

یک مدل برای توصیف ترمولومینسانس ناشی از انتقال الکترون از تراز عمیق به تراز فعال توسط فوتون و چگونگی استفاده از آن برای تخمین پارامترهای سینتیک سیستم های واقعی

هارونی آرانی^۱، سمیه^۱؛ زاهدی فر، مصطفی^۲؛ الماسی فرد، فاطمه^۳

^{۱،۲،۳} دانشکده فیزیک دانشگاه کاشان، بلوار قطب راوندی، کاشان

چکیده

در بررسی فرآیند ترمولومینسانس (TL) و فرآیند ناشی از انتقال الکترون از تراز عمیق به تراز فعال توسط فوتون (PTTL) میزان پرشدگی تراز عمیق دارای اهمیت است. در این کار روشی برای تخمین میزان پرشدگی تراز عمیق و پارامترهای g_c (احتمال خروج الکترون از تراز عمیق در طول فرآیند نوردهی) و g_n (احتمال خروج الکترون از تراز فعال در طول فرآیند نوردهی) معرفی شده است. برای این منظور معادلات آهنگ فرآیند PTTL با فرض در نظر گرفتن یک مرکز گیراندازی فعال، یک مرکز گیراندازی عمیق و یک مرکز بازترکیب حل شده و منحنی های پاسخ PTTL رسم شده است که با مقایسه ی این منحنی ها با داده های تجربی می توان تخمینی از میزان پرشدگی تراز عمیق و پارامترهای g_c و g_n به دست آورد.

A model for phototransferred thermoluminescence and its application for estimating the kinetic parameters of real systems

Harooni Arani, Somayeh¹; Zahedifar, Mostafa²; Almasifard, Fatemeh³

^{1,2,3} Department of Physics, University of Kashan, Kashan

Abstract

Deep trap population is an important parameter in studying thermoluminescence (TL) and phototransferred thermoluminescence (PTTL) processes. In this work a method is presented for estimating deep trap population and obtaining the probability of excitation of electrons from deep trap (g_c) and active trap (g_n) following UV irradiation. For doing so the rate equations of PTTL process considering one active trap, one deep trap and one recombination center were solved to obtain the PTTL signal curves. The above theoretical curves can be compared with the experimental data to estimate deep trap population and g_c and g_n parameters.

کرد. تحقیقات زیادی برای بررسی خواص دزیمتری مواد TL و کاربرد آنها در دزیمتری و مخصوصاً در UV دزیمتری انجام شده است [۲-۷]. پاسخ TL به نور حساسیت دارد. نور در عین حال که می تواند باعث ایجاد اثر محو شدگی شود، می تواند باعث انتقال الکترونها از تراز عمیق به تراز دزیمتری نیز شود [۸]. میزان پرشدگی تراز عمیق می تواند باعث تغییر حساسیت دزیمتر و تغییر منحنی تابش TL از لحاظ پهنا و موقعیت شود [۹-۱۲]. در مواردی ممکن است در اثر اشتباهات فردی و یا عوامل دیگر اطلاعات ثبت

مقدمه

پدیده ی ترمولومینسانس (TL) ناشی از انتقال الکترون از تراز عمیق به تراز فعال توسط فوتون (PTTL) در بسیاری از مواد مشاهده و مورد مطالعه قرار گرفته است. از جمله دزیمترهایی که پدیده ی PTTL برای آنها مورد بررسی قرار گرفته است می توان به MgO ، $MgO:Cu$ ، $CaF_2:Cu$ ، $Al_2O_3:C$ اشاره کرد [۱]. از این پدیده می توان به عنوان ابزاری برای UV دزیمتری، دزیمتری مجدد و عمرسنجی نمونه های باستانی استفاده

گیراندازی فعال و یک مرکز گیراندازی عمیق به صورت زیر است [۱۳]:

$$\frac{dn_c}{dt} = \frac{dm}{dt} - \frac{dn}{dt} - \frac{dc}{dt} \quad (۱)$$

$$\frac{dn}{dt} = A_n(N - n)n_c - g_n n \quad (۲)$$

$$\frac{dc}{dt} = A_c(H - c)n_c - g_c c \quad (۳)$$

$$\frac{dm}{dt} = -A_m m n_c \quad (۴)$$

که در آن $A_m (cm^3 s^{-1})$ احتمال بازترکیب، $A_n (cm^3 s^{-1})$ و $A_c (cm^3 s^{-1})$ به ترتیب احتمال بازگیراندازی توسط مرکزگیراندازی فعال و عمیق، $n_c (cm^{-3})$ تمرکز الکترون‌ها در باند هدایت، $N (cm^{-3})$ و $H (cm^{-3})$ به ترتیب چگالی حالت‌های در دسترس برای مرکزگیراندازی فعال و عمیق، $m (cm^{-3})$ تمرکز حفره‌ها در مرکز بازترکیب در زمان t ، $n (cm^{-3})$ و $c (cm^{-3})$ به ترتیب تمرکز الکترون‌ها در مرکزگیراندازی فعال و عمیق در زمان t ، $g_n (s^{-1})$ و $g_c (s^{-1})$ به ترتیب آهنگ خارج شدن الکترون از مرکز گیراندازی فعال و عمیق طی فرآیند نوردهی هستند.

در سال ۱۹۶۰ یک سری معادلات دیفرانسیل که توصیف کننده حرکت حامل‌های بار طی فرآیند ترمولومینسانس هستند، توسط هالپرین و برانر [۱۴] به صورت زیر مطرح شدند:

$$\frac{dn_c}{dt} = \frac{dm}{dt} - \frac{dn}{dt} - \frac{dc}{dt} \quad (۵)$$

$$\frac{dn}{dt} = A_n(N - n)n_c - ns \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (۶)$$

$$\frac{dc}{dt} = A_c(H - c)n_c \quad (۷)$$

$$I(t) = -\frac{dm}{dt} = A_m m n_c \quad (۸)$$

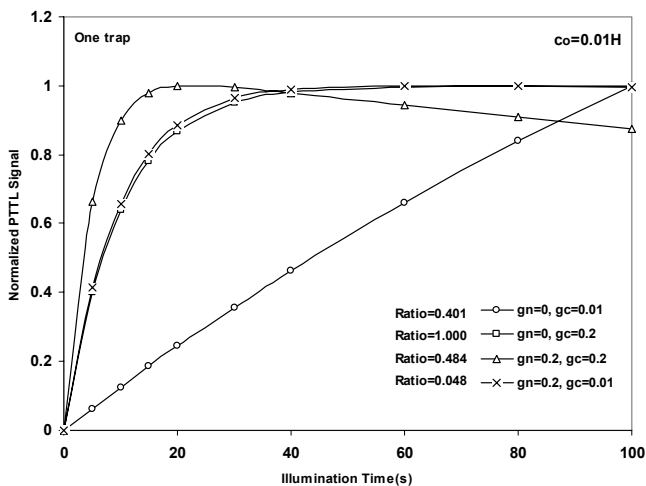
در این روابط I شدت ترمولومینسانس، $s (s^{-1})$ فاکتور فرکانس، $E (eV)$ انرژی فعال‌سازی، $k (eVK^{-1})$ ثابت بولتزمن و سایر پارامترها در رابطه اول نیز حضور دارند و همان‌جا تعریف شده‌اند. حل این معادلات دیفرانسیل به صورت تحلیلی دشوار و تقریباً غیر ممکن است. بنابراین به منظور حل این معادلات از روش‌های عددی استفاده می‌شود. که در این کار معادلات دیفرانسیل با استفاده از نرم افزار مپیل و به روش عددی حل شده

شده در دزیمترها پاک شود. در این حالت دزیمتری مجدد می‌تواند روش خوبی برای غلبه بر این مشکل باشد. با توجه به پایداری ترازهای عمیق می‌توان از الکترون‌های به دام افتاده در این ترازها به منظور باریابی اطلاعات استفاده کرد.

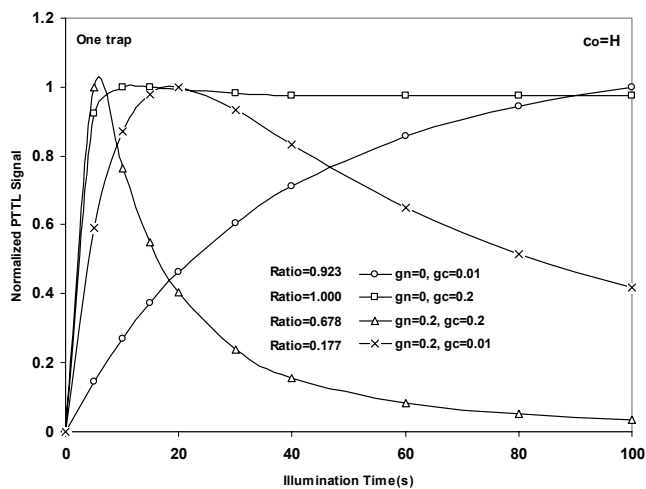
برای مشاهده پدیده‌ی TL در ابتدا بایستی یک نمونه‌ی TLD تحت تابش پرتوهای یونساز قرار گیرد. که در این صورت مراکز گیراندازی الکترون و حفره پر می‌شوند. در صورتی که این نمونه با یک آهنگ گرماده‌ی ثابت و در یک بازه‌ی دمایی مشخص حرارت داده شود، این امکان برای الکترون‌های واقع در مراکز گیراندازی وجود دارد که خارج شده و به باند هدایت بروند و از آنجا به مرکز بازترکیب رفته و با حفره‌های گیرافتاده در آن ترکیب شده و فوتون آزاد کنند. منحنی تابش TL ناشی از این پدیده را می‌توان بر حسب دما رسم کرد و آن را مورد بررسی قرار داد. بعد از پایان مرحله‌ی گرماده‌ی یا قرائت نمونه مرکز گیراندازی دزیمتری یا فعال خالی می‌شود. اما یک سری مراکز گیراندازی که به اصطلاح مراکز عمیق جدا شده‌ی گرمایی هستند در بازه‌ی دمایی قرائت نمونه با کاهش الکترون روبرو نمی‌شوند. با تاباندن فوتون به این نمونه الکترون از این مراکز عمیق خارج شده و باعث پر شدن ترازهای فعال می‌شوند. در این صورت میزان پرشدگی تراز فعال به زمان نوردهی بستگی دارد. اگر بعد از این مرحله دوباره نمونه با یک آهنگ گرماده‌ی ثابتی قرائت شود، منحنی به دست آمده از آن ناشی از پدیده‌ی PTTL خواهد بود. آنچه در بررسی پدیده‌ی PTTL مورد توجه است سطح زیر منحنی تابش ناشی از این پدیده است که معمولاً بر حسب زمان نوردهی رسم می‌شود. با بررسی نمودار پاسخ TL و PTTL می‌توان میزان دز اشباع را به ترتیب برای مراکزگیراندازی فعال و عمیق به دست آورد. همچنین با بررسی نمودار پاسخ PTTL می‌توان برآوردی از میزان تابش UV به دست آورد.

روش کار

معادلات دیفرانسیل حاکم بر حرکت حامل‌های بار در طول زمان نوردهی با فرض در نظرگرفتن یک مرکز بازترکیب، یک مرکز



شکل ۱: نمودار تغییرات پاسخ P TTL بر حسب زمان نوردهی به ازای حالت‌های مختلف g_n و g_c را با فرض اینکه مرکز گیراندازی عمیق دور از ناحیه اشباع باشد، نشان می‌دهد. هر نمودار با توجه به داده‌های خودش نرمال شده است و ضرایب مشخص شده به ازای هر نمودار برای مقایسه نمودارها با یکدیگر تعیین شده است.



شکل ۲: نمودار تغییرات پاسخ P TTL بر حسب زمان نوردهی به ازای حالت‌های مختلف g_n و g_c را با فرض اینکه مرکز گیراندازی عمیق در حالت اشباع باشد، نشان می‌دهد. هر نمودار با توجه به داده‌های خودش نرمال شده است و ضرایب مشخص شده به ازای هر نمودار برای مقایسه نمودارها با یکدیگر تعیین شده است.

که در این صورت به ازای یک زمان نوردهی مشخص و دمای معلوم، شدت P TTL به دست می‌آید. این کار برای یک بازه‌ی دمایی مشخص تکرار و با توجه به آن سطح زیر منحنی شدت P TTL بر حسب دما (پاسخ P TTL) به ازای یک زمان نوردهی مشخص به دست آمده است. با تکرار این عمل برای مقادیر مختلف زمان نوردهی، نمودار پاسخ P TTL بر حسب زمان نوردهی رسم شده است.

دستاوردها

نمودار پاسخ P TTL بر حسب زمان نوردهی با فرض در نظرگرفتن یک مرکز گیراندازی فعال و با توجه به حالت‌های مختلفی که می‌توان برای g_n و g_c در نظر گرفت، به ازای $c_o = H$ و $c_o = 0.01H$ مورد بررسی قرار گرفته است. با فرض اینکه g_c بین 0.01 تا 0.2 و g_n بین 0 تا 0.2 باشد، چهار حالت مختلف را می‌توان مورد بررسی قرار داد که نمودارهای آن در قالب دو شکل ۱ و ۲ رسم شده است. برای به دست آوردن این نمودارها سایر پارامترها ثابت و به صورت $E = 1.57(eV)$ ، $A_n = A_c = A_m = 1 \times 10^{-13} (cm^3 s^{-1})$ ، $N = H = 1 \times 10^{17} (cm^{-3})$ و $s = 1 \times 10^{18} (s^{-1})$ ، گرفته شده است.

با استفاده از نمودارهای شکل ۱ می‌توان گفت که وقتی g_c کمترین و g_n بیشترین مقدار خود را داشته باشند، سطح زیر منحنی نمودار P TTL کمترین مقدار خود را دارد (نمودار مشخص شده با ضریب ۰/۰۴۸) و با افزایش زمان نوردهی پاسخ P TTL زیاد شده و بعد از حدود ۴۰ ثانیه به یک مقدار ثابت می‌رسد. وقتی g_n و g_c هر دو کم باشند، پاسخ P TTL بزرگتر می‌شود و با افزایش زمان نوردهی به صورت خطی افزایش می‌یابد (نمودار مشخص شده با دایره و دارای ضریب ۰/۴۰۱). وقتی g_c و g_n هر دو زیاد باشند، پاسخ P TTL نسبت به حالت قبل بزرگتر می‌شود و با افزایش زمان نوردهی ابتدا افزایش می‌یابد و بعد از زمان حدود ۲۰ ثانیه کمی روند کاهشی به خود می‌گیرد (نمودار مشخص شده با مثلث و دارای ضریب ۰/۴۸۴).

مرجع‌ها

- [۱] D. A. Sono and S. W. S. McKeever; "Phototransferred thermoluminescence for use in UVB dosimetry"; *Radiat. Prot. Dosim.*, **100**, (2002), 309-312.
- [۲] W. C. Las and T. G. Stoebe; "Thermoluminescent Mechanisms Involving the Transition Metal Ion Impurities and V-type Centres in MgO Crystals Exposed to Ultraviolet Radiation"; *J. Mater. Sci.*, **17**, (1982), 2585-2593.
- [۳] A. K. Dhar, L. A. DeWerd and T. G. Stoebe; "Direct-Response Ultraviolet Dosimeter Utilizing Thermoluminescent Magnesium Oxide"; *US Patent 3*, (1975).
- [۴] W. G. Buckman, D. C. Sutherland, and D. W. Cooke; "Thermoluminescence of Sapphire"; *US Patent 3*, (1973).
- [۵] E. Okuno and S. Watanabe; "UV Induced Thermoluminescence on Natural Calcium Fluoride"; *Health Phys*, **23**, (1972), 377-382.
- [۶] L. E. Colyott, M. S. Akselrod, and S. W. S. McKeever; "An Integrating Ultraviolet-B Dosimeter Using Phototransferred Thermoluminescence from $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ "; *Radiat. Prot. Dosim.*, **72**, (1997), 87-94.
- [۷] L. E. Colyott, M. S. Akselrod and S. W. S. McKeever; "An Integrating Ultraviolet-B Dosimeter Using Phototransferred Thermoluminescence from $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ "; *US Patent pending*, (2001).
- [۸] E. Bulur and H. Y. Goksu; "Phototransferred thermoluminescence from $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ using blue light emitting diodes"; *Radiat. Meas.*, **30**, (1999), 203-206.
- [۹] E. G. Yukihara, V. H. Whitley, J. C. Polf, D. M. Klein, S. W. S. McKeever, A. E. Akselrod and M. S. Akselrod; "The effects of deep trap population on the thermoluminescence of $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ "; *Radiat. Meas.*, **37**, (2003), 627-638.
- [۱۰] V. S. Kortov, I. I. Milman, E. V. Moiseykin, S. V. Nikiforov and M. M. Ovchinnikov; "Deep-trap competition model for TL in $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ heating stage"; *Radiat. Prot. Dosim.*, **119**, (2006), 41-44.
- [۱۱] I. I. Milman, V. S. Kortov and S. V. Nikiforov; "An interactive process in the mechanism of the thermally stimulated luminescence of anion-defective $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ crystals"; *Radiat. Meas.*, **29**, (1998), 401-410.
- [۱۲] S. V. Nikiforov and V. S. Kortov; "Effect of deep traps on sensitivity of TLD-500 thermoluminescent detectors"; *Radiat. Meas.*, **45**, (2010), 527-529.
- [۱۳] C. S. Alexander, M. F. Morris and S. W. S. McKeever; "The Time and Wavelength Response of Phototransferred Thermoluminescence in Natural and Synthetic Quartz"; *Radiat. Meas.*, **27**, (1997), 153-159.
- [۱۴] A. Halperin and A. A. Braner; "Evaluation of thermal activation energies from glow curves"; *Phys. Rev.*, **117**, (1960), 408-415.

وقتی g_c بیشترین مقدار و g_n کمترین مقدار خود را دارد، به این معناست که در طول زمان نوردهی احتمال خارج شدن الکترون از مرکزگیراندازی عمیق و انتقال آن به مرکزگیراندازی فعال زیاد است و در عین حال احتمال خروج الکترون از مرکزگیراندازی فعال صفر است که مسلماً پاسخ PTTL نسبت به سه حالت دیگر بزرگتر خواهد بود (نمودار مشخص شده با مربع و دارای ضریب ۱). در این حالت نیز با افزایش زمان نوردهی پاسخ PTTL افزایش می‌یابد و بعد از زمان حدود ۴۰ ثانیه ثابت باقی می‌ماند.

طبق نمودارهای شکل ۲ می‌توان گفت که باز هم به ازای g_c کم و g_n زیاد کمترین سطح زیر منحنی PTTL وجود دارد و با افزایش زمان نوردهی ابتدا پاسخ PTTL افزایش و بعد از زمان حدود ۲۰ ثانیه کاهش می‌یابد. وقتی g_c و g_n بیشترین مقدار خود را دارند، پاسخ PTTL نسبت به حالت قبل بزرگتر می‌شود و با افزایش زمان نوردهی به شدت کاهش می‌یابد. وقتی g_n و g_c کمترین مقدار خود را دارند، باز هم پاسخ PTTL نسبت به حالت قبل بزرگتر می‌شود و با افزایش زمان نوردهی افزایش می‌یابد. وقتی g_c بیشترین مقدار و g_n کمترین مقدار خود را داشته باشند، پاسخ PTTL نسبت به سه حالت قبل بزرگتر می‌شود و با افزایش زمان نوردهی تقریباً ثابت باقی می‌ماند.

نتیجه‌گیری

در این کار معادلات دیفرانسیل توصیف کننده‌ی پدیده‌ی PTTL که شامل مجموعه‌ی معادلات دیفرانسیل مربوط به مرحله‌ی نوردهی و گرمادهی است، با فرض در نظر گرفتن مقادیر مشخص برای پارامترها حل شده و با توجه به آن نمودار پاسخ PTTL بر حسب زمان نوردهی رسم شده است. این منحنی‌ها به ازای دو حالت اشباع و دور از ناحیه‌ی اشباع برای مرکز گیراندازی عمیق مورد بررسی قرار گرفته است. این بررسیها نشان می‌دهند که منحنی پاسخ PTTL به میزان پرشدگی مرکز گیراندازی عمیق و همچنین مقادیر پارامترهای g_n و g_c وابسته است. که با توجه به این نمودارهای تئوری و مقایسه‌ی آنها با نمودارهای مشابه آنها در حالت تجربی می‌توان برآوردی از میزان پرشدگی مرکز عمیق و همچنین پارامترهای g_n و g_c به دست آورد.