

LATVIJAS UNIVERSITĀTE
ĶĪMIJAS FAKULTĀTE

**RADIĀCIJAS DEFEKTU ANALĪZE
GGAG:Ce KRISTĀLOS AR TERMISKI STIMULĒTĀS
LUMINISCENCES METODI**

MAGISTRA DARBS

Autors: **Toms Elvijs Šusts**

Studenta apliecības Nr.: ts13053

Darba vadītāja: Dr. *chem.* Elīna Pajuste

RĪGA

2022

ANOTĀCIJA

Radiācijas defektu analīze GGAG:Ce kristālos ar termiski stimulētās luminescences metodi. Šusts T. E., darba vadītāja Dr. *chem.* Pajuste E. Kursa darbs, 31 lapaspuse, 18 attēli, 4 tabulas, 25 literatūras avoti. Latviešu valodā.

Darbā ir veikta informācijas apkopošana apkopota informācija par scintilācijas kristāliem, $\text{Ga}_3\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ un tā īpašībām. Izpētīti termostimulētās luminescences teorētiskie un praktiskie pamati, darbības modeļi un pirmās, otrās un starppakāpju termostimulētās luminescences kinētika, kā arī termoluminiscenci raksturojoši modeļi. Jonizējošā starojuma izraisītu defektu izpētei izmantota termostimulētās luminescences, un radioluminiscences metodes. Datu analīzē izmantots Meja – Pārtridža modelis un izotermālās sabrukšanas metode. Eksperimentālajā daļā veikta parauga apstarošana istabas temperatūrā, izmantojot ar $^{90}\text{Sr}^{90}$ beta starojumu un rentgenlampurentgenstarojumu, pēc kā veikti termostimulētās luminescences mērījumi, kā arī uzņemts radioluminiscences spektrs. Ar termostimulētās luminescences metodi noteikti jonizējošā starojumu veidotie radītie defekti, tos reprezentējošo joslu pozīcijas un aktivācijas enerģijas. Noteikts, ka radioluminiscences spektra maksimums ir 530 nm.

GGAG:CE, $\text{Ga}_3\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, TSL, IZOTERMĀLĀ SABRUKŠANAS METODE, TSL JOSLU DZĪVES ILGUMI, MEJA-PĀRTRIDŽA MODELIS.

ABSTRACT

Analysis of radiation induced effects in GGAG:Ce crystals using thermostimulated luminescence. Šusts T. E., supervisor Dr. *chem.* Pajuste E. Course work, 31 pages, 18 figures, 4 tables, 25 references. In latvian.

The theoretical part of this research project contains information on scintillation, $\text{Ga}_3\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ and its properties. The theoretical and practical basis of thermally stimulated luminescence, and its first, second and general-order kinetics and mathematical thermoluminescence models are researched. Stability of defects caused by ionising radiation were studied using thermally stimulated luminescence and radioluminescence. Isothermal decay method and the May – Partridge model were used in data analysis. A $\text{Ga}_3\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ crystal was irradiated by Sr^{90} and an X-ray lamp. Thermally stimulated luminescence measurements were performed on the irradiated sample. Radioluminescence spectra was measured. Using thermally stimulated luminescence defects formed by ionising radiation were detected. The peak positions, activation energies and life times were determined. Radioluminescence spectra has a maximum at 530 nm.

GGAG:CE, $\text{Ga}_3\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, TSL, ISOTHERMAL DECAY METHOD, TSL PEAK LIFETIMES, MAY – PARTRIGE MODEL

SATURS

ANOTĀCIJA	2
ABSTRACT	3
APZĪMĒJUMU SARAKSTS	5
IEVADS	6
1. LITERATŪRAS APSKATS	8
1.1. GGAG:Ce	8
1.2. TSL	9
1.3. TSL darbības modeļi	10
1.4. Pirmās pakāpes kinētika	1211
1.5. Otrās pakāpes kinētika	15
1.6. Starppakāpju kinētika	17
1.7. Refleksa Joslas intensitātes profila matemātiskie tuvinājumi	18
2. EKSPERIMENTĀLĀ DAĻA	21
2.1. Izmantotās vielas un to sagatavošana	21
2.2. Izmantotā aparatūra	21
2.3. TSL mērījumi	21
2.4. TSL līkņu dalīšana komponentēs	22
2.5. Radioluminiscences spektra uzņemšana	23
2.6. Rezultātu matemātiskā apstrāde	23
3. REZULTĀTI UN TO IZVĒRTĒJUMS	2524
3.1. Parauga TSL līkņu iegūšana pēc apstarošanas ar β starotāju	2524
3.2. TSL līkņu laukumi pēc apstarošanas ar β starotāju un to analīze	2625
3.3. Parauga TSL līkņu iegūšana pēc apstarošanas ar rentgenstariem	2827
3.4. Radioluminiscences dati un to izvērtējums	2928
3.5. TSL līkņu dalīšana atsevišķās joslās	2928
SECINĀJUMI	3634
LITERATŪRAS AVOTI	3735
PATEICĪBAS	4038
PIELIKUMI	4139

APZĪMĒJUMU SARAKSTS

LHC	lielais hadronu paātrinātājs
HL-LHC	augsta spožuma lielais hadronu paātrinātājs
CMS	kompaktais mionu selenoīds
BTL	cauruļveida laika noteikšanas detektors
TSL	termostilmulētā luminiscence
OSL	optiski stimulētā luminiscence
TL	termoluminiscence
GGAG:Ce	gallija gadolīnija alumīnija granāts, $\text{Ga}_3\text{Gd}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$
ns	nanosekunde
LYSO:Ce	

IEVADS

Viena no lielākajām problēmām ar ko saskarās detektori daļiņu paātrinātājos paātrinātāju detektoru darbībā ir reģistrējamo notikumu uzkrāšanās un pārklāšanās, t.i., situācijas, kad noteikto daļiņu ceļi pārklājās un nav iespējams noteikt to detektēšanas secību, jo detektors tās nespēj pietiekami ātri noteikt. Šādas situācijas Tas apgrūtina būtiski ierobežo daļiņu izcelsmes noteikšanu laikā, kas savukārt apgrūtina daļiņu sadursmēs notiekošo procesu noteikšanu. Ar šādām situācijām parasti saskarās daļiņu paātrinātājos, kur starp daļiņu pulsiem un attiecīgi sadursmēm ir mazi laika intervāli.^{1,2}

Lielajam hadronu paātrinātājam paātrinātāju (Large Hadron Collider - LHC), pārejot savā) plānots turpmāk darbināt t.s. augstā spilgtuma fāzē (HL-LHC), kur protonu - protonu iedarbību skaits pieaugs līdz pat 200 katras 25 ns. Lai šo iedarbību rezultātus varētu detektēt, ir nepieciešams veids kā atdalīt reģistrētos signālus laikā. LHC šo problēmu risina risinājumam tiek izstrādājot izstrādāti laika noteikšanas detektorus, kuri, strādājot kopā ar jau esošajiem detektoriem, palīdz tiem atdalīt notikumus laikā.^{3,4}

Vieni no piemērotākajiem materiāliem, ko var izmantot laika noteikšanas detektoros, ir scintilācijas kristāli ar ātriem defektu sabrukšanas laikiem. Šobrīd LHC kompaktā mionu muonu solenoīda detektora (Compact Muon Solenoid CMS) cauruļveida laika noteikšanas detektorā (Barrel Timing Layer - BTL) tiek plānots izmantot LYSO:Ce scintilācijas kristālus, tomēr šim detektoram tika apsvērs apsvērts arī GGAG:Ce.^{3,5} Pateicoties tā augstajai noturībai pret radiāciju, ātrajam defektu rekombinācija laikam un radioluminiscences viļņa garumam, kas saskan ar Si fotopavairotāja absorbcijas maksimumu, ko izmanto scintilācijas gaismas noteikšanai, GGAG:Ce ir liels potenciāls pielietošanai paātrinātāju laika noteikšanas detektoros.^{5,6,7}

Tomēr GGAG:Ce ir kristālu izmantošanu ierobežo tiem novērota novērotā ilgstoša ilgstošā pēcspīdēšana. Šīs pēcspīdēšanas komponentu izprašana palīdzētu labāk apzināties materiāla pielietojamību nozarē. Temperatūru diapazonā 300 – 500K GGAG:Ce termiski stimulētās luminiscences (TSL) līkni veido vairāki komponenti. Šo komponentu atdalīšana un stabilitātes noteikšana varētu palīdzēt izprast kristālā notiekošos pēcspīdēšanas procesus un sekojoši to samazināšanas iespējas.^{1,6,7}

Viens no TSL līkņu analīzes veidiem ir to pielīdzināšana matemātiskiem modeļiem, lai noteiktu konkrētu defektu - ķērājcentru parametrus. Populārākā TSL līkņu dalīšanas un analīzes programma "GlowFit" nesniedz informāciju, kas raksturo izdalītos komponentus. Jaunas līkņu dalīšanas metodes izstrāde varētu palīdzēt risināt šo jautājumu.^{6,7,8,9}

Līdz ar to kā **darba mērķis** tika izvirzīts:

Noteikt jonizējošā starojuma radītu defektu veidošanos un to stabilitāti GGAG:Ce paraugos, izdalot atsevišķos ķērājcentrus no kopējās TSL līknes, izmantojot Meja - Pārtridža modeli.

Darba uzdevumi:

1. Izstrādāt parauga apstarošanas un TSL mērījumu metodi ar labu atkārtojamību.
2. Uzņemt TSL līknes ar atšķirīgu laiku starp parauga apstarošanu un TSL mērījumu.
3. Uzņemt parauga radioluminiscences spektru.
4. Izstrādāt jaunu vai pilnveidot eksistējošu TSL līkņu dalīšanas metodi.
5. Ienest Meja – Pārtridža modeli “Wolfram mathematica” programmēšanas valodā.
6. Pēc iespējas labāk optimizēt modeli, lai iegūtu precīzākus rezultātus.

Darbs izstrādāts Latvijas Universitātes Ķīmijas fakultātē, Ķīmiskās fizikas institūtā un Cietvielu Fizikas institūtā Valsts Pētījumu Programmas projekta “Virsošnes kvarka un Higa bozona pētījumi CMS eksperimentā, kristāla scintilatoru, CMS apakšdetektoru un daļiņu paātrinātāju tehnoloģiju attīstīšana lietišķam pielietojumam, sadarbībā ar CERN” ietvaros.

1. LITERATŪRAS APSKATS

Literatūras apskatā apkopota informācija par scintilācijas kristāliem un detektoriem, GGAG:Ce īpašības, TSL un tās līkņu veidojošo refleksu joslu formas un intensitātes atkarību no TSL kinētikas, kā arī aprakstīti vairāki matemātiskie modeļi, kurus var izmantot TSL līkņu dalīšanai joslās.

Scintilācijas kristāli

Scintilācijas kristāli tiek izgatavoti no materiāliem, kuriem, pēc apstarošanas ar jonizējošo starošanas laikā ar jonizējošo starojumu, ir novērojama luminiscence.⁸ Tie tipiski vairumā gadījumu ir veidoti pusvadītājiem ar lielu blīvumu un augstu relatīvo atomskaitli, kas palielina kristālu iespēju apturēt starojuma daļiņas. Kristāliem tipiska ir raksturīga arī zema gaismas absorbcija un laba izturība pret jonizējošo starojumaugsta radiācijas stabilitāte. Atkarībā no pielietojuma liela nozīme var būt arī luminiscences atbildes ātrumam un spožumam, t.i., izstarotās gaismas daudzumam attiecībā pret absorbēto enerģiju.⁹

Scintilācijas detektori

Scintilācijas detektoros visbiežāk izmantotie materiāli ir scintilācijas kristāli, kuri detektorā parasti tiek piejūgti foto pavairotājam. Jonizējošajam starojumam, ejot cauri scintilācijas kristālam, tajā ierosinātie atomi un molekulas izstaro gaismu, kura foto pavairotājos tiek pārveidota par strāvu. Šīs strāvas signālus savukārt uztver un interpretē elektroniskā sistēma.¹⁰

1.1. GGAG:Ce

Ar cēriju dopēts gadolīnija gallija alumīnija granāts $Ga_3Gd_3Al_5O_{12}$ ir jauns materiāls, kam piemīt tādas pozitīvas īpašības ar virkni priekšrocību:

- , kā augsts blīvums ($6,5 \text{ g/cm}^3$),
- liela gaismas atdeve (47000 fotoni/MeV) un,
- Liels jonizējošā starojuma izraisītu defektu pirmo rekombināciju laiks (46 ns).¹¹

Dopēšana ar cēriju krietni uzlabo šīs īpašības, jo gaismas atdeve nedopētam GGAG ir 45000 fotoni/MeV un jonizējošā starojuma izraisītu defektu pirmo rekombināciju laiks 90 ns . Šīs īpašības tiek izvērtētas, piemeklējot materiālus scintilācijas detektoriem.¹

Šo īpašību dēļ tTas tiek izvērtēts izmantošanai paātrinātāju detektoros un kosmosa tehnoloģijās jonizējošā starojuma noteikšanai.¹² Kā šķērsli materiāla lietošanai šajā nozarē ir jāmin tā ilgā pēcspīdēšana.

GGAG:Ce luminiscences spektra aptuvenie emisijas viļņa garumi istabas temperatūrā, ierosinot ar UV gaismu, ir no 500 līdz 650 nm, ar maksimumu pie 530 nm¹⁴, vai no 450 līdz 750 nm¹⁵. Ja visu slazdu enerģija ir pietiekami zema, lai tos visus ierosinātu ar UV gaismu, šos luminiscences spektra rezultātus var salīdzināt ar rezultātiem, kas iegūti apstarojot ar rentgenstariem. Zemās temperatūrās, aptuveni 10K, ir novērojami divi maksimumi, pie 530 un 590 nm. Divi maksimumi ir saistīti ar to, ka Ce⁺³ 4f pamatlīmenis ir dalīts divās daļās ²F_{7/2} un ²F_{5/2}, un attiecīgi notiek divas pārejas 5d - ²F_{7/2} un 5d - ²F_{5/2}, kas katra saistīta ar savu maksimumu.

GGAG:Ce TSL līknes refleksu joslu maksimumi tiek piedāvāti pie 323±5, 373±5 un 438±5 K ar attiecīgajāmrespektīvajām slazdu enerģijām 0,89, 1,02 un 1,12 eV un refleksu joslu dzīves ilgumu ~0,3 h (1080s), ~100h un ~10000h respektīvi.¹⁵

Pēc Termiski apstrādājot GGAG:Ce karsēšanas gaisā, pirms apstarošanas, tiek novērots TSL līkņu refleksu joslu intensitāšu samazinājums. Gaismas atdeve neatjaunojas laika gaitā, bet to var atjaunot tikai apstarojot ar gaismu.¹⁵ Kā gaismas avots tiek izmantota parasta fluorescentā spuldze. Līdzīgu TSL līkņu refleksu joslu intensitāšu samazinājumu novēro arī izkarsējot paraugus reducējošā atmosfērā (N₂ +2% H₂).^{15,16}

GGAG:Ce var iegūtiegūst audzējot kristālus vai kā keramikākeramiku. Starp abiem veidiem ir novērojamas atšķirības fotoluminiscences emisijas spektros, gaismas atdevē un pēcspīdēšanā. Keramikas ir vieglāk ražot, tomēr to pielietojums jonizējošā starojuma detektoros nav paredzamsefektīvs, jo tām ir ilgāks rekombinācijas laiks nekā kristāliem.^{16,17}

1.2. Termostimulētā luminiscence (TSL)

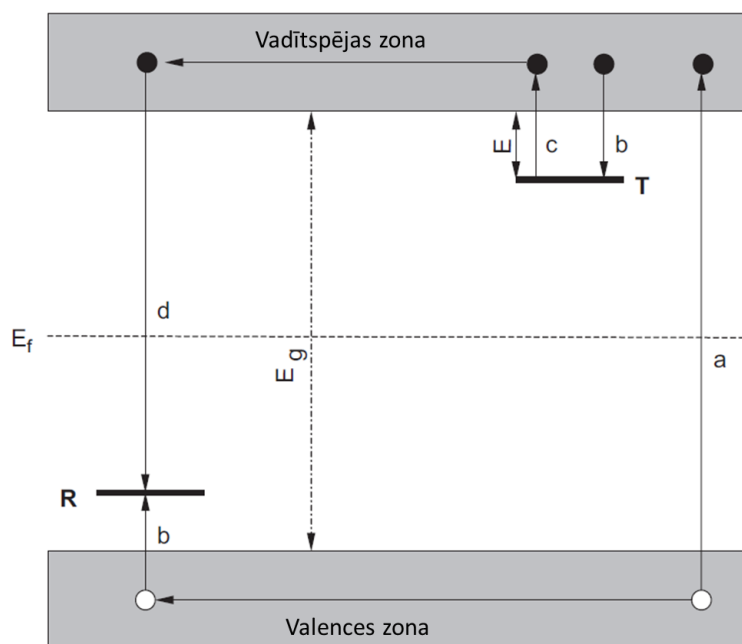
Termiski apstrādājot ierosinātus pusvadītājus vai strāvu nevadošus materiālus jeb izolatorus, rodas fizikāla parādība - termostimulētā luminiscence (TSL). Šī parādība nav novērojama metāla materiālos un paraugosos. Baltkvēle atšķirībā no TSL ir elektromagnētiskā starojuma izdalīšanās no vielas, kas novērojama paaugstinātā temperatūrā. , Ssavukārt TSL var raksturot kā iepriekš absorbētas jonizējošās radiācijas enerģijas termiski stimulētu gaismas izstarošanu. Gaisma tipiski vairumā gadījumu tiek izstarota redzamajā gaismas spektrā. Abas parādības mēdz būt novērojamas vienādos temperatūras apgabalos.

TSL izstarotā gaisma ir proporcionāla absorbētajai jonizējošai enerģijai. Karsējot neapstarotus scintilējošus materiālus, tie neizdalīs ar termoluminiscenci saistītu gaismu. TSL iespējams izmantot paraugā uzkrāto jonizējošā starojuma defektu noteikšanai.

Izstarotās gaismas proporcionalitāte absorbētajai jonizējošai enerģijai un spēja uzglabāt šī starojuma ierosinātos defektus ir galvenie iemesli kāpēc materiālus, kuriem novērota TSL, ir iespējams izmantot arī jonizējošā starojuma dozimetrijā.¹⁷

1.3. TSL darbības modeļi

Viens no modeļiem, ko izmanto termoluminiscences īpašību skaidrošanai cietvielās, ir aizliegtās zonas teorija. Ideālos pusvadītāju pusvadītājos vai izolatoru izolatoros kristālos vairums elektronu atrodas valences zonā. Nākamā zona ar augstāku enerģiju, kurā elektroni var atrasties, ir vadītspējas zona (1.1. attēls). Abas zonas nošķir aizliegtā zona. Gadījumos, kad kristālos ir defekti vai citu vielu piemaisījumi, elektroni var stabili atrasties arī enerģijas līmeņos, kas ideālā kristālā atrastos aizliegtajā zonā.



1.1.att. Enerģijas zonu modeļa grafisks attēlojums¹⁷

Enerģijas atšķirība starp vadītspējas un valences zonām apzīmēta ar E_g , savukārt, Fermi līmenis, augstākais līmenis, ko elektrons var ieņemt pie 0K, apzīmēts ar E_f (skat. 1.1. attēlu). Vienkāršotā termoluminiscences modelī tiek pieņemta divu līmeņu eksistence, kuri atrodas

aizliegtajā zonā. Līmenis T , kurš atrodas virs Fermi līmeņa un pirms apstarošanas ar jonizējošo starojumu ir tukšs, strādā darbojas kā elektronu slazds. Ierosinot paraugu tiek radīti brīvi elektroni un pretēji lādēti caurumi. Līmenis R ir caurumu slazds un tas raksturojas kā elektronu un caurumu rekombinācijas centrs.

Ja paraugs tiek apstarots ar starojumu, kura enerģija ir lielāka par E_g , paraugā notiek valences elektronu jonizācija, radot brīvos elektronus vadītspējas zonā un brīvos caurumus valences zonā. Šis process 1.1. attēlā apzīmēts ar a . Brīvie lādiņnesēji var vai nu rekombinēties, vai tikt noķerti slazdos.

Brīvajam elektronam un caurumam tieši rekombinējoties tiek atbrīvota enerģija, kas var ierosināt luminiscences centru, kurš relaksējoties izstaro gaismu. Tiešas brīvo lādiņnesēju rekombinācijas procesu, kura laikā tiek izstarota gaisma sauc par radioluminiscencei. Tai ir raksturīga ātra norise, t.i., $<10^{-8}$ s.

Pusvadītājos un izolatoros paralēli radioluminiscencei notiek arī brīvo lādiņnesēju noķeršana slazdos, kas 1.1. attēlā apzīmēti ar R un T , savukārt pats process apzīmēts ar b . Lādiņnesēja iespēju izkļūt no slazda paraksta Arēniusa vienādojums (1.1. vienādojums):

$$p = s \cdot \exp\left\{\frac{-E}{kT}\right\} \quad (1.1.)$$

kur p – varbūtība, ka lādiņnesējs izkļūs no slazda, laika vienībā;

s – frekvences faktors – konstante, kas raksturo kristālrežģa vibrāciju;

E – slazda dziļums jeb aktivācijas enerģiju, eV;

k – Boltzmaņa konstante, $8,617 \cdot 10^{-5}$ eV/K;

T – absolūta temperatūra, K.

Ja slazda dziļums $E > kT_o$, kur T_o ir temperatūra parauga apstarošanas laikā, tad lādiņš tiks noķerts un paliks slazdā arī pēc apstarošanas beigām. Ņemot vērā, ka sistēmā elektronu un caurumu skaits ir vienāds, lādiņnesēju nokļūšana slazdā neļauj sistēmai relaksēties, radot metastabilu stāvokli. Sistēma var soprotaņisponāni atgriezties pamatstāvoklī, tomēr, nepaaugstinot temperatūru, šī procesa norisi kontrolē parametri E un s , un šo procesu sauc par fosforiscencifosforencenci.

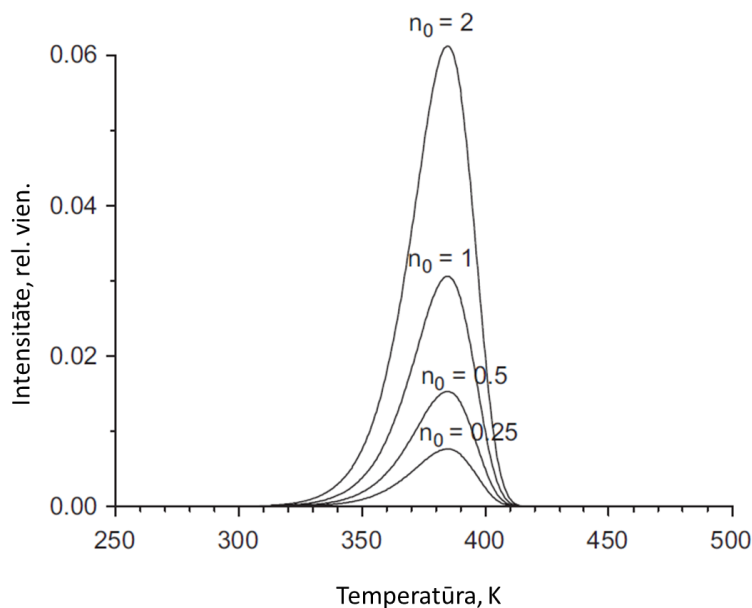
Sistēmas atgriešanos pamatstāvoklī var paātrināt, paaugstinot temperatūru virs apstarošanas temperatūras T_o . Tas palielinās iespējamību, ka elektroni izkļūst no slazda, nonāk vadītspējas zonā un rekombinējas ar caurumu slazdā R .^{17,18}

1.4. Pirmās pakāpes kinētika

Paaugstinot apstarotā parauga temperatūru, notiek lādiņnesēju rekombinācija un luminiscences centru ierosināšana. Parauga izstarotās gaismas intensitāte pieaug līdz tā sasniedz maksimumu un sāk kristies, kad slazdos esošo lādiņnesēju daudzums, kuri šajā temperatūras diapazonā ir ar pietiekami lielu enerģiju, lai izkļūtu no slazdiem, tuvojas nullei.

Pie konstanta temperatūras pieauguma šāda gaismas intensitāšu izmaiņa veido intensitāšu refleksus joslas ar specifiskām formām, kuras ir asimetriskas pieaugošās temperatūras dēļ. Tipiskši šie refleksi joslas ir platāki zemākajā temperatūras pusē un šaurāki augstākajā temperatūras galā, jo pie augstākām temperatūrām slazdos esošajiem elektroniem ir lielāka enerģija, kas liecina par lielāku iespējamību, ka elektrons izkļūs no slazda, tādējādi paātrinot visu elektronu izkļūšanu no slazdiem ar konkrēto enerģiju.

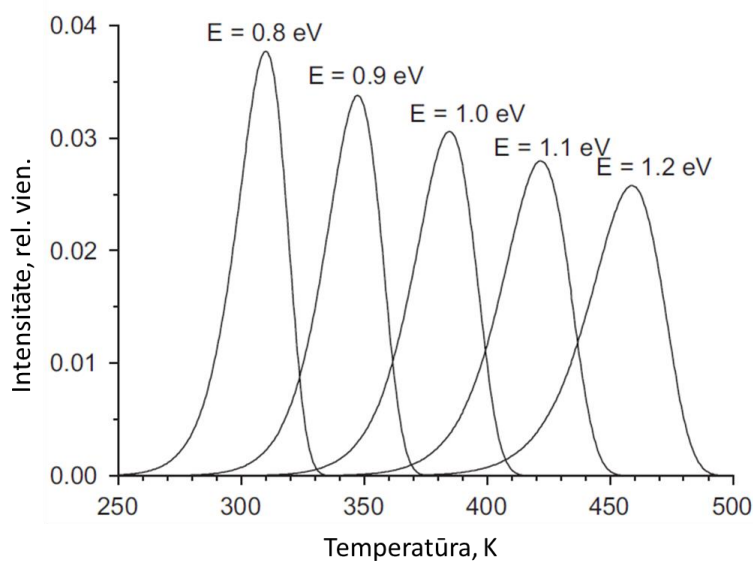
Attēlojot gaismas intensitāti I attiecībā pret $1/T$, līknes slīpuma koeficients ir vienāds ar $-E/k$, no kā var iegūt slazdā esošā elektrona aktivācijas enerģijas vērtību E .



1.2. att. Refleksa Joslas intensitātes profila atkarība no lādiņu koncentrācijas n_0 .¹⁷

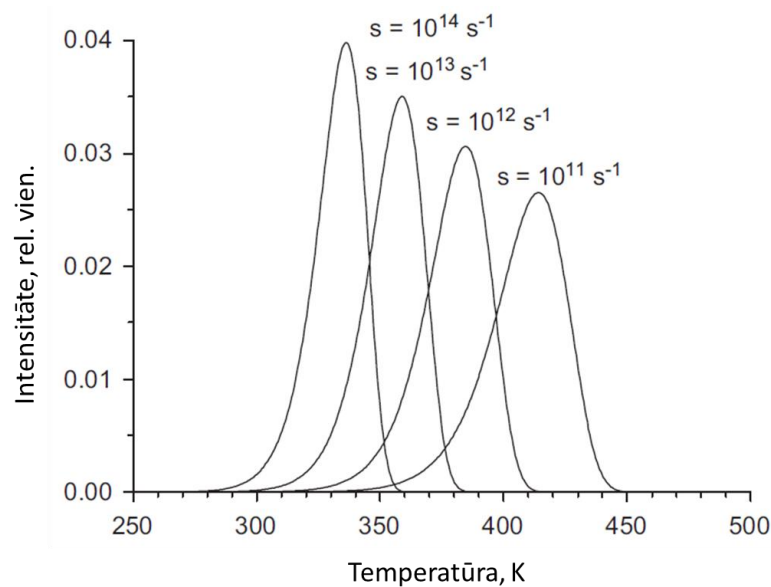
1.2. attēlā ir attēlotas TSL refleksa joslas intensitātes profila atkarība no lādiņu koncentrācijas n_0 pie pirmās pakāpes kinētikas. Šajā attēlā var redzēt, ka ne tikai refleksa joslas maksimums, bet arī katrs līknes punkts ir proporcionāls atbrīvoto lādiņnesēju koncentrācijai.

No šī novērojuma izriet, ka refleksa joslas intensitāte ir tieši proporcionāla atbrīvoto lādiņnesēju koncentrācijai.^{19,17}



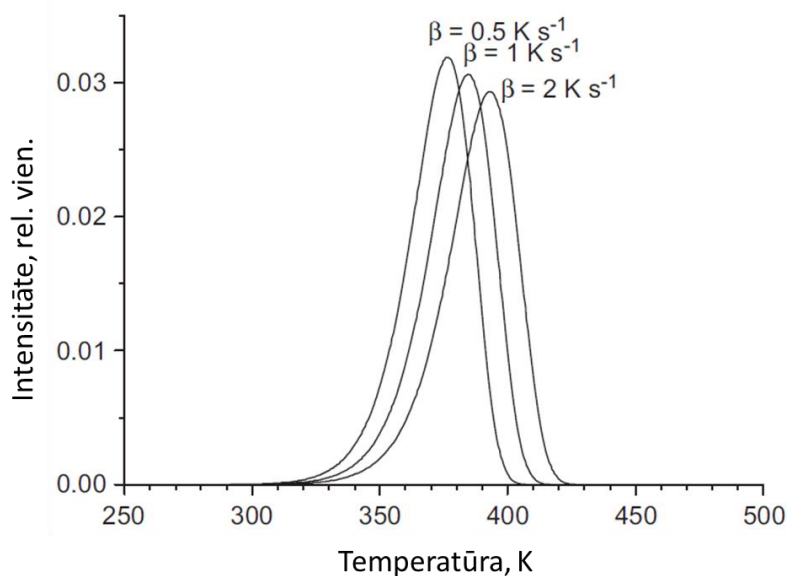
1.3. att. Refleksa Joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no lādiņu slazda aktivācijas enerģijas E.¹⁷

1.3. attēlā ir attēlotas TSL joslasrefleksa intensitātes profila un novietojuma atkarība no lādiņu slazda aktivācijas enerģijas E pie pirmās pakāpes kinētikas. Šajā attēlā var redzēt, ka, pieaugot slazdu aktivācijas enerģijai, ne tikai refleksjoslas maksimums tiek nobīdīts uz augstākām temperatūrām, bet arī mainās refleksa joslas līknes profils. Samazinoties refleksa joslas maksimumam, pieaug refleksa joslas pamata platumss, atstājot joslasrefleksa laukumu nemainīgu. Augstākas aktivācijas enerģiju refleksjoslu nobīde uz augstāku temperatūru pusi skaidrojama ar to, ka elektroniem dziļākos slazdos ar lielākām aktivācijas enerģijām nepieciešams vairāk enerģijas, t.i., augstāka temperatūra, lai izkļūtu no šiem slazdiem.



1.4. att. Refleksa Joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no lādiņu slazda aktivācijas enerģijas E frekvences faktora.¹⁷

1.4. attēlā ir attēlotas TSL refleksa joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no frekvences faktora s pie pirmās pakāpes kinētikas. Pieaugot frekvences faktoram, pieaug arī refleksu joslu intensitātes, un refleksu joslu maksimumi ir novērojami pie zemākām temperatūrām. No tā var secināt, ka elektrona slazdam ar augstāku frekvences faktoru nepieciešams mazāk enerģijas, t.i., zemāka temperatūrai, lai no šī slazda izkļūtu.

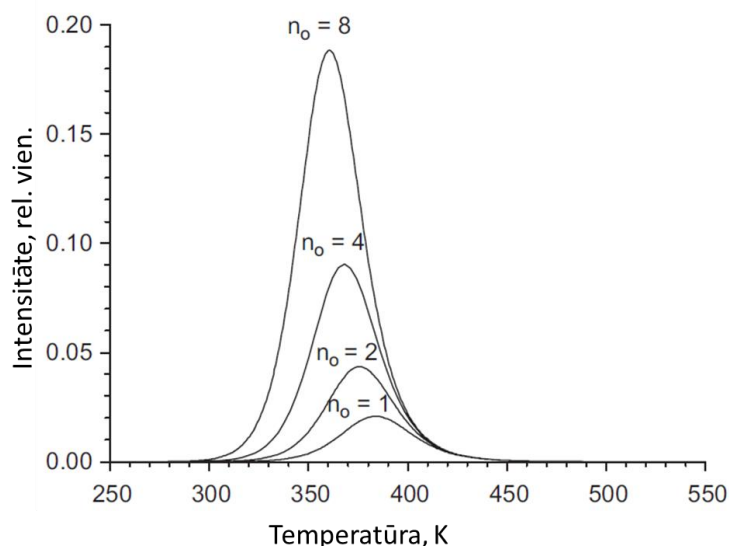


1.5. att. Refleksa Joslu intensitātes profila un maksimuma novietojuma atkarība no karsēšanas ātruma β .¹⁷

1.5. attēlā ir attēlotas TSL joslurefleksa intensitātes profila un maksimuma novietojuma atkarība no karsēšanas ātruma β pie pirmās pakāpes kinētikas. Pieaugot karsēšanas ātrumam, joslas refleksa maksimums tiek nobīdīts uz augstākām temperatūrām, un maksimuma intensitāte samazinās, laukumam paliekot nemainīgam. Šis novērojams skaidrojams ar to, ka pie augstāka karsēšanas ātruma elektroni slazdā konkrētajā temperatūrā pavada mazāk laika. Apzinoties, ka varbūtība p , ka elektrons izkļūs no slazda tiek izteikta kā attiecība pret laika vienību, var secināt, ka pie lielāka karsēšanas ātruma, varbūtībai konkrētajā temperatūrai būtu jābūt mazākai.^{20,17}

1.5. Otrās pakāpes kinētika

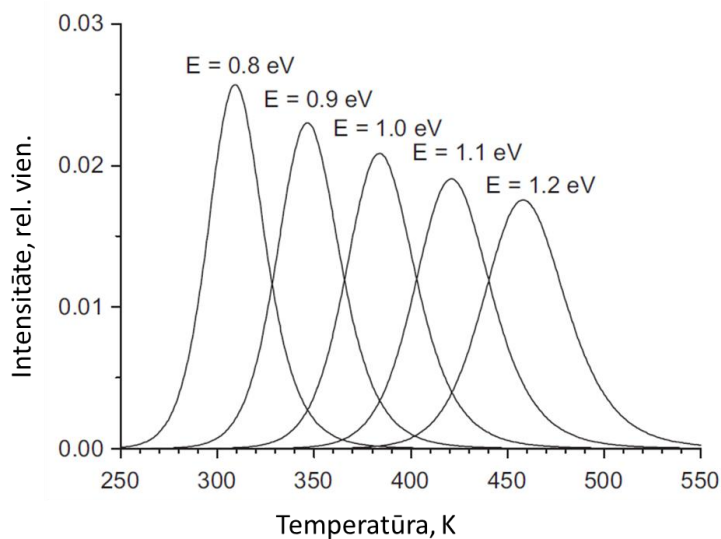
Elektroni, kas izkļūst no slazda, var arī nonākt tajā atpakaļ. Ja pieņem, ka šāds process dominē vai ir vienlīdz iespējams ar elektrona un slazda rekombināciju, tad termoluminiscences procesam piemīt otrās pakāpes kinētika. Šādā gadījumā refleksi joslas ir gandrīz simetriskasi ar nedaudz lielāku platumu zemākās temperatūras pusē. Tas skaidrojams ar to, ka liela daļa elektronu tiek atkārtoti noķerti slazdos pirms tie ir paspējuši rekombinēties ar caurumiem, kā rezultātā veidojas luminiscences emisijas aizkavēšanās un luminiscences refleksa joslas izplešanās lielākā temperatūru diapazonā.



1.6. att. Refleksa Joslas intensitātes profila atkarība no lādiņu koncentrācijas n_o .¹⁷

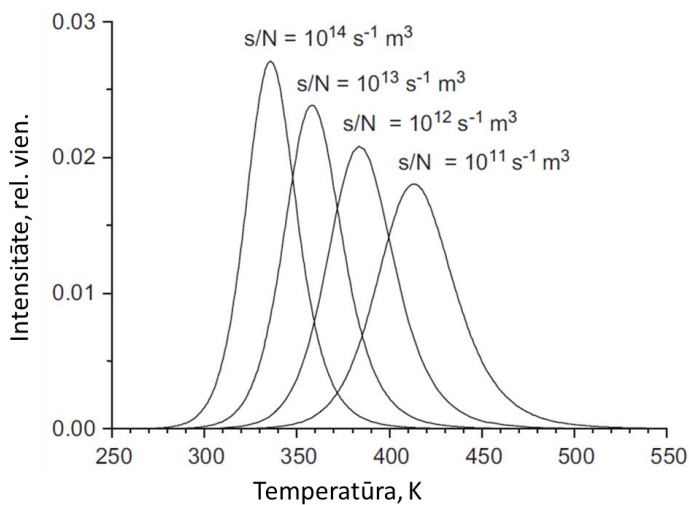
1.6. attēlā ir attēlotas TSL refleksa joslas intensitātes profila atkarība no lādiņu koncentrācijas n_o pie otrās pakāpes kinētikas. Arī šajā gadījumā saglabājas tie paši secinājumi,

kas pie pirmās pakāpes vienādojuma. Refleksa Joslas intensitāte ir tieši proporcionāla atbrīvoto lādiņnesēju koncentrācijai.



1.7. att. Refleksa Joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no lādiņu slazda aktivācijas enerģijas E .¹⁷

1.7. attēlā ir attēlotas TSL refleksa joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no lādiņu slazda aktivācijas enerģijas E pie otrās pakāpes kinētikas. Saglabājas pirmās pakāpes vienādojuma secinājumi. Pieaugot slazdu aktivācijas enerģijai ne tikai refleksa joslas maksimums tiek nobīdīts uz augstākām temperatūrām, bet arī mainās refleksa joslas līknes profils. Samazinoties refleksa joslas maksimumam, pieaug refleksa joslas pamata platums, atstājot refleksa joslas laukumu nemainīgu.

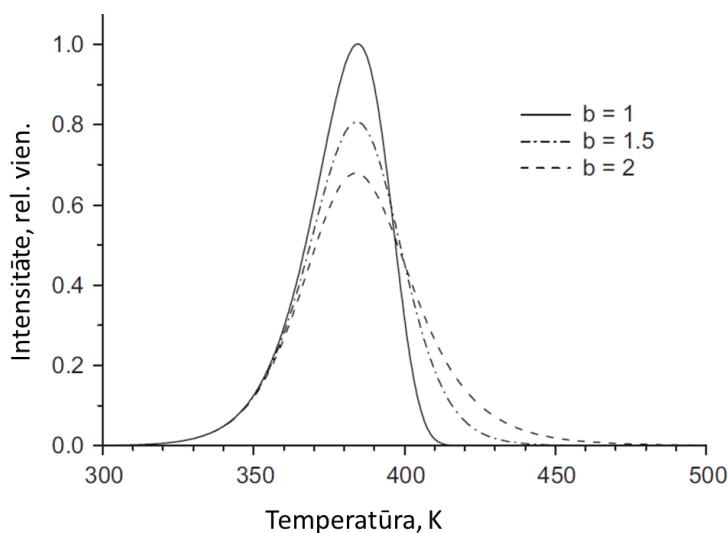


1.8. att. Refleksa Joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no frekvences faktora s .¹⁷

1.8. attēlā ir attēlotas TSL refleksa joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no frekvences faktora s pie otrās pakāpes kinētikas. Arī pie otrās pakāpes kinētikas saglabājas tie paši secinājumi, kas pie pirmās pakāpes vienādojuma. Elektronam slazdam ar augstāku frekvences faktoru nepieciešams mazāk enerģijas, t.i., zemāka temperatūrai, lai no šī slazda izkļūtu.^{21,17}

1.6. Starppakāpju kinētika

TSL procesam var piemist ne tikai pirmās vai otrās pakāpes kinētika, bet arī jebkura no pakāpēm starp pirmo un otro pakāpi.



1.9. att. Refleksa Joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no termoluminiscences kinētikas pakāpes, b .¹⁷

1.9. attēlā ir attēlotas TSL refleksa joslas intensitātes profila un novietojuma atkarība no kinētikas pakāpes b . Attēlā var redzēt, ka neatkarīgi no pakāpes refleksa joslas intensitātes, maksimuma novietojums nemainās. Mainās tikai refleksa joslas intensitātes profila forma, atstājot laukumu nemainīgu.^{22,17}

Kinētikas pakāpi ir iespējams aprēķināt, izmantojot Izotermālās defektu sabrukšanas metodi. Šajā Minētājā metodē tipiski paraugs tiek apstarots un vienlaikus uzkarsts līdz noteiktai temperatūrai, kura pēc tam ir konstanta konkrētu laika posmu. Šajā laika posmā nepārtraukti tiek mērīts izdalīto fotonu daudzums. Izdalīto fotonu daudzuma krituma kritumu

laikā var izmantot, lai aprēķinātu kinētikas pakāpi. Aprēķinos izmanto Izotermālās defektu sabrukšanu raksturojošo vienādojumu (1.2. vienādojums):

$$\left(\frac{I_0}{I_t}\right)^{\frac{b}{b-1}} = \left[1 + s(b-1)t * e^{\left(\frac{-E}{kT}\right)}\right] \quad (1.2.)$$

kur t – laiks, s;

I_0 – sākotnējā intensitāte, relatīvas mērvienības, tipiski nomērīto fotonu skaits;

I_t – intensitāte laikā t , s;

b – kinētikas pakāpe;

s – frekvences faktors, L/mol*s;

E – ķērājcentra enerģija, eV;

k – Bolcmaņa konstante;

T – temperatūra, K;

e – Eilera skaitlis.

Šī vienādojuma kreisās puses rezultāta attiecībai sakarībai pret ar laiku, pie pareizi izvēlētas kinētikas pakāpes, būtu jāveido taisne.jābūt lineārai.²³

1.7. Refleksa Joslas intensitātes profila matemātiskie tuvinājumi

Randala - Vilkinsa modelis

Randala - Vilkinsa modelis modelī tiek pieņemts, ka termoluminiscences procesā defektu rekombinācijas ātrums ir vienāds ar ātrumu, ar kādu defekti izkļūst no lamatām. Šajā modelī elektrona iespēju izkļūt no lamatām raksturo Arēniusa vienādojums (1.3.). Savukārt, termoluminiscences intensitāti intensitāte I konstantā temperatūrā tiek pieņemta kā proporcionāla ātrumam, ar kuru defekti izkļūst no lamatām. To raksturo vienādojums:

$$I = -c \left(\frac{dn}{dt}\right) = cpn \quad (1.3.)$$

kur I – termoluminiscences intensitāte, relatīvas mērvienības, tipiski nomērīto fotonu skaits;

c – proporcionalitātes konstante;

n – lamatās esošo lādiņu skaits;

t – laiks, s;

p – iespējamība ka lādiņš izkļūs no lamatām laika vienībā.

Šajā modelī termoluminiscences refleksa joslas formu raksturo vienādojums (1.4.):

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) * \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right] \quad (1.4.)$$

kur n_0 – sākotnējais lamatās esošo lādiņu skaits;

β – karsēšanas ātrums, K/s;

T_0 – sākotnējā temperatūra, K.

Lai modeļus būtu iespējams praktiski izmantot aprēķinos ir nepieciešams atbrīvoties no integrēšanas un atvasināšanas darbībām. Tāpēc vairumam modeļu ir izstrādāti vienkāršojumtuvinājumi, kurus izmanto aprēķinos modeļu vietā. Randala - Vilkinsa modeļa populārākais plašāk izmantotais vienkāršojums tuvinājums(1.5.):

$$I(T) = I_m * \exp\left(\frac{E}{kT_m} - \frac{E}{kT}\right) \exp\left(\frac{E}{kT_m} \left(\alpha \left(\frac{E}{kT_m}\right)\right) - \frac{T}{T_m} \exp\left(\frac{E}{kT_m} - \frac{E}{kT}\right) \alpha \left(\frac{E}{kT}\right)\right) \quad (1.5.)$$

kur I_m – intensitāte maksimumā;

T_m – temperatūra maksimumā;

α – 4. pakāpes polinomālais koeficients.

Garlika – Gibsona modelis

Garlika – Gibsona modelis ir modelis, kas pieņem, ka brīvs lādiņš var gan nokļūt lamatās, gan rekombinēties. Šajā modelī tiek ieviesta kinētikas pakāpe, tomēr tā netiek ieviesta kā mainīgais, bet gan kā aproksimēta vērtība 2. Kinētikas pakāpe raksturo varbūtību, ka brīvais lādiņš rekombinēsies, attiecībā pret varbūtību, ka lādiņš nokļūs lamatās.

Šajā modelī termoluminiscences refleksa joslas formu raksturo vienādojums (1.6.):

$$I(T) = n^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = \frac{n_0^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^2} \quad (1.6.)$$

kur n – elektronu skaits, kas atrodas lamatās;

s' – konstante, pirmsekspontes faktors, kā vērtību var raksturot izmantojot s/N attiecību.

Meja - Pārtridža modelis

Kad Ja brīvie lādiņi nepakļaujas nedz pirmās, nedz otrās pakāpes kinētikai, tad ir iespējams izmantot vispārējās pakāpes kinētiku, t.i., starppakāpju kinētiku jeb jebkuru kinētikas pakāpi starp 1. un 2. ieskaitot.

Vispārējo pakāpju kinētikas raksturošanai var izmantot pusempīrisko Meja – Pārtridža modeli, kurš ir balstīts uz Randala – Vilkinsa modeļa, ieviešot mainīgo b – kinētikas pakāpi (1.7. vienādojums).

$$I(T) = s'' n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s''(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{\frac{b}{b-1}} \quad (1.7.)$$

kur s'' – pirmseksponentes faktora atvasinājums.

Meja – Pārtridža modeļa populārākais vienkāršojumsplašāk izmantotais tuvinājums (1.8. vienādojums):

$$I(T) = s * n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[\frac{skT^2}{\beta E} * \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left(1 - \frac{2kT}{E}\right) + 1\right]^{-2} \quad (1.8.)$$

kur 2 – izvēlēts kā aproksimētā kinētikas pakāpes vērtība. ¹⁷

2. EKSPERIMENTĀLĀ DAĻA

Eksperimentālajā daļā aprakstītas izmantotās vielas, to sagatavošanas process, izmantotā aparatūra un datu apstrādes metodes.

2.1. Izmantotās vielas un to sagatavošana

GGAG:Ce kristāls, 95% etanola ūdens šķīdums.

Paraugs ir griezts un pulēts GGAG: Ce kristāls, ražots JSC “Fomos-Materials” (Maskava, Krievija), kurš pēc sintezēšanas sintezes izturēts vakuumā 773,15 K temperatūrā, Ce saturs audzēšanas substrātā 3% no masas.²⁴

Pirms ievietošanas iekārtā “Lexsyg research TL/OSL” paraugs tika notīrīts, izmantojot etanola ūdens šķīdumu.

2.2. Izmantotā aparatūra

Paraugu apstaroja un karsēja, un TSL datus uzņēma iekārtā “Lexsyg research TL/OSL”, starojuma avoti Sr^{90} 55 mGy/s un rentgenlampa ar W anodsu, spriegums 40 kV, strāva 0.5 mA. Izmantotais karsēšanas ātrums 2 K/s.

Radioluminscences mērījumiem izmantoja “Lexsyg research TL/OSL” pieejgto Andor SR-303i-B spektrometru ar DV420A-BU2 CCD moduli.

2.3. TSL mērījumi

Gan parauga apstarošana, gan TSL mērījumus veica iekārtā “Lexsyg research TL/OSL”.

Apzinoties iepriekšējās karsēšanas un gaismas ietekmi uz TSL izdalītās gaismas daudzumu, sastādīja mērījumu programmu, kurā pirms katras apstarošanas paraugu izkarsēja un neņēma ārā no iekārtas, lai samazinātu gaismas ietekmi. Viena mērījumu programmas cikla procesi redzami 2.1 tabulā. Lai pārliecinātos par rezultātu precizitāti ciklu atkārtoja 3 reizes.

TSL mērījumus veica izmantojot divus starojuma avotus Sr^{90} un W anoda rentgenlampu. Laika apsvērumu dēļ, izmantojot rentgenlampu, mērījumus ieguva tikai vienam ciklam. Paraugu apstaroja 300s jeb 5 min.

Pirmais karsēšanas process tiek veikts, lai iegūtu atkārtojamus rezultātus, jo eksperimenta gaitā tika noteikts, ka iepriekšēja karsēšana ietekmē TSL līknes formu.

Viena TSL mērijumu programmas cikla procesi un to ilgums, s

Nr.	Process	Ilgums, s	Nr.	Process	Ilgums, s
1.	Karsēšana	600	12.	Gaidīšana	1000
2.	Apstarošana	1800	13.	TSL mērijuma veikšana	600
3.	Gaidīšana	10	14.	Apstarošana	1800
4.	TSL mērijuma veikšana	600	15.	Gaidīšana	3600
5.	Apstarošana	1800	16.	TSL mērijuma veikšana	600
6.	Gaidīšana	100	17.	Apstarošana	1800
7.	TSL mērijuma veikšana	600	18.	Gaidīšana	7200
8.	Apstarošana	1800	19.	TSL mērijuma veikšana	600
9.	Gaidīšana	500	20.	Apstarošana	1800
10.	TSL mērijuma veikšana	600	21.	Gaidīšana	14400
11.	Apstarošana	1800	22.	TSL mērijuma veikšana	600

2.4. TSL līkņu dalīšana komponentēs

TSL līkņu dalīšanai komponentēs izmantoja “Wolfram mathematica” rakstītu skriptu. Vienas TSL līknes līkņu aprakstīšanai izmantoja Meja - Pārtridža modeļa vienkāršojumutuvinājumu, jo no tā ir ar to ir iespējams iegūt ķērājcentru raksturlielumus, kā arī ar to ir iespējams raksturot starppakāpju TSL procesus. Kopējā TSL līkne tika aprakstīta kā visu TSL līkņu komponentu summa. Aprēķinos iegūto TSL līkņu pielīdzināšanai eksperimentālajiem datiem izmantoja *FindFit* funkciju, kura izmantokas balstās uz mazāko kvadrātu metodi, lai sasniegtu labāko rezultātu. Šai Dotjai funkcijai nav pieejamas analīzes funkcijas, tai skaitā atlikumu analīze. Kā mainīgās vērtības modelī izvēlējās Intensitāti intensitāti jeb reģistrēto fotonu skaitu, ķērājcentra enerģiju un frekvences faktoru. Aprēķinus veica izmantojot kinētikas pakāpes b vērtību 2, kas ir modeļa vienkāršojuma tuvinājuma universālā aproksimētā vērtība, un 1,65, kas ir aprēķinātā vērtība, iegūta, izmantojot izotermālo sabrukšanas metodi.

FindFit funkcija “Wolfram mathematica” valodā ir novecojusi funkcija, kas nav tikusi atjaunota kopš 6. “Wolfram mathematica” izdevuma (Skripts tika rakstīts 12. izdevumā). Tas nozīmē, ka funkcijai nav pieejamas vairākas apakšfunkcijas. Tomēr konkrētajai datu sērijai, aprēķinos izmantojot Meja - Pārtridža modeli, ir nepieciešams ieviest vismaz 12 mainīgos, tik lielu mainīgo skaitu ir iespējams izmantot tikai ar *FindFit* funkciju. Datu sērijām ar tikai vienu TSL joslu, attiecīgi 4 mainīgajiem vai mazāk, labāk būtu izmantot *NonlinearFit* funkciju, kurā ir iestrādātas arī rezultātu analīzes apakšfunkcijas, piemēram, atlikumu analīze.

2.5. Radioluminiscences spektra uzņemšana

Radioluminiscences spektru uzņēma, izmantojot “Lexsyg research TL/OSL” iekārtu ar piejūgtu Andor SR-303i-B spektrometru, DV420A-BU2 CCD moduli. Kā starojuma avotu izmantoja rentgenstaru lampu.

2.6. Rezultātu matemātiskā apstrāde

TSL līknes ieguva no neapstrādātajām TSL līknēm atņemot fonu, kas iegūts, mērot TSL neapstarotam paraugam.

Manuāli integrējot TSL līknes, ieguva kopējo laukumu zem līknēm, kas raksturo kopējo izdalīto gaismu un norāda uz parauga dozimetriskajām īpašībām.

Formula, kas izmantota TSL līknes laukuma aprakņāšanai aprēķināšanai (2.1. vienādojums):

$$\sum_{T=297K}^{T=523,15K} \frac{I_1 + I_2}{2} * (T_2 - T_1), \quad (2.1.)$$

kur T_1 – temperatūras mērījums;

T_2 – sekojošais temperatūras mērījums;

I_1 – intensitāte, kas atbilsts T_1 ;

I_2 – intensitāte, kas atbilsts T_2 .

Dati ir trokšņaini, tomēr TSL līknes vērtībām neveica eksponenciālo izlīdzināšanu, jo tā ietekmētu iegūto līkņu formu.

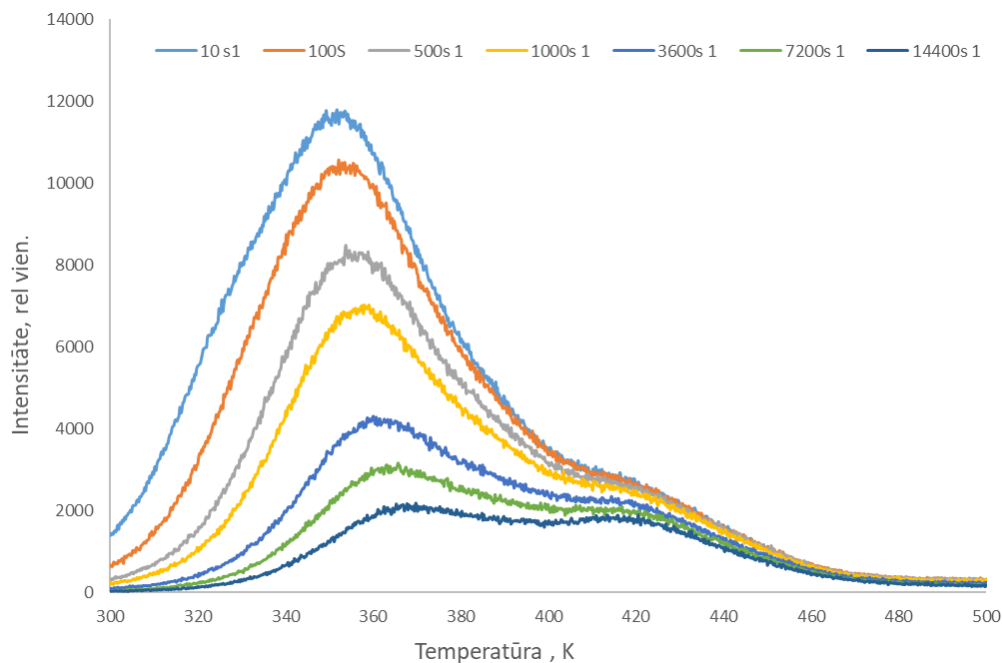
Izotermālās sabrukšanas metodei izmantoja datus, kas iegūti 2.1. tabulā aprakstītajā programmā. Starp datiem, kas iegūti ar šo mērījumu programmu un izotermālajā sabrukšanas metodē iegūstamajiem datiem pastāv tieša sakarība, tāpēc tos ir iespējams izmantot kinētikas

pakāpes aprēķinos. Ar šo metodi tika piemeklēta kinētikas pakāpes vērtība, kura, ievietojot vienādojumā, deva vienādojuma vērtības, kuru attiecība pret laiku bija lineāra. Linearitāte tika noteikta izmantojot mazāko kvadrātu metodi.

3. REZULTĀTI UN TO IZVĒRTĒJUMS

3.1. Parauga TSL līkņu iegūšana pēc apstarošanas ar β starotāju

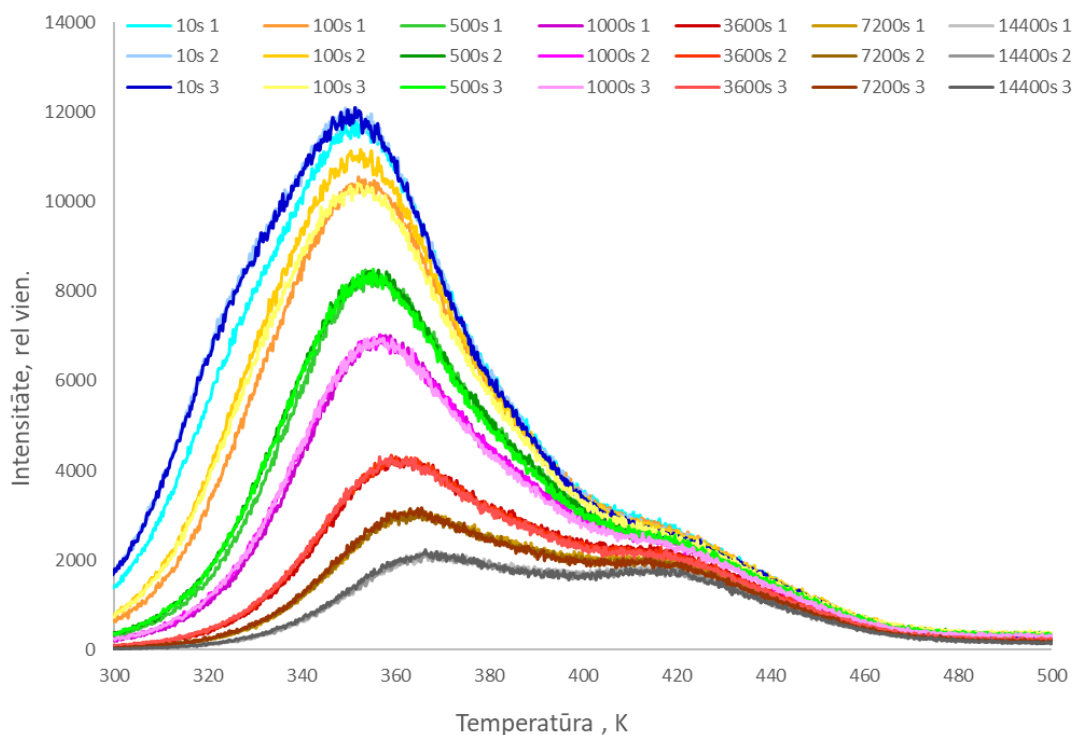
Parauga TSL līknes tika iegūtas veicot 2.1. tabulā aprakstītos ciklus.



3.1. att. 1. mērījumu cikla TSL līknes apstarojot paraugu ar β starotāju

3.1. attēlā redzamas 1. mērījumu ciklā iegūtās TSL līknes. Leģendā TSL līknes apzīmētas pēc laika starošanas beigām un TSL mērījumu sākumu.

Šajā attēlā ir redzams, ka TSL līkne sastāv no vismaz divām atsevišķām joslām, ar maksimumiem pie 360K un 420K, kuras katra sabrūk ar citādu ātrumu. 10s mērījumā iespējams redzēt vēl vienu iespējamu joslas maksimumu pie 330K, kas kopējā TSL līknē veido nelielu pacēlumu pie sava maksimuma.. Pieaugot gaidīšanas laikam kopš apstarošanas mainās tā maksimuma novietojums, kurš atrodas ap 360K, kas arī norāda uz to, ka TSL līkni veido vairāk nekā divas joslas.



3.2. att. Visu mērījumu ciklu TSL līknes apstarojot paraugu ar β starotāju

3.2. attēlā redzamas visu 3 mērījumu ciklā iegūtās TSL līknes. Leģendā TSL līknes apzīmētas pēc laika starošanas beigām un TSL mērījumu sākumu, un cikla numura.

Ņemot vērā, ka TSL līknes maksimumi, izotermālos apstākļos, istabas temperatūrā, samazinās, var pieņemt, ka GGAG:Ce kristāliem istabas temperatūrā ir novērojama lēnā pēcspīdēšana.

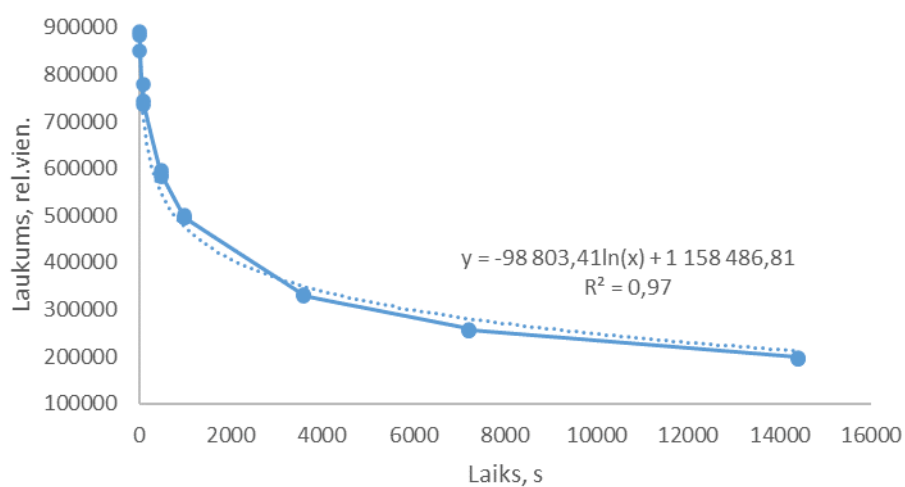
3.2. TSL līkņu laukumi pēc apstarošanas ar β starotāju un to analīze

No iegūtajām TSL līknēm atņēma fonu un aprēķināja zem tām esošos laukumus, kuri ir apkopti 3.1. tabulā. Zem TSL līknēm esošie laukumi raksturo kopējo termolumumisniscenē parauga izstarotās gaismas daudzumu.

3.1. tabulā apkoptie zem TSL līknēm esošie laukumi attiecināmi pret laiku starp apstarošanu un TSL mērījumu. Tika iegūta sakarība, kas attēlota 3.3. attēlā.

Zem TSL līknēm esošo laukumu apkopojums

Mērījumu cikls	Gaidīšanas laiks, s	Laukums zem līknes, rel. vien.
1	10	849980,54
2	10	890649,84
3	10	882748,86
1	100	735984,04
2	100	780166,86
3	100	744038,60
1	500	583510,19
2	500	596296,64
3	500	586776,46
1	1000	496033,78
2	1000	501034,17
3	1000	494981,88
1	3600	330713,66
2	3600	332003,45
3	3600	328535,06
1	7200	258867,91
2	7200	255067,01
3	7200	255821,13
1	14400	198099,64
2	14400	195447,61
3	14400	196332,30



3.3.att. Zem TSL līknes esošo laukumu atkarība no laika pēc apstarošanas

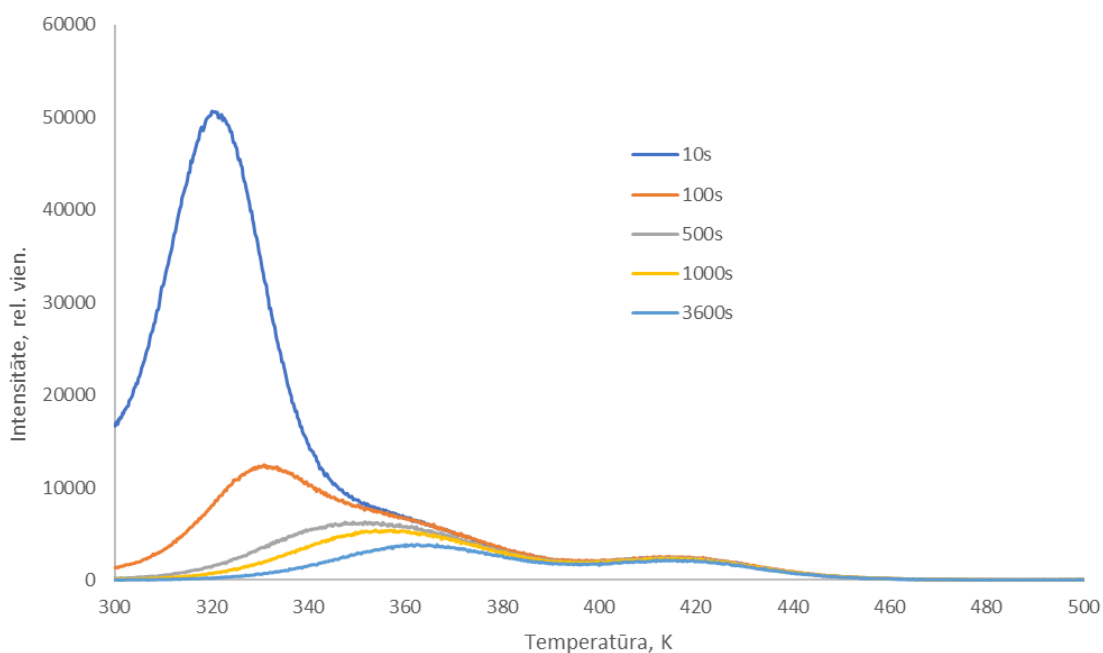
3.3. attēlā parādīta sakarība starp zem TSL līknes esošo laukumu un laiku starp apstarošanu un TSL mērījumu. Redzama logaritmiska sakarība, kas ar eksperimentālajiem datiem sakrīt ar $R^2 = 0,97$.

Augstā sakrītība skaidrojama ar to, ka, lietojot mērījumu programmu, kurā paraugs nenonāk saskarē ar gaismu un pirms katra mērījuma tiek izkarsēts, atceļas vairākikā rezultātā tiek izslēgti blakus faktori, kas ietekmē parauga izstaroto gaismas daudzumu.

Logaritmiska sakrītība norāda uraksturoz uzkrāto lādiņu stabilitāti, kas savukārt norāda raksturo uz parauga dozimetriskajās īpašībās, . tomērTomēr, lai par tām pilnvērtīgi spriestuizvērtētu pielietojumu dozimetrijā, būtu nepieciešams noteikt zem TSL līknēm esošo laukumu, t.i. kopējoā termolumumismiscencē parauga izstarotās gaismas daudzuma atkarību no dozas, ar kuru paraugs apstarots, kā arī būtu nepieciešams iegūt datus par ilgākiem laikiem starp apstarošanu un TSL mērījumu.

Izmantojot laukumu parametru, var arī pārliecināties par izmantotās metodes precizitāti un atkārtojamību.

3.3. Parauga TSL līkņu iegūšanalīknes pēc apstarošanas ar rentgenstariem



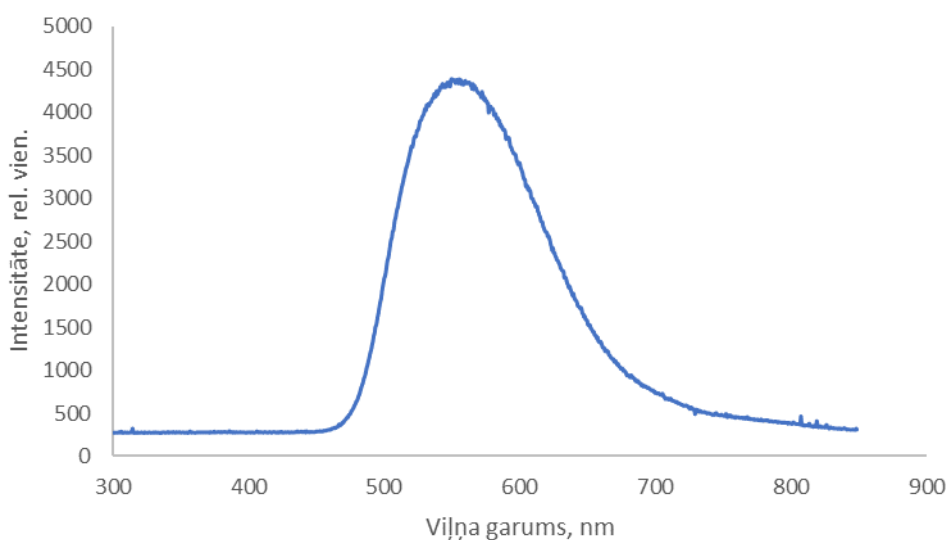
3.4. att. 1. mērījumu cikla TSL līknes apstarojot paraugu ar rentgenstariem

3.4. attēlā redzami vienīgajā ciklā, kurā paraugu apstaroja ar rentgenstariem, iegūtās TSL līknes. Legēndā TSL līknes apzīmētas pēc laika starp starošanas beigām un TSL mērījumu

sākumu. Atšķirības starp 3.2. un 3.4. varētu izskaidrot ar to, ka kopējā doza bija lielāka, starojot ar rentgenstariem.

Lai varētu salīdzināt datus starp starotājiem, būtu jāveic papildus cikli, apstarojot paraugus ar rentgenstarojumu un vienādu kopējo dozu, kā arī salīdzinot ar programmas cikliem, kas tika veikti apstarojot ar β starotāju.

3.4. Radioluminiscences dati un to izvērtējums



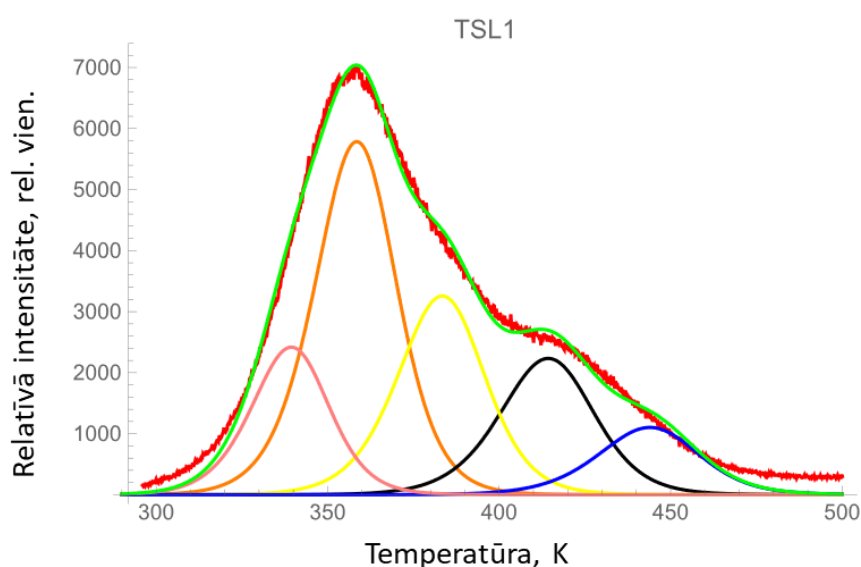
3.5. att. Parauga radioluminiscences spektrs paraugu apstarojot ar rentgenstariem

3.5. attēlā redzams radioluminiscences spektrs, apstarojot paraugu ar rentgenstariem. Radioluminiscencē izstaroto viļņu aptuvenais garumsa diapazons ir no 500 līdz 650 nm, ar maksimumu pie 530 nm. Iegūtais rezultāts ir pielīdzināms un atbilst literatūrā piedāvātajiem datiem. Istabas temperatūrā iegūtajam radioluminiscences spektram nav iespējams izdalīt vairākus maksimumus, tomēr literatūrā pie temperatūras aprakstīta radioluminiscence 10K temperatūrā, kur ir iespējamas izdalīt divus maksimumus, vienu pie 530 nm un vienu pie 590 nm.¹⁴ Ņemot vērā, ka istabas temperatūrā ir novērojams tikai viens maksimums, tad var pieņemt ka pāreja $5d - ^2F_{7/2}$ notiek biežāk nekā $5d - ^2F_{5/2}$. Būtu noderīgi uzņemt radioluminiscences spektru, apstarojot paraugu ar β starotāju.

3.5. TSL līkņu dalīšana atsevišķās joslās

TSL līkņu dalīšanai komponentēs tika izmantots “Wolfram mathematica” rakstīts skripts. Vienas TSL joslaslīknes aprakstīšanai tika izmantots Meja - Pārtridža modeļa vienkāršojums.

Rezultātu un to izvērtējuma 2. sadaļā tika noskaidrots, ka kopējais izotermālais defektu sabrukšanas process vislabāk atbilst logaritmiskai sakarībai. Un, kā arī kopējā fotonu izdalīšanās būs summa no katras komponentes visu komponentu summa. Raksturojot eksperimentālo procesu matemātiski, var pieņemt, ka vienas joslas intensitātes izmaiņa laikā ir intensitātes atvasinājums pēc laika, savukārt, un atvasinājums no summas ir summa no atvasinājumiem ir atvasinājums no summas. Summārais process atbilst logaritmiskai sakarībai un tādēļ tiek pieņemts, ka katras komponentes defektu sabrukšanai arī būtu jāatbilst logaritmiskai sakarībai.



3.6. att. Programmā “Wolfram mathematica” iegūtais TSL līknes dalījums joslās

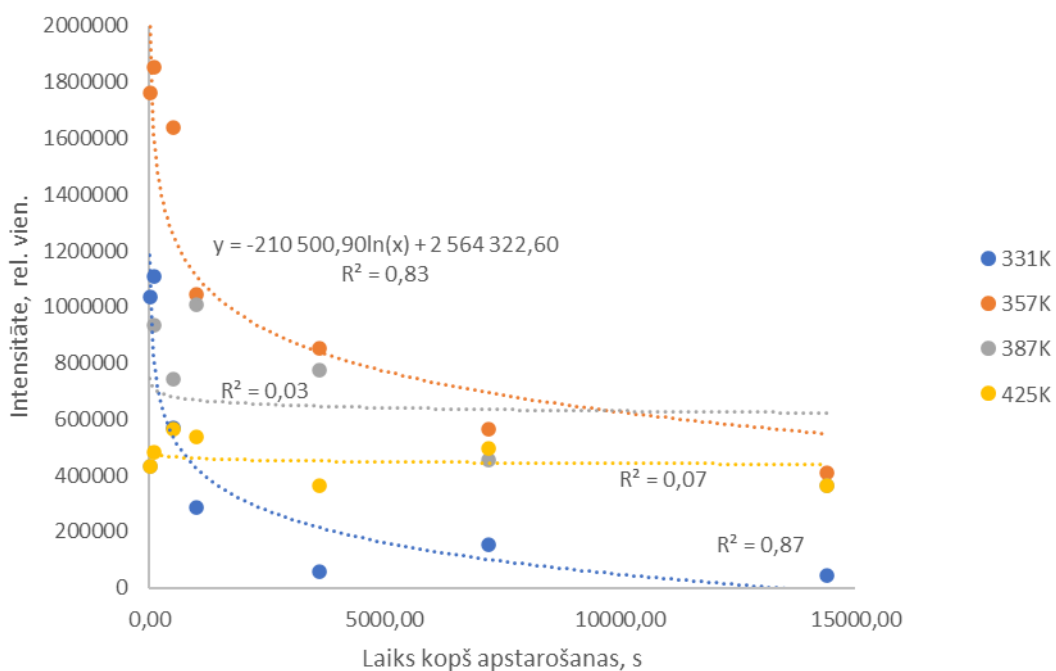
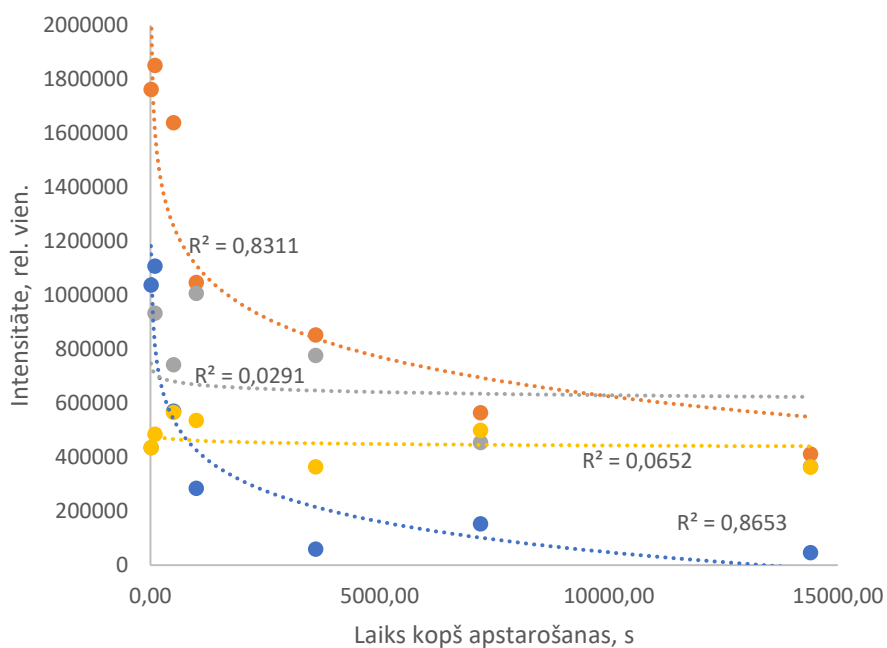
3.6. attēlā iespējams redzēt TSL līkņu dalīšanu atsevišķās joslās, kā arī aprēķinos iegūto vērtību atbilstību eksperimentālajiem datiem. Sarkanā līkne attēlo eksperimentāli iegūtos datus, savukārt zaļā līkne attēlo summāro vērtību aprēķinos iegūtajām joslām.

3.2. tabula

Ar β starotāju apstarotā parauga no TSL līknēm izdalīto pīķu raksturlielumi izmantojot kinētikas pakāpi 2

Nr.	Maksimuma temperatūra, K	Slazda aktivācijas Energija, eV
1.	331±4	1,07±0,08
2.	357±6	01,25±0,07

3.	387±8	1,20±0,05
4.	425±3	1,41±0,03



3.7. att. Izmantojot kinētikas pakāpi 2, programmā “Wolfram mathematica” izdalīto joslu intensitātes atkarībā no laika.

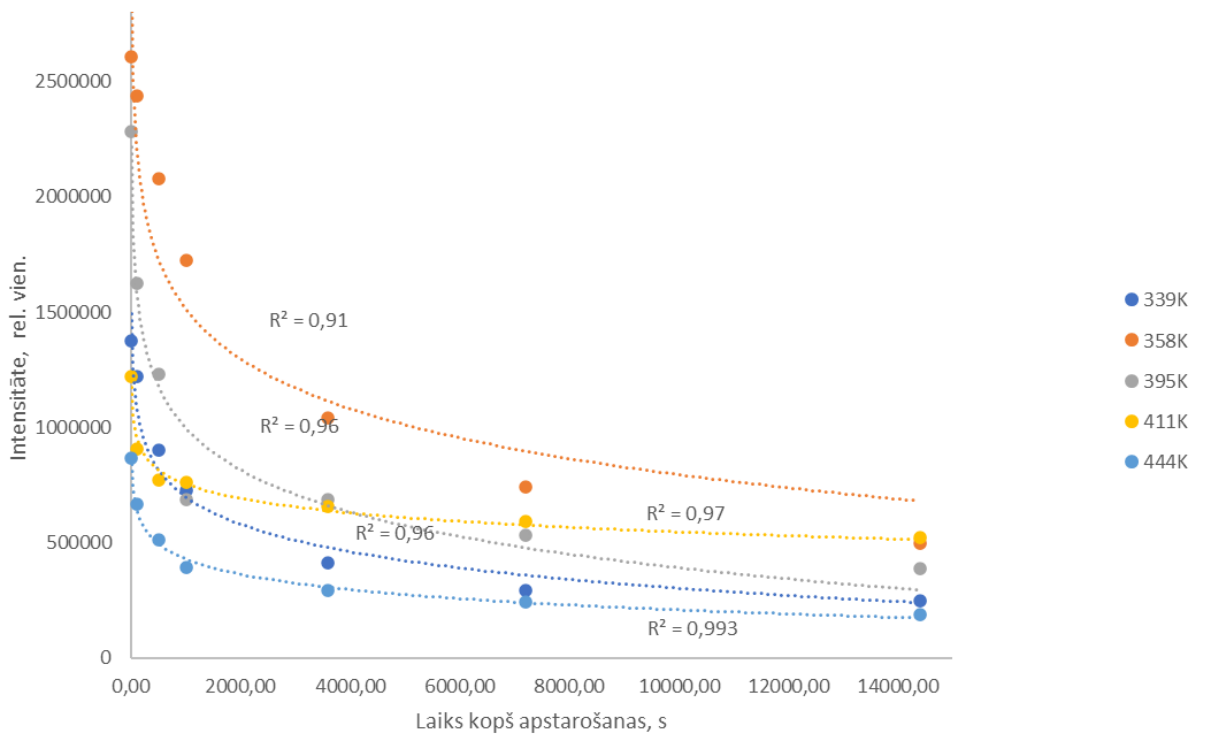
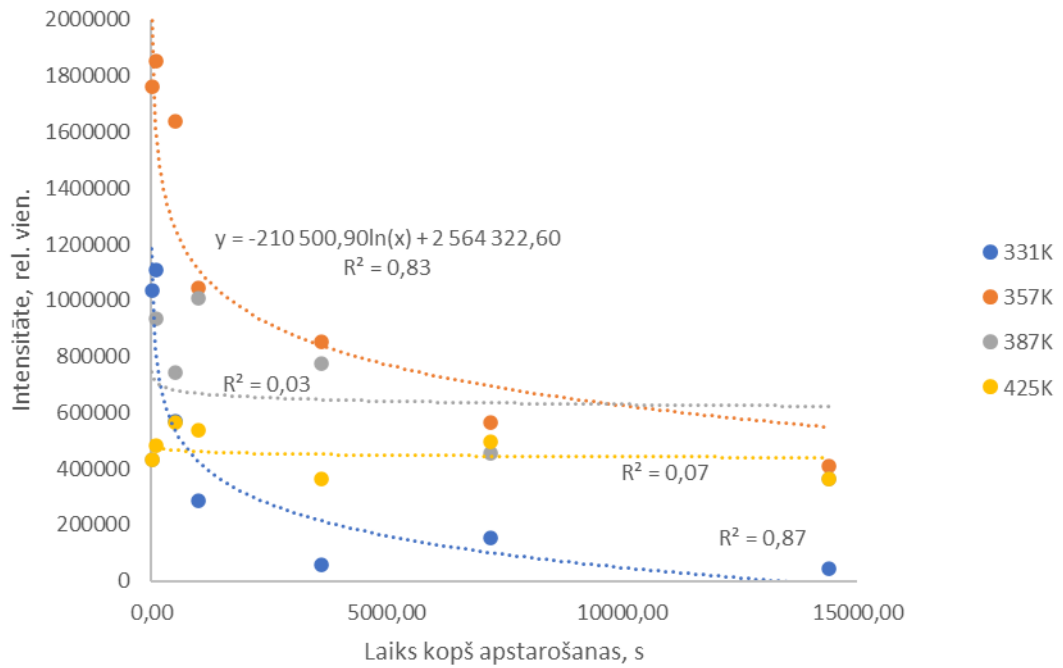
Izmantojot aproksimēto kinētikas pakāpes vērtību 2, aprēķinos tika iegūtas maksimumu temperatūru un ķerājcentru enerģiju vērtības ar mazu izkliedi. Tās daļēji sakrīt ar literatūras datiem, jo literatūrā tiek piedāvāti tikai trīs refleksi joslas ar atšķirīgām slazda aktivācijas enerģijām, tomēr maksimumu temperatūras ir līdzīgas.¹⁴ Izdalīto joslu intensitāšu atkarība no laika neveido logaritmiskas sakarības, kas ir pretstatā ar apakšnodaļas sākumā minēto argumentu. Šī iemesla dēļ ar šo metodi iegūto vērtību ticamība ir apšaubāma (3.2. tabula, 3.7. attēls).

Optimizējot metodi un mēģinot uzlabot metodes precizitāti, vienādojumā tika ieviesta aprēķinātā kinētikas pakāpes vērtība $1,65 \pm 0,01$. Kinētikas pakāpe tika aprēķināta, izmantojot literatūras apskatā un eksperimentālajā daļā aprakstīto izotermālo sabrukšanas metodi (3.3. tabula, 3.8. attēls).

3.3.tabula

Ar β starotāju apstarotā parauga no TSL līknēm izdalīto pīķu raksturlielumi izmantojot kinētikas pakāpi 1,65

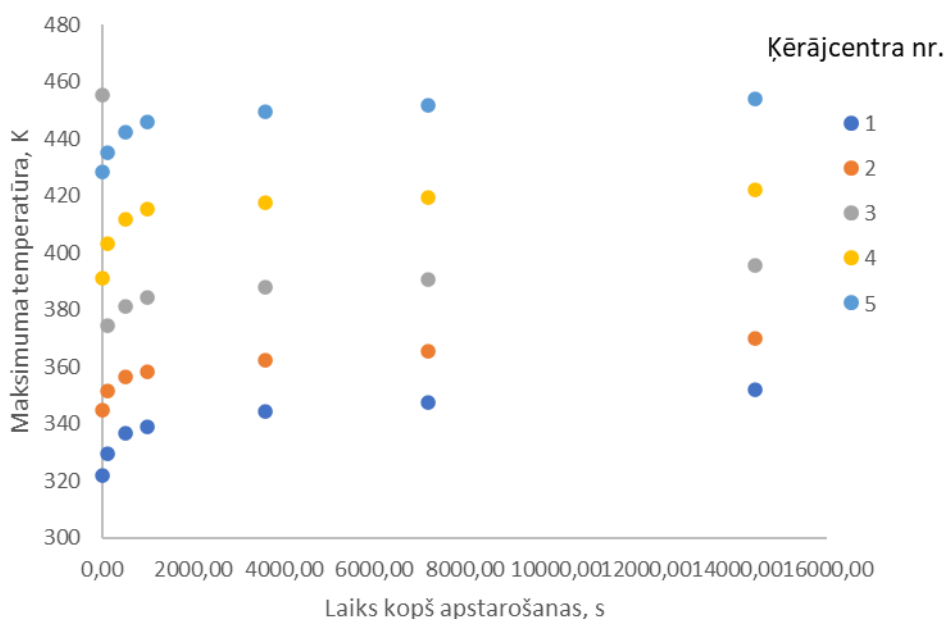
Nr.	Maksimuma temperatūra, K	Slazda aktivācijas Enerģija, eV
1.	339±13	1,13±0,05
2.	358±11	1,21±0,04
3.	395±34	1,29±0,05
4.	411±14	1,38±0,05
5.	444±12	1,49±0,04



3.8. att. Izmantojot kinētikas pakāpi 1,65, programmā “Wolfram mathematica” izdalīto joslu intensitātes atkarībā no laika

Izmantojot kinētikas pakāpi 1,65, aprēķinātās maksimumu temperatūru vērtības, salīdzinot ar neoptimizēto metodi ir ar lielāku izkliedi, savukārt ķērājcentru enerģiju izkliede ir maza un pielīdzināma tai, ko ieguva ar neoptimizētu metodi. Lielākā atšķirība, salīdzinot ar

neoptimizētu metodi, būtu, ka optimizētajā metodē, izdalīto joslu intensitāšu atkarība no laika veido izteiktas logaritmiskas sakarības.



3.9. att. Izmantojot kinētikas pakāpi 1,65, programmā “Wolfram mathematica” izdalīto joslu maksimumu nobīde atkarībā no laika

3.7. un 3.8. attēlā attēloti programmā “Wolfram mathematica” izdalīto refleksu joslu intensitātes atkarībā no laika. Leģendā atsevišķāsie refleksi joslas apzīmēti ar temperatūrām, kurās atrodas to maksimumi. No iegūtajiem grafikiem var secināt, ka, palielinoties maksimuma temperatūrai, palielinās arī tā stabilitāte, kas atbilst teorijai.¹⁷

Lielā temperatūru izkliede liecina par to, ka nepieciešama tālāka modeļa optimizācija. Kā redzams 3.9. attēlā, visstraujākā temperatūru nobīde ir novērojama pie zemākā laika kopš apstarošanas, to var skaidrot, ka pie zemākajām laika vērtībām notiek straujākā defektu sabrukšana un attiecīgi to ķērājcentru intensitāte, kuru maksimumi ir zemākās temperatūrās sabrūk pirmie, nobīdot atrasto maksimumu temperatūras pie lielākām laika vērtībām. Lai šo problēmu risinātu ir nepieciešams iestatīt “cietās” vērtības, kuras nevar mainīties nākamajos aprēķinos. Funkcijai *FindFit* šādas iespējas nav, tādēļ nāktos mainīt funkciju, ar ko tiek meklēti ķērājcentri. Vislabākais variants risinājums būtu atrast sākotnējas ķērājcentru raksturojošās vērtības, izmantojot *FindFit* funkciju, un pārējos mērījumos ar lielākiem gaidīšanas laikiem lietot funkciju *NonlinerFit*, kam ir iespējams uzstādīt “cietās vērtības”. *NonlinearFit* nav iespējams izmantot pirmo vērtību atrašanai, jo tas nespēj meklēt tuvinājumus datiem bez “cietām” vērtībām. Lai izmantotu *NonlinearFit*, kā mainīgos var atstāt tikai konkrēto joslu intensitātes, jo tad mainīgo skaits būtu pietiekami mazs.

Liels ieguvums šādam metodes uzlabojumam būtu tas, ka *NonlinearFit* funkcijai ir iespējams veikt atlikumu analīzi, ar ko būtu iespējams noteikt aprēķināto vērtību atbilstību eksperimentālajiem datiem.

Lielāku drošību par datu ticamību var ieviest pierādot konkrēta ķērājcentru skaita pastāvēšanu apskatāmajā temperatūru diapazonā. To varētu mēģināt panākt karsējot paraugu ar dažādiem karsēšanas ātrumiem vai arī izmantojot “start & stop” metodi, kurā apstarotais paraugs tiek karsēts līdz konkrētai temperatūrai, lai atbrīvotos no lādiņiem, kas atrodas ķērājcentros ar aktivācijas enerģiju zem izvēlētās temperatūras. Tādējādi tiek uzņemta pilna TSL aina, lai redzētu vai ķērājcentru aktivizēšana ir izmainījusi TSL līknes profilu.

SECINĀJUMI

1. Izstrādāta parauga apstarošanas un TSL mērījumu metode ar labu atkārtojamību.
2. Istabas temperatūrā GGAG:Ce ir novērojama ilgā pēcspīdēšana, kas ierobežo materiāla pielietojamību detektoros, kas paredzēti laikā tuvu notikumu detektēšanai.
3. Apstarojot ar rentgenstariem, uzņemts radioluminiscences spektrs, kurš atbilst literatūrā uzrādītam luminiscences spektram, kas iegūts apstarojot ar UV gaismu. Tātad nav slazdu ar ierosināšanas enerģiju starp UV gaismas enerģiju un rentgenstariem ar reģistrējamu daudzumu neeksistē. izmantotās metodes iespēju robežās nav konstatējami.
4. Dalot TSL līkni komponentēs iegūts atšķirīgs komponentu skaits no literatūrā piedāvātā, kas norāda uz iespējamu neprecizitāti literatūrā vai izvēlētajā datu analīzes metodē.
5. Noskaidrots, ka Meja – Pārtridža metodes optimizācija var palīdzēt iegūt precīzākus un ticamākus rezultātus, kā arī ir noskaidrots, kāda veida metodes optimizācija ir jāveic.

LITERATŪRAS AVOTI

1. (1) Kamada, K.; Yanagida, T.; Pejchal, J.; Nikl, M.; Endo, T.; Tsutsumi, K.; Fujimoto, Y.; Fukabori, A.; Yoshikawa, A. Crystal Growth and Scintillation Properties of Ce Doped $\text{Gd}_3(\text{Ga,Al})_5\text{O}_{12}$ Single Crystals. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **2012**, *59* (5), 2112–2115. DOI:10.1109/TNS.2012.2197024.
2. Soyvez, G. Pileup Mitigation at the LHC: A Theorist's View. *Phys. Rep.* **2019**, *803*, 1–158. DOI:10.1016/j.physrep.2019.01.007.
3. LHC iekšējais iepirkuma apspriešanas dokuments LHCC-P-009.Pdf
4. Marshall, Z. The ATLAS Collaboration. Simulation of Pile-up in the ATLAS Experiment. *J. Phys. Conf. Ser.* **2014**, *513* (2), 022024. DOI:10.1088/1742-6596/513/2/022024.
5. Lucchini, M. T.; Gundacker, S.; Lecoq, P.; Benaglia, A.; Nikl, M.; Kamada, K.; Yoshikawa, A.; Auffray, E. Timing Capabilities of Garnet Crystals for Detection of High Energy Charged Particles. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.* **2017**, *852*, 1–9. DOI:10.1016/j.nima.2017.02.008.
6. CMS Luminosity Measurement for the 2018 Data-Taking Period at $s = 13$ TeV. 34.
7. Hofer, H.; Lecomte, P.; Nessi-Tedaldi, F. Afterglow Measurements of Lead Tungstate Crystals. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.* **1999**, *433* (3), 630–636. DOI:10.1016/S0168-9002(99)00398-8.
8. Coleman A.C., Yukihara E.G. On the validity and accuracy of the initial rise method investigated using realistically simulated thermoluminescence curves. *Radiat. Meas.* **2018**
9. Melcher, C. L. Scintillation Crystals for PET. *J NucIMed.* **2000**, No. 41, 6.
10. Influence of the Crystal Structure Defects on Scintillation Properties. *Inorganic Scintillators for Detector Systems*; Particle Acceleration and Detection; Springer-Verlag: Berlin/Heidelberg, 2006; pp 123–173. DOI:10.1007/3-540-27768-4_4.
11. Leo, W. R. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*. Springer Berlin Heidelberg: Berlin, Heidelberg. **1994**. DOI:10.1007/978-3-642-57920-2.
12. Meng, F.; Koschan, M.; Wu, Y.; Melcher, C. L.; Cohen, P. Relationship between Ca^{2+} Concentration and the Properties of Codoped GGAG:Ce Scintillators. In *2014 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC)*; IEEE: Seattle, WA, USA. **2014**, pp 1–2. DOI:10.1109/NSSMIC.2014.7431229.
13. Giuseppe. D.; Riccardo, C.; Nicola, Z. u.c. A Summary on an Investigation of GAGG:Ce Afterglow Emission in the Context of Future Space Applications within the

HERMES Nanosatellite Mission. *Space Telescopes and Instrumentation 2020: Ultraviolet to Gamma Ray*. **2020**, Vol. 11444.

14. Pankratova, V.; Kozlova, A. P.; Buzanov, O. A.; Chernenko, K.; Shendrik, R.; Šarakovskis, A.; Pankratov, V. Time-Resolved Luminescence and Excitation Spectroscopy of Co-Doped $\text{Gd}_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ Scintillating Crystals. *Sci. Rep.* **2020**, *10* (1), 20388. DOI:10.1038/s41598-020-77451-x.
15. Mihóková, E.; Vávrů, K.; Kamada, K.; Babin, V.; Yoshikawa, A.; Nikl, M. Deep Trapping States in Cerium Doped $(\text{Lu},\text{Y},\text{Gd})_3(\text{Ga},\text{Al})_5\text{O}_{12}$ Single Crystal Scintillators. *Radiat. Meas.* **2013**, *56*, 98–101. DOI:10.1016/j.radmeas.2012.12.018.
16. Tyagi, M.; Meng, F.; Koschan, M.; Donald, S. B.; Rothfuss, H.; Melcher, C. L. Effect of Codoping on Scintillation and Optical Properties of a Ce-Doped $\text{Gd}_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ Scintillator. *J. Phys. Appl. Phys.* **2013**, *46* (47), 475302. DOI:10.1088/0022-3727/46/47/475302.
17. Zhu, Y.; Qian, S.; Wang, Z.; Guo, H.; Ma, L.; Wang, Z.; Wu, Q. Scintillation Properties of GAGG:Ce Ceramic and Single Crystal. *Opt. Mater.* **2020**, *105*, 109964. DOI:10.1016/j.optmat.2020.109964.
18. Bos, A. J. J. Theory of Thermoluminescence. *Radiat. Meas.* **2006**, *41*, S45–S56. DOI:10.1016/j.radmeas.2007.01.003.
19. Bilski, P.; Budzanowski, M.; Olko, P. A Systematic Evaluation of The Dependence of Glow Curve Structure on the Concentration of Dopants in $\text{LiF}:\text{Mg},\text{Cu},\text{P}$. *Radiat. Prot. Dosimetry*. **1996**, *65* (1), 195–198. DOI:10.1093/oxfordjournals.rpd.a031619.
20. Kitis, G.; Papadopoulos, J. G.; Charalambous, S. & Tuyn, J. W. N. The Influence of Heating Rate on the Response and Trapping Parameters of $\text{Alpha-Al}_2\text{O}_3:\text{C}$. *Radiat. Prot. Dosimetry* **1994**. DOI:10.1093/oxfordjournals.rpd.a082391.
21. Akselrod, M. S.; Agersnap Larsen, N.; Whitley, V.; McKeever, S. W. S. Thermal Quenching of F -Center Luminescence in $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$. *J. Appl. Phys.* **1998**, *84* (6), 3364–3373. DOI:10.1063/1.368450.
22. Bos, A. J. J. High Sensitivity Thermoluminescence Dosimetry. **2001**, 26.
23. Bos, A. J. J. On the Energy Conversion in Thermoluminescence Dosimetry Materials. *Radiat. Meas.* **2001**, *33* (5), 737–744. DOI:10.1016/S1350-4487(01)00094-4.
24. Furetta C. Models and Methods in Thermoluminescence. **2005**
25. Alenkov Vladimir. V. Single Crystal With Garnet Structure For Scintillation Counters And Method For Producing Same. PCT/RU2018/000066, 2018.
26. Puchalska, M.; Bilski, P. GlowFit—a New Tool for Thermoluminescence Glow-Curve Deconvolution. *Radiat. Meas.* **2006**, *41* (6), 659–664. DOI: 10.1016/j.radmeas.2006.03.008.

PUBLICITĀTE

Par kursa darba tēmu iesniegtas tēzes dalībai starptautiskā Dalība konferencēs konferencē:

1) "Advanced Materials and Technologies", 23.-27. augustā, 2021, Palangā, Lietuvā

Tēzes:

Toms E. Šusts, Elīna Pajuste, Artūrs Zariņš, Jānis Čipa, Vladimir Pankratov, Anatoli I. Popov, "Investigation of Radiation Induced Defect Stability in GAGG:Ce for Particle Collider Detector Applications"

2) "80th International Scientific Conference of the University of Latvia", "Nanotechnologies and Radiation Processes" sekcijā, 3.-4. februārī, 2022, Rīga, Latvija

Tēzes: "Deep trapping states in Cerium doped $Gd_3Ga_3Al_2O_{12}$ "

PATEICĪBAS

Latvijas Universitātes Cietvielu fizikas institūta Spektroskopijas laboratorijai, īpaši Jānim Čipam par pieeju darbam ar TL/OSL un Katrīnai Langanovskai par palīdzību skripta veidošanā.

Latvijas Universitātes Ķīmiskās Fizikas institūtam par pieeju darbam ar TSL iekārtu.

PIELIKUMI

**“Wolfram mathematica” valodā rakstītais skripts TSL līknes dalīšanai komponentēs
izmantojot kinētikas pakāpi 2.**

```

TSL1 = Import[
  "faila atrašanās vieta", "Table"];

peak1 = n0*s0*
  Exp[-En0/(8.617*10^-5*T)] (s0*8.617*10^-5*T^2/(0.16*En0)*
  Exp[-En0/(8.617*10^-5*T)]*(1 - 2*8.617*10^-5*T/En0) + 1)^-2;
peak2 = n1*s1*
  Exp[-En1/(8.617*10^-5*T)] (s1*8.617*10^-5*T^2/(0.16*En1)*
  Exp[-En1/(8.617*10^-5*T)]*(1 - 2*8.617*10^-5*T/En1) + 1)^-2;
peak3 = n2*s2*
  Exp[-En2/(8.617*10^-5*T)] (s2*8.617*10^-5*T^2/(0.16*En2)*
  Exp[-En2/(8.617*10^-5*T)]*(1 - 2*8.617*10^-5*T/En2) + 1)^-2;
peak4 = n3*s3*
  Exp[-En3/(8.617*10^-5*T)] (s3*8.617*10^-5*T^2/(0.16*En3)*
  Exp[-En3/(8.617*10^-5*T)]*(1 - 2*8.617*10^-5*T/En3) + 1)^-2;
peak5 = n4*s4*
  Exp[-En4/(8.617*10^-5*T)] (s4*8.617*10^-5*T^2/(0.16*En4)*
  Exp[-En4/(8.617*10^-5*T)]*(1 - 2*8.617*10^-5*T/En4) + 1)^-2;

peaks = peak1 + peak2 + peak3 + peak4;

nlm1 = FindFit [
  TSL1, {peaks, 0 < En0 < 1.1, 0 < En1 < 1.4, 1.1 < En2 < 2,
  1.4 < En3 < 2, n0 > 1, n1 > 1, n2 > 1, s0 > 0, s1 > 0,
  s2 > 0}, {{n0, 10^2}, {n1, 10^5}, {n2, 10^6}, {n3, 10^6}, {s0,
  10^15}, {s1, 10^15}, {s2, 10^15}, {s3, 10^15}, {En0, 0.7}, {En1,
  1.3}, {En2, 1.4}, {En3, 1.4}}, T, MaxIterations -> 100000]

Show[Plot[peaks /. nlm1, {T, 290, 500}],
  ListLinePlot[TSL1, PlotStyle -> Red]]

```

```
graph = Show[
  ListLinePlot[TSL1, PlotStyle -> Red, PlotRange -> Full,
    PlotLabel -> "TSL1"],
  Plot[peak1 /. nlm1, {T, 290, 500}, PlotStyle -> Orange,
    PlotRange -> Full],
  Plot[peak2 /. nlm1, {T, 290, 500}, PlotStyle -> Black,
    PlotRange -> Full],
  Plot[peak3 /. nlm1, {T, 290, 500}, PlotStyle -> Yellow,
    PlotRange -> Full],
  Plot[peak4 /. nlm1, {T, 290, 500}, PlotStyle -> Blue,
    PlotRange -> Full],
  Plot[peak5 /. nlm1, {T, 290, 500}, PlotStyle -> Pink,
    PlotRange -> Full],
  Plot[peaks /. nlm1, {T, 290, 500}, PlotStyle -> Green,
    PlotRange -> Full]].
```

Maģistra darbs "Radiācijas defektu analīze GGAG:Ce kristālos ar termiski stimulētās luminiscences metodi Latvijas Universitātes Ķīmiskās fizikas institūtā.

(darba nosaukums)

Ar savu parakstu apliecinu, ka pētījums veikts patstāvīgi, izmantoti tikai tajā norādītie informācijas avoti un iesniegtā darba elektroniskā kopija atbilst izdrukai.

Autors: Toms Elvijs Šusts _____

(personiskais paraksts)

(paraksta atšifrējums)

Rekomendēju/nerekomendēju darbu aizstāvēšanai

Vadītāja profesore, *Dr. chem.* Elīna Pajuste: _____

(personiskais paraksts)

(datums)

Recenzents docents, *Dr. Phys.* Jana Andžāne: _____

(personiskais paraksts)

(datums)

Darbs iesniegts Ķīmijas fakultātē: _____ (datums)

Dekāna pilnvarotā persona, metodiķe: _____ Ilze Gaile

(personiskais paraksts)

Darbs aizstāvēts bakalaura gala pārbaudījuma komisijas sēdē:

_____ protokols Nr. _____

(ieraksta sekretārs)

(datums)

(protokola Nr.)

Komisijas sekretāre, lektore: _____

(personiskais paraksts)

(paraksta atšifrējums)