

ATERMOLUMINESZCENCIA JELENSÉGÉNEK FÖLDTANI ALKALMAZÁSA*

DR. FÉLSZERFALVI JÁNOS**—DR. KASZAP ANDRÁS***—DR. MUCSI OTTÓ****

(6 ábrával)

Összefoglalás: A szerzők a termolumineszcencia jelenségének rövid elméleti értelmezése után a jelenség földtani alkalmazásával kapcsolatos lehetőségeket ismertetik. Ezek között beszámolnak a lábatlani és tatai klasszikus szelvényeken végzett saját mérésükről is, amiket rétegtani azonosítások céljaira kívánnak kidolgozni. A leírt mérések azt mutatják, hogy az egyes rétegek melegítési görbéi (az intenzitásvizonyokat nem tekintve) közel azonos lefutásúak, azaz a melegítési görbék a mintavétel helyére jellemzők. Ismertetik továbbá a mérés céljaira készült műszeres berendezést. A melegítés sebessége $1,3\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$, ill. $10\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ volt a különböző melegítési görbék vételénél.

Bevezetés

Régóta ismeretes, hogy sok ásvány melegítés hatására látható fényt bocsát ki. Ezt a jelenséget termolumineszcenciának nevezzük.

A két gyémánt termolumineszcenciáját elsőnek Boyle (1663) észlelte, azonban e jelenség csak ásványtani érdekesség maradt. Sok szerző számolt be különböző ásványok termolumineszcenciájának vizuális észleléséről. A jelenség pontos, kvantitativ is követhető megfigyelése főleg csak az utolsó 50 évben, a mérőeszközök technikai tökéletesedése után vált lehetségessé.

Az 1930—1940-es években Elsworth, Kohler, valamint Alt és Steinmetz arra a következtetésre jutottak, hogy az ásványok természetes termolumineszcenciáját a hozzájuk társult radioaktív anyagok okozzák. Utóbbiak azt is megfigyelték, hogy a kristályok szennyezettsége meghatározó tényező a termolumineszcencia karakterét illetően.

Több ezer ásvány vizuális vizsgálata mutatja, hogy az ásványok 75%-a melegítés hatására fényt bocsát ki. Az észleléseknél a mintát vörös izzás alatti hőmérsékletre hevített fémlapra helyezték. A különböző ásványok termolumineszcenciája azok kristályos szerkezetén alapul. A kalcit és magnezit pl. a sárgától a narancsig, a nátrium- és káliumtartalmú földpátok pedig kék fényvel világítanak. A metamikt-ásványok általában nem termolumineszcens sajátságúak.

Az eddigiekből következően a mészkő és a dolomit általában termolumineszcens jelenséget idézhet elő.

A termolumineszcencia jelensége a szilárdtestfizika elmélete alapján vázlatosan a következő módon értelmezhető.

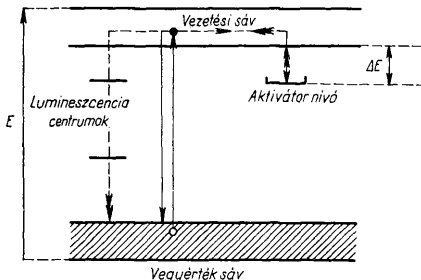
* Elhangzott a Magyarhoni Földtani Társulat 1964. I. 8-i előadójelentésén. Kézirat lezárva 1964. VII. 1.

** Kossuth Lajos Tudományegyetem Alk. Fizikai Intézete, Debrecen.

*** Eötvös Loránd Tudományegyetem Földtani Tanszéke, Budapest.

**** Debreceni Orvostudományi Egyetem, Röntgenklinika, Debrecen.

A szilárd test elektronjai normális alapállapotukban az ún. vegyértéksávban helyezkednek el (1. ábra). A környezet radioaktív sugárzásának hatására az elektronok energiája megnő és magasabb energiatartalmuk következtében az ún. vezetési sávba kerülhetnek, ahonnan a gerjesztés megszűnte után alapállapotukba, a vegyértéksávba jutnak vissza. A kristályban jelenlevő vagy a sugárzás hatására létrejött rács hibák, a bevitt idegen anyagok (aktivátorok) vagy jelenlevő szennyezések az elektronokat befoghatják. Az elektronok lekötése közben különböző ún. göcök jönnek létre (legjelentő-



1. ábra. Szilárdtest egyszerűsített energianívó skémája

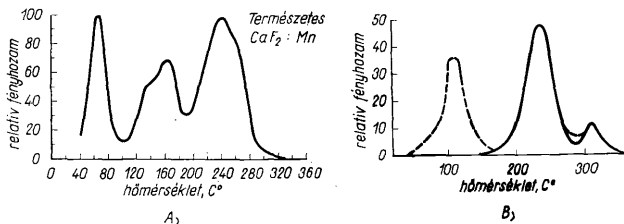
Abb. 1. Vereinfachtes Schema des Energieniveaus eines festen Körpers

sebb az ún. F göc), amik változásokat idéznek elő a besugárzott szilárd test optikai tulajdonságaiban. Ez a változás különböző módon nyilvánulhat meg. Eredményezhet többek között olyan esetben is lumineszcenciát, amikor a besugárzatlan anyag egyébként nem lumineszkál. A későbbiekben részletezett vizsgálati minták esetében pl. a minta első felmelegítésekor észleljük annak természetes termolumineszcenciáját. Ugyanezt a mintát ismételten melegítve, lumineszcencia-jelenséget nem tapasztalunk, csak a melegítést megelőző besugárzás után, amikor is a besugárzott anyagban a befogott elektronok lumineszcens fény kibocsátása közben térnek vissza alapállapotukba. A besugárzás hatására létrejövő különféle göcök egy része szobahőmérsékleten és világításban stabilis.

A különböző anyagok termolumineszcens tulajdonságainak vizsgálatánál jelentős szerepe van a minta „melegítési görbe” (glow curve) felvételének. A minta melegítésekor a hőmérséklet függvényében felvett relatív fényintenzitás-változás jellemző a mintára (2. ábra). A melegítési görbék egy vagy több maximummal rendelkeznek és ezek intenzitása, valamint az intenzitásmaximumokhoz rendelhető hőmérséklet igen különböző lehet.

A földkéreg kőzetei a természetes radioaktív és a kozmikus sugárzás hatásának évmilliókon át ki vannak téve és így anyaguktól, valamint a ráható sugárzás mennyiségétől és minőségétől függően természetes termolumineszcens tulajdonságokat mutatnak. A kőzet első felmelegítésekor az előbb említett sugárhatások következtében betöltött elektroncsapdák kiürülnek, és a minta ún. természetes termolumineszcenciáját mutató melegítési görbéjét regisztrálhatjuk (2. ábra). A természetes termolumineszcencia egy adott minta esetében csak egyszer, az első felmelegítés alkalmával jelentkezik, tehát egyazon mintánál a jelenség nem ismétlődik. Mesterséges besugárzás hatására a minta ismét aktiválható (mesterséges termolumineszcencia) és ily módon többszörösen felhasználható a melegítési görbék felvételére. A természetes termolumineszcencia jelen-

ségét vizsgálva a melegítési görbéken a kb. 100–120 °C hőmérséklet alatt kiürülő hiba-helyekről származó maximumokat nem tapasztaljuk, mert ezek a kőzet keletkezése óta eltelt földtani idők alatt, a besugárzással közel párhuzamosan kiürülnek, ill. e maximumok intenzitása a magasabb hőmérsékletű helyek intenzitásához viszonyítva igen kicsi. Radioaktív besugárzás hatására azonban ezek újra telítődnek, és a melegítési görbék már tartalmazzák ezeket az alacsonyabb hőmérsékletre tartozó intenzitásmaximumokat is. A mesterségesen besugárzott minták legtöbbjénél a kisebb hőmérsékleten



2. ábra. a) Természetes $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$ melegítési görbéje; b) CaCO_3 melegítési görbéje. Folytonos vonallal jelölve a minta természetes termolumineszcenciáját mutató görbe; szaggatott vonallal jelölve az első felmelegítés után radioaktív sugárzás hatására megjelenő alacsonyabb hőmérsékletértékű fekvő csúcs
Abb. 2. a) Erwärmungskurve des natürlichen $\text{CaF}_2 : \text{Mn}$. b) Erwärmungskurve des CaCO_3 . Die Kurve, welche die natürliche Thermolumineszenz der Probe zeigt, wird durch eine kontinuierliche Linie dargestellt; die nach der ersten Erwärmung, infolge radioaktiver Strahlung bei einem niedrigen Temperaturwert liegende Spitze ist gestrichelt gezeichnet

levő csúcsokat adó befogóhelyek szobahőmérsékleten néhány nap alatt kiürülnek; ezt a jelenséget a szakirodalom „fading”-nek nevezi.

A melegítési görbék előbb említett tulajdonságai a

1. minta anyagától, az abban levő szennyezések mennyiségétől és minőségétől,
2. minta termikus és kristályosodási történetétől,
3. minta radioaktív sugárérzékenységétől (termolumineszcens érzékenység) függenek.

A felsorolt tulajdonságok a módszer alkalmazását illetően nagyfokú óvatosságra és körültekintésre intenek. A módszernek azonban számos előnyös tulajdonsága van, és ezért különösen olyan területeken alkalmazható, ahol a gyors, tájékozódó mérés igénye merül fel és annak érdekében nem igényeljük pl. az abszolút földtani kormeghatározás igen munkaigényes, tömegspektrométeres méréseinek nagyobb pontosságát.

A regisztrált melegítési görbék közül többirányú következtetések vonhatók le. Több hőmérsékleti maximum esetén a különböző rétegekből vett minták az egyes hőmérsékleti értékekhez tartozó maximumokat különböző intenzitással tartalmaznak, célszerű tehát a jó összehasonlíthatóság érdekében az egyik hőmérsékleti maximumhoz tartozó intenzitást 100%-nak venni és így a görbe alakja az adott rétegre jellemző.

A fényintenzitás-maximumokhoz tartozó hőmérsékleti értékek elsősorban a minta anyagára jellemzők (2. ábra), különböző ásványok esetében tehát más és más hőmérsékleti értéknél jelentkeznek.

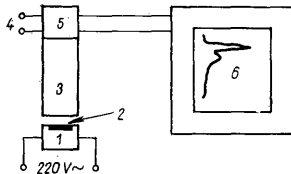
Földtani kormeghatározásnál a nagyobb hőmérsékletnél elhelyezkedő intenzitásmaximum mérésével – a minta radioaktív anyagtartalmának mérése és a hitelesítési görbe felvétele után – következtethetünk a minta korára.

Alkalmazható a módszer egymástól távolos szelvények párhuzamosítására, valamint nagyvastagságú, egyveretű összeletekben való függőleges tájékozódás céljaira. Fon-

tos alkalmazási területe lehet a fentebb említett földtani kormeghatározás, különösen olyan esetekben, amikor vulkáni eredetű kőzetekben, vagy hidrotermális ásványcsoportosulásoknál kívánunk valamely ásvány, vagy kőzet termikus és kristályosodási történetére vonatkozó adatokhoz jutni és amelyre a tömegspektrométeres abszolút földtani kormeghatározási módszerek nem igen alkalmasak.

A mérőberendezés leírása

A termolumineszcens fény intenzitását mérő berendezés — amely a debreceni Kossuth Lajos Tudományegyetem Alkalmazott Fizikai Intézetében korábban kidolgozott kiértékelő berendezés módosított formája — vázlatosan a 3. ábrán látható. A mintát (2) fűtött lapon helyeztük el, a fűtőtestre kapcsolt feszültséget toroidtranszformátor



3. ábra. A mérőberendezés vázlata. 1. Fűtőtest, szabályozó transzformátorral, 2. Minta, 3. Fotoelektronsokszorozó cső, 4. Magasfeszültségű tápegység, 5. Érzékenységet szabályozó rész, 6. Regisztráló műszer
Abb. 3. Schema der Messanlage. 1. Heizkörper mit Reguliertransformator, 2. Probe, 3. Photoelektronenvervielfacher, 4. Hochspannungs-Speisegerät, 5. Empfindlichkeits-Regulierungseinheit, 6. Registriergerät

(1) segítségével változtatni tudtuk. A melegítés sebessége $1,3\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec.}$, ill. $10\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{sec}$ volt. A mintát fénytől elzárva helyeztük el a melegítésre szolgáló felületen egy FEU 35 típusú elektronsokszorozó cső (3) fotokatódja előtt. A fotoelektronsokszorozó cső működéséhez szükséges magasfeszültséget (4) $0,5\%$ -ra stabilizáltuk. A berendezés érzékenysége a fotoelektronsokszorozó cső anódkörében elhelyezett munkaellenállások (5) segítségével volt változtatható. A melegítési görbéket elektronikus kompenzográf (6) regisztráltuk.

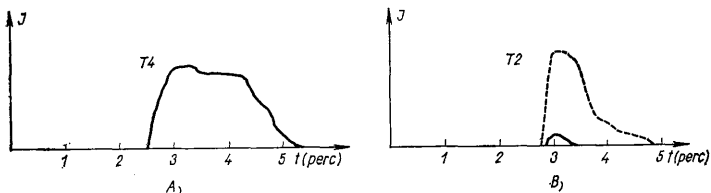
Tájékozódó jellegű méréseinknél szabványosított 20 mm átmérőjű és 2 mm vastagságú mintákat használtunk, amelyeket a kőzetcsiszolás szokásos módszereivel készítettünk elő.

Mérési eredmények

Tájékozódó méréseket végeztünk a tatai és a lábatlani triász-jura szelvény néhány rétegének mintáján. A 4. ábrán a *b)* görbe a dachsteini mészkő legfelső megalodusos mészkőpadjának természetes termolumineszcenciáját mutatja be, az *a)* görbe a dachsteini mészkő legfelső, az alsóliás mészkővel érintkező részéből készült minta hasonló adata. A *b)* ábrán szaggatott vonallal jelöltük az ugyanarról a helyről származó másik minta melegítési görbét, nagyobb elektronikus erősítés mellett.

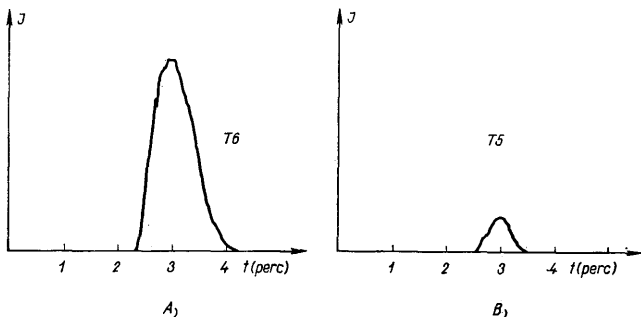
Az 5. ábrán az előbbi rétegekre települő alsóliás mészkő természetes termolumineszcenciájára vonatkozó méréseket mutatjuk be. A *b)* görbe a 4. ábra *a)* görbéjén feltüntetett dachsteini mészkőrétegen települő alsóliás mészkőösszlet legelső rétegének aljáról származó minta, az *a)* görbe az előbbinél mintegy 70 cm -rel magasabb helyzetű alsóliás mészkőminta melegítési görbéit mutatja be.

A tatai szelvény (Kálváriadomb) kőzetmintáinak természetes termolumineszcenciáját feltüntető 4. és 5. ábrák világosan mutatják, hogy az egyes rétegek melegítési



4. ábra. Felsőtriász mészkőminták melegítési görbéi. Tata, Kálváriadomb. a) a dachsteini mészkő legfelső az alsóliász mészkővel érintkező részéből vett minta, b) a dachsteini mészkő legfelső tagozatából, megalodusos mészkőpadból vett minták

Abb. 4. Erwärmungskurven obertriadischer Kalksteinsproben. Tata, Kálváriahügel. a) Probe aus dem obersten, mit dem unterliassischen Kalkstein im Kontakt befindlichen Teil des Dachsteinkalksteines, b) Proben aus dem obersten Glied des Dachsteinkalkes — der Megalodus-Kalksteinbank



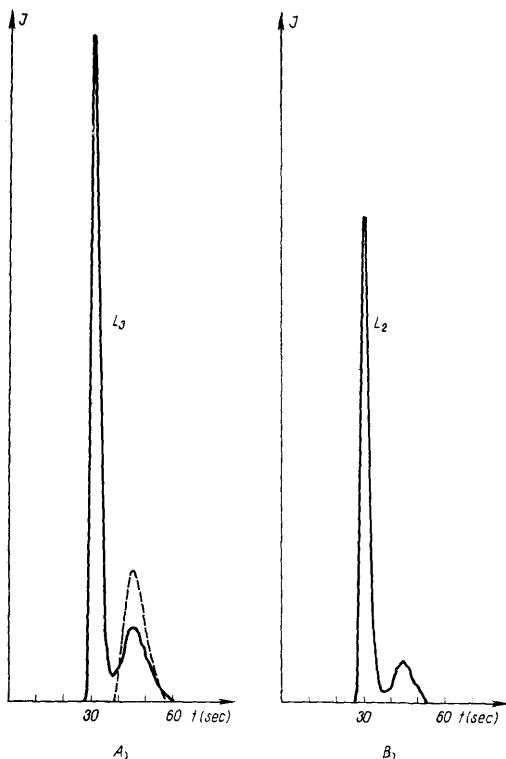
5. ábra. Alsóliász mészkőminták melegítési görbéi. Tata, Kálváriadomb
Abb. 5. Erwärmungskurven unterliassischer Kalksteinproben. Tata, Kálváriahügel

görbéi az intenzitásvizonyokat nem tekintve, közel azonos lefutásúak. Ezeknél a méréseknél a melegítés sebessége $1,3 \text{ } ^\circ\text{C}/\text{sec}$ volt.

A látatlan klasszikus júraszelvény két mintáján végzett mérés eredménye a 6. ábrán látható. Ez az ábra az egyszeri felmelegítés után radioaktív sugárforrással (Co-60, 1200 Curie aktivitás, 20 cm távolság, 90 perc besugárzási idő) besugárzott minták melegítési görbéit mutatja. (A besugárzást a Debreceni Orvostudományi Egyetem Röntgenklinikáján végeztük.)

A b) ábrán a látatlan Tölgyhát kőfejtő középsőliász összlet legalsó rétegéből, az a) ábrán a felsőliász aljáról származó mészkőminta melegítési görbéi láthatók. Az a) ábrán szaggatott vonallal jelöltük be a minta előzőleg felvett, természetes termolumineszcenciáját mutató melegítési görbét is. Ezeknél a méréseknél a melegítés sebessége $10 \text{ } ^\circ\text{C}/\text{sec}$ volt.

Mint a fentiekből látható, a különböző helyekről származó minták melegítési görbéje igen jellemző a mintavétel helyére és ezért a módszer rétegtani azonosítások céljaira előnyösen alkalmazhatónak látszik.



6. ábra. Radioaktív sugárforrással besugárzott középsőliász (b) és felsőliász (a) mészkőminták melegítési görbéi. Lábatlan, Tölgyhát kövejtő. Az a) ábrán szaggatott vonal jelöli a megelőzőleg felvett természetes termolumineszcencia görbét

Abb. 6. Erwärmungskurven mittelliassischer (b) und oberliassischer (a) Kalksteinproben, die durch eine radioaktive Strahlungsquelle bestrahlt worden sind. Lábatlan, Steinbruch Tölgyhát. In Abb. a) wird die vorangehend aufgenommene natürliche Thermolumineszenzkurve durch eine gestrichelte Linie dargestellt

IRODALOM – SCHRIFTTUM

- Daniels, F.—Boyd, C. A.—Saunders, D. F., (1953): Thermoluminescence as a research tool. *Science* 117, 343. — Daniels, F., (1961): Kinetics and Thermoluminescence in Geochemistry. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 22, 65. — Donald, F.—Saunders, D. F., (1953): Thermoluminescence and Surface Correlation of Limestones. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.* 37, 114. — Faul, H., (1955): *Nuclear Geology*. New York. — Félszerfai J.—Pátkó J., (1962): Gammasugárzás mérése termolumineszcenciás dózismérővel. *ATOMKI Közlemények* 4, 169. — Félszerfai J.—Pátkó J., (1963): A new device for the evaluation of thermoluminescent dosimeters and its application in γ -radiation dosimetry. *Acta Physica et Chimica Debrecina*. — Fonda, G. R.—Seitz, F., (1948): *Preparation and Characteristics of Solid Luminescent Materials*. New York. — Garlick, G.

F. J., (1949): *Luminescent Materials*. Oxford. — Houtermans, F. G. — Jäger, E. — Schön, M. — Stauffer, H., (1957): Messung der Thermolumineszenz als Mittel zur Untersuchung der thermischen und der Strahlungsgeschichte von natürlichen Mineralien und Gesteinen. *Annalen der Physik* 20, 283. — Leverenz, H. W., (1950): *An Introduction to Luminescence of Solid*. New York. — Pringsheim, (1949): *Fluorescence and Phosphorescence*. New York. — Przibram, K., (1956): *Irradiation Colours and Luminescence*. London. — Seitz, F., (1940): *The Modern Theory of Solids*. New York.

Geologische Anwendung der Thermolumineszenz

DR. J. FÉLSZERFALVI—DR. A. KASZAP—DR. O. MUCSI

Nach einer kurzen theoretischen Interpretierung des Phänomens der Thermolumineszenz erörtern Verfasser die Möglichkeiten zur geologischen Anwendung dieser Erscheinung. In diesem Zusammenhang berichten sie auch über die Messungen, die sie selber an den klassischen Trias—Jura-Profilen bei Tata und Látatlan (Nordungarn) unternommen haben und die sie zur stratigraphischen Korrelation verwendbar machen wollen. Die beschriebenen Messungen zeigen, dass die Erwärmungskurven der einzelnen Schichten, von den Intensitätsverhältnissen abgesehen, beinahe gleich verlaufen, d. h. die Erwärmungskurven für die Stelle der Probenentnahme bezeichnend sind. Des weiteren wird die zum Zwecke dieser Messungen gebaute Anlage beschrieben. Die Erwärmungsgeschwindigkeit war bei der Aufnahme verschiedener Erwärmungskurven $1,3^{\circ}$ C/s, bzw. 10° C/s.