

## MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

Université Abdelhamid Ibn Badis de Mostaganem

Faculté Des Sciences Exactes et de l'Informatique

Domaine des Sciences de la Matière

Département de physique

Projet de Fin d'Etudes

## Pour obtenir le diplôme de Master en Physique

**Option : Modélisation et Caractérisation des Matériaux** 

Présenté par :

**Ould Sidi Ahmed Badra** 

Sujet:

# LA THERMOLUMINESCENCE

**Soutenue le** : 06/06/2016

Devant le jury composé de :

Mme H.Hentit	M.C.A	Université de Mostaganem	Présidente
Mme R.Melati	M.C.B	Université de Mostaganem	Examinatrice
Mr A.Benachenhou	M.C.A	Université de Mostaganem	Encadreur

Année Universitaire: 2015/2016

## SOMMAIRE

Introduction générale1				
<b>Chapitre I : CONCEPTS FONDAMENTAUX</b>				
I.1.Introduction				
<b>I.2.</b> Historique				
<b>I.3.</b> Concept de basse sur thermoluminescence (TL)				
<b>I.3.1.</b> Luminescence stimulée thermique(TSL)				
I.3.2.Piégeage et dépiégeage				
<b>I.3.3.</b> La recombinaison				
<b>I.3.4.</b> Le phénomène d'ionisation7				
<b>I.3.5.</b> Le phénomène d'excitation7				
I.4.Modèle de TL				

## Chapitre II : LE PRINCIPE DE TL

II.1.Principe de thermoluminescence	
II.1.1.Peuplement des pièges par irradiation	10
II.1.2.Lecteur TL	10
II.1.3.Mesures de la TL	12
II.1.3.1.Le thermogramme	12
II.1.3.2.La résolution spectrale	12
<b>Chapitre III : LA THEORIE DE LA TL</b>	
III.1.La théorie de la TL	14
<b>III.1.1.</b> L'expression de $T_L$ à $1^{er}$ ordre cinétique	16
<b>III.1.2.</b> L'expression de $T_L$ à 2 <sup><i>eme</i></sup> ordre cinétique	
III.1.3.L'ordre cinétique général	

## Chapitre IV : LES APPLICATIONS DE LA TL

IV.1.Les applications de thermoluminescence	20
IV.1.1. Application de TL à l'archéologie	20
IV.1.2.Application à la biologie et la biochimie	21
IV.1.3.Application à la géologie	21
IV.1.5.Contrôle de la qualité dans l'industrie	22

## **Chapitre V : SIMULATION DE LA TL**

V.1.Simulation de la TL.	26
V.1.1.Premier ordre cinétique	
<b>V.1.1.1.</b> L'effet de $n_0$ sur la courbe de TL	
V.1.1.2.L'effet de E sur la courbe de TL	
V.1.1.3.L'effet de S sur la courbe de TL	
<b>V.1.1.4.</b> L'effet de $\beta$ sur la courbe de TL	
V.1.2.Deuxième ordre cinétique	
<b>V.1.2.1.</b> L'effet de $n_0$ sur la courbe de TL	
V.1.2.2.L'effet de E sur la courbe de TL	
V.1.2.3.L'effet de S/N sur la courbe de TL	
<b>V.1.2.4.</b> L'effet de $\beta$ sur la courbe de TL	
V.1.2.5.Comparaison entre 1 et 2 ordres cinétiques	
V.1.3.Comparaison des pics des différentes ordres	
V.1.3.1.Analyse des courbes de préchauffage	
V.1.3.2.Résultats et discussions	
V.1.3.3.Analyse des TL luisantes courbes	
Conclusion générale	

## INTRODUCTION GENERALE

Un cristal n'est jamais parfait, il contient de très grandes quantités d'impuretés ou de défauts ponctuels dont certains peuvent constituer des sites « pièges » pour les électrons libérés par irradiation. Continuellement au cours du temps, au passage d'une particule radioactive, des électrons libérés par l'irradiation sont ainsi piégés dans états physiques dits métastables.

Le phénomène de la thermoluminescence a été largement étudié par de nombreux chercheurs, la compréhension actuelle de la thermoluminescence a exploré le potentiel d'applications pratiques dans divers domaines.

Le phénomène de thermoluminescence fut observé pour la 1<sup>er</sup> fois en 1663 par Sir Boyle, qui vit une lueur en réchauffant un diamant dans l'obscurité.

En 1930 les physiciens du solide Ubrach et Frish en expliquèrent le principe grâce à leurs études sur les pièges à électrons dans les cristaux. **[1]** 

On peut définir la thermoluminescence comme un phénomène physique qui se traduit par la propriété qu'ont certains cristaux d'émettre de la lumière lorsqu'on les chauffe, à condition qu'ils aient été au préalable soumis à une irradiation naturelle ou artificielle.

Le but de cette étude est de mettre en évidence les concepts de base de la thermoluminescence avec détermination des différents domaines d'application. La partie la plus importante est la compréhension des différents modèles pour faire une comparaison entre eux.

Le plan de travail que nous présentons dans ce mémoire est organisé comme suit :

Après une introduction générale, le premier chapitre introduit les concepts fondamentaux da la TL. Dans le chapitre 2 les étapes du processus de TL sont expliquées. Le  $3^{\acute{e}me}$  et  $4^{\acute{e}me}$  chapitre sont consacrées sur la théorie de la TL (pour le $1^{er}$  or dre, $2^{\acute{e}me}$  ordre et l'ordre général) et le différent domaine d'applications. Dans le chapitre 5 on étudie l'influence des paramètres physiques sur les expressions du  $1^{er}$  et  $2^{\acute{e}me}$  ordre cinétique et de l'ordre général. Suivra ensuite une interprétation des courbes générées par simulation du phénomène de TL. Finalement nous avons achevé cette étude par une conclusion générale.

#### I. Concepts fondamentaux :

#### I.1. Introduction :

En physique du solide, la théorie des bandes est une modélisation des valeurs d'énergie que peuvent prendre les électrons d'un solide à l'intérieur de celui-ci. De façon générale, ces électrons n'ont la possibilité d'occuper des niveaux d'énergie compris que dans certains intervalles, lesquels sont séparés par des bandes d'énergie interdite.

Cette modélisation permet d'expliquer la thermoluminescence (TL) que nous pouvons définir comme un phénomène physique qui se traduit par une émission de faible lumière stimulé par le réchauffement des échantillons irradiés. Elle résulte d'une recombinaison des paires préexistantes de charges qui avaient été stabilisées dans les puits de potentiel. La courbe luminescente résultante est considérée comme la superposition d'un certain nombre de pics de préchauffages.

Dans presque toutes les études de l'analyse des courbes de préchauffage enregistrées sont basées sur la théorie cinétique d'ordre 1 initialement obtenus par Randall et Wilkins ou le second ordre cinétique de TL développées par Garlick et Gibson. Ces cinétiques sont données par des expressions décrivant la forme, la température maximale, la largeur à mi-hauteur, la dépendance sur le taux de chauffage et d'autres caractéristiques d'un seul pic de préchauffage.

#### I.2.Historique :

Le phénomène de la TL a été découvert par Sir Robert Boyle qui relevait de la Royal Society de Londres, le 28 Octobre 1663. Il a observé une "lueur "quand il a tenu un diamant pour "un bon moment sur la partie chaude du son corps nu dans l'obscurité de sa chambre ". Il a répété l'observation en utilisant la chaleur provenant d'autres sources telles qu'une bougie, un métal chauffé et friction. Le phénomène n'a pas trouvé d'interprétation correcte pendant environ trois quarts de siècle. La première compréhension claire de cette observation a été fournie par Du Fay, qui a montré que ce type d'émission était en fait une phosphorescence retardée. Henri Becquerel a détecté l'apparition de ce phénomène dans certains échantillons phosphorescents vers la fin du dix-neuvième siècle. Il a reconnu la capacité de certains minéraux à conserver l'effet de l'irradiation radioactive de substances pendant une longue période. Wiedemann et Schmidt ont utilisé ce phénomène pour la première fois afin de détecter les rayons cathodiques et les rayons ultraviolets. Le travail de Marie Curie sur l'induction de TL dans la minérale fluorite en cas d'exposition au radium a réveillé un grand intérêt dans ce domaine. La découverte des rayons X, a donné une nouvelle relance aux travaux sur la TL.

Au cours de 1925-1928, Wick et ses collaborateurs ont testé l'effet des rayons X sur la TL de nombreuses substances. Les mesures de TL sous la forme de courbe de préchauffage sont réalisées pour la première fois dans Przibram laboratoire au cours 1925-1930. Son collègue Urbach a rapporté la TL d'alcali halogénures et a tenté de les expliquer théoriquement. La base théorique de la TL incandescence maximum a été donnée pour la première fois par Randall et Wilkins [2].

Une modification de cette théorie a été donnée par Garlick et Gibson [3]. Une approche généralisée de la cinétique du processus à plus tard été développé par Kelly et Braunlich [4].

Les progrès réalisés sur la recherche dans ce domaine le doivent à l'application à grande échelle de ce phénomène dans les deux domaines, à savoir : Dosimétrie de radioprotection et datation des poteries anciennes, céramiques, briques, et les sédiments géologiques. La TL est considéré comme une branche de la science appliquée.

La période après la Seconde Guerre mondiale a vu une augmentation soudaine dans les sources d'ionisation radiations dues aux diverses applications de l'énergie nucléaire à des fins militaires et civiles. Les applications potentielles de TL dans les différentes branches de l'activité humaine sont envisagées à un stade précoce par Daniels et al. En dehors de la dosimétrie des rayonnements, dans lequel la luminescence technique est devenue indispensable, il a été établi comme une importante technique dans la datation archéologique et géologique. D'autres applications incluent ceux de la terre et des sciences planétaires et l'étude des défauts de solide cristallin matériaux. Les lecteurs peuvent se référer à Aiken pour archéologique et géologique applications [5].

#### I.3.Concept de base de thermoluminescence [TL]:

#### I.3.1.Thermiquement luminescence stimulée (TSL) :

La luminescence thermiquement stimulée (TSL) est le phénomène de l'émission de lumière pendant le réchauffement d'une substance préalablement irradiée avec un taux de chauffage uniforme. Quand un matériau est exposé aux rayonnements ionisants comme les radiations, des rayons X ou des rayons ultraviolets alpha, bêta, gamma et, ou lorsqu'il subit certaines réactions chimiques ou des contraintes mécaniques, un certain pourcentage des porteurs de charges libérés (électrons et trous) peuvent être piégés dans certaines imperfections du réseau, qui sont appelés pièges. Si ces pièges sont assez profonds, les porteurs de charge restent piégés pendant une longue période [des milliers d'années] avant qu'ils ne soient libérés par une stimulation suffisante.

Cette stimulation peut être réalisée par apport d'énergie optique ou thermique de ces solides excités.

Le retour de ces porteurs de charge piégés à un état stable en raison de la stimulation par l'énergie externe (par exemple de la chaleur) est toujours associé à la libération de l'énergie absorbée (par les porteurs de charge), principalement sous la forme de chaleur. Une petite fraction de l'énergie absorbée est également libérée sous forme de lumière au cours de ce processus. Cette forme d'émission de lumière est appelée thermoluminescence (TL). La TL à partir du matériau est très sensible à :

i) la quantité et la nature de l'impureté;

ii) l'histoire thermique;

iii) pré-thermique, mécanique et un effet de rayonnement;

iv) taille de particule matérielle;

v) l'histoire de cristallisation;

vi) motif de défaut présent dans le matériau.

La théorie stipule qu'aucun électron ne peut exister dans le matériau avec des états d'énergie tombant dans la bande interdite. Lorsque le matériau est excité par des rayonnements ionisants, certains des électrons (à l'origine dans la bande de valence) sont excités et ils atteignent des états d'énergie correspondant à la bande de conduction. Normalement, ces électrons ne peuvent rester excités indéfiniment. La durée de vie d'un électron dans la bande de conduction est très courte et l'électron atteint son état fondamental en libérant immédiatement de l'énergie pour réchauffer le réseau cristallin ou sous forme de lumière.

Cependant, un atome d'impureté (avec une taille ionique appropriée) présent dans le matériau peut avoir des états d'énergie dans la bande interdite. Ce sont les états d'énergie métastables ayant la durée de vie appréciable. Un électron excité peut se trouver dans cet état, plutôt que de revenir à son état de bande de valence normale. Maintenant, on dit un électron est «piégé». Par analogie, l'absence d'un électron pris au piège dans un état d'énergie très proche de la bande de valence est appelée piégeage d'un trou. L'écart du niveau d'énergie du piège à électrons par rapport à la bande de conduction (ou du piège à trous par rapport à la bande de valence) est appelé la profondeur du piège.

Cette étape correspond à un stockage d'énergie après l'excitation initiale d'un matériau.

Si maintenant le matériau est chauffé, la chaleur fournie est capable de stimuler les électrons hors des pièges (dépiégeage) et les électrons reviennent à l'état fondamental, si les conditions sont favorables Dans ce «processus de retour» se produit alors la thermoluminescence .De même, un trou peut être excité dans la bande de valence où il erre jusqu'à ce qu'il se recombine avec un électron provoquant la TSL.

Si les pièges ne sont pas très profonds, le piégeage et la recombinaison peuvent déjà se produire à une vitesse importante autour de la température ambiante en raccourcissant la durée de vie de l'énergie stockée. Ce phénomène est appelé la phosphorescence. Mais peut être considérée comme une thermoluminescence à la température ambiante.

Si les pièges sont assez profonds pour aboutir à une stabilité de stockage suffisante à la température ambiante (demi-vie des électrons piégés au moins plusieurs mois correspondant à une émission maximale à une température supérieure à environ 150 ° C), l'effet devient d'intérêt dosimétrique. La courbe de luminescence présente généralement plusieurs pics, correspondant chacun à un piège avec une profondeur d'énergie différente. Dans de nombreux luminophores, il est possible que les électrons et les trous soient piégés plus ou moins simultanément, et ils se recombinent sur un site entièrement nouveau que l'on appelle le centre de luminescence ou un centre de recombinaison.

L'électron (trou) peut avoir une énergie d'activation thermique efficace pour surmonter la barrière de potentiel entre le piège et le centre de recombinaison et une probabilité finie de se repiéger. La forme de la courbe de TL diffère selon que le phénomène soit présent ou pas.

Un tel processus est appelé un second ordre ou un processus biomoléculaire, tandis que le cas le plus simple où la recombinaison a une probabilité constante dans le temps, est appelé un premier ordre ou d'un processus monomoléculaire.

Il existe aussi des situations concrètes où les porteurs de charges se recombinent directement, sans avoir été excités dans les bandes de conduction / valence. Ceci est un cas de TL impliquant la luminescence d'un centre isolé et le processus suit une cinétique de premier ordre.

Toutes les discussions qui précèdent ne prennent en compte que les effets d'ionisation de l'irradiation d'excitation; il ne faut cependant pas oublier les effets de déplacement résultant de collisions élastiques / inélastiques de l'atome des luminophores avec le rayonnement. Cet effet est plus important pour le cas des radiations particulières (comme alpha, bêta, gamma, neutrons, les rayons cosmiques). La chose importante à propos de cet effet de déplacement est que atomes sont physiquement déplacés qui se traduit par la création d'interstitiels, et les postes vacants. En ce qui concerne la thermoluminescence, ceux-ci constituent des défauts, qui ont le potentiel d'influencer les processus de piégeage et d'émission [6].

## I.3.2.Piégeage et dépiégeage :

Le taux de piégeage dépend des caractéristiques de l'irradiation ainsi que des paramètres du piège métastable. On ne citera qu'un seul paramètre pour la phase d'irradiation et la phase de piégeage :

• Le taux de remplissage des pièges pendant une irradiation dépend à la fois de la dose absorbée et du débit de dose utilisé. Ainsi, pour certains matériaux, le piégeage des porteurs est plus important lorsque le débit de dose utilisé lors de l'irradiation est faible.

• Le piège est caractérisé par un coefficient de piégeage  $\beta$  tel que  $\beta = \upsilon \times \sigma$ . La grandeur  $\upsilon$  est la vitesse du porteur de charge, électron (trou) dans le cas d'un piège à électron (trou), et  $\sigma$  la section efficace de capture de ce porteur de charge. Lors d'un apport d'énergie extérieur supérieur à l'énergie d'activation du piège, l'électron piégé peut être dépiégé. Le temps de vie moyen  $\tau$ , que passe un électron dans un piège est défini par:

$$\tau = s^{-1} \exp\left(\frac{E}{KT}\right).$$
 (1)

Avec s le facteur de fréquence, supposé constant  $(s^{-1})$ , E l'énergie d'activation du piège (eV), T la température absolue (K) et k la constante de Boltzmann (eV.K<sup>-1</sup>). **[6]** 

La probabilité de dépiégeage  $\alpha$  est définie par:

 $\alpha = 1/\tau = s \exp(-E/kT)$  ......(2).

#### I.3.3. La recombinaison:

L'annihilation d'un électron libre excité avec un trou piégé est appelée recombinaison. Lorsqu'un électron libre de la bande de conduction retourne à l'état fondamental et s'annihile avec un trou de la bande de valence, la recombinaison est dite directe ou bande à bande. La recombinaison est indirecte lorsqu'elle n'implique pas la bande de valence mais un piège dans lequel le trou s'est préalablement piégé. Le temps de vie des porteurs avant recombinaison dépend alors de la densité de porteurs excités, de la température, et de la densité de sites de recombinaison. Une recombinaison électron-trou entraînant une émission de lumière est dite radiative. Il existe également des recombinaisons non radiatives. Lors de ces recombinaisons, l'énergie est dissipée sous forme de phonons. Sous l'effet de la température, la probabilité de transitions non radiatives augmente au détriment des transitions radiatives. **[6]** 

## I.3.4.Le phénomène d'ionisation :

Lorsque l'énergie transférée d'une particule incidente vers un atome de la cible est suffisamment élevée, une paire électron-trou est créée. L'électron arraché provient en général des couches périphériques. On obtient alors au sein de la matière un électron libre et un ion positif fixe (Figure .1.a). L'énergie minimale nécessaire pour ioniser la matière dépend de cette matière cible et est appelée énergie de première ionisation. Dans le cas du carbone, par exemple, l'énergie nécessaire pour extraire l'électron dont l'énergie de liaison est la plus faible, est de 1086,1 kJ.mol<sup>-1</sup>. **[6]** 

## I.3.5.Le phénomène d'excitation :

L'excitation d'un atome a lieu si le transfert d'énergie de la particule incidente vers l'atome cible n'est pas suffisant pour créer une paire électron-trou. Cependant, si cette énergie transférée est suffisante, un électron du cortège électronique de l'atome cible peut être amené d'un niveau d'énergie vers un niveau d'énergie supérieure (Figure .1.b). Les interactions photons-matière et électrons-matière, qui se basent en partie sur ces phénomènes. **[6]** 



Figure.1. phénomènes d'ionisation (a) et d'excitation (b).

## I.4. Modèles de la thermoluminescence :

Le modèle le plus simple de la TL ne fait intervenir que deux types de centres : un centre piège à électron et un centre de recombinaison.





Supposons qu'initialement tous les centres sont inoccupés. Irradions le solide par un rayonnement ionisant d'énergie supérieure au gap. Des électrons de valence sont transférés vers la bande de conduction, dans laquelle ils se déplacent librement tandis que les trous ainsi créés se déplacent dans la bande de valence. Par la suite, une partie des électrons sera piégée dans les centres pièges et une partie des trous dans les centres de recombinaison. Le reste des électrons retrouve son état initial en se recombinant avec des trous libres ou piégés. Si ce dernier processus est radiatif on observe une fluorescence.

La deuxième phase consiste à libérer les charges piégées. En général, ceci s'effectue en chauffant l'échantillon avec une vitesse de chauffage constante. Pendant le chauffage on atteint une température où la probabilité de dépiégeage des électrons devient importante.

Les électrons libérés se recombinent avec les trous piégés dans les centres de recombinaison. Cette recombinaison entraîne une émission de photons dont l'énergie (la longueur d'onde) est caractéristique du centre de recombinaison. Une analyse spectrale de cette émission de TL permet de déterminer la nature de ce centre.

Le thermogramme consiste en l'enregistrement du nombre des photons émis en fonction de la température de l'échantillon. Un pic va alors apparaître autour d'une température particulière que l'on relie à l'énergie d'activation du centre piège.

Un modèle symétrique du précédent peut être envisagé en considérant un centre piège à trou et un centre à électron se comportant en centre de recombinaison. Dans ce cas, le trou dépiégé thermiquement va pouvoir se recombiner via la bande de valence dans le centre de recombinaison.

Souvent, on est amené à bâtir des modèles plus complexes à plusieurs niveaux pièges (à électron et/ou à trou) adaptés aux matériaux étudiés. Cependant, ces modèles, bien qu'ils soient plus compliqués à étudier, ne s'éloignent pas des principes établis pour le modèle simplifié. C'est pour cette raison que nous ne décrivons qu'un modèle qui diffère des précédents par la nature des transitions. Dans ce modèle, le centre de recombinaison est lié au piège. Ainsi le piège peut être considéré comme un niveau métastable à partir duquel la transition vers le niveau initial n'est possible que par apport d'énergie thermique (ou optique).

Si le retour vers l'état fondamental est une transition radiative on observe de la thermoluminescence. Ce type de centre est appelé centre luminogène isolé. La particularité de ce modèle est que la transition des électrons vers les centres de recombinaison ne fait pas intervenir la bande de conduction. De ce fait, aucune conductivité (CTS) n'est observée. **[7]** 

## **II.1.Principe de la thermoluminescence :**

Une expérience par thermoluminescence (TL) se déroule en deux phases : l'excitation et la mesure TL.

#### II.1.1.Peuplement des pièges par irradiation :

On soumet le matériau à une radiation ionisante ; cette radiation doit transmettre une énergie suffisante (au moins égale à l'énergie du gap) pour exciter un électron présent dans la bande valence (BV) et permettre son passage dans la bande de conduction (BC). L'électron laisse une lacune dans la BV, appelée trou. Il y a création d'une paire électron-trou représentée sur la Figure 3.



**Figure 3** : Génération et relaxation d'une paire électron-trou 1 : recombinaison directe 2 : piégeage d'un électron ou d'un trou 2+3: recombinaison indirecte

Après création de la paire électron-trou, le solide contenant des électrons dans la BC et des trous dans la BV n'est pas dans un état énergétiquement stable et les porteurs de charges tendent à se relaxer en allant spontanément occuper des états de plus basse énergie, notamment les pièges (piégeage).

La Figure 3 illustre les trois voies distinctes de relaxation de la paire électron-trou : la recombinaison directe (1) et la recombinaison indirecte (2+3) ramènent le matériau à un état stable, alors que la relaxation des électrons (ou des trous) dans les pièges du matériau conduit à un état métastable (2). Si l'électron excité se relaxe en tombant sur un des niveaux d'énergie

permis présents dans le gap, on dit qu'il est piégé. On peut avoir le même processus pour le trou qui se piège sur un défaut du matériau. Il ne perd alors qu'une partie de l'énergie gagnée lors de son excitation. La relaxation étant incomplète, cette voie d'évolution conduit à un état métastable qui peut perdurer très longtemps si le piège impliqué est « profond ». La profondeur du piège est la différence d'énergie entre le niveau piège à électron (resp. à trou) et le bas de la BC (resp. le haut de la BV). Le dépiégeage de la charge ne peut se réaliser qu'au travers d'un nouvel apport d'énergie extérieur. **[8]** 

## II.1.2.Lecture TL :

Le matériau est chauffé pour « dépiéger » les électrons (resp. les trous). Les électrons sont à nouveau excités et atteignent la BC (resp. la BV). Certains se relaxent dans des pièges («repiégeage »), d'autres se recombinent sur des défauts où sont piégés des trous (resp. électrons).



**Figure 4** : Longtemps après l'irradiation le porteur se dépiège sous l'effet d'une stimulation thermique et vient se recombiner de manière radiative.

C'est la recombinaison indirecte (voir Figure 3). Si les recombinaisons sont radiatives, elles s'accompagnent de l'émission d'un photon qu'il est possible de détecter. C'est la lumière stimulée thermiquement ou TL. La Figure 4 illustre ce principe. **[8]** 

#### II.1.3.Mesures de la thermoluminescence :

#### **II.1.3.1.Le thermogramme :**

Les photons émis par stimulation thermique, en chauffant linéairement avec le temps, sont détectés sur tout le spectre accessible du photomultiplicateur (200 ~ 900 nm). Les thermogrammes sont les « observables expérimentales » classiques de la TL. Il s'agit de courbes où l'intensité de luminescence, intégrée sur toutes les longueurs d'ondes détectables par le photomultiplicateur, est portée en fonction de la température du matériau.

En principe, chaque niveau piège fournit un pic. Qualitativement, la position des pics reflète la position des pièges dans le gap. La température associée à un pic représente la profondeur du piège, plus la température est élevée, plus le piège est profond. Le thermogramme nous donne des informations sur les pièges (centres à priori non luminescents) ainsi que sur les centres de recombinaison. **[8]** 



**Figure 5**: TL intégrée en longueur d'onde d'échantillons d'aluminosilicate dopé Yb (AS: Yb) et de Germanosilicate (GS) après irradiation aux X. **[8]** 

#### II.1.3.2.La résolution spectrale :

Le spectre TL, montre spécifiquement les centres luminescents qui ont été altérés par irradiation. À l'aide d'un analyseur optique multicanaux, on est capable de remonter à la composante spectrale de la luminescence à chaque température du thermogramme.

On peut tracer des courbes en trois dimensions où l'intensité lumineuse est portée en fonction de la température et de la longueur d'onde. **[8]** 



**Figure 6** : Analyse spectrale de la TL d'échantillons de AS: Yb et GS après irradiation aux X. **[8]** 

## III.1.Détermination de la relation empirique des courbes de *TL* :

Le modèle le plus simple utilisé pour décrire mathématiquement la TL est le modèle prenant en compte un seul piège à électron (PE) et un seul centre de recombinaison (CR).



**Figure 7**.Le modèle simple de la bande d'énergie pour un seul piège à électron (PE) et un seul centre de recombinaison (CR).

Avec :

 $A_m$ : Taux de recombinaison ( $cm^3/s$ ).

- m : densité de centre de recombinaison (CR).
- S : fréquence de dépiègeage  $(S^{-1})$ .
- $A_n$ : Taux de repiègeage ( $cm^3/s$ ).
- N : densité de piège à électron (PE).
- n : densité d'électron dans BC ( $cm^{-3}$ ).

$$I = -\frac{dm}{dt} = A_m \operatorname{m} n_c$$
(3).

Cette équation indique que le taux de recombinaison est proportionnelle au nombre d'électron libres  $n_c$  et et de trou m.

Une seconde équation traite de la variation de la population d'électron dans des pièges n, et tient compte de l'excitation des électrons de conduction dans la bande de conduction ainsi que le dépiègeage possible :

$$\frac{dn}{dt} = -\operatorname{sn}\exp\left(-\frac{E}{KT}\right) + n_{c} (N-n)....(4).$$

 $A_n$  Et  $A_m$  sont supposées indépendantes de la température.

L'équation (4) indique le taux de variation  $n_c$  est donnée par le taux de libération des électrons moins le taux de recombinaison en m et dépiègeage dans N.

La troisième équation concerne la neutralité de charge, elle peut être exprimée sous la forme :

$$\frac{\mathrm{dn}_{\mathrm{c}}}{\mathrm{dt}} = \frac{\mathrm{dm}}{\mathrm{dt}} - \frac{\mathrm{dn}}{\mathrm{dt}}$$
(5).

En utilisant les équations (1) et (2) :

$$\frac{dn_c}{dt} = s n \exp(-\frac{E}{KT}) - n_c m A_m - n_c (N-n) A_n$$
.....(6).

Alors en utilisant les équations précédentes pour expliquer la  $T_L$ , c'est-à-dire l'émission de lumière mesurée au cours du chauffage de l'échantillon, quand un état de piégeage et un centre de recombinaison sont impliqués.

Deux hypothèses de base ont été prises pour résoudre la précédente série des équations :

$$\left|\frac{dn_c}{dt}\right| << \left|\frac{dn}{dt}\right| \tag{8}.$$

L'équation (6) signifie que la concentration de porteurs dans la BC ne change pas c'est-à-dire :

$$dn_c = 0.....(9).$$

Dans ce cas, l'équation (4) obtient :

Puis l'intensité est donnée par :

et :

Posons:

L'équation (9) deviant:

L'équation (11) devient l'équation d'un piège générale pour la  $I_L$ . [9]

A = n s exp  $\left(-\frac{E}{KT}\right)$  : est le nombre d'électron thermiquement libéré de la BC /unité de temps.

 $B = [1 - \frac{\delta(N-n)}{\delta(N-n) + m}]$ : la fraction des électrons de la BC subissant une recombinaison de cette équation.

Il est possible d'obtenir le  $1^{er}$  et  $2^{eme}$  équation cinétique d'ordre.

## III.1.1. 1<sup>er</sup> ordre cinétique :

En effet, la cinétique de  $1^{er}$  ordre est le cas lorsque la recombinaison domine ce qui signifie que :

$$A_m \text{ m} >> (N -n) A_n$$
 .....(14).  
 $\delta = 0$  .....(15).

Ou :

L'équation de l'intensité devient alors :

$$\mathbf{I} = -\frac{dm}{dt} = \mathbf{n} \, \mathrm{s} \, \exp\left(-\frac{E}{KT}\right).$$
 (16).

L'hypothèse (7) donne:

$$\frac{dm}{dt} = \frac{dn}{dt} \qquad \text{ou}: \qquad m = n + c^{ste}$$

Et ainsi l'équation (14) devient :

$$I = \frac{dn}{dt} = n \operatorname{s} \exp\left(-\frac{E}{KT}\right).$$
 (17).

On a:

n= 
$$n_0 \exp\left[-\frac{s}{\beta}\int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) dT\right]$$

Donc:

$$I(T) = -\frac{1}{\beta}\frac{dn}{dt} = n\frac{s}{\beta}\exp\left(-\frac{E}{KT}\right) = n_0\frac{s}{\beta}\exp\left(-\frac{E}{KT}\right)\exp\left[-\frac{s}{\beta}\int_{T_0}^T\exp\left(-\frac{E}{KT}\right)\,dT....(18).$$

L'équation (16) donne l'expression de  $T_L$  du  $1^{er}$  ordre cinétique :

$$I(T) = n_0 \frac{s}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) dT\right] \qquad (19).$$

## III.1.2. 2<sup>eme</sup> ordre cinétique :

L'hypothèse de dépèigeage de Garlick et Gibson stipule que :

$$m A_m \ll (N - n) A_n$$

Puis l'intensité est donnée par :

D'autre part, en supposant que le piège est loin de la saturation, ce qui signifie N >> n on obtient :

En utilisation la condition m=n, la dernière équation devient:

Qui, avec  $s' = s mA_m / N A_n$  est l'équation Garlick et Gibson.

En supposant maintenant égalité entre  $A_m$  et  $A_n$ , on obtient la même équation de Garlick et Gibson avec : $s' = \frac{s}{N}$ 

$$I(T) = -\frac{1}{\beta} \frac{dn}{dt} = n^2 \frac{s'}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) \dots (23).$$

Avec :

n= 
$$n_0 \exp\left[-\frac{s}{\beta}\int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) dT\right]$$

L'équation (21) devient :

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

Cette équation appelle équation du second ordre. [9]

#### III.1.3.L'ordre cinétique général :

Les formes de premier et second ordre de l'équation de thermoluminescence ont été élaborées avec le recours à des hypothèses simplificatrices spécifiques.

Cependant, lorsque ces hypothèse simplificatrices ne sont pas vérifiées, le pic de thermoluminescence ne conviendra ni à la première cinétique ni la cinétique de second ordre. May et Partridge (1964) **[10]** ont utilisé pour ce cas une expression empirique pour l'ordre général b, à savoir :

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = n^b s' \exp(-\frac{E}{KT}) .....(24).$$

L'équation (22) appelé la relation de l'ordre cinétique général, à partir de cette équation en peut écrire :

$$\frac{dn}{n^b} = s' \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) dt$$
 (25).

Avec b est défini comme paramètre d'ordre général et qui n'est pas nécessairement 1 ou 2.

Cette dernière expression expression permet de fournir une expression générale qui satisfasse non seulement le  $1^{er}$  et  $2^{\acute{eme}}$  ordre cinétique lorsque b = 1 et b = 2, mais permet également d'inclure toutes les autres valeurs plausibles de b, y compris des valeurs non entières entre 1 et 2 ou méme en dehors de cette fourchette. Ce modèle est donc appelé le modèle cinétique de l'ordre générale. Bien que cette expression ait été proposée par ses auteurs en utilisant le méme modèle que celui de Garlick et Gibson, la pratique générale est maintenant de l'appliquer à toute forme de courbe expérimentale particuliére.

L'intégration de l'équation (2) devient :

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

Ou' s = s''  $n_0^{b-1}$  avec l'unité s<sup>-1</sup> comme le facteur de fréquence s.

En remplace s par sa valeur on obtient :

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

Lorsque b = 2, on peut retrouver l'intégrale de l'expression de Garlick-Gibson qu'on appelle "équation du second ordre". Lorsque b = 1, la précédente équation tend vers l'intégrale de l'équation de Randall-Wilkins qu'on appelle "équation du première ordre".

En résumé, un centre de piégeage est caractérisé par deux paramètres : son énergie d'activation (E) et son facteur de fréquence (s). Un troisième paramètre est l'ordre de cinétique (b) qui est lié à la forme du pic de TL et caractérise le mécanisme de dépiégeage. **[9] [12]** 

#### IV. Les applications de thermoluminescence:

Le phénomène de la TL a été largement étudié par de nombreux chercheurs. La compréhension du mécanisme d'occurrence de l'émission stimulée thermiquement est le domaine important de la recherche fondamentale. De nombreux chercheurs ont suggéré leur point de vue pour le mécanisme TL pour les matières activées pures et impuretés. Avec l'expansion des connaissances de la physique de l'état solide, il est un sujet de recherche pour donner le dernier mécanisme plausible de TL. Cependant, la compréhension actuelle de la TL a exploré le potentiel de très haute application dans divers domaines. La modernisation et le développement dans l'instrumentation; et une meilleure compréhension de la TL ont aidé les professionnels à résoudre leurs problèmes dans de nombreux domaines. Les applications de la TL sont résumées dans ce qui suit:

#### IV.1.Applications de thermoluminescence à l'archéologie:

Technique de thermoluminescence a été trouvé pour être un grand succès dans la datation des échantillons de poterie ancienne. Cette méthode convient pour les raisons suivantes:

i) Il donne la date exacte de tirs de fours de l'échantillon (les autres méthodes dépend principalement sur la forme et le style de la poterie et donc en corrélation avec la civilisation à laquelle il appartenait).

ii) TL datation est possible, même au-delà de 30000 ans, mais l'âge minimum est de 50 ans avec une précision de  $\pm 1$  an.

iii) l'authentification et la détection de la contrefaçon peuvent être rapidement et facilement fait en utilisant cette méthode.

Le TL / OSL datation est faite à partir d'un grain de quartz qui est recueillie de la poterie ou de la brique en lisant le TL-sortie. La TL de l'échantillon est principalement dû à TL inclusions minérales sensibles (principalement de quartz) dans la matrice argileuse hôte de la poterie. La technique de la datation de la poterie est très similaire à celle effectuée dans des échantillons géologiques. En archéologie, un événement plus précis et défini est la base - la cuisson au four. La poterie doit avoir tiré dans le courant de four dans le long passé. Cet événement est considéré comme le début de la «TL horloge» pour la datation archéologique. Quel que soit le TL a été enregistré plus tôt dans l'inclusion minérale due à des irradiations internes et externes au cours des temps géologiques (depuis la cristallisation) sont considérée comme effacée lors de la cuisson au four. Après l'apparition de la «TL horloge» (cuisson au four) de la poterie commence la construction de TL due à l'irradiation interne à partir d'émanations radioactives de l'uranium (U), le thorium (Th) et le potassium (K) contenu dans l'argile et externes radiations du fond cosmique sur le site d'excavation. Typiquement, le taux d'irradiation totale est de l'ordre de 1 rad par an, dont la majeure partie est des radiations internes et le restant dû à l'irradiation des sols et des rayons cosmiques.

Une fois qu'un TL accumulé dans l'échantillon a été mesuré et exprimée en termes de dose absorbée par des techniques d'étalonnage appropriées et si le taux d'irradiation totale pour l'échantillon n'a pu être établi, l'âge archéologique peut être obtenu simplement en divisant le premier par le second.

Dire : âge = dose accumulée /débit de dose annuelle. Mais dans la pratique, de nombreux facteurs de complication viennent dans la façon d'évaluer l'âge.

## IV.2.Applications à la biologie et la biochimie:

Application de la technique de TL dans l'étude des systèmes biologiques et biochimiques est de plus favorisée dans ces derniers temps. Les tentatives ont été couronnées de succès dans l'étude des hydroxyles et des acides aminés benzoïque, des protéines, des acides nucléiques, les feuilles des plantes, les algues et les bactéries. Les résultats TL pourraient indiquer la bonne stabilité du ou de la Orthoform de l'acide benzoïque, le transfert moléculaire inter et intra des dégâts d'irradiation dans les acides nucléiques, des protéines et leurs constituants pourrait être en corrélation avec leur comportement de TL; les voies de transport d'électrons photosynthétiques dans le diagramme de Z pourraient être corrélées avec TL et routes supplémentaires définies et l'interaction entre les sels et les protéines peuvent être compris à partir des modèles de TL.

#### **IV.3.Application à la géologie:**

La géologie est l'une des premières disciplines à accepter la technique de TL dans son pli dans une variété d'applications, telles que la datation de la minéralisation, les activités ignées, la sédimentation et l'évaluation des taux de plages et dunes de sable croissance. La technique de TL a été trouvé utile dans la datation des spécimens d'origine géologiquement récente où toutes les autres méthodes classiques échouent. Dans un échantillon géologique, le TL commence à se constituer à partir du moment de sa cristallisation et continuer normalement tout au long de son existence, en raison de la radioactivité présente dans les substances minérales et les matériaux environnants, jusqu'à ce que sa saturation. Si l'on sélectionne un matériau ayant une radioactivité négligeable dans ce (par exemple quartz) le TL accumulé représente la plupart du temps le débit de dose de l'environnement à un endroit d'où l'échantillon géologique a été recueilli. L'accumulation de TL peut être affectée par la lumière naturelle en particulier sa composante ultraviolette. En géologie le blanchiment de la lumière du soleil est considéré comme la base pour dater l'événement géologique. L'exposition des grains de sable à la lumière du soleil pendant leur altération et le transport à travers le vent et l'eau des résultats dans le blanchiment de leur TL géologique. Ce blanchiment est assez efficace pour réduire le niveau de thermoluminescence à une valeur négligeable. Ces particules de sable blanchies, une fois embarqués dans une dune de sable ou de l'eau de Javel, s'abri de toute exposition à la lumière solaire. Cela permet d'acquérir des particules plus TL en raison de l'exposition aux radiations de leur nouvel environnement dans la dune de sable ou sur la plage. À l'heure actuelle à l'aide unique âge technique de grain d'échantillons géologiques peut être estimée jusqu'à 50 millions d'années avec une précision de + 5% ou -5%. [11]

## IV.4.Contrôle de la qualité dans l'industrie:

Dès 1938, l'application de la TL dans le contrôle de feldspath dans les produits en céramique a été décrite. La quantité de TL donnée par une céramique après irradiation artificielle est une indication directe de son feldspath contient à des niveaux de traces où tout autre type d'analyse quantitative est temps. Ainsi, dans l'industrie céramique où un processus particulier est répété un grand nombre de fois pour produire des lots des certains matériaux, les variations contrôlables dans le contenu feldspath peuvent être vérifiés rapidement et efficacement. L'efficacité de certain catalyseur de surface comme  $Al_2O_3$  peut être rapidement et efficacement évaluée par leur TL sensibilités .Les défauts de réseau qui permettent les réactions d'adsorption pourraient également jouer un rôle dans la TL émis par ces substances et la nature et l'intensité de TL peut exercer une activité corrélée avec l'activité catalytique. La courbe de préchauffage TL dans un tel cas peut être utilisée comme critère pour le contrôle des paramètres de préparation d'un catalyseur désiré. En principe, la méthode TL peut être utilisée dans le contrôle de la qualité de la plupart des verres, des céramiques et des produits semi-conducteurs; Récemment il a été montré dans le cas de fibres textiles que les

changements TL lumineux courbe à basse température peuvent être mises en corrélation avec les différences de structure et / ou des impuretés constituées par des traceurs chimiques.

Cependant ceux-ci ne sont pas encore reçu l'attention des industries. Dosimétrie des rayonnements:

Dans le monde scientifique actuel, les radiations ionisantes ont été jugées très utiles dans l'ingénierie, la médecine, la science et la technologie. Les professionnels les utilisent à chaque marche de la vie. Dans toutes les applications, la quantité exacte d'absorption de l'énergie de rayonnement dans le matériau exposé est un facteur important pour obtenir les résultats souhaités. Meilleure utilisation peut être obtenue principalement par une détermination précise de l'énergie absorbée à partir du champ de rayonnement et permet la répartition de cette énergie absorbée au sein du matériau. Les mesures de ces quantités constituent la base de la dosimétrie et les systèmes utilisés à ce fin rayonnement sont désignés comme dosimètres. Les professionnels ont travaillé dans ce sens, une enquête et normalisé de nombreuses méthodes d'analyse pour estimer les doses de radiations. Les techniques importantes développées et utilisées sont les moins;

- 1. Technique Fluorescence.
- 2. Méthode bioluminescence.
- 3. Diffuse technique de réluctance.
- 4. technique de luminescence stimulée thermiquement [TLD]
- 5. technique de luminescence stimulée optiquement [OSL]
- 6. Electron technique de résonance paramagnétique [EPR dosimétrie]

La base principale de la thermoluminescence Dosimétrie (TLD) est que la sortie de TL est directement proportionnelle à la dose de rayonnement reçue par le phosphore et fournit par conséquent les moyens d'estimation de l'irradiation inconnue. En outre, TL peut fournir une mesure passive parfaite à savoir les niveaux d'irradiation intégrés sur de longues périodes de l'ordre de même des années. Ainsi, il trouve une utilisation immense dans le suivi des doses reçues par les travailleurs de rayonnement sur une base régulière; faiblement / mensuel / annuel selon sur quelle que soit la situation de nombreux mandat. Il convient toutefois de garder à l'esprit que la plupart des luminophores TL ne sont pas équivalents de tissus (en termes d'absorption d'énergie par irradiation) et d'où la dose pertinente qui est médicalement significative à un travailleur de rayonnement à partir du point de vue de la protection ne soit pas facile à obtenir. Certains des luminophores comme ViE, Li2B4O7, BeO etc qui sont des tissus presque équivalentes Le score 4 points précis sur d'autres comme CaSO4, CaF2 Mg2SiO4 etc qui sont cependant plus sensibles.

nombreux été développés De luminophores TLDs. ont pour Le potentiel de TL-dosimètre application est très élevé. Ils ont été trouvés très utile dans de nombreux domaines en raison de plusieurs caractéristiques favorables telles que la sensibilité élevée, de petite taille, la capacité de couvrir une grande plage d'exposition / dose, réutilisabilité, insensible aux conditions environnementales. Dans le passé, les professionnels ont utilisé le technique film budge dans la pratique réelle. Plus tard, ils ont constaté que la technique de TLD est préférable pour de nombreuses raisons. Et par conséquent, au cours des derniers trois à quatre décennies, ils ont développé et mis en place la technique de TLD. Ceci est devenu populaire maintenant un jour d'applications en vue de thermoluminescence dosimétrie et radioprotection. Les dosimètres ont été largement utilisés pour la dosimétrie en fantôme et in vivo, dans des applications médicales. Un autre domaine où les dosimètres thermoluminescents ont trouvé une utilisation personnelle est suivi des travailleurs sous rayonnements.

En raison de leur capacité à intégrer sur de longues périodes de temps et de mesurer une exposition très faible, ils ont été largement employés pour la surveillance environnementale des doses de l'ordre de quelques micros gris. Les gTLD ont été utilisés dans la surveillance de la protection pour la mesure tels que les niveaux de rayonnement de fuite sur et autour des conteneurs de source, la mesure de la dispersion de l'air autour des installations supérieures ouvertes, la zone de surveillance autour des installations de rayonnement, etc.

Rapport d'évanouissement rapide de TL principale basse température carillonné de certains luminophores tels que CaSO4: Dy a utilisé pour l'estimation du temps d'exposition après l'irradiation. Il a été constaté que cette technique permet également de détecter et d'évaluer les doses de neutrons thermiques et rapides. Etant donné que les luminophores TLD insensibles aux neutrons thermiques sont également disponibles, combinaison de dosimètre peut être utilisée pour l'estimation de la dose gamma et des neutrons thermiques dans la zone mixte. En outre, TL dosimétrie comprennent également la datation archéologique à savoir la datation des poteries et céramiques anciennes, l'espace dosimétrie, dosimétrie des rayonnements non ionisants tels que les UV et micro-ondes dosimétrie. Si dosimètre UV a une sensibilité proche de la réponse thermique de la peau humaine, il doit fournir une mesure de la valeur thermique efficace de l'énergie UV.

D'autre part TLDs peut également trouver utile dans l'agriculture. Dans ce domaine, ils utilisent principalement concernés par haut niveau dosimétrie des photons, comme la mesure de la dose dans la conservation des aliments, la stérilisation par irradiation des semences, la lutte antiparasitaire, etc. Formellement, la mesure de la dose dans l'agriculture a insisté sur des dosimètres chimiques par exemple système ferrique (Fe2 +, Fe3 +). TLDs constituent une méthode moins coûteuse et sont applicables dans l'intervalle de dose de 10 - 4 à 108 rads.

En peut résumer les applications de TL en deux familles :

- Les datations :

Parmi les cristaux pouvant présenter le phénomène de thermoluminescence, on trouve la baryte (sulfate de baryum  $BaSO_4$ ), la calcite (carbonate de calcium  $CaCO_3$ ), la fluorite (fluorure de calcium  $CaF_2$ ), la Célestine (sulfate de strontium  $SrSO_4$ )....

On utilise ce phénomène de thermoluminescence :

- en archéologie, pour la datation de poteries, d'éléments architecturaux en terre cuite, de fours .....

- en géologie, étude des roches ignées (granite, basalte..) permettant de dater les éruptions de volcans (on a pu ainsi dater une coulée issue du volcan de Volvic à -  $45000 \pm 8000$  ans) ou des cratères de météorites ou l'étude des stalagmites (calcite).

Les datations ne peuvent dépasser 700 000 ans avec des marges d'erreur de l'ordre de 10%. [1]

- Dosimétrie par thermoluminescence :

On peut aussi utiliser la thermoluminescence pour mesurer des doses de radiations ionisantes. En effet plus la dose de radiation reçue par un matériau adéquat (on utilise dans certains dosimètres des cristaux de fluorure de lithium LiF) est importante, plus le nombre d'électrons piégés est important et plus est intense la lumière émise ensuite par chauffage du cristal.

On peut ainsi surveiller les doses de radiations auxquelles sont soumis certains techniciens d'appareils radiologiques ou certains opérateurs de centrales nucléaires.

En médecine également on peut surveiller les doses d'irradiation absorbées par les tissus traités en radiothérapie. [1]

## V. Simulation de la TL :

Grace à ce que nous avons dit précédemment il ya trois expressions de la TL, de  $1^{er}$  ordre,  $2^{\acute{eme}}$  ordre et l'ordre cinétique générale.

Ces différentes expressions caractérisées par son énergie d'activation E, son facteur de fréquence S et l'ordre cinétique b. Ces trois paramètres peuvent être déterminés à partir de la courbe de TL.

## V.1.1.Premier ordre cinétique :

Partant de l'expression de la TL pour le 1<sup>er</sup> ordre cinétique :

$$\mathbf{I}(\mathbf{T}) = n_0 \frac{s}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) \, \mathrm{dT}\right]$$

On calcule la valeur de l'intensité pour différentes valeurs de  $n_0$ , E, S, et  $\beta$  en fonction de la température selon le tableau suivant :

E (ev)	0.8	0.9	1	1.1	/
$n_0(cm^{-3})10^{10}$	0.25	0.5	1	1.5	2
S (s <sup>-1</sup> )	10 <sup>11</sup>	10 <sup>12</sup>	10 <sup>13</sup>	10 <sup>14</sup>	/
$\beta(s^{-1}.K)$	0.5	1	2	/	/

Chaque fois on fait varier un paramètre et les autres paramètres restent constants.

Finalement on trace l'intensité en fonction de la température par le logiciel EXEL.

La figure 8 donne un exemple d'une courbe de TL, calculée en utilisant l'équation cidessus avec les paramètres suivants : E = 1 eV, s  $= 10^{12} s^{-1}$ ,  $n_0 = 10^{10} \ cm^{-3}$ .



**Figure.8**. pic de lueur Normalisé selon le Randall-Wilkins premier ordre équation TL (Eq. (19)). Le facteur d'asymétrie ou de la géométrie  $\mu_g$  définie comme  $\mu_g = \delta/\omega$  a une valeur typique de 0,42.

Cette courbe (connue sous le nom courbe luminescence de TL), n'est pas symétrique. Son asymétrie peut être exprimée par la mesure de la température  $T_{max}$ ,  $T_1$  et  $T_2$  représentés sur la figure ci-dessus. Ici  $T_{max}$  = température de l'intensité maximale de TL et $T_1$ ,  $T_2$  = température à la moitié de l'intensité de TL maximale.

Il est d'usage de définir les quantités  $\tau = T_{max}-T_1$ ,  $\delta = T_2-T_m$ , et  $\omega = T_2-T_1$ . (Voir la courbe de lueur dans la Figure. 8.).



**Figure.9**. Piégées profils de population électronique n, la probabilité p de l'excitation et de la courbe de préchauffage en fonction de T lors du chauffage. **[5]** 

Les valeurs d'intensité tracées dans la courbe de préchauffage sont 10 fois des valeurs calculées réelles pour une meilleure visibilité. Les calculs sont effectués à l'aide du modèle de Randall-Wilkins. Les paramètres d'entrée utilisés sont : E = 1 eV,  $s = 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ,  $\beta = 1 \text{Ks}^{-1}$ . Valeur initiale de n est  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ .

La figure 9 illustre les profils de variation de n, la probabilité d'excitation thermique p et l'intensité de thermoluminescence I en fonction de la température T. Dans la partie initiale de la courbe de préchauffage l'intensité augmente de façon exponentielle. Dans cette partie, le changement de n n'est pas perceptible. D'autre part la probabilité d'excitation p thermique donnée par s exp (-E / kT) augmente de façon exponentielle. La valeur de *n* peut être considérée comme constante à  $n_0$  dans cette partie. Cette propriété est utile pour déterminer la valeur de la profondeur de piège E en utilisant la méthode de montée initiale. Lorsque le nombre de charges piégées n, est sensiblement diminuée, la courbe d'intensité de TL cesse d'augmenter en mode exponentiel. Elle passe par un maximum avant de diminuer et tends finalement vers zéro lorsque tous les pièges sont vidés. L'intensité I à toute température T de la courbe de préchauffage est égale au produit des valeurs de n et p à cette température. L'intensité I étant directement proportionnelle à n, ce modèle de TL relève de la catégorie de premier ordre cinétique. Les caractéristiques des courbes de TL de ce modèle sont les suivants:

## V.1.1.1. Effet de la concentration :

Voici un exemple de 5 premières courbes afin de TL, calculées pour plusieurs valeurs de la concentration initiale de pièges.



**Figure. 10**. Influence de la concentration des porteurs de charges piégées après l'irradiation  $n_0$  pour E = 1 eV, s = 10^12 s -1 et  $\beta$  = 1 Ks-1 ([ $n_0$ ] =0.5, 1, 1.5, 2 $cm^{-3}$ ).

La température  $T_m$  du pic et la forme des pics restent inchangés lorsque la concentration initiale  $n_0$  des pièges est modifiée. Cela signifie que les caractéristiques des pics sont indépendantes de la dose de rayonnement donnée à l'échantillon. Cependant, la hauteur du pic augmente en proportion directe de  $n_0$  pour E, s et  $\beta$  donnés.

Cela signifie que l'intensité est directement proportionnelle à la dose administrée à un échantillon, en supposant que le remplissage du piège est directement proportionnel à la dose.

## V.1.1.2. Effet de l'énergie d'activation E :

La figure 11 représente 4 courbes de TL, calculées pour des valeurs d'énergie d'activation E = 0.8, 0.9, 1, et 1,1 eV. Notons que lorsque l'énergie E augmente, la courbe de préchauffage TL se déplace vers des températures plus élevées, mais la courbe conserve sa forme générale.



Figure.11. Effet de l'énergie d'activation E sur la courbe de TL pour  $n_0 = 1cm^{-3}$ , s = 10^12 s -1 et  $\beta = 1$  Ks<sup>-1</sup> ([E] = 0.8, 0.9, 1, 1.1eV).

La température Tm correspondant à l'intensité maximale se déplace vers les hautes températures. Une valeur plus élevée de E signifie une liaison plus forte de la charge piégée. Par conséquent, il est compréhensible qu'une température plus élevée soit nécessaire pour le libérer. Figure.10.montre les pics de préchauffage pour différents E, pour des valeurs données de s et  $\beta$ . On voit que, avec l'augmentation de la valeur de E la hauteur du pic est réduite.

La température d'intensité maximale, Tm augmente presque linéairement avec E comme on le voit sur la Figure. 11.

## V.1.1.3.L'effet du facteur de fréquence:

La figure 12 donne un exemple de 4 courbes de TL, calculées pour plusieurs valeurs initiales du facteur de fréquence des pièges.



**Figure.12**.Effet du facteur de fréquence s pour  $n_0 = 10^{10} cm^{-3}$ , E = 1 eV,  $\beta = 1$  Ks<sup>-1</sup> ([s] =  $10^{11}$ ,  $10^{12}$ ,  $10^{13}$ ,  $10^{14} s^{-1}$ ).

Pour des valeurs données de E et  $\beta$ , la température  $T_m$  est décalée vers les basses températures lorsque s augmente (voir la Figure 12.). Ainsi, E et s ont des effets opposés sur Tm. Ceci est simple à comprendre car s plus élevé signifie échapper plus rapidement du piège à partir de l'état excité.

## V.1.1.4. Effet de vitesse de chauffage :

La figure 13 donne un exemple de 3 courbes de TL, calculées pour plusieurs valeurs de la vitesse de chauffe.



**Figure.13**. Variation de la vitesse de chauffe  $\beta$  pour  $n_0 = 10^{10}$  cm<sup>-3</sup>, E = 1 eV et s =  $10^{12}$  s<sup>-1</sup> ([ $\beta$ ] = 0.5, 1, 2Ks<sup>-1</sup>).

Pour des valeurs données de E et s, les pics de température Tm augmente à mesure que la vitesse de chauffage  $\beta$  est augmentée. On remarque que si  $\beta$  augmente le pic de préchauffage devient plus étroit.

Lorsque  $\beta$  augmente le pic de préchauffage se déplacé vers les hautes T, avec diminution de la hauteur et augmente de  $\omega$  avec l'aire qui reste constante, donc comportement opposé à celui de s.

Ces caractéristiques sont uniques au 1<sup>er</sup> ordre cinétique et sont d'une importance primordiale dans l'application de TL en dosimétrie.

## V.1.2.Deuxième ordre cinétique :

L'expression de l'intensité de TL pour le 2<sup>ème</sup> ordre cinétique est donnée par :

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

On calcule la valeur de l'intensité pour différentes valeurs de  $n_0$ , E, S et  $\beta$  en fonction de la température T selon le tableau suivant :

E (ev)	0.8	1	1.2	/
$n_0 (cm^{-3}) 10^{10}$	1	3	6	/
$S/N (m^3 s^{-1})$	/	10 <sup>12</sup>	10 <sup>14</sup>	10 <sup>16</sup>
$\beta$ (k.s <sup>-1</sup> )	1	2	3	4

On varie chaque fois un paramètre et les autres restent constants.

## V.1.2.1. Effet de la concentration sur la courbe de TL :

Voici un exemple de 3 courbes ordres de TL de second ordre, calculées pour plusieurs valeurs de la concentration initiale de pièges.



**Figure. 14**. la variation de la concentration des porteurs de charges piégées après l'irradiation  $n_0$  pour E = 1 eV, s = 10^12 s^{-1} et  $\beta$ = 1 Ks<sup>-1</sup> ([ $n_0$ ] = 1, 3, 6cm<sup>-3</sup>).

La température  $T_m$  se déplace vers les plus hautes températures et les courbes deviennent progressivement plus larges en forme lorsque la valeur de  $n_0$  est réduite, à savoir

pour des doses plus petites. Donc  $T_m$  et le facteur de forme sont dépendants de  $n_0$ ,  $T_m$  diminue quand  $n_0$  augmente, différence principale par rapport à  $1^{er}$  ordre.

L'aire de la courbe est proportionnelle à  $n_0$  comme pour le 1<sup>er</sup> ordre mais l'intensité de la courbe n'est plus directement proportionnelle à  $n_0$  (même si la déviation est petite).

## V.1.2.2 Effet l'énergie d'activation sur la courbe de TL :

Voici un exemple de 3 courbes de TL d'ordre 2 TL, calculée à l'aide de 3 valeurs différentes de l'énergie d'activation E.



Figure.15.1a variation de l'énergie d'activation E pour  $n_0 = 1cm^{-3}$ , s = 10^12 s^{-1} et  $\beta = 1$ Ks<sup>-1</sup> ([E] = 0.8, 1, 1.2 eV).

Lorsque E augmente le pic est décalé vers les hautes températures.

A partir le Figure.15 en remarque que si E augmente, il élevée la température pour vidée le niveau piégée (électron déplace à la BC).

## V.1.2.3.L'effet du facteur de fréquence S/N sur la courbe de TL :

Voici un exemple de 3 courbes de TL, calculées pour plusieurs valeurs du facteur de fréquence des pièges.



**Figure.16**.la variation de S/N pour  $n_0 = 1cm^{-3}$ , E = 1 eV,  $\beta = 1$  Ks<sup>-1</sup> ([s/N] =10^12, 10^14, 10^16 s^{-1}).

Ceci est simple à comprendre car S/N plus élevé signifie échapper plus rapide du changement piégé à partir de l'état excité du piège. Conduit supérieur de également pour augmenter la hauteur de pointe et à la réduction de la largeur du pic.

## V.1.2.4.L'effet de la vitesse de chauffage $\beta$ sur la courbe de TL :

Voici un exemple de 4 courbes afin de TL, calculées pour plusieurs valeurs de la vitesse de chauffage.



**Figure.17**.la variation de la fréquence d'échappement S/N pour  $n_0 = 1cm^{-3}$ , E = 1 eV et s =  $10^{12} s^{-1} ([\beta] = 1, 2, 3, 4Ks^{-1})$ .

Lorsque la vitesse de chauffage  $\beta$  utilisée pour le lecteur de la TL est augmentée, on observe un petit décalage du pic TL vers les hautes températures, à savoir la température  $T_m$  du pic et de la forme des pics restent inchangés lorsque  $\beta$  augment.





**Figure.18**.la comparaison entre  $1^{er}$  et  $2^{\acute{eme}}$  ordre cinétique.

La courbe de TL de second ordre est beaucoup plus symétrique que la cinétique de premier ordre. Tout comme dans le cas du premier pic de TL, nous pouvons mesurer les températures  $T_{max}$  = température de l'intensité de TL maximale et  $T_1$ ,  $T_2$  = température à la moitié de l'intensité maximale de TL.

Encore une fois, nous pouvons définir les quantités  $\tau = T_{max} - T_1$ ,  $\delta = T_2 - T_m$ , et  $\omega = T_2 - T_1$ .

Le facteur d'asymétrie pour un deuxième ordre cinétique est toujours égale à  $\mu = \frac{\delta}{\omega} = 0.52$ .

La chute de la courbe de préchauffage est légèrement plus lente que son ascension. Ceci est en contraste avec le cas de la cinétique  $de 1^{er}$ , dans lequel la chute est plus rapide que la hausse. La valeur moyenne du facteur de forme pour différents rapports E et S a été constatée que, contrairement 0,52 à 0,42 dans le cas de la cinétique du  $1^{er}$ .

#### V.1.3.Comparaison des pics des différents ordres (ordre général):

L'expression de la TL pour un ordre cinétique général est donnée par :

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

On calcule la valeur de l'intensité pour différentes valeurs de b (b = 1, 1.25, 1.5, 1.75, 2) avec E = 1ev, s=  $10^{12} s^{-1}$  et  $\beta = 1k. s^{-1}$  en fonction de la température T.

La figure 19 illustre l'influence de l'ordre b sur les courbes de TL.



Figure.19.1a variation de l'ordre général pour  $n_0 = 1cm^{-3}$ , E = 1 eV,  $s = 10^{12} s^{-1}$  et  $\beta = 1$  Ks<sup>-1</sup> pour b = 1, 1.25, 1.5, 1.75, 2.

Lorsque en augmente l'ordre cinétique b, la température maximale  $T_m$  reste constante, et l'intensité maximale  $I_m$  diminué.

D'autre part en observe que si l'ordre cinétique b augmente la largeur du pic  $\omega$  augmente.

## V.1.3.1.Analyse des courbes de TL :

Nous considérons que les valeurs (E = 1 eV; S = 10^12 s<sup>-1</sup>; k = 8.617 × 10-5 ev k<sup>-1</sup>;  $\beta$  = 1 ° ks<sup>-1</sup>; N = 10^10 cm<sup>-3</sup>; no = 1 x N; b = 1, 1.25, 1.5, 1.75, 2) et en utilisant EXEL pour tracer des courbes de préchauffage pour différentes valeurs de b. Pour l'analyse des courbes de brillance, il est usuel de définir les quantités  $\tau = T_m - T_1$ ,  $\delta = T_2 - T_m$ ,  $\omega = T_2 - T_1$  et  $\mu = \delta/\omega$ . Ici  $T_m$  = température de l'intensité maximale de TL et  $T_1$ ,  $T_2$  = température à la moitié de l'intensité de TL maximale.

## V.1.3.2.Résultats et discussions :

Nous avons donné ci-dessous les valeurs des paramètres différents pour la lueur des différentes valeurs de b.

b	Im	τ	δ	ω	μ	T <sub>m</sub>
1	6,05.10 <sup>-2</sup>	25	20	45	0.42	390
1.25	5,39.10 <sup>-2</sup>	22	18	40	0.44	390
1.5	4,88.10 <sup>-2</sup>	15	15	30	0.48	390
1.75	4,48.10 <sup>-2</sup>	12	13	25	0.5	390
2	4,01.10 <sup>-2</sup>	10	10	20	0.52	390

## V.1.3.3.Analyse des courbes de thermoluminescences :

Nous avons tracé de changement de  $\tau$  (=  $T_m$ -  $T_1$ ) pour la variation de b représentée sur la figure 20, le changement de température de l'intensité de la TL maximale de la variation de b représenté dans la figure 21, le changement de  $\delta$  (=  $T_2 - T_m$ ) pour la variation de b montre la figure 22, Changement de  $\omega$  (=  $T_2 - T_1$ ) pour la variation de b représenté dans la figure 23 et, enfin, le changement de  $\mu$  pour la variation de b montre la figure 24.



**Figure 20**: Changement de  $\tau$  (=  $T_m$  -  $T_1$ ) pour la variation de b.



**Figure 21**: Changement de  $\delta$  (=  $T_2$  -  $T_m$ ) pour la variation de b.



**Figure 22**: Changement de  $\omega$  (=  $T_2 - T_1$ ) pour la variation de b.



Figure 23: Changement de  $\mu$  pour la variation de b.



Figure.24. Modification de l'intensité maximale de TL pour la variation de b.

D'après la figure 19, 20, 21 et 22, nous voyons que la valeur de  $\tau$  (=  $T_m$  - $T_1$ ), la température de l'intensité de TL maximale, la valeur de  $\delta$  (=  $T_2$  -  $T_m$ ) et la valeur de  $\omega$  (=  $T_2$ - $T_1$ ) sont tous de façon exponentielle diminue avec l'augmentation de l'ordre de la cinétique b. De la figure 23, nous voyons que la valeur de  $\mu$  augmente avec l'augmentation de l'ordre de la cinétique b.

## **Conclusion générale**

L'objectif de ce travail consiste à déterminer les caractéristiques des pics de préchauffage de la TL, lorsque en varie certaines paramètres qui liées à différente expression de la TL.

Au cours de notre travail, nous avons a amené à suivre l'effet de l'énergie d'activation (E), la concentration (nombre de charge piégées) $n_0$ , le facteur de fréquence (S) et la vitesse de chauffage ( $\beta$ ) en fonction de la température T sur la courbe de préchauffage de la TL.

A la fin de notre travail en peut conclue que :

1- La courbe de TL en fonction de T n'a pas la même allure selon l'ordre de la cinétique, un pic de TL répondant à une cinétique de 1<sup>er</sup> ordre est de forme asymétrique. Dans le cas d'une cinétique d'ordre 2 la probabilité de repiégeage étant importante, on observe un retard dans l'émission de la luminescence, le pic est alors symétrique.

2- Pour des valeurs données de S et  $\beta$ , la température d'intensité maximale  $T_m$  augmente presque linéairement avec l'augmentation de E, et la hauteur du pic est réduite avec l'augmentation de E, signifie que pour des valeurs plus élevée de E la liaison plus forte de la charge piégée.

3- Pour des valeurs données de E et  $\beta$ , le pic de préchauffage se déplacé vers abaisse température comme S est augmentée, car S plus élevée signifie échapper plus rapide du changement piégé à partir de l'état excité du piège, donc E et S ont des effets opposés sur  $T_m$ .

4- Pour des valeurs de E et S, les pics de température  $T_m$  augmente à comme la vitesse de chauffage  $\beta$  est augmenté.

5- Lorsque la concentration initiale  $n_0$  remplie des pièges est modifiée, la température d'intensité maximale  $T_m$  du pic et la forme des pics restent inchangés, signifie que les caractéristiques des pics sont indépendantes de la dose de rayonnement donnée à l'échantillon, mais l'intensité augmente en proportion directe de  $n_0$  pour des valeurs données de E, S et  $\beta$ .

A savoir que la dépendance de  $T_m$  sur E, S et  $\beta$  sont semblables à celle de la cinétique du 1<sup>er</sup> ordre et le même du 2<sup>éme</sup> ordre cinétique.

## **Références**

## Références

[1] Guirec querré et Elisa porto, laboratoire de recherches des musées de France, TL et datation, 2009.

[2] J.T.Randall, M.H.F.Wilkins, Proc.Roy.Soc. (London) ser.A, 184,365(1945).

[3] G.F.J.Garlick, A.F.Gibson, Proc.Phys.Soc. (London) 60,574 (1948).

[4] P.Kelly, P.Braunlich, Phys.Rev.B1, 1587 (1970).

[5] C. M. Sunta, book of Recherch Center and Atomic Energy, India, Univerling TL, 2015.

[6] Aurélie Petitfils, thèse de docteur de l'université de Toulouse III, propriétés TL du diamant CDV. Application à la dosimétrie des rayonnements ionisants.2007.

[7] Molnar Gabor, thèse de docteur de l'université de Nice Sophia-Antipolis et de l'université Eötvös Lorand de Budapest, étude du rôle des défauts ponctuels dans la TL de monocristaux d'alumine-alpha, effets des traitements thermiques, 2002.

[8] Solène Pesch et Yassine Bouras, rapport de stage en laboratoire Cursus Licence de Physique, la TL application à l'étude des defaults dans des verres de silice, université de Nice Sophia-Antipolis, 2010.

[9] P.W.Levy, Brookhaven National laboratory Upton, New York 11973. USA, TL systems with two or more glow peaks, Described by Anomalous kinetic parameters, 1983.

[10] May.C.E.and Partridge J.A.J.Phys.40, 1401(1964).

**[11]** Ronald Chessex, Article sur Application de la TL à la géologie. Article de Bulletin de la Société Vaudoise des sciences naturelles, Vol.68, Fasc.1, 1962.

[12] Md.Shah Alam and Sabar Bauk, Analysis of TL glow-curves for General-order kinetics using Mathematical, Adv.Studies theor.Phys.,Vol.4, No.17, (2010), 837-853.

[13] A.J.J.Bos\*, theory of TL, Delft university of Technology, Faculty of Applied Sciences, 2629 JB Delft, The Netherlands, Radiation Measurements 41 (2007) S45-S56.

[14] Claudio Furetta. Handbook of TL, Physics Department Rome University, La Sapienza, Italy, (2003) 535-356.

[15] R.Chen.V.Pagonis, on the quasi-equilibrium assumptions in the theory of TL, journal of luminescence 143(2013) 734-740.

# Références