

ETKİLEŞİMLİ ÇOKLU TUZAK MODELİNİN SAYISAL OLARAK ÇÖZÜMLENMESİ ve GERÇEK MALZEMELERE UYGULANMASI

Erdem UZUN

Karamanoğlu Mehmetbey Üniversitesi, Kamil Özdağ Fen Fakültesi Fizik Bölümü, 70100, Karaman-TÜRKİYErdemuzun@kmu.edu.tr

ÖZET

Termolüminesans olay radyasyon dozlarının ölçülmesinde yaygın olarak kullanılan bir yöntemdir. Bu yöntem ile radyasyon dozlarının ölçülmesinde dikkat edilmesi gereken en önemli nokta termolüminesans ışımaya belirleyen temel tuzak parametrelerinin belirlenmesidir. Bu parametrelerin belirlenmesi ve termolüminesans ışıma mekanizmasının açıklanması için bugüne kadar birçok model ileri sürülmüştür. Bu çalışmada etkileşimli çoklu tuzak modeli incelenmiş, fiziksel modeli yapılmış, model tarafından ileri sürülen diferansiyel denklemler sayısal yöntemler ile çözülmüş ve sonuçlar gerçek malzemeler ile kıyaslanmıştır. Teorik ve deneysel çalışmalardan elde edilen sonuçlar ışığında bu modelin termolüminesans mekanizmayı açıklamadaki başarısı tartışılmıştır.

Anahtar Sözcükler : Seydişehir alümina, IMTS, termolüminesans olay, tuzak parametreleri

ABSTRACT

Thermoluminescence phenomenon, have been commonly utilized for measurement of radiation doses. Most important point of the measurement of radiation doses by using this method is that fundamental traps parameters influencing thermoluminescence process. Up to now, several models are asserted to determine of the trap parameters and to explain of thermoluminescence process. In this work, interactive multi-trap model was investigated, physical model was performed, differential equations, which is asserted by the model, were solved by numerically and results were compared with real materials. In the light of results obtained from theoretical and experimental studies the proficiency of this model to explain the thermoluminescence process was discussed.

Keywords : Seydişehir alumina, IMTS, thermoluminescence, trap parameters

1. GİRİŞ

Termolüminesans olay, termodinamik denge durumunda bulunan bir sistemin dış enerji kaynağından enerji soğurarak uyarılması sonucunda yarı kararlı duruma geçmesi ve ardından ısı enerjisi yardımıyla fazla enerjinin yayınlanarak sistemin denge durumuna dönmesi olarak tanımlanabilir. Burada uyarılmaya neden olan dış enerji kaynağı iyonlaştırıcı radyasyondur.

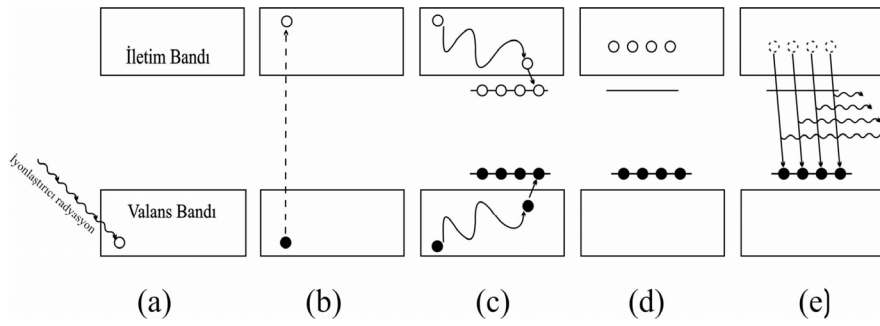
Şekil 1’de TL olayın basamakları grafik olarak sunulmuştur. Bir yalıtkan ya da yarıiletken kristal, iyonlaştırıcı

radyasyona maruz kaldığında enerji soğurur (Şekil 1a). Bu soğurulma, valans bandındaki elektronların bir kısmının serbest kalmasına ve kristal içerisinde serbest elektron-boşluk çiftlerinin meydana gelmesine neden olur (Şekil 1b). Serbest kalan elektronlar iletim bandında ve boşluklar valans bandında hareket ederler. Bu hareket sırasında serbest yük taşıyıcılar zıt işaretli başka yük taşıyıcılar ile yeniden birleşebilir ya da kristal içerisindeki kusur ve safsızlıklar tarafından meydana getirilmiş olan yük taşıyıcı tuzakları (tuzak durumları, trapping states) tarafından yakalanabilirler (Şekil 1c). Tuzaklara yakalanan elektronlar,

ortamın sıcaklığı ve tuzak seviyesinin aktivasyon enerjisine (tuzak derinliğine) bağlı olarak tuzaklarda bir süre kalırlar. İyonlaştırıcı radyasyonun ortamdaki uzaklaştırılmasının ardından kristal kontrollü bir şekilde ısıtılır. Isıtma sürecinde tuzaklardaki yük taşıyıcılar yakalandıkları tuzaklardan kaçabilecek kadar ısı enerjisi kazandıklarında serbest kalarak yeniden iletim bandına geçerler (Şekil 1d). Serbest kalan elektronlar, kristal içerisinde hareket ederken zit işaretli yük taşıyıcıları ile yeniden birleşirler ve eğer yeniden birleşme olayı ışınımlı ise lüminesans bir foton yayınlanır (Şekil 1e). Bu süreç TL mekanizmasının en basit açıklamasıdır.

elektromanyetik ışınım yaparlar ve bu ışınım siyah cisim ışınımı olarak bilinmektedir. Cismin sıcaklığına bağlı olarak siyah cisim ışınımının yoğunluğu da değişmektedir (Burgh, 1967). TL olayda ise yalnızca iyonlaştırıcı radyasyona maruz kalan cisim TL ışınımı yapabilir ve bu süreç sonunda cismin yeniden TL ışınımı yapabilmesi için tekrar ışınlanması gerekmektedir.

Fermi - Dirac istatistiğine göre bir sistemde 0 K ve termodinamik denge durumunda, Fermi enerji seviyesinin



Şekil 1 Termoluminesans olay

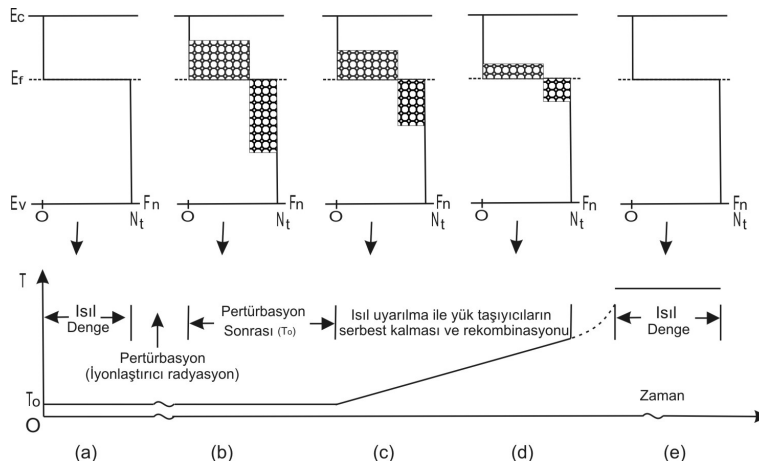
Isı enerjisi yardımıyla sistem denge durumuna dönerken yayınlanan lüminesans ışınım tüm süreç boyunca izlenir. Kristalden yayınlanan lüminesans ışınım, sıcaklığın bir fonksiyonu olarak kaydedilir ve ışınım eğrisi (glow curve) grafiği elde edilir. Bu ışınım, sistemin denge durumuna dönme hızıyla orantılıdır.

Termoluminesans özellik gösteren kristaller, radyasyona maruz kaldıktan sonra, ısıtıldıklarında ışınım yaparlar; ancak bu ışınım siyah cisim ışınımından farklıdır. Bilindiği gibi doğadaki bütün cisimler, sıcaklıklarına bağlı olarak,

(E_f) üzerinde bulunan tüm enerji durumları tamamen boş iken bu seviyenin altında kalan tüm enerji durumları ise tam olarak doludur. Bu durum Şekil 2a'da görülmektedir.

Şekil 2'deki enerji bant diyagramı üç bileşenden oluşmaktadır;

- İletim bandının tabanını temsil eden E_c seviyesi,
- Valans bandının tavanını temsil eden E_v seviyesi,
- E_c ve E_v enerji seviyeleri arasında kalan ve yasak bant bölgesinde bulunan yük taşıyıcı tuzaklarının enerji durum dağılımı.



Şekil 2 a) Termodinamik denge. b) Işınım sonrası. c - d) Isıtma süreci. e) $T > T_0$ termodinamik denge (McKeever ve Chen, 1997).

Bu tip diyagramlara doldurma diyagramları (filling diagrams) denilmektedir. Doldurma diyagramındaki enerji durumlarının yük taşıyıcıları (elektron - elektron boşluğu) ile doldurulması bir $F_n(E)$ Fermi - Dirac doldurma fonksiyonu (filling function) ile temsil edilir. $F_n(E)$ belirli bir enerji durumunda bulunan elektronların (ve boşlukların) yerleşme olasılığını tanımlamaktadır. Şekil 2a'da 0 K'deki keyfi bir Fermi - Dirac doldurma fonksiyonu ve Şekil 2b'de ise iyonlaştırıcı radyasyon ile uyarılmanın ardından ortaya çıkan yeni bir doldurma fonksiyonu görülmektedir. Bu yeni fonksiyon yasak bant bölgesinde yerleşmiş olan yük taşıyıcı tuzakları tarafından yakalanan elektron ve boşlukların (oluşan elektron ve boşlukların eşit konsantrasyonlarda olduğu kabul edilmektedir) dağılımlarını vermektedir. Şekil 2c ve Şekil 2d'de ısı uyarılma sürecinde tuzaklardaki yük taşıyıcılarının serbest kalması ile doldurma fonksiyonunda meydana gelen değişme görülmektedir. Şekil 2e'de doldurma fonksiyonu $F_n(E)$ 'nin ısı uyarılma süreci sonunda, iyonlaştırıcı radyasyon ile uyarılmadan önceki denge durumuna döndüğü görülmektedir, ancak bu durumda sıcaklık daha yüksektir. Şekil 2c ve 2d'de görülen ısıtma sürecinde, sıcaklık sabit ve (1) eşitliğine uygun olarak artmaktadır.

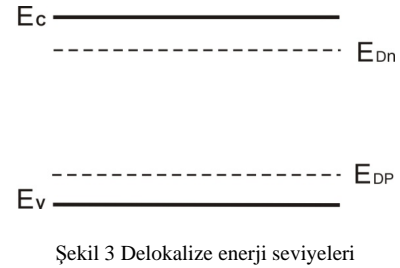
$$T(t) = T_0 + \beta t \quad (1)$$

Burada; T_0 ilk sıcaklık, β ısıtma hızı (heating rate, °C / s) ve t zaman (s)'dir.

Termoluminesans mekanizmayı açıklayıp, enerji seviyeleri arasındaki yük taşıyıcı trafiğini belirlemek için bazı yeni tanımlamalar ve kabuller yapmak gerekmektedir.

- Sadece yük taşıyıcılarının (elektron, boşluk) valans ve iletim bantlarından yük taşıyıcı tuzaklarına geçişleri veya bunun tam tersi geçişler ile ilgilenilecektir. Tuzaklar arası yük taşıyıcı geçişleri dikkate alınmayacaktır.
- Bir yük taşıyıcısının ısı olarak uyarılıp tuzaktan kurtularak kendi delokalize enerji bandına ("delocalized band", Şekil 3) geçme olasılığı, zıt işaretli bir serbest yük taşıyıcısı ile karşılaşarak yeniden birleşme olasılığından büyük olduğu kabul edilecektir.

- Tuzaktaki bir yük taşıyıcısının, zıt işaretli başka bir yük taşıyıcısı ile yeniden birleşme (recombination) olasılığının ısı uyarılma olasılığından büyük olduğu merkezlere yeniden birleşme merkezleri (recombination center) denir.
- Yeniden birleşme olasılığı ile delokalize banda geçme olasılığının birbirine eşit olduğu enerji seviyesine demarkasyon seviyesi (demarcation level) denir. Her iki tip yük taşıyıcısı için demarkasyon seviyeleri tanımlanmaktadır. (Elektronlar için E_{Dn} , boşluklar için E_{Dp} , Şekil 3)
- İletim bandında bulunan bir elektronun (enerjisi $\geq E_c$), E enerjili ($E_c > E \geq E_{Dn}$) bir tuzığa geçişi ışınımsızdır ve sadece örgü titreşimi (fonon) yayınlanır. Benzer şekilde, valans bandındaki bir boşluğun (enerjisi $\leq E_v$), E enerjili ($E_{Dp} > E \geq E_v$) bir tuzığa geçişi ışınımsızdır ve sadece fonon yayınlanır.
- $E \geq E_c$, yani iletim bandındaki serbest elektronların, $E_f > E > E_{Dp}$ bölgesinde bulunan tuzaklara yakalanmış boşluklarla yeniden birleşmesi ışınımlıdır ve foton yayınlanır.
- $E \leq E_v$ olan serbest boşlukların serbest elektronlarla yeniden birleşmesi ışınımlıdır ve foton yayınlanır.



Şekil 3 Delokalize enerji seviyeleri

Şekil 3'deki diyagramda, tuzak enerji seviyeleri için, düzgün bir durum dağılımı görülmektedir. Herhangi bir keyfi durum yoğunluğu fonksiyonu $N(E)$ için delokalize bantların elektron ve boşluk konsantrasyonlarındaki değişim sırasıyla (2) ve (3) eşitlikleri ile verilebilir.

$$\frac{dn_c}{dt} = \int_{E_{Dn}}^{E_c} p_n(E) \cdot N(E) \cdot f(E) \cdot dE - n_c \cdot \nu_n \int_{E_{Dn}}^{E_c} \sigma_n(E) \cdot N(E) \cdot (1-f(E)) \cdot dE - n_c \cdot \nu_n \int_{E_{Dp}}^{E_f} \sigma_{nn}(E) \cdot N(E) \cdot (1-f(E)) \cdot dE \quad (2)$$

$$\frac{dn_v}{dt} = \int_{E_v}^{E_{Dp}} p_p(E) \cdot N(E) \cdot (1-f(E)) \cdot dE - n_v \cdot \nu_p \int_{E_v}^{E_{Dp}} \sigma_p(E) \cdot N(E) \cdot f(E) \cdot dE - n_v \cdot \nu_p \int_{E_f}^{E_{Dn}} \sigma_{np}(E) \cdot N(E) \cdot f(E) \cdot dE \quad (3)$$

Yük taşıyıcıların tuzaklardan kurtulma olasılığı (4) eşitliği ile tanımlanabilir

$$p = s \cdot \exp\left(\frac{-E}{k.T}\right) \quad (4)$$

Burada k Boltzmann sabiti ($k = 1,38 \times 10^{-13} \text{J} / \text{K}$), T sıcaklık ve s kaçmaya teşebbüs etme frekansdır (attemp to escape). s'nin değerinin örgü titreşimi ile aynı mertebede olduğu ($10^6 - 10^{14} \text{s}^{-1}$) kabul edilir (Chen ve McKeever, 1997, Milman vd., 1998, Kulkarni vd. 2005).

Termolüminesans sinyalin karakteristiğini, ışımaya pikinin farklı doz ve ısıtma hızlarında nasıl bir değişime uğradığını açıklayabilmek için bu güne kadar birçok modeli sürülmüştür. Bu çalışmada termolüminesans olgunun açıklanması için faydalanılan ve diğerleri ile kıyaslandığında kısmen daha karmaşık bir yapıya sahip olan IMTS (Interactive Multi Traps Model) tartışılacaktır.

2. IMTS MODELİ

Termolüminesans ışımayı açıklamak için önerilen basit modeller yalnızca bir tuzak ve bir yeniden birleşme merkezi önermektedir. Ancak gerçek malzemeler birden fazla sayıda elektron tuzakları ve yeniden birleşme merkezi ihtiva etmektedirler. Basit modellerin en önemli kabulü $n = m$ yani tuzaklardaki elektron konsantrasyonunun (n), tuzaklardaki boşluk konsantrasyonu (m) ile eşit olmasıdır. Gerçek kristallerde sığ elektron tuzakların yanı sıra derin tuzaklarda bulunmaktadır. Sıcaklık kontrollü bir şekilde artırıldığında önce sığ tuzaklarda bulunan elektronlar serbest kalırken, daha yüksek sıcaklıklarda ise daha derin tuzaklarda bulunan elektronlar serbest kalmaktadır (Chen ve Lockwood, 2005). Böylece yük eşitliğini ifade eden bağıntı (5) halini alır.

$$n + h = m \quad (5)$$

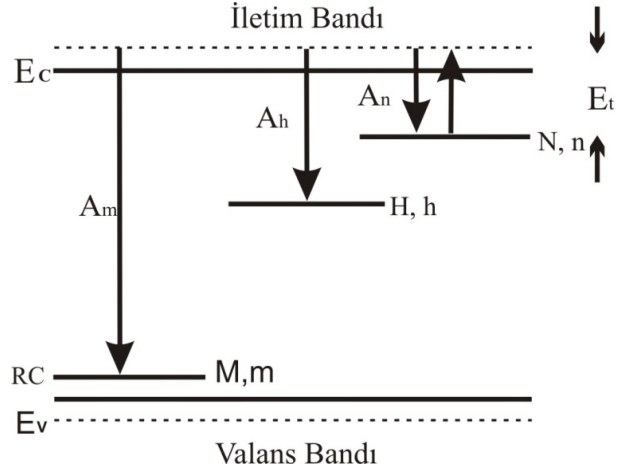
Burada h derin tuzaklarda bulunan elektron konsantrasyonunu ifade etmektedir. Görece düşük sıcaklıklarda, sığ tuzaklardaki elektronlar serbest kalırken derin tuzaklardaki elektronlar serbest kalmak için daha fazla ısı enerjisi ihtiyaç duyarlar ve tuzaklardan kurtulamazlar. Bu nedenle, görece düşük sıcaklıklarda, derin tuzakların ısı bağlantısız (thermally disconnected) oldukları kabul edilmektedir.

Bu model tarafından önerilen izinli geçişler Şekil 4'de görülmektedir.

Derin tuzaklardaki elektron konsantrasyonunun değişim hızı eşitlik (6) ile verilmektedir.

$$\frac{dh}{dt} = n_c \cdot (H - h) \cdot A_h \quad (6)$$

Burada H toplam derin tuzak konsantrasyonudur.



Şekil 4 IMTS modelinin öne sürdüğü enerji seviyeleri ve izinli geçişler

Sığ elektron ve boşluk tuzaklarındaki elektron trafiğini ifade eden eşitlikler sırasıyla (7) ve (8) ile verilmiştir;

$$\frac{dn}{dt} = -n \cdot s \cdot \exp\left(-\frac{E}{k.T}\right) + n_c \cdot (N - n) \cdot A_n \quad (7)$$

$$\frac{dh}{dt} = n_c \cdot (H - h) \cdot A_h \quad (8)$$

İletim bandındaki serbest elektron konsantrasyonunun değişim hızı ise eşitlik (9) ile verilir.

$$\frac{dn_c}{dt} = -\frac{dn}{dt} - \frac{dm}{dt} - \frac{dh}{dt} \quad (9)$$

Bu durumda E_t enerjili sığ tuzaklardan serbest kalan elektronların hem yeniden birleşme merkezleri ve hem de derin tuzaklar tarafından yakalanması hesaba katılmış olmaktadır. Bu nedenle ısı olarak bağlantısız olan derin tuzakların, sığ tuzaklardan serbest kalan elektronları yakalayarak yeniden birleşme merkezleri ile yarıştığı söylenebilir ve derin tuzaklar "etkileşimli" (interactive) tuzaklar olarak adlandırılmaktadır. Yayınlanan TL ışımaya eşitlik (10) ile verilmektedir. $H = h$ ve $dn / dt = 0$ özel durumunda denklem 11 yazılabilir.

$$I_{TL} = n_c \cdot (h + n + n_c) \cdot A_m \quad (10)$$

$$I_{TL} = \frac{n \cdot s \cdot \exp\{-E_t / k.T\} \cdot (n + h) \cdot \sigma_m}{[(N - n) \sigma_n + (n + h) \sigma_m]} \quad (11)$$

Bu denklemde yeniden tuzaklara yakalanma olasılığının diğer olasılıklara göre çok küçük olduğu kabul edilirse, $[(N - n) \sigma_n \ll (n + h) \sigma_m]$, (11) eşitliği birinci mertebeden Randall-Wilkins termolüminesans denklemine dönüşür. Yeniden tuzaklara yakalanma olasılığının büyük olduğu

kabul edilirse; $[(N - n) \sigma_n \gg (n + h) \sigma_m]$ ve $n \ll N$ ile birlikte, eşitlik (12),

$$I_{TL} = \frac{n.s.\exp\{-E_t/k.T\} \cdot (n+h) \cdot \sigma_m}{N \cdot \sigma_n} \quad (12)$$

ya da $\sigma_n = \sigma_m$ durumunda eşitlik (13) haline gelir.

$$I_{TL} = \frac{n.s.\exp\{-E_t/k.T\} \cdot (n+h)}{(N+h)} \quad (13)$$

$s' = s / (N + h)$ tanımı kullanılarak eşitlik (12) ve (13) yeniden düzenlenirse;

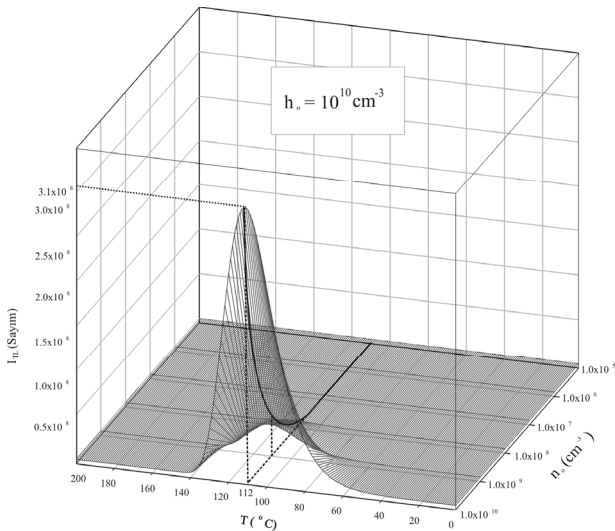
$$I_{TL} = s'.n.h.\exp\left\{-\frac{E_t}{k.T}\right\} + s'.n^2.\exp\left\{-\frac{E_t}{k.T}\right\} \quad (14)$$

Eşitlik (13) açık halde yazıldığında birinci ve ikinci mertebeden terimleri içerdiği görülmektedir. Özellikle eğer $h \ll n$ ise denklem birinci derece özel durumuna ve $h \gg n$ ise denklem ikinci derece özel durumuna indirgenmiş olmaktadır. Bu nedenle (14) eşitliği karma mertebeden olarak adlandırılmaktadır.

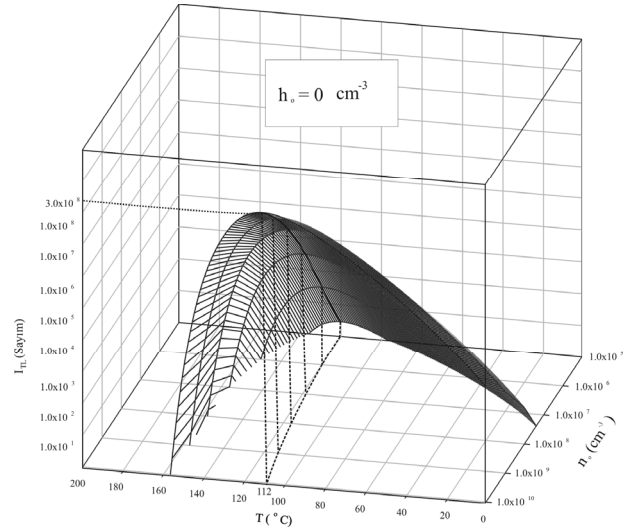
3. IMTS MODELİNİN SAYISAL ÇÖZÜMLENMESİ

IMTS modeli için elde edilen denklem sistemleri (3-14) zamana ve sıcaklığa bağlı olarak Mathematica 5.0 programı ve Çizelge 1-4'de verilen başlangıç koşulları kullanılarak sayısal olarak çözülmüştür.

Derin elektron tuzaklarının tam dolu ve boş olduğu durumların ışımaya piki, pik maksimum şiddeti ve sıcaklığı üzerindeki etkisi Şekil 5a ve Şekil 5b'de, çözüm için kullanılan parametreler ise Çizelge 1'de ayrıntılı olarak sunulmuştur.



Şekil 5a n_0 ve h_0 'ın ışımaya piki üzerindeki etkisi

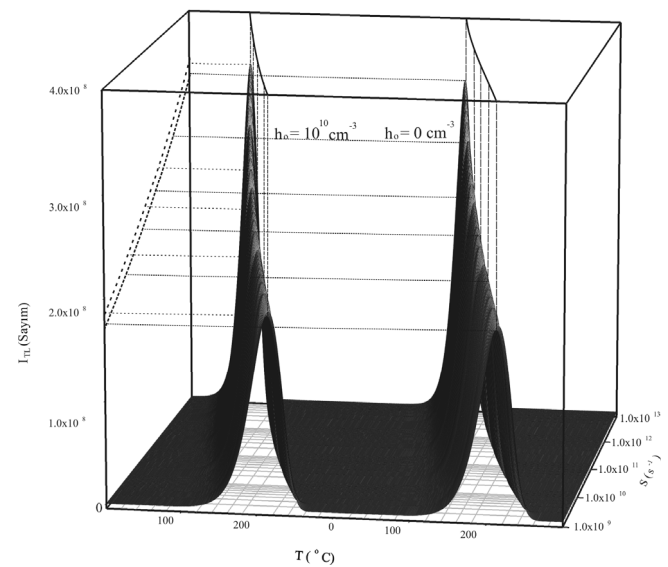


Şekil 5b n_0 ve h_0 'ın pik maksimum şiddeti üzerindeki etkisi

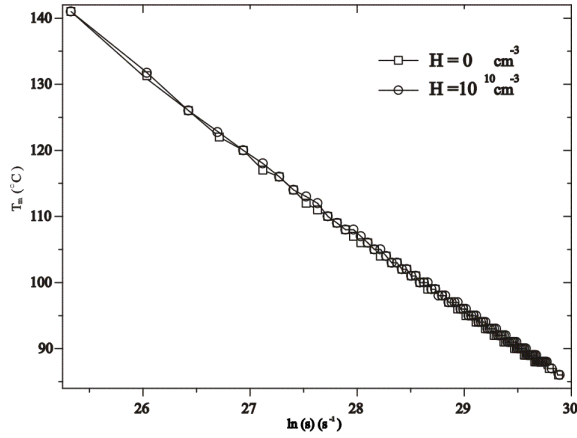
Çizelge 1 Şekil 5a ve b için ışımaya eğrisi parametreleri

n_0-h_0 (cm^{-3})	N, H (cm^{-3})	S (s^{-1})	β ($^{\circ}\text{C}/\text{s}$)	E_t (eV)	A_h-A_n	A_m
$0-10^{10}$	10^{10}	10^{12}	1	1.0	10^{-9}	10^{-7}

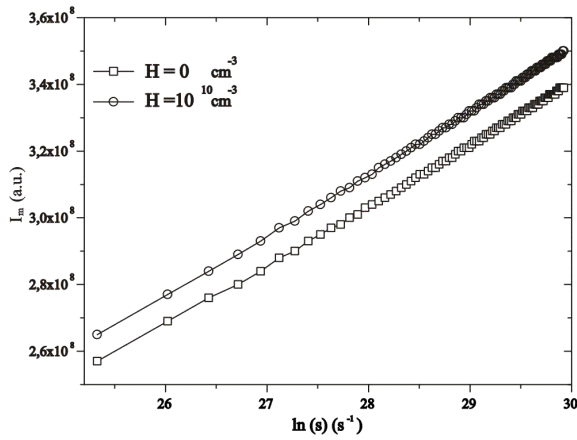
Şekil 6a'da frekans faktörünün (s) ışımaya eğrisi, Şekil 6b'de s 'nin pik maksimum sıcaklığı ve Şekil 6c'de s 'nin pik maksimum şiddeti üzerindeki etkisi görülmektedir. Çözümde kullanılan parametreler Çizelge 2'de sunulmuştur.



Şekil 6a s 'nin ışımaya eğrisi üzerindeki etkisi



Şekil 6b s'nin pik maksimum sıcaklığı üzerindeki etkisi



Şekil 6c s'nin pik maksimum şiddeti üzerindeki etkisi

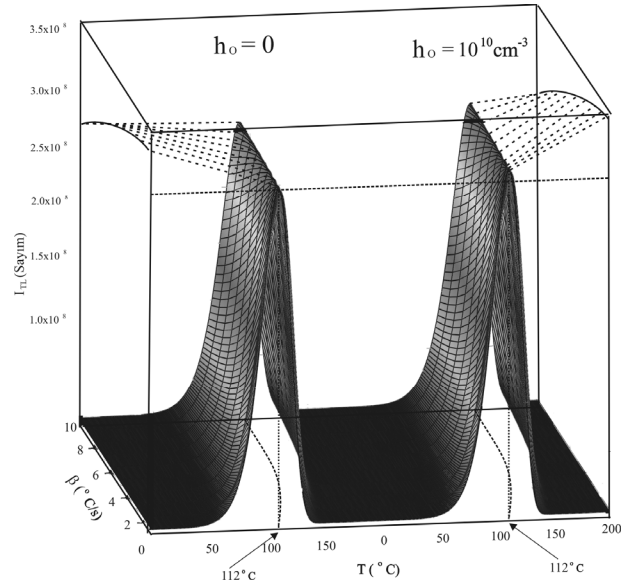
Çizelge 2 Şekil 6a, b ve c için ısıtma eğrisi parametreleri

S (s ⁻¹)	E _t (eV)	β (°C/s)	N, H (cm ⁻³)	A _h -A _n	A _m
10 ⁹ -10 ¹³	1,0	1	10 ¹⁰	10 ⁻⁹	10 ⁻⁷

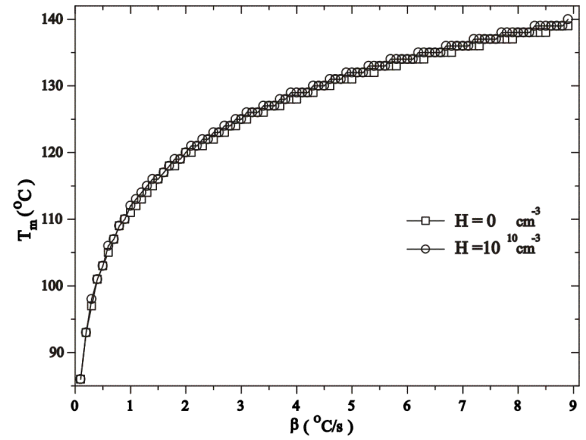
Şekil 7a'da farklı h₀ değerlerinde, ısıtma hızının (β) ısıtma eğrisi, Şekil 7b'de β'nin pik maksimum sıcaklığı ve Şekil 7c'de β'nin pik maksimum şiddeti üzerindeki etkisi görülmektedir. Çözümde kullanılan parametreler Çizelge 3'de sunulmuştur.

Çizelge 3 Şekil 7a, b ve c için ısıtma eğrisi parametreleri

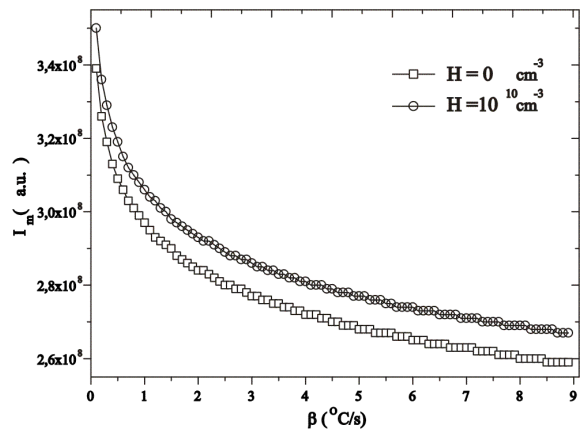
β (°C/s)	S (s ⁻¹)	N, H (cm ⁻³)	E _t (eV)	A _h -A _n	A _m
1-10	10 ¹²	10 ¹⁰	1.0	10 ⁻⁹	10 ⁻⁷



Şekil 7a β'nin ısıtma eğrisi üzerindeki etkisi

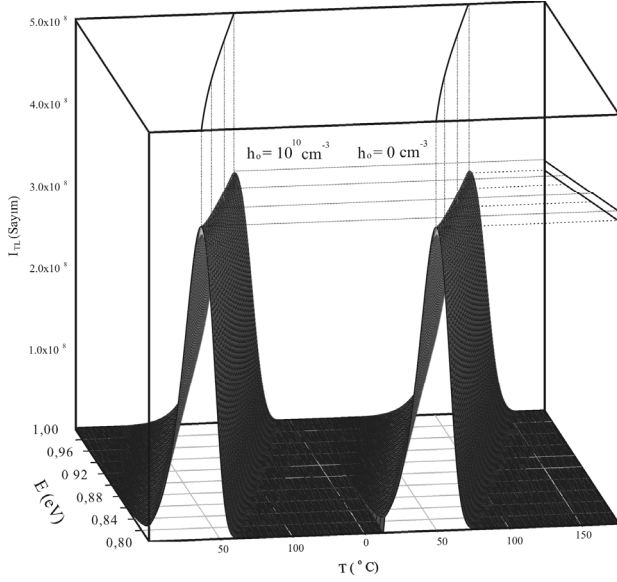


Şekil 7b β'nin pik maksimum sıcaklığı üzerindeki etkisi

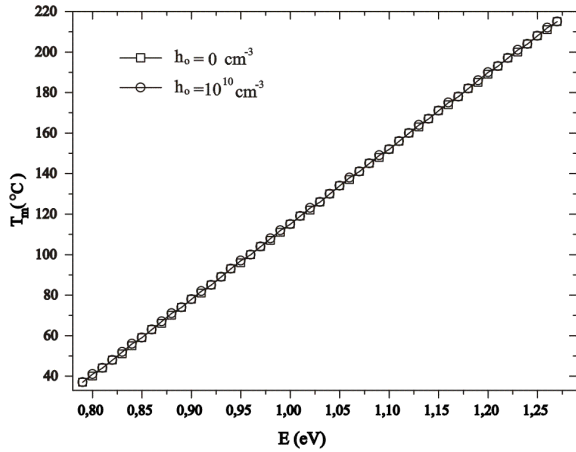


Şekil 7c β'nin pik maksimum şiddeti üzerindeki etkisi.

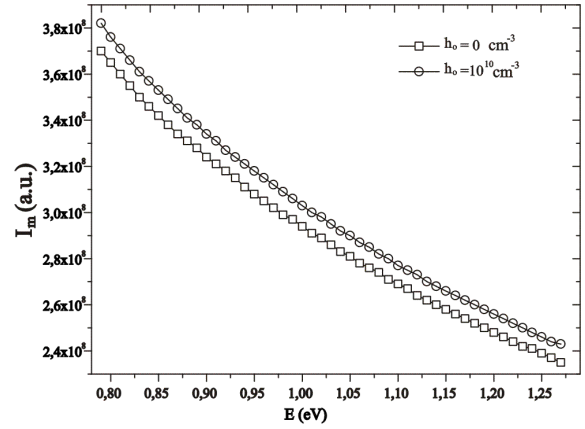
Şekil 8a'da tuzak derinliğinin (E) ışına eğrisi, Şekil 8b'de E'nin pik maksimum sıcaklığı ve Şekil 8c'de E'nin pik maksimum şiddeti üzerindeki etkisi görülmektedir. Çözümde kullanılan parametreler Çizelge 4'de sunulmuştur.



Şekil 8a E'nin ışına eğrisi üzerindeki etkisi.



Şekil 8b E'nin pik maksimum sıcaklığı üzerindeki etkisi.



Şekil 8c E'nin ışına pik maksimum şiddeti üzerindeki etkisi.

Çizelge 4 Şekil 8a, b ve c için ışına eğrisi parametreleri

E_t (eV)	β (°C / s)	S (s ⁻¹)	N, H (cm ⁻³)	$A_h - A_n$	A_m
0.8 - 1.0	1	10^{12}	10^{10}	10^{-9}	10^{-7}

4. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

IMTS modelinde, elektronlar için ikinci bir tuzak enerji seviyesi daha bulunmaktadır. Bu yeni tuzak derin ya da ısıl bağlantısız tuzak olarak bilinmektedir. Bu tuzak tarafından yakalanan elektronların tuzaklardan uyarılmayacağı kabul edilmiştir. Bu modele göre iletim bandında bulunan elektronların hareketi için üç olasılık söz konusudur:

- yeniden sığ tuzaklara yakalanma,
- derin tuzaklara yakalanma,
- rekombinasyon (yeniden birleşme) merkezlerine geçerek termoluminesans ışına yapma.

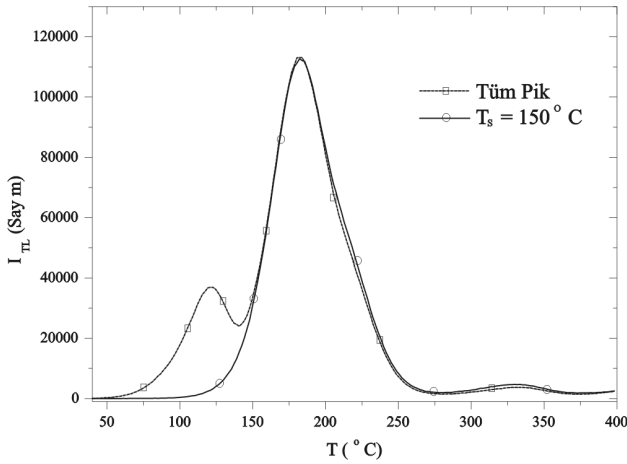
İşına eğrisinin karakteri bu üç olasılığın değerlerine bağlıdır.

Çalışmanın bu kısmında, teorik olarak incelenen IMTS modeli kullanılarak gerçek bir malzemenin ışına piki elde edilmeye çalışılmıştır. Bu amaçla Seydişehir alüminasının 1. ışına piki değerlerinden yalıtılarak elde edilmiş ve tuzak parametreleri deneysel olarak hesaplanmıştır (Çizelge 5) [Uzun, 2008]. Seydişehir alüminası 0-400°C aralığında 4 farklı ışına pikine sahiptir; 1. ışına piki $117 \pm 1,8^\circ\text{C}$ 'de ve ona en yakın olan 2. ışına piki $177 \pm 1,8^\circ\text{C}$ 'de bulunmaktadır. Buradan görülebilir ki; 1. ışına pikinin aktif olduğu $\sim 117 \pm 1,8^\circ\text{C}$ civarında diğer tuzaklar aktif olmadıkları için IMTS modeli tarafından ileri sürülen derin tuzaklar gibi davrandıkları kabul edilebilir.

Çizelge 5 Seydişehir alüminasının 1. ışımaya pikinin tuzak parametreleri
(*deneyden, ** modelden)

$\ln(s)^*$ (s^{-1})	E_t^* (eV)	$n_0-m_0^*$ (cm^{-3})	A_{mn}^{**}	A_m^{**}	A_n^{**}
$23,9 \times 10^9$	0,88	Normalize	$5,0 \times 10^{-7}$	10^{-9}	$3,5 \times 10^{-8}$

1. ışımaya pikinin diğer ışımaya piklerinden yalıtılarak elde edilmesi için aşağıdaki deneysel izlek uygulanmıştır: Deneylere başlamadan önce elektron tuzaklarında radyasyon ya da diğer etkiler ile birikmiş olması muhtemel kalıntı elektronların temizlenmesi için öncelikle malzeme $600^\circ C$ 'de 15 dakika süre ile tavlınmıştır. $4,45 Gy$ 'lik beta radyasyonu ile ışınlanan örneklerin tüm ışımaya eğrisi elde edilmiştir. Ardından tavlınmış ve tekrar aynı doz ile ışınlanmıştır. Malzeme, $T = 150^\circ C$ 'ye kadar ısıtılmış, ardından oda sıcaklığına kadar soğutulmuş ve oda sıcaklığından başlayarak ışımaya eğrisi elde edilmiştir. Elde edilen ışımaya eğrileri birbirinden çıkartılarak (Şekil 9) 1. ışımaya piki deneysel olarak elde edilmiştir.

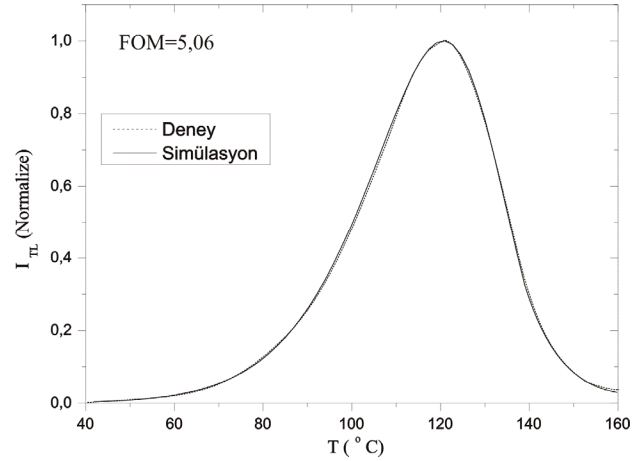


Şekil 9 Seydişehir alüminasının ön ısıtma görmüş ve görmemiş ışımaya eğrileri

Birinci ışımaya pikinin deneysel olarak hesaplanan tuzak parametreleri, IMTS modelinin ileri sürdüğü diferansiyel denklemlerin çözümünde girdi olarak kullanılmış ve denklem sistemi Mathematica 5.0 bilgisayar programı yardımı ile sayısal olarak çözülmüştür. Böylece Seydişehir alüminasının ışımaya piki sayısal olarak elde edilmiştir. Şekil 10'da, Seydişehir alüminasının hem deneysel ve hem de sayısal yöntemler ile elde edilen ışımaya pikleri görülmektedir.

5. SONUÇLAR ve TARTIŞMA

IMTS modeli için elde edilen diferansiyel denklemler (Denklem 3 – Denklem 14) bir bilgisayar programı yardımı ile sayısal olarak çözülmüştür.



Şekil 10 Seydişehir alüminasının deneysel ve IMTS modeli yardımı ile elde edilen 1. ışımaya piki

Derin elektron tuzaklarının (h) elektronlar ile tam olarak dolu (Şekil 5a) veya boş (Şekil 5b) olduğu durumlarda; ışımaya pik şiddetinin artan elektron konsantrasyonu (n_0) ile arttığı ve azalması ile de azaldığı gözlemlenmiştir. Diğer taraftan h'nin tamamen boş olduğu durumda; sıg tuzaklardan (n) serbest kalan elektronların bir kısmı derin tuzaklar tarafından yakalandığı için, ışımaya pik şiddetindeki artışın daha az olduğu gözlemlenmiştir. Bu azalma özellikle sıg tuzaklarda bulunan elektron konsantrasyonundaki azalma ile belirgin hale gelirken (Şekil 5b), elektron konsantrasyonundaki artış ile de etkisini kaybetmektedir. Bu modele göre h, elektronlar için sonsuz derinlikli bir potansiyel kuyusu gibi davranmaktadır ve derin tuzaka düşen bir elektronun, termolüminesans yayınlanma sürecinde tuzaktan kurtulması mümkün olmamaktadır. Böylece h tarafından yakalanan elektronlar termolüminesans ışımaya eğrisine katkıda bulunamazlar. Derin tuzaklarda bulunan elektron konsantrasyonunun azalması, derin tuzakların elektron yakalama olasılığını arttıracığı için ışımaya pik şiddetinin ve pik altında kalan alanın azalmasına neden olacaktır. Buna zıt olarak, derin tuzaklardaki elektron konsantrasyonunun artması onların elektron yakalama olasılığını azaltacağından ışımaya pik şiddetinin ve pik altında kalan alanın, derin tuzakların tam olarak boş olduğu duruma göre, artmasına neden olacaktır. Sıg tuzaklarda bulunan elektron konsantrasyonunun azalması, buradaki elektronların birim zamanda serbest kalan miktarının azalmasına ve dolayısıyla da termolüminesans ışımaya şiddetinin azalmasına neden olmaktadır (Şekil 5a). Diğer taraftan pik maksimum sıcaklığının (T_m) sabit kalması, tuzak derinliğinin ya da s parametresinin değişmemiş olmasından kaynaklanmaktadır. Dolayısıyla derin tuzakların tam dolu olduğu durumda, n_0 'ın artması ya da azalması tuzaklardaki elektronların serbest kalması için gerekli olan ısı enerjisinde değişmeye yol açmamaktadır. Diğer taraftan derin tuzakların tamamen boş ve n_0 'ın konsantrasyonunun

düşük olduğu durumda; her iki faktörde elektronların rekombinasyon yapma olasılığını azaltacağı için T_m 'nin yüksek sıcaklık bölgesine doğru kaydığı, n_0 konsantrasyonunun artması ile de kaymanın ortadan kalktığı görülmektedir (Şekil 5b).

Frekans faktörünün artması ile ışımaya pik şiddetinin arttığı ve pik maksimumunun düşük sıcaklık bölgesine doğru hareket ettiği gözlemlenmiştir (Şekil 6a). Frekans faktörü (s), tuzaklardaki elektronların buldukları tuzaklardan, ısı enerjisi yardımıyla, birim zamanda kaçmaya teşebbüs etme olasılığının bir ölçüsüdür. Frekans faktörü arttıkça elektronların tuzaklardan kurtulma olasılığı artacağından daha düşük sıcaklıklarda serbest kalırlar ve böylece ışımaya piki düşük sıcaklık bölgesine doğru hareket eder. Pik şiddetinin frekans faktörüyle değişmesi ise, frekans faktöründe meydana gelen artışın ya da azalmanın birim zamanda daha az ya da fazla sayıda elektronun tuzaklardan serbest kalmasından kaynaklanmaktadır. Burada dikkat edilmesi gereken en önemli nokta; herhangi bir s değerlerinde, derin tuzaklardaki elektron konsantrasyonunda meydana gelen değişimin pik maksimum sıcaklığını etkilemediğidir (Şekil 6b). Diğer taraftan, aynı s değerlerinde, derin tuzakların tamamen boş olduğu durumdaki ışımaya pik şiddetinin, derin tuzakların tamamen dolu olduğu durum ile kıyaslandığında daha zayıf olduğu görülmektedir (Şekil 6a ve c). Bu durum ısı etkisi ile serbest kalan elektronların bir kısmının derin tuzaklar tarafından yakalanması sonucu ortaya çıkmaktadır.

Isıtma hızındaki (β) artışın, ışımaya pik maksimumunun hafifçe yüksek sıcaklık bölgesine doğru hareket etmesine ve pik şiddetinin azalmasına neden olduğu gözlemlenmiştir (Şekil 7a). Isıtma hızının artması, termolüminesans malzemenin sıcaklığını kısa süre içerisinde yükselteceği için ışımaya pikinin daha kısa bir süre içerisinde elde edilmesine ve daha kısa bir zaman aralığında daha çok sayıda elektronun tuzaklardan serbest kalacak kadar ısı enerjisi kazanmasına neden olacaktır. Ancak, sıcaklığın hızlı bir şekilde yükselmesi ve diğer faktörlerinde sabit olması nedeniyle, şimdi düşük sıcaklıklarda serbest kalabilecek elektronların bir kısmı daha yüksek sıcaklıkta serbest kalacaktır. Bilindiği gibi ısı enerjisi yardımı ile serbest kalan elektronların bir kısmı rekombinasyon yaparken bir kısmı da tuzaklar tarafından yakalanmaktadır. Sığ tuzaklar tarafından yakalanan elektronlar ısı enerjisi yardımı ile yeniden serbest kalırlar ve yukarıdaki süreç tekrarlanır. Isıtma hızının artması, ışımaya eğrisinin elde edilme süresini kısaltır ve elektronların bir ΔT sıcaklık aralığında rekombinasyona teşebbüs etme olasılığını azaltır. ($\beta_1 < \beta_2$ olsun. Malzemenin her iki ısıtma hızında ki aynı bir ΔT sıcaklığında bulunma süreleri; $\Delta t_1 = 1/\beta_1$ ve $\Delta t_2 = 1/\beta_2$ 'dir ve $\Delta t_1 > \Delta t_2$). Bu ise pik maksimumuna karşı gelen sıcaklığın artmasına ve ışımaya pikinin genişlemesine neden olacaktır. Tuzaklarda bulunan elektron konsantrasyonu sabit olduğu için böyle bir genişlemenin pik maksimum şiddetinin azalmasına neden

olduğu $H=0 \text{ cm}^{-3}$ - $H=10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (Şekil 7a) durumlarında gözlemlenmiştir. Şekil 7a'daki ışımaya pikleri kıyaslandığında; farklı ısıtma hızlarında aynı karakterlere ve pik sıcaklıklarına sahip oldukları (Şekil 7b) fakat derin tuzaklar boş olduğunda ışımaya piklerinin daha zayıf olduğu gözlemlenmiştir. İki durum arasında gözlemlenen bu fark, serbest kalan elektronların bir kısmının derin tuzaklar tarafından yakalanması sonucunda ortaya çıkmaktadır. Bu etki Şekil 7c'de daha açık bir şekilde görülmektedir.

Sığ elektron tuzak enerji seviyelerinin derinliğinin artması, elektronların bu tuzaklardan kurtulması için daha fazla ısı enerjisine gereksinim duymasına neden olacağından pik maksimum sıcaklığının artması beklenir ve bu durum Şekil 8a'da görülmektedir. Şekil dikkatle incelendiğinde, derin tuzak enerji seviyelerinin tamamen boş olduğu durumda, ışımaya piklerinin daha zayıf oldukları görülmektedir. Işıma piklerindeki bu zayıflama, termolüminesans proses sırasında serbest kalan elektronların bir kısmının derin tuzaklar tarafından yakalandığını göstermektedir. Diğer taraftan tuzak derinliğinin artması, elektronların bu tuzaklardan kurtulması için gerekli olan ısı enerjisini kazanacağı sıcaklığa ulaşma süresini de arttıracaktır. Ancak, bu sıcaklığa ulaşmaya kadar Arrhenius denkleminde (Chen ve McKeever, 1997) göre bir miktar elektron henüz kritik sıcaklığa ulaşmadan gerekli ısı enerjisi kazanarak serbest kalabilir ve böylece artan tuzak derinliği ile pik maksimum şiddeti azalır (Şekil 8a ve c). Farklı E değerlerinde, derin tuzaklardaki elektron konsantrasyonunun pik maksimum sıcaklığı ve şiddeti üzerindeki etkisi Şekil 8b ve c'de görülmektedir. Şekil 8b'de herhangi bir E değeri için, derin tuzaklardaki elektron konsantrasyonunun artmasının ışımaya pik sıcaklığını değiştirmediği, ancak pik maksimumunu azalttığı gözlemlenmiştir (Şekil 8c). Bu etkinin derin tuzaklardaki elektron konsantrasyonunun artması ile azaldığı görülmüştür.

Bu çalışmada incelenen IMTS modelinin, gerçek bir malzemenin ışımaya pikini temsil edebilirliği de araştırılmıştır. Bu amaçla Seydişehir alüminasının 1. ışımaya piki deneysel olarak elde edilmiş (Şekil 9) ve termolüminesans tuzak parametreleri deneysel yöntemler ile hesaplanmıştır (Çizelge 5). Bu parametreler kullanılarak Seydişehir alüminası için IMTS modeli yardımı ile bir enerji bant diyagramı oluşturulmuş ve bilgisayar yardımı ile ışımaya piki elde edilmiştir. Elde edilen ışımaya piki deneysel ışımaya piki ile karşılaştırıldığında (Şekil 10) ve deneysel hatalar da göz önünde bulundurulduğunda, IMTS modelinin gerçek bir malzemenin ışımaya pik karakteristiğine yaklaşık olarak sahip olduğu, ancak, tam olarak temsil edemediği görülmüştür (FOM=5,06). Bu bilgiler ışığında, modelin karmaşık termolüminesans mekanizmaların açıklanmasında yetersiz kaldığı, fakat onların anlaşılabilmesine yardımcı olduğu düşünülmüştür.

KAYNAKLAR

- Uzun, E. (2008), "Seydişehir Alüminasının Termoluminesans Özelliklerinin Karakterizasyonu ve Doz-Cevap Özelliklerinin Araştırılması", Yıldız Teknik Üniversitesi, Doktora Tezi, İstanbul
- Milman, I. I., Kortov, V. S. ve Nikiforov, S.V., (1998), "An Interactive Process in the Mechanism of the Thermally Stimulated Luminescence of Anion-Defective $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$ Crystals", Radiation Measurements Vol. 29. No. 3 – 4: 401 – 410.
- Kulkarni, M. S., Mishra, D. R., Muthe, K .P., Ajay Singh, Royc, M., Gupta, S.K. ve Kannan, S. (2005), "An Alternative Method of Preparation of Dosimetric Grade $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ by Vacuum – Assisted Post – Growth Thermal Impurification Technique", Radiation Measurements 39 : 277 – 282.
- Chen, R., ve Lockwood, D. J., (2002), "Developments in Luminescence and Display Materials Over the Last 100 Years as Reflected in Electrochemical Society Publications", Journal of The Electrochemical Society, 149 (9): 69 - 78.
- Chen R. ve McKeever S. W. S. (1997), Theory of thermoluminescence and Related Phenomena, Word Scientific, Singapore.
- Burgh, W. M., (1967), "Thermoluminescence, Low Radiation Dosage and Black - Body Radiation", Physics in Medicine and Biology, Vol. 12, No. 4: 523-530