

**ANKARA ÜNİVERSİTESİ
NÜKLEER BİLİMLER ENSTİTÜSÜ**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**BOR NİTRÜRÜN DOZİMETRİK ÖZELLİKLERİNİN LÜMİNESANS
TEKNİKLERLE İNCELENEREK SAĞLIK FİZİĞİ UYGULAMALARINDA
KULLANILABİLİRLİĞİNİN ARAŞTIRILMASI**

Çağan Hakan ÖZTOPRAK

MEDİKAL FİZİK ANABİLİM DALI

**ANKARA
2021**

Her hakkı saklıdır

TEZ ONAYI

Çağan Hakan Öztoprak tarafından hazırlanan “**Bor Nitrürün Dozimetrik Özelliklerinin Lüminesans Tekniklerle İncelenerek Sağlık Fiziği Uygulamalarında Kullanılabilirliğinin Araştırılması**” adlı tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Medikal Fizik Anabilim Dalı’nda **YÜKSEK LİSANS TEZİ** olarak kabul edilmiştir.

Danışman: Doç. Dr. Gaye Özgür ÇAKAL

Eş Danışman: Dr. Georgios S. POLYMERIS

Jüri Üyeleri:

Prof. Dr. Aytunç ATEŞ

Ankara Yıldırım Beyazıt Üniversitesi Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü

Doç. Dr. Gaye Özgür ÇAKAL

Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü

Doç. Dr. Eren ŞAHİNER

Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof. Dr. Haluk YÜCEL

Enstitü Müdürü

Bu tezdeki tüm bilgilerin akademik kurallara ve etik davranış ilkelerine uygun olarak elde edildiğini ve sunulduğunu beyan ederim. Ayrıca, bu kurallar ve davranışların gerektirdiği şekilde, başka kaynaklardan aldığım tüm materyalleri ve sonuçları alıntı yaparak, bunlara kaynak gösterdiğimi beyan ederim.

Çağan Hakan ÖZTOPRAK



ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

BOR NİTRÜRÜN DOZİMETRİK ÖZELLİKLERİNİN LÜMİNESANS TEKNİKLERLE İNCELENEREK SAĞLIK FİZİĞİ UYGULAMALARINDA KULLANILABİLİRLİĞİNİN ARAŞTIRILMASI

Çağan Hakan ÖZTOPRAK

**Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü
Medikal Fizik Anabilim Dalı
Sağlık Fizigi Yüksek Lisans Programı**

**Danışman: Doç. Dr. Gaye Özgür ÇAKAL
Eş Danışman: Dr. Georgios S. POLYMERIS**

Günümüzde lüminesans dozimetri sistemlerinde farklı fiziksel formlarda malzemeler termolüminesans (TL) ve optik uyarmalı lüminesans (OSL) yöntemleri kullanılarak kişisel, klinik, çevresel vb. birçok uygulama alanında yaygın olarak tercih edilmektedir. Yeni araştırmalar dozimetrelerin üretilmesi üzerine yoğunlaşmıştır. Bu nedenle, dünyadaki bor rezervlerinin yaklaşık %73'ünün Türkiye'de olduğu da göz önüne alınarak, lüminesans uygulamalarında sıklıkla kullanılan borat bileşiklerinden sonra özel bor ürünlerinin de dozimetri araştırmalarında değerlendirilmesi ve bu sayede de özel bor ürünlerinin uygulama alanının genişletilmesi açısından önem taşımaktadır.

Bu tez çalışmasında, iki önemli kristal yapıdaki bor nitrür (BN): hegzagonal bor nitrür (h-BN) ve kübik bor nitrür (c-BN) örneklerinin dozimetrik özellikleri incelenmiştir. Bor nitrür malzemeler; kimyasal, mekanik özellikleri ve biyouyumluluğu nedeni ile sağlık alanında kullanılmaktadır. Bu malzemelerin doku eşdeğeri ($Z_{eff} = 6,3$) olmaları, kolayca katılandırılabilirlikleri ve toksik olmamaları nedeniyle de dozimetre uygulamalarında kullanılabileceği öngörülmüştür. h-BN ve c-BN örneklerinin; EPR, SEM ve XRD yöntemleri kullanılarak karakterizasyonları yapıldıktan sonra lüminesans teknikler ile dozimetrik özellikleri incelenmiştir. Her iki bor nitrür örneğinin TL ve mavi uyarmalı lüminesans (BSL) yöntemleri kullanılarak; radyasyon doz cevabı, tekrarlanabilirlik, minimum ölçülebilen doz değeri incelenmiştir. TL ısıma eğrisinde tuzak parametreleri kesikli ısıma eğrisi ve ayrıştırma yöntemleriyle araştırılmış ve zamana bağlı sönümün TL sinyallerine etkisi ele alınmıştır. Ayrıca BSL ve kızılötesi uyarmalı lüminesans (IRSL) sinyalleri ile OSL sonrası artakalan TL (RTL) ısıma eğrileri incelenmiştir.

$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile ısınlanan h-BN ve c-BN örneklerinin minimum ölçülebilen doz değerleri sırasıyla toplam alanda TL için 10 ± 2 Gy ve $0,08 \pm 0,004$ Gy; BSL için 27 ± 5 Gy ve $4 \pm 0,2$ Gy olarak hesaplanmıştır. TL yönteminde c-BN'ün tekrarlanabilir olduğu ve h-BN'ün hassasiyetinde artış gözlemlendi; OSL yönteminde ise 4. ölçümden sonra h-BN ve c-BN örneklerinin tekrarlanabilir oldukları görülmüştür. c-BN ve h-BN örneklerinin düşük sıcaklık bölgelerinde gözlenen TL tepelerinin artan dozda lineer sinyal şiddeti artışına rağmen hızlı sönüme uğramaları nedeniyle dozimetrik olarak uygun olmadığı gözlenmiştir. Diğer bulgularla birlikte değerlendirildiğinde h-BN örneğinin Gy mertebesindeki çalışmalarda kullanılabileceği, c-BN örneğinde ise zamana bağlı sönümün hızlı olması nedeniyle geliştirilmesi gerektiği görülmüştür. Ayrıca katkısız bor nitrür örneklerinin TL, OSL ve EPR özellikleri ilk defa bir arada çalışılmıştır.

2021, 80 sayfa

Anahtar Kelimeler: Bor nitrür (BN), termolüminesans (TL), optik uyarmalı lüminesans (OSL), lüminesans dozimetri, sağlık fizigi

ABSTRACT

Master Thesis

FEASIBILITY INVESTIGATION OF THE DOSIMETRIC PROPERTIES OF BORON NITRIDE BY USING LUMINESCENCE TECHNIQUES ON HEALTH PHYSICS APPLICATIONS

Çağın Hakan ÖZTOPRAK

**Ankara University Institute of Nuclear Sciences
Department of Medical Physics
Health Physics Master Program**

**Supervisor: Assoc. Prof. Dr. Gaye Özgür ÇAKAL
Co-Supervisor: Dr. Georgios S. POLYMERIS**

Nowadays, materials in different physical forms in luminescence dosimetry systems are commonly preferred to be used in personal, clinical, environmental, etc., applications that using thermoluminescence (TL) and optically stimulated luminescence (OSL) methods. Recent research has focused on the production of dosimeters. For this reason, considering that approximately 73% of the world's boron reserves are in Turkey, the evaluation of special boron products in dosimetry researches after borate compounds, which are frequently used in luminescence applications, is of importance in terms of expanding the application area of special boron products.

In this thesis, the dosimetric properties of two important crystal forms of boron nitride (BN), namely hexagonal boron nitride (h-BN) and cubic boron nitride (c-BN) samples were investigated. Boron nitride materials are used in the field of health due to their chemical, mechanical properties, and biocompatibility. These materials are predicted to be used in the dosimetry application as they are tissue equivalent ($Z_{eff} = 6,3$), easily doped, and non-toxic. After characterization of h-BN and c-BN samples using EPR, SEM, and XRD methods, their dosimetric properties were examined with luminescence techniques. Using TL and blue stimulated luminescence (BSL) methods of both boron nitride samples; radiation dose-response, reproducibility, minimum detectable dose values were investigated. Trap parameters in the TL glow curve are investigated by the fractional glow and deconvolution methods, and the effect of time-dependent fading on TL signals was discussed. In addition, BSL and infrared stimulated luminescence (IRSL) signals and residual TL (RTL) glow curves after OSL were investigated.

The minimum measurable dose values in the total area of h-BN and c-BN samples irradiated with $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta source were found as 10 ± 2 Gy and $0,08 \pm 0,004$ Gy for TL, respectively; 27 ± 5 Gy and $4 \pm 0,2$ Gy for BSL, respectively. c-BN was found to be reproducible in the TL method and h-BN was found to have increased sensitivity. It was observed that the h-BN and c-BN samples were reproducible in the OSL method after the 4th measurement. It was observed that TL peaks in low-temperature regions of c-BN and h-BN samples were not suitable dosimetrically due to their rapid fading despite the increase in linear signal intensity with increasing dose. When evaluated together with other findings, it was seen that the h-BN sample could be used in studies at the level of Gy, while the c-BN sample needed to be improved due to its rapid fading with time. In addition, TL, OSL, and EPR properties of undoped boron nitride samples were studied combined for the first time.

2021, 80 pages

Key Words: Boron nitride (BN), thermoluminescence (TL), optically stimulated luminescence (OSL), luminescence dosimetry, health physics

TEŞEKKÜR

Yüksek lisans tez çalışmam boyunca her konuda bilgi birikimleri ile zamanlarını benden esirgemeyen, ihtiyaç duyduğumda çalışmanın her aşamasında bana yardımcı olarak tavsiyeleriyle beni yönlendiren ve akademik hayatımda eğitimime yaptığı değerli katkılardan dolayı danışman hocam Sayın Doç. Dr. Gaye Özgür ÇAKAL'a ve eş danışman hocam Sayın Dr. Georgios S. POLYMERIS'e;

Tezin bilimsel olarak düzenlenmesinde bilgi ve deneyimini benden esirgemeyen, önerileriyle yol gösteren ve çalışmalarımda her fırsatta bana zaman ayırarak destek olan Sayın Dr. Şule KAYA KELEŞ'e;

Tez çalışmam süresince A.Ü. NBE Lüminesans Tarihlendirme Araştırma Laboratuvarındaki ölçümlerimi almama olanak sağlayarak verdikleri destek ve yapmış oldukları değerli tavsiyelerden dolayı Sayın Doç. Dr. Eren ŞAHİNER, Dr. Engin AŞLAR ve Öğr. Gör. Sasan GARANMAYEH'e;

Araştırmalarımda kullandığım hegzagonal bor nitrür ve kübik bor nitrür örnekleri için Sayın Prof. Dr. Bilgin KAFTANOĞLU'na, ODTÜ Metalurji ve Malzeme Mühendisliği'nde XRD analizlerini yapan Sayın Yrd. Doç. Dr. Caner ŞİMŞİR ve Nilüfer ÖZEL ile A.Ü. NBE'de SEM analizlerini yapan Dr. Elif YILDIZ'a ve tezim süresince katkısı olan A.Ü. NBE personeline içten duygularıyla çok teşekkür ederim.

Ayrıca hayatımın her anında varlıkları ile desteklerini hep yanımda hissettiğim ve eğitimim sürecinde bugünlere gelmemi sağlayan hayattaki en büyük şansım olarak gördüğüm sevgili aileme; annem Mukaddes ÖZTOPRAK, babam Aziz ÖZTOPRAK ve canım kardeşim Uzm. Dr. Hazal Selvi ÖZTOPRAK'a sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Çağan Hakan ÖZTOPRAK

Ankara, Ekim 2021

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR	iii
İÇİNDEKİLER	iv
SİMGELER DİZİNİ	vii
ŞEKİLLER DİZİNİ	ix
ÇİZELGELER DİZİNİ	xii
1. GİRİŞ	1
2. KURAMSAL TEMELLER.....	4
2.1 Lüminesans	4
2.2 Enerji Band Modeli.....	6
2.3 Termolüminesans (TL)	8
2.4 Termolüminesans Kinetiği	12
2.5 TL Tuzak Parametrelerinin Belirlenmesi için Kullanılan Yöntemler	14
2.5.1 Başlangıçtaki artış yöntemi	15
2.5.2 Farklı ısıtma hızları yöntemi.....	16
2.5.3 Kesikli ışıma eğrisi yöntemi.....	17
2.5.4 Ayrıştırma (CGCD) yöntemi.....	17
2.6 Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL)	19
2.6.1 OSL'nin geliştirilmiş matematiksel modeli.....	21
2.7 Lüminesans Dozimetreler (TLD ve OSLD)	23
2.8 Lüminesans Dozimetri (TLD ve OSLD) Uygulamaları.....	27
2.9 Bor Nitrür (BN) Malzemelerin Yapısı ve Dozimetrik Özellikleri ile İlgili Çalışmalar.....	30
3. MATERYAL VE YÖNTEM.....	36

3.1 Materyal.....	36
3.1.1 Bor nitrür (BN).....	36
3.1.2 Kullanılan cihazlar.....	36
3.1.2.1 TL/OSL okuyucu.....	36
3.1.2.2 TLD okuyucu.....	39
3.1.2.3 Işınlama ünitesi	40
3.1.2.4 Taramalı elektron mikroskobu (SEM)	41
3.1.2.5 X-ışınları difraksiyonu (XRD) spektroskopisi.....	42
3.1.2.6 EPR spektroskopisi	43
3.2 Yöntem	44
3.2.1 Bor nitrür malzemelerin yapısal karakterizasyonu.....	44
3.2.2 Bor nitrür malzemelerin luminesans özelliklerinin incelenmesi	45
4. BULGULAR VE TARTIŞMA.....	47
4.1 Bor Nitrür Malzemelerin Yapısal Karakterizasyonu.....	47
4.1.1 X-Işınları Difraksiyonu (XRD) spektroskopisi analizleri.....	47
4.1.2 Taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve enerji yayımlı X-ışını (EDX) analizleri.....	48
4.1.3 Elektron paramanyetik rezonans (EPR) yöntemi analizleri.....	50
4.2 Bor Nitrür Malzemelerin TL Özelliklerinin İncelenmesi	51
4.2.1 Farklı filtreler kullanılarak TL ışıma eğrilerinin karşılaştırılması.....	51
4.2.2 TL ışıma eğrileri.....	52
4.2.3 TL doz cevap eğrileri	53
4.2.4 TL minimum ölçülebilen doz (MDD) değerleri.....	55
4.2.5 TL tekrarlanabilirlik ölçümleri	55
4.2.6 Farklı ısıtma hızları yöntemi ile ışıma eğrisinin incelenmesi.....	56

4.2.7 TL tuzak parametrelerinin incelenmesi.....	57
4.2.8 Sönüm (Fading) sonuçları	59
4.3 Bor Nitrür Malzemelerin OSL Özelliklerinin İncelenmesi.....	60
4.3.1 BSL ve IRSL sinyallerinin incelenmesi.....	60
4.3.2 RTL ışıma eğrileri.....	61
4.3.3 BSL doz cevap eğrileri.....	62
4.3.4 BSL minimum ölçülebilen doz (MDD) değerleri.....	64
4.3.5 BSL tekrarlanabilirlik ölçümleri.....	65
5. SONUÇ.....	66
KAYNAKLAR	72
ÖZGEÇMİŞ.....	80

SİMGELER DİZİNİ

b	Kinetik mertebe
BN	Bor nitrür
B₀	Rezonans manyetik alanı
BSL	Mavi uyarmalı lüminesans
CGCD	Ayrıştırma yöntemi
CW	Sürekli dalga
c-BN	Kübik bor nitrür
E	Aktivasyon enerjisi
E_g	Enerji band aralığı
E_f	Fermi seviyesi
EDX	Enerji yayımlımlı x-ışını
EPR	Elektron paramanyetik rezonans
eV	Elektron volt
exp	Exponansiyel
FOM	İlgi alanı
g	g faktörü
Gy	Gray (J/kg)
h	Planck sabiti
h-BN	Hegzagonal bor nitrür
I	Lüminesans şiddeti
IR	Kızılötesi
IRSL	Kızılötesi uyarmalı lüminesans
k	Boltzman sabiti
k.b.	Keyfi birim
LM	Lineer modülasyon
LED	Işık yayan diyot
MDD	Minimum ölçülebilen doz
N	Elektron tuzaklarının konsantrasyonu
n	Tuzaklanmış elektronların konsantrasyonu
n₀	Başlangıçta tuzaklanmış elektronların sayısı

n_h	Tuzaklanmış hollerin konsantrasyonu
OSL	Optik uyarmalı lüminesans
OSLD	Optik uyarmalı lüminesans dozimetre
p	Birim zamandaki olasılık
R	Yeniden birleşme merkezi
RTL	Artakalan TL
s	Frekans faktörü
SEM	Taramalı elektron mikroskobu
$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$	Stronsiyum-90/Yitriyum-90
Sv	Sievert
T	Mutlak sıcaklık
T_0	Başlangıçtaki sıcaklık
$T_{\max}$	Maksimum sıcaklık
T_{stop}	Durma sıcaklığı
TL	Termolüminesans
TLD	Termolüminesans dozimetre
UV	Morötesi
XRD	X-ışınları difraksiyonu
Z_{eff}	Etkin atom numarası
β	Isıtma hızı
μ_B	Bohr manyetonu
μ_g	Geometrik faktör
η	Verim
ϕ	Foton akısı
T	Elektron tuzağı
τ	Ortalama ömür
σ	Fotoiyonizasyon tesir kesiti
ω	Pikin yarı yükseklikteki tam genişliği
δ	Pikin yarı yükseklikteki yarı genişliği
λ	Dalgaboyu

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 1.1 Bor ürünlerinin nihai kullanım alanlarına göre dağılımı	2
Şekil 2.1 a) Floresans, b) fosforesans olaylarının şematik gösterimi.....	5
Şekil 2.2 Enerji band modeli.....	6
Şekil 2.3 Farklı tipte kristal yapı kusurları.....	7
Şekil 2.4 Termolüminesans olayının basitleştirilmiş iki seviyeli enerji band diyagramı .	9
Şekil 2.5 Ölçüm süresince lineer ısıtma hızı (β) kullanılarak: (a) sıcaklığın, (b) yeniden birleşme merkezlerindeki tuzaklanmış hollerin konsantrasyonunun ve (c) TL şiddetinin zamana göre değişimi.....	11
Şekil 2.6 a) Birinci mertebeden kinetiğe sahip TL ışıma eğrisinin geometrik faktöre göre ($\mu g = \delta/\omega$) pik şekli ve b) farklı mertebeden kinetiğe sahip TL ışıma eğrilerinin karşılaştırılması	14
Şekil 2.7 TL ışıma eğrisinde başlangıçtaki artış yöntemi ile aktivasyon enerjisinin belirlenmesi	15
Şekil 2.8 Farklı ısıtma hızlarındaki TL ışıma eğrilerinin maksimum şiddet (I_M) değerleri ve buna karşılık gelen T_M değerlerinin değişimi.....	16
Şekil 2.9 $CaF_2:Dy$ örneğine ait ışıma eğrisinin ayrıştırma (CGCD) yöntemi ile iç içe geçmiş piklerinin bileşenlerine ayrıştırılması işlemi.....	18
Şekil 2.10 Farklı uyarım modları ile elde edilen OSL eğrileri.....	21
Şekil 2.11 a) Farklı fiziksel formlarda (toz, çip ve pelet) lüminesans malzemeler ve kişisel b) göz (lens) c) yüzük d) kart tipi lüminesans dozimetreler.....	28
Şekil 2.12 a) Hegzagonal bor nitrür (h-BN) ve b) kübik bor nitrür (c-BN)'ün kristal yapıları.....	32
Şekil 3.1 Örnek karuseline yerleştirilmiş toz formda h-BN (1. ile 27. yuvalar arasında) ve c-BN (28. ile 33. yuvalar arasında) malzemeler	36
Şekil 3.2 Risø TL/OSL DA-20 okuyucu sistemi	37
Şekil 3.3 Risø TL/OSL DA-20 okuyucusunun şematik gösterimi.....	38
Şekil 3.4 Harshaw 3500 TLD okuyucu.....	39
Şekil 3.5 Elsec 9010 ışınlama ünitesi.....	40
Şekil 3.6 Zeiss Evo 40 SEM sistemi	41
Şekil 3.7 Rigaku D/Max 2200 PC XRD spektrometre sistemi	42

Şekil 3.8 a) Bruker EMX plus X-band EPR spektrometre sistemi ve bileşenleri, b) kavite	44
Şekil 4.1 h-BN örneğinin XRD analizi	47
Şekil 4.2 c-BN örneğinin XRD analizi	48
Şekil 4.3 h-BN örneğinin SEM görüntüsü	49
Şekil 4.4 c-BN örneğinin SEM görüntüsü	49
Şekil 4.5 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin EDX analizleri	49
Şekil 4.6 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin oda sıcaklığındaki EPR spektrumları	50
Şekil 4.7 Kullanılan filtrelerin: Schott UG-11 ve Hoya U-340 farklı dalga boyu aralıklarında geçirgenlik spektrumları	51
Şekil 4.8 ~10 Gy ışınlanmış a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin farklı filtreler (Hoya U-340 ve Schott UG-11) kullanılarak elde edilen TL ışıma eğrileri.....	52
Şekil 4.9 h-BN örneğinin; a) doğal, 25 Gy, background TL ışıma eğrileri ve b) artan doza karşı TL ışıma eğrilerinin değişimi	53
Şekil 4.10 c-BN örneğinin; a) doğal, 25 Gy, background TL ışıma eğrileri ve b) artan doza karşı TL ışıma eğrilerinin değişimi	53
Şekil 4.11 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin artan doza karşı (0.2-100 Gy) TL şiddetlerinin farklı bölge ve toplam alan değerlerine göre doz cevap eğrileri.....	54
Şekil 4.12 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin ilk şiddete göre normalize edilmiş farklı bölge ve toplam alan değerlerinin TL tekrarlanabilirliği	56
Şekil 4.13 h-BN örneğinin artan ısıtma hızlarına göre a) TL ışıma eğrileri ve b) toplam alan TL şiddet değerlerinin değişimi.....	57
Şekil 4.14 c-BN örneğinin artan ısıtma hızlarına göre a) TL ışıma eğrileri ve b) toplam alan TL şiddet değerlerinin değişimi.....	57
Şekil 4.15 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin kesikli ışıma eğrisi yöntemi kullanılarak elde edilen analiz sonuçları.....	58
Şekil 4.16 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin farklı bölge ve toplam alan TL şiddetlerinin zamanla değişimi (sönüm) analiz sonuçları	59
Şekil 4.17 55 Gy radyasyon dozu ile ışınlanmış a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin BSL ve IRSL azalım eğrileri	60
Şekil 4.18 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin TL ve OSL (%70 güçteki mavi ve kırmızı LED ile 100 s) sonrası elde edilen RTL ışıma eğrileri.....	61

Şekil 4.19 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin; doğal, 25 Gy, background BSL azalım eğrileri	62
Şekil 4.20 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin artan doza karşı BSL azalım eğrilerinin değişimi	63
Şekil 4.21 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin artan doza karşı BSL azalım eğrilerinin toplam alan ve I_0 ($t = 1$ s'deki BSL şiddeti) değerlerine göre doz cevap eğrisi.....	64
Şekil 4.22 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin toplam alan ve I_0 (1. saniye) değerlerine göre BSL tekrarlanabilirlik sonuçları	65



ÇİZELGELER DİZİNİ

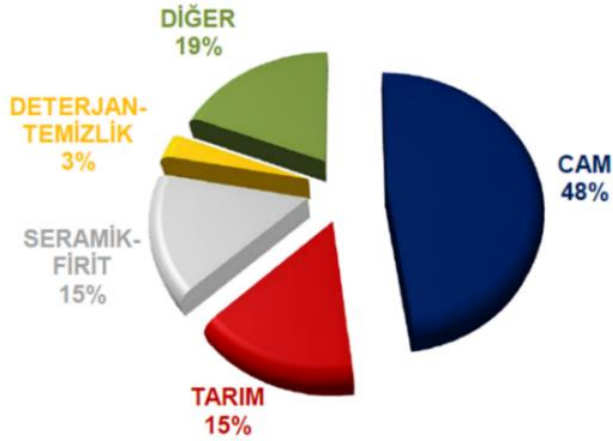
Çizelge 3.1 EPR sisteminde kullanılan ölçüm parametreleri	44
Çizelge 4.1 Bor nitrür örneklerinin TL doz cevap eğrilerinden elde edilen k değerleri .	54
Çizelge 4.2 Bor nitrür örneklerinin TL için elde edilen MDD değerleri	55
Çizelge 4.3 Bor nitrür örneklerinin kesikli ışıma eğrisi yöntemi (FGT) ve ayırıştırma yöntemi kullanılarak elde edilen kinetik parametre değerleri.....	58
Çizelge 4.4 Bor nitrür örneklerinin BSL doz cevap eğrilerinden elde edilen k değerleri	64
Çizelge 4.5 Bor nitrür örneklerinin BSL için elde edilen MDD değerleri.....	64

1. GİRİŞ

Lüminesans malzemelerin tarihi antik çağlara kadar dayanmaktadır; ancak lüminesans mekanizmasının daha iyi anlaşılması, özellikle Bologna taşının keşfiyle 1600’lü yıllarda gerçekleşmiştir. 1603 yılında amatör simyacı Vincenzo Casciarolo tarafından İtalya’nın Bologna şehri yakınlarında bulunan ve altın üretimi çalışmaları sırasında kullandığı doğal mineral olan barit (BaSO_4)’in kendi kendine parladığı gözlemlenmiştir. Bu nedenle barit ya da Bologna taşı olarak adlandırılan malzemeler üzerine yapılan araştırmalar literatürdeki ilk lüminesans çalışmalarını oluşturmaktadır. Robert Boyle, 1663 yılında karanlık odada elmas benzeri doğal mineraller üzerinde yaptığı çalışmalarla termolüminesans ve doğadaki gözlemleriyle de biyolüminesans gibi farklı çeşitte lüminesans çalışmalarının temelini atmış ve ilk kez rapor halinde yayınlamıştır. Lüminesans kelimesi ilk kez 1888 yılında Alman fizikçi Eilhardt Wiedemann tarafından kullanılmıştır ve daha sonra 1895 yılında Wiedemann ve Schmidt yaptığı araştırmalarda, günümüzde de termolüminesans uygulamalarında yaygın olarak kullanılan kalsiyum florür ($\text{CaF}_2\text{:Mn}$) ve kalsiyum sülfat ($\text{CaSO}_4\text{:Mn}$) gibi minerallerin çalışmaları ilk kez yayınlanmıştır. Wiedemann ayrıca lüminesansı uyarım şekillerine göre fotolüminesans, termolüminesans, elektrolüminesans kristalolüminesans, tribolüminesans ve kemilüminesans olarak altı farklı şekilde sınıflandırmıştır. Yeni keşfedilen farklı lüminesans çeşitlerinin temelini bu altı sınıf oluşturmaktadır (Virk 2015).

Farklı türlerdeki ışık saçan canlılar ve kuzey ışıkları gibi doğadaki çeşitli olaylar nedeniyle lüminesans geçmişten günümüze insanoğlunun ilgisini çekmeye devam etmektedir. Lüminesans malzemeler, özellikle son yıllarda gelişen fotolüminesans ve elektrolüminesans uygulamalarının verimli ve sürdürülebilir çözümler üretmesi nedeniyle günlük hayatta en çok kullandığımız aydınlatma araçları, ışık yayan diyotlar (LEDs), görüntüleme cihazları ve iyonize radyasyon ölçümünde kullanılan dozimetri sistemleri gibi birçok farklı alanda kullanılmaktadır (Armaroli ve Bolink 2016, Poppinga vd. 2017). Literatürde lüminesans malzemelerin dozimetrik özellikleri üzerine yapılan araştırmalar sonucunda bazı temel özelliklere sahip farklı birçok lüminesans malzeme; kişisel, klinik, çevresel ya da yüksek doz gibi dozimetri uygulama alanlarında yaygın olarak kullanılmaktadır.

Bor, doğada iki farklı kararlı izotoptan (^{10}B ve ^{11}B) oluşan metalle ametal arası yarı iletken özelliğe sahip bir elementtir. Bor ürünleri, sağlık fiziği uygulamalarında nötronları soğurma özelliği nedeniyle kanser tedavisinde (BNCT) kullanılmaktadır ve birçok farklı bileşik oluşturabilme potansiyelinden dolayı sanayide de yaygın olarak kullanılan hammaddelerden bir tanesidir. Doğada bulunan bor mineralleri (230'dan fazla), yapılarında çeşitli miktarlarda bor oksit (B_2O_3) içeren doğal bileşiklerdir. Bor mineralleri içerisinde ticari açıdan en yaygın olanları: kolemanit, tinkal, üleksit ve kernittir. Bor, Şekil 1.1'de gösterilen nihai kullanım alanı olan sektörler içerisinde genellikle rafine bor ürünleri olarak tüketildiği gibi doğrudan konsantre bor olarak da kullanılabilir. Özel bor ürünleri olarak tanımlanan bor ürünleri; rafine bor ürünlerinden üretilen, üretim ve tüketim miktarları düşük, üretim maliyetleri yüksek, genellikle üretildikleri ülkelerde farklı endüstrilerde ileri teknoloji malzemesi olarak tüketilen ve günümüzde ticareti çok yaygın olmayan ürünlerdir. Dünyadaki bor rezervlerinin yaklaşık %73'ünün Türkiye'de olduğu göz önüne alındığında yakın gelecekte tamamlanması planlanan tesisler ile ülkemizde üretilecek olan özel bor ürünlerinin yeni araştırma alanlarında kullanılmasının önemi ortaya çıkmaktadır (Yünlü 2016, Eti Maden 2020).



Şekil 1.1 Bor ürünlerinin nihai kullanım alanlarına göre dağılımı (Eti Maden 2020)

Özel bor ürünleri içerisinde yer alan, 19. yüzyılın başlarında elde edilmiş olmasına rağmen 20. yüzyılın ikinci yarısına kadar ticari bir önem taşımamış olan bor nitrür (BN); bor ve azot elementlerinin oluşturduğu doğada bulunmayan bir bileşiktir. Sinterlenmesi zordur, sıcak pres ile şekil verilebilir ve karbür uçlarla kolayca işlenebilir. Refrakter bor ürünlerinde yer alan BN'ün yoğunluğu ve ısıl genleşme katsayısı düşük, ergime sıcaklığı,

termal şok dayancı ve elektrik direnci yüksektir. İndirgeyici özelliğe sahip olup, asal atmosferde ve azot altında 3000 °C'ye kadar kararlıdır. Çeşitli sıvı oksit ve sıvı metalik çözeltilere karşı son derece dayanıklıdır. Bor nitrürün kristal yapısı karbonunkine benzer. Farklı kristal yapılarda elde edilebilmekle beraber endüstriyel bor ürünleri olarak kullanılan en önemli iki formu: hegzaonal ve kübik bor nitrürdür (Roskill 2010, Yünlü 2016). Bor nitrürün diğer allotropları arasında vürtzit, tetragonal, rombik, turbo, eksplosif ve amorf da sayılabilir (Örnek vd. 2018). Bor nitrür malzemeler; kimyasal, mekanik özellikleri, toksik olmaması ve biyouyumluluğu nedeni ile sağlık alanında birçok farklı uygulamada kullanılmaktadır. Yeni yapılan araştırmalar bor nitrürün yüksek enerjili foton dozimetresi için dedektör malzemesi, bor nitrür kaplamalı implant malzemesi ve kemik doku mühendisliği alanında kemik grefti olarak kullanılabileceğini göstermektedir (Gökmenoğlu vd. 2016, Poppinga vd. 2017, Unal vd. 2018).

Bu tez çalışması kapsamında özel bor ürünleri içerisinde yer alan BN'ün farklı kristal yapılardaki iki formu hegzaonal bor nitrür (h-BN) ve kübik bor nitrür (c-BN) örneklerinin; EPR, SEM ve XRD yöntemleri kullanılarak yapısal karakterizasyon analizleri yapılmış ve lüminesans teknikler (TL, BSL ve IRSI) ile dozimetrik özellikleri incelenerek sağlık fiziği uygulamalarında kullanılabilirliği araştırılmıştır. Bu çalışmada kullanılan her iki malzemenin TL, BSL, IRSI ve EPR özellikleri ilk defa bir arada kapsamlı şekilde araştırıldığı için elde edilen bulgularla literatüre katkı sunulması hedeflenmiştir. Tezin ikinci bölümünde, kuramsal temeller başlığı altında lüminesans olayının genel bir tanımı yapılarak enerji band modeli ile lüminesans mekanizması açıklandıktan sonra TL/OSI olayları, dozimetri sistemleri ve dozimetri uygulamaları ayrıntılı bir şekilde ele alınmıştır. Ayrıca bu bölümde, bor nitrür malzemelerin yapısı ile ilgili genel bilgiler verilmiştir ve h-BN ile c-BN'ün dozimetrik özellikleri hakkında literatürde yapılan çalışmalar özetlenmiştir. Tezin üçüncü bölümünde, bu çalışma kapsamında kullanılan toz formdaki h-BN ve c-BN malzemelerden, ölçümlerde kullanılan cihazların özelliklerinden ve ölçüme hazır hale getirilen örnekler uygulanan yöntemlerden bahsedilmiştir. Tezin dördüncü bölümünde, h-BN ile c-BN'ün karakterizasyon analizleri ve dozimetrik ölçümler sonucu elde edilen bulgularına yer verilmiştir ve elde edilen ölçüm sonuçları literatürle karşılaştırılarak tartışılmıştır. Tezin son bölümünde ise elde edilen sonuçlar değerlendirilerek öneriler getirilmiştir.

2. KURAMSAL TEMELLER

2.1 Lüminesans

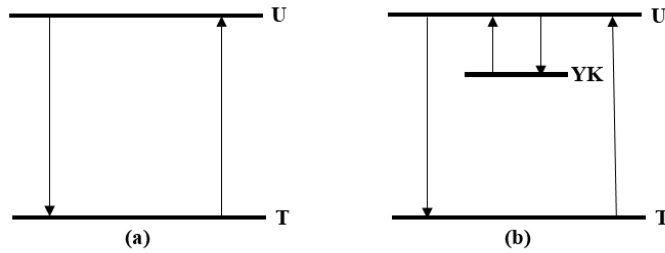
Bir malzeme, radyasyona maruz kalması durumunda üzerine gelen enerjinin bir kısmını soğurabilir ve dalga boyu daha uzun olan foton şeklinde yeniden yayımlayabilir (Stoke Kanunu). Malzemenin soğurduğu bu enerjiyi belli bir süre depoladıktan sonra ışık olarak yayımlaması olayına lüminesans denir. Yayımlanan bu ışığın dalga boyu (λ) gelen radyasyonun karakteristik bir özelliği değil, lüminesans malzemesine ait karakteristik bir özelliktir. Bu yayımlanan ışık genellikle elektromanyetik spektrumun kızılötesi (IR), görünür ve morötesi (UV) bölgelerini kapsamaktadır. (McKeever 1985). Lüminesans malzemeler genellikle kristal yapıya sahiptir. Diğer elektromanyetik ışınlamalar ile lüminesans olayını ayıran temel fark, atomun ya da molekülün ısısında bir değişim meydana gelmeden de yayımlanabilmesidir. Bu özelliğinden dolayı kara cisim ışımasından ayırt etmek için soğuk ışık olarak da adlandırılmaktadır. Lüminesans olayı en geniş kapsamda incelendiğinde floresans ve fosforesans olmak üzere iki ana kategoride sınıflandırılmaktadır. Chen ve McKeever (1997) tarafından malzemenin yayılım yapması için geçen sürenin 10^{-8} s'den küçük olduğu durumlar floresans olayı, 10^{-8} s'den büyük olduğu durumlar ise fosforesans olayı olarak tanımlanmıştır. Bu durumda elektronun uyarılmadan tuzakta kaldığı süre ortalama ömür (τ) olarak adlandırılır. Ortalama ömür (τ) Eşitlik (2.1)'de verilmiştir (McKeever 1985).

$$\tau = \frac{1}{s} e^{\left(\frac{E}{kT}\right)} \quad (2.1)$$

Burada s , sıcaklıktan bağımsız frekans faktörü (s^{-1}); E , tuzak derinliği ya da aktivasyon enerjisi (eV); k , Boltzman sabiti ($8,1617 \times 10^{-5} \frac{eV}{K}$) ve T , mutlak sıcaklıktır (K).

Floresans olayı; uyarılmış elektronun, yarı kararlı enerji seviyesinden taban durumu enerji seviyesine geçişi esnasında meydana gelen ışımadır. Floresansın oluşması için geçen zaman elektronun yarı kararlı enerji seviyesinde kaldığı süre ile belirlenebilmektedir. Bu süre pikosaniyeler ile ifade edilebilecek kadar kısa olabileceği

gibi bazı özel durumlarda milisaniyeler mertebesinde uzun da olabilir. Farklı süreçlerde (uyarıcılarının etkisiyle) meydana gelen floresans olaylarına fotolüminesans (foton ile uyarılma), katotlüminesans (elektron ile uyarılma), kemilüminesans (kimyasal enerji ile uyarılma), biyolüminesans (biyokimyasal ile uyarılma) ve tribolüminesans (mekanik enerji ile uyarılma) örnek gösterilebilir. Fosforesans olayında ise floresanstan farklı olarak uyarılmış elektron, taban durumu enerji seviyesine doğrudan geçişinin yasak olduğu yarı kararlı bir enerji seviyesine geçtikten sonra oradan da yeniden uyarılmış enerji seviyesine çıkarak taban durumu enerji seviyesine döner. Bu nedenle floresans olayı ile karşılaştırıldığında uyarılmış enerji seviyesine çıkan elektronların taban durumu enerji seviyesine geri dönme süresinde gecikmeler meydana gelir. Bu gecikme değerlerinin ne kadar uzun olacağı ise floresans olayında da gözlemlendiği gibi elektronun yarı kararlı enerji seviyesinde kaldığı süreye göre değişir. Fosforesans olayında uyarılmış ve yarı kararlı enerji seviyeleri arasındaki fark genellikle çok küçüktür. Bu nedenle elektronlar dışarıdan bir enerjiye ihtiyaç duymaksızın ortam sıcaklığında kristal yapıdaki kafes titreşimleri ile temel enerji seviyesine geçiş yapabilirler. Termolüminesans (TL) ve optik uyarmalı lüminesans (OSL) olaylarında ise yarı kararlı ve uyarılmış durum arasındaki enerji farkı çok fazla olduğundan elektronların tuzaklardan kurtulabilmesi amacıyla dışardan bir enerji uygulanması gerekmektedir. Malzemelerde lüminesans olay; TL’de ısı ile uyarma, OSL’de ise optik uyarma sonucu ortaya çıkar (Thomsen 2004).

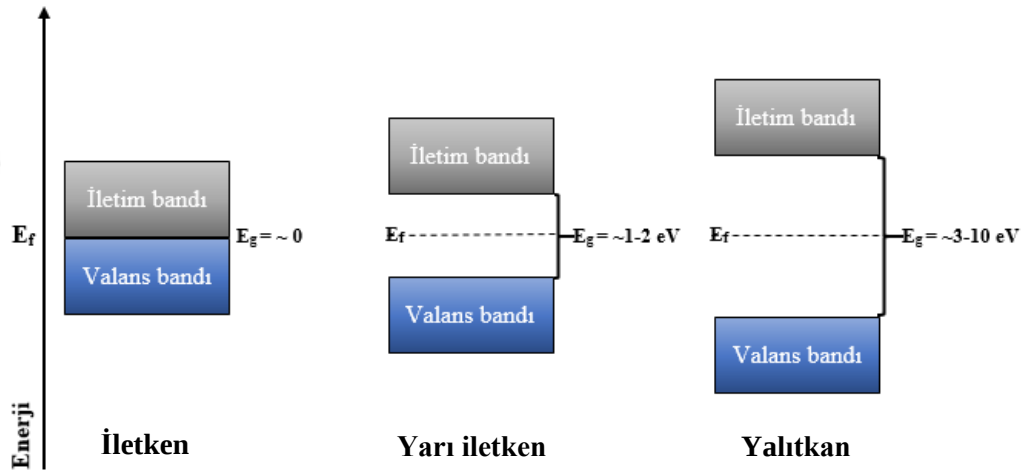


Şekil 2.1 a) Floresans, b) fosforesans olaylarının şematik gösterimi (Chen ve McKeever 1997’den değiştirilerek alınmıştır)

Floresans olayı uyarılmış enerji seviyesinde (U) bulunan bir elektronun taban durumu enerji seviyesine (T) geçişinde yayınlanan ışık (Şekil 2.1a), fosforesans olayı ise yarı kararlı enerji seviyesinin (YK) varlığında uyarılmış durumda bulunan bir elektronun taban durumu enerji seviyesine dönüşünde yayınlanan ışık (Şekil 2.1b) olarak şematize edilmektedir (Chen ve McKeever 1997).

2.2 Enerji Band Modeli

Bir atomun yörüngesindeki bir elektron izin verilen belirli enerji seviyelerinde bulunabilmektedir. İzin verilen bu enerji seviyeleri dışında atomdaki serbest elektronların bulunması yasaktır. Katılarda atomları birbirine bağlayan kuvvetler diğer elektronların davranışlarını etkiler. Katılarda atomların birbirine yakın olma durumuna göre enerji seviyeleri ayrılarak izinli enerji bandları oluşur. Kristal malzemeleri bu band aralığının genişliğine göre sınıflandırmak mümkündür. Band aralığı geniş (3-10 eV) malzemeler yalıtkan, band aralığı sıfır ya da ihmal edilebilir olan malzemeler ise iletken olarak iki sınıfta toplanabilir. Band aralığı yalıtkan ve iletkenlerin arasında yer alan malzemeler de yarı iletkenler olarak sınıflandırılabilir (Thomsen 2004). Şekil 2.2’de enerji band modeli üzerinden malzemelerin sınıflandırılması gösterilmektedir. Şekilde E_f , fermi seviyesini E_g ise enerji band aralığını simgelemektedir.

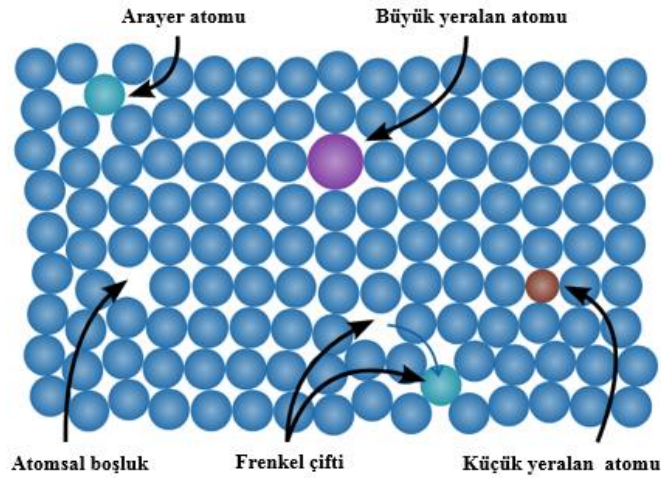


Şekil 2.2 Enerji band modeli

Lüminesans olayı, yalıtkan ve yarı iletken malzemelerde meydana gelmektedir. Lüminesansın ana mekanizması karmaşık ve oluşum şekli tam olarak anlaşılmamasına rağmen, yalıtkan iyonik kristal malzemelerin enerji band modeli üzerinden açıklanabilmektedir. Enerji band modelinde, elektronların band diye ifade edilen farklı enerji seviyelerinde bulunduğu kabul edilmektedir. Buna göre en düşük enerji seviyesi valans bandı (değerlik bandı), en yüksek enerji seviyesi iletim bandı (conduction band) ve bu iki band arasındaki boşluk ise yasak band olarak adlandırılmaktadır. Kusursuz bir

kristalde elektronlar bu yasak band aralığında bulunmamaktadır. Fakat bu ideal durumu doğada bol miktarda bulunan kuvars, feldspat vb. birtakım kristaller her zaman sağlamazlar ve kristal yapılarında birtakım kusurlar barındırabilirler. Kristal yapıların içindeki bu kusurlar yasak bandda bazı yarı kararlı enerji seviyelerinin oluşmasına sebep olur. Böylece elektronlar yasak enerji aralığında bulunabilme olasılığına sahip olurlar (Vandenbergh 2004).

Oluşum şekillerine göre farklı tipte kristal yapı kusurları vardır (Şekil 2.3). Gözlenen kusur tiplerinden en yaygın olanı noktasal kusurlardır. Noktasal kusurlar kendi içinde yapısal kusurlar (intrinsic) ile yapısal olmayan kusurlar (extrinsic) olarak iki ayrı sınıfta incelenebilir. Bunlardan yapısal kusurlar, kristal yapıda herhangi bir atomun bulunması gereken yerde olmadığı boşluklar oluşması ya da herhangi bir atomun yanlış dizilim sonucu bulunması gereken konumdan başka bir yerde olması durumunda meydana gelen kusurlardır. Yapısal olmayan kusurlar ise kristal yapının dışarıdan katkılандırıldığı ya da kristal yapı içerisine yabancı bir atomun yerleştiği durumda oluşan kusurlardır. Eğer bu kristal kusurunun elektron veya elektronun ardında bıraktığı pozitif yük taşıyıcısı olan serbest deşik (hole) yakalama özelliği varsa, yük taşıyıcı bir kusur merkezi (tuzak) gibi davranarak zıt yükü çeker. Bunun sonucunda kusurlar yasak band aralığında yarı kararlı enerji seviyelerinin oluşmasına neden olur. Gelen radyasyon oluşan bu yarı kararlı enerji seviyelerinde elektronların tuzaklanmasını sağlar ve lüminesans olayı meydana gelir (Thomsen 2004).



Şekil 2.3 Farklı tipte kristal yapı kusurları (Bellini vd. 2018'den değiştirilerek alınmıştır)

Yayınlanan ışık miktarı (lümİnesans şİddeti) gelen radyasyonun malzeme tarafından soğurulan enerjisi nedeniyle tuzaklarda depolanan elektron miktarı ile orantılıdır. Enerji belli bir oranda soğurulduğu için lümİnesans şİddeti malzemenin ne kadar süre radyasyona maruz kaldığına da bağılıdır. Bu sürenin uzun ya da kısa olması elde edilen sinyalin şİddetini de etkiler. Yayınlanan ışığın (lümİnesans) dalga boyu ise yeniden birleşme (recombination) merkezlerinin oluşmasını sağlayan lümİnesans merkezinin tipine göre farklılık gösterebilir (Vandenberghe 2004). Bazı durumlarda elektron-deşik (hole) yeniden birleşme olayları sırasındaki geçişler herhangi bir ışıma yapmadan gerçekleşir. Işımalı ve ışısız geçişlerin oranı, kristalin sıcaklığı ile safsızlığı gibi etkenlere bağılı olarak 0 ile 1 arasında değişmektedir (Horowitz 1984). Buradan çıkan sonuçla Eşitlik (2.2)'de verilen belli bir sıcaklıkta birim zamanda lümİnesans yayınlayan merkez sayısının birim zamanda lümİnesans yayınlayan ve yayınlamayan merkez sayısına oranı lümİnesans verimini (η) gösterir (Larsen 1999).

$$\eta = \frac{n_r}{n_r + n_{nr}} \quad (2.2)$$

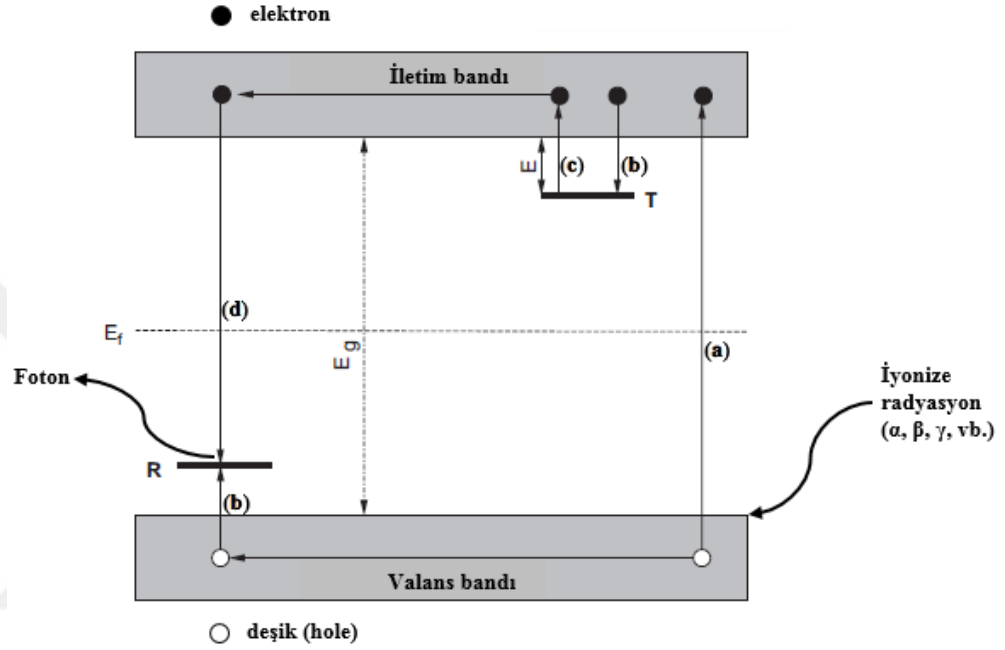
Burada n_r , lümİnesans yayınlayan merkez sayısı; n_{nr} ise lümİnesans yayınlamayan merkez sayısıdır.

2.3 Termolümİnesans (TL)

Yarı iletken ya da yalıtkan yapıda katı bir malzemenin ısı ile uyarılması sonucunda gözlemlenen lümİnesans çeşidine termolümİnesans (TL) denir. Termolümİnesans olayı ile bir malzemenin yüksek sıcaklıklarda (200 °C'nin üzerinde) ısıtılması sonucu ortaya çıkan akkor haldeki kara cisim ışıması birbirinden farklıdır (Bos 2007). Bu iki ışımayı birbirinden ayırt etmek ve termolümİnesans olayının gözlenebilmesi için bazı şartların oluşması gerekmektedir. İlk olarak malzeme yarı iletken veya yalıtkan özellikte olmalıdır (metallerde TL gözlenmez). Daha sonra malzeme iyonize radyasyona maruz kaldığında, bu süre boyunca enerjiyi soğurarak depolayabilmelidir. Sonuç olarak, soğurulan bu enerjinin ışık (lümİnesans) olarak yayımlanabilmesi için malzemenin ısı ile uyarılması gerekmektedir (McKeever 1985). İdeal bir TL malzemesinin soğuduktan sonra tekrar ısıtılması halinde lümİnesans yayımlayabilmesi için yeniden iyonize radyasyona maruz

kalması gerekir. Bu şekilde malzeme, enerji depolama kapasitesine bağlı olarak tekrarlanabilir TL dozimetre uygulamaları için uygun hale gelmektedir (Bos 2007).

Termolüminesans (TL) olayı basitleştirilmiş iki seviyeli enerji bandı kullanılarak bir tuzak-bir yeniden birleşme (recombination) merkezi modeli (Şekil 2.4) ile açıklanabilmektedir.



Şekil 2.4 Termolüminesans olayının basitleştirilmiş iki seviyeli enerji band diyagramı (Bos 2007’den değiştirilerek alınmıştır)

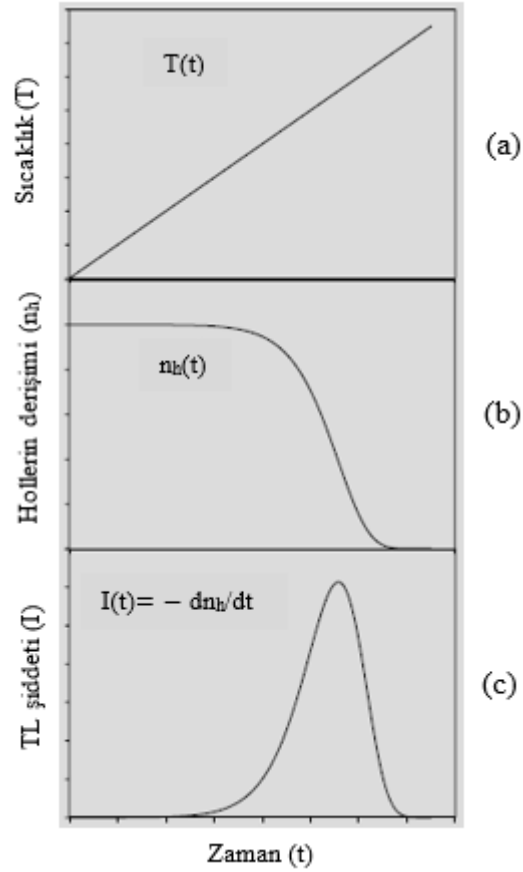
Şekil 2.4 gelen radyasyonun bilgisinin nasıl depolandığı ve kullanıldığını gösteren enerji band diyagramıdır. Şekilde gösterilen E_f fermi seviyesi, E_g band genişliği, E_a aktivasyon enerjisi, T elektron tuzakları ve R yeniden birleşme (recombination) merkezidir. Gelen radyasyonun enerjisi band genişliğinden fazla ise valans bandındaki elektronların iyonize olmasıyla iletim bandına geçerek serbest elektronlar ve valans bandında da geride bıraktıkları pozitif iyon alanları olan boşluklar (holler) oluşturur (a). Oluşan serbest elektronlar elektron tuzakları olan T ’lerde, holler ise yeniden birleşme (recombination) merkezlerinde tuzaklanır (b). Elektronların birim zamanda tuzaklardan kurtulma olasılığı Arrhenius eşitliği ile verilir (Eşitlik 2.3).

$$p = \frac{1}{\tau} = se^{-\frac{E}{kT}} \quad (2.3)$$

Burada s , sıcaklıktan bağımsız frekans faktörü (s^{-1}); E , tuzak derinliği ya da aktivasyon enerjisi (eV); k , Boltzman sabiti ($8,1617 \times 10^{-5} \frac{eV}{K}$) ve T , mutlak sıcaklıktır (K).

Malzemeye gelen iyonize radyasyon eşit sayıda elektron ve deşik (hole) çiftleri oluşturur. Bu nedenle T tuzagındaki elektron sayısı ile R 'deki deşik sayısı aynı olmalıdır. Fakat bazı yarı kararlı durumlarda bu denge değişebilir. Burada oluşan durum ile denge dışı bir durum (non-equilibrium) temsil edilmektedir. Denge dışı durum sonsuz bir süre boyunca varlığını koruyabilir. Dengeye gelme durumu Eşitlik (2.3)'de verilen E ve s parametreleri ile ilgilidir. Denge durumunun oluşmasını hızlandırmak için malzemenin termal uyarımı sonucu tuzaklardaki elektronların gerekli enerjiyi kazanarak iletim bandına tekrar çıkması sağlanabilir (c). Daha sonra elektronların iletim bandı aracılığıyla yeniden birleşme merkezlerinde holler ile birleşmesi sonucunda foton yayınlanarak (d) termolüminesans (TL) olayı gerçekleşir (Bos 2007).

Yayınlanan termolüminesans şiddeti (yeniden birleşme merkezinden yayınlanan ışık miktarı) ölçülerek sıcaklığa göre çizilen grafik ışıma eğrisi (glow curve) olarak adlandırılır. Termolüminesans şiddeti başlangıçta artar, daha sonra tuzakların tamamen boşaltılabildiği sıcaklıktaki pik noktasına ulaşır ve bu noktadan sonra tekrar düşüşe geçerek sıfırlanır. Termolüminesans şiddetindeki bu düşüşün nedeni, tuzaklanmış elektronların azalarak tuzakların boşaltılmasıyla ilgilidir. Malzemeler farklı tipte yapı kusurlarına sahip olabileceği için, her malzeme farklı enerji seviyelerinde yer alan birbirinden farklı tuzaklara sahip olabilirler (Thomsen 2004). Bu nedenle ışıma eğrilerinin şekilleri her malzeme için farklı elde edilmektedir. Şekil 2.5'te lineer ısıtma hızı (β) ile elde edilen ışıma eğrisinde, termolüminesans şiddeti (I) ile yeniden birleşme merkezlerindeki tuzaklanmış hollerin konsantrasyonu ya da derişimi (n_h) arasındaki ilişki gösterilmektedir. Sıcaklık-zaman grafiğinin eğimi (m) lineer ısıtma hızına (β) eşittir. Lineer ısıtma hızı kullanıldığında, sıcaklık (T) artışına bağlı olarak belli bir süre sonra, malzemeye göre değişen farklı şekillerde karakteristik TL pikleri gözlenmektedir (McKeever 1985, Pagonis vd. 2006).



Şekil 2.5 Ölçüm süresince lineer ısıtma hızı (β) kullanılarak: (a) sıcaklığın, (b) yeniden birleşme merkezlerindeki tuzaklanmış hollerin konsantrasyonunun ve (c) TL şiddetinin zamana göre değişimi (Pagonis vd. 2006'dan değiştirilerek alınmıştır)

Sığ tuzaklardaki elektronların ömrü, derin tuzaklardaki elektronların ömrüne göre daha kısadır. Genelde 200 °C'nin altındaki sıcaklıklarda gözlenen ışıma eğrilerinin pik noktaları, sığ tuzaklarda gerçekleşen elektron geçişlerinden kaynaklandığı için ortam sıcaklıklarında kararsız kabul edilmesi nedeniyle dozimetrik olarak uygun değildir. Dozimetrik uygulamalar için 200 °C ve bu sıcaklığın üstündeki kararlı ışıma pikleri daha uygundur. Fakat bu sıcaklıklarda da düşük sıcaklıklardaki kararsız piklerde olduğu gibi oda sıcaklığında anormal sönümlenme (fading) gözlemlenebilmektedir. Bu durumun oluşma şekli kuantum mekaniği üzerinden tünelleme etkisi ile açıklanmaktadır. Ayrıca TL ölçümlerinde gözlenen diğer bir sönümlenme şekli de termal sönümlenme (thermal quenching) olayıdır. Malzemede sıcaklık artışına bağlı ışımasız geçişlerin artmasıyla oluşan termal sönümlenme etkisi lüminesans veriminin azalmasına neden olmaktadır (Wintle 1973, 1975).

2.4 Termolüminesans Kinetiği

Termolüminesans (TL) sürecini belirleyen birinci mertebe kinetik ifadesi (Eşitlik 2.4), Randall ve Wilkins (1945a, b) tarafından malzemenin ısıtma işlemi sırasında tekrar tuzaklanma olasılığının ihmal edilebileceği varsayımı yapılarak elde edilmiştir. İkinci mertebe kinetik ifadesi ise Garlick ve Gibson (1948) tarafından malzemenin ısıtma işlemi sırasında tekrar tuzaklanma olasılığının baskın ve tuzakların saturasyon (doyum) bölgesine uzakta olduğu varsayımları Eşitlik (2.5) ile verilir. Birinci ve ikinci mertebe kinetik ifadeleri bazı varsayımlar yapılarak elde edilmiştir ; fakat bu varsayımların geçerli olmadığı ve TL pikinin bu iki kinetik mertebeye de uymadığı durumlarda çözüm olarak May ve Partridge (1964) tarafından deneysel olarak geliştirilen genel mertebede kinetik ifadesi (Eşitlik 2.6) kullanılmıştır (Randall ve Wilkins 1945a, b, Garlick ve Gibson 1948, May ve Partridge 1964).

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = nse^{-\frac{E}{kT}} \quad (2.4)$$

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = \frac{n^2}{N} se^{-\frac{E}{kT}} \quad (2.5)$$

$$I(t) = -\frac{dn}{dt} = n^b s' e^{-\frac{E}{kT}} \quad (2.6)$$

Burada,

E = tuzak derinliği ya da aktivasyon enerjisi (eV)

k = Boltzman sabiti ($8,1617 \times 10^{-5} \frac{\text{eV}}{\text{K}}$)

t = zaman (s)

T = mutlak sıcaklık (K)

Tipik bir deney süresince lineer ısıtma hızı β (Ks^{-1}), örneği değişken sıcaklıklara ısıtır

($T = T_0 + \beta t$) ve

T_0 = başlangıçtaki sıcaklık (K)

s = sıcaklıktan bağımsız frekans faktörü (s^{-1}) olarak adlandırılır ve elektron tuzağının karakteristiğini gösteren bir sabittir. Bu parametre örgü fononları ile elektronların

çarpışma frekansı ile orantılıdır. Genellikle s 'nin maksimum değeri 10^{12} ile 10^{14} (s^{-1}) arasında (örgü titreşim frekansına karşılık gelir) değişir.

N = toplam tuzak konsantrasyonu (m^{-3})

n = belli bir t zamanındaki tuzaklanan elektronların konsantrasyonu (m^{-3})

b = kinetik mertebe (genellikle 1 ile 2 arasında)

s' = genel mertebe kinetiği için kullanılan etkin ön-eksponansiyel faktörü ($m^{3(b-1)}s^{-1}$)

Yukarıdaki eşitliklerin lineer ısıtma hızı uygulandığı düşünülerek integrali alınırsa, sırasıyla Eşitlik (2.7), (2.8) ve (2.9) elde edilir (Bos 2007).

$$I(T) = n_0 s e^{\left(-\frac{E}{kT}\right)} e^{\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T e^{\left(-\frac{E}{kT'}\right)} dT'\right]} \quad (2.7)$$

$$I(T) = n_0^2 \frac{s}{N} e^{\left(-\frac{E}{kT}\right)} \left[1 + \frac{n_0 s}{\beta N} \int_{T_0}^T e^{\left(-\frac{E}{kT'}\right)} dT'\right]^{-2} \quad (2.8)$$

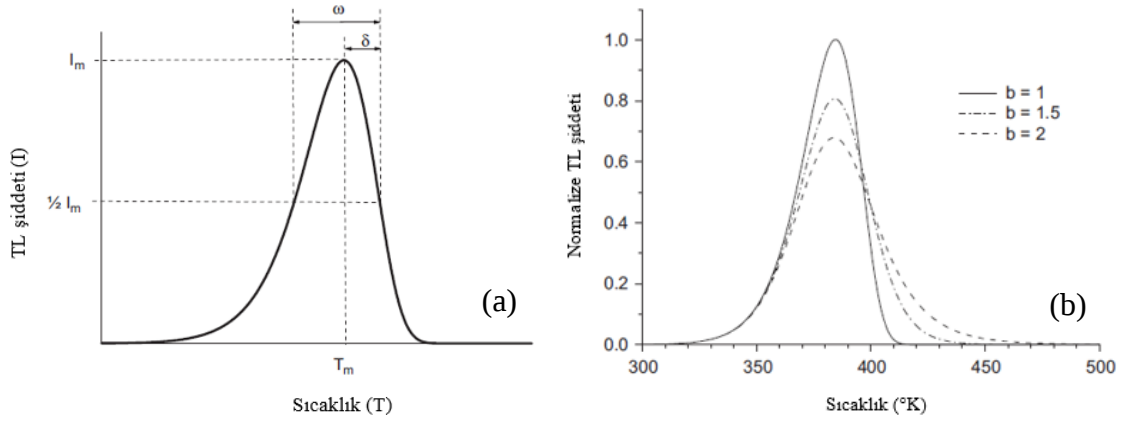
$$I(T) = n_0 s'' e^{\left(-\frac{E}{kT}\right)} \left[1 + \frac{s''(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T e^{\left(-\frac{E}{kT'}\right)} dT'\right]^{-\frac{b}{b-1}} \quad (2.9)$$

Yukarıdaki eşitliklerde verilen,

n_0 = başlangıçta tuzaklanmış elektronların sayısı (m^{-3})

$s'' = s' n_0^{(b-1)}$ = genel mertebe kinetiğinde kullanılan etkin frekans faktörünü temsil eden deneysel parametredir (s^{-1}).

Şekil 2.6 (a)' da Randall ve Wilkins'e göre birinci mertebeden kinetiğe sahip TL ısıtma eğrisinin geometrik faktöre göre pik şekli gösterilmektedir. Geometrik faktör (μ_g), pikin yarı yükseklikteki tepe noktasına göre sağ tarafındaki yarı genişliğinin (δ) pikin yarı yükseklikteki tam genişliğine (ω) oranını veren değerdir. Geometrik faktörün birinci mertebeden kinetik ($b=1$) için yaklaşık değeri 0,42; ikinci mertebeden kinetik ($b=2$) için yaklaşık değeri 0,52'dir. Genel mertebeden kinetik için ise μ_g bu iki değer arasında değişmektedir. Şekil 2.6 (b)'de $E = 1$ eV, $s = 1 \times 10^{12} s^{-1}$ ve $\beta = 1$ K/s parametrelerinde farklı mertebeden kinetiğe sahip TL ısıtma eğrilerindeki pik şekilleri gösterilmektedir.



Şekil 2.6 a) Birinci mertebeden kinetiğe sahip TL ışıma eğrisinin geometrik faktöre göre ($\mu g = \delta/\omega$) pik şekli ve b) farklı mertebeden kinetiğe sahip TL ışıma eğrilerinin karşılaştırılması (Bos 2007)

Şekil 2.6 (b)'de pikler, birinci mertebeden kinetiğin TL şiddetine göre normalize edilmiştir. Tüm piklerin başlangıçtaki artan kısımları çakışmaktadır. Birinci ve ikinci mertebeden kinetiğe sahip örnekler karşılaştırıldığında, iki ışıma eğrisi arasındaki en önemli fark eğrilerin alçalan kısımlarında gözlenmektedir. Bu fark ikinci mertebedeki tekrar tuzaklanma olasılığının baskın olmasından kaynaklanmaktadır (Pagonis vd. 2006, Bos 2007).

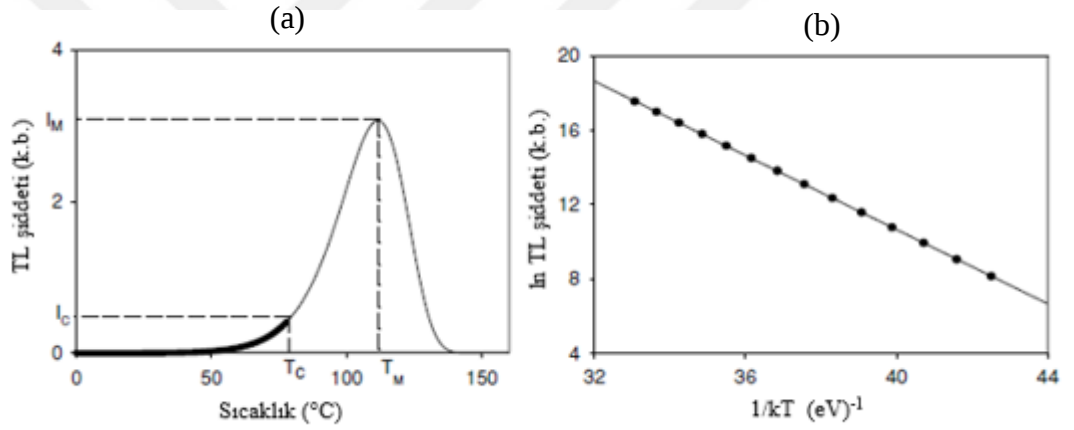
2.5 TL Tuzak Parametrelerinin Belirlenmesi için Kullanılan Yöntemler

TL ışıma eğrileri kullanılarak tuzak parametrelerinin belirlenmesi ile ilgili yapılan çalışmalar sonucunda birçok farklı yöntem geliştirilmiştir. Bu yöntemler, elde edilen ölçüm verileri kullanılarak TL mekanizmasının anlaşılmasını sağlayan aktivasyon enerjisi, kinetik mertebe ve frekans faktörü gibi kinetik parametrelerin belirlenmesini sağlar. TL çalışmalarında başlangıçtaki artış, farklı ısıtma hızları, kesikli ışıma eğrisi, ayırıştırma, izotermal azalım, pik şekli ve $T_{\max} - T_{\text{stop}}$ yöntemi gibi farklı yöntemler yaygın olarak kullanılmaktadır. Tez kapsamında başlangıçtaki artış (initial rise), farklı ısıtma hızları (various heating rate), kesikli ışıma eğrisi (fractional glow) ve ayırıştırma (CGCD) yöntemleri kullanılmıştır.

2.5.1 Başlangıçtaki artış yöntemi

Garlick ve Gibson (1948) tarafından ilk olarak önerilen başlangıçtaki artış (initial rise) yöntemi ile analiz, bir TL ışıma eğrisinde tuzak parametrelerinin hesaplanmasında kullanılan temel yöntemlerden biridir. Bu yöntemde TL ışıma eğrilerinde pikin ilk artış kısmının eksponansiyel olarak arttığı ve bu bölgedeki tuzaklanmış elektronların konsantrasyonunun (n) yaklaşık olarak sabit kaldığı kabul edilir. Bu nedenle n 'nin sıcaklığa bağımlılığı bu bölgede ihmal edilebilir. Eşitlik (2.10), n 'nin sabit (α) olduğu varsayımı kullanılarak TL şiddetini ifade etmektedir.

$$I(T) = \alpha e^{-\frac{E}{kT}} \quad (2.10)$$



Şekil 2.7 TL ışıma eğrisinde başlangıçtaki artış yöntemi ile aktivasyon enerjisinin belirlenmesi (Pagonis vd. 2006)

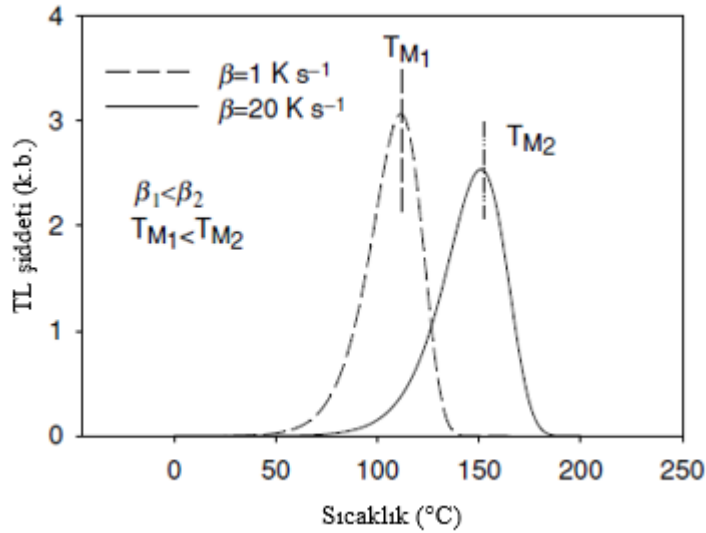
Bu yöntemde ışıma eğrisinin maksimum TL şiddetinin (I_M) %15'ine denk gelen şiddet değerindeki sıcaklığa (T_C) kadar olan kısmı kullanılmaktadır (Şekil 2.7a). Bu nedenle kinetik mertebeden bağımsızdır. Eşitlik (2.10)'un logaritması alınarak elde edilen $\ln(I)-1/kT$ grafiğinin eğimi ile aktivasyon enerjisi belirlenir (Şekil 2.7b). Bu yöntem, üst üste geçmiş piklerde termal ayıklama (thermal cleaning) yöntemi ile tek pik elde ederek kullanılabilir; ancak iç içe geçmiş piklerde bu yöntem uygun olmayabilir. Bu nedenle başlangıçtaki artış yöntemi diğer piklerden ayırt edilmiş tekli pikler için daha uygundur (Pagonis vd. 2006).

2.5.2 Farklı ısıtma hızları yöntemi

Isıtma hızı, bir malzemenin TL ışıma eğrisinin maksimum şiddet (I_M) ya da maksimum şiddete ulaşma sıcaklığı (T_M) gibi karakteristik özelliklerini etkileyen bir parametredir. Malzeme farklı iki lineer ısıtma hızıyla ısıtıldığında ışıma eğrisinin pik noktaları değişecektir. Termal sönümlenme nedeniyle ısıtma hızı artarsa I_M azalır ve T_M yüksek sıcaklıklara doğru kayar (Şekil 2.8). Bu yöntemle tuzak parametreleri, farklı ısıtma hızları (various heating rate) kullanılarak T_M değişimine bağlı olarak belirlenir. Eşitlik (2.7)'nin türevi alındıktan sonra türevin sıfır olduğu noktada $T = T_m$ kabul edilirse, 1. mertebe kinetik için Eşitlik (2.11) elde edilir.

$$\frac{\beta E}{kT_m^2} = se^{-\frac{E}{kT_m}} \quad (2.11)$$

Eşitlik 2.11 farklı ısıtma hızları için yeniden düzenlenerek, $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin $(1/T_m)$ 'ye karşı grafiği çizilerek elde edilen doğru bölgesinin eğiminden E/k değeri bulunur. Buradan aktivasyon enerjisi (E) belirlendikten sonra frekans faktörü (s) de hesaplanabilir (Hoogenstraaten 1958, Chen ve Pagonis 2011).



Şekil 2.8 Farklı ısıtma hızlarındaki TL ışıma eğrilerinin maksimum şiddet (I_M) değerleri ve buna karşılık gelen T_M değerlerinin değişimi (Pagonis vd. 2006)

2.5.3 Kesikli ısıma eğrisi yöntemi

Gobrecht ve Hofmann (1966) tarafından önerilen kesikli ısıma eğrisi (fractional glow) yöntemi, tekrar eden termal ayıklama (thermal cleaning) işlemi ile tuzakların aktivasyon enerjilerinin belirlenmesinde kullanılmaktadır. Bu yöntem, başlangıçtaki artış yönteminin çoklu şekilde uygulanması olarak da ifade edilebilir. Buna göre örnek başlangıçta belirlenen bir sıcaklığa kadar ısıtılır. Daha sonra örnek, sıcaklık belirli aralıklarla (kesik kesik) artacak şekilde birçok kez tekrar edilerek T_{max} 'a ulaşana kadar ısıtılır. Her ısıtma işlemi sonucu elde edilen TL şiddetinin $\ln$ 'i alınıp $1/kT$ 'ye göre grafiği çizdirilerek gözlenen eğrinin eğimi o sıcaklıktaki tuzağa ait aktivasyon enerjisinin değerini verir. Tüm ısıtma işlemleri sonucunda elde edilen aktivasyon enerjilerinin sıcaklığa bağlı değişimini gösteren grafik üzerinden plato bölgeleri oluşur. Bu plato bölgeleri örneğe ait her bir tuzağın aktivasyon enerjisi hakkında bilgi verir. Doğruluk oranı yüksek bu yöntemdeki temel zorluk ise küçük sıcaklık aralıklarında birçok deneysel ölçüm alınması gerekliliği ve bu ölçümlerden elde edilen verilerin analizidir.

2.5.4 Ayırıştırma (CGCD) yöntemi

Ayırıştırma (CGCD) yöntemi, karmaşık TL ısıma eğrilerinde birden fazla iç içe geçmiş piklerin Şekil 2.9'da gösterildiği gibi tek tek bileşenlerine ayrıştırılması işleminde uygulanır. Elektron tuzaklarıyla ilişkili kinetik parametreleri belirlemek için yaygın olarak kullanılan bir yaklaşım olan bilgisayarlı ısıma eğrisi ayırıştırma yöntemi (CGCD) olarak da bilinmektedir. Literatürde tekli TL ısıma eğrisi pikinde birinci, ikinci ve genel mertebe kinetik için birçok fiziksel model önerilmiştir. Bu uygulamalarda kinetik parametreleri tanımlayan analitik denklemleri doğrudan TL ölçümleri üzerinden dönüştürerek değerlendirebilen modeller üzerinde çalışılmıştır. ısıma eğrileri analiz edilirken bu amaçla geliştirilmiş programlar kullanılır. Programlar üzerinden ısıma eğrilerinin pikleri ayrıştırılırken, her pike ait maksimum sıcaklık, lüminesans şiddeti ve kinetik mertebe gibi deneysel veriler girilerek fit edilir (Peng vd. 2021).

Tez kapsamında Kitis vd. (1998) tarafından geliştirilen programda Eşitlik (2.12)'deki teorik TL şiddet ifadesine fit edilerek piklerin ayırıştırma işlemi gerçekleştirilmiştir.

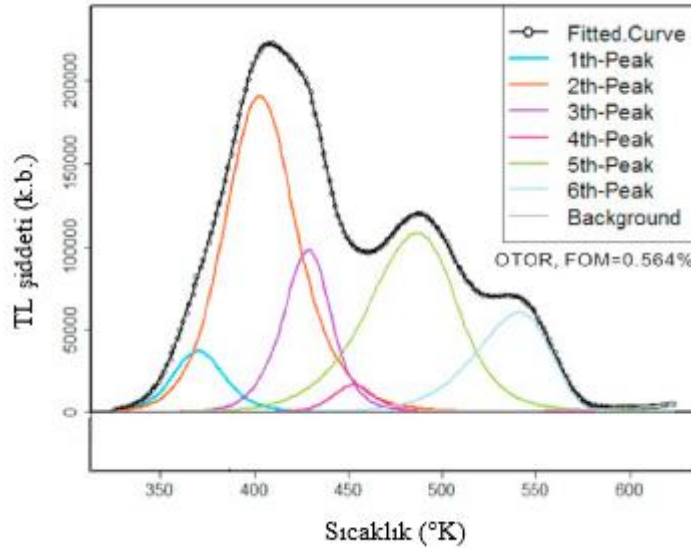
$$I(T) = I_m b^{\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_m}{T_m}\right) [(b-1)(1-\Delta) \frac{T^2}{T_m^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T-T_m}{T_m}\right) + Z_m]^{-\frac{b}{b-1}} \quad (2.12)$$

Burada I_m , maksimum şiddet; T_m , maksimum sıcaklık; b , 1 ile 2 arasında değişen kinetik merteye terimi ($b \neq 1$); $\Delta = \frac{2kT}{E}$; $\Delta_m = \frac{2kT_m}{E}$ ve $Z_m = 1 + (b-1) \Delta_m$ ile verilir.

Işıma eğrilerinin tüm ayrıştırma işlemlerinde, Microsoft Excel yazılımı ile çözücü (Solver) programı kullanılmıştır. Ayrıştırma ile elde edilen fitin deneysel sonuçlarla uygunluğu Eşitlik (2.13) üzerinden Figure of Merit (FOM) değeri ile kontrol edilmiştir. FOM değerinin düşük olması, yapılan fit işleminin uygunluğunun iyi olduğunu gösterir (Balian ve Eddy 1977).

$$FOM = \sum_i \frac{|Y_{deney} - Y_{fit}|}{A} \quad (2.13)$$

Burada Y_{deney} , deneysel TL ışıma eğrisindeki verileri; Y_{fit} , fit edilmiş eğrideki verileri; A ise fit edilmiş eğrinin altında kalan alan değerini göstermektedir.



Şekil 2.9 $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ örneğine ait ışıma eğrisinin ayrıştırma (CGCD) yöntemi ile iç içe geçmiş piklerinin bileşenlerine ayrıştırılması işlemi (Peng vd. 2021)

2.6 Optik Uyarmalı Lüminesans (OSL)

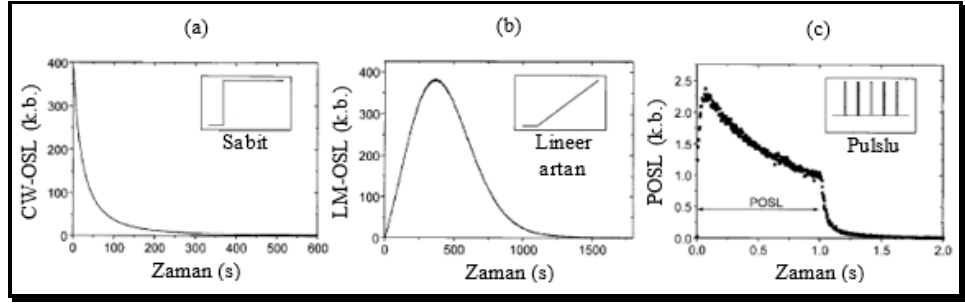
Optik uyarmalı lüminesans (OSL), ışınlanmış yarı iletken ya da yalıtkan bir malzemenin ışığa maruz kalması sonucunda gözlemlenen lüminesans çeşidine denir. OSL şiddetinin örnek tarafından soğurulan radyasyon dozunun bir fonksiyonu olması nedeniyle OSL olayı radyasyon dozimetrisinde kullanılabilir. OSL olayında, malzemenin iyonize radyasyonu soğurması sonucu elektron ve hol çiftleri oluşur. Sonrasında, oluşan bu elektron ve holler malzeme içerisinde daha önceden yer alan kusurlarda tuzaklanırlar. Tuzaklanmış elektronlar, malzemenin ışıkla uyarılması sonucunda gelen enerjiyi soğurur ve serbest kalarak iletim bandına geçişler gerçekleşir. Daha sonra bu serbest elektronlar taban durumuna dönerken yeniden birleşme merkezlerinde hollerle birleşmesi sonucu optik uyarmalı lüminesans meydana getirirler. Burada oluşan OSL sinyalinin şiddeti soğurulan radyasyon dozuyla orantılıdır. Deneysel olarak bir OSL sinyali, malzemenin çeşitli dalga boylarında ışık kaynaklarıyla uyarıldıktan sonra uyarım ışığından farklı spektral bölgelerde oluşan lüminesans şiddetinin ölçülmesi sonucunda elde edilir. TL sinyali, ışıma eğrisinin farklı sıcaklıklarda elde edilen piklerinden tuzak yapıları hakkında bilgi verirken, OSL sinyali ise azalım eğrisinin tuzak yapıları hakkında bilgi vermeden ışıkla uyarılma süresi boyunca tuzaklardan kurtulan elektron sayısının giderek azalmasına bağlı lüminesans şiddetindeki değişimi ifade etmektedir. Bu nedenle OSL yöntemi, TL'den farklı olarak tuzak-yük yapıları hakkında bilgi vermez. Ancak OSL yönteminin TL yöntemine göre avantajı; malzemenin oda sıcaklığında kullanılarak yüksek sıcaklıklara kadar ısıtılmadığı için yapısal bozulma, hassasiyet ve lüminesans verimi gibi özelliklerinde çok büyük değişiklikler gözlenmemesidir.

OSL ile fotolüminesans olayı karıştırılmamalıdır. Fotolüminesans olayında malzeme ışığı soğurduktan sonra taban durumundaki elektron uyarılmış duruma geçer ve daha sonra uyarılmış durumdan taban durumuna dönerken fotonun dalga boyundan daha uzun bir dalga boyunda lüminesans yayınımlı gerçekleşir. OSL sinyali, malzeme tarafından soğurulan iyonize radyasyon dozuyla orantılıdır; ancak fotolüminesans sinyali genelde malzemenin maruz kaldığı iyonize radyasyon dozuna bağlı değildir (Bøtter-Jensen 2000, Bøtter-Jensen vd. 2003).

OSL yönteminde optik uyarım, sabit sıcaklık ve dalgaboyu ile belirli uyarma şiddetinde gerçekleştirilir. Farklı malzemeler için uyarma işlemi için farklı dalga boylarında (UV, görünür ya da kızılötesi) ışıklar kullanılır. Örneğin, kuvars mineralini uyarmak için ışık kaynağı olarak 420-550 nm dalga boyu aralığında mavi LED (Light Emitting Diode)'ler kullanılır. Genellikle bu şekilde mavi ışık ile uyarma yapılarak ölçülen lüminesans, optik uyarımlı lüminesans (OSL) olarak adlandırılır. Çoğu feldspat çeşidinin uyarımında ise kızılötesi (infrared) bölgede ışık kaynağı olarak dalga boyu 800-900 nm aralığına sahip halojen lambalar kullanılır. Bu şekilde kızılötesi bölgede uyarım yapılarak ölçülen lüminesans çeşidine de kızılötesi uyarımlı lüminesans (IRSL) denir. Farklı uyarma karakteristiğine sahip malzemelerde ise malzemenin hangi uyarma türüne uygun olduğu yapılacak araştırmalar sonucunda belirlenerek OSL çalışmalarında uygulanır. Farklı ışık kaynakları kullanılarak uygulanan uyarma işlemleri sonucunda elde edilen lüminesans, uygun filtreler yardımıyla fotoçoğaltıcı tüp üzerinden kaydedilir. Malzemenin yayımlanan lüminesansın enerjisi uyarımda kullanılan ışığın dalga boyu ile ters orantılı olduğu için oluşacak lüminesans ışımaya uygun filtreler kullanılarak ölçülür (Aitken 1998).

OSL ölçümlerinde farklı uyarım modları mevcuttur. Bu şekilde incelenen malzemeler farklı uyarım modları ile uyarılabilmektedir. Şekil 2.10'da malzemelerin farklı uyarım modlarıyla uyarılması sonucunda elde edilen OSL eğrileri gösterilmektedir. Bu uyarım modları üç ana gruba ayrılır:

- a) Sürekli dalga OSL (CW-OSL) yöntemi: Işık şiddeti, malzemenin uyarım süresi boyunca sabit tutulur.
- b) Lineer modülasyon OSL (LM-OSL) yöntemi: Işık şiddeti, malzemenin uyarım süresi boyunca lineer olarak arttırılır.
- c) Pulsu OSL (P-OSL) yöntemi: Uyarım ışığı, malzemenin uyarım süresi boyunca pulslar halinde gönderilir ve bu pulslar arasında OSL ölçülür.



Şekil 2.10 Farklı uyarım modları ile elde edilen OSL eğrileri (Bøtter-Jensen vd. 2003)

2.6.1 OSL'nin genelleştirilmiş matematiksel modeli

OSL modeli, radyasyona maruz kalan bir tuzak ve bir hol merkezi içerdiği varsayılan malzemenin ışıqla uyarılması işlemi için geliştirilen denklemler ile ifade edilmektedir. Malzeme ışıqla uyarıldıktan sonra tuzaklanmış elektronların serbest hale geçerek yeniden birleşme merkezlerinde tuzaklanmış hollerle birleşmesi sonucu lüminesans olayı gerçekleşir. Uyarma süresi boyunca tuzaklanan elektron konsantrasyonu giderek azalacağından OSL sinyali de azalmaktadır. Buradan yola çıkılarak geliştirilen OSL modelinde TL kinetiğinde olduğu gibi tuzaklanma ve yeniden birleşmede sadece elektronlar kullanılır. Bütün geçişlerin iletim bandı vasıtasıyla gerçekleşerek yeniden birleşme merkezinde sonuçlandığı varsayılır. Tuzaklanmış bir elektronun sabit bir ışıqla uyarılması ile elektronun tuzaktan birim zamanda kurtulma olasılığı p terimi (optik uyarımda olasılık fonksiyonu), Φ ve σ terimlerinin çarpımı ile verilir (Eşitlik 2.14).

$$p(E_0) = \Phi\sigma(E_0) \quad (2.14)$$

Burada Φ , gelen foton akısı (foton/cm²s); σ , fotoiyonizasyon tesir kesiti (cm²) ve E_0 , tuzaktan elektronun ayrılması için gerekli optik uyarımın eşik enerjisidir (eV).

Optik uyarımda tuzakları boşaltmak için sabit dalga boyu ve uyarma şiddeti kullanılırsa CW-OSL azalım eğrisi, sabit dalga boyunda uyarma şiddeti zamanla lineer olarak arttırılır (Eşitlik 2.15) ise LM-OSL eğrisi elde edilmektedir (Bøtter-Jensen vd. 2003).

$$\Phi_{(t)} = \Phi_0 + \beta\phi t \quad (2.15)$$

OSL şiddeti, termoluminesans sürecinde olduğu gibi bir tuzak bir yeniden birleşme merkezi modeline göre yarı denge yaklaşımı yapılır ve tekrar tuzaklanma olasılığı ihmal edilirse:

$$I_{OSL} = -\frac{dm}{dt} = -\frac{dn}{dt} = np \quad (2.16)$$

olarak elde edilir. Eşitlik (2.16)'nın integrali alınır:

$$I_{OSL} = n_0 p e^{-tp} = I_0 e^{-\frac{t}{\tau_d}} \quad (2.17)$$

şeklinde çözüm elde edilir. Burada I_0 , $t = 0$ anındaki (başlangıçtaki) OSL şiddeti; τ_d ise CW-OSL azalım sabitidir. Bu şekilde birinci mertebeden kinetik model ile malzemeye sabit uyarımlı ışık şiddeti uygulandığında OSL şiddetinin üstel (eksponansiyel) azalacağını göstermektedir. Böylece tuzaklar boşaltılırken tüm tuzaklarda elektron kalmadığında OSL şiddeti de sıfırlanacaktır (Bøtter-Jensen vd. 2003).

Eşitlik (2.17) ifadesi, tekrar tuzaklanma olasılığı ihmal edildiği için kısıtlı bir durumu ifade etmektedir. Bu nedenle (Chen ve McKeever 1997) tarafından CW-OSL azalım eğrileri, tekrar tuzaklanma olasılığının önemli olduğu durumda analize eklenmesi gerektiğini Eşitlik (2.18)'de elde edilen OSL şiddeti ile göstermiştir.

$$I_{OSL} = np - n_c A_n (N - n) \quad (2.18)$$

$N \gg n$, ve $R = A/A_m \gg n/(N - n)$ durumu altında ikinci mertebeye kinetik fonksiyonu:

$$I_{OSL} = \frac{n^2 p}{NR} = -\frac{dn}{dt} \quad (2.19)$$

elde edilir. Eşitlik (2.19)'un integrali alındıktan sonra çözüm:

$$I_{OSL} = I_0 \left(1 - \frac{n_0 p t}{NR}\right)^{-2} \quad (2.20)$$

olarak elde edilir. Burada $I_0 = \frac{n_0^2 p}{NR}$ dir. Daha genel durumlar için $I_0 = \frac{n_0^b p}{NR}$ alınır

genel mertebeden OSL şiddeti, Eşitlik (2.21) ile tanımlanır.

$$I_{OSL} = I_0 \left(1 - \frac{n_0 p t}{NR}\right)^{\frac{b}{1-b}} \quad (2.21)$$

Chen ve Leung (2003) tarafından bu durum daha detaylı olarak incelendikten sonra OSL azalım eğrilerinin basit bir üstel azalımı olmadığı ve onun yerine uzatılmış üstel ifadesini kullanarak Eşitlik (2.22) ile en iyi şekilde fit edildiğini göstermişlerdir.

$$I_{OSL} = I_0 e^{-\left(\frac{t}{\tau_d}\right)^\beta} \quad (2.22)$$

Burada β , 0 ile 1 arasında bir değer almaktadır.

2.7 Lüminesans Dozimetreler (TLD ve OSLD)

Radyasyon dozimetrisi, bir malzeme veya cihaz aracılığıyla radyasyon dozunun tespitini ve ölçümünü içeren bir araştırma alanıdır. Bu alanda kullanılan radyasyon dozimetreleri: aktif ve pasif dozimetreler olarak iki ana kategoriye ayrılır. Aktif dozimetrelerde, radyasyon dozunun gerçek zamanlı olarak ölçmek için bir malzeme ve elektronik devre kullanılır. Böylece dozun sürekli takip edilmesine olanak sağlar. Buna karşılık pasif dozimetrelerde; radyasyon dozu gerçek zamanlı olarak değil, daha sonra yapılan bazı işlemler sonucunda belirlenir. Bu dozimetreler, soğurulan radyasyon dozu ve geçmiş hakkında bilgi sağlamak için kullanılır. Küçük boyutlarda ve ucuz olmalarının yanı sıra pasif dozimetrelerin bulundukları yerde herhangi bir elektronik güç kaynağına ihtiyaç duymadan ve yüksek dozlarda da kullanılabilmesi gibi farklı pek çok avantajı vardır (Ahmed 2007).

TLD ve OSLD malzemelerini içeren lüminesans dozimetri sistemleri pasif dozimetreler kategorisinde incelenmektedir. Lüminesansın gözlenmesinde kullanılan cihazlar, geçmişten günümüze kadar ilerleyen süreçte birçok aşamadan geçerek çok hassas ölçümlerin yapılabilirdiği sistemlere entegre olmuştur; fakat bu hızlı ilerleme, yeni lüminesans dozimetre malzemelerinin geliştirilmesinde sağlanamamıştır.

Lüminesans malzemeler üzerine yapılan araştırmalar Boyle'un çalışmalarını yayınladığı tarihten günümüze kadar artarak devam etmektedir. Literatürde arkeoloji, jeoloji, tıp, biyoloji, organik kimya ve katıhal fiziği gibi farklı disiplinlerde uygulama alanı bulan çeşitli birçok lüminesans malzemesi ile ilgili çalışmalar mevcuttur; ancak bu malzemelerin çoğu özellikle kişisel ve çevresel dozimetrik uygulamalar için uygun bulunmamıştır (Murthy 2014).

İyi bir lüminesans dozimetre malzemesinin özellikleri:

- Aday dozimetre malzemesi 150-180 °C'nin üzerinde doğal TL (NTL) piki veren basit ışıma eğrisi sergilemelidir; yani sıcaklık, laboratuvarda yapay ışınlamanın neden olduğu kararsız TL sinyallerinin sıcaklığından yeterince yüksek bir sıcaklık aralığında olmalıdır. Bu sayede bu iki sinyal belirgin olarak ayrıştırılabilmelidir (Kiyak vd. 2010).
- Kararlı bir TL tuzağı olmadığı durumda, kararsız TL pikleri (oda sıcaklığı ile 150 °C arasındaki sıcaklık bölgesi içindeki pikler) (Polymeris ve Kitis 2019) oldukça yüksek bir hassasiyetin izlenmesini sağlarsa, önceden birikmiş doza dayalı olarak kullanılabilir (ön-doz etkisi) (Bailiff 1994).
- Sıfırlama koşulu, kolay ve hızlı tekrar kullanım sürecini önermektedir.
- Lineerlik gibi uygun doz cevap özelliklerine (ilgilenilen doz bölgesinde), dedekte edilebilir en düşük doz limitine ve doyum noktasına sahip olmalıdır (McKeever vd. 1995).
- Yüksek radyasyon verimi ile lüminesans yayınımlı yapmalıdır.
- Soğurulan enerjiyi uzun süreli depolama özelliğine sahip olmalıdır.
- Ortam koşullarında (sıcaklık, nem, basınç vb.) kararlı olmalıdır.
- Zehirli (toksik) olmamalıdır.
- Tekrar kullanılabilir özelliklere sahip olmalıdır. Bu sayede tek bir temsili örnek ile ölçümler alınabilir.
- Termal sönmürlenme (quenching) ve anormal sönmürlenme (fading) etkileri olmamalıdır.
- Sağlık fiziği uygulamalarında doku eşdeğeri ($Z_{eff}=7,42$) olmalıdır.

Geçmişte ve güncel yapılan araştırmalar sonucunda yukarıda belirtilen kriterlerin çoğunu karşılayan bir malzeme bulmak oldukça zordur. Halen günümüzde en sık kullanılan termolüminesans malzemesi olan Lityum Florür (LiF) ilk defa 1953 yılında Wisconsin Üniversitesinde (ABD) Farrington Daniels ve araştırma grubu tarafından önerilmiştir. LiF'ün TLD malzemesi olarak tercih edilme sebebi yapı içerisindeki Mg ve Ti'nin varlığından kaynaklanan kompleks kusurlardır. Yapılan çalışmalar sonucunda 1963 yılında Harshaw Chemical Company LiF malzemesini TLD-100 olarak adlandırarak patentini almıştır (Murthy 2014). LiF:Mg,Ti (TLD-100) dozimetreleri medikal fizik uygulamalarında ve personel dozimetri alanında yaygın olarak kullanılan dozimetredir. LiF malzemesine katkılanırılan farklı elementlerle oluşturulan dozimetre olan LiF:Mg,Cu,P malzemesi de TL dozimetrisi olarak kabul edilmektedir. Yüksek hassasiyeti nedeniyle LiF:MCP μGy ' den kGy ' e geniş bir doz aralığında ölçüm yapılabilir. LiF:Mg,Cu,Si dozimetresi $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar ısıtıldığında TL hassasiyetinde herhangi bir kayıp ya da ışıma eğrisi yapısında herhangi bir değişiklik gözlenmediği ve bu dozimetrelerin LiF:Mg,Ti (TLD-100) dozimetrelerden çok daha hassas olduğu rapor edilmiştir (Omanwar vd. 2013). Ancak TLD-100'ün kompleks TL ışıma eğrisi (Sadek vd. 2016), OSL sinyalinin olmaması ve belirli sıcaklıklarda tavlama sonrası anormal davranış sergilemesi (Kitis ve Otto 2000) gibi bazı istenmeyen özellikleri nedeniyle:

- a) Kişisel dozimetre uygulamalarında $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ (Akselrod vd. 2006, Polymeris vd. 2010), ya da BeO (Aşlar vd. 2017a, b, Aşlar vd. 2019),
- b) Çevresel dozimetre uygulamalarında ise CaF_2 (Chougaonkar ve Bhatt 2004, Polymeris vd. 2006, Karsu Asal vd. 2018) ya da lityum tetraborat (Annalakshmi vd. 2011, Celik vd. 2017, Ozdemir vd. 2019) gibi alternatif dozimetreler de kullanılmaya başlamıştır. Bütün bu bahsedilen dozimetreler, yoğun TL ve OSL sinyalleri vermektedir.

Bilinen doğal ve sentetik termolüminesans malzemeleri arasında CaF_2 'ün önemli bir yeri vardır. CaF_2 'ün en önemli özelliği yüksek lüminesans (hem TL hem de OSL) hassasiyeti göstermesidir. Bunun yanı sıra en düşük dedekte edilebilir doz limiti (LDDL) nedeniyle oldukça düşük çevresel dozların ölçümünde OSL'nin kullanılabilir olduğu sonucuna varılmıştır (Polymeris vd. 2006). Karsu Asal vd. (2018) $\text{CaF}_2\text{:Dy}$ (TLD-200) kullanarak

ışınlama sıcaklığına (oda sıcaklığı-270 °C) bağlı olarak termoluminesans cevabı çalışmışlardır. Yüksek sıcaklıktaki daha kararlı piklerin aktivasyon enerjilerinin hem ışınlama hem de ışınlama sonrası tavlama sıcaklıklarına bağlı olduğu sonucuna varmışlardır.

Lüminesans dozimetresi olarak berilyum oksit (BeO) kişisel, medikal ve çevresel dozimetri alanlarda kullanılmaktadır. Etkin atom numarasının dokunun etkin atom numarasına ($Z_{eff} = 7,35-7,65$) ya da suyun etkin atom numarasına ($Z_{eff} = 7,51$) yakın olması BeO' e avantaj sağlamaktadır (Aşlar vd. 2017a, b, Aşlar vd. 2019). $Al_2O_3:C$, iyonlaştırıcı radyasyona karşı yüksek hassasiyeti nedeniyle tercih edilmektedir. Diğer dozimetrelere kıyasla hem TL hem de OSL eğrileri daha sadedir. $Al_2O_3:C$ 'nin yüksek optik hassasiyeti nedeni ile çoğunlukla OSL dozimetresi olarak kullanılır (Polymeris vd. 2010). $Al_2O_3:C$ 'nin OSL sinyalinin, 1 Gy gama dozlarının saptanmasında termal olarak kararlı ve tekrarlanabilir olduğu gösterilmiştir. Bu malzemenin bir diğer avantajı da hem doz hızı hem de toplam doz ölçülebilmesidir (Akselrod vd. 2006). Ancak, yoğun termal sönümlenme etkisi, hem BeO (Aşlar vd. 2017a, b) hem de $Al_2O_3:C$ (Dallas vd. 2008a, b) dozimetrelerinin uygulamalarında dezavantaj oluşturur.

Boratlar etkin atom numarası, lineer doz cevabı, hassasiyeti ve kolay üretim yöntemleri nedeniyle radyasyon dozimetrisinde sıklıkla kullanılmaktadır. Borat bileşikleri, infra-red (IR) dalga boyundan görünür ve UV dalga boylarına kadar geniş bir spektral cevap aralığına sahiptir (İflazoğlu vd. 2019). Lüminesans uygulamalarında en çok kullanılan dozimetri malzemeleri: lityum tetraborat, lityum triborat ve magnezyum tetraborattır. Dokulardaki soğurulan dozun tahmin edilmesinde termoluminesans dozimetrelerin doku eşdeğeri olması istenilen bir özelliktir. Lityum borat bazlı TL dozimetrelerin etkin atom numarası 7,3 olup, dokunun etkin atom numarasına en yakın olanıdır. Bu sebeple kişisel dozimetrelerde en çok tercih edilen dozimetrelerden biri lityum borat bazlı dozimetrelerdir. Düşük ışıma hassasiyete sahip katkılandırılmamış bu malzemelerin hassasiyeti alüminyum, bakır, gümüş, fosfor, magnezyum, gadolinyum gibi katkıların tek başına ya da birlikte (co-doped) kullanılması ile artırılabilir (Depci vd. 2008, Kafadar vd. 2009, Annalakshmi vd. 2011, Celik vd. 2017, Ozdemir vd. 2019). Bu sayede malzeme çok iyi lüminesans özelliklerine sahip olur. Depci vd. (2008) %5 alüminyum

katkılandırmanın lityum triboratin hassasiyetini 240 kat arttırdığını, Celik vd. (2017) %0,08 bakır ve %0,04 gümüşü birlikte katkılandırmanın lityum tetraboratin hassasiyetini 40 kat arttırdığını rapor etmişlerdir.

Magnezyum boratın lüminesans özellikleri, Tm ve Dy gibi nadir toprak elementleriyle katkılandırma ile geliştirilebilir. Bu dozimetreler özellikle foton, beta ve nötron dozimetrisinde kullanılmaktadır. Etkin atom numarası 8,4 olan magnezyum tetraborat (MgB_4O_7 : Dy) genelde medikal dozimetre malzemesi olarak kullanılmaktadır (İflazoğlu vd. 2019). Kitis vd. (2016) ve Pagonis vd. (2019), disprosyum ve sodyum birlikte katkılandırılan magnezyum tetraboratta TL'deki tekrar birleşmenin (recombination) tünelleme aracılığıyla meydana geldiğini kanıtlamışlardır. Bu nedenle, yoğun termal olmayan sönümün (athermal fading) varlığından dolayı dozimetrik uygulamalar için bu malzemenin uygun bir malzeme olmadığı sonucuna varılmıştır.

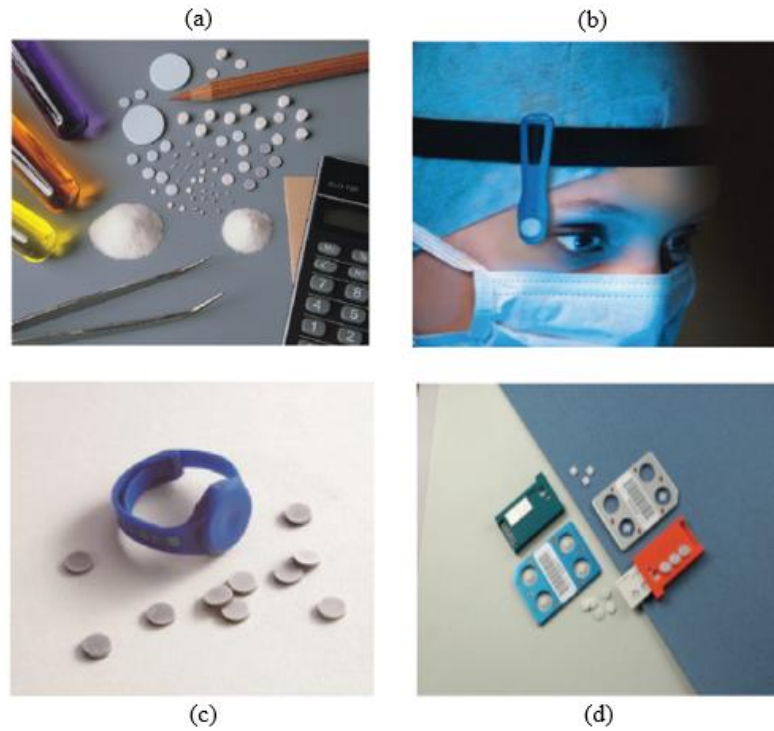
Bu üç TL/OSL dozimetre grubunun yanı sıra, literatürde kolemanit ve üleksit gibi diğer bor bazlı malzemelerin lüminesans özelliklerini inceleyen çok az sayıda makale bulunmaktadır. Tez kapsamında, yukarıda bahsedilen borat bazlı dozimetrelerden farklı olarak, katkılandırma yapılmamış özel bir bor ürününün dozimetre malzemesi olarak kullanılması önerilmektedir.

2.8 Lüminesans Dozimetri (TLD ve OSLD) Uygulamaları

Uygulama alanına özgü dozimetre seçimi önemlidir. Bu nedenle lüminesans dozimetri sistemleriyle ilgili geçmişten günümüze yapılan araştırmalar sonucu elde edilen veriler doğrultusunda hangi malzemenin hangi uygulamalara uygun olduğu belirlenmektedir. Güncel araştırmalar yeni ve yüksek performanslı dozimetrelerin üretilmesi üzerine yoğunlaşmıştır. Yapılan bu çalışmalar sonucunda en iyi sonucu veren TLD ve OSLD malzemeler: kişisel, klinik, çevresel ya da yüksek doz gibi birçok uygulama alanında farklı fiziksel formlarda (toz, çip, pelet, çubuk vb.) yaygın olarak kullanılmaktadır. Bu ana uygulama alanlarında çalışılan iyonize radyasyon çeşitleri ve doz aralıkları değişkenlik gösterebilmektedir.

Şekil 2.11 (a)'da gösterilen ideal lüminesans malzemeler, belirlenirken bazı temel özelliklere sahip olmasına ve kullanıldığı uygulama alanının doz aralığında yüksek oranda lineer bir doz cevap eğrisi elde edilmesine göre değerlendirilir. Bundan dolayı lüminesans (TL ve OSL) tekniğinin kişisel, çevresel ve retrospektif gibi farklı dozimetri alanlarında uygulanabilir olması için genellikle bu temel koşulları yerine getirmesi gerekir (McKeever vd. 1995).

Kişisel dozimetri; nükleer reaktör, hastanelerdeki radyoterapi ve radyoloji ya da nükleer atık gibi radyasyon alanlarında görevli personellerin rutin faaliyetlerin yürütülmesi sırasında maruz kaldıkları radyasyon dozunun ölçülmesini temel almaktadır. Buradaki amaç her bir personelin maruz kaldığı radyasyon dozunu, uluslararası kuruluşlar (IAEA, ICRP, EURATOM vb.) temel alınarak önceden belirlenmiş ve izin verilen maksimum limitlerin altında tutmaya çalışmaktır. Bu alanlarda ilgilenilen doz aralığı $\sim 10^{-5}$ Sv ile 10^{-1} Sv arasında (dozun belirsizliği $\pm \%10-20$ aralığında olmalı) değişmektedir. Kişisel dozimetri; uzuv, tüm vücut ve doku (deri) dozimetresi alt kategorilerinde incelenmektedir (Şekil 2.11). Bu şekilde maruz kalınan eşdeğer dozlar hesaplanarak değerlendirilir.



Şekil 2.11 a) Farklı fiziksel formlarda (toz, çip ve pelet) lüminesans malzemeler ve kişisel b) göz (lens) c) yüzük d) kart tipi lüminesans dozimetreler (Konopka vd. 2017)

Klinik dozimetri, teşhis ve tedavi uygulamalarında hastanın vücudunun üzerine küçük boyuttaki lüminesans materyalleri yerleştirilerek maruz kaldıkları iyonize radyasyon dozu hesabının yapılması amacıyla kullanılmaktadır. Uygulamalardan sonra dozimetri malzemesi hastadan alınarak ölçümler yapılır. Elde edilen doz, doku eşdeğeridir. Böylece sağlık fizikçileri tarafından kritik iç organlara ulaşan gerçek doz değerleri hesaplanarak tedavi planlaması yapılır. Klinik dozimetri, tanısal (diagnostik) radyoloji ve radyoterapi (ışın tedavisi) olarak iki alt kategoride incelenmektedir. Bu uygulamalarda x-ışınları, gama ışınları, elektronlar, ağır yüklü parçacıklar ve nötronlar gibi farklı enerji seviyelerinde iyonize radyasyon çeşitleri ile çalışılmaktadır. Bu nedenle ilgilenilen doz aralığı radyoloji uygulamaları için 10^{-5} Gy ile 10^{-2} Gy arasında iken radyoterapi uygulamalarında maksimum 20 Gy'e kadardır (radyoterapi doz hata oranı $\pm$ %3'ten az olmalı). Kullanılan dozimetre malzemelerinin bu aralıklarda yüksek hassasiyette ve lineer doz cevap eğrilerine sahip olması gerekmektedir.

Çevresel dozimetri, karasal ve uzaysal olarak iki alt kategoriye ayrılır. Karasal kategorisi, tarihlendirme (jeolojik ve arkeolojik) ve retrospektif (geriye dönük) dozimetre çalışmalarına dayanır. Retrospektif dozimetre, nükleer enerji endüstrisinin gelişmesiyle beraber artan çevresel radyasyon dozunun düzenli olarak ölçülmesine katkı sağlamayı amaç edinmiştir. Özellikle nükleer santral kazaları ve radyoaktif atıklar gibi çevresel zararlar oluşturabilen durumlar bu alandaki çalışmaları önemli hale getirmiştir. Bu nedenle nükleer santrallerin bulunduğu bölgelerde radyoaktivite seviyesinin belirlenmesi için kullanılmaktadır. Bu alanda kullanılan dozimetreler, kişisel dozimetrelerden daha düşük doz seviyelerinde (eşdeğer doz genellikle 10^{-2} mSv civarındadır) ve uzun süreli okumalarda yüksek hassasiyette olduğundan farklı performans kriterlerine sahip olması gerekir. Tarihlendirme ise yer kabuğunda belli oranda bulunan kuvars ve feldspat gibi doğal minerallerin lüminesans özellikleri kullanılarak yapılır. Tarihlendirilmek istenen örnekte bulunan bu doğal minerallerin çevresel radyasyondan kaynaklı soğurduğu toplam doz (örneğin son ısıtıldığı ya da gün ışığına son maruz kaldığı zamana göre) ve yıllık doz miktarı ölçümleri üzerinden yapılan hesaplamalar ile jeolojik ve arkeolojik yaş tayinleri gerçekleştirilir. Diğer bir alt kategori olan uzay dozimetrisinde ise son yıllarda gerçekleşen uzay yolculuklarının artması nedeniyle bu alandaki çalışmaları arttırmıştır. Uzay yolculukları boyunca astronotlar ve uzay mekiğinin elektronik donanımı gibi hassas

bileşenleri güneş rüzgarlarından gelen ağır yüklü parçacıklara ve yüksek enerjili fotonlardan oluşan kozmik radyasyona maruz kalması ciddi riskler oluşturmaktadır. Bu nedenle lüminesans dozimetreler, son yıllarda uzay uçuşlarında maruz kalınan eşdeğer dozun hesaplanabilmesi için de kullanılmaktadır.

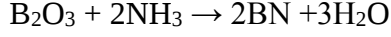
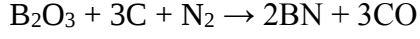
Lüminesans malzemelerin kullanıldığı diğer bir ana uygulama alanı ise yüksek radyasyon dozu (10^2 Gy ile 10^6 Gy arasında) ölçümleridir. Yüksek doz uygulamaları; nükleer santrallerdeki iç yapılar, materyal testleri ve gıda sterilizasyon alt kategorilerinde incelenmektedir. Bu alanlarda kullanılan lüminesans malzemelerinin sahip olması gereken dozimetrik özellikler karmaşık yapıdadır; çünkü bu malzemelerin diğer uygulama alanlarında kullanılan malzemelerden daha yüksek dozlarda doygunluğa ulaştığı görülmektedir. Bu nedenle okumalarda kararlı (yüksek sıcaklıklardaki) pikler kullanılmaktadır. Ayrıca bazı araştırmalar, malzemenin okuma öncesi yüksek dozlara maruz kalması (radyasyon hasarı) sonucu doz hassasiyetinin azalarak da bu özelliğin kullanılabileceğini öngörmüştür (McKeever vd. 1995).

2.9 Bor Nitrür (BN) Malzemelerin Yapısı ve Dozimetrik Özellikleri ile İlgili Çalışmalar

Bor nitrür (BN), bor ve azot elementlerinin oluşturduğu doğada bulunmayan bir bileşiktir. Bor nitrürün kristal yapısı karbonunkine benzer. Farklı kristal yapılarda elde edilebilmekle beraber endüstriyel bor ürünleri olarak kullanılan önemli iki formu: hegzaonal ve kübik bor nitrürdür.

Hegzaonal bor nitrür (h-BN), en çok kullanılan bor nitrür türüdür. Kristal yapısı, yumuşaklık, tabakalı olması ve kayganlık özellikleri nedeniyle h-BN grafit benzer. Bundan dolayı beyaz grafit olarak da adlandırılır. Yağlayıcı özelliğini çok iyi olduğu için mekanik aksamalarda, seramik ve cam endüstrisinde, kozmetik sanayiinde, kesici ve aşındırıcı uçların üretiminde kullanılır. Ayrıca hegzaonal bor nitrür tozu; farklı birçok malzemeye katkı maddesi olarak ilave edilerek, ileri teknoloji uygulamalarında kullanılan bu malzemelerin mekanik özelliklerinin güçlendirilmesini sağlar.

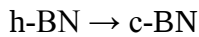
h-BN üretim yöntemleri şu şekildedir: bor oksit, karbon tarafından indirgenmekte ve açığa çıkan bor ile azotun hemen reaksiyona girmesi sonucu oluşmaktadır. Diğer yöntemde ise 900 °C’de sıvı haldeki B₂O₃ içinden NH₃ gazı geçirilmesi ile elde edilir.



h-BN’ün bazı fiziksel özellikleri: yoğunluğu, $2,2 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$; sertliği, Mohs’a göre 1-2; ergime noktası, ~ 3000 °C; yumuşak ve yağlayıcıdır.

Kübik bor nitrür (c-BN) ise kristal yapısı ve diğer özellikleri yönünden elmasa benzer. Bu nedenle inorganik elmas olarak da adlandırılır. Saf c-BN renksiz, iyi bir elektrik yalıtkanıdır ve elmasın ardından bilinen en yüksek sertlik değerine sahip malzemedir. Elmastan farklı olarak c-BN, yüksek ısıl direnç özelliğine sahip olmasının yanında çok yüksek sıcaklıklara dayanıklıdır. Mekanik etkilere karşı dayanımı yüksek olması nedeniyle aşındırıcı malzeme olarak, kesme aletlerinde, çelik gibi sertleştirilmiş malzemelerin işlenmesinde, kuru yağlayıcı ya da yağlama yağı katkısı olarak, kozmetik ve seramik sanayiinde kullanılır.

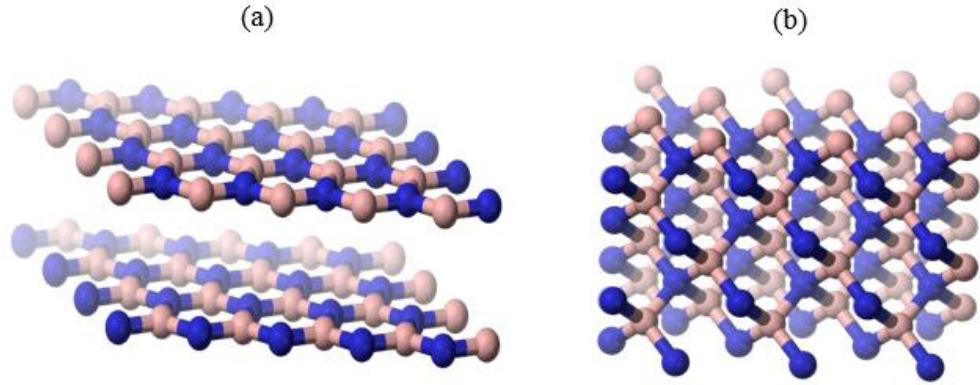
c-BN üretim yöntemi şu şekildedir: hegzagonal bor nitrürün yüksek sıcaklık (1400 °C - 1700 °C) ve basınç (60000 atm) altında ısıtılması ile elde edilir.



c-BN’ün bazı fiziksel özellikleri: yoğunluğu, $3,5 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$; sertliği, Mohs’a göre 9,5; ergime noktası, 2973 °C; sert ve aşındırıcıdır.

Farklı kristal yapılarıdaki h-BN ve c-BN (Şekil 2.12); kimyasal olarak kararlı, termal (ısı) olarak iletken, elektriksel olarak yalıtkan, yüksek sıcaklıklarda (yaklaşık 3000 °C’ ye kadar) kullanılabilme, oksidasyona ve korozyona karşı dirençli özelliklere sahip bileşiklerdir. Bu özellikleri nedeniyle; yüksek sıcaklık metalürji uygulamalarında, elektrik-elektronik endüstrisinde, seramik-kompozit malzemelerin yapımında ve kimya

endüstrisinde farklı uygulamalarda kullanılmaktadırlar. Hızla gelişen ve yaygınlaşan ileri teknoloji uygulamaları nedeniyle yeni kullanım alanları bulmaya yönelik çalışmalar devam etmektedir (Roskill 2010, Yünlü 2016).



Şekil 2.12 a) Hegzagonal bor nitrür (h-BN) ve b) kübik bor nitrür (c-BN)'ün kristal yapıları (Fiume vd. 2015)

Bor nitrür (BN) örneklerinin olası bir tuzaklanmış yük dozimetresi olarak değerlendirilebilecek özellikleri:

- c-BN 6,36 eV, h-BN ise 5,96 eV enerji band aralığına sahip olan malzemelerdir (Evans vd. 2008).
- BN'nin etkin atom numarası (Z_{eff}) 6,3 olarak hesaplanmıştır (Singh ve Badiger 2016).
- BN malzemeler hem mekanik işlemlere kolay tabi tutulabilir hem de kolayca katkılandırılabilir (Manfredotti vd. 2004).
- Bor ve azot zehirli (toksik) maddeler değildir.

Literatürde bor nitrürün dozimetrik özellikleri ile ilgili sınırlı sayıda çalışma yapılmıştır. Bor nitrürün termoluminesans özellikleri literatürde ilk defa 1970 yılında Bose ve Henisch tarafından çalışılmıştır. Sıcak preslenmiş hegzaonal bor nitrür tozları kullanılan araştırmada %58 silika içeren bor nitrür için elde edilen TL ışıma eğrisinde 425 K ile 543 K'de iki pik gözlenmiştir. Ayrıca güçlü UV uyarımı sonrası oda sıcaklığında birkaç dakika fosforesans gözlenmiştir (Bose ve Henisch 1970).

Lubyanskii vd. (1972) arařtırmalarında h-BN'nin dozimetrik  zelliklerini incelemiřlerdir. Yapılan  alıřmada  rnekler oda sıcaklıęında gama ve termal n tronlarla ıřınıldıktan sonra elde edilen TL bulguları incelenmiřtir. Bu  alıřmada farklı sıcaklıklarda fading  alıřması da yapılmıřtır. Hegzagonal bor nitr r n TL ve buna ek olarak EPR  alıřmaları 1972 ve 1975 yıllarında Katzir vd. tarafından yapılmıřtır. EPR ve termol minesans  l  mleri arasında bir korelasyon elde edilmiřtir. Bir ve    borlu merkezlerin iki farklı tipte tuzak  a neden olduęu tespit edilmiřtir. Bir tane eřleřmemiř elektronun bir ^{11}B  ekirdeęi ile etkileřime girdięinde d rt  izgili EPR spektrumu verdięi g sterilmiř ve bu merkezler bir borlu merkezler olarak ifade edilmiřtir. Dięer bir tipin ise eřleřmemiř elektronun    eřdeęer ^{11}B  ekirdeęi ile etkileřiminden dolayı 10  izgili EPR spektrumu verdięi g sterilmiř ve bu merkezler    borlu merkezler olarak ifade edilmiřtir.  rnekler ısıtıldıęı zaman elektronlar  nce bir borlu merkezlerdeki sonra    borlu merkezlerdeki tuzaklardan ka tıęı ve ıřıma eęrisi verirken aynı anda da EPR sinyalinin d řmesine sebep olduęu belirtilmiřtir (Katzir vd. 1972, 1975). Hegzagonal bor nitr r n; UV ıřıęı, x-ıřınları veya gama ıřınlarına maruz kalması sonucunda bir borlu ve    borlu merkezlerinin oluřmasının saęlanabildięi g sterilmiřtir ve EPR spektrumunun řiddetinin, uygulanan ıřınlama dozu ile arttıęı g zlemlenmiřtir (Geist 1977, Toledo vd. 2018). Korsaks (2012) yaptıęı  alıřmada farklı yapılarıdaki hegzagonal bor nitr r malzemelerin l minesans  zelliklerini incelemiřtir. Bu  alıřmada makro (h-BN) ve nano boyutta (BNNTs) bor nitr r tozlarının karakterizasyon iřlemleri yapılmıřtır. Karakterizasyonun ardından farklı yapılarıdaki bor nitr r malzemelerin l minesans  zelliklerine incelenmiř ve UV ıřınlama sonucu uygun optik cam filtreler kullanılarak TL ıřıma eęrileri (325 nm ve 375 nm dalga boylarına karřılık gelen) elde edilmiřtir. ıřıma eęrilerinde 80  C civarında bir sıę tuzak ve 360 ile 520  C'lerde de derin tuzaklar g zlemlenmiřtir. Weinstein vd. (2013) h-BN toz  rneęinin UV ıřınlama sonrası spektral ve karakteristik TL  zelliklerini incelemiřlerdir.  rneęin 2 K/s ısıtma hızı ile oda sıcaklıęından 773 K' e kadar ısıtılmasıyla elde edilen TL ıřıma eęrisinde $T_{\text{max}} = 380, 500$ ve 600 K de    TL piki g zlenmiřtir. Deneysel TL ıřıma eęrisi, genel mertebeden kinetik ve tuzak parametreleri analiz edilerek bir borlu ve    borlu merkezlerle iliřkileri g sterilmiřtir. Daha sonra yapılan farklı  alıřmalarda mikro ve nano boyutlarda bor nitr r tozlarının potansiyel UV radyasyon dozimetresi olarak kullanılabiliřlięi incelenmiřtir. UV ile ıřınlanan h-BN  rneklerinin, doza baęlı TL  zellikleri karakterize edilmiř ve farklı dalga

boylarındaki TL ışıma eğrileri incelenerek ayrıştırılmıştır. Elde edilen bulgularda h-BN'ün farklı sıcaklıklarda karakteristik TL pikleri gözlenmiş ve tuzak parametreleri ile aktivasyon enerjileri üzerine çalışmalar yapılmıştır. Çalışılan UV doz aralığında mikro boyuttaki h-BN'ün TL cevabının lineer davranış gösterdiği bulunmuştur. Elde edilen sonuçlar doğrultusunda donör - akseptör yeniden birleşme mekanizmasının $1B$, O_N ve C_N merkezlerinde elektron ve hole tuzaklarının oluştuğu belirlenmiştir (Vokhmintsev vd. 2014, 2016, 2019, Spiridonov vd. 2018). Hegzagonal bor nitrürün Berzina vd. 2016 tarafından oda sıcaklığında gerçekleştirilen OSL çalışmasında, h-BN 260 nm mavi ışığa maruz bırakıldıktan sonra darbeli (pulsed) kırmızı ışıkla çok kısa zamanda (nanosaniye mertebesinde) uyarılarak lüminesans sinyali ölçülmüştür ve OSL yönteminin uygulanmasının tuzaklanmış elektronlar için yeniden birleşme süreçlerini oluşturduğunu göstermiştir. Elde edilen sonuçlar OSL'nin karmaşık bir spektrum oluşturduğu ve bu spektrumun ana pikinin mavi ışık spektral bölgesini kapsadığı görülmüştür.

Kübik bor nitrür (c-BN)'ün lüminesans özellikleriyle ilgili literatürde Halperin ve Katzir (1975) tarafından yapılan ilk kapsamlı çalışmada TL ölçümleri 77 K ile 450 K aralığında incelenmiştir. Daha yüksek sıcaklıklarda örnek tutucunun kristalden daha fazla ışık yaydığı gözlemlenmiştir. UV uyarımı sonrası 140, 220, 290 ve 360 K'de çözünmemiş TL pikleri gözlenmiştir. Bu piklerin kararsız olması nedeniyle araştırmanın zor olduğu sonucuna varmışlardır. Piklerin aktivasyon enerjileri initial rise yöntemiyle 0,15-0,4 eV aralığında bulunmuştur. Yayınlanan ışığın dalga boyu kararsızdır ama kullanılan farklı filtreler ile dalga boyunun 9000 Å° üzerinde çoğunlukla kırmızı ışık bölgesinde olduğu gözlenmiştir. Örnek X-ışınları ile uyarıldığında elde edilen TL ışıma eğrisinin ise en kararlı piki 150 K'de ve yayımlanan ışığın dalga boyu 2500-4000 Å° aralığında çoğunlukla UV bölgesinde gözlemlenmişlerdir. Trinkler vd. (2004) kare şeklinde üretilen c-BN seramiklerin (4x4x0,5 mm³) TL özelliklerini incelemişlerdir. Çalışmada UV ve beta kaynağı (⁹⁰Sr/⁹⁰Y) ile ışınlanan örneklerin 700 °C sıcaklığa kadar ısıtılarak elde edilen TL ışıma eğrilerinde gözlenen pikleri, mavi ve UV filtreler kullanılarak karşılaştırmışlardır. Ayrıca UV ile ışınlama sonrası fading çalışması yaparak piklerdeki değişimi gözlemlenmişlerdir. Manfredotti vd. (2004), farklı katkılar (precursors) ile kübik bor nitrür numuneleri hazırlamışlardır. Magnezyum katkılandırma ile siyah, kalsiyum katkılandırma ile amber renkli numuneler elde etmişlerdir. Siyah renkli numuneler,

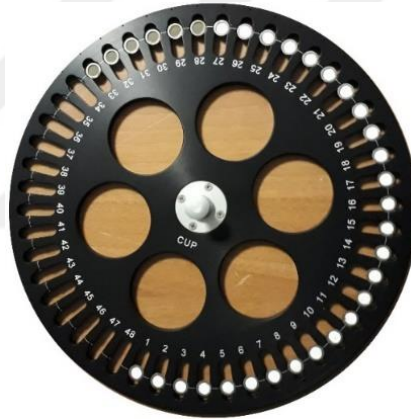
yüksek dozlarda bile belirli bir TL sinyali vermemiş, amber renkli numuneler ise geniş ve tekrarlanabilir TL sinyalleri vermiştir. Bu çalışmada, TL ışıma eğrilerinin tuzak enerjileri ve frekans faktörü gibi parametrelerin detaylı bir analizi yapılmıştır. Ca katkılı kübik bor nitrürün doz yanıtının kararlı ve tekrar edilebilir olmasından dolayı dozimetre olarak 1-10 Gy aralığında kullanılabileceğini belirtmişlerdir. Nistor vd. (2019) oda sıcaklığında ^{70}Y kaynağı kullanılarak 1 MeV enerjili elektronlarla ışınlanan amber renkli toz formda c-BN'ün 50-500 °C aralığında TL spektrumlarının yoğun ve tekrarlanabilir olduğunu gözlemlemişlerdir. TL ışıma eğrilerinin şeklinin ışınlama dozuna bağlı olmadığını ve 62 Gy'e kadar lineer doz cevap eğrisi verdiğini göstermişlerdir. Bundan dolayı da bu malzemenin yüksek radyasyon direnci olduğunu bulmuşlar ve c-BN'nin potansiyel bir dozimetre malzemesi olabileceğini söylemişlerdir. c-BN'nin TL ışıma eğrisinin iç içe geçmiş en az dört pikten oluştuğu, bunun birçok tuzak merkezinin varlığını gösterdiğini ve belirli safsızlıklardan kaynaklanabileceğini belirtmişlerdir. Kübik bor nitrürün kristal yapı analizleri Solozhenko vd. (1990) tarafından çalışılmıştır. Farklı geliştirme sistemleri ile elde edilen üç farklı kübik bor nitrürün, yapılarındaki safsızlıkların oranı tespit edilmiş ve paramanyetik merkezlerinin farklı olduğu ifade edilmiştir. Diğer bir çalışmada da farklı kübik bor nitrür örneklerinin EPR spektrumlarını incelemiş ve koyu kahverengi olan bor nitrür örneğinin karakteristik bir spektrum verdiğini, ancak sarı ya da amber renkli kübik bor nitrürlerde bu spektrumun gözlenmediğini belirtmişlerdir. Koyu renk ile ilişkilendirilen belirli paramanyetik merkezlerin (D1 ve D2) varlığı sonucunda bu spektrumların elde edildiği sonucuna varılmıştır (Nistor vd. 2000). Zhang ve Chen (1992) kübik bor nitrürün kusur ve mikroyapı analizlerini, EPR ve Raman spektrumlarını inceleyerek gerçekleştirmiştir. EPR sinyalinin asılı duran (dangling) azot bağından kaynaklandığını belirtmiştir. Azarko vd. (2013) ise EPR karakteristiklerinin c-BN sentezine, nötron ve elektron ile ışınlama koşullarına ve tavlama sıcaklığına bağlı olduğunu ifade etmişlerdir. Işınlama sonrasında da bor içeren kusurların oluşum sürecinin devam ettiğini, bor kusurlarında olduğu gibi azot kusurlarında da benzer EPR sinyallerinin oluştuğunu gözlemlemişlerdir.

3. MATERİYAL VE YÖNTEM

3.1 Materyal

3.1.1 Bor nitrür (BN)

Tez çalışması kapsamında hegzagonal ve kübik kristal yapılarındaki bor nitrür örnekleri (h-BN ve c-BN) kullanılmıştır. Bu örnekler iki farklı firmadan (h-BN; BORTEK Bor Teknolojileri ve Mekatronik San. Tic. A.Ş., Eskişehir ve c-BN; Elements Six Technologies Ltd., Güney Afrika) temin edilmiştir. Her iki malzeme de toz formdadır. Şekil 3.1’de gösterilen hegzagonal bor nitrür (h-BN) ve kübik bor nitrür (c-BN) malzemelerin genel özellikleri Bölüm 2.9’da verilmiştir.



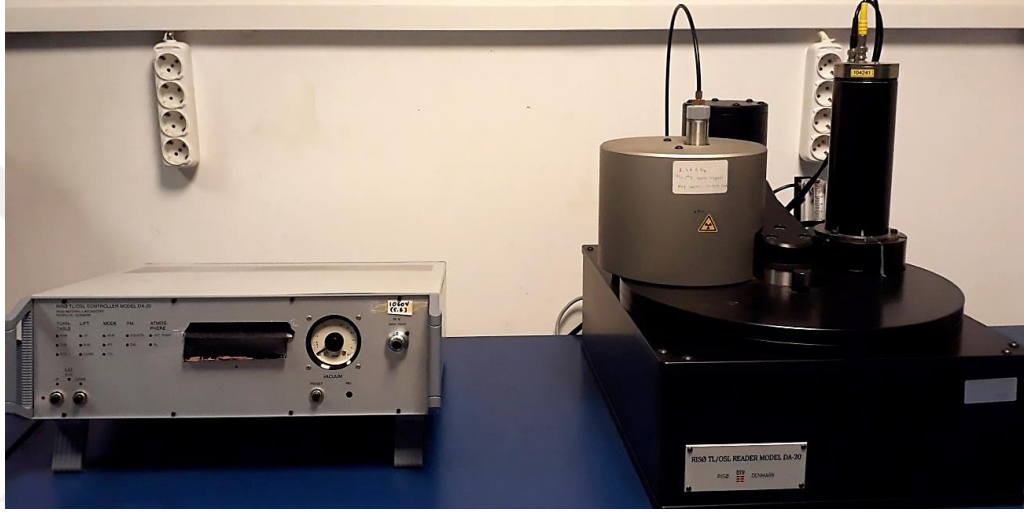
Şekil 3.1 Örnek karuseline yerleştirilmiş toz formda h-BN (1. ile 27. yuvalar arasında) ve c-BN (28. ile 33. yuvalar arasında) malzemeler

3.1.2 Kullanılan cihazlar

3.1.2.1 TL/OSL okuyucu

TL ve OSL ölçümleri için Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Retrospektif Dozimetri Laboratuvarı’nda bulunan Risø TL/OSL DA-20 okuyucu sistemi kullanılmıştır. Bu sistem; jeolojik ve arkeolojik tarihlendirme, radyasyondan korunma, adli dozimetri, kaza dozimetrisi ve lüminesans araştırmaları gibi uygulamalarda doğal ve yapay malzemelerdeki radyasyon dozlarını belirlemek için kullanılmaktadır.

Şekil 3.2’de gösterilen sistemi oluşturan iki ayrı ünite bulunmaktadır. Bunlar okuyucu ve kontrol üniteleridir. Okuyucu ünitesi; örneklerin yerleştirildiği, optik ya da termal olarak uyarıldığı, dedekte edildiği ve radyasyon kaynağı ile ışınlандığı ünedir. Kontrol ünitesi ise sistemin elektronik kontrol kısmını oluşturur. Programlar ile okuyucu arasında köprü görevi görür ve örnekler için hazırlanan ölçüm parametrelerinin uygulanmasını sağlar. Ayrıca yüksek voltajın uygulanması, vakum ortamının sağlanması, örnek taşıyıcının açılması ve kapanması da kontrol ünitesi tarafından yapılmaktadır.

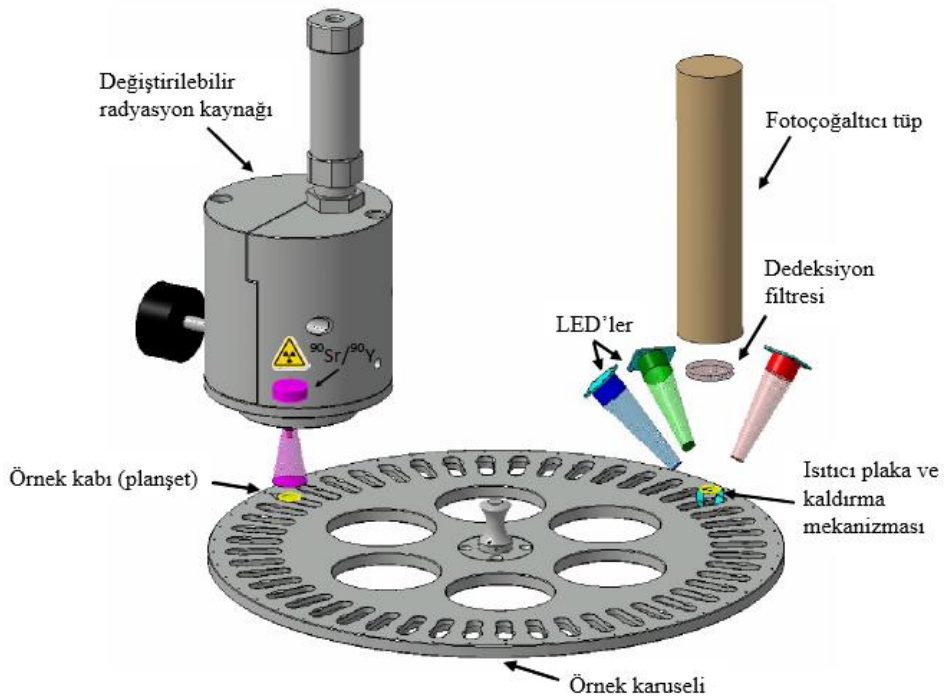


Şekil 3.2 Risø TL/OSL DA-20 okuyucu sistemi

Şekil 3.3’de şematik olarak gösterilen Risø TL/OSL DA-20 otomatik okuyucu ile hem TL hem de OSL ölçümleri yapılabildiği gibi optik ve termal uyarımların birlikte kullanıldığı ölçümleri de yapmak mümkündür. Ölçüme hazır örnekler 9,7 mm çapındaki alüminyum/paslanmaz çelik diskler ya da kaplar (planşetler) üzerine konulduktan sonra 48 örnek kapasiteli karuselin yuvalarına yerleştirilmektedir. Örneklerin ışınlaması için sistemde dahili bir ışınlama ünitesi bulunmaktadır. Bu üniteye silindirik özel bir kurşun zırh içerisinde $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı (yarı ömrü 30 yıl, başlangıç aktivitesi 1,48 GBq ve maksimum enerjisi 2,27 MeV) vardır. Kaynağın kuartzdaki doz hızı yaklaşık 0,115 Gy/s’dir. TL ölçümlerinde örnekler oda sıcaklığından 700 °C’ye kadar (ısıtma hızı; 0,1-10 K/s aralığında) ısıtılabilir. 200 °C’nin üzerindeki sıcaklıklarda azot gazı kullanılarak, ısıtma sisteminin oksidasyondan korunması ve hızlı soğutma işlemi sağlanmaktadır.

OSL ölçümlerinde ise sürekli dalga (CW-OSL) ve lineer modülasyon (LM-OSL) uyarım modları kullanılır. Optik uyarım kaynağı olarak mavi LED'ler (dalga boyu 470 nm ve toplam gücü 50 mW/cm²) ve kızılötesi LED'ler (dalga boyu 870 nm ve toplam gücü 145 mW/cm²) bulunmaktadır.

Uyarma ışığının şiddeti, örnekler uyarıldıktan sonra oluşan lüminesans şiddetinden yaklaşık 10¹⁸ kat daha büyük olduğundan yayılan lüminesans şiddetinin ölçülebilmesi için uygun optik filtreler kullanılarak uyarma ışığının PMT'ye ulaşması önlenmektedir. Bu TL/OSL okuyucu sisteminde üç farklı filtre kullanılmaktadır. Bunlar Hoya U-340 (7,5 mm kalınlığında ve Ø = 45 mm), Schott BG39 (2 mm kalınlığında ve Ø = 45 mm) ve Corning 7-59 (4 mm kalınlığında ve Ø = 45 mm)'dur. Yayılan lüminesans son olarak maksimum dedeksiyon verimi 200-400 nm dalga boyu aralığında bialkali EMI 9235QB fotoçoğaltıcı tüp (PMT) tarafından dedekte edilir. Elde edilen veriler kontrol ünitesi üzerinden bilgisayara aktarılır. Sequence Editor ve Analyst gibi programlar kullanılarak Risø TL/OSL DA-20 okuyucu sisteminin bilgisayar üzerinden kontrolü ve elde edilen verilerin görüntülenmesi sağlanmaktadır (Şahiner 2015, Anonymous 2021).



Şekil 3.3 Risø TL/OSL DA-20 okuyucusunun şematik gösterimi (Anonymous 2021)

3.1.2.2 TLD okuyucu

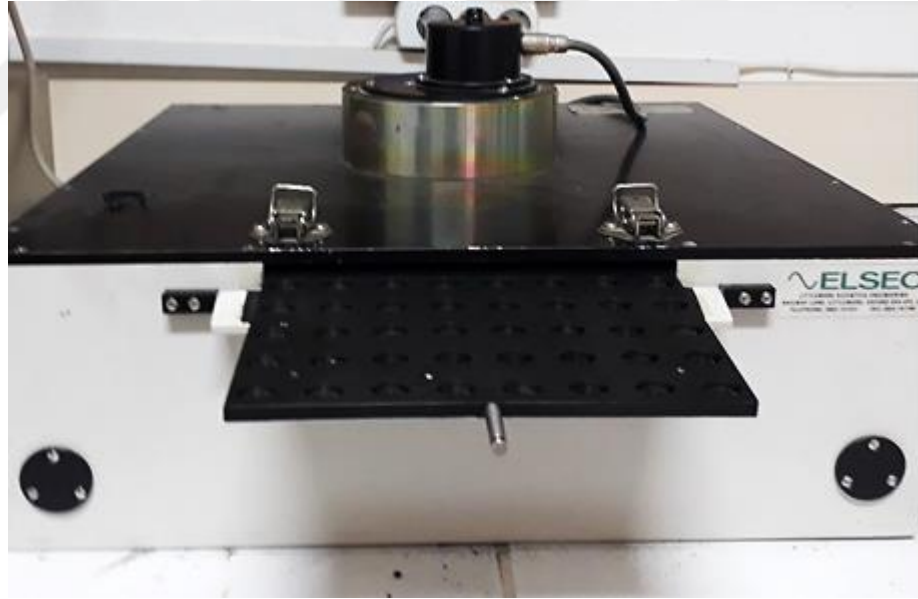
Sönüm (fading) ölçümleri için Ankara Üniversitesi Fizik Mühendisliği Lüminesans Tarihlandırma Araştırma Laboratuvarında bulunan Harshaw 3500 TLD okuyucu sistemi kullanılmıştır. Şekil 3.4’de gösterilen TLD okuyucu sisteminde örnekler (çip, çubuk, toz, pelet vb.), paslanmaz çelik planşetin bulunduğu bölmeye yerleştirilmektedir. Tek örnek kapasiteli bu bölmede örneklerin ısıtılması (ısıtma hızı, 1-50 °C/s aralığında; maksimum çalışma sıcaklığı: 600 °C) sonrasında açığa çıkan ışık fotoçoğaltıcı tüp tarafından akım değerine dönüştürülerek örneğin soğurduğu doz bilgisi elde edilmektedir. Sönüm ölçümlerinde Schott UG-11 (1 mm kalınlığında ve Ø = 50 mm) optik filtresi kullanılmıştır. Elde edilen verilerin kaydedilerek analizinin yapılması, ölçüm parametrelerinin girilmesi ve okuyucu sisteminin bilgisayar üzerinden kontrolü WinREMS programı kullanılarak sağlanmaktadır (Anonymous 2016, Aşlar 2020).



Şekil 3.4 Harshaw 3500 TLD okuyucu

3.1.2.3 Işınlama ünitesi

Sönüm (fading) çalışmalarında ışınlamalar için Ankara Üniversitesi Fizik Mühendisliği Lüminesans Tarihlendirme Araştırma Laboratuvarında bulunan Elsec 9010 okuma sisteminin ışınlama ünitesi kullanılmıştır. Elsec 9010 sistemi, bilgisayar programı ile kontrol edilebilen OSL okuma ünitesi ve harici ışınlama ünitesinden oluşmaktadır. Işınlama ünitesinde açılıp kapatılması bilgisayar programıyla otomatik kontrol edilen $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı (alüminyum üzerindeki doz hızı 0,025 Gy/s) kullanılmaktadır. Ölçüme hazır malzemeler örnek tepsisinin uygun bölmelerine (10 mm çaplı ve 0,5 mm kalınlıkta 64 disk kapasitesine sahip) konularak ışınlama ünitesinin altına gelecek şekilde yerleştirilir (Şekil 3.5). Bilgisayar programı kullanılarak belirlenen dozların sisteme girilmesi sonrasında ışınlama başlatılmaktadır. Program ile kontrol edilen örnek tepsisi x-y düzleminde hareket ederek bölmelerin $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağının altında konumlandırılır ve malzemelerin belirlenen dozlarda ışınlamaları sağlanır (Atlıhan 2008).



Şekil 3.5 Elsec 9010 ışınlama ünitesi

3.1.2.4 Taramalı elektron mikroskobu (SEM)

SEM ölçümleri için Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Elektron Mikroskobu Laboratuvarı'nda bulunan Şekil 3.6'da gösterilen Zeiss Evo 40 SEM sistemi kullanılmıştır. SEM kullanılarak; belli çap (9-15 mm arasında) ve kalınlığa (0,1-30 mm arasında) sahip katı ya da toz iletken örnekler, kaplama yapılmış yalıtkan örnekler, ince filmler, polimerler ve biyolojik örnekler incelenmektedir. Yüksek vakum ortamına zarar vermeleri nedeniyle örneklerin yapısında sıvı bulundurması durumunda kritik nokta kurutucusu ile yapılarında bulunan sıvı uzaklaştırılarak incelenebilmektedir. SEM'de, yüksek enerjili elektronların (kaynak, tungsten filament; gerilim, 500 V-30 kV aralığında) numunedeki atomlarla etkileşmesi sonucu oluşan elektron ve foton sinyalleri kullanılır. Dedektör (SE, BSE, EDX ve VPSE) tarafından farklı açılarda saçılan elektronlar dedekte edildikten sonra oluşan sinyaller toplanır ve SEM yazılımı ile işlenerek örneğin görüntüsü elde edilir. Malzeme yüzeyinin topografik görüntüsünü oluşturmak için uyarılan numune atomlarının yaydığı ikincil elektronlardan faydalanılır. Numuneden geri saçılan elektronlardan faydalanılarak ise malzemenin atom numarasına ve kontrasta bağlı atomik kompozisyon yapısı analiz edilir ve SEM sistemindeki enerji dağılımı spektrometresi (EDS) dedektörü kullanılarak bu nitel ve nicel analizler (noktasal, çizgisel ya da bölgesel) ile numunenin içerisinde bulunan elementlerin dağılım haritalaması yapılmaktadır (<http://emb.ankara.edu.tr/sem>, 2021).



Şekil 3.6 Zeiss Evo 40 SEM sistemi

3.1.2.5 X-ışınları difraksiyonu (XRD) spektroskopisi

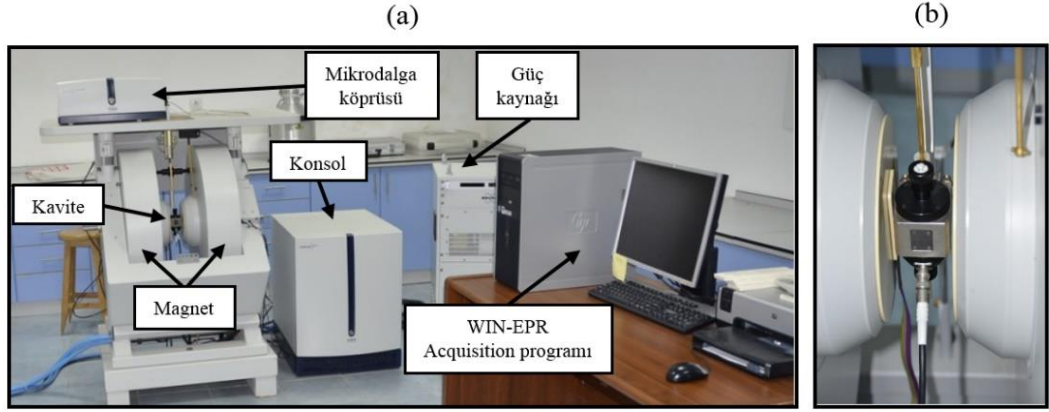
XRD spektroskopisi: malzeme bilimi, metalurji, jeoloji, arkeoloji, fizik, kimya, biyoloji, mineraloji, kalite kontrol ve ar-ge gibi çok geniş bir uygulama alanına sahiptir. XRD'nin çalışma prensibi Bragg kanunu ile açıklanmaktadır. XRD spektroskopisinde; numuneye gelen x-ışınının dalga boyu ile belirli düzlemlerden yansıyan ışının açısı (2θ) kullanılarak, malzemenin kristal yapı özelliklerine göre mineral tanımlaması yapılabilir ya da malzeme içerisindeki safsızlıkların tespit edilmesinde kullanılabilir. XRD ölçümleri için ODTÜ Metalurji ve Malzeme Mühendisliği Bölümü'nde X-Işınları Difraksiyonu Laboratuvarı'nda bulunan Şekil 3.7'de gösterilen Rigaku D/Max 2200 PC XRD spektrometre sistemi kullanılmıştır. X-ışını kaynağı olarak Cu K α ($\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$, 40 kV, 30 mA) ile numuneler uygun boyutlarda olacak şekilde sistemde belirlenen tarama aralığında analiz edilmektedir. Elde edilen XRD verileri, spektroskopi sistemindeki yazılım programı üzerinden pdf kart numaralarına sahip maddeler ile karşılaştırılarak numunelerin mineral içeriği belirlenir (Çakmak 2010, Anonymous 2018).



Şekil 3.7 Rigaku D/Max 2200 PC XRD spektrometre sistemi

3.1.2.6 EPR spektroskopisi

Elektromanyetik radyasyonun madde ile etkileşmesi sonucunda, çeşitli spektroskopik yöntemlerle maddenin yapısı hakkında önemli bilgiler elde edilebilir. EPR spektrometresi ile paramanyetik özellik gösteren, elektriksel iletkenliği minimum, nemli olmayan numunelerin spektrumu alınabilir. Kristaldeki metal iyonları, yarı iletkenlerdeki alıcı ve verici safsızlıklar, serbest radikaller içeren yapılar çiftlenmemiş elektrona sahiptirler. Bu durumda net spin manyetik momenti sıfırdan farklıdır. Rezonans olayında, atomik veya moleküler durumlar arasındaki enerji farklılığı (ΔE), gelen fotonun enerjisine ($h\nu$) eşit olduğu durumda bir soğurma gerçekleşir. Statik bir manyetik alanda elektron spinlerinin ya da çiftlenmemiş elektronların enerji soğurmaları sonucunda enerji seviyeleri arasındaki elektronik geçişler ile bir EPR spektrumu gözlenir. EPR spektrometresinde alınacak ölçümler rezonans koşulunu sağlayacak şekilde ($\Delta E = h\nu = g\mu_B B_0$) olmalıdır. Buradaki eşitlikte Planck sabiti (h), g faktörü (g) ve Bohr manyetonu (μ_B) sabit olduğundan; rezonans koşulu manyetik alan (B_0) ya da mikrodalga frekansının (ν) değişmesiyle sağlanır. Uygulamada mikrodalga frekansının hassas bir şekilde değişmesi manyetik alanın değişmesine göre daha zor olduğundan genellikle EPR sistemlerinde frekans sabit tutulur ve manyetik alan değiştirilir. Dışarıdan verilen mikrodalga frekansı sabit tutularak ve manyetik alan şiddeti değiştirilerek örneğin g faktörüne bağlı EPR spektrumu elde edilir. Buradaki g faktörünün değeri, elektron ve molekül arasındaki doğal bağların kimyasal bilgisi ile molekülün elektronik yapısını içermesi nedeniyle molekülün parmak izi olarak kullanılabilir. EPR ölçümleri için Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Elektron Paramanyetik Rezonans Laboratuvarı'nda bulunan Bruker EMX plus X-band EPR spektrometre sistemi kullanılmıştır. Bruker EMX plus X-band (dalga boyu, ~ 3 cm; frekans, 9,8 GHz) spektrometre sistemi; güç kaynağı, mikrodalga kaynağı ve dedektörün bulunduğu mikrodalga köprüsü, magnetler ve örneğin koyulduğu kavite ana bileşenlerinden oluşmaktadır (Şekil 3.8a). Örneklerden elde edilen zayıf sinyaller kavitede yükseltilir. Sistemde sinyallerin işlendiği ve elektronik kontrolün yapıldığı konsol ünitesi bulunmaktadır. Örnekler, kuvars tüplerde (iç çapı 3 mm) kavite içine (Şekil 3.8b) yerleştirilerek oda sıcaklığında ölçüm alınmıştır. Sistemin bilgisayar üzerinden kontrolü ve elde edilen verilerin analizi WIN-EPR Acquisition programı ile sağlanmaktadır (Weber vd. 1998, Kaya-Keleş 2020).



Şekil 3.8 a) Bruker EMX plus X-band EPR spektrometre sistemi ve bileşenleri, b) kavite

3.2 Yöntem

3.2.1 Bor nitrür malzemelerin yapısal karakterizasyonu

Tez çalışması kapsamında kullanılan h-BN ve c-BN örneklerinin yapısal karakterizasyon analizlerinde EPR, SEM ve XRD yöntemleri kullanılmıştır.

EPR yönteminde; doğal ve $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı kullanılarak 200 Gy ile ışınlanmış h-BN ($m = \sim 5,5 \text{ mg}$) ve c-BN ($m = \sim 40 \text{ mg}$) örneklerinin, kuvars tüplerde (iç çapı 3 mm) Çizelge 3.1’de gösterilen ölçüm parametreleri kullanılarak oda sıcaklığında analizleri yapılmıştır. Kuvars tüplerin farklı açılarında yapılan taramalar üç kez tekrar edilerek ortalaması alındıktan sonra örneklerin geniş ve dar EPR spektrumları elde edilmiştir. Elde edilen analizlerden sonra h-BN ve c-BN örneklerinin WIN-EPR Acquisition programı aracılığı ile EPR spektrumları üzerinden g değerleri belirlenmiştir.

Çizelge 3.1 EPR sisteminde kullanılan ölçüm parametreleri

	h-BN	c-BN
Mikrodalga gücü (mW)	2	2
Modülasyon genliği (mT)	0,2	0,1
Modülasyon frekansı (kHz)	100	100
Tarama zamanı (s)	81,92	40,96
Tarama sayısı	1	1
Dönüşüm zaman sabiti (ms)	80	40
Örnekleme sayısı	1024	1024

SEM yönteminde; çalışma mesafesi (WD) h-BN için 8 mm ve c-BN için 12mm, 20 kV gerilimde tungsten filament kaynak ve EDX dedektörü ile farklı büyütme oranları kullanılarak malzeme yüzeylerinin topografik görüntüleri ve h-BN ve c-BN örneklerinin içerdiği elementlerin dağılımı (EDX) belirlenmiştir.

XRD yönteminde, X-ışını kaynağı olarak dalga boyu 1,5418 Å olan Cu K α kullanılarak h-BN ve c-BN örneklerinin analizi yapılmış ve kristal yapı özelliklerine göre XRD pikleri şiddet değerleri ve konumlarına göre karşılaştırma yapılarak incelenmiştir.

3.2.2 Bor nitrür malzemelerin lüminesans özelliklerinin incelenmesi

Risø TL/OSL okuyucu sistemindeki Hoya U-340 optik filtresi kullanılarak yapılan TL ve OSL ölçümlerinde; c-BN örneği için tek tablet yöntemi, h-BN örneği içinse çoklu tablet yöntemi kullanılarak örnekler hazırlanmıştır. TL ve OSL ölçümlerinde her bir tablet h-BN örneğinden 4,3 mg ($\pm 5\%$) ve c-BN örneğinden 29,5 mg ($\pm 5\%$) olacak şekilde hazırlanmış ve karusel üzerine yerleştirilmiştir. h-BN ve c-BN örnekleri, ısıtılmadan önce TL ölçümleri için 500 °C' ye kadar ($\beta = 2$ °C/s) ısıtılmıştır; BSL ölçümleri için sürekli dalga (CW) modunda %70 güçteki mavi LED ile 100 s uyarılma işlemine; IRSI ölçümleri içinse sürekli dalga (CW) modunda %70 güçteki kızılötesi LED ile 100 s uyarılma işlemine tabi tutularak tuzaklardaki elektronlar boşaltılmıştır.

TL ölçümlerinde bor nitrür örnekleri doz hızı 115 mGy/s olan $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile ısıtılmıştır ve radyasyon doz cevabı, minimum dedekte edilebilen doz (MDD), tekrarlanabilirlik ve sönüm (fading) özellikleri incelenmiş; kesikli ışıma eğrisi ve ayrıştırma tekniği kullanılarak da tuzak parametreleri araştırılmıştır. Ayrıca aynı radyasyon dozu ile ısıtılan h-BN ve c-BN örneklerinin TL ışıma eğrilerinin şekli Hoya U-340 ve Schott UG-11 kullanılarak incelenmiş ve farklı geçirgenliğe sahip optik filtreler ile gözlenen TL tepelerinin şiddetindeki değişim karşılaştırılmıştır. BSL ölçümlerinde $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile ısıtılan h-BN ve c-BN örneklerinin radyasyon doz cevabı, minimum dedekte edilebilen doz (MDD) ve tekrarlanabilirlik özellikleri araştırılmıştır. Bunlara ek olarak bor nitrür örneklerinin BSL ve IRSI ile elde edilen azalım eğrileri karşılaştırılmış ve OSL sonrası TL (RTL) ışıma eğrileri incelenmiştir.

Bor nitrür örneklerinin TL sinyallerindeki sönüm (fading) çalışması için çoklu tablet hazırlama yöntemiyle çalışılmıştır. Her bir tablette h-BN için 1 mg ($\pm\%5$) ve c-BN için 5 mg ($\pm\%5$) örnek miktarı kullanılmıştır. Işınlamalar Elsec 9010 ışınlama ünitesinde doz hızı 25 mGy/s olan $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı kullanılarak yapılmıştır. TL ölçümleri Schott UG-11 optik filtresi kullanılarak Harshaw 3500 TLD okuyucuda gerçekleştirilmiştir. 10 Gy ışınlanan örnekler ölçüleceği zamana kadar karanlık ortamda bekletilmiştir.

Her iki örneğin de 200 °C'nin altındaki sık tuzaklarının bulunduğu bölge, düşük sıcaklık bölgesi (1. bölge); 200 °C'nin üstündeki kararlı tuzaklarının bulunduğu bölge ise yüksek sıcaklık bölgesi (2. bölge) olarak adlandırılmış ve ayrı ayrı incelenmiştir.

Bir lüminesans malzemenin radyasyon doz cevabı davranışının incelendiği çalışmalarda, belirli bir radyasyon dozunun aşılmasından sonra artan doza karşılık elde edilen sinyal şiddetleri de artmaya başlar. Bu artış malzemedeki tuzakların dolduğunu gösteren doygunluk seviyesine kadar devam eder. Dozimetri çalışmalarında bu bölge önemlidir; çünkü doz cevap eğrisinin bu bölgesinden lineer aralık belirlenerek dedekte edilebilen doz değeri (MDD) hesaplanabilmektedir. Halperin ve Chen (1966)'e göre doz bağımlılığı Eşitlik 3.1 ile tanımlanabilir.

$$I_{max} \sim \alpha D^k \quad (3.1)$$

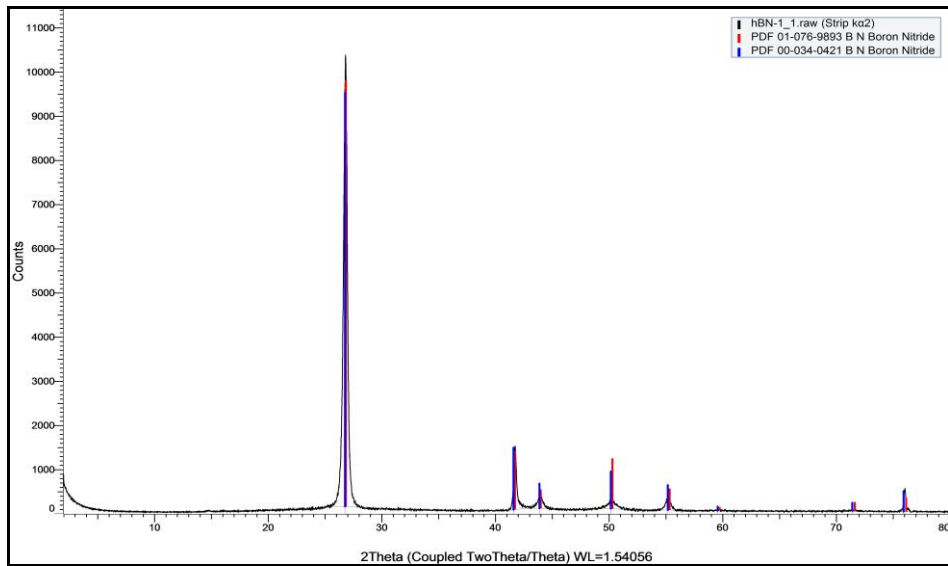
Burada α , orantılılık katsayısı; k , eğrinin doğrusallığını gösteren bir sabittir. D radyasyon dozunun bir fonksiyonu olarak maksimum şiddet (I_{max}) log-log ekseninde çizildiğinde, bu denklem k eğimine sahip bir çizgi vermektedir. MDD değeri ile doygunluk seviyesi arasındaki bölgede k , malzemenin radyasyon dozu lineerlik özellikleri hakkında bilgi vermektedir. Bu bölgedeki $k > 1$, artışı supralineer olduğunu; $k < 1$ ise doz cevap eğrisinin davranışının sublineer olduğunu göstermektedir. İdeal durumda $k = 1$, malzemenin lineer radyasyon doz cevabının olduğunu göstermektedir. Dozimetri çalışmalarında ideal durum olan lineer bir radyasyon doz cevabı istenmektedir; ancak çoğu doğal malzemenin doz cevabında lineerlikten farklı bulunmaktadır (Kaya-Keleş 2020).

4. BULGULAR VE TARTIŞMA

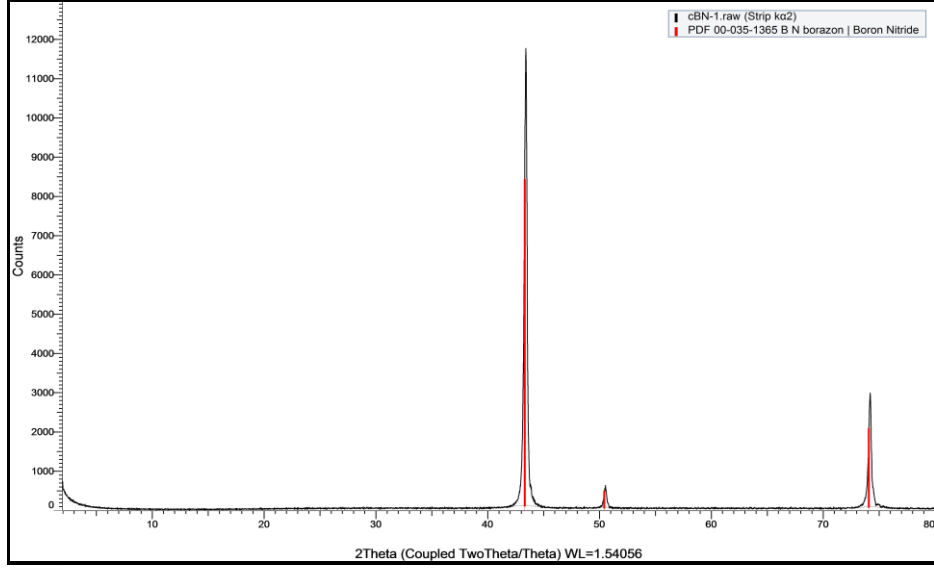
4.1 Bor Nitür Malzemelerin Yapısal Karakterizasyonu

4.1.1 X-Işınları Difraksiyonu (XRD) spektroskopisi analizleri

Hegzagonal ve kübik bor nitür örneklerinin 2-80° tarama aralığında 0,02 artış ile elde edilen XRD grafikleri Şekil 4.1 ve Şekil 4.2’de gösterilmektedir. Ana pik h-BN için 27°’de olup diğer pikler sırasıyla 41,5°, 44°, 50°, 55°, 59,5°, 71,5° ve 76°’de; c-BN içinse ana pik 43°’de olup diğer pikler 51,5° ve 74°’de konumlanmıştır. İki örneğinde XRD grafiklerinde gözlenen piklerin hangi minerale ait olduğu pdf kartları ile karşılaştırma yapılarak XRD analiz desenleri üzerinde gösterilmiştir. Şekil 4.1’deki bor nitür örneğinin 00-034-0421 ve 01-076-9893 numaralı pdf kartlarıyla eşleştiği ve örneğin h-BN olduğu, Şekil 4.2’deki bor nitür örneğinin ise 00-035-1365 numaralı pdf kartıyla eşleştiği ve örneğin c-BN olduğu görülmüştür. XRD analizleri; spektrumlarından da görüldüğü üzere her iki örneğin, farklı kristal yapılar ve piklerinin BN fazına ait olduğunu göstermiştir. Evans vd. (2008) tarafından yapılan çalışmada verilen h-BN ve c-BN örneklerinin XRD analiz sonuçları incelenmiş ve Şekil 4.1 ve Şekil 4.2 ile benzer spektrumlar elde edildiği görülmüştür.



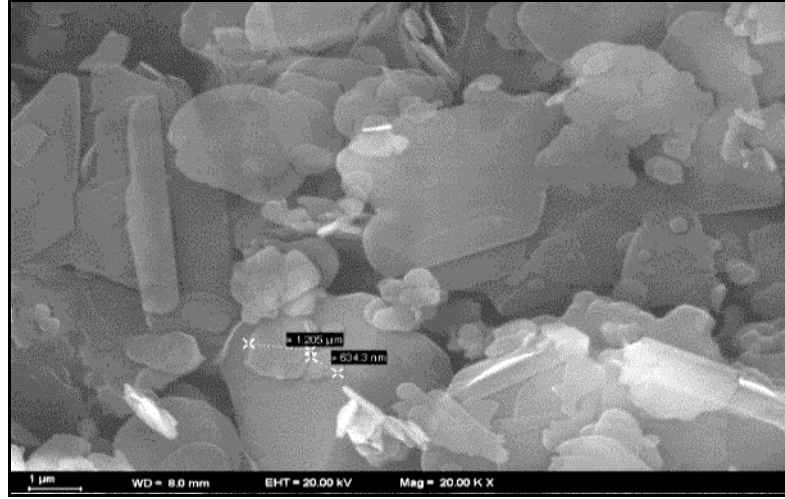
Şekil 4.1 h-BN örneğinin XRD analizi



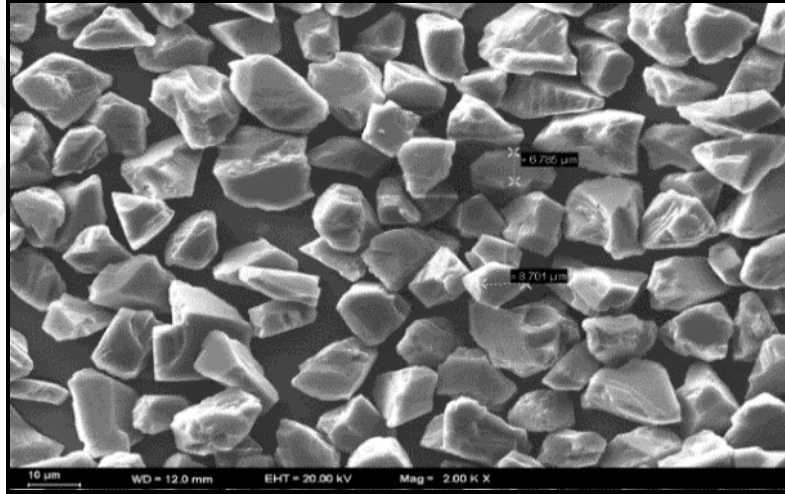
Şekil 4.2 c-BN örneğinin XRD analizi

4.1.2 Taramalı elektron mikroskobu (SEM) ve enerji yayımlı X-ışını (EDX) analizleri

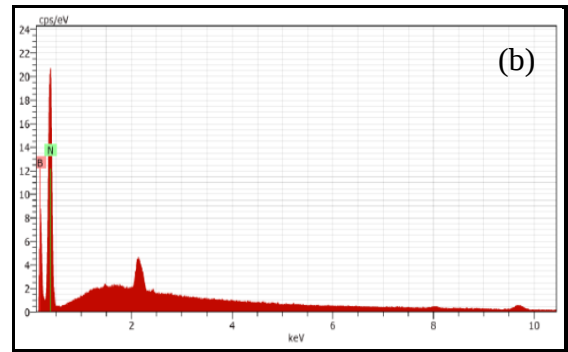
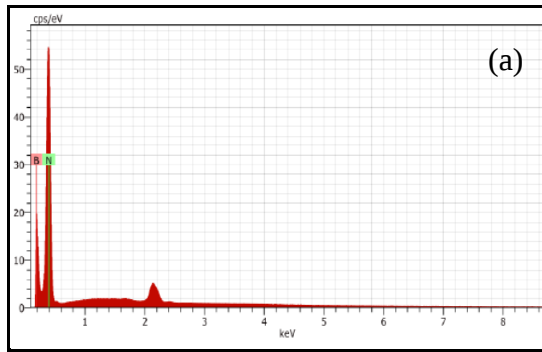
Bor nitrür örneklerinin SEM’de farklı büyütme oranları kullanılarak elde edilen malzeme yüzeylerinin topografik görüntüleri ile EDX analizleri Şekil 4.3 ve Şekil 4.4’de gösterilmektedir. Şekil 4.3’de h-BN örneğinin, 20000x büyütmede elde edilen SEM görüntüsünün farklı kısımlarından alınan parçacık boyutu ~250 nm - 5 µm aralığında ve yüzeyinin tabakalı bir yapıya sahip olduğu görülmektedir. Şekil 4.4’de c-BN örneğinin, 2000x büyütmede elde edilen SEM görüntüsünün farklı kısımlarından alınan parçacık boyutu ~5-20 µm aralığında ve yüzey parçacık dağılımının homojen bir yapıya sahip olduğu görülmektedir. Şekil 4.5a ve Şekil 4.5b’de ise h-BN ve c-BN örneklerinin EDX spektrumları gösterilmektedir. Noktasal analizler ile numunelerin içerisinde bulunan elementlerin dağılımı incelendiğinde, h-BN örneğinin, ağırlıkça %85,11 N ve %14,89 B; c-BN örneğinin ise ağırlıkça %83,57 N ve %16,43 B içeriğine sahip oldukları görülmüştür.



Şekil 4.3 h-BN örneğinin SEM görüntüsü



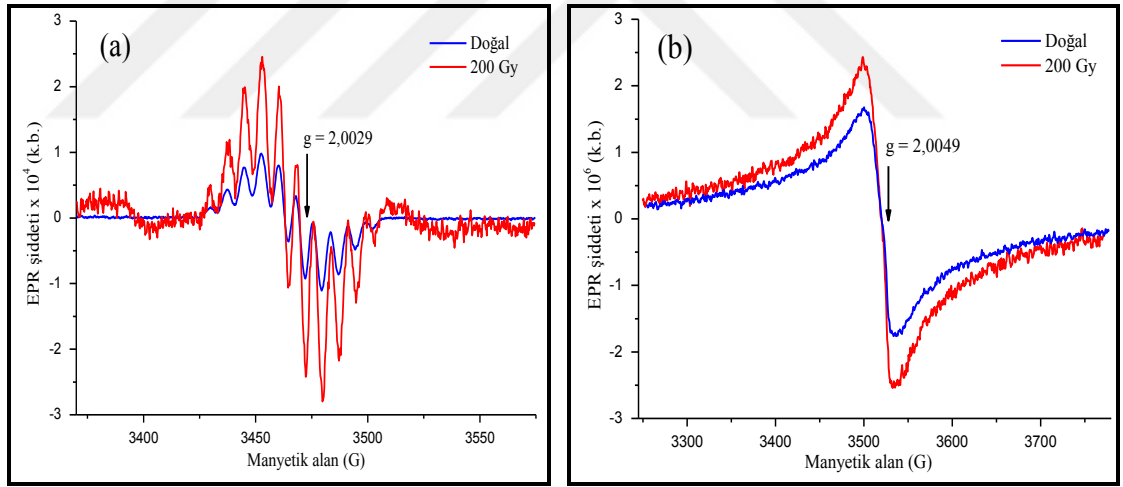
Şekil 4.4 c-BN örneğinin SEM görüntüsü



Şekil 4.5 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin EDX analizleri

4.1.3 Elektron paramanyetik rezonans (EPR) yöntemi analizleri

Bölüm 3.2.1’de verilen şartlarda Çizelge 3.1’deki parametreler kullanılarak yapılan ölçümler sonucunda h-BN (~250 nm - 5 µm) ve c-BN (~5-20 µm) örneklerinin oda sıcaklığında doğal ve $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 200 Gy ışınlandıktan sonra elde edilen EPR spektrumları Şekil 4.6’da gösterilmektedir. Bu spektrumlar incelendiğinde; h-BN örneğinde aşırı ince yapısı ve üç borlu merkezleri nedeniyle (Katzir vd. 1975) 10 tane EPR çizgisi, c-BN örneğinde ise asılı duran azot bağı nedeniyle (Zhang ve Chen 1992) şiddetli bir EPR çizgisi görülmüştür. Buradaki merkezlerin radyasyon dozuna bağımlılığı olduğu için h-BN ve c-BN spektrumlarının şiddeti, uygulanan radyasyon dozu ile artmaktadır. Ön çalışmalarda alınan ölçümlerde elde edilen EPR spektrumlarının merkezleri üzerinden g değerleri; Katzir vd. (1975), Solozhenko vd. (1990) ve Fanciulli (1997) tarafından yapılan çalışmalarda da gözlemlendiği şekilde h-BN için $g = 2,0029$ ve c-BN için $g = 2,0049$ olarak belirlenmiştir.



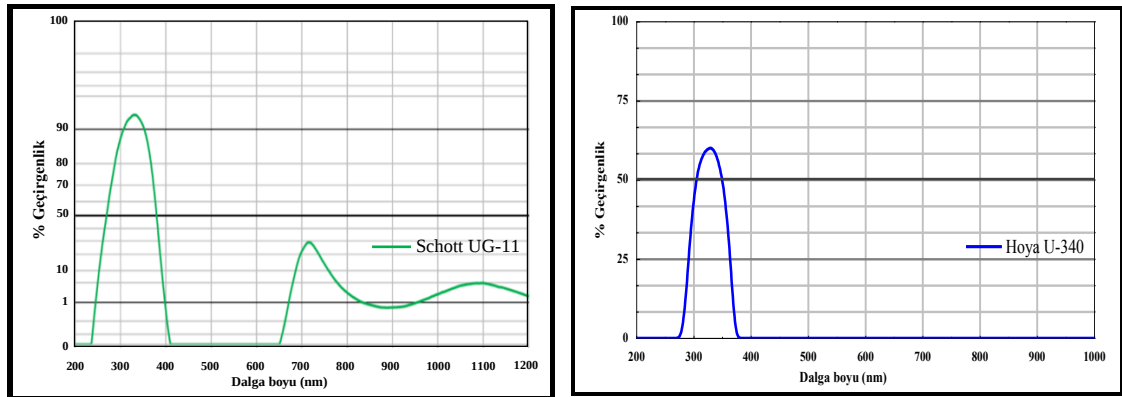
Şekil 4.6 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin oda sıcaklığındaki EPR spektrumları

4.2 Bor Nitrür Malzemelerin TL Özelliklerinin İncelenmesi

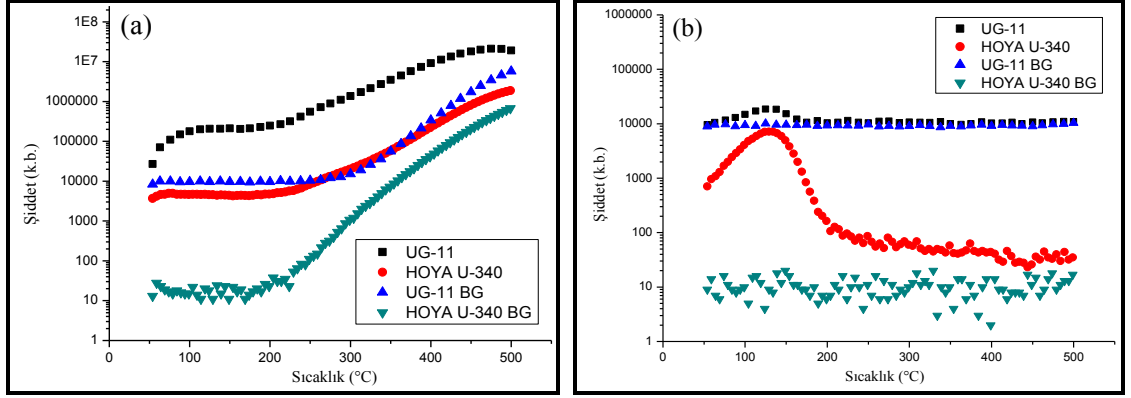
Bor nitrür malzemelerin TL özellikleri incelenmeden önce h-BN ve c-BN örnekleri Bölüm 3.2.2’de belirtildiği gibi hazırlanarak ölçüme uygun hale getirilmişlerdir. Her ölçümden önce doğal dozu okuma işlemi için örnekler 2 °C/s’lik ısıtma hızı ile 500 °C’ye kadar ısıtılmıştır.

4.2.1 Farklı filtreler kullanılarak TL ışıma eğrilerinin karşılaştırılması

Aynı radyasyon dozu ile ışınlanan bor nitrür örneklerin; farklı geçirgenlik spektrumlarına sahip optik filtreler kullanılarak malzemelerden yayımlanan ışığın dalga boyları ve TL ışıma eğrilerinin şekli incelenerek gözlenen TL tepelerinin şiddetindeki değişimler karşılaştırılmıştır. Bor nitrür örnekler $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile ~10 Gy ışılandıktan sonra Şekil 4.7’de farklı dalga boyu aralıklarında ışık geçirgenlikleri gösterilen filtreler (Hoya U-340 ve UG-11) kullanılarak 2°C/s’lik ısıtma hızı ile 500 °C’ye kadar ısıtılarak TL ışıma eğrileri elde edilmiştir. Örneklerin ~10 Gy doza karşılık ve doğal fon (background, BG) ışıma eğrileri Şekil 4.8’de verilmiştir. Elde edilen ışıma eğrileri incelendiğinde c-BN ve h-BN örneklerinin, Hoya U-340’a göre Schott UG-11 optik filtresi ile alınan ölçümlerde TL şiddetinin daha yüksek olduğu görülmüştür. Bunun nedeninin UG-11 optik filtresinin hem daha geniş geçirgenlik dalga boyu aralığında hem de bu aralıktaki % geçirgenliğinin daha yüksek olmasına ve kalınlığının daha az olmasına bağlı olduğu düşünülmektedir.



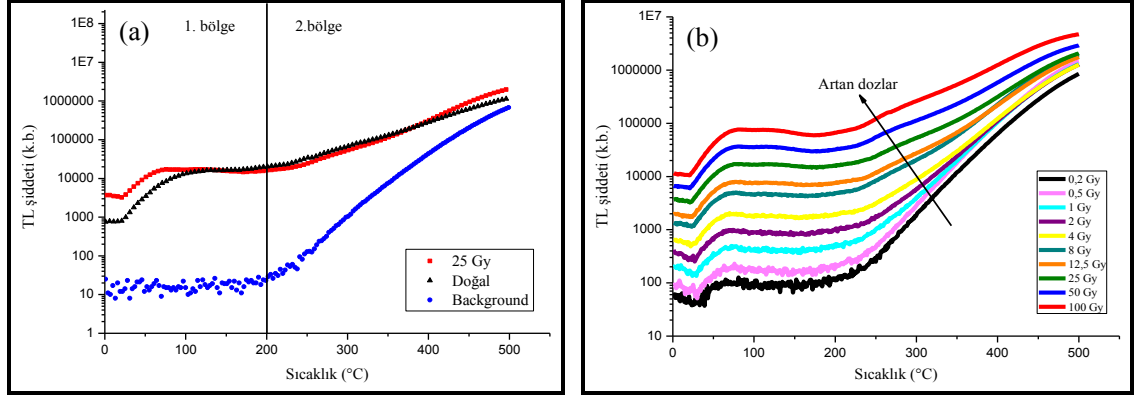
Şekil 4.7 Kullanılan filtrelerin: Schott UG-11 (Anonymous 2020) ve Hoya U-340 (A.Ü. Fizik Müh. Bölümü Optik Araştırma Laboratuvarı’ndaki UV-1800 model Shimadzu marka cihaz ile elde edilmiştir.) farklı dalga boyu aralıklarında geçirgenlik spektrumları



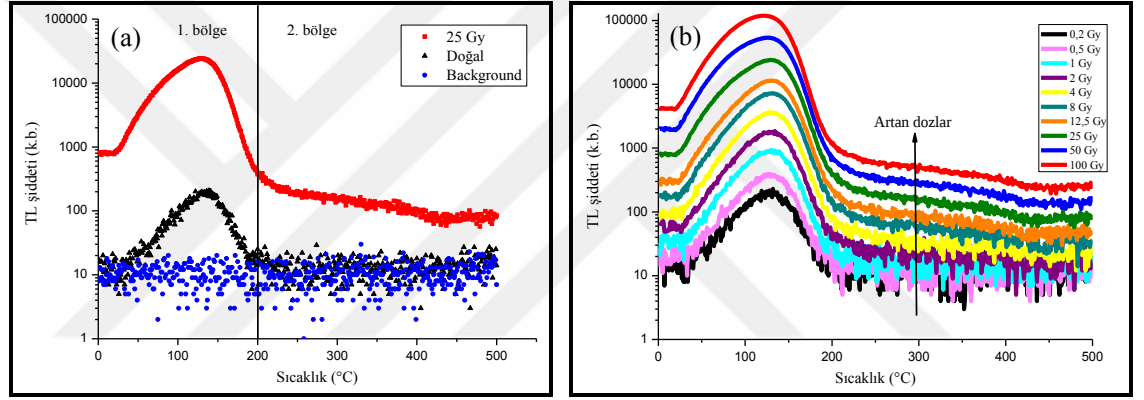
Şekil 4.8 ~10 Gy ışınlanmış a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin farklı filtreler (Hoya U-340 ve Schott UG-11) kullanılarak elde edilen TL ışıma eğrileri

4.2.2 TL ışıma eğrileri

Bor nitrid örneklerinin ilk olarak 2 °C/s'lik ısıtma hızı ile 500 °C'ye ısıtılması sonucunda doğal, 25 Gy ve BG ışıma eğrileri elde edilmiştir (Şekil 4.9a ve Şekil 4.10a). Daha sonra artan doza göre elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 4.9b ve Şekil 4.10b'de görülmektedir. Her iki örneğinde düşük sıcaklıklarda sığ tuzaklarının ve yüksek sıcaklıklarda kararlı tuzaklarının olduğu gözlenmiştir. TL ışıma eğrileri incelendiğinde h-BN'in ~150 °C ve 450 °C'de konumlanmış yüksek şiddette TL tepelerinden oluştuğu, en az bir derin tuzagının olabileceği (Korsaks 2012); c-BN'in ise ~130 °C'de konumlanmış TL tepesi ve 2. bölgede düşük tuzak konsantrasyonuna sahip iç içe geçmiş TL tepelerinin varlığı gözlenmektedir. h-BN örneğinin yüksek sinyal şiddeti fotoçoğaltıcı tüpü doyum sınırına getirerek sayım almasını engellemesi nedeniyle 500 °C'nin üzerindeki sıcaklıklara çıkılamamıştır. İki örneğin ışıma eğrilerinin şekilleri ve tepe noktaları, h-BN için Lubyanskii vd. (1972) ve Korsaks (2012)'nin çalışmalarıyla; c-BN içinse Manfredotti vd. (2004) ve Trinkler vd. (2004)'ün çalışmaları ile uyumludur.



Şekil 4.9 h-BN örneğinin; a) doğal, 25 Gy, background TL ışıma eğrileri ve b) artan doza karşı TL ışıma eğrilerinin değişimi

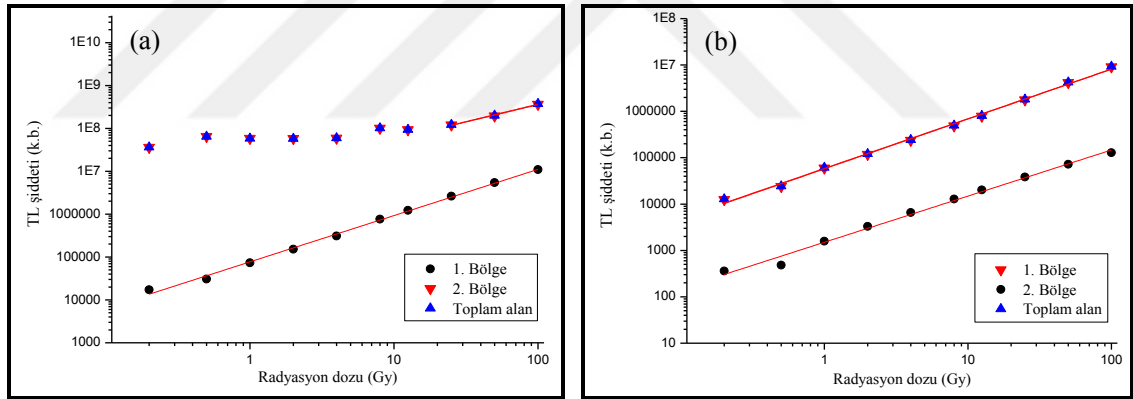


Şekil 4.10 c-BN örneğinin; a) doğal, 25 Gy, background TL ışıma eğrileri ve b) artan doza karşı TL ışıma eğrilerinin değişimi

4.2.3 TL doz cevap eğrileri

Dozimetrik malzemeler, artan doza karşılık elde edilen sinyal şiddetlerine göre farklı davranışlar (sublineer, lineer ve supralineer) göstermektedirler. İyi bir dozimetrik malzemenin ilgilenilen doz bölgesinde lineer davranış göstermesi gerekmektedir. Bor nitrür örneklerinin radyasyon doz cevabının belirlenmesi için h-BN ve c-BN örnekleri $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 0,2 Gy'den 100 Gy'e kadar ışınlanmıştır. Her ışınlama işleminden hemen sonra TL ($T_{\text{max}} = 500\text{ °C}$ ve $\beta = 2\text{ °C/s}$) ölçümleri yapılmıştır. Elde edilen 1.bölge, 2.bölge ve toplam alan şiddetlerinden doz-cevap grafikleri oluşturulmuştur. Buradan çıkan sonuçlarla bor nitrür örneklerinin artan doz ile TL ışıma eğrileri arasındaki ilişki incelenmiştir. Her bir radyasyon dozuna karşılık elde edilen ışıma

eğrilerinin pik bölgelerine ve toplam alan değerlerine göre oluşturulan doz cevap eğrileri Şekil 4.11'de verilmiştir. Doz cevap eğrilerinin lineer olduğu bölge kullanılarak minimum ölçülebilen doz değerleri belirlenmiştir. Şekil 4.11a'da h-BN örneğinin ve Şekil 4.11b'de ise c-BN örneğinin doz cevaplarının lineer olduğu aralıklar gösterilmektedir. TL doz cevap eğrilerinin bu aralıklarından Bölüm 3.2.2'de tanımlanan Eşitlik 3.1 ile belirlenen k değerleri Çizelge 4.1'de gösterilmektedir. h-BN örneğinde, 2. bölge ve toplam alan için 25 Gy'e kadar sinyal şiddetinde doza bağlı bir artış gözlenmediği, 25 Gy'den sonra uygulanan radyasyon dozuyla şiddetin artmaya başladığı gözlenmiş ve lineer eğri bu doz değerinden sonra belirlenerek doz cevap eğrisinin davranışının sublineer özellik gösterdiği; c-BN örneğinde ise; ışınlanan doz aralığında 1. bölge, 2. bölge ve toplam alan incelendiğinde lineer doz cevap davranışı gösterdiği görülmüştür. Ayrıca her iki bor nitrür örneği için de ışınlamalarda TL şiddetinin doyuma ulaştığı bölgenin gözlenmesi için daha yüksek radyasyon dozlarıyla ışınlama yapmak gerekmektedir.



Şekil 4.11 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin artan doza karşı (0,2-100 Gy) TL şiddetlerinin farklı bölge ve toplam alan değerlerine göre doz cevap eğrileri

Çizelge 4.1 Bor nitrür örneklerinin TL doz cevap eğrilerinden elde edilen k değerleri

	k değeri	
	h-BN	c-BN
1. bölge	1,07	1,07
2. bölge	0,80	0,99
Toplam alan	0,81	1,07

4.2.4 TL minimum ölçülebilen doz (MDD) değerleri

Bor nitrür örneklerinin minimum ölçülebilen doz (*MDD*) değerleri, Eşitlik (4.1) ile hesaplanmıştır (Furetta vd. 2000).

$$MDD = (B_{ort} + 2\sigma_{Bort}) F \quad (4.1)$$

Burada B_{ort} , tez kapsamında kullanılan h-BN ve c-BN örneklerine ait BG (doğal fon) ortalamasını; σ_{Bort} , doğal fonların ortalama standart sapma değerini ve F , TL ölçüm sisteminin dozimetrik malzemenin lineer doz-cevap aralığından belirlenen kalibrasyon faktörünü göstermektedir (Yüksel 2018). Bor nitrür örneklerinin TL radyasyon doz cevabı eğrilerinden belirlenen lineer doz-cevap aralıklarından Eşitlik (4.1) kullanılarak hesaplanan MDD değerleri Çizelge 4.2’de gösterilmektedir.

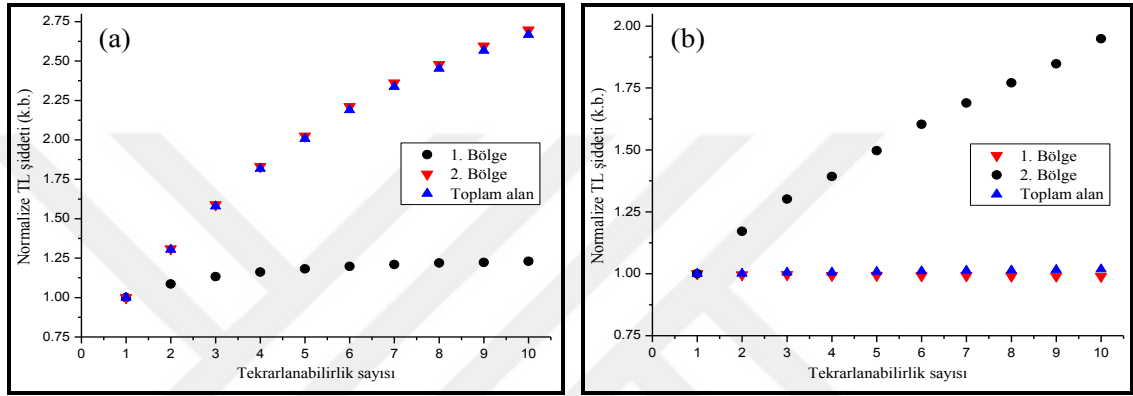
Çizelge 4.2 Bor nitrür örneklerinin TL için elde edilen MDD değerleri

	F (kalibrasyon faktörü)		MDD (Gy)	
	h-BN	c-BN	h-BN	c-BN
1. bölge	$1,21 \times 10^{-5}$	$1,57 \times 10^{-5}$	$0,06 \pm 0,012$	$0,03 \pm 0,0015$
2. bölge	$2,87 \times 10^{-7}$	$6,81 \times 10^{-4}$	10 ± 2	$2 \pm 0,1$
Toplam alan	$2,78 \times 10^{-7}$	$1,53 \times 10^{-5}$	10 ± 2	$0,08 \pm 0,004$

4.2.5 TL tekrarlanabilirlik ölçümleri

Bir lüminesans malzemenin aynı koşul ve parametreler kullanılarak art arda alınan TL ölçümleri sonucunda TL hassasiyetinin aynı kalması dolayısıyla tekrarlanabilir olması gereklidir. Bu amaçla h-BN ve c-BN örneklerinin lüminesans verimlerindeki değişimi gözlemlemek için tek tablet yöntemi kullanılarak $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 25 Gy ışılandıktan hemen sonra örneklerin TL ($T_{max} = 500 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ve $\beta = 2 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$) ölçümleri yapılmıştır. Aynı işlem aynı örneğe 10 kez uygulanarak ışıma eğrilerinin tekrarlanabilirliği incelenmiştir. Elde edilen TL şiddetlerinin değerleri ilk ölçümde elde edilen TL şiddetlerine göre normalize edilerek Şekil 4.12’de gösterilmiştir.

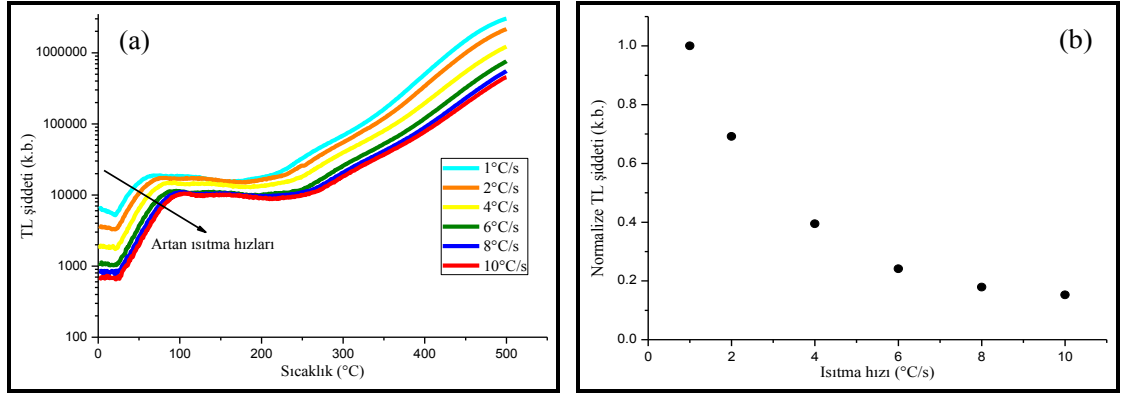
Elde edilen tekrarlanabilirlik sonuçlarına göre h-BN örneğinde, 4. TL ölçümünden sonra düşük sıcaklık bölgesindeki TL tepelerinin toplam şiddetinin tekrarlanabilir olduğu ve yüksek sıcaklık bölgesinde yer alan TL tepesinin her ışınlama ve ısıtma işleminin ardından hassasiyetinin arttığı gözlenmiştir. c-BN örneğinde ise düşük sıcaklıkta yer alan (1. bölge) TL tepesi ve toplam alan incelendiğinde tekrarlanabilir olduğu ve yüksek sıcaklık bölgesinde (2. bölge) ısıtma ve ışınlamanın TL hassasiyetine etkisi olduğu gözlenmiştir.



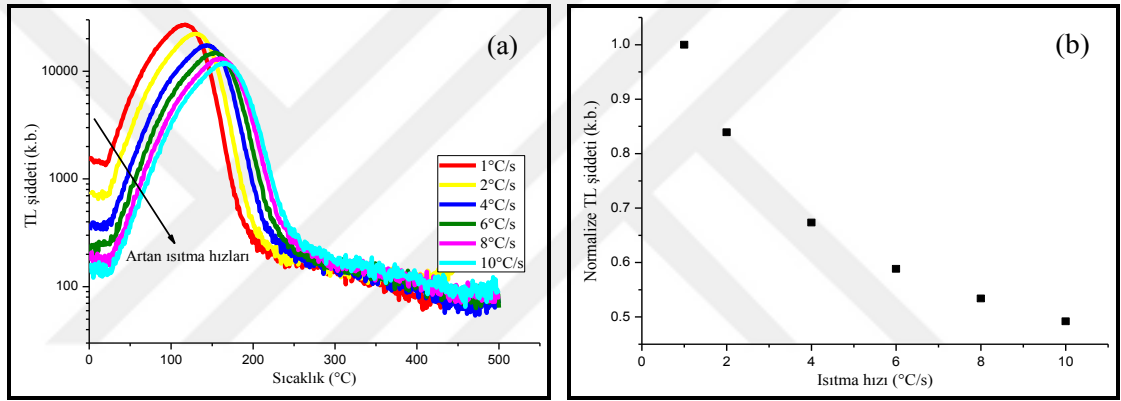
Şekil 4.12 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin ilk şiddete göre normalize edilmiş farklı bölge ve toplam alan değerlerinin TL tekrarlanabilirliği

4.2.6 Farklı ısıtma hızları yöntemi ile ışıma eğrisinin incelenmesi

Farklı ısıtma hızının TL ışıma eğrilerine etkisini gözlemlemek için h-BN ve c-BN örneklerine $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 25 Gy doz verildikten sonra 1, 2, 4, 6, 8, 10 °C/s ısıtma hızlarında oda sıcaklığından 500 °C'ye kadar ısıtma işlemi uygulanmıştır. Elde edilen TL ışıma eğrileri Şekil 4.13a ile Şekil 4.14a'da ve toplam alan TL şiddet değerlerinin değişimi Şekil 4.13b ile Şekil 4.14b'de gösterilmiştir. TL dozimetrisinde, ısıtma hızı arttıkça termal sönümlenme nedeniyle ışıma eğrisinin TL tepe sıcaklıklarının yüksek sıcaklıklara kayması, toplam alan sabit kalırken maksimum TL şiddetinin düşmesi beklenen bir durumdur. h-BN ve c-BN örnekleri için artan ısıtma hızına bağlı olarak TL ışıma eğrilerinde TL tepe sıcaklıklarının yüksek sıcaklığa kaydığı ve toplam alan değerinin ısıtma hızının artmasıyla azaldığı gözlenmiştir. Bu da termal sönümlenme olayının varlığını göstermektedir (Chen ve Pagonis 2011).



Şekil 4.13 h-BN örneğinin artan ısıtma hızlarına göre a) TL ışıma eğrileri ve b) toplam alan TL şiddet değerlerinin değişimi

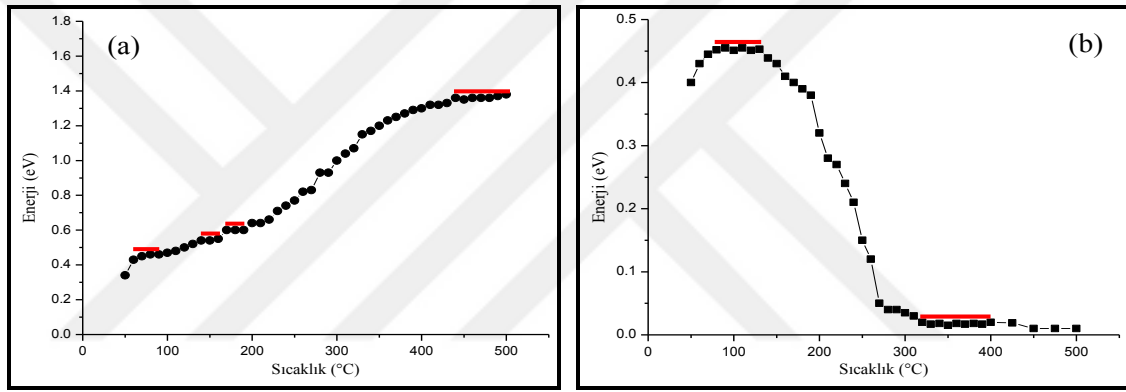


Şekil 4.14 c-BN örneğinin artan ısıtma hızlarına göre a) TL ışıma eğrileri ve b) toplam alan TL şiddet değerlerinin değişimi

4.2.7 TL tuzak parametrelerinin incelenmesi

h-BN ve c-BN örneklerinin aktivasyon enerjileri (E), frekans faktörü (s) ve ortalama tuzak ömrü (τ) gibi TL tuzak parametreleri kesikli ışıma eğrisi (FGT) ve ayrıştırma yöntemleri kullanılarak araştırılmıştır. FGT için örnekler $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 25 Gy doz verildikten sonra 50 °C'den başlayarak 10 °C'lik sıcaklık artışlarıyla 500 °C'ye kadar ısıtılmıştır. Her bir ısıtma işlemi sonucu elde edilen TL şiddetinin Bölüm 2.5.3'de anlatıldığı gibi $\ln I - 1/kT$ grafiği çizilerek eğrinin lineer olduğu bölgenin eğimi aracılığıyla o sıcaklıktaki tuzağa ait aktivasyon enerjisi belirlenmiştir. Şekil 4.15a ve Şekil 4.15b'de h-BN ve c-BN örnekleri için FGT ile elde edilen $T_{\max}$ 'a karşılık gelen plato bölgelerinin aktivasyon enerjileri belirlenmiştir.

Ayrıştırma yönteminde ise Bölüm 2.5.4’de belirtildiği gibi Kitis vd. (1998) tarafından geliştirilen program kullanılarak TL şiddet ifadeleri fit edilerek piklerin ayrıştırma işlemi gerçekleştirilmiş ve kinetik parametre değerleri elde edilmiştir. Ayrıştırma işleminde Eşitlik (2.12) ile verilen genel mertebeye denklemi; $b = 1,00000001$ kullanılarak birinci mertebeye indirgenerek kullanılmıştır. Kesikli ışıma eğrisi ve ayrıştırma yöntemleri ile elde edilen h-BN ve c-BN örneklerinin TL tuzak parametre değerleri Çizelge 4.3’de gösterilmektedir. Elde edilen sonuçlar iki örneğin de belirgin tuzak bölgeleri olduğunu göstermektedir. h-BN ve c-BN örneklerinin iki ayrı plato bölgesinden oluştuğu, h-BN örneğinin ışıma eğrisi iç içe geçmiş piklerden oluştuğu için plato bölgelerinin daha karmaşık bir yapıya sahip olduğu görülmüştür.



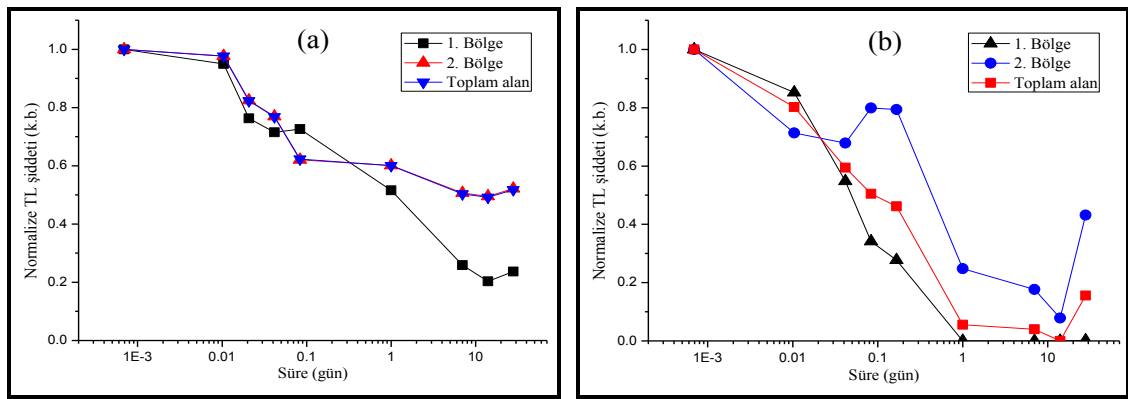
Şekil 4.15 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin kesikli ışıma eğrisi yöntemi kullanılarak elde edilen analiz sonuçları (Şekil üstünde gösterilen platolar ayrıştırma işlemi ve FGT ile elde edilen TL tepelerinin aktivasyon enerjilerini göstermektedir.)

Çizelge 4.3 Bor nitrür örneklerinin kesikli ışıma eğrisi yöntemi (FGT) ve ayrıştırma yöntemi kullanılarak elde edilen kinetik parametre değerleri

Örnek	Yöntem	T_{max} (°C)	E (eV)	s (s^{-1})	τ (s)
c-BN	FGT	105±17	0,44±0,01	5,25x10 ⁴	7,04x10 ²
	FGT	370±20	0,02±0,06	1,39x10 ³	1,45x10 ³
	Ayrıştırma	127±4	0,51±0,05	1,44x10 ⁵	2,75x10 ³
h-BN	FGT	85±17	0,45±0,02	1,76x10 ⁵	3,12x10 ²
	FGT	140±14	0,53±0,02	2,11x10 ⁵	6,17x10 ³
	FGT	195±17	0,62±0,02	3,12x10 ⁵	1,48x10 ⁵
	FGT	470±20	1,36±0,01	9,60x10 ⁷	2,58x10 ¹⁵
	Ayrıştırma	75±2	0,41±0,01	4,76x10 ⁴	1,59x10 ²
	Ayrıştırma	140±2	0,45±0,01	1,89x10 ⁴	2,89x10 ³
	Ayrıştırma	195±3	0,51±0,02	1,28x10 ⁴	3,11x10 ⁴

4.2.8 Sönüm (Fading) sonuçları

Dozimetrik malzemeler ışınlandıktan sonra TL ölçümünden önce bulundukları ortamda ısı ya da ışık gibi uyarıcılara maruz kalabilirler. Bu nedenle özellikle sıg tuzaklardaki elektronlar TL ölçümüne kadar geçen sürede bekletildikleri ortamda tuzaklardan kurtularak şiddetin düşmesine sebep olmaktadır. Bölüm 3.2.2’de belirtildiği gibi h-BN ve c-BN örneklerine $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 10 Gy doz verildikten sonra örnekler karanlık odada farklı sürelerde (0, 15, 30, 60, 120, 1440, 10080, 20160, 40320 dak.) bekletilerek TL ölçümleri ($T_{\text{max}} = 500\text{ }^{\circ}\text{C}$ ve $\beta = 2\text{ }^{\circ}\text{C/s}$) Schott UG-11 optik filtresi kullanılarak yapılmıştır. Örneklerin ışıma eğrilerinden elde edilen toplam alan, düşük ve yüksek sıcaklık piklerinin alanlarından TL şiddetleri elde edilmiş ve ilk okumaya göre normalize edilen TL şiddetlerinin bekleme sürelerinin değişimi Şekil 4.16’da gösterilerek, h-BN ve c-BN malzemelerin sönümü incelenmiştir. Her iki örneğinde düşük sıcaklık bölgelerinin daha fazla sönüme uğradığı gözlenmiştir. c-BN örneğinin dozimetrik bölgelerinin çok fazla sönüme uğradığı; 1. bölgesindeki TL şiddetinin 1. gün sonunda sıfırlandığı, 2. bölgesinde ise 28 gün sonunda TL şiddetinde belirgin bir artış olduğu görülmektedir. Bu artışın nedeninin yüksek sıcaklıklardan düşük sıcaklık enerji seviyelerine geçiş olabileceği düşünülmektedir. h-BN örneğinin dozimetrik bölgelerinin c-BN’e göre daha az sönüme uğradığı; 1. bölgesindeki TL şiddetinde 28 gün sonunda yaklaşık %80 oranında, 2. bölgesindeki TL şiddetinde ise yaklaşık %50 oranında sönüm gözlenmiştir.



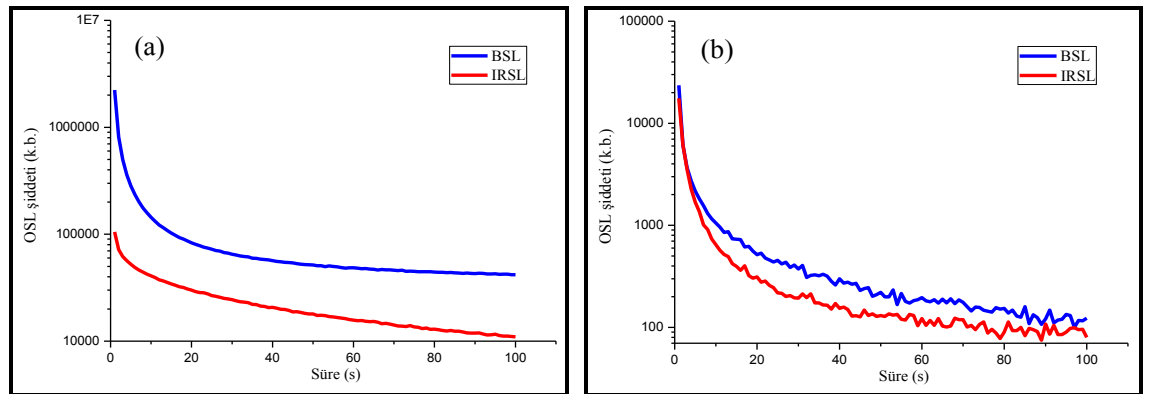
Şekil 4.16 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin farklı bölge ve toplam alan TL şiddetlerinin zamanla değişimi (sönüm) analiz sonuçları

4.3 Bor Nitrür Malzemelerin OSL Özelliklerinin İncelenmesi

h-BN ve c-BN örnekleri OSL özelliklerinin incelenmesi amacıyla Bölüm 3.2.2’de anlatıldığı gibi hazırlanmıştır. Hoya U-340 optik filtresi kullanılarak CW-OSL modunda elde edilen OSL azalım eğrileri için 100 s boyunca oda sıcaklığında mavi ve kızılötesi ışık ile uyarım yapılmıştır (sırasıyla BSL ve IRSL olarak adlandırılmıştır). OSL ölçümlerinin ardından örnekler 500 °C’ye kadar ısıtılarak artakalan TL ışımaya eğrileri (RTL) ölçülmüştür.

4.3.1 BSL ve IRSL sinyallerinin incelenmesi

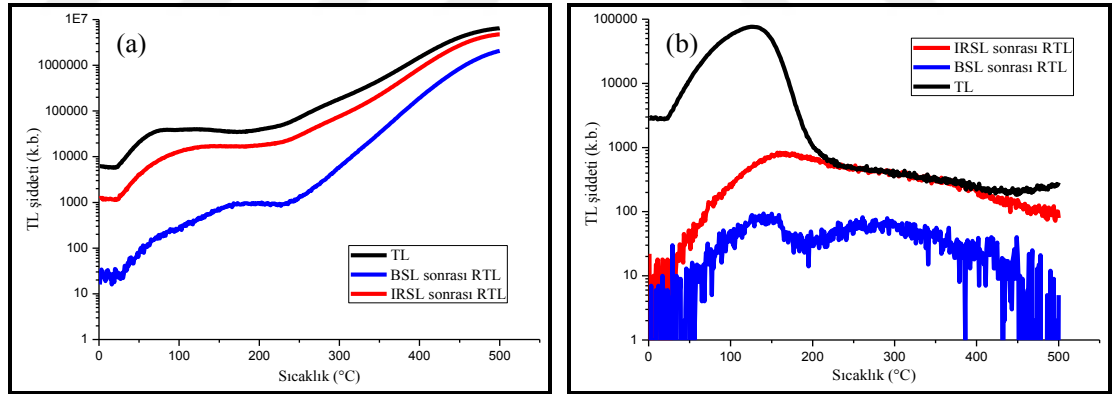
Bor nitrür örnekler $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 55 Gy ışılandıktan sonra CW-OSL modunda %70 güçteki kızılötesi ışık ile 100 saniye uyarılarak IRSL ve %70 güçteki mavi ışıkla 100s uyarılarak BSL sinyalleri elde edilmiştir. Şekil 4.17a’da gösterilen h-BN örneğinin BSL ve IRSL azalım eğrileri incelendiğinde BSL şiddetinin IRSL’ye göre daha yüksek olduğu görülmekte ve eğri şekillerinin birbirinden farklı olduğu gözlenmektedir. c-BN örneğinin de BSL şiddetinin IRSL şiddetine göre yüksek olduğu (Şekil 4.17b) ve azalım eğrilerinin birbirlerine benzer olduğu gözlenmiştir. Her iki örnek içinde OSL sinyal şiddetinin mavi ışık ile uyarımda daha yüksek olduğu görülmüştür.



Şekil 4.17 55 Gy radyasyon dozu ile ışılanmış a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin BSL ve IRSL azalım eğrileri

4.3.2 RTL ışıma eğrileri

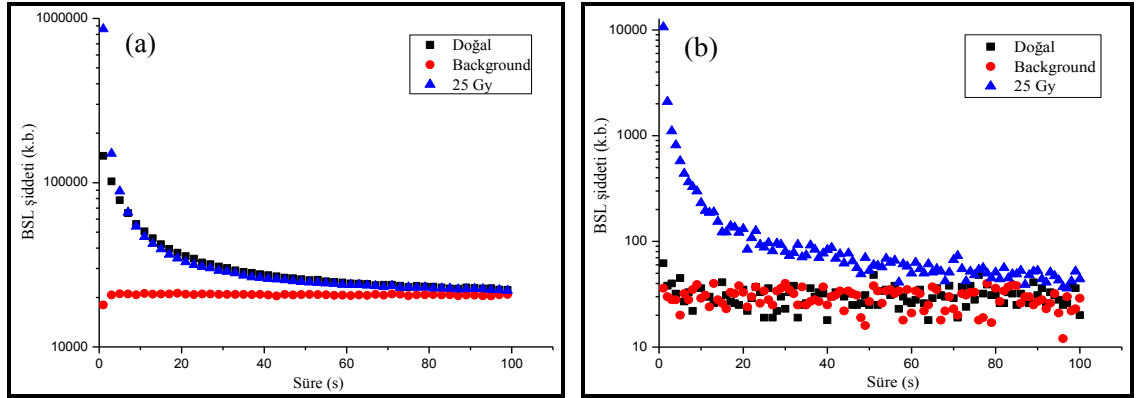
RTL ışıma eğrileri, malzemelerin ışınlanmasının ardından ölçülen OSL sinyallerinin hemen devamında elde edilen eğrilerdir. Bu işlem ile OSL yöntemiyle uyarmanın hangi TL tepelerine etki ettiği ve uyarma işleminin ardından tuzakların tamamen boşalıp boşalmadığı hakkında bilgiler sunmaktadır. RTL işleminin TL sinyalleri üzerindeki etkisinin az olması durumunda aynı numunelerde BSL sonrası RTL sinyalleri tarihlendirme gibi uygulamalarda da kullanılabilir. (Bøtter-Jensen 2000). Şekil 4.18’de h-BN ve c-BN örneklerinin $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 55 Gy ışılandıktan sonra oda sıcaklığından 500 °C’ye kadar ($\beta = 2$ °C/s) ısıtıldığında elde edilen TL ve OSL (CW modunda %70 güçteki mavi ve kırmızı LED ile 100 s) ölçümü sonrası elde edilen RTL ışıma eğrileri gösterilmektedir. İki örneğinde IRSL sonrası elde edilen RTL eğrisinin şiddeti, BSL sonrası elde edilen RTL eğrisinin şiddetine göre daha yüksek olduğu görülmektedir. Bunun sebebinin, kırmızı ışığın enerjisinin mavi ışığa göre düşük olmasından dolayı daha düşük aktivasyon enerjisine (E) sahip olan sık tuzakların IRSL ile uyarılmalarından kaynaklandığı düşünülmektedir.



Şekil 4.18 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin TL ve OSL (%70 güçteki mavi ve kırmızı LED ile 100 s) sonrası elde edilen RTL ışıma eğrileri

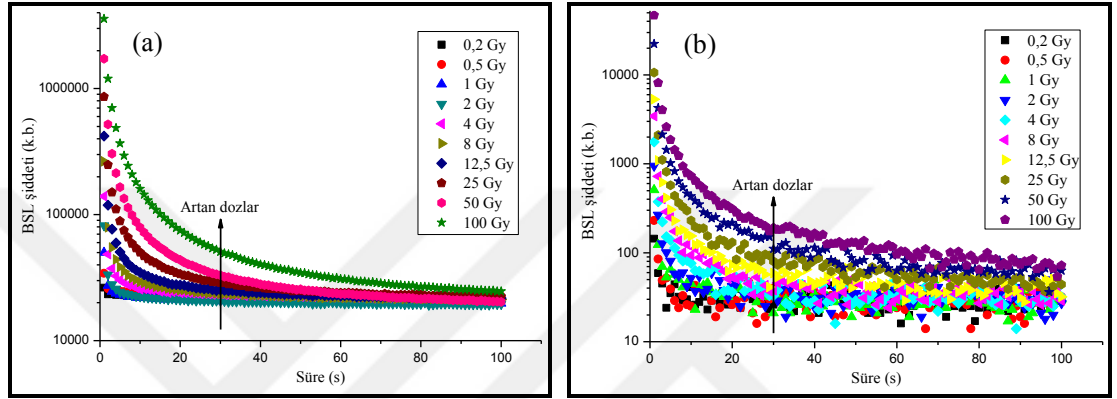
4.3.3 BSL doz cevap eğrileri

h-BN örneğinin doz cevap eğrilerinin elde edilmesinde çoklu tablet yöntemi kullanılmıştır. Örneklere artan radyasyon dozları verilmeden önce tüm örneklere CW modunda %70 güçte mavi LED kullanarak 100 s boyunca (Hoya U-340 optik filtresi kullanılarak) ağartma işlemi uygulanmış ve doğal BSL eğrileri elde edilmiştir. Şekil 4.19a’da tek bir örneğin elde edilen doğal BSL sinyali, aynı örneğe 25 Gy radyasyon dozu verilmesinin ardından ölçülen BSL sinyali ve bu ölçümden sonra aynı şartlarda doz verilmeden ölçülen BG sinyali örnek olarak verilmiştir. c-BN örneğinin doz cevap eğrilerinin elde edilmesinde ise tek tablet yöntemi kullanılmıştır. Artan radyasyon dozları verilmeden önce örnek h-BN örneğindeki ağartma parametreleri kullanılarak doğal BSL sinyali elde edilmiştir. 4.19b’de c-BN örneğinin doğal BSL sinyali, aynı örneğe 25 Gy radyasyon dozu verildikten sonra elde edilen BSL sinyali ve devamında ölçülen BG sinyali gösterilmektedir. Her ölçümden önce doğal dozun silinmesi için örneklere CW modunda %70 güçte mavi LED ile 100 s ağartma işlemi yapılmıştır. Doğal sinyalin boşaltılmasında örneklerin lüminesans hassasiyetlerinde değişim gözlenmemesi için ısıtma işlemi uygulanmamıştır.



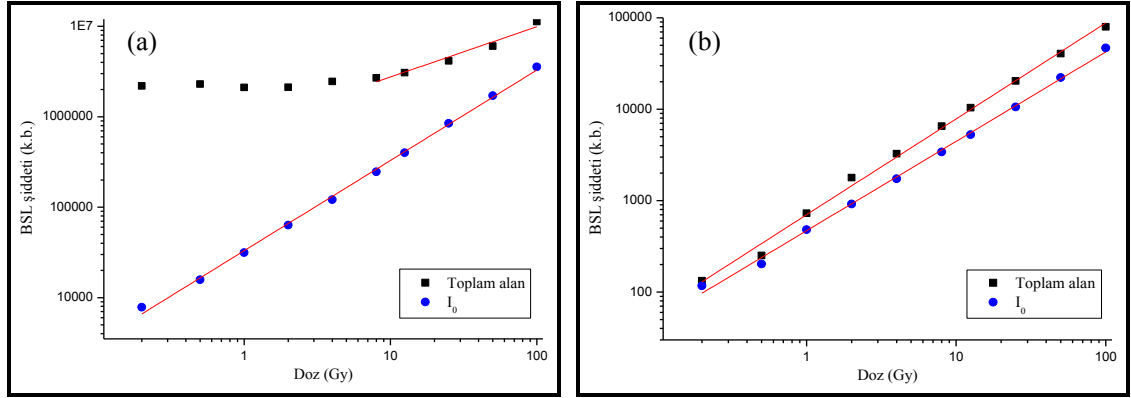
Şekil 4.19 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin; doğal, 25 Gy, background BSL azalım eğrileri

Bor nitrür örnekleri 0,2 Gy ile 100 Gy arasında ışınlanmış ve CW modunda %70 güçteki mavi LED ile 100 s uyarılarak artan dozlara karşı elde edilen BSL azalım eğrileri elde edilmiştir (Şekil 4.20a ve Şekil 4.20b). Her iki örneğin BSL azalım eğrileri incelendiğinde; h-BN örneğinin BSL sinyal hassasiyetinin c-BN'e göre daha yüksek olduğu gözlenmiştir. Ayrıca her iki örneğin başlangıçtaki BSL şiddetlerinin ilk 10 saniye içerisinde hızlı bir azalmaya uğradığı gözlemlenmiştir.



Şekil 4.20 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin artan doza karşı BSL azalım eğrilerinin değişimi

Elde edilen BSL toplam alan ve başlangıçtaki şiddet değeri (I_0) kullanılarak doz-cevap eğrileri oluşturulmuştur (Şekil 4.21). BSL doz cevap davranışının incelenmesi amacıyla doz cevap eğrilerinin lineer olduğu bölgede Eşitlik 3.1 ile tanımlanan k değerleri hesaplanmış ve Çizelge 4.4'de gösterilmiştir. Her iki örneğinde I_0 değerlerine göre oluşturulan doz cevap eğrileri lineer davranış göstermektedir. Toplam alan değerlerine göre oluşturulan doz cevap eğrileri incelendiğinde Şekil 4.21a'da h-BN örneğinin düşük dozlarda sinyal şiddetinde artış göstermediği ve 8 Gy'in üstünde sublineer davrandığı; c-BN örneği ise 0,2-100 Gy doz aralığındaki değerlerde lineer davranış göstermektedir. (Şekil 4.21b). h-BN ve c-BN örneklerinin doz cevap eğrilerinde 100 Gy'e kadar olan ışınlamalarda BSL şiddetinin doyuma ulaşmadığı gözlenmiştir. Doyuma ulaştığı bölgenin gözlenmesi için daha yüksek radyasyon dozlarıyla ışınlama yapmak gerekmektedir.



Şekil 4.21 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin artan doza karşı BSL azalım eğrilerinin toplam alan ve I_0 ($t = 1$ s'deki BSL şiddeti) değerlerine göre doz cevap eğrisi

Çizelge 4.4 Bor nitrür örneklerinin BSL doz cevap eğrilerinden elde edilen k değerleri

	k değeri	
	h-BN	c-BN
I_0	0,99	1,04
Toplam alan	0,55	0,99

4.3.4 BSL minimum ölçülebilen doz (MDD) değerleri

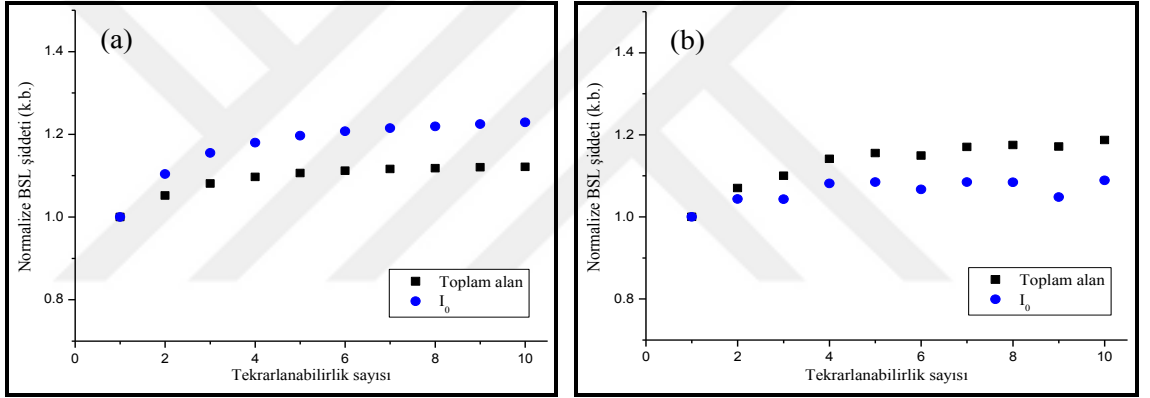
Bor nitrür örneklerinin BSL MDD değerleri, TL yönteminde de kullanılan Eşitlik (4.1) ile hesaplanmıştır. h-BN ve c-BN örneklerinin BSL radyasyon doz cevabı eğrilerinden belirlenen lineer doz-cevap aralıkları kullanılarak hesaplanan MDD değerleri ve hesaplamada kullanılmak üzere belirlenen f faktörleri Çizelge 4.5'de gösterilmektedir.

Çizelge 4.5 Bor nitrür örneklerinin BSL için elde edilen MDD değerleri

	F (kalibrasyon faktörü)		MDD (Gy)	
	h-BN	c-BN	h-BN	c-BN
I_0	$2,9 \times 10^{-5}$	$2,2 \times 10^{-3}$	$0,6 \pm 0,12$	$0,1 \pm 0,005$
Toplam alan	$1,2 \times 10^{-5}$	$1,2 \times 10^{-3}$	27 ± 5	$4 \pm 0,2$

4.3.5 BSL tekrarlanabilirlik ölçümleri

Tekrarlanabilirlik ölçümlerinde h-BN ve c-BN örnekleri tek tablet olarak kullanılmıştır. Her bir örneğe $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 25 Gy doz verildikten hemen sonra örneklerin BSL (%70 güçteki mavi LED ile 100 s) ölçümleri yapılmıştır. Aynı işlem 10 kez uygulanarak azalım eğrilerinin tekrarlanabilirliği incelenmiştir. Elde edilen her bir tekrarlamaaya ait azalım eğrilerinin I_0 ve toplam alan değerleri ilk ölçümlerde elde edilen BSL sinyallerine göre normalize edilerek Şekil 4.22’de gösterilmiştir. Buradaki sonuçlara göre h-BN ve c-BN örneklerinin, 4. ölçümden sonra BSL şiddet değerlerinin kararlı hale geldiği görülmektedir. Dolayısıyla 4. ölçümden sonra h-BN ve c-BN örneklerinin tekrarlanabilir oldukları görülmüştür.



Şekil 4.22 a) h-BN ve b) c-BN örneklerinin toplam alan ve I_0 (1. saniye) değerlerine göre BSL tekrarlanabilirlik sonuçları

5. SONUÇ

Bu tez çalışması kapsamında bor nitrürün iki önemli formu h-BN ve c-BN örneklerinin lüminesans yöntemlerle dozimetri alanında kullanılabilirliği incelenmiştir. Bu amaçla örneklerin yapısal karakterizasyonunun belirlenmesi için EPR, SEM ve XRD yöntemleri kullanılmıştır. Dozimetrik özelliklerinin belirlenmesinde ise TL ve OSL (BSL ve IRSL) yöntemleri kullanılarak ışıma eğrisi, radyasyon doz cevabı davranışı, sönüm, tekrarlanabilirlik ve MDD değerlerinin belirlenmesine yönelik çalışmalar yapılmıştır.

EPR yöntemi ile bor nitrür örneklerinin oda sıcaklığında elde edilen EPR spektrumları incelenmiştir. h-BN örneğinde Katzir vd. (1975) tarafından yapılan çalışmalarda belirlenen aşırı ince yapısı ve üç borlu merkezleri nedeniyle 10 tane EPR çizgisi, c-BN örneğinde ise Zhang ve Chen (1992) tarafından yapılan çalışmaya benzer olarak asılı duran azot bağı nedeniyle şiddetli bir EPR çizgisi görülmüştür. h-BN ile c-BN örneklerinin doğal ve $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ beta kaynağı ile 200 Gy ışınlanmasının ardından ölçülen EPR spektrumları incelendiğinde; sinyal şiddetlerinin uygulanan radyasyon dozu ile arttığı gözlenmiştir. Elde edilen EPR spektrumlarında h-BN için $g = 2,0029$ ve c-BN için $g = 2,0049$ olduğu görülmüştür.

SEM yöntemi ile alınan ölçümlerde h-BN örneğinin parçacık boyutunun $\sim 250 \text{ nm} - 5 \mu\text{m}$ aralığında ve yüzeyinin tabakalı bir yapıya sahip olduğu, c-BN örneğinin ise parçacık boyutu $\sim 5-20 \mu\text{m}$ aralığında ve yüzey parçacık dağılımının homojen bir yapıya sahip olduğu görülmüştür. Yapılan EDX noktasal analizleri ile h-BN örneğinin, ağırlıkça %85,11 N ve %14,89 B; c-BN örneğinin ise ağırlıkça %83,57 N ve %16,43 B içeriğine sahip oldukları görülmüştür.

XRD spektrumlarında ana pik pik h-BN için 27° 'de olup diğer pikler sırasıyla $41,5^\circ$, 44° , 50° , 55° , $59,5^\circ$, $71,5^\circ$ ve 76° 'de; c-BN içinse ana pik 43° 'de olup diğer pikler $51,5^\circ$ ve 74° 'de konumlanmıştır. İki örneğinde XRD grafiklerinde gözlenen pikler pdf kartları ile eşleştirilmiş ve XRD spektrumlarının uyumlu olduğu gözlenmiştir. Elde edilen XRD verilerine göre her iki örneğin, farklı kristal yapılarda ve piklerinin BN fazına ait olduğu görülmüştür.

h-BN ve c-BN örneklerinin TL özelliklerinin belirlenmesi amacıyla radyasyon doz cevabı, minimum dedekte edilebilen doz (MDD), tekrarlanabilirlik, sönüm (fading) çalışmaları yapılmış ve tuzak parametrelerinin incelenmesi için farklı ısıtma hızları, kesikli ışıma eğrisi ve ayrıştırma yöntemleri kullanılmıştır. Ayrıca aynı radyasyon dozunda ışınlanmış h-BN ve c-BN örneklerinin TL ışıma eğrileri iki farklı filtre kullanılarak karşılaştırılmıştır. Her iki örneğin de 200 °C'nin altındaki sığ tuzaklarının bulunduğu bölge, düşük sıcaklık bölgesi (1. bölge); 200 °C'nin üstündeki kararlı tuzaklarının bulunduğu bölge ise yüksek sıcaklık bölgesi (2. bölge) olarak adlandırılmış ve ayrı ayrı incelenmiştir.

TL çalışmalarında iki örneğin ışıma eğrileri incelendiğinde, h-BN'ün oda sıcaklığından başlayarak yaklaşık 200 °C'ye kadar olan bölgede iç içe geçmiş TL piklerinin olduğu ve 450 °C'de yüksek şiddetli bir TL tepesine sahip olduğu gözlenmiştir. c-BN'ün ise ~130°C'de bir TL tepesine sahip olduğu, 200 °C'nin üstündeki sıcaklıklarda düşük tuzak konsantrasyonuna sahip iç içe geçmiş TL tepelerinin varlığı gözlenmiştir. Doz cevap eğrileri incelendiğinde h-BN örneğinde, yüksek sıcaklık tepesi ve toplam alan için 25 Gy'e kadar sinyal şiddetinde doza bağlı bir artış gözlenmediği, 25 Gy'den sonra şiddetin artmaya başlayarak sublineer özellik gösterdiği; c-BN örneğinde ise; ışınlanan doz aralığında düşük ve yüksek sıcaklık pikleri ile toplam alan incelendiğinde lineer doz cevap davranışı gösterdiği belirlenmiştir. Ayrıca h-BN ve c-BN örneklerinin doz cevap eğrilerinde 100 Gy'e kadar olan ışınlamalarda TL şiddetlerinin doyuma ulaşmadığı gözlenmiştir. TL doz cevap eğrilerinin lineer aralıklarına göre belirlenen bor nitrür örneklerin MDD değerleri h-BN için düşük sıcaklık piklerinde $0,06 \pm 0,012$ Gy, yüksek sıcaklık piklerinde ve toplam alanda 10 ± 2 Gy; c-BN için ise düşük sıcaklık piklerinde $0,03 \pm 0,0015$ Gy, yüksek sıcaklık piklerinde $2 \pm 0,1$ Gy ve toplam alanda $0,08 \pm 0,004$ Gy olarak hesaplanmıştır. Bor nitrür örneklerin lüminesans hassasiyetlerindeki değişimi gözlemek için elde edilen tekrarlanabilirlik sonuçları incelendiğinde; h-BN örneğinde, 4. TL ölçümünden sonra düşük sıcaklık tepelerinin tekrarlanabilir olduğu ve yüksek sıcaklık tepesinin her ışınlama ve ısıtma işleminin ardından hassasiyetinin arttığı, kararlı bir davranış göstermediği elde edilmiştir. c-BN örneğinde ise düşük sıcaklıkta yer alan TL tepesi ve toplam alan incelendiğinde tekrarlanabilir olduğu ve yüksek sıcaklık tepesinde ısıtma ve ışınlamanın TL hassasiyetine etkisi olduğu gözlenmiştir. Farklı ısıtma

hızları yöntemiyle bor nitrür örneklerin ısıma eğrileri incelendiğinde; her iki örnek için de artan ısıtma hızına bağlı olarak TL ısıma eğrilerinde TL tepe sıcaklıklarının yüksek sıcaklığa kaydığı ve toplam alan değerinin ısıtma hızının artmasıyla azaldığı gözlenmiştir. Isıtma hızının arttırılmasıyla yüksek sıcaklıklara kayan TL tepelerinin toplam alanı incelendiğinde, toplam şiddetin sabit kalması gereklidir. Bu çalışmada gözlenen toplam şiddetteki azalış termal sönümlenme (thermal quenching) olayının varlığını göstermektedir. Bor nitrür örneklerin TL tuzak parametreleri FGT ve ayrıştırma yöntemleri kullanılarak incelenmiştir. h-BN örneğinin ısıma eğrisi iç içe geçmiş piklerden oluştuğu için plato bölgelerinin daha karmaşık bir yapıya sahip olduğu görülmüştür. h-BN örneğinin düşük sıcaklık bölgesinde en az 3 TL tepesi, yüksek sıcaklık bölgesinde en az 1 TL tepesi; c-BN örneğinde ise düşük sıcaklık bölgesinde ve yüksek sıcaklık bölgesinde en az 1 TL tepesi bulunmaktadır. Son olarak TL çalışmalarında h-BN ve c-BN malzemelerin zamana bağlı sönümleri incelenmiştir. Her iki örneğinde düşük sıcaklık tepelerinin daha fazla sönüme uğradığı gözlenmiştir. c-BN örneğinin dozimetrik bölgelerinin çok fazla sönüme uğradığı; düşük sıcaklık bölgesindeki TL şiddetinin 1. gün sonunda sıfırlandığı, yüksek sıcaklık bölgesinde ise 28 gün sonunda TL şiddetinde belirgin bir artış olduğu görülmektedir. Bu artışın nedeninin yüksek sıcaklıklardan düşük sıcaklık enerji seviyelerine geçiş olabileceği düşünülmektedir. h-BN örneğinin dozimetrik bölgelerinin c-BN'e göre daha az sönüme uğradığı; düşük sıcaklık bölgesindeki TL şiddetinde 28 gün sonunda yaklaşık %80 oranında, yüksek sıcaklık bölgesindeki TL şiddetinde ise yaklaşık %50 oranında sönüm gözlenmiştir.

OSL özellikleri radyasyon doz cevabı, minimum dedekte edilebilen doz (MDD) ve tekrarlanabilirlik yöntemleri ile araştırılmıştır. Bunlara ek olarak h-BN ve c-BN örneklerinin BSL ile IRSL sinyalleri ve OSL sonrası elde edilen RTL ısıma eğrileri incelenmiştir.

OSL çalışmalarında ilk olarak iki örneğin azalım eğrileri incelendiğinde, h-BN örneğinin BSL şiddetinin IRSL'ye göre daha yüksek olduğu görülmekte ve eğri şekillerinin birbirinden farklı olduğu; c-BN örneğinin ise BSL şiddetinin IRSL şiddetine göre yüksek olduğu ve azalım eğrilerinin birbirlerine benzer olduğu gözlenmiştir. Her iki örnek için OSL sinyal şiddetinin mavi ile uyarımda daha yüksek olduğu görülmüştür. Ayrıca h-BN

ve c-BN örneklerinin IRSL sonrası elde edilen RTL eğrisinin şiddeti, BSL sonrası elde edilen RTL eğrisinin şiddetine göre daha yüksek olduğu görülmektedir. Her iki örnek içinde BSL sonrası elde edilen RTL eğrilerinin şiddet değerlerinin TL ışıma eğrilerinin şiddetine göre daha düşük olması malzemelerin BSL-TL ortak tuzak yapılarının olabileceğini göstermektedir. Artan doza karşılık elde edilen azalım eğrilerinin toplam alan ve I_0 şiddet değerlerine göre oluşturulan doz cevap eğrileri incelendiğinde; Her iki örneğinde I_0 değerlerine göre oluşturulan doz cevap eğrileri lineer davranış göstermektedir. Toplam alan değerlerine göre oluşturulan doz cevap eğrileri incelendiğinde h-BN örneğinin düşük dozlarda sinyal şiddetinde artış göstermediği ve 8 Gy'in üstünde sublineer davrandığı; c-BN örneği ise 0,2-100 Gy doz aralığındaki değerlerde lineer davranış göstermektedir. Bor nitrür örneklerinin doz cevap eğrilerinde 100 Gy'e kadar olan ışınlamalarda BSL şiddetlerinin doyuma ulaşmadığı gözlenmiştir. Ayrıca her iki örneğin elde edilen doğal BSL sinyali, aynı örneğe 25 Gy radyasyon dozu verilmesinin ardından ölçülen BSL sinyali ve bu ölçümden sonra aynı şartlarda doz verilmeden ölçülen BG sinyali de incelenmiştir. Berzina vd. (2016) tarafından h-BN örneğinin mavi ışıkla ilet uyarımının ardından oda sıcaklığında ölçülen IRSL azalım eğrileri incelenmiş ve mavi ışıkla uyarmanın yeniden birleşme süreçlerini oluşturduğu tespit edilmiştir. BSL doz cevap eğrilerinin lineer aralıklarına göre belirlenen bor nitrür örneklerin MDD değerleri h-BN için I_0 'da $0,6 \pm 0,12$ Gy ve toplam alanda 27 ± 5 Gy; c-BN için ise I_0 'da $0,1 \pm 0,005$ Gy, toplam alanda $4 \pm 0,2$ Gy olarak hesaplanmıştır. Son olarak BSL çalışmalarında bor nitrür örneklerin tekrarlanabilirlik ölçümleri incelenmiştir. Elde edilen sonuçlara göre h-BN ve c-BN örneklerinin 4. ölçümden sonra BSL şiddet değerlerinin kararlı hale geldiği görülmektedir. Dolayısıyla 4. ölçümden sonra h-BN ve c-BN örneklerinin tekrarlanabilir oldukları görülmüştür.

Tez çalışması kapsamında ısıtma ya da ışınlama yapılmamış h-BN örneğinin doğal sinyali TL ve BSL yöntemleriyle incelendiğinde sıg tuzakları tanımlayan düşük sıcaklık bölgesinde sinyal şiddetlerinin oldukça yüksek olduğu gözlenmiştir (Şekil 4.9a). Oysa bu bölgede düşük tuzak ömrüne sahip olan piklerin doğal sinyalinin BG'ye yakın olması beklenmektedir. Bunun nedeninin Poppinga vd. 2017 tarafından yapılan çalışmada bahsedildiği üzere geniş bant aralığına (6 eV) sahip olmasına rağmen iyon ve deşik mobilitelerinin ($10^3 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$) yüksek olmasından kaynaklandığı düşünülmektedir. Doğal

sinyalin düşük sıcaklık bölgesinde c-BN örneğinin de sinyal şiddetinin h-BN'deki gibi arttığı gözlenmektedir (4.10a). Bunun dışında h-BN örneğinin hem TL hem de BSL eğrilerinde sinyal şiddetinin düşük dozlarda yapılan ışınlamalarda dahi çok yüksek olduğu ve ölçümler sırasında kullanılan PM tüpü doyum sınırına getirdiği gözlenmiştir. Bu yüksek sinyal şiddetinin; Museur vd. 2007, Silly vd. 2007, Watanabe vd. 2011 ve Koronski vd. 2019'da bahsedildiği üzere fotoluminesans özelliğinden kaynaklandığı düşünülmektedir.

Dünyadaki bor rezervlerinin yaklaşık %73'ü Türkiye'de olduğu için bor ürünlerinin farklı alanlarda kullanımına yönelik çalışmalar gün geçtikçe artmaktadır. Son yıllarda teknolojinin gelişmesiyle birlikte yapılan araştırmalar bor nitrür (BN) malzemeler gibi özel bor ürünleri üzerinde yoğunlaşmıştır. Farklı kullanım alanlarına sahip bor nitrürün önemli iki formu hegzagonal bor nitrür (h-BN) ve kübik bor nitrür (c-BN) malzemelerin literatürde dozimetrik özellikleri ile ilgili sınırlı sayıda çalışma yapılmıştır. Bu nedenle tez kapsamında yapılan çalışmalar ile literatürdeki bor nitrür malzemelerin luminesans özelliklerinin araştırılması, dozimetrik özelliklerinin değerlendirilmesi ve dozimetre alanında yeni bir malzeme olarak kullanılabilirliği açısından katkılar yapılmıştır. Literatür araştırmasından da görüldüğü üzere hegzagonal ve kübik bor nitrürün TL ve EPR özelliklerinin çalışıldığı çok az sayıda araştırma mevcuttur. Buna ek olarak, hegzagonal ve kübik bor nitrürün TL, OSL ve EPR özelliklerinin bir arada çalışılmadığı, bu malzemelerin kapsamlı BSL ve IRSL araştırmasının yapılmadığı görülmüştür. Literatürde h-BN ve c-BN örneklerinin geriye dönük doz ölçümü üzerine iyonize radyasyon kullanılarak yapılan herhangi bir OSL çalışması bulunmamaktadır. İyonize radyasyon dozları verildikten sonra h-BN ve c-BN örneklerinin BSL özellikleri literatürde ilk defa bu tez çalışmasında incelenmiştir. Bu nedenle iki örneğin birlikte çalışıldığı ve farklı tekniklerin kullanıldığı bu tür çalışmalar ileride yapılabilecek yeni çalışmalara yol göstermesi açısından oldukça önemlidir. Çalışma h-BN örneğinin, yüksek dozlarda lineer olması ve doyuma ulaşmaması nedeniyle sağlık fiziğinin radyoterapi yüksek doz uygulamalarında ya da nükleer santrallerdeki iç yapılar, materyal testleri ve gıda sterilizasyonu gibi uygulamalarda ışınlamanın hemen ardından yapılmak üzere kullanılabilir olduğunu göstermektedir.

Bor nitrür malzemeler; kimyasal, mekanik özellikleri, toksik olmaması ve biyouyumluluğu nedeni ile sağlık alanında birçok farklı uygulamada kullanılmaktadır. Yeni yapılan araştırmalarda bor nitrürün sağlık alanında yüksek enerjili foton dozimetresi için dedektör malzemesi, bor nitrür kaplamalı implant malzemesi ve kemik doku mühendisliği alanında kemik grefti olarak olarak kullanılabileceğini göstermektedir (Gökmenoğlu vd. 2016, Poppinga vd. 2017, Unal vd. 2018).

Bor nitrürün etkin atom numarasının dokuya eşdeğer olması, kolayca katkılandırılabilir bir malzeme olması ve toksik bir madde olmaması gibi özellikleri dozimetrik çalışmalarda önemli bir avantaj sağlamaktadır. Dolayısıyla her iki örneğin tez kapsamındaki sonuçları ile birlikte radyoterapi ve radyoloji gibi sağlık fiziki uygulamalarında in-vivo dozimetresi olarak yapılacak çalışmalarda incelenebilmesi için bor nitrür malzemelerle benzer çalışmaların farklı radyasyon kaynakları (UV, alfa, nötron, X-ışını ve gama ışını) ile de ve özellikle fotolüminesans gibi diğer lüminesans tekniklerle birlikte geliştirilerek yeni uygulama alanlarında kullanılabilirliğinin araştırılması önerilmektedir. Ayrıca bu çalışma katkılı BN örnekleri için de tekrarlanıp dozimetrik uygulamalarda incelenebilir.

KAYNAKLAR

- Ahmed, S. N. 2007. Physics and engineering of radiation detection. Academic Press, 764p., Oxford.
- Aitken, M. J. 1998. An introduction to optical dating: the dating of quaternary sediments by the use of photon-stimulated luminescence. Oxford University Press, 267p., New York.
- Akselrod, M. S., Bøtter-Jensen, L. and McKeever, S. W. S. 2006. Optically stimulated luminescence and its use in medical dosimetry. Radiation Measurements, 41, S78-S99.
- Ankara Üniversitesi, Web sitesi. <http://emb.ankara.edu.tr/sem>. Erişim Tarihi: 10.10.2020.
- Annalakshmi, O., Jose, M. T. and Amarendra, G. 2011. Dosimetric characteristics of manganese doped lithium tetraborate - an improved TL phosphor. Radiation Measurements, 46, 669-675.
- Anonymous. 2016. The Harshaw 3500 TLD reader with WinREMS user manual. Thermo Fisher Scientific, 51p., USA.
- Anonymous. 2018. The Bruker AXS D8 Advance diffraction solutions user manual. Bruker, 38p., USA.
- Anonymous. 2020. The SCHOTT optical filter glass catalog. SCHOTT, 41p., USA.
- Anonymous. 2021. The Risø TL/OSL reader user manual. DTU Nutech, 54p., Denmark.
- Armaroli, N. and Bolink, H. J. 2017. Photoluminescent materials and electroluminescent devices. Springer, 395p., Cham.
- Aşlar, E., Meriç, N., Şahiner, E., Kitis, G. and Polymeris, G. S. 2017a. Calculation of thermal quenching parameters in BeO ceramics using solely TL measurements. Radiation Measurements, 103, 13-25.
- Aşlar, E., Şahiner, E., Polymeris, G. S. and Meriç, N. 2017b. Determination of trapping parameters in BeO ceramics in both quenched as well as reconstructed thermoluminescence glow curves using various analysis methods. Applied Radiation and Isotopes, 129, 142-151.
- Aşlar, E., Meriç, N., Şahiner, E., Erdem, O., Kitis, G. and Polymeris, G. S. 2019. A correlation study on the TL, OSL and ESR signals in commercial BeO dosimeters yielding intense transfer effects. Journal of Luminescence, 214, 116533.
- Aşlar, E. 2020. BeO dozimetrelerin TL, OSL ve ESR teknikleri arasındaki korelasyonu ve mamografi sistemlerinde kullanılabilirliğinin incelenmesi. Doktora tezi. Ankara Üniversitesi, 168s., Ankara.

- Atlıhan, M. A. 2008. Ege çöküntü sistemindeki bazı deprem izlerinin lüminesans yöntemiyle incelenmesi. Doktora tezi. Ankara Üniversitesi, 106s., Ankara.
- Azarko, I., Ignatenko, O., Karpovich, I., Odzhaev, V., Kozlova, E. and Zhukowski, P. 2013. EPR investigations of electrons and neutrons irradiated cubic boron nitride. *Acta Physica Polonica A*, 123, 923-925.
- Bailiff, I. K. 1994. The pre-dose technique. *Radiation Measurements*, 23, 471-479.
- Balian, H. G. and Eddy, N. W. 1977. Figure-of-merit (FOM), an improved criterion over the normalized chi-squared test for assessing goodness-of-fit of gamma-ray spectral peaks. *Nuclear Instruments and Methods*, 145, 389-395.
- Bellini, S., Sun, Y., Gallucci, F. and Caravella, A. 2018. Thermodynamic aspects in non-ideal metal membranes for hydrogen purification. *Membranes*, 8, 1-20.
- Berzina, B., Korsaks, V., Trinkler, L., Sarakovskis, A., Grube, J. and Bellucci, S. 2016. Defect-induced blue luminescence of hexagonal boron nitride. *Diamond and Related Materials*, 68, 131-137.
- Bos, A. J. J. 2007. Theory of thermoluminescence. *Radiation Measurements*, 41, 45-56.
- Bose, D. N. and Henisch, H. K. 1970. Thermoluminescence in boron nitride powders. *Journal of the American Ceramic Society*, 53, 281-282.
- Bøtter-Jensen, L. 2000. Development of optically stimulated luminescence techniques using natural minerals and ceramics, and their application to retrospective dosimetry. Ph.D. thesis, University of Copenhagen, 185p., Denmark.
- Bøtter-Jensen, L., McKeever, S. W. S. and Wintle, A.G. 2003. Optically stimulated luminescence dosimetry. Elsevier, 374 p., Amsterdam.
- Celik, M. G., Yilmaz, A. and Yazici, A. N. 2017. Synthesis and thermoluminescence characterization of lithium tetraborate ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$) doped with copper and silver metals. *Radiation Measurements*, 102, 16-26.
- Chen, R. and McKeever, S. W. S. 1997. Theory of thermoluminescence and related phenomena. World Scientific, 576p., Singapore.
- Chen, R. and Leung, P. L. 2003. The decay of OSL signals as stretched-exponential functions. *Radiation Measurements*, 37, 519-26.
- Chen, R. and Pagonis, V. 2011. Thermally and optically stimulated luminescence: a simulation approach. Wiley, 434p., New Jersey.
- Chougaonkar, M. P. and Bhatt B. C. 2004. Blue light stimulated luminescence in calcium fluoride, its characteristics and implications in radiation dosimetry. *Radiation Protection Dosimetry*, 112, 311-321.

Çakmak, B. 2010. X-ışınları toz kırınımı ile kristal yapıların incelenmesi. Yüksek lisans tezi. Erciyes Üniversitesi, 84s., Kayseri.

Dallas, G. I., Afouxenidis, D., Stefanaki, E. C., Tsagas, N. F., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C. and Kitis, G. 2008a. Reconstruction of the thermally quenched glow-curve of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$. *Physica Status Solidi A*, 205, 1672-1679.

Dallas, G.I., Polymeris, G. S., Stefanaki, E. C., Afouxenidis, D., Tsirliganis, N. C. and Kitis, G. 2008b. Sample dependent correlation between TL and LM-OSL in $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$. *Radiation Measurements*, 43, 335-340.

Depci, T., Özbayoğlu, G., Yilmaz, A. and Yazici, A. N. 2008. The thermoluminescent properties of lithium triborate (LiB_3O_5) activated by aluminium. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 266, 755-762.

Eti Maden. 2020. Bor sektör raporu, 32s., Ankara.

Evans, D. A., McGlynn, A. G., Towlson, B. M., Gunn, M., Jones, D., Jenkins, T. E., Winter, R. and Poolton, N. R. J. 2008. Determination of the optical band-gap energy of cubic and hexagonal boron nitride using luminescence excitation spectroscopy. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 20, 1-7.

Fanciulli, M. 1997. Electron paramagnetic resonance and relaxation in BN and BN:C. *Philosophical Magazine B*, 76, 363-381.

Fiume, M. M., Bergfeld, W. F., Belsito, D. V., Hill, R. A., Klaassen, C. D., Liebler, D. C., Marks, J. G., Shank, R. C., Slaga, T. J., Snyder, P. W. and Andersen, F. A. 2015. Safety assessment of boron nitride as used in cosmetics. *International Journal of Toxicology*, 34, 53S-60S.

Furetta, C., Prokic, M., Salamon, R. and Kitis, G. 2000. Dosimetric characterization of a new production of $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ thermoluminescent material. *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 243-250.

Garlick, G. F. J. and Gibson, A. F. 1948. The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors. *Proceedings of the Physical Society*, 60, 574-590.

Geist, D. 1977. Electron paramagnetic resonance (EPR) in boron nitride, boron and boron carbide, in: *Boron and refractory borides*. Matkovich, V.I. (eds), Springer, pp. 65-77, Berlin.

Gobrecht, H. and Hofmann, D. 1966. Spectroscopy of traps by fractional glow technique. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 27, 509-522.

Gökmenoğlu, C., Özmeriç N., Çakal, G., Dökmetaş, N., Ergene, C. and Kaftanoğlu, B. 2016. Coating of titanium implants with boron nitride by RF-magnetron sputtering. *Bulletin of Materials Science*, 39, 1363-1370.

Halperin, A., Chen, R. 1966. Thermoluminescence of semiconducting diamonds. *Physical Review*, 148, 839-845.

Halperin, A. and Katzir, A. 1975. Electrical conductivity, absorption and luminescence measurements in cubic boron nitride. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 36, 89-93.

Hoogenstraaten, W. 1958. Electron traps in zinc-sulphide phosphors. *Research Laboratory of N. V. Philips*, 13, 515-693.

Horowitz, Y. S. 1984. Thermoluminescence and thermoluminescent dosimetry. CRC Press, 232p., Florida.

İflazoğlu, S., Yılmaz, A., Kafadar, V. E., Topaksu, M. and Yazıcı, A. N. 2019. Neutron+gamma response of undoped and Dy doped MgB_4O_7 thermoluminescence dosimeter. *Applied Radiation and Isotopes*, 147, 91-98.

Kafadar, V. E., Yazıcı, A. N. and Yildirim, R. G. 2009. Determination of trapping parameters of dosimetric thermoluminescent glow peak of lithium triborate (LiB_3O_5) activated by aluminum. *Journal of Luminescence*, 129, 710-714.

Karsu Asal, E. C., Polymeris, G. S. and Kitis, G. 2018. Thermoluminescence response of $\text{CaF}_2\text{:Dy}$ as a function of irradiation temperature between room temperature and 270°C . *Radiation Measurements*, 118, 14-19.

Katzir, A., Suss, J. T. and Halperin, A. 1972. Thermally stimulated currents and thermoluminescence of paramagnetic centers in hexagonal boron nitride. *Physics Letters A*, 41, 117-118.

Katzir, A., Suss, J. T., Zunger, A. and Halperin, A. 1975. Point defects in hexagonal boron nitride. I. EPR, thermoluminescence, and thermally-stimulated-current measurements. *Physical Review B*, 11, 2370-2377.

Kaya-Keleş, Ş. 2020. Doğal kuvarsta radyasyonla yaratılan yapı kusurlarının incelenmesi: birleştirilmiş TL, OSL ve EPR çalışması. Doktora tezi. Ankara Üniversitesi, 146s., Ankara.

Kitis, G., Gomez-Ros, J. M. and Tuyn, J. W. N. 1998. Thermoluminescence glow-curve deconvolution functions for first, second and general orders of kinetics. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 31, 2636-2641.

Kitis, G. and Otto, T. 2000. Peculiarities of the glow-peak 5a of LiF:Mg,Ti . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 160, 262-273.

Kitis, G., Polymeris, G. S., Sfampa, I. K., Prokic, M., Meriç, N. and Pagonis, V. 2016. Prompt isothermal decay of thermoluminescence in $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ and $\text{LiB}_4\text{O}_7\text{:Cu,In}$ dosimeters. *Radiation Measurements*, 84, 15-25.

Kiyak, N. G., Polymeris, G. S. and Kitis, G. 2010. TL/OSL properties of crystalline inclusions from heavy, barytes loaded, concrete. *Radiation Measurements*, 45, 543-545.

Konopka, M. N., Obryk, P. B. B., Marczewska, B., Olko, P., Kłosowski M. and Gieszczyk W. 2017. Luminescence dosimetry: review of methods, detectors and their applications. *Nonlinear Optics and Quantum Optics*, 48, 133-146.

Koronski, K., Kaminska, A., Zhigadlo, N. D., Elias, C., Cassabois, G. and Gil, B. 2019. Spontaneous emission of color centers at 4eV in hexagonal boron nitride under hydrostatic pressure. *Superlattices and Microstructures*, 131, 1-7.

Korsaks, V. 2012. Luminescence processes in different structured boron nitride materials. Ph.D. thesis, University of Latvia, 37p., Latvia.

Larsen, N. A. 1999. Dosimetry based on thermally and optically stimulated luminescence. Ph.D. thesis, University of Copenhagen, 151p., Denmark.

Lubyanskii, G. A., Styrov, V. V. and Sokolov, V. A. 1971. Dosimetric properties of boron nitride. *Soviet Atomic Energy* 31, 826-830.

Manfredotti, C., Giudice, A. L., Paolini, C., Vittone, E., Fizzotti, F. and Cossio, R. 2004. Characterization of impurities in cubic boron nitride crystallites with thermoluminescence and ionoluminescence. *Physica Status Solidi A*, 201, 2566-2572.

May, C. E. and Partridge, J. A. 1964. Thermoluminescent kinetics of alpha-irradiated alkali halides. *The Journal of Chemical Physics*, 40, 1401-1409.

McKeever, S. W. S. 1985. Thermoluminescence of solids. Cambridge University Press, 392p., New York.

McKeever, S. W. S., Moscowitch, M. and Townsend, P. D. 1995. Thermoluminescence dosimetry materials: properties and uses. Nuclear Technology Publishing, 210p., Ashford.

Murthy, K. V. R. 2014. Thermoluminescence and its applications: a review. *Defect and Diffusion Forum*, 347, 35-73.

Museur, L., Anglos, D., Petitet, J. P., Michel, J. P. and Kanaev, A. V. 2007. Photoluminescence of hexagonal boron nitride: effect of surface oxidation under UV-laser irradiation. *Journal of Luminescence*, 127, 595-600.

Nistor, S. V., Stefan, M., Schoemaker, D. and Dinca, G. 2000. EPR observation of first point defects in cubic boron nitride crystalline powders. *Solid State Communications*, 115, 39-44.

Nistor, S. V., Nistor, L. C., Joita, A. C. and Vlaicu, A. M. 2019. Presence and distribution of impurity defects in crystalline cubic boron nitride. A spectroscopic study. *Radiation Measurements*, 123, 21-25.

Omanwar, S. K., Koparkar, K. A. and Virk, H. S. 2013. Recent advances and opportunities in TLD Materials: a review. Defect and Diffusion Forum, 347, 75-110.

Ozdemir, A., Polymeris, G. S., Şahiner, E., Aşlar, E., Guckan, V., Altunal, V., Meriç, N. and Yegingil, Z. 2019. Evaluation of thermoluminescence trapping parameters in $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$ co-doped with Ag^+ and Gd^{3+} using various experimental techniques. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 461, 70-76.

Örnek, M., Reddy, K. M., Hwang, C., Domnich, V., Burgess, A., Pratas, S., Calado, J., Xie, K. Y., Miller, S. L., Hemker, K. J. and Haber, R. A. 2018. Observations of explosion phase boron nitride formed by emulsion detonation synthesis. Scripta Materialia 145, 126-130.

Pagonis, V., Kitis, G. and Furetta, C. 2006. Numerical and practical exercises in thermoluminescence. Springer, 210p., New York.

Pagonis, V., Brown, N., Polymeris, G. S. and Kitis, G. 2019. Comprehensive analysis of thermoluminescence signals in $\text{MgB}_4\text{O}_7\text{:Dy,Na}$ dosimeter. Journal of Luminescence, 213, 334-342.

Peng, J., Kitis, G., Sadek, A. M., Asal, E. C. K. and Li, Z. 2021. Thermoluminescence glow-curve deconvolution using analytical expressions: a unified presentation. Applied Radiation and Isotopes, 168, 109440.

Polymeris, G. S., Kitis, G. and Tsirliganis, N. C. 2006. Correlation between TL and OSL properties of $\text{CaF}_2\text{:N}$. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 251, 133-142.

Polymeris, G. S., Raptis, S., Afouxenidis, D., Tsirliganis, N. C. and Kitis, G. 2010. Thermally assisted OSL from deep traps in $\text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$. Radiation Measurements, 45, 519-522

Polymeris, G. S. and Kitis, G. 2019. Thermally assisted optically stimulated luminescence (TA – OSL), in: Advances in physics and applications of optically and thermally stimulated luminescence. Chen, R. and Pagonis, V. (eds), World Scientific, pp. 131-171, London.

Poppinga, D., Halbur, J., Lemmer, S., Delfs, B., Harder, D., Looe, H. K. and Poppe, B. 2017. Test study of boron nitride as a new detector material for dosimetry in high-energy photon beams. Physics in Medicine & Biology, 62, 436-444.

Randall, J. T. and Wilkins, M. H. F. 1945a. Phosphorescence and electron traps: I. The study of trap distributions. Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences, 184, 366-389.

Randall, J. T. and Wilkins, M. H. F. 1945b. Phosphorescence and electron traps: II. The interpretation of long-period phosphorescence. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 184, 390-407.

Roskill, 2010. Boron: global industry markets and outlook. Roskill Information Services Limited, 243p., London.

Sadek, A. M., Khamis, F., Polymeris, G. S., Carinou, E. and Kitis, G. 2016. Similarities and differences between two different types of the thermoluminescence dosimeters belonging to the LiF family. *Physica Status Solidi C*, 14, 1-10.

Silly, M. G., Jaffrennou, P., Barjon, J., Lauret, J. S., Ducastelle, F., Loiseau, A., Obraztsova, E., Attal-Tretout, B. and Rosencher, E. 2007. Luminescence properties of hexagonal boron nitride: Cathodoluminescence and photoluminescence spectroscopy measurements. *Physical Review B*, 75, 085205.

Singh, V. P. and Badiger, N. M. 2016. Effective atomic numbers of dosimetric interest organic compounds. *Indian Journal of Pure and Applied Physics*, 54, 333-338.

Solozhenko, V. L., Chernyshev, V. V., Fetisov, G. V., Rybakov, V. B. and Petrusha, I. A. 1990. Structure analysis of the cubic boron nitride crystals. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 51, 1011-1012.

Spiridonov, D. M., Henaish, A. M. A., Shalyakin, S. A., Vokhmintsev, A. S. and Weinstein, I. A. 2018. Spectrally resolved thermoluminescence in UV excited hexagonal boron nitride nanopowder. *Journal of Physics: Conference Series*, 1115, 052025.

Şahiner, E. 2015. Paleosismolojik çalışmalarda TL/OSL ve ESR yöntemlerinin kullanılması: Kütahya-Simav ve Kuzey Anadolu Fay Hattı. Doktora tezi. Ankara Üniversitesi, 216s., Ankara.

Thomsen, K. J. 2004. Optically stimulated luminescence techniques in retrospective dosimetry using single grains of quartz extracted from unheated materials. Ph.D. thesis, Risø-DTU, 176p., Denmark.

Toledo, J. R., de Jesus, D. B., Kianinia, M., Leal, A. S., Fantini, C., Cury, L. A., Sáfar, G. A. M., Aharonovich, I. and Krambrock, K. 2018. Electron paramagnetic resonance signature of point defects in neutron-irradiated hexagonal boron nitride. *Physical Review B*, 98, 155203.

Trinkler, L., Berzina, B., Benabdesselam, M., Iacconi, P., Bøtter-Jensen, L. and Atobe, K. 2004. Radiation induced luminescence processes in c-BN. *Radiation Measurements*, 38, 615-618.

Unal, S., Ekren, N., Sengil, A. Z., Oktar, F. N., Irmak, S., Oral, O., Sahin, Y. M., Kilic, O., Agathopoulos, S., Gunduz, O. 2018. Synthesis, characterization, and biological properties of composites of hydroxyapatite and hexagonal boron nitride. *Journal of Biomedical Materials Research Part B: Applied Biomaterials*, 106, 2384-2392.

- Vandenberghe, D. 2004. Investigation of the optically stimulated luminescence dating method for application to young geological sediments. Ph.D. thesis, Universiteit Gent, 298p., Holland.
- Virk, H. S. 2015. History of luminescence from ancient to modern times. *Defect and Diffusion Forum*, 361, 1-13.
- Vokhmintsev, A. S., Minin, M. G., Chaykin, D. V. and Weinstein, I. A. 2014. A high-temperature accessory for measurements of the spectral characteristics of thermoluminescence. *Instruments and Experimental Techniques*, 57, 369-373.
- Vokhmintsev, A. S., Minin, M. G. and Weinstein, I. A. 2016. Application of hexagonal boron nitride micropowder for thermoluminescent dosimetry of UV radiation. *Radiation Measurements*, 90, 205-209.
- Vokhmintsev, A. S., Weinstein, I. A., Minin, M. G. and Shalyakin, S. A. 2019. Thermally stimulated processes in the luminescence of carbon-related defects for h-BN micropowder. *Radiation Measurements*, 124, 35-39.
- Watanabe, K., Taniguchi, T., Miya, K., Sato, Y., Nakamura, K., Niiyama, T. and Taniguchi, M. 2011. Hexagonal boron nitride as a new ultraviolet luminescent material and its application-Fluorescence properties of hBN single-crystal powder. *Diamond and Related Materials*, 20, 849-852.
- Weber, R.T., Jiang, J., Barr, D.P. 1998. EMX user's manual. EPR Instruments, Bruker, 245p., USA.
- Weinstein, I. A., Vokhmintsev, A. S., Minin, M. G., Kartashov, V. V. and Chernetsky, I. V. 2013. Spectral and kinetic features of thermoluminescence in hexagonal boron nitride powder after UV-irradiation. *Radiation Measurements*, 56, 236-239.
- Wintle, A. G. 1973. Anomalous fading of thermoluminescence in mineral samples. *Nature*, 245, 143-144.
- Wintle, A. G. 1975. Thermal quenching of thermoluminescence in quartz. *Geophysical Journal of the Royal Astronomical Society*, 41, 107-113.
- Yüksel, M. 2018. Thermoluminescence and dosimetric characteristics study of quartz samples from Seyhan Dam Lake Terraces. *Canadian Journal of Physics*, 96, 779-783.
- Yünlü, K. 2016. BOR (bileşikleri, sentez yöntemleri, özellikleri ve uygulamaları). Boren, 820s., İstanbul.
- Zhang, F. and Chen, G. 1992. ESR characteristics of cubic boron nitride crystals. *Materials Research Society Symposium Proceedings*, 242, 613-615.

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı : Çağın Hakan ÖZTOPRAK

Yabancı Dili : İngilizce

Eğitim Durumu (Kurum ve Yıl)

Lise : Selçuklu Anadolu Lisesi (2002)

Lisans : Ankara Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Fizik Mühendisliği
Bölümü (2009)

Yüksek Lisans : Ankara Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Medikal Fizik
Anabilim Dalı, Sağlık Fiziği Programı (2021)