



<http://dx.doi.org/10.7240/mufbed.v25i1.001>

Sayısal Işıldama Eğrilerinin İzotermal Bozunum (Isothermal Decay) Yöntemi ile İncelenmesi ve Tuzak Parametrelerinin Hesaplanması

Erdem UZUN^{1*}

¹ Karamanoğlu Mehmetbey Üniversitesi, Kamil Özdağ Fen Fakültesi, Fizik Bölümü, 70100, Merkez/ KARAMAN

Özet

Bu çalışma kapsamında termolüminesans (TL) ışımaya açıklayan bazı temel modeller yeniden gözden geçirilmiş ve nümerik olarak çözümlenmiştir. Bu amaçla her bir model için yük taşıyıcı trafiğini ifade eden diferansiyel denklem sistemleri türetilmiştir. Bu denklem sistemlerini sayısal olarak çözümlenebilmek için Mathematica 8.0 bilgisayar programı üzerinde koşturulabilen kodlar yazılmıştır. Belirli tuzak parametre değerleri başlangıç koşulu olarak bilgisayar programına verilmiş ve ışıldama eğrileri elde edilmiştir. Termolüminesans tuzak parametrelerinin hesaplanmasında kullanılan izotermal bozunum (ID) yöntemi bir bilgisayar algoritması haline dönüştürülmüş ve her bir modele uygulanmıştır. Termolüminesans modeller ve izotermal bozunum yöntemi kullanılarak tuzak parametreleri nümerik olarak hesaplanmıştır. Hesaplanan parametreler başlangıç koşulları ile karşılaştırılmış ve uyum içerisinde oldukları görülmüştür.

Anahtar Kelimeler: Termolüminesans, TL tuzak parametreleri, TL modeller, sayısal çözümleme, eş sıcaklık bozunum.

Analysis of Numeric Glow Curves by using the Method of Isothermal Decay and Calculating of the Trap Parameters

Abstract

Within this work, some fundamental models describing the TL glow are revised and resolved numerically. For this purposes, differential equation systems representing the charge carrier traffic are derived for each model. Some executable computer codes in Mathematica 8.0 are written to solve the systems numerically. Some trap parameters are given to the computer code as initial conditions and glow curves are obtained. The isothermal decay method used in the calculation of the thermoluminescence trap parameters are converted into a computer algorithm and is applied for every model. Trap parameters are calculated numerically by using thermoluminescence models and isothermal decay method. The calculated parameters are compared with the initial conditions and one can be seen that they are in a good agreement.

Keywords: thermoluminescence, TL trap parameters, TL models, numerical analysis, isothermal decay.

Giriş

Literatürde termolüminesans (TL) modellerin çözümlerinin birçok araştırmanın konusu olduğu görülmektedir [1-10]. Bu çalışmaların önemli bir kısmı özel malzemelerin TL karakteristiklerini açıklayabilmek üzere yapılmış çalışmalardır. Bugün TL alanındaki çalışmaların önemli bir kısmı TL malzemesi olarak kullanılması düşünülen yeni malzemelerin

*Sorumlu yazar: Erdem UZUN, erdemuzun@kmu.edu.tr.

TL tuzak parametrelerinin hesaplanması üzerine yoğunlaşmıştır. Bertucci vd., 2011 [11] analitik saflıktaki kuvars kristalindeki derin tuzakların tuzak parametrelerini hesaplamaya çalışmışlardır. Bu malzeme yoğun olarak çalışılmış olmasına rağmen özellikle derin elektron tuzakları için bazı belirsizlikler söz konusudur. Yazarlar bu çalışmada eksikliği giderebildiklerini ileri sürmüşlerdir. Jose vd., 2011 [12] talyum ile aktive edilmiş lityum-kalsiyum borat bileşiğinin TL tuzak parametrelerini incelemişlerdir. Bu malzemenin TL tuzak parametrelerinin ilk defa ölçüldüğünü ileri sürmüşlerdir. Denis vd., 2010 [13], Eu^{2+} katkılı $\text{Ba}_{13-x}\text{Al}_{22-2x}\text{Si}_{10+2x}\text{O}_{66}$ ($x \sim 0.6$) malzemelerin TL tuzak parametrelerini incelemiş ve bu çalışmayı ısıl bağlantılı tuzaklar modeli (thermally connected traps –TCT– model) ile yaptıklarını bildirmişlerdir. Cruz vd., 2011 [14], Ca–Mn ve Cd–Mn iyonları ile aktive edilmiş NaCl kristalinin TL tuzak parametrelerini hesaplamışlardır. Geeta vd., 2010 [15] seryum ile aktive edilmiş CaSrS bileşiğinin TL tuzak parametrelerini, Singh vd., 2012 [16] ^{60}Co gama kaynağı kullanılarak yüksek dozlarda (30–280 kGy) gama ile ışınlanmış doğal kuvars örneklerin TL parametrelerini hesaplamışlardır. Wu vd., 2011 [17], Ce^{3+} ve Eu^{2+} iyonları ile aktive edilmiş $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ bileşiğinin TL tuzak parametrelerini araştırmışlardır. Bu çalışmalardan da görülebileceği gibi son yıllarda literatürde yeni ve eski TL malzemelerin tuzak parametrelerinin hesaplanmasına yönelik çalışmalar yoğunlaşmıştır. Bunun nedeni daha ucuz ve kullanışlı yeni malzemeler bulabilmek ve TL dozimetre olarak kullanılması düşünülen bu yeni malzemelerin tuzak parametrelerini oldukça hassas bir şekilde tanımlayabilmektir. ID (Isothermal Decay) yöntemi TL ışınma piklerinin incelenmesinde ve tuzak parametrelerinin belirlenmesinde ışınma eğrisinin elde edilmesi ve ele alınışı itibarıyla, kullanılan diğer yöntemlerden oldukça farklıdır. İşte bu nedenle ID yöntemi TL tuzak parametrelerinin belirlenmesinde yaygın olarak kullanılmaktadır.

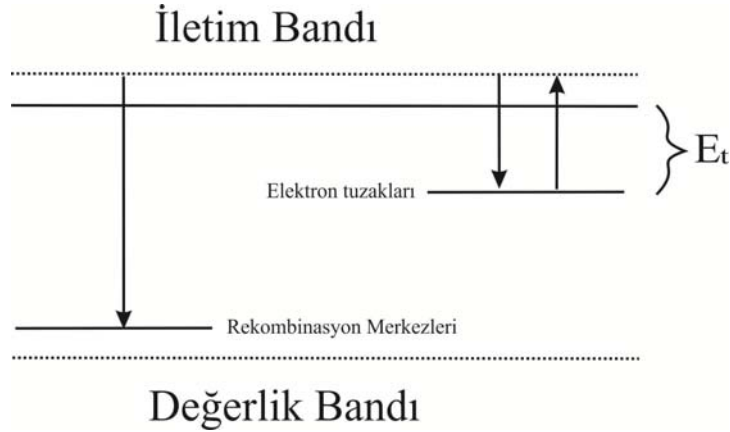
Termoluminesans konusu ile ilgili literatürdeki yeni çalışmalar incelendiğinde yeni malzemelerin davranışlarını açıklayabilmek için iki yaklaşımın kullanıldığını görebiliriz; bunlardan birincisi, hali hazırda var olan modeller kullanılarak TL davranışların açıklanması, ikincisi ise yeni yaklaşımların kullanılmasıdır. Zahedifar vd., 2011 [18] kuvars kristallerinin aktivasyon enerjilerindeki üstel dağılımı açıklayabilmek için revize edilmiş genel mertebeden TL modeli kullanmışlardır. Yazarlar, ileri sürülen bu yeni düzenleme ile modelin gerçek bir malzemenin TL ışıltama eğrisini oldukça gerçekçi bir şekilde temsil edebildiğini ileri sürmüşlerdir. Mandowski ve Bos 2011 [19], Ce^{3+} ve Sm^{3+} ile aktive edilmiş YPO_4 kristalinde gözlemlenen anormal ısıtma hızı bağımlılığını açıklayabilmek için yarı lokalize geçişler modelini kullanmışlardır. Chen vd., 2012 [20] TL malzemelerin tuzak parametrelerini ve TL davranışlarını açıklayabilmek için yeni bir model ileri sürmüşlerdir. Bu modele göre, ısıtma sürecinde tuzaklardan serbest kalan elektronların iletim bandına geçmeden önce yeni bir ara uyarılmış durumda bulunabileceklerini ileri sürmüşlerdir. Yarı lokalize durumda bulunan elektronların davranışları için iki durum söz konusudur: bu elektronlar iletim bandına uyarılabilir ya da yeniden tuzaklar tarafından yakalanabilirler. Yazarlar bu modeli kullanarak yük taşıyıcı trafğini ifade eden denklemleri türetmişler ve sayısal çözümlerini yapmışlardır. Pagonis vd., 2012 [21], optik ve termal uyarmalı bazı luminesans malzemeler için bildirilen süper lineer doz cevabını açıklayabilmek için yeni bir model ileri sürmüşlerdir. Yazarlar bu çalışmada tuzakların elektronlar ile doldurulması temsil eden yeni analitik denklemler ileri sürmüş ve bunların çözümlerini tartışmışlardır. Diğer taraftan TL malzemelerin tuzak parametrelerini hesaplamak için yoğun olarak ID yönteminin kullanıldığı bilinmektedir. Ancak buna ilave olarak son yıllarda ID yönteminin geliştirilmesine yönelik bazı yeni çalışmalar da yapılmaktadır. González vd., 2011 [22], ID yöntemi için yeni bir yaklaşım kullanarak yöntemi modifiye etmişler ve LiF:Mg,Cu,P -teflon karışımından elde ettikleri malzemeye modifiye ID yöntemini uygulamışlar ve elde ettikleri sonuçların tatmin edici olduğunu bildirmişlerdir. Kucuk vd., 2010 [23], tek kristal TlGaSeS tabakalarına ID

yöntemini uygulayarak tuzak parametrelerini hesaplamışlardır. Choubey vd., 2010 [24], $K_3Na(SO_4)_2$ kristalinin TL tuzak parametrelerini ID yöntemi ile hesaplamışlardır. Tüm bu çalışmalar göstermektedir ki ID yöntemi TL tuzak parametrelerinin hesaplanmasında önemli bir rol oynamaktadır.

Materyal ve Yöntem

Termoluminesans Modellere Genel Bir Bakış

Termoluminesans olay, termodinamik denge durumunda bulunan bir sistemin, dış enerji kaynağından enerji soğurarak uyarılması sonucunda yarı kararlı duruma geçmesi ve ardından ısı enerjisi yardımıyla sistemdeki fazla enerjinin yayınlanarak denge durumuna dönmesi olarak tanımlanabilir. Burada uyarılmaya neden olan dış enerji kaynağı iyonlaştırıcı radyasyondur [25]. En basit TL modellerde yük taşıyıcılar için kristal içerisinde yalnızca iki adet enerji seviyesinin olduğu kabul edilir. Bunlar; elektron tuzakları ve rekombinasyon merkezleridir. Şekil 1'de bu modelin önerdiği enerji seviyeleri ve izinli geçişler görülmektedir.



Şekil 1 Enerji seviyeleri ve izinli geçişler [26]

Birinci Mertebeden Devinimler

Randall ve Wilkins ısı uyarılma sırasında, yük taşıyıcılarının tuzaklara yakalanma olasılığının yeniden birleşme olasılığı ile kıyaslandığında, ihmal edilecek kadar küçük olduğu kabul ederek TL yayınlanma için (1) eşitliğini ileri sürmüşlerdir [27-28].

$$I_{TL} = n.s. \exp\left\{-\frac{E_t}{k.T}\right\} \quad (1)$$

İkinci Mertebeden Devinimler

Garlick ve Gibson, ısıtma sürecinde tuzaklardan serbest kalan elektronların tekrar tuzaklara yakalanma olasılığının, yeniden birleşme olasılığı ile kıyaslanabilir oranlarda olduğunu kabul ederek TL yayınlanma için (2) eşitliğini ileri sürmüşlerdir [29].

$$I_{TL} = -\frac{dn}{dt} = s' \cdot n^2 \cdot \exp\left\{-\frac{E_t}{k.T}\right\} \quad (2)$$

Genel Mertebeden Devinimler

Randall - Wilkins birinci mertebeden ve Garlick - Gibson ikinci mertebeden TL ışımaya yoğunluğunu ifade eden denklemlerini türetirken, önceki bölümlerde söz edildiği gibi, yeniden tuzaklara yakalanma ve yeniden birleşme olasılıklarının oranları hakkında bazı özel kabuller öne sürmüşlerdir. May ve Partridge, bu kabulleri ve elde edilen denklemleri hesaba katılarak, TL ışımaya yoğunluğunu ifade eden ve Eşitlik (3) ile verilen bir ampirik bağıntı türetmişlerdir [30-31].

$$I_{TL} = n^b \cdot s' \cdot \exp\left(-\frac{E}{k.T}\right) \quad (3)$$

May ve Partridge'nin önerdikleri bu Eşitlik 1. ve 2. mertebeden denklemlerin uygulanmadığı durumlar için kullanılabilir. Eşitlik (3)'de $b \rightarrow 2$ alındığında ikinci mertebeden Garlick - Gibson TL denklemine (2), $b \rightarrow 1$ olarak alındığında Randall - Wilkins birinci mertebeden TL denklemine (1) indirgenir.

İzotermal Bozunum Yöntemi

ID (Isothermal Decay) yöntemi TL ışımaya piklerinin incelenmesinde ve tuzak parametrelerinin belirlenmesinde ışımaya eğrisinin elde edilmesi ve ele alınışı itibarıyla, kullanılan diğer yöntemlerden oldukça farklıdır. Bu yöntemde malzeme belirli bir sıcaklığa (T_s) ulaşıncaya kadar kontrollü olarak ısıtılır ve sıcaklık T_s değerinde sabit tutularak yayınlanan ışımaya zamanın bir fonksiyonu olarak izlenir. Bu nedenle ID yönteminde incelenen ışımaya fosforesans yayınlanma ile alakalıdır. İzotermal bozunum yöntemi birinci mertebeden TL ışımaya pikleri için ilk olarak Garlick ve Gibson tarafından önerilmiştir [25]. Yöntemin ayrıntıları literatürde detaylı olarak sunulmuştur [32-35].

Bu çalışmada öncelikle TL yayınlanmayı açıklayan FOK, SOK ve GOK modelleri bilgisayar kodları haline dönüştürülmüştür. Bu amaçla aşağıdaki proses her bir modele uygulanmıştır;

- Model tarafından ileri sürülen enerji-bant diyagramının elde edilmesi,
- Modele göre yük taşıyıcıların mümkün hareket mekanizmalarının tanımlanması,
- Değişkenlerin ve parametrelerin tanımlanması, tanım aralıklarının belirlenmesi,
- Yük taşıyıcı trafiğini ifade eden diferansiyel denklemlerin model tarafından ileri sürülen enerji-bant diyagramına uygun olarak türetilmesi,

- Hareket denklemlerinin Mathematica 8.0 ortamında koşturulabilecek bilgisayar kodlarına dönüştürülmesi,
- Başlangıç koşullarının belirlenmesi ve sisteme yüklenmesi,
- Denklemlerin sıcaklığa göre çözümlenmesi.

Yukarıda detaylı bir şekilde açıklanan adımlar takip edilerek belirli başlangıç koşulları için TL ışıldama eğrileri elde edilebilir. İzotermal bozunum yönteminin TL yayınlanmayı açıklayan FOK, SOK ve GOK modellerine uygulanması sırasında aşağıdaki genel prosedürler uygulanmıştır.

- Daha önceden tanımlanmış olan (modellerin nümerik çözümleri için kullanılan) başlangıç koşullarının sisteme yüklenmesi,
- İzotermal bozunum yönteminin uygulanacağı her bir model için (daha önceden elde edilmiş olan nümerik ışıldama eğrilerinden) pik maksimum sıcaklığının (T_m) belirlenmesi,
- İzotermal bozunum yönteminin uygulanacağı sıcaklıkların (T_s) belirlenmesi,
- Malzemenin T_s sıcaklığında bekletilme süresinin belirlenmesi,
- Her bir model için $n(T_s) = n_0$ başlangıç koşulu da kullanılarak model tarafından ileri sürülen denklemlerin T_s sıcaklığına kadar sıcaklığa göre nümerik olarak çözülmesi,
- Sıcaklık T_s 'ye ulaştığında sıcaklığın sabit tutulması,
- Sabit T_s sıcaklığında model tarafından ileri sürülen denklemlerin zamana göre sayısal olarak çözülmesi.

Bu çalışmada yapılan tüm hesaplamalar nümeriktir ve hesaplamalar sırasında yazılan bilgisayar kodları Mathematica 8.0 bilgisayar programı üzerinde çalıştırılmıştır.

Bulgular ve Tartışma

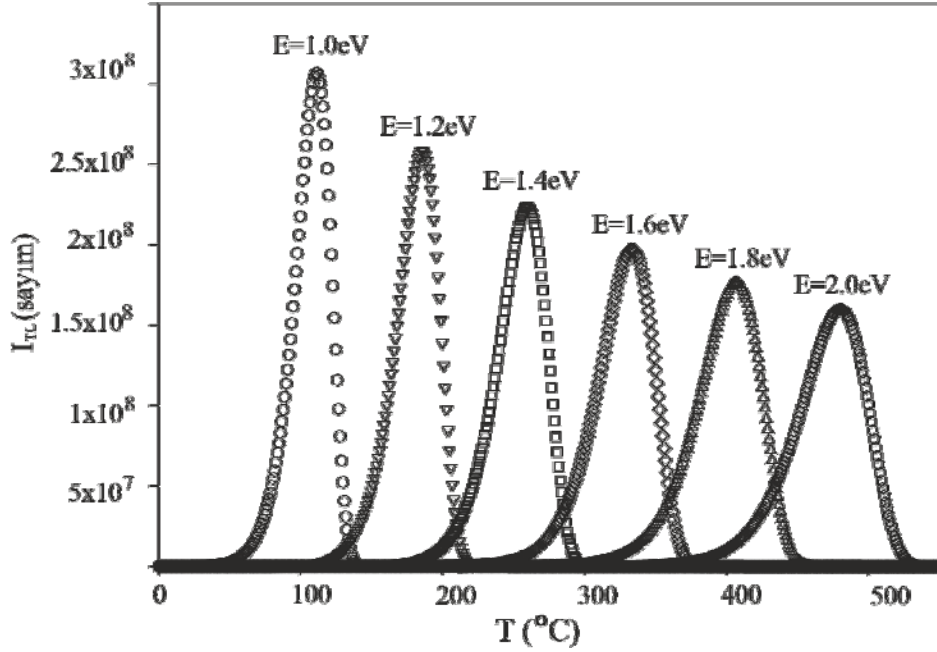
Proses Ait Bulgular

İzotermal bozunum yönteminin uygulanacağı sıcaklıkların (T_s) belirlenmesi sırasında birçok deneme yapılmış ve bu çalışmada T_s sıcaklıkları ($T_m-40^\circ\text{C}$) – ($T_m+10^\circ\text{C}$) aralığında seçilmiştir. Burada T_m pik maksimum sıcaklığıdır. T_s bu aralığın alt sınırından üst sınırına kadar 1°C aralıkla değiştirilmiştir.

İzotermal bozunum deney süresinin belirlenmesi aşamasında birçok deneme yapılmış ve T_s sıcaklığında bekletilme süresinin yaklaşık olarak 220s olması gerektiği sonucuna varılmıştır.

İzotermal Bozunum Yönteminin Birinci Mertebeden Kinetik Modeline Uygulanması

FOK modeli tarafından TL ışıltama için ileri sürülen ve yük taşıyıcı trafiğini kontrol eden Eşitlik 1, farklı tuzak derinlikleri için 0-400°C sıcaklık aralığında sayısal olarak çözülmüş, tüm ışıltama eğrisi elde edilmiş ve pik maksimum sıcaklıkları (T_m) belirlenmiştir. Farklı tuzak derinlikleri için elde edilen sayısal ışıltama eğrileri Şekil 2’de sunulmuştur.

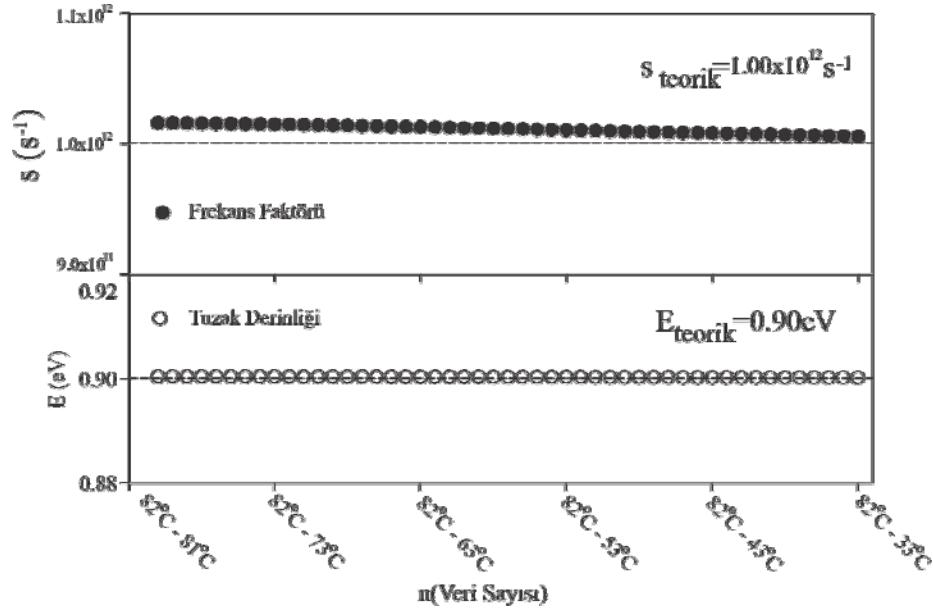


Şekil 2. Farklı E değerlerinde FOK modeli için elde edilen ışıltama eğrileri

ID yönteminin bir ışıltama pikine uygulanması aşağıda detaylı bir şekilde gösterilmiştir; $E=0.9\text{eV}$, $s=10^{12}\text{s}^{-1}$ ve $n_0=10^{10}\text{cm}^{-3}$ olmak üzere;

- i- Verilen başlangıç koşulları kullanılarak ($E=0.9\text{eV}$, $s=10^{12}\text{s}^{-1}$ ve $n_0=10^{10}\text{cm}^{-3}$) eşitlik 1 sayısal yöntemlerle çözümlenmiş ve pik maksimum sıcaklığı $T_m = 73^\circ\text{C}$ olarak belirlenmiştir.
- ii- Önceden belirlenen prosedüre uygun olarak ID yönteminin uygulanacağı sıcaklık aralığı $33^\circ\text{C} \leq T_s < 82^\circ\text{C}$ olarak belirlenmiştir.
- iii- Eşitlik 1, malzemenin sıcaklığı oda sıcaklığından T_s 'ye kadar sıcaklığa bağlı olarak, sıcaklık bu değere ulaştıktan sonra ise $T=T_s$ 'de sabit tutularak zamana bağlı olarak çözülmüştür.
- iv- ID sayısal çözümlerinden elde edilen verilerin doğal logaritmaları alınarak zamana göre grafikleri çizilmiştir.
- v- Her bir T_s sıcaklığı için $\ln(\text{sayım})$ 'ın zamana göre çizilen eğrilerinin eğimleri hesaplanmıştır. Hesaplanan eğimlerin doğal logaritmaları alınarak her bir eğim için ona karşı gelen T_s değeri yardımı ile $\ln(\text{eğim})$ in $(1/k.T_s)$ 'ye göre grafiği çizilmiştir.
- vi- Eğrinin eğimi E parametresine eşittir. Ayrıca eğrinin $1/k.T_s$ eksenini kestiği nokta belirlenerek frekans faktörü hesaplanmıştır.

ID yöntemine göre TL tuzak parametreleri tüm T_s değerlerini hesaba katmadan da hesaplanabilir. Şekil 3’de $T_s=82^\circ\text{C}$ ’den $T_s=33^\circ\text{C}$ ’ye kadar farklı aralıklarda hesaplanan tuzak parametreleri görülmektedir.



Şekil 3 Tuzak parametrelerinin hesaplanmasında kullanılan veri sayısındaki değişimin tuzak parametreleri üzerindeki etkisi

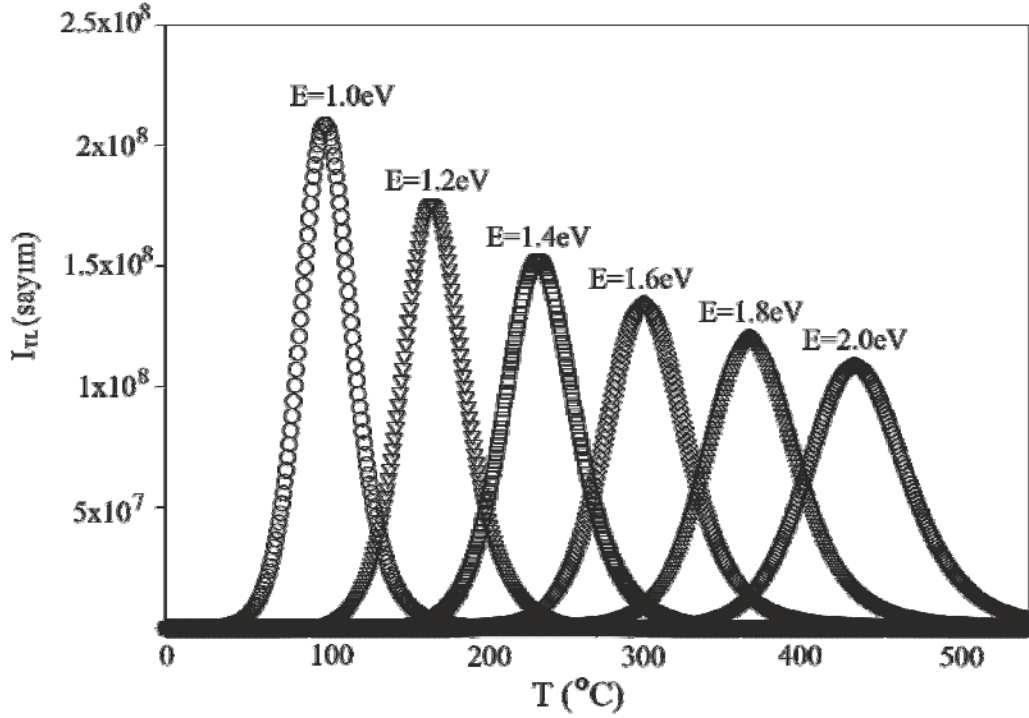
Farklı E değerleri için ID yöntemi uygulanmış ve tuzak parametreleri hesaplanmıştır. Sonuçlar toplu halde çizelge 1’de sunulmuştur.

Çizelge 1 FOK modeli için hesaplanan E ve s değerleri

E (eV) Teorik	S (s ⁻¹) Teorik	Veri aralığı (°C)	E (eV) - ID	s (s ⁻¹) - ID x10 ¹²
0.90	10 ¹²	82-33	0.90±0.001	1.00±0.0051
1.00		120-71	1.00±0.001	1.00±0.0054
1.10		157-108	1.10±0.001	1.00±0.0096
1.20		194-145	1.20±0.001	1.01±0.0034
1.30		231-182	1.30±0.001	1.01±0.0059
1.40		268-219	1.40±0.001	1.01±0.0084
1.50		305-256	1.50±0.001	1.02±0.0057
1.60		341-292	1.60±0.001	1.02±0.0023
1.70		378-329	1.70±0.001	1.02±0.0040
1.80		415-366	1.80±0.001	1.02±0.0055
1.90		451-402	1.90±0.001	1.02±0.0067
2.00		488-439	2.00±0.001	1.02±0.0081

İzotermal Bozunum Yönteminin İkinci Mertebeden Kinetik Modeline Uygulanması

SOK modeli tarafından TL ışıltama için ileri sürülen ve yük taşıyıcı trafiğini kontrol eden eşitlik 2, farklı tuzak derinlikleri için 0-600°C sıcaklık aralığında sayısal olarak çözülmüş, tüm ışıltama eğrisi elde edilmiş ve pik maksimum sıcaklıkları (T_m) belirlenmiştir. Farklı tuzak derinlikleri için elde edilen sayısal ışıltama eğrileri şekil 4’de sunulmuştur.



Şekil 4 SOK modeli kullanılarak farklı E değerleri için elde edilen ışıltama eğrileri

Aşağıda yöntemin SOK modeline uygulanışını detaylı bir şekilde gösterilmiştir. $E=1.0\text{eV}$, $s=10^{12}\text{s}^{-1}$ ve $n_0=10^{10}\text{cm}^{-3}$ olmak üzere;

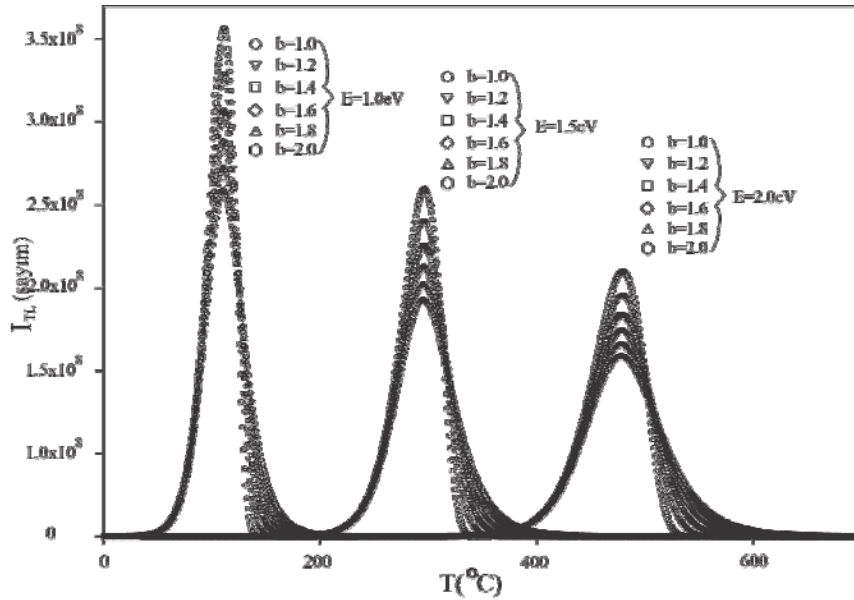
- Verilen başlangıç koşulları kullanılarak ($E=1.0\text{eV}$, $s=10^{12}\text{s}^{-1}$ ve $n_0=10^{10}\text{cm}^{-3}$) eşitlik 2 sayısal yöntemlerle çözümlenmiş ve pik maksimum sıcaklığı $T_m = 111^\circ\text{C}$ olarak belirlenmiştir.
- Pik maksimum sıcaklığı kullanılarak ID yönteminin uygulanacağı sıcaklıklar $120^\circ\text{C} \leq T_s < 71^\circ\text{C}$ olarak belirlenmiştir.
- Eşitlik 2, oda sıcaklığından T_s 'ye kadar sıcaklığa bağlı olarak bu değerden sonra ise sıcaklık $T=T_s$ olacak şekilde zamana bağlı olarak çözülmüştür.
- Her bir T_s sıcaklığı için elde edilen bozunum eğrisinden $[(I_t / I_o)^{-1/2}]$ 'nin zamana göre grafiği çizilmiş ve eğimi hesaplanmıştır.
- Her bir T_s sıcaklığı için bir üst basamakta hesaplanan eğimlerin doğal logaritmaları alınarak her bir eğim için ona karşı gelen T_s değeri yardımı ile $\ln(\text{eğim})$ in $(1/k.T_s)$ 'ye göre grafiği çizilmiştir.
- Son eğrinin eğimi tuzak derinliğine eşit olacaktır. Eğrilerin eğimleri tüm T_s değerleri üzerinden hesaplandığında elde edilen değerler çizelge 2’de sunulmuştur.

Çizelge 2 SOK modeli için hesaplanan E ve s değerleri

E (eV) Teorik	S (s ⁻¹) Teorik	Veri aralığı (°C)	E (eV) - ID	s (s ⁻¹) - ID x10 ¹²
0,90	10 ¹²	82-33	0,900±0,001	1,00±0,0041
1,00		120-71	1,000±0,001	1,00±0,0052
1,10		157-108	1,100±0,001	1,00±0,0096
1,20		194-145	1,200±0,001	1,01±0,0034
1,30		231-182	1,300±0,001	1,01±0,0059
1,40		268-219	1,400±0,001	1,01±0,0084
1,50		305-256	1,500±0,001	1,02±0,0057
1,60		341-292	1,600±0,001	1,02±0,0023
1,70		378-329	1,700±0,001	1,02±0,0040
1,80		415-366	1,800±0,001	1,02±0,0055
1,90		451-402	1,900±0,001	1,02±0,0067
2,00		488-439	2,000±0,001	1,02±0,0081

İzotermal Bozunum Yönteminin Genel Mertebeden Kinetik Modeline Uygulanması

GOK modeli tarafından TL ışıltama için ileri sürülen ve yük taşıyıcı trafliğini kontrol eden eşitlik 3, farklı tuzak derinlikleri için 0-400°C sıcaklık aralığında sayısal olarak çözülmüş, tüm ışıltama eğrisi elde edilmiş ve pik maksimum sıcaklıkları (T_m) belirlenmiştir. Farklı tuzak derinlikleri için elde edilen sayısal ışıltama eğrileri şekil 5’de görülmektedir.



Şekil 5 GOK modeli kullanılarak farklı E değerleri için elde edilen ışıltama eğrileri

Yöntemin GOK modeline uygulanışı aşağıda detaylı bir şekilde gösterilmiştir. E=1.0eV, s=10¹²s⁻¹, no=10¹⁰cm⁻³ ve b=1.5 olmak üzere;

- i- Verilen başlangıç koşulları kullanılarak ($E=1.0\text{eV}$, $s=10^{12}\text{s}^{-1}$ $n_0=10^{10}\text{cm}^{-3}$ ve $b=1.5$) eşitlik 3 sayısal yöntemlerle çözümlenmiş ve pik maksimum sıcaklığı $T_m = 111^\circ\text{C}$ olarak belirlenmiştir.
- ii- Pik maksimum sıcaklığı kullanılarak ve önceden belirlenen prosedüre uygun olarak, ID yönteminin uygulanacağı sıcaklık $120^\circ\text{C} \leq T_s \leq 71^\circ\text{C}$ olarak belirlenmiştir.
- iii- Eşitlik 3 oda sıcaklığından T_s 'ye kadar sıcaklığa bağlı olarak bu değerden sonra ise sıcaklık $T=T_s$ olacak şekilde zamana bağlı olarak çözülmüştür.
- iv- Her bir T_s sıcaklığı için elde edilen bozunum eğrisi için $[(I_t / I_0)^{(1-1.5)/1.5}]$ 'in zamana göre grafiği çizilmiş ve eğimi hesaplanmıştır.
- v- Her bir T_s sıcaklığı için bir üst basamakta hesaplanan eğimlerin doğal logaritmaları alınarak her bir eğim için ona karşı gelen T_s değeri yardımı ile $\ln(\text{eğim})$ in $(1/k.T_s)$ 'ye göre grafiği çizilmiştir.
- vi- Son olarak bu eğrinin eğimi tuzak derinliğine eşit olacaktır. Eğrilerin eğimleri tüm T_s değerleri üzerinden hesaplandığında elde edilen değerler çizelge 3'de sunulmuştur.

Çizelge 3 GOK modeli için farklı b değerlerinde hesaplanan E ve s değerleri

b (Kinetik Mertebe)	E (eV) Teorik	S (s^{-1}) Teorik	Veri aralığı ($^\circ\text{C}$)	E (eV) - ID	s (s^{-1}) - ID $\times 10^{12}$
1.2	0.90	10^{12}	82-33	0.900±0.001	0.952±0.0028
	1.00		120-71	1.000±0.001	0.956±0.0005
	1.10		157-108	1.100±0.001	0.961±0.0093
	1.20		194-145	1.200±0.001	0.964±0.0061
	1.30		231-182	1.300±0.001	0.967±0.0019
	1.40		268-219	1.400±0.001	0.969±0.0069
	1.50		305-256	1.500±0.001	0.971±0.0010
	1.60		341-292	1.600±0.001	0.973±0.0048
	1.70		378-329	1.700±0.001	0.975±0.0081
	1.80		415-366	1.800±0.001	0.976±0.0011
	1.90		451-402	1.900±0.001	0.977±0.0035
	2.00		488-439	2.000±0.001	0.978±0.0059

Çizelge 3 GOK modeli için farklı b değerlerinde hesaplanan E ve s değerleri (devam)

b (Kinetik Mertebe)	E (eV) Teorik	S (s^{-1}) Teorik	Veri aralığı ($^\circ\text{C}$)	E (eV) - ID	s (s^{-1}) - ID $\times 10^{12}$
1.4	0.90	10^{12}	82-33	0.900±0.001	0.952±0.0028
	1.00		120-71	1.000±0.001	0.956±0.0005
	1.10		157-108	1.100±0.001	0.961±0.0093
	1.20		194-145	1.200±0.001	0.964±0.0061
	1.30		231-182	1.300±0.001	0.967±0.0019
	1.40		268-219	1.400±0.001	0.969±0.0069
	1.50		305-256	1.500±0.001	0.971±0.0010
	1.60		341-292	1.600±0.001	0.973±0.0048
	1.70		378-329	1.700±0.001	0.975±0.0081
	1.80		415-366	1.800±0.001	0.976±0.0011
	1.90		451-402	1.900±0.001	0.977±0.0035
	2.00		488-439	2.000±0.001	0.978±0.0059

Çizelge 3 GOK modeli için farklı b değerlerinde hesaplanan E ve s değerleri (devam)

b (Kinetik Mertebe)	E (eV) Teorik	S (s ⁻¹) Teorik	Veri aralığı (°C)	E (eV) - ID	s (s ⁻¹) – ID x10 ¹²
1.6	0.90	10 ¹²	82-33	0.900±0.001	0.952±0.0028
	1.00		120-71	1.000±0.001	0.956±0.0005
	1.10		157-108	1.100±0.001	0.961±0.0093
	1.20		194-145	1.200±0.001	0.964±0.0061
	1.30		231-182	1.300±0.001	0.967±0.0019
	1.40		268-219	1.400±0.001	0.969±0.0069
	1.50		305-256	1.500±0.001	0.971±0.0010
	1.60		341-292	1.600±0.001	0.973±0.0048
	1.70		378-329	1.700±0.001	0.975±0.0081
	1.80		415-366	1.800±0.001	0.976±0.0011
	1.90		451-402	1.900±0.001	0.977±0.0035
	2.00		488-439	2.000±0.001	0.978±0.0059

Çizelge 3 GOK modeli için farklı b değerlerinde hesaplanan E ve s değerleri (devam)

b (Kinetik Mertebe)	E (eV) Teorik	S (s ⁻¹) Teorik	Veri aralığı (°C)	E (eV) - ID	s (s ⁻¹) – ID x10 ¹²
1.8	0.90	10 ¹²	82-33	0.900±0.001	0.952±0.0028
	1.00		120-71	1.000±0.001	0.956±0.0005
	1.10		157-108	1.100±0.001	0.961±0.0093
	1.20		194-145	1.200±0.001	0.964±0.0061
	1.30		231-182	1.300±0.001	0.967±0.0019
	1.40		268-219	1.400±0.001	0.969±0.0069
	1.50		305-256	1.500±0.001	0.971±0.0010
	1.60		341-292	1.600±0.001	0.973±0.0048
	1.70		378-329	1.700±0.001	0.975±0.0081
	1.80		415-366	1.800±0.001	0.976±0.0011
	1.90		451-402	1.900±0.001	0.977±0.0035
	2.00		488-439	2.000±0.001	0.978±0.0059

Sonuç

Bu çalışma kapsamında öncelikle TL mekanizmayı açıklayan 3 temel teorik model üzerinde durulmuştur. Bu modeller; birinci mertebeden (FOK), ikinci mertebeden (SOK) ve genel mertebeden (GOK) kinetik parametrelere sahip modellerdir. Çalışmada ilk olarak TL modeller tarafından ileri sürülen enerji-bant diyagramları ve her bir model için yük taşıyıcıların mümkün hareket mekanizmaları literatür yardımı ile elde edilmiştir [9, 25, 32-34]. Her bir model tarafından ileri sürülen değişkenler ve parametreler literatüre bağlı kalınarak tanımlanmış, tanım aralıkları belirlenmiştir. Ardından yük taşıyıcı trafiğini ifade eden diferansiyel denklemler model tarafından ileri sürülen enerji-bant diyagramına uygun olarak türetilmiştir. Bu denklemlerin nümerik çözümlerinin yapılabilmesi için, Mathematica 8.0 ortamında koşturulabilecek bilgisayar kodlarına dönüştürülmüşlerdir. Denklemler belirli başlangıç koşulları altında sıcaklığa göre çözümlenerek sayısal ışıldama eğrileri elde edilmiştir. Elde edilen sayısal ışıldama eğrileri, literatürdeki deneysel ışıldama eğrileri ile aynı karakteristiklere sahip oldukları görülmüş ve modellerin bilgisayar ortamına dönüştürülmesinde uygulanan ve yöntem kısmında ayrıntıları ile sunulan prosedürün uygun olduğu sonucuna ulaşılmıştır. Çalışmanın ikinci kısmında ID yöntemi bilgisayar kodları haline dönüştürülmüştür. Bu amaçla modellerin nümerik çözümlerinin yapılması aşamasında kullanılan başlangıç koşulları sisteme yüklenmiş ve ID yönteminin uygulanacağı her bir model için pik maksimum sıcaklıkları belirlenmiştir. Ardından her bir model için ileri sürülen ID deneyi bilgisayar ortamında simüle edilmiş ve her bir model için tuzak parametreleri hesaplanmıştır. ID yöntemi ile tuzak derinliğinin hesaplanmasında yapılan hata oranı $< \% 0.001$ mertebesindedir. Diğer taraftan frekans faktörünün hesaplanması sırasında yapılan hata ise $< \% 0.01$ mertebesindedir. Yapılan simülasyon çalışmalarından elde edilen veriler ışığı altında yazar tarafından aşağıdaki sonuçlara ulaşılmıştır:

- i- Termolüminesans yayınlanmayı açıklamak için ileri sürülen bazı temel modellerin bu çalışma kapsamında elde edilen sayısal çözümlerinin, literatürde öne sürülen karakteristikleri ile benzer özelliklere sahip oldukları gözlemlenmiştir.
- ii- Termolüminesans yayınlanmayı açıklayan modellerin sayısal çözümlerini elde etmek için; yöntemler kısmında detaylı bir şekilde açıklanan temel prosedürler sırasıyla uygulanmalıdır.
- iii-ID yönteminin bilgisayar ortamında simüle edilebilmesi için yöntemler kısmında detaylı bir şekilde açıklanan temel prosedürler sırasıyla uygulanmalıdır.
- iv-Hesaplanan tuzak parametrelerinin hassasiyeti ve işlem karmaşası göz önüne alındığında T_s sıcaklıkları için optimum değer aralığı $(T_m-40^\circ\text{C}) - (T_m+10^\circ\text{C})$ olması gerektiği sonucuna ulaşılmıştır.
- v- ID deney süresinin yaklaşık olarak 220s civarında olması gerektiği sonucuna ulaşılmıştır.
- vi-Bu çalışmada ID yöntemi bilgisayar ortamında başarılı bir şekilde simüle edilmiştir.

Teşekkür

Bu çalışma Karamanoğlu Mehmetbey Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Komisyonu tarafından BAP 38-M-12 numaralı proje kapsamında desteklenmiştir.

Kaynaklar

- [1] Chen, R. (1968). Glow curves with general order kinetics. *J. Electrochem. Soc.*, 116: 1254-1257.
- [2] Chen, R. (1969). On the calculation of activation energies and frequency factors from glow curves. *J. Appl. Phys.*, 40-2: 570 – 585.
- [3] Chen R. (1970). On the computation of the generalized integral in glow curve theory. *J. Comput. Phys.*, 6-2: 314 - 316.
- [4] Mohan, N. M., Chen, R. (1970). Numerical curve fitting for calculating glow parameters. *J. Phys: D. Appl. Phys.*, 3: 243 – 247.
- [5] Shenker D., Chen, R. (1970). Numerical curve fitting of general order kinetics glow peaks. *J. Phys: D. Appl. Phys.*, 4: 287 – 291.
- [6] Shenker D., Chen, R. (1972). Numerical solution of the glow curve differential equations, *J. Comput. Phys.*, 10-2: 272 – 283.
- [7] Chen R., Kristianpoller, N., Davidson, Z., Visocekas, R. (1981a). Mixed, first and second order kinetics in thermally stimulated processes. *J. Lumin.*, 23: 293-303.
- [8] Chen, R., McKeever S.W.S., Durrani, A. D. (1981b). Solution of the kinetic equations governing trap filling. Consequences concerning dose dependence and dose - rate effects. *Phys. Rev. B*, 24-9: 4931 – 4944.
- [9] McKeever, S.W.S., Rhodes, J.F., Mathur, V.K., Chen, R., Brown, M.D., Bull, R.K. (1985). Numerical solutions to the rate equations governing the simultaneous release of electrons and holes during thermoluminescence and isothermal decay. *Phys. Rev. B*, 32-6: 3835 – 3843.
- [10] McKeever, S.W.S., Bull, R.K. (1985). Numerical solutions to the rate equations governing the simultaneous release of electrons and holes during thermoluminescence and isothermal decay. *Phys. Rev. B*, 32-6: 3835 – 3843.
- [11] Bertucci M., Veronese I., Cantone M.C. (2011). Photo-transferred thermoluminescence from deep traps in quartz. *Radiat. Meas.*, 46:6–7, 588-590.
- [12] Jose M.T., Anishia S.R., Annalakshmi O., Ramasamy V. (2011). Determination of thermoluminescence kinetic parameters of thulium doped lithium calcium borate. *Radiat. Meas.*, 46-10: 1026-1032.
- [13] Denis G., Deniard P., Rocquefelte X., Benabdesselam M., Jobic S. (2010). The thermally connected traps model applied to the thermoluminescence of Eu^{2+} doped $\text{Ba}_{13-x}0.6\text{Al}_{22-2x}\text{Si}_{10+2x}\text{O}_{66}$ ($x\sim 0.6$) materials. *Opt. Mater.*, 32-9: 941-945.
- [14] Cruz-Zaragoza E., Ortiz A., Furetta C., Flores J.C., Hernández A.J., Murrieta S.H. (2011). Thermoluminescence analysis of co-doped NaCl at low temperature irradiations. *Appl. Radiat. Isotopes*, 69-2: 334-339.

- [15] Geeta S., Lochab S.P., Nafa S. (2010). Investigation of thermoluminescence characteristics of CaSrS: Ce nanophosphors. *Physica B: Condens. Matter.*, 405-21: 4526-4529.
- [16] Singh M., Kaur N., Singh L. (2012). Thermoluminescence characteristics of high gamma dose irradiated natural quartz. *Nucl. Instr. Meth. B*: 276: 19-24.
- [17] Wu H., Hu Y., Ju G., Chen L., Wang X., Yang, Z. (2011). Photoluminescence and thermoluminescence of Ce³⁺ and Eu²⁺ in Ca₂Al₂SiO₇ matrix. *J. Lumin.* 131-12: 2441-2445.
- [18] Zahedifar M., Harooni S., Sadeghi E. (2011). Thermoluminescence kinetic analysis of quartz using an improved general order model for exponential distribution of activation energies. *Nucl. Instr. Meth. A*: 654-1: 569-574.
- [19] Mandowski A., Bos J.J. (2011). Explanation of anomalous heating rate dependence of thermoluminescence in YPO₄:Ce³⁺, Sm³⁺ based on the semi-localized transition (SLT) model. *Radiat. Meas.*, 46-12: 1376-1379.
- [20] Chen R., Lawless J.L., Pagonis V. (2012). Two-stage thermal stimulation of thermoluminescence, *Radiat. Meas.*, 47- 9: 809-813 .
- [21] Pagonis V., Chen R., Lawless J. L. (2012). Superlinear dose response of thermoluminescence (TL) and optically stimulated luminescence (OSL) signals in luminescence materials: An analytical approach. *J. Lumin.*, 132-6: 1446-1455.
- [22] González P.R., Furetta C., Cruz-Zaragoza E. (2011). New modified expressions for isothermal decay of Teflon embedded LiF:Mg,Cu,P and BaSO₄:Eu phosphors. *Appl. Radiat. Isotopes*, 69-2: 511-515.
- [23] Kucuk İ., Yildirim T., Gasanly N. M., Özkan H. (2010). Computational modeling of isothermal decay curves of trapping centers in TiGaSeS layered single crystals. *J. Alloys Compounds*, 507-2, 517-520.
- [24] Choubey A., Das S., Sharma S.K., Manam J. (2010). Calculation for the trapping parameters of K₃Na(SO₄)₂ phosphor by isothermal luminescence decay method. *Mater. Chem. Phys.*, 120-3: 472-475.
- [25] McKeever, S.W.S. (1985). Thermoluminescence of Solids, Cambridge University Press, London, s.98-101.
- [26] Chen R., Lockwood D.J. (2002). Developments in luminescence and display materials over the last 100 years as reflected in electrochemical society publications. *J. Electrochem. Soc.*, 149-9: 69-78.
- [27] Randall J.T., Wilkins M.H.F. (1945a). Phosphorescence and electron traps I. A study of trap distributions. *Proceedings of the Royal Soc. A, Math. Phys. Sci.*, 184: 366-389.
- [28] Randall J.T., Wilkins M.H.F. (1945b). Phosphorescence and electron traps II. The interpretation of long period phosphorescence. *Proceedings of the Royal Soc. A, Math. Phys. Sci.*, 184: 390-407.

- [29] Garlick G.F.J, Gibson A.F. (1948). The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors. *Proc. Phys. Soc.*, 60: 574-590.
- [30] May C.E., Partridge, J.A. (1964). Thermoluminescence kinetics of alpha irradiated alkali halides. *J. Chem. Phys.*, 40: 1401–1409.
- [31] Partridge J.A., May, C.E. 1965. Anomalous thermoluminescence kinetics of irradiated alkali halides. *J. Chem. Phys.*, 42: 797-798
- [32] Furetta, C. (2003). Handbook of Thermoluminescence, Word Scientific, New Jersey, s. 176-181.
- [33] Chen, R., McKeever, S.W.S. (1997). Theory of thermoluminescence and Related Phenomena, Word Scientific, Singapore s.88-96.
- [34] Chen, R., Pagonis V. (2011). Thermally and optically stimulated luminescence. A simulation approach. Wiley&Sons, Wiltshire, s.81.