# T.C. ADIYAMAN ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

## YÜKSEK LİSANS

# DOĞAL KUVARS MİNERALİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİ VE KİNETİK PARAMETRELERİNİN BELİRLENMESİ

**Raziye AKKAYA** 

FİZİK ANABİLİM DALI

ADIYAMAN

2011

Her hakkı saklıdır.

# T.C. ADIYAMAN ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

## YÜKSEK LİSANS

# DOĞAL KUVARS MİNERALİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİ VE KİNETİK PARAMETRELERİNİN BELİRLENMESİ

**Raziye AKKAYA** 

FİZİK ANABİLİM DALI

ADIYAMAN

2011

Her hakkı saklıdır.

## ÖZET YÜKSEK LİSANS TEZİ

## DOĞAL KUVARS MİNERALİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİ VE KİNETİK PARAMETRELERİN BELİRLENMESİ

Raziye AKKAYA

ADIYAMAN ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ FİZİK ANABİLİM DALI Yıl: 2011, Sayfa:72 Danışman: Doç. Dr. Mustafa TOPAKSU

Bu calısmada Hakkari civarından alınmıs doğal kuvars örneklerinin dozimetrik malzeme olarak kullanımının araştırılması amacıyla dozimetrik karakteristikleri termolüminesans yöntemi kullanılarak incelenmiş ve kinetik parametreleri hesaplanmıştır. Kuvars örneklerinin termolüminesans (TL) özelliklerinin incelenmesi sırasında 90 Sr/90 Y beta kaynağı kullanılmıştır. Yapılan çalışmada kuvarsın dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi amacıyla kuvarsın TL ışıma eğrileri üzerine etkisi, uygun tavlama sıcaklığının ve süresinin belirlenmesi, ışınlama öncesi tavlama sıcaklığının TL hassasiyetine etkisi, farklı ısıtma hızları yöntemi ile tuzak parametrelerinin hesaplanması, doz cevabı, deneyleri gerçekleştirilmiştir. Yapılan hesaplamalar sonucunda aktivasyon enerjisi ve frekans faktörünün literatürde yayınlanan değerlerle uyum içerisinde olduğu, doğal kuvars örneklerinin ~66 Gy ile ~400 Gy arasında lineer bir doz cevap eğrisine sahip olduğu görülmektedir. Sonuc olarak, bu çalışmada kullanılan doğal kuvars örneklerinin yüksek doz uygulamalarında kullanılabileceği söylenebilir.

Anahtar Kelimeler: Kuvars, Tavlama, Doz Cevabı, Termolüminesans, Beta Işını, Isıtma oranı.

#### ABSTRACT

#### MS Thesis

## THERMOLUMINESCENCE PROPERTIES OF NATURAL QUARTZ AND CALCULATION OF KINETIC PARAMETERS

Raziye AKKAYA ADIYAMAN UNIVERSITY INSTITUTE OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES DEPARTMENT OF PHYSICS Year: 2011, Page:72 Supervisor: Doç. Dr. Mustafa TOPAKSU

In this study the dosimetric characteristics of some natural quartz samples collected from Hakkari are investigated by using thermoluminescence technique for the purpose of determining the suitability of them as dosimetric materials and calculation of kinetic parameters. <sup>90</sup>Sr/<sup>90</sup>Y beta source is used to analyse the TL glow curves. In this study, various experiments have been carried out for the investigation of the dosimetric properties of quartz samples. Briefly, these experiments can be outlined as: analyzing TL glow curves of natural quartz, determining the annealing conditions, the effects of pre-irradiation annealing procedures on TL sensitivity, the investigation of the characteristics of TL glow curves obtained after annealing the samples, determination of trap parameters with the Various Heating Rate Method and the dose response. The obtained results show that trap depths and frequency factor values are consist with literature. The studied samples have linear dose responses for the absorbed doses ranging between ~66 Gy and ~400 Gy. Consequently, we examined that quartz samples can be used as dosimetric materials in high dose applications.

Keywords: Quartz, Annealing, Dose Response, Thermoluminescence, Beta Rays, Heating Rate

## TEŞEKKÜR

Bu yüksek lisans çalışması boyunca bana yardımcı olan ve yol gösteren danışmanım Doç. Dr. Mustafa TOPAKSU'ya, çalışmalarımda bana yardımcı olan Adıyaman Üniversitesi öğretim üyesi Yrd. Dr. Necmeddin NUR'a, Adıyaman Üniversitesi öğretim görevlisi Tamer DOĞAN'a, ayrıca çalışmalarımda yardımlarını esirgemeyen Çukurova Üniversitesi Fizik Bölümü doktora öğrencisi Mehmet YÜKSEL ve arkadaşlarıma teşekkür ederim.

Yüksek lisans çalışmam boyunca benden yardımlarını, maddi ve manevi desteğini esirgemeyen babam Abdullah AKKAYA'ya, annem Huriye AKKAYA ve kardeşlerime sonsuz teşekkür ederim.

# İÇİNDEKİLER

## SAYFA

ÖZ	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR	iii
İÇİNDEKİLER	iv
ŞEKİLLER DİZİNİ	vi
TABLOLAR DİZİNİ	ix
SİMGELER VE KISALTMALAR	X
1. GİRİŞ	1
2. KURAMSAL TEMELLER	4
2.1. Termolüminesans Tarihi	4
2.2. Lüminesans Olayı	5
2.3. Kristal Kusurları	7
2.3.1. İçsel veya Doğal Kusurlar	8
2.3.2. Dışsal veya Safsızlık Kusurları	9
233 İvonlaştırıcı Radvaşyonun Alkali Halojenürlerde Meydana Getirdiği	
2.5.5. Tyomaştırler Radyusyonan Arkan Hatojenarlerde Weydana Getriergi	
Kusurlar	.10
Z.S.S. Fyörindstiller Rudydsyöridil Prikari Pratojendi Federike ydana Gethalgi         Kusurlar	.10 11
<ul> <li>2.5.5. Fyöringstiner Rudydsyörian Ankan Halojenar ferde Meydana Gethalgi</li> <li>Kusurlar</li></ul>	.10 11 14
<ul> <li>2.5.5. Fyöringstiner Rudydsyörian Ankan Halojenar ferde Meydana Gethalgi Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Yönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> </ul>	.10 11 14 14
<ul> <li>2.5.5. Fyörin starfer Rudyusyörinn Ankun Hulojenur ferde Meydania Gethalgi Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Yönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.2. İkinci Derece Kinetik.</li> </ul>	.10 11 14 14 17
<ul> <li>2.5.3. Fyörid stiller Rudydsyöridi Prikur Palojendi ferde file ydana Gethalgi Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Yönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.2. İkinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.3. Genel Mertebeden Kinetik.</li> </ul>	.10 11 14 14 17 20
<ul> <li>2.5.3. Fyörid Junier Rudydsyonan Ankan Halojenan erde File yaana Gethalgi Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Yönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.2. İkinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.3. Genel Mertebeden Kinetik.</li> <li>2.6. Tuzak Parametrelerin Analiz Yöntemi.</li> </ul>	.10 11 14 14 17 20 22
<ul> <li>2.5.3. Fyörid Junier Rudydsyonan Ankan Halojenan erde Freiydana Gethalgi Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Vönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.2. İkinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.3. Genel Mertebeden Kinetik.</li> <li>2.6.1. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi.</li> </ul>	.10 11 14 14 17 20 22
<ul> <li>2.5.5. Fyöhla, inter Radyasyöhlan Ankan Hatojenarterae meydana Gethalgi Kusurlar</li></ul>	.10 11 14 14 17 20 22 22
<ul> <li>2.9.9. Fyondşin er Rudyusyonun Andan Hudsjendrierde Meydand Genergi Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Yönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.2. İkinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.3. Genel Mertebeden Kinetik.</li> <li>2.6. Tuzak Parametrelerin Analiz Yöntemi.</li> <li>2.6.1. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi.</li> <li>2.6.2. Başlangıçtaki Artış yöntemi.</li> <li>2.6.3. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayrıştırma Yöntemi</li> </ul>	.10 11 14 14 17 20 22 22 24 25
<ul> <li>2.5.5. Fyönaşını er radyasyonan rinan rina fenerice ineyadıla Generagi Kusurlar</li> <li>2.4. Termolüminesans Yönetiminin Temel Teorileri</li></ul>	.10 11 14 14 20 22 22 22 24 25 26
<ul> <li>2.5.5. Fyönköjiner rukufustyönen rukufi ru</li></ul>	.10 11 14 17 20 22 22 22 24 25 26 27
<ul> <li>2.5.5. Fyönäsiner Radyasyönän rinkan hatojenarierae integration ocentraligi Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Yönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.2. İkinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.3. Genel Mertebeden Kinetik.</li> <li>2.6.1. Farklı Istma Hızları Yöntemi.</li> <li>2.6.2. Başlangıçtaki Artış yöntemi.</li> <li>2.6.3. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayrıştırma Yöntemi</li> <li>2.6.4. İzotermal Sönüm Yöntemi.</li> <li>2.6.5. Tepe Şekli Yöntemi.</li> </ul>	.10 11 14 17 20 22 22 22 24 25 26 27 29
<ul> <li>2.9.3. Iyönlişinler Radyusyönali Anali Halojena ferde Meydalia Gendiği Kusurlar.</li> <li>2.4. Termolüminesans Vönetiminin Temel Teorileri.</li> <li>2.5. Termolüminesans Kinetikleri.</li> <li>2.5.1. Birinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.2. İkinci Derece Kinetik.</li> <li>2.5.3. Genel Mertebeden Kinetik.</li> <li>2.6. Tuzak Parametrelerin Analiz Yöntemi.</li> <li>2.6.1. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi.</li> <li>2.6.2. Başlangıçtaki Artış yöntemi.</li> <li>2.6.3. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayrıştırma Yöntemi</li> <li>2.6.4. İzotermal Sönüm Yöntemi</li> <li>2.6.5. Tepe Şekli Yöntemi.</li> <li>3. KAYNAK ÖZETLERİ</li> <li>3.1. Termolüminesans İle İlgili Önceki Çalışmalar</li> </ul>	.10 11 14 17 20 22 22 22 24 25 26 27 29 29

4. MATERYAL ve YÖNTEM	33
4.1. Materyal	33
4.1.1. Kuvars	33
4.1.2. Kuvarsın Kimyasal Yapısı	35
4.1.3.Örnek Hazırlamada Kullanılan Cihazlar	36
4.1.3.1. Firm	36
4.1.3.2. Agat Havan	37
4.1.3.3. Hassas Terazi	38
4.1.3.4. Örnek Tablası	38
4.1.3.5.Termolüminesans (TL) Ölçüm Sistemi	39
4.1.3.5.(1). Radyasyon Kaynağı	40
4.1.3.5.(2). Isitma İle Uyarım Sistemi	41
4.1.3.5.(3). Fotokatlandırıcı Tüp (PMT)	42
4.1.3.5.(4). IR ve Mavi Işık Kaynağı	43
4.1.3.5.(5). Kontrolür	43
4.2. Yöntem	44
4.2.1. Kuvars Örneğinin Hazırlanması	44
4.2.2. Kuvarsın TL Işıma Eğrilerinin Belirlenmesi	45
4.2.3. Tavlama Sıcaklığının ve Süresinin Belirlenmesi	45
4.2.4. Farklı İsıtma Hızlarının TL İşıma Eğrileri Üzerine Etkileri ve Farklı	
Isıtma Hızları Metodu İle Kinetik Parametrelerin Hesabı	46
4.2.5. Doz Cevabı	46
5. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA	47
5.1. Kuvarsın TL Işıma Eğrilerinin İncelenmesi	47
5.2. Uygun Tavlama Sıcaklığının Belirlenmesi Deneyi Sonuçları	50
5.3. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi Deneyi Sonuçları	51
5.4. Doz Cevap	59
6. SONUÇ ve ÖNERİLER	65
KAYNAKLAR	71
ÖZGEÇMİŞ	72

## ŞEKİL DİZİNİ

## SAYFA

Şekil 2.1.	İdeal bir kristalin üç boyutlu yapısı a) LiF (• Li, o F) b) CaF <sub>2</sub>
	(• Ca, o F) (Furetta ve ark. 1998)
Şekil 2.2.	İçsel kusurları bulunan gerçek bir kristalin yapısı (örneğin LiF).
	+ alkali iyon (Li <sup>+</sup> ), - halojen iyon (F <sup>-</sup> ), ⊞ alkali iyon boşluğu,
	$m egin{array}{lll} m eta$ halojen iyon boşluğu, $\oplus$ örgüye ait olmayan bir noktadaki
	alkali iyon, $\ominus$ örgüye ait olmayan bir noktadaki halojen iyon
	(Furetta ve ark. 1998)
Şekil 2.3.	LiF içerisinde Li iyonunun yerini alan Mg <sup>+2</sup> katyonu (Furetta ve
	ark. 1998)
Şekil 2.4.	(a) yerinden ayrılmış bir alkali iyon ; (b) birleşik bir yapı
	oluşturmak üzere iyonların çekimi (Furetta ve ark. 1998)
Şekil 2.5.	Gerçek bir kristalde V, V $_k$ ve V $_3$ merkezleri (Furetta ve ark.
	1998)
Şekil 2.6.	Bant modeline gore lüminesans mekanizmasının enerji
	diyagramı
Şekil 2.7.	Eşitlik 2.9'un çözümü. TM, tuzaklanmış elektronların
	başlangıçtaki yoğunluğu olan $n_0$ 'dan bağımsızdır (Furetta ve
	ark. 1998)
Şekil 2.8.	I, birinci derece kinetiğe sahip, II, ikinci dereceden kinetiğe
	sahip örnekte elde edilen tepelerin şekli. İki eğri arasındaki
	büyük fark, eğrinin alçalan kısmında görülmektedir (Furetta ve
	ark. 1998)
Şekil 2.9.	Parametreleri E=1 eV, s= $10^{12}$ s <sup>-1</sup> ,n <sub>o</sub> =N = $10^3$ m <sup>-3</sup> olan birinci ve
	ikinci mertebeden kinetiğe sahip TL ışıma eğrilerinin şematik
	olarak karşılaştırılması
Şekil 4. 1.	Kuvars örneğinin alındığı Doğu Anadolu Bölgesi
Şekil 4. 2.	Çalışmada kullanılan doğal kuvars örneği
Şekil 4. 3.	Kuvars kristalinin yapısı

Şekil 4.4.	Kuvarsın ( $\alpha$ ve $\beta$ ) kimyasal yapısı
Şekil 4.5.	Tavlama Fırını
Şekil 4.6.	Agat havan
Şekil 4.7.	Kuvars kristallerinin tartılmasında kullanılan hassas terazi
Şekil 4.8.	Kenarlıklı ve kenarlıksız diskler ile örnek tablasının görüntüsü
Şekil 4.9.	RisØ TL/OSL cihazının görünümü
Şekil 4.10.	Radyasyon kaynağı $^{90}$ Sr / $^{90}$ Y (beta kaynağı)
Şekil 4.11.	Riso TL/ OSL ölçüm cihazı ve fotokatlandırıcı tüp
Şekil 4.12.	IR ve mavi ışık kaynağının dalgaboyu-ışık şiddeti grafiği
Şekil 4.13.	Kontrolör
Şekil 5.1.	Doğal kuvarsın doğal ve fon ışıma eğrileri
Şekil 5.2.	450°C de 15 dakika tavlanıp 30 dakika (~200 Gy) beta dozu
	verilen kuvars örneğinden elde edilen TL ışıma eğrisi
Şekil 5.3.	Doğal kuvars kristalinden elde edilmiş doğal TL ışıma eğrisi ile
	450 °C'de 15 dk'lık tavlama sonrası 30 dakika beta dozu
	verilerek elde edilmiş TL eğrisinin karşılaştırılması
Şekil 5.4.	Farklı tavlama sıcaklıkları ile tavlamanın ardından 100 Gy'lik
	beta test dozu verilerek elde edilen TL ışıma eğrileri
Şekil 5.5.	Farklı tavlama sıcaklıkları ile tavlamanın ardından 200 Gy'lik
	beta test dozu verilerek elde edilen TL ışıma eğrileri
Şekil 5.6.	210 °C tepesinin tavlama sıcaklığına karşılık TL
	hassasiyetindeki değişim grafiği
Şekil 5.7.	Farklı ısıtma hızları kullanılarak elde edilen TL ışıldama eğrileri
Şekil 5.8.	Farklı dozlara karşılık tepe sıcaklıklarının (T <sub>m</sub> ) değişim grafiği
	(a) 85 °C tepesi için (b) 210 °C tepesi için
Şekil 5.9.	Düşük sıcaklık tepesi (85 °C ve 110 °C tepelerinin toplamından
	oluşan tepe) için $\ln(T_m^2/\beta)$ 'a karşılık $1/T_m$ 'nin grafiği
Şekil 5.10.	Dozimetrik tepe (210 °C tepesi) için $\ln(T_m^2/\beta)$ 'a karşılık $1/T_m$ 'nin grafiği

Şekil 5.11.	Kuvars örneğine sırasıyla 1 (0.11 Gy), 2 (0.22 Gy), 5 (0.55 Gy),	
	10 (0.66 Gy) ve 15 (1.67 Gy) saniyelik beta dozu verilerek elde	61
	edilen ışıma eğrileri	
Şekil 5.12.	Kuvars örneğine sırasıyla 0,5 (3.34 Gy), 1 (6.68 Gy), 2 (13.3	
	Gy), 5 (33.44 Gy) ve 10 (66.89 Gy) dakikalık beta dozu	
	verilerek elde edilen ışıma eğrileri	61
Şekil 5.13.	Kuvars örneğine sırasıyla 15 (100.33 Gy), 30 (200.67 Gy) ve 45	
	(301 Gy) dakikalık beta dozu verilerek elde edilen ışıma eğrileri	62
Şekil 5.14.	Kuvars örneğine sırasıyla 1 (401.34 Gy), 6 (2408.04 Gy), 12	
	(4816.08 Gy) ve 24 (9632.16 Gy) saatlik beta dozu verilerek	
	elde edilen ışıma eğrileri	
		62
Şekil 5.15.	1 saniye (0.11 Gy) ile 24 saat (9632.16 Gy) arasında beta dozu	
	verilen kuvars örneğinin doz cevap eğrisi	64

## TABLOLAR DİZİNİ

## SAYFA

Tablo 2.1.	Lüminesans olayı ve uyarılma yöntemleri	6
Tablo 5.1.	Düşük sıcaklık tepesi (85 °C ve 110 °C tepelerinin	
	toplamından oluşan tepe) için elde edilen hesaplamalar	57
Tablo 5.2.	Dozimetrik tepe (210 °C tepesi) için elde edilen hesaplamalar	57
Tablo 5.3.	Farklı ısıtma hızları yöntemi kullanılarak elde edilen $E(eV)$ ve	
	s(s) uegenen	59

## SİMGELER VE KISALTMALAR

: Alüminyum oksit					
: Karbon katkılı alüminyum oksit					
: Magnezyum katkılı alüminyum oksit					
: Magnezyum ve itriyum katkılı alüminyum oksit					
: Silisyum ve titanyum katkılı alüminyum oksit					
: Kalsiyum oksit					
: Disprosiyum katkılı kalsiyum sülfat					
: Manganez katkılı kalsiyum sülfat					
: Kalsiyum florür					
: Disprosiyum katkılı kalsiyum fluorit					
: Manganez katkılı kalsiyum fluorit					
: Bilgisayarlı Işıma Eğrisi Ayrıştırma Yöntemi (Computerized Glow					
Curve Deconvolution)					
: Her bir saniyedeki sayım					
: Krom (III) oksit					
: Bakır (II) oksit					
: Uluslararası Radyasyondan Korunma Ajansı (International					
Commission on Radiological Protection)					
: Demir (III) oksit					
: Demir (II) oksit					
: Galyum (III) oksit					
: Potasyum oksit					
: Lityum metaborat					
: Manganez katkılı lityum borat					
: Bakır katkılı lityum borat					
: Lityum florür					
: Manganez ve titanyum katkılı lityum florür					
: Magnezyum bakır ve fosfor katkılı lityum florür					
: Disporsiyum katkılı magnezyum borat					

MgB <sub>4</sub> O <sub>7</sub> :Mn	: Manganez katkılı magnezyum borat					
MgO	: Magnezyum oksit					
NaCl	: Sodyum klorür					
Na <sub>2</sub> O	: Sodyum oksit					
PbO	: Kurşun (II) oksit					
PM	: Fotokatlandırıcı					
$Sb_2O_3$	: Antimon (III) oksit					
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu					
SiO <sub>2</sub>	: Silisyum dioksit					
$SnO_2$	: Kalay (IV) oksit					
TL	: Termolüminesans					
TLD	: Termolüminesans Dozimetresi					
β	: Beta					
μ	: Mikron					
a.u.	: Keyfi birim					
b	: Kinetik mertebe					
eV	: Elektron volt					
E	: Enerji seviyesi					
Gy	: Gray					
kGy	: Kilo Gray					
k	: Boltzmann sabiti					
Κ	: Kelvin					
S	: Frekans faktörü					
Sv	: Sievert					
$T_m$	: Tepe sıcaklığı					
Ι	: Işıma şiddeti					
Z <sub>etkin</sub>	: Etkin atom numarası					

### 1. GİRİŞ

Teknolojinin ilerlemesiyle birlikte radyasyon ve radyasyon ölçümü gittikçe önemli bir hal almaktadır. Bu önemin artmasıyla birlikte yapılan çalışmalar da hız kazanmış ve pek çok alanda kullanılır hale gelmiştir. İçinde bulunduğumuz çevrede sürekli olarak radyoaktif ışınlara maruz kalmaktayız. Maruz kalınan bu radyasyon miktarının ölçümü gerek sağlık alanında gerekse fizik gibi diğer bilim dallarında önemli bir yere sahiptir. Radyasyon dozunu ölçmeye yarayan aletlere dozimetre denir. Dozimetreler, tüm radyasyon uygulama işlemlerinde doz ve doz hızının belirlenmesi amacıyla kullanılmaktadır. Lüminesans işlemi, insanların maruz kaldığı radyasyonun saptanması için radyasyon dozimetresinde ve arkeolojik eserlerin tarihlendirilmesinde kullanılmaktadır.

Termolüminesans dozimetri (TLD) belirli bir zaman aralığında radyasyon dozunu ölçmek için kullanılan cihazlardan biridir. Bu yöntemle, günümüzde radyasyon şartlarında çalışan insanların daha güvenli çalışabilmeleri için, maruz kalınan radyasyon dozlarının ölçümü yapılmaktadır. Bununla birlikte hastanelerde teşhis ve tedavi amaçlı kullanılan radyasyon kaynaklarının, nükleer ilaç üreten firmaların ve diğer nükleer uygulama yapan kuruluşların denetim, kalite kontrol ve kalibrasyon işlemleri yine TLD kullanılarak yapılmaktadır. Bu teknik yardımıyla nükleer kazalar, nükleer silah denemeleri ve nükleer silahların kullanılması sonucu çevreye yayılan radyasyonun miktarının ölçümü de yapabilmektedir.

Ayrıca termoluminesans radyasyon seviyesinin ölçülmesi ve yaş tayini için kullanılmaktadır. Termoluminesans tepesi oda sıcaklığının üzerinde genellikle 200 derecenin üzerinde gözlenen malzemeler tercih edilmektedir. Bu amaçla kullanılan malzemeler arasında Mg-Ti ile katkılandırılmış LiF; veya Mg, C, P, ile katkılandırılmış LiF; Mn veya Cu ile katkılandırılmış Li<sub>2</sub>B<sub>4</sub>O<sub>7</sub>; Dy veya Tm ile katkılandırılmış CaSO<sub>4</sub>; Tb ile katkılandırılmış Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>; ve Dy ile katkılandırılmış CaS en çok çalışılan malzemelerdir.

Uygulama alanı bu kadar geniş olan TLD konusunda bu güne kadar birçok çalışma yapılmıştır. Bu çalışmalar özellikle TLD'lerin termolüminesans (TL) özelliklerini iyileştirmeye yöneliktir. İyi bir dozimetrik malzemeden aranan bazı temel özellikler vardır. Bunlar; lineer bir doz aralığında olması, pahalı olmaması, yüksek verimlilikte bir ışık yayınımına sahip olması, çevre koşullarına dayanıklı olması, tekrarlanabilirlik özelliğinin olması, basit tuzak dağılımına sahip olması gibi özelliklerdir (Soliman ve ark. 2009). TLD malzemelerinin özeliklerinin bu şekilde geliştirilmesi bu dozimetrelerin hassasiyetini ve güvenilirliğini arttırmaktadır.

Termolüminesans dozimetre malzemesi olarak kuvars mineralleri gibi pek çok doğal malzeme incelenmiştir ve bu konu hakkında pek çok çalışma yapılmıştır. Kuvarsın çeşitli uygulamaları arasından termolüminesans (TL) dozimetresi (de Lima ve ark. 2002; Hashimoto ve ark. 1998), tarihlendirme (Huntley ve ark. 1988; McKeever 1991) ve elektronik enstrümantasyon sayılabilir. Doğal kuvars, dozimetrik materyaller arasında en çok incelenen malzemelerden biridir. Doğal kuvarsın TL ışıma eğrisi 100 °C ile 450°C arasında gözlenen birçok tepeden oluşmaktadır ( de Lima ve ark. 2002; Santos ve ark. 2001).

Bu çalışmalar termolüminesans olayının ilk defa 1663 yılında Sır Robert Böyle tarafından elmas kristalinde gözlenmesiyle başlamıştır. Sır Robert Böyle elmas kristalini ısıttığı zaman, karanlık oda da elmas kristalinin bir ışık yaydığını gözlemlemiştir.

Termolüminesansın radyasyon ölçme yeteneği, TL ışıma eğrisinin altında kalan alanın alınan radyasyon ile orantılı olması ilkesinden kaynaklanmaktadır. Bir ışınlamadan alınan enerji ile valans bandındaki elektronlar enerji kazanmakta ve tuzak seviyelerinde yakalanmaktadır. Tuzakların dolmasına radyasyondan alınan enerji neden olmaktadır. Alınan doz ise zamanla ilgilidir. Dolayısıyla termoluminesansda salınan ışık miktarı radyasyon ile orantılıdır. Hesaplanması mümkün olan bu doz miktarından, dozun alınması için geçen süreyi de hesaplamak mümkündür. Termoluminesans yardımı ile yaş tayini, özellikle C-14 yönteminin yetersiz kaldığı uzun yaşlarda iyi sonuçlar vermektedir. Bu uygulamaları hayata geçirmek için değişen doz miktarının, tavlama işleminin ve çeşitli ısıtma hızlarının ışıldama eğrisi üzerine etkilerini inceleyen araştırmalar yapılmıştır.

Bu çalışmada Doğu Anadolu bölgesinden alınan doğal kuvars örneğinin dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi amacıyla termolüminesans özelliklerinin ve kinetik parametrelerinin (tepe sayısı, tepe sıcaklığı (Tm), aktivasyon enerjisi (E), frekans faktörü (s) vs.) belirlenmesi amaçlanmıştır. Böylece bu çalışmada kullanılan doğal kuvars örneğinin dozimetrik malzeme olarak kullanılmasının uygun olup

2

olmadığı ve hangi çalışma alanında kullanılabileceği incelenmiştir. Bu çalışmalar sırasıyla; tavlanmamış kuvars kristalinin doğal TL ışıma eğrilerinin incelenmesi, tavlama sıcaklığına bağlı olarak doğal kuvarsın TL hassasiyetindeki değişimin belirlenmesi, uygun tavlama sıcaklığının belirlenmesi, Farklı Isıtma Hızları yöntemi ile tuzak parametrelerin hesaplanması (aktivasyon enerjisi, frekans faktörü vs.) ve kuvars kristalin farklı oranlardaki beta dozuna tepkisinin belirlemesidir. Bölüm 5'te yapılan deneysel çalışmalarda elde edilen sonuçlar ayrıntılı olarak verilmiştir.

#### 2. KURAMSAL TEMELLER

#### 2.1. Termolüminesans Tarihçesi

Isı uyarmalı lüminesans yöntemi olarak bilinen termolüminesans yöntemi ile ilgili ilk araştırmalar elmas, doğal mineraller ve feldispat üzerinde gerçekleştirilmiştir. Termolüminesans olayı ilk defa 1663 yılında elmas kristalinde gözlemlenmiştir.

19. yüzyılda thermolüminesans, minerallerin yapısında çeşitli nedenlerle tuzaklanmış elektronların ısıyla uyarılması olarak tanımlanmıştır. 1885 yılında Bequerel radyum ışıması altında fluorit kristalindeki TL etkisini incelemiştir (Bequerel 1885). Wiedemann ve Schmidt (1895) katot ışınları ile ışınlanmış maddelerin TL etkisini ilk olarak ortaya çıkarmışlardır. Wiedemann ve Schmidt katot ışınları, X-ışınları ve doğal radyoaktivitenin keşfi, doğal ve sentetik minerallerin TL özelliklerine olan etkilerini incelemişlerdir.

İlk ışıma tepesi Viyana'da 1922- 1923 yıllarında Przibram tarafından kaydedildi. 1922 -1923 yıllarında alkali halojenür, kalsiyum karbonat ve flörit çeşitleri radyum kaynağına ve X-ışınlarına maruz bırakıldı, lüminesans sonuçları araştırıldı fotoelektrik dedektörle ölçüldü ve kaydedildi.

1927 yılında Frish tarafından katod ışınlarına tabi tutulan NaCl kristalinde ışıma gözlenmiştir. İlk kuramsal model 1945 yılında Randall ve Wilkins tarafından yapılmış ve birinci mertebe ışımayı dikkate alan TL teorisini kurmuşlardır. Daha sonra, Garlick ve Gibson (1948) ikinci dereceden kinetik ışımayı dikkate alan TL ifadesini genişletmiştir. Bu arada çalışmalar daha çok jeolojik materyaller ve katkılanmış maddelerin dozimetrik özelliklerinin gelişimi üzerinde yoğunlaşmıştır. Sonraki yıllarda, TL yöntemi ile kayaların, toprakların, kabukların ve diğer seramik gibi materyallerin yaş tayini yapılabileceği fikirleri ortaya atılmıştır. Farrington ve arkadaşları tarafından 1953 yılında ortaya atılan bu yöntem 1960 yılında Kennedy ve Knof tarafından daha da geliştirilerek yaş tayini uygulamalarına devam edilmiştir.

1966 yılında Fleming termolüminesans tarihlendirme yönteminde uygulamak amacı ile kuvars katkı tanecikleri yöntemini ve 1967 yılında Zimmerman ince tanecik yöntemini geliştirdi. 1968 yılında Aitken ve arkadaşları termolüminesans yöntemini ilk defa jeolojik kaynaklı materyallere uygulamıştır. Günümüzde ise TL yöntemi daha da geliştirilip dozimetrik materyallerin incelenmesi ve tuzak parametrelerin belirlenmesi gibi çalışmalarla birlikte tıp alanında teşhis ve tedavide kullanılmaktadır.

### 2.2. Lüminesans Olayı

Işıldama veya Lüminesans, bazı maddelerin, ısısı değişmeksizin elektromanyetik ışınım yaymasıdır. Başka elektromanyetik ışınım kaynaklarından temel farkı, kaynağın ısısında bir değişme olmamasıdır. Bu yönüyle ışıldama, kara cisim ışımasından farklıdır, "soğuk ışık" olarak da adlandırılır. Işıldama, herhangi bir cismin dış bir kaynaktan herhangi bir şekilde aldığı enerjinin bir kısmını elektromanyetik ışınım olarak salmasıdır.

Işıldama, neon ve fluoresans lambaları, televizyon, yıldırım, kutup ışıması, ateşböcekleri gibi bazı canlılardaki organik bileşikler ve bazı sentetik boyalarda görülür. Işıldamaya yol açan enerji kaynakları, elektron akışı, elektrik ya da manyetik alan, morötesi ışınım, alfa parçacıkları salınımı şeklindedir. Bu yolla uyarılmış atomlar, kararlı hallerine dönerken dışarıya ısı ya da elektromanyetik ışınım (ya da her ikisi birden) yoluyla enerji verirler. Atomdaki bu uyarılma en dıştaki elektron kabuğunda oluşur. Belirtilen şekilde uyarılan atomun en dış elektron kabuğundaki elektron valans ya da değerlilik elektronu, bir üst enerji düzeyine yükselir. Ancak, bu enerji düzeyi kararsız olduğundan tekrar eski enerji düzeyine düşecektir. Böylece, elektronun aldığı enerjiyi geri vermesi bir foton salınımı olarak gerçekleşir.

Herhangi bir atom tarafından yayınlanan ışımanın frekansı, elektronun çekirdek çevresindeki dönüş frekansına bağlıdır. Farklı atomların dış elektron kabuğu farklı olduğu için salınan ışınımın frekansı da değişik olacaktır. Elektron çekirdeğe yakınsa dönüş frekansı artacaktır. Bunun sonucunda da yayınlanan ışımanın frekansı yüksek olacaktır. Işıldama özelliği, minerallerin değişik koşulları altında aktivatör denilen yabancı maddelerin etkileri sonucunda gelişmektedir. Işıldamanın tetikleyici enerji kaynağına göre sınıflandırılması Tablo 1'de verilmiştir.

5

Termolüminesans	İsi ile uyarılarak ışıldama oluyorsa					
Fotolüminesans	Görünür ve kızılötesi ışık ile oluşuyorsa					
Tribolüminesans	Kristallerin kırılması ve parçalanması ile oluşuyorsa					
Katodalüminesans	Katod ışınları ile oluşuyorsa					
• Elektrolüminesans	Elektrik alan uygulamasıyla oluşuyorsa					
Biolüminesans	Biyokimyasal etkileşmelerden meydana geliyorsa					
<ul> <li>Flüro ışıldama (Fluoresans) : t&lt;10<sup>-8</sup>sn</li> </ul>	Işıldama 10 <sup>-8</sup> den daha az bir zamanda ışımaya devam ederse					
<ul> <li>Fosfor ışıldama (Fosforesans) : t&gt; 10<sup>-8</sup>sn</li> </ul>	Işıldama <b>10<sup>-8</sup></b> den sonra ışıma devam ederse fosforesens adını alır.					

Tablo 2.1. Lüminesans olayı ve uyarılma yöntemleri

Işıldama ile görünür ışık yayılması (fotolüminesans) olayının gerçekleşme süresi (elektronun temel enerji düzeyine geri dönmesi için geçen süre) sınıflandırılması aşağıdaki gibidir:

- Flüro ışıldama (Fluoresans) :  $t < 10^{-8}$ sn
- Fosfor ışıldama (Fosforesans) :  $t > 10^{-8}$ sn

### 2.3. Kristal Kusurları

Termolüminesans dozimetrisi prensip olarak yalıtkanlarla ilgilenir. Çünkü, iletim bandındaki elektronlar, soğurulan radyasyon enerjisinden dolayı yükseltgenirler. Bu yalıtkanlara kübik yapıdaki LiF ve NaCl gibi alkali halojenürler örnek gösterilebilir. Bir kristal, yapısal olarak atom veya moleküllerin 3 katlı periyotlarla bir araya gelmeleri sonucu oluşur. Bir kristalin tanımlamak için öncelikle atomların veya moleküllerin bir birim hücre içindeki yerlerini belirlemek gerekir. Bir kristalin yapısını anlayabilmek için en uygun malzemeler alkali halojenürlerdir. İdeal bir kristal olan LiF ve CaF<sub>2</sub> Şekil 2.2'de gösterilmiştir.



Şekil.2.1. İdeal bir kristalin üç boyutlu yapısı a) LiF (• Li, o F) b) CaF<sub>2</sub> (• Ca, o F) (Furetta ve ark. 1998)

Gerçek bir kristal 3 tip kusura sahiptir. Bunlar; içsel veya doğal kusurlar, dışsal veya safsızlık kusurları ve iyonlaştırıcı radyasyonun alkali halojenürlerde meydana getirdiği kusurlardır.

### 2.3.1. İçsel veya Doğal kusurlar

İçsel veya doğal kusurlar şu şekilde olabilirler:

\* Boşluklar veya olması gereken yerde olmayan boşluklar ki bunlara Schottky kusurları denir. Schotty kusurları bir atom yerinden çıkarıldığı zaman meydana gelen kusurdur.

\* Araya girme veya Frenkel kusuru: Bu tür kusurlar örgüye ait olmayan bir noktaya yerleşmiş bir X atomundan meydana gelir.

\*Yerine geçme kusurları: Örneğin alkali iyonun bulunması gereken yerde bulunan halojen iyonlarının bulunması.

\* Tüm kusurların hepsinin birlikte olduğu kusurlar.

Şekil 2'de yukarıda bahsedilen kusurlar gösterilmiştir.

+	—	+	—	+	+	—	+	—	+
-	+	— Đ	+	-	-	+	—	+	—
+	-	+	_	+	+	_	+	_	+
-	+	—	+	—	-	+	—	+	_
+	—	+	—	+	+	_	+		+
– F S	+ renke chott	— I kus ky ku	+ uru ve Isuru	-	s	+ Schott	— ky ki	+ Jsuru	-

Şekil.2.2. İçsel kusurları bulunan gerçek bir kristalin yapısı (örneğin LiF). + alkali iyon (Li<sup>+</sup>), - halojen iyon (F<sup>-</sup>), <sup>⊕</sup> alkali iyon boşluğu, <sup>⊕</sup> balojen iyon boşluğu, <sup>⊕</sup> örgüye ait olmayan bir noktadaki alkali iyon, <sup>⊕</sup> örgüye ait olmayan bir noktadaki alkali iyon, <sup>⊕</sup> örgüye ait olmayan bir noktadaki alkali iyon, <sup>⊕</sup> örgüye ait olmayan bir noktadaki alkali iyon, <sup>1</sup>

### 2.3.2. Dışsal veya Safsızlık Kusurları

Dışsal veya safsızlık kusurları X kristali içerisinde bulunan Y kimyasal safsızlıkları gibi olabilirler.

Bunlar iki şekilde olabilir.

- X ve Y'den oluşan bir yapıda Y atomunun X atomunun yerine geçmesi ile meydana gelen kusurlar
- Kusursuz bir kristalde bulunan bir Y atomunun örgüye ait olmayan bir yerde bulunması ile oluşan kusurlar.

Şekil 2.3'te dışsal veya safsızlık kusuru dediğimiz kusurlar örnek olarak gösterilmiştir

+	_	+	_	+
_	+	_	+	_
+	_		_	+
_	+	\ <u>+</u> '	+	_
+	_	+	_	+
_	+	_	+	_

**Şekil 2.3.** LiF içerisinde Li iyonunun yerini alan Mg<sup>+2</sup> katyonu (Furetta ve ark. 1998)

Şekil 2.4'te kimyasal safsızlıkların oluşum mekanizması gösterilmiştir.



**Şekil.2.4.**(a) yerinden ayrılmış bir alkali iyon ; (b) birleşik bir yapı oluşturmak üzere iyonların çekimi (Furetta ve ark. 1998)

## 2.3.3. İyonlaştırıcı Radyasyonun Alkali Halojenürlerde Meydana Getirdiği Kusurlar

İyonlaştırıcı radyasyonun alkali halojenürlerde meydana getirdiği kusurlar renk merkezleri olarak adlandırılır. Örneğin, negatif iyon boşlukları yerel pozitif yük bölgeleri olarak davranırlar. Bunun sebebi kristal örgü içerisinde normalde var olan negatif bir iyonun kaybolması ve iyonları çevreleyen negatif yüklerin nötralize olmamalarıdır.

İyonlaştırıcı radyasyonun etkisiyle yerinden koparılan bir elektron kristal içerisinde serbest şekilde hareket eder. Hareket ederken Coulomb kuvvetinin etkisiyle boşluk içerisinde tuzaklanabilir ve bu merkez "F" merkezi olarak adlandırılır. Buna benzer bir durum pozitif iyon boşluğu için de geçerlidir. Bu pozitif iyon boşluğu bir deşik tuzağını temsil eder ve "V" merkezi olarak adlandırılır. Fakat bu merkezler için deneysel bir veri yoktur. Diğer değişik merkezi çeşitleri aşağıdaki gibidir.

- Bir deşik, negatif bir iyon çifti ile tuzaklandığında  $V_k$  merkezi meydana gelir.
- Bir halojen iyonunun yerini yüksüz bir halojen molekülünün almasıyla oluşan yapıya V<sub>3</sub> merkezi denir.

$$\begin{vmatrix} + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ + & - & + & - & + \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ - & & + & - & + \\ - & + & - & + & - \\ + & - & + & - & + \\ + & - & + & - & + \\ + &$$

**Şekil 2.5.** Gerçek bir kristalde V, V k ve V<sub>3</sub> merkezleri (Furetta ve ark. 1998)

### 2.4. Termolüminesans Yönteminin Temel Teorisi

Termolüminesans özelliği yarı iletken ve yalıtkanlarda görülür. Çünkü yalıtkan ve yarı iletken maddeler içlerinde ve çevrelerinde bulunan toryum, uranyum gibi radyoaktif elementlerin saldığı alfa ve beta parçacıkları ile gama enerji soğururlar ve bu enerjinin bir kısmını kristal yapılarında depo ederler. Enerji depolanması şu şekilde olur: madde içinden geçen radyasyon, yolu üzerindeki birçok atomla çarpışır. Bu sırada atomlardan elektron kopararak enerji kazanırlar. Ardından bu elektronlar atomlardaki enerji düzeylerinden daha yüksek düzeylere çıkarlar. Bu elektronların az bir kısmı maddenin kristal yapısında çeşitli nedenlerle oluşan ve tuzak denilen yerlere bağlanırken, büyük çoğunluğu kazandığı enerjiyi çok kısa bir süre içinde kaybederek tekrar düşük enerji düzeylerine dönerler, tuzağa bağlanan elektronlara 'tuzaklanan

elektronlar' denir. Bu elektronlar radyosyondan aldıkları enerjinin büyük bir kısmını geri vermediklerinden maddede enerji depolanmış olur.



Şekil 2.6. Bant modeline göre lüminesans mekanizmasının enerji diyagramı

Temel teori, yasak enerji aralığı içinde yer alan tuzak seviyelerinde elektronların tuzaklanması, ısıtma ile bu elektronların önce iletkenlik bandına çıkmaları ve daha sonra eksponansiyel bir fosforesans bozunma ile sabit sıcaklıkta rekombinasyon olarak özetlenebilir. Bu ifadeleri formüle dökecek olursak TL şiddeti,

$$I = -\frac{dn}{dt} = pn \tag{2.1}$$

Şeklinde olur.

Tuzaktaki yük taşıyıcının p geçiş olasılığı, E aktivasyon enerjisine ve sıcaklığa bağlı olarak

$$p = s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{2.2}$$

Şeklinde ifade edilebilir. Fosforun sıcaklığı,

$$\beta = \frac{dT}{dt} \tag{2.3}$$

oranında lineer olarak arttırılırsa, I ışıma şiddetinin,

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-\int_0^T s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \frac{dT}{\beta}\right]$$
(2.4)

şeklinde olduğu gösterilebilir. Tuzak seviyesinin iletkenlik bandı kenarından (boşluklar için valans bandı kenarından) olan derinliğini tayin etmek ve böylece fosforu karakterize etmek mümkündür. Burada iki önemli yaklaşım kullanılmaktadır.

1. Şiddetin başlangıçta, sıcaklığın tersi ile eksponansiyel olarak yükseldiğini varsaymak.

2. Maksimum ışıma denklemi, (2.2), (2.5) ve (2.6) denklemlerinde tanımlanan  $T_m$  sıcaklığında meydana gelmesi.

i) 
$$I = I_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
  
ii)  $Ln\left(\frac{\beta}{T_m^2}\right) = Ln\left(\frac{k.s}{E}\right) - \frac{E}{kT_m}$ 
(2.6)

### 2.5. Termolüminesans Kinetikleri

#### 2.5.1 Birinci Derece Kinetik

Termolüminesans teorisini açıklamada en önemli ilerleme Randall ve Wilkins tarafından yapılan araştırmalar sonucunda oluşmuştur. Randal ve Wilkins'e göre bir kristalde elektronların tuzaklardan kaçma olasılığı matematiksel olasılık teorilerindeki bağlantılarla ifade edilebilmektedir (Randall ve Wilkins 1945). Bu olasılık teorilerini ifade edebilmek için;

- Elektronlar serbest kalmasın diye, yeteri kadar düşük bir sıcaklıkta fosforun radyasyona tutulması,
- Sabit bir sıcaklık oranında artan ısıtılması,
- Tuzaktan kurtulan elektronların tekrar aynı tuzaklara yakalanmadan yeniden birleşmelerini göz önüne almışlardır.

Randall ve Wilkins, tuzaklardan kurtulan elektronların tekrar tuzaklanmadığı birinci mertebe ışımayı (tek moleküler model) dikkate alan TL teorisini kurmuştur. Böylece, TL şiddeti I, herhangi bir sıcaklıkta doğrudan tuzaktan kurtulan elektronların sayısı ile orantılıdır.

$$I = -c(\frac{dn}{dt}) = cpn \tag{2.7}$$

Burada, c, 1 olarak alınabilen sabit bir sayıdır.

 $n = n_0 \exp\left[-st \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]$  ve  $P = s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$  göz önüne alınır ve 2.7 denkleminde

yerine yazılırsa;

$$I(t) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-st \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]$$
(2.8)

olur. Burada I(t) herhangi bir t anında elde edilen lüminesans şiddeti,  $n_0$  ise t=0 anında tuzaklarda bulunan tuzaklanmış elektron konsantrasyonu, T sıcaklık, E tuzakların enerji seviyeleri, s elektronların tuzaklardan kurtulma olasılığına bağlı frekans faktörü ve k Boltzmann sabitidir

Isitma hizi lineer olacak şekilde ele alınırsa;  $(\beta = dT/dt)$  kullanılarak

 $\int_{n_0}^{n} \frac{dn}{n} = -\int_{t_0}^{t} s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dt$  denklemi tekrar düzenlenebilir ve sonuçta *n* değeri için bir denklem elde edilir. Bulunan *n* ifadesi eşitlik 2.7'de tekrar yazılırsa;

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

Bu ifade nümerik çözüm kullanılarak hesaplanabilir. Ayrıca bu ifade, karakteristik bir tepe sıcaklığında ( $T_M$ ) maksimum bir şiddete sahip çan şeklinde bir eğri verir (Şekil 2.7).



**Şekil 2.7.** Eşitlik 2.9'un çözümü.  $T_{M_1}$  tuzaklanmış elektronların başlangıçtaki yoğunluğu olan  $n_0$ 'dan bağımsızdır (Furetta ve ark. 1998)

Denklem 2.9'da  $T=T_M$  noktasında  $\frac{dI}{dT}=0$  olarak alınabilir. Bu şekilde önemli bir ilişki elde edilir. Bu eşitliğin logaritmik türevi alınacak olursa;

$$\frac{d(\ln I)}{dT} = \frac{1}{T}\frac{dI}{dT}$$

olur.

Buna göre Eşitlik 2.9'un logaritması alınıp gerekli işlemler yapıldığında TL tepelerinin enerji seviyeleri, frekans faktörü ve ısıtma hızı arasında önemli bir eşitlik elde edilir:

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \quad \text{eșitliği elde edilir.}$$
(2.10)

Bu eşitlik kullanılarak farklı ısıtma hızları için deneysel sonuçlardan elde edilecek olan farklı  $T_M$  değerleri kullanılarak elde edilecek grafikten enerji seviyesi E ve frekans faktörü *s* rahatlıkla bulunabilir. Bu yöntem "Farklı Isıtma Hızları Yöntemi" olarak adlandırılmaktadır ve bu konu ilerideki bölümlerde daha detaylı bir şekilde işlenmiştir.

Eşitlik 2.10'dan bazı önemli sonuçlar elde edebiliriz:

• Sabit bir ısıtma hızı için, E değeri arttırıldığında veya s azaltıldığında,  $T_M$  yüksek sıcaklıklara doğru kaymaktadır.

• Bir tuzak için (E ve s sabit değer olarak alınmıştı) ısıtma hızı artarken,  $T_M$  daha yüksek sıcaklıklara doğru kayar.

- $T_M$ ,  $n_0$ 'dan bağımsızdır (dolayısı ile verilen dozdan da bağımsızdır).
- Toplam ışık miktarına S dersek, S ifadesini aşağıdaki gibi yazabiliriz;

$$S = \int_{0}^{\infty} I dt = -c \int_{0}^{\infty} \frac{dn}{dt} dt = -c \int_{n_0}^{0} dn = cn_0$$
(2.11)

Burada görüldüğü gibi *S* tuzaklanmış yüklerin başlangıçtaki sayısı ile doğru orantılıdır. Fakat ısıtma sürecinden bağımsızdır. Tuzaklanmış yüklerin sayısının radyasyon dozu ile orantılı olduğu bilinmektedir. Bu durumda *S*'de radyasyon dozu ile orantılıdır. Bu özellik radyasyon dozimetresinde çok önemlidir (Furetta ve ark. 1998).

### 2.5.2. İkinci Derece Kinetik

Garlick ve Gibson (1948) tuzaklardan kurtulan elektronların yeniden birleşme olasılığının, tekrar tuzaklama olasılığına eşit olduğu varsayımından yola çıkarak, Randall ve Wilkins modelinde enerji ve frekans faktörü belirleme yönteminde farklı yöntemler izleyerek hesaplamalar yapmışlardır. İkinci dereceden kinetik ifadesi, yeniden tuzaklanmanın baskın olduğu bir durumu tanımlamak için kullanılır. Bu durumda aşağıdaki matematiksel ifade geçerlidir.

$$\frac{dn}{dt} = -n^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{2.12}$$

Bu ifade yeniden birleşme olasılığının 1'e eşit olduğu birinci derece durumunda elde edilen sonuçtan farklıdır. Çünkü yeniden tuzaklanma mümkün değildir. Bu nicelik s'=s/N ile gösterilir ve ön üstel faktör olarak adlandırılır. s',cm<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> boyutunda sabit bir değere sahiptir. N(cm<sup>-3</sup>) ise tuzak yoğunludur. Burada  $n_0$ , başlangıçta tuzaklanmış olan toplam elektron sayısıdır.

Eşitlik 2.12'nin, sabit T sıcaklığı için alınırsa aşağıdaki denklem elde edilir.

$$n = n_0 \left[ 1 + s' n_0 t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{-1}$$
(2.13)

Denklem (2.13) denklem 2.12'de yerine konulup sabit bir ısıtma hızı için ( $dt = dT / \beta$ ) gerekli integraller alındığında

I(t) ışık şiddeti

$$I(T) = n_0^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \left(\frac{s'n_0}{\beta}\right)_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-2}$$
(2.14)

olarak elde edilir.

Kinetik mertebenin ışıma eğrisinin şekli üzerinde nasıl bir etki yarattığını gösterebilmek amacıyla Şekil 2.8'de birinci dereceden ve ikinci dereceden kinetik mertebeye sahip iki TL tepesi üst üste bindirilerek verilmiştir. Şekilde her örnek için tek tip tuzak ve dolayısı ile her örnek için sadece bir tepe mevcuttur. Şekilde görüldüğü gibi ikinci dereceden kinetiğe sahip örnek içerisindeki elektronların tekrar tuzaklanmaları TL sinyalinin sönümünü geciktirmektedir. Böylece ikinci derece kinetiğe sahip örnekten elde edilen eğrinin azalan kısmı daha uzundur. Bu fark birinci ve ikinci derece kinetik mertebesine sahip tepeleri ayırt edebilmemizi sağlayan önemli bir özelliktir.



**Şekil 2.8**. I, birinci derece kinetiğe sahip, II, ikinci dereceden kinetiğe sahip örnekte elde edilen tepelerin şekli. İki eğri arasındaki büyük fark, eğrinin alçalan kısmında görülmektedir (Furetta ve ark. 1998)

*I(T)*'nin önce logaritmasını daha sonra türevini alıp sıfıra eşitlersek;

$$\frac{\beta E}{2kT_M^2} \left[ 1 + \frac{s'n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \right] = s'n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)$$
(2.15)

denklemi tepe sıcaklığına bağlı olarak elde edilir.

İkinci derece kinetiğin baskın olduğu durumlarda yeniden tuzaklanan elektronlardan kaynaklı gecikmeden dolayı  $T_M$  %1'lik bir dereceyle artış gösterir. Tuzaklanmış elektronların serbest kalması  $T_M$  sıcaklığının altındaki sıcaklık değerlerinde gerçekleştiğinden ışık yayınımı,  $T_M$ 'nin altındaki sıcaklıklarda meydana gelir.

Sabit bir *E* değeri için  $\beta$  arttırıldığında veya *s*' azaldığında *T<sub>M</sub>* artmaktadır. Sabit bir  $\beta$  değeri için *T<sub>M</sub>*, *E* ile doğru orantılı bir sonuç verir (Furetta ve ark. 1998).

İkinci derece kinetikte birinci derceden farklı olarak,  $n_o$  konsantrasyonları artarken  $T_M$ azalmaktadır.



**Şekil.2.9.** Parametreleri E=1 eV,  $s=10^{12}$  s<sup>-1</sup>,  $n_o=N=10^3$  m<sup>-3</sup> olan birinci ve ikinci mertebeden kinetiğe sahip TL ışıma eğrilerinin şematik olarak karşılaştırılması

#### 2.5.3. Genel Mertebeden Kinetik

Genel mertebeden kinetik denklemleri, teorik olarak elde edilmiş birinci ve ikinci mertebe ışıma eğrilerinin deneysel olarak elde edilen ışıma eğrilerine tamamen uymadığı durumlarda kullanılmak amacıyla geliştirilmiştir. Genel mertebeden kinetik, tuzakların enerji seviyelerinin tek olduğu düşüncesi ile ele alınır. Tek bir enerji seviyesinde bulunan yük taşıyıcılarının n sayısının  $n^b$  ile orantılı olduğunu varsayalım. May ve Padridge (1964), V.Ausin ve arkadaşları (1972), R.W.Ward ve arkadaşları (1972) I şiddeti için

$$I(t) = \frac{dn}{dt} = -s'' n^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(2.16)

eşitliğini elde etmişlerdir.

Burada, s'', ön-üssel faktördür. b ise genellikle 1 ve 2 arasında herhangi bir değer alır ve kinetik mertebe olarak tanımlanır. s'' ön-üssel faktörü, cm<sup>3(b-1</sup>)s<sup>-1</sup> boyutunda ifade edilir. s'' 'nün boyutları b mertebesi ile değişir. Ayrıca, b=2 olduğunda, s'', s' 'ne indirgenir.

Eşitlik 2.16, genel mertebeden kinetik olarak adlandırılır. Birinci ve ikinci mertebe kinetikler için *b* sabiti sırasıyla 1 ve 2 değerlerini almaktadır. Genel mertebe kinetik durumunda ise *b*, 1 ile 2 arasında herhangi bir değer alabilir (Fleming, 1968; Keaning, 1961). Burada s<sup>n</sup>, nün boyutları *b* mertebesi ile değişir. b=2 olduğunda, s",s' 'ne indirgenir. 2.14 eşitliğinden termolüminesans (TL) yayınımını açıklayan ifadeyi elde edebiliriz.

Eşitlik 2.16 tekrar düzenlenip integrali alınacak olursa:

$$n = n_0 \left[ 1 + s(b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{\frac{1}{1-b}}$$
(2.17)

olur. Burada,  $s = s'' n_0^{b^{-1}}$  olarak ifade edilir ve birimi de s<sup>-1</sup>dir. Frekans faktörü olan *s*, verilen bir doz için sabittir fakat, doz değiştirildiğinde *s* de değişir. Buna göre lineer bir ısıtma hızı ( $dT = \beta dt$ ) kullanılarak elde edilecek olan bir TL ışıma eğrisinin şiddeti  $I(T_r)$  ışıma şiddeti gibi verilebilir:

$$I(T) = sn_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-\frac{b}{b-1}}$$
(2.18)

Bu eşitlikte görüldüğü gibi burada verilen iki faktörün I(T)'ye katkısı gözlenebilmelidir;

- *T* ile sabit bir oranda artan üssel faktör,
- *T* artarken azalan ve köşeli parantez içerisinde gösterilen faktör.

Eşitlik 2.15'te b=2 olduğunda ikinci dereceden kinetik denklemi elde edilmiş olur. Fakat b=1 durumu için bu denklem geçerli değildir. Ancak  $b \rightarrow 1$  için bu denklem birinci dereceden kinetik denklemine indirgenir. Bunların yanı sıra Eşitlik 2.13 tamamen deneysel sonuçlarla türetilmiştir. Diğer eşitlikler kullanılarak (Eşitlik 2.4 ve 2.9) 2.13 eşitliğini türetecek bir yaklaşım yoktur. Sonuç olarak genel dereceden kinetik için bir fiziksel model mevcut değildir.

Genel dereceden kinetik için maksimum yayınım eşitliği, Eşitlik 2.18'den çıkartılabilir:

$$\frac{kT_M^2 bs}{\beta E} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) = 1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'$$
(2.19)

Sonuç olarak, Eşitlik 2.10, 2.15 ve 2.19'dan elde edilen ilginç sonuçlar vardır: Bunlar;

- Eşitlik 2.7'deki *n*<sub>0</sub> başlangıç yoğunluğuna bağlı değildir. Birinci dereceden tepelerin yüksekliklerinin ışınlama dozlarına bağlı olarak değişmesi beklenemez.
- b ≠ 1 olması durumunda ise (genel derece ve ikinci derece kinetik için), s, n<sub>0</sub>'a bağlı olduğundan T<sub>M</sub>'nin uyarılma dozuna bağlı olarak değişmesi beklenir (Furetta ve ark. 1998).
#### 2.6. Tuzak Parametrelerin Analiz Yöntemi

#### 2.6.1. Farklı İsitma Hızları Yöntemi

Farklı ısıtma hızları TL ışıma eğrisini etkiler. Bu yöntem farklı ısıtma hızlarına bağlı olarak meydana gelen ışıma şiddetindeki değişikliklerin tuzak parametreleri arasında yer alan *E* (tuzak derinliği) ve *s*'nin (frekans faktörü) hesaplanmasında kullanılabileceğini gösterir (Taylor ve ark. 1982). Yapılan birçok araştırmanın sonucunda ısıtma hızının artmasıyla TL şiddetinin azaldığı gözlenmiştir (Spooner ve ark. 2002). Bu olgu, sıcaklığın artışıyla etkinliği artan termal sönüm ile bağlantılı olarak açıklanmıştır. Lüminesansın termal sönümü olgusu, lüminesans etkinliğinin sıcaklığın artmasına bağlı olarak azalması olayıdır.

Termal sönümü açıklayabilmek amacıyla, aşağıdaki lüminesans verimliliği denklemi kullanılabilir (Spooner ve ark. 2002).

$$\eta = [1 + C \exp(-W/kT)]^{-1}$$
 (2.20)

Burada, W termal sönüme bağlı olarak lüminesans verimliliğinin aktivasyon enerjisi, kBoltzmann sabiti, T(K) sıcaklık ve C bir sabittir. Ayrıca, toplam TL şiddetinin Naperian logaritması şu şekilde yazılabilir;

$$\ln(toplamTL) = (W/k)T_m^{-1} + F$$
(2.21)

Burada, F ısıtma hızından bağımsız bir sabit ve  $T_m$  maksimum tepe sıcaklığıdır. Böylece, ln(toplamTL)'in  $1/T_m$ 'ye karşı grafiği çizilecek olursa, W/k değeri eğimden bulunabilir. TL tepesinin sıcaklığı ısıtma hızının artmasıyla daha yüksek sıcaklıklara doğru kaymaktadır. Böylece, düşük ısıtma hızlarında TL tepesi termal sönümün minimum olduğu bölgede gözlenirken, yüksek ısıtma hızlarında tepe termal sönümün güçlü olduğu noktada gözlenebilir (Nanjundaswamy ve ark. 2002). Barkani-Krachi ve ark. (2002) ısıtma hızının TL cevabına etkisi üzerine çalışmalar yapmışlar ve ısıtma hızının artmasıyla TL cevabının azaldığını göstermişlerdir. Ayrıca TL duyarlılığındaki bu azalmanın Mott-Seitz teorisinin kullanılmasıyla iyi bir şekilde açıklanabileceğini belirtmişlerdir. Hornyak ve arkadaşları (1992) bu konu üzerinde incelemeler yapmış ve en düşük ısıtma hızından en yüksek ısıtma hızına doğru gidildikçe tepe sıcaklığının yaklaşık 42 °C kaydığını göstermişlerdir. Bunun yanı sıra ısıtma hızının artmasıyla TL şiddetinin kademeli olarak azaldığını gözlemlemişlerdir. Bu azalma 0.5 °C/s ile 4 °C/s arasındaki ısıtma hızları için büyük olasılıkla termal sönüme bağlı olarak %8 civarındadır.

Deneyler sırasında ölçülen sıcaklık ile örnek sıcaklığı, örnek ile ısıtıcı arasındaki temasa göre değişen termal gecikmeyle bağlı olarak birbirinden farklı olabilmektedir. Bundan dolayı, örnekte termal gecikmeyle beraber sıcaklıkta lineer bir artış meydana gelir ve böylece ışıma eğrisinden okunan T<sub>m</sub> değeri gerçek değerinden sistematik olarak düşük olur. Sonuçta örnek kalınlığının, özellikle yüksek ısıtma hızlarında, sıcaklığın kademeli olarak artışı ve termal gecikme üzerinde önemli etkileri vardır (Kıyak ve ark. 2002).

Aktivasyon enerjisinin hesaplanmasında kullanılan diğer önemli yöntemlerden biri Farklı Isıtma Hızları Yöntemi'dir. Eğer bir örnek,  $\beta_1$  ve  $\beta_2$  gibi iki farklı ısıtma hızları ile ısıtılırsa tepelerin maksimum sıcaklıkları değişecektir. Aşağıdaki denklem (2.22) ısıtma hızı  $\beta$ , aktivasyon enerjisi *E*, frekans faktörü *s* ve maksimum şiddete karşılık gelen sıcaklık  $T_m$  arasındaki bağıntıyı vermektedir.

$$\frac{\beta E}{kT_m} = s \exp(-\frac{E}{kT}) \tag{2.22}$$

Burada *k* Boltzmann sabitidir. Bu denklem her ısıtma hızı için yazılabilir.  $\beta_1$  (ve  $T_{m1}$ ) değerleri yazılarak elde edilen denklem ile  $\beta_2$  (ve  $T_{m2}$ ) yazılarak elde edilen denklemin oranı alınıp yeniden düzenlendiğinde, *E*'nin hesaplanabilmesi için aşağıdaki basitleştirilmiş eşitlik elde edilebilir.

$$E = k \frac{T_{m1}T_{m2}}{T_{m1} - T_{m2}} \ln[(\frac{\beta_1}{\beta_2})(\frac{T_{m2}}{T_{m1}})^2]$$
(2.23)

Burada,  $T_{m1}$  ve  $T_{m2}$  farklı iki ısıtma hızı kullanılarak ( $\beta_1$  ve  $\beta_2$ ) elde edilen tepe sıcaklıklarıdır. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi'nin en önemli avantajı sadece tepe maksimum noktasındaki verilerin ( $T_m$ ,  $I_m$ ) alınmasının yeterli olmasıdır. Çünkü bu değerler geniş bir tepenin daha küçük tepelerle çevirili olması durumunda bile ışıma eğrisinden rahatlıkla ve doğru bir şekilde alınabilirler. Ayrıca bu yöntemin bir diğer avantajı da E'nin hesaplanması sırasında, Başlangıçtaki artış yönteminde etki gösteren termal sönüm sorunu gibi bir sorundan etkilenmemesidir.

Birinci dereceden kinetik için farklı ısıtma hızları kullanıldığında aşağıdaki denklem elde edilmektedir:

$$\ln(\frac{T_m^2}{\beta}) = (\frac{E}{k})(\frac{1}{T_m}) + sabit$$
(2.24)

Eğer  $\ln((T_m^2/\beta))$ 'nın  $(1/T_m)$ 'ye karşı grafiği çizilirse eğimi E/k olan bir düz eğri elde etmemiz gerekir ve bu eğim kullanılarak E değeri rahatlıkla hesaplanabilir. Ayrıca  $1/T_m=0$  noktasındaki değer kullanılacak olursa  $\ln(sk/E)$  denklemi için bir değer bulunmuş olur ve eğimden elde edilen E/k değeri burada yerine konacak olursa sfrekans faktörü de hesaplanmış olur.

#### 2.6.2. Başlangıçtaki Artış Yöntemi

Garlic ve Gibson (Garlic ve Gibson,1948) tarafından önerilen bu yöntem, frekans faktörü olmadan aktivasyon enerjisinin hesaplanmasında yaygın olarak kullanılabilmektedir. Başlangıçtaki artış yönteminin temel varsayımı tepenin düşük sıcaklık tarafındaki bitiş noktasındaki tuzak ışıma merkezi ve birbirini etkileyen bütün enerji seviyelerindeki değerlerin yaklaşık olarak sabit olduğunu kabul eder. Bundan dolayı bu bölgede, sıcaklığın fonksiyonu olarak elde edilen şiddetin grafiği üssel artışa oldukça benzemektedir. Böylece, TL eğrisi

$$I(T) = C \exp(-E/kT)$$
(2.25)

şeklinde bir denklem ile uyumludur. Burada C diğer tüm parametrelere ve seviyelerin doluluğuna bağlı bir sabit, E aktivasyon enerjisi (eV), k Boltzmann sabiti (eV/K) ve T sıcaklıktır (K).

 $\ln(I)$ 'nın 1/T'ye göre grafiği çizilecek olursa, elde edilecek olan lineer eğrinin eğimi -E/k'ya eşit olacaktır. Böylece aktivasyon enerjisi E'yi, frekans faktörü s ile ilgili herhangi bir bilgiye ihtiyaç duymaksızın aşağıdaki şekilde elde etmek mümkün olacaktır;

$$E = -kd(\ln(I))/d(1/T)$$
(2.26)

E değeri hesaplandıktan sonra frekans faktörü (s) aşağıdaki denklemden elde edilebilir;

$$\frac{\beta E}{kT_m} = s \exp(-\frac{E}{kT}) \tag{2.27}$$

Burada,  $T_m$  maksimum şiddete karşılık gelen sıcaklık değeridir. Burada dikkat edilmesi gereken en önemli nokta bu yöntemin sadece diğer tepelerden belirgin bir şekilde ayrılmış ve iyi bir şekilde oluşmuş tek bir tepe için kullanılabileceğidir.

### 2.6.3. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayrıştırma Yöntemi

Tuzak parametrelerin E (tuzak derinliği) ve *s*'nin (frekans faktörü) hesaplanmasında kullanılabilen bir diğer yöntem de bilgisayarla ışıma eğrisini ayrıştırma yöntemidir (CGDC). Bu yöntemde üst üste binmiş tepelerin TL ışıma eğrilerini analiz etmek için Tamtam ve Glowfit adlarında 2 ayrı program bulunmaktadır. GlowFit programı sadece 1. dereceden kinetiğe sahip TL eğrilerinin ayrıştırılmasında kullanılırken, Tamtam programı ile hem birinci dereceden hem de genel dereceden kinetiğe sahip TL eğrileri ayrıştırılabilmesi mümkündür. Programın ayrıştırma işlemi yapılması için E ve s gibi tuzak parametrelerinin n en az bir tepe için girilmesi gerekmektedir. Burada asıl problem, TL ışıma eğrilerinin kinetik mertebelerinden kaynaklanır. Birinci derece kinetiğe sahip eğrilerde bu denklem:

$$I(T) = n_0 s \exp(-\frac{E}{kT}) \exp\left[(-\frac{s}{\beta} \frac{kT^2}{E} \exp(-\frac{E}{kT}) * (0.9920 - 1.620 \frac{kT}{E})\right] \text{dir.} (2.28)$$

Genel derece kinetik mertebesine sahip bir eğride ise aşağıdaki denklem kullanımaktadır.

$$I(T) = n_0 s \exp(-\frac{E}{kT}) \left[ 1 + \left(-\frac{(b-1)s}{\beta} \frac{kT^2}{E} \exp(-\frac{E}{kT}) * (0.9920 - 1.620 \frac{kT}{E}\right]^{\frac{b}{b-1}} \right]$$
(2.29)

Burada,  $n_0$  (m<sup>-3</sup>) t=0 anındaki tuzaklanmış elektron yoğunluğu,  $s(s^{-1})$  ön-üssel faktör, E (eV) aktivasyon enerjisi, T(K) sıcaklık, k (eV/K) Boltzmann sabiti,  $\beta({}^0C/s)$  )ısıtma hızı ve b kinetik mertebedir.

#### 2.6.4. İzotermal Sönüm Yöntemi

Bu yöntemde, TL okuması sırasında belli bir noktada sıcaklık sabit tutulur ve ışık yayınımı zamanın fonksiyonu olarak kaydedilir. Genel olarak izotermal sönüm yönteminde aşağıdaki 1. dereceden denklem sabit *T* sıcaklığı için çözümlenebilir;

$$I(t) = -c\frac{dn}{dt} = c\frac{n_0}{\tau}\exp(-\frac{t}{\tau})$$

Burada  $n_0$ , *n*'nin başlangıçtaki değeri ve  $\tau = s^{-1} \exp(\frac{E}{kT})$ . Yukarıdaki denklem sabit bir *T* sıcaklığında ışık yayınımının *t* zamanına bağlı olarak üssel olarak azaldığını göstermektedir. ln(*I*)'nın *t*'ye göre grafiği çizildiğinde eğimi  $m = s \exp(-\frac{E}{kT})$  olan bir eğri elde edilir. Buradan *E* ve s'yi hesaplayabilmek için iki farklı sabit *T*<sub>1</sub> ve *T*<sub>2</sub> sıcaklığı için deneysel sonuçlar kaydedilmeli ve böylece iki farklı  $m_1$  ve  $m_2$  eğimi elde edilmelidir. Bu yolla elde edilen veriler ve aşağıdaki denklem kullanılarak aktivasyon enerjisi hesaplanabilmektedir:

$$E = \frac{k}{\left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right)} \ln\left(\frac{m_1}{m_2}\right)$$
(2.30)

İzotermal sönüm yöntemi daha yüksek kinetik mertebeye sahip eğriler için kullanışlı değildir. Kathuria ve Sunta (1979) kinetik mertebe değeri b'nin, termolüminesansın izotermal sönümünden faydalanılarak hesaplanabileceği bir metod önermişlerdir. Bu metoda göre eğer sönüm eğrisi örneğin sabit sıcaklıkta tutulmasıyla elde edilmişse, seçilen uygun b değerleri için  $I^{\binom{1}{b}-1}$ , in t'ye göre grafiği düz bir çizgi verecektir. Böylece düz bir çizgi elde edilene kadar farklı kinetik mertebe değerleri denendiğinde tepenin sahip olduğu b değeri bulunmuş olur.

### 2.6.5. Tepe Şekli Yöntemi

Tuzak parametrelerin hesaplanmasında kullanılan yöntemlerden biri tepe şekli yöntemidir. Bu yöntemde *E*'nin hesaplanmasında ışıma eğrisindeki tepenin şeklinden faydalanılarak elde edilen parametreler kullanılmaktadır. Şekil parametreleri olarak bilinen bu parametreler, tepenin maksimum noktasının sıcaklığı  $T_m$ , maksimum şiddetin yarı değerindeki genişlik  $w=T_2-T_1$ , maksimumun yüksek sıcaklık tarafındaki yarı genişlik değeri  $\delta=T_2-T_m$ , maksimumun düşük sıcaklık tarafındaki yarı genişlik değeri  $\tau$  $= T_m - T_1$  ve simetri faktörü  $\mu_g = \delta/\omega'$  dır.

TL eğrisinin kinetik mertebe (*b*) değeri tepenin şeklinden tahmin edilebilir. Fakat bu yöntemde dikkat edilmesi gereken önemli bir nokta, aktivasyon enerjisi hesaplanacak olan tepenin üst üste binmiş tepelerden oluşmamasının gerekmesidir. Başka bir deyişle bu yöntem, sadece tek bir tepe için kullanılabilmektedir. Chen (1969) çalışmasında, simetri faktörü  $\mu_g$ 'nin aktivasyon enerjisi *E* ve frekans faktörü *s*'nin değişimine duyarlı olmadığını fakat kinetik mertebeye bağlı olarak değiştiğini bulmuştur. Örneğin lineer olarak ısıtılması koşuluyla  $\mu_g$ 'nin değerinin b=1 için 0.42'den b=2 için 0.52'ye kadar değiştiği gösterilmiştir.

Tepe şekli yöntemi ilk olarak Grossweiner (1953) tarafından geliştirilmiştir. Ardından Chen (1969) E değerini hesaplayabilmek için Halperin ve Braner'in (1960) denklemini geliştirmiştir;

$$E_{\tau} = [1.51 + 3(\mu_g - 0.42)] \frac{kT_m^2}{\tau} - [1.58 + 4.2(\mu_g - 0.42)] 2kT_m$$

$$E_{\delta} = [0.976 + 7.3(\mu_g - 0.42)] \frac{kT_m^2}{\delta}$$

$$E_{\omega} = [2.52 + 10.2(\mu_g - 0.42)] \frac{kT_m^2}{\omega} - 2kT_m$$
(2.31)

Burada,  $E_{\tau}$ ,  $E_{\delta}$  ve  $E_{\omega}$  sırasıyla  $\tau$ ,  $\delta$ , ve  $\omega$  değerlerinin kullanılmasıyla elde edilen aktivasyon enerjileridir. Bir tepenin ortalama enerjisi,  $E_{\tau}$ ,  $E_{\delta}$  ve  $E_{\omega}$  değerlerinin ortalaması alınarak hesaplanmaktadır. Eğer tepe şekli yöntemiyle herhangi bir tepenin aktivasyon enerjisinin ve kinetik mertebenin değeri hesaplanırsa, frekans faktörü s'nin değeri hesaplanabilir. Bu amaçla birinci dereceden kinetik için denklem (2.10) ve genel derece kinetik için denklem (2.19) kullanılarak aşağıdaki eşitlik bulunabilir.

$$s = \frac{\beta E}{kT_m^2} \left[ \exp(-\frac{E}{kT_m})(1 + (b-1)\frac{2kT_m}{E}) \right]^{\frac{b}{b-1}}$$
(2.32)

Burada tepe şekli yöntemi ile herhangi bir tepe için bulunan E ve b değerleri yerlerine konarak frekans faktörü hesaplanabilmektedir.

# 3. KAYNAK ÖZETLERİ

# 3.1. Termolüminesans ile İlgili Önceki Çalışmalar

Isısal uyarılmayla lüminesans olarak bilinen termolüminesans yöntemi ile ilgili ilk araştırmalar elmas, doğal mineraller ve feldispat üzerinde gerçekleştirilmiştir. TL olayı ilk olarak 1663 yılında Sır Robert Böyle tarafından elmas kristalinde gözlenmiştir.

19. yüzyılda termolüminesans olayı minerallerin yapısında çeşitli nedenlerle tuzaklanmış elektronların ısıyla uyarılması olarak tanımlanmıştır. 1885 yılında Bequerel radyum ışıması altında florit kristalindeki TL etkisini incelemiştir (Bequerel 1885).

Wiedemann ve Schmidt, (1895) katot ışınları ile ışınlanmış maddelerin TL etkisini ilk olarak ortaya çıkarmışlardır. Ayrıca, Katot ışınları, X ışınları ve doğal radyoaktivitenin, doğal ve sentetik minerallerin TL özelliklerine olan etkisini incelemişlerdir.

İlk ışıma tepesi Viyana'da 1922-1923 yıllarında Przibram tarafından kaydedilmiştir. Przibram çalışmalarında alkali halojenür, kalsiyum karbonat ve bazı florit çeşitlerini radyum kaynağı ve X ışınlarına maruz bırakarak lüminesans özelliklerini incelemiş.

1927 yılında Frish tarafından katod ışınlarına tabi tutulan NaCl kristalinde ışıma gözlenmiştir. İlk kuramsal model 1945 yılında Randall ve Wilkins tarafından yapılmış ve birinci mertebe ışımayı dikkate alan TL teorisini kurmuştur. Daha sonra Garlick ve Gibson(1948) ikinci dereceden kinetik ışımayı dikkate alan TL ifadesini genişletmiştir. Bu arada çalışmalar daha çok jeolojik materyaller ve katkılanmış maddelerin dozimetrisinin gelişimi üzerinde yoğunlaşmıştır. Sonraki yıllarda TL yöntemi ile kayaların, toprakların, kabukların ve diğer seramik gibi materyallerin yaş tayini yapılabileceği fikirleri ortaya atılmıştır. Farrington ve arkadaşları tarafından 1953 yılında ortaya atılan bu yöntem 1960 yılında Kennedy ve Knof tarafından daha da geliştirilerek yaş tayini uygulamalarına devam edilmiştir.

1966 yılında Fleming termolüminesans tarihlendirme yönteminde uygulamak amacı ile kuvars katkı tanecikleri yöntemini ve 1967 yılında Zimmerman ince tanecik yöntemini geliştirdi. 1968 yılında Aitken ve arkadaşları termolüminesans yöntemini ilk defa jeolojik kaynaklı materyallere uygulamıştır.

# 3.2. Kuvarsın Termolüminesansı İle İlgili Çalışmalar

Cohen (1985) kuvarsın üç ana rhombohedral yüzeylerinin büyüklüğü ara Fe<sup>+3</sup> kirliliği olan bölgelerde demir içeriğinin Al<sup>+3</sup> kirliliği içeriğinden fazla olması durumunda dumanlı renge bürünmesinin engellendiğinin ancak radyasyon varlığının dumanlı renge sebep olan tuzak alanlarının merkezini oluşturduğundan fazla demire rağmen dumanlı renk alabileceğini belirtmektedir. Demirin kuvars içerisinde Fe<sup>+2</sup>, Fe<sup>+3</sup> ve Fe<sup>+4</sup> şeklinde üç farklı değere sahip olabileceğini ve üç farklı değerde demirinde atomlar arası boşlukta yer alabileceğini ancak Fe<sup>+3</sup>, ün Si<sup>+4</sup>, ün de yerine geçeceğinden söz eder. Yüksek değerli iyon içeren demirin oyuklarda ve badem şekilli boşluklar ya da hidrotermal damarlar gibi yüzeye yakın şartlar altında üretilen kuvarslarda hakim olduğunu belirtmektedir.

Fournier'e (1985) göre kuvars hidrotermal sistemde silikanın en duyarlı biçimidir. Başlangıç sıcaklığı 200–340 °C arasındaki bir hidrotermal çözeltinin yavaş soğumasıyla kuvars kristalleri ortaya çıkar. Öz şekilli veya düzgün biçimli kristaller nispeten yavaş değişen sıcaklık ve basınç koşullarında oluşur. Kuvarslar silika bakımından az doygun çözeltilerde gelişirler.

Mebdah ve ark.(2006), doğal kuvars içindeki farklı merkezlerden tavlama sıcaklığının RTL üzerine etkisini araştırmıştır. Tuzak merkezlerinin ve lüminesans merkezlerinin davranışı 100 Gy'de ışınlanmış tuğla ve çökeltilerden pişirilmiş ve pişirilmemiş doğal kuvars için araştırılmış ve 350 -700°C arasında değişen farklı sıcaklıklarda tavlanmıştır. Tavlama davranışı TL ışıma tepesini önceden gözlemlendiği gibi etkilemiştir. 550 -600 °C bölgesindeki tavlama için daha yüksek hassasiyet gözlemiştir. Bu tavlama sıcaklığında 96 °C ve 180 °C de iki pikin ortaya çıktığı gözlemiştir. Daha düşük tavlama sıcaklıklarında bu piklerin sırasıyla 90 °C ve 195 °C'deki piklerle örtüştüğünü gözlemiştir. Tavlanmış kuvarsla ilgili olarak 500-550 °C bölgesinde 200 °C'deki pik sıcaklığı için bir tavlamada daha yüksek hassasiyet ve 100 °C civarındaki pik sıcaklığı için olağandışı bir duyarsızlaşma görülmüştür. Bu iki çeşit kuvarsın davranışı kinetik parametreler, lüminesans yayımı ve literatür bilgileri dikkate alınarak analiz edilmiştir.

Yang ve McKeever (1989) ön dozun kristal kuvars üzerine etkisini çalışmışlardır. Bu çalışma 110 °C de kuvars kristalindeki termolüminesansın,

30

boşluklardan tuzaklanan AlO<sub>4</sub> merkezleri ile GeO<sub>4</sub> merkezlerinden açığa çıkan elektronların yeniden birleşmesinden kaynaklandığını belirtmektedir. Bu makalede H<sub>3</sub>O<sub>4</sub> merkezli örgü kusurlarını tespit eden yeni sonuçlar göstermektedir. Bu H<sub>3</sub>O<sub>4</sub> merkezli örgü kusurlar ile 110°C'de tavlanan AlO<sub>4</sub>'ün termolüminesansının tamamen aynı olduğu görülüyor. Ön doza maruz bırakıldığında ve 400° C'de ısıtıldığında H<sub>3</sub>O<sub>4</sub> merkezli örgü kusurlarının duyarlı hale geldiğini gözlemektedir. Ayrıca bu çalışmada yüksek sıcaklığın etkileri ve ışınlama öncesi tavlamanın ön doz termal aktivasyon eğrileri üzerine etkileri incelenmiştir. Verilere dayanarak kuvars örneğini orta sıcaklığa kadar ısıtılırsa (950 -1000°C yerine 300 -450°C ye ) termal aktivasyon eğrisi ölçümü boyunca, ön doz duyarlılığına bağlı olmayan büyük bir duyarlılık artışı gözlemiştir. Bu etkinin tarihleme ve dozimetrede önemli sonuçlara sahip olabileceği yargısına varmıştır.

Carvolho Jr. (2010), yüksek gama dozuyla hassaslaştırılmış doğal kuvarsın TL cevabında parçacık boyutunun etkisini araştırmıştır. Brezilyanın Solonopole bölgesinden alınan tek parça şeklindeki kuvars kristali parçalamış ve büyüklükleri 38 mikrometreden 5mm'ye değişen 10 büyük parçaya sınıflandırmıştır. Parçaların her bir boyutunun belirli bir kısmı <sup>60</sup>Co kullanılarak 25 kGy'ye gama dozu verilerek hassaslaştırmış ve bir fırında 400°C'de ısıl işleme tabi tutulmuştur. Hassaslaştırılmamış örnekler 50 Gy ile 5kGy arasında test dozuna ve hassaslaştırılmış örnekler 50 mGy eş doza maruz bırakmıştır. Hassaslaştırılmamış örnekler için parçacık boyutu azalırken termolüminesans tepesi yaklasık 325°C'ye çıktığını gözlemlemiştir fakat hassaslaştırılmış örnekler artan parçacık boyutuyla 280°C ye kadar çıktığını gözlemlemiştir. Bunun da 308 mikrometreye eş bir parçacık boyutuna denk olduğu sonucuna varmıştır. 308 mikrometrenin üzerinde TL şiddetinde ani bir azalma gözlemiştir. Bu etkiler özgün yüzey alanı ile ilişkilendirilmiş ve kuvarsın büyük ve saf taneciklerinin yüksek gama dozuyla farklı etkileşimi tartışılmıştır.

Kafadar (2004), sentetik kuvars kristalinin dozimetrik ve termolüminesans özelliklerinin incelenmesi adlı yüksek lisans tezinde CaSO:Dy (TLD-900) ve sentetik kuvars kristalinin dozimetrik ve termolüminesans özelliklerini araştırmaya çalışmıştır. Bu çalışmada asitle yıkanmış sentetik kuvars kristalinin 0.02 Gy ile 2.5 kGy arasında beta ışını ile ışındıktan sonra termal ışıma eğrileri ve bu eğrileri oluşturan ışıma tepeciklerinin kinetik parametreleri, doz ekleme, değişken ısıtma sıcaklığı oranı, tekrarlanan ilk yükselme ve bilgisayar ile ışıma eğrisi ayrışımı yöntemlerini kullanarak

31

bulmuştur. AD ve CGCD yöntemleriyle iç içe geçmiş en az yedi tane birinci dereceden ışıma tepeciğinden oluştuğunu göstermiştir. Kinetik parametre sonuçlarının uygulanan yöntemlere göre değiştiğini gözlemiştir. Birinci ve ikinci ışıma tepelerinin karanlık bir odada tamamen söndüğünü gözlemiştir. Dördüncü, beşinci, altıncı ve yedinci ışıma tepelerinin bu süreçten etkilenmediğini fakat üçüncü tepenin şiddetinin ilk değerinin %27'sine düştüğünü bildirmişlerdir. Yapılan deneyler sonunda CaSO :Dy'un iç içe geçmiş birinci dereceden 6 tane ışıma tepesine sahip olduğunu görmüştür.

Toktamış (2008), "Investigation of Thermally Stimulated Luminescence Characteristics of Synthetic and Natural Quartz" adlı doktora tezinde Türkiye'nin Konya ilinin Beyşehir ilçesinde bulunan Kubad Abad sarayının seramiklerinden çıkarılan doğal kuvarsın termolüminesans (TL) özellikleri çalışılmıştır. Farklı tavlama sıcaklıkları için sentetik ve doğal kuvarsın kinetik parametrelerinin ve TL tepe şiddetlerinin kararlılıklarına bakılmıştır. Isısal denemelerin doğal kuvarsın kinetik parametreleri ve TL tepe şiddetleri üzerindeki etkilerinin incelenmiştir. En son olarak da farklı tavlama işlemlerinden sonra sentetik ve doğal kuvarsın termolüminesans (TL) doz tepkileri ve ısıtma oranının sentetik ve doğal kuvarsın termolüminesans karakteristikleri üzerine etkileri araştırmıştır.

# 4. MATERYAL ve YÖNTEM

### 4.1. Materyal

# 4.1.1. Kuvars

Radyasyon doz ölçümünde kullanılması planlanan doğal kuvars kristalleri ülkemizde bol miktarda bulunmaktadır. Bu çalışmada Doğu Anadolu bölgesinden alınan doğal kuvars minerali üzerinde çeşitli araştırmalar yapılmış ve böylece Doğu Anadolu kuvarsının termolüminesans (TL) özellikleri ile kinetik parametrelerinin belirlenmesi amaçlanmıştır.



Şekil 4.1. Kuvars örneğinin alındığı Doğu Anadolu Bölgesi



Şekil 4.2'de bu çalışmada kullanılan doğal kuvars örneği gösterilmektedir.

Şekil 4.2. Çalışmada kullanılan doğal kuvars örneği

Oksijen, silisyum ve alüminyum yer kabuğunun en bol bulunan elementleridir. Oksijen ve silisyum atomları yer kabuğundaki atomların % 80 den fazlasını oluştururlar. Çok sayıda mineral ve bileşikte bulunan bu elementler büyük endüstriyel öneme sahiptir. Bunlardan en önemlisi de silistir (silica-SiO<sub>2</sub>) ve 870 °C in altındaki sıcaklıklarda kuvars, 870-1470 °C aralığında tridimit ve 1470-1710 °C aralığında kristobalit olmak üzere üç kristal yapıda bulunabilir. Silis 1710 °C de erimektedir. Erimiş silis yüksek viskoziteye sahiptir ve yüksek viskozitenin kristalleşmeyi yavaşlatması nedeniyle kristalleşmeksizin 1500 °C civarında yumuşayan bir cama dönüşür. Silisin bir kristal şeklinden diğerine dönüşümü kuvvetli Si-O bağının kopmasını gerektirdiğinden, yüksek sıcaklılarda bile yavaş ve zordur. Silisin üç kristal şekli de oksijen atomlarını paylaşan dörtyüzlü (SiO<sub>4</sub>) birimlerinden oluşur ve Si-O-Si bağ açısı 143.6° dır ( Meissler ve ark. 1999)

Kuvars, silisin en çok bulunan kristal şeklidir ve dörtyüzlü (SiO<sub>4</sub>) birimlerinin saat yönü veya tersi yönde dizilmesiyle oluşan zincirlerden oluşur. Zincirlerin helezon tarzı bir tam dönüş mesafesinde, üç Si üç de O atomu bulunmaktadır (Meissler ve ark. 1999) ve bu zincirlerden altısı altıgen halka oluşturacak şekilde bir arada bulunmaktadır (şekil 4.3.)



Şekil 4.3. Kuvars kristalinin yapısı

### 4.1.2. Kuvarsın Kimyasal Yapısı

Kuvarslar trigonal simetri özelliği gösterirler. Yüksek sıcaklık ve basınçlarda kuvars, silisyum dioksitin kararlı hali kuvarstır. Kuvars, 1 kilobar basınçta, 573°C' ye kadar kararlılığını korur.

Kimyasal yapısı SiO<sub>2</sub> olan mineral, doğada beyaz, kırmızı, pembe, mavi, mor gibi çeşitli renklerde bulunabilir. Sıcaklığa dayanıklı olması, radyasyonu toplayıcı özelliği, yeryüzünde çok bol bulunması dozimetrik malzeme olarak kullanımını arttırmıştır.



**Şekil 4.4**. Kuvarsın ( $\alpha$  ve  $\beta$ ) kimyasal yapısı

# 4.1.3. Örnek Hazırlamada Kullanılan Cihazlar

# 4.1.3.1. Tavlama Fırını

Bütün ısıtma işlemleri, geç ısınma ve geç soğuma özelliğine sahip özel olarak tasarlanmış mikroişlemci kontrollü bir elektrikli fırında yapılmıştır. Tuğla ile kaplı bu fırın oda sıcaklığı ile 1200°C arasındaki yüksek sıcaklıklarda dijital olarak ölçüm yapmaktadır. Kullanılan bu fırının ölçüm hassasiyeti  $\pm 2$  °C'dir.



Şekil 4.5. Tavlama Fırını

# 4.1.3.2 Agat Havan

Farklı materyalleri öğütmek için kullanılan agat havan kuvars kristallerini küçük parçalara ayırmak için kullanılmıştır. Agatın oldukça sert yapısı sayesinde kırılma işlemi sırasında örneğe yabancı malzemelerin karışması engellenebilmektedir. Şekil 4.6'da kuvars kristallerini küçük parçalara ayırmak için kullandığımız agat havanı gösterilmektedir.



Şekil 4.6. Agat havan

### 4.1.3.3. Hassas Terazi

Bu çalışmada kullanılan kuvars kristalleri agat havanda küçük parçalara ayrıldıktan sonra yüksek Precisa XT 220 A model bir hassas terazi kullanılarak ~3 mg olacak şekilde tartılmışlardır (Şekil 4.7). Bu hassas terazinin hassasiyeti 0.1 mg'dır.



Şekil 4.7. Kuvars kristallerinin tartılmasında kullanılan hassas terazi

# 4.1.3.4. Örnek tablası

Örnek tablası 48 örneğin bir arada okunmasını sağlayacak şekilde tasarlanmıştır. Her bir örmeğin arasındaki mesafe 17 mm olup, her örnek için farklı ışınlama işlemi uygulanabilir. Yapılacak deneylerde hassasiyeti sağlamak için örnekler yan yana koyulmamaya dikkat edilmelidir. Çünkü örneğin ışınlanması sırasında komşu örneklerde çok az seviyede de olsa doz soğurmaktadır. Örnekler kenarlıklı disklerin içine yerleştirilerek örnek tablasının üzerine koyulur.



Şekil 4.8. Kenarlıklı ve kenarlıksız diskler ile örnek tablasının görüntüsü

# 4.1.3.5. Termolüminesans (TL) Ölçüm Sistemi

Bu çalışmada yapılan analizler Çukurova Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Termolüminesans Dozimetresi ve Medikal Fizik Laboratuvarında yürütülmüştür. Kuvars kristalinin TL ışıma eğrilerinin elde edilmesinde Riso TL/OSL DA-20 model TL-OSL ölçüm cihazı kullanılmıştır. Bu cihaz, ilk olarak 1982'de TL okuyucusu olarak tasarlanmıştır. Var olan TL okuyucusunun yanında 1991 de daha da geliştirilerek OSL okuyucusu da tasarlanmıştır. Günümüze kadar geliştirilmesi devam eden bu Riso TL/OSL Lüminesans okuyucusu pek çok araştırmaya kolaylık sağlamıştır. Riso TL/OSL otomatik ölçüm sistemi hem TL hem de OSL ölçümlerini yapabilmektedir. Sistem 48 örneğin aynı anda

- Opsiyonel olarak radyoaktif alfa (α) ve beta (β) kaynakları veya mini X ışını jeneratörleri vasıtasıyla örneklerin her birinin bağımsız olarak tutulmasını sağlamakta
- Sürekli dalgada (CW) lineer modülasyonlu OSL'de (LM-OSL) ve pulsed OSL (POSL) modunda değişik ışık kaynakları kullanarak optiksel uyarılma sağlamakta
- Oda sıcaklığı ile 700°C arasında herhangi bir sıcaklığa kadar bağımsız olarak ısıtılmasını sağlamaktadır.

Riso TL/OSL Lüminesans Okuyucu: Model TL/OSL-DA-20 cihazı radyasyon kaynağı, ısıtma sistemi, fotokatlandırıcı, kontrolör ve IR-mavi ışık kaynağından

oluşmaktadır. Şekil 4.9'de deneyde kullanılan Riso TL/OSL ölçüm cihazı görülmektedir.



Şekil 4.9. Risø TL/OSL cihazının görünümü

### 4.1.3.5.(1) Radyasyon Kaynağı

TL/ OSL cihazında bulunan Beta ( ${}^{90}$ Sr/ ${}^{90}$ Y) radyasyon kaynağı pnömatik bir kapağa sahip özel bir kurşun blok içerisine yerleştirilmiştir. Bu radyasyon kaynağı, Şekil 4.10'da gösterildiği gibi örneklerin yerleştirildiği bir döner tabla veya bir diğer adıyla örnek karuselin üzerinde yer almaktadır. Radyasyon kaynak modülünün içerisinde maksimum yarılanma ömrü 30 yıl olan, maksimum 2.27 MeV'lik enerjiye sahip  $\beta$  parçacıkları yayan ve 1.48 GBq'lik (40 mCi) aktiviteye sahip  ${}^{90}$ Sr /  ${}^{90}$ Y kaynağı bulunmaktadır. Kuvars için örnek pozisyonundaki doz soğurma oranı 6.689 Gy/dak'dır.



**Şekil 4.10.** Radyasyon kaynağı  ${}^{90}$ Sr /  ${}^{90}$ Y (beta kaynağı)

# 4.1.3.5.(2) Isıtma ile uyarım sistemi

Örneği ısıtan ve uygun konuma getiren bu sistem yüksek dirençli alaşımdan yapılmıştır. Bu sistemin ısıtıcı ve kaldırma mekanizması fotokatlandırıcı tüpün (PMT) altında yer alarak 2 göreve hizmet eder. Birincisi örneği ısıtmak ve ikincisi de örneği ölçüm pozisyonuna getirmektir. Örneği aşırı ısınmadan (yanmadan) koruyan ve soğutan bir azot ortamı mevcuttur. Bu sayede TL ölçümü lineer olarak oda sıcaklığından 700°C'ye kadar yapılabilmektedir. Bu sağlanmadığı takdirde örneklerin TL hassasiyetinde bir değişme görülür.

### 4.1.3.5.(3) Fotokatlandırıcı Tüp (PMT)

Riso TL/ OSL ölçüm cihazı temelde lüminesans uyarım sistemi (termal veya optik), ışınlama kaynağı ve ışık algılama sisteminden oluşmuştur (Şekil 4.11). Işık algılama sisteminin içerisinde yer alan optik filtreler ve fotokatlandırıcı tüp (PMT) sayesinde lüminesans yayınımı algılanmaktadır.

Bu fotokatlandırıcı tüp içerisinde, numune ısıtıldığında TL şiddetini ölçen ışığa karşı duyarlı katod bulunmaktadır. Katod CsSb ve bialkali bir bileşiklerden oluşur.

Riso TL/ OSL cihazı içerisindeki PMT'lerin maksimum algılama verimi 200 nm ile 400 nm arasındadır. Bu özelliği sayesinde feldispat ve kuvarsın lüminesans ölçümleri yapılmaktadır. Riso TL/ OSL cihazında PMT katodu ile örnek arasındaki mesafe 55 mm'dir ve bu sistemin algılama katı açısı 0.4 steradyandır.



Şekil 4.11. Riso TL/ OSL ölçüm cihazı ve fotokatlandırıcı tüp

#### 4.1.3.5.(4) IR ve Mavi Işık Kaynağı

Riso TL/OSL cihazının önemli parçalarından biri de IR ve mavi ışık kaynağıdır. Bu kaynak sayesinde kuvars ve diğer örnekler LED yardımıyla uyarılır. Şekil 4.12'de mavi LED'lerden ve IR LED'lerden oluşan IR ve mavi ışık kaynağının dalgaboyu-ışık şiddeti grafiği gösterilmektedir.



Şekil.4.12. IR ve mavi ışık kaynağının dalgaboyu-ışık şiddeti grafiği

## 4.1.3.5.(5) Kontrolör

Örnekten alınan verilerin, bilgisayara aktarılmasını sağlayan, bilgisayarda bulunan Windows tabanlı yazılım aracılığı ile kullanıcının girdiği komutları TL cihazına aktaran ve tüm süreci sürekli kontrol eden birimdir. Kontrolörün içerisinde 40 komut dili çeviricisi vardır. Şekil 4.13'de kontrolör görülmektedir.



Şekil 4.13. Kontrolör

# **4.2. YÖNTEM**

### 4.2.1. Kuvars Örneğinin Hazırlanması

Bu çalışmada Hakkari yöresinden bir blok parçadan alınan kuvars (SiO<sub>2</sub>) kristalinin termolüminesans (TL) özellikleri ve kinetik parametrelerinin (aktivasyon enerjisi, frekans faktörü vs.) belirlenmesi amaçlanmıştır. Bu çalışmada yapılan analizler Çukurova Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Termolüminesans Dozimetresi ve Medikal Fizik laboratuvarında yürütülmüştür. Çalışmada kullanılan Hakkari yöresinden alınan doğal kuvars örneği Şekil 4.2'de gösterilmiştir. Dozimetrik malzeme olarak kullanınının uygun olup olmadığı incelenecek olan doğal kuvars örneği öncelikle saf su ile yıkanmıştır. Bu işlemin amacı örneğe bulaşabilecek farklı materyalleri arındırmaktır. Daha sonra kurutulan örnek agat havanında küçük parçalar haline getirilmiştir. Hazırlanan bu örnekler kenarlıklı disklerin içerisine yerleştirilerek hassas terazi aracılığıyla 3 mg olacak şekilde tartılmıştır. Aksi belirtilmediği sürece bütün deneylerde 3 mg'lık kristal kuvars örneği kullanılmıştır. Ayrıca doz öncesi standart tavlama sıcaklığı ve süresi 450 °C'de 15 dakika olacak şekilde belirlenmiştir.

Bu çalışmada kuvarsın termolüminesans (TL) özelliklerini ve kinetik parametreleri belirlemek amacıyla çeşitli deneyler yapılmıştır. Buradaki temel amaç kuvarsın dozimetrik malzeme olarak kullanılmasının uygun olup olmadığının incelenmesidir. Yapılan bu deney aşamaları sırasıyla verilecek olursa: tavlanmış ve tavlanmamış kuvarsın TL ışıma eğrilerinin incelenmesi, tavlama sıcaklığının kuvarsın TL hassasiyetine etkisi, uygun tavlama sıcaklığının ve süresinin belirlenmesi, farklı ısıtma hızlarının TL ışıma eğrilerine etkisi, tuzak parametrelerin (aktivasyon enerjisi, frekans faktörü) Farklı Isıtma Hızı Metodu ile hesaplanması, kuvars kristalinin doz cevabının incelenmesi ve kuvarsın doz cevap eğrisinin belirlenmesi şeklinde sıralanabilir.

### 4.2.2. Kuvarsın TL Işıma Eğrilerinin İncelenmesi

Hassas terazide tartılan doğal kuvars örneği herhangi bir işleme tutulmadan (tavlama, ışınlama vs.) doğal TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Ardından ikinci kez TL okuması yapılarak fon eğrisi elde edilmiştir. Böylece doğal kuvars kristalinin doğada bulunduğu süre boyunca toprakta bulunan toryum, uranyum gibi iyonize radyasyon kaynaklarından ileri gelen TL ışıma eğrilerinin incelenmesi amaçlanmıştır. Aynı örnek 450°C de 15 dakika tavlanmasının ardından TL cihazında bulunan <sup>90</sup>Sr<sup>90</sup>Y beta kaynağı ile 30 dakika (~200 Gy) ışınlanarak TL ışıma eğrisi elde edilmiştir. Doğal TL ışıma eğrisi ile tavlama sonrası ışınlanarak elde edilen TL ışıma eğrisi karşılaştırılmıştır. Elde edilen sonuçlar bölüm 5.1'de verilmektedir.

#### 4.2.3. Tavlama Sıcaklığının ve Süresinin Belirlenmesi Deneyi

İyi bir dozimetrik malzemenin yüksek verimlilikte bir ışık yayınımına sahip olması, ucuz olması ve tekrarlanabilirliğinin olması, çevre koşullarına dayanıklı olması, lineer bir doz tepkisi olması v.b gibi birçok özelliğe sahip olması beklenir (Soliman ve ark. 2009). Bu özelliklerden en önemlilerinde birisi malzemenin yüksek verimlilikte ışık yayınımına sahip olmasıdır. Bunun için de uygun tavlama sıcaklının ve süresinin belirlenmesi gerekmektedir. Aksi takdirde doğada bulunduğu süre boyunca maruz kaldığı radyasyondan ileri gelen TL sinyali laboratuvar ortamında verilen dozdan ileri gelen TL sinyali ile karışarak yanlış sonuçlar elde etmemize yol açabilir. Bu amaçla kuvars örneği öncelikle 250°C de 15 dakika tavlanmıştır. Tavlanan örnek alüminyum blok üzerinde 5 dakika soğumaya bırakıldıktan sonra 100 Gy'lik beta test dozu verilmiş ve ardından 1 °C/s ısıtma oranı kullanılarak oda sıcaklığı ile 450°C aralığında TL ölçümü alınmıştır. Bu işlemler 300°C, 350°C, 400°C, 450°C, 500°C, 550°C, 600°C, 650°C ve 700°C'lik tavlama sıcaklıkları için ayrı ayrı tekrar edilmiştir. Alınan ölçümler sonucunda her bir tavlama sıcaklığı için TL ışıma şiddeti grafiği çizilmiştir. Aynı işlemler 200 Gy'lik beta test dozu için de tekrar edilmiştir. Elde edilen bulgularla ilgili ayrıntılı sonuçlar bölüm 5.2'de verilmektedir.

# 4.2.4. Farklı Isıtma Hızlarının TL Işıma Eğrisi Üzerine Etkileri ve Farklı Isıtma Hızları Metodu ile Kinetik Parametrelerin Hesabı

Farklı ısıtma hızlarının TL ışıma eğrisi üzerine etkilerini incelemek amacıyla aynı kuvars örneği standart tavlama protokolüne göre tavlanmıştır. Ardından örneğe 10 dakikalık (66.89 Gy) beta dozu verilerek sırasıyla 1°C/s, 2°C/s, 3°C/s, 4°C/s, 5°C/s, 6°C/s, 8°C/s ve 10°C/s'lik ısıtma hızları için TL ışıma eğrileri çizilmiştir. Böylece elde edilen TL ışıma tepelerinin tepe sıcaklıkları ölçülmüştür. Bu tepe sıcaklıkları kullanılarak elde edile hesaplamalar Tablo 5.1. ve Tablo 5.2'de gösterilmektedir. Bu tablolardan hareketle tuzak parametreler olan aktivasyon enerjisi ve frekans faktörü hesaplanmıştır. Bu hesaplama sonuçları Bölüm 5.3'te gösterilmiştir.

#### 4.2.5. Doz Cevabı

Dozimetrik malzemelerin doz cevap özelliklerinin belirlenmesi bu malzemelerin hangi alanda kullanılabileceği ile ilgili önemli bilgiler vermektedir. Bu amaçla kuvars kristalinin hangi doz aralığında lineer doz cevap eğrisine sahip olduğunu belirlemek için örnek 450 °C'de 15 dakika tavlanmasının ardından çeşitli oranlarda beta dozu verilerek TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Örnek, 1s'den başlayarak sırasıyla 2, 5, 10, 15, 30 saniye ile 1, 2, 5, 10, 15, 30, 45 dakika ve 1, 6, 12, 24 saatlik beta ışınlanmasına maruz bırakılmıştır. TL okuması ısıtma hızı 1°C/s alınarak gerçekleştirilmiştir Farklı doz oranları ile ışınlanarak elde edilen TL ışıma eğrileri ve diğer analiz sonuçları Bölüm 5.4'te verilmiştir.

#### 5. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA

### 5.1. Kuvarsın TL Işıma Eğrilerinin İncelenmesi

Doğal kuvars kristalinin doğal TL ışıma eğrilerinin incelenmesi amacıyla herhangi bir işleme (tavlama, ışınlama vb.) tabi tutulmamış ~3 mg'lık bir kristal parçası kullanılarak TL okuması yapılmıştır. Ardından ikinci kez TL okuması yapılarak fon eğrisi elde edilmiştir. Böylece doğal kuvars kristalinin doğada bulunduğu süre boyunca toprakta bulunan toryum, uranyum gibi iyonize radyasyon kaynaklarından ileri gelen TL ışıma eğrilerinin incelenmesi amaçlanmıştır. Elde edilen TL ışıma eğrisi Şekil 5.1'de verilmektedir. Şekil 5.1 incelendiğinde doğal kuvarsın tavlanmadan önce yaklaşık 210 °C, 250 °C ve 350°C civarında üç tepeden oluştuğu görülmektedir.



Şekil 5.1. Doğal kuvarsın doğal ve fon ışıma eğrileri

Şekil 5.1'deki ışıma eğrisi bize hiçbir ısıl işleme tabi tutulmamış kuvars kristalinin TL eğrisi hakkında önemli bilgiler vermektedir. Bunlardan en önemlisi, kristalin tuzak yapısının tavlama işlemi ile birlikte herhangi bir değişikliğe uğrayıp uğramadığı hakkında bilgi sahibi olabilmemizdir. Eğer tavlanmamış bir örnekten elde

edilen TL ışıma eğrisi tavlama sonrası elde edilen ile benzer kinetik parametrelere (tepe sayısı, tepe sıcaklığı (T<sub>m</sub>), aktivasyon enerjisi (E), frekans faktörüne (s) vs.) sahipse, örneğin sıcaklığa maruz kalmasıyla çok fazla yapısal değişikliye uğramadığı söylenebilir. Bunların yanı sıra bir diğer önemli nokta doğal TL ışıma eğrisi bize hangi tepelerin sönüme uğradığı ve hangi tepelerin dozimetrik tepe olarak kullanılabileceği ile ilgili önemli bilgiler vermektedir. Şekil 5.2'de aynı örneğin 450°C de 15 dakika tavlanmasının ardından TL cihazında bulunan  ${}^{90}$ Sr ${}^{90}$ Y beta kaynağı ile 30 dakika (~200 Gy) ışınlanması ile elde edilen TL ışıma eğrisi verilmektedir. Doğal TL ışıma eğrisi (Şekil 5.1) ile tavlama sonrası ışınlanarak elde edilen TL ışıma eğrisi (Şekil 5.2) karşılaştırıldığında, yaklaşık 85 °C ve 110 °C civarında bulunan düşük sıcaklık tepelerinin sönüme uğradığı ve bu sebeple Şekil 5.1'de görülmediği söylenebilir. Bunun sebebi düşük sıcaklık tepelerinin sığ tuzaklardan (başka bir değişle aktivasyon enerjisi düşük tuzaklar) ileri geldiği bilinmektedir. Bu sebeple bu tuzakların oda sıcaklığındaki saklanma koşullarında bile sönüme uğradıkları bilinmektedir (Aitken 1985). Şekil 5.3 incelendiğinde bu durum daha net bir şekilde görülmektedir. Buradan düşük sıcaklık tepelerinin (85 °C ve 110 °C) kuvarsın dozimetrik özelliklerinin incelenmesinde kullanımının uygun olmayacağı söylenebilir.



**Şekil 5.2.** 450°C de 15 dakika tavlanıp 30 dakika (~200 Gy) beta dozu verilen kuvars örneğinden elde edilen TL ışıma eğrisi



Şekil 5.3. Doğal kuvars kristalinden elde edilmiş doğal TL ışıma eğrisi ile 450 °C'de 15 dk'lık tavlama sonrası 30 dakika beta dozu verilerek elde edilmiş TL eğrisinin karşılaştırılması

Şekil 5.2 de görüldüğü gibi tavlama sonrası ~200 Gy doz verilerek elde edilen TL ışıma eğrisi yaklaşık 85 °C, 110 °C, 210°C, 250 °C ve 350 °C civarında tepe sıcaklıklarına sahip 5 tepeden oluşmaktadır. Yukarıda bahsedildiği gibi, bunlardan 85 °C ve 110 °C tepeleri düşük sıcaklık tepeleri olarak nitelendirilebilirler. Bu tepelerin genellikle sığ tuzaklardan meydana gelmektedir. Dolayısıyla bu tepeler malzemenin dözimetrik özelliklerinin incelenmesi için uygun değildir. İyi bir dozimetrik malzemeden beklenen özellik yüksek sıcaklarda kararlı olması ve uygun saklama koşullarında sönüme uğramamasıdır. 250 °C ve 350 °C civarında bulunan tepeler ise çok belirgin tepeler değildir. Özellikle 250 °C tepesi 210 °C tepesi ile iç içe geçmiş durumdadır. 350 °C tepesi ise düşük bir tepe yüksekliğine sahiptir. Ayrıca bu tepe düşük dozlarda çok fazla belirgin olmayıp ancak yüksek dozlarda karşımıza çıkmaktadır. Sonuç olarak çalışılan kuvars örneğinin dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi amacıyla kullanılabilecek en uygun tepenin 210 °C tepesi olduğuna karar verilmiştir. Bundan sonra yapılacak olan deneylerde özellikle bu tepe üzerinde durulacaktır.

#### 5.2. Uygun Tavlama Sıcaklığının Belirlenmesi

Dozimetrik malzeme çalışmalarında en önemli deneylerden birisi de ışınlama öncesi uygun tavlama sıcaklığının belirlenmesidir. Uygun tavlama sıcaklığı ve süresinin bulunması iki açıdan önemlidir. Birincisi örneğin doğada oluştuğu andan itibaren biriktirdiği radyasyon dozunun silinmesidir. Örneğe laboratuvar ortamında verilen ve TL okuması sırasında tamamen boşalmayan derin tuzaklardaki dozun silinmesi de aynı açıdan bakıldığında önemlidir. İkincisi ise tavlama sonucu kristalde bulunan tuzakların yeniden düzenlenerek daha kararlı bir yapıya dönüşmesinin sağlanmasıdır. Uygun sıcaklık ve sürede gerçekleştirilen tavlama işlemi tuzak yapısının daha kararlı hale gelmesini sağlamaktadır. Literatürde ışınlama öncesi tavlama sıcaklığının TL hassasiyetini oldukça fazla etkilediği yayınlanmıştır (Yang ve ark. 1990; Chen ve ark. 1997). Çalışılan kuvars örneğinin doğal ve fon ışıma eğrilerini elde ettikten sonra aynı örnek tavlama fırınında, 250°C de 15 dakika tavlanmıştır. Tavlanan örnek 5 dakika soğumaya bırakıldıktan sonra 100 Gy'lik beta test dozu verilmiş ve ardından 1 °C/s ısıtma oranı kullanılarak oda sıcaklığı ile 450°C aralığında TL ölçümü alınmıştır. Bu işlemler 300°C, 350°C, 400°C, 450°C, 500°C, 550°C, 600°C, 650°C ve 700°C farklı tavlama sıcaklıkları için ayrı ayrı tekrar edilmiştir. Alınan ölçümler sonucunda her bir tavlama sıcaklığı için TL ışıma şiddeti grafiği çizilmiştir (Şekil 5.4). Aynı işlemler 200 Gy'lik beta test dozu için de tekrar edilmiştir. Bu şekilde elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 5.5'te verilmektedir.

Şekil 5.4 ve Şekil 5.5'te görüldüğü üzere tavlama sıcaklığının arttırılması özellikle düşük sıcaklık tepelerinin (85 °C ve 110 °C) TL hassasiyetinde gözle görünür bir şekilde artışa neden olmaktadır. Aynı şekilde yüksek sıcaklık tepelerinin (210°C, 250 °C ve 350 °C) TL hassasiyetinde bir artış gözlenmektedir. Fakat bu artış düşük sıcaklık tepelerine kıyasla daha düşük bir oranda gerçekleşmektedir. Dozimetrik tepe olan 210 °C tepesinin tavlama sıcaklığına karşı TL hassasiyetindeki değişim oranı Şekil 5.6'da verilmektedir. Literatürde tavlama sıcaklığının, kuvarsın yüksek sıcaklık tepelerinin TL hassasiyeti üzerine etkisi ile ilgili yapılan çalışmalarda  $\alpha$ - $\beta$  faz geçiş sıcaklıklarında (573°C'den yüksek sıcaklıklarda) genellikle TL hassasiyetinde bir artış olduğu belirtilmiştir. Kuvarsın TL hassasiyetinin tavlama sıcaklığına bağlı olarak değiştiği McKeever ve ark. (1983) tarafından da gösterilmiştir. Bu hassasiyet artışının sebebi aktif olmayan yeniden birleşme merkezlerinin yüksek sıcaklık sebebiyle yeniden aktif hale gelmesidir (M.David ve ark. 1977).



**Şekil 5.4.** Farklı tavlama sıcaklıkları ile tavlamanın ardından 100 Gy'lik beta test dozu verilerek elde edilen TL ışıma eğrileri



Şekil.5.5. Farklı tavlama sıcaklıkları ile tavlamanın ardından 200 Gy'lik beta test dozu verilerek elde edilen TL ışıma eğrileri



Şekil 5.6. 210 °C tepesinin tavlama sıcaklığına karşılık TL hassasiyetindeki değişim grafiği

Şekil 5.6 incelendiğinde 210 °C tepesinin TL hassasiyetinin 500 °C'nin üzerindeki tavlama sıcaklıklarında gözle görünür bir şekilde arttığı görülmektedir. Genellikle dozimetrik uygulamalarda TL hassasiyetinin yüksek olduğu tavlama sıcaklıklarının kullanılması istenir. Fakat TL hassasiyetinin belli bir tavlama sıcaklığı bölgesinde kararlı bir yapıya sahip olması da oldukça önemlidir. Bunun sebebi TL şiddetinin tavlama sırasında yaşanabilecek olası sıcaklık değişimlerinden mümkün olan en az seviyede etkilenmesini sağlamaktır. Şekilde görüldüğü gibi 450 °C civarında gerçekleştirilen tavlama sonrasında elde edilen TL şiddetindeki değişim en az seviyededir. Böylece TL hassasiyetinde maksimum artış sağlanmasa da daha kararlı ve tutarlı sonuçlar elde edilebilmesi mümkün olacaktır. Sonuç olarak bu çalışmada ışınlama öncesi standart tavlama sıcaklığı ve süresi 450 °C'de 15 dakika olarak seçilmiştir.

#### 5.3. Farklı Isıtma Hızları Deneyi

Farklı ısıtma hızlarının doğal kuvars kristalinin TL ışıma eğrisi üzerine etkisini incelemek amacıyla örnek öncelikle 450°C'de 15 dakika tavlanmıştır. Örnek soğutulduktan sonra laboratuarda <sup>90</sup>Sr<sup>90</sup>Y beta kaynağı kullanılarak 10 dakika (66.89 Gy) ışınlanmış ve ısıtma hızı olarak 1°C/s seçilerek TL ölçümü kaydedilmiştir. Daha sonra bu deneysel işlemler aynı doz oranı kullanılarak sırasıyla 1°C/s, 2°C/s, 3°C/s, 4°C/s, 5°C/s, 6°C/s, 8°C/s ve 10°C/s'lik ısıtma hızları için tekrar edilmiştir. Sonuçta farklı ısıtma hızlarına bağlı olarak TL ışıma eğrileri çizilmiştir. Şekil 5.7.'de bu ışıma eğrilerinden bazıları yer almaktadır.



Şekil 5.7. Farklı ısıtma hızları kullanılarak elde edilen TL ışıldama eğrileri

Şekil 5.7'de görüldüğü gibi ısıtma hızlarının arttırılması ile elde edilen TL ışıma eğrilerinin tepe yüksekliklerinde belirgin bir azalma meydana gelmektedir. Ayrıca TL tepelerinin tepe sıcaklıkları (pozisyonları) da ısıtma hızının arttırılmasıyla yüksek sıcaklık bölgesine doğru kaydığı gözlenmektedir. TL teorisine göre verilen doz oranının sabit olması şartıyla, birinci dereceden kinetik mertebeye sahip tepelerin  $\beta$  lineer ısıtma hızının artmasına bağlı olarak tepe sıcaklıkları yüksek sıcaklık tarafına doğru kayar

(Furetta ve ark. 1998). Isıtma hızındaki artışa bağlı olarak tepe yüksekliklerinin azalması ise termal sönüm olayı ile açıklanabilir. Lüminesans etkinliğinin sıcaklığın artmasıyla azalmasına termal sönüm denir. Termal sönümdeki temel mantık yüksek ısıtma hızlarıyla ısıtılan bir malzemede birim zamanda tuzaklardan kurtulan elektron sayısının çok fazla olmasıdır. Bu durum elektronların birbirleriyle rekabet etmelerine yol açmakta ve böylece ışıma merkezlerindeki ışımalı yeniden birleşme verimi azalmaktadır. Bu da tepe yüksekliğinin azalmasına yol açmaktadır (Spooner ve ark. 2002).

Teorik olarak birinci dereceden kinetik için farklı ısıtma hızları kullanıldığında aşağıdaki denklem elde edilmektedir

$$\ln(\frac{T_m^2}{\beta}) = (\frac{E}{k})(\frac{1}{T_m}) + sabit$$
(5.1)

Burada k, boltzman sabiti ve  $\beta$  ısıtma hızıdır. Denklemde görüldüğü gibi eğer In $(T_m^2/\beta)$ 'nın  $1/T_m$ 'ye karşı grafiği çizilirse elde edilecek olan eğrinin eğiminden E ve s değerleri hesaplanabilmektedir.

Bu denklemler birinci dereceden kinetiğe sahip bir için örnek kullanılabilmektedir. Bu sebeple kuvars örneğinin TL tepelerinin kinetik mertebelerine karar verebilmek amacıyla ek doz yöntemi uygulanmıştır. Teoriye göre birinci dereceden kinetik mertebesine sahip eğriler (b=1) için tepe sıcaklığı sadece ısıtma hızının artması ile değişmektedir (McKeever 1985). Böylece sabit 1 °C/s ısıtma hızı kullanılarak elde edilen eğrilerinin diğer deneysel parametrelerden etkilenmemesi ve T<sub>m</sub> değerinin deneysel hata sınırları içerisinde sabit kalması beklenmektedir. Buna karşın b≠1 için ve sabit ısıtma hızı kullanılarak elde edilen TL ışıma eğrilerinin T<sub>m</sub> değerlerinin verilen radyasyon dozunun arttırılması ile birlikte düşük sıcaklık tarafına doğru kayması söz konusudur. Yapılan çalışmada, elde edilen TL eğrilerinin tepe sıcaklıklarının dozun artışına bağlı olarak değişip değişmediği incelenmiştir. Bu amaçla kuvars örneğine 1 sn ile 24 saat arasında değişen sürelerde beta dozları verilmiş ve tepe sıcaklıklarının değişip değişmediği incelenmiştir. Elde edilen sonuçlar Şekil 5.8'de verilmektedir. Şekilde hem 85 °C tepesinin hem de 210 °C tepesinin (dozimetrik tepe) T<sub>m</sub> değerinin %4 ve % 5.5'lik hata sınırları içerisinde kaldığı görülmektedir. Sonuç olarak doğal kuvars kristalinin TL tepelerinin birinci dereceden kinetik mertebeye sahip olduğu deneysel verilere dayanarak söylenebilir.



Şekil 5.8. Farklı dozlara karşılık tepe sıcaklıklarının ( $T_m$ ) değişim grafiği (a) 85 °C tepesi için (b) 210 °C tepesi için

Farklı ısıtma hızları kullanılarak kuvars örneklerinin kinetik parametrelerinin (aktivasyon enerjisi E ve frekans faktörü *s*) hesaplanması amacıyla 1, 2, 3, 4, 5, 8 ve 10 °C/s'lik ısıtma hızları kullanılarak elde edilen TL ışıma eğrileri kullanılmıştır. Böylece elde edilen TL ışıma tepelerinin tepe sıcaklıkları ölçülmüştür. Bu tepe sıcaklıkları kullanılarak elde edilen hesaplamalar tablo 5.1. ve tablo 5.2. de gösterilmektedir.

**Tablo 5.1**. Düşük sıcaklık tepesi (85 °C ve 110 °C tepelerinin toplamından oluşan tepe) için elde edilen hesaplamalar

β	$T_{m}(K)$	1/ T <sub>m</sub>	T <sub>m</sub> <sup>2</sup>	$T_m^2/\beta$	$In(T_m^2/\beta)$
1	359	0,002786	128881	128881	11,76664
2	367	0,002725	134689	67344,5	11,11758
3	372	0,002688	138384	46128	10,73918
4	376	0,00266	141376	35344	10,47288
5	379	0,002639	143641	28728,2	10,26563
8	388	0,002577	150544	18818	9,842569
10	392	0,002551	153664	15366,4	9,639939

Tablo 5.2. Dozimetrik tepe (210 °C tepesi) için elde edilen hesaplamalar

β	$T_{m}(K)$	1/ T <sub>m</sub>	T <sub>m</sub> <sup>2</sup>	$T_m^2/\beta$	$In(T_m^2/\beta)$
1	484	0,002066	234256	234256	12,36417
2	489	0,002045	239121	119560,5	11,69158
3	498	0,002008	248004	82668	11,32259
4	502	0,001992	252004	63001	11,05091
5	503	0,001988	253009	50601,8	10,83174
8	511	0,001957	261121	32640,13	10,3933
10	518	0,001931	268324	26832,4	10,19737

Tablo 5.1 ve Tablo 5.2'de elde edilen sonuçlar kullanılarak  $In(T_m^2/\beta)$ 'a karşılık  $1/T_m$ 'nin grafiği çizilmiş ve sonuçlar Şekil 5.9 ve Şekil 5.10'da verilmiştir.


Şekil 5.9. Düşük sıcaklık tepesi (85 °C ve 110 °C tepelerinin toplamından oluşan tepe) için  $\ln(T_m^2/\beta)$ 'a karşılık  $1/T_m$ 'nin grafiği



Şekil 5.10. Dozimetrik tepe (210 °C tepesi) için  $\ln(T_m^2/\beta)$ 'a karşılık 1/ $T_m$ 'nin grafiği

Yukarıdaki şekillerde gösterilen doğruların eğimi E enerji değerini gösterirken, doğrudaki noktaların  $1/T_m$ 'yi kestiği nokta ise In(E/ks) değerini vermektedir. Bu doğruların eğimi alınarak kinetik parametreler hesaplanmıştır. Yukarıda elde edilen iki grafikte orijin 7.5 programı kullanılarak elde edilen eğrilerin eğimi hesaplanmıştır. Sonuçta elde edilen düşük ve yüksek sıcaklık tepelerinin aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (*s*) tablo 1 de gösterilmiştir.

**Tablo 5.3.** Farklı ısıtma hızları yöntemi kullanılarak elde edilen E(eV) ve  $s(s^{-1})$  değerleri

	E(eV)	$s(s^{-1})$
Düşük sıcaklık tepesi (85 °C+110 °C)	0.77	5,14 E+11
Yüksek sıcaklık tepesi (210 °C)	1.35	1,15 E+14

Tablo 5.3 incelendiğinde düşük sıcaklık tepesinin aktivasyon enerjisinin 0.77 eV ve frekans faktörünün de 5.14 E+11 s<sup>-1</sup> olduğu görülmektedir. Aynı şekilde dozimetrik tepe olan ve 210 °C civarında yer alan tepenin aktivasyon enerjisinin 1.35 eV ve frekans faktörünün de 1,15 E+14 s<sup>-1</sup> olduğu bulunmuştur. Literatürde kuvarsın frekans faktörünün 10<sup>9</sup> ile 10<sup>16</sup> arasında değerler alabileceği bildirilmiştir (Aitken, 1985). Elde edilen frekans faktörü değerleri bu aralığın içerisindedir. Ayrıca daha önceki çalışmalarda kuvarsın düşük sıcaklık tepelerinin aktivasyon enerjilerinin 1.02 eV (Mebhah ve ark. 2006), 0,92 eV (Kitis ve ark. 2002) ve 0.97 eV (Jain ve ark. 2007) gibi değerler aldığı yayınlanmıştır. Ayrıca yüksek sıcaklık tepelerinin (~200 °C) 1.20 eV (Mebhah ve ark. 2006) ve 1.36 eV (Veronese ve ark. 2004)'luk enerji seviyelerine sahip oldukları bildirilmiştir. Görüldüğü gibi Türkiye kaynaklı doğal kuvarslardan elde edilen aktivasyon enerji seviyeleri literatürde yayınlanan değerlerle uyum içerisindedir.

## 5.4. Doz Cevap Eğrisi

Dozimetrik malzemelerin doz cevap özelliklerinin belirlenmesi bu malzemelerin hangi alanda kullanılabileceği ile ilgili önemli bilgiler vermektedir. Örneğin kişisel dozimetri uygulamalarında ilgilenilen doz aralığı  $\sim 10^{-5}$  Sv'ten  $10^{-1}$  Sv'e kadar

değişmekle beraber dozun belirsizliği  $\pm$  %10-20 aralığında olmalıdır (McKeever ve ark. 1995). Çevre dozunun ölçülmesi ile ilgili çalışmalarda ise bu ölçülmesi gereken doz  $10^{-2}$  mSv civarında iken klinik uygulamalarda radyoloji için  $10^{-5}$  ile  $10^{-2}$  Gy arasında değişirken radyoterapide 20 Gy'e kadar radyasyon dozu kullanılmaktadır (hata oranı  $\pm$  %3'ten az olmalıdır). Son olarak yüksek doz uygulamalarında ise çalışılan doz oranı  $10^{2}$  Gy'e kadar değişmektedir.

Doz cevabı, verilen doz oranının arttırılmasıyla birlikte TL şiddetinde gözlenen artıştır. Genellikle dozun artması ile birlikte lüminesans şiddetinin de aynı oranda artması istenir. Bu durumda örneğin lineer bir doz cevap eğrisine sahip olduğundan söz edilebilir. Fakat birçok malzeme ile ilgi yapılan çalışmalarda verilen dozun arttırılması ile birlikte doz cevap eğrisinin önce lineer (genellikle dar bir aralıkta gözlenir) daha sonra supralineer (daha geniş bir doz aralığını kapsar) ve sublineer (doygunluk) özellikleri gösterdiği gözlenmektedir (McKeever ve ark. 1995).

Doğal kuvars örneğinin lineer doz cevap eğrisine sahip olduğu doz aralığını belirlenmesi amacıyla örnekler 450 °C'de 15 dakika tavlanmasının ardından çeşitli oranlarda beta dozu verilerek TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Örnek 1s'den başlayarak sırasıyla 2, 5, 10, 15, 30 saniye ile 1, 2, 5, 10, 15, 30, 45dakika ve 1, 6, 12, 24 saatlik beta ışımasına maruz bırakılmıştır. TL okuması ısıtma hızı 1°C/s alınarak gerçekleştirilmiştir. Elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 5.11, Şekil 5.12, Şekil 5.13 ve Şekil 5.14' te gösterilmiştir.



**Şekil 5.11**. Kuvars örneğine sırasıyla 1 (0.11 Gy), 2 (0.22 Gy), 5 (0.55 Gy), 10 (0.66 Gy) ve 15 (1.67 Gy) saniyelik beta dozu verilerek elde edilen ışıma eğrileri



**Şekil 5.12.** Kuvars örneğine sırasıyla 0,5 (3.34 Gy), 1 (6.68 Gy), 2 (13.3 Gy), 5 (33.44 Gy) ve 10 (66.89 Gy) dakikalık beta dozu verilerek elde edilen ışıma eğrileri



**Şekil 5.13**. Kuvars örneğine sırasıyla 15 (100.33 Gy), 30 (200.67 Gy) ve 45 (301 Gy) dakikalık beta dozu verilerek elde edilen ışıma eğrileri



**Şekil 5.14.** Kuvars örneğine sırasıyla 1 (401.34 Gy), 6 (2408.04 Gy), 12 (4816.08 Gy) ve 24 (9632.16 Gy) saatlik beta dozu verilerek elde edilen ışıma eğrileri

Görüldüğü gibi birinci tepenin (~85 °C) TL şiddetindeki artış1saniye (0.11 Gy) verilen dozdan 1 saat (401.34 Gy) verilen doza kadar devam etmiştir. Fakat 1 saatlik ışınlamadan sonra bu tepenin artık gözlenmediği görülmektedir (Sekil 5.14). Bunun sebebi yüksek dozdan dolayı bu tepeye sebep olan tuzakların deformasyona uğraması olabilir. Ayrıca uzun süreli ışınlamalarda sığ tuzakların verilen radyasyon sebebiyle bosalması da muhtemeldir. Fakat bu 85 °C tepesinin tamamen silinmesi için veterli değildir. Bu sebeple birinci olasılığın gerçekleşme ihtimali daha yüksektir. Bunları yanı sıra 24 saatlik (~9632 Gy) ışınlama sonucu elde edilen TL ışıma eğrisi incelendiğinde 210 °C tepesinin TL şiddetinde bir azalma olduğu gözlenmiştir. Burada 210 °C tepesinin şekil itibariyle değişikliğe uğramadığı, sadece beklenen TL şiddetinde bir azalma olduğu görülmektedir. Burada da 85 °C tepesinde olduğu gibi bazı tuzakların yüksek doz sebebiyle deforme oldukları veya yeniden birleşme merkezlerinin sayısının azaldığı söylenebilir. Uzun süreli ışınlama sonucu çok daha derin tuzaklarda bulunan tuzaklanmış elektronların uyarılarak yeniden birleşme merkezleri ile birleşmeleri sonucu TL şiddetinde bir azalma meydana gelmesi muhtemeldir. Bunların yanı sıra 12 (~4816 Gy) ve 24 saatlik ışınlama sonucunda 350 °C civarında bulunan tepenin TL şiddetinde belirgin bir artış olduğu gözlenmiştir. Buradan bu tepenin sadece yüksek dozlar için kullanılabileceği görülmektedir.

Farklı doz oranları ile ışınlanarak elde edilen TL ışıma eğrilerinden faydalanarak Şekil 5.15'da verilen doz cevap eğrisi elde edilmiştir. Burada dozimetrik tepe olan 210 °C tepesi göz önünde bulundurulmuştur. Şekilde doğal kuvars örneklerinin ~66 Gy ile ~400 Gy arasında lineer bir doz cevap eğrisine sahip olduğu görülmektedir. Aynı zamanda ~1 kGy'lik dozdan sonra örneğin doyuma ulaşmaya başladığı ve ~ 4800 Gy'den sonra tamamen doyuma ulaştığı belirlenmiştir. Sonuç olarak bu çalışmada kullanılan doğal kuvars örneklerinin yüksek doz uygulamalarında kullanılabileceği söylenebilir. Yüksek doz uygulamalarına gıdaların sterilizasyonu, ilaç sanayi, malzeme testleri ve nükleer santrallerde rastlamamız mümkündür.



**Şekil 5.15.** 1 saniye (0.11 Gy) ile 24 saat (9632.16 Gy) arasında beta dozu verilen kuvars örneğinin doz cevap eğrisi

## 6. SONUÇ ve ÖNERİLER

Bu çalışmada Doğu Anadolu bölgesinden alınan doğal kuvars örneğinin dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi amacıyla termolüminesans özelliklerinin ve kinetik parametrelerinin (tepe sayısı, tepe sıcaklığı ( $T_m$ ), aktivasyon enerjisi (E), frekans faktörü (*s*) vs.) belirlenmesi amaçlanmıştır. Böylece bu çalışmada kullanılan doğal kuvars örneğinin dozimetrik malzeme olarak kullanılmasının uygun olup olmadığı ve hangi çalışma alanında kullanılabileceği incelenmiştir.

Yapılan bu çalışmada kuvars kristalinin termolüminesans özelliklerini ve kinetik parametrelerini (tepe sayısı, tepe sıcaklığı ( $T_m$ ), aktivasyon enerjisi (E), frekans faktörü (*s*) vs.) belirlemek amacıyla çeşitli çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalar sırasıyla; tavlanmamış kuvars kristalinin doğal TL ışıma eğrilerinin incelenmesi, tavlama sıcaklığına bağlı olarak doğal kuvarsın TL hassasiyetindeki değişimin belirlenmesi, uygun tavlama sıcaklığının belirlenmesi, Farklı Isıtma Hızları yöntemi ile tuzak parametrelerin hesaplanması (aktivasyon enerjisi, frekans faktörü vs.) ve kuvars kristalin farklı oranlardaki beta dozuna tepkisinin belirlemesidir. Bölüm 5'te, yapılan deneysel çalışmalarda elde edilen sonuçlar ayrıntılı olarak verilmiştir.

Kuvars kristalinin doğal TL ışıma eğrilerinin incelenmesi amacıyla herhangi bir işleme (tavlama, ışınlama vb.) tabi tutulmadan örneğin TL okuması yapılmış ve doğal kuvarsın tavlanmadan önce yaklaşık 210 °C, 250 °C ve 350°C civarında üç ayırt edilebilir tepeden oluştuğu görülmüştür (Şekil 5.1). Ardından ikinci kez TL okuması yapılarak fon eğrisi elde edilmiştir. Kristalin tuzak yapısının tavlama işlemi ile birlikte herhangi bir değişikliğe uğrayıp uğramadığı hakkında bilgi sahibi olabilmek için, kuvars örneğinin 450 °C'de 15 dk'lık tavlama sonrası 30 dakika beta dozu verilerek elde edilmiş TL eğrisi çizilmiştir. Elde edilen TL ışıma eğrisi incelendiğinde tavlanmış kuvars örneğinin yaklaşık 85 °C, 110 °C, 210°C, 250 °C ve 350 °C civarında tepe sıcaklıklarına sahip 6 tepeden oluştuğu gözlenmiştir (Şekil 5.2). Bu deney sonucunda doğal TL ışıma eğrisi (Şekil 5.1) ile tavlama sonrası ışınlanarak elde edilen TL ışıma eğrisi (Şekil 5.2) karşılaştırıldığında, yaklaşık 85 °C ve 110 °C civarında bulunan düşük sıcaklık tepelerinin sönüme uğradığı ve bu sebeple Şekil 5.1'de gözlenmediği söylenebilir. Bunun sebebi düşük sıcaklık tepelerinin sığ tuzaklardan (başka bir değişle

65

aktivasyon enerjisi düşük tuzaklar) ileri gelmesidir. Bu tuzakların oda sıcaklığındaki saklanma koşullarında bile sönüme uğradıkları bilinmektedir (Aitken 1985). Dolayısıyla bu tepeler malzemenin dozimetrik özelliklerinin imcelenmesi için uygun değildir. Çünkü iyi bir dozimetrik malzemeden beklenen özellik sıcaklarda kararlı olması ve uygun saklama koşullarında sönüme uğramamasıdır. 250 °C ve 350 °C civarında bulunan tepeler ise çok belirgin tepeler değildir. Özellikle 250 °C tepesi 210 °C tepesi ile iç içe geçmiş durumdadır. 350 °C tepesi ise düşük bir tepe yüksekliğine sahiptir. Ayrıca bu tepe düşük dozlarda çok fazla belirgin olmayıp ancak yüksek dozlarda karşımıza çıkmaktadır. Sonuç olarak çalışılan kuvars örneğinin dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi amacıyla kullanılabilecek en uygun tepenin 210 °C tepesi olduğuna karar verilmiştir.

Kuvars kristalinin dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi için uygun tavlama sıcaklığı ve süresinin bulunması 2 açıdan önemlidir. Birincisi örneğin doğada oluştuğu andan itibaren biriktirdiği radyasyon dozunun silinmesidir. Örneğe laboratuvar ortamında verilen ve TL okuması sırasında tamamen boşalmayan derin tuzaklardaki dozun silinmesi de aynı açıdan bakıldığında önemlidir. İkincisi ise tavlama sonucu kristalde bulunan tuzakların yeniden düzenlenerek daha kararlı bir yapıya dönüşmesinin sağlanmasıdır. Uygun sıcaklık ve sürede gerçekleştirilen tavlama işlemi tuzak yapısının daha kararlı hale gelmesini sağlamaktadır. Literatürde ışınlama öncesi tavlama sıcaklığının TL hassasiyetini oldukça fazla etkilediği yayınlanmıştır (Yang ve ark. 1990; Chen ve ark. 1997). Çalışılan kuvars örneğinin doğal ve fon ışıma eğrilerini elde ettikten sonra aynı örnek tavlama fırınında, 35 dakika 250°C de 10 dakika tavlanmıştır. Tavlanan örnek 5 dakika soğumaya bırakıldıktan sonra 100 Gy'lik beta test dozu verilmiş ve ardından 1 °C/s ısıtma oranı kullanılarak oda sıcaklığı ile 450°C aralığında TL ölçümü alınmıştır. Bu işlemler 300°C, 350°C, 400°C, 450°C, 500°C, 550°C, 600°C, 650°C ve 700°C farklı tavlama sıcaklıkları için ayrı ayrı tekrar edilmiştir. Alınan ölçümler sonucunda her bir tavlama sıcaklığı için TL ışıma şiddeti grafiği çizilmiştir (Şekil 5.4). Aynı işlemler 200 Gy'lik beta test dozu için de tekrar edilmiştir. Bu şekilde elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 5.5'te verilmektedir.

Şekil 5.4 ve Şekil 5.5'te görüldüğü üzere tavlama sıcaklığının arttırılması düşük sıcaklık tepelerinin (85 °C ve 110 °C ) TL hassasiyetinde gözle görünür bir artışa neden olmaktadır. Aynı şekilde yüksek sıcaklık tepelerinin (210°C, 250 °C ve 350 °C) TL

hassasiyetinde bir artış gözlenmektedir. Dozimetrik tepe olan 210 °C tepesinin tavlama sıcaklığına karşı TL hassasiyetindeki değişim oranı Şekil 5.6'da verilmektedir. Kuvarsın TL hassasiyetinin tavlama sıcaklığına bağlı olarak değiştiği McKeever ve ark. (1983) tarafından da gösterilmiştir. Bu hassasiyet artışının sebebi aktif olmayan yeniden birleşme merkezlerinin yüksek sıcaklık sebebiyle yeniden aktif hale gelmesidir (M.David ve ark. 1977).

Şekil 5.6 incelendiğinde 210 °C tepesinin TL hassasiyetinin 500 °C'nin üzerindeki tavlama sıcaklığının gözle görünür bir şekilde arttığı görülmektedir. Dozimetrik malzeme olarak kullanılacak olan materyallerinin yüksek TL hassasiyeti göstermesi ve aynı zamanda belli bir tavlama sıcaklığı bölgesinde kararlı bir yapıya sahip olması oldukça önemlidir. 450 °C civarında gerçekleştirilen tavlama sonrasında elde edilen TL şiddetindeki değişim en az seviyededir. Bu tavlama sıcaklığında kuvars kristalinin TL hassasiyetinde maksimum artış sağlanmasa da daha kararlı ve tutarlı sonuçlar elde edilebilmesi mümkün olacaktır. Sonuç olarak yapılan bu farklı tavlama sıcaklarının kuvars kristalinin TL hassasiyeti üzerine etkisi deneyinde en uygun tavlama sıcaklığının ve süresinin 450 °C de 15 dakika olmasına karar verilmiştir.

Kuvars kristali için belirlenen uygun tavlama sıcaklığı ve süresinden sonra farklı ısıtma hızlarına sahip doğal kuvars kristalinin TL ışıma eğrisi üzerine etkisini incelemek amacıyla örnek öncelikle 450°C'de 15 dakika tavlanmıştır. Alüminyum blok üzerinde soğutulan örnek <sup>90</sup>Sr<sup>90</sup>Y beta kaynağı kullanılarak 10 dakika (66.89 Gy) ışınlanmış ve ısıtma hızı olarak 1°C/s seçilerek TL ölçümü kaydedilmiştir. Daha sonra bu deneysel işlemler aynı doz oranı kullanılarak sırasıyla 2°C/s, 4°C/s, 6°C/s ve 10°C/s'lik ısıtma hızları için tekrar edilmiştir. Sonuçta farklı ısıtma hızlarına bağlı olarak TL ışıma eğrileri çizilmiştir (Şekil 5.7). Bölüm 5.1.3'te de belirtildiği gibi da ısıtma hızının arttırılmasıyla tepe sıcaklıklarının yüksek sıcaklık bölgesine doğru kaydığı gözlenmektedir. TL teorisine göre verilen doz oranının sabit olması şartıyla, birinci dereceden kinetik mertebeye sahip tepelerin  $\beta$  lineer ısıtma hızının artmasına bağlı olarak tepe sıcaklıkları yüksek sıcaklık tarafına doğru kayar (Furetta ve ark. 1998). Isıtma hızındaki artışa bağlı olarak tepe yüksekliklerinin azalması ise termal sönüm olayı ile açıklanabilir. Termal sönüm, ısıtma hızının artmasıyla tuzaklardan kurtulan elektronların birbirleri ile rekabeti sonucu yeniden birleşme merkezlerindeki verimin azalması ve sonuçta lüminesans şiddetinin azalması olarak ifade edilebilir (Spooner ve ark., 2002).

Yapılan çalışmada, elde edilen TL eğrilerinin tepe sıcaklıklarının dozun artışına bağlı olarak değişip değişmediği incelenmiştir. Bu test tepelerin kinetik mertebelerinin belirlenmesinde kullanılan basit bir testtir. Bu amaçla kuvars örneğine 1 sn ile 24 saat arasında değişen sürelerde beta dozları verilmiş ve tepe sıcaklıklarının değişip değişmediği incelenmiştir (Şekil 5.7). Şekil 5.8(a) ve Şekil 5.8(b) incelendiğinde hem 85 °C tepesinin hem de 210 °C tepesinin (dozimetrik tepe) T<sub>m</sub> değerinin %4 ve % 5.5'lik hata sınırları içerisinde kaldığı görülmektedir. Sonuç olarak doğal kuvars kristalinin TL tepelerinin birinci dereceden kinetik mertebeye sahip olduğu deneysel verilere dayanarak söylenebilir.

Şekil 5.7'den elde edilen sonuçlarla  $In(T_m^2/\beta)$ 'nın  $1/T_m$ 'ye karşı grafiği çizilip elde edilen eğrinin eğiminden E ve *s* değerleri hesaplanmıştır. Sonuçta elde edilen düşük ve yüksek sıcaklık tepelerinin aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) tablo 5.3'te gösterilmiştir. Düşük sıcaklık tepesinin aktivasyon enerjisi 0.77 eV ve frekans faktörü de 5.14 E+11 s<sup>-1</sup> olarak hesaplanmıştır. Aynı şekilde dozimetrik tepe olan ve 210 °C civarında yer alan tepenin aktivasyon enerjisinin 1.35 eV ve frekans faktörünün de 1,15 E+14 s<sup>-1</sup> olduğu bulunmuştur. Literatürde kuvarsın frekans faktörünün 10<sup>9</sup> ile 10<sup>16</sup> arasında değerler alabileceği bildirilmiştir (Aitken, 1985). Elde edilen frekans faktörü değerleri bu aralığın içerisindedir. Ayrıca daha önceki çalışmalarda kuvarsın düşük sıcaklık tepelerinin aktivasyon enerjilerinin 1.02 eV (Mebhah ve ark. 2006), 0,92 eV (Kitis ve ark. 2002) ve 0.97 eV (Jain ve ark. 2007) gibi değerler aldığı yayınlanmıştır. Ayrıca yüksek sıcaklık tepelerinin (~200 °C) 1.20 eV (Mebhah ve ark. 2006) ve 1.36 eV'luk (Veronese ve ark. 2004) enerji seviyelerine sahip oldukları bildirilmiştir. Görüldüğü gibi Türkiye kaynaklı doğal kuvarslardan elde edilen aktivasyon enerji seviyeleri literatürde yayınlanan değerlerle uyum içerisindedir.

Tuzak parametrelerinin hesaplanmasının ardından kuvars kristalinin doz cevabı incelenmiştir (Bölüm 5.1.4). Bu amaçla doğal kuvars kristali 450 °C'de 15 dakika tavlanmasının ardından çeşitli oranlarda 0.11 Gy ile 9632.16 Gy beta dozu verilerek elde edilen TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Farklı doz oranları ile ışınlanarak elde edilen TL ışıma eğrilerinden faydalanarak Şekil 5.15'da verilen doz cevap eğrisi elde edilmiştir. Burada dozimetrik tepe olan 210 °C tepesi göz önünde bulundurulmuştur.

Şekil 5.15'te doğal kuvars örneklerinin ~66 Gy ile ~400 Gy arasında lineer bir doz cevap eğrisine sahip olduğu görülmektedir. Aynı zamanda ~1 kGy'lik dozdan sonra örneğin doyuma ulaşmaya başladığı ve ~ 4800 Gy'den sonra tamamen doyuma ulaştığı belirlenmiştir. Sonuç olarak bu çalışmada kullanılan doğal kuvars örneklerinin yüksek doz uygulamalarında kullanılabileceği söylenebilir. Yüksek doz uygulamalarında ise çalışılan doz oranı  $10^2$  Gy'den  $10^6$  Gy'e kadar değişmektedir (McKeever ve ark. 1995). Yüksek doz uygulamalarına gıdaların sterilizasyonu, ilaç sanayi, malzeme testleri ve nükleer santrallerde rastlamamız mümkündür.

Sonuç olarak yapılan çalışmalara dayanarak doğal kuvars kristalinin dozimetrik malzeme olarak kullanımının uygun olduğu söyleyebiliriz. Kuvars örneğinin sahip olduğu lineer doz cevap bölgesi (~66 Gy ile ~400 Gy arası) bu örneklerin yüksek doz uygulamalarında dozimetrik malzeme olarak kullanılabileceğini göstermiştir. Böylece bu çalışmada dozimetrik özellikleri incelenen doğal kuvars örneğinin gıdaların sterilizasyonu, ilaç sanayi, malzeme testleri ve nükleer santraller gibi yüksek doz uygulamaları yapan yerlerde iyi bir dozimetrik malzeme olarak kullanınının mümkün olduğunu göstermektedir. Bu çalışmada tavlama sıcaklığının TL hassasiyetini oldukça fazla etkilediği görülmüştür. Tavlama sıcaklığına bağlı olarak TL hassasiyetindeki bu değişimin sebepleri detaylı olarak incelenebilecek bir konudur. Ayrıca yüksek dozun kuvarsın tuzak yapısı üzerine etkisi de ayrıntılı olarak araştırılmalıdır.

## KAYNAKLAR

Aitken M. J., (1985) Thermoluminescence dating, Academic Press, London

Zımmerman S.F., M.J., D.W., Fleming S.F., and Huxtable (1970)Aitken dating Thermoluminescence of pottery. Radiocarbon variations and absolute chronology, edited by I.U. Olsson, New York: Wiley.

Basun, S., Imbusch, G.F., Jia, D.D., Yen, W.M., 2002. The analysis of Thermoluminescence glow curves. Journal LuminescenceVolume 104, 1ssue 4 Pages 283-294.

Bull, R.K. McKeever, S.W.S., Chen, R., Mathur, V.K., Rhodes, J.F., Brown, M.D., 1985. Thermoluminescence kinetics for multipeak glow curves produced by the release of electrons and holes. J.Phs. D: Appl. Phys. 19, 1321-1334

Braunlich, P., 1979. Thermally Stimulated Relaxation in Solids, Springer-Verlag, Berlin

Betts, D.S., Couturier, L., Khayrat, A.H., Luff, B.J., and Townsend, P.D., 1992. Temperature distrubution in thermoluminescence experiments. J.Phs. D: Appl. Phys. 26, 843-848.

Carvolho Jr, A.B., Guzzo, P. L., Sullasi, L. ve Khoury, H.J., 2010. Effect of particle size in the TL response of natural quartz sentized with high gamma dose

Campos, S.S., Almeide, G.M., Cardoso, L.X., Lima, L.L., Carlor, A., Souza, S.O., 2010. Thermoluminescent dose reconstruction using quartz extracted from unfired buildings. Journal of Physics: Conference Series 249 012031.

Chen, R., Mckeever, S.W.S., 1997. Theory of Thermolüminescence and Telated Phenomena World Scientific, London.

Chen, R., Winer, A.A., 1970. Effects of Various Heating Rates on Glow Curves. J. Appl. Phys. 41, 5227.

Chen, R., Kirsh, Y., 1981. Analysis of Thermally Stimulated Processes, Pergamon Press, Oxford.

Chen, R., Mckeever, S.W.S., 1997. Theory of thermoluminescence and related phenomena. World Scientific Publishing, Singapore, 559p., ISBN: 9810222955

Elkolaly, M. A., Sunta, C. M., Ganguly, A. K., 1981. Effect of temperature on X-ray excited luminescence of nutural CaF2 and its implication in thermoluminescence, Journal of Luminescence, Volume 23,

I Furetta, C., Weng, P.S., 1998. Operational Thermoluminescence Dosimetry, World Scientific, Singapore.

Furetta, C., Kitis, G., Kuo, C.H., 1999. Kinetics Parameters of Diamond by Computerized Glow-Curve Deconvolution (CGCD), Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B 160, 65-72.

Furetta, C., 2003. Handbook of Thermoluminescence. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. Singapore.450 p. ssues 3-4, September-October 1981, Pages 423-431.

McKeever, S.W.S., Strain, J.A., Towsend, P.D., Wood, R.A., 1983. Eur. PACT J. 9 123

Mebhah, D., Imatoukene, D., Abdelazziz, F.Z., Lounis-Mokrani, Z., 2006. Evaluation of trap parameters associated with thermoluminescence peaks in fired quartz. Radiation Measurements 41, 813–818.

Miessler, G.L., Tarr, D.A., 1999. Inorganic Chemistry, part 7, St.Olaf College, Northfield, Minnesota. Prentice-Hall, 0-13-841891-8.Çev.Ed.: Karacan, N., Gürkan, P., Gazi Üniversitesi, Ankara 219-220.

Nanjundaswamy, R., Lepper, K., McKeever, S.W.S., 2002. Thermal quenching of Thermoluminescence in natural quartz. Radiation Protection Dosimetry Vol. 100,Nos 1-4, pp. 305-308 Nuclear Technology Publishing.

Nur, N., 2010. Ametistlerin Termolüminesans Yöntemi İle Dozimetrik Özelliklerinin Analiz edilmesi. Doktora Tezi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Adana.

Preusser, F., Chithambo, M.L., Götte, T., Martini, M., Ramseyer, k., Sendereza E., Susino, G., Wintle, A., 2009.Quartz as a natural luminescence dosimeter.Earth Science Reviews 97,184-214.

Smith, B. W., 1988, Quaternary Science Reviews 7 (3-4), p401-406.

Sutton, S. R. and Zimmerman, D. J., 1976, Archaeometry 18, p125-134.

Topaksu, M., Kubad Abad'a (Konya) Ait Selçuklu Seramik ve Çinilerinin Termolüminesans (TL) Tarihlendirilmesi, Yapısının Belirlenmesi ve Teknolojisinin Açıklanması, Çukurova Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalı, Doktora Tezi, s. 5-36, 2004.

Toktamış, H., 2008. Investigation of Thermally Stimulated Luminescence Characteristcs of Synthetic and Natural Quartz. Ph.D Thesis, Physics Engineering, Gaziantep.

Yang, X.H., McKeever, S.W.S., 1989. The pre-dose effect in crystalline quartz. J.Phs. D: Appl. Phys. 23, 237-244.

Wintle, A. G. and Huntley, D. J., 1979, Nature 279, p710-712.

Wintle, A.G. and Huntley, D. J., 1980, Canadian Journal of Earth Sciences 17, p348-360.

Wintle, A. G., 1997, Radiation Measurements 27, p769-817

Zimmerman, D.W., J., 1971. The radiation-induced increase of 110 oC thermoluminescence sensitivity of fired quartz. J. Phys. C Solid State Phys. 4, 3265-3276.

## ÖZGEÇMİŞ

1 Ocak 1985 yılında Mersin'de doğdu. İlköğrenimimi İleri İlköğretim Okulunda, Ortaokul ve liseyi Mehmet Adnan Özçelik Anadolu Lisesi'nde tamamladı. 2004 yılında Kahramanmaraş Sütçü İmam Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü'ne başladı. 2008 yılında lisans eğitimimi tamamladı. Aynı yıl Adıyaman Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim Dalı'nda Tezli Yüksek Lisans eğitimine başladı.