

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Hasan YAZAN

**NEODİMYUM (Nd) VE SERYUM (Ce) KATKILI KALSİYUM
FLORÜRÜN (CaF_2) TERMOLÜMİNESANS (TL)
ÖZELLİKLERİNİN BELİRLENMESİ**

FİZİK ANABİLİM DALI

ADANA, 2020

**ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**NEODİMYUM (Nd) VE SERYUM (Ce) KATKILI KALSİYUM FLORÜRÜN
(CaF₂) TERMOLÜMINESANS (TL) ÖZELLİKLERİNİN BELİRLENMESİ**

Hasan YAZAN

YÜKSEK LİSANS TEZİ

FİZİK ANABİLİM DALI

Bu Tez / /2020 Tarihinde Aşağıdaki Jüri Üyeleri Tarafından
Oybirliği/Oyçokluğu ile Kabul Edilmiştir.

.....
Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU
DANIŞMAN

.....
Prof. Dr. Cebail GÜMÜŞ
ÜYE

.....
Doç.Dr. Emir Vural KAFADAR
ÜYE

Bu Tez Enstitümüz Fizik Anabilim Dalında hazırlanmıştır.
Kod No:

**Prof. Dr. Mustafa GÖK
Enstitü Müdürü**

Not: Bu tezde kullanılan özgün ve başka kaynaktan yapılan bildirişlerin, çizelge ve fotoğrafların kaynak gösterilmeden kullanımı, 5846 sayılı Fikir ve Sanat Eserleri Kanunundaki hükümlere tabidir.

ÖZ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

NEODİMYUM (Nd) VE SERYUM (Ce) KATKILI KALSİYUM FLORÜRÜN (CaF₂) TERMOLÜMINESANS (TL) ÖZELLİKLERİNİN BELİRLENMESİ

Hasan YAZAN

ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
FİZİK ANABİLİM DALI

Danışman : Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU
Yıl: 2020, Sayfa: 107
Jüri : Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU
: Prof. Dr. Cebail GÜMÜŞ
: Doç.Dr. Emir Vural KAFADAR

Bu çalışmada, Kalsiyum Florit'e (CaF₂) Neodimyum (Nd) ve Seryum (Ce) katıhal sentez yöntemi kullanılarak katkılanmış ve elde edilen fosforların lüminesans özellikleri termolüminesans (TL) yöntemiyle incelenmiştir. Kalsiyum Florit'e (Nd) ve (Ce) katkılanması farklı sıcaklık ve kütle konsantrasyonlarında yapılmış ve uygun sıcaklık değerinin 900 °C, kütle konsantrasyonu ise Nd için 1%, Ce için 0.5% olduğu bulunmuştur. Ayrıca, belirlenen sıcaklık ve kütle konsantrasyonlarında CaF₂'e Nd ve Ce ikisi birlikte çift katkılama yapılmıştır. Elde edilen toz materyal pelet haline getirilip, 10 Gy beta test dozuna maruz bırakılarak farklı filtrelerdeki ışıma eğrilerine bakıldı. Elde edilen sonuçlar ışığında TL çalışmaları için uygun filtrenin 410 nm olduğu görülmüştür. CaF₂:Nd 1%,Ce 0.5% için doz cevap özelliği incelendiğinde 0.1 Gy'den 5 Gy'e kadar supralineer bölgede, 5 Gy'den 50 Gy'e kadar ise lineer bölgede olduğu, solma deneyinde ise dozimetrik amaçlar için kullanılabilecek 2. tepenin 55 gün sonra 15%'ni kaybettiği, tekrarlanabilirlik ölçümlerinde ise 10 çevrim sonucunda toplam sinyalin 2% oranında azaldığı görülmüştür. Ayrıca, farklı ısıtma hızları, başlangıçtaki artış, bilgisayarla ışıma eğrisi ayrıştırma (CGCD), yöntemleri kullanılarak tuzak parametreleri E_a , b ve s hesaplanmıştır.

Anahtar Kelimeler: Termolüminesans, Neodimyum, Seryum, Kalsiyum Florür, Katkılama

ABSTRACT

MSc THESIS

DETERMINATION OF THE THERMOLUMINESCENCE(TL) CHARACTERISTICS OF NEODYMIUM (Nd) AND CERIUM (Ce) DOPED CALCIUM FLUORIDE (CaF₂)

Hasan YAZAN
ÇUKUROVA UNIVERSITY
INSTITUTE OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES
DEPARTMENT OF PHYSIC

Supervisor : Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU
Year: 2020, Page: 107
Jury : Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU
: Prof. Dr. Cebail GÜMÜŞ
: Assoc Prof. Dr. Emir Vural KAFADAR

In this study, luminescence properties of Calcium Fluoride (CaF₂) phosphors doped with Neodymium (Nd) and Cerium (Ce) synthesized via solid state method were examined through thermoluminescence (TL) analysis method. Doping processes of Nd and Ce to CaF₂ were applied at various temperatures and 900°C is determined as optimal reaction temperature while various mass concentrations and optimal percentages were determined as 1% and 0.5%, respectively for Nd and Ce. Furthermore, for indicated temperatures and mass concentrations, Nd and Ce were also doped to CaF₂ at the same time. The powder material obtained was pelletized and then subjected to 10 Gy of beta test dose, and radiation curves in different filters were examined. In the light of the obtained results, the suitable filter for TL studies was found to be 410 nm. When the dose response feature for CaF₂: Nd 1%; Ce 0.5% is examined, the supralinear region and linear region are found to be in the range of 0.1-0.5 Gy and 5Gy-50 Gy, respectively. It was observed that 2nd. maxima used for dosimetry purposes lost 15% of its intensity after 55 days, in the repeability measurements, after 10 cycles, the total signal was decreased by 2%. In addition, trap parameters E_a , b and s are calculated using various heating rates (VHR), initial rise, computerized glow curve deconvolution (CGCD) methods.

Keywords: Thermoluminescence, Neodymium, Cerium, Calcium Fluoride, Doped

GENİŞLETİLMİŞ ÖZET

Bu çalışmada, Kalsiyum Florit'e (CaF_2) Neodimyum (Nd) ve Seryum (Ce) katıhal sentez yöntemi kullanılarak katkılanmış ve elde edilen fosforun lüminesans özellikleri termolüminesans (TL) yöntemi kullanılarak belirlenmiştir. Bu katkılama işleminde başlangıç materyali saf CaF_2 (katalog no: 1028401000, Merck'ten) ve katkı elementleri Seryum (IV) oksit (CeO_2) (katalog no: 202975; Aldrich'ten % 99,995 saflıkta) ve Neodimyum (III) oksit (Nd_2O_3) (katalog no: 40252; Alfa Aesar'dan saflığı ≥ 99) olarak kullanılmıştır. Katıhal sentez yöntemiyle üretilen fosforların karakterizasyonları, X- Işını Toz Kırınımı (XRD), Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM), Termal Analiz Yöntemleri (TG-DTA) kullanılarak yapılmıştır. Katkılanmamış CaF_2 , $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%, $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5%, ve $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ örneklerinin kristal örgüsünün tanımlanması, birim hücre yapısı, örgü düzlemleri, Miller indisleri, kristal yapısı, mevcut farklı minerallerin oranlarının tayin edilmesi için XRD sonuçları kullanılmıştır. Scherrer's formülü kullanılarak yapılan hesaplamada parçacıkların ortalama boyutları her bir katkı için $\text{CaF}_2\text{:Ce0.5\%}$, $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%}$ ve $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ için sırasıyla 1123 Å, 1126 Å ve 1258 Å olarak hesaplandı. SEM görüntülerine bakıldığında birkaç mikrometrelik büyüklükte ve daha küçük parçacıklardan oluşan topaklar (agglomerations) gözlenmiştir. CaF_2 örneğine Ce^{3+} ve Nd^{3+} bir arada katkılандırıldığında orijinal morfolojinin korunduğu gözlemlendi. Tüm örneklerde, TG eğrilerinde gözlenen hızlı düşüşün kaynağı olarak tutuşma reaksiyonu ve suyun uzaklaştırılmasından dolayı kütlede oluşan kayıptan kaynaklandığı düşünülmüştür. Sadece Ce katkılı örnekte diğer örneklerden farklı olarak yaklaşık 650 °C'den sonra belirgin bir kütle kaybı söz konusu değildi, bu sonuç bize 700 °C'den sonra tavlama sıcaklığının kristallikte bir artışın olabileceğini gösterdi. Bundan dolayı da, sentezleme için uygun sıcaklıklar 700 °C'nin üzerinde yapıldı.

CaF₂ ile k tlece yoęunlukları 0.5, 1, 2, 4 ve 8% olan Nd agat havanda birlikte karıştırıldıktan sonra al minyum kroze i erisine konularak fırında 600 C, 700 C, 800 C, 900 C, 1000 C ve 1100 C sıcaklıklarda iki saat sinterlenmiřtir.

Bu  alıřmada  retilen t m fosforlar, ticari kullanıma uygun hale getirmek i in TL  alıřmalarında ilk  nce toz halden pelet haline getirildi. Bu iřlem i in 30 mg'lık toz numunelerin t m , 20 dakika boyunca 2000 kg kuvvet/cm²'lik bir basınc altında tutularak pelet formuna getirmek i in preslenmiřtir. Her pelet numunesi 6 mm  ap ve 0.75 mm kalınlıęa sahiptir.

Sinterleme sonrası elde edilen CaF₂:Nd katkılı fosforlar, beta ( ) ıřın kaynaęından 10 Gy test dozu verilerek TL ıřıma eęrilerine bakılmıř ve elde edilen sonu lar ıřıęında TL  alıřmaları i in uygun olan fosforun 900 C 'de 1% Nd katkılı CaF₂ olduęu bulunmuřtur. Yapılan  alıřmada t m TL ıřıma eęrileri, fon (blackbody) TL ıřıma sonu ları  ıkarılarak verilmiřtir.

Aynı řekilde CaF₂ ile k tlece yoęunlukları 0.5, 1, 2, 4 ve 8% olan Ce agat havanda birlikte karıştırılıp yine al minyum kroze yardımıyla fırında 600 C, 700 C, 800 C, 900 C ve 1000 C sıcaklıklarda iki saat sinterlenmiřtir. Sinterleme sonrası elde edilen fosfor pelet haline getirildikten sonra beta ( ) ıřın kaynaęından 10 Gy test dozuna maruz bırakılarak Lexsyg Smart TL/OSL okuyucu kullanılarak TL ıřıma eęrilerine bakılmıř ve TL  alıřmaları i in uygun olan materyalin 900 C 'de 1% Ce katkılı CaF₂ olduęu bulunmuřtur. Daha sonra CaF₂ ile k tlece 1% yoęunluklu Nd sabit tutulup k tlece yoęunlukları 0.1, 0.3, 0.5, 1, 2, 3 ve 4% olan Ce agat havanda karıştırılıp al minyum kroze yardımıyla 900 C 'de 2 saat sinterlenmiřtir. XRD sonu ları CaF₂:Nd, CaF₂:Ce ve CaF₂:Nd,Ce malzemelerinin bařarılı bir řekilde sentezlendięini g stermiřtir. En uygun fosforun ve filtrenin seęimi i in elde edilen fosforlar pelet haline getirildikten sonra  zerine 10 Gy test dozu verilip TL  l  mleri yapılarak ıřıma eęrileri elde edilmiřtir. Elde edilen sonu lar ıřıęında en uygun filtrenin 410 nm olduęu g zlemlenmiřtir.

Fosforların vermiř olduęu TL ıřıma eęrilerine g re de CaF₂'e Nd ve Ce  ift katkılama i in en uygun oranların Nd 1% ve Ce 0.5% k tle konsantrasyonlarında

olması gerektiği belirlenmiştir. Tez çalışmasında bu katkı oranlarında malzeme üretimi yapılmış ve çalışmalarda bu malzeme üzerine odaklanılmıştır. $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun dozimetrik özellikleri TL yöntemi kullanılarak belirlenmiştir. Üretilen materyalin dozimetrik özelliklerini belirlemek için öncelikle verilen dozlara karşı hassasiyetine bakılmıştır. Bunun için 0.1-50 Gy aralığında beta (β) dozları verilerek doz-yanıt TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. TL ışıma eğrileri, $2\text{ }^\circ\text{Cs}^{-1}$ 'lik sabit bir ısıtma hızı ile oda sıcaklığından (RT) $450\text{ }^\circ\text{C}$ 'ye kadar örnekler ısıtılarak kaydedilmiştir. Yaklaşık 90 ve $265\text{ }^\circ\text{C}$ 'de iki maksimuma sahip ve maruz bırakılan doz miktarının artmasıyla şiddetleri artan iki tepe gözlenmiştir. Ayrıca, sıcaklık-ışıma şiddeti eğrisinin altında kalan alanlar hesaplanarak lineer doz aralığı belirlenmiştir. Fosforun, doz yanıt özelliğinin 0.1 Gy'den 5 Gy'e kadar supralineer bölgede olduğu 5 Gy'den 50 Gy'e kadar ise lineer bölgede olduğu görülmüştür.

Farklı ısıtma hızları (VHR) yöntemi, $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun ısıtma hızı değişikçe göstereceği davranışı, aktivasyon enerjisi (E_a) ve frekans faktörü (s) gibi kinetik parametrelerin belirlenmesi için uygulanmıştır. Bu amaçla, malzemeye lineer aralığa düşen 30 Gy'lik beta dozu verilerek farklı ısıtma hızlarında ($0.5, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10\text{ }^\circ\text{Cs}^{-1}$) TL ışıma eğrileri RT'dan $450\text{ }^\circ\text{C}$ ısıtma işlemi yapılarak kaydedilmiştir. Elde edilen VHR sonuçlarına göre, ısıtma hızı arttıkça gözlenen ilk tepe maksimumlarının yüksek sıcaklığa doğru kaydığı ve ışıma şiddetinin de düştüğü gözlenmiştir. Fakat, gözlenen ikinci tepe maksimumlarının ısıtma hızı arttıkça yine tepe noktalarının daha yüksek sıcaklığa kaydığı, ışıma şiddetlerinin ise arttığı gözlenmiştir. Birinci ve ikinci tepelerde ısıtma hızının artmasıyla birlikte maksimum tepe sıcaklığının daha yüksek sıcaklıklara kaymasından termal gecikme etkisi (Temperature Lag, TLA) sorumludur. Bu nedenle, TL okuması süresince örneğe doğru olan ısı transferinin mümkün olduğunca hızlı iletimi için planşete konulan toz örneklerinin miktarını sınırlı tutmak ve örnekleri homojen bir şekilde dağıtmak gerektiğinden örnekler $\sim 30\text{ mg}$ ve pelet formunda hazırlanmıştır. Isıtma hızına karşılık elde edilen TL

ışırma eęrisinin, artan ısıtma hızı ile maksimum tepe řiddeti beklenenden daha fazla azaldığı ve bu azalmanın ışıınımsız geęişlerin daha olası olduęu “termal sönümlenme (thermal quenching)” etkisinden kaynaklandığı düşünölmektedir ve bunun için de tepe alanının ısıtma hızına karřılık grafięi çizilmiştir. Çünkü, TL ışıırma eęrisinin altındaki toplam alan termal sönümlenme varlığında ısıtma hızı arttıkça azalması beklenir. Tepe 1’deki azalış termal sönümlenme etkisini açıkça göstermiştir. Termal sönümlenme varlığında yarı yükseklikteki tam genişlięin (FWHM) arttığı da gözlenmiştir. Ayrıca alıřma, literatürde anormal ısıtma hızı olarak ifade edilen artan ısıtma hızı ile toplam lüminesans řiddetinin arttığını göstermiştir. Derin tuzaklarda hem TL řiddeti hem de TL tepesinin altındaki alan ısıtma hızı artışıyla artmakta ve FWHM’nin ısıtma hızına karřı davranışına bakıldığında, ışıırma tepesinin ok daha geniş hale geldięi de gözlenmiştir. $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforuna ait sıę tuzaklarda termal sönümlenme etkisi görölürken derin tuzaklarda anormal ısıtma hızı etkisi görölmüřtür. Ayrıca E_a ve s deęerleri, hem Hoogenstraten yöntemi hem de Kitis ve Tuyn, (1998) tarafından önerilen ısısal gecikme etkisini (TLA) düzeltmesi yapılarak hesaplanmıştır.

Bu tez alıřmasında da $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun ışıırma eęrisinin kaç tepeden oluřtuęunu bulmak için $T_m\text{-}T_{\text{stop}}$ yöntemi uygulanmıştır. Bunun için materyale 30 Gy doz verip 60 °C den bařlayarak 300 °C’ye kadar 5’er derece aralıklarla ön ısıtma işlemleri uygulanmıştır. Elde edilen ışıırma eęrilerine bařlangı artıř (IR) yöntemi uygulanarak E_a ve s deęerleri hesaplanmıştır. Hesaplanan E_a deęerlerine karřılık T_{stop} grafięi çizilerek enerji düzeyleri belirlenmiştir. Bu enerji düzeyleri $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun TL ışıırma eęrisinin iç içe girmiş iki tepeden meydana geldięini göstermiştir. Ayrıca 30 Gy doz verildikten sonra deneysel olarak elde edilen TL ışıırma eęrisi, (CGCD) kullanılarak R-yazılım paketi “tgcd” ile ayrıştırılmıştır (Chen 1969; Kitis ve ark. 1998). Deneysel ve teorik arasında bir eřleşme işareti olarak kabul edilen FOM deęeri 2.3% olarak elde edilmiş olup, TL ışıırma eęrisinin 6 tepeden oluřtuęu gözlenmiştir. IR yöntemiyle

elde edilen E_a deęerlerinin, CGCD yöntemiyle elde edilen deęerler ile uyum içerisinde olduęu görölmüştür.

Dozimetrik olarak üretilen malzemelerin önemli testlerinden birisi de solma testidir. Tez kapsamında çalışılan $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun solma özelliğini incelemek için fosfor, 30 Gy beta dozuna maruz bırakıldıktan sonra laboratuvarında karanlık ortamda 1 dakikadan 55 güne kadar deęişen zaman aralıklarında bekletilmesinin ardından TL okuması yapılmıştır. Dozimetrik tepe olan 2.tepenin TL sinyal şiddetinde 55 günde 15%'lik bir düşüşün olduęu görölmüştür.

Dozimetrik özelliklerin testi için önemli özelliklerden birisi tekrar kullanılabilirlięin test edimesidir. Aynı koşullar altında $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforu 10 Gy'lik beta dozuna maruz bırakılarak $2\text{ }^\circ\text{Cs}^{-1}$ ısıtma hızı ile oda sıcaklıęından $450\text{ }^\circ\text{C}$ 'ye kadar TL okuması yapılmıştır. Bu döngü on kez tekrarlanmıştır. 10 ışınlama ve okuma döngüsünden sonra TL şiddetinde önemli bir deęişiklięin olmadığı, yaklaşık 2% civarında olduęu görölmektedir.



TEŞEKKÜR

Bu tezin yönetiminde, olanakların oluşmasını hazırlayan, gerekli yönlendirmeleri yapan, ortaya çıkmasında ve düzenlenmesinde sürekli yanımda olan sayın hocam Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU'ya özellikle teşekkür ederim. Çalışmalarında bilgi ve deneyimleriyle yardımcı olan Suudi Arabistan, Jazan Üniversitesi Fizik Bölümü Öğretim Üyesi Prof. Dr. Nurdoğan CAN'a teşekkür ederim. Kimyasal katkılama işlemlerimde bilgisiyle yardımcı olan Seramik Bölümü öğretim üyelerinden Doç.Dr. Yusuf Ziya HALEFOĞLU'na teşekkür ederim. Tezimin tamamlanması sırasında değerli katkılarıyla çalışmamı düzenlememde yardımcı olan Juri üyelerim Prof.Dr. Cebrail GÜMÜŞ ve Doç. Dr. Vural Emir KAFADAR'a teşekkür ederim. Laboratuvardaki çalışmalarında desteklerini esirgemeyen İmamoğlu Meslek Yüksek Okulu'ndan Doç.Dr. Tamer DOĞAN, Fizik Bölümü'nden Doç. Dr. Mehmet YÜKSEL, Dr. Ziyafer Gizem Portakal UÇAR, Dr. Sibel AKÇA'ya ve çalışma arkadaşlarım Mehmet OĞLAĞCI ve Kenan BULCAR'a ayrı ayrı teşekkür ederim. Çalışmalarım süresince her zaman yanımda yer alan arkadaşlarım Oğuzhan ŞANAL ve Merhan KILIÇ'a teşekkür ederim. En özel olarak, çalışmam sırasında yanımda desteğini sürekli olarak hissettiğim annem Dilek YAZAN'a sonsuz teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

SAYFA

ÖZ	I
ABSTRACT.....	II
GENİŞLETİLMİŞ ÖZET	III
TEŞEKKÜR.....	IX
İÇİNDEKİLER	X
ÇİZELGELER DİZİNİ	XII
ŞEKİLLER DİZİNİ	XIV
KISALTMALAR.....	XX
1. GİRİŞ	1
1.1. Lüminesans Olayları	2
1.2. Kristal Kusurları	6
1.2.1. İçsel veya Doğal Kusurlar	7
1.2.2. Dışsal veya Safsızlık Kusurları	8
1.2.3. İyonlaştırıcı Radyasyonun Alkali Halojenürlerde Meydana Getirdiği Kusurlar	9
1.3. Katılarda Bant Modeli	11
1.4. Termolüminesans Teorisi	12
1.5. Termolüminesans Kinetikleri.....	14
1.5.1. Birinci Derece Kinetiği	14
1.5.2. İkinci Mertebe Kinetiği	17
1.5.3. Genel Derece Kinetiği	18
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR	21
3. MATERYAL VE METOT	27
3.1. Katıhal Sentez Yöntemi	27
3.2. X-Işını Toz Kırınımı Yöntemi (XRD)	28
3.3. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)	30
3.4. Termal Analiz Yöntemleri (TG-DTA).....	31
3.5. TL Yönteminde Kullanılan Araç-Gereç ve Cihazlar	31

3.5.1. Radyasyon Kaynağı	35
3.5.2. Isıtma Sistemi.....	35
3.5.3. Fotoçoğaltıcı Tüp (PMT)	36
3.5.4. IR Mavi Işık LED.....	37
3.5.5. LexStudio Protokol Programı	37
3.5.6. Analiz (Analist) Programı	41
4. ARAŞTIRMA VE BULGULAR.....	45
4.1. Karakterizasyon Analizleri	45
4.1.1. XRD Analizleri	45
4.1.2. SEM Analizleri.....	48
4.1.3. TG-DTA Analizleri.....	51
4.2. TL Analizleri.....	53
4.2.1. $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ için Optimum Sinterleme Sıcaklığının Belirlenmesi.....	53
4.2.2. Katkılanacak Nd'un Kütle Konsantrasyonunun Belirlenmesi	55
4.2.3. $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ için Optimum Sinterleme Sıcaklığının ve Filtrenin Belirlenmesi	59
4.2.4. Katkılanacak Ce'un Kütle Konsantrasyonunun Belirlenmesi	62
4.2.5. CaF_2 'e Nd ve Ce Çift Katkılanması.....	66
4.2.6. $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%,Ce 0.5% Fosforunun Doz Cevabı	70
4.2.7. Isıtma Hızı	73
4.2.8. Solma (Fading).....	78
4.2.9. Tekrar Kullanılabilirlik	81
4.3. Tuzak Parametrelerinin Belirlenmesi Yöntemleri	82
4.3.1. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi (VHR)	83
4.3.2. Başlangıç Artış Yöntemi (IR Yöntemi)	86
4.3.3. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma Yöntemi (CGCD)	92
5. DEĞERLENDİRME VE SONUÇ.....	95
KAYNAKLAR	101
ÖZGEÇMİŞ	107

ÇİZELGELER DİZİNİ

SAYFA

Çizelge 1.1. Bazı lüminesans çeşitleri ve bunlara ait uyarma yöntemleri	4
Çizelge 3.1. Lexsyg Smart TL / OSL okuyucu cihazında kullanılabilen filtre setleri	33
Çizelge 4.1. XRD verilerine göre çalışılan malzemelerin yapısal ve fiziksel özellikleri.....	46
Çizelge 4.2. $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiğinden elde edilen aktivasyon enerjisi (E_a) ve frekans faktörü (s) değerleri	86
Çizelge 4.3. IR yöntemi kullanılarak hesaplanan aktivasyon enerjileri E (eV) ve frekans faktörleri (s^{-1}).....	90
Çizelge 4.4. Bilgisayarla ısıma eğrisi ayrıştırma yöntemi (CGCD) kullanılarak elde edilen tepelere ait aktivasyon enerjisi ve maksimum sıcaklık değerlerinin gösterimi.....	94



ŞEKİLLER DİZİNİ

SAYFA

Şekil 1.1.	Floresans olayı	5
Şekil 1.2.	Fosforesans olayı.....	6
Şekil 1.3.	İdeal bir kristalin üç boyutlu yapısı a) CaF_2 ($\bullet\text{Ca}$, o F) b) LiF ($\bullet\text{Li}$, o F).....	7
Şekil 1.4.	İçsel kusurları bulunan bir kristalin yapısı (örnek olarak LiF). + alkali iyon (Li^+), halojen iyon (F^-).....	8
Şekil 1.5.	Yer değiştirmeye ait iki değerlikli katyon kusuru Mg^{+2}	8
Şekil 1.6.	a) Yerinde bulunmayan bir alkali iyonu b) İyonların birbirini çekmesi ile birleşik bir yapı oluşturması.....	9
Şekil 1.7.	Gerçek bir kristalde V , V_k ve V_3 merkezleri	10
Şekil 1.8.	Katılarda bant yapısı	12
Şekil 1.9.	Örnek bir TL ışıma eğrisi. Her tepe noktasında iyi tanımlanmış bir tuzak bulunur	13
Şekil 1.10.	Birinci derece TL denklemine göre normalize edilmiş ışıma tepesi	15
Şekil 3.1.	X-ışınları kırınımı ile malzeme analiz tekniği (http://ees2.geo.rpi.edu/probe/Images/concepts/XRD.gif).....	29
Şekil 3.2.	Bir materyalde atomların iki düzleminden X-ışınlarının yansımaları (Bragg Yasası).....	30
Şekil 3.3.	Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu cihazının genel görünümü.....	32
Şekil 3.4.	40 tane örnek haznesine sahip örnek tablası ve örneklerin yerleştirildiği kenarlı diskler	34
Şekil 3.5.	Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucu cihazının şematik görünümü	35
Şekil 3.6.	LexStudio programının başlangıç ekranı görüntüsü	38
Şekil 3.7.	Lexstudio programının makine kontrol ekranının görüntüsü.....	38
Şekil 3.8.	Lexstudio programının sekans düzenleme ekran görüntüsü	39
Şekil 3.9.	Lexstudio programında sekans ayarlarının ekran görüntüsü.....	39

Şekil 3.10.	Lexstudio programında sekans kaydetme ekran görüntüsü	40
Şekil 3.11.	Lexstudio programının sekans başlatma ekran görüntüsü	41
Şekil 3.12.	Lexstudio programının ölçüm anında grafik ekran görüntüsü	41
Şekil 3.13.	Analist programı açılış görüntüsü	42
Şekil 3.14.	Analist programının menü görüntüsü.....	43
Şekil 3.15.	Analist programının export menüsünün görüntüsü.....	43
Şekil 3.16.	Analist programının dosya oluşturma görüntüsü	44
Şekil 4.1.	PANalytical marka EmPyrean modeli x-ışını kırınımı ölçüm cihazı	45
Şekil 4.2.	Saf CaF_2 , $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%, $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5%, ve $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%, Ce 0.5% fosforlarının XRD kırınım deseni	47
Şekil 4.3.	FEI marka Quanta 650 Field Emission modeli SEM ölçüm cihazı	48
Şekil 4.4.	$\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5% katkılmasının 10000 kat büyütülmüş görünümü	49
Şekil 4.5.	$\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1% katkılmasının 10000 kat büyütülmüş görünümü	49
Şekil 4.6.	$\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%, Ce 0.5% katkılmasının 10000 kat büyütülmüş görünümü	50
Şekil 4.7.	CaF_2 'ün 10000 kat büyütülmüş görünümü	50
Şekil 4.8.	$\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5% katkılmasının Termogravimetri eğrisi	51
Şekil 4.9.	$\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1% katkılmasının Termogravimetri eğrisi.....	52
Şekil 4.10.	$\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%, Ce 0.5% katkılmasının Termogravimetri eğrisi	52
Şekil 4.11.	CaF_2 ile kütlece 1%'lik Nd katkılmasının 410 nm ve Geniş bant mavi filtrelerde 10 Gy'lik doza karşı sinterleme sıcaklığının TL ışıma şiddetine etkisi (Isıtma hızı (β)= 2 °Cs ⁻¹).....	54
Şekil 4.12.	Kütlece 0.5%'lik Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi (β = 2 °Cs ⁻¹)	56
Şekil 4.13.	Kütlece 1%'lik Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi (β = 2 °Cs ⁻¹)	56

Şekil 4.14.	Kütlece 2%'lik Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)	57
Şekil 4.15.	Kütlece 3% 'lük Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)	58
Şekil 4.16.	Kütlece 4%'lük Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)	58
Şekil 4.17.	Kütlece 8%'lik Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)	59
Şekil 4.18.	CaF_2 ile kütlece 1%'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılanmasının 365 nm filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)	60
Şekil 4.19.	CaF_2 ile kütlece 1%'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılanmasının 565 nm filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)	61
Şekil 4.20.	CaF_2 ile kütlece 1%'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılanmasının Geniş bant mavi filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$).....	61
Şekil 4.21.	CaF_2 ile kütlece 1% 'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılanmasının 410 nm filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)	62
Şekil 4.22.	CaF_2 ile kütlece 0.5%'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$).....	63
Şekil 4.23.	CaF_2 ile kütlece 1%'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$).....	64
Şekil 4.24.	CaF_2 ile kütlece 2%' lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$).....	64
Şekil 4.25.	CaF_2 ile kütlece 4%'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$).....	65

Şekil 4.26.	CaF ₂ ile kütlece 8% 'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ısıtma eğrisi ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$).....	65
Şekil 4.27.	CaF ₂ : Ce katkılamasının 410 nm filtrede farklı oranlardaki TL ısıtma eğrisi ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$).....	66
Şekil 4.28.	CaF ₂ 'e sabit 1% Nd ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 365 nm filtrede gözlemlenen TL ısıtma eğrisi ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$).....	67
Şekil 4.29.	CaF ₂ 'e sabit 1% Nd ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 565 nm filtrede gözlemlenen TL ısıtma eğrisi ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$).....	68
Şekil 4.30.	CaF ₂ 'e sabit 1% Nd ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan Geniş bant mavi filtrede gözlemlenen TL ısıtma eğrisi ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)	68
Şekil 4. 31.	CaF ₂ 'e sabit Nd 1% ile farklı kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 410 nm filtrede gözlemlenen TL ısıtma eğrisi ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$).....	69
Şekil 4.32.	CaF ₂ 'e sabit Nd 1% ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 410 nm filtrede gözlemlenen normalize edilmiş tepe alanı.....	70
Şekil 4.33.	CaF ₂ : Nd 1% ,Ce 0.5% fosforunun uygulanan doz aralığındaki doz cevap özelliği ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)	72
Şekil 4.34.	CaF ₂ :Nd 1%,Ce 0.5% çift katkılamasının 0.1 Gy'den 50 Gy'e kadar verilen doza karşı doz cevap değişimi ($\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)	73
Şekil 4.35.	CaF ₂ :Nd 1%,Ce 0.5% çift katkılı materyalin ısıtma hızının TL şiddetine etkisi.....	74
Şekil 4.36.	Isıtma hızının a) maksimum tepe sıcaklığına (T_m), b) maksimum tepe şiddetine karşı grafikleri	75
Şekil 4.37.	Normalize edilmiş TL tepe alanlarının grafiği	76
Şekil 4.38.	FWHM'nin ısıtma hızı bağımlılığı	77

Şekil 4.39.	Fosforun (a) 12 saat sonunda, (b) 55 gün sonunda TL şiddetindeki değişimi ($\beta=2\text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$).....	80
Şekil 4.40.	1. ile 2. Tepelerin maksimum şiddetlerinin ve toplam alan değerlerinin değişen zaman aralıklarına göre değişimi.....	80
Şekil 4.41.	$\text{CaF}_2:\text{Nd}$ 1%,Ce 0.5% katkılamasına art arda tekrarlanan 30 Gy'lik dozlara karşılık normalize edilmiş tepe alanının grafiği ($\beta=2\text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$).....	82
Şekil 4.42.	$\text{CaF}_2:\text{Nd}$ 1%,Ce 0.5% katkılamasında $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı 1. tepenin grafiği.....	84
Şekil 4.43.	$\text{CaF}_2:\text{Nd}$ 1%,Ce 0.5% katkılamasında $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı 2. tepenin grafiği.....	84
Şekil 4.44.	Isısal gecikme düzeltilmesinden sonra 1. tepenin $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiği	85
Şekil 4.45.	Isısal gecikme düzeltilmesinden sonra 2. tepenin $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiği	86
Şekil 4.46.	Ön ısıtma yapılan $\text{CaF}_2:\text{Nd}$ 1%,Ce 0.5% fosforunun TL ışıma eğrisi ($\beta=2\text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)	88
Şekil 4.47.	120 $^{\circ}\text{C}$ önısıtma değerine karşılık gelen Arrhenius grafiği	89
Şekil 4.48.	Ön ısıtma yapılan $\text{CaF}_2:\text{Nd}$ 1%,Ce 0.5% fosforunun aktivasyon enerjisinin gösterimi.....	89
Şekil 4.49.	Rstudio TGCD paketi kullanılarak $\text{CaF}_2:\text{Nd}$ 1%,Ce 0.5% örneğine ait TL büyüme eğrisinin ayrıştırılması (FOM = 2.3%)	93



KISALTMALAR

TL	: Termolüminesans
TLD	: Termolüminesans Dozimetre
OSL	: Optik Uyarmalı Lüminesans
OSLD	: Optik Uyarmalı Lüminesans Dozimetre
TG	: Termogravimetrik
DTA	: Diferansiyel Termal Analiz
XRD	: X- Işını Toz Kırınımı
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
RT	: Oda Sıcaklığı
VHR	: Farklı Isıtma Hızları Yöntemi
IR	: Başlangıçtaki Artış
CGCD	: Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma Yöntemi



1. GİRİŞ

Radyoaktivite ile ilgili uygulamalar zaman geçtikçe birçok alanda önem kazanmaktadır. Genellikle, bu uygulamalar ve radyasyon ölçümü, Fizik, Kimya, Biyoloji, Tıp, Arkeoloji ve Jeoloji gibi birçok bilimsel ve teknik alanda kullanılmaktadır. Bir malzemenin veya canlı organizmanın maruz kaldığı radyasyon miktarının belirlenmesi oldukça önemlidir. Bu radyasyon dozunun doğrudan ya da dolaylı olarak ölçülmesine “Dozimetrik Ölçüm” ve bunu ölçen alete de “Dozimetre” adı verilir. Maruz kalınan dozların ölçümü ve bunların takibi Termoluminesans dozimetreler (TLD), film dozimetreler ve Optik Uyarmalı Lüminesans dozimetreler (OSLD) kullanılarak gerçekleştirilebilir. Son yıllarda lüminesans yöntemi kullanılarak doğal ve katkılı malzemelerin dozimetrik özelliklerinin araştırılması yoğun bir şekilde sürmektedir. Üretilen bu dozimetreler (TLD ve OSLD) doz ölçümü için yaygın bir şekilde kullanılırken bilimsel olarak da geniş bir araştırma geliştirme alanına sahiptir.

Özellikle doğal ve katkılı floritler ile ilgili çalışmalar dozimetri konusunda ilgi odağı haline gelmiştir. Medikal, kişisel, çevresel ve endüstriyel dozimetre üretiminde doğal ve sentetik floritlerin kullanımı artmıştır. Elde edilen bu floritlerin dozimetrik özelliklerinin çalışılması gün geçtikçe daha da önem kazanmıştır.

Florit metalurji, kimya endüstrisi, seramik ve cam endüstrisi, optik endüstrisi ve çimento endüstrisi gibi birçok alanda kullanılmaktadır. Ayrıca, süs eşyası yapımında da malzeme olarak kullanılan bir mineraltir. Florit yatakları pegmatit-pnömatöjen, hidrotermal ve sedimanter olmak üzere üç çeşittir (MTA, 1979). Florit yataklarının oluşumlarının büyük bir kısmı belirgin bir şekilde magmatik olaylarla ilişkilidirler.

Kalsiyum floritler hem doğal olarak hem de sentetik şekillerde elde edilerek dozimetrik amaç için kullanılmaktadırlar. Gelişmekte olan ülkelerde

genellikle dozimetre olarak doğal floritler kullanılırken, pek çok ticari uygulamalarda sentetik formu kullanılmaktadır.

CaF_2 malzemesinin dozimetre olarak tercih edilmesinin nedeni LiF:Mg,Ti ile karşılaştırıldığında doza karşı yüksek duyarlılığıdır. Aynı zamanda katkılanan maddeye bağlı olarak basit bir ışıma eğrisine sahip olmasıdır. Doku eşdeğeri olmaması kişisel dozimetre olarak kullanılmasına engel olsa da, yüksek duyarlılığı nedeniyle mükemmel bir çevresel dozimetrik malzemedir. Genellikle CaF_2 'ün üç sentetik formu kullanılmaktadır. Bunlar, Mn-katkılı, Dy-katkılı ve Tm-katkılı bileşiklerdir. Dy, Tm ve Mn gibi farklı safsızlıklar ile katkılanmış CaF_2 ticari olarak birer TL dozimetreleridir. Bunlar sırasıyla TLD-200, TLD-300, TLD-400 olarak değişik ticari isimleri altında üretilmiştir. Bu TLD'ler genellikle kişisel, çevresel, UV dozimetresi olarak kullanılmaktadır.

Bu çalışmanın amacı sentetik CaF_2 'e Neodimyum (Nd) ve Seryum (Ce) katkılayarak elde edilen fosforun TL özellikleri incelenerek amaca uygun (çevresel, medikal, kişisel gibi) dozimetrik malzeme geliştirmektir.

1.1. Lüminesans Olayları

Birçok lüminesans olayı vardır. Bunlardan bir tanesi de Termolüminesans (TL) olayıdır. Bazı yalıtkan ve yarı iletken maddeler ısıtıldıkları zaman ışıma yaparlar. Bu fiziksel olaya “ısıtma ile ışıma” anlamına gelen TL adı verilir. Bu konuda ilk gözlem Sir Robert Boyle (1663) tarafından yapılmıştır. 1960'ların sonunda kullanılmaya başlanan lüminesans yöntemlerinden birisi olan TL, madde içinde depolanan uranyum (U), toryum (Th) ve potasyum (K) gibi uzun ömürlü radyoaktif izotopların bozunması sonucunda ortaya çıkan alfa (α), beta (β) parçacıkları ile gama (γ) ışınları tarafından taşınan enerjinin madde içerisinde birikmesi ve bu enerjinin ölçülmesi temeline dayanmaktadır. Bunun için, biriken enerjiyi ve bu enerjinin birikme hızını bulmak gerekir. İyonize radyasyona (ışınım) maruz kalan katıların valans bandındaki elektronlar, serbest kaldıktan sonra bir kısmı kristal örgünün kusurlarında tuzaklanırlar. TL olayında, ısıtılan

kristal örgüdeki tuzaklanmış elektronlar serbest kalırlar. Serbest elektronlar, önce iletim bandına geçer ve oradan 10^{-8} s içerisinde tekrar valans bandına geçmek isterler. Bu sırada daha önceden yer değiştiren bir elektronun bıraktığı boşluğun oluşturduğu yeniden birleşme merkezlerindeki holler ile birleşebilirler. Bu birleşme sürecinde elektronun kaybettiği enerji foton olarak açığa çıkar. Bu ışımının şiddetinin ölçülmesiyle materyalin soğurmuş olduğu doz değeri belirlenebilir (Aitken, 1985).

Katıda biriken enerjinin açığa çıkmasıyla yayınlanan ışığın dalga boyu katının karakteristiği olup gelen radyasyona bağlı değildir. Bununla birlikte yayınlanan ışığın dalga boyu radyasyondan daha büyük dalga boyuna sahiptir (Stoke's Yasası).

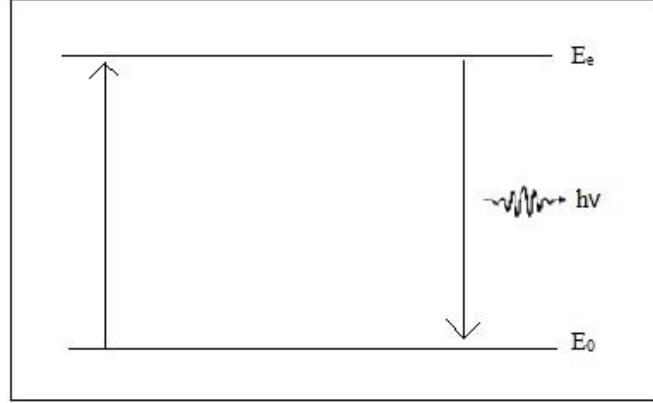
Lüminesans olaylarındaki incelenen ışık yayılımlarının dalga boyu elektromanyetik spektrumda genellikle görünür ışık bölgesine denk gelmektedir. Bununla birlikte kızılötesi (IR) ve ultraviyole (UV) gibi bölgelere denk gelen ışık yayılımları da incelenmektedir.

Bir materyalin radyasyon enerjisini muhafaza etme özelliği, lüminesans dozimetresinde önemli bir yer teşkil eder. Bu enerjinin depo edilmesi saf olmayan atomlar ve yapısal kusurlar ile sağlanır (Furetta ve Weng, 1998). Bazı lüminesans çeşitleri Çizelge 1.1'de verilmiştir.

Çizelge 1.1. Bazı lüminesans çeşitleri ve bunlara ait uyarma yöntemleri (Furetta ve Weng, 1998)

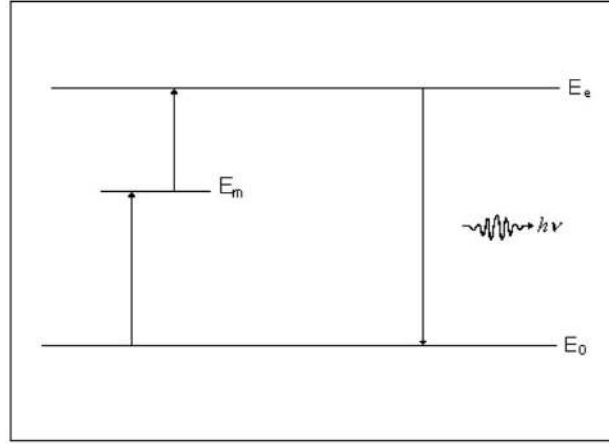
LÜMINESANS OLAYLARI	UYARMA YÖNTEMLERİ
Biyolüminesans	Biyokimyasal enerji
Katod Lüminesans	Katot ışınları
Kimyasal Lüminesans	Kimyasal enerji
Elektrolüminesans	Elektrik alan
Fotolüminesans	U.V., görünür ve kızılötesi ışık
Piezolüminesans	Basınç (10 ton m ⁻²)
Tribolüminesans	Sürtünme
Radyolüminesans	İyonlaştırıcı radyasyon
Sonolüminesans	Ses dalgaları
Fluoresans Fosforesans Termolüminesans	İyonlaştırıcı radyasyon, UV., ve görünür ışık

Çizelgedeki son üç lüminesans türü ışık yayılımının gerçekleştiği süre bakımından birbirinden ayrılır. Fluoresans, radyasyonun madde tarafından soğurulmasından sonra 10^{-8} saniyeden daha kısa bir sürede ışık yayılımını ifade eder. Floresans sadece uyarılmanın devam ettiği süre boyunca gerçekleşen bir süreçtir. Uyarılma ortadan kaldırıldığı zaman ışıma olayı da gözlenmeyecektir. Bununla birlikte floresansın gerçekleşme süresi sıcaklıktan bağımsızdır. Fluoresansın süresi uyarılmış bir E_e enerji seviyesinden E_0 taban enerji durumuna geçme ihtimali ile belirlenir (Furetta ve Weng, 1998). Bu durum Şekil 1.1'de gösterilmiştir.



Şekil 1.1. Floresans olayı (Furetta ve Weng, 1998)

Fosforesans, 10^{-8} saniyeden daha uzun bir süre boyunca gerçekleşir ve uyarılma olayı ortadan kaldırılrsa dahi ışıma gözlenebilir. Fosforesans olayının gerçekleşme süresi sıcaklığa bağlıdır. Fosforesans olayı, bir elektronun E_0 taban enerji durumundan yarı kararlı E_m enerji seviyesine (elektron tuzağı) uyarılmasından sonra çeşitli uyartıcılar ile E_e enerji seviyesine ulaşır ve taban enerji seviyesi E_0 'a dönerken yayımladığı ışımadır. Bu ışık yayılımı, yarı kararlı durumda hiçbir yük kalmayana kadar azalan bir yoğunlukla devam edecektir (Furetta ve Weng, 1998). Bu durum Şekil 1.2'de gösterilmiştir.



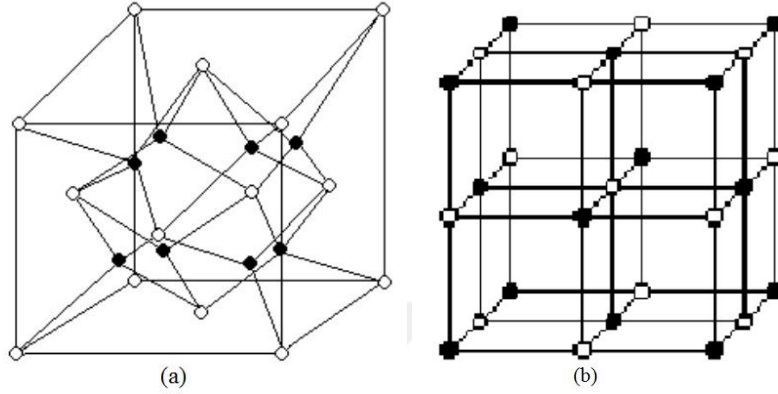
Şekil 1.2. Fosforesans olayı (Furetta ve Weng, 1998)

Lüminesans olayının gerçekleşmesi 10^{-4} saniyeden daha az bir sürede gerçekleşiyorsa fluoeresans ile fosforesansı ayırt etmek zordur. Bunun için izlenecek tek yol lüminesans olayının sıcaklığa bağlı olup olmadığını kontrol etmektir. Eğer numune daha yüksek bir sıcaklığa yükseltirirse, E_m 'den E_e 'ye geçişlerde bir artış meydana gelecektir. Sonuç olarak, fosforesans daha parlak olacak ve yarı kararlı durumda bulunan elektronların E_e 'ye geçiş sayısı arttığı için fosforesansın gerçekleşme süresi de kısılacaktır. Bu olayda elektronların geçişi ısı etkisiyle sağlanmış olmakla birlikte ısı arttıkça lüminesans şiddetinin de arttığı sonucuna varılır. TL olayında uyarma ile ışık yayımlama arasındaki gecikme birkaç dakikadan 10^{10} yıl arasında sürebilmektedir (Furetta ve Weng, 1998).

1.2. Kristal Kusurları

TL dozimetresinde ilgi çeken malzemeler, esas olarak radyasyon enerjisinden kaynaklanan iletken elektronlarını tamamen soğuran yalıtkanlardır. Bir kristal, üç katlı bir yapı ile karakterize edilen atomların veya moleküllerin yığın halidir. Bir kristalin yapısını anlayabilmek için en uygun malzemeler alkali halojenürlerdir. Alkali halojenürler ve bunların kristal yapılarındaki kusurlar, lüminesans olaylarını anlamak için uygun özelliktedirler.

İdeal bir kristalin yapısı Şekil 1.3'de gösterilmiştir.



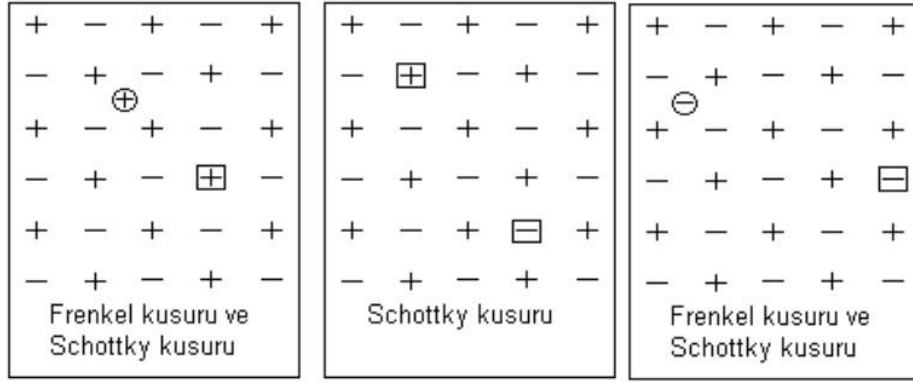
Şekil 1.3. İdeal bir kristalin üç boyutlu yapısı a) CaF₂ (•Ca, o F) b) LiF (• Li, o F) (Furetta ve Weng, 1998)

Gerçek bir kristalin sahip olduğu üç temel kusur vardır. Bunlar; (i) içsel veya doğal kusurlar, (ii) dışsal veya safsızlık kusurları ve (iii) iyonlaştırmacı radyasyonun alkali halojenürlerde meydana getirdiği kusurlar olmak üzere sıralanır (Furetta ve Weng, 1998).

1.2.1. İçsel veya Doğal Kusurlar

- Boşluklar veya bir atomun bulunması gereken yerde olmaması durumunda meydana gelen kusurlardır. Bu kusurlara Schottky kusurları denir.
- Araya girme ya da Frenkel Kusuru: Bir X atomunun örgüye ait olmayan bir yerde bulunması sonrasında oluşan kusurlardır.
- Yerine geçme kusurları: Alkali iyonunun bulunması gereken yerde halojen iyonlarının bulunması sonucu oluşan kusurlardır.
- Tüm kusurların hepsinin birlikte olduğu kusurlar.

Bu kusura ait bir kristalin yapısı Şekil 1.4'de gösterilmiştir.

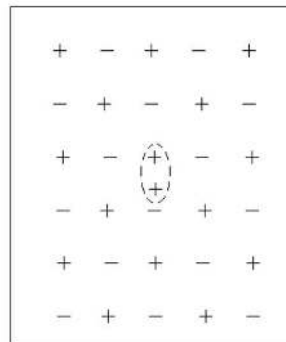


Şekil 1.4. İçsel kusurları bulunan bir kristalin yapısı (örnek olarak LiF). + alkali iyon (Li^+), halojen iyon (F^-) (Furetta ve Weng, 1998)

1.2.2. Dışsal veya Safsızlık Kusurları

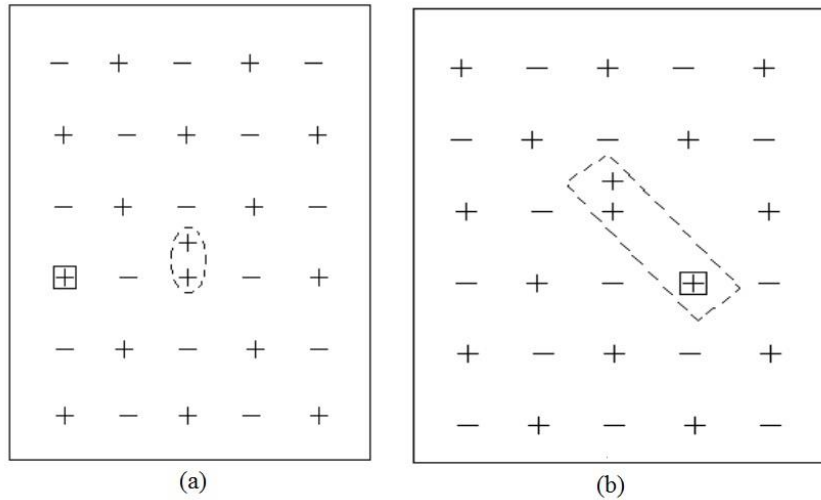
Bir X kristalinde Y kimyasal safsızlığının bulunması sonucu oluşan kusurlardır. Bu kusurlar iki şekilde meydana gelebilir:

- X ve Y atomlarının birlikte bulunduğu bir yapıda X atomunun yerini Y atomunun alması sonucu oluşan kusurlar (Şekil 1.5).
- Kusursuz bir kristalde, bir Y atomunun örgüye ait olmayan bir yerde bulunması sonucu oluşan kusurlar.



Şekil 1.5. Yer değiştirmeye ait iki değerlikli katyon kusuru Mg^{+2} (Furetta ve Weng, 1998)

Kimyasal safsızlıkların mekanizmasını anlamak için, Şekil 1.6.'da gösterildiği gibi boşluk yoğunluğu üzerindeki iki değerlikli iyonun hareketini ve etkisini incelemek gereklidir.



Şekil 1.6. a) Yerinde bulunmayan bir alkali iyonu b) İyonların birbirini çekmesi ile birleşik bir yapı oluşturması

Şekil 1.6. (a)'da boşluk yoğunluğunda iki değerlikli bir iyon ifade edilmiştir. Pozitif yük safsızlığını dengelemek için bir alkali iyonu atılmalıdır. Şekil 1.6. (b)' de ise iki değerlikli katyon safsızlığının bir yerel pozitif yük ve katyon boşluğunun da bir yerel negatif yük oluşturduğu ve bu iki yükün birbirini çekerek bileşik bir yapı oluşturduğu gösterilmiştir (Furetta ve Weng, 1998).

1.2.3. İyonlaştırıcı Radyasyonun Alkali Halojenürlerde Meydana Getirdiği Kusurlar

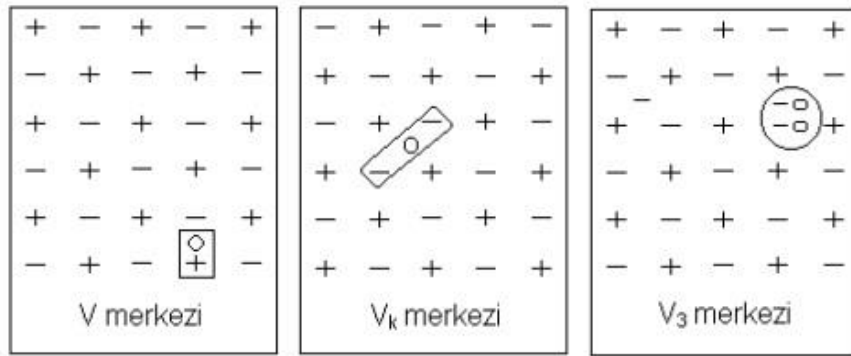
İyonlaştırıcı radyasyonun etkisi ile koparılan bir elektron, yerel bir pozitif yük tarafından Coulomb kuvveti ile çekilir ve boşluğa hapsolür. Bu sistem veya merkez “F” merkezi olarak ifade edilir.

Buna benzer olarak bir pozitif iyon boşluğu bir deşik tuzağını ifade eder ve bu sistem veya merkez “V” merkezi olarak isimlendirilir. Fakat bunlar için yeterli bir bilgi bulunmamaktadır.

Boşluk merkezlerinin diğer çeşitleri de şu şekildedir:

- Bir deşik, bir negatif iyon çifti ile tuzaklanırsa “ V_k ” merkezi oluşturulur.
- Bir halojen iyonunun bulunduğu yeri yüksüz bir halojen molekülünün almasıyla “ V_3 ” merkezleri oluşur. Sonuçta iki halojen iyonu iki boşlukla tuzaklanmış olur.

Bu kusurların oluşumu Şekil 1.7’de gösterilmiştir.



Şekil 1.7. Gerçek bir kristalde V, V_k ve V₃ merkezleri (Furetta ve Weng, 1998)

Radyasyon miktarı kristal kusurlarının oluşumunda önemlidir. Çünkü, TL malzemelerini yüksek dozda radyasyona maruz bırakmak kristal yapıda istenmeyen kusurlara yol açabilmektedir. Bu durum TL dozimetreleri için oldukça önemlidir (Furetta ve Weng, 1998).

Kristaller fotonlar, elektronlar, nötronlar, yüklü ve yüksüz parçacıklar tarafından bombardıman edildiğinde, örgü içinde bulunan atomların olması gereken yerden uzaklaştırılması sonucu kusurlar meydana gelir. Bununla birlikte

boşluk ve ara yer atomunun yeniden birleşme olasılığı arttığı için uzun bir ışınlama esnasında oluşturulan kusurların sayısı aşamalı olarak azalacaktır. Işınlama esnasında iyonlaşma hasarı olarak ifade edilen bir işlemle negatif iyon boşlukları oluşturulabilmektedir. Bu mekanizma, iyonlaşma elektronunun ve boşlukların yeniden birleşme durumuyla ilgilidir. Bir elektron-boşluk çifti yeniden birleşme süresince negatif bir iyon üzerinde hapsolabilir. Yeniden birleşme sırasında ortaya çıkan enerji negatif iyonla aktarılır, bunun sonucunda boşluk ve ara yer atomları birbirleriyle çarpışırlar. Bu olayın sonunda, F merkezi ve ara yer atomlarının oluşumu gerçekleşmiş olur (Furetta ve Weng, 1998).

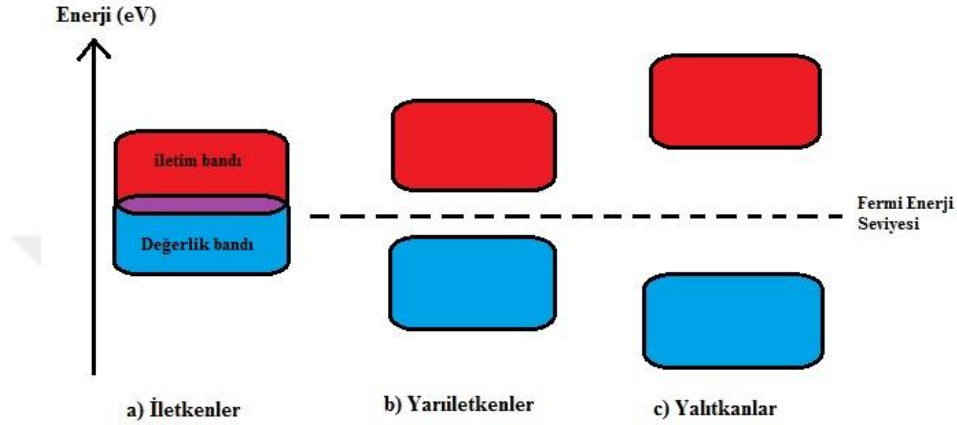
Işınlama öncesinde gerçek bir kristalin farklı türde kusurları vardır. Işınlama esnasında meydana gelen elektron ve deşikler bu kusurlarda tuzaklanırlar veya elektronlar ile tuzaklanmış deşikler yeniden birleşirler. Yeniden birleşme olasılığı tuzaklanma ihtimalinden çok daha büyüktür ve bu nedenle ışınlama sonunda yüklerin yalnızca bir kısmı tuzaklanmış olarak kalır.

1.3. Katılarda Bant Modeli

Atom dizilişlerine göre katılar iki grupta incelenirler. Bunlar, amorf ve kristal yapıdır. Bir katı içerisindeki atomlar belli bir düzen olmaksızın gelişigüzel bir şekilde yapı oluşturuyorsa buna amorf yapı denir. Bir katıyı oluşturan atom, atom grupları ve moleküller, o katıya özgü düzenli bir yapı oluşturuyorsa buna kristal yapı adı verilir.

Katılar, elektriksel ve optiksel olarak yalıtkanlar, yarıiletkenler ve iletkenler olmak üzere üç grupta incelenir. Değerlik (valans) bandı elektronlarla dolu olup iletim bandı boş olan katılara yalıtkan denir. Yalıtkanlarda bu iki bant arasında bulunan yasak enerji aralığının geniş olması sebebiyle oda sıcaklığında elektronların değerlik bandından iletim bandına geçmeleri mümkün değildir. Değerlik ve iletim bantları birleşmiş olan katılara ise iletken denir (Şekil 1.8). Tüm metaller iletken özelliğe sahiptir. Değerlik bandı ile iletim bandı arasındaki yasak

enerji aralığı yalıtkanlardaki gibi çok geniş olmayan katılara ise yarı iletken denir (Aitken, 1985).



Şekil 1.8. Katılarda bant yapısı

1.4. Termolüminesans Teorisi

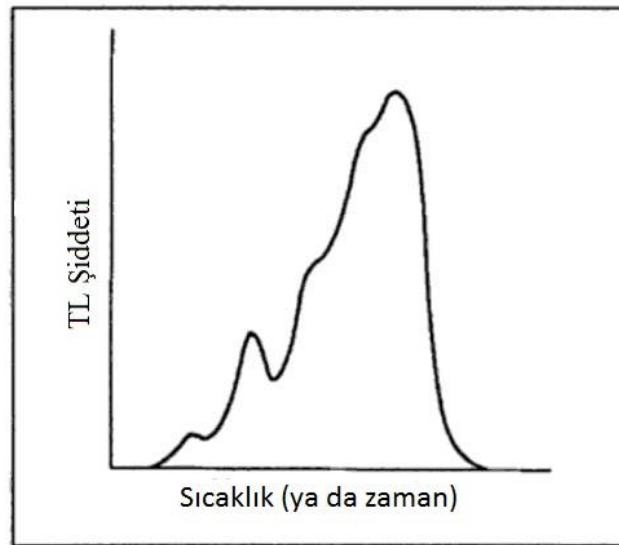
Yalıtkan ve yarıiletken maddeler, iyonlaşma radyasyonuna maruz kaldıktan sonra ısıtıldıklarında ışımaya yaparlar. Bu ışımaya “termolüminesans” (TL) denir. Yalıtkan ve yarıiletken maddeler radyoaktif elementlerin yaydığı alfa ve beta parçacıkları ile gama ışınları gibi iyonlaştırıcı radyasyonların etkisiyle enerji soğururlar.

Maddeye etki eden radyasyon atomlarla etkileşime girerek elektronlara enerji kazandırır. Enerji kazanan elektronlar iletim bandına geçer ve çeşitli nedenlerle oluşan tuzak adı verilen yerlere yakalanırlar. Böylece, elektronlar radyasyondan alınan enerjinin maddede depolanmasını sağlamış olur. Elektronların tuzaklarda kalma süreleri, çevre koşullarına ve tuzak özelliklerine bağlı olarak değişiklik gösterir. Bu süre birkaç dakikadan milyonlarca yıla kadar olabilir. Kısa sürede boşalan tuzaklara sığ tuzaklar, uzun sürede boşalan tuzaklara derin tuzaklar denir. Kristal yapı ısıtıldığında tuzaklanan elektronlar serbest kalır ve yeniden

birleşme merkezleriyle birleşerek ışık yayımlanmasına sebep olurlar. Yayımlanan ışık miktarı maddede biriken radyasyon enerjisiyle orantılıdır.

Madde sabit bir hızla ısıtıldığında, önce sıg tuzaklar sonra derin tuzaklar olmak üzere sırayla boşalırlar. Her tuzak grubu farklı bir sıcaklıkta boşalır. Buna bağlı olarak elektron tuzakları sırayla boşalırken, farklı sıcaklıklarda ayrı ayrı tepeler meydana gelir. Tuzak gruplarının boşalma sıcaklıklarına yaklaşıldıkça ışıma artar ve bir noktada maksimuma ulaşır ve bir sonraki tuzak gruplarının boşalma sıcaklığına kadar azalmaya başlar. Işıma olayındaki bu artma ve azalmaların sıcaklığa karşı grafiği ışıma eğrisi (glow curve) olarak adlandırılır (Aitken, 1985).

Şekil 1.9'da, bir kristal ısıtıldıktan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi gösterilmiştir.



Şekil 1.9. Örnek bir TL ışıma eğrisi. Her tepe noktasında iyi tanımlanmış bir tuzak bulunur (Furetta ve Weng, 1998)

1.5. Termoluminesans Kinetikleri

1.5.1. Birinci Derece Kinetiği

1945 yılında Randall ve Wilkins kristal yapıda tek bir tuzak derinliğini ele alarak, ışıma eğrisindeki her bir tepe noktası için matematiksel bir formül oluşturmuşlardır. Randall-Wilkins teorisine göre elektronların tekrar tuzaklanma olasılığının çok düşük olduğu varsayılır.

Buna göre TL şiddeti I , herhangi bir sıcaklıkta tuzaklardan kurtulan fakat tekrar tuzaklanmayan elektronların sayısıyla orantılıdır.

$$I(t) = -c \left(\frac{dn}{dt} \right) = cpn \quad (1.1)$$

Burada c sabit bir sayıdır.

$$I(t) = n_0 s \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \exp\left[-st \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)\right] \quad (1.2)$$

Lineer ısıtma hızı ($\beta = dT/dt$) kullanarak,

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n} = -\left(\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \quad (1.3)$$

$$\ln(n) - \ln(n_0) = -\left(\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \quad (1.4)$$

denkleminde n değeri tek başına bırakılırsa denklem,

$$n = n_0 \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT'\right] \quad (1.5)$$

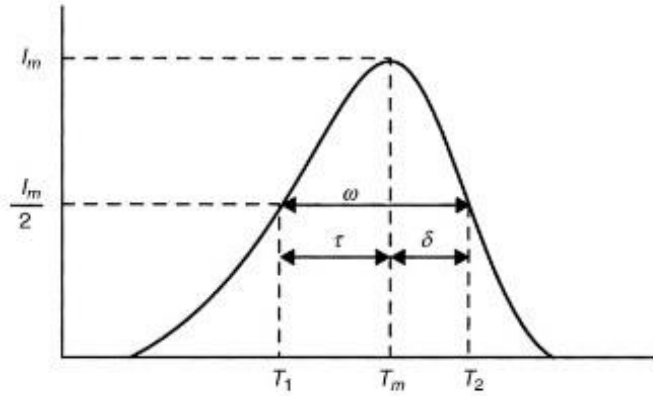
şekline dönüşür.

$$I(t) = n_0 s \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT'\right] \quad (1.6)$$

olarak bulunur.

Bu ifade karakteristik bir T_m sıcaklığında maksimum yoğunluğu bulmamızda yardımcı olur.

Bu ifadeye ait TL şiddeti-sıcaklık grafiği Şekil 1.10'da gösterilmiştir.



Şekil 1.10. Birinci derece TL denklemine göre normalize edilmiş ışıma tepesi (Furetta ve Weng, 1998)

Gerekli düzenlemeler ve yaklaşımlar yapılarak; $T=T_m$ düşünülüp TL şiddetinin sıcaklığa göre türevi alınıp sıfıra eşitlenirse,

$$\frac{dI(t)}{dT} = 0, \quad T = T_M \quad (1.7)$$

olur ve kolay bir çözüm için logaritmik türev alınırsa,

$$\frac{d(\ln I(t))}{dT} = \frac{1}{T} \frac{dI(t)}{dT} \quad (1.8)$$

$$\ln(I(t)) = \ln(n_0 s) - \frac{E_a}{kT} - \frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \quad (1.9)$$

$$\left[\frac{d(\ln I(t))}{dT} \right]_{T=T_M} = \frac{E_a}{kT_M^2} - \frac{s}{\beta} \exp\left(-\frac{E_a}{kT_M}\right) = 0 \quad (1.10)$$

$$\frac{\beta E_a}{kT_M^2} = s \exp\left(-\frac{E_a}{kT_M}\right) \quad (1.11)$$

denklemleri elde edilir. Bu denklemlerden bazı çıkarımlar yapılabilir. Buna göre;

- Sabit bir ısıtma hızı için, aktivasyon enerjisi (E_a) arttıkça veya frekans faktörü (s) azaldıkça T_m yüksek sıcaklıklara doğru kayar.
- E_a ve s nin sabit değerleri için ısıtma hızı arttıkça T_m yüksek sıcaklıklara doğru kayar.
- T_m , n_0 dan bağımsızdır.
- Toplam ışıma şiddeti S diye ifade edilirse;

$$S = \int_0^\infty I(t) dt = -c \int_0^\infty \frac{dn}{dt} dt = -c \int_{n_0}^0 dn = cn_0 \quad (1.12)$$

olur.

- S tuzaklanan yüklerin başlangıç sayılarıyla orantılıdır ve ısıtma döngüsünden bağımsızdır.
- Tuzaklanan yük sayısı radyasyon miktarı ile orantılıysa, S 'de radyasyon miktarı ile orantılıdır.

1.5.2. İkinci Mertebe Kinetiği

Garlick ve Gibson, serbest bir yük taşıyıcısının TL merkeziyle yeniden birleşebileceğini veya tekrar tuzaklanabileceğini öne sürmüşlerdir. Buna bağlı olarak ikinci derece kinetik için matematiksel bağıntıları oluşturmuşlardır.

$$I(t) = \frac{dn}{dt} = -n^2 \frac{s}{N} \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) = -n^2 s' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (1.13)$$

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n^2} - s' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \int_0^t dt \quad (1.14)$$

$$\frac{1}{n_0} - \frac{1}{n} = -s' t \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (1.15)$$

$$n = n_0 \left[1 + s' n_0 t \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \right]^{-1} \quad (1.16)$$

Ve buna göre yoğunluk,

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^2 s' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) = \frac{n_0^2 s' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)}{\left[1 + s' n_0 t \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \right]^2} \quad (1.17)$$

$dt = \frac{dT}{\beta}$ ifadesini dikkate alarak,

$$\frac{dn}{n^2} = -\frac{s'}{\beta} \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) dT \quad (1.18)$$

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n^2} = -\frac{s'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) dT \quad (1.19)$$

$$\frac{1}{n_0} - \frac{1}{n} = -\frac{s'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) dT' \quad (1.20)$$

$$n = n_0 \left[1 + \left(\frac{s'n_0}{\beta} \right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \right]^{-1} \quad (1.21)$$

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^2 s' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) = \frac{n_0^2 s' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s'n_0}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \right]^2} \quad (1.22)$$

Garlick ve Gibson'ın ikinci derece kinetik denklemi elde edilmiş olur.

1.5.3. Genel Derece Kinetiği

Birinci veya ikinci derece kinetik şartlarının oluşmadığı durumlarda genel derece kinetiği düşünülür. Genel dereceden kinetik, birinci ve ikinci dereceden kinetikte bahsedildiği gibi, tuzakların enerji seviyelerinin tek olduğu varsayımıyla ele alınır. Tek bir enerji seviyesinde bulunan yük taşıyıcılarının n sayısının, n^b ile orantılı olduğunu düşünelim. Buna göre;

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^b s'' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \quad (1.23)$$

$$\frac{dn}{n^b} = -s'' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) dt \quad (1.24)$$

$$\int_{n_0}^n n^{-b} dn = - \int_0^t s'' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) dt \quad (1.25)$$

$$n^{1-b} = n_0^{1-b} \left[1 + s'' n_0^{b-1} (b-1) t \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \right] \quad (1.26)$$

$$n = n_0 \left[1 + s(b-1) t \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (1.27)$$

$$s = s'' n_0^{b-1} \quad (1.28)$$

$$\begin{aligned} I(t) &= -\frac{dn}{dt} = n^b s'' \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \\ &= s n_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \left[1 + s(b-1) t \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \right]^{\frac{1}{1-b}} \end{aligned} \quad (1.29)$$

ısıtma hızının lineer olduğu düşünülerek, $dT = \beta dt$

$$\frac{n^{1-b} - n_0^{1-b}}{1-b} = -\frac{s''}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \quad (1.30)$$

$$n^{1-b} = n_0^{1-b} \left[1 + \frac{s''(b-1)n_0^{b-1}}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \right] \quad (1.31)$$

$$n = n_0 \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (1.32)$$

$$I(t) = sn_0 \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right) \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \right]^{\frac{b}{b-1}} \quad (1.33)$$

$$\ln[I(T)] = \ln(sn_0) - \frac{E_a}{kT} - \frac{b}{b-1} \ln \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \right] \quad (1.34)$$

$$\begin{aligned} \frac{d(\ln I(T))}{dT} \Big|_{T=T_M} &= \frac{E_a}{kT_M^2} \\ &\quad - \frac{b}{b-1} \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \right]^{-1} \frac{s(b-1)}{\beta} \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) \\ &= 0 \end{aligned} \quad (1.35)$$

$$\frac{kT_M^2 bs}{\beta E_a} \exp\left(-\frac{E_a}{kT_M}\right) = 1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E_a}{kT'}\right) dT' \quad (1.36)$$

denklemleri elde edilir (Furetta ve Weng, 1998).

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Floritin (doğal CaF_2) radyasyon dozimetresi olarak uygun bir TL fosforu olduğu ilk Schayes ve ark. (1963) tarafından önerilmiştir. Daha sonraki çalışmalarda bu fosforun TL emisyon mekanizmaları (Watanabe ve ark. 1971; Sunta, 1971; Calderon ve ark., 1992; El-Kolaly ve ark., 1981) ve özellikleri üzerine çalışmalar yapılmıştır. Çoğu ülkelerde doğal CaF_2 beyaz, pembe, yeşil ve mor gibi farklı renklerde bulunmaktadır. Çevresel radyasyonu belirleme, kişisel dozimetri uygulamaları üzerine çalışmalar yapılmış ve dozimetrik karakteristiğinin bulunduğu bölgeye bağlı olarak değiştiği belirtilmiştir (Mishev, 1972).

TL kişisel, çevresel ve klinik dozimetrelerin ölçümünde yaygın olarak kullanılan bir yöntemidir. TL dozimetrelerinden alınan ölçüm sonucunda elde edilen TL tepe şiddeti ve eğri altında kalan alan soğurulan doz ile orantılıdır. Nano boyuttaki materyallerin özel optiksel, fiziksel, kimyasal, elektriksel ve manyetik özelliklerinden ve geniş uygulanma potansiyellerinden dolayı oldukça dikkat çekmektedir. Buna bağlı olarak, son zamanlarda farklı nano materyallerin TL özellikleri dikkat çekmiş ve araştırılmaya başlanmıştır (Salah, 2011; Zahedifar ve ark., 2011; Salah ve ark., 2011).

Bakır ile katkılanmış CaF_2 'nin ($\text{CaF}_2:\text{Cu}$) TL dozimetresi olarak özellikleri incelenmiştir (Zahedifar ve Sadeghi, 2013). Doza karşı aşırı duyarlı bu materyalin TL hassasiyeti $\text{LiF}:\text{Mg},\text{Ti}$ (TLD-100)'den yaklaşık 160 kez daha yüksek olduğu bulunmuştur (Prokert ve Sommer, 1998). Benzer şekilde foto transfer TL kullanarak $\text{CaF}_2:\text{Cu}$ 'nun UVB dozimetresi olarak kullanılabileceği rapor edilmiştir (Sono ve McKeever, 2002).

$\text{CaF}_2:\text{Dy}$ katkılı çalışmalar;

Merz ve Pershan (1967)'de $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ kristalinin 77°C 'de oluşan tepesi için E_a ve s değerlerini hesaplamışlardır.

Binder ve Cameron (1969) $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ kristalinin dozimetrik özellikleri üzerine çalışmışlar ve $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ 'nin ışıma eğrisinin 120, 140, 200 ve 240°C 'lerde

merkezlenen dört düşük sıcaklık tepesine (maksimuma), 340 ve 400°C'de iki yüksek sıcaklık tepesine (maksimuma) sahip olduğunu gözlemişlerdir.

Sunta 1970'de TLD-200'ün ($\text{CaF}_2:\text{Dy}$) özellikle yüksek sıcaklıklarda ($>300^\circ\text{C}$) önemli ölçüde Tb^{+3} iyonlarından kaynaklanan emisyonunu gözlemlemiştir.

Hsu ve Wang (1986), " $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (TLD-200)'ün dozimetrik özelliklerini TL yöntemini kullanarak detaylı bir şekilde incelemişlerdir. Fosforun yüksek bir hassasiyete sahip olduğunu göstermişlerdir. Fosforun kullanılmadan önce 450°C'de 20 dakika tavlmasının uygun olacağını bildirmişlerdir.

Yazıcı ve ark., (2000) $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ fosforunun termoluminesans ısıma eğrisinin 27 ile 277°C arasındaki sıcaklık bölgesini detaylı bir şekilde incelenmişlerdir. Bilgisayarla ısıma eğrisi ayrıştırma, tepe şekli ve izotermal bozunum metodlarını kullanarak kinetik parametre ve ısıma eğrisinin kaç tane iç içe girmiş tepelerden oluştuğunu belirlemişlerdir.

M. Zahedifar ve ark. hidrotermal sentezleme yöntemini ilk kez kullanarak $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ fosforunu elde etmişlerdir. Dy 'un optimum konsantrasyonunu 3% mol olarak bulmuşlardır. Sentezlenen materyali karakterize etmek için X-ışını kırınımı (XRD), taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve enerji dağılımlı spektrometre (EDS) yöntemlerini kullanmışlardır. Parçacık boyutu, SEM görüntülerinden ve XRD verilerinden elde edilen bilgiler ışığında 43 nm olarak hesaplanmıştır. Sentezlenen nano parçacıkların kinetik parametrelerini ve ısıma eğrilerinin kaç bileşenden oluştuğunu bulabilmek için CGCD ve T_m-T_{stop} yöntemlerini kullanmışlardır. Fosforun, Co-60 gama (γ) kaynağından farklı dozlara maruz bırakıldıktan sonra 1000 Gy'e kadar lineer bir doz aralığına sahip olduğunu göstermişlerdir. Elde edilen sonuçlara göre bu fosforun yüksek dozlar için kullanılabilir aday bir dozimetre olduğunu belirtmişlerdir (Zahedifar ve ark., 2012).

Mahesh S. Bhadane ve ark. $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ nanofosforunu, çökeltme yöntemini kullanarak sentezleme yaparak elde etmişlerdir. $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ nanofosforunu düşük

enerjili iyon ışınları (LEIB) ile ışınlamışlardır. $\text{CaF}_2\text{:Dy}$ numunesinin FTIR spektrumları, LEIB ışınlamasından sonra NO, CF ve CH gibi bazı bağların değişikliğe uğradığını göstermiştir. TL ışıma eğrisi, Ar iyonu için 207 °C'de, H iyonu için 203 °C'de ve N iyonu için 216 °C ve 270 °C'de maksimumlar vermiştir. $\text{CaF}_2\text{:Dy}$ nanofosforunun tüm iyon türleri için minimum solma ve lineer doz aralığına sahip olduğunu göstermişlerdir. Elde edilen veriler ile $\text{CaF}_2\text{:Dy}$ fosforunun düşük enerjili bir iyon dedektörü olarak kullanılabileceğini göstermişlerdir (Bhadane ve ark., 2016).

P.R. Gonzalez ve ark., Ce ve Dy katkılı CaF_2 ($\text{CaF}_2\text{:Ce}$, Dy) fosforunu hidroflorik asit kullanarak stokiyometrik oranda kalsiyum karbonat ile reaksiyona girmesini sağlamışlardır. CaF_2 'e Ce 0.4% ve Dy 0.4% katkılama yapmışlardır. Morfolojik, kristalografik ve optik özelliklerini düşük vakumlu taramalı elektron mikroskobu, X-ışını kırınımı, Raman ve fotoluminesans spektroskopileri ile incelenmiştir. Elde edilen TL sonuçlarından fosforun, gama radyasyonuna karşı TLD-100'den on kat daha duyarlı olduğunu göstermişlerdir. Fosforun 0.001-500 Gy doz aralığında lineer davranış gösterdiğini ve sonraki dozlarda doyuma ulaştığını gözlemlemişlerdir. Fosfor iyi bir tekrar kullanılabilirlik göstermiştir. Elde edilen sonuçlarla, bu yeni geliştirilen $\text{CaF}_2\text{:Ce}$, Dy + PTFE fosforunun, düşük dozlarda yüksek hassasiyete sahip olduğunu göstermişlerdir. Sonuç olarak, bu malzemenin dozimetrik amaçlı kullanılabilecek özelliğe sahip olduğunu belirlemişlerdir (Gonzalez ve ark., 2017).

$\text{CaF}_2\text{:Mn}$ katkılı çalışmalar;

$\text{CaF}_2\text{:Mn}$ fosforunun TL mekanizması için pek çok modeller önerilmiştir. Her bir mekanizma en sonunda Mn^{+2} iyonunun 6A1g(6S) temel seviyesine geri uyarılmasına temellendirilmiştir. Bu konuda ilk model Schulman tarafından önerilmiştir. Sunta (1994) tamamen farklı bir mekanizma önermiştir.

De Planque (1984) $\text{CaF}_2\text{:Mn}$ fosforunun TL özelliklerine bakmış ve solma (fading) özelliğini detaylı bir şekilde çalışıp diğer çalışmalar ile karşılaştırma yapmıştır.

McKeever ve ark., (1986) ışınlanmış $\text{CaF}_2\text{:Mn}$ 'ın optik özelliklerini detaylı bir şekilde çalışmışlardır.

Pradhan (2002), Isıtma Hızının $\text{CaF}_2\text{:Dy}$, $\text{CaF}_2\text{:Mn}$, $\text{CaF}_2\text{:Tm}$, $\text{CaF}_2\text{:Cu}$ fosforlarının 270°C civarında TL tepesi üzerindeki etkilerini çalışmışlardır.

M. Zahedifar ve ark. yaptıkları "Mn Katkılı CaF_2 'nin sentez ve termoluminesans özellikleri" adlı çalışmalarında Mn katkı CaF_2 nano parçacıkları hidrotermal yöntemle sentezlemişlerdir. Bu nano yapının oluşumu XRD yöntemi ile karakterize edilmiştir. Parçacığın boyutu, XRD verilerinden yaklaşık olarak 39 nm olarak hesaplanmıştır. TL çalışmaları sonucunda malzemenin yaklaşık olarak 399, 436 ve 494 K değerlerinde 3 tepe noktasından oluştuğunu belirlemişlerdir. Bu fosforun TL'sı farklı Mn konsantrasyonları için çalışılmış ve maksimum duyarlılığın 3% mol Mn katkı durumunda gözlemlenmiştir (Zahedifar ve ark., 2011).

$\text{CaF}_2\text{:Tm}$ katkı çalışmaları;

Bir TL dozimetresi olarak $\text{CaF}_2\text{:Tm}$ 'nin önemi ilk olarak Lukas ve Kapsar (1977) tarafından ifade edilmiştir. Daha sonraki süreçte TLD-300 olarak bilinen $\text{CaF}_2\text{:Tm}$ 'nin dozimetri uygulamaları ve kinetik analizleri üzerine geniş araştırmalar yapılmıştır (Bos and Dielhof, 1991; Rasheedy ve ark., 1994; Jafarizadeh ve ark., 1999). $\text{CaF}_2\text{:Tm}$ 'nin TL ışıma eğrisi, tepe 3 ve tepe 5 olarak bilinen (tepe 3=180 °C ve tepe 5=272 °C) iki farklı maksimumdan oluşur. $\text{CaF}_2\text{:Tm}$ nötron ve gamma radyasyonuna maruz kaldığında bu iki ışıma pikinin doza karşı verdikleri cevap oranları farklıdır. $\text{CaF}_2\text{:Tm}$ 'nin nötron duyarlılığı $\text{CaF}_2\text{:Mn}$ ve $\text{CaF}_2\text{:Dy}$ 'den daha fazla olduğu görülmüştür (Dielhof ve ark., 1988). $\text{CaF}_2\text{:Tm}$ 'nin dozimetri uygulamalarında en yüksek TL hassasiyeti için Tm'nin optimum konsantrasyonu γ ışınlaması için 0.6%, α parçacıkları için 0.6-0.7% olarak bulunmuştur.

B. Marczewska ve ark. Stockbarger yöntemini kullanarak 0.1, 0.3, 0.5, 0.6, ve 0.7% konsantrasyonlarla katkıladıkları $\text{CaF}_2\text{:Tm}$ tek kristalin TL yöntemini kullanarak dozimetrik özelliklerini araştırmışlardır. 10 Gy'e kadar verilen dozlarda

elde edilen TL verimliliğinin radyasyon tedavisi için önemini değerlendirmişlerdir. Doz yanıtının lineerliği ve tekrarlanabilirliği standart Harshaw TLD-300 dozimetresinin özellikleri temel alınarak çalışılmıştır. Bu dedektörlerin, yüksek LET ışınlamasından sonra yüksek verimlilikleri ve geniş doğrusallık aralığı nedeniyle, yüksek LET radyoterapi ışınlarının dozimetrisi için en uygun olduğu sonucuna varılmıştır (Marczewska ve ark., 2001).

Daniel A.A. Vasconcelos ve ark. yaptığı çalışmada "Tm katkılı CaF_2 'in sentezi ve termolüminesans yanıtı " adlı çalışmada sentezlenen malzemenin kristal yapısı ve parçacık boyutu, sırasıyla XRD ve SEM ile karakterize edilmiştir. TL yanıtının Co-60 gama radyasyonu ile ışınlanan numuneler için 10 kGy'ye kadar doğrusallık gösterdiği ifade edilmiştir (Vasconcelos ve ark., 2014).

Diğer katkılarla ilgili önceki çalışmalar (Ce, Eu) ;

M. Zahedifar ve ark. hidrotermal sentezleme yöntemini kullanarak CaF_2 'ye Ce nanopartiküllerini katkılamaşlardır. Sentezleme işlemi için optimum süre ve sıcaklığı sırasıyla 30 dk ve 400 °C olarak bulmuşlardır. XRD yöntemini kullanarak kristalin kübik kafes yapısına sahip olduğunu belirtmişlerdir. Şekil ve büyüklüklerini SEM ile gözlemlenmişlerdir. Co-60 gama kaynağı kullanılarak ışınlanan CaF_2 :Ce örneklerinin TL özellikleri incelenmiştir. Maksimum TL duyarlılığını 0.4% mol Ce katkılı fosforda gözlemlenmişlerdir. Elde edilen ışıma eğrilerinin kaç bileşenden oluştuğu ve kinetik parametreler T_m - T_{stop} ve bilgisayarlı ışıma eğrisi ayrıştırma (CGCD) yöntemleri kullanılarak belirlenmiştir. Fosforun 2000 Gy'e kadar lineer doz aralığına sahip olduğunu göstermişlerdir (Zahedifar ve ark., 2013).

Fumiya Nakamura ve ark. yaptığı "Eu katkılanmış CaF_2 'in sintilasyon ve dozimetrik özellikleri" adlı çalışmada Spark Plazma Sinterleme (SPS) yöntemi ile CaF_2 'e Evropiyum (Eu) katkılanmış olup fotolüminesans ve dozimetrik özelliklerini araştırmışlardır. Eu'un 5d-4f geçişi ve kendi kendine tuzaklanan eksitonlar nedeniyle 300 ve 430 nm'de bir yayılım görmüşlerdir. Tüm örneklerin ısısal uyarılmış lüminesans (TSL) ışınlam eğrilerinin 100 ve 180°C'de tepe noktası

oluşturduğunu gözlemlemişlerdir. X-ışınına maruz bırakılan fosforun, lineer doz aralığının 0.1 Gy'den 1000 Gy'e kadar olduğunu göstermişlerdir (Nakamura ve ark., 2017).



3. MATERYAL VE METOT

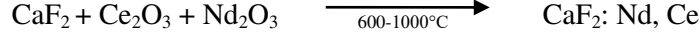
Bu çalışmada saf CaF_2 bileşiği, Nd ve Ce elementleri kullanılmıştır. CaF_2 ev sahibi materyale katıhal sentez yöntemi kullanılarak önce ayrı ayrı Nd ve Ce iyonları katkılanmış daha sonra ise çift katkılama yapılarak elde edilen materyalin dozimetrik özellikleri TL yöntemiyle araştırılmıştır. Elde edilen materyalin karakterizasyonu ise X-Işını Toz Kırınım Yöntemi (XRD), Termal Analiz Yöntemleri (TG-DTA) ve Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) yöntemleriyle belirlenmiştir. Tez çalışması kapsamında kullanılan metodlar hakkındaki bilgiler aşağıda detaylı bir şekilde verilmiştir.

3.1. Katıhal Sentez Yöntemi

Bu yöntem katı bir ana malzeme ile yine katı bir katkı bileşeninin ev sahibi materyalin kimyasal özellikleri de göz önüne alınarak yüksek sıcaklıkta tavlanması sonucunda yeni bir bileşik elde etme prensibine dayanır. Genel olarak, katkı malzemeleri katkılanacak olan elementin oksit bileşenleri olarak seçilmektedir. Bu katkılama işleminde başlangıç materyali saf CaF_2 (katalog no 1028401000, Merck'ten) ve katkı elementleri Seryum (IV) oksit (CeO_2) (katalog no: 202975; Aldrich'ten % 99,995 saflıkta) ve Neodimyum (III) oksit (Nd_2O_3) (katalog no 40252; Alfa Aesar'dan saflığı ≥ 99) olarak seçildi. Katıhal sentez yönteminde, öğütülerek toz haline getirilmiş olan başlangıç malzemeleri (ev sahibi materyal ve katkı malzemesi) ağırlıkça ve uygun mol oranlarında karıştırılıp ana bileşenin erime noktasının altındaki bir sıcaklıkta belli sürelerde tavlanması sonucu katkılanmış bir bileşik elde edilir.

Tez çalışması kapsamında, katıhal sentez yönteminde 600-700-800-900-1000 °C sinterleme sıcaklıklarında sentez yapılarak optimum sinterleme sıcaklığı belirlenmiştir. Bileşiklerimiz öncelikle agat havanda iyice karıştırıldıktan sonra, alüminyum kroze ile fırın içerisine yerleştirilmiş ve yaklaşık 2 saat kalsine edilmiştir.

Sentezleme işleminde aşağıda verilen reaksiyon denklemi kullanılmıştır.



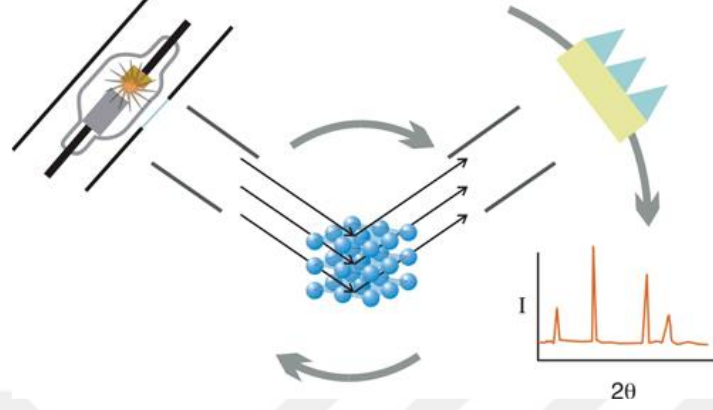
3.2. X-Işını Toz Kırınımı Yöntemi (XRD)

Mineraller gibi amorf olmayan materyallerin üç boyutlu yapısı, bir kristal örgüdeki atomların tekrarlanan düzenli düzlemleriyle tanımlanır. Odaklanmış bir X-ışını demeti, atomların bu düzlemleriyle etkileşime girdiğinde, ışık demetinin bir kısmı yayılır, bir kısmı atom tarafından soğurulur, bir kısmı saçılır ve diğer bir kısmı da kırılır. Kristalleşmiş bir katı tarafından X-ışını demetinin kırınımı, bildiğimiz gökkuşağı oluşumundaki su damlacıklarının ışığı kırmasına benzer. X-ışını, her bir mineralden, mineralin kristal yapısına ve atomların nasıl dizildiğine bağlı olarak, farklı şekilde kırılır. Böylece, analizi yapılan maddenin karakterizasyonu belirlenmiş olur.

XRD, bir kristal materyalin tanımlanması için kullanılan hızlı analitik bir tekniktir ve birim hücre boyutları hakkında bilgi edinilmesini sağlar (Dutrow ve Clark, 2008).

Çok az miktarda örneğe ihtiyaç vardır. Jeoloji, çevre bilimleri, malzeme bilimi, mühendislik ve biyoloji alanlarındaki geniş bir şekilde kullanılmaktadır (Dutrow ve Clark, 2008).

X-ışını, materyalin kristal yapısına ve atomların nasıl dizildiğine bağlı olarak, farklı şekilde kırılır. Çalışmalarda kullanılan X-ışınları, vakum altında bir tüp içerisinde üretilir. Tüp içerisindeki sıcak bir filamente akım uygulandığında filamentten büyük bir elektron yayınımları olur (Şekil 3.1). Genellikle, 15-60 kilovoltluk yüksek gerilim tüp içerisine uygulanır. Bu yüksek voltaj elektronları hızlandırır ve hızlanan elektronlar genelde bakırdan yapılmış bir hedefe çarpar ve böylece X-ışınları üretilmiş olur. Oluşan bu X-ışınlarının dalga boyu, hedef materyalin karakteristiğini gösterir.



Şekil 3.1. X-ışınları kırınımı ile malzeme analiz tekniği (web 1)

Bir X-ışını demeti bir materyale çarptığında kırılmaya uğrayacaktır. Bragg Yasası'nın uygulanması ile materyaldeki atomların düzlemleri arasındaki mesafeyi ölçebiliriz (Şekil 3.2). Bragg Yasası aşağıda verilen denklem ile ifade edilir.

$$n\lambda = 2d \sin\theta$$

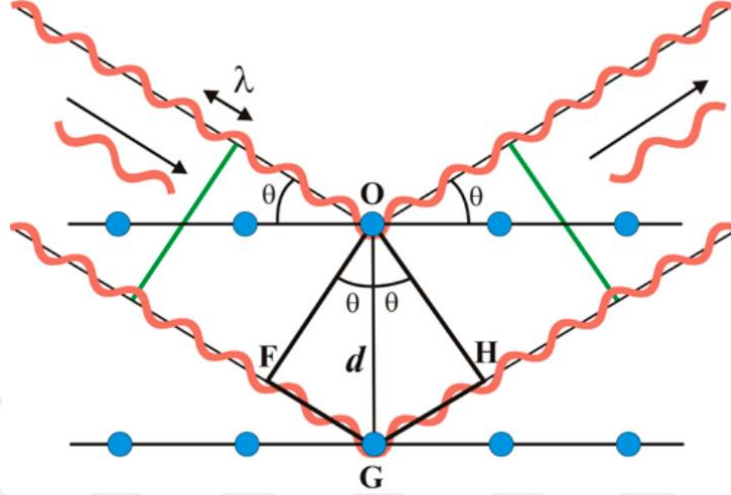
Burada denklemde yer alan ifadeler aşağıdaki gibi tanımlanır,

n : tek sayı ve kırılmış demetlerin derecesini gösterir,

λ : gelen X-ışının dalga boyu,

d : atomların komşu düzlemleri arasındaki mesafe,

θ : X-ışınının gelme açısıdır.



Şekil 3.2. Bir materyalde atomların iki düzleminden X-ışınlarının yansıması (Bragg Yasası).

Bragg denkleminde, λ bilindiği ve θ da ölçüldüğü için d -mesafesini kolaylıkla bulunabilir. d -mesafesinin karakteristiği, örnekteki mevcut mineral veya mineraller hakkında bilgi sağlar. Ancak öncelikle standart PDF kartları ile deneysel ölçüm sonuçları karşılaştırılıp çalışılan materyalde herhangi bir safsızlığın olup olmadığı ve PDF kartı ile tümüyle uyduğu kontrol edilmelidir. Bu her XRD analizinde yapılan standart bir uygulamadır.

Yapılan tez çalışmasında, katkılanmış örneklerin iyi bir şekilde tanımlanması ve kristal örgü yapılarının belirlenmesi için XRD yöntemi kullanılmıştır.

3.3. Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM)

SEM yönteminde, katı numunelerin yüzeyine odaklanmış yüksek enerjili elektronlar gönderilir. Birkaç kilovolt enerjiye sahip bu elektronlar numuneye çarptıklarında numunede bulunan atomlara has karakteristik X-ışınları üretilir. Bu sayede numune yüzeyinde çeşitli sinyaller elde edilir. Elektron ve numune etkileşimlerinden elde edilen bu sinyaller uygun algılayıcılarda toplanarak

bilgisayar sistemine aktarılır. Böylece numunenin kimyasal bileşimi ve kristal yapısı hakkında bilgiler elde edilir (Swapp, 2012).

Gerek ayırım gücü (resolution), gerek odak derinliği (depth of focus) gerekse görüntü ve analizi birleştirebilme özelliği, taramalı elektron mikroskobunun kullanım alanını genişletmektedir. Örneğin 1000X büyütmede optik mikroskobun odak derinliği yalnızca 0.1µm iken taramalı elektron mikroskobunun odak derinliği 30 µm dir.

Yapılan çalışmada yapısal analizin incelenebilmesi amacıyla SEM analizi kullanılmıştır.

3.4. Termal Analiz Yöntemleri (TG-DTA)

Termal analiz, bir numunenin özelliklerinin ısıtma sonucu değişimlerinin incelenmesi temeline dayanır. Bir numunenin ısıtılması ile kütlesindeki değişimlerin incelenmesi Termogravimetrik (TG) yöntem olarak adlandırılır. Termogravimetrik (TG) yöntem bir numunedeki kütle değişikliklerini sıcaklığın bir fonksiyonu olarak ifade eder (Shriver ve Atkins 2006; West, 2001).

Diferansiyel Termal Analiz (DTA) yönteminde bir numunenin sıcaklığı referans materyalin sıcaklığı ile karşılaştırılır. Numune ile referans materyal arasındaki sıcaklık farkının zamana veya sıcaklığa göre grafiği çizilerek numune hakkında bilgiler elde edilir (Bhadeshia, 2002).

Termogravimetrik (TG) ve Diferansiyel Termal Analiz (DTA) yöntemleri ile materyalin erime noktası ve saflık gibi bazı özellikleri belirlenebilir.

3.5. TL Yönteminde Kullanılan Araç-Gereç ve Cihazlar

Üretilen malzemenin lüminesans özelliğinin TL yöntemiyle incelenmesinde, Çukurova Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Termolüminesans (TL)/Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL) Tarihlendirme Laboratuvarında bulunan “Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu” cihazı kullanılmıştır (Şekil 3.3).



Şekil 3.3. Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu cihazının genel görünümü

“Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu” cihazı TL ve Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL) ölçümlerinin her ikisini de yapabilecek özelliktedir. Cihaz, LexStudio adlı program ile kontrol edilmektedir. Verilerin analizi için de programın iki temel bileşeni olan “Protokol için LexStudio” ve “Analiz için Analyst” programları kullanılmaktadır. Bu programların kullanımı Bölüm 3.5.5 ve 3.5.6’da detaylı şekilde anlatılmıştır.

Lexsyg Smart TL/OSL okuyucusu 6 farklı filtre özelliğine sahiptir ve bu filtreler Çizelge 3.1’de verilmiştir. Filtreler, yapılacak çalışmanın özelliğine göre seçilip ölçümler yapılmaktadır.

Çizelge 3.1. Lexsyg Smart TL / OSL okuyucu cihazında kullanılabilen filtre setleri
(Richter ve ark.,2015)

Kullanım	Filtre Çeşitleri	Uyarım	Ölçüm:
IRSL, TL Geniş bant mavi	BG 39 + BG25 + KG3	OSL (850 nm), Isıtma elemanı	Dozimetreler için geniş bant algılama
BSL, TL- 365 nm	U340 + BP365/50 EX	OSL (458 nm), Isıtma elemanı	Kuvarsın UV emisiyonu
IRSL, TL- 410 nm	BG39 + HC414/46	OSL (850 nm), Isıtma elemanı	Feldspat ve dozimetrelerin mavi emisiyonu
IRSL, TL- 565 nm	BG39 + HC575/25	OSL (850 nm), Isıtma elemanı	Feldspatın yeşil emisiyonu
BSL, TL- 365 nm (0.25%)	U340 + BP365/50 EX	OSL (458 nm), Isıtma elemanı	Kuvarsın UV emisiyonu
IRSL, TL- 410 nm (0.25%)	BG39 + HC414/46	OSL (850 nm), Isıtma elemanı	Feldspat ve dozimetrelerin mavi emisiyonu

Lexsyg smart TL/OSL cihazı, üretilen malzemenin dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi ve tarihlendirme işlemleri için kullanılmaktadır.

Cihaz içerisinde 40 örnek bölmesine sahip döner tabla ile örneklerin toz veya pelet şeklinde yerleştirilebileceği 10 mm çaplı 0,5 mm kalınlıkta alüminyum ya da paslanmaz çelik kenarlı diskleri alabilecek yuvalar bulunmaktadır (Şekil 3.4). Temel olarak sistem, 40 örneğin beraber okunduğu döner tabla yardımıyla aynı anda her bir örneğin ayrı ayrı oda sıcaklığı ile 710 °C arasında herhangi bir sıcaklığa kadar bağımsız olarak ısıtılmasını ve radyoaktif beta (β) kaynağı

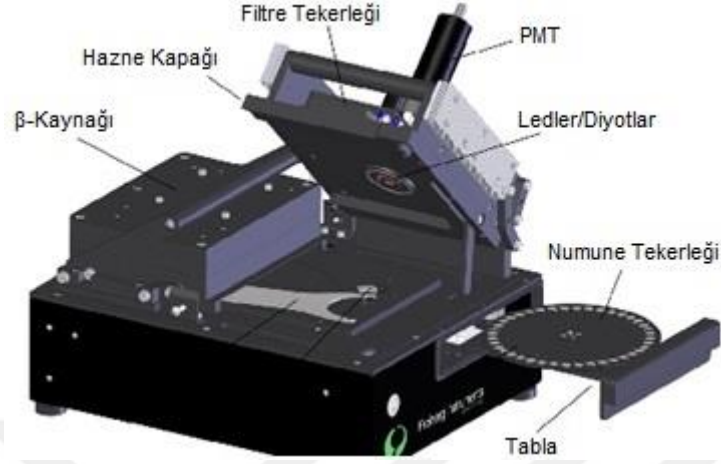
($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) kullanarak örneklerin her birinin bağımsız olarak radyasyona tutulmasını sağlamaktadır.



Şekil 3.4. 40 tane örnek haznesine sahip örnek tablası ve örneklerin yerleştirildiği kenarlı diskler

“Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu” cihazı 4 temel kısımdan oluşmaktadır (Şekil 3.5). Bunlar;

- Radyasyon Kaynağı
- Isıtma sistemi
- PM Tüpü (fotokatlandırıcı)
- IR-mavi ışık LED



Şekil 3.5. Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucu cihazının şematik görünümü (Richter ve ark., 2015)

3.5.1. Radyasyon Kaynağı

Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucu cihazında bulunan beta ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) radyasyon kaynağı bir kurşun blok içerisinde bulunmaktadır. Beta radyasyon kaynağı maksimum yarılanma ömrü 30 yıl olan, 1,85 GBq'lık aktiviteye sahip ve maksimum 2.27 MeV'lik enerjiye sahip β parçacıkları yayan bir iyonlaştırıcı radyasyon çeşididir. Kaynağın uyguladığı doz hızı 0.10 Gy/s'dir.

3.5.2. Isıtma Sistemi

Isıtma sistemi, numunenin konulduğu döner tabla ile örneği ısıtmaya ve ölçüm pozisyonuna getirmeye yarayan ısıtıcı kısımdan oluşur. Isısal uyarılma, fotoçoğaltıcı tüpün altına yerleştirilmiş olan bu ısıtma sistemi bölümü ile gerçekleştirilir. Bu sayede ısısal uyarılmayla ortaya çıkan fotonlar ilk olarak PM tüpe gidecektir. Numuleri ısıtmaya ve ölçüm pozisyonuna getirmeye yarayan bu küçük kütleli ısıtıcı kısım yüksek dirençli demir alaşımdan yapılmıştır. Isıtma, 20 kHz'de çalışan ve açma kapaması olmayan sabit frekanslı sinüs dalgası jeneratörü tarafından sağlanmaktadır. Isıtıcı, örneklerin konulduğu disklerin yüzeyini 0.1 ile 20.0 $^{\circ}\text{Cs}^{-1}$ sıcaklık değerleri arasında değişen lineer ısıtma hızlarında ısıtılmasını

sağlamaktadır. Böylelikle örnekler azot ortamı içerisinde lineer ısıtma hızında oda sıcaklığından 710 °C'ye kadar ısıtılabilir. Azotun cihaz içerisindeki akışı sayesinde ısıtıcı bandı ve örnek, ölçüm tamamlandıktan sonra hızlı bir şekilde soğutulmaktadır.

Cihaz içerisinde azot gazının dolaşımı örneği aşırı ısınmadan (yanmadan) koruduğu gibi ısıtma bandının da soğumasını sağlamaktadır. Ayrıca, PM tüpün kapalı bölümleri arasında da dolaşmakta olan azot gazı, sistem içindeki nemi yok eder ve cihaz çalışırken meydana gelen gürültüyü engellemiş olur.

3.5.3. Fotoçoğaltıcı Tüp (PMT)

Lüminesans yayını bir fotoçoğaltıcı tüp (PMT) tarafından algılanmaktadır. PMT, yayılan TL'yi elektrik sinyaline dönüştürür. PMT'deki ışığa karşı duyarlı eleman katottur. Katot ışık yayan bir malzeme ile kaplıdır. Malzemenin ısıtılmasıyla ortaya çıkan fotonlar PMT'nin katoduna gelir ve burada fotoelektrik olay gerçekleşir. Fotoelektrik olay sonucu oluşan elektronların oluşturduğu akım değeri çok küçük olduğu için bu değeri artırmak gerekir. Bu artırma işlemi dinodlar (elektrotlar) ile yapılır. Dinodlar artan voltaj değerlerine tutulur. Bu sayede daha fazla elektron sökülmesi sağlanır ve ölçüm yapılmış olur.

Farklı dalga boylarındaki lüminesans emisyonlarının farklı fiziksel özelliklere karşılık gelebileceği ve lüminesans uygulamasında dedeksiyon camının ihtiyaca göre ayarlanması gerektiği iyi bilinmektedir. Lexsyg smart, hızlı bir şekilde değiştirilebilir toplam kalınlığı 7.5 mm olan 1 inç çapındaki filtrelerle sahiptir. Bununla birlikte, yalnızca LexStudio yazılımı aracılığıyla çalıştırılan ve ölçüm sekansları sırasında dedeksiyon dalga boyu bantlarında değişikliğe izin veren bir filtre değiştirici bulunmaktadır. Bu pnömatik hareketli filtre tekerleği, her biri ölçümler arasında 0.3 ila 3.0 sn aralığında dedeksiyon camını değiştirme imkanı sağlayan 6 konumdan (toplam maksimum 7.5 mm kalınlığa sahip bir inç filtre) oluşur. Filtre kombinasyonları, istenen dalga boyu aralığında maksimum

iletim sağlarken, stimölasyon ışığının (OSL) ve / veya termal kirliliğin (TL, fon ışıması) en iyi şekilde engellenmesi için optimize edilmiştir (Richter ve ark., 2015).

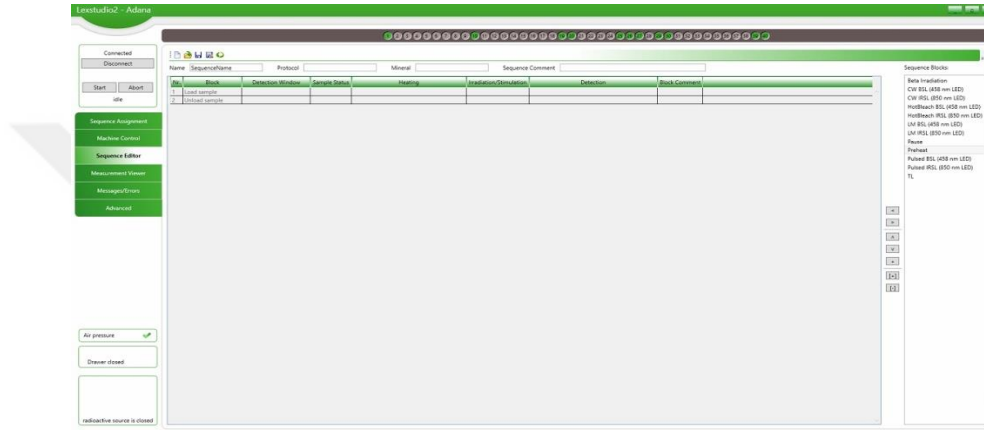
3.5.4. IR Mavi Işık LED

Lexsyg Smart'daki optik uyarma, lazer diyotlar veya LED'ler için toplam 15 konumdan oluşan bir uyarma ünitesine bağlıdır. Her bir LED veya diyot, Lomax ve ark. ifade ettiğı gibi bir fotodiyot tarafından izlenir ve bir geri besleme döngüsü 0.2%'den daha küçük bir sapma ile ışık gücü çıkışı sağlar. Bu, tüm LED'lerden / diyotlardan aynı ışık çıkışını sağlar ve bireysel farklılıkları veya dalgalanmaları, birkaç LED'den oluşan bütün bir diziden ziyade, her LED/diyotun bireysel eskimesini telafi eder. Uyarımın tekrarlanabilirliğini sağlamak için geri besleme döngüsünün etkinliğı, aynı dozda 100 kez ölçülen $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ 'den OSL sinyalini ölçmek için kullanılan yeşil bir lazer kaynağı için de gösterilmiştir. Malzemenin neden olduğu farklılığı da içeren 1%'den küçük farklılıkla mükemmel bir tekrarlanabilirlik gösterir. LED'lerin görüş alanının ($\varnothing = 6\text{-}8\text{ mm}$) homojen bir şekilde aydınlatılması sağlanır. Böylece, uyarma dalga boyları için maksimum güç kararlılığı, numune üzerindeki uyarma ışığının homojenliğı ve optik güç kararlılığı sağlanır. Ayrıca, her LED/diyot, mümkünse, maksimum güçle sınırlı uyarma dalga boyu bantları sağlamak için uygun filtrelerle donatılmıştır. Bununla birlikte sürekli dalga (CW-OSL) doğrusal modüle edilmiş dalga (LM-OSL) modunda OSL ölçümlerine ve kullanıcı tarafından belirlenen güç ve süre için yükseltilmiş sıcaklıklara izin verir (Richter ve ark., 2015).

3.5.5. LexStudio Protokol Programı

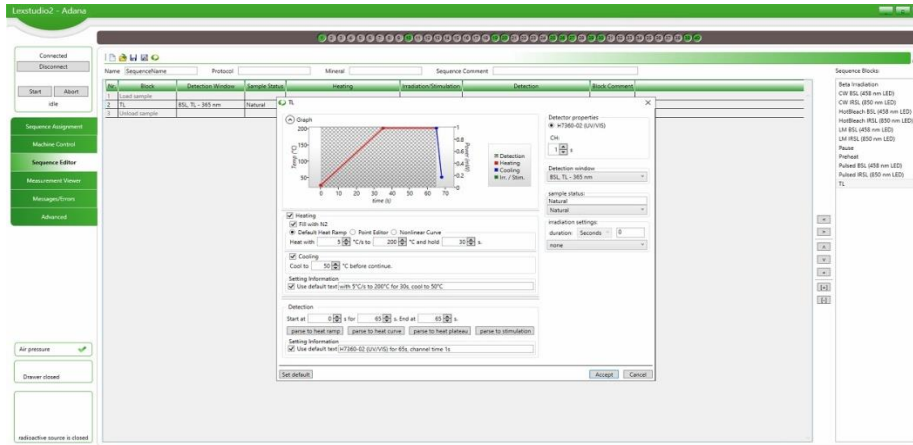
Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu Cihazı, LexStudio adlı program ile kontrol edilmektedir. Bu program windows tabanlı bir bilgisayara yüklenip cihazın bilgisayara bağlanmasıyla veri akışı sağlanmaktadır. Yapılan ölçüm sonucunda elde edilen veriler bu programda depolanmaktadır. LexStudio programının kullanımı şu şekilde olmaktadır.

Buraya kadar yapılan iki aşamada cihaz ölçüm için hazır hale gelmiştir. Bu aşamadan sonra yapılacak ölçümler için komut dosyaları oluşturulmalıdır. Bunun için sol taraftaki sekmelerden "sequence editör" seçilir. Burada uygulanması istenen sekans oluşturulur. Bunun için sağ tarafta yer alan işlemlerden istenilen seçilir (Şekil 3.8).



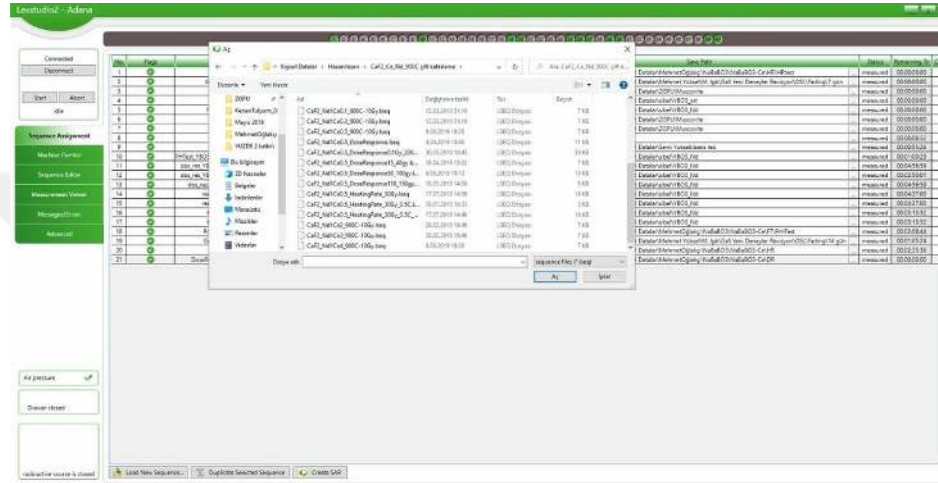
Şekil 3.8. Lexstudio programının sekans düzenleme ekran görüntüsü

Bu seçimin üzerine çift tıklandığında ise detaylı ayarlamalar yapılabilir (Şekil 3.9).



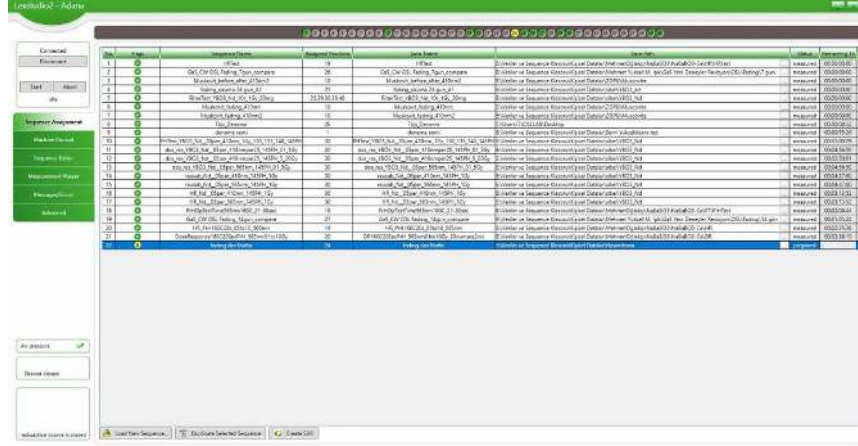
Şekil 3.9. Lexstudio programında sekans ayarlarının ekran görüntüsü

Son olarak gerekli sekans belirlendikten sonra isim verilip kaydedilir. Daha sonra kaydedilen bu sekansı kullanmak için sol taraftaki sekmelerden "sequence assignment" kısmı seçilip sol altta bulunan "load new sequence" tıklanarak istenilen sekans çalıştırılmak üzere ekrana getirilir (Şekil 3.10).



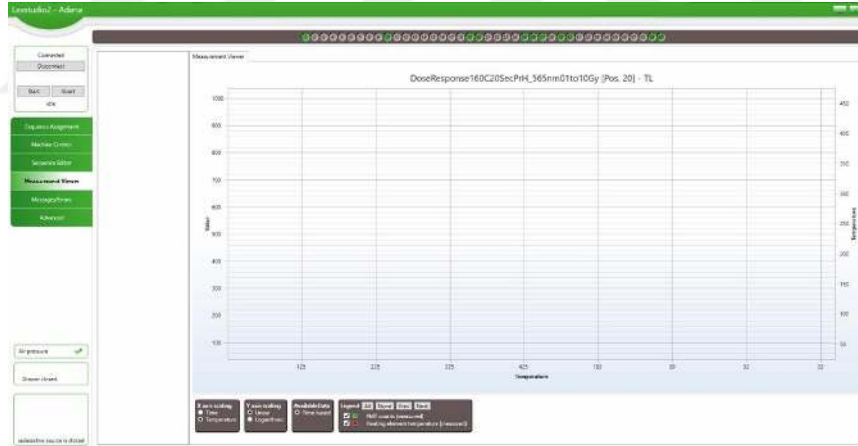
Şekil 3.10. Lexstudio programında sekans kaydetme ekran görüntüsü

Bu aşamadan sonra, yapılacak ölçüm verilerinin nereye kaydedileceği, numunenin karoselde hangi numaraya konulduğuyula ilgili bilgiler girilip ölçüm için tüm işlemler tamamlanmış olur. Daha sonra sekansın üzerine sağ tıklanıp "set prepared" seçilir ve başlamaya hazır hale getirilir. Sol üstte yer alan "start" tuşuna basılmasıyla ölçüm başlatılmış olur (Şekil 3.11).



Şekil 3.11. Lexstudio programının sekans başlatma ekran görüntüsü

Ölçüm yapılırken "measurement viewer" kısmı seçilerek TL şiddetinin sıcaklığa veya zamana bağlı grafiğinin oluşumu görülebilir (Şekil 3.12).



Şekil 3.12. Lexstudio programının ölçüm anında grafik ekran görüntüsü

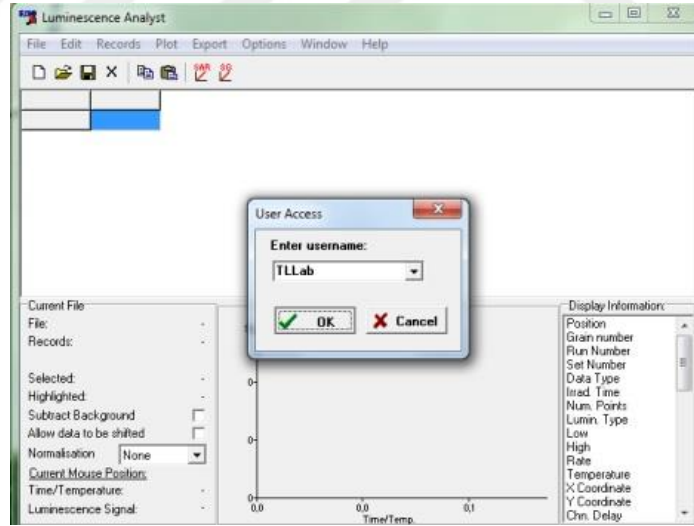
3.5.6. Analiz (Analist) Programı

Analiz (Analist), TL/OSL okuyucu kullanılarak toplanan lüminesans verilerinin görüntülenmesi, düzenlenmesi ve analiz edilmesi için tasarlanmış Windows tabanlı bir programdır. Ancak, diğer araç gereçlerle de uyumlu veri

dosyaları oluşturabilir. Analist, eşdeğer doz tespiti, solma oranlarının hesaplanması, OSL bozunma eğrilerinin bileşen düzenlemesi ve verilerin görüntülenmesi için çeşitli seçenekler de dahil olmak üzere bir dizi kolaylıklar sağlar. Ayrıca, herhangi bir analitik programın her olasılığı karşılaması mümkün olmadığından, verileri elektronik çizelgeler de dahil olmak üzere diğer programlara aktarılabilmesi için çeşitli formatlarda dışa aktarılmasına imkan tanır. Analist tarafından kullanılan temel dosya yapısı BINX dosyasıdır. Bu program, en yeni nesil otomatik TL/OSL okuyucuları çalıştırmak için Riso tarafından sağlanan sekans düzenleyici programıyla birlikte çalışacak şekilde tasarlanmıştır (Duller, 2015).

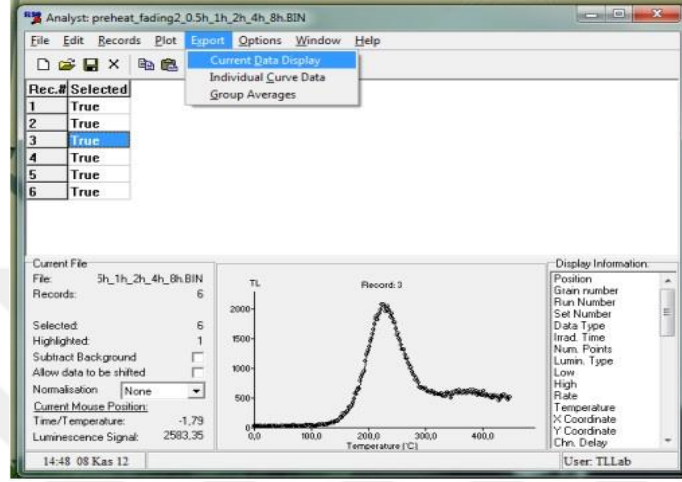
Analist programında verileri kullanabilmek için sırasıyla şu adımlar izlenmelidir.

İlk olarak Analist programı çalıştırıldığında ekrana Şekil 3.13'deki görüntü gelecektir. Burada kullanıcı adını seçip ok tuşuna basılmalıdır.



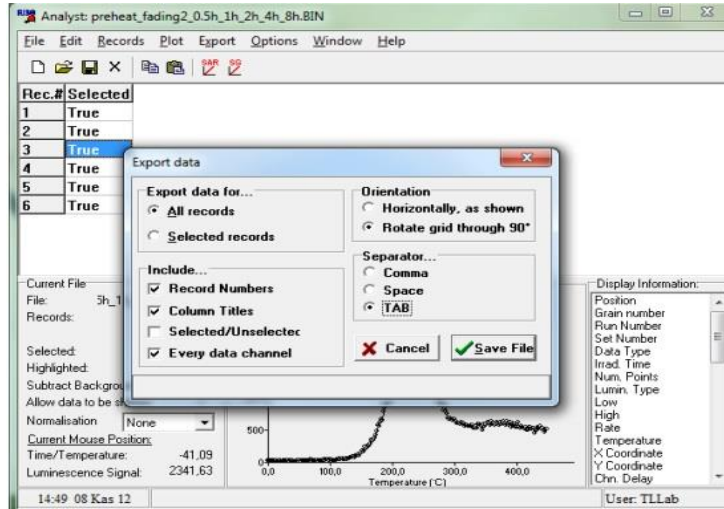
Şekil 3.13. Analist programı açılış görüntüsü

İkinci adım olarak Şekil 3.14'de görüldüğü gibi programda export menüsü seçilip current data display seçeneğine tıklanmalıdır.



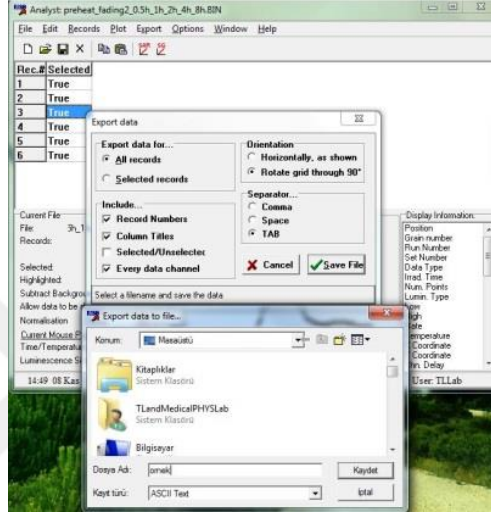
Şekil 3.14. Analist programının menü görüntüsü

Üçüncü adım olarak Şekil 3.15'de gösterilen export data penceresindeki seçimler yapıp save file seçeneğine tıklanmalıdır.



Şekil 3.15. Analist programının export menüsünün görüntüsü

Son olarak veriler Şekil 3.16'da gösterildiği gibi excel formatında kaydedilir ve ister excel programında isterse origin programında grafik çizimleri yapılır.



Şekil 3.16. Analyst programının dosya oluşturma görüntüsü

4. ARAŞTIRMA VE BULGULAR

4.1. Karakterizasyon Analizleri

4.1.1. XRD Analizleri

Bu çalışmada katkılanmamış CaF_2 , $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%, $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5%, ve $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%, Ce 0.5% örneklerinin kristal örgüsünün tanımlanması, birim hücre yapısı, örgü parametreleri, d-aralığı, Miller indisleri, kristal yapısı, simetri elementleri, kristallik derecelerinin belirlenmesi ve mevcut farklı minerallerin oranlarının tayin edilmesi için XRD sonuçları kullanılmıştır.

XRD ölçümleri, Çukurova Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarı'nda PANalytical marka, empyrean XRD modelinde 20-50 kV voltaj aralığında, Cu – $\text{K}\alpha$ X-ışını tüpüne sahip, ve çalışma akım aralığı 5 - 60 mA olan XRD ölçüm cihazı ile yapılmıştır (Şekil 4.1).



Şekil 4.1. PANalytical marka Empyrean modeli x-ışını kırınımı ölçüm cihazı

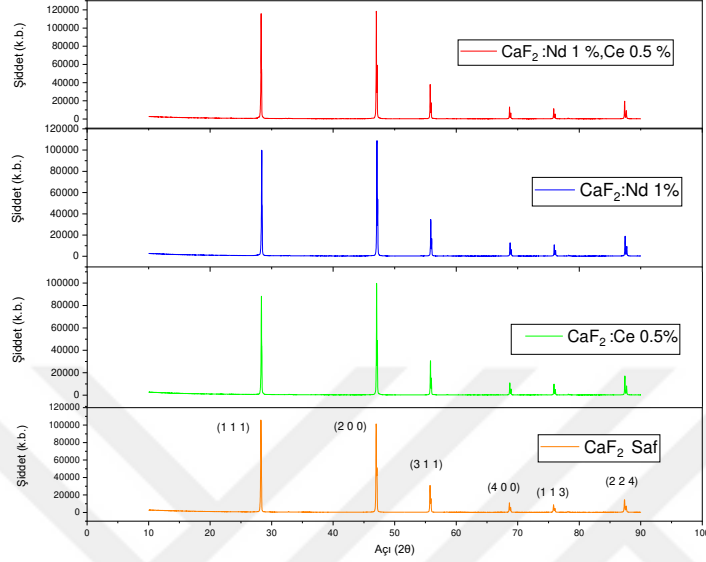
2θ açılı farklı kristal düzlemlerinden gelen kırınım 28 (111), 47 (200), 55 (311), 68 (400) 78 (113) düzlemlerinde oluşmuşlardır. Bu verilerden yola çıkarak,

malzemelerin kübik yapıda olduğu dolayısıyla birbirine eşit 3 kenar uzunluğuna ve 90°'lik açılara sahip olduğu görülmüştür (Çizelge 4.1).

Çizelge 4.1. XRD verilerine göre çalışılan malzemelerin yapısal ve fiziksel özellikleri

Örnek Adı	a	b	c	Alfa	Beta	Gama	Birim Hücre Hacmi
CaF ₂ :Nd1%,Ce0.5%	5.462	5.462	5.462	90 °	90 °	90 °	162.950
CaF ₂ : Nd 1%	5.450	5.450	5.450	90 °	90 °	90 °	161.878
CaF ₂ : Ce 0.5%	5.460	5.460	5.460	90 °	90 °	90 °	162.771
CaF ₂ Saf	5.464	5.464	5.464	90 °	90 °	90 °	163.129

Şekil 4.2’de katkısız CaF₂ ve Ce 0.5% ile Nd 1% katkılarının CaF₂’ye tek tek katkılanması ve birlikte katkılanması ile elde edilen XRD kırınım desenlerinin 98-006-0368 CaF₂, 98-016-4956 Seryum oksit (Ce₁O_{1.88}), 98-064-5662 Neodyum oksit (Nd₂O₃), 98-009-5658 Neodyum oksit florit (F₁Nd₁O₁), 98-018-4526 Neodymium(III) Oxide (Nd₂O₃) nolu PDF kartları ile verilen referans kırınım desenleri ile karşılaştırılması verilmektedir.



Şekil 4.2. Saf CaF_2 , $\text{CaF}_2\text{:Nd } 1\%$, $\text{CaF}_2\text{:Ce } 0.5\%$, ve $\text{CaF}_2\text{:Nd } 1\%, \text{Ce } 0.5\%$ fosforlarının XRD kırınım deseni

Katkısız CaF_2 ve katkılı $\text{CaF}_2\text{:Ce } 0.5\%$, $\text{CaF}_2\text{:Nd } 1\%$, $\text{CaF}_2\text{:Nd } 1\%, \text{Ce } 0.5\%$ fosforlarının XRD kırınım desenlerinin konum ve şiddetleri 98-006-0368 nolu PDF kartında verilen CaF_2 'ün kırınım desenleri ile uyum içerisinde. CaF_2 kübik kristal yapıya sahipken, $\text{Ce}_1\text{O}_{1.88}$ 'ün kübik Nd_2O_3 'ün ve $\text{F}_1\text{Nd}_1\text{O}_1$ hekzagonal yapıya sahiptir.

Bu çalışmada parçacıkların ortalama boyutları her bir katkı için Scherrer's formülü

$$D = \frac{k\lambda}{\beta \cos \theta}$$

kullanılarak hesaplanmıştır. Burada $k=0.9$, $\lambda=1.540562 \text{ \AA}$, β yarı maksimum tam genişlik, ve θ kırınım açısıdır. Oluşan fosforların ortalama kristal boyutu yaklaşık

olarak $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5% için 1123 Å, $\text{CaF}_2\text{:1% Nd}$ için 1126 Å ve $\text{CaF}_2\text{:Nd 1%,Ce}$ 0.5% için 1258 Å olarak hesaplanmıştır. Genel olarak belirtmek gerekirse nano yapılar için, en önemli özellik mikro yapıların benzerlerine kıyasla büyük bir yüzey/hacim oranına sahip olmasıdır. Ayrıca, yüzeylerde bulunan yakalama durumları derin tuzak bölgelerinden farklı kinetik parametrelere sahiptir ve bu nanoparçacıklar TL ışıma eğrilerinde önemli bir rol oynar. Böylece boyutlara bağlı olarak, nanokristal malzemelerin TL ışıma eğrisi, mikro kristali yapıdan farklı olabilecektir.

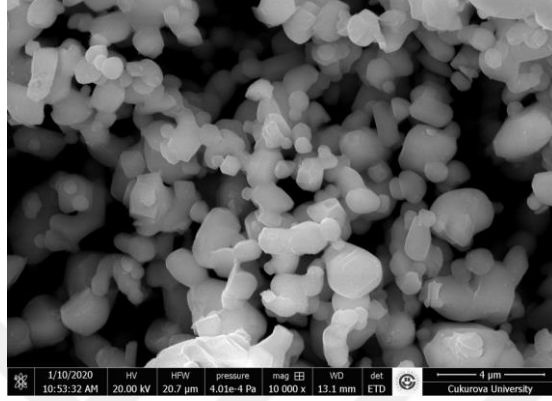
4.1.2. SEM Analizleri

SEM görüntüleri, Çukurova Üniversitesi Merkezi Araştırma Laboratuvarı'nda FEI marka, Quanta 650 Field Emission SEM modelinde, hızlandırma voltajı 100V - 30kV, Probe akımı 100 nA, büyütme oranı 6 - 1.000.000 olan cihazla elde edilmiştir (Şekil 4.3).

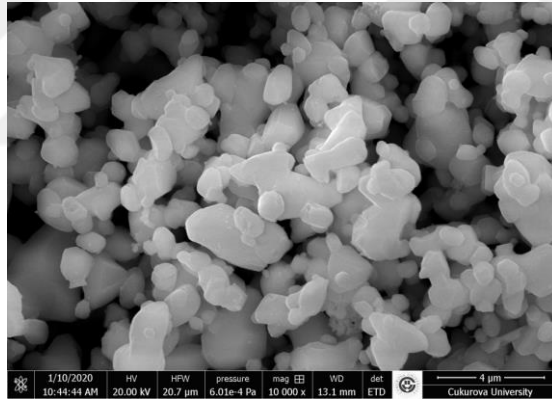


Şekil 4.3. FEI marka Quanta 650 Field Emission modeli SEM ölçüm cihazı

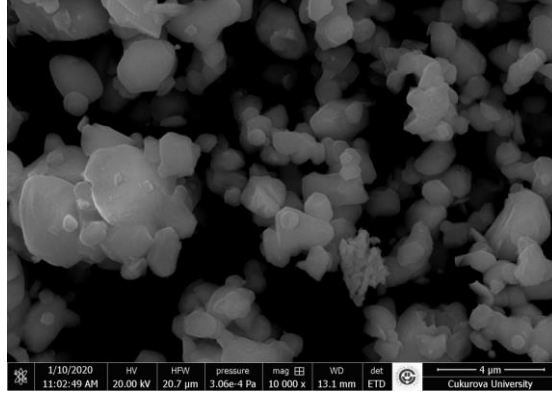
CaF_2 , $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5%, $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1% ve $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1%,Ce 0.5% fosforların SEM fotoğrafları Şekil 4.4, Şekil 4.5, Şekil.4.6 ve Şekil 4.7'de gösterilmiştir.



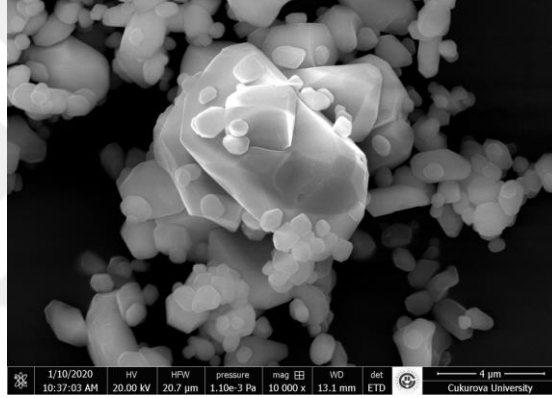
Şekil 4.4. $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 0.5% katkılamasının 10000 kat büyütülmüş görünümü



Şekil 4.5. $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1% katkılamasının 10000 kat büyütülmüş görünümü



Şekil 4.6. CaF₂:Nd 1%, Ce 0.5% katkılamaasının 10000 kat büyütülmüş görünümü



Şekil 4.7. CaF₂ 'ün 10000 kat büyütülmüş görünümü

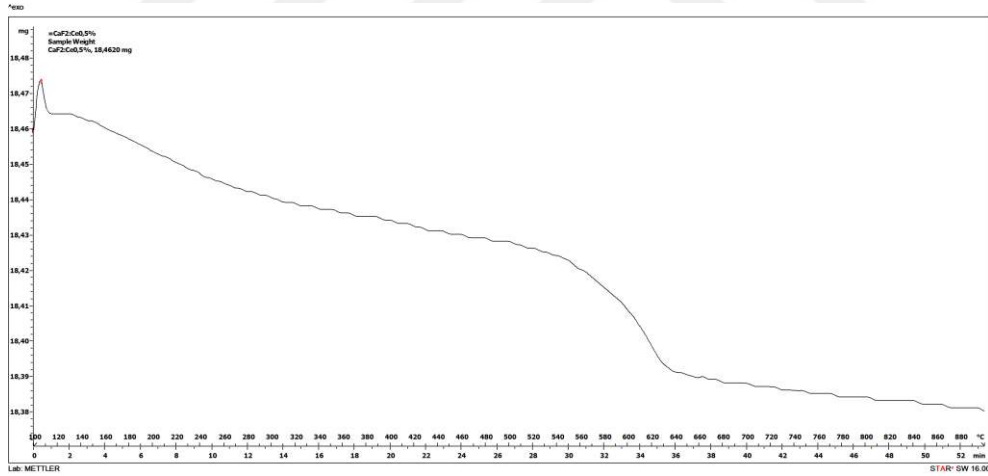
Genel olarak SEM görüntülerine bakıldığında birkaç mikrometrelik büyüklükte ve daha küçük parçacıklardan oluşan topaklar (agglomerations) gözlenmiştir. Elde edilen veriler her bir şekil için kaydedilen XRD verileri ile uyum içindedir. Bu morfolojik analizler TL malzemeleri için oldukça önemlidir. Tanecik boyutlarına baktığımızda her bir farklı katkı için bu boyutların farklılık gösterdiği SEM fotoğraflarından açıkça görülmektedir. Nd³⁺ ve Ce³⁺ iyonları CaF₂ örgü kristaline katkılandırıldığında yük dengesi (charge compensation) iyonları olarak kullanılan içsel F iyonları tarafından çizgi kusurları ortaya çıkacaktır. Örneğin Ce³⁺ ve Ca²⁺ arasındaki iyonik yarıçapların farklılığı kristalliğin

(crystallinity) azalmasına yol açacaktır. Bu durum benzer olarak Nd^{3+} için de geçerlidir. Şekil 4.6'da görüldüğü gibi CaF_2 örneğine Ce^{3+} ve Nd^{3+} bir arada katkılандırıldığında Şekil 4.4 ve Şekil 4.5'deki orijinal morfolojinin korunduğu söylenebilir.

4.1.3. TG-DTA Analizleri

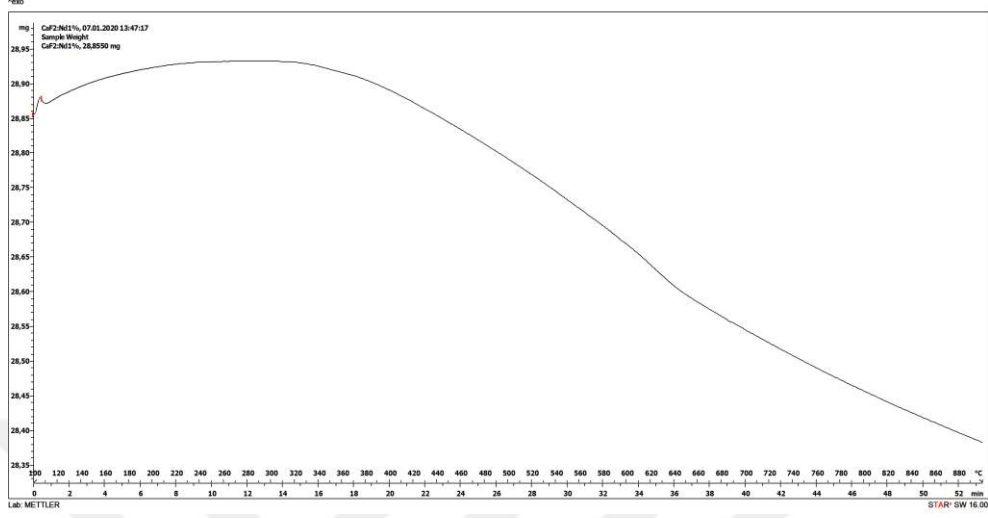
Bu çalışmada Termal Analiz yöntemleri kullanılarak katkılama ile elde edilen örneklerin kimyasal özelliği incelenmiştir. Nd ve Ce katkılı CaF_2 örneğine ilişkin Termogravimetri (TG) eğrileri 100- 900 °C sıcaklık aralığında kaydedilmiştir.

Ce katkılı örneklerde görüldüğü gibi, 900 °C'ye kadar uzanan bir sıcaklık aralığında sürekli bir TG eğrisinin elde edilmiş olması bu örnekte herhangi bir faz değişiminin olmadığını göstermektedir (Şekil 4.8).

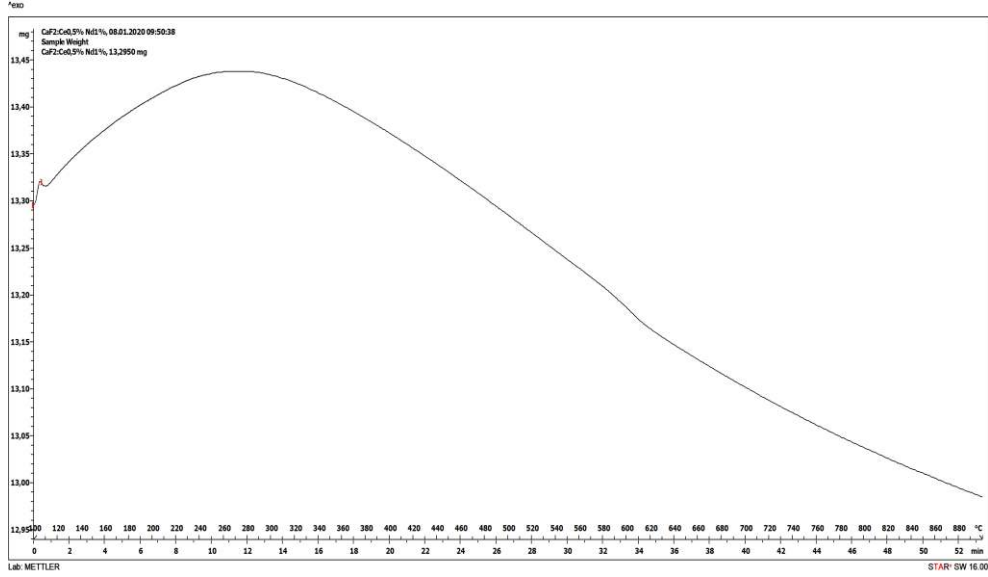


Şekil 4.8. CaF_2 :Ce 0.5% katkılamasının Termogravimetri eğrisi

Nd katkılı örnekte ise bu sürekli değişim yaklaşık olarak 300 °C'den sonra başlamış ve 900 °C'ye kadar devam etmiştir (Şekil 4.9).

Şekil 4.9. CaF₂:Nd 1% katkılamaının Termogravimetri eğrisi

Benzer bir durum Nd-Ce katkılı örnekte de tespit edilmiştir. Bu son iki örnek için de, Ce katkılı CaF₂'de gözlemlendiği gibi herhangi bir faz değişiminin olmadığı gözlemlenmiştir (Şekil 4.10).

Şekil 4.10. CaF₂:Nd1%,Ce0.5% katkılamaının Termogravimetri eğrisi

Hazırlanan tüm örneklerde TG eğrileri hızlı bir düşüş sergilemektedir ki bu da tutuşma reaksiyonu ve suyun uzaklaştırılmasından dolayı kütlede oluşan kayıptan kaynaklandığı düşünülmektedir. Sadece Ce katkılı örnekte diğer örneklerden farklı olarak yaklaşık 650 °C'den sonra belirgin bir kütle kaybı söz konusu değildir. Bu sonuç bize 700 °C'den sonra tavlama sıcaklığı kristallikte bir artış gözlenme olasılığını göstermektedir.

4.2. TL Analizleri

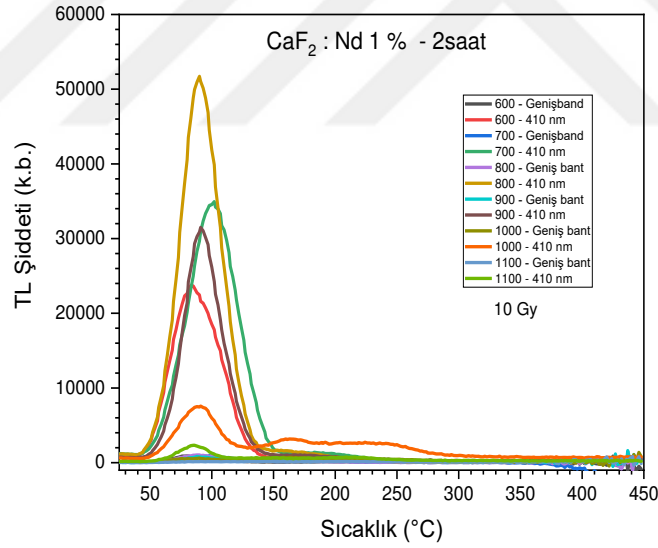
Tez çalışmasının ilk aşamasında, CaF_2 ev sahibi materyale katihal sentez yöntemi kullanılarak Nd ve Ce ayrı ayrı katkılanmıştır. TL dozimetresi için ideal fosforu elde etmek için optimum Nd ve Ce konsantrasyonları ile sinterleme sıcaklığının belirlenmesi gerçekleştirilmiştir. Daha sonra, bulunan optimum değerler kullanılarak Nd ve Ce çift katkılanması yapılmıştır. Çift katkılanmada elde edilen ideal fosforun TL ölçümlerini gerçekleştirmek için önemli bir aşama olan filtre testleri yapılmıştır. TL ölçümlerinin hepsinde belirlenen en uygun filtre kullanılmıştır. Optimum sinterleme sıcaklıkları, kütle konsantrasyonları ve filtre ile ilgili deneysel çalışmalar aşağıda detaylı bir şekilde verilmiştir. Tez çalışmasının ikinci aşamasında, üretilen ideal fosforun dozimetrik özellikleri ve kinetik parametreleri TL yöntemi kullanılarak belirlenmiştir.

4.2.1. $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ için Optimum Sinterleme Sıcaklığının Belirlenmesi

Sentetik olarak dozimetre üretiminde sentezleme işleminde önemli parametrelerden bir tanesi, sinterleme sıcaklığı ve süresidir. Çünkü optimum sinterleme sıcaklığı ve süresi, kristal yapının oluşmasında ve yüksek hassasiyette TL ışıması alınmasında etkili olmaktadır. Bundan dolayı, tez çalışması kapsamında sinterleme sıcaklığını belirlemek için, 1000 mg CaF_2 ile yaklaşık 10 mg yani kütlece Nd 1% agat havan içerisinde homojen bir dağılım göstermesi amacıyla yaklaşık 30 dakika karıştırıldı. Elde edilen bu karışım alüminyum kroze içerisine alınarak kül fırınına konulmuştur. $\text{CaF}_2\text{:Nd}$ 1% karışımı, 600 °C'den 1100 °C'ye

kadar 100'er derece aralıklarla 2 saat boyunca kül fırında sinterlenmiştir. Bölüm 3.3'de verilen Çizelge 3.1'de belirtilen Lexsyg Smart TL/OSL cihazında bulunan farklı filtrelerden 410 nm ve Geniş bant filtreler kullanılarak ölçümler alınmıştır. Üretilen fosforların, $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağından 10 Gy doza maruz bırakıldıktan sonra her iki filtre ile TL ölçümü alınmıştır. Elden edilen TL ışıma eğrileri Şekil 4.11'de gösterilmiştir.

Şekil 4.11'de görüldüğü gibi bütün sinterleme sıcaklıklarında yaklaşık 100 °C civarında bir maksima meydana gelmiştir. Ancak, 1000 °C'de yapılan sinterlemede 100, 175 ve 250 °C de üç ana maksima görülmüştür. Bundan dolayı, CaF_2 'ye Nd katkılanmak için optimum sinterleme sıcaklığı 1000 °C'de 2 saat olarak belirlenmiştir.

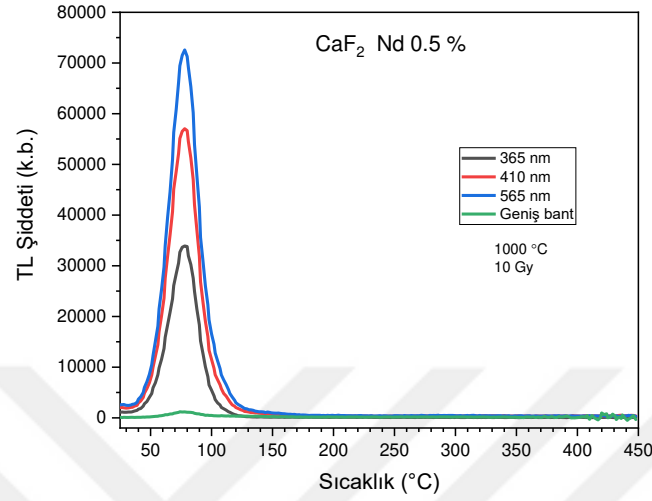


Şekil 4.11. CaF_2 ile kütlece 1%'lik Nd katkılanmasının 410 nm ve Geniş bant mavi filtrelerde 10 Gy'lik doza karşı sinterleme sıcaklığının TL ışıma şiddetine etkisi (Isıtma hızı (β)= 2 °C s⁻¹)

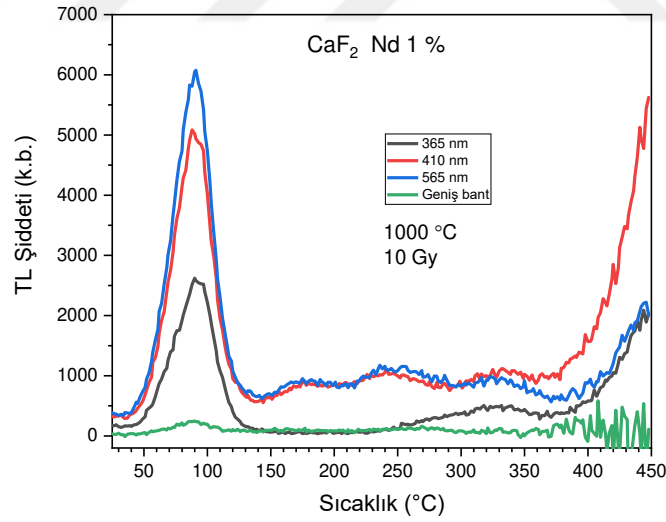
4.2.2. Katkılanacak Nd'un Kütle Konsantrasyonunun Belirlenmesi

CaF_2 ile Nd katkılanması için uygun olan sinterleme sıcaklığını belirlemek için CaF_2 'e 1% oranında Nd katkılanması yapıp 2 saat farklı sıcaklıklarda tavlama işlemi yapıldı. Bölüm 4.2.1'de belirtildiği gibi uygun sinterleme sıcaklığı 1000°C olarak bulunmuştur. Bu kısımda ise katkılanacak Nd iyonunun yüzde olarak oranı belirlenmeye çalışılmıştır. Katkılanacak iyonunun yüzde olarak konsantrasyon oranını belirlemek dozimetrik materyaller için çok önemlidir. Çünkü, katkılama kullanılacak iyonun konsantrasyonu TL şiddetini artırıp belli bir eşik değerine geldikten sonra konsantrasyona bağlı sönmüleme (concentration quenching) ortaya çıkacaktır. Bu eşik değerde TL sinyali düşmeye başlayacaktır. Tez çalışması kapsamında optimum Nd konsantrasyonunu bulmak için 0.5, 1, 2, 3, 4 ve 8% oranlarında Nd katkılanmıştır. Her katkılama, 1000°C 'de 2 saat kül fırında bekletilerek sinterleme gerçekleştirilmiştir. Ardından TL çalışmaları için numune ilk önce toz halden pelet haline getirildi. Bu işlem için 30 mg'lık toz numunelerin tümü, 20 dakika boyunca $2000\text{ kg kuvvet} / \text{cm}^2$ 'lik bir basınç altında tutularak pelet formunun hazırlanması için preslendi. Her katkılama sonrası elde edilen pelete 10 Gy beta test dozu verilerek, 4 ayrı filtre kullanılarak TL ölçümleri yapılmıştır. Nd konsantrasyonuna ve filtrelere bağlı olarak elde edilen TL ışıma eğrileri katkılama oranlarına göre sırasıyla Şekil 4.12, 4.13, 4.14, 4.15, 4.16 ve 4.17'de gösterilmiştir.

0.5% oranında Nd katkılanması sonucunda elde edilen TL ışıma eğrisinde bütün filtrelerde sadece $\sim 75^\circ\text{C}$ 'de tepe görülmüştür (Şekil 4.12). Düşük sıcaklıkta görülen bu tepe hızlı bir şekilde solmaya (fading) uğrayacağından dozimetrik amaçlı kullanılamaz. Bundan dolayı, aynı şartlar altında (1000°C 'de 2 saat sinterleme) ev sahibi materyale Nd 1% katkılama işlemi yapılmıştır ve elde edilen fosfor yine 10 Gy beta dozuna maruz bırakılarak 4 filtre ile TL okuması yapılmıştır. Okuma sonucunda elde edilen TL ışıma eğrisi Şekil 4.13 de verilmiştir.

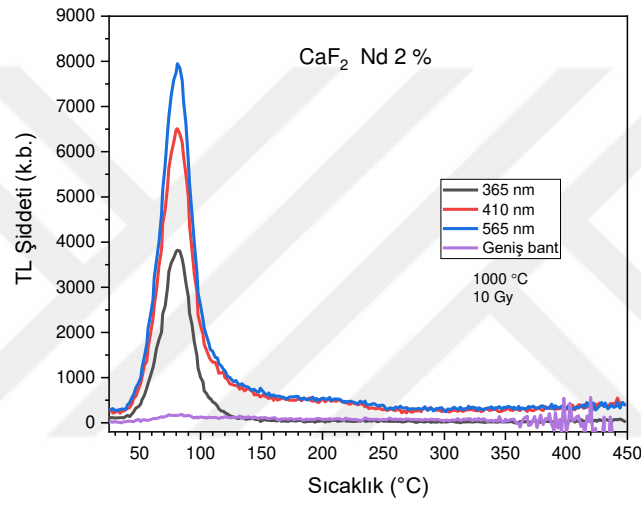


Şekil 4.12. Kütlece 0.5%'lik Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)



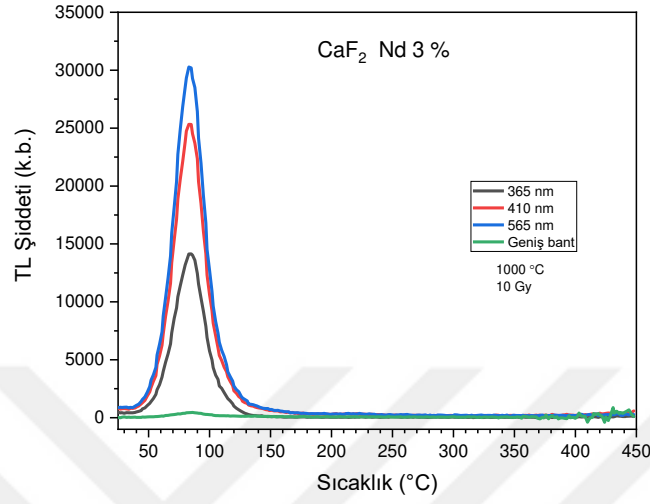
Şekil 4.13. Kütlece 1%'lik Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

Şekil 4.13'de görüldüğü gibi 1%'lik Nd katkılamasından sonra 75 °C meydana gelen düşük sıcaklık tepesine ilave 175, 225 ve 325 °C'lerde 3 yeni maksima oluşmuştur. CaF₂'e 2% oranında Nd katkılanıp elde edilen yeni fosfora 10 Gy doz verilip 4 farklı filtrede TL ışıma eğrisine bakıldığında ise 1%'lik Nd'de meydana gelen 175, 225 ve 325 °C'lerde maksimaların şiddetinde önemli bir düşüşün meydana geldiği gözlenmiştir (Şekil 4.14).

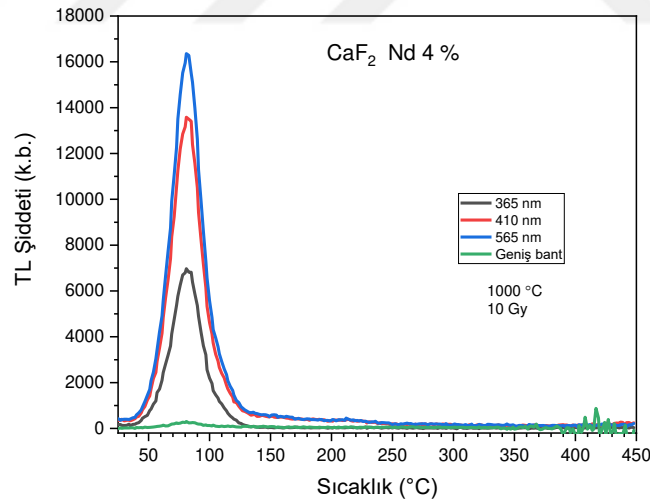


Şekil 4.14. Kütüce 2%'lik Nd katkılanan CaF₂'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)

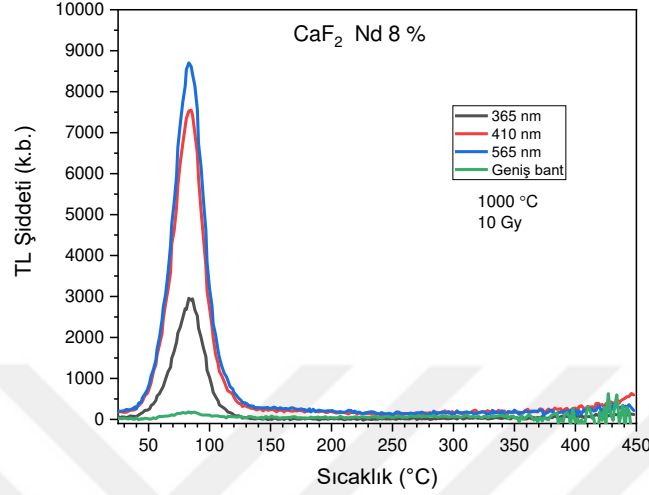
CaF₂'e 3, 4 ve 8% oranında Nd katkılanıp 10 Gy beta dozuna maruz bırakıldıktan sonra 4 farklı filtrelerle yapılan TL ölçüm sonuçları sırasıyla Şekil 4.15, Şekil 4.16 ve Şekil 4.17 gösterilmiştir. Her üç katkılama da sadece 80 °C'de bir maksima görülmektedir. 1% ve 2% katkılama da görülen 3 maksima bu katkılamalarda tamamen yok olmuştur. Burada şiddetlerdeki düşüş, konsantrasyon yüzde oranına bağlı olarak konsantrasyon sönümlemesi (concentration quenching) adı verilen olayın gerçekleşmesinden kaynaklanmaktadır.



Şekil 4.15. Kütlece 3% 'lük Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)



Şekil 4.16. Kütlece 4%'lük Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)

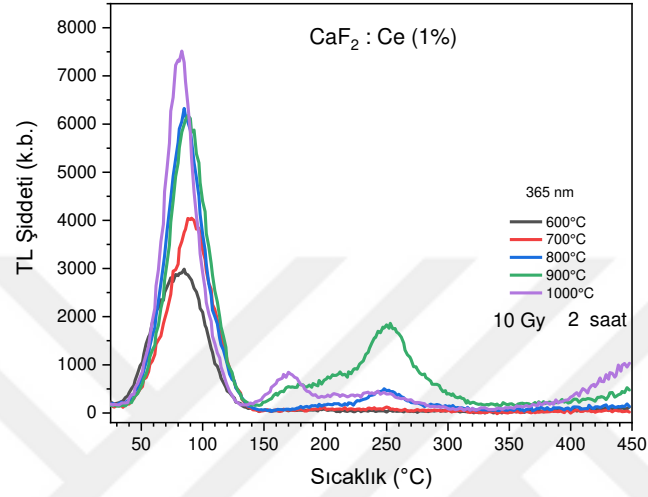


Şekil 4.17. Kütlece 8%'lik Nd katkılanan CaF_2 'in farklı filtrelerde 10 Gy'lik dozdan sonra elde edilen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

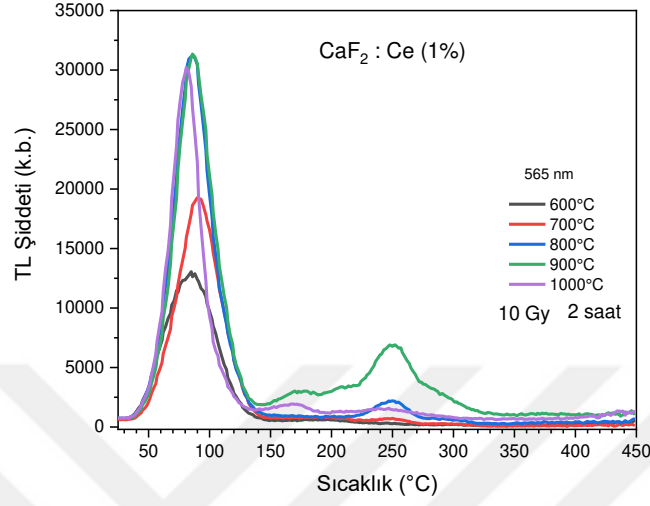
4.2.3. $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ İçin Optimum Sinterleme Sıcaklığının ve Filtrenin Belirlenmesi

1000 mg CaF_2 ile yaklaşık 10 mg yani kütlece Ce 1% agat havan içerisinde homojen bir şekilde karışımını sağlamak amacıyla yaklaşık 30 dakika birlikte karıştırıldı. Elde edilen bu karışım, alüminyum kroze içine alınarak kül fırınına konulmuştur. $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ 1% karışımı, 600 °C'den 1000 °C'ye kadar 100'er derece aralıklarla farklı sıcaklıklarda 2 saat boyunca kül fırında bekletilerek sinterlenmiştir. Öncelikle numune toz halden pelet haline getirildi. Bu işlem için 30 mg'lık toz numunelerin tümü, 20 dakika boyunca 2000 kg kuvvet/cm²'lik bir basınç altında tutularak pelet formunun hazırlanması için preslendi. Üretilen fosforlar, $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağından 10 Gy test dozuna maruz bırakıldıktan sonra 4 farklı filtre ile TL ölçümü alınmıştır. Bu Bölüm 3.3'de verilen Çizelge 3.1'de belirtilen Lexsyg Smart TL/OSL cihazında bulunan BSL-TL 365 nm, IRSI-TL 410 nm, IRSI-TL 565 nm, ve IRSI-TL Geniş bant mavi filtreler kullanılarak ölçümler

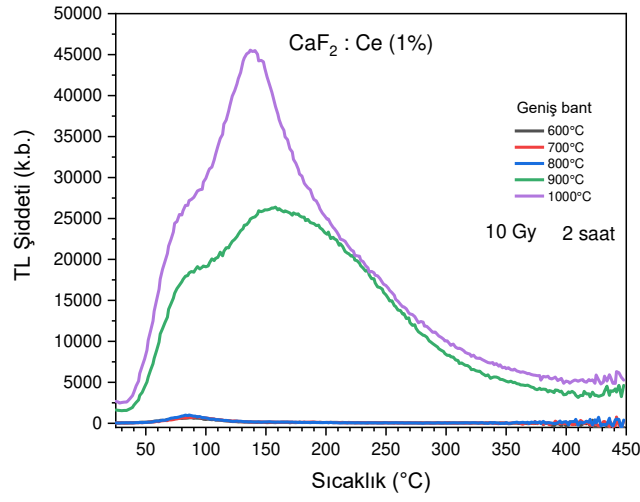
alınmıştır Elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 4.18, 4.19, 4.20 ve 4.21'de gösterilmiştir.



Şekil 4.18. CaF_2 ile kütlece 1%'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılamasının 365 nm filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{C s}^{-1}$)



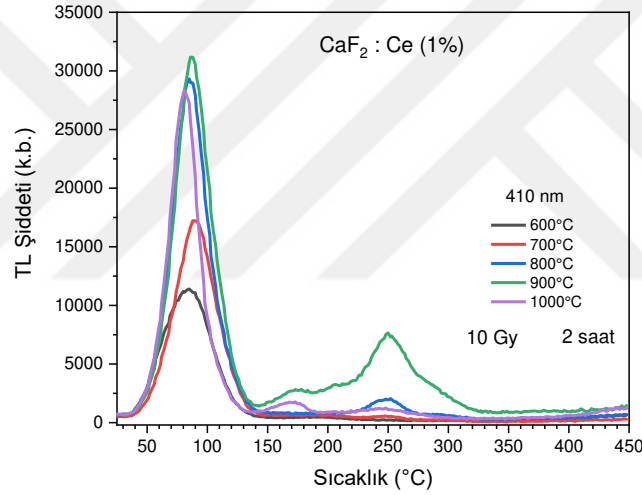
Şekil 4.19. CaF_2 ile kütlece 1%'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılamasının 565 nm filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)



Şekil 4.20. CaF_2 ile kütlece 1%'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılamasının Geniş bant mavi filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

Tüm sinterleme sıcaklıklarında yaklaşık 90 °C ve 250 °C civarında bir maksima meydana gelmiştir. Ancak, 900 °C'de yapılan sinterlemede dozimetrik amaçlı kullanılabilecek 250 °C'de yüksek bir TL şiddeti görülmüştür. Bununla birlikte, dört farklı filtrede yapılan ölçümlerde elde edilen TL ışıma şiddetlerine bakıldığında uygun filtrenin 410 nm'de alınan TL sonucu olduğu görülmüştür (Şekil 4.21).

Bu yüzden CaF_2 'e Ce katkılanmak için optimum sinterleme sıcaklığı 900 °C'de 2 saat olarak görülmüş ve TL ölçümleri için de uygun filtrenin 410 nm filtre olduğu belirlenmiştir.

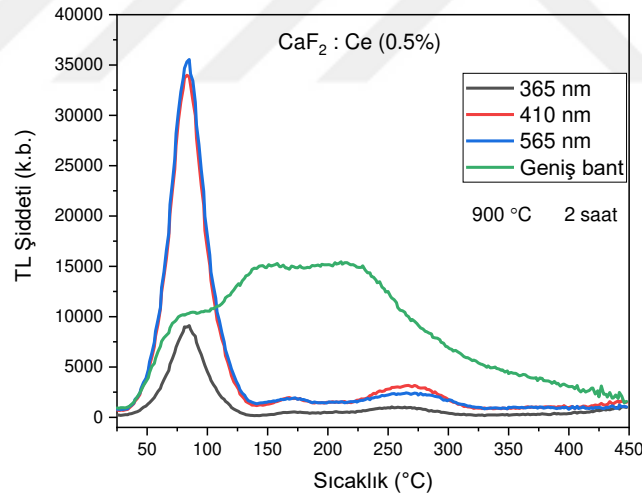


Şekil 4.21. CaF_2 ile kütlece 1% 'lik Ce'un yapılan tüm sıcaklıklardaki katkılanmasının 410 nm filtrede 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{C s}^{-1}$)

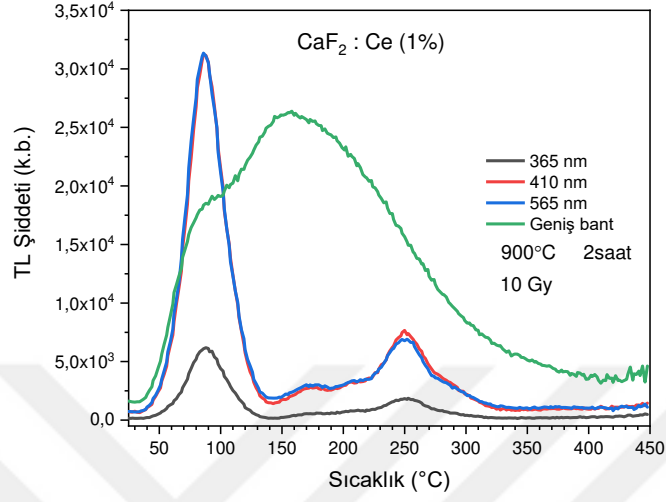
4.2.4. Katkılanacak Ce'un Kütle Konsantrasyonunun Belirlenmesi

CaF_2 ile Ce katkılanmasında uygun olan sinterleme sıcaklığını belirlemek için CaF_2 'e 1% oranında Ce katkılanması yapıp, 2 saat farklı sıcaklıklarda sinterleme işlemi yapılmıştır. Bölüm 4.2.3'de belirtildiği gibi uygun sinterleme sıcaklığı 900°C olarak bulunmuştu. Bu kısımda katkılanacak Ce iyonunun yüzde

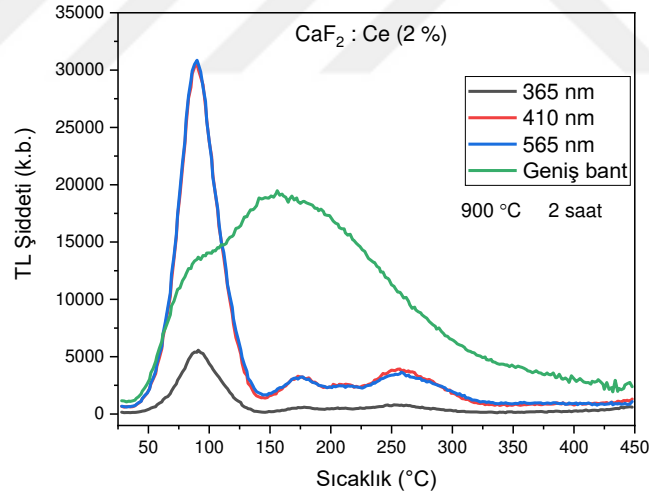
oranı belirlenmeye çalışılmıştır. Tez çalışması kapsamında optimum Ce konsantrasyonunu bulmak için CaF_2 'ye 0.5, 1, 2, 4, ve 8% oranlarında Ce katkılanmıştır. Her katkılama, 900 °C'de 2 saat kül fırında bekletilerek sinterleme işlemi gerçekleştirilmiştir. Her katkılama sonrası elde edilen fosfor toz halden pelet haline getirildi. Bu işlem için 30 mg'lık toz numunelerin tümü, 20 dakika boyunca 2000 kg kuvvet / cm^2 'lik bir basınç altında tutularak pelet formunun hazırlanması için preslenmiştir. Daha sonra 10 Gy beta test dozu verilerek, 4 ayrı filtre kullanılarak TL ölçümleri yapılmıştır. Ce konsantrasyonuna ve filtrelere bağlı olarak elde edilen TL ışıma eğrileri katkılama oranlarına göre sırasıyla Şekil 4.22, 4.23, 4.24, 4.25 ve 4.26'da gösterilmiştir. Tüm oranlarda Ce katkılanması sonucunda elde edilen TL ışıma eğrilerinde yaklaşık 90 °C, 170 °C ve 250 °C civarında belirgin maksimalar görülmüştür



Şekil 4.22. CaF_2 ile kütlece 0.5%'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{C s}^{-1}$)

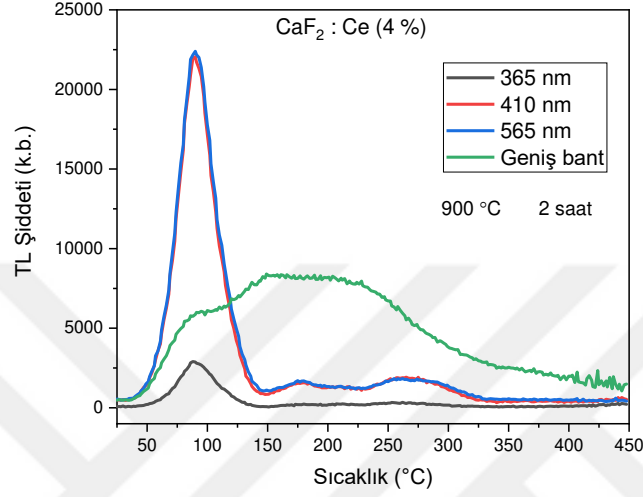


Şekil 4.23. CaF₂ ile kütlece 1%'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta=2\text{ }^{\circ}\text{C s}^{-1}$)

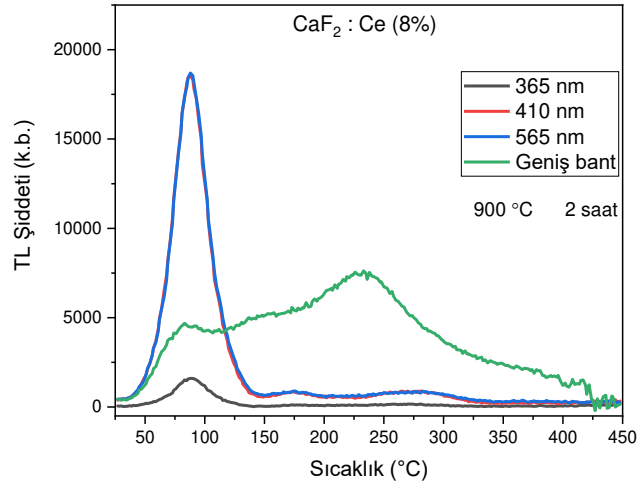


Şekil 4.24. CaF₂ ile kütlece 2%'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta=2\text{ }^{\circ}\text{C s}^{-1}$)

CaF_2 ile Ce'un 4% ve 8% oranlarındaki katkılanması Şekil 4.25 ve 4.26'da gösterilmiştir.

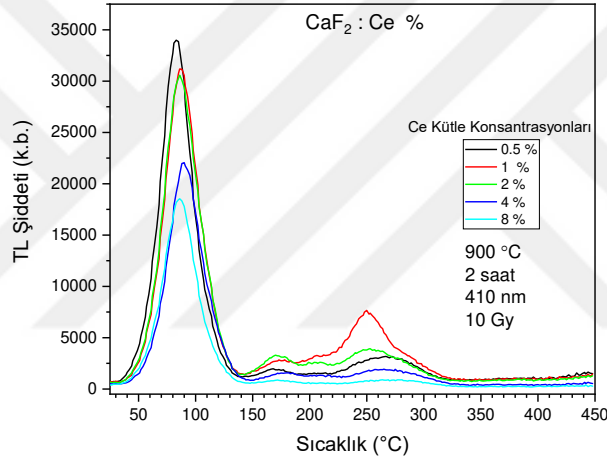


Şekil 4.25. CaF_2 ile kütlece 4%'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{C s}^{-1}$)



Şekil 4.26. CaF_2 ile kütlece 8% 'lik Ce'un 900 °C'de katkılanmasının 10 Gy'lik doza karşı TL ışıma eğrisi ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{C s}^{-1}$)

Bölüm 4.2.3'de uygun filtrenin 410 nm olduğu belirtilmişti. Bu nedenle yapılan tüm katkılama oranları 410 nm filtre ile ölçülmüş ve bulunan TL şiddetleri incelenmiştir. Bu inceleme sonucunda dozimetrik çalışmalar için uygun olan katkılama oranının Ce 1% olduğu belirlenmiştir. Çünkü, bundan sonra yapılan 2, 4 ve 8% katkılama oranlarında TL şiddetinde bir düşüş gözlenmiştir. Bunun sebebi, Ce iyonunun 1% katkılama oranı ile eşik değerine ulaşıldığını ve bu değerden sonra konsantrasyona bağlı sönümlene olayının gerçekleştiği söylenebilir (Şekil 4.27).



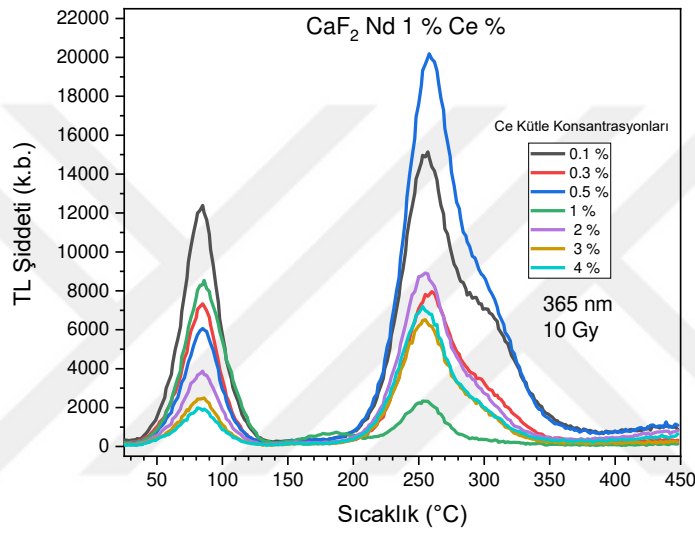
Şekil 4.27. CaF₂ : Ce katkılama oranının 410 nm filtrede farklı oranlardaki TL ısıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

4.2.5. CaF₂'e Nd ve Ce Çift Katkılanması

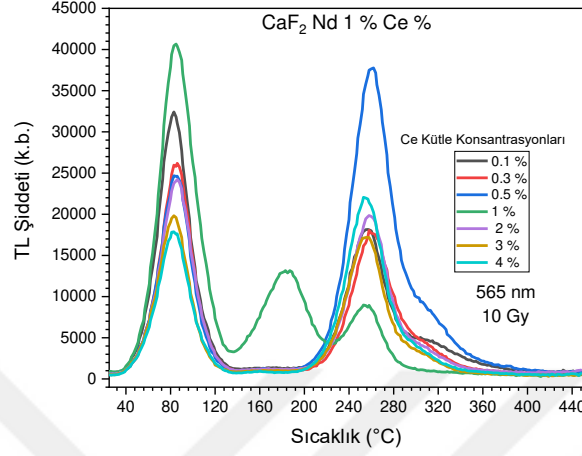
CaF₂'ye Nd ve Ce ayrı ayrı katkılanağında 250 °C 'de dozimetrik amaçlı bir maksima görülmüştür. Ancak, TL şiddetinin düşük olmasından dolayı, tez çalışmasının bu aşamasında CaF₂'ye Nd ve Ce çift katkılanması planlanmıştır. Bu katkılamayı gerçekleştirmek için, CaF₂ ile kütlece 1% yoğunluklu Nd sabit tutulup kütlece yoğunlukları 0.1, 0.3, 0.5, 1, 2, 3 ve 4% olan Ce agat havanda karıştırılıp alüminyum kroze içinde kül fırınında 900 °C 'de 2 saat sinterlenmiştir. Sinterleme

sonrası pelet hale getirilen 30 mg numuneler beta ışın kaynağından 10 Gy doza maruz bırakılarak BSL-TL 365 nm, IRSL-TL 410 nm, IRSL-TL 565 nm, ve IRSL-TL Geniş bant mavi filtreler kullanılarak ölçümler alınmıştır.

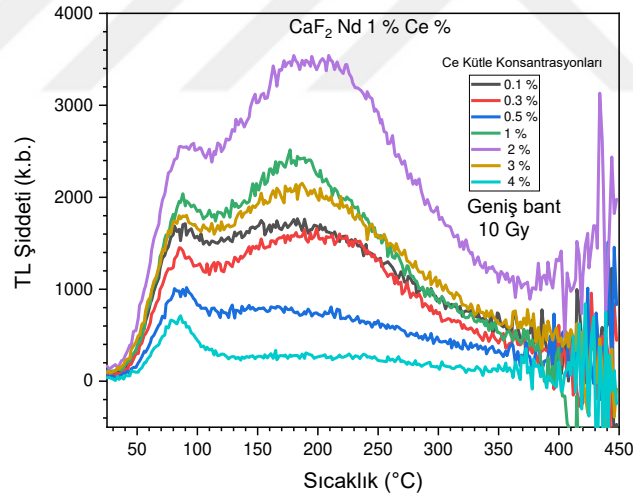
Elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 4.28, 4.29, 4.30 ve 4.31'de gösterilmiştir.



Şekil 4.28. CaF_2 'e sabit 1% Nd ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 365 nm filtrede gözlemlenen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

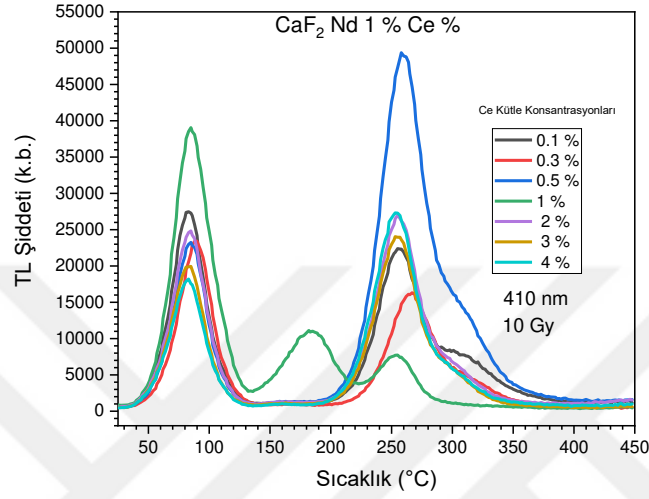


Şekil 4.29. CaF₂'e sabit 1% Nd ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 565 nm filtrede gözlemlenen TL ışıma eğrisi ($\beta=2\text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)



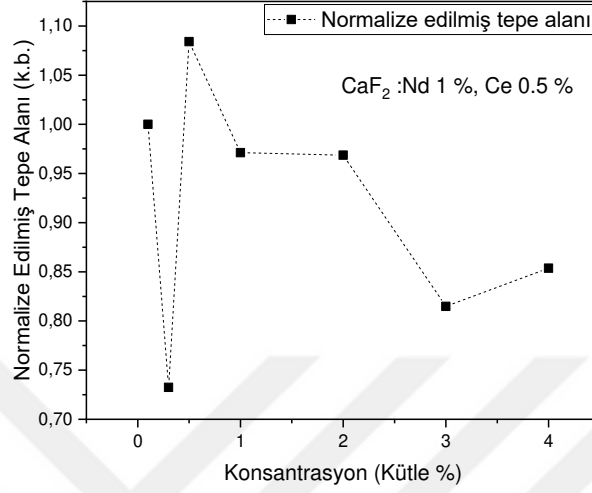
Şekil 4.30. CaF₂'e sabit 1% Nd ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan Geniş bant mavi filtrede gözlemlenen TL ışıma eğrisi ($\beta=2\text{ }^{\circ}\text{Cs}^{-1}$)

$\text{CaF}_2\text{:Nd } 1\%, \text{Ce } 0.5\%$ katkılmasının 410 nm filtre ile yapılan ölçümünde diğer filtrelerle göre daha yüksek TL şiddetine sahip olduğu görülmüştür (Şekil 4.31).



Şekil 4. 31. CaF_2 'e sabit Nd 1% ile farklı kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 410 nm filterde gözlemlenen TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

Nd 1%:Ce 0.5% katkılama oranının belirtilen tüm filtrelerde yüksek bir TL ışıma şiddetine sahip olduğu görülmüştür. Ce'un 1, 2, 3 ve 4% oranlarında ise TL ışıma şiddetinin düştüğü gözlenmektedir. Bu durum Ce katkılanması için eşik konsantrasyon değerinin 0.5% olduğunu ve bu değerden sonra yapılan katkılmalarda (Ce 1, 2, 3 ve 4%) konsantrasyona bağlı sönmeme olayının gerçekleştiğini göstermektedir (Şekil 4.32).



Şekil 4.32. CaF_2 'e sabit Nd 1% ile değişik kütle yoğunluğuna sahip Ce'un çift katkılanması sonucu oluşan 410 nm filtrede gözlemlenen normalize edilmiş tepe alanı

BSL-TL 365 nm, IRSL-TL 410 nm, IRSL-TL 565 nm, ve IRSL-TL Geniş bant mavi filtreler kullanılarak yapılan ölçümlerde, IRSL-TL 410 nm'de alınan ölçümlerde yüksek TL şidetinin olduğu görülmüştür.

Katıhal sentez yöntemiyle üretilen $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ çift katkılı malzemenin, dozimetrik özelliklerinin belirlenmesi için TL okumaları IRSL-TL 410 nm filtre kullanılarak yapılmıştır. Yapılan dozimetrik çalışmalar ile ilgili bilgiler aşağıda geniş bir şekilde verilmiştir.

4.2.6. $\text{CaF}_2\text{:Nd 1\%,Ce 0.5\%}$ Fosforunun Doz Cevabı

Üretilen $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforu, TL çalışmaları için ilk önce toz halden pelet haline getirildi. Bu işlem için 30 mg'lık toz numunelerin tümü, 20 dakika boyunca $2000 \text{ kg kuvvet/cm}^2$ 'lik bir basınç altında tutularak pelet formunun hazırlanması için preslenmiştir. Her pelet numunesi 6 mm çap ve 0.75 mm kalınlığa sahiptir. TL ışıma eğrileri, peletlerin oda sıcaklığından 450°C 'ye kadar

ısıtılmasıyla elde edildi. Her TL okumasından sonra yine oda sıcaklığından 450 °C'ye kadar fon (background) okuması yapılmıştır. Net TL ışıma eğrileri, ilk TL okumasından elde edilen ışıma eğrisinin verilerinden fon okumasından elde edilen ışıma eğrisinin verilerinin çıkartılması ile elde edilmiştir.

İdeal bir dozimetrik fosfor uygulanan farklı dozlarda aynı hassasiyetle cevap vermelidir. Yine ideal bir dozimetrik fosforun uygulanan dozlarda geniş bir lineer doz cevap aralığına sahip olması beklenir. Ancak, çoğu fosfor dar bir lineer aralığa sahiptir ve dolayısıyla lineer olmayan eğriler gözlenebilir. Genellikle, dozimetrik bir fosfordan elde edilen TL doz cevap eğrisinde, uygulanan dozun artması ile sırasıyla lineer, supralineer, sublineer ve doygunluk bölgelerinin oluşması beklenir (McKeever ve ark., 1995).

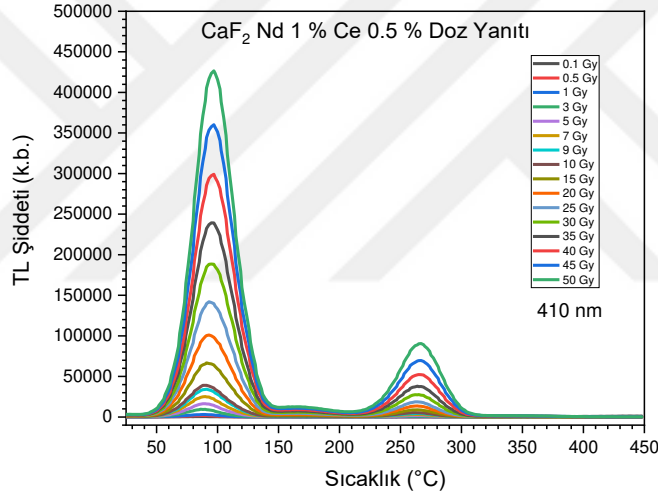
TL şiddetinin soğurulan doza bağlı fonksiyonunu $g(D)$ ile ifade edersek, normalize edilmiş doz cevap fonksiyonu (veya supralineerlik indeksi) $g(D)$,

$$g(D) = \frac{(G(D)/D)}{(G(D_1)/D_1)}$$

denklemleri ile verilebilir. Burada $g(D)$ herhangi bir D dozuna karşılık gelen doz cevabıdır ve $G(D_1)$ ise daha düşük bir D_1 doz değerine karşılık gelen doz cevabıdır. Böylece ideal bir dozimetre için geniş bir bölgede $g(D)=1$ olması beklenir. Ancak, yukarıda da belirtildiği gibi birçok TLD fosforlarında $g(D)=1$ şartı sadece dar bir doz aralığında elde edilebilmektedir. Genellikle gözlenen, supralineerlik yani $g(D)>1$ durumdur. $g(D)<1$ olduğu durumda sublineerlik ve bu durum daha çok doygunluğa ulaşılırken gözlenmektedir (McKeever ve ark., 1995).

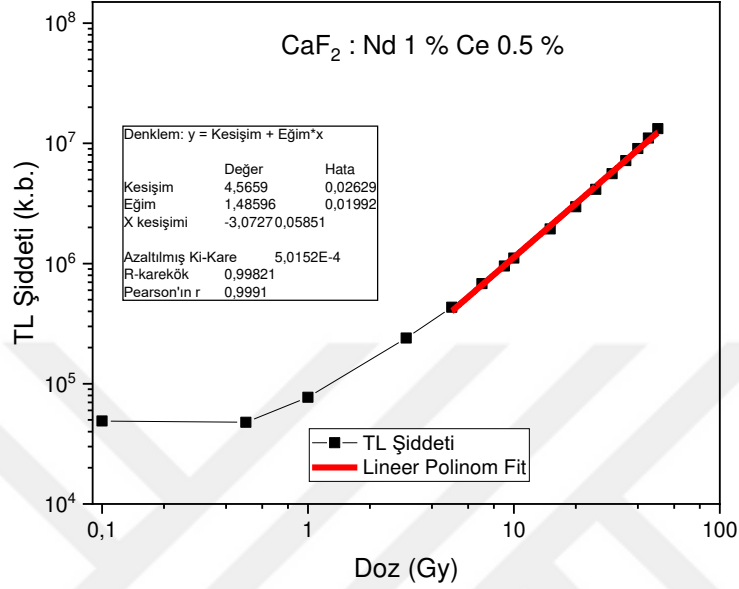
Tez çalışması kapsamında, $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ çift katkılı malzemenin doz cevap özelliğini incelemek için 0.1 Gy'den başlanarak 50 Gy'e kadar beta (β) kaynağından farklı dozlar verilmiştir. Doza maruz bırakılan fosforların, 2°Cs^{-1} ısıtma hızı ile oda sıcaklığından 450 °C'ye kadar ısıtarak TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Şekil 4.33'de görüldüğü gibi, yaklaşık 90 ve 265 °C'de iki

maksima artan doz ile artmaktadır. Maruz bırakılan doza bağlı olarak bir fosforun lineer olduğu aralığı belirlemek son derece önemlidir. Çünkü lineer aralık, fosforun hangi alanda kullanılabileceğini belirleyen en önemli faktörlerden birisidir. Bu amaçla yapılan çalışmada uygulanan her bir doz için elde edilen TL ışıma eğrisinin altında kalan alanlar hesaplanmıştır. Bulunan sonuçlar kullanılarak, uygulanan dozun TL ışıma eğrisinin altında kalan alana karşı grafiği çizilerek $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ fosforunun lineer olduğu doz aralığı belirlenmiştir (Şekil 4.34).



Şekil 4.33. $\text{CaF}_2 : \text{Nd} 1\% ,\text{Ce} 0.5\%$ fosforunun uygulanan doz aralığındaki doz cevap özelliği ($\beta = 2 \text{ } ^\circ\text{Cs}^{-1}$)

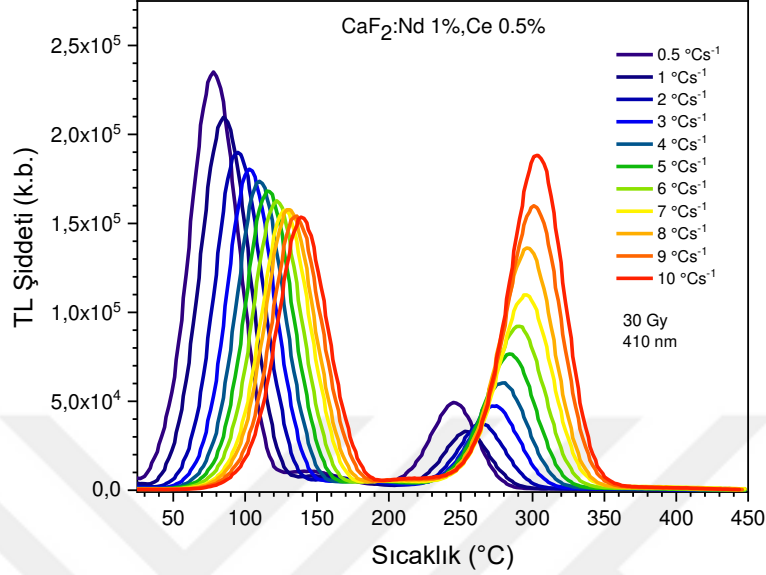
Şekil 4.34 incelendiğinde fosforun 0.1 Gy'den 5 Gy'e kadar uygulanan dozlara karşı supralineer özellik göstermiştir. 5 Gy'den 50 Gy'e kadar ise lineer bir bölge oluşturmuştur. Elde edilen grafiğin eğiminden r^2 değeri 0.99821 olarak bulunmuştur ve bu da lineerliğinin çok iyi olduğunu göstermektedir.



Şekil 4.34. CaF₂:Nd 1%,Ce 0.5% çift katkılamaının 0.1 Gy'den 50 Gy'e kadar verilen doza karşı doz cevap değişimi ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

4.2.7. Isıtma Hızı

Isıtma hızı (β), TL ısıtma eğrilerini etkileyen faktörlerden birisidir. Bu tez çalışmasında da bu etkiyi gözlemlemek için, üretilen CaF₂:Nd1%,Ce0.5% fosforuna 30 Gy beta dozu verip sırasıyla 0.5, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10 $^\circ\text{Cs}^{-1}$ ısıtma hızlarında TL ısıtma eğrileri kaydedilmiştir. Elde edilen TL ısıtma eğrilerinde, ısıtma hızı arttıkça ilk maksimumun tepe sıcaklığının (T_m) daha yüksek sıcaklığa doğru kaydığı ve ısıtma şiddetinin de düştüğü gözlenmiştir. İkinci maksimumun ise ısıtma hızı arttıkça yine tepe sıcaklıklarının (T_m) daha yüksek sıcaklığa doğru kaydığı fakat ısıtma şiddetinin arttığı gözlenmiştir (Şekil 4.35).

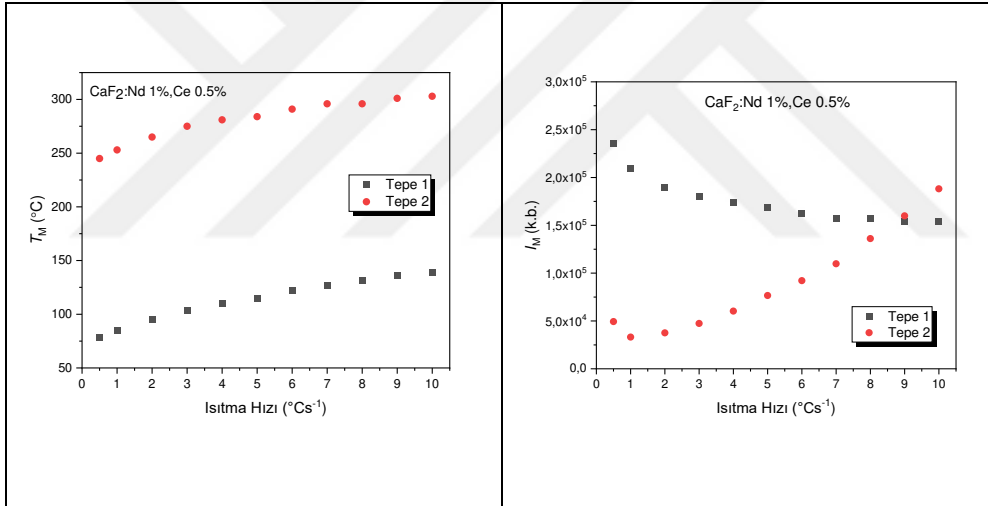


Şekil 4.35. CaF₂:Nd 1%, Ce 0.5% çift katkılı materyalin ısıtma hızının TL şiddetine etkisi

Şekil 4.35’de görüldüğü gibi ısıtma hızının artmasıyla maksimum TL şiddetleri daha yüksek sıcaklıklara kaymaktadır. Birinci ve ikinci tepelerde ısıtma hızının artmasıyla birlikte maksimum TL şiddetinin daha yüksek sıcaklıklara kaymasından termal gecikme etkisi (Temperature Lag, TLA) sorumludur (Şekil 4.36 (a)). Bu kaymanın miktarı, TL okuması sırasında ısıtıcı eleman (termal çift) ve fosfor örneği arasındaki sıcaklık gecikmesi (TLA) etkisine bağlıdır. Başka bir deyişle, 2 °C/s⁻¹ ısıtma hızı ile T₁’den T₂’ye (T₁ < T₂) ısıtılan bir numunenin, aynı miktardaki elektroni serbest bırakmak için 10 °C/s⁻¹ ısıtma hızı ile ısıtılardan daha uzun bir süreye ihtiyacı vardır. Bu nedenle, ısıtma hızı arttıkça (diğer bir deyişle benzer şiddete ulaşmak için geçen süre farkı) ışıma tepesi daha yüksek sıcaklık tarafına doğru kaymaktadır. Ölçümlerde meydana gelebilecek termal gecikme etkisi ile ilgili sorunları önlemek için ısıtılan planşet ve örnek arasında iyi bir termal etkileşimi sağlamak gerekir. Bu nedenle TL okuması süresince örneğe doğru olan ısı transferini mümkün olduğunca hızlı yapabilmek için planşete

konulan toz örneklerinin miktarını sınırlı tutmak ve örnekleri homojen bir şekilde dağıtmak gerekir. Bu nedenle tez çalışmasında bu etkiyi olabildiğince minimumda tutmak amacıyla örnekler en uygun miktarda ve pelet formunda hazırlanmıştır.

Şekil 4.35’de ısıtma hızına karşılık elde edilen TL ışıma eğrilerinin ilk tepelerine bakıldığında, hızlı ısıtma hızı ile maksimum tepe şiddeti beklenenden daha fazla azalabilmekte ve bu azalma radyasyona bağlı olmayan geçişlerin daha olası olduğu “termal sönümlenme (thermal quenching)” etkisinden kaynaklandığı düşünülmektedir. Termal sönümlenmenin TL eğrisi üzerindeki etkisi ısıtma hızı değişimi ile I_M grafikleri üzerinden de görülebilmektedir (Şekil 4.36 (b)). Isıtma hızı değişimi ile T_m grafikleri Şekil 4.36 (a)’da gösterilmiştir.

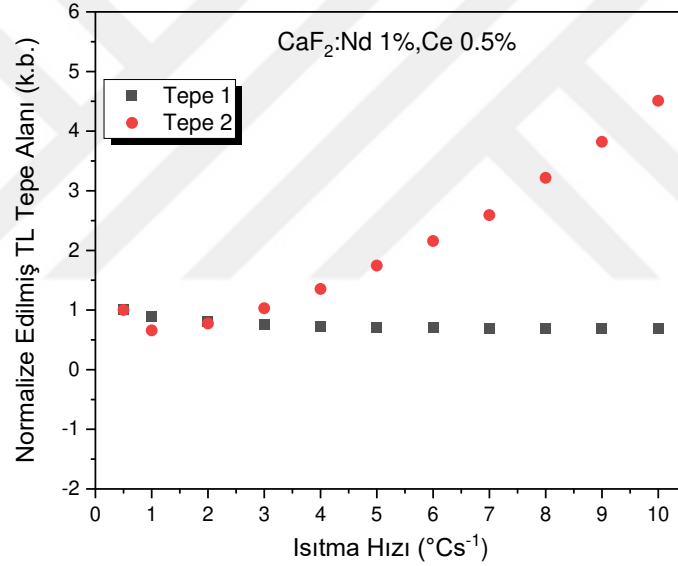


Şekil 4.36. Isıtma hızının a) maksimum tepe sıcaklığına (T_m), b) maksimum tepe şiddetine karşı grafikleri

Kumar ve arkadaşlarına göre, termal sönümlenmeyi kantitatif olarak ölçmenin mantıklı bir yolu, sabit bir dozda ısıtma hızındaki artışla elde edilen toplam sayımların azalmasını analiz etmektir. Yani, termal sönümlenmeyi görmek için toplam tepe alanının ısıtma hızına karşılık grafiğini çizmek gerekmektedir (Kumar ve ark., 2010). Termal sönümlenme olmadığında, TL ışıma eğrisinin

altındaki toplam alanın ısıtma hızından bağımsız olması beklenir fakat termal sönümlenme varlığında ısıtma hızına bağımlıdır ve ısıtma hızı arttıkça azalır.

Şekil 4.37, normalize edilmiş toplam tepe alanlarının ısıtma hızlarına karşılık değerlerini göstermektedir ve tepe 1'deki azalış termal sönümlenme etkisinin olduğunu açıkça göstermektedir. Şekil 4.38'e bakıldığında, ısıtma hızı arttıkça tepe 1 giderek genişlemekte ve yarı yükseklikteki tam genişlik (FWHM) değerleri de düşük miktarda da olsa bir artış göstermektedir. Termal sönümlenme varlığında yarı yükseklikteki tam genişliğin (FWHM) artması gerekir. Bu durum da termal sönümlenme etkisini ispatlayan bir diğer faktördür.

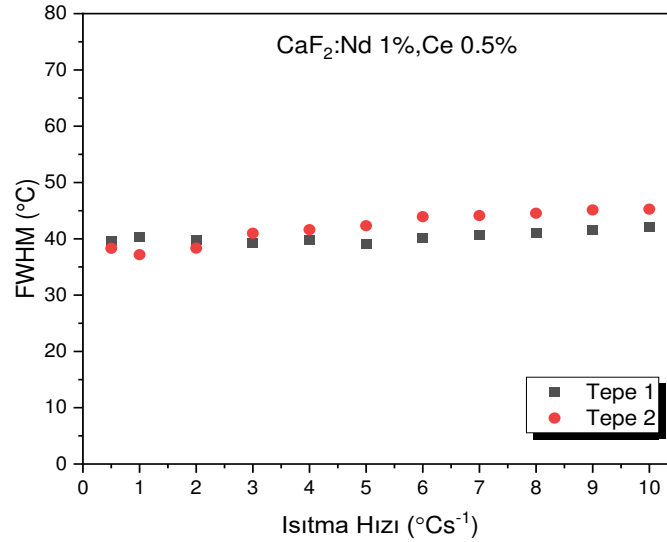


Şekil 4.37. Normalize edilmiş TL tepe alanlarının grafiği

Termal sönümlenme olayı ile ilgili en iyi bilinen iki ifade Mott-Seitz ve Schön-Klasens modelleridir. Mott-Seitz modeli, aynı atom içinde uyarılmış durum ile taban durumu arasındaki elektron geçişini ifade eder (Kalita ve Wary, 2016). Işınımsal olmayan geçişlerin artan olasılığından dolayı, lüminesans verimliliğindeki azalmanın bir sonucu olarak tepe yüksekliği artan ısıtma hızı ile

azalır. Çeşitli ısıtma hızları (VHR) kullanılarak yapılan TL deneylerinde yayımlanan toplam foton sayısının sabit olması beklenilir. TL şiddetini ve ısıtma tepelerinin altındaki alanın azalmasını açıklayan başka bir varsayım ise, serbest elektronların deşik merkezine (yani rezervuar) geçişinin ısımalı olduğu ve deşik merkezine (yani yeniden birleşme merkezi) geçişin ısımasız olduğu yaklaşımdır. Bu model Schön-Klasens modeliyle büyük ölçüde benzerdir ve sadece bölgesel olmayan geçişleri ifade eder. Bu model, boşluklardan bazılarının yeniden birleşme merkezlerinde tuzaklanmasıyla TL şiddetine katkıda bulunan toplam boşluk sayısında azalmaya sebep olacağı ve bu azalmanın da TL şiddetinde azalmaya yol açacağını ifade etmektedir (Chen ve Pagonis, 2016).

Fakat Şekil 4.35’de ikinci tepelere bakıldığında, ısıtma hızı arttıkça T_m değerleri artarken (Şekil 4.36 (a)) maksimum tepe şiddetleri (I_M) de anormal bir şekilde artmaktadır. Bu artış Şekil 4.36(b)’de daha açık bir şekilde gösterilmektedir. Benzer şekilde normalize edilmiş toplam tepe alanı (Şekil 4.37) ve FWHM değerleri (Şekil 4.38) de artış göstermektedir. Bu durum TL teorisi ve şu ana kadar değerlendirilmiş olan durumlar ile açıklanamamaktadır.



Şekil 4.38. FWHM'nin ısıtma hızı bağımlılığı

Mandowski ve Bos (2011), çeşitli ısıtma hızları için bu anormal etkiyi açıklamak için bölgesel geçişlerin ışımsal olmayan katkısının ve bölgesel olmayan geçişlerin ışımsal katkısının dikkate alındığı varsayımını rapor etmişlerdir (Mandowski ve Bos,2011). Bununla birlikte yapılan deney sonuçları, anormal ısıtma hızı olarak ifade edilen artan ısıtma hızı ile toplam lüminesans şiddetinin artması davranışının gerçekleştiğini göstermiştir (Bos ve ark., 2010; Delice ve ark., 2014; Delice ve ark., 2015). Bölgesel olmayan geçişlerin açıklandığı Schön-Klasens modelinde, yeniden birleşme merkezine geçişin ışımalı olduğunu, boşluk merkezlerine geçişin ışımalı olmadığını, hem normalize edilmiş maksimum şiddetlerin hem de ısıma eğrilerinin altındaki normalize edilmiş alanın arttıkça arttığını varsayarlar (Chen ve Pagonis, 2016). Bu olayın gerçekleşmesinin nedeni yeniden birleşme merkezindeki boşluk miktarının artması ve bu durumun ışık yayınımına katkıda bulunmasıdır (Chen ve Pagonis, 2016). Bu nedenle derin tuzaklarda hem TL şiddeti hem de TL tepesinin altındaki alan ısıtma hızı artışıyla artar (Şekil 4.35 ve Şekil 4.36). Ayrıca FWHM'nin ısıtma hızına karşı davranışına bakıldığında, ısıma tepesinin çok daha geniş hale geldiği de görülmektedir (Şekil 4.38).

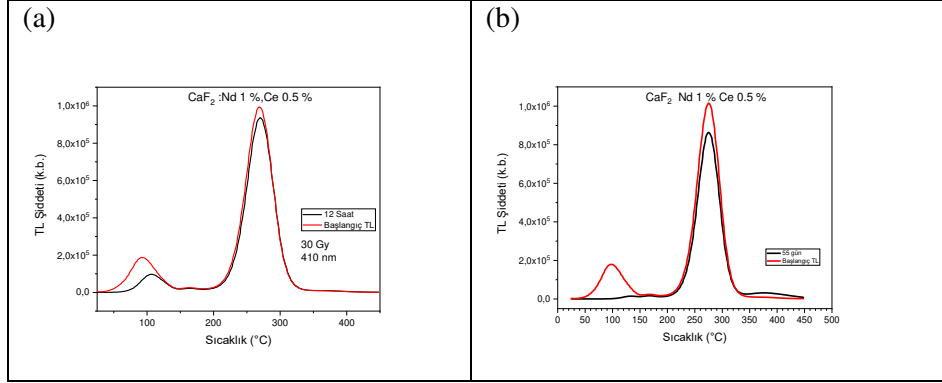
$\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun detaylı ısıtma hızı testi yapıldığında sıg tuzaklarda termal sönümlleme etkisi görülürken derin tuzaklarda anormal ısıtma hızı etkisi görülmüştür. Serbest elektronların yeniden birleşme merkezlerine ışımsal geçiş olasılığındaki artış nedeniyle, termal sönümlleme açıklamaları ve ışımsal olmayan geçişler, fosforun TL davranışını açıklayan tek ve baskın etkiler değildir.

4.2.8. Solma (Fading)

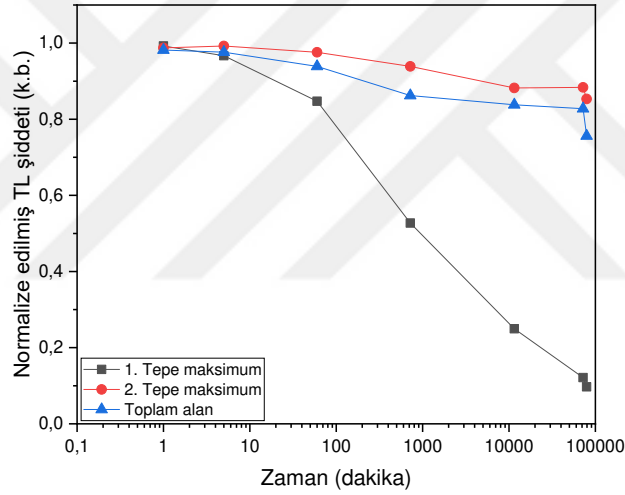
Dozimetrik bir fosfor radyasyona maruz tutulup, ışık görmeyen bir ortamda bekletildikten sonra, oda sıcaklığında dahi TL şiddetinde azalma olduğu birçok çalışmada görülmüştür. TL şiddetindeki bu azalma solma (fading) olarak adlandırılır. İletim bandına yakın bir yerde bulunan sıg tuzaklardaki elektronların

ömürleri derin tuzaklardaki elektronlara göre daha azdır ve çok hızlı solmaya uğrarlar (özellikle de 200 °C'nin altındaki sıcaklardaki tuzaklarda tuzaklanmış elektronlar). İdeal bir dozimetrik fosforda TL maksimasının 200-300 °C arasında olması beklenir. Bu aralıktaki sıcaklıklardaki tuzaklanmış elektronların ömürleri yüksektir. Buna karşılık oda sıcaklığında bile bazı yüksek sıcaklıklardaki TL ışıma maksimalarının düştüğü gözlemlenmiştir (Wintle, 1973). Bunun sebebi; (i) kuantum mekaniksel olarak tünelleme yolu ile tuzaklanmış elektronların yeniden birleşme merkezlerine direkt olarak geçmeleri (Visocekas ve ark., 1976), (ii) tuzakları meydana getiren bazı iyonların fosforu oluşturan kristal yapıdan difüzyon ile uzaklaşmasıdır (Templer, 1986). Tez kapsamında çalışılan $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ fosforunun solma özelliğini incelemek için fosfor, 30 Gy beta dozuna maruz bırakıldıktan sonra hiç ışık almayacak ortamda farklı zaman aralıklarında bekletilmiştir. Daha sonra TL okumaları yapılarak TL ışıma eğrileri elde edilmiştir. Şekil 4.39(a)'da görüldüğü gibi 12 saat sonundaki 265 °C'deki dozimetrik maksimanın TL şiddetindeki kayıp 6% olarak hesaplanmıştır.

12 saat sonundaki kaybın çok az olmasından dolayı materyale 30 Gy doz verilip 55 gün boyunca ışık almayan ortamda bekletilerek TL okuması yapılmıştır. Şekil 4.39(b)'de görüldüğü gibi 80 °C'deki maksima tamamen kaybolurken 265 °C'deki dozimetrik maksimanın TL şiddetindeki kayıp 15%'dir. Elde edilen bu sonuçlardan da anlaşılacağı gibi dozimetrik maksimanın çok kararlı olduğu düşünülmektedir.



Şekil 4.39. Fosforun (a) 12 saat sonunda, (b) 55 gün sonunda TL şiddetindeki değişimi ($\beta=2^\circ\text{Cs}^{-1}$)



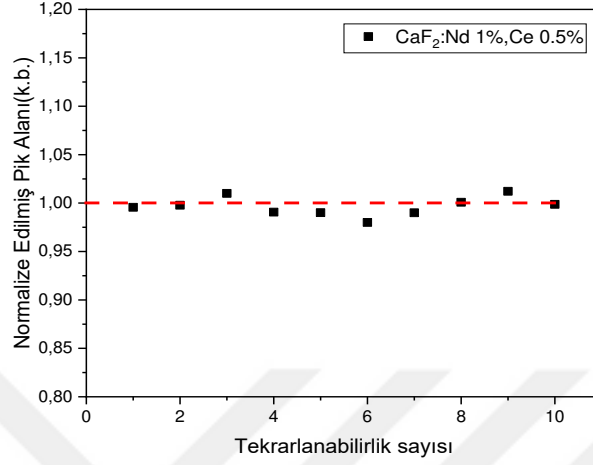
Şekil 4.40. 1. ile 2. Tepelerin maksimum şiddetlerinin ve toplam alan değerlerinin değişen zaman aralıklarına göre değişimi

Şekil 4.40'da TL ışıma eğrilerinden, 1. ve 2. tepe şiddetlerinin maksimum değeriyle toplam sinyal şiddetinin normalize edilmiş halinin zamana göre değişimi gösterilmiştir. 1. tepenin 55 gün sonunda tamamen yok olduğu açıkça görülmektedir. Buna rağmen, 2.tepe değeri ise 55 günün sonunda 15% oranında değer kaybetmiştir. Toplam sinyal şiddeti ise bu süre zarfında 2%'sini

kaybetmiştir. Solma deneylerinden de görüleceği gibi $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun, 265 °C'deki tepesinin 55 günlük bekletilmeden sonra kararlı bir yapıda olmasından dolayı dozimetrik amaçlar için kullanılabilecek potansiyel bir aday olabileceği düşünülmektedir.

4.2.9. Tekrar Kullanılabilirlik

Bir fosforun dozimetrik amaçlar için kullanılıp kullanılmayacağına karar vermek için önemli faktörlerden biri de tekrar kullanılabilirliktir. İdeal bir dozimetrik malzemeden, birkaç tavlama-ışınlama-okuma döngüsü sonrası sabit bir TL şiddetine sahip olması beklenir. Diğer bir deyişle, ideal bir fosfordan aynı doz, tavlama ve okuma koşulu altında tekrarlanan ölçümlerde TL şiddetinin 5%'ten daha az farklılık göstermesi beklenir (Furetta, 2003). Söz konusu tez çalışmasında, ışınlamadan sonra okunan TL'in, tuzaklanmış elektronları boşaltmak için yeterli olduğu düşünüldüğünden, ışınlama işleminden önce tavlama işlemi yapılmamıştır. Aynı koşullar altında $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforu 10 Gy'lik beta dozuna maruz bırakılarak $2\text{ }^\circ\text{Cs}^{-1}$ ısıtma hızı ile oda sıcaklığından 450 °C'ye kadar TL okuması yapılmıştır. Bu döngü on kez tekrarlanmıştır. Şekil 4.41'de, 10 ışınlama ve okuma döngüsünden sonra TL şiddetinde önemli bir değişikliğin olmadığı, yaklaşık 2% civarında olduğu görülmektedir. Bu nedenle, $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun, dozimetrik amaçlar için kullanılabilecek potansiyel bir aday olabileceği düşünülmektedir.



Şekil 4.41. $\text{CaF}_2\text{:Nd } 1\%, \text{Ce } 0.5\%$ katkılamasına art arda tekrarlanan 30 Gy'lik dozlarla karşılık normalize edilmiş tepe alanının grafiği ($\beta = 2^\circ\text{Cs}^{-1}$)

4.3. Tuzak Parametrelerinin Belirlenmesi Yöntemleri

Tuzak parametrelerinin yani aktivasyon enerjisi, frekans faktörü ve kinetik derecesi gibi parametrelerin belirlenmesi TL çalışmalarında önemlidir. Bu amaçla tuzak parametrelerinin belirlenmesi için çeşitli yöntemler geliştirilmiştir (Aitken, 1985; Chen ve McKeever, 1997; McKeever ve ark., 1985).

Bu yöntemler;

- Farklı Isıtma Hızları Yöntemi (VHR)
- Başlangıçtaki Artış Yöntemi (IR)
- Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma Yöntemi (CGCD)
- Tepe Şekli Yöntemi
- İzotermal Sönüm Yöntemi
- Moharil'in Yöntemleri
- Bükülme Noktaları Yöntemi

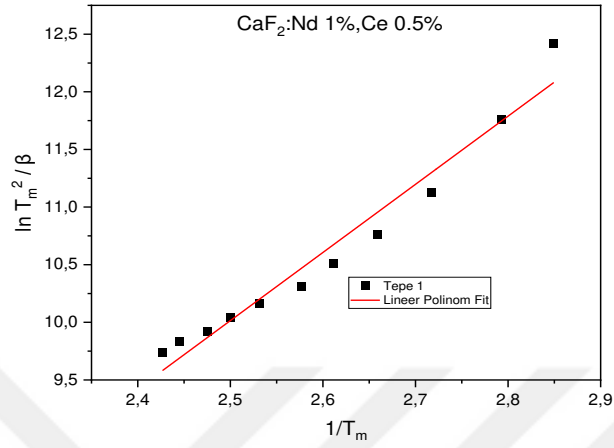
dir. Tez çalışması kapsamında yukarıda verilen yöntemlerden, Farklı Isıtma Hızları (Hoogenstraten Yöntemi), Başlangıçtaki Artış ve Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma (CGCD) yöntemleri kullanılarak kinetik parametre hesapları yapılmıştır.

4.3.1. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi (VHR)

TL teorisine göre farklı ısıtma hızları, TL ısıma eğrilerinin maksimum sıcaklık (T_m) tepe noktalarının değişmesine neden olmaktadır. Numunelerin bir dizi farklı ısıtma hızlarıyla elde edilen TL ısıma eğrilerini kullanarak, aktivasyon enerjisinin ve frekans faktörünün belirlendiği bu yöntem Hoogenstraten yöntemi olarak da bilinmektedir (Hoogenstraten, 1958). Bu yöntemde numuneye sabit bir doz verilir ve belirlenen bir ısıtma hızında TL okuma işlemi gerçekleştirilir. Daha sonra aynı doz miktarı numuneye tekrar verilir ve farklı ısıtma hızında TL okuma işlemi yapılır. Bu şekilde yöntem farklı ısıtma hızları kullanılarak tekrar edilir. VHR yöntemi her ne kadar birinci derece kinetiğe sahip TL ısıma eğrilerine önerilse de, diğer kinetik dereceye sahip ısıma eğrilerine de uygulanmıştır (McKeever, 1985).

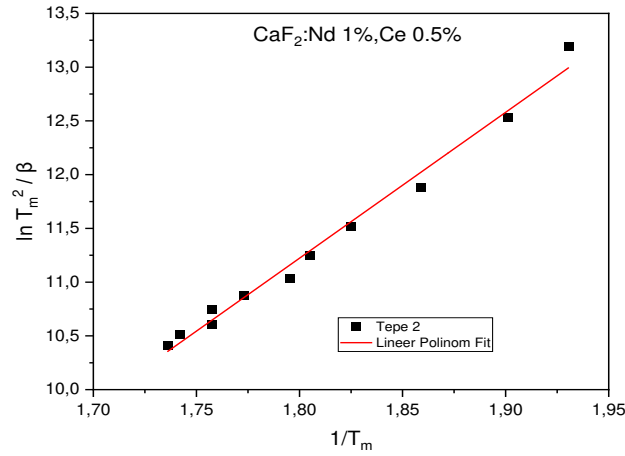
Bu yöntemde, yapılan her bir ısıtma hızındaki ölçümlerde elde edilen TL ısıma eğrisinin tepe noktasına karşılık gelen T_m değerleri belirlenir. Belirlenen T_m değerleri kullanılarak $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiği çizdirilir. Grafikten elde edilen doğrunun eğimi (E_a/k)'ya kesişimi ise (E_a/ks)'ye eşittir. Buradan elde edilen değerler kullanılarak aktivasyon enerjisi (E_a) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplanır (Chen ve Winer, 1970; Hoogenstraten, 1958).

Tez çalışması kapsamında uygulanan farklı ısıtma hızlarıyla elde edilen ve Şekil 4.35'te gösterilen TL maksimaları için Hoogenstraten yöntemi uygulanarak E_a ve s değerleri hesaplanmıştır. Birinci tepeler için $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiği Şekil 4.42'de gösterilmiştir.



Şekil 4.42. CaF₂ :Nd 1%,Ce 0.5% katkılamasında $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı 1. tepenin grafiği

İkinci tepeler için $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiği Şekil 4.43'de gösterilmiştir.



Şekil 4.43. CaF₂ :Nd 1%,Ce 0.5% katkılamasında $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı 2. tepenin grafiği

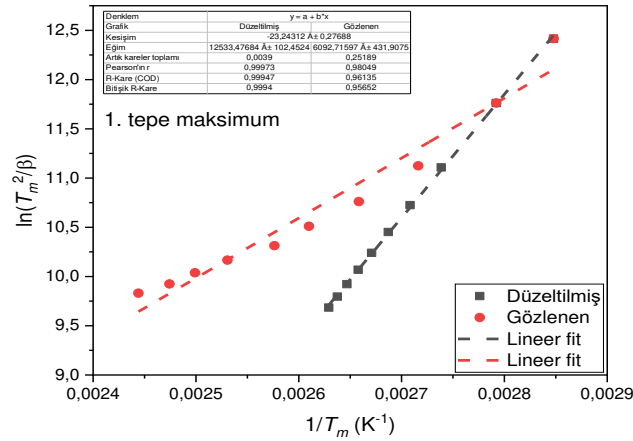
$\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı oluşturulan grafiğin eğimi yardımıyla birinci ve ikinci tepeye ait aktivasyon enerjileri ve frekans faktörleri bulunmuştur ve sonuçlar Çizelge 4.2'de verilmiştir.

Ayrıca, T_m 'i doğru hesaplamak için ısısal gecikme etkisini (TLA) düzelten farklı ısıtma hızlarını içeren bir denklem Kitis ve Tuyn, (1998) tarafından önerilmiştir. TLA düzeltmesi için kullanılan denklem aşağıda verilmiştir (Denklem 4.1.).

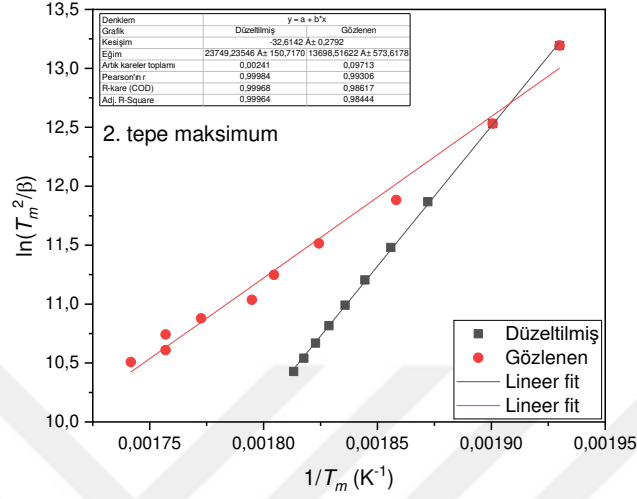
$$T_{mgj} = T_{mgi} - c \cdot \ln\left(\frac{\beta_i}{\beta_j}\right) \quad (4.1)$$

Burada, β_j ve β_i ısıtma hızlarında kaydedilen maksimum tepe sıcaklıkları sırasıyla T_{mgj} ve T_{mgi} 'dir ve c bir sabittir. T_m değeri, her yüksek ısıtma hızında düşük olana göre hesaplanır.

$\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ fosforunun TLA düzeltmesi yapıldıktan sonra elde edilen sonuçlar Şekil 4.44 ve Şekil 4.45'te gösterilmiştir. TLA düzeltmesi sonrası hesaplanan E_a ve s değerleri Çizelge 4.2'de verilmiştir.



Şekil 4.44. Isısal gecikme düzeltmesinden sonra 1. tepenin $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiği



Şekil 4.45. Isısal gecikme düzeltmesinden sonra 2. tepenin $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiği

Çizelge 4.2. $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $1/T_m$ 'ye karşı grafiğinden elde edilen aktivasyon enerjisi (E_a) ve frekans faktörü (s) değerleri

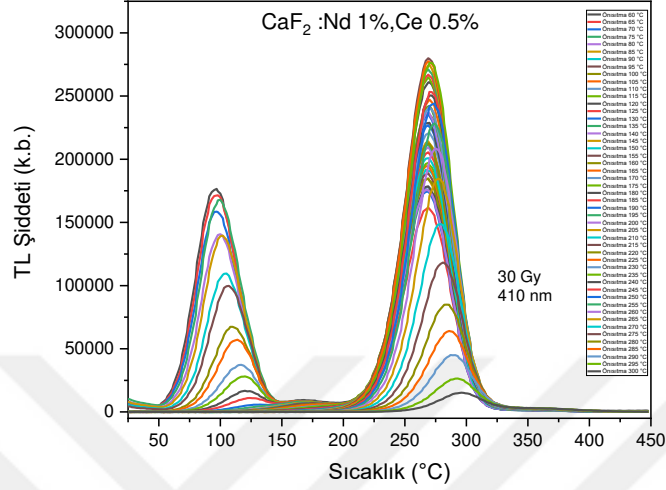
CaF ₂ : Nd 1 %, Ce 0.5 %				
	Düzeltilmemiş		Düzeltilmiş	
	Aktivasyon Enerjisi (eV)	Frekans Faktörü (s ⁻¹)	Aktivasyon Enerjisi (eV)	Frekans Faktörü (s ⁻¹)
Tepe 1	0.51 ± 0.03	1.16E+16	1.08± 0.01	1.58E+14
Tepe 2	1.17 ± 0.04	9.45E+09	2.047± 0.01	3.54E+18

4.3.2. Başlangıç Artış Yöntemi (IR Yöntemi)

Başlangıç artış yöntemine göre, bir materyalden elde edilen TL ışıma eğrisinin başlangıcında tuzaklanan elektronların yoğunluğu sıcaklıkla sabittir veya

çok az miktar değişmektedir. Bu yöntemde $I(t) = c \exp(-E_a / kT)$ ile ifade edilir, burada c bir sabittir, k Boltzmann sabiti ve E_a aktivasyon enerjisidir. $\ln(I)$ 'nın $1/T_m$ 'ye karşı grafiği çizildiğinde bir doğru elde edilir, bu doğrunun eğimi kullanılarak E_a değeri hesaplanır. Başlangıç artış yöntemi, TL ışıma eğrisinin kinetik mertebesine bağlı olmadığı için tüm TL ışıma eğrilerine uygulanabilir. Ancak yöntem, yalnızca maksimum şiddet (I_m)'nin 15%'ine kadar olan başlangıç bölgesine uygulanabilir (Furetta C ve Weng, P.S.,1998). Başlangıç artış yöntemi, eğer bir materyalden elde edilen TL ışıma eğrisi iki veya daha fazla iç içe girmiş tepelerden oluşuyorsa uygulanamaz. Bu gibi durumlarda bu yöntemin uygulanabileceği ısısal temizleme yöntemi geliştirilmiştir. Isıl temizleme yöntemi veya T_m-T_{stop} yönteminde, numuneler iyonlaştırıcı radyasyona maruz bırakıldıktan sonra ilk tepenin düşük sıcaklık bölgesine karşılık gelen bir sıcaklığa kadar ısıtılır ve bu T_{stop} olarak kaydedilir. Daha sonra numune oda sıcaklığına kadar soğutulur ve ışıma eğrisinin geri kalanını elde etmek için numune aynı ısıtma hızında tekrar ısıtılarak TL okuması yapılır ve T_m olarak kaydedilir. Yöntem belirli sıcaklık aralığında, bir sonraki tepenin maksimum değerine kadar ısıtılır ve tekrar soğutulur, ısıtılmış numuneler üzerinde birçok defa tekrarlanır (Pagonis ve ark., 2006). T_m-T_{stop} yöntemi ile her bir ışıma eğrisinin tepe noktası için düzgün başlangıç yükselme eğrileri elde edilir. Böylece bu eğrilere başlangıç artışı yöntemi (IR) uygulanarak tuzak parametreleri (E_a ve s) belirlenebilir. IR yöntemiyle elde edilen E_a değerine karşılık T_{stop} grafiği çizildiğinde, üst üste binen tepeler için merdiven basamağı şeklinde bir plato yapısı veya sürekli çizgi şeklinde iki farklı davranış gösterebilir. Yani elde edilen grafik yardımıyla, ışıma eğrisindeki tepelerin sayısı ve tepenin hangi sıcaklıkta oluştuğu belirlenebilir.

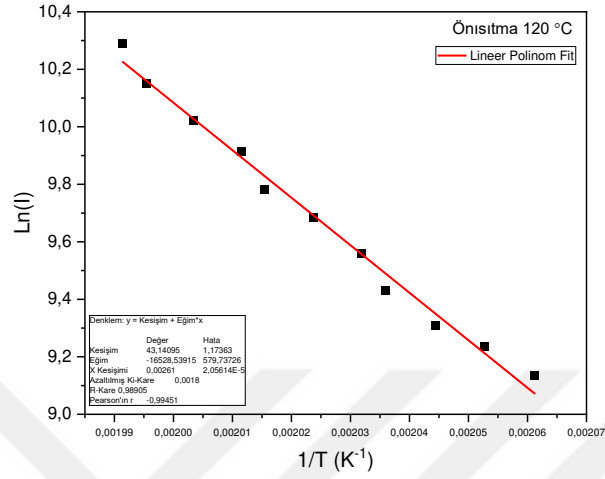
Yapılan tez çalışmasında T_m-T_{stop} yöntemi için üretilen $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ fosforuna 30 Gy doza maruz bırakıp 60 °C den başlayarak 5'er derece aralıklar ile 300 °C'ye kadar ön ısıtma işlemi uygulandı (Şekil 4.46).



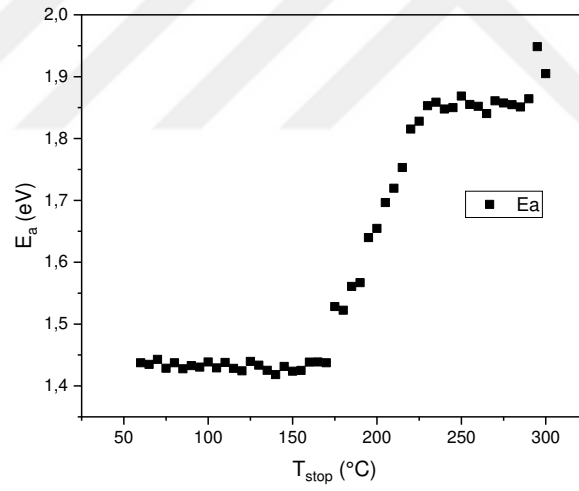
Şekil 4.46. Ön ısıtma yapılan $\text{CaF}_2:\text{Nd } 1\%, \text{Ce } 0.5\%$ fosforunun TL ışıma eğrisi ($\beta = 2^\circ\text{C s}^{-1}$)

Elde edilen her bir ışıma eğrisine IR yöntemi uygulanarak aktivasyon enerjileri hesaplanmıştır. Hesaplanan E_a değerlerine karşı T_{stop} grafiği çizilerek $\text{CaF}_2:\text{Nd } 1\%, \text{Ce } 0.5\%$ fosforunun TL ışıma eğrisinin kaç tepeden oluştuğu ve enerji sevipleri belirlenmeye çalışılmıştır (Şekil 4.48). Elde edilen Şekil 4.48'e göre, TL ışıma eğrisinin iç içe girmiş 2 tepeden oluştuğu düşünülmektedir.

Şekil 4.46'de gösterilen TL ışıma eğrilerinden örnek olarak seçilen, 120°C 'lik T_{stop} sonucuna IR yöntemi uygulandıktan sonra elde edilen Arrhenius grafiği $\ln(I)$ 'nin $1000/T_m$ 'e karşı grafiği Şekil 4.47'de gösterilmektedir.



Şekil 4.47. 120 °C ön ısıtma değerine karşılık gelen Arrhenius grafiği

Şekil 4.48. Ön ısıtma yapılan CaF_2 : Nd 1%,Ce 0.5% fosforunun aktivasyon enerjisinin gösterimi

Şekil 4.48’de görüldüğü gibi, 1. tepenin 1.45 eV tuzak derinliğine, 2. tepenin ise yaklaşık 1.9 eV tuzak derinliğine sahip olduğu görülmektedir. Her bir T_{stop} değerine karşılık gelen IR yöntemiyle elde edilen E_a ve s değerleri sırasıyla Çizelge 4.3’de verilmektedir.

Çizelge 4.3. IR yöntemi kullanılarak hesaplanan aktivasyon enerjileri E (eV) ve frekans faktörleri (s^{-1})

T_{stop} (°C)	E_a (eV)	s (s^{-1})
60	1,43 ± 0,04	4,14E+23 ± 4,80E+04
65	1,43 ± 0,03	1,02E+23 ± 4,24E+04
70	1,44 ± 0,04	5,14E+23 ± 5,26E+04
75	1,42 ± 0,04	5,27E+22 ± 4,51E+04
80	1,43 ± 0,04	2,44E+23 ± 4,88E+04
85	1,42 ± 0,04	1,01E+23 ± 4,25E+04
90	1,43 ± 0,03	1,17E+23 ± 4,10E+04
95	1,43 ± 0,03	1,12E+23 ± 4,14E+04
100	1,43 ± 0,03	2,02E+23 ± 4,09E+04
105	1,42 ± 0,03	6,62E+22 ± 3,67E+04
110	1,43 ± 0,03	1,25E+23 ± 4,10E+04
115	1,42 ± 0,08	1,96E+23 ± 1,30E+05
120	1,42 ± 0,04	7,43E+22 ± 5,34E+04
125	1,43 ± 0,03	1,45E+23 ± 3,57E+04
130	1,43 ± 0,03	1,13E+23 ± 3,81E+04
135	1,42 ± 0,04	1,67E+23 ± 4,33E+04
140	1,41 ± 0,04	1,47E+23 ± 5,16E+04
145	1,43 ± 0,04	3,68E+23 ± 4,97E+04
150	1,42 ± 0,04	2,44E+23 ± 4,71E+04
155	1,42 ± 0,04	5,28E+23 ± 4,71E+04
160	1,43 ± 0,05	5,33E+23 ± 5,56E+04
165	1,43 ± 0,04	6,40E+23 ± 5,28E+04

170	1,43 ± 0,06	7,77E+23 ± 8,40E+04
175	1,52 ± 0,04	1,60E+24 ± 4,78E+04
180	1,52 ± 0,04	1,17E+24 ± 4,65E+04
185	1,56 ± 0,03	3,43E+24 ± 4,36E+04
190	1,56 ± 0,03	3,56E+24 ± 3,69E+04
195	1,63 ± 0,03	2,28E+25 ± 4,19E+04
200	1,65 ± 0,02	2,91E+25 ± 3,60E+04
205	1,69 ± 0,03	8,74E+25 ± 4,84E+04
210	1,71 ± 0,02	1,33E+26 ± 3,89E+04
215	1,75 ± 0,03	3,32E+26 ± 4,91E+04
220	1,81 ± 0,04	1,25E+27 ± 6,02E+04
225	1,82 ± 0,03	1,84E+27 ± 5,13E+04
230	1,85 ± 0,05	4,27E+27 ± 8,56E+04
235	1,85 ± 0,04	3,29E+27 ± 6,15E+04
240	1,84 ± 0,05	4,12E+27 ± 8,08E+04
245	1,84 ± 0,04	2,22E+27 ± 6,53E+04
250	1,86 ± 0,07	1,27E+27 ± 1,12E+05
255	1,85 ± 0,03	1,80E+27 ± 5,36E+04
260	1,85 ± 0,08	1,88E+27 ± 1,42E+05
265	1,84 ± 0,06	7,66E+26 ± 8,48E+04
270	1,86 ± 0,03	8,60E+26 ± 4,40E+04
275	1,85 ± 0,04	5,21E+26 ± 6,64E+04
280	1,85 ± 0,1	3,48E+26 ± 2,46E+05
285	1,85 ± 0,03	3,46E+26 ± 5,19E+04
290	1,86 ± 0,03	1,23E+26 ± 4,72E+04
295	1,94 ± 0,07	4,11E+26 ± 1,12E+05
300	1,90 ± 0,05	6,77E+25 ± 6,96E+04

4.3.3. Bilgisayarla ışıma eğrisi Ayırıştırma Yöntemi (CGCD)

Bilgisayarla ışıma eğrisi ayırıştırma yöntemi (CGCD), daha önceki yöntemlere kıyasla bilgisayar yardımı sayesinde karmaşık bir yapıda olan ışıma eğrisini bileşenlerine ayıran yöntemdir. Ayırıştırma, ekstra olarak bir ısısal işlem olmaksızın tepe parametrelerinin kısa sürede bulunmasını sağlamaktadır. Bilgisayarlı ışıma eğrisi ayırıştırma yöntemleri, en az yirmi yıldır TL mekanizmalarını inceleyen araştırmacılar tarafından kullanılmaktadır. En yaygın TLD malzemelerinin ışıma eğrilerine, iyi bilinen matematiksel eşitliklerin uygulanması ile TLD'nin problemlerinin çözümünde önemli ilerlemeler kaydedilmiştir (Horowitz ve Yossian, 1995).

Deneyssel olarak elde edilen ışıma eğrisi, (CGCD) kullanılarak R-yazılım paketi “tgcd” ile çözümlenmiştir (Chen 1969; Kitis ve ark. 1998). Ayırıştırmanın oluşturulmasında önemli bir adım, kabul edilebilir bir uyum elde etmek için gereken minimum tepe sayısını belirlemektir.

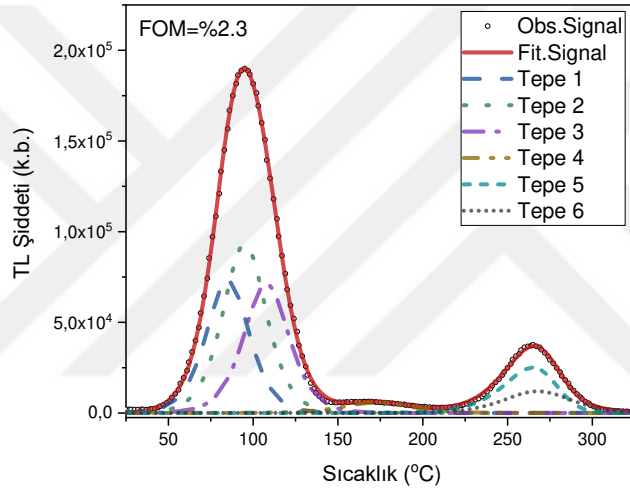
Bilindiği gibi, ayırıştırmanın yapılabilmesinde önemli bir adım, deneyssel ve teorik arasında bir eşleşme işareti olarak kabul edilen FOM değerini (Denklem 4.2.), bu iki değer arasında kabul edilebilir bir uyum sağlamak için gereken minimum tepe sayısını düzenlemektir. Bu nedenle, bu uyumu temsil eden FOM,

$$FOM (\%) = \sum_j \frac{|y_j - y(x_j)|}{A} \times 100 \quad (4.2)$$

şeklinde ifade edilir. Burada, A ilgilenilen bölgedeki ışıma eğrisinin integralidir, y_j ve $y(x_j)$ sırasıyla j 'deki uyuşan fonksiyonunun deneyssel verileri ve fit değeridir.

Elde edilen FOM değerleri önemlidir: 0.0-2.5% arasındaki bir FOM değeri uyumun kabul edilebilir olduğu anlamına gelir, eğer 2.5-3.5% aralığında ise uygun olduğu anlamına gelir, aksi takdirde $> 3.5\%$, uyum kabul edilemez (Horowitz ve Yossian, 1995). Yapılan çalışmada FOM değeri 2.3% olarak bulunmuş olup uyum kabul edilebilir düzeydedir.

CGCD yöntemi, fosforun 30 Gy beta dozuna maruz bırakıldıktan sonra elde edilen TL eğrisine uygulanmış ve tek bir tepe şeklinde görülen TL tepelerinin alt tepeleri bulunmuştur. Buna göre birinci tepe 3 alt tepeden oluşmaktadır. Şekil 4.49'da görüldüğü gibi bu tepeler tepe 1, tepe 2, ve tepe 3 olarak ifade edilmiştir. Belirgin olarak gözelenen ikinci tepe ise 2 alt tepeden oluşmaktadır. Şekil 4.49'da bu tepeler tepe 5 ve tepe 6 olarak ifade edilmektedir. Bununla birlikte tepelere ait E_a , b , I_m , T_m (K) değerleri belirlendi ve Çizelge 4.4'te verilmiştir.



Şekil 4.49. Rstudio TGCD paketi kullanılarak CaF₂:Nd 1%,Ce 0.5% örneğine ait TL büyüme eğrisinin ayrıştırılması (FOM = 2.3%)

Çizelge 4.4. Bilgisayarla ısıma eğrisi ayrıştırma yöntemi (CGCD) kullanılarak elde edilen tepelere ait aktivasyon enerjisi ve maksimum sıcaklık değerlerinin gösterimi

	T_m (K)	I_m (k.b.)	E_a (eV)	s (s ⁻¹)	b
Tepe 1	358	72836.755	1.30	4.76E+15	2
Tepe 2	368	93319.822	1.37	1.44E+16	2
Tepe 3	380	71124.537	1.40	1.93E+17	2
Tepe 4	445	5902.216	1.32	1.59E+13	2
Tepe 5	537	25067.022	1.90	1.03E+18	1.3
Tepe 6	540	11942.772	1.90	2.46E+16	2

Çizelge 4.4'den de görüleceği gibi CGCD yöntemiyle ısıma eğrisinin 6 tepeden oluşabileceği belirlenmiştir. Ancak, ilk 4 tepenin E_a değerleri birbirine çok yakın değerlerdir. Bu sonuçlar, T_m - T_{stop} deneyinden sonra ısıma eğrilerine uygulanan IR yöntemiyle elde edilen E_a değerleri ile yaklaşık olarak uyum içerisindedir.

5. DEĞERLENDİRME VE SONUÇ

Bu çalışmanın amacı, sentetik CaF_2 'e Neodimyum (Nd) ve Seryum (Ce) katkılayarak elde edilen fosforun TL özellikleri incelenerek amaca uygun (çevresel, medikal, kişisel gibi) dozimetrik malzeme geliştirmektir. Öncelikle katkılanmamış CaF_2 ve katıhal sentez yöntemiyle katkılanmış $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%}$, $\text{CaF}_2\text{:Ce 0.5\%}$, ve $\text{CaF}_2\text{:Nd 1\%,Ce 0.5\%}$ örneklerinin karakterizasyon çalışmaları için XRD, SEM, TG-DTA yöntemleri uygulanarak amaca uygun sonuçlar elde edilmiştir.

- Bu çalışmada katkılanmamış CaF_2 , $\text{CaF}_2\text{:Nd 1\%}$, $\text{CaF}_2\text{:Ce 0.5\%}$, ve $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce 0.5\%}$ örneklerinin kristal örgüsünün tanımlanması, birim hücre yapısı, örgü düzlemleri, Miller indisleri, kristal yapısı, mevcut farklı kristallerin tayin edilmesi için XRD sonuçları kullanılmıştır. XRD sonuçlarından yola çıkarak çalışmada parçacıkların ortalama boyutları her bir katkı için Scherrer's formülü kullanılarak hesaplanmış ve $\text{CaF}_2\text{:Ce0.5\%}$ için 1123 Å, $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%}$ için 1126 Å ve $\text{CaF}_2\text{:Nd1\%,Ce0.5\%}$ için 1258 Å olarak bulunmuştur.
- SEM görüntülerine bakıldığında birkaç mikrometrelik büyüklükte ve daha küçük parçacıklardan oluşan topaklar (agglomerations) gözlenmiştir. Elde edilen veriler her bir şekil için kaydedilen XRD verileri ile uyum içinde olduğu görülmüştür. CaF_2 örneğine Ce^{3+} ve Nd^{3+} bir arada katkılандırıldığında orijinal morfolojinin korunduğu söylenebilir.
- Bu çalışmada hazırlanan tüm örneklerde, TG eğrileri hızlı bir düşüş sergilemektedir ki bu da tutuşma reaksiyonu ve suyun uzaklaştırılmasından dolayı kütlede oluşan kayıptan kaynaklandığı düşünülmektedir. Sadece Ce katkılı örnekte diğer örneklerden farklı olarak yaklaşık 650 °C'den sonra belirgin bir kütle kaybı söz konusu değildir. Bu sonuç bize 700 °C'den sonra tavlama sıcaklığı kristallikte bir artışın olabileceğini göstermektedir.

Bundan dolayı da, sentezleme için uygun sıcaklıklar 700 °C'nin üzerinde gözlenmiştir.

Bu çalışmada uygun kristal yapı için optimum koşulların belirlenmesi sürecinin ardından üretilen tüm malzemeler, öncelikle TL dozimetre olarak ticari kullanımına uygun hale getirmek için ilk önce toz halden pelet haline getirildi. Bu işlem için 30 mg'lık toz numunelerin tümü, 20 dakika boyunca 2000 kg kuvvet / cm²'lik bir basınç altında tutularak pelet formunun hazırlanması için preslenmiştir. Her pelet numunesi 6 mm çap ve 0.75 mm kalınlığa sahiptir. TL çalışmalarından sonra elde edilen sonuçlar;

- TL ışıma eğrileri Leksyg smart TL/OSL okuyucu cihazı kullanılarak elde edilmiştir. Yapılan filtre testi sonucunda IRSL/TL 410 nm filtrenin daha uygun olduğu görülmüştür ve TL ölçümleri bu filtre kullanılarak yapılmıştır. Doz-cevap özelliğini görmek için, fosforlar 0.1-50 Gy aralığında beta (β) dozuna maruz bırakılarak 2 °C s⁻¹'lik sabit bir ısıtma hızı ile RT'den 450 °C'ye kadar TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Verilen doz miktarının artmasıyla TL ışıma şiddetinin de arttığı görülmüştür. Ayrıca, sıcaklık-ışıma şiddeti eğrisinin altında kalan alanlar hesaplanarak lineer doz aralığı belirlenmiştir. CaF₂:Nd1%,Ce0.5% fosforunun, doz yanıt özelliği 0.1 Gy'den 5 Gy'e kadar supralineer bölgede olduğu 5 Gy'den 50 Gy'e kadar ise lineer bölgede olduğu görülmüştür.
- TL yöntemiyle ışıma eğrilerinin elde edilmesinde önemli faktörlerden birisi de ısıtma hızı (β)'dır. Bu tez çalışmasında da bu etkiyi gözlemlemek için, üretilen CaF₂:Nd1%,Ce0.5% fosforuna 30 Gy beta dozu verip sırasıyla 0.5-10°C s⁻¹ ısıtma hızlarında TL ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Elde edilen TL ışıma eğrilerinde, ısıtma hızı arttıkça ilk maksimumun tepe sıcaklığının (T_m) daha yüksek sıcaklığa doğru kaydığı ve ışıma şiddetinin

de düştüğü gözlenmiştir. İkinci maksimumun ise ısıtma hızı arttıkça yine tepe sıcaklıklarının (T_m) daha yüksek sıcaklığa doğru kaydığı fakat ısıma şiddetinin arttığı gözlenmiştir. Termal gecikme etkisi (Temperature Lag, TLA) birinci ve ikinci tepelerde ısıtma hızının artmasıyla birlikte maksimum TL şiddetinin daha yüksek sıcaklıklara kaymasından sorumludur. Bu nedenle, bu çalışmada bu etkiyi olabildiğince minimumda tutmak amacıyla örnekler en uygun miktarda ve pelet formunda hazırlanmıştır.

- $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ fosforunun detaylı ısıtma hızı testlerinde sıg tuzaklarda termal sönümlleme etkisi görülürken derin tuzaklarda anormal ısıtma hızı etkisi görülmüştür.
- $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ fosforunun solma özelliğini incelemek için fosfor, 30 Gy beta dozuna maruz bırakıldıktan sonra laboratuvar ortamında hiç ışık almayacak ortamda 1 dakikadan 55 gün aralıklarında bekletilmiştir. Daha sonra, TL okumaları yapılarak TL ısıma eğrileri elde edilmiştir ve hiç bekletilmeden alınan TL sonuçlarıyla karşılaştırılmıştır. Dozimetirk tepe olan 2. tepenin TL sinyal şiddetinde en büyük kaybın 55 günde 15% olduğu görülmüştür.
- Fosforun tekrar kullanılabilirliğini test etmek için, aynı koşullar altında $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ fosforu 10 Gy'lik beta dozuna maruz bırakılarak 2 $^{\circ}\text{Cs}^{-1}$ ısıtma hızı ile RT'den 450 $^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar TL okuması yapılmıştır. Bu döngü on kez tekrarlanmıştır. On döngünün sonunda değişimin 2% civarında olduğu görülmüştür. Sonuçlar, Furetta (2003) tarafından önerilen ideal bir fosforda aynı doz, tavlama ve okuma koşulu altında tekrarlanan ölçümlerde TL şiddetinin 5%'ten daha az farklılık göstermesi beklenir ifadesiyle uyumludur.

Tez çalışması kapsamında, Farklı Isıtma Hızları (Hoogenstraten Yöntemi), Başlangıçtaki Artış ve Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma (CGCD) yöntemleri kullanılarak kinetik parametre hesapları yapılmıştır.

- Bu çalışmada numunelerin farklı ısıtma hızlarıyla elde edilen TL ışıma eğrilerini kullanarak, aktivasyon enerjisinin ve frekans faktörü Hoogenstraten (1958) yöntemi ile hesaplanmıştır. Ayrıca, Kitis ve Tuyn, (1998) tarafından önerilen T_m 'i doğru hesaplamak için ısısal gecikme etkisini (TLA) düzelten farklı ısıtma hızlarını içeren denklem kullanılarak da E_a ve s değerleri hesaplanmıştır.
- T_m-T_{stop} yöntemi için, üretilen $CaF_2:Nd1\%,Ce0.5\%$ fosforu 30 Gy beta dozuna maruz bırakılıp 60 °C den başlayarak 5'er derece aralıklar ile 300 °C'ye kadar ön ısıtma işlemi uygulanmıştır. Elde edilen her bir ışıma eğrisine IR yöntemi uygulanarak aktivasyon enerjileri hesaplanmıştır. Hesaplanan E_a değerlerine karşı T_{stop} grafiği çizilerek $CaF_2:Nd1\%,Ce0.5\%$ fosforunun TL ışıma eğrisinin iç içe girmiş 2 tepeden oluştuğu sonucuna varılmıştır.

Deneyssel olarak elde edilen ışıma eğrisi, (CGCD) kullanılarak R-yazılım paketi “tgcd” ile çözümlenmiştir. CGCD yöntemi ile tek bir tepe şeklinde görülen TL tepelerinin alt tepeleri bulundu. Buna göre ışıma eğrisi toplam 6 alt tepeden oluşmaktadır. Bununla birlikte tepelere ait E_a , b , I_m , $T_m(K)$ değerleri elde edilmiştir. Çalışmada FOM değeri 2.3% olarak bulunmuş olup Horowitz ve Yossian, (1995) tarafından önerildiği gibi kabul edilebilir düzeydedir. T_m-T_{stop} verilerini kullanarak IR yöntemiyle elde edilen enerji seviyeleri ile CGCD yöntemiyle elde edilen enerji seviyeleri uyum içerisinde.

Tez çalışmasında elde edilen sonuçlar toplu halde değerlendirildiğinde, $\text{CaF}_2:\text{Nd}1\%,\text{Ce}0.5\%$ fosforu ideal bir dozimetre için potansiyel aday olduğunu düşünmekteyiz. Elde edilen bu fosforun X-ışını ve γ -ışını gibi diğer iyonlaştırıcı radyasyona karşı duyarlılığının test edilmesi daha sonraki çalışmalar için planlanmaktadır.





KAYNAKLAR

- Aitken, M.J., 1985. Thermoluminescence Dating. Academic Press, 359.
- Binder, W., Cameron, J. R., 1969. Dosimetric Properties of $\text{CaF}_2 : \text{Dy}$. Health Physics. 17(4), 613-618.
- Bhadane Mahesh S., Hareesh K., Dahiwalé S.S., Sature K.R., Patil B.J., Asokan K., Kanjilal D., Bhoraskar V.N., Dhole S.D., 2016. A highly sensitive $\text{CaF}_2 : \text{Dy}$ nanophosphor as an efficient low energy ion dosimetry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 386, 61-69.
- Bhadeshia H. K. D. H., 2002. Thermal Analysis Techniques. University of Cambridge, Materials Science & Metallurgy, American Journal of Analytical Chemistry, 6, 6.
- Bos, A.J.J., Dielhof, J.B., 1991. The analysis of thermoluminescent glow peaks in $\text{CaF}_2 : \text{Tm}$ (TLD-300). Radiation Protection Dosimetry, 37, 231–239.
- Bos A.J.J., Poolton N.R.J., Wallinga J., Bessiere A., Dorenbos P., 2010. Energy levels in $\text{YPO}_4 : \text{Ce}^{3+}, \text{Sm}^{3+}$ studied by thermally and optically stimulated luminescence. Radiation Measurements, 45, 3-6, 343-346.
- Calderon, T., Khanlary, M. R., Rendell, H. M. and Townsend, P. D., 1992. “Luminescence from Natural Fluorite Crystals”. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 20, 475–485.
- Chen R., 1969a. Glow Curves with general order kinetics. Journal of The Electrochemical Society, 116 (9), 1254-1257.
- Chen R., 1969b. On the calculation of activation energies and frequency factors from glow curves. Journal of Applied Physics, 40, 570-585.
- Chen R., McKeever S.W.S., 1997. Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena. World Scientific.
- Chen, R., Winer S., 1970. Effects of various heating rates on glow curves. Journal of Applied Physics 41, 5227.

- Chen R., Pagonis V., 2016. A model explaining the anomalous heating-rate effect in thermoluminescence as an inverse thermal quenching based on simultaneous thermal release of electrons and holes. *Radiation Measurements*, 106, 0-25.
- De Planque 1984. EG, US Department of Energy Report EML 418.
- Delice S., Bulur E., Gasanly N.M., 2014. Anomalous heating rate dependence of thermoluminescence in $\text{Ti}_2\text{GaInS}_4$ single crystals. *Journal of materials science*, 49, 24, 8294-8300.
- Delice S., Bulur E., Gasanly N.M., 2015. Thermoluminescence in gallium sulfide crystals: an unusual heating rate dependence. *Philosophical Magazine*, 95, 9, 998-1006.
- Dielhof, J.B., Bos, A.J.J., Zoetelief, J., Broerse, J.J., 1988. Sensitivity of CaF_2 thermo-luminescent materials to fast neutrons. *Radiation Protection Dosimetry*, 23, 405–408.
- Duller, G.A.T., 2015. The Analyst software package for luminescence data: overview and recent improvements. *Ancient TL*, 33, 1.
- Dutrow B.L., (Louisiana State University), Clark, C.M., 2008. (Eastern Michigan University)-(www.serc.carleton.edu) (11 Nisan).
- El-Kolaly, M. A., Sunta, C. M. and Ganguli, A. K., 1981. “Effect of Temperature on X-Ray Excited Luminescence of Natural CaF_2 and its Implication in Thermoluminescence”. *Journal of Luminescence*, 23, 423–443.
- Furetta C., Weng, P.S., 1998. *Operational Thermoluminescence Dosimetry*. World Scientific.
- Furetta C., 2003. *Handbook of Thermoluminescence*, World Scientific.
- Gonzalez P.R., Mendoza-Anaya D., Mendoza L., Escobar-Alarcon L. 2017. Luminescence and dosimetric properties of $\text{CaF}_2\text{:Ce,Dy}$ phosphor. *Journal of Luminescence*, 195, 321-325.
- Hoogenstraten, W., 1958. Electron traps in zinc sulphide phosphors. Eindhoven : Research laboratory of N. V. philips, 13, 515-693.

- Horowitz Y.S., Yossian D., 1995. Computerised Glow Curve Deconvolution: Application to Thermoluminescence Dosimetry. *Radiation Protection Dosimetry*, 60, 1, 3.
- Jafarizadeh, M., Sohrabi, M., Nazeri, F., 1999. "Analysis of glow curve kinetics of $\text{CaF}_2:\text{Tm}$ (TLD-300) based on a general order model". *Radiation Protection Dosimetry*, 84, 119–122.
- Kalita J.M., Wary G., 2016. Estimation of band gap of muscovite mineral using thermoluminescence (TL) analysis, 485, 53-59.
- Kitis G., Gomez-Ros J., Tuyn J., 1998. Thermoluminescence glow-curve deconvolution functions for first, second and general orders of kinetics. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 31, 19.
- Kumar M., Chourasiya G., Bhatt B.C., Sunta C.M., 2010. Dependence of peak height of glow curves on heating rate in thermoluminescence. *Journal of Luminescence*, 130, 7, 1216-1220.
- Marczewska B., Bilski P., Budzanowski M., Olko P., Chernov V., 2001. Dosimetry properties of Tm-doped single CaF_2 crystals. *Radiation Measurements*, 33, 5, 571-576.
- Mandowski A., Bos A.J.J., 2011. Explanation of anomalous heating rate dependence of thermoluminescence in $\text{YPO}_4:\text{Ce}^{3+}$, Sm^{3+} based on the semi-localized transition (SLT) model. *Radiation Measurements*, 46, 12, 1376-1379.
- McKeever S., Rhodes J.F., Mathur V., Chen R., Brown M., Bull R., 1985. Numerical solutions to the rate equations governing the simultaneous release of electrons and holes during thermoluminescence and isothermal decay. *Physical Review*, b32, 3835.
- McKeever S., Mathur V., Brown M., Jassemnejad B., 1986. Energy transfer in $\text{CaF}_2:\text{Ce}, \text{Mn}$, *Radiation Effects*, 99, 1-4, 15-20.

- McKeever, S. W. S., Moscovitch, M. and Townsend, P. D., 1995. TL dosimetry materials: properties and uses. Nuclear Technology Publishing, Ashford, Kent, 204. ISBN: 1870965191 9781870965194.
- Merz, J.L. and Pershan, P.S., 1967. "Charge Conversion of Irradiated Rare-Earth Ions in CaF_2 . II. Thermoluminescent Spectra". Physical Review, 162, 217, 235.
- Mishev I. T., 1972. "The Natural Fluorite in Personnel Gamma-Neutron Dosimetry". In: IAEA Regional Study Group Meeting on Radiological and Environmental Protection, Istanbul, IAEA/PL-522.
- MTA., 1979. Türkiye Fluorit Envanteri, M.T.A.Yayın1, No:176, Ankara. 32 s.
- Nakamura F., Kato T., Okada G., Kawaguchi N., Fukuda K., Yanagida T., 2017. Scintillation and dosimeter properties of CaF_2 transparent ceramic doped with Eu^{2+} . Ceramics International, 43, 1, 604-609.
- Pagonis V., Kitis G., Furatta, C., 2006. Numerical and Practical Exercises in Thermoluminescence. Springer Science & Business Media.
- Pradhan, A.S., 2002. Effect of Heating Rate on the Responses of $\text{CaF}_2:\text{Cu}$, $\text{CaF}_2:\text{Tm}$, $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ and $\text{CaF}_2:\text{Mn}$. Radiation Protection Dosimetry, 100 (1- 4), 289-292.
- Prokert, K. and Sommer, M, 1998. "A new hypersensitive thermoluminophorbased on CaF_2 ". Radiation Protection Dosimetry, 78,249–256.
- Rasheedy, M.S., Nishimura, F., Ichimori, T., 1994. Studies on the dosimetric properties of TLD-300. Radiation Physics and Chemistry, 44, 63–67.
- Richter D., Richter A., Dornich K., 2015. Lexsyg smart - A luminescence detection system for dosimetry, material research and dating application. Geochronometria, 42, 1, 202-209.
- Salah, N., 2011." Nanocrystalline materials for the dosimetry of heavy charged particles: a review". Radiation Physics and Chemistry, 80, 1–10.

- Salah, N., Habib, S.S., Khan, Z.H., Djouider, F., 2011. Thermoluminescence and photoluminescence of ZrO_2 nanoparticles. *Radiation Physics and Chemistry*, 80, 923–928.
- Schayes, R., Lorthoir, M. and Lheureux, M., 1963. La Dosimétrie par Thermoluminescence. *Revue MBL* 6, 30 (Brussels,Belgium).
- Shriver D.F., Atkins P. W., 2006. Shriver & Atkins Inorganic Chemistry 4th edition. Oxford University Press, Oxford ,189-190.
- Sunta C.M., 1970. Thermoluminescence spectrum of gamma-irradiated natural calcium fluoride. *Journal of Physics C:Solid State Physics*, 3, 9.
- Sunta, C.M., 1971. Thermoluminescence of Natural CaF_2 and its Applications. In: *Proc. 3rd Int. Conf. on Luminescence Dosimetry (Riso: Danish AEC) Riso Rep. No. 249*, 392–409.
- Sunta C.M., Yoshimura, E.M. and Okuna, E., 1994. Sensitization and supralinearity of CaF_2 : Natural thermoluminescent phosphor. Interpretation based on partially interactive traps. *Physica Status Solidi a*, 142, 253.
- Sono, D. A. and McKeever, S. W. S., 2002. Photo transferred thermoluminescence for use in UVB dosimetry. *Radiation Protection Dosimetry*, 100, 309-312.
- Swapp, S., 2012. Scanning Electron Microscopy,(SEM). (University of Wyoming) - (www.serc.carleton.edu) (11 Nisan).
- Templer R. 1986. The Localised Transition Model of Anomalous Fading Radiation. *Protection Dosimetry*, 17, 493.
- Vasconcelos D.A.A., Barros V.S.M., Khoury H.J., Azevedo W.M., Asfora V.K., Guzzo P.L., 2014. Synthesis and thermoluminescent response of CaF_2 doped with Tm^{3+} . *Radiation Measurements*, 71, 51-54.
- Visocekas, R. , Ceva, T. , Marti, C., Lefauchaux F., Robert M. C. , 1976. Tunneling processes in afterglow of calcite. *Physica Status Solidi*, 35, 1, 315-327.
- Wang, T.K., Hsu, Pin-Chieh and Weng, P.S., (1986). Application of TLD-200 Dosimeter on the Discrimination of α , β , and γ Radiation. *Radiation Protection Dosimetry*, 16, 3, 253-256.

- Watanabe, S. and Okuno, E., 1971. Thermoluminescence Response of Natural Brazilian Fluorides to ^{137}Cs Gamma Rays. In: Proc. 3rd Int. Conf. on Luminescence Dosimetry (Riso: Danish AEC) Riso Report No 249, 380–391.
- Web 1, (<http://ees2.geo.rpi.edu/probe/Images/concepts/XRD.gif>) (1 haziran)
- West, A. R., 2001. Basic Solid State Chemistry 2nd Edition. Wiley-Blackwell, London, 203-210.
- Wintle, A.G., 1973. Anomalous Fading of Thermoluminescence in Mineral Samples. Nature, London, 245, 5421, 143-144.
- Yazıcı, A. N., Hacıbrahimoğlu, M. Y., Bedir, M., 2000. The Effect of Various Experimental Parameters on Glow Peaks and Trapping Parameters of $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ (TLD-200) Crystals. Turkish Journal of Physics, 24, 623-649.
- Zahedifar, M., Hosseinmardi, F., Eshraghi, L., Ganjipour, B., 2011. Synthesis and thermoluminescence of boron-doped germanium nanowires. Radiation Physics and Chemistry, 80, 324–327.
- Zahedifar M., Sadeghi E., Harooni S., 2012. Thermoluminescence characteristics of the novel $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ nanoparticles prepared by using the hydrothermal method. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms , 291, 65-72.
- Zahedifar M., Sadeghi E., 2013. Thermoluminescence Dosimetry Properties of new Cu Doped CaF_2 Nanoparticles”. Radiation Protection Dosimetry, 157, 3, 303–309.
- Zahedifar M., Sadeghi E., Mozdianfard M.R., Habibi E., 2013. Synthesis, characteristics and thermoluminescent dosimetry features of γ -irradiated Ce doped CaF_2 nanophosphor. Applied Radiation and Isotopes, 78, 125-131.

ÖZGEÇMİŞ

24 Ağustos 1987'de Kadirli'de doğdu. İlkokuldan liseye kadar eğitimini Adana'da tamamladı. 2008 yılında Çukurova Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik bölümünü kazandı. Bölümden 2012 yılında mezun oldu. 2017 yılında yüksek lisans eğitimine başladı.

