김일성종합대학학보 (자연과학) 주체105(2016)년 제62권 제7호
JOURNAL OF **KIM IL SUNG** UNIVERSITY (NATURAL SCIENCE) Vol. 62 No. 7 JUCHE105(2016).

선형가열속도변화에 기초한 열형광곡선해석

강분이, 량흥모, 김일남

열형광현상은 선량측정과 년대결정에서 널리 리용되고있다. 열형광곡선을 정확히 해석하여야 열형광현상의 운동학적물림새를 밝힐수 있다.

선행연구들[1, 4−6]에서는 가열속도에 따르는 열형광곡선의 변화에 대하여 실험적으로 많이 연구되였지만 그것에 기초하여 운동학적파라메터를 결정하기 위한 연구는 진행되지 못하였다. 그러므로 우리는 가열속도를 변화시키면서 측정한 열형광실험곡선으로부터 운동학적파라메터들을 결정하기 위한 한가지 해석방법을 제기하였다.

1. 방법의 원리

1차, 2차 및 일반차수운동학방정식은 다음과 같다.[2]

$$I(T)=-\frac{dn}{dt}=nse^{-E/(kT)} \tag{1}$$

$$I(T)=-\frac{dn}{dt}=\frac{n^2}{N}se^{-E/(kT)} \tag{2}$$

$$I(T)=-\frac{dn}{dt}=n^b s' e^{-E/(kT)} \tag{3}$$

여기서 $I(T)$는 열형광세기, E는 활성화에네르기, k는 볼츠만상수, T는 절대온도, s는 빈도인자, b는 운동학차수, s'는 일반차수에 해당한 빈도인자, t는 시간, N은 포획중심의 농도, n은 포획전자의 농도이다.

선형가열속도 β에 관한 운동학방정식은 다음과 같다.[3]

$$I(T)=n_0 s\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\exp\left[-\frac{s}{\beta}\int_{T_0}^{T}\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)dT\right] \tag{4}$$

$$I(T)=n_0^2\frac{s}{N}\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\left[1+\frac{n_0 s}{\beta N}\int_{T_0}^{T}\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)dT\right]^{-2} \tag{5}$$

$$I(T)=n_0 s'\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\left[1+\frac{s'(b-1)}{\beta}\int_{T_0}^{T}\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)dT\right]^{-b/(b-1)} \tag{6}$$

여기서 n_0은 포획전자의 초기농도, T_0은 초기온도이다.

우리는 프로그람 Mathematica를 리용하여 열형광곡선을 모의하였다.(그림) 이때

$$E = 1\text{eV},\ s = 10^{12}\text{s}^{-1},\ k = 8.617\times10^{-5}\text{eV/K},$$
$$N = n_0 = 1\text{개}/\text{m}^3$$

로 설정하고 식 (4)−(6)을 리용하였다.

그림에서 보는바와 같이 가열속도가 빠를수록 열형광세기의 극대값은 작아지고 봉우리 극대위치는 높은 온도쪽으로 이동한다. 이것을 리용하여 열형광곡선의 운동학적파라메터들을 결정할수 있다.

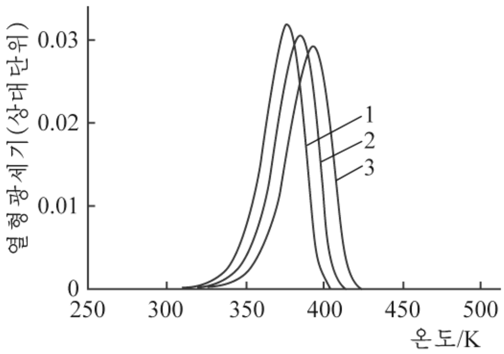

그림. 온도에 따르는 1차열형광곡선의 변화
1−3은 각각 $\beta = 0.5,\ 1,\ 2\text{K/s}$일 때

이제 식 (4)−(6)의 도함수들을 령으로 놓으면 다음의 극대조건방정식들을 얻을수 있다.

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s\exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \tag{7}$$

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s\exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)\left[1+\left(\frac{2kT_M}{E}\right)\right] \tag{8}$$

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s\exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)\left[1+(b-1)\left(\frac{2kT_M}{E}\right)\right] \tag{9}$$

여기서 T_M은 최대열형광세기에 해당한 온도이다.

식 (7)에 2개의 가열속도 β_1, β_2를 대입하고 정리하면 다음식이 얻어진다.

$$E = k\frac{T_{M_1}\cdot T_{M_2}}{T_{M_1}-T_{M_2}}\ln\left[\frac{\beta_1}{\beta_2}\left(\frac{T_{M_2}}{T_{M_1}}\right)^2\right] \tag{10}$$

2차와 일반차수운동학인 경우에도 식 (8)과 (9)로부터 각각 우에서와 같은 방법으로 다음의 식들을 얻을수 있다.

$$\frac{T_{M_2}^2}{T_{M_1}^2}\cdot\frac{\beta_1}{\beta_2} = \exp\left(\frac{E}{k}\cdot\frac{T_{M_1}-T_{M_2}}{T_{M_1}T_{M_2}}\right)\cdot\frac{1+\dfrac{2kT_{M_1}}{E}}{1+\dfrac{2kT_{M_2}}{E}} \tag{11}$$

$$\frac{T_{M_2}^2}{T_{M_1}^2}\cdot\frac{\beta_1}{\beta_2} = \exp\left(\frac{E}{k}\cdot\frac{T_{M_1}-T_{M_2}}{T_{M_1}T_{M_2}}\right)\cdot\frac{1+(b-1)\dfrac{2kT_{M_1}}{E}}{1+(b-1)\dfrac{2kT_{M_2}}{E}} \tag{12}$$

식 (11), (12)에서 보는바와 같이 이 식들을 리용하여 활성화에네르기를 직접 계산하는것은 어려우므로 일반적으로 프로그람 Mathematica 혹은 Matlab를 리용하여 활성화에네르기를 계산한다.

다음으로 가열속도가 2개이상으로 주어지는 경우 활성화에네르기와 빈도인자를 계산하기 위하여 식 (7)의 량변에 자연로그를 취하면 다음식을 얻는다.

$$\ln\left(\frac{T_M^2}{\beta}\right)=\frac{E}{kT_M}+\ln\frac{E}{sk} \tag{13}$$

식 (13)에서 보는바와 같이 $\ln(T_M^2/\beta)$와 $1/(kT_M)$사이에는 선형관계가 있다. 그러므로 선형관계를 나타내는 직선의 방향결수는 활성화에네르기 E이며 직선이 y축과 사귀는 값 $\ln[E/(sk)]$로부터 빈도인자 s를 계산할수 있다.

2. 방법의 적용

우리는 제기한 방법을 순천시 동암동유적에서 나온 방해석시료들로부터 얻은 열형광곡선들에 적용하여 활성화에네르기와 빈도인자를 계산하였다.

먼저 2개의 가열속도에 의하여 측정한 T_M값들을 식 (10)에 넣고 계산한 활성화에네르기는 표 1과 같다.

표 1. 2개 가열속도에 의하여 계산한 활성화에네르기

가열속도	극대온도	E/eV
$\beta_1=275\text{K/s}$	$T_{M_1}=533\text{K}$	1.245
$\beta_2=277\text{K/s}$	$T_{M_2}=546\text{K}$	

다음으로 5개의 서로 다른 가열속도에 의하여 측정한 T_M값들을 식 (13)에 넣고 얻은 직선의 방향결수와 y축과 사귀는 값으로부터 결정한 운동학적파라메터는 표 2와 같다.

표 2. 5개의 가열속도에 의하여 결정한 운동학적파라메터

$\beta/(\text{K}\cdot\text{s}^{-1})$	T_M/K	$1/(kT_M)$	$\ln(T_M^2/\beta)$	E/eV	$\ln[E/(sk)]$	s
274	520	22.3	12.5			
275	533	21.8	11.9			
276	541	21.4	11.5	1.208	−14.421	2.56×10^{10}
277	546	21.2	11.2			
278	549	21.1	11.0			

표 1, 2에서 보는바와 같이 2개 가열속도에 의하여 결정한 활성화에네르기는 여러개의 가열속도에 의하여 결정한 활성화에네르기와 비슷하다.

맺 는 말

우리는 선형가열속도변화에 기초한 열형광곡선해석법을 제기하고 순천시 동암동유적에서 나온 방해석시료로부터 얻은 실험곡선에 적용하였다.

결과 2개의 가열속도를 가지고 결정한 활성화에네르기는 1.245eV이며 5개의 서로 다른 가열속도를 가지고 결정한 활성화에네르기는 1.208eV, 빈도인자는 2.56×10^{10}이다.

참 고 문 헌

[1] V. Pagonis et al.; Numerical and Practical Exercises in Thermoluminescence, Springer, 8～12, 2006.
[2] A. Taher et al.; Life Science Journal, 10, 1475, 2013.
[3] L. Robindro Singh et al.; Original Reseach, 11, 179, 2011.
[4] A. Shah et al.; Adv. Studies Theor. Phys., 4, 837, 2010.
[5] A. J. J. Bos; Radiation Measurements, 135, 234, 2007.
[6] M. S. Rasheedy et al.; Journal of Physics and Chemistry of Solids, 68, 243, 2007.

주체105(2016)년 3월 5일 원고접수

Thermoluminescence(TL) Curve Analysis based on the Change of Linear Heating Rates

Kang Pun I, Ryang Hung Mo and *Kim Il Nam*

We suggested the thermoluminescence curve analysis method based on the change of linear heating rates and applied it to experimental curves obtained from calcite samples of Tongamdong site in Sunchon city.

By means of two heating rates, the activation energy is 1.245eV and in the case of some different heating rates E is 1.208eV, the frequency factor is 2.56×10^{10}.

Key words: thermoluminescence, heating rate, activation energy