

یک مدل جدید مرتبه آمیخته ترمولومینسانس با امکان بازگیراندازی حاملهای بار توسط مرکز عمیق

هارونی آرانی^۱، سمیه^۱؛ زاهدی فر، مصطفی^۲

^۱ دانشکده فیزیک دانشگاه کاشان، بلوار قطب راوندی، کاشان

چکیده

یک مدل جدید مرتبه آمیخته ترمولومینسانس ارائه شده است. در این مدل بازگیراندازی حامل های تحریک شده ی گرمایی توسط مرکز عمیق در نظر گرفته شده است و از این جهت این مدل کلی تر از مدل مرتبه آمیخته می باشد که در آن مراکز عمیق پر در نظر گرفته می شود. همچنین این مدل با فرض اشباع مرکز گیراندازی عمیق به مدل مرتبه آمیخته تبدیل می شود.

A new thermoluminescence mixed order model assuming allowed retrapping of charge carriers in deep trap

Harooni Arani, Somayeh¹; Zahedifar, Mostafa²

^{1,2} Department of Physics, University of Kashan, Kashan

Abstract

An improved thermoluminescence mixed order model is presented. This model takes in to account the retrapping of thermally stimulated charge carriers in deep trap, so is more general than the conventional mixed order model, in which the deep traps are assumed to be saturated. In the limiting case of saturation of deep traps, this model reduces to conventional mixed order model.

$n(\text{cm}^{-3})$ تمرکز الکترونها در مرکز گیراندازی در زمان t ، $s(s^{-1})$

فاکتور فرکانس، $E(eV)$ انرژی فعال سازی، $k(eVK^{-1})$ ثابت بولتزمن و T دما بر حسب کلوین است. با استفاده از معادلات (۱)، (۲) و (۳) و با فرض $n_c \ll n$ و $\left| \frac{dn_c}{dt} \right| \ll \left| \frac{dn}{dt} \right|$ خواهیم داشت:

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = ns \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \frac{A_m m}{A_m m + A_n (N - n)} \quad (۴)$$

طبق رابطه ی (۴) در صورتی که فرض کنیم $A_m m \gg A_n (N - n)$ برقرار باشد، یعنی بازترکیب را غالب در نظر بگیریم، به مدل مرتبه ی اول که اولین بار توسط راندال و ویلکینز [۲] مطرح شد می رسیم. همچنین در صورتی که فرض کنیم $A_m m \ll A_n (N - n)$ برقرار باشد، یعنی بازگیراندازی را غالب در نظر بگیریم، با فرض $A_m = A_n$ و $N \gg n$ (دور از ناحیه ی اشباع) به مدل مرتبه ی

مقدمه

در سال ۱۹۶۰ یک سری معادلات دیفرانسیل که توصیف کنندة حرکت حامل های بار طی فرآیند ترمولومینسانس هستند، توسط هالپرین و برانر [۱] به صورت زیر مطرح شدند:

$$I(t) = -\frac{dm}{dt} = A_m m n_c \quad (۱)$$

$$-\frac{dn}{dt} = ns \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) - A_n (N - n) n_c \quad (۲)$$

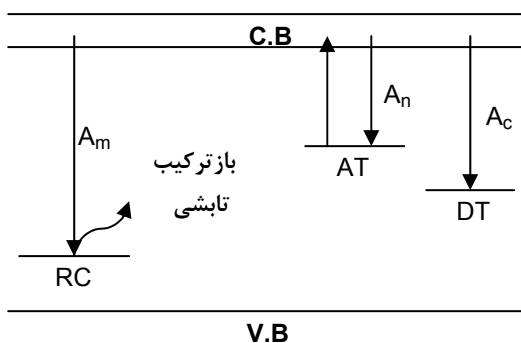
$$m = n + n_c \rightarrow \frac{dm}{dt} = \frac{dn}{dt} + \frac{dn_c}{dt} \quad (۳)$$

در این روابط I شدت ترمولومینسانس، $A_m (\text{cm}^3 \text{s}^{-1})$ احتمال بازترکیب، $A_n (\text{cm}^3 \text{s}^{-1})$ احتمال بازگیراندازی، $n_c (\text{cm}^{-3})$ تمرکز الکترونها در باند هدایت، $N (\text{cm}^{-3})$ چگالی حالت های در دسترس، $m (\text{cm}^{-3})$ تمرکز حفره ها در مرکز بازترکیب در زمان t ،

که به ازای $n \ll c (\alpha = 1)$ مدل مرتبه ی دوم و به ازای $n \gg c (\alpha = 0)$ مدل مرتبه ی اول را خواهیم داشت. بنابراین مدل مرتبه ی آمیخته در عین حال که در حالت های حدی به مدل مرتبه ی اول و دوم تبدیل می شود، حالت های بینابینی بین این دو مدل را نیز در بر دارد و پارامتر α مستقیماً به کمیت های فیزیکی سیستم مربوط است. هدف از کار حاضر این است که معادلات دیفرانسیل توصیف کننده پدیده ترمولومینسانس را با فرض اشباع نبودن مرکز گیراندازی عمیق حل کرده و معادله ی به دست آمده را مورد تجزیه و تحلیل قرار دهیم.

دستاوردها

معادله ی (۷) با این فرض به دست آمده است که مرکز گیراندازی عمیق موقع پرتو دهی نمونه پر شده و بنابراین موقع قرائت نمونه هیچ الکترونی توسط این مرکز باز گیراندازی نمی شود و در نتیجه پارامتر c ثابت باقی می ماند. اما در عمل همواره مرکز گیراندازی عمیق اشباع نمی شود و فرض در نظر گرفته شده توسط چن تنها برای سادگی مسئله و امکان حل معادلات به صورت تحلیلی بوده است. با فرض اینکه مرکز گیراندازی عمیق اشباع نباشد، همان طور که در شکل (۱) نیز نشان داده شده است امکان باز گیراندازی الکترونها توسط این مرکز وجود دارد.



شکل ۱: دیاگرام سطوح انرژی با فرض یک مرکز گیراندازی (AT). یک مرکز باز ترکیب (RC) و مرکز عمیق (DT).

در این صورت معادلات دیفرانسیل حاکم بر پدیده ی ترمولومینسانس به صورت زیر در می آیند:

دوم می رسیم که اولین بار توسط گارلیک و گیسون [۳] مطرح شد. معادله ی دیگری که علاوه بر معادلات (۱)، (۲) و (۳) برای توصیف پدیده ی ترمولومینسانس مطرح شده توسط دوسل و بویی [۴] در سال ۱۹۶۷ و همچنین کلی و برانلیچ [۵] در سال ۱۹۷۰ ارائه شده است. این معادله در ارتباط با مرکز گیراندازی عمیق است و به صورت زیر می باشد:

$$\frac{dc}{dt} = (H - C)A_e n_e \quad (5)$$

که در آن $c(\text{cm}^{-3})$ مربوط به تمرکز الکترونها در مرکز گیراندازی عمیق، $H(\text{cm}^{-3})$ مربوط به چگالی حالت های در دسترس برای مرکز گیراندازی عمیق، $A_e(\text{cm}^3 \text{s}^{-1})$ احتمال باز گیراندازی برای مرکز عمیق و $n_e(\text{cm}^{-3})$ مربوط به تمرکز الکترونها در باند هدایت است. در صورتی که فرض کنیم $H \cong c$ برقرار است، بنابراین $\frac{dc}{dt} \cong 0$ و در این صورت c ثابت خواهد بود. رابطه ی مربوط به خنثی بودن بار نیز به صورت $m = n + n_e + c$ است [۶].

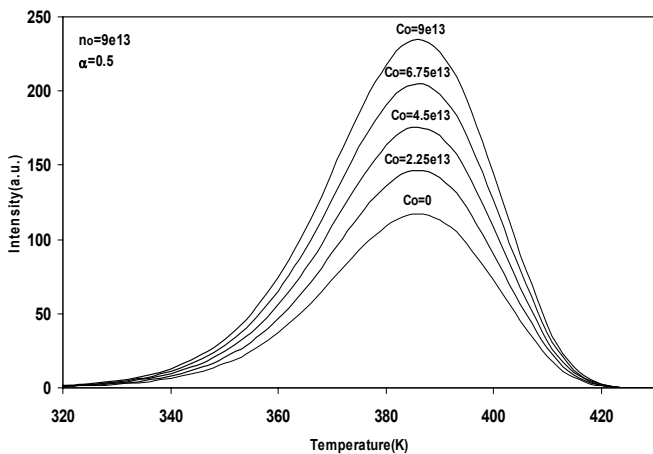
در سال ۱۹۸۱ چن [۷] این مرکز گیراندازی را در نظر می گیرد و فرض می کند که در حالت ساده c ثابت باشد. یعنی تعداد الکترون هایی که به هنگام پرتو دهی نمونه در مرکز گیراندازی عمیق قرار می گیرند در طول فرآیند ترمولومینسانس ثابت باقی می ماند. چن با در نظر گرفتن این حالت و رابطه ی (۴) و با فرض اینکه $A_m = A_n$ باشد، مدلی تحت عنوان مدل مرتبه ی آمیخته را به صورت زیر مطرح کرد:

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n(n+c)s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (6)$$

که در آن $s' = s/(N+c)$ است. با حل معادله ی (۶) رابطه ی شدت ترمولومینسانس بر اساس مدل مرتبه ی آمیخته به صورت زیر می شود:

$$I(T) = \frac{c^2 s' \alpha \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left(\frac{cs'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right)}{\left(\exp\left(\frac{cs'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right) - \alpha\right)^2} \quad (7)$$

که در آن $\alpha = n_0/(n_0 + c)$ و $n_0(\text{cm}^{-3})$ تمرکز اولیه ی الکترونها در مرکز گیراندازی است. طبق رابطه ی (۶) می توان دید



شکل ۲: تغییرات C_0 به ازای α ثابت را طبق مدل جدید نشان می‌دهد.

برای انجام برازش از یک برنامه‌ی کامپیوتری بر اساس الگوریتم لونیبرگ- مارگارت که در آزمایشگاه ترمولومینسانس دانشگاه کاشان تهیه شده، استفاده شده است [۸]. معیار برازش FOM است که با رابطه‌ی زیر داده می‌شود:

$$FOM = \frac{\sum |y_i - f_i|}{\sum y_i} \times 100 \quad (13)$$

y_i شدت در کانال i ام مربوط به پیک مورد نظر و f_i بهترین مقداری است که از طریق برازش به دست می‌آید و سیگما روی کل کانالها جمع می‌زند. هر چه FOM کوچکتر باشد انطباق بیشتری بین دو منحنی وجود دارد. مقادیر FOM کمتر از ۲/۵ درصد به معنای انطباق خوب است [۹].

جدول ۱: پارامترهای سینتیک در نظر گرفته شده برای مدل جدید مرتبه آمیخته

شکل	α	$N(cm^{-3})$	$n_0(cm^{-3})$	$c_0(cm^{-3})$	$s(s^{-1})$	$E(eV)$	$\beta(K/s)$
a	۰/۸	۱e۱۴	۹e۱۳	۰/۶H	۱e۱۲	۱	۱
b	۰/۸	۱e۱۴	۹e۱۳	۰/۳H	۱e۱۲	۱	۱
c	۰/۸	۱e۱۴	۹e۱۳	۰/۱H	۱e۱۲	۱	۱

جدول ۲: پارامترهای سینتیک به دست آمده بر اساس مدل قدیم مرتبه آمیخته

شکل	α	$N(cm^{-3})$	$n_0(cm^{-3})$	$s(s^{-1})$	$E(eV)$	$\beta(K/s)$	$FOM(\%)$
a	۰/۸	۱e۱۴	۹e۱۳	۱/۶۳e۱۱	۰/۹۴	۱	۴/۰۴
b	۰/۸	۱e۱۴	۹e۱۳	۳/۷۳e۱۰	۰/۸۹	۱	۷/۰۶
c	۰/۸	۱e۱۴	۹e۱۳	۱/۳۱e۱۰	۰/۸۶	۱	۹/۰۹

شکل ۳ قسمت‌های (a)، (b) و (c) بر اساس نتایج مندرج در جداول ۱ و ۲ رسم شده‌اند.

$$I(t) = -\frac{dm}{dt} = A_m m n_c \quad (8)$$

$$-\frac{dn}{dt} = ns \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) - A_n (N - n) n_c \quad (9)$$

$$\frac{dc}{dt} = (H - C) A_c n_c \quad (10)$$

$$m = n + n_c + c \rightarrow \frac{dm}{dt} = \frac{dn}{dt} + \frac{dc}{dt} + \frac{dn_c}{dt} \quad (11)$$

با حل معادلات فوق رابطه شدت ترمولومینسانس بر اساس مدل جدید به صورت زیر در می‌آید:

$$I(T) = H^2 s' \alpha^2 \frac{n_0 + c_0}{n_0} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left(\frac{Hs'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right) \times \frac{1}{\left(\exp\left(\frac{Hs'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right) - \alpha\right)^2} \quad (12)$$

که در آن $s' = s/(N + H)$ ، $\alpha = n_0/(n_0 + H)$ است. رابطه (۱۲) به ازای $c_0 = H = c$ (یعنی با فرض اشباع مرکزگیراندازی عمیق) دقیقاً به رابطه‌ی شدت ترمولومینسانس بر اساس مدل مرتبه‌ی آمیخته‌ی ارائه شده توسط چن (رابطه‌ی (۷)) تبدیل می‌شود. با انتخاب دسته پارامترهای $\alpha = 0.5$ ، $N = 1e14(cm^{-3})$ ، $n_0 = 9e13(cm^{-3})$ ، $s = 1e12(s^{-1})$ ، $E = 1(eV)$ و $\beta = 1(K/s)$ بر اساس مدل جدید مورد بررسی قرار گرفته است. همان‌طور که در شکل ۲ نشان داده شده است با کاهش C_0 سطح زیر منحنی کاهش می‌یابد. در واقع هرچه C_0 کوچکتر باشد، تمرکز الکترونها در مرکز عمیق کمتر و در نتیجه تعداد بیشتری از الکترونها خارج شده از مرکزگیراندازی توسط این مرکز بازگیراندازی می‌شوند و در این صورت سطح زیر منحنی کاهش می‌یابد.

مقایسه‌ی دو مدل مرتبه آمیخته‌ی جدید و قدیم بر اساس اطلاعات درج شده در جدول‌های ۱ و ۲ انجام شده است. به این صورت که ابتدا طبق جدول ۱ و رابطه (۱۲) منحنی تابش ترمولومینسانس تولید شده و در مرحله‌ی بعد با رابطه‌ی (۷) برازش شده و نتایج حاصل از برازش در جدول ۲ ارائه شده است.

که هرچه c_0 به ازای H ثابت کوچکتر باشد، یعنی درصد خالی بودن تراز عمیق بیشتر است و در این صورت طبق مدل جدید بازگیراندازی الکترونها به این تراز بیشتر صورت می‌گیرد و در نتیجه سطح زیر منحنی در مدل جدید کمتر از مدل قدیم می‌شود. در صورتی که طبق مدل قدیم بازگیراندازی به تراز عمیق به دلیل اینکه فرض می‌شود تراز عمیق پر است صورت نمی‌گیرد.

نتیجه گیری

برای بررسی منحنی های تابش ترمولومینسانس مدل های مختلفی ارائه شده است. از بین این مدل ها مدل مرتبه ی آمیخته عام تر و فیزیکی است. اما این مدل نیز دارای اشکالات مختلفی است. چون این مدل با در نظر گرفتن یک سری از فرضیات ساده کننده حاصل شده است. یکی از این فرضیات ساده کننده این است که فرض می‌شود موقع پرتو دهی نمونه مرکزگیراندازی عمیق پر می‌شود و در این صورت موقع فرانت نمونه الکترونی توسط آن بازگیراندازی نمی‌شود. بنابراین مدل جدید از این جهت که با حذف یکی از این فرضیات ساده کننده به دست آمده است، می‌تواند مدل بهتری نسبت به مدل قدیم باشد.

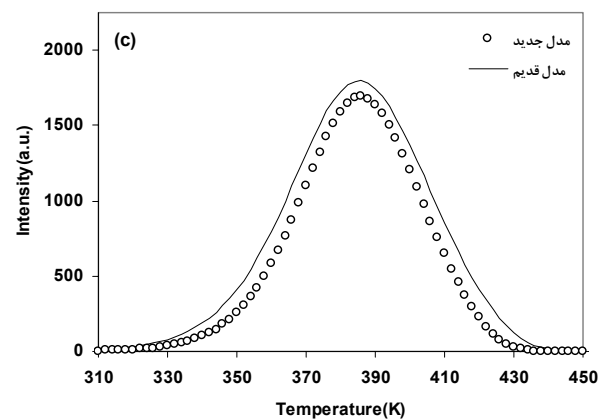
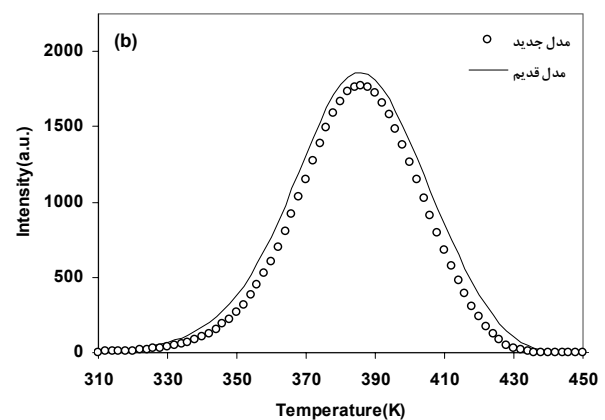
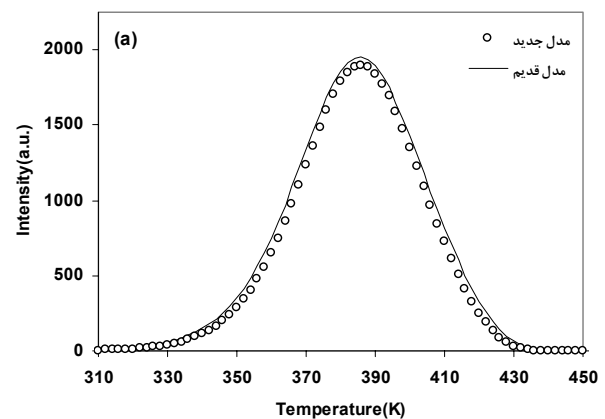
مرجع ها

- [۱] A Halperin and A. A. Braner; "Evaluation of thermal activation energies from glow curves"; *Phys.Rev.* **117**, (1960), 408-415.
- [۲] J. T. Randall and M. H. F. Wilkins; "Phosphorescence and electron traps: I. The study of trap distribution"; *Proc. Roy. Soc.(London) A*, **184**, (1945), 366-389.
- [۳] G. F. J. Garlick and A. F. Gibson; "The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors"; *Proc. Phys. Soc.*, **60**, (1948), 574-589.
- [۴] G.A. Dussel and R.H. Bube; "Theory of TSC in a previously photo excited crystal"; *phys. Rev.* **155**, (1967), 764-779.
- [۵] P.J. Kelly and P. Braunlich; "I. Phenomenological theory of TL"; *Phys.Rev.B*, **1**, (1970), 1587-1595.
- [۶] R. Chen and S.W.S. McKeever; "Theory of thermoluminescence and related phenomena"; *World scientific, Singapore*, (1997).
- [۷] R. Chen, N. Kristianpoller, Z. Davidson and R. Visocekas; "Mixed first and second order kinetics in thermally stimulated processes"; *Journal of luminescence*, **23**, (1981), 293-303.

[۸] کاویانی نیا، محمد جواد، یک برنامه کامپیوتری برای برازش منحنی های تابش و کاربرد آن در تحلیل سینتیکی پدیده ترمولومینسانس، دانشگاه

کاشان، پایان نامه (۱۳۸۴).

- [۹] H. G. Balian and N. W. Eddy; "Figure of Merit(FOM), an improved criterion over the normalized chi-squared test for assessing goodness of fit of gamma ray spectra peaks"; *Nucl. Instrum. Meth.*, **145**, (1977) 389-395.



شکل ۳: مقایسه دو مدل بر اساس برازش مدل مرتبه آمیخته جدید با مدل مرتبه آمیخته قدیم به ازای مقادیر مختلف پرشدگی برای مرکز عمیق به صورت $(a)0.6H$ ، $(b)0.3H$ ، $(c)0.1H$ را نشان می‌دهد. پارامترهای در نظر گرفته شده برای مدل جدید طبق جدول ۱ و پارامترهای به دست آمده برای مدل قدیم بر اساس جدول ۲ است.

همان طور که دیده می‌شود با کاهش c_0 سطح زیر منحنی طبق مدل قدیم بیشتر از مدل جدید می‌شود. دلیل این موضوع آن است