### EGE ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

(YÜKSEK LİSANS TEZİ)

## Dy VE Li KATKILANMIŞ CaSO<sub>4</sub> İLE Dy KATKILANMIŞ CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> TERMOLÜMİNESANS MALZEMELERİN KİNETİK PARAMETRELERİNİN İNCELENMESİ

Aycan AKIN

Nükleer Bilimler Anabilim Dalı

Bilim Dalı Kodu: 622.01.01

Sunuş Tarihi: 08.09.2009

Tez Danışmanı: Doç. Dr. Turgay KARALI

Bornova-İZMİR

Sayın Aycan AKIN tarafından Yüksek Lisans tezi olarak sunulan "Dy CaSO<sub>4</sub> İle Li Katkılanmış Dy Katkılanmış ve  $CaB_4O_7$ Termolüminesans Malzemelerin Kinetik Parametrelerinin İncelenmesi" başlıklı bu çalışma E.Ü Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliği ile E.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü Eğitim ve Öğretim Yönergesi'nin ilgili hükümleri uyarınca tarafımızdan değerlendirilerek savunmaya değer bulunmuş ve 08.09.2009 tarihinde yapılan tez savunma sınavında aday oybirliği/oyçokluğu ile başarılı bulunmuştur.

<u>Jüri Üyeleri</u>		<u>İmza</u>
Jüri Başkanı	: Doç. Dr. Turgay KARALI	•••••
Üye	: Prof. Dr. Mehmet Nurullah KUMRU	•••••
Üye	: Yard. Doç. Dr. Rana KİBAR	•••••

#### ÖZET

## Dy VE Li KATKILANMIŞ CaSO4 İLE Dy KATKILANMIŞ CaB4O7 TERMOLÜMİNESANS MALZEMELERİN KİNETİK PARAMETRELERİNİN İNCELENMESİ

AKIN, Aycan

Yüksek Lisans Tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü,

Nükleer Bilimler A.B.D.

Danışman: Doç. Dr. Turgay KARALI

08.09.2009, 75 sayfa

Bu çalışmada, termolüminesans dozimetre olarak kullanılmak üzere hazırlanmış olan CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ve CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li fosforlarının ana TL ışıma piklerinin kinetik parametreleri incelenmiştir. CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li TL ışıma eğrisi 120°C'de bir maksimuma sahip çift pik ve 400°C'de bir yüksek sıcaklık piki gösterirken, CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy fosforu, yaklaşık 50°C'de düşük sıcaklık piki, 250°C'de dozimetrik pik olarak kullanılabilecek ana pik ve 400°C'de yüksek sıcaklık piki olan bir termolüminesans ışıma eğrisine sahiptir. Malzemelerin TL sönüm karakteristikleri incelenmiş ve CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy'ın ışınlamadan sonraki 20 gün içinde TL sinyalinin %16'sının kaybolduğu, CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li malzemesinin ise 3 ay içinde %40'lik bir sönüme sahip olduğu gözlenmiştir. Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme metodu (CGCD) için gerekli yaklaşık pik konumlarını belirlemede ek doz (ED) ve  $T_m$ - $T_{durdurma}$  yöntemleri uygulanmıştır. Pik şekli (PS) ve izotermal bozunum (ID) yöntemleri de CGCD ile teorik olarak elde edilen kinetik parametrelerin deneysel olarak doğrulanması için kullanılmıştır.

**Anahtar Sözcükler:** CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy, CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li, Termolüminesans, Kinetik (tuzaklama) parametreleri, Dozimetre

#### ABSTRACT

### INVESTIGATION OF THE KINETIC PARAMETERS OF THERMOLUMINESCENCE MATERIALS IN Dy AND Li DOPED CaSO4 WITH Dy DOPED CaB4O7

AKIN, Aycan

MSc in Department of Nuclear Sciences (Physics)

Supervisor : Doç. Dr. Turgay KARALI

08.09.2009, 75 pages

In this study, the kinetic parameters of main TL glow peaks of CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy and CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li phosphors prepared to use as a thermoluminescence dosimeter were investigated. As CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li glow curve has a double peak with maximum at 120°C and a high tempereture peak at 400°C, CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy phosphor shows a low temperature peak at around 50°C, a main peak to be used as a dosimetric peak at 250°C and a high temperature peak at 400°C. When studied fading characteristics of TL materials, CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy shows a fading of %16 in a post-irradiation interval of 20 days whereas CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li has a fading of % 40 in 3 months. Additive dose (AD) and T<sub>m</sub>-T<sub>stop</sub> methods were applied to estimate approximate peak positions for computerized glow curve

deconvolution (CGCD). Experimentally, the peak shape (PS) and isothermal decay (ID) methods were also used to confirm values of the kinetic parameters obtain theoretically with CGCD.

**Keywords:** CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy, CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li, Thermoluminescemce, Kinetic (trapping) parameters, Dosimeter

## TEŞEKKÜR

Yüksek lisans çalışmalarım boyunca, bilgi ve önerileri ile çalışmalarıma yön vererek katkı sağlayan tez danışmanım Sayın Doç. Dr. Turgay KARALI'ya, Enstitü Müdürü Sayın Prof. Dr. Perihan ÜNAK'a, çalışmalarımın başlangıcından itibaren fikirlerini ve deneyimlerini esirgemeyen Dr. Arzu EGE, Ar. Gör. Elçin EKDAL, Yük. Fiz. Kemal F. OĞUZ, Ar. Gör. Melis GÖKÇE, Yük. Fiz. Ramazan GÜMÜŞ ve eserlerinden yararlandığım bilim insanlarına çok teşekkür ederim.

Son olarak her zaman yanımda olan, maddi ve manevi desteğini hiçbir zaman esirgemeyen, aileme teşekkürü borç bilirim.



# İÇİNDEKİLER

Say	<u>yfa</u>
ÖZET	. V
ABSTRACT	VII
ſEŞEKKÜR	IX
ÇİNDEKİLER	XI
ŞEKİLLER DİZİNİ	٢V
ÇİZELGELER DİZİNİX	IX
GİRİŞ	1
2 GENEL BİLGİLER	6
2.1 Kristal Kusurları	6
2.2 Lüminesans	8
2.3 Enerji Band Modeli	13

#### XI

# İÇİNDEKİLER (devam)

<u>Sayfa</u>

2.4 Termolüminesans (TL)	.17
2.5 Termolüminesans Kinetikleri	.21
2.5.1 Birinci derece kinetikler	.21
2.5.2 İkinci derece kinetikler	.23
2.5.3 Genel derece kinetikler	.23
2.5.4 Farklı termolüminesans modeller	.25
2.6 Termolüminesans Dozimetre (TLD)	.28
3 MATERYAL VE METOD	.31
3.1 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy ve CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li Dozimetrelerinin Yapısı	.31
3.2 Termolüminesans Dozimetre (TLD) Okuyucu Sistemi	.31
3.3 Doz Yanıt Eğrisinin Belirlenmesi	.33
3.4 Sönümleme Olayı	.35
3.5 TL Işıma Eğrisi Analiz Yöntemleri	.36

### XIII

# İÇİNDEKİLER (devam)

<u>Sayfa</u>
3.5.1 Ek doz yöntemi
3.5.2 T <sub>maksimum</sub> -T <sub>durdurma</sub> yöntemi
3.5.3 Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme yöntemi (CGCD) 38
3.5.4 Pik şekli yöntemi
3.5.5 İzotermal bozunum yöntemi
4 BULGULAR VE TARTIŞMA 46
4.1 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy ve CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li Işıma Eğrileri 46
4.2 Doz Yanıt Eğrisi Sonucu
4.3 Sönümleme Olayı Sonuçları 50
4.4 TL Işıma Eğrisi Analiz Yöntemleri Sonuçları
4.4.1 Ek doz yöntemi sonuçları 51
$4.4.2 T_{maksimum} T_{durdurma} sonuçları$
4.4.3 Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme (CGCD) sonuçları 54
4.4.4 Pik şekli yöntemi sonuçları

#### XIV

# İÇİNDEKİLER (devam)

<u>Sayfa</u>

4.4.5 İzotermal bozunum yöntemi sonuçları	.60
5 SONUÇLAR	.65
KAYNAKLAR DİZİNİ	.68
ÖZGEÇMİŞ	.75

## ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Şekil</u> <u>Sayfa</u>
<ul><li>2.1 (a) noktasal kusurlar, (b) çizgisel kusurlar ve (c) hacimsel kusurlar.</li><li>8</li></ul>
2.2 Fluoresans, fosforesans ve termolüminesans salınımları ile radyasyon soğurulması arasındaki ilişkiler. T <sub>0</sub> ışınlamanın meydana geldiği sıcaklık; $\beta$ ısıtma hızı; t <sub>r</sub> ışınlamanın son bulduğu ve fosforesans bozunumunun başladığı zamanı göstermektedir
2.3 (a) fluoresans ve (b) fosforesans oluşumuna yol açan enerji geçişleri
2.4 Basit bir iki düzey modele göre bir TL malzemedeki elektronik geçişleri gösteren enerji band modeli: (a) elektron ve deşiklerin oluşumu; (b) elektron ve deşiğin tuzaklanması; (c) termal uyarılmadan dolayı elektronun serbest kalması; (d) yeniden birleşme. Koyu daireler elektronları, açık daireler ise deşikleri göstermektedir. T düzeyi bir elektron tuzağını, R düzeyi yeniden birleşme merkezini, E <sub>f</sub> Fermi düzeyini ve E <sub>g</sub> bandlar arasındaki yasak enerji aralığını tasvir etmektedir
2.5 Termolüminesans sürecini açıklamak için kullanılan basit iki düzey modeli

## ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

## <u>Şekil</u>

## <u>Sayfa</u>

	2.6 Sıcaklık profili T(t), termolüminesans şiddeti I(t) ve t zamanının bir fonksiyonu olarak yeniden birleşme merkezi
	RC'deki tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonu n <sub>h</sub> (t).
20	Deneyde lineer 1s1tma h1z1 $\beta$ kullanılmaktadır.
	2.7 Birinci ve ikinci derece kinetikler için TL ışıma piklerinin karşılaştırılması. $E = 1 \text{ eV}$ , $s = 10^{-12} \text{ s}^{-1}$ , $n_0 = N = 10^3 \text{ m}^{-3}$
	parametreleri kullanılmıştır (ikinci grafik normalize
22	durumu göstermektedir).
	2.8 Farklı kinetik dereceleri (b parametresi) için (2.15) denklemi
	kullanılarak hesaplanan genel dereceli TL ışıma pikleri. E
	= 1 eV, $s = 10^{12} s^{-1}$ , $\beta = 1 K s^{-1}$ ve $n_0 = N = 1$ parametreleri
25	kullanılmıştır.
	3.1 Işıma ölçümlerinin yapıldığı TLD okuyucu sistemi
31	(Harshaw TLD 3500).
32	3.2 TLD okuyucunun basit bir diyagramı
34	3.3 Bir TL malzemenin örnek doz-yanıt eğrisi
40	3.4 Geometrik şekil nicelikleri $\tau$ , $\delta$ ve $\omega$
46	4.1 Sr-90 radyo izotopunun bozunum şeması

#### XVII

## ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

<u>Şekil</u> <u>Sayfa</u>
4.2 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla alınan ışıma eğrisi
4.3 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla alınan ışıma eğrisi
4.4 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresine ait doz yanıt eğrisi
4.5 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresine ait doz yanıt eğrisi
4.6 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresine ait sönümleme eğrisi
4.7 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy örneğine ait TL ışıma eğrisinin şekli üzerinde ışınlama süresinin etkisi
4.8 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li örneğine ait TL ışıma eğrisinin şekli üzerindeki ışınlama süresinin etkisi
4.9 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresine ait T <sub>m</sub> -T <sub>durdurma</sub> yöntemi sonucu
4.10 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresine ait T <sub>m</sub> -T <sub>durdurma</sub> yöntemi sonucu 54
4.11 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla kaydedilen çözümlenmiş TL ışıma eğrisi

#### XVIII

## ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
4.12 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla kaydedilen çözümlenmiş TL ışıma eğrisi	55
4.13 Termal temizleme ve çıkarma işlemlerinden sonra elde edilen CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresinin 1 numaralı piki	58
4.14 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresinin termal temizleme ve çıkarma işlemlerinden sonra elde edilen 3 numaralı piki	59
4.15 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy'un 1 numaralı pikin 210, 215 ve 220°C'deki izotermal bozunum eğrileri.	61
4.16 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresinin 1 numaralı pikine ait 1/T'ye karşı Ln(m) grafiği.	62
4.17 CaSO <sub>4</sub> : Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikin 95, 100 ve 105°C'deki izotermal bozunum eğrileri	63
4.18 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikine ait 1/T'ye karşı Ln(m) grafiği.	64

# ÇİZELGELER DİZİNİ

<u>Çizelge</u> <u>Sa</u>	yfa
4-1 CGCD yöntemi kullanılarak örneğin 1dk β <sup>-</sup> ışınlanmasından sonra kaydedilen CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresine ait TL pikin kinetik parametrelerinin değerleri.	56
4-2 CGCD yöntemi kullanılarak örneğin 30s β <sup>-</sup> ışınlanmasından sonra kaydedilen CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresine ait TL pikin kinetik parametrelerinin değerleri.	56
4-3 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresine ait 1 numaralı pikin kinetik parametreleri	. 58
4-4 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresine ait 3 numaralı pikin kinetik parametreleri	. 60
4-5 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresinin 1 numaralı pikin izotermal bozunum yöntemiyle elde edilen kinetik parametreleri	62
4-6 CaSO <sub>4</sub> :Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikin izotermal bozur yöntemiyle elde edilen kinetik parametreleri	num 64
5-1 CaB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Dy dozimetresinin 1 numaralı pikine ait kinetik parametreler. Burada CGCD: Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme, PS: Pik şekli (ortalama değeri alınmıştır) ve ID: İzotermal bozunum yöntemlerini göstermektedir	66

## ÇİZELGELER DİZİNİ (devam)

#### <u>Çizelge</u>

#### <u>Sayfa</u>

#### 1 GİRİŞ

Fosforesans ile radyasyon arasındaki bağlantı on dokuzuncu yüzyılın sonundaki kapsamlı incelemelerin konusuydu ve radyasyonla uyarılmış termolüminesans çalışmaları, Marie Curie 1904'de doktora tezini yazdığında bir artış gösterdi: *"Florit gibi belirli nesneler usıtıldığında parlak hale gelmektedir. Onlar usıyla-uşıldayanlardır* (*parlayanlar*). Onların parlaklığı belirli bir süre sonra kaybolur fakat usıtma yoluyla uşıldayan durumuna gelme kapasitesi, ateşleme ve aynı zamanda radyasyon etkisiyle eski haline getirilmektedir. Radyum bu nesneleri usıyla-parlayan özelliğine sahip eski haline getirebilir (Curie, 1904)". Gerçekten termolüminesansı yeniden oluşturmak için radyumdan gelen beta ışınlarının kabiliyeti Wiedemann tarafından da gözlendi.

Lind & Bardwell (1923) değişik değerli taşlardan ve saydam minerallerden ışımayı uyarmak için radyum kullanarak radyasyonla uyarılmış termolüminesans çalışmasına devam ettiler. Bunu 1924'te floritte kendi doğal termolüminesans gözlemini yapan Wick takip etti. O ve meslektaşları seçilmiş doğal mineraller ve sentetik fosforlarda x-ışını ve elektron demeti ile uyarılmış termolüminesans hakkında detaylı çalışmalar yapmışlardır. Özellikle Wick & Slattery (1928) seçilmiş aynı sentetik fosforlarda x-ışını ile uyarılmış termolüminesansın kapsamlı bir Bu fosforlar mangan ile katkılanmış incelemesini yapmışlardır. CaSO<sub>4</sub>'tan oluşmaktaydı. CaSO<sub>4</sub>:Mn özellikle mükemmel bir termolüminesant (1s1yla parlayan) fosfordur. Bu malzeme Lyman (1935),fosforun tarafından ışığa maruz kalmasıyla uyarılan termolüminesansı gözleyerek mor-ötesi radyasyonu saptamak için kullanıldı. Ateşleme ile fosfor arasındaki havanın geçirgenlik derecesi termolüminesansın parlaklığı ile anlaşıldı. Yani Lyman'ın çalışması dozimetride termolüminesansın ilk kullanımlarından biriydi.

Termolüminesans eğrisinin maksimum olduğu sıcaklık, elektronun tuzak derinliğiyle ilişki içindeydi. Bu, Urbach tarafından (1930) tuzak derinlik dağılımlarını çalışmak için termolüminesansın kullanımına anahtar olarak görüldü.

Termolüminesans eğrisinin teorik incelenmesi konusundaki ilk çalışmalar, Birmingham Üniversitesindeki bir grup araştırmacı (Randall & Wilkins, 1945 ve Garlick & Gibson, 1948) tarafından yapılmıştır. Bu araştırmacılar katıların band modelini göz önüne alan bazı modellemeler yaparak termolüminesans teorisini formalize etmişlerdir. Böylece bir termolüminesans pikin sıcaklığı, şekli ve boyutu ile tuzaklama parametreleri denen E (aktivasyon enerjisi), s (frekans faktörü) ve n<sub>0</sub> (ısıtmanın başlangıcında tuzaklanmış elektronların sayısı) arasındaki ortaya çıkarılmıştır. Günümüze kadar TL ışıma eğrisini iliski açıklayabilmek için pek çok model ve yaklaşım geliştirilmiştir (Sunta et al., 1999; Furetta and Kitis, 2004 ;Furetta, 2003). Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Cu, Ag, P fosforunun kinetik parametrelerinin belirlendiği bir makalede; yakın zamanda hazırlanan, doku eşdeğeri, son derece duyarlı bir termolüminesant dedektörün kinetik parametreleri hesaplanmıştır (Ege, 2007). Bu çalışmada 446K'deki ana ışıma piki göz önüne alınarak izotermal bozunum ve pik şekli yöntemleri ile aktivasyon enerjileri sırasıyla 1.12 ve 1.13eV olarak elde edilmiştir. Bununla birlikte frekans faktörleri 7.61x10<sup>11</sup> ve 3.53x10<sup>11</sup> s<sup>-1</sup> hesaplanmıştır. Her iki yöntemle elde edilen sonuçların güvenilir ve doğru olduğu görünmektedir. Cu ile katkılanmış BaSO<sub>4</sub> malzemesinin termal uyartımlı lüminesans ile kinetik parametrelerinin incelendiği bir çalışmada toz halindeki fosfor xışınlarına maruz bırakılmaktadır (Manam and Das, 2009). Bu makalede

BaSO<sub>4</sub> fosforu Cu ile katkılandığında, TL duyarlılığının katkılanmamış fosfora göre 9 kat arttığı gözlenmiştir. Ayrıca BaSO<sub>4</sub> fosforuna Mn safsızlığı da eklenmiş ancak onun TL duyarlılığını sadece 3 kat arttırdığı görülmüştür. Bu nedenle Cu katkılı BaSO<sub>4</sub> TL dozimetrisinde kullanışlı olabilir. Yük taşıyıcılarının yeniden tuzaklanmasının ihmal edildiği bu TL çalışmasında fosforun birinci derece kinetiklere uyduğu belirtilmiştir. İzotermal bozunum (ID) ile pik şekli (PS) yöntemleriyle tuzaklama parametrelerinin E (ID: 0.93eV, PS: 0.88eV) ve s (ID: 4.6x10<sup>8</sup> s<sup>-1</sup>, PS: 1.2x10<sup>8</sup> s<sup>-1</sup>) değerleri arasında bir uyumun ve güvenilirliğin olduğu söylenebilir. Bu fosforun ana piki karanlıkta 5 günlük bir zaman aralığında %35'lik bir sönümleme göstermesine rağmen doz-yanıtında iyi bir lineerlik ve basit bir ışıma eğri yapısına sahip olan mükemmel bir tekrarlanabilirlik sergilediği bulunmuştur. Kolaylıkla hazırlanabileceği ve radyasyon dozimetrisinde kullanılabileceği de eklenmiştir. Alüminyum ile aktive edilmiş LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>'ın dozimetrik ışıma pikinin özelliklerinin çalışıldığı bir başka makalede ise ilgili fosforun ışıma eğrisinin, 0.04 ve 5Gy arasında  $\beta$ -ışınlamasına maruz bırakıldığında en az 3 ışıma pikinin bileşiminden oluştuğu bununla birlikte doz 5Gy'in üzerine arttırıldığında ana dozimetrik pikin yüksek sıcaklık tarafında yeni bir pikin oluşmaya başladığı gözlenmiştir (Kafadar vd., 2009). Bu araştırmacılar ışıma eğrisinin kinetik derecesini bulmak için ek doz (AD) yönteminden ve ışıma eğrisi altında kalan bireysel piklerin konumları ile başlangıç aktivasyon enerjilerini ( $E_a$ ) belirlemek için  $T_m(E_a)$ - $T_{durdurma}$  yönteminden yararlanmışlardır. Ana dozimetrik pikin aktivasyon enerjisi ve frekans faktörünü bulmak için farklı deneysel yöntemler kullanmışlardır. Bu deneysel yöntemlerden elde edilen sonuçlar günümüzde oldukça popüler olan bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme (CGCD) tekniği ile elde edilen sonuçlarla çok iyi bir uyum sergilemektedir. Tüm yöntemlerle elde edilen değerleri tuzaklama parametrelerinin arasında bir doğruluk ve güvenilirlik bulunmaktadır. Etkin dedektörler yardımıyla karma radyasyon ortamlarında nötron dedeksiyonu, alandaki yüklü parçacıkların ve gama ışınlarının çeşitliliği birbirinden ayırt edilemediği için genellikle zordur. Bu nedenle bir alternatif olarak pasif TLD'ler önerilmektedir. Son zamanlarda karma nötron-gama alanlarındaki ZrO<sub>2</sub> nano kristal tozlarının termal nötron duyarlılığı incelenmiştir (Rivera et al., 2009). Bunun için örnek önce 2mSv'lık eşdeğer bir doza sahip gama ışınlarına ardından yine 2mSv'lık eşdeğer doza sahip karma gama-nötron alanına maruz bırakılmıştır. TL yanıtına bakıldığında her iki durumda da 140 ve 270°C'de iki pik görülmüştür. Ancak gama duyarlılığı, karma alanınkinden yaklaşık 100 kat daha yüksektir. Ondan sonra LiF:Mg,Cu,P ile ZrO<sub>2</sub> 2mSv eşdeğer doza sahip gama+nötron alanına bırakılmaktadır. Net nötron yanıtını bulmak için lityum florürden zirkonyum dioksitin TL yanıtı çıkarılır. Aynı eşdeğer dozda zirkonyum dioksitin nötron duyarlılığının diğer fosfora kıyasla ihmal edilebilir olduğu görülmüştür. Oysa gama radyasyonuna olan duyarlılıkları benzerdir. ZrO<sub>2</sub>'in termal nötron dozuna (0.9 ile 16.7mSv arasında) karşı gösterdiği TL yanıt lineerdir. 30 günlük bir zaman diliminde ise %1.8 sönümleme göstermiştir. Bu çalışma karma alandaki nötron katkısının bulunması açısından önemlidir. Tanısal ve radyoterapi uygulamalarında bir dozimetre olarak fiber optiklerin kullanılması önerilmiştir (Hustan et al, 2002; Benevides et al., 2007). Bir termolüminesans dozimetre olarak Ge katkılı fiber optikler, daha iyi bir çözünürlüğe, düşük bir maliyete, esnekliğe ve küçük boyuta sahiptir (Ong et al., 2009). Bu fiber optik malzemenin 0.2 ile 12Gy doz aralığında lineer bir yanıta ve 5Gy'lik bir ışınlama sonrası iki haftada %3.53 sönüme sahip olduğu gösterilmiştir. Diğer TL karakteristiklerinin (enerji yanıtı, tekrarlanabilirliği, yeniden kullanımı vb.) de oldukça tatmin edici olduğunu belirtmek gerekir. Bu dozimetrelerin özellikle radyoterapide ticari TLD'lere göre daha iyi bir alternatif olduğu vurgulanmıştır.

İlerleyen bölümlerde kristal yapı kusurları, ile lüminesans termolüminesansın temel prensipleri, kullanılan modeller ve termolüminesans dozimetrelerden ayrıntılı bir şekilde bahsedilmektedir. Ardından calışmada incelenen CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ile CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetrelerinin doz yanıtı ve sönümleme olayının yanı sıra bu dozimetrelerin kinetik parametrelerini hesaplamak için kullanılan yöntemler (Ek doz, T<sub>m</sub>-T<sub>durdurma</sub>, bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme, pik şekli ve izotermal bozunum) verilmektedir. Son bölümde elde edilen sonuçlar verilmiş ve tartışılmıştır.

#### 2 GENEL BİLGİLER

#### 2.1 Kristal Kusurları

Kristal örgünün mükemmel olduğu ve her boş konumun bir atom tarafından işgal edildiği varsayılmaktadır. Fakat bir metre küpte yaklaşık 10<sup>28</sup> atom bulunduğu hatırlandığında istatistiksel olarak bir takım düzensizliklerin olacağı beklenmektedir. Gerçekte tüm kristaller, bir takım kusurlar ihtiva ederler. Çoğu kristalin özellikleri, kusurların konsantrasyonları ile belirlenmektedir. Bunların özellikle en önemlileri yarı iletkenler ve optik kristallerdir (Mosely and Crocker, 1996). Sözü edilen üç boyutlu yapı içerisinde mutlaka periyodikliği az veya çok miktarda bozacak kusurlar bulunur. Bunlara kristal yapı kusurları denir.

hacmi içerisinde atomlar veya atom grupları, Bir kristal tanımlandığı gibi tümü ile düzgün bir sıralınım içerisinde bulunmazlar. Her şeyden önce bir kristal yapıyı oluşturan atomların hiçbir zaman durgun halde olmadıkları akıldan çıkarılmamalıdır. Sıcaklığa bağımlı olarak atomlar bir kristal içerisinde bulunmaları beklenen noktanın etrafında titreşim hareketi yaparlar, işte bu durum bile hemen karşımıza bizim tanımladığımız gibi atomların sabit noktalarda ve birbirlerine göre belirli uzaklıklarda olmadıklarını çıkarır. Kristali oluşturan atomlar arasında yabancı atomlar, yani bu kristalin yapısı içerisinde yer almaması gereken atomlar da bulunabilir (Dikici, 1993). Burada, belirli atom ya da atom gruplarında oluşan bir kristalde, bu atomların arasındaki düzenin bozulduğu durumlar üzerinde durulmuştur. Bunlar noktasal, çizgisel ve hacimsel kusurlardır (Şekil 2.1). Noktasal bir yapı bozukluğu; atom boşlukları (normal olarak dolu olması gerektiği halde boş olan yerler), ara yer atomu (normal olarak dolu olan konumların dışında bulunan atomlar ya da iyonlar), ayrışmış ara yerler (bir ara yer, diğer bir atomun ya da iyonun normal konumunu değiştirdiğinde) görülür. Pozitif ve negatif iyonlardan oluşan iyonik bir kristalde kusurların oluşumu sırasında elektriksel dengenin kurulmuş olması gerekir. Bu durumda belirli bir işaretin bir iyonundan bir atom boşluğunun oluşmasıyla birlikte, kaçınılmaz olarak, ya karşıt işaretin iyonundan başka bir atom boşluğu (Schottky kusuru: nötral metal atomlarının örgüsünde tek bir atom yerinden çıkarsa oluşan boşluk) ya da aynı işaretin bir ara yeri (Frenkel kusuru: bir iyonun komşu yüksek enerjili bir bölgeye geçmesi ile oluşan kusur) oluşur (Çetin, 2007). Çizgisel yapı bozuklukları dislokasyon tipi bozukluklardır ve kristalin dış kuvvetlere karşı direncinde önemli değişikliklere yol açarlar. En çok görülen yapı bozuklukları ise ikizlenme (twinning) veya kayma (slip) türü bozukluklardır ve tanımından da anlaşılacağı gibi üç boyutta ortaya çıkarlar.

Burada sözü edilen kristal yapı kusurları kristalin oluşumu sırasında kendiliğinden ortaya çıkmış olabileceği gibi, oluşumdan sonra dış etkenlerle de oluşabilirler.



Şekil 2.1 (a) noktasal kusurlar, (b) çizgisel kusurlar ve (c) hacimsel kusurlar.

#### 2.2 Lüminesans

Bir malzeme radyasyonla etkileştiğinde, enerjinin bir kısmı malzeme tarafından soğurulabilir ve daha uzun bir dalga boyu ile yeniden yayınlanabilir (Stokes Kanunu). Bu lüminesans sürecidir. Yayınlanan ışığın dalga boyu, gelen radyasyonun değil lüminesant maddenin karakteristiğidir. Lüminesans olaylarının çoğu, görünür ışığın salınımıyla ilgilenmektedir fakat mor ötesi ve kızıl ötesi gibi diğer dalga boyları da salınabilir.

Lüminesans salınımın harekete geçirmek için kullanılan radyasyon türünü ifade eden farklı lüminesans olayları aşağıda isimleriyle verilmektedir. Bunlara fotolüminesans (optik veya mor ötesi ışıkla uyarma), radyolüminesans (nükleer radyasyonlar, örneğin gama ışınları, beta parçacıkları, x ışınları gibi) ve katodolüminesans (elektron demeti ile uyarma) örnek olarak verilebilir. Ayrıca lüminesans, kimyasal enerji (kemilüminesans), mekanik enerji (tribolüminesans), elektrik enerjisi (elektrolüminesans), biyokimyasal enerji (biyolüminesans) ve ses dalgaları (sonolüminesans) ile de üretilebilir.

Işık salınımı, radyasyonun soğurulmasından sonra karakteristik bir sürede ( $\tau_c$ ) meydana gelir ve bu süre lüminesans işlemini alt kategorilere ayırmamıza yardımcı olur. Böylece  $\tau_c < 10^{-8}$ s'de fluoresans meydana gelirken  $\tau_c > 10^{-8}$ s'de fosforesans meydana gelir.

 $\tau_c < 10^{-8}$  s değeri, aslında fluoresans salınımının kendiliğinden geldiğini meydana gösteren bir tanımdır. Fluoresans salınımı, radyasyonun soğurulması ile aynı anda meydana gelen ve radyasyonun kesilmesiyle derhal duran işlem olarak tanımlanmaktadır (Şekil 2.2). Öte yandan fosforesans, soğurulan radyasyon ile maksimum şiddete ulaşması için geçen süre (t<sub>max</sub>) arasındaki gecikme ile karakterize edilmektedir. Buna ilaveten fosforesansın, uyarılma kaldırıldıktan sonra bir süre devam ettiği görülmektedir. Şüphesiz, gecikme zamanı  $\tau_c$ , 1s mertebesindedir. Fosforesans olarak sınıflandırmak kolaydır. Bununla birlikte çok daha kısa süreli gecikmeler için, fluoresans ile fosforesans arasındaki ayrımı yapmak daha zordur. Fosforesansın kendisi, uygun bir şekilde sırasıyla kısa süreli ( $\tau_c < 10^{-4}$  s) ve uzun süreli ( $\tau_c > 10^{-4}$  s) fosforesans olarak tekrar iki ana başlığa bölünebilir. Fluoresans ile fosforesans arasındaki farkı ayırt etmenin tek yolu lüminesansın bozunumu üzerine sıcaklığın etkisini incelemektir. Fluoresans, aslında sıcaklıktan bağımsızdır oysa ki fosforesans bozunumu, güçlü bir sıcaklık bağımlılığı sergiler.



Şekil 2.2 Fluoresans, fosforesans ve termolüminesans salınımları ile radyasyon soğurulması arasındaki ilişkiler. T<sub>0</sub> ışınlamanın meydana geldiği sıcaklık; β ısıtma hızı; t<sub>r</sub> ışınlamanın son bulduğu ve fosforesans bozunumunun başladığı zamanı göstermektedir.

Genelde, lüminesans salınımı radyasyon enerjisinin katının elektronlarına iletilmesiyle ve böylece elektronların bir g taban halinden uyararak bir uyarılmış e haline geçmesi olarak açıklanmaktadır (Şekil 2.3a geçiş i). Bir lüminesans fotonunun salınımı, uyarılmış bir elektron taban hale döndüğünde meydana gelir (geçiş (ii)). Böylece fluoresans için, (i) ve (ii) arasındaki gecikme 10<sup>-8</sup> s'den daha azdır ve bu işlem sıcaklıktan bağımsızdır. Burada (Şekil 2.3b) enerji düzey diyagramı e ve g arasında yasak enerji aralığındaki yarı kararlı bir m düzeyinin varlığı ile değiştirilmektedir.



Şekil 2.3 (a) fluoresans ve (b) fosforesans oluşumuna yol açan enerji geçişleri.

g'den e'ye uyarılan bir elektron, e'ye geri dönmek için yeteri kadar E enerjisi verilene kadar m'de tuzaklanmış olabilir. Eğer m durumundaki elektron gerekli enerjiyi alırsa buradan e durumuna ve ardından g taban durumuna geri dönerken ışık salınımı gözlenir. Böylece fosforesansta gözlenen gecikme, elektronun elektron tuzağı m'de harcadığı zamana (süreye) karşılık gelir. T sıcaklığında tuzakta geçirilen ortalama sürenin:

$$\tau = s^{-1} exp(E/kT) \tag{2.1}$$

ile verildiği gösterilebilir. Burada s bir sabit ve E, e ve m (tuzak derinliği) arasındaki enerji farkı; k Boltzmann sabitidir. Denklem (2.1)'den görülebileceği gibi fosforesans süreci, eksponansiyel olarak sıcaklığa bağlıdır.

Katıların enerji band teorisine dayanan fosforesansın bu basit gösterimi, birkaç fosforun lüminesans özelliklerini açıklamak için başarıyla kullanılmıştır. Fakat teori, Randall & Wilkins'in (1945a) çalışmasına kadar tam olarak formüle edilememiştir. Bu yazarlar, elektronun tuzaktan kurtulur kurtulmaz m haline geri dönme olasılığının, taban hali g'ye geri dönme olasılığından daha az olduğu varsayımında bulunmuşlardır. Herhangi bir t anındaki fosforesans salınımının şiddeti yeniden birleşme hızıyla orantılıdır. Bu durumda, e-g geçişleri basitçe m-e geçişleri tarafından yönetilmektedir ve böylece I(t), tuzaktan elektronların salınım hızıyla orantılıdır. Bundan dolayı

$$I(t) = -C \, dn/dt = C \, n/\tau \tag{2.2}$$

olur. Burada C, orantı sabitidir ve n, m'de tuzaklanmış elektronların sayısıdır. Yukarıdaki denklemin integrali alınarak,

$$I(t) = I_0 exp(-t/\tau)$$
(2.3)

elde edilir. Burada  $\tau$ , denklem (2.1) ile verilmektedir, t zaman ve I<sub>0</sub>, t = 0 anındaki şiddettir. Bu denklem, ışınlamanın sonunu takip eden sabit sıcaklıktaki fosforesans bozunumunun denklemidir. Sabit sıcaklıkta, bozunum basit bir eksponansiyel veya birinci derece bozunumdur. Bu duruma pratikte sık sık rastlanmaktadır, fakat fosforesans bozunumu

12

eksponansiyel değildir. Bunun nedenlerinden biri, birkaç birinci derece bozunumun üst üste binmesi olabilir. Bu nedenle herhangi bir sıcaklıktaki farklı E değerlerine sahip tuzakların her biri örnek olarak denenmektedir. İkinci sebebi, tuzaktan salınır salınmaz elektronun ya m haline geri döndüğü ya da g halinde yeniden birleştiği olasılığıdır. Bu durumda yeniden birleşme hızı, sadece elektronların sayısı ile değil aynı zamanda mevcut yeniden birleşme konumlarının sayısıyla da orantılıdır. Bunların eşit olduğu varsayımı (her ikisinin de n'ye):

$$I(t) = -C \, dn/dt = \alpha n^2 \tag{2.4}$$

denklemini verir. Burada α, sabit T'deki bir sabittir.

(2.2) ile (2.4) denklemlerinin kıyaslanmasıyla görülüyor ki fosforesans şiddeti, n'den ziyade  $n^2$  ile orantılıdır. İntegrali,

$$I(t) = I_0 / (n_0 \alpha t + 1)^2$$
(2.5)

verir. Bu bozunum türü, ikinci derece olarak ifade edilmektedir.  $\alpha$  sabiti m'deki elektronların yeniden tuzaklanması ve g'de yeniden birleşmelerinin bağıl olasılıklarını tanımlayan bir terim ve ortalama ömür  $\tau$  ile ilgilidir (McKeever, 1988).

#### 2.3 Enerji Band Modeli

Gözlenen TL özelliklerinin açıklanabilmesi için, katıların enerji band teorisinden yararlanılabilir. İdeal bir kristal, yarı iletken veya yalıtkanda elektronların çoğu, valans bandında bulunmaktadır. Elektronların işgal edebildiği sonraki en yüksek band, aralarında yasak band aralığı bulunan, valans bandından ayrılmış iletkenlik bandıdır. Ayrık bandlar arasındaki enerji farkı Eg'dir. Bununla birlikte bir kristalde yapısal kusurlar meydana geldiğinde veya örgü içerisinde safsızlıklar mevcut ise mükemmel bir kristalde yasak olan enerjilere sahip olabilen elektronlar için bir olasılık vardır. Basit bir TL modelin, biri iletkenlik bandının altında ve diğeri de valans bandının üstünde bulunan iki düzeyden oluştuğu varsayılmıştır (Şekil 2-4). Örneğin radyasyona maruz kalmadan ve elektronlarla deşikler yaratılmadan önce, T ile gösterilen en yüksek düzey, Fermi düzeyinin (E<sub>f</sub>) üstünde bulunmaktadır ve denge durumunda boştur. O nedenle potansiyel bir elektron tuzağıdır. Diğer düzey (R ile gösterilen) potansiyel bir deşik tuzağıdır ve yeniden birleşme merkezi olarak işlevini yerine getirebilir. hv>Eg ile ışınımsal enerjinin soğurulması, valans bandında serbest deşikler ve iletkenlik bandında serbest elektronlar oluşturacak olan enerjili elektronlar ve deşikler üreten valans elektronlarının iyonizasyonuyla sonuçlanır (geçiş a). Serbest yük taşıyıcıları, birbiri ile veya tuzaklanmış olanlarla yeniden birleşirler. Doğrudan yeniden birleşme durumunda, bir lüminesant merkezini uyarabilen enerjinin bir miktarı, serbest bırakılacaktır. Lüminesant merkezi, ışığın salınımı altında boşalır (taban hale geri döner). Işığın salınımı altında serbest elektronların ve deşiklerin doğrudan (<10<sup>-8</sup> s) yeniden birleşme olayı, radyolüminesans olarak bilinir. Bununla birlikte yarı iletken ve yalıtkanlarda yük taşıyıcılarının belirli bir yüzdesi, T'de elektronlar ve R'de deşikler olarak tuzaklanmıştır (geçiş b). Tuzaktaki bir elektronun serbest kalması için birim olasılığının, Arrhenius denklemi ile zaman başına tanımlanabileceği varsayılmaktadır:

$$p = s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{2.6}$$

Burada p birim zaman başına olasılıktır. s ifadesi frekans faktörü veya kaçmaya teşebbüs faktörü olarak bilinir. Basit modelde s, örgü titreşim frekansı, yani  $10^{12} - 10^{14}$  s<sup>-1</sup> mertebesindeki bir değerle sabit olarak (sıcaklığa bağlı değil) göz önüne alınmaktadır. E, iletkenlik bandına tuzaktan bir elektronun salınması için gereken enerji yani tuzak derinliği veya aktivasyon enerjisi olarak bilinir (Şekil 2.4). k = Boltzmann sabiti = 8.617 x  $10^{-5}$  eV/K ve T = mutlak sıcaklıktır. Eğer tuzak derinliği E >> kT<sub>0</sub>, T<sub>0</sub> ışınlamadaki sıcaklık, ise tuzaklanmış herhangi bir elektron uzun bir zaman dilimi öylece kalacaktır. Radyasyona maruz kalmasından sonra bile azımsanmayacak kadar bir tuzaklanmış elektron popülâsyonu bulunacaktır. Bundan başka serbest elektron ve deşiklerin çifter çifter yaratılması ve yok edilmesinden dolayı R düzeyinde eşit bir tuzaklanmış deşikler popülasyonu olması gerekir. Çünkü normal Fermi denge düzeyi E<sub>f</sub>, R düzeyinin üstünde ve T düzeyinin altında bulunmaktadır, bu tuzaklanmış elektron ve deşik popülasyonları dengenin olmadığı bir durumu temsil eder (gösterir). Denge durumuna geri dönmek için reaksiyon yolu her zaman açıktır fakat denge durumundaki (iyonlaştırıcı radyasyona maruz kalması boyunca) düzensizlikten dolayı düşük sıcaklıkta (E/k)ile kıyaslanan) gerçekleştirilmektedir, yukarıdaki denklemle belirlendiği için boşalma hızı yavaştır. Böylece, dengenin olmadığı durum yarı kararlıdır ve E ile s hız parametreleri ile kontrol edilen belirsiz bir süre orda bulunacaktır.



Şekil 2.4 Basit bir iki düzey modele göre bir TL malzemedeki elektronik geçişleri gösteren enerji band modeli: (a) elektron ve deşiklerin oluşumu; (b) elektron ve deşiğin tuzaklanması; (c) termal uyarılmadan dolayı elektronun serbest kalması; (d) yeniden birleşme. Koyu daireler elektronları, açık daireler ise deşikleri göstermektedir. T düzeyi bir elektron tuzağını, R düzeyi yeniden birleşme merkezini, E<sub>f</sub> Fermi düzeyini ve E<sub>g</sub> bandlar arasındaki yasak enerji aralığını tasvir etmektedir.

Denge durumuna dönüş, TL malzemenin sıcaklığını  $T_0$ 'ın üstüne yükselterek hızlandırılabilir. Bu yeniden tuzaklanma olasılığını artıracaktır ve elektronlar, tuzaktan iletkenlik bandına salınacaktır. Yük taşıyıcı, yeniden birleşme merkezi R'de yeniden birleşmeye maruz kalana kadar kristalin iletkenlik bandı boyunca yer değiştirir. Basit modelde bu yeniden birleşme merkezi, elektronun yeniden birleştiği bir
lüminesant merkezidir ve deşik daha yüksek uyarılmış hallerden birinde merkezi terk eder. Taban hale geri dönüş, ışık kuantasının (miktarının) salınımıyla ilişkilendirilmektedir (örneğin TL) (Bos, 2001).

### 2.4 Termolüminesans (TL)

Kimi termal uyartımlı olaylarda genel olarak önceden uyarılmış katı bir örneğin ısıtılması yoluyla açığa çıkan ışığın salınımı incelenmektedir. Bu genellikle termolüminesans (TL) olarak ifade edilmektedir.

Termolüminesans (TL) olgusu, aşağıdaki gibi tanımlanabilir. Katı bir örnek, genellikle yalıtkan bir malzeme, "düşük" bir sıcaklıkta iyonize radyasyonla karakteristik olarak uyarılmaktadır. Bu aşamanın sonunda örnek lineer bir ısıtma hızıyla ısıtılır. Bu süreç, "readout" aşaması olarak bilinmektedir. Bu aşamada, sıcaklık derece derece arttırılmaktadır ve sıcaklığın (veya zamanın) bir fonksiyonu olarak ışık salınımı, ışığa duyarlı bir fotoçoğaltıcı dedektör kullanılarak kaydedilir. Sıcaklığın fonksiyonu olarak salınan bu ışık, termolüminesans "ışıma eğrisi" olarak bilinen eğriyi ortaya çıkartır. Normal olarak ışıma eğrisinin şekli, bazıları üst üste binebilen bir veya daha fazla pikten oluşur. Işıma eğrisinin şekli ışığa duyarlı alete ve özellikle de onun spektral yanıtına bağlıdır. Ayrıca örnekle dedektör arasına farklı filtreler konulması halinde bile ışıma eğrisi farklı görünebilir. Aynı zamanda TL ışıma eğrisinin şekli kullanılan ısıtma hızına da bağlıdır. Isıtma işleminin sonunda örnek hızlı bir şekilde soğutulur (Chen and McKeever, 1995).

Isıtıldığında malzemelerin ışık yaydığı süreç, en basit olası model göz önüne alınarak anlaşılabilir. Bu model biri yalıtılmış bir elektron tuzağı (T) ve diğeri yeniden birleşme merkezi (RC) olarak işlev gören iki lokalize düzeyden ibarettir (Şekil 2.5). Bu genellikle one-trap-one-recombination center (OTOR) modeli olarak bilinmektedir.



Şekil 2.5 Termolüminesans sürecini açıklamak için kullanılan basit iki düzey modeli.

Kristal içindeki tuzakların toplam konsantrasyonunu N (m<sup>-3</sup>) ile t zamanında kristaldeki doldurulmuş tuzakların konsantrasyonunu n(t) (m<sup>-3</sup>) ve yeniden birleşme merkezindeki tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonunu n<sub>h</sub>(t) (m<sup>-3</sup>) ile gösterelim. t = 0 anında doldurulmuş tuzakların ilk konsantrasyonu, n<sub>0</sub> ile gösterilmektedir.

Tipik bir termolüminesans deneyinde örnek, oda sıcaklığından yüksek bir sıcaklığa  $\beta = dT/dt$  lineer bir ısıtma hızı ile ısıtılmaktadır. Örneğin sıcaklığı arttırılırken, T'de tuzaklanmış elektronlar Şekil 2.5'de

1 numaralı okla gösterildiği gibi termal olarak iletkenlik bandına çıkarılırlar. Bu iletkenlik bandı elektronları, yeniden birleşme merkezindeki RC (2 numaralı okla gösterilen geçiş) deşiklerle ya yeniden birleşebilirler ya da Şekil 2.5'de gösterildiği gibi elektron tuzağı T'de (3 numaralı okla gösterilen geçiş) yeniden tuzaklanabilirler. Salınan ışığın şiddeti, yeniden birleşme merkezindeki deşiklerin ve elektronların yeniden birleşme hızına eşittir ve

$$I(t) = -\frac{dn_h}{dt} \tag{2.7}$$

ile verilmektedir. Örneğin sıcaklığındaki (T) artış, ışığın eş zamanlı salınımı (I(t)) ve tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonundaki ( $n_h$ )azalma Şekil 2.6'da gösterilmektedir (Pagonis et al., 2006).



#### 2.5 Termolüminesans Kinetikleri

Bir TL malzemenin sıcaklığa veya zamana karşı verdiği emisyon ışıma eğrisi, olarak adlandırılır ve bir veya daha fazla ışıma piklerinden oluşur. Işıma pikleri çeşitli yollarla analiz edilir. Temel termolüminesans teori, deneysel TL piklerin tanımlanabilmesi için iki ifade öngörür. Bu ifadeler, Randall ve Wilkins'ın birinci derece kinetik teorisi ile Garlick ve Gibson'ın ikinci derece kinetik teorisinden çıkarılmaktadır. Bununla birlikte birinci ve ikinci derece kinetiklere uymayan fakat bu ikisi arasındaki kinetik derecelere karşılık gelen bir şekle sahip pek çok yayınlanmış deneysel ışıma pikleri vardır. Bu aradaki kinetik dereceleri tanımlamak için tamamen deneysel verilere dayanan bir teori May ve Partridge tarafından önerilmiştir. TL ışıma piklerinin şekli, konumu ve şiddeti TL salınımından sorumlu olan tuzaklama parametreleri ile ilgilidir. Bu parametreler, frekans faktörü s (s<sup>-1</sup>), aktivasyon enerjisi E (eV) ve kinetiklerin derecesi b'yi kapsar.

#### 2.5.1 Birinci derece kinetikler

Tamamen ayrılmış (yalıtılmış) bir TL piki için birinci derece kinetik, temel olarak yeniden tuzaklanmanın olmadığı durumu göz önüne alan Randall and Wilkins (Randall and Wilkins, 1945a) tarafından verilmekte ve tuzaklanmış elektronların konsantrasyonu ile orantılı olan bir TL şiddetinin olduğu varsayılmaktadır. Bu durum genellikle birinci derece kinetikler olarak bilinmektedir. T (K) sıcaklığında birim zaman (s) başına elektronların serbest kalma hızı:

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = nse^{-E/kT}$$
(2.8)

ile verilmektedir. Burada I (keyfi değer) TL şiddeti, n t(s) anında tuzaklanmış elektron konsantrasyonu ve k ( $eVK^{-1}$ ) Boltzmann sabitidir. Birinci derece kinetikler için TL şiddetini tanımlayan denklem:

$$I(T) = n_0 s \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]$$
(2.9)

ile verilir (Şekil 2.7). Burada  $\beta$  (Ks<sup>-1</sup>), dT/dt lineer ısıtma hızı ve n<sub>0</sub> (cm<sup>-3</sup>), T<sub>0</sub> (K) sıcaklığında tuzakların konsantrasyonudur. Birinci derece kinetiklerin maksimum koşulunu veren ifade:

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \tag{2.10}$$

olur.



Şekil 2.7 Birinci ve ikinci derece kinetikler için TL ışıma piklerinin karşılaştırılması.  $E = 1 \text{ eV}, \text{ s} = 10^{-12} \text{ s}^{-1}, n_0 = N = 10^3 \text{ m}^{-3}$  parametreleri kullanılmıştır (ikinci grafik normalize durumu göstermektedir).

# 2.5.2 İkinci derece kinetikler

Yeniden tuzaklanma sürecini göz önüne alan Garlick ve Gibson (Garlick and Gibson, 1948), TL şiddetinin, tuzaklanmış elektronların konsantrasyonunun karesi ile orantılı olduğunu varsaymışlardır. Bu durum ikinci derece kinetikler olarak ifade edilmektedir. T (K) sıcaklığında birim zaman başına elektronların serbest kalma hızı:

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = \frac{n^2}{N} s e^{-E/kT}$$
(2.11)

ile verilir. Burada N (m<sup>-3</sup>), tuzakların konsantrasyonudur. Bu denkleme göre ikinci derece kinetikler için TL tanımlayan denklem:

$$I(T) = n_0^2 \frac{s}{N} \exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \left[1 + \frac{n_0 s}{\beta N} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-2}$$
(2.12)

ile verilmektedir (Şekil 2.7). Maksimum koşulu veren ifade:

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \left[1 + \left(\frac{2kT_M}{E}\right)\right]$$
(2.13)

olur.

# 2.5.3 Genel derece kinetikler

TL için birinci ve ikinci derece denklemler, Halperin ve Braner (Halperin and Braner, 1960) tarafından verilen daha genel bir denklemin özel durumlarıdır. May ve Partridge (May and Partridge, 1964; Partridge and May, 1965) ile diğerleri (Chen, 1969; Takeuchi et al., 1975), ne birinci derece ne de ikinci derece koşulların karşılanmadığı durumlarda aşağıdaki deneysel denklemi kullanmayı önermişlerdir.

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^{b} s' e^{-E/kT}$$
(2.14)

Burada b kinetiklerin derecesi ve *s'* (cm<sup>3(b-1)</sup> s<sup>-1</sup>) frekans (preexponential) faktörüdür. Genellikle b'nin 1 ile 2 arasında değerler aldığı kabul edilir fakat bazen bu aralığı aşabilir. Lineer ısıtma hızı  $\beta$  ve  $b \neq 1$ olmak üzere üstteki denklemin çözümü:

$$I(T) = s'' n_0 exp\left(\frac{-E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s''(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$
(2.15)

ile verilir (Şekil 2.8). Burada Chen (Chen, 1984) tarafından tanımlanan  $s'' = s' n_0^{(b-1)}$ , genel dereceli kinetikler için etkin frekans faktörü gibi davranan deneysel bir parametredir ve birimi s<sup>-1</sup>'dir. Maksimum salınım koşulunu veren ifade:

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \left[1 + (b-1)\left(\frac{2kT_M}{E}\right)\right]$$
(2.16)

şeklinde verilir.



**Şekil 2.8** Farklı kinetik dereceleri (b parametresi) için (2.15) denklemi kullanılarak hesaplanan genel dereceli TL ışıma pikleri. E = 1 eV,  $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$ ,  $\beta = 1 \text{ Ks}^{-1}$  ve  $n_0 = N = 1$  parametreleri kullanılmıştır.

# 2.5.4 Farklı termolüminesans modeller

### **Adirovitch Modeli**

1956'da Adirovitch, genel durumdaki fosforesans bozunumunu açıklamak için üç diferansiyel denklem kullandı. Aynı model Haering-Adams (1960) ve Halperin-Braner (1960) tarafından lokalize enerji düzeyleri ile tuzağın boşalması süresince lokalize olmayan bandlar arasındaki yük akışını tanımlamak için kullanılmıştır.

### Sıfır derece kinetikler

Partridge ve May, birinci dereceden daha küçük (b < 1) bir kinetik dereceye ilişkin bir takım gözlemlerini bildirdiler. Onlar, birinci ışınımsal derece ve ışınımsal geçişler olmaksızın gerçekleşen sıfır derece durumları gibi iki rakip süreç aracılığıyla deneysel sonuçlarını açıkladılar.

### **Braunlich–Scharmann modeli**

TL kinetiklerinin daha tatmin edici bir açıklaması, yasak band aralığındaki TL merkezlerinin daha karmaşık bir açıklaması üzerine temellendirilebilir. Schon tarafından önerilen enerji düzey şeması referans alınarak termal uyarılma sırasında yük taşıyıcılarının trafiğini tanımlayan bir takım diferansiyel denklemler ifade edilmiştir. Bu şema, bir elektron tuzağı, bir deşik tuzağı ve her biri kendine ait tuzağına geri dönen serbest kalmış taşıyıcıların yeniden tuzaklama geçişlerini içerir.

### İki Tuzak Modeli (Sweet ve Urquhart)

Bu model, Sweet ve Urquhart tarafından iki pikin birbirine çok yaklaşması sebebiyle sadece bir pik olarak görünen durumları açıklamak için önerilmiştir.

# Karma Birinci ve İkinci derece Kinetikler

Birden daha büyük kinetik derecelere yol açan genel varsayım, m = n (m ve n sırasıyla tuzaklanmış deşiklerin ve elektronların konsantrasyonu) durumudur. Bu varsayımın, prensipte pek çok kusur ve safsızlıklar içeren gerçek bir malzemede meydana gelmesinin daha az olası olduğu görünüyor (Furetta and Kitis, 2004).

# Çok-Tuzaklı Sistem

TL fosforları daima çok-pikli ışıma eğrileri ortaya çıkarırlar. Bu daha düşük bir sıcaklık pikinin etkin sıcaklık aralığında, termal olarak kararlı olan tuzakların hala mevcut olduğu anlamına gelir. Böyle tuzaklar, termal olarak bağlantısız derin tuzaklar (TDDT) olarak adlandırılmaktadır. TDDT'nin etkisinden iki şekilde bahsedilebilir: (i) TDDT, etkileşimli (karşılıklı) değildir. Bu sistemi, etkileşimli olmayan etkin çok tuzaklı sistem (NMTS) olarak adlandırılır; (ii) TDDT etkileşimlidir. olduğunda, TDDT'nin etkin Boş tuzaklarda taşıyıcıları yeniden yakaladığı tuzaklanmayan serbest anlamına gelmektedir. Bu model etkileşimli çok tuzaklı sistem (INMTS) olarak isimlendirilir (Sunta et al., 1999).

# Yarı kararlı durum (QE)

Yarı kararlı durum varsayımı aşağıdaki ilişki ile ifade edilmektedir:

$$\left|\frac{dn_c}{dt}\right| \ll \left|\frac{dn}{dt}\right|, \left|\frac{dm}{dt}\right|$$

burada;

n<sub>c</sub> = iletkenlik bandındaki serbest elektron konsantrasyonu

n = tuzaklanmış elektron konsantrasyonu

m = yeniden birleşme merkezlerindeki deşik konsantrasyonu.

Bu varsayım, iletkenlik bandındaki serbest elektron miktarının sabit olduğu anlamına gelir. Ayrıca eğer serbest elektronların başlangıç konsantrasyonun, çok küçük olduğu kabul edilirse bu serbest yük taşıyıcılarının iletkenlik bandında toplanmadığı anlamına gelir. Dengebenzeri varsayımı, termal uyarılma sırasında enerji düzeyleri arasındaki yük taşıyıcı geçişlerini tanımlayan diferansiyel denklemlerin analitik bir çözümüne izin verir (Furetta, 2003).

### 2.6 Termolüminesans Dozimetre (TLD)

Dozimetri, uygun bir alet kullanarak iyonlaştırıcı radyasyonun ölçülmesi olarak tanımlanabilir. İyonize radyasyonun nicel doz ölçümleri, bu doz tarafından uyarılmış fiziksel, kimyasal ve biyolojik değişiklikler ile doz arasında sayısal bir ilişki kurulmasına imkân verir (Komor, 2006).

Termolüminesans dozimetri, başarılı uygulamaları sayesinde son otuz yıl içinde aktif bir şekilde geliştirilmiştir. İyonlaştırıcı radyasyon kaynakları çevresinde çalışan kişilerin (kişisel dozimetri) radyasyon izlenmesinin yanı sıra çevresel radyasyonun izlenmesinde de yaygın bir şekilde kullanılmaktadır. Son yıllarda TL dozimetrisi radyasyon terapisinde (tıbbi dozimetre) bile kullanılmaya başlanmıştır. TL dedektörlerinde kullanılan malzemelerin araştırılması, geliştirilmesi ve analizi daha önce belirtilen TL dozimetri uygulamaları için son derece önem taşımaktadır (Kortov, 2007). Radyasyondan korunmanın temel ilkesi, hastalara veya görevlilere verilmiş dozların tam olarak belirlenmesidir. Eğer gerekliyse, ek olarak radyasyon korunmayı ölçmek veya kazalar durumunda tıbbi müdahale yöntemine karar vermek için ışınlama dozunun bilgisi gerekir. Genellikle, kişisel dozimetre, radyasyondan korunma giysisinin altında göğsün sol tarafına yerleştirilmektedir. Özel çalışma işlemlerinde radyasyon dozu, kollar ve bacaklar, gözler, üreme organları vb gibi vücudun farklı kısımları üzerinde ölçülebilir. Medikal dozimetrede radyasyon dozları, çeşitli tanısal veya iyileştirici tıbbi tedaviler boyunca hastalar üzerinde vücudun çeşitli kısımlarında ölçülmek zorundadır.

Kişisel ve tıbbi dozimetre için dozimetre sistemleri aşağıdaki şartları yerine getirmek zorundadırlar:

- dozimetre, mekanik olarak sağlam, kimyasal olarak tepkimeye girmeyen, radyasyona dayanıklı, taşıması kolay, ucuz ve küçük olmak zorundadır.
- lüminesans şiddetinin soğurulan dozla lineer olduğu geniş aralık
- yüksek duyarlılık, soğurulan doz birimi başına yüksek TL sinyali
- gelen radyasyonun enerjisindeki TL yanıt bağımlılığının düşük olması
- düşük sönümlü olması gerekir
- basit bir TL eğrsi olmalı
- lüminesans spektrumu foto-çoğaltıcının maksimum spektral duyarlılığı ile uygun olmalı
- birkaç μSv'dan birkaç Sv aralığındaki radyasyon dozunu ölçebilmesi gerekir.
- doz tepkisinin dozimetrenin konumundan bağımsız olması gerekir.
- gama ve x radyasyonu, beta ve nötron radyasyonundan ayrı ayrı ölçülmek zorundadır.
- dozun zayıflaması, azar azar olmalı
- çevresel koşullar (nem, ışık, sıcaklık vb.) doz ölçümlerindeki belirsizliği etkilememelidir.

• dozimetrenin değerlendirmesi hızlı, basit ve kolay olmalı.

Bu şartlara göre film ve TL dozimetreler kişisel dozimetreler için en uygun olanlardır. Hasta doz ölçümleri için TLD'ler, küçük boyutları sebebiyle daha elverişlidir.

30

# **3 MATERYAL VE METOD**

### 3.1 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ve CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li Dozimetrelerinin Yapısı

Deneysel çalışmalarda kullanılan CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy (5mm çapında, 1mm kalınlığında) ile CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li (4mm çapında, 1mm kalınlığında), dozimetreleri Belgrad'ta Nükleer Bilimler Enstitüsünde Dr. M. Prokic tarafından hazırlanmıştır.

# 3.2 Termolüminesans Dozimetre (TLD) Okuyucu Sistemi

Çalışmada tüm ışıma ölçümleri için Harshaw 3500 TLD okuyucu sistemi kullanılmıştır. Bu sistem bilgisayar bağlantılı el ile işletilen bir okuyucudur (Şekil 3.1). İki temel bileşeni vardır: TLD okuyucu ve seri iletişim port ile bağlantılı WinREMS (Windows Radiation Evaluation and Management System) programının çalıştırıldığı bir bilgisayar.



Şekil 3.1 Işıma ölçümlerinin yapıldığı TLD okuyucu sistemi (Harshaw TLD 3500).

Temel olarak TLD okuyucu sistemler örneğin ısıtıldığı, ısıtma süresince meydana gelen ışımanın belirlenip toplandığı elektronik olarak ışıma verilerinin aktarıldığı ve görüntülenerek kaydedildiği kısımlardan meydana gelmektedir (Şekil 3.2). Bu sistemde örnek tablası tek bir örnek için tasarlanmıştır. Isıtma sürecinin kontrolü için K tipi ısıl çift (termocouple) kullanılmıştır. Sistem ile örnekler oda sıcaklığından 600 °C'ye kadar lineer olarak ısıtılabilmektedir.



Şekil 3.2 TLD okuyucunun basit bir diyagramı.

Isıtma sonucu örneklerden çıkan ışıma sistemde bulunan bir fotoçoğaltıcı tüp (PMT-EMI 9235QA) kullanılarak belirlenmektedir. PM tüpten gelen ışıma sinyalleri yükseltilerek WinREMS programının olduğu bilgisayar aracılığı ile görüntülenmekte ve kaydedilmektedir (Ege, 2008).

#### 3.3 Doz Yanıt Eğrisinin Belirlenmesi

Doz yanıtı, bir TL fosforun maruz kaldığı radyasyon miktarı (doz) ile TL çıktısı (pik yüksekliği veya ışıma eğrisi altında kalan alan) arasındaki ilişkidir (Vij, 1998). İyi bir TLD'nin, alınan doz ile onu takip eden TL çıktısı arasında lineer bir ilişki sergilemesi gerekir. Dozimetre aynı zamanda ilgilenilen doz aralığında çok duyarlı olmalı ve bu aralık içinde herhangi bir saturasyon belirtisi göstermemelidir. Genellikle ışıma eğrilerinde pek çok pik sergileyen TL malzemeler, dozla lineer altı'lıktan ziyade lineer üstü bir davranış gösterirler, oysa tek pike sahip ışıma eğrilerinin doz yanıtı, doz aralığının ortasına kadar hemen hemen lineer fakat büyük doz aralığında lineer altı olur. Doymuşluğa yaklaşan hem lineer üstü hem de lineer altı'lık durum, sırasıyla gereğinden az veya fazla dozun verilmesinden kaynaklanabilir. Radyasyonun soğurulmasını takip eden TL şiddetindeki artış, pek çok TL fosforu tarafından gösterilmektedir ve lineer üstülük ile yakından ilgilidir. Duyarlılık ve lineer üstülük gibi problemlerin üstesinden gelmek için, her ışınlamadan sonra fosforun tavlanması (sabit yüksek sıcaklıkta ısıtma işlemi) gerekir. Kusur kararlılığı tavlamadan sonra tekrar elde edilir ve böylece malzeme yeniden kullanım için hazır hale gelir. Absorblanan dozla TL davranışındaki değişimi gösteren şematik bir eğri Şekil 3.3'de gösterilmektedir. Tavlamadan sonra gerçekleştirilen soğutma işlemi (soğutma hızı) de önemli bir değişkendir. Lineer üstülük ve duyarlılaştırma, radyasyonun lineer enerji transferine (LET) de bağlıdır. Yüklü parçacıklar için bir malzemenin LET'i dE/dl ile verilir. Burada dE, elektronlarla çarpışmalardan dolayı bir dl uzunluğu kat eden yüklü parçacıklar tarafından kaybedilen enerjidir. Gerçekte bir ortamdaki radyasyonun iyonizasyon kapasitesi, gelen enerjiden (keV/µm ile ifade edilen LET) ortama transfer edilen lineer enerji miktarı ile gösterilmektedir. Genellikle bağıl TL yanıtı,



Şekil 3.3 Bir TL malzemenin örnek doz-yanıt eğrisi.

$$\left(\frac{TL \text{ intensitesi}}{\text{soğurulan doz}}\right)_{LET} / \left(\frac{TL \text{ intensitesi}}{\text{soğurulan doz}}\right)_{CO^{60}}$$
(3.1)

verilir ve lineer üstülük LET'deki bir artışla azalır fakat değişme daha karmaşıktır.

### 3.4 Sönümleme Olayı

Bir TLD dedektörün seçimindeki en önemli hususlardan biri, bir ortamdaki doz ölçerin sinyal kararlığının nasıl olduğudur (McKeever, 1988). Bu nedenle malzeme içinde tuzaklanan yük, ısıtma (termal sönümleme), ışık (optik sönümleme) veya herhangi bir diğer yolla (düzensiz sönümleme) kaybedilebileceği için TLD'lerde incelenmesi gereken önemli bir parametredir.

Termal sönümlemenin ilkeleri, termolüminesans ışıma-eğrilerinin izotermal analizinin tartışmasında aslında bahsedilmişti. Temel nokta, tuzak derinliği E çok çok küçük ise, hem ışınlama sırasında hem de ışınlama ile okuma arasında sinyalde şiddetli bir sönümleme meydana geleceğidir. Dozimetrik amaçlar için, 200-250°C arasında bir pikli ışıma eğrisiyle karakterize edilen dedektör arzu edilir. Bu sıcaklık aralığı genellikle, tuzak derinliğinin, tuzakların fark edilir bir şekilde boşalmaması için yeteri kadar büyük (E > kT) olduğunu garanti eder fakat aynı zamanda yeteri kadar düşüktür öyle ki kara cisim arka fon sinyalinden kaynaklanan karışım ihmal edilebilir.

Sinyal kaybı, basit tuzak boşaltma yoluyla meydana gelmesinin yanı sıra kusur reaksiyonları yoluyla da meydana gelebilir. Bu etkileri tam olarak incelemek için termal bozunum deneylerine ihtiyaç vardır. E ve s değerlerinin hesaplanmasına dayanan pikler için hesaplama sınırlı kullanımdan biridir.

Ara sıra bir dedektörün yüksek sıcaklık ortamında kullanılması gerekebilir. Bu durumlarda, özellikle yüksek sıcaklık piklerinin seçilmesi gerekir. Bu, doz ölçer plakasına dikkatsiz bir işlem uygulanmasından kaynaklanan sinyalin yanlışlıkla silinmesinin üstesinden gelinmesine de yardım eder. Fosfor içindeki derin tuzakların varlığı, eğer ilk okuma transfer esnasında boşaltılmamışsa foto mekanizması yoluyla termolüminesans sinyalini yeniden tahmin etmek için faydalanılabilir. Yeniden okunabilen bir TLD dedektörün yeteneği, dozimetrik çalışmalarda önemli bir avantajdır.

#### 3.5 TL Işıma Eğrisi Analiz Yöntemleri

Kullanılan dozimetrelerin fiziksel özelliklerini açığa çıkarmak için TL mekanizmasının bilinmesi gerekir. Bu nedenle aşağıda doz ölçümünde kullanılabilecek termolüminesans ışıma piklerine ait kinetik (tuzaklama) parametreleri (E, s ve b) elde etmek için çok yaygın olarak kullanılan bazı analiz yönteminden bahsedilmiştir.

### 3.5.1 Ek doz yöntemi

Bir takım çalışmalar (Yazıcı vd., 2006; Sharma et al., 2008), bazı parametrelerin belirlenmesinin esasen ışıma eğrisindeki ışıma piklerinin tam sayısına ve kinetik derecenin (b) önceden bilinmesine bağlı olduğunu göstermiştir. O yüzden ışıma eğrisindeki tüm bireysel piklerin b değeri hakkında bir fikir sahibi olmak için artan doz yönteminden yararlanılmaktadır. TL teoride, b = 1 için ışıma piklerinin pik sıcaklıklarının sadece ısıtma hızıyla değiştiği kabul edilmektedir. Bu nedenle sabit bir ısıtma hızı için pikin maksimumunun diğer deneysel parametrelerle etkilenmemesi ve deneysel belirsizlik sınırları içinde tam anlamıyla sabit olması gerekir. Bununla birlikte  $b \neq 1$  ve tuzak saturasyon noktalarının [ n<sub>0</sub> (tuzaklanmış elektronların konsantrasyonu) < N<sub>t</sub> (tuzakların konsantrasyonu)]altında genellikle pik sıcaklıklarının artan doz seviyeleri ile daha düşük sıcaklık tarafına doğru değiştiği kabul edilmektedir.

# 3.5.2 T<sub>maksimum</sub>-T<sub>durdurma</sub> yöntemi

Deneysel ışıma eğrilerinin genel doğası, tuzak derinliklerinin yakın bir dağılımına sahip olan farklı piklerin üst üste binmesine bağlanabilir. Genel TL piklerinin, farklı TL modellerine dayanan ışıma eğrisi (GCD) çözümleme matematiksel fonksiyonlarını kullanarak çözümlenebildiği iyice kanıtlandı. Tüm GCD fonksiyonlarının en basiti, birinci derece kinetiğe dayanandır ve en iyi uyum sonuçlarını verir. Birinci derece işlemin ispatı, farklı maruz kalma süreleri altında kaydedilen ışıma eğrilerinin "değişmeyen T<sub>m</sub>" özelliğinden zaten yararlanılmaktadır. Bundan başka, farklı bileşenlerden oluşan ışıma piklerinin konumları hakkında bilgi elde etmek için T<sub>m</sub>-T<sub>durdurma</sub> yöntemi uygulanmaktadır (McKeever, 1980). Bu yöntem, üst üste binen pikleri ayırmamıza ve her birinin T<sub>m</sub> değerini belirlememize olanak sağlar. T<sub>m</sub>-T<sub>durdurma</sub> grafiğindeki düz bölgeler, karmaşık bir ışıma eğrisindeki pik konumlarını gösterir. Yöntem, önce ışınlanan bir örneğin herhangi bir T<sub>durdurma</sub> sıcaklığına lineer bir hızla ısıtmaktan ibarettir. Bundan sonra örnek hızlıca oda sıcaklığına soğutulmakta ve geriye kalan ışıma eğrisinin tamamını kaydetmek için aynı hızla tekrar ısıtılmaktadır. İşlem, farklı T<sub>durdurma</sub> değerlerinde tavlanan/ışınlanan aynı örnekle birkaç kez tekrarlanır. Işıma eğrisindeki birinci maksimum kaydedilir.

### 3.5.3 Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme yöntemi (CGCD)

Çözümleme, önceden bahsedilen yöntemlere nazaran bilgisayar desteği sayesinde karmaşık bir ışıma eğrisinin gösterimini bireysel pik bileşenlerine ayıran, genel bir yöntemdir. Bu yöntem çok pikli ışıma eğrilerine de uygulanabilir. Çözümleme, herhangi bir ilave termal işlem olmaksızın pik parametrelerinin anında bulunmasını da sağlar. Bu faktörün yanı sıra, bir TL sistemin bir takım temel karakteristiklerinin iyileştirilmesine de izin verir. Fakat farklı modellerin; yaklaştırma ve en aza indirme vöntemlerinin, dünya çapında kullanılan CGCD programlarındaki ışıma eğrisi analizi için kullanıldığına dikkat edilmesi gerekir. Sonuç olarak CGCD programı ile ifade edilirken, kinetik parametrelerin kabul edilebilirliğine ilişkin her zaman bir şüphe vardır. Fakat eğer çözümlemeden sonra fiziksel olarak yöntemlerden (T<sub>m</sub>, E-T<sub>durdurma</sub>) belirlenen parametreleri kullanan, uygunluk derecesi veya değer FOM :  $\sum \frac{|TL_{deneysel} - TL_{fit}|}{\sum TL_{fit}}$ of merit, olarak (figure katsay1s1 tanımlanmaktadır.), % 0.0 ile % 2.5 (3.0) arasında çıkarsa elde edilen kinetik parametrelerin değerlerinin fiziksel olarak anlamlı gibi göz önüne alınması gerekir.

Şimdiye kadar pek çok bilgisayar programı (GLOCANIN, TLAnal, GlowFit, vb.) bu işlemleri gerçekleştirmek için geliştirilmiştir. Burada GlowFit yazılım paketi kullanılmaktadır. GlowFit (Puchalska and Bilski, 2006) birinci derece GCD fonksiyonları çözümlemek için tasarlanan bir programdır. Aşağıda birinci derece fonksiyonu tanımlayan denklem verilmiştir.

$$I(T) = I_M exp \left[ 1 + \frac{E}{kT} x \frac{T - T_M}{T_M} - \frac{T^2}{T_M^2} x (1 - \Delta_M) exp \left( \frac{E}{kT} x \frac{T - T_M}{T_M} \right) - \Delta_M \right]$$
(3.2)

Burada  $\Delta_M = 2kT_M/E$ ,  $T_M$  ve  $I_M$  sırasıyla maksimumdaki ışıma pikinin sıcaklığı ve TL şiddetidir. E aktivasyon enerjisi ve k Boltzmann sabitidir.

# 3.5.4 Pik şekli yöntemi

E, s ve b kinetik parametrelerini bulmak için TL ışıma eğrisini analiz etmede kullanılan popüler bir yöntem, pikin şeklini ve geometrik özelliklerini göz önüne alır. İkinci derece kinetiklere karşılık gelen TL ışıma pikleri, hemen hemen simetrik bir şekille (biçim) karakterize edilmektedir. Oysa birinci derece pikler simetrik değildir. Şekil 3.4'de gösterilen parametreler aşağıdaki gibi tanımlanır:



Şekil 3.4 Geometrik şekil nicelikleri  $\tau$ ,  $\delta$  ve  $\omega$ .

T<sub>m</sub>: pikin maksimumdaki sıcaklığı

 $T_1$  ve  $T_2$ : sırasıyla maksimum şiddetin yarısına karşılık gelen,  $T_m$ 'nin her iki tarafındaki sıcaklıklardır

 $\tau = T_m - T_1$ : pikin düşük sıcaklık tarafındaki yarı genişlik

 $\delta = T_2 - T_m$ : ışıma pikinin yüksek sıcaklık tarafındaki yarı genişlik

 $\omega = T_2 - T_1$ : toplam yarı genişlik

 $\mu = \delta/\omega$ : geometrik şekil veya simetri faktörü olarak bilinmektedir.

Grossweiner, tuzak derinliğini (E) hesaplamak için ışıma pikinin şeklini kullanan ilk kişiydi (Grossweiner, 1953). Onun yöntemi, maksimum şiddetteki sıcaklık  $T_m$  ve yarı şiddetteki düşük sıcaklık  $T_1$ 'e dayanmaktadır. Birinci derece kinetikleri göz önüne alarak:

$$E = 1.51k \frac{T_m T_1}{T_m - T_1} \tag{3.3}$$

elde etti. Bu ifade, E'nin hesaplanmasında daha iyi bir doğruluk elde etmek için 1.51'lik Grossweiner katsayısı yerine 1.41 alınarak Chen tarafından deneysel olarak değiştirildi (Chen, 1969).

Luschchik de hem birinci hem de ikinci derece kinetikler için TL ışıma pikinin şekline dayanan bir yöntem önerdi (Lushihik, 1956). Yukarıda tanımlanan  $\delta$  parametresini de hesaba katarak bir ışıma piki bir üçlü tarafından tahmin edilebilir. Birinci derece kinetik durum için E ifadesi:

$$E = \frac{kT_m^2}{\delta} \tag{3.4}$$

İkinci derece kinetik için Luschchik formülü:

$$E = \frac{2kT_m^2}{\delta} \tag{3.5}$$

olur. Chen, E değerinde daha iyi bir doğruluk elde etmek için (1.42) denklemini 0.978 ve (1.43) denklemini ise 0.853 ile çarparak önceki iki denklemi değiştirdi.

Halperin ve Braner, ışıma eğrisi üzerinde hem  $T_1$  hem de  $T_2$ 'yi kullanarak farklı bir yaklaşımda bulundular (Halperin and Braner, 1960):

$$E = \frac{1.72}{\tau} kT_m^2 (1 - 2.58\Delta_m) \text{ birinci derece için}$$
(3.6)

$$E = \frac{2}{\tau} k T_m^2 (1 - 3\Delta_m) \text{ ikinci derece için}$$
(3.7)

burada  $\Delta_m = \frac{2kT_m}{E}$ 'dir.

Halperin ve Braner denklemleri, E'ye de bağlı olan  $\Delta$ m'nin varlığından dolayı E'yi bulmak için tekrarlamalı (iterative) bir işleme ihtiyaç duyar. Bu zorluğun üstesinden gelmek için yeni bir yaklaşık yöntem aşağıdaki ifadeleri kullanan Chen tarafından önerildi.

$$E = 2kT_m \left(1.25\frac{T_m}{\omega} - 1\right) \text{ birinci derece için}$$
(3.8)

$$E = 2kT_m \left(1.76\frac{T_m}{\omega} - 1\right) ikinci derece için$$
(3.9)

Chen aynı zamanda E değerini bulmak için genel ifadeler de türetti (Chen, 1969). Onun yöntemi, 0.1 eV ile 2.0 eV arasında değişen geniş bir enerji aralığı için ve  $10^5$  s<sup>-1</sup> ile  $10^{23}$  s<sup>-1</sup> arasındaki pre-exponential faktörlere sahip değerler için kullanışlıdır. Ayrıca Chen yöntemi herhangi bir tekrarlamalı işlemlere gerek duymazken, pik şeklinden bulunan  $\mu$  simetri faktörü kullanılarak bulunan kinetik derecenin bilgisine de ihtiyaç duymaz. Denklemler şöyle özetlenebilir:

$$E_{\alpha} = c_{\alpha} \left(\frac{kT_{m}^{2}}{\alpha}\right) - b_{\alpha}(2kT_{m})$$
(3.10)

burada  $\alpha$   $\tau$ ,  $\delta$  ve  $\omega$  yerine kullanılmıştır.  $c_{\alpha}$  ve  $b_{\alpha}$  aşağıdaki gibi özetlenmektedir:

$$c_{\tau} = 1.510 + 3.0(\mu - 0.42)$$
  $b_{\tau} = 1.58 + 4.2(\mu - 0.42)$  (3.11)

42

$$c_{\delta} = 0.976 + 7.3(\mu - 0.42) \quad b_{\delta} = 0 \tag{3.12}$$

$$c_{\omega} = 2.52 + 10.2(\mu - 0.42)$$
  $b_{\omega} = 1$  (3.13)

Eğer  $\mu = 0.42$  ise birinci derece TL ışıma piki olduğu söylenir. İkinci derece pikler için ise  $\mu = 0.52$ 'dir.

### 3.5.5 İzotermal bozunum yöntemi

Bir izotermal bozunum deneyinde klasik (alışılmış) deneysel yöntem, örneği ışınladıktan sonra belirli bir sıcaklığa hızlı bir şekilde ısıtmak ve verilen zaman aralığı içinde örneği bu sıcaklıkta tutmaktan ibarettir. Işık çıkışı (fosforesans bozunumu olarak da bilinir) zamanın fonksiyonu olarak ölçülür ve böylece tuzaklanmış elektronların bozunma hızını ölçmek mümkün olur. Sabit sıcaklıkta zamana karşı TL şiddet grafikleri izotermal bozunum eğrileri olarak bilinir.

Bu yöntemde, tuzaklanma parametrelerinin belirlendiği ışıma pikinin artan tarafı üzerinde üç sıcaklık seçilmektedir. Uygun dozlarla gerçekleştirilen ışınlamadan sonra seçilen sıcaklıklardan birine ısıtılmaktadır ve lüminesans şiddetinin bozunumu sabit sıcaklıkta kaydedilmektedir. Bu işlem diğer iki sıcaklık içinde tekrarlanmaktadır. Sonra deneysel veriler kinetik dereceleri bulmak için test edilmektedir. Birinci derece kinetikler Garlick ve Gibson (Garlick and Gibson, 1948), genel derece kinetikler ise May ve Partridge (May and Partridge, 1964) ile Takeuchi, Inabe ve Nanto (Takeuchi, Inabe and Nanto, 1975) tarafından önerilmiştir. Birinci derece kinetiklere uyan TL şiddetine ait denklem(Manam and Sharma, 2004):

$$I = -\left(\frac{dn}{dt}\right) = nsexp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(3.14)

Bu denklemin izotermal durum için çözümü:

$$I(t) = n_0 sexp\left(-\frac{E}{kT}\right) exp\left[-stexp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]$$
(3.15)

veya

$$ln[I(t)] = -\left[sexp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]t + \left[ln(n_0s) - \frac{E}{kT}\right]$$
(3.16)

böylece birinci derece durum için zamana karşı ln[I(t)]'nin grafiği bir doğru vermesi gerekir.

Genel derece kinetiklere uyan denklem:

$$I = -\left(\frac{dn}{dt}\right) = s'n^b exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(3.17)

Burada  $s' = \frac{s}{n_0^{b-1}}$  pre-exponential faktör ve n<sub>0</sub>, tuzaklanmış elektronların ilk konsantrasyonudur. İzotermal durum için şiddet denkleminin çözümü:

$$\left(\frac{l_0}{l}\right)^{\frac{b-1}{b}} - 1 = sexp\left[-\frac{E}{kT}\right](b-1)t$$
(3.18)

Böylece genel derece durum için zamana karşı  $(I_0/I)^{(b-1)/b} - 1$ 'in grafiğinin bir doğru vermesi gerekir. Burada b  $(1 < b \le 2)$  kinetiklerin derecesidir.  $I_0$  t = 0 anındaki şiddet ve I ise her hangi bir t anındaki şiddet

değeridir. Farklı b değerleri test edilerek hangisinin bir doğru verdiği tespit edilir. Böylece kinetik derece bulunabilir. Doğrunun eğimi:

$$m = (b-1)sexp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(3.19)

olur.

Farklı sıcaklıklardaki zamana karşı  $(I_0/I)^{(b-1)/b} - 1$  grafiklerine ait doğruların eğimleri frekans faktörünün değerini verecektir:

$$s = \frac{(m_2)^{\frac{T_2}{T_2 - T_1}}}{(b-1)(m_1)^{\frac{T_1}{T_2 - T_1}}}$$
(3.20)

elde edilir. Burada  $m_1$  ve  $m_2$  sırasıyla  $T_1$  ve  $T_2$  sıcaklıklarına karşılık gelen eğimlerdir.

$$ln[m(T)] = -\frac{E}{kT} + ln[s(b-1)]$$
(3.21)

Bu denklem aracılığıyla 1/T'ye karşı ln[m(T)]'nin grafiğinden elde edilen doğrunun eğimi termal aktivasyon enerjisini verecektir (m' = -E/k).

# **4 BULGULAR VE TARTIŞMA**

### 4.1 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ve CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li Işıma Eğrileri

CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ile CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li malzemelerinin 900 MBq'lik bir aktiviteye sahip Sr-90 beta kaynağı kullanılarak ışınlanmasından sonra  $50^{\circ}$ C başlangıç sıcaklığından itibaren,  $2^{\circ}$ C/s ısıtma hızı kullanılarak termolüminesans çalışmaları yapılmıştır. Şekil 4.1'de bu kaynağın bozunumu gösterilmiştir. Aşağıda sırasıyla CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ile 500°C ve CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li ile 450°C sıcaklıklarına kadar ısıtılan dozimetrelerin ışıma eğrileri görülmektedir.



Şekil 4.1 Sr-90 radyo izotopunun bozunum şeması.



Şekil 4.2 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla alınan ışıma eğrisi.

Şekil 4.2'de görüldüğü gibi, düşük (50°C ile 150°C), orta (150°C ile 350°C) ve yüksek (350°C ile 500°C) sıcaklık bölgelerinde olmak üzere üç adet ışıma piki bulunmaktadır. Burada sadece orta bölge ile ilgili deneysel incelemeler yapılmıştır. Çünkü düşük sıcaklıklarda soğurulan dozun sönümlenmesi ve yüksek sıcaklıklarda da meydana gelen siyah cisim ışıması nedeniyle bu bölgelerde ölçülen TL pikleri dozimetrik amaçlar için kullanılamamaktadır.

Şekil 4.3'de iki ışıma piki gözlenmektedir. Sadece 50 ile 300°C arasındaki yapı inceleme konusu yapılmıştır.



**Şekil 4.3** CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla alınan ışıma eğrisi.

# 4.2 Doz Yanıt Eğrisi Sonucu

 $CaB_4O_7:Dy$  ve  $CaSO_4:Dy,Li$  dozimetrelerinin beta kaynağı ile farklı sürelerde ışınlanmasını takiben 2°C/s ısıtma hızıyla ışıma eğrileri alınmış ve eğrilerin altında kalan alanlar Şekil 4.4 ve 4.5'de gösterilmiştir. Bu grafiklerden görüldüğü üzere çalışılan ışınlama süresi aralığında TL doz yanıt eğrileri lineerdir.



**Şekil 4.4** CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresine ait doz yanıt eğrisi.



Şekil 4.5 CaSO4:Dy, Li dozimetresine ait doz yanıt eğrisi

# 4.3 Sönümleme Olayı Sonuçları

İki dozimetreye ait sönümleme durumlarını incelemek için beta kaynağı ile CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy örnekleri bir dakika ışınlandıktan sonra karanlık bir odada belirli zaman aralıkları ile saklanmış ve ardından örneklere ait ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Şekil 4.6 depolama süresinin bir fonksiyonu olarak CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresine ait sönümleme eğrisini göstermektedir. Şekilden CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresi, ışınlamadan sonra 20 günlük zaman aralığında 250°C'deki ana piki %16'lık bir sönümleme göstermektedir. CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresinin sönümlemesi ise daha önce incelenmiş (Prokic, 2000) ve 3 aylık bir zaman diliminde %40'lık bir sönümleme gösterdiği belirlenmiştir.



Şekil 4.6 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresine ait sönümleme eğrisi.

50

# 4.4 TL Işıma Eğrisi Analiz Yöntemleri Sonuçları

### 4.4.1 Ek doz yöntemi sonuçları

Işıma eğrisini oluşturan tüm bireysel piklerin kinetik derecesini bulmak için ek doz yönteminden yararlanılmıştır. Birinci derece piklerin sıcaklıkları sadece ısıtma hızının değişmesiyle farklılık gösterir. Bu nedenle sabit bir ısıtma hızında pikin maksimumu diğer parametrelerden Sekil 4.7'de  $\beta^{-}$  kaynağı ile ışınlanan etkilenmez.  $CaB_4O_7:Dy$ dozimetresine ait ışıma eğrileri gösterilmektedir.  $\beta$  dozundaki artışın ışınlama süresindeki artışla orantılı olduğu kabul edilmektedir. Şekilden ışıma eğrisinin 248  $\pm$ 2 °C civarında genel bir piki olduğu görülmektedir. Işınlama süresi 10s'den 1saat'e arttırıldığında ışıma pikinin şekli, TL ışıma eğrisinin altındaki alan hariç aynı kalmaktadır. Işıma eğrisinin maksimum sıcaklığı radyasyon dozu ile değişmemektedir. Bu incelenen bölgedeki (150°C ile 350°C aralığı) ışıma piklerinin tamamının birinci derece kinetiklere uyduğu anlamına gelir.

Şekil 4.8'de CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresinin 50°C ile 300°C arasındaki TL ışıma eğrisi görülmektedir. Şekil incelendiğinde 120 ile 150°C civarında birbiri üzerine binmiş 2 TL piki görülür. Işınlama süresi 10s'den başlayarak 40dk kadar arttırıldığında piklerin konumları hemen hemen aynı kalmaktadır. Dolayısıyla ışınlama süresince bu iki pikin maksimum sıcaklığı sabit kalmaktadır. Eğri altında kalan tüm pikler teoriye göre birinci derece kinetikler olarak kabul edilebilir.



Şekil 4.7 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy örneğine ait TL ışıma eğrisinin şekli üzerinde ışınlama süresinin etkisi.



**Şekil 4.8** CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li örneğine ait TL ışıma eğrisinin şekli üzerindeki ışınlama süresinin etkisi.
## 4.4.2 T<sub>maksimum</sub>-T<sub>durdurma</sub> sonuçları

Bu çalışmada CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ve CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li örnekleri sırasıyla 1 dakika ve 30 s beta kaynağı ile ışınlandıktan sonra 2 °C/s'lik lineer ısıtma hızıyla, TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Bu işlemler 5 °C'lik adımlarla tekrar edilmekte ve elde edilen çıktılardan ışıma eğrilerine ait maksimumlar not edilmektedir. Şekil 4.9 ve 4.10, bu dozimetrelere ait T<sub>m</sub>-T<sub>durdurma</sub> grafiklerini göstermektedir. Grafiklerde birden çok plato bölgesi görülmektedir. Bu platolar ışıma eğrisi altında kalan bireysel pikleri göstermektedir. CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy grafiğine bakıldığında 5 plato bölgesi görülürken CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li grafiğinde 8 adet plato bölgesi görülmektedir.



Şekil 4.9 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresine ait T<sub>m</sub>-T<sub>durdurma</sub> yöntemi sonucu.



Şekil 4.10 CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresine ait T<sub>m</sub>-T<sub>durdurma</sub> yöntemi sonucu.

## 4.4.3 Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme (CGCD) sonuçları

Burada, pik konumları ve ışıma eğrilerinde  $T_m$ 'in değişmeme özelliğinden yararlanarak, daha önceden tanımlanan GCD fonksiyonu (GlowFit) kullanıldı. Şekil 4.11 ve 4.12, çözümlenen CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ve CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li örneklerine ait ışıma piklerini göstermektedir.



Şekil 4.11 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla kaydedilen çözümlenmiş TL ışıma eğrisi.



Şekil 4.12 CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresine ait 2°C/s ısıtma hızıyla kaydedilen çözümlenmiş TL ışıma eğrisi.

Bulunan tuzaklama parametreleri Çizelge 4.1 ve 4.2'de listelenmektedir.

Pik	Maksimum Sıcaklık,	Aktivasyon enerjisi, E	Frekans faktörü, s
No	Tm (°C)	(eV)	$(s^{-1})$
1	247.9	0.702	3.73x10 <sup>5</sup>
2	273.1	0.5	$1.60 \times 10^3$
3	289.2	1.039	$1.58 \times 10^{8}$
4	305.9	0.914	$5.68 \times 10^6$
5	318.8	0.552	$1.82 \mathrm{x} 10^3$

FOM = % 1.71

Pik	Maksimum sıcaklık, Tm	Aktivasyon enerjisi, E	Frekans faktörü, s
No	(°C)	(eV)	$(s^{-1})$
1	98.74	0.500	$5.07 \times 10^{05}$
2	123.64	0.9131	$5.40 \times 10^{10}$
3	148.38	0.8751	$3.35 \times 10^{09}$
4	166.03	0.6686	$3.81 \times 10^{06}$
5	199.20	0.6213	$2.76 \times 10^{05}$
6	213.00	0.6527	$3.77 \times 10^{05}$
7	229.80	0.7249	$1.23 \times 10^{06}$
8	265.10	0.7491	$6.23 \times 10^{05}$

FOM = % 1.10

Elde edilen FOM değerleri istenen sınırlar (0.0 ile 2.5 veya 3.0) içindedir. Bu FOM değerleri daha fazla azaltılabilir ve eğer programda kullanılan piklerin sayısı arttırılırsa çok daha iyi bir uyum elde edilebilir. Fakat eğer her hangi bir fiziksel ölçümü yansıtmazlarsa sadece matematiksel bir tahmin olarak göz önüne alındıkları için böyle fazladan pik veya piklerin kabul edilebilirliği kesinlikle güvensizlik yaratacaktır. Bu nedenle programda kullanılacak veriler  $T_m$ , E (aktivasyon enerjisi) - $T_{durdurma}$ , FG (fractional glow) vb yöntemlerle sınırlandırılmalıdır. Bu çalışmada çözümleme sonuçları  $T_m$ - $T_{durdurma}$  sonuçlarıyla yakın bir uyum içindedir.

### 4.4.4 Pik şekli yöntemi sonuçları

CGCD yöntemiyle elde edilen pik parametreleri Chen'in pik şekli yöntemi kullanılarak da elde edilebilir. Pik şekli yöntemini CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ile CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetrelerine uygulayabilmek için her iki örneğin ışıma eğrileri altında kalan bireysel piklerin birbirlerinden iyice yalıtılması gerekir. Bunun için  $T_m$ - $T_{durdurma}$  ve termal temizlemeden yararlanılmıştır. Termal temizleme ışıma eğrisi altındaki piklerin maksimum sıcaklıklarının ötesine kadar örneği ısıtarak sorumlu pikin ışıma eğrisinden çıkarılmasına dayanmaktadır. Bu işlem diğer pikler için de aynen tekrarlanır. Burada CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy'un 1 numaralı piki ile CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li'un 3 numaralı ışıma pikine pik şekli yöntemi uygulanmıştır. Şekil 4.13'de 1 numaralı pikin ışıma eğrisi görülmektedir.



Şekil 4.13 Termal temizleme ve çıkarma işlemlerinden sonra elde edilen CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresinin 1 numaralı piki.

Bu ışıma eğrisine daha önceden verilen denklemler kullanılarak hesaplamalar yapılırsa  $\mu_g$  değeri ~ 0.42 bulunur ve bu değer pik 1'in birinci derece kinetik olduğunu gösterir. Çizelge 4.3'de hesaplanan E ve s parametreleri görülmektedir.

**Çizelge 4.3** CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresine ait 1 numaralı pikin kinetik parametreleri.

Aktivasyon enerjisi, E (eV)			Freka	ans faktörü,	s (s <sup>-1</sup> )
$E_{\tau}$	$E_{\delta}$	$E_{\omega}$	$s_{\tau}$	$s_{\delta}$	$s_{\omega}$
0.6954	0.7394	0.7170	3.18x10 <sup>05</sup>	$9.02 \times 10^{05}$	5.31x10 <sup>05</sup>

CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikine ait ışıma eğrisi Şekil 4.14'de görülmektedir. Gerekli bağıntılar yardımıyla hesaplanan  $\mu_g$ değeri 0.42 bulunmuştur. Böylece bu dozimetreye ait pikin de birinci derece kinetiklere uyduğu görülmektedir. Çizelge 4.4'de diğer parametreler gösterilmiştir.



**Şekil 4.14** CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresinin termal temizleme ve çıkarma işlemlerinden sonra elde edilen 3 numaralı piki.

Aktivasyon enerjisi, E (eV)			Frekans faktörü, s (s <sup>-1</sup> )		
$E_{\tau}$	$E_{\delta}$	$E_{\omega}$	$s_{\tau}$	$s_{\delta}$	$s_{\omega}$
0.8614	0.8759	0.8741	2.31x10 <sup>09</sup>	3.50x10 <sup>09</sup>	3.33x10 <sup>09</sup>

Çizelge 4.4 CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresine ait 3 numaralı pikin kinetik parametreleri.

## 4.4.5 İzotermal bozunum yöntemi sonuçları

Bu çalışmada CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresi 1 dakika  $\beta$  kaynağı ile ışınlandıktan sonra 1 numaralı pikin 210, 215 ve 220°C sabit sıcaklıklarındaki bozunum eğrileri kaydedilmiştir. Şekil 4.15'de içteki grafik verilen sıcaklıklardaki izotermal bozunumları göstermektedir. Aynı şekilde zamana karşı TL şiddetinin logaritması alındığında lineerliğin elde edildiği görülmektedir. Bu bozunum birinci derece kinetiklere uyar.



**Şekil 4.15** CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy'un 1 numaralı pikin 210, 215 ve 220°C'deki izotermal bozunum eğrileri.

Üçüncü bölümde verilen denklemlerden yararlanarak Şekil 4.15'de görülen eğrilere ait doğruların eğimleri (m) hesaplanır ve eğimlerin logaritması alınır. 1/T'ye karşı ln(m)'nin grafiği bir doğru verir (Şekil 4.16). Bu doğrunun eğimi –E/k'ye eşittir. Burada k Boltzmann sabiti ve E aktivasyon enerjisidir. Şekil 4.16'da görülen doğru denkleminden yararlanılarak aktivasyon enerjisi E ve frekans faktörü s kolaylıkla hesaplanabilir. Çizelge 4.5'de elde edilen kinetik parametreler gösterilmektedir.



Şekil 4.16 CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresinin 1 numaralı pikine ait 1/T'ye karşı Ln(m) grafiği.

**Çizelge 4.5** CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresinin 1 numaralı pikin izotermal bozunum yöntemiyle elde edilen kinetik parametreleri.

Aktivasyon enerjisi, E (eV)	Frekans faktörü, s (s <sup>-1</sup> )	Kinetik derece, b
0.75	$2.52 \times 10^{06}$	1

Aynı şekilde CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li dozimetresi 30s  $\beta^{-}$  kaynağı ile ışınlandıktan sonra 3 numaralı pikin 95, 100 ve 105 °C'deki izotermal bozunum eğrileri kaydedilmiştir. Bu sabit sıcaklıklardaki izotermal bozunumları Şekil 4.17 göstermektedir. Yukarıda bahsedildiği gibi, bu bozunumların da zamana karşı logaritmik TL şiddetleri çizildiğinde lineerlik görülmektedir. Böylece bu bozunumların da birinci derece kinetiklere uyduğu söylenebilir. Şekil 4.17'de görülen eğrilere ait doğruların eğimleri bulunup daha önce değinildiği üzere E ve s kinetik parametreleri rahatlıkla hesaplanabilir (Şekil 4.18). Çizelge 4.6 bulunan kinetik parametreleri göstermektedir.



Şekil 4.17 CaSO<sub>4</sub>: Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikin 95, 100 ve 105°C'deki izotermal bozunum eğrileri.



Şekil 4.18 CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikine ait 1/T'ye karşı Ln(m) grafiği.

**Çizelge 4.6** CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikin izotermal bozunum yöntemiyle elde edilen kinetik parametreleri.

Aktivasyon enerjisi, E (eV)	Frekans faktörü, s (s <sup>-1</sup> )	Kinetik derece, b
0.83	$1.49 \times 10^{09}$	1

## 5 SONUÇLAR

Bu tez çalışmasında CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy ve CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li dozimetrelerinin geniş bir doz aralığı için çok iyi bir lineer doz yanıtına sahip olduğu bulunmuştur. CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy'un 250°C'deki ana ışıma piki %16 sönümleme gösterirken, CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li'un 162°C'deki ana ışıma pikinin sönümlemesi %40'dır (Prokic, 2000). Bu dozimetrelerin doz yanıtı termolüminesans dozimetreler (TLD) için istenen özellikleri sağlamaktadır. Bununla birlikte dozimetrelerde gözlenen %16 ve %40'lık sönümlemeler yüksek olduğu için bu dozimetrelerin ancak kısa süreli doz ölçümlerinde uygun olacağı düşünülmektedir.

ek belirlenmesinde doz Tuzak parametrelerinin yöntemi dozimetrelerin ana ışıma pikini oluşturan bireysel piklerin birinci derece kinetiklere uyduğunu göstermektedir. T<sub>m</sub>-T<sub>durdurma</sub> yöntemiyle bu bireysel saptanmıştır. İlgilenilen sıcaklık aralığında piklerin konumları CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy 1şıma eğrisinin en az 5, CaSO<sub>4</sub>:Dy,Li dozimetresinin ise 8 bireysel ışıma pikinin bileşiminden oluştuğu gözlenmektedir.

CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy fosforunun bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme (CGCD), pik şekli (PS) ve izotermal bozunum yöntemleriyle elde edilen sonuçları Çizelge 5.1'de görülmektedir. Bu çizelgede üç yöntemle elde edilen sonuçların birbiri ile uyumlu olduğu söylenebilir.

**Çizelge 5.1** CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy dozimetresinin 1 numaralı pikine ait kinetik parametreler. Burada CGCD: Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme, PS: Pik şekli (ortalama değeri alınmıştır) ve ID: İzotermal bozunum yöntemlerini göstermektedir.

	Yöntem		
Kinetik Parametreler	CGCD	PS	ID
Kinetik derece, b	1	1	1
Aktivasyon enerjisi, E (eV)	0.702	0.717	0.75
Frekans faktörü, s (s <sup>-1</sup> )	$3.73 \times 10^{05}$	$5.84 \text{x} 10^{05}$	$2.52 \times 10^{06}$

CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li fosforunun CGCD, PS ve ID yöntemleri ile elde edilen tuzak parametreleri Çizelge 5.2'de gösterilmektedir. Çizelgeden görüleceği gibi 3 farklı yöntem ile bulunan değerler birbiri ile uyumludur. Sonuç olarak üç farklı yöntemle elde edilen kinetik parametreler arasında uyumun olması sonuçların güvenirliliğini ortaya koyması açısından önemlidir.

Çizelge 5.2 CaSO<sub>4</sub>:Dy, Li dozimetresinin 3 numaralı pikine ait kinetik parametreler. Burada CGCD: Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme, PS: Pik şekli (ortalama değeri alınmıştır) ve ID: İzotermal bozunum yöntemlerini göstermektedir.

	Yöntem		
Kinetik Parametreler	CGCD	PS	ID
Kinetik derece, b	1	1	1
Aktivasyon enerjisi, E (eV)	0.875	0.871	0.83
Frekans faktörü, s (s <sup>-1</sup> )	$3.35 \times 10^{09}$	$3.05 \times 10^{09}$	$1.49 \times 10^{09}$

Özellikle ID yöntemindeki parametrelerin diğer iki yöntemden kısmen farklı çıkması, ışıma eğrisi altındaki piklerin iyice birbirinden yalıtılmamış olması ve mono moleküler süper pozisyon teorisi (Randall and Wilkins, 1945a; 1945b; Paulose et al., 2007) ile açıklanabilir. Bu teoriye göre hiberbolik bozunum farklı tuzaklara karşılık gelen eksponansiyellerin bir sonucudur. Farklı eksponansiyellere karşılık gelen tuzak derinlikleri, fosforesans bozunumu için Randall & Wilkins denklemi kullanılarak elde edilen doğruların eğimlerinden hesaplanmaktadır. Ayrıca tuzak konumlarının belirlenmesinde daha iyi bir doğruluk elde etmek için parçalı ışıma (FG - fractional glow) tekniği de kullanılabilir (Gobrecht and Hofmann, 1966; Chruscinska, 2001).

CaSO<sub>4</sub>:Dy'un TL yanıtının LiF (TLD-100)'ün TL yanıtından yaklaşık 50 kat daha yüksek olduğu bulunmuştur (Prokic, 1991). Ayrıca Li katkısının CaSO<sub>4</sub>:Dy termolüminesans dozimetrelerinin TL duyarlılığını 1.5 kat arttırdığı saptanmıştır (Prokic, 2000). Diğer yandan CaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Dy fosforlarının ticari olarak kullanılan LiF (TLD-100) fosforundan 4 kat daha duyarlı olduğu ve bu nedenle TLD100 dozimetresine bir alternatif olarak kullanılabilecekleri rapor edilmiştir (Dhoble et al., 2004).

# **KAYNAKLAR DİZİNİ**

- Benevides, L.A., Huston, A.L., Justus, B.L., Falkenstein, P., Brateman, L.F. and Hintenlang, D.E., 2007, Characterization of a fiber-optic-coupled radioluminescent detector for application in the mammography energy range, Medical Physics Vol. 34, Issue:6 2220-2227.
- **Bos, A.J.J.**, 2001, High sensitivity thermoluminescence dosimetry, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 184 3-28.
- **Bos, A.J.J., Piters, T.M., Gomez Ros, J.M. and Delgado, A.**, 1993, An intercomparison of glow curve analysis computer programs: I. Synthetic glow curves, Radiation Protection Dosimetry Vol. 47 473-477.
- **Chen, R. and McKeever, S.W.S.**, 1995, Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena, World Scientific Publishing Company Inc., New York, 559p.
- Chen, R., 1969, Glow curves with general order kinetics, J. Electrochem. Soc. 116 1254-1257.
- **Chen, R.**, 1969, On the calculation of activation energies and frequency factors from glow curves, J. Appl. Phys. 40 570-585.
- **Chen, R.**, 1984, Kinetics of thermoluminescence glow peaks. In: Thermoluminescence and Thermoluminescence Dosimetry. Ed. Y.S. Horowitz, Boca Raton, USA:CRC Press.
- Chruscinska, A., 2001, The fractional glow technique as a tool of investigation of TL bleaching efficiency in K-feldspar, Journal of Methods and Applications of Absolute Chronology, Geochronometria Vol. 20 21-30.

- **Chung, K.S., Choe, H.S., Lee, J.I., Kim, J.L. and Chang, S.Y.**, 2005, A computer program for the deconvolution of thermoluminescence glow curves, Radiation Protection Dosimetry Vol. 115 No. 1-4 345-349.
- **Çetin, A.**, 2007, Farklı Metalik İyonlarla Bombalanan ZNO Örneklerinin Fiziksel ve Yapısal Özelliklerinin Nükleer, Lüminesans ve Diğer Teknikler Kullanılarak İncelenmesi, Doktora Tezi. Ege Üniversitesi Fizik Bölümü, 189.
- **Dikici, M.**, 1993, Katıhal Fiziğine Giriş, Ondokuz Mayıs Üniversitesi Eğitim Fakültesi, Samsun, 276s.
- **Durlu, T. N.**, 1992, Katıhal Fiziğine Giriş, Ankara Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü, Ankara, 313s.
- **Ege, A.**, 2008, Işıma Teknikleri Kullanılarak Jeolojik Örneklerin Tarihlendirilmesi, Doktora Tezi, EGE Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, 153s.
- **Ege, A.T., Ekdal, E., Karalı, T. and Can, N.**, 2007, Determination of thermoluminescence kinetic parameters of Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>:Cu, Ag, P, Radiation Measurements 42 1280-1284.
- **Furetta, C. and Kitis, G.**, 2004, Review models in thermoluminescence, Journal of Materials Science 39 2277-2294.
- **Furetta, C.**, 2003, Handbook of Thermoluminescence, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, 480p.
- Furetta, C., 2007, A fading-base method for checking the presence of closely overlapping peaks in thermoluminescent (TL) materials, Radiation Effects & Defects in Solids Vol. 162, No. 5, 319-323.

- **Furetta, C., Kitis, G. and Kuo, C.H.**, 2000, Kinetic parameters of CVD diamond by computerised glow-curve deconvolution (CGCD), Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 160 65-72.
- **Garlick, G.F.J. and Gibson, A.F.**, 1948, The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors Proc. Phys. Soc. 60 574-590.
- Gobrecht, H. and Hofmann, D., 1966, Spectroscopy of traps by fractional glow technique, Journal of Physics and Chemistry of Solids Vol. 27 Issue 3, 509-522.
- Gonzalez, P.R., Furetta, C., Calvo, B.E., Gaso, M.I. and Cruz-Zaragoza, E., 2007, Dosimetric characterization of a new preparation of BaSO4 activated by Eu ions, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 260 685-692.
- Halperin, A. and Braner, A.A., 1960, Evaluation of thermal activation energies from glow curves, Phys. Rev. 117 408-415.
- **Horowitz, Y.S. and Yossian, D.**, 1995, Computerised glow curve deconvolution: Application to thermoluminescence dosimetry, Radiation Protection Dosimetry 60, 1.
- Huston, A.L., Justus, B.L., Falkenstein, P.L., Miller, R.W., Ning, H. and Altemus, R., 2002, Optically stimulated luminescent glass optical fibre dosemeter, Radiation Protection Dosimetry Vol. 101, Issue 1-4, 23-26.
- Jiang, L.H., Zhang, Y.L., Li, L.I., Hao, J.Q. and Su, Q., 2009, Synthesis, photoluminescence, thermoluminescence and dosimetry properties of novel phosphor KSr<sub>4</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub>:Ce, Journal of Alloys and Compounds 482 313-316.

- **Kafadar, V.E., Yazıcı, A.N. and Yıldırım, R.G.**, 2009, Determination of trapping parameters of dosimetric thermoluminescent glow peak of lithium triborate (LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>) activated by aluminum, Journal of Luminescence 129 710-714.
- Kitis, G. and Pagonis, V., 2007, Peak shape methods for general order thermoluminescence glow-peaks: A reappraisal, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 262 313-322.
- Kitis, G., Chen, R. and Pagonis, V., 2008, Thermoluminescence glowpeak shape methods based on mixed order kinetics, Physica Status Solidi (a) 205, No. 5, 1181-1189.
- **Komor, M.R.**, 2006, NATO Science Series Vol.41, Radiation Safety Problems in the Caspian Region, Thermoluminescence personal and medical dosimetry, Springer Netherlands, 177-190p.
- Kortov, V., 2007, Materials for thermoluminescent dosimetry: Current status and future trends, Radiation Measurements 42 576-581.
- Manam, J. and Das, S., 2009, Determination of kinetic parameters of thermally stimulated luminescence of Cu-doped BaSO<sub>4</sub>, Journal of Physics and Chemistry of Solids 70 379-384.
- Manam, J. and Sharma, S.K., 2004, Thermally stimulated luminescence studies of BaB<sub>4</sub>O<sub>7</sub> compound, Journal of Materials Science 39 6203-6208.
- May, C.E and Partridge, J.A., 1964, Thermoluminescent kinetics of alpha;-irradiated alkali halides, Journal of Chemical Physics 40(5) 1401-9.

- McKeever, S.W.S., 1980, On the analysis of complex thermoluminescence glow- curves: resolution into individual peaks, Physica Status Solidi A: Applied Research 62(1) 331-40.
- McKeever, S.W.S., 1988, Thermoluminescence of Solids, Cambridge University Press, Sydney, 392p.
- Mosely, P.T. and Crocker, J., 1996, Sensor Materials (Sensors), International Lead Zinc Research Organization, Inc., USA, 227p.
- **Ong, C.L., Kandaiya, S., Kho, H.T. and Chong, M.T.**, 2009, Segments of a commercial Ge-doped optical fiber as a thermoluminescent dosimeter in radiotherapy, Radiation Measurements 44 158-162.
- **Pagonis, V., Kitis, G. and Furetta C.**, 2006, Numerical and Practical Exercises in Thermoluminescence, Springer Science+Business Media Inc., New York, 210p.
- **Partridge, J.A. and May, C.E.**, 1965, Anomalous thermoluminescent kinetics of irradiated alkali halides, Journal of Chemical Physics 42(2) 797-8.
- Paulose, P.I., Joseph, J., Rudra Warrier, M.K., Jose, G. and Unnikrishnan N.V., 2007, Relaxation kinetics of Sm: Ce-doped CaS phosphors, Journal of Luminescence 127 583-588.
- Pitale, S.S., Sharma, S.K., Dubey, R.N., Qureshi, M.S. and Malik, M.M., 2008, Thermoluminescence glow curve analysis of UV irradiated long persistence CaS:Pr3+ phosphor through computerized glow curve deconvolution tecnique, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 266 2027-2034.

- **Prokic, M.**, 2000, Effect of lithium co-dopant on the thermoluminescence response of some phosphors, Applied Radiation and Isotopes 52 97-103.
- Puchalska, M. and Bilski, B., 2006, GlowFit-a new tool for thermoluminescence glow-curve deconvolution, Radiation Measurements 41 659-664.
- Randall, J.T. and Wilkins, M.H.F., 1945a, Phosphorescence and electron traps. I. The study of trap distributions. Proc. Roy. Soc. A, 184, 366-389.
- **Randall, J.T. and Wilkins, M.H.F.**, 1945b, Phosphorescence and electron traps. II. The interpretation of long-period phosphorescence. Proc. Roy. Soc. A, 184, 390-407.
- **Rasheedy, M.S.**, 1996, A new method for obtaining the order of kinetics and the activation energy of the thermoluminescence glow peak, J. Phys.: Condens. Matter 8 1291-1300.
- Rivera, T., Vega, H.R., Azorin, J., Manzanares, E., Gonzalez, P.R. and Furetta, C., 2009, Thermal neutron equivalent dose measurements with nanostructured zirconia, Radiations Effects & Defects in Solids, Vol. 164, No. 4, 224-231.
- Sunta, C.M., Feria Ayta W.E., Kulkarni, R.N., Piters T.M. and Watanabe, S., 1999, Theoretical models of thermoluminescence and their relevance in experimental work, Radiation Protection Dosimetry Vol. 84, Nos. 1-4, pp. 25-28.
- Takeuchi, N., Inabe, K. and Nanto, H., 1975, Effect of iron impurity concentration on kinetics order of thermoluminescent blue emission in MgO single crystals, Solid State Communications Vol. 17 Issue 10 1267-1269.

- Vij, D.R., 1998, Luminescence of Solids, Springer-Verlag, New York LLC, 446p.
- **Yazıcı, A.N., Bedir, M. and Sökücü, A.S.**, 2007, The analysis of dosimetric thermoluminescent glow peak of CaF<sub>2</sub>:Mn after β-irradiation, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 259 955-965.
- Yazıcı, A.N., Kurt, K., Kafadar, V.E., Gürler, S. and Topaksu, M., 2006, The analysis of thermoluminescent glow peaks of natural zircon after β-irradiation, Nuclear Instrument and Methods in Physics Research B 248 133-141.

# ÖZGEÇMİŞ

Adı soyadı: Aycan AKIN

Doğum yeri ve tarihi: Kırcaali, 27/04/1983

# Öğrenim durumu:

- 1991-1999: Başaran İlköğretim Okulu, Bursa
  1999-2003: Hayrettin Duran Lisesi, İzmir
  2003-2007: Lisans, Ege Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü
- 2007-.....: Yüksek Lisans, Ege Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü