T.C.

NİĞDE ÜNİVERSİTESİ

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

FİZİK ANABİLİM DALI

TÜRKİYE'DE ÇIKARTILAN OPAL (SiO_2 nH_2O) MİNERALLERİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

HASAN YÜREK

Mayıs - 2013

T.C.
NİĞDE ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
FİZİK ANABİLİM DALI

TÜRKİYE'DE ÇIKARTILAN OPAL (SiO_2 nH_2O) MİNERALLERİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

HASAN YÜREK

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Danışman

Yrd. Doç. Dr. Adil CANIMOĞLU

Mayıs 2013

Hasan YÜREK tarafından **Yrd. Doç. Dr. Adil CANIMOĞLU** danışmanlığında hazırlanan "**TÜRKİYE'DE ÇIKARTILAN OPAL ($Si0_2$ nH_20) MİNERALİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**" adlı bu çalışma jürimiz tarafından Niğde Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü **Fizik** Anabilim Dalında Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

Başkan : Prof. Dr. Sefa ERTÜRK (Niğde Üniversitesi)

Üye : Doç. Dr. Kasım KURT (Mersin Üniversitesi)

Üye : Yrd. Doç. Dr. Adil CANIMOĞLU(Niğde Üniversitesi)

ONAY:

Bu tez, Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulunca belirlenmiş olan yukarıdaki jüri üyeleri tarafından …./…./20.... tarihinde uygun görülmüş ve Enstitü Yönetim Kurulu'nun …./…./20.... tarih ve ..... sayılı kararıyla kabul edilmiştir.

...../...../20...

Doç. Dr. Osman SİVRİKAYA

MÜDÜR

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin bilimsel ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, ayrıca tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

Hasan YÜREK

ÖZET

TÜRKİYE'DE ÇIKARTILAN OPAL (SiO_2 nH_2O) MİNERALLERİNİN TERMOLÜMİNESANS ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

YÜREK, Hasan

Niğde Üniversitesi
Fen Bilimleri Enstitüsü
Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Yrd. Doç. Dr. Adil CANIMOĞLU

Mayıs 2013, 76 sayfa

Bu çalışmada, dozimetre olarak tasarlanan opal kristallerinin termolüminesans özellikleri çalışıldı. Opal kristallerine radyasyon işlemi uygulanmadan önce, yeşil opal ve süt opal kristallerinin oda sıcaklığında 200nm-800nm dalga boyu aralığında optik soğurma grafikleri UV-VIS-IR spektrofotometre ile elde edildi. Daha sonra kristaller ayrı ayrı 100, 200, 300, 400, 500 ve 600^0C sıcaklık değerlerinde tavlandıktan sonra onların tekrar soğurma eğrileri elde edildi. Diğer taraftan, opal kristallerine radyasyon uygulanmadan önce, kristallerin TL parıldama eğrileri $\beta = 2^0$C/s ısıtma oranı için elde edildi. Benzer işlemler uygulanan 150Gy≈5dk, 300Gy≈10dk, 450Gy≈15dk, 600Gy≈20dk ve 750Gy≈25dk farklı X-ışını dozlarına maruz bırakılarak opal kristallerinin TL parıldama eğrileri elde edildi. Bu ölçümler 50^0C-400^0C sıcaklık aralığında gerçekleştirildi. Sabit ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri kullanılarak verilen doz miktarı ile TL şiddeti arasındaki ilişkiler araştırıldı. Oluşan grafiklerden yeşil opal ve süt opal arasındaki ilişkiler incelendi, elde edilen grafiklerden yeşil opalde üç pik oluşurken süt opalde tek pik oluştuğu gözlendi.

Anahtar sözcükler: Opal, Termolüminesans, Dozimetre, Opalin tavlanması, Kinetik parametreleri, Isıtma oranı

SUMMARY

INVESTIGATION OF TL PROPERTIES OF OPAL (SiO2 nH2O) MINERALS MINED IN TURKEY

YÜREK, Hasan

Nigde University

Graduate School of Natural and Applied Sciences

Department of Physics

Supervisor : Assistant Professor Dr. Adil CANIMOĞLU

May 2013, 76 pages

In this study, the thermoluminescence properties of opal crystals designed as dosimeter were studied. Before radiation process was applied, absorption graphics of green opal and milk opal crystals were obtained in the wavelength range 200 nm and 800 nm at room temperature. Then, after every crystal was annealed at 100, 200, 300, 400, 500 and 600^0C its absorption curves were obtained corresponding these temperatures. On the other hand, before radiation is not exposed to opal crystals, their TL glow curves were obtained for a heating rate $\beta = 2^0$C/s. After this, every opal crystal was exposed to 150Gy≈5min, 300Gy≈10min, 450Gy≈15min, 600Gy≈20min and 750Gy≈25min X-ray doses and its TL glow curves were obtained. These measurement, were carried out in the temperature range 50^0C-400^0C. The relationship between the applied dose amount and TL intensity are investigated using the TL glow curves obtained at constant heating rate. When the graphics obtained for green opal crystals and milk opal crystals were compared with each other, it was observed that three peaks appeared on the green opal curves while one peak was appearing on the milk opal curves.

Keywords: Opal, Thermoluminescence, Dozimeter, Annealing of Opal, Trap of Depth, Kinetic parameters, Heating rate

ÖN SÖZ

Bu yüksek lisans çalışmasında, Yeşil opal ve Süt opal kristallerine absorplama yöntemleri ve farklı X-ışını dozuna maruz bırakılarak TL ölçümleri üzerinde çalışıldı. Absorplama işlemlerinde; oda sıcaklığında (24), 100, 200, 300, 400, 500 ve 600^0C sıcaklık değerlerinde 30dk tavlandıktan sonra soğurma eğrileri elde edildi. Başlangıçta farklı soğurma şiddetleri gözlenirken 400^0C'den sonra her iki opalde de soğurma şiddetlerinin arttığı ve birbirine benzedikleri gözlemlendi. Radyasyon uygulamadan önce ve farklı süreler için uygulanan radyasyonda, maruz bırakılan her iki opal kristalinin TL ölçümleri elde edildi. Yeşil opal ve Süt opal kristallerine 750Gy≈25dk radyasyon (X-ışını) uygulandıktan sonra elde edilen deneysel TL ölçümlerine similasyon uygulandı. Yeşil opal ve Süt opal kristalleri arasındaki benzerlik ve farklılıklar incelendi.

Yüksek lisans çalışmalarım boyunca, bilgi ve önerileri ile çalışmalarıma yön vererek katkı sağlayan ve her konuda desteğini esirgemeyen danışmanım sayın Yrd. Doç. Dr. Adil CANIMOĞLU'na ve yine çalışmalarım boyunca bilgi ve deneyimini esirgemeyen ve her konuda yardımcı olan hocam sayın Prof. Dr. Refik KAYALI'ya sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Ayrıca deneysel çalışmalarımda bana Celal Bayar Üniversitesi Termolüminesans Araştırma Labaratuvar'ını kullanmama izin veren Prof. Dr. Nurdağan CAN'a ve bilgilerini esirgemeyen Dr. İsrafil SABİKOĞLU'na teşekkürlerimi bir borç olarak sunarım.

Her zaman yanımda olan, maddi manevi desteklerini hiçbir zaman esirgemeyen aileme teşekkürü borç bilirim.

İÇİNDEKİLER

ÖZET iv
SUMMARY v
ÖN SÖZ vi
İÇİNDEKİLER vii
ÇİZELGELER DİZİNİ ix
ŞEKİLLER DİZİNİ x
FOTOĞRAF VB. MALZEMELER DİZİNİ xii
SİMGE VE KISALTMA xiii
BÖLÜM I GİRİŞ 1
BÖLÜM II ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR 4
BÖLÜM III TEORİ 10
3.1 Giriş 10
3.2 Lüminesans 10
3.3 Termolüminesans 12
3.3.1 Basit termolüminesans modeli 14
3.4 Birinci, İkinci ve Genel Derece TL Kinetikleri İçin İfadeler 16
3.4.1 Birinci dereceden kinetik ifade 16
3.4.2 İkinci dereceden kinetik ifade 19
3.4.3 Genel mertebeden kinetik ifade 22
3.5 Parıldama Pikinin Şekline Dayanan Analiz Metotları 25
3.6 X-Işınları ve Özellikleri 28
3.7 X-Işının Oluşumu 29
3.7.1 Doğal X-ışınları 29
3.7.2 Yapay X-ışınları 29
3.8 X- Işını Tüpü 29
3.9 X- Işınları Kırınımı ile Kristal Yapıların Tayini 30
3.10 X- Işınlarının Madde ile Etkileşimi 31
3.10.1 Fotoelektrik etki 32
3.10.2 Compton saçılması 33
3.10.3 Çift oluşumu 33

3.11 Opal'in Fiziksel, Kimyasal ve Yapısal Özellikleri 35
3.11.1 Kristal yapısı 36
3.11.2 Fiziksel özellikleri 37
3.11.3 Opalin oluşumu 37
3.11.4 Kimyasal özellikleri 38
BÖLÜM IV DENEYSEL ÇALIŞMA 40
4.1 Opal Kristalinin Temizlenmesi 40
4.2 Opal Kristallerinde Tavlama İşlemi 41
4.3 Opal Kristallerine Isıl İşlem Uygulandıktan Sonra Alınan Optiksel Soğurma Ölçümleri 42
4.4 TLD Ölçümleri 43
4.5 Opal Kristallerine Radyasyon Uygulandıktan Sonra Alınan Termolüminesans Ölçümleri 44
BÖLÜM V BULGULAR VE TARTIŞMA 46
5.1 Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerine Tavlama İşleminden Sonra Uygulanan Optiksel Soğurma İşlemi 46
5.2 Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerine Radyasyon Uygulanmadan Alınan Termolüminesans Ölçümleri 54
5.3 Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerine Radyasyon Uygulandıktan Sonra Alınan Termolüminesans Ölçümleri 56
5.4 Yeşil Opal ve Süt Opal Arasındaki İlişki 64
5.5 Similasyon Sonucu 65
BÖLÜM VI SONUÇLAR ve YORUMLAR 68
KAYNAKLAR 71
ÖZ GEÇMİŞ 75
TEZ ÇALIŞMASINDAN ÜRETİLEN ESERLER 76

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 3.1. Lüminesans olaylarının ve uyarılma metotlarının çeşitleri 10
Çizelge 3.2. X-ışınlarının genel özellikleri ve madde etkileşmesi 31
Çizelge 3.3. Opal'in fiziksel, kimyasal ve yapısal özellikleri 35
Çizelge 5.1. Yeşil opal kristalinin simülasyonla elde edilen parıldama eğrilerinin aktivasyon enerjilerinin maksimum şiddet ve sıcaklık değerleri 66
Çizelge 5.2. Süt opal kristalinin simülasyonla elde edilen parıldama eğrilerinin aktivasyon enerjilerinin maksimum şiddet ve sıcaklık değerleri 67

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 3.1. Floresans olayı 11
Şekil 3.2. Fosforesans olayı 11
Şekil 3.3. Lüminesans olayının soy ağacı 12
Şekil 3.4. TL parıldama eğrisi 13
Şekil 3.5. Termolüminesans işlemi için iki basamaklı basit model 14
Şekil 3.6. t zamanının bir fonksiyonu olarak RC birleşme merkezinde sıcaklık görüntüsü T(t), boşluk tuzaklarının konsantrasyonu $n_h(t)$ ve termolüminesans şiddeti I(t) 15
Şekil 3.7. Geometrik şekil büyüklükleri τ ,δ ,ω 25
Şekil 3.8. Kinetik derece b ve geometrik faktörler $\mu = \delta/\omega$ ve $\gamma = \delta/\tau$ arasındaki bağıntı 27
Şekil 3.9. X-ışını tüpü 30
Şekil 3.10. Fotoelektrik etki 32
Şekil 3.11. Compton saçılması 33
Şekil 3.12. Çift oluşumu 34
Şekil 3.13. Kuvars (solda) ve opal (sağda) kristal yapıları içinde farklılık gösteren şematik gösterim 36
Şekil 3.14. Opal mineralinde ışık kırınımı 38
Şekil 4.1. Opal kristalinin temizlenme işlemi 40
Şekil 5.1. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin oda sıcaklığındaki soğurulma bantları 47
Şekil 5.2. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 100^0C sıcaklığındaki soğurulma bantları 48
Şekil 5.3. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 200^0C sıcaklığındaki soğurulma bantları 49
Şekil 5.4. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 300^0C sıcaklığındaki soğurulma bantları 50
Şekil 5.5. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 400^0C sıcaklığındaki soğurulma bantları 51
Şekil 5.6. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 500^0C sıcaklığındaki soğurulma bantları 52

Şekil 5.7. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 600^0C sıcaklığındaki soğurulma bantları 53
Şekil 5.8. Yeşil opalin radyasyon uygulamadan önce alınan TL ölçüm grafiği 54
Şekil 5.9. Süt opalin radyasyon uygulamadan önce alınan TL ölçüm grafiği 55

Şekil 5.10. 150Gy≈5dk X-ışın dozuna maruz bırakılan Yeşil opal kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 56
Şekil 5.11. 150Gy≈5dk X-ışın dozuna maruz bırakılan Süt opal kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 57
Şekil 5.12. 300Gy≈10dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 58
Şekil 5.13. 450Gy≈15dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 59
Şekil 5.14. 600Gy≈20dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 60
Şekil 5.15. 750Gy≈25dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 61
Şekil 5.16. Farklı X-ışın dozlarına maruz bırakılan Yeşil Opal Kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 62
Şekil 5.17. Farklı X-ışın dozlarına maruz bırakılan Süt Opal Kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri 63
Şekil 5.18. 750Gy≈25dk X-ışını radyasyonundan sonra Yeşil opal ile Süt opal arasındaki ilişki 64
Şekil 5.19. 750Gy≈25dk X-ışınına maruz bırakılan Yeşil opalin deneysel pikleri simülasyonla elde edilen piklerle karşılaştırılması 65
Şekil 5.20. 750Gy≈25dk X-ışınına maruz bırakılan Süt opalin deneysel pikleri simülasyonla elde edilen piklerle karşılaştırılması 67

FOTOĞRAF VB. MALZEMELER DİZİNİ

Fotoğraf 3.1. Yeşil opal 39
Fotoğraf 3.2. Süt opal 39
Fotoğraf 4.1. Proterm marka boru tipi fırın 41
Fotoğraf 4.2. Perkin Elmer marka Lambda 950 UV-VIS-NIR spektrofotometresi..... 42
Fotoğraf 4.3. RA94 TLD Reader-Analyser model TLD cihazı 43
Fotoğraf 4.4. Machlett OEG marka X-ışını tüpü 44

SİMGE VE KISALTMA

Simgeler	Açıklama
I(t)	Işıma şiddeti
I_0	Başlangıçtaki ışıma şiddeti
E	Tuzak derinliği
T	Sıcaklık
T_0	Başlangıçtaki sıcaklık
T_M	Işıma eğrisinin maksimum sıcaklığı
T_{stop}	Durdurma sıcaklığı
T_{trap}	Elektron tuzağı
R_{rec}	Birleşme merkezi
R_{ret}	Tekrar tuzaklanma
β	Isıtma oranı
s	Frekans faktörü
t	Zaman
b	Kinetik derece
n	Tuzaklanmış elektronların sayısı
n_0	Başlangıçta tuzaklanmış elektron sayısı
N	Toplam tuzak sayısı
k	Boltzman sabiti
α	Alfa parçacığı
β	Beta parçacığı
γ	Gama ışını
X	X-ışını
τ	Tuzak ömrü
a.u.	Keyfi birim
η	Lüminesans verimi

Kısaltmalar	**Açıklama**
TL	Termolüminesans
TLD	Termolüminesans dozimetre
GO	Genel derece
CGCD	Bilgisayarlı ışıma eğrisi çözümleme
PS	Pik (Tepe) Şekli
RL	Relatively Low (Göreceli olarak düşük)
exp	Exponansiyel
IR	İnfrared (Kızıl ötesi)
NIR	Yakın infrared (Kızıl ötesi)
UV	Ultraviyole (Mor ötesi)
VIS	Visible light (Görünür ışık)
FT-Raman	Forier Dönüşüm Raman Spektrumunu
FTIR	Forier Dönüşüm Kızıl Ötesi
AFM	Atomic Force Microscopy (Atomik Güç Mikroskobu)
SEM	Scanning electron microscop (Taramalı Elektron Mikroskobu)
TMA	Termomekanik Analiz
TG	Termogravimetrik Analiz
PBG	Photonic Band Gap (Fotonik Bant Aralığı)
RC	Yeniden birleşme merkezi
OTOR	Bir tuzak bir birleşme merkezi modeli
STM	Basit tuzak modeli
QE	Yarı kararlı seviye
ib	İletkenlik bandı
vb	Valans bandı
eV	Elektron volt (enerji birimi)
Gy	Gray (Radyasyon soğurma birimi)= j/kg
nm	Nanometre (1nm=10^{-9} m)

BÖLÜM I

GİRİŞ

Dünyanın oluşumuyla birlikte tabiatta yerini alan çok uzun ömürlü (milyarlarca yıl) radyoaktif elementler yaşadığımız çevrede normal ve kaçınılmaz olarak kabul edilen doğal bir radyasyon düzeyi oluşturmuşlardır. Karasal ortamdaki kayalarda ve deniz ortamındaki sedimentlerde radyoaktif maddeler bulunduğu gibi atmosferde de kozmik ışınların etkisiyle radyoaktivite oluşur. Bu sebeple insanoğlu ve diğer canlılar, milyonlarca yıldan beri evrenden gelen kozmik ışınlar ve yerkürede bulunan doğal radyoaktif maddelerden yayılan radyasyonla ışınlanmakta olup; tüm canlıların varoluşlarından bu yana sürekli olarak doğal radyasyonla iç içe yaşamaktadırlar.

Radyasyon ilk çağlardan bu yana vardır ancak insanlığın radyasyonu keşfetmesi 1896′da Fransız fizikçi Henri Becquerel'ın uranyum tuzunun ışınlar yaydığını farketmesiyle gerçekleşmiştir. Bundan iki sene sonra Marie Curie ve eşi Pierre Curie uranyum ile deney yaparken benzer ışınlara rastlamışlardır. Bu deneyde polonyum ve radyum oluştuğunu görmüşlerdir ve bu iki elementi ilk keşfedenler olmuşlardır. Polonyum ve özellikle radyum'un daha fazla ışın yaydıklarını gözlemişlerdir.

Doğada mevcut bulunan radyoaktif maddeler tarafından salınan alfa (α), beta (β) ve gama (γ) gibi radyoaktif ışınlar madde ve canlı organizmalar üzerinde olumsuz etkilerde bulunmaktadır. Dolayısıyla uzaydan dünyamıza ulaşan kozmik ışınlar ve ultraviyole ışınlar da canlı organizmalar üzerinde olumsuz etkilerde bulunabilmektedir. Bunun yanı sıra radyasyon pozitif amaçlarla kullanımı vazgeçilmez olmuştur. Radyoaktiflik nerdeyse bütün bilimsel ve teknik alanlarda geniş bir uygulama alanına sahiptir. Radyoaktivite uygulamaları ve radyasyon ölçümü, Fizik, Kimya, Biyoloji, Tıp, Metalurji, Tarih, Arkeoloji ve Jeoloji gibi birçok bilimsel ve teknik alanda kullanılmaktadır. Radyasyondan faydalanılarak yapılan çalışmalar yaşam koşullarımızda önemli bir rol oynamıştır. Ayrıca Alman fizikçi Prof. Dr. Wilhelm Conrad Roentgen tarafından 1895 yılında X-ışınlarının keşfedilmesi radyoloji biliminin doğmasına vesile olmuş ve X-ışınlarının keşfiyle tıp alanında bir çığır açmıştır. Ancak radyolojinin tanı ve tedaviyle ilgili uygulamalarında kullanılan gama ve X-ışınları

radyasyonu ile çalışanlar ve hastalar üzerinde birçok biyolojik zarara da neden olmaktadır.

Radyasyon madde üzerinde iyonlaştırıcı ve iyonlaştırıcı olmayan radyasyon etkilerini yaratır. İyonlaştırıcı radyasyon girdiği ortamda iyonları ayrıştıran radyasyonlara denir. Bunlar elektromanyetik dalgalar (gama ve X-ışınları), parçacıklı radyasyon (alfa ve beta radyasyonu), kozmik ışınlar ve nötronlardır. İyonlaştırıcı olmayan radyasyon çok daha uzun dalga boyuna sahip olan, yüksek gerilim hatları, bilgisayarlar, cep telefonları, mikro dalga fırınlar, radyo dalgaları ve ultraviyole ışınları şeklindeki hücrenin kimyasına zarar vermeyen radyasyonlardır.

Yarı iletken maddelerin içinde meydana gelen etkileri tayin etmek amacı ile kullanılan nükleer tekniklerden bazıları Termolüminesans (TL), Elektron Spin Rezonans (ESR), Nükleer iz analiz teknikleridir. Termolüminesans (TL) yöntemi, maddenin ısıtılmasıyla ortaya çıkan ışımanın ölçülmesi esasına dayanır. Maddede biriken radyasyon enerjisi miktarı onun radyasyon etkisinde kaldığı süreye, dolayısıyla maddenin yaşına bağlıdır. Biriken toplam enerjinin bir yılda biriken enerjiye bölünmesi ile enerjinin kaç yıldır toplandığı, diğer anlamda maddenin yaşı hesaplanır. Bazı mineraller ve özellikle obsidyende optik ışıma hızının ölçülmesi ile 500 bin yılına kadar ölçüm yapılabilmektedir.

Termolüminesans (TL) olayı ilk kez 1663 yılında Robert Boyle tarafından elmas kristali üzerinde yaptığı çalışmalarda gözlenmiştir. Boyle, karanlık bir odada ısıttığı elmasın pırıltı vererek görünür ışık yaydığını görmüştür. Daha sonra 1677 yılında Elshotz ve birkaç yıl sonra Oldenburg tarafından florit kristalinde de gözlenmiştir. Bu zaman aralığında birçok benzer araştırmalar yapılmıştır. Kuvars mineralinde termolüminesans deneylerini ilk olarak Du Fay (1738) gerçekleşmiştir. Radyoaktivitenin keşfinden sonra H.Bequerel (1885), radyum ışıması altındaki fluroit kristalinde TL ve tavlama olayını incelemiştir. Daha sonra Wiedeman (1895) doğal radyoaktivitenin, minerallerin TL özelliklerine olan etkisini tespit etmiştir. Bu işlem sonradan TL olayının jeolojik araştırmalarda kullanılmasını sağlamıştır.

Termolüminesans (TL) dozimetri ölçümü, madde içinde depolanan uzun ömürlü radyoaktif izotopların bozunması sonucunda ortaya çıkan alfa, beta parçacıkları ile gama ışınları tarafından taşınan enerjinin madde içerisinde birikmesi olayına

dayanmaktadır. Madde içerisinde soğurulan radyasyonu belirlemeye yarayan aletler dozimetre olarak adlandırılır. Günlük hayatta termolüminesans yöntemi dozimetrik materyallerin incelenmesi, tuzak parametrelerinin belirlenmesi, tarihlendirme (yaş tayini) gibi çalışmalar da kullanılmaktadır. Aynı zamanda Tıp, Arkeoloji, Jeoloji, Nükleer Mühendislik, Fizik, Biyoloji ve Organik Kimya gibi çeşitli kullanım alanları vardır.

Bu çalışmada, opal kristalini radyasyona maruz bırakarak kristal örgüdeki kusurlarda tuzaklanmış olan elektronlar tarafından depolanan radyasyon enerjisi bulundu. Opal kristalinin termolüminesans spektrumlarında hem ışınlama dozu hem de ısıtma oranının etkisi ve TL ışıma piklerinin kinetik parametreleri incelendi. Yapılan çalışmada opal kristaline optik soğurulma işlemi uygulandı, oda sıcaklığındaki soğurulma grafikleri elde edildi. Daha sonra 100^0C, 200^0C, 300^0C, 400^0C, 500^0C ve 600^0C sıcaklıklarında soğurulma grafikleri kaydedildi. Yeşil opal ve Süt opal kristalleri için elde edilen soğurulma grafikleri arasındaki ilişki incelendi. Daha sonra opal kristaline radyasyon uygulamadan önce sabit ısıtma oranı için termolüminesans ölçümü alındı. Son olarak opal kristali 150Gy, 300Gy, 450Gy, 600Gy ve 750Gy değerlerinde X-ışını dozlarına maruz bırakıldı ve sabit ısıtma oranı için parıldama eğrileri elde edildi. Yeşil opal ve Süt opal kristalleri için elde edilen TL grafikleri arasındaki ilişki incelendi. Yeşil opal ve Süt opal kristallerine radyasyon ve tavlama işlemi uyguladıktan sonra elde ettiğimiz parıldama eğrilerine pik şekli (PS) metodu uygulayarak aktivasyon enerjisi değerleri hesaplandı.

Bu tezin birinci bölümünde radyoaktiflik konusu, çeşitleri ve kullanıldığı alanlar hakkında bilgi verildi. Termolüminesans olayının oluşumu kısaca anlatılacaktır. İkinci bölümde daha önce termolüminesans ve opal ile ilgili yapılan çalışmalar verilecektir. Bölüm üçte lüminesans, termolüminesans, birinci, ikinci ve genel derece kinetik denklemeleri, analiz metotları, aktivasyon enerjisi, kristal kusurları, X-ışını ve opal kristali hakkında genel bilgiler açıklanacaktır. Bölüm dörtte deneysel yöntemler ve çalışmalar detaylı bir şekilde açıklanacaktır. Bölüm beşte deney sonuç grafikleri ve bu grafiklerden hesaplanan aktivasyon enerjisi değerleri verilecektir. Bölüm altıda yapılan deneysel çalışma değerlendirilerek sonuç ve yorum kısmı açıklanacaktır.

BÖLÜM II

ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Bu bölümde, Termolüminans ve opal kristali hakkında geçmişten bugüne kadar değişik amaçlar ve uygulamalar için yapılmış olan gerek teorik gerekse deneysel çalışmaların literatür taraması yapılmış ve bu çalışmalar arasında çalıştığımız konuya yakın ve ilginç olan konular seçilerek bu çalışmaların içerikleri kısaca verilmiştir.

Habiboğlu C. yaptığı çalışmada, Türkiye'nin Çiçekdağı Masifi, Kırşehir iline bağlı olan Akçakent ilçesinden alınan doğal florit kristalinin termolüminesans özelliklerini incelemiştir. Bunun için florit kristali tavlama yapılmadan farklı ısıtma oranları (3°C/s, 5°C/s, 7°C/s ve 9°C/s) için 5Gy radyasyon verilerek çalışılmıştır. Aynı örneği 200°C, 300°C ve 400°C sıcaklıklarında 15'er dakika tavlamış ve her tavlama sonrasında 5Gy ile 100Gy arasında doz vererek 5°C/s ısıtma oranında TL ışıma tepelerini kaydetmiştir. Farklı bir florit örneğini alarak, 50°C, 100°C, 200°C ve 300°C sıcaklıklarında 15'er dakika tavladıktan sonra 1°C/s, 3°C/s, 5°C/s, 7°C/s ve 10°C/s değişik ısıtma oranlarında 5Gy doz verip TL okumasını yapmıştır. Daha sonra ışıma eğrileri yardımıyla doz-TL şiddeti ile ısıtma oranı-tepe sıcaklığı arasındaki ilişkiye bakarak enerji tuzak parametrelerini belirlemiştir. Doz sayım ilişkisinin sürekli bir lineerlik gösterdiğini gözlemlemiştir. Isıtma oranına bağlı olarak tepe sıcaklığının kayması elektron tuzak derinliklerinin belirlenmesinde bir yöntem olarak kullanılmıştır (Habiboğlu, 2008)

Opal minerali bugüne kadar birçok araştırmacı tarafından teorik ve deneysel olarak araştırılmış ve bu konuda çeşitli bilimsel çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalardan biri Ross L. M. ve ark. tarafından yapılmış olan bazı doğal ve sentetik opallerin termolüminesans çalışmalarıdır. Bu çalışmada kaynakların yaygın bir oranından 30 tane doğal ve sentetik opalin termolüminesansı geliştirilen opal orijininin bir yöntemi olarak geliştirilmiştir. Doğal opal her bir bağlı örneğin yoğunluğuna 230^{o}C, 300^{o}C ve 360^{o}C civarında karşılık gelen TL' yi vermiştir. Opaldeki suyu öne süren silikanın TL' si üzerine çalışmalarda, 230^{0}C tepe noktası için ve tekrar ısınan aynı örneğin üzerinde bazen görülen başka bir TL için sorumlu olduğu görülmüştür. En yüksek 360^{o}C sıcaklığı sadece Avustralya tortu opal alanlarından kaynaklanan opallerle birlikte görülmüştür. Gama radyasyonunun etkisi ve üretilen TL üzerindeki ışığın etkilerinin

geliştirilmesi rapor edilmiştir ve floresan ışığı ile uyarılmış TL' nin kullanımı sentetik ve doğal opal arasında ayırt edilmesinin anlamı olarak önerilmiştir. Sonuç olarak gama radyasyonunun opal TL üzerinde pozitif bir etkiye sahip olmadığı görülmüştür (Ross vd., 1978).

Tsunekawaal S. ve ark. AFM ve SEM gözlemlerini yaparak, fotonik bant aralığını inceleyerek ve CdS nano-parçacıklarını birleştirerek değerli opallerin karakterizasyonunu yapmışlardır. ~200 nm silika küreleri içeren cevher-kaliteli mavi opalleri sentezlemişlerdir ve bir çözelti tekniği yoluyla CdS nanoparçacıklarıyla birleştirmişlerdir. Opalleri CdS ile ve CdS olmaksızın atomik güç mikroskobu, taramalı elektron mikroskobu ve klasik optik spektroskobik ölçümler ile karakterize etmişlerdir. Nano boyutlu materyallerin ve fotonik kristallerin 3-boyutlu dizilişlerinin üretilmesinin mümkünlüğünü bu deneylerle desteklemişlerdir (Tsunekawaal vd., 1997).

Smallwood A.G. ve ark. Forier dönüşümü ile Raman Spektroskopisi yöntemini kullanarak tortulu opalleri karakterize etmişlerdir. Bunun için bir seri opalin Forier Dönüşüm Raman Spektrumunu (FT-Raman) sunmuşlardır. Opallerin merkezi Avustralya olan bir çeşidinden türediği karakterize edilmiştir ve bu opallerin kökeni kuzey Amerika olan opaller ile karşılaştırması yapılmıştır. Opaller Raman spektrumunda geçerli olan kristal morfolojileriyle ayırt edilmiştir. Opaller silika kimyasına bağlı iken; silika polimorfoslarının bir çeşidinin titreşim spektrumunun, spektrumu belirlemek için ve opallerin morfolojisini tanımlamak için kullanılmakta olduğu görülmüştür (Smallwood vd., 1997).

Rybin M.V. ve ark. sentetik opallerdeki yüksek Miller indisi fotonik bandlarını incelemişlerdir. Bir SiO_2 sentetik opalindeki yüksek Miller indisi (hkl) fotonik bandlarının detaylı bir çalışmasını yapmışlardır. Opallerin polarize edilmiş ışık transmisyon spektrumu yüzey merkezli kübik (fcc) yapıdaki Brilloin bölgesi üzerinde bütün yüksek simetri yönleri için geniş bir dalga boyu oranında çalışmışlardır. Yüksek Miller- indisli fotonik bandların dispersiyonu düşük dielektrik karşıtlığının durumları altında fcc örgünün (hkl) kristalografik yüzeylerinden saptırılmış Bragg dalga uzunluğunun hesaplanmış olan bağımlılığı tarafından tanımlanmış olduğu gösterilmiştir (Rybin vd. 2005).

Johnson N.P. ve ark. opal ve indirgenmiş opal fotonik kristallerinin sentezlenmesi ve optik özellikleri üzerine bir çalışma yapmışlardır. Birbirini tamamlayan iki fotonik kristalin sentezlemesini tanımlamışlardır. Opal ve bir titan matrisindeki hava kürelerini ihtiva eden indirgenmiş opallerle çalışmışlardır. Optik ölçümlere bakıldığında ve literatürle karşılaştırıldığında; mekanik kuvvet ve etkili kırıcı indisin, opal ve indirgenmiş opal bileşiğinin sinterlenmesi ile artırıldığı anlaşılmıştır. Bunun [111] yönünde azalan PBG(photonic bandgap)' nin sarf edilmesi ile mümkün olduğu görülmüştür (Johnson vd., 2001).

Tanaka Y. ve ark. opallerin fonon özellikleri hakkında bir çalışma yapmışlardır. Periyodik olarak kümeleşmiş silika küreciklerinden meydana gelen opallerin titreşim özellikleri incelenmiştir. Küreciklerin karakteristik özelliklerini analiz etmek için bir tek kürenin kendine özgü frekanslarının hesaplama işleminden ve kürelerin periyodik olarak kümelenmiş tek bir tabakadan ve daha sonra çoklu tabakalardan birleştirildiği zaman nasıl modüle edilmelerinin hesaplama işleminden başlamışlardır. Teorik olarak bant yapısı deneysel olarak ölçülmüş olan titreşim spektrumu ile kıyaslanmıştır (Tanaka vd., 2007).

Başka bir çalışmada Marina M. L. ve ark. ters opaller içindeki nadir toprak lüminesansının potansiyelini ve sınırlamalarını çalışmışlardır. Güçlü fotonik etkiler sergileyen ters opallerin boşluklarına yerleştirilmiş olan Lüminesans malzemeleri ile işbirliği yapabildiği tespit edilmiştir. Bu durumun geçmişte boya molekülleri için gösterilmiş olduğu aşikarken, literatür incelemesi bu bağlamda nadir toprak elementlerinin potansiyeli üzerinde sadece birkaç deneyi ortaya koymuştur. Sarfedilen gayretler emici özelliklerin spektral ve uzaysal modifikasyonu üzerinde odaklanarak tanımlanmıştır, oysaki yapılan çalışmada karşılaştırılan emilim özelliklerinin çalışması da takip edilmiştir. Ancak, lüminesans türlerinin keyfi birleşimi fotonik etkileri bozabildiği, diğer taraftan temel hazırlama gayretlerinin hem opal sunucularının fotonik özelliklerini hem de katkı atomlarının lüminesans verimliliğini korumasını yapma ihtiyacı olduğu vurgulanmıştır. Yapılan çalışmada, ters dahil edilmiş-opal nadir toprak floritlerinin ve oksifloritlerinin morfolojisi ve verimliliği, ve şu anki verimli iyileştirmeler için bir iç kaplama yöntemini göz önüne alan konular tanımlanmıştır. Buna ek olarak Marina M. L ve ark. bu bağlamda Tb^{3+} ile modifiye edilmiş host

duvarlarından Eu^{3+} katkı atomlarının türlerine kadar enerji transferinin yapılabileceğini gösterebilmişlerdir (Marina vd., 2009).

Brown L. D. ve ark. Avustralya' daki tortulu opallerin termal karakteristiklerini incelemişlerdir. Avustralya' nın üç farklı bölgesinde doğal olarak meydana gelen opallerin ısısal özellikleri incelenmiştir. Tüm opaller kaynaklarına bağlı olarak meydana gelmiş olan genişlemeden daralmaya kadar tüm değişimlerdeki sıcaklığa rağmen termomekanik analizdeki (TMA) daralmayla beraber takip edilmiş olan başlangıçtaki genişlemeyi göstermişlerdir. Termogravimetrik analiz (TG), farklı oranlarda ve bu opallerin dehidratasyon (suyunu kurutan) sıcaklıklarında ortaya çıkmıştır. Dehidratasyon maksimum hızında ve sıfır ısıl genleşmedeki herhangi bir sıcaklık arasında genel bir bağıntı gözlenmiştir. Bir dehidrasyon sinterleme mekanizması toplam dehidrasyonu takip eden daha çok göze çarpmış olan sinterlemenin etkisiyle beraber öne sürülmüştür (Brown vd., 2002).

Cheng-Yu K. ve ark. 3 boyutlu opal ve ters opal yapılarıyla kimyasal algılamaya bağlı durdurma bandı kaymasını incelemişlerdir. Polistiren opalinin, altının ve titanyum ters opal yapılarının kimyasal algılama yeteneği akışkan olan medyanın ve sınır analitlerin kırılma indisi değişkenleri ile ilgili olarak durdurma bandı durumunun hassas tepkisi ile beraber gösterilmiştir. %20, %40 ve %80 alkol çözeltileri polistiren opal yapısında durdurma bandı pozisyonunda 1.5-2 nm ile sürekli yön değiştiği gösterilmiştir. Hassaslık, durdurma bandı durumunun 4,5-6 nm' lik bir kayması için sunucu algılanırken, altın ve titanyum ters opal yapılarını kullanarak geliştirilmiştir. Analitlerin varlığının tespiti altın ters opalin yüzeyi içinde sırasıyla $C_8H_{18}S$ ve $C_{18}H_{38}S$' nin bağlayıcılığı tarafından etkilenmiş olan durdurma bandı durumundaki 3.5 ve 4.5 nm' lik kaymalar tarafından da gösterilmiştir (Cheng-Yu vd., 2007).

Smallwood A. ve ark. sentetik opale yani bir bakış üzerinde 35 yıl başlıklı bir konu hakkında çalışmışlardır. Bu incelemeye göre nadide opal yapısının 1964' deki keşfi, laboratuarda materyalin aynısını yapmak için bilim adamları arasında bir telaşa neden olmuştur. Avustralya da ki CSIRO bu deneylerin en ön sırasındaydı. Aynı zamanda orijinal patentle ilgili işlemler için teknoloji Fransa' da geliştiriliyordu ve Pierre Gilson Laboratuarları ilk ' sentetik' opali üretti. Bu çalışmada Japonya, Rusya ve Çinden gelen sentetik ve emitasyon opallerin son yıllardaki üretimini incelemesinin yanı sıra sentetik

opal imalatının ilk günlerinin tarihini de tekrar gözden geçirmiştir. Gemmolojikal sabitlerin tabloları doğal opalin onlarla karşılaştırılması için sağlanmıştır (Smallwood vd., 2003).

Pallavidino L. ve ark. Silikon tabanlı opallerin sentezlenmesi, karakterizasyonu ve modellemesi üzerine bir çalışma yapmışlardır. Bu çalışmada fcc örgülerin içinde düzenlenmiş olan silika nano küreleri ihtiva eden yapay opaller, oryantasyon ve küre boyutunun iyi kontrol edilmesiyle büyütülmüştür. Böyle yapılar amorf silikon tarafından doyurulmuştur ve zıt işretli yüksek kırınıma sahip fotonik kristalleri elde etmek için düzen içinde olan şablonu ortadan kaldırarak başarılı bir şekilde sunulmuştur. Fotonik band aralığının analizleri taramalı matrix yöntemiyle gerçekleştirilmiş olan yansıma ile olduğu kadar, fotonik bandların hesaplanmasıyla doğrulanmış olan kırınım ve fotolüminesans spektrumu yoluyla da ortaya çıkarılmıştır (Pallavidino vd., 2006).

Güldürek M. Amik Ovası Tell Atçana Höyüğü sur dibi seramiklerinin termolüminesans yöntemiyle tarihlendirilmesi hakkında bir çalışma yapmıştır. Hatay'ın Reyhanlı ilçesinde, Amik Ovası'nda bir höyük olan Tell Atçana kazı alanından çıkarılmış iki seramik örneği termolüminesans yöntemi kullanılarak tarihlendirilmiştir. Çalışılan seramik parçaları için rejenerasyon doz yöntemi ile TL ışıma eğrileri elde edilmiştir. Örnekler için karakteristik olan bu eğriler kullanılarak örneklerin arkeolojik dozları hesaplanmıştır. Daha sonra seramik örneklerinin ait olduğu höyük için çevre dozu hesaplanarak TL yaşı bulunmuştur. Elde edilen TL yaşları 1B örneği için 3457±553 ve 3C örneği için 3486 ± 801 olarak bulunmuştur, bu yaşlar M.Ö. 1453 ve M. Ö. 1482 yıllarına tekabül etmektedir. Bu yaşlar kazı alanı için arkeologların beklediği yaşlar ile uyumlu olup Geç Bronz Çağı'na karşılık gelmektedir (Güldürek, 2006).

Sentetik opaller otuz yıldan daha fazla zaman için kuyumculukta üretilmiş ve kullanılmıştır. Bu anlamda araştırmacı Choudhary ve ark. sentetik ateş opalinin yeni bir modeli olan "Mexifire" ateş opalini tanımlamışlardır. Bu sentetiğin gemolojikal özelliklerinin bazılarının bu doğal ateş opallerine benzediği tespit edilmiştir. Bunun yanında 1.77' den küçük olan bir SG değerinin sentetik orjinin güçlü bir bulgusunu sunduğu gözlenmiştir. Daha ileri bulgular ise değeri 1.40' dan daha düşük olan göreceli RI(relatively low) tarafından ve büyümeyle beraber incelendiğinde taratılmış noktaların

varlığı tarafından sağlandığı da vurgulanmıştır. Benzer özellikler sergileyen Mexifire sentetik opalinin ve doğal ateş opalinin IR spektrumunda 5350–5000 cm^{-1} bölgesinde bir emilim bandı, doğal opallerin bazı spektrumlarında bulunmamış olduğu 4600−4300cm^{-1} aralığında bir tepe, ve yaklaşık olarak 4000 cm^{-1} altında toplam emilim gözlenmiştir(Choudhary vd., 2008).

Yanga L. Y. ve ark. kimyasallar için polianilinin ters opallerinin optik yansımalarını incelemişlerdir. Bu çalışmada, ters opallerin, yüksek spesifik yüzey alanı ve gözenek birleştiricisi gibi sensor uygulamaları için önemli özelliklere sahip olan makro üç boyutlu düzenlenmiş gözenekli materyaller olduğunu ve günümüzdeki makalelerin ethanol, hidrojen klorür ve özellikle yapısal periyodiklikten kaynaklanan optiksel durdurma bantları içinde değişen amonyak için polianilin ters opallerinin optiksel tepkilerini incelediklerini vurgulamışlardır. Taramalı elektron mikroskobuyla yaptıkları inceleme kimyasal olarak sentezlenmiş ters opallerin iyi kalitede olduğunu göstermiştir ve yansıma spektrumlarındaki durdurma bandı uzun-aralık düzenliliğinin ek bir bulgusunu sağlamıştır. Aynı zamanda etanol buharı atomik güç mikroskobu tarafından onaylandığı zaman, ters opallerin yükselmeye sebep olmuş olan boyut değişimleri yüzünden durdurma bandındaki görülebilir kaymalara sahip olduğu gözlemlenmiştir. Ayrıca hidrojen klorür ve amonyak, hem polianilinin değişen protonlaşma derecesinin yeteneğini, hem de özellikle kırılma indisini değiştirmiştir ve bu yüzden 100 nm' den daha fazla kaymalara sahip olan durdurma bandı pozisyonu elde edilmiştir (Yanga vd., 2010).

Weinstein I. A. ve ark. yaptıkları bu çalışmada TLD−500 detektörünün 2.4eV, 3.0eV ve 3.8eV yayılım bantlarında 450K'de temel dozimetrik pikte termolüminesans çalışmışlardır. Termolüminesans (TL) eğrileri, genel derece kinetik denklemleri tarafından yaklaşık olarak D= (10^{-5}−1)Gy dozlarda elde edilmiştir. Aktivasyon enerjisi ve frekans faktörü etkisi arasındaki bağıntı denkliği tüm bantlarda gözlenmiştir. Özellikle lüminesans dozimetride olası uygulamalar dikkate alınmıştır. Sonuçta TLD−500 dozimetrik kristalde TL sürecinin kinetikler üzerindeki etkisi gösterilmiştir (Weinstein vd., 2008).

BÖLÜM III
TEORİ

3.1 Giriş

Bu bölümde, lüminesans, termolüminesans, analiz metotları ve opal kristali hakkında genel bilgiler verilecektir.

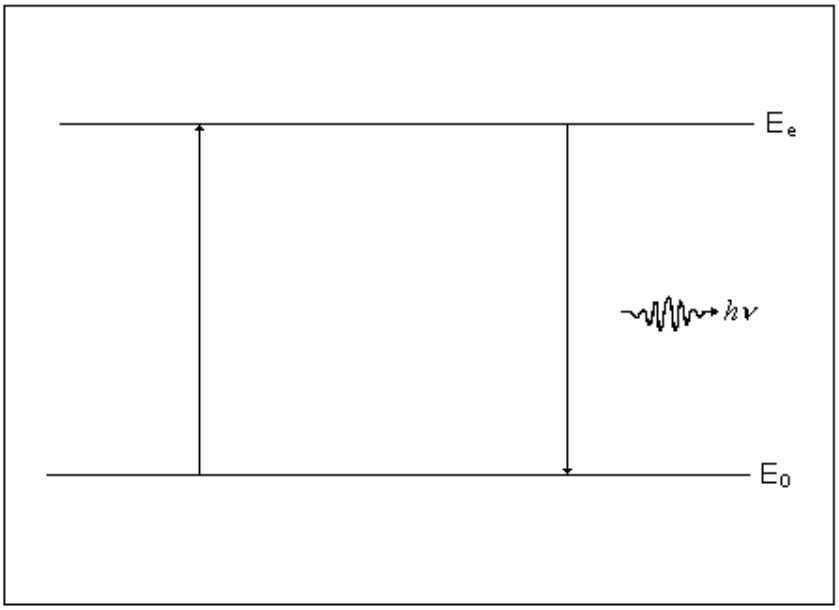
3.2 Lüminesans

Bir cismin herhangi bir şekilde dış bir kaynaktan aldığı enerjinin bir kısmını elektromanyetik ışınım olarak salması olayına lüminesans olayı denir. Bu tanımı daha açık bir hale getirecek olursak; bir maddenin enerji soğurmasıyla uyarılan ve karasız hale geçen atom veya moleküller, kazandıkları bu enerjiyi vererek temel hale dönmek isterler. Bu temel enerji seviyesine dönerken de fazla enerjinin bir kısmını ışık şeklinde dışarıya verirler. Işığın açığa çıkarılmasıyla oluşan bu olaya "lüminesans" denir. Lüminesans olayları cismin uyarılma çeşidine göre sınıflandırılırlar. Çizelge 3.1' de lüminesans olaylarının ve uyarılma metotlarının çeşitlerinden bazıları listelenmiştir(Furetta ve Weng, 1998).

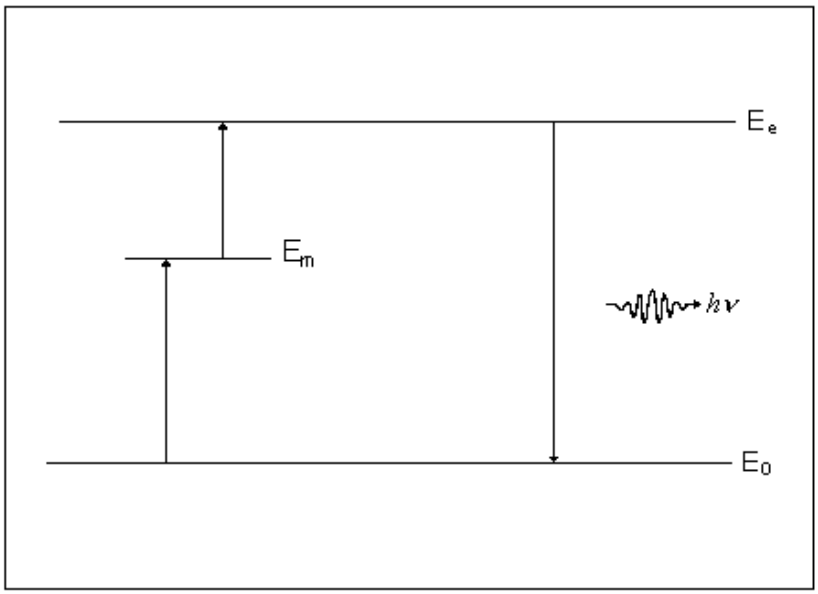
Çizelge 3.1. Lüminesans olaylarının ve uyarılma metotlarının çeşitleri

Lüminesans Olayı	**Uyarılma Metotları**
Sonolüminesans	Ses dalgaları
Fotolüminesans	Optiksel fotonlar (UV, görünür ve IR ışığı)
Radyolüminesans	İyonlaştırıcı radyasyon
Katodolüminesans	Katot ışınları
Elektrolüminesans	Elektrik alanı
Biyolüminesans	Biyokimyasal reaksiyonlardan olan enerji
Kemilüminesans	Kimyasal reaksiyonlardan olan enerji
Tribolüminesans	Sürtünme
Piezolüminesans	Basınç (10 ton m^{-2})
Termolüminesans	İyonlaştırıcı radyasyon, UV, görünür ışık
Floresans	
Fosforesans	

Işığın yayılımı, radyasyon soğurulma sırasında bir karakteristik zaman ile temsil edilen τ_c parametresi ile ifade edilir. Bu parametreler lüminesans sürecinin sınıflandırılmasına izin verir. Dolayısıyla $\tau_c<10^{-8}$ saniye ise floresans ve $\tau_c >10^{-8}$saniye ise fosforesans olarak adlandırılır. Bu olaylar şekil 3.1 ve şekil 3.2' de gösterilmiştir (Garlick, 1949; Curie, 1960).

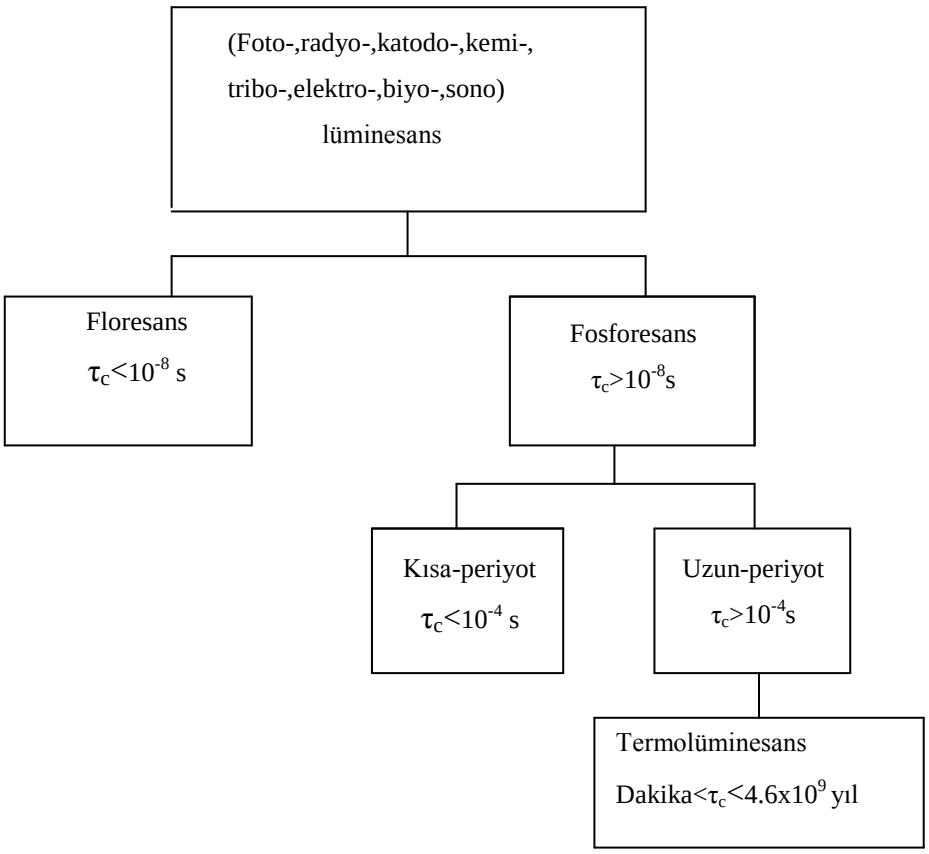


Şekil 3.1. Floresans olayı



Şekil 3.2. Fosforesans olayı

Uyarma ve yayım arasındaki gecikme τ_c, floresans ve fosforesansı ayırırken lüminesans terimindeki örnek uyarma modlarını da ayırır. Bu durum şekil 3.3' de lüminesans olayının soy ağacında gösterilmektedir.

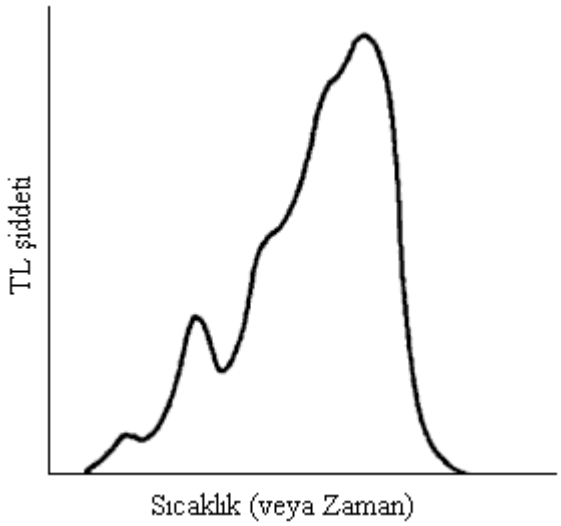


Şekil 3.3. Lüminesans olayının soy ağacı

Buradaki τ_c parametresi:
$\tau_c = s \exp (E/k_\beta T)$ ile ifade edilir.

3.3 Termolüminesans

Işınlamalar sırasında yalıtkanlar veya yarı iletkenler enerji soğururlar. Daha sonra ısıtılan yalıtkan veya yarı iletken malzemede depolanan enerji ışık olarak yayımlanır. Bu olay Termolüminesans Olay (TL) olarak tanımlanır. TL işlemi süresince sıcaklığının fonksiyonu olarak malzemeden yayımlanan ışığın miktarının grafiği 'TL parıldama eğrisi ' olarak bilinir. Bu eğri Şekil 3.4' de verilmiştir.



Şekil 3.4. TL parıldama eğrisi

Bir malzemenin termolüminesans deneyi yapılırken, farklı durumlar içerisinden alınan parıldama eğrilerinden bir grafik elde edilir. TL parıldama eğrilerinin analiz ve ölçümlerinin doğruluğu materyal için TL işleminin tanımlanmasında kullanılan, birkaç parametreye bağlıdır. Bu parametreler aşağıda verilmiştir.

E: Aktivasyon enerjisi veya tuzak derinliği (eV)

K: Boltzman sabiti (eV K^{-1})

t: Zaman (s)

T: Absorblanma sıcaklığı (K)

β : Lineer ısıtma oranı (K s^{-1})

T_0: t=0 K anındaki sıcaklık

N: Toplam konsantrasyonu (m^{-3})

n: t anında tuzaklanmış elektronların konsantrasyonu (m^{-3})

b: Kinetik derece, 1 ile 2 arasında değişen bir parametre

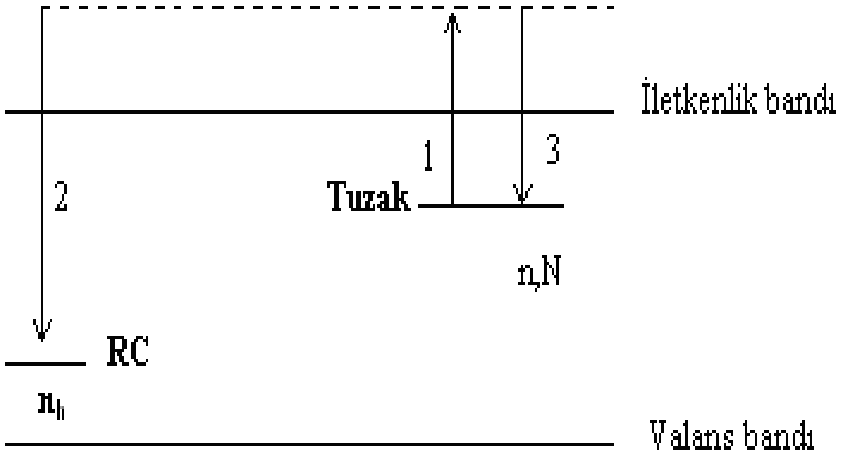
s': Genel derece kinetikleri için etkin üstel faktör olarak adlandırılır ($m^{3(b-1)}s^{-1}$)

s: Elektron tuzağını karakterize eden sabit, 'üstel frekans faktörü' veya 'kaçma olasılığı frekansı (s^{-1})' olarak adlandırılır.

3.3.1 Basit Termolüminesans Modeli

Işık yayılım sürecinde oluşan en basit olası model iki seviye arasında yer alır. Bunlar izole edilmiş bir elektron tuzağı (T) ve bir birleşme merkezi (RC)' dir. Bu bir tuzaklanma olan birleşme merkez modeli olarak tanımlanır (OTOR).

Tuzaklanma esnasında belirtilen parametreler**,** N kristaldeki tuzakların toplam konsantrasyonu (m^{-3}), n(t) kristaldeki dolu tuzakların konsantrasyonu (m^{-3}), t zaman, ve $n_h(t)$ birleşme merkezindeki boşluk tuzaklarının konsantrasyonudur (m^{-3}). Dolu tuzakların başlangıç konsantrasyonu da t=0 anında n_0 olarak ifade edilir.



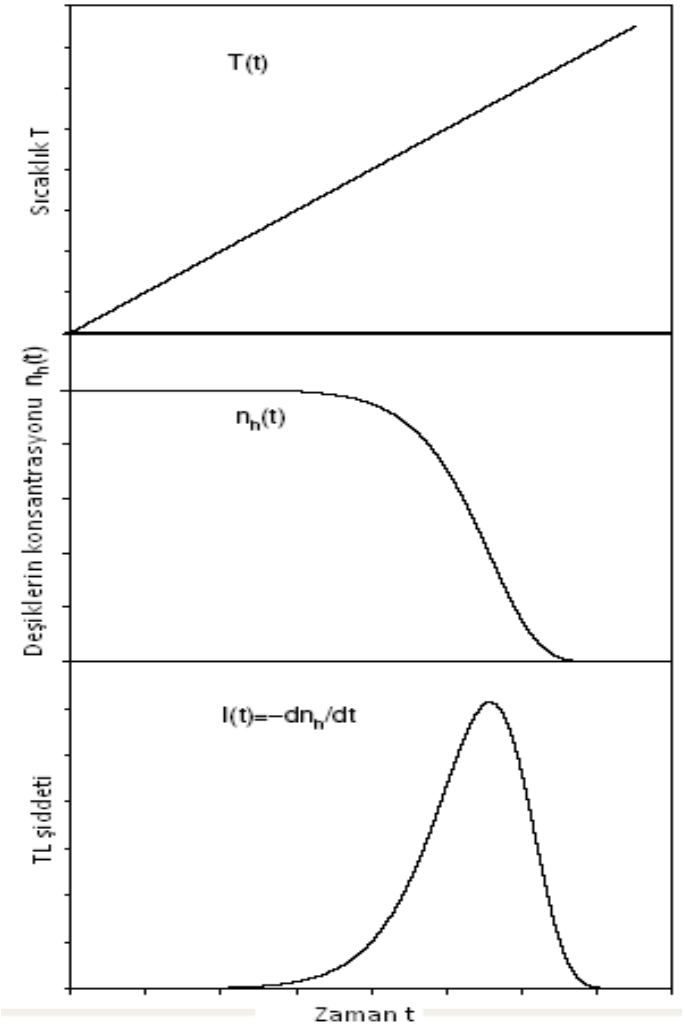
Şekil 3.5. Termolüminesans işlemi için iki basamaklı basit model

Şekil 3.5'te termolüminesans işlemi için iki basamaklı basit model gösterilmiştir. Bir malzeme oda sıcaklığından 500^0C ye kadar lineer bir şekilde ısıtılırsa ısıtma oranı $\beta = dT/dt$ ile ifade edilir. Tuzaklanmış elektronlar malzeme sıcaklığı arttığından termal olarak iletkenlik bandına doğru salınır (şekil 3.5 geçiş 1). İletkenlik bandında bulunan elektronlar ise 2 durumla karşılaşırlar. Ya birleşme merkezindeki hollerle birleşirler (şekil 3.5 geçiş 2) ya da elektron tuzaklarında yeniden tuzaklanırlar (şekil 3.5 geçiş 3).

Birleşme merkezindeki elektron ve hollerin birleşme oranı yayılan ışığın şiddeti olarak ifade edilir. Bu ifade:

$$I(t) = -dn_h/dt \qquad (3.2)$$

ile gösterilir. Deney süresince lineer ısıtma oranı β kullanıldığında, numune sıcaklığındaki artma T, ışığın yayılım şiddeti I(t) ve hol tuzaklarının konsantrasyonundaki azalma n_h'ın zamana bağlı olarak değişen grafikleri 3.6' da şekilde gösterilmiştir.



Şekil 3.6. t zamanının bir fonksiyonu olarak RC birleşme merkezinde sıcaklık görüntüsü T(t), boşluk tuzaklarının konsantrasyonu $n_h(t)$ ve termolüminesans şiddeti I(t)

3.4 Birinci, İkinci ve Genel Derece TL Kinetikleri İçin İfadeler

Termolüminesansın keşfinden sonra birçok araştırmacı termolüminesans üzerinde araştırmalar yapmış ve çeşitli denklemler elde etmişlerdir. Ama en önemli ilerleme Randall ve Wilkins (1945) tarafından yapılmıştır. Daha sonra yapılan çalışmalarda ise Garlick−Gibson (1948) ve May-Partridge (1964) tarafından yapılmıştır. Daha sonra yapılan çalışmalarda ise Garlick-Gibson ve May-Partridge tarafından çeşitli denklemler elde edilmiştir. Bunlar sırasıyla birinci, ikinci ve genel denklemlerdir.

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = nse^{-E/kT} \tag{3.3}$$

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = \frac{n^2}{N}se^{-E/kT} \tag{3.4}$$

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^b s'e^{-E/kT} \tag{3.5}$$

3.4.1 Birinci dereceden kinetik ifade

Randall ve Wilkins yaptıkları çalışmalarda tuzaklardan kurtulan elektronların tekrar tuzaklanmadığını varsayarak birinci mertebe ışımayı (tek moleküler model) dikkate alan TL teorisini kurmuştur. Yani birinci dereceden TL ifadesini oluşturmuşlardır. Buna göre herhangi bir sıcaklıkta, TL şiddeti I, doğrudan tuzaktan kurtulan elektronların sayısı ile orantılı olacaktır.

$$I(t) = -c(\frac{dt}{dn}) = c\ ln\ n \tag{3.6}$$

Burada c bir sabit ve 1 olarak alınabilen sayıdır.

$$n = n_0 exp\left[-st\ exp\left(-\frac{E}{k_\beta T}\right)\right] \quad \text{ve} \quad P = s\ exp\left(-\frac{E}{k_\beta T}\right)$$

eşitliğini göz önüne alırsak ve bunları 3.6 denkleminde yerine yazarsak:

$$I(t) = n_0 s\, exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\, exp\left[-st\, exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right] \quad (3.7)$$

olur.

(β= dT/dt) lineer ısıtma hızını kullarak

$$\int_{n_0}^{n} \frac{dn}{n} = -\frac{s}{\beta}\int_{t_0}^{t} s\, exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dt \quad (3.8)$$

Denklemi tekrar düzenlersek;

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

olur.

Eşitlik düzenlenirse

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

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

olmuş olur.

Bulduğumuz n ifadesini 3.6 denkleminde yeniden yazarsak

$$I(T) = n_0 s\, exp\left(-\frac{E}{kT}\right) exp\left[-\frac{s}{\beta}\int_{T_0}^{T} exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right] dT' \quad (3.9)$$

bulunan bu son ifadeye Randall ve Wilkins formülü denir. Bu formül Termolüminesans ışıma eğrisinin, E ve s gibi tuzak parametrelerine, tuzaklanmış elektronların n_0 sayısına,

sıcaklık (T) ve ısıtma hızı (b) gibi deney parametrelerine bağlayan Randall ve Wilkins'in(1945) birinci mertebe TL ışıma şiddeti bağıntısıdır.

T=T_M 'de $\frac{dI}{dT} = 0$ alınırsa, önemli bir ilişki elde edilmiş olur. Burada logaritmik türev ele alınırsa;

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

olur.

Buna göre 3.9 eşitliğinin logaritmasını alırsak;

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

olur. Böylece;

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

elde edilmiş olur. Bu sonuçtan da

$$\frac{\beta E}{kT_M^2} = s\, exp\left(-\frac{E}{k_\beta T}\right) \qquad (3.10)$$

Bu ifadede yer alan T_M, ışıma eğrisinin en büyük değerine karşılık gelen sıcaklıktır. Kristalin ısıtma hızı arttırıldığında, T_M'nin yüksek sıcaklıklara kaydığı saptanmıştır (Ausin vd., 1972)

- E artarsa veya s azalırsa T_M yüksek sıcaklıklara doğru kayar.
- E, s ve b 'nın sabit değerleri için tepenin maksimum yüksekliği, alınan radyasyon doz miktarının ölçüsü olarak kullanılabilir.
- T_M ve b ölçülerek s ve E değerleri hesaplanabilir.
- Toplam ışık miktarına S dersek, S ifadesini aşağıdaki gibi yazabiliriz;

$$s = \int_0^\infty I dt = -c \int_0^\infty \frac{dn}{dt} dt = -c \int_{n_0}^0 dn = c n_0 \quad (3.11)$$

Böylece, S, tuzaklanmış yüklerin başlangıçtaki sayısı ile orantılıdır ve ısıtma dizisinden bağımsızdır.

3.4.2 İkinci dereceden kinetik ifade

Tuzaklardan çıkan elektronların yeniden birleşme olasılığının, tekrar tuzaklanma olasılığına eşit olduğu varsayımından yola çıkan Garlick ve Gibson(1948), Randall ve Wilkins (1945) modelinde enerji ve frekans faktörü belirleme yönteminde farklı yöntemler izleyerek hesaplamalar yapmışlardır. İkinci dereceden kinetik ifadesi, yeniden tuzaklanmanın baskın olduğu bir durumu tanımlamak için kullanılır. Bu durumda aşağıdaki matematiksel ifade geçerlidir:

$$\frac{dn}{dt} = -n^2 s \, exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.12)$$

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

Eşitlik 3.12' nin, sabit T sıcaklığında integralini alırsak.

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

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

$$n = n_0 \left[1 + s' n_0 t \, exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]^{-1} \quad (3.13)$$

elde edilir.

Buradan, I(T) ışık şiddeti:

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = n^2 s' \, exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

$$= \frac{n_0^2 s' exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + s' t n_0 exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]} \tag{3.14}$$

olur. Eğer dt= dT/ β alınırsa

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

olur. Böylece

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

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

$$n = n_0 \left[1 + \left(\frac{s' n_0}{\beta}\right) \int_{T_0}^{T} exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-1} \tag{3.15}$$

Tekrar I(T) ışık şiddetini düzenlersek;

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

$$I(T) = \frac{n_0^2 s' exp\left(-\frac{E}{kT}\right)}{\left[1 + \frac{s' n_0}{\beta} \int_{T_0}^{T} exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]} \tag{3.16}$$

elde edilir.

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

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

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

olur. Buradan da

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

oluşur. Bu denklem yeniden düzenlenirse;

$$\frac{\beta E}{2kT_M^2}\left[1 + \frac{s' n_0}{\beta}\int_{T_0}^{T_M} exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right] = s' n_0 exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) \quad (3.17)$$

eşitlik 3.17, eşitlik 3.10'ten aşağıdaki faktör ile ayrılır.

$$\frac{1}{2}\left[1 + \frac{s' n_0}{\beta}\int_{T_0}^{T_M} exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right] = \frac{s' n_0}{s} \quad (3.18)$$

Sabit bir E değeri için b arttıkça veya s' azaldıkça T_M artar. Sabit bir b değeri için T_M, E ile doğru orantılı bir sonuç verir. İkinci derece kinetiğin olduğu durumlarda, T_M %1'lik artış gösterir.

3.4.3 Genel mertebeden kinetik ifade

Deneysel yöntem ile çalışan ve genel mertebe kinetiği adı verilen TL teorisi, Randall ve Wilkins'ın birinci mertebe ışıması ile Garlick ve Gibson'ın ikinci mertebe ışıması dikkate alınarak kurulan TL teorilerinden yararlanılarak, birinci ve ikinci mertebe teorik çalışma eğrilerine deneysel ışıma piklerinin uymadığı durumlarda kullanılmak üzere geliştirilmiştir. Genel mertebeden kinetik tuzakların enerji seviyelerinin tek olduğu düşüncesi ile ele alınır. Tek bir enerji seviyesinde bulunan yük taşıyıcılarının n sayısının, nb ile orantılı olduğunu varsayalım. Tuzaklardan kurtulma olasılığını, May ve Padridge (1964) daha sonra V.Ausin ve arkadaşları (1972):

$$\frac{dn}{dt} = s'' n^b exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \tag{3.19}$$

eşitliğini elde etmişlerdir.

Eşitlik 3.19, genel mertebeden kinetik olarak adlandırılır. Birinci ve ikinci mertebe kinetikler için b sabiti sırasıyla 1 ve 2 değerlerini almaktadır. Genel mertebe kinetik durumunda ise b, 1 ile 2 arasında herhangi bir değer alabilir (Fleming, 1968; Keating, 1961). Burada s^n, ön−üstel faktördür. s^n ön-üstel faktörü, $cm^{3(b-1)}s^{-1}$ boyutunda ifade edilir. $s^{n'}$ nün boyutları b mertebesi ile değişir. b=2 olduğunda, s'', s'' ne indirgenir. 3.19 eşitliğinden termolüminesans (TL) yayınımını açıklayan ifadeyi elde edebiliriz.

Eşitlik 3.19'u tekrar düzenlersek:

$$\frac{dn}{n^b} = -s'' exp\left(-\frac{E}{kT}\right) dt \tag{3.20}$$

olur. 3.20 eşitliğin integralini alırsak:

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

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

$$n = n_0 \left[1 + s''(b-1)texp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.21)$$

olur.

$$s = s'' n_0^{b-1} \quad (3.22)$$

s' nin birimi saniye^{-1} dir. Verilen bir doz için s sıklık faktörü sabittir. Fakat doz değişken olduğunda s' de değişir. Bundan dolayı, I(t) ışınım şiddeti,

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

$$= s n_0 exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\left[1 + s(b-1)texp\left(-\frac{E}{kT}\right)\right]^{\frac{1}{1-b}} \quad (3.23)$$

olur. Kristali ısıtma hızını dT= βdt varsayarsak, eşitlik 3.23'den

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

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

aşağıdaki eşitlikleri elde ederiz.

$$n = n_0\left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta}\int_{T0}^{T} exp\left(-\frac{E}{kT'}\right)dT'\right]^{-\frac{1}{1-b}} \quad (3.24)$$

elde edilir. Buradan termolüminesans ışıma şiddeti I(t),

$$I(t) = sn_0 exp\left(-\frac{E}{kT}\right)\left[1 + \frac{s(b-1)}{\beta}\int_{T0}^{T} exp\left(-\frac{E}{kT'}\right)dT'\right]^{-\frac{b}{b-1}} \quad (3.25)$$

olarak elde edilir.

I(t)'nin logaritmasını alırsak

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

olur. Bu eşitliğin T' ye göre türevini alıp sıfıra eşitlersek

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

dir. Buradan da,

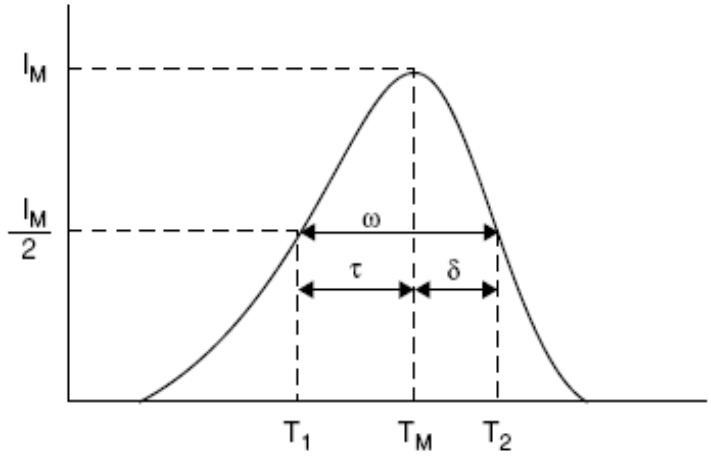
$$\frac{kT_M^2 bs}{\beta E} exp\left(-\frac{E}{kT_M}\right) = 1 + \frac{s(b-1)}{\beta}\int_{T_0}^{T_M} exp\left(-\frac{E}{kT'}\right)dT' \quad (3.26)$$

Sonuçta, Eşitlik 3.25, Eşitlik 3.16'de verilen ikinci mertebeden (b=2) kinetikteki sonucu içerir. b=1 durumu için geçerli olmayan 3.15 denklemi b→1 giderken, Eşitlik 3.9'a indirgenir.

Eşitlik 3.19, tamamen deneysel bir sonuçtur. Eşitlik 3.10, n_0 başlangıç yoğunluğunu içermez. Bu nedenle, birinci dereceden tepe noktasının, ışıma dozlarının bir fonksiyonu olarak değişmesi beklenemez. Eşitlik 3.17 ve 3.26'den b ≠1 durumunda, s, n_0 'a bağlı olduğu için T_M'nin, uyarılma dozuna bağlı olduğu bilinir.

3.5 Parıldama Pikinin Şekline Dayanan Analiz Metotları

TL çözümlemelerinde kullanılan metotlardan biride parıldama pikinin şekline dayanan analiz metotlarıdır. Burada E, s ve b kinetik parametrelerini anlamak için bir TL parıldama eğri analiz metodunda pikin şekli veya geometrik özellikleri dikkate alınır. Birinci derece pikler asimetrik olmasına rağmen, ikinci derece kinetiklere bağlı TL parıldama pikleri, yaklaşık bir simetri şekli tarafından karakterize edilir. Bu parametreler aşağıdaki şekilde gösterildiği gibi tanımlanır.



Şekil 3.7. Geometrik şekil büyüklükleri τ ,δ ,ω

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

$\delta = T_2 - T_M$ parıldama pikinin artan sıcaklık kısmındaki yarı genişlik

$\omega = T_2 - T_1$ toplam yarı genişlik

$\mu = \delta / \omega$ geometrik şekil ya da simetri faktörü olarak isimlendirilir.

E tuzak derinliğini hesaplamak için parıldama pikinin şeklini ilk kullanan Grossweinerdir(1953). Bu metot maksimum şiddetin T_M sıcaklığına ve yarı şiddetin düşük sıcaklık bölgesindeki T_1 değerlerine bağlıdır. Birinci derece kinetikler varsayılarak aşağıdaki denklem elde edilir.

$$E = 1.51\, k \frac{T_M T_1}{T_M - T_1} \qquad (3.27)$$

Aynı zamanda Lushchik (1956) hem birinci hem de ikinci derece kinetikler için TL parıldama pikinin şekline dayanan bir metot önerdi. Burada parıldama piki yaklaşık olarak bir üçgen şekli olarak düşünülebilir ve δ parametresi tanımlanır.

$$E = \frac{kT_M^2}{\delta} \tag{3.28}$$

İkinci derece kinetik durum için Lushchik formülü;

$$E = \frac{2kT_M^2}{\delta} \tag{3.29}$$

Chen (1969a), E değerinin daha iyi hassasiyet verebilmesi için (3.28) denklemini 0,978 ve (3.29) denklemini 0,853 çarparak, verilen iki denklemi düzenledi. Daha sonra Halperin ve Braner(1960) parıldama piki üzerinde hem T_1 hem de T_2 sıcaklığını kullanarak farklı bir yaklaşım verdiler.

Birinci derece için;

$$E = \frac{1.72}{\tau} kT_M^2(1 - 2.58\Delta_M) \tag{3.30}$$

İkinci derece için;

$$E = \frac{2}{\tau} kT_M^2(1 - 3\Delta_M) \tag{3.31}$$

denklemlerini verdiler. Burada $\Delta_M = 2kT_M/E$ dir. Halperin ve Braner 'in denklemleri E'ye bağlı Δ_M'nin varlığından dolayı E bulmak için tekrar eden bir süreç gerektirir. Chen (1969a) var olan bu zorluğun üstesinden gelmek için, bir yeni yaklaşıklık metodu önerdi ve aşağıdaki ifadeler elde edildi.

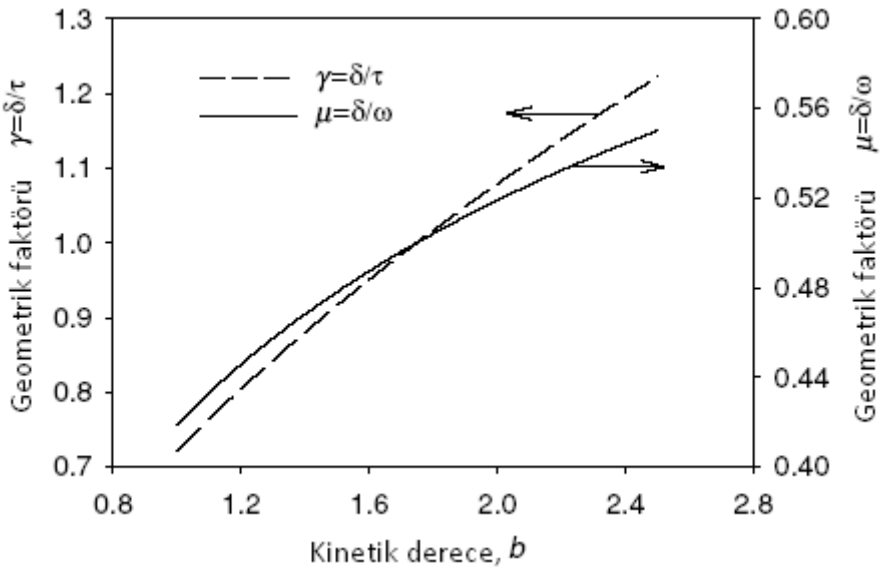
Birinci derece için;

$$E = 2kT_M\left(1.25\frac{T_M}{\omega} - 1\right) \tag{3.32}$$

İkinci derece için;

$$E = 2kT_M\left(1.76\frac{T_M}{\omega} - 1\right) \tag{3.33}$$

Chen (1969b), E'nin hesaplanması için genel ifadeler tanımlar. Bu metoda göre $0.1\ eV - 2.0\ eV$ arasındaki geniş enerji oranı için ve $10^5\ s^{-1} - 10^{23}\ s^{-1}$ arasındaki exponansiyel faktör değeri için de kullanılır.



Şekil 3.8. Kinetik derece b ve geometrik faktörler $\mu = \delta/\omega$ ve $\gamma = \delta/\tau$ arasındaki bağıntı (Chen, 1969b).

Bu metot herhangi bir tekrarlama yöntemi ve kinetik derece ile ilgili bilgi vermez. Pik şekli kullanılarak, μ simetri faktörü bulunur. Bu denklem aşağıdaki şekilde özetlenebilir.

$$E_\alpha = c_\alpha\left(\frac{kT_M^2}{\alpha}\right) - b_\alpha(2kT_M) \tag{3.49}$$

Burada α ; τ , δ veya ω 'dir. c_α'nın ve b_α 'nın değerleri aşağıdaki gibi özetlenir.

$$\begin{aligned} c_\tau &= 1.510 + 3.0(\mu - 0.42) & b_\tau &= 1.58 + 4.2(\mu - 0.42) \\ c_\delta &= 0.976 + 7.3(\mu - 0.42) & b_\delta &= 0 \\ c_\omega &= 2.52 + 10.2(\mu - 0.42) & b_\omega &= 1 \end{aligned} \tag{3.50}$$

Birinci derece TL parıldama pikleri için μ = 0.42 ve ikinci derece pikler için μ = 0.52 olarak alınır. b'nin 0.7 ve 2.5 arasındaki değerleri için 0.36 'dan 0.55'e kadar μ'nün bir grafiği hesaplanır (Chen, 1969b). Bir başka grafik Balarin (1979) tarafından önerildi. Şekil 3.8' de $\gamma = \delta/\tau$ parametrelerinin bir fonksiyonu olarak kinetik dereceleri verilir.

3.6 X-Işınları ve Özellikleri

X-ışınları yüksek enerjili elektronların yavaşlatılması veya atomların iç yörüngelerindeki elektron geçişleri ile meydana gelen dalga boyları 0.1-100Å arasında değişen elektromanyetik dalgalardır. X-ışını doğadaki görünür ışık yada radyo dalgalarına benzeyen bir elektro manyetik ışınım biçimidir. Öbür ışınım türleri gibi X−ışınları da, boşlukta (vakumda) yol alabilen ve ancak bazı maddelerin içinden geçebilen enerji dalgalarından oluşur. X-ışınları gözle görülemez ve elektro manyetik tayfın morötesi ışınları ile gamma ışınları arasında kalan kesiminde yer alırlar. X-ışınları 1895'te, Alman bilim adamı Wilhelm Conrad Röntgen tarafından keşfedildi. Bu yüzden bu ışınlara Röntgen ışınları da denir.

X-ışınlarının frekansı görünür ışığın frekansından ortalama 1000 defa daha büyüktür ve X-ışını fotonu (parçacığı) görülen ışığın fotonundan daha yüksek enerjiye sahiptir. Gama ışınları, X-ışınları ve radyo dalgaları, ışık, elektromanyetik radyasyonun bir yapısıdır. Tanecik karakteri gösteren elektromagnetik radyasyona da foton denir.

X−ışınları hem dalga hem tanecik özelliği gösterirler. Dolayısıyla çift karakterlidirler.

- Tanecik özellikleri; Fotoelektrik soğurulma, Compton saçılması (inkoherent saçılma), gaz iyonizasyonu ve sintilasyon.
- Dalga özellikleri; Hız, polarizasyon ve Rayleigh saçılması (koherent saçılma).

3.7 X-Işının Oluşumu

X-ışınları, doğal X-ışınları ve yapay X-ışınları olmak üzere iki şekilde meydana gelir.

3.7.1 Doğal X-ışınları

Atom çekirdeği tarafından K enerji kabuğundan elektron yakalanması, alfa bozunumu, iç dönüşüm ve beta bozunumu olaylarıyla meydana gelir.

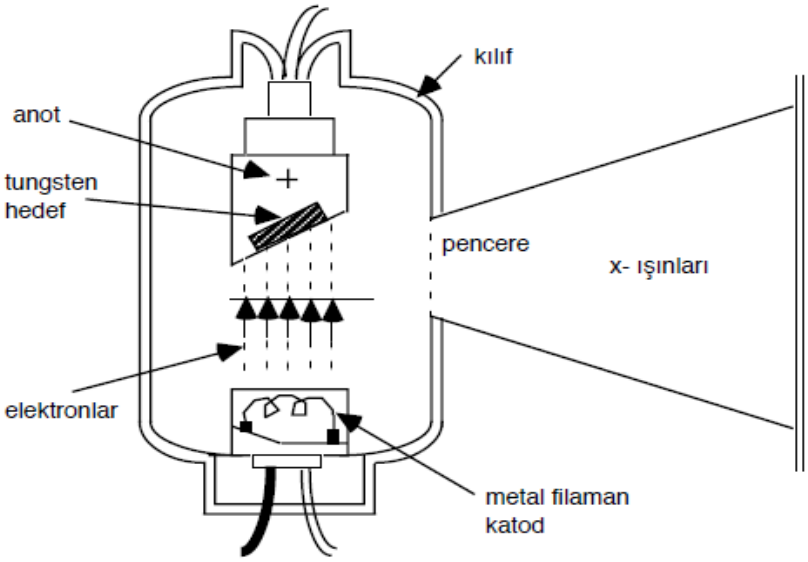
Bir atoma dışarıdan gelen veya gönderilen yüksek enerjili elektronlar o atomun ilk halkalarından elektronlar koparırlar. Atomdan kopan bu elektronun yerine daha yüksek seviyelerden (üst halkalardan) elektronlar atlayarak kopan elektronun yerindeki boşluğu doldururlar. Bu sırada ortaya çıkan enerji fazlalığı X-ışını şeklinde dışarı salınır. Çekirdek içerisinde bulunan protonlardan bir tanesi hareketi esnasında atomun ilk halkalarındaki elektronu yakalar ve nötrleşir. Yakalanan bu elektronun halkasındaki boşalan yere diğer bir halkadan bir elektron atlamasıyla X-ışını meydana gelebilir.

3.7.2 Yapay X-ışınları

Maddenin; elektron, proton, parçacıkları veya iyonlar gibi hızlandırılmış parçacıklarla etkileşmesinden ya da X-ışını tüpünden veya başka bir uygun radyoaktif kaynağından çıkan fotonlarla etkileşmesinden meydana gelir. Maddenin, fotonlarla etkileşmesinden karakteristik (çizgi) X-ışınları, yüklü parçacıklarla etkileşmesinden hem karakteristik hem de sürekli X-ışınları elde edilir.

3.8 X-Işını Tüpü

X-ışını tüpü yüksek voltajlı bir katot ışını tüpüdür. Tüp yüksek vakumda havası boşaltılmış cam bir kılıftan oluşmuştur. Bir ucunda anot (pozitif elektrot), diğer ucunda katot (negatif elektrot) bulunur ve bunların her ikisi de lehimle sıkıca mühürlenmiştir.



Şekil 3.9. X-ışını tüpü

Katot, ısıtıldığında elektron salan tungsten materyalinden yapılmış bir flamandır. Anot, kalın bir çubuk ve bu çubuğun sonundaki metal hedeften oluşur. Anot ve katot arasına yüksek voltaj uygulandığında katot flamanda elektron yayınlanır. Bu elektronlar yüksek gerilim altında anoda doğru hızlandırılır ve hedefe çarpmadan önce yüksek hızlara ulaşır. Yüksek hızlı elektronlar metal hedefe çarptıklarında enerjilerini aktararak bir foton yayınlanır. Oluşan X-ışını demeti cam zarfın içindeki ince cam pencereden geçer. Bazı tüplerde tek dalga boylu X-ışını elde etmek için filtre kullanılır.

3.9 X-Işınları Kırınımı ile Kristal Yapıların Tayini

Kristallerde X-ışını kırınımı ve diğer kırınım (elektron ve nötron kırınımı) teknikleri ile sağlanan bilgiler şunlardır:

- Kristalin yapısını belirleme
- Kristalin mükemmelliği veya fazın saflığını belirleme
- Kristalin doğrultularını belirleme
- Kristalin örgü sabitlerini belirleme

Günümüzde kristallerde kırınım, kristal yapıların hemen hemen hepsinin yapısının biliniyor olması sebebiyle, kristalin mükemmelliği ve doğrultularının belirlenmesinde kullanılmaktadır.

3.10 X- Işınlarının Madde ile Etkileşimi

Elektromagnetik enerjiler kendi dalga boylarına yakın maddelerle etkileşime girerler. X-ışınları da 10^{-9}-10^{-10} m dalga boyları ile atom ve subatomlar (atom alt parçacıklar) ile etkileşirler. X-ışını enerjisi;

- Düşük: atomun tümüyle (foto elektrik olay)
- Orta: yörünge elektronları ile (compton saçılması)
- Yüksek: çekirdekle etkileşir (çift oluşumu

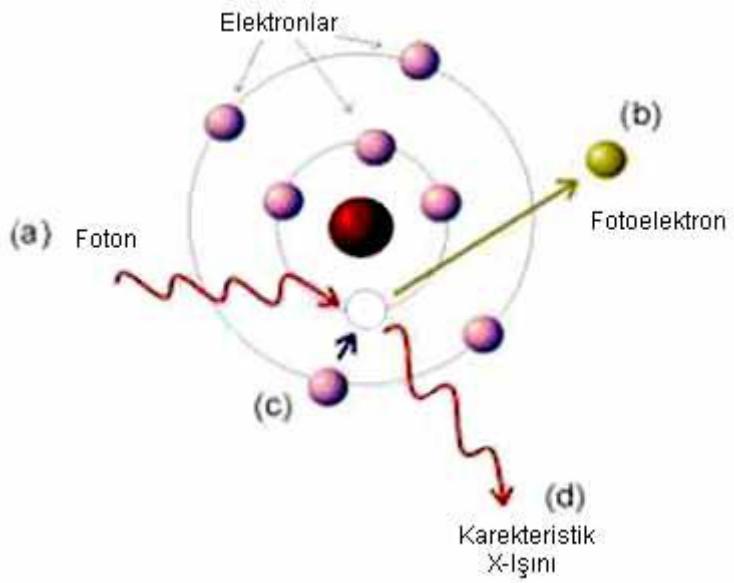
Bu etkileşimler sonucu X- ışını fotonları ya absorbe edilerek tamamen kaybolur ya da yönleri değişerek saçılmaya uğrarlar. Çizelge 3.2' de X- ışınlarının genel özellikleri ile madde etkileşmesi gösterilmektedir.

Çizelge 3.2. X-ışınlarının genel özellikleri ve madde etkileşmesi

Genel Özellikler	**Etkileşme sonucu maddeden çıkan tanecik**
Sürekli spektrum verir. Çizgi spektrum verir. Işık hızı ile yayılır. Doğrular halinde yayılır. Elektrik ve magnetik alandan etkilenmezler.	İyon Fotoelektron Auger elektronu Geri tepme elektronu Elektron pozitron çifti
Yapabileceği fiziksel olaylar	**X-ışını soğurmasının kalıcı sonuçları**
Transmisyon Kırılma Yansıma Polarizasyon Koherent saçılma İnkoherent saçılma Fotoelektrik olay	Radyasyon tahribatı Sıcaklık artması Fotoelektrik iyonizasyon Genetik değişme Hücrenin ölümü

3.10.1 Fotoelektrik etki

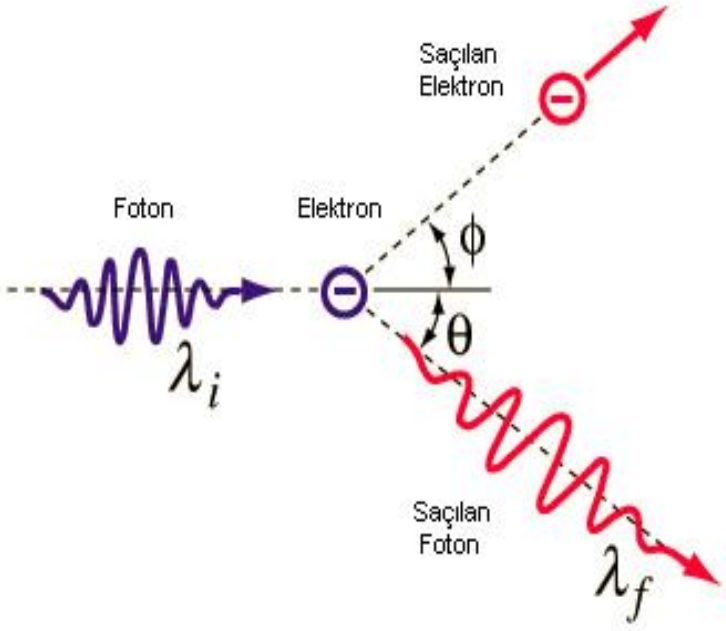
Fotoelektrik etkide, X-ışın fotonu bir yörünge elektronuyla çarpışır ve toplam bir şekilde elektron tarafından soğurulur. Elektron kabukta bir boşluk yaratacağından atomdan çıkarılır. Çıkarılan elektron kinetik enerjisini kaybedene kadar iyonlar yaratarak diğer atomlarla etkileşir. Dış kabuktan düşen atomdaki elektronlar karakteristik foton yapısındaki iç kabuktaki boşluğu doldurur. Fotoelektrik soğurma 10keV aşağısındaki enerjiyle X-ışın fotonunda en etkili şekilde meydana gelir.



Şekil 3.10. Fotoelektrik etki

3.10.2 Compton saçılması

Compton saçılması bir yörünge veya serbest elektrondan bir X-ışın fotonu saçıldığında oluşur. Fotoelektrik sürecin aksine, sadece foton enerji kısmı elektrona aktarılır. Elektron atomdan çıkarılır ve X-ışın fotonu enerjisi azalarak saçılır.



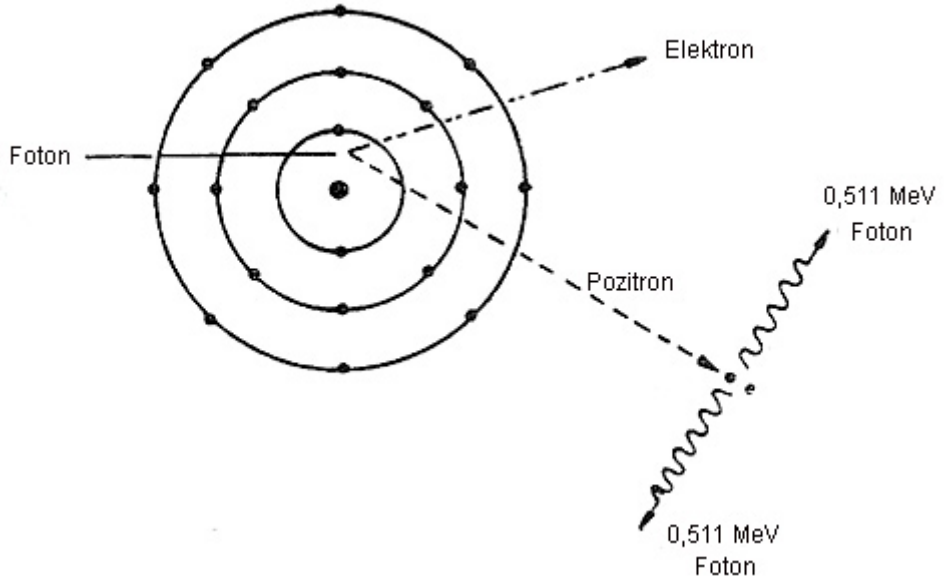
Şekil 3.11. Compton saçılması

Bu saçılan fotona ek olarak Compton veya Fotoelektrik süreç tarafından yörünge elektronlarıyla sürekli etkileşirler. Compton saçılmasının olasılığı X-ışın fotonun artmasıyla enerji olarak artar. Fotoelektrik ve Compton çarpışmaları boyunca etkileşimin yaklaşık olarak 35keV olma olasılığına eşittir.

3.10.3 Çift oluşumu

X-ışınının madde ile olan üçüncü etkileşme mekanizması, çift oluşumudur. Bu olayın gerçekleşebilmesi için X-ışının minimum 1.02MeV bir enerjiye sahip olması gerekir. Çift oluşumunda, bir foton çekirdek etrafında elektrik alanıyla etkileşir ve bir elektron ve pozitronun (pozitif elektron) yaratılmasıyla maddeye geçer.

Pozitron iki 0.511MeV gama fotonları (radyasyon ortadan kaldırıldığında) yaratarak, bir elektronla etkileşerek mikrosaniyede (μs) yok olur. Bu fotonlar Compton ve Fotoelektrik çarpışmalar tarafından maddeyle etkileşir.



Şekil 3.12. Çift oluşumu

Yani fotonun enerjisi yeteri kadar büyük ise ve bu foton atom çekirdeğinin çok yakınından geçerse, kütlesi olmayan fotonun enerjisinden çekirdek yakınında aynı anda biri negatif yüklü elektron diğeri pozitif yüklü pozitron olmak üzere iki parçacık yaratılır. Böylece elektromanyetik bir dalgadan madde oluşur.

$$h\nu = m_{e^+} + m_{e^-} + T_{e^+} + T_{e^-} \tag{3.51}$$

Teorik olarak böyle bir çift oluşumunun meydana gelebilmesi için, (Denklem 3.51) göre fotonun enerjisinin en az 2×0.511 = 1,022 MeV olması gerekir. Foton enerjisinin daha büyük olduğu durumlarda ise bu enerjinin artakalan kısmı elektron ve pozitrona kinetik enerji olarak aktarılır.

3.11 Opal' in Fiziksel, Kimyasal ve Yapısal Özellikleri

Opal kristalinin fiziksel, kimyasal ve yapısal özellikleri Çizelge 3.3'te verilmiştir (www.minerals.net).

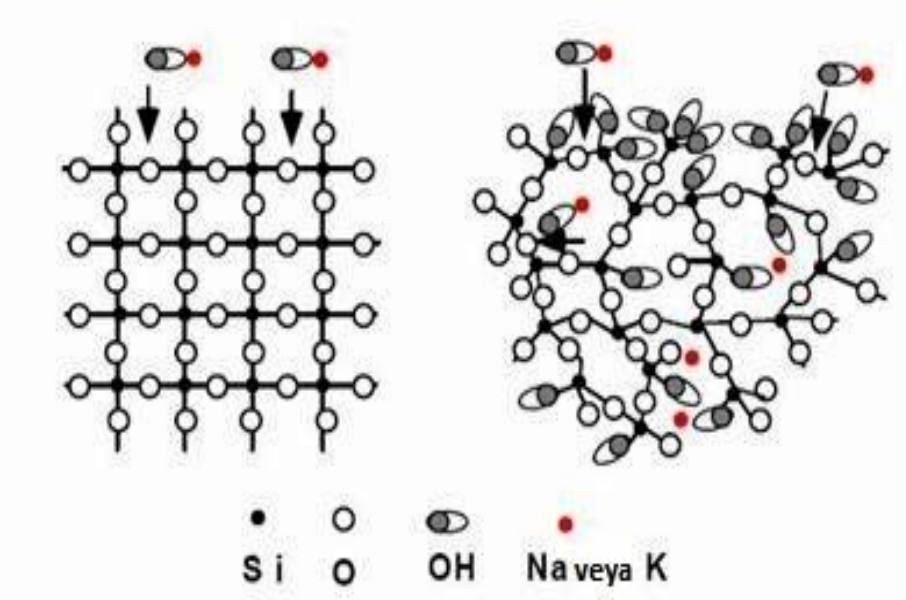
Çizelge 3.3. Opal'in fiziksel, kimyasal ve yapısal özellikleri

Kategori	**Mineral çeşidi**
Kimyasal formül	Sulu silisyum dioksit ($Si0_2$ nH_20)
Renk	Esas alınan bazı opal renkleri, beyaz, sarı, turuncu, kırmızı, mor, mavi, yeşil, gri, kahverenkli ve siyahtır.
Çizgi rengi	Beyaz
Mohs Ölçeği- Sertlik	Opal genellikle 5,5' tir. Ancak bazı opallerde 4,5 ile 6,5 civarındadır.
Kristallografi	Amorf
Şeffaflık	Opak, saydam
Kırılma	Konkoidal (midye kabuğu)
Sağlamlık	Kolay kırılır, gevrek.
Özgül Ağırlık	Sıradan opalde; 1,98-2,25. Kıymetli opalde; 2,10-2,20
Parlaklık	Genellikle cam gibi fakat aynı zamanda inci gibi, cilalı veya reçinemsi olabilir.
Dilinim	Yok
Renk oyunu	Opaller bazen açık yeşil, aynı zamanda parlak yeşil, parlak mavi, mor ve beyaz renkte flouresans özelliği gösterir.
Su oranı	Toplam ağırlığın %3 - %21 arasındadır. Fakat genellikle %6-%10 arasındadır.

3.11.1 Kristal yapısı

Opal'in kristal yapısı Amorf olmasına karşın bir mineral olarak sayılır. Ancak opal bir mineral değil mineraloyıt'tir (mineraloıd). Bir mineral çeşidi olmadığı halde mineral sınıfında yer alması Opalin en az bir mineral kadar iyi olduğunun göstergesi olarak kabul edilir. Opal'in oluşum biçimi şekilsizdir.

Opalin yapısında bulunan silika küreciklerinin mikro yapısına gelen ışığın kırınımıyla oluşan ve "renk oyunu" olarak bilinen özelliğe sahip opaller değerli opallerdir. Bu yüzden opalin sahip olmuş olduğu bu Mikro silika küreciklerinin şekli ve çapı oluşan renk fraksiyonunu belirler. Bu renk fraksiyonunu değerli opallerin parlaklığıyla ayırt edici özellik taşır.



Şekil 3.13. Kuvars (solda) ve opal (sağda) kristal yapıları içinde farklılık gösteren şematik gösterim

3.11.2 Fiziksel özellikleri

Opaller yapısal ve fiziksel olarak birçok çeşidi olduğundan Avustralya Gemoloji Endüstrisi Konseyi (AGIC) tarafından yapılan terminolojik sınıflandırmayla konuya açıklık getirilmiştir. Buna göre opaller şu özelliklere göre sınıflandırılmıştır (www.minerals.net; sanwapearl.com.hk):

- **Görünüm ve Değerli Oluşuna Göre Sınıflandırılması**
  - Değerli Opal
  - Genel /Adi Opal
  - Ateş Opal
- **Opalin Ana Renk Tonuna Göre Yapılan Sınıflandırma**
  - Siyah Opal
  - Koyu Opal
  - Açık Opal
- **Doğal Yada Yapay oluşuna Göre Sınıflandırma**
  - **Doğal opal**
    - ✓ 1. Tip Doğal Opal
    - ✓ 2. Tip Doğal Opal
    - ✓ 3. Tip Doğal Opal
  - **Sentetik / taklit opal**

Zengin renk oyununa sahip olan opaller renk çeşidine ve sahip olduğu şekil itibariyle çeşitli isimlere sahiptir. Süt opal, yeşil opal, ateş opal, beyaz opal, kemik opal, şeffaf opal ve kiraz opal gibi isimler bunların sadece bir kaçıdır. Günlük hayatta kullanılan ama bilimsel olarak bilinmeyen birçok opal türü de yer almaktadır.

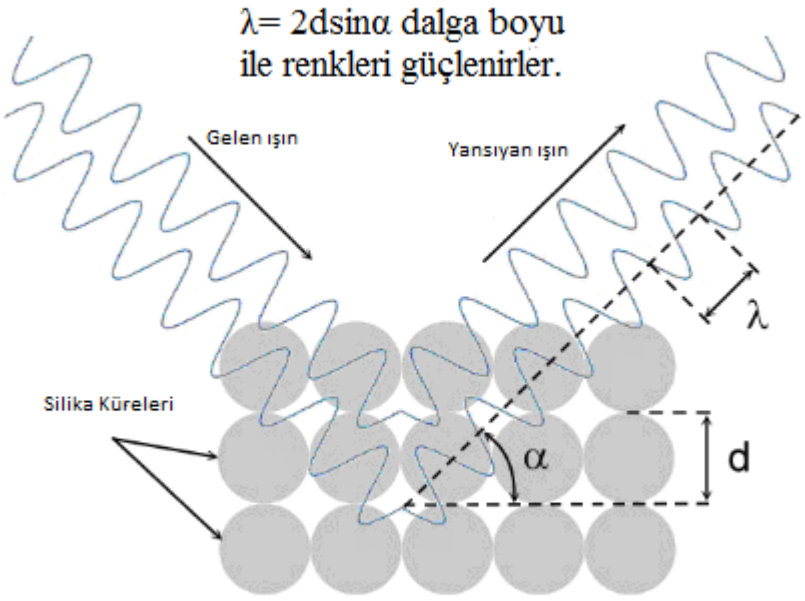
3.11.3 Opalin oluşumu

Opaller genellikle volkanik bölgelerde bulunan hidrotermal sular ve gayzerlerin bulunduğu ortamlarda ayrıca kayaların çatlak ve boşluklarında bazen de solüsyon olarak ta oluşmaktadır. Opaller ultrabazik kayaçların ayrışması olarak silikaların bozuşmasıyla oluşurlar(Betekhin, 1961)

3.11.4 Kimyasal özellikleri

Opalin kimyasal ismi, sulu silisyum dioksittir ($Si0_2$ nH_20). Opal sahip olduğu ağırlığın %(3–21) aralığında su taşır. Fakat opallerin genelinde bu oran %(6–10) aralığındadır (Andaç, 1976). Bu sebeple yumuşak taş şeklindedirler.

Opalde bulunan renk oyununun nedenini açıklamak için pek çok teori ileri sürülmüştür. 1960'larda Elektron mikroskobunun da yardımıyla bu renk oyununun sebebi keşfedilmiştir; Opallerin yapısında bulunan küçük silika kürecikleri, üzerine kayaçtan giren ışığı spektral renklere ayırır. Ayrılan bu ışık dalgası kayaçta bir ışık parıltısına sebep olur. Böylece parıldama gerçekleşir. Bu silika küreciklerinin her bir küreden yansıyan ışınlar, küçük su damlacıklarındaki gökkuşağı rengine benzer. Bu eşsiz renk oyunundan dünyada en çok aranan taş olmasını sağlar.



Şekil 3.14. Opal mineralinde ışık kırınımı

Opal rezervlerin dünyada en önemlileri başta %95 oranla Avustralya olmak üzere bunu Meksika ve Brezilya takip etmektedir. Türkiye'de daha çok Eskişehir, Kütahya, Bilecik, Afyon ve Erzurum' da bulunmaktadır(Horton, 2000).

Bu deney süresince kulandığım Yeşil opal ve Süt opal kristalleri aşağıda gösterilmektedir.

Fotoğraf 3.1. Yeşil opal

Fotoğraf 3.2. Süt opal

BÖLÜM IV

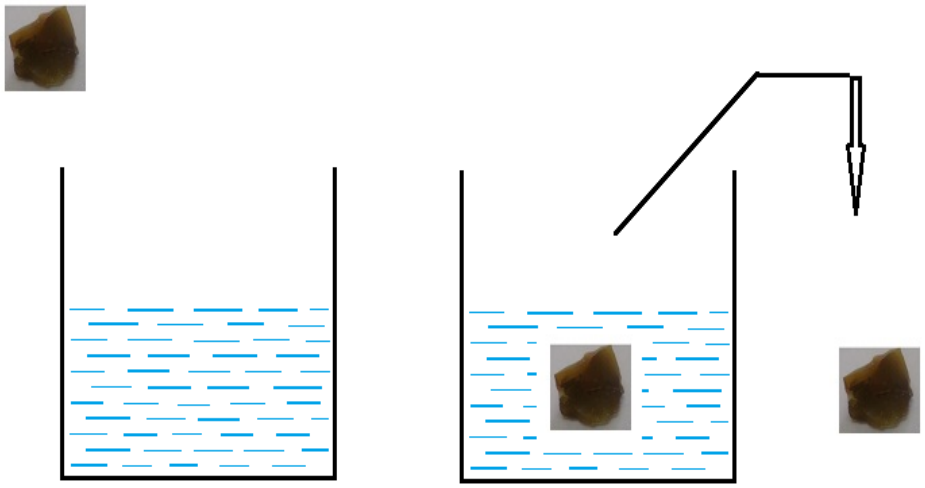
DENEYSEL ÇALIŞMA

Bu bölümde, Celal Bayar Üniversitesi Termolüminesans Laboratuarında bir dozimetre olarak kullanılması düşünülen Yeşil opal ile Süt opal kristallerinin termolüminesans özelliklerinin belirlenmesi için yapılan deneysel çalışmalar anlatılacaktır.

4.1 Opal Kristalinin Temizlenmesi

Opal kristalinin temizlenmesi için sırasıyla aşağıdaki adımlar takip edilmiştir:

1. Şekil 4.1-a' da görüldüğü gibi, opal kristalini yüzeysel kirden arıtmak için, kristal bir kıskaç yardımıyla tutulup içinde saf su bulunan beher içerisine konularak içerisinde iyice karıştırıldı.
2. Şekil 4.1-b' de görüldüğü gibi, kristalinin yüzeyinde bulunabilecek son kirlerde kristal saf su içinde iken kulak çöpü yardımıyla temizlendi.
3. Daha sonra, kristal beherden çıkarıldı ve deneyde kullanılmaya hazır hale getirildi. Dış etkenlerden etkilenmemesi için karanlık odada tutuldu.



Şekil 4.1. Opal kristalinin temizlenme işlemi

4.2 Opal Kristallerinde Tavlama İşlemi

Deneysel çalışma boyunca tavlama işlemi için Fotoğraf 4.1'de görülen Proterm marka boru tipi fırın kullanıldı. Proterm marka boru tipi fırının çıkabileceği maksimum sıcaklık 1200^0C, sıcaklık ayar hassasiyeti 1^0C ve sıcaklık sapması $\pm 2^0$C'dir.

Fotoğraf 4.1. Proterm marka boru tipi fırın

Öncelikle oda sıcaklığında tutulan yeşil opal kristali siyah bir kutu ile taşınarak Perkin Elmer marka Lambda 950 UV-VIS-NIR spektrofotometresi cihazına götürülüp yerleştirildi. Burada soğurma ölçümleri alındı. Oda sıcaklığındaki işlem bittikten sonra yeşil opal kristali 30 dakika süreyle 100^0C'de tavlama işlemine tabi tutuldu. Kristal aynı şekilde siyah bir kutu ile taşınarak Perkin Elmer marka Lambda 950 UV-VIS-NIR spektrofotometresi cihazına götürülüp yerleştirildi ve soğurma ölçümleri alındı. Daha sonra kristal 30 dakika süreyle 200^0C, 300^0C, 400^0C, 500^0C ve 600^0C'de tavlama işlemine tabi tutuldu ve aynı işlemler tekrarlandı.

4.3 Opal Kristallerine Isıl İşlem Uyguladıktan Sonra Alınan Optiksel Soğurma Ölçümleri

Optiksel soğurma ölçüm işlemleri Fotoğraf 4.2'de gösterilen Perkin Elmer marka Lambda 950 UV-VIS-NIR spektrofotometresi ile gerçekleştirildi.

Fotoğraf 4.2. Perkin Elmer marka Lambda 950 UV-VIS-NIR spektrofotometresi

Lambda 950 spektrofotometresi UV(165−380)nm, VIS(380-780)nm, NIR(780-3300)nm dalgaboyu aralığında ölçüm yapmayı sağlayan bir sistemdir. Bu özelliği sayesinde, kullanılan örneğin 175nm ile 3300nm arasındaki dalga boyu değişimini gözlemlemeye olanak verir. Ölçüm yapılacak dalga boyu aralığı, sistemin çözünürlüğü ve hangi tür ölçüm yapılacağı (soğurma, yansıma veya geçirgenlik) "Perkin Elmer UV WinLab" bilgisayar programı sayesinde belirlenir. Elde edilen veriler AXUM programı ile grafik haline getirilir.

Opal kristallerinin soğurma ölçümü için Perkin Elmer marka Lambda 950 UV-VIS-NIR spektrofotometresine yerleştirildi. Daha sonra Perkin Elmer UV WinLab bilgisayar programında 200nm-800nm dalga boyu aralığı ve 1nm ölçüm aralığı için ayarlandı. Öncelikle yeşil opal oda sıcaklığında soğurma ölçümü alındı. Daha sonra Proterm marka boru tipi fırın ile ısıtılan yeşil opal için 30 dakika süreyle 100^0C, 200^0C, 300^0C,

400^0C, 500^0C ve 600^0C için ölçümler alındı. Elde edilen ölçüm verileri Axum programı yardımı ile grafiklere dönüştürüldü.

4.4. TLD Ölçümleri

Deneysel çalışma boyunca termolüminesans ölçümlerini almak için Fotoğraf 4.3‘ te görülen RA94 TLD Reader-Analyser model TLD cihazı kullanıldı.

Fotoğraf 4.3. RA94 TLD Reader-Analyser model TLD cihazı

TLD ölçüm cihazının ön panelinde çalıştırma düğmeleri, 4 haneli ekran, azot veya argon gaz akışı ayarları için kullanılan rotametre, mod kontrolü ile programlama anahtarları ve ısıtma levhası, kontrol ışık kaynağı ve ısıtma güç birimi içeren çekmece bulunmaktadır. RA94 TLD Reader-Analyser TL dozimetre yukarıda anlatılan işlemlerde kullanılan modern bir cihazdır. Cihaz bünyesinde bulunan kendi mikroişlemcisi ve bilgisayar destekli bir sistemden oluşur.

Radyasyona tabi tutulmadan önce yeşil opal kristalinin TLD ölçümleri alınırken aşağıdaki adımlar takip edilmiştir:

1. Sistemin yüksek hassasiyet kararlılığı ve TL malzemelerinin düşük şiddetli sinyalleri için kullanılan azot veya argon gazı soğutucusunun rotametre değeri 100 üzerinden 40−60 aralığında ayarlandı.

2. TLD Reader Analyser cihazında direnç yardımı ile oluşturulan sıcaklığın kristale en iyi şekilde iletilmesini sağlamak için, cihazın ön panelinde bulunan çekmece içerisindeki levha greslendi ve yeşil opal kristali levha üzerine yerleştirildi.

3. TLD cihazına bağlı bilgisayarda bulunan TLD programı kullanılarak deneysel çalışma boyunca sıcaklık 50^0C-400^0C aralığında ısıtma oranı olarak bilinen β değeri 2^0C/s olacak şekilde ayarlandı.

4. TL ölçümü başlatıldı ve daha önce bahsedildiği gibi TLD sistemindeki bilgisayara aktarılan veriler Axum programı kullanılarak ışıma şiddetinin sıcaklığa göre grafiği elde edildi.

4.5 Opal Kristallerine Radyasyon Uygulandıktan Sonra Alınan Termolüminesans Ölçümleri

Radyasyon işlemi için Fotoğraf 4.4‘ te görülen X-ışını cihazı kullanıldı. Radyasyon cihazında kullanılan X-ışını tüpü su soğutmalı tek fazlı Machlett OEG−50A lik bir tüptür. 0,1mm alüminyum filtreli 1mm berilyum pencereli olup tungsten hedeften ibarettir. Maksimum 50kV luk gerilim ve 20mA lik akım sağlanabilmektedir. Doz hızı (20cm uzakta) ~30Gy/dak dır.

Fotoğraf 4.4. Machlett OEG marka X-ışını tüpü

Yeşil opal kristaline radyasyon uygulanırken aşağıdaki adımlar takip edilmiştir:

1. Olası bir elektriksel boşalımında tüpe zarar vermemek, güvenli çalışmak ve istenen doz seviyesini aşmamak amacıyla X−ışını tüpünün voltaj ve akım değerleri sırasıyla 30kV ve 15mA olarak ayarlandı.

2. Yeşil opal kristali alüminyum bloktan yapılmış boru içine yerleştirildi.

3. Kristal 150Gy X-ışın doz alacak şekilde 5 dakika X−ışını radyasyonuna maruz bırakıldı.

4. Daha sonra, kristal alüminyum bloktan yapılmış boru içinden alındı ve siyah bir kutu içinde taşınarak TLD cihazına yerleştirildi.

5. TLD Reader Analyser cihazı 50^0C−400^0C sıcaklık aralığında çalışacak şekilde ayarlandı.

6. 5. adımda verilen sıcaklık aralığında $\beta=2^0$C/s lineer ısıtma oranlarına tekabül eden termolüminesans ölçümü yapıldı.

Yukarıdaki işlemler; 10, 15, 20 ve 25 dakika X-ışını alacak şekilde radyasyon değerleri için tekrarlandı.

Deneysel çalışma boyunca Yeşil opal için uygulanan bütün bu adımlar daha sonra Süt opal kristali içinde uygulandı.

BÖLÜM V

BULGULAR VE TARTIŞMA

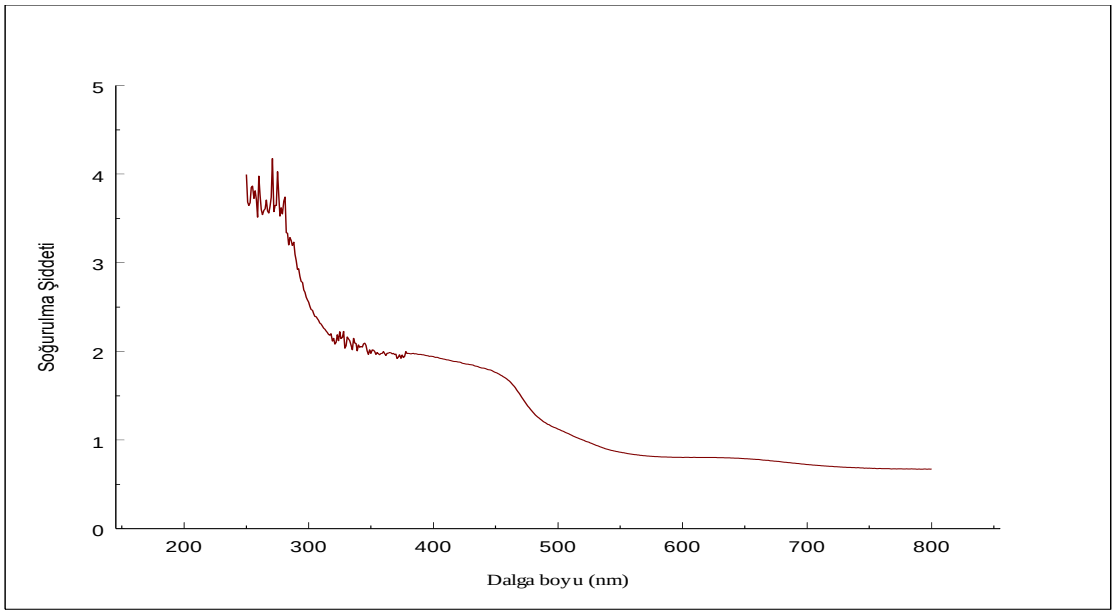
Tezin bu bölümünde Yeşil opal ve Süt opal kristallerine farklı sıcaklıklardaki tavlama işlemlerine tabi tutulduktan sonra optiksel soğurma işlemleri yapıldı. Daha sonra farklı doza maruz bırakılan, sabit ısıtma değeriyle ısıtılan kristallerin termolüminesans ölçümleri sonucunda parıldama eğrileri elde edildi. Simülasyon sonuçları alınarak iki kristal arasındaki ilişki ve belirlenen kinetik parametreleriyle beraber sonuçların yorumları yapıldı.

5.1 Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerine Tavlama İşleminden Sonra Uygulanan Optiksel Soğurma İşlemi

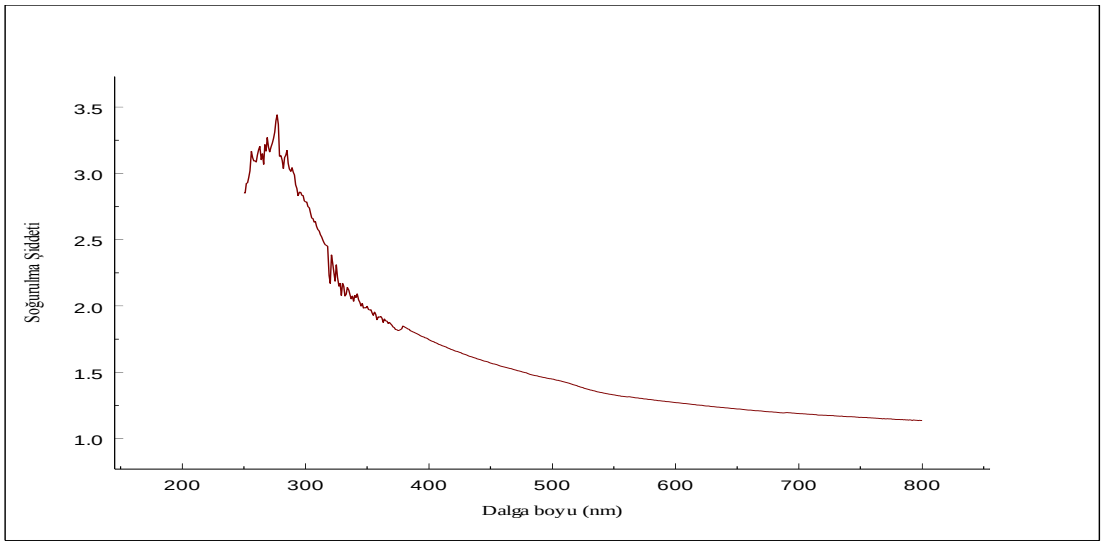
Yeşil opal ve Süt opal kristalleri soğurma ölçümü için Perkin Elmer marka Lambda 950 UV-VIS-NIR spektrofotometresi kullanıldı. Yeşil opal ve Süt opal kristallerine herhangi bir radyasyon işlemi uygulamadan optik soğurulma ölçümleri alındı. Burada elde edilen grafiklerden soğurma bant değerleri belirlendi.

Proterm marka boru tipi fırının içersine ayrı ayrı yerleştirilen Yeşil opal ve Süt opal kristallerine herhangi bir tavlama işlemi uygulamadan optik soğurulma ölçümleri alındı. Burada elde edilen grafiklerden soğurma bant değerleri belirlendi. Daha sonra kristal 30 dakika süreyle 100^0C, 200^0C, 300^0C, 400^0C, 500^0C ve 600^0C'de tavlama işlemine tabi tutuldu. Kristal sıcaklığının oda sıcaklığına düşmesi beklendi (T=300K). Perkin Elmer UV WinLab bilgisayar programında 200nm-800nm dalga boyu aralığı ve 1nm ölçüm aralığı için ayarlandı. Elde edilen ölçüm verileri Axum programı ile grafik haline getirildi.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin oda sıcaklığındaki soğurulma bantları şekil 5.1'de görülmektedir. Yeşil opal ve Süt opal kristallerine optik soğurulma işlemi her numune için iki kere tekrarlandı. Yeşil opalde uygulanan optiksel soğurma işleminde 550−800nm aralığında soğurma şiddetinin 1 olduğu, yaklaşık olarak 450nm'de 2 katına çıktığı son olarak soğurma şiddetinin 280nm dalga boyunda başlangıç seviyesinin 4 katına çıktığı görüldü. Süt opalde ise 370−800nm aralığında soğurulma şiddetinde herhangi bir değişimin gerçekleşmediği sadece 250−280nm aralığında dar soğurulma bandının oluştuğu gözlendi.



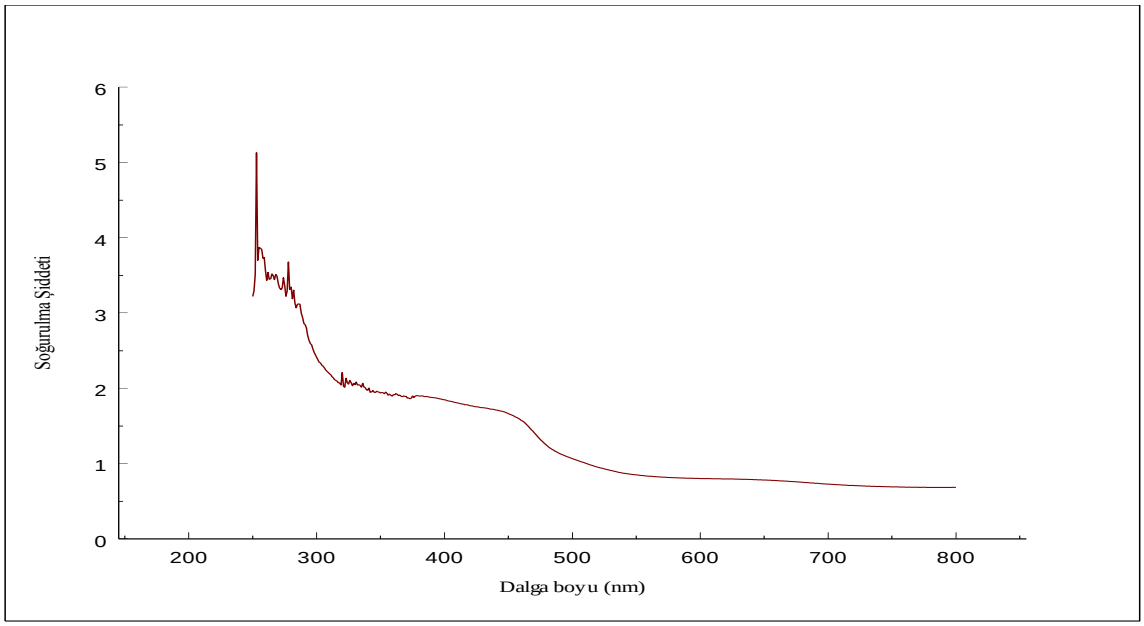
a) Yeşil Opal



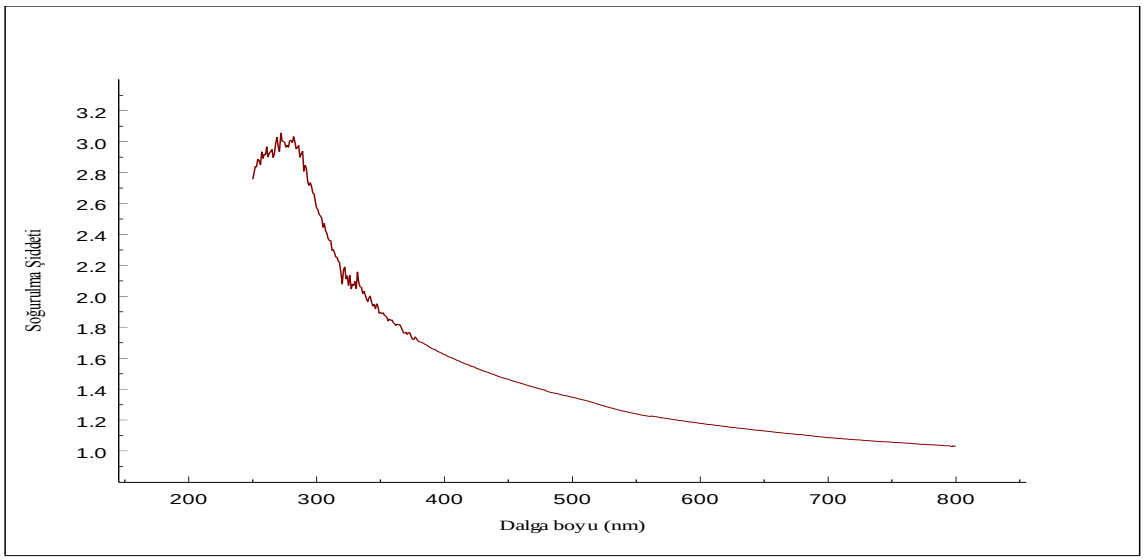
b) Süt Opal

Şekil 5.1. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin oda sıcaklığındaki soğurulma bantları

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin 100^0C sıcaklığında 30 dk bekletildikten sonra oda sıcaklığındaki soğurulma bantları şekil 5.2'de gösterilmektedir. Yeşil opalde 550−800nm aralığında soğurma şiddetinin 1 olduğu görülmektedir. 340nm−470nm aralığında şiddetin 2 katına çıkarken 253nm de ise başlangıç seviyesinin 5 katına kadar soğurulma şiddetinin arttığı gözlendi. Bu sonuç şekil 5.1' deki ölçüm ile uyuşmaktadır. Şekil 5.3b'de Süt opalde soğurulma grafiğinde 332nm dalga boyunda dar pik gözlenirken 246nm−297nm dalga boyu aralığında ise geniş soğurulma bandı gözlendi.



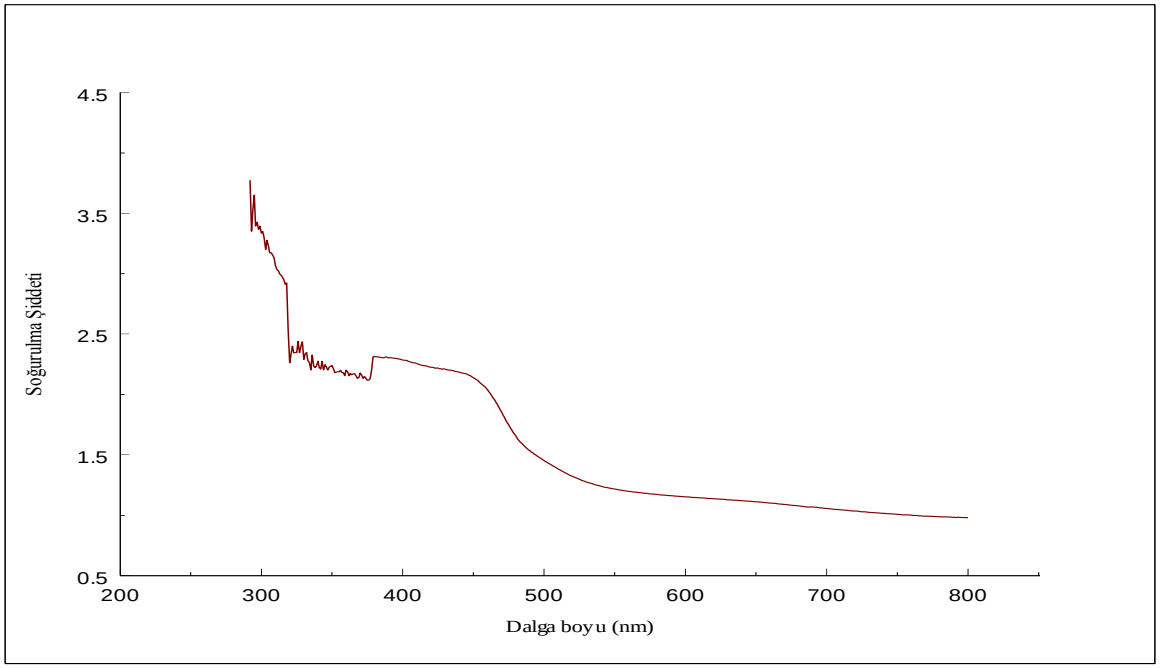
a) Yeşil opal



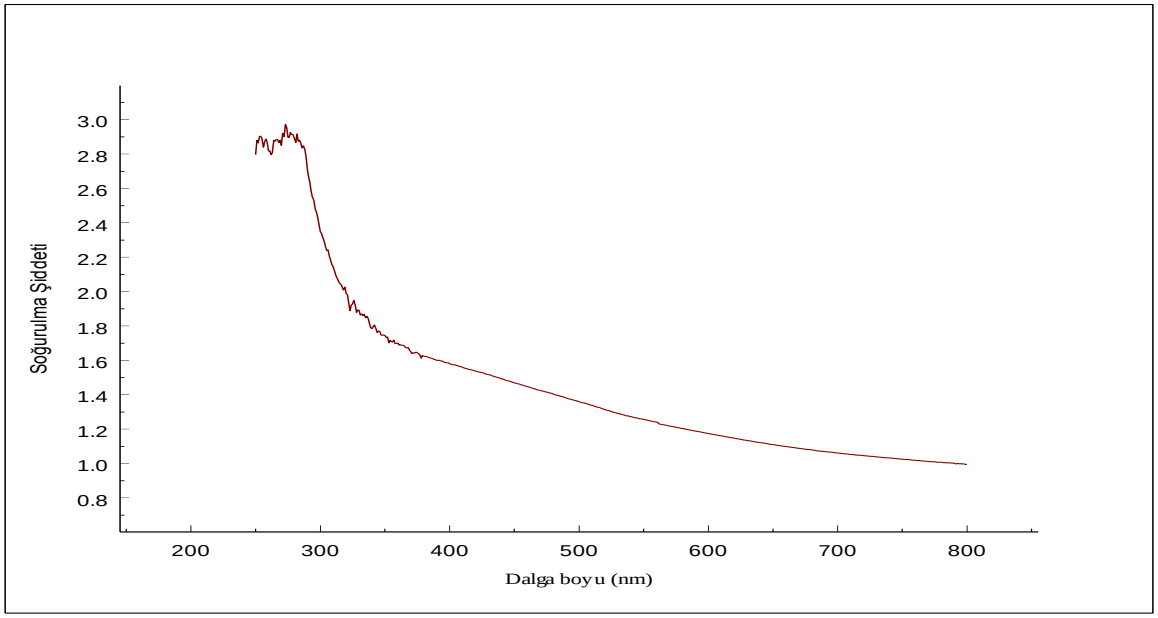
b) Süt opal

Şekil 5.2. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 100^0C sıcaklığında uygulandıktan sonra oda sıcaklığında ki soğurulma bantları

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin 200^0C sıcaklığında 30 dk bekletildikten sonra oda sıcaklığındaki soğurulma bantları şekil 5.3'de gösterilmektedir. Yeşil opalde 376nm−465nm aralığında geniş soğurulma bandı gözlenirken 305nm−320nm aralığında dalga boyunda dar pik oluştuğu gözlendi. Süt opal soğurulma grafiğinde 256nm−286nm dalga boyu aralığında ise geniş soğurulma bandı gözlendi.



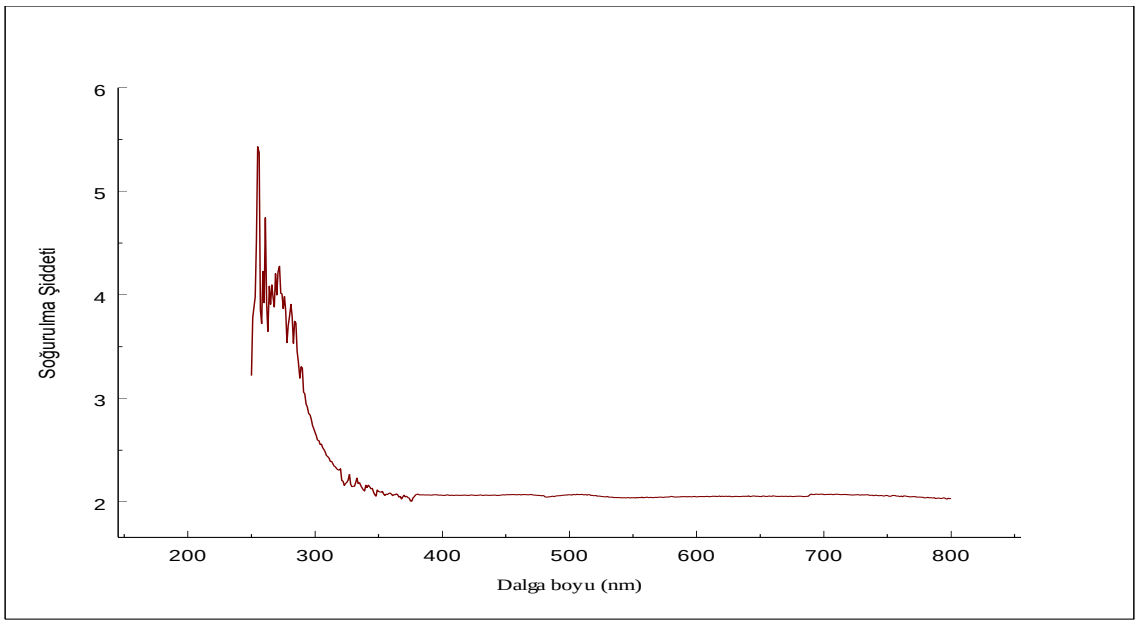
a) Yeşil opal



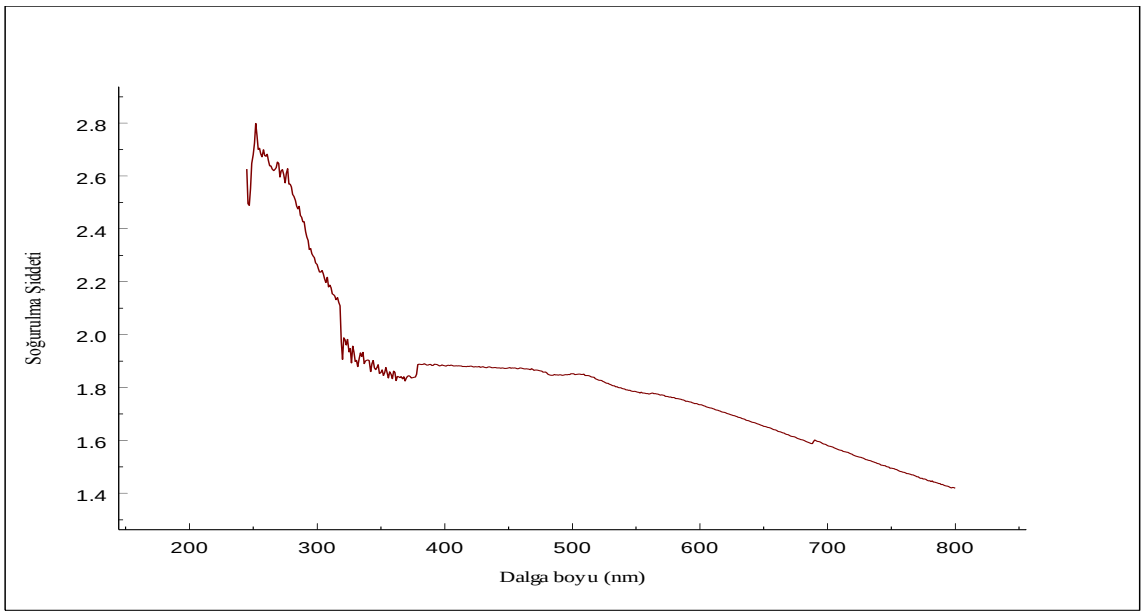
b) Süt opal

Şekil 5.3. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 200^0C sıcaklığında uygulandıktan sonra oda sıcaklığında ki soğurulma bantları

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin 300^0C sıcaklığında 30 dk bekletildikten sonra oda sıcaklığındaki soğurulma bantları şekil 5.4'de gösterilmektedir. Yeşil opalde uygulanan optiksel soğurma işleminde 380nm−800nm dalga boyu aralığında soğurma şiddeti 2 iken 270nm−320nm aralığında başlangıç seviyesinin 2 katına çıkmıştır. 260nm de ise başlangıç seviyesinin 2.5 katı kadar artmıştır. Süt opalde ise soğurulma grafiğinde 250nm−280nm dalga boyunda dar soğurulma bandı gözlendi.



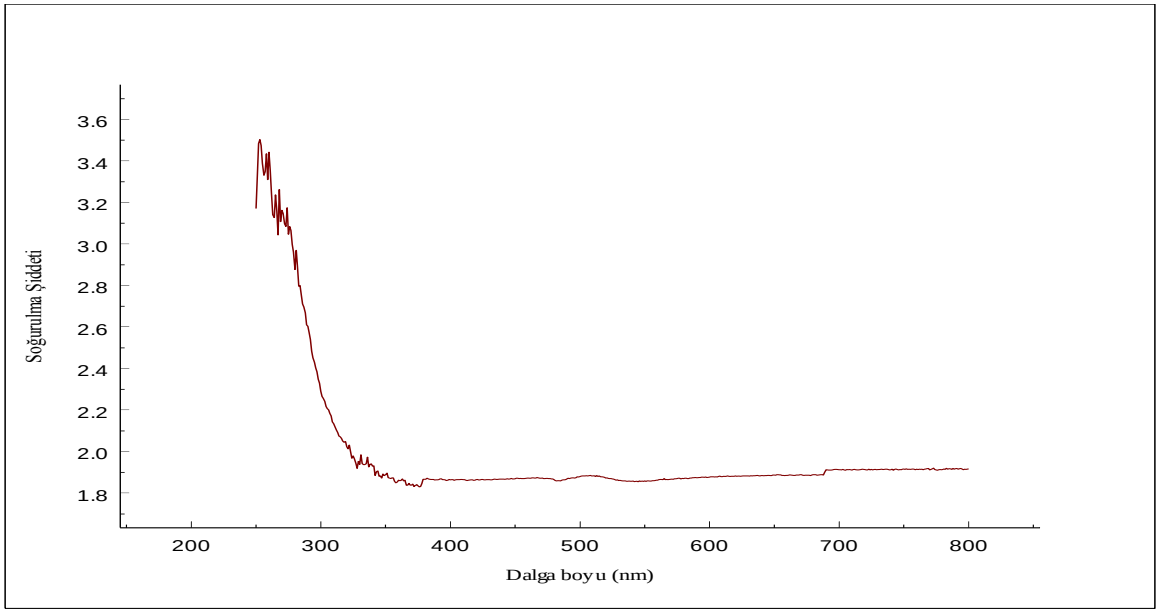
a) Yeşil opal



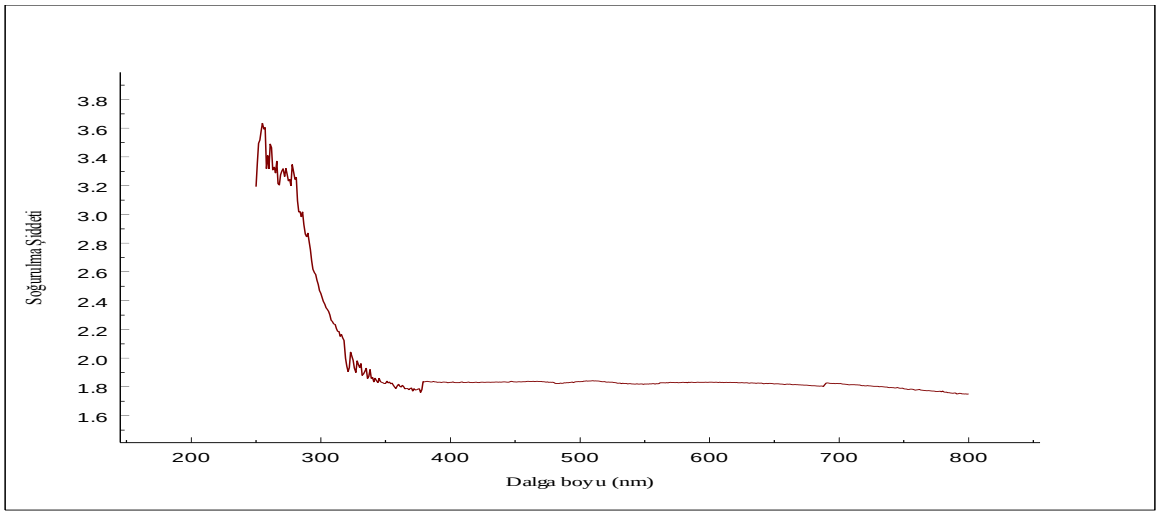
b) Süt opal

Şekil 5.4. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 300^0C sıcaklığında uygulandıktan sonra oda sıcaklığında ki soğurulma bantları

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin 400^0C sıcaklığında 30 dk bekletildikten sonra oda sıcaklığındaki soğurulma bantları şekil 5.5'de gösterilmektedir. Yeşil opalde uygulanan optiksel soğurma işleminde 390nm−800nm dalga boyu aralığında soğurulma şiddeti, 1.9 civarında 255nm aralığında ise başlangıç seviyesinin yaklaşık 2 katına çıkmıştır. Burada 250nm−265nm aralığında soğurulma piki elde edildi. Süt opaldeki soğurulma grafiğinde 375nm−800nm dalga boyunda soğurulma şiddeti 1.8 iken 265nm−285nm dalga boyu aralığında başlangıç seviyesinin 2 katına çıkmıştır. Soğurulma şiddeti en fazla olduğu bölge 250nm−270nm aralığındadır.



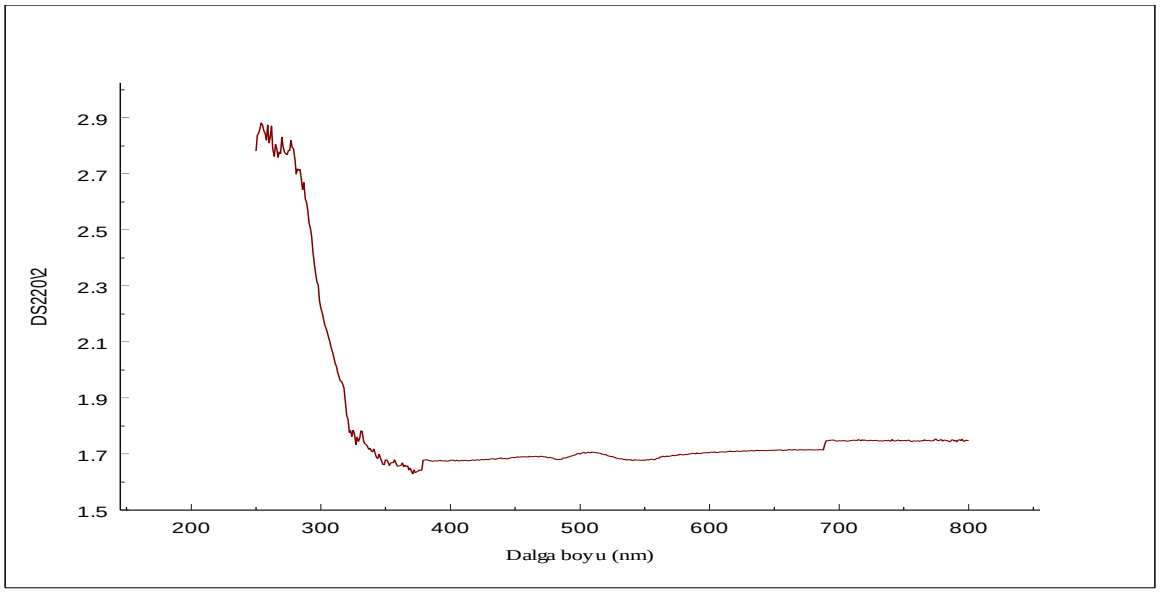
a) Yeşil Opal



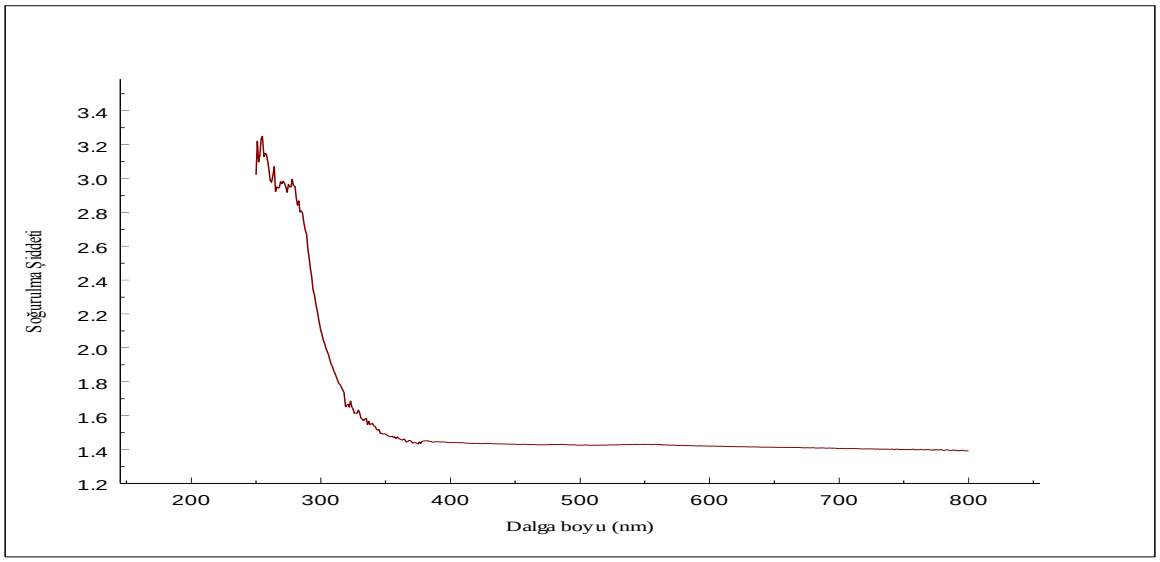
b) Süt Opal

Şekil 5.5. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 400^0C sıcaklığında uygulandıktan sonra oda sıcaklığında ki soğurulma bantları

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin 500^0C sıcaklığında 30 dk bekletildikten sonra oda sıcaklığındaki soğurulma bantları şekil 5.6'da gösterilmektedir. Yeşil opalde uygulanan optiksel soğurma işleminde 255nm dalga boyunda dar ve 486nm - 530nm dalga boyu aralığında geniş soğurulma bantları elde edildi. Süt opalde ise soğurulma grafiğinde 370nm−800nm dalga boyu aralığında soğurulma şiddeti değişmemiştir, 260nm−285nm dalga boyu aralığında başlangıç şiddetinin yaklaşık 2 katı kadar artmıştır. 255nm de dar bir soğurulma bandı gözlenmiştir. Bu sonuç Şekil 5.5b deneyi ile uyumludur.



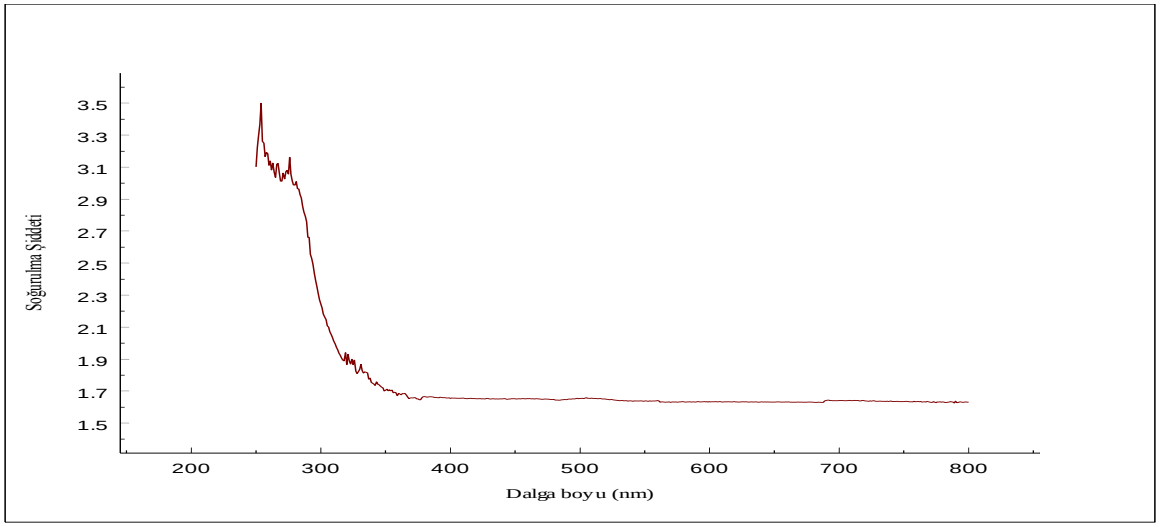
a) Yeşil Opal



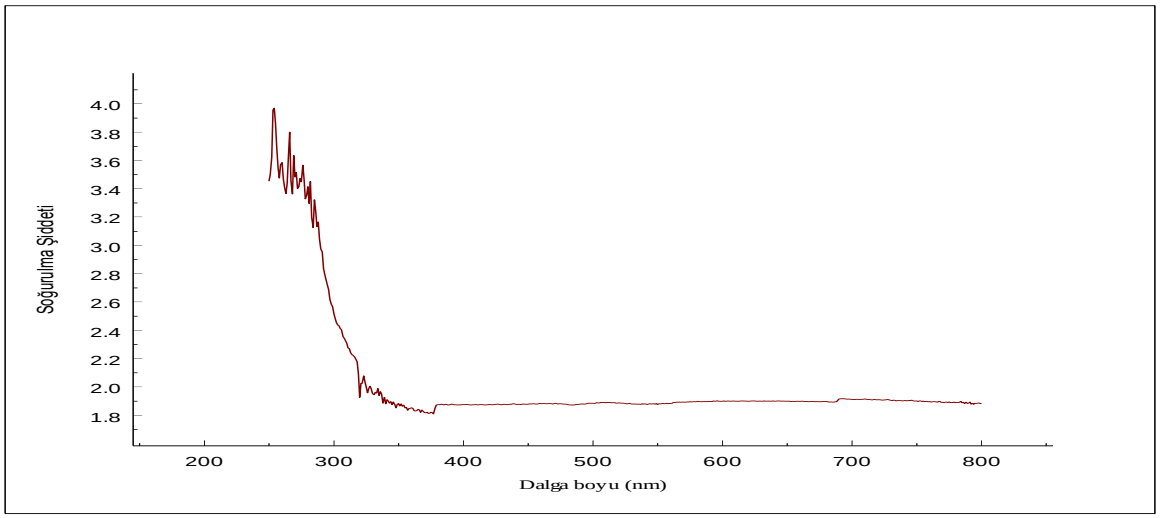
b) Süt Opal

Şekil 5.6. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 500^0C sıcaklığında uygulandıktan sonra oda sıcaklığında ki soğurulma bantları

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin 600^0C sıcaklığında 30 dk bekletildikten sonra oda sıcaklığındaki soğurulma bantları şekil 5.7'de gösterilmektedir. Buna göre Yeşil opalde uygulanan optiksel soğurma işleminde 370nm−800nm dalga boyu aralığında soğurulma şiddeti değişmemiştir. 250nm−350nm dalga boyu aralığında soğurma şiddeti başlangıç seviyesinin 2 katı kadar artmıştır. 256nm dalga boyu aralığında ise dar soğurulma bandı gözlendi. Süt opal soğurulma grafiğinde 375nm−800nm dalga boyu aralığında soğurulma şiddeti değişmemiştir, 260nm−285nm dalga boyu aralığında başlangıç şiddetinin yaklaşık 2 katı kadar artmıştır ve 250nm dalga boyunda dar soğurulma bandı gözlendi.



a) Yeşil opal



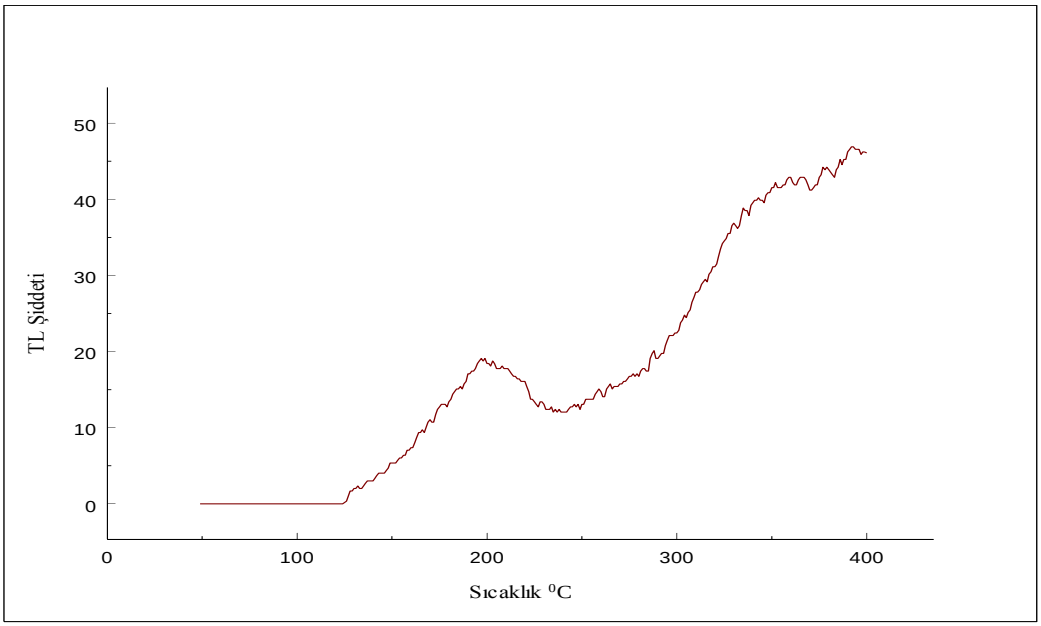
b) Süt opal

Şekil 5.7. (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerinin 600^0C sıcaklığında uygulandıktan sonra oda sıcaklığında ki soğurulma bantları

5.2 Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerine Radyasyon Uygulanmadan Alınan Termolüminesans Ölçümleri

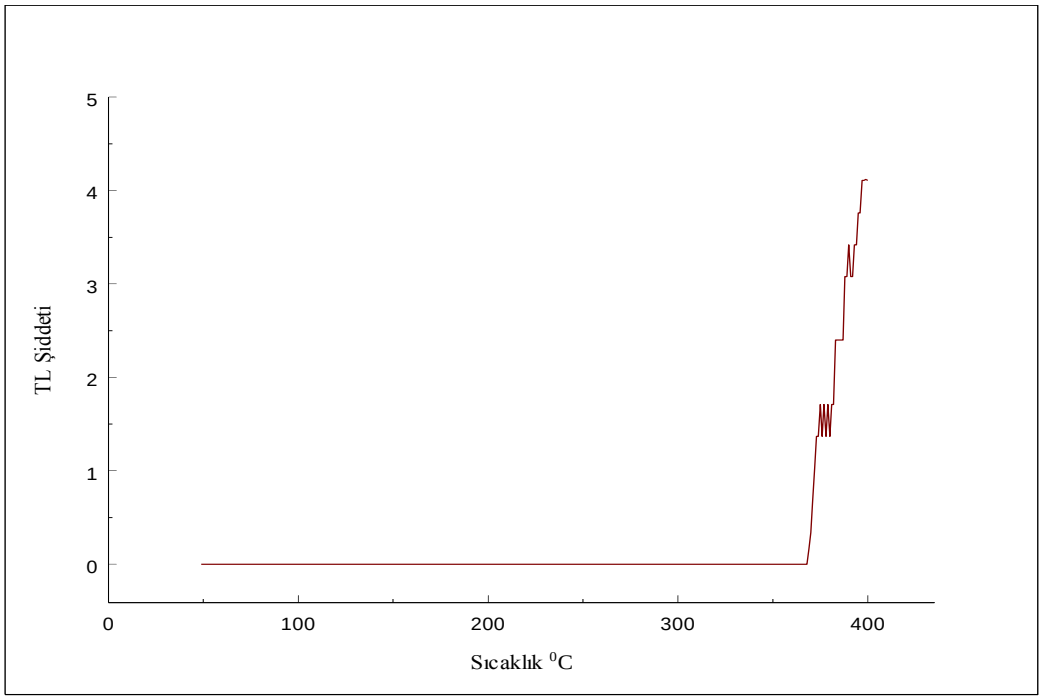
Yeşil opal ve Süt opal kristallerine radyasyon ve tavlama işlemi uygulanmadan önce $\beta = 2^0$C/s, sabit ısıtma değeri için termolüminesans (TL) ölçümler alındı. Bu ölçümler alınırken bu ısıtma oranı için Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin her iki numune içinde oda sıcaklığında tutulduktan sonra Termolüminesans şiddetinin sıcaklığa bağlı parıldama eğrileri elde edildi. Burada sabit ısıtma oranının her iki numune için parıldama eğrileri üzerindeki etkisi incelendi.

Şekil 5.8'da radyasyon uygulanmadan oda koşullarında tutulan Yeşil opalin, sabit ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrisi görülmektedir. Şekil 5.8'de görüldüğü gibi $\beta = 2^0$C/s için elde edilen eğri Yeşil opalde 125^0C den sonra pikin oluşmaya başlandığı görülmektedir. Bu pikin maksimum şiddeti 197^0C olarak tespit edildi.



Şekil 5.8. Yeşil opalin radyasyon uygulamadan önce alınan TL ölçüm grafiği

Şekil 5.9'da radyasyon uygulanmadan oda koşullarında tutulan Süt opalin, sabit ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrisi görülmektedir. Şekil 5.9'da görüldüğü gibi oda koşullarında tutulan ve radyasyona maruz kalmayan Süt opalde $\beta = 2^0$C/s için elde edilen eğri de ise herhangi bir pikin oluşmadığı gözlendi.

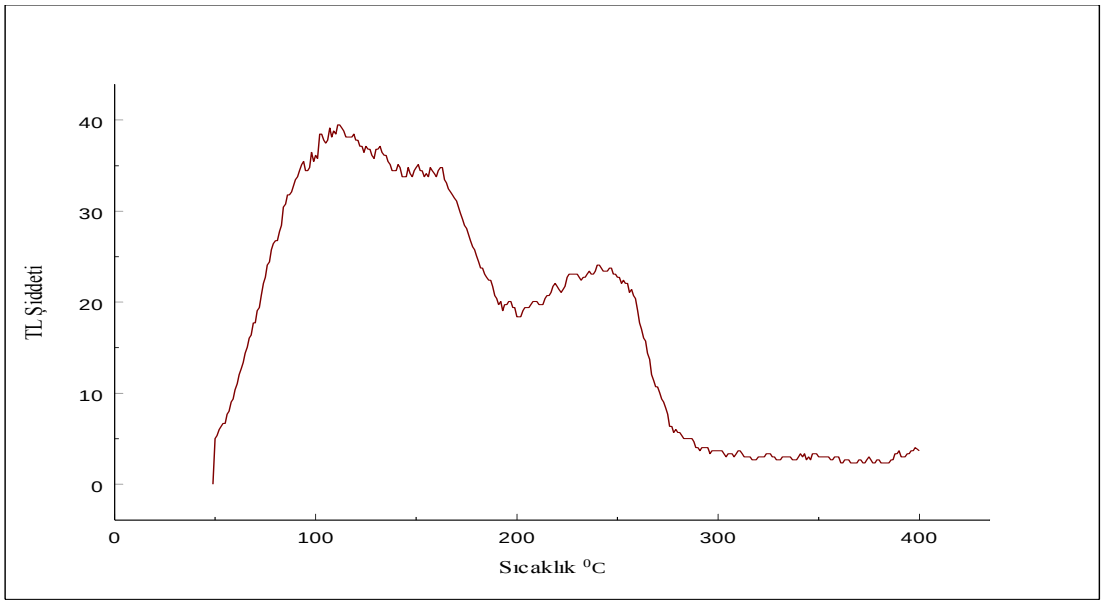


Şekil 5.9. Süt opalin radyasyon uygulamadan önce alınan TL ölçüm grafiği

5.3 Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerine Radyasyon Uygulandıktan Sonra Alınan Termolüminesans Ölçümleri

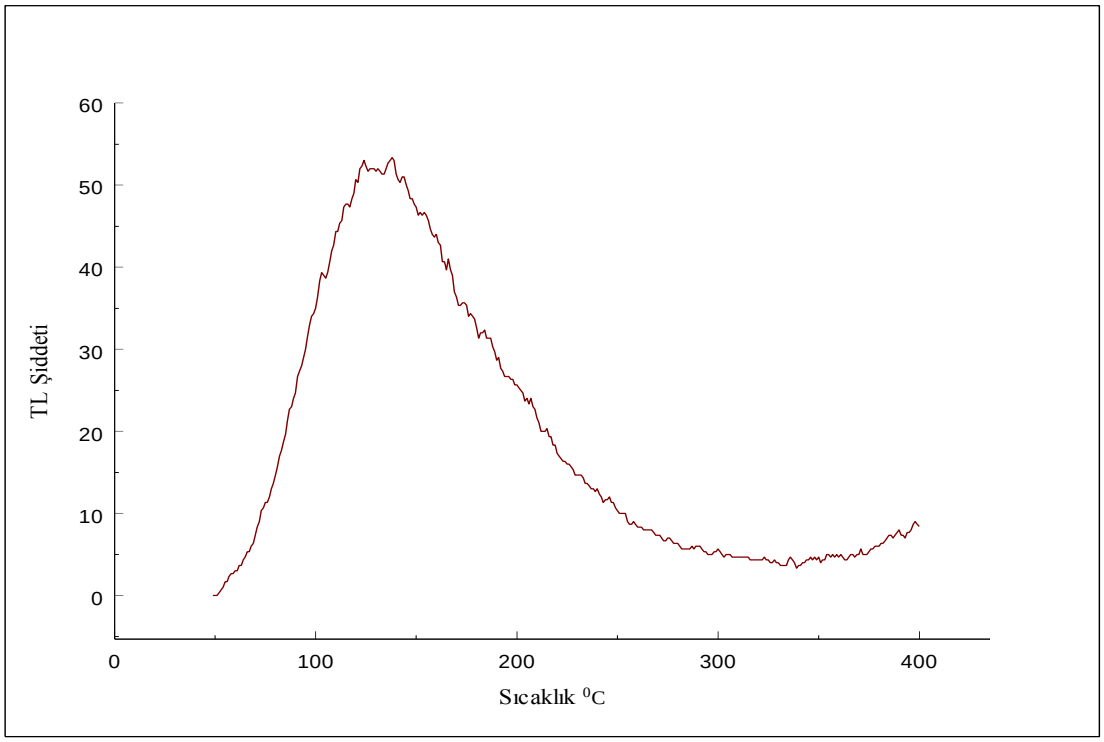
Yeşil opal ve Süt opal kristallerine uygulanan doz miktarı kaynak numuneden 20 cm uzaktaki mesafeye göre hesaplandı ve dakikada ~30Gy radyasyon olarak kabul edildi. Opal kristallerinin almış oldukları doz miktarları ve soğrulma süreleri 150Gy≈5dk**,** 300Gy≈10dk, 450Gy≈15dk, 600Gy≈20dk ve 750Gy≈25dk'dır. Numuneler farklı X−ışını dozuna maruz bırakıldıktan sonra $\beta=2^0$C/s sabit ısıtma oranı için termolüminesans (TL) ölçümleri alındı.

Yeşil opal kristaline 150Gy≈5dk X-ışın dozuna maruz bırakılan $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrisi şekil 5.10' da görülmektedir. Yeşil opalde 3 pik oluşurken, oluşan bu piklerin 108, 155 ve 250^{0}C karşılık geldikleri görüldü.



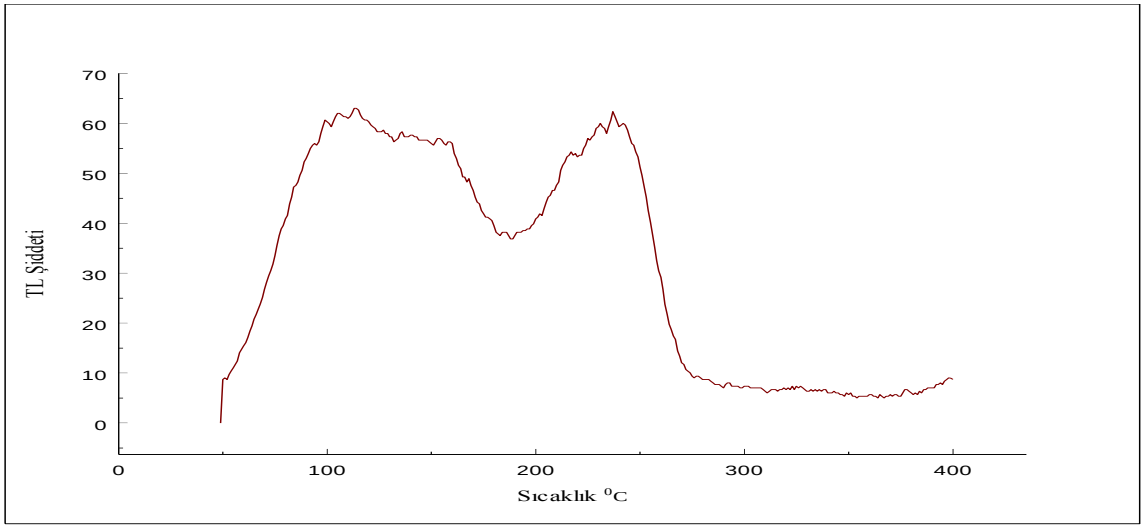
Şekil 5.10. 150Gy≈5dk X-ışın dozuna maruz bırakılan Yeşil opal kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

Süt opal kristaline 150Gy≈5dk X-ışın dozuna maruz bırakılan $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrisi şekil 5.11' de görülmektedir. Süt opalde ise tek pik oluştuğu gözlendi. Bu maksimum pikin sıcaklık değeri ise 138^0C ye karşılık gelmektedir. Bu pikin, pik şekil metodu ile hesaplanan enerji değeri ise 0.46eV olarak bulundu.

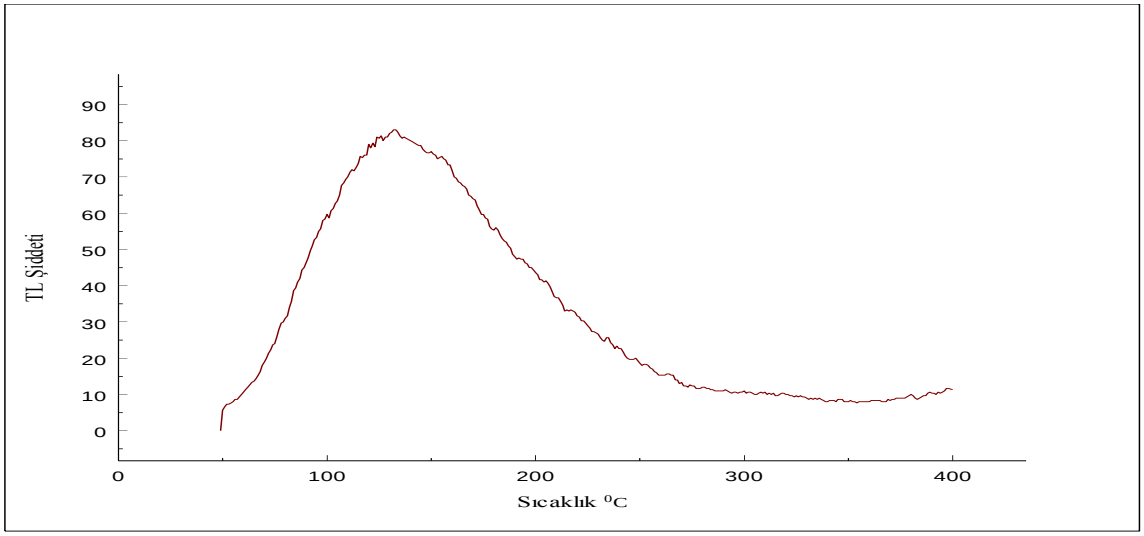


Şekil 5.11. 150Gy≈5dk X-ışın dozuna maruz bırakılan Süt opal kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

300Gy≈10dk X-ışın dozuna maruz bırakılan Yeşil opal ve Süt opal kristallerinde elde edilen parıldama eğrileri şekil 5.12' de görülmektedir. Yeşil opalde aynı şekilde 3 pik oluştuğu görülmektedir. Bu pikler 114, 136 ve 237^{0}C karşılık geldikleri görüldü. Şekil 5.10' daki ölçümle çok iyi bir uyum içinde olduğunu gösterdi. Süt opalde tek pik oluştuğu Şekil5.12b' de görülmektedir. Bu pikin maksimum sıcaklık değeri ise 132^{0}C ye karşılık gelmektedir. Bu pikin, pik şekil metodu ile hesaplanan enerji değeri ise 0.475eV olarak bulundu. Şekil 5.11' deki ölçümle çok iyi bir uyum sağlamaktadır.



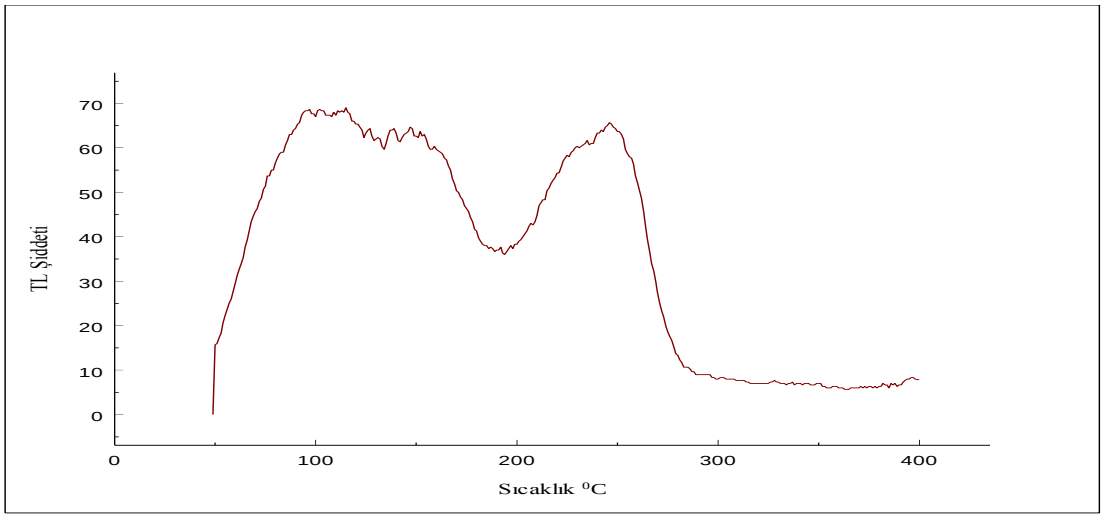
a) Yeşil opal



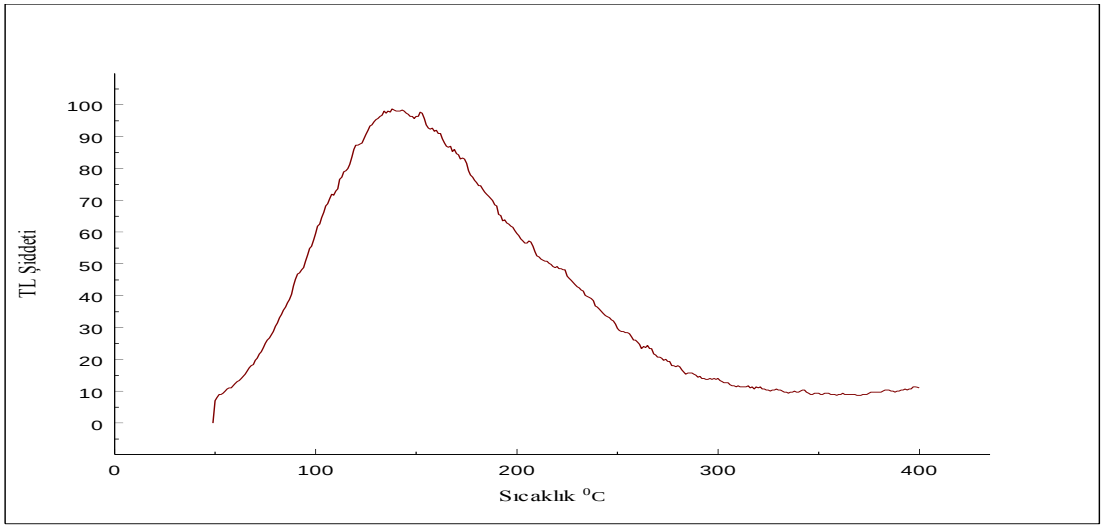
b) Süt opal

Şekil 5.12. 300Gy≈10dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine β=2^{0}C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

Şekil 5.13' de Yeşil opal ve Süt opal kristallerine 450Gy≈15dk X-ışın dozuna maruz bırakılan $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri görülmektedir. Yeşil opalde şekil 5.13a' da 3 pik oluştuğu görüldü. Bu pikler 102, 147 ve 246^{0}C karşılık geldikleri görüldü. Şekil 5.13b'de Süt opalde tek pik oluşmuştur. Bu pikin maksimum sıcaklık değeri ise 138^{0}C ye karşılık gelmektedir. Bu pikin hesaplanan enerji değeri ise pik şekil metodu yöntemiyle 0.49eV olarak bulundu. Bir önceki ölçümle yine uyum sağlamaktadır.



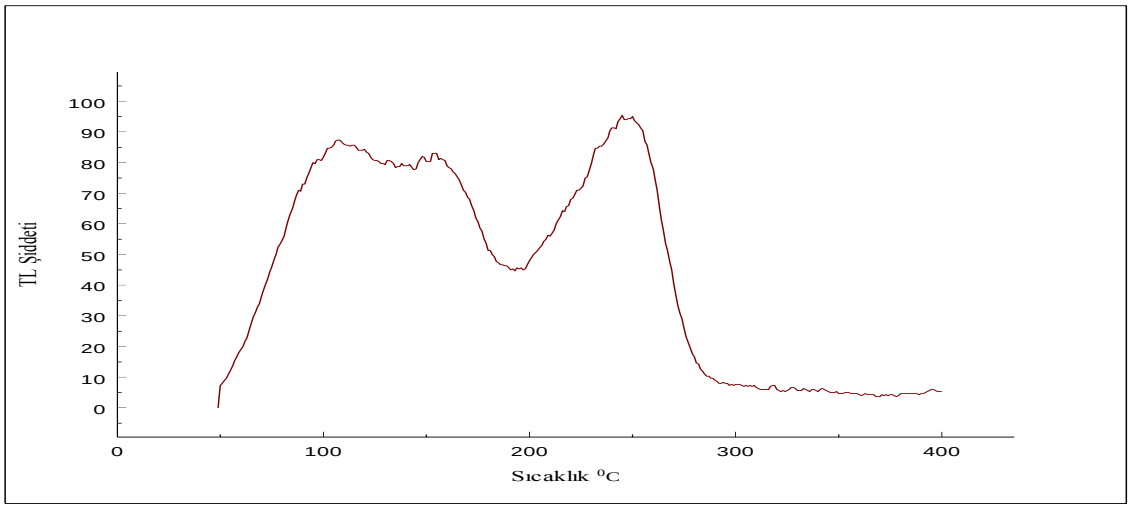
a) Yeşil opal



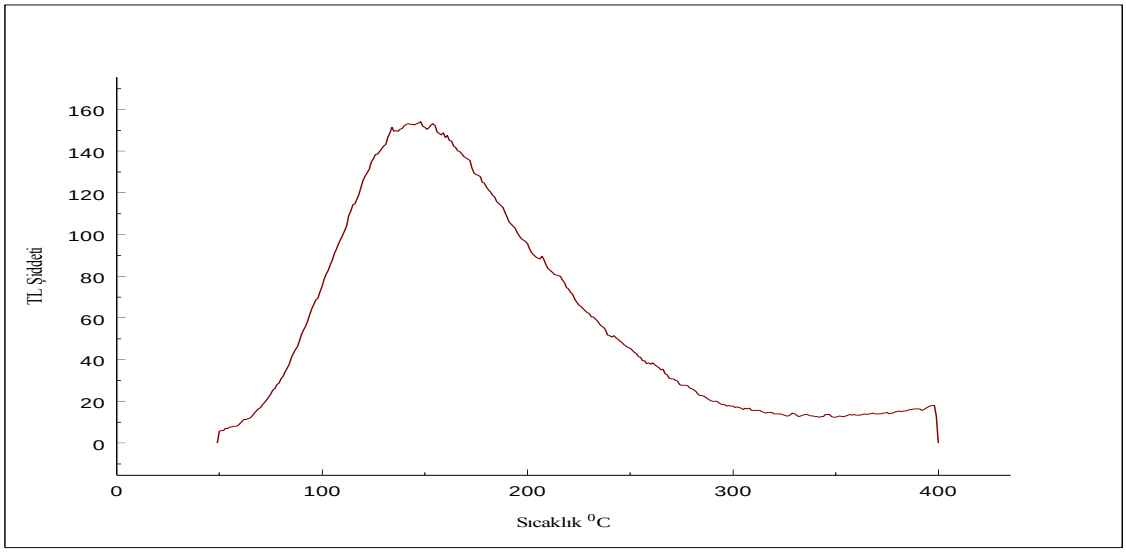
b) Süt opal

Şekil 5.13. 450Gy≈15dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

Yeşil opal ve Süt opal kristallerine 600Gy≈20dk X-ışın dozuna maruz bırakılan $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri şekil 5.14' te görülmektedir. Yeşil opalin şekil5.14a' da 3 pik oluştuğu görüldü. Bu pikler 108, 155 ve 250^0C karşılık geldikleri görüldü. Süt opalde tek pik oluştuğu şekil 5.14b'de görülmektedir. Bu pikin maksimum sıcaklık değeri ise 148^0C ye karşılık gelmektedir. Bu pikin hesaplanan enerji değeri ise pik şekil metodu yöntemiyle 0.56eV olarak bulundu.



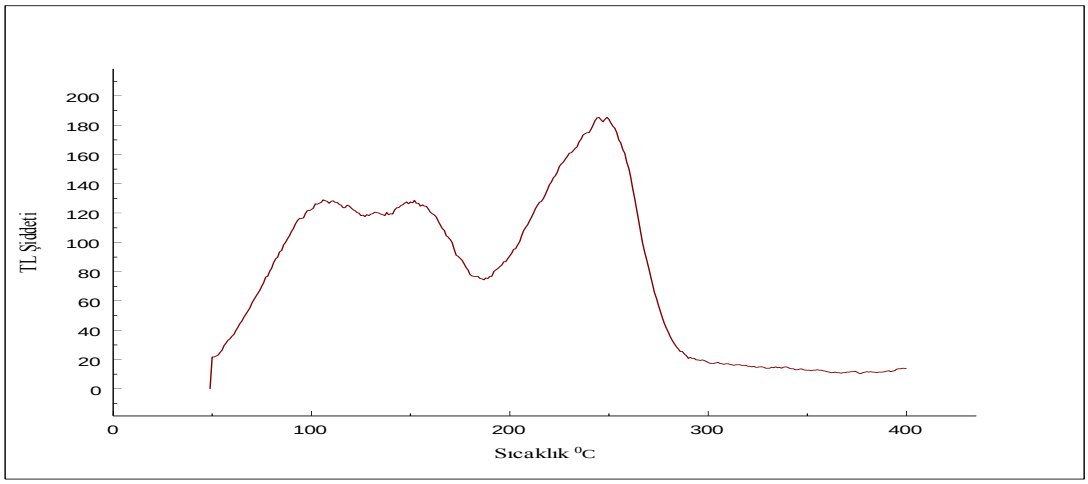
a) Yeşil opal



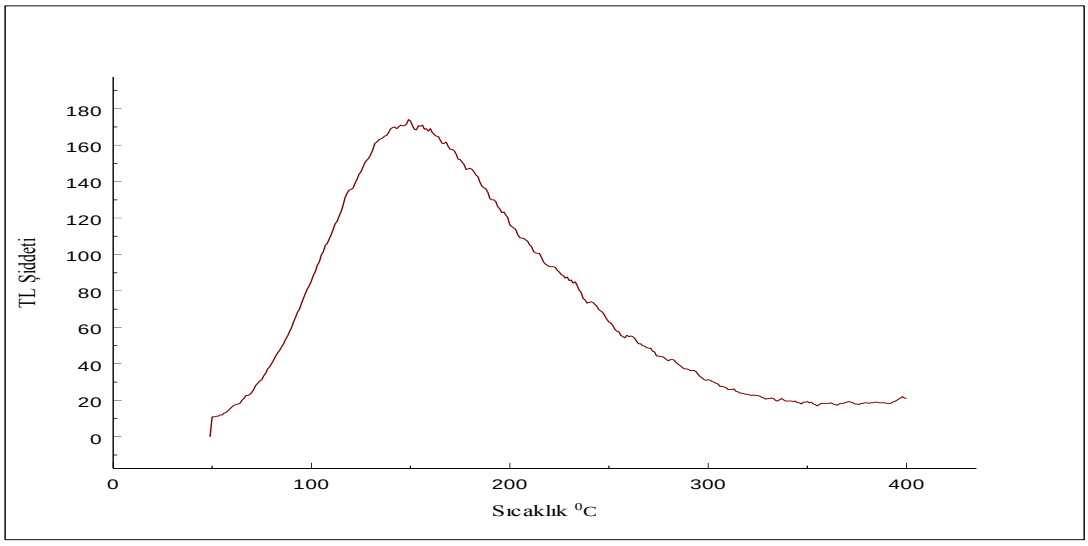
b) Süt opal

Şekil 5.14. 600Gy≈20dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

Yeşil opal ve Süt opal kristallerine 750Gy≈25dk X-ışın dozuna maruz bırakılan $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri şekil 5.14' de görülmektedir. Şekil 5.15a' da Yeşil opalde oluşan 3 pike karşılık gelen sıcaklık değerleri 106, 150 ve 249^0C'ye karşılık gelmektedir. Şekil 5.15b'de Süt opalde tek pik oluşmuştur. Bu pike karşılık gelen sıcaklık değeri ise 150^0C'dir. Bu pikin hesaplanan enerji değeri ise pik şekil metodu yöntemiyle 0.48eV olarak bulundu.



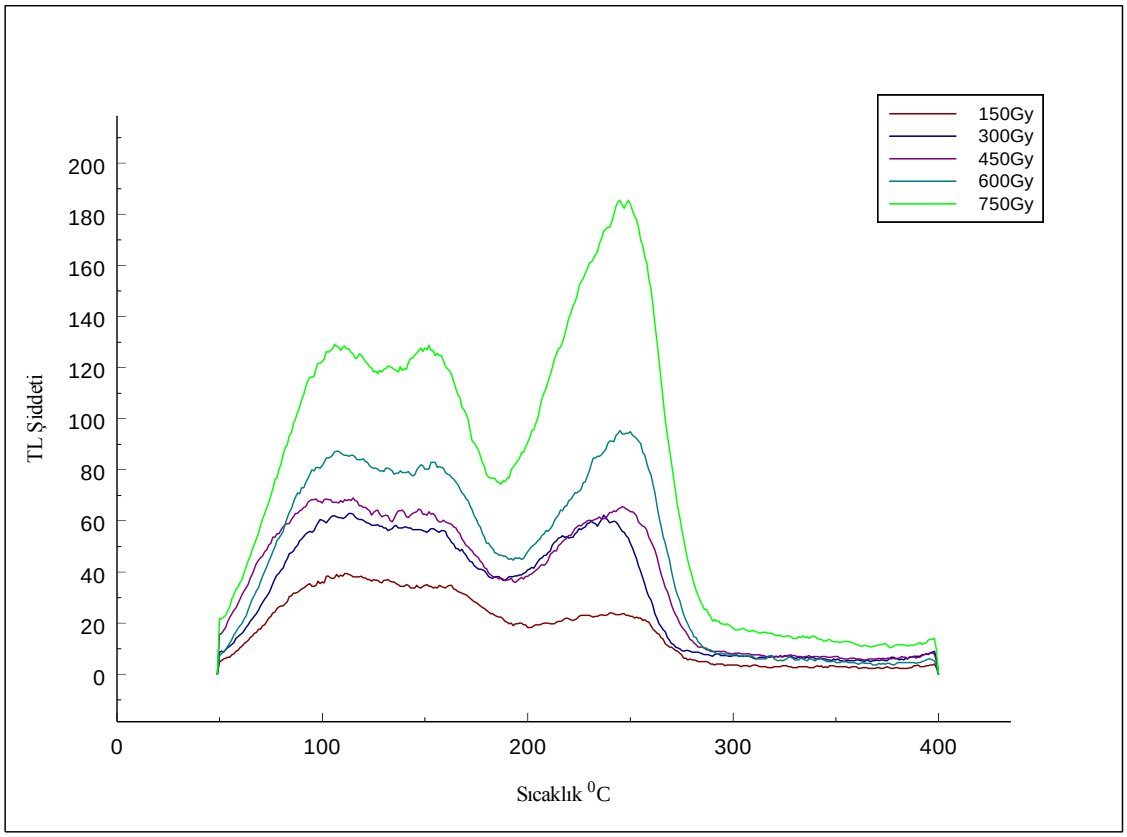
a) Yeşil opal



b) Süt opal

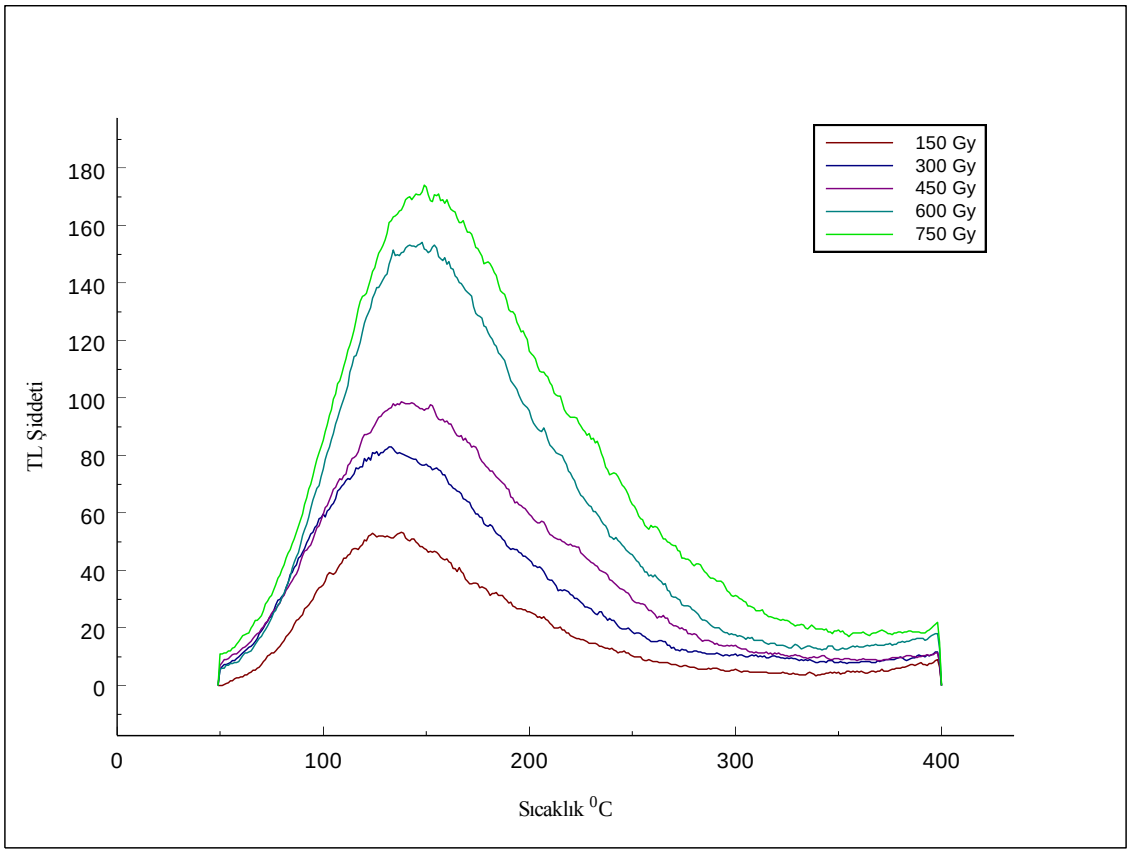
Şekil 5.15. 750Gy≈25dk X-ışın dozuna maruz bırakılan (a) Yeşil opal ve (b) Süt opal kristallerine $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

Şekil 5.16'da Yeşil opal kristaline farklı değerlerde X-ışını dozu verildikten sonra $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri görülmektedir. Yeşil opalde farklı değerlerde X-ışını dozu verildikten sonra 3 pik oluştuğu gözlendi. Yeşil opalde radyasyon miktarının artmasıyla TL parıldama eğrilerinin şiddetinin de arttığı görülmüştür.



Şekil 5.16. Farklı X-ışın dozlarına maruz bırakılan Yeşil opal kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

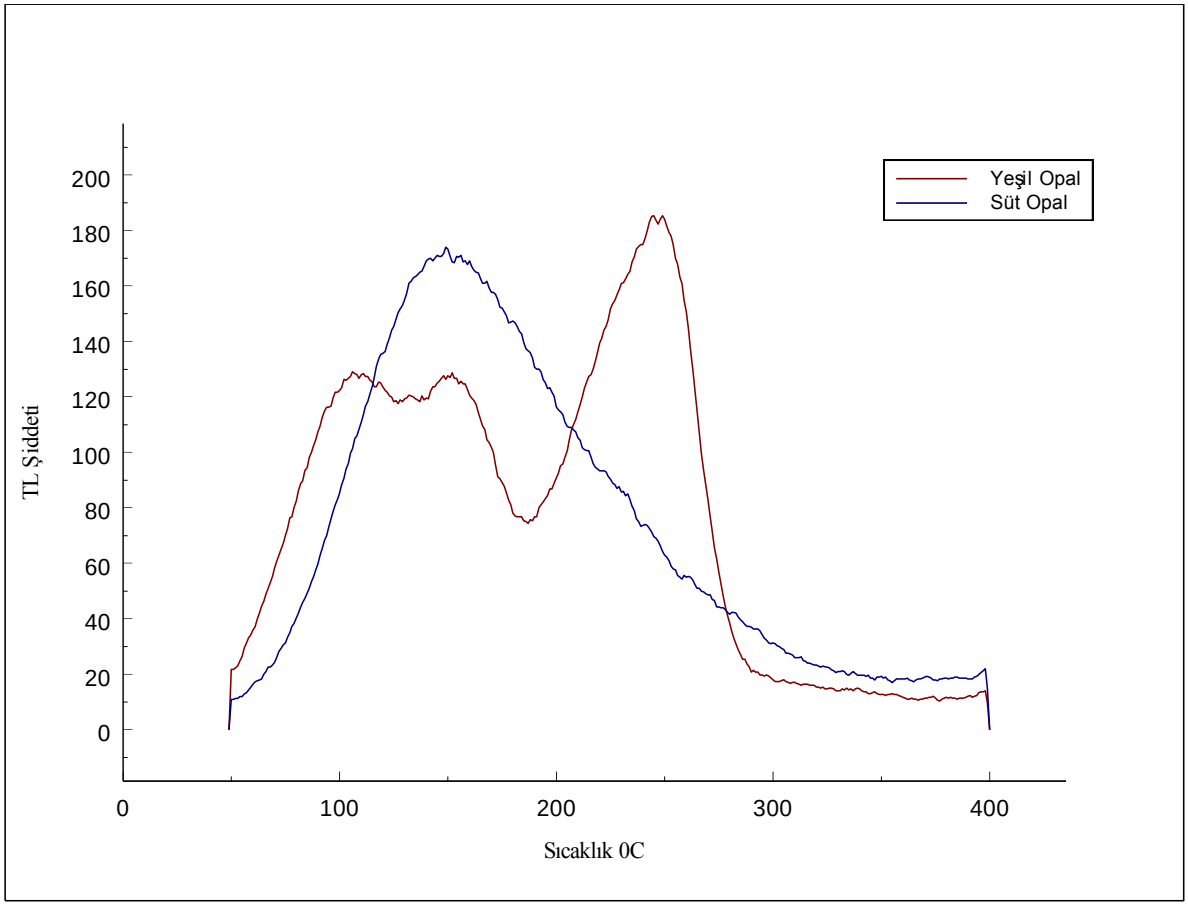
Şekil 5.17'de ise Süt opal kristaline farklı değerlerde X-ışını dozu verildikten sonra $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri görülmektedir. Şekilde görüldüğü gibi, farklı değerlerde X-ışını dozu verildikten sonra Süt opalde tek pik oluştuğu gözlendi. Süt opalde radyasyonun miktarının artmasıyla TL parıldama eğrisi şiddetinin arttığı ve elde edilen parıldama eğrilerinin yüksek sıcaklıklara doğru çok az bir kayma oluşturduğu görülmektedir.



Şekil 5.17. Farklı X-ışın dozlarına maruz bırakılan Süt opal kristaline $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri

5.4 Yeşil Opal ile Süt Opal Arasındaki İlişki

Aşağıda şekil5.18'de görüldüğü gibi 750Gy≈25dk X-ışını radyasyonundan sonra Yeşil opal ve Süt opalin TL parıldama eğrileri görülmektedir. Radyasyondan sonra Yeşil opalde 3 pik gözlenirken Süt opalde tek pik oluştuğu gözlendi. Yeşil opalin 2. piki ile süt opalin piki 150^0C'de üst üste bindiği açık bir şekilde görülmektedir. Yeşil opalde oluşan fakat Süt opalde oluşmayan 1. ve 3. piklerin TL şiddeti ise sırasıyla 106^0C ve 249^0C'ye karşılık gelmektedir.

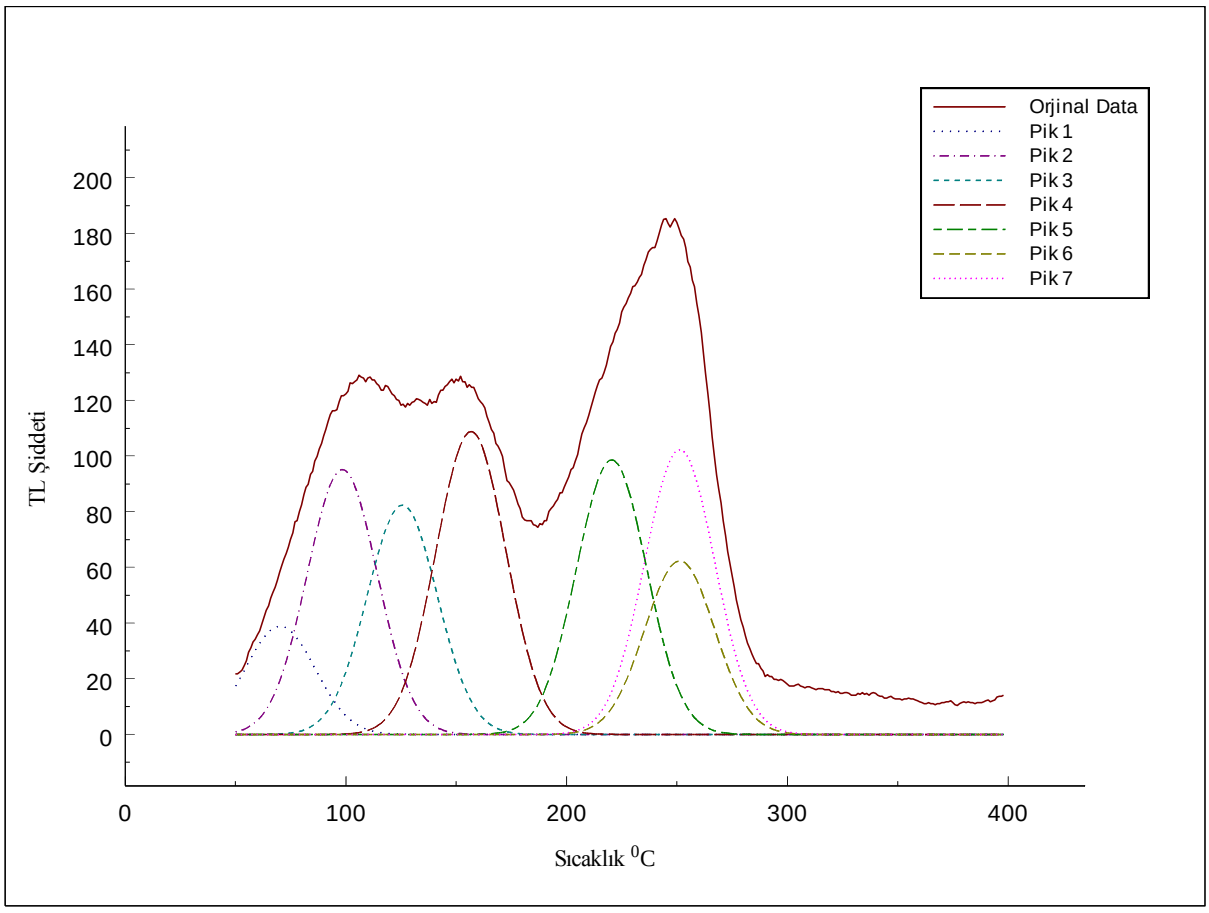


Şekil 5.18. 750Gy≈25dk X-ışını radyasyonundan sonra Yeşil opal ile Süt opal arasındaki ilişki

5.5 Simülasyon Sonucu

Yeşil ve Süt opal kristallerinde termolüminesans ölçümlerinden elde edilen parıldama eğrilerinde üst üste binmiş pikler olabileceğinden 750Gy≈25dk X-ışın dozu uygulanan ve $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrisinin üst üste binmiş parıldama eğrilerinin ayrıştırılması Glow Fit programı kullanılarak yapıldı.

Simülasyon sonucunda Yeşil opalin parıldama eğrisinde ilk iki pike karşılık dört pik gözlemlenirken son pike karşılık üç pik belirlendi. 750Gy≈25dk X-ışınına maruz bırakılan ve $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrisinin simülasyonla elde edilen tuzaklara ait pikler (deneysel ve simülasyonla) elde edilen toplam radyasyon eğrilerinin karşılaştırılması şekil 5.19'da verilmektedir.



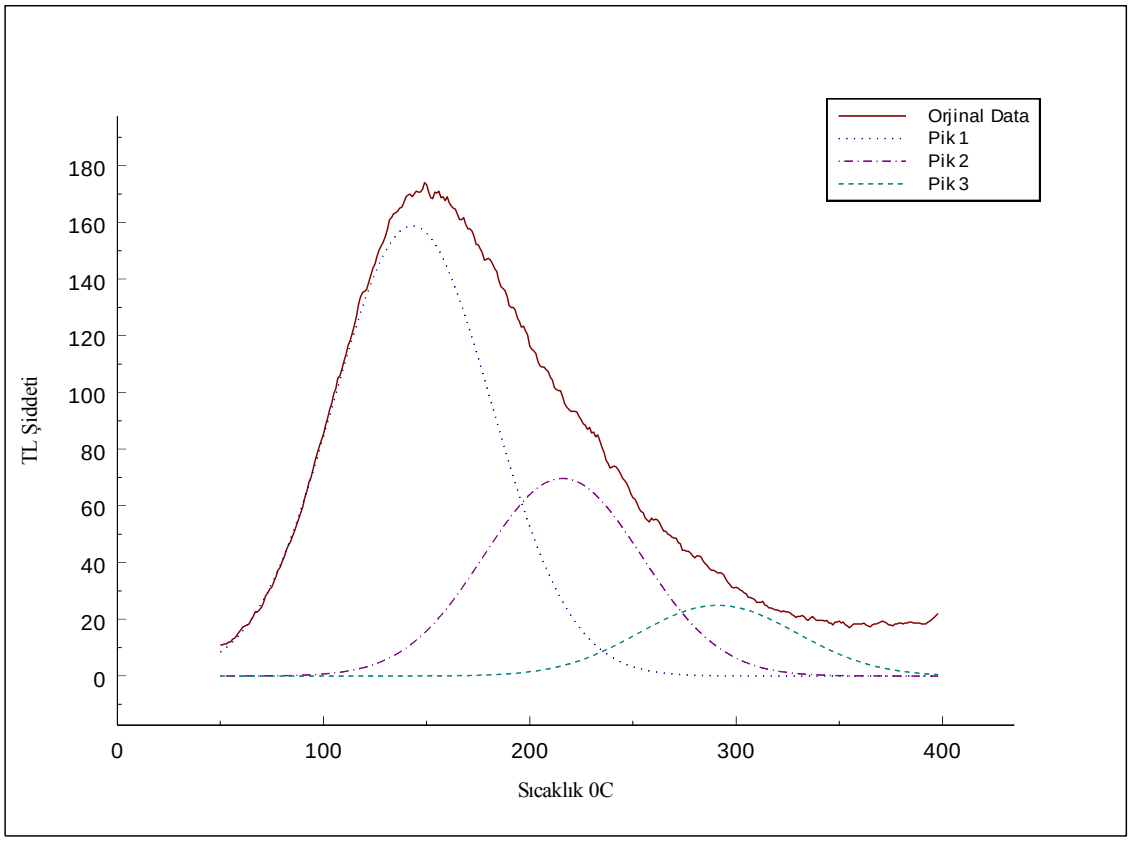
Şekil 5.19. 750Gy≈25dk X-ışınına maruz bırakılan Yeşil opalin deneysel pikleri simülasyonla elde edilen piklerle karşılaştırılması

Çizelge 5.1. Yeşil opal kristalinin simülasyonla elde edilen parıldama eğrilerinin aktivasyon enerjilerinin maksimum şiddet ve sıcaklık değerleri

	Pik 1	Pik 2	Pik 3	Pik 4	Pik 5	Pik 6	Pik 7
E (eV)	0.83	1.01	1.11	1.32	1.86	1.98	2.11
I_M	39	95	82	108	95	62	102
T_M (^{0}C)	70	98	126	157	220	251	251

Deneyde elde edilen veriler simülasyon sonucu ile karşılaşıldığında elde ettiğimiz birinci ve ikinci pikin aslında pik1, pik2, pik3 ve pik4'ten oluştuğu, üçüncü pikin ise pik5, pik6 ve pik7'den olduğu gözlendi. Birinci pikin deneysel aktivasyon enerji değeri Glow Fit programı ile 0.92eV iken, simülasyon sonucu oluşan piklere göre birinci pikin aktivasyon enerji değeri 0.83eV-1.01eV aralığında bulundu. Deneysel olarak ikinci pike karşılık gelen aktivasyon enerji değeri 1.21eV iken simülasyon sonucundaki pik3 ve pik4'ün enerji değeri 1.11eV-1.32eV aralığında bulundu. Üçüncü pike karşılık gelen aktivasyon enerji değeri 1.95eV iken; pik5, pik6 ve pik7'nin simülasyon sonucunda aktivasyon enerji değeri 1.86eV-2.11eV aralığında bulundu.

Deneysel olarak elde edilen Süt opalin parıldama eğrisinde oluşan geniş pikin simülasyon sonucunda sırt sırta vermiş üç pik oluştuğu belirlendi. 750Gy≈25dk X-ışınına maruz bırakılan ve $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen deneysel parıldama eğrisinin simülasyonla elde edilen tuzaklara ait eğrilerin karşılaştırılması şekil 5.20'de verilmektedir.



Şekil 5.20. 750Gy≈25dk X-ışınına maruz bırakılan Süt opalin deneysel pikleri simülasyonla elde edilen piklerle karşılaştırılmasız

Çizelge 5.2. Süt opal kristalinin simülasyonla elde edilen parıldama eğrilerinin aktivasyon enerjilerinin maksimum şiddet ve sıcaklık değerleri

	Deneysel Pik	Pik 1	Pik 2	Pik 3
E (eV)	0.69	0.48	0.68	0.91
I_M	174	159	70	25
T_M (^{0}C)	149	143	216	246

Deneyde elde edilen veriler simülasyon sonucu ile karşılaşıldığında elde ettiğimiz pikin aslında sırt sırta vermiş pik1, pik2 ve pik3'ten oluştuğu gözlendi. Oluşan bu deneysel pike karşılık gelen aktivasyon enerji değeri 0.69eV iken; simülasyonda hesaplanan değerlere göre aktivasyon enerji değerleri 0.485eV-0.91eV aralığında bulundu.

BÖLÜM VI

SONUÇLAR ve YORUMLAR

Yeşil opal ve Süt opal kristallerine farklı sıcaklıklardaki tavlama işlemlerine tabi tutulduktan sonra optiksel soğurma işlemleri yapıldı. Sonra farklı doza maruz bırakılan, sabit ısıtma değeriyle ısıtılan kristallerin termolüminesans ölçümleri sonucunda parıldama eğrileri elde edilerek simülasyon sonuçları alınıp iki kristal arasındaki ilişki ve belirlenen kinetik parametreleri incelendi.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin soğurma bantlarının ve pik değerlerinin belirlenmesi için optik soğurma ölçümleri alındı. Mor ötesi-görünür-kızılötesi bölgelerini kapsayan (200nm -800nm aralığı) optik soğurma eğrileri elde edildi.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin farklı sıcaklıklardaki absorblama yöntemi ile elde edilen grafiklere bakıldığında elde edilen bu soğurulma bantlarına göre opal kristalinin yapısında SiO_2nH_2O olmasıyla birlikte yapısında bulunan safsızlık atomlarından bu soğurulma bantlarının oluştuğu söylenebilir.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerine tavlama ve radyasyon işlemi uygulamadan önce $\beta=2^0C/s$ ısıtma oranı için elde edilen TL parıldama eğrilerinde Yeşil opalde 125^0C den sonra pikin oluşmaya başlandığı gözlendi. Bu pikin maksimum şiddeti 197^0C olarak ölçüldü. Süt opalde $\beta= 2^0C/s$ için elde edilen eğri de ise herhangi bir pikin oluşmadığı gözlendi. Bu da bize süt opalde herhangi bir yapı bozukluğunun veya tuzakların olmadığının göstergesidir.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerine farklı değerlerde X-ışını dozu verildikten sonra $\beta=2^0C/s$ ısıtma oranı için elde edilen parıldama eğrileri incelendi. Yeşil opalde sabit ısıtma oranında farklı X-ışın dozu uygulandıktan sonra 3 pik oluştuğu gözlendi. Süt opalde ise sabit ısıtma oranında farklı X-ışın dozu uygulanınca tek pik oluştuğu gözlendi.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerine tavlama ve radyasyon işlemi uyguladıktan sonra $\beta=2^0$C/s ısıtma oranı için elde edilen TL parıldama eğrilerinde; Yeşil opalde oluşan piklerin 750Gy≈25dk'da maksimum değere ulaştıkları gözlendi. Bu maksimum pikler 106^0C, 150^0C ve 249^0C'ye karşılık geldikleri görüldü. Aynı şekilde Süt opalde de maksimum pikin 750Gy≈25dk 'da oluştuğu ve 150^0C' ye karşılık geldiği gözlendi.

Deneysel olarak elde edilen parıldama eğrilerin simülasyon yöntemi uygulandıktan sonra elde edilen pikler, pik şekil metodu kullanarak; Yeşil opalde oluşan birinci pikin 0.83eV-1.01eV, ikinci pikin 1.11eV-1.32eV ve üçüncü pikin de 1.86eV-2.11eV aralığında enerji değerleri hesaplandı. Süt opalde ise oluşan geniş pikin enerji değeri 0.48eV-0.91eV olarak hesaplandı.

Simülasyon sonucunda elde edilen veriler ile deneysel olarak hesaplanan değerler kıyaslandığında sonuçların farklı değerler aldığı görülmektedir. Bunun nedeni deneysel olarak ölçülen parıldama eğrilerinin üst üste binen piklerin olmasından ve birbirinden iyice ayrıştırılmamış olmasından kaynaklanmaktadır. Buradaki değerlerin farklı çıkmasının sebebi ise elde edilen eğrilerdeki piklerin üst üste binmesinden kaynaklanabilir.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerine farklı oranlarda X-ışın dozu verildikten sonra $\beta=2^0$C/s ısıtma oranına göre elde edilen parıldama eğrilerinde X-ışın dozu artıkça TL şiddetinin arttığı ve süt opalde parıldama eğrilerinin yüksek sıcaklıklara doğru çok az bir kayma oluşturduğu görüldü.

Radyasyon sonrası elde edilen deneysel ölçümde Yeşil opalin 2. piki ile Süt opalin piki 150^0C'de üst üste bindiği gözlendi. Elde edilen şekile dayalı olarak opal kristallerinin yapısında bulunan SiO_2 minerallerinden kaynaklandığını söyleyebiliriz. Yeşil opalde oluşan 1. ve 3. piklerin bu 2. pikten farklı olmasının sebebi ise yeşil opale rengini veren minerallerden meydana geldiğini tahmin ediyoruz.

Yeşil opal ve Süt opal kristallerinin parıldama eğrilerinin TL şiddeti artan doz miktarına bağlı olarak bir lineerlik gösterdiği ancak Doz response ve Fedding deneyleri yapılarak dozimetrik olarak kullanıp kullanılamayacakları söylenebilir.

KAYNAKLAR

Andaç, M., Newesely, H., Wilk, H., "Bayat-Afyon ve Karamanca Köyü (Şaphane-Kütahya) Opal Zuhurlarının Elektron Mikroskopu İle Etüdü", ***Maden Tetkik ve Arama Enstitüsü Dergsi***, Sayı:87., 1976.

Ausin V. and Alvarez-Rivas J.A., ***J.Phys. C:Solids State Phys***., 5,82. 1972.

Balarin M., ***Phys. Status Solidi*** a, 54, K137, 1979.

Betekhin, A., "A Course of Mineralogy", ***Moscow Peace Publishers***, Russian.1961.

Brown, L. D., Ray, A. S., Thomas, P. S. and Guerbois, J. P., Thermal characterıstıcs of australıan sedımentary opals, ***Journal of Thermal Analysis and Calorimetry***, Vol. 68 (2002) 31.36

Chen R., ***J. Appl. Phys.*** 40, 570, 1969a.

Chen R., ***J. Electrochem. Soc.*** 116, 1254, 1969b.

Cheng-Yu K., Shih-Y. L., Shengfu C., Matt B., and Shaoyi J., Stop band shift based chemical sensing with three-dimensional opal and inverse opal structures. ***Sensors and Actuators B*** 124 (2007) 452–458

Choudhary G., Bhandari R., A new type of synthetic fire opal: Mexifire, ***GEMS & GEMOLOGY***, Vol. 44, No. 3, pp. 228–233., 2008.

Curie, D., Luminescence in Crystals, ***Methuen***, London. 1960.

Fleming, S.J., ***Journal of Material Science*** 46,1569., 1968

Furetta, C., WENG, P.S., Operational Thermoluminescence Dosimetry, ***World Scientific Publishing Co. Ptc. Ltd***, 251p. 1998.

Garlick, G.F.J. and Gibson A.F., ***Proc. Roy. Soc.*** 60, 574, 1948.

Garlick, G.F.J., Luminescent Materials, ***Oxford Universty Press***, London. 1949.

Grossweiner L.I., ***J. Appl. Phys***. 24, 1306, 1953.

Güldürek M., Amik Ovası Tell Atçana Höyüğü sur dibi seramiklerinin termolüminesans yöntemiyle tarihlendirilmesi, Yüksek Lisans Tezi, ***Ç. Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü,*** Adana, 2006.

Habiboğlu, C., Akçakent floritlerinin termolüminesans özellikerine tuzak parametrelerinin çalışılması, Yüksek Lisans Tezi, ***Ç. Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü***, Adana, 2008.

Halperin A. and Braner A.A., ***Phys. Rev***. 117, 408, 1960.

Horton, D, "Australian Sedimantary Opal-Why Is Australia Unique?", ***Managing Director of Opal Horizon Limited***, Australia., 2000.

http://www.minerals.net

Johnson, N.P., McComb, D.W., Richel, A., Treble, B.M., and De La Rue R.M., Synthesis and optical properties of opal and inverse opal photonic crystals, ***Synthetic Metals*** 116 (2001) 469-473

Kasa, I., Chobala, R., Mell, P., Szakacs, S. and Kerekes, A. "Preparation and investigation of Thermoluminescence properties of $CaSO_4$:T_MCu. ***Radiation Protection Dosimetry*** (2007), Vol. 123, No. 1, pp.32-35

Keating, P.N., Thermally Stimulated Emission and Conductivity Peaks in the Case Temperature Dependent Trapping Cross Section. ***Proc. Phys. Soc***. Vol:78, 1408., 1961

Lushchik L.I., ***Soviet Phys. Jept*** 3, 390, 1956.

Marina, M.L., Franco L., and Ulrich, H. K., Potential and limitations of rare-earth luminescence in inverse opals, ***Journal of Luminescence*** 129 (2009) 1464–1468

May C.E. and Partridge J.A., J. ***Chem. Soc.*** 40, 1401, 1964.

Pallavidino L., Santamaria R. D. , Geobaldo F., Balestreri A., Bajoni D., Galli M., Andreani L. C., Ricciardi C., Celasco E., Quaglio M., Giorgis F., Synthesis, characterization and modelling of silicon based opals, ***Journal of Non-Crystalline Solids*** 352 (2006) 1425–1429.

Randall J.T. and Wilkins M.H.F., ***Proc. Roy. Soc.*** A 184, 366, 1945.

Ross, L. M., Gregory, J. C., and Bruce, L. D., Thermoluminescence studies of some natural and synthetic opals, ***American Mineralogist***, Volume 63, pages 737-743, 1978

Rybin, M.V., Samusev, K.B., and Limonov, M.F., High Miller-index photonic bands in synthetic opals, ***Photonics and Nanostructures – Fundamentals and Applications*** 5 (2007) 119–124

sanwapearl.com.hk

Smallwood, A.G., Thomas, and P.S., Ray, A.S., Characterisation of sedimentary opals by Fourier transform Raman spectroscopy, ***Spectrochimica Acta Part A*** 53 (1997) 2341-2345

Smallwood A., MSc, FGAA, GG Sutherland, NSW, 35 years on a new look at synthetıc opal, ***Australian Gemmologist*** (2003) 21.438-447

Tanaka, Y., Tamura, S., Akimov, A. V., Pevtsov A. B., Kaplan, S. F., Dukin, A. A., Golubev, V. G., Yakovlev, D. R. and Bayer, M., Phononic properties of opals, ***Journal of Physics***: Conference Series 92 (2007) 012107

Tsunekawaal S., Yu.A. B., Poborchiib, V.V., Samoilovich, S.M., and Kasuya, A., Nishina, Y., Characterization of precious opals: AFM and SEM observations, photonic band gap, and incorporation of CdS nano-particles, ***Microporous Materials*** 8 (1997) 275-282

Weinstein, I.A., Vokhmintsev, A.S., Kortov, V.S., Compensation effect in thermoluminescence of TLD-500, ***Radiation Measurements*** 43, 259-262, 2008.

Yanga L.Y., Liaua,W. B., Optical responses of polyaniline inverse opals to chemicals, ***Synthetic Metals*** 160 (2010) 1809–1814.

ÖZ GEÇMİŞ

Hasan YÜREK, 26.10.1986 tarihinde İskenderun'da doğdu. İlk, orta ve lise öğretimini İskenderun'da tamamladı. 2005 yılında girdiği Niğde Üniversitesi F.E.F. Fizik Bölümü'nden Haziran 2009'de mezun oldu. 2009 yılında Niğde Üniversitesi F.B.E. Fizik Anabilim Dalında Yüksek Lisans öğrencisi olarak başladı. Yüksek lisans çalışmaları sırasında Lümidoz IV (2010), Lümidoz V (2011), Lümidoz VI (2012) ile TFD29 (2012) Kongrelerinde sözlü ve poster çalışmalarını sundu. Mayıs 2013'te Yüksek lisans öğrenimini tamamladı.

Tez Çalışmasından Üretilen Eserler

Bu tez çalışmasından, 1 (bir) adet ulusal ve 1 (bir) adet uluslararası bildiri üretilmiştir. Bu üretilen çalışmalar aşağıda sunulmuştur.

Hasan Yürek, Sera İflazoğlu, Adil Canımoğlu. " Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerinin Termolüminesans Karakteristiklerinin Araştırılması" ***TFD29***, Uluslararası Fizik Kongresi 05-08 Eylül 2012. Bodrum/Muğla, Türkiye.

Hasan Yürek, Sera İflazoğlu, Adil Canımoğlu. " Türkiye'den Çıkartılan Yeşil Opal ve Süt Opal Kristallerinin Termolüminesans ve Absorpsiyon Karakteristiklerinin Araştırılması" ***LümiDoz-VI***, Ulusal Fizik Kongresi, 11-13 Eylül 2012. Çeşme/ İzmir, Türkiye.