CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ * FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

YENİ TL DOZİMETRELERİNİN LÜMİNESANS TEKNİĞİ KULLANILARAK İNCELENMESİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Esra TARI

Anabilim Dalı: Fizik Bölümü

Programı: Katıhal Fiziği

MANİSA 2009

CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ * FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

YENİ TL DOZİMETRELERİNİN LÜMİNESANS TEKNİĞİ KULLANILARAK İNCELENMESİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ Esra TARI

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih: 23 Ocak 2009

Tezin Savunulduğu Tarih: 25 Aralık 2008

Tez Danışmanı : Prof. Dr. Nurdoğan CAN Diğer Jüri Üyeleri : Yrd. Doç.Dr. Yüksel KARABULUT Yrd. Doç.Dr. Müslüm Murat SAC

MANİSA 2009

İÇİNDEKİLER LİSTESİ

Sayfa No

İÇİNDEKİLER	iii
SEMBOL LISTESI	iv
ŞEKİL LİSTESİ	v
ÇİZELGE LİSTESİ	vi
KISALTMALAR LİSTESİ	vii
TEŞEKKÜR	viii
ÖZET	ix
ABSTRACT	x
1. GİRİŞ	1
2. GENEL BİLGİLER	2
3. GEREÇ ve YÖNTEM	8
4. BULGULAR	21
4.1 İzotermal Bozunma Metodu (ID)	21
4.2. T _m -T _{stop} yöntemi	23
4.3. Pik Şekli Metodu (PS)	24
5. TARTIŞMA	26
6. SONUÇ ve ÖNERİLER	
7. KAYNAKLAR	29
ÖZGEÇMİŞ	

SEMBOL LİSTESİ

Li ₂ O	LİTYUM OKSİT
B ₂ 0 ₃	BORİK ASIT
Mg_2SO_4	MAGNEZYUM SULFAT
CaSO	KALSİYUM SÜLFAT
Са	KALSİYUM
Ва	BARYUM
AL ₂ O ₃	ALÜMİNYUM OKSİT
BeO	BERİLYUM OKSİT
Si0 ₂	SILIKON DIOKSIT
CaF ₂	KALSİYUM FLORİT
Li ₂ B ₄ O ₇	LİTYUM BORAT
Li	LİTYUM
Р	FOSFOR
К	POTASYUM
MN	MANGANEZ
AG	GÜMÜŞ
CU	BAKIR

ŞEKİL LİSTESİ

<u>Sayfa No</u>

Şekil 3.1. a-b. RA'94 TLD Reader-Analyser	8
Şekil 3.2. SR90/Y90 TLD ışınlama sisteminin (a) önden ve (b) arkadan görünüşü. (c)	
lşınlama sisteminde aynı anda 50 adet örneğin ışınlanmasını sağlayan taşıyıc	ม12
Şekil 3.3. TLD okuyucunun basit bir diyagramı	13
Şekil 3.4. KG-1 filtresinin geçirgenlik spektrumu	14
Şekil 3.5. T _M 'nin Isıtma hızıyla değişimi	15
Şekil 3.6. Tek bir TL piki için ω , τ ve δ parametreleri	19
Şekil 4.1 1 dakika boyunca ⁹⁰ Sr- ⁹⁰ Y kaynağı ile ışınlandıktan sonra elde edilen	
$Li_2B_4O_7$:Cu,Ag,P TL'nin parıldama eğrisi.	21
Şekil 4.2 446 K deki parıldama eğrisi için $Li_2B_4O_7$:Cu,Ag,P dozimetresinin izotermal	
bozunma eğrisi	22
Şekil 4.3. Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P dozimetresinin parıldama eğrisinin 446 K de 1/T ye	
karşı Ln [m (T)] grafiği	23
Şekil 4.4. Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P dozimetresinin ana pikinin 1 Ks ⁻¹ lik ısıtma hızları ile elde	
edilen T_m - T_{stop} eğrisi. T_{stop} sıcaklığı her bir deney için 3 K lık adımlarla	
arttırılmıştır.	24
Şekil 4.5. Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P dozimetresinim parıldama eğrisinin GCD analizleri	25

ÇİZELGE LİSTESİ

<u>Sayfa No</u>

Çizelge 2.1. Bazı anahtar TL malzemelerin (dozimetreler) karakteristikleri	3
Çizelge 5.1 İki yöntemle elde edilen $Li_2B_4O_7$:Cu,Ag,P dozimetresinin ana pikinin	
kinetik parametreleri	27

KISALTMALAR LİSTESİ

TLD	TERMOLUÜMİNESANS DOZİMETRE
TL	TERMOLÜMİNESANS
PS	PİK ŞEKLİ METHODU
⁹⁰ SR	SİTRONTİYUM 90
TSL	TERMAL UYARIMLI LÜMİNESANS
PMT	FOTO ÇOĞALTICI TÜP
ICRP	ULUSLAR ARASI RADYASYON GÜVENLİĞİ KOMİSYONU
ID	İZOTEMAL BOZUNMA
S	FREKANS FAKTORU
eV	ELEKTRON VOLT

TEŞEKKÜR

Tezi hazırlarken her aşamada yardımlarını esirgemeyen Sayın Hocam Prof. Dr. Nurdoğan CAN'a, hayatım boyunca beni destekleyen aileme, sonsuz teşekkürler ederim.

Esra TARI Ocak 2009

ÖZET

YENİ TL DOZİMETRELERİNİN LÜMİNESANS TEKNİĞİ KULLANILARAK İNCELENMESİ

Yeni hazırlanmış doku eşdeğerli, yüksek duyarlılıklı Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetrelerinin kinetik parametreleri hesaplanmıştır. β -ışınlamasından sonra Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P numunelerinin termolüminesans parıldama eğrileri 1 Ks⁻¹ ısıtma hızı ile yaklaşık 384 K ve 446 K de pikler göstermiştir. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P nin 446 K deki ana piki ile ilişkili olan aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) izotermal bozunma (ID) ve pik şekli (PS) yöntemi ile belirlenmiştir. ID ve PS yöntemi ile elde edilen aktivasyon enerjileri 1.12 ve 1.13 eV (ortalama) olarak hesaplanmıştır. Her iki yöntemle elde edilen frekans faktörleri 61x10¹¹ s⁻¹ ve 3.53x10¹¹ s⁻¹ (ortalama)dir. Her iki yöntemle elde edilen sonuçlar karşılaştırılmış ve tartışılmıştır.

ABSTRACT

ASSESSMENT OF THE NEW TLD DOSIMETERS BY LUMINESCENCE TECHNIQUE

The kinetic parameters of a newly prepared tissue-equivalent, highly sensitive thermoluminescent detector, $Li_2B_4O_7$:Cu,Ag,P of sintered pellets have been calculated. Thermoluminescence (TL) glow curves of $Li_2B_4O_7$:Cu,Ag,P samples after β -irradiation showed peaks at about 384 K and 446 K with a heating rate of 1 Ks⁻¹. The kinetic parameters, namely activation energy (E) and frequency factor (s) associated with the main glow peak (446 K) of $Li_2B_4O_7$:Cu,Ag,P have been determined using isothermal decay (ID) and peak shape (PS) methods. The activation energies obtained by ID and PS method are calculated to be 1.12 and 1.13 eV (mean), respectively. The frequency factors obtained by both methods are 7.61x10¹¹ s⁻¹ and 3.53x10¹¹ s⁻¹ (mean), respectively. Results obtained using both methods are compared and discussed.

1. GİRİŞ

lşıma tekniklerinin kullanım alanlarından bazıları kişisel ve çevre dozimetrisidir. Kişisel dozimetrinin öncelikli amacı rutin çalışma süresince kişilerin maruz kaldığı radyasyon dozunun gözlenmesidir. Bu gibi bir izleme yardımıyla reaktör çalışanları, hastane radyoterapi teknisyenlerinin maruz kaldığı dozun güvenli limitler içinde sınırlandırılması istenmektedir. Bu limitler Uluslararası Radyasyon güvenliği Komisyonu (ICRP) gibi düzenleyici ajansların tavsiyelerine dayanmaktadır. Rutin izlenmenin yanı sıra, kişisel dozimetrinin alanı radyasyon kazalarının neden olduğu soğurulan dozların belirlenmesini de içermektedir.

Son yıllarda, sağlık, endüstri ve politik komiteler yapay radyasyon salınımının potansiyel çevresel etkileri hakkında halkın gösterdiği artan ilginin farkına varmışlardır. Gün geçtikçe nükleer güç istasyonlarından gaz radyonüklidlerin kaçışı, düşük-düzeyli atık yönetimi, nükleer yakıtların yeniden işlenmesi, nükleer güç istasyonları kazaları ve nükleer güç endüstrisi ile ilişkili diğer olay ve aktiviteler, bu konunun çevre üzerindeki olası zararlı etkilerinin halkın arasında yayılmasına neden olmuştur. Bunların sonucunda salınan radyasyonun sürekli izlenmesi endüstrileşmiş ülkelerde önemli konu olmuştur. Bu sürekli radyasyon izlenmesi kavramı TLD kullanımını getirmiştir. Bu amaç için kullanılan TLD'lerin özellikleri kişisel dozimetre için kullanılandan farklıdır. Çevresel doz ölçümlerinde en önemli dozimetrik özellik TLD'nin uzun sürelerde kararlılığını korumasıdır.

Termolüminesans (TL) yöntemi kullanılarak bir termolüminesans dozimetrenin (TLD) kinetik derecesi (b), aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktöründen (s) oluşan tuzaklanma parametrelerinin hesaplanması, malzemenin kinetik karakterizasyonu ve daha etkin dozimetrelerin üretim çalışmaları açısından çok önemli olabilmektedir. Bu çalışmada çevresel radyasyon ve personel dozimetri alanında kullanıları çeşitli TLD'lerin kinetik parametrelerinin incelenmesi amaçlanmaktadır. TL tekniği kullanılarak TLD malzemelerin kinetik parametreleri çeşitli ısıtma hızları metodu (Various Heating Rates), Pik şekli (Peak Shape), İzotermal lüminesans bozunma (Isothermal Luminescence Decay) metotlarından dozimetrelere uyan metotlar kullanılarak araştırılmıştır. Ayrıca genel derece kinetik denklemine göre yazılan bir program kullanılarak parıldama eğrisinin analizi yapılması ve bunun dozimetrelerden elde edilen parıldama eğrisine uyumundan yararlanarak piklerin analizinin yapılmıştır. Bu değerler bilgisayar ortamında incelenerek deneysel veri ile matematiksel verinin karşılaştırılması yapılmıştır.

2. GENEL BİLGİLER

Termolüminesans (TL) dosimetresi başarılı uygulamalarından dolayı son 30 senedir aktif olarak geliştirilmiştir. Bunlar arasında, en yaygın olanı iyonize radyasyon kaynakları civarında çalışan personelin aldığı radyasyonun takip edilmesidir. Çünkü çalışan personelin bulunduğu ortamdaki radyasyonun takip edilmesi son derece önemlidir. Son yıllarda, TL dozimetresinin radyasyon terapisinde kullanım büyüyen bir trend göstermiştir.

Yukarıda sözü edilen TL dosimetresinin başarılı uygulamaları iyonize radyasyonun TL dedektörlerinde kullanılan malzemelerin araştırılması, geliştirilmesi ve analizinde öncü olmaktadır. Termolüminesans dosimetrik malzemelerin kullanımı ve özellikleri ile ilgili geniş bir literatür ve bu konuda kitaplar mevcuttur [1-4] Bazı araştırmacılar TL dozimetresi için malzeme seçimi ve gelişimi için genel prensipler ortaya koymuştur [5-8]. Yeni malzemeler geliştirilmiş ve lüminesans özellikleri aktif olarak incelenmiş olmasına rağmen günümüzde bunlar özelliğini kaybetmemiştir. Bununla beraber, bazı bağlayıcı bir takım gereksinimler ticari TL dozimetre vardır. Bu koşulları maddeler halinde kısaca vermek yayarlı olacaktır.

 Lüminesans şiddetinin soğurulan doz ile lineer olduğu geniş bir aralık. Çoğu malzemelerde lineer aralık yüksek dozlarda TL şiddetinin lineer üstü ve doymasıyla (bozunma) sınırlıdır. Yararlı aralık lineer doz bağlılığı ile tayin edilir.

 Yüksek duyarlılık yani soğurulan doz başına yüksek bir TL sinyali. Yüksek duyarlılık kişisel ve tıbbi dozimetreler de ve keza çevresel radyasyonun izlenmesinde son derece önemlidir.

• TL cevabının gelen radyasonun enerjisine olan bağlılığının düşük olması. Gerekirse, enerji bağlılığı metalik filtreler yardımıyla kısmi olarak engellenebilir.

Düşük solma (fading), yani uzunca bir süre dozimetrik bilgiyi depolaya bilme yeteneği

• Basit TL eğrisi (bir izole pikli). Birkaç pik mevcut ise dozimetre ısıtma protokolü karmaşık bir hal alır.

 Lüminesans spektrumu fotoçoğaltıcı tüpün maksimum spektral duyarlılığı ile uyuşmalıdır.

 TL dozimetre malzemesi mekanik olarak güçlü, kimyasal olarak iner ve radyasyona dirençli olmalıdır. Genel olarak tüm bunlar yüksek kaliteli TL dozimetrelerinde aranılan özelliklerdir. Çoğunlukla olduğu gibi tüm bu koşulları yerine getiren dozimetrelerin yapımı oldukça zordur, özellikle düşük solma (fading) koşulu gerçekleştirilmesi en zor olanların başında yer alır.

Günümüzde, özellikleri TL doizmetri gereksinimlerine göre incelenen birkaç malzeme grubunu ayırt etmek olasıdır. Bu malzemeler alkali ve toprak alkali malzemelerdir. Bunlara örnek olarak LiF ve CaF₂ verilebilir. Bir sonraki sülfatlar (MgSO₄, CaSO₄) As sülfatlar (A=Mg, Sr, Ca, Ba) ve Al₂O₃, BeO, SiO₂ oksitlerdir.

Ticari dozimetreler LiF, CaF₂ ve Al₂O₃ kullanılarak dizayn edilmiştir. Tarihsel olarak bakıldığında, ilk temel TL malzemesi LiF:Ti, Mg (TLD-100) dür. Bunların özellikleri hala geniş ölçüde çalışılmaktadır. Bu malzemedeki özellik onun doku eşdeğerinin Z_{eff}=8.04 olmasıdır. Bu personel dozimetreleri için önemli bir faktördür. Bu temel TL dozimetrelerinin temel karakteristikleri geniş kullanılabilir bir menzili, küçük dozlara duyarlılığı ve sınırlı bir solmasının olmasıdır. Bazı dozimetrelerin hangi özelikleri taşıdığı bir çizelge halinde göstermek karşılaştırma yapmak amacı ile yararlı olacaktır.

Malzeme	Dozimetre türü	Kullanılabilir aralık	Termal solma
			(fading)
LiF:Mg,Ti	TLD-100	10μGy-10Gy	Yılda %5-10
LiF:Mg,Cu,P	TLD-100H	1μGy-20Gy	Yılda %3
⁶ LiF:Mg, Ti	TLD-600	10µGy-20Gy	İhmal edilebilir
⁶ LiF:Mg, Cu, P	TLD-600H	Nötron duyarlılığı 1µGy-20Gy	İhmal edilebilir
CaF ₂ :Dy	TLD-200	0.1µGy-10Gy	2 haftada toplam
			%16
CaF ₂ :Mn	TLD-400	0.1µGy-100Gy	3 ayda toplam %15
Al ₂ O ₃ :C	TLD-500	0.05µGy-10Gy	Yılda %3

Çizelge 2.1. Bazı anahtar TL malzemelerin (dozimetreler) karakteristikleri

Çizelge 2.1 duyarlılığı en yüksek dozimetre ile (LiF:Mg, Cu, P) ve yüksek duyarlılıklı (CaF₂:Dy, CaF₂:Mn, Al₂O₃:C) dozimetrelerin temel TLD-100 dozimetresine göre ayırt edilebileceğini gösterir. Ticari TL dozimetrelerin çoğunluğu düşük bir solma (fading) değerine sahiptir (yıllık %5 aşmaz). Bunların içinde sadece CaF₂ in aylık solması %25 kadar yüksek bir değerdedir [9]. Ticari lüminesans dozimetrelerinin spektrumu 380-480 nm de bir maksimum emisyon gösterir. Bu aralık yaygın bir fotoçoğaltıcı tüpün spektral aralığına karşılık gelir.

Dozimetrik lüminesans piki 180-260 °C de bir maksimum vermektedir. Ayrıca LiF-tabanlı dozimetreleri ⁶Li izotopu ile zenginleştirerek nötronlara duyarlı hale getirmek olasıdır.

Böylece ticari dozimetreler TL dozimetrik malzemeler için önceden sözü edilen gereksinimlerin çoğunu karşılamaktadır. Bunun bir istisnai durumu TL eğrisinin şeklidir. LiF tabanlı dozimetreler basit bir TL eğrisi sağlamakta başarısızlardır. Örneğin, LiF:Ti,Mg nın TL eğrisi en azından 6 tane pik içerir [10]. Genellikle, 5. pik (T_m=210 °C) dozimetrik ölçümler için kullanılır. TL eğrisindeki çok sayıdaki pik dozimetrelerin ısıtılmasını karmaşık hale getirir. Isıtma işlemi sığ tuzakların boşaltılması için ön ısıtmayı derin tuzakların boşaltılması için de ilave olarak yüksek sıcaklıkta bir ısıtılmayı içermelidir. Radyasyone en duyarlı olan CaF₂:Mn ve Al₂O₃:C en basit bir TL eğrisi gösterir. Bu dozimetrelerin ısıtılması son derece basittir ve TL pikinin sıcaklık aralığı üzerindeki mevcut artışla lineer bir ısıtma içerir.

Ticari TL dozimetrelerin başarılı bir şekilde geliştirilmesi verimli malzemelerin geliştirilmesi ve seçilmesi için bazı genel ilkeleri ortaya koymak için analiz edilmelidir. Lüminesansın basit band modelinden lüminesans uyartılma merkezlerini oluşturan elektron tuzakları yeterince büyük enerji derinliğine sahipse solmanın (fading) küçük olması gerekir. Parıldama pikinin maksimum sıcaklığı (180-260 °C) nispeten derin merkezlere karşılık gelir (E_a=0.8-1.2eV). Böylece küçük solma gereksinimi geniş band aralıklı dielektrikler arasında TL dozimetrik malzemelerine bakmamıza yol açar. E_g yasaklanmış aralığın genişliğinin elektron boşluk (e-h) çifti oluşumu için gerekli E_{eh}= β E_g enerjisini tayin ettiği bilinmektedir. Burada β >1 katsayısı malzemeye bağlıdır [11]. Tipik olarak TL dozimetresinde kullanılan malzemeler (LiF, CaF', Al2O3) yarı iletken sintilatörler ile karşılaştırıldığında (GaTe , ZnS) [6-7] e-h çiftlerinin yüksek oluşum enerji ile karakterize edilir. Küçük dozları detekte etme gereksinimi TL malzemelerin içsel verimliliğini değerlendirmek için onu gerekli kılar [5]. η_i içsel verimlilik ışıma altında soğurulan enerjinin görünür ışığa dönüşümünü karakterize eder. Sonunda, radyasyona maruz kaldıktan sonra yayınlanan fotonların sayısı olan Y (phMeV⁻¹) lüminesans verimini belirler.

Daha önce ışımanın ilk sonucu olarak e-h çiftlerinin oluştuğundan söz edilmişti. Daha sonra yük taşıyıcılar ısıtılır ve tuzaklarda yakalanır. Tuzaklanan yük taşıyıcılar soğurulan doz hakkında bilgi verir. Yük taşıyıcılar tuzaklarda kaybolmaksızın çok uzunca bir süre orada kalabilmelidirler. Okuma işlemi bir takım seri prosesleri başlatır. Bunlar tekrar tuzaklanma, yük taşıyıcıların lüminesans merkezlerine transportu, uyartılması ve taban haline değişimi, malzemeden fotonların açığa çıkması olarak sıralanabilir. Tüm bu prosesler birimden daha düşük olan uygun bir verimlilik faktörü ile tanımlanır. İçsel verimlilik η_i bireysel proseslerin verimlilik faktörlerinin çarpanı olarak tanımlanır. Burada belirtilmelidir ki bazı yük taşıyıcıların tekrar birleşimi ışıyıcı değildir. η_i ve Y nin deneysel tayini yayınlanan tanecik ve soğurulan dozun dikkatli hesaplamalarını içeren karmaşık bir problemdir. Bu problem bazı TL dozimetrik malzemelerin η_i değeri ve buna karşılık gelen ışık değeri Y için başarılı bir şekilde çözülmüştür [5]. Işık

verimlerine göre, malzemeler aşağıdaki şekilde düzenlenebilmektedir: LiF:Ti, Mg (180 (29); LiF:Mg, Cu,P (330 (40); CaF₂:Dy (7200 (30); CaF₂Ti (8400(500); Al₂O₃:C (15300(600). (içsel verimliliği LiF:Mg da %1.7x10⁻², Al₂O₃:C de %84x10⁻² dir.

Duyarlı TL malzemelerde yüksek verim için sorumlu mekanizmayı analiz etmek gereklidir. Detaylarına girmeksizin, TL dozimetresinin bazı etkin malzemelerin anyon örgüsünün Fmerkezlerini oluşturan kusurlar içerdiğinden söz etmek yeterlidir. Alkali halojen ve alkali-toprak metallerin optik ve lüminesans özelliklerindeki F-merkezlerinin rolü dozimetrik malzemelerin rollerini de içerek şekilde geniş bir şekilde literatürde tartışılmıştır [12-13]. Kristallerdeki anyon eksikliğini artırmaya yönelik çalışmalardan sonra alüminyum oksitin TL dozimetresi içersinde en duyarlı malzeme olduğu söylenebilir [14-16]. Bu koşullar altında oluşturulan oksijen boşlukları elektronları yakalar ve ışıma altında F ve F⁺ merkezleri oluşur. F-merkezlerinin varlığı soğurulan doz artıkça optiksel soğurma bandlarının büyümesiyle ortaya konulabilir. Enerji terimlerinde derin tuzaklama merkezlerinin olmasından dolayı F-merkezleri çok uzun bir zaman boyunca tuzaklanmış yük taşıyıcılarını muhafaza edebilir ve bundan dolayı dozimetrelerde az bir solma oluşabilir. Muhtemelen, F-merkezleri oksijen boşluklarından oluşan toplam kusurların bir kısmıdır ve safsızlıklar kristallerde mevcuttur. Safsızlıklar F-merkezine F-merkezine yakın boşluk merkezlerini oluştururlar. Termal uyartılma boyunca açığa çıkan boşluklar uyartılma ve lüminesansa yol açan F-merkezli elektronlarla tekrar birleşir. Eksitonların duyarlı TL dozimetrelerinde mevcut olduğu ve F-merkezlerine bağlı eksitonların oluşturulması için koşulların olması gerektiği belirtmek önemlidir. Bu durumda F-merkezi uyartılması için iki kanal vardır; F-merkezi elektronların thermal olarak aktive olmuş boşluklar ile tekrar birleşmesi ve bağlı eksitonların disentegrasyonudur. F ve F⁺ merkezlerine bağlı eksitonların Al₂O₃:C nin lüminesans özelliklerinin oluşumunda rol aldıkları araştırmalarda ortaya konmuştur [17]. Bu tartışmadan duyarlı TL malzemelerin yüksek ışık verimliliğinin etkin tuzaklanma-tuzakların boşaltılması ve F-merkezlerine benzer tuzaklama merkezleri içeren uyartılma işlemlerinden kaynaklandığı ortaya konulmuştur.

Geliştirilen yeni TL dozimetri malzemelerinin özellikleri optiksel soğurma, lüminesans spektrometresi, elektroparamanyetik rezonans ve parıldama eğrilerinin bilgisayar desteği ile dekonvülasyonu yardımıyla araştırılmaktadır. Ön ısıtma, yüksek sıcaklık tavlaması ve malzemenin başlangıçta radyasyona verdiği tepki oldukça ilgi çekicidir [18-19]. Daha fazla ilgi hem teroik hem de pratik bakımdan önemli olan dozimetrelerin süperlineerliğine verilmektedir. Bu TL dozimetrik malzemelerin çoğunluğunun genel bir özelliğidir. Çünkü bu malzemelerdeki TL verimi Dⁿ soğurulan doz ile orantılıdır. Burada n≥1 dir. Doz karakteristiğinin lineer olmaması özellikle yüksek dozlarda söylenir. Süperlineerliği açıklayan birkaç teori vardır ve bilinen TL dozimetreleri için bu olayın aydınlığa kavuşmasında oldukça yeterlidir. Bu teorilerin bazıları yüksek dozlara maruz bırakılan malzemedeki iz/kusur etkileşmelerini göz önüne alır [20]. Diğer

teorilerde, süperlineerlik tuzaklama merkezlerinin ve tekrar birleşmelerinin farklı kombinasyonlarında açığa çıkan olaylardan kaynaklandığı düşünülmektedir [21]. Yüksek verimli malzemeler üzerine araştırmalar deva etmektedir. Yeni tür bileşikleri temsil eden AIN seramiklerin TL özellikleri üzerine çalışmalar da gerçekleştirilmektedir. Eşit dozlarda bu seramiğin TL verimi en duyarlı Al₂O₃:C dozimetresinin TL veriminden çoğu kez daha büyüktür [22]. Bununla beraber, şimdiye kadar son derece yüksek solma (fading) pratik uygulamalar için AIN-tabanlı dozimetrelerin gelişimini önlemiştir.

Bu çalışmada kullandığımız Li₂B₄O₇ tabanlı fosforlar bir kaç on yıldır araştırma ve uygulamalarda kullanılmaktadır [24-25]. Tavlama prosedürüne cevapları, parıldama eğrisinin basitliği, nem ve solma (fading) etkisi, ışığa duyarlılığı ve foton doz cevabı önemli dozimetrik özellikler araştırılmaktadır [26]. Li₂B₄O₇ TL dozimetreleri özellikle radyasyon dozimetri uygulamalarında etkin olarak radyasyon terapi ve klinik uygulamalarında kullanılmaktadır. Bu malzemenin doku eşedeğeri 7.3 olup bu değer yumuşak biyolojik dokuların değeri olan 7.4 e oldukça yakındır. Bu durumda bu malzemeleri radyasyon tedavisinde kullanılan foton enerjisinden bağımsız ölçümler için uygun hale getirir.

Katkılandırılmış Li₂B₄O₇ (LBO) kristaller de etkin sintilatörler olarak ilgi çekicidir. Mn ile katkılandırılan lityum borat radyasyon doz ölçümleri için oluşturulan ilk fosforlardandır. Ancak Mn burada düşük bir TL şiddetine neden olur. Malesef Mn katkısından TL emisyonu 600 nm dedir ve çoğu fotoçoğaltıcı tüpün ideal dalga boyu bölgesinden çok uzaktadır. Bunun üzerine Li₂B₄O₇ TLD tozlarına Cu ilavesi yapılarak emisyon bandının PM tüpün dah uygun bir spektral aralığına kaydırma imkanı yaratılmış olacaktır. Bu aralık ta ~400 nm den 460 nm kadar olan bir aralıktır. Bununla birlikte hala yine de rutin dozimetrik uygulamalarda bu malzemenin kullanılmasında aşılması gereken problemler vardır. Bu malzemenin hazırlanması için farklı yöntemler geliştirilmiştir ve farklı TL karakteristikleri elde edilmiştir. Örneğin parıldama eğrisinin şekli, TL duyarlılığı, lineerlik vb [24].

Cu, In; Cu, In, Ag; Mg, Cu, P gibi farklı dopantlarla katkılandırılmış Li₂B₄O₇ daha iyi dozimetrik karakteristikli TLD malzemeleri oluşturmak için üretilmeye başlanmıştır. Bu dozimetreler TLD-100 e benzer bir duyarlılık gösterirken TL dozimetreleri olarak daha iyi bir doku eşdeğerine sahiptirler. Buna ilave olarak katkılı lityum borat kristaller büyük nötron yakalama tesir kesitine sahip Li ve B varlığından dolayı nötron deteksiyonu için yeni malzeme olarak bir potansiyele sahiptir. Böylece etkin nötron yakalama beklenir. LBO düşük etkin atom numarası ve düşük malzeme yoğunluğundan dolayı gamma ışını tabii fon deteksiyonu için düşük bir verimliliğe sahip olacaktır.

Termolüminesans dozimetreler ışıma yapan cihazlar veya maddelerden gelen kişisel radyasyon dozunu değerlendirmede en etkili araçlardan bir tanesidir. Soğurulan dozu en iyi bir şekilde ölçebilmek için dozimetre malzemesi ışınlanan ortam olarak benzer bir cevaba sahip olmalıdır. TLD in performansı lineerlik, doze aralığı, enerji cevabı, tekrarlanabilirlik, depolanan bilginin kararlılığı ve izotropi gibi özellikleri hesaba katmak suretiyle değerlendirilir.

Yalıtıcıların yapılarında mevcut bulunan gerek doğal olarak oluşan gerekse de yapay olarak yaratılan nokta kusurlar yasaklanmış banttaki elektronik halleri oluştururlar. TL olayının anlaşılması bu kusur yapılarının karakterizasyonuna bağlıdır. TL malzemeleri yük taşıyıcıları serbest kaldığında bir veya daha fazla pikli parıldama eğrisi gösterirler [26]. Bu parıldama eğrisinin boyutu ve şekli E kinetik parametresi (tuzağın aktivasyon enerjisi) ve s frekans faktörü ve tuzaklanan elektronların sayısı ile tanımlanır [27].

TL olayında kullanılan dozimetrelerin karakteristikleri kinetik parametrelerle ilişkilidir ve bu parametreler kantitatif olarak tuzaklanan ve yayınlanan merkezleri tanımlar. Kinetik parametrelerin detaylı çalışmaları dozimetrik uygulamalar için TL mekanizması hakkında değerli bilgiler verir [28]. Termolüminesans malzemenin güvenilir bir dozimetrik çalışması iyi bir kinetik parameter bilgisine dayandırılır. Örneğin; ışımadan sonra malzemede depolanan dozimetrik bilginin kaybı yasak aralık içersindeki tuzaklanma seviyelerine güçlü bir şekilde bağlıdır.

Personel dozimetresinde dozimetrik malzemenin doku eşdeğer olması arzu edilen bir durumdur. İyonize radyasyona maruz kalan yumuşak biyolojik dokuda soğurulan doz malzeme doku eşdeğer ise yani Z_{eff} = 7.42 ise kesin olrak tayin edilebilir [23-25]. Bu çalışmada Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dosimeters leri kullanılmıştır.

Çalışmanın amacı hem bu proje ile satın alınan TL sisitemini laboratuarımıza kazandırmak hem de Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinin ID ve PS yöntemleri kullanılarak malzememizin fiziksel karakteristiklerini (aktivasyon enerjisi E (ev), s frekans faktörü (s⁻¹). Yapılan literature taramasının sonucunda bu yeni üretilen dozimetrede bu tür bir çalışma ilk defa yapılmaktadır.

3. GEREÇ ve YÖNTEM

Termolüminesans (TL) metodu kullanılarak bazı TLD malzemelerin fiziksel özelliğinin belirlenmesinde de önemli olan kinetik parametrelerin farklı metotlar kullanılarak hesaplanması amacıyla hazırlanan bu projede malzemelerin TL spektrumlarını almak için RA'94 TLD READER-ANALYSER (Şekil 3.1) ve TL ölçümleri öncesi malzemelerin ışınlanması için Sr90/Y90 TLD Irradiator (Şekil 3.2) satın alınmıştır.



Şekil 3.1. a-b. RA'94 TLD Reader-Analyser

- 1 LCD 4 haneli ekran
- 2 Çalıştırma düğmeleri
- 3 İnert gaz akışı ayarları için kullanılan rotametre
- 4 Isıtma levhası, kontrol ışık kaynağı ve ısıtma güç birimi içeren çekmece
- 5 Mod kontrolü ve programlama anahtarları
- 6 Isitma levhasi
- 11 Ana güç ON/OFF düğmesi
- 12 Topraklanmış ana kablo
- 13 Güç kaynağı soğutma fanı
- 14 İner gaz girişi için
- 15 Paralel CENTRONICS ara birim bağlantısı
- 16 Seri RS232 ara birim bağlantısı

RA'94 TLD Reader-Analyser farklı fosforlardaki TL olaylarının incelenmesi ve toz veya küçük pellet şeklindeki tüm TL malzemeleri ile radyasyon dozunun ölçümü için dizayn edilmiştir. Bunların üstesinden gelmek için RA94 TLD Reader-Analyser ya el ile kontrol edilerek READER olarak ya da bir bilgisayarla birlikte programlanmış kontrol parametreleri ile READER-ANALYSER olarak çalıştırılabilir. İsıtılan TL malzemelerinden çıkan ışık sinyali uygun bir şekilde seçilmiş PM ile ölçülür. PM in çıkış akımı akım-puls dönüştürücüsünde standart pulslara dönüştürülür. Sisteme verleştirilmiş olan kalibrasyon ışık kaynağı sistemin hassasiyetini kolayca ve otomatik olarak sabit bir seviyeye ayarlama imkanı sağlar. READER modunda TL malzemelerinin özel bir ısıtma sistemi uygulanır ve bu şekilde ısıtma sıcaklığı üç farklı adımda arttırılır. Bu sistemin amacı sadece seçilen bir sıcaklıktaki TL sinyalini okumak ve başlangıçta daha sonraki kullanım için TL malzemesini hazırlamaktır. Her bir adımdaki sıcaklık ve zaman önce LiF:Mg,Ti için programlanır. TL sonucu (puls sayısı) ve sıcaklık sistemin ön kısmında bulunan LCD ekranda görülür ve paralel CENTRONICS çıkışı ile doğrudan bir yazıcıya veya RS232 seri zaman uyumsuz bir ara birim sayesinde bir PC bilgisayara gönderilebilir. ANALYSER modunda ısıtma levhasının sıcaklığı önceden programlanmış bir hızla lineer olarak artar ve sayısal hale getirilen ışıma eğrisi bilgisayara kaydedilir. Pulsların toplam sayısı ve sıcaklık LCD ekranda da görülür. Sistem termoelektrik sistemin hassasiyetinin kararlılığını sağlamak için bir soğutucu, TL malzemelerinin düşük şiddetli sinyalleri için inert gaz akış devresi ve karanlık akımı azaltmak için otomatik olarak kontrol edilen PM karanlık akım kompansasyonu içermektedir.

Isıtma levhaları için kullanılan özel bir platin alaşım çoklu ısıtma devrelerinden sonra kararmaz. Yüksek hassasiyetli düşük TL şiddetlerinin ölçülmesi için, %0.1 den daha az oksijen içeren sıkıştırılmış inert gaz (nitrojen veya argon) tüpü gerekir. Bu amaçla sisteme bir azot tüpü bağlanmıştır. Gaz akışı cihazın ön kısmında bulunan göstergeden kontrol edilebilmektedir.

Temel Özellikler

1. Duyarlık: Referans ışık kaynağı ile programlanabilir

- 1. Hassasiyet: ± %2 S.D. (bir pelletin multiple sonucu için)
- 2. Kararlılığı: 8 saat çalışması boyunca \pm %2 den daha iyi
- 3. Okuma zamanı: READER modunda : 3-180 s

ANALYSER modunda: 25-4000 s

XREADER modunda : max toplam zaman 45 s

4. Üç Adımlı Isıtma: 20-400 °C arasında ayarlanabilir sıcaklıklar

Her bir döngü zamanı 1-60 s arasındadır.

- 5. Max. Isıtma Sıcaklığı: 400 °C ye kadar ayarlanabilir.
- 6. Lineer Isitma Hizi: Saniyede 0.5-10 (6) °C arasında ayarlanabilir.
- 7. Veri Çıkışı: LCD ekran, Paralel CENTRONICS çıkış (yazıcıya)

Seri RS-232 (bilgisayara)

- 8. Ölçüm Aralığı: Elle ayarlanabilir modda 7
- 9. Yüksek Güç Kaynağı: Otomatik ayarlama
- 10. Isıtma Levhası: Dayanıklı ve sağlam platin alaşım
- 11. TL Dedektör Büyüklüğü: 12 mm den küçük
- 12. Güç Kaynağı Gerilimi: 230 V / 60 Hz
- 13. Güç Tüketimi: max 0 V A
- **14.** Ortam Sıcaklığı: 10-28 °C (Güneş ışığına maruz bırakmayınız ve herhangi bir

ısıtıcının yakınına yerleştirmeyiniz)

- **15. Boyutları:** 365x155x372 mm
- 16. Ağırlığı: Yaklaşık olarak 14 kg.



SR90/Y90 TLD IŞINLAMA SİSTEMİ

(a)



(b)



(c)

Şekil 3.2. SR90/Y90 TLD ışınlama sisteminin (a) önden ve (b) arkadan görünüşü. (c) lşınlama sisteminde aynı anda 50 adet örneğin ışınlanmasını sağlayan taşıyıcı.

Teknik Özellikler

- 1. Model: Sr90/Y90 TLD Irradiator Models 2210
- 2. Kapasite: Disk başına 50 tek örnek veya 2,3,4 element içeren 5 kart
- 3. Kaynak: 90Sr/Y90
- 4. Kaynak Aktivitesi: 33 MBq (0.9mCi)
- **5. Doz/Dönme:** 44 μGy
- 6. Max.Kalibrasyon Faktörü: 10⁶-1
- 7. Tekrarlanabilirlik: 10 cm uzaklıkta <µGy
- 8. Voltaj: 230V/50 Hz 115V/60 Hz
- 9. Mikro Sigorta: 125 mA (220 V) 250 mA (115V)
- 10. Pil: Lityum pil

11. Boyutları: 260 mm x 155 mm x 265 mm

12. Ağırlığı: 9.5 kg

Temel olarak TLD okuyucu sistemler örneğin ısıtıldığı, ısıtma süresince medya gelen ışımanın belirlenip toplandığı, elektronik olarak ışıma verilerinin aktarıldığı ve görüntülenerek kaydedildiği kısımlardan meydana gelmektedir (Şekil 3.3).



Şekil 3.3. TLD okuyucunun basit bir diyagramı.

Bu sistemde örnek tablası tek bir örnek için tasarlanmıştır. Isıtma işlemi için K tipi ısıl çift (termocouple) kullanılmıştır. Sistem ile örnekler 50 °C'den 400 °C'ye kadar ısıtılabilmektedir. Sistemde meydana gelen ışıma EMI 9235QA markalı foto çoğaltıcı tüp (PMT) kullanılarak belirlenmektedir. Bu PMT 400 nm'de maksimum dedeksiyon verimine sahiptir. Çalışmamızda kullanılan TL dozimetreler ve sediment örneklerinden elde edilen kuvars mineralleri bu dalga boyu civarında ışıma verdikleri için bu PMT çalışma için uygundur. PM tübün önüne siyah cisim ışıması olarak adlandırılan ve yüksek sıcaklıklarda oluşan ışıma etkisini en aza indirmek için Schott KG-1 filtre konulmuştur. Şekilde 3.4 de bu filtreye ait geçirgenlik spektrumu görülmektedir. Ayrıca sistemde PM tübe çok yüksek şiddette ışıma gelmesi durumunda tüpün korunması için firma tarafından nötral density filtre konulmuştur.



Şekil 3.4. KG-1 filtresinin geçirgenlik spektrumu

Termal uyarımlı lüminesans (TSL), kristale verilen radyasyon enerjisinin, kristal ısıtıldığında görünür ve/veya kızılötesi bölgede ışıma olarak yayımlanması olayıdır. Bazı kristallerin TSL özellik göstermelerinin temel nedeni, kristal içi yapı bozuklukları veya kristal içine yabancı atomların ilave edilmesidir. TSL şiddeti, maddenin maruz kaldığı radyasyon miktarı (dozu) sonucunda biriken toplam enerjinin ve bu enerjinin birikmesi için geçen sürenin dolaylı bir ölçüsüdür. TSL sürecinde, dopant olarak adlandırılan safsızlıklar tarafından oluşturulan yük taşıyıcı tuzaklar kullanılır. Yük taşıyıcılar bu tuzaklardan salındığında TSL materyali bir veya daha fazla pikli bir ışıma eğrisi gösterir. Işıma pikinin şekli ve büyüklüğü tuzağın aktivasyon enerjisi E, frekans faktörü s ve kinetik derecesi b gibi tuzak parametreleri ile tanımlanır.

Çalışırken veya tedavi esnasında radyasyona maruz kalan kişilerin aldıkları dozun belirlenmesi için çeşitli dozimetreler kullanılmaktadır. TLD'ler

- Tekrar kullanılabilmeleri
- Lineer olmaları
- Küçük boyutları sayesinde kolaylıkla kullanılmaları

gibi özelikleri nedeniyle son yıllarda film, kalem gibi dozimetrelere alternatif olarak kullanılmaya başlanmıştır.

Termolüminesans özelliğe sahip malzemeler yasak bant aralığında tuzak adı verilen yarı kararlı enerji düzeylerine sahiptirler. Bu tuzakların iletkenlik veya değerlik bandına olan uzaklıkları tuzak enerjisi (E) olarak adlandırılır. Ayrıca bu tuzaklara yakalanmış olan elektron veya boşlukların bu tuzaklardan kaçma olasılığı frekans faktörü adı verilen s parametresi ile

ilişkilidir. Bir malzemenin kinetik karakterizasyonu öncelikle malzemeden elde edilen ışıma eğrisinin şekline ve eğrinin pik sıcaklıklarına bağlıdır. Bu parametrelerin belirlenmesine yönelik çalışmamızda kullanılan metotlar hakkında kısa bir bilgi aşağıda sunulmuştur.

Çeşitli İsıtma Hızlarına Bağlı Analiz Metotları

Lineer 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 3.5'de görülür.



Şekil 3.5. 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. Bu metoda göre tuzak enerjisi aşağıdaki ifadeden yararlanarak elde edilebilir.

$$E = k \frac{T_{\rm M1} T_{\rm M2}}{T_{\rm M1} - T_{\rm M2}} \ln \left[\frac{\beta_1}{\beta_2} \left(\frac{T_{\rm M2}}{T_{\rm M1}} \right)^2 \right]$$
(3.1)

Bu metot ile T_M 1°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.

$$\ln\left(\frac{T_{\rm M}^2}{\beta}\right) = \frac{E}{kT_{\rm M}} + \ln\left(\frac{E}{sk}\right). \tag{3.2}$$

Bu metotta 1/kT'ye karşı $\ln(T_{M}^{2}/\beta)$ nin grafiği çizilir ve elde edilen doğrunun eğimden E ve kesitinden $\ln(E/sk)$ elde edilir.

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

$$\ln\left[I_{\rm M}^{b-1}\left(\frac{T_{\rm M}^2}{\beta}\right)^b\right] = \frac{E}{kT_{\rm M}} + c \tag{3.3}$$

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.

$$\ln\left[I_{\rm M}\left(\frac{T_{\rm M}^2}{\beta}\right)^2\right] = \frac{E}{kT_{\rm M}} + c.$$
(3.4)

b=1 için T_M sıcaklığında tuzaklanan elektronların başlangıç konsantrasyonu n₀'dan bağımsız olduğu için, bu metot sadece b'nin birden farklı olduğunda yararlıdır.

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

$$\left(\frac{\beta}{T_{\rm M}^2}\right) \cong \exp\left(-\frac{E}{kT_{\rm M}}\right) \left(\frac{ks}{E}\right) \left[1 + (b-1)\,\Delta_{\rm M}\right]$$
(3.5)

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_M'ye karşı ln($\beta/T_{\rm M}^2$)'nin grafiği eğim -E olan bir düz doğru oluşturur.

Gartia ve arkadaşları tarafından iki ısıtma hızının kullanıldığı farklı bir metot da önerilmiştir. 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 I_M 'nin değişiminden çok daha hızlı bir değişime sahip olan β ile I_M 'nin değişimine dayanmasıdır. Genel derece ifadesi kullanıldığında

$$E = \frac{kT_{m1}T_{m2}}{T_{m1} - T_{m2}} \ln \frac{I_{m1}}{I_{m2}}.$$
(3.6)

elde edilir.

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

Chen ve Winer, sıcaklığa bağımlı bir ön üstel faktör s (s, T^{α} ile orantılıdır) örneğinde, 1/ kT_M'ye karşı ln(T_M²/ β) nin grafiğinin gerçek aktivasyon enerjisi E yerine *E* + αkT_{M} eğimini veren düz bir çizgi meydana getirdiğini göstermişlerdir.

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.

İzotermal Lüminesans Bozunma Metodu (ILD)

Sabit bir T sıcaklığında zamana göre lüminesansın şiddetinin değişiminin kaydedilmesine dayanmaktadır [30-31].

Lüminesans şiddetindeki değişim

$$I = -\left(\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t}\right) = ns \exp\left(-\frac{E}{kT}\right),\tag{3.7}$$

Burada I lüminesans şiddetini, n tuzaklanmış elektronların sayısını, s frekans faktörünü, E tuzak enerjisini, T sıcaklığı ve k da Boltzmann sabitini göstermektedir.

ILD metodu için bu ifadenin çözümü

$$I(t) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-st \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]$$
(3.8)

$$\operatorname{Ln}[I(t)] = -\left[s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]t + \left[\operatorname{Ln}(n_0 s) - \frac{E}{kT}\right]$$
(3.9)

Eğer lüminesans bozumu birinci mertebeden ise Ln[*I* (t)] zamana göre değişimden elde edilen grafik lineer çıkar. Seçilen sıcaklık için bu eğrinin eğimi aşağıdaki şekilde ifade edilir.

$$m = s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{3.10}$$

veya

$$\operatorname{Ln}[m(T)] = -\frac{E}{kT} + \operatorname{Ln}(s). \tag{3.11}$$

Bu ifadeden yararlanarak ışıma eğrisinin yükselen kısmında belirlenen üç sıcaklık için lüminesans bozunumları kaydedilerek kullanılan malzemenin incelenen lüminesans ışıma pikine ait tuzak enerjisi ve frekans faktörü hesaplanır.

Pik Şekli Metodu (Peak Shape Method)

Bu metotta pik üzerinde üç nokta alınır. Maksimum sıcaklık T_m ve düşük ve yüksek yarı yoğunluk sıcaklıkları T_1 ve T_2 (Şekil 3.4) Chen E, s ve b nin üç parametre kullanılarak $\omega=T_2-T_1$, $\tau=T_m-T_1$ ve $\delta=T_2-T_m$ hesaplanabileceğini bulmuştur. Kinetik derece b, $\mu'=\delta/\omega$ nın monotonik fonksiyonudur [32]. Bu şekilleri kullanarak b değerleri bulunabilir. Aktivasyon enerjisi ise

$$E_{\alpha} = c_{\varepsilon} \left(\frac{kT_m^2}{\alpha}\right) - b_{\alpha} \left(2kT_m\right)$$
(3.12)

eşitliğinden yararlanarak bulunabilir.

Burada; $\alpha~$ = $\delta,\,\tau$, and ω ve

$$c_{\tau} = 1.51 + 3.0 (\mu'_{g} - 0.42) \qquad b_{\tau} = 1.58 + 4.2 (\mu'_{g} - 0.42)$$

$$c_{\delta} = 0.976 + 7.3 (\mu'_{g} - 0.42) \qquad b_{\delta} = 0 \qquad (3.13)$$

$$c_{\omega} = 2.52 + 10.2 (\mu'_{g} - 0.42) \qquad b_{\omega} = 1$$

şeklinde verilmektedir.

Frekans faktörü

$$s = \frac{\beta E}{kT_m^2} \exp(\frac{E}{kT_m}) \quad \left[1 + (b-1)\Delta_m\right]^{-1}$$
(3.14)

kullanılarak bulunur. Burada β ısıtma hızıdır ve $\Delta_m=2kT_m/E$



Şekil 3.6. Tek bir TL piki için ω , τ ve δ parametreleri

Çalışmada kullanılan TLD'ler her ölçüm öncesi literatürde belirtilen tavlama işlemlerine maruz bırakılmıştır. Daha sonra iyonlaştırıcı radyasyon kaynağı (⁹⁰Sr) kullanılarak her bir ölçüm için aynı dozlara maruz bırakılarak yukarıda bahsedilen çeşitli ısıtma hızları, Pik şekli, izotermal lüminesans bozunma metotlarından dozimetreler için uygun olanları seçilecek ve dozimetrelere ait piklerin kinetik parametreleri belirlenmiştir.

Satın alınan RA'94 Reader/Analyser Cihazının kalibrasyonu için öncelikle standart prosedür uygulamasına geçilmeden önce bizim için avantaj olan başka bir yöntem uygulanmıştır. Benzer bir cihaz Ege Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsün de bulunmaktadır. Harhsaw 3500 TLD sistemi olan bu cihaz ile farklı dozimeterler kullanılarak alınan ölçümler aynı dozimetrelerle aynı koşullar altında mevcut sistemde alınmış ve hata sınırları içersinde aynı sonuçlar elde edilmiştir.

Numune Hazırlanması

Bakır bilinen en etkin lüminesans aktivatörlerinden biridir. Çeşitli deneysel lüminesans sonuçları bazı inorganik sistemlerde aktivator veya ko-aktivatör olarak Cu-Ag-P içeren kusur kompleksinin lüminesans şiddetinde bir artış ortaya koyduğunu gösterir. Katı Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P fosforlar nispeten karmaşık bir TL malzemesidir. Parıldama eğrisinin şekilleri ve TL şiddetleri hazırlama yöntemi, mevcut Li₂O-B₂O₃ sistemin fazları, kullanılan temel kimyasal safsızlık ve activator ve ko-aktivatör konsantrasyonları ile etkileşimi son derece kuvvetlidir. Tuzak ve lüminesans merkezleri açıkça çok bileşenli geniş kusur merkezlerinin varlığından kaynaklandığından dolayı bu tür değişimler kaçınılmazdır.

 $Li_2B_4O_7$ örnekleri Belgrad taki Nükleer Bilimler Enstitsünde Dr. Prokic tarafından hazırlanmıştır. Kullanılan peletlerin çapı 4 mm, kalınlığı 0.9 mm dir. Kullanılan malzemelerin tanecik boyutları 75 ile 200 µm arasındadır. Sinterleme işlemi hava ortamında 850 °C sıcaklıkta yapılmıştır. Yüksek nem gibi çevresel faktörler uygulanan yöntem de dozimetreleri etkilememektedir. $Li_2B_4O_7$ örneğindeki Cu, Ag ve P aktivatörlerinin konsantrasyonu 0.03 wt%, 0.3 wt% ve 0.8 wt% dir.

4. BULGULAR

Çalışmada kullanılan Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresine yukarıda sözü edildiği gibi farklı yöntemler uygulanmış ve kinetik parametreleri hesaplanmıştır. Aşağıda başlıklar halinde uygulanan yöntemlerle ilgili elde edilen sonuçlar verilmiştir.

4.1 İzotermal Bozunma Metodu (ID)

Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P örneğinin parıldama eğrisi 1 dakika boyunca ⁹⁰Sr-⁹⁰Y kaynağı ile ışınlandıktan sonra kaydedilmiştir (Şekil 4.1). Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL malzemesinin parıldama eğrisi ayrılmış iki tane termolümineans pikinden oluşmaktadır. Bunlardan bir tanesi 446 K de bulunan ana pik diğeri de 384 K de bulunan düşük sıcaklık pikidir. Her iki pik arasındaki şiddet oranı yaklaşık 4 civarındadır.



Şekil 4.1 1 dakika boyunca ⁹⁰Sr-⁹⁰Y kaynağı ile ışınlandıktan sonra elde edilen Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P TL'nin parıldama eğrisi.

Kullanılacak yöntemler kısmında kısmen detaylı olarak açıklanan izotermal bozunma metodu (ID) kullanılarak Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinin 446 K de bulunan ana pikinin kinetik parametrelerini belirlemek için ana pik sıcaklığının altında dört sıcaklık (423, 428, 433 ve 438 K) seçilmiştir. Kinetik mertebesi zamana karşı [(I₀/I)^{(b-1)/b}-1] eğrisine farklı b değerleri uygulanarak 1.6 olarak bulunmuştur. Bu durumda Şekil 8 de görüldüğü gibi bir değişim elde edilmiştir.



Şekil 4.2 446 K deki parıldama eğrisi için Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinin izotermal bozunma eğrisi.

Her bir sıcaklık için Şekil 4.2 deki doğruların eğimleri hesaplanmış ve Ln [m(T)] ye karşı 1/T grafiğinin logoritmik değerleri Şekil 4.3 de görüldüğü gibi çizilmiştir. Aktivasyon enerjisi bu doğrunun eğiminden hesaplanmış ve 1.12 ± 0.01 eV olarak bulunmuştur. 3.11 nolu denklem kullanılarak frekans faktörü (7.61±0.08)x10¹¹ s⁻¹ olarak bulunmuştur.



Şekil 4.3. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinin parıldama eğrisinin 446 K de 1/T ye karşı Ln [m (T)] grafiği.

4.2. T_m-T_{stop} yöntemi

Karmaşık TL parılma eğrileri için, bu yöntem TL parıldama eğrisindeki piklerin yaklaşık sayısını tespit etmek için kullanılır. Işınlamadan sonra, $T_m -T_{stop}$ analizleri Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinin ana pikine uygulanmıştır. Analiz boyunca T_{stop} değeri once 370 K e set edilmiş daha sonra 3 K lik adımlarla 470 K e çıkartılmıştır. Kaydedilen parıldama eğrileri ilk pikin T_m değerinin T_{stop} un fonksiyonu olarak çizilmek üzere kullanılmıştır. Bu durumda elde edilen grafik Şekil 4.4 de verilmiştir. T_m - T_{stop} eğrisi T_m 435 K in yukarısında çok daha hızlı olarak değiştiğini göstermektedir. Ayrıca yine şekilden açıkça görülmektedir ki 447 ve 461 K de bir plato söz konusudur.



Şekil 4.4. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinin ana pikinin 1 Ks⁻¹ lik ısıtma hızları ile elde edilen T_m-T_{stop} eğrisi. T_{stop} sıcaklığı her bir deney için 3 K lık adımlarla arttırılmıştır.

4.3. Pik Şekli Metodu (PS)

GCD (Glow curve deconvulation) analizleri elde edilen $T_m - T_{stop}$ sonuçları kullanılarak temizlenmiş ana pik üzerinde uygulanmıştır. Şekil 4.5 de gösterilen gerçek ve izole edilmiş pikler elde edilmiştir. Daha sonra pik şekli metodu (PS) GCD analizi yoluyla belirlenmiş ve temizlenmiş olan ana pike uygulandı. Bu uygulamanın sonucu olarak da tuzak enerjisi (E), frekans faktörü (s) ve simetri faktörü (3.12-3.14) denklemleri kullanılarak belirlenmiştir. Simetri faktörü (μ'_g), ortalama tuzak enerjisi ve frekans faktörü 0.46, 1.13 ±0.003 eV ve (3.53±0.43)x10¹¹ s⁻¹ olarak bulunmuştur. GCD ve PS yöntemleri pikin şekli ve FWHM gibi özelliklerine bağlıdır. Sonuç olarak PS yöntemi GCD ile elde edilenlere benzer sonuçlar verir.



Şekil 4.5. Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinim parıldama eğrisinin GCD analizleri

5. TARTIŞMA

Kinetik mertebesi, tuzak derinliği enerjisi ve frekans faktörü gibi tuzak parametrelerinin fosforun TL özellikleri üzerinde kayda değer bir etkisi vardır. Bu nedenle bu parametrelerin bilinmesi fosfordaki TL olayının anlaşılması için son derece önemlidir ve deneysel olarak bu parametrelerin tespit edilmesinde birçok yaklaşımlar vardır [33]. TL parametrelerinin elde edilmesi için geliştirilen ısıtma hızı, eğri altındaki alan ölçümü, parıldama eğrisi şekli vb faktörlere bağlı olan TL parametrelerinin elde edilmesi için geliştirilen çeşitli analiz metodları vardır.

Çalışmada kullandığımız izotermal bozunma E ve s nin belirlenmesi için genel bir tekniktir. Önceden uyartılmış olan TL malzemesi belirli bir sabit sıcaklığa hızlı bir şekilde ısıtılır ve zamanın fonksiyonu olarak üstel bir şekilde bozunan ışık yayınlaması (yani fosferesans) izlenir. TL parıldama eğrisinin kinetic parametreleri Manam ve Sharma tarafından belirlenen yöntem uygulanarak belirlenir. Bu yöntemde üç veya dört sıcaklık parıldama pikinin maksimum sıcaklığı altında seçilmiştir. Işımadan sonra, örnek seçilen sıcaklığa kadar ısıtılır ve sabit sıcaklıkta zamanla TL yayınlamasının değişiminin kaydedilmesi sağlanır. Bu yöntem çalışmada kullandığımız Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresi için diğer seçilen sıcaklıklar için tekrarlanmıştır.

Kullanılan diğer metod olan T_m-T_{stop} yönteminde TL piklerinin konumları T_{stop} arttıkça gözlenir. Bu yöntem de karmaşık parıldama eğrisi içinde piklerin sayıları ve konumları tespit edilmektedir. Başlangıçta ışınlanan malzeme parıldam eğrisinin düşük sıcaklık kuyruğundaki konumuna karşılık gelen T_{stop} sıcaklığına lineer bir hızda ısıtılır. Elde edilen eğrideki her bir düz bölgeye karşılık gelen sıcaklıklar bu sıcaklıklardaki bireysel pikin varlığını ortaya koyar.

Son olarak kullanılan PS metoduna gelince, PS metodu karmaşık parıldama eğrilerine karşılık gelen malzemelerde doğru sonuçlar vermemektedir. Kullandığımız Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetreside böyle pikler verdiğinden bu yöntem uygulanmadan önce T_m -T_{stop} yöntemi kullandığımız malzemenin parıldama eğrilerinin konumlarını ve sayılarını elde etmek için kullanılmıştır. Ön ısıtma 390 K de tutulmuştur ve böylece ana pike düşük sıcaklığın katkısı olabildiğince elimine edilmiştir. Daha sonra da bu elde edilen temiz piklerde her birini ayırmak için de yukarıda ayrıntıları verilen GCD yönetmi uygulanmıştır.

Yukarıdaki yöntemler kullanılarak elde edilen tüm tuzak enerji ve frekans faktörleri Çizelge 1.1 de verilmiştir. Çizelgeden görüldüğü üzere PS ve ID yöntemleri kullanılarak elde edilen sonuçlar arasında iyi bir uyuşum vardır. PS yöntemi ile elde edilen E değerleri ısıtıcı şerit ve numunenin yayınlayıcı yüzeyi arasındaki sıcaklık gradyenti ile etkilenmeyecektir. Çünkü 3.12

PS	Aktivasyon Enerjisi (E)	(eV)	Frekans Faktörü (s)	(s ⁻¹)
	E_δ	1.13	${f S}_\delta$	3.42x10 ¹¹
Yöntemi	E,	1.13	Sτ	3.17x10 ¹¹
	E_{ω}	1.14	\mathbf{S}_{ω}	4.01x10 ¹¹
ID Yöntemi	E	1.12±0.01	S	(7.61± 0.08)x10 ¹¹

Çizelge 5.1 İki yöntemle elde edilen Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresinin ana pikinin kinetik parametreleri

denklemdeki $T_{m}^{2}/lpha$ terimi ısıtma hızının fonksiyonu olarak değişmez. Üstelik T_m üzerindeki

termal gradyentin etkisi α üzerine benzer etki ile iptal edilir [34].

6. SONUÇ ve ÖNERİLER

Öncelikle bu proje çerçevesinde satın aldığımız RA'94 TLD Reader-Analyser başarılı bir şekilde laboratuarımıza kurulmuş ve çalışmada kullanabilir hale getirilmiştir. Çalışmada kullandığımız Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P dozimetresi için PS ve ID metodları arasında değerlendirilen kinetik parametrelerde iyi bir uyuşum olduğu gösterilmiştir. Bu nedenle hem PS ve ID metodlarının hem de ölçülen parametrelerin güvenilir ve kesin olduğunu söyleyebiliriz. Yeni geliştirilen bu tür dozimetrelerle yapılan ilk çalışma olması amacıyla da ayrıca önem taşımaktadır. Bu çalışmaya ilave olarak diğer yöntemlerde aynı dozimetrelere uygulanarak tam bir karşılaştırma yapma durumu söz konusu olabilir. Yine ayrıca Cu, Ag ve P un farklı oranlarda karıştırılarak elde edilecek yeni dozimetrelerin analizleri yapılabilir.

Günümüzde tüm dünyada, insan ve çevresinin radyasyon güvenliğinin sağlanması ve radyasyonla çalışanların kişisel doz değerlerinin tespitinde TLD kullanımı gittikçe artmaktadır. Bununla birlikte TL dozimetreler altyapı ve yetişmiş insan gücündeki yetersizlikler nedeniyle ülkemizde henüz yaygın olarak kullanılamamaktadır. Son yıllarda tıp fakültelerinde, özel hastane ve kliniklerde gittikçe yaygın hale gelen radyasyon uygulamaları nedeniyle hem çalışan personelin hem de hastaların alacakları radyasyon dozunun minimuma (radyasyondan koruma kuruluşlarının müsaade edilebilir olarak kabul ettikleri dozların altına) indirilmesi ile ilgili araştırmaların yapılmasını zorunlu kılmaktadır. Ülkemizde bu konularda araştırma yapan grupların sayısı oldukça kısıtlıdır ve bu konunun yaygınlaştırılmasına acil ihtiyaç vardır.

7. KAYNAKLAR

- Azorin, J., Furretta, C., Scaco, A., 1993. Preparation and Properties of Thermoluminescent Materials. *Phys. Status Solidi A* 138 9–46.
- [2] McKeever, S.W.S., Moscovitch, M., Townsend, P.D., 1995 Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses. Nucl. Tech. Pub., Ashford.
- [3] Spaeth, J.-M., 2001 Recent Developments in X-Ray Storage Phosphor Materials Radiat. Meas. 33 527–532.
- [4] Botter-Jensen L., McKeever S.M.S., Wintle A.G., 2003 Optically Stimulated Luminescence Dosimetry. Elsevier, Amsterdam.
- [5] Meijvogel, B., van der Burg, B., Bos, A.J.J., 1996 Intrinsic Efficiencies of TL Materials. *Radiat. Prot. Dosim.* 65 (1–4) 117–122.
- [6] Bos A.J.J., 2001 On The Energy Conversion in Thermoluminescence Dosimetry Materials. *Radiat. Meas.* 33 737–744.
- [7] Wieczorek, H., 2001 Physical Aspects Of Detector Design Radiat. Meas. 33541–545.
- [8] Lushchik, A., Lushchik, Ch., Kotlov, A., Kudryavtseva, I., Maaross, A., Nagirnyi, V., Vasilchenko, E., 2004 Spectral Transformers of VUV Radiation of The Basis of Wide-Dap Oxides. *Radiat. Meas* 38 747–752.
- [9] McKeever, S.W.S., Vlasov, V.K., Kulikov, O.A., Nambi, K.S.V., 1996 Thermoluminescence Applications In: Marfunin, A. (Ed.), Advanced Mineralogy: Methods and Instrumentations. Springer, Berlin, pp. 157–165.
- [10] Satinger, D., Horowitz, Y.S., Oster, L., 1999 Isothermal Decay of Isolated Peak 5 in 165 °C (15 min) Post-Irradiation Annealed LiF:Mg, Ti (TLD-100) Following Alpha Particle and Beta Ray Irradiation *Radiat. Prot. Dosim.* 84 (1–4) 67–72.
- [11] Rodnyi, P.A., Dorenbos, P., van Eijk, C.W.E., 1995 Energy Loss in Organic Scintillators. *Phys. Status Solidi B* 187 15–29.
- [12] McKeever, S.W.S., 1984 Thermoluminescence in The Alkali Halides *Radiat.Prot. Dosim.* 8 (1/2) 3–23.
- [13] Flerov V.I., Flerov A.V., 1996 The Role of F Centres in TheThermoluminescence of Lithium Fluoride. Radiat. Prot. Dosim. 65 (1–4) 105–108.
- [14] Kortov, V.S., 1985 Role of Non-Stoichiometry in Exoelection Emission of Oxides Jpn. J. Appl. Phys. 24 65–75.

- [15] Kortov, V.S., Milman, I.I., Surdo, A.I., Akselrod, M.S., Afonin, U.D., 1987 Processing Technique of The Material of The Ionizing Radiation Solid State Detector on The Oxide Aluminium Basis USSR Inventors Certificate No.1347729.
- [16] Akselrod M.S., Kortov V.S., Kravetsky D.J., Gotlib V.I., 1990. Highly Sensitive Thermoluminescence Anion-Defective -Al2O3:C Single Crystal Detectors. *Radiat. Prot. Dosim.* 32 15–20.
- [17] Surdo, A.I., Kortov, V.S., 2004 Exciton Mechanism of Energy Transfer to F-Centers in Dosimetric Corundum Crystals Radiat. Meas. 38 667–671.
- [18] Piters, T.M., Bos, A.J.J., Van der Burg, B., 1996 Effects of Annealing on Glow Peak Parameters of LiF:Mg, Ti (TLD-100) Dosimetry Material *Radiat. Prot. Dosim.* 84 (1–4) 201– 206.
- [19] Bhatt B.C., Menon S.N., Mitra R., 1999. Effect of Pre- and Postirradiation Temperature Treatments on TL Characteristics and Radiation Induced Sensitizations of Various TL Peaks in LiF TLD-He Concentration of Dopants in LiF:Mg, Cu, P. Dosimetry. 100. *Radiat. Prot. Dosim.* 84 (1–4) 175–178.
- [20] Horowitz Y.S., Nahaina S., 1999 The Unified Interaction Model Applied The Gamma Induced Supralinearity And Sensitisation of Peaks 4 and 5 in LiF:Mg, Ti (TLD-100) *Radiat. Prot. Dosim.* 84 (1–4) 29–34.
- [21] Chen R., Leung P.L., 2001 Nonlinear Dose Dependence and Dose–Rate Dependence of Optically Stimulated Luminescence and Thermoluminescence *Radiat. Meas.* 33 475–481.
- [22] Trinkler, L., Bos, A.J.J., Winkelman, P., Christiansen, N., Agersnap Larsen, N., Berzina, B., 1999 Thermally and Optically Stimulated Luminescence of Ceramics After Ionizing Irradiation AIN-Y₂O₃ Ceramics After Ionizing Irradiation *Radiat. Prot. Dosim.* 84 (1–4) 207– 210.
- [23] Kitis, G., Furetta, C., Prokic´, M., Prokic´, V., 2000. Kinetic parameters of some tissue equivalent thermoluminescence materials. J. Phys. D: Appl. Phys. 33, 1252–1262.
- [24] Furetta, C., Prokic´, M., Salamon, R., Prokic´, V., Kitis, G., 2001. Dosimetric characteristics of tissue equivalent thermoluminescence solid TL detectors based on lithium borate. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*. 456, 411-417.
- [25] Takenaga M., Yamamoto O., Yamashita T., 1980. Preparation and characteristics of Li₂B₄O₇ :Cu phosphor. *Nucl. Inst and Meth.* 175, 77.
- [26] Prokic´, M., 2002. Dosimetric Characteristics of Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P solid TL detectors. *Radiat. Prot. Dosim.* 100, 265-268.

- [27] Azorín, J., 1986. Determination of thermoluminescence parameters from glow curves I. A Review. Int. J. Radiat. Instrum. Part. D. Nucl. Tracks. 11, 3, 159–166.
- [28] Kiyak, N.G., Buluş, E., 2001. Effect of annealing temperature on determining trap depths of quartz by various heating rates method. *Radiat. Meas.* 33, 879-882.
- [29] Kitis, G., Furetta, C., Prokic', M., Prokic', V., 2000. Kinetic parameters of some tissue equivalent thermoluminescence materials. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 33, 1252–1262.
- [30] McKeever, S.W.S., 1985. Thermoluminescence of Solids. Cambridge University Press, New York.
- [31] Manam, J., Sharma, S.K., 2005. Evaluation of trapping parameters of thermally stimulated luminescence glow curves in Cu-doped Li₂B₄O₇ Phosphor. *Radiat. Phys. Chem.* 72, Issue 4, 423-427.
- [32] Chen, R., 1969. Glow curves with general order kinetics. J. Electrochem. Soc. 116, 1254-1257.
- [33] Bindi, R., Lapraz, D., Iacconi, P., Boutayeb, S., 1994. Theoretical analysis of the simultaneous detection method of thermally stimulated conductivity (TSC) and luminescence (TSL); application to an alpha -Al₂O₃ monocrystal. *J. Phys. D: Appl. Phys.* 27, 2395.
- [34] Furetta, C., Kitis, G., Kuo, J. H., Vismara, L., Weng, P. S., 1997. Imppact of non-ideal heat transfer on the determination of thermoluminescent kinetics parameters. J. Lumin. 75,341.

ÖZGEÇMİŞ

ESRA TARI

Doğum Tarihi : 28 NİSAN 1984 Doğum Yeri : İZMİR

EĞİTİMLER;

1995-2002	MİLLİ PİYANGO ANADOLU LİSESİ
2002-2006	CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ FEN-EDEBİYAT FAKÜLTESİ
	FİZİK BÖLÜMÜ
2006-2008	KATIHAL FİZİĞİ TEZLİ YÜKSEK LİSANS