



بررسی تأثیر افزودنی Tm^{+2} بر کاهش پدیده پس تاب در بلور CsI:Tl توسط مدل‌های گرمالیانی

محمدحسین خراسانی^{۱*}، سجاد شاه‌ملکی^۲، فائزه رحمانی^۲

۱. دانشگاه آزاد اسلامی واحد علوم تحقیقات، صندوق پستی: ۱۴۵۱۵-۷۷۵، تهران - ایران
۲. دانشکده فیزیک، دانشگاه خواجه نصیرالدین طوسی، صندوق پستی: ۱۹۸۳۹۶۳۱۱۳، تهران - ایران

*Email: Mohammad_200610@yahoo.com

مقاله‌ی فنی

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۱/۹/۱۳ تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۱/۱۱/۱۶

چکیده

بلور CsI:Tl یک آشکارساز سوسوزن است که در کاربردهای مختلفی از جمله طیف‌سنجی، دزیمتری، تصویربرداری پزشکی و ... استفاده می‌شود. ویژگی‌های این بلور مانند عدد اتمی، خلوص و چگالی بالا، باعث توجه بیشتر به آن شده ولی علی‌رغم این مزایا، وجود پدیده پس تاب در طیف گسیلی آن باعث محدودیت استفاده از CsI:Tl می‌شود. جهت کاهش پدیده پس تاب، از عناصر مختلفی به عنوان افزودنی دوم استفاده گردیده است. با توجه به تأثیر کاتیون‌های لانتانید با دوبرار مثبت بر کاهش پدیده پس تاب، در این پژوهش، عناصر Tm^{+2} و Eu به بلور CsI:Tl اضافه گردیده و منحنی درخشندگی گرمالیانی بلور (آهنگ گرمادهی $10^\circ C/sec$)، پس از پرتودهی نمونه‌ها به مدت ۲ ساعت با چشمه $90Sr$ اندازه‌گیری گردید. هم‌چنین فرض گردید که منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl از سینتیک مرتبه اول و منحنی درخشندگی حاصل از بلور CsI:Tl در حضور Eu و Tm^{+2} از سینتیک مرتبه دوم تبعیت می‌نماید. سپس با استفاده از روش فعال‌سازی به‌دست آمده از برازش منحنی‌های درخشندگی با معادلات سینتیک مرتبه اول و دوم، منحنی‌های درخشندگی موجود، به قله‌های منفرد تشکیل‌دهنده خود، تفکیک شدند و نتیجه نشان داد که اضافه نمودن افزودنی دوم، باعث کاهش سهم عنصر Tl در تشکیل منحنی درخشندگی و جابه‌جایی آن به سمت دماهای بالاتر به دلیل افزایش انرژی فعال‌سازی شده و هم‌چنین قله جدید ناشی از افزودنی دوم در دماهای پایین ایجاد می‌شود. شدت قله‌های جدید نسبت به قله ناشی از تالیوم کم‌تر بوده است که علت آن انرژی فعال‌سازی بالای ترازهای ایجاد شده توسط عنصر Eu و Tm^{+2} در ساختار بلور است که مانع آزادسازی الکترون‌ها در دماهای پایین می‌گردد. از مقایسه قله ناشی از عناصر Eu و Tm^{+2} می‌توان نتیجه گرفت عنصر Tm^{+2} نسبت به عنصر Eu دام‌های عمیق‌تری ایجاد نموده، بنابراین تأثیر عنصر Tm^{+2} بر کاهش پدیده پس تاب در بلور CsI:Tl به مراتب بیشتر از تأثیر عنصر Eu است.

کلیدواژه‌ها: بلور CsI:Tl، کاهش پدیده پس تاب، افزودنی دوم، Tm، Eu

Study the effect of Tm^{+2} co-dopant on afterglow suppression in CsI:Tl crystal by thermoluminescence models

M.H. Khorasani^{1*}, S. Shahmaleki², F. Rahmani²

1. Islamic Azad University Science and Research Branch, P.O.Box: 14515-775, Tehran - Iran
2. Faculty of Physics, K.N. Toosi University of Technology, P.O.Box: 1983963113, Tehran-Iran

Technical Paper

Received 4.12.2022, Accepted 5.2.2023

Abstract

There are many applications with the CsI:Tl crystal, including spectroscopy, dosimetry, medical imaging, etc. The characteristics of this crystal, such as its atomic number, purity, and high density, have caused more attention to it. However, despite these advantages, the presence of an afterglow phenomenon in its emission spectrum limits CsI:Tl. In order to reduce the afterglow phenomenon, various elements have been used as co-dopants. In this research, Tm^{2+} and Eu elements were added to the CsI:Tl crystal. The glow curve of the crystal (heating rate of $10^\circ C/sec$) was measured after irradiating the samples for 2 hours with a $90Sr$ source. The combination of the glow curve with the first and second-order kinetic models showed that the CsI:Tl crystal follows first-order kinetics. The glow curve from the CsI:Tl crystal in the presence of Eu and Tm^{2+} follows second-order kinetics. Then, with the deconvolution method, glow curves were separated into their individual constituent peaks, and the results showed that adding the co-dopant can reduce the contribution of the Tl element in the formation of the glow curve and shift it to higher temperatures thanks to the increase in the activation energy, as well as the new peak caused by co-dopant at low temperatures. The intensities of the upcoming peaks were lower than the peak caused by thallium. This is due to the high activation energy of the levels created by Eu and Tm^{2+} in the crystal structure. This phenomenon is due to the fact that electrons cannot be released at low temperatures. It can be concluded from the comparison of the Eu and Tm^{2+} peaks that Tm^{2+} elements create deeper traps in the crystal structure than Eu elements. This means that the effect of the element on reducing the afterglow in CsI:Tl crystals is more significant than the effect of the Eu element.

Keywords: CsI:Tl crystal, Afterglow suppression, Co-dopant, Eu, Tm



۱. مقدمه

واپاشی و گسیل نور در بازه زمانی طولانی‌تری نسبت به واپاشی اولیه و ذاتی بلور اتفاق می‌افتد. البته در بیش‌تر بلورهای سوسوزن گسیل نور سوسوزنی تابع مراکز گسیل نور اولیه است، پس تفکیک مؤلفه‌های واپاشی به‌راحتی امکان‌پذیر نیست. این امر در مورد بلور CsI:TI نیز صدق می‌کند و به‌راحتی نمی‌توان مؤلفه‌های گسیل نور اولیه و ثانویه را از یک‌دیگر تفکیک نمود. بنابراین پدیده برهم‌نهی پالس‌ها رخ می‌دهد. عامل مهم در بلور CsI:TI، میزان گسیل مراکز V_K (حفره‌های بین دو آنیون خودگیرانداز) و یا گیراندازی مجدد الکترون‌ها است، که همین امر باعث ایجاد سه بازه زمانی مختلف با سینتیک و رفتار خاص در واپاشی می‌شود. در فرایند اول (شکل ۱-الف)، یک تراز Tl^+ ایجاد می‌شود و حامل‌های بار به‌صورت پیوسته جذب این تراز می‌شوند. البته یک فرایند رقابتی وجود دارد: جذب حفره‌های مثبت توسط تراز Tl^+ و ایجاد تراز Tl^{2+} ، و یا جذب الکترون‌های منفی توسط تراز Tl^+ و ایجاد تراز Tl^0 . هیچ‌کدام از این دو فرایند به دما وابسته نیستند و مجموع تأثیر این دو فرایند آهنگ واپاشی اولیه پالس را با توجه به مشخصه زمانی ثابت یون مثبت تعیین می‌کنند (۲۰۰ ns) [۲]. حامل‌های بار حرکت تصادفی سریعی دارند و قبل از خودگیراندازی^۵، به Tl^+ می‌رسند. این فرایند نقش تعیین‌کننده‌ای در بلورهای CsI دارد. فرایند بعدی (شکل ۱-ب)، تحریک گرمایی الکترون‌های موجود در تراز Tl^0 است که با سرعت آهسته‌تری نسبت به مرحله اول صورت می‌گیرد که در هالیدها رایج است. بازه این فرایند گسترده است مثلاً از 10^{-9} ثانیه در NaI تا 10^{-2} در KCl تفاوت دارد. فرایند نهایی که در زمان طولانی‌تری نسبت به سایر فرایندها رخ می‌دهد (شکل ۱-ج)، گیراندازی سریع الکترون‌ها و حفره‌ها توسط یون مثبت Tl و ایجاد مراکز Tl^0 و Tl^{2+} و در ادامه، آزاد شدن گرمایی الکترون‌ها از مراکز Tl^0 و جذب الکترون‌ها توسط مراکز Tl^+ و Tl^{2+} است. این فرایند آغاز اصلی یک مؤلفه بسیار طولانی در بیش‌تر هالیدهای سوسوزنی است که تا حدود ۷۵ درصد کل نور گسیل شده در بازه زمانی ۲۰۰ میلی‌ثانیه را شامل می‌شود. بنابراین همین طبیعت پیچیده سوسوزنی در بلور سوسوزن باعث پیچیدگی آشکارسازی با قدرت تفکیک انرژی و زمانی مناسب می‌شود. طرح‌واره سه فرایند فوق‌الذکر و انتقال حامل‌های بار در بلور CsI:TI در شکل ۱ نشان داده شده است.

یکی از آشکارسازهایی که کاربرد گسترده‌ای در تصویربرداری پزشکی اعم از تصویربرداری مبتنی بر پرتوایکس (پرتونگاری و سی‌تی‌اسکن) و مبتنی بر پرتوگاما (پت، اسپکت و دوربین گاما) دارد، بلور CsI:TI است. ویژگی‌های این آشکارساز از قبیل عدد اتمی مناسب عناصر سازنده آن، ارزان بودن، در دسترس بودن، بهره نوری بالا (۶۴۰۰۰ photon/MeV)، زمان واپاشی اولیه سریع (۶۸۰ ns) و چگالی نسبی بالا ($4/5 \text{ g/m}^3$) باعث شده که این آشکارساز به‌عنوان یکی از کارآمدترین آشکارسازهای سوسوزن در سیستم‌های تصویربرداری پزشکی مطرح گردد [۱].

۲. علی‌رغم تمام ویژگی‌های مناسب این بلور، حضور یک مؤلفه واپاشی کند در ساختار این بلور منجر به بروز پدیده پس‌تاب^۱ در طیف سوسوزنی این آشکارساز گردیده که استفاده از این بلور را در کاربردهایی که چشمه پرتوزا آهنگ واپاشی بالایی دارد، محدود کرده است. وجود پدیده پس‌تاب در آهنگ‌های بالایی واپاشی، باعث ایجاد برهم‌نهی پالس‌ها^۲ و در نتیجه افت قدرت تفکیک انرژی و ایجاد آرتیفکت^۳ در تصویر می‌شود. اگر بتوان این پدیده را کاهش داد می‌توان از این بلور در کاربردهایی که سرعت در آن‌ها مهم‌ترین مؤلفه است (نظیر کاربردهایی با پرتو مخروطی‌شکل و یا سی‌تی‌اسکن مارپیچ^۴ و ...) استفاده نمود [۳، ۴].

۳. برای کاهش و یا حذف پدیده پس‌تاب، باید ابتدا درک درستی از پدیده سوسوزنی در بلور CsI:TI داشت. فرایند سوسوزنی در بلور CsI:TI به مراتب پیچیده‌تر از سایر بلورهای سوسوزن نظیر GdOS و LSO است [۱]. در یک بلور سوسوزن خالص، مراکز جذب و گسیل به صورت کامل از یک‌دیگر جدا شده‌اند و انرژی فوتون توسط مراکز جذب و گسیل قبل از بازگشت به حالت پایدار، جذب می‌شود. پس از بازترکیب، انرژی آزاد شده و باعث گسیل نور می‌شود، بنابراین مؤلفه واپاشی سریع این سوسوزن‌ها، غالب است. لذا قبل از این‌که مراکز گسیل تحریک شوند، تجمع بالایی از مراکز تحریکی در سوسوزن صورت می‌گیرد بنابراین گسیل نور یک فرایند نمایی مرتبه اول خواهد بود و تعیین پارامترهای واپاشی به آسانی امکان‌پذیر است. اما در شرایط واقعی یک بلور خالص وجود ندارد و همه بلورها به صورت ذاتی و یا مصنوعی، مقداری نقص و ناخالصی در ساختار شبکه خود دارند که باعث گیراندازی برخی از حامل‌های بار درون این نقص‌ها و ناخالصی‌ها می‌شود بنابراین

1. After Glow
2. Pile Up
3. Artifact
4. Spiral

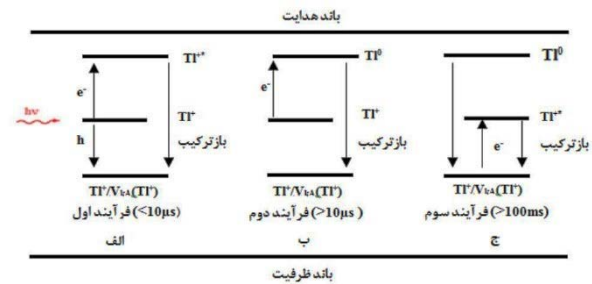
5. Self-Trapped



رسیدند که افزودن عنصر Eu^{2+} به ساختار بلور CsI:Tl باعث کاهش مؤثر پدیده پس تاب در بلور CsI:Tl می‌گردد [۴]. آقای کاپرز و همکارانش در سال ۲۰۱۰ تأثیر Sm^{2+} بر کاهش پدیده پس تاب در بلور CsI:Tl را مورد بررسی قرار دادند و به این نتیجه رسیدند که افزودن Sm^{2+} به بلور CsI:Tl باعث به وجود آمدن دام‌های عمیقی در ساختار بلور CsI:Tl می‌گردد که الکترون‌های آزاد شده از سطح دام‌های سست Tl را گیرانداخته و بدین ترتیب باعث کاهش پدیده پس تاب می‌شود [۷، ۸]. لذا از عناصر مختلفی به عنوان افزودنی دوم جهت کاهش پدیده پس تاب در بلور CsI:Tl استفاده می‌شود. در این پژوهش از عنصر Eu^{2+} به عنوان عنصر شاهد جهت مقایسه تأثیرگذاری عنصر Tm^{2+} بر کاهش پدیده پس تاب با Eu^{2+} استفاده شده است و رفتار بلور با توجه به مدل‌های گرمایی مختلف مورد بررسی قرار گرفته است.

با توجه به سازوکار سوسوزنی در بلور CsI:Tl (شکل ۱) و همچنین مقایسه منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl در حضور عناصر مختلف، می‌توان نتیجه گرفت ورود ماده افزودنی دوم مانند Eu^{2+} ، Sm^{2+} یا Tm^{2+} به ساختار بلور، مسیرهای مختلفی جهت گیراندازی الکترون‌های آزاد شده از سطح دام‌های قوی و سست تألیم ایجاد می‌کند. شکل ۲ گیراندازی الکترون‌های مذکور توسط Tm^{2+} را نشان می‌دهد. در شکل ۲، دو مسیر برای گیراندازی و سپس آزاد شدن الکترون‌ها از سطح Tm^{2+} نشان داده شده است. در شکل ۲-الف، الکترون‌های موجود در ساختار بلور پس از جذب توسط Tl^+ و ایجاد سطح Tl^0 ، تمایل دارند که از سطح Tl^0 آزاد شوند. در صورتی که عنصر Tm^{2+} در ساختار بلور وجود داشته باشد، این الکترون‌ها می‌توانند توسط عنصر Tm^{2+} جذب شده و تشکیل تراز Tm^{2+*} را دهند، بنابراین با تشکیل Tm^+ دو فرایند روی می‌دهد:

الکترون‌ها با دریافت مقداری انرژی گرمایی به طور مستقیم از تراز Tm^+ به سمت مراکز V_{KA} رفته و بازترکیب می‌شوند، یا با دریافت انرژی بیشتر به سمت باند هدایت بلور رفته و از آنجا بازترکیب می‌شوند. نکته قابل توجه در هر دو حالت این است که عنصر Tm^{2+} با جذب الکترون‌های آزاد شده از سطح دام‌های سست Tl باعث ایجاد تأخیر در بازترکیب این الکترون‌ها شده و عملاً باعث کاهش میزان پس تاب می‌شود. در شکل ۲-ب نیز الکترون‌هایی که باعث شکل‌گیری سطح Tl^{+*} شده، پس از آزادسازی از سطح Tl^{+*} در مسیر خود توسط Tm^{2+} گیر افتاده، مجدد همانند فرایندهای ایجاد شده در شکل ۱-الف، گیراندازی الکترون‌ها توسط Tm^{2+} باعث کاهش پدیده پس تاب می‌گردد.



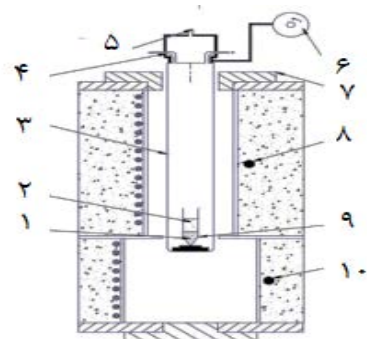
شکل ۱. طرح‌واره سازوکار سوسوزنی و انتقال حامل‌های بار در بلور CsI:Tl.

دلیل ایجاد پس تاب، ایجاد دام‌های ضعیف الکترونی توسط ناخالصی Tl است. در اثر تابش یونیزان، جفت الکترون-حفره به وجود می‌آید. الکترون‌ها در اثر انرژی دریافتی از پرتو، از باند ظرفیت بلور به باند هدایت رفته و پس از مدت زمان بسیار کوتاهی مجدد از باند هدایت به باند ظرفیت بازمی‌گردند که همین گذار از باند هدایت به باند ظرفیت با آزاد شدن انرژی همراه خواهد بود. برخی از الکترون‌ها در مسیر بازگشت به باند ظرفیت توسط ترازهای انرژی Tl گیر افتاده و پس از دریافت مقداری انرژی گرمایی از محیط مجدد به تراز هدایت بلور رفته، سپس به سمت باند ظرفیت می‌رسند که باعث آزاد شدن انرژی و تابش می‌شوند. با توجه به این که این حالت گذار الکترون‌ها و بازترکیب الکترون‌ها با تأخیر زمانی صورت می‌گیرد، یک قله با فاصله زمانی طولانی‌تری نسبت به قله اصلی بلور در دماهای بالاتر ایجاد می‌شود. این قله به وجود آمده را پس تاب می‌نامند. پژوهش‌های متعددی در زمینه حذف و یا کاهش پس تاب در طیف سوسوزنی بلور CsI:Tl صورت گرفته است [۳-۵]. در بیش‌تر این پژوهش‌ها نشان داده شده است که استفاده از کاتیون‌های با دو بار مثبت می‌تواند دام‌های عمیق‌تری در بلور CsI:Tl به وجود آورد. الکترون‌هایی که با فاصله زمانی بیش‌تری نسبت به واپاشی اولیه، از سطح Tl آزاد می‌شوند توسط دام‌های عمیقی که ایجاد شده‌اند، گیراندازی می‌شوند و بنابراین بازترکیبی رخ نمی‌دهد. البته این الکترون‌های گیراندازی شده در دام‌های عمیق نیز در نهایت از سطح این دام‌ها آزاد می‌شوند ولی چون آزاد شدن آن‌ها با فاصله زمانی طولانی‌تری صورت می‌گیرد، عملاً از ایجاد پدیده برهم‌نهی پالس‌ها و سایر مشکلات جلوگیری می‌گردد. برای کاهش پدیده پس تاب در بلور CsI:Tl از روش‌های مختلفی مانند کاهش ضخامت بلور، تکنیک‌های پردازش تصویر و افزودن ناخالصی دوم به بلور، استفاده می‌شود [۵]. آقای بارچر و همکارانش در سال ۲۰۰۶ تأثیر Eu^{2+} بر کاهش پدیده پس تاب در بلور CsI:Tl را مورد بررسی قرار دادند. طیف سوسوزنی بلور CsI:Tl در حضور عنصر با غلظت‌های مختلف مورد بررسی قرار گرفت و به این نتیجه

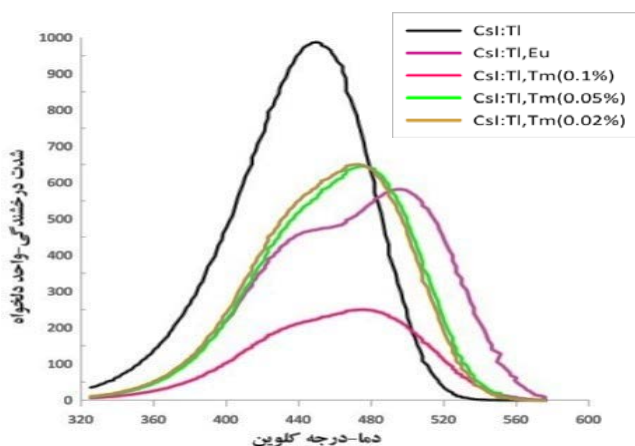


۲.۲ پرتودهی و اندازه‌گیری منحنی درخشندگی بلورها

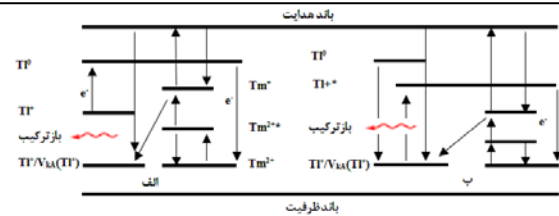
فرایند پرتودهی و اندازه‌گیری منحنی‌های درخشندگی در آزمایشگاه فیزیک هسته‌ای دانشگاه آزاد قم انجام گردید. برای پرتودهی نمونه‌ها از یک چشمه نقطه‌ای $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ با اکتیویته ۱۰ mCi استقرار یافته در یک میله به قطر ۲ mm و ارتفاع ۱۰ mm استفاده شد. نمونه‌ها به مدت ۲ ساعت تحت تابش چشمه $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ قرار گرفتند. دز اعمالی به نمونه‌ها تقریباً ۲ Gy بود. برای اندازه‌گیری گرمایی (آهنگ گرمادهی $10^\circ\text{C}/\text{sec}$)، از قرائت‌گر ^3IAP (TLD-۷۱۰۳) استفاده شد. برای اندازه‌گیری گرمایی سعی شد که تمام نمونه‌ها با وزن یکسان و ابعاد $5 \times 5 \times 5$ mm برش داده شوند. منحنی درخشندگی‌های حاصل در شکل ۴ نشان داده شده است.



شکل ۳. طرح‌واره کوره دو بخشی مورد استفاده در رشد بلور به روش بریجمن، ۱ بلور، ۲ مذاب، ۳ راکتور، ۴ ورودی خلأ، ۵ قرائت‌گر خلأ، ۶ سیستم کشنده 1 mm/h ، ۷ حفاظ حرارتی، ۸ کوره منطقه ذوب، ۹ بوته، ۱۰ کوره منطقه سرد.



شکل ۴. منحنی درخشندگی حاصل از قرائت بلور CsI:TI در حضور افزودنی‌های مختلف.



شکل ۲. طرح‌واره سازوکار سوسوزنی و انتقال بار در بلور CsI:TI:Tm^{2+} .

۲. مواد و روش‌ها

در این پژوهش تأثیر افزودن ماده تولیم Tm^{2+} با غلظت‌های مختلف و عنصر Eu^{2+} بر منحنی درخشندگی بلور CsI:TI و نیز تطابق آن‌ها با مدل‌های گرمایی و سهم هر کدام از این عناصر در تشکیل منحنی درخشندگی بلور، مورد بررسی قرار گرفته است. به همین منظور، این پژوهش در گام‌های زیر بررسی می‌گردد:

- افزودن عنصر Tm^{2+} با غلظت‌های ۰٫۰۵، ۰٫۰۲ و ۰٫۱ درصد به بلور CsI:TI و رشد بلور CsI:TI
- افزودن عنصر Eu^{2+} با غلظت ۰٫۰۲٪ به عنوان نمونه شاهد به بلور CsI:TI و رشد بلور CsI:TI
- پرتودهی نمونه‌ها
- اندازه‌گیری منحنی درخشندگی هر کدام از بلورها
- مروری بر مدل‌های گرمایی و پیاده‌سازی آن‌ها در متلب
- تفکیک منحنی‌های درخشندگی به دست آمده به قله‌های منفرد (دی‌کانولوشن)

۱.۲ افزودن عنصر Tm^{2+} و Eu^{2+} به بلور CsI:TI و رشد بلور

تک‌بلور CsI با آلاینده‌های TI ، Tm^{2+} و Eu^{2+} با استفاده از روش بریجمن در یک کوره شامل دو بخش فوقانی و تحتانی که با یک بافل از هم جدا شده‌اند، رشد داده شد. غلظت ناخالصی TI در رشد بلور ۰٫۲ درصد مولی بوده است. شکل ۳ طرحی از سیستم ساخته شده رشد بلور به روش بریجمن و متعلقات آن را نشان می‌دهد. پودر CsI در تمام نمونه‌ها به میزان یکسان و به همراه آلاینده‌های TI ، Tm^{2+} و Eu^{2+} در داخل بوته قرار داده شد.

مواد اولیه تهیه شده از کمپانی مرک و آلدریچ پس از توزین در داخل بوته شیشه‌ای (ظرف استوانه‌ای با نوک مخروطی با شیب ۴۵ درجه) ریخته شدند. از آن‌جا که بلور CsI باید در شرایط خلأ (بیش از 10^{-4} mbar) رشد داده شود، ترکیب نام برده، داخل کیسولی (آمپول) از جنس کوارتز قرار داده شد. بوته به مدت ۲ ساعت در داغ‌ترین ناحیه کوره (با دمای 850°C) قرار داده شد تا تمام ماده ذوب شود. پس از آن بوته به سمت مناطق با دمای پایین‌تر سوق داده شد. عملیات حرارتی پس از رشد کامل بلور، طی ۲۴ ساعت در دمای 500°C به منظور به‌دست آوردن توزیع یکنواخت آلاینده‌ها به کوره اعمال شد.



۳.۲ مدل‌های گرمالیانی

هدف این پژوهش، بررسی منحنی‌های درخشندگی بلور CsI:Tl در حضور افزودنی‌های Tm^{2+} و Eu^{2+} بر اساس مدل‌های گرمالیانی و توجیه تأثیر این افزودنی‌ها بر کاهش پدیده پس تاب در این بلور است. بنابراین، ابتدا تطابق منحنی‌های درخشندگی با مدل‌های گرمالیانی سینتیک مرتبه اول و مرتبه دوم بررسی گردیده است. سپس این مدل‌ها با استفاده از روش واپیچش (دی‌کانولوشن) در نرم‌افزار متلب پیاده‌سازی شدند. انرژی فعال‌سازی و سهم هرکدام از عناصر در تشکیل منحنی درخشندگی بلور، به دست آمده و در نهایت تأثیر آن‌ها بر کاهش پدیده پس تاب مورد بررسی قرار گرفت.

۱.۳.۲ سینتیک مرتبه اول

ساده‌ترین مدل گرمالیانی، مدل تک‌حفره-تک‌دام است. در این مدل فرض می‌شود که الکترون‌های گیراندازی شده توسط دام‌های موجود در ساختار بلور با دریافت انرژی گرمایی از سطح دام آزاد شده، به باند هدایت رسیده و از آنجا می‌توانند بازترکیب شوند. در این مدل، منحنی درخشندگی حاصل دارای یک قله است. تعداد الکترون‌های آزاد شده از سطح دام با افزایش دما، افزایش یافته و به دنبال آن، میزان نور گسیل شده از بلور افزایش می‌یابد. سپس به تدریج با کاهش تعداد الکترون‌های موجود در سطح دام، تعداد الکترون‌های آزاد شده کاهش می‌یابد. پس از فرونشانی گرمایی شدت منحنی درخشندگی کاهش می‌یابد [۱۰]. بنابراین طبق این مدل ساده، منحنی درخشندگی دارای یک قله است. شدت گرمالیانی در منحنی درخشندگی طبق سینتیک مرتبه اول توسط معادله ۱ حاصل می‌شود [۱۱]:

$$I(T) = I_m \exp\left[1 + \frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m} - \frac{T^\gamma}{T_m^\gamma}\right] \times \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) (1 - \Delta) - \Delta_m \quad (1)$$

$$I_m = n_0 \frac{\beta E}{kT_m^\gamma} \exp[-(1 - \Delta_m)] \quad (2)$$

$$\Delta = \gamma \frac{kT}{E}, \quad \Delta_m = \gamma \frac{kT_m}{E} \quad (3)$$

سایر پارامترهای استفاده شده در معادله ۱ عبارتند از:

I : شدت منحنی درخشندگی

γ : فاکتور فرکانس

n_0 : غلظت اولیه حامل‌های به دام افتاده

E : انرژی فعال‌سازی

k : ثابت بولتزمن

β : آهنگ گرمادهی

T : دمای لحظه‌ای برحسب کلونین

T_m : دمای قله بیشینه

T_0 : دمای اولیه برحسب کلونین

۲.۳.۲ سینتیک مرتبه دوم

مدل ذکرشده در بخش سینتیک مرتبه اول، یک مدل بسیار ساده و ایده‌آل است و در موادی صدق می‌کند که بلور خالص باشد. از آنجایی که بیش‌تر مواد دارای نقص ذاتی بوده و یا مقداری ناخالصی در ساختار خود دارند، بنابراین منحنی درخشندگی بلورهای مختلف از سینتیک مرتبه اول تبعیت نمی‌نماید. به دلیل نقص ذاتی و نیز وجود ناخالصی در ساختار بلور، راه‌های مختلفی جهت بازترکیب الکترون‌های آزاد شده از سطح دام وجود دارد. همین امر باعث تغییر شکل منحنی درخشندگی می‌شود [۱۰]. شدت گرمالیانی در منحنی درخشندگی طبق سینتیک مرتبه دوم توسط معادله ۲ حاصل می‌شود [۱۱]:

$$I(T) = \gamma I_m \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) \times \left[\frac{T^\gamma}{T_m^\gamma} (1 - \Delta) \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) + 1 + \Delta_m\right]^{-\gamma} \quad (4)$$

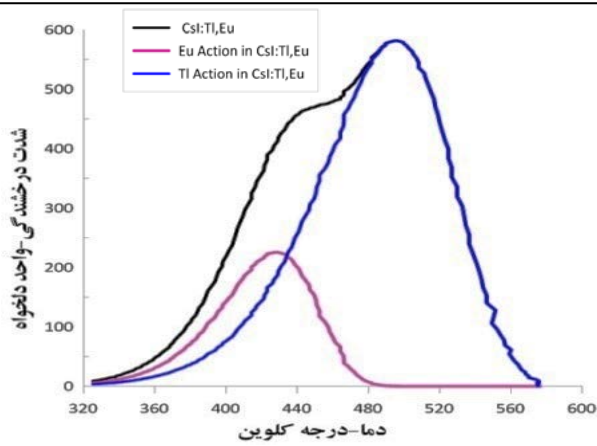
پارامترهای استفاده شده در این معادله، مشابه پارامترهای سینتیک مرتبه اول هستند.

۳.۳ تفکیک منحنی‌های درخشندگی به دست آمده به قله‌های منفرد

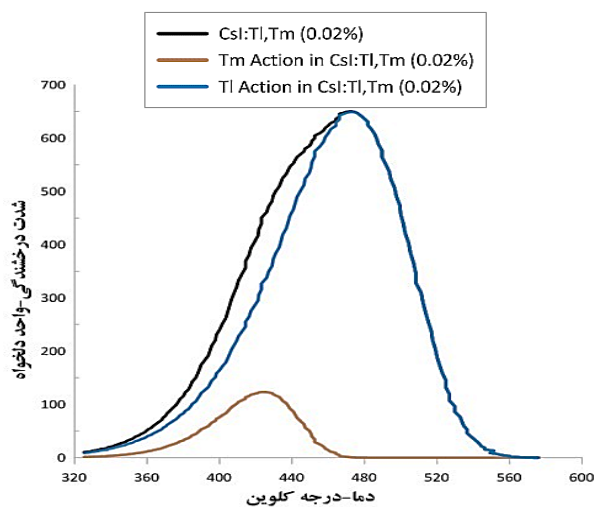
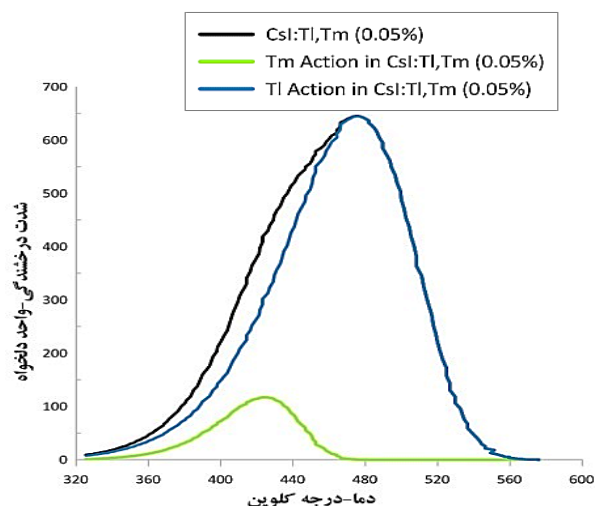
(دی‌کانولوشن)

استفاده از روش دی‌کانولوشن^۱ برای تجزیه و تحلیل منحنی درخشندگی که ترکیبی از قله‌های منفرد است، از سال ۱۹۸۰ آغاز گردیده است [۱۰]. منحنی درخشندگی تابعی از پارامترهای دام، عمق دام، ضریب فرکانس و غلظت اولیه حامل‌های بار است. هم‌چنین می‌توان آن را به عنوان تابعی از دمای قله ماکزیمم، شدت قله و عرض قله در نظر گرفت. توابع بسیاری توسط دانشمندان برای توصیف قله‌های منفرد منحنی درخشندگی پیشنهاد شده‌اند [۹-۱۱]. در این پژوهش روابط مربوط به سینتیک مرتبه اول و سینتیک مرتبه دوم که در قسمت قبل ذکر شد، در نرم‌افزار متلب پیاده‌سازی شد. با





شکل ۵. منحنی درخشندگی CsI:Tl, Eu.

شکل ۶. منحنی درخشندگی CsI:Tl, Tm با غلظت ۰.۰۲٪ از Tm^{2+} .شکل ۷. منحنی درخشندگی CsI:Tl, Tm با غلظت ۰.۰۵٪ از Tm^{2+} .

استفاده از منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl در حضور افزودنی‌های مختلف، دمای قله و شدت قله مشخص می‌باشد. لذا با داشتن این دو پارامتر، تنها پارامتر مجهول معادلات ۱ و ۴، انرژی فعال‌سازی می‌باشد. انرژی فعال‌سازی با استفاده از مدل‌های سینتیک مرتبه اول و مرتبه دوم، بهینه‌سازی شده و در نهایت منحنی‌های درخشندگی بلور CsI:Tl به تنهایی و هم‌چنین در حضور افزودنی‌های Tm^{2+} و Eu^{2+} ، به قله‌های منفرد تجزیه شدند.

۴. نتایج

منحنی‌های درخشندگی به‌دست آمده با مدل‌های سینتیک مرتبه اول و مرتبه دوم مورد بررسی قرار گرفت. با توجه به این‌که نقش اصلی سوسوزنی در بلور CsI:Tl بر عهده Tl است لذا می‌توان منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl را براساس سینتیک مرتبه اول مورد بررسی قرار داد. از طرفی با افزودن عناصر Tm^{2+} و Eu^{2+} به بلور CsI:Tl دو مسیر کلی برای آزاد شدن و گیراندازی الکترون‌ها وجود دارد که در بخش مقدمه به‌صورت کامل توضیح داده شده است، لذا می‌توان منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl در حضور عناصر Tm^{2+} و Eu^{2+} را بر اساس سینتیک مرتبه دوم مورد بررسی قرار داد. بر اساس فرضیات مدل سینتیک مرتبه دوم، حضور افزودنی در ساختار بلور باعث ایجاد قله‌های جدیدی در منحنی درخشندگی بلور می‌شود. این قله‌ها در دماهای پایین‌تر نسبت به قله اصلی منحنی درخشندگی ظاهر می‌شوند. از آن‌جا که قله اصلی منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl ناشی از تالیپ است، بنابراین قله‌های ناشی از Tm^{2+} و Eu^{2+} در دماهای پایین‌تری ظاهر می‌شوند. نمودارهای حاصل از دی‌کانوولوشن منحنی‌های درخشندگی بلور CsI:Tl در حضور افزودنی‌های مختلف، در شکل‌های ۵ تا ۱۰ نشان داده شده است.

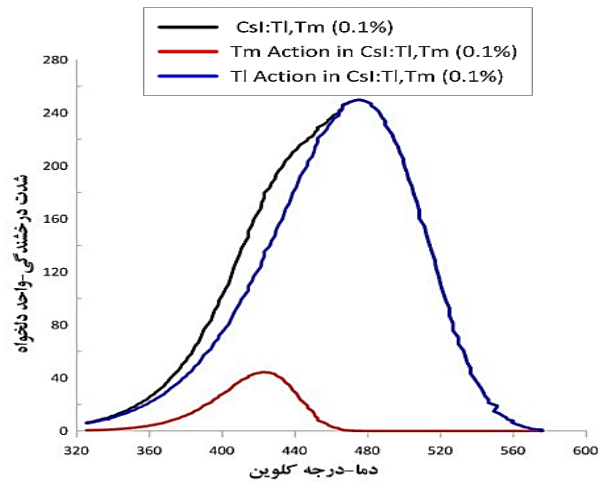
انرژی فعال‌سازی بلور CsI:Tl در حضور افزودنی‌های Tm^{2+} و Eu^{2+} با استفاده از دی‌کانوولوشن نمودارهای شکل ۴ در جدول ۱ آمده است.



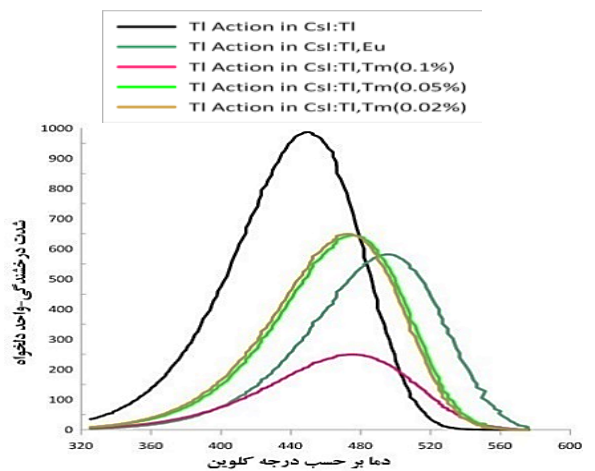
جدول ۱. انرژی فعال‌سازی قله‌های تشکیل‌دهنده منحنی درخشندگی بلور

انرژی فعال‌سازی (eV)			بلور	ردیف
قله Tm^{2+}	قله Eu^{2+}	قله Tl		
-----	-----	۰.۵۳	CsI:Tl	۱
-----	۰.۶۸	۰.۶۰	CsI:Tl, Eu	۲
۰.۸۱	-----	۰.۵۸	CsI:Tl, Tm (۰.۰۲٪)	۳
۰.۸۳	-----	۰.۵۶	CsI:Tl, Tm (۰.۰۵٪)	۴
۰.۸۴	-----	۰.۵۴	CsI:Tl, Tm (۰.۰۱٪)	۵

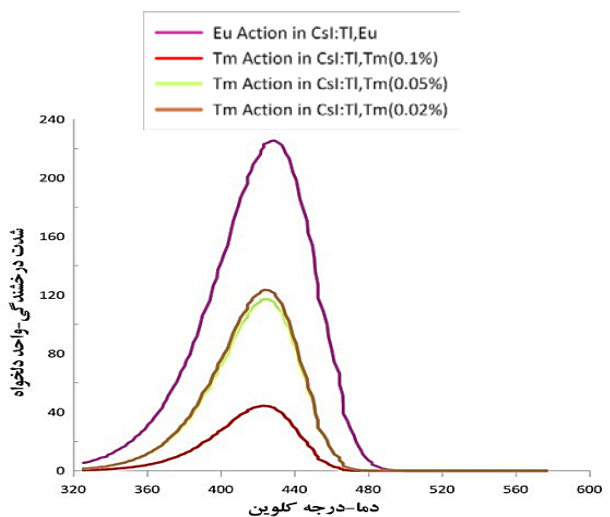
در شکل ۴، منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl در حضور افزودنی‌های مختلف نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل مشخص است، با اضافه نمودن افزودنی دوم به بلور CsI:Tl، شدت قله منحنی درخشندگی بلور کاهش یافته و به سمت دماهای بالا جابه‌جا شده است. در شکل ۵ منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl, Eu به عنوان نمونه شاهد و در شکل‌های ۶ الی ۹ منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl در حضور افزودنی Tm^{2+} با غلظت‌های ۰.۰۲٪، ۰.۰۵٪ و ۰.۰۱٪ نشان داده شده است. لازم به ذکر است که تالییم، سهم اصلی در تشکیل قله منحنی درخشندگی را داشته و با اضافه نمودن افزودنی دوم (شکل‌های ۵ تا ۸)، یک قله جدید متأثر از حضور افزودنی دوم در ساختار بلور CsI:Tl ظاهر می‌شود، که باعث کاهش قله اصلی منحنی درخشندگی متأثر از Tl می‌گردد. حضور این قله جدید در منحنی درخشندگی نشان‌دهنده این امر است که اضافه‌نمودن افزودنی دوم به بلور CsI:Tl باعث ایجاد ترازهایی در ساختار بلور می‌شود که الکترون‌های فرار کرده از دام‌های ضعیف Tl را گیرانداخته و مانع از بازترکیب آن‌ها و گسیل نور می‌شود، بدین ترتیب باعث کاهش پدیده پس تاب می‌شوند. از طرفی طبق داده‌های جدول ۱، بخشی از الکترون‌های فرار کرده از سطح دام‌های سست تالییم، توسط ترازهای انرژی داخلی‌تر تالییم گیر می‌افتند. این الکترون‌ها به دلیل داشتن انرژی فعال‌سازی بالاتر، باعث جابه‌جایی قله ناشی از تالییم به سمت دماهای بالاتر می‌شوند که این امر، در شکل ۹ نشان داده شده است. در شکل ۱۰، سهم افزودنی دوم در تشکیل منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl نشان داده شده است، بر این اساس، شدت قله ناشی از عنصر Tm^{2+} نسبت به عنصر Eu در دمای مشابه، کم‌تر است که این امر نشان‌دهنده این است که عنصر Tm^{2+} نسبت به عنصر Eu^{2+} دام‌های عمیق‌تری ایجاد نموده است و میزان آزادسازی این الکترون‌ها در دماهای پایین به مراتب کم‌تر از الکترون‌های گیر افتاده توسط عنصر Eu^{2+} است. کاهش شدت قله منحنی درخشندگی ناشی از افزودنی دوم هم‌زمان با کاهش شدت قله منحنی درخشندگی ناشی از تالییم، باعث کاهش شدت منحنی درخشندگی کل می‌گردد. با افزایش غلظت عنصر Tm^{2+} ، تعداد دام‌های موجود ناشی از عنصر Tm^{2+} نیز افزایش یافته که باعث گیراندازی بیش‌تر الکترون‌های فرار



شکل ۸. منحنی درخشندگی CsI:Tl, Tm با غلظت ۰.۰۱٪ از Tm^{2+} .



شکل ۹. سهم عنصر Tl در منحنی درخشندگی CsI:Tl در حضور افزودنی‌های Tm^{2+} و Eu.



شکل ۱۰. سهم عناصر Tm^{2+} و Eu^{2+} در منحنی درخشندگی CsI:Tl.



مراجع

- Gridin S, Belsky A, Moszynski M, Syntfeld A. Scintillation properties of CsI:In single crystals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment*. 2014;761:376-383.
- Conceição Costa Pereira M, Madi Filho T. Characteristics of the CsI:Tl Scintillator Crystal for X-Ray Imaging Applications. *Materials Sciences and Applications*. 2018;9(2).
- Bartram R.H, Kappers L.A, Hamilton D.S, Lempicki A, Brecher C, Glodob J, Gaysinskiy V, Ovechkin E.E. Suppression of afterglow in CsI:Tl by codoping with Eu²⁺-II: Theoretical model. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2006;A 558:458-467.
- Brecher C, Lempicki A, Miller S.R, Glodo J, Ovechkin E.E., Gaysinskiy V, Nagarkarb V.V, Bartram R.H. Suppression of afterglow in CsI:Tl by codoping with Eu²⁺-I: Experimental. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. 2006;A 558:450-457.
- Zarei Zefreh K, De Beenhouwer J, Marone Welford F, Sijbers J. Investigation on Effect of scintillator thickness on Afterglow in Indirect-Flat Panel Detectors. 6th Conference on Industrial Computed Tomography. *Wels, Austria*, 2016.
- Furreta C. Hand book of thermoluminescence. 1937.
- Kappers L.A, Bartram R.H, Hamilton D.S, Lempicki A, Brecher C, Gaysinskiy V, Ovechkin E.E, Nagarkar V.V. Concentration Dependence of Afterglow Suppression in CsI:Tl,Sm. *Journal of Physics: Conference Series*. 2010;249:012014.
- Kappers L.A, Bartram R.H, Hamilton D.S, Lempicki A, Brecher C, Gaysinskiy V, Ovechkin E.E, Thacker S, Nagarkar V.V. A tunneling model for afterglow suppression in CsI:Tl,Sm scintillation materials. *Radiation Measurements*. 2010;45(3-6):426-428.
- Kitisy G, Gomez-Rosz J.M, Tuynx J.W.N. Thermoluminescence glow-curve deconvolution functions for first, second and general orders of kinetics. *Journal of Physics D Applied Physics*. 1998;31:2636.
- Bos J. Thermoluminescence as a Research Tool to Investigate Luminescence Mechanisms. *Materials*. 2017;10(12):1357.
- Peng J, Kitis G, Sadek A.M, Asal E.C.K, Li Z. Thermoluminescence glow-curve deconvolution using analytical expressions. *Radiation and Isotopes*. 2020;S0969-8043(20):30585-6.

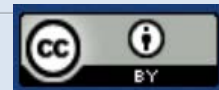
کرده از سطح تالییم می‌شود. با توجه به نتایج موجود در جدول ۱، افزایش غلظت عنصر Tm²⁺ باعث افزایش انرژی فعال‌سازی الکترون‌های به دام افتاده در سطح تالییم شده و از آزادسازی الکترون‌ها از سطح عنصر Tm²⁺ در دماهای پایین جلوگیری می‌شود. بنابراین می‌توان نتیجه‌گیری نمود که افزودن عنصر Tm²⁺ به بلور CsI:Tl باعث کاهش پدیده پس‌تاب می‌گردد.

۵. نتیجه‌گیری

در این مقاله به بررسی اثر افزودنی دوم بر سوسوزن CsI:Tl پرداخته شد. هدف این پژوهش بررسی تأثیر افزودنی Tm²⁺ بر کاهش پدیده پس‌تاب در بلور CsI:Tl توسط مدل‌های گرمالیانی بوده است. افزودن تالییم به بلور CsI:Tl، دام‌های سستی در باند ممنوعه بلور به وجود می‌آورد که باعث ایجاد پدیده پس‌تاب می‌شوند. منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl به‌تنهایی و در حضور عنصر Tm²⁺ و Eu توسط مدل‌های گرمالیانی سینتیک مرتبه اول و مرتبه دوم بررسی گردید. با توجه به نتایج به‌دست آمده، منحنی درخشندگی بلور CsI:Tl از سینتیک مرتبه اول و منحنی درخشندگی CsI:Tl در حضور افزودنی دوم از سینتیک مرتبه دوم تبعیت می‌نماید. پیاده‌سازی این مدل‌ها و محاسبه انرژی فعال‌سازی قله‌های تشکیل‌دهنده منحنی درخشندگی نشان داد، اضافه کردن افزودنی دوم باعث کاهش سهم عنصر Tl در تشکیل منحنی درخشندگی و جابه‌جایی آن به سمت دماهای بالاتر به دلیل افزایش انرژی فعال‌سازی شده و همچنین ایجاد قله جدید ناشی از افزودنی دوم در دماهای پایین می‌شود. شدت قله‌های جدید نسبت به قله ناشی از تالییم کم‌تر بوده است که علت آن انرژی فعال‌سازی بالای ترازهای ایجاد شده توسط عنصر Eu و Tm²⁺ در ساختار بلور است که مانع آزادسازی الکترون‌ها در دماهای پایین می‌گردد. از مقایسه قله ناشی از عناصر Eu و Tm²⁺ می‌توان نتیجه گرفت عنصر Tm²⁺ نسبت به عنصر Eu دام‌های عمیق‌تری ایجاد نموده، بنابراین تأثیر عنصر Tm²⁺ بر کاهش پدیده پس‌تاب به مراتب بیش‌تر از تأثیر عنصر Eu²⁺ است. با توجه به نتایج به‌دست آمده در این پژوهش، می‌توان در پژوهش‌های آتی، غلظت‌های مختلفی از افزودنی‌های دوم مانند Eu²⁺ و Tm²⁺ و Sm²⁺ را به بلور CsI:Tl اضافه نمود و با بررسی منحنی‌های درخشندگی، غلظت افزودنی دوم را بهینه‌سازی نمود.

COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.



استناد به این مقاله

خراسانی، محمدحسن، شاهملکی، سجاد، رحمانی، فائزه. (۱۴۰۳). بررسی تأثیر افزودنی Tm²⁺ بر کاهش پدیده پس‌تاب در بلور CsI:Tl توسط مدل‌های گرمالیانی.

مجله علوم و فنون هسته‌ای، ۱۰۷(۱)، ۱۶۸-۱۷۵. DOI: 10.24200/nst.2023.1260.1820. URL: https://jonsat.nstri.ir/article_1542.html

