



**INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ
IM. HENRYKA NIEWODNICZAŃSKIEGO
POLSKIEJ AKADEMII NAUK**

Rozprawa doktorska

**Fluorescencyjne detektory śladów cząstek
jądrowych na bazie kryształów fluorku
litu: rozwój i optymalizacja metody oraz
badanie efektów temperaturowych**

Małgorzata Sankowska

Promotor: prof. dr hab. Paweł Bilski

Instytut Fizyki Jądrowej im. Henryka Niewodniczańskiego

Polskiej Akademii Nauk

Zakład Fizyki Radiacyjnej i Dozymetrii

Kraków, 2023

*Pragnę serdecznie podziękować mojemu promotorowi
prof. dr. hab. Pawłowi Bilskiemu za cenne uwagi merytoryczne,
a także wsparcie i motywację, bez której niniejsza rozprawa nie mogłaby powstać.*

*Chciałabym także podziękować dr hab. Barbarze Marczewskiej
za okazaną życzliwość oraz liczne dyskusje na tematy naukowe i nie tylko.*

*Szczególne podziękowania kieruję w stronę dr. hab. Wojciecha Gieszczyka, za wyhodowanie
badanych w pracy kryształów, a także za nieustanną motywację do działania.*

*Dziękuję także koleżankom i kolegom z Zakładu Fizyki Radiacyjnej i Dozymetrii:
dr inż. Annie Mrozik, dr. hab. Mariuszowi Kłosowskiemu, dr. inż. Michałowi Sądłowi,
a także koleżankom z Laboratorium Wzorcowania Przyrządów Dozymetrycznych:
Jagdzie Drop, Aleksandrze Ziarko oraz Lidii Grin za wszelką pomoc merytoryczną podczas
prowadzenia badań oraz wsparcie psychiczne w chwilach zwątpienia.*

Gorąco dziękuję mojej rodzinie i przyjaciołom za wsparcie, wyrozumiałość i wiarę we mnie.

Streszczenie

Jednym z najbardziej rewolucyjnych osiągnięć ostatnich lat w dziedzinie dozymetrii luminescencyjnej było przedstawienie przez firmę Landauer fluorescencyjnych detektorów śladów cząstek jądrowych (FNTD) z kryształów tlenku glinu ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C},\text{Mg}$). Technika ta wykorzystuje fotoluminescencję centrów barwnych, które wytwarzane są w materiale detektora w wyniku oddziaływania z promieniowaniem jonizującym. Wzbudzenie tych centrów światłem o odpowiedniej długości fali pozwala na obserwację śladów pojedynczych cząstek przy zastosowaniu mikroskopu fluorescencyjnego.

Przez długi czas tlenek glinu był jedynym materiałem z powodzeniem stosowanym jako FNTD. Dopiero niedawno zespół naukowców z Instytutu Fizyki Jądrowej PAN w Krakowie był w stanie uzyskać wysokiej jakości obrazy mikroskopowe z użyciem kryształów fluorku litu (LiF). Chociaż technika ta ma ogromny potencjał, a detektory FNTD z powodzeniem zostały wykorzystane do obrazowania śladów takich cząstek jak cząstki alfa, jony oraz elektrony, dalszy rozwój metodyki pomiaru oraz analizy jest niezbędny.

W ramach rozprawy doktorskiej opracowano metodykę umożliwiającą ilościową analizę i porównywanie ze sobą śladów cząstek jądrowych zmierzonych dla obrazów zarejestrowanych w różnych warunkach. Opracowano formuły korekcyjne pozwalające na uniezależnienie jasności śladów od takich parametrów, jak głębokość w kryształach, na której prowadzony jest pomiar oraz czas akwizycji.

Druga część pracy skupiała się na badaniu efektów temperaturowych występujących we fluorku litu i próbie wykorzystania ich w celu zwiększenia możliwości pomiarowych fluorescencyjnych detektorów śladów cząstek jądrowych z LiF. Niski stosunek sygnału do tła jest jedną z największych przeszkód utrudniających dalszy rozwój techniki FNTD. Wykazano, że zastosowanie odpowiedniego procesu grzania dla wcześniej napromienionych detektorów może prowadzić do zwiększenia sygnału fotoluminescencji.

Prowadzenie pomiarów w podwyższonych temperaturach (z zakresu od 60 do 100°C) pozwoliło po raz pierwszy na rejestrację obrazów mikroskopowych śladów cząstek alfa w zielonym zakresie widma emisyjnego.

Za największe osiągnięcie pracy można uznać odkrycie efektu wzmocnienia jasności śladów w wyniku wygrzewania detektorów do temperatury z zakresu 200°C – 300°C. Wzmocnienie,

a także szerokość warstwy powierzchniowej, w której efekt występuje, zależy od procesu grzania wysokotemperaturowego (temperatura 840°C), który stosowany jest standardowo podczas preparatyki próbek. Dzięki optymalizacji tych dwóch procesów grzania możliwe było osiągnięcie aż czterokrotnego wzmocnienia jasności obserwowanych śladów. Zjawisko to jest niezwykle obiecujące i może prowadzić do zwiększenia możliwości pomiarowych metody FNTD. Dodatkowo procedura grzania jest szybka i łatwa, co sprawia, że można zostać bez problemu wprowadzona do standardowej metodyki pomiaru.

Abstract

One of the most revolutionary achievements in the field of luminescence dosimetry in recent years was the introduction of Fluorescent Nuclear Track Detectors (FNTDs) from aluminum oxide ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C},\text{Mg}$) crystals by the scientist from Landauer. This technique exploits the photoluminescence of color centers which are produced in the material as a result of interaction with ionizing radiation. Such centers, when excited by light of an appropriate wavelength, emit photons which make it possible to see the tracks of single particles while using a fluorescence microscope. For a long time, aluminum oxide was the only material successfully used as FNTD. Only recently, a team of scientists from the Institute of Nuclear Physics Polish Academy of Sciences in Kraków was able to obtain high-quality microscopic images using lithium fluoride (LiF) crystals. Although this technique has great potential, and FNTD detectors have been successfully used to image traces of particles such as alpha particles, ions and electrons, further development of measurement methodology and image analysis is necessary.

Within this doctoral dissertation, a methodology was developed to enable quantitative analysis and comparison of nuclear particle tracks measured for images acquired under different conditions. Correction formulas have been developed to make the brightness of the tracks independent of such parameters as the depth in the crystal at which the measurement is carried out and the acquisition time.

The second part of the work focused on the study of temperature effects occurring in lithium fluoride in an attempt to use them to increase the measurement capabilities of fluorescent nuclear track detectors based on LiF. The low signal-to-noise ratio is one of the biggest obstacles hindering the further development of the FNTD technique. Within the conducted studies it has been shown that the usage of an appropriate heating process after prior irradiation of FNTD detectors can lead to an increase in the photoluminescence signal.

Performing measurements at elevated temperatures (from 60 to 100 °C) allowed, for the first time, to acquire microscopic images of alpha particles tracks in the green range of the emission spectrum.

The discovery of the effect of track intensity enhancement after heating of the detectors to the temperature ranging from 200 to 300 °C can be considered the greatest achievement of this doctoral dissertation. The strength of the effect as well as the width of the surface layer in which the effect occurs depends on the high-temperature heating process (temperature of 840°C),

which is routinely used during sample preparation. Thanks to the optimization of these two heating processes, it was possible to achieve a four-time increase in the brightness of the observed tracks. This phenomenon is extremely promising and may lead to an increase in the measurement capabilities of the FNTD method. In addition, the heating procedure is quick and easy, which means that it can be easily introduced into the standard measurement methodology.

Spis treści

1. Wstęp	3
1.1. Wprowadzenie.....	3
1.2. Cel pracy	5
2. Detektory promieniowania jonizującego.....	8
2.1. Promieniowanie jonizujące i jego oddziaływanie z materią	8
2.2. Podział detektorów promieniowania jonizującego	10
2.3. Dawkomierze luminescencyjne.....	10
2.4. Detektory śladowe promieniowania jonizującego	14
2.5. Fluorescencyjne detektory śladów cząstek jądrowych.....	16
2.5.1. Fotoluminescencja.....	16
2.5.2. Podstawy działania fluorescencyjnych detektorów śladów cząstek jądrowych	18
2.5.3. Fluorescencyjne detektory śladów cząstek jądrowych oparte na fluorku litu	19
2.5.4. Potencjalne zastosowania detektorów FNTD z kryształów fluorku litu	23
3. Wykorzystywane materiały, aparatura i metody pomiarowe.....	29
3.1. Kryształy fluorku litu	29
3.1.1. Wytwarzanie kryształów w Instytucie Fizyki Jądrowej.....	29
3.1.2. Preparatyka próbek z kryształów fluorku litu	30
3.2. Źródła promieniowania jonizującego	31
3.3. Rejestracja obrazów mikroskopowych.....	35
3.3.1. Mikroskop fluorescencyjny	35
3.3.2. Analiza obrazów mikroskopowych – parametry śladów.....	39
3.4. Pozostała aparatura	41
3.4.1. Stolik grzewczy	41
3.4.2. Spektrometr	42
3.4.3. Spektrofotometr absorpcyjny	43
3.4.4. Miernik mocy światła.....	43
3.5. Standardowe procedury pomiarowe.....	44
3.5.1. Pomiary mikroskopowe	45
3.5.2. Pomiary widm emisyjnych	45
4. Rozwój metodyki fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych przy pomocy kryształów LiF	46

4.1. Badanie powtarzalności pomiaru.....	46
4.2. Wpływ czasu po napromienianiu na jasność śladów	50
4.3. Zależność jasności śladów od kąta padania cząstek.....	52
4.4. Zjawisko wybielania.....	57
4.5. Zależność między głębokością obserwacji a jasnością śladów	61
4.6. Pomiar tła.....	64
4.7. Zależność jasności śladów od mocy oświetlacza	68
4.8. Zależność jasności śladów od średnicy przysłony	70
4.9. Podsumowanie	74
5. Wpływ wygrzewania napromienionych kryształów LiF na ich fotoluminescencję	76
5.1. Widma absorpcyjne i emisyjne	77
5.1.1. Widma absorpcyjne.....	78
5.1.2. Widma emisyjne.....	82
5.1.3. Porównanie widm absorpcyjnych i emisyjnych.....	85
5.2. Wpływ wygrzewania na jasność śladów	86
5.2.1. Efekt wzmocnienia jasności śladów	87
5.2.2. Optymalizacja temperatury grzania.....	94
5.2.3. Optymalizacja czasu grzania	95
5.2.4. Wpływ fluencji cząstek na efekt wzmocnienia	100
5.2.5. Trwałość efektu wzmocnienia.....	103
5.2.6. Wybór obserwowanej powierzchni.....	104
5.3. Wpływ wygrzewania wysokotemperaturowego na występowanie efektu wzmocnienia	108
5.3.1. Zmiana jasności śladów - próbki kryształów LiF niepoddane grzaniu wysokotemperaturowemu	109
5.3.2. Wpływ czasu grzania wysokotemperaturowego na głębokość występowania efektu wzmocnienia	110
5.3.3. Wpływ czasu grzania wysokotemperaturowego na wartość współczynnika wzmocnienia	112
5.3.4. Wykorzystanie efektu wzmocnienia – obserwacje śladów neutronów	114
5.4. Porównanie efektu wzmocnienia dla różnych rodzajów kryształów.....	116
5.5. Możliwe zjawiska fizyczne odpowiadające za efekt wzmocnienia	119
5.6. Podsumowanie	120
6. Fotoluminescencja kryształów LiF w podwyższonych temperaturach	122

6.1. Widma emisyjne.....	122
6.2. Wpływ podwyższonej temperatury w trakcie pomiaru na jasność śladów	127
6.2.1. Rejestracja obrazów mikroskopowych w podwyższonych temperaturach ...	128
6.2.2. Optymalizacja temperatury grzania	129
6.2.3. Porównanie jasności śladów przy użyciu różnych filtrów emisyjnych.....	131
6.3. Podsumowanie.....	133
7. Podsumowanie i perspektywy dalszych badań.....	134
Bibliografia.....	138

Wykaz skrótów

FNTD	Fluorescencyjny detektor śladów cząstek jądrowych (ang. Fluorescent Nuclear Track Detector)
HIMAC	Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba
HIT	Heidelberg Ion-Beam Therapy Center
IFJ PAN	Instytut Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk
LET	Liniowy przekaz energii (ang. Linear Energy Transfer)
LUT	Lookup table
MIP	Projekcja maksymalnej intensywności (Maximum Intensity Projection)
OSL	Optycznie stymulowana luminescencja
PL	Fotoluminescencja
RPL	Radiofotoluminescencja
TL	Termoluminescencja
TLD	Detektor termoluminescencyjny

1. Wstęp

1.1. Wprowadzenie

Promieniowanie jonizujące towarzyszy człowiekowi od początków jego istnienia. Wśród naturalnych jego źródeł można wymienić pierwiastki promieniotwórcze występujące w skorupie ziemskiej, glebie czy w innych organizmach żywych, a także promieniowanie kosmiczne. Wraz z rozwojem technologii ludzie coraz częściej wykorzystują promieniowanie jonizujące także do własnych celów. Wśród najważniejszych obszarów jego zastosowań z pewnością należy wymienić medycynę. Promieniowanie jonizujące wykorzystywane jest obecnie w diagnostyce (rentgenodiagnostyka, tomografia, scyntygrafia), radiologii zabiegowej, jak i w radioterapii. Inne obszary, w których wykorzystuje się promieniowanie jonizujące to m.in. energetyka, liczne gałęzie przemysłu, geologia, czy ochrona środowiska. Mimo niewątpliwych zalet, jakie płyną ze stosowania promieniowania jonizującego, należy pamiętać, że nadmierna ekspozycja może nieść ze sobą negatywne skutki dla zdrowia i życia człowieka. Wszechobecne wykorzystanie sztucznych źródeł promieniowania jonizującego daje wobec tego motywację do wprowadzania nowych, i ulepszania już istniejących, metod jego wykrywania, mierzenia oraz obrazowania.

Wśród licznych metod detekcji promieniowania jonizującego wykorzystywanych we współczesnej dozymetrii i ochronie radiologicznej jednymi z najpopularniejszych są metody oparte na zjawisku luminescencji. Słowo „luminescencja” zostało po raz pierwszy użyte przez niemieckiego fizyka Eilharda Wiedemanna w roku 1888 [1] aby opisać proces emisji światła spowodowany czynnikami innymi niż podgrzanie materiału do wysokiej temperatury. Zjawiska luminescencyjne obserwowane były jednak dużo wcześniej. Już w 1603 roku włoski alchemik Vincenzo Cascariolo podczas próby wytworzenia złota w wyniku podgrzania bryłek barytu zauważył emisję światła widzialnego [2]. W roku 1663 Robert Boyle zaobserwował i opisał świecenie diamentu podgrzanego do temperatury ciała człowieka [3]. Od tego czasu występowanie różnych typów luminescencji wykryto w niezliczonych materiałach, zarówno występujących naturalnie, jak i wytwarzanych przez człowieka. Obecnie detektory oparte na termoluminescencji, optycznie stymulowanej luminescencji oraz radiofotoluminescencji są wykorzystywane na całym świecie w celu monitorowania poziomu narażenia osób pracujących z promieniowaniem jonizującym.

Jednym z najbardziej rewolucyjnych osiągnięć ostatnich lat w dziedzinie dozymetrii luminescencyjnej było przedstawienie przez naukowców z firmy Landauer nowego rodzaju detektorów z kryształów tlenku glinu domieszkowanego węglem i magnezem ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C},\text{Mg}$) nazwanych fluorescencyjnymi detektorami śladów cząstek jądrowych (ang. Fluorescent Nuclear Track Detector, FNTD) [4], [5]. Zasada ich działania opiera się na fotoluminescencji centrów barwnych wytwarzanych w kryształach pod wpływem działania promieniowania jonizującego. Wzbudzenie powstałych w ten sposób centrów barwnych światłem o odpowiedniej długości fali pozwala na obserwację śladów pojedynczych cząstek jądrowych dzięki użyciu mikroskopu fluorescencyjnego. Tym, co wyróżnia detektory FNTD spośród wcześniej stosowanych detektorów śladowych, takich jak np. emulsje jądrowe, jest brak konieczności stosowania skomplikowanej obróbki chemicznej po ekspozycji, a także możliwość wielokrotnego wykorzystania jednego detektora. Przez ponad 10 lat tlenek glinu pozostawał jedynym materiałem z powodzeniem stosowanym jako FNTD. Dopiero niedawno zespół naukowców z Instytutu Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk w Krakowie (IFJ PAN) był w stanie uzyskać wysokiej jakości obrazy mikroskopowe z użyciem kryształów fluorku litu (LiF) [6]. Co więcej, obrazy te zarejestrowane zostały przy użyciu mikroskopu szerokiego pola, znacznie tańszego i powszechniej dostępnego niż dotychczas wykorzystywany mikroskop konfokalny.

Fluorek litu jest jednym z najbardziej znanych materiałów optycznych i luminescencyjnych. Pierwsze prace prowadzące do wykorzystania tego materiału w celu detekcji promieniowania jonizującego rozpoczęły się już w latach 40-tych ubiegłego wieku [7]. Obecnie detektory termoluminescencyjne (TLD) oparte na fluorku litu domieszkowanym magnezem i tytanem ($\text{LiF}:\text{Mg},\text{Ti}$) oraz magnezem, miedzią i fosforem ($\text{LiF}:\text{Mg},\text{Cu},\text{P}$) należą do najczęściej stosowanych detektorów w dozymetrii promieniowania jonizującego. Tym, co wyróżnia fluorek litu w perspektywie wykorzystania tego materiału jako detektora FNTD, jest fakt, że jedynie stosując promieniowanie jonizujące można wytworzyć w nim centra barwne [8]. Chociaż technika fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych z wykorzystaniem kryształów LiF rozwijana jest dopiero od kilku lat, jej potencjał jest niezaprzeczalny. Z jej pomocą udało się z powodzeniem zarejestrować ślady jonów takich jak hel, neon, krzem czy żelazo [9]. Detektory te mogą także być używane do detekcji i pomiarów dawek promieniowania neutronowego [10] lub do określenia energii cząstek alfa oddziałujących z kryształem [11]. Jednym z najbardziej obiecujących zastosowań detektorów FNTD z LiF jest ich wykorzystanie do rejestrowania i obrazowania śladów promieniowania kosmicznego.

Liczne perspektywy wykorzystania detektorów FNTD dają motywację do dalszego rozwoju tej metody, w tym optymalizacji i usystematyzowania odczytu i analizy rejestrowanych obrazów mikroskopowych. Obecnie, mimo możliwości obrazowania śladów wielu różnych rodzajów cząstek jądrowych o różnych energiach, uzyskanie ilościowych informacji na temat pola promieniowania nie jest możliwe. Dalszy rozwój tej techniki utrudnia także w znacznym stopniu niski stosunek sygnału do szumu. Zwiększenie sygnału fotoluminescencji (PL) pochodzącego od śladów cząstek jest niezwykle ważne, ponieważ mogłoby pozwolić na rozwinięcie nowych zastosowań detektorów FNTD. Jednym z nich jest rejestracja wysokoenergetycznych śladów protonów, które wykorzystywane są w radioterapii.

1.2. Cel pracy

Ogólnym celem niniejszej pracy był dalszy rozwój opracowanej w Instytucie Fizyki Jądrowej PAN w Krakowie metody pomiaru z zastosowaniem fluorescencyjnych detektorów śladów cząstek jądrowych z kryształów LiF. Jego realizacja odbywała się na dwa sposoby: poprzez optymalizację procesu rejestracji oraz analizy obrazów mikroskopowych, oraz przez próbę wykorzystania efektów temperaturowych występujących w LiF w celu zwiększenia rejestrowanego sygnału PL.

Głównym celem pierwszej części pracy było opracowanie metodyki umożliwiającej ilościową analizę i porównywanie mikroskopowych obrazów śladów cząstek, nawet gdy warunki napromieniania lub rejestracji obrazów były różne. Intensywność fotoluminescencji oraz jasność obserwowanych śladów dostarcza szereg informacji na temat cząstek, które oddziałują z materiałem detektora (takich jak liniowy przekaz energii, LET), co może umożliwić ich identyfikację. Niestety, na rejestrowany sygnał luminescencyjny, poza właściwościami cząstek, ma także wpływ szereg czynników związanych z warunkami napromieniania i rejestracji obrazów. Do najważniejszych z nich zaliczyć można czas pomiędzy zakończeniem napromieniania a rozpoczęciem pomiaru, głębokość pod powierzchnią próbki, na której prowadzone są obserwacje mikroskopowe, czas ekspozycji na światło niebieskie podczas akwizycji oraz moc wykorzystywanego oświetlacza. Również kąt, pod którym cząstki padają na kryształ, może mieć istotne znaczenie w kontekście pomiaru jasności śladów. Prace skupiały się na badaniu wpływu wybranych parametrów pomiaru na jasność obserwowanych śladów i wprowadzeniu odpowiednich procedur lub współczynników poprawkowych

mających na celu uniezależnienie otrzymywanych wartości od warunków, w jakich wykonywane są napromieniania i prowadzone są pomiary.

Celem drugiej części pracy było zbadanie efektów temperaturowych we fluorku litu, pod kątem ich wykorzystania do zwiększenia możliwości pomiarowych fluorescencyjnych detektorów śladowych. Mimo iż LiF jest materiałem badanym od dziesięcioleci, w wiedzy na jego temat nadal występują pewne luki. Jedną z nich jest wpływ temperatury na koncentrację i fotoluminescencję centrów barwnych. Temperatura może mieć wpływ zarówno na kształt widma fotoluminescencji LiF, jak i na jej intensywność. Chociaż wiadomym jest, że takie zależności występują, stosunkowo nieliczne publikowane na ten temat prace podają często sprzeczne ze sobą wyniki. Dodatkowo skupiają się one tylko na efektach występujących po napromienianiu dużymi dawkami promieniowania. W przypadku techniki FNTD fluencje cząstek muszą być na tyle małe, żeby możliwe było obserwowanie pojedynczych śladów. Przy tak niskich dawkach efekty występujące w wyniku wygrzewania mogą być zupełnie inne.

W niniejszej pracy podjęto się przeprowadzenia badań nad wpływem wygrzewania detektorów FNTD z LiF po napromienianiu. Badania prowadzone były zarówno dla niskich, jak i wysokich dawek promieniowania jonizującego i obejmowały zarówno pomiary widm emisyjnych i absorpcyjnych, jak i analizę obrazów mikroskopowych. Główną motywacją przeprowadzenia wyżej wymienionych badań była perspektywa wykorzystania efektów temperaturowych w standardowych pomiarach z detektorami FNTD. Aby było to możliwe, opracowano odpowiednie procedury grzania pozwalające na uzyskanie jak największego wzmocnienia sygnału PL. Zbadano także trwałość obserwowanych efektów oraz ich zależność od indywidualnych własności poszczególnych kryształów i detektorów.

Wyniki pracy opisano łącznie w 7 rozdziałach. Rozdział 2 stanowi oparty na literaturze opis oddziaływania promieniowania jonizującego z materią, a także działania i zastosowania detektorów pasywnych promieniowania jonizującego. Szczególną uwagę poświęcono detektorom luminescencyjnym i detektorom śladowym, których właściwości łączą w sobie fluorescencyjne detektory śladów cząstek jądrowych, które wykorzystywane były w pracy. W rozdziale 3 opisane zostały techniki, aparatura oraz materiały wykorzystane w ramach prowadzonych badań. Rozdziały 4 – 6 stanowią główną część pracy, przedstawiającą wyniki własnych badań. Rozdział 4 to opis badań prowadzonych w celu optymalizacji metody pomiarowej oraz umożliwienia wspólnej analizy obrazów rejestrowanych w różnych warunkach. W rozdziale 5 i 6 skupiono się na opisie efektów temperaturowych obserwowanych

we fluorku litu oraz ich wykorzystania w celu zwiększenia sygnału PL detektorów FNTD z LIF. W rozdziale 7 podsumowane zostały najważniejsze osiągnięcia uzyskane w trakcie realizacji opisanych badań, a także przedstawione zostały perspektywy dalszych prac badawczych.

2. Detektory promieniowania jonizującego

2.1. Promieniowanie jonizujące i jego oddziaływanie z materią

Mianem promieniowania jonizującego określa się promieniowanie korpuskularne lub elektromagnetyczne posiadające bezpośrednią lub pośrednią zdolność do jonizacji ośrodka, przez który przechodzi. Do promieniowania bezpośrednio jonizującego zalicza się promieniowanie alfa, beta, strumienie protonów oraz jonów. Wśród promieniowania jonizującego pośrednio wyróżnia się promieniowania X i gamma, a także strumienie neutronów. Poszczególne rodzaje promieniowania wykazują różne mechanizmy oddziaływania z materią [12]. Poniżej omówione zostały najbardziej powszechne rodzaje promieniowania jonizującego.

Ciężkie cząstki naładowane – do ciężkich cząstek naładowanych zalicza się m.in. protony lub cząstki alfa. Cząstki te, przechodząc przez materiał ośrodka, oddziałują z nim głównie za pośrednictwem siły kulombowskiej. Dzięki niej cząstka posiadająca dodatki ładunek elektryczny oraz elektrony atomów ośrodka mające ładunek ujemny wzajemnie się przyciągają. Przechodząc przez materiał, ciężka cząstka naładowana oddziałuje z licznymi elektronami, powodując najczęściej jonizację, ale także wzbudzenie atomów ośrodka [13]. Często zdarza się, że energia przekazana przez cząstkę naładowaną do wybitego elektronu jest na tyle duża, że umożliwi mu jonizację kolejnych atomów. Elektrony takie nazywane są elektronami delta. Ciężkie cząstki naładowane mogą także przekazywać swoją energię w wyniku elastycznych zderzeń z jądrami atomowymi, jednak procesy te są znacznie rzadsze. Ze względu na dużą różnicę między masą ciężkich cząstek naładowanych a masą elektronów, z którymi oddziałują, w wyniku pojedynczych zderzeń przekazują one jedynie niewielką część swojej energii. Zmiany kierunku cząstki wywołane takimi zderzeniami są bardzo małe. W wyniku tego ciężkie cząstki naładowane poruszają się w zasadzie po linii prostej, a zmiana ich kierunku może nastąpić jedynie w wyniku zderzeń z jądrami atomowymi. Taki sposób oddziaływania z materią sprawia, że ciężkie cząstki naładowane mają określony zasięg, który zależy od energii cząstki, a także od właściwości materiału.

Cząstki beta – czyli elektrony lub pozytony emitowane z jądra atomowego, tak jak ciężkie cząstki naładowane, mogą oddziaływać z elektronami atomowymi, powodując jonizację i ekscytację. Ponieważ jednak masa spoczynkowa cząstek beta jest taka sama jak masa elektronów, z którymi oddziałują, w wyniku takich zdarzeń cząstki tracą znacznie większą

część swojej energii i zmieniają kierunek ruchu. Cząstki beta mogą także rozpraszać się sprężysto na jądrach atomowych, co również powoduje zmianę ich kierunku. W wyniku tych zjawisk tor cząstek beta jest wielokrotnie zakrzywiony w wielu różnych kierunkach. Uniemożliwia to wyznaczenie określonego zasięgu cząstki o danej energii, co możliwe jest dla ciężkich cząstek naładowanych. Lekkie cząstki naładowane, takie jak elektrony i pozytony, mogą także tracić swoją energię w wyniku emisji promieniowania elektromagnetycznego tzw. promieniowania hamowania. Jego emisja związana jest z wytracaniem energii kinetycznej cząstek beta w wyniku oddziaływania z jądrami i elektronami atomowymi [14].

Promieniowanie X i gamma – oddziaływanie tego promieniowania z materią opiera się głównie na wytworzeniu wtórnych cząstek naładowanych takich jak elektrony. To interakcja tych cząstek z ośrodkiem powoduje jego jonizację i ekscytację. Oddziaływanie fotonów z materią i wytworzenie cząstek wtórnych zachodzi głównie w wyniku następujących zjawisk fizycznych:

- zjawiska Comptona polegającego na niekoherentnym rozpraszaniu na elektronach walencyjnych;
- efektu fotoelektrycznego;
- koherentnego rozpraszania na jądrami i elektronach powłok wewnętrznych;
- tworzenia par elektronowo-pozytonowych [15].

Neutrony – neutrony, podobnie jak fotony, nie posiadają bezpośredniej zdolności do jonizacji ośrodka, przez który przechodzą. Przekaz energii jest możliwy za pośrednictwem wtórnych cząstek naładowanych. Neutrony oddziałują głównie z jądrami atomowymi. W wyniku tych oddziaływań neutron może zostać rozproszony sprężysto (z zachowaniem całkowitej energii kinetycznej układu) lub niesprężysto (w wyniku reakcji jądra z neutronem zachodzi emisja kwantu gamma). Neutrony mogą także brać udział w reakcjach jądrowych prowadzących do powstania ciężkich cząstek naładowanych takich jak protony czy cząstki alfa, a także powodować reakcje rozszczepienia niektórych jąder ciężkich. Kolejnym prawdopodobnym zjawiskiem jest radiacyjny wychwyty neutronu, polegający na absorpcji neutronu przez jądro i emisji jednego lub kilku fotonów, które następnie oddziałują z ośrodkiem [15].

2.2. Podział detektorów promieniowania jonizującego

Detektorami nazywamy urządzenia służące do wykrywania i mierzenia poziomu promieniowania jonizującego. Detekcja promieniowania jonizującego jest możliwa dzięki oddziaływaniu promieniowania z materiałem detektora [16].

Detektory możemy podzielić na dwie bardzo szerokie kategorie:

- detektory aktywne, które wymagają źródła zasilania do pracy. Pozwalają one na uzyskanie wyniku w czasie rzeczywistym. Do detektorów aktywnych należą m.in. detektory gazowe (komory jonizacyjne, liczniki proporcjonalne, liczniki Geigera-Müllera), liczniki scyntylicyjne i detektory półprzewodnikowe.
- detektory pasywne (bierne), nie wymagają źródła zasilania. Sygnał jest akumulowany w materiale detektora przez cały czas jego użytkowania. Następnie, po odpowiedniej obróbce lub wzbudzeniu detektora, sygnał ten może zostać odczytany [17]. Do detektorów pasywnych należą m.in. emulsje jądrowe, klisze rentgenowskie, dielektryczne detektory śladowe oraz detektory chemiczne. Bardzo ważną grupą detektorów zaliczającą się do detektorów pasywnych są detektory luminescencyjne.

2.3. Dawkomierze luminescencyjne

Luminescencję definiuje się jako emisję promieniowania elektromagnetycznego o natężeniu większym niż natężenie promieniowania cieplnego w danej temperaturze oraz czasie trwania dłuższym od okresu emitowanej fali świetlnej [18]. Własności luminescencyjne wykazuje szereg substancji organicznych i nieorganicznych zarówno występujących naturalnie, jak i wytwarzanych syntetycznie. W zależności od sposobu pobudzenia materiału luminescencyjnego do emisji promieniowania możemy wyróżnić m.in.:

- fotoluminescencję – materiał jest wzbudzany promieniowaniem elektromagnetycznym z zakresu światła widzialnego, ultrafioletu i podczerwieni;
- termoluminescencję (TL) – wzbudzenie jest wywołane energią cieplną (poprzez podgrzanie materiału);
- optycznie stymulowaną luminescencję (OSL) – wzbudzenie jest wywołane światłem o określonej długości;

- elektroluminescencję – wzbudzenie polem elektrycznym;
- radioluminescencję – wzbudzenie promieniowaniem jonizującym;
- tryboluminescencję – wzbudzenie energią naprężeń mechanicznych;
- chemoluminescencję – wzbudzenie wywołane reakcjami chemicznymi;
- katodoluminescencję – wzbudzenie strumieniem szybkich elektronów.

Zjawiska luminescencyjne, które wykorzystywane są w dozymetrii promieniowania jonizującego to termoluminescencja, optycznie stymulowana luminescencja oraz radiofotoluminescencja (RPL). Poniżej przedstawiono najogólniejsze opisy zjawisk TL i OSL. Zjawisko RPL zostanie opisane bardziej szczegółowo w rozdziale 2.5.

Termoluminescencja

Detektory termoluminescencyjne są najbardziej rozpowszechnianymi detektorami luminescencyjnymi. Zasada ich działania opiera się na emisji światła podczas podgrzewania materiału uprzednio napromienionego promieniowaniem jonizującym. W strukturze pasmowej idealnego dielektryka wyróżnić można trzy pasma: pasmo walencyjne, pasmo przewodnictwa oraz oddzielające je pasmo wzbronione o szerokości kilku eV. W rzeczywistych kryształach, w sieci krystalicznej występują jednak liczne defekty oraz domieszki, które prowadzą do powstawania dodatkowych poziomów energetycznych w paśmie wzbronionym. Nazywane są one pułapkami elektronowymi i dziurowymi. To właśnie istnienie tych poziomów umożliwia zajście zjawiska termoluminescencji, które składa się z dwóch etapów [19]:

1. W pierwszym etapie następuje pochłonięcie promieniowania jonizującego przez materiał dielektryka. Następuje jonizacja atomów termoluminoforu. Powstałe w ten sposób elektrony i dziury są wychwytywane przez pułapki, co powoduje „zapamiętanie” pochłoniętej dawki promieniowania.
2. Pierwszy i drugi etap może oddzielać nawet bardzo długi czas. W drugim etapie, w wyniku podgrzania detektora, dostarczana jest energia pozwalająca na uwolnienie nośników ładunku, po czym następuje ich rekombinacja z emisją światła.

Odczyt detektora TL polega na kontrolowanym (najczęściej liniowym lub wielostopniowym) grzaniu detektora z równoczesną detekcją emitowanego światła. Rejestrowane światło jest przetwarzane na impulsy prądowe. Grzejąc liniowo detektor, otrzymujemy różniczkową krzywą jarzenia będącą zależnością ilości rejestrowanych zliczeń (które odpowiadają natężeniu

świecenia) od temperatury. Typowa krzywa jarzenia składa się z kilku pików odpowiadających pułapkom o różnych głębokościach. Jako miarę dawki zaabsorbowanej wcześniej przez detektor najczęściej wykorzystuje się scałkowaną powierzchnię pod pikiem.

Własności termoluminescencyjne wykazuje wiele materiałów. W praktyce dozymetrycznej najczęściej wykorzystywanymi są: fluorek litu domieszkowany magnezem i tytanem (LiF:Mg,Ti), fluorek litu domieszkowany magnezem, miedzią i fosforem (LiF:Mg,Cu,P), a także materiały oparte na siarczanie wapnia i fluorku wapnia [20].

Optycznie stymulowana luminescencja

Zasada działania zjawiska optycznie stymulowanej luminescencji jest bardzo zbliżona do zjawiska termoluminescencji. Główną różnicą między zjawiskami TL i OSL jest sposób wzbudzenia próbki do świecenia. W przypadku OSL energia niezbędna do uwolnienia elektronów z pułapek (spowodowania rekombinacji nośników ładunku) jest dostarczana w postaci światła o określonej długości fali. Długość fali emitowanej w wyniku optycznie stymulowanej luminescencji może być zarówno dłuższa, jak i krótsza od długości fali wzbudzającej. Odczyt detektora polega na stymulacji światłem o wybranej długości fali i rejestracji światła o innej długości fali (odpowiadającej światłu emitowanemu przez materiał) [21]. Najbardziej standardową metodą odczytu jest stymulacja światłem o stałej intensywności CW-OSL (ang. Continuous Wave-OSL). Rejestrując luminescencję będącą wynikiem stymulacji światłem o stałej intensywności, otrzymuje się krzywą OSL (ang. Decay-curve) mającą najczęściej charakter eksponencjalny. Najpowszechniej stosowanymi materiałami OSL są tlenek glinu domieszkowany węglem ($Al_2O_3:C$) [22] oraz tlenek berylu (BeO) [23].

Przykłady zastosowań detektorów luminescencyjnych

Materiały luminescencyjne są obecnie szeroko stosowane w dozymetrii promieniowania jonizującego. Główne obszary, w których są wykorzystywane to:

- Dozymetria indywidualna – głównym celem dozymetrii indywidualnej jest kontrola dawek, które otrzymują pracownicy zatrudnieni w warunkach narażenia na promieniowanie jonizujące. Najpopularniejszymi dawkomierzami stosowanymi w tym celu są dawkomierze termoluminescencyjne [24], aczkolwiek detektory oparte na zjawiskach optycznie stymulowanej luminescencji [23] oraz radiofotoluminescencji [25] także są powszechnie stosowane.

- Dozymetria środowiskowa – poza pomiarami indywidualnymi stosowanymi dla pracowników narażonych na duże dawki promieniowania jonizującego, w placówkach wykorzystujących promieniowanie jonizujące wykonywane są także tzw. pomiary środowiskowe. Pomiary środowiskowe często stosowane są także w okolicy takich placówek, w celu określeniu ich wpływu na środowisko. W przypadku dozymetrii środowiskowej dawkomierze luminescencyjne cenione są szczególnie za ich niewielkie rozmiary, brak konieczności zasilania, a także dużą odporność na warunki zewnętrzne [26].
- Dozymetria awaryjna – zjawiska luminescencyjne są także wykorzystywane w celach dozymetrii awaryjnej [27]. W sytuacjach nagłego, niekontrolowanego zwiększenia natężenia promieniowania jonizującego w środowisku, kiedy nieprowadzone są standardowe pomiary dozymetryczne, możliwe jest wykorzystanie przedmiotów codziennego użytku w celu rekonstrukcji dawki [28]. Właściwości luminescencyjne, które mogą zostać wykorzystane w tym celu, wykazują między innymi cegły lub dachówki [29], ale także elementy smartfonów takie jak szkła wyświetlaczy [30] czy rezystory [31].
- Medycyna – jeden z najważniejszych obszarów zastosowań detektorów luminescencyjnych jest związany z medycyną i fizyką medyczną [32]. Detekcja promieniowania jonizującego niezbędna jest zwłaszcza w przypadku medycyny nuklearnej, radiodiagnostyki i radioterapii. Szczególnie duże uznanie w tych dziedzinach zdobyły detektory TL takie jak LiF:Mg,Ti oraz LiF:Mg,Cu,P [33]. Ich zaletami są małe rozmiary, szeroki zakres pomiarowy, tkankorównoważność, duża odporność na zmienne warunki, możliwość wielokrotnego stosowania i stosunkowo duża dokładność pomiaru. W ostatnich latach dużym zainteresowaniem cieszą się także materiały OSL takie jak $Al_2O_3:C$ czy BeO (tlenek berylu) [34]. W porównaniu z detektorami TL posiadają kilka zalet, jak np. szybszy i bardziej precyzyjny odczyt, który w przeciwieństwie do detektorów TL może być wykonany wielokrotnie [35].
- Pomiary kosmiczne – narażenie astronautów na promieniowanie kosmiczne jest istotnym problemem, który należy brać pod uwagę, przy planowaniu wszystkich misji kosmicznych z udziałem człowieka. Detektory luminescencyjne nie wymagają użycia źródła zasilania, mają małe rozmiary, a także odporne są na zmienne warunki środowiskowe, co ma wpływ na ich częste stosowanie w pomiarach kosmicznych [36], [37]. Detektory TLD wykorzystane zostały m.in. w projekcie „Matroshka”, w ramach

którego umieszczone zostały wewnątrz fantomu humanoidalnego, który został następnie poddany ekspozycji na zewnątrz i wewnątrz Międzynarodowej Stacji Kosmicznej na orbicie okołoziemskiej [38].

2.4. Detektory śladowe promieniowania jonizującego

Detektory śladowe promieniowania jonizującego to specjalny rodzaj detektorów, który umożliwia nie tylko wykrywanie, ale także obserwację śladów cząstek jądrowych przechodzących przez materiał. Ślady cząstek obserwowane mogą być w czasie rzeczywistym przy użyciu detektorów gazowych takich jak komora Wilsona czy komora pęcherzykowa [39]. W ich przypadku ślady widoczne są jednak jedynie przez krótki czas, a w celu permanentnego ich udokumentowania konieczne jest wykonanie fotografii. Innym rodzajem detektorów śladowych są detektory oparte na ciele stałym, takie jak dielektryczne detektory śladowe czy emulsje jądrowe. Nie umożliwiają one obserwacji w czasie rzeczywistym, ale zarejestrowane w nich tory cząstek jądrowych są znacznie trwalsze i po zastosowaniu odpowiedniej obróbki chemicznej mogą być wielokrotnie obserwowane.

Dielektryczne detektory śladowe promieniowania jonizującego

Dielektryczne detektory śladowe promieniowania jonizującego (ang. Track Etch Detectors lub Solid State Track Detectors) to w największym uproszczeniu materiały, które w wyniku kontaktu z promieniowaniem jonizującym doznają uszkodzenia, które następnie może zostać wytrawione i obserwowane np. z użyciem mikroskopu optycznego. W roku 1958 Young po raz pierwszy zaobserwował ślady wytworzone na powierzchni fluorku litu przez fragmenty rozszczepienia i wytrawione w mieszance kwasu fluorowodorowego i octowego [40]. Rok później ślady powstałe w wyniku oddziaływania z fragmentami rozszczepienia zostały zaobserwowane także w mące [41]. Od tego czasu intensywne badania nad rozwojem tej metody pozwoliły na zastosowanie jej w wielu innych materiałach.

Kiedy ciężkie cząstki naładowane przechodzą przez detektor, powodują jonizację materiału wzdłuż swojego toru. Powoduje ona szereg reakcji chemicznych, w wyniku których powstają wolne rodniki i inne związki chemiczne. Ten obszar o zwiększonej aktywności chemicznej nazywany bywa śladem ukrytym. Kiedy materiał, w którym występują ślady ukryte, poddany zostanie działaniu roztworu agresywnego chemicznie, reakcje zachodzą w ich obszarze bardziej intensywnie. Proces ten nazywany jest wytrawianiem, a roztworami, które najczęściej

stosowane są w tym celu, są wodne roztwory wodorotlenku sodu lub potasu. Wytrawianie zachodzi na całej powierzchni detektora, natomiast jego prędkość jest większa w obszarze uszkodzonym, czyli wzdłuż toru cząstek. W ten sposób formowane są ślady, które można obserwować przy użyciu mikroskopu optycznego [42].

Jako detektory śladowe stosowane są jedynie dielektryki. W materiałach przewodzących i półprzewodnikach zachodzi rekombinacja, która sprawia, że ślady ukryte nie są stabilne. Najbardziej popularnymi materiałami, które wykorzystywane są jako detektory śladowe, są różnego rodzaju poliwęglany (np. popularny materiał znany pod nazwą CR39 oparty na poliwęglanie allilo-diglikolowym lub detektory Makrofol) i nitroceluloza (najbardziej popularnym detektorem z tego materiału jest sprzedawany pod komercyjną nazwą LR 115) [43]. Wśród materiałów naturalnych, które mogą być wykorzystane do obserwowania śladów, wyróżnia się między innymi apatyt, mikię i oliwin. Efekt wytwarzania śladów ukrytych, które następnie mogą być wytrawione, obserwowany może być także w szklach polimorficznych [44].

Emulsje jądrowe

Innym rodzajem detektorów, który również pozwala na obserwację śladów cząstek, są emulsje jądrowe nazywane też czasami detektorami filmowymi. Detektory produkowane są zazwyczaj w postaci filmów o przezroczystym podłożu z żywicy poliestrowej lub octanu celulozy. Podłoże powleczone jest warstwą emulsji jądrowej. Jest to rodzaj emulsji fotograficznej specjalnie zmodyfikowanej w celu umożliwienia rejestracji śladów cząstek naładowanych. Składa się ona z cząsteczek halogenków srebra (najczęściej AgBr) umieszczonych w żelatynie. Emulsja jądrowa odróżnia się od standardowej emulsji fotograficznej przede wszystkim nawet czterokrotnie większą koncentracją AgBr. Rozmiary ich kryształów są także mniejsze (typowe rozmiary ziaren rzędu 0.1 – 1 μm) i dobrze rozdzielone [13]. W wyniku przechodzenia przez emulsję jądrową cząstek jądrowych naładowanych, w bromku srebra zachodzą procesy chemiczne prowadzące do powstania obrazu utajonego. Następnie emulsja poddawana jest obróbce chemicznej nazywanej wywoływaniem. W jego wyniku w kryształkach odkładają się kompleksy wiążące srebro metaliczne (ziarna) [45]. Podczas procesu utrwalania z części emulsji, która nie uległa ekspozycji na promieniowanie jonizujące, srebro jest wypłukiwane. Ziarna tworzą w przezroczystej żelatynie ślady przechodzących przez emulsję cząstek. Na podstawie stopnia zaczernienia emulsji jądrowej możliwe jest wyznaczenie dawki pochłoniętej przez detektor [20].

2.5. Fluorescencyjne detektory śladów cząstek jądrowych

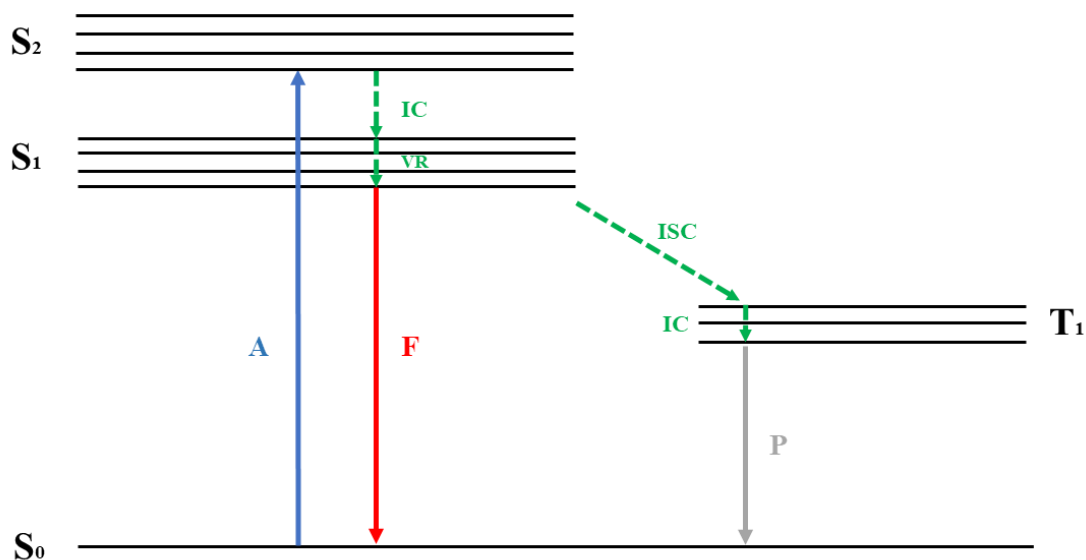
W poniższym rozdziale przedstawione zostały zasady działania fluorescencyjnych detektorów śladów cząstek jądrowych (ang. Fluorescent Nuclear Track Detectors, FNTD), ze szczególnym uwzględnieniem detektorów na bazie kryształów fluorku litu, które wykorzystywane były podczas badań wykonanych w ramach rozprawy doktorskiej.

2.5.1. Fotoluminescencja

Wystąpienie zjawiska fotoluminescencji nie wymaga, inaczej niż w przypadku termoluminescencji i optycznie stymulowanej luminescencji, wcześniejszej ekspozycji na promieniowanie jonizujące. Istnieją jednak materiały, dla których sygnał fotoluminescencyjny zwiększa się lub pojawia dopiero po absorpcji promieniowania. Oznacza to, że centra, na których zachodzi fotoluminescencja, tworzone są w wyniku oddziaływania promieniowania jonizującego z materiałem. Zjawisko takie nazywane jest radiofotoluminescencją i podobnie jak TL i OSL, wykorzystywane jest w dozymetrii.

Wzbudzenie świecenia, w przeciwieństwie do OSL i TL, nie wymaga jonizacji defektów wytworzonych w wyniku działania promieniowania jonizującego. Emisja zachodzi w wyniku wzbudzenia pułapkowanego elektronu do stanu wzbudzonego, a następnie jego relaksacji z równoczesną emisją kwantu światła. Tym, co odróżnia fotoluminescencję od optycznie stymulowanej luminescencji, jest także długość fali emitowanej w wyniku stymulacji światłem. W przypadku fotoluminescencji długość fali emitowanej jest zawsze większa niż długość fali wzbudzającej [46]. Odczyt fotoluminescencji, w przeciwieństwie do termoluminescencji i optycznie stymulowanej luminescencji, jest nieniszczący, co oznacza, że możliwe jest wielokrotne odczytania detektora bez utraty sygnału [47].

Wzbudzenie luminoforu powoduje przeniesienie elektronu do stanu wzbudzonego. Przejścia energetyczne zachodzące w cząsteczce, które mogą prowadzić do emisji fotoluminescencji, można zobrazować przy użyciu diagramu Jabłońskiego [48].



Rysunek 2.1. Diagram Jabłońskiego fluorescencji i fosforescencji. Oznaczenia: S_0 - Singletowy stan podstawowy, $S_{1,2}$ - Singletowe stany wzbudzone, T_1 - Trypletowy stan wzbudzony, A- Przejście do stanu wzbudzonego w wyniku absorpcji światła, F-Fluorescencja, P- Fosforescencja, IC- Konwersja wewnętrzna, VR- relaksacja wibracyjna, ISC- Wewnętrzne przejście interkombinacyjne.

Po absorpcji fotonu o energii równej różnicy między singletowym stanem podstawowym (S_0) a jednym z singletowych stanów wzbudzonych elektron ulega ekscytacji do stanu wzbudzonego. Po czasie relaksacji elektron przechodzi do najniższego poziomu wibracyjnego stanu S_1 w wyniku bezpromienistych procesów relaksacji wibracyjnej oraz konwersji wewnętrznej. Następnie wzbudzona cząsteczka może przejść do stanu podstawowego, przy jednoczesnej emisji fotonu o energii równej różnicy energii między stanem podstawowym a podstawowym stanem wibracyjnym poziomu wzbudzonego S_1 . Taka emisja, związana z przejściem między wzbudzonym i podstawowym poziomem singletowym, nazywana jest fluorescencją. Proces ten zachodzi bardzo szybko. Średni czas pomiędzy ekscytacją a powrotem do stanu podstawowego to ok. 10 ns [49]. Procesem znacznie mniej prawdopodobnym, ale nie niemożliwym jest fosforescencja. Zachodzi ona, kiedy elektron z singletowego stanu wzbudzonego przejdzie do trypletowego stanu wzbudzonego w wyniku wewnętrznego przejścia interkombinacyjnego. Następnie, po przejściu do podstawowego stanu wibracyjnego, elektron może przejść ze stanu trypletowego do podstawowego stanu singletowego z emisją kwantu światła. Ponieważ stan trypletowy charakteryzuje się niższą energią niż energia pierwszego stanu wzbudzonego singletowego, widmo promieniowania elektromagnetycznego wyemitowanego w procesie fosforescencji jest przesunięte w stronę dłuższych długości fali w stosunku do widma fluorescencji. Fosforescencja charakteryzuje się

także dłuższym czasem emisji promieniowania po ustaniu czynnika wzbudzającego (rzędu milisekund, a czasami nawet sekund) [48].

Wśród materiałów wykazujących radiofotoluminescencję w praktyce dozymetrycznej na szczególną uwagę zasługują halogenki metali alkalicznych (głównie fluorek litu LiF), tlenek glinu domieszkowany węglem i magnezem ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C},\text{Mg}$) oraz szkła fosforanowe [50].

2.5.2. Podstawy działania fluorescencyjnych detektorów śladów cząstek jądrowych

Nazwa fluorescencyjnych detektorów śladów cząstek jądrowych została wprowadzona przez naukowców z firmy Landauer, którzy w 2006 roku po raz pierwszy zaprezentowali tę technikę detekcji promieniowania jonizującego, wykorzystując w tym celu tlenek glinu domieszkowany węglem i magnezem ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C},\text{Mg}$) [5]. Przez długi czas materiał ten był jedynym, który z powodzeniem wykorzystywano jak detektor FNTD. Dopiero stosunkowo niedawno zespół z IFJ PAN w Krakowie był w stanie uzyskać wysokiej jakości obrazy mikroskopowe przy użyciu kryształów fluorku litu [6]. Innym materiałem, który ostatnio udało się wykorzystać w celu fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych, są szkła fosforanowe domieszkowane srebrem [51], [52].

Fluorescencyjne detektory śladowe to materiały, w których występuje zjawisko radiofotoluminescencji, które może być wykorzystane w celu obserwacji torów cząstek jądrowych, które przeszły przez detektor. Działanie fluorescencyjnych detektorów śladowych jest ściśle związane z centrami barwnymi [53], [54]. Centra barwne to defekty sieci krystalicznej, które zdolne są do absorpcji światła w zakresie widzialnym. Najprostsze centra barwne to centra F (od niemieckiego Farbzentrum), które składają się z wakancji anionowej pułapkującej elektron [55]. Promieniowanie jonizujące przechodząc przez fluorescencyjny detektor śladowy, powoduje wytworzenie w nim centrów barwnych (w przypadku kryształów LiF) [6] lub transformację centrów, które są już obecne w materiale (w przypadku Al_2O_3) [56]. Powoduje to wytworzenie dodatkowych poziomów w strukturze pasmowej dielektryka, co może prowadzić do powstania w widmie emisyjnym nowych pasm, które odpowiadają centrom barwnym wytworzonym w wyniku działania promieniowania jonizującego. Wzbudzenie tych centrów światłem o odpowiedniej długości fali może prowadzić do emisji fluorescencji o wyższej długości fali. Ponieważ cząstki jądrowe wytwarzają centra barwne (lub powodują transformację istniejących już centrów) głównie wzdłuż toru swojego ruchu, dzięki

zastosowaniu mikroskopu fluorescencyjnego możliwe jest wykonanie zdjęć śladów pojedynczych cząstek jądrowych. Materiały, które wykorzystywane są jako detektory śladowe, są przezroczyste, co umożliwia obserwowanie torów cząstek na różnych głębokościach w kryształach. Detektory najczęściej mają postać małych próbek o wymiarach rzędu kilku milimetrów, dokładnie wypolerowanych. Dużą zaletą fluorescencyjnych detektorów śladowych, w porównaniu z innymi detektorami śladowymi na ciele stałym, takimi jak emulsje jądrowe lub dielektryczne detektory śladowe, jest brak konieczności stosowania czasochłonnej obróbki chemicznej detektorów po ekspozycji na promieniowanie jonizujące. Dodatkowo detektory te mogą być wielokrotnie używane. Po odczycie możliwe jest całkowite usunięcie sygnału przez wygrzanie kryształów w odpowiednio wysokiej temperaturze. Proces odczytu jest nieniszczący, a ta sama próbka może być wielokrotnie odczytywana. Dużą zaletą detektorów fluorescencyjnych jest możliwość przechowywania ich przez długi czas bez utraty sygnału. Kryształy nie muszą być przechowywane w warunkach ciemni, nie są także wrażliwe na niewielkie zmiany temperatury, które mogą występować podczas przechowywania.

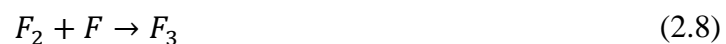
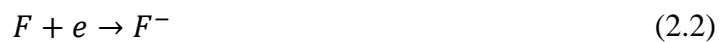
2.5.3. Fluorescencyjne detektory śladów cząstek jądrowych oparte na fluorku litu

Fluorek litu jest jednym z najszerszej stosowanych materiałów luminescencyjnych w dozymetrii promieniowania jonizującego. Zalicza się on do grupy halogenków metali alkalicznych. Fluorek litu ma sześcienny układ krystaliczny ściennie centrowany. W takiej strukturze każdy kation (w tym przypadku jon Li^+) otoczony jest przez sześć sąsiadujących z nim anionów (jony F^-). Fluorek litu posiada jedną z największych przerw energetycznych wśród wszystkich materiałów dielektrycznych (jej szerokość wynosi ~ 14 eV), podczas gdy współczynnik załamania światła jest jednym z najniższych i wynosi 1.3912 [57].

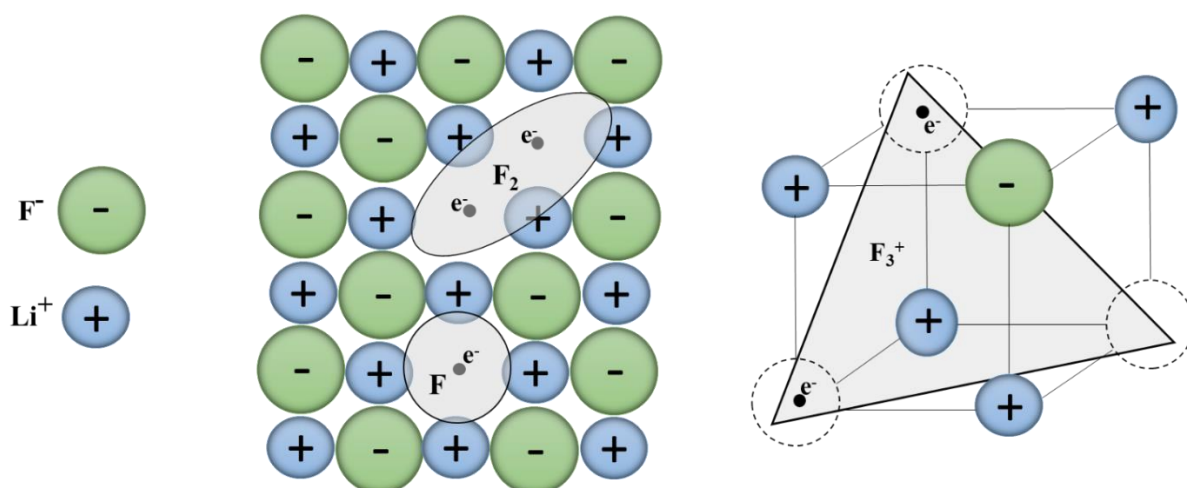
Centra barwne we fluorku litu mogą zostać wytworzone jedynie w wyniku napromienienia go promieniowaniem jonizującym [8]. Przechodzące przez kryształ cząstki naładowane wytwarzają w nim defekty krystaliczne, takie jak defekty Frenkela składające się z jonu halogenku (w przypadku LiF fluoru) w pozycji międzywęzłowej, oraz z wakancji anionowej (F^+) posiadającej ładunek dodatni [58]. Jony fluoru są mobilne w temperaturze powyżej 50 K i mogą łączyć się z wakancjami, co eliminuje defekt [59]. Jeżeli jednak dojdzie do rozdzielenia pary, składającej się z wakancji i jonu w pozycji międzywęzłowej, na odległość kilku stałych sieciowych, proces rekombinacji może nie nastąpić. Pomędzy defektami sieci krystalicznej, jak również wolnymi elektronami (e), które także powstają w wyniku oddziaływania

promieniowania z kryształem, mogą zachodzić różne procesy prowadzące m.in. do powstawania centrów barwnych.

Procesy tworzenia i transformacji centrów barwnych są silnie uzależnione od temperatury napromieniania i późniejszej temperatury przechowywania napromienionych kryształów. We fluorku litu wakancje anionowe są mobilne w temperaturze powyżej 270 K [59]. Jeżeli napromienianie zachodzi w wyższych temperaturach, to w wyniku działania promieniowania jonizującego w kryształach LiF wytwarzane są głównie centra F (wakancje anionowe pułapkujące jeden elektron). Centra te mogą jednak łączyć się ze sobą nawzajem, a także z innymi rodzajami defektów występujących w sieci krystalicznej i tworzyć bardziej złożone centra barwne [60]. Najliczniejszymi z nich są centra F_2 (dwie wakancje anionowe połączone z dwoma elektronami) oraz centra F_3^+ (trzy wakancje anionowe połączone z dwoma elektronami). Bardziej złożone centra też mogą się tworzyć, jednak ich koncentracja jest zazwyczaj bardzo niska. Poniżej przedstawione zostały procesy prowadzące do powstania centrów barwnych [59], [61] :



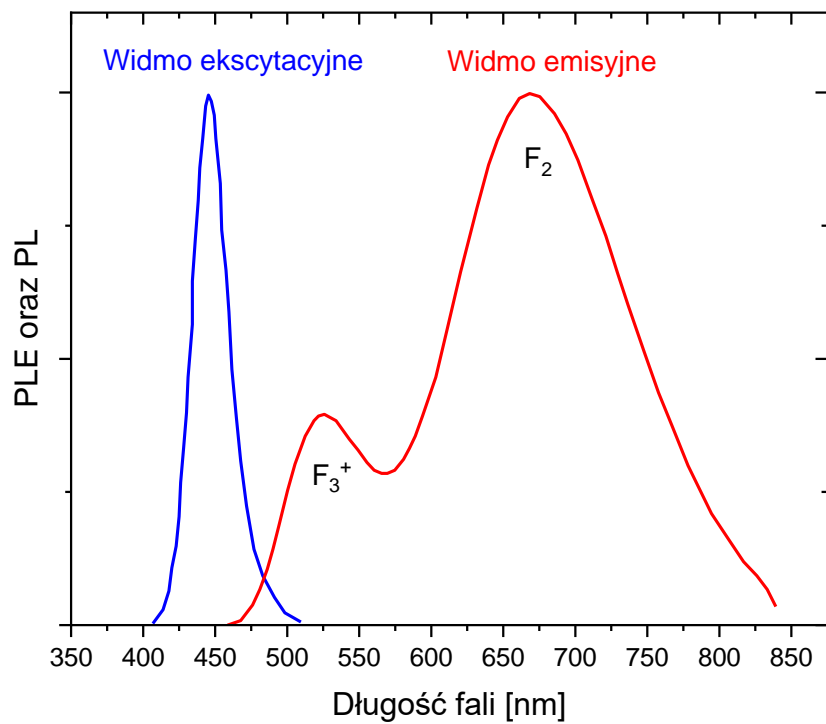
Jeżeli jednak temperatura, w której kryształy są napromieniane, jest niższa od temperatury mobilności wakancji (270 K), jedynymi procesami, które mogą zachodzić są procesy (2.1) i (2.2). Centra barwne bardziej złożone niż centra F nie mogą zostać wytworzone w takich warunkach. Dopiero podniesienie po napromienianiu temperatury powyżej 270 K, umożliwia wytworzenie bardziej skomplikowanych defektów [62].



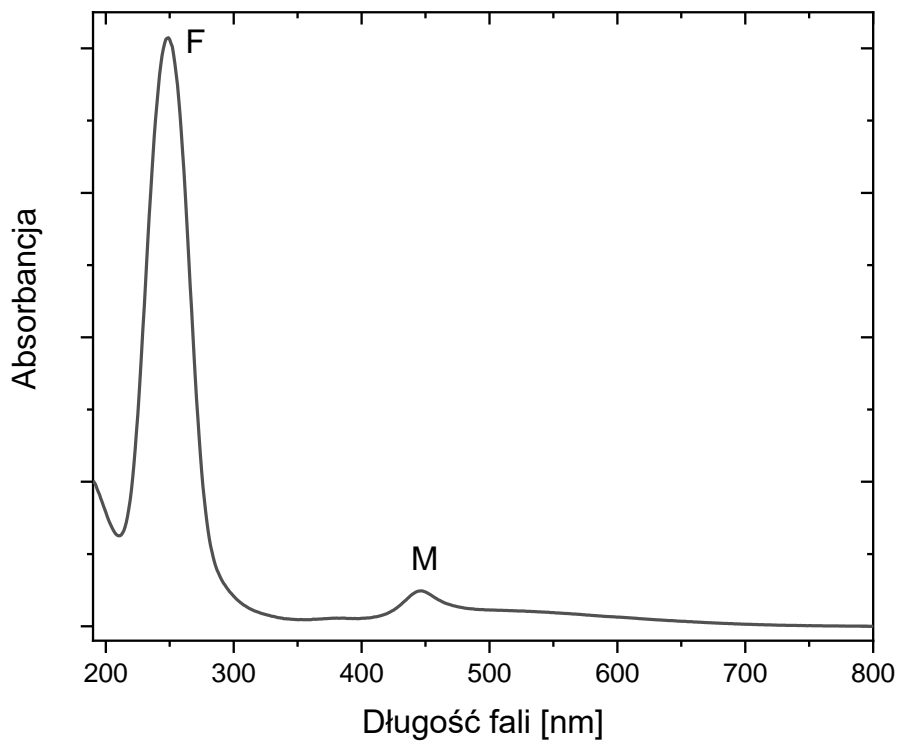
Rysunek 2.2. Schemat centrów F, F₂ i F₃⁺ we fluorku litu.

Wytworzenie centrów barwnych we fluorku litu związane jest z generowaniem dodatkowych podpoziomów energetycznych w paśmie wzbronionym, które pułapują elektrony. Poprzez oświetlenie kryształu światłem o odpowiedniej długości fali elektrony te mogą zostać przeniesione do stanu wzbudzonego, z którego następnie powracają do stanu podstawowego z jednoczesną emisją luminescencji. W związku z tym, występowanie w strukturze kryształu centrów barwnych prowadzi do występowania w jego widmie absorpcyjnym i emisyjnym pasm związanych z konkretnymi centrami barwnymi.

Najliczniej wytwarzane w wyniku interakcji z promieniowaniem jonizującym w LiF centra F związane są z silnym pasmem absorpcyjnym z maksimum w okolicy 250 nm. Choć teoretycznie przewidziane jest występowanie słabej fotoluminescencji związanej z centrami F w okolicy 900 nm, nie udało jej się do tej pory zaobserwować [57]. Z tego powodu centra te nie są użyteczne z punktu widzenia dozymetrii. Znacznie bardziej interesujące są bardziej złożone centra F₂ i F₃⁺. Pasma absorpcyjne tych dwóch centrów nakładają się na siebie, tworząc wspólnie tzw. pasmo M, którego maksimum znajduje się w okolicy 445 nm [63]. Wzbudzenie tych centrów światłem niebieskim powoduje emisję silnej fotoluminescencji. W widmie emisyjnym rozróżnić można dwa piki. Silniejszy, w okolicy 670 nm związany jest z centrami F₂, natomiast słabszy w okolicy 525 nm z centrami F₃⁺ [6]. Na Rysunku 2.3. przedstawione zostało widmo ekscytacyjne (PLE) oraz widmo emisji fotoluminescencji (PL). Widmo absorpcyjne kryształu fluorku litu poddanego wcześniejszej ekspozycji na promieniowanie jonizujące (promieniowanie beta pochodzące ze źródła Sr-90/Y-90) przedstawione zostało na Rysunku 2.4.



Rysunek 2.3. Widmo ekscytacyjne i widmo emisyjne fotoluminescencji dla kryształu LiF po ekspozycji na promieniowanie beta ze źródła Sr-90/Y-90.

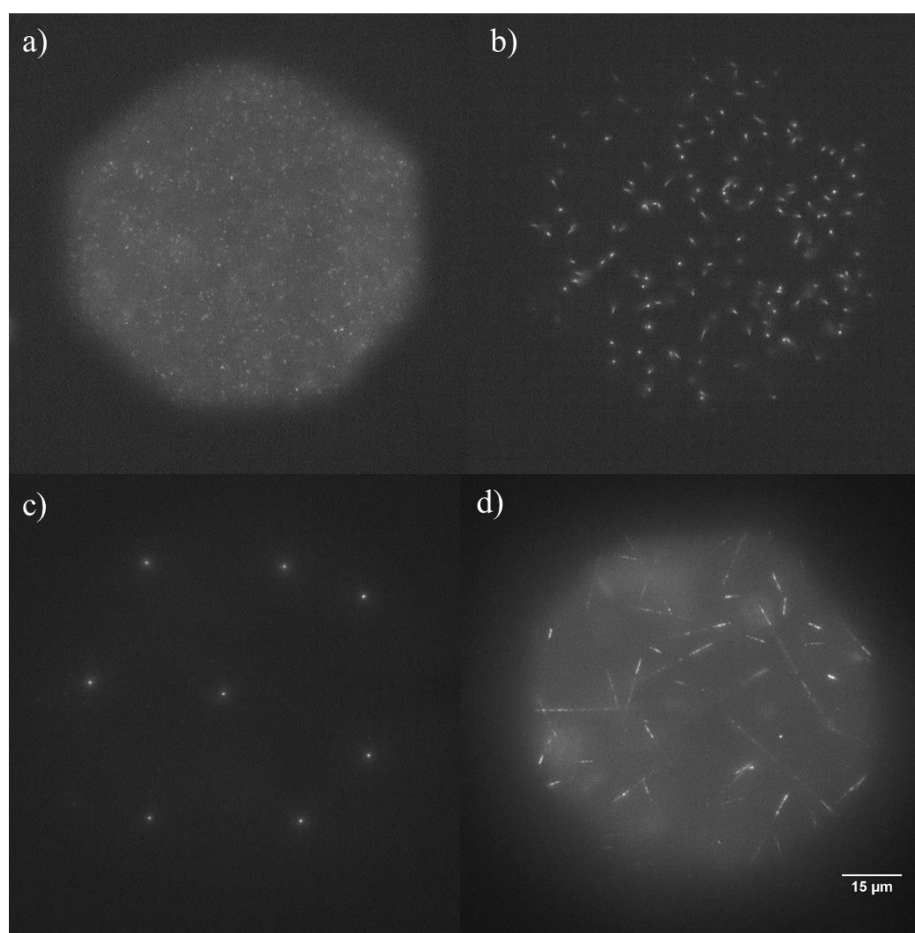


Rysunek 2.4. Widmo absorpcyjne dla kryształu LiF po ekspozycji na promieniowanie beta ze źródła Sr-90/Y-90.

W celu detekcji śladów cząstek jądrowych wykorzystuje się głównie fotoluminescencję centrów F_2 ponieważ jest ona silniejsza, a dodatkowo obserwacje dla wyższych długości fali umożliwiają lepszą separację od światła wzbudzającego.

2.5.4. Potencjalne zastosowania detektorów FNTD z kryształów fluorku litu

Chociaż metoda fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych z zastosowaniem kryształów fluorku litu jest stosunkowo nową techniką, posiada wiele zalet, które czynią ją niezwykle atrakcyjną z punktu widzenia zastosowań w detekcji promieniowania jonizującego. Z jej wykorzystaniem z powodzeniem udało się zaobserwować ślady pochodzące od cząstek alfa, beta, jonów, a także cząstek powstających w wyniku interakcji z materiałem detektora neutronów oraz promieniowania X i gamma. Przykłady obrazów mikroskopowych przedstawione zostały na Rysunku 2.5.

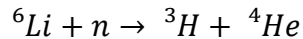


Rysunek 2.5. Przykłady zdjęć mikroskopowych uzyskanych dla detektorów wykonanych z kryształów LiF po napromienieniu: a) 50 mGy promieniowania gamma ze źródła Cs-137; b) cząstkami alfa ze źródła Am-241 o fluencji $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$; c) jonami Fe-56 o fluencji rzędu 10^5 cm^{-2} ; d) neutronami ze źródła Pu-Be o fluencji rzędu 10^6 cm^{-2} .

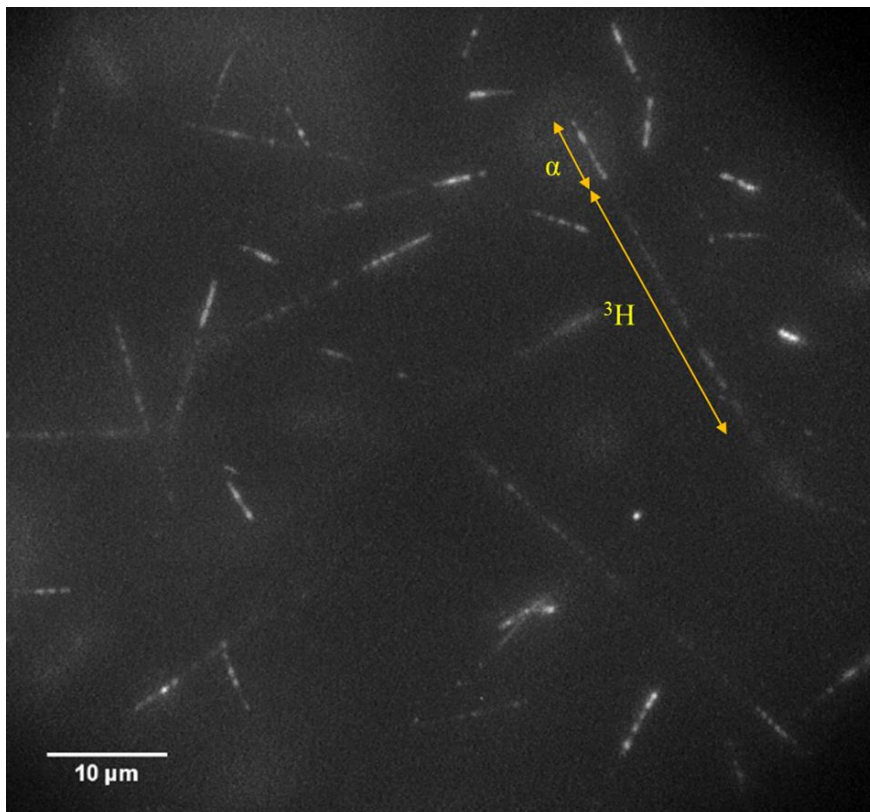
Poniżej opisane zostało kilka z potencjalnych obszarów, w których użyteczność detektorów FNTD z LiF została wykazana.

- **Detekcja neutronów**

Fluorek litu jest szczególnie interesującym materiałem w kontekście detekcji neutronów, ponieważ zawiera izotop ${}^6\text{Li}$, który ma wysoki przekrój czynny na reakcję z neutronami termicznymi:



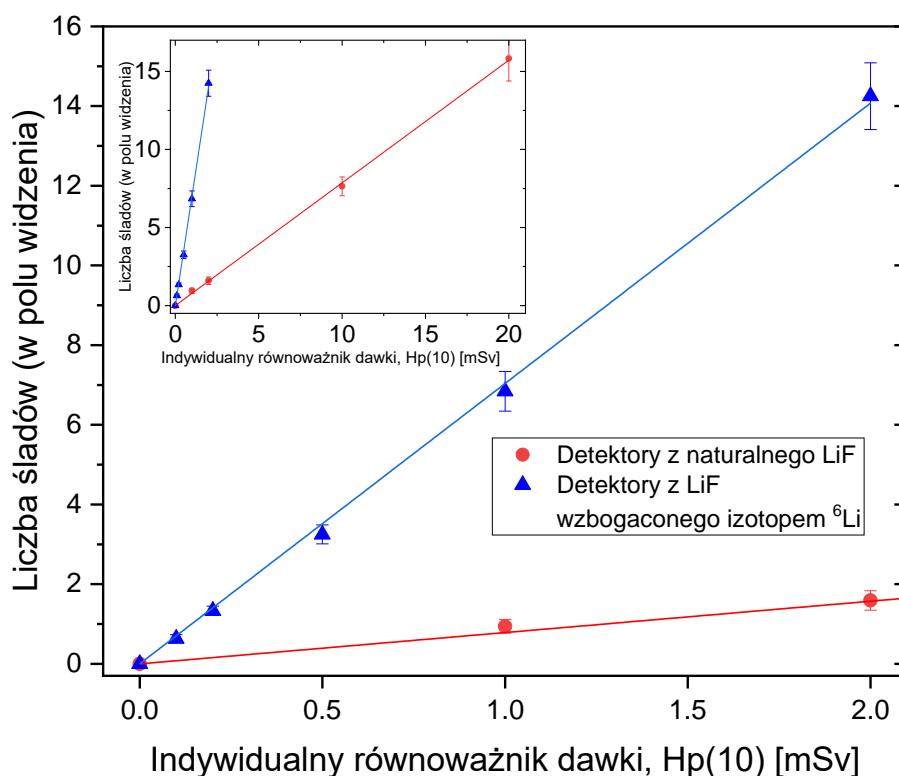
W wyniku tej reakcji powstaje jądro trytu oraz cząstka alfa. Mimo iż nie jesteśmy w stanie zarejestrować śladów neutronów, ślady produktów powyższej reakcji możemy nie tylko zaobserwować, ale także łatwo zidentyfikować. Ślad powstający w wyniku takiej reakcji składa się bowiem z dwóch części: krótszej i jaśniejszej pochodzącej od cząstki alfa oraz dłuższej, ale mniej intensywnej pochodzącej od jądra trytu (patrz Rysunek 2.6.) [10].



Rysunek 2.6. Przykład śladu zarejestrowanego po napromienieniu próbki LiF neutronami termicznymi o fluencji ok. 10^6 cm^{-2} . Na obrazie zaznaczono ślady pochodzące od cząstki alfa oraz od jądra trytu.

Liczba śladów, które można zaobserwować po napromienianiu próbek kryształu LiF, jest wprost proporcjonalna do pochłoniętej dawki. Przy zastosowaniu detektorów z naturalnego LiF

udało się zmierzyć dawki rzędu ok. 1 mSv [10]. Limit detekcji można jednak znacząco obniżyć, wzbogacając naturalny fluorek litu w izotop ${}^6\text{Li}$ [64]. Na Rysunku 2.7. przedstawiona została zależność liczby obserwowanych w polu widzenia śladów od indywidualnego równoważnika dawki pochodzącej od neutronów. Zastosowanie ${}^6\text{Li}$ zwiększa około dziesięciokrotnie liczbę obserwowanych śladów.



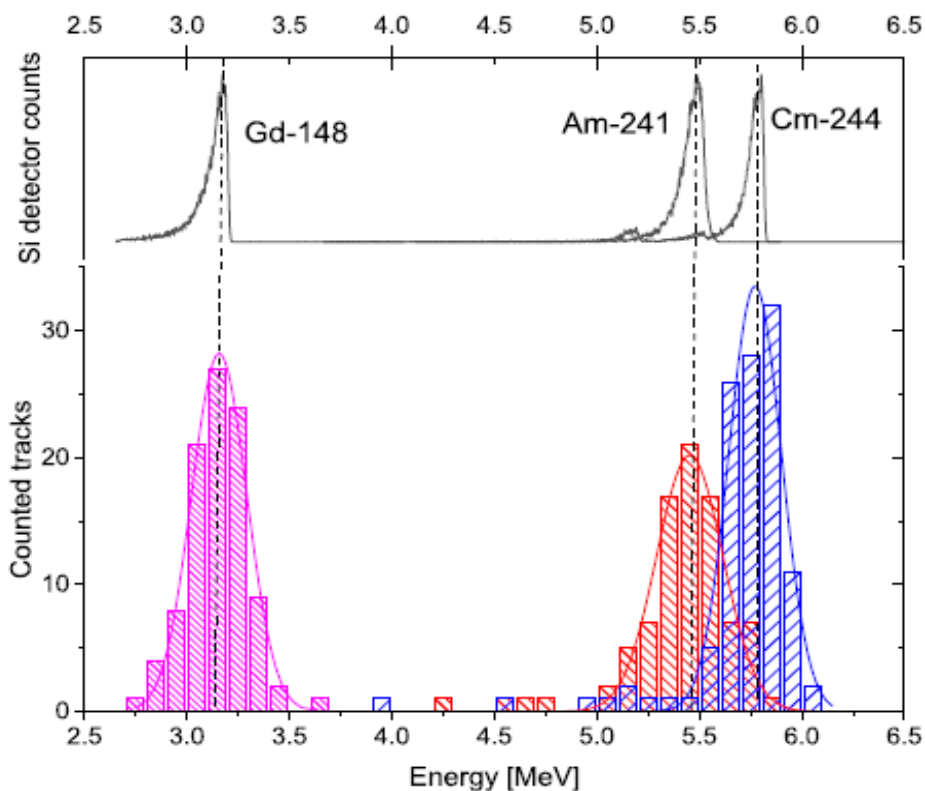
Rysunek 2.7. Zależność liczby śladów w polu widzenia od indywidualnego równoważnika dawki pochodzącej od neutronów dla detektorów z naturalnego LiF oraz LiF wzbogaconego izotopem ${}^6\text{Li}$ [64].

Stosowanie detektorów śladowych z LiF pozwala także na skuteczne i łatwe rozróżnienie dawki pochodzącej od neutronów oraz promieniowania gamma, które w praktycznej dozymetrii zawsze im towarzyszy [10].

- **Spektrometria cząstek alfa**

Wykorzystanie fluorescencyjnych detektorów śladowych z fluorku litu pozwala na określenie energii cząstek alfa, które zatrzymują się w materiale detektora. Zasięg cząstki alfa w danym materiale jest ściśle związany z jego energią. Obserwując ślad w trzech wymiarach, możemy wyznaczyć jego długość i następnie powiązać ją z energią konkretnej cząstki alfa. Na Rysunku 2.8. przedstawiono widma energetyczne cząstek alfa pochodzących ze źródeł Gd-148,

Am-241 oraz Cm-244 wyznaczone z wykorzystaniem detektorów śladowych oraz detektorów półprzewodnikowych. Dobra zgodność wyników dla obu metod udowadnia, że zaproponowana metoda wyznaczenia energii cząstek przy użyciu FNTD jest poprawna i może być stosowana [11].

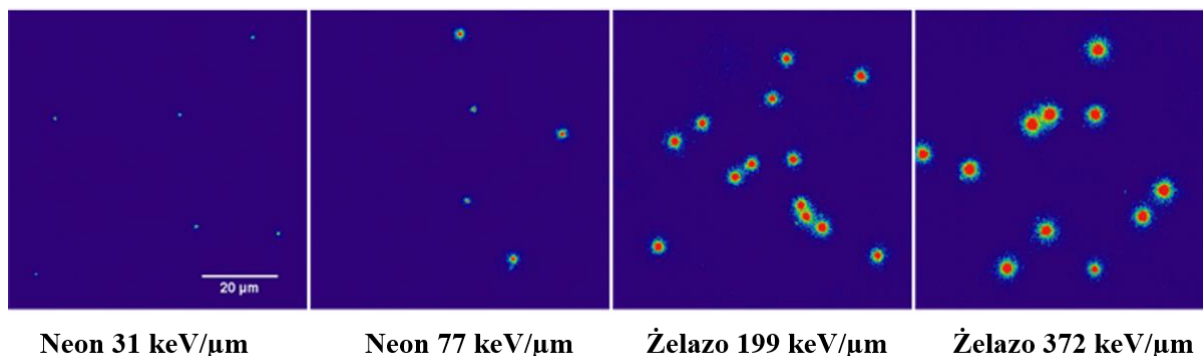


Rysunek 2.8. Widmo cząstek alfa wyznaczone na podstawie rozkładu długości śladów cząstek z dopasowanymi krzywymi Gaussa. Na górnej części wykresu przedstawione zostały widma zmierzone przy użyciu detektorów półprzewodnikowych [11].

- **Pomiary ciężkich jonów**

Detektory z LiF z powodzeniem zostały także wykorzystane w pomiarach ciężkich jonów. Z ich użyciem udało się wykonać zdjęcia mikroskopowe torów takich jonów jak: hel, neon, węgiel krzem czy żelazo. Udowodniono, że intensywność rejestrowanych śladów wykazuje liniową zależność od współczynnika liniowego przekazu energii (LET) danej cząstki. Umożliwia to uzyskanie pewnych informacji spektrometrycznych na temat pola promieniowania, jakim napromieniona jest próbka. Na Rysunku 2.9. przedstawione zostały przykładowe obrazy uzyskane po napromienieniu kryształów LiF jonami o różnych wartościach LET. Pozornie ślady na kolejnych obrazach różnią się rozmiarem. Rzeczywiste rozmiary śladów są jednak

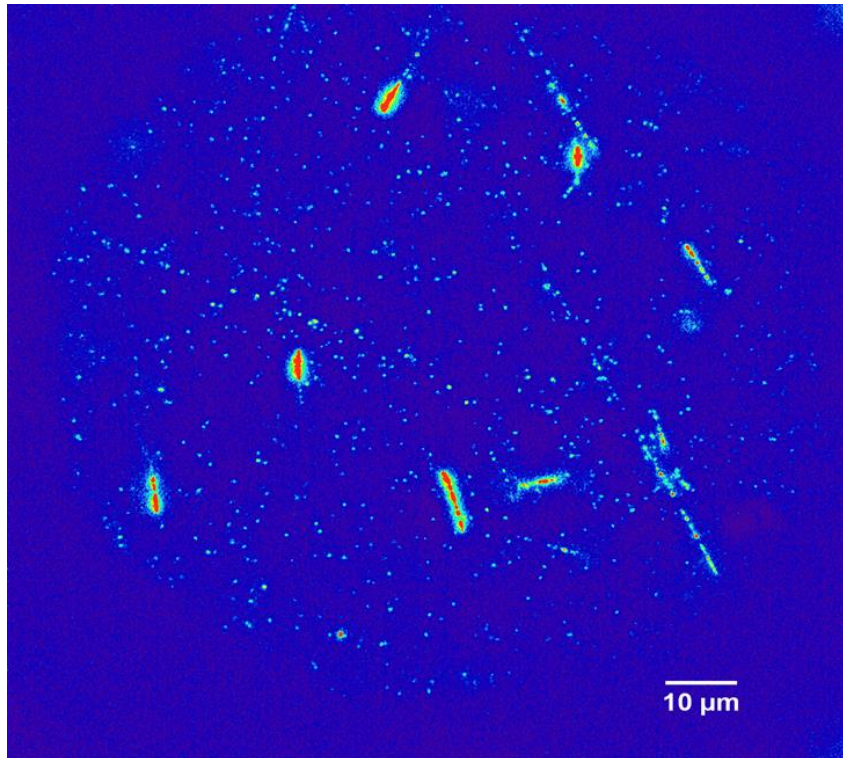
dużo mniejsze (rzędu nanometrów) niż rozdzielczość mikroskopu, a widoczna różnica wynika jedynie z różnic w intensywności fotoluminescencji poszczególnych śladów [9].



Rysunek 2.9. Obrazy mikroskopowe zarejestrowane po napromienieniu kryształów fluorku litu jonami o różnych wartościach LET. Kolory obrazów wynikają z zastosowania odpowiedniego LUT (ang. lookup table) w celu lepszego zobrazowania różnic między jasnościami poszczególnych śladów. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne obrazów są takie same dla wszystkich obrazów [9].

- **Pomiary promieniowania kosmicznego**

Pomiary promieniowania kosmicznego są jednym z najbardziej perspektywicznych zastosowań detektorów FNTD. Wraz z rozwojem metody, detektory śladowe mogłyby zostać wykorzystane nie tylko w celu wyznaczenia dawki pochłoniętej przez detektor w trakcie przebywania w przestrzeni kosmicznej, ale także identyfikacji śladów pochodzących od różnego rodzaju promieniowania. Detektory z fluorku litu były wykorzystywane w ramach projektu DOSIS 3D polegającego na serii pomiarów prowadzonych na Międzynarodowej Stacji Kosmicznej [65]. Znalazły się także na pokładzie pojazdu kosmicznego Orion, który w ramach misji ARTEMIS 1, odbył pod koniec 2022 roku lot na orbitę Księżyca.



Rysunek 2.10. Przykłady śladów zarejestrowanych przy pomocy kryształów LiF po trwającej pół roku ekspozycji na orbicie okołoziemskiej, na pokładzie Międzynarodowej Stacji Kosmicznej. Kolory obrazu wynikają z zastosowania odpowiedniego LUT (ang. lookup table).

3. Wykorzystywane materiały, aparatura i metody pomiarowe

3.1. Kryształy fluorku litu

3.1.1. Wytwarzanie kryształów w Instytucie Fizyki Jądrowej

Niemal wszystkie kryształy wykorzystane w badaniach zawartych w pracy doktorskiej wyhodowane zostały w IFJ PAN w Krakowie. Na terenie Instytutu znajduje się aparatura umożliwiająca wysokotemperaturowy wzrost monokryształów metodami mikrowyciągania oraz Czochralskiego. W skład stanowiska produkcji firmy Cyberstar wchodzi hermetycznie zamykany piec indukcyjny wraz z generatorem TruHeat MF 3020 firmy Huttinger Elektronik o mocy 20 kW i częstotliwości prądu 5 – 15 kHz. Urządzenia te umożliwiają osiągnięcie temperatur powyżej 2000°C. Proces wzrostu monokryształu może zachodzić w próżni (do ok. $3 \cdot 10^{-6}$ bara) lub w dowolnej atmosferze gazowej (np. argonu lub azotu). Urządzenie wyposażone jest także w system automatycznej kontroli procesu wzrostu kryształu na podstawie przyrostów masy. Kryształy fluorku litu mogą być produkowane zarówno metodą Czochralskiego, jak i mikrowyciągania. Jako materiał wsadowy stosuje się czysty proszek fluorku litu.

W metodzie Czochralskiego materiał startowy roztopiany jest w tyglu platynowym bądź irydowym, o kształcie zbliżonym do cylindrycznego, umieszczonym wewnątrz pieca indukcyjnego. Proces wzrostu kryształu rozpoczyna się przez zanurzenie zarodka w roztopie. Następnie zarodek jest powoli unoszony do góry, co powoduje rozpoczęcie procesu krystalizacji roztopionego materiału na styku z zarodkiem. Wyciąganiu często towarzyszy także ruch obrotowy. Kryształ, wraz ze wzrostem, jest rozszerzany najpierw do postaci stożka, a następnie walca. Średnica kryształu jest kontrolowana przez dobranie odpowiedniej mocy grzania oraz prędkości wyciągania i rotacji kryształu [66]. Prędkość liniowa wzrostu kryształu metodą Czochralskiego zazwyczaj wynosi około kilku mm na godzinę, natomiast prędkość obrotów to od kilku do kilkudziesięciu obrotów na minutę [67]. Końcowe wymiary kryształu (w każdej płaszczyźnie) wynoszą do kilku centymetrów.

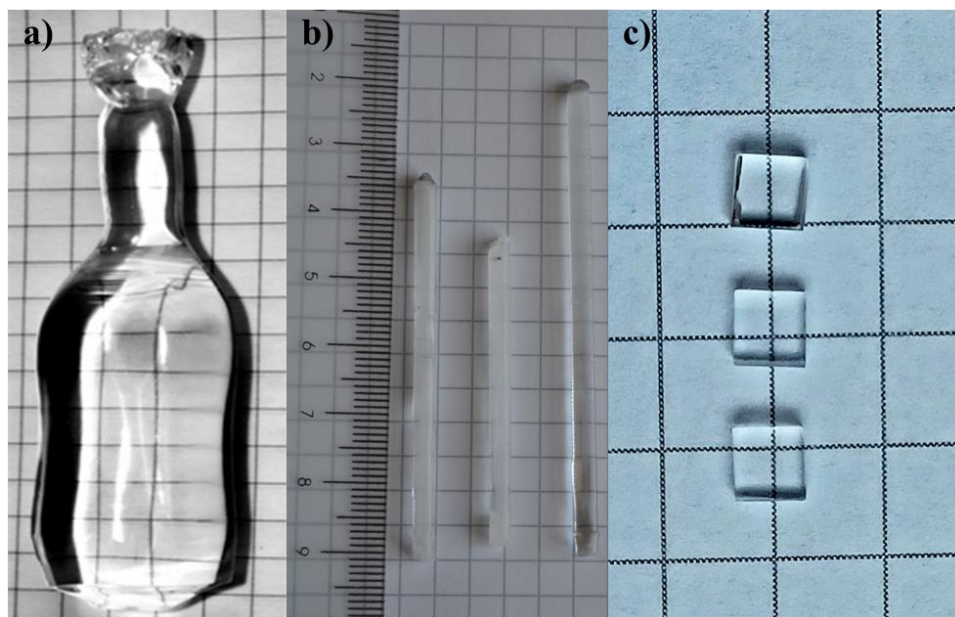
W przeciwieństwie do metody Czochralskiego, przy zastosowaniu metody mikrowyciągania, kryształ wyciągany jest w dół, a nie do góry. Materiał wsadowy roztopiany jest w umieszczonym w piecu indukcyjnym tyglu, który ma w swoim dnie otwór tzw. mikrokanal.

Roztopiony materiał wsadowy utrzymuje się we wnętrzu tygla dzięki napięciu powierzchniowemu. Dopiero kontakt zarodka z tygłem umożliwia przepływ roztopu. Po rozpoczęciu wyciągania kryształu jego kształt może być korygowany przez zapewnienie odpowiedniej temperatury tygla (poprzez kontrolę mocy generatora) oraz prędkości wyciągania [68]. Metoda ta jest znacznie szybsza od metody Czochralskiego. Typowe szybkości wzrostu z jej zastosowaniem to kilka mm/min, a dodatkowo kryształ nie musi być obracany. Kryształy wyprodukowane tą metodą mają jednak znacznie mniejszą średnicę [69]. Kryształy wyhodowane metodą mikrowyciągania mają kształt pręcików o średnicy rzędu 3 mm i długości do kilku cm. Z tego powodu większość użytych w ramach pracy kryształów LiF była wyhodowana metodą Czochralskiego. Większe wymiary kryształów ułatwiają ich późniejszą obróbkę, umożliwiają większą swobodę w doborze rozmiaru wytwarzanych próbek, a także umożliwiają uzyskanie dużej ilości próbek z tego samego kryształu, co pozwala na zapewnienie lepszej powtarzalności właściwości fizycznych próbek. Metoda mikrowyciągania jest natomiast pomocna w przypadku kiedy nie jest dostępna duża ilość materiału wsadowego. Przykładem kryształów badanych w pracy, wyhodowanych tą metodą, są kryształy LiF wzbogacone w ${}^6\text{Li}$.

3.1.2. Preparatyka próbek z kryształów fluorku litu

Aby wyhodowane kryształy fluorku litu mogły zostać wykorzystane jako fluorescencyjne detektory śladów cząstek jądrowych należy poddać je szeregowi procesów. W pierwszej kolejności kryształy cięte są na plastry o grubości ok. 1 mm przy użyciu piły tarczowej z ostrzem pokrytym pyłem diamentowym. Następnie, stosując diamentową piłę drutową, plastry te cięte są na próbki o kształcie prostopadłościanu. Standardowy wymiar jednej próbki to 4x4x1 mm, możliwa jest jednak wykonanie próbek zarówno większych, jak i mniejszych. Po cięciu próbki są polerowane z użyciem papierów ściernych o gradacji P2500 oraz P4000. Po polerowaniu próbki myte są w myjce ultradźwiękowej, w acetonie, przez 5 min. Po osuszeniu próbki są gotowe do użycia. Większość próbek wykorzystywanych w pomiarach poddawana jest jednak dodatkowo procesowi wygrzewania w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia fluorku litu (ok. 840°C) przez 10 min. Zabieg ten zdecydowanie polepsza jakość powierzchni próbek. Eliminuje część zarysowań, które powstały w trakcie wcześniejszego polerowania. Jest to szczególnie ważne przy stosowaniu kryształów LiF jako detektorów śladowych. Wszelkie zanieczyszczenia i uszkodzenia powierzchni próbek

wpływają niekorzystnie na jakość otrzymywanych obrazów mikroskopowych, a w najgorszych przypadkach całkowicie uniemożliwiają zastosowanie danej próbki w celu obserwacji śladów.



Rysunek 3.1. Zdjęcia kryształów LiF: a) kryształ wyhodowany metodą Czochralskiego; b) kryształy wyhodowane metodą mikrowyciągania; c) pocięte i wypolerowane próbki kryształu wyhodowanego metodą Czochralskiego.

Detektory śladowe na bazie kryształów fluorku litu są detektorami wielokrotnego użytku. Po ich napromienieniu możliwa jest ich całkowita anilacja poprzez zastosowanie odpowiedniej obróbki termicznej. Standardowa procedura anilacji kryształów LiF polega na wygrzaniu ich przez 30 min w piecu, w temperaturze 450°C. Kryształy przebywają w piecu na metalowej płytce, przykryte folią aluminiową, która nie dotyka bezpośrednio próbek. Taka konfiguracja ma na celu osłonięcie próbek przed ewentualnymi zanieczyszczeniami, które mogłyby opaść na nie podczas grzania w piecu i obniżyć jakość ich powierzchni. Po 30 min próbki wyjmowane są na płytce z pieca i umieszczane na aluminiowej płytce w celu szybkiego schłodzenia do temperatury pokojowej. Taka procedura umożliwia całkowite usunięcie wcześniejszego sygnału i ponowne wykorzystanie próbek.

3.2. Źródła promieniowania jonizującego

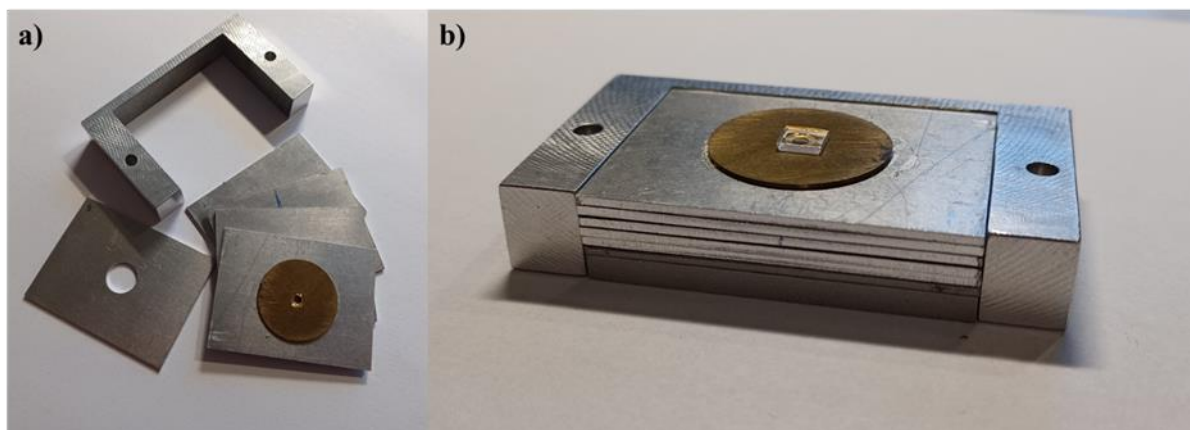
W ramach pracy doktorskiej badano kryształy fluorku litu napromienione różnymi rodzajami promieniowania jonizującego. Najwięcej pomiarów przeprowadzono dla próbek napromienionych promieniowaniem alfa, ze względu na to, że ślady cząstek alfa wytwarzane we fluorku litu są wyraźnie widoczne i łatwe do zmierzenia. Poza źródłami promieniowania

alfa wykorzystywane było także promieniowanie beta, gamma, a także wysokoenergetyczne jony.

Źródła promieniowania alfa

Do napromieniania próbek wykorzystywane były dwa źródła promieniowania alfa Am-241.

Pierwsze z nich to źródło AMRB5718 produkcji Eckert&Ziegler o aktywności 10.7 MBq. W przypadku napromieniania próbek LiF małymi fluencjami cząstek alfa, w celu prowadzenia obserwacji mikroskopowych śladów cząstek, podczas napromieniania stosowany był kolimator. Składa się on ze specjalnej podstawki oraz nakładanych na nią pięciu metalowych płytek dystansujących, z których każda miała grubość ok. 1 mm oraz otwór o średnicy ok. 8 mm. Na ostatnią płytkę dystansującą naklejona została okrągła blaszka o grubości ok. 0.6 mm z otworem o średnicy ok. 2 mm. Całkowita grubość kolimatora wynosiła ok. 6 mm. Zastosowanie kolimatora pozwoliło na uzyskanie dużej liczby śladów w przybliżeniu prostopadłych do powierzchni próbki, a także powtarzalne ustawienie źródła promieniowania i napromienianej próbki. Zdjęcia kolimatora przedstawione zostały na Rysunku 3.2.



Rysunek 3.2. a) Poszczególne części kolimatora; b) Próbkę z LiF napromienianą cząstkami alfa ze źródła Am-241 o aktywności 10.7 MBq przy użyciu kolimatora.

Nominalna energia cząstek alfa ze źródła Am-241 to 5.486 MeV. Konstrukcja źródła, a także zastosowany kolimator spowodowały degradację tej energii. Cząstki docierające do próbki LiF miały średnią energię ok. 2 MeV co odpowiada średniej długości śladu (zasięgowi cząstek alfa w LiF) ok. 6 μm . W późniejszych rozdziałach źródło to będzie nazywane „źródłem Alfa 1”. Wszystkie napromieniania z użyciem źródła Alfa 1 (poza tymi gdzie w tekście jasno zaznaczono, że nie stosowano kolimacji) były prowadzone z wykorzystaniem opisanego wcześniej kolimatora.

Drugim źródłem alfa wykorzystywanym w czasie badań było źródło AMR14 produkcji Eckert&Ziegler. Jego aktywność wynosiła 40 kBq. Również w tym wypadku, przy napromienianiu kryształów fluorku litu w celu obserwacji śladu, zastosowano kolimator mający na celu zapewnianie powtarzalnych warunków napromieniania oraz zapewnienie jak największej liczby śladów prostopadłych do powierzchni próbki. Kolimator wykonany był z metalu o grubości 2.5 mm i otworze o średnicy ok. 1 mm. W przypadku tego źródła, ze względu na jego inną budowę, energia cząstek docierających do detektora była większa i wynosiła ok. 4 MeV, co odpowiada średniej długości śladu ok. 14 μm . W późniejszych rozdziałach źródło to będzie nazywane „źródłem Alfa 2”. Wszystkie napromieniania z użyciem źródła Alfa 2 (poza tymi gdzie w tekście jasno zaznaczono, że nie stosowano kolimacji) z użyciem źródła Alfa 2 były prowadzone z wykorzystaniem opisanego wcześniej kolimatora.



Rysunek 3.3. Próbkę z LiF napromieniana cząstkami alfa ze źródła Am-241 o aktywności 40 kBq z wykorzystaniem kolimatora.

Źródło promieniowania beta

Wykorzystane zostało źródło beta Sr-90/Y-90. Moc dawki wynosiła 0.324 kGy/h, a źródło zainstalowane było w napromieniaczu (Rysunek 3.4).



Rysunek 3.4. Napromniacz wyposażony w źródło promieniowania beta Sr-90/Y-90.

Jony

W części pomiarów wykorzystane zostały kryształy LiF napromienione wysokoenergetycznymi jonami. Napromieniania prowadzone były w akceleratorze jonów HIMAC (Heavy Ion Medical Accelerator in Chiba) w Japonii oraz w Heidelberg Ion-Beam Therapy Center (HIT) w Niemczech. Próbkki napromieniane były jonami helu, węgla, tlenu, neonu, krzemu i żelaza. Część napromieniań była także prowadzona z użyciem specjalnych absorberów z PMMA mających na celu zmniejszenie energii cząstek. W ramach pracy doktorskiej wykorzystywane były jedynie kryształy napromienione jonami żelaza i krzemu (napromieniania w akceleratorze HIMAC), oraz tlenu (napromieniania w centrum HIT). Parametry wiązek jonów wykorzystanych do napromienienia próbek zostały przedstawione w Tabeli 3.1. Zasięg cząstek w LiF wyznaczony został za pomocą kodu SRIM [70].

Tabela 3.1. Parametry wiązek jonów wykorzystanych do napromienienia kryształów LiF.

Jony	Energia nominalna [MeV/n]	Energia rzeczywista [MeV/n]	LET LiF [keV/μm]	LET H ₂ O [keV/μm]	Zasięg w LiF [mm]
²⁸ Si	490	441.3	121.3	57.0	64.3
⁵⁶ Fe	500	412.5	423.3	199.0	34.3
¹⁶ O	104	93.8	104.2	48.6	8.1

Promieniowanie gamma

Napromieniania promieniowaniem gamma zostały zrealizowane w akredytowanym Laboratorium Wzorcowania Przyrządów Dozymetrycznych w Instytucie Fizyki Jądrowej. Laboratorium posiada trzy źródła Cs-137. Aktywność najsilniejszego z nich wynosi 2 TBq. Zakres mocy dawki, który możliwy jest do uzyskania, wynosi od 1 μ Gy/h do 1 Gy/h.

Neutrony

Napromieniania neutronami realizowane były przy użyciu źródła Pu-Be. Emisja w pełny kąt bryłowy wynosiła ok. 10^6 neutronów/s. Neutrony ze źródła były spowalniane dzięki zastosowaniu warstwy polietylenu o grubości około 5 cm.

3.3. Rejestracja obrazów mikroskopowych

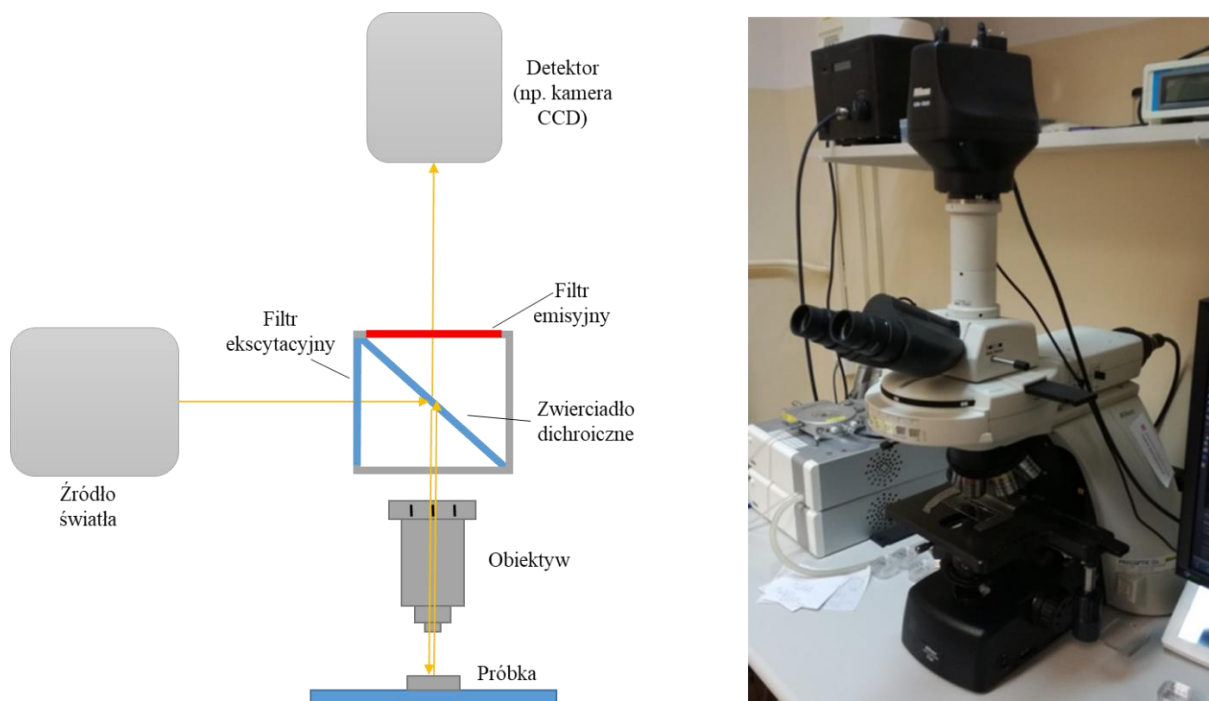
3.3.1. Mikroskop fluorescencyjny

Mikroskop fluorescencyjny to mikroskop świetlny, którego działanie oparte jest na zjawisku fluorescencji lub fosforescencji. Oświetlenie obserwowanej próbki światłem o odpowiedniej długości fali sprawia, że generuje ona własne światło. Może to wynikać z naturalnych właściwości obserwowanego materiału (jak np. w przypadku napromienionych promieniowaniem jonizującym kryształów fluorku litu) lub być wynikiem wprowadzenia do próbki tzw. znacznika fluorescencyjnego. Podstawowe elementy, z których zbudowany jest mikroskop fluorescencyjny pokrywają się z elementami tradycyjnego mikroskopu świetlnego. Głównymi różnicami są natomiast źródło światła, które w przypadku mikroskopu fluorescencyjnego musi emitować światło o znacznie większej intensywności, a także zastosowanie specjalnych filtrów emisyjnych i ekscytacyjnych mających na celu rozróżnienie światła emitowanego przez próbkę od światła wzbudzającego [71].

Większość mikroskopów fluorescencyjnych to tzw. mikroskopy epi-fluorescencyjne. W tym ustawieniu wzbudzenie i obserwacja próbki zachodzą z tej samej strony (światło emitowane „podróżuje” w przeciwnym kierunku niż światło wzbudzające). Światło wzbudzające przechodzi przez filtr ekscytacyjny i zwierciadło dichroiczne, a następnie jest skupiane na próbce przy użyciu obiektywu (który pełni rolę kondensora). Obiektyw jest używany także w celu zebrania i skupienia światła emitowanego przez wzbudzoną próbkę. Po przejściu przez zwierciadło dichroiczne i filtr emisyjny światło trafia do detektora. Taki układ, w porównaniu

z mikroskopem trans-fluorescencyjnym, czyli takim, w którym światło przechodzi przez próbkę i jest rejestrowane po jej drugiej stronie, zapewnia znacznie lepszą zdolność do rozdzielania światła emitowanego i wzbudzającego [71].

Schemat mikroskopu fluorescencyjnego został przedstawiony na Rysunku 3.5.



Rysunek 3.5. Po lewej stronie: schemat mikroskopu fluorescencyjnego szerokiego pola. Po prawej stronie: mikroskop szerokiego pola Nikon Eclipse Ni w układzie z kamerą CCD DS-Qi2.

Wykorzystywany w ramach pracy doktorskiej mikroskop fluorescencyjny to mikroskop szerokiego pola Nikon Eclipse Ni w układzie z kamerą CCD DS-Qi2. W mikroskopach szerokiego pola jednocześnie oświetlana jest duża część próbki (duże pole widzenia) lub nawet cała próbka. Pozwala to na szybkie i łatwe wykonanie zdjęć mikroskopowych dużych fragmentów próbki. Dla porównania skanujące mikroskopy konfokalne oświetlają w danym momencie tylko bardzo mały punkt i w celu uzyskania obrazu konieczne jest skanowanie większego obszaru próbki. Pozwala to na osiągnięcie lepszego kontrastu oraz rozdzielczości przestrzennej. Z drugiej strony pomiary są jednak czasochłonne i skomplikowane [72].

Jednym z najważniejszych elementów układu mikroskopu fluorescencyjnego jest źródło światła. Musi ono zapewniać promieniowanie świetlne o dużej intensywności w zakresie długości fali wzbudzającej odpowiedniej dla danego materiału. Źródło światła powinno także zapewniać równomierne oświetlenie próbki w polu widzenia. Tradycyjnie, najczęściej stosowanymi źródłami światła stosowanymi w mikroskopach fluorescencyjnych były ksenonowe lub rtęciowe lampy łukowe [73]. Mają one jednak wiele wad. Zalicza się do nich

między innymi krótki czas pracy, niestabilność i konieczność stosowania filtrów w celu filtracji niechcianej części widma. Z tych powodów lampy łukowe coraz częściej zastępowane są przez wysokowydajne diody elektroluminescencyjne (LED). Źródła LED również są stabilnym źródłem światła o wysokiej intensywności, ale pobierają mniej energii i generują mniej ciepła od lamp ksenonowych lub rtęciowych. Mają także dłuższy czas pracy oraz generują światło w wąskim zakresie długości fali co znacząco upraszcza proces filtrowania odpowiedniej długości fali wzbudzającej [74]. Źródło światła stosowane w używanym podczas badań mikroskopie to system oświetleniowy pE-100 wyposażony w LED o długości fali 440 nm (CoolLed).

Kolejnym elementem mikroskopu fluorescencyjnego jest układ filtrów i zwierciadła dichroicznego. Odpowiedni dobór filtrów jest niezwykle ważny, ponieważ pozwala na oddzielenie światła emitowanego przez próbkę od światła wzbudzającego. W przypadku filtrów ekscytacyjnych najczęściej używa się filtrów pasmowoprzepustowych. Jako filtrów emisyjnych używa się czasami filtrów górnoprzepustowych, które blokują jedynie światło w zakresie fali wzbudzającej, a pozwalają na rejestrację całego światła emitowanego przez próbkę w całym zakresie. Bardzo często filtry emisyjne i ekscytacyjne wraz ze zwierciadłem dichroicznym umieszczone są w jednym bloku optycznym, nazywanym czasem kostką. Taki układ zapewnia stałą geometrię i zmniejsza rozpraszanie wiązki światła [72].

Używane filtry oraz zwierciadło zostały przedstawione w Tabeli 3.2.

Tabela 3.2. Elementy optyczne wykorzystywane w realizowanych w ramach pracy badaniach.

Rodzaj elementu optycznego	Nazwa	Charakterystyka elementu optycznego
Filtr emisyjny górnoprzepustowy	ET 570 LP	przepuszcza światło o długości fali powyżej 570 nm
Filtr emisyjny górnoprzepustowy	ET 515 LP	przepuszcza światło o długości fali powyżej 515 nm
Filtr emisyjny pasmowoprzepustowy	HQ 535/30	przepuszcza światło w zakresie długości fali 535 nm \pm 30 nm
Filtr ekscytacyjny pasmowoprzepustowy	ET 445/30	przepuszcza światło w zakresie długości fali 445 nm \pm 30 nm.
Zwierciadło dichroiczne	FF506 – Di03	odbija światło o długości fali krótszej niż 506 nm i przepuszcza światło o długości fali dłuższej niż 506 nm

Podczas pomiarów bardzo ważny jest także dobór odpowiedniego obiektywu. Ma on wpływ nie tylko na równomierne oświetlenie całego pola widzenia, ale także na powiększenie i rozdzielczość obserwowanego obrazu. Podczas prowadzonych badań wykorzystywane były dwa obiektywy:

- 5x TU Plan (NA 0.15);

- 100x TU Plan ELWD (NA 0.80).

W układ mikroskopu wchodzi także specjalny, w pełni zmotoryzowany stolik, na którym umieszcza się szkiełko z próbkami, pozwalający na precyzyjny ruch w płaszczyźnie poziomej. Korpus mikroskopu umożliwia także poruszanie stolikiem w płaszczyźnie pionowej. Ruchem stolika w obu płaszczyznach można sterować z poziomu oprogramowania komputerowego. Dzięki temu możliwa jest zmiana głębokości ogniskowania oraz przesuwanie próbki o zadaną odległość bez konieczności dotykania jej bezpośrednio.

Mikroskop znajdujący się w IFJ PAN wyposażony jest w kamerę CCD DS-Qi2. Posiada ona cyfrową, monochromatyczną chłodzoną matrycę CMOS formatu FX. 16.25-megapikselowy sensor został zoptymalizowany pod kątem obrazowania fluorescencyjnego i charakteryzuje się wysoką czułością oraz niskim poziomem szumów. Wraz z oprogramowaniem Nikon NIS-Elements, kamera CCD DS-Qi2 umożliwia prowadzenie obserwacji w czasie rzeczywistym, a także zapis otrzymanych obrazów.

Poza rejestracją pojedynczych obrazów na określonej głębokości, możliwa jest także rejestracja tzw. **stosów obrazów** (z ang. stacks), czyli serii obrazów uzyskanych z ostrością ustawioną na różnej głębokości w kryształach. Pierwsze zdjęcie w stosie robione jest zazwyczaj z ostrością ustawioną ponad powierzchnią próbki, a kolejne z ostrością ustawioną na coraz większej głębokości w próbce, z zadanym krokiem. Rejestrując stosy obrazów mikroskopowych możliwa jest rejestracja całego śladu.

Z zarejestrowanego stosu obrazów można sporządzić **projekcję maksymalnej intensywności (MIP)**. W MIP każdej wartości XY przypisywana jest maksymalna wartość piksela wzdłuż osi Z (w głąb próbki). Części obrazu, które są ostre, mają większą jasność niż części nieostre. W związku z tym, wykonanie MIP pozwala na uzyskanie rzutowania obrazu śladu na płaszczyznę równoległą do powierzchni detektora.

3.3.2. Analiza obrazów mikroskopowych – parametry śladów

Korzystając z oprogramowania Nikon NIS-Elements wykonywano tylko podstawową analizę obrazów mikroskopowych. Dalsza analiza odbywała się przy użyciu oprogramowania ImageJ (z interfejsem Fiji). Jest to oprogramowanie typu open source umożliwiające przetwarzanie i analizowanie obrazów naukowych. Oprogramowanie można rozszerzać poprzez pobieranie lub tworzenie własnych pluginów, makr i skryptów [75].

Obrazy z mikroskopu zapisywane są w formacie nd2. Rozmiar obrazu to 1608x1608 pikseli. Dla obrazów rejestrowanych z obiektywem 100x, kalibracja wynosi 0.074 μm /piksel. Obrazy rejestrowane są w skali szarości, a ich głębia bitowa to 14 bitów. Oznacza to, że każdy piksel może przyjmować wartość z zakresu od 0 do 16383.

Poniżej przedstawiono algorytmy, według których wyznaczone były najczęściej wykorzystywane w rozprawie doktorskiej parametry poszczególnych śladów i całych obrazów.

- **Wyznaczanie jasności śladu**

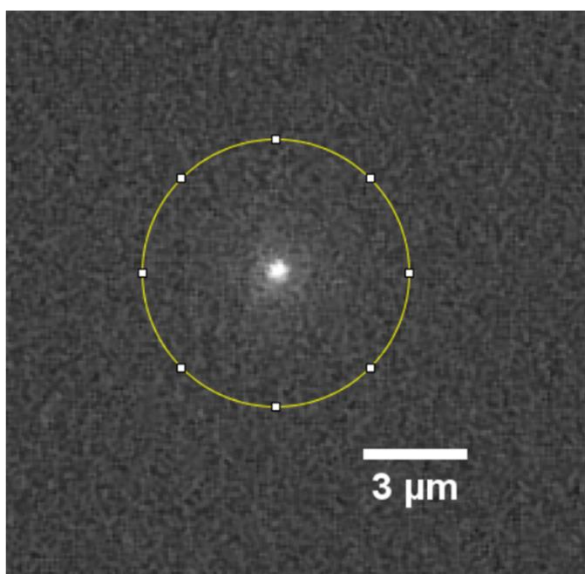
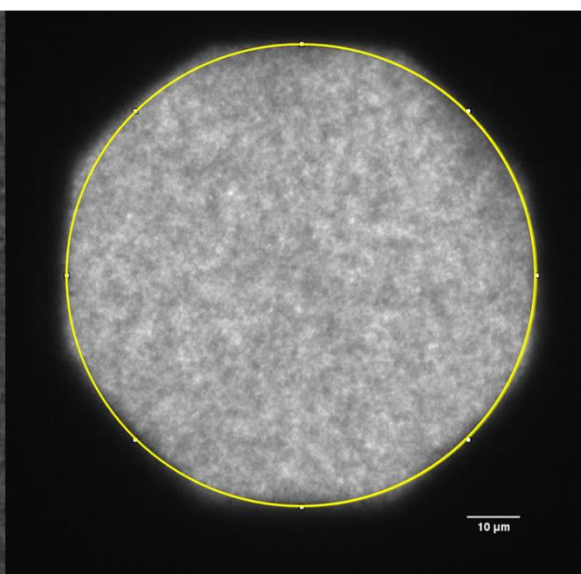
W rozprawie wprowadzone zostały następujące definicje dotyczące jasności śladów:

- maksymalna intensywność śladu – to maksymalna wartość piksela w śladzie;
- tło lokalne śladu – to wartość modalna intensywności w kole o promieniu 50 pikseli (ok. 3.5 μm) wokół śladu (piksela o maksymalnej wartości) – patrz Rysunek 3.6.a). Tło wyznaczone jest lokalnie, a nie w całym obrazie, ze względu na występujące niejednorodności, które wynikać mogą np. z uszkodzeń i zabrudzeń powierzchni;
- jasność śladu – to różnica maksymalnej intensywności śladu oraz tła lokalnego.

W porównaniach najczęściej wykorzystywana jest jasność śladu, ponieważ jest to wartość niezależna od niejednorodności tła.

- **Wyznaczanie średniej jasności w polu widzenia**

W przypadku kiedy nie jest możliwe rozróżnienie pojedynczych śladów, ze względu na ich zbyt dużą ilość, zamiast jasności śladów wyznaczana jest średnia jasność w polu widzenia. Wartość ta jest wyznaczana jako średnia intensywność w kole o średnicy 90 μm (Rysunek 3.6.b). Średnia jasność w polu widzenia jest także wyznaczana w przypadku pomiarów tła i jest wtedy nazywana średnim tłem.

a)**b)**

Rysunek 3.6. a) Powiększony obraz pojedynczego śladu z zaznaczonym obszarem, z którego wyznaczane jest tło lokalne; b) obraz, na którym pojedyncze ślady nie są rozróżnialne, z zaznaczonym obszarem, z którego wyznaczana jest średnia jasność.

- **Wyznaczanie długości śladu**

W celu wyznaczenia długości śladu wykorzystano metodę przedstawioną w artykule dotyczącym spektrometrii cząstek alfa przy użyciu FNTD z kryształów fluorku litu [11].

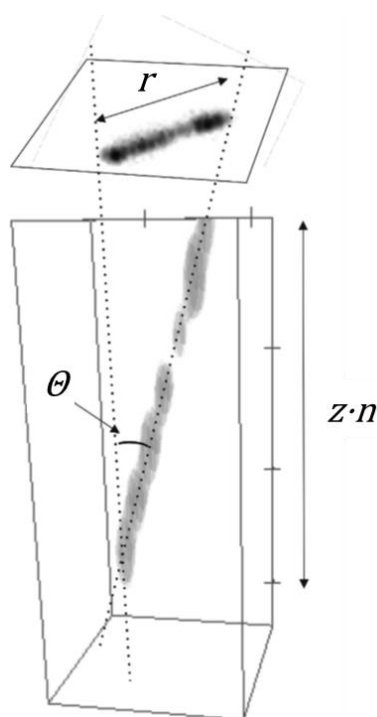
Aby zmierzyć długość śladu, konieczne jest zobrazowanie go w trzech wymiarach. Takie obrazowanie jest możliwe przy wykorzystaniu detektorów FNTD z LiF dzięki małej głębi ostrości stosowanego w mikroskopie obiektywu (100x TU Plan ELWD), wynoszącej około 1 μm. Aby wyznaczyć długość śladu, rejestrowano stosy obrazów. Pierwsze zdjęcie w stosie robione było z ostrością ustawioną ponad powierzchnią próbki, a kolejne z ostrością ustawioną na coraz większej głębokości w próbce, z krokiem co 1 μm, aż do momentu, kiedy ślady nie były widoczne. Liczba obrazów w stosie, na których ślad jest wyraźny, pozwala na estymację jego długości w płaszczyźnie prostopadłej do powierzchni próbki. Wyznaczoną liczbę (oznaczaną dalej jako z) należy pomnożyć przez współczynnik załamania dla fluorku litu wynoszący $n = 1.39$.

Długość śladu w płaszczyźnie równoległej do powierzchni śladu wyznacza się poprzez sporządzenie projekcji maksymalnej intensywności (MIP) z zarejestrowanych stosów obrazów. Otrzymany w ten sposób rzut śladu można bezpośrednio zmierzyć. Długość śladu w płaszczyźnie XY oznaczana będzie jako r . Całkowitą długość śladu (R) można wyznaczyć z wartości z i r korzystając z równania Pitagorasa:

$$R = \sqrt{[r^2 + (z \cdot n)^2]} \quad (3.1)$$

Możliwe jest także wyznaczenie kąta padania cząstki na detektor, mierzonego jako kąt pomiędzy śladem cząstki, a normalną do powierzchni detektora (Θ).

$$\Theta = \arctan\left(\frac{r}{z \cdot n}\right) \quad (3.2)$$

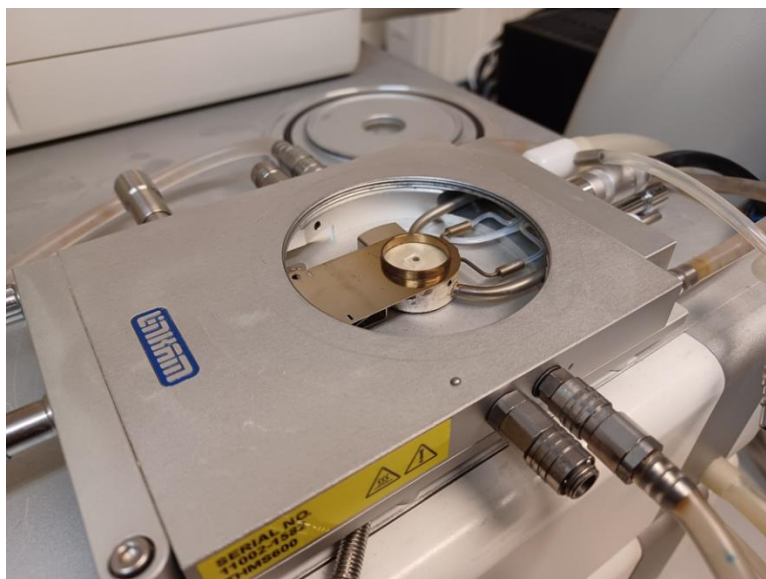


Rysunek 3.7. Schematyczne przedstawienie w 3D pojedynczego śladu cząstki alfa z zaznaczonymi parametrami z , r oraz Θ . Obraz fluorescencyjny został przedstawiony z odwrotnym kontrastem.

3.4. Pozostała aparatura

3.4.1. Stolik grzewczy

Stolik grzewczy Linkam THMS600 wykorzystywany był w części badań dotyczącej efektów temperaturowych występujących w kryształach fluorku litu. Pozwala on na uzyskanie temperatur od -196°C do 600°C z maksymalną szybkością grzania $150^{\circ}\text{C}/\text{min}$. Do stolika podłączona jest pompa obiegowa wody ECP. Stosowanie jej jest szczególnie ważne przy grzaniu powyżej 300°C przez dłuższy czas i ma na celu uniknięcie przegrzewania się metalowej obudowy stolika. Stolik THMS600 umożliwia także chłodzenie próbek poniżej temperatury pokojowej. W tym celu konieczne jest podłączenie do stolika pompy ciekłego azotu LNP95.



Rysunek 3.8. Stolik grzewczy Linkam THMS600

Stolik grzewczy może zostać zamontowany w układzie mikroskopu zamiast standardowego ruchomego stolika. Umożliwia on wtedy obserwację, w czasie rzeczywistym, próbki w podwyższonych lub obniżonych temperaturach. Konstrukcja stolika zapewnia w pewnym stopniu możliwość poruszania próbką, jest ona jednak znacznie bardziej ograniczona i nie tak precyzyjna jak w przypadku standardowego stolika mikroskopu Nikon. Możliwe jest także wykorzystanie stolika poza układem mikroskopu. Sterowanie stolikiem grzewczym odbywa się z poziomu oprogramowania mikroskopu Nikon NIS-Elements, w którym możliwe jest wybranie temperatury, szybkości grzania oraz włączenie, wyłączenie lub chwilowe zatrzymanie procesu grzania.

3.4.2. Spektrometr

Do pomiarów widm emisyjnych wykorzystywano spektrometr Ocean Optics QE65 PRO. Podczas pomiarów spektrometr był montowany w układzie mikroskopu zamiast kamery. Urządzenie łączone było z układem mikroskopu za pomocą światłowodu. Zamontowanie spektrometru w ten sposób pozwala na przeprowadzenie pomiarów widmowych w takiej samej geometrii, w jakiej wykonywane są zdjęcia mikroskopowe śladów. Zmniejsza to ilość czynników, które mogą mieć wpływ na różnice między wynikami uzyskiwanymi przy użyciu tych dwóch technik pomiarowych. Do obsługi spektrometru wykorzystywano komputer z zainstalowanym dedykowanym oprogramowaniem OceanView.

Spektrometr Ocean Optics QE65 PRO wyposażony jest detektor FFT-CCD Hamamatsu z dwuwymiarowym układem pikseli (1044 w poziomie na 64 w pionie). Umożliwia on pomiar w zakresie długości fali od 200 nm do 1100 nm z maksimum wydajności kwantowej wynoszącym około 90% (wydajność kwantowa dla 250 nm to 65%).

3.4.3. Spektrofotometr absorpcyjny

Spektrofotometr absorpcyjny to urządzenie, którego zadaniem jest zmierzenie ilości światła absorbowanego przez próbkę w danym zakresie długości fali. Wiązka światła przechodzi przez monochromator, który z emitowanego światła wybiera wąskie pasmo o wybranej długości fali. Następnie światło to przechodzi przez próbkę i pada na detektor. W przypadku spektrofotometrów dwuwiązkowych światło rozdzielane jest na dwie wiązki i przechodzi przez próbkę badaną, a także przez próbkę wzorcową. W takim przypadku detektor wskazuje różnicę absorpcji między tymi dwoma próbkami.

Pomiary widm absorpcyjnych odbyły się przy użyciu spektrofotometru Varian Cary 5000 UV-Vis-NIR znajdującego się w Instytucie Fizyki PAN w Warszawie. Urządzenie wyposażone jest w dwa źródła światła: lampę wolframową i deuterową. Detektor z technologią PbSmart umożliwia pomiary w zakresie długości fali od 175 nm do 3300 nm. Spektrofotometr ma możliwość zmiany szerokości szczeliny do wartości tak niskich jak 0.01 nm. Do urządzenia dołączone jest oprogramowanie WinUV pozwalające na analizę oraz eksport uzyskanych wyników.

3.4.4. Miernik mocy światła

W celu pomiaru mocy światła i irradiancji stosowany był miernik mocy i energii światła Thorlabs, PM100 USB. Urządzenie to wyposażone jest w fotodiodeę pozwalającą na pomiary w zakresie długości fali od 350 nm do 1100 nm. Maksymalna mierzalna przez miernik moc światła wynosi 150 mW.

Najczęściej wykorzystywanym w pracy parametrem związanym z mocą światła jest irradiancja, czyli moc promieniowania świetlnego przypadająca na jednostkę powierzchni, przez którą przechodzi. Obszar oświetlany przez oświetlacz LED ma kształt quasi-okrągły i jest ograniczany jest przez wykorzystywany obiektyw, a także średnicę przysłony. Irradiancja

I wyznaczana jest jako zmierzona przy pomocy miernika moc światła P podzielona przez powierzchnię pola widzenia mikroskopu, gdzie s to średnica pola widzenia:

$$I = \frac{P}{\pi \cdot \left(\frac{1}{2}s\right)^2} \quad (3.3)$$



Rysunek 3.9. Miernik mocy światła Thorlabs PM100USB.

3.5. Standardowe procedury pomiarowe

Pomiary mikroskopowe oraz pomiary widm emisyjnych stanowiły główne źródło informacji w badaniach prowadzonych w ramach niniejszej pracy. Poniżej opisane są standardowe warunki pomiaru, które zazwyczaj były stosowane. Jeżeli przy opisie poszczególnych prowadzonych pomiarów nie zaznaczono wyraźnie, że stosowane były inne parametry, oznacza to, że zastosowano standardowe procedury. Szereg parametrów pomiarowych nie mógł być jednak zestandaryzowany, gdyż koniecznym było dostosowanie go do każdego z licznych eksperymentów i pomiarów (np. czas akwizycji obrazu mikroskopowego czy dawka promieniowania). Parametry te podane będą przy opisie poszczególnych pomiarów.

3.5.1. Pomiary mikroskopowe

Wszystkie pomiary śladów cząstek jądrowych prowadzone były z wykorzystaniem systemu oświetleniowego, wyposażonego w LED o długości fali 440 nm, oraz filtra ekscytacyjnego pasmowoprzepustowego ET 445/30. Standardowo wykorzystywano filtr emisyjny górnoprzepustowy o progu 570 nm (ET 570 LP). Obrazy rejestrowano z obiektywem o powiększeniu stukrotnym (100x TU Plan ELWD). Średnica pola widzenia wynosiła 90 μm . Obrazy prawie zawsze rejestrowane były na głębokości równej lub większej niż 3 μm pod powierzchnią detektora. Bliżej powierzchni rejestrowane były tylko obrazy będące częścią stosów obrazów rejestrowanych na różnych głębokościach. Ze względu na różnice występujące dla poszczególnych eksperymentów, głębokość rejestracji, a także czas akwizycji pojedynczego zdjęcia podawane będą w późniejszych rozdziałach. Niepewność średniej jasności śladów wyznaczana była jako odchylenie standardowe.

3.5.2. Pomiary widm emisyjnych

Pomiary widm emisyjnych odbywały się dla spektrometru zamontowanego zamiast kamery CCD w układzie mikroskopu fluorescencyjnego. W celu wzbudzenia emisji próbek fluorku litu wykorzystywane było źródło światła znajdujące się w układzie mikroskopu, czyli system oświetleniowy wyposażony w LED o długości fali 440 nm. Dodatkowo zastosowany został filtr ekscytacyjny pasmowoprzepustowy ET 445/30 oraz filtr emisyjny górnoprzepustowy o progu 515 nm (ET 515 LP). Dzięki zastosowaniu filtra emisyjnego możliwe było odcięcie z widma części pochodzącej od światła wzbudzającego. Pomiary prowadzone były z użyciem obiektywu z powiększeniem pięciokrotnym (5x TU Plan Epi).

4. Rozwój metodyki fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych przy pomocy kryształów LiF

Technika FNTD z zastosowaniem LiF powstała stosunkowo niedawno. Z tego powodu, mimo iż możliwe jest otrzymanie dobrej jakości obrazów mikroskopowych wielu rodzajów cząstek jądrowych, uzyskanie ilościowych informacji na temat rejestrowanego promieniowania jest nadal bardzo trudne. Dobrym tego przykładem są kryształy LiF ekspozycje na promieniowanie kosmiczne (patrz Rysunek 2.10.). Promieniowanie kosmiczne jest niezwykle złożone i składa się z wielu rodzajów cząstek o różnych energiach. To sprawia, że na obrazach mikroskopowych widoczne są różne rodzaje śladów, jednak bezpośrednie powiązanie ich z określonym rodzajem promieniowania, czy wyznaczenie zdeponowanej dawki jest niemożliwe na obecnym etapie rozwoju techniki FNTD z użyciem kryształów LiF. Dodatkowo nawet w przypadku omówionych wcześniej zastosowań detektorów śladowych z LiF, badania prowadzone były w ściśle kontrolowanych warunkach (np. napromieniowania prowadzone były pod ściśle określonymi kątami, obrazy mikroskopowe rejestrowane były zawsze na tej samej głębokości w kryształach, unikano długich czasów akwizycji, aby nie dopuścić do wybielenia obrazu) co nie zawsze jest możliwe w praktycznej dozymetrii.

Aby dalej rozwijać technikę FNTD z wykorzystaniem kryształów LiF konieczne jest sprawdzenie jakie parametry napromieniania i rejestracji obrazów mają wpływ na sygnał fotoluminescencyjny i czy możliwe jest zastosowanie właściwej korekty lub dobór odpowiednich warunków, które zniwelują różnice w otrzymywanych wartościach. W poniższym rozdziale opisane zostały badania przeprowadzone w celu zoptymalizowania metody pomiarowej fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych przy pomocy kryształów fluorku litu.

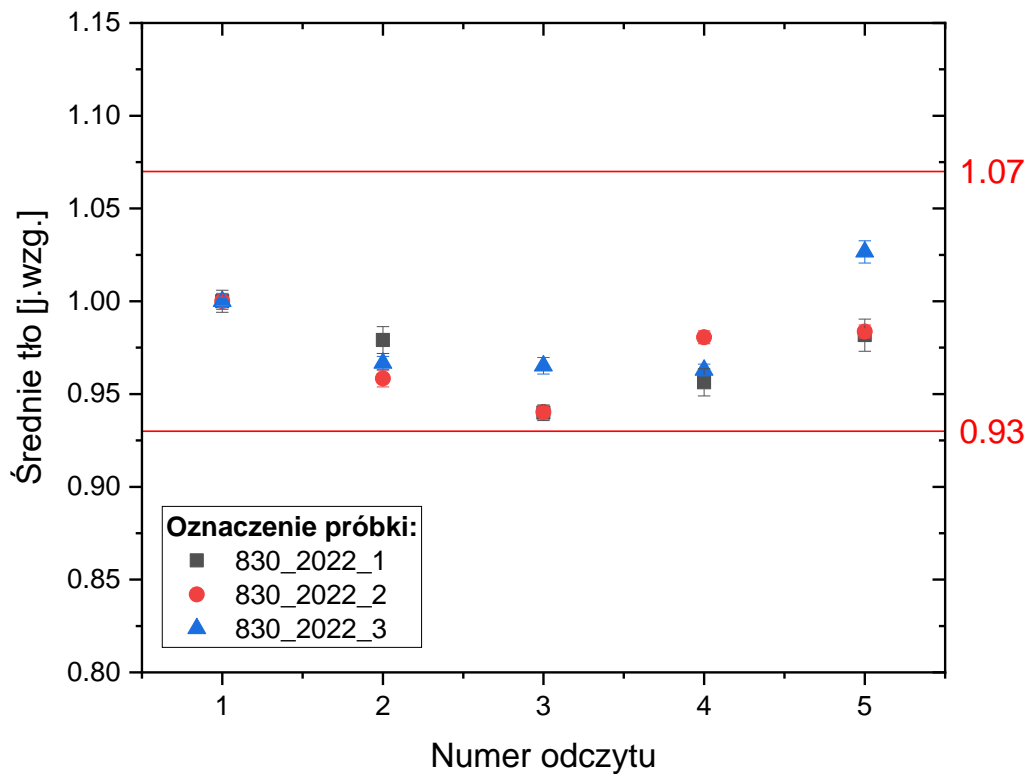
4.1. Badanie powtarzalności pomiaru

Detektory fluorescencyjne na bazie kryształów fluorku litu są detektorami wielokrotnego użytku. Zastosowanie odpowiedniego procesu anilacji, czyli wygrzewania w wystarczająco wysokich temperaturach prowadzi do całkowitego usunięcia sygnału PL. Procedurą anilacyjną, standardowo stosowaną podczas pracy z kryształami LiF w IFJ PAN, jest wygrzewanie kryształów przez 30 min w piecu, w temperaturze 450°C. Następnie próbki wyjmowane są

z pieca i szybko chłodzone poprzez umieszczenie na płycie z aluminium. W ramach pracy przeprowadzono badania mające na celu sprawdzenie, czy wielokrotnie powtarzane procesy anilacji nie mają wpływu na jasność śladów fluorescencyjnych, a także na tło próbek nienapromienionych.

Trzy nieużywane wcześniej próbki z kryształu LiF zostały poddane cyklowi kolejnych napromieniań i anilacji. Kryształy napromieniane były przy wykorzystaniu źródła Alfa 1 (fluencja cząstek $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$). Wykonano pięć cykli napromieniania próbek. Przed każdym procesem napromienienia, dla wszystkich próbek rejestrowane były trzy obrazy mikroskopowe, w różnych obszarach kryształu, i na ich podstawie wyznaczano średnie tło. Obrazy rejestrowano na głębokości 3 μm pod powierzchnią próbki. Czas akwizycji każdego z obrazów wynosił 7 s. Po każdym procesie napromieniania, dla każdej próbki rejestrowano po 5 obrazów mikroskopowych. Zastosowano taką samą głębokość pomiaru oraz czas akwizycji jak w przypadku pomiarów tła. Spośród wszystkich obserwowanych na obrazach śladów wybrano te o kształcie jak najbardziej zbliżonym do okrągłego, które pochodzą od cząstek padających niemal prostopadle do powierzchni próbki (aby zniwelować możliwy wpływ kąta padania cząstki na jasność śladu). Zmierzone maksymalną intensywność śladów oraz tło lokalne śladu i na tej podstawie wyznaczono średnią jasność śladu (zgodnie z opisem w rozdziale 3.3.2). Dla każdego pomiaru, dla każdej z próbek, zmierzono od 50 do 75 śladów.

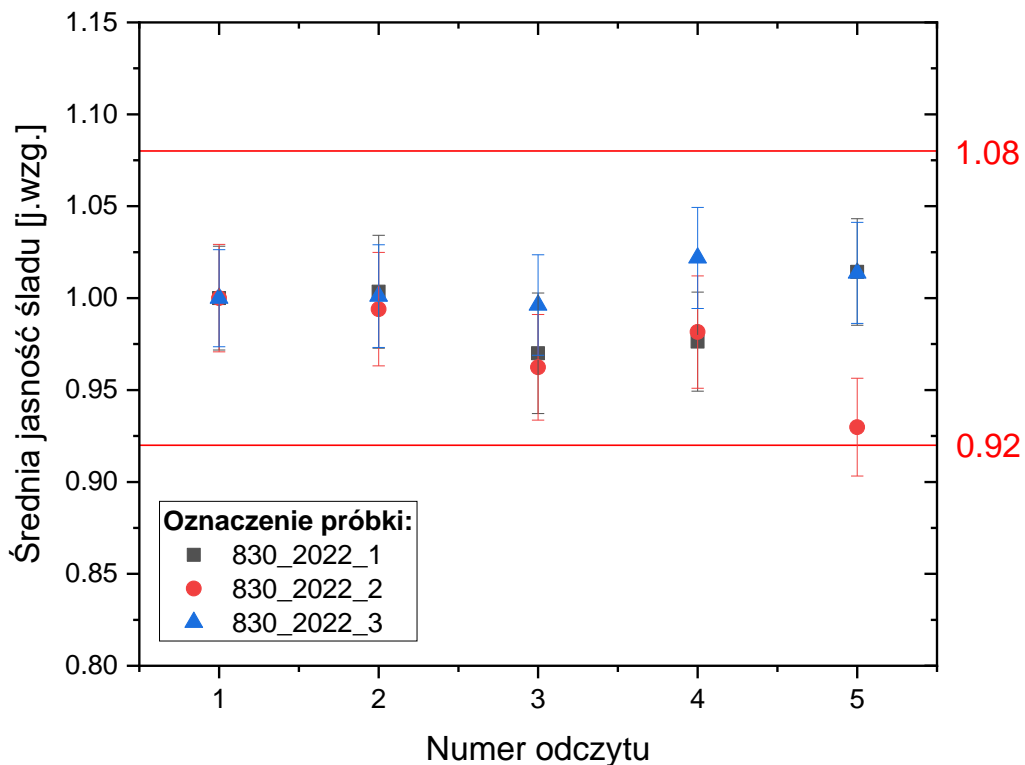
Znormalizowane do wartości uzyskanych przed pierwszym napromienieniem (odczyt 1) wartości średniego tła, dla poszczególnych próbek, zostały przedstawione na Rysunku 4.1.



Rysunek 4.1. Średnie tło wyznaczone dla kolejnych odczytów. Wartości znormalizowane do średniego tła zmierzonego przed pierwszym napromienianiem.

Czerwone linie na wykresie wyznaczają odchylenie od pierwszej zmierzonej wartości średniego tła wynoszące $\pm 7\%$. Można zauważyć, że dla wszystkich próbek średnie tło zmienia się po kolejnych procesach anilacji tylko w nieznacznym stopniu. Różnica między kolejnymi odczytami nie wynosi więcej niż kilka procent. Największe odchylenie od średniego tła wyznaczonego dla próbki przed pierwszym użyciem, zostało zaobserwowane dla próbek kryształu oznaczonych jako 830_2022_1 i 830_2022_2 i wynosiło 6%.

Na Rysunku 4.2. przedstawiono średnią jasność śladów po kolejnych cyklach napromieniania i anilacji znormalizowaną do wartości wyznaczonej dla próbki przed pierwszą anilacją (odczyt 1).



Rysunek 4.2. Średnia jasność śladów wyznaczona dla kolejnych odczytów. Wartości znormalizowane do średniej jasności śladów zmierzonej po pierwszym napromienieniu próbek.

Tak jak w przypadku średniego tła, odchylenie średniej jasności śladów, zmierzonych dla obrazów mikroskopowych po kolejnych cyklach napromieniania i anilacji, nie przekracza $\pm 8\%$ w stosunku do średniej jasności śladów zmierzonej po pierwszym napromienieniu próbek. Największe odchylenie od średniej jasności śladów zmierzonej dla odczytu 1 zaobserwowano dla próbki 830_2022_2 i wynosiło ono 7%.

Przedstawione wyniki wyraźnie potwierdzają, że kolejne cykle anilacji nie mają istotnego wpływu ani na średnie tło, obserwowane dla nienapromienionych próbek, ani na średnią jasność śladów, zmierzoną po napromienieniu próbek. Obserwowane różnice nie przekraczają kilku procent w stosunku do wartości uzyskanych dla próbek odczytywanych po raz pierwszy (niepoddanych wcześniej procesowi anilacji). Tak niewielkie różnice mogą wynikać z niewystarczającej statystyki pomiarowej, a także z doboru obserwowanego pola widzenia na próbce. Powierzchnia próbek kryształów nie jest idealnie jednorodna, znajdują się na niej drobne rysy i zabrudzenia. Te niedoskonałości mogą prowadzić do powstawania niewielkich różnic w jasności tła, a nawet do różnic w jasności śladów. Ponieważ nie zaobserwowano żadnego wyraźnego trendu w zmianach obserwowanych dla średniej jasności śladów, ani dla

średniego tła, można stwierdzić, że nie są one spowodowane kolejnymi procesami anilacji. Oznacza to, że detektory FNTD z LiF mogą być z powodzeniem stosowane wielokrotnie, przy użyciu omawianego powyżej procesu anilacji.

Zauważono jednak, że kolejne procesy wygrzewania detektorów w piecu mogą prowadzić do zwiększenia zanieczyszczeń powierzchni próbek kryształów przez osadzanie się nie niej pyłków. Aby zminimalizować to zjawisko, anilację prowadzi się umieszczając detektory na płycie aluminiowej oraz osłaniając je od góry folią aluminiową, w taki sposób aby folia nie stykała się z powierzchnią próbek.

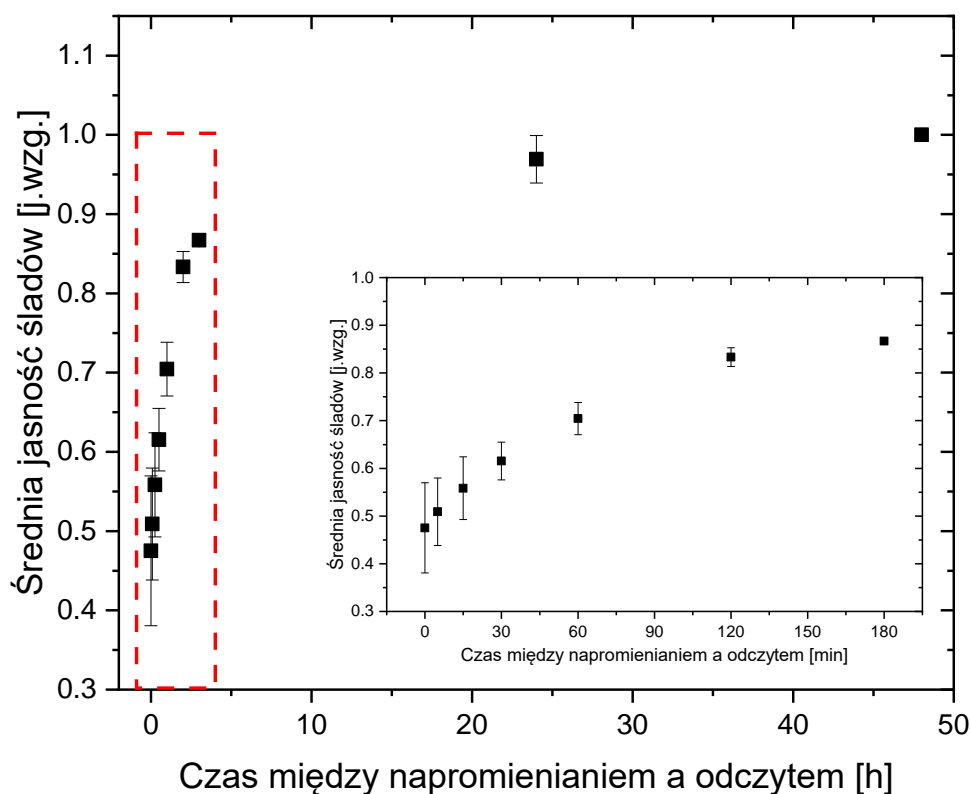
4.2. Wpływ czasu po napromienianiu na jasność śladów

We fluorku litu, tak jak w niektórych innych materiałach luminescencyjnych, zaobserwowano zjawisko narastania intensywności fotoluminescencji w czasie po zakończeniu napromieniania [76], [77]. Proces ten może trwać od kilku minut do nawet kilkunastu godzin. Jest on spowodowany reakcjami zachodzącymi między defektami, takimi jak łączenie się ze sobą defektów oraz pułapkowanie i uwalnianie elektronów. Czas, po którym sygnał fotoluminescencyjny stabilizuje się, zależy od rodzaju materiału, a także od koncentracji centrów barwnych oraz od temperatury [50].

Sprawdzono, jak czas pomiędzy zakończeniem napromieniania detektorów FNTD z LiF, a rejestracją obrazów mikroskopowych, wpływa na średnią jasność śladów cząstek jądrowych. W tym celu trzy próbki kryształów zostały napromienione cząstkami alfa ze źródła Alfa 1 (fluencja cząstek $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$). Następnie, dla każdej próbki wykonywano zdjęcia z użyciem mikroskopu fluorescencyjnego. Obrazy rejestrowane były bezpośrednio po napromienieniu oraz po upływie zadanego czasu od zakończenia napromieniania. Pomędzy kolejnymi pomiarami, próbki przechowywane były w warunkach normalnych, w temperaturze pokojowej. Najdłuższy czas, pomiędzy zakończeniem napromieniania, a rejestracją obrazów wynosił 48 h (czas wybrano na podstawie wcześniej publikowanych badań [76]). W przypadku każdorazowej obserwacji mikroskopowej rejestrowano 5 obrazów w różnych obszarach próbki. Zdjęcia wykonywane były na głębokości 3 μm , a czas akwizycji wynosił 2 s. Ze wszystkich obserwowanych śladów, przy wyznaczaniu średniej jasności śladów, uwzględniano jedynie ślady pochodzące od cząstek padających niemal prostopadle do powierzchni próbki. Dla każdej z próbek, dla każdego z wybranych czasów po zakończeniu napromieniania zmierzono

ok. 60 – 70 śladów. Średnia jasność dla każdej próbki została znormalizowana do wyników uzyskanych po 48 h. Wyniki otrzymane dla trzech próbek zostały następnie uśrednione.

Wyniki przedstawione zostały na Rysunku 4.3. Fragment wykresu, przedstawiający zmiany zachodzące w czasie trzech pierwszych godzin po zakończeniu napromieniania (zaznaczony czerwoną przerywaną linią na wykresie) został dodatkowo powiększony.



Rysunek 4.3. Zmiany średniej jasności śladów w czasie po zakończeniu napromieniania. Wyniki znormalizowane do wartości uzyskanych po 48 h. Fragment wykresu zaznaczony czerwoną linią, na którym przedstawione są zmiany zachodzące w ciągu pierwszych 3 h, został dodatkowo powiększony.

W ciągu pierwszych kilku godzin po zakończeniu napromieniania wyznaczona średnia jasność śladów znacząco wzrasta. Zaraz po zakończeniu napromieniania jasność wynosiła niecałe 50% jasności po 48 h, natomiast po upływie 3 h wzrosła do 86%. Po upływie tego czasu szybkość wzrostu sygnału fotoluminescencyjnego znacząco spada. Zmiana jasności śladów pomiędzy obrazami zarejestrowanymi po 24 h i 48 h mieści się w zakresie błędu pomiarowego.

Uzyskane wyniki jednoznacznie potwierdzają występowanie efektu narastania sygnału PL wraz z upływem czasu po zakończeniu napromieniania. W przypadku obserwacji wykonywanych na różnych próbkach zaobserwowano dość duże różnice w szybkości narastania jasności śladów.

Dodatkowo duży wzrost jasności w pierwszych kilku godzinach sprawia, że nawet obrazy zarejestrowane w jednej serii pomiarowej mogą znacząco różnić się od siebie, ze względu na upływ czasu pomiędzy akwizycją kolejnych obrazów. Z tego względu nie zdecydowano się na wprowadzenie współczynników poprawkowych, które, poprzez znormalizowanie uzyskanych jasności średnich, pozwalałyby na prowadzenie obserwacji mikroskopowych w dowolnym czasie po zakończeniu napromieniania. Zamiast tego, przyjęto jako zasadę, aby pomiędzy napromienieniem kryształów LiF, a przystąpieniem do pomiarów, odczekać co najmniej kilkanaście godzin. W niemal wszystkich badaniach przedstawionych w niniejszej pracy czas pomiędzy napromienianiem a pomiarem wynosił co najmniej 20 h.

4.3. Zależność jasności śladów od kąta padania cząstek

Jasność obserwowanych śladów wykazuje zależność od kąta, pod jakim cząstka pada na detektor FNTD [78], [79]. Wynika to z tego, że mikroskop rejestruje nie tylko światło docierające z głębokości, na której jest zogniskowany, ale także z warstw leżących poniżej i powyżej. Podczas obserwacji śladów prostopadłych do powierzchni, fotoluminescencja emitowana spoza głębokości ogniskowania mikroskopu dodaje się do rejestrowanego obrazu śladu, zwiększając jego jasność. Im bardziej tor cząstki jest oddalony od kierunku prostopadłego, tym mniejszy jest przyczynek od światła docierającego do kamery spoza obszaru ustawionej ostrości. Z tego powodu nie można porównywać ze sobą bezpośrednio jasności śladów pochodzących od cząstek padających na detektor FNTD pod różnymi kątami.

Podczas napromieniań cząstkami alfa, wykonywanych w ramach niniejszej pracy, stosowane były kolimatory, których zadaniem była zarówno eliminacja cząstek, które padałyby na detektor pod dużymi kątami, jak i zapewnienie powtarzalnej geometrii napromieniania i dystansu między źródłem a napromienianym kryształem, oraz zmniejszenie strumienia cząstek.

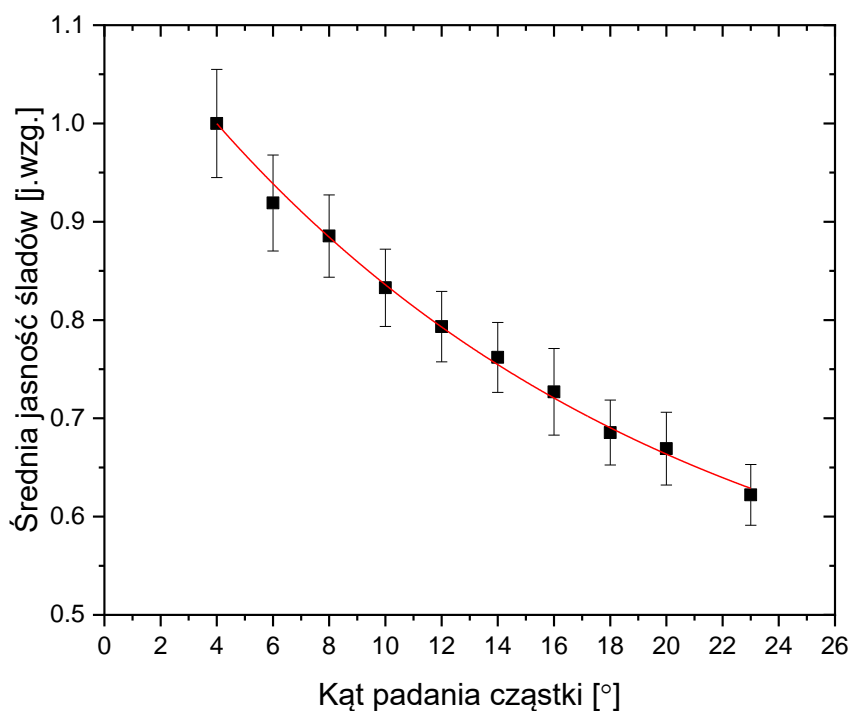
Sprawdzono, czy stosowanie kolimatorów umożliwia wybór cząstek w stopniu niwelującym wpływ kąta na średnią jasność śladów. W tym celu, trzy próbki z kryształu fluorku litu napromieniono cząstkami alfa ze źródła Alfa 2 z zastosowaniem kolimatora opisanego w rozdziale 3.2. Fluencja cząstek wynosiła ok. $5.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$. Dla każdej z próbek przeprowadzono trzy serie napromieniania, odczytu z użyciem mikroskopu fluorescencyjnego i anilacji przez pół godziny w 450°C (sekwencja taka sama jak w przypadku badania powtarzalności). Dla każdego detektora, po kolejnym napromienianiu rejestrowano 9 lub 10

stosów obrazów mikroskopowych w różnych miejscach na próbce. Każdy stos składał się z 17 zdjęć. Pierwsze zdjęcie wykonywano z ostrością ustawioną ponad powierzchnią detektora, a następnie dla kolejnych zdjęć ostrość ustawiana była z krokiem co 1 μm w głąb próbki. W ten sposób możliwe było zarejestrowanie całych śladów. Czas akwizycji pojedynczego zdjęcia wynosił 7 s. Zmierzono długość śladów i kąt pod którym cząstka padała na detektor, przy użyciu metody opisanej w rozdziale 3.3.2.

Łącznie dla wszystkich próbek zmierzono 2137 śladów, pochodzących od cząstek padających na detektory pod kątami z zakresu od 2.5° do 28° . Kąt mierzony był jako kąt pomiędzy torem ruchu cząstki (lub kierunkiem śladu), a normalną do powierzchni detektora. Ślady pogrupowane zostały ze względu na kąt padania. Dla śladów, których nachylenie wynosi mniej niż 5° bardzo ciężko jest wyznaczyć rzeczywistą długość śladu w płaszczyźnie równoległej do powierzchni kryształu (ślad jest w przybliżeniu punktem), a co za tym idzie, dokładnie wyznaczyć kąt padania. Z tego względu wszystkie ślady pochodzące od cząstek padających pod kątem mniejszym niż 5° zostały zgrupowane razem. Kolejne grupy były dzielone co 2 stopnie (czyli od 5° do 7° , od 7° do 9° itd.) aż do 21° . Ze względu na zastosowanie kolimacji, liczba śladów nachylonych pod kątem większym niż 21° była niewielka, a kąt nachylenia zazwyczaj nie przekraczał 23° . Wobec tego postanowiono wszystkie ślady pochodzące od cząstek padających pod kątem większym niż 21° zebrać w jedną kategorię.

Jasność śladu mierzona była na jednej, ustalonej głębokości pod powierzchnią detektora, wynoszącej 5 μm . Dla wszystkich próbek wyznaczono oddzielnie średnie jasności śladów dla poszczególnych grup kątów padania, które znormalizowano do jasności wyznaczonej dla śladów o kącie nachylenia $<5^\circ$. Następnie wyniki uśredniono dla trzech próbek. Niepewność pomiaru uwzględnia odchylenie standardowe od średnich wartości jasności uzyskanych dla kolejnych kategorii dla różnych próbek, a także niepewność związaną z wykorzystaniem trzech różnych próbek.

Na Rysunku 4.4. przedstawione zostały średnie jasności śladów dla kolejnych grup kątów. Kolejne punkty przedstawiają średnie jasności śladów dla poszczególnych grup kątów, znormalizowane do średniej jasności dla grupy $<5^\circ$. Wartości punktów na osi X odpowiadają wartościom średnim kąta nachylenia dla kolejnych grup śladów. Dla grup z zakresu kątów od 5° do 21° był to zawsze środek przedziału (czyli np. przedział od 5° do 7° został zaznaczony na osi X jako 6°). Dla grupy $<5^\circ$ średnie nachylenie wynosiło 4° , natomiast dla grupy $\geq 21^\circ$, 23° .



Rysunek 4.4. Zależność średniej jasności śladów od kąta padania cząstki. Wyniki znormalizowane do średniej jasności śladów o kącie nachylenia $<5^\circ$.

Do danych pomiarowych dopasowana została funkcja eksponencjalna o następującym wzorze:

$$y = 0.448 + 0.698 \cdot \exp(-0.059 \cdot \theta) \quad (4.1)$$

Zauważyć można, że zwiększenie kąta padania cząstek na detektor powoduje znaczne zmniejszenie średniej jasności śladów. Przy średnim kącie padania wynoszącym 20° średnia jasność śladów wynosi mniej niż 70% średniej jasności śladów cząstek padających w przybliżeniu prostopadle do powierzchni. Można wobec tego stwierdzić, że nawet po zastosowaniu kolimatora, ślady widoczne na obrazach mikroskopowych mogą mieć różną jasność ze względu na kąt padania. Z tego powodu nie można bezpośrednio porównywać jasności śladów pochodzących od cząstek padających po różnych kątami.

Aby uniezależnić średnią jasność śladów od kąta padania cząstek można zastosować jedną z dwóch opisanych poniżej metod:

1. Zastosowanie współczynników poprawkowych

Zastosowanie tej metody pozwala na wykorzystanie do pomiarów wszystkich (lub większości) śladów widocznych na zarejestrowanych obrazach mikroskopowych, niezależnie od kąta pod

jakim padają cząstki. Aby móc z niej skorzystać konieczne jest jednak wyznaczenie kąta nachylenia każdego z mierzonych śladów. W związku z tym, niezbędne jest zarejestrowanie stosu obrazów w głąb próbki, tak by objąć cały ślad. Następnie należy zmierzyć ślad w płaszczyźnie prostopadłej i równoległej do powierzchni kryształu i wyznaczyć kąt padania cząstki na powierzchnię. Po wyznaczeniu kątów padania cząstek i zmierzeniu ich jasności na wybranej głębokości, należy wyznaczyć średnią jasność w poszczególnych kategoriach kątów (takich jak opisano powyżej) i zastosować krzywą dopasowaną na Rysunku 4.4. aby uzyskać współczynnik poprawkowy. W Tabeli 4.1. podano wartości, przez które należy pomnożyć jasność śladów o nachyleniu z poszczególnych grup, aby otrzymać wartość, która odpowiada śladowi w przybliżeniu prostopadłemu do powierzchni detektora (nachylenie $< 5^\circ$).

Zaproponowano współczynniki poprawkowe dla poszczególnych zakresów kątów padania, zamiast wprowadzenia poprawki dla ściśle wyznaczonej wartości kąta, ze względu na dość dużą niepewność w wyznaczeniu kąta padania cząstki. Pomiar długości śladu (zwłaszcza w płaszczyźnie Z) w pewnej mierze zależy od subiektywnej oceny osoby mierzącej, co może przekładać się na błędy lub niedokładności w długości śladu, a co za tym idzie zastosowanym niedokładnym współczynnikiem poprawkowym.

Tabela 4.1. Współczynniki poprawkowe dla jasności śladów z różnych grup kątów nachylenia.

Grupa kątów	Współczynnik poprawkowy
$< 5^\circ$	1.00
od 5° do 7°	1.07
od 7° do 9°	1.13
od 9° do 11°	1.20
od 11° do 13°	1.26
od 13° do 15°	1.33
od 15° do 17°	1.39
od 17° do 19°	1.45
od 19° do 21°	1.51
$\geq 21^\circ$	1.59

Znając kąty nachylenia poszczególnych śladów, można także zdecydować o wykorzystaniu tylko części z dostępnych śladów. Najczęściej wybiera się ślady z najbardziej licznych grup kątów nachylenia (np. od 5° do 15°), co pozwala na uzyskanie dobrej statystyki pomiarowej,

lub ślady pochodzące od cząstek padających pod jak najmniejszymi kątami, co pozwala na niestosowanie współczynników poprawkowych [78].

Metoda ta jest szczególnie użyteczna, jeśli nie dysponujemy dużą liczbą śladów, które można zmierzyć. W takiej sytuacji zastosowanie jej pozwala na uzyskanie dobrej statystyki dzięki porównywaniu ze sobą jasności śladów pochodzących od cząstek padających pod różnymi kątami. Niestety metoda ta jest dość czasochłonna, wymaga bowiem zmierzenia śladu w trzech wymiarach, a co za tym idzie rejestracji stosu obrazów obejmującego całą długość śladu. Takie podejście zwiększa czas pomiaru, a przy długich śladach lub przy konieczności zastosowania długich czasów akwizycji może prowadzić do znaczącego wybielania sygnału w czasie odczytu. Z tych względów, jeżeli możliwe jest wykonanie większej liczby zdjęć mikroskopowych lub zmierzenie większej liczby śladów, w praktyce stosowana jest częściej metoda druga.

2. Selekcja śladów prostopadłych do powierzchni

Zaletą tej metody jest brak konieczności rejestrowania stosów obrazów. Ślady rejestrowane na jednej, zadanej głębokości mają różne kształty w zależności od kąta pod jakim cząstka pada na detektor. Ślady pochodzące od cząstek padających w przybliżeniu prostopadle do powierzchni detektora mają okrągły kształt. W miarę zwiększania kąta padania, kształt śladu zmienia się, staje się bardziej wydłużony w jednym kierunku [80]. Wybór do analizy jedynie śladów okrągłych, pozwala na odrzucenie śladów pochodzących od cząstek padających na detektor pod dużymi kątami. Zastosowanie tej metody pozwala na wybór spośród wszystkich śladów, tych, które pochodzą od cząstek padających na detektor pod kątem $<10^\circ$. Kolimacja nie zatrzymuje cząstek wychodzących ze źródła pod kątami z tego zakresu. Z tego powodu rozkład śladów pochodzących od tych cząstek jest równomierny. Przy odpowiednio dużej liczbie mierzonych śladów, w tym zakresie wpływ kąta padania na jasność śladów uśrednia się.

Główną wadą tej metody jest wpływ subiektywnej oceny osoby mierzącej. Dodatkowo, ze względu na wybór do analizy tylko części spośród wszystkich obserwowanych śladów, w celu uzyskania dobrej statystyki konieczna jest analiza dużej liczby obrazów (ich liczba uzależniona jest od fluencji cząstek). Ponieważ jednak metoda ta jest zdecydowanie szybsza, a także nie wymaga wykonywania stosów zdjęć i mierzenia długości śladów, w późniejszych badaniach na temat efektów temperaturowych była ona częściej stosowana jako sposób na redukcję wpływu kąta padania cząstki na jasność śladu.

4.4. Zjawisko wybielania

Jak wspomniano wcześniej, pomiar fotoluminescencji LiF jest zasadniczo procesem nieniszczącym i może być wielokrotnie powtarzany dla tej samej próbki. Niemniej jednak, długotrwała ekspozycja na światło niebieskie o dużej mocy może powodować zmniejszenie intensywności PL, co nazywane jest procesem wybielania (ang. bleaching). Jednym z procesów odpowiedzialnych za występowanie wybielania jest fotojonizacja centrów F_2 , prowadząca do powstania centrów F_2^+ [81]. Udział w procesie wybielania mają także inne reakcje związane z oddziaływaniem ze sobą różnych centrów barwnych oraz nośników ładunku. Centra F_2 mogą być ponownie wytwarzane w wyniku ponownego pułapkowania uwolnionych elektronów. W przypadku kiedy koncentracja centrów F_3^+ jest większa niż koncentracja centrów F_2 , możliwe jest także zachodzenie procesu pułapkowania uwolnionych elektronów przez centra F_3^+ . Jeśli jednak koncentracja centrów F_3^+ jest znacząco mniejsza niż centrów F_2 , (tak jak w przypadku omawianych detektorów z kryształów LiF) proces ten jest mało prawdopodobny [63]. Siła wybielania zależy więc od wielu czynników, w tym od mocy światła i długość fali, a także od koncentracji poszczególnych defektów [82].

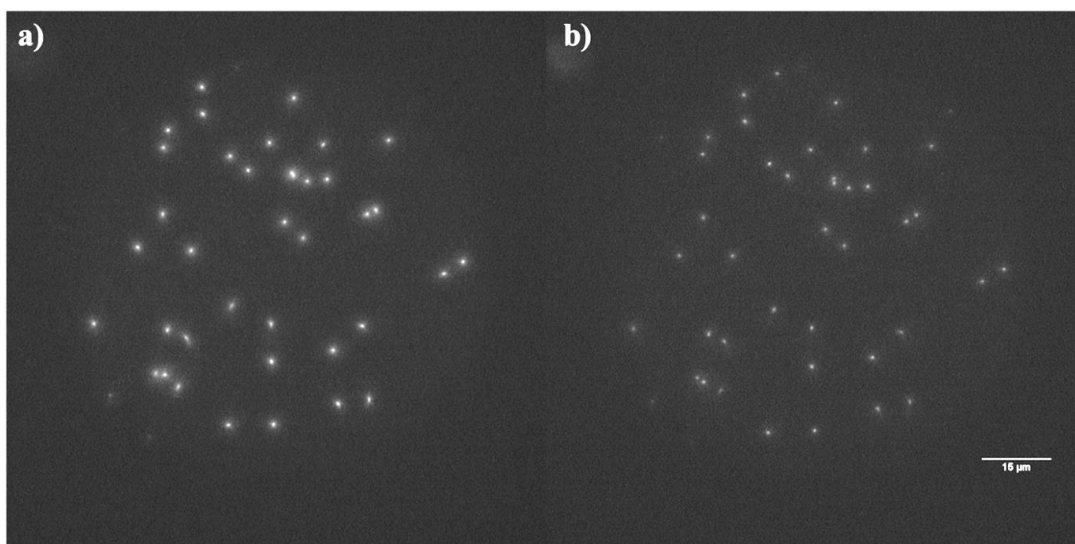
W pracy zbadano zależność średniej jasności śladów od czasu ekscytacji przy wykorzystaniu standardowo używanego systemu oświetleniowego LED o długości fali 440 nm. Moc oświetlacza ustawiona była na 100%. Irradiancja zmierzona w układzie mikroskopu, przy zastosowaniu obiektywu ze stukrotnym powiększeniem wynosiła ok. 130 mW/mm². Przeprowadzone zostały dwie serie pomiarowe: pierwsza, dla próbek napromienionych jonami żelaza Fe-56 o energii 412.5 MeV/n i zasięgu w LiF wynoszącym 34.5 mm (napromieniania przeprowadzone w akceleratorze HIMAC w Japonii) oraz druga, dla próbek napromienionych cząstkami alfa ze źródła Alfa 2. Fluencja cząstek wynosiła odpowiednio ok. 10⁵ cm⁻² dla jonów żelaza i ok. 5.5*10⁵ cm⁻² dla cząstek alfa. Czas akwizycji pojedynczego obrazu wynosił 10 s dla próbek napromienionych jonami żelaza i 5 s dla próbek napromienionych cząstkami alfa. Dzięki zastosowaniu odpowiedniej geometrii napromieniania, wszystkie ślady pochodzące od jonów żelaza były w przybliżeniu prostopadłe do powierzchni kryształu. Pozwala to na niestosowanie żadnych poprawek na kąt nachylenia śladów. W przypadku napromieniania z użyciem źródła alfa analiza została przeprowadzona tylko dla śladów o kształcie okrągłym (czyli pochodzących od cząstek padających niemal prostopadłe do powierzchni).

Pierwsza seria pomiarowa została wykonana dla próbki napromienionej jonami żelaza. Całkowity czas, przez który próbka była eksponowana na światło niebieskie, wynosił 200 s.

W ciągu tego czasu, bez zmieniania głębokości i pola widzenia, co 10 s rejestrowany był obraz. Obrazy rejestrowane były na 4 różnych głębokościach pod powierzchnią próbki: 5, 10, 15 oraz 20 μm . Łącznie zmierzono ponad 130 śladów. Jasność poszczególnych śladów mierzona była dla kolejnych obrazów i porównywana z jasnością tego samego śladu wyznaczoną dla pierwszego zdjęcia. Wyniki dla wszystkich analizowanych śladów zostały uśrednione.

Czas pojedynczej akwizycji lub serii pomiarów rzadko wynosi więcej niż 200 s. Zastosowanie takich czasów pomiaru może być jednak niezbędne dla słabo widocznych śladów, np. pochodzących od jonów helu. Z tego powodu zdecydowano się na sprawdzenie dalszego spadku jasności śladów, przy wykorzystaniu kryształu LiF napromienionego cząstkami alfa. Analiza śladów pochodzących od innych cząstek podyktowana była małą dostępnością kryształów napromienionych jonami żelaza. Zdjęcia dla próbek napromienionych cząstkami alfa wykonano przed ekspozycją na światło niebieskie, a następnie co 5 s, dla czasu ekspozycji od 200 s do 580 s, na głębokości 5 μm . Tak jak w przypadku próbek napromienionych jonami Fe-56 jasność poszczególnych śladów dla kolejnych zdjęć została porównana z początkową jasnością, a wyniki zostały uśrednione. W tej serii pomiarowej zmierzono 30 śladów.

Na Rysunku 4.5. porównane zostały 2 obrazy mikroskopowe zarejestrowane dla próbki napromienionej cząstkami alfa. Obraz przedstawiają to samo pole widzenia przed i po ekspozycji na światło niebieskie trwającej 580 s. Można zauważyć wyraźny spadek jasności śladów widocznych na obrazach.

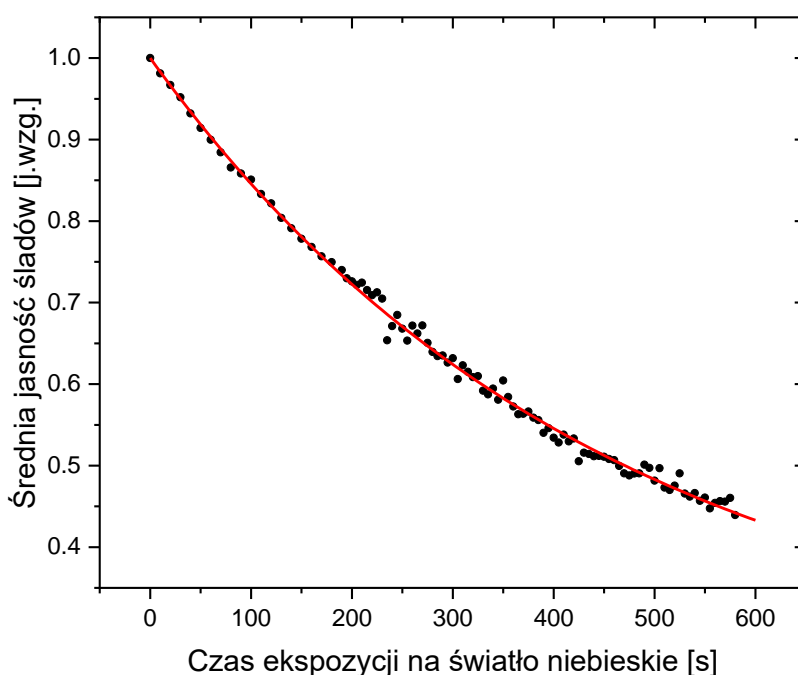


Rysunek 4.5. Obrazy mikroskopowe tego samego pola widzenia zarejestrowane dla próbki napromienionej promieniowaniem alfa: a) przed, b) po ekspozycji na światło niebieskie trwającej 580 s. Obraz zarejestrowany na głębokości 5 μm , czas akwizycji 5 s. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne obu obrazów są takie same.

Na Rysunku 4.6. przedstawiona została zależność średniej jasności śladów od czasu ekspozycji na silne światło niebieskie. Wartości znormalizowane zostały do początkowej wartości średniej jasności śladów. Do danych dopasowana została funkcja eksponencjalna o wzorze:

$$y = 0.765 \cdot \exp\left(-\frac{t}{443.850}\right) + 0.235 \quad (4.2)$$

gdzie y to znormalizowana jasność śladu mierzona dla zdjęcia wykonanego po czasie t od rozpoczęcia ekspozycji na światło niebieskie. Aby zachować czytelność wykresu, nie zaznaczono niepewności pomiarowych.



Rysunek 4.6. Wpływ czasu ekspozycji na silne światło niebieskie na średnią jasność śladów.

Na podstawie otrzymanych wyników można bezsprzecznie stwierdzić, że długotrwała ekscytacja kryształów LiF światłem o długości fali 440 nm powoduje znaczący spadek jasności obserwowanych śladów. Już akwizycja trwająca zaledwie 1 min powoduje spadek początkowo obserwowanej jasności śladów o 10%. Po 3 min jasność śladów spada do 75% wartości początkowej. Dodatkowo stwierdzono, że różnice w stopniu wybielania mierzone na różnych głębokościach pod powierzchnią próbki są zanedbywalne.

Dłuższe czasy ekspozycji (kilka minut) często są wykorzystywane podczas rejestracji stosów obrazów na różnych głębokościach pod powierzchnią kryształu, w tym samym polu widzenia. W takich przypadkach, jeżeli porównywane są ze sobą jasności śladów, obserwowanych po

różnym czasie ekspozycji na światło niebieskie, niezbędne jest zastosowanie odpowiedniej poprawki na wybielanie. Poprawka ta, wyznaczana jest na podstawie równania krzywej dopasowanej do punktów pomiarowych przedstawionych na Rysunku 4.6.

Istotnym zagadnieniem związanym ze zjawiskiem wybielania, jest wybielanie poza obszarem ostrości. Podczas pomiaru, zdjęcie wykonywane jest na określonej głębokości pod powierzchnią. Oznacza to, że światło pochodzące z oświetlacza jest ogniskowane na tej głębokości i jego moc jest największa. Obszar próbki poniżej i powyżej, oświetlany jest z mniejszą mocą, co może prowadzić do tego, że wybielanie jest tam mniejsze. Pomiary, w których czas ekscytacji próbki jest bardzo długi to zazwyczaj serie krótszych pomiarów wykonywanych na różnych głębokościach. Szczególnie istotne jest wobec tego ustalenie, czy konieczne jest wprowadzenie dodatkowej poprawki uwzględniającej różnicę głębokości między warstwą, na której skupione jest światło, a warstwą na której następnie mierzona jest zmiana jasności po dłuższej ekspozycji na światło niebieskie.

W tym celu wykonano serię pomiarów polegającą na wyznaczeniu zmiany jasności śladów zmierzonych na głębokości 5 μm przed i po ekspozycji na światło niebieskie, które skupione było na głębokościach 10 μm , 15 μm oraz 20 μm . Czas ekspozycji wynosił 200 s. Pomiary przeprowadzono dla próbek napromienionych jonami żelaza Fe-56. Czas akwizycji zdjęć wykonywanych na głębokości 5 μm wynosił 10 s. Dla każdej wybranej głębokości zmierzono około 30 śladów. Wyznaczony został średni stosunek jasności śladów przed i po ekspozycji na światło niebieskie dla wszystkich głębokości, a następnie został on porównany ze stosunkiem wyznaczonym z funkcji eksponencjalnej (równanie 4.2), opisującej wybielanie śladu po ekspozycji na światło, które skupione było na tej samej głębokości na której prowadzono pomiar. Wartość wyznaczona z funkcji eksponencjalnej wynosiła 0.72. Wyniki zostały przedstawione w Tabeli 4.2.

Tabela 4.2. Różnice między wybielaniem dla światła skupionego na głębokości pomiaru (wyznaczone z funkcji eksponencjalnej) i dla światła skupionego na różnych głębokościach.

Głębokość na której skupione było światło podczas ekspozycji [μm]	Stosunek jasności śladów przed i po ekspozycji na światło niebieskie na głębokości 5 μm	Odchylenie od wartości wyznaczonej z równania 4.2 [%]
10	0.69	4.39
15	0.70	2.54
20	0.73	-1.08

Porównanie wybielania wyznaczonego po trwającej 200 s ekspozycji na głębokości innej niż głębokość rejestracji obrazu z wartością wyznaczoną z równania 4.2 (dla której rejestracja i ekspozycja są prowadzone na tej samej głębokości) wykazało, że różnice nie przekraczają 5% przy maksymalnej różnicy w głębokościach wynoszącej 15 μm . Zauważono, że siła wybielania zmniejsza się wraz ze wzrostem różnicy między głębokością skupienia światła a głębokością pomiaru. Różnice te są jednak bardzo małe. Trzeba także zauważyć, że przedstawione wyniki dotyczą ekstremalnych przypadków, w których długotrwała ekspozycja prowadzona jest na jednej głębokości, a następnie obraz rejestrowany jest na innej, zadanej głębokości. Podczas standardowych rejestracji stosów obrazów mikroskopowych głębokość zmienia się po każdym zdjęciu, a czas akwizycji zazwyczaj jest znacznie krótszy. Z tych powodów uznano, że wpływ różnicy pomiędzy głębokością pomiaru a głębokością skupienia światła na wybielanie jest na tyle mały, że może zostać pominięty. Zdecydowano, że poprawka na wybielanie wyznaczana będzie jedynie na podstawie dopasowanej wcześniej funkcji eksponencjalnej (patrz wykres na Rysunku 4.6.).

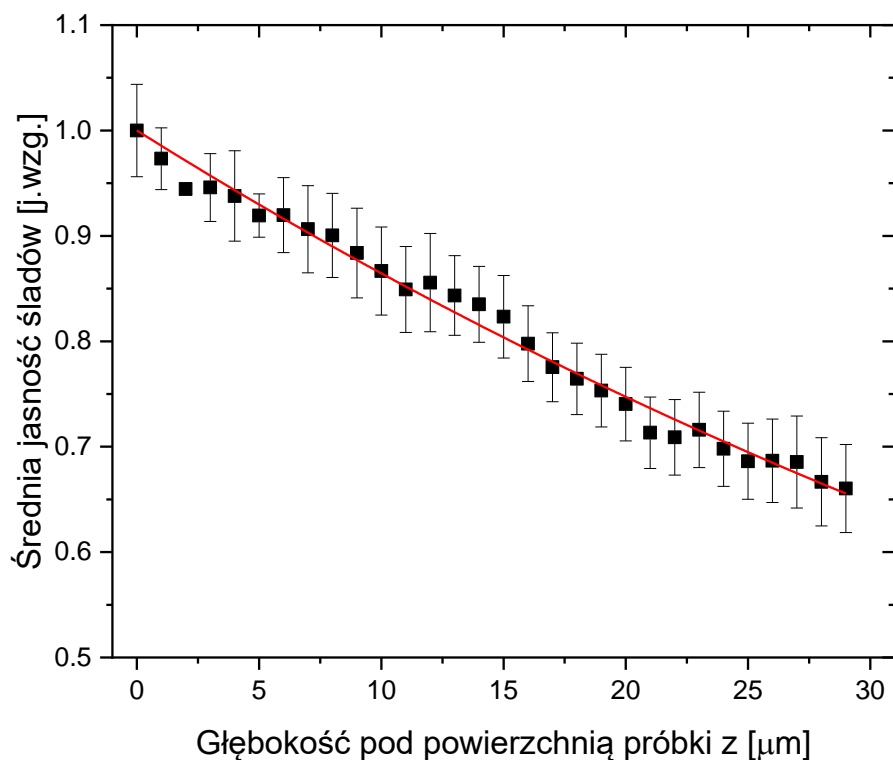
4.5. Zależność między głębokością obserwacji a jasnością śladów

Kolejnym parametrem, który ma wpływ na jasność śladów obserwowanych po napromienianiu kryształów LiF promieniowaniem jonizującym, jest głębokość pod powierzchnią próbki, na jakiej rejestrowane są obrazy. Przechodząc przez kryształ, światło ulega częściowemu pochłanianiu, co może prowadzić do zmniejszenia jasności obserwowanych śladów wraz ze zwiększaniem głębokości, na jakiej rejestrowane są obrazy mikroskopowe.

Przeprowadzono pomiary, mającą na celu określenie jak duży wpływ na zmianę jasności śladów ma głębokość, na której są one mierzone. W tym celu wykorzystano próbki LiF napromienione jonami żelaza Fe-56 (energia 412.5 MeV/n, zasięg w LiF 34.3 mm) i krzemu Si-28 (energia 441.3 MeV/n, zasięg w LiF 64.3 mm). Do analizy wybrano ślady pochodzące od tych cząstek, ponieważ ich współczynnik LET w całej objętości próbki jest w przybliżeniu stały. Fluencja cząstek wynosiła ok. 10^5 cm^{-2} . Dla napromienionych próbek prowadzone były pomiary polegające na rejestrowaniu stosu obrazów mikroskopowych. Aby zredukować wpływ wybielania, pomiary były prowadzone w dwóch seriach: pierwsza, na głębokościach od 5 μm do 29 μm z krokiem co 1 μm , oraz druga, od powierzchni kryształu do głębokości 15 μm , również z krokiem co 1 μm . Zastosowano także korektę wybielania wyznaczoną na podstawie równania 4.2. Pomiary prowadzone były zawsze od głębokości najbliższej powierzchni, w głąb

próbki. W zależności od jasności obserwowanych śladów, czas akwizycji dla jednego zdjęcia wynosił 5 s lub 10 s.

Dla każdego zmierzonego śladu wyznaczono i porównano jasność śladów na kolejnych głębokościach. Następnie wyniki dla obu serii pomiarowych zostały wspólnie znormalizowane do jasności śladu na powierzchni. Jako powierzchnię (oznaczoną jako głębokość $0 \mu\text{m}$) uznano głębokość, na której ślad jest już wyraźnie widoczny, a średnia jasność śladów jest największa. Wyznaczono wartości średnie dla wszystkich zmierzonych śladów na danej głębokości. W przypadku głębokości, które powtarzały się dla pierwszej i drugiej serii pomiarowej (od $5 \mu\text{m}$ do $15 \mu\text{m}$), uśrednione zostały wszystkie dostępne wartości. Dla każdej głębokości z mierzonego zakresu zmierzono ponad 170 śladów dla 6 różnych próbek LiF. W ostatecznej niepewności uwzględniono również odchylenie standardowe od średniej jasności na danej głębokości wynikające z różnic we własnościach poszczególnych próbek. Zależność średniej jasności śladów od głębokości, na której wykonywane jest zdjęcie mikroskopowe, znormalizowana do średniej jasności śladów na powierzchni, przedstawiona została na Rysunku 4.7.



Rysunek 4.7. Zależność średniej jasności śladów od głębokości pod powierzchnią próbki LiF. Wyniki znormalizowane do średniej jasności zmierzonej na powierzchni próbki.

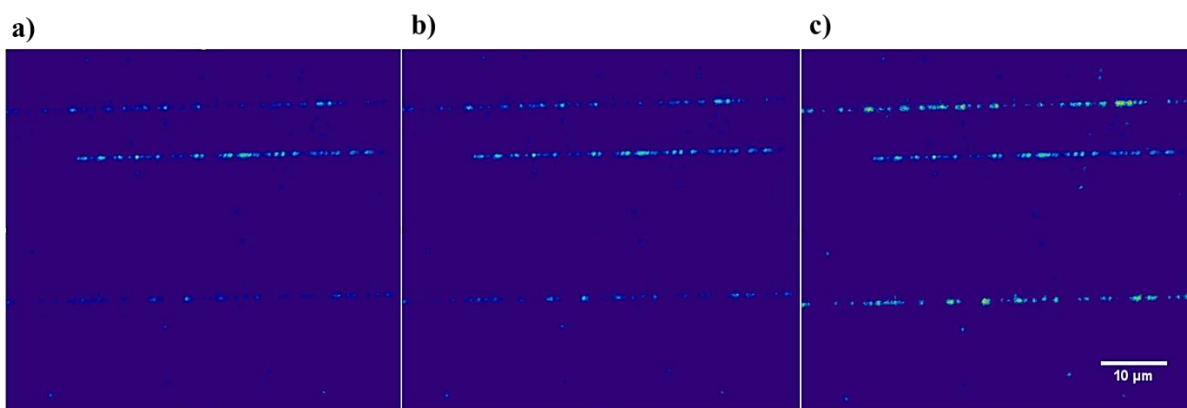
Do uzyskanych wyników dopasowana została krzywa eksponencjalna opisująca spadek jasności śladów wraz ze zwiększaniem głębokości obserwacji:

$$y = \exp(-0.015 \cdot z) \quad (4.3)$$

We wzorze, y oznacza jasność śladu na określonej głębokości z , znormalizowaną do jasności wyznaczonej na powierzchni.

Na podstawie przeprowadzonych pomiarów stwierdzono, że średnia jasność śladów w znaczącym stopniu zależy od głębokości, na której rejestrowane są obrazy mikroskopowe. W przypadku kiedy konieczne jest porównywanie ze sobą jasności śladów, zmierzonych na różnych głębokościach, niezbędne jest zastosowanie odpowiedniego współczynnika korekcyjnego.

Wyznaczone współczynniki poprawkowe, związane z głębokością obrazu i czasem ekspozycji na silne światło niebieskie, można także zastosować bezpośrednio do obrazów mikroskopowych. Na Rysunku 4.8.a) przedstawiony został obraz uzyskany poprzez sporządzenie projekcji maksymalnej intensywności dla stosu obrazów zarejestrowanych od powierzchni do głębokości 20 μm z krokiem co 1 μm . Czas akwizycji pojedynczego obrazu wynosił 30 s. Od obrazów numerycznie zostało odjęte tło. Obrazy zarejestrowane były dla próbki napromienionej jonami krzemu, padającymi równoległe do powierzchni detektora. Ślady cząstek znajdowały się na kilku różnych głębokościach (na powierzchni, na głębokości 15 μm oraz 17 μm), w związku z czym na obrazie projekcji maksymalnej intensywności (Rysunek 4.8.a) mają one różną jasność (ze względu zarówno na wybielanie, jak i na głębokość obserwacji). Każdy z obrazów w stosie obrazów pomnożono przez odpowiedni dla danej głębokości i czasu wybielania współczynnik. Następnie sporządzona została projekcja maksymalnej intensywności. Na Rysunku 4.8.b) przedstawiony został obraz po zastosowaniu tylko poprawki na głębokość obserwacji, natomiast na Rysunku 4.8.c) po zastosowaniu poprawki na głębokość obserwacji i wybielanie. Jasność jednego ze śladów (znajdującego się na środku obrazu) nie uległa zmianie, ponieważ ślad ten znajdował się na powierzchni detektora. W przypadku dwóch pozostałych śladów, po zastosowaniu poprawek, ich jasność znacząco wzrosła i jest porównywalna z intensywnością śladu obserwowanego na powierzchni. Oznacza to, że różnica w jasności, która była bardzo wyraźna w przypadku Rysunku 4.8.a) wynika jedynie z różnic w parametrach rejestracji obrazów, a nie z różnic we właściwościach poszczególnych cząstek, których ślady obserwujemy. Przedstawione na Rysunku 4.8. obrazy wyraźnie pokazują, jak istotne jest wprowadzenie poprawek na zmienne warunki pomiaru.



Rysunek 4.8. Projekcja maksymalnej intensywności dla stosów obrazów, z odjętym numerycznie tłem, zarejestrowanych dla detektora napromienionego jonami krzemu: a) bez stosowania współczynników poprawkowych, b) po zastosowaniu współczynnika poprawkowego na głębokość rejestracji obrazów, c) po zastosowaniu współczynnika poprawkowego na głębokość rejestracji obrazów oraz wybielenie. Kolory na obrazie wynikają z użycia odpowiedniego LUT. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne obrazów są takie same.

4.6. Pomiary tła

Jednym z największych problemów związanych z wykorzystaniem kryształów LiF jako FNTD jest niski stosunek sygnału do tła. Tło częściowo pochodzi od rozproszonej fluorescencji ze śladów znajdujących się poza obszarem ogniskowania mikroskopu. Oprócz tego występuje także tło aparaturowe, na które składa się wiele czynników, takich jak szumy kamery CCD, światło pochodzące spoza układu optycznego mikroskopu, światło wzbudzające przeciekające przez filtry optyczne, a także fluorescencja elementów układu optycznego. Tło aparaturowe można podzielić na dwie części: stałą, niezależną od czasu trwania pomiaru i obecności światła wzbudzającego, której źródłem są szumy układu detekcyjnego oraz zmienną, zależną od czasu trwania pomiaru, związaną ze światłem nie pochodzącym od fotoluminescencji mierzonych śladów.

Aby wyznaczyć jasność tła przeprowadzono serię pomiarów mikroskopowych próbek nienapromienionych. Obrazy rejestrowane były z różnymi czasami akwizycji od 100 μ s do 40 s, bez oświetlenia oraz z oświetleniem. Wyznaczone zostało średnie tło. W tym przypadku, średnia jasność tła mierzona była dla całego zdjęcia, a nie tylko dla okręgu o średnicy 90 μ m wyznaczonego przez pole widzenia. Przyczyną jest bardzo niska jasność zdjęć, która jedynie dla bardzo długich czasów akwizycji (powyżej 10 s) z użyciem oświetlenia pozwala na zaobserwowanie obszaru pola widzenia. Średnie tło wyznaczone na głębokości 5 μ m dla nienapromienionej próbki kryształu LiF przedstawione zostało w Tabeli 4.3.

Tabela 4.3. Zależność średniego tła od czasu akwizycji dla próbki nienapromienionej.

Czas akwizycji [s]	Średnie tło	
	Bez światła wzbudzającego	Ze światłem wzbudzającym 440 nm
0.0001	351.7	350.7
0.0002	349.9	349.1
0.0005	349.2	346.9
0.001	349.5	348.4
0.05	347.3	352.9
0.1	349.3	362.2
0.5	351.1	421.8
1	354.5	495.9
5	379.0	1113.4
10	408.8	1887.6
20	468.8	3440.2
40	586.8	6544.1

Wartości średniego tła, dla najniższych czasów akwizycji (do 0.05 s) są w przybliżeniu stałe i takie same w przypadku braku światła wzbudzającego i przy oświetleniu próbki światłem o długości fali 440 nm. Tło to wynosi ok. 350 i jest to jego część stała, wynikająca z szumów kamery. Występowanie tła stałego i znajomość jego wartości jest bardzo istotna w przypadku, kiedy niezbędne jest znormalizowanie wyznaczonej intensywności śladów lub średniej intensywności PL do czasu akwizycji. Normalizować należy wtedy jedynie jasność śladów (już po odjęciu tła od maksymalnej intensywności), a w przypadku kiedy normalizujemy średnią jasność w polu widzenia, należy pamiętać, że wartość tła stałego nie zależy od czasu pomiaru (i nie powinna w związku z tym być normalizowana).

Pozostała część tła, zależna od czasu pomiaru, została wyznaczona dla czasu akwizycji od 1 s do 40 s. Od zmierzonej wartości tła średniego odjęto tło stałe (niezależne od czasu akwizycji), a następnie uzyskany wynik podzielony został przez czas akwizycji. Wyznaczona została średnia z wyników uzyskanych dla czasów akwizycji wynoszących 1 s, 5 s, 10 s, 20 s oraz 40 s. W ten sposób otrzymano wartość średniego tła zależnego od czasu akwizycji, znormalizowaną do czasu trwania pomiaru. Wartość ta wynosi 6 s^{-1} dla pomiarów bez zastosowania oświetlacza, i 154 s^{-1} dla pomiarów z oświetlaczem.

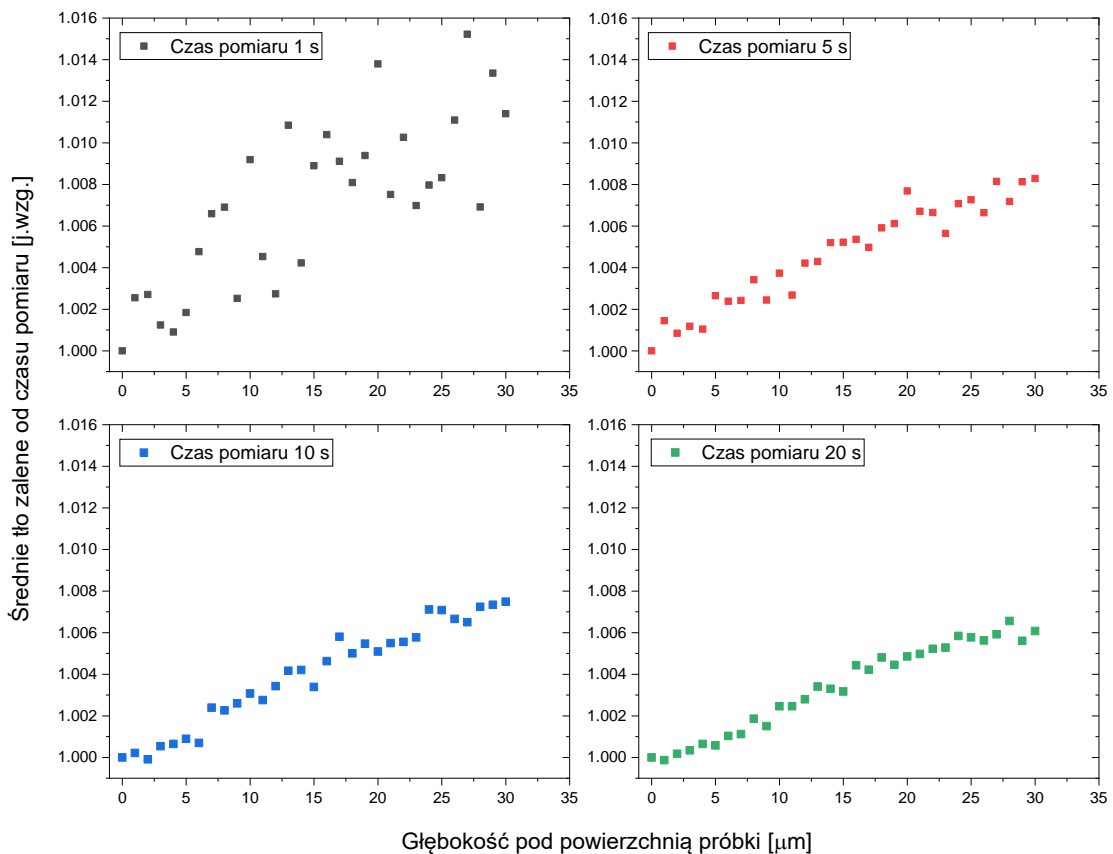
Wzór na tło dla próbki nienapromienionej, w zależności od czasu akwizycji wyrażonego w sekundach (t_a), dla pomiarów bez oświetlacza (T_{no}):

$$T_{no} = 350 + 6 \cdot t_a \quad (4.4)$$

Natomiast wzór na obliczenie tła próbki nienapromienionej dla pomiarów z oświetlaczem (T_o):

$$T_o = 350 + 154 \cdot t_a \quad (4.5)$$

Zbadano także, jak na wartość średniego tła zależnego od czasu akwizycji wpływa zmiana głębokości obserwacji. W tym celu zarejestrowano stosy obrazów mikroskopowych próbki nienapromienionej, przy użyciu światła wzbudzającego o długości fali 440 nm, dla głębokości obserwacji zmieniającej się od powierzchni próbki do 30 μm z krokiem co 1 μm . Stosy obrazów wykonano dla czterech różnych czasów akwizycji: 1 s, 5 s, 10 s i 20 s. Dla wszystkich obrazów zmierzono średnie tło, od którego odjęto tło stałe (wynoszące 350), a otrzymaną wartość podzielono przez czas akwizycji. Zależność średniego tła, zależnego od czasu akwizycji, od głębokości, na której rejestrowany jest obraz, dla różnych czasów akwizycji, została przedstawiona na wykresach na Rysunku 4.9. Wyniki znormalizowane zostały do wartości średniego tła zmierzonego na powierzchni próbki.



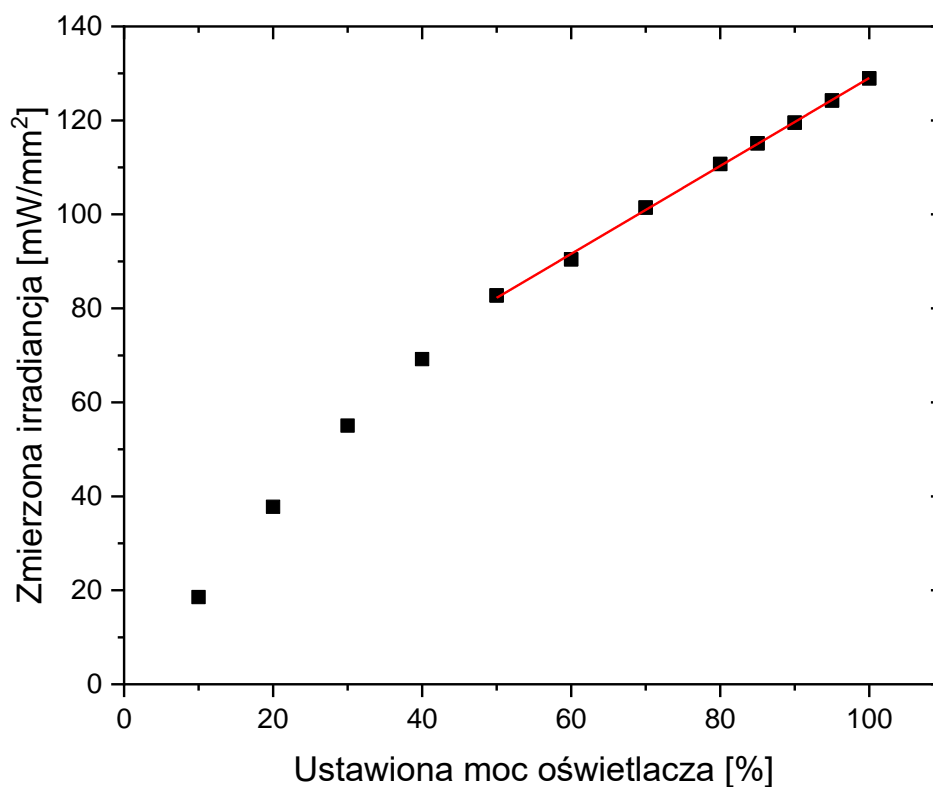
Rysunek.4.9. Zależność średniego tła próbki nienapromienionej od głębokości pomiaru.

Jak można zauważyć na powyższych wykresach, zmiana średniego tła wraz ze zmianą głębokości pod powierzchnią próbki jest bardzo mała. W przypadku pomiaru z czasem akwizycji większym niż 1 s nie przekracza ona 1%. Dla krótszych czasów akwizycji wyznaczone wartości mają największy rozrzut, co prawdopodobnie spowodowane jest większą niepewnością pomiaru, związaną z bardzo małą mierzoną jasnością. Co ciekawe, wraz ze wzrostem głębokości, średnie tło próbki nienapromienionej wzrasta, w przeciwieństwie do omówionego wcześniej spadku średniej jasności śladów wraz z głębokością rejestracji obrazu. Ten efekt najprawdopodobniej związany jest z faktem, iż w przypadku próbki nienapromienionej, sygnałem mierzonym nie jest, jak w przypadku śladów, fotoluminescencja emitowana przez próbkę. Głównym źródłem sygnału mierzonego jako tło jest odbite lub rozproszone światło wzbudzające. Kiedy pomiary wykonywane są na coraz większej głębokości pod powierzchnią detektora, obiektyw znajduje się coraz bliżej kryształu, co powoduje zwiększenie intensywności rejestrowanego sygnału.

4.7. Zależność jasności śladów od mocy oświetlacza

Źródłem światła w układzie mikroskopu fluorescencyjnego wykorzystywanego w ramach pracy doktorskiej jest system oświetleniowy LED, który pozwala na kontrolę mocy oświetlacza od 0% do 100% z krokiem co 1%. Podczas standardowych pomiarów moc ustawiona jest na 100%. Może jednak zdarzyć się, że w przypadku próbek o bardzo wysokim sygnale fotoluminescencji korzystne jest zmniejszenie irradancji. Zmierzone, jak zmiana mocy oświetlacza wpływa na średnią jasność śladów obserwowanych z użyciem kryształów LiF.

W pierwszej kolejności sprawdzono, czy pomiędzy ustawioną procentową mocą lampy a zmierzona w układzie mikroskopu rzeczywistą irradancją występuje liniowa zależność. Wyniki przedstawione zostały na Rysunku 4.10.

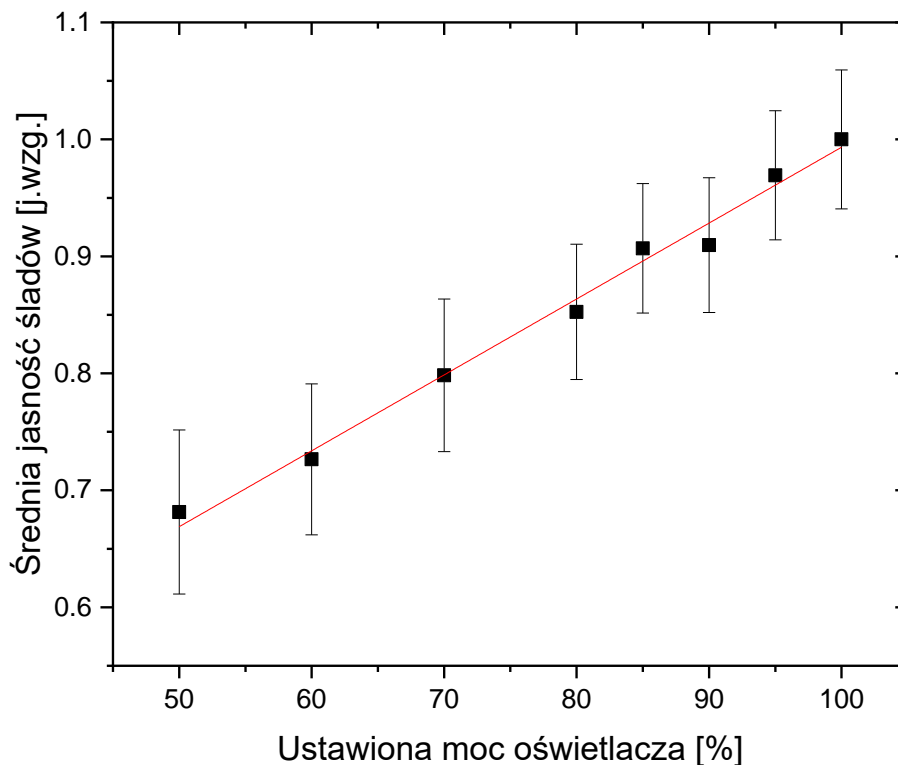


Rysunek 4.10 Zależność między ustawioną mocą oświetlacza a zmierzoną irradancją.

Okazuje się, że zależność między ustawioną mocą oświetlacza a rzeczywistą, zmierzona irradancją nie jest liniowa w całym zakresie mocy oświetlacza. Można natomiast, z dobrą dokładnością, dopasować prostą do zakresu powyżej 50% mocy oświetlacza. W przypadku pomiarów z użyciem detektorów FNTD z LiF nie stosuje się mniejszych mocy ze względu na

bardzo niski sygnał fotoluminescencyjny. Wobec tego, można stwierdzić, że zależność między rzeczywistą irradiancją a ustawioną mocą oświetlacza w stosowanym zakresie mocy jest liniowa. Oznacza to, że wraz ze wzrostem ustawionej mocy, ilość światła wzbudzającego docierającego do próbki zwiększa się liniowo, co powinno powodować zmiany w jasności obserwowanych śladów.

Aby wyznaczyć zależność pomiędzy średnią jasnością śladów a irradiancją (ustawioną mocą oświetlacza) wykonano serię pomiarów na trzech próbkach napromienionych cząstkami alfa ze źródła Alfa 2 (fluencja $5.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$). Po napromienieniu próbek zarejestrowano stopy obrazów mikroskopowych na takich głębokościach, aby możliwe było zmierzenie całych śladów. Zdjęcia dla dwóch próbek wykonywano przy ustawieniu różnych mocy lampy z najczęściej stosowanego zakresu: od 80% do 100% z krokiem co 5%. Dla trzeciej próbki wykonano zdjęcia przy ustawieniu mocy lampy od 50% do 100% z krokiem co 10%. Zmierzono długość i kąt padania obserwowanych śladów, a następnie zastosowano odpowiednie współczynniki poprawkowe na kąt padania cząstki z Tabeli 4.1. Ze względu na małą ilość śladów padających pod kątami poniżej 5° i powyżej 15° , zdecydowano się na wykorzystanie do analizy tylko śladów o kącie nachylenia z zakresu $5^\circ - 15^\circ$. Dla każdej z próbek, dla każdej wybranej mocy oświetlacza, zmierzono około 150 śladów. Wyznaczono średnią jasność śladów zmierzoną dla wszystkich próbek, dla poszczególnych ustawień mocy lampy, a niepewność wyznaczona została jako odchylenie standardowe od średniej. Na Rysunku 4.11. przedstawiono zależność między średnią jasnością śladów a ustawioną mocą oświetlacza. Wyniki znormalizowane zostały do wartości średniej jasności śladów wyznaczonej dla 100% mocy oświetlacza.



Rysunek 4.11. Zależność średniej jasności śladów od ustawionej mocy oświetlacza. Wyniki znormalizowane do średniej jasności zmierzonej dla mocy oświetlacza wynoszącej 100%.

Okazuje się, że w używanym zakresie mocy oświetlacza, zależność średniej jasności śladów od ustawionej mocy oświetlacza można z dobrą dokładnością opisać przy pomocy funkcji liniowej o następującym wzorze:

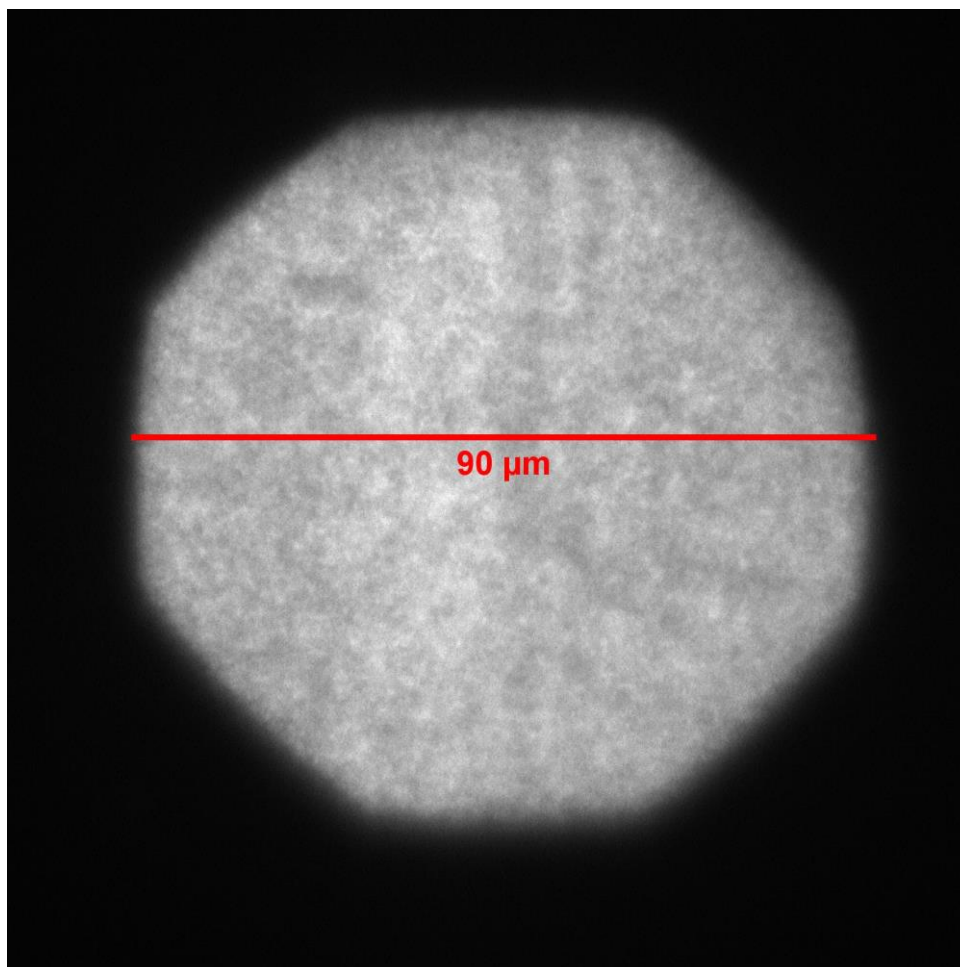
$$y = 0.0065 * P + 0.3445 \quad (4.6)$$

Gdzie P to moc oświetlacza wyrażona w procentach. Oznacza to, że liniowy wzrost irradancji powoduje liniowy wzrost jasności śladów.

4.8. Zależność jasności śladów od średnicy przysłony

W układzie optycznym mikroskopu, pomiędzy źródłem światła (oświetlaczem LED) a obiektywem, znajduje się przysłona połowa o quasi-okrągłym kształcie i regulowanej średnicy. Przysłona ta wyznacza pole widzenia obserwowane na obrazach mikroskopowych. Na Rysunku 4.12. przedstawiony został obraz mikroskopowy zarejestrowany dla próbki kryształu LiF napromienionej cząstkami alfa o fluencji ok. $6 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Zdjęcie zostało

wykonane przy ustawieniu średnicy przysłony na $90\ \mu\text{m}$. Na obrazie zaznaczona została średnica pola widzenia.



Rysunek 4.12. Zdjęcie mikroskopowe wykonane ze średnicą przysłony ustawioną na $90\ \mu\text{m}$ dla próbki kryształu LiF napromienionej cząstkami alfa (fluencja ok. $6 \cdot 10^9\ \text{cm}^{-2}$). Na obrazie zaznaczono średnicę pola widzenia.

Najczęściej wykorzystywanym ustawieniem średnicy przysłony jest $90\ \mu\text{m}$. Ze względu na umiejscowienie regulacji przysłony, możliwym jest przypadkowe zmienienie ustawienia, co skutkuje zmianą średnicy pola widzenia. Przysłona połowa reguluje rozmiar pola widzenia, nie powinna natomiast wpływać na irradiancję oświetlanego obszaru. Aby upewnić się, że zmniejszanie średnicy przysłony w układzie używanego mikroskopu nie powoduje kolimacji światła (zwiększenia irradiancji), które skutkowałoby zwiększeniem jasności obserwowanych na obrazach mikroskopowych śladów cząstek jądrowych, zmierzono irradiancję przy użyciu obiektywu ze stukrotnym powiększeniem, zmieniając średnicę przysłony od $70\ \mu\text{m}$ do $100\ \mu\text{m}$ z krokiem co $10\ \mu\text{m}$. Wartość $100\ \mu\text{m}$ to maksymalna wartość średnicy przysłony, dla której rejestrowany obraz mieści się jeszcze w polu widzenia kamery. Pola widzenia o średnicy mniejszej niż $70\ \mu\text{m}$ nie są stosowane ze względu na mały obszar obserwacji, a co za tym idzie

małą liczbę śladów na pojedynczych obrazach. W przypadku śladów o dużym kącie nachylenia małe pole widzenia może skutkować także niemieszczeniem się śladów na obrazie.

Otrzymane wyniki zależności irradiancji od średnicy przysłony przedstawione zostały w Tabeli 4.4.

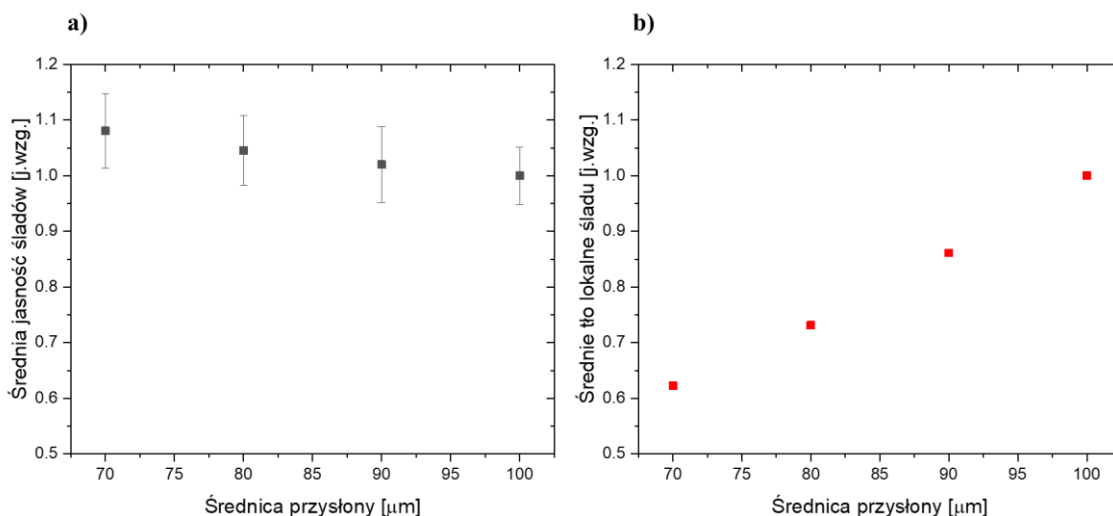
Tabela 4.4. Zależność irradiancji od średnicy przysłony.

Średnica przysłony	Irradiancja [mW/mm²]
100	125
90	130
80	127
70	129

Analizując otrzymane wyniki, można stwierdzić, że różnice irradiancji zmierzonych dla poszczególnych średnic przysłony są niewielkie i mogą wynikać z niepewności w pomiarze mocy światła i ustawieniu przysłony. Wobec tego ustawiona średnica przysłony nie powinna mieć wpływu na jasność śladów.

Aby potwierdzić to założenie, próbkę kryształu LiF napromieniono cząstkami alfa ze źródła Alfa 2 (fluencja ok. $5.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$). Następnie zarejestrowano stosy obrazów mikroskopowych, pozwalające na zmierzenie długości śladów i wyznaczenie kąta padania cząstki na detektor. Jasność śladów mierzona była na stałej głębokości 5 μm pod powierzchnią detektora, w związku z czym zastosowanie poprawki na głębokość pomiaru nie było konieczne. Czas akwizycji pojedynczego obrazu w stosie wynosił 7 s. Ponieważ czas oświetlania wybranego pola widzenia był krótki i w przybliżeniu taki sam dla wszystkich obrazów na głębokości 5 μm , nie stosowano także poprawki na wybielanie. Do analizy wybrano natomiast tylko ślady o kącie nachylenia od 5° do 15° i dla wyznaczonej średniej jasności śladów zastosowano współczynniki poprawkowe wyznaczone dla poszczególnych grup nachylenia kątów (zawarte w Tabeli 4.1). Po zastosowaniu współczynników jasność wszystkich śladów, zmierzonych dla kolejnych wartości średnicy przysłony, została uśredniona. Dla każdego z punktów pomiarowych zmierzono około 150 śladów. Na Rysunku 4.13. (wykres a) przedstawiona została zależność średniej jasności śladów od średnicy przysłony. Dodatkowo dla porównania na wykresie b) przedstawiona została zmiana średniego tła lokalnego śladu wraz ze zmianą średnicy przysłony. Wartości przedstawione na obu wykresach zostały znormalizowane do wartości

uzyskanych dla średnicy przysłony wynoszącej 100 μm . Dla ułatwienia interpretacji użyto tej samej skali.



Rysunek 4.13. Zależność a) średniej jasności śladów i b) średniego tła lokalnego śladu od średnicy przysłony. Wartości znormalizowane do wartości zmierzonych dla średnicy przysłony wynoszącej 100 μm .

Zauważono, że wraz ze zmniejszaniem średnicy przysłony wzrasta średnia jasność śladów. Mimo iż wzrost jest niewielki i zmiany średniej jasności przy zmianie średnicy przysłony o 30 μm nie przekraczają 10%, efekt ten jest niespodziewany, ponieważ irradancja nie zmienia się wraz ze zmianą średnicy oświetlanego pola. Okazuje się natomiast, że wraz ze zmianą średnicy przysłony w znaczącym stopniu zmienia się średnie tło lokalne śladu. Zmniejszenie średnicy przysłony ze 100 μm do 70 μm powoduje spadek tła lokalnego do około 60% wartości początkowej. Zmniejszenie średnicy przysłony powoduje nie tylko zmniejszenie oświetlanego obszaru, ale także obszaru, z którego zbierany jest sygnał. Ponieważ tło zależy także od czynników niezwiązanych bezpośrednio z fotoluminescencją śladów cząstek jądrowych (jak np. zewnętrzne źródła światła, światło wzbudzające odbite i rozproszone na powierzchni próbki), zmniejszenie mierzonego obszaru powoduje jego znaczący spadek. Prawdopodobnie właśnie duże różnice w tle lokalnym dla śladów mierzonych dla obrazów mikroskopowych zarejestrowanych przy różnym ustawieniu przysłony powodują różnice w ich średniej jasności.

Chociaż zmierzone różnice w średniej jasności śladów są niewielkie w zakresie średnicy przysłony od 70 μm do 100 μm , dobrą praktyką jest stosowanie jednej, ustalonej średnicy pola widzenia w przypadku wykonywania zdjęć, które są później porównywane. Obrazy wykorzystywane w ramach pracy doktorskiej rejestrowane były ze średnicą przysłony wynoszącą 90 μm .

4.9. Podsumowanie

Opisane w rozdziale 4 badania przyczyniły się do rozwoju i zwiększenia możliwości pomiarowych metody fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych z wykorzystaniem kryształów fluorku litu.

Udowodniono, że właściwa anilacja detektorów z LiF pozwala na wielokrotne stosowanie tych samych próbek kryształu. Wygrzewanie w 450°C przez pół godziny jest dobrym sposobem na całkowite usunięcie sygnału fotoluminescencyjnego i nie wpływa ani na średnie tło, ani na jasność śladów obserwowanych po kolejnych anilacjach. Potwierdzono także, że w czasie pierwszych kilkunastu godzin od zakończenia napromieniania fotoluminescencja LiF narasta. Zmianę średniej jasności śladów obserwowano przez pierwsze 24 h po napromienianiu kryształów. Z tego względu nie zaleca się prowadzenia obserwacji mikroskopowych, zwłaszcza w celu późniejszej analizy ilościowej, w ciągu pierwszych kilkunastu godzin po zakończeniu napromieniania kryształów.

Wyznaczona została zależność średniej jasności śladów od kąta padania cząstek na powierzchnię detektora (rozdział 4.3), czasu ekspozycji na światło wzbudzające (rozdział 4.4) oraz głębokości prowadzenia pomiaru (rozdział 4.5). Wpływ wymienionych czynników na sygnał fotoluminescencyjny okazał się na tyle duży, że w większości przypadków konieczne jest uwzględnienie go podczas ilościowej analizy obserwowanych śladów. Wszystkie trzy z powyższych zależności opisać można za pomocą funkcji eksponencjalnych. Na ich podstawie zastosować można odpowiednie współczynniki poprawkowe pozwalające na porównywanie ze sobą śladów mierzonych w różnych warunkach (np. zmierzonych dla obrazów rejestrowanych na różnej głębokości lub z różnymi czasami akwizycji) oraz pochodzących od cząstek padających pod różnymi kątami. Zaproponowano także uproszczoną metodę selekcji śladów pochodzących tylko od cząstek padających z przybliżeniem prostopadle do powierzchni (patrz rozdział 4.3) opartą na różnicach w kształcie śladów mierzonych na jednej głębokości.

W rozdziale 4.6 skupiono się na pomiarach tła. Wyznaczono wartość tła stałego, niezależnego od czasu akwizycji ani obecności światła wzbudzającego. Jego wartość wynosi 350 a jego obecność spowodowana jest szumami kamery CCD. Wyznaczone zostały także wartości tła zmiennego w zależności od czasu pomiaru. W przypadku braku obecności światła wzbudzającego tło zmienne na 1 s wynosi 6, natomiast przy oświetlaniu próbki nienapromienionej światłem niebieskim: 154. Źródłem tej części tła jest światło rozproszone

i odbite od próbki, zewnętrzne źródła światła, nieszczelność stosowanych filtrów, a także fotoluminescencja elementów układu optycznego mikroskopu. Znajomość wartości tła jest szczególnie istotna przy porównywaniu obrazów o różnym czasie akwizycji (kiedy konieczna jest normalizacja uzyskanych wyników do czasu pomiaru).

Na podstawie przeprowadzonych badań, stwierdzono, że w zakresie od 50% do 100% mocy stosowanego oświetlacza LED średnia jasność śladów zależy w sposób liniowy od ustawionej przez użytkownika mocy (rozdział 4.7). Zmiana średnicy przysłony (pola widzenia) w znaczącym stopniu wpływa na zmianę tła lokalnego śladów cząstek jądrowych. Zmniejszenie średnicy przysłony ze 100 μm do 70 μm powoduje spadek średniego tła lokalnego o niemal 40%. Tak duży związek pola widzenia z tłem lokalnym prawdopodobnie jest przyczyną zaobserwowanego wzrostu średniej jasności śladów wraz ze zmniejszaniem średnicy przysłony. Mimo iż wzrost ten jest znacznie mniejszy niż w przypadku spadku tła lokalnego śladu i nie przekracza 10%, zaleca się stosowanie ustalonej, stałej średnicy pola widzenia.

5. Wpływ wygrzewania napromienionych kryształów LiF na ich fotoluminescencję ⁽¹⁾

Jednym z największych problemów, który w znacznym stopniu ogranicza rozwój metody FNTD, jest bardzo niski stosunek sygnału do szumu. Nawet w przypadku najbardziej wyraźnych śladów, takich jak ślady jonów żelaza, sygnał tła wynosi aż ok. 20% maksymalnej intensywności w śladzie. Niektóre publikacje [61], [85] sugerują, że zwiększenie sygnału pochodzącego od fotoluminescencji centrów barwnych może być zrealizowane poprzez zastosowanie odpowiedniej obróbki cieplnej. Jedną z możliwości jest poddanie napromienionych już próbek grzaniu przed odczytem.

Mimo iż badania dotyczące wpływu wygrzewania kryształów LiF po napromienianiu na koncentracje centrów barwnych były już prowadzone, ich wyniki nie są jednoznaczne. Niektóre badania wskazują, że centra F zanikają w niższych temperaturach niż centra F₂ [86], natomiast w innych publikacjach opisywany jest zupełnie odwrotny efekt [87], [88]. Dodatkowo dotychczas opublikowane badania skupiają się jedynie na kryształach LiF napromienionych bardzo dużymi dawkami promieniowania (m.in. fluencjami ciężkich jonów rzędu 10¹⁰ – 10¹⁴ cm⁻² [61], dawkami promieniowania gamma rzędu 10⁶ Gy [89] lub strumieniami neutronów o fluencjach rzędu 10¹⁸ cm⁻² [90]). Efekty zachodzące dla detektorów napromienionych tak wysokimi dawkami mogą nie mieć przełożenia na efekty obserwowane dla małych dawek bądź fluencji cząstek, które wykorzystywane są podczas stosowania kryształów LiF jako detektory FNTD.

Podczas poprzednio opisanych pomiarów stosowano anilację przez pół godziny w temperaturze 450°C jako proces całkowicie usuwający sygnał PL. W tym rozdziale opisane zostaną wyniki badań nad efektami temperaturowymi zachodzącymi w niższych temperaturach (głównie od temperatury pokojowej do 400°C).

¹ Przedstawione wyniki zostały częściowo opublikowane w dwóch artykułach naukowych dotyczących wpływu temperatury na fotoluminescencję kryształów fluorku litu: „Thermal enhancement of the intensity of fluorescent nuclear tracks in lithium fluoride crystals” [83] oraz „Influence of elevated temperature on color centers in LiF crystals and their photoluminescence” [84].

5.1. Widma absorpcyjne i emisyjne

Widma absorpcyjne oraz emisyjne stanowią najważniejsze źródło wiedzy na temat zmian zachodzących w koncentracjach centrów barwnych. Zmierzenie ich wymaga jednak znacząco wyższych dawek, niż mogą dostarczyć pojedyncze cząstki, których ślady możemy obserwować. W celu wykonania pomiarów spektralnych próbki wykonane z kryształów LiF zostały napromienione promieniowaniem beta ze źródła Sr-90/Y-90 (dawka 30 kGy) oraz promieniowaniem alfa Am-241 przy użyciu źródła Alfa 1 bez zastosowania kolimatora (fluencja cząstek $3.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$).

Po napromienieniu, próbki poddane zostały wygrzewaniu w zakresie temperatur od temperatury pokojowej (oznaczanej później jako 23°C) do 400°C z krokiem co 20°C.

Widma absorpcyjne zostały zmierzone w Instytucie Fizyki PAN w Warszawie z użyciem spektrofotometru Varian Cary 5000 UV-Vis-NIR. Pomiar odbywał się zgodnie z następującym schematem:

1. Umieszczenie napromienionej próbki w czytniku TL i podgrzanie do zadanej temperatury z szybkością grzania 300°C/min;
2. Grzanie próbki w zadanej temperaturze przez 3 min;
3. Wyłączenie grzania i wyjęcie próbki z czytnika;
4. Pomiar widma absorpcyjnego w temperaturze pokojowej.

Po zarejestrowaniu widma proces był powtarzany dla kolejnej wartości temperatury, aż do temperatury 400°C.

Widma emisyjne zmierzono w IFJ PAN w Krakowie z użyciem spektrometru QE65 PRO, Ocean Optics zamontowanego w układzie mikroskopu fluorescencyjnego Nikon Eclipse. Pomiar widm emisyjnych odbywał się zgodnie z następującym schematem:

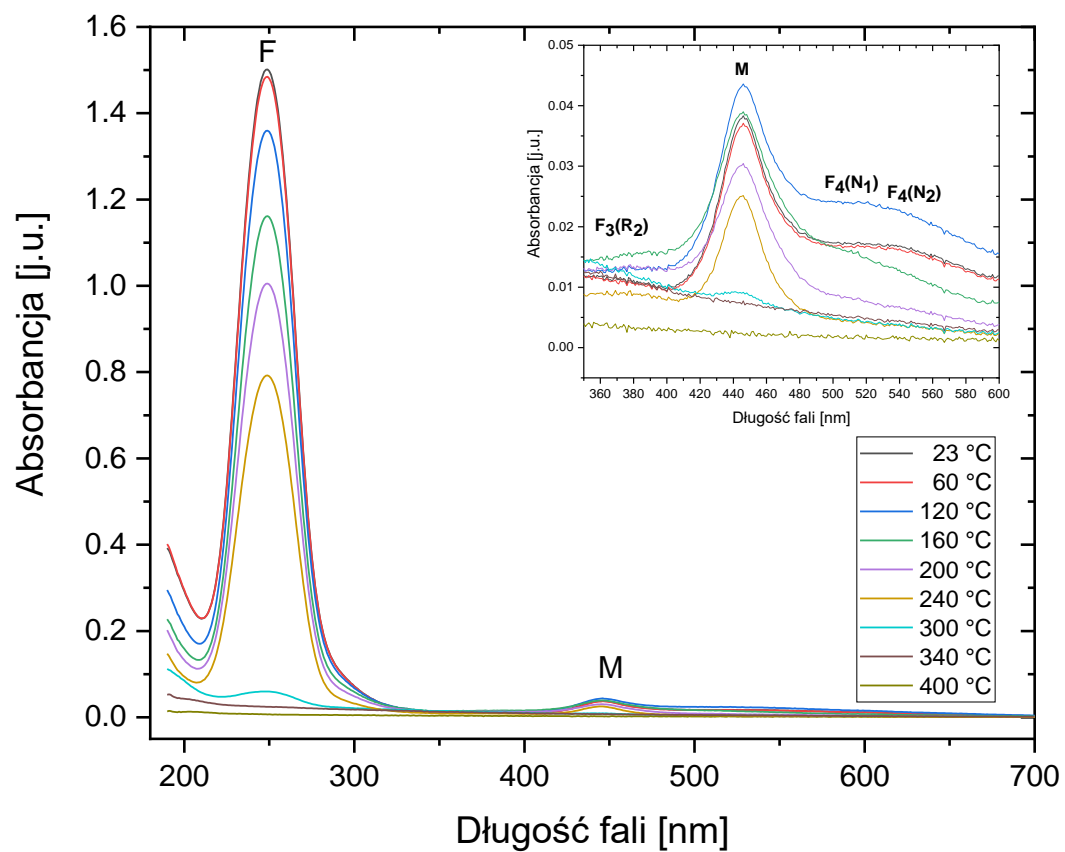
1. Umieszczenie napromienionej próbki na stoliku grzewczym Linkam THMS600 w temperaturze pokojowej;
2. Włączenie stolika grzewczego z szybkością grzania 150°C/min do zadanej temperatury;
3. Grzanie próbki w zadanej temperaturze przez 3 min;
4. Wyłączenie grzania i powolne chłodzenie próbki na stoliku grzewczym przez kolejne 3 min;
5. Zdjęcie próbki ze stolika i zmierzenie widma emisyjnego w temperaturze pokojowej.

Po zarejestrowaniu widma emisyjnego próbka ponownie była podgrzewana do kolejnej wartości temperatury i przeprowadzany był kolejny pomiar.

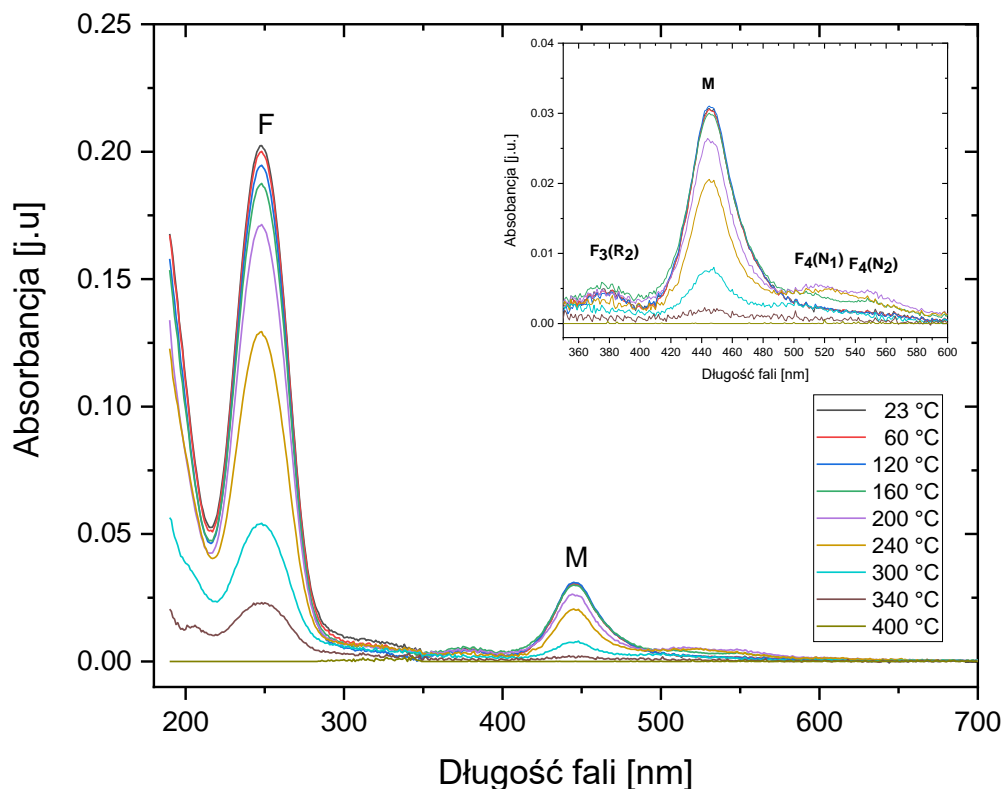
Różnice pomiędzy schematami pomiarów widm absorpcyjnych i emisyjnych wynikały z różnego wyposażenia i możliwości dwóch laboratoriów wykonujących pomiary. Procedury grzania i pomiaru starano się dobrać tak, aby widma były mierzone w jak najbardziej zbliżonych do siebie warunkach.

5.1.1. Widma absorpcyjne

Na Rysunkach 5.1. i 5.2. przedstawione zostały widma absorpcyjne zmierzone dla próbek napromienionych odpowiednio promieniowaniem beta i alfa, i poddanych grzaniu do kolejnych temperatur. W celu zapewnienia przejrzystości prezentowanych wyników, na wykresach przedstawione zostały widma zmierzone po grzaniu w wybranych temperaturach. Najwyraźniejsze piki występujące w widmach zostały oznaczone symbolami centrów barwnych, z którymi są związane. Najbardziej intensywny pik, znajdujący się w okolicy 250 nm, pochodzi od centrów F. Drugie pod względem intensywności pasmo, z maksimum w okolicy 445 nm, to pasmo M, które składa się z dwóch nakładających się na siebie pasm absorpcyjnych związanych z centrami F_2 oraz F_3^+ . Maksimum absorpcji dla pasm F i M zostało zmierzone dla długości fali odpowiednio 249 nm i 446 nm. Absorbancja dla tych długości fal będzie wykorzystywana w porównaniach przedstawionych w późniejszych częściach analizy widm absorpcyjnych. Na wykresach zostały oznaczone także znacznie słabsze pasma pochodzące od centrów F_3 oraz F_4 , jednak ze względu na ich mały udział w całkowitej absorpcji nie będą one uwzględniane w dalszej dyskusji.



Rysunek 5.1. Widma absorpcyjne dla próbki LiF napromienionej 30 kGy promieniowania beta (Sr-90/Y-90) i poddanej grzaniu do kolejnych temperatur. Pomiary w temperaturze pokojowej.

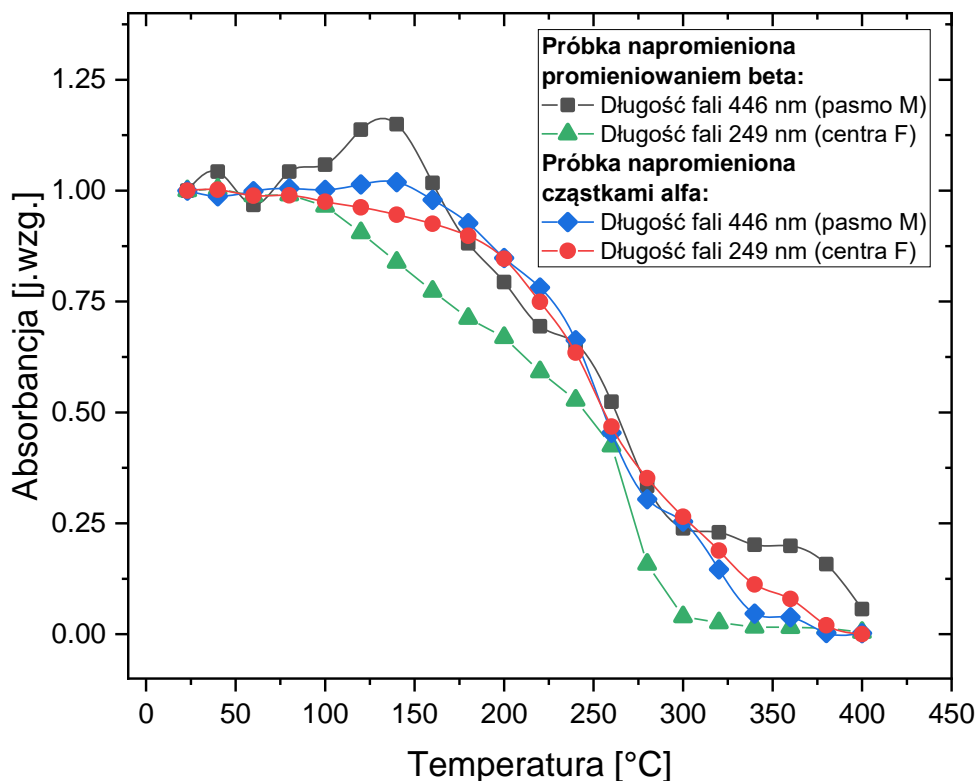


Rysunek 5.2. Widma absorpcyjne dla próbki LiF napromienionej cząstkami alfa o fluencji $3.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ (Am-241) i poddanej grzaniu do kolejnych temperatur. Pomiary w temperaturze pokojowej.

Porównując wykresy przedstawione na Rysunku 5.1. i 5.2. można zauważyć, że całkowita absorbancja w przypadku próbki napromienionej promieniowaniem beta jest zdecydowanie wyższa. Stosunek intensywności maksimum pasma M do pasma F jest jednak wyższy dla próbki napromienionej promieniowaniem alfa. Dla widm zmierzonych bez zastosowania dodatkowej obróbki termicznej stosunek ten wynosi 0.151 dla próbki po napromienieniu promieniowaniem alfa, natomiast dla próbki napromienionej promieniowaniem beta jest to tylko 0.026. Wynika to prawdopodobnie ze sposobu, w jaki cząstki alfa i beta deponują energię w próbce kryształu LiF. Cząstki beta w niemal jednorodny sposób deponują swoją energię w całej objętości próbki. Cząstki alfa pochodzące ze źródła Am-241 (bez użycia kolimatora) mają natomiast energię ok. 3 MeV. To sprawia, że ich zasięg we fluorku litu to tylko ok. $9.3 \mu\text{m}$. Warstwa, w której cząstki alfa mogą deponować energię, jest zatem bardzo cienka w porównaniu z całkowitą grubością próbki (wynoszącą ok. 1 mm). Przekształcając fluencję cząstek alfa wynoszącą $3.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ na średnią dawkę zaabsorbowaną w warstwie kryształu LiF o grubości $9.3 \mu\text{m}$ otrzymuje się wartość 224 kGy. Jest to zdecydowanie większa dawka niż dawka promieniowania beta, którą napromieniona została druga próbka. Wyższa dawka

promieniowania powoduje, że koncentracja centrów barwnych wytworzonych w danej objętości kryształu jest większa. Wyższa koncentracja centrów F sprzyja ich grupowaniu i łączeniu w bardziej złożone defekty, w tym centra F_2 i F_3^+ [58].

Na Rysunku 5.3. przedstawiono zmiany, jakie zachodzą w absorbancji związanej z pasmami F (dla długości fali 249 nm) oraz M (dla długości fali 446 nm) w wyniku podgrzewania próbek do coraz wyższych temperatur.



Rysunek 5.3. Zmiany w absorbancji (znormalizowane do wartości przed podgrzaniem próbek) zmierzone dla dwóch najwyraźniejszych pików w widmie (dla 249 nm i 446 nm) dla próbki napromienionej promieniowaniem beta (dawka 30 kGy, Sr-90/Y-90) i próbki napromienionej cząstkami alfa (Am-241, fluencja $3.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$).

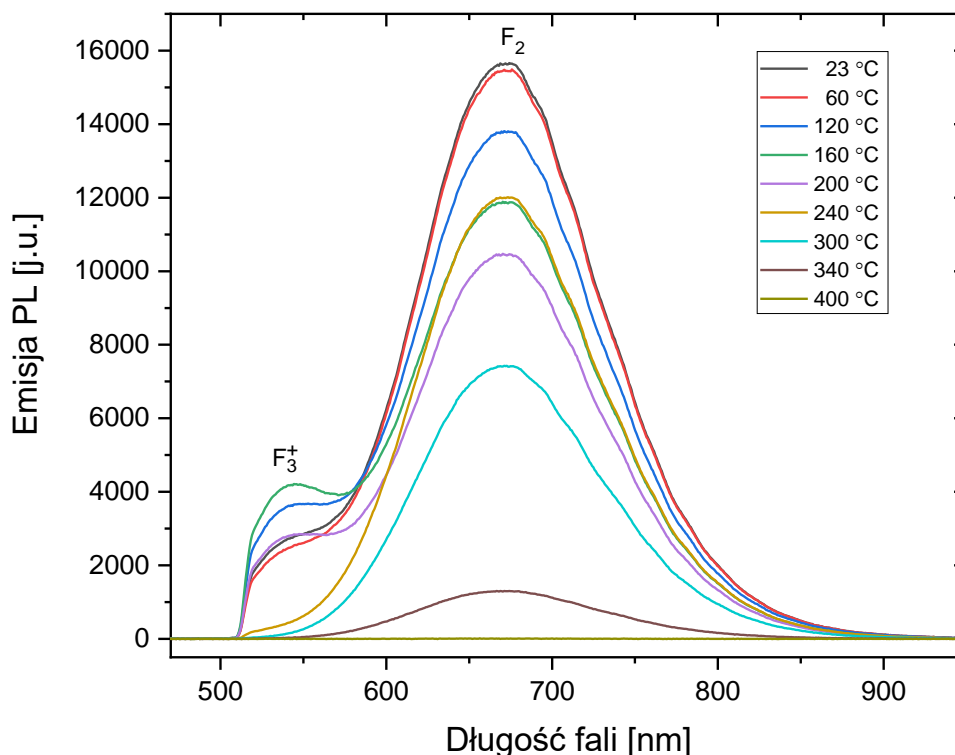
Dla próbki napromienionej cząstkami alfa nie zauważono wzrostu w absorbancji po zastosowaniu omówionej wcześniej procedury grzania. Zarówno absorbancja zmierzona dla długości fali 446 nm (pasmo M), jak i dla 249 nm (związana z centrami F) pozostawała na podobnym poziomie do temperatury grzania ok. 150°C, po czym stopniowo spadała aż do temperatury ok. 380°C, powyżej której całkowicie zanika.

Dla próbki napromienionej promieniowaniem beta widoczny jest niewielki wzrost absorbancji związanej z centrami F_2 i F_3^+ po grzaniu w temperaturach od 100°C do 160°C. Jego maksimum występuje dla temperatury grzania ok. 140°C. Dodatkowo spadek absorbancji dla długości fali

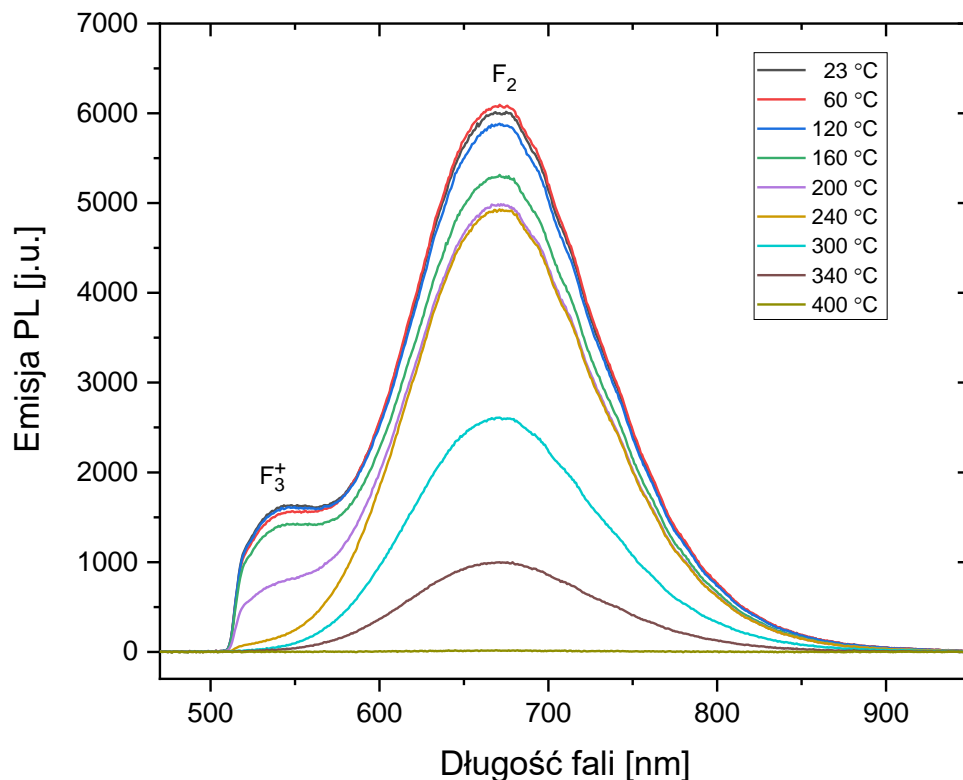
249 nm jest w tym przypadku znaczenie szybszy niż w przypadku próbki napromienionej promieniowaniem alfa. Spadek absorpcji w tym zakresie długości fali jest związany ze spadkiem koncentracji centrów F. Może zatem świadczyć o przekształceniu części centrów F w bardziej złożone centra takie jak F_2 bądź F_3^+ (w wyniku łączenia się centrów i innych defektów sieci krystalicznej), czego efektem może być wzrost absorpcji w paśmie M.

5.1.2. Widma emisyjne

Na Rysunkach 5.4. oraz 5.5. zostały przedstawione widma emisyjne zmierzone po napromienieniu próbek promieniowaniem alfa lub beta, a następnie grzaniu ich do zadanych temperatur. Podobnie jak w przypadku widm absorpcyjnych, w celu zapewnienia przejrzystości prezentowanych wyników, na wykresach przedstawione zostały widma jedynie dla wybranych temperatur. Na wykresach oznaczone zostały piki związane z centrami F_2 (z maksimum dla 670 nm) oraz F_3^+ (z maksimum dla 525 nm). Ze względu na zastosowany filtr górnoprzepustowy 515 LP część widm w zakresie niższych długości fali została odcięta.



Rysunek 5.4. Widma emisyjne dla próbki LiF napromienionej 30 kGy promieniowaniem beta (Sr-90/Y-90) i poddanej grzaniu do kolejnych temperatur. Pomiary w temperaturze pokojowej.

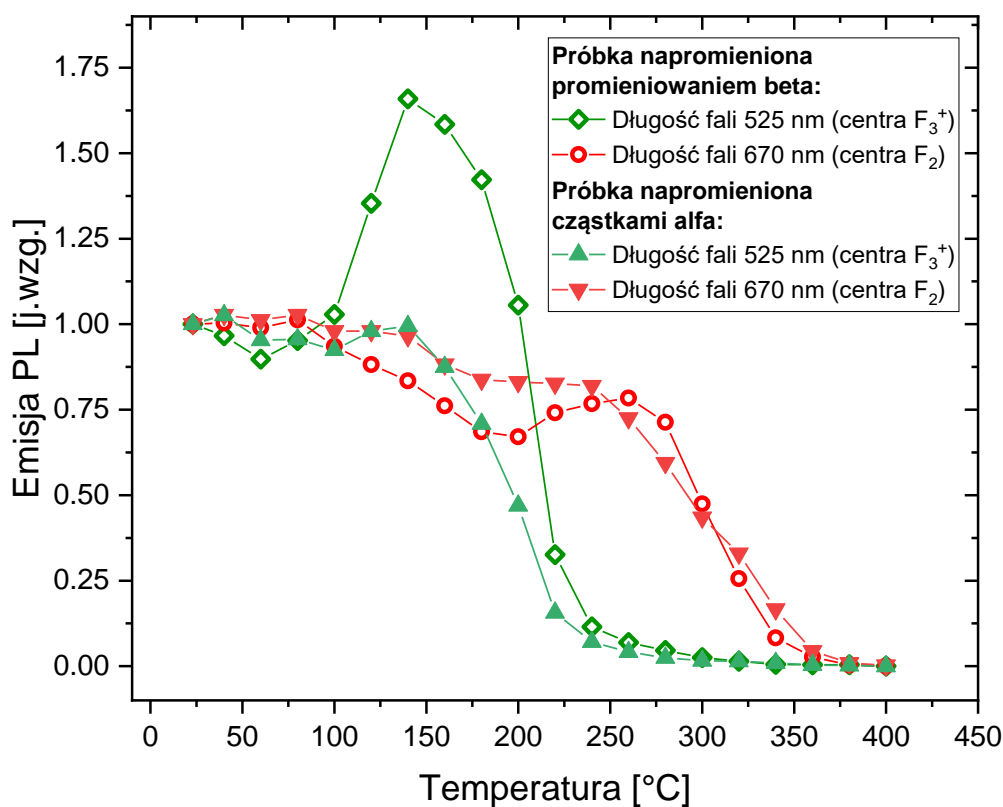


Rysunek 5.5. Widma emisyjne dla próbki LiF napromienionej cząstkami alfa o fluencji $3.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ (Am-241) i poddanej grzaniu do kolejnych temperatur. Pomiary w temperaturze pokojowej.

Również w przypadku pomiarów emisyjnych można zaobserwować pewne różnice między widmami uzyskanymi dla próbki napromienionej promieniowaniem alfa i próbki napromienionej promieniowaniem beta. Przed zastosowaniem jakiegokolwiek obróbki termicznej (na wykresach widmo oznaczone jako 23°C) stosunek intensywności PL zmierzonej dla długości fali 525 nm (centra F_3^+) do intensywności zmierzonej dla długości fali 670 nm (centra F_2) jest wyższy dla próbki napromienionej promieniowaniem alfa (wynosi 0.22) niż dla próbki napromienionej promieniowaniem beta (wynosi 0.14). Może to wynikać ponownie, tak jak w przypadku różnic obserwowanych dla widm absorpcyjnych, z różnic w dawce zaabsorbowanej przez próbkę. Cząstki alfa deponują lokalnie większą energię, co sprzyja tworzeniu się bardziej skomplikowanych centrów barwnych. Innym wyjaśnieniem może być fakt, iż cząstki alfa deponują swoją energię tylko w przypowierzchniowej części próbki z kryształu LiF. Koncentracja dyslokacji w warstwie przypowierzchniowej przed poddaniem próbki napromienieniu jest wyższa niż w pozostałej części kryształu [91]. To sprawia, że prawdopodobieństwo wytworzenia wakancji jest większe. Dodatkowo cząstki naładowane wytworzone w wyniku promieniowania jonizującego w kryształach mają tendencję do

przemieszczania się z głębi kryształu do jego powierzchni. Duża liczba wakancji zwiększa prawdopodobieństwo tworzenia centrów F_3^+ (które powstają w wyniku łączenia się centrów F_2 z wakancjami anionowymi F^+) [91]. W przypadku próbki napromienionej cząstkami alfa, centra barwne tworzone są tylko w cienkiej przypowierzchniowej warstwie kryształu, co może być przyczyną wyższego stosunku centrów F_3^+ do F_2 niż w przypadku promieniowania beta, które jest w stanie wytwarzać centra barwne w całej objętości próbki.

Na Rysunku 5.6. przedstawione zostały zmiany w intensywności fotoluminescencji zmierzone dla długości fali odpowiadającej centrom F_2 (670 nm) i F_3^+ (525 nm) po poddaniu próbek napromienionych promieniowaniem beta i alfa grzaniu w temperaturach od temperatury pokojowej do 400°C.



Rysunek 5.6. Zmiany w intensywności fotoluminescencji (znormalizowane do wartości przed podgrzaniem próbek) zmierzone dla długości fali 525 nm (centra F_3^+) i 670 nm (centra F_2) dla próbki napromienionej promieniowaniem beta (30 kGy Sr-90/Y-90) i próbki napromienionej cząstkami alfa (Am-241, fluencja $3.4 \cdot 10^{12}$ cm^{-2}).

Najwyraźniejszym efektem zachodzącym w wyniku wygrzewania kryształów LiF w coraz wyższych temperaturach jest wyraźny wzrost intensywności PL dla długości fali 525 nm (centra F_3^+). Występuje on dla próbki napromienionej promieniowaniem beta, w zakresie temperatur

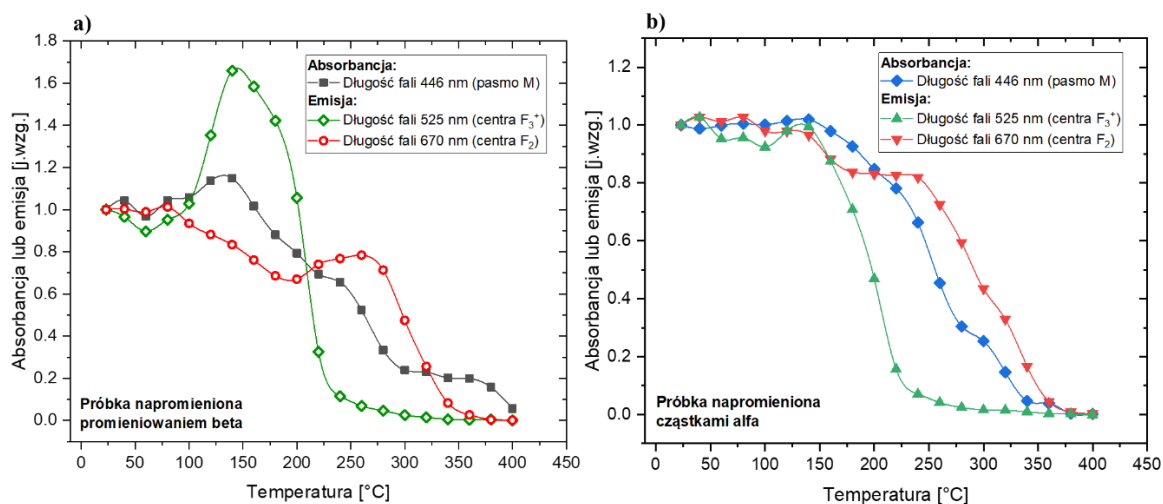
od ok. 100°C do 220°C. Maksymalny wzrost sygnału wynoszący ok. 1.7 został zaobserwowany dla temperatury grzania wynoszącej 140°C. W przypadku próbki napromienionej promieniowaniem alfa, wzrost sygnału jest prawie niezauważalny. Dla temperatury 140°C można zauważyć jedynie bardzo słabe maksimum lokalne.

Intensywność fotoluminescencji, mierzona w czerwonym zakresie widma, spada wraz ze wzrostem temperatury grzania do ok. 200°C i spadek ten jest bardziej wyraźny dla próbki napromienionej promieniowaniem beta. Powyżej tej temperatury, dla próbki napromienionej promieniowaniem beta, zaobserwować można niewielki wzrost w emisji z maksimum lokalnym dla 260°C. Dla próbki napromienionej cząstkami alfa, w podobnym zakresie obserwujemy plateau zależności względnej intensywności PL od temperatury grzania. Trzeba zaznaczyć, że w żadnym z tych przypadków obróbka termiczna po napromienieniu próbek nie spowodowała zwiększenia sygnału fotoluminescencji w czerwonym zakresie widma. Ponieważ jest to zakres, w którym sygnał jest największy, i w którym zazwyczaj prowadzone są obserwacje, oznacza to, że dodatkowe grzanie detektorów nie niesie ze sobą żadnych korzyści w stosunku do standardowego pomiaru.

W przypadku próbek napromienionych oboma rodzajami promieniowania fotoluminescencja związana z centrami F_3^+ zanika całkowicie po poddaniu próbek grzaniu do temperatur powyżej 220°C. Fotoluminescencja związana z centrami F_2 (z maksimum intensywności zmierzonym dla długości fali 670 nm) zanika dopiero po zastosowaniu temperatury 360°C. Można zatem wnioskować, że centra F_2 są bardziej odporne na działanie temperatury niż centra F_3^+ .

5.1.3. Porównanie widm absorpcyjnych i emisyjnych

Na Rysunku 5.7. a) i b) zaprezentowane zostały porównania zmian w absorbancji i emisji PL dla najważniejszych pasm związanych z centrami barwnymi F_2 i F_3^+ zachodzących w wyniku grzania napromienionych próbek do coraz wyższych temperatur. Na wykresach porównano osobno zmiany dla próbki napromienionej promieniowaniem beta i alfa.



Rysunek 5.7. Zmiany w absorbancji i emisji PL w wyniku grzania próbek do coraz wyższych temperatur. Zmierzone dla próbek LiF napromienionych uprzednio: a) 30 kGy promieniowaniem beta ze źródła Sr-90/Y-90; b) cząstkami alfa o fluencji $3.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ (Am-241).

Porównując ze sobą zmiany w absorbancji zmierzonej dla pasma M oraz zmiany w emisji fotoluminescencji zmierzonej dla długości fali 525 nm, dla próbki napromienionej promieniowaniem beta, można stwierdzić, że temperatura grzania, po której obserwujemy maksimum absorbancji, zgadza się z temperaturą, dla której obserwowane jest maksimum emisji PL. Taka zależność może wskazywać na to, że wzrost w emisji związany jest ze wzrostem liczby centrów F_3^+ w próbce po zastosowaniu obróbki termicznej w temperaturach bliskich 140°C . W przypadku próbki napromienionej cząstkami alfa zarówno absorbancja, jak i emisja pozostają na bardzo zbliżonym poziomie aż do temperatury grzania ok. 160°C . Powyżej tej temperatury ich wartość stopniowo spada.

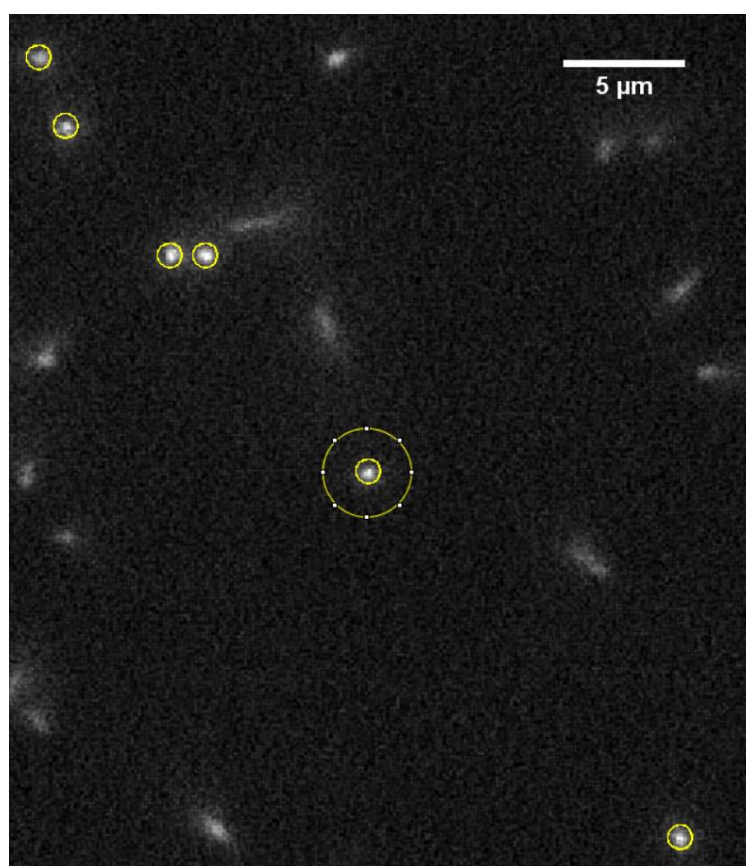
5.2. Wpływ wygrzewania na jasność śladów

Jak wspomniano wcześniej, pomiary spektralne zostały wykonane dla dawek znacznie wyższych, niż te, dla których możliwe jest zastosowanie kryształów LiF jako detektorów śladowych. Aby zaobserwować zmianę intensywności pojedynczych śladów cząstek jądrowych, próbki z kryształów LiF zostały poddane napromienianiu przy użyciu źródła Alfa 1. Zdecydowana większość obrazów mikroskopowych, które zostaną przedstawione w dalszej części rozdziału 5, została wykonana dla próbek LiF napromienionych cząstkami alfa o fluencji około $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$. Odpowiada to dawce ok. 0.1 Gy, czyli ponad $2 \cdot 10^6$ razy mniejszej, niż dawka promieniowania alfa zastosowana w przypadku pomiarów spektralnych.

5.2.1. Efekt wzmocnienia jasności śladów

Pomiary intensywności śladu wykonywane były dla obrazów mikroskopowych zarejestrowanych na głębokości 3 μm pod powierzchnią próbki. Wybór takiej głębokości pozwala na wyeliminowanie tzw. „fałszywych śladów”, czyli świecących punktów pochodzących od zabrudzeń i uszkodzeń powierzchni, które mogą zostać omyłkowo uznane za ślady cząstek alfa. Dodatkowo pomiary poniżej powierzchni wykazują niższe wartości tła, ze względu na mniejszy wkład od zanieczyszczeń. Nie zdecydowano się na pomiary na większych głębokościach ze względu na stopniowe zanikanie śladów (ze względu na zasięg cząstek alfa w LiF). Aby dodatkowo zapewnić niezależność jasności śladów od kąta, pod którym cząstka pada na detektor, mierzono jasność tylko śladów o kształcie w przybliżeniu okrągłym.

Dla każdej badanej próbki (w konkretnych warunkach, np. po grzaniu do zadanej temperatury) wykonywane było od 3 do 5 zdjęć mikroskopowych, co łącznie dawało od ok. 45 do 80 zmierzonych śladów.



Rysunek 5.8. Fragment typowego obrazu mikroskopowego próbki napromienionej promieniowaniem alfa (fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$). Czas akwizycji wynosił 2 s. Na obrazie zaznaczono ślady, które zostały uznane za pochodzące od cząstek padających prostopadłe do powierzchni detektora. Wokół jednego ze śladów został narysowany okrąg ilustrujący obszar z którego wyznaczane jest tło lokalne.

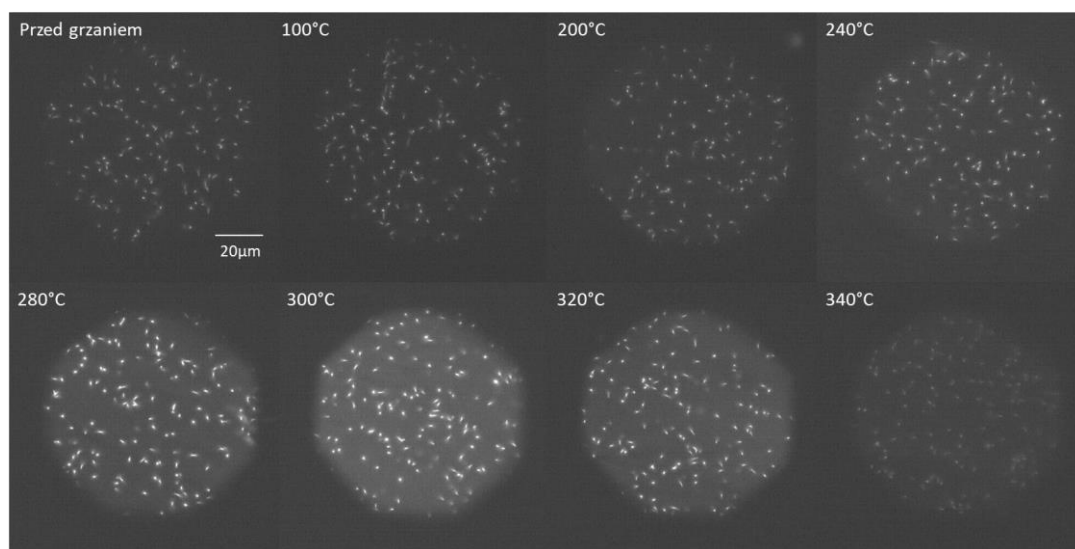
Dla każdej badanej temperatury grzania średnia jasność śladów była porównywana do średniej jasności śladów przed zastosowaniem jakiegokolwiek obróbki termicznej.

Sekwencja napromieniania i pomiarów wyglądała następująco:

1. Napromienienie próbki cząstkami alfa;
2. Odczekanie co najmniej 20 h ze względu na zmiany w intensywności śladów;
3. Rejestracja obrazów mikroskopowych dla próbki przed grzaniem i wyznaczenie średniej jasności śladów;
4. Zastosowanie procedury grzania;
5. Rejestracja obrazów mikroskopowych po grzaniu i wyznaczenie średniej jasności śladów;
6. Porównanie jasności śladów po i przed zastosowaniem grzania.

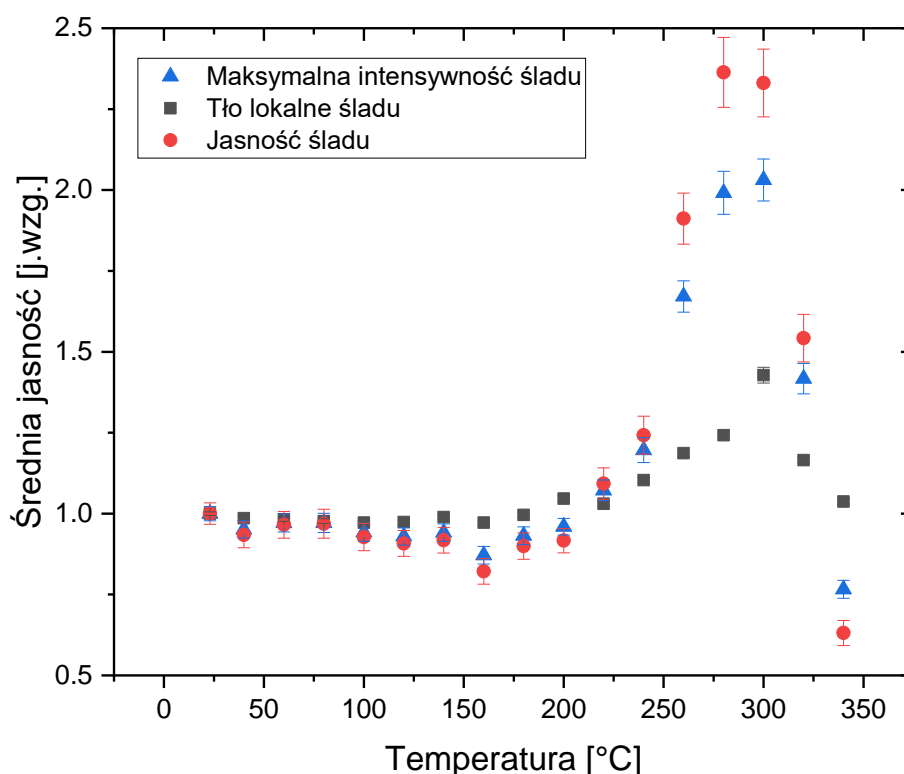
Aby móc porównać otrzymane wyniki ze zmierzonymi wcześniej widmami emisyjnymi zastosowano taką samą procedurę grzania (z zastosowaniem stolika grzewczego Linkam THMS600). Napromieniona próbka grzana była do coraz wyższych temperatur od temperatury pokojowej (23°C), z krokiem co 20°C, aż do momentu, w którym ślady były niewidoczne. Czas grzania i chłodzenia na stoliku grzewczym wynosił 3 min, a szybkość grzania 150°C/min. Zdjęcia mikroskopowe wykonywane były w temperaturze pokojowej.

Na Rysunku 5.9. przedstawione zostały obrazy mikroskopowe zarejestrowane dla tej samej próbki LiF po podgrzaniu jej do wybranych temperatur. Zauważono, że dla temperatury grzania wyższej niż 200°C następuje wzrost w intensywności zarówno obserwowanych śladów, jak i tła.



Rysunek 5.9. Obrazy mikroskopowe zarejestrowane dla tej samej próbki LiF po napromienieniu promieniowaniem alfa (fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$) i grzaniu do coraz wyższych temperatur. Czas akwizycji 2 s. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne wszystkich obrazów są takie same.

Na Rysunku 5.10. przedstawiono zmiany w średniej maksymalnej intensywności śladów, tle lokalnym oraz jasności śladów jakie następują po poddaniu kryształów LiF grzaniu w coraz wyższych temperaturach. Niepewność pomiaru zaznaczona na wykresie została obliczona jako odchylenie standardowe średniego stosunku jasności śladu lub tła zmierzonego po i przed grzaniem.



Rysunek 5.10. Zmiana średniej jasności w funkcji temperatury grzania. Próbką napromieniona promieniowaniem alfa (Am-241, fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$).

Jasność śladów (a także tła) pozostaje na podobnym poziomie aż do osiągnięcia temperatury grzania ok. 200°C. Grzanie kryształu LiF powyżej tej temperatury powoduje zmianę w jasności. Dla temperatury grzania z zakresu od 200°C do 320°C zastosowanie obróbki termicznej prowadzi do wzrostu jasności śladów. **Efekt ten będzie w dalszym ciągu pracy nazywany „efektem wzmocnienia”**. Największe wzmocnienie występuje dla temperatur około 280 – 300°C. Stosunek jasności śladów po grzaniu do jasności przed grzaniem wynosi prawie 2.5. Ten współczynnik nazywany będzie współczynnikiem wzmocnienia W :

$$W = \frac{max_{temp} - tło_{temp}}{max_{23} - tło_{23}} \quad (5.1)$$

gdzie:

W – współczynnik wzmocnienia;

max_{temp} – średnia maksymalna intensywność śladu po grzaniu w zadanej temperaturze;

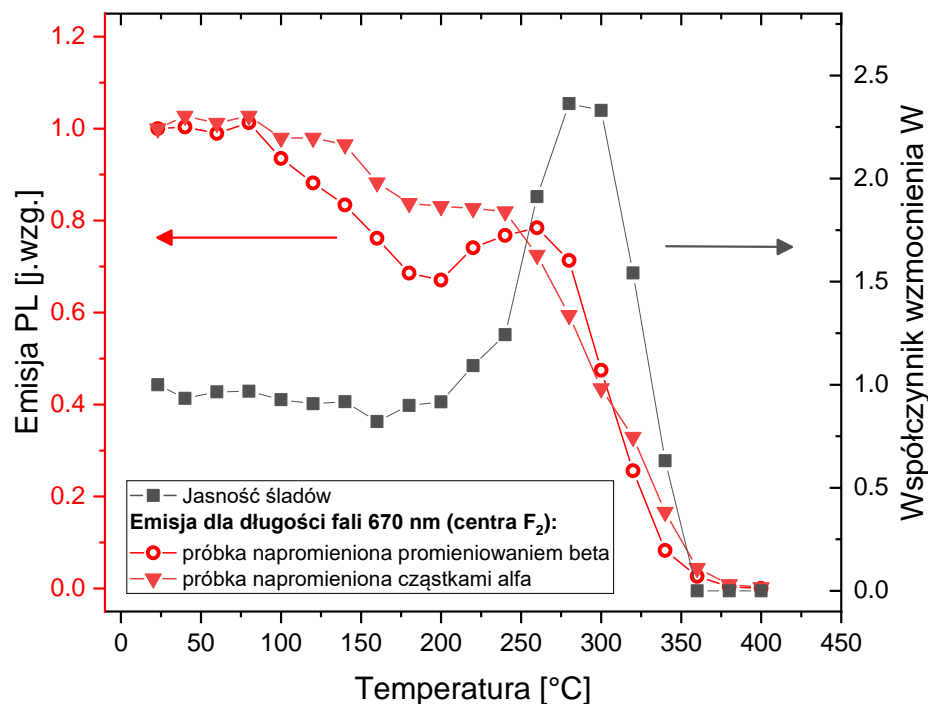
tlo_{temp} – średnie tło lokalne śladu po grzaniu w zadanej temperaturze;

max_{23} – średnia maksymalna intensywność śladu przed grzaniem;

tlo_{23} – średnie tło lokalne przed grzaniem.

Grzanie próbek do temperatur wyższych niż 300°C powoduje bardzo szybkie zanikanie efektu wzmocnienia. Po wygrzewaniu w temperaturze 340°C ślady są mniej intensywne niż przed grzaniem, a dalsze grzanie kryształu prowadzi do całkowitego zaniku fotoluminescencji.

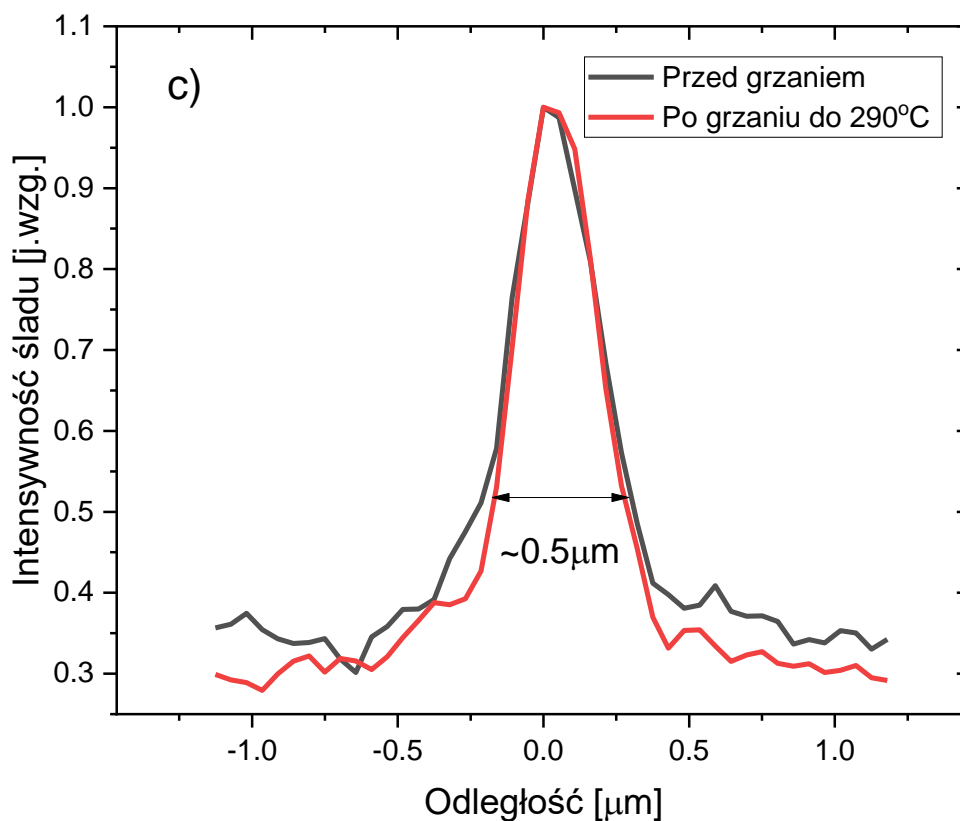
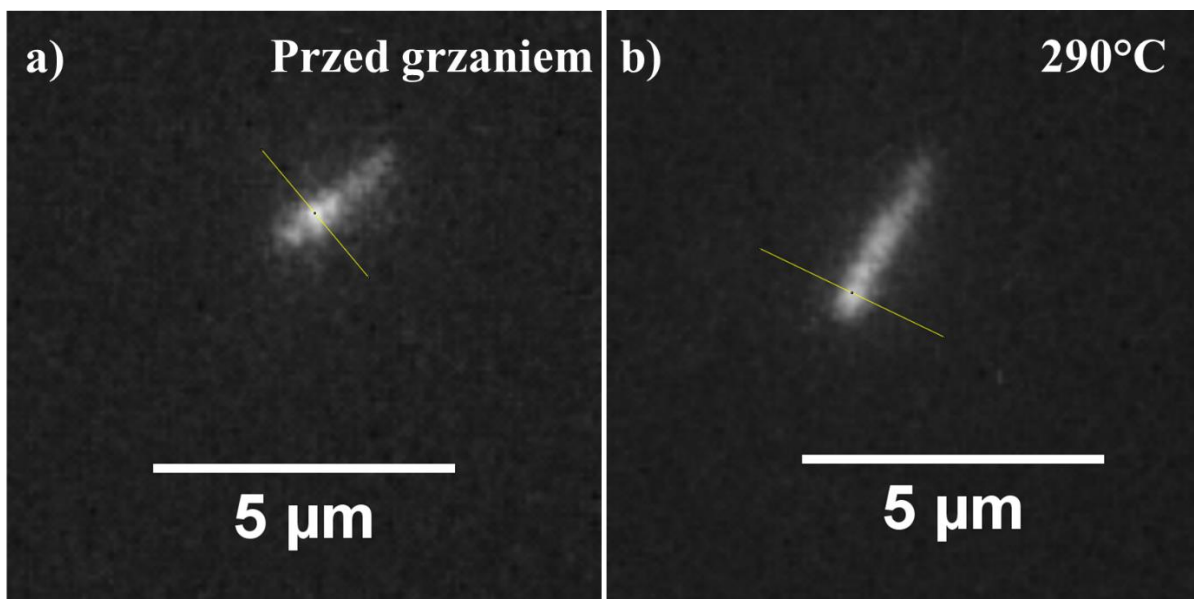
Wystąpienie dużego wzmocnienia jasności śladów po grzaniu kryształów do temperatur tak wysokich jak 300°C jest interesującym i zaskakującym efektem. Zwiększenie sygnału fotoluminescencyjnego w tym zakresie temperatur jest odwrotnym zachowaniem niż to, które można było zaobserwować dla kryształów napromienionych dużymi dawkami promieniowania alfa lub beta. Porównanie zmian w fotoluminescencji wyznaczonych na podstawie pomiarów widm emisyjnych oraz analizy obrazów mikroskopowych zostało przedstawione na Rysunku 5.11. W przypadku pomiarów spektralnych, po zastosowaniu temperatur ok. 280 – 300°C emisja fotoluminescencji w czerwonym zakresie widma spada do około 50% zarówno dla próbki napromienionej promieniowaniem alfa, jak i beta. W przypadku próbki napromienionej promieniowaniem beta można zaobserwować maksimum lokalne dla temperatur grzania ok. 220-280°C. Występuje ono jednak dla niższych temperatur niż w przypadku zwiększenia jasności śladów. Grzanie w tym przypadku nie powoduje także zwiększenia sygnału w stosunku do PL zmierzonej dla próbki niepoddanej obróbce termicznej po napromienieniu.



Rysunek 5.11. Porównanie zmian w emisji PL i zmian w jasności śladów dla kryształów LiF poddanych grzaniu po ekspozycji na promieniowanie jonizujące.

Ponieważ w praktyce pomiarowej przy stosowaniu detektorów z LiF wykorzystywane są małe dawki promieniowania (takie, które umożliwiają detekcję pojedynczych śladów) obserwowany efekt wzmocnienia jest bardzo obiecujący. Niestety, wraz ze wzrostem jasności śladu zwiększa się także jasność tła, co można zaobserwować na Rysunku 5.9. Wzrost jasności tła występował dla wszystkich badanych próbek. Co więcej, nie jest on taki sam dla różnych kryształów, a nawet dla różnych próbek wykonanych z tego samego kryształu. Zależy on natomiast bardzo silnie od jakości powierzchni podgrzewanej próbki. Po zastosowaniu obróbki termicznej wszelkie zarysowania i zabrudzenia obecne na powierzchni podczas ekscytacji światłem niebieskim stają się źródłem bardziej intensywnego światła. Pojawiają się także niedoskonałości, które nie były widoczne przed podgrzaniem kryształu. To wszystko wpływa na zwiększenie jasności tła, a także utrudnia prowadzenie pomiarów.

Zauważono także, że wzrost jasności śladów obserwowany po podgrzaniu detektorów do temperatury 290°C nie prowadzi do pogorszenia jakości śladów obserwowanych na obrazach, które mogłyby być spowodowane migracją defektów. Po podgrzaniu ślady nie rozmywają się ani nie dochodzi do ich poszerzenia. Nawet kiedy kryształy podgrzewane są do temperatur wyższych niż 300°C i ich jasność zaczyna maleć, ich kształt pozostaje taki sam. Porównanie szerokości śladów i ich profili zostało przedstawione na Rysunku 5.12.

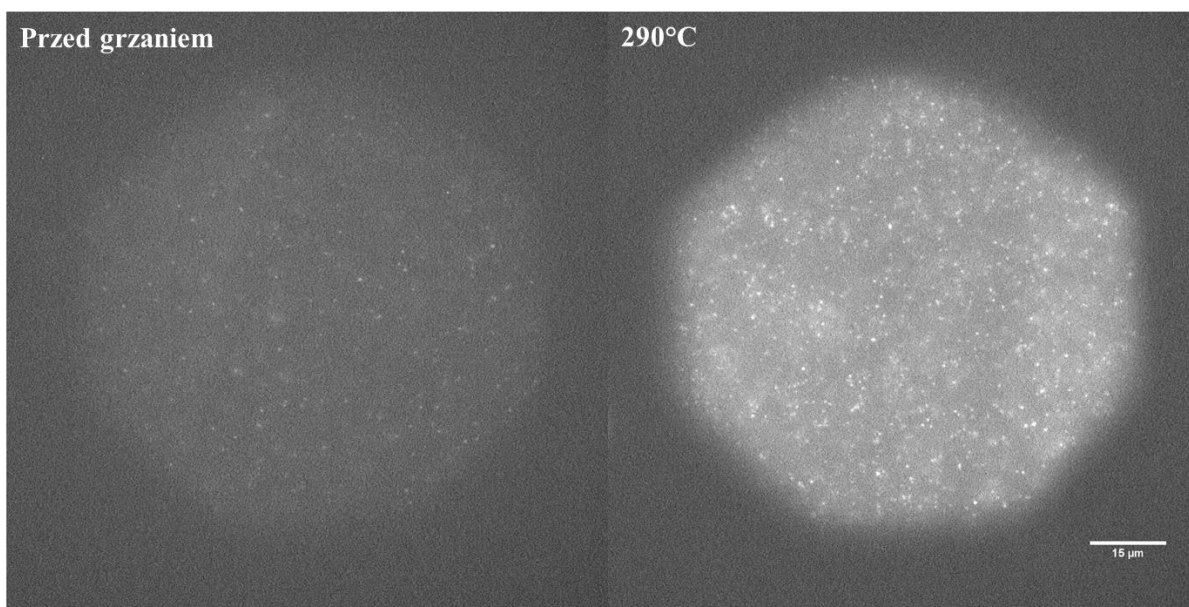


Rysunek 5.12. Porównanie śladów cząstek alfa: a) przed i b) po grzaniu do temperatury 290°C. Panel c) przedstawia profil śladów czyli znormalizowaną wartość intensywności zmierzona wzdłuż żółtych linii prostopadłych do osi śladów.

Sprawdzono także, czy zastosowanie procedury grzania umożliwia obserwację śladów w zielonym zakresie widma emisyjnego (który związany jest z centrami F_3^+). W przypadku próbek, wobec których niezastosowana była obróbka termiczna, taka obserwacja nie jest

możliwa ze względu na zbyt niską emisję światła w tym zakresie długości fali. Dla próbek po zastosowaniu grzania do temperatur z zakresu od 23°C do 400°C zarejestrowano obrazy z użyciem filtra pasmowoprzepustowego HQ 535/30. Okazało się, że opisana powyżej procedura grzania nie umożliwiła obserwacji śladów w zielonym zakresie widma. Nawet przy zastosowaniu bardzo długich czasów ekspozycji (rzędu kilkudziesięciu sekund) ślady cząstek alfa nie były widoczne.

W późniejszych badaniach skupiono się na pomiarach dla kryształów LiF napromienionych cząstkami alfa lub jonami, ponieważ ślady te są najłatwiejsze do zmierzenia. Efekt wzmocnienia nie ogranicza się jednak tylko do tych cząstek. Na Rysunku 5.13. przedstawione zostały obrazy zarejestrowane przed i po grzaniu do 290°C próbki kryształu LiF napromienionego uprzednio promieniowaniem gamma (Cs-137, dawka 50 mGy).



Rysunek 5.13. Obrazy zarejestrowane przed i po grzaniu do 290°C dla próbki napromienionej promieniowaniem gamma (Cs-137, 50 mGy). Głębokość rejestracji obrazu 5 μm, czas akwizycji 20 s. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne obu obrazów są takie same.

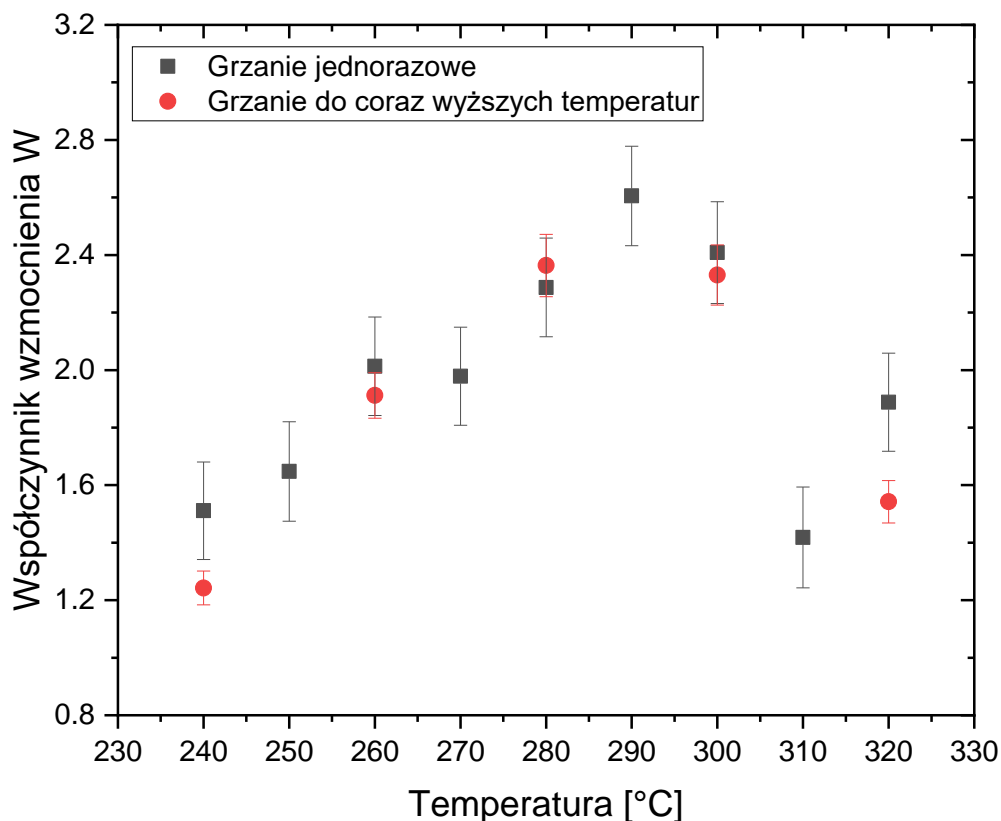
Ślady wytworzone w wyniku oddziaływania promieniowania gamma nie mają kształtu przypominającego rzeczywisty tor ruchu wtórnych elektronów. Są one niewielkimi kropkami o rozmiarach zbliżonych do rozdzielczości przestrzennej wykorzystywanego systemu mikroskopowego (ok. 400 nm). Mogą one być interpretowane jako wynik lokalnie zwiększonej depozycji energii występującej np. w miejscu przecięcia się śladów kilku elektronów lub na końcu toru cząstki. W wyniku podgrzania detektora wyraźnie zwiększa się jasność obserwowanych śladów. Widoczna jest ich także większa liczba, co wynika prawdopodobnie z większej jasności śladów występujących na warstwach poniżej i powyżej głębokości

obserwacji. Bardzo wyraźnie zwiększa się także jasność tła, co w przypadku kryształów napromienionych promieniowaniem gamma może być spowodowane nie tylko zanieczyszczeniami występującymi na powierzchni próbki, ale także zwiększeniem sygnału PL pochodzącego od centrów barwnych nieformujących wyraźnych śladów. Takie centra niewątpliwie istnieją, ponieważ promieniowanie gamma deponowane jest w całej objętości kryształu. Ze względu na małą intensywność nie są one jednak widoczne podczas standardowych pomiarów.

Mimo problemów ze wzrostem jasności tła, efekt wzmocnienia śladów ma bardzo duży potencjał. Może on bowiem prowadzić do zwiększenia stosunku sygnału do szumu, a przez to do zwiększenia możliwości pomiarowych detektorów FNTD z LiF. W kolejnych rozdziałach przedstawione zostaną dalsze badania nad optymalizacją procedury grzania po napromienieniu detektorów.

5.2.2. Optymalizacja temperatury grzania

Przy zastosowaniu stopniowego grzania do coraz wyższych temperatur, maksimum wzmocnienia, zarówno dla jasności śladów, jak i dla tła lokalnego śladów występuje dla temperatur 280 – 300°C. Całkowity czas trwania takiej procedury grzewczej jest jednak dość długi i niepraktyczny w codziennym użytku. W związku z tym efekt wzmocnienia wywołany stopniowym dogrzewaniem do coraz wyższych temperatur został porównany z efektem wzmocnienia występującym po jednorazowym grzaniu do zadanej temperatury. Poza tym wszelkie pozostałe parametry grzania (czas grzania i chłodzenia, szybkość grzania) pozostały takie same. W celu wybrania optymalnej temperatury grzania przeprowadzone zostały pomiary po jednorazowym grzaniu do temperatur z zakresu od 240°C do 320°C z krokiem co 10°C. Ponieważ pomiary dla procedury jednorazowego grzania prowadzone były z zastosowaniem różnych próbek LiF, w niepewności uwzględnione zostało także odchylenie standardowe od średniego wzmocnienia wyznaczonego dla wszystkich próbek po podgrzaniu do 290°C (wzmocnienie to zostało zmierzone osobno, aby uwzględnić możliwe różnice pomiędzy próbkami). Na Rysunku 5.14. przedstawiony został współczynnik wzmocnienia W wyznaczony dla jednorazowego i stopniowego grzania w zależności od temperatury grzania.



Rysunek 5.14. Współczynnik wzmocnienia W w funkcji temperatury grzania. Próbkę napromieniono cząstkami alfa ze źródła Am-241 (fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$).

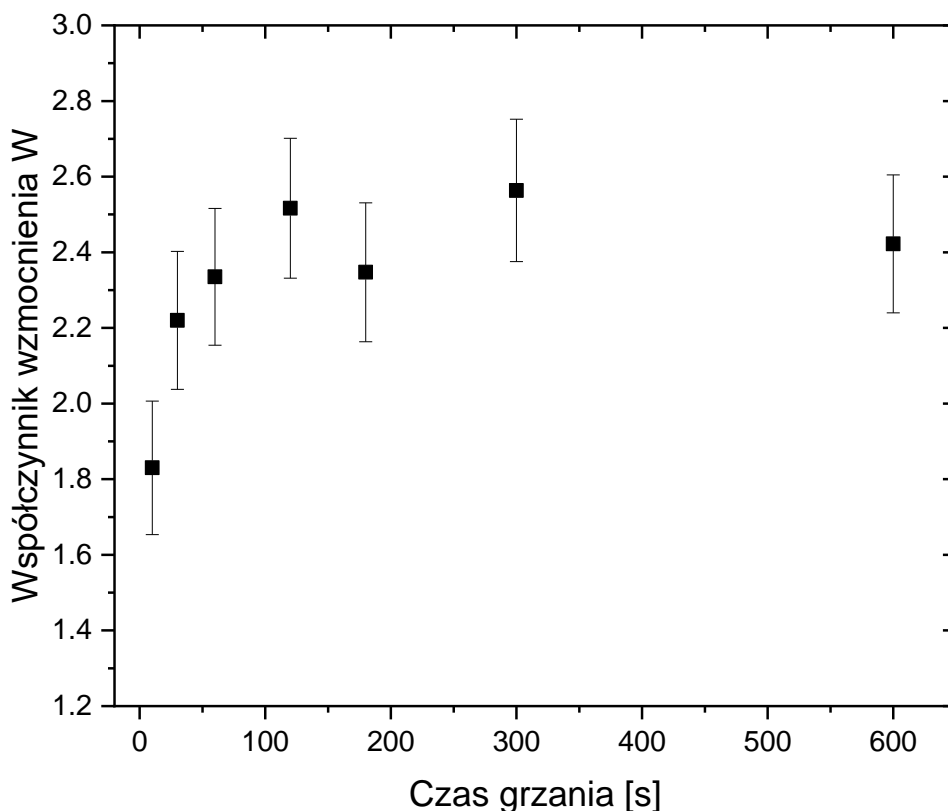
Wartości współczynnika wzmocnienia W otrzymane po zastosowaniu jednorazowego grzania są bardzo zbliżone do tych, które otrzymano w wyniku stopniowego grzania do coraz wyższych temperatur. Oznacza to, że obie procedury grzania dają takie same rezultaty. Jedynie dla najwyższych temperatur (powyżej 300°C) występują znaczące różnice. Po zastosowaniu tak wysokich temperatur ślady zaczynają już zanikać, co może mieć wpływ na otrzymane wyniki.

Największe wzmocnienie w przypadku jednorazowego grzania uzyskano dla temperatury grzania wynoszącej 290°C . Współczynnik wzmocnienia W wynosi dla niej ok. 2.5. W kolejnych rozdziałach ta temperatura będzie stosowana jako temperatura standardowa w badaniach nad efektem wzmocnienia jasności śladów.

5.2.3. Optymalizacja czasu grzania

W celu wyznaczenia optymalnego czasu trwania obróbki termicznej zmierzono współczynnik wzmocnienia W po zastosowaniu procedury jednorazowego grzania do 290°C z zastosowaniem różnych czasów grzania. Zamiast wykorzystywanego we wcześniejszych badaniach czasu

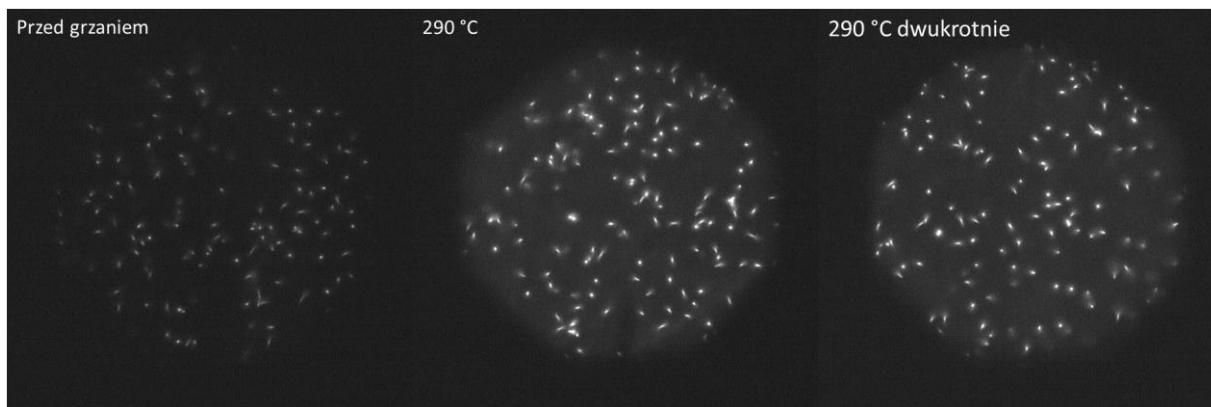
grzania i chłodzenia wynoszącego 3 min zastosowano różne czasy z zakresu od 10 s do 10 min (10 s, 30 s, 1 min, 2 min, 3 min, 5 min oraz 10 min). Tak jak w przypadku optymalizacji temperatury grzania, do pomiarów wykorzystane zostały różne próbki LiF. Niepewności pomiaru zostały wyznaczone w analogiczny sposób, z uwzględnieniem indywidualnych różnic między próbkami. Wartości współczynnika wzmocnienia W wyznaczone dla próbek w funkcji czasu grzania przedstawione zostały na Rysunku 5.15.



Rysunek 5.15. Wartość współczynnika wzmocnienia W w funkcji czasu grzania. Próbki napromienione cząstkami alfa ze źródła Am-241 (fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$).

Wartość współczynnika wzmocnienia W wzrasta wraz z wydłużaniem czasu trwania obróbki termicznej, aż do czasu 60 s. Powyżej tego czasu występują jedynie niewielkie różnice we współczynniku wzmocnienia. Nie wykazują one jednak żadnego wyraźnego trendu oraz mieszczą się w granicach niepewności pomiaru. Można wobec tego stwierdzić, że wybór jakiegokolwiek czasu grzania z zakresu od 120 s do 600 s da podobny efekt wzmocnienia jasności śladów. Z tego powodu zdecydowano, że jako standardowy czas grzania i chłodzenia próbek wybrany zostanie czas 3 min, co pozwoliło na zachowanie spójności z wynikami wcześniejszych pomiarów.

Sprawdzono także, czy zastosowanie kolejnego procesu grzewczego, już po wcześniejszym grzaniu próbki, wpływa w jakikolwiek sposób na jasność śladów. W tym celu próbkę napromienioną promieniowaniem alfa poddano standardowemu grzaniu do 290°C, a następnie po schłodzeniu i odczycie, kolejnemu takiemu samemu grzaniu. Na Rysunku 5.16. przedstawione zostały obrazy mikroskopowe tej samej próbki LiF przed zastosowaniem jakiegokolwiek obróbki termicznej, po pierwszym grzaniu do 290°C oraz po drugim grzaniu do 290°C.



Rysunek 5.16. Trzy zdjęcia mikroskopowe wykonane dla tej samej próbki LiF napromienionej cząstkami alfa ze źródła Am-241 (fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$), od lewej: przed zastosowaniem obróbki termicznej, po zastosowaniu grzania do 290°C, po zastosowaniu dwukrotnego grzania do 290°C. Czas akwizycji 2 s. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne wszystkich obrazów są takie same.

W Tabeli 5.1. przedstawiono zmiany w średniej maksymalnej intensywności śladów, średnim tle lokalnym śladów oraz średniej jasności śladów (współczynnik wzmocnienia W) zmierzone po zastosowaniu obu procesów grzewczych.

Tabela 5.1. Wpływ dwukrotnego grzania do 290°C na efekt wzmocnienia.

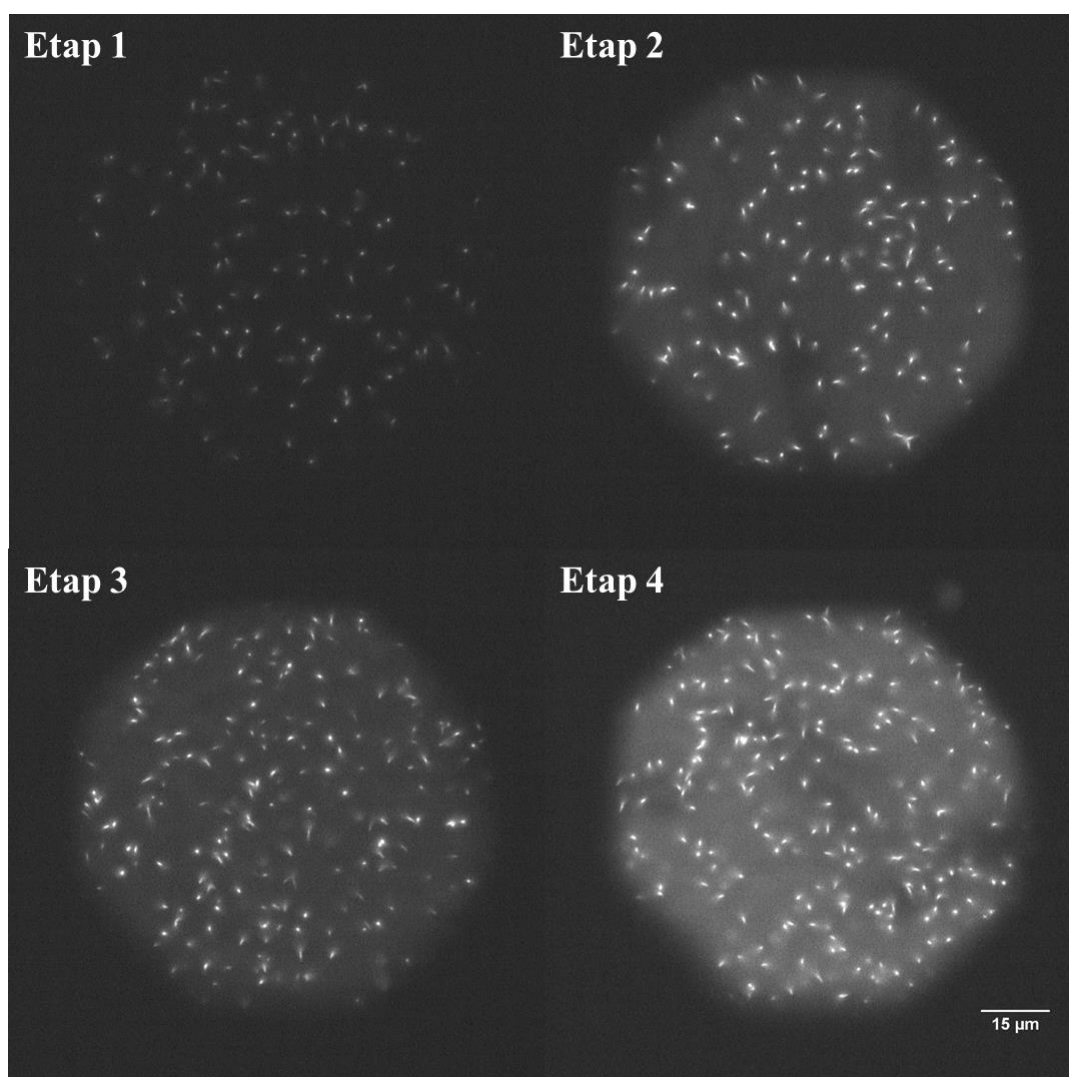
Oznaczenie procesu grzewczego	Stosunek maksymalnej intensywności śladów do wartości zmierzonej przed grzaniem	Stosunek tła lokalnego śladów do wartości zmierzonej przed grzaniem	Stosunek jasności śladów do wartości zmierzonej przed grzaniem
290°C	2.22	1.19	2.68
290°C dwukrotnie	2.17	1.34	2.53

Z przeprowadzonych pomiarów wynika, że dodatkowe grzanie próbki, która wcześniej poddana już została standardowemu procesowi grzania do temperatury 290°C, nie ma wpływu na występujący efekt wzmocnienia. Nie zaobserwowano znaczącej różnicy w jasności śladów lub tła po zastosowaniu dodatkowego grzania próbek.

Wykonano także kombinację napromieniania i wygrzewania kryształów LiF mającą na celu uzyskanie obrazów mikroskopowych próbki, w której występują dwa typy śladów: wzmocnione i niewzmocnione. W tym celu kryształ poddano następującej serii napromieniań i procesów grzewczych:

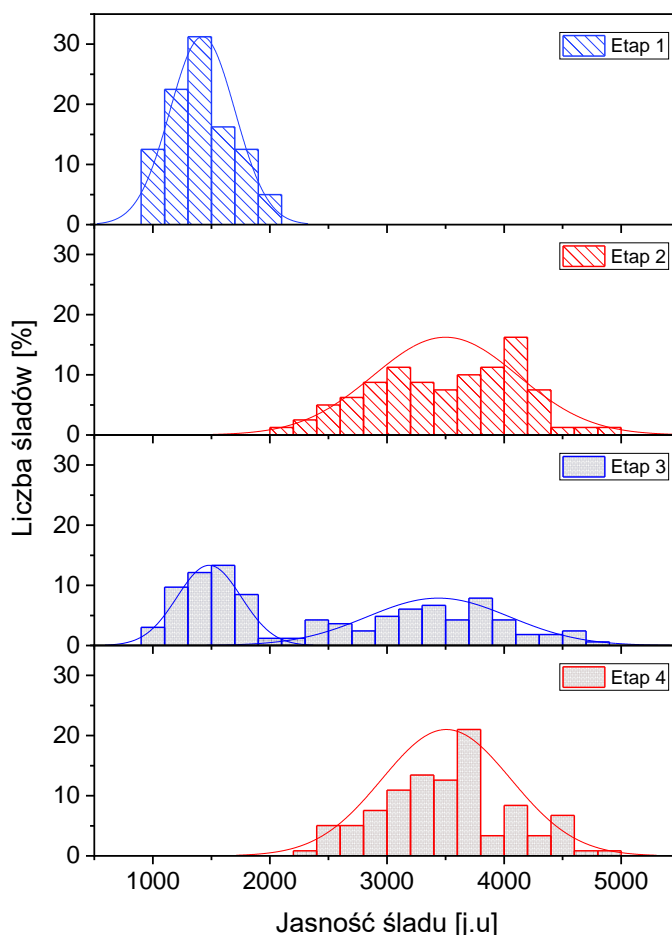
1. Próbkę napromieniono cząstkami alfa ze źródła Am-241 (fluencja $1.2 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$);
2. Próbkę podgrzano do 290°C z zastosowaniem standardowego procesu grzania;
3. Po ostygnięciu próbkę ponownie napromieniono cząstkami alfa o takiej samej fluencji.
4. Próbkę podgrzano ponownie do 290°C .

Po każdym etapie rejestrowano obrazy mikroskopowe próbki. Przykładowe obrazy przedstawione zostały na Rysunku 5.17.



Rysunek 5.17. Przykładowe zdjęcia mikroskopowe wykonane po kolejnych etapach cyklu napromieniań i procesów grzewczych. Czas akwizycji wynosił 2 s. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne wszystkich obrazów są takie same.

Po każdym z etapów wykonano od 4 do 5 zdjęć mikroskopowych dla których zmierzono jasność śladów. Dla każdego z etapów zmierzone zostało co najmniej 80 śladów. Wykonane zostały histogramy przedstawiające procentową częstość występowania śladów o danej jasności. Do histogramów dopasowane zostały krzywe Gaussa.



Rysunek 5.18. Histogramy przedstawiające rozkład jasności śladów po kolejnych etapach cyklu napromieniowań i procesów grzewczych. Ślady o średniej jasności ok. 1500 są niewzmocnione, a ok. 3500 wzmocnione.

Histogram rozkładu jasności śladów po pierwszym etapie cyklu jest jednomodalny. Jasność śladów zawiera się w przedziale od 900 do 2100, a wyraźnie najwięcej śladów ma jasność z przedziału 1300 – 1500. Dopasowana do histogramu krzywa Gaussa dobrze opisuje rozkład jasności śladów. Po drugim etapie, czyli po podgrzaniu próbek, następuje wzmocnienie jasności śladów. Co więcej, jasność śladów ma znacznie większy zakres: od 2000 do aż 5000. Taki wynik sugeruje, że ślady nie są wzmacniane w taki sam sposób. Dodatkową przyczyną może być wzmocnienie śladów, które w przypadku pomiarów przed grzaniem nie były widoczne, lub była na tyle słabe, że nie były analizowane (np. zostały uznane za pochodzące z powierzchni

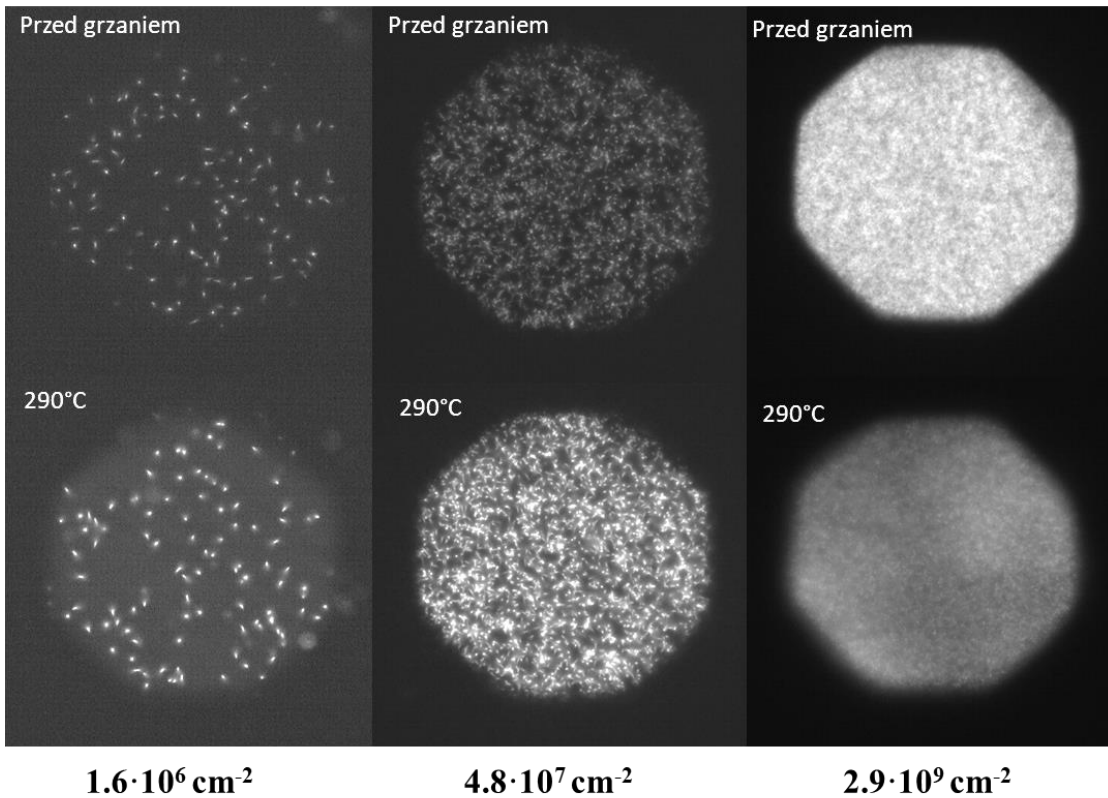
zanieczyszczenie). Histogram po trzecim etapie cyklu jest histogramem dwumodalnym. Można w nim wyróżnić dwie składowe. Pierwsza z nich znajduje się w niższych przedziałach jasności. Dopasowana do niej krzywa Gaussa jest węższa i ma maksimum dla jasności ok. 1500. Ta część histogramu pochodzi od śladów niewzmocnionych, które powstały w wyniku drugiego napromieniania. Druga część histogramu, która ma swoje maksimum dla wyższych jasności śladów, pochodzi od śladów wzmacnionych, które już po drugim etapie cyklu były obserwowane na obrazach mikroskopowych. Także w tym przypadku histogram dla śladów po wzmacnieniu jest szerszy niż dla śladów, które nie uległy wzmacnieniu. Histogram po czwartym etapie ponownie jest jednomodalny. W przypadku obrazów mikroskopowych zarejestrowanych po czwartym etapie wszystkie ślady uległy wzmacnieniu w wyniku kolejnego procesu grzewczego. Histogram przypomina ten, który uzyskano po drugim etapie. Niewielkie różnice w ich wyglądzie mogą być spowodowane różnicą w liczbie zmierzonych śladów. Dla histogramu po etapie drugim było to około 80 śladów, natomiast po etapie czwartym zbadano około 160 śladów. Ślady mają jasność z zakresu od 2000 do 5000. Zdecydowanie najwięcej śladów ma jasność z zakresu od 3600 do 3800.

Analizując histogramy rozkładu jasności śladów, można stwierdzić, że możliwe jest obserwowanie w tym samym czasie, przy użyciu jednej próbki, śladów, które uległy wzmacnieniu oraz tych, które nie zostały wzmacnione w wyniku grzania. Ze względu na różnice w ich jasności, po sporządzeniu histogramu, możliwe jest podzielenie wszystkich obserwowanych śladów na dwie kategorie: wzmacnione i niewzmocnione. Kolejne procesy grzewcze nie mają wpływu na ślady, które już wcześniej uległy wzmacnieniu. Możliwe jest zatem podgrzanie próbki zawierającej dwa typy śladów i w jego wyniku uzyskanie tylko śladów o podwyższonej jasności.

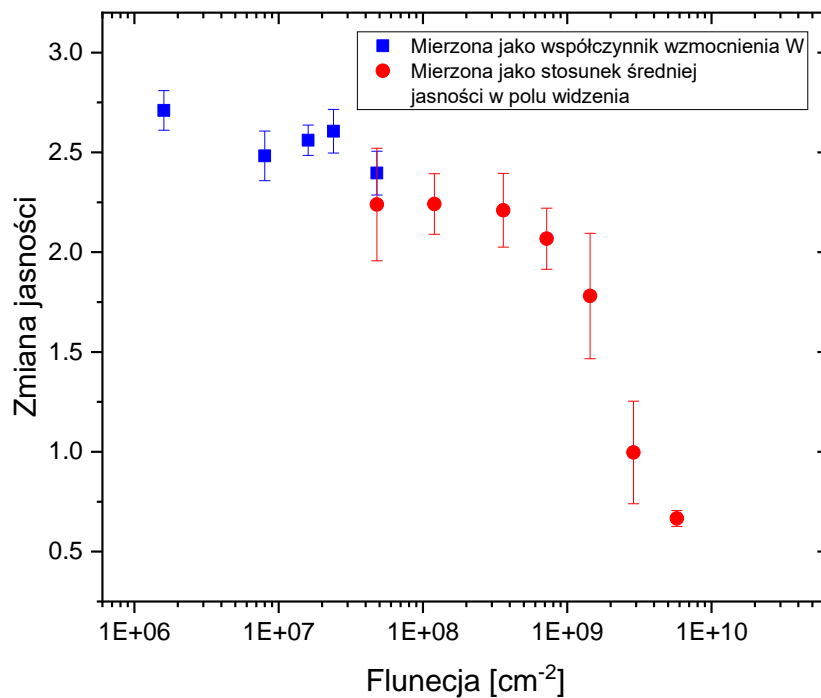
5.2.4. Wpływ fluencji cząstek na efekt wzmacnienia

W poprzednich rozdziałach zauważono, że efekt wzmacnienia jasności śladów nie występuje w przypadku próbek, dla których przeprowadzono pomiary spektralne. Jest to efekt niespodziewany i interesujący, zwłaszcza że zarówno pomiary mikroskopowe, jak i spektralne były prowadzone w takich samych warunkach (wykorzystywane było to samo źródło światła, oba typy pomiarów prowadzone były w układzie mikroskopu fluorescencyjnego). Jediną różnicą, która mogłaby powodować tak duże rozbieżności w uzyskanych wynikach, jest fluencja cząstek użyta do napromieniania próbek. W przypadku napromieniania cząstkami alfa

dla pomiarów mikroskopowych fluencja wynosiła $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$, natomiast w przypadku pomiarów spektralnych $3.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. W celu sprawdzenia, czy fluencja cząstek ma związek z występowaniem efektu wzmocnienia, przeprowadzono serię pomiarów mikroskopowych. Próbki napromienione różnymi fluencjami cząstek alfa, od $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ do $5.8 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$, zostały poddane standardowemu procesowi grzania do temperatury 290°C . Obrazy mikroskopowe zarejestrowane po zastosowaniu obróbki termicznej zostały porównane ze zdjęciami wykonanymi przed podgrzaniem próbek. Dla zdjęć wykonanych dla próbek napromienionych cząstkami o fluencji $4.8 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ i niższych wyznaczony został współczynnik wzmocnienia W . Dla wartości fluencji wyższych niż $4.8 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$, ze względu na brak możliwości rozróżnienia pojedynczych śladów, zmianę w intensywności sygnału wyznaczono jako stosunek średniej jasności w polu widzenia o średnicy $90 \mu\text{m}$ po i przed grzaniem próbki. Dla fluencji $4.8 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ zmiana sygnału wyznaczona została przy pomocy obu tych metod, aby upewnić się, że wyniki można porównywać ze sobą. Czasy akwizycji obrazów mikroskopowych różniły się dla różnych wartości fluencji i wynosiły od 2 s dla najniższych wartości fluencji do 200 ms dla najwyższych wartości fluencji. Porównywane ze sobą obrazy, zarejestrowane dla tej samej fluencji przed i po grzaniu próbki, zawsze były jednak wykonywane z takim samym czasem akwizycji. Na Rysunku 5.19. przedstawione zostały przykładowe obrazy wykonane przed i po podgrzaniu próbki dla trzech różnych wartości fluencji. Zmiana jasności wywołana zastosowaniem obróbki termicznej w zależności od fluencji cząstek alfa, którymi napromieniona została próbka LiF, zaprezentowana została na Rysunku 5.20. Niepewność wyznaczona została jako odchylenie od wartości średniej zmierzonej zmiany w jasności śladów lub pola widzenia z uwzględnieniem niepewności wynikającej z różnic w indywidualnych własnościach użytych próbek.



Rysunek 5.19. Zdjęcia mikroskopowe wykonane przed i po podgrzaniu próbki. Kryształy LiF napromienione różnymi fluencjami cząstek alfa ze źródła Am-241. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne obrazów zarejestrowanych dla detektorów napromienionych daną fluencją cząstek są takie same.



Rysunek 5.20. Zależność między zmianą jasności wywołaną grzaniem napromienionych próbek LiF a fluencją cząstek alfa.

Przeprowadzone pomiary potwierdziły hipotezę, że różnice pomiędzy wynikami pomiarów wykonanych z użyciem mikroskopu i spektrometru wynikają z różnic we fluencji cząstek, którymi próbki były napromienione. Wzmocnienie na poziomie 2.5 można uzyskać tylko dla bardzo małych fluencji, do mniej więcej $4.8 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$. Powyżej tej wartości efekt wzmocnienia staje się mniej wyraźny. Dla wartości fluencji ok. $2.9 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ średnia jasność w polu widzenia po zastosowaniu obróbki termicznej jest w przybliżeniu taka sama jak przed podgrzaniem próbki. Dalsze zwiększanie fluencji powoduje, że jasność obserwowana po grzaniu detektora jest niższa niż przed zastosowaniem jakiegokolwiek obróbki termicznej.

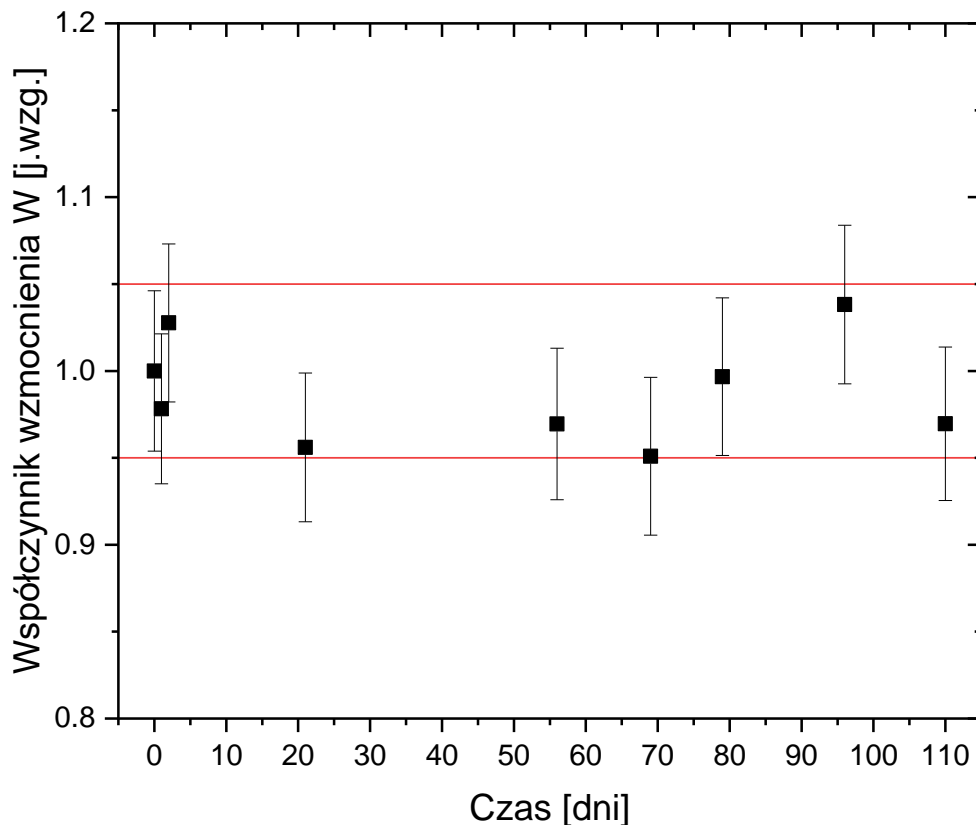
5.2.5. Trwałość efektu wzmocnienia

W badaniach nad efektem wzmocnienia w wyniku grzania napromienionych kryształów LiF przeprowadzonych w poprzednich rozdziałach maksymalny czas pomiędzy grzaniem próbek a pomiarem wynosił ok. 24 h. W praktyce pomiarowej często zdarza się jednak, że pomiary z użyciem detektorów śladowych wykonywane są nawet kilka miesięcy po napromienieniu. Dodatkowo ponieważ technika FNTD jest metodą nieniszczącą, odczyty tej samej próbki mogą być prowadzone wielokrotnie bez utraty sygnału.

Aby sprawdzić, czy efekt wzmocnienia jest stały w czasie, próbkę napromienioną cząstkami alfa o fluencji $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ poddano grzaniu do 290°C i zmierzono średnią jasność śladów oraz wyznaczono współczynnik wzmocnienia W bezpośrednio po schłodzeniu próbki do temperatury pokojowej. Następnie, próbkę przechowywano przez 8 miesięcy w stałych warunkach atmosferycznych, w miejscu nienarażonym na intensywne działanie światła. Po tym czasie ponownie wykonano zdjęcia mikroskopowe i zmierzono średnią jasność śladów. Okazało się, że różnica pomiędzy współczynnikiem wzmocnienia śladów zmierzonym od razu po grzaniu próbki i po 8 miesiącach wynosiła mniej niż 5%. Oznacza to, że efekt wzmocnienia jest efektem stałym i utrzymuje się na podobnym poziomie nawet po wielu miesiącach przechowywania kryształów.

Sprawdzono także, czy prowadzenie obserwacji mikroskopowych próbki wpływa w jakiś sposób na obserwowane wzmocnienie jasności śladów. W tym celu próbka przechowywana była przez 110 dni od napromieniania i podgrzania. W tym czasie, w nieregularnych odstępach czasu wykonywane były zdjęcia mikroskopowe. Za każdym razem mierzone było od 60 do 80 śladów, a otrzymywany współczynnik wzmocnienia porównywany był ze współczynnikiem wzmocnienia, który otrzymano od razu po podgrzaniu i schłodzeniu próbki. Na Rysunku 5.21.

przedstawione zostały względne zmiany współczynnika wzmocnienia w czasie. Czerwone linie na wykresie oznaczają zmianę wartości współczynnika wzmocnienia na poziomie 5%. Niepewność wyznaczona została jako odchylenie od wartości średniej zmiany jasności śladów.



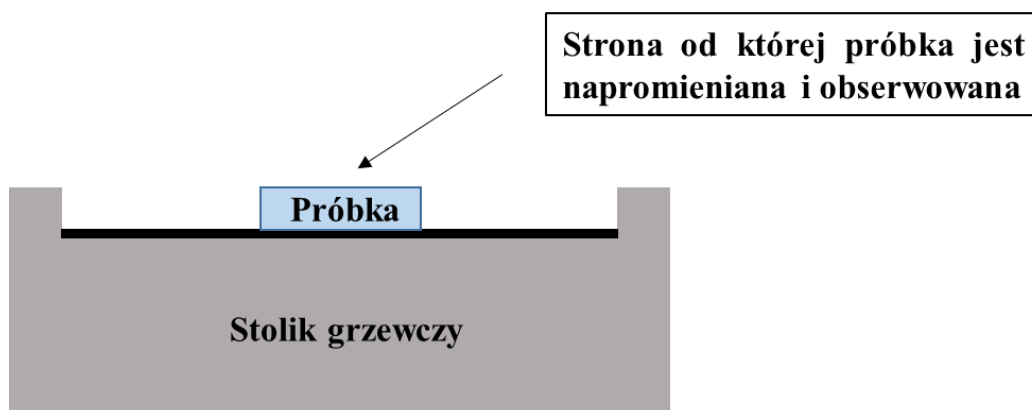
Rysunek 5.21. Zmiany współczynnika wzmocnienia W w zależności od czasu, który upłynął od grzania próbki. Wyniki znormalizowane do wartości współczynnika wzmocnienia wyznaczonego od razu po grzaniu detektorów.

Również w tym przypadku zmiany współczynnika wzmocnienia nie przekraczają 5%. Dodatkowo nie występuje w nich żaden trend, a widoczne niewielkie wahania mają charakter statystyczny. Próbkę po podgrzaniu mogą zatem być wykorzystywane w taki sam sposób jak próbki, które nie zostały poddane żadnej obróbce termicznej po napromienieniu. Ich sygnał jest bowiem stabilny w czasie a wcześniejsze pomiary nie powodują znaczącego osłabienia jasności obserwowanych śladów.

5.2.6. Wybór obserwowanej powierzchni

Podczas badań nad efektem wzmocnienia próbki kryształów LiF były grzane na stoliku grzewczym Linkam THMS600. Zastosowanie takiej metody grzania powoduje, że detektor

jedną swoją powierzchnią styka się z powierzchnią grzewczą. Chociaż próbka grzana jest standardowo przez aż 3 min, co powinno pozwolić na równomierne ogrzanie całej objętości próbki, możliwe jest występowanie pewnych różnic, w zależności od tego, czy próbka jest obserwowana od strony powierzchni stykającej się ze stolikiem grzewczym. W dotychczasowych pomiarach próbki napromieniane i obserwowane były od strony niestykającej się ze stolikiem grzewczym. Schemat obrazujący grzanie próbki na stoliku grzewczym przedstawiony został na Rysunku 5.22.



Rysunek 5.22. Schemat standardowego grzania próbek.

Aby sprawdzić, jaki wpływ na efekt wzmocnienia ma kontakt powierzchni próbki z powierzchnią stolika grzewczego, dwie próbki LiF napromienione zostały cząstkami alfa (źródło Alfa 1, fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$) z obu stron. Zarejestrowane zostały obrazy mikroskopowe z obu stron próbki. Następnie próbki poddane zostały standardowemu procesowi grzania do 290°C . Po schłodzeniu obserwacje mikroskopowe przeprowadzone zostały z obu stron próbki: od strony powierzchni stykającej się ze stolikiem grzewczym oraz od strony powierzchni niestykającej się ze stolikiem grzewczym. Zmierzoną jasność śladów porównano z wartościami jasności dla śladów przed podgrzaniem próbek (odpowiednio dla jednej i drugiej strony). Wartości współczynnika wzmocnienia W przedstawione zostały w Tabeli 5.2.

Tabela 5.2. Różnice we współczynniku wzmocnienia W w zależności od badanej powierzchni próbki.

Oznaczenie krusztalu	Współczynnik wzmocnienia W		Stosunek współczynników wzmocnienia
	Powierzchnia stykająca się ze stolikiem	Powierzchnia niestykająca się ze stolikiem	
684_2019	2.69	2.25	0.83
590_2018	2.64	2.53	0.96

Dla obu próbek wyższy współczynnik wzmocnienia wyznaczono dla powierzchni stykającej się ze stolikiem grzewczy. W przypadku próbki z kryształu 590_2018 różnica ta była niewielka, nie przekraczała ona 5%. Dla próbki z kryształu 684_2019 różnica była większa. Próbka ta wykazywała jednak znaczny wzrost w jasności tła po podgrzaniu (dla strony stykającej się ze stolikiem jasność tła wzrosła prawie trzykrotnie, natomiast dla strony niestykającej się ze stolikiem grzewczym stosunek tła po i przed grzaniem wynosił ok. 1.4). Tak znaczący wzrost tła może wynikać np. z przenoszenia zabrudzeń występujących na stoliku grzewczym na powierzchnię próbki. Takie zabrudzenia mogą znacząco wpływać na wyniki, ponieważ zwiększają jasność tła i śladów w wybranych fragmentach próbki, powodując tym samym duże rozrzuty w mierzonych wartościach jasności śladu. Może to prowadzić do zaobserwowanych różnic we współczynnikach wzmocnienia dla próbki z kryształu 684_2019. W przypadku próbki 590_2018 różnice we współczynniku wzmocnienia są niewielkie, nadal jednak wzrost tła był większy w przypadku powierzchni stykającej się ze stolikiem grzewczym (1.53 do 1.30).

Uzyskane wyniki sugerują, że kontakt ze stolikiem grzewczym prawdopodobnie nie wpływa w znaczącym stopniu na efekt wzmocnienia. Może on natomiast prowadzić do znaczącego zwiększenia jasności tła, w wyniku przeniesienia zabrudzeń z powierzchni stolika grzewczego na powierzchnię próbki. Należy także pamiętać, że występujące różnice we współczynnikach wzmocnienia mogą być także spowodowane różnicą w jakości powierzchni próbki. Mimo iż badana jest ta sama próbka, jej dwie powierzchnie mogą mieć różną jakość (różną liczbę rys lub uszkodzeń) ze względu na osobny proces polerownia powierzchni. To także może wpływać na współczynnik wzmocnienia.

Aby zapewnić jak największą spójność wyników, zdecydowano, że standardowo badana będzie zawsze ta sama powierzchnia próbki. Wybrana została strona, która nie styka się w procesie grzania z powierzchnią stolika grzewczego.

5.2.7. Wpływ głębokości pod powierzchnią na efekt wzmocnienia

W publikowanych do tej pory pracach na temat centrów barwnych wytwarzanych w kryształach fluorku litu pojawiały się informacje na temat różnego zachowania centrów barwnych w warstwie powierzchniowej kryształu i w pozostałej jego objętości [91], [92]. Aby sprawdzić, czy efekt wzmocnienia śladów w wyniku podgrzania próbek LiF występuje w całej objętości kryształu, a nie ogranicza się jedynie do warstwy powierzchniowej, zmierzono długość śladów obserwowanych przed i po podgrzaniu próbek. W przypadku nielicznych próbek, dla których

efekt wzmocnienia nie został zaobserwowany, podgrzanie detektora do 290°C sprawia, że obserwacja śladów nie jest już możliwa (ślady zanikają). Jeżeli efekt obecny jest tylko w warstwie powierzchniowej, to ślady po podgrzaniu kryształu powinny mieć mniejszą długość.

Próbki z dwóch różnych kryształów LiF napromieniono cząstkami alfa (źródło Alfa 2, fluencja $5.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$). Wykorzystano próbki pochodzące z dwóch różnych kryształów, aby uwzględnić możliwe różnice indywidualne we właściwościach poszczególnych kryształów. Mimo iż wszystkie wykorzystywane kryształy były produkowane z zastosowaniem czystego proszku LiF jako materiału startowego, ich procesy wzrostu mogły się od siebie różnić. Również proces polerowania i wstępnego wygrzewania w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia LiF może wpływać na właściwości kryształów, zwłaszcza w warstwie przypowierzchniowej. Zarejestrowane zostały obrazy mikroskopowe, a długość obserwowanych śladów została zmierzona. Następnie próbki podgrzano do temperatury 290°C. Po schłodzeniu próbek wykonano kolejne zdjęcia mikroskopowe. Długość zmierzonych śladów porównana została z wartościami uzyskanymi przed podgrzaniem próbek. Porównana została średnia głębokość maksymalna w próbce, na której ślady są jeszcze obserwowane (czyli wartość $z' = z \cdot n$ gdzie n to współczynnik załamania światła dla LiF). Nie porównywano długości śladu w płaszczyźnie XY, wartość ta nie jest istotna z punktu widzenia prowadzonych badań. Otrzymane wyniki przedstawione zostały w Tabeli 5.3.

Tabela 5.3. Różnice w długości obserwowanych śladów cząstek alfa przed i po grzaniu do 290°C. Próbki napromienione przy użyciu źródła Alfa 2.

Oznaczenie kryształu	Długość śladu w płaszczyźnie prostopadłej do powierzchni próbki z'		
	Przed grzaniem	Po grzaniu do 290°C	Stosunek z' po i przed grzaniem
684_2019	13.58	5.92	0.44
590_2018	13.64	8.39	0.62

W przypadku cząstek o zasięgu w LiF wynoszącym ok. 14 μm wyraźnie widoczne jest, że podgrzewanie próbek do temperatury 290°C prowadzi do zmniejszenia głębokości, na której ślady są jeszcze obserwowalne, a co za tym idzie zmniejszenia ich długości. Ta obserwacja sugeruje, że efekt wzmocnienia jasności śladów może występować wyłącznie w warstwie powierzchniowej kryształu.

Warto zauważyć, że mimo iż w przypadku obu kryształów LiF średnia długość śladów zmniejszyła się, stosunek długości po i przed grzaniem dla różnych kryształów jest inny. Tak wyraźnie różnice (stosunek ok. 0.44 dla kryształu 684_2019 i 0.62 dla kryształu 590_2018) mogą wynikać z różnic w procesie grzania do temperatury zbliżonej do temperatury topnienia LiF. Ze względu na zastosowanie bardzo wysokiej temperatury pomiędzy poszczególnymi procesami grzewczymi mogą zachodzić różnice, np. w dokładnym czasie grzania próbek lub temperaturze, w jakiej próbki przebywają. Dodatkowo próbki mogą mieć także różną grubość i wymiary, a także różną jakość powierzchni co dodatkowo może wpływać na ich podatność na temperaturę. Rozbieżności mogą być także wynikiem różnic, które standardowo występują w próbkach, takich jak zanieczyszczenia powierzchni, przezroczystość kryształu czy wybór różnych miejsc na próbce podczas obserwacji mikroskopowych.

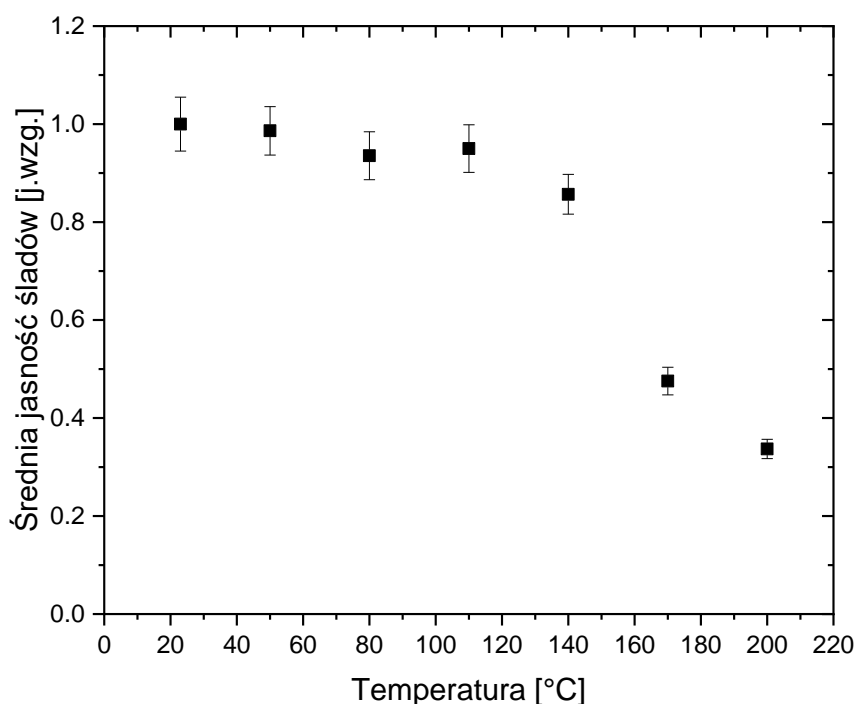
5.3. Wpływ wygrzewania wysokotemperaturowego na występowanie efektu wzmocnienia

Obecnie wszystkie próbki kryształów LiF używane jako detektory FNTD w IFJ PAN w Krakowie przed pierwszym użyciem wygrzewane są w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia fluorku litu. Zabieg ten znacząco poprawia jakość powierzchni próbek. Nie jest on jednak niezbędny, nie zmienia także jasności śladów, które obserwowane są po napromienieniu detektorów promieniowaniem jonizującym.

Podczas wygrzewania wysokotemperaturowego pocięte i wypolerowane próbki umieszczane są w piecu nagrzanym do temperatury 400°C. Próbki umieszczane są na platynowych płytkach, a grzanie prowadzone jest przy przepływie argonu. Kryształy utrzymywane są w temperaturze 400°C przez 15 min, a następnie temperatura pieca ustawiana jest na 840°C. Czas potrzebny na zmianę temperatury pieca to około 15 min. Po osiągnięciu przez piec temperatury 840°C próbki wygrzewane są przez zadany czas. Podczas standardowego procesu wygrzewania wysokotemperaturowego wynosi on 10 min. Po tym czasie grzanie pieca jest wyłączane. Próbki pozostają w piecu, chłodząc się powoli przez ok. 2 h, aż do czasu osiągnięcia przez piec temperatury 400°C. Po tym czasie próbki wyjmowane są z pieca, a dalsze chłodzenie odbywa się w warunkach pokojowych.

5.3.1. Zmiana jasności śladów - próbki kryształów LiF niepoddane grzaniu wysokotemperaturowemu

Sprawdzono, czy efekt wzmocnienia występuje w próbkach niepoddanych wygrzewaniu w temperaturach zbliżonych do temperatury topnienia LiF. W tym celu próbka LiF, wypolerowana, ale niepoddana grzaniu do temperatur powyżej 800°C, napromieniona została cząstkami alfa ze źródła Alfa 1 (fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$). Następnie próbka podgrzewana była do kolejnych temperatur, od temperatury pokojowej do 230°C ze standardowym czasem i szybkością grzania. Dla każdego kroku temperaturowego wykonywane były zdjęcia mikroskopowe, a następnie wyznaczana była średnia jasność śladów. Dla każdego z punktów pomiarowych zmierzono 55 – 65 śladów. Na Rysunku 5.23. przedstawiona została względna jasności śladów (znormalizowana do średniej jasności przed zastosowaniem grzania). Na wykresie nie zostały zaznaczone wartości dla temperatury 230°C, ponieważ po podgrzaniu próbki do tej temperatury ślady nie były już widoczne.



Rysunek 5.23. Zmiana w jasności śladów dla próbki napromienionej promieniowaniem alfa (Am-241, fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$) i podgrzewanej do kolejnych temperatur. Próbka nie była wygrzewana w temperaturze 840°C przed pierwszym użyciem. Rejestracja obrazów prowadzona w temperaturze pokojowej.

Okazuje się, że **próbki, które nie były wygrzewane w temperaturze bliskiej temperaturze topnienia LiF, nie wykazują omawianego wcześniej efektu wzmocnienia.** Średnia jasność

śladów pozostaje na podobnym poziomie dla temperatur grzania po napromienieniu niższych niż 110°C. Jeżeli próbki podgrzewane są do wyższych temperatur, jasność śladów gwałtownie spada i już dla temperatury ok. 230°C ślady są niemożliwe do zaobserwowania. Jest to zupełnie inne zachowanie niż w przypadku próbek, które poddane były procesowi wygrzewania w temperaturze 840°C, dla których w tym zakresie temperatur jasność śladów zaczyna się zwiększać. Test przeprowadzono także na innych próbkach niewygrzewanych przed pierwszym użyciem poddanych standardowemu procesowi grzania po napromienieniu do 290°C. Po grzaniu do tej temperatury na żadnej z tych próbek nie udało się zaobserwować śladów.

Aby upewnić się, że jedynym czynnikiem powodującym brak efektu wzmocnienia jest niezastosowanie obróbki termicznej przed napromienieniem próbki (a nie np. różnice w indywidualnych właściwościach poszczególnych kryształów i próbek), próbka niewykazująca efektu wzmocnienia poddana została grzaniu w temperaturze 840°C przez 10 min. Po tym czasie ponownie została napromieniona z taką samą fluencją i poddana standardowej procedurze grzania do 290°C. W tym wypadku okazało się, że ślady nie tylko są widoczne, ale ich jasność była prawie 2.5 razy wyższa niż jasność śladów przed podgrzaniem do 290°C. Oznacza to, że zastosowanie procesu grzania w temperaturach zbliżonych do temperatury topnienia LiF spowodowało wystąpienie efektu wzmocnienia w próbce kryształu, która wcześniej go nie wykazywała.

Wynika z tego, że **oba procesy grzewcze: grzanie do temperatury 840°C na etapie przygotowywania próbki oraz grzanie do temperatur z zakresu 200°C do 300°C po napromienianiu, muszą zostać łącznie zastosowane, aby wystąpił efekt wzmocnienia jasności śladów.**

5.3.2. Wpływ czasu grzania wysokotemperaturowego na głębokość występowania efektu wzmocnienia

Sprawdzono, czy możliwe jest poszerzenie warstwy, w której obserwowane są ślady o wzmocnionej jasności, poprzez wydłużenie czasu wygrzewania próbek w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia LiF. W tym celu pięć nieużywanych wcześniej próbek kryształu LiF wygrzano w temperaturze 840°C. Czas grzania każdej z próbek był inny i wynosił odpowiednio 10 min, 30 min, 60 min, 120 min oraz 270 min. Po wygrzaniu próbki napromienione zostały jonami tlenu o energii 93.8 MeV/n i fluencji ok. $1.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$.

Napromieniania prowadzone były w Heidelberg Ion-Beam Therapy Center (HIT) w Niemczech.

Dla próbek przeprowadzone zostały obserwacje mikroskopowe, a dla zarejestrowanych obrazów zmierzona została jasność śladów. Następnie próbki podgrzane zostały do temperatury 290°C. Po schłodzeniu zarejestrowano kolejne zdjęcia mikroskopowe.

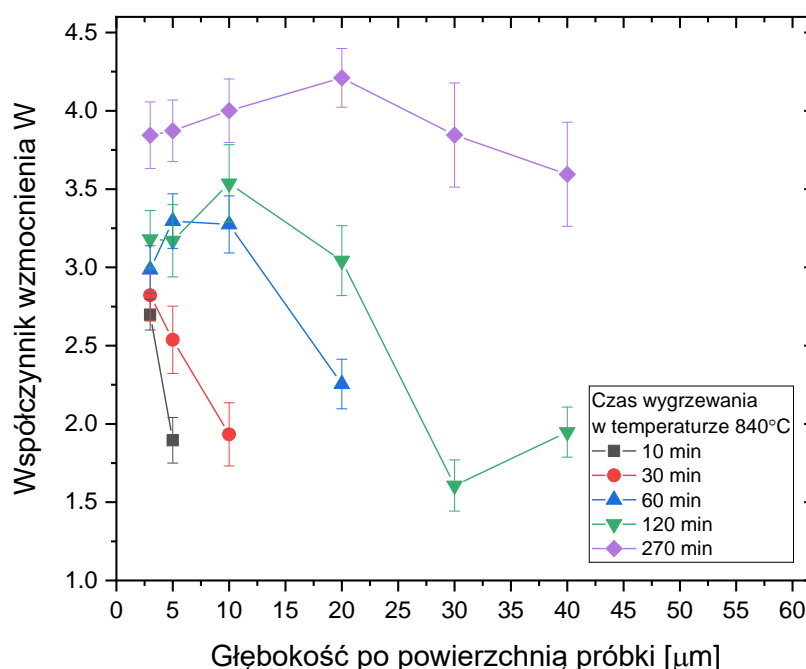
Uzyskane wyniki ujawniły, że **zwiększenie czasu wygrzewania w temperaturze 840°C przed pierwszym użyciem kryształów prowadzi do poszerzenia warstwy, w której występuje wzmocnienie śladów** cząstek jądrowych po zastosowaniu procesu grzania po napromienianiu. W przypadku czasu wstępnego wygrzewania wynoszącego 10 min warstwa ta wynosi jedynie ok. 7 μm . Na większych głębokościach w próbce kryształu, ślady stają się niewyraźne i zanikają. Zwiększenie czasu wygrzewania powoduje zwiększenie szerokości tej warstwy. W Tabeli 5.4. przedstawione zostały głębokości, na których możliwe było jeszcze zaobserwowanie śladów po podgrzaniu próbek do 290°C dla próbek wygrzewanych w temperaturze 840°C przez różny czas. Zauważono także, że nie wszystkie ślady znikają na tej samej głębokości, a różnice między obserwowanymi długościami śladów w płaszczyźnie Z mogą wynosić nawet kilka μm . W związku z tym podane w Tabeli 5.4. wartości są średnią szerokością warstwy, w której ślady są jeszcze obserwowane, a nie dokładną ich długością w płaszczyźnie prostopadłej do powierzchni próbki.

Tabela 5.4. Głębokość pod powierzchnią, na której możliwe jest zaobserwowanie śladów po podgrzaniu próbek do temperatury 290°C.

Czas wygrzewania w temperaturze 840°C	Grubość warstwy w której obserwowane są ślady po podgrzaniu próbek do 290°C
10 min	7 μm
30 min	20 μm
60 min	40 μm
120 min	50 μm
270 min	80 μm

5.3.3. Wpływ czasu grzania wysokotemperaturowego na wartość współczynnika wzmocnienia

Dla wszystkich próbek opisanych w rozdziale 5.3.2 zarejestrowane zostały stopy obrazów mikroskopowych przed i po grzaniu do 290°C. Pomiary wykonywane były od powierzchni kryształu do głębokości 30 μm z krokiem co 1 μm , lub od powierzchni do głębokości 50 μm z krokiem co 2 μm (żeby zmniejszyć efekt wybielania). Czas akwizycji każdego z obrazów wynosił 7 s. Wykorzystując obrazy mikroskopowe zmierzono średnią jasność śladów na różnych głębokościach pod powierzchnią próbek. Porównując średnie jasności śladów przed i po podgrzaniu do 290°C wyznaczono współczynniki wzmocnienia W na różnych głębokościach w próbce. Pomiary na głębokościach większych niż 40 μm nie były prowadzone, ponieważ jasność śladów dla próbek niepodgrzewanych była bardzo niska ze względu na pochłanianie światła przy tak dużej głębokości obserwacji, a także duże wybielanie obrazu. Dla każdej głębokości zmierzone zostało od 20 do 50 śladów. Wyniki przedstawione zostały na Rysunku 5.24. Niepewność wyznaczona została jako odchylenie standardowe od średniej zmiany jasności śladów.

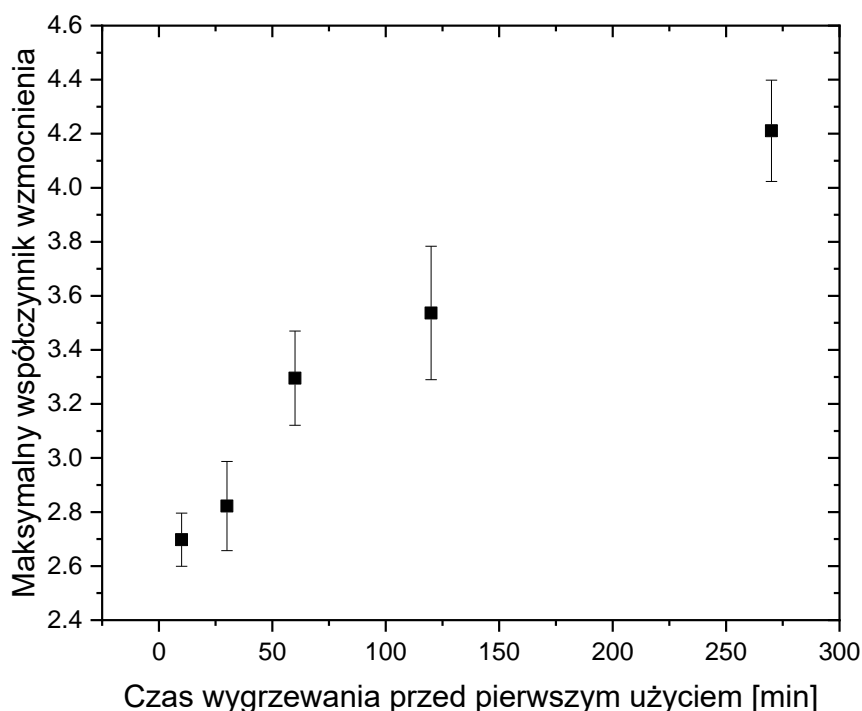


Rysunek 5.24. Zależność współczynnika wzmocnienia W po podgrzaniu próbek napromienionych promieniowaniem alfa do 290°C od głębokości pod powierzchnią próbki, na której prowadzone są pomiary mikroskopowe. Wyniki dla próbek wygrzewanych przed pierwszym użyciem w temperaturze 840°C przez różny czas.

Ponieważ dla poszczególnych próbek obserwowana długość śladów w płaszczyźnie Z jest różna, na Rysunku 5.24. poszczególne serie danych mają różną liczbę punktów pomiarowych.

Chociaż głębokość warstwy, dla której można jeszcze zaobserwować ślady, w przypadku grzania wysokotemperaturowego przez czas 60 min wynosi ok. 40 μm , dla tej temperatury nie zmierzono współczynnika wzmocnienia na 30 μm . Przyczyną jest zanikanie części śladów już na tej głębokości. Podobne zachowanie zaobserwowano dla głębokości 40 μm przy czasie wygrzewania wysokotemperaturowego wynoszącego 120 min. Zliczanie jasności tylko śladów, które są jeszcze widoczne, może prowadzić do fałszywie zawyżonych wyników średniej jasności śladów.

Na Rysunku 5.25. przedstawiona została zależność maksymalnego współczynnika wzmocnienia zmierzonego dla danej próbki od czasu, przez który ta próbka była wygrzewana w temperaturze 840°C.



Rysunek 5.25. Zależność współczynnika wzmocnienia po grzaniu napromienionych kryształów LiF do 290°C od czasu wygrzewania w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia LiF przed użyciem jako FNTD.

Widać wyraźnie, że **współczynnik wzmocnienia W silnie zależy od czasu grzania próbek kryształu LiF w temperaturze 840°C**. Zarówno współczynnik zmierzony na głębokości 3 μm

(Rysunek 5.24.), jak i maksymalny zmierzony współczynnik wzmocnienia dla danej próbki (Rysunek 5.25.) zwiększają się wraz ze wzrostem czasu wygrzewania próbek w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia LiF. W przypadku czasu wstępnego grzania wynoszącego 10 min współczynnik wzmocnienia wynosi na głębokości 3 μm ok. 2.7. Zwiększenie czasu grzania wstępnego do 270 min spowodowało wzrost współczynnika wzmocnienia jasności śladów do aż 3.84.

Zauważono także, że współczynnik wzmocnienia nie jest taki sam na całej głębokości, w której widoczne są ślady po podgrzaniu próbek. W przypadku próbek wygrzewanych w temperaturze 840°C przez czas nieprzekraczający 30 min współczynnik wzmocnienia jest najwyższy najbliżej powierzchni próbki (na głębokości 3 μm). Dla dłuższych czasów grzania wysokotemperaturowego maksymalny współczynnik wyznaczono na większych głębokościach. Może to oznaczać, że w przypadku dłuższego wygrzewania wstępnego warstwa, w której wzmocnienie sygnału jest największe, znajduje się poniżej powierzchni próbki. Inną możliwą przyczyną mogą być także różnice w szybkości wybielania, które mogą występować dla próbek przed i po podgrzaniu do 290°C.

Dla wszystkich badanych próbek zaobserwowano, że współczynnik wzmocnienia W , powyżej głębokości, dla której jest on największy, zmniejsza się stopniowo wraz ze zwiększaniem głębokości obserwacji. Potwierdza to zaobserwowany wcześniej efekt stopniowego zmniejszania się jasności śladów obserwowanych dla próbek poddanych grzaniu po napromienianiu.

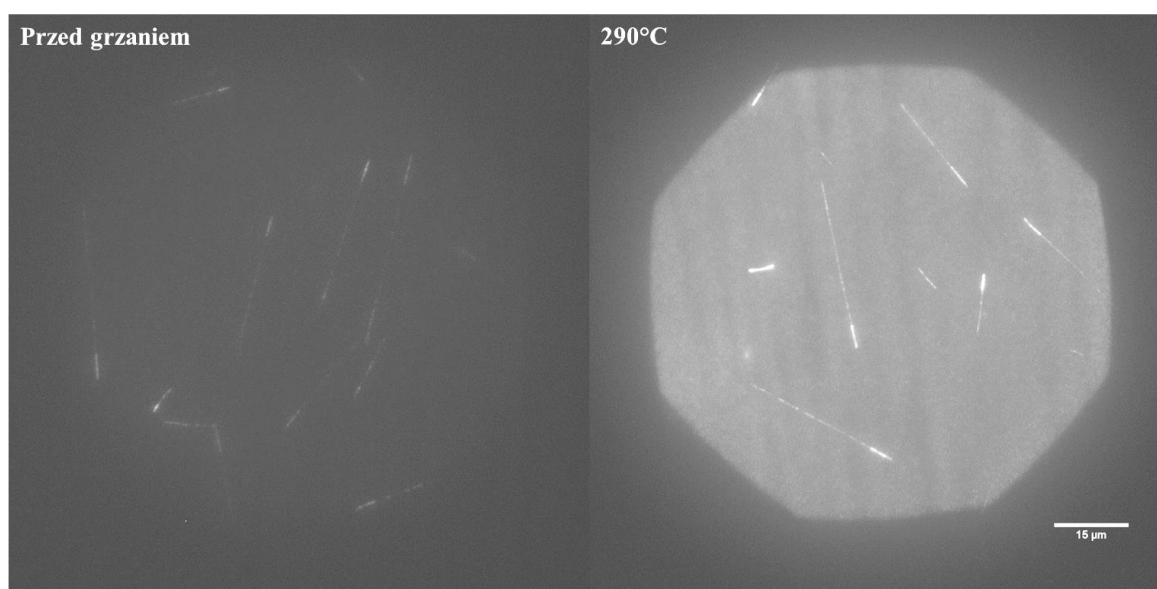
5.3.4. Wykorzystanie efektu wzmocnienia – obserwacje śladów neutronów

Jak wspomniano w rozdziale 2, ślady pochodzące od neutronów termicznych nie są możliwe do bezpośredniego zarejestrowania przy użyciu detektorów FNTD z LiF. Możliwe jest jednak obserwowanie śladów jąder trytu i cząstek alfa, które powstają w wyniku oddziaływania neutronów z ${}^6\text{Li}$. Ślady pochodzące od jąder trytu mają jednak dość małą intensywność i czasami ciężko jest rozróżnić je od tła. Z tego powodu możliwość uzyskania wzmocnienia tych śladów w wyniku podgrzania próbki jest pożądana.

Niestety w przypadku próbek LiF poddanych standardowemu grzaniu wysokotemperaturowemu przez 10 min, warstwa powierzchniowa, w której występuje efekt wzmocnienia, jest bardzo wąska. Z tego powodu ślady cząstek alfa i jąder trytu, które mają

łączną długość powyżej 30 μm i najczęściej nie są idealnie równoległe do powierzchni kryształu, wzmocniane są tylko częściowo. Po podgrzaniu próbki, sporządzenie projekcji maksymalnej intensywności ze stosu obrazów rejestrowanych na kolejnych głębokościach w głąb próbki sprawia, że widoczne są jedynie ślady rejestrowane blisko powierzchni. Ślady, które zarejestrowane były głębiej mają często jasność mniejszą niż tło rejestrowane na powierzchni próbki, przez co nie są one widoczne.

Opisane w rozdziale 5.3.2 poszerzenie warstwy, w której zachodzi efekt wzmocnienia, stworzyło możliwość wykorzystania go do obserwacji śladów jąder trytu i cząstek alfa. W celu sprawdzenia, czy tak jest w istocie, próbka LiF została wygrzana w temperaturze 840°C przez 270 min, a następnie napromieniona neutronami termicznymi pochodzącymi ze źródła Pu-Be. Dla napromienionej próbki zarejestrowano stosy obrazów na głębokościach od powierzchni do 20 μm pod powierzchnią z krokiem co 1 μm . Obrazy rejestrowane były przed i po podgrzaniu próbki do temperatury 290 °C. Dla zarejestrowanych obrazów sporządzona została projekcja maksymalnej intensywności. Wyniki przedstawione zostały na Rysunku 5.26.



Rysunek 5.26. Ilustracja wpływu efektu wzmocnienia na ślady pochodzące od neutronów termicznych. Projekcja maksymalnej intensywności dla stosów obrazów zarejestrowanych na głębokościach od powierzchni do 20 μm z krokiem co 1 μm dla tego samego kryształu LiF przed i po grzaniu w 290°C. Czas rejestracji pojedynczego obrazu 5 s. Próbkę napromieniono neutronami termicznymi (źródło Pu-Be). Jasność, kontrast i inne parametry graficzne obu obrazów są takie same.

W przypadku kiedy warstwa, w której zachodzi efekt wzmocnienia, została poszerzona, ślady obserwowane na wszystkich warstwach od powierzchni do 20 μm zostały wzmocnione w takim samym stopniu. Dzięki temu, po sporządzeniu projekcji maksymalnej intensywności, wszystkie ślady są wyraźnie widoczne, a ich jasność jest większa niż tło. Mimo iż jasność tła także

wyraźnie się zwiększa, kontrast pomiędzy śladami a tłem jest lepszy w przypadku obrazów zarejestrowanych po podgrzaniu próbki. W wyniku grzania obserwowane ślady jąder trytu, które przed grzaniem są mało intensywne i przerywane, stały się dużo jaśniejsze, a przerwy pomiędzy częściami śladu są znacznie rzadsze i krótsze. To znacząco ułatwia identyfikację śladów pochodzących od neutronów i odróżnienie ich od innych śladów, które mogłyby występować na obrazie. Dodatkowo dzięki występowaniu wzmocnienia można skrócić czas prowadzenia pomiaru, co zmniejsza wybielanie.

5.4. Porównanie efektu wzmocnienia dla różnych rodzajów kryształów

Opisane w poprzednich rozdziałach badania prowadzone były na próbkach z kryształów LiF, które wyhodowane zostały przy użyciu metody Czochralskiego. Jako materiał wsadowy wykorzystywany był czysty proszek LiF. Aby sprawdzić jak zachowują się próbki wykonane z innych rodzajów kryształów LiF zbadano efekty zachodzące po podgrzaniu do 290°C próbek pochodzących z kryształów: wyhodowanych metodą Czochralskiego, wzbogaconych ^7Li , wyhodowanych metodą mikrowyciągania, wzbogaconych izotopem ^6Li oraz próbek kryształów komercyjnych z firmy SurfaceNet GmbH. Wszystkie próbki napromienione były przed grzaniem promieniowaniem alfa (źródło Alfa 1, fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$). Porównano ze sobą maksymalną intensywność śladów, tło oraz jasność śladów po i przed grzaniem próbek. Wyniki dla przykładowych próbek z różnych rodzajów kryształów przedstawiono w Tabeli 5.5.

Tabela 5.5. Porównanie zmian w intensywności fotoluminescencji po grzaniu do 290°C dla różnych typów kryształów.

Numer kryształu	Oznaczenie próbki	Stosunek maksymalnej intensywności śladów	Stosunek tła	Stosunek jasności śladów (współczynnik wzmocnienia W)
590_2018	590_2018_1	2.19	1.18	2.69
	590_2018_2	2.53	2.08	2.76
592_2018	592_2018_1	Efekt wzmocnienia nie występuje		
	592_2018_2	Efekt wzmocnienia nie występuje		
684_2019	684_2019_1	2.07	1.25	2.47
	684_2019_2	1.93	1.13	2.29
787_2021	787_2021_1	2.30	1.43	2.68
531_2018	531_2018_1	2.37	1.07	2.99
	531_2018_2	2.43	1.10	3.04
660_2019	660_2019_1	1.63	1.58	1.65
	660_2019_2	1.55	1.19	1.69
790_2021	790_2021_1	2.87	3.05	2.79
	790_2021_2	2.23	1.05	2.72
830_2022	830_2022_1	Efekt wzmocnienia nie występuje		
8119_K001	8119_K001	2.07	1.55	2.35
8120_K111	8120_K111	2.23	1.32	2.62

Opis kryształów z Tabeli 5.5.:

590_2018 – kryształ wyhodowany metodą Czochralskiego z czystego proszku LiF;

592_2018 – kryształ wyhodowany metodą Czochralskiego z czystego proszku LiF; podczas wyciągania kryształu wystąpiły problemy techniczne, które doprowadziły do bardzo szybkiego schłodzenia kryształu (kryształ został wyprodukowany w niestandardowych warunkach);

684_2019 – kryształ wyhodowany metodą Czochralskiego z czystego proszku LiF;

787_2021 – kryształ wyhodowany metodą Czochralskiego z czystego proszku LiF;

531_2018 – kryształ wyhodowany metodą mikrowyciągania z czystego proszku LiF;

660_2019 – kryształ wzbogacony izotopem ^6Li , wyhodowany metodą mikrowyciągania;

790_2021 – kryształ wzbogacony izotopem ^7Li , wyhodowany metodą Czochralskiego;

830_2022 – kryształ wyhodowany metodą Czochralskiego z czystego proszku LiF; podczas wyciągania kryształu wystąpiły problemy techniczne, które doprowadziły do konieczności ponownego przetopienia kryształu (kryształ został wyprodukowany w niestandardowych warunkach);

8119_K001 – kryształ komercyjny firmy SurfaceNet GmbH;

8120_K111 – kryształ komercyjny firmy SurfaceNet GmbH .

Wszystkie próbki porównywane w Tabeli 5.6 (także te zakupione komercyjnie) zostały przed użyciem poddane procesowi grzania w temperaturze 840°C przez 10 min. Przed powyższym procesem grzania w żadnej z próbek efekt wzmocnienia śladów nie występował.

Efekt wzmocnienia zaobserwowany został dla wszystkich kryształów z wyjątkiem kryształów 592_2018 i 830_2022. W procesie wyciągania obu tych kryształów wystąpiły problemy techniczne, prowadzące do znaczących różnic w przebiegu ich wzrostu. Można przypuszczać, że struktura kryształu została wskutek tego zmieniona, co doprowadziło do innego zachowania pod wpływem działania temperatury.

Dla kryształu 830_2022 podjęto próbę sprawdzenia, czy wydłużony do 270 min czas wygrzewania w temperaturze 840°C (270 min) doprowadzi do pojawienia się efektu wzmocnienia. Uzyskano odpowiedź pozytywną: wzmocnienie jasności śladów na głębokości 3 μm wyniosło ok. 3.3, czyli niewiele mniej niż wzmocnienie standardowego kryształu poddanego analogicznej procedurze (Rysunek 5.24.). A zatem **zmieniona, wskutek nietypowego profilu temperaturowego w czasie wzrostu, struktura kryształu nie eliminuje efektu wzmocnienia, a jedynie wywołuje większą oporność na jego występowanie.**

W przypadku pozostałych kryształów efekt wzmocnienia był obserwowany, chociaż jego siła zależała od rodzaju kryształu LiF. Dla standardowo używanych kryształów z czystego LiF produkowanych metodą Czochralskiego współczynnik wzmocnienia W zawiera się w zakresie od 2.3 do 2.8. Największe wzmocnienie jasności śladów, prawie trzykrotne, występuje dla próbek z kryształów LiF wyprodukowanych metodą mikrowyciągania. W przypadku próbek z tych kryształów obserwowany był także bardzo mały wzrost jasności tła. Wyraźnie najmniejsze wzmocnienie występuje dla próbek wykonanych z kryształów fluorku litu wzbogaconych ${}^6\text{Li}$. Wynosi ono tylko ok. 1.7. Mniejsze wzmocnienie prawdopodobnie nie jest związane z koncentracją izotopową Li. Wzbogacenie materiału startowego w izotop ${}^6\text{Li}$ wiąże się z koniecznością zastosowania procedur chemicznych, które mogą powodować także

zwiększenie zanieczyszczeń i domieszek. W związku z tym materiał, z którego następnie produkowane są kryształy, nie jest tak czysty jak w przypadku stosowania Li naturalnego.

5.5. Możliwe zjawiska fizyczne odpowiadające za efekt wzmocnienia

Przyczyna obserwowanego po grzaniu kryształów LiF zwiększenia jasności śladów nie jest jeszcze znana. Ponieważ efekt wzmocnienia występuje tylko dla bardzo małych fluencji lub dawek promieniowania jonizującego, nie jest możliwe wykorzystanie pomiarów widm absorpcyjnych i emisyjnych w celu ustalenia procesów prowadzących do zwiększenia jasności śladów. Biorąc pod uwagę stałość wzmocnienia w czasie, można byłoby postawić hipotezę, że grzanie próbek prowadzi do powstania nowych centrów barwnych F_2 odpowiedzialnych za emisję fotoluminescencji w zakresie światła czerwonego, w którym prowadzone są pomiary mikroskopowe. Poza centrami F, centra F_2 są najliczniej powstającymi centrami w LiF w wyniku działania promieniowania jonizującego. Z tego względu wydaje się, że najbardziej prawdopodobnym mechanizmem, prowadzącym do zwiększenia liczby centrów F_2 , jest przekształcenie części centrów F w centra F_2 . Jakikolwiek procesy przekształcania centrów bardziej złożonych niż F_2 (jak np. F_3 lub F_3^+) nie powinny skutkować aż 2.5 zwiększeniem fotoluminescencji związanej z centrami F_2 , ponieważ ich koncentracje są zdecydowanie niższe.

Jednakże ta hipoteza nie wyjaśnia związku pomiędzy występowaniem efektu wzmocnienia a wcześniejszym grzaniem próbek w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia LiF, jak również braku wzmocnienia dla dużych fluencji cząstek. Wydaje się, że alternatywnym scenariuszem mogłaby być dyfuzja, podczas procesu wygrzewania wysokotemperaturowego, cząsteczek występujących w atmosferze komory pieca (takich jak np. tlen) w głąb warstwy przypowierzchniowej kryształu. Wygrzewanie odbywa się przy ciągłym przepływie argonu (czystość na poziomie 99.999%), jednakże konstrukcja pieca nie jest hermetyczna i nie umożliwia uprzedniego odpompowania powietrza. Podczas napromieniania detektorów promieniowaniem jonizującym jony tlenu mogą łączyć się z wytworzonymi wakancjami anionowymi, tworząc defekty $[O^{--} F^+]$. W procesie późniejszego wygrzewania kryształu defekty te mogą się rozpaść, prowadząc do uwolnienia wakancji anionowych F^+ , które w wyniku reakcji opisanych równaniami 2.5 – 2.7 mogą prowadzić do zwiększenia koncentracji złożonych centrów barwnych F_2 i F_3^+ [61]. Brak efektu wzmocnienia dla dużych dawek promieniowania można by tłumaczyć wyczerpaniem się ilości defektów $[O^{--} F^+]$. Weryfikacja tej hipotezy wymagać będzie jednak dalszych badań.

5.6. Podsumowanie

Podsumowując, podgrzewanie próbek po uprzednim napromienieniu wydaje się skuteczną metodą wzmocnienia intensywności śladów w pewnych określonych warunkach. Aby zaobserwować efekt wzmocnienia konieczne jest:

- użycie detektorów, które zostały poddane procedurze grzania do temperatury zbliżonej do temperatury topnienia LiF;
- zastosowanie niskiej fluencji cząstek (do fluencji rzędu 10^9 cm^{-2});
- prowadzenie obserwacji tylko w warstwie przypowierzchniowej kryształu, której szerokość zależy od czasu trwania wygrzewania wysokotemperaturowego.

Wzmocnienie jasności śladów obserwowane było tylko w czerwonym zakresie widma emisyjnego (emisja związana z centrami F_2). W przypadku obserwacji w zielonym zakresie widma (emisja związana z centrami F_3^+) ślady cząstek nie były widoczne ani przed, ani po zastosowaniu procedury grzania po napromienieniu w zakresie temperatur do 400°C .

Ciekawym zjawiskiem jest związek efektu wzmocnienia w wyniku grzania po napromienianiu z procesem wstępnego wygrzewania próbek LiF w temperaturze 840°C . Efekt wzmocnienia nie został zaobserwowany w detektorach niepoddanych wcześniejszemu grzaniu w tych temperaturach. Dodatkowo udowodniono, że szerokość warstwy przypowierzchniowej, w której efekt wzmocnienia zachodzi, oraz jego siła zależą od czasu trwania wstępnego wygrzewania próbek kryształów.

Pomiędzy wzmocnieniem obserwowanym dla różnych kryształów występują dość duże różnice. Prawdopodobnie wynikają one z nieidentycznych procesów wyciągania kryształów, które skutkują innymi właściwościami otrzymywanych próbek. Przyczyną mogą być także niewielkie różnice pomiędzy procesami grzewczymi (takie jak dokładna temperatura i czas wygrzewania próbek). W ramach przyszłych badań na ten temat przewiduje się zbadanie wpływu wszystkich tych parametrów i wprowadzenie odpowiednich współczynników poprawkowych niwelujących różnice występujące pomiędzy poszczególnymi detektorami z LiF.

Grzanie detektorów FNTD z LiF do temperatury 290°C jest bardzo obiecującą metodą wzmocnienia sygnału fotoluminescencyjnego. Proces grzania jest bardzo szybki (wynosi ok. 6 min), co sprawia, że może być z łatwością stosowany w standardowych pomiarach.

Dodatkowo efekt jest stały w czasie, a dodatkowe grzanie nie powoduje dalszego wzmocnienia lub osłabienia sygnału. Możliwość poszerzenia warstwy, w której występuje wzmocnienie śladów, w wyniku zastosowania dłuższego procesu grzania wstępnego, może doprowadzić do zwiększenia możliwości pomiarowych kryształów LiF (np. w przypadku detekcji protonów lub ciężkich jonów). Dodatkowo uzyskanie większej jasności śladów sprawia, że możliwe jest uzyskanie wyraźnych śladów i dobrych jakościowo obrazów mikroskopowych przy zastosowaniu krótszych czasów akwizycji. Krótsza ekspozycja na silne światło niebieskie zmniejsza efekt wybielania, który utrudnia pomiary.

6. Fotoluminescencja kryształów LiF w podwyższonych temperaturach ⁽²⁾

Opisana w rozdziale 5 metodyka wygrzewania próbek i następnie prowadzenia pomiarów w temperaturze pokojowej pozwala na obserwowanie efektów stacjonarnych – takich, które są trwałe i niezmiennie w czasie po zakończeniu wygrzewania kryształów. Przeprowadzenie pomiarów fotoluminescencji w trakcie grzania detektorów umożliwia natomiast badanie efektów dynamicznych, które zachodzą tylko w momencie, kiedy kryształ znajduje się w podwyższonej temperaturze. Dotychczas publikowane badania na temat fotoluminescencji fluorku litu skupiają się głównie na pomiarach prowadzonych w temperaturze pokojowej lub poniżej tej temperatury [59], [93]. Również w tym przypadku brak jest danych na temat efektów, które zachodzą dla kryształów LiF napromienionych niskimi dawkami promieniowania, które umożliwiają rejestrację śladów pojedynczych cząstek jądrowych.

W poniższym rozdziale przedstawione i omówione zostaną wyniki pomiarów spektralnych i mikroskopowych prowadzonych, w temperaturach wyższych niż temperatura pokojowa, dla napromienionych kryształów LiF. Należy podkreślić, że opisane zjawiska fotoluminescencyjne zachodzące w podwyższonych temperaturach są odmienne od dobrze znanej termoluminescencji LiF. Jeżeli detektory podgrzewane były do tych samych temperatur, ale bez jednoczesnego wzbudzenia światłem niebieskim, brak było mierzalnego sygnału luminescencyjnego, zarówno w przypadku rejestracji obrazów mikroskopowych, jak i widm emisyjnych.

6.1. Widma emisyjne

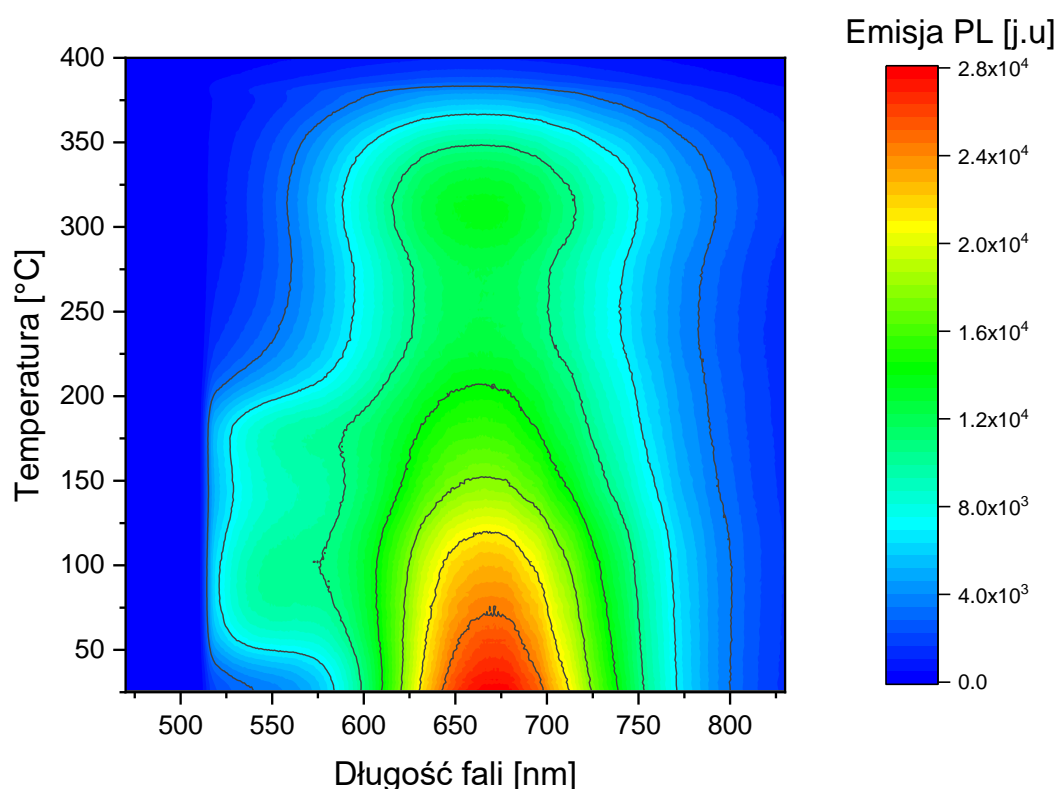
Ze względu na techniczny brak możliwości zmierzenia widm absorpcyjnych w podwyższonych temperaturach, pomiary spektralne ograniczone były do pomiarów widm emisyjnych

Próbki kryształów LiF zostały napromienione promieniowaniem beta ze źródła Sr-90/Y-90 (dawka 8 kGy) oraz promieniowaniem alfa ze źródła Am-241 (źródło Alfa 1 bez kolimatora,

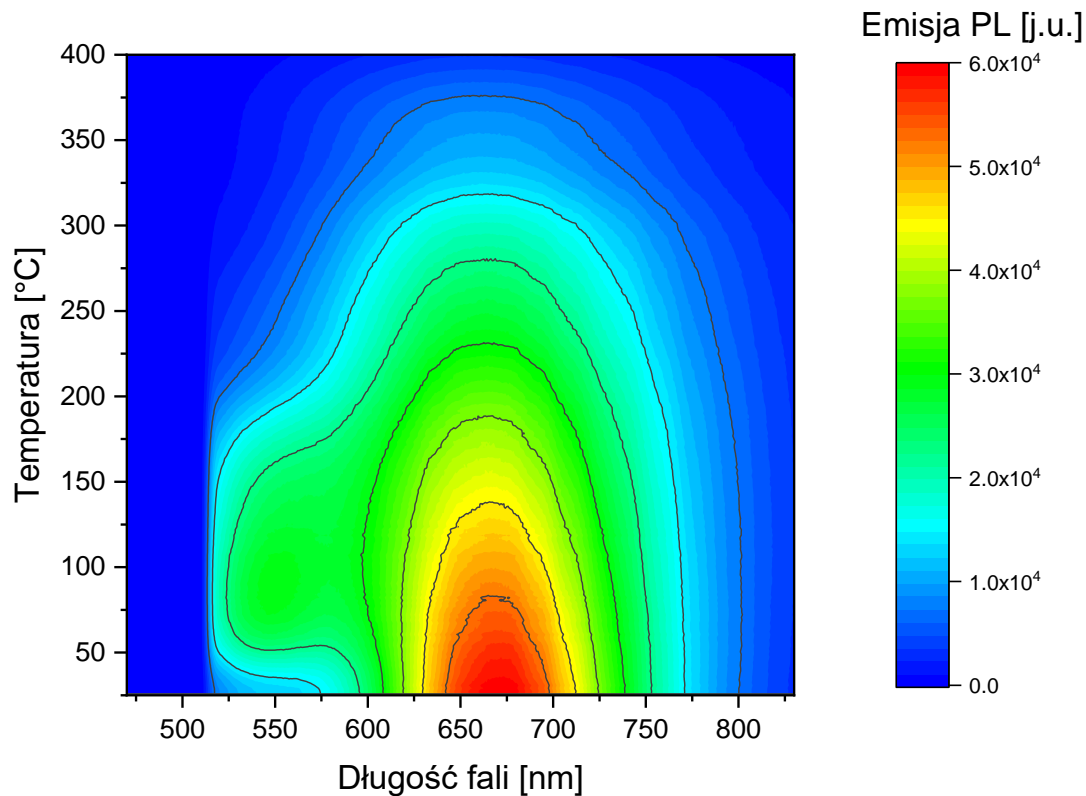
² Przedstawione wyniki zostały częściowo opublikowane w artykule naukowym dotyczącym wpływu temperatury na fotoluminescencję kryształów fluorku litu: „Influence of elevated temperature on color centers in LiF crystals and their photoluminescence” [84].

fluencja 10^{12} cm^{-2} , co odpowiada dawce ok. 65 kGy). Podczas pomiarów widm emisyjnych standardowy stolik mikroskopowy został zastąpiony stolikiem grzewczym Linkam THMS600.

Detektor umieszczony był na stoliku w temperaturze pokojowej. Następnie włączane było grzanie do temperatury 400°C z szybkością grzania $50^\circ\text{C}/\text{min}$. Równocześnie próbka oświetlana była światłem niebieskim (długość fali 440 nm). Widma emisyjne rejestrowane były w przedziałach dwusekundowych. Zmiany w fotoluminescencji kryształów LiF, napromienionych dwoma rodzajami promieniowania, zarejestrowane w czasie grzania detektorów, zostały przedstawione na Rysunkach 6.1. i 6.2.



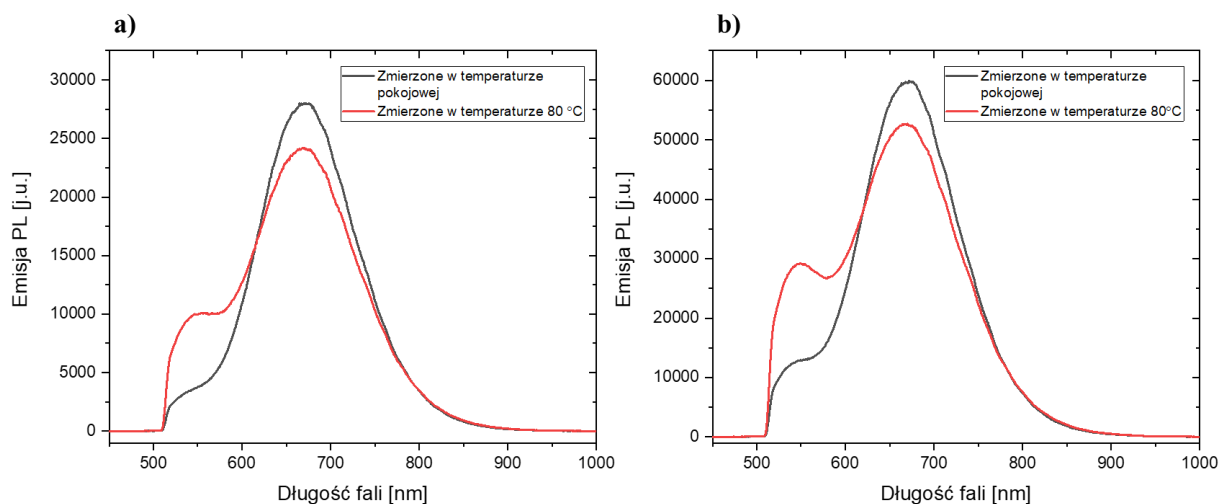
Rysunek 6.1. Widma emisyjne zmierzone podczas grzania próbki kryształu LiF napromienionej promieniowaniem beta (Sr-90/Y-90, dawka 8kGy). Ekscytacja światłem o długości fali 440 nm. Najniższe długości fali odcięte przez zastosowany filtr emisyjny.



Rysunek 6.2. Widma emisyjne zmierzone podczas grzania próbki kryształu LiF napromienionej promieniowaniem alfa (Am-241 , fluencja 10^{12} cm^{-2}). Ekscytacja światłem o długości fali 440 nm. Najniższe długości fali odcięte przez zastosowany filtr emisyjny.

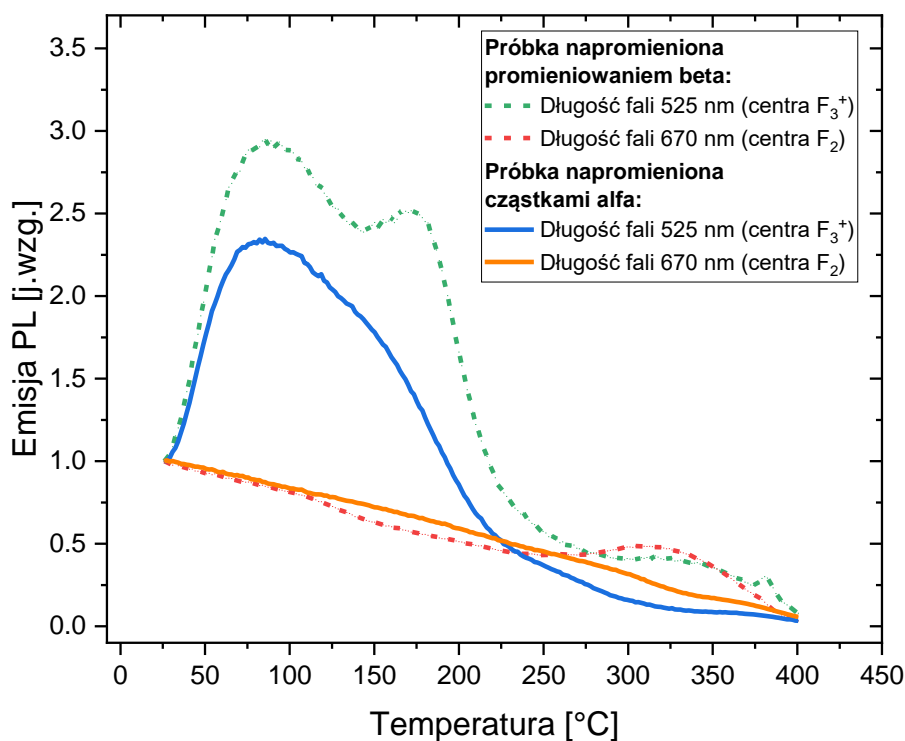
Zarówno dla próbki napromienionej promieniowaniem beta, jak i alfa, największą emisję PL zarejestrowano dla temperatur zbliżonych do temperatury pokojowej (do ok. 70°C), dla długości fali z zakresu 650 – 700 nm. Emisja fotoluminescencji w tym zakresie odpowiada centrom F_2 . Można wobec tego stwierdzić, że prowadzenie obserwacji w zakresie światła czerwonego w podwyższonych temperaturach nie niesie ze sobą żadnych praktycznych korzyści.

Inny efekt można zaobserwować dla drugiego pików występującego w widmie emisyjnym fluorku litu. Emisja mierzona dla długości fali ok. 525 nm, związana z centrami F_3^+ , wzrasta dla zakresu temperatur od 50°C do 200°C . Porównanie widm emisyjnych zmierzonych w temperaturze pokojowej i w temperaturze 80°C zostało przedstawione na Rysunku 6.3. Porównując oba wykresy, można zauważyć wyraźny wzrost fotoluminescencji związanej z centrami F_3^+ (długość fali 525 nm), a także niewielki spadek w przypadku fotoluminescencji związanej z centrami F_2 (długość fali 670 nm). Efekt występuje zarówno w przypadku próbki napromienionej cząstkami alfa, jak i promieniowaniem beta.



Rysunek 6.3. Porównanie widm emisyjnych zmierzonych w temperaturze pokojowej i w 80° C dla próbki napromienionej promieniowaniem: a) beta b)alfa.

Względne zmiany w emisji PL dla długości fali 525 nm i 670 nm, dla próbek napromienionych dwoma typami promieniowania, zostały przedstawione na Rysunku 6.4. Należy pamiętać, że mimo iż względna zmiana emisji PL zarejestrowana dla długości fali 525 nm jest większa, rzeczywista emisja PL jest znacznie większa dla długości fali wynoszącej 670 nm.



Rysunek 6.4. Zmiany w emisji PL podczas grzania detektorów z kryształu LiF napromienionych promieniowaniem beta lub alfa.

Dla próbek napromienionych oboma rodzajami promieniowania jonizującego maksymalne wzmocnienie, zmierzone dla długości fali 525 nm, występuje w temperaturze ok. 80°C. Stosunek emisji PL dla długości fali 525 nm zmierzonej w 80°C do emisji PL zmierzonej w temperaturze pokojowej jest większy dla próbki napromienionej cząstkami beta (wynosi 2.90) niż dla próbki napromienionej promieniowaniem alfa (wynosi 2.32). Posiada on także dwa wyraźne maksima. Drugie z nich obecne jest w temperaturze ok. 180°C. Wzmocnienie emisji PL wynosi dla tej temperatury 2.5. Po podgrzaniu próbki do wyższych temperatur sygnał gwałtownie zanika. W przypadku próbki napromienionej promieniowaniem alfa występuje tylko jedno maksimum (w okolicy 80°C). Grzanie kryształu powyżej tej temperatury prowadzi do stopniowego zmniejszania emisji PL. Spadek sygnału jest znacznie mniej gwałtowny niż dla próbki napromienionej promieniowaniem beta.

Występowanie dodatkowego maksimum dla próbki napromienionej promieniowaniem beta jest prawdopodobnie związane ze wzmocnieniem sygnału, które opisane było w rozdziale 5. Podgrzanie próbki napromienionej promieniowaniem beta do temperatury 140°C sprawia, że podczas obserwacji fotoluminescencji w temperaturze pokojowej sygnał PL jest ok. 1.7 razy większy niż sygnał przed zastosowaniem obróbki termicznej (patrz Rysunek 5.6). Niewielkie przesunięcie temperatury, w której obserwowane jest maksimum wzmocnienia (z 140°C do 180°C), najprawdopodobniej wynika z różnic w warunkach grzania. W pomiarach przedstawionych w rozdziale 5 próbka przebywa w zadanej temperaturze 3 min, natomiast w omawianych w rozdziale 6 pomiarach widma emisyjne mierzone są w czasie grzania. Można wobec tego założyć, że oba obserwowane wzmocnienia sygnału związane są z tymi samymi zjawiskami fizycznymi, które skutkują zwiększeniem liczby centrów F_3^+ .

Maksimum wzmocnienia obserwowane dla 80°C prawdopodobnie jest związane z innymi zjawiskami fizycznymi. Wzmocnienie w tym zakresie temperatur nie było obserwowane w przypadku pomiarów dla próbek podgrzanych, a następnie schłodzonych do temperatury pokojowej. Oznacza to, że efekt nie jest trwały i występuje jedynie, kiedy kryształ LiF znajduje się w podniesionej temperaturze. Jest wobec tego mało prawdopodobnym, aby efekt ten był związany z tworzeniem się nowych centrów F_3^+ .

Na zwiększenie emisji fotoluminescencji w mierzonym zakresie długości fali może natomiast wpływać osłabienie procesów konkurencyjnych do radiacyjnej emisji związanej z danym rodzajem centrów barwnych, w tym przypadku centrów F_3^+ . W cyklu optycznym centrów F_3^+ występuje proces nieradiacyjny, który związany jest z metastabilnym stanem trypletowym [94].

Centra F_3^+ , w wyniku absorpcji światła niebieskiego, mogą zostać wzbudzone ze stanu podstawowego do stanu wzbudzonego. Po czasie relaksacji mogą one powrócić do stanu podstawowego z jednoczesną emisją fotoluminescencji. Część ze wzbudzonych centrów F_3^+ ze stanu wzbudzonego przechodzi jednak nieradiacyjne do podstawowego stanu trypletowego, a następnie, w wyniku kolejnego nieradiacyjnego przejścia, do singletowego stanu podstawowego [95]. Występowanie takiego procesu sprawia, że część ze wzbudzonych centrów F_3^+ zostaje „uwięziona” na długożyciowym poziomie trypletowym, co zmniejsza wydajność fotoluminescencji. Udowodniono, że temperatura ma wpływ zarówno na prawdopodobieństwo przejścia centrów F_3^+ do stanu trypletowego, jak i na jego czas życia [96]. Podgrzewanie kryształu LiF do temperatur powyżej temperatury pokojowej skutkuje zmniejszeniem czasu życia stanu trypletowego. Może to tłumaczyć zwiększenie fotoluminescencji związanej z centrami F_3^+ z maksimum dla temperatury 80°C. Krótszy czas życia stanu trypletowego sprawia, że większa liczba centrów może brać udział w procesie radiacyjnym.

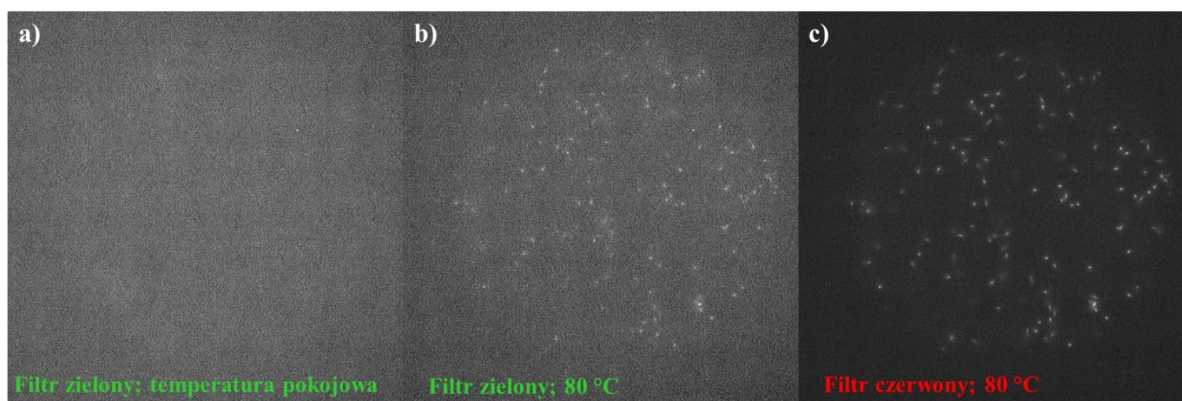
W przypadku centrów F_2 i związanej z nimi emisji fotoluminescencji mierzonej dla długości fali 670 nm nie zaobserwowano wzmocnienia sygnału w stosunku do obserwacji prowadzonych w temperaturze pokojowej. Wyróżnić można jedynie maksimum lokalne obecne w temperaturze ok. 320°C dla próbki napromienionej promieniowaniem beta. Maksimum to może być powiązane z lokalnym maksimum, które występuje dla próbek podgrzanych do 260°C, a następnie schłodzonych (efekt opisany w rozdziale 5, patrz Rysunek 5.6.). Przesunięcie temperaturowe spowodowane może być różnymi profilami grzania, podobnie jak w przypadku maksimum w 180°C dla długości fali 525 nm.

6.2. Wpływ podwyższonej temperatury w trakcie pomiaru na jasność śladów

Widoczny w widmach emisyjnych wzrost fotoluminescencji w zielonym zakresie światła jest niezwykle pożądanym efektem, ponieważ w tym zakresie fali zazwyczaj nie jesteśmy w stanie obserwować śladów cząstek jądrowych. Ze względu na małą koncentrację centrów F_3^+ jasność śladów w tym zakresie długości fali jest tak niska, że nawet zastosowanie bardzo długich czasów akwizycji nie pozwala na skuteczne odróżnienie ich od tła. Także rejestracja obrazów mikroskopowych napromienionych próbek w temperaturze pokojowej, po uprzednim grzaniu detektorów, nie umożliwiła obserwacji śladów w tym zakresie widma.

6.2.1. Rejestracja obrazów mikroskopowych w podwyższonych temperaturach

Aby sprawdzić, czy wzmocnienie emisji PL w temperaturze 80 °C obserwowane jest także dla próbek napromienionych niskimi dawkami promieniowania, przeprowadzono pomiary mikroskopowe dla próbek napromienionych promieniowaniem alfa (źródło Alfa 1, fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$). Obrazy rejestrowane były z filtrem emisyjnym pasmowoprzepustowym HQ 535/30 (pozwalającym na obserwacje w zielonym zakresie widma, dla ułatwienia nazywany będzie filtrem zielonym) w temperaturze pokojowej oraz w temperaturze 80°C. Uzyskane w ten sposób zdjęcia zostały przedstawione na Rysunku 6.5. Dla porównania wykonano także zdjęcie tego samego pola widzenia w 80°C, przy zastosowaniu standardowego filtra górnoprzepustowego ET570 LP (nazywany filtrem czerwonym) pozwalającego na obserwację w czerwonym zakresie widma.



Rysunek 6.5. Obrazy mikroskopowe zarejestrowane dla próbki kryształu LiF napromienionej cząstkami alfa (Am-241, fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$): a) wykonane z filtrem HQ 535/30 (filtr zielony) w temperaturze pokojowej, czas akwizycji 10 s; b) wykonane z filtrem HQ 535/30 (filtr zielony) w temperaturze 80 °C, czas akwizycji 10 s; c) wykonane z filtrem ET570 LP (filtr czerwony) w temperaturze 80 °C, czas akwizycji 2 s. Jasność, kontrast i inne parametry graficzne obrazów a) i b) są takie same, natomiast obrazu c) inne.

Rejestrowanie obrazów w temperaturze 80°C pozwoliło po raz pierwszy na uwidocznienie śladów cząstek alfa w zielonym zakresie widma (Rysunek 6.5.b). Obserwowane ślady pokrywają się z tymi, które widoczne są przy zastosowania filtra przepuszczającego światło o długości fali powyżej 570 nm. **Dowodzi to, że rozkład przestrzenny centrów F_2 i F_3^+ jest identyczny.** Ze względu na to, że na obrazach rejestrowanych w temperaturze pokojowej przy zastosowaniu filtra zielonego ślady są całkowicie niewidoczne, nie jest możliwe ilościowe określenie wzrostu sygnału PL w tym zakresie widma. Co za tym idzie, nie można porównać ilościowo wzrostu jasności śladów ze wzrostem emisji PL obserwowanym podczas podgrzewania próbek napromienionych dużymi dawkami promieniowania jonizującego.

Ślady obserwowane na obrazach rejestrowanych w zielonym zakresie widma mają znacznie mniejszy stosunek jasności śladu do jasności tła, nawet przy zastosowaniu dłuższych czasów akwizycji. Średni stosunek jasności śladów do tła przy zastosowaniu czasu akwizycji 2 s dla filtra czerwonego wynosi ok. 1.5. W przypadku filtra zielonego konieczne jest zastosowanie czasu akwizycji wynoszącego co najmniej 10 s, a średni stosunek jasności śladów do tła wynosi ok. 0.4. Normalizując zmierzone wartości średniej jasności śladu do czasu akwizycji wynoszącego 1 s, dla śladów zmierzonych z użyciem filtra czerwonego średnia jasność śladów wynosi 696, natomiast dla śladów zmierzonych z użyciem filtra zielonego 70 (podane wartości oznaczają wartość piksela, która mieści się w zakresie od 0 do 1638). Oznacza to, że mimo iż podgrzanie kryształu fluorku litu do temperatury 80°C pozwala na obserwację śladów cząstek jądrowych także w zielonym zakresie widma emisyjnego, jasność obserwowanych śladów wynosi tylko ok. 10% jasności śladów przy obserwacji z filtrem czerwonym. Dodatkowo zauważono, że prowadzenie pomiarów w temperaturze 80°C powoduje spadek jasności śladów (obserwowanych przy użyciu filtra czerwonego) o ok. 6% (spadek ze znormalizowanej do czasu akwizycji 1 s średniej jasności wynoszącej 741 do 696).

Inaczej niż w przypadku wzmocnienia omawianego w rozdziale 5, wzmocnienie jasności śladów w zielonym zakresie widma nie jest efektem trwałym. Po schłodzeniu podgrzanej próbki do temperatury pokojowej ślady nie są możliwe do zaobserwowania. Ponowne podgrzanie umożliwia jednak ich obserwację.

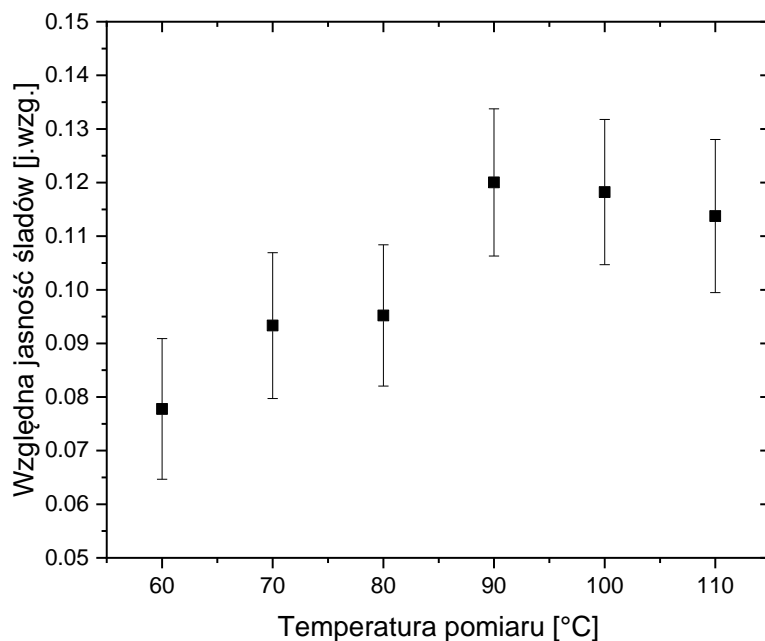
Wzmocnienie jasności śladów oraz całkowitej emisji PL obserwowane w zielonym zakresie widma, w przeciwieństwie do wzmocnienia śladów omawianego w rozdziale 5, nie jest związane z wygrzewaniem wysokotemperaturowym próbek przed ich wykorzystaniem jako detektory. Zwiększenie emisji związanej z centrami F_3^+ w podniesionych temperaturach występuje we wszystkich testowanych próbkach, niezależnie od tego, czy poddane były wcześniej grzaniu w temperaturach zbliżonych do temperatury topnienia LiF. To spostrzeżenie potwierdza wcześniejszą hipotezę, że za obserwowane efekty odpowiadają różne zjawiska fizyczne.

6.2.2. Optymalizacja temperatury grzania

W przypadku kryształów fluorku litu napromienionych wysokimi dawkami promieniowania jonizującego maksymalne wzmocnienie emisji PL związanej z centrami F_3^+ występuje, kiedy temperatura w trakcie pomiaru wynosi ok. 80°C. Jak udowodniono w rozdziale 5, efekty

temperaturowe zachodzące w LiF mogą zależeć od dawek promieniowania lub fluencji cząstek, którymi zostały one uprzednio napromienione.

Aby wyznaczyć optymalną temperaturę prowadzenia pomiarów, pozwalającą na rejestrację śladów o jak największej jasności w zielonym zakresie widma, przeprowadzono pomiary kryształów LiF napromienionych cząstkami alfa (fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$) dla temperatur z zakresu od 60 do 110°C z krokiem co 10°C. Obrazy rejestrowane były na głębokości 3 μm pod powierzchnią próbek. Czas akwizycji wynosił 10 s. Aby uniezależnić wyniki od indywidualnych różnic występujących między próbkami, średnia jasność śladów zmierzonych w zadanej temperaturze była porównywana ze średnią jasnością śladów zmierzona dla tej samej próbki w temperaturze pokojowej z użyciem filtra emisyjnego umożliwiającego obserwacje w czerwonym zakresie widma (czas akwizycji wynosił 2 s). Dla każdej wartości temperatury, dla obrazów zarejestrowanych z użyciem danego filtra, zmierzono jasność 40 – 70 śladów. Wyznaczone średnie jasności śladów znormalizowane zostały do czasu akwizycji obrazu. Niepewność pomiaru została obliczona jako odchylenie standardowe średniego stosunku jasności śladów. Ponieważ pomiary prowadzone były z zastosowaniem różnych próbek LiF, w niepewności uwzględnione zostało także odchylenie standardowe od średniego stosunku jasności śladów wyznaczonego dla wszystkich próbek dla temperatury pomiaru wynoszącej 90°C (stosunek ten został wyznaczony osobno). Wyniki przedstawione zostały na Rysunku 6.6.



Rysunek 6.6. Stosunek średniej jasności śladów zmierzonych w zielonym zakresie widma w danej temperaturze do średniej jasności śladów zmierzonych w czerwonym zakresie widma w temperaturze pokojowej.

Jasność śladów, zmierzona dla obrazów rejestrowanych w zielonym zakresie widma emisyjnego, rośnie wraz ze wzrostem temperatury w zakresie od 60°C do 90°C. Największą względną jasność śladów odnotowano dla temperatury pomiarów wynoszącej 90°C. Stosunek średniej jasności śladów zmierzonych w tej temperaturze z użyciem filtra pozwalającego na obserwację w zielonym zakresie widma do średniej jasności śladów zmierzonych dla obrazów zarejestrowanych w temperaturze pokojowej w czerwonym zakresie widma wynosi 0.12.

Powyżej temperatury 90°C jasność śladów zaczyna się zmniejszać, jednak spadek ten jest bardzo łagodny w porównaniu z obserwowanym wzrostem jasności w niższych temperaturach. Dla obserwacji w temperaturze 110°C jasność śladów nadal pozostawała na dość wysokim poziomie. Nie zdecydowano się jednak na pomiary w wyższych temperaturach ze względu na możliwość uszkodzenia obiektywu mikroskopu. Podczas rejestracji obrazów mikroskopowych pozwalających na obserwację śladów cząstek jądrowych stosuje się obiektyw 100x TU Plan ELWD. Podczas pomiarów znajduje się on bardzo blisko próbki (odległość robocza wynosi 4.5 mm), a więc także bardzo blisko powierzchni grzewczej.

Przeprowadzone badania potwierdziły, że rejestracja obrazów mikroskopowych w podwyższonych temperaturach pozwala na obserwowanie śladów cząstek jądrowych także w zielonym zakresie widma PL. Mimo iż średnia jasność śladów obserwowanych przy pomocy filtra zielonego w optymalnych warunkach wynosi jedynie 12% średniej jasności śladów rejestrowanych w temperaturze pokojowej przy użyciu filtra czerwonego, ślady można odróżnić od tła, czego nie udało się osiągnąć w przypadku grzania kryształów po napromienianiu i późniejszej rejestracji obrazów w temperaturze pokojowej.

6.2.3. Porównanie jasności śladów przy użyciu różnych filtrów emisyjnych

W poprzednich rozdziałach wykazano, że rejestrując obrazy w zielonym zakresie widma, nawet w podniesionych temperaturach, mierzona jasność śladów jest dużo niższa niż w przypadku obrazów rejestrowanych w czerwonym zakresie widma. Sprawdzone, czy wykorzystanie obu tych zakresów i rejestrowanie obrazów przy użyciu filtra górnoprzepustowego o progu 515 nm (ET 515 LP) pozwoli na otrzymanie lepszej jakości obrazów. Filtr ten pozwala na obserwację fotoluminescencji pochodzącej zarówno od centrów F_2 , jak i F_3^+ . Wykorzystanie tego filtra podczas obserwacji w temperaturze pokojowej nie niesie ze sobą żadnych korzyści. Rejestrowany sygnał jest wyższy, lecz źródłem dodatkowego światła jest głównie promieniowanie tła, ponieważ sygnał pochodzący od centrów F_3^+ jest bardzo niski.

Sprawdzono, czy podgrzanie kryształów LiF do temperatury 90°C, i tym samym zwiększenie emisji fotoluminescencji w zielonym zakresie widma, sprawi, że rejestracja w całym zakresie widma emisyjnego będzie korzystniejsza niż standardowe pomiary w czerwonym zakresie widma. W tym celu próbki napromienione zostały cząstkami alfa (źródło Alfa 1, fluencja $1.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$). Zarejestrowane zostały obrazy mikroskopowe przy użyciu dwóch rodzajów filtrów emisyjnych górnoprzepustowych: o progu 570 nm (ET 570 LP) oraz o progu 515 nm (ET 515 LP). Obrazy rejestrowane były na głębokości 3 μm , a czas akwizycji wynosił 2 s. Zmierzona została średnia jasność śladów, a także średni stosunek jasności śladów do tła lokalnego śladu. Następnie próbki podgrzane zostały do temperatury 90°C i pomiary zostały powtórzone. Dla każdego z filtrów, w danej temperaturze zmierzone zostało 40 – 50 śladów. Wyniki przedstawione zostały w Tabeli 6.1.

Tabela 6.1. Porównanie dwóch rodzajów filtrów emisyjnych. Podane wartości średniej jasności śladów oznaczają wartość piksela, która mieści się w zakresie od 0 do 1638.

Nazwa filtru	ET 570 LP		ET 515 LP	
Temperatura pomiaru	Temperatura pokojowa	90°C	Temperatura pokojowa	90°C
Średnia jasność śladów	1413	1298	1485	1519
Średni stosunek jasności śladów do tła lokalnego	1.4	1.4	0.8	0.9

Na podstawie przeprowadzonych badań stwierdzono, że prowadzenie pomiarów w całym zakresie widma emisyjnego nie zwiększa jakości śladów obserwowanych na rejestrowanych obrazach. Średnia jasność śladów zmierzona dla obrazów zarejestrowanych z filtrem ET 515 LP nie zwiększa się w znaczącym stopniu po podgrzaniu do temperatury 90°C mimo zwiększenia emisji fotoluminescencji związanej z centrami F_3^+ . Prawdopodobnie jest to spowodowane niewielkim spadkiem fotoluminescencji związanej z centrami F_2 . Świadczy o tym spadek w jasności śladów zmierzony dla obrazów rejestrowanych z filtrem ET 570 LP w 90°C (jasność wynosi 1413 dla pomiarów w temperaturze pokojowej i 1298 dla temperatury 90°C).

Stosunek jasności śladów do tła jest zdecydowanie wyższy dla pomiarów prowadzonych tylko w czerwonym zakresie widma i jest taki sam zarówno dla obrazów rejestrowanych w temperaturze pokojowej, jak i w temperaturze 90°C. Związane jest to z wyższym promieniowaniem tła rejestrowanym przy życiu filtru ET 515 LP. Oznacza to, że przy użyciu

filtru ET 570 LP ślady są bardziej wyraźne i łatwiejsze do odróżnienia od tła niż przy użyciu filtra ET 515 LP.

Prowadzenie pomiarów w podwyższonych temperaturach, a także stosowanie filtra pozwalającego na rejestrację fotoluminescencji pochodzącej zarówno od centrów F_2 , jak i F_3^+ nie jest korzystne w kontekście zastosowania kryształów LiF jak detektorów FNTD. Standardowe pomiary w temperaturze pokojowej w czerwonym zakresie widma emisyjnego pozwalają na uzyskanie podobnej średniej jasności śladów, a także lepszego stosunku sygnału do tła.

6.3. Podsumowanie

Wykazano, że **prowadzenie pomiarów fotoluminescencji w podwyższonych temperaturach, w zakresie od 50 do 200°C, prowadzi do zwiększenia emisji PL w zakresie długości fali związanej z centrami barwnymi F_3^+** . Wzmocnienie zaobserwowano zarówno dla wysokich, jak i niskich dawek promieniowania. Występuje ono także dla kryształów niepoddanych wcześniej wygrzewaniu wysokotemperaturowemu. Obserwowany efekt nie jest trwały i zanika po schłodzeniu próbki do temperatury pokojowej.

Obserwowane wzmocnienie najprawdopodobniej nie jest związane z wytwarzaniem nowych centrów barwnych F_3^+ . Może być ono natomiast związane ze skróceniem czasu życia stanu trypletowego występującego w cyklu optycznym centrów F_3^+ . Procesy związane z tym stanem są bowiem procesami konkurencyjnymi do emisji radiacyjnej.

Maksymalną jasność śladów podczas grzania próbek LiF obserwuje się dla temperatury grzania wynoszącej 90°C. Chociaż niewątpliwie dużym sukcesem jest umożliwienie rejestracji śladów w zielonym zakresie widma, efekt ten nie niesie obecnie żadnej korzyści pomiarowej. Jasność śladów mierzona w tym zakresie wynosi niewiele ponad 10% jasności śladów uzyskanej podczas standardowych pomiarów w czerwonym zakresie widma emisyjnego. Również stosunek jasności do tła jest zdecydowanie lepszy dla obrazów rejestrowanych w temperaturze pokojowej w czerwonym zakresie widma. Mimo wszystko zaobserwowany efekt wzmocnienia może być przydatny zwłaszcza w przypadku badań nad właściwościami centrów F_3^+ .

7. Podsumowanie i perspektywy dalszych badań

Głównym celem niniejszej pracy był rozwój techniki fluorescencyjnej detekcji śladów cząstek jądrowych z wykorzystaniem kryształów fluorku litu. Postawione zadanie zrealizowane zostało na dwa sposoby: przez optymalizację metody pomiaru i analizy uzyskiwanych obrazów mikroskopowych oraz przez wykorzystanie efektów temperaturowych występujących w LiF do zwiększenia sygnału PL.

Największym osiągnięciem pierwszej części pracy jest opracowanie metodyki umożliwiającej ilościową analizę i porównywanie ze sobą śladów cząstek jądrowych zmierzonych dla obrazów zarejestrowanych w różnych warunkach. Jest to niezwykle ważne dokonanie, które znacząco ułatwia i usprawnia pracę z detektorami FNTD. Do tej pory wspólna analiza obrazów mikroskopowych mogła być prowadzona jedynie dla zdjęć zarejestrowanych w dokładnie takich samych warunkach (na tej samej głębokości, po tym samym czasie akwizycji, z tą samą mocą oświetlacza), co jest trudne do osiągnięcia, a w wielu przypadkach nie jest możliwe. Opisane w rozdziale 4 badania pozwoliły na opracowanie formuł korekcyjnych pozwalających na uniezależnienie mierzonych jasności śladów od parametrów pomiaru. Odpowiednie współczynniki poprawkowe wprowadzono także w przypadku analizy śladów pochodzących od cząstek padających na detektor pod różnymi kątami. Zaproponowana została również alternatywna, szybsza metoda uniezależnienia się do kąta padania cząstek, związana z kształtem śladów, która z powodzeniem była stosowana w późniejszych analizach prowadzonych w ramach realizacji niniejszej pracy.

Druga część pracy, której wyniki przedstawione zostały w rozdziałach 5 oraz 6, skupiała się na efektach temperaturowych występujących w kryształach LiF po napromienieniu i podgrzaniu do temperatur z zakresu do 400°C. Główną motywacją przeprowadzonych badań było uzyskanie wzmocnienia sygnału PL. Obecnie metoda FNTD z użyciem LiF charakteryzuje się niskim stosunkiem sygnału do szumu, co znacząco utrudnia jej rozwój.

Badania prowadzone w tej części pracy jednoznacznie potwierdziły, że odpowiednio dobrany proces wygrzewania kryształów LiF może prowadzić do zwiększenia sygnału PL. **Za największe osiągnięcie pracy uznać można odkrycie efektu wzmocnienia jasności śladów, pozwalającego na nawet czterokrotne zwiększenie intensywności sygnału.** Maksymalne wzmocnienie obserwowano po wygrzaniu napromienionych uprzednio detektorów do temperatury 290°C. Efekt wzmocnienia jasności śladów został zaobserwowany dla próbek

napromienionych promieniowaniem alfa, jonami, promieniowaniem gamma, a także neutronami termicznymi.

Zaskakującym i bardzo interesującym zjawiskiem jest odkryty związek pomiędzy występowaniem efektu wzmocnienia a uprzednim wygrzewaniem kryształów w temperaturze zbliżonej do temperatury topnienia LiF (proces stosowany rutynowo w IFJ PAN w Krakowie w ramach preparatyki próbek) – efekt wzmocnienia nie występuje w kryształach niepoddanych temu procesowi. Wzmocnienie jasności śladów obserwowane było tylko w warstwie powierzchniowej próbek z kryształów LiF. Dzięki wydłużeniu czasu wygrzewania wysokotemperaturowego możliwe było poszerzenie tej warstwy nawet do kilkudziesięciu μm . Stwierdzono także, że dłuższy proces wstępnego wygrzewania wpływa na zwiększenie siły efektu wzmocnienia.

Potwierdzono jednoznacznie, że zmiana w PL kryształów LiF po napromienieniu i późniejszej obróbce termicznej zależy od dawki promieniowania jonizującego, którymi napromienione były detektory. Obserwacja ta jest niezwykle ważna, ponieważ może tłumaczyć niektóre rozbieżności występujące w publikacjach dotyczących wpływu temperatury na fotoluminescencję kryształów LiF.

Prowadzenie pomiarów w podwyższonych temperaturach (z zakresu od 60 do 100°C) pozwoliło, po raz pierwszy, na rejestrację obrazów mikroskopowych śladów cząstek alfa w zielonym zakresie widma emisyjnego (z wykorzystaniem fotoluminescencji centrów F_3^+), co nie było możliwe w przypadku standardowych pomiarów w temperaturze pokojowej ze względu na zbyt niską intensywność PL. Była to jedyna procedura pozwalająca na uwidocznienie śladów cząstek w tym zakresie widma. Ten efekt, jednakże, w przeciwieństwie do wzmocnienia jasności śladów obserwowanego po grzaniu do temperatury 290°C, nie jest efektem stałym (zanika w temperaturze pokojowej), a także nie zależy od występowania procesu grzania wysokotemperaturowego.

Spośród dwóch sposobów grzania detektorów FNNT: przed pomiarem oraz w trakcie pomiaru, zdecydowanie bardziej obiecującym z punktu widzenia praktycznego stosowania omawianej techniki jest pierwszy z nich. Uzyskanie czterokrotnego wzmocnienia sygnału fotoluminescencji może pozwolić na zaobserwowanie śladów cząstek, których do tej pory nie udało się zarejestrować ze względu na zbyt niski sygnał (np. ślady wysokoenergetycznych protonów lub jonów o niskim LET). Zaproponowana procedura grzania jest bardzo łatwa i szybka, w związku z czym może być bez problemu stosowana w czasie standardowych

pomiarów. Z tych powodów przyszłe badania nad rozwojem techniki FNDT przy wykorzystaniu efektów temperaturowych w LiF skupiają się właśnie na tej metodzie.

Ważną ich częścią będzie ustalenie, jakie zjawiska fizyczne odpowiadają za zwiększenie emisji PL. Przedstawione w pracy przypuszczenia są jedynie hipotezami i nie zostały do tej pory jednoznacznie potwierdzone. Koniecznym jest dalsze wyjaśnienie związku pomiędzy wygrzewaniem wysokotemperaturowym a występowaniem efektu wzmocnienia, w tym przeprowadzenie badań dla próbek wygrzewanych w temperaturach niższych niż 840°C, oraz w innej atmosferze gazowej (co mogłoby potwierdzić lub wykluczyć związek efektu wzmocnienia z występowaniem w strukturze kryształów LiF jonów tlenu).

Przedstawione w pracy badania skupiały się na efektach zachodzących w kryształach fluorku litu po podgrzaniu już napromienionych detektorów. Możliwe jest, że efekt wzmocnienia można osiągnąć stosując także inne rodzaje wygrzewania, np. podczas napromieniania próbek. Również połączenie dwóch lub większej liczby procesów grzania może być korzystnym rozwiązaniem. Jak udowodniono bowiem w niniejszej pracy, dopiero połączenie wstępnego wygrzewania wysokotemperaturowego z grzaniem w temperaturach 200°C po napromienianiu, powoduje wystąpienie efektu wzmocnienia.

Bibliografia

- [1] E. Wiedemann, „Ueber Fluorescenz und Phosphorescenz I. Abhandlung”, *Ann. Phys. Chem.*, t. 270, nr 7, s. 446–463, 1888, doi: 10.1002/andp.18882700703.
- [2] H. S. Virk, „History of Luminescence from Ancient to Modern Times”, *Defect Diffus. Forum*, t. 361, s. 1–13, sty. 2015, doi: 10.4028/www.scientific.net/DDF.361.1.
- [3] R. Boyle, „Experiments and Considerations upon Colours with Observations on Diamond That Shines in the Dark”, *Regist. R. Soc. Lond.*, t. 213, 1663.
- [4] M. S. Akselrod, R. C. Yoder, i G. M. Akselrod, „Confocal fluorescent imaging of tracks from heavy charged particles utilising new $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C,Mg}$ crystals”, *Radiat. Prot. Dosimetry*, t. 119, nr 1–4, s. 357–362, wrz. 2006, doi: 10.1093/rpd/nci664.
- [5] M. S. Akselrod i A. E. Akselrod, „New $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C,Mg}$ crystals for radiophotoluminescent dosimetry and optical imaging”, *Radiat. Prot. Dosimetry*, t. 119, nr 1–4, s. 218–221, wrz. 2006, doi: 10.1093/rpd/nci663.
- [6] P. Bilski i B. Marczevska, „Fluorescent detection of single tracks of alpha particles using lithium fluoride crystals”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, t. 392, s. 41–45, luty 2017, doi: 10.1016/j.nimb.2016.12.003.
- [7] M. Nowina Konopka i in., „Dozymetria luminescencyjna: przegląd metod, detektorów i ich zastosowań”, *Postępy Tech. Jądrowej*, t. 3, s. 8–16, 2022.
- [8] G. Baldacchini, R. M. Montereali, i T. Tsuboi, „Energy transfer among color centers in LiF crystals”, *Eur. Phys. J. D*, t. 17, nr 2, s. 261–264, lis. 2001, doi: 10.1007/s100530170030.
- [9] P. Bilski i in., „Fluorescent imaging of heavy charged particle tracks with LiF single crystals”, *J. Lumin.*, t. 213, s. 82–87, wrz. 2019, doi: 10.1016/j.jlumin.2019.05.007.
- [10] P. Bilski, B. Marczevska, M. Kłosowski, W. Gieszczyk, i M. Naruszewicz, „Detection of neutrons with LiF fluorescent nuclear track detectors”, *Radiat. Meas.*, t. 116, s. 35–39, wrz. 2018, doi: 10.1016/j.radmeas.2018.06.022.
- [11] P. Bilski, B. Marczevska, M. Sankowska, W. Gieszczyk, i J. W. Mielelski, „Range-based method of alpha-particle spectrometry using LiF fluorescent nuclear track detectors”, *Measurement*, t. 160, s. 107837, sie. 2020, doi: 10.1016/j.measurement.2020.107837.
- [12] F. H. Attix, *Introduction to radiological physics and radiation dosimetry*. New York: Wiley, 1986.
- [13] C. Grupen i I. Buvat, Red., *Handbook of particle detection and imaging*. w Springer reference. Berlin ; New York: Springer, 2012.
- [14] B. Nilsson i A. Brahme, „Interaction of Ionizing Radiation with Matter”, w *Comprehensive Biomedical Physics*, Elsevier, 2014, s. 1–36. doi: 10.1016/B978-0-444-53632-7.00920-5.
- [15] B. Dziunikowski, *O fizyce i energii jądrowej*. Kraków: Wydawnictwa AGH, 2001.
- [16] M. Neno, Red., *Evolution of Ionizing Radiation Research*. InTech, 2015. doi: 10.5772/59330.
- [17] R. H. Thomas, „Passive Detectors”, w *Advances in Radiation Protection and Dosimetry in Medicine*, R. H. Thomas i V. Perez-Mendez, Red., Boston, MA: Springer US, 1980, s. 181–226. doi: 10.1007/978-1-4757-1715-0_11.

- [18] H. Podbielska, *Optyka biomedyczna: wybrane zagadnienia*. Wrocław: Oficyna Wydawnicza Politechniki Wrocławskiej, 2011.
- [19] A. J. J. Bos, „Theory of thermoluminescence”, *Radiat. Meas.*, t. 41, s. S45–S56, grudz. 2006, doi: 10.1016/j.radmeas.2007.01.003.
- [20] A. Hrynkiewicz i R. J. Broda, *Człowiek i promieniowanie jonizujące: praca zbiorowa*. Warszawa: Wydaw. Naukowe PWN, 2001.
- [21] M. S. Akselrod, L. Bøtter-Jensen, i S. W. S. McKeever, „Optically stimulated luminescence and its use in medical dosimetry”, *Radiat. Meas.*, t. 41, s. S78–S99, grudz. 2006, doi: 10.1016/j.radmeas.2007.01.004.
- [22] S. W. S. McKeever, „Optically stimulated luminescence: A brief overview”, *Radiat. Meas.*, t. 46, nr 12, s. 1336–1341, grudz. 2011, doi: 10.1016/j.radmeas.2011.02.016.
- [23] M. Sommer, A. Jahn, i J. Henniger, „Beryllium oxide as optically stimulated luminescence dosimeter”, *Radiat. Meas.*, t. 43, nr 2–6, s. 353–356, luty 2008, doi: 10.1016/j.radmeas.2007.11.018.
- [24] P. Olko, L. Currivan, J. W. E. Van Dijk, M. A. Lopez, i C. Wernli, „Thermoluminescent detectors applied in individual monitoring of radiation workers in Europe—a review based on the EURADOS questionnaire”, *Radiat. Prot. Dosimetry*, t. 120, nr 1–4, s. 298–302, wrz. 2006, doi: 10.1093/rpd/nci538.
- [25] T. Yamamoto, Y. Yanagida-Miyamoto, T. Iida, i H. Nanto, „Current status and future prospect of RPL glass dosimeter”, *Radiat. Meas.*, t. 136, s. 106363, sie. 2020, doi: 10.1016/j.radmeas.2020.106363.
- [26] A. Duragkar *i in.*, „Versatility of thermoluminescence materials and radiation dosimetry – A review”, *Luminescence*, t. 34, nr 7, s. 656–665, lis. 2019, doi: 10.1002/bio.3644.
- [27] I. K. Bailiff, S. Sholom, i S. W. S. McKeever, „Retrospective and emergency dosimetry in response to radiological incidents and nuclear mass-casualty events: A review”, *Radiat. Meas.*, t. 94, s. 83–139, lis. 2016, doi: 10.1016/j.radmeas.2016.09.004.
- [28] H. Y. Göksu i I. K. Bailiff, „Luminescence dosimetry using building materials and personal objects”, *Radiat. Prot. Dosimetry*, t. 119, nr 1–4, s. 413–420, wrz. 2006, doi: 10.1093/rpd/nci699.
- [29] M. J. Kim, Y. J. Lee, J. I. Lee, J. L. Kim, i D. G. Hong, „Fading test using the SAAD-POSL method for retrospective accidental dosimetry of building materials”, *Radiat. Phys. Chem.*, t. 116, s. 373–376, lis. 2015, doi: 10.1016/j.radphyschem.2015.04.002.
- [30] A. Mrozik, B. Marczewska, P. Bilski, i M. Kłosowski, „Investigation of thermoluminescence properties of mobile phone screen displays as dosimeters for accidental dosimetry”, *Radiat. Phys. Chem.*, t. 104, s. 88–92, lis. 2014, doi: 10.1016/j.radphyschem.2014.01.013.
- [31] A. Mrozik, B. Marczewska, P. Bilski, i W. Gieszczyk, „Investigation of OSL signal of resistors from mobile phones for accidental dosimetry”, *Radiat. Meas.*, t. 71, s. 466–470, grudz. 2014, doi: 10.1016/j.radmeas.2014.05.004.
- [32] T. Kron, P. Lonski, i E. G. Yukihara, „Thermoluminescence dosimetry (TLD) in medicine: five ‘w’s and one how”, *Radiat. Prot. Dosimetry*, t. 192, nr 2, s. 139–151, grudz. 2020, doi: 10.1093/rpd/ncaa212.

- [33] M. Moscovitch i Y. S. Horowitz, „Thermoluminescent materials for medical applications: LiF:Mg,Ti and LiF:Mg,Cu,P”, *Radiat. Meas.*, t. 41, s. S71–S77, grudz. 2006, doi: 10.1016/j.radmeas.2007.01.008.
- [34] E. G. Yukihiro i S. W. S. McKeever, „Optically stimulated luminescence (OSL) dosimetry in medicine”, *Phys. Med. Biol.*, t. 53, nr 20, s. R351–R379, paź. 2008, doi: 10.1088/0031-9155/53/20/R01.
- [35] P. Olko, „Advantages and disadvantages of luminescence dosimetry”, *Radiat. Meas.*, t. 45, nr 3–6, s. 506–511, mar. 2010, doi: 10.1016/j.radmeas.2010.01.016.
- [36] T. Berger *i in.*, „DOSIS & DOSIS 3D: long-term dose monitoring onboard the Columbus Laboratory of the International Space Station (ISS)”, *J. Space Weather Space Clim.*, t. 6, s. A39, 2016, doi: 10.1051/swsc/2016034.
- [37] E. G. Yukihiro *i in.*, „Application of the optically stimulated luminescence (OSL) technique in space dosimetry”, *Radiat. Meas.*, t. 41, nr 9–10, s. 1126–1135, paź. 2006, doi: 10.1016/j.radmeas.2006.05.027.
- [38] T. Berger, G. Reitz, M. Hajek, R. Bergmann, P. Bilski, i Msc. M. Puchalska, „Depth dose distributions measured with thermoluminescence detectors inside the anthropomorphic torso of the MATROSHKA experiment inside and outside the ISS”, w *37th COSPAR Scientific Assembly*, sty. 2008, s. 257.
- [39] S. A. Durrani i R. K. Bull, *Solid state nuclear track detection: principles, methods, and applications*, 1st ed. w International series in natural philosophy, no. v. 111. Oxford ; New York: Pergamon Press, 1987.
- [40] D. A. Young, „Etching of Radiation Damage in Lithium Fluoride”, *Nature*, t. 182, nr 4632, s. 375–377, sie. 1958, doi: 10.1038/182375a0.
- [41] C. Hepburn i A. H. Windle, „Solid state nuclear track detectors”, *J. Mater. Sci.*, t. 15, nr 2, s. 279–301, luty 1980, doi: 10.1007/BF02396776.
- [42] M. Sidorov i O. Ivanov, Red., *Nuclear track detectors: design, methods and applications*. w Electrical engineering developments series. New York: Nova Science Publishers, 2010.
- [43] J. M. Stajic, B. Milenkovic, i D. Nikezic, „Study of CR-39 and Makrofol efficiency for radon measurements”, *Radiat. Meas.*, t. 117, s. 19–23, paź. 2018, doi: 10.1016/j.radmeas.2018.07.008.
- [44] D. Nikezic i K. Yu, „Formation and growth of tracks in nuclear track materials”, *Mater. Sci. Eng. R Rep.*, t. 46, nr 3–5, s. 51–123, grudz. 2004, doi: 10.1016/j.mser.2004.07.003.
- [45] H. Schopper i C. W. Fabjan, Red., *Detectors for particles and radiation*. w Particle physics reference library / Herwig Schopper (editor), no. volume 2. Cham, Switzerland: Springer Open, 2020.
- [46] K. N. Shinde, *Phosphate phosphors for solid-state lighting*. w Springer series in materials science, no. volume 174. Heidelberg ; New York: Springer, 2012.
- [47] G. Okada, Y. Koguchi, T. Yanagida, S. Kasap, i H. Nanto, „Recent advances in radiophotoluminescence materials for luminescence dosimetry”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, t. 62, nr 1, s. 010609, sty. 2023, doi: 10.35848/1347-4065/ac9023.
- [48] P. P. Mondal i A. Diaspro, *Fundamentals of Fluorescence Microscopy*. Dordrecht: Springer Netherlands, 2014. doi: 10.1007/978-94-007-7545-9.
- [49] J. R. Lakowicz, *Principles of fluorescence spectroscopy*, Second edition. New York: Springer Science + Business Media, 1999.

- [50] S. W. S. McKeever, *A course in luminescence measurements and analyses for radiation dosimetry*. Hoboken: John Wiley & Sons, 2022.
- [51] S. Kodaira, T. Kusumoto, H. Kitamura, Y. Yanagida, i Y. Koguchi, „Characteristics of fluorescent nuclear track detection with Ag⁺-activated phosphate glass”, *Radiat. Meas.*, t. 132, s. 106252, mar. 2020, doi: 10.1016/j.radmeas.2020.106252.
- [52] T. Kurobori, Y. Yanagida, S. Kodaira, i T. Shirao, „Fluorescent nuclear track images of Ag-activated phosphate glass irradiated with photons and heavy charged particles”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, t. 855, s. 25–31, maj 2017, doi: 10.1016/j.nima.2017.02.057.
- [53] G. J. Sykora, M. Salasky, i M. S. Akselrod, „Properties of novel fluorescent nuclear track detectors for use in passive neutron dosimetry”, *Radiat. Meas.*, t. 43, nr 2–6, s. 1017–1023, luty 2008, doi: 10.1016/j.radmeas.2007.12.038.
- [54] G. J. Sykora i M. S. Akselrod, „Photoluminescence study of photochromically and radiochromically transformed Al₂O₃:C,Mg crystals used for fluorescent nuclear track detectors”, *Radiat. Meas.*, t. 45, nr 3–6, s. 631–634, mar. 2010, doi: 10.1016/j.radmeas.2009.11.022.
- [55] D. S. McGregor i J. K. Shultis, *Radiation detection: concepts, methods, and devices*, First edition. Baton Raton, FL: CRC Press, 2020.
- [56] M. S. Akselrod i G. J. Sykora, „Fluorescent nuclear track detector technology – A new way to do passive solid state dosimetry”, *Radiat. Meas.*, t. 46, nr 12, s. 1671–1679, grudz. 2011, doi: 10.1016/j.radmeas.2011.06.018.
- [57] G. Baldacchini, „Colored LiF: an optical material for all seasons”, *J. Lumin.*, t. 100, nr 1–4, s. 333–343, grudz. 2002, doi: 10.1016/S0022-2313(02)00460-X.
- [58] K. Schwartz, C. Trautmann, A. S. El-Said, R. Neumann, M. Toulemonde, i W. Knolle, „Color-center creation in LiF under irradiation with swift heavy ions: Dependence on energy loss and fluence”, *Phys. Rev. B*, t. 70, nr 18, s. 184104, lis. 2004, doi: 10.1103/PhysRevB.70.184104.
- [59] A. P. Voitovich, V. S. Kalinov, G. Baldacchini, R. M. Montekali, i M. Cremona, „Spectroscopy of F₃⁺-color centers in lithium fluoride crystals (review)”, *J. Appl. Spectrosc.*, t. 65, nr 5, s. 778–795, wrz. 1998, doi: 10.1007/BF02679848.
- [60] E. Sonder i W. A. Sibley, „Defect Creation by Radiation in Polar Crystals”, w *Point Defects in Solids*, J. H. Crawford i L. M. Slifkin, Red., Boston, MA: Springer US, 1972, s. 201–290. doi: 10.1007/978-1-4684-2970-1_4.
- [61] A. Dauletbekova i in., „LiF crystals irradiated with 150MeV Kr ions: Peculiarities of color center creation and thermal annealing”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, t. 295, s. 89–93, sty. 2013, doi: 10.1016/j.nimb.2012.11.004.
- [62] A. P. Voitovich i in., „Color centers aggregation kinetics in lithium fluoride after gamma irradiation”, *J. Lumin.*, t. 143, s. 207–214, lis. 2013, doi: 10.1016/j.jlumin.2013.04.004.
- [63] V. V. Ter-Mikirtychev i T. Tsuboi, „Stable room-temperature tunable color center lasers and passive Q-switchers”, *Prog. Quantum Electron.*, t. 20, nr 3, s. 219–268, sty. 1996, doi: 10.1016/0079-6727(96)00001-8.
- [64] Sankowska, M., P. Bilski, B. Marczevska, M. Kłowski, i W. Gieszczyk, „The development of Fluorescent Nuclear Track Detectors for measurements of personal neutron doses.”, zaprezentowano na International Conference on Individual Monitoring

of Ionising Radiation (IM2022) and Neutron and Ion Dosimetry Symposium (NEUDOS-14), Kraków, Poland, 29.04 2022.

- [65] P. Bilski, „Fluorescent Nuclear Track Detectors (FNTD) based on LiF single crystals”, Dostęp: 28 luty 2023. [Online]. Dostępne na: <https://wrmiss.org/workshops/twentyfourth/Bilski.pdf>
- [66] G. Müller, „The Czochralski Method - where we are 90 years after Jan Czochralski's invention”, *Cryst. Res. Technol.*, t. 42, nr 12, s. 1150–1161, grudz. 2007, doi: 10.1002/crat.200711001.
- [67] A. Pajęczkowska, „Metoda Czochralskiego”, *Postępy Fiz.*, t. 67, 2016.
- [68] T. Fukuda i V. I. Chani, *Shaped crystals: micro-pulling-down technique and growth*. w *Advances in materials research*, no. 8. Berlin ; New York: Springer, 2007.
- [69] A. Yoshikawa i V. Chani, „Growth of Optical Crystals by the Micro-Pulling-Down Method”, *MRS Bull.*, t. 34, nr 4, s. 266–270, kwi. 2009, doi: 10.1557/mrs2009.77.
- [70] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, i J. P. Biersack, „SRIM – The stopping and range of ions in matter (2010)”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, t. 268, nr 11–12, s. 1818–1823, cze. 2010, doi: 10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- [71] W. G. Jerome i R. L. Price, Red., *Basic Confocal Microscopy*. Cham: Springer International Publishing, 2018. doi: 10.1007/978-3-319-97454-5.
- [72] M. J. Sanderson, I. Smith, I. Parker, i M. D. Bootman, „Fluorescence Microscopy”, *Cold Spring Harb. Protoc.*, t. 2014, nr 10, s. pdb.top071795, paź. 2014, doi: 10.1101/pdb.top071795.
- [73] W. T. Mason, Red., *Fluorescent and luminescent probes for biological activity: a practical guide to technology for quantitative real-time analysis*, 2nd ed. w *Biological techniques*. San Diego, Calif: Academic Press, 1999.
- [74] K. K. Aswani, „Emerging LED Technologies for Fluorescence Microscopy”, *Microsc. Today*, t. 24, nr 4, s. 22–27, lip. 2016, doi: 10.1017/S1551929516000407.
- [75] J. Schindelin *i in.*, „Fiji: an open-source platform for biological-image analysis”, *Nat. Methods*, t. 9, nr 7, s. 676–682, lip. 2012, doi: 10.1038/nmeth.2019.
- [76] J. Nahum, „Optical Properties and Mechanism of Formation of Some F-Aggregate Centers in LiF”, *Phys. Rev.*, t. 158, nr 3, s. 814–825, cze. 1967, doi: 10.1103/PhysRev.158.814.
- [77] S. W. S. McKeever, S. Sholom, N. Shrestha, i D. M. Klein, „Build-up of radiophotoluminescence (RPL) in Ag-doped phosphate glass in real-time both during and after exposure to ionizing radiation: A proposed model”, *Radiat. Meas.*, t. 132, s. 106246, mar. 2020, doi: 10.1016/j.radmeas.2020.106246.
- [78] J. A. Bartz, S. Kodaira, M. Kurano, N. Yasuda, i M. S. Akselrod, „High resolution charge spectroscopy of heavy ions with FNTD technology”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, t. 335, s. 24–30, wrz. 2014, doi: 10.1016/j.nimb.2014.05.019.
- [79] A. Stabilini, D. Kiselev, M. S. Akselrod, i E. G. Yukihara, „A Monte-Carlo study on the fluorescent nuclear track detector (FNTD) response to fast neutrons: Which information can be obtained by single layer and 3D track reconstruction analyses?”, *Radiat. Meas.*, t. 145, s. 106609, lip. 2021, doi: 10.1016/j.radmeas.2021.106609.

- [80] J. J. M. Kouwenberg *i in.*, „Alpha particle spectroscopy using FNTD and SIM super-resolution microscopy”, *J. Microsc.*, t. 270, nr 3, s. 326–334, cze. 2018, doi: 10.1111/jmi.12686.
- [81] T. Tsuboi i V. V. Ter-Mikirtychev, „Characteristics of the LiF:F₃⁺ color center laser”, *Opt. Commun.*, t. 116, nr 4–6, s. 389–392, maj 1995, doi: 10.1016/0030-4018(95)00065-G.
- [82] P. Bilski *i in.*, „Luminescent properties of LiF crystals for fluorescent imaging of nuclear particles tracks”, *Opt. Mater.*, t. 90, s. 1–6, kwi. 2019, doi: 10.1016/j.optmat.2019.02.014.
- [83] M. Sankowska, P. Bilski, i B. Marczewska, „Thermal enhancement of the intensity of fluorescent nuclear tracks in lithium fluoride crystals”, *Radiat. Meas.*, t. 157, s. 106845, wrz. 2022, doi: 10.1016/j.radmeas.2022.106845.
- [84] M. Sankowska, P. Bilski, B. Marczewska, i Y. Zhydachevskyy, „Influence of Elevated Temperature on Color Centers in LiF Crystals and Their Photoluminescence”, *Materials*, t. 16, nr 4, s. 1489, luty 2023, doi: 10.3390/ma16041489.
- [85] A. P. Voitovich, P. A. Loiko, X. Mateos, L. P. Runets, J. M. Serres, i A. P. Stupak, „Photoluminescence behavior of surface radiation induced color centers in lithium fluoride and influence of nanosized clusters”, *J. Lumin.*, t. 188, s. 75–80, sie. 2017, doi: 10.1016/j.jlumin.2017.04.007.
- [86] A. T. Akilbekov, A. V. Russakova, A. K. Dauletbekova, M. V. Koloberdin, M. Zh. Baijumanov, i M. V. Zdorovets, „Generation of color centers when annealing LiF crystals irradiated by Kr ions with an energy of 150 MeV”, *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.*, t. 78, nr 6, s. 535–539, cze. 2014, doi: 10.3103/S1062873814060045.
- [87] K. Schwartz, A. E. Volkov, M. V. Sorokin, R. Neumann, i C. Trautmann, „Effect of irradiation parameters on defect aggregation during thermal annealing of LiF irradiated with swift ions and electrons”, *Phys. Rev. B*, t. 82, nr 14, s. 144116, paź. 2010, doi: 10.1103/PhysRevB.82.144116.
- [88] C. Trautmann, K. Schwartz, J. M. Costantini, T. Steckenreiter, i M. Toulemonde, „Radiation defects in lithium fluoride induced by heavy ions”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, t. 146, nr 1–4, s. 367–378, grudz. 1998, doi: 10.1016/S0168-583X(98)00427-3.
- [89] M. Izerrouken, L. Guerbous, i A. Meftah, „Thermal annealing study of F center clusters in LiF single crystals”, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, t. 613, nr 1, s. 9–14, sty. 2010, doi: 10.1016/j.nima.2009.11.057.
- [90] M. Izerrouken, A. Meftah, i M. Nekkab, „Color centers in neutron-irradiated Y₃Al₅O₁₂, CAF₂ and LiF single crystals”, *J. Lumin.*, t. 127, nr 2, s. 696–702, grudz. 2007, doi: 10.1016/j.jlumin.2007.04.005.
- [91] A. P. Voitovich, V. S. Kalinov, N. N. Naumenko, i A. P. Stupak, „Radiation-induced color centers in the near-surface layer of lithium fluoride crystals”, *J. Appl. Spectrosc.*, t. 73, nr 6, s. 866–873, lis. 2006, doi: 10.1007/s10812-006-0168-z.
- [92] A. P. Voitovich, V. S. Kalinov, E. F. Martynovich, A. P. Stupak, i L. P. Runets, „Diffusion and aggregation of subsurface radiation defects in lithium fluoride nanocrystals”, *Phys. Solid State*, t. 57, nr 9, s. 1752–1758, wrz. 2015, doi: 10.1134/S1063783415090334.
- [93] R. Fastampa, M. Missori, M. C. Braidotti, C. Conti, M. A. Vincenti, i R. M. Montereali, „Temperature behavior of optical absorption bands in colored LiF crystals”, *Results Phys.*, t. 6, s. 74–75, 2016, doi: 10.1016/j.rinp.2016.01.013.

- [94] G. Baldacchini, F. De Matteis, R. Francini, U. M. Grassano, F. Menchini, i R. M. Montereali, „Emission decay times of F_3^+ and F_2 color centers in LiF crystals”, *J. Lumin.*, t. 87–89, s. 580–582, maj 2000, doi: 10.1016/S0022-2313(99)00301-4.
- [95] G. Baldacchini, M. Cremona, G. d’Auria, R. M. Montereali, i V. Kalinov, „Radiative and nonradiative processes in the optical cycle of the F_3^+ center in LiF”, *Phys. Rev. B*, t. 54, nr 24, s. 17508–17514, grudz. 1996, doi: 10.1103/PhysRevB.54.17508.
- [96] T. T. Basiev, I. V. Ermakov, i K. K. Pukhov, „Optical and nonradiative transitions involving triplet states of laser-active F_3^+ colour centres in LiF crystals”, *Quantum Electron.*, t. 27, nr 4, s. 304–308, kwi. 1997, doi: 10.1070/QE1997v027n04ABEH000932.