



تعیین پارامترهای فروکشی دمایی در دزیمتر گرمالیانی $\text{CaF}_2:\text{Mn}(\text{TLD}-400)$

سمیه هارونی^{۱*}، سکینه طاهری حسن آباد^۱، مصطفی زاهدی فرا^۲، ناهید حاجیلو^۳

۱. گروه فیزیک هسته‌ای، دانشکده فیزیک، دانشگاه کاشان، صندوق پستی: ۵۳۱۵۳-۸۷۳۱۷، کاشان- ایران

۲. پژوهشکده علوم و فناوری نانو، دانشگاه کاشان، صندوق پستی: ۵۳۱۵۳-۸۷۳۱۷، کاشان- ایران

۳. پژوهشکده کاربرد پرتوها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی، صندوق پستی: ۱۴۱۵۵-۱۳۳۹، تهران- ایران

مقاله‌ی پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۹۸/۶/۱۶ تاریخ پذیرش مقاله: ۹۸/۹/۳۰

چکیده

گرمالیانی پدیده‌ی شناخته شده‌ای است که در بسیاری از مواد جامد (عایق و نیمه‌رسانا) مشاهده می‌شود. با توجه به کاربردهای متنوع این پدیده، به دست آوردن روابط دقیقی که به درستی توصیف‌کننده‌ی آن باشند، ضرورت می‌یابد. در این میان اثر فروکشی دمایی یکی از عوامل تأثیرگذار است. این اثر با افزایش دما و اهمیت یافتن احتمال بازترکیب غیر تابشی مشاهده می‌گردد. با افزایش آهنگ گرمادهی، دما و شدت بیشینه‌ی منحنی درخشش گرمالیانی تحت تأثیر قرار می‌گیرند، به نحوی که دمای بیشینه افزایش و شدت بیشینه کاهش می‌یابد. در این پژوهش نحوه‌ی تغییرات منحنی درخشش گرمالیانی دزیمتر $\text{CaF}_2:\text{Mn}(\text{TLD}-400)$ به ازای مقادیر مختلف آهنگ گرمادهی مورد بررسی قرار گرفته و با مشاهده‌ی اثر فروکشی دمایی برای این دزیمتر، پارامترهای آن به صورت $W=3\text{ eV}$ و $C=2.1 \times 10^{27}$ از طریق برازش داده‌های تجربی با رابطه‌ی نظری مربوطه به دست آمده است. پارامترهای فروکشی گرمایی به دست آمده می‌تواند برای برازش منحنی‌های درخشش گرمالیانی تجربی با مدل‌های نظری برای تعیین پارامترهای سینتیک مورد استفاده قرار گیرد.

کلیدواژه‌ها: گرمالیانی، فروکشی دمایی، آهنگ گرمادهی، $\text{CaF}_2:\text{Mn}(\text{TLD}-400)$

Determination of thermal quenching parameters in $\text{CaF}_2:\text{Mn}(\text{TLD}-400)$ thermoluminescent dosimeter

S. Harooni^{1*}, S. Taheri- Hasanabad¹, M. Zahedifar^{1,2}, N. Hajiloo³

1. Department of Nuclear Physics, Faculty of Physics, University of Kashan, P.O.Box: 87317-53153, Kashan – Iran

2. Institute of Nanoscience and Nanotechnology, University of Kashan, P.O.Box: 87317-53153, Kashan – Iran

3. Radiation Application Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 1339-14155, Tehran - Iran

Research Article

Received 7.9.2019, Accepted 21.12.2019

Abstract

Nowadays, thermoluminescence is a known phenomenon that is observed in many solids (insulators and semiconductors). Given the various applications, it is necessary to acquire accurate relationships that correctly describe this phenomenon. Meanwhile, the thermal quenching effect is one of the effective factors. This effect, is observed with both increasing temperature and the probability of non-radiative recombination. Also, by increasing the heating rate, the maximum temperature and maximum intensity of the thermoluminescence glow curve are affected, in a way that the maximum temperature increases, and the maximum intensity decrease. In this study, the variation of the thermoluminescence glow curve of $\text{CaF}_2:\text{Mn}(\text{TLD}-400)$ dosimeter has been investigated for different heating rates. This way, after observing the thermal quenching effect for this dosimeter, the related parameters were determined as $W=3\text{eV}$ and $C=2.1 \times 10^{27}$ through the fitting of experimental data with the associated theoretical equation. The obtained thermal quenching parameters can be used for fitting the experimental thermoluminescence glow curves to the theoretical models to determine the kinetic parameters.

Keywords: Thermoluminescence, Thermal quenching, Heating rate, $\text{CaF}_2:\text{Mn}(\text{TLD}-400)$

*Email: kmlsern@yahoo.com

۱. مقدمه

انسان متشکل از بافت‌های ناهمگن نظیر استخوان و بافت نرم است، با توجه به این‌که بافت مورد تهاجم از چه نوعی باشد انتخاب دزیمتر مناسب معادل آن اهمیت ویژه‌ای می‌یابد [۸]. همچنین حساسیت قابل اغماض این دزیمتر به نوترون‌های حرارتی سبب شده تا از آن در میدان‌های آمیخته نوترون-گاما برای اندازه‌گیری دز پرتوهای BNCT استفاده شود [۹]. در این کار اثر فروکشی دمایی در TLD-۴۰۰ مشاهده و پارامترهای آن تعیین شده است.

۲. بررسی‌های نظری

برای دستیابی به گرمالیان باید بازترکیب الکترون-حفره توأم با گسیل نور باشد که این امر به معنای وقوع انتقال تابشی است. تا مدت‌ها تصور می‌شد که تمام بازترکیب‌ها از این نوع هستند. اما حقیقت فیزیکی که در این میان نادیده گرفته شده بود، پدیده نشر فونون بود. حقیقت این است که گاهی در بازترکیب الکترون-حفره هیچ فوتونی توسط دستگاه آشکارساز به ثبت نمی‌رسد. زیرا فرکانس تابش صورت گرفته متفاوت است و انرژی حاصل صرف گرم کردن شبکه بلور یا همان نشر فونون می‌گردد. بدین ترتیب، بازترکیب هیچ‌گونه تابشی در پی ندارد؛ بنابراین بازده گرمالیان یک ماده وابسته به احتمال گذارهای تابشی و غیرتابشی است؛ که هرچه احتمال گذار غیرتابشی افزایش یابد شدت TL و در نتیجه بازده کاهش می‌یابد [۱۰].

موت-سایترز^۵ در دهه ۱۹۴۰ میلادی و شون-کلاوسنزر^۶ در دهه ۱۹۵۰ میلادی مدل‌هایی را برای توصیف اثر TQ ارایه کردند. آن‌ها رابطه‌ای به صورت زیر را برای بازده گرمالیانی به صورت تابعی از دما مطرح کردند:

$$Q(T) = \frac{1}{1 + C \exp\left(-\frac{W}{kT}\right)} \quad (1)$$

که در آن C و $W(eV)$ پارامترهای فروکشی‌دمایی، k ثابت بولتزمن و $T(K)$ دما می‌باشد [۵]. برای در نظر گرفتن اثر فروکشی دمایی در روابط نظری، کافی است رابطه‌ی (۱) در رابطه‌ی نظری توصیف‌کننده‌ی پدیده‌ی TL ضرب شود.

آهنگ گرماده‌ی^۱ (β) به‌عنوان یک متغیر تجربی مهم و مؤثر در تغییر شکل منحنی‌های درخشش گرمالیانی^۲ (TL) است [۱]. افزایش β ، سبب جابه‌جایی قله به سمت دماهای بالاتر می‌شود که خود مسئول بالا رفتن سهم انتقال‌های غیرتابشی است [۲]. اولین اثر بازترکیب^۳ غیرتابشی روی منحنی درخشش به‌صورت افت شدت TL است، زیرا کسری از الکترون‌ها و حفره‌ها از چرخه‌ی TL خارج می‌شوند. بدین ترتیب شدت افت می‌کند و بازده گرمالیان کاهش می‌یابد. پژوهش‌های بسیاری نشان می‌دهند که این کاهش به‌عنوان تابعی از مقادیر مختلف β ، یک پدیده‌ی عام تلقی می‌گردد که در اغلب مواد TL قابل رؤیت است. علت وقوع این پدیده اثر فروکشی‌دمایی^۴ (TQ) است [۲-۴]. از آنجایی‌که این اثر وابسته به دما است، بیش‌تر در دماهای بالاتر خود را نشان می‌دهد. پس قله‌هایی که در دماهای بالاتر هستند نسبت به قله‌های کم‌دما بیش‌تر در معرض اثر TQ قرار می‌گیرند [۲].

از جمله شناخته‌شده‌ترین موادی که اثر TQ در آن‌ها مشاهده شده است، می‌توان به کوارتز [۱] و TLD-۵۰۰ [۵] اشاره کرد که پارامترهای فروکشی دمایی مربوط به آن‌ها محاسبه شده است. TLD-۱۰۰ نیز یکی از دزیمترهای نام‌آشناست که استفاده گسترده‌ای در دزیمتری شخصی و بالینی دارد. در سال ۱۳۹۵ شمسی پس از مشاهده اثر TQ روی قله‌ی پنجم TLD-۱۰۰، پارامترهای فروکشی دمایی مربوط به آن به‌صورت $W=1.66 \text{ eV}$ و $C=3.965 \times 10^{17}$ تعیین شده است [۶]. TLD-۴۰۰ نیز به خاطر حساسیت بالا و پاسخ خطی در محدوده دزهای ۰.۵ mGy تا ۱ kGy مورد توجه است [۷]. همین موضوع سبب شده تا از آن اغلب به‌عنوان دزیمتر محیطی استفاده شود. عدد اتمی آن (۱۶۳) نیز معادل بافت استخوان می‌باشد؛ اما این مطلب نمی‌تواند کاربردهای TLD-۴۰۰ را محدود سازد. در دزیمتری‌های بالینی و در روش‌های درمانی نظیر براکی تراپی تعیین میزان دز دریافتی و تعیین پارامترهای چشمه‌ی مورد استفاده در مجاورت بافت آسیب‌دیده از اهمیت بالایی برخوردار است. از آنجایی‌که بدن

1. Heating Rate
2. Thermoluminescence
3. Recombination
4. Thermal Quenching

5. Mott-Seitz

6. Schon-Klasens

۳. روش کار و یافته‌ها

به‌منظور یافتن پارامترهای مربوط به اثر TQ در نمونه‌های تجاری TLD-۴۰۰ باید منحنی درخشش TL به ازای مقادیر مختلف β به دست آید. به همین دلیل ابتدا یک رژیم گرمایی استاندارد به صورت گرمادهی در دمای ۵۰۰ درجه‌ی سیلسیوس به مدت نیم ساعت و سپس سرد شدن در دمای اتاق، به نمونه‌ها اعمال می‌کنیم تا اثرات تابش‌های قبلی پاک شود. سپس نمونه‌ها تحت تابش یونیزان چشمه‌ی کبالت-۶۰ قرار گرفته و دزی به میزان نیم گری را دریافت کردند و پس از گذشت ۲۴ ساعت از پرتودهی و تثبیت دام‌ها، با آهنگ گرمادهی ۲ درجه سیلسیوس بر ثانیه قرائت شدند. این کار برای یافتن ضریب ECC^2 به‌منظور یکسان‌سازی حساسیت نمونه‌ها ضروری است. این مراحل مجدداً تکرار شد با این تفاوت که این بار نمونه‌ها به ازای مقادیر مختلف β قرائت شدند. این قرائت توسط دستگاه ۴۵۰۰ TLD-reader ساخت شرکت هارشا^۳ انجام شد. مقادیر مختلف β برای قرائت نمونه‌ها به صورت ۱، ۲، ۳، ۴، ۵، ۶، ۷، ۹، ۱۰، ۱۵، ۲۰، ۲۵، ۳۰ °C/s بود که روی بازه‌ی دمایی ۱۰۰ تا ۴۶۰ °C انجام شد.

نتیجه‌ی این قرائت را می‌توان در شکل ۲ قسمت‌های الف و ب مشاهده کرد. با توجه به شکل ۲ همان‌طور که انتظار می‌رود با افزایش آهنگ گرمادهی، شدت بیشینه (به دلیل اثر فروکشی دمایی) کاهش و دمای بیشینه افزایش می‌یابد. نحوه‌ی تغییرات شدت بیشینه برحسب β و همچنین دمای بیشینه برحسب β به ترتیب در شکل‌های ۳ و ۴ نشان داده شده است. با رسم نمودار شدت بیشینه (بازده گرمالیان) برحسب دمای بیشینه که در شکل ۵ نشان داده شده است، نمودار تجربی حاصل می‌شود که می‌توان آن را با رابطه‌ی نظری (۱) برازش کرد و مقادیر C و W را به عنوان پارامترهای اثر فروکشی دمایی به دست آورد.

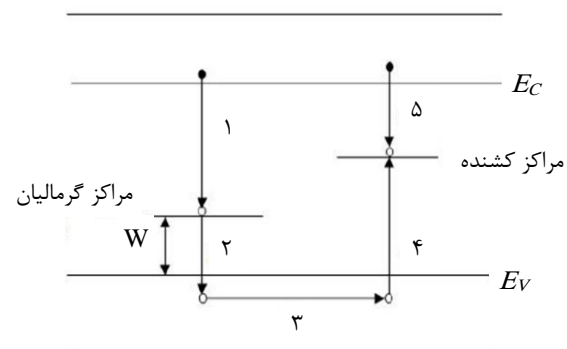
برازش داده‌های تجربی با رابطه‌ی نظری با استفاده از یک برنامه کامپیوتری نوشته شده با نرم‌افزار C++ انجام شده است که بر اساس الگوریتم لونیگ-مارگارت^۴ و روش حداقل مربعات کار می‌کند. معیار بهترین انطباق نیز رابطه‌ی FOM^۵ و به صورت زیر است:

$$FOM = \frac{\sum_i |y_i - f_i|}{\sum_i y_i} \times 100 \quad (2)$$

با بررسی نحوه‌ی تغییرات منحنی $Q(T)$ برحسب T به ازای تغییرات مختلف پارامترهای C و W دیده می‌شود که وقتی به ازای یک مقدار مشخص برای W ، C افزایش یابد، نمودار به سمت دماهای پایین‌تر جابه‌جا می‌شود. در حالی که اگر به ازای C ثابت مقدار W را افزایش دهیم، نمودار به سمت دماهای بالاتر جابه‌جا می‌شود. در این دو حالت اخیر ضمن جابه‌جایی نمودار $Q(T)$ برحسب T به سمت دماهای بالاتر یا پایین‌تر، تغییر چندانی در شیب نمودار حاصل نمی‌شود. اما اگر پارامترهای C و W هر دو کاهش یا هر دو افزایش یابند، باعث ایجاد تغییراتی در شیب نمودار می‌شوند. به نحوی که با کاهش هم‌زمان پارامترهای C و W شیب نمودار کندتر و با افزایش هم‌زمان آن‌ها شیب نمودار تندتر می‌شود [۶].

مراکز کشنده^۱ نقش اساسی را در وقوع اثر TQ ایفا می‌کنند. چون در دماهای به حد کافی بالا امکان آزاد شدن حفره‌ها از مراکز گرمالیان فراهم می‌شود. سپس این حفره‌ها به مراکز کشنده گذار کرده و در آن‌جا با الکترون‌های آزاد بازترکیب می‌شوند. این بازترکیب نشری ندارد و تنها بازده گرمالیان را کاهش می‌دهد که این اتفاق به دلیل افزایش تمرکز مراکز کشنده و گسیل فونون‌های بیش‌تر است.

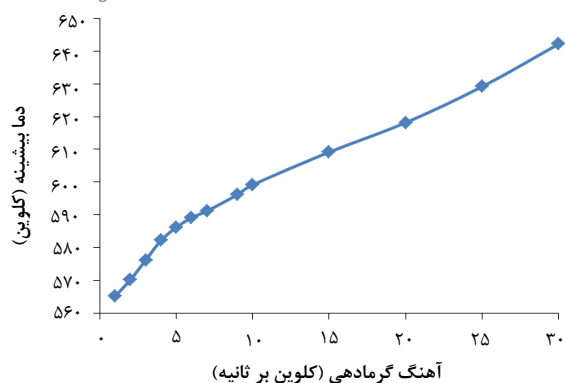
در شکل ۱ انتقال ۱ مربوط به بازترکیب تابشی است. انتقال ۲ آزاد شدن حفره در اثر گرما را نشان می‌دهد. در انتقال ۳ شاهد جابه‌جایی حفره هستیم، انتقال ۴ نیز بازگیراندازی حفره در مرکز کشنده را به نمایش می‌گذارد و آخرین انتقال یعنی انتقال ۵ به بازترکیب غیرتابشی منجر می‌شود [۱۱].



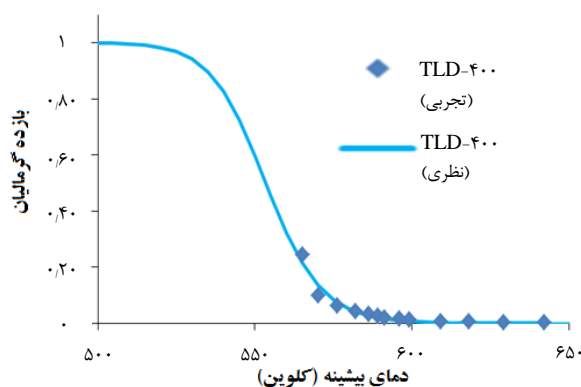
شکل ۱. نمایی از مدل شون-کلاوسنز [۱۱] نشان داده شده است که در آن E_c مشخص‌کننده‌ی انرژی لبه‌ی پایینی نوار هدایت و E_v مربوط به انرژی لبه‌ی بالایی نوار ظرفیت است.

2. Element Correction Coefficient
3. Harshaw
4. Levenberg-Marquart
5. Figure of Merit

1. Killer Center



شکل ۴. نحوه‌ی تغییرات دمای بیشینه به ازای مقادیر مختلف β نشان داده شده است.

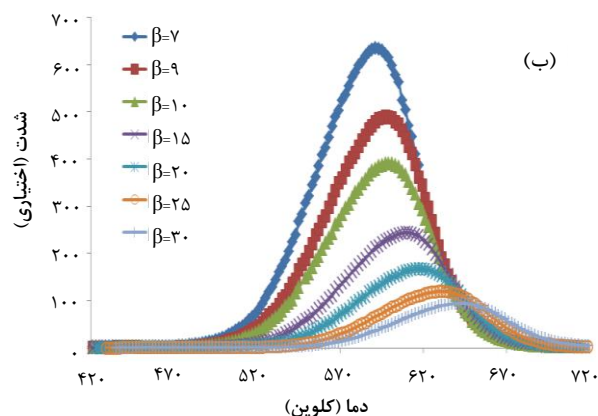
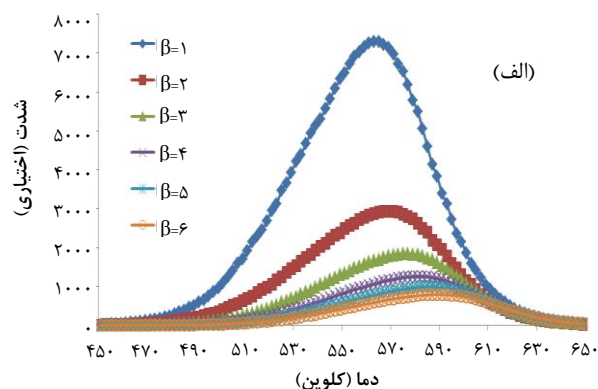


شکل ۵. برازش داده‌های تجربی (نمودار نقطه‌ای) با منحنی نظری (نمودار خط ممتد) نشان داده شده است.

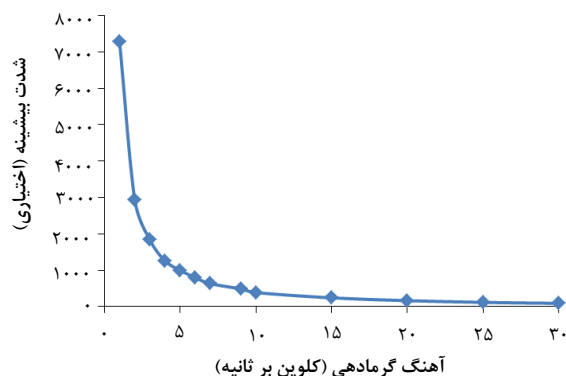
۴. نتیجه‌گیری

در این کار با بررسی منحنی‌های درخشش گرمالیانی $\text{CaF}_2:\text{Mn}(\text{TLD}-400)$ مشاهده شد که این منحنی‌ها تحت تأثیر اثر فروکشی دمایی قرار دارند که با برازش داده‌های به دست آمده از این منحنی‌ها با رابطه‌ی نظری (۱) پارامترهای فروکشی دمایی مربوط به این دزیتر به صورت $W=3\text{eV}$ و $C=2.1 \times 10^{27}$ به دست آمد. اهمیت این موضوع از آن جهت است که در روابط نظری توصیف‌کننده‌ی پدیده‌ی TL برای تعیین پارامترهای سینتیک این اثر در نظر گرفته نمی‌شود. چون برای تعیین پارامترهای سینتیک منحنی‌های درخشش TL، برازش داده‌های تجربی با رابطه‌ی نظری انجام می‌شود. در صورتی که در روابط نظری اثر فروکشی دمایی در نظر گرفته شود، پارامترهای سینتیک متفاوت و در عین حال واقعی‌تری نسبت به حالتی که این اثر در روابط نظری وارد نشود، به دست می‌آید. ضمن این‌که هر نوع دزیتری که اثر فروکشی دمایی در آن مشاهده می‌شود، دارای پارامترهای فروکشی دمایی مخصوص به خود است که باید تعیین شود.

که در آن y_i مربوط به داده‌های تجربی و f_i بهترین مقداری است که از طریق برازش به دست می‌آید [۱۲]. مقادیر پارامترهای W و C به دست آمده به ترتیب 2.1×10^{27} و 3eV به دست آمدند. مقدار FOM به دست آمده برای تعیین C و W حدود ۵ درصد بوده است. همان‌طور که در شکل ۵ نیز دیده می‌شود، انطباق خوبی بین داده‌های تجربی با منحنی حاصل از رابطه‌ی نظری با در نظر گرفتن این پارامترها حاصل شده است.



شکل ۲. تغییرات منحنی درخشش TL به ازای مقادیر مختلف β در دو قسمت الف و ب نشان داده شده است.



شکل ۳. نحوه‌ی تغییرات شدت بیشینه به ازای مقادیر مختلف β نشان داده شده است.

1. A. Kadari, D. Kadri, *New numerical model for thermal quenching mechanism in quartz based on two-stage thermal stimulation of thermoluminescence model*, *Arab. J. Chem.*, **8**(6), 798-802 (2015).
2. V.E. Kafadar, *Thermal quenching of thermoluminescence in TLD-200, TLD-300 and TLD-400 after β -irradiation*, *Physica B*, **406**(3), 537-540 (2011).
3. C. Furetta, *Handbook of thermoluminescence*, *World Scientific*, (2010).
4. A.S. Pradhan, *Effect of heating rate on the response of $\text{CaF}_2:\text{Cu}$, $\text{CaF}_2:\text{Tm}$, $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ and $\text{CaF}_2:\text{Mn}$* , *Radiat. Prot. Dosim.*, **100**, 289-292 (2002).
5. M.S. Akselrod, et al, *Thermal quenching of F-center luminescence in $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$* , *J. Appl. Phys.*, **84**(6), 3364-3373 (1998).
6. S. Harooni, M. Zahedifar, Z. Ahmadian, *Determination of thermal quenching parameters of TLD-100 dosimeter*, *Iran. J. Radiat. Safety and Meas.*, **5**(1), 29-34 (2017) (In Persian).
7. P.D. Sahare, M. Singh, P. Kumar, *Effect of annealing and impurity concentration on the TL characteristics of nanocrystalline Mn-doped CaF_2* , *Radiat. Meas.*, **80**, 29-37 (2015).
8. H. Tavakoli-Anbaran, O.L. Ahmadi, *Investigation of bone tissue heterogeneity on the distribution of the dose of brachytherapy source $\text{Pd}103$ MED3633 model using the Monte Carlo method*, *Iran. J. Radiat. Safety and Meas.*, **4**(1), 25-34 (2016) (In Persian).
9. W.C. Tsai, S.H. Jiang, *The attenuation of thermoluminescence light in TLD-400*, *Radiat. Meas.*, **107**, 87-93 (2017).
10. R. Chen, S.W.S. McKeever, *Theory of thermoluminescence and related phenomena*, *World Scientific*, (1997).
11. S.W.S. McKeever, *Thermoluminescence of solids*, *Cambridge University Press*, (1985).
12. H.G. Balian, N.W. Eddy, *Figure of merit (FOM), and improved criterion over the normalized chi-squared test for assessing goodness of fit of gamma ray spectra peaks*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **145**, 389-395 (1977).