

**UKUROVA NİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Savaş SARIKCI

**SAMARYUM (Sm^{3+}) VE EVROPIYUM (Eu^{3+}) KATKILANMIŞ
 SrGd_2O_4 'ÜN KARAKTERİZASYONU VE TERMOLÜMİNESANS
ÖZELLİKLERİNİN BELİRLENMESİ**

FİZİK ANABİLİM DALI

ADANA-2022

ÖZ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

SAMARYUM (Sm^{3+}) VE EVROPIYUM (Eu^{3+}) KATKILANMIŞ SrGd_2O_4 'ÜN KARAKTERİZASYONU VE TERMOLÜMINESANS ÖZELLİKLERİNİN BELİRLENMESİ

Savaş SARIKCI

ÇUKUROVA ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
FİZİK ANABİLİM DALI

Danışman : Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU
Yıl: 2022, Sayfa:89
Jüri : Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU
: Prof. Dr. Emir Vural KADAFAR
: Doç.Dr. Mehmet YÜKSEL

Bu çalışmanın amacı, katıhal sentez yöntemi ile sentezlenen polikristal yapıdaki SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının dozimetrik özelliklerinin kapsamlı bir şekilde belirlenmesidir. Sentezlenen fosforların yapısal ve dozimetrik özelliklerinin incelenmesinde sırasıyla X-ışını kırınımı (XRD) ve termolüminesans (TL) yöntemi kullanıldı. TL çalışmasında beta radyasyonu kaynağı ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) maruz bırakılmış örneklerin ana TL dozimetri özellikleri araştırılmış ve optimal TL bant geçiren filtre, optimal katkı konsantrasyonu, doğrusal doz aralığı, çeşitli ısıtma hızları (VHR) altında davranış, tekrar kullanılabilirlik kalitesi ve elektron tuzak parametreleri belirlenmiştir. Katkısız SrGd_2O_4 'ın TL şiddetini arttırmak amacıyla, katkılar sonucunda beta radyasyonuna duyarlı en yüksek TL şiddetinin $\% 0.5 \text{ Sm}^{+3}$ ve $\% 0.25 \text{ Eu}^{+3}$ katkı oranlarında olduğu görülmüştür. Her iki katkı oranı için de en uygun filtrenin IRSI-TL geniş band olduğu belirlenmiştir. Farklı ısıtma hızları, başlangıç artış ve CGCD yöntemleri kullanılarak tuzak parametreleri aktivasyon enerjisi (E), kinetik mertbe (b) ve frekans faktörü (s) hesaplanmıştır.

Anahtar Kelimeler: Termolüminesans, Samaryum, Evropiyum Katkılama

ABSTRACT

MSc THESIS

DETERMINATION OF THE CHARACTERIZATION AND THERMOLUMINESCENCE PROPERTIES OF SAMARIUM (Sm^{3+}) AND EUROPIUM (Eu^{3+}) DOPPED SrGd_2O_4

Savaş SARIKCI

ÇUKUROVA UNIVERSITY
INSTITUTE OF NATURAL AND APPLIED SCIENCES
DEPARTMENT OF PHYSICS

Supervisor	: Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU Year:2022, Pages: 89
Jury	: Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU : Prof. Dr. Emir Vural KADAFAR : Assoc. Prof. Dr. Mehmet YÜKSEL

The aim of this thesis, dosimetric properties of polycrystalline SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = 0.5, 1, 2, 3, 4, 5$ mass%) and $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = 0.25, 0.5, 1, 2, 3$ mass%) phosphors synthesized via solid state reaction are extensively studied. X-ray diffraction (XRD) and thermoluminescence (TL) were used to examine the structural and dosimetric properties of the synthesized phosphors, respectively. In the TL study, main TL dosimetry properties were investigated using samples exposed to beta radiation ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) and optimal TL bandpass filters, optimal doping concentrations, linear dose ranges, behavior under varying heating rates (VHR), reusability quality, and electron trap parameters were determined. It was found that Sm^{+3} and Eu^{+3} have the most optimum value for increasing the TL intensity of undoped SrGd_2O_4 . The IRSL-TL broadband filter was suggested as the best filter to handle both doping levels. The traps parameters, namely activation energy (E), order of kinetics (b) and frequency factor (s) were estimated using the various heating rate (VHR), the initial rise (IR), the CGCD.

Key words: Thermoluminescence, Samarium, Europium Doping

GENİŞLETİLMİŞ ÖZET

Bu tez çalışmasında, katıhal sentez yöntemi ile sentezlenmiş SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının dozimetrik özelliklerinin belirlenmesinde termolüminesans (TL) yöntemi kullanılmıştır. Sentezlenen fosforların yapısal ve kristalografik özellikleri X-Işını Kırınımı (XRD) yöntemi kullanılarak incelenmiştir. Katkılı ve katkısız örneklerin tüm TL ölçümleri, örnekler pelet haline getirildikten sonra Lexsyg Smart TL/OSL okuyucu cihazında gerçekleştirilmiştir. Tüm ışınlamalar Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda bulunan beta ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) radyasyon kaynağı ile gerçekleştirilmiştir. Beta radyasyon kaynağının yarılanma ömrü yaklaşık 30 yıl olup maksimum 2.27 MeV'lik enerjiye sahip β parçacıkları yaymaktadır. Kaynak numuneye saniyede 0.1 Gy'lik bir doz hızı sağlar. Radyasyon kaynağı özel bir kurşun blok içerisine yerleştirilmiştir. Cihazın, soğutma ve bazı pnömatik alt sistemleri için yüksek saflıkta nitrojen gazı kullanılır. TL ölçümü esnasında fosforlardan yayılan lüminesans, bir foto-çoğaltıcı (PM) tüp ve sistem içerisinde yer alan optik filtreler aracılığıyla detekte edilir. Ölçümlerde yaygın olarak BSL, TL-365 nm, BSL, TL-365 nm ($\% 0.25$), IRSI, TL-410 nm, IRSI, TL-410 nm ($\% 0.25$), IRSI, TL-565 nm ve IRSI, TL-geniş band mavi optiksel algılama filtreleri kullanılmaktadır.

Katkısız ve Sm^{+3} katkılı $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının XRD kırınım desenlerinin ICDD 98-019-3592 nolu PDF kartında verilen SrGd_2O_4 ile uyum içerisinde olduğu görülmüştür. SrGd_2O_4 ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının her bir katkı oranı için BSL, TL-365 nm, IRSI, TL-410 nm, IRSI, TL-565 nm, IRSI-TL-geniş band mavi filtrelerinde deneysel ölçümler gerçekleştirilmiştir. Deneysel olarak, IRSI-TL geniş bant filtre kombinasyonunun, $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun TL analizi için uygun filtre olduğu belirlenmiştir. Bu filtre ile yapılan ölçümler sonucunda, yüksek hassasiyetli TL şiddetinin $\% 0.5 \text{ Sm}^{+3}$ katkı oranına

sahip fosforun olduğu görülmüştür. Doz-yanıt yöntemi ile elde edilen TL ısıma eğrilerinin altında kalan alanlardan yararlanılarak, malzemenin 0.1-10 Gy arasında doğrusal fonksiyon ile uyum içerisinde olduğu belirlenmiştir. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun ilk okumaya göre 10 döngü sonunda % 2 oranında bir sapma gösterdiği ve bununla kabul edilebilir hata sınırları içerisinde olduğu görülmüştür. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforuna 5 Gy'lik sabit beta dozu verilmesinin ardından 0.5-9 °C/s'lik farklı ısıtma hızlarında elde edilen TL ısıma eğrilerinin tepe yüksekliklerinin yüksek sıcaklık bölgelerine doğru kaydığı ve bu kaymaların ısısal gecikmeden (temperature lag) kaynaklandığı düşünülmüştür. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun TL ısıma eğrisinde görülen Tepe 1'de literatürde "Anomalous Heating Rate Effects" (anormal ısıtma hızı etkisi) olarak adlandırılan fiziksel olay görülmüştür. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun ısıma eğrisinin kaç tepeden oluştuğunu bulmak için $T_{\text{maksimum}}-T_{\text{durma}}$ tekniği kullanılmıştır. Bu teknikte 40-271 °C aralıklarında 3'er derecelik artışlarla tekrarlanan deneyler sonucunda elde edilen TL ısıma eğrilerine başlangıçtaki artış yöntemi (IR) uygulanarak tuzak parametreleri hesaplanmıştır. $T_{\text{maksimum}}-T_{\text{durma}}$ tekniği ile TL ısıma eğrisinin kaç tane tepeden oluştuğu ve tepelere karşı gelen enerji seviyeleri belirlendi. Farklı ısıtma hızları deneyinde sıcaklık düzeltmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforu için aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplandı. CGCD yöntemi ile analiz edilen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun ısıma eğrisinin iç içe girmiş 5 ısıma tepesinden oluştuğu tespit edildi. Bu ısıma tepelerine ait tuzak parametreleri hesaplandı.

Katkısız ve Eu^{+3} katkılı $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının kristal yapısı XRD ölçümleri ile analiz edilmiştir. XRD analiz sonuçlarına göre, örneklerin tümünün $Pnam$ (62) uzay grubunda ve ortorombik kristal yapısında olduğu belirlenmiştir. XRD desenlerinin ICDD 98-019-3592 nolu PDF kartında verilen SrGd_2O_4 ile uyum içerisinde olduğu tespit edilmiştir. Bir dizi TL ölçümleri sonucunda optimal

filtre IRSL-TL geniş band olduğu ve optimal katkı konsantrasyonunun ise % 0.25 Eu^{+3} olduğu belirlenmiştir. Doz-yanıt deneyi sonucunda, $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun uygulanan β dozuna karşılık 0.1-8 Gy aralığında bir doğrusallık sergilediği görülmüştür. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun aynı koşullar altında 15 kez ışınlama ve okumadan sonra doz ölçüm duyarlılığının % 1 standart sapma gösterdiği ve bu da % 5 dozimetri kabul sınırının altında olduğu belirlendi. 0.5-9 °C/s'lik farklı ısıtma hızlarında elde edilen TL ışıma eğrilerinin tepe yüksekliklerinin yüksek sıcaklık bölgelerine doğru kaydığı görülmüştür. Bu kaymalardan ısısal gecikmenin (temperature lag) sorumlu olduğu düşünülmüştür. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun TL ışıma eğrisinin Tepe 1, Tepe 2 ve Tepe 3'ün TL teorisine ters bir davranış gösterdiği görülmüştür. Tuzak parametreleri, farklı ısıtma hızları yöntemi kullanılarak farklı ısıtma hızlarından elde edilmiş olan tepe sıcaklıkları kullanılarak hesaplandı. Yani, farklı ısıtma hızları deneyinde sıcaklık düzeltmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu için aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplandı. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu için 40 °C den başlayarak 3'er derece aralıklar ile 271 °C'ye kadar $T_{\text{maksimum}}-T_{\text{durma}}$ tekniği kullanılarak TL ışıma eğrileri kaydedildi. Elde edilen her bir TL ışıma eğrisine IR yöntemi uygulanarak aktivasyon enerjileri hesaplanmış ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun TL ışıma eğrisinin kaç tane tepeden oluştuğu ve enerji sevipleri belirlenmiştir. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun tuzak parametreleri CGCD analizi ile de teorik olarak belirlendi. CGCD analizi için gerekli olan sıcaklık ve aktivasyon enerjisi değerlerinin başlangıç değerleri için, $T_{\text{maksimum}}-T_{\text{durma}}$ deneyinden ve IR analizinden elde edilmiş olan en olası değerler aralığı kullanıldı. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$

fosforunun TL ışıma eğrisi CGCD yöntemi ile analiz edildiğinde iç içe girmiş 6 ışıma tepesinden oluştuğu görülmüştür.



TEŞEKKÜR

Bu tezin oluşumunda, çalışmaları yönlendiren yürüten, takip eden, bilgi ve tecrübelerini esirgemeyen, bu alanda gelişmemi sağlayan danışman hocam Sayın Prof. Dr. Mustafa TOPAKSU'ya katkılarından dolayı teşekkürlerimi bir borç bilirim. Malzeme seçimi ve üretimi aşamasında her türlü desteği veren Sayın Doç. Dr. Yusuf Ziya HALEFOĞLU'na teşekkür ederim. Ayrıca, bilgi ve tecrübelerinden faydalandığım Prof. Dr. Nurdoğan CAN'a da çok teşekkür ederim.

Yüksek Lisansa başladığım dönemden itibaren birlikte çalıştığımız, her konuda bana yardımcı olan desteğini esirgemeyen, motivasyonumu arttıran, mükemmel insan Semi ATASÖZ'e, çalışmalar sırasında bilgi ve tecrübelerinden yararlandığım Sayın Arş. Gör. Dr. Ziyafer Gizem PORTAKAL UÇAR'a, Sayın Doç. Dr. Sibel AKÇA ÖZALP'a, Sayın Dr. Öğr. Üyesi Kenan BULCAR'a, Dr. Mehmet OĞLAKÇI' ya, araştırmacı Muammer SONSUZ'a teşekkürlerimi sunarım. Jüri üyelerim Prof. Dr. E. Vural KAFADAR ve Doç. Dr. Mehmet YÜKSEL'e de teşekkür ederim.

Bu tez çalışması sürecinde, iş hayatımda beni idare eden desteklerini her zaman yanımda hissettiğim akadaşlarım Muhittin ACAR, Adnan TUNÇ, Çağlar TAŞ, Seyhan ADANIR, Onur KOÇ'a ve EĞİTİM ATÖLYESİ' ndeki bütün çalışma arkadaşlarıma ve çok sevdiğim Ercan BAZNA'ya teşekkür ederim.

Ayrıca hayattaki en büyük desekçim olan annem Sermin SARIKCI'ya, hayatta her konuda yanımda olan başarılarıma katkı sağlayan ablam ve kardeşim, Deniz KATIÇELİK ve Ali SARIKCI'ya teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

SAYFA

ÖZ	I
ABSTRACT.....	II
GENİŞLETİLMİŞ ÖZET	III
TEŞEKKÜR.....	VII
İÇİNDEKİLER	VIII
ÇİZELGELER DİZİNİ	XII
ŞEKİLLER DİZİNİ	XIV
KISALTMALAR.....	XVIII
1. GİRİŞ	1
1.1. Lüminesans.....	2
1.2. Katılarda Bant Modeli ve Elektron Geçişler.....	6
1.3. Termolüminesans.....	10
1.4. Termolüminesans Kinetikleri	12
1.4.1. Birinci Derece Kinetiği	14
1.4.2. İkinci Derece Kinetiği	17
1.4.3. Genel Derece Kinetiği	18
1.5. TL Tuzak Parametrelerinin Belirlemesi İçin Kullanılan Yöntemler	20
1.5.1. Doz Yanıt Yöntemi	21
1.5.2. Başlangıç Artış (IR) Yöntemi.....	22
1.5.3. Farklı Isıtma Hızı Yöntemi.....	23
1.5.4. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayrıştırma (CGCD) Yöntemi	25
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR	29
3. MATERYAL VE METOT	31
3.1. Materyal.....	31
3.1.1. Tez Kapsamında Kullanılan Kimyasallar.....	31
3.1.2. Tez Kapsamında Kullanılan Cihazlar.....	31
3.1.2.1. Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucusu	31

3.1.2.2. X-Işını Kırınımı (XRD) Cihazı	35
3.1.2.3. Isıl İşlemlerde Kullanılan Kül Fırını	36
3.1.2.4. Agat Havan	37
3.1.2.5. Hassas Terazı	37
3.1.2.6. Hidrolik Pres Cihazı	38
3.1.2.7. Çeker Ocak	39
3.2. Metot	40
3.2.1. Katıhal Sentez Yöntemi	40
3.2.2. Örneklerin Hazırlanması	41
4. BULGULAR VE TARTIŞMA	45
4.1. Giriş	45
4.2. SrGd ₂ O ₄ :xSm (x = 0, % 0.5, % 1, % 2, % 3, % 4, % 5) Fosforlarının Yapısal Özellikleri	45
4.2.1. XRD Analizleri	45
4.3. Termolüminesans (TL) Ölçümleri ile İlgili Bulgular	47
4.3.1. SrGd ₂ O ₄ :xSm (x = 0, % 0.5, % 1, % 2, % 3, % 4 ve % 5 kütlece) Fosforlarının Filtre Testleri ile İlgili Bulgular	47
4.3.2. Doz Yanıt Deneyleri İle İlgili Bulgular	53
4.3.3. Tekrar Kullanılabilirlik Deneyi ile İlgili Bulgular	55
4.3.4. Farklı Isıtma Hızları Deneyi ile İlgili Bulgular	56
4.3.5. Başlangıç Artış (IR, Initial Rise) Yöntemi ile İlgili Bulgular	60
4.3.6. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma (CGCD) Yöntemi ile İlgili Bulgular	62
4.4. SrGd ₂ O ₄ :xEu (x = % 0.25, % 0.5, % 1, % 2, % 3 kütlece) Fosforlarının Yapısal Özellikleri	64
4.4.1. XRD Analizleri	64
4.5. Termolüminesans (TL) Ölçümleri ile İlgili Bulgular	65
4.5.1. SrGd ₂ O ₄ :xEu (x = 0, % 0.25, % 0.5, % 1, % 2, % 3 kütlece) Fosforlarının Filtre Testleri ile İlgili Bulgular	65

4.5.2. Doz Yanıt Deneyleri ile İlgili Bulgular	67
4.5.3. Tekrar Kullanılabilirlik Deneyi İle İlgili Bulgular	68
4.5.4. Farklı Isıtma Hızları Deneyi ile İlgili Bulgular	70
4.5.5. Başlangıç Artış Yöntemi ile İlgili Bulgular.....	74
4.5.6. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma (CGCD) Yöntemi ile İlgili Bulgular	75
5. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	77
KAYNAKLAR	81
ÖZGEÇMİŞ	89



ÇİZELGELER DİZİNİ

SAYFA

Çizelge 1.1.	Uyartım kaynaklarına göre lüminesans çeşitleri.....	3
Çizelge 3.1.	Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda bulunan filtre kombinasyonları.....	34
Çizelge 4.1.	Tepe 1 ve Tepe 2 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri.....	60
Çizelge 4.2.	Tepe 1 ve Tepe 2 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri kullanılarak hesaplanan tuzak parametreleri.....	60
Çizelge 4.3.	CGCD yöntemi ile analiz edilen ışıma tepelerinin tuzak parametreleri	63
Çizelge 4.4.	Tepe 1, Tepe 2 ve Tepe 3 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri	73
Çizelge 4.5.	Tepe 1, Tepe 2 ve Tepe 3 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri kullanılarak hesaplanan tuzak parametreleri.....	73
Çizelge 4.6.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun CGCD yöntemi ile elde edilen tuzak parametreleri.....	76



ŞEKİLLER DİZİNİ

SAYFA

Şekil 1.1.	Lüminesans olayının karakteristik zamana göre sınıflandırılması	4
Şekil 1.2.	Floresans (a) ve Fosforesans (b) olayının şematik görünümü	6
Şekil 1.3.	Mutlak sıcaklığında denge durumunda bulunan metal	7
Şekil 1.4.	Yarıiletken ve yalıtkanlarda yaygın elektronik geçişler:	8
Şekil 1.5.	TL olayının fiziksel süreci (Aitken, 1998)	11
Şekil 1.6.	OTOR model.	13
Şekil 1.7.	Birinci derece TL denklemine göre normalize edilmiş ışıma tepesi.....	15
Şekil 3.1.	Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu cihazının genel görünümü	32
Şekil 3.2.	Lexsyg Smart TL/OSL okuyucunun temel bölümleri	32
Şekil 3.3.	Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda bulunan örnek tablası	33
Şekil 3.4.	PANalytical EMPYREAN XRD marka cihaz.....	35
Şekil 3.5.	Protherm PLF 14/50/450 marka fırın	36
Şekil 3.6.	Öğütme işleminde kullanılan agat havan.....	37
Şekil 3.7.	Prescisa XB 220 A marka.....	38
Şekil 3.8.	Carver marka hidrolik pres cihazı ve parçaları.....	39
Şekil 3.9.	Çeker ocak.....	40
Şekil 3.10.	Malzeme hazırlama laboratuvarından bir kare	42
Şekil 3.11.	Malzemelerin sentezleme aşamaları.....	43
Şekil 4. 1.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının XRD desenleri	46
Şekil 4.2.	SrGd_2O_4 fosforuna ilişkin filtre testi	48
Şekil 4.3.	a-f. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının dört farklı standart filtre kombinasyonları test sonuçları.....	51
Şekil 4.4.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının IRSL-TL geniş banddaki TL ışıma eğrileri	52

Şekil 4.5.	Her bir katkı oranına ($\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) karşılık toplam TL eğri alanları.....	53
Şekil 4.6.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun 0.1-10 Gy aralığındaki farklı doz oranlarına maruz bırakılmasıyla elde edilen TL ısıtma eğrileri	54
Şekil 4.7.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun 0.1-10 Gy aralığındaki doz-yanıt eğrisi.....	55
Şekil 4.8.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun 10 döngü sonrasındaki değişimi	56
Şekil 4.9.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforuna ısıtma hızının TL ısıtma eğrilerine etkisi	57
Şekil 4.10.	Farklı ısıtma hızları sonucunda elde edilen Tepe 1 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.....	58
Şekil 4.11.	Farklı ısıtma hızları sonucunda elde edilen Tepe 2 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.....	59
Şekil 4.12.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun sabit 5 Gy beta dozu altında 40 °C ile 271 °C arasında 3 °C'lik artışlarla T_{durma} olarak ifade edilen sıcaklık değerlerine kadar ısısal temizleme işlemi uygulanması ile elde edilen TL ısıtma eğrileri	61
Şekil 4.13.	IR yöntemi kullanılarak elde edilen aktivasyon enerjisine karşı T_{durma} grafiği.....	62
Şekil 4.14.	tgcd isimli R paketi kullanılarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun TL ısıtma eğrisinin ayrıştırılması	63
Şekil 4.15.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının XRD desenleri	64
Şekil 4.16.	$\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının 1 Gy beta doz sonrası elde edilen TL ısıtma eğrileri	65

Şekil 4.17. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarındaki her bir katkı oranının toplam eğri alanına karşı grafiği	66
Şekil 4.18. 0.1-8 Gy aralıklarındaki farklı beta dozları ile elde edilen TL ısıma eğrileri.....	67
Şekil 4.19. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforuna 0.1-8 Gy aralıklarında elde edilen doz-yanıt eğrisi	68
Şekil 4.20. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}$ fosforunun ilk TL okumasına göre normalize edilen TL şiddetlerinin 15 döngüye kadar tekrarlanabilirlik grafiği.....	69
Şekil 4.21. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu için farklı ısıtma hızlarında elde edilen TL ısıma eğrilerinin karşılaştırılması.....	70
Şekil 4.22. Farklı ısıtma hızlarında sonucunda elde edilen Tepe 1 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.	71
Şekil 4.23. Farklı ısıtma hızlarında sonucunda elde edilen Tepe 2 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.	72
Şekil 4.24. Farklı ısıtma hızlarında sonucunda elde edilen Tepe 3 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.	72
Şekil 4.25. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun 40-271 °C arasında 3 °C'lik artışlarla elde edilen TL ısıma eğrileri.....	74
Şekil 4.26. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforlarının 3°C'lik artışlarla 40-271°C aralığında elde edilen aktivasyon enerjileri	75
Şekil 4.27. CGCD yöntemi kullanarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun TL ısıma eğrisinin ayrıştırılması.	76



KISALTMALAR

TL	: Termolüminesans
TLD	: Termolüminesans Dozimetre
OSL	: Optik Uyarmalı Lüminesans
OSLD	: Optik Uyarmalı Lüminesans Dozimetre
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

Günlük yaşıntımızın önemli bir parçası olan radyasyon ve radyasyon ile ilgili uygulamalar modern teknoloji çağının en önemli unsurlarından biri haline gelmiştir. Bu nedenle radyasyon çeşitlerinin tanımlanması, yapıcı yönlerinin belirlenmesi ve maruz kalınması durumunda olabilecek zararların farkına varılması son derece önemlidir. Örneğin, radyasyon çeşitlerinden biri olan iyonlaştırıcı radyasyonun, tıpta teşhis ve tedavi amacı ile kullanılmasının yanında soğrulan doza bağılı olarak kanser hastalığına, DNA yapısının bozulmasına ve genetik değışikliklere neden olduğı bilinmektedir. Bu nedenle, iyonlaştırıcı radyasyon kaynağı ile çalışan nükleer tıp, radyoterapi ve radyoloji gibi alanlarda çalışan personelin güvenliğinin sağlanması amacıyla kişilerin maruz kaldıkları radyasyon doz miktarının periyodik aralıklarla takip edilmesi yani ölçülmesi önemlidir. Ayrıca, komşu ülkelerden kaynaklanabilecek olası nükleer sızıntılar ve nükleer kazalar sonusunda herhangi bir malzemenin veya canlı organizmanın maruz kaldığı radyasyon doz miktarının belirlenmesi de gerekmektedir. Bu bağlamda iyonlaştırıcı radyasyonun kullanıldığı alanlarda doz miktarının ölçülmesi oldukça önemlidir. Bu ölçüm genellikle sentetik olarak üretilen ve dozimetre adı verilen cihazlar ile yapılmaktadır. Dozimetreler, doğrudan ya da dolaylı olarak iyonlaştırıcı radyasyona maruz kaldığında gelen enerjinin bir kısmını yapısında tutan ve ihtiyaç duyulduğunda bu enerjiye ulaşmamıza imkan sağlayan bir çeşit algılama sistemleridir. İyonlaştırıcı radyasyonun ülkemizde özellikle sağlık ve enerji alanında hızla artan kullanımı düşünüldüğünde dozimetreler ile ilgili çalışmaların hassasiyetle devam etmesi gerektiğı anlaşılmaktadır. Yaygın olarak kullanılan dozimetrelerden birisi de termoluminesans dozimetreleridir (TLD).

Son yıllarda yarıiletken ve yalıtkan malzemelerin dozimetrik özellikleri üzerine binlerce çalışma yapılmıştır. Bu çalışmaların az bir kısmı yeni TLD malzemelerin araştırılması üzerine yoğunlaşırken diğer kısmı ise var olan TL malzemelerin farklı sentezleme yöntemleri ile kimyasal kompozisyonunda stokiometrik oranlarda değişiklikler yapılarak TL özelliklerini geliştirmeye yöneliktir. Bu amaçla bu tez çalışmasında da, katıhal tepkime yöntemi ile sentezlenmiş olan SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının termoluminesans özellikleri araştırılarak bu fosforların çevresel, medikal (klinik), kişisel (personel) veya yüksek doz dozimetresi gibi alanların birinde TLD malzemesi olarak kullanılabilme potansiyelleri araştırılmıştır.

1.1. Lüminesans

Yalıtkan ya da yarıiletken kristal bir malzeme, dış kaynaktan gelen X ve gama (γ) ışınları gibi iyonlaştırıcı bir radyasyon kaynağına veya ısı, elektron demeti, mekaniksel kuvvet ve elektrik enerjisi gibi bir enerji kaynağına maruz kalması sonucunda bu enerjinin bir kısmını soğurabilir. Soğurulan bu enerji malzeme içerisindeki atomun en dış yörüngesindeki elektronları uyatarak bir üst enerji seviyesine çıkarabilir. Elektron kararsız olan bu enerji seviyesinden tekrar eski kararlı (temel) enerji seviyesine dönüşümü esnasında soğurduğu bu enerjiyi iki enerji seviyesi arasındaki enerji farkı kadar bir enerjiye sahip foton (ışık) olarak yayar. Bu şekildeki ışık yayılım olayına genel olarak "lüminesans" (ışılma) adı verilmektedir (McKeever, 1985; Chen ve McKeever, 1997; Furetta, 2010; Sunta, 2015). Yayılan ışığın dalga boyu, ışılma yapan malzemenin karakteristik özelliği olup genellikle

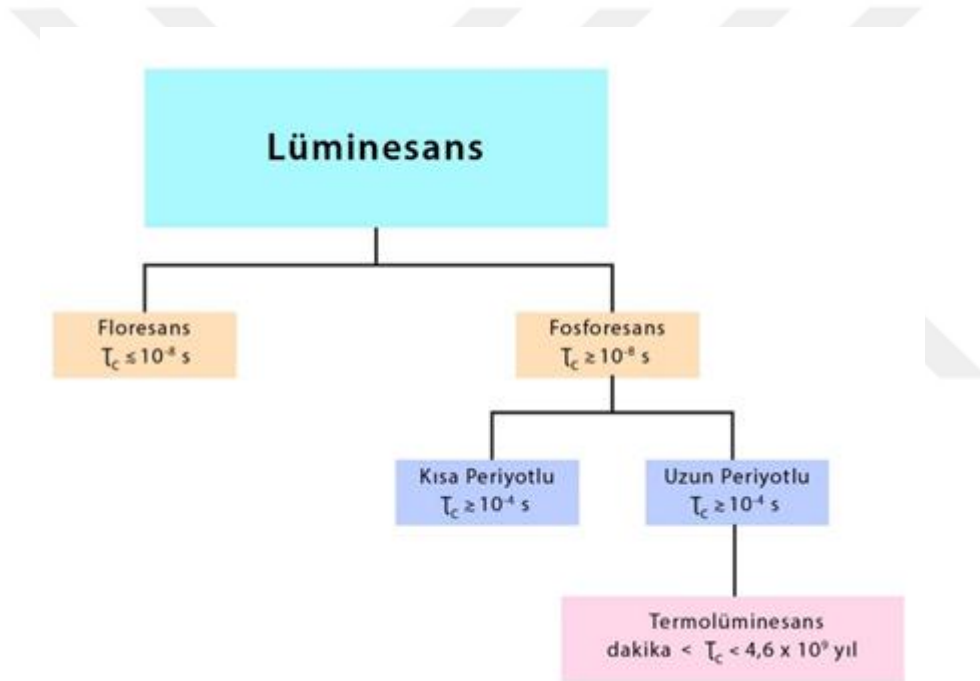
elektromanyetik spektrumun görünür bölgesine düşmektedir (McKeever, 1985).

Lüminesansın genel tanımından da anlaşılacağı üzere uyartım kaynağına göre farklı lüminesans çeşitleri bulunmaktadır. Örneğin uyartım için gerekli enerji, canlı organizmaların hücrelerinde gerçekleşen doğal kimyasal reaksiyonlardan sağlanıyorsa biyolüminesans, elektriksel enerjiden sağlanıyorsa elektrolüminesans, kimyasal enerjiden sağlanıyorsa kemilüminesans, mekaniksel enerjiden sağlanıyorsa tribolüminesans, X-ışınları, alfa, beta ve gama gibi iyonlaştırıcı radyasyondan sağlanıyorsa radyolüminesans ve elektron demetinin enerjisinden sağlanıyorsa katodalüminesans olarak adlandırılır. Lüminesansın oluşumunda kullanılan uyartım kaynakları Çizelge 1.1’de özetlenmiştir.

Çizelge 1.1. Uyartım kaynaklarına göre lüminesans çeşitleri (McKeever, 1985)

Lüminesans Türü	Uyartım Kaynağı
Termolüminesans (TL)	İyonlaştırıcı Radyasyon
Fotolüminesans (PL)	Uygun Dalgaboylu Işık
Katodalüminesans (CL)	Elektron Demeti
Radyolüminesans (RL)	İyonlaştırıcı Radyasyon
Tribolüminesans	Mekanik Enerji
Biyolüminesans	Biyokimyasal Enerji
Kemilüminesans	Kimyasal Enerji
Elektrolüminesans (EL)	Elektrik Alan
Sonolüminesans	Ses dalgaları

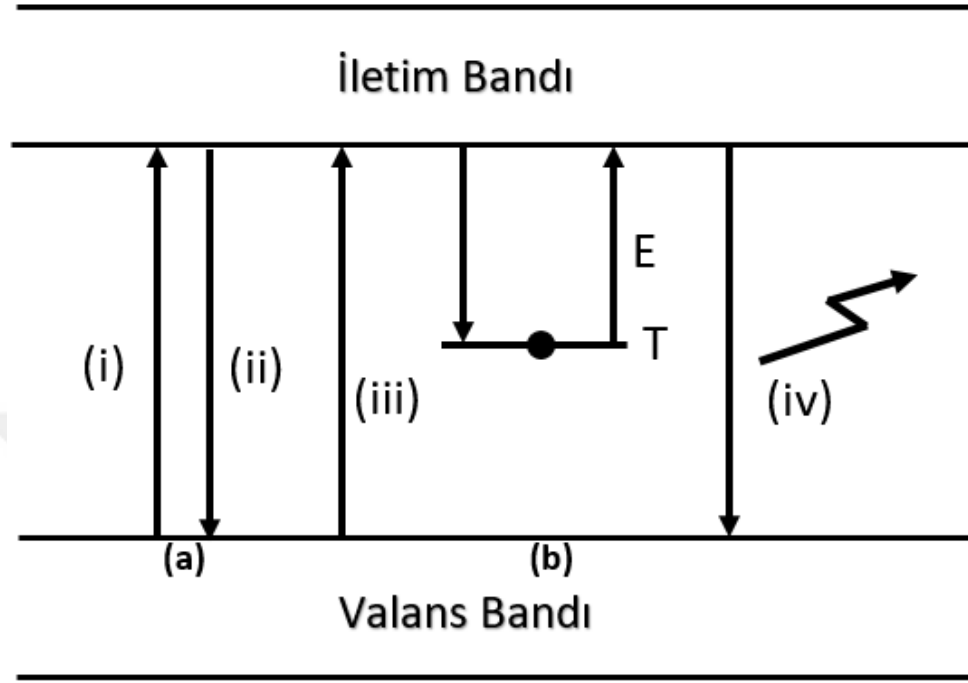
Lüminesans, iyonlaştırıcı radyasyonun malzeme tarafından soğurulması ile malzemeden ışığın açığa çıkması arasında geçen karakteristik zamana göre floresans ve fosforesans olarak iki farklı şekilde sınıflandırılabilir (McKeever, 1985). Şekil 1.1'den de görüldüğü üzere karakteristik zamanın (τ_c), 10^{-8} s'den daha küçük olduğu durumlardaki ($\tau_c < 10^{-8}$ s) ışımaya çeşidine 'floresans', 10^{-8} s'den daha uzun sürdüğü ($\tau_c > 10^{-8}$ s) ışımaya çeşidine ise 'fosforesans' adı verilir (McKeever, 1985).



Şekil 1.1. Lüminesans olayının karakteristik zamana göre sınıflandırılması (McKeever, 1985)

Floresans, yalıtkan ya da yarıiletken kristal bir malzemenin radyasyon kaynağına maruz bırakılması sonucunda soğrulan enerji ile valans bandında bulunan elektronların enerji kazanarak iletim bandına çıkması (geçiş i) ve tekrar değerlik bandına geçişi (geçiş ii) sırasında 10^{-8}

saniyeden daha kısa bir sürede ışık yayılımını ifade eder (Şekil 1.2.a). Bu durum, uyarılmanın devam ettiği sürece ışığın yayılması anlamına gelmektedir. Yani uyartım kaynağın kesilmesiyle birlikte ışık yayılımının da duracağı söylenebilir. Benzer şekilde, Şekil 1.2.b’de dövrüldüğü gibi yalıtkan ya da yarıiletken kristal bir malzemenin iyonlaştırıcı radyasyon kaynağına maruz bırakılmasının sonucunda soğurulan enerji ile valans bandında bulunan elektron enerji kazanarak iletim bandına çıkabilir (geçiş iii). Serbest haldeki elektronun iletim bandından tekrar kararlı duruma geçişi esnasında yasak enerji aralığındaki yarı kararlı bir enerji seviyesinde (T) tuzaklanabilir. Tuzaklanmış elektronun uyarıcı bir kaynak (ısı gibi) ile en az tuzak derinliği (E) kadar bir enerjinin elektrona verilmesi ile tekrar iletim bandına geçer ve daha sonra taban durumuna dönmesi esnasında bir foton yayılımı oluşur (iv). Böylece, floresans olayı ile karşılaştırıldığında yarı kararlı enerji seviyesinden dolayı uyarılma-ışınma arasında bir gecikme olabilmektedir. Bu şekilde 10^{-8} saniyeden daha fazla ($\tau_c > 10^{-8}$) süren ışıma çeşidine fosforesans adı verilir. Fosforesans olayında, malzeme üzerindeki uyartım kaynağı kesildikten sonrada ışıma gözlenebilir. Floresans ve fosforesans arasındaki en ayırt edici özellik, fosforesans olayı sıcaklığa bağılyken, floresans olayı sıcaklıktan bağımsızdır.

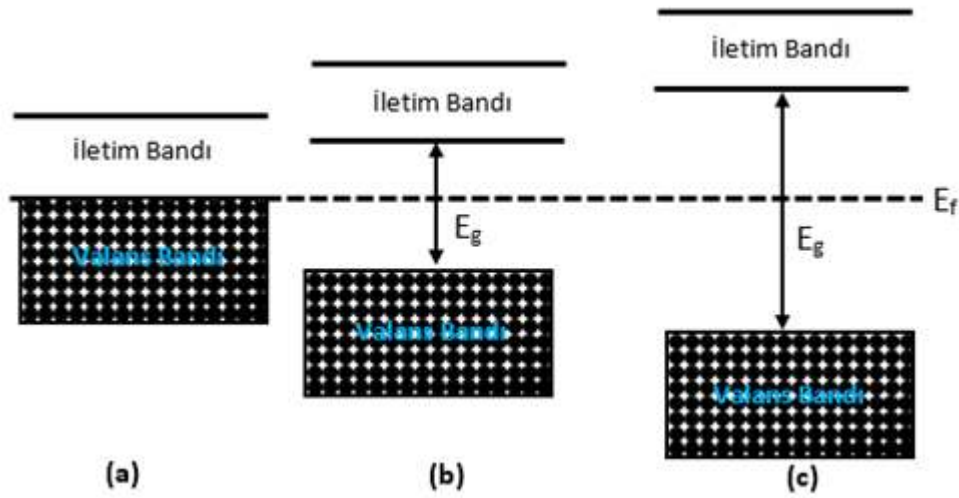


Şekil 1.2. Floresans (a) ve Fosforesans (b) olayının şematik görünümü (McKeever, 1985)

1.2. Katılarda Bant Modeli ve Elektron Geçişler

Elektronlar için Schrödinger dalga denkleminin periyodik olarak değişen potansiyel altındaki çözümü, elektronların sadece izin verilen enerji aralıklarında bulunabileceğini gösterir (Kittel, 2004). Diğer olası enerji değerleri yasak enerji aralığını veya yasak band aralığını oluşturur. Yani, valans bandı ile iletim bandı elektronların bulunabileceği izinli bantlardır. Bu iki band arasında yer alan bölgeye yasak enerji aralığı (E_g) ya da band aralığı denilmektedir ve bu band izinli iki enerji durumunu birbirlerinden ayırmaktadır (Şekil 1.3). Böylece katılar, yasak enerji aralığının büyüklüğüne göre iletken, yarı iletken ve yalıtkan olarak adlandırılır. Yasak enerji aralığının büyüklüğü ihmal edilecek kadar küçük ise materyal iletken olarak adlandırılır (Şekil 1.3.a). Yasak enerji aralığının büyüklüğü yaklaşık olarak 4 eV'dan küçük

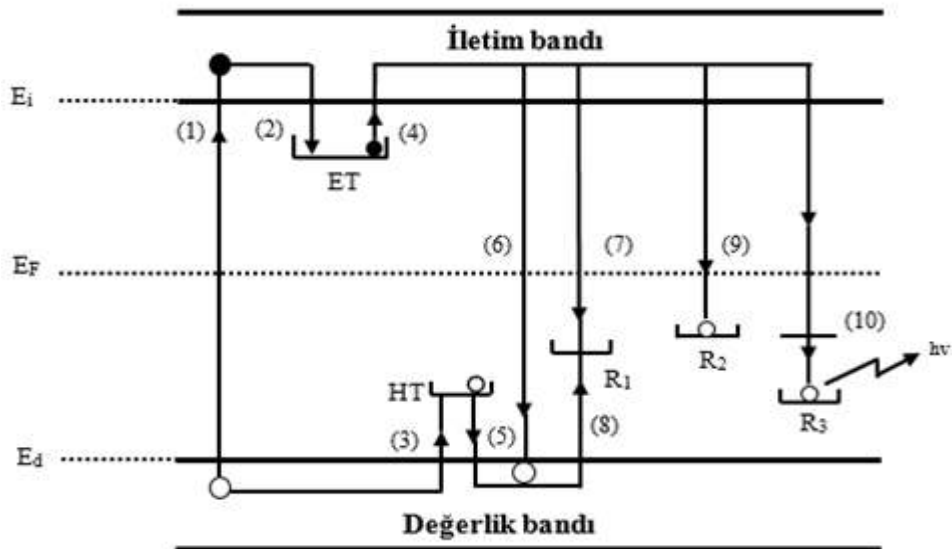
ise materyal yarıiletken (Şekil 1.3.b.), 4 eV'dan büyük ise materyal yalıtkan olarak adlandırılır (Şekil 1.3.c.). Mükemmel (kusursuz) bir kristal, sadece mutlak sıcaklıkta (0K) bulunabilir. Mutlak sıcaklıkta fermi enerjisi seviyesinin altındaki tüm enerji düzeyleri tamamen doluyken, üzerindeki enerji düzeyleri tamamen boştur (Şekil 1.3). Kusursuz bir kristalde yasak enerji aralığında elektron bulunmaz ve bu durum yalnızca mutlak sıfırda geçerlidir. Ancak, çeşitli nedenlerden dolayı kristalde yapısal kusurlar veya örgü içerisinde safsızlıklar oluşmuşsa, kristal yapının periyodik tekrarlanması bozulur böylece kusursuz kristaldeki yasak enerji aralığında elektron bulunabileceği yeni ara enerji seviyeleri mümkün olacaktır. Bu ara enerji seviyeleri yarı kararlıdır ve elektron-holler için tuzak görevi görmektedirler.



Şekil 1.3. Mutlak sıcaklığında denge durumunda bulunan metal (a), yarıiletken (b) ve yalıtkan (c) bir malzemenin enerji seviyeleri. E_f Fermi enerjisi seviyesini göstermektedir (McKevver, 1985)

Enerji band modeline göre, mutlak sıcaklıkta yalıtkan ya da yarıiletken kristal bir malzeme herhangi bir dış enerji kaynağına (ısı,

iyonlaştırıcı radyasyon gibi) maruz kalmadığı sürece elektronların değerlik bandından iletkenlik bandına geçiş yapması mümkün değildir. Ancak bu kristal malzemelerin alfa, beta ve gama gibi iyonlaştırıcı radyasyon kaynağına maruz bırakılması ile valans bandında bulunan elektronların yeterli enerjiyi soğurmaları sonucunda kristal örgü içinde enerji seviyeleri arasında geçişler yaparlar. Bu geçişler bir enerji durumundan diğerine olan elektronik geçişlerle olur. Elektron ve deşiklerin olası geçişleri Şekil 1.4'te şematik olarak gösterilmiştir. Şekil 1.4'e göre siyah daireler elektronları açık daireler ise holleri (deşikleri) temsil etmektedir. Şekil 1.4'te E_c iletkenlik bandının en düşük enerji seviyesini, E_d değerlik bandının en yüksek enerji seviyesini, E_f Fermi enerji seviyesini göstermektedir.



Şekil 1.4. Yarıiletken ve yalıtkanlarda yaygın elektronik geçişler: (1) iyonizasyon; (2) ve (3); sırasıyla elektron ve deşik tuzaklanması; (4) ve (5) elektron ve deşikin serbest bırakılması; (6) doğrudan yeniden birleşme; (7), (8), (9) ve (10) dolaylı yeniden birleşme. (ET: Elektron Tuzağı; HT: Hol Tuzağı; R_1 , R_2 ve R_3 yeniden birleşme merkezleri) (Yazıcı, 1996; Topaksu, 2004)

Şekil 1.4. (1)'de görüldüğü gibi yalıtkan ya da yarıiletken kristal bir malzemenin iyonlaştırıcı radyasyon kaynağına maruz kalması ile valans bandında bulunan elektronların yeterli enerjiyi soğurmaları sonucunda yasak enerji aralığını geçerek iletim bandına geçerler. İyonlaşmanın bir sonucu olarak bu şekilde iletim bandına geçen her elektron valans bandında bir hol (deşik) bırakır. İletim bandındaki serbest elektron ve valans bandındaki serbest deşik, örgü tuzaklarında tuzaklanana kadar serbestçe hareket ederler.

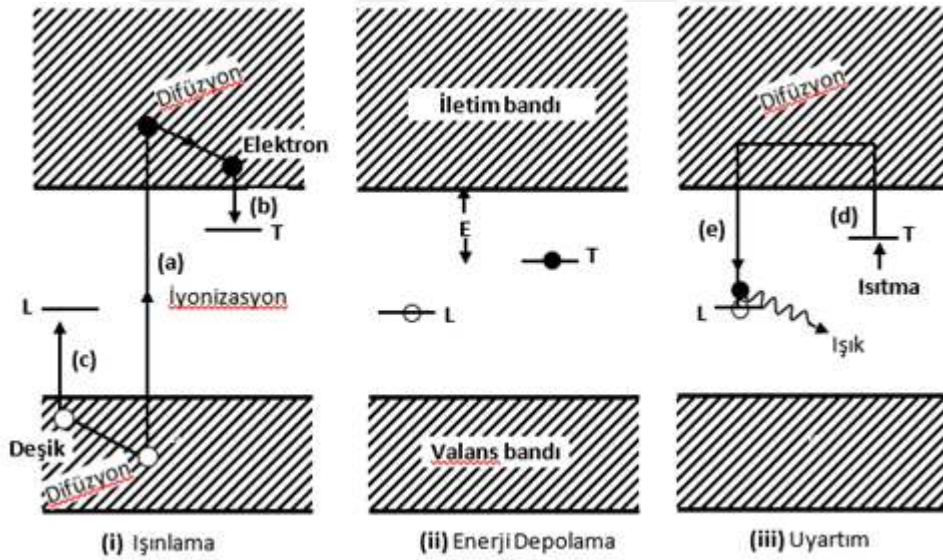
Kristal örgüde serbest hareket eden elektron ve deşikler Şekil 1.4'teki 2 ve 3 numaralı geçişleri yaparak tuzaklanırlar. Tuzaklanmış elektron ve deşikler, kristal ısıtıldığında veya uygun dalga boylu ışık ile uyartıldığında tuzaklardan serbest kalırlar (4 ve 5 nolu geçişler). Tuzaktan kurtulan elektron ve deşikler doğrudan ya da dolaylı olarak yeniden birleşme merkezlerindeki (R_1 , R_2 , R_3) tuzaklanmış holler ile birleşebilirler (6, 7, 8, 9 ve 10 numaralı geçişler). Banddan banda olan yeniden birleşme, doğrudan birleşme olarak adlandırılır. Banddan merkeze veya merkezden merkeze yeniden birleşmeler ise dolaylı birleşmeler olarak adlandırılır. Yeniden birleşme süreçleri ışımalı (radiative) ya da ışımasız (non-radiative) olarak gerçekleşebilir. Lüminesans oluşması için yeniden birleşme merkezlerinde foton yayılımının gerçekleşmesi gerekmektedir. Yani, birleşmeler sonucunda malzemeden foton yayılımı gerçekleşiyorsa, bu birleşme yerlerine yeniden birleşme merkezleri veya lüminesans merkezleri denir (10 numaralı geçiş). Işımasız geçişlerde ise enerji, fononlara ya da kristal örgü titreşimlerine verilir ve bu durum malzemenin ısınmasına neden olur.

1.3. Termolüminesans

Bir malzemede termolüminesans olayının gözlenebilmesi için o malzemenin yasak enerji aralığında çeşitli nedenlerle oluşmuş kusurların olması gerekir. Yani temelde TL olayı, kristal örgüdeki kusurların bir sonucudur. Yasak enerji aralığında yeni ara enerji seviyelerin oluşmasına neden olan safsızlıklar kontrol edilerek farklı alanlarda kullanılabilen yeni dozimetrik materyaller üretilir. Dolayısıyla, safsızlık içermeyen bir kristalin TL özelliği göstermesi beklenemez. Elektron ve deşik tuzağı olarak davranan safsızlıkların oluşturduğu yasak bölgedeki enerji seviyelerinin çalışılması, dozimetre uygulamalarında geniş yer almıştır. Buradan hareketle dozimetrik malzeme araştırmalarında çalışılacak malzemenin yalıtkan ya da yarı iletken olması gerekmektedir. Metallerde ise safsızlıkları bünyesinde muhafaza edilebilecek herhangi bir mekanizma olmadığı için bu malzemelerde TL olayı gözlenmez.

Gerçekte çok karmaşık olan TL olayını tam olarak açıklayabilen bir model yoktur. Ancak, katılardaki enerji-band modeli ile TL olayını basite indirgeyerek açıklayabiliriz. Şekil 1.5’de TL olayın basamakları grafik halinde sunulmuştur. Birinci basamakta elektron ve deşik çifti oluşmaktadır (i ışınlama). Bu basamak, yalıtkan ya da yarıiletken kristal bir malzemenin iyonlaştırıcı radyasyon kaynağına maruz kalması ile valans bandında bulunan elektronların yeterli enerjiyi soğurmaları sonucunda yasak enerji aralığını geçerek iletim bandına geçmesini vurgulamaktadır. İyonlaşmanın bir sonucu olarak bu şekilde iletim bandına geçen her elektron geride bir hol (deşik) bırakır. Böylece, soğrulan radyasyon doz miktarına bağlı olarak kristal yapıda sebestçe hareket edebilen elektron-hol çiftleri oluşur. İkinci basamakta, kristal örgüde hareket halinde olan elektron-deşik çiftlerinden elektron, iletim bandına yakın elektron tuzaklarından (T) birine yaklanırken

deşik de valans bandına yakın bir bölgede birdeşik tuzağına (L) tuzaklanabilir (ii enerji depolama). Böylece, elektronlar radyasyondan aldıkları enerjiyi bu tuzaklarda biriktirmiş olurlar. Elektronların yakalandıkları tuzaklarda kalma süresi iletkenlik bandı altındaki tuzanın E derinliği ile belirlenir. Tuzak derinliği (E), tuzaklanmış bir elektronun tuzakta ne kadar süre boyunca kalacağını belirler. Bu süre birkaç dakikadan bir milyon yıla kadar uzanabilmektedir. Kısa sürede boşalan tuzaklara sıg, uzun sürede boşalanlara da derin tuzaklar denir. Derin tuzaklar oluştukları andan itibaren kendiliklerinden boşalmadıkları için maddenin aldığı radyasyon miktarını tam olarak yansıtır.



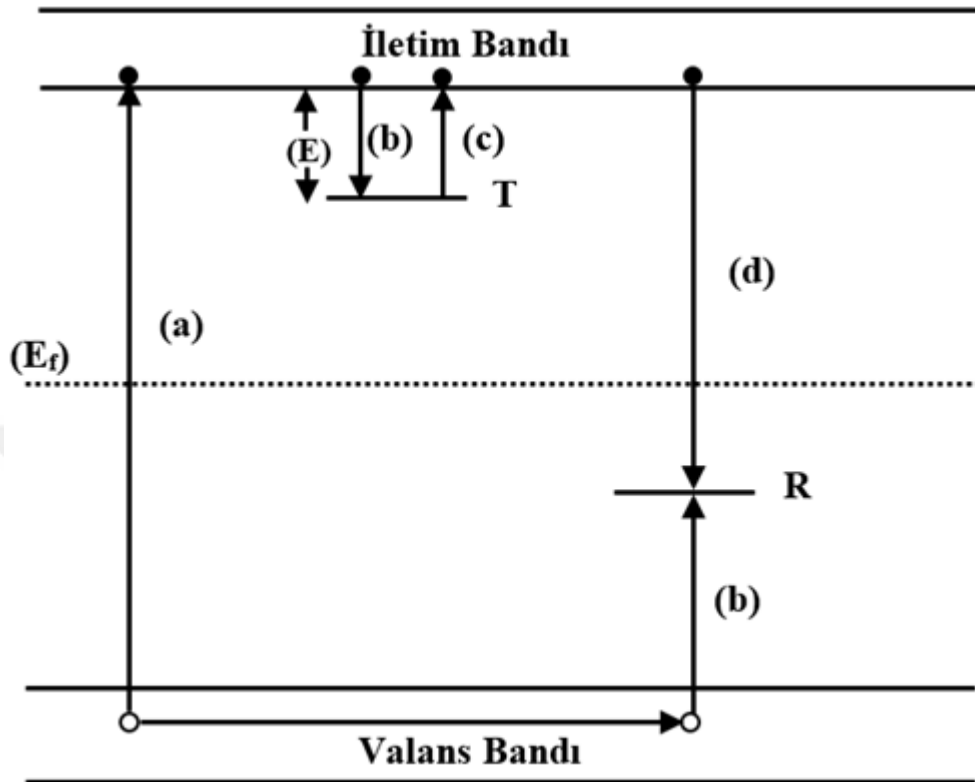
Şekil 1.5. TL olayının fiziksel süreci (Aitken, 1998)

Üçüncü basamakta ise, yarı kararlı enerji seviyesindeki tuzaklanmış elektronlar, doğrusal bir ısıtma hızında ısıtıldığı zaman tuzaktan kurtularak iletim bandına geçerler. İletim bandına çıkan elektronlar valans bandına

dönerken yeniden birleşme merkezindeki (lüminesans merkezi) holler ile birleşerek foton yayarlar (iii uyartım). Böylelikle kristalde biriken radyasyon miktarı ışık olarak geri verilmiş olur. Yayımlanan ışığın miktarı kusurlarda depolanan elektronların sayısı yani kristalin maruz kaldığı radyasyon doz miktarı ile orantılıdır. Kristalden çıkan fotonlar (TL şiddeti) bir foto dedektör yardımıyla algılanıp sıcaklık veya zamanın bir fonksiyonu olarak bir veya daha fazla tepeden oluşan bir eğri şeklinde kaydedilir. Kaydedilen bu eğriye TL ışıma eğrisi denilmektedir. Eğrinin altında kalan toplam alan ısıtma sırasında malzemeden çıkan toplam foton sayısını yani malzemenin soğurmuş olduğu radyasyon doz miktarını göstermektedir. Ayrıca, her bir ışıma tepesinin yüksekliğinin sayısal değeri, kristalin maruz kaldığı radyasyon dozu ile orantılıdır.

1.4. Termolüminesans Kinetikleri

TL kinetikleri daha önceden iyonlaştırıcı radyasyona maruz bırakılmış yalıtkan veya yarıiletken kristallerde oluşan elektron ve deşiklerinin kristal örgü içerisindeki tuzaklarda tuzaklanmasını ve bu malzemelerin ısıtılması sonucunda tuzaktan kurtulan elektronların bazı varsayımlar doğrultusunda izleyebileceği yolların matematiksel denklemlerle nasıl ifade edildiğini içermektedir. Bu matematiksel denklemlerin anlaşılabilmesi için Şekil 1.6'de verilen "Bir Tuzak ve Bir Yeniden Birleşme Merkezi" (OTOR) olan enerji band modeli kullanılmaktadır (McKeever ve ark., 1995).



Şekil 1.6. OTOR model. (a) elektron-deşik çiftinin oluşumu (b) elektron-deşiklerin tuzaklanması (c) ısı ile elektronun tuzaktan kurtulması (d) yeniden birleşme merkezinde elektron ve deşiklerin birleştirilmesi. Siyah ve beyaz daireler sırasıyla elektron ve deşikleri temsil etmektedir. T , elektron tuzağını; R , hem yeniden birleşme merkezini hem de deşik tuzağını; E , tuzak derinliği; E_f , Fermi enerji seviyesini ifade etmektedir (McKeeve ve ark., 1995)

OTOR modeline göre yarı kararlı enerji seviyesindeki tuzaklanmış elektronların ısıtılması sonucunda tuzaktan kurtulan elektronların gidebileceği üç olası durum vardır. Birincisi, direk lüminesans merkezlerindeki mevcut hollerle birleşip lüminesans vermesi durumu (birinci derece kinetik). İkincisi, ya tekrar tuzaklanabileceklerini ya da lüminesans oluşturmak için yeniden birleşme merkezlerine geçebilecekleri durum (ikinci derece kinetik). Üçüncüsü ise, birinci ve ikinci dereceden

kinetiklere ait şartların sağlanmadığı yani yetersiz kaldığı bazı durumlar (genel derece kinetik).

1.4.1. 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.

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

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,

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

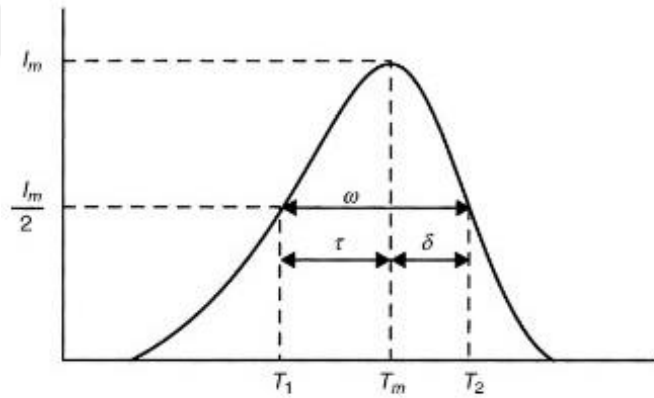
şekline dönüşür.

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

olarak bulunur.

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

Bu ifadeye ait TL şiddeti-sıcaklık grafiği Şekil 1.7'de gösterilmiştir.



Şekil 1.7. 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,

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

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

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

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

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

- Sabit bir ısıtma hızı için, aktivasyon enerjisi (E) arttıkça veya frekans faktörü (s) azaldıkça T_m yüksek sıcaklıklara doğru kayar.
- E 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.

1.4.2. İkinci Derece 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.

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

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

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

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

ve buna göre yoğunluk,

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

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

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

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

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

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

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

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

1.4.3. 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;

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$I(t) = s n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \right]^{\frac{b}{b-1}} \quad (1.33)$$

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

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

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

denklemleri elde edilir (Furetta ve Weng, 1998).

1.5. TL Tuzak Parametrelerinin Belirlenmesi İçin Kullanılan Yöntemler

Termoluminesans çalışmalarında kullanılan analiz yöntemleri temel olarak, herhangi bir materyalin tuzak yapısını anlamaya ve belirlemeye yöneliktir. Bu yöntemler ile TL ölçümleri sonucunda elde edilen ışıma eğrilerinden tuzak parametrelerinin hesaplanması ile malzemelerin örgü yapılarındaki tuzaklar hakkında bilgi sağlanmaktadır. Her bir kusur bir enerji (E), frekans faktörü (s) ve kinetik bir mertebeye (b) sahip parametrelerden oluşmaktadır. E parametresi, kristalin örgü yapısındaki yarı kararlı bir enerji düzeyinden tuzaklanmış bir elektronun tuzaktan kurtulabilmesi için tuzığa verilmesi gereken aktivasyon enerjisidir. Bu aktivasyon enerjisi tuzak derinliği olarak da tanımlanır. Kristalin örgü yapısındaki tuzak bir kutu olarak düşünülürse s parametresi, elektronun bu tuzaktan kaçmak için kutunun duvarlarına birim zamandaki titreşim sayısına (çarpma sayısı) kaçma frekansı (frekans faktörü) olarak tanımlanabilir (Mott ve Gurney, 1940; Mott ve Stoneham, 1977). b parametresi ise, kristalin örgü yapısındaki yarı kararlı bir enerji

düzeyinden tuzaklanmış bir elektronun tuzaktan kurtulduktan sonra tekrar tuzaklanıp tuzaklanamayacağını ifade eder. Dozimetrik amaçlı sentezlenmiş bir malzemenin TL ölçümleri sonucunda elde edilen ışıma eğrilerinden bu parametrelerinin belirlenebilmesi için birçok deneysel/teorik yöntemler geliştirilmiştir (Aitken, 1998; Azorín, 1986; Randall ve Wilkins 1945; Chen ve McKeever, 1997; Chen ve Pagonis, 2011; Kirsh, 1992; McKeever, 1985; Pagonis ve ark., 2006).

Bu tez çalışmasında, katıhal tepkime yöntemi ile sentezlenmiş olan SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının tuzak parametrelerinin belirlenebilmesi için doz yanıt yöntemi, farklı ısıtma hızları yöntemi, bilgisayarla ışıma eğrisi ayrıştırma (CGCD) yöntemi ve başlangıç artış yöntemleri kullanılmıştır.

1.5.1. Doz Yanıt Yöntemi

Termoluminesans ışıma eğrisindeki her bir ışıma tepesinin kinetik mertebesini (b) belirlemek için kullanılan yaygın bir yöntemdir. Bu yöntemde ilk olarak önceden belirlenen farklı doz oranlarından malzemeye bir radyasyon dozu verilir ve ardından TL okuması yapılır. Elde edilen TL ışıma eğrilerinden tepe maksimum şiddetine karşılık gelen tepe maksimum sıcaklığı (T_m) belirlenir. Bu şekilde artan dozlar için döngü tekrarlanarak her bir doz değeri için radyasyonun tepe sıcaklıkları üzerindeki etkisi kaydedilir. TL teorisine göre sabit ısıtma hızında birinci derece kinetiğe sahip T_m sıcaklığı artan radyasyon dozundan bağımsızdır. Ancak artan doz değerlerindeki radyasyona karşı T_m sıcaklığının düşük sıcaklıklara doğru

kayması TL tepesinin ikinci veya genel dereceden kinetiğe sahip olduğu anlamına gelir.

1.5.2. Başlangıç Artış (IR) Yöntemi

İlk olarak Garlic ve Gibson (1948) tarafından öne sürülen başlangıç artış yöntemi, çevresindeki diğer ısıma tepelerinden izole edilmiş her hangi bir ısıma tepesinin aktivasyon enerjisini hesaplamada kullanılmaktadır. Bu yöntemde, TL ısıma tepesinin düşük sıcaklık kısmında sıcaklığın bir fonksiyonu olarak tuzaklanan yük taşıyıcı konsantrasyonu ($n(T)$) yaklaşık olarak sabit kabul edilmektedir. Birinci ve ikinci mertebeden kinetik denklemlerin birinci üssel kısmı sıcaklığın artmasıyla artar, ancak ikinci terim kısmı neredeyse sabit kaldığı varsayılır (Garlick and Gibson, 1948). Bu varsayım doğrultusunda birinci ve ikinci dereceden kinetik denklemleri,

$$I(t) = C \exp \left(-\frac{E}{kT} \right) \quad (1.37)$$

olarak basit haline indirgenmiş olur. Burada E , eV cinsinden aktivasyon enerjisidir, k , eV/K cinsinden Boltzmann sabitidir, T , K birimi cinsinden sıcaklıktır ve C , neredeyse sabit olduğu varsayılan denklemin geri kalanını temsil eden sabittir. Bu varsayım, TL ısıma eğrisinin tepe maksimum değerinin (I_m) % 15'lik bir sınırına kadar uygulanmaktadır (Pagonis ve ark., 2006). Bu denklemde eşitliğin her iki tarafının logaritması alındığında;

$$\ln(I) = \ln(C) - \frac{E}{k} \frac{1}{T} \quad (1.38)$$

denklemini elde edilir. Bu denklemde, $\ln(I)$ 'nın $-1/kT$ 'ye göre grafiği çizildiğinde elde edilen lineer doğrunun eğimi $-E/k$ 'ya eşit olacaktır ve buradan aktivasyon

enerjisi hesaplanılabilir. Herhangi bir izole TL ısıma eğrisi için, aktivasyon enerjisini belirlemek için başlangıç artış yöntemini uygulamak mümkündür; ancak TL ısıma eğrisi birden fazla ısıma tepelerine sahipse ve bu ısıma tepeleri birbirlerine çok yakınsa, böyle bir durum için farklı yaklaşımlar mevcuttur (Pagonis ve ark., 2006). Bu yaklaşımlardan biri örneğin ilk ısıma tepesinin üzerindeki bir sıcaklık seviyesine (T_{durma}) kadar belirli bir ısıtma hızı ile ısıtılmasını ve ardından oda sıcaklığına soğutulmasını içeren ısısal temizleme tekniğidir (Nicholas ve Woods, 1964). Hemen sonrasında ısıma eğrisinin geri kalanını elde etmek için örnek aynı ısıtma hızında tekrar ısıtılır ve ikinci ısıma tepesinin ($T_{maksimum}$) ötesinde yeniden ısıtılır ve tekrar soğutulur. Daha sonra T_{durma} 'ın yeni bir değeri kullanılarak döngüler birkaç kez tekrarlanır. Bu döngüler sonucunda elde edilen T_{durma} değerlerine karşılık $T_{maksimum}$ veya her tepe için hesaplanan aktivasyon enerjisi değerlerinin grafiği çizilir. Bu şekilde ana ısıma eğrisinin kaç ısıma tepesinden oluştuğu ve bu ısıma tepelerin enerji düzeyleri tespit edilmiş olur.

1.5.3. Farklı Isıtma Hızı Yöntemi

Farklı ısıtma hızı yöntemi, dozimetrik bir malzemenin tuzak parametrelerinin belirlenmesi için kullanılan yaygın bir yöntemdir. Isıtma hızı TL ısıma eğrisinin şekil ve maksimum tepe sıcaklık değerlerinin değişmesine doğrudan neden olur. Birinci dereceden TL ısıma tepesi için verilen

$$\frac{\beta E}{kT_m^2} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_m T}\right) \quad (1.39)$$

maksimum koşul denklemini kullanarak farklı ısıtma hızları için verilen β_1 , T_1 ve β_2 , T_2 değerleri yerine yazılıp gerekli matematiksel düzenlemeler yapıldığında

$$E = k \frac{T_{m1} T_{m2}}{T_{m1} - T_{m2}} \ln \left[\frac{\beta_1}{\beta_2} \left(\frac{T_{m2}}{T_{m1}} \right)^2 \right] \quad (1.40)$$

denklemleri elde edilir. Bu denklemler iki farklı ısıtma hızından birinci dereceden TL ısıtma tepesinin aktivasyon enerjisinin hesaplanmasıdır (Bohun, 1954; Porfianovitch, 1954; Booth, 1954). Farklı ısıtma hızları ve bu ısıtma hızlarına karşılık gelen ısıtma eğrisindeki tepe maksimum T_m değerleri kullanılarak aktivasyon enerjisini hesaplamak için önerilen başka bir yöntem vardır (Hoogenstaraaten, 1958). Bu bağıntı 1.39 eşitliğinin doğal logaritması alınıp gerekli matematiksel işlemler yapılırsa

$$\ln\left(\frac{T_m}{\beta}\right)^2 = \frac{E}{kT_m} \ln\left(\frac{E}{sk}\right) \quad (1.41)$$

denklemleri elde edilir. Burada T_m , maksimum sıcaklık tepesi; β , lineer ısıtma hızı; k , Boltzman sabiti; s , frekans faktörü ve E , aktivasyon enerjisidir. Farklı ısıtma hızları deneyinde elde edilmiş olan TL ısıtma eğrilerinin maksimum sıcaklık değerleri T_m kullanılarak $\left(\frac{1}{T_m}\right)$ karşı $\ln\left(\frac{T_m^2}{\beta}\right)$ grafiği çizildiğinde düz bir doğru elde edilir. Elde edilen doğrunun eğimi E/k 'ya eşittir ve buradan aktivasyon enerjisini hesaplanabilir. Aktivasyon enerjilerinin hesaplanmasında kullanılan bir diğer yöntem de ise sadece β ve T değerleri aynı zamanda I değerleri de kullanılmaktadır (Gartia ve ark., 1991).

Farklı ısıtma hızları yönteminde dikkat edilmesi gereken önemli bir husus ise, TL ısıtma eğrileri aynı deney koşullarında fakat farklı ısıtma hızlarında elde edildiğinde ısıtma eğrilerinin tepe maksimumuna karşılık gelen tepe sıcaklıklarının yüksek sıcaklık bölgelerine doğru kaydığı ve tepe maksimum şiddetlerinin azalarak genişlediği gözlemlenmiştir. Bu kaymaların sebebi sıcaklık gecikmesi (temperature lag) ile açıklanabilir (Kitis ve Tuyn, 1998). Sıcaklık gecikmesi, TL okuması sırasında ısıtma işlemini sağlayan ısıtıcı çift (ısıtıcı çubuk) ile örnek malzeme arasındaki teması göre değişen sıcaklık farkından kaynaklanmaktadır. Farklı ısıtma hızları yöntemi ile elde edilen kinetik parametrelerde, ısıtıcı eleman ve örnek

arasında var olan sıcaklık farkı çok büyük hatalara sebep olabilmektedir. Kitis ve Tuyn (1999), bu sıcaklık farkından kaynaklanan aktivasyon enerjisi ve frekans faktörünün doğru hesaplanması için

$$T_{m_j} = T_{m_i} - c \ln\left(\frac{\beta_i}{\beta_j}\right) \quad (1.42)$$

bağıntısını geliştirmişlerdir. Burada T_{m_j} TL ışıma tepesinin düzeltilmiş sıcaklık değeridir, T_{m_i} zaten düzeltilmiş değerdir veya başlangıçta bu değer en düşük ısıtma hızı ile kaydedilen tepe değeridir. c ise, en düşük iki ısıtma hızıyla hesaplanan sıcaklık gecikmesi düzeltme sabitidir ve

$$c = \frac{T_{m_2} - T_{m_1}}{\ln\left(\frac{\beta_2}{\beta_1}\right)} \quad (1.43)$$

bağıntısı ile hesaplanılır. En düşük ısıtma hızı için sıcaklık gecikmesinin etkisinin ihmal edilebilir olduğu varsayılır.

1.5.4. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma (CGCD) Yöntemi

Herhangi bir belirli spektrum için, onu oluşturan alt parçalara ayırmak mümkündür. Dozimetrik malzemelerin tek bir ışıma tepesinden oluşan TL ışıma eğrilerine sahip olması çok nadirdir. Dozimetrik malzemelerin çoğunda ışıma eğrisi iki ya da daha fazla sayıda ışıma tepelerine sahiptir. Ayrıca, çoğu durumda ışıma eğrilerin bitişik olarak üst üste binecek şekilde birbirine çok yakın karmaşık (kompleks) ışıma eğrilerinden oluştuğu görülmüştür. Bilgisayarla ışıma eğrisi ayırıştırma (CGCD) yöntemi, ısıtılmış TL dozimetrik malzemelerden deneysel olarak elde edilen TL ışıma eğrilerinin tuzak parametrelerinin belirlenmesinde kullanılan yaygın yöntemlerden birisidir. Bu yöntem diğer deneysel yöntemlere göre daha avantajlıdır. Çünkü üst üste binmiş kompleks ışıma tepelerin ısısal

işleme ihtiyaç duymadan ayrıştırılabilmektedir. Bilgisayarla veri kayıt yöntemlerinin gelişmesiyle birlikte, ayrıştırma yöntemleri daha popüler hale gelmiştir. Bu yöntem, TL ışıma eğrisine ait parametreleri bulmak için, birinci, ikinci ve genel mertebeden denklemlerin önceden bilgisayarda kullanılan bir yazılım diline tanıtılması esasına dayanmaktadır. Ancak, Kitis ve arkadaşları, genel derece kinetik denklemini herhangi bir malzemenin TL eğrisi bileşenlerine ayrıştırmada kullanmayı önermişlerdir (Kitis ve ark., 1998). Böylece, parametreler daha sonra değiştirilebilmektedir, buna bağlı olarak da deneysel ve hesaplanmış eğriler arasındaki fark en aza indirilmektedir. Yani, başlangıç parametrelerini (aktivasyon enerjisi, frekans faktörü ve kinetik mertebe) tahmin etmek ve ardından her bir parametreyi kendi sınırları içinde denemektir, ta ki tahmin edilen tepe noktalarının değerlerinin referans spektrumuna benzer olana kadar. Bu tahmin, deneme yanılma döngüsünü içerir. Bu tahmini dağılım “uyum” olarak da adlandırılır ve genel olarak uyum kalitesi R^2 değeri ile gösterilir. Ancak deneysel ve teorik olarak elde edilen ışıma eğrisinin birbirine ne kadar iyi fit edildiğini belirlemek için FOM (Figure of Merit) değeri de kullanılabilir (Balian ve Eddy, 1977).

$$FOM = 100 \times \frac{\sum TL_{exp} - TL_{fit}}{\sum TL_{fit}} \quad (1.44)$$

Burada TL_{exp} , deneysel verilerde farklı sıcaklık değerlerinde ölçülen toplam şiddet değerleridir. TL_{fit} ise en iyi fit değerine karşılık gelen toplam veri değerleridir. Araştırmacılar, bulunan FOM değeri % 0 ile % 2.5 arasında değişiyorsa iyi fit, % 2.5 ile % 3 arası için uyumlu ve % 3.5’den büyük olarak bulunan FOM değerleri için fit eğrisinin uyumsuz olduğunu belirtmektedirler (Balian ve Eddy, 1977; Misra ve Eddy, 1979). CGCD işleminin fiziksel kalitesi, deneysel olarak gözlemlenen olası enerji seviyesi, tepe konumu, kinetik mertebe ve deneysel gözlem yoluyla belirlenebilen herhangi bir parametre ile doğrudan

ilişkilidir. TL ısıma eğrisinin ayrıştırma işlemini yapmak için yeni bir program yazmak veya mevcut yazılı ve test edilmiş programları kullanmak mümkündür. Bu tez çalışmasında, ücretsiz ve açık kaynak kodlu bir program olan “tgcd” isimli R paketi kullanılarak TL ısıma eğrisinin ayrıştırma işlemleri yapılmıştır (Peng ve ark., 2016). Program, bu modellerin güncellenmiş versiyonları da dahil olmak üzere birçok kinetik modele sahiptir. Ayrıca, program literatüre göre de güncellenmektedir. Kinetik merteye olarak genel mertebeden kinetik seçilmiş ve ayrıştırma için

$$I(T) = I_m \exp\left(\frac{E}{kT_m^2} (T - T_m)\right) \left[\frac{1}{b} + \frac{b-1}{b} \exp\left(\frac{E}{kT_m^2} (T - T_m)\right)\right]^{-\frac{b}{b-1}} \quad 1.44$$

denklemini kullanılmıştır (Gomez-Ros ve Kitis, 2002).



2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Termolüminesans olayı çok eski tarihlerden beri bilinmektedir. Du Fay, doğal kuvars minerali ile ilgili yaptığı deneylerinde TL'nin aslında gecikmiş bir fosforesans olduğunu bilimsel ve deneysel olarak kanıtlayan ilk kişi olmuştur (Du Fay, 1738). Ancak, termolüminesans olayının dozimetride kullanımı “Bir Araştırma Aracı Olarak Termolüminesans (Thermoluminescence as a Research Tool)” adlı makale çalışması ile Farrington Daniels, Charles A. Boyd ve Donald F. Saunders tarafından gerçekleştirilmiştir (Daniels ve ark., 1953). Yeni TLD malzemeleri geliştirmek amacıyla literatürde birçok yalıtkan veya yarı iletken malzeme TL dozimetri çalışmalarına konu olmuştur. Bunlardan bazıları uluslararası kabul görmüş standart TL dozimetrelerdir. Örnek olarak, TLD-100, Magnezyum ve Titanyum katkılı lityum florür, TLD-200, Disprosyum katkılı kalsiyum florür, TLD-400, Magnezyum katkılı kalsiyum florür, TLD-500, Karbon katkılı alüminyum oksit ve TLD-800 Mangan katkılı lityum tetraborat verilebilir.

Ev sahibi olan SrY_2O_4 , SrLu_2O_4 , BaY_2O_4 ve BaGd_2O_4 fosforlarının lüminesans özellikleri üzerinde farklı çalışmalar yapılmıştır (Wang ve ark., 2007; Zhang ve ark., 2012; Sun ve ark., 2012; Besara ve ark., 2014). Ancak şimdiye kadar, nadir toprak iyonları ile katkılı SrGd_2O_4 'ün termolüminesansı hakkında çok az artış yapılmıştır. Genel olarak, TL dozimetrelerinin tercih edilen özelliklerini doku eşdeğeri, tek ışıma eğrisi, görünür bölgede yayılım spektrumuna sahip olması, geniş bir lineer aralık, kolay üretim süreci ve düşük maliyetler olarak sıralanabilir (Kishor ve ark., 2021).

Singh ve arkadaşları (2017), hava ortamında yüksek sıcaklıkta katı hal reaksiyon yöntemi ile sentezledikleri $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{Eu}$ fosforlarının yapısal ve lüminesans özelliklerini incelemişlerdir. Fosforların yapısal özelliklerini XRD, FESEM ve TEM tekniklerini kullanarak gerçekleştirmişlerdir. Safsızlık (Eu^{3+}) ve ısıtma hızının TL ışıma eğrisi üzerine olan etkilerini incelemişlerdir. Gama ile ısıtılmış $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{Eu}$ fosforuna ait TL ışıma eğrisi 537 K'de bir omuz ile 393 ve

598 K'de belirgin iki maksimum ışıma tepesine sahip olduğunu belirtmişlerdir. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{Eu}$ fosforunun 500 Gy-3 kGy arasında lineer bir doz-yanıt eğrisine sahip olduğu gözlemlenmiştir. CGCD yöntemi ile tuzak parametrelerini hesaplamışlardır. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{Eu}$ fosforunun yüksek tekrarlanabilirliği, geniş bir doz aralığında lineer ve solma (fading) miktarının düşük olması nedeniyle TL dozimetri uygulamaları için uygun bir fosfor olduğunu belirtmişlerdir.

Singh ve arkadaşları (2017), ilk kez homojen çökeltme ve otomatik yanma yöntemiyle sentezledikleri $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{Dy}^{3+}$ fosforlarının yapısal ve lüminesans özelliklerini incelemişlerdir. Fosforların yapısal özelliklerini XRD tekniğini kullanarak gerçekleştirmişlerdir. Safsızlık (Dy^{3+}) ve ısıtma hızının TL ışıma eğrisi üzerine olan etkilerini incelemişlerdir. Gama kaynağına maruz bırakılmış $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{Dy}^{3+}$ fosforunun TL ışıma eğrisi CGCD yöntemi ile 114, 161, 198, 248 ve 293 °C'de konumlanmış beş temel ışıma tepesinden oluştuğunu bildirmişlerdir. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{Dy}^{3+}$ fosforunun 80 Gy-2 kGy arasında geniş bir lineer doz-yanıt eğrisine sahip olduğunu göstermişlerdir. Bir aylık bekleme süresi sonunda % 18 oranında sinyal kaybının olduğunu belirtmişlerdir. Tuzak parametrelerinin hesaplanmasında Chen'nin tepe şekil (PS) yöntemini ve CGCD yöntemini kullanmışlardır.

3. MATERYAL VE METOT

3.1. Materyal

3.1.1. Tez Kapsamında Kullanılan Kimyasallar

Bu tez kapsamında TL dozimetresi geliştirmek amacıyla SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının sentezlenmesinde kimyasal malzeme olarak stronsiyum oksit (SrO , $\% 99.99$ saflıkta, Aldrich), evropiyum oksit (Eu_2O_3 , $\% 99.99$ saflıkta, Alfa Aesar), gadolinyum oksit (Gd_2O_3 , $\% 99.99$ saflıkta, Alfa Aesar) ve samaryum oksit (Sm_2O_3 , $\% 99.99$ saflıkta, Alfa Aesar) bileşikleri kullanılmıştır.

3.1.2. Tez Kapsamında Kullanılan Cihazlar

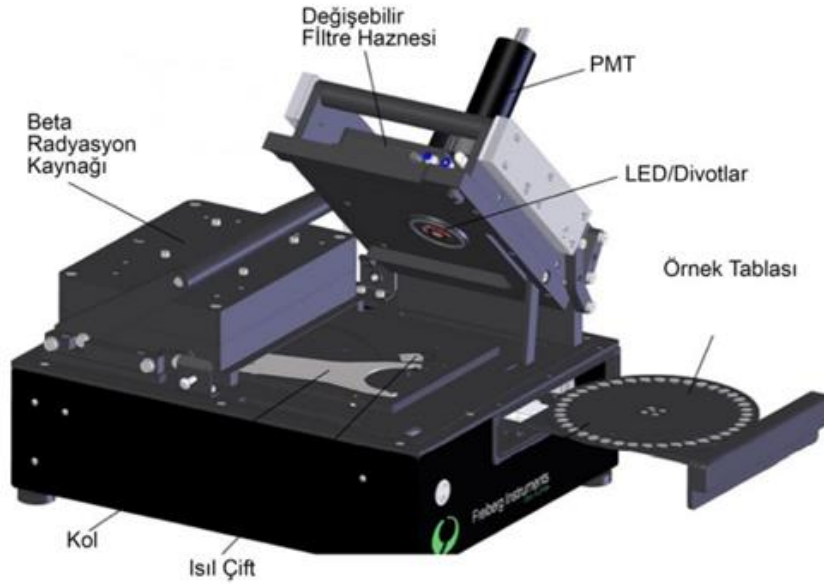
3.1.2.1. Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucusu

Bu tez çalışmasında, sentezlenen dozimetrik malzemelerin lüminesans özelliklerinin incelenmesinde Çukurova Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Termolüminesans (TL)/Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL) Dozimetri ve Tarihlendirme Laboratuvarında bulunan "Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucu" cihazı kullanılarak gerçekleştirilmiştir (Şekil 3.1). Freiberg Instruments tarafından geliştirilen Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucusu hem TL hem de OSL tekniği ile ölçüm yapabilen gelişmiş bir cihazdır (Richter ve ark., 2015). Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucu sisteminin, yapabileceği her türlü işlem için LexStudio yazılımı ile kontrol edilir. Lexsyg Smart cihazı örnek tablanın cihaza yerleştirilmesi ve çıkarılması dışında yazılımla çalıştırılır (Richter ve Kumar, 2014). Sequence programı, kullanıcının yeni bir ölçüm yazmasını veya mevcut ölçüm dizilerini düzenlemesini mümkün kılar. TL ölçümü devam ederken sıcaklığa/zamana bağlı oluşan ışıma eğrisi görülebilmektedir. Toplanan ölçüm verileri, lexysg formatındaki bir xysg dosyasında saklanır. Ayrıca, sıralama dosyasıyla birlikte verilen ölçüm ayarlarının tüm ayrıntılı bilgileri de bu xysg dosyasına kaydedilir (Richter ve ark., 2015). Sistem ayrıca farklı formatlarda çıktılar verebilmektedir. Bunlar bin, binx ve ASCII dosya kayıt türleridir.



Şekil 3.1. Lexsyg Smart TL / OSL Okuyucu cihazının genel görünümü

Lexsyg Smart TL/OSL Okuyucu, örneklerin yerleştirildiği örnek tablası (karosel), örneklerin ısıtılmasını sağlayan beta radyasyon kaynağı, örneklerin ısıtılması (TL) veya optiksel olarak uyarılmasını sağlayan TL/OSL bölümü ve bu bölümden çıkan fotonların algılanmasını sağlayan foto çoğaltıcı tüp (PMT) olmak üzere beş temel bölümden oluşmaktadır (Şekil 3.2).



Şekil 3.2. Lexsyg Smart TL/OSL okuyucunun temel bölümleri (Richter ve ark., 2015)

Cihaz içerisinde 40 örnek haznesine sahip örnek tablası ile örneklerin toz veya pelet şeklinde yerleştirilebileceği 10 mm çaplı, 0.5 mm kalınlıkta ve maksimum 2.5 mm yüksekliğinde alüminyum ya da paslanmaz çelik kenarlıklı diskleri alabilecek yuvalar bulunmaktadır (Şekil 3.3). TL ölçümü devam ederken, örnek tablası ile ölçüm odası arasında herhangi bir taşıma olmadığında kenarlı disklerin (planchetlerin) çıkarılması, eklenmesi ve/veya değiştirilmesi de mümkündür (Richter ve ark., 2015).



Şekil 3.3. Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda bulunan örnek tablası

Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda beta ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) radyasyon kaynağı kullanılmaktadır. Beta radyasyon kaynağının yarılanma ömrü yaklaşık 30 yıl olup maksimum 2.27 MeV'lik enerjiye sahip β parçacıkları yaymaktadır. Kaynak, numuneye saniyede 0.1 Gy'lik bir doz hızı sağlar. Radyasyon kaynağı özel bir kurşun blok içerisine yerleştirilmiştir.

Cihazdaki ısıtma işlemi, genel olarak 0.5°C/s'lik ısıtma hızından başlayarak 20 °C/s'lik ısıtma hızlarına kadar yapılabilmektedir. Tabla üzerinde olan örnekler asansör yardımıyla yukarı çıkartılır ve kol yardımıyla ısıtıcı bölümdaki ısı çiftin üzerine getirilerek ısıtma işlemi gerçekleştirilir. 0.5 ile 20 °C/s

ısıtma hızları arasında çıkılabilecek maksimum sıcaklık değeri 500 °C iken, 0.5 ile 10 °C/s ısıtma hızları arasında çıkılabilecek maksimum sıcaklık değeri 710 °C'dir.

Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda optiksel uyarımı sağlayan infrared, görünür veya ultraviyole lazer diyot/LED ünitesi kaynakları bulunmaktadır.

Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda, örnekten çıkan fotonlar bir fotokatlandırıcı tüp (Photomultiplier Tube, PMT) tarafından algılanmaktadır. Yayılan fotonlar, bir PMT ve sistem içerisinde yer alan optik filtreler aracılığıyla detekte edilir. Optik filtreler bi-alkalin foto katlandırıcı tüpün önünde yer alır. Örnekten çıkan fotonlar farklı dalga boylarına sahip olabilir ve bu dalga boyları farklı fiziksel özelliklere karşılık gelebilir. Bu nedenle, optik filtrelerde bir kısıtlama ihtiyacı ortaya çıkmaktadır (Richter ve ark., 2015). Sistemde filtre kombinasyonları için filtre modülü bulunmaktadır. Cihazda 6 farklı optiksel filtre bulunmaktadır (Çizelge 3.1).

Çizelge 3.1. Lexsyg Smart TL/OSL okuyucuda bulunan filtre kombinasyonları

Kombinasyonun İsmi	Her Filtrenin Bireysel İsmi
BSL, TL-365 nm	✓ Hoya-U340-Glas (2.5mm) ✓ Delta-BP 365/50 EX-Interference (5 mm)
BSL, TL-365 nm (% 0.25)	✓ Hoya – U340-Glas (2.5mm) ✓ Delta-BP 365/50 EX-Interference (5mm) ✓ Schott-NG 4- Glas (1.2 mm)
IRSL, TL-410 nm	✓ Schott-BG 39 (Glas-3mm) ✓ AHF-BrightLine HC 414/46-Interference (3.5mm)
IRSL, TL-410 nm (% 0.25)	✓ Schott-BG 39-Glas (3mm) ✓ AHF-BrightLine HC 414/46-Interference (3.5mm) ✓ Schott-NG 4-Glas (1.2mm)
IRSL, TL-565 nm	✓ Schott-BG 39-Glas (3mm) ✓ AHF-BrightLine HC 575/25-Interference (5mm)
IRSL, TL-geniş band mavi	✓ Schott-KG 3-Glas (2mm) ✓ Schott-BG 25-Glas (3mm) ✓ Schott-BG 39-Glas (3mm)

3.1.2.2. X-Işını Kırınımı (XRD) Cihazı

X-ışını kırınımı cihazı, kristal yapıların analizinde kullanılan yaygın bir tekniktir. Bu teknik, kristal yapı içerisindeki atomların incelenmesini temel alarak her bir kristal yapının kendine has atomik dizilimlerine bağlı olarak, X-ışınlarını karakteristik bir düzen içerisinde kırması esasına dayanır. Her bir kristal fazı için bu kırınım desenleri bir parmak izi gibi o kristali tanımlamaktadır. XRD kırınım ölçümlerinden kristal yapının birim hücre parametreleri, düzlemler arası mesafe, kristal örgünün hangi yapıda olduğu, bilinmeyen bir malzemenin kristal yapısı ve kristal örgünün mükemmelliği gibi birçok özelliği belirleyebiliriz. Katıhal sentez yöntemiyle sentezlenen fosforların XRD ölçümleri Çukurova Üniversitesi ÇÜMERLAB Merkezi Araştırma Laboratuvarında bulunan PANalytical EMPYREAN XRD marka cihaz ile yapıldı (Şekil 3.4). Sentezlenen fosforların X-ışını ölçümleri için sinterlenmiş tabletler agat havanda öğütülerek toz haline getirilmiştir.



Şekil 3.4. PANalytical EMPYREAN XRD marka cihaz (<https://cumerlab.cu.edu.tr/>)

3.1.2.3. Isıl İşlemlerde Kullanılan Kül Fırını

Katıhal sentez yöntemiyle sentezlenen fosforların yüksek sıcaklıklarda kalsinasyon, tavlama ve sinterleme gibi ısı işlemlerinin yapılması için Çukurova Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Termoluminesans (TL)/Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL) Dozimetri ve Tarihlendirme Laboratuvarında bulunan Protherm PLF 14/50/450 marka fırın kullanılarak gerçekleştirilmiştir (Şekil 3.5). Fırın programlanabilir özelliğe sahip olmasından dolayı her türlü özel ayarlamalara imkan sağlamaktadır. Isıl işlem esnasında fırının sıcaklığı cihazın ön panelindeki ekran vasıtasıyla dijital olarak okunmaktadır.



Şekil 3.5. Protherm PLF 14/50/450 marka fırın

3.1.2.4. Agat Havan

Katıhal sentez yöntemiyle sentezlenen toz halindeki örneklerin parçacık boyutlarındaki homojenliği sağlamak ve tribolüminesans etkisinden kaçınmak için agat havanda öğütülmüştür (Şekil 3.6). Agat havan kırılma ve çizilmeye dayanıklı olup oldukça sert bir malzemeden yapılmıştır. Sert yapısından dolayı malzeme istenilen toz haline getirilip, öğütme işlemi rahatça yapılabilir.



Şekil 3.6. Öğütme işleminde kullanılan agat havan

3.1.2.5. Hassas Terazi

Çalışmada kullanılan kimyasalların tartım işlemi, Precisa XB 220 A marka dijital hassas terazi kullanılarak gerçekleştirilmiştir (Şekil 3.7). Terazi, 0.1 mg tartım hassasiyeti, 0.1 mg'den 212 g'a kadar tartım aralığına sahiptir. Dara alma özelliği sayesinde hedeflenen miktarın tam olarak tartımı yapılabilir.



Şekil 3.7. Precisa XB 220 A marka

3.1.2.6. Hidrolik Pres Cihazı

Agat havanda yapılan öğütme işleminden sonra hazırlanan toz numuneler, CARVER marka hidrolik presleme cihazı ile pellet haline dönüştürülmüştür (Şekil 3.8). Tüm toz örnekler 2 ton-kuvvet/cm² basınç altında pelet haline getirilmiştir. Her presleme işleminde, cihazın malzeme ile temas eden her bir parçası, istenmeyen herhangi bir kontaminasyon olasılığından korumak için her seferinde metanol ile dikkatlice temizlenmiştir.



Şekil 3.8. Carver marka hidrolik pres cihazı ve parçaları

3.1.2.7. Çeker Ocak

Laboratuvarda malzeme üretimi esnasında çeker ocakların kullanılması sağlık, güvenlik ve hijyen açısından çok önemlidir. Çeker ocak içerisinde sentezi yapılan malzemelerin sentezlenme sürecinde ortaya çıkan zehirli gazların laboratuvar ortamına yayılmasını engellemek için fan ve filtre sisteminin bulunduğu bir cihazdır (Şekil 3.9). Çalışma esnasında ortaya çıkan istenmeyen kimyasal gazların ortamdaki çekilmesi otomatik olarak ayarlanabilmektedir.



Şekil 3.9. Çeker ocak

3.2. Metot

Dozimetrik malzemelerin üretiminde farklı kimyasal yöntemler tercih edilebilmektedir. Bu yöntemlerden bazıları katı-hal sentez yöntemi, çözelti yanma sentez yöntemi, sol-jel yöntemi, çöktürme yöntemi ve nitrik asit yöntemidir. Tüm bu yöntemlerin ortak hedefi, küçük parçacık boyutuna sahip polikristal veya tek kristal olan yüksek saflıkta homojen örneklerin hazırlanmasıdır. Bu tez çalışmasında bu yöntemlerden katıhal sentez yöntemi kullanılmıştır.

3.2.1. Katıhal Sentez Yöntemi

Katıhal sentez yöntemi ile malzemeler kolaylıkla ve az bir maliyetle sentezlendiği için araştırma grupları tarafından yaygın olarak tercih edilen bir yöntemdir. Bu yöntemde hedeflenen bileşikler oksitler, karbonatlar ve nitratlar gibi başlangıç kimyasalları kullanılarak hazırlanılır. Hedeflenen düzeyde malzeme sentezleyebilmek için bu başlangıç materyallerin uygun saflıkta olması gerekir. Homojen bir karışım elde etmek için başlangıç maddeleri uygun oranlarda karıştırılarak agat havanda öğütülür. Öğütme işlemindeki temel amaç mümkün olduğu kadar ince tozların elde edilmesidir. Öğütme işlemi bittikten sonra ilk ısı

işlem olan kalsinasyon aşamasına geçilir. Kalsinasyon işleminde tozlar porselen bir krozeye konularak sıcaklığı ayarlanabilir bir fırın içerisine önceden belirlenmiş sıcaklık ve sürede tutulur. Bu işlemin amacı, öğütme sırasında veya olası çevre durumlarında toz karışımının içine girebilecek yabancı maddelerin, nemin, oksit ve karbondioksit gibi uçucu maddeleri yapıdan uzaklaşması için sıcaklıkla ayrışmasını sağlamaktır. Daha sonra fırından çıkarılan tozlar tekrar agat havanda öğütülür ve tekrar kalsinasyon işlemi gerçekleştirilir. Bu döngü ile karışımda homojenlik sağlanana kadar öğütme ve kalsinasyon işlemleri birkaç kez tekrarlanabilir. Kalsinasyondan sonra toz örnekler belirlenen ton altında preslenerek peletler haline getirilir. Preslemedeki temel amaç, tanecikler arasındaki mesafeyi yakınlaştırarak malzemedeki ısı iletiminin daha kolay olmasını sağlamaktır. Pelet hazırlama işlemlerinden diğer bir ısı işlem olan sinterleme aşamasına geçilir. Sinterleme, malzemeyi oluşturan atomlar arası bağlantıları güçlendirmek, polikristalleri meydana getirmek ve bazı örgü kusurlarını ortadan kaldırmak için hazırlanmış peletlerin ayrı ayrı porselen krozelere yerleştirilerek yüksek sıcaklıkta belirli bir süre bekletmektir. Bu süre sonunda malzeme içerisinde çatlaklar ve dislokasyonlar oluşmaması için fırın yavaş ve kontrollü soğutulmalıdır. Bunun yanı sıra sinterleme yapılan kabı doğru seçmek gerekir. Çünkü, sinterleme süresince kabın yapıldığı materyalden malzemenin içerisine sızmalar olabilir.

3.2.2. Örneklerin Hazırlanması

Bu çalışmada yeni TL dozimetresi geliştirmek amacıyla SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının sentezlenmesi Çukurova Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Termolüminesans (TL)/Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL) Dozimetri ve Tarihlendirme Laboratuvarı'nda gerçekleştirilmiştir (Şekil 3.10). Bu fosforların sentezlenmesinde başlangıç kimyasalları olarak stronsiyum oksit (SrO , $\% 99.99$ saflıkta) ve gadolinyum oksit (Gd_2O_3 , $\% 99.99$ saflıkta) bileşikleri kullanılmıştır. SrGd_2O_4 fosforunu elde etmek

için başlangıç karışımları denklem 3.1 deki gibi oluşturuldu. Benzer şekilde diğer katkı fosforlarını sentezlemek için gerekli başlangıç materyalleri uygun stokiometrik oranlarda tartılarak sentezlenmiştir.

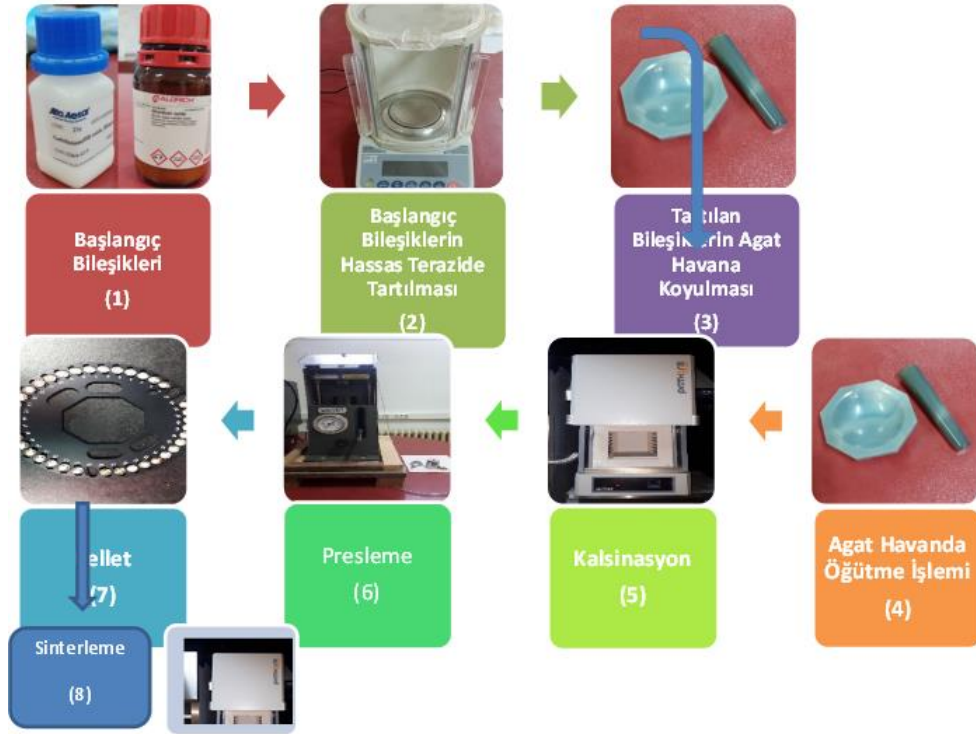


Şekil 3.10. Malzeme hazırlama laboratuvarından bir kare

Stronsiyum oksitten (SrO, % 99.99 saflıkta) kütlege 1.03 gram ve Gadolinyum oksitten de (Gd₂O₃, % 99.99 saflıkta) 3.62 gram alınarak hassas terazide tartıldı. Tartım işlemi yapıldıktan sonra katı halinde bulunan kimyasallar agat havanda karıştırıldı. Homojenliği sağlamak için karışım agat havanda 15-20 dk boyunca öğütüldü. Malzeme ısı işlem için hazır hale getirildi. Agat havandan alınan malzeme alüminyum kroze konuldu. Alüminyum kroze fırına yerleştirildi. Malzeme fırına konulduktan sonra, fırın, 2 saatte 900 °C'ye çıkması ve 900 °C'de 4 saat bekletilmek üzere ayarlandı. Bu işlemten sonra malzeme oda sıcaklığına kadar soğutulmaya bırakıldı. Soğutma işleminden sonra fırından alınan malzeme agat havana alınarak 15-20 dk boyunca tekrar dövülerek toz haline getirildi ve iyice karıştırıldı. Öğütülen toz örnekler 2 ton basınç altında 20 dakika bekleyerek 10 mm

çapında silindirik peletlere dönüştürüldü. Peletler krozeeye konularak ikinci defa ısıtılma işlemine tabi tutuldu.

Daha sonra fırın, 2 saat içerisinde 1300 °C sıcaklığa çıkacak şekilde programlandı. Kristalleşmenin tam oluşması ve atomlar arası bağların kuvvetlenmesi için hazırlanan peletler ayrı ayrı alüminyum krozelere konularak 1300 °C sıcaklıkta 4 saat boyunca sinterlendi. Sinterleme süresinin sonunda peletler yavaş bir şekilde oda sıcaklığına kadar soğutulmaya bırakıldı. Soğuyan peletler fırından çıkarıldı. Agat havanda tekrar öğütme işlemine tabi tutuldu ve toz haline gelen malzeme plastik tüplere konularak gerekli analizler için ölçüme hazır hale getirildi. Örneklerin hazırlanma aşamaları Şekil 3.11’de şematik olarak verilmiştir.



Şekil 3.11. Malzemelerin sentezleme aşamaları



4. BULGULAR VE TARTIŞMA

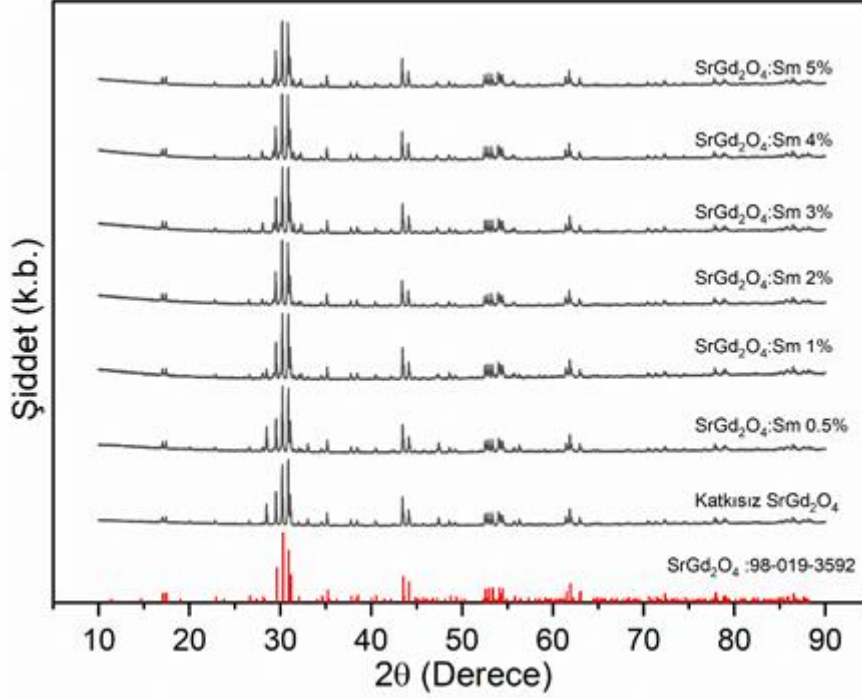
4.1. Giriş

Bu bölümde, yeni TL dozimetresi geliştirmek amacıyla SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının yapısal ve dozimetrik özelliklerinin belirlenmesine yönelik analiz sonuçlarına yer verilmektedir. Sentezlenen fosforların yapısal karakterizasyonları için X-ışını difraktometresi (XRD) kullanılarak analizler yapılmıştır. Sentezlenen fosforların dozimetrik özelliklerinin belirlenmesinde Lexsyg Smart TL/OSL okuyucu cihazı kullanılmıştır.

4.2. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4, \% 5$) Fosforlarının Yapısal Özellikleri

4.2.1. XRD Analizleri

Katıhal sentez yöntemi ile sentezlenen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforların kristal örgü yapısına sahip olup olmadıklarını ve ev sahibi malzemeye katkılanan farklı katkı konsantrasyonlarının ana yapıyı değiştirip değiştirmediğini belirlemek için oda sıcaklığında $10^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$ aralığında XRD ölçümleri yapılmıştır. Şekil 4.1'de $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarına ait XRD kırınım deseni verilmektedir.

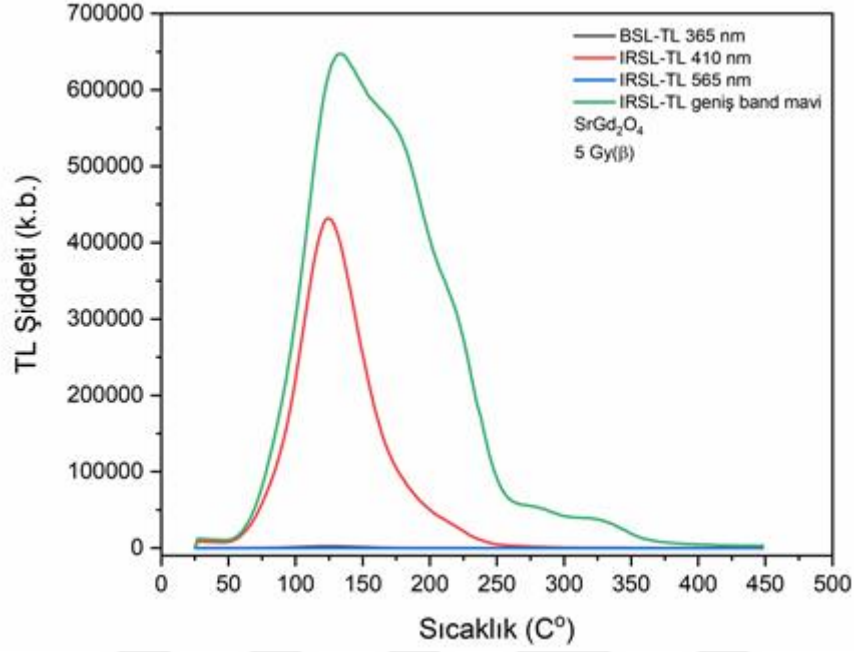


Şekil 4. 1. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0$, % 0.5, % 1, % 2, % 3, % 4 ve % 5 kütlece) fosforlarının XRD desenleri

Sentezlenen fosforların XRD kırınım desenlerindeki piklerin konum ve şiddetleri ICDD 98-019-3592 nolu PDF kartında verilen SrGd_2O_4 ile uyum içerisinde olduğu görülmüştür. Yapılan analizlerden katkısız örnekte olduğu gibi, Sm^{+3} katkılı fosforların da *Pnam* (62) uzay grubunda ve ortorombik kristal yapıda olduğu tespit edilmiştir (Sarıkcı ve ark., 2022). Bununla birlikte, daha önceki çalışmalarda görüldüğü gibi safsızlık fazı olarak SrGd_2O_4 fazının ihmal edilecek bir düzeyde olduğu görülmüştür (Singh ve ark., 2017). SrGd_2O_4 'ün yapısı Sm^{+3} katkısından etkilenmez. Buna ek olarak, farklı konsantrasyonlarda sentezlenen örneklerin kırınım tepe noktaları simetrik ve keskindir, bu da sentezlenen örneklerin iyi kristalli olduğunu gösterir.

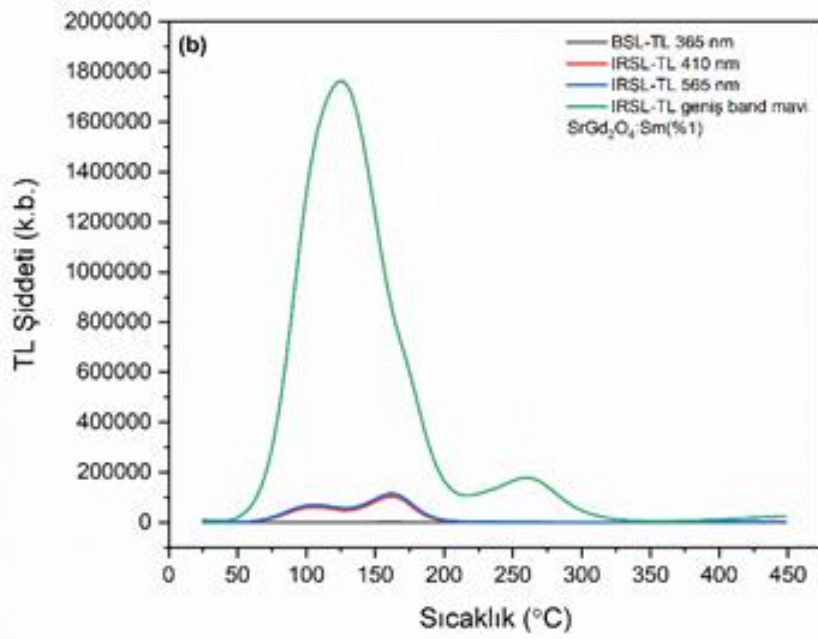
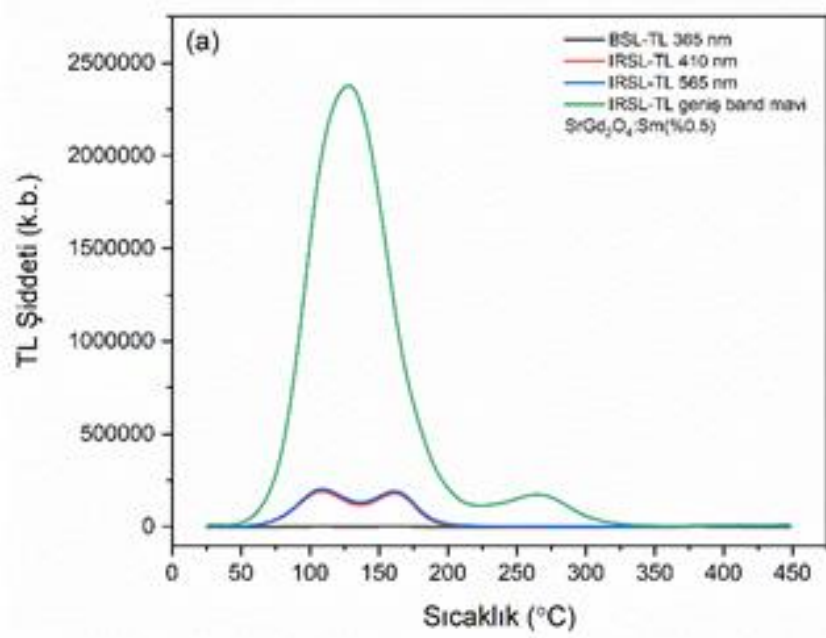
4.3. Termolüminesans (TL) Ölçümleri ile İlgili Bulgular**4.3.1. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) Fosforlarının Filtre Testleri ile İlgili Bulgular**

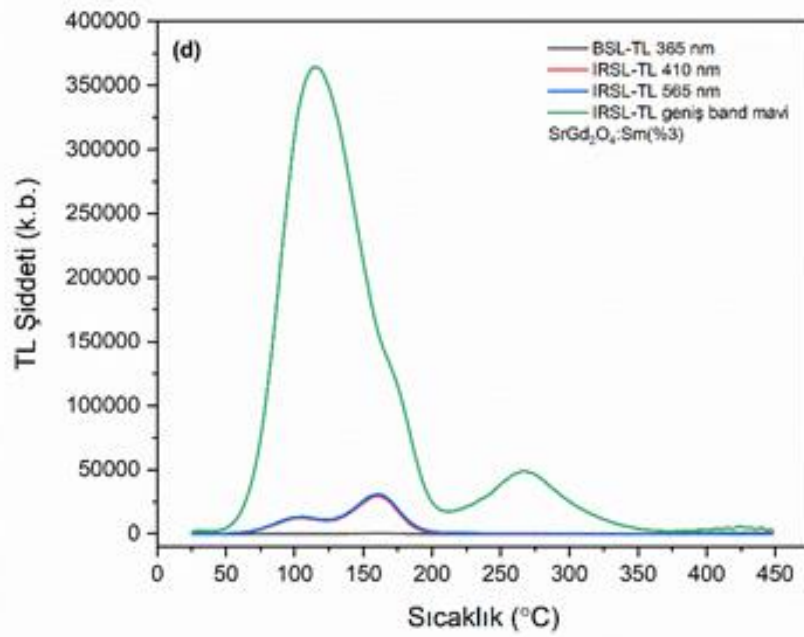
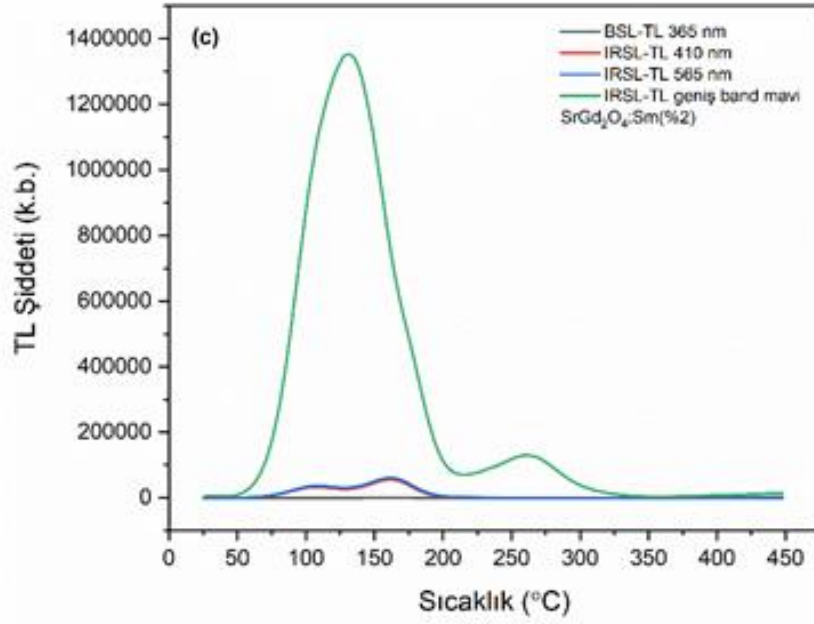
Katıhal sentez yöntemi ile sentezlenen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının dozimetrik özellikleri TL yöntemi kullanılarak kapsamlı bir şekilde araştırılmıştır. Sentezlenen bu fosforların XRD ölçümlerinden kristal yapıda oldukları belirlendikten sonra ikinci adım olarak katkısız SrGd_2O_4 ve samaryum katkılı $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) örnekler için en uygun filtrenin belirlenmesi gerçekleştirilmiştir. Bunun için katkısız ve katkılı her bir fosfor örneği 10 Gy beta radyasyon kaynağına maruz bırakılmıştır. Ardından 2°C/s ısıtma hızı ile 450°C 'ye kadar TL tekniği ile ölçüm alındı. Bu ölçüm sonucunda TL ışıma eğrileri elde edilmiştir. Şekil 4.2'de SrGd_2O_4 fosforuna ait farklı filtre testi sonuçları verilmektedir. Bu sonuçlardan en yüksek TL sinyali, IRSL-TL geniş band mavi filtresinde olduğu tespit edildi. Katkısız SrGd_2O_4 fosforundan elde edilen TL ışıma eğrileri değerlendirilerek malzemenin dozimetrik amaçlar için kullanılabileceği görülmüştür.

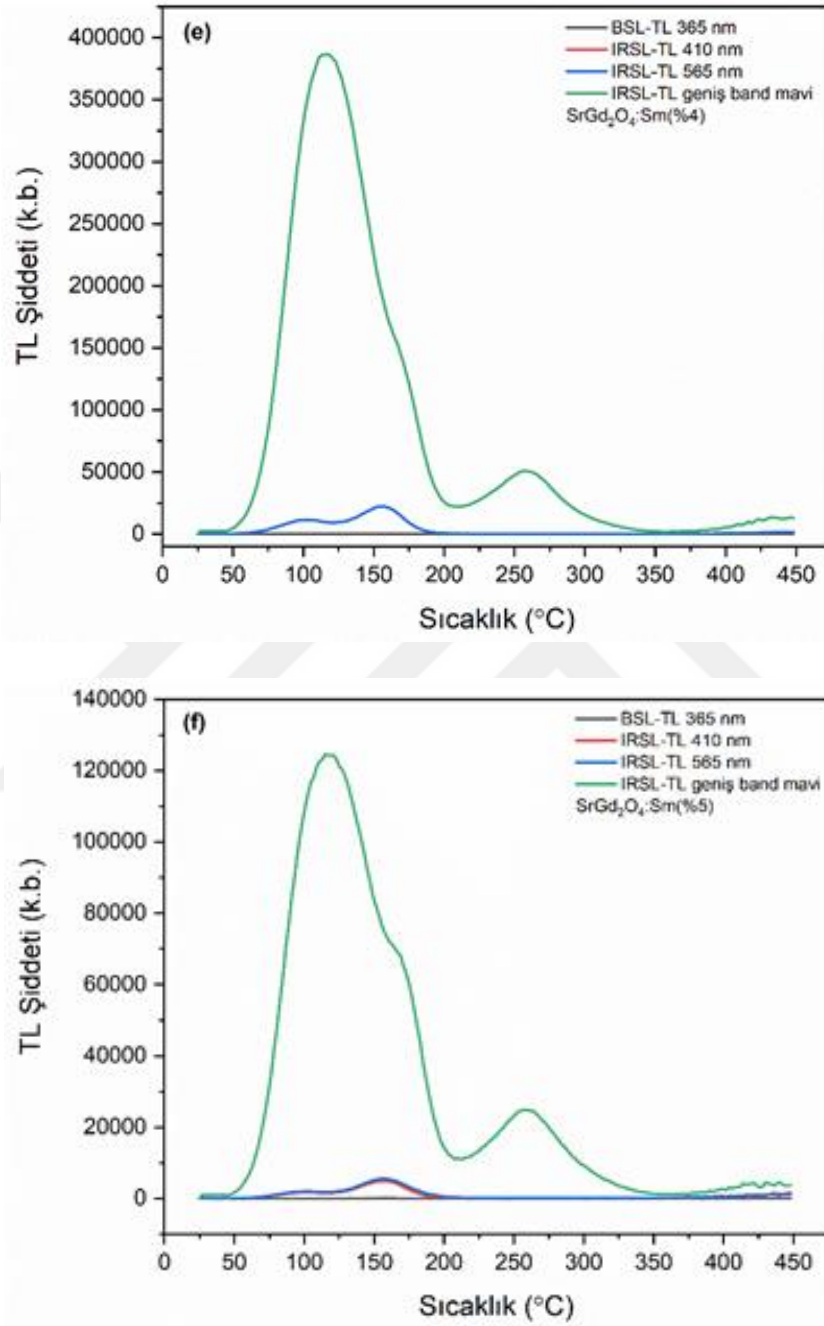


Şekil 4.2. SrGd_2O_4 fosforuna ilişkin filtre testi

SrGd_2O_4 fosforunun TL sinyalini daha da arttırmak ve kompleks olmayan bir ışıma eğrisi elde etmek için önceden belirlenen farklı oranlardaki Sm^{+3} iyonu SrGd_2O_4 fosforuna katkılандırılmıştır. Her bir katkı oranı farklı filtrelerde 10 Gy beta radyasyon dozuna maruz bırakılmıştır. Elde edilen TL ışıma eğrilerinin analizi sonucunda en uygun filtrenin IRSL-TL geniş bant olduğu belirlenmiştir (Şekil 4.3.a-f). Bu filtre ile yapılan ölçümlerde, yüksek hassasiyetli TL şiddeti bakımından en uygun katkı oranının % 0.5 Sm^{+3} olduğu belirlenmiştir.

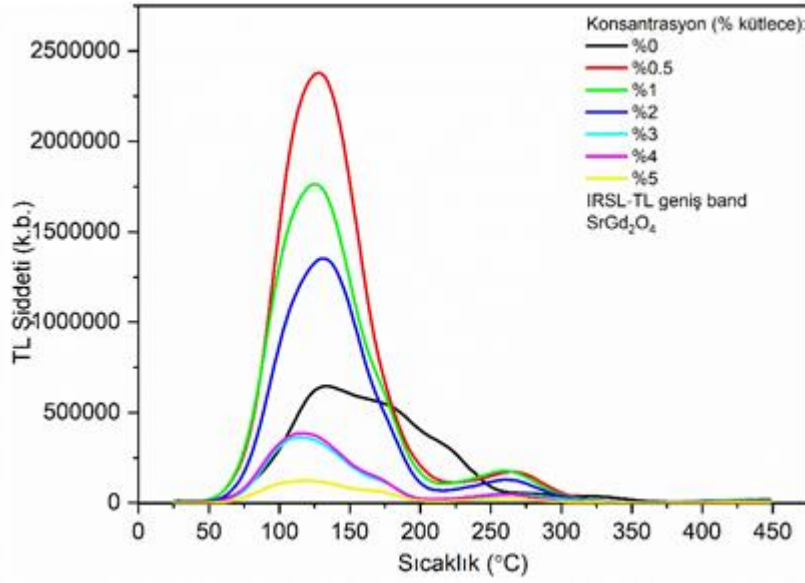






Şekil 4.3. a-f. SrGd₂O₄:xSm (x = 0, % 0.5, % 1, % 2, % 3, % 4 ve % 5 kütlece) fosforlarının dört farklı standart filtre kombinasyonları test sonuçları

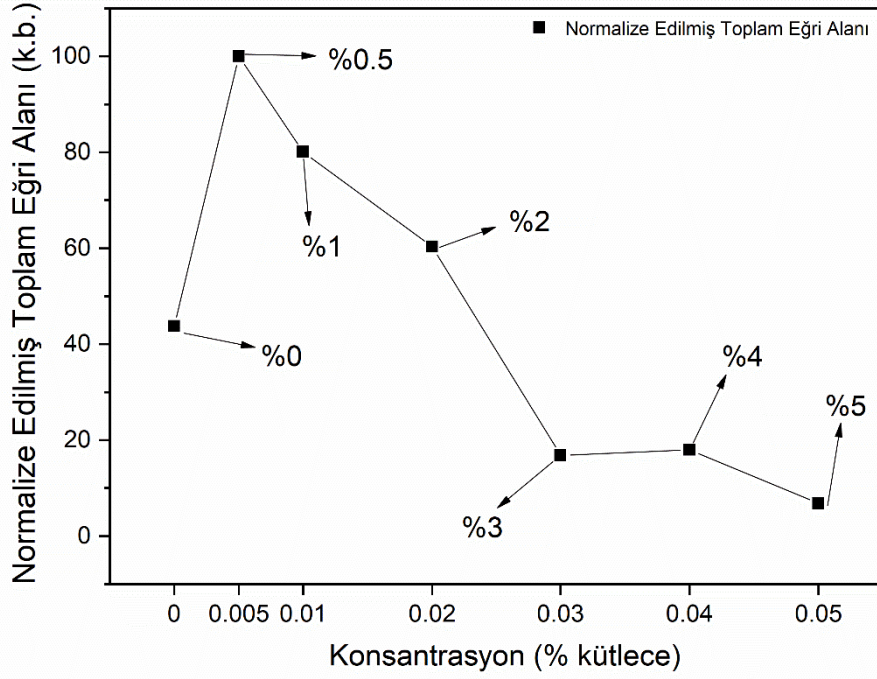
Şekil 4.4’de her bir katkı oranı için $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının 5 Gy’lik beta radyasyon dozuna maruz bırakıldıktan sonra TL okuması yapılarak oluşan lüminesansın IRSL-TL geniş bant filtresi ile kaydedilmiş sonuçları gösterilmektedir. Bu sonuçlara göre en uygun katkı oranının $\% 0.5$ olduğu belirlenmiştir.



Şekil 4.4. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının IRSL-TL geniş banddaki TL ışıma eğrileri

Benzer şekilde, her bir katkı oranına $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) karşılık toplam eğri alanı grafiği çizilmiştir (Şekil 4.4). Katkılama sonuçlarından belli bir değere kadar TL ışıma şiddetinin artması beklenir. Ana malzemeye katkılanan elementlerin yüzde oranları olabildiğince düşük seçilmelidir. Bu oranlama işlemi TL ışıma şiddetini belli bir seviyeye kadar maksimum yapar. Daha sonra kademeli olarak TL şiddetinin azalması beklenir. Şekilden de görüldüğü üzere katkı oranı, ev sahibi malzemenin TL şiddetini belli bir değere kadar çıkarmış ve o değerden sonra da konsantrasyon sönümlemesi

olayının gerçekleşmesi ile de TL şiddetlerinde bir azalma meydana gelmiştir. Bu sonuçlara göre en uygun katkı oranının % 0.5 olduğu belirlenmiştir (Şekil 4.5).

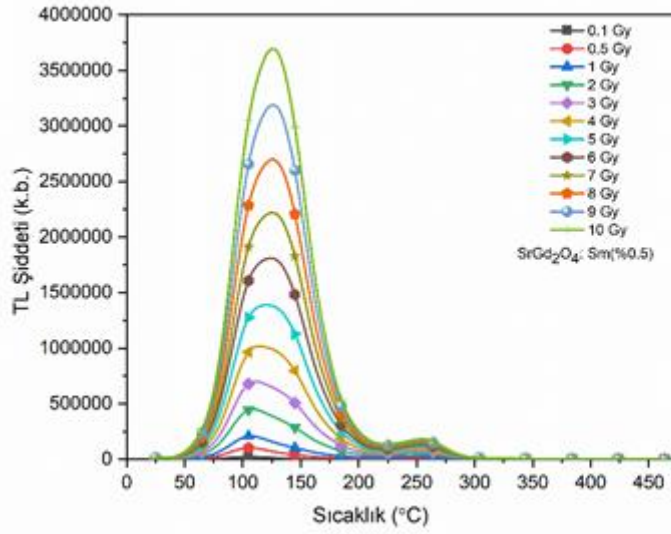


Şekil 4.5. Her bir katkı oranına ($\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) karşılık toplam TL eğri alanları

4.3.2. Doz Yanıt Deneyleri İle İlgili Bulgular

TL doz-yanıt deneyi, herhangi bir fosfor malzemesinin güvenilir lineer aralığını belirlemek açısından oldukça önemlidir. Yani, bir fosforun lineer olduğu aralığın maruz kalınan doza bağlı olarak belirlenmesi fosforun nerede kullanılabileceğini tanımlamada en önemli parametrelerden biridir. Bu bağlamda sentezlenen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($x = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforlarının personel, çevresel, yüksek doz ve klinik dozimetre gibi alanların hangisi ya da hangilerinde kullanılabileceğinin öngörülebilmesi

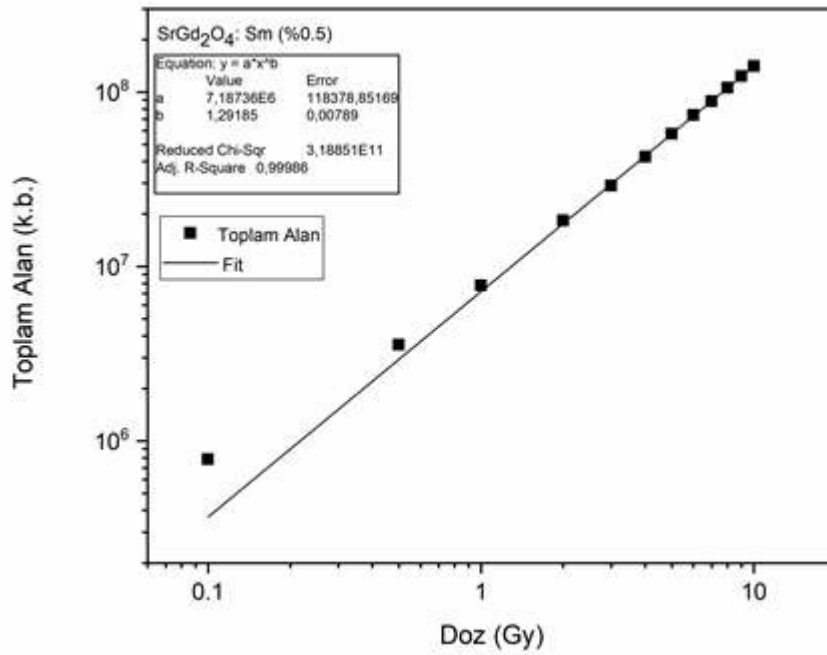
için, malzemenin doz-yanıt eğrisinin belirlenmesi gerekir. Sentezlenen bu fosforlar farklı dozlarda beta radyasyon kaynağına maruz bırakılmasının ardından elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 4.6’da gösterilmektedir.



Şekil 4.6. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun 0.1-10 Gy aralığındaki farklı doz oranlarına maruz bırakılmasıyla elde edilen TL ışıma eğrileri

Şekil 4.6’da görüldüğü gibi örneğe verilen radyasyon dozu arttıkça TL eğrilerinin tepeleri gittikçe daha da belirginleşmektedir. Doz miktarının artması ile beraber TL şiddetlerinde de bir artışın olduğu gözlenmektedir. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforu için ışıma şiddeti tepeleri yaklaşık olarak birinci tepe için 100°C ile 150°C , ikinci tepe için 200°C ile 260°C arasında olduğu iki ana maksimumdan oluşmaktadır. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforuna verilen her doz değeri için TL ışıma eğrilerinin altındaki alanlar, log-log eksenleri ve uygun $\text{TL} = aD^b$ (burada y eksenini TL yoğunluğu ve x eksenini verilen dozdur) aracılığıyla belirlendi. D uygulanan dozlar olduğunda, a orantı faktörünü b

ise eğimi belirtir. TL teorisinde, supralineerlik yani $b > 1$ olduğu durumdur. Sublineerlik ise daha çok doyumluğa ulaşılırken gözlenmekte olup $b < 1$ olarak tanımlanabilir (McKeever ve ark., 1995). Şekil 4.7’de görüldüğü gibi $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforu 0.1 Gy’lik dozdan 10 Gy’lik doza kadar olan bölgede veri bilgileri doğrusal fonksiyon ile uyum içerisindedir.

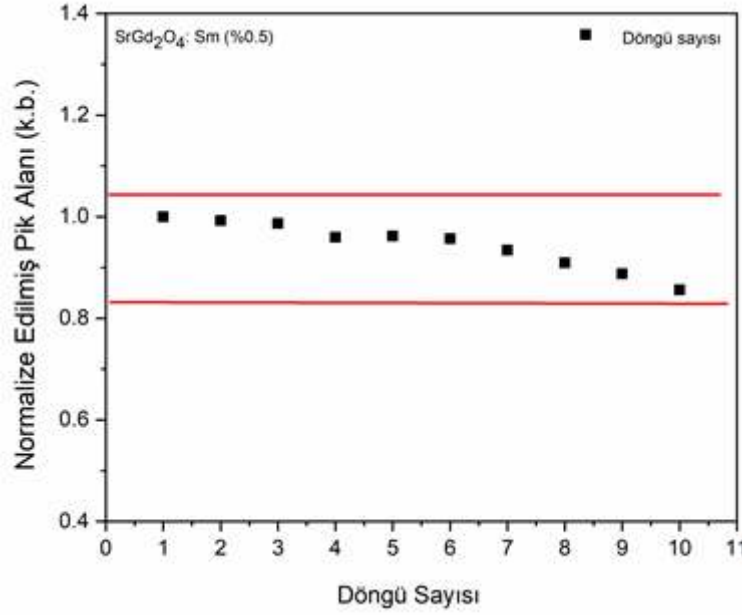


Şekil 4.7. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun 0.1-10 Gy aralığındaki doz-yanıt eğrisi

4.3.3. Tekrar Kullanılabilirlik Deneyi ile İlgili Bulgular

Herhangi bir TLD malzemenin her seferinde aynı şartlar altında aynı radyasyon dozuna maruz bırakılmasının ardından herhangi bir zamanda ya da ardışık ışınlama-okuma döngü sonrasında aynı şiddet ile cevap vermesi beklenir. Bu şekilde cevap veren bir malzeme güvenilir ve tekrar tekrar kullanılabilir olduğunu göstermektedir. Bundan dolayı, dozimetrik çalışmalarda üzerinde durulması gereken en önemli noktalardan biri tekrarlanabilirliktir. İyi bir

dozimetrik malzemenin yeniden kullanılabilirliği, aynı doz ve okuma koşulu altında tekrarlanan ölçümler için % 5 güven aralığı içerisinde olmalıdır (Furetta, 2003).

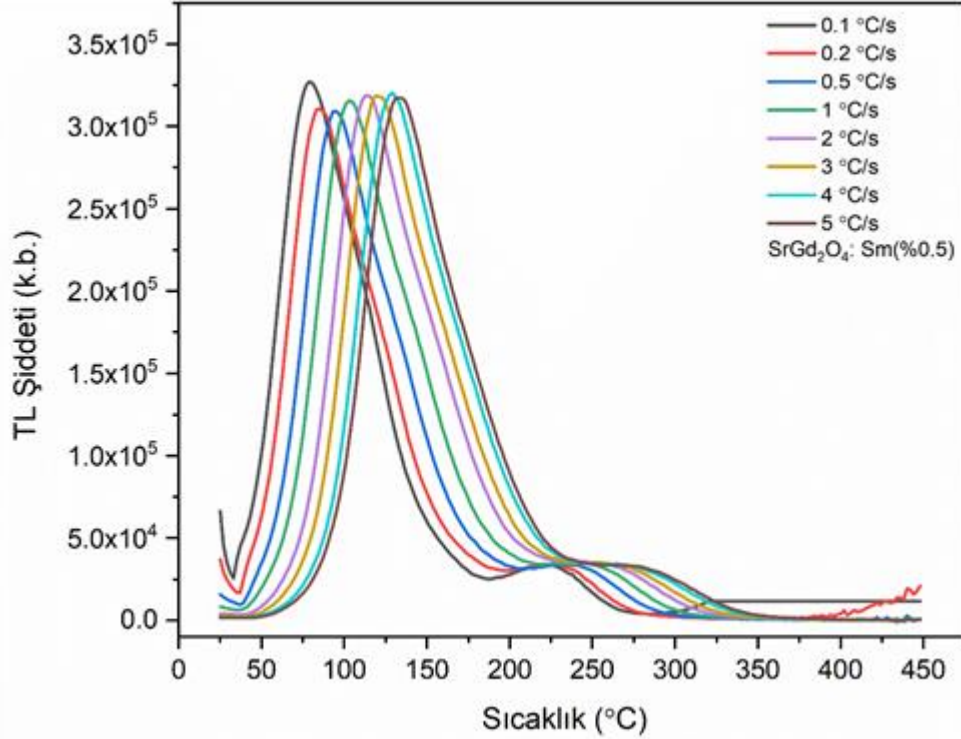


Şekil 4.8. SrGd₂O₄:0.005Sm fosforunun 10 döngü sonrasındaki değişimi

SrGd₂O₄:0.005Sm⁺³ fosforunun 10 döngü sonunda ilk döngüden başlayarak son döngüye kadar en fazla % 2 oranında bir sapma gösterdiği ve bu sapma değerinin kabul edilebilir hata sınırları içerisinde olduğu görülmüştür (Şekil 4.8).

4.3.4. Farklı Isıtma Hızları Deneyi ile İlgili Bulgular

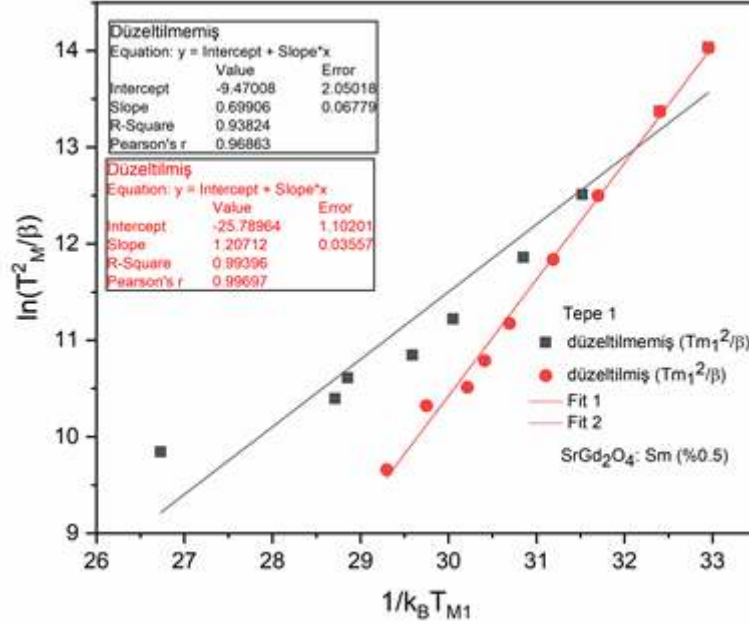
Isıtma hızı, TL ısıtma eğrisinin konumunu ve şeklini etkileyen önemli parametrelerden biridir. Şekil 4.9’da SrGd₂O₄:0.005Sm⁺³ fosforuna 5 Gy’lik beta dozu verilmesinin ardından 0.1-5 °C/s’lik farklı ısıtma hızları kullanılarak elde edilen ısıtma eğrileri görülmektedir.



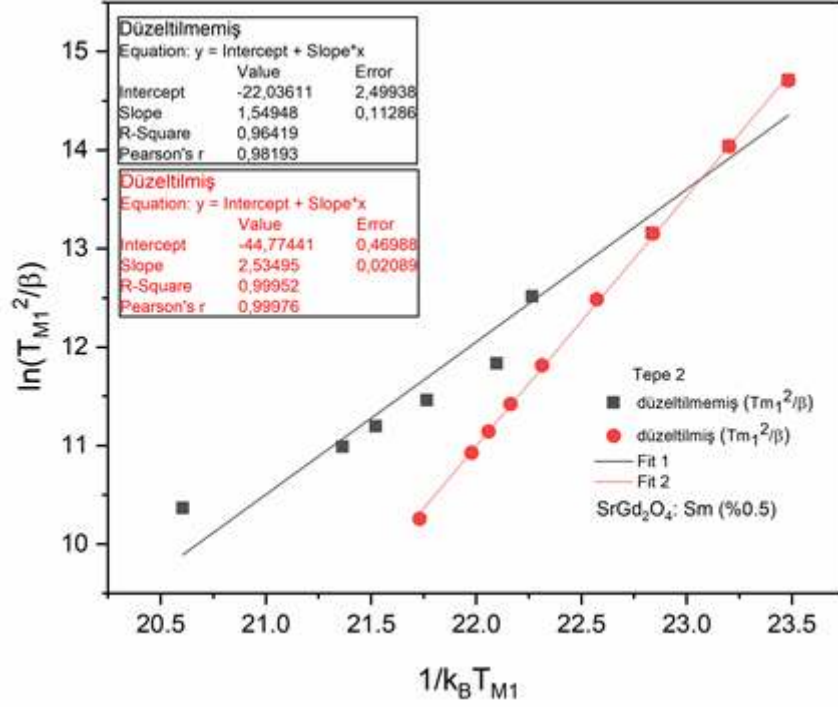
Şekil 4.9. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforuna ısıtma hızının TL ışıma eğrilerine etkisi

Şekil 4.9’da görüldüğü gibi ısıtma hızının artmasıyla TL ışıma eğrilerinin tepe yükseklikleri yüksek sıcaklık bölgelerine doğru kaymaktadır. Bu kaymalar literatürdeki birçok çalışmada verilen ısısal gecikme (temperature lag) ile açıklanabilir (Kitis ve Tuyn, 1999). Isısal gecikme, TL okuması sırasında ısı çift (ısıtıcı çubuk) ile üzerinde bulunan malzeme arasındaki sıcaklık farkından kaynaklanmaktadır. Yani, TL okuması sırasında ısı çift ile üzerinde bulunan malzemenin sıcaklık değerleri farklılık gösterebilmektedir. Özellikle, ölçümlerde kalın olarak kullanılan pelletlerin sıcaklığı ile ısı çiftin sıcaklığı belirgin bir şekilde farklılık göstermektedir. Şekil 4.9’da ısıtma hızı arttıkça Tepe 1’in TL ışıma şiddetlerinin artışı görülmektedir. Tepe 2’de ise ısıtma hızının artmasıyla

birlikte TL şiddetlerinin hemen hemen aynı olduğu görülmektedir (Şekil 4.9). Tepe 1'deki TL şiddetindeki bu artış, literatürde anormal ısıtma hızı etkisi olarak ifade edilmektedir (Delice ve ark., 2014; Dogan ve ark., 2017; Bulcar ve ark., 2022). Sıcaklık düzeltmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak çizilen $(\frac{1}{T_m})$ karşı $\ln(\frac{T_m^2}{\beta})$ grafiklerinin eğiminden yararlanılarak aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplanmıştır (Şekil 4. 10-4.11).



Şekil 4.10. Farklı ısıtma hızları sonucunda elde edilen Tepe 1 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri



Şekil 4.11. Farklı ısıtma hızları sonucunda elde edilen Tepe 2 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri

Sıcaklık düzeltmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak SrGd₂O₄:0.005Sm⁺³ fosforu için aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplanmış ve elde edilen sonuçlar sırasıyla, Çizelge 4.1 ve Çizelge 4.2’de verilmiştir.

Çizelge 4.1. Tepe 1 ve Tepe 2 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri

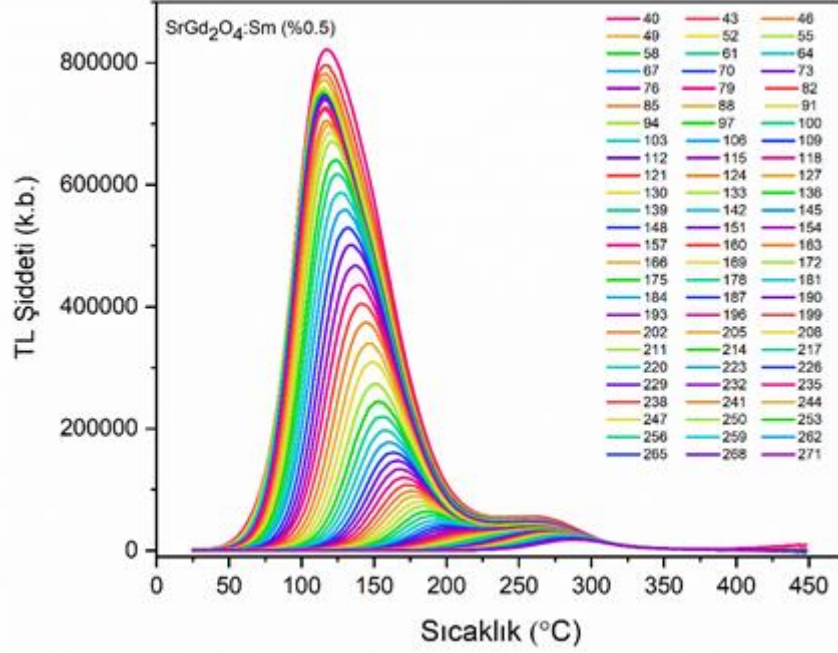
Isıtma Hızı	Tepe 1		Tepe 2	
	Düzeltilmemiş (°C)	Düzeltilmiş (°C)	Düzeltilmemiş (°C)	Düzeltilmiş (°C)
0,1	79	79	221	221
0,2	85	85	227	227
0,5	95	92,93	235	234,93
1	103	98,93	248	240,93
2	113	104,93	252	246,93
3	119	108,44	260	250,44
4	129	110,93	266	252,93
5	131	116,93	270	254,86

Çizelge 4.2. Tepe 1 ve Tepe 2 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri kullanılarak hesaplanan tuzak parametreleri

Maxima 1	düzeltilmemiş	düzeltilmiş
s (Hz)	1,05183E8	2,22165E15
E (eV)	0,69906	1,20712
Maxima 2	düzeltilmemiş	düzeltilmiş
s (Hz)	6,68297E13	8,20108E23
E (eV)	1,54948	2,53495

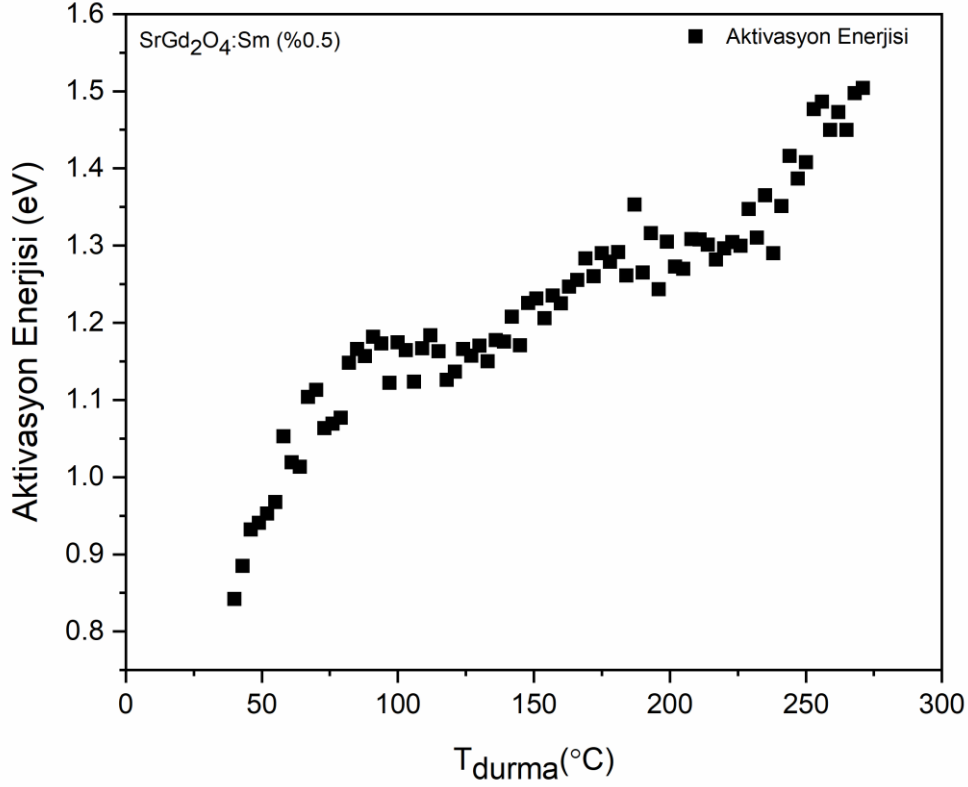
4.3.5. Başlangıç Artış (IR, Initial Rise) Yöntemi ile İlgili Bulgular

$T_{maksimum} - T_{durma}$ yönteminde, $SrGd_2O_4:0.005Sm^{+3}$ fosforu 5 Gy beta dozu ile ışılandıktan sonra oda sıcaklığından ilk tepenin düşük sıcaklık bölgesine (40 °C) karşılık gelen bir sıcaklığa kadar ısıtıldı ve bu T_{durma} (40 °C) olarak kaydedildi. Isıtılan fosfor, oda sıcaklığına kadar soğutuldu. Işıma eğrisinin geri kalanını elde etmek için fosfor aynı ısıtma hızında hedeflenen sıcaklığa kadar tekrar ısıtılarak $T_{maksimum}$ kaydedildi. Daha sonra T_{durma} 'ın yeni bir değeri kullanılarak benzer bir şekilde her ışılamadan sonra 40 °C'den 271 °C'ye kadar 3 °C'lik artışlarla tekrarlanarak TL ışıma eğrileri kaydedildi (Şekil 4.12.).



Şekil 4.12. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun sabit 5 Gy beta dozu altında 40 °C ile 271 °C arasında 3 °C'lik artışlarla T_{durma} olarak ifade edilen sıcaklık değerlerine kadar ısısal temizleme işlemi uygulanması ile elde edilen TL ışıma eğrileri

Elde edilen her bir TL ışıma eğrisine IR yöntemi uygulanarak Arrhenius grafiği oluşturulmuş ve aktivasyon enerjileri hesaplanmıştır. Hesaplanan aktivasyon enerji değerlerine karşı T_{durma} grafiği çizilerek $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun TL ışıma eğrisinin kaç tane tepeden oluştuğu ve enerji sevipleri belirlenmiştir (Şekil 4.13).

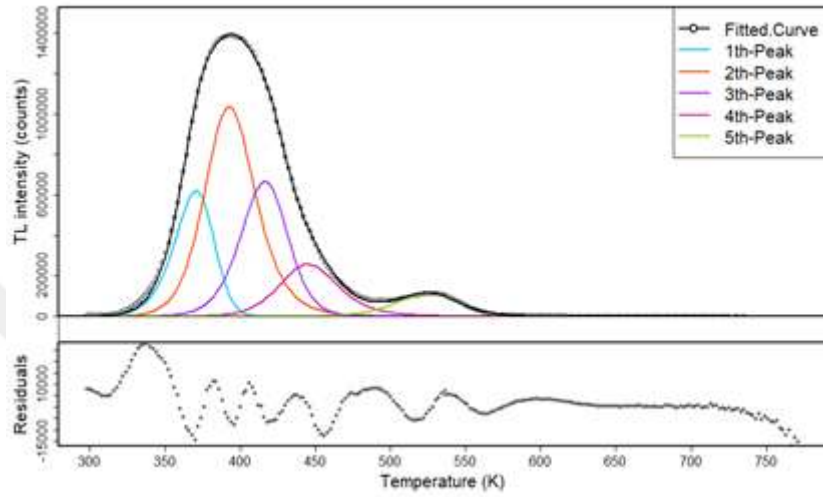


Şekil 4.13. IR yöntemi kullanılarak elde edilen aktivasyon enerjisine karşı T_{durma} grafiği

4.3.6. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma (CGCD) Yöntemi ile İlgili Bulgular

Bilgisayarla ışıma eğrisi ayırıştırma yöntemi (CGCD), bilgisayardaki yazılım programları sayesinde karmaşık bir yapıda olan TL ışıma eğrilerinin kaç tepeden oluştuğunu ve bu tepelerin tuzak parametrelerini hesaplayan bir yöntemdir. Bu yöntemin temel avantajlarından biri, ısısal işlem olmaksızın ışıma tepe parametrelerinin kısa sürede bulunmasını sağlamaktadır. 5 Gy beta dozuna maruz bırakılmış $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforuna ait ışıma eğrisi ayırıştırma yapılmaksızın incelendiğinde, ışıma eğrisinin birbirinden bağımsız ve belirgin bir şekilde iki ışıma tepesinden meydana geldiği görülmektedir. Ancak ışıma eğrisi CGCD yöntemi ile analiz edildiğinde bir birine çok

yakın ve iç içe girmiş 5 ışıma tepesinden oluştuğu görülmektedir (Şekil 4.14.). Ayrıca bu tepelere ait tuzak parametreleri Çizelge 4.3'te verilmiştir.



Şekil 4.14. tgcd isimli R paketi kullanılarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}$ fosforunun TL ışıma eğrisinin ayrıştırılması

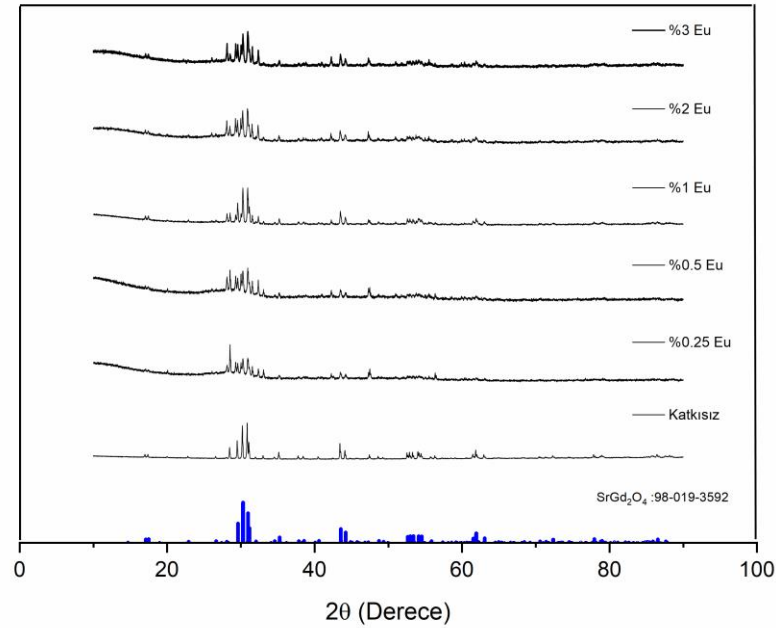
Çizelge 4.3. CGCD yöntemi ile analiz edilen ışıma tepelerinin tuzak parametreleri

	T_M (°C)	μ_g	E_{ort} (eV)	s (s^{-1})
Tepe 1	97,53	0,475	1,03	1.72E+13
Tepe 2	119,43	0,530	1,13	5.16E+13
Tepe 3	143,31	0,493	1,20	5.15E+13
Tepe 4	171,59	0,533	1,25	2.01E+13
Tepe 5	251,92	0,465	1,43	6,17E+18

4.4. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) Fosforlarının Yapısal Özellikleri

4.4.1. XRD Analizleri

Şekil 4.15’da $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının XRD kırınım desenleri verilmektedir. Fosforlarının XRD kırınım desenlerinin konum ve şiddetleri ICDD 98-019-3592 nolu PDF kartında verilen SrGd_2O_4 ile uyum içerisindeydir. XRD sonuçları ile $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının $Pnam$ (62) uzay grubunda ve ortorombik kristal yapısına sahip olduğu belirlenmiştir. Böylelikle katkılama ile ev sahibi malzemenin kristal yapısının değişmediği söylenebilir.

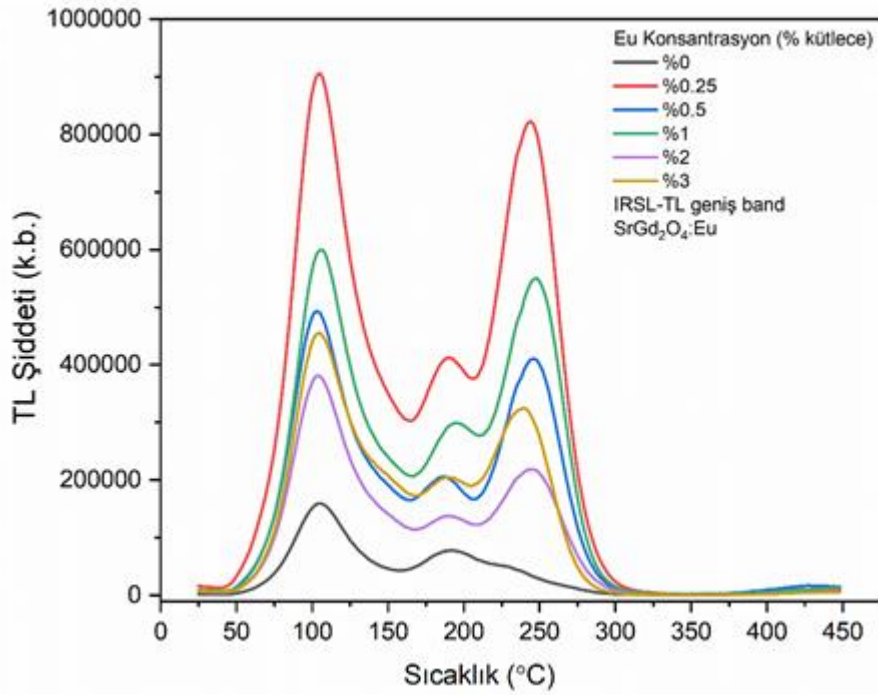


Şekil 4.15. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının XRD desenleri

4.5. Termolüminesans (TL) Ölçümleri ile İlgili Bulgular

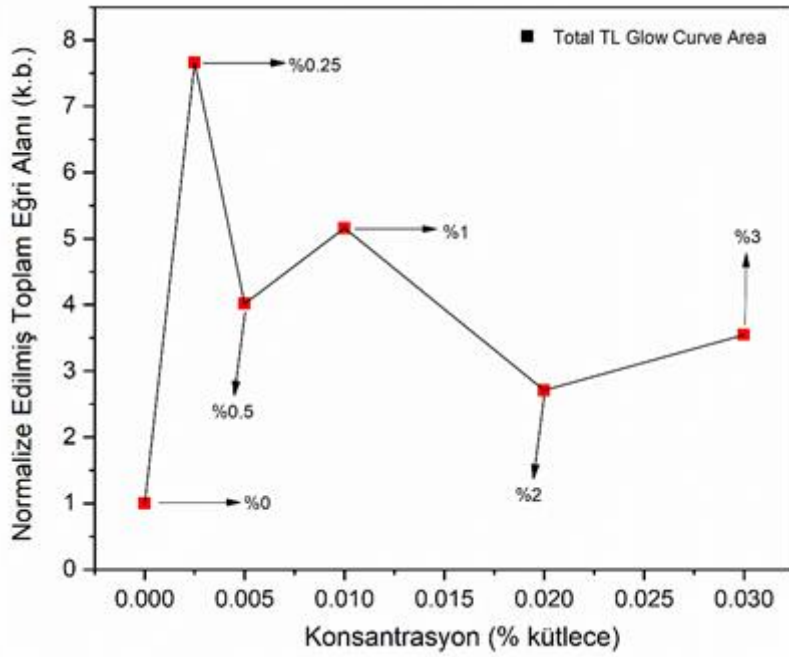
4.5.1. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) Fosforlarının Filtre Testleri ile İlgili Bulgular

Katıhal sentez yöntemi ile sentezlenen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlar 1 Gy beta test dozuna maruz bırakıldıktan sonra standart BSL-TL 365 nm, IRSI-TL 410 nm, IRSI-TL 565 nm, ve IRSI-TL geniş band filtre kombinasyonları ile TL ölçümü alınmıştır. Bunun için katkısız ve katkılı her bir fosfor örneği 1 Gy beta dozuna maruz bırakılarak 2°C/s ısıtma hızı ile 450°C 'ye kadar TL tekniği ile ölçüm alındı. Bu ölçümler sonucunda TL hassasiyeti bakımından en uygun filtrenin IRSI-TL geniş band olduğu ve en uygun katkılama oranının ise $\% 0.25$ olduğu belirlenmiştir (Şekil 4.16).



Şekil 4.16. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının 1 Gy beta doz sonrası elde edilen TL ışıma eğrileri

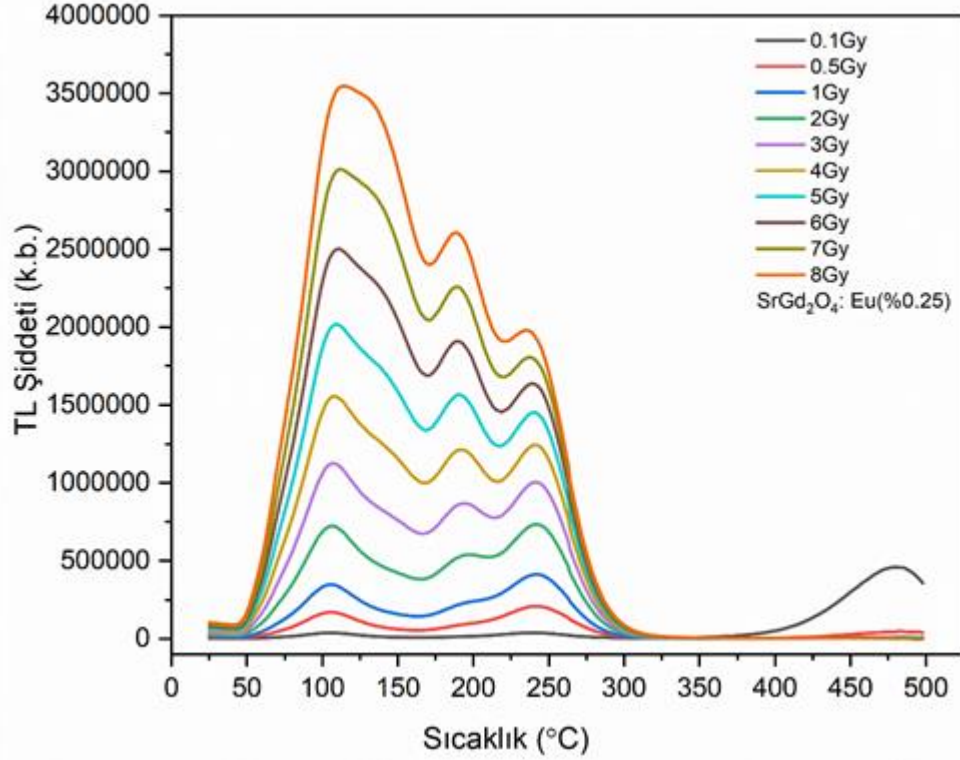
Benzer şekilde, IRSL-TL geniş band filtre testi kullanılarak her bir katkı oranına $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) karşılık toplam eğri alanı grafiği çizildi (Şekil 4.17). Ev sahibi malzemeye katılacak olan safsızlık miktarları olabildiğince düşük seçilmelidir. Çünkü, yüksek katkı oranlarına çıkıldığında konsantrasyon sönümlene etkisinden dolayı lüminesans olayının verimliliğinde bir azalma meydana gelmektedir. Bundan dolayı, Şekil 4.17’de görüldüğü gibi artan Eu^{+3} konsantrasyonunun değeri ile TL şiddetinin aşamalı bir şekilde arttığı, ancak $\% 0.25 \text{Eu}^{+3}$ katkı konsantrasyonundan sonra konsantrasyon sönümlene etkisi ile TL şiddeti önemli bir ölçüde azalmaya başlamaktadır (Şekil 4.17). Dolayısıyla, TL hassasiyeti bakımından en uygun katkılama oranının $\% 0.25 \text{Eu}^{+3}$ olduğu belirlenmiştir.



Şekil 4.17. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = 0, \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarındaki her bir katkı oranının toplam eğri alanına karşı grafiği

4.5.2. Doz Yanıt Deneyleri ile İlgili Bulgular

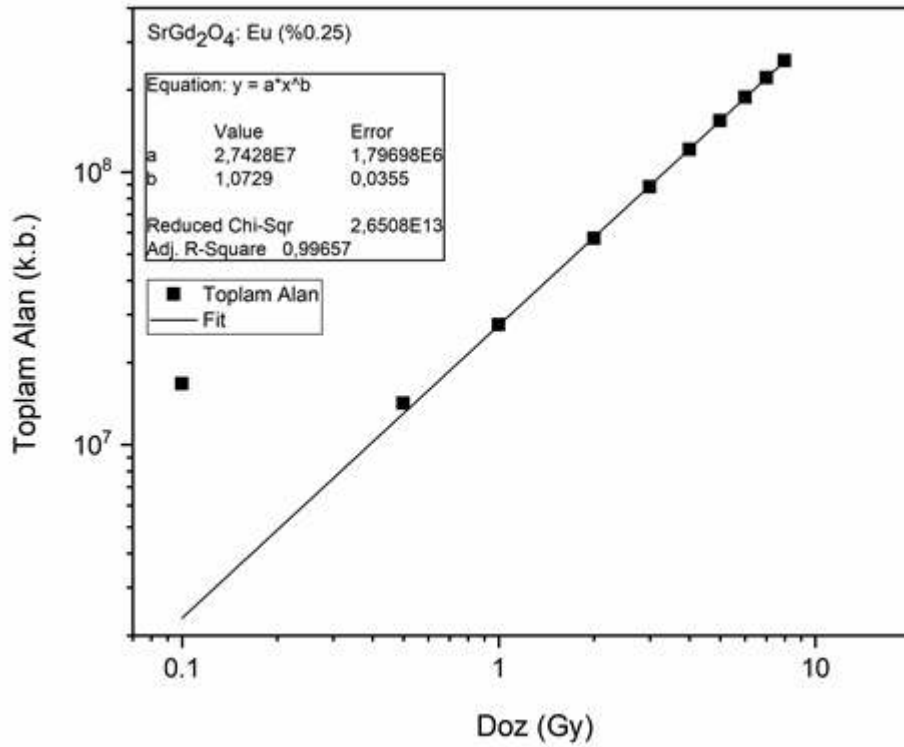
Sentezlenen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun farklı beta dozlarına maruz bırakılmasından sonra elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 4.18’de verilmiştir.



Şekil 4.18. 0.1-8 Gy aralıklarındaki farklı beta dozları ile elde edilen TL ışıma eğrileri

Şekil 4.18’de görüldüğü gibi, artan doz değerleri ile TL ışıma tepe şiddetleri artmaktadır. TL ışıma tepelerindeki bu artış beklenen bir durumdur. Artan dozla birlikte tuzaklara yakalanan elektronların sayısının arttığı ve ısıtma ile tuzaktan kurtulan elektronların verimli ışıma sonucunda TL şiddetlerinde bir artışın olduğunu göstergesidir. İyonlaştırıcı radyasyona maruz kalmış yalıtkan ya da yarı iletken kristal bir malzemenin sabit bir ısıtma hızı ile elde edilen ışıma eğrilerin altında kalan alan o malzemenin aldığı radyasyon

dozunun bir ölçüsüdür. Doz miktarının arttırılmasıyla birlikte TL şiddetinde orantılı bir şekilde artış meydana gelmesi beklenir. Dolayısıyla ideal dozimetrik bir malzemenin lineer bir doz-yanıt eğrisine sahip olması gerekir. Çalışılan $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu, 0.1 Gy'lik dozdan 8 Gy'lik doza kadar olan bölgede doğrusal fonksiyon ile uyum içerisinde (Şekil 4.19).

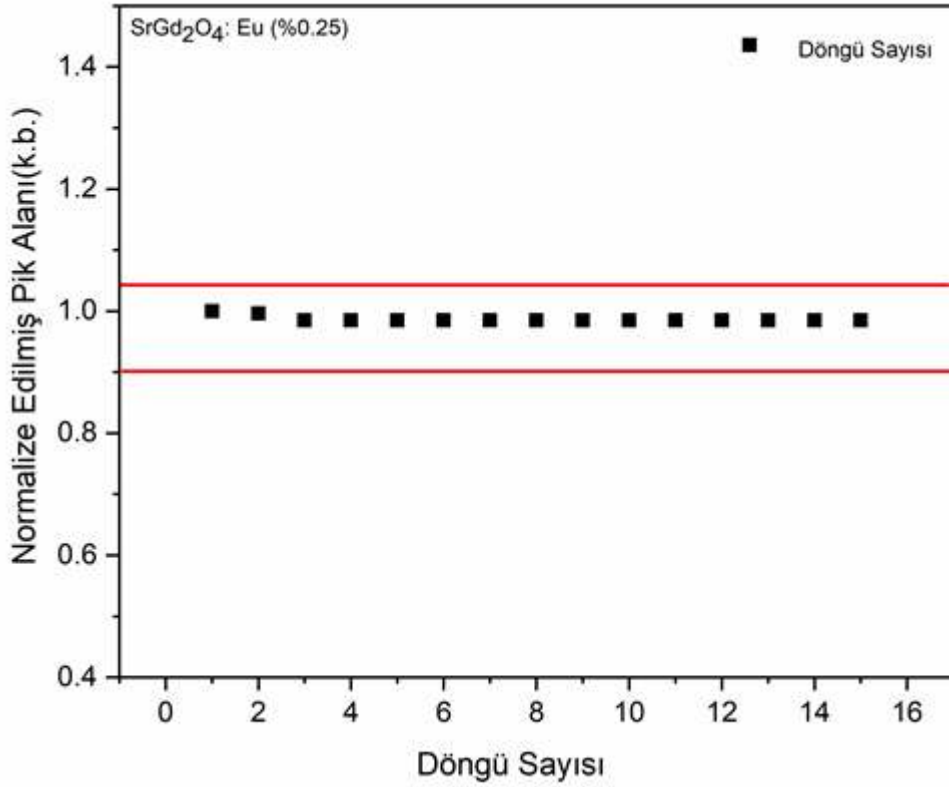


Şekil 4.19. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforuna 0.1-8 Gy aralıklarında elde edilen doz-yanıt eğrisi

4.5.3. Tekrar Kullanılabilirlik Deneyi İle İlgili Bulgular

Tekrar kullanılabilirlik, dozimetrik bir malzemenin her seferinde aynı radyasyon dozuna maruz kalmasının ardında aynı koşullar altında tekrarlanan ölçümler sonrasında malzemenin elde edilen TL şiddetinin aynı olup olmadığının belirlenmesi olayıdır. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu 15 kez aynı koşullar altında 5 Gy doza maruz bırakıldıktan sonra, elde edilen TL ışıma eğrilerinin altında kalan

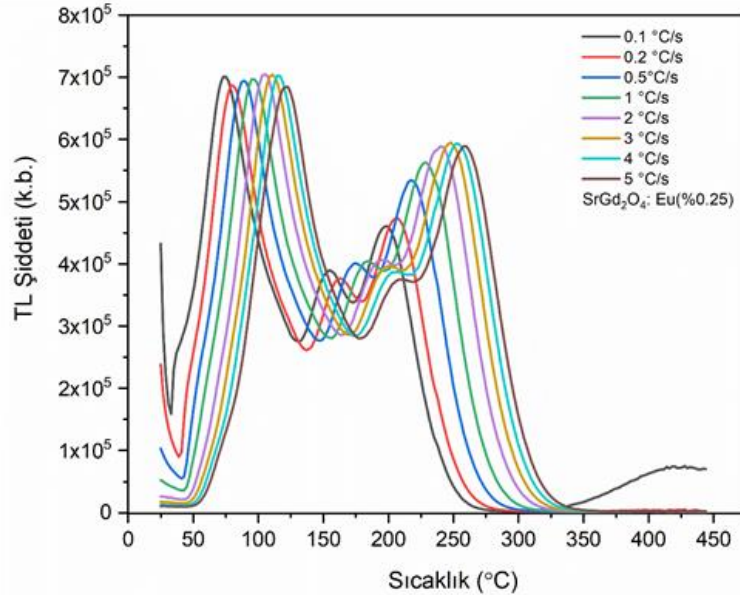
alanlardan yararlanılarak malzemelerin kararlılıkları test edilmiştir. Bu bağlamda $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun aynı koşullar altında 15 döngüye kadar tekrarlanan TL ölçümleri sonucunda elde edilen TL ışıma eğrilerinin altında kalan alanlarının ilk döngüye göre % 1 oranında bir sapma gösterdiği ve bu sapma değerinin kabul edilebilir hata sınırları içerisinde olduğunu göstermektedir (Şekil 4.20). Bu sonuç, $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun mükemmel bir tekrarlanabilirliğine sahip olduğunu göstermektedir.



Şekil 4.20. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}$ fosforunun ilk TL okumasına göre normalize edilen TL şiddetlerinin 15 döngüye kadar tekrarlanabilirlik grafiği

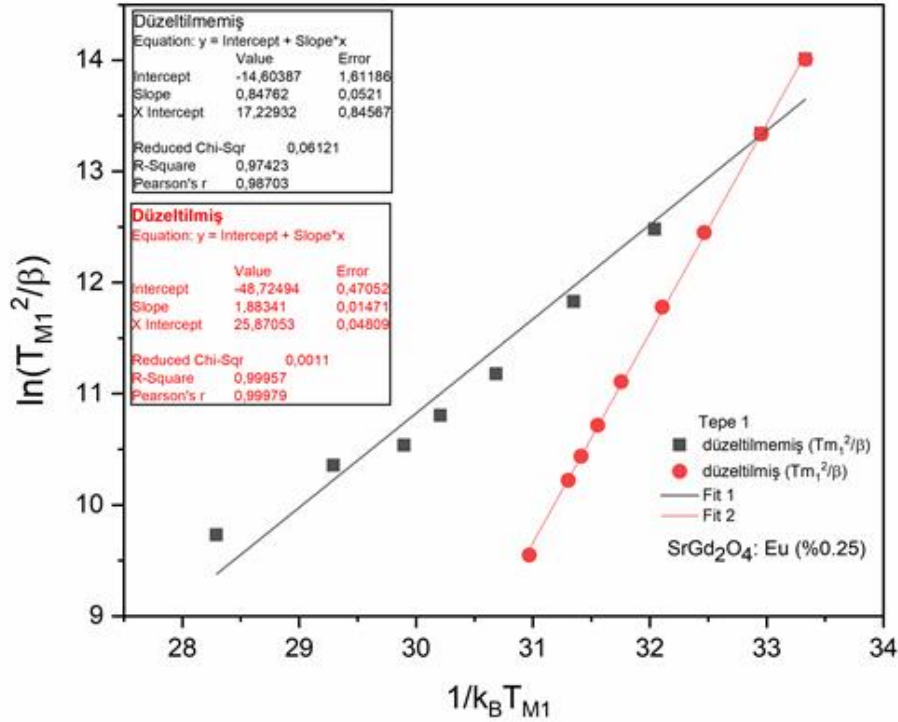
4.5.4. Farklı Isıtma Hızları Deneyi ile İlgili Bulgular

Şekil 4.21’de 2 Gy’lik sabit beta radyasyon dozuna maruz bırakılan $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun 0.1-5 °C/s’lik farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışıma eğrileri görülmektedir. Şekil 4.21’de görüldüğü gibi artan ısıtma hızına bağlı olarak ışıma tepelerinin de yüksek sıcaklık bölgelerine doğru kaydığı görülmektedir. Bu kaymalar ısıtma işlemini sağlayan ısı çift (thermocouple) ile örnek arasındaki sıcaklık farkının oluşmasından kaynaklanan bir durumdur. Bu sıcaklık farkı, ısısal gecikme (temperature lag) olarak adlandırılır ve yüksek ısıtma hızlarında bu sıcaklık farkının oluşma olasılığı çok yüksektir (Kitis ve Tuyn, 1998; Dogan ve ark., 2017; Portakal ve ark., 2017; Bulcar ve ark., 2018; Kucuk ve ark., 2018; Yüksel ve ark., 2018; Oglakci ve ark., 2019; Ayvacıklı ve ark., 2020; Oglakci ve ark., 2021; Souadi ve ark., 2022; Bulcar ve ark., 2022; Atasöz ve ark., 2022; Sarıkcı ve ark., 2022).

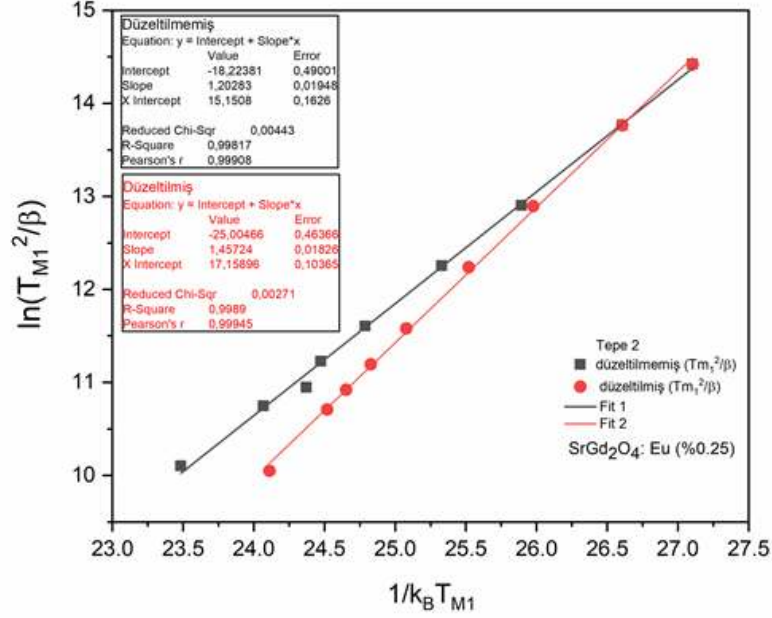


Şekil 4.21. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu için farklı ısıtma hızlarında elde edilen TL ışıma eğrilerinin karşılaştırılması.

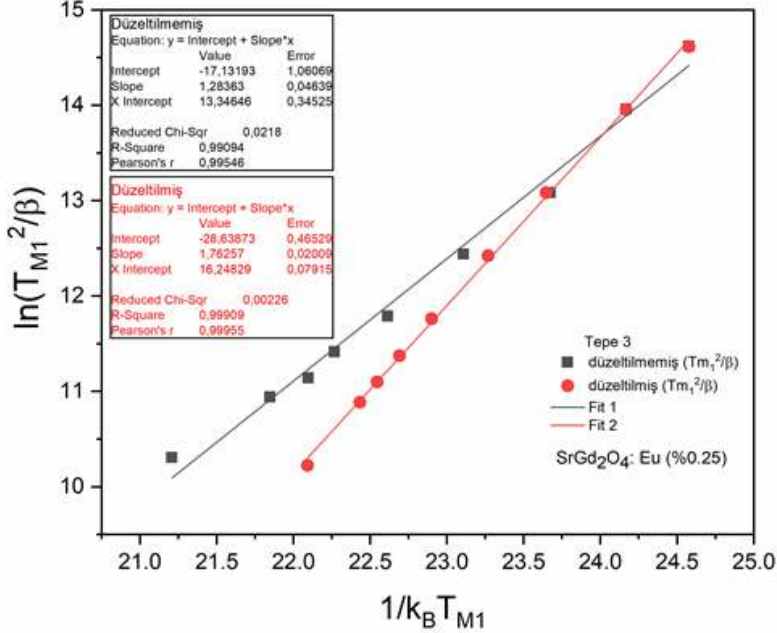
Şekil 4.21’de görüldüğü gibi ısıtma hızı artıkça Tepe 1’in TL şiddeti hemen hemen aynı kalırken, Tepe 2 ve Tepe 3’ün ışıma tepelerinin TL şiddetleri artmaktadır. Tepe 2 ve Tepe 3’deki artış TL teorisi ve şu ana kadar değerlendirilmiş olan davranışlar ile açıklayamamaktadır. Bu davranış literatürde ‘‘Anomalous Heating Rate Effects’’ (anormal ısıtma hızı etkisi) olarak adlandırılan fiziksel bir olaydır. Bazı araştırmacılar, farklı ısıtma hızları için bu anormal etkiyi açıklamak için yerel geçişlerin ışımsal olmayan katkısının ve yerel olmayan geçişlerin ışımsal katkısının hesaba katılmasını rapor etmişlerdir (Mandowski ve Bos, 2011). Sıcaklık düzeltmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak çizilen $(\frac{1}{T_m})$ karşı $\ln(\frac{T_m^2}{\beta})$ grafiklerinin eğiminden yararlanılarak aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplanmıştır (Şekil 4.22-4.24).



Şekil 4.22. Farklı ısıtma hızlarında sonucunda elde edilen Tepe 1 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.



Şekil 4.23. Farklı ısıtma hızlarında sonucunda elde edilen Tepe 2 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.



Şekil 4.24. Farklı ısıtma hızlarında sonucunda elde edilen Tepe 3 için sıcaklık gecikmesine bağlı olarak düzeltilmemiş ve düzeltilmiş T_m değerleri.

Sıcaklık düzeltmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu için aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplanmış ve elde edilen sonuçlar sırasıyla, Çizelge 4.4 ve Çizelge 4.5'te verilmiştir.

Çizelge 4.4. Tepe 1, Tepe 2 ve Tepe 3 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri

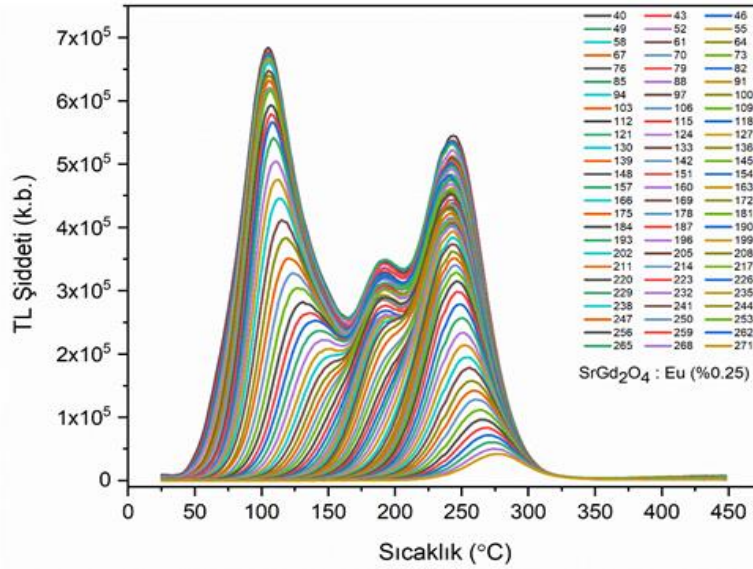
Isıtma Hızı $B(^{\circ}\text{C}/\text{s})$	Tepe 1		Tepe 2		Tepe 3	
	Düzeltilmemiş ($^{\circ}\text{C}$)	Düzeltilmiş($^{\circ}\text{C}$)	Düzeltilmemiş($^{\circ}\text{C}$)	Düzeltilmiş($^{\circ}\text{C}$)	Düzeltilmemiş($^{\circ}\text{C}$)	Düzeltilmiş($^{\circ}\text{C}$)
0,1	75	75	155	155	199	199
0,2	79	79	163	163	207	207
0,5	89	84,28771	175	173,57542	217	217,57542
1	97	88,28771	185	181,57542	229	225,57542
2	105	92,28771	195	189,57542	240	233,57542
3	111	94,62756	201	194,25512	248	238,25512
4	115	96,28771	203	197,57542	252	241,57542
5	123	97,57542	209	200,15085	258	244,15085

Çizelge 4.5. Tepe 1, Tepe 2 ve Tepe 3 için deneysel ve düzeltilmiş T_m değerleri kullanılarak hesaplanan tuzak parametreleri

Tepe 1	Düzeltilmemiş	Düzeltilmiş
s (Hz)	2,16381E10	3,16612E251
E (eV)	0,84762	1,88341
Tepe 2	Düzeltilmemiş	Düzeltilmiş
s (Hz)	1,14637E12	1,22338E15
E (eV)	1.20283	1,45724
Tepe 3	Düzeltilmemiş	Düzeltilmiş
s (Hz)	4,10541E11	5,60276E16
E (eV)	1.28363	1.76257

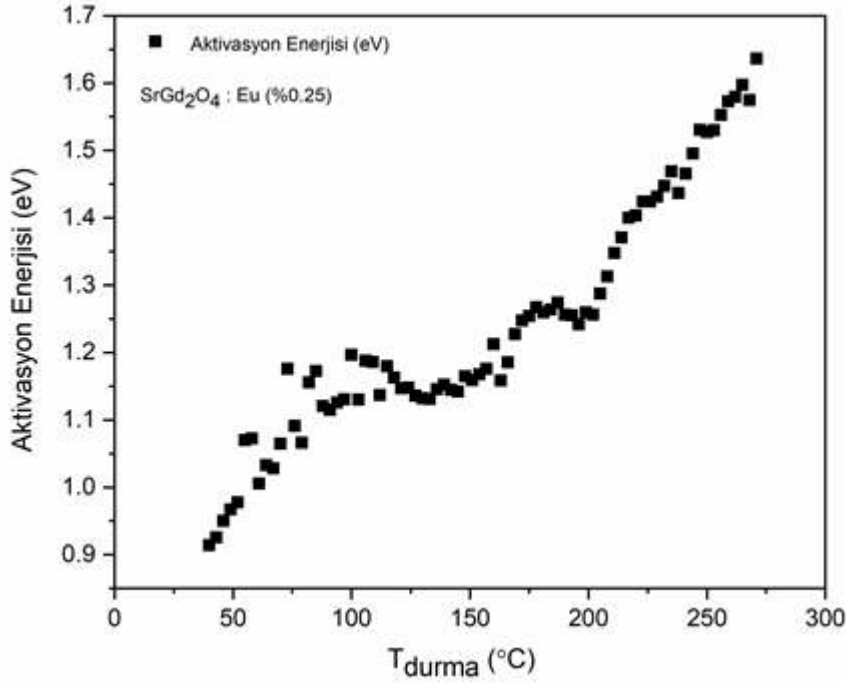
4.5.5. Başlangıç Artış Yöntemi ile İlgili Bulgular

Başlangıç artış yöntemi, iki veya daha fazla iç içe geçmiş ışıma tepelerinden oluşuyorsa uygulanamaz. Başka bir deyişle, başlangıç artış yöntemi, çevresindeki diğer komşu ışıma tepelerinden ayrılmış tek bir ışıma tepesinin aktivasyon enerjisini hesaplamak için kullanılan bir yöntemdir. TL ışıma tepelerini birbirinden ayırmak için $T_{\text{maksimum}}-T_{\text{durma}}$ tekniği yaygın olarak kullanılmaktadır (McKeever, 1985). Bu teknikte, $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu 2 Gy beta dozu ile ışılandıktan sonra oda sıcaklığından ilk tepenin düşük sıcaklık bölgesine (40 °C) karşılık gelen bir sıcaklığa kadar ısıtıldı. Isıtılan fosfor, oda sıcaklığına kadar soğutuldu. Işıma eğrisinin geri kalanını elde etmek için fosfor aynı ısıtma hızında hedeflenen sıcaklığa kadar tekrar ısıtılarak T_{maksimum} belirlendi. Daha sonra T_{durma} 'ın yeni bir değeri kullanılarak benzer bir şekilde T_{maksimum} belirlendi. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu 2 Gy doza maruz bırakıp 40 °C den başlayarak 3'er derece aralıklar ile 271 °C'ye kadar $T_{\text{maksimum}}-T_{\text{durma}}$ tekniği kullanılarak TL ışıma eğrileri kaydedildi (Şekil 4.25).



Şekil 4.25. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun 40-271 °C arasında 3 °C'lik artışlarla elde edilen TL ışıma eğrileri.

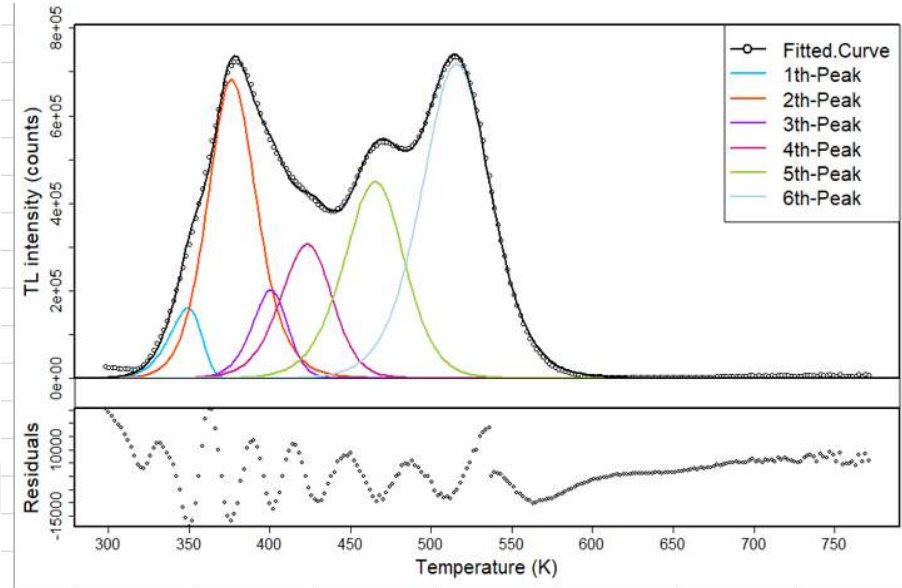
Elde edilen her bir TL ışıma eğrisine IR yöntemi uygulanarak aktivasyon enerjileri hesaplanmıştır. Hesaplanan aktivasyon enerji değerlerine karşı T_{durma} grafiği çizilerek $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun TL ışıma eğrisinin kaç tane tepeden oluştuğu ve enerji sevipleri belirlenmiştir (Şekil 4.26).



Şekil 4.26. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforlarının 3°C 'lik artışlarla $40\text{--}271^\circ\text{C}$ aralığında elde edilen aktivasyon enerjileri

4.5.6. Bilgisayarla Işıma Eğrisi Ayırıştırma (CGCD) Yöntemi ile İlgili Bulgular

5 Gy beta dozu sonrası elde edilen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun ışıma eğrisine bakıldığında belirgin bir şekilde 3 ışıma tepesinden meydana geldiği görülmektedir. Ancak ışıma eğrisi CGCD yöntemi ile analiz edildiğinde bir birine çok yakın ve iç içe girmiş 6 ışıma tepesinden oluştuğu görülmektedir (Şekil 4.27). Ayrıca, bu tepelere ait tuzak parametreleri Çizelge 4.6'da verilmiştir.



Şekil 4.27. CGCD yöntemi kullanarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun TL ışıma eğrisinin ayrıştırılması.

Çizelge 4.6. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun CGCD yöntemi ile elde edilen tuzak parametreleri

	T_M (°C)	μ_g	E_{ort} (eV)	s (s ⁻¹)
Tepe 1	76,09	0,382	1,07	5,60E+14
Tepe 2	103,15	0,515	1,12	1,74E+14
Tepe 3	127,48	0,489	1,55	6,91E+18
Tepe 4	150,14	0,457	1,20	2,91E+13
Tepe 5	192,14	0,466	1,25	4,46E+12
Tepe 6	242,47	0,485	1,40	5,64E+12

5. SONUÇ VE ÖNERİLER

Bu tez kapsamında, yeni TL dozimetresi geliştirmek amacıyla SrGd_2O_4 , $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$, ve $\% 5$ kütlece) ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($\text{x} = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2$ ve $\% 3$ kütlece) fosforlarının sentezlenmesi Çukurova Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Termoluminesans (TL)/Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL) Dozimetri ve Tarihlendirme Laboratuvarı'nda gerçekleştirilmiştir. Bu fosforların sentezlenmesinde başlangıç kimyasalları olarak stronsiyum oksit (SrO , $\%99.99$ saflıkta) ve gadolinyum oksit (Gd_2O_3 , $\%99.99$ saflıkta) bileşikleri kullanılmıştır. Sentezlemeden sonra elde edilen fosforlarda homojenliği sağlamak için 15-20 dakika boyunca agat havanda öğütme işlemi gerçekleştirilmiştir. Öğütme işleminden sonra toz haline getirilen fosforların yapısındaki organik bileşiklerin uzaklaştırılması için kül fırında 900°C sıcaklıkta 4 saat boyunca kalsine edildi. Fırından çıkarılan fosforlar tekrar agat havanda 15-20 dakika boyunca öğütüldü. Öğütülen toz örnekler 2 ton basınç altında 20 dakika bekleyerek 10 mm çapında silindirik peletlere dönüştürüldü. Kristalleşmenin tam oluşması ve atomlar arası bağların kuvvetlenmesi için hazırlanan peletler 1300°C sıcaklıkta 4 saat boyunca sinterlendi. Sinterleme süresinin sonunda peletler yavaş bir şekilde oda sıcaklığına kadar soğutulmaya bırakıldı. Soğuyan peletler fırından çıkarıldı. Agat havanda tekrar öğütme işlemine tabi tutuldu ve toz haline gelen malzeme plastik tüplere konularak gerekli analizler için ölçüme hazır hale getirildi.

Katıhal sentez yöntemi ile sentezlenen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforların XRD kırınım desenlerindeki piklerin konum ve şiddetleri ICDD 98-019-3592 nolu PDF kartında verilen SrGd_2O_4 ile uyum içerisinde olduğu görülmüştür. Katkılama ile elde edilen fosforlarının tümünün P_{nam} (62) uzay grubunda ve ortorombik kristal yapıda olduğu tespit edilmiştir. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xSm}$ ($\text{x} = 0, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3, \% 4$ ve $\% 5$ kütlece) fosforları için elde edilen TL ısıma eğrilerinin analizi sonucunda en uygun filtrenin IRSL-TL geniş bant olduğu ve en uygun katkı oranının $\% 0.5 \text{ Sm}^{+3}$ olduğu

belirlenmiştir. Doz-yanıt yöntemi ile elde edilen TL ışıma eğrilerinin altında kalan alanlardan yararlanılarak, malzemenin 0.1-10 Gy arasında doğrusal fonksiyon ile uyum içerisinde olduğu belirlendi. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun ilk okumaya göre 10 döngü sonunda % 2 oranında bir sapma gösterdiği tespit edildi. Farklı ısıtma hızları deneyinde, sıcaklık düzeltilmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforu için aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplandı. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforu için 40 °C den başlayarak 3'er derece aralıklar ile 271 °C'ye kadar $T_{\text{maksimum}} - T_{\text{maksimum}}$ tekniği kullanılarak elde edilen her bir TL ışıma eğrisine IR yöntemi uygulanarak Arrhenius grafiği oluşturulmuş ve aktivasyon enerjileri hesaplanmıştır. Bu teknikle TL ışıma eğrisinin kaç tane tepeden oluştuğu ve enerji seviyeleri belirlendi. CGCD yöntemi ile analiz edilen $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ fosforunun ışıma eğrisinin iç içe girmiş 5 ışıma tepesinden oluştuğu tespit edildi. Bu ışıma tepelerine ait tuzak parametreleri hesaplandı. $T_{\text{maksimum}} - T_{\text{durma}}$ ile elde edilen ışıma tepeleri ile CGCD yöntemi ile elde edilen ışıma tepelerinin uyum içinde olduğu görülmüştür.

$\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının XRD kırınım desenlerinin konum ve şiddetlerinin ICDD 98-019-3592 nolu PDF kartında verilen SrGd_2O_4 ile uyum içerisinde olduğu gözlemlendi. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:\text{xEu}$ ($x = \% 0.25, \% 0.5, \% 1, \% 2, \% 3$ kütlece) fosforlarının P_{nam} (62) uzay grubunda ve ortorombik kristal yapısına sahip olduğu belirlenmiştir. Bir dizi TL ölçümleri sonucunda en uygun filtrenin IRSL-TL geniş band olduğu ve en uygun katkılama oranının ise % 0.25 Eu^{+3} olduğu belirlendi. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun 0.1-8 Gy'lik doz aralıklarındaki lineerliğin doğrusal fonksiyon ile uyum içerisinde olduğu tespit edildi. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun aynı koşullar altında 15 döngüye kadar tekrarlanan TL ölçümleri sonucunda elde edilen TL ışıma eğrilerinin altında kalan alanlarının ilk döngüye göre % 1 oranında bir sapma gösterdiği tespit edildi. Farklı ısıtma hızları deneyinde sıcaklık düzeltilmesi yapılmış T_m değerleri ile deneysel T_m değerleri kullanılarak $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu için

aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) değerleri hesaplandı. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforu için 40 °C den başlayarak 3'er derece aralıklar ile 271 °C'ye kadar $T_{\text{maksimum}}-T_{\text{durma}}$ tekniği kullanılarak TL ışıma eğrileri kaydedildi. Elde edilen her bir TL ışıma eğrisine IR yöntemi uygulanarak aktivasyon enerjileri hesaplanmış ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun TL ışıma eğrisinin kaç tane tepeden oluştuğu ve enerji sevipleri belirlenmiştir. $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforunun ışıma eğrisi CGCD yöntemi ile analiz edildiğinde iç içe girmiş 6 ışıma tepesinden oluştuğu ve bu ışıma tepelere ait tuzak parametreleri hesaplandı.

Bu çalışmada elde edilen sonuçlar doğrultusunda $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.005\text{Sm}^{+3}$ ve $\text{SrGd}_2\text{O}_4:0.0025\text{Eu}^{+3}$ fosforlarının mükemmel bir tekrarlanabilirlik özelliğe sahip olduğu görülmüştür. Doz-yanıt sonuçları kullanılarak elde edilen lineerlik aralığı her ne kadar dar bir alanda olsa da bu fosforların çevresel dozimetreler olarak kullanılabileceği söylenebilir. Böyle yüksek lüminesans özellik gösteren fosforlara, lantanit ya da nadir toprak grubundan belli stokiyometrik konsantrasyonlarda elementler tekli veya çift olarak katkılanarak dozimetrik özellikleri geliştirilebilir. Bu bağlamda SrGd_2O_4 fosforu ideal bir ev sahibi materyaldir.



KAYNAKLAR

- Aitken, M.J., 1998. An Introduction to Optical Dating. The dating of quaternary sediments by the use of photon-stimulated luminescence. Oxford University Press, New York, 267pp.
- Atasöz, S., Topaksu, M., Souadi, G., Can, N., 2022. Anomalous heating rate dependence and analyses of thermoluminescence glow curves in Gd doped ZnB_2O_4 phosphors. Journal of Luminescence, 246, 118838.
- Balian, H.G., and Eddy, N.W., 1977. Figure-of-merit (FOM), an improved criterion over the normalized chi-squared test for assessing goodness-of-fit of gamma-ray spectral peaks. Nuclear Instruments and Methods, 145: 389-395pp.
- Besara, T., Lundberg, M.S., Sun, J., Ramirez, D., Dong, L., Whalen, J.B., Vasquez, R., Herrera, F., Allen, J., Davidson, M., Siegrist, T., 2014. Single crystal synthesis and magnetism of the BaLn_2O_4 family (Ln = lanthanide), Prog. Solid State Chem. 42, 23-36.
- Bohun, A., 1954. Thermoemission und photoemission von Natriumchlorid. Czech. J. Phys. 4, Pages 91-93.
- Booth, A.H., 1954. Calculation of electron trap depths from thermoluminescence maxima, Canadian Journal of Chemistry, Volume 32, Number 2, 214-215pp.
- Bulcar, K., Dogan, T., Akça, S., Yüksel, M., Ayvacikli, M., Karabulut, Y., Kucuk, N., Canimoglu, A., Can, N., Topaksu, M., 2018. Thermoluminescence behavior of Sm^{3+} activated ZnB_2O_4 phosphors synthesized using low temperature chemical synthesis method. Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B, 428: 65-71pp.

- Bulcar, K., Oglakci, M., Hakami, J., Topaksu, M., Can, N., Alma, M.A., 2022. Kinetic parameters and anomalies in heating rate effects of the thermoluminescence from rock salt from Tuzluca in Turkey. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research*, B, 523, 8-15.
- Chen, R., and Pagonis V., 2011. *Thermally and optically stimulated luminescence: a simulation approach*. Wiley, New Jersey, 419p.
- Chen and McKeever, 1997. *Theory of thermoluminescence and related phenomena*, World Scientific, Singapore, River Edge, N.J.
- 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): 8294-8300pp.
- Dogan, T., Yüksel, M., Akça, S., Portakal, Z.G., Yegen, S.B., Kucuk, N., Topaksu, M., 2017. Normal and anomalous heating rate effects on thermoluminescence of Ce-doped ZnB_2O_4 . *Applied Radiation and Isotopes*, 128: 256-262pp.
- Daniels, F., Boyd, C.A., and Saunders, D.F., 1953. Thermoluminescence as a Research Tool. *Science*, 117: 343-349pp.
- Du Fay, C.F., 1738. The Notes of the observations about luminescence. *Hist. De Acad. Roy. De Sci. De Paris*, 3, 96pp.
- Furetta C., Weng, P.S., 1998. *Operational Thermoluminescence Dosimetry*. World Scientific.
- Furetta, C., 2003. *Handbook of thermoluminescence*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, 450pp.
- Furetta, C., 2010. *Handbook of thermoluminescence*. World Scientific Press, Singapor, 544pp.
- Garlick, G.F.J, and Gibson, A.F., 1948. The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors. *Proceedings of the Physical Society*, 60: 574-589pp.

- Gartia, R.K., Ingotombi, S., Singh, T.S.G., Mazmudar, P.S., 1991. On the determination of the activation energy of a thermoluminescence peak by the two-heating-rates method, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Volume 24, Number 1, 65.
- Gavhane, K.H., Bhadane, M.S., Kulkarni, P.P., Bhoraskar, V.N., Dhole, S.D., Dahiwal, S.S., 2021. Investigation of novel Eu doped SrDy_2O_4 microphosphor for thermoluminescence dosimetry, *J. Lumin.* 231 117781.
- Gomez-Ros JM, Kitis G, 2002. Computerised glow curve deconvolution using general and mixed order kinetics. *Radiation Protection Dosimetry*, 101(1-4): 47-52.
- Hoogenstraaten, W., 1958. Electron traps in zinc sulphide phosphors. *Philips Research Report* 13: 515-693pp.
- Kittel, C., 1996. *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley & Sons, Inc., New York, 6th edition, 434 p.
- Kitis, G., and Tuyn, J.W.N., 1998. A simple method to correct for the temperature lag in the TL glow-curve measurements. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 31: 2065-2073pp.
- Kitis, G., Tuyn, J.W.N. 1999. Correction for temperature lag and thermal gradient effects arising during thermoluminescence readout. *Radiation Protection Dosimetry*, 84(1-4):371-374pp.
- Kitis, G., Gomez-Ros, J.M., Tuyn, J.W.N., 1998. Thermoluminescence glow curve deconvolution functions for first, second and general orders of kinetics, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 31, 2636-2641.
- Kucuk, N., Bulcar, K., Dogan, T., Garcia Guinea, J., Portakal, Z.G., Karabulut, Y., Ayvacikli, M., Canimoglu, A., Topaksu, M., Can, N., 2018. Doping Sm^{3+} into ZnB_2O_4 phosphors and their structural and cathodoluminescence properties. *Journal of Alloys and Compounds*, 748: 245-251pp.

- 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 semilocalized transition (SLT) model. *Radiation Measurements*, 46, 12, 1376- 1379.
- McKeever, S.W.S., 1985. *Thermoluminescence of Solids*. Cambridge University Press, England, 450pp.
- McKeever, S.W.S., Moscovitch, M and Townsend, P.D., 1995. *Thermoluminescence dosimetry materials: Properties and Uses*. Nuclear Technology Publishing, England, 204pp.
- Misra, S.K., Eddy, N.W., 1979. IFOM, a formula for universal assessment of goodness-of-fit of gamma ray spectra. *Nuclear Instruments and Methods* 166(3): 537-540pp.
- Mott, N. F. ve Gurney, R. W., 1940, *Electronic processes in ionic crystals* The international series of monographs on physics, The Clarendon Press, Oxford.
- Mott, N. F., ve Stoneham, A. M., 1977, The lifetime of electrons, holes and excitons before self-trapping, *Journal of Physics C: Solid State Physics*, 10(17), 3391.
- Nicholas, K.H., and Woods, J., 1964. The evaluation of electron trapping parameters from conductivity glow curves in cadmium sulphide. *British Journal of Applied Physics*, 15 (7): 783-795pp.
- Oglakci, M., Topaksu, M., Can, N., 2020. Thermoluminescence glow curves of beta irradiated $\text{NaBaBO}_3\text{:Ce}^{3+}$ phosphor synthesized by combustion method, *Sensors and Actuators A: Physical*, Volume 315, 112299, ISSN 0924-4247.
- Oglakci, M., Topaksu, M., Souadi, G., Can, N., 2021. Thermoluminescence study and trapping parameters of beta irradiated $\text{NaBaBO}_3\text{:Gd}^{3+}$ phosphor, *Journal of Luminescence*, Volume 238, 118245, ISSN 0022-2313.

- Oglakci, M., Akça, S., Halefoglu, Y.Z., Dogan, T., Ayvacikli, M., Karabulut, Y., Topaksu, M., Can, N., 2019. Characterization and thermoluminescence behavior of beta irradiated NaBaBO₃ phosphor synthesized by combustion method, *Ceramics International*, Volume 45, Issue 6, Pages 7011-7017, ISSN 0272-8842.
- Pagonis, V., Kitis, G., Furetta, C., 2006. Numerical and practical exercises in thermoluminescence. Springer, New York, 208pp.
- Parfianovich, I.A., 1954. On the determination of the energy depth of capture levels in crystal phosphors, *J. Exp. Theor. Phys.*, SSSR 26, 696-703pp.
- Peng, J., Dong, Z.B., Han, F.Q., 2016. tgc: An R package for analyzing thermoluminescence glow curves. *SoftwareX*, 5: 112-120.
- Portakal, Z.G., Dogan, T., Balci-Yegen, S., Küçük, N., Ayvacikli, M., Garcia Guinea, J., Canimoglu, A., Karabulut, Y., Topaksu, M., Can, N., 2017. Luminescence characteristics of Dy³⁺ incorporated zinc borate powders. *Journal of Luminescence*, 188: 409-417pp.
- Randall, J.T. and Wilkins, M.H.F. 1945. Phosphorescence and electron traps-I. The study of trap distributions. *Proc. R. Soc. London A*, 184: 366-389pp.
- Richter, D., Richter, A., Dornich, K., 2015. Lexsyg smart - A luminescence detection system for dosimetry, material research and dating application, *Geochronometria*, 42, 202–209.
- Richter, A., Kumar, T., 2014. Instruction manual: Lexsygsmart-Automated TL/OSL Reader. Freiberg Instruments, Germany, 47pp.
- Sarıkcı, S., Topaksu, M., Bakır, M., Can, N., 2022. Structural and analyses of thermoluminescence glow curves in Sm doped SrGd₂O₄ phosphor. *Journal of Alloys and Compounds*, 911, 165008.
- Singh, J., Manam, J., Singh, F., 2017. Thermoluminescence studies of solid-state reaction derived and γ -irradiated SrGd₂O₄: Eu³⁺ phosphor. *Materials Research Bulletin*, 93, 318-324pp.

- Singh, J., Manam, J., Singh, F., 2017. Synthesis and thermoluminescence studies of γ -irradiated Dy^{3+} doped SrGd_2O_4 phosphor. *Materials Research Bulletin*, 94, 113-121pp.
- Souadi, G., Oglakci, M., Kaynar, U.H., Correcher, V., Benavente, J.F., Bulcar, K., Ayvacikli, M., Hiziroglu, A., Topaksu, M., Can, N., 2022. Thermoluminescence glow curve analysis and kinetic parameters of Eu doped Li_2MoO_4 ceramic phosphors. *Ceramics International*, 48(13), 19258-19265.
- Sun, X.Y., Wang, W.F., Sun, S.Q., Lin, L.W., Li, D.Y., Zhou, L.P., 2013. Synthesis and luminescent properties of novel $\text{BaGd}_2\text{O}_4:\text{Eu}^{3+}$ scintillating phosphor, *Luminescence* 384-391pp.
- Sunta, C.M., 2015. *Unraveling Thermoluminescence*, vol. 202 of Springer Series in Materials Science, Springer, India.
- Topaksu, M., 2004. Kubad Abad'a (Konya) ait Selçuklu seramik ve çinilerinin termolüminesans (TL) tarihlendirilmesi, yapısının belirlenmesi ve teknolojisinin açıklanması. Çukurova Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Doktora Tezi, Adana.
- Wang, D., Wang, Y., Wang, L., 2007. Photoluminescence properties of $\text{Sr}(\text{Y}, \text{Gd})_2\text{O}_4:\text{Eu}^{3+}$ under VUV excitation, *J. Lumin.* 126 135-138pp.
- Yazan, H., Portakal-Uçar, Z.G., Akça, S., Topaksu, M., Townsend, N., Can, N., 2021. Thermoluminescence of Ce and Nd co-doped CaF_2 phosphors after beta irradiation. *Journal of Luminescence*, 234, 117949.
- Yazıcı, A.N., 1996. Thermal and optical characteristics of radiation induced defect centers in alkali halide crystals (TLD-100). University of Gaziantep, Physics Engineering, Ph.D. Thesis, Gaziantep.
- Yüksel, M., Dogan, T., Balci-Yegen, S., Akca, S., Portakal, Z.G., Kucuk, N., Topaksu, M., 2018. Heating rate properties and kinetic parameters of thermoluminescence glow curves of La-doped zinc borate. *Radiation Physics and Chemistry*, 151: 149-155pp.

Zhang, J., Wang, Y., Guo, L., Huang, Y., 2012. Vacuum ultraviolet–ultraviolet, X-ray, and near-infrared excited luminescence properties of $\text{SrR}_2\text{O}_4\text{:RE}^{3+}$ (R = Y and Gd; RE = Tb, Eu, Yb, Tm, Er, and Ho), J. Am. Ceram. Soc. 95 (1) 243-249pp.





ÖZGEÇMİŞ

Savaş SARIKCI, İlk orta ve lise öğrenimini Adana’da tamamladı. 2004 yılında Selçuk Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü’ne başladı 2008 yılında mezun oldu. 2011-2012 yılında askerlik görevini tamamladı. Mezun olduktan sonra fizik öğretmeni ve yönetici olarak birçok kurumda çalıştı.

Mesleki çalışmasını Eğitim Atölyesi kurumunda sürdürmekte.

