

CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**SAF VE KATKILANDIRILMIŞ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ KRİSTALİNİN
TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Gözde ARICILAR

**Anabilim Dalı : FİZİK BÖLÜMÜ
Programı : KATIHAL FİZİĞİ**

MANİSA 2009

CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ * FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**SAF VE KATKILANDIRILMIŞ $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ KRİSTALİNİN
TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Gözde ARICILAR

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih : 8 TEMMUZ 2009
Tezin Savunulduğu Tarih : 11 AĞUSTOS 2009

Tez Danışmanı : Yrd. Doç. Dr. Rana KİBAR

Diğer Jüri Üyeleri : Prof.Dr. Nurdoğan CAN

Yrd.Doç.Dr. Müslim Murat SAÇ

MANİSA 2009

ÖZET

SAF VE KATKILANDIRILMIŞ BGO KRİSTALİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

ARICILAR GÖZDE

Yüksek Lisans Tezi, Fizik Bölümü

Tez Yöneticisi: Yrd.Doç.Dr Rana Kibar

Bu çalışmada hem saf hem de çeşitli nadir toprak iyonları ve metal iyonları ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) tek kristalinin termolüminesans özellikleri incelenmiştir. Bu amaçla örnekler farklı dozlarda (300, 600 ve 900 Gy) X-ışınına maruz bırakılmıştır ve 50-400 °C sıcaklık aralığında farklı ısıtma hızları (2, 5 ve 10 °C/s) kullanılarak ısıtılmıştır. Bu şekilde yapılarak hem ışınlama dozunun hem de ısıtma hızının TL piklerine olan etkisi incelenmiştir.

X-ışınına maruz bırakılan saf BGO kristalinin termolüminesans parıldama eğrilerinde 110 °C ve 250 °C de pikler gözlenirken nadir toprak iyonları ile katkılandırılmış olanlarda yine 110 °C ve 275 °C de termolüminesans pikleri elde edilmiştir.

ABSTRACT**THE INVESTIGATION OF THERMOLUMINESCENCE PROPERTIES OF
PURE and DOPED $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ CRYSTALS**

ARICILAR GÖZDE

MSc Thesis, Physics Department

Supervisor: Yrd.Doç.Dr Rana Kibar

In this study, thermoluminescence characteristics of both pure and doped $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) with Nd for different concentrations and Eu at 3 ppm have been analyzed. For this reason, all samples are exposed to X-ray for different doses (300, 600 and 900 Gy) and heated with different heating rates (2, 5 and 10 °C/s) in the 50-400 °C temperature ranges. Thus effect (role) of exposed dose and heating rate is investigated for TL peaks.

The temperatures of the glow peaks are seen at 110 °C ve 250 °C for pure BGO crystal induced by X-ray irradiation. As regard to doped with rare-earth it has been seen that Nd and Eu doped has been contributed at 250 °C and 110 °C respectively.

III

TEŞEKKÜR

Yaptığım çalışmalar sırasında bana bilgi ve tecrübeleriyle yardımcı olan ve yol gösteren değerli hocalarım Yrd.Doç.Dr. Rana KİBAR ve Prof.Dr. Nurdoğan CAN' a teşekkürlerimi sunarım.

TL ölçümlerinin alınması sırasında cihazın çalıştırılması, kullanılması ve alınan ölçümlerin değerlendirilmesinde benden yardımlarını esirgemeyen Yrd.Doç.Dr. Ahmet ÇETİN' e teşekkürü borç bilirim.

Gözde ARICILAR

İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa No</u>
ÖZET.....	I
ABSTRACT.....	II
TEŞEKKÜR.....	III
İÇİNDEKİLER.....	IV
ŞEKİL LİSTESİ.....	VI
TABLO LİSTESİ.....	VIII
SİMGELER VE KISALTMALAR	IX
1 GİRİŞ.....	1
1.1 Çalışmanın Amacı.....	1
1.2 Temel Bilgiler.....	1
1.3 BGO Kristali ile Yapılan Daha Önceki Çalışmalar.....	2
2 TEMEL TEORİ.....	4
2.1 Lüminesans Nedir?.....	4
2.2 Uyarılma Yöntemlerine Göre Lüminesans Çeşitleri.....	6
2.2.1 Radyolüminesans.....	6
2.2.2 Katodolüminesans	6
2.2.3 Fotolüminesans.....	7

İÇİNDEKİLER (devamı)

	<u>Sayfa No</u>
2.2.4 Optik Uyarmalı Lüminesans.....	7
2.2.5 Tribolüminesans.....	7
2.2.6 Elektrolüminesans	7
3 TERMOLÜMINESANS TEORİ.....	8
3.1 Termolüminesans (TL)	9
3.1.1 Birinci Derece Kinetik.....	12
3.1.2 İkinci Derece Kinetik.....	15
3.1.3 Genel Derece Kinetik.....	18
3.1.4 Tuzak ve Yeniden Birleşme Merkezleri.....	22
3.1.5 Doğrudan ve Dolaylı Yeniden Birleşme.....	24
4 MATERYAL VE METOD.....	28
4.1 Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂ Kristalinin Özellikleri.....	28
4.2 Malzemenin Hazırlanışı.....	29
4.3 RA'94 Reader-Analyser Termolüminesans Sistemi.....	30
4.4 X IŞINI TÜPÜ.....	32
5 SONUÇLAR VE YORUM.....	34
KAYNAKLAR	46

ŞEKİL LİSTESİ

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa No</u>
2.1	Basit lüminesans modeli
2.2	Farklı bant boşluğuna sahip malzemelerde lüminesans
2.3	Fluoresans ve fosforesans
2.4	Fosforensans olayına bir örnek
3.1	Termolüminesans mekanizması
3.2	Termolüminesansın ışıma eğrisi
3.3	Sıcaklık ve termolüminesans şiddeti arasındaki bağıntı
3.4	Birinci derece kinetik (I) ve ikinci derece kinetik (II) için ışıma eğrisi
3.5	Değişik kinetik dereceler arasında gerçekleşen farklı süreçler.
3.6	Yarıiletken ve yalıtkanlarda elektronlar ve deşikler için bazı olası geçişler
3.7	Yarıiletken ve yalıtkanlarda elektron ve deşik tuzaklama düzeyleri içeren enerji bant diyagramı
3.8	a) Doğrudan bant aralık geçişi b) Dolaylı bant aralıklı geçişi
3.9	Termolüminesans için basit iki-düzey modeli
4.1	$\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristali
4.2	RA'94 Reader-Analyser TLD sistemi
4.3	Bir X ışını tüpünün genel yapısı
4.4	X ışını tüpü

VII

5.1	300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış saf $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları	38
5.2	300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,3 wt Nd ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları	39
5.3	300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,4 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları	40
5.4	300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,54 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları	41
5.5	300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,7 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları	42
5.6	300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,9 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları	43
5.7	300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %1,1 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları	44
5.8	300 Gy X-ışınına maruz bırakılan %0,7 wt Nd ve 3 ppm Eu ile katkılandırılmış BGO örneğinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumu	45

VIII

5.9	600 Gy X-ışınına maruz bırakılıp 2 °C/s ısıtma hızı ile alınmış farklı örneklerle ait TL spektrumları	45
------------	---	-----------

TABLO LİSTESİ

<u>Tablo</u>		<u>Sayfa No</u>
4.1	BGO kristaline yapılan Nd ve Eu katkı seviyeleri	30
5.1	İşmada kullanılan BGO örnekleri	35

SİMGELER VE KISALTMALAR

<u>Simgeler</u>	<u>Açıklama</u>
τ	Termodinamik açıdan T sıcaklığında geçen ortalama zaman
E	e ile tuzak derinliği arasındaki enerji farkı (aktivasyon enerjisi)
s	Frekans faktörü
k	Boltzman sabiti
p	tuzaktan kaçma olasılığı
T	mutlak sıcaklık
I_t	fosforesans yayınım şiddeti
n	materyaldeki tuzaklanmış elektron sayısı
n_0	t_0 anında tuzaklanmış elektron sayısı
s^n	üssel faktör
β	lineer ısıtma hızı
T_M	maksimum sıcaklık
S	ışığın toplam integrali
b	kinetik derece
D_c	elektronlar için dekolaze bant
D_h	deşikler için delokalize bant.
n_r	tuzaklanmış yüklerin yoğunluğu
p_r	tuzaklanmış yüklerin yoğunluğu
A_r^n	Elektronlar için yeniden birleşme katsayısı
A_r^p	Deşikler için yeniden birleşme katsayısı

1.GİRİŞ

1.1 Çalışmanın Amacı

Bu çalışmanın amacı saf ve çeşitli nadir toprak elementleri ve metal iyonları ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) kristalinin termolüminesans (TL) özelliklerinin incelenmesidir.

1.2. Temel Bilgiler

BGO tek kristali yüksek yoğunluğa (7 g/cm^3) ve kısa bozunma zamanına (300 ns) sahip olduğu için parçacık sintilasyon dedektörlerinde, doğrusal olmayan optik aletlerde, nadir toprak iyonları ile katkılandırıldığında katıhal lazerlerinde ve dalga kılavuzlarında geniş uygulama alanı bulmaktadır. Yüksek efektif atom numarasına ve yoğunluğa sahiptir. Yapılan son çalışmalar da BGO nun radyasyon hasarını ve dengesizliğini azaltacak uygun dopantların (katkı elementlerinin) bulunduğunu belirtilmektedir.. Bu safsızlıklar BGO nun uygulamalarında ve optiksel özelliklerinde önemli bir rol oynamaktadırlar. [1].

BGO aynı kübik yapıya ve 43m nokta simetrisine sahip eulytine $\text{Bi}_4\text{Si}_3\text{O}_{12}$ minerali ile izomorftur [2]. BGO optoelektronikte kullanılmasının yanı sıra lüminesans uygulamalarında geniş çapta kullanılmaktadır. Her bir uygulama türü için, kristal içindeki kusur yapıları ile ilgilenilir. Bununla birlikte, malzemedeki kusur yapıları özellikle de lüminesans oluşumuna katkıda bulunanlar ile ilgili yine de bilinmeyenler vardır. Termolüminesans boyunca alınan emisyon spektrumları malzemenin kusur yapıları hakkında son derece önemli bilgiler sağlamaktadır. Yüksek hassasiyete sahip bu teknik saf malzemedен gelen sinyaller üzerinde safsızlık iyonlarının etkisini çözme konusunda oldukça elverişlidir [3-6]. Bu yüzden bu çalışmada X-ışını ile aşılınmış saf ve katkılandırılmış BGO tek kristalinin 50-400°C arasındaki termolüminesans spektrumları farklı ışınlama süreleri ve farklı ısıtma hızları kullanılarak incelenmiştir.

1.3. Bi₄Ge₃O₁₂ Kristali ile Yapılmış Önceki Çalışmalar

Bu kısımda birçok farklı çalışmaya konu olan Bi₄Ge₃O₁₂ kristalinin termolüminesans özelliklerinin incelendiği bazı çalışmalara başlangıçtan bu yana kısaca değinilecektir.

Saf BGO tek kristaline ait ilk TL spektrumları 1985 yılında Melcher tarafından alınmıştır. Bu çalışmada TL spektrumları örneklerin civa lambasından elde edilen ultraviyole, ²⁴¹Am kaynağından elde edilen γ -radyasyonu ve güneş ışığına maruz bırakılması sonucu 8 °C/s ısıtma hızı ile 30-400 °C sıcaklık aralığında elde edilmiştir. Elde edilen TL spektrumlarında 115, 150 ve 150 °C de pikler gözlenmiştir [7]

BGO tek kristaline ait düşük sıcaklık (12-295 K) TL spektrumları ilk kez 1985 te Dieguez ve arkadaşları tarafından yapılan çalışmada yayınlanmıştır. BGO kristaline ait radyolüminesans (RL), fotolüminesans (PL) ve termolüminesans (TL) spektrumlarının alındığı çalışmada, TL ölçümleri öncesinde örnekler 12 K de 2 saat boyunca X-ışınına maruz bırakılmıştır. Elde edilen spektrumda 22, 30, 41, 61, 103, 141 ve 192 K de yedi tane TL piki tespit edilmiştir.. Tüm pikler için toplan pik alanı metodu ile E (eV) ve s (s⁻¹) parametreleri hesaplanmıştır [6].

1991 yılında Lecoq ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada farklı bölgelerde ve farklı metotlarla üretilmiş toplam 49 adet BGO kristali kullanılmıştır. Örneklerin farklı dozlarda UV, γ ve β radyasyonuna maruz bırakılması sonucu 5 °C/s ısıtma hızı ile TL spektrumları alınmıştır. 100, 110, 125, 155 ve 170 °C de gözlenen TL piklerinin tuzak karakterizasyonunu belirlemek amacıyla başlangıç artışı metodu kullanılarak tuzak parametreleri hesaplanmıştır [8].

Farklı nadir toprak iyonları ve metaller ile katkılandırılmış BGO örneklerinin oda sıcaklığı üzerinde TL piklerinin şiddetinin ışınlama dozu, ışınlama süresi ve safsızlık varlığı ile değiştiğini gösteren bir çalışma 1994 yılında Raymond ve arkadaşları tarafından yapılmıştır. 75, 110-135, 185, 220 ve 285 °C de TL piklerinin gözlemlendiği çalışmada, safsızlıkların oksijen boşluk kusurları gibi içsel kusurlar ile yakından ilgili olduğu, geçiş ve metal iyonlarının farklı pozitif yüklü iyon merkezlerine yerleştiği ileri sürülmüştür [4].

γ radyasyonunun saf ve Fe ve Al ile katkılandırılmış BGO kristallerinin TL spektrumlarını nasıl etkilediğini gösteren bir çalışma 1993 yılında Sabharwal ve arkadaşları tarafından yapılmıştır. Faklı oranlarda Bi₂O₃ kullanılarak hazırlanan saf BGO örneklerinde 106, 155 ve 222 °C de TL pikleri gözlenirken Fe ile katkılandırılmış

olanda 100-105 °C, Al ile katkılandırılmış olan da ise 125 °C de TL pikleri elde edilmiştir [9].

BGO tek kristalinin 7-2400 Gy doz aralığında X-ışınına maruz bırakılıp düşük sıcaklıkta (18-290 K) şiddet ile dalga boyu ve sıcaklık arasındaki ilişkiyi gösteren 3-boyutlu TL spektrumu alınmıştır. 400-800 nm arasında incelenen spektrumda 500 nm de geniş bir luminesans bandı gözlenirken 85, 115, 150 ve 200 K de dört tane TL piki gözlenmiştir [10].

2000 yılında Jazmati ve arkadaşları tarafından yapılan çalışmada Er^{+3} , Eu^{+3} , Sm^{+3} ve Nd^{+3} ile katkılandırılmış BGO örnekleri dalga kılavuzu üretebilmek için düşük sıcaklıkta He^+ iyonları ile aşılamlıdır.. Aşılamanın sebep olduğu kusurlar dalga kılavuzu içindeki nadir toprak iyonlarının luminesans spektrumlarını genişletmiştir. Bu genişleme ile nadir toprak iyonlarının büyüklüğü arasında bir bağlantı görülmüştür. Nadir toprak iyonları ile katkılandırılmış BGO örneklerinin He^+ ile aşılama sonucu yapıda gerilme ve kusurlar oluştuğu saptanmıştır [2].

BGO kristalinin düşük sıcaklık (20-290 K) TL spektrumları üzerinde nadir toprak iyonlarının ve geçiş metal iyonlarının etkisini incelemek amacıyla 2000 yılında Raymond tarafından yapılan çalışmada saf ve katkılandırılmış BGO örnekleri kullanılmıştır. 3-boyutlu olarak elde edilen spektrumlarda saf BGO için 54, 105 ve 141 K de elde edilen TL pikleri nadir toprak iyonlarının etkisi ile büyük ölçüde değişmiştir [3].

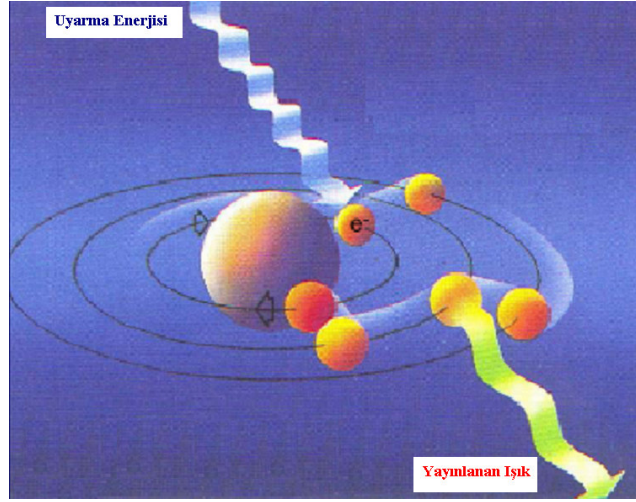
Sintilatör uygulamalarında kullanılabilen BGO tek kristalinin luminesansı üzerinde Eu^{+3} iyonunun etkisini incelemek amacıyla RI, PL ve TL spektrumları alınmıştır. TL ölçümleri için örnekler yaklaşık olarak 10 Gy lik X-ışınına maruz bırakılıp 20-480 °C aralığında 1 K/s lik ısıtma hızı ile ısıtılarak TL spektrumları elde edilmiştir. Saf BGO da 110 °C de ana bir TL piki elde edilirken, Eu ile katkılandırma sonucu 40-50, 90 ve 170 °C de yeni TL pikleri gözlenmiştir [5].

Saf BGO kristali, UV veya β radyasyonuna maruz bırakılıp, 20-200 °C aralığında ısıtılarak TL spektrumu alınmıştır. Söz konusu spektrumda 61 ve 90 °C de gözlenen pikler için kinetik merteye (b), aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörünü (s) T_m-T_{stop} , başlangıç artış metodu ve pik maksimum metodu ile hesaplanmıştır [11].

2. TEMEL TEORİ

2.1. Lüminesans Nedir?

Radyasyon malzeme üzerine geldiğinde, malzeme bu radyasyonun bir kısmını soğurur, ve daha uzun dalgaboylu bir ışık olarak geri yayınlar (Stoke's kanunu). Uyarılmış seviyelerden düşük enerji seviyesine ya da taban seviyesine geçiş sonucu oluşan bu elektromanyetik radyasyon yayılımına lüminesans denir (Şekil 2.1). Lüminesans olayı yarıiletken veya yalıtkan malzemelerde gözlenir. Örneğe verilen ısı ya da ışıkla elektronlar tuzaklardan çıkar ve lüminesans merkezlerine ulaşır. Bu süreç sonucunda merkezlerdeki yeniden birleşmeler sayesinde görünür bölgede bir ışıma oluşur.

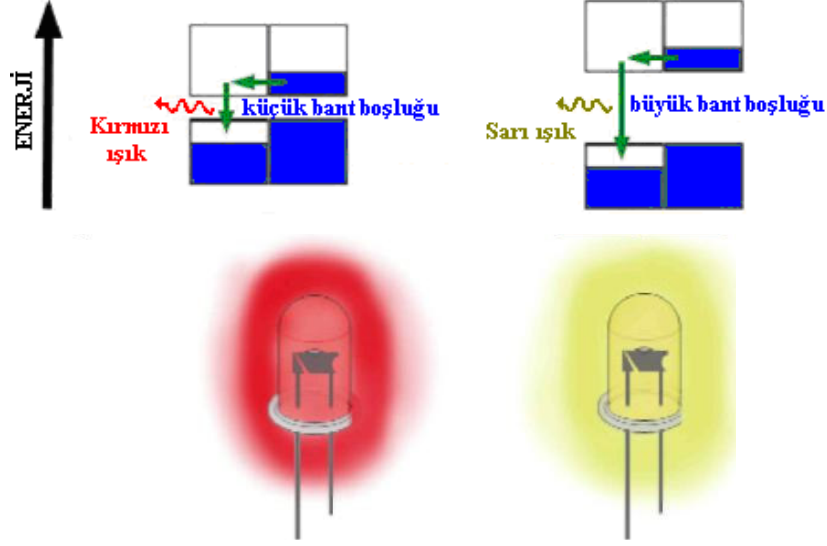


Şekil 2.1. Basit lüminesans modeli

Radyasyon ile ışınlama boyunca kristal örgüye aktarılan enerji kristaldeki elektronları uyaracak ve lüminesans merkezlerinde tuzaklanmasına sebep olacaktır. Bazı malzemelerde bulunabilecek olası lüminesans merkezleri şunlardır:

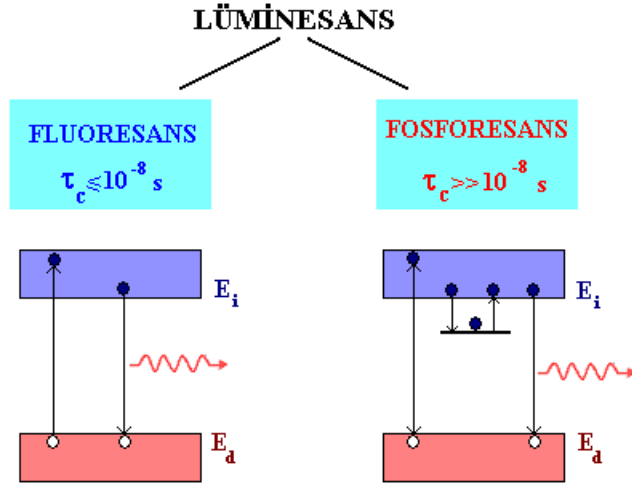
- Geçiş metal iyonları (Mn^{+2} , Cr^{+3} , Fe^{+3} , ...)
- Nadir toprak elementleri (Tb^{+3} , Eu^{+3} , ...)
- Ağır metaller (Pb^{+2} , Tl^{+} , ...)
- Elektron-boşluk merkezleri (S_2^- , O_2^- , F-merkezleri)
- Yerdeğiştirmeler, kümeler, ...

Malzemelerin sahip olduđu bant boşluđuna göre yayınlanan ışığın dalgaboyu farklılık gösterecektir (Şekil 2.2).

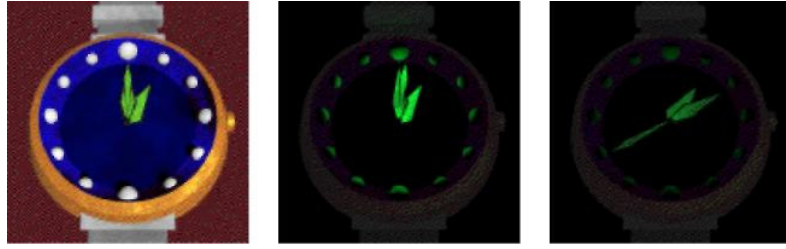


Şekil 2.2. Farklı bant boşluđuna sahip malzemelerde lüminesans

Lüminesans süresi elektronların bir seviyeden başka bir seviyeye geçiş süresi ile belirlenir. Yayınlanma ömrü olarak bilinen bu zaman τ_c ile gösterilir ve malzemeye özgüdür. Foton emisyonu uyarılmış bir seviyeden taban duruma olan direkt bir geçişten kaynaklandığında meydana gelen ve 10^{-8} s veya daha kısa süren lüminesans **fluoresans** olarak isimlendirilir. Uyarma durdurulduktan sonra devam eden lüminesans ise **fosforesans** adını alır. Bu tür özellik gösteren malzemelere verilen genel isim “fosforlar”dır. Fosforların lüminesansı yaklaşık 10^{-7} s den başlayıp dakikalar hatta saatlerce sürebilir. Dolayısıyla yayınlanma ömrüne göre, şekil 2.3 te gösterildiđi gibi, lüminesans ikiye ayrılabilir [12,13].



Şekil 2.3. Fluoresans ve fosforesans



Şekil 2.4. Fosforensans olayına bir örnek

2.2. Uyarılma Yöntemlerine Göre Lüminesans Çeşitleri

2.2.1. Radyolüminesans (RL)

Uyarılma X-ışınları gibi yüksek enerjili ışınlar tarafından gerçekleşiyorsa bu olaya radyolüminesans denir. X-ışını yardımıyla oluşan lüminesans birincil radyasyon fotonlardan meydana gelmesine rağmen uyarılma, soğurulma yoluyla üretilen hızlı ikincil elektronlar yardımıyla olur.

2.2.2. Katodolüminesans (CL)

Lüminesans olayı elektronlarla gerçekleşiyorsa bu olaya katodolüminesans denir. Yüksek enerjili elektron demeti katıya yani yarı iletkenine çarparsa % 90 civarında katıya girer ve bağlı elektronları koparır. Koparılmış elektronlar başka elektronların koparılmasına neden olur.

2.2.3. Fotolüminesans (PL)

Lüminesans; uyarılmış bir sistemin bir ışık kuantumunun yayınlanmasıyla temel haline geri dönmesi sonucuyla oluşur. Fotolüminesansta uyarılma yolu ışığın soğurulmasıyla olur.

2.2.4. Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL)

Bir maddenin atom ve ya molekülleri, o maddenin enerji almasıyla uyarılır ve kararsız hale geçer. Uyarılan atom ve moleküller kazandıkları bu fazla enerjiyi atarak temel hale geçmeyi isterler. Temel hale geçerken bir ışık yayılması meydana gelir. Bu yayılım olayına daha önce söz edildiği gibi lüminesans adı verilir. Uyarma amacıyla ışık kullanılıyorsa buna optik uyarmalı lüminesans denir.

2.2.5. Tribolüminesans

Esnetilerek, kırılarak ve ya koparılarak ayrılan yüzeylerde, ayrılan yüzeyler arasında ince hava tabakası içinde iki yüzey arasında zıt yüklerin üretilmesi nedeniyle elektrik boşalması oluşur. Malzemenin parçalanması yöntemi içinde, harcanan mekanik enerji uyarılma enerjisini sağlar ve karanlık içinde gözlenebilen bir kızarıklığa neden olur. Bu olaya da tribolüminesans denir.

2.2.6. Elektrolüminesans

Malzemeye elektrik alanın uygulanmasıyla elde edilen lüminesans yöntemidir. Hava moleküllerinin uyarılması sonucunda elektrik boşalmasıyla enerjili elektronların oluşmasına neden olur. Aydınlanma olmamakla birlikte hava içerisinde sadece parıldamalar gözlemlenir [12].

3. TERMOLÜMINESANS (TL) TEORİSİ

Termolüminesansın bilimsel olarak ilk verileri 1663 te Robert Boyle tarafından elde edilmiştir. Boyle, elması avucunun içerisinde ısıttığı zaman, parlaklığı karanlık bir odada kolaylıkla görülen ışık biçiminde dağıldığını gözlemlemiştir. 1676 da Elsholtz fluospar minerali ile benzer bir etkiyi gözlemlemiştir. Uygulamalı fizikteki etkinin günümüzdeki kullanımı Wisconsin Üniversitesi'nde Farrington Daniels'in çalışmalar sonucunda ortaya çıkmıştır [14].

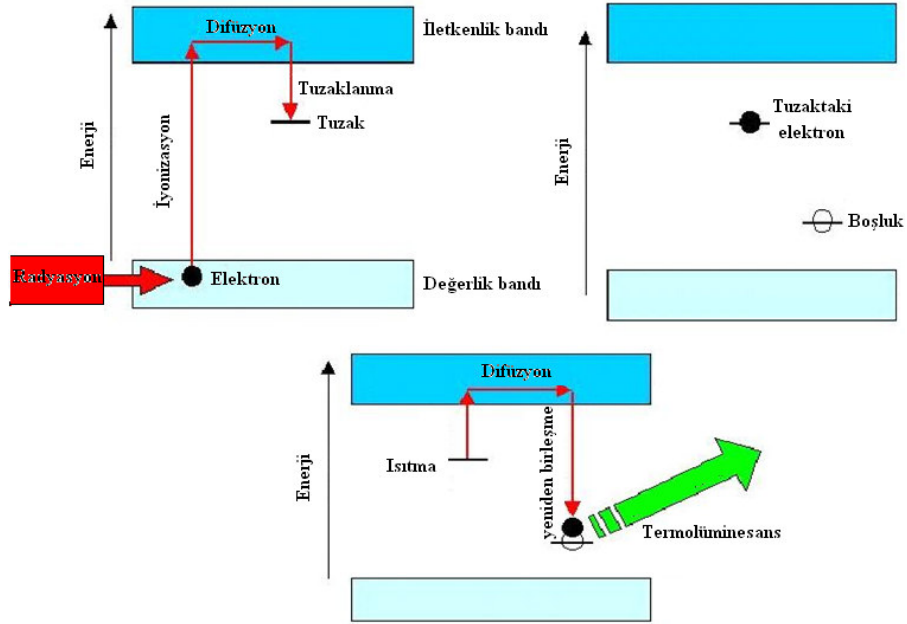
Radyoaktivitenin keşfinden hemen sonra, radyum ışması altındaki fluorit kristalindeki TL olayı ilk olarak Becquerel tarafından tespit edilmiştir [15]. Wiedeman ve Schmidt doğal radyoaktivitenin minerallerin TL özelliklerine etkisini fark etmişlerdir [16]. Doğal fluoritteki TL olayının jeolojik araştırmaları ilk olarak Steinmentz ve Gisser tarafından gerçekleştirilmiştir. Steinmentz ve Gisser ayrıca TL spektrumları yardımı ile fluorit minerali çeşitlerini sınıflandırmaya çalışmışlardır. Devam eden süreçte birçok bilim adamı kaya tuzu, NaCl, kuvars ve kalsiyum gibi minerallerin termolüminesans özelliklerini incelemişlerdir. Bu zaman boyunca yayılan termolüminesansın tayfı ile ilgili ilk eksiksiz çalışma 1905'te Morse tarafından yapılmıştır. Morse bu çalışmasında, CaF_2 mineralini kullanmıştır [17]. 1940 lara gelindiğinde TL sayesinde birçok olaya genel ve anlaşılabilir bir açıklama getirildi. Randall ve Wilkins (1945), fosforesans ile TL arasındaki temel benzerliği görüp, kristal örgüdeki elektron tuzakları modelini kullanarak her iki olayı da açıklamıştır. 1940 ların sonunda radyasyon ölçümlerini yapmak için TL'i ilk kullanan Daniels ve arkadaşları olmuştur. Daha çok jeolojik numune ve alkali halojenlerin TL özellikleri üzerinde çalışmışlardır. Fotoçoğaltıcıların icadından sonra 1953 yılında termolüminesans Daniels tarafından, maruz kalınan nükleer radyasyon miktarının ölçülmesinde kullanılmıştır [18].

Günümüzde termolüminesans (TL) yöntemi, dozimetrik materyallerin incelenmesi, tuzak parametrelerinin belirlenmesi gibi çalışmalarla birlikte tıp alanında teşhis ve tedavide de yaygın olarak kullanılmaktadır. Fiziksel bir teknik olarak TL olayının dozimetrik amaçlarla radyasyon işlemlerinde uygulama alanları şu şekilde verilebilir:

- a) Tıpta, kanserli dokuya verilen soğurulma dozunun doğruluk derecesinin tayininde,
- b) Yıllık çevresel doğal radyasyonun saptanmasında,
- c) Yariletken malzeme araştırmalarında,
- d) Arkeolojik ve jeolojik örneklerin yaş tayininde kullanılmaktadır [19].

3.1. Termolüminesans (TL)

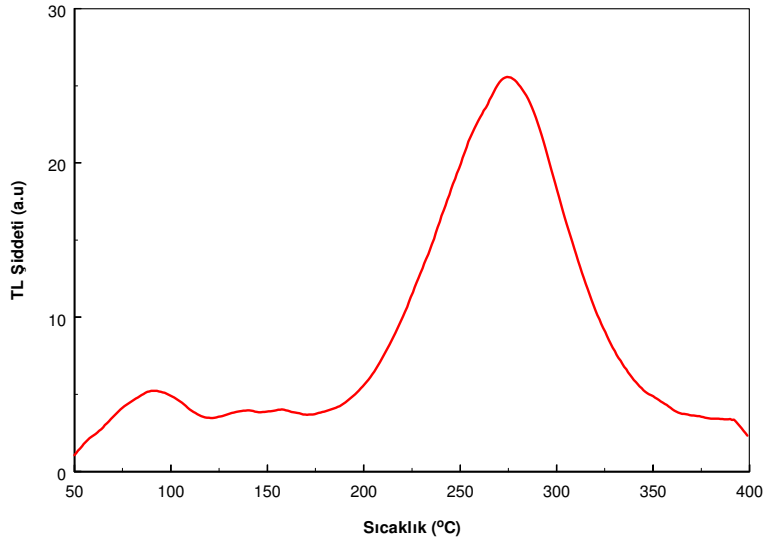
Bazı maddeler alfa, beta, gama, X-ışını gibi radyasyona maruz kaldıklarında bünyelerinde bir miktar enerji depolarlar. Bu enerjinin soğurulması onların yapısında kararsızlığa neden olur. Bu enerji depolanmasından dolayı, değerlik bandındaki serbest elektronlar, direk olarak iletkenlik bandına geçebilirler. Buradaki elektronlar serbestçe dolaşabilir veya bazı nedenlerle kristal yapı içinde oluşan tuzaklara yakalanabilirler. Tuzaklardan kurtulmak için yeterli enerjiyi bulanlar lüminesans merkezlerinde boşluklarla birleşip fazla enerjiyi UV veya görünür ışığa dönüştürebilirler. Malzemenin belli bir sıcaklığa kadar sabit bir hızla ısıtılmasıyla kristal içerisinde bulunan elektron tuzaklarının boşaltılması sonucu ışık yayınlanmasına termolüminesans (TL) denir (Şekil 3.1). Başka bir deyişle termolüminesans, uyartım kaynağı durdurulduktan sonra ısı uyartımıyla ışık yayılımıdır.



Şekil 3.1. Termolüminesans mekanizması

TL deneylerinde, fosferasansın düşük olduğu sıcaklıklarda ısınlama yapılır ve bunun ardından fosferasansın parlak olduğu sıcaklık değerine kadar ısıtılır. Isı ile uyartılmış bütün yükler örneği yarı-kararlı düzeylerinin dışına uyardır ve belirli bir süre sonra lüminesans tamamen kaybolur. 300 °C sonra gözlenen ışık şiddeti, örnek ve/veya ısıtıcıdan gelen (kırmızı ötesi) siyah cisim ışımasından kaynaklanmaktadır [20].

Tuzaklanmış bir elektron kristaldeki ısısal titreşimlerle çıkarılabilir. Sıcaklık miktarı arttıkça daha derin tuzaklardaki elektronların çıkarılma olasılığı artmaktadır. Elektron tuzaklarının boşaltılması sırasında yayılan lüminesans sinyali sıcaklığın bir fonksiyonu olarak kaydedilir. Karakteristik TL sinyali “ışma eğrisi” (glow curve) olarak adlandırılır (Şekil 3.2). Her bir malzemenin ayrı bir parıldama eğrisi vardır. O yüzden parıldama eğrileri malzemeler için karakteristiktir. Yayınlanan ışığın miktarı kullanılan kristalin cinsine, iyonlaştırıcı radyasyondan yayınlanan radyasyon miktarına bağlıdır. Yayınlanan ışık miktarı soğurulan ışık miktarı ile doğru orantılıdır.



Şekil 3.2. Termolüminesans ışıma eğrisi

Grafikte pikin en yüksek olduğu noktadaki sıcaklık, tuzak derinliğine (E) bağlıdır. Birden fazla pikin bulunması ayrı tuzakların bulunduğunu ve bu tuzakların, E ve s değerleriyle belirli bir sıcaklıkta aktive edildiklerini göstermektedir. Her bir pikin altında kalan alan doldurulan tuzakların sayısı ile ilişkilidir.

TL ışıma eğrisi düzgün sürekli bir eğri görünümündedir. Bu eğri, farklı düzeylerde tuzaklanmış elektronların ısı ile serbest kalmasından türetilmiş üst üste bir çok sayıdaki pikin birleşiminden oluşabilmektedir. Derin tuzaklardaki elektronun ömrü, sık tuzaklardaki elektronların ömürlerine göre daha uzundur. Genelde, tuzakların 200 °C den düşük ışıma pikleri dozimetre uygulamaları için kullanışlı değildir. Bunun nedeni elektronların çevresel sıcaklıklara maruz kaldıklarında bu tuzaklardan kurtulabilme

olasılıklardır [17]. Dozimetrik ölçüm için 300°C ya da daha yüksek sıcaklıklarda oluşan kararlı ısı eğrileri uygundur [21].

TL ölçümlerinde önemli diğer bir sorun ise termal sönümlemedir. Termal sönümlemenin sebebi (yüksek sıcaklıklarda lüminesans verimindeki azalma) ışınlı (radyatif) geçişlerle yarışan ışınlı olmayan (radyatif olmayan) geçişlerin olasılığının artmasıdır. Çünkü ısıtma hızındaki artış TL ışıma pikinin sıcaklığının artması demektir. Sıcaklıktaki bu kaymadan ışınlı olmayan geçişlerin katkıları sorumlu olacaktır. Herhangi bir TL dozimetre materyalinde meydana gelen termal sönümleme yüksek sıcaklıklarda düşük sıcaklıklarda olduğundan daha fazladır [22].

Termodinamik açıdan T sıcaklığında geçen ortalama zaman;

$$\tau = s^{-1} \exp(E / kT) \quad (3.1)$$

şeklinde olacaktır. E , e düzeyi ve m (tuzak derinliği) arasındaki enerji farkı, s sabit bir değer ve k ise Boltzmann sabitidir. Sonuç olarak fosforesans süreci sıcaklığa üssel biçimde bağlıdır. Herhangi bir anda fosforesans yayılım şiddeti $I(t)$ yeniden birleşmelerin değeriyle orantılıdır ($e - g$ geçiş değeri).

E termal aktivasyon enerjisi tuzaklanmış yük taşıyıcılarını serbest hale getirmek için gereken enerjidir. Buna “Tuzak derinliği” de denilmektedir. Birim zaman içinde tuzaktan kurtulan tuzaklanmış elektron sayısı başka bir deyişle, tuzaktan kaçma olasılığı;

$$p = s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.2)$$

E = eV olarak tuzak derinliği

k = Boltzmann sabiti

T = mutlak sıcaklık (K)

s = frekans faktörü (s^{-1}), potansiyel kuyu olarak düşünülür. s ' nin maksimum değeri örgü titreşim frekansına uygun olarak 10^{12} - $10^{14} s^{-1}$ gibi bir değerdir.

T sıcaklığında yarı-kararlı düzeydeki yük taşıyıcılarının τ ömür süresi

$$\tau = p^{-1} \quad (3.3)$$

Buradaki temel yaklaşım, tuzaktan serbest kalan hiçbir elektronun yeniden tuzaklanmayacağıdır ve bu da birinci dereceden kinetik olarak adlandırılır. Sıcaklık sabit olmak üzere, materyaldeki tuzaklanmış elektron sayısı n , aşağıdaki ifadeye göre zamanla azalacaktır.

$$\frac{dn}{dt} = -pn \quad (3.4)$$

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n} = \int_{n_0}^n s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dt \quad (3.5)$$

$$\ln n - \ln n_0 = -s \cdot t \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.6)$$

$$\ln\left(\frac{n}{n_0}\right) = -s \cdot t \cdot \exp\left(\frac{E}{kT}\right) \quad (3.7)$$

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

elde edilir. Burada n_0 , t_0 anında tuzaklanmış elektron sayısınıdır.

3.1.1 Birinci Derece Kinetik

1945 yılında Randall ve Willkins, ışıma eğrisindeki her bir pik için kapsamlı matematiksel tanımlamalar kullanmışlardır. Bu matematiksel yaklaşımı yaparken de şu varsayımları yapmışlardır:

- i- Işınlama herhangi bir elektronun serbest kalmayacağı kadar düşük sıcaklıkta yapılmaktadır.
- ii- Isıtma işlemi sıcaklık artış hızı lineer olacak şekilde gerçekleştirilmektedir.

Bu teori birinci derece kinetik ve tek tuzak derinliđi olarak kabul edilir. Böylece herhangi bir sıcaklıkta doğrudan yeniden tuzaklanma oranına bađlı olan TL şiddeti, I , şöyle ifade edilir;

$$I = -c\left(\frac{dn}{dt}\right) = cpn \quad (3.9)$$

$$I(t) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-st \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right] \quad (3.10)$$

Lineer ısıtma hızı $\beta = dT / dt$ olarak alınırsa;

$$\int_{n_0}^n \frac{dn}{n} = -\left(\frac{s}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT' \quad (3.11)$$

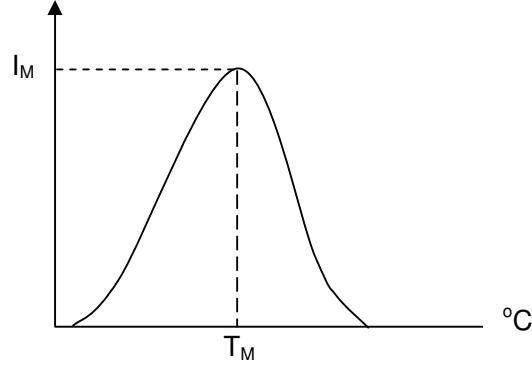
elde edilir. Denklem 3.11 çözüldüğünde,

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

elde edilen çözüm denklem 3.9 da yerine yazılırsa,

$$I(T) = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kt}\right) dT'\right] \quad (3.12)$$

Bu ifade nümerik integrasyon yoluyla çözülrse, çan eğrisi biçiminde bir eğri elde edilecektir. Şekil 3.3 te denklemin çözümünden elde edilen eğri görölmektedir. Grafikte göröldüğü gibi maksimum şiddete, karakteristik T_M sıcaklığında erişilmektedir.



Şekil 3.3. Sıcaklık ve termolüminesans şiddeti arasındaki bağıntı

T_M , tuzaklanmış elektronların başlangıç konsantrasyonundan (n_0) bağımsızdır.

$T=T_M$ olması durumunda $\frac{dI}{dT} = 0$ olması şartıyla önemli bir bağıntı elde edilecektir.

Pratik amaçlar için, logaritmik türev alınırsa:

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

Denklem 3.12 nin doğal logaritması alınırsa

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

elde edilir. Buradan,

$$\left[\frac{d(\ln I)}{dT} \right]_{T=T_M} = \frac{E}{kT_M^2} - \frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) = 0$$

$$\frac{\beta E}{kT_M} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \quad (3.13)$$

bağıntısı elde edilecektir. Denklem 3.13 ten şu önemli sonuçlar elde edilebilir:

i- Sabit ısıtma oranında, T_M yüksek sıcaklara doğru kaydığında E artar yada s azalır.

ii- Bilinen bir tuzak için (E ve s sabit) T_m ısıtma hızının artırılmasıyla birlikte T_m daha yüksek sıcaklık değerlerine çıkar.

iii- T_m , n_0 'dan bağımsızdır.

iv- Işığın toplam integraline, S denilirse

$$S = \int_0^{\infty} I dt = -c \int_0^{\infty} \frac{dn}{dt} dt = -c \int_{n_0}^0 dn = cn_0 \quad (3.14)$$

elde edilir.

S tuzaklanmış yüklerin başlangıç sayısı ile orantılı ve ısıtma çevriminden bağımsızdır. Eğer tuzaklanmış yüklerin sayısı radyasyon dozu ile orantılı ise, bu durumda S radyasyon dozuyla da orantılı olacaktır. Bu özellik radyasyon dozimetresinde oldukça önemlidir.

Böylece, birinci dereceden termoluminesans pikin $I(T)$ şiddeti denklem 3.12 de verildiği gibi olacaktır. Yayınım şiddeti; başlangıçta sıcaklıkla üstel artacak; tuzaklanmış elektronların konsantrasyonu azalırken, T_m sıcaklığında maksimum değere ulaşmış olduğunda şiddet düşmeye başlayacaktır. Tuzaklar tamamen boşaldığında da sıfıra düşecektir [23].

3.1.2 İkinci Derece Kinetik

1948 yılında Garlick ve Gibson serbest yük taşıyıcılarının serbest kaldıktan sonra tuzaklarda yeniden tuzaklanması veya TL lüminesans merkezleri ile yeniden birleşmesi ile ilgili varsayımda bulunmuşlardır. Yeniden tuzaklanmanın etkin olduğu bu durum için ikinci dereceden kinetik ifadesini kullanarak,

$$\frac{dn}{dt} = -n^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.15)$$

bağıntısını vermişlerdir. Burada yeniden birleşme olasılığı sıfırdan farklı olduğundan birinci derece kinetikten daha farklı bir sonuç elde edilir. Birinci derece kinetik

durumunda yeniden tuzaklanma olasılığı yoktur. Buradaki $s(= s / N)'$ değerine ön-üssel faktör denilir ve $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ boyutundadır. $N (\text{cm}^{-3})$ ise tuzak konsantrasyonudur.

Denklem 3.15 ten, sabit T sıcaklığı için integral alınırsa;

$$\begin{aligned} \int_{n_0}^n \frac{dn}{n^2} &= -s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \int_0^t dt \\ \frac{1}{n_0} - \frac{1}{n} &= -s' t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \\ n &= n_0 \left[1 + s' n_0 t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{-1} \end{aligned} \quad (3.16)$$

elde edilir. Elde edilen bu n değeri kullanılarak, $I(t)$ şiddeti çözümü yapılırsa;

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = \frac{n_0^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + s' n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^2} \quad (3.17)$$

$dt = dT / \beta$ olmak üzere,

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

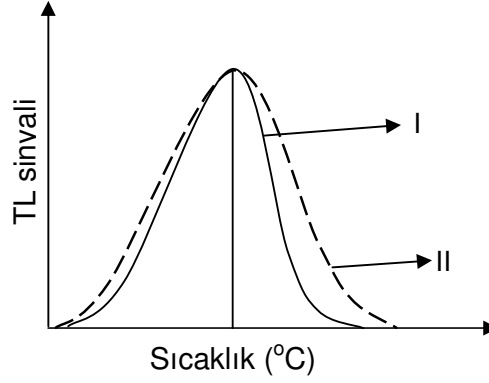
sonucu bulunur. Böylece,

$$\begin{aligned} \int_{n_0}^n \frac{dn}{n^2} &= -\frac{s'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT \\ \frac{1}{n_0} - \frac{1}{n} &= -\frac{s'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT \\ n &= n_0 \left[1 + \left(\frac{s' n_0}{\beta} \right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT \right]^{-1} \end{aligned} \quad (3.18)$$

Buna göre $I(t)$ şiddeti,

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = \frac{n_0^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \left(\frac{s' n_0}{\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^2} \quad (3.19)$$

olur. Kinetik derecenin ışıma pik eğrisine pratik etkisi Şekil 3.4 te görülmektedir. Şekilde tek tip tuzaktan elde edilen iki parlaklık eğrisi karşılaştırılmıştır.



Şekil 3.4. Birinci derece kinetik (I) ve ikinci derece kinetik (II) için ışıma eğrisi

$I(T)$ denkleminin diferansiyeli alınıp sıfıra eşitlenirse nicel etkisi görülebilir:

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

$$\left[d \left(\frac{\ln(I)}{dT} \right) \right]_{T=T_M} = -\frac{E}{kT} - 2 \frac{\frac{s' n_0}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)}{1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'} = 0$$

$$\frac{E}{kT_M^2} = 2 \frac{\frac{s' n_0}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)}{1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'} = 0$$

$$\frac{\beta E}{2kT_M^2} = \left[1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \right] = s' n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) \quad (3.20)$$

(3.20) denklemi, ilk elde edilen denklem 3.13 ten $\left[\frac{\beta E}{kT_M} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \right]$ çarpan

olarak farklıdır. T_M ikinci derece kinetik durumunda, %1 lik bir artış gösterir. Buradaki önemli fark, T_M değerinin üzerindeki sıcaklıkta oluşmasıdır. Bunun nedeni ise serbest kalan elektronların yeniden tuzaklanması nedeniyle meydana gelen ışımadaki gecikmedir. Ayrıca sabit E değerleri için, T_M sıcaklığındaki artışlar β' nin artışına veya s' nin azalışına paralel olacaktır. Sabit β değerleri için, T_M sıcaklığı doğrudan E ile orantılı olacaktır.

3.1.3 Genel Derece Kinetik

Birinci veya ikinci derece şartları uygun olmadığı durumlarda, genel derece kinetiği kullanılmaktadır. Genel derece kinetiği ampirik bir yöntem olup tuzakların enerji düzeyinin tek olduğu varsayımına dayanmaktadır.

İlk olarak tek bir enerji düzeyinde bulunan n sayıda yük taşıyıcılarının n^b ile orantılı olduğu kabul edilsin. Buradan, kaçış olasılığı $\left[\frac{dn}{dt} = -pn \right]$ ve

$$p = s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \text{ denklemlerinden}$$

$$\frac{dn}{dt} = -s^n n^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.21)$$

s^n üssel faktör olup denklem 3.21 genel derece kinetik bağıntısı olarak bilinmektedir. Bu denklemde b , $1 < b < 2$ arasındadır. Üssel faktör s^n ise $cm^{3(b-1)} s^{-1}$ ile ifade edilmektedir. Görüldüğü gibi s^n nin boyutu b nin derecesi ile değişir. $b=2$ olduğunda s^n değeri s' ye azalır. Denklem 3.21 den, TL yayınının bağıntısı bulunabilir. Denklem 3.21 i yeniden düzenlenirse:

$$\frac{dn}{n^b} = -s^n \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dt \quad (3.22)$$

$$\begin{aligned} \int_{n_0}^n n^b dn &= -\int_0^n s^n \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT \\ n^{1-b} &= n_0^{1-b} \left[1 + s^n n_0^{b-1} t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right] \\ n &= n_0 \left[1 + s(b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad s = s^n n_0^{b-1} \quad (s=s^{-1}) \end{aligned} \quad (3.23)$$

Bu durumda, s frekans faktörü verilen bir dozda sabittir ve doz ile değişecektir. $I(t)$ şiddeti şöyle verilir:

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = s^n n^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = s n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + s(b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.24)$$

Doğrusal ısıtma hızı $dT = \beta dt$ olarak alınırsa, Denklem 3.22 elde edilir.

$$\frac{n^{1-b} - n_0^{1-b}}{1-b} = -\frac{s^n}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT,$$

$$n^{1-b} = n_0^{1-b} \left[1 + \frac{s^n (b-1) n_0^{b-1}}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT \right]$$

Her ikisinden kökün türevi alınıp Denklem 3.23 deki ifade kullanılırsa;

$$n = n_0 \left[1 + \frac{s^n (b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.25)$$

$$I(T) = s n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.26)$$

elde edilir. Bu denklemde $I(T)$ şiddetine iki faktör katkıda bulunmaktadır:

- i- Üssel faktör, T ile sabit artar
- ii- Parantez içindekilerin yer aldığı faktör, T nin artışına karşılık azalır

Böylece ışıma eğrisinin deneysel olarak gözlenen çan eğrisi şekli yeniden elde edilir. b derece kinetik için maksimum yayılım şartı Denklem 2.26' dan bulunabilir. Burada birinci derece kinetik için yapılanların benzeri bir yol kullanılır.

$I(T)$ nin logaritması alınır;

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

$$\left. \frac{d\ln(I)}{dT} \right|_{T=T_M} = \frac{E}{kT_M^2} - \frac{b}{b-1} \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \right]^{-1} \frac{s(b-1)}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) = 0$$

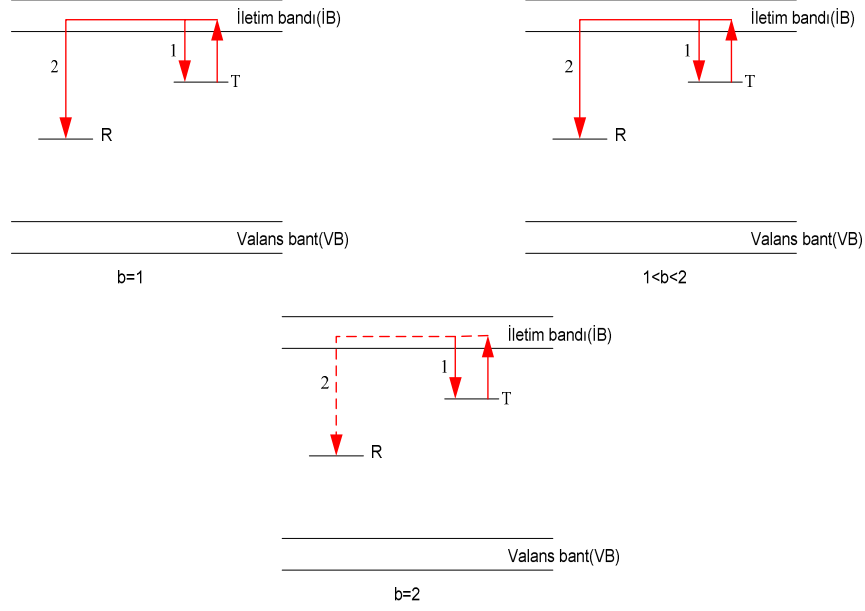
$$\frac{kT_M^2 bs}{E\beta} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) = 1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \quad (3.27)$$

elde edilir. Sonuç olarak, Denklem 3.26, 3.19 denkleminde verilen ikinci derece şartını ($b=2$) kapsar. Denklem 3.26, $b=1$ şartı için geçerli değildir, $b \rightarrow 1$ olduğunda denklem 3.12 ye indirgenir. Denklem 3.21 in tamamen ampirik bir bağıntıdır. Genel derece kinetiğe eşlik edecek fiziksel model yoktur.

3.20 ve 3.27 denklemlerinden şu sonuçlar elde edilecektir:

- Denklem 3.13' de n_0 başlangıç konsantrasyonu dahil edilmediğinden, birinci derece kinetiğe uyan pikin ışınlama dozunun fonksiyonu olarak değişmesi beklenmeyecektir.
- Buna karşılık, $b \neq 1$ için n_0 konsantrasyonunda s' nin bağımlılığında olacak ve uyartım dozunda, denklem 3.20 ve 3.27 den T_M nin doza bağlı olması beklenmektedir.

Değişik kinetik dereceler arasındaki farkı gösteren bir çizim Şekil 3.5 te görülmektedir.



Şekil 3.5. Değişik kinetik dereceler arasında gerçekleşen farklı süreçler

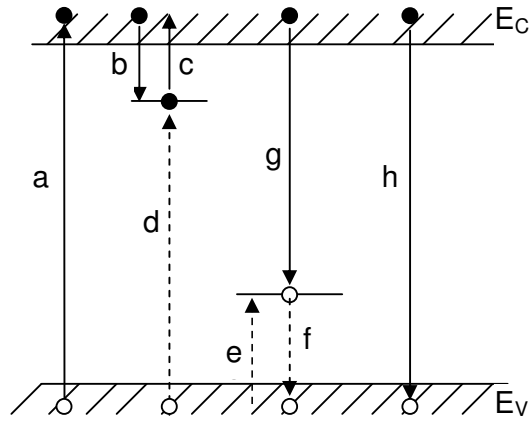
Şekil 3.5 te “1” ile işaretlenmiş yollar yeniden tuzaklanmaları, “2” yeniden birleşmeleri, “T” tuzaklama merkezlerini ve “R” ise yeniden birleşme merkezlerini ifade etmektedir.

$\tau = s^{-1} \exp(E / kT)$ eşitliği ortalama yaşam süresi τ nun sıcaklığa üssel olarak bağlı olduğunu göstermektedir. Fosforesans için, birleştirilmiş E ve T değerleri başka bir deyişle τ çok küçüktür ve lüminesans, ışınlama yapıldığında T_o sıcaklığında kolayca gözlenir. Bununla birlikte eğer tuzak yeterince derinde ise, $E \gg kT_o$ koşulunu sağlayan E ve T_o değerleri için τ çok büyük olacaktır. Bunun anlamı elektronun belirsiz süre tuzaklandığı m düzeyinde kalacağıdır. Tuzaklanmış elektronların serbest kalma değeri $dn / dt = -n / \tau$ T_o sıcaklığında çok küçük olacaktır. Eğer sıcaklık lineer olarak artırılırsa ($\beta = dT / dt$) $I(t) = n / \tau$ denklemindeki sıcaklık, lüminesansın gözlenmesine yetecek kadar büyük olacaktır.

Görüleceği gibi T artar iken τ azalır ve dolayısıyla tuzaktan kurtulan elektronlar ve yeniden birleşmeler olacağından şiddet artar.

3.1.4. Tuzak ve Yeniden Birleşme Merkezleri

Bütün lüminesans süreçlerinin temel özelliği, farklı lokalize enerji durumlarının doldurulmasındaki değişimlere dayanmaktadır. Popülasyondaki bu değişimler, bir enerji durumundan diğerine elektronik geçişlerle yapılmaktadır. Şekil 3.6 da bir yarıiletken veya yalıtkandaki elektronlar ve deşikler için bazı olası geçişler gösterilmektedir. Burada, elektronlar ●, elektron geçişleri $\longrightarrow$ ile; deşikler ○, deşik geçişleri ise $\dashrightarrow$ sembolleri ile gösterilmiştir. Ana atomdan değerlik elektronun uyarımla örgü içerisinde yeterli enerjiyle kolayca hareket edebileceği iletim bandına hareketi (a) geçişi ile gösterilmiştir. Bu durum iyonizasyon sürecine uymakta ve radyasyon gibi dış bir kaynaktan enerjinin soğurulmasıyla oluşmaktadır.



Şekil 3.6. Yarıiletken ve yalıtkanlarda elektronlar ve deşikler için bazı olası geçişler

İyonizasyon serbest elektron-deşik çiftlerinin oluşmasına neden olur. Serbest elektron-deşik çiftleri kristal yapı içerisinde kusur merkezlerine yerleşirler. Bu durumda elektron ya da deşikler tuzaklanacaktır. Şekil 3.6 da, elektronların tuzaklanması (b) geçişi ile deşiklerin tuzaklanması ise (e) geçişi ile gösterilmiştir.

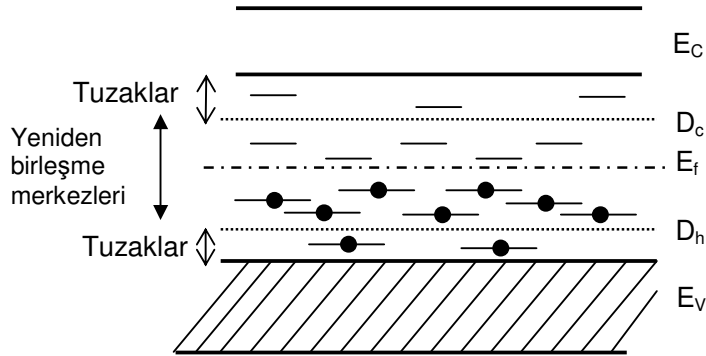
Yerleşmiş elektronlar ve deşikler, tuzaklarından optiksel ya da termal uyarma sayesinde (c) ve (f) geçişlerini yaparlar.

Serbest elektron ve deşik için ikinci bir seçenek ise, ya doğrudan (a-geçişi) ya da dolaylı olarak önceki tuzaklanmış taşıyıcılarla yeniden birleşmedir (d-geçişi ve g-geçişi).

Yeniden birleşme mekanizmalarının her ikisi de, ışığın yayılımı ile (lüminesansla) sonuçlanır.

Lokalize enerji düzeyleri tuzak ya da yeniden birleşme merkezleri gibi davranırlar. Yeniden birleşme merkezini basit bir tuzaktan ayırt etmek mümkündür. Eğer c-geçişi d-geçişinden daha yüksek olasılıkta ise, bu “merkez tuzak” olarak adlandırılır. Buna karşılık eğer d-geçişi daha yüksek olasılıkta ise bu enerji düzeyine “yeniden birleşme merkezi” denir. Benzer olarak, deşik merkezleri için de aynı durumlar geçerlidir (g-geçişi ve f-geçişi).

Bir düzeyin ömrünü veren $\tau = s^{-1} \exp(-E / kt)$ denkleminde görüleceği gibi termal olarak kendi tuzaklarından serbest kalan yük taşıyıcılarının olasılığı E/kT terimine üssel olarak bağlıdır. Verilen bir sıcaklık için, bu küçük E li merkezler, büyük E lilere göre çoğunlukla tuzak olarak davranırlar. Bunun nedeni ise yeniden birleşme merkezlerinin, yasaklanmış aralığın ortalarına doğru yerleşmeleridir. Tuzaklar ise bantların yakınlıklarına doğru yerleşmiştir. Tuzaklama ve yeniden birleşme olasılığı tuzak ve yeniden birleşme merkezi arasındaki mesafeye bağlıdır. Enerji bant diyagramında elektron ve deşik için tuzaklama merkezleri Şekil 3.7 de görülmektedir.



Şekil 3.7. Yarıiletken ve yalıtkanlarda elektron ve deşik tuzaklama düzeyleri içeren enerji bant diyagramı. D_c ve D_h sırasıyla elektronlar ve deşikler için delokalize bant.

E enerji derinliğinin merkezi, $E < D$ olduğunda burası tuzak olacak iken, $E > D$ olduğunda ise yeniden birleşme merkezi olacaktır. Çünkü tuzakların derinliği lokalize düzey ve bununla ilişkin delokalize bant (elektron için iletkenlik bandı, deşikler için değerlik bant gibi) arasındaki enerji farkını göstermektedir [24]

Yeniden birleşme merkezi ve tuzak arasındaki mesafe, merkezin enerji derinliğine bağlı değildir. Ayırma (sınırları belirleme) düzeyinin tanımlanmasından şöyle yazılabilir:

$$s_e \exp(-D_e / kT) = n_r A_r^n \quad \text{elektron için} \quad (3.28)$$

$$s_h \exp(-D_h / kT) = p_h A_r^p \quad \text{deşik için} \quad (3.29)$$

Eşitliğin sol tarafındaki terim elektron ve deşiğin ayırım düzeylerinden, birim zamanda tuzaklanmış elektronun ya da deşiklerin termal uyartım olasılığını göstermektedir. Eşitliğin sağındaki terimler ise, zıt işaretli serbest taşıyıcılarla, tuzaklanmış taşıyıcıların birim zamanda yeniden birleşmelerinin olasılığını temsil etmektedir.

Bu eşitlikte n_r ve p_r tuzaklanmış yüklerin yoğunludur. A_r^n ve A_r^p terimleri elektron ve deşikler için yeniden birleşme katsayısıdır (hacim / birim zaman).

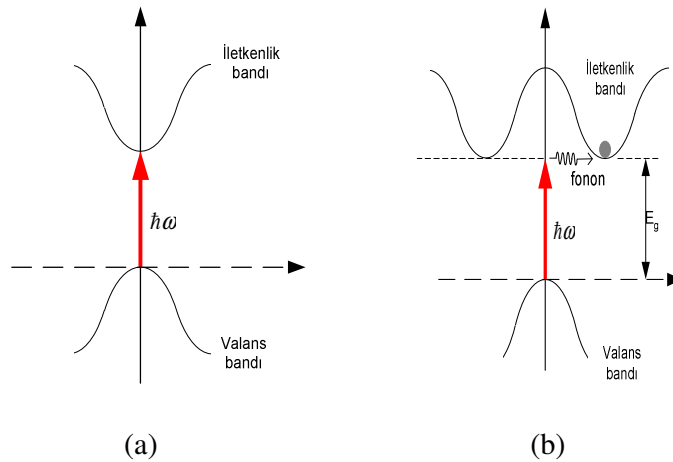
3.1.5. Doğrudan ve Dolaylı Yeniden Birleşme

Yasak bant aralığını doğrudan geçen serbest elektron ve deşiklerin yeniden birleşmeleriyle oluşan lüminesans çeşitli malzemelerde gözlenmektedir [24].

Bant-bant yeniden birleşme iki şekilde gerçekleşecektir;

i- Eğer iletim bandı minimumu ve değerlik bandı maksimumu dalga vektörünün aynı değerinde meydana gelirse geçiş, momentum transferi olmadan gerçekleşir. Başka bir deyişle, süreç daha yüksek olasılığa sahiptir. Bu sürece doğrudan geçiş denilmektedir.

ii- Eğer bant maksimum değerine farklı dalga vektöründe sahip olursa, momentum transferi gerçekleşir yani bant-bant geçişi daha düşük olasılıkta gerçekleşecektir. Bu süreç ise dolaylı geçiş olarak adlandırılmaktadır (Şekil 3.8).



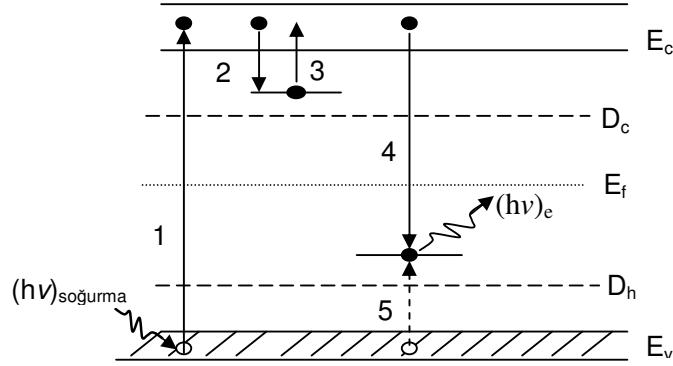
Şekil 3.8. (a) Doğrudan bant aralık geçişi, (b) dolaylı bant aralıklı geçişler

Bant–merkez yeniden birleşme mekanizması düşük sıcaklıklarda daha etkindir. Dolaylı geçişlerde uyarılmış taşıyıcının enerjisi tamamen fonon etkileşimleriyle yani ışınlı olmayan geçişle sonuçlanır.

Bant-bant	doğrudan yeniden birleşme
Bant-merkez	dolaylı yeniden birleşme

Uyarılmış elektron bant aralığına uygun enerji miktarı kaybetmelidir ve elektronun enerjisini harcamak için birçok fononun aynı anda oluşması gerekecektir. Bundan dolayı, doğrudan geçiş foton yayılımına neden olacağından ışınlıdır.

Dolaylı geçişlerde enerji harcanması bant-aralık enerjisinden çok daha az olacağından enerji gerek ışınlı (foton yoluyla) gerekse ışınlı olmayan (fonon yoluyla) şekilde harcanacaktır. Şekil 3.9 da basit iki-düzey modeli görülmektedir.



Şekil 3.9. Termoluminesans için basit iki-düzey modeli.

Burada izin verilen geçişler; 1 iyonizasyon, 2 ve 5 tuzaklama, 3 termal serbest kalma, 4 ışınlı yeniden birleşme ve ışık yayınıdır.

Elektronlar aktif taşıyıcılar olmakla birlikte benzer durum değişimleri içinde söz konusudur. Şekil 3.9 daki enerji bandı diyagramında, sadece iki lokalize düzey, delokalize düzey ile ayırım düzeyi arasında bir düzey bulunmaktadır (D_c ve E_c yada D_h ve E_h). Diğer durumlar D_c ve D_h arasına yerleştirilmiştir. Böylece bir düzey tuzak gibi davranırken diğeri yeniden birleşme merkezi gibi davranacaktır.

Diyagramda, radyasyonun soğurulmasında önce, tuzak fermi düzeyinin E_f yukarısındadır ve denge konumunda boştur. Bundan dolayı potansiyel bir elektron

tuzadır. Diğer taraftan yeniden birleşme merkezi, fermi düzeyinin altında olup, tamamen elektronla doludur ve potansiyel bir deşik tuzadır.

Soğurulan radyasyon enerjisi $(h\nu)_{abs} > E_c - E_v$ (bant – aralık enerjisinden daha büyük) değelik elektronunun iyonizasyonu sonucunda iletkenlik bandında serbest elektron ve değelik bantta ise serbest deşikler oluşur (Geçiş-1). Yeniden birleşmenin oluşabilmesi için deşikler ilk önce R merkezlerinde tuzaklanmalıdır (Geçiş 5). Yeniden birleşme serbest elektronun tuzaklanmış deşiklerin anihilasyonu ile gerçekleşir (Geçiş 4). Eğer bu modelde, yeniden birleşme ışınlı olarak kabul edilirse lüminesans oluşur. Serbest elektron T düzeyinde tuzaklanırsa (Geçiş 2), bu durumda sadece yeniden birleşme meydana gelir. Eğer tuzaklanmış elektron, iletkenlik bandına dönüşü için yeteri kadar enerji soğursa, burada yeniden birleşmeler olasıdır. Bu durumda lüminesans, tuzaktaki elektronun τ ortalama ömür geçecek süre kadar gecikir. Bu Arrhenius denklemiyle verilmiştir:

$$p = \tau^{-1} = s \exp(-E / kT) \quad (3.30)$$

p , elektronun birim zamanda tuzaktan serbest kalma olasılığıdır. Denge durumu $E \leq kT$ gibi örneğin T_0 sıcaklığı üzerine çıkarılması ile hızlandırılabilir. Böylece p yeniden tuzaklama olasılığı artacak ve elektron tuzaktan iletkenlik bandına serbest kalacaktır. Termolüminesans serbest elektronun tuzaklanmış deşiklerle yeniden birleşmeleriyle sonuçlanır.

Termolüminesansın şiddeti $I(t)$ herhangi bir anda ısıtma sırasında R düzeyindeki elektron ve deşiklerin yeniden birleşme miktarıyla orantılıdır. Eğer n_h tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonu ise,

$$I(t) = -d_{n_h} / d_t \quad (3.31)$$

olacaktır.

Sıcaklık arttığında; elektronlar serbest kalır ve yeniden birleşmeler tuzaklanmış deşiklerin konsantrasyonunu azaltır ve böylece termolüminesans şiddeti yükselir. Elektron tuzakları gittikçe boşalır ve yeniden birleşme miktarı azalır ve buna bağlı olarak termolüminesans şiddeti düşer. Bu süreç termolüminesans pikinin oluşmasına neden olur.

Genellikle bu tür deneysel çalışmalarda, sıcaklık zamanın lineer bir fonksiyonu olarak $T = T_0 + \beta t$ denkleminde uygun şekilde artar. Yayımlanmış ışığın enerjisi $(h\nu)_c$ uyartılmış düzey (burada iletkenlik bandı) ve taban seviye (yeniden birleşme merkezi) arasındaki enerji farkıyla belirlenir [20].

4. MATERYAL VE METOD

4.1. $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ Kristalinin Özellikleri



Şekil 4.1. $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristali

- BGO tek kristali yüksek yoğunluğa (7 g/cm^3) ve kısa bozunma zamanına (300 ns) sahip olduğu için parçacık sintilasyon dedektörlerinde, doğrusal olmayan optik aletlerde, nadir toprak iyonları ile katkılандırıldığında katı hal lazerlerinde ve dalga kılavuzlarında geniş uygulama alanı bulmaktadır. Yüksek efektif atom numarasına ve yoğunluğa sahiptir. Son çalışmalar BGO nun radyasyon hasarını ve dengesizliğini azaltacak uygun dopantların (katkı elementlerinin) bulunduğunu göstermektedir. Bu safsızlıklar BGO nun uygulamalarında ve optiksel özelliklerinde önemli bir rol oynar [1].
- Yüksek dedeksiyon veriminden dolayı yüksek enerji fiziği deneyleri için büyük elektromanyetik kalorimetreler içeren, medikal fizikte bilgisayarlı tomografi sistemlerinde kullanılan ve γ -ışını spektroskopik ölçümleri gibi bazı uygulamalarda γ -ışınlarının dedeksiyonu için sintilatör olarak NaI(Tl) ile yer değiştirmiştir.

- BGO tek kristali son zamanlarda yüksek enerji fiziği deneylerinde elektromanyetik kalorimetreler için nem tutmadığı ve yüksek atom numarasına sahip olduğu için büyük ilgi gören bir malzemedir.
- BGO kristalleri X-ışını ve pozitron içeren bilgisayarlı tomografi için geniş çapta kullanılmaktadır. Diğer uygulama alanları elektro-optik elektro-mekanik ve doğrusal olmayan optik aletleridir [6].
- İyon aşılınmış dalga kılavuzları, dalga kılavuzu lazerleri ve doğrusal olmayan özelliklerinden dolayı optoelektronikte yaygın olarak kullanılmaktadır.
- Yüksek mekanik ve kimyasal kararlılığı ve mükemmel lüminesans özelliklerinden dolayı sintilatör uygulamaları için uygundur.
- Aynı kübik yapıya ve 43m nokta simetrisine sahip $\text{Bi}_4\text{Si}_3\text{O}_{12}$ minerali ile izomorftur [2].
- Bizmut elementinin oksijenle birleşmesinden elde edilen üç tane oksidi vardır. Bunlar $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$, $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ ve $\text{Bi}_2\text{Ge}_3\text{O}_9$ tir [25,26].

4.2. Malzemenin Hazırlanışı

Söz konusu BGO kristallerinin katkılandırılma işlemi Çin'deki Shanghai Institute of Ceramics'de Bridgman-Stockbarger tekniği kullanılarak yaptırılmıştır. Tüm numuneler (100) şeklinde kesilmiştir. Aşağıdaki tabloda BGO numunelerine katkılandırılmış olan nadir toprak elementlerinin (RE) seviyeleri verilmiştir. Kristallerin kalitesini artırmak için ise ppm mertebesinde Eu eriyik olarak malzemeye katılmıştır.

Nd	Eu
0,3	-
0,4	3
0,54	3
0,7	3
0,9	3
1,1	3

Tablo 4.1. BGO kristaline yapılan Nd ve Eu katkı seviyeleri

4.3. RA'94 Reader-Analyser Termolüminesans Sistemi

RA94 TLD Reader-Analyser (Şekil 4.2) TL dozimetredeki incelemeler için kullanılan çok yönlü ve modern bir araçtır. Bu araç ya kendi mikroişlemcisi ile kontrol edilerek tek başına ya da bir bilgisayar sayesinde çalıştırılabilir. Tüm verileri gösterebilir ve dijital formda bir çıktı sağlayabilir. Böylece RA94 TLD Reader-Analyser orta ölçekli bir radyasyon koruma laboratuvarındaki rutin işlemler için veya TL etkilerinin bilgisayar destekli analizleri için kullanılabilir.



Şekil 4.2 RA'94 Reader-Analyser TLD sistemi

RA94 TLD Reader-Analyser farklı fosforlardaki TL olaylarının incelenmesi ve toz veya küçük pellet şeklindeki bilinen tüm TL malzemeleri ile radyasyon dozunun ölçümü için dizayn edilmiştir. Bu amaçla RA94 TLD Reader-Analyser ya el ile kontrol edilerek READER olarak ya da bir bilgisayarla birlikte programlanmış kontrol parametreleri ile READER-ANALYSER olarak çalıştırılabilir. Isıtılan TL malzemelerinden çıkan ışık sinyali uygun bir şekilde seçilmiş PM ile ölçülür. PM in çıkış akımı akım-puls dönüştürücüsünde standart pulslara dönüştürülür.

- Sisteme yerleştirilmiş olan kalibrasyon ışık kaynağı sistemin hassasiyetini kolayca ve otomatik olarak sabit bir seviyeye ayarlama imkanı sağlar.

- **READER** modunda TL malzemelerinin özel bir ısıtma sistemi uygulanır ve bu şekilde ısıtma sıcaklığı üç farklı adımda arttırılır. Bu sistemin amacı sadece seçilen bir sıcaklıktaki TL sinyali okumak ve başlangıçta daha sonraki kullanım için TL malzemesini hazırlamaktır. Her bir adımdaki sıcaklık ve zaman önce LiF:Mg,Ti için kalibre edilir.
- **ANALYSER** modunda ısıtma levhasının sıcaklığı önceden programlanmış bir hızla lineer olarak artar veya operatör ile ayarlanır ve sayısal hale getirilen ısıma eğrisi bilgisayara kaydedilir. Pulsların toplam sayısı ve sıcaklık LCD ekranda da görülür.
- Sistem termoelektrik sistemin hassasiyetinin kararlılığını sağlamak için bir soğutucu, TL malzemelerinin düşük şiddetli sinyalleri için inert gaz akış devresi ve karanlık akımı azaltmak için otomatik olarak kontrol edilen PM karanlık akım kompensasyonu içermektedir.
- Isıtma levhaları için kullanılan özel bir platin alaşım çoklu ısıtma devrelerinden sonra kararmaz.
- Yüksek hassasiyetli düşük TL şiddetlerinin ölçülmesi için, %0.1 den daha az oksijen içeren sıkıştırılmış inert gaz (nitrojen veya argon) tüpü gerekir.
- RA94 TLD Reader-Analyser ın eşsiz özelliği ölçülen TL şiddetine karşılık değişebilir akustik bir sinyal üretilmesidir. Bu özellik özel uygulamalar için önemli bir amaç olduğunu kanıtlar.

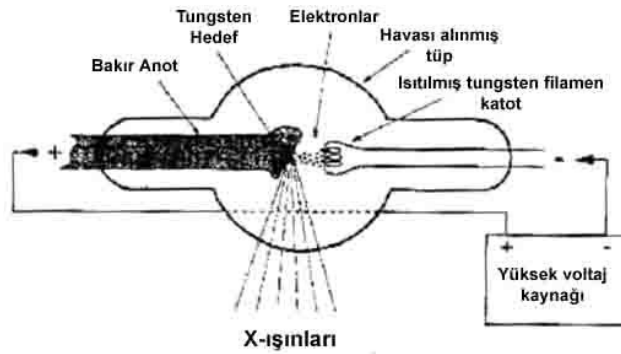
Temel Özellikler

1. **Duyarlık:** Referans ışık kaynağı ile programlanabilir
2. **Hassasiyet:** $\pm$ %2 S.D. (bir pelletin multiple sonucu için)
3. **Kararlılığı:** 8 saat çalışması boyunca $\pm$ %2 den daha iyi
4. **Okuma zamanı:** **READER** modunda : 3-180 s
ANALYSER modunda : 25-4000 s
XREADER modunda : max toplam zaman 45 s

5. **Üç Adımlı Isıtma:** 20-400 °C arasında ayarlanabilir sıcaklıklar
Her bir döngü zamanı 1-60 s arasındadır.
6. **Max. Isıtma Sıcaklığı:** 400 °C ye kadar ayarlanabilir.
7. **Lineer Isıtma Hızı:** Saniyede 0.5-10 (6) °C arasında ayarlanabilir.
8. **Veri Çıkışı:** LCD ekran
Paralel CENTRONICS çıkış (yazıcıya)
Seri RS-232 (bilgisayara)
9. **Ölçüm Aralığı:** Elle ayarlanabilir modda 7...
10. **Yüksek Güç Kaynağı:** Otomatik ayarlama
11. **Isıtma Levhası:** Dayanıklı ve sağlam platin alaşım
12. **TL Dedektör Büyüklüğü:** 12 mm den küçük
13. **Güç Kaynağı Gerilimi:** 230 V / 60 Hz
14. **Güç Tüketimi:** max 0 V A
15. **Ortam Sıcaklığı:** 10-28 °C
16. **Boyutları:** 365x155x372 mm
17. **Ağırlığı:** Yaklaşık olarak 14 kg

4.3. X-İŞINI TÜPÜ

X ışınlarını 1895 yılında Wilhelm Conrad Roentgen keşfetmiştir. Basitleştirilmiş bir X ışını tüpünde temel olarak vakumlanmış bir cam tüp içerisinde katot ve anot olarak isimlendirilen iki elektrot bulunur. Katotta bir ampulünkine benzeyen ve akkor haline geldiğinde elektron bulutu salan tungstenden yapılmış bir flaman vardır. Anot genellikle bakır gibi ısıyı iyi ileten bir malzemeden yapılır ve ucunda farklı bir malzemeden yapılmış genellikle X-ışını hedefi olarak adlandırılan bir bölüm bulunur.



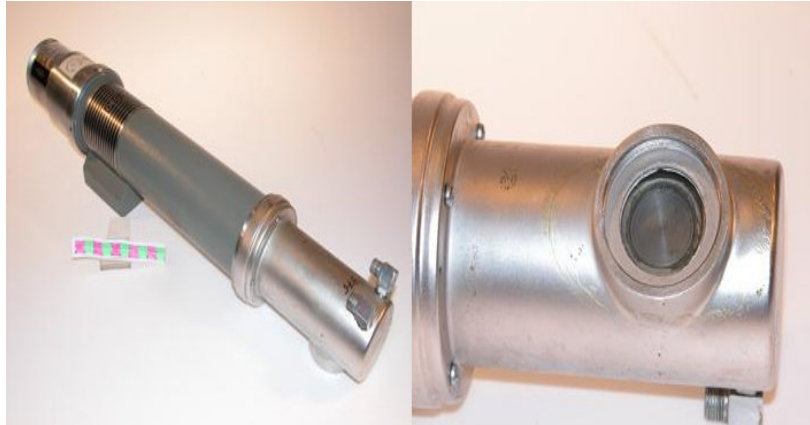
Şekil 4.3. Bir X-ışını tüpünün genel yapısı

X-ışınları tüpü ile, Bremsstrahlung (frenleyici) ve karakteristik olmak üzere iki farklı X-ışını üretilir. Bremsstrahlung radyasyonu elektronlar ile hedef atomların çekirdeği arasındaki etkileşimlerden kaynaklanır. Her etkileşimde, sıfır ile anot ve katot arasına uygulanan gerilim ile belirlenen bir değer arasındaki enerjiye sahip olan X-ışını üretilir. Örneğin, üzerinde 100 kV gerilim olan bir tüp, enerjileri 0 ile 100 keV arasında değişen X-ışınları üretecektir.

Hedefe çarpan hızlandırılmış elektronlar, hedef atomların iç yörüngelerinden (K yörüngesi) elektron sökerler ve geride bir boşluk kalır. Daha sonra üst yörüngelerden birinden (genellikle L yörüngesinden) bir elektron K yörüngesindeki bu boşluğu doldurur ve bu esnada X-ışını oluşur. Bu X-ışını, enerjisi hedef elemente özgü olduğu için Karakteristik X-ışını olarak adlandırılır.

Tanısal radyolojide kullanılan X-ışınlarının çoğu Bremsstrahlung olup, kullanılan X-ışınlarının küçük bir yüzdesi karakteristik radyasyondur (örneğin 100 kV de %15). Elektronların kinetik enerjisinin yaklaşık %99'u termal enerjiye (ısı) dönüşür ve tüpün soğutulması gerekir. Bu nedenle X-ışınlarının üretim veriminin ancak %1 olduğu söylenebilir.

Bu çalışmada TL ölçümleri öncesinde örnekleri ışınlamak amacı ile Celal Bayar Üniversitesi Lüminesans Araştırma Laboratuvarında bulunan radyolüminesans sistemine ait X-ışını tüpü (Şekil 4.4) kullanılmıştır.



Şekil 4.4. X-ışını tübü

4. SONUÇLAR VE YORUM

Bu çalışmada hem saf hem de nadir toprak elementlerinden Nd ve Eu ile katkılanmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) kristalinin TL spektrumları incelenmiştir. Tablo 5.1 de bu çalışmada kullanılan örnekler ayrıntılı bir şekilde verilmektedir.

	Nd (% wt)	Eu (ppm)
Saf BGO	-	-
Örnek 2	0,3	-
Örnek 3	0,4	3
Örnek 4	0,54	3
Örnek 5	0,7	3
Örnek 6	0,9	3
Örnek 7	1,1	3

Tablo 5.1. Çalışmada kullanılan BGO örnekleri

Bu amaçla numuneler Celal Bayar Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Lüminesans Araştırma Laboratuvarında bulunan X-ışını tüpü ile 300-900 Gy doz aralında X-ışınına maruz bırakılmıştır. Tüm ışınlamalar karanlık ortamda gerçekleştirilmiştir. Aynı zamanda ısıtılmış örnekler TL sistemine götürülürken, dışarıdan ışık almaması için, siyah kap içinde taşınmıştır. Burada kullanılan X-ışını tüpü, su soğutmalı, tek fazlı, 0,1 mm alüminyum filtre ve 1 mm berilyum pencereye sahip, tungsten hedef içeren Machlett OEG-50A dir. Maksimum 50 kV hızlandırma gerilimi ve 20 mA akım uygulanabilen bu tüp için, hem olası elektriksel boşalımla tüpe zarar vermemek hem de güvenli çalışma doz seviyesini aşmamak amacıyla, bu çalışma sırasında 30 kV ve 15 mA değerleri seçilmiştir. Bu değerler ile elde edilen doz hızı (10 cm uzakta) ~30 Gy/dk dır.

RA'94 Reader-Analyser TL sistemi sayesinde tüm örneklerin 50-400 °C sıcaklık aralığında TL spektrumları alınmıştır. Isıtma hızının TL piklerine olan etkisini incelemek amacıyla örnekler 2 °C/s, 5 °C/s ve 10 °C/s ısıtma hızları ile ısıtılmıştır.

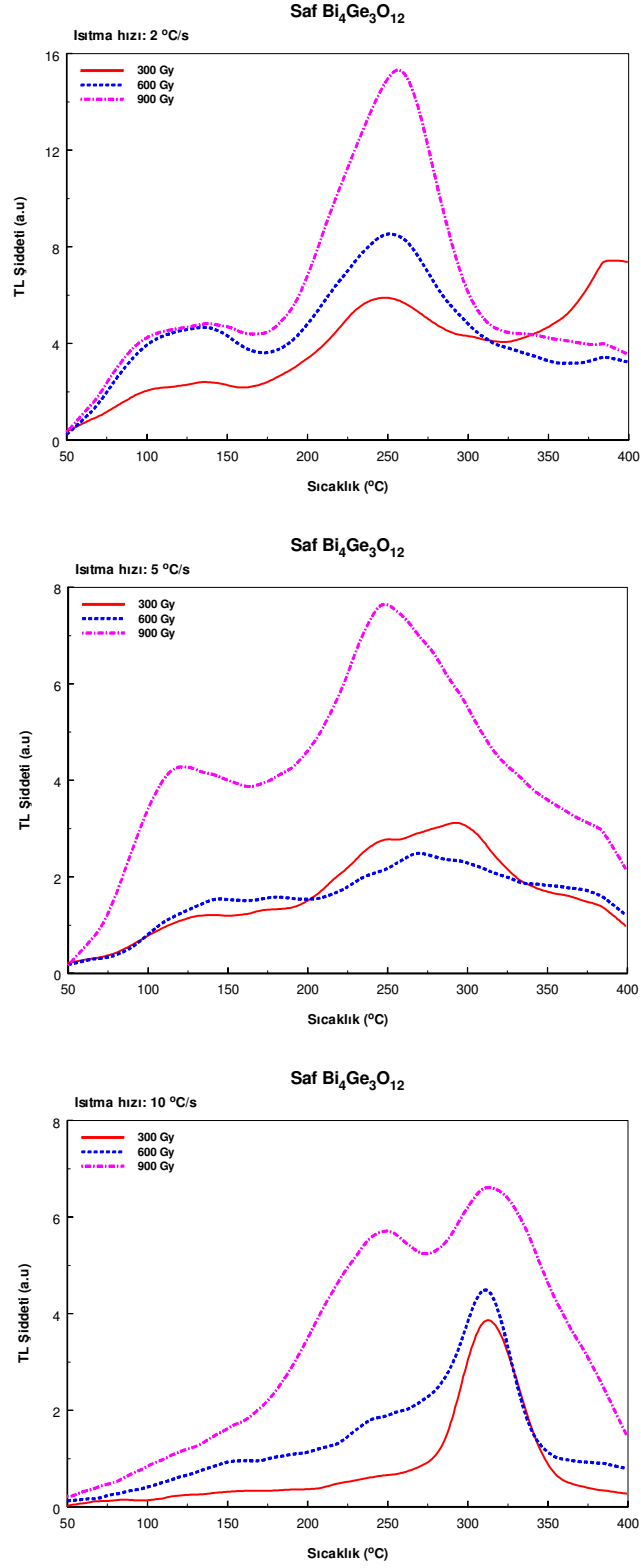
Çalışmanın başında önce saf BGO kristalinin yukarıda verilen deney koşullarında TL ölçümleri alınmıştır. Bu kaydedilen TL parıldama eğrileri Şekil 5.1 de gösterilmiştir. Şekilden de görüleceği üzere, farklı ısıtma hızları kullanılmıştır. Bununla birlikte her ısıtma hızı için 300, 600 ve 900 Gy de ışınlandıktan sonra spektrum toplanmıştır. 2 °C/s lik ısıtma hızı için ışıma şiddeti doz şiddeti artıkça belirgin bir şekilde artmaktadır. Benzer durum 600 ve 900 Gy ler içinde gözlenmiştir. Bununla birlikte doz şiddeti sabit kaldığında ısıtma hızı değiştirilinde parıldama eğrileri daha yüksek sıcaklıklara doğru bir kayma göstermektedir.

Şekil 5.2 de ise saf BGO kristaline %0,3 oranında Nd katkılandırılmıştır. Burada da, saf BGO ile karşılaştırma yapabilmek için, aynı ısıtma hızları ve aynı dozlar kullanılmıştır. Şekle bakıldığında farklı ısıtma hızları için doz sabit kalmak suretiyle, literatürde sözü edildiği gibi, parıldama eğrileri daha yüksek sıcaklıklara doğru bir kayma göstermektedirler. Şekilden de açıkça görüldüğü üzere, katkılandırılmış BGO da 110 °C ve 275 °C civarındaki pikler daha belirgin bir şekilde ortaya çıkmaktadırlar.

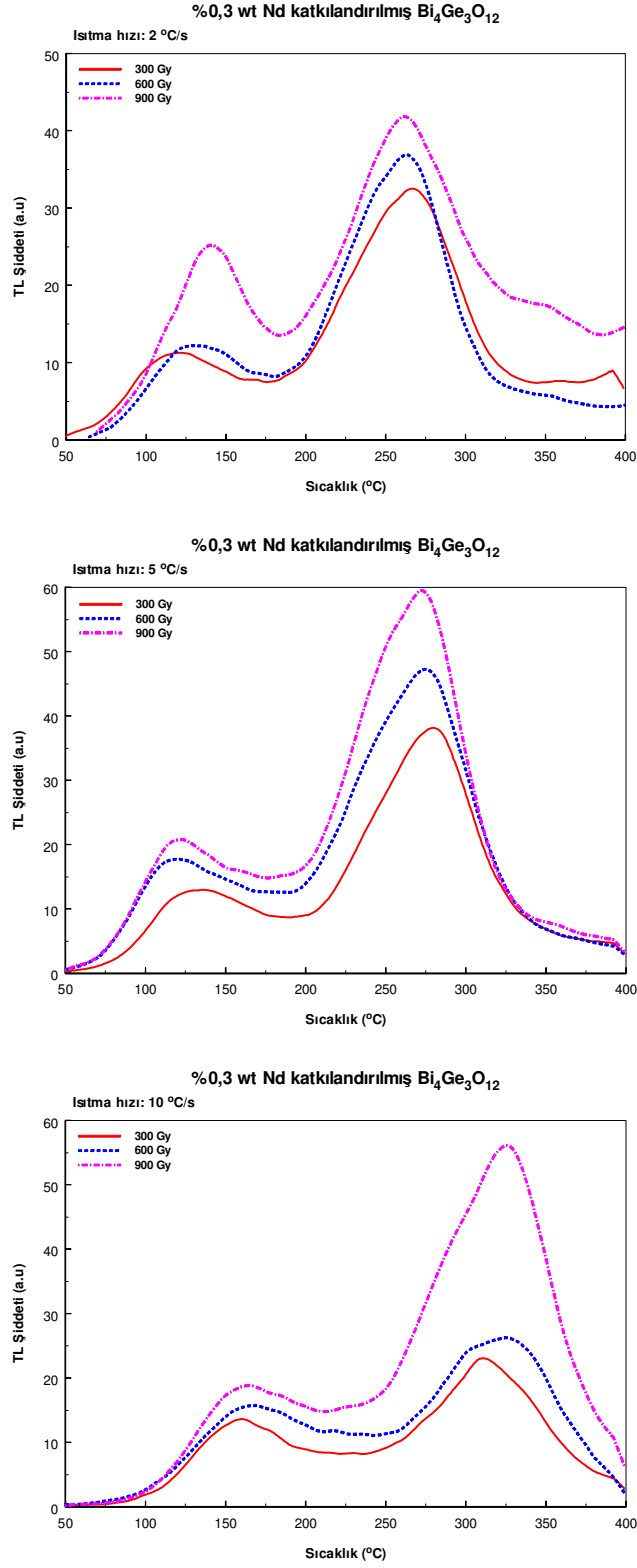
Şekil 5.3 den Şekil 5.7 ye kadar olan grafikler ise farklı Nd oranlarına 3 ppm mertebesinde Eu katkılandırılması sonucu elde edilmiştir. Buradaki amaç elde edilen parıldama eğrilerine Eu nadir toprak elementinin katkısını görmek ve bununla beraber farklı oranlardaki Nd katkısının Eu ile birlikte ortaya çıkardığı etkiyi görmektir. Şekillerden de görüleceği üzere genel bir düzenden söz etmek mümkün değildir. Bunun nedeninin öncelikle elde edilen spektrumların şiddetinin, oldukça yüksek dozlar kullanılmış olmasına karşın, zayıf olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir. Bununla beraber Nd katkısı artıkça 275 C deki pikin 250 C ye kaydığı ve şiddetinin belirgin bir biçimde arttığı söylenebilir. Bu durum Şekil 5.9 da da açıkça görülmektedir.

Elde edilen parıldama eğrilerine baktığımızda başlangıçta genel bir gidişat olarak 4 ya da 5 tane pikin olduğu söylenebilir. Ancak bu piklerin bir kısmı çok belirgin

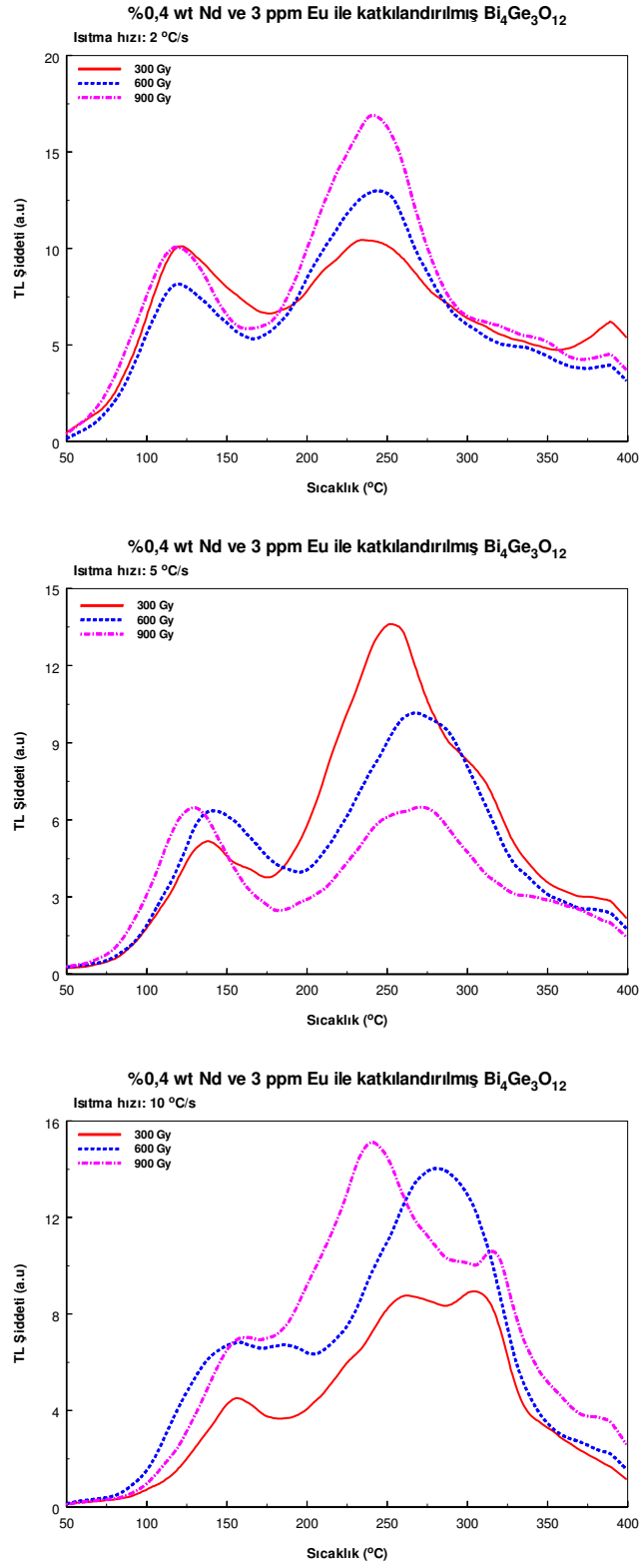
değildir. Zaten çalışmada da hem kristalin daha kaliteli hem de piklerin daha belirgin olması amacıyla eriyik olarak Eu katılmıştır. Ancak yine de 110 °C ve 270 °C dışındaki pikler belirgin olarak gözlenememiştir. Aslına bakılacak olursa katkılandırmadan önce ve sonra elde edilen parıldama eğrileri karşılaştırılacak olursa (Şekil 5.9) bu piklerin aynı tuzak seviyelerinden kaynaklandığını söyleyebiliriz. Piklerin kaymasının bir nedenin de Nd ve Eu katkısından ileri geldiğini düşünülmektedir. Daha önce de belirtildiği gibi, katkı seviyeleri ile pik şiddetleri arasında genel bir gidişten söz etmek mümkün değildir. Dolayısıyla tuzaklanma seviyeleri katkılardan bağımsız gibi düşünülebilir. Bu tuzakların malzemenin kendisinden veya safsızlık katkısıyla bir farklılık gösterdiğini doğrudan söylemek mümkün değildir. Başka bir deyişle katkı maddelerinin malzemede farklı tuzaklanma seviyelerini oluşturduğunu söylemek olası değildir.



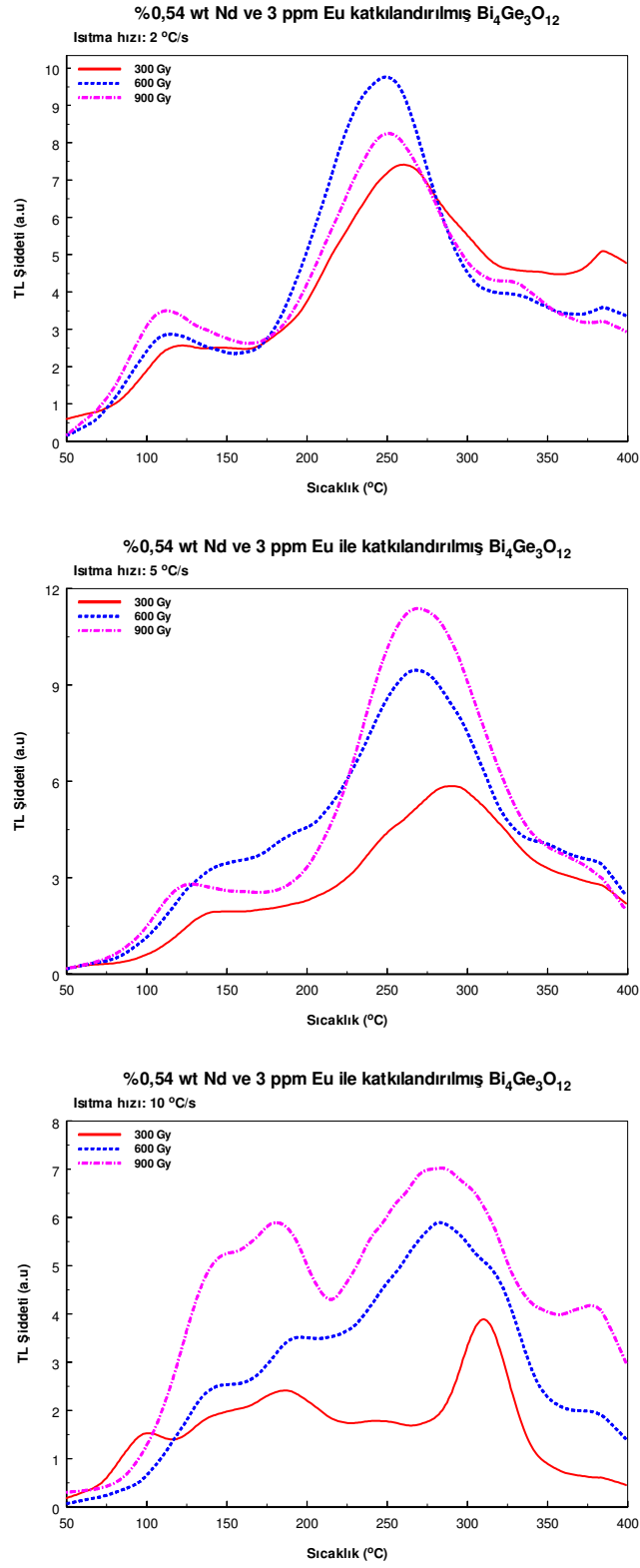
Şekil 5.1. 300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış saf Bi₄Ge₃O₁₂ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları



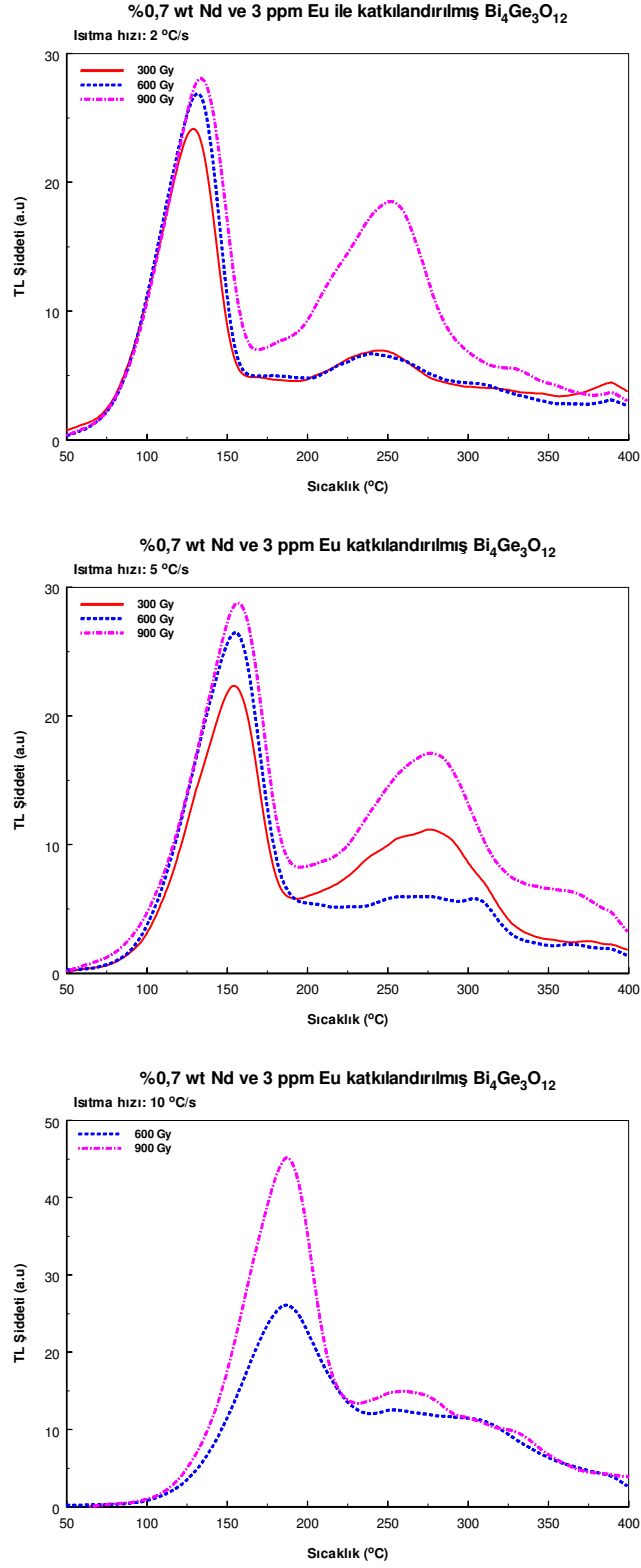
Şekil 5.2. 300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,3 wt Nd ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları



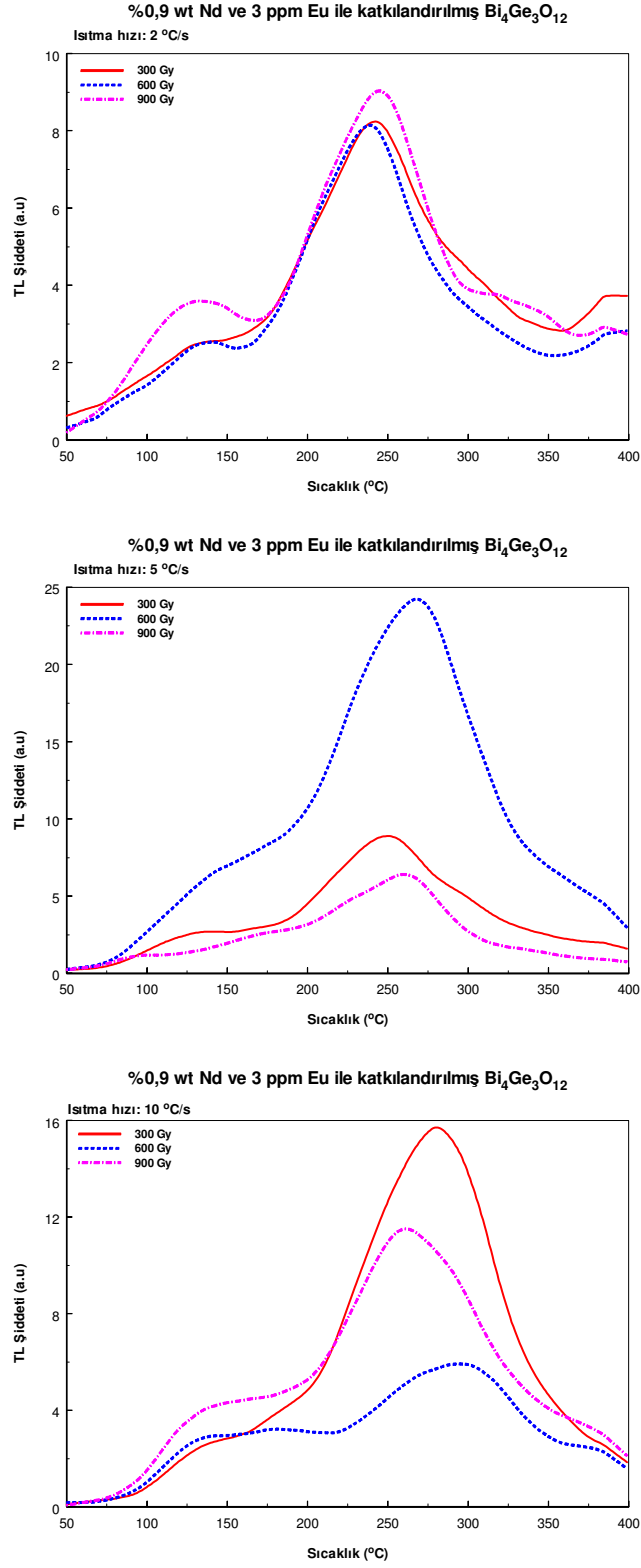
Şekil 5.3. 300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,4 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları



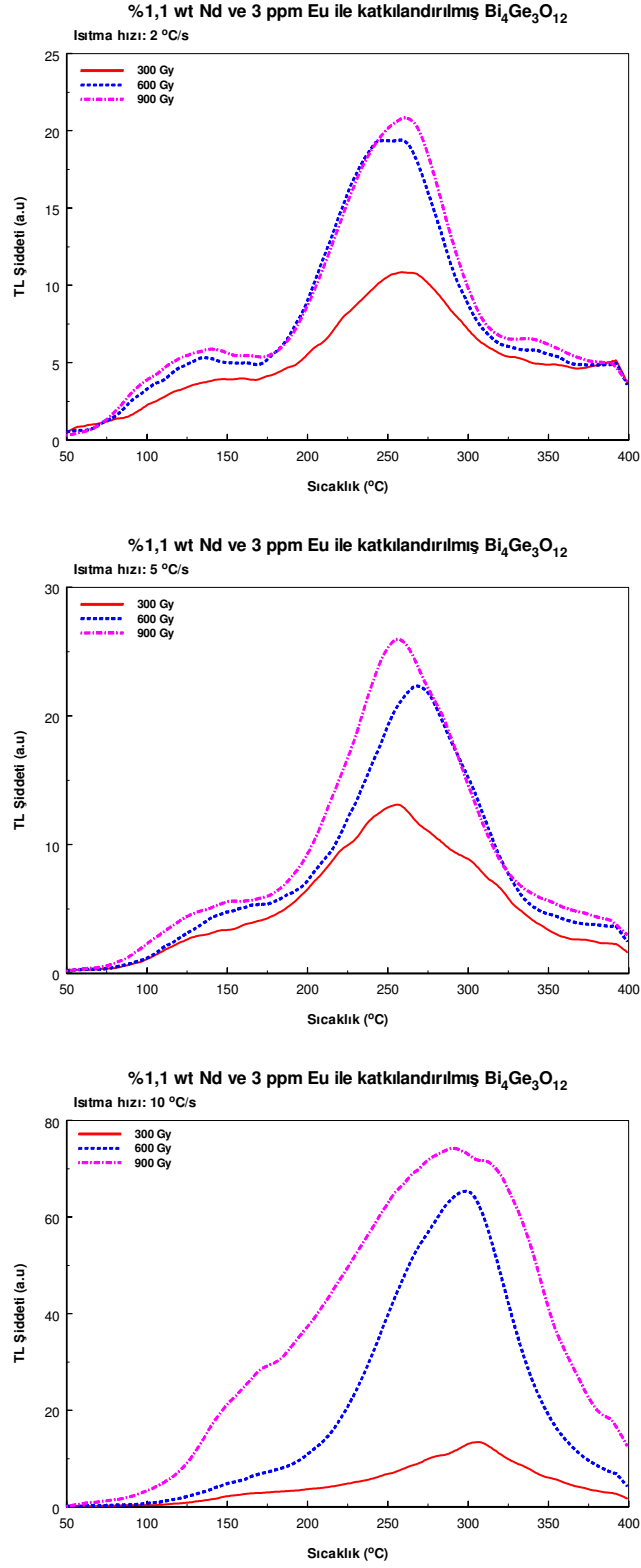
Şekil 5.4. 300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,54 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları



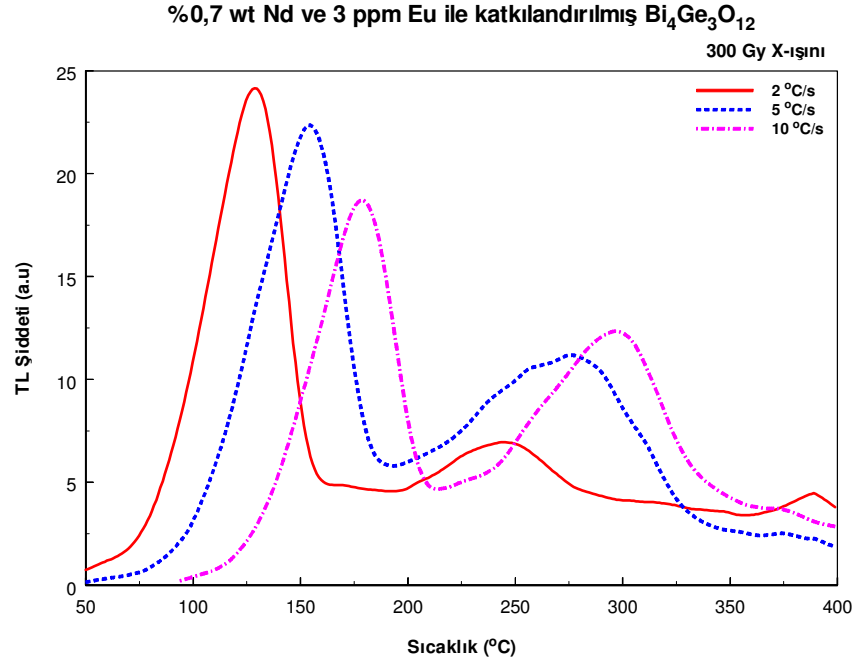
Şekil 5.5. 300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,7 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları



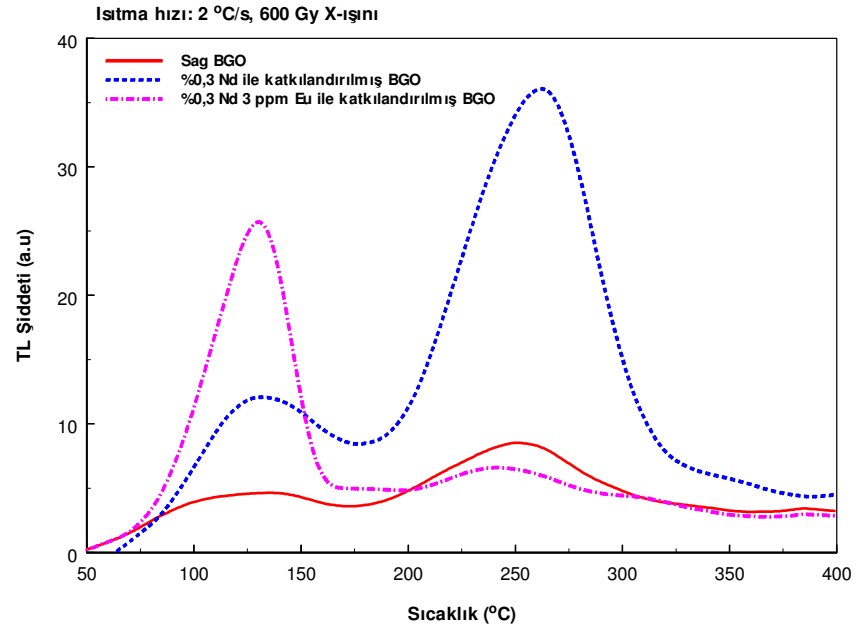
Şekil 5.6. 300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %0,9 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları



Şekil 5.7. 300-900 Gy doz aralığında X-ışını ile ışınlanmış %1,1 wt Nd 3 ppm Eu ile katkılandırılmış $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ kristalinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumları



Şekil 5.8. 300 Gy X-ışınına maruz bırakılan %0,7 wt Nd ve 3 ppm Eu ile katkılandırılmış BGO örneğinin farklı ısıtma hızları ile alınan TL spektrumu



Şekil 5.9. 600 Gy X-ışınına maruz bırakılıp 2 °C/s ısıtma hızı ile alınmış farklı örneklere ait TL spektrumları

Şekil 5.9 da, çok daha belirgin olarak göstermek amacıyla, saf BGO, Nd katkılı BGO ve buna Eu katkısı eklenmiş BGO örneklerinin karşılaştırılması yapılmıştır. Görüldüğü üzere temelde 2 pik görülmektedir. Bunlar 125 ve 250 °C civarındadır. Buradaki tuzak merkezlerini etkileyecek bir başka parametre ise nadir toprak elementlerin iyonik yarıçaplarıdır. Ancak daha ileri çalışmalarda bu katkı dikkate alınmalıdır.

Daha geniş anlamda bakıldığında BGO'nun lüminesans uygulamaları için nadir toprak iyonların etkisinin TL emisyon spektrumlarını önemli ölçüde etkilediği ve sintilasyon verimliliğini belirgin şekilde değiştirebildiği bilinmektedir. Bu bağlamda bu malzemenin diğer lüminesans teknikleri ile de irdelenmesinin yararlı olacağı düşünülmektedir.

KAYNAKLAR

- [1] R. Kibar, A.Çetin, Y. Tuncer, S. Uysal, P.D. Townsend, A.Canimoglu, N. Can “Cathodoluminescence Response From Rare Earth Doped $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ” Journal of Luminescence, In pres
- [2] A.K. Jazmati, P.D. Townsend “Photoluminescence from RE Doped BGO Waveguides” NIM B 166-167 (2000) 597-601.
- [3] S G Raymond and P D Townsend “The Influence of Rare-Earth Ions on The Low-Temperature Thermoluminescence of $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ ” J. Phys.: Condens. Matter 12 (2000) 2103–2122.
- [4] S.G. Raymond, B.J. Luff, P.D. Townsend, Xiqi Fen and Gujanqing Hut “Thermoluminescence Spectra of Doped $\text{Bi}_2\text{Ge}_4\text{O}_{12}$ ” Radiation Measurements, 23 I (1994) 195-202,
- [5] J.B. Shim, A. Yoshikawa, M. Nikl, A. Vedda, T.Fukuda “Radio-, photo- and thermo-luminescence Characterization in Eu-doped $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ Single Crystal for Scintillator Application” Optical Materials 24 (2003) 285–289
- [6] E Dieguez, L Arizmendi and J M Cabrera “X-ray Induced Luminescence, Photoluminescence and Thermoluminescence of $\text{Bi}_2\text{Ge}_4\text{O}_{12}$ ” J. Phys. C: Solid State Phys. 18 (1985) 4777-4783.
- [7] C.L. Melcher “Thermoluminescence and Radiation Damage in Bismuth Germanate” Letters to Nature 313 (1985) 4665-467.
- [8] P.Lecoq, P.J.Li and B.Rostaing “BGO Radiation Damage Effects: Optical Absorption, Thermoluminescence and Thermoconductivity” NIM A 300 (1991) 240-258.
- [9] S.C. Sabharwal, Hema Prasad, D.G. Desai, Sangeeta, S.C. Karandikar and M.K. Gupta “Thermoluminescence and Transmission Recovery of Gamma Irradiated

Bi₄Ge₃O₁₂ Single Crystal” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 329 (1993) 179-182

[10] L. Kovacs, S.G. Raymond, B.J. Luff, A. Peter, P.D. Townsend “Thermoluminescence Spectra of Eulytine Bi₄Si₃O₁₂ and Bi₄Ge₃O₁₂ single Crystals” Journal of Luminescence 60 (1994) 574 577

[11] Ronaldo Santos da Silva, Ze’lia Soares Macedo, Andre’ Luiz Martinez, Antonio Carlos Hernandez, Ma’rio Ernesto Giroldo Valerio “Thermoluminescence Kinetic Parameters of Bi₄Ge₃O₁₂ Single Crystals” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 250 (2006) 390–395

[12] R.Kibar “Farklı Metal İyonları İle Bombalanan SrTiO₃ Kristalinin ve Bazı Minerallerin Nükleer Ve Diğer Yöntemlerle İncelenmesi” Doktora tezi, 2007.

[13] D.R. Vij “Luminescence of Solids” Plenum Press, New York, 1998

[14] Daniels, J. M., Scholes, G., And Weiss, J., Nature 171 (1953) 1153.

[15] H. Becquerel, Relations entre l'absorption de la lumiere et l'emission de la phosphorescence dans les composes d'uranium. Comptes Rendus Hebdomadaires des Seances de l'Academie des Sciences de Paris 101 (1885) 1252-1256.

[16] E. Wiedemann, G.C. Schmidt, Ueber Luminescenz, Ann. Phys. Chem. Neue Folge, 54 (1895) 604.

[17] AITKEN, M.J., Recent Advances in Thermoluminescence Dating, Radiation Protection Dosimetry 6 (1985) 181-183.

[18] M.Yüksel “Orta Anadolu Fluoritlerinin (CaF₂) Termolüminesans (TL) Işıma Tepelerine Tavlamanın Etkisi” Yüksek Lisans Tezi, 2008.

- [19] Ö.Gürel “Lityum Florür Fosforunun Termolüminesans Özelliklerinin İncelenmesi ve Termolüminesans Dozimetre ile Doz tayini” Yüksek Lisans Tezi, 2003.
- [20] C.Harmanşah “Termolüminesans-Optik Uyarımlı Lüminesans Sisteminin Kurulması ve UV Radyasyonunun Ölçümünde Kullanılması” Doktora Tezi, 2006.
- [21] A. G Wintle “Luminescence Dating of Aeolian Sands: An Overview” Geological Society London, Special Publications 72 (1993) 49–58.
- [22] A. S Pradhan “Effect of Heating 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,(2002) 289-292.
- [23] Furetta Claudio, Pao-Shan Weng 1998 “Operational Thermoluminescence Dosimetry” World Scientific.
- [24] S.W.S. McKeever 1985 “Thermoluminescence of Solids” Cambridge University Press.
- [25] C. Zaldo, L. Contreras L. Arizmondi and E. Dieguez ‘Optical Properties of $\text{Bi}_2\text{Ge}_3\text{O}_9$ Single Crystals X-ray Irradiations 114 (1989) 397.
- [26] C.W.M Timmermans, Oboenho and G. Blasse “The Luminescence of $\text{Bi}_2\text{Ge}_3\text{O}_9$ ” 1982