

T.C.
CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ * FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**UV RADYASYON DOZUNUN TERMOLÜMİNESANS DOZİMETRELERLE
İNCELENMESİ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Aylin ÖZKAN

Anabilim Dalı : Fizik

Programı : Genel Fizik

MANİSA 2013

T.C.

CELAL BAYAR ÜNİVERSİTESİ * FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

UV RADYASYON DOZUNUN TERMOLÜMİNESANS DOZİMETRELERLE
İNCELENMESİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Aylin ÖZKAN

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih : 24.04.2013

Tezin Savunulduğu Tarih : 21.05.2013

Tez Danışmanı : Yrd.Doç. Dr. Arzu EGE

Jüri Üyeleri : Yrd.Doç. Dr. Arzu EGE (CBÜ)

Prof. Dr. Turgay KARALI (EÜ)

Yrd. Doç. Dr. Nermin KÜÇER (CBÜ)

MANİSA 2013

TEŞEKKÜR

Yüksek lisans çalışmalarım süresince her adımda değerli destek ve katkılarını esirgemeyen tez danışmanım Sayın **Yrd.Doç.Dr. Arzu EGE**'ye, başta yardımlarını esirgemeyen Araş. Gör. Dr. Mehmet AYVACIKLI olmak üzere her zaman büyük özveriyle yanımda olan arkadaşlarıma ve aileme, en içten teşekkürlerimi sunarım.

AYLİN ÖZKAN

ÖZET

UV (mor ötesi) elektromanyetik spektrumun bir parçasıdır. İnsanlar günlük yaşantılarında güneşten ya da endüstride kullanılan yapay kaynaklardan UV radyasyonuna maruz kalırlar. UV radyasyonun biyolojik etkileri dalga boyu ile oldukça değişmektedir. UV spektrum dalga boyuna göre üç alt gruba ayrılır: UVA (400-315 nm), UVB (315-290 nm) and UVC (280-200 nm). Bu çalışmanın amacı UV radyasyonun ölçümünde termolüminesans dozimetrelerin (TLD) kullanılmasının incelenmesidir. TLD'ler, canlı organizmaların maruz kaldığı radyasyon dozun belirlenmesinde kullanım kolaylığı, ucuz olması ve kolay temin edilebilirliği gibi bazı üstün özelliklere sahiptir. Çalışmada çeşitli ticari ve ticari olmayan termolüminesans dozimetrelerin, UV radyasyonuna maruz bırakılmalarının ardından termolüminesans (TL) ışıma sinyalleri alınmıştır. Çalışmada kullanılan dozimetreler, LiF:Mg,Cu,P , $\text{CaB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$, $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm,Mn}$ dozimeterleridir. Ayrıca Dr. Popovici tarafından sentezlenmiş olan itriyum niyobat (YNbO_4) fosforu da kullanılmıştır. YNbO_4 fosforunun UV radyasyonuna karşı kararlılık, doz cevabı gibi dozimetrik özellikleri incelenmiştir. Ayrıca, bu fosforun yaklaşık 150 °C deki temel ışıma pikine ait tuzak enerjisi (E), frekans faktörü (s) ve kinetik merteye (b) gibi kinetik parametreleri artan doz, çeşitli ısıtma hızları, pik şekli yöntemleri kullanılarak hesaplanmıştır.

ABSTRACT

UV radiation is part of the electromagnetic spectrum. People are exposed to UV radiation from the sun and many artificial sources used in industry and daily life. The biological effects of UV radiation change extremely with wavelength. The UV spectrum is further subdivided into three regions according to wavelength: UVA (400-315 nm), UVB (315-280 nm) and UVC (280-200 nm). The aim of current study is to investigate the usability of thermoluminescence dosimeters (TLDs) in measuring the UVB radiation. TLDs have some superior characteristics such as their availability, being cheap and easy to use in determination of exposed dose to living organisms. In this study, the thermoluminescence glow curves of a variety of commercial and non-commercial thermoluminescent dosimeters (TLD) were recorded after exposing to UV radiation. Dosimeters used in this study were LiF:Mg,Cu,P, CaB₄O₇:Dy, CaSO₄:Dy, Li₂B₄O₇:Cu,Ag,P, MgB₄O₇:Dy, Na, MgB₄O₇:Tm, Mn. Moreover, yttrium niobate (YNbO₄) phosphor synthesized by Dr.Popovici was also used. Dosimetric characteristics of YNbO₄ phosphor such as dose response and stability against UV radiation were examined. Furthermore, The kinetic parameters, namely trap energy and frequency factor (s) associated with the main glow peak (~150 °C) of this phosphor were determined using additive dose, various heating rates (VHR) and peak shape methods (PS).

İÇİNDEKİLER

ÖZET	I
ABSTRACT	II
İÇİNDEKİLER	III
ŞEKİL DİZİNİ	VI
ÇİZELGE DİZİNİ	VIII
SİMGELER ve KISALTMALAR	IX
1. GİRİŞ	1
1.1 Literatür Özeti	2
2. LÜMİNESANS	4
2.1 Uyarılma Türlerine göre Lüminesans	5
2.2. Termolüminesans	5
2.3. Termolüminesansın Matematiksel Modellemesi	7
2.4. Termolüminesans Dozimetre (TLD)	8
2.5. Dozimetrik Malzemelerin Özellikleri	9
2.5.1. Doz cevabı	9
2.5.2. Duyarlılığı	9
2.5.3. Enerji yanıtı	10
2.5.4. Tavlama koşulları	10
2.5.5. Termal sönümlenme	11
2.5.6. Işık duyarlılığı	11

3.TERMOLÜMİNESANS TEORİLERİ	12
3.1. Basit Model	12
3.2. Birinci Derece Kinetik (Randall-Wilkins Teorisi)	17
3.3. İkinci Derece Kinetik (Garlick-Gibson Teorisi)	20
3.4. Genel Derece Kinetik	23
3.5. Yarı-Denge (QE)	26
3.6. Mott-Seitz Gösterimi	27
3.7. Schön-Klasens Gösterimi	28
4. ELEKTROMANYETİK SPEKTRUM	30
4.1. UV Radyasyon	31
4.2. UV Radyasyonun Etkileri	32
4.2.1. Güneşin geliş açısı	32
4.2.2. Stratosferdeki ozon miktarı(kalınlığı)	32
4.2.3. Bulut miktarı	32
4.2.4. Gün içindeki zamanlar	32
4.2.5. Çevresel şartlar	33
4.2.6. Coğrafi konum	33
4.3 UVB Radyasyonun İnsan Sağlığı Üzerine Etkileri	33
4.3.1. Dermatolojik etkiler	33
4.3.2. Bağışıklık sistemi	33
4.3.3. Kanser	33
4.3.4. Göz sağlığına etkisi	34

4.3.5.Çevre üzerine etkileri	34
4.4. UV Radyasyonu Ölçme Teknikleri	35
5. MATERYAL ve METOD	38
5.1. Çalışmada Kullanılan Termolüminesans Dozimetreler ve Özellikleri	38
5.2. Termolüminesans Dozimetre (TLD) Okuyucu Sistemi	39
5.3. TL Işıma Eğrisinin Kinetik Parametre İçin Analiz Yöntemleri	40
5.3.1. Artan doz metodu	41
5.3.2. Chen pik şekli metodu	41
5.3.3. Çeşitli ısıtma hızları metodu	42
6. SONUÇLAR ve TARTIŞMA	46
6.1. Termolüminesans Dozimetrelerin ve $YNbO_4$ fosforunun Işıma Eğrileri	46
6.2. $YNbO_4$ fosforunun TL kararlılığı ve doz yanıtı	52
6.3. $YNbO_4$ fosforunun Termolüminesans Kinetik Karakterizasyonu	54
6.3.1. Pik şekli metoduyla elde edilen TL kinetikleri	54
6.3.2. Çeşitli ısıtma hızları metoduyla elde edilen TL kinetikleri	55
KAYNAKLAR	60
ÖZGEÇMİŞ	63

ŞEKİL DİZİNİ

Şekil 2.1. Floresans olayının şematik gösterimi	4
Şekil 2.2. Fosforesans olayının şematik gösterimi	5
Şekil 2.3. Termolüminesans oluşturan elektron geçişlerinin şematik gösterimi.....	6
Şekil 2.4. Işıma eğrisi örneği. Her bir pik iyi tanımlanmış bir tuzağa karşılık gelir.....	6
Şekil 2.5. Farklı dozimeterler ile doz cevap eğrileri a) SiO ₂ 'nin 100 °C piki b)TLD-100(LiF:Mg,Ti) 5.piki- b)TLD-400(CaF ₂ :Mn)	9
Şekil 2.6. Bazı Dozimeterlerin foton enerji yanıtını gösteren grafik LiF için Z _{eff} =8,14, CaF ₂ için Z _{eff} =16,3 Referans ortam hava.....	10
Şekil 3.1. Termolüminesans için iki seviyeli basit model. İzinli geçişler: (1) iyonlaşma; (2) ve (5) tuzaklanma; (3) ısısal serbest kalma; (4) ışımsal yeniden birleşme ve foton yayınımlı.	13
Şekil 3.2. Yeniden birleşme merkezlerinde tuzaklanmış deşikler ve termolüminesans şiddeti arasındaki ilişki.....	16
Şekil 3.3. Randall-Wilkins birinci derece TL denklemine göre normalize edilmiş ışıma tepesi: Asimetrik ya da geometrik faktör olarak tanımlanan $\mu = \omega / \delta$, 0.42 tipik değerine sahiptir.	17
Şekil 3.4. Randall Wilkins birinci derece TL denkleminin özellikleri; (a) n ₀ ışınlamasından sonra, tuzaklanmış doz taşıyıcılarının yoğunlukla değişimi. (b) E, aktivasyon enerjisi ile değişimi (c) Parametre değerleri: n = 1m ⁻³ ; E= 1 eV;s=1x10 ¹² s ⁻¹ kaçış frekansı ile değişimi. Bütün eğriler için ısıtma hızı 1 Ks ⁻¹ 'dir. Belirlenen tepenin maksimum konumu n ₀ 'la değişmez.....	19
Şekil 3.5. Birinci derece kinetik (I) ve ikinci derece kinetik (II) için ışıma eğrileri	21
Şekil 3.6. Garlick-Gibson ikinci derece TL denkleminin özellikleri; (a) n ₀ ışınlamasından sonra, tuzaklanmış doz taşıyıcılarının yoğunlukla değişimi. (b) E, aktivasyon enerjisi ile değişimi (c) Parametre değerleri: n ₀ = 1m ⁻³ ; E=1 eV; s=1x10 ¹² s ⁻¹ m ⁻³ kaçış frekansı ile değişimi. Bütün eğriler için ısıtma oranı 1 Ks ⁻¹ 'dir. Belirlenen tepenin maksimum konumu n ₀ 'la değişmez.	22
Şekil 3.7. Değişik kinetik dereceler sırasında gerçekleşen farklı TL süreçler.....	26
Şekil 3.8. Mott-Seitz mekanizması.....	27
Şekil 3.9. Schön-Klasens modeli.....	28
Şekil 4.1. Elektromanyetik Spektrum.....	30
Şekil 4.2. Ultraviyole radyasyonun sınıflandırması.....	31
Şekil 5.1. Çalışmada kullanılan termolüminesans dozimetrenin resimleri a) LiF:Mg,Cu,P b) CaB ₄ O ₇ :Dy c) CaSO ₄ :Dy d) Li ₂ B ₄ O ₇ :Cu,Ag,P e) MgB ₄ O ₇ :Dy, Na f) MgB ₄ O ₇ :Tm, Mn	38

Şekil 5.2. TLD Harshaw 3500 okuyucu sistemi.....	39
Şekil 5.3. TLD okuyucu sisteminin genel diyagramı.....	39
Şekil 5.4. Çalışmada UV kaynağı olarak UVB ışık kaynağı ve spektrumu.....	40
Şekil 5.5. Geometrik şekil nicelikleri τ , δ , ω	41
Şekil 5.6. Kinetik derece b ve geometrik faktör $\mu = \delta / \omega$ ve $\gamma = \delta / \tau$ arasındaki ilişki.	42
Şekil 5.7. T_M ' nin ısıtma hızıyla değişimi.....	43
Şekil 6.1. $MgB_4O_7:Tm,Mn$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.....	46
Şekil 6.2. $MgB_4O_7:Dy,Na$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.....	47
Şekil 6.3. $Li_2B_4O_7:Cu,Ag,P$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.	48
Şekil 6.4. $CaSO_4:Dy$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.....	49
Şekil 6.5. $CaBO_4:Dy$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.....	50
Şekil 6.6. $LiF:Mg,Cu,P$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.....	51
Şekil 6.7. $YNbO_4$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.....	52
Şekil 6.8. $YNbO_4$ dozimetresinin 30s, 1, 3, 5,10 ve 20 dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrileri.....	53
Şekil 6.9. $YNbO_4$ dozimetresinin ışıma eğrisin altında kalan alana göre doz cevap eğrisi.....	53
Şekil 6.10. $YNbO_4$ fosforunun kararlılık eğrisi.....	54
Şekil 6.11. UVB radyasyonuna 5 dk maruz bırakılan $YNbO_4$ fosforunun 1, 2, 5, 10, 20 ve 40°C/s ısıtma hızları ile elde edilen ışıma eğrileri	55
Şekil 6.12. Her bir ısıtma hızında elde edilen ışıma piklerinin maksimum sıcaklık değerlerine karşılık $(1/T_m)$ karşılık $\ln(T_m^2/\beta)$ grafiği. Grafikte ısı boşluk düzeltmesi yapılmış değerler (■) ve düzeltme yapılmamış değerler ise (□) sembolü gösterilmiştir.	57

ÇİZELGE DİZİNİ

Çizelge 6.1. Chen metoduna göre belirlenen 5 dk UVB radyasyonuna maruz bırakılan YNbO_4 fosforunun 2°C/s ısıtma hızı ile elde edilen ışıma eğrisinin ana pikine ait TL kinetik parametre sonuçları55

Çizelge 6.2. UVB radyasyonuna 5 dk maruz bırakılan YNbO_4 fosforunun 150°C pikinin Chen pik şekli ve çeşitli ısıtma hızları metotlarına göre elde edilen kinetik parametre sonuçları57

SİMGELER ve KISALTMALAR

β ısıtma hızı

E_c İletim bandı enerjisi

E_v Valans bandı enerjisi

E_t Kararlı tuzak derinliği

E_f Fermi enerji seviyesi

eV Elektron volt, enerji birimi

Gy Gray (Radyasyon soğurma birimi)=J/kg

k Boltzmann sabiti

I (TL) Termolüminesans sinyalinin şiddeti

nm Nano metre, 1 nm=10⁻⁹ m

ns Nano saniye, 1 ns=10⁻⁹s

p Elektronun tuzaktan kaçma olasılığı

⁹⁰Sr Stronsiyum-90

T Sıcaklık

ΔS Entropi değişimi

b.d. Birimsiz değer

ED Eşdeğer doz

exp Exponansiyel

GDT Genel derece tuzak

IR İnfrared (Kızıl ötesi, Enfrarüj)

OSL Optik uyarmalı lüminesans

PS Pik (Tepe) şekli

TL Termolüminesans

TLD Termolüminesans dozimetre

UV Ultra-Viyole (Mor ötesi)

1. GİRİŞ

Orta çağda bazı simyacıları bazı minerallerin ısıtıldığında karanlıkta parıldadığını fark etmişlerdi. Bilimsel olarak kayıtlara geçmiş ilk termoluminesans (TL) teoremi: 17. yüzyılda ilk kez Robert Boyle tarafından (1663) doğal mineraller üzerinde gerçekleştirilmiştir [McKeever, 1985]. 1895 yılında Wiedemann ve Schmith tarafından TL aktivatörler üzerine ilk sistematik araştırmalar yapılmıştır. Fosforesans ve radyasyon arasındaki ilişki 19. yüzyıl sonrasında geniş araştırmalara konu olmuştur [McKeever, 1985].

Radyasyonla uyarılmış TL çalışmalarına 1904'te Marie Curie doktora tezinde yer vermiştir. Curie çalışması sonucunda "bazı cisimler (florür gibi) ısıtıldığında ışıltı verir" demiştir. Bu ışıdamalar ısı yoluyla uyarılmış ışımadır. Işıltıları bir süre sonra kaybolmaktadır fakat ısıları korundukça ışıltıları da sürmektedir. Isı sağlanması alev ya da radyasyonla yapılabilir. "Radyum bu tür cisimlerin TL özelliğini tazelemek için kullanılabilir" demiştir [McKeever, 1985]. Przibram ve arkadaşları (1922 -1923)

Avusturya'da Radyum Enstitüsünde, ışınlanan doğal minerallerin hem ısıyla hem de ışıkla ağartıldığında verdikleri fosforesansı gözlemlemişlerdir. Isı yoluyla uyarılmış ışıma spektrumu ile ilgili ilk geniş çalışma Morse tarafından, florit minerali ile yapılmıştır. Lind ve Bardwell radyasyon uyarımlı TL üzerindeki çalışmaları çeşitli saydam mineralleri radyum kullanarak uyarma yoluyla sürdürdü. Buna 1924 de Wick devam etmiş ve Florür ile doğal TL gözlemleri yapmıştır. O ve arkadaşları doğal minerallerde X-ışını ve elektron demeti ile uyarılmış TL üzerinde ve ayrıca sentetik fosforlarla yoğun çalışmalar yapmıştır. Özellikle Wick ve Slattery, Wiedemann ve Schmidt in çalıştığı sentetik fosforların aynılarını kullanarak X-ışını uyarımlı TL üzerinde önemli buluşlar yaptılar. Bu fosforlar arasında Mangan ile aşılınmış CaSO_4 bulunur. Mangan iyi bir TL aktivatörü olarak bilinir ve $\text{CaSO}_4:\text{Mn}$ mükemmel bir TL fosforudur.

Önceden belirtildiği gibi TL eğrisinin maksimum olduğu sıcaklık elektron tuzak derinliği ile ilgilidir. Bu konudaki en gerçek ilerleme Birmingham Üniversitesi, İngilterede bir araştırma grubu tarafından yapılan çalışmalardır [Lyman,1932]. Randall ve Wilkins TL teorisini elektronun tuzaktan ayrılma mekanizmasının birinci dereceden olduğunu düşünerek formüle ettiler. Yani tuzaktan ayrılan elektronun tekrar tuzaklanmadığını doğrudan birleşmeye uğradığını kabul ettiler. Bu çalışmalar TL üzerine yapılan ilk çalışmalardandır. 1940'ların sonu ve 1950'lerin başında ilk olarak Randall ve Wilkins (1945) sonrasında Garlick ve Gibson'nın (1948) çalışmaları sonucu TL kullanımı artmıştır. TL'ın farklı alanlarda kullanılmasında ilk pratik araştırmacılar 1950'lerde Amerikadaki Wisconsin Üniversitesinden Farrington Daniels ve araştırma grubudur. Radyasyonun soğurulma hızı bir örnekten çıkan TL elektronlarla belirli enerji düzeylerini doldurmak suretiyle artırır. Diğer taraftan çevreden ısı soğurması tuzaklanmış elektronları ısı olarak serbest hale geçirerek tuzaklanmış elektron sayısını azaltır. Böylece TL şiddeti radyasyonun doldurduğu tuzaklar ile termal uyarılmanın boşalttığı tuzaklar arasındaki rekabete bağlıdır.

Fotoçoğaltıcıların keşfinden sonra 1953 yılında termolüminesans Daniels tarafından, maruz kalınan nükleer radyasyon miktarının ölçülmesinde kullanılmıştır. 1960'lı yıllarda Aitken ve arkadaşları ilk TL tekniğini arkeolojik tarihlendirme için de kullanılmışlardır. 1976 da Elsholtz, feldspat mineralinde ısıya doğrudan ışığa dönüştüğünü gözlemlemiştir 1976'dan sonra o zamanın diğer gözlemcileri de benzer şekilde düşünmüşlerdir. Du Fay ışımanın maddenin içinde bulunan ve ısıtınca yanan kükürt yüzünden olduğunu düşünmüştür. Ama daha sonra ısı yoluyla uyartılmış ışımanın gecikmiş fosforesanstan başka bir şey olmadığını belirtmiştir. Doğal kuvars ile yaptığı deneyleri ısı yoluyla uyartılmış ışımanın malzemenin tekrar ışığa tutularak tekrar aktive edilebileceğini göstermiştir. Isı, emisyonunun nedeni olmayıp yalnızca uyaranıdır. Déribéré Annecy Fransadan kimyacı Callaud'un sülfatı 100-180°C da ısıtarak yoğun mavi bir ışığa elde ettiğini rapor etmiştir. Bu gözlem sonradan Pelletier tarafından da desteklenmiştir [McKeever, 1985]. 1977 yılında Botter-Jensen ve arkadaşları, ilk PC ve mikroişlemci kontrollü okuyucu TL sistemini tasarlamışlardır [Harmanşah, 2006]. Aitken, 1985 yılında kullanılan TL tekniğini ve metodlarını gözden geçirerek bunları termolüminesans tarihlendirme başlığı altında birleştirmiştir. 1997 yılında, Markey ve arkadaşları bu sisteme yazılım kontrollü hareket edebilen yeni bir model geliştirmişlerdir. 2000' li yıllardan sonra OSL tekniği TL tekniği ile beraber doz ölçümünde kullanılmaya başlanmıştır. Günümüzde termolüminesans (TL) yöntemi, dozimetrik materyallerin incelenmesi, tuzak parametrelerinin belirlenmesi gibi çalışmalarla birlikte tıp alanında teşhis ve tedavide de radyasyon dozlarının ölçümünde yaygın olarak kullanılmaktadır. Termolüminesans dozimetre materyalleri, son elli yıldır nükleer tıpta olduğu gibi çevresel ve kişisel dozimetride de olağan uygulamalar için kullanılmaktadır [McKeever, 1985].

Bu tez çalışmasında, UV radyasyon doz ölçümünde TL dozimetrelerin kullanılmasına yönelik incelemeler yapılmıştır. Bu amaçla daha önceden farklı radyasyon kaynaklarıyla ışınlanmış olarak incelenmiş LiF:Mg,Cu,P , $\text{CaB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$, $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm,Mn}$ dozimetreler ile yeni üretilmiş YNbO_4 fosforu kullanılmıştır.

1.1 Literatür özeti

$\text{Mg}_2\text{SiO}_4\text{:Tb}$ malzemesinin fosforesans ve TL özelliğinden yararlanarak UV dozimetre olarak kullanılabilirliği ile ilgili ilk araştırmalar 1978 yılında Lakshmanan ve arkadaşları tarafından yapılmıştır [Lakshmanan et al.,1978].

Pradhan ve arkadaşları, 1996 yılında $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ TLD malzemesinin fototransfer termolüminesans (PTTL) özelliğinden yararlanarak bu malzemenin UVB dozimetre olarak kullanılabilirliği ile ilgili araştırmalar yapmışlardır. UV ışınlarına maruz kalma öncesi ışınlanmış örneklerin TL sinyalin önemli bir ağartma gözlememişlerdir. $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ TL dozimetresinin iyonize

radasyona ek olarak UV dozimetrisi için de oldukça hassas bir TL malzeme olduğunu ileri sürmüşlerdir [Pradhan et al.,1996].

Colyott ve arkadaşları 1997 yılında α - Al_2O_3 :C TLD malzemesinin fototransfer termoluminesans (PTTL) özelliğinden yararlanarak bu malzemenin UVB dozimetre olarak kullanılabilirliği ile ilgili araştırmalar yapmışlardır [Colyott et al., 1997].

Noh ve arkadaşları (2001) CaF_2 :Dy ve CaSO_4 :Dy dozimetrelerinin ısı ve ışık kararlılıkları ve lineer doz cevapları dolayısıyla güneşten kaynaklanan UV radyasyonun izlenmesinde kullanmışlardır. Bu amaçla 220-255nm dalgaboyunda ışık kaynağı kullanmışlardır. Yüksek termal ve ışık sönmömleri nedeniyle CaF_2 :Dy ve CaSO_4 :Dy dozimetrelerinin UV dozimetre olarak uygun olmadığını belirtmişlerdir. Al_2O_3 , dozimetresinin 287 °C pikinin oda sıcaklığında kararlı olması nedeniyle özellikle soğuk iklimlerde UV radyasyon doz ölçümünde kullanılabileceği ve CaF_2 :Dy ve CaSO_4 :Dy dozimetrelerinin ısı ve ışık kararlılıkları ve lineer doz cevaplarını incelendiğinde güneşten kaynaklanan UV radyasyonun izlenmesinde kullanılabileceğini belirtmişlerdir. Ayrıca LiF : Mg, Cu, P dozimetersinin de UV radyasyon dozu ölçümünde uygun olmadığını ifade etmişlerdir [Noh et al., 2001].

Salas ve arkadaşları (2003) polikristal monoklinik ZrO_2 malzemesinin UV radyasyon dozuna karşılık TL cevabını incelemişler. Farklı dalga boylarına maruz bırakılan ZrO_2 malzemesinin TL ışıma eğrisini kaydetmişler. Sol-gel metodu ile sentezlenen monoklinik ZrO_2 malzemesinin geniş bir eksitasyon spektrumuna ve TL verimine sahip olduğunu gözlemlemişlerdir [Salas et al., 2003].

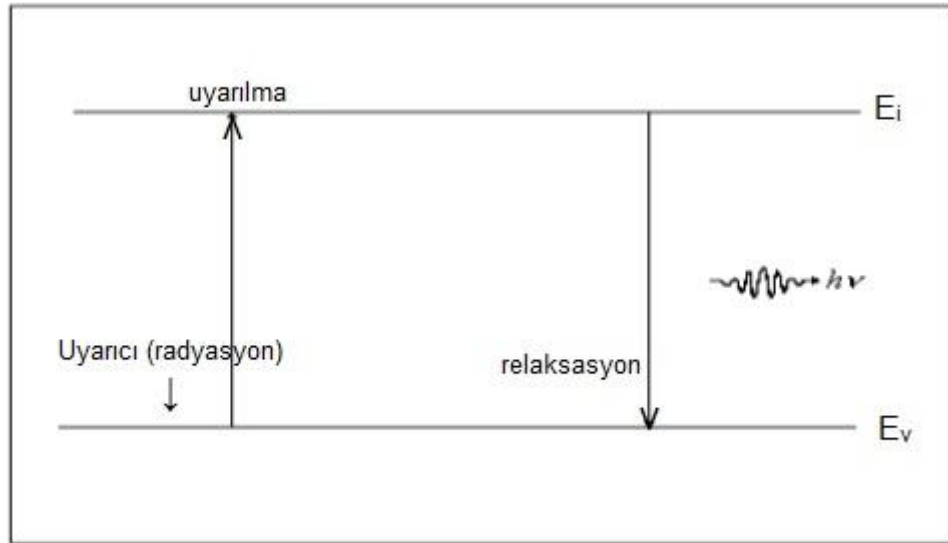
Saito ve arkadaşları 2011 yılında yaptıkları çalışmada in vivo olarak CaF_2 :Tb,Sm TL dozimetresini kullanmışlardır. Bu malzemeyi diş minesi üzerine yerleştirmişler ve gün içinde kişinin aldığı UV dozunu belirlemeye çalışmışlardır [Saito et al., 2011].

2. LÜMİNESANS

Bir malzeme herhangi bir şekilde radyasyona maruz kaldığında, gelen enerjinin bir kısmı soğrulur ve kendisinden daha uzun dalga boylu bir ışınım olarak geri yayımlanır, bu işleme “lüminesans” denir. Bu yayımlanma siyah cisim radyasyonu içermez. Katının elektronik sisteminde depolanan enerjinin görünür, kızıl ötesi (IR) veya mor ötesi ışın (UV) ile ya da iyonlaştırıcı radyasyon yoluyla uyarılması sonucu ortaya çıkışıdır. Çıkan ışığın dalga boyu gelen ışığından daha uzundur (Stoke Kanunu). Bunun yanı sıra yayılan ışığın dalga boyu ışıma yapan maddenin cinsine bağlıdır. Işıma dozimetrelerinde radyasyon enerjisinin depolanma kabiliyeti önemlidir ve genellikle aktivatörlerin (yabancı atomlar ve yapısal hatalar gibi) varlığıyla bağlantılıdır [McKeever, 1985].

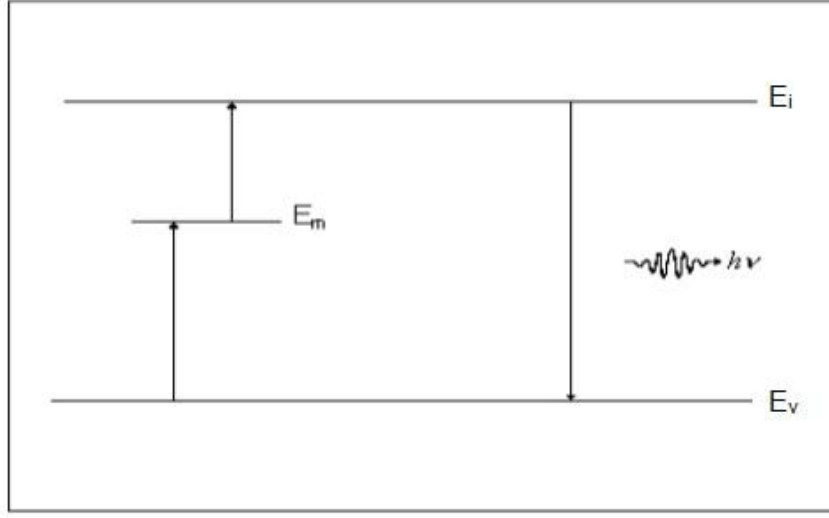
Lüminesans yayımlanma ömrüne göre 2 ye ayrılır.

Floresans: Yayımlanma ömrü 10^{-8} sn’ küçük olan lüminesanstır. Buna göre floresans uyarılma süresince yer alan ışıma olayıdır. Floresansın bozunma süresi sıcaklıktan bağımsızdır ve uyarılmış bir E_i düzeyinden temel duruma E_v a geçiş olasılığı ile belirlenir. Bu işlem şekil 2.1’de gösterilmiştir.



Şekil 2.1. Floresans olayının şematik gösterimi.

Fosforesans: Yayımlanma ömrü 10^{-8} sn’ fazla olan lüminesanstır. Uyarıcı kaynağın uzaklaştırılmasından sonra da gözlenebilir. Fosforesansın bozunma zamanı sıcaklığa bağlıdır. Şekil 2.2’ ye göre bir elektron E_v temel düzeyinden E_m tuzak seviyesine uyarıldığında bu durum oluşur. Elektron foton saçılması ile (E_m ’den E_v ’a) temel duruma dönmez çünkü seçim kuralı bunu kısmen veya tamamen engeller



Şekil 2.2. Fosforesans olayının şematik gösterimi.

2.1 Uyarılma Türlerine Göre Lüminesans

Kullanılan uyarılma kaynaklarına göre lüminesans farklı isimler alır. Aşağıda bunlardan bazıları kısaca tanımlanmıştır.

Fotolüminesans: Ultraviyole ışıkla uyarılan maddede oluşan bir lüminesans çeşididir. Floresans ve fosforesans olayları fotolüminesansın özel durumlarıdır.

Termolüminesans: İyonlaşma radyasyonu ile uyarılan bazı cisimler sıcaklıkları yükseldiğinde bir lüminesans gösterirler. Bu ışımaya termolüminesans denir.

Sonolüminesans: Yüksek frekanslı ses dalgaları veya fononlarla meydana gelen bir lüminesans türüdür.

Katodolüminesans: Elektronların kristallere çarpmasıyla oluşabilen lüminesans türüdür.

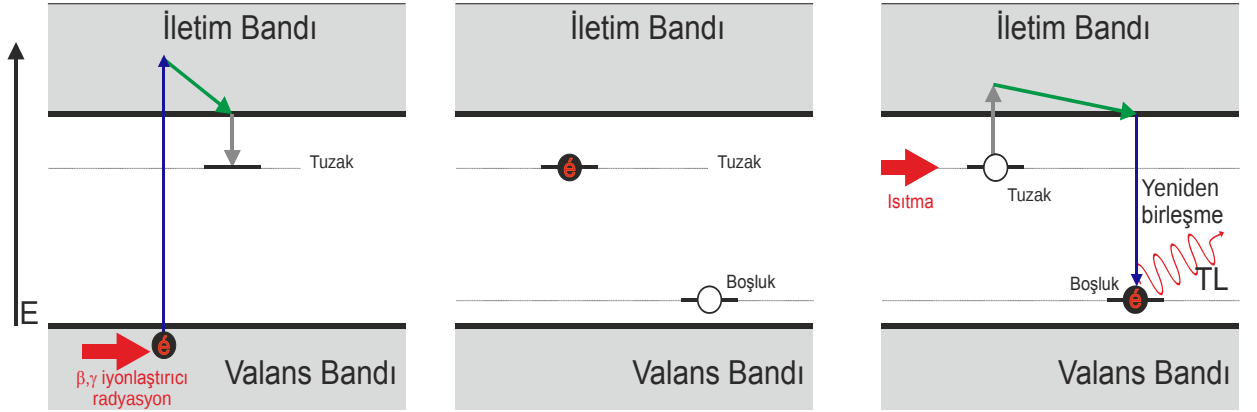
Elektrolüminesans: Maddeye elektrik alanının uygulanması ile meydana gelen lüminesans çeşididir.

Tribolüminesans: Mekanik deformasyonlar veya sürtünmelerle oluşan lüminesans türüdür.

Radyolüminesans: Hızlandırıcılardan, kozmik ışıklardan, radyoaktif maddelerden veya diğer kaynaklardan gelen yüksek enerjili parçacıkların etkisi ile meydana gelen lüminesans çeşididir.

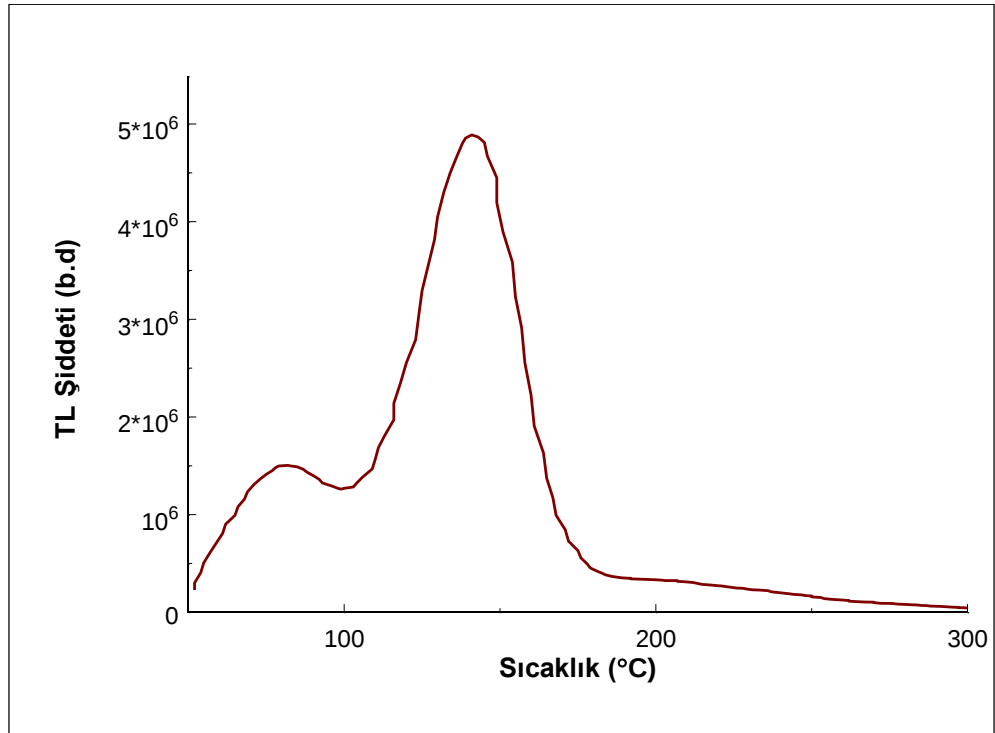
2.2 Termolüminesans

Bazı maddeler radyasyona maruz kaldıklarında bu enerjinin soğurulması onların yapısında kararsızlığa neden olur. Fakat bu maddelerde emilen enerji ısıtma yoluyla ışık formunda serbest bırakılır. Bu olaya termolüminesans denir. Işık miktarı dozimetrenin maruz kaldığı radyasyon dozu ile orantılıdır.



Şekil 2.3 Termoluminesans oluşturan elektron geçişlerinin şematik gösterimi.

TL özellik gösteren malzeme radyasyona (iyonlaştırıcı, görünür ışık, UV vs.) maruz kalma süresince enerjiyi soğurur ve ısıtılana kadar bu enerjiyi depo eder. Eğer ışık şiddeti sıcaklığın (veya zamanın) bir fonksiyonu olarak çizilirse, ortaya çıkan grafiğe ısıma eğrisi adı verilir. Şekil 2.4 ısıma eğrileri ısıma-pikleri adı verilen bir veya daha fazla maksimuma sahip olabilirler. Bu ısıma pikleri çeşitli enerji seviyesindeki tuzakların fonksiyonlarıdır.



Şekil 2.4. ısıma eğrisi örneği. Her bir pik iyi tanımlanmış bir tuzaka karşılık gelmektedir.

2.3 Termoluminesansın Matematiksel Modellemesi

Işığın ısı yoluyla uyartılmış ışımaya saçılması ile ilgili matematik analizinin amacı olayla ilgili yeterli bilgiye ulaşmaktır. Teorik olarak ısı yoluyla uyartılmış ışımaya katının bant yapısına yabancı madde ve örgü düzensizliklerinin yarattığı etkiyle ve doğrudan bağlıdır. Her yükteki iyonlar orijinal yerlerinden çıkartılıp boşluk oluşturulduğunda merkezler oluşur. Bunlar serbest yük taşıyıcılarla karşılaşabilir ve onları tuzaklar ya da iyonlar içsel pozisyonlara yayılabilir ve ideal örgü geometrisini bozar. Sonuç olarak yabancı iyonlar örgü yapısını bozar çünkü büyüklük ve değer olarak civar atomlardan farklıdır. Dahası bu dışsal hatalar içsel olanlarla etkileşebilir ve daha karmaşık şekiller oluşturabilirler. Atomik açıdan bir hata etkileştiği taşıyıcıların işaret ve sayısı ve de uyartılmış durumların varlığıyla tanımlanabilir. Her merkezin karakteristik enerjisi verebileceği enerji miktarıdır. Tuzaklanmış yüklerin serbest kalması merkezin bozulması ve yerel sıra durumunun yeniden oluşması yoluyla olur. Bant yapısını valans ve iletkenlik bantları terimleriyle ifade etmek mümkündür. Bu bantlar yasaklanmış bir aralıkla birbirlerinden ayrılırlar. Bu aralıkta bantlar her yükteki serbest yük taşıyıcıların tuzaklandığı iletim bandının altında farklı derinliklerde bulunur. Bu nedenle yasaklanmış bant aralığı oldukça karmaşık bir yapıdadır. Bu nedenle ısı yoluyla uyartılmış ışımaya saçılma çalışmaları en anlamlı parametrelerle ilgili detaylı bilginin alınması için önemli bir araçtır. Bu parametreler her bir boşluk için karakteristik enerji (E), frekans faktörü (s) (geçiş frekansına da bağlıdır) ve kinetik derecedir (b) (ilgili olayı niteleyen). Kinetik derece 1 ya da 2 olabilir. Eğer yük (elektron) verilen enerji ile iletkenlik bandından çıkıp devamında bir boşlukla birleştiği bir merkeze düşerse derecesi 1'dir. Bu olayla tekrar tuzaklanma olasılığı aynı ise derecesi 2 olur. Işıma yapmayan olaylardan katılımlarla ortada durumlar da gerçekleşebilir ($b=0$).

Bu tanımlara dayanan matematik modelleri uygun diferansiyel eşitlik sisteminden oluşur. Her durumda yüklü taşıyıcı miktarı ölçülür ve uygun diferansiyel verilerle kontrol edilir. Böylece teori ve pratik arasında bir birlik sağlanacak şekilde parametreler ayarlanır. En iyi yol farklı deneysel koşullarda ısı yoluyla uyartılmış ışımaya saçılmasının ısı yoluyla uyartılmış ışımaya örneğin ısıtıldığı sıcaklığın ya da ısıtma zamanının fonksiyonu olarak gözlemlemek ve kaydetmektir. Sabit bir ısıtma hızında bu iki gözlem eşdeğerdir. Grafiğin şekli maddenin fiziksel ve kimyasal özelliğine ve uygulanan işleme bağlıdır. Yine de genel denklemlerden anlaşılacağı gibi daima tekli ya da çoklu eğri içeren bir yapıdadır ve bir eğri ile bir elektron tuzağı düzeyi arasında iyi bir bağlantı kurulabilir. Bu belli bir sıcaklıkta belli bir düzey için termal enerji miktarının iletkenlik bandındaki tuzaklanmış yükleri ışımaya yapar hale getirebilen enerjisi ile açıklanabilir. Bu amaçla pozitif yük taşıyıcılarını tuzaklayabilen diğer merkezler yayılan ışığın kalitesiyle ilişkilendirilmiştir.

Tüm eğrinin süper pozisyonu olan tek bir eğrinin analitik şekli sağ sol genişlikleri, aralarındaki oran, tam genişlik ve yükseklik gibi bazı geometrik parametrelerle tanımlanır. Yükseklik belli düzey koşullarında ısıtma hızına bağlı olarak artar. Bu geometrik parametreler

gerçek fiziksel duruma karşılık gelir. İlgili eşitliklerin uygun analitik işlemler ile matematik ifadeler hesaplanabilir. Deneysel belirsizlikler parlama eğrisinin grafiği ile bulunabilir. Böylece fiziksel hatalar tahmin edilerek hesaplamada kullanılacak en uygun metot belirlenir.

2.4 Termolüminesans Dozimetre (TLD)

Canlı bir organizmanın ya da bir malzemenin maruz kaldığı radyasyon dozunu belirlemeye yarayan ölçü aletlerine "Dozimetre" adı verilir. Termolüminesans dozimetre (TLD), sürekli olarak geliştirilmekte ve ilerlemektedir. Dozimetrelerin birçok kullanım alanı vardır. Kullanıldığı yere veya doz miktarına bağlı olarak farklı kişisel dozimetre, çevresel dozimetre, klinik dozimetre ve yüksek doz dozimetresi gibi çeşitleri vardır [McKeever et al.,1995].

Kişisel Dozimetre: Kişisel dozimetrenin öncelikli amacı rutin çalışma süresince reaktör çalışanları, hastane radyoterapi teknisyenleri ve nükleer güçle çalışan denizaltı personelleri gibi kişilerin maruz kaldığı radyasyon dozunun gözlenmesidir. Böylece kişilerin maruz kaldığı dozun güvenli limitler içinde sınırlandırılması sağlanır. Bu limitler Uluslar arası Radyasyon güvenliği Komisyonu (ICRP) gibi düzenleyici ajansların tavsiyelerine dayanmaktadır. Rutin izlenmenin yanı sıra, radyasyon kazaları sırasında soğurulan dozların belirlenmesini de sağlamaktadır. Bir kişisel dozimetrenin en belirgin özelliği doku eşdeğer olmasıdır.

Çevresel Dozimetre: Son yıllarda, sağlık, endüstri ve politik komiteler yapay radyasyon salınımının potansiyel çevresel etkileri hakkında halkın gösterdiği artan ilginin farkına varmışlardır. Gün geçtikçe nükleer güç istasyonlarından gaz radyonüklidlerin kaçışı, nükleer yakıtların yeniden işlenmesi, nükleer güç istasyonları kazaları ve nükleer güç endüstrisi ile ilişkili diğer aktiviteler, radyasyonun zararlı etkilerinin halkın arasında yayılmasına neden olmuştur. Bütün bunların sonucunda salınan radyasyonun sürekli izlenmesi endüstrileşmiş ülkelerde önemli bir konu olmuştur. Sürekli radyasyonun izlenmesi kavramı TLD kullanımını getirmiştir. Bu amaçla kullanılan TLD lerin özellikleri kişisel dozimetre için kullanılanlardan farklıdır. Çevresel doz ölçümlerinde en önemli dozimetrik özellik TLD'nin uzun sürelerde kararlılığını korumasıdır.

Çevresel dozimetrenin karasal kullanım alanları yapay radyasyon salınımını sürekli izlenmesi, jeolojik tarihleme, arkeolojik tarihleme, retrospektif dozimetre (geriye dönük doz ölçümü) konularını kapsar.

Çevresel dozimetrenin uzaysal kullanım alanları kozmik ışınların yüksek enerjili protonların güneş rüzgârlarından gelen ağır yüklü parçacıkların doz ölçümlerine dayanmaktadır.

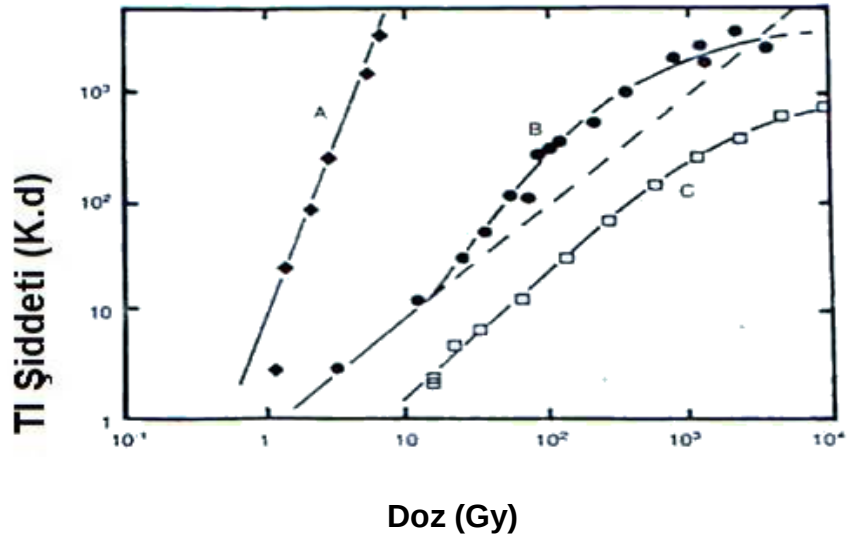
Klinik Dozimetre: Teşhise dayalı Radyoloji (Diagnostic Radiology) Örnek: Mamografi, dış tedavisi görüntülemeleri sırasında Radyoterapi Örnek: Çeşitli kanserlerin tedavileri

Yüksek Doz Dozimetre: Nükleer reaktörler, gıda ışınlaması, malzeme testleri gibi yüksek dozun söz konusu olduğu alanlarda 10^2 den 10^6 Gy'e kadar olan dozların izlenmeleri için üretilmişlerdir.

2.5. Dozimetrik Malzemelerin Özellikleri

2.5.1 Doz Cevabı

Soğurulan doza karşı ölçülen ışıma sinyalinin fonksiyonel bağımlılığı olarak tanımlanır. Doz cevabının geniş bir doz aralığında lineer olması istenir.



Şekil 2.5. Farklı dozimetreler ile doz yanıt eğrileri; a) SiO₂'nin 100 °C piki, b) TLD-100 (LiF:Mg,Ti) 5.piki, c) TLD-400 (CaF₂:Mn) [McKeever et al.,1995].

2.5.2 Duyarlılığı

Bir dozimetrik malzemenin duyarlılığı soğurulan birim doz başına ışıma sinyalinin şiddeti olarak tanımlanır. Duyarlık değeri verilirken bir malzemeden elde edilen ışıma sinyalinin, LiF:Mg, Ti dozimetresinin aynı koşullarda elde edilen ışıma sinyalinin şiddetine oranı olarak hesaplanır.

$$S(D) = \frac{F(D)_{malzeme}}{F(D)_{TLD-100}} \quad \text{TLD-100:LiF:Mg,Ti}$$

Bir dozimetrik malzemenin duyarlılığı, sistemde kullanılan optik filtrelere, ölçüm esnasında kullanılan ısıtma hızına ölçüm metoduna ve kullanılan sisteme göre değişebilir. Bu nedenle duyarlılıkla ilgili incelemeler yapılırken bu koşullar aynı kalmasına dikkat edilmelidir.

2.5. 3 Enerji Yanıtı

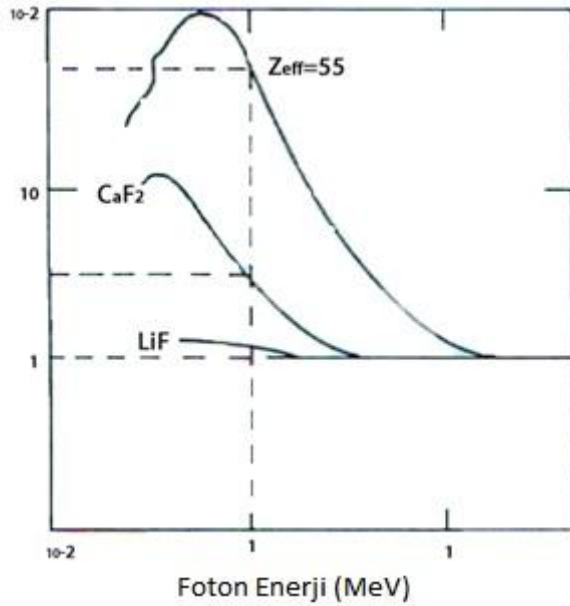
Enerji yanıtı sabit bir doz için soğurulan radyasyonun enerjisinin bir fonksiyonu olarak tayin edilen ışıma verisinin değişimidir. Bu değişim malzemenin soğurma katsayısının bağımlılığından ileri gelmektedir ve foton ışınlamaları için malzemenin kütle enerji soğurma katsayısı, μ_{en}/ρ , olarak tanımlanır. Foton enerji yanıtı $S_E(E)$

$$S_E(E) = \frac{(\mu_{en}/\rho)_m}{(\mu_{en}/\rho)_{ref}}$$

Foton enerji yanıtının pratik kullanımda ^{60}Co 1.25 MeV fotonlarına göre tanımlanan bağıl enerji yanıtı (RER) ile kullanılır.

$$(RER)_E = \frac{S_E(E)}{S_E(1.25\text{MeV } ^{60}\text{Co})} \quad dE/dx|_{E,Z_{eff}}$$

anahtar parametre durdurma gücüdür. Bu parametrede hem malzemenin kalınlığına hem de efektif atom numarasına bağlıdır.



Şekil 2.6 Bazı dozimetrelerin foton enerji yanıtını gösteren grafik. LiF için $Z_{eff}=8,14$, CaF_2 için $Z_{eff}=16,3$, Referans ortam hava [McKeever et al.,1995].

2.5.4 Tavlama Koşulları

Dozimetrik bir malzemenin güvenilir bir şekilde yeniden kullanımı için genellikle malzemenin belirli bir termal tavlama işlemine tutulması gerekmektedir. Tavlama işlemi genellikle belirli bir

süre ve sıcaklıkta ön ısıtmadan meydana gelir. Tavlamanın amacı ısınlama ve okuma öncesinde malzemenin termodinamik kusur dengesinin yeniden kurulmasıdır. Tavlama sıcaklığının yanlış belirlenmesi ısıma ölçümüyle elde edilen sonuçları olumsuz yönde etkileyebilir.

2.5.5 Termal Sönümleme

Eğer ısıma sinyali zamanla kararlı değilse yani ısınlamadan sonra zamanla azalıyorsa sinyalin sönümlendiği söylenir. En yaygın karşılaşılan şekli termal sönümlemedir. Termal sönümle, tuzaktan yüklerin ısı yardımıyla salınması olayıdır. Bu sönümleme aşağıdaki denklemle ifade edilir.

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

τ_f , termal sönümleme zamanı

E, tuzak enerjisi

s, frekans faktörü

T, sıcaklık

2.5.6 Işık Duyarlılığı

Isıma sinyalinin istenmeyen sönümlenmesi tuzaklardan yüklerin optiksel uyartımıyla da meydana gelebilir. Soğurulan fotonun enerjisi optiksel tuzak derinliğinden daha büyük olması tuzaklardan yüklerin salınmasına neden olacak ve bu nedenle ısıma sinyali azalacaktır. Işığın sönümlenme etkisinin aksine bazı malzemelerde ışık, ısıma sinyalini artmasına da neden olabilir. Bu genellikle UV ışığa maruz kalmadan kaynaklanır. Bazı malzemelerde görülen PTTL (Phototransferred Thermoluminescence) etkisi buna bir örnektir.

3. TERMOLÜMINESANS TEORİLERİ

Termolüminesans tekniğinde daha önceden iyonize radyasyona maruz kalmış yalıtkan ve/ veya yarı iletkenin ısıtmasının ardından ışık yayımlaması olayıdır. Bu bölümde termolüminesans tekniği ile ilgili geliştirilmiş modellemelerine değinilecektir.

3.1. Basit Model

Basit model Şekil 3.1'de gösterilmiştir. Bu enerji bant şemasında biri sınır seviyesi ve delokalize bant arasına (D_e ve E_c veya D_h ve E_v) diğeri ise sınır seviyeleri arasında herhangi bir yere yerleşmiş olan iki lokalize seviye vardır. Böylece biri tuzak gibi davranırken diğeri ise yeniden birleşme merkezi olarak davranır. Şekil 3.1'de tuzak dengi Fermi seviyesinin E 'nin üstüne yerleştirilmiştir ve denge durumunda boştur (Radyasyondan enerji soğurmadan önce). Böylece potansiyel elektron tuzağıdır. Yeniden birleşme merkezi Fermi seviyesinin altına yerleştirilmiştir ve tamamen elektronlarla doludur. Bundan dolayı potansiyel deşik tuzağıdır.

Radyasyon enerjisinin soğurulması iletim bandında serbest elektronlar ve valans bandında deşikler oluşturur. Serbest elektronlar T seviyesinde tuzaklanırlar.

Tuzaklanan bu elektronlar yeterince enerji soğururlarsa iletim bandına dönerler. Tekrar serbest kalan elektronlar yeniden birleşme merkezinde tuzaklanmış deşiklerle birleşirler. Bu yeniden birleşme geçişi ışımaya yayınımla sonuçlanır (Şekil 3.1).

Işıma yayınımla tuzakta harcanan zaman τ kadar gecikir.

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

Burada,

p : elektronun birim zamanda tuzaktan kurtulma olasılığı,

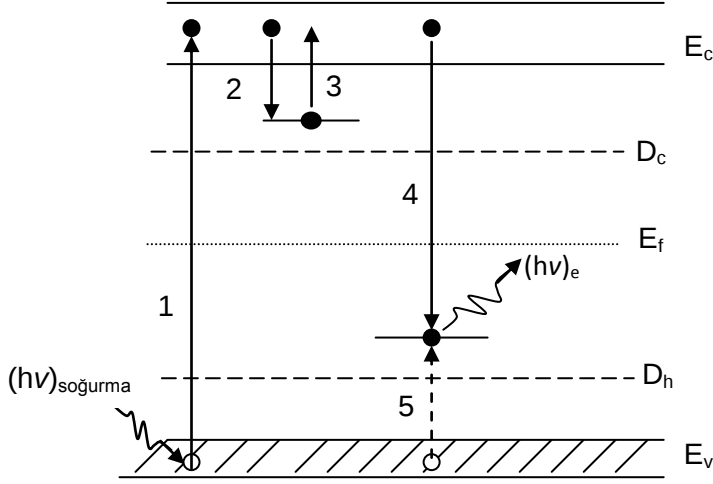
E : aktivasyon enerjisi (tuzak derinliği),

k : Boltzman sabiti,

T : sıcaklıktır.

Eğer tuzak derinliği E , ısınlama sıcaklığı T_0 'da $E \gg kT_0$ ise elektron uzun bir süre tuzakta kalır. Serbest elektron ve deşikler çiftler halinde oluştuıkları ve yine çiftler halinde yok oldukları için R seviyesinde elektronla eşit yoğunlukta tuzaklanmış deşik bulunmalıdır. T ve R seviyeleri denge Fermi seviyesinin altında ve üstünde bulundukları için tuzaklanmış elektron ve deşikler kararsız durumu gösterirler. Denge durumuna dönüş yolu her zaman açıktır. Fakat denge durumunda ısınlama şeklindeki (perturbasyon) düşük sıcaklıkta olduğu için denge durumuna dönme oranı 3.1) eşitliğinden dolayı düşer. Denge durumuna dönme sıcaklığı T_0 'ın üstüne çıkarak hızlandırılır ($E < kT$). Bu da elektronların tuzaktan kurtulma olasılığını artırır ve tuzaktan kurtulan

elektronlar iletim bandına geçerler. Serbest elektronların yeniden birleşme merkezlerindeki boşluklarla birleşmeleri sonucu termolüminesans oluşur.



Şekil 3.1. Termolüminesans için iki seviyeli basit model. İzinli geçişler: (1) iyonlaşma; (2) ve (5) tuzaklanma; (3) ısısal serbest kalma; (4) ışınımsal yeniden birleşme ve foton yayınımlı.

Herhangi bir zamanda termolüminesans şiddeti $I(t)$, R seviyesinde elektron ve boşlukların birleşme oranıyla orantılıdır. Eğer m tuzaklanmış boşlukların yoğunluğu ise

$$I(t) = -dm/dt \quad (3.2)$$

olarak verilir.

Sıcaklık yükseldikçe elektronlar kurtulur, yeniden birleşme oluşur ve termolüminesans şiddeti artar. Elektron tuzakları sürekli boşaldıkça yeniden birleşme oranı düşer ve böylece termolüminesans şiddeti düşerken karakteristik TL tepesi oluşur.

Sıcaklık zamanın lineer bir fonksiyonu olarak,

$$T = T_0 + \beta t \quad (3.3)$$

bağıntısına göre artar. Burada $\beta = dT/dt$ 'dir.

Bir elektronun tuzaktan kurtulma olasılığı tuzak derinliği E ve sıcaklığa bağlı olduğu için TL tepesinin oluşacağı sıcaklık aralığı tuzak derinliğine bağlıdır. Maksimumunun konumu E ve s ile belirlenir. Sabit bir s için E 'nin değeri ne kadar büyükse tepenin oluştuğu sıcaklık o kadar yüksektir.

s sabiti genellikle "ön-exponensiyel faktör" olarak adlandırılır. Fakat şimdiki uygulama için daha tanımlayıcı olan "kaçış frekansı" olarak adlandırılır ve birim zamanda örgü kafesi ile etkileşme sayısı olarak yorumlanır. Böylece s,-

$$s = vk\{\Delta S/k\} \quad (3.4)$$

şeklinde yazılabilir.

Burada v birim saniyede elektronun örgü kafesi ile etkileşme sayısı, k geçiş olasılığı, ΔS , elektron temel durumdan uyarılmış duruma geçerken entropide meydana gelen değişimdir. Bu durumda frekans faktörü yarı kararlı durumun yakalama etki kesiti σ' ya eşittir.

$$s = N_s v \sigma \quad (3.5)$$

N_s : delokalize banttaki seviyelerin etkin yoğunluğu

V: serbest taşıyıcının ısısal hızı

N_s , σ ve v sıcaklığa bağlı olduğu için s de sıcaklığa bağlıdır.

Model, termolüminesansın uyarılması sırasında değişik enerji seviyeleri arasındaki yük akışını tanımlayan oran denklemleri ile analiz edilir. Olayı iki birleşime yarıma sırasında tuzak boşalma olayıdır. Bu durum Şekil 3.1'de gösterilmiştir. Şekilde düzgün bir tuzak dağılımı için doldurulan enerji seviyelerini göstermek için kullanılan dolum diyagramları gösterilmiştir [Chen ve McKeever, 1997]. Şeklin sol tarafında $0^\circ K$ 'de Fermi-Dirac dolum fonksiyonları görülmektedir. Uyarılmadan sonra E_f 'nin altında ve üstündeki lokalize seviyelerde tuzaklanan elektron ve deşik dağılımlarını gösteren yeni dolum fonksiyonları vardır. Biri elektronlar için E ve diğeri deşikler için E_{fp} olmak üzere iki "Yarı Fermi Seviyesi" vardır. Bu seviyeler uyarılmayı takiben oluşan dengede olmayan durumu tanımlamak için kullanışlı araçlardır. Isıtılma sırasında dolum fonksiyonu F (E) derece uyarılma öncesi durumuna geri döner. Tuzaklanan yük yoğunlukları azaldıkça yarı Fermi seviyeleri de denge Fermi seviyesine doğru hareket eder.

Lokalize seviyeler arasında direkt geçişler ihmal edilmiştir. Elektronların iletim bandından ($E \geq E_c$) E enerjili tuzaklara geçişi ($E_c > E > E_{dn}$) ve deşiklerin valans bandından ($E \leq E_v$) deşik tuzaklarına ($E_{dp} > E > E_v$) geçişleri fonon yayarak, yani ışımasıdır.

Serbest elektronların iletim bandından ($E \geq E_c$) rekombinasyon merkezlerine ($E_f > E > E_{dn}$) ve serbest deşiklerin valans bandından geçişi ışımalıdır.

Adirovitch (1956), Haerings-Adams (1960) ve Halperin-Braner (1960) denklemlerini genelleştirerek ısısal uyarılma sırasında iletim ve valans bandına giren yük atışını tanımlayan oran denklemlerini yazdılar [Chen ve McKeever, 1997]. Bu denklemleri yazarsak,

$$\begin{aligned} \frac{dn_c}{dt} = & \int_{E_{dn}}^{E_f} P_n(E) N(E) f(E) dE - n_c V_n \int_{E_{dn}}^{E_f} \sigma_n(E) N(E) - f(E) dE \\ & - n_c V_n \int_{E_{dn}}^{E_f} P_{mn}(E) N(E) (1 - f(E)) dE \end{aligned} \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned} \frac{dn_v}{dt} = & \int_{E_v}^{E_{dp}} P_p(E) N(E) f(E) dE - n_v V_p \int_{E_v}^{E_{dp}} P_p(E) N(E) (1 - f(E)) dE \\ & - n_v V_p \int_{E_f}^{E_{dn}} \sigma_{np}(E) N(E) (1 - f(E)) dE \end{aligned} \quad (3.7)$$

$p_n(E)$ ve $p_p(E)$ tuzaklardan kurtulma olasılıkları, $N(E)$ durum yoğunlukları fonksiyonu, $f(E)$ dolum fonksiyonu, n_c iletim bandındaki elektron sayısı, n valans bandındaki deşikler, v_n ve v_p serbest elektron ve deşğin ısısal hızları, $n \sigma(E)$ ve (E) elektro $p \sigma n$ ve deşik tuzaklarının yakalama tesir kesiti, $\sigma_{np}(E)$ ve $\sigma_{mn}(E)$ yeniden birleşme tesir kesitleridir.

$$\int_{E_{dn}}^{E_c} \sigma_{np} N(E) f(E) dE \rightarrow n \quad (3.8)$$

Boş tuzakların sayısı

$$\int_{E_{dn}}^{E_c} N(E) (1 - f(E)) dE \rightarrow N - n \quad (3.9)$$

Deşik durumlarının sayısı

$$\int_{E_v}^{E_{dp}} N(E) (1 - f(E)) dE \rightarrow m \quad (3.10)$$

Sadece elektronların tuzaklardan kurtulduğu varsayılırsa $n_v=0$ dır.

$$\frac{dn_c}{dt} = ns \exp(-E_t / kT) - n_c (N - n) A_n - n_c m A_{mn} \quad (3.11)$$

$$dn_v=0$$

$A_n = V_n \sigma_n$ yeniden tuzaklanma olasılığı

$A_{mn} = v_n \sigma_{mn}$ yeniden birleşme olasılığı

$$\frac{dn}{dt} = n_c (N - n) A_n - n_s \exp(-E_T / kT) \quad (3.12)$$

$$\frac{dm}{dt} = -ncmA_{mn} \quad (3.13)$$

$$\frac{dn_c}{dt} = dm/dt - dn/dt$$

yükün nötrlüğünden,

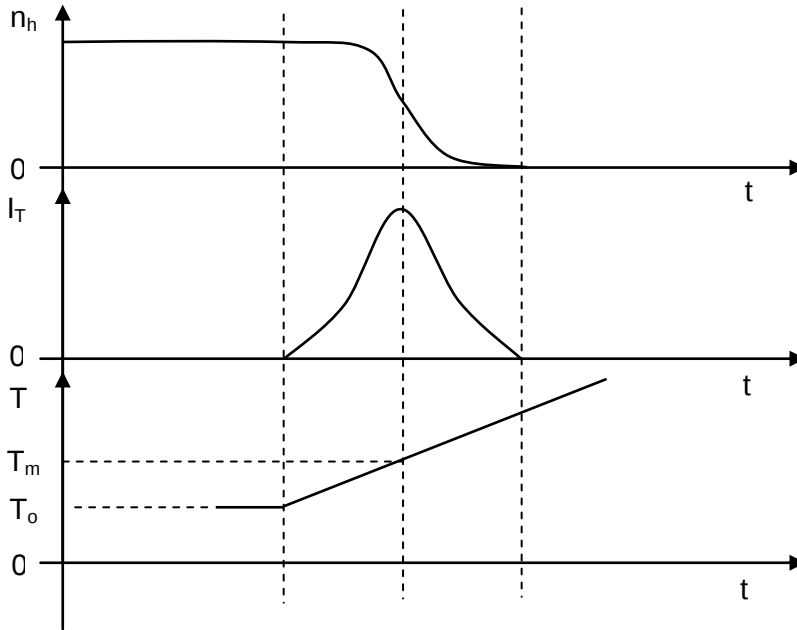
$$n_c + n = m \quad (3.14)$$

sistemin dengeye dönüşü sırasında yayılan TL şiddeti

$$I_{TL} = -\eta dm/dt$$

η ışıma verimidir bir sabittir. Bütün yeniden birleşme olayları foton üretir ve tüm fotonlar için $\eta = 1$ 'dir.

3.11-3.14 denklemleri denge durumundan uyarılan bir sistem için ısıtılma sırasında elektronların trafiğini tanımlar. Bunlar birinci derece lineer olmayan diferansiyel denklemlerdir. n_c , n , m yoğunluklarının üçü de hem zamana hem de sıcaklığa bağlıdır [Chen ve McKeever, 1997]. Bu model aşağıdaki şekille daha iyi anlaşılabilir (Şekil 3.2).



Şekil 3.2 Yeniden birleşme merkezlerinde tuzaklanmış deşikler ve termolüminesans şiddeti arasındaki ilişki.

3.2 Birinci Derece Kinetik (Randall-Wilkins) Teorisi

Randall ve Wilkins tuzaklardan kurtulan elektronların tekrar tuzaklanmadığını yani $m\sigma_{mn} \gg (N - n)\sigma_n$ olduğunu varsaydılar. Bu şart başlangıçta doğru görülmekle beraber, daha sonra tuzaklanan elektronlar azaldıkça doğru olmama olasılığı artmaktadır [Randall and Wilkins, 1945]. Yavaş tuzaklanma şartından genel derece tuzakları ifade eden (GDT) denklemi,

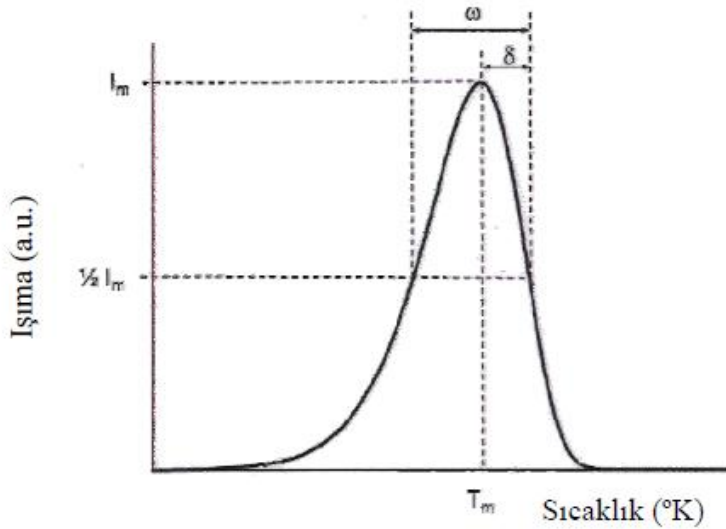
$$I_{tl} = ns \exp(-E_t/kT) \quad (3.15)$$

$ITL = -dn/dt = -dm/dt$ denkleminde $-dn/dt \approx n$ 'dir. Böylece birinci dereceden bir reaksiyondur. (3.21) denkleminin $t=0$ 'dan $t=t$ 'ye integrali alınarak Randall-Wilkins bağıntısı;

$$I_{TL} = n_o s \exp(-E_t/kT) \exp[-s/\beta \int_{T_o}^T \exp\{-E_t/k\theta\} d\theta] \quad (3.16)$$

olarak bulunur. Burada θ , sıcaklığı gösteren bir değişkendir.

Bu ifade karakteristik bir T M sıcaklığında maksimum bir yoğunluk ile Şekil 3.3 gibi çan şeklinde bir eğri verir.

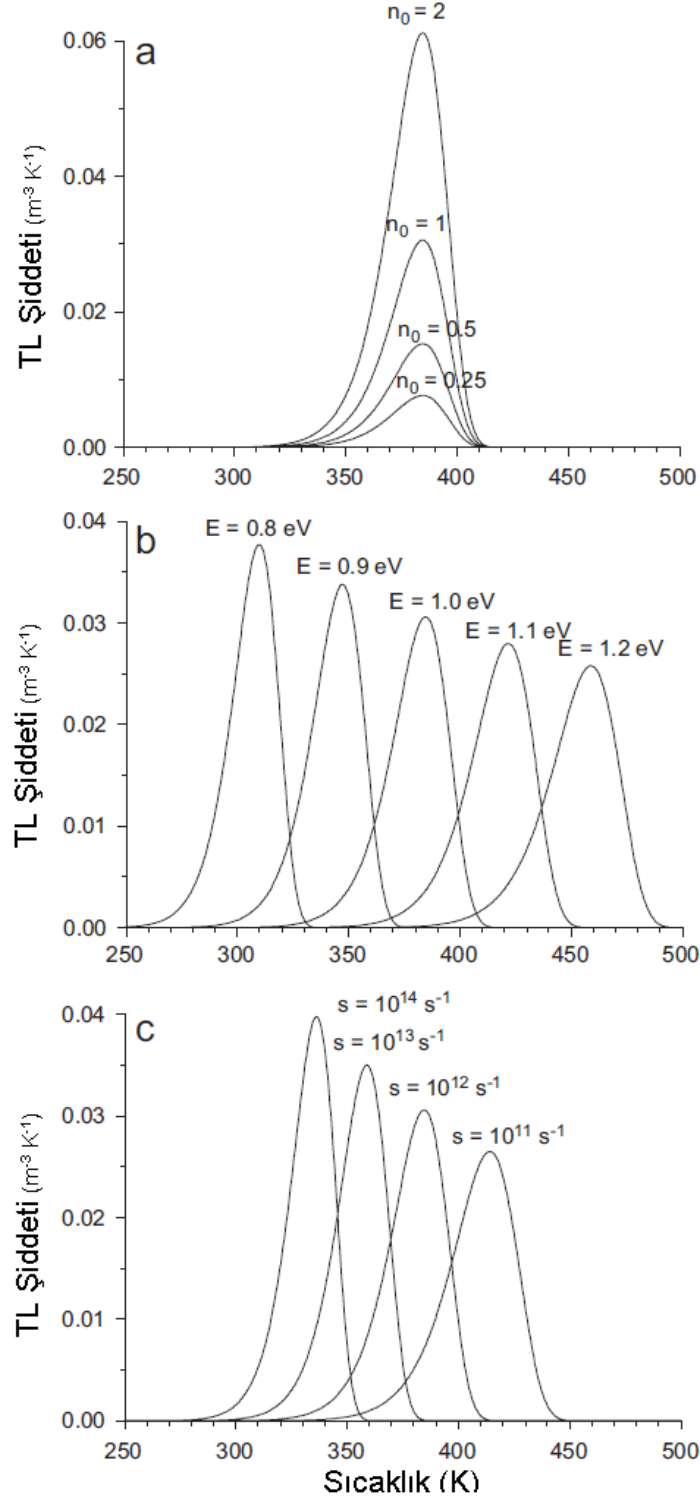


Şekil 3.3. Randall-Wilkins birinci derece TL denkleminde normalize edilmiş ışımaya tepesi: Asimetrik ya da geometrik faktör olarak tanımlanan $\mu = \omega/\delta$, 0.42 tipik değerine sahiptir.

Birinci derece kinetiğinin maksimum noktası aşağıdaki şekilde bulunur. İlk önce I_{TL} denkleminin logaritması alınır. Daha sonra türevi alınır ve $T=T_m$ 'de sifıra eşitlenir. Böylece S hesaplanmış olur.

$$S = \beta E/kT_m^2 (E_t/kT_m) \quad (3.17)$$

Eğer E ve β sabit fakat n değişiyorsa tepe yüksekliği de değişir. Fakat tepenin konumu değişmez. Bu birinc dereceden TL eğrilerinin önemli bir karakteristik özelliğidir. Birinci dereceden TL eğrilerinin bir diğer karakteristik özelliği de tepenin asimetrisidir. Düşük sıcaklık kısmı yüksek sıcaklık kısmından daha geniştir. Kararlı tuzak derinliği (E_t) arttıkça, tepe maksimumu daha yüksek sıcaklıklara doğru kayar. Tepenin yüksekliği azalır ve genişliği artar. Isıtma oranı (β) arttıkça tepe yüksek sıcaklıklara doğru kayar. Tepenin yüksekliği artar ve tepe alanı da β ile değişir. Randall-Wilkins birinci derece TL denkleminin özellikleri Şekil 3.4' de görülmektedir.



Şekil 3.4. Randall Wilkins birinci derece TL denkleminin özellikleri; (a) n_0 ışınlanmasından sonra, tuzaklanmış doz taşıyıcılarının yoğunlukla değişimi. (b) E , aktivasyon enerjisi ile değişimi (c) Parametre değerleri; $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$; $E = 1 \text{ eV}$; $s = 1 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$ kaçış frekansı ile değişimi. Bütün eğriler için ısıtma hızı 1 K s^{-1} 'dir. Belirlenen tepenin maksimum konumu n_0 'la değişmez [Boss, 2006].

3.3. İkinci Derece (Garlick-Gibson) Kinetik Teorisi

Garlick ve Gibson (1948) serbest yük taşıyıcıların tuzaklanma ya da TL merkezlerine birleşme durumunu göz önüne almıştır. Bu durumda tuzaktan kaçan e^- lar doğrudan yeniden birleşme merkezine gitmektedir. İkinci derece kinetik terimi tekrar tuzaklanmanın baskın olduğu durumu göstermek üzere kullanıldı [Garlick and Gibson, 1948]. Bu durumda

$$\frac{dn}{dt} = -n^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.18)$$

bağıntısı geçerlidir.

Bu bağıntı birinci dereceden kinetikte elde edilenden farklıdır. Orada tekrar birleşme olasılığı bir idi çünkü tekrar tuzaklanma mümkün değildi. $s'=s/N$ değeri pre-exponential faktör olarak adlandırılır ve birimi $\text{cm}^3\text{sn}^{-1}$ olan bir sabittir. $N(\text{cm}^{-3})$ ise tuzak yoğunluğudur. (3.18) eşitliğinin sabit sıcaklıkta türevi alınarak

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

$$\frac{1}{n_0} - \frac{1}{n} = -s' t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.19)$$

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

ve sonra $I(t)$ yoğunluğu

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = \frac{n_0^2 s' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{[1 + s' t n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)]^2} \quad (3.20)$$

bulunur.

Yada $dt=dT/\beta$ olduğu dikkate alınarak

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

$$\frac{1}{n_0} - \frac{1}{n} = -\frac{s'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT' \quad (3.21)$$

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

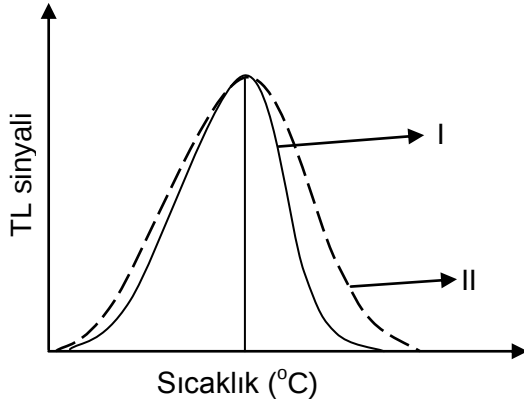
bulunur.

Burada; $I(T)$ yoğunluğu

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^2 s^1 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = \frac{n_0^2 s^1 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^2} \quad (3.22)$$

olur.

Kinetik derecenin ışıma eğrisi şekline etkisi şekil 3.5' de gösterilmiştir. Tek cins tuzak için iki ışıma eğrisi (farklı iki derece için) gösterilmektedir.

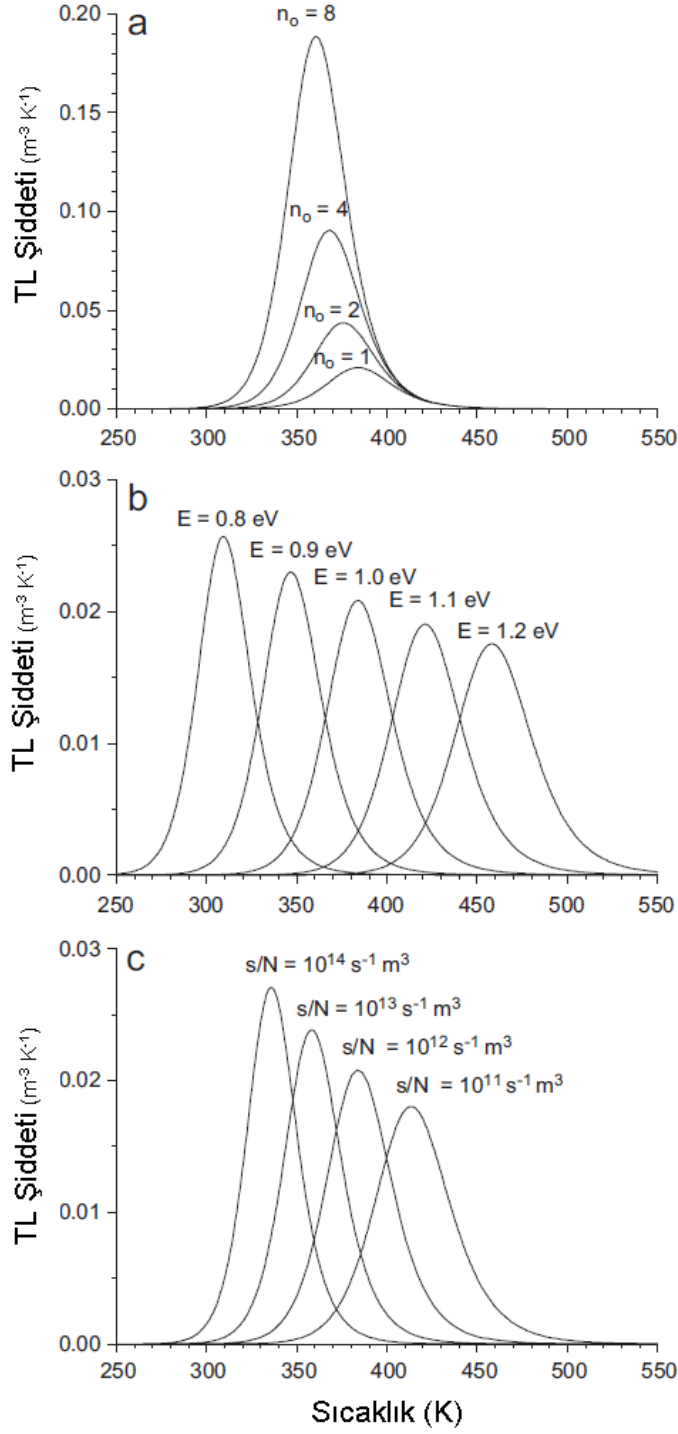


Şekil 3.5. Birinci derece kinetik (I) ve ikinci derece kinetik (II) için ışıma eğrileri görülmektedir.

$$\begin{aligned} \ln(I) &= \ln(n_0^2 s') - \frac{E}{kT} - 2 \ln\left[1 + \frac{s/n_0}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right] \\ \left[d\left(\frac{\ln I}{dT}\right)\right]_{T=T_M} &= \frac{E}{kT} - 2 \frac{\frac{s' n_0}{\beta} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right)}{1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'} = 0 \\ \frac{\beta e}{2kT_M^2} \left[1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right] &= s' n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \end{aligned} \quad (3.23)$$

faktörü kadar farklıdır.

İkinci dereceden kinetikte T_M %1 artmaktadır. Asıl fark ışığın T_M den daha yüksek sıcaklıklarda üretilmesi durumunda ortaya çıkmaktadır çünkü tuzaklanma elektron çıkışını geciktirmektedir. Dahası sabit bir E değerinde β artarken yada s' azalırken T_M artar. Sabit β da ise T_M sonuçları E ile doğru orantılıdır.



Şekil 3.6. Garlick-Gibson İkinci derece TL denkleminin özellikleri; (a) n_0 ışınlamasından sonra, tuzaklanmış doz taşıyıcılarının yoğunlukla değişimi. (b) E aktivasyon enerjisi ile değişimi (c) Parametre değerleri: $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$; $E = 1 \text{ eV}$; $s = 1 \times 10^{12} \text{ s}^{-1} \text{m}^{-3}$ kaçış frekansı ile değişimi. Bütün eğriler için ısıtma hızı 1 Ks^{-1} 'dir. Belirlenen tepenin maksimum konumu n_0 'la değişmez [Boss, 2006].

3.4 Genel Derece Kinetik

Birinci veya ikinci derece şartları uygun olmadığı durumlarda, genel derece kinetiği kullanılmaktadır. Genel derece kinetiği deneye dayalı bir yöntem olup tuzakların enerji düzeyinin tek olduğu varsayımına dayanmaktadır [Furetta and Weng, 1998].

İlk olarak tek bir enerji düzeyinde bulunan n sayıda yük taşıyıcılarının n^b ile orantılı olduğunu varsayalım. Buradan, kaçış olasılığı

$$\left[\frac{dn}{dt} = -pn \text{ ve } p = s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \text{ denklemlerinden} \right]$$

$$\frac{dn}{dt} = -s^n n^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.24)$$

s^n üssel faktör olup Denklem 3.24 genel derece kinetik bağıntısı olarak bilinmektedir. Bu denklemde b , $1 < b < 2$ arasındadır. Üssel faktör s^n ise $cm^{3(b-1)}s^{-1}$ ile ifade edilmektedir. Görüldüğü gibi s^n nin boyutu b nin derecesi ile değişir. $b=2$ olduğunda s^n değeri s' ye iner. Denklem 3.24' den, TL yayınının bağıntısını bulabiliriz. Denklem 3.24 ü yeniden düzenleyecek olursak, şöyle bir sonuç elde ederiz:

$$\frac{dn}{n^b} = -s^n \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dt \quad (3.25)$$

$$\int_{n_0}^n n^b dn = -\int_0^n s^n \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT$$

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

$$n = n_0 \left[1 + s(b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad s = s^n n_0^{b-1} \quad (s=s^{-1}) \quad (3.26)$$

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

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = s^n n^b \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) = sn_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + s(b-1)t \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.27)$$

doğrusal ısıtma hızı $dT = \beta dt$ olduğu varsayılırsa, Denklem 3.27 elde edilir.

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

$$n^{1-b} = n_0^{1-b} \left[1 + \frac{s^n (b-1) n_0^{b-1}}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT' \right] \quad (3.28)$$

Her ikisinden kökün türevi alınır ve Denklem 3.28 deki ifade kullanılırsa;

$$n = n_0 \left[1 + \frac{s^n (b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT' \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.29)$$

n Denklem 3.29' daki gibi elde edilir. Bu bağıntıyı kullanarak $I(T)$ değeri

$$I(T) = sn_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dT' \right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.30)$$

elde edilir.

Bu denklemde $I(T)$ şiddetine iki faktörün katkıda bulunduğu gözlenecektir:

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

Böylece ışıma eğrisinin deneysel olarak gözlenen çan eğrisi şekli yeniden elde edilir. b derece kinetik için maksimum yayınım şartı Denklem 3.30' dan bulunabilir. Burada birinci derece kinetik için yapılanların benzeri bir yol kullanılır [Furetta and Weng, 1998].

$I(T)$ ' nin logaritması alınır;

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

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

buradan

$$\frac{kT_M^2 bs}{E\beta} \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) = 1 + \frac{s(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \quad (3.31)$$

elde edilir.

Sonuç olarak, Denklem 3.30, 3.23 nolu denklemde verilen ikinci derece şartını ($b=2$) kapsar. Denklem 3.30, $b=1$ şartı için geçerli değildir, $b \rightarrow 1$ olduğunda Denklem 3.32' e indirgenir. Denklem 3.25' in tamamen ampirik bir bağıntı olduğunu vurgulamak gerekir. Genel derece kinetiğe eşlik edecek fiziksel model yoktur.

$$\frac{\beta E}{kT_M} = s \exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \quad (3.32)$$

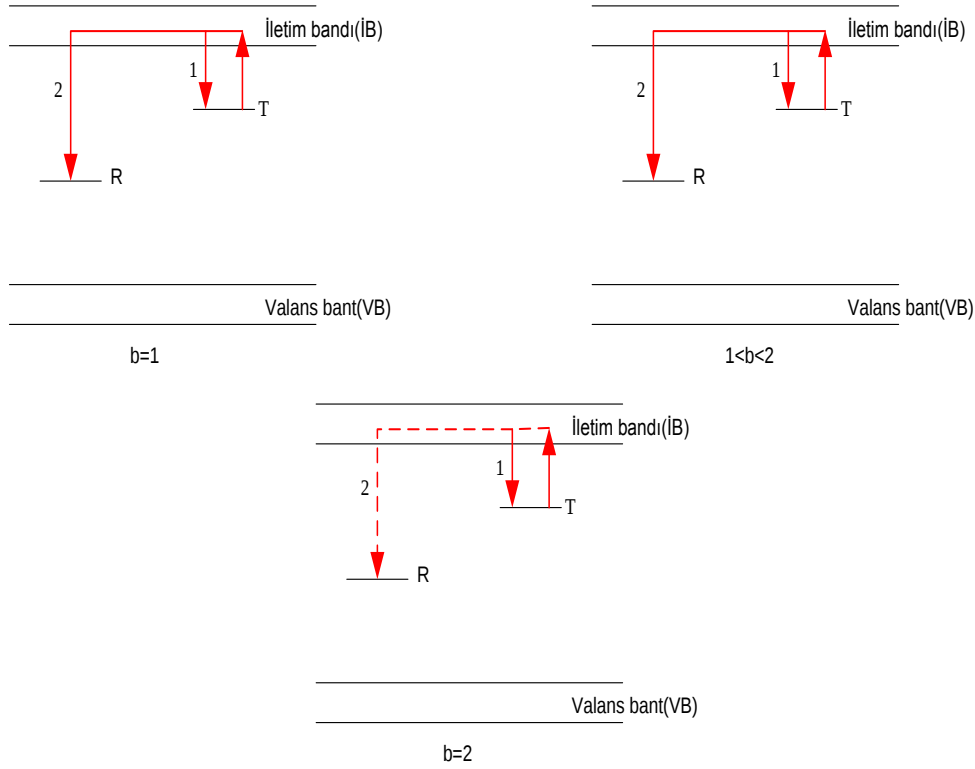
$$\frac{\beta E}{2kT_M^2} = \left[1 + \frac{s'n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T_M} \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT' \right] = s'n_0 \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right)$$

(Denklem 3.24) ve yukarıdaki 3.31 no'lu denklemlerden şu sonuçlar elde edilecektir:

Denklem 3.17' de n_0 başlangıç konsantrasyonu dahil edilmediğinden, birinci derece kinetiğe uyan pikin ışınlama dozunun fonksiyonu olarak değişmesi beklenmeyecektir.

Buna karşılık, $b \neq 1$ için n_0 konsantrasyonunda s' nin bağımlılığında olacak ve uyarım dozunda, -Denklem 3.24 ve 3.31' den $-T_M$ 'nin doza bağlı olması beklenecektir.

Değişik kinetik dereceler arasındaki farkı gösteren bir çizim Şekil 3.7' de görülmektedir.



Şekil 3.7 Değişik kinetik dereceler sırasında gerçekleşen farklı TL süreçler.

3.5. Yarı-Denge Durumu (QE)

TL şiddeti ve sıcaklık arasında bir bağlantı oluşturmak için oran denklemlerine bazı varsayımlar yerleştirilmelidir. Bu denklemlere yerleştirilen tüm varsayımların en önemlisi yarı dengedir. QE varsayımı

$$dn_c/dt \gg dn/dt, dm/dt \quad (3.33)$$

Bu varsayım basitçe, iletim bandındaki serbest elektron yoğunluğunun yarı kararlı olduğunu belirtir. Eğer bu varsayımı, başlangıçtaki serbest yük yoğunluğunun çok az olduğu varsayımıyla ($n_c=0$) birleştirirsek ısısal uyarılma sırasında iletim bandında hiçbir zaman elektron birikmez. Bu eşitsizliği uygulayarak,

$$-dn/dt = -dm/dt = I_{TL} \quad (3.34)$$

bağıntısı kullanılarak n hesaplanır ve yerine yazılarak aşağıdaki denklemler bulunur:

$$I = \frac{ns \exp\{-E_t / kT\} m \sigma_{mn}}{(N - n) \sigma_n + m \sigma_{mn}} \quad (3.35)$$

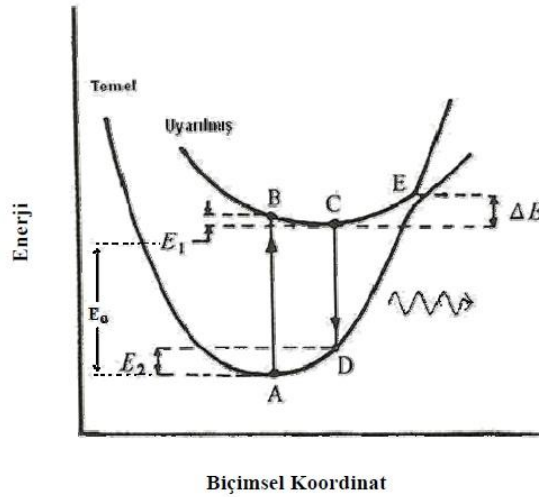
$$I = ns \exp \left\{ -E_t / kT \right\} \left[1 - \frac{(N-n)\sigma_n}{(N-n)\sigma_n + m\sigma_{mn}} \right] \quad (3.36)$$

(3.35) ve (3.36) denklemleri TL yayınımları için genel bir tuzaklı bağıntı (GDT) olarak adlandırılır [Levy,1984]. (3.34) denklemindeki kare parantez içerisindeki ifade ısısal olarak yeniden tuzaklanmama olasılığıdır.

3.6. Mott-Seitz Gösterimi

Mott-Seitz mekanizmasında uyarılmış durum ve temel durum arasındaki elektronik geçişler biçimsel koordinat diyagramıyla biçimsel koordinat kusuru yakınındaki atomların yer değiştirmesidir ve dengede temel durumdaki elektron minimum enerjidedir (A noktası). Radyasyondan enerji soğurulması uyarılmış durum B' ye geçişle sonuçlanır. Şekil 3.8' de Mott-Seitz mekanizması görülmektedir [McKeever, 1985].

Uyarılmış durumda minimum enerji için biçimsel koordinat temel durumdakinden farklıdır. Bunun için elektron yeni minimum enerjiye (C noktasına) ulaşmak için E_1 kadarlık enerji kaybeder. CD geçişi lüminesans yayılımı ile sonuçlanır. Biçimsel koordinat yeniden düzenlenir ve elektronun orijinal konumuna (A noktasına) geri dönmesi sırasında E kadarlık enerji kaybeder. Lüminesans enerjisi CD, soğurulan enerji AB'den $E_1 + E_2$ kadar azdır. Böylece yayınım bandı, soğurma bantlarının uzun dalga boylu kısmında bulunur.



Şekil 3.8. Mott-Seitz mekanizması.

Eğer elektron uyarılmış durumda ΔE kadar enerji soğurursa C'den E'ye geçiş oluşur. Elektron temel duruma ışınlamadan geri döner fakat ısı yayınımları elektronun A noktasındaki

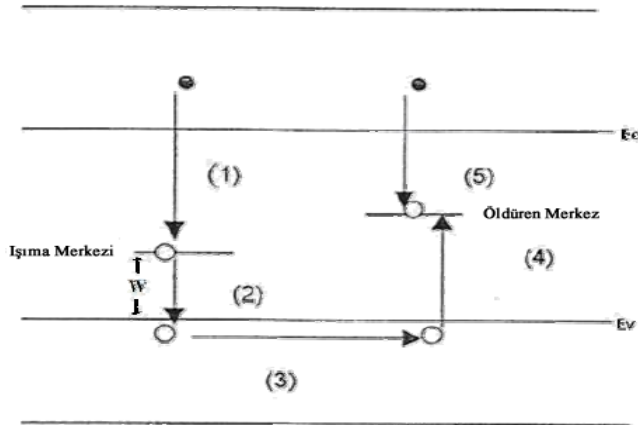
minimum enerjiye geri dönmesini sağlar. Böylece ışımasız geçiş olasılığı sıcaklığa, $\exp(-\Delta E/kT)$ bağıntısı ile bağlıdır. Fakat ışımalı geçiş sıcaklıktan bağımsızdır. Bir materyalin ışıma ve enerji soğurmayı takiben ışıma gösterip göstermemesi ışımalı ve ışımasız geçiş olasılıklarına bağlıdır. Genellikle bir fosforun ışıma verimi η , ışımalı geçiş olasılığı P_{nr} 'ye

$$\eta = P_r / P_r + P_{nr} = 1/[1 + c \exp(-\Delta E / kT)] \quad (3.37)$$

bağıntısıyla bağlıdır.

3.7. Schön-Klasens Gösterimi

Schön-Klasens mekanizması enerji band modeline dayanır. Yeniden birleşme (rekombinasyon), yük taşıyıcılarının, kristal örgü içerisinde ışıma oluşturmak için ışıma merkezlerindeki deşiklerle birleşirler. Yeterince yüksek sıcaklıklarda elektronlar direkt olarak valans bandından ışıma merkezlerine geçerler (deşikler ısısal olarak serbest kalmış olabilirler) ve serbest deşikler ilerler ve diğer merkezlerde (Öldüren merkez olarak adlandırılır) yeniden tuzaklanırlar. Öldüren merkezin yoğunluğundaki ve sıcaklıktaki artış ışımasız geçiş olasılığını artırır. Mekanizma Şekil 3.9 'da gösterilmiştir [McKeever, 1985].



Şekil 3.9. Schön-Klasens modeli.

Elektronların ışıma merkezlerinde, yeniden birleşme ile verim

$$\eta = 1/1 + c \exp(-W/kT) \quad (3.38)$$

şeklinde yazılabilir.

İşıma merkezleri düşük sıcaklıklarda yeniden birleşme merkezi gibi davranırken yüksek sıcaklıklarda deşik tuzağı gibi davranır. Bir yük taşıyıcısının tuzaktan kurtulma olasılığı

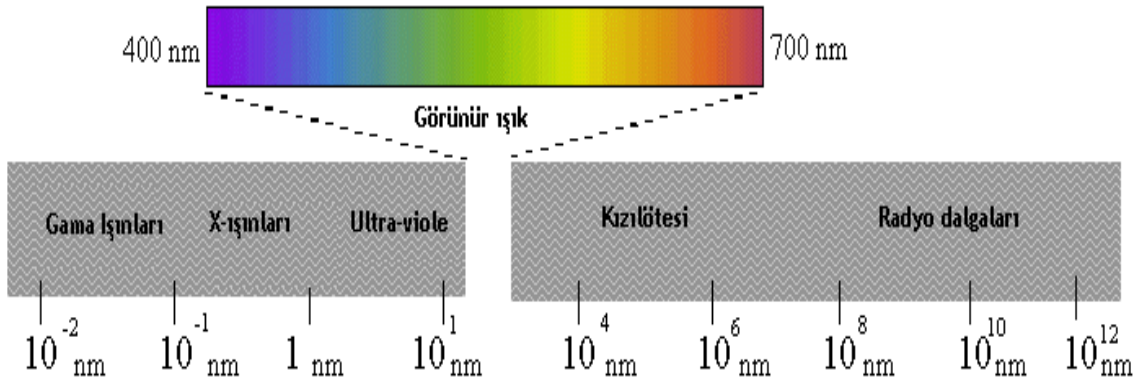
$\exp(-E/kT)$ ile orantılıdır. Burada E tuzak derinliği yani tuzak ile delokalize bant arasındaki enerji farkıdır. Verilen bir sıcaklık için E küçük ise merkez tuzak gibi davranır. Bundan dolayı yeniden birleşme merkezleri yasak aralığının ortasına doğru, tuzaklar ise yasak aralığının kenarlarına doğru yerleşmişlerdir.

Tuzak ve yeniden birleşme merkezleri arasındaki fark tuzaklanma ve yeniden birleşme olasılıklarına dayanır. Verilen bir sıcaklıkta bu iki olasılığın eşit olduğu kusur seviyeleri vardır. D derinliğindeki böyle bir seviye tuzak ve yeniden birleşme merkezleri arasında bir sınır seviyesidir. Eğer $E < D$ ise merkez tuzak gibi, $E > D$ ise merkez yeniden birleşme merkezi gibi davranır.

Bir öldüren merkezin yüksek sıcaklıklarda yeniden birleşme merkezi gibi davranabilmesi için enerji derinliğinin, ışıma merkezinin valans bantından olan derinliğinden (W) büyük olması gerekir.

4. ELEKTROMANYETİK SPEKTRUM

Elektromanyetik spektrum; radyodalgaları, mikrodalga, kızılötesi ışınım, görünür ışık, ultraviyole radyasyon, X-ışınları ve gama ışınları gibi farklı enerji formlarından oluşmaktadır (Şekil 4.1). Spektrumu oluşturan elektromanyetik dalgalar birbirlerine benzemekle beraber madde ile etkileşimleri birbirlerinden oldukça farklıdır. Spektrumun en kısa dalga boyuna sahip bölümünü oluşturan X-ışınları ve gama ışınları, daha yüksek enerjilidir.



Şekil 4.1 Elektromanyetik Spektrum

Elektromanyetik radyasyonun büyük bir kısmı UV radyasyon, görünür ışık ve kızılötesi dalgalı boylarında yayınlanmaktadır. Güneşten kaynaklanan elektromanyetik radyasyonun büyük bir kısmı yeryüzüne ulaşmadan atmosfer tarafından filtrelenebilir. Elektromanyetik radyasyonun yaklaşık %8' i UV radyasyonu oluştururken, büyük bir kısmı kızılötesi ve görünür ışıktır.

Spektral bölge	Dalga boyu (nm)	Enerji (%)
Kızılötesi	>700	49.4
Görünür ışık	400-700	42.3
UV radyasyon	<400	8.3

4.1 Ultraviyole Radyasyon (UV)

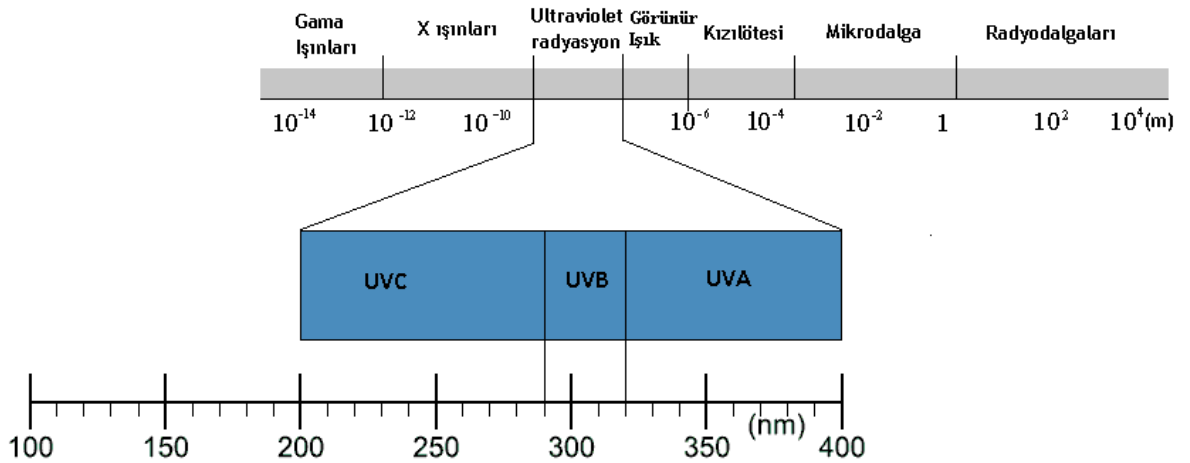
Ultraviyole radyasyon, elektromanyetik spektrumun görünür ışıktan daha kısa dalga boylu olan belli bir parçasını oluşturur. Genel olarak 3 bölümde incelenir. Bunlar sırası ile UV-A, UV-B ve UV-C bantlarıdır (Şekil 4.2)

UV-A: Dalga boyu 315–400 nm (nanometre) arasında olan ultraviyole radyasyondur. UV-A stratosfer tabakasını geçerek yere kadar ulaşır. Derinin daha alt kısımlarına kadar etki yaparak, öncelikle cildin koyulaşmasına neden olmaktadır. Ayrıca deri kanserinin gelişimini de artırmaktadır.

UV-B: Dalga boyu 280–315 nm arasında olan ultraviyole radyasyondur.

Atmosferdeki stratosferik ozonun konsantrasyonuna bağlı olarak değişik oranlarda yer yüzeyine ulaşır. Uzun süre maruz kalındığında tüm canlılar için zararlı etkiye sahiptir.

UV-C: Dalga boyu 280 nm'den daha az olan ultraviyole radyasyondur. UV radyasyonun en tehlikeli kısmı olup, tamamı atmosferdeki ozon ve oksijen tarafından emilir.



Şekil 4.2 Ultraviyole radyasyonun sınıflandırması.

Güneşli bir yaz gününde, yeryüzüne ulaşan UV radyasyonun %96'sı UVA ve %4' ü UVB radyasyonundan oluşmaktadır. UVB radyasyonu çok düşük oranda olması rağmen biyolojik hasar açısından UVA radyasyonuna göre daha etkilidir. Yeryüzüne ulaşan UV radyasyonun şiddeti, güneşten gelen enerjiye ve atmosferin geçirgenliğine bağlıdır. Atmosferin (yer yüzeyinden itibaren) 10. km' sinden başlayarak 50. km' sine kadar olan katmanı "Stratosferik ozon" tabakası olarak tanımlanır. 1985 yılında Farman ve arkadaşları tarafından yapılan bir çalışma, Antarktika üzerindeki ozon tabakasının %50' ye yakın incelindiğini göstermiştir. Ozon

tabakasındaki incelme yeryüzüne ulaşan UV radyasyon düzeyinin artmasına yol açmaktadır [Kerr and McElroy, 1993].

Bu tabakanın incelmesi güneşten gelen UV radyasyonun miktarında, biyolojik ve kimyasal süreçleri olumsuz olarak etkileyecek artışlar meydana getirmektedir [Harmanşah, 2006].

1990' lı yıllarda ozon tabakasındaki incelmenin izlenmesine yönelik çeşitli UV izleme merkezleri ve sistemleri geliştirilmiştir. Son yıllarda yapılan çalışmalar, Kuzey yarımkürede de ozon tabakasının önemli miktarlarda incelendiğini göstermiştir. 1992 yılında Atmosferik Çevre Merkezi (Kanada) tarafından UV radyasyon miktarı UV indeks olarak açıklanmaya başlanmıştır. Böylece güneşin zararlı etkilerine karşı kamuoyu bilinçlendirilmeye başlamıştır. 1994 yılında Çevre Koruma Ajansı ve Ulusal Meteoroloji Merkezi (ABD) tarafından günlük UV indeks değerleri belirlenerek 58 büyük yerleşim merkezini kapsayacak bir UV radyasyon izleme ağı kurulmuştur. Ülkemizde Meteoroloji Genel Müdürlüğü 1997 yılından itibaren iki izleme istasyonu (Ankara, Antalya) UV-B Radyasyon ölçümüne başlamıştır.

4.2 UV Radyasyonun Etkileri

Yeryüzüne ulaşan UV radyasyonunun düzeyini etkileyen faktörler

4.2.1 Güneşin geliş açısı

Güneşin geliş açısı: Güneş ışınları dik açıyla geldiğinde radyasyon şiddeti artar, eğik açıyla geldiğinde ise radyasyon şiddeti azalar bu açıdan güneşin geliş açısı önemlidir.

4.2.2 Stratosferdeki Ozon miktarı(kalınlığı)

Stratosferdeki ozon tabakasının incelmesiyle yeryüzüne gelen UV radyasyon miktarı artar. Bu durum biyolojik ve kimyasal süreçler olumsuz etkilenir.

4.2.3 Bulut miktarı

Bulut örtüsü: Gökyüzündeki bulutluluk miktarı arttıkça güneşten kaynaklanan UV radyasyon şiddeti de azalmaktadır. Meteorolojik olarak, havanın bulutsuz olduğu güneşli bir günde UV radyasyon şiddetinin en yüksek seviyede olduğu kabul edilir.

4.2.4 Gün içindeki zamanlar

Gün içindeki zamanlar: Güneşin açısındaki günlük değişiklikler, atmosfer içerisinde geçen UV radyasyon miktarını etkiler. Güneş, en yüksek noktasında olduğunda yani gün ortasında yeryüzüne ulaşan UV radyasyon miktarı en yüksek düzeye ulaşır. Örneğin, yaz günlerinde toplam UV radyasyonun %75' i sabah 09 ile 15 arasında alınmaktadır.

4.2.5 Çevresel şartlar

Mevsim: Güneş ışınları, kış aylarında daha eğik bir açıyla yeryüzüne ulaşır. Dolayısıyla, bu mevsimde UV ışınları dünyaya ulaşmak için atmosfer içersinde daha uzun bir yol alır ve radyasyonun şiddeti azalır.

Yansımaya: UV radyasyon yer yüzeyindeki şartlara bağlı olarak yansır ve saçılır. Örneğin, kar örtüsü UV radyasyonu %80 oranında; kumlu yüzeyler ise %15 oranında yansıtır.

4.2.6 Coğrafi konum

Enlem: Güneş ışınları, ekvatora ve yakınındaki bölgelere dünyanın diğer yerlerine göre daha dik açıyla gelirler. Bu nedenle UV radyasyonu ekvatora yakın enlemlerde daha büyüktür.

Yükseklik: UV radyasyon şiddeti deniz seviyesinden yükseldikçe, her 1 km'de yaklaşık olarak %10 ila 12 arasında artmaktadır.

4.3 UVB Radyasyonun İnsan Sağlığı Üzerine Etkileri

UVB radyasyonun insan sağlığı üzerindeki etkileri aşağıdaki gibi birkaç başlık altında toplanabilir.

4.3.1 Dermatolojik Etkiler

Dermatolojik etkiler akut ve kronik olmak üzere ikiye ayrılır. Akut olarak UV-B' ye maruz kalma güneş yanıklarına; kronik olarak UV-B ye maruz kalma ise cildin elastikliğinin kaybolması ve derinin yaşlanmasının hızlanmasına neden olur. Bazı durumlarda ise ışığa karşı şiddetli alerji olayları kaydedilmiştir.

4.3.2 Bağışıklık sistemi

UV radyasyonun, deri pigmentasyonundan bağımsız olan ve daha sık hasta olma, şiddetli enfeksiyon gibi, insanların ve hayvanların bağışıklık sistemlerine zarar verdiği bilinmektedir. Güneş ışınlarına maruz kalma süresinin artması kandaki beyaz kan hücrelerinin hastalıkla savaşma fonksiyonlarını azaltmaktadır. Diğer taraftan, UV radyasyon bağışıklık sisteminin yanıtını kontrol edebildiği bilinmektedir.

4.3.3 Kanser

Birleşmiş Milletler Çevre Programı "Ozonun Tabakasındaki Azalmanın Çevre Üzerine Etkileri" raporunun "İnsan Sağlığı" bölümünde (UNEP), Longstreth ve arkadaşları (1991) UV-B radyasyon ve cilt kanserleri arasındaki temel ilişkiyi ortaya çıkaran önemli bulgular elde etmişlerdir. UV-B' nin en ciddi etkileri cilt kanseri riskini arttırmasıdır. Dudak, tükürük bezleri, göz

içi kanserleri gibi, diğer kanserlerdeki artış riski ise bilinmemektedir. Kanser ile UV radyasyonu arasındaki ilişki detayları ile Uluslararası Kanser Araştırmaları Ajansının yayınlarında tartışılmış ve cilt kanserlerinin oluşumu ile ilişkili olduğu kesin olarak belirlenmiştir [Longstreth et al., 1991].

Townsville’ de (Avustralya) 8 ile 16 yaşları arasındaki öğrenim gören çocukların okulda geçirdikleri süre içerisinde maruz kaldıkları UV radyasyon dozunun cilt kanserlerinin gelişimini artırdığı gözlemlenmiştir.

4.3.4 Göz sağlığına etkisi

UV Radyasyonu katarakt, ve olası noktasal dejenerasyon riskini arttırmaktadır. Dünya Sağlık Örgütü’nün hazırladığı raporlarda, atmosferik ozonun % 10 azalması halinde katarakt riskinin her yıl için % 5 artacağı hesaplanmaktadır. Katarakt, UV-B radyasyona maruz kalma süresine bağlı olarak yavaş gelişen ve daha erken yaşlarda karşılaşılan ciddi sağlık problemlerinden birisidir.

Bol güneşli ve sıcak iklime sahip yerleşim bölgelerinde yaşayan insanlarda UV-B radyasyonun artışına bağlı olarak daha yüksek oranda göz hastalıkları ile karşılaştıkları ve diğer bölgelerde yaşayanlara göre 10-15 yıl daha erken katarakt oldukları görülmüştür.

4.3.5 Çevre Üzerine Etkileri

UVB radyasyonun çevre üzerine etkilerini incelendiğinde özellikle deniz ekosistemi üzerinde planktonlara zarar verdiği görülmüştür. Planktonların; ekosistemimizde gıda zincirinin ilk halkası olmaları ve karbondioksitin yarıdan fazlasını tüketerek, yeryüzünün iklim dengesini sağlamaları gibi çok önemli bir işlevi bulunmaktadır. UV-B radyasyonunun, deniz ekosistemine zarar vererek planktonların; bitkilerin fotosentez hızını yavaşlatarak da, topraktaki mikro organizmaların yok olmasına neden olduğu bilinmektedir.

Ayrıca UVB radyasyonunun bitki ve mikroorganizmalar üzerindeki etkileri görülmüştür. Bitkilerin UV radyasyonun artışına karşı duyarlı olduğu bilinmektedir. Yapılan araştırmalar bazı bitki türlerinin diğerlerine göre daha hassas olduğunu göstermiştir. Soya fasulyesi üzerine yapılan bir çalışma, daha fazla UV radyasyona maruz kalanların lif boyutlarının küçük olduğunu ve daha az büyüdüklerini ortaya koymuştur. Yeryüzüne ulaşan UV radyasyon miktarının artması, göller ve denizlerde yüzeye yakın yaşayan birçok yosun türünü de olumsuz yönde etkilemektedir. Bununla birlikte, ormanlarda ve meralarda doğal yetişen bitki örtüsü de güneşin zararlı ışınlarından etkilenmektedir. Ormanların ve bitki örtüsünün hızla yok olmasını engellemek için bu alanlardaki UV radyasyona duyarlı bitki ve ağaçlar yerine, daha az duyarlı ağaç ve bitki türleri ekilmesine yönelik yeni çalışmalar yapılmaktadır. UV-B radyasyonun bazı bitkilerin çiçeklenme zamanını değiştirmektedir. Diğer taraftan bitkilerde ve

mikroorganizmalardaki genlerin çoğu UV-B tarafından kontrol edilmekte ve bu radyasyondaki değişimler genetik yapıyı etkilemektedir.

UVB radyasyonun ayrıca iklim üzerinde de etkileri bulunmuştur.

4.4 UV Radyasyonu Ölçme Teknikleri

Son 10 yıl içinde güneşten kaynaklanan UV radyasyonun ölçülmesine yönelik çok sayıda sistem ve cihaz geliştirilmiştir. Bu cihazlarla birlikte kullanılmak üzere ticari ve araştırma amaçlı yeni UV detektörler üretilmiştir.

UV-B ölçümünün 3 işlevi bulunmaktadır. Bunlar:

- 1- Işık kaynaklarının etkin UV-B değerini ve kararlılığını izlemek,
- 2- UV-B radyasyonun şiddetini veya dozunu bulmak
- 3- Uzun süreli gün ışığının UV-B eğilimini izlemektir.

Biyolojik etkiler genellikle birikmiş doza duyarlıdır. Bunun için ölçme cihazı, ışımadaki değişimlere bağlı olarak yeteri kadar hızlı örnekleme almalı veya sürekli ölçüm yapmalıdır. Ölçme cihazlarındaki diğer önemli faktörde kararlılıktır. Birçok gözlem veya UV radyasyonun biyolojik etkisi uzun süreli ölçümlere dayanmaktadır. Etki ve UV radyasyona maruz kalma arasındaki belirgin ilişkiyi tanımlamak için kısa ve uzun süreli ölçümler alınmalıdır.

Karşılaştırma çalışmalarını birimden birime gerçekleştirebilmek için spektral kalibrasyon duyarlılığı da sağlanmalıdır.

UV radyasyonun algılanmasında üç farklı tip ölçme aygıtı kullanılmaktadır. Bunlar radyometre, spektoradyometre ve dozimetrelerdir. Spektoradyometreler gelen ışığın spektral dağılımını ölçmek için geliştirilmiş cihazlardır. Bu cihazların üstünlüklerinden biride spektrumun biyolojik etkinliğini hesaplayabilmesidir. Bununla birlikte güneşten kaynaklanan radyasyonun biyolojik etkinliğinin izlemesi için kullanıldığında, uzun süreli izleme, tarama frekansı ve parçaların mekanik ömürleri gibi etkiler dolayısıyla ölçümde hatalar görülecektir. Bu durum spektoradyometre ile alınan ölçümlerin hassaslığını sınırlandıracaktır. Radyometreler geniş bir spektral aralıkta gelen tüm radyant gücü ölçerken spektoradyometreler ise geniş spektral aralıktaki radyant güç dağılımını ölçmektedir.

Geniş bantlı ve spektral çizgi cihazları ise, fosfor tabanlı Robertson metre (RB metre) ve interferans filtre tabanlı cihazlar olmak üzere ikiye ayrılır. Her iki tip cihazın yanıt hızı yüksek ve ekonomiktir. Bu tip cihazlar seçili bir spektrumda tek bir bant şeklini veya çok dar aralıklı bant

dizilerini ölçebilirler. Çoğunlukla RB metre tip cihazlar, Eritem Aksiyon Spektrumunu izlemek için tasarlanmıştır [Harmanşah, 2006].

Farklı yerlerden ve kaynaklardan elde edilen verilerin karşılaştırılmasında ve yorumlanmasında oluşan sorunların yanı sıra, küresel iklim sistemi için alınan direk solar çevresel UV-B ölçümlerinin yetersiz olması ile aşağıda belirtilen nedenlerden dolayı UV-B eğilimin değerlendirilmesinde problemler görülmektedir. Bunlar;

a) Ölçüm cihazlarının kurulumundaki problemler: modern ve güvenilir spektral veya geniş-bant cihazları değişik biyolojik ve kimyasal hedeflere (farklı dalgaboyu bağımlılıkları ve duyarlılıkları dolayısıyla) ayrı duyarlılık göstermeleri

b) Saha cihazlarının, çalışma süresine uygun olarak hassas kalibrasyon zorlukları

c) Küresel izleme ağı sistemlerin kurulumunda, çevresel kirlilikler dolayısıyla karşılaşılan sınırlamalardır.

1974 -1985 yıllarında, Scotto ve arkadaşları Amerika Birleşik Devletlerindeki 8 istasyondan alınan UV datalarının bu periyotta UV-B de yıllık %0.5 ile %1.1' lik bir azalmayı gösterdiğini sunmuşlardır. Oysa bu sonuçlar teorik tahminlere uymamaktadır. Smith ve Ryan bu uyumsuzluğun cihazların uzun-sürelili kalibrasyon problemlerinden veya şehirler ve buralara yakın bölgelerdeki çevre kirliliğinden kaynaklandığını ortaya koymuştur [Harmanşah, 2006].

Sonuç olarak, uluslar arası ve ulusal bazlı UV radyasyonun izlenmesi 4 temel nedene dayanmaktadır. Bunlar:

- 1- UV düzeyleri ve değişimler hakkında kamuoyunun bilgilendirilmesi
- 2- Temel iklimbilimi
- 3- UV radyasyonun insan, hayvan, bitki üzerine olan olumsuz etkilerinin araştırılması
- 4- Uzun süreli değişimlerin saptanmasıdır.

UV radyasyonun nicel analizinde toprak seviyesinde yapılan ölçümlere ihtiyaç duyulmaktadır. Yapılan ölçümlerin kalitesini artırmak için hem deneysel ölçümlerin yapıldığı yer sayısı artırılmalı hem de farklı ölçüm modelleri kullanılmalıdır.

Radyometre ve spektoradyometreler gelen radyasyonu elektriksel sinyale dönüştürecek elektro-optik detektörle direk okuma yapan cihazlardır. Radyometre ve spektoradyometreler gerekli kalibrasyonları ve dönüşümleri yapılarak detektörden gelen sinyalin zamana göre integralini alan dozimetreler gibi kullanılabilirler.

Diğer taraftan, dozimetreler doza (ışınlanmaya maruz kalma) doğrudan yanıt veren cihazlardır. Bunlar optiksel olarak modifiye edildikten sonra kalibrasyonla spektruma uygun yanıt verebilirler.

UV-B radyasyonun izlenmesinde kullanılacak uygun detektörün seçiminde; veri saklama özelliği, kolay kullanım, taşınabilirlik, elektriksel güç tüketimi, fiziksel boyutlar ve doğruluğu gibi faktörler önemlidir. Cihaz seçimini; spektral yanıt, doğrusallık, zaman/frekans yanıtı, kararlılık (özellikle uzun süreli ölçümlerde), çevresel çalışma şartları, kolay kullanılabilirlik ve ekonomiklik gibi parametreler belirlemektedir.

Son 10 yılda, güneşten kaynaklanan UV-B radyasyon ölçümlerinin kalitesi ve sayısı artmıştır. Bu süreçte, geliştirilen yeni ticari cihazların ve araştırma amaçlı UV detektörlerinin kalibrasyon prosedürleri iyileştirilmiş ve uluslararası karşılaştırma kriterleri geliştirilmiştir [Harmanşah, 2006].

Uydu aracılığıyla elde edilen veriler ve toprak düzeyinden alınan veriler arasındaki uyumsuzluk atmosferik kirlilik ve çevre şartlarından kaynaklanmaktadır. Bundan dolayı, değişik yöntemlerle ve cihazlarla toprak seviyesinde gerçekleştirilecek doğrudan UV-B ölçümleri, bölgesel ve uluslararası verilerin analizine önemli katkılar sağlayacaktır.

TL dozimetreler, spektoradyometreler ve radyometreler ile kıyaslanamayacak kadar büyük boyuttadırlar. Çalışmamız sırasında kullanılan $Al_2O_3:C$, $CaSO_4:Dy$ ve $CaSO_4:Tm$ gibi dozimetreler 1 mm kalınlığında ve 5 mm çapında tabletler şeklindedir. Ayrıca, spektoradyometre ve radyometre cihazlarının fiziksel yerleşimleri ve elektriksel kurulumları sırasındaki karşılaşılan ve sistemin çalışmasını olumsuz yönde etkileyen çevresel sorunlar dozimetri kullanımıyla ortadan kaldırılacaktır.

Dozimetri yöntemlerinin geleceği, özellikle güneşten kaynaklanan UV radyasyonla ilişkili, ölçüm cihazlarının ucuz ve güvenilir çapraz kalibrasyon metotlarını kapsayan kalite güvence prosedürlerinin yerleştirilmesi üzerine yoğunlaşmıştır [Driscoll, 1996].

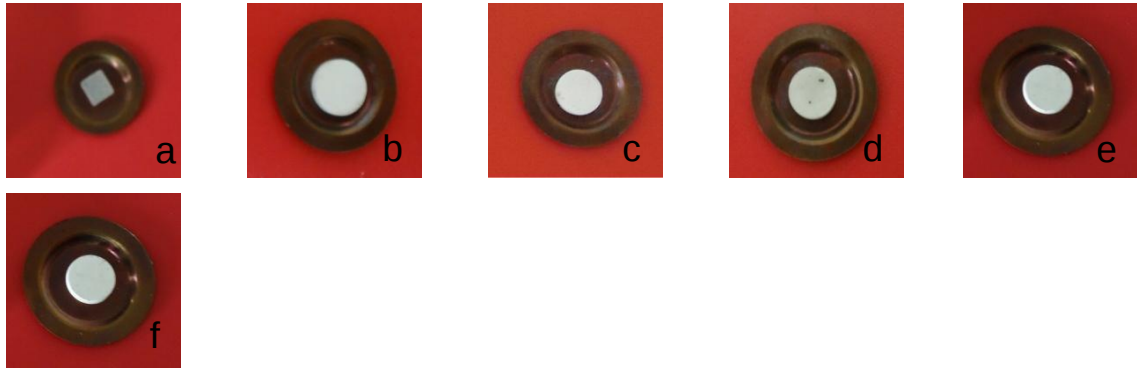
TL metodu ve özellikle son yıllarda OSL metodu, diğer UV ölçme yöntemleri ile karşılaştırıldığında, kolay, ucuz ve güvenilir alternatif bir yöntem olarak kullanılmaktadır.

5. MATERYAL ve METOT

Bu tez çalışmasında amaç, UVB dozimetre olarak uygun bir dozimetrenin belirlenmesidir. Bu amaçla öncelikle bazıları ticari olarak piyasa mevcut termolüminesans dozimetreler (TLD) incelenmiştir. Ayrıca Romanya'da Dr. Popovici tarafından üretilmiş olan YNbO_4 fosforunda UV dozimetre olarak kullanılabilirliğine yönelik çalışmalar yapılmıştır. Bu malzemenin çeşitli yönetmelerle termolüminesans kinetik parametreleri (b, E, s) belirlenmiştir.

5.1. Çalışmada Kullanılanın Termolüminesans Dozimetreler ve Özellikleri

Çalışmada ilk olarak ticari olarak üretilmiş $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm}$, Mn, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$, Na, $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$, LiF:Mg,Cu,P , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$, $\text{CaBO}_4\text{:Dy}$ termolüminesans dozimetrelerin ve sonrasında da YNbO_4 fosforunu UV dozimetre olarak kullanılabilirliği incelenmiştir (Şekil 5.1).



Şekil 5.1. Çalışmada kullanılan ticari termolüminesans dozimetrelerin resimleri **a)** LiF:Mg,Cu,P **b)** $\text{CaB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$ **c)** $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ **d)** $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$ **e)** $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy, Na}$ **f)** $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm, Mn}$.

Ticari dozimetrelerin incelenmesinin ardından çalışma'da Dr. Popovici ve çalışma arkadaşları tarafından sentezlenmiş itriyum niyobat fosforu kullanılmıştır. Bu fosforun sentezi Y_2O_3 (%99,9 Alfa Aesor) ve NbO_5 (%99,9 Optipur, Merck) ile katıhal reaksiyon yöntemi kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Li_2SO_4 (%99,9) ve/veya Na_2SO_4 (%99,9) flux madde (karıştırıcı, eriyik) olarak kullanılmıştır. Karışım aseton ortamda homojen hale getirilmiştir ve 70°C de kurutulmuştur. Fosfor örneklerine 1200°C de dört saat bekletme ve yavaş yavaş oda sıcaklığına soğutulma şeklinde bir tavlama işlemi uygulanmıştır. Ardından örnekler su ile yıkanıp kurutulmuş ve elekten geçirilmiştir [Popovici et al., 2008]

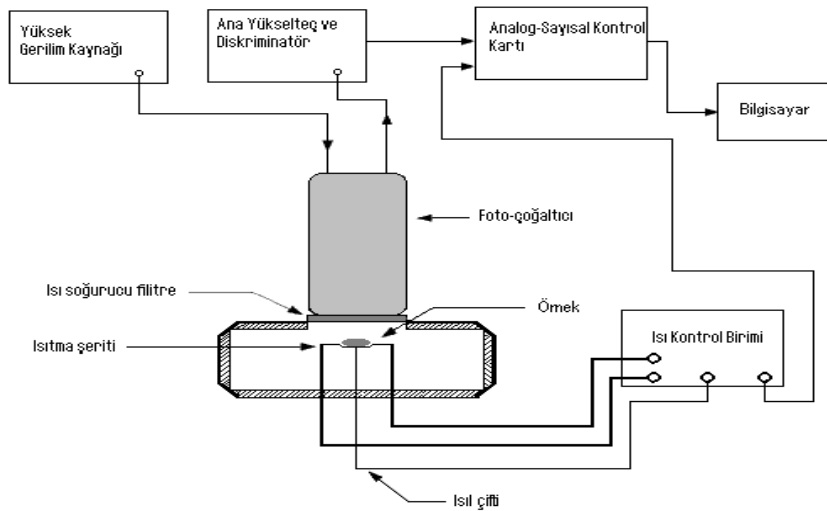
5.2. Termolüminesans Dozimetre (TLD) Okuyucu Sistemi

Bilgisayar bağlantılı el ile işletilen bir okuyucu sistemine dayanan Harshaw 3500 TLD okuyucusu, çalışmadaki termolüminesans ölçümlerini gerçekleştirmek için kullanılmıştır (Şekil 5.2). TLD okuyucu ve seri iletişimli port ile bağlantılı WinREMS (Windows Radiation Evaluation Measurement System) programının çalıştığı sistem olmak üzere iki temel bileşenden oluşmaktadır.



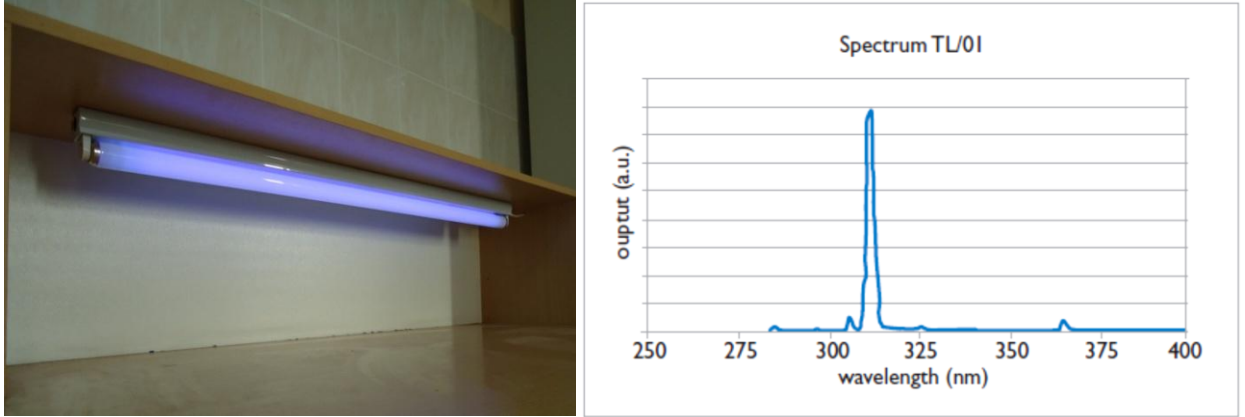
Şekil 5.2. Harshaw 3500 TLD okuyucu sistemi

Genel olarak TLD okuyucu sistemleri mevcut örneğin belirli bir sıcaklıktan istenilen bir sıcaklığa kadar, seçilen bir ısıtma hızı ile lineer olarak ısıtıldığı ve bu süreçte çıkan ışımının fotoçoğaltıcı tüp tarafından kaydedilerek görüntülendiği elektronik kısımlardan meydana gelmektedir (Şekil 5.3).



Şekil 5.3. TLD okuyucu sisteminin şematik gösterimi

Deney yapılan sistemde örneğin konulduğu düzenek yalnızca bir adet örnek alabilecek kapasitededir ve ısıtma safhasının sağlıklı bir şekilde kontrol edilebilmesi için K tipi ısıl çift kullanılmaktadır. Sistemde örnekler oda sıcaklığından 600 °C' ye kadar, seçilen herhangi bir ısıtma hızında gerçekleştirilebilmektedir. Bu işlem sonucunda örnekten çıkan ışık EMI-9235QA model bir fotoçoğaltıcı (PMT) ile tespit edildikten sonra bilgisayar aracılığıyla (WinREMS) görüntülenir ve kaydedilir (Şekil 5.3).



Şekil 5.4 Çalışmada UV kaynağı olarak kullanılan UVB ışık kaynağı ve spektrumu .

Örneklerin UVB ışınlanması için Philips TL 01 UVB ışık kaynağı kullanılmıştır. Kullanılan UVB ışık kaynağının spektrum ve resmi Şekil 5.4 te görülmektedir. Kullanılan lambanın spektrumu incelendiğinde 310 nm de pik veren bir emisyonu sahip olduğu görülmektedir.

5.3. TL Işıma Eğrisinin Kinetik Parametre İçin Analiz Yöntemleri

Dozimetrik amaçlarla termoluminesans yapan bir malzemenin bu alandaki uygulanabilirliğini ölçmek için TL mekanizmasını tanımlayan kinetik parametrelerin belirlenmesi gerekmektedir. Kinetik derece (b), aktivasyon enerjisi (E) ve frekans faktörü (s) içeren kinetik parametrelerin hesaplanması adına birçok yöntem geliştirilmiştir. Tez çalışması kapsamında YNbO_4 fosfor malzemesinin UVB radyasyonuna maruz bırakıldıktan sonra $2\text{ }^{\circ}\text{C.s}^{-1}$ ısıtma hızı kullanılarak 50-400 °C arasında termoluminesans (TL) ışıma eğrileri kaydedilmiştir. Farklı sürelerde UVB radyasyonuna bırakılarak TL doz cevabı ve eşit sürelerde aynı dozu vererek UVB radyasyonu için malzemenin TL kararlılığı incelenmiştir. Elde edilen ölçümlerden TL ışıma eğrisinin 93 ve 151 °C de iki pikten oluştuğu gözlenmiştir. YNbO_4 için ışıma eğrisindeki 151 °C piki ana pik olarak kabul edilerek bu pike ait kinetik parametreler, artan doz, çeşitli ısıtma hızları ve Chen pik şekli yöntemleri kullanılarak incelenmiştir.

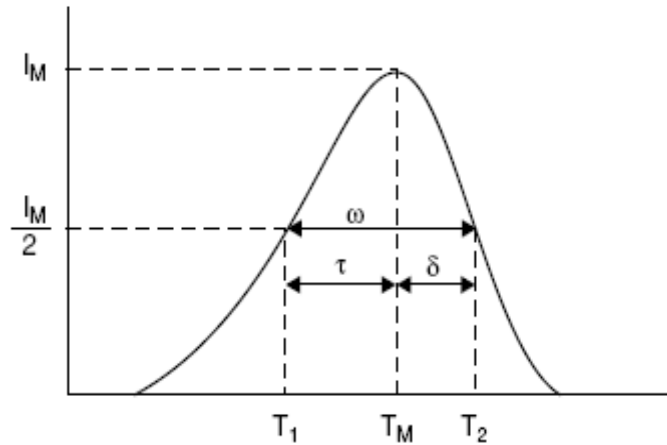
5.3.1 Artan Doz Metodu

Bu metotta malzeme artan doz oranlarında ışınlamalarının ardından TL ışıma eğrileri kaydedilmektedir. Elde edilen ışıma eğrileri incelendiğinde ışıma piklerinin yeri artan doza bağlı olarak değişmiyorsa bu durumda o pikin birinci derece kinetiğe uyduğu söylenir [McKeever, 1985]. Artan doza bağlı olarak ışıma piklerinde kayma gözlenmesi durumunda ise ışıma piklerinin ikinci derece veya genel derece kinetiğe uyduğu düşünülür. Çalışmada 30s, 1, 3, 5, 10 ve 20 dk'lık sürelerde ışınlanan YNbO_4 fosforunun termoluminesans ışıma eğrileri kaydedilmiştir.

5.3.2 Chen Pik Şekli Metodu

E,s,b kinetik parametrelerini belirlemek için bir TL ışıma eğrisi analizinin popüler bir metodu da pikin şekil ya da geometrik özelliklerinin dikkate alınmasıdır. Bu ışıma eğrisinin şekline bağlı olan analiz metotlarından en yaygın olanı Chen tarafından geliştirilen Pik Şekli (Peak Shape) metodudur. Chen pikin maksimum şiddete sahip olduğu sıcaklık ve bu maksimum sıcaklığın yarı yüksekliğindeki sıcaklıkları dikkate alarak E'nin ve s'nin değerlendirmesi için genel bir ifadeyi çıkartmıştır [Chen, 1969]. T_M maksimumdaki pik sıcaklığı

- T_1 ve T_2 sırasıyla T_M 'nin yarı şiddetinde her iki yanındaki sıcaklıklar,
- $\tau = T_M - T_1$ pikin düşük sıcaklık kısmındaki yarı genişlik
- $\delta = T_2 - T_M$ ışıma pikinin artan sıcaklık kısmındaki yarı genişlik
- $\omega = T_2 - T_1$ ışıma pikinin toplam yarı genişlik
- $\mu = \delta / \omega$ geometrik şekil ya da simetri faktörü olarak isimlendirilir (Şekil 5.5).



Şekil 5.5. Geometrik şekil nicelikleri τ , δ , ω

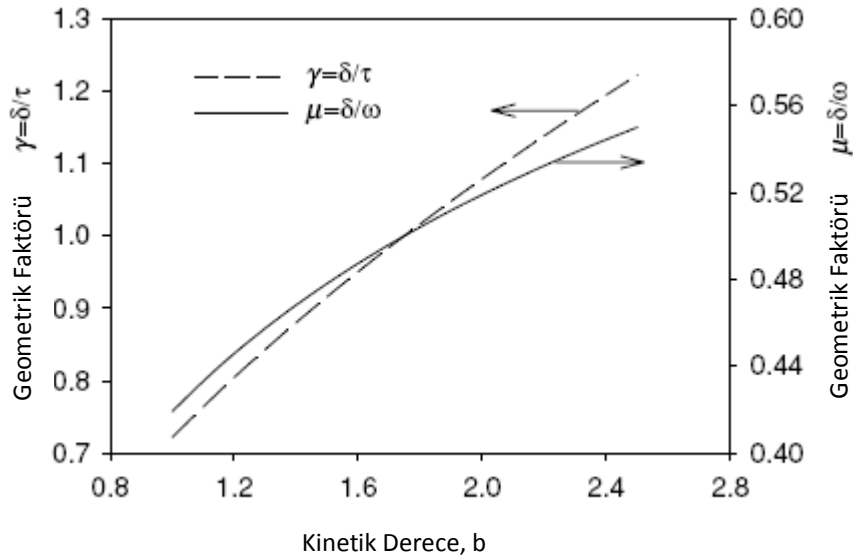
Chen'in metodunda bir yinleme işlemi yoktur ve pik şeklinden belirlenen simetri faktörünün kullanımıyla kinetik derecenin bilinmesini gerektirmez. Bu ifade en genel olarak aşağıdaki şekilde düzenlenmiştir [Ege et al., 2007a].

$$E = c_{\alpha} \left(\frac{kT_M^2}{\alpha} \right) - b_{\alpha} (2kT_M) \quad (5.1)$$

c_{α} ve b_{α} 'nin değerleri $\alpha = \tau$, δ ya da ω için aşağıdaki gibi verilmektedir.

$$\begin{aligned} c_{\tau} &= 1.510 + 3.0(\mu - 0.42) & b_{\tau} &= 1.58 + 4.2(\mu - 0.42) \\ c_{\delta} &= 0.976 + 7.3(\mu - 0.42) & b_{\delta} &= 0, \\ c_{\omega} &= 2.52 + 10.2(\mu - 0.42) & b_{\omega} &= 1 \end{aligned} \quad (5.2)$$

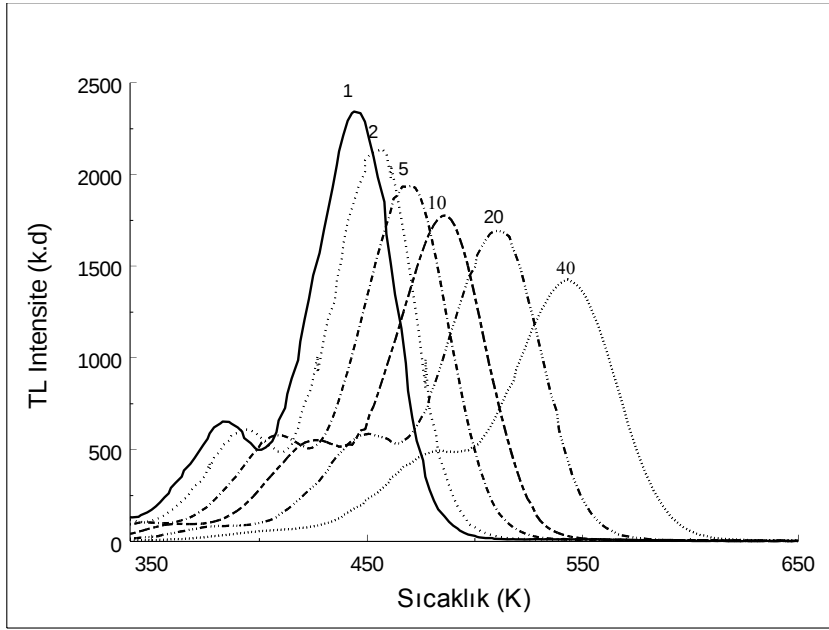
Birinci derece TL ısıtma piklerinin durumu için $\mu=0.42$ ve ikinci derece pikler için ise $\mu=0.52$ ile ifade edilir. Ara değerlerdeki μ değerleri için ise Şekil 5.6 deki grafik kullanılır [Chen and McKeever, 1997].



Şekil 5.6. Kinetik derece b ve geometrik faktör $\mu = \delta / \omega$ ve $\gamma = \delta / \tau$ arasındaki ilişki.

5.3.3 Çeşitli Isıtma Hızları Metodu

Doğrusal ısıtma hızı β değişirse, pikin maksimum TL şiddetinin sıcaklığı da (T_M) değişir. Daha hızlı ısıtma T_M 'nin daha yüksek bir değere kaymasına neden olur. Bu etki Ege ve arkadaşları tarafından $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$: Cu, Ag, P dozimetresinde yapılan deneysel sonuçlarda da görülmektedir (Şekil 5.7).



Şekil 5.7. T_M 'nin ısıtma hızıyla değişimi [Ege et al.,2007a].

Bohum, Porfianovitch ve Booth birinci derece bir pik için iki farklı ısıtma hızına bağlı olarak E 'nin hesaplandığı bir metot önermişlerdir. (5.3) denkleminin maksimum koşullarını düşünerek ve iki farklı ısıtma hızı kullanarak bir çözüm elde etmişlerdir [Pagonis et al., 2006].

$$E = k \frac{T_{M1} T_{M2}}{T_{M1} - T_{M2}} \ln \left[\frac{\beta_1 \left(\frac{T_{M2}}{T_{M1}} \right)^2}{\beta_2} \right] \quad (5.3)$$

Bu metot ile T_M 1°C doğruluk ile ölçülebilirse, E %5 doğruluk ile elde edilir.

Bundan biraz farklı bir metot, Hoogenstraaten tarafından birinci derece kinetik denkleminde yola çıkarak aşağıdaki lineer bağıntıyı elde etmek için birkaç ısıtma hızının kullanılmasıyla tanımlanmıştır [Pagonis et al., 2006].

$$\ln \left(\frac{T_M^2}{\beta} \right) = \frac{E}{k T_M} \ln \left(\frac{E}{sk} \right) \quad (5.4)$$

Bu metotta $1/kT$ 'ye karşı $\ln(T_M^2/\beta)$ nin grafiği çizilir ve elde edilen doğrunun eğimden E ve eksenini kestiği noktadan $\ln(E/sk)$ elde edilir.

Chen ve Winer, $I(T)$ 'nin genel derece ifadesinde görülen integral için bir yaklaşım kullanarak aşağıdaki denklemini elde etmişlerdir [Chen and Winer, 1970].

$$\ln \left[I_M^{b-1} \left(\frac{T_M^2}{\beta} \right)^b \right] = \frac{E}{kT_M} + c \quad (5.5)$$

Bu denklem ile b'nin farklı değerleri için sol taraftaki değeri değerlendirmek mümkün olur ve farklı b değerleri için $1/kT_M$ nin fonksiyonu olan bir seri grafik elde edilir.

Grafiğin en iyi doğrusal olduğu b değeri belirlenir ve hesaplamalar ona göre yapılır. Bu metot genel ısıtma hızları için geçerlidir yani ısıtma hızı β 'nin sabit olmasını gerektirmez. İkinci derece kinetiklerinin durumu için yukarıdaki denklem aşağıdaki şekli alır.

$$\ln \left[I_M \left(\frac{T_M^2}{\beta} \right)^2 \right] = \frac{E}{kT_M} + c \quad (5.6)$$

b=1 için T_M sıcaklığında tuzaklanan elektronların başlangıç konsantrasyonu n_0 'dan bağımsız olduğu için, bu metot sadece b'nin 1'den farklı olduğunda yararlıdır.

Chen ve Winer maksimum yayımlama ve integral yaklaşımı koşullarını kullanmışlar ve aşağıdaki ifadeyi elde etmişlerdir [Chen and Winer, 1970].

$$\left(\frac{\beta}{T_M} \right) \cong \exp \left(- \frac{E}{kT_M} \right) \left(\frac{ks}{E} \right) [1 + (b-1)\Delta_M] \quad (5.7)$$

Burada $\Delta_M = 2kT_M/E$ dir. $[1 + (b-1)\Delta_M]$ değeri bire yakındır ve bir sabit olarak düşünülebilir, böylece $1/kT_M$ 'ye karşı $\ln(\beta/T_M^2)$ 'nin grafiği eğim -E olan bir düz doğru oluşturur.

Gartia ve arkadaşları tarafından iki ısıtma hızının kullanıldığı farklı bir metot da önerilmiştir [Gartia et,al.1991]. Bu sadece birinci derece için geçerli olan Booth metoduna benzer fakat bu metodun en önemli farklılığı, birinci derece olmayan piklere de uygulanabilmesi ve β ile T_M 'nin değişiminden çok daha hızlı bir değişime sahip olan β ile I_M 'nin değişimine dayanmasıdır.

Genel derece ifadesi kullanıldığında,

$$E = k \frac{T_{M1} T_{M2}}{T_{M1} - T_{M2}} \ln \frac{I_{m1}}{I_{m2}} \quad (5.8)$$

elde edilir.

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

Chen ve Winer, sıcaklığa bağımlı bir ön üstel faktör s (s , T^a ile orantılıdır) örneğinde, $1/kT_M$ 'ye karşı $\ln(T_M^2/\beta)$ nin grafiğinin gerçek aktivasyon enerjisi E yerine $E + akT_M$ eğimini veren düz bir çizgi meydana getirdiğini göstermişlerdir [Chen and Winer, 1970].

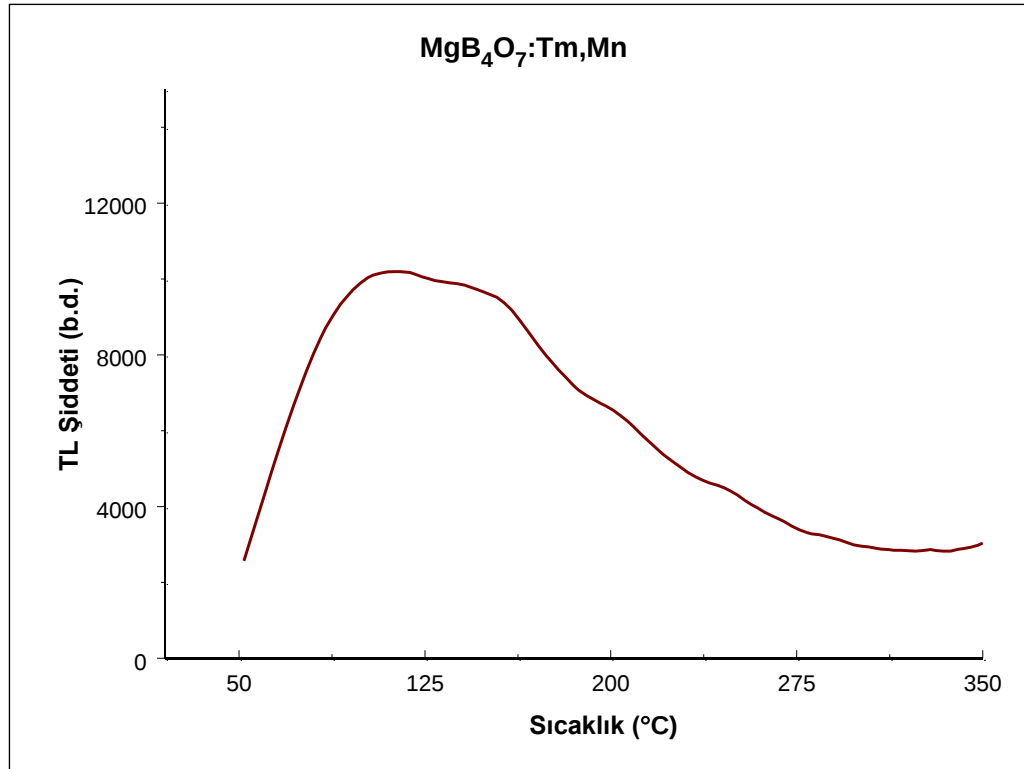
Çeşitli ısıtma hızı analizi metotları kullanılırken TL cihazındaki ısıtma elemanı ile örnek arasında iyi bir termal kontakın olması gerekmektedir. Termal kontakta kaynaklanan sorunların ortadan kaldırılabilmesi için bazı düzeltmelerin yapılması gerekebilir.

6. SONUÇLAR ve TARTIŞMA

Bu bölümde UVB radyasyonuna maruz bırakılan LiF:Mg,Cu,P , $\text{CaB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$, $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$, $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy}$, Na, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm}$, Mn termolüminesans dozimetreler ile yeni üretilmiş olan YNbO_4 fosfor malzemesine ait ışıma eğrileri, YNbO_4 fosforunun kararlılık sonuçları, YNbO_4 doz cevabı ve bu fosfora ait ışıma eğrisinin pik şekli ve çeşitli ısıtma hızları metotları ile hesaplanan kinetik parametre sonuçları sunulmuştur.

6.1 Termolüminesans Dozimetrelerin ve YNbO_4 fosforunun UVB Işımasıyla elde Edilen Işıma Eğrileri

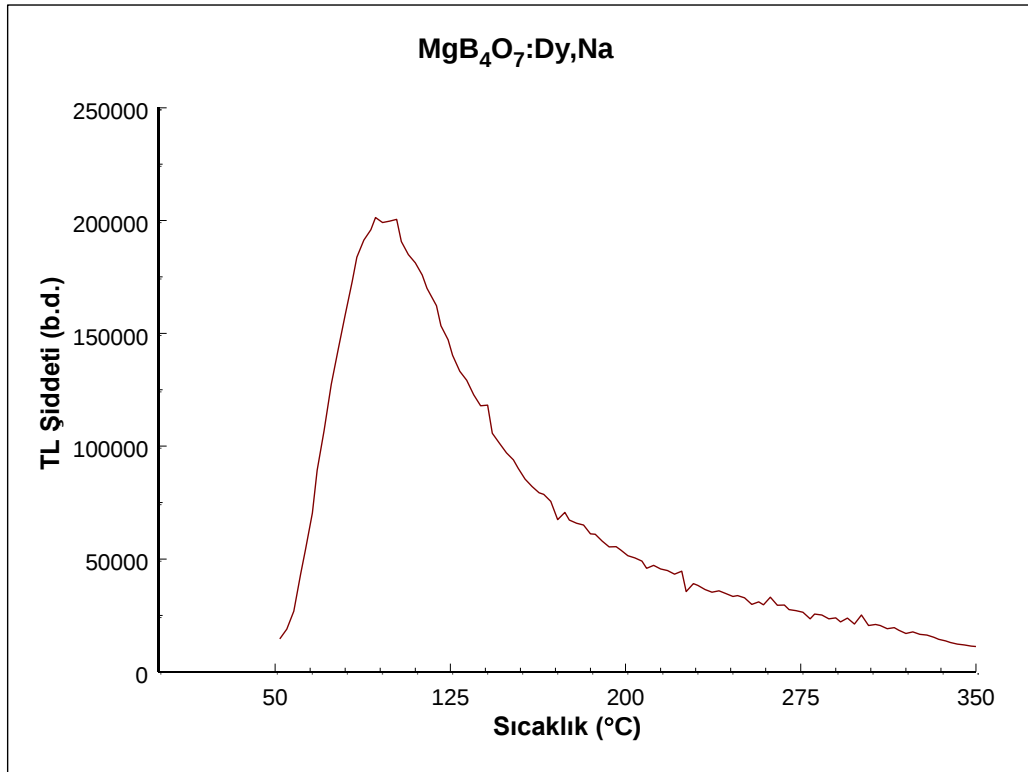
Çalışmada $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm,Mn}$, $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$, $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$, LiF:Mg,Cu,P , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$, $\text{CaBO}_4\text{:Dy}$ termolüminesans dozimetreler ve yeni üretilmiş olan YNbO_4 fosforu kullanılmıştır. Malzemelerin 5dk'lık sürelerde UVB radyasyonu ile ısıtılmalarının ardından 2°C/s ısıtma hızıyla ışıma eğrileri kaydedilmiştir. $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm,Mn}$ dozimetresinden elde edilen ışıma eğrisi incelendiğinde yaklaşık 100°C 'de geniş bir pik görülmesine rağmen UVB radyasyonuna duyarlı olduğunu söylemek zordur (Şekil 6.1).



Şekil 6.1. $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Tm,Mn}$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.

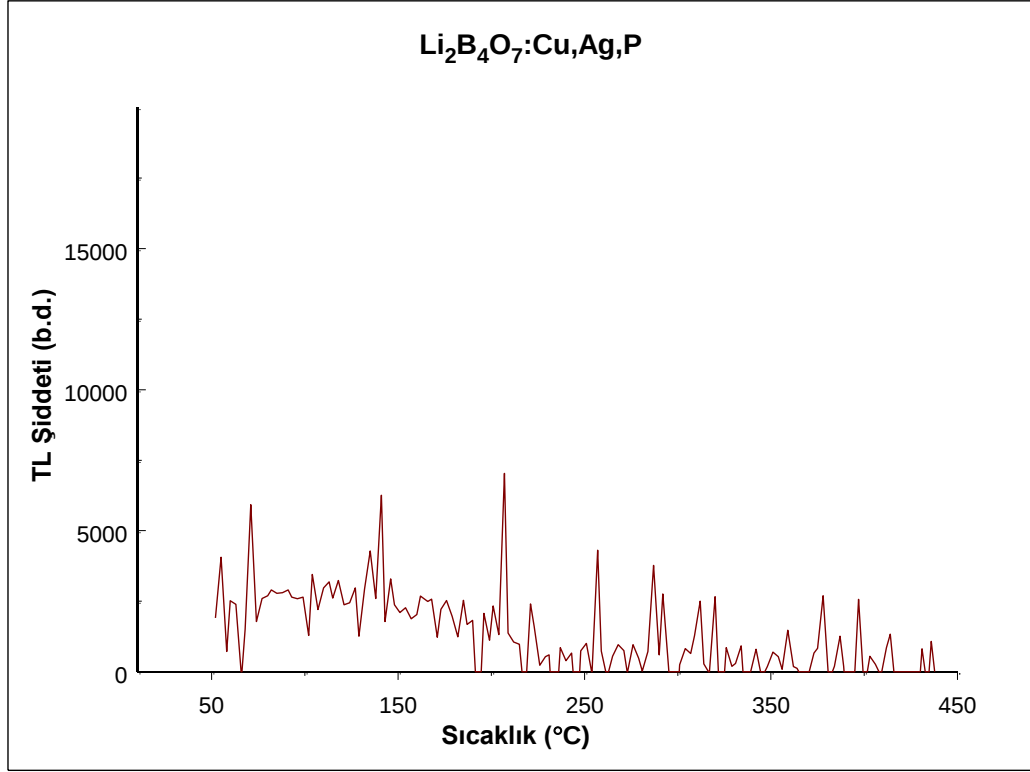
Dy ve Na ile katkılandırılmış magnezyum borat ($\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$) dozimetresinden elde edilen ışıma eğrisi incelendiğinde yaklaşık 75°C pike sahip geniş bir bant görülmektedir.

Malzemenin UVB radyasyonuna duyarlı olduğu söylenebilir fakat TL ışıma pikinin düşük sıcaklıkta olması oda sıcaklığında bile bu pikin kolayca sönmülebileceğini düşündürmektedir. Bu sonuçlar, bu malzemenin de UV dozimetre olarak bir potansiyele sahip olmadığını göstermektedir (Şekil 6.2).



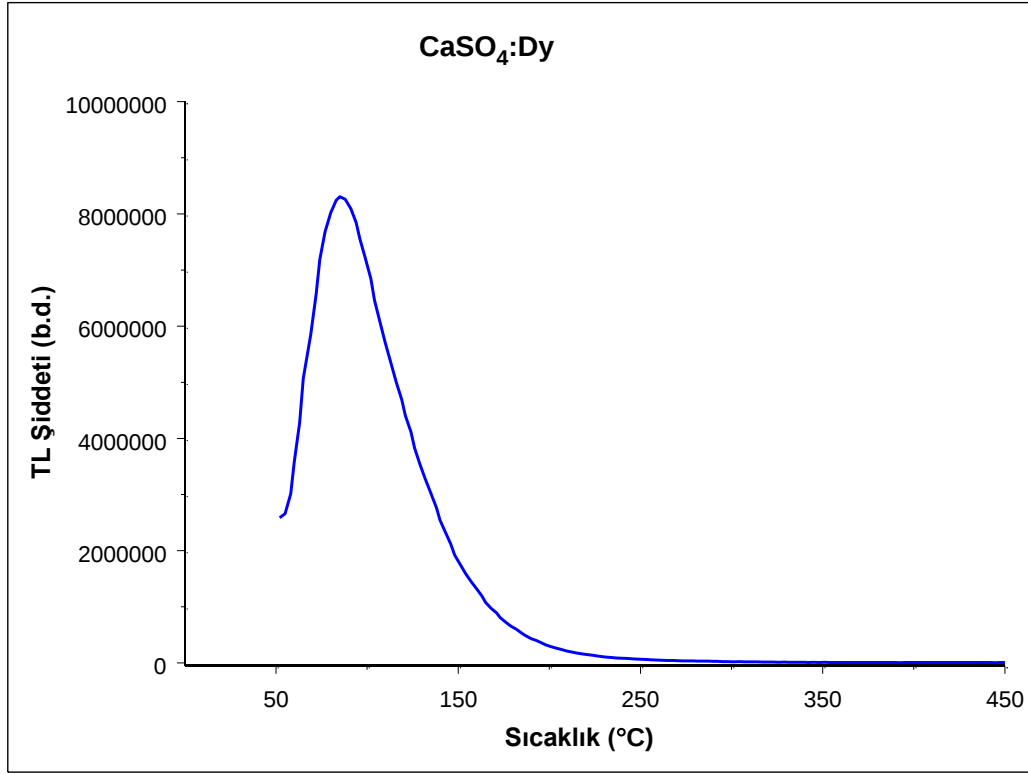
Şekil 6.2. $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.

UVB radyasyonuna maruz bırakılan $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$ dozimetresinden elde edilen ışıma eğrisinde TL ışıma sinyalinin artortam seviyesinde olduğu görülmüştür. Bu nedenle bu malzemenin UVB dozimetre olarak kullanılması önerilmemektedir (Şekil 6.3).



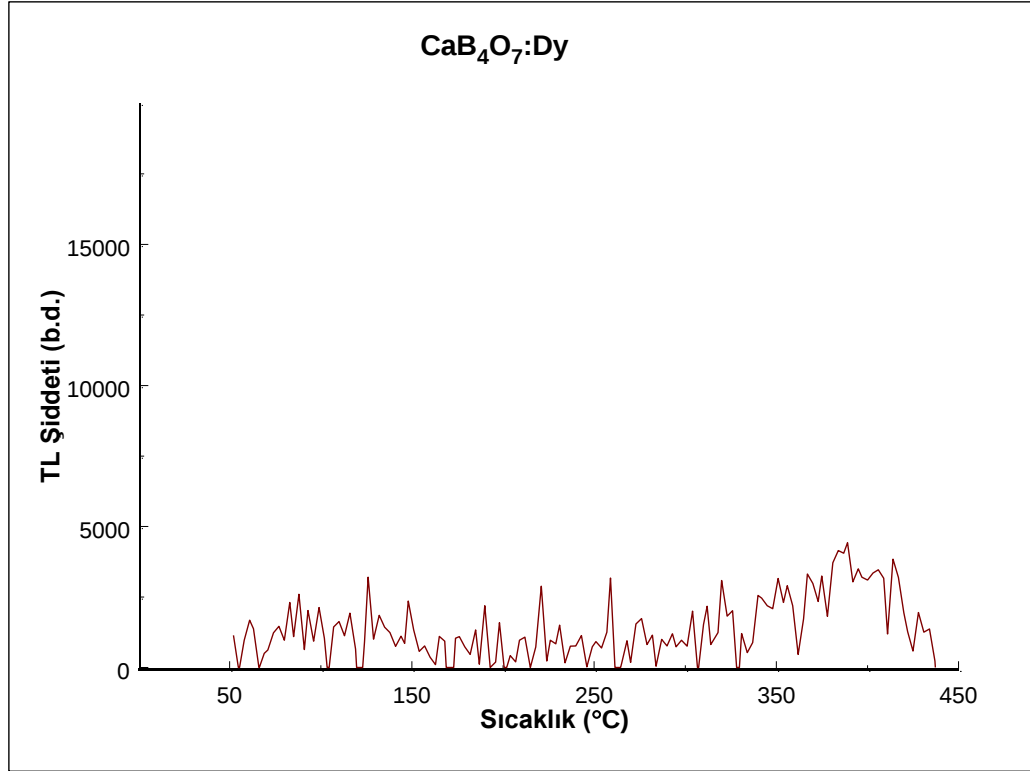
Şekil 6.3. $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Cu,Ag,P}$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.

UVB radyasyonuna maruz bırakılan $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ dozimetresinden elde edilen ışıma eğrisinde 100°C ışıma pikine sahip olduğu ve ışıma sinyalinin $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy,Na}$ dozimetresinden elde edilen ışıma sinyaline kıyasla yaklaşık kırk kat daha fazla olduğu görülmüştür. Fakat ışıma pikinin düşük sıcaklıkta olması bu pikinde çabuk sönmülenebileceğini göstermektedir. Bu nedenle bu malzemenin UVB dozimetre olarak kullanılması için özellikle sönmülenme özelliğinin ayrıntılı olarak incelenmesi gerekmektedir (Şekil 6.4).



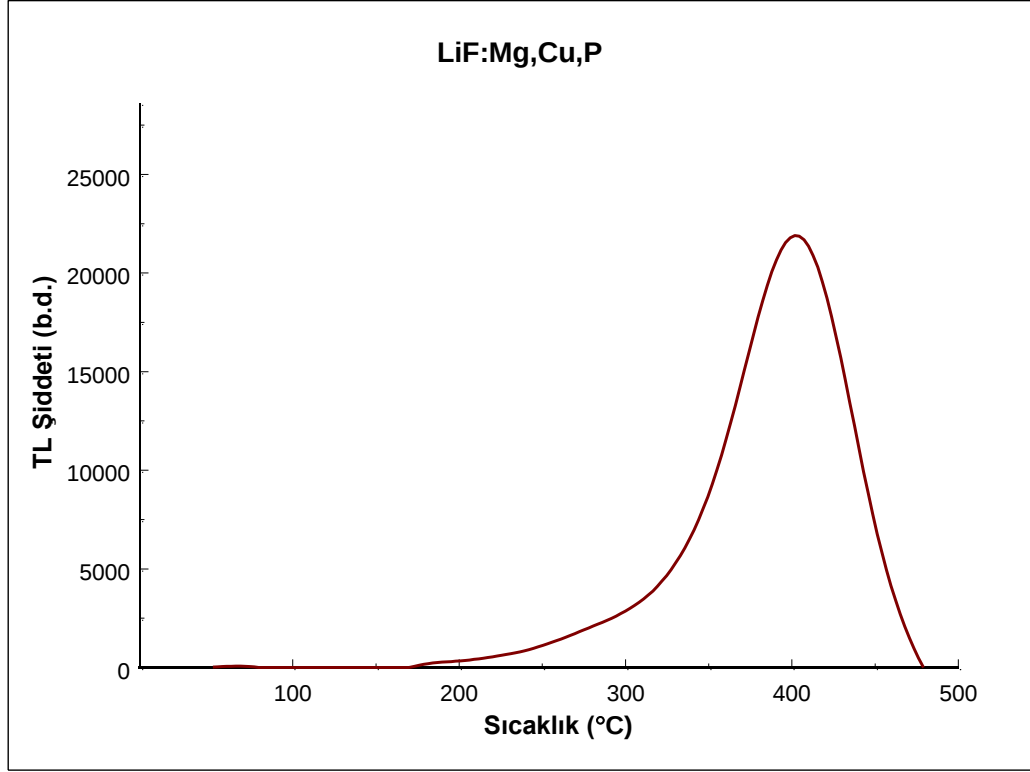
Şekil 6.4. $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.

$\text{CaBO}_4:\text{Dy}$ dozimetresi ile yapılan TL ölçümlerinde ise bu dozimetrik malzemenin UVB radyasyonu ile ışınlamasının ardından herhangi bir TL ışıma sinyali elde edilememiştir (Şekil 6.5).



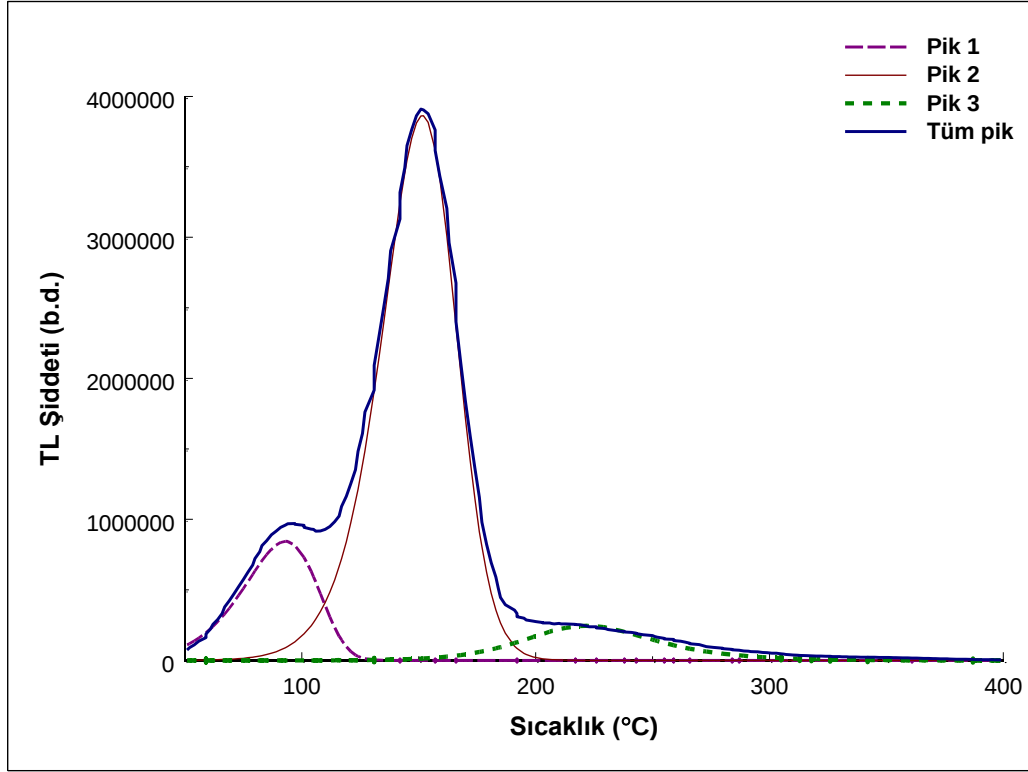
Şekil 6.5. $\text{CaBO}_4:\text{Dy}$ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.

$\text{LiF}:\text{Mg,Cu,P}$ dozimetresinin 5dk UVB radyasyonuna bırakıldıktan sonra elde edilen ışıma eğrisinde yaklaşık 400 °C'de ışıma pikine sahip olduğu bulunmuştur. Işıma pikine ait tepe sıcaklığının 400 °C de olmasına rağmen ve ışıma sinyalinin şiddetinin düşük olması malzemenin UVB dozimetre olarak kullanılabilirliği konusunda kesin karar verilmesini zorlaştırmıştır (Şekil 6.6). Diğer yandan 400 °C'deki bir pike TL okuyucudan gelen siyah cisim ışıma sinyalinden katkı gelebilmektedir.



Şekil 6.6. LiF:Mg, Cu,P dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.

Dr. Popovici tarafından üretilen YNbO_4 fosforuyla UVB ışınlamasının ardından yapılan TL ölçümlerinde malzemenin içice geçmiş iki pikten oluştuğu gözlemlenmiştir. Isıtma hızı 2°C/s olarak ayarlandığında kaydedilen ışıma eğrisinde birinci pikin yaklaşık 100°C de, ikinci pikin ise yaklaşık 150°C de olduğu belirlenmiştir. Burada ikinci pikin UVB radyasyon ölçümünde kullanılmasının uygun olabileceği düşünülmektedir (Şekil 6.7).

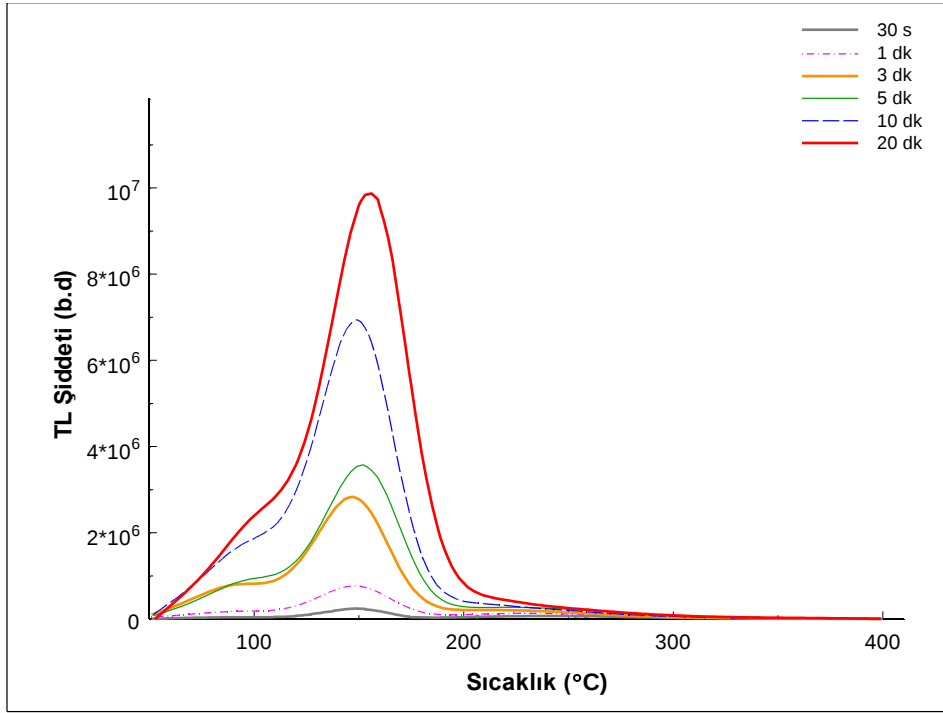


Şekil 6.7. YNbO₄ dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardından elde edilen TL ışıma eğrisi.

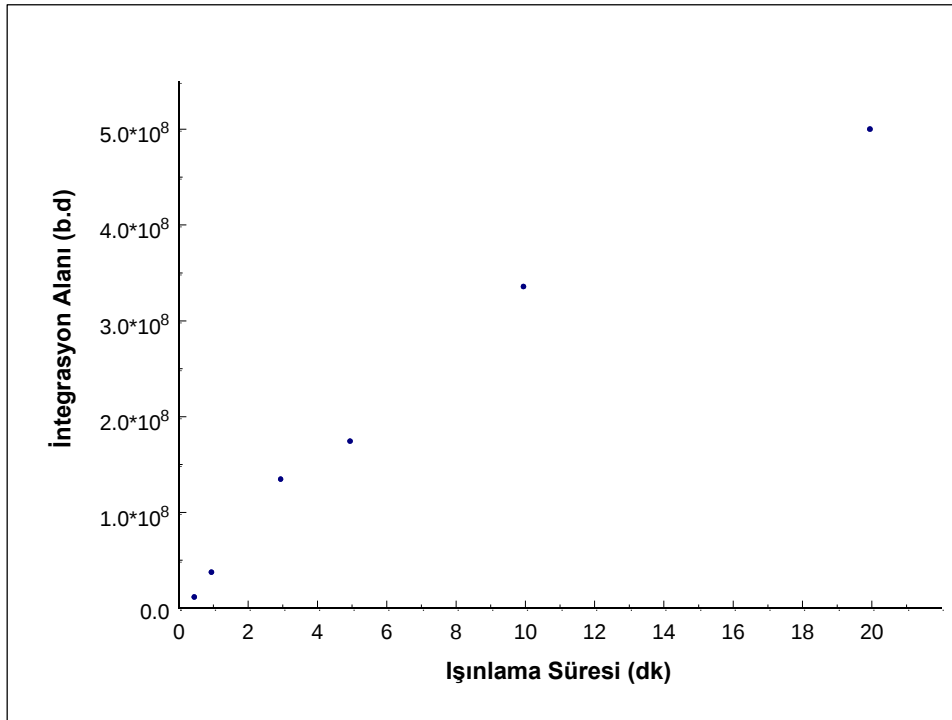
6.2 YNbO₄ fosforunun TL kararlılığı ve doz yanıtı

Bu malzemenin artan UVB radyasyon dozuna karşılık ışıma eğrileri kaydedilmiştir. 30s, 1, 3, 5, 10 ve 20 dk UVB ışınlamalarının ardından 2 °C/s ısıtma hızında ışıma ölçümleri kaydedilmiştir (Şekil 6.8). Elde edilen ışıma eğrileri incelendiğinde piklerin şiddetinin artan dozla beraber artmasına rağmen piklerin konumlarında kaymalar gözlemlenmiştir. Bu artan doz tekniği olarak bilinen tekniğin bir uygulamasıdır. Pikin yerinin değişmesi bu pikin birinci derecen bir pik olmadığını gösterebilmektedir.

Farklı dozlamalar sonucunda elde edilen ışıma eğrilerinin 50-400°C sıcaklık aralığında altında kalan alanlar hesaplanarak bu malzemeye ait doz-cevap eğrisi belirlenmiştir (Şekil 6.9). Doz cevap eğrisinde ilk 5 dakikalık ışınlamalara kadar eğride bir lineerlik gözlemlenmesine rağmen, daha uzun sürelerde ışınlama sonucunda lineer altı (sub-lineer) bir davranış gözlemlenmiştir. Her ne kadar iyi bir dozimetrik malzemedede aranan özellik doz cevabının kullanım aralığına bağlı olarak lineerlik göstermesi olsa da iyi tanımlanmış lineer üstü (supra-lineer) veya lineer altı davranış göstermesi çok büyük bir problem teşkil etmeyebilir. Önemli olan bu doz cevap eğrisinin tamamıyla iyi belirlenmiş olmasıdır.

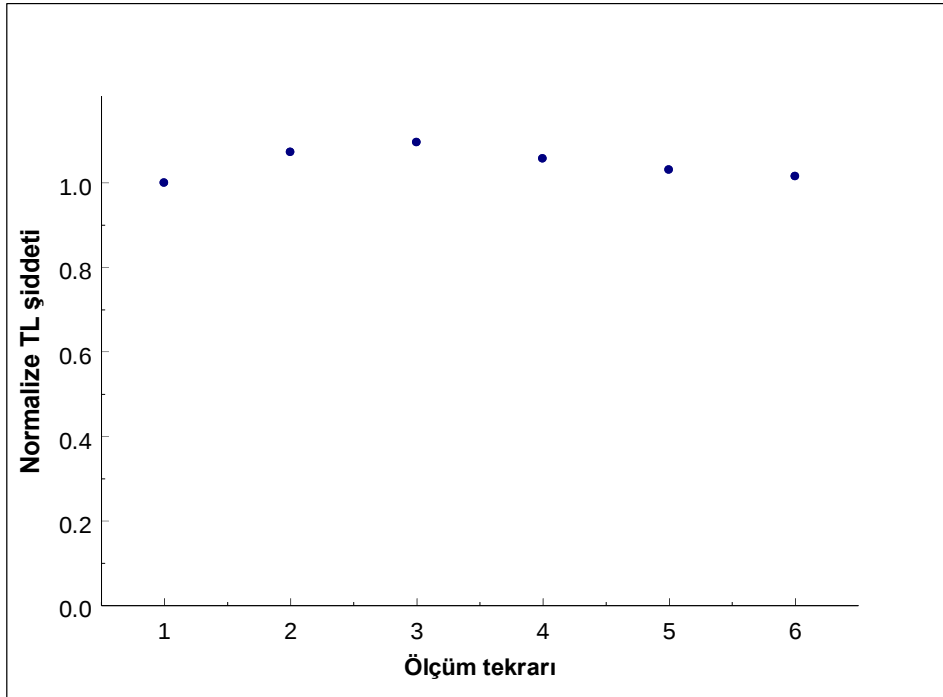


Şekil 6.8. YNbO₄ dozimetresinin 30s, 1, 3, 5, 10 ve 20 dk UVB ışınlamasının ardında elde edilen TL ışıma eğrileri.



Şekil 6.9. YNbO₄ dozimetresinin ışıma eğrisin altında kalan alana göre doz cevap eğrisi.

Dozimetrik özelliklerinden bir diğer önemli parametre malzemenin aynı koşullarda ölçümleri sonucunda aynı sonuçları vermesi gerektiği ile ilgili olan kararlılık (stabilite) özelliğidir. Bu amaçla YNbO_4 fosforunun 1dk sürelerde UVB ışınlamasının ardından $2\text{ }^\circ\text{C/s}$ ısıtma hızında arka arkaya ışıma ölçümleri alınmıştır. TL ölçümlerinden elde edilen ışıma eğrilerinin altında kalan alanlardan malzemenin soğurduğu dozla ilişkili bilgileri vermektedir. Sonuçlar, ilk elde edilen TL sinyaline göre normalize edilmiştir. Aynı koşullarda yapılan ölçümlerde malzemeden elde edilen ışıma sonuçlarında % 5 den daha az sapma gözlenmiştir. Elde edilen bu sonucun bir dozimetrik malzeme için uygun olduğu söylenebilir (Şekil 6.10).



Şekil 6.10. YNbO_4 fosforunun kararlılık eğrisi.

6.3 YNbO_4 fosforunun Termoluminesans Kinetik Karakterizasyonu

6.3.1 Pik Şekli metoduyla elde edilen TL kinetikleri

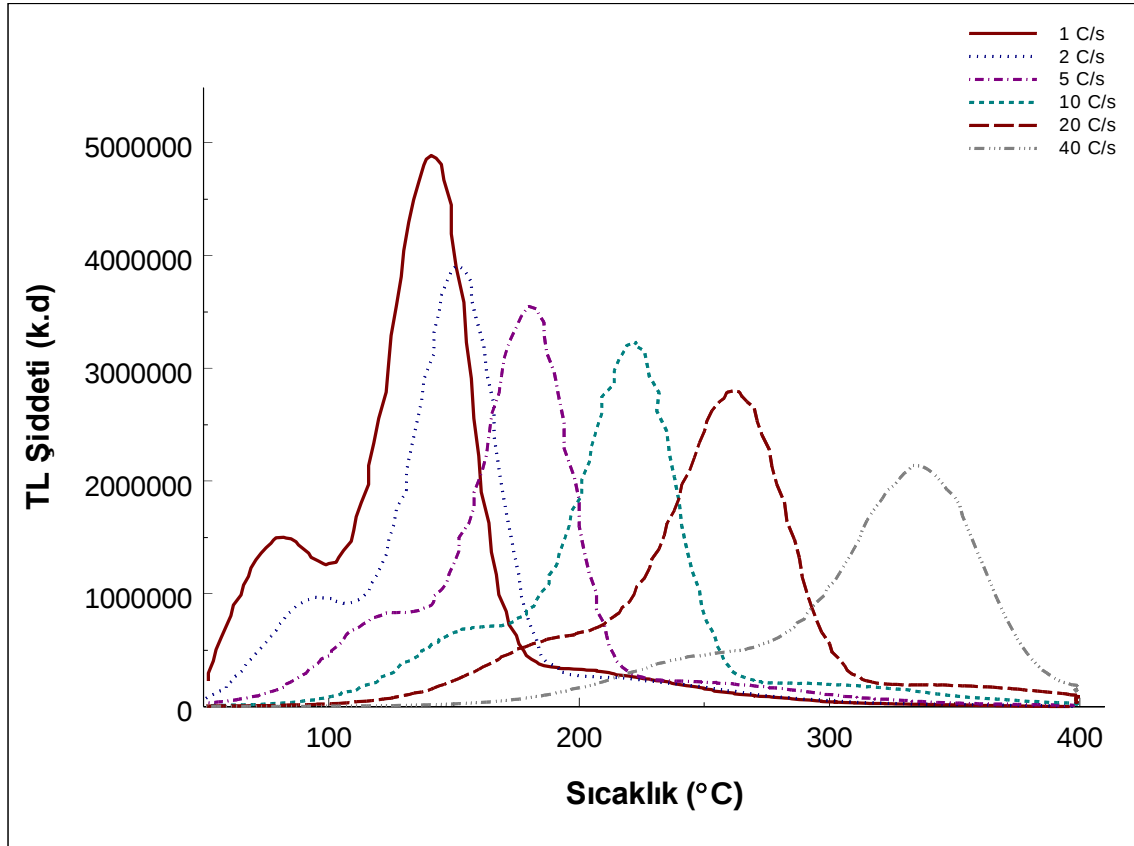
YNbO_4 dozimetresinin 5dk UVB ışınlamasının ardında elde edilen TL ışıma eğrisi, bilgisayarlı pik ayrıştırma metoduna göre pikleri ayrıştırılmıştır (Şekil 6.7). Chen tarafından geliştirilen pik şekli metodu yaklaşık $150\text{ }^\circ\text{C}$ deki ışıma pikine (Pik 2) uygulanmıştır. Bu metotla elde edilen tuzak enerjisi (E), frekans faktörü (s) (5.1 ve 5.2) denklemleri ve Şekil 5.6 deki grafikten yararlanarak belirlenmiştir. Simetri faktörü $\mu=0.46$, ortalama tuzak enerjisi 1.09 eV ve frekans faktörü $0,98 \times 10^{+12}\text{ s}^{-1}$ olarak bulunmuştur (Çizelge 6.1).

Çizelge 6.1 Chen metoduna göre belirlenen 5 dk UVB radyasyonuna maruz bırakılan YNbO_4 fosforunun 2°C/s ısıtma hızı ile elde edilen ışıma eğrisinin ana pikine ait TL kinetik parametre sonuçları.

	τ	δ	ω	Ortalama
E(eV)	1,08	1,10	1,09	1,09
S(s⁻¹)	$4,31 \times 10^{+11}$	$1,77 \times 10^{+12}$	$7,29 \times 10^{+11}$	$0,98 \times 10^{+12}$
b	1,28	1,28	1,28	1,28

6.3.2 Çeşitli Isıtma Hızları metoduyla elde edilen TL kinetikleri

Şekil 6.11’de 5 dk UVB radyasyonuna maruz bırakılan YNbO_4 fosforunun 1, 2, 5, 10, 20 ve 40°C/s ısıtma hızları ile elde edilen ışıma eğrileri görülmektedir. Tüm ölçümlerde örnekler aynı miktar doza yani 5 dk lık UVB ışınlamasına maruz bırakılmışlardır. Isıtma hızının etkisi şekilde açıkça görülmektedir.



Şekil 6.11 UVB radyasyonuna 5 dk maruz bırakılan YNbO_4 fosforunun 1, 2, 5, 10, 20 ve 40°C/s ısıtma hızları ile elde edilen ışıma eğrileri.

Isıtma hızı arttıkça kinetik parametrelerini incelediğimiz 150 °C pikinin sağa doğru yüksek sıcaklıklara doğru kaydığı ve şiddetinin azaldığı gözlemlenmiştir. Isıtma hızının artmasına bağlı olarak pik altında kalan alan değişmemiş sadece pikin yarı yükseklikteki tam genişliği (FWHM) değeri artmıştır. Bu sonuç bize malzemede yüksek ısıtma hızlarında herhangi bir termal sönümlenme olmadığını göstermektedir.

Kinetik parametre hesaplamalarında malzeme ve ısıtıcı yüzey arasındaki ısı boşluğu (temperature lag) ve sıcaklık gradyanın (temperature gradient) önemli bir rolü vardır [Ege et al, 2007b]. Tüm ölçümlerdeki ısı boşluğu düzeltmeleri Kitis ve Tuyn tarafından önerilen metotlar ile belirlenmiştir [Kitis and Tuyn, 1998;1999]. Bu metotta, aşağıdaki denklemler kullanılmıştır.

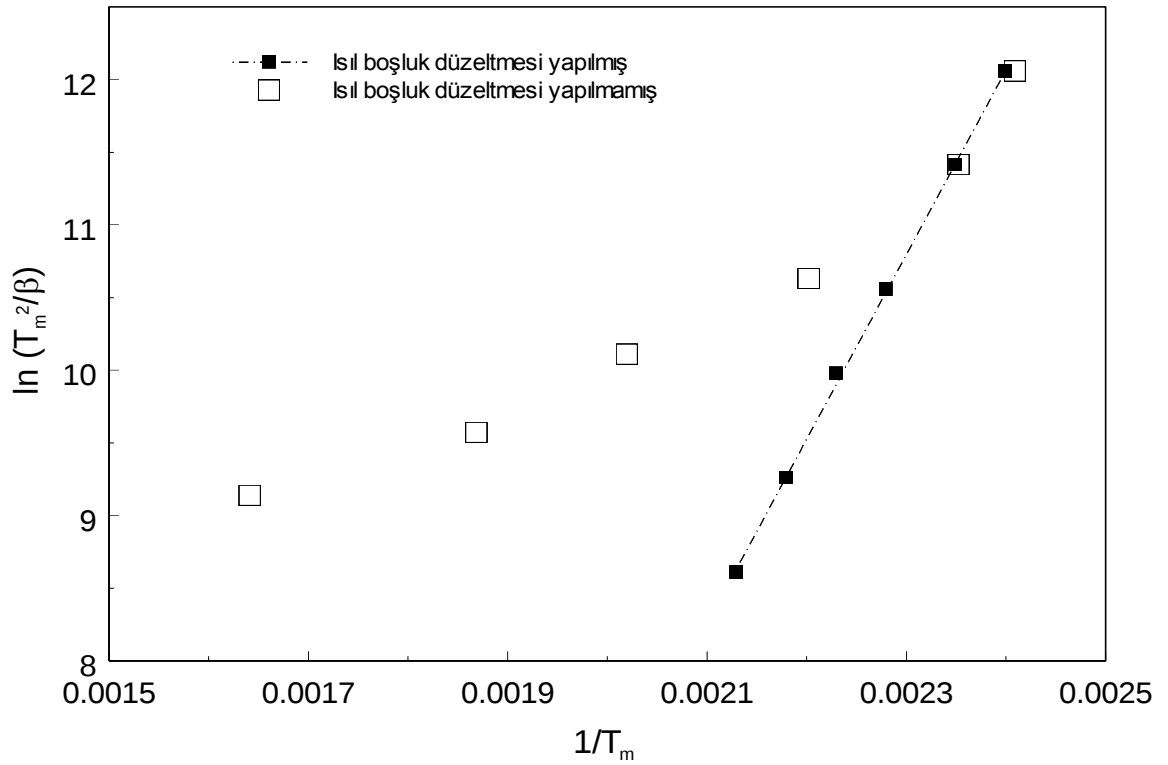
Bu denklemlerde T_m^j ve T_m^i , sırasıyla β_j ve β_i ısıtma hızlarında ölçülen ısıma eğrisinde incelenen pikin maksimum sıcaklık değerine karşılık gelmektedir.

$$T_m^j = T_m^i - c \ln \left(\frac{\beta_i}{\beta_j} \right) \quad (6.1)$$

Denklemdaki c katsayısı ısı boşluğunun ihmal edilebildiği en düşük iki sıcaklıkta ölçülen değerlerden elde edilir. Denklem 6.2 deki T_g ısı boşluğu içeren durumdaki pik maksimumunu, T_m ise gerçek pik maksimumunu göstermektedir.

$$\Delta T = T_g - T_m \quad (6.2)$$

Ölçüm sonucunda elde edilen ısıma eğrilerinde yararlanarak her bir ısıtma hızındaki ısıma piklerinin maksimum sıcaklık değerlerine karşılık $(1/T_m)$, $\ln(T_m^2/\beta)$ grafiği çizilmiştir (Şekil 6.12). Bu grafiğin düz bir çizgi vermesi gerekmektedir çünkü sistemdeki ısıtma hızı lineerdir. Elde edilen grafikte ısı boşluğu düzeltmesi yapılmadan elde edilen pike ait maksimum sıcaklıklar ($\square$) sembolü ile ısı boşluğu düzeltmesi yapılmış maksimum pik sıcaklık değerleri ise grafikte ($\blacksquare$) sembolleri ile gösterilmiştir.



Şekil 6.12. Her bir ısıtma hızında elde edilen ışıma piklerinin maksimum sıcaklık değerlerine karşılık ($1/T_m$) karşılık $\ln(T_m^2/\beta)$ grafiği. Grafikte ısı boşluk düzeltmesi yapılmış değerler (■) ve düzeltme yapılmamış değerler ise (□) sembolü ile gösterilmiştir.

Bu grafiğin eğiminden tuzak enerjisi ve kesim noktasından ise frekans faktörü hesaplanmıştır (Çizelge 6.2).

Çizelge 6.2 UVB radyasyonuna 5 dk maruz bırakılan $YNbO_4$ fosforunun 150 °C pikinin Chen Pik şekli ve çeşitli ısıtma hızları metotlarına göre elde edilen kinetik parametre sonuçları.

Kinetik Parametreler	Çeşitli Isıtma Hızları Metodu	Pik Şekli Metodu
E (eV)	1,09	1,09
s (s ⁻¹)	1,38x10 ¹²	0,98x10 ¹²
b	-	1,28

Her iki metotla elde edilen sonuçlar karşılaştırıldığında uyum içinde olduğu görülmüştür.

Noh ve arkadaşlarının 2001 yılında yapmış oldukları çalışmada LiF:Mg,Cu,P ve $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ dozimetreleri 220–255 nm aralığında UV kaynağı ile ışınlanarak TL ışıma eğrileri incelenmiştir. LiF:Mg,Cu,P dozimetresinin 143 °C, $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ dozimetresinin ise 195 ve 290 °C’de piklere sahip olduklarının belirlemişlerdir. Bu tez çalışmasında UV kaynağı olarak 310 nm dalga boylu UVB ışığı kullanılması nedeniyle elde edilen sonuçlar farklıdır [Noh et al., 2001].

Literatürde $\text{CaBO}_4\text{:Dy}$ ile yapılan çok fazla TL çalışması bulunmamaktadır. Az sayıda olan çalışmalarda ise cam formundaki $\text{CaBO}_4\text{:Dy}$ malzemelere yönelik çalışmalar bulunmuştur. Rojas ve arkadaşlarının yaptığı çalışmada katkısız, Dy katkılı ve Dy ve Li katkılı cam CaBO_4 malzemesinin UV ışınlamasının ardından TL ışıma eğrilerini incelemişlerdir [Rojas et al., 2006]. Dy katkılı cam CaBO_4 malzemesinin TL ışıma eğrisinde yaklaşık 258 °C’de geniş bir pik gözlemişlerdir. UV kaynağı olarak civa lambası kullanmaları ve cam formunda malzeme kullanmaları nedeniyle çalışmadaki sonuçlardan farklı sonuçlara ulaşmışlardır.

Çalışmada kullandığımız $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ dozimetresi ile daha önce Lakshmanan ve arkadaşları tarafından incelemeler yapılmıştır [Lakshmanan, 1978]. Fakat bu deneyler esnasında UV kaynağı olarak kuvars lamba kullanılarak 253,7 nm lik dalga boyu kullanılmıştır. Elde edilen sonuçlarda yaklaşık 50 ve 180 °C de pikler gözlemlenmiştir. Kullanılan dalga boyunun çalışmada kullanılan UVB dalga boyundan farklı olması nedeniyle sonuçlar bu çalışmadaki sonuçlardan farklıdır.

Karalı ve arkadaşları 1999 yılında yaptıkları çalışmada $\text{MgBO}_4\text{:Dy}$, $\text{MgBO}_4\text{:Tm}$ ve $\text{CaSO}_4\text{:Dy}$ malzemelerin TL spektrumlarını incelemişlerdir. Bu çalışmalar sırasında malzemeler X-ışını ile ışınlanmışlardır [Karalı et al., 1999]. MgBO_4 malzemesinin 180-190°C ve 320 ile 350°C arasında, CaSO_4 malzemesinin ise 55°C, ve 200 ila 270°C bölgesinde baskın özellik gösteren pikler gözlemlenmiştir.

$\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$ dozimetresi ile ilgil olarak literatür incelendiğinde, bu malzemenin TL kinetik parametrelerine yönelik olarak Ege ve arkadaşları tarafından yapılan çalışmalara ulaşılmıştır. Yapılan çalışmalarda beta radyasyonuna maruz bırakılan malzemelerin pik şekli, izotermal bozunma ve çeşitli ısıtma hızları metotları gibi birçok yöntemle kinetik parametrelerini hesaplamışlardır [Ege et al, 2007a]. Fakat literatürde $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7\text{:Cu,Ag,P}$ dozimetresinin UV ışınlamasının ardından TL ışıma ölçümüne yönelik herhangi bir çalışmaya rastlanmamıştır.

Bu çalışmada kullanılan YNbO_4 fosforu yeni bir malzeme olması nedeniyle literatürde UV radyasyonu ile ilgili çalışmalar bulunmamaktadır. Bu konu ile ilgili tek çalışma Karsu ve arkadaşları tarafından yapılan itriyum tabanlı fosforların TL özellikleri ile ilgili çalışmada geçmektedir [Karsu ve ark., 2011]. Bu çalışmada aynı kişi tarafından üretilen farklı üretim aşamasındaki YNbO_4 fosforunun farklı radyasyon kaynakları ile ışınlanmasının ardından alınan

TL ışıma eğrileri elde edilmiştir. Karsu ve arkadaşlarının çalışmasında 80 ve 160 °C de iki pik gözlemlenirken bu tez çalışmasında 80, 150 °C de iki pik gözlemlenmiştir. Malzemelerin farklı üretim olması nedeniyle sonuçlarda farklılık gözlemlenmiş olabilir. Ayrıca bu çalışmada UVB radyasyonuna maruz bırakılan YNbO_4 fosforunun dozimetrik karakterizasyonuna veya kinetik karakterizasyonuna yönelik herhangi bir çalışma yapılmamıştır.

KAYNAKLAR

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

Bos A.J.J., Theory of Thermoluminescence, Radiation Measurements, 41, S45–S56, 2006.

Chen, R., Glow Curves and General Order Kinetics, J. Electrochem. Soc. 166, 1254-1257, (1969).

Chen, R. and McKeever, S.W.S., Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena. World Scientific Publishing, Singapore, (1997).

Chen R and Winner, S.A.A. ,Effects of Various Heating Rates on Glow Curves, J. Appl. Phys. 41, 5227-5232 (1970).

Colyott, L.E., Akselrod, M. S. and McKeever, S. W. S. An Integrating Ultraviolet-B Dosemeter Using Phototransferred Thermoluminescence in α -Al₂O₃:C. Radiat. Prot. Dosim. 72, 87-94, (1997).

Driscoll, C.M.H., Solar UVR Measurements, Radiation Protection Dosimetry, 64, 179-188, (1996).

Ege, A. (Türkler), Ekdal, E., Karali, T. and Can, N., Determination of Thermoluminescence Kinetic Parameters Of Li₂B₄O₇: Cu, Ag, P, Radiation Measurements, 42, 1280- 1284, (2007a).

Ege, A., Wang, Y., Townsend, P.D., Systematic Errors in Thermoluminescence, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 576, 411-416, (2007b).

Furetta C. And Weng P.S., Operational Thermoluminescence Dosimetry, World Scientific, Singapore, River Edge, N.J.(1998).

Garlick G.F.J., Gibson A.F., The Electron Trap Mechanism of Luminescence in Sulphide and Silicate Phosphors, Proc. Phys. Soc., 60, 574, (1948).

Gartia, R.K., Ingotombi, S., Singh, T.S.G., and Mazmudar, P.S., On the determination of the activation energy of a thermoluminescence peak by the two-heating-rates methodJ. Phys. D: Appl. Phys. 24, 65, 1991.

Harmanşah, C., Optik Uyarımlı Lüminesans Sisteminin Kurulması ve UV Radyasyonun Ölçümünde Kullanılması, Doktora tezi, Ege Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, (2006).

Karali, T., Townsend, P. D., Prokic, M., Rowlands, A. P. Comparison of TL spectra of co-doped Dosimetric materials, Radiation Protection Dosimetry, 84, 281–284, (1999).

Karsu, E.C., Popovici, E.J., Ege, A., Morar, M., Indrea, E., Karali, T., Can, N., Luminescence study of some yttrium tantalate-based phosphors, Journal of Luminescence, 131, 1052–1057, (2011).

Kerr J. B. and McElroy C.T., Evidence for large upward trends of ultraviolet-B radiation linked to ozone depletion, Science, 262, 1032-1034, (1993).

Kitis, G. and Tuyn, J. W. N. A simple method to correct for the temperature lag in TL glow-curve measurements, J. Phys. D: Appl. Phys. 31 2065–73, (1998).

Kitis, G. and Tuyn, J. W. N. Correction for temperature lag and thermal gradient effects arising during thermoluminescence readout, Radiat. Prot. Dosim. 84 371–4, (1999).

Lakshmanan A.R., A.R., Shinde, S.S., and Bhatt, R.C., Ultraviolet-induced thermoluminescence and phosphorescence in $\text{Mg}_2\text{SiO}_4\text{:Tb}$, Phys. Med. Biol., 23, 952. (1978).

Levy, P.W., Thermoluminescence kinetics in systems more general than the usual 1st. and 2nd. Order kinetics, Journal of Luminescence, 31-31, 133-135, (1984).

Lyman, T., . Notes on the Luminescence of Glass and Fluorite, Phys. Rev., 40:578-582, (1932).

Longstreth, J. D., F. R. de Gruijl, Y. Takizawa, and J. C. van der Leun. 1991. Human health. Chapter 2 in Environmental effects of ozone depletion: 1991 update, 15-24. United Nations Environment Programme (UNEP) panel report. Nairobi, Kenya: United Nations Environment Programme

McKeever, S.W.S., Thermoluminescence of solids. Cambridge University Press, London, (1985).

McKeever, S.W.S., Moscovitch, M., Townsend, P.D., Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses, Nuclear Technology Publishing (1995).

Noh, A.M., Amin, Y.M., Mahat, R.H., Bradley, D.A., Investigation of some commercial TLD chips/discs as UV dosimeters, *Radiation Physics and Chemistry*, 61, 497–499, (2001).

Pagonis, V., Kitis, G., Furetta, C., Numerical and Practical Exercises in Thermoluminescence, Springer Science+Business Media Inc., (2006).

Popovici E. J., Imre-lucaci F., Muresan I., Stefan M., Bica E., Grecu R., Indrea E., Spectral investigations on niobium and rare earth activated yttrium tantalate powders, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 10 (9), 2334-2337 (2008).

Pradhan, A.S., Sharma, P.K.D., Shirva, V.K., Thermoluminescence response of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ to UV and ionising radiation, *Radiation Protection Dosimetry*, 64 (3), 227-231, (1996).

Randall, J.T., Wilkins, M.H.F., Phosphorescence and electron traps. I. The study of trap distributions, *Proc. Roy. Soc. Lond. A*, 184, 366, (1945).

Rojas, S.S. , Yukimitu, K., de Camargo, A.S.S. Nunes, L.A.O.,Hernandes, A.C., Undoped and calcium doped borate glass system for thermoluminescent dosimeter, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 352,3608–3612, (2006).

Saito, W., Ikejima, I., Fukuda, Y., Momoi, Y. In vivo measurements of daily UV exposure of human anterior teeth using $\text{CaF}_2\text{:Tb,Sm}$ as a thermoluminescence dosimeter, *Radiation Measurements*, 46 (3), 286-291, (2011).

Salas, P., De la Rosa-Cruz, E., Diaz-Torres L.A., Castano, V.M., Meléndrez R., Barboza-Flores M., Monoclinic ZrO_2 as a Broad Spectral Response Thermoluminescence UV Dosemeter *Radiation Measurements*, 37, 187-190, (2003).

ÖZGEÇMİŞ

Adı ve Soyadı : Aylin ÖZKAN

Doğum Tarihi : 17/07/1987

Eğitim ve Akademik Durumu:

Lise 2002-2005 Hayrettin Duran Lisesi

Lisans 2006-2010 Celal Bayar Üniversitesi Fizik Bölümü

Formasyon 2011-2012 Celal Bayar Üniversitesi

İş Tecrübesi

2012-2013 :Şehitler Ortaokulu Matematik Öğretmenliği