CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

FARKLI TERMOLÜMİNESANS MALZEMELERİN **KINETIK PARAMETRELERININ INCELENMESI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ Levent TÜRKLER

Anabilim Dalı : Fizik

Programı : Katıhal Fiziği

MANİSA - 2010

CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

FARKLI TERMOLÜMİNESANS MALZEMELERİN

KINETIK PARAMETRELERININ INCELENMESI

YÜKSEK LİSANS TEZİ Levent TÜRKLER

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih : 29.12.2009

Tezin Savunulduğu Tarih : 13.10.2010

Tez Danışmanı : Yrd. Doç. Dr. Yüksel KARABULUT

Diğer Jüri Üyeleri : Yrd. Doç. Dr. Yüksel KARABULUT Prof. Dr. Nurdoğan CAN Yrd. Doç. Dr. Müslim Murat SAÇ

MANISA 2010

İÇİNDEKİLER

İÇİ	NDEK	İLER		I
KIS	SALTN	/IALAI	R LISTESI	. 111
ŞE	ŞEKİL LİSTESİIV			. IV
ÇİZ	ÇİZELGE LİSTESİVI			VII
ΤE	ŞEKK	ÜR		VIII
ÖZ	ET			.IX
AB	STRA	СТ		X
1.	GİR	iş		1
2.	GEN		BILGILER	2
2	2.1.	Krist	taller ve Kusurlar	2
2	2.2.	Lüm	inesans	8
2	2.3.	Tern	nolüminesans	.10
	2.3.	1.	İlk Basamak: ışınlama	11
	2.3.	2.	İkinci basamak: ısıtma	11
2	2.4.	Tern	nolüminesansın Matematiksel Yaklaşımı	.12
	2.4.	1.	Fosforesans için matematiksel yaklaşım	14
	2.4.	2.	Termolüminesansa nitel bir bakış	15
3.	TEF	RMOL	ÜMİNESANS KİNETİK PARAMETRELERİ	17
3	3.1.	Basi	it Termolüminesans Modeli	.17
3	3.2.	Birin	nci, İkinci ve Genel Derece Termolüminesans Kinetikleri	.19
	3.2.	1.	Birinci Derece Kinetik Işıma Pikleri için Fonksiyon	22
	3.2.	2.	İkinci Derece Kinetik Işıma Pikleri için Fonksiyon	24
	3.2.	3.	Genel Derece Kinetik Işıma Pikleri için Fonksiyon	25
4.	ANA	ALİZ N	METODLARI	29
2	4.1.	Başl	langıç Artış metodu	.29
2	1.2.	Tüm	ı Termolüminesans Işıma Eğrilerinde Kullanılan Analiz Metotları	.34
2	4.3.	Pik F	Pozisyon Metotları ile Analiz	.35

	4.3.	1.	Maksimum sıcaklığa dayanan Analiz Metotları	. 35
	4.3.2	2.	Çeşitli Isıtma Hızlarına Bağlı Analiz Metotları	. 35
	4.3.3	3.	İzotermal Lüminesans Bozunma Metodu	. 38
	4.3.4	4.	lşıma Eğrisinin şekline bağlı analiz metotları	. 40
5.	BİLO	GİSA`	YAR YAZILIMI İLE IŞIMA EĞRİSİ ANALİZİ	. 44
5	5.1.	Giriş	5	44
5	i.2.	Yaz	lım	44
5	5.3.	Prog	grama Verilerin Eklenmesi	45
5	.4.	Pikle	erin Yerleştirilmesi	49
5	5.5.	Pikle	erin Uygunlaştırılması	51
6.	SON	NUÇL	AR ve TARTIŞMA	. 56
е	5.1.	Çalı	şmada Kullanılan Malzemeler	56
6	5.2.	Örne	eklerin Işıma Eğrilerinin Ölçümleri ve Bilgisayar Yardımıyla Pik Analizleri	56
6	5.3.	Son	uç ve Değerlendirme	61
ÖZGEÇMİŞ			. 64	

KISALTMALAR LİSTESİ

TL	: Termolüminesans
TLD	: Termolüminesans dozimetre
RC	: Yeniden birleşme merkezi
OTOR	: Tek-tuzak-tek-yeniden birleşme merkezi
IR	: Başlangıç artış metodu
ILD	: İzotermal lüminesans bozunma metodu
РМ	: Foto çoğaltıcı
IR	: Kızıl ötesi ışın
UV	: Mor ötesi ışın

ŞEKİL LİSTESİ

Şekil 2.1. İdeal kristalin 3 boyutlu yapısı	3
Şekil 2.2. İçsel kusurlu gerçek bir kristalin yapısı. Örneğin LiF. +alkali iyon (Li⁺), - hal iyonu (F⁻),	ojenir 4
Şekil 2.3. İki değerlikli Mg ²⁺ katyonunun yerine geçmesi	4
Şekil 2.4. (a)Alkali iyon kayıpları ; (b) Bir kompleks oluşturmak için iyonları çekimi	5
Şekil 2.5. Gerçek bir kristalde V, V _k , V ₃ merkezleri	6
Şekil 2.6. Floresans olayı	9
Şekil 2.7. Fosforesans olayı	9
Şekil 2.8. Işıma eğrisi örneği. Her bir pik iyi tanımlanmış bir tuzağa karşılık gelir	10
Şekil 2.9. Kristal yapıda ışınlama ile oluşan işlemler	11
Şekil 2.10. Işınlanmış bir kristalde ısıtmayla oluşan işlemler.	12
Şekil 2.11. Fosforesans işlemi	14
Şekil 2.12. Tuzaklanma ve yeniden birleşme işlemlerinin taslağı	16
Şekil 3.1. Termolüminesans süreci için basit iki seviyeli model	17
Şekil 3.2. Zamanın fonksiyonu olarak sıcaklık değişimi T(t), termolüminesans şiddeti I(t), yeniden birleşme merkezindeki (RC) tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonu n _h (t) dur. Der süresince β lineer ısıtma hızı kullanılmıştır.	ve ìey 18
Şekil 3.3. Birinci ve ikinci derece kinetikler için TL ışıma piklerinin sistematik kıyaslanması Buradaki parametreler, E = 1 eV, s = 10^{12} s^{-1} , n ₀ = N = 10^3 m^{-3}	20
Şekil 3.4. Farklı başlangıç konsantrasyonları n_0 için, Denklem (3.5) ve (3.6) ile hesaplanar birinci ve ikinci derece TL ışıma pikleri. Buradaki parametreler E = 1 eV, s = 10^{12} s ⁻¹ , N = m^{-3} ve (a) $n_0 = 1$, 0.5, 0.1 × 10^{10} m ⁻³ (b) $n_0/N = 1$, 0.5, 0.1	n 10 ¹⁰ 21
Şekil 3.5. (a) E= 1.0 eV ve farklı s frekans faktörleri için (b) s= 10 ¹² s ⁻¹ ve farklı aktivasyon enerjileri için, denklem (3.5) kullanılarak hesaplanan birinci derece TL ışıma pikleri	21
Şekil 3.6. b kinetik derece parametresinin farklı değerleri için denklem (3.10) kullanılarak hesaplanan genel derece TL ışıma pikleri. Burada kullanılan parametreler $E = 1 \text{ eV}$, $s = 1 \text{ s}^{-1}$, $\beta = 1 \text{ K s}^{-1}$, ve $n_0 = \text{N} = 1$ şeklindedir	0 ¹² 22
Şekil 4.1. Termolüminesans ışıma eğrisinin başlangıç artış kısmı	29
Şekil 4.2. Şekil 4.1 verilen ışıma eğrisinin başlangıç artış kısmına bu tekniğin uygulanmas	sı 30
Şekil 4.3. Ilich tarafından önerilen grafiksel metot	31

Şekil 4.4. Başlangıç artış metodunun başarısız olduğu üst üste binen TL ışıma pikleri	örneği. 32
Şekil 4.5. Tüm ışıma pikinde alanın n(T) hesaplanması - alan ölçüm metodu	33
Şekil 4.6. T_M 'nin Isıtma hızıyla değişimi	36
Şekil 4.7. Geometrik şekil nicelikleri τ , δ , ω	40
Şekil 4.8. Kinetik derece b ve geometrik faktör $\mu = \delta / \omega$ ve $\gamma = \delta / \tau$ arasındaki ilişki	42
Şekil 5.1. Programın ekran görüntüsü	45
Şekil 5.2. Araç çubuğu ekran görüntüsü	45
Şekil 5.3. Dosya seçme İşlemi	46
Şekil 5.4. Başlangıç değerlerinin belirlenmesi	46
Şekil 5.5. Deneysel verilerin grafik şeklinde gösterimi	47
Şekil 5.6. Grafik özellikleri	47
Şekil 5.7. Sekmeler	48
Şekil 5.8. Pik değerleri tablosu	48
Şekil 5.9. Piklerin seçimi	49
Şekil 5.10. Piklerin sayısı	49
Şekil 5.11. Pik parametre tablosu	50
Şekil 5.12. Grafikte farenin bulunduğu X ve Y değerleri Tm ve Im cinsinden	50
Şekil 5.13. Kinetik parametrelerin belirlenmesi	51
Şekil 5.14. Kinetik parametrelerin belirlenmesi	52
Şekil 5.15. Parametrelerin belirlenmesinde kullanılan kaydırma çubuğu	52
Şekil 5.16. Toplam pik eğrisi ile deneysel ışıma eğrisinin uyumu	53
Şekil 5.17. Piklerin belirlendikten sonra pik parametreleri oluşur	53
Şekil 5.18. Pik değerleri sekmesi	53
Şekil 5.19. Kalıntı grafiği	54
Şekil 5.20. Kalıntı grafiği açılmış ekran görüntüsü	54
Şekil 5.21. Rapor dosyası	55
Şekil 6.1. Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P dozimetresine ait ışıma eğrisi	57
Şekil 6.2. MgB ₄ O ₇ :Tm,Na dozimetresine ait ışıma eğrisi	57

Şekil 6.3. Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P TL dozimetresinin tavlanma işlemine maruz bırakıldıktan sonra ele edilen ışıma eğrisinin hazırlanan bilgisayar programı elde edilen analizi	de 58
Şekil 6.4. ⁹⁰ Sr Beta kaynağı ile ışınlanmış Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P TL dozimetresine ait tüm ışıma eğrisinin hazırlanan bilgisayar programı elde edilen analizi.	59
Şekil 6.5. ⁹⁰ Sr Beta kaynağı ile ışınlanmış MgB ₄ O ₇ :Tm,Na TL dozimetresine ışıma eğrisinin hazırlanan bilgisayar programı elde edilen analizi	60

ÇİZELGE LİSTESİ

Çizelge 2.1. Lüminesans olaylarının ve uyarılma metotlarının çeşitleri.	8
Çizelge 6.1. Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P TL dozimetresinin tavlama sonrası alınan ışıma eğrisine bilgisayar programı uygulandığında elde edilen pik parametreleri.	58
Çizelge 6.2. Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P TL dozimetresinin tüm ışıma eğrisine bilgisayar programı uygulandığında elde edilen pik parametreleri.	60
Çizelge 6.3. MgB ₄ O ₇ :Tm,Na TL dozimetresinin tüm ışıma eğrisine bilgisayar programı uygulandığında elde edilen pik parametreleri.	61

TEŞEKKÜR

Yüksek Lisans çalışmalarım süresince her adımda değerli destek ve katkılarını esirgemeyen tez danışmanım Sayın Yrd. Doç. Dr. Yüksel KARABULUT'a, çalışmalarımda başından sonuna dek maddi ve manevi desteğini benden esirgemeyen ve bana her daim bilimselliği ile örnek olan ve Bölüm laboratuarlarında her türlü çalışma olanağını sağlayan Celal Bayar Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölüm Başkanı ve Katıhal Fiziği Anabilim Dalı Başkanı Sayın Prof. Dr. Nurdoğan CAN'a, Yüksek Lisansımın ilk aşamasında beni destekleyen tez eski danışmanın Sayın Yrd. Doç. Dr. H. Güngör BELİK'e, deneysel aşamada yardımlarından dolayı Sayın Doç. Dr. Turgay KARALI ve Araş. Gör. Dr. Elçin EKDAL olmak üzere, her zaman büyük özveriyle yanımda olan ve bana sürekli destek veren kardeşim Yrd. Doç. Dr. Arzu TÜRKLER EGE'ye, manevi desteğini esirgemeyen eşim Fatime TÜRKLER'e ve oğlum Yiğit Alp TÜRKLER'e ve aileme, en içten teşekkürlerimi sunarım.

Levent TÜRKLER

ÖZET

Kişilerin, radyasyon üreten cihazlardan veya radyoaktif malzemelerden ne kadar radyasyona maruz kaldığının değerlendirilmesi için en etkili araçlardan biri TLD'lerdir. TL dozimetrenin performansı doğrusallığı, doz aralığı, enerji yanıtı, yeniden üretilebilirliği, saklanan bilginin kararlılığı, izotropi gibi özelikleri dikkate alınarak değerlendirilir. İyonize radyasyona maruz kalmış yumuşak biyolojik dokunun soğurduğu dozun belirlenmesi için kullanılacak dozimetrenin insan dokusuna benzer atomik bileşime sahip olması yani, dokuya eşdeğer olması gerekir (Z_{eff} = 7.42). Borat tabanlı TLD'ler 7.3 efektif atom numarasına sahip olmaları nedeniyle personel doz ölçümleri konusunda son yıllarda en ilgi çekici dozimetrelerden biri olmuştur. Çalışmada dokuya eşdeğer özelliğe ve yüksek duyarlığa sahip Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P ve MgB₄O₇:Tm,Na dozimetrelerin ışıma piklerine ait enerji (E), frekans faktörü (s) ve kinetik mertebe (b) parametreleri Delphi programlama dili kullanılarak hazırlanmış olan bilgisayar programı ile analiz edilmiştir.

ABSTRACT

TLDs are effective tools in order to assess how much radiation exposure a person receives from substances or equipments that produce radiation. The performance of TL dosimeter is evaluated by taking into account properties such as linearity, dose range, energy response, reproducibility, stability of stored information and isotropy. Measurement of absorbed dose in soft biological tissue exposed to ionized radiations requires that the dosimeter material has a similar atomic composition as that of human tissue, i.e. to be tissue equivalent (Zeff = 7.42). Therefore, it is possible to say that borate based TL dosimeters (TLD) appeared to be one of the most attractive materials in personal dosimetry due to its effective atomic number of 7.3. In this study, energy (E) and frequency factor (s) and kinetic order (b) of the glow peaks of $Li_2B_4O_7$:Cu,Ag,P and MgB₄O₇:Tm,Na dosimeters have been analyzed using the computer program with created Delphi codes.

1. GİRİŞ

Termolüminesans (TL), bir iletken veya yalıtkanın ışınlamalar sırasında soğurduğu enerjiyi malzeme ısıtıldığında ışık olarak yayımlaması olarak tanımlanır. TL işlemi süresince sıcaklığının fonksiyonu olarak örnekten yayımlanan ışığın şiddetinin grafiği "TL ışıma eğrisi" olarak bilinir. Bir termolüminesans deneyinde farklı koşullar altında farklı ışıma eğrileri elde edilebilir. Örneğin, çeşitli dozlarla ışınlanan veya çeşitli sıcaklıklarda ön ısıtma uygulanan bir malzeme için farklı ışıma eğrileri elde edilebilecektir. TL ışıma eğrilerinin ölçülmesi ve analizi, malzemenin TL sürecini tanımlamakta kullanılan çeşitli parametrelerin çıkarılması işlemidir Bu parametrelere örnek olarak, TL tuzakları için aktivasyon enerjisi E (tuzak derinliği olarak da adlandırılır), frekans faktörü s, TL sürecinin b kinetik derecesi, tuzak ve yeniden birleşme merkezinin yakalama tesir kesiti ve tuzak merkezlerinin konsantrasyonu sayılabilir [1,2].

İlk termolüminesans (TL) olayı, 1663 yılında Robert Boyle tarafından feldspat ve elmas gibi doğal mineraller üzerinde gözlemlenmiştir. 18. yüzyılda topaz, kalsit ve ametist gibi minerallerin TL özellikleri belirlenmiştir. Yüzyılın sonunda ise TL ile fosferans ilişkisi tribolüminesans olayıyla kanıtlanmıştır [3].

Lüminesansın kinetiği için ilk teorik model (birinci derece kinetik) 1945 yılında Randall ve Wilkins tarafından öne sürülmüştür. Daha sonra 1948 yılında Garlick ve Gibson bunu ikinci dereceden kinetik için genişletmişlerdir. Daha sonraları Halperin ve Brainer, Chen, McKeveer, Kitis v.b birçok araştırmacı teorik ve deneysel olarak bu konuda birçok çalışma yapmışlardır [1,4,5].

Termolüminesans dozimetrelerin çevresel ve medikal doz ölçümünde yaygın kullanımlarıyla birlikte bu konudaki çalışmalar yoğunluk kazanmıştır. Yeni dozimetrik malzemelerin üretilmesi, beraberinde bu malzemelerin karakterizasyonunu da getirmiştir. Bir dozimetrik malzemenin ışıma piklerine ait aktivasyon veya tuzak enerjisi (E), frekans faktörü (s) ve kinetik mertebe (b) gibi parametrelerin belirlenmesi malzemenin karakterizasyonunda büyük önem taşımaktadır.

Bu çalışmada kinetik parametrelerin belirlenmesinde kullanılmak üzere Delphi programlama dili ile hazırlanmış olan bilgisayar programı tanıtılmıştır. Ayrıca programın kullanılabilirliğinin incelenmesi için literatürde daha önce çalışılmış olan Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresine ait ışıma piklerinin analizi yapılmıştır [6,7]. Ayrıca aynı program kullanılarak daha önce kinetik parametreler açısından incelenmemiş olan MgB₄O₇:Tm,Na termolüminesans dozimetresine ait E, s ve b parametreleri belirlenmiştir.

2. GENEL BİLGİLER

2.1. Kristaller ve Kusurlar

Termolüminesans dozimetresinde ilgilenilen malzemeler, özellikle soğurulan radyasyonun enerjisi nedeniyle, çoğunlukla iletkenlik elektronlarına sahip olan yalıtkanlardır. LiF ve NaCl gibi kübik yapıdaki alkali halojenürler bu yalıtkanlara örnektir. En son üretilen termolüminesans malzemelerin hazırlanma ve karakteristiklerini de içeren geniş bir inceleme Azorin et al tarafından da verilmiştir [8].

Kristal 3-katlı periyodikliği ile tanımlanmış bir atom veya molekül yığınıdır. Bir kristali bütünüyle tanımlamak için, atomların (veya moleküllerin) gelişigüzel bir orijinin üç-vektörü \vec{a}_i (i=1,2,3) ile oluşturulmuş bir birim hücre içindeki pozisyonlarının belirlenmesi gerekir. Kristal içindeki tüm atomlar, \vec{t} ötelemeleriyle birim hücrenin atomlarından elde edilmiş olacaktır.

$$\vec{t} = \sum_{i} \alpha_{i} a_{i} \tag{2.1}$$

Burada α_i tüm negatif ve pozitif tamsayıları ifade eder.

Denklem (2.1) ile tanımlanan bir kristal idealdir. Termal titreşimler periyodikliği bozar ve bu denkleme uymayı imkansız hale getirir, bu durumda kristale kusurlu kristal adı verilir. Bu denklemin bir başka sınırlaması da sınırlı kristal büyüklüğüdür. Kristaller birinci tip kristal kusurları olan serbest yüzeyler ile sınırlandırılmışlardır. Serbest yüzeylere veya muhtemel diğer kusurlara sahip olan kristal gerçek bir kristaldir.

Alkali halojenürler ve kusurları lüminesans olayını anlamak için uygundurlar. Bu yüzden gerçek bir kristalin davranışını ve ışınlama süresince ikincil yüklü parçacıkların meydana getirdiği yük taşıyıcıları için potansiyel tuzak olarak davranabilen tüm kusurları tartışmak için kullanılacaklardır.

Alkali halojenürler, alkali ve halojenür iyonlarının üç doğrultuda birbirini takip ederek artarda düzenli sıralanmasıyla meydana gelir. Şekil 2.1' de ideal bir kristal, örneğin LiF, görülmektedir.



Şekil 2.1. İdeal kristalin 3 boyutlu yapısı

(a) LiF in Yapısı (•Li ○F) : (b) CaF₂ nin Yapısı (•Ca ○F)

Bunun aksine gerçek bir kristal ise temelde üç çeşit kusura sahiptir.

1 - İçsel veya doğal kusurlar

Bunlar:

a) Boşluklar ve kayıp atomlar (Schottky kusurları olarak adlandırılır). Boşluk kusuru, bir atom kristal içinde olması gereken yerden bir şekilde çıkarıldığında ve yerine başka bir atom gelmediğinde meydana gelen kusurdur.

b) İntersiyel veya Frenkel kusuru. Bir X kristali içindeki bir X atomunun örgü içinde uygun olmayan bir yere girmesinden meydana gelir.

c) Yerine geçme kusurları: örneğin alkali bölgelerdeki halojenür iyonları.

d) Önceki kusurların birleşiminden meydana gelen kusurlar olarak sayılabilir.

Şekil 2.2.'de bu bahsedilen kusurlar görülmektedir [8].



Şekil 2.2. İçsel kusurlu gerçek bir kristalin yapısı. Örneğin LiF. +alkali iyon (Li⁺), - halojenir iyonu (F⁻), ⁺ alkali iyon boşluğu, ⁻ halojenür iyon boşluğu , ⊕ intersitiyel alkali iyon,Θ intersitiyel halojenür iyon

2 - <u>Dışsal veya safsızlık kusurları,</u> Bunlar:

- a) Yerine geçme safsızlığı: Bir Y atomu bir X atomunun yerini alır.
- b) İntersitiyel safsızlık: Bir Y atomu X kristali içinde mükemmel bir kristale ait olmayan bir ara yere girer.

Bu safsızlıklar, sonraki aşamalarda kristal yapı içinde, kristalin erimesi, difüzyon veya implantasyon olayları esnasında meydana gelir. Şekil 2.3'teki LiF içindeki iki değerlikli Mg²⁺ katyonunun davranışı buna örnek olarak gösterilebilir: Burada Mg²⁺, Li⁺ iyonunun yerini alır.



Şekil 2.3. İki değerlikli Mg²⁺ katyonunun yerine geçmesi.

Kimyasal safsızlığın mekanizmasını anlamak için Şekil 2.4 (a)'da görüldüğü gibi, boşluk konsantrasyonu üzerine iki değerlikli bir iyonun etkisine bakılabilir. Safsızlığın fazlalık pozitif yükünü telafi etmek için bir alkali iyon çıkarılmalıdır; ayrıca iki değerlikli katyon safsızlığı yerel bir pozitif yük olduğu ve katyon boşluğu ise yerel bir negatif yük olduğu için Şekil 2.4 (b)'de görüldüğü gibi birbirlerini çekerek bir kompleks oluşturabilirler.



Şekil 2.4. (a)Alkali iyon kayıpları ; (b) Bir kompleks oluşturmak için iyonları çekimi

3 - İyonize radyasyon alkali halojenürler içinde diğer kusurları üretir.

Bu kusurlara soğurma merkezleri olarakta bilinen renk merkezleri ve ya renklenmiş iyonik kristaller adı verilir. Örneğin, normalde olması gereken bir negatif iyonun kaybolması ve bu iyonların çevresindeki yükleri nötrlenmediği için, negatif iyon boşlukları yerleşik pozitif yük bölgeleri halini alır. İyonize radyasyon nedeniyle, bir elektron kristal içinde serbest hale geçer, bu sayede hareket edebilir. Bu hareketi sırasında yerleşik pozitif yükler tarafından bir Coulomb kuvvetiyle çekilebilir ve boşluk tarafından tuzaklanabilir. Bu sistem veya merkez, F merkezi olarak adlandırılır. Aynı şekilde, bir pozitif iyon boşluğu da bir deşik (hole) tuzağını temsil eder ve bu sistem V merkezi olarak adlandırılır fakat bunun hakkında herhangi deneysel veri bilinmemektedir. Diğer deşik merkezi çeşitleri:

- V_k merkezi, bir boşluğun bir çift negatif iyon tarafından tuzaklandığında elde edilir,

 - V₃ merkezi, bir halojen iyon bölgesini dolduran nötr bir halojen molekülünden meydana gelir: bu da iki halojenür iyonun iki deşik ile tuzaklanmasının etkisiyle ortaya çıkar.

Bahsedilen tüm bu kusurlar Şekil 2.5'te gösterilmiştir.

Yüksek doz seviyeleri, termolüminesans ölçüm sistemlerinde önemli olan, duyarlılık azalması, satürasyon etkisi v.b. gibi TL malzemelerinde istenmeyen ve genellikle radyasyon hasarı olarak adlandırılan etkilere neden olabilmektedirler. Bu yüzden ışınlama süresince kusur

üretimi öneminin ana hatlarıyla belirtilmesi gerekmektedir. Ayrıca, fotolüminesans gibi çeşitli lüminesans tekniklerini kullanarak renk merkezlerini çalışmak, termolüminesans olgusuna ait bilgiyi geliştirebilir [8].

Bu nedenle aşağıda kristallerdeki radyasyon hasarıyla ilgili olaylar hakkında kısa bir bilgi verilmiştir.



Şekil 2.5. Gerçek bir kristalde V, V_k, V₃ merkezleri.

Fotonlar, elektronlar, nötronlar, yüklü ve yüksüz parçacıklar kullanılarak yapılan radyasyon bombardımanı, örgüdeki kristal atomların normal pozisyonlarını değiştirmesi, boşluk ve intersitiyel meydana getirmesi gibi yer değiştirmeler ile kusur yaratabilirler. Üretilen kusurların sayısı radyasyonun akısı ve ışınlama zamanıyla orantılıdır. Bununla birlikte uzun bir ışınlama süresinde, boşluk-intersitiyel yeniden birleşmelerinin olasılığı arttığı için üretilen kusurların sayısı da yavaş yavaş azalacaktır.

lşınlama, iyonizasyon hasarı olarak adlandırılan bir süreçte negatif iyon boşlukları da üretebilir. Bu mekanizma iyonize elektron ve deşiklerin yeniden birleşmesiyle ilişkilidir. Yeniden birleşme süresince bağlı bir elektron-deşik çifti (eksiton), negatif bir örgü iyonu üzerine tuzaklanabilir. Yeniden birleşme süresince salınan enerji, boşluk ve intersitiyel atomları meydana getiren çarpışmaları üreten negatif iyona aktarılır. Tüm bunlar F merkezleri ve intersitiyel üretimi ile sonuçlanır.

Daha önce de belirtildiği gibi ışınlamadan önce kristal zaten, boşluk, iki boşluk, intersitiyel atom ve iyon, intersitiyel ve/veya yerine geçen safsızlıklar v.b. gibi birçok farklı çeşit kusura sahiptir. Bunlar elektronlar ve deşikler için tuzak olarak davranabilirler. Işınlama süresince, iyonizasyon ile meydana gelen elektronlar ve deşikler kusurlar üzerinde

tuzaklanabilir veya elektronlar, tuzaklanmış deşikler ile yeniden birleşebilir veya tersi olabilir. Yeniden birleşme olasılığı tuzaklanma olasılığından çok daha büyük olduğu için ışınlamanın sonunda yüklerin çok küçük bir yüzdesi tuzaklanmış olarak kalır.

Sadece bir çeşit yüklenmiş tuzağın üretimi aşağıdaki ifade ile tanımlanabilir:

$$\frac{dn}{dt} = \Phi f(N_0 + kt - n) \tag{2.2}$$

Burada

1

dn/dt, üretilen yüklü tuzakların hızı,

 N_o , ışınlamadan önce kristalde zaten bulunan boş tuzak konsantrasyonu,

k ışınlama süresince birim zamanda üretilen kusur sayısı,

kt, t zamanı süresince ışınlamayla üretilen kusurların sayısı,

n, t zamanında yüklü tuzakların konsantrasyonu,

 Φ ,doz hızı,

f, yüklü tuzaklara dönüşen boş tuzakların kesri.

t=0 anında *n*=0 olarak düşünüldüğünde önceki denklemin çözümü aşağıdaki şekilde verilir.

$$n = \left(N_0 \frac{k}{f\Phi}\right) \left[1 - \exp(-f\Phi t)\right] + kt$$
(2.3)

Bu denklem, doyuma giden bir üstel bileşen ve bir doğrusal bileşen olmak üzere iki bileşen içerir.

lşınlama süresince, ışınlamadan önce bulunan belirli bir sayıdaki boş tuzakların, *N*_o, ışınlamanın kendisi tarafından ortadan kaldırabileceği ve bu yüzden de artan ve azalan kusur konsantrasyonunun, artan ve azalan doyuma giden bileşenlerin bir toplamı olarak gözlenebileceği gerçeği dikkate alınarak Denklem (2.3) düzenlenebilir.

lşınlama sona erdikten sonra üretilen yüklü tuzaklar farklı mekanizmalar takip edebilirler. Bunlardan birisi, termolüminesans denklemi ile tanımlandığı gibi termal bozunmadır. Bazen renk merkezlerinde bir artış da gözlenmektedir. Bu durum, üzerinde çalışılan malzeme iki veya daha fazla çeşit tuzak içerdiğinde mümkündür. Bir merkezin tüketilmesi diğerini büyütür: Eğer yükler bir çeşit tuzaktan salınırsa, bunların bir kısmı veya tamamı bir başka tuzak tarafından yeniden tuzaklanabilir.

2.2. Lüminesans

Lüminesans, fosfor adı verilen bazı katı maddelerden ışık yayımlanması olayıdır. Kara cisim radyasyonunu içermeyen bu yayımlanma, katı elektronik sistemin iyonlaştırıcı radyasyon, görünür, kızılötesi (IR) veya mor ötesi (UV) ışık gibi önceki uyarılmalarının vasıtasıyla, katı içinde depolanmış enerjinin salıverilmesidir. Yayımlanan ışık, gelen radyasyonun dalga boyundan daha uzun bir dalga boyuna sahiptir (Stoke kanunu). Ayrıca yayımlanan ışığın dalga boyu lüminesans malzemenin karakteristik bir özelliğidir. Radyasyon enerjisini depo etme özelliği lüminesans dozimetrede önemlidir ve genellikle aktivatörlerin (safsızlık atomları ve yapısal kusurlar gibi) bulunmasıyla ilişkilidir [1].

Çizelge 2.1.'de lüminesans olaylarının ve uyarılma metotlarının çeşitlerinden bazıları listelenmiştir.

LÜMİNESANS OLAYI	UYARILMA METOTLARI
Biyolüminesans	Biyokimyasal reaksiyon enerjisi
Katodolüminesans	Katot ışınları
Kemilüminesans	Kimyasal reaksiyon enerjisi
Elektrolüminesans	Elektrik alan
Fotolüminesans	Optiksel fotonlar (mor ötesi, görünür ve kızılötesi ışık)
Piezolüminesans	Basınç (10 ton m ⁻²)
Tribolüminesans	Sürtünme
Radyolüminesans	İyonize radyasyon
Sonolüminesans	Ses dalgaları
Floresans	
Fosforesans	İyonize radyasyon, morötesi ve görünür ışık.
Termolüminesans	

Çizelge 2.1. Lüminesans olaylarının ve uyarılma metotlarının çeşitleri.

Son üç olay ışık yayımının meydana geldiği zamanı açısından değerlendirilerek birbirine bağlanmıştır.

Floresans, radyasyonun soğurulmasının ardından ışığın 10⁻⁸ sn'den daha kısa bir zaman içinde yayımlandığı lüminesans olayı olarak tanımlanır. Bunun anlamı floresans sadece uyarılma devam ettiği sürece devam eden bir lüminesans sürecidir. Floresansın bozunum zamanı sıcaklıktan bağımsızdır ve bir E_e uyarılmış seviyesinden E_o taban seviyesine geçiş olasılığı ile tanımlanabilir. Bu süreç Şekil 2.6'da görülmektedir.



Şekil 2.6. Floresans olayı

Fosferasans ise 10^{-8} saniyeden daha uzun bir zamanda meydana gelir ve uyarılma kaynağının ortadan kalkmasının ardından da gözlenebilir. Fosferesansın bozunum zamanı sıcaklığa bağımlıdır. Şekil 2.7'de verildiği gibi, bir elektron E_o taban seviyesinden bir yarı kararlı (elektron tuzağı) seviyeye uyarıldığında (iyonize radyasyon ile), bu düzey seçim kurallarıyla tamamen veya kısmen yasaklı olduğu için, foton yayımlaması ile taban seviyesine (örneğin E_m den E_o a geçiş) dönemez.



Şekil 2.7. Fosforesans olayı

Eğer sistemin E_e - E_m enerjisini soğurulmasıyla ulaşabileceği daha yüksek bir uyarılmış seviyenin (E_e) var olduğu ve bu E_e - E_m ışınımlı geçişinin izinli olduğu kabul edilirse, bu durumda bu E_e - E_m enerjisi oda sıcaklığında termal yollardan sağlanabilir. Böyle bir durumda uyartım kaynağı ortadan kaldırılsa bile sürekli bir lüminesans yayımı (fosforesans) gözlemlenebilir. Bu

yayımlanma, yarı kararlı düzeyde herhangi bir yük kalmayıncaya kadar azalan bir şiddet ile devam edecektir. 10⁻⁴ saniye gibi kısa zaman gecikmeleri için, floresans ve fosforesans arasında ayrım yapmak zordur. Bunun tek yolu olayın sıcaklığa bağlı olup olmadığının kontrol edilmesidir. Sistem daha yüksek bir sıcaklığa yükselirse E_m den E_e seviyesine geçişin hızında bir artma olacak ve bunun sonucunda ise fosforesans daha parlak olacak ve bozunma zamanı yarı kararlı düzeyin daha hızlı boşalması nedeniyle kısalacaktır. Bu durumda fosforesansa, termolüminesans adı verilir. Uyarılma ve ışık yayımı arasındaki gecikme dakikalardan 10¹⁰ yıla kadar uzanabilir [1].

2.3. Termolüminesans

Termolüminesans veya uyarılmanın ardından sıcaklık-uyartımlı ışık yayımı, aslında daha öncede söylediğimiz gibi sürekli artan sıcaklık koşulunda gözlenen fosforesans olayıdır. Alışagelmiş termolüminesans deneylerinde, sistem fosforesansın düşük olduğu sıcaklıkta ışınlanır ve daha sonra fosforesansın parlak olduğu, tüm yüklerin yarı kararlı düzeylerden termal olarak uyarıldığı ve lüminesansın tamamen gözden kaybolduğu bir sıcaklık seviyesine kadar ısıtılır.

Eğer ışık şiddeti sıcaklığın (veya zamanın) bir fonksiyonu olarak çizilirse, ortaya çıkan grafiğe ışıma eğrisi adı verilir.

Şekil 2.8 ışıma eğrileri ışıma-pikleri adı verilen bir veya daha fazla maksimuma sahip olabilirler. Bu ışıma pikleri çeşitli enerji seviyesindeki tuzakların fonksiyonlarıdır.



Şekil 2.8. Işıma eğrisi örneği. Her bir pik iyi tanımlanmış bir tuzağa karşılık gelir.

Etkin termolüminesans fosforları, daha önce bahsedilen yapısal kusur ve safsızlıkların meydana getirdiği yüksek elektron ve deşik tuzak konsantrasyonuna sahiptir.

Aşağıdaki şekillerde kristal yapısındaki kusurlar aracılığı ile termolüminesans şematik olarak gösterilmiştir (Şekil 2.9).

2.3.1. İlk Basamak: ışınlama

lşınlama serbest elektron ve deşikler üretir. Işınlamanın ardından elektronlar katı içinde kısa bir süre için iletkenlik bandında seyahat etmekte özgürdür. Bu elektronlar ya Şekil 2.9 da görüldüğü gibi kusurlarda tuzaklanır veya deşikler ile radyatif (floresans) veya radyatif olmayan (fosforesans) şekilde yeniden birleşerek iletkenlik bandına geri dönerler (Şekil 2.9b). Ya da bu elektronlar, ışınlama sonucunda deşiklerle zaten aktive olmuş lüminesans merkezleri (genellikle çok derin tuzaklar) tarafından yakalanabilirler ve ışık yayımıyla merkezi yeniden aktive edebilirler (Şekil 2.9c): bu son işlem radyolüminesans olarak isimlendirilir. Aynı işlem deşikler için de tartışılabilir [5].



Şekil 2.9. Kristal yapıda ışınlama ile oluşan işlemler.

2.3.2. İkinci basamak: ısıtma

Şekil 2.10 da görüldüğü gibi yarı kararlı düzeyde tuzaklanmış elektronlar, tuzaklardan iletkenlik bandına kaçmak için yeterli enerjiyi alırlar. Bu durumda ya kusurlarda yeniden tuzaklanabilirler (a) ya da iletkenlik bandına geri dönebilir ve deşikler ile radyatif veya radyatif olmayan bir şekilde yeniden birleşebilirler (b), ya da deşik ile aktivite olmuş lüminesans merkezi ile radyatif olarak yeniden birleşebilirler (c). Son işlemde yayımlanan ışık termolüminesanstır. Deşikler için de aynı süreçler geçerlidir.



Şekil 2.10. Işınlanmış bir kristalde ısıtmayla oluşan işlemler.

Elektronların iletkenlik bandından değerlik bandına doğrudan radyatif geçişleri, bu enerji boşluğuna eşit veya daha büyük bir kuantum enerjisine sahip radyasyonun kaynağını oluşturur ve bunun sonucunda yüksek olasılıkla kendi kendine soğurma olayı meydana gelir.

2.4. Termolüminesansın Matematiksel Yaklaşımı

Işığın termolüminesans yayımı hakkındaki matematiksel analizinin amacı, bununla ilgili olay hakkında yeterli bir bilgiye ulaşmaktır. Teorik bir bakış açısından TL, katının bant yapısına ve özellikle de safsızlık ve örgü düzensizliklerine doğrudan bağlıdır. Kristal içindeki yük taşıyıcıları zıt işaretli iyonlar etkisiyle orijinal bölgelerinden serbest yük taşıyıcıları ile etkileşebilmek ve onları tuzaklayabilmek için uzaklaşırlar ve arkalarında boşluk hallerini bırakırlar. Bu şekilde meydana gelen yapılar merkez olarak tanımlanabilir. Bundan farklı olarak, iyonlar intersitiyel pozisyonlara yayılabilir ve ideal örgü geometrisini yerel olarak bozabilir. Bir diğer merkez ise safsızlıkların meydana getirdiği oluşumlardır. Safsızlık iyonlarının boyutları ve değerlikleri genellikle komşu iyonlardan farklı olduğu için örgü yapısını bozabilirler. Ayrıca dışsal kusurlar içsel kusurlar ile etkileşebilir ve sonuç olarak herhangi birini daha karmaşık yapılandırma içinde bir araya toplayabilir. Atomik bakış açısından kusur, etkileştiği yük taşıyıcılarının işareti, sayısı ve son olarak bulunduğu uyarılmış haller aracılığı ile tanımlanabilir. Böyle bir tanım her bir merkezin karakteristik bir enerjiye karşılık geldiğini ifade eder. Bu ifade, karakteristik enerjinin sağlanmasının tuzaklanmış yükleri serbest bırakacağı, bu şekilde merkezi yok edeceği ve yerel düzenin durumunu yeniden düzenleyeceği şeklinde tanımlanabilir [1].

Bu nedenle bant yapısını, yasak boşluk ile birbirinden ayrılmış değerlik ve iletkenlik bantlarından ve bu iletkenlik bandının altındaki farklı derinliklerde yasak boşluk içinde zıt işaretli serbest yük taşıyıcılarının tuzaklandığı bölgeler olarak gösterilen kusurlardan meydana gelen bir yapı olarak tarif etmek uygun olur. Yasaklanmış boşluğun haritalandırılması oldukça karmaşıktır. Bu nedenle deneysel TL yayımı çalışmaları, TL olayına ilişkin en anlamlı parametreler ile ilgili ayrıntılı bilgiyi elde etmek için tatmin edici bir araç sağlayabilir. Bu parametreler her bir bölge için, karakteristik enerji (E), geçiş frekansı ile ilişkili frekans faktörü (s) ve kapsadığı olayın kalitesini ifade eden bir kinetik mertebedir (b). Kinetik mertebe 1 ile 2 arasındadır. 1 değeri, yükün (elektronun) iletkenlik bandına yükselmesi ve ardından da deşik ile yeniden birleşmeye maruz kaldığı merkeze düşmesi durumuna karşılık gelir. 2 değeri ise, bu olayın olasılığının yeniden tuzaklanmayla aynı olduğu bir duruma uymaktadır. Ayrıca radyatif olmayan olayların (b=0) katkısının ve ara durumların da olması muhtemeldir.

Bu tanımlara dayanan matematiksel modeller, tüm durumları veren uygun diferansiyel denklem sistemlerini, yüklü taşıyıcı popülasyonunun gelişimini ve uygun deneysel veriler aracılığıyla kontrol etmek için oluşturulan analitik formları da içermektedir. Bu nedenle, matematiksel modellerin teori ve pratik arasında düzgün bir uzlaşma elde edilinceye kadar bu parametreleri uygun bir şekilde ayarlayacak şekilde olması gerekmektedir. Bu konuda en iyi araç, farklı deneysel koşullar altında örneğin ısıtıldığı sıcaklığın veya ısıtma zamanının bir fonksiyonu olarak TL yayımının gözlenmesi ve kaydedilmesidir. Sabit bir ısıtma hızı için, bu iki gözlem eşittir. Bu grafiğin şekli malzemenin fiziksel ve kimyasal özelliğine ve uygulanan işlem çeşidine bağlıdır. Bununla birlikte, bu grafik, genel denklemlerden beklenebildiği gibi tek -veya çoklu- bir pik yapısındadır. Burada bir pik ve bir elektronun tuzak seviyesi arasında bir benzerlik dikkat çekebilir. Bu, belirli sıcaklıkta verilen bir seviye için, sağlanan termal enerjinin miktarının ilgili tuzaklanmış yüklerin radyatif yeniden birleşme olaylarını verebildiği yerden iletkenlik bandına yükseltmesi için gerekli eşiğe nasıl ulaştığıyla açıklanır. Bu amaçla, pozitif yük taşıyıcılarını tuzaklayabilen diğer merkezler de olaya dahil edilirler ve bunlar yayımlanan ışığın kalitesiyle ilişkili olabilirler.

Tüm eğrinin toplamı olan tek pik için analitik form, pik pozisyonu, pikin sol ve sağ genişlikleri, bunların arasındaki oran, tüm pik genişliği, yüksekliği gibi bazı geometrik parametreleri aracılığıyla tamamen tanımlanabilir. Pik yüksekliği ısıtma hızına bağlıdır ve verilen deneysel koşullarda ısıtma hızının artmasıyla artar. Bu geometrik parametrelerin temel fiziksel parametrelere karşılık geldiği görülebilir. Matematiksel ifadeler, içerdiği denklemlerin uygun analitik oynamalarıyla değerlendirilebilir. Işıma-eğrisi grafiği yardımıyla elde edilen deneysel belirsizliklerin, onlarla ilişkili fiziksel hataların tahminine izin verdiğine ve bunlarla ilgili değerlendirmelerin en iyi uyan iyi tanımlanmış metotlar ile belirtilebildiğine de dikkat edilmelidir.

2.4.1. Fosforesans için matematiksel yaklaşım

Eğer ilk olarak fosforesans işlemini ele alınırsa, durum Şekil 2.11 deki gibi gösterilebilir. Burada İB=iletkenlik bandı, DB=değerlik bandı, E= termal aktivasyon enerjisi



Şekil 2.11. Fosforesans işlemi.

Şekilde E, tuzaklanmış bir yük taşıyıcısının serbest kalması için gerekli termal aktivasyon enerjisidir. Buna tuzak derinliği de denir. Birim zamanda tuzaklanmış bir elektronun tuzaktan kaçabilme olasılığı veya saniyedeki olasılık hızı:

$$p = s.\exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{2.4}$$

Şeklinde verilir. Burada

E= tuzak derinliği (eV)

k= Boltzman sabiti

T= mutlak sıcaklık (K)

s= frekans faktörü (s⁻¹) dür. Frekans faktörü tuzak bir potansiyel kuyu olarak düşünüldüğünde, elektronun tuzak içindeki çarpma sayısının frekansına bağlıdır. *s* 'nin en büyük değeri örgü titreşim frekansına, yani $10^{12}-10^{14}$ s⁻¹, karşılık gelir. *T* sıcaklığında yarı kararlı seviyedeki yük taşıyıcıların yaşam süresi τ ,

$$\tau = p^{-1} \tag{2.5}$$

şeklinde verilir [4].

Tuzaktan salınan hiçbir elektronun yeniden tuzaklanmadığı temel varsayımı, birinci dereceden kinetiğin genel görüşünü verir. (1) Eğer *n* malzeme içinde tuzaklanmış elektronların sayısı ise ve sıcaklık sabit tutulursa, bu durumda *n* aşağıdaki ifadeye göre zamanla azalır.

$$\frac{dn}{dt} = -p.n \tag{2.6}$$

Denk.(2.5)'i kullanır ve Denk.(2.6) nın integralini alırsak,

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n} = -\int_{t_0}^t s. \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dt$$
(2.7)

$$\ln n - \ln n_0 = -s.t.\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(2.8)

Olur ve buradan

$$n = n_0 \exp\left[-s.t.\exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]$$
(2.9)

Elde edilir. Burada n_o , $t_o=0$ anında tuzaklanmış elektronların sayısıdır.

2.4.2. Termolüminesansa nitel bir bakış

Termolüminesans olayının matematiksel davranışına derinlemesine girmeden önce, yeniden tuzaklanma işleminin nitel bir tanımının ve TL sinyalinin şeklinin nasıl belirlendiğinin anlaşılması gereklidir.

Isıtma süresince tuzaklanmış yüklerin serbest kalması, sıcaklığın bir fonksiyonu olan P kaçma olasılığı ile düzenlenir. Isıtma süresince sıcaklık artarken, P 'de artar ve yeterince yüksek sıcaklıkta, yani TL pikinin maksimum olduğu sıcaklıkta, bu olasılık bire eşittir. Bu sıcaklıkta tüm yükler, iletkenlik bandına doğru serbestçe göç etmek ve radyatif olarak yeniden birleşmek için yeterli termal enerjiyi zaten elde ettikleri için, tuzak tamamıyla boşalmış olacaktır.

P maksimum değerine kadar sıcaklıkla sürekli olarak artarken, birim zamanda serbest kalan taşıyıcı sayısı, *dn/dt*, aynı kalmaz. Bunun sebebi, tuzaklanmış yüklerin belirli bir miktarının

başlangıçta tuzaklanmış olması ve ısıtma süresince bu tuzaklanma olayının gelişiminin azalmasıdır. Kalan tuzaklanmış yüklerin sayısının *dn/dt*'ye herhangi ilave bir artış sağlayacak kadar yeterli olmadığı belirli bir sıcaklık vardır; bundan sonrada *dn/dt* azalmaya başlar. Sonuç olarak, sıcaklığın artmasıyla *dn/dt*'ye bir pik şekli verir: *dn/dt* düşük sıcaklıkta artar, tuzak karakteristiğiyle tanımlanan bir sıcaklık için maksimuma ulaşır ve son olarak da yüksek sıcaklar için tuzak tamamıyla boşaldığından sıfıra kadar azalır. İletkenlik bandındaki yük konsantrasyonun sabit olduğu hipotezine göre termal olarak aktive olmuş yükler, ışık şeklinde enerjilerini salarak hızla yeniden birleşme merkezlerine göç ederler. Isıtma süresince saptanan bu ışık da bir pik şeklindedir. Bu pikin şiddeti ve alanı tuzak içindeki tuzaklanmış yüklerin başlangıçtaki sayısına bağlıdır. Şekil 2.12 de yeniden tuzaklanma ve yeniden birleşme işlemlerinin bir taslağını vermektedir [8].



Şekil 2.12. Tuzaklanma ve yeniden birleşme işlemlerinin taslağı.

3. TERMOLÜMİNESANS KİNETİK PARAMETRELERİ

3.1. Basit Termolüminesans Modeli

Bir malzemenin ısıtıldığında ışık yayımlaması süreci Şekil 3.1'de görüldüğü gibi iki lokalize seviyeden, bir izole elektron tuzağı (T) ve bir yeniden birleşme merkezinden (RC), meydana gelen en basit olası model düşünülerek anlaşılabilir. Bu genellikle tek-tuzak-tekyeniden birleşme merkezi (OTOR) modeli olarak bilinir. N kristaldeki tuzak konsantrasyonunu (m⁻³), n(t) t anında kristaldeki dolu tuzak konsantrasyonu (m⁻³), ve nh(t) yeniden birleşme merkezindeki tuzaklanmış deşik konsantrasyonu temsil etmektedir



Şekil 3.1. Termolüminesans süreci için basit iki seviyeli model.

t=0 anında dolu tuzakların başlangıç konsantrasyonu n₀ ile ifade edilir. Tipik bir termolüminesans deneyinde örnek oda sıcaklığından genellikle 500 °C civarında yüksek sıcaklığa kadar β = dT/dt lineer ısıtma hızı ile ısıtılır. Örneğin sıcaklığı artarken, T'deki tuzaklanmış elektronlar Şekil 3.1 deki 1 geçişi ile gösterildiği gibi termal olarak iletkenlik bandına doğru hareket ederler. Bu iletkenlik bandı elektronları ya yeniden birleşme merkezindeki (RC) deşikler ile birleşir (2 geçişi) ya da tekrar elektron tuzağı (T) ile yeniden tuzaklanabilirler (3 geçişi). Yayımlanan ışığın şiddeti yeniden birleşme merkezindeki deşik ve elektronların hızına eşittir ve

$$I(t) = -\frac{dn_h}{dt} \tag{3.1}$$

ile verilir.

Şekil 3.2 T sıcaklığındaki örnek için, yayımlanan ışığın I(t) artışına karşılık tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonundaki n_h azalmayı ifade eden sistematik bir diyagramı göstermektedir [4].



Şekil 3.2. Zamanın fonksiyonu olarak sıcaklık değişimi T(t), termolüminesans şiddeti I(t), ve yeniden birleşme merkezindeki (RC) tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonu n_h(t) dur. Deney süresince β lineer ısıtma hızı kullanılmıştır.

3.2. Birinci, İkinci ve Genel Derece Termolüminesans Kinetikleri

Termolüminesans sürecini ifade eden denklemler, birinci, ikinci ve genel dereceler için sırasıyla Randall–Wilkins, Garlick–Gibson and May–Partridge tarafından verilmiştir [1.4.9].

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = nse^{-E/kT}$$
(3.2)

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = \frac{n^2}{N} s e^{-E/kT}$$
(3.3)

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^b s' e^{-E/kT}$$
(3.4)

Burada

E = aktivasyon enerjisi veya tuzak derinliği (eV)

 $k = Boltzmann sabiti (eV K^{-1})$

t = zaman(s)

T = mutlak sıcaklık (K) tır.

Tipik bir deneysel durumda, örneği ısıtmak için β lineer ısıtma hızı kullanılır. Bu ısıtma $T = T_0 + \beta t$ şeklinde sıcaklık değişimine neden olur. Burada β =lineer ısıtma hızı (K s⁻¹) dır.

 β lineer ısıtma hızı varsayılarak (3.2) – (3.4) denklemlerinin integrali alınırsa aşağıdaki denklemler elde edilir.

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]$$
(3.5)

$$I(T) = n_0^2 \frac{s}{N} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[1 + -\frac{n_0 s}{\beta N} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-2}$$
(3.6)

$$I(T) = s'' n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[1 + -\frac{s''(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.7)

T₀ = t = 0 anındaki sıcaklık (K)

s = "ön üstel frekans faktörü" veya kaçma olasılığı frekansı" (s⁻¹) olarak adlandırılan elektron tuzağını karakterize eden bir sabit. Bu sabit örgü fononları ile elektronların çarpışma frekansı ile orantılıdır. s'nin tipik maksimum değeri örgü titreşim frekansının değerlerine karşılık gelir, yani $10^{12} - 10^{14}$ s⁻¹.

N = toplam tuzak konsantrasyonu (m^{-3})

n = t anındaki tuzaklanmış elektronların konsantrasyonu (m⁻³)

b =kinetik derece, 1 ile 2 arasında değişen bir parametre

s' = genel derece kinetikleri için etkin ön üstel faktör olarak adlandırılır $(m^{3(b-1)}s^{-1})$.

n₀ = tuzaklanmış elektronların t=0 anındaki sayısı (m⁻³)

 $s'' = s'n_0^{(b-1)}$ = genel derece kinetikleri için etkin ön üstel faktör olarak davranan deneysel bir parametre (s⁻¹).

(3.2) ve (3.3) denklemleri uygun bazı basitleştirmeler kullanılarak basit termolüminesans modellerinden türetilmesine rağmen, (3.4) genel-derece denklemi tamamen deneyseldir ve gerçek fiziksel modellerle herhangi bir ilişkiye sahip değildir.

Şekil 3.3 birinci ve ikinci derece kinetikler için TL ışıma piklerinin kıyaslanmasını göstermektedir. İkinci derece kinetik örneğinde ışık yayımlanması tuzaktaki elektronların yeniden tuzaklanmasıyla gecikir; bu gecikme genellikle TL ışıma eğrisinin azalan kısmında görülür [4].



Şekil 3.3. Birinci ve ikinci derece kinetikler için TL ışıma piklerinin sistematik kıyaslanması. Buradaki parametreler, E = 1 eV, $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $n_0 = N = 10^3 \text{ m}^{-3}$.



Şekil 3.4. Farklı başlangıç konsantrasyonları n₀ için, Denklem (3.5) ve (3.6) ile hesaplanan birinci ve ikinci derece TL ışıma pikleri. Buradaki parametreler E = 1 eV, $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $N = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ ve (a) n₀ = 1, 0.5, 0.1 × 10¹⁰ m⁻³ (b) n₀/N = 1, 0.5, 0.1.

Şekil 3.4 tuzaklanmış elektronların farklı başlangıç konsantrasyonları n₀ için, Denklem (3.5) ve (3.6) ile hesaplanan birinci ve ikinci derece TL ışıma piklerini göstermektedir [4]. Burada ikinci derece kinetikler için TL ışıma piklerinin maksimum sıcaklığı T_M, n₀ başlangıç konsantrasyonu azalırken yüksek sıcaklıklara doğru kaydığı, birinci derece kinetikleri için T_M'nin n₀ 'a bağlı olmadığı görülmektedir.



Şekil 3.5. (a) E= 1.0 eV ve farklı s frekans faktörleri için (b) s= 10¹² s⁻¹ ve farklı aktivasyon enerjileri için, denklem (3.5) kullanılarak hesaplanan birinci derece TL ışıma pikleri.

Şekil 3.5 'de (a) E = 1.0 eV ve farklı s frekans faktörleri için (b) s = 10^{12} s^{-1} ve farklı aktivasyon enerjileri için, Denklem (3.5) kullanılarak hesaplanan birinci derece TL ışıma pikleri görülmektedir [4]. E enerjisi artarken veya s değeri azalırken, TL ışıma eğrisi yüksek sıcaklıklara doğru kaymaktadır.



Şekil 3.6. b kinetik derece parametresinin farklı değerleri için denklem (3.10) kullanılarak hesaplanan genel derece TL ışıma pikleri. Burada kullanılan parametreler $E = 1 \text{ eV}, s = 10^{12} \text{ s}^{-1}, \beta = 1 \text{ K s}^{-1}, \text{ ve } n_0 = \text{N} = 1$ şeklindedir.

Şekil 3.6 b kinetik derece parametresinin farklı değerleri b=1,5-1,6 için denklem (3.7) kullanılarak hesaplanan genel derece TL ışıma piklerini göstermektedir. Burada kullanılan parametreler E = 1 eV, $s = 10^{12} \text{ s}^{-1}$, $\beta = 1 \text{ K s}^{-1}$, ve $n_0 = \text{N} = 1$ şeklindedir [4].

TL pikinin analizi başlıca üç parametre ile yapılabilir. Her bir pik aktivasyon enerjisi E, frekans faktörü s ve kinetik derece b gibi TL kinetik parametrelerini belirlemek için çeşitli teknikler kullanılarak analiz edilebilir. Deneysel şartlarda ilgilenilen nicelikler, maksimum TL şiddetinin (I_M) meydana geldiği T_M sıcaklığı ve TL ışıma eğrisinin genişliğidir. Ayrıca, TL ışıma pikinin büküm noktalarının bilinmesi de yararlı olabilir. Bu büküm noktaları verilerin ikinci türevinin sıfıra eşitlenmesiyle hesaplanabilir.

3.2.1. Birinci Derece Kinetik Işıma Pikleri için Fonksiyon

Birinci derece ışıma piklerini ifade eden Denklem (3.5) gerekli düzenlemeler yapılır ve integralleri alınırsa:

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-\frac{skT^2}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left(1 - \frac{2kT}{E}\right)\right]$$
(3.8)

Denklemi elde edilir. Denklem (3.5) deki ifadelerin türevlerinin sıfıra eşitlenmesiyle

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(3.9)

yada

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(3.10)

Bu denklem ile Denklem (3.8) yerleştirilirse

$$I(T) = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \exp\left[\frac{E}{kT_M} \left(\frac{T - T_M}{T_M}\right)\right]$$

$$\exp\left\{-\frac{T^2}{T_M^2} \exp\left[\frac{E}{kT_M} \left(\frac{T - T_M}{T_M}\right)\right](1 - \Delta)\right\}$$
(3.11)

olur. Burada $\Delta = 2kT/E$ dir. Maksimum pikte I_M şiddeti Denklem (3.8) de Denklem (3.9) yerleştirilerek bulunabilir [8].

$$I_{M} = n_{0} \frac{\beta E}{k T_{M}^{2}} \exp[-(1 - \Delta_{M})]$$
(3.12)

olur. Burada $\Delta_{_M} = 2kT_{_M}$ / E dir. Denklem (3.12) düzenlenirse

$$n_0 \frac{\beta E}{k T_M^2} = I_M \exp(1 - \Delta_M)$$
(3.13)

Denklem (3.13)ü Denklem (3.11) de yerleştirirsek:

$$I(T) = I_{M} \exp(1 - \Delta_{M}) \exp\left[\frac{E}{kT_{M}} \left(\frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right)\right]$$

$$\exp\left\{-\frac{T^{2}}{T_{M}^{2}} \exp\left[\frac{E}{kT_{M}} \left(\frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right)\right] (1 - \Delta)\right\}$$
(3.14)

Bu denklemde düzenlenirse birinci derece ışıma eğrileri için kullanılacak denklem ortaya çıkar.

$$I(T) = I_{M} \exp\left[1 + \frac{E}{kT_{M}} \frac{T - T_{M}}{T_{M}} - \frac{T^{2}}{{T_{M}}^{2}} \exp\left[\frac{E}{kT_{M}} \frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right] (1 - \Delta) - \Delta_{M}\right]$$
(3.15)

3.2.2. İkinci Derece Kinetik Işıma Pikleri için Fonksiyon

İkinci derece ışıma piklerini ifade eden Denklem (3.6) gerekli düzenlemeler yapılır ve integralleri alınırsa:

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-\frac{skT^2}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)(1-\Delta) + 1\right]^{-2}$$
(3.16)

Denklemi elde edilir. Denklem (3.5) deki ifadelerinin türevlerinin sıfıra eşitlenmesiyle

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = (1 + \Delta_M) s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(3.17)

yada

$$s = \frac{\beta E}{k{T_M}^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(3.18)

ve

$$s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) = \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{1 + \Delta_M}$$
(3.19)

Denklem (3.19) Denklem (3.16) da yerleştirilirse:

$$I(T) = n_0 \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} \exp\left[\frac{E}{kT}\left(\frac{T - T_M}{T}\right)\right]$$

$$\left\{\frac{T^2}{T_M^2} \frac{1 - \Delta}{1 + \Delta_M} \exp\left[\frac{E}{kT}\left(\frac{T - T_M}{T}\right)\right] + 1\right\}^{-2}$$
(3.20)
İkinci Derece Kinetik Denklem (3.16) da maksimum pik durumu I_M için

$$I_M = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \left[\frac{skT_M^2}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) (1 - \Delta_M) + 1\right]^{-2}$$
(3.21)

Denklem (3.22) üzerine Denklem (3.20) yerleştirilirse:

$$I_{M} = n_{0} \frac{\beta E}{k T_{M}^{2}} \frac{1}{1 + \Delta_{M}} \left(\frac{2}{1 + \Delta_{M}}\right)^{-2}$$
(3.22)

$$n_0 \frac{\beta E}{k T_M^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} = I_M \left(\frac{2}{1 + \Delta_M}\right)^2$$
(3.23)

Denklem (3.23) ü Denklem(3.20) yerleştirirsek İkinci derece ışıma eğrisi analizinde kullanılacak son şekle ulaşmış oluruz.

$$I(T) = 4I_M \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right)$$

$$\left[\frac{T^2}{T_M^2} (1 - \Delta) \exp\left[\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right] + 1 + \Delta_M\right]^{-2}$$
(3.24)

3.2.3. Genel Derece Kinetik Işıma Pikleri için Fonksiyon

Genel derece ışıma piklerini ifade eden Denklem (3.6) gerekli düzenlemeler yapılır ve integralleri alınırsa:

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

$$\exp\left[-\frac{(b-1)skT^2}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)(1-\Delta) + 1\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.25)

Maksimum şiddet I_M için

$$I_{M} = n_{0}s \exp\left(-\frac{E}{kT_{M}}\right)$$

$$\exp\left[-\frac{(b-1)skT_{M}^{2}}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)(1-\Delta_{M}) + 1\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.26)

Maksimum durum için

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = Z_M s \left(-\frac{E}{kT_M^2} \right)$$
(3.27)

$$Z_{M} = 1 + (b - 1)\Delta_{M}$$
(3.28)

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{Z_M} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(3.29)

ve

$$s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) = \frac{\beta E}{kT_M^2} \frac{1}{Z_M}$$
(3.30)

Denklem (3.29) Denklem (3.25) da yerleştirilirse:

$$I(T) = n_0 \frac{\beta E}{k T_M^2} \frac{1}{Z_M} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right) \left[\frac{b - 1}{Z_M} \frac{T^2}{T_M^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right) (1 - \Delta) + 1\right]^{-\frac{b}{b - 1}}$$
(3.31)

Denklem (3.30) Denklem (3.26) da yerleştirilirse:

$$I_{M} = n_{0} \frac{\beta E}{k T_{M}^{2}} \frac{1}{Z_{M}}$$

$$\left(\frac{(b-1)k T_{M}^{2}}{\beta E} \frac{\beta E}{k T_{M}^{2}} \frac{1}{Z_{M}} (1-\Delta_{M}) + 1\right)^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.32)

Denklemler düzenlendikten sonra

$$I_{M} = n_{0} \frac{\beta E}{k T_{M}^{2}} \frac{1}{Z_{M}} \left(\frac{b}{Z_{M}}\right)^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.33)
$$n_{0} \frac{\beta E}{k T_{M}^{2}} \frac{1}{Z_{M}} = I_{M} \left(\frac{b}{Z_{M}}\right)^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.34)

Denklem (3.34) Denklem (3.31) de yerleştirilirse:

$$I(T) = I_M \left(\frac{b}{Z_M}\right)^{-\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right)$$

$$\left[\frac{b-1}{Z_M} (1 - \Delta) \frac{T^2}{T_M^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right) + 1\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.35)

olur. Bu denklem düzenlenirse genel derece kinetik ışıma pikleri için ifade

$$I(T) = I_{M}(b)^{-\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right)$$

$$\left[(b-1)(1-\Delta)\frac{T^{2}}{T_{M}^{2}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right) + Z_{M}\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$
(3.36)

Şeklini alır. Böylece birinci, ikinci ve genel derece kinetikler için denklemler ve frekans faktörleri için ifadeler aşağıda gösterildiği gibi son şeklini almış olur.

Birinci derece Kinetikler için;

$$I(T) = I_{M} \exp\left[1 + \frac{E}{kT_{M}} \frac{T - T_{M}}{T_{M}} - \frac{T^{2}}{{T_{M}}^{2}} \exp\left[\frac{E}{kT_{M}} \frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right] (1 - \Delta) - \Delta_{M}\right]$$
(3.37)

$$s = \frac{\beta E}{kT_M^2} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(3.38)

İkinci Derece Kinetikler için

$$I(T) = 4I_M \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right)$$
$$\left[\frac{T^2}{T_M^2} (1 - \Delta) \exp\left[\frac{E}{kT} \frac{T - T_M}{T_M}\right] + 1 + \Delta_M\right]^{-2}$$
(3.39)

$$s = \frac{\beta E}{k{T_M}^2} \frac{1}{1 + \Delta_M} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(3.40)

Genel Derece Kinetikler için

$$I(T) = I_{M}(b)^{-\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right)$$

$$\left[(b - 1)(1 - \Delta)\frac{T^{2}}{T_{M}^{2}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_{M}}{T_{M}}\right) + Z_{M}\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$

$$s = \frac{\beta E}{kT_{M}^{2}} \frac{1}{Z_{M}} \exp\left(-\frac{E}{kT_{M}}\right)$$
(3.42)

Kullanılacaktır. Burada

$$\Delta_{_M}=2kT_{_M}$$
 / E , $\Delta_{_M}=2kT_{_M}$ / $E~$ ve $~Z_{_M}=1+(b-1)\Delta_{_M}$ değerlerini almaktadır.

Burada T_M , maksimum TL şiddeti I_M deki sıcaklığa karşılık gelir.

4. ANALİZ METODLARI

4.1. Başlangıç Artış metodu

Başlangıç artış metodu analizi ilk defa Garlick and Gibson tarafından önerilmiştir [1]. TL ışıma eğrisinin düşük sıcaklık kısmında, n(T)'nin sıcaklığa (T) bağımlılığının ihmal edilebilmesi için, TL ışıma eğrisinin bu sıcaklık aralığında tuzaklanmış elektronların miktarının yaklaşık olarak sabit olduğu kabul edilmelidir. Aslında, sıcaklık artarken ikinci üstel denklem (3.5)'teki ilk terim artar ikinci terim ise bir sabite yaklaşır. Bu ifade TL şiddetinin maksimum değerinin yaklaşık %15'inden daha küçük bir TL şiddetine (I_c) karşılık gelen T_c kesme sıcaklığının üzerindeki sıcaklıklar için doğru kalır. Sıcaklıkta daha fazla artış (T>T_c) denklem (3.5)'teki ikinci terimi azaltır; Denklem (3.5)'teki iki terim arasındaki ilişki TL ışıma eğrisinin pik şeklini meydana getirir. n(T)'nin sabit olduğu varsayımını kullanarak termolüminesans yayımı aşağıdaki şekilde tanımlanabilir.

$$I(T)\alpha \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{4.1}$$

Şekil 4.1 bir TL ışıma pikinin başlangıç artış kısmını göstermektedir. Başlangıç artış metodunu uygulandığında, In (I)'ya karşılık 1/kT'nin grafiği çizilir ve düz bir doğru elde edilir. Bu doğrunun eğiminden frekans faktörü s hakkında herhangi bir şey bilmeden aktivasyon enerjisi E belirlenir. Başlangıç artış çiziminin bir örneği Şekil 4.2'de verilmiştir [4].



Şekil 4.1. Termolüminesans ışıma eğrisinin başlangıç artış kısmı.



Şekil 4.2. Şekil 4.1 verilen ışıma eğrisinin başlangıç artış kısmına bu tekniğin uygulanması.

Alternatif bir metot Şekil 4.3 te gösterilen Ilich tarafından önerilen grafiksel metottur. Bu metotta I(T)'nin aşağıdaki şekilde verildiği varsayılarak, izole bir TL ışıma pikinin üzerindeki I_c noktası kullanılır, N = (T_c , I_c) noktasına bir teğet çizilir ve eğimi hesaplanır [4].

$$I(T) = c \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(4.2)

Bu ifadenin türevi aşağıdaki gibidir.

$$\frac{dI}{dT} = c \frac{E}{kT^2} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = I \frac{E}{kT^2}$$
(4.3)

Şekil 4.3 teki N noktasındaki teğetin eğimi ise denklem (4.3)'te $T=T_c$ yerine konularak bulunur.

$$\left. \frac{dI}{dT} \right|_{T=T_c} = Ic \frac{E}{kT^2}$$
(4.4)



Şekil 4.3. Ilich tarafından önerilen grafiksel metot

Grafiğin x ekseninde kestiği $M \equiv (T_0, 0)$ noktasını bulmak için teğetin doğru denklemi kullanılır.

$$I - Ic = \frac{I_{c}E}{kT_{c}^{2}}(T_{-}T_{c})$$

$$I = 0$$
(4.5)

Bu sistemin çözümü E'yi verir.

$$E = k \frac{Tc^2}{(T_c - T_0)}$$
(4.6)

Bu metotta sonuçların güvenilirliğini geliştirmek için çok sayıda (T_c,I_c) noktası seçilerek istatiksel olarak işlenebilir. Aramu ve ark. başlangıç artış metodunu frekans faktörü s'nin T sıcaklığına bağlı olduğu bir örnek için uygulamışlardır [4]. Bu örnekte TL şiddeti

$$I \,\alpha T^{\,\alpha} c \exp\!\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{4.7}$$

şeklinde ifade edilir. Burada α =sabit.

Yukarıdaki ifadeden aşağıdaki sonuç elde edilir.

$$\frac{d\ln(I)}{dT} = \frac{\alpha}{T} + \frac{E}{kT^2}$$
(4.8)

Bu denklem frekans faktörü s'nin sıcaklığa bağlı olmadığı durumda elde edilen denklemle kıyaslanabilir.

$$\frac{d\ln(I)}{dT} = \frac{E_{IR}}{kT^2} \tag{4.9}$$

Burada E_{IR} başlangıç artış metoduyla elde dilen aktivasyon enerjisidir. Denklem (4.8) ve (4.9) birbiriyle kıyaslanarak aktivasyon enerjisi aşağıdaki şekilde elde edilir.

$$E = E_{IR} - \alpha kT \tag{4.10}$$

Denklem (4.10) frekans faktörü s'nin T sıcaklığına bağlı olduğu durum için küçük bir yüzde ile doğru E değerini verir. Eğer üst üste binen piklerin bulunması durumunda TL ışıma eğrisinin çözünürlüğü düşük ise başlangıç artış metodu uygulanamamaktadır. Bu gibi bir durum Şekil 4.4 'te gösterilmiştir. Burada başlangıç artış metodu uygulanmadan önce TL ışıma eğrisini meydana getiren bileşenlerin ayrılması gerekmektedir.

Literatürde bileşik TL ışıma eğrilerine başlangıç artış metodunu uygulamak için birçok yöntem önerilmiştir.

Birinci metot termal temizleme tekniğini içerir. Birinci pikin maksimumunun üzerinde bir sıcaklığa kadar ısıtılan örnek daha sonra lüminesansın ihmal edildiği bir sıcaklık değerine kadar soğutulur. Bu işlemden sonra bir sonraki pikin maksimumunun üzerinde bir sıcaklığa kadar tekrar ısıtılır ve tekrar soğutulur. İşlem bütün pikler için tekrar edilir. Bu metotla her pik için temiz başlangıç artış eğrileri oluşturur. Pratikte, TL piklerinin termal olarak temizlenmesi tam anlamıyla yapılamaz ve E değerleri çok doğru olmayabilir [4].



Şekil 4.4. Başlangıç artış metodunun başarısız olduğu üst üste binen TL ışıma pikleri örneği.

Başlangıç artış metodu kullanılarak analiz edilebilecek bir seri I(T) grafiği oluşturmak için, termal temizleme tekniği ve başlangıç artış metodunun analizi her defasında yavaşça daha yüksek T_{Stop} sıcaklığı uygulanarak birçok ısıtma ve soğutma devirleriyle daha sistematik bir şekilde uygulanabilir. E aktivasyon enerjisi T_{Stop}'un bir fonksiyonu olarak çizilir, bu işlemle "E-T_{Stop} grafiği" olarak tanımlanan genellikle bir "merdiven" tipi grafik elde edilir. Bu metot sıcaklıkla yeteri derecede ayrılmış TL piklerine en iyi şekilde uygulanabilir.

Alternatif bir metot McKeever tarafından ileri sürülmüştür: Işınlanmış bir örnek ilk pikin düşük sıcaklık kısmı üzerindeki bir noktaya karşılık gelen bir T_{Stop} sıcaklığına kadar lineer bir hızla ısıtılır [1]. Daha sonra örnek tekrar soğutulur ve ışıma eğrisinin tamamını elde etmek için ısıtılır ve maksimum TL şiddetinin (T_M) sıcaklığı not edilir. Bu işlem aynı örnek yeniden ışınlanarak, ya da farklı bir ışınlanmış örnekler kullanarak, her defasında kullanılan T_{Stop} ' un yavaşça artırılmasıyla birçok kez tekrar edilir (her defasında T_{Stop} 2 °C ile 5 °C lik sıcaklıklarda arttırılabilir). T_{Stop} a karşı T_M 'nin çizimi, farklı E aktivasyon enerjilerine karşılık gelen "düz" bölgeler içeren basamaklı bir yapı gösterir.

Bu metot düz bir merdiven şekli oluşturan tek ya da üst üste binmiş birinci ve ikinci derece pikleri için uygulanabilir. Pikler yakın bir şekilde üst üste bindiğinde veya TL pikleri sanki sürekli bir dağılım gösterdiğinde, hem birinci hem de ikinci derece örnekler için eğim yaklaşık 1 olur. Bu metot karmaşık bir ışıma eğrisi içindeki her bir pikin sayısı ve pozisyonunun tahminine izin verir. Böylece ışıma eğrisine bilgisayarlı eğri uyumu işlemi uygulanarak tuzaklama parametreleri tahmin edilebilir.



Şekil 4.5. Tüm ışıma pikinde alanın n(T) hesaplanması - alan ölçüm metodu.

Gobrecht ve Hofmann tarafından, daha hassas fakat deneysel olarak çok çaba gerektiren kesirli ışıma (FG) metodu olarak adlandırılan bir metot tanımlanmıştır. Bu metotta örnekte küçük sıcaklık aralıklarında ısıtma ve soğutma yapılır. Her bir ısıtma ve soğutma devirleri için 1/kT 'ye karşı ln(I) çizilmesiyle aktivasyon enerjisi E hesaplanır [4].

4.2. Tüm Termolüminesans Işıma Eğrilerinde Kullanılan Analiz Metotları

Bu metotlar "alan metotları" veya "tüm ışıma piki" analiz metotları olarak bilinir ve bir ışıma pikinin altındaki integralin ölçülmesine dayanır; iyi izole ve temiz bir pik olduğunda uygulanabilir. Belirli bir sıcaklık aralığı üzerinde TL şiddetinin integral değeri n(T) 'de görüldüğü gibi başlangıç artış bölgesinde verilen bir T₀ sıcaklığından ışıma pikinin sonundaki bir T_f sıcaklığına kadar, ışıma eğrisinin altında kalan alandan belirlenebilir.

$$n = \int_{t_0}^{t_f} I dt = \frac{1}{\beta} \int_{T_0}^{T_f} I dT =$$
(4.11)

Birinci derece kinetikleri ele alır ve yukarıdaki ifadeyi (3.2) Randall-Wilkins bağıntılarında yerine koyarsak aşağıdaki ifade oluşur [1].

$$\ln \left[\frac{I}{\int_{T}^{T_{f}} IdT}\right] = \ln \frac{s}{\beta} - \frac{E}{kT}$$
(4.12)

Bu denklem, birinci dereceden kinetik durumu için $\ln(I / n(T))$ 'nin, 1/kT ile ilişkisinin doğrusal bir fonksiyonu olduğunu ve eğiminin – E'yi kesim noktasının $\ln(s/\beta)$ 'yi verdiğini göstermektedir. Bu durumda denklem

$$\ln\left(\frac{I}{n^{b}}\right) = \ln\frac{s'}{\beta} - \frac{E}{kT}$$
(4.13)

şeklini alır ve ln(l/n^b)'nin 1/kT ye göre çizilen grafiğinden yararlanarak parametreler belirlenir.

Eğer kinetik derece b bilinirse, eğrinin düz bir çizgi olduğu geniş bir sıcaklık aralığı elde edilebilir. Kinetik derece bilinmiyorsa, b'nin çeşitli değerleri kullanılarak çizim yapılır ve en iyi doğruyu veren b kinetik derece olarak seçilir.

4.3. Pik Pozisyon Metotları ile Analiz

Bu metotlar iki geniş kategori altında toplanır; maksimum TL şiddetinin yerine (T_M) dayanarak yapılan hesaplama metotları ve TL ışıma pikleri ölçümü süresince çeşitli ısıtma hızlarının kullanılmasına dayanan metotlar.

4.3.1. Maksimum sıcaklığa dayanan Analiz Metotları

Randall ve Wilkins birinci derece denklemini çözememişler fakat tuzaktan kaçan elektron olasılığının bire eşit olduğu TL ışıma pikinden biraz düşük bir sıcaklığa karşılık gelen maksimum sıcaklığını ele almışlardır. Bu yazarlar s = 2.9×10^9 s⁻¹değerini kullanarak E için çok basit bir ifade bulmuşlardır [10].

$$E = 25kT_M \tag{4.14}$$

Urbach $s = 10^9 s^{-1}$ kullanarak benzer bir bağıntı vermiştir [4].

$$E = \frac{T_M}{500} = 23kT_M$$
(4.15)

Denklem (4.14) ve (4.15)'in her ikisindeki sayısal faktörler s değerine bağlıdır ve bu yüzden E' nin değerleri yalnızca bir yaklaşımdır. Bu denklemler yalnızca E değerlerinin ilk yaklaşımı olarak kullanılabilirler.

4.3.2. Çeşitli Isıtma Hızlarına Bağlı Analiz Metotları

Doğrusal ısıtma hızı β değişirse, pikin maksimum TL şiddetinin sıcaklığı da (T_M) değişir. Daha hızlı ısıtma T_M'nin daha yüksek bir değere kaymasına neden olur. Bu etki Şekil 4.6'da görülür [7].



Şekil 4.6. T_M'nin Isıtma hızıyla değişimi.

Bohum, Porfianovitch ve Booth birinci derece bir pik için iki farklı ısıtma hızına bağlı olarak E'nin hesaplandığı bir metot önermişlerdir. (3.9) denkleminin maksimum koşullarını düşünerek ve iki farklı ısıtma hızı kullanarak bir çözüm elde etmişlerdir [4].

$$E = k \frac{T_{M1} T_{M2}}{T_{M1} - T_{M2}} \ln \left[\frac{\beta 1}{\beta 2} \left(\frac{T_{M2}}{T_{M1}} \right)^2 \right]$$
(4.16)

Bu metot ile $T_M 1^{\circ}C$ doğruluk ile ölçülebilirse, E %5 doğruluk ile elde edilir.

Bundan biraz farklı bir metot, Hoogenstraaten tarafından birinci derece kinetik denkleminden yola çıkarak aşağıdaki lineer bağıntıyı elde etmek için birkaç ısıtma hızının kullanılmasıyla tanımlanmıştır [4].

$$\ln\left(\frac{T_M^2}{\beta}\right) = \frac{E}{kT_M}\ln\left(\frac{E}{sk}\right)$$
(4.17)

Bu metotta 1/kT'ye karşı $\ln(T_M^2/\beta)$ nin grafiği çizilir ve elde edilen doğrunun eğimden E ve ekseni kestiği noktadan $\ln(E/sk)$ elde edilir.

Chen ve Winer, I(T) 'nin genel derece ifadesinde görülen integral için bir yaklaşım kullanarak aşağıdaki denklemini elde etmişlerdir [4].

$$\ln \left[I_M^{b-1} \left(\frac{T_M^2}{\beta} \right)^b \right] = \frac{E}{kT_M} + c$$
(4.18)

Bu denklem ile b'nin farklı değerleri için sol taraftaki değeri değerlendirmek mümkün olur ve farklı b değerleri için 1/kT_M nin fonksiyonu olan bir seri grafik elde edilir.

Grafiğin en iyi doğrusal olduğu b değeri belirlenir ve hesaplamalar ona göre yapılır. Bu metot genel ısıtma hızları için geçerlidir yani ısıtma hızı β'nin sabit olmasını gerektirmez.

İkinci derece kinetiklerinin durumu için yukarıdaki denklem aşağıdaki şekli alır.

$$\ln\left[I_M\left(\frac{T_M^2}{\beta}\right)^2\right] = \frac{E}{kT_M} + c$$
(4.19)

b=1 için T_M sıcaklığında tuzaklanan elektronların başlangıç konsantrasyonu n_0 'dan bağımsız olduğu için, bu metot sadece b'nin 1'den farklı olduğunda yararlıdır.

Chen ve Winer maksimum yayımlama ve integral yaklaşımı koşullarını kullanmışlar ve aşağıdaki ifadeyi elde etmişlerdir [4].

$$\left(\frac{\beta}{T_{M}}\right) \cong \exp\left(-\frac{E}{kT_{M}}\right) \left(\frac{ks}{E}\right) \left[1 + (b-1)\Delta_{M}\right]$$
(4.20)

Burada $\Delta_{\rm M} = 2kT_{\rm M}/E$ dir. $[1 + (b - 1)\Delta_{\rm M}]$ değeri bire yakındır ve bir sabit olarak düşünülebilir, böylece $1/kT_{\rm M}$ 'ye karşı $\ln(\beta/T_{\rm M}^2)$ 'nin grafiği eğim -E olan bir düz doğru oluşturur.

Gartia et al tarafından iki ısıtma hızının kullanıldığı farklı bir metot da önerilmiştir [11]. Bu sadece birinci derece için geçerli olan Booth metoduna benzer fakat bu metodun en önemli farklılığı, birinci derece olmayan piklere de uygulanabilmesi ve β ile T_M 'nin değişiminden çok daha hızlı bir değişime sahip olan β ile I_M 'nin değişimine dayanmasıdır.

Genel derece ifadesi kullanıldığında

$$E = k \frac{T_{M1} T_{M2}}{T_{M1} - T_{M2}} \ln \frac{I_{m1}}{I_{m2}}$$
(4.21)

elde edilir.

Denklem kullanıldığında aktivasyon enerjisindeki (E) maksimum sistematik hata tüm kinetik dereceler (1.1 \leq b \leq 2.5) için %1 den az olur.

Chen ve Winer, sıcaklığa bağımlı bir ön üstel faktör s (s, T^{α} ile orantılıdır) örneğinde, 1/ k T_{M} 'ye karşı $\ln(T_{M}^{2}/\beta)$ nin grafiğinin gerçek aktivasyon enerjisi E yerine $E + \alpha kT_{M}$ eğimini veren düz bir çizgi meydana getirdiğini göstermişlerdir [4].

Çeşitli ısıtma hızı analizi metotları kullanılırken TL cihazındaki ısıtma elemanı ile örnek arasında iyi bir termal kontağın olması gerekmektedir. Termal kontaktan kaynaklanan sorunların elimine edilmesi için bazı düzeltmeler yapılması gerekebilir.

4.3.3. İzotermal Lüminesans Bozunma Metodu

İzotermal lüminesans bozulma (ILD) metodunun rutin deneysel aşamasında örnek ışınlandıktan sonra özel bir sıcaklığa kadar hızlı bir şekilde ısıtılır ve burada belirli bir süre bekletilir. Işık çıkışı (fosferans bozunumu olarak adlandırılır) zamanın bir fonksiyonu olarak ölçülür ve böylece tuzaklanan elektronların bozunma hızını değerlendirmek mümkün olur. Sabit sıcaklıkta TL şiddetinin zamana göre değişimini veren grafikler izotermal bozunma eğrileri olarak adlandırılır.

İzotermal bozunma analiz metodu Garlick ve Gibson tarafından birinci derece kinetikleri için tanımlanmıştır. Birinci derece kinetik TL pikleri için bir T_i sıcaklığındaki izotermal bozulma eğrileri zamanın bir fonksiyonu olan üstel grafiklerdir ve aşağıdaki şekilde verilir [1].

$$I = I_0 \exp\left(-s \exp\left(-\frac{E}{kT_i}\right)t\right)$$
(4.22)

Bu denklem birinci derece kinetikleri için zamana göre ln(l) 'nın grafiğinin lineer olduğunu gösterir ve doğrunun eğimi

$$egim = m_i = -s \exp\left(-\frac{E}{kT_i}\right)$$
(4.23)

şeklinde olur. Bu denklemin tekrar doğal logaritması alınırsa aşağıdaki ifade elde edilir.

$$\ln(|egim|) = \ln s - \frac{E}{kT_i} \tag{4.24}$$

1/kT ye karşı ln (|eğim|)' nin grafiği düz bir doğru olmalıdır. Bu doğrunun eğimi=-E'ye ve y eksenini kestiği yer ln(s)'ye eşit olur.

Eğer deney T_1 ve T_2 gibi iki farklı sabit sıcaklıkla yapılırsa, m_1 ve m_2 şeklinde iki farklı eğim elde edilir ve Denklem (4.24)'ten yararlanarak

$$\ln\left(\frac{m_{1}}{m_{2}}\right) = \frac{E}{k} \left(\frac{1}{T_{2}} - \frac{1}{T_{1}}\right)$$
(4.25)

yukarıdaki ifadeye ulaşılır. Bu denklem E'yi hesaplamak için kullanılabilir.

May ve ark. ve Takeuchi ve ark. tarafından izotermal lüminesans bozulma analizlerinin genel derece kinetikleri için uygulamalarını önerilmiştir [4]. Bu durumda kullanılan izotermal analizler ile b kinetik derecesini de bulmak mümkündür. Sıcaklığı sabit tutup (3.4) genel derece denkleminin zamana göre integrali alınarak,

$$It = I_0 \left[1 + s' n_0^{b-1} (b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{-\frac{b}{1-b}}$$
(4.26)

yukarıdaki ifade elde edilir. Burada

$$It = I_0 \left[1 + s' n_0^{b-1} (b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{-\frac{b}{1-b}}$$
(4.27)

$$I_0 = s' n_0^{\ b} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{4.28}$$

 I_0 ve n_0 sırasıyla başlangıç TL şiddeti ve tuzaklanan yüklerin başlangıç konsantrasyonu ve I_t t zamanındaki TL şiddetidir. Denklem [3.69] 'nın yeniden düzenlenmesiyle

$$\left(\frac{It}{I_0}\right)^{\frac{1-b}{b}} = \left[1 + s' n_0^{b-1} (b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]$$
(4.29)

ifadesine ulaşılır. Bu denklem uygun bir b değeri için $(I_t/I_0)^{(1-b)/b}$ 'nin zamana karşı çizilen grafiğinin düz bir çizgi olması gerektiğini gösterir.

Farklı izotermal bozulma sıcaklıkları kullanılarak, bir seri doğru elde edilir ve aktivasyon enerjisi E, In(m)'nin 1/kT' ye karşı bir eğiminden saptanabilir.

$$m = s' n_0^{b-1} (b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(4.30)

Alternatif olarak, b kinetik derecesi May ve Patridge'nin ifadeleri kullanılarak belirlenebilir.

$$\ln\left(\frac{dI}{dt}\right) = \ln C + \frac{2b-1}{b}\ln(I) \tag{4.31}$$

Ln (dl/dt) ya karşı ln(l)'nın grafiği çizilirse, bu doğrunun eğim m=(2b-1)/b şeklinde olur. Buradan yararlanarak b değeri belirlenebilir.(13)

4.3.4. Işıma Eğrisinin şekline bağlı analiz metotları

E,s,b kinetik parametrelerini belirlemek için bir TL ışıma eğrisi analizinin popüler bir metodu da pikin şekil ya da geometrik özelliklerinin dikkate alınmasıdır.

İkinci derece kinetikleri için TL ışıma pikleri hemen hemen simetrik bir şekilde olurken, birinci derece pikler asimetriktir. Bu analiz Şekil 4.7'de gösterilen parametreler ile tanımlanır.

- T_M maksimumdaki pik sıcaklığı
- T₁ ve T₂ sırasıyla T_M' nin yarı şiddetinde her iki yanındaki sıcaklıklar,
- T= T_M T₁ pikin düşük sıcaklık kısmındaki yarı genişlik
- $\delta = T_2 T_M$ ışıma pikinin artan sıcaklık kısmındaki yarı genişlik
- ω= T₂ T₁ ışıma pikinin toplam yarı genişlik
- μ= δ / ω geometrik şekil ya da simetri faktörü olarak isimlendirilir.



Şekil 4.7. Geometrik şekil nicelikleri τ, δ, ω

Grossweiner ilk olarak tuzak derinliği E'nin hesabı için ışıma pikinin şeklini kullanmıştır [4]. Onun metodu maksimum şiddetteki T_M sıcaklığına ve yarı şiddetteki, T₁ düşük sıcaklığına bağlıdır. Birinci derece kinetikleri varsayarak aşağıdaki ifadeyi elde etmiştir.

$$E = 1.51k \frac{T_M T_1}{T_M - T_1}$$
(4.32)

Bu ifade Chen tarafından E'nin hesabında daha doğru bir değer elde etmek için Grossweiner'in 1.51 faktörü yerine deneysel olarak 1.41 faktörü koyularak değiştirilmiştir [4].

Lushchik ise birinci ve ikinci derece kinetiklerin TL ışıma pikinin şekline bağlı bir metot önermiştir. Yukarıda δ parametresi tanımlanarak ışıma eğrisi bir üçgenle ifade edilebilir [4].

Birinci derece kinetikleri durumunda, E ifadesi için,

$$E = \frac{kT_M^2}{\delta}$$
(4.33)

İkinci derece kinetikleri için Lushchik formülü aşağıdaki şekli alır.

$$E = \frac{2kT_M^2}{\delta}$$
(4.34)

Chen E değerinde en iyi doğruluğu elde etmek için denklem (4.33) yi 0,978 ile ve denklem (4.34) ise 0,853 ile çarparak önceki iki denklemi düzenlemiştir [9,12].

Halperin ve Braner T_1 ve T_2 'yi kullanarak ışıma eğrisine farklı bir yaklaşım yapmıştır [13].

$$E = \frac{1.72}{\tau} k T_{M}^{2} (1 - 2.58\Delta_{M})$$
 Birinci Derece (4.35)

$$E = \frac{2}{\tau} k T_M^{2} (1 - 3\Delta_M)$$
 İkinci Derece (4.36)

Burada $\Delta_M = \frac{kT_M}{E}$ (4.37)

Halperin and Braner'in denklemlerinde E'yi veren bağıntının içinde yine E'ye bağlı Δ_M 'nin varlığından dolayı tekrarlanan bir işlem gerektirir. Bu zorluğu ortadan kaldırmak için, Chen yeni bir metot geliştirmiş ve aşağıdaki ifadeleri elde etmiştir [13].

$$E = 2kT_{M} (1.58 \frac{T_{M}}{\omega} - 1) \qquad \text{Birinci Derece} \qquad (4.38)$$

$$E = 2kT_{M} (1.76 \frac{T_{M}}{\omega} - 1) \qquad \text{İkinci Derece} \qquad (4.39)$$

Chen aynı zamanda E'nin değerlendirmesi için genel bir ifade çıkartmıştır. Bu metot 0,1 eV ve 0,2 eV arasındaki enerji ve 10^5 s^{-1} ve 10^{23} s^{-1} önüstel faktör aralığında yararlıdır [9,12].



Şekil 4.8. Kinetik derece b ve geometrik faktör $\mu = \delta / \omega$ ve $\gamma = \delta / \tau$ arasındaki ilişki.

Ayrıca Chen'in metodunda bir yineleme işlemi yoktur ve pik şeklinden belirlenen simetri faktörünün kullanımıyla kinetik derecenin bilinmesini gerektirmez Bu ifade en genel olarak aşağıdaki şekilde düzenlenmiştir [9,12].

$$E = c_{\alpha} \left(\frac{kT_{M}^{2}}{\alpha} \right) - b_{\alpha} (2kT_{M})$$
(4.40)

 c_{α} ve b_{α} 'nin değerleri α = τ , δ ya da ω için aşağıdaki gibi verilmektedir.

$$\begin{split} c_{\tau} &= 1.510 + 3.0(\mu - 0.42) \qquad b_{\tau} = 1.58 + 4.2(\mu - 0.42) \\ c_{\delta} &= 0.976 + 7.3(\mu - 0.42) \qquad b_{\delta} = 0, \\ c_{\omega} &= 2.52 + 10.2(\mu - 0.42) \qquad b_{\omega} = 1 \end{split} \tag{4.41}$$

Birinci derece TL ışıma piklerinin durumu için μ =0,42 ve ikinci derece pikler için ise μ =0,52 ile ifade edilir.

Chen Şekil 4.8 de görüldüğü gibi 0,9 ve 2,5 aralığındaki b değerleri için 0,36'dan 0,55'e kadar değişen ve b'nin hesaplanmasında kullanılabilen μ için bir grafik oluşturmuştur [9,12]. Diğer grafikler Balarin tarafından $\gamma = \delta / \tau$ parametresinin bir fonksiyonu olarak kinetik dereceyi veren bir grafik öne sürülmüştür. Bu grafik Şekil 4.8'de gösterilmiştir [4].

5. BİLGİSAYAR YAZILIMI İLE IŞIMA EĞRİSİ ANALİZİ

5.1. Giriş

Deneyler sonucunda alınmış olan veriler Bölüm 4 de belirtilen analiz metodları ile Bölüm 3 deki formüller kullanılarak dozimetrelerin kinetik parametreleri hesaplanabilir. Burada seçilecek olan analiz metoduna göre gerekli olan formüllerden istenen parametre değerleri elde edilebilir. Parametreleri elde etmek için bazı sadece tek bir analiz yeterli olurken bazı durumlarda birden fazla analiz ile tespit etmek gerekmektedir. Parametrelerin hesaplanması sürecinde deneylerden aldığımız sonuçlar çeşitli programlar yardımı ile grafiklere dökülüp incelemesi ve değer düzgünleştirme işlemleri yapıldıktan sonra elde edilebilmektedir. Bazen aldığımız her değer Denklem (3.37), (3.39), (3.41) gibi kompleks formüllerle hesaplanmakta bulunan bu değerler daha sonra tekrar kullanılmaktadır. Alınan deneysel parametrelerin artması deneyin sonucundaki başarıyı arttırmasına rağmen işlemlerin sayısını ve karmaşıklığını arttırmaktadır. Bu yüzden bu gibi ifadelerin çözümlenmesinde bilgisayar ve yazılımlardan faydalanmak hem sonucun doğruluğunu hem de işlem hızını artırmada yararlı olacaktır.

5.2. Yazılım

Burada alınan deneysel veriler kullanılan ölçü sistemleri ile çeşitli formatlarda kaydedilmektedir. Kaydedilen dosyalarda ışıma şiddeti ve deneyin yapıldığı sıcaklık bilgileri yer almaktadır. Bu bilgilerin sırası ve/veya çeşidi birimi çalışacağımız grafikte önemli rol üstlendiği için başlangıçta ya değerleri bu formata göre değiştirmemiz gerekecek ya da yazılımdan bunu yapması beklenecektir. Birinci durum pratik kullanım yaratmaması ve sonuçların hatalı işlemler sonucu beklenen doğru değerleri vermeyecek olması nedeniyle olması gereken ikinci seçenektir. Yani gelen dosyanın formatı, program tarafından başta kontrol edilecek yada bir kişi tarafından değerlerin bilgisi girmesi beklenecek daha sonra işlem yapılacaktır. Ayrıca kullanılacak program gerektiğinde bu verileri de başka programlara aktarabilmeli bu sayede program sonrasında istenen veriler başka ortamlarda da kullanılabilmelidir.

Bu amaçlar doğrultusunda hazırlanan program Pascal dilinde Delphi programında hazırlanmıştır. Bu programlama dili ve Delphi programı dışındaki diğer dillerde de programın hazırlanması mümkündür. Programda veri girişi büyük bir aralıkta gerçekleştirilmiş yaklaşık olarak 65000 data aynı anda işlenmiştir. Programın ekran görüntüsü Şekil 5.1 görüldüğü gibidir.

📰 TL Işıma Eğrisi Analizö			
Veni Proje Aç	raim August Residue [%] Grafiği Kaydet Temizle	e Kapat	
Grafik Pik Değerleri			1
Chart Uzellikleri 0	0		
Kinetik Parametreler e 1.7 eV b 1 Derece • 1			
C 2 C Genel		Sicaklik (K)	
Pik Sayısı	•	Toplam Pik Değerleri	
	Tm E b \$	Derece 1 5 2 6 1 3 7 1 4 8 1	9 10 Toplam FOM

Şekil 5.1. Programın ekran görüntüsü

5.3. Programa Verilerin Eklenmesi

Program açıldığında Dosya menüsünden Yeni yada Şekil 5.2 de görülen Araç Çubuğundan Yeni butonu tıklanıldığında analizi yapılacak verinin dosyasının seçilmesi istenir. Burada DAT, CSV, TXT uzantılara sahip yada buna benzer formatta dosyaları kullanmak mümkündür.



Şekil 5.2. Araç çubuğu ekran görüntüsü

Dosya seçme işleminden sonra seçilmiş dosyada kullanılacak birim Celcius ya da Kelvin cinsinden olabilir bunun için açılacak Şekil 5.3 deki pencereden Sıcaklık türünü ve başlangıçta kabul edilen değerleri β ısıtma hızı, aktivasyon enerjisi gibi belirlenir. Bu değerlerden aktivasyon enerjisi her durum için değişiklik gösterebileceğinden daha sonra bu değer ana pencereden de değiştirilebilecektir. Bu yüzden burada parametre değerinin değiştirilmesi çok önemli değildir.



Şekil 5.3. Dosya seçme İşlemi

Varsayılan Kinetik Parametrele	Veri Sıcaklık türü Celcius C Kelvin
Tama	m

Şekil 5.4. Başlangıç değerlerinin belirlenmesi

Dosya seçim işlemi yapıldıktan sonra ve başlangıç değerleri belirlendikten sonra dosyadan alınan değerler grafik ekranına yerleştirilir (Şekil 5.5).



Şekil 5.5. Deneysel verilerin grafik şeklinde gösterimi

Yatay eksen **Sıcaklık** ve düşey eksen ise **Işıma şiddeti** değerleri olacak şekilde girilen değerlere göre odaklanma sıcaklık eksenine göre yapılmaktadır. Ancak istenildiği takdirde bir bölgeye farenin sağ tuşu ile odaklama yapılabilir veya Şekil 5.6 teki Grafik özelliklerinden istenilen sıcaklığa göre belli bir bölgeye odaklanabilinir. Deneysel veriler yüklendiğinde bunların sayısal bilgileri aynı zamanda Pik Değerleri sekmesinde tabloya da yüklenmektedir.

Grafik Özellikleri									
	XEkseni								
Min.	350	\$							
Maks.	725	\$							
S	Otomatil Tıkla-Çiz	< 2							

Şekil 5.6. Grafik özellikleri

Bu ekranda aynı zamanda Otomatik ve Tıkla - Çiz şeklinde iki seçim bulunmaktadır

- Otomatik : Grafikte odaklanma verilerin büyüklüğüne göre belirlenir
- Tıkla-Çiz : Grafik ekranında pik oluşturmak için tıklama etkisini açar.

Grafik	Pik Değerleri

Şekil 5.7. Sekmeler

Bu sekme tıklanıldığında Şekil 5.8 görülen ekran karşımıza gelir. Burada 1. Sütunda I(T) değerleri İkinci sütunda ise Kelvin cinsinden Sıcaklık değerleri bulunmaktadır. Diğer sütunlarda ise ilk anda hiçbir değer bulunmaktadır. Bu sütunlar ilerleyen aşamalarda pikin uygunlaştırılması aşamasında kendiliğinden dolacaktır.

Grafik	Grafik Pik Değerleri												
	I(T)	T(K)	I(T)1	I(T)2	I(T)3	I(T)4	I(T)5	I(T)6	I(T)7	I(T)8	I(T)9	I(T)10	Toplam
1	93511	350											
2	90663	353											
3	89395	356											
4	88641	358											
5	87526	361											
6	86695	364											
7	87117	367											
8	87798	369											
9	89325	372											
10	94277	375											
11	101140	378											
12	108361	380											
	I												

Şekil 5.8. Pik değerleri tablosu

Tablonun en sağında Toplam sütunu ise girilen pik sayısına bağlı olarak bu piklerin matematiksel değerlerinin her sıcaklık için toplamını gösterir. Örneğin pik sayısı 3 olduğunda I(T)1, I(T)2, I(T)3 sütunlarının her sıcaklık için ayrı ayrı toplamını gösterir.

5.4. Piklerin Yerleştirilmesi

Deneysel veriler çoğu kez birden fazla pikin birleşiminde oluşur. Bu gibi durumlarda alışılagelmiş şekilde tek bir formülle çözüme ulaşılamaz. Birden fazla pik ve/veya matematiksel denklem kullanılarak çözülebilir. Bu da deneysel grafikte birden fazla pik ve birden fazla parametre gerekli olduğu anlamına gelir. Grafikte yerleştirilecek pikler toplam piki oluşturacaktır. Böylelikle deneysel grafikle yerleştirdiğimiz piklerin toplamının uyum içinde olması sağlanarak seçilen dozimetrik malzemenin kinetik parametreleri belirlenebilecektir. Deneyde alınan değerlerden sonra uygun görülen noktalar seçilerek pikler seçilebilir.



Şekil 5.9. Piklerin seçimi

Grafik üzerindeki her bir tıklama sonucunda yeni bir eğri meydana gelir. Bu yeni eğriler her bir piki temsil eder. Bu piklerin maksimum sıcaklık noktaları ve maksimum ışıma şiddeti noktaları grafikte tıklanan noktadır. Birden fazla pik seçilmesi durumunda grafik ekranında

- Deneysel noktaların oluşturduğu grafik (Kırmızı)
- 1. Pik için grafik (Yeşil)
- 2. Pik için grafik (Turuncu)
- Toplam Pik (Kalın Çizgi-Açık Mavi) Şeklinde görülür

Pik Sayısı
2 🜲

Şekil 5.10. Piklerin sayısı

Eğer grafiğin birden fazla pikin birleşiminden oluştuğu düşünülüyorsa bunu gerçekleştirmek için pik sayısının belirlenmesi gerekir. Bunun için ana ekranda Şekil 5.10 da görülen bölümden Pik sayısı belirlenir. Burada 1 den 10 a kadar pik sayısı belirlenebilir. Pik sayısının belirlenmesi ile aynı zamanda pik değerlerinin kayıtlarının tutulduğu tabloda satır sayısı artar. (Şekil 5.11)

Pik Sayısı	0,01	•					
3 🛋		lm	Tm	E	Ь	s	Derece
- <u>-</u>	1						
	2						
	3						

Şekil 5.11. Pik parametre tablosu

Burada her grafiğe her pik yerleştirildiğinde Im ve Tm değerleri X ve Y eksenine tıklanılan noktaya göre program tarafından kendiliğinden yerleştirilmektedir. Grafiğe tıklanıldığında hangi değerlerin alınacağı ise Şekil 5.12 de görülen Durum çubuğunda farenin hareketinin değişmesi ile görebilmektedir.

		_
Im:819.370,985	Tm:489,791	

Şekil 5.12. Grafikte farenin bulunduğu X ve Y değerleri Tm ve Im cinsinden

Grafikte her seçilen noktada Im ve Tm oluşurken Pik Parametre Tablosunda görülen E değeri değiştirilmediyse, verilerin girilmesi esnasındaki ilk ekranda görülen değeri kalır. Bu değer pikin uygunlaştırılması esnasında daha sonra da değiştirilebilmektedir. Bunun için Ana ekranda Kinetik Parametreler kısmında e ve b değerleri grafikte pik seçimlerinden önce belirlenebilir. Burada b değerinin 1 yada 2 olduğuna kesinlikle emin olunduğunda piklerin seçiminden önce Derece seçimi yapılmalıdır. Bu kısımdan daha sonra da istenilirse değerler tekrar değiştirilebilir (Şekil 5.13). b değeri 1, 2 seçildiğinde b ekranı pasif iken genel seçildiğinde buradan veri girişi mümkün olmakta ve varsayılan değer olarak b değeri 1.1 değerinden başlamaktadır.

—Kin	etik Parametreler
е	1.7 eV
b	1
De	rece
	1
ō	Genel

Şekil 5.13. Kinetik parametrelerin belirlenmesi

Pik parametre tablosunda s değeri ise seçilen derece değerine göre Bölüm 3 te belirtilen Denklem (3.38), (3.40), (3.42) ile her pik için girilen değerlere göre hesaplanır. Daha önce bahsedilen E, b gibi değerlerin değişimi ile s değeri program tarafından kendiliğinden değişecektir. s değerinin hesaplanmasında kullanılan ısıtma hızı (β) değeri ilk verinin eklediği ekranda lsıtma hızı olarak girilen değerdir. Bu değer ilk anda girildiği için bundan sonra bir daha değiştirilemeyecektir. O yüzden ilk ekranda bu değerin doğru bir şekilde girilmesi gerekmektedir.

5.5. Piklerin Uygunlaştırılması

Pik değerleri eklendikçe Pik parametre tablosu dolacaktır. Aynı zamanda Toplam Pik değerleri tablosunda her bir pik için daha önce bahsedilen Şekil 5.14 te görüldüğü üzere bir kutu bulunmakta ve bu kutudaki değerler her pik için hesaplanmış ışıma şiddetlerinin toplamını göstermektedir. Toplam kutusunda ise her pikin kendi içinde ayrı ayrı pik altında kalan alanlarının toplamı gösterilmektedir. Eğer burada sadece bir pik varsa doğal olarak burada Toplam değerde sadece 1. Pikin toplam değeri yazacaktır. Bu kısmın en sağ alt köşesindeki FOM değeri ise Denklem (5.1) formüle göre hesaplanarak yüzde cinsinden burada gösterilir.

$$FOM = \frac{\sum_{p} \left| y_{deneysel} - y_{hesaplanmış} \right|}{\sum_{p} y_{hesaplanmış}}$$

(5.1)

Burada amaç FOM değerinin en düşük değere getirmektedir. Böylece ışıma eğrisi uyumu sağlanacak ve parametreler belirlenecektir.



Şekil 5.14. Kinetik parametrelerin belirlenmesi

Pikler belirlendikten ve yerleştirildikten sonra istenen uyumun sağlanması E,b, Im, Tm değerlerinin değiştirilmesiyle gerçekleştirilir. Bunun için incelenen pikin istenen parametresi seçilip Şekil 5.15 'te görülen Pik parametre tablosu üzerindeki kaydırma çubuğu ile en uygun değer belirlenir istenirse buradaki hassasiyeti arttırmak için 0,01 değeri değiştirilebilir. Burada en uygun değeri grafikten gözle görülebileceği gibi FOM değeri kontrolü ve aynı zamanda Kalıntı değeri kontrolü ile de sağlanabilir. Değerler seçildikçe ve ayarlar yapıldıkça Pik değerleri sekmesindeki boşluklar dolar (Şekil 5.19).

0,01	•					
	im	Tm	E	D	s	Derece
1	2163617	474,691	0,7513	1	3,17E+007	1
2	1036166	515,966	1,3944	2	1,87E+013	2
3	890696	655,863	1,214	1	5,91E+008	1

Şekil 5.15. Parametrelerin belirlenmesinde kullanılan kaydırma çubuğu.

Burada s parametresi, ayarlanan değerlerden hesaplandığı için diğer parametreler gibi ayarlanamaz fakat girilen diğer parametrelere bağlı olarak değişir. b değeri eğer 1 veya 2 seçildiyse değiştirilemez ancak genel derece seçildiyse değiştirilebilir.



Şekil 5.16. Toplam pik eğrisi ile deneysel ışıma eğrisinin uyumu

	lm	Tm	E	Ь	s	Derece
1	2163617	474,691	0,7513	1	3,17E+007	1
2	1036166	515,966	1,3944	2	1,87E+013	2
3	890696	655,863	1,214	1	5,91E+008	1

Şekil 5.17. Piklerin belirlendikten sonra pik parametreleri oluşur

Değerler arka arkaya girilecekse Şekil 5.17 'de görülen kutucuk işaretlenir. Böylelikle pikler grafik ekranında sırasıyla tıklanmasıyla pik parametreleri tabloya yerleşir. Aksi halde her pik için ilgili satır seçilmelidir. İlk işlem esnasında bu büyük kolaylık sağlarken ayarlama esansında iken bu kutucuğun seçilmemesi hatayı önleyecektir. Çünkü bir parametrenin ayarlanması bazen değerlerin birkaç kez değişimi ile mümkün olmaktadır.

Grafil	Grafik Pik Değerleri												
	I(T)	T(K)	I(T)1	I(T)2	I(T)3	I(T)4	I(T)5	I(T)6	I(T)7	I(T)8	I(T)9	I(T)10	Toplam
1	93511	350	7959,10587	1,421849044	0,01784588								7960,545574
2	90663	353	9818,35377	2,100033550	0,02506099								9820,478870
3	89395	356	12068,5678	3,081373512	0,03499237								12071,6842
4	88641	358	13821,4114	3,964659964	0,04357862								13825,4196
5	87526	361	16890,7779	5,75604470	0,06028978								16896,59425
6	86695	364	20572,0298	8,30564376	0,08296412								20580,41848
7	87117	367	24972 6057	11 91293539	0 11357172								24984 63226

Şekil 5.18. Pik değerleri sekmesi

Piklerin seçilmesi ile Pik değeri tablosunda matematiksel veriler hesaplanırken diğer hücreler boş kalacak ve bunlar kendilerine ait pik değerleri seçilmedikçe işleme girmeyecektir (Şekil 5.18).



Şekil 5.19. Kalıntı grafiği

Kalıntı grafiği ise deneysel değerlerin oluşturduğu grafik ile matematiksel verilerin oluşturduğu grafik arasındaki farkı görebilmek amacıyla kullanılır (Şekil 5.19). Bu grafiği kullanmak için Şekil 5.2 da araç çubuğunda Kalıntı butonuna basılır. Bu andan sonra ekran görüntüsü Şekil 5.20 de görülen şekli alır. FOM değeri küçüldükçe Kalıntı grafiği düz ve 0 değerine yaklaşacaktır. Kalıntı grafiğinin düzelmesiyle toplam pik grafiği ile deneysel pik grafiği üst üste gelerek uyum sağlanacaktır (Şekil 5.16).



Şekil 5.20. Kalıntı grafiği açılmış ekran görüntüsü

Programda ekran görüntüsü istenirse başka programlara da taşınabilir. Bunun için Şekil 5.2 da görülen araç çubuğundaki Grafiği Kaydet butonuna basılır. Bu şekilde grafik ekranı panoya kopyalanır. İstenilen programda yapıştır işlemi ile grafik buraya yerleştirilebilir. Çalışmalar istenildiğinde tekrar kullanılabilmesi amacı ile proje dosyası halinde de kaydedilebilmektedir. Böylece çalışmalar yarıda kaldığında daha sonra devam edilebilinir. Ayrıca yapılan tüm çalışmalar Rapor Menüsündeki Rapor Ver seçeneği ile CSV dosya formatında kaydedilerek, tüm değerler bir rapor dosyasında saklanabilir (Şekil 5.21).

Pik Parametreleri							
Im	Tm	E bs	3				
1 2220797	474,291	0,7513 1 3	,23E+007				
2 1037876 515,866 1,3854 2 1,53E+013							
3 890696	655,813	1,216 1 6,1	4E+008				
Intensity	/ Listesi						
I(T) T	$\Gamma(K) = I(T)$)1	I(T)2	I(T)3	Toplam		
1 93511 3	50 8296,	68264770315	1,57477799391583	0,0173374263258549	8298,2747631	2339	
2 90663 3	53 10234	,7547112227	2,32005817675519	0,0243605913750689	10237,099129	9908	
3 89395 3	56 12580,	,3502486912	3,39580078073619	0,0340331106284733	12583,780082	5826	
4 88641 3	58 14407,	,4790288682	4,36211676920174	0,0423993085036063	14411,883544	9459	
5 87526 3	61 17606	,8949798119	6,31786582121234	0,058689618224917	17613,271535	2514	
6 86695 3	64 21444,	,0713505976	9,09476868138756	0,0808046364967392	21453,246923	9155	
7 87117 3	67 26030	,9656763136	13,0144570948027	0,11067278555252	26044,090806	194	
8 87798 3	69 29568	,1902015215	16,4731368646696	0,136105771114272	29584,799444	1573	
9 89325 3	72 35699,	,5992639394	23,3473697089684	0,18484975753474	35723,131483	4059	
Pik Değerleri							
Pik1: 51879751							
Pik2: 23800913							
Pik3: 24535936							
Pik4: 0							
Pik5: 0							
Pik6: 0							
Pik7: 0							
Pik8: 0							
Pik9: 0							

Şekil 5.21. Rapor dosyası

Pik10: 0

Toplam Pik: 100216600 FOM: 3,82511941327027

6. SONUÇLAR ve TARTIŞMA

Bu bölümde hazırlanmış olan program yardımıyla dozimetrik malzemelerin ışıma eğrilerinin analizleri yapılacaktır. İlk olarak daha önceden farklı tekniklerle ışıma eğrisi incelenmiş ve enerji (E), frekans faktörü (s) ve kinetik mertebesi belirlenmiş olan Li₂B₄O₇:Cu, Ag, P dozimetresinin kinetik parametreleri incelenmiştir. Daha sonra da literatürde kinetik parametreleri daha önce çalışılmamış olan MgB₄O₇:Tm,Na dozimetrik malzemesinin karakterizasyonu yapılmıştır. Elde edilen veriler aşağıdaki bölümlerde ayrıntılarıyla sunulmuştur.

6.1. Çalışmada Kullanılan Malzemeler

Çalışmada ilk olarak Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P termolüminesans dozimetreleri kullanılmıştır. Bu malzemeler sinterleme metoduyla Dr. M. Prokić tarafından Nükleer Bilimler Enstitüsü-Vinca'da üretilmiştir. Malzemeler sinterleme metoduyla hazırlanmıştır. Bu peletler (4.5 mm çapında ve 0.95 mm kalınlığında) 75 ve 200 µm arasındaki tanecik boyutuna sahip polikristalin tozunun soğuk preslenmesi yöntemiyle üretilerek, 1123 K'nin üzerindeki bir sıcaklıkta sinterlenmiştir [14]. Dozimetreler ışınlanmadan önce porselen kapta 20 dakika 300 °C' de ısıtılıp, oda sıcaklığına kadar hızlı bir şekilde soğutulma (tavlama) işlemine tabi tutulmuştur. Bu işlem TLD'lerin sıfırlanması için yapılması gereken standart bir işlemdir. İncelenecek dozimetreler yaklaşık 20 cGy.s⁻¹'lik eşdeğer doz hızına sahip ⁹⁰Sr beta kaynağı ile ışınlanmışlardır. Malzemeler gün ışığına duyarlı oldukları için kullanım, ışınlama ve okuma işlemleri süresince direkt ışıktan korunmuştur. Lüminesans emisyon sinyalleri, 2 °C.s⁻¹ düzgün ısıtma hızında ve ısıtıcı şeritten gelen IR emisyonunu önlemek için kullanılan ısı soğurucu filtre (Schott KG-1) kullanılarak TL okuyucu (Harshaw Model 3500) ile ışıma sinyalleri kaydedilmiştir [6,7].

Çalışmanın ikinci kısmında kullanılan malzeme ise yine borat tabanlı bir TL dozimetresi olan MgB₄O₇:Tm,Na 'dir. Bu malzemede yine Dr. M. Prokić tarafından Nükleer Bilimler Enstitüsü-Vinca üretilmiştir [15].

6.2. Örneklerin İşıma Eğrilerinin Ölçümleri ve Bilgisayar Yardımıyla Pik Analizleri

Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P ve MgB₄O₇:Tm,Na TLD dozimetreleri uygun koşullarda tavlamanın ardından⁹⁰Sr beta kaynağı ile yaklaşık 1dk'lık sürelerde ışınlanmışlardır. Işınlanan dozimetreler Harshaw 3500 TL okuyucu kullanılarak 2 C.s⁻¹lik ısıtma hızı kullanılarak TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Bu malzemelere ait ışıma eğrileri Şekil 6.1 ve Şekil 6.2 de gösterilmiştir.



Şekil 6.1. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresine ait ışıma eğrisi.



Şekil 6.2. MgB₄O₇:Tm,Na dozimetresine ait ışıma eğrisi.

İlk olarak literatürde daha önce Ege ve diğerleri tarafından [6,7] (Ege et.al 2007a,b), İzotermal lüminesans bozunma metodu ve Pik şekli metodu ve çeşitli ısıtma hızları metotlarıyla E, s ve b parametreleri incelenmiş olan ve Şekil 6.1 de görülen Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL dozimetresinin ışıma eğrisi analiz edilmeye çalışılmıştır. Analiz yapılırken Bölüm 5 de tez çalışması kapsamında hazırlanmış olan bilgisayar programı kullanılmıştır.

Ege ve diğerlerinin yaptığı çalışmada sadece yaklaşık 450 K de bulunan pik için analiz yapmışlardır. Tez çalışmasında tavlama işlemine maruz bırakılarak ilk pikten temizlenmiş bu ışıma eğrisi için yapılan analiz işlemi aşağıdaki şekilde gösterilmiştir (Şekil 6.3).



Şekil 6.3. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL dozimetresinin tavlanma işlemine maruz bırakıldıktan sonra elde edilen ışıma eğrisinin hazırlanan bilgisayar programı elde edilen analizi.

Bu analiz işlemine ait pik parametreleri Çizelge 6.1'de verilmiştir.

Çizelge 6.1. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL dozimetresinin tavlama sonrası alınan ışıma eğrisine bilgisayar programı uygulandığında elde edilen pik parametreleri.

	Tm (K)	E (eV)	В	S (s⁻¹)
Pik 1	444	1,09	1,50	2,14E+11
Pik 2	460	1,65	1,04	1,73E+17

Bu bulanan sonuçlar Ege ve diğerlerinin yaptığı çalışmadakilerle uyum içerisindedir [6,7]. Burada pikler iç içe geçmiş durumda olduğu için pik temizleme yöntemi uygulanarak esas pik olarak adlandırılan 450 K deki pik analiz edilmiştir. Tez çalışmasında hazırlanmış olan bilgisayar programı kullanılarak bu temizleme işlemini yapmadan tüm ışıma eğrisi analiz edilebilmektedir. Bununla ilgili yapılan analize ait grafik Şekil 6.4 de sunulmuştur.



Şekil 6.4.⁹⁰Sr Beta kaynağı ile ışınlanmış Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL dozimetresine ait tüm ışıma eğrisinin hazırlanan bilgisayar programı elde edilen analizi.

Tüm ışıma eğrisinin analizi sonucunda elde edilen veriler aşağıdaki gibi bulunmuştur (Çizelge 6.2).

	Tm (K)	E (eV)	b	S (s⁻¹)
Pik 1	381	0,7627	1	3,11E+09
Pik 2	420	1,7619	1	5,27E+20
Pik 3	444	1,1008	1,51	7,88E+11
Pik 4	450	1,4749	1	1,05E+16
Pik 5	463	1,7601	1	4,88E+18

Çizelge 6.2. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL dozimetresinin tüm ışıma eğrisine bilgisayar programı uygulandığında elde edilen pik parametreleri.

Bu program sayesinde ışıma eğrisindeki tüm piklerin kinetik parametrelerin analizi mümkün olmuştur.

Çalışmanın devamında daha önceden kinetik parametre analizi açısından hiç incelenmemiş olan MgB₄O₇:Tm,Na dozimetresi incelenmiştir. Malzemeler yaklaşık 1 dakika süre ile ⁹⁰Sr beta kaynağı ile ışınlanmanın ardında Harshaw 3500 TL okuyucu ile 2 C/s lik ısıtma hızı ile ışıma eğrisi ölçülmüştür. Elde edilen ışıma eğrisi Şekil 6.2 de verilmiştir. Bu ışıma eğrisi hazırlanan bilgisayar programı ile analiz edilmiştir. Analiz sonucu grafiksel olarak Şekil 6.5 'de gösterilmiştir.



Şekil 6.5. ⁹⁰Sr Beta kaynağı ile ışınlanmış MgB₄O₇:Tm,Na TL dozimetresine ışıma eğrisinin hazırlanan bilgisayar programı elde edilen analizi.
Bu analiz sonucunda MgB₄O₇:Tm,Na TL dozimetresinin toplam 3 tane pik ten meydana geldiği bulunmuştur. Her bir pike ait E, s ve b parametreleri Çizelge 6.3 'de verilmiştir.

Çizelge 6.3. MgB₄O₇:Tm,Na TL dozimetresinin tüm ışıma eğrisine bilgisayar programı uygulandığında elde edilen pik parametreleri.

	Tm (K)	E (eV)	b	S (s ⁻¹)
Pik 1	474,000	0,6892	1,0555	1,30E+006
Pik 2	517,155	0,9354	1,3861	8,68E+007
Pik 3	654,769	1,2492	1,0950	2,33E+008

6.3. Sonuç ve Değerlendirme

Son yıllarda TL dozimetrelerin çevresel ve medikal doz ölçümünde kullanılması yoğunluk kazanmıştır. Bu kullanımındaki artışta yeni dozimetrelerin üretimi ve karakterizasyonunu doğurmuştur. Dozimetrelerin karakterizasyonu aşamasında dozimetreye ait ışıma eğrisini meydana getiren tuzak yapılarının irdelenmesi önem taşımaktadır. Dozimetreye ait tuzakların incelenmesinde, tuzağı karakterize eden tuzak enerjisi veya tuzak derinliği (E), frekans faktörü (s) ve kinetik mertebenin (b) belirlenmesi gerekliği ortaya çıkmıştır. Bu inceleme işlemlerinde birçok deneysel ve teorik çalışmalar yapılmıştır. Bunlardan biri de bilgisayar programı ile pik analizi metodudur.

Bu çalışmada Delphi programlama dili kullanılarak birinci, ikinci ve genel derece kinetiklere uygun olan bir program hazırlanmıştır. Programın kullanılması aşamasında ilk olarak daha önceden farklı yöntemler ile kinetik parametreleri belirlenmiş olan Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL dozimetresi incelendi. Elde edilen verilen daha önce Ege ve diğerlerinin yaptığı 2007 yayınlarıyla uyum içerisinde çıktı [6,7]. Programın bu sonuçlar ile doğruluğunun test edilmesinin ardından daha önce kinetik parametreleri hiç incelenmemiş olan MgB₄O₇:Tm,Na dozimetresinin ışıma eğrisi analizi yapıldı. Analiz sonucunda bu dozimetrenin ışıma eğrisinin üç tane pikten meydana geldiği gözlemlendi ve bunlara ait E, s ve b parametreleri belirlendi.

Bu çalışma sonucunda hazırlanmış olan bilgisayar programı, içice geçmiş piklerden oluşmuş ve birinci, ikinci ve genel dereceye sahip tüm ışıma eğrilerinin analizlerine olanak sağlamıştır.

KAYNAKÇA

- [1] McKeever, S.W.S., 1985, Thermoluminescence of Solids. Cambridge University Press, London.
- [2] Vij, D.R., 1998, Luminescence of Solids, Plenum Pres, New York.
- [3] McKeever, S.W.S., Moscovitch, M., Townsend, P.D., 1995, Thernoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses, Nuclear Technology Publishing, Kent.
- [4] Pagonis, V., Kitis, G., Furetta, C., 2006, Numerical and Practical Exercises in Thermoluminescence, Springer Pres, New York.
- [5] Furetta, C. and Kitis, G., 2004, Review Models in Thermoluminescence, Journal of Materials Science, 39: 2277-2294pp.
- [6] Ege, A. (Türkler), Ekdal, E., Karali, T. and Can, N., 2007a, Determination of Thermoluminescence Kinetic Parameters Of Li₂B₄O₇: Cu, Ag, P, Radiation Measurements, 42, 1280- 1284pp.
- [7] Ege, A. (Türkler), Ekdal, E., Karali, T., Can, N. and Proki'c, M., 2007b, Effect of heating rate on kinetic parameters of β-irradiated Li₂B₄O₇: Cu, Ag, P in TSL measurements. Measurement Science and Technology, 18: 889–892pp.
- [8] Furetta, C. and Weng, P.S., 1998, Operational thermoluminescence dosimetry, World Scientific, Singapore, River Edge, N.J.
- [9] Chen, R., 1969a, Glow Curves with General Order Kinetics, Journal of Electrochemical Society, 16: 1254-1257pp.
- [10] Chen, R. and McKeever, S.W.S, 1997, Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena : Singapore: World Scientific.
- [11] Gartia, R.K., Ingotombi, S.T., Singh, S.G., and Mazmudar, P.S., 1991, Journal of Applied Physics :D, 24: 65.
- [12] Chen, R., 1969b, On the Calculation of Activation Energies and Frequency Factors from Glow Curves, Journal of Applied Physics,40: 570-585pp.

- [13] Halperin, A. and Braner, A.A., 1960, , Physics Reviews. 117:408.
- [14] Prokic´, M., 2002. Dosimetric Characteristics of Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P solid TL detectors. Radiation Protection and Dosimetry 100, 265-268pp.
- [15] Karali, T., Townsend, P.D., Prokic, M. and Rowlands, A.P., 1999, Comparison of TL spectra of co-doped dosimetric materials, Radiation Protection Dosimetry, 84: 281–284 pp.

ÖZGEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Soyadı, adı	:TÜRKLER, Levent
Uyruğu	:T.C.
Doğum tarihi ve yeri	:29.04.1972, İzmir
E-mail	:levent.turkler@ege.edu.tr.

Eğitim

Derece	Eğitim Birimi	Mezuniyet
Lisans	Gazi Üniversitesi/T.E.F. Elektrik Bölümü	1994
Lise	Bergama EML	1989
Ortaokul	Bergama Lisesi	1986
İlköğretim	Hürriyet İlköğretim Okulu	1983

İş Deneyimi

Yıl	Görev	Yer	Kurum
1994-1995	Öğretmen	Çanakkale	Yenice Ç.P.L.
1996-1998	Öğretmen	İzmir	Aliağa Ç.P.L.
1999-2005	Elektrik Bölüm Şefi	İzmir	Aliağa M.E.T.E.M.
2005-	Öğr.Gör.	Bergama MYO	Ege Üniversitesi

Yabancı Dil

İngilizce