ANKARA ÜNİVERSİTESİ NÜKLEER BİLİMLER ENSTİTÜSÜ

DOKTORA TEZİ

DOĞAL KUVARSTA RADYASYONLA YARATILAN YAPI KUSURLARININ İNCELENMESİ: BİRLEŞTİRİLMİŞ TL, OSL VE EPR ÇALIŞMASI

ŞULE KAYA KELEŞ

MEDİKAL FİZİK ANABİLİM DALI

ANKARA 2020

Her hakkı saklıdır

TEZ ONAYI

Şule KAYA KELEŞ tarafından hazırlanan "Doğal Kuvarsta Radyasyonla Yaratılan Yapı Kusurlarının İncelenmesi: Birleştirilmiş TL, OSL ve EPR Çalışması" adlı tez çalışması aşağıdaki jüri tarafından oy birliği / oy çokluğu ile Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Medikal Fizik Anabilim Dalı'nda **DOKTORA** Tezi olarak kabul edilmiştir.

Danışman : Prof. Dr. Niyazi MERİÇ

Eş Danışman: Dr. George POLYMERIS

Jüri Üyeleri :

Prof. Dr. Ayşe KAŞKAŞ Ankara Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü

Prof. Dr. Enver BULUR Orta Doğu Teknik Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü(

Prof. Dr. Niyazi MERİÇ Ankara Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü

Prof. Dr. Ülkü SAYIN Selçuk Üniversitesi, Fen Fakültesi, Fizik Bölümü

Doç. Dr. Eren ŞAHİNER Ankara Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof. Dr. Niyazi MERİÇ Enstitü Müdürü

ЕТІК

Bu tezdeki tüm bilgilerin akademik kurallara ve etik davranış ilkelerine uygun olarak elde edinildiğini 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.

Adı Soyadı: Şule KAYA KELEŞ

Imza:

ÖZET

Doktora Tezi

DOĞAL KUVARSTA RADYASYONLA YARATILAN YAPI KUSURLARININ İNCELENMESİ: BİRLEŞTİRİLMİŞ TL, OSL VE EPR ÇALIŞMASI

Şule KAYA KELEŞ

Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Medikal Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. Niyazi MERİÇ Eş danışman: Dr. George POLYMERIS

Kuvars, geriye dönük dozimetride kullanılan ve çok tercih edilen bir mineraldir. Kristal yapısı, safsızlıklar ve yapı kusurları kökenine göre çeşitlilik göstermektedir. Bu nedenle, doğal kuvars lüminesans özellikleri için önemlidir. Bu çalışmada, laboratuvar ortamında ısıtılmamış, ön-doz verilmiş kuvars örneği; retrospektif dozimetri, tarihlendirme ve referans kuvars materyali gibi etkili uygulamalara yönelik olarak incelenmiştir. Çalışmanın amacı, Termolüminesans (TL) (yüksek sıcaklık TL pikleri), Optik Uyarımlı Lüminesans (OSL) (sürekli dalga (CW) ve doğrusal modülasyon (LM)) ve Elektron Paramanyetik Rezonans (EPR) sinyalleri arasında bir korelasyon bulmaktır. Mevcut çalışma, hızlı CW-OSL bileşeni ile bazı LM-OSL ve TL pikleri arasında üçlü bir ilişki olduğunu gösterirken, tüm bu lüminesans sinyalleri Ge merkezinin $g_2 = 1.9975$ sinyali ile ilişkilendirilmiştir. Bu çalışma, (i) bir TL pikinin iki LM-OSL bileşeninden daha fazlası için kaynak olabileceği ve (ii) iki farklı TL pikinin de aynı OSL bileşenine katkıda bulunabileceğine dair deneysel kanıtlar sunmaktadır. Ayrıca, EPR sinyalinde, Ge merkezinden kaynaklandığı düşünülen EPR sinyalinin yanı sıra, daha önce literatürde tanımlanmamış bir bileşenin de analizi yapılmıştır.

Bu tez, TÜBİTAK tarafından 117F300 proje ile kısmi olarak desteklenmiştir.

2020, 146 sayfa

Anahtar Kelimeler: TL, OSL, EPR, Korelasyon, Radyasyon doz cevabı, Termal kararlılık, Ge merkezi, MDDL, Yüksek sıcaklık TL pikleri.

ABSTRACT

Ph.D Thesis

INVESTIGATION OF RADIATION INDUCED DEFECTS OF NATURAL QUARTZ: A COMBINED TL, OSL AND EPR STUDY

Şule KAYA KELEŞ

Ankara University Institute of Nuclear Sciences Department of Medical Physics

Supervisor: Prof. Dr. Niyazi MERİÇ Co-advisor: Dr. George POLYMERIS

Quartz is one of the most preferred mineral inclusions used in retrospective dosimetry. Its crystal structure as well as its impurity content and concentration and the lattice defects exhibit diversities according to its origin. Therefore, it is important to the luminescence properties of natural quartz. In the present work, un-heated, pre-dosed quartz is investigated towards its effective applications such in retrospective dosimetry, dating and as a reference quartz material. The purpose of the study is to find a correlation between Thermoluminescence (TL) (high temperature TL peaks), Optically Stimulated Luminescence (OSL) (both continuous wave (CW) and linear modulation (LM)) and Electron Paramagnetic Resonance (EPR) signals. The present work indicated a triple correlation between the fast CW-OSL component and certain peaks of LM-OSL and TL while all these luminescence entities are attributed to the $C2_{EPR}$ at g_2 (Landé splitting factor) ($g_2 = 1.9975$). The present study provides experimental evidence that (i) one TL peak might be the source for more than two LM-OSL components and (ii) even two different TL peaks can contribute to the same OSL component. Furthermore, on the EPR signal, besides the well established Ge center, another un-identified component has been resolved.

This thesis was partially supported by TÜBİTAK with the 117F300 project number.

2020, 146 pages

Keywords: TL, OSL, EPR, Correlation, Radiation dose response, Thermal stability, Ge centre, MDDL.

TEŞEKKÜR

Doktora tez çalışması boyunca bilimsel desteğini esirgemeyen, tezin her aşamasında tecrübelerini paylaşan ve Enstitümüzdeki cihazları kullanmama olanak sağlayan Danışman Hocam Sayın Prof. Dr. Niyazi MERİÇ'e sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmalarım boyunca bilgi ve deneyimini benden esirgemeyen, her konuda sabrını ve anlayışını hissettiğim hem hoca hem de arkadaş olarak desteğini esirgemeyen Eşdanışman Hocam Sayın Dr. Georgios S. POLYMERIS'e içten duygularımla sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Doktora çalışmamın başından itibaren çalışmalarımı takip eden, bilimsel bilgi ve desteğini esirgemeyen, manevi desteğini hep hissettiğim Tez İzleme Komitesi'nde yer alan Hocam Sayın Prof. Dr. Enver BULUR'a içten duygularımla sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Doktora tez çalışmam süresince, bilgi ve deneyimi ile bana destek olan, yol gösteren Tez İzleme Komitesi'nde yer alan Hocam Sayın Prof. Dr. Ayşe KAŞKAŞ'a içten duygularımla teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmamda maddi destek sağlayan TÜBİTAK'a (Proje no: 117F300) teşekkürlerimi sunarım.

Lisans eğitiminden itibaren varlığını hissettiğim, desteğini esirgemeyen sevgili arkadaşım Sayın Dr. Öğr. Gör. Asena YALÇIN'a ve Lisansüstü eğitimim boyunca bilgi birikimiyle akademik hayatıma katkıda bulunan tüm hocalarıma sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Her türlü koşulda beni destekleyen, varlıklarını ruhumda hissettiren, hep yanımda olan, sabrı, anlayışı öğreten, hayata hazırlayan ve yol gösteren, gece gündüz demeden benim için emek veren, yaptığım her işe anlam katmamı sağlayan, varlıkları için şükrettiğim Ailem Sayın İ. Yalçın KAYA, Semra KAYA, Elvan KAYA ARABACI, Pınar KAYA, Erkan KELEŞ ve Samed ARABACI'ya; bitanecik yiğenim Zeynep ARABACI'ya; canım oğlum Toprak KELEŞ'e en içten duygularımla sevgi, saygı ve teşekkürlerimi sunarım.

Şule KAYA KELEŞ Ankara, Şubat 2020

Canım oğlum Toprak'a

İÇİNDEKİLER

ÖZET
ABSTRACTi
TEŞEKKÜRii
İÇİNDEKİLERiv
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİvi
ŞEKİLLER DİZİNİvii
ÇİZELGELER DİZİNİxii
1. GİRİŞ
2. KURAMSAL TEMELLER
2.1 Lüminesans Olayı11
2.2 Enerji Band Modeli12
2.3 Termolüminesans (TL)15
2.3.1 TL kinetik ifadeleri
2.4 Optik Uyarımlı Lüminesans (OSL)
2.4.1 CW-OSL
2.4.2 LM-OSL
2.5 Elektron Paramanyetik Rezonans (EPR)
2.5.1 Zeeman etkisi
2.5.2 Spin-orbit etkileşmesi
2.5.3 g faktörü
2.5.4 Çizgi Şekli
2.5.5 Aşırı ince (hyperfine) ve süper ince (super-hyperfine) yapı yarılması
2.5.6 EPR sinyal şiddeti
2.6 Kinetik Parametrelerin Analiz Yöntemleri
2.6.1 Işıma eğrisi ayrıştırma yöntemleri
2.6.2 Kesikli ışıma eğrisi tekniği
2.6.3 Tuzak parametrelerinin belirlenmesi40
2.7 Doğrusallık (k) ve minimum ölçülebilen doz limiti (MDDL)42
2.8 Isısal Sönümleme
2.9 Termal Kararlılık44
2.10 Hassasiyet Değişimi44
2.11 Kuvarsın Moleküler Yapısı ve Kusurları45
2.11.1 Kuvarsın noktasal kusurları47

2.11.1.1 Yapı içi (intrinsik) kusurlar48
2.11.1.2 Safsızlıklardan kaynaklanan kusurlar49
3. MATERYAL
3.1 Kuvars
3.2 Lüminesans Ölçüm Sistemi55
3.3 EPR Sistemi
4. YÖNTEM
4.1 Merck Kuvarsın Kalsinasyon Sıcaklığının Belirlenmesi66
4.2 110 °C TL Pikinin Deneysel Ölçümleri67
4.2.1 110 °C TL pikinin ısıtma ve ışınlama ile hassasiyet değişimi67
4.2.2 110 °C TL pikinin ayrıştırması67
4.2.3 110 °C TL pikinin radyasyon doz cevabı68
4.3 Yüksek Sıcaklık TL Piklerinin Deneysel Ölçümleri69
4.3.1 HTTL piklerinin tuzak parametrelerinin belirlenmesi
4.3.1.1 Kesikli ışıma tekniği analizi70
4.3.1.2 HTTL piklerinin ayrıştırma analizi70
4.3.2 CW-OSL azalım eğrilerinin ayrıştırılması ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi
4.3.3 LM-OSL eğrilerinin ayrıştırılması ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi71
4.3.4 EPR ölçüm parametrelerinin optimizasyonu71
4.3.5 Termal kararlılık deneyleri73
4.3.6 HTTL piklerinin TL, OSL ve EPR yöntemleriyle radyasyon doz cevabının incelenmesi74
4.4 Ağartma işleminden sonra kuvarsta olağan dışı LM-OSL eğri şekillerinin incelenmesi
4.5 TL, CW-OSL ve LM-OSL Sinyallerinin Tavlama Sıcaklığı İle Değişimi77
4.6 Doz Yeniden Oluşturma Testi78
5. BULGULAR
5.1 Merck Kuvarsın Kalsinasyon Sıcaklığının Belirlenmesi
5.2 110 °C TL Piki İçin Elde Edilen Sonuçlar80
5.2.1 110 °C TL pikinin hassasiyet değişimi80
5.2.2 110 °C TL pikinin ayrıştırılması81
5.2.3 110 °C TL pikinin radyasyon doz cevabı83
5.3 Yüksek Sıcaklık TL Piklerinin Deneysel Bulguları86
5.3.1 HTTL piklerinin tuzak parametrelerinin belirlenmesi87
5.3.1.1 Kesikli ışıma tekniği analizi87

5.3.1.2 HTTL ışıma eğrisinde ayrıştırma analizi8	38
5.3.2 CW-OSL azalım eğrilerinin ayrıştırılması ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi	91
5.3.3 LM-OSL eğrilerinin ayrıştırma analizi ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi) 2
5.3.4 Termal kararhhk	94
5.3.5 Radyasyon doz cevabi) 6
5.3.5.1 TL radyasyon doz cevabı9) 6
5.3.5.2 CW-OSL ve LM-OSL radyasyon doz cevabı9) 8
5.3.5.3 EPR radyasyon doz cevabi9) 9
5.3.6 Doğrusallık (k) ve minimum ölçülebilen doz limiti (MDDL)) 9
5.4 Ağartma işleminden sonra kuvarsta olağan dışı LM-OSL eğri şekillerinin incelenmesi10)1
5.5 Tavlama İle TL, CW-OSL ve LM-OSL Sinyallerinin Değişimi)6
5.5.1 TL ışıma eğrilerinin farklı tavlama sıcaklıklarındaki değişimi10)6
5.5.2 CW-OSL azalım eğrilerinin farklı tavlama sıcaklıklarındaki değişimi1()7
5.5.3 LM-OSL azalım eğrilerinin farklı tavlama sıcaklıklarındaki değişimi10)8
5.6 Doz Yeniden Oluşturma Testi10)9
6. TARTIŞMA VE SONUÇ11	11
7. DEĞERLENDİRME12	24
KAYNAKLAR12	27
ÖZGEÇMİŞ14	12

SİMGELER DİZİNİ

β	Isitma hizi
CW	Sürekli-dalga (Continious-wave)
eV	Elektron volt
exp	Exponansiyel
Ε	Aktivasyon enerjisi
EPR	Elektron Paramanyetik Rezonans
FGT	Kesikli Işıma Tekniği (Fractional Glow Technique)
fm	Femtometre (fermi)
FOM	İlgi alanı (Field of Merit)
Gy	Gray (J/kg)
HTTL	Yüksek Sıcaklık TL (High temperature TL)
IR	Kızılötesi (Infrared)
k	Boltzmann sabiti
k.b.	Keyfi birim (arbitrary unit)
LM	Çizgisel Kiplenimli (Lineer Modulated)
MDDL	Ölçülebilen minimum doz limiti
nm	Nanometre, 1 nm=10 ⁹ m
OSL	Optik uyarımlı lüminesans
OTOR	Tek Tuzak Tek Yeniden Birleşme (One Trap One Recombination)
RC	Yeniden birleşme merkezi
σ	Foto-iyonizasyon tesir kesiti
⁹⁰ Sr	Stronsiyum-90
Τ	Mutlak sıcaklık
τ	azalım zamanı
TL	Termolüminesans

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1 a) Floresans, b) fosforensans olaylarında enerji seviyeleri arasındaki geçişler
Şekil 2.2 Mutlak sıfırda, a) değerlik bandının kısmen dolu olduğu ve iletkenlik bandı
ile arasında bant boşluğunun bulunmadığı iletken malzeme ve değerlik bandı arasında
Eg enerjili bant boşluğu (yasak enerji bandı) bulunması durumlarında b) yarı-iletken
ve c) yalıtkan malzemeyi temsil eden şema13
Şekil 2.3 Yalıtkan bir malzemenin mutlak sıfırdaki enerji seviyeleri14
Şekil 2.4 Lüminesans mekanizmasını temsil eden basit enerji-bant modeli15
Şekil 2.5 266 Gy radyasyon dozu ile ışınlanan Merck kuvarsın a) 200 °C'ye kadar
ısıtılarak elde edilen ışıma eğrisini, b) 180 °C'ye kadar ısıtılarak ön-ısıtma yapıldıktan
sonra kuvarsın 500 °C'ye kadar ısıtılarak elde edilen ışıma eğrisi16
Şekil 2.6 Birinci derece $b = 1$ (a, b, c) ve ikinci derece $b = 2$ (d, e, f) kinetik
denklemlerinin özellikleri
Şekil 2.7 OSL uyarım modları CW-OSL, LM-OSL ve POSL'nin uyarım sırasındaki
şiddet değişimi (düz çizgiler) ve elde edilen OSL sinyalinin (noktalı eğriler) şematik
gösterimi23
Şekil 2.8 a) Serbest elektronun spini ve manyetik momenti, b) B0 manyetik alanı
uygulandığında μ 'e göre maksimum ve minimum enerji yönelimi
Şekil 2.9 Uygulanan manyetik alanın (B) bir fonksiyonu olarak serbest elektron için
enerji seviye şeması
Şekil 2.10 g değerinin moleküllerin manyetik alandaki yönelimine bağımlılığı32
Şekil 2.11 g faktörünü oluşturan x, y, z eksen değerlerine göre a) izotropik, b) ve
c)aksiyel ve d) rombik EPR spektrumunun şematik gösterimi
Şekil 2.12 EPR sisteminde manyetik etkileşimin üç tipi a) ince yapı yarılması, b) aşırı
ince yapı yarılması ve c) spin-spin etkileşimi
Şekil 2.13 Nükleer spini $I=1/2$ olan manyetik çekirdek ile tek elektronun etkileşmesi
sunucu oluşan EPR spektrumu
Şekil 2.14 Bruker EMX plus X-bant EPR sisteminde 300 Gy radyasyon dozu ile
ışınlanan kaliş örneğine ait EPR spektrumunun birinci türev sinyali, belirlenen sinyal
şiddet ve genişliği

Şekil 2.15 TL ışıma eğrisinin başlangıçtaki artış kısmı
Şekil 2.16 Başlangıçtaki artış yöntemi kullanılarak elde edilen veriler kullanılarak
çizilen TL ışıma eğrisinin başlangıçtaki artış kısmına uygulanan başlangıçtaki artış
yöntemi
Şekil 2.17 α ve β kuvarsın kararlılık alanları ile magmatik ve metamorfik kayaçların
oluşum koşullarını gösteren Basınç-Sıcaklık diyagramı46
Şekil 2.18 Düzenli silika yapısının üç boyutlu şeması47
Şekil 2.19 Kuvarsın yapı içi (intrinsic) kusurları49
Şekil 2.20 Şekil 2.20 Kuvarsın safsızlık kusurları
Şekil 3.1 Risø TL/OSL Sistemi a) örneklerin yerleştirildiği, uyarımın ve ışınlamanın
yapıldığı kısım, b) sinyal işleme, kaydedilme ve aktarılmanın yapıldığı kısım55
Şekil 3.2 Risø TL/OSL okuyucunun a) şematik gösterimi, b) örnek diskleri ve
planşetleri, c) örnek karuseli
Şekil 3.3 RISØ TL/OSL okuyucuda kullanılan optik filtrelerin geçirgenlik
spektrumları
Şekil 3.4 Bruker EMX plus X-band EPR sistemi ve bileşenleri59
Şekil 3.5 Mikrodalga köprüsünün blok diyagramı60
Şekil 3.6 Standart EPR kavitesinde manyetik ve elektrik alan şekli62
Şekil 3.7 Dalga klavuzu ile kavitenin eşleştirilmesi62
Şekil 3.8 Alan modülasyon ve faz duyarlı dedeksiyon63
Şekil 3.9 a) Modülasyon genliğinin arttırılması ile sinyalin bozulması, b) zaman
sabitinin arttılmasıyla sinyalin bozulması ve kayması64
Şekil 4.1 Merck kuvarsın A, ön ısıtma yapılmamış ışıma eğrisidir, hem 110 $^\circ$ C TL
pikini hem de HTTL'ler içerir, B, TL ışıma eğrisinin 180 ° C'ye kadar ön ısıtmadan
sonra elde edilen HTTL pikleridir ve C, Merck'in arka plan (background) sinyalidir 69
Şekil 4.2 a) 266 Gy ile ışınlanarak oda sıcaklığında ölçülen ısıtılmamış Merck kuvarsın
EPR spektrumundaki tanımlanmamış bileşen (C4 _{EPR}) ve Ge merkezi (C1 _{EPR} , C2 _{EPR} ,
C3 _{EPR}) olarak adlandırılan sinyaller; A _{pp} , EPR sinyalinin şiddetini göstermektedir, b)
farklı radyasyon dozlarıyla ışınlanmış Merck kuvarsın EPR spektrumlarının örneği72
Şekil 4.3 a) Optimum mikrodalga gücünün belirlenmesi için değişken mikrodalga
gücünün kareköküne karşılık çizilen C 2_{EPR} sinyalinin A_{pp} değeri; modülasyon genliği
2 G ve tarama süresi 80 s (10 tarama) kullanılmıştır, b) 2 mW'ta, 80 s x 10 tarama

parametreleri kullanılarak farklı modülasyon genliklerinde (0,2, 1, 2, 5 G) elde edilen
EPR spektrumları73
Şekil 5.1 Merck kuvarsın TL ışıma eğrisinde 200 °C ile 500 °C arasındaki toplam TL
şiddeti kullanılarak 300-1000 °C aralığındaki tavlama sıcaklıklarına karşı TL
hassasiyetinin değişimi
Şekil 5.2 Farklı optik filtre kombinasyonları için ayrıştırılarak elde edilen 110 °C TL
pikinin ilk değere normalize edilmiş TL hassasiyeti80
Şekil 5.3 Ön-doz verilmemiş Merck kuvarsın Optik filtreler için ışıma eğrileri81
Şekil 5.4 Optik filtreler için 50 Gy ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılmış ışıma
eğrileri
Şekil 5.5 Ön-doz verilmemiş örneklerin farklı optik filtreler için 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2,
4, 8, 16, 33, 66, 132 ve 266 Gy radyasyon dozları ile ışınlanmasının ardından elde
edilen ışıma eğrileri
Şekil 5.6 Ön-doz verilmiş örneklerin farklı optik filtreler için 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4,
8, 16, 33, 66, 132 ve 266 Gy radyasyon dozları ile ışınlanmasının ardından elde edilen
ışıma eğrileri
Şekil 5.7 Merck kuvarsın a) ön-doz verilmemiş ve b) ön-doz verilmiş durumları için
110 °C TL pikinin radyasyon doz-cevap eğrisi86
Şekil 5.8 Merck kuvarsın a) ön-doz verilmemiş ve b) ön-doz verilmiş durumları için
110 °C TL pikinin supra-lineerlik indeksi. $D_1 = 0.13$ Gy olarak alınmıştır
Şekil 5.9 Kesikli ışıma tekniğini kullanarak elde edilen analiz sonuçları: 5 °C'lik
adımlarla, 200 °C - 500 °C arasındaki sıcaklık seçilen maksimum sıcaklık değerlerine
karşılık elde edilen a) aktivasyon enerjisi platoları, b) ilgili TL ölçümlerini, c) TL
ölçümlerinin Arrhenius grafiklerini göstermektedir88
Şekil 5.10 Ön-doz verilen Merck kuvarsın farklı optik filtre kombinasyonları için
ayrıştırılan TL ışıma eğrileri
Şekil 5.11 Ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılan CW-OSL (125 °C'de) eğrisi92
Şekil 5.12 Ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılan LM-OSL (125 °C'de) eğrisi93
Şekil 5.13 a) EPR spektrumundaki C1 _{EPR} , C2 _{EPR} and C4 _{EPR} ve CW-OSL azalım
eğrisindeki hızlı bileşenin termal kararlılık eğrileri. Şiddetler başlangıç şiddetine
normalize edilmiştir, b) TL pikleri ile ön-ısıtmaya bağlı azalan sinyal bileşenlerinin

karşılaştırılması için verilen 33 Gy ile ışınlanmış ve 180 °C'ye kadar (ısıtma hızı 1
°C/s) ısıtılmış kuvarsın ışıma eğrisi
Şekil 5.14 Ön-doz verilmiş Merck kuvarsın a) Hoya U-340, b) Schott BG39 & Corning
7-59, c) sadece Schott BG39, d) sadece Corning 7-59 optik filtre kombinasyonları
kullanılarak elde edilen HTTL pikleri için radyasyon doz-cevap eğrileri96
Şekil 5.15 Ön-doz verilen Merck kuvarsın a) 125 °C'de ölçülen CW-OSL azalım
eğrileri ve b) 125 °C'de ölçülen LM-OSL eğrilerinden ayrıştırılarak elde edilen
radyasyon doz-cevap eğrileri
Şekil 5.16 Ön-doz verilen Merck kuvarsın C1 _{EPR} , C2 _{EPR} and C4 _{EPR} bileşenlerinin EPR
radyasyon doz cevapları
Şekil 5.17 200 Gy ile ışınlanan Merck kuvarsın LM-OSL eğrileri: a) 125 °C uyarım
sıcaklığında (T _i), 2, 5, 25, 50, 75, 100 s ağartma süresinin ardından ağartılmamış ve
ağartılmamış LM-OSL sinyalleri, b) log-log ölçeğinde, 100 s ağartma işlemini takiben
125 °C'de ölçülen LM-OSL eğrisinin ayrıştırılması
Şekil 5.18 a) Merck kuvarsın başlangıç sinyal şiddetine normalize edilmiş ölçüm
sıcaklığına bağlı olarak değişen LM-OSL eğrileri, b) LM-OSL ölçümlerinden sonra
ölçülen RTL eğrileri103
Şekil 5.19 a) Merck kuvarsın başlangıç sinyal şiddetine normalize edilmiş ölçüm
sıcaklığına bağlı olarak değişen LM-OSL eğrileri, b) LM-OSL ölçümlerinden sonra
ölçülen RTL eğrileri105
Şekil 5.20 Farklı tavlama sıcaklıkları için elde edilen TL ışıma eğrileri
Şekil 5.21 Farklı tavlama sıcaklıkları için elde edilen a) oda sıcaklığında, b) 125 °C'de
ölçülen CW-OSL azalım eğrileri107
Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW-
Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW- OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi
Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW- OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi
Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW- OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi
Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW- OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi
Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW- OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi
Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW- OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi
 Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW-OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi

Şekil 6.1 a) CW-OSL ve OSP bileşenlerinin 75 ila 200 °C arasındaki	uyarım
sıcaklıklarına (T _i) kadar başlangıç şiddeti (I ₀) değişimi ve b) OSP için $ln(\tau_{OSP}$) ve 1 /
kT'ye karşı Arrhenius grafikleri.	121

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 2.1 Farklı lüminesans yöntemleriyle deneysel veriler kullanılarak elde edilen
tuzak parametreleri
Çizelge 2.2 Kuvarsın bilinen kusurları (Preusser vd. 2009)53
Çizelge 4.1 Merck kuvarsın kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi için kullanılan
deney protokolü
Çizelge 4.2 110 °C TL piki radyasyon doz-cevabı ölçüm protokolü68
Çizelge 4.3 Termal kararlılık ölçüm protokolü74
Çizelge 4.4 TL, CW-OSL ve LM-OSL yöntemleri kullanılarak radyasyon doz-cevabı
ölçüm protokolü
Çizelge 4.5 EPR yöntemi kullanılarak radyasyon doz cevabı ölçüm protokolü76
Çizelge 4.6 Ağartmanın kuvarsın LM-OSL bileşenlerine etkisinin incelenmesi77
Çizelge 4.7 TL, CW-OSL (Oda sıcaklığında ve 125°C'de) ve LM-OSL (Oda
sıcaklığında ve 125°C'de) sinyallerinin tavlama sıcaklığı ile değişimi
Çizelge 4.8 Doz yeniden oluşturma ölçüm protokolü78
Çizelge 5.1 Farklı filtre kombinasyonları için aktivasyon enerjilerinin ortalama
değerleri
Çizelge 5.2 Ön-doz verilmiş Merck kuvarsın farklı optik filtre kombinasyonları için
ayrıştırmadan sonra elde edilen T _m değerleri90
Çizelge 5.3 Ön-doz verilmiş Merck kuvarsın farklı optik filtre kombinasyonları için
ayrıştırmadan sonra elde edilen aktivasyon enerjileri91
Çizelge 5.4 Ön-doz verilen Merck kuvarsın 125 °C'de ölçülen CW-OSL eğrilerinin
ayrıştırma işleminden sonra elde edilen tuzak parametreleri92
Çizelge 5.5 Ön-doz verilen Merck kuvarsın 125 °C'de ölçülen LM-OSL eğrilerinin
ayrıştırma işleminden sonra elde edilen tuzak parametreleri
Çizelge 5.6 Merck kuvarsın farklı filtre kombinasyonları ile ölçülen TL, CW-OSL
(125 °C'de), LM-OSL (125 °C'de) ve EPR (oda sıcaklığında) yöntemleriyle belirlenen
radyasyon doz cevabı eğrilerinden elde edilen k değerleri. Regresyon analizinin
varyansını belirlemek için kullanılan R-kare değeri % 0,85 ile % 0,99 arasında
değişmektedir

Çizelge 5.7 Merck kuvarsın farklı filtre kombinasyonları ile ölçülen TL, CW-OSL
(125 °C'de), LM-OSL (125 °C'de) ve EPR (oda sıcaklığında) yöntemleriyle belirlenen
radyasyon doz cevabı eğrilerinden elde edilen MDDL değerleri. MDDL'lerin ortalama
standart sapması \pm % 8'dir101
Çizelge 5.8 CW-OSL veya PH bileşenleri eklenerek elde edilen Merck kuvarsın farklı
uyarım sıcaklıklarında elde edilen LM-OSL bileşenlerinin t_{max} değerleri. Hatalar, tüm
farklı uyarım sıcaklığı sonuçları üzerinden elde edilen parametrelerin ortalama
değerleri ile hesaplanmıştır
Çizelge 5.9 Ayrıştırılmış LM-OSL eğrilerine dahil edilen hem CW-OSL hem de PH
bileşenlerinin fit parametreleri. Hatalar, tüm farklı uyarım sıcaklığı sonuçları
üzerinden elde edilen parametrelerin ortalama değerleri ile hesaplanmıştır104
Çizelge 5.10 Farklı uyarım sıcaklıklarında LM-OSL bileşenlerinin fotoiyonizasyon
tesir kesitleri
Çizelge 6.1 Ön-doz verilmiş ve verilmemiş Merck kuvarsın ölçülen emisyonu ve
radyasyon doz cevabı davranışları114

1. GİRİŞ

Kuvars, yer kabuğunun %10'undan fazlasını oluşturması ve arkeolojik ya da yapı malzemelerinde bol miktarda bulunması nedeniyle lüminesans yöntemi kullanılarak yapılan geriye dönük dozimetre ve özellikle tarihlendirme çalışmalarında yaygın olarak kullanılan bir malzemedir (Polymeris vd. 2012). Kuvars kristalinin yapısındaki safsızlıklar, yapısal kusurlar tuzak adını verdiğimiz yarı kararlı enerji seviyelerini oluşturur ve gelen radyasyon bu yarı kararlı enerji seviyelerinde elektronların tuzaklanmasını sağlar. Kuvarsın lüminesans özelliği oluşum geçmişine göre (alandaki basınç, sıcaklık, jeolojik mineraller) değişkenlik gösterir. Bu nedenle çalışmaya baslamadan önce kuvarsın radyasyon doz cevabı, ışık yayılımı, doz soğurma kinetiği veya ısıtma/ışınlama/ağartma işlemleri ile hassaslaşması gibi lüminesans özellikleri bilinmelidir. Bu özelliklerin bilinmesi daha doğru çalışmalar yapmamıza olanak sağlamaktadır. Lüminesans yöntemiyle, kuvarsın soğurduğu radyasyon dozunun belirlenmesi amacıyla örneğin ısıtılması (Termolüminesans, TL) veya belli bir dalga boyunda uyarılması (Optik Uyarımlı Lüminesans, OSL) gerekmektedir. Uyarılan kuvars örneğinden elde edilen görünür bölgedeki ışık şiddeti, laboratuvar ortamında bilinen radyasyon dozları ile ışınlanmasının ardından oluşturulan radyasyon doz-cevap eğrilerinin karşılaştırılması ile bulunmaktadır. Bu ölçümler sırasında kuvars örneğine ısıtma, ışınlama veya ağartma işlemleri uygulanır. Genelde lüminesans yönteminde kullanılan bir dozimetreden/örnekten beklenen, aynı örneğin aynı radyasyon dozlarıyla ışınlanması sonucunda aynı lüminesans şiddetini vermesidir. Ancak uygulanan bu işlemler sonucunda kuvarsın lüminesans şiddetinin (hassasiyet) değiştiği birçok çalışmada görülmüş ve konu üzerine çalışma yapılmaya başlamıştır.

Kuvars veya diğer Dozimetrik malzemelerin yapısında bulunan tuzaklar, Elektron Paramanyetik Rezonans (EPR) spektrometrisinde paramanyetik merkezleri oluştururlar. Bu merkezlerin değişken manyetik alanda sabit mikrodalga frekansı ile uyarılması sonucu elde edilen EPR sinyalleri kullanılarak hem örneğin soğurduğu radyasyon dozu hem de ilgili merkezlerin (tuzakların) kaynaklandığı kusur ve safsızlıkların türü belirlenebilir. Lüminesans ve EPR yöntemleriyle ölçülmek istenen sinyal şiddetinin ısıtma ve ışınlama işlemleri sonucunda yapısındaki kusurların farklılaşması nedeniyle değişmesi söz konusu

olabilir. Lüminesans şiddetindeki bu değişime *hassaslaştırma* adı verilmektedir ve ölçüm yönteminde örneğe uygulanan işlemler sonucunda (ısıtma, ışınlama) test dozu ile ışınlanmasının ardından yüksek lüminesans şiddetinin elde edilmesi olayı olarak açıklanır (Chen ve McKeever 1997, Poolton vd. 2000). Li'nin 2002 yılında yaptığı çalışmada, ısıtma ve ışınlamanın yanı sıra ağartma (bleaching) işleminin de ısıtılmamış örneklerde OSL sinyalinin hassasiyetine etkisinin olduğu gözlenmiş ve ağartma işlemi de hassaslaştırma çalışmalarına dahil edilmeye başlanmıştır.

Kuvarsa ait TL 1şıma eğrisinde genellikle, 110°C, 170°C, 210°C, 325°C ve 375°C 'de gözlenen en az beş ana pike rastlanır. Günümüze kadar yapılan çalışmalarda, düşük sıcaklıktaki TL piklerinde (özellikle 110 °C), ısıtma ve ışınlama işlemlerinin hassaslaştırmaya olan etkisi hakkında birçok araştırma yapılmıştır (Zimmerman 1971, Aitken 1979, Chen 1979, Kitis vd. 1995, Polymeris vd. 2006a, Koul 2008, Koul vd. 2010). Bu araştırmalar sunucunda, kuvarsın ışınlama ve ısıtma işlemlerinin ardından 110°C'de bulunan TL pikinin hassasiyetindeki artış kullanılarak yapılan tarihlendirme metodu geliştirilmiştir. "Ön-doz etkisi" olarak adlandırılan bu metot, 110 °C TL pikinin daha önce soğurulan toplam radyasyon dozu ile ilgilidir (Fleming 1969, 1973, Zimmerman 1971, Aitken 1979, Bailiff ve Haskell 1983). Sonraki yıllarda yapılan çalışmalarda 110°C 'de gözlenen ön-doz etkisinin 220°C TL pikinde de gözlendiği belirlenmiş ve hassaslaştırma işlemindeki fiziksel mekanizma birçok araştırmanın konusu olmuştur (Chen vd. 1991, Benny ve Bhatt 1997, Göksu vd. 1997, Hübner ve Göksu 1997, Oniya vd. 2012a).

Kuvarsın düşük sıcaklık piklerinin tarihlendirmede kullanılması üzerine çok sayıda çalışma yapılmış olmasına rağmen, kararlılığı nedeniyle tarihlendirmede kullanılan asıl tepeler 325°C ve 375°C'de görülen yüksek sıcaklık TL tepeleridir. Ancak bu tepelerin kararlılığı ve bağlı olduğu merkezler konusunda tartışmalar günümüzde de devam etmektedir. Yüksek sıcaklık TL tepelerinin 110°C TL tepesi kadar çalışılmamasının en önemli nedeni ışıma eğrisinde iç içe geçmiş halde bulunmalarından kaynaklanmaktadır. Bunun dışında yüksek sıcaklık TL tepelerinin hassasiyetinin düşük olması nedeniyle iyi bir istatistiksel sonuç elde edebilmek için yüksek radyasyon dozları ile ışınlanmaları gerekmektedir (Oniya vd. 2012a).

Lüminesans hassasiyeti, kütle birimi başına bilinen, sabit radyasyon dozu ile ışınlama sonrası oluşan lüminesans emisyonunun şiddeti olarak tanımlanmaktadır (McKeever 1985). Bu nedenle, örneğin yüksek sıcaklıklara ısıtılmasının bir sonucu olarak, belirli bir radyasyon dozu ile ışınlama sonrası lüminesans cevabının değiştiği gözlemlenmektedir (Chen ve McKeever 1997). Kuvarsın 110 °C'de gözlenen TL piki, ışıma eğrisinde diğer piklerden bağımsız yer alan bir lüminesans pikidir. Yarı ömrü 30-60 dakika (Polymeris vd. 2009) olan bu TL piki, çok sayıda çalışmanın konusu olmuştur ve TL'ın temel mekanizmalarının incelenmesi için birincil öneme sahiptir (Polymeris vd. 2006a). Yüksek hassaslaştırmaya neden olan yüksek sıcaklıklara ısıtmaya gerek yoktur (Koul vd. 2010). Ana yapısı (şekil, pik konumu ve tuzak parametreleri) yüksek sıcaklık ve ışınlama koşullarının uygulanmasından sonra bile dar bir sınır dahilinde değişmektedir (Pagonis vd. 2002).

Fleming ve Thompson (1970) 110 °C TL pikinin hassasiyet değişikliklerini keşfettikten sonra Zimmerman (1971), kuvarsın 110 °C TL pikinin hassasiyetini açıklamak için bir model önermiştir. Bu çalışmalardan sonra, bilim insanları kuvarsın 110 °C TL pikine odaklanmış ve hassasiyete neden olan olayları incelemişlerdir. Bu TL pikinin hassasiyet değişiminin ön-doz etkisi olarak adlandırılan hem ışınlama hem de ısıl işlem nedeniyle oluştuğunu göstermektedir (Polymeris vd. 2006a, Petrov ve Bailiff 1995, Chen ve Li 2000a, Pagonis vd. 2003, Chen ve Pagonis 2003, Koul 2012).

Isıtma ve ışınlamanın 110 °C TL pikinin hassasiyet özellikleri üzerindeki etkisi hakkında birçok araştırma vardır. Ayrıca, radyasyon dozu ve ısıtmanın uygulanmasından sonra kuvars hassasiyetindeki artış kullanılarak *ön-doz etkisi* adı verilen tarihleme tekniği geliştirilmiştir (Bailiff 1994). Hassasiyetteki artış, ısıtmadan önce soğurulan toplam radyasyon dozu ile ilişkilidir (Fleming 1969, Fleming 1973, Zimmerman 1971, Aitken 1979, Bailiff ve Haskell 1983).

ESR, IR sinyalleri ve TL ölçümlerinin karşılaştırılmasıyla Yang ve McKeever (1990), 110 °C TL pikinin kaynağının elektron tuzağı olarak $(GeO_4)^0$ ve yeniden birleşme merkezleri olarak $[AIO_4]^0$, $[AIO_4]^-$ ve $[H_3O_4]^0$ olduğunu rapor etmişlerdir. Krbetschek vd. (1997) 110 °C TL pikini üreten emisyon dalga boylarının 360-380 nm, 420 nm ve 450470 nm civarında merkezlendiğini söylemiştir (Petrov ve Bailiff 1995, Yang ve McKeever 1990, Randell vd. 1994).

Hassaslaştırma sürecinin fiziksel mekanizmalarının araştırılması için farklı kökenlerden gelen doğal ve sentetik kuvars örnekleri kullanılmaktadır (Polymeris vd. 2006a, Chen vd. 1991, Göksu vd. 1997, Polymeris vd. 2012, Oniya vd. 2012a). Düşük safsızlıklar, ışınlama ve ısıtma geçmişinin bilinmesi nedeniyle sentetik kuvars, göreceli düşük lüminesans şiddetine rağmen, 110 °C TL piki ve lüminesans hassaslaştırma mekanizmasının kaynaklarını araştırmak için tercih edilmektedir.

Supra-lineerlik ve hassasiyet birbiriyle ilişkilidir (Chen ve McKeever 1997). Supralineerlik, soğurulan radyasyon dozuna bağlı hassasiyetin artması olarak tanımlanabilir ve birçok çalışmada, 110 °C TL pikinin güçlü bir supra-lineer davranışı olduğu belirtilmiştir (Charitidis vd. 1996). Chen vd. (1988), ısıtılmamış sentetik kuvars kullanılarak düşük radyasyon dozu aralığında ön-dozun hassasiyet üzerindeki etkisini incelemiş ve 110 °C TL pikinin bir supra-lineer radyasyon doz davranışına sahip olduğunu bulmuşlardır. Charitidis vd. (2000) bu çalışmayı yüksek radyasyon doz aralığına genişletmiş ve ısıtılmamış sentetik kuvarsın düşük doz bölgesinde olduğu gibi yüksek dozlarda da supralineer olduğunu göstermiştir. 110 °C TL piki hem hassasiyet hem de supra-lineerliği sayesinde tarihlendirme ve retrospektif dozimetri çalışmalarında önemli rol oynamaktadır, çünkü ön-doz etkisinin temeli ışınlama ve ısıtma işlemlerine bağlıdır. Kitis vd. (2006) farklı radyasyon dozlarında farklı kökenden elde edilen kuvars tiplerini kullanarak ısıtılmamış ve 500 °C'ye kadar ısıtılmış kuvars örneklerinde 0,1 Gy ile 400 Gy arasındaki ön-dozun etkilerini arastırmışlardır. Isıtılmış ve ön-doz verilmiş örneklerin hassasiyetinin sadece ön-doz verilmiş örneklerden daha yavaş değiştiğini göstermişlerdir. Polymeris vd. (2006a) bu çalışmayı 500 ° C'ye ve 900 °C'ye kadar ısıtılan örnekler kullanılarak genişletmişlerdir. Ön-ısıtma sıcaklığı arttıkça, farklı kuvars tipleri için hassasiyet değişimindeki oranın benzer olduğunu göstermiştir.

Hassaslaştırma mekanizmasını açıklamak için iki model geliştirilmiştir (Chen ve McKeever 1997, Zimmerman 1971, Chen 1979) ve supra-lineerlik için iki tür model bulunmaktadır. Birincisi, uyarılma (exitation) (soğurma aşaması) sırasında ve ikincisi ısıtma sırasında yeniden birleşme sırasında gerçekleşen bir rekabet (competition) mekanizmasını içermektedir (Charitidis vd. 1999).

Bugüne kadar, deneysel çalışmaların çoğunda, hem supra-lineerlik etkilerini hem de hassaslaştırma özelliklerinin incelenmesinde, Sawyer Research Products tarafından üretilen sentetik kuvars kullanılmıştır (Petrov ve Bailiff 1995, Chen vd. 1991, Chen vd. 1988, Charitidis vd. 1999, Yang ve McKeever 1988, Bøtter-Jensen vd. 1995, Kitis vd. 1995). Bu çalışmalara göre, sentetik kuvars, özellikle düşük radyasyon dozu bölgesinde, yüksek supra-lineer doz bağımlılığına sahiptir. Bu nedenle, ısıtılmamış ve ısıtılmış sentetik kuvarsın radyasyon doz cevabı davranış modellerinin tüm tanımlamaları supralineerite kullanılarak şekillendirilmiştir. Bu çalışmada, ticari olarak temin edilebilen, Merck kuvars örneği kullanılmıştır. Tez çalışmasının ilk aşamanızda 110 °C TL pikinin farklı emisyon bantlarının radyasyon doz cevap eğrilerini elde etmek için dört farklı optik filtre kombinasyonu kullanılmıştır. Hem doğal hem de sentetik olan 110 °C TL pikinin radyasyon doz cevabı son 40 yılda çok kapsamlı bir şekilde incelenmiştir. Ancak, Merck kuvars için hiçbir radyasyon doz cevabı çalışması rapor edilmemiştir. Bu nedenle, bu ilk çalışmanın önemi, ısıtılmamış Merck kuvars için 110 °C TL pikinin hangi emisyonunun sub-lineer olduğunu tespit edilmesinden yönelik literatürdeki ilk çalışma olmadır. Öndozun radyasyon doz - cevap eğrilerine etkisi de bu çalışmada incelenmiştir.

Kuvarsta E' kusurları ve Ge, Ti, Al, OH merkezleri uygun ölçüm sıcaklığı seçilerek tipik bir EPR spektrumunda izlenebilir (Halperin vd. 1986, Ikeya 1993, Toyoda ve Ikeya 1994, Schilles vd. 2001). Kuvars, dozimetrik malzeme olarak TL, OSL veya EPR yöntemleri kullanarak araştırılırken, ilgili ışıma eğrisinde gözlenen TL pikleri, OSL eğrileri ve EPR spektrumlarında ayrıştırma, ölçüm sıcaklığı, vb. koşullar belirlenmelidir. En uygun koşulu seçmek için tuzak parametrelerinin kararlılık, ağartma kabiliyeti, uyarım (stimülasyon) ve emisyon dalga boyu, radyasyon doz-cevap davranışı, solma, tekrarlanabilirlik vb. gibi spesifik özellikler hakkında bilgi sahibi olunmalıdır. Bu nedenle, malzemenin karakterizasyonu dozimetrik uygulamalar için çok önemlidir. (Preusser vd. 2009, Wintle ve Adamiec 2017, Krbetschek vd. 1997, Bulur vd. 2000, Larsen vd. 2000, Pagonis vd. 2002, Li 2002, Wintle ve Murray 2006). Doğal kuvars örneği kullanılarak yapılan lüminesans çalışmalarında belirli zorluklar ortaya çıkmaktadır. Doğal kuvarsın radyasyon doz cevabı düşüktür ve dolayısıyla hassasiyeti düşük bir malzemedir, bu nedenle minimum ölçülebilen doz limiti (minimum detectable dose limit, MDDL), ısıtılmış kuvars ve diğer sentetik malzemelerinkinden daha yüksektir. Isıtma, ışınlama, vb. uyarım süreçleri ve hatta bunların bir kombinasyonu duyarlılaşmaya neden olabilir (Benny ve Bhatt 1997, Göksu vd. 1998, Han vd. 2000). Bu nedenle, kuvars için veri analizinde daha fazla dikkat gerektirir. Eğer ışıma eğrisinin yüksek sıcaklık bölgesindeki TL pikleri ile ilişkili daha derin tuzaklarla ilgileniliyorsa, birbirleriyle örtüşen TL piklerinin ayrıştırılması gerekir. Bu nedenle ana nokta, iyi karakterize edilen bileşeni toplam sinyalden çıkarmak tarihlendirme ve kaza dozimetrisi uygulamaları için dozimetrik gereklilikleri ele alan özellikleri sunmaktadır.

Literatürde yüksek radyasyon doz hassasiyeti ve ayrıştırma gerektirmeyen ışıma eğrisinin basit şekli nedeniyle kuvarsın 110 °C TL piki ile ilgili birçok çalışma vardır (Krbetschek vd. 1997, Chen 1979, Göksu vd. 1989, Kitis vd. 1995, Petrov ve Bailiff 1995, Bøtter-Jensen vd. 1995, Charitidis vd. 1996, Charitidis vd. 1999, Chen ve Li 2000b, Pagonis vd. 2003, Kitis vd. 2006, Polymeris vd. 2006a, Oniya vd. 2013, Kaya-Keleş vd. 2016, Vaccaro vd. 2017, Schmidt vd. 2017, Kiyak vd. 2008, Polymeris vd. 2009). Bu calışmaların çoğu için kuvars örnekleri, sırasıyla 550-800 °C veya 850-1000 °C gibi radyasyon hassasiyetini arttıran veya azaltan yüksek sıcaklıklara ısıtılmıştır (Kitis vd. 2006, Polymeris vd. 2006a). Ayrıca, 110 °C TL pikinin LM-OSL bileşeni (Kiyak vd. 2008, Polymeris vd. 2009, Oniya vd. 2012b) veya EPR sinyali (Vaccaro vd. 2017, Schmidt vd. 2017, Kiyak vd. 2008, Polymeris vd. 2009, Oniya vd. 2012b, Martini vd. 2009) ile ilişkilendirilmesi için büyük çaba gösterilmiştir. Bununla birlikte, yüksek sıcaklık TL (high temperature TL, HTTL) piklerine dikkat çekilmiştir ve araştırmalar uzun süredir devam etmektedir. Tarihlendirme prosedüründe kullanılan hızlı OSL bileşeni ile 325 °C TL piki arasındaki ilişki (Kitis vd. 2010, Spooner 1994, Li ve Chen 2001, Jain vd. 2003) ve HTTL piklerinin hassaslaştırılması ile ilgili çalışmalara ulaşılabilir (Oniya vd. 2013, Oniya vd. 2012a). Bu çalışmalarda doğal ve sentetik kuvars örnekleri kullanılmıştır (Oniya vd. 2012a, 2012b, Kitis vd. 2010, Yazici ve Topaksu 2003, Toktamiş vd. 2007, Guzzo vd. 2009, Topaksu vd. 2013). HTTL pikleri ile ilgili çoğu çalışma, TL ve OSL sinyalleri arasında korelasyonların belirlenmesini içerirken, bazı durumlarda lüminesans sinyallerinin kaynağını araştırmak için EPR sinyali de çalışılmıştır (Wintle ve Murray 1997, Martini vd. 2009, Huntley vd. 1991, Franklin vd. 1995, Poolton vd. 2000, Lomax vd. 2015).

HTTL pikleri ile çeşitli OSL bileşenleri arasındaki korelasyon çalışmaları, kuvarsın OSL azalım eğrisinin hızlı bileşeninin 325 °C TL pikleriyle ilişkilendirilmesine yönelik deneysel ipuçları sağlamıştır (Kitis vd. 2010, Spooner 1994). Ayrıca, bu korelasyon çalışmalarında yapılan EPR ölçümleri, kuvarsın tuzakları ve yeniden birleşme merkezleri için ilgili kusurlar ve safsızlıklar hakkında bilgi edinme şansı sağlamıştır (Martini vd. 2014, Halperin vd. 1986, Poolton vd. 2000, Göksu vd. 1996, Vaccaro vd. 2019, Timar-Gabor 2018). Bununla birlikte, ilgili yeniden birleşme merkezleri ve bunlara bağlı elektron tuzaklarıyla ilişkilendirilebilen ilgili emisyon hakkında sonuçlar elde etmek için spektral ölçümler gereklidir.

Günümüze kadar korelasyona yönelik TL, OSL ve EPR yöntemlerini kullanan çalışmalar genel olarak kuvars örneğinin 110 °C TL pikine odaklanmıştır. Çeşitli Nijerya kökenli kuvars örneklerinin HTTL piklerinin tekrarlanan ışınlama ve ısıtma ile hassaslaştırılması ve Oniya vd. (2012c) tarafından kuvarsta TL ve OSL arasındaki radyasyon doz cevabı korelasyonu ile ilgili çalışma da dahil edildiğinde birkaç dikkate değer istisna görülmektedir. Bununla birlikte, her iki durumda da, örneklerin laboratuvarda ön işlem olarak termal geçmişi bulunmaktadır. HTTL pikleriyle yapılan çalışmanın iki amacı vardır. İlki doğal referans kuvars örneği oluşturmak için bir Merck kuvars numunesinin incelenmesidir (Kreutzer vd. 2017, Schmidt vd. 2018). Merck kuvars referans kuvars örneği adayları arasındadır (Kreutzer vd. 2017). Referans kuvars malzemesi, protokolleri ve ölçüm dizilerini standartlaştırmak için laboratuvarlar arası karşılaştırma ölçümlerini mümkün kılmaktadır. Tez çalışmasının ikinci kısmında, Merck kuvars'ın 200 °C ile 500 °C arasındaki HTTL pikleri, OSL (hem CW, hem de LM modlarında ölçülmüştür) ve EPR sinyalleri arasındaki olası korelasyonlar araştırılmaktadır. Oniya vd. (2012c)'nin çalışmasına benzer olarak korelasyon, çoğunlukla termal kararlılık çalışmasının da dahil edildiği radyasyon doz - cevap özelliklerinin incelenmesi ile elde edilmiştir. Buna ek olarak, dört farklı emisyon bandında Merck kuvarsın HTTL piklerinin TL radyasyon doz - cevap özellikleri için bir karşılaştırma yapılmıştır.

OSL yöntemini kullanan çeşitli çalışmalarda, tuzaklardan gelen sinyalin daha ayrıntılı tespit edilebildiği LM-OSL tekniği tercih edilmektedir. Bu teknik, ışık kaynağının doğrusal olarak artan uyarım gücü ile malzemeyi uyararak lüminesans sinyalini elde etme prensibine dayanır, böylece zamanın bir fonksiyonu olarak pik şeklinde OSL sinyali elde edilir (Bulur 1996). Rutin LM-OSL ölçümlerinde, uyarım gücü sıfırdan maksimum değere kadar değişirken, sinyal şiddeti ihmal edilebilir arka plan seviyesinden artmaya başlar ve pikler oluşturur. LM-OSL eğrisi şekillerine ilişkin örnekler için, Bulur vd. (2000), Kuhns vd. (2000), Jain vd. (2003), Li ve Li (2006), Kiyak vd. (2007), Kitis vd. (2010), Oniya vd. (2012c)'nin yaptığı çalışmalar incelenebilir. LM-OSL eğrilerinde ayrıştırma analizi yapmak için toplam beş ile yedi LM-OSL bileşeni gereklidir. Bu sayı, CW-OSL azalım eğrilerine uyması için gereken maksimum üç bileşen sayısından oldukça farklıdır. Bu tutarsızlık LM-OSL eğrileri için en uygun çözünürlükle ilişkilendirilir (Kitis ve Pagonis 2008).

Kuvars kullanan bazı çalışmalarda, LM-OSL eğrisinde olağan dışı bir şekil gözlenmektedir. LM-OSL eğrisinde uyarımın başlangıç kısmında, elde edilecek şiddet artışını baskılayan ve Kuhns vd. (2000)'nin çalışmasında olduğu gibi CW-OSL eğrisine benzeyen bir azalım sinyali bulunmaktadır. Bazı durumlarda, ilk azalım sinyali LM-OSL sinyalini kapsayacak kadar baskın değildir, bu nedenle LM-OSL eğrisinin ilk bileşeni Bulur vd. (2000), Kuhns vd. (2000), Jain vd. (2003), Singarayer ve Bailey (2004), Choi vd. (2006), Kiyak vd. (2007), Kitis vd. (2010) ve Oniya vd. (2012c)'nin çalışmalarındaki gibi kolayca tanımlanabilir. Aslında, başlangıç şiddeti teorik olarak sıfır olmalı ya da en azından deneysel olarak elde edilen düşük arka plan seviyesinde olmalıdır ve bu sinyal şiddeti örnekten örneğe değişmektedir.

Kuvarsın oluşumu sırasında, kuvars minerallerinin yapı özellikleri ve safsızlıkları sıcaklık, basınç ve elementer çeşitlilik gibi çevresel koşullardan etkilenmektedir. Bu nedenle kuvarsın lüminesans özellikleri ve hassasiyeti kökenine bağlıdır. Analiz sırasında piklerin ayrıştırılması için olağan dışı bileşenin hem matematiksel hem de fiziksel olarak tanımlanması kararlı LM-OSL bileşenlerinin doğru bir şekilde belirlenmesi için oldukça önemlidir. Bu nedenle, bu olağan dışı şiddet bağımsız araştırmacılar tarafından çeşitli şekillerde yorumlanmıştır. Bu sinyal için en yaygın kullanılan tanımlar arasında Kuhns

vd. (2000), Singarayer (2003), Bøtter-Jensen vd. (2003), Kitis vd. (2010), Oniya vd. (2012c)'ne göre fosforesans (phosphorescence, PH) ve Bøtter-Jensen vd. (1999) ve Bulur vd. (2000)'ne göre CW-OSL olağan dışı bileşenin azalan şekli nedeniyle yer alır. Ek olarak, Whitley ve McKeever (2002) ve Dallas vd. (2008) bu sinyali Al₂O₃:C'de başlangıç uyarım gücünde rampanın doğrusal olmama özelliği nedeniyle ölçüm tekniğinin kararsızlığı olarak tanımlamıştır. Bu deneysel dezavantaj, Risø ticari TL/OSL okuyucularının eski modellerinde (DA 12 ve 15 modelleri) oldukça yaygındır. Özellikle Dallas vd. (2008), bu dezavantajı düzeltmek için ilk uyarım zamanlarında negatif bir OSL bileşeni kullanmaktadır.

Tez çalışmasının üçüncü kısmında, LM-OSL sinyallerinin olağan dışı LM-OSL eğrisi şekillerini araştırmayı amaçlamıştır. Bunlar, LM-OSL eğrilerinde uyarımın başlangıç kısmında baskın olarak gözlenen azalan eğrileridir. LM-OSL sinyallerinin ağartılmasının ardından ölçülen 200 Gy'lik bir test dozuyla ışınlamadan sonra 75 °C ve 200 °C arasındaki farklı uyarım sıcaklıklarında Merck kuvarsının LM-OSL eğrileri olağan dışı eğriler vermiştir. İlgili bileşenin kaynağının tanımlanması için, ayrıştırma yöntemi kullanılmıştır. Bu baskın azalım bileşeninin benzeşimi (simulation) için iki farklı yaklaşım test edilmiştir. Olağan LM-OSL bileşenlerinin yanı sıra, eğrilerin başlangıç kısmına (a) bir PH azalım bileşeni ve (b) bir CW-OSL azalım bileşeni eklenerek eğriler çözülmüştür. PH ve CW-OSL bileşenlerinin uyum parametrelerinin optimum yaklaşımı seçmeye yönelik davranışı araştırılmıştır.

Bu çalışmalara ek olarak; kuvars örneğinin 573 °C ve 870 °C'de gözlenen faz değişimlerinin ışıma eğrisine etkisi farklı sıcaklıklarda yapılan tavlama işlemi sonucu gözlenmeye çalışılmıştır. Literatürde tavlama işleminin örneğin hassasiyetinde meydana getirdiği artışı incelemek amacıyla yapılan çalışmalarda TL, OSL ve EPR yöntemleri kullanılmıştır. Özellikler faz geçiş sıcaklıklarında yapılan bu çalışmalarda tavlama sıcaklığının artışıyla sinyal şiddetinin de arttığı gözlenmiştir (Bøtter-Jensen vd. 1995, Poolton vd. 2000, Schills vd. 2001, Li ve Chen 2001, Polymeris vd. 2006a). Tez çalışmasının son kısmında 500 – 1000 °C aralığında yapılan tavlama işlemi sonucunda kuvarsın hem 110 °C hem de HTTL piklerini incelemek amacıyla TL, CW-OSL ve LM-OSL eğrileri incelenmiştir.

Son kısımda ise; kuvars örneğinin sıklıkla kullanıldığı tarihlendirme çalışmalarında yapılan doz yeniden oluşturma tekniği (Bøtter-Jensen vd. 2003, McKeever 1985) ile standart bir uygulamada 5 Gy ile ışınlanan Merck kuvarsın radyasyon doz – cevap eğrisi oluşturulmuş ve eşdeğer doz hesabı yapılmıştır.

Literatür incelendiğinde, HTTL piklerinin hassasiyetinin ölçümler sırasında uygulanan ışınlama, ısıtma veya ağartma işlemleri sonucunda nasıl değiştiği ve farklı yöntemlerde elde edilen verilerde bu tepelerin bağlı olduğu merkezler konusundaki tartışmalar devam etmektedir. Bu tez çalışmasında genel hatlarıyla, tarihlendirmede kullanılan derin tuzaklar (yüksek sıcaklık TL tepeleri) üzerinde durulmuştur. Isıtma, ışınlama ve ağartma işlemlerinin lüminesans sinyaline etkisinin belirlenmesi amacıyla bir dizi radyasyon dozcevap eğrileri, termal kararlılık, farklı sürelerde ağartma gibi deneysel çalışmalar yapılmıştır. Deneysel çalışmalarda kullanılan TL, CW-OSL ve LM-OSL sinyallerinde her bir bileşen ayrı ayrı çalışılmıştır. Bu, her bir yöntem ile elde edilen sinyallerin birbiri ile korelasyonunu inceleme fırsatı sağlamıştır. Böylece, bu bilgiler lüminesans mekanizmasının işleyişi hakkında bilgi edinmemizi sağlamıştır. Lüminesans çalışmaları, kusurlar ve kusurların TL ve OSL sinyalleri ile bağlantısını yorumlamamız amacıyla EPR ölçümleri ile desteklenmiştir.

2. KURAMSAL TEMELLER

2.1 Lüminesans Olayı

Lüminesans, maddenin atom veya moleküllerinde herhangi bir ısısal-olmayan uyarım sonucunda, genellikle elektromanyetik spektrumun görünür bölgesindeki dalga boylarında yayılan elektromanyetik radyasyondur. Maddenin ısı ile uyarılmasında elde edilen kara cisim ışımasından farklı olarak soğuk ışık olarak adlandırılır (Thomson 2004). Lüminesans malzemeler, enerjiyi soğurur, bir süre depolar ve depoladığı enerjiyi ışığa çevirir. Bu malzemeler genellikle kristal yapıda bulunmaktadır.

Lüminesans, soğurulan enerjinin depolanmasının ardından lüminesans yayılımının meydana gelmesi arasında geçen süreye (karakteristik ömür, τ) bağlı olarak floresans ve fosforesans olmak üzere iki şekilde sınıflandırılır. Lüminesans yayılımının $\tau \le 10^{-8}$ s olduğu durum için floresans, $\tau \ge 10^{-8}$ s olduğu durumlar içinse fosforesans adı verilir (Garlick 1949, Curie 1960). Floresans, taban durumu enerji seviyesindeki (değerlik bandı) elektronun uyarılması ile uyarılmış durum enerji seviyesine (iletkenlik bandı) çıkması (geçiş (i)) ve bunu takiben elektronun taban durumu enerji seviyesine geri dönmesidir (geçiş (ii)) (Şekil 2.1a). Eğer elektronun uyarılmış durumdan taban durumuna geçişi, yarı-kararlı enerji seviyesine (*m*) inip çıkmasıyla (geçiş (iii)) ertelenirse, uyarma ve yayılım arasında çok daha uzun gecikmeler meydana gelebilir. Bu olay ise fosforesans olarak adlandırılır (Şekil 2.1b) (Chen ve McKeever 1997).



Şekil 2.1 a) Floresans, b) fosforensans olaylarında enerji seviyeleri arasındaki geçişler (Chen ve McKever 1997'den değiştirilerek alınmıştır)

İki durum arasındaki ayırım belirgin olmadığında τ 'nun sıcaklığa bağımlılığı incelenebilir. Eğer *m* seviyesine geçiş *T* sıcaklığında meydana geliyorsa ve *E* enerjisi \ge *kT* (*k*, Boltzmann sabiti) koşulunu sağlıyorsa elektronun kaydadeğer bir süre m seviyesinde kalması olasıdır.

Bu durumda, enerjinin Maxwell dağılımı göz önüne alınacak olursa yarı-kararlı seviyedeki elektronun termal uyarımı için birim zamandaki p olasılığı Arrhenius eşitliğine göre (Eşitlik 2.1) sıcaklığa bağımlıdır:

$$p = sexp\{-E/kT\},$$
(2.1)

burada *s*, zamanın tersi birimine sahip bir sabittir (s⁻¹), tuzaktan kaçma olasılığı veya frekans faktörü olarak tanımlanır (Becker 1973). Frekans faktörü basit lüminesans modeline göre (tek tuzak - tek yeniden birleşme merkezi, OTOR) $10^{12} - 10^{14}$ s⁻¹ mertebelerindedir ve sıcaklıktan bağımsız bir sabit olarak kabul edilir (Bos 2006). *E*, tuzak derinliği veya aktivasyon enerjisi olarak adlandırılır, bir elektronun tuzaktan iletkenlik bandına çıkarılması için gerekli enerjidir (Şekil 2.1b). *k*, Boltzmann sabitidir ve değeri 8,617×10⁻⁵ eV/K'dir, *T* ise mutlak sıcaklıktır (K). Böylece uyarma ile taban seviyeye dönüş arasında geçen süre elektronun yarı-kararlı enerji seviyesinde bulunduğu süre kadar gecikir. Bu durumda Eşitlik 2.1'in sıcaklık bağımlılığı incelendiğinde fosforesansın floresansa göre sıcaklığa çok daha fazla bağımlı olduğu sonucu çıkarılabilir (Chen ve McKeever 1997).

2.2 Enerji Band Modeli

Schrödinger denkleminin çözümü periyodik olarak değişken bir potansiyele maruz kalan elektronların sadece izin verilen enerji seviyelerinde (enerji bandı, izinli bölge) bulunduğunu ortaya koymaktadır. Diğer olası enerji seviyeleri ise yasaklı bölgeyi (veya bant boşluğu) oluşturmaktadır. Her bir bölgenin (bandın) doluluk oranı durum yoğunluk fonksiyonu ile verilir:

$$N(E) = Z(E)f(E), (2.2)$$

burada, f(E) Fermi-Dirac dağılım fonksiyonudur ve Eşitlik 2.3 ile tanımlanır:

$$f(E) = 1/\{exp[(E - E_f)/kT] + 1\}.$$
(2.3)

Bu eşitliklerde, N(E) kullanılan enerji seviyelerinin yoğunluğunu, Z(E) mevcut enerji durumlarının yoğunluğunu ve E_f ise Fermi seviyesini verir. Mutlak sıfırda E_f 'nin altında kalan tüm enerji seviyeleri tamamen dolu, bu değerin üstündeki enerji seviyeleri ise tamamen boştur. Yarı-iletken ve yalıtkanlarda E_f , değerlik bandının tamamen dolu olması nedeniyle değerlik bandı enerjisinin üzerinde yer alır (McKeever 1988) (Şekil 2.2).

Kristal yapıdaki bir yarı-iletken veya yalıtkanda idealde Z(E) = 0'dır. Ancak, kristalde yapı kusurları oluşması veya örgü içerisinde safsızlıkların bulunması, kristal yapının periyodik tekrarlanmasını bozar ve yasak bantta elektronların bulunmasını mümkün hale getirir. Yasak bantta E_f ile iletkenlik bandı arasında kalan bölgede enerji seviyeleri boştur ve anyon bölgesini oluşturur.



Şekil 2.2 Mutlak sıfırda, a) değerlik bandının kısmen dolu olduğu ve iletkenlik bandı ile arasında bant boşluğunun bulunmadığı iletken malzeme ve değerlik bandı arasında Eg enerjili bant boşluğu (yasak enerji bandı) bulunması durumlarında b) yarı-iletken ve c) yalıtkan malzemeyi temsil eden şema (McKeever 1988'den değiştirilerek alınmıştır).

Değerlik bandından serbest bırakılan bir elektron anyon bölgesine Coulomb etkisi ile çekilir ve tuzaklanır. Değerlik bandı ve E_f seviyesi arasında kalan bölge ise pozitif yüklü katyon bölgesi mevcuttur. Bu bölgede enerji seviyeleri elektronlar ile tamamen doludur ve deşik merkezlerini oluşturur.



Şekil 2.3 Yalıtkan bir malzemenin mutlak sıfırdaki enerji seviyeleri (McKeever 1988'den değiştirilerek alınmıştır)

Bir kristalin yapısındaki kusurların yük taşıyıcılarını (elektron veya deşik) yakalaması ve geldiği enerji bandına geri yayınlaması mümkünse bu kristal kusuru tuzak (T) olarak tanımlanır. Zıt işaretli yük taşıyıcılarının yakalanabileceği ve elektron – deşik yeniden birleşmesiyle sonuçlanacak yapı kusurları yeniden birleşme merkezleri (R) olarak adlandırılır (Larsen 1999).

Şekil 2.4'te gösterildiği üzere, uyarılma (excitation) ile iyonizasyon sonucu oluşturulan elektron – deşik çifti, T ve H enerji seviyelerinde (kusurlarında) tuzaklanır. Kristalin uyarımı (stimulation) ile (i), elektronlar tuzaktan kurtulmaları için gerekli enerjiyi (E_t) kazandıklarında iletkenlik bandına çıkarlar. Bu elektronlar kararlı seviyeye dönerken ışımalı geçişe olanak sağlayan yeniden birleşme merkezleri ile birleşir. Birleşmenin sonucunda görünür bölgede hv_{lum} enerjili bir foton yayınlanır (ii). Yayılan bu fotona lüminesans adı verilir (Thomson 2004).



Şekil 2.4 Lüminesans mekanizmasını temsil eden basit enerji-bant modeli (Thomson 2004'ten değiştirilerek alınmıştır). T_s sığ (kararsız) tuzakları, T_t derin (daha kararlı) tuzakları, H deşikleri ve R yeniden birleşme merkezlerinin göstermektedir.

2.3 Termolüminesans (TL)

Yarı-iletken veya yalıtkan malzemelerde, iyonizasyon ile yapıda tuzaklanan elektronların ısı ile uyarımı (stimulation) sonucu görünür bölgede lüminesans elde edilmesi olayı termolüminesans olarak adlandırılır (Wiedemann ve Schmidt 1895). Burada ısı lüminesansın yayılımı amacıyla kullanılan bir yöntemdir. Bu nedenle teknik olarak ısı uyarımlı lüminesans (TSL) daha doğrudur ancak bu tezde alışılageldiği üzere termolüminesans (TL) kullanılacaktır (Chen and McKeever 1997).

TL yönteminde ısıtma işlemi için sıcaklık lineer ısıtma hızı (β) ile arttırılır. Sıcaklık $T = T_0 + \beta t$ ile değişmektedir. Burada T_0 , t = 0 anındaki sıcaklıktır (K). Sıcaklığın lineer arttırılması ile yasak bantta belirli enerji seviyelerinde tuzaklanan elektronlar uyarılır ve değerlik bandına çıkar. Kararlı seviyeye dönerken bu elektronlar yeniden birleşme merkezleri tarafından yakalanır ve lüminesans yayınımı elde edilir. Sıcaklığın bir fonksiyonu olarak elde edilen lüminesans şiddeti ışıma eğrisi (glow curve) ile gösterilir. Işıma eğrisi, malzemeden yayılan ışığın oluşturduğu bir ya da daha fazla tepeden (pikten) veya bunların üst üste binmiş halinden oluşmaktadır (Chen ve McKeever 1997). Şekil 2.5

266 Gy radyasyon dozu ile ışınlanmış Merck kuvarsın düşük ve yüksek sıcaklıklarda gözlenen TL piklerini göstermektedir.



Şekil 2.5 266 Gy radyasyon dozu ile ışınlanan Merck kuvarsın a) 200 °C'ye kadar ısıtılarak elde edilen ışıma eğrisini, b) 180 °C'ye kadar ısıtılarak ön-ısıtma yapıldıktan sonra kuvarsın 500 °C'ye kadar ısıtılarak elde edilen ışıma eğrisi. Isıtma hızı 1 °C/s'dir. TL ölçümleri için Hoya U-340 optik filtresi kullanılmıştır. Tanecik boyutu 90 – 140 µm'dir.

Işıma eğrisinin şekli, malzemeden yayılan ışığı dedekte ettiğimiz cihazın, çoğunlukla fotoçoğaltıcı tüp, hassasiyetine yani spektral cevabına bağlıdır. Bunun dışında, ışığın ölçülmesi sırasında örnek ile dedektör arasına yerleştirilen optik filtreler, kullanılan ısıtma hızı, uyarılmanın (excitation) cinsi (UV, α , β , γ , vb.), uyarılma dozu ve uyarılma doz hızı da ışıma eğrisinin şeklini değiştirebilecek faktörlerdir (Chen ve McKeever 1997).

Malzemenin ısıtılması sırasında, herhangi bir *t* zamanında saniyedeki foton sayısı TL şiddeti I(t) olarak adlandırılır ve deşikler ile elektronların R enerji seviyesindeki (Şekil 2.4) yeniden birleşme hızı ile orantılıdır. Eğer *m* (m⁻³) R'de tuzaklanan deşiklerin konsantrasyonu ise TL şiddeti:

$$I(t) = -\frac{\mathrm{d}m}{\mathrm{d}t} \tag{2.4}$$

olarak verilir. Burada negatif işareti deşik konsantrasyonunun azalmasını göstermektedir. Burada, her yeniden birleşmenin bir foton ürettiği ve üretilen tüm fotonların dedekte edildiği varsayılmaktadır. Yeniden birleşmenin hızı değerlik bandındaki serbest elektron konsantrasyonu n_c ve deşiklerin konsantrasyonu m ile orantılıdır:

$$I(t) = -\frac{\mathrm{d}m}{\mathrm{d}t} = n_c m A_m \,. \tag{2.5}$$

 A_m sabiti yeniden birleşme olasılığıdır, birim zamandaki birim hacim olarak verilir ve sıcaklıktan bağımsızdır. Tuzaklanan elektroların konsantrasyonundaki n değişim hızı, termal salınım hızı ile tekrar tuzaklanma hızı arasındaki farka eşittir:

$$-\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = np - n_c(N-n)A_n\,,\tag{2.6}$$

burada, *N* elektron tuzaklarının konsantrasyonu ve A_n tekrar tuzaklanma olasılığıdır (m³s⁻). Serbest elektroların konsantrasyonu, termal salınım hızı ile tekrar tuzaklanma ve yeniden birleşme hızı arasındaki farka eşittir:

$$\frac{\mathrm{d}n_c}{\mathrm{d}t} = np - n_c(N-n)A_n - n_c m A_m. \tag{2.7}$$

Eşitlik 2.5, 2.6 ve 2.7, tuzaklanan elektronun tek tuzaktan salındığı ve tek merkezde yeniden birleştiği durumlar için tanımlanmıştır. Deşik salınımları tarafından oluşturulan TL için de aynı denklemler kullanılabilir. Bu eşitliklerin genel analitik çözümü yoktur. Bu eşitliklerin geliştirilmesinde bazı basitleştirici varsayımlar yapılmalıdır. Bu varsayımlardan en önemli olanı, her zaman:

$$\left|\frac{\mathrm{d}n_c}{\mathrm{d}t}\right| \ll \left|\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t}\right| \; ; \quad \left|\frac{\mathrm{d}n_c}{\mathrm{d}t}\right| \ll \left|\frac{\mathrm{d}m}{\mathrm{d}t}\right| \; .$$
 (2.8)

Bu varsayım Chen ve McKeever (1997) tarafından yarı denge (quasi equilibrium, QE) varsayımı olarak adlandırılmıştır çünkü bu eşitlik iletkenlik bandındaki serbest elektron

konsantrasyonunun yarı kararlı olmasını gerektirir. Işınlama sırasında tuzaklanan elektronlar ve deşikler çiftler halinde oluşur. Bu durumda yük dengesi kabulüne göre:

$$n_c + n = m , (2.9)$$

olur ve $n_c \approx 0$ ise $n \approx m$ 'dir. Böylece deşik konsantrasyonundaki azalma ile tuzaklanan elektron konsantrasyonundaki azalma birbirine yaklaşık olarak eşittir (Bos 2006):

$$I(t) = -\frac{\mathrm{d}m}{\mathrm{d}t} \approx -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} \tag{2.10}$$

İletkenlik bandında yer alan elektronların konsantrasyonundaki değişim hızının $dn_c/dt \approx$ 0 olduğu durum için Eşitlik 2.7 çözülürse TL şiddeti *I*(*t*):

$$I(t) = \frac{mA_m n}{(N-n)A_n + mA_m} s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$
(2.11)

ile elde edilir.

2.3.1 TL kinetik ifadeleri

Genellikle tek tuzak – tek yeniden birleşme merkezi yaklaşımı kullanılarak en basit şekliyle açıklanmaya çalışılan lüminesans olayı çok daha karmaşık bir işleyişe sahiptir. Lüminesans verimi için elektron – deşik çifti oluşumu, tuzaklanma, yük transferi, yeniden birleşme veya yayılım gibi birçok parametrenin birlikte değerlendirilmesi gerekmektedir (Bos 2006). Ancak, basit model kullanılarak elde edilen Eşitlik 2.11 ile analitik olarak çözülemediğinden bazı basitleştirici varsayımlar yapmak gerekmektedir. Bu varsayımlara göre termolüminesans sürecini belirleyen birinci, ikinci ve genel derece kinetik denklemleri sırasıyla Randall ve Wilkins (1945), Garlic ve Gibson (1948), May ve Patridge (1964) tarafından elde edilmiştir. Buna göre Eşitlik 2.11'i çözmek için kullanılan varsayımlar ve denklem çözümleri:
i. Birinci derece kinetiği: Malzemenin ısıtılması sırasında yeniden tuzaklanmanın ihmal edilebileceği ve $mA_m \gg (N - n)A_n$ varsayımı yapılarak Eşitlik 2.11 aşağıdaki şekilde elde edilmiştir:

$$I(t) = -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = nse^{-E/kT} \tag{2.12}$$

Eşitlik 2.12'de eğer sıcaklık *T* sabit kalırsa p = sexp(E/kT)'de (Eşitlik 2.1) sabittir ve integrali alınırsa şiddet:

$$I(t) = I_0 exp(-pt)$$
, (2.13)

Burada I_0 t = 0 anındaki başlangıç şiddetidir. Sabit sıcaklıkta azalım zamanın basit bir eksponansiyel fonksiyondur ve bu olaya fosforesans adı verilir. Ancak sıcaklık değişkense Eşitlik 2.12, Eşitlik 2.14'teki halini alır:

$$I(T) = -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = n_0 s \exp\left(-\frac{E}{\mathrm{kT}}\right) \exp\left[-\frac{s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{\mathrm{kT}'}\right) \mathrm{dT}'\right],$$
(2.14)

burada, n_0 t = 0 anında toplam tuzaklanan elektronların sayısıdır. Sıcaklık arttıkça lüminesans şiddeti artar ve bir maksimum değeri geçtikten sonra azalır. Böylece eğri bir pik şeklini alır ve bu birinci derece ışıma pikidir (Bos 2006).

ii. İkinci derece kinetiği: Malzemenin ısıtılması sırasında yeniden tuzaklanma olasılığının baskın olduğu $mA_m \ll (N - n)A_n$ durumlar için çözüm yapılmıştır. Ayrıca tuzakların doyumdan (saturation) uzak olduğu $N \ll n$, konsatrasyonların n = m ve yeniden birleşme ve yeniden tuzaklanma olasılıklarının eşit olduğu ($A_m = A_n$) varsayıldığında Eşitlik 2.11:

$$I(t) = -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = \frac{n^2}{N} s \mathrm{e}^{-E/kT},\tag{2.15}$$

ile verilmektedir. Burada dn/dt, n^2 ile orantılıdır ve zaman içinde sıcaklık lineer arttırıldığında eksponansiyel değil hiperbolik bir eğri elde edilir:

$$I(T) = -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = \frac{n_0^2}{N} s \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \left(\frac{n_0 s}{\mathrm{N}\beta}\right) \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) \mathrm{d}T'\right]^{-2}.$$
 (2.16)

Bu eğri neredeyse simetriktir ve eğrinin eteklerinde (şiddetin yarıya düştüğü noktaların altı) ise yüksek sıcaklık bölgesi düşük sıcaklık bölgesine göre daha geniştir. Bu da varsayımda yeniden birleşmeden önce yeniden tuzaklanmaların gerçekleşmesi sonucu lüminesans salınımının gecikmesinden kaynaklanmaktadır (Bos 2006).

iii. Genel derece kinetiği: Birinci ve ikinci derece TL kinetikleri bazı özel ve basitleştirici varsayımlar yapılarak türetilmiştir. Ancak, bu varsayımların geçerli olmadığı ve TL pikinin bu iki kinetiğe uymadığı durumlar da mevcuttur. Bu durumda May ve Partridge (1964) tarafından deneysel olarak geliştirilen genel derece kinetiği kullanılmıştır:

$$I(t) = -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = n^b s' \mathrm{e}^{-E/kT}$$
(2.17)

s', m^{3(b-1)}s⁻¹ boyutundadır (ön-eksponansiyel faktörü) ve b ise genel derece parametresi olarak tanımlanmaktadır ve 1 ile 2 arasındaki değerleri almaktadır. b \neq 1 durumu için Eşitlik 2.17'nin integrali alınırsa,

$$I(T) = n_0 s'' \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \left[1 + \frac{s''(b-1)}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{kT'}\right) dT'\right]^{-\frac{D}{b-1}},$$
(2.18)

burada, $s'' = s' n_0^{(b-1)}$, dir ve birimi s⁻¹, dir. $b \to 1$ ve $b \to 2$ durumları için sırasıyla birinci derece kinetik ve ikinci derece kinetik denklemleri kolaylıkla elde edilebilir (Bos 2006).

Bir TL ışıma eğrisini tanımlayan parametreler E, s, b ve n_0 'dır. Bu parametrelerin değişiminin ışıma eğrisi üzerindeki etkileri Şekil 2.6'da verilmektedir.

2.4 Optik Uyarımlı Lüminesans (OSL)

OSL yönteminde, yasak enerji bandındaki ara enerji seviyelerinde (*T*) tuzaklanan elektronlar (Şekil 2.4) uyarılarak malzemenin (fosforun) daha önce aldığı radyasyon dozu ile orantılı lüminesans şiddeti elde edilir. Burada, uyarımda (stimulation) kullanılan yöntem TL yönteminden farklı olarak optik uyarımdır. Uyarım sabit sıcaklıkta, sabit dalgaboyunda (λ) (UV, görünür veya kızılötesi) ve belirli bir uyarma (illumination) şiddetinde (ϕ) gerçekleştirilir. Uyarımı ardından yayınlanan OSL uyarım süresinin bir fonksiyonu olarak kaydedilir (OSL eğrisi). OSL yönteminde, uyarım şekline bağlı olarak tanımlanan üç farklı mod bulunmaktadır:

i. Sürekli dalga - OSL (CW-OSL): Malzemenin uyarımında kullanılan ışığın şiddeti sabit tutulmaktadır. Uyarım süresince OSL sinyalleri kaydedilir (Huntley vd. 1985),

ii. Çizgisel kiplenimli - OSL (LM-OSL): Malzemenin uyarımında kullanılan ışığın şiddeti doğrusal olarak artırılmaktadır ve uyarım süresinde OSL sinyalleri kaydedilir (Bulur 1996),

iii. Puls şeklinde - OSL (POSL): Malzemenin uyarımı için puls şeklinde ardarda ışık şiddeti uygulanmakta ve uyarımlar arasındaki sürelerde OSL sinyalleri kayıt edilmektedir (Sanderson ve Clark 1994). Bu yöntem, lüminesans sinyallerinin ömrü ve yeniden birleşme merkezi karakterizasyonu hakkında bilgi elde edilebilecek olan zaman çözünürlüklü OSL (TR-OSL) olarak geliştirilmiştir (Chithambo ve Galloway 2001, Bailiff 2000). POSL tekniği bu tez çalışmasında kullanılmamıştır.



Şekil 2.6 Birinci derece b = 1 (a, b, c) ve ikinci derece b = 2 (d, e, f) kinetik denklemlerinin özellikleri: a) ışınlamanın ardından tuzakların konsantrasyonu (n_0) değişimi, b) aktivasyon enerjisi (E) ile değişim, c) tuzaktan kaçış frekansı (s) ile değişim, d) ışınlamanın ardından tuzakların konsantrasyonu (n_0) değişimi, e) aktivasyon enerjisi (E) ile değişim, f) s/N ile değişim. Işıma eğrilerinin çiziminde $n_0 = 1 \text{ m}^{-3}$; E = 1 eV; $s = 1 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$; $s/N = 1 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}\text{m}^3$ parametreleri kullanılmıştır. Bir parametre değişken iken diğerleri sabit tutulmuştur. Isıtma hızı tüm eğriler için 1 K/s'dir. Birinci derece kinetiğe sahip TL ışıma eğrilerinde pik maksimum değeri n_0 ile değişmemekte ve ikinci derece kinetiğe sahip TL ışıma eğrilerinde pik maksimum değeri n_0 ile değişmektedir (Bos 2006).

OSL modlarının zamana bağlı uyarım şekli ve elde edilen OSL sinyallerinin şematik gösterimi Şekil 2.7'da verilmektedir.



Şekil 2.7 OSL uyarım modları CW-OSL, LM-OSL ve POSL'nin uyarım sırasındaki şiddet değişimi (düz çizgiler) ve elde edilen OSL sinyalinin (noktalı eğriler) şematik gösterimi (Bøtter-Jensen vd. 2003'den değiştirilerek alınmıştır)

Optik uyarımda tuzaktaki elektronların uyarılma hızı p (s⁻¹):

$$p(E_0) = \varphi \sigma(E_0) , \qquad (2.19)$$

burada, φ optik uyarım şiddeti, $\sigma(E_0)$ foto-iyonizasyon tesir kesiti (cm²) ve E_0 ise tuzaklanan elektronun salınımı için gerekli olan optik uyarımın eşik enerjisidir. Optik uyarım sırasında, tuzaklar sabit dalgaboyu λ ve uyarma şiddeti φ kullanılarak boşaltılırsa CW-OSL azalım eğrisi elde edilmektedir. Ancak *p* zamana bağımlı ise yani sabit dalgaboyunda uyarım şiddeti $\varphi(t)$ zamanla doğrusal olarak arttırılırsa ($\beta_{\varphi} = d\varphi/dt$) LM-OSL eğrisi elde edilmektedir (Bøtter-Jensen vd. 2003):

$$\varphi(t) = \varphi_0 + \beta_{\varphi} t \,, \tag{2.20}$$

2.4.1 CW-OSL

Tek tuzak – tek yeniden birleşme merkezi modeline (basit enerji - bant modeli) göre daha önce Bölüm 2.3'te verildiği şekilde (Eşitlik 2.4 – 2.10) yarı-denge yaklaşımı ile tuzak ve deşiklerin konsantrasyonundaki değişim hızının birbirine neredeyse eşit olduğu kabul edilmiştir. İkinci bir yaklaşım olarak yavaş tekrar tuzaklanma dikkate alınacak olursa $(n_c(N - n)A_n \ll np, n_v m A_m)$ kullanılarak optik uyarım için CW-OSL sinyal şiddeti (Bøtter-Jensen vd. 2003):

$$I_{OSL} = -\frac{\mathrm{d}m}{\mathrm{d}t} = -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} = np \tag{2.21}$$

olarak verilir. Denklemin çözümü ise;

$$I_{OSL} = n_0 pexp(-tp) = I_0 exp(-t/\tau_d).$$
(2.22)

Burada, $I_0 t = 0$ anındaki başlangıç OSL şiddeti, τ_d ise CW-OSL azalım sabitidir. Böylece birinci derece kinetik fonksiyonu ile malzemeye sabit uyarım ışık şiddeti uygulandığında OSL şiddetinin exponansiyel azalacağı görülmektedir. Sonuçta tuzaklar boşaltıldığında, OSL sıfırlanacaktır (McKeever vd. 1997).

Chen ve McKeever (1997) optik uyarım sırasında belirgin bir şekilde yeniden tuzaklanma olduğunda analize eklenmesi gerektiğini ve yavaş yeniden tuzaklanma yaklaşımının geçersiz olacağını göstermiştir:

$$I_{OSL} = np - n_c A_n (N - n) \tag{2.23}$$

N >> n ve $R = A_n/A_m >> n/(N - n)$ özel durumları için ikinci derece kinetik fonksiyonu:

$$I_{OSL} = \frac{n^2 p}{NR} = -\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}t} \tag{2.24}$$

olur. İntegral alındıktan sonra çözüm:

$$I_{OSL} = I_0 \left(1 - \frac{n_0 p t}{NR} \right)^{-2}$$
(2.25)

Burada $I_0 = n_0^2 p/NR$ 'dir. Daha genel derece kinetik durumlar için $I_0 = n_0^b p/NR$ alınırsa CW-OSL şiddeti aşağıdaki şekilde tanımlanır (Bøtter-Jensen vd. 2003):

$$I_{OSL} = I_0 \left(1 - \frac{n_0 p t}{NR} \right)^{\frac{b}{1-b}}.$$
 (2.26)

2.4.2 LM-OSL

1996'da Bulur, CW-OSL tekniğine alternatif, uyarım şiddetinin doğrusal arttırılması sırasında OSL şiddetinin dedekte edilmesi yöntemini tanımlamıştır. Bu uyarım modu ile OSL sinyalleri her biri farklı tuzak tiplerinden optik salınım yapan pikler halinde gözlenmektedir. Bu tekniğe göre foto-iyonizasyon tesir kesiti büyük olan tuzaklar önce boşalır ve uyarım zamanına karşılık OSL pikleri (eğrileri) elde edilir. Böylece tuzaklardaki hızlı, orta, yavaş, azalma hızı CW-OSL tekniğine göre daha iyi gözlenir (Bøtter-Jensen vd. 2003).

Tekrar tuzaklanmanın ihmal edilebilir olduğu birinci mertebe kinetik için tuzakların boşalma hızı Eşitlik 2.21 ile verilir ve Eşitlik 2.22 ile lüminesans (CW-OSL) şiddeti elde edilir burada azalımın zaman sabiti $\tau_d = 1/\sigma \varphi$ 'dir. Ancak, uyarım şiddeti doğrusal olarak sıfırdan maksimum φ_m değerine arttırılırsa zamana bağlı şiddet (Bøtter-Jensen vd. 2003):

$$\varphi(t) = \gamma t \tag{2.27}$$

ile değişir. Burada γ, uyarım şiddetindeki artışın hızıdır. Bu durumda;

$$p = \frac{dn}{dt} = -\sigma\gamma tn \tag{2.28}$$

elde edilir. Bu denklemin çözülmesiyle Gaussian fonksiyonu elde edilir ve tuzaklardaki elektron konsantrasyonu:

$$n = n_0 exp\left(-\frac{\sigma\gamma}{2}t^2\right),\tag{2.29}$$

böylece LM-OSL sinyal şiddeti Eşitlik 2.30'deki şekilde elde edilir:

$$I_{OSL} = n_0 \sigma \gamma t \exp\left(-\frac{\sigma \gamma}{2} t^2\right)$$
(2.30)

2.5 Elektron Paramanyetik Rezonans (EPR)

Elektromanyetik radyasyonun madde ile etkileşmesinin bir sonucu olarak, çeşitli spektroskopik yöntemlerle maddenin yapısı hakkında önemli bilgiler elde edilebilir. Elde edilen spektrumlar veya enerji bantları, enerji seviyeleri arasındaki elektronik geçişleri temsil etmektedir (Weber vd. 1998).

Statik bir manyetik alanda elektron spinleri veya çiftlenmemiş elektronların enerji soğurmaları sonucunda bir EPR spektrumu gözlenir. EPR spektrometresi ile paramanyetik özellik gösteren, elektriksel iletkenliği minimum, nemli veya sulu olmayan numunelerin spektrumu alınabilir. Kristaldeki metal iyonları, yarı iletkendeki alıcı ve verici safsızlıklar, serbest radikaller içeren yapılar çiftlenmemiş elektrona sahiptirler. Bu durumda net spin manyetik momenti sıfırdan farklıdır (Weber vd. 1998).

Spektroskopi, atomik veya moleküler durumlar arasındaki enerji farklılığının ölçülmesidir. Bu enerji farklılıklarının (ΔE) bilinmesiyle, malzemenin dinamik yapısı hakkında bilgiler elde edilebilir. Elektromanyetik ışımanın soğurulması ve ΔE enerjisi arasında önemli bir bağıntı vardır. Planck yasasına göre elektromanyetik radyasyonun soğurulması:

şeklindedir. Burada *h* Planck sabiti ve *v* ışınım frekansıdır. Enerji soğurulması daha düşük bir enerji seviyesinden daha yüksek bir enerji seviyesine geçişe sebep olur. Konvansiyonel spektroskopide, *v* değişken kabul edilerek tarama yapılır ve soğurulmanın meydana geldiği frekans değeri durumlar arasındaki enerji farkını temsil etmektedir. EPR spektrometrelerinde frekansı 10^9-10^{12} s⁻¹ (1–1000 GHz) aralığında olan *mikrodalga* radyasyonu kullanılmaktadır ve EPR spektrometreleri, çalışılmak istenen amaca uygun olan frekans değerine göre (mikrodalga bandı) seçilir. X-bant (yaklaşık 9.5 GHz) EPR sistemi en çok kullanılandır ve dalga boyu (λ) 3-4 cm arasındadır. Bu aralık kaviteye yerleştirilen numune boyutuna göre ayarlanmaktadır (Weber vd. 1998, Weil ve Bolton 2007).

Maddenin manyetik özellikleri, maddeyi oluşturan atomik birimlerin manyetizmasına ve bu atomik birimlerin kendi aralarındaki etkileşmeye bağlıdır. Manyetik momentleri sıfırdan farklı ve aralarındaki etkileşmenin zayıf olduğu yapı taşlarının meydana getirdiği maddelere *paramanyetik* madde denir. Atoma sürekli manyetik momenti çekirdek ve elektronlar kazandırır. O halde atomun toplam manyetik momenti elektron ve çekirdek manyetik momentlerinin toplamıdır. Manyetik rezonans, statik manyetik alan uygulayarak bu manyetik momentlerle bağlantılı enerji düzeyleri yaratıp bunlar arasında geçişler oluşturma esasına dayanır. Dolayısıyla EPR, elektronik manyetik momentlere ilişkin enerji düzeyleri arasındaki geçişleri inceler (Weber vd. 1998).

2.5.1 Zeeman etkisi

Tek başına bir elektron herhangi bir dış kuvvet olmadığında da spin (\overline{S}) adı verilen kendine özgü (intrinsic) açısal momentuma sahiptir. Çünkü elektron yüklüdür ve yaptığı açısal hareket manyetik alan oluşturur. Böylece yükü ve açısal momentumu sayesinde malzeme manyetik momenti ($\vec{\mu}$) olan bir mıknatıs veya manyetik dipol gibi davranır (Şekil 2.8a) (Duin 2019).



Şekil 2.8 a) Serbest elektronun spini ve manyetik momenti, b) B_0 manyetik alanı uygulandığında $\vec{\mu}$ 'e göre maksimum ve minimum enerji yönelimi (Duin 2019'dan değiştirilerek alınmıştır)

EPR spektroskopisinde, enerji farklılıkları malzemedeki çiftlenmemiş elektronların manyetik alanla etkileşmesi ile gerçekleşir. Bu etkileşmeye Zeeman etkisi (yarılması) denir. Manyetik alan B_0 , elektronun manyetik momenti için iki enerji seviyesi oluşturur. Manyetik alan ile aynı yönlendirilirken en düşük enerji durumunda, manyetik alan ile ters yönde yönlenmiş ise en yüksek enerji durumundadır (Şekil 2.8b). İki durumda elektron spininin (m_s) yönelimine göre isimlendirilir. Elektron spini $\frac{1}{2}$ olan bir parçacıktır. Manyetik alana paralel olduğu durumda $m_s = -\frac{1}{2}$, antiparalel olduğu durumda $m_s = +\frac{1}{2}$ 'dir. Bir elektron için $\mu = m_s g_e \beta$ 'dır, burada β çevirim sabiti olan Bohr magnetonu ve g_e serbest elektron için spektroskopik g-faktörüdür (Landé g-faktörü) ve değeri 2,0023192778 (\approx 2,0023)'tür (Duin 2019). Bu durumda, $m_s = -\frac{1}{2}$ ve $m_s = +\frac{1}{2}$ olan elektron için enerji:

$$E_{+\frac{1}{2}} = +\frac{1}{2}g_e\beta B_0 \tag{2.32}$$

$$E_{-\frac{1}{2}} = -\frac{1}{2}g_e\beta B_0 \tag{2.33}$$

olarak tanımlanır (Şekil 2.9) (Duin 2019).



Şekil 2.9 Uygulanan manyetik alanın (*B*) bir fonksiyonu olarak serbest elektron için enerji seviye şeması (Weil ve Bolton 2007'den değiştirilerek alınmıştır)

2.5.2 Spin-orbit etkileşmesi

Üzerinde dış kuvveti olmayan uzayda bir elektron aldığımızda ve onu bir moleküle yerleştirdiğimizde, toplam açısal momentumu değişir, çünkü içsel spin açısal momentumuna (\vec{S}) ek olarak, yörüngesel açısal momentuma da (\vec{L}) sahip olur. \vec{L} , yörüngesel açısal momentumlu bir elektronun dolaşım akımıdır ve dolayısıyla yörüngesel açısal momentumdan kaynaklanan bir manyetik moment de vardır. Bu iki manyetik alan etkileşime girmektedir. Spin-yörünge etkileşiminin enerjisi, göreceli olarak yönlerine bağlıdır (Duin 2019).

Elektron uzayda ise:

$$\vec{\mu} \propto g_e S$$
, (2.34)

Elektron bir molekülde ise:

 $\vec{\mu} \propto g_e \vec{S} + \vec{L},\tag{2.35}$

Genel olarak, yörüngesel açısal momentum, temel durumdaki bir elektron için yaklaşık olarak sıfırdır. Bununla birlikte, temel durum ile uyarılmış durumlar arasındaki etkileşim,

temel duruma küçük miktarlarda yörüngesel açısal momentum ilave eder (Duin 2019) (spin-orbit çiftleşme katkısı):

$$\vec{\mu} \propto g_e \vec{S} + spin - orbit$$
 çiftleşme katkısı, (2.36)

Spin-orbit çifti katkı teriminin S ile orantılı olduğunu varsaymak yaygın bir uygulamadır, bu da hem sağdaki terimleri birleştirip hem de g, g_e değerini değiştirebileceğimiz anlamına gelir (Duin 2019).

$$\vec{\mu} \propto g\vec{S}$$
, (2.37)

$$\Delta E = g\beta B_0. \tag{2.38}$$

Spin-orbit çifti katkısının büyüklüğü çiftlenmemiş elektron içeren çekirdeğin boyutuna bağlıdır. Böylece, sadece H, O, C ve N atomlarını içeren organik serbest radikallerde spin-yörünge çiftinin katkısı küçük olacaktır. Bu durum da g faktörü g_e ye çok yakın elde edilirken, metaller gibi daha büyük elementlerin g faktörleri g_e den oldukça farklı olabilir. g faktörü elektron ve molekül arasındaki doğal bağların kimyasal bilgisini, molekülün elektronik yapısını içerir ve g değeri molekülün parmak izi olarak alınabilir (Duin 2019).

2.5.3 g faktörü

Bir EPR spektrometresinde, paramanyetik bir örnek, yukarıda gösterildiği gibi, temel durumun enerji seviyelerini ΔE ile bölen geniş bir düzgün manyetik alana yerleştirilir (Duin 2019):

$$\Delta E = g\beta B_0 = h\nu, \tag{2.39}$$

 β , Boltzman sabitidir ve B_0 'ın büyüklüğü ölçülebilir. g'yi hesaplamak için gereken iki spin seviyesi arasındaki ΔE değerini belirlemektir. Örnek, mikrodalga ile ışınlanırken belli bir frekans değerinde şiddetli manyetik alan taraması yapılır (Duin 2019). İki spin durumu arasındaki enerji farklılıklarını manyetik alan kuvvetini değiştirerek gerçekleştirebildiğimiz için, spektrum elde etmek için alternatif iki yolumuz vardır: i. Sabit bir manyetik alan uygulayabilir ve elektromanyetik radyasyonun frekansını geleneksel spektroskopide olduğu gibi tarayabiliriz. Alternatif olarak, ii. elektromanyetik radyasyon frekansını sabit tutabilir ve manyetik alanı tarayabiliriz. Soğurmadaki pik noktası, manyetik alan değeri iki spin durumuna ayarlandığında (tuning) enerji farkı mikrodalga radyasyonu ile eşleşir ve bu alana "rezonans alanı, B_0 " denir. EPR'de mikrodalga üreten kaynağa klystron denir. X-bandı klystronu 8.8-9.6 GHz genişliğinde özel bir spektral banda sahiptir. Genellikle EPR sistemlerinde rezonans koşulunun sağlanması için frekans sabit tutulur ve manyetik alanı değiştirilir (Duin 2019).

2.5.4 Çizgi Şekli

Ölçülen *g* faktörünün serbest elektronunkinden sapması, temel durum ile uyarılmış durum arasındaki spin-yörünge bağlantısından kaynaklanır. Yörüngeler moleküle yöneldiğinden, bu karışımın büyüklüğü yöne bağlıdır yani anizotropiktir. Düşük viskoziteli bir çözümde, bu anizotropinin tamamının ortalaması alınır. Ancak, tek kristalde durum farklıdır. Tek kristalin EPR spektrumunda anizotropi nedeniyle kristali döndürüldüğünde *g* faktörü değişir. Her paramanyetik molekül için ana eksen sistemi vardır. Bu eksenler boyunca ölçülen *g* faktörleri g_x , g_y ve g_z olarak etiketlenir (Duin 2019).

Şekil 2.10, paramanyetik malzemenin z yönünde iki eşit ligand (bağlanma) ile x ve y yönünde dört yönde eşit ligand tarafından koordine edildiği bir örnek olarak göstermektedir. Ortaya çıkan g faktörü B_0 alanının z eksenine paralel veya x veya y eksenlerine paralel olduğu durumlar için farklı olmaktadır.

Şekil 2.11, üç farklı anizotropi sınıfı için soğurma ve birinci türev spektrumunu göstermektedir. İzotropik olarak adlandırılan birinci sınıfta, ana *g* faktörlerinin tümü aynıdır (Şekil 2.11a). Eksenel olarak adlandırılan ikinci sınıfta, diğer ikisinden farklı olan bir eksen bulunur ($g_x = g_y \neq g_z$) (Şekil 2.11b ve 2.11c).



Şekil 2.10 g değerinin moleküllerin manyetik alandaki yönelimine bağımlılığı (Duin 2019)

Benzemeyen eksen (g_z) boyunca *g* faktörünün ona paralel olduğu söylenir, $g_z = g//$. Diğer iki eksen ise ona diktir, $g_{x,y} = g \perp$. Rombik (eşkenar dörtgen) denilen son sınıf, tüm *g* faktörleri farklı olduğunda ortaya çıkar (Şekil 2.11d) (Duin 2019).

2.5.5 Aşırı ince (hyperfine) ve süper ince (super-hyperfine) yapı yarılması

EPR'de oluşabilecek üç çeşit etkileşim vardır. İlk iki tip, eşleşmemiş bir elektron ve manyetik çekirdek arasındaki etkileşime bağlıdır. Eşleşmemiş bir elektronun nükleer manyetik moment ile etkileşimi, nükleer aşırı ince yapı yarılması olarak adlandırılır. Genellikle, etkileşim eşleşmemiş elektronun bağlı olduğu çekirdekten kaynaklanıyorsa (Şekil 2.12A) *aşırı ince*, eğer komşu bir çekirdekle etkileşmeden kaynaklanıyorsa *süper ince yapı yarılması* olarak adlandırılır (Şekil 2.12B).



Şekil 2.11 g faktörünü oluşturan x, y, z eksen değerlerine göre a) izotropik, b) ve c)eksenel ve d) rombik EPR spektrumunun şematik gösterimi. Üst sıra manyetik momentlerle ilişkili şekilleri gösterir. Altında soğurma eğrileri gösterilmiştir. En altta karşılık gelen EPR birinci türev eğrileri gösterilmiştir (Palmer 1985).

Üçüncü tip, normalde bir spin-spin etkileşimi olarak adlandırılan bir molekül içindeki farklı atomlardaki iki eşlenmemiş elektron arasındaki etkileşimdir (Şekil .2.12C).



Şekil 2.12 EPR sisteminde manyetik etkileşimin üç tipi a) ince yapı yarılması, b) aşırı ince yapı yarılması ve c) spin-spin etkileşimi (Duin 2019)

Çekirdeğin manyetik kuantum sayısı (M_I) toplam 2I+1 tane değer almaktadır. Bu nedenle manyetik alan da 2I+1 değer alır. Eşitlik 2.39'daki rezonans koşuluna (dış manyetik alan (B_0) için) bir de çekirdeğin manyetik alanının eklenmesi nedeniyle dış manyetik alan da 2I+1 kadar yarılır. Böylece EPR spektrumu aşırı ince yapı çizgisi adı verilen 2I+1 çizgiye yarılır (Apaydın 1991).



Şekil 2.13 Nükleer spini *I*=1/2 olan manyetik çekirdek ile tek elektronun etkileşmesi sunucu oluşan EPR spektrumu (Duin 2019)

2.5.6 EPR sinyal şiddeti

EPR sinyalinin integral alanı paramanyetik merkezlerin konsantrasyonu ile orantılıdır. Bir malzemenin spinlerinin mutlak konsantrasyonu spin yoğunluğu bilinen standart bir örnekle karşılaştırma yapılarak belirlenebilir. Şiddetin elde edilmesi EPR sinyalinin birinci türevinde:

$$I \propto A_{pp} (\Delta H_{pp})^2, \tag{2.40}$$

burada, A_{pp} türev sinyalinin pikten pike genliğini, ΔH_{pp} ise pikten pike ölçülen manyetik alan farkını vermektedir. , ΔH_{pp} 'nin sabit olduğu varsayılırsa pikten pike ölçülen genlik (A_{pp}) direk olarak sinyal şiddeti olarak kabul edilebilir (Bulur 1998).



Şekil 2.14 Bruker EMX plus X-bant EPR sisteminde 300 Gy radyasyon dozu ile ışınlanan kaliş örneğine ait EPR spektrumunun birinci türev sinyali, belirlenen sinyal şiddet ve genişliği

2.6 Kinetik Parametrelerin Analiz Yöntemleri

Yapılan deneysel ölçümlerden elde edilen verilerin analiz edilmesi ve bunun sonucunda lüminesans mekanizmasının anlaşılabilmesi için kinetik parametrelerin belirlenmesi gerekmektedir. Bu amaçla kullanılabilecek olan yöntemlerden ışıma eğrisi ayrıştırma (deconvolution) ve kesikli ışıma eğrisi teknikleri tez çalışması kapsamında kullanılmıştır.

2.6.1 Işıma eğrisi ayrıştırma yöntemleri

Deneysel ölçümler sonucunda elde edilen TL, CW-OSL ve LM-OSL eğrileri farklı enerji seviyelerinden gelen lüminesansın zamana veya süreye bağlı olarak toplam şiddeti hakkında bilgi vermektedir. Bu nedenle her enerji seviyesinden gelen bilginin

incelenmesi amacıyla TL piklerinin veya OSL eğrilerinin ayrıştırılması sık kullanılan yöntemler arasındadır. Ayrıştırma işlemi için daha önce Bölüm 2.3 ve 2.4'te anlatılan, TL, CW-OSL ve LM-OSL yöntemlerine göre elde edilen birinci, ikinci ve genel derece kinetik denklemleri kullanılmaktadır.

TL kinetik denklemlerinde (Eşitlik 2.14, 2.16, 2.18) yer alan parametrelerin ayrıştırmada uygulanabilirliği açısından Kitis vd. tarafından (1998) birinci (Eşitlik 2.41), ikinci (Eşitlik 2.42) ve genel (Eşitlik 2.43) derece kinetik için I_m , T_m , E ve b parametrelerine indirgenmiştir.

$$I(T) = I_m \exp\left[1 + \frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m} - \frac{T^2}{T_m^2} \times \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) (1 - \Delta) - \Delta_m\right],$$
 (2.41)

$$I(T) = 4I_m \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) \times \left[\frac{T^2}{T_m^2} (1 - \Delta) \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) + 1 + \Delta_m\right]^{-2}, \quad (2.42)$$

$$I(T) = I_m b^{\frac{b}{b-1}} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) \times \left[(b-1)(1-\Delta) \frac{T^2}{T_m^2} \exp\left(\frac{E}{kT} \frac{T - T_m}{T_m}\right) + Z_m \right]^{-\frac{b}{b-1}}.$$
 (2.43)

Burada, $\Delta = 2kT/E$, $\Delta_m = 2kT_m/E$ ve $Z_m = 1 + (b-1)\Delta_m$ 'dir.

Ölçümler sonucunda elde edilen CW-OSL eğrisi bir eksponansiyel azalım eğrisidir ve genellikle farklı enerji seviyelerinden gelen OSL sinyalleri üst üste binerek tek bir azalım eğrisi gibi görünürler. Bu toplam eğrisinden gerekli kinetik parametre bilgililerinin elde edilmesi için ayrıştırma işlemi yapmak gereklidir. Eşitlik 2.26'de elde edilen ifade de deneysel olarak belirlenemeyen n_0 , I_0 ve p parametrelerinin yerine Bøtter-Jensen vd. (2003) tarafından yeniden düzenlenen Eşitlik 2.44 ayrıştırma işlemlerinde kullanılmaktadır. Bu denklemde I_0 , b ve τ parametrelerine başlangıç değerleri atanarak tahmini değerleri üzerinden toplam OSL eğrisini tanımlayacak bileşenler elde edilmektedir:

$$I(t) = I_0 \left[1 + (b-1)\frac{t}{\tau} \right]^{-\frac{b}{b-1}}.$$
(2.44)

Deneysel LM-OSL eğrileri, genellikle birbiriyle örtüşen birden fazla pikten oluşmaktadır. Ayrıştırma için tek bir LM-OSL eğrisi için Bulur (1996) tarafından elde edilen Eşitlik 2.30'da doğrudan deneysel olarak elde edilemeyen n_0 , σ , γ ve t paramatreleri Kitis ve Pagonis tarafından (2008) dönüştürülerek LM-OSL eğrilerinin I_m , t_m , b ve t parametreleri ile denklemi yeniden uyarlamıştır. Ayrıştırma işlemi bu parametrelerin tahmini değerleri ile başlayarak uygun uydurma (fit) eğrileri elde edilir. Polymeris vd. (2006b) bu parametreleri genel derece kinetik denklemine uyarlamıştır. Kinetik dereceyi gösteren parametre b'dir. b parametresinin 1 alınması ile denklem birinci derece kinetik denklemine dönüşmektedir:

$$I(t) = I_m \frac{t}{t_m} \left[\frac{b-1}{2b} \frac{t^2}{t_m^2} + \frac{b+1}{2b} \right]^{\frac{b}{1-b}}$$
(2.45)

Bölüm 5.4'te gösterildiği üzere ağartma işleminin LM-OSL sinyallerine etkisinin belirlenmesi amaçlı yapılan ölçümlerde LM-OSL eğrisinin başlangıçtaki şiddetinin sıfırdan (yani doğal fonun üzerinde) farklı olması, azalan bir eğri olarak elde edilmesi nedeniyle ayrıştırma işleminde ek bir bileşenin başlangıçtaki sinyali tanımlaması için eklenmesi gerekmektedir. Bu amaçla başlangıç kısmında gözlenen azalım eğrisinin tanımlanması amacıyla forforesans (PH) ve CW-OSL olmak üzere iki yaklaşım kullanılmıştır. Bu amaçla kullanılan PH bileşeninin analizi için LM-OSL ayrıştırma analizine Eşitlik 2.46 ile verilen eksponansiyel azalım bileşeni (Randall ve Wilkins 1945) eklenmiştir:

$$I = I_0 \cdot e^{-\lambda t}, \tag{2.46}$$

burada *I*, herhangi bir zamanda *t* (s) PH şiddetidir, I_0 , t = 0 'daki PH şiddetidir (başlangıç şiddeti) ve λ , s⁻¹ birimlerinde ifade edilen lineer azalım (linear attenuation) veya azalım (decay) katsayısıdır.

Tüm eğri donanımları, Microsoft Excel yazılım paketi kullanılarak, çözücü programı (Afouxenidis vd. 2012) ile gerçekleştirilirken, uyum iyiliği değeri, Balian ve Eddy (1977)'ın FOM (Figure of Merit) rakamı kullanılarak test edilmiştir:

$$FOM = \sum_{i} \frac{|Y_{Exper} - Y_{Fit}|}{A}$$
(2.47)

 Y_{Exper} deneysel ışıma eğrisi ise, Y_{Fit} fit edilen ışıma eğrisidir ve A fit edilen ışıma eğrisinin alanıdır. Elde edilen FOM değerleri her durumda % 2'den az olmalıdır.

2.6.2 Kesikli ışıma eğrisi tekniği

Karmaşık TL ve OSL eğrilerini analiz etmek ve karşılaştırmak için ayrıştırma gerekmektedir. Bu ayrıştırma analizi için, fitting (uydurma) parametreleri için ve özellikle TL piklerinin aktivasyon enerjisi için uygun başlangıç değerlerinin elde edilmesi oldukça önemlidir. Bu nedenle, Gobrecht ve Hofmann'a (1966) göre, kesikli ışıma eğrisi tekniği (fractional glow technique, FGT) çoklu başlangıçtaki artış tekniği olarak uygulanmaktadır. Standart TL teorisine göre, her bir TL piki ilk artan kısım, bunu takiben de son bir azalan kısım ile birlikte maksimum şiddetin görüldüğü T_m değeri vardır. Garlick ve Gibson'a 1948 göre, lüminesans pikinin ilk artan kısını, Boltzmann fonksiyonuna kuvvetle bağlıdır, son kısım ise üstel olarak azalmaktadır. Buna dayanarak, Gobrecht ve Hofmann (1966), artan sıcaklıklarda sıralı kesitler (T_c) kullanarak başlangıçtaki artış tekniğinin tekrarlayan bir uygulamasını önermiştir.

Başlangıçtaki artış tekniğinde, bir TL ışıma pikinin düşük sıcaklık kısmında tuzaklanan elektronların miktarı yaklaşık olarak sabit kabul edilebilir. Çünkü n(T)'nin sıcaklığa bağımlılığı bu sıcaklık bölgesinde ihmal edilebilir. Sıcaklık arttıkça Eşitlik 2.14'teki ilk

exponansiyel kısım artarken ikinci terim sabit kalır. Bu durum, kesim sıcaklığına (T_c) kadar doğrudur, bu da maksimum TL şiddetinin (I_m) %15'inden daha küçük bir TL şiddetine I_c karşılık gelir. Sıcaklıktaki daha fazla artış ($T > T_c$) Eşitlik 2.14'teki ikinci terimi düşürür. Burada, n(T)'nin sabit olduğu varsayımı kullanılarak termolüminesans yayımı $I(T) \sim \exp(-E/kT)$ şeklinde tanımlanabilir (Şekil 2.15).



Şekil 2.15 TL ışıma eğrisinin başlangıçtaki artış kısmı (Furetta 2003)

Başlangıçtaki artış yöntemi uygulamasında çizilen ln(I) - 1/kT grafiği lineerdir. Burada eğimi –*E*'yi verir, böylece aktivasyon enerjisi (*E*), frekans faktörü (*s*) bilgisi olmadan değerlendirilir (Şekil 2.16).



Şekil 2.16 Başlangıçtaki artış yöntemi kullanılarak elde edilen veriler kullanılarak çizilen TL ışıma eğrisinin başlangıçtaki artış kısmına uygulanan başlangıçtaki artış yöntemi (Furetta 2003)

Kesikli ışıma eğrisi tekniğinde örnek ışınlandıktan sonra ilk tepenin düşük sıcaklık kısmına karşılık gelen bir sıcaklığa (T_c) kadar ısıtılır. Örnek daha sonra oda sıcaklığında soğumaya bırakılır ve ışıma eğrisinin geri kalanını elde etmek için örnek aynı ısıtma hızında tekrar ısıtılır ve T_m belirlenir. Yöntem, yeni ışınlanmış bir örnek üzerinde veya ısıtılmış/ışınlanmış örnek üzerinde birçok kez tekrarlanır. $T_m - T_c$ grafiği merdiven basamağı şeklindedir. Bu yöntemle, tepelerin sayısı ve her plato bölgesi her tepenin yaklaşık konumunu, yani tepenin hangi sıcaklıkta oluştuğu belirlenir. Plato bölgesinin bitimindeki kademeli artış kinetik derecenin birden büyük olduğunu gösterir. Birinci mertebeden TL kinetiğinde ise bir sonraki plato bölgesine geçişte keskin bir artış gözlenir.

2.6.3 Tuzak parametrelerinin belirlenmesi

TL, CW-OSL ve LM-OSL yöntemleri kullanılarak elde edilen ışıma eğrileri veya azalım eğrilerine ayrıştırma yöntemi uygulanmıştır. Ayrıştırma işlemi sonucunda lüminesans eğrilerini oluşturan pikler ve bileşenlere ait tuzak parametrelerinin bir kısmı yapılan fit (eğri uydurma) sonucu olarak elde edilmiştir. TL ışıma eğrisinin ayrıştırılmasında fit parametreleri belirlenmeden önce kesikli ışıma eğrisi tekniği ile başlangıç değerleri elde edilmiştir. Başlangıç parametrelerinin belirlenmesinin ardından ayrıştırma analizi yapılmış ve tuzak aktivasyon enerjileri ve T_m gibi parametreler belirlenmiştir (Çizelge 2.1). CW-OSL ve LM-OSL eğrilerinin ayrıştırma analizinin ardından elde edilen nicelikler (Çizelge 2.1) kullanılarak Eşitlik 2.48-2.50'den ilgili OSL modu için fotoiyonizasyon tesir-kesiti (σ) ve yeniden birleşme ömrü (τ) hesaplanmıştır.

Lüminesans yöntemi	Tuzak parametreleri belirleme tekniği	Elde edilen tuzak parametreleri
TL	Ayrıştırma	I_m, T_m, E, b
	Kesikli ışıma eğrisi	T_m, E
CW-OSL	Ayrıştırma	Ιο, b, τ
LM-OSL	Ayrıştırma	Imax, tmax, b

Çizelge 2.1 Farklı lüminesans yöntemleriyle deneysel veriler kullanılarak elde edilen tuzak parametreleri

Fotoiyonizasyon tesir-kesiti OSL tuzakları arasındaki ilişkiyi incelemek ve karşılaştırmak için kullanılabilecek tuzak parametrelerinden birisidir. Bir CW-OSL bileşeni için, fotoiyonizasyon tesir-kesiti (σ) denklem (5) ile hesaplanabilir (Bøtter-Jensen vd. 2003):

$$p = \frac{1}{\tau} = \sigma \cdot \varphi , \qquad (2.48)$$

burada τ , ayrıştırmayla belirlenen s cinsinden yeniden birleşme ömrü, φ ise cm⁻²·s⁻¹ cinsinden foton akısıdır. CW-OSL ölçümlerinde mavi uyarma ışığının gücü % 90 kullanılmıştır ve buna göre uyarma ışığının akısı 8,5×10¹⁶ cm⁻²·s⁻¹'dir.

LM-OSL eğrileri için fotoiyonizasyon tesir-kesitleri, LM-OSL pikinin maksimum şiddete ulaştığı zaman (t_m) kullanılarak hesaplanabilir (Bulur 1996, Polymeris vd. 2006b):

$$\sigma = \frac{2P \cdot E_{\varphi}}{6.24146 \cdot 10^{18} \cdot t_m^2 I_0 \cdot (b+1)},\tag{2.49}$$

burada, I_0 uyarım şiddetidir (mW·cm⁻²) ve *b*, kinetik derece parametresini temsil etmektedir.

Bölüm 5.4'de LM-OSL eğrisinin başlangıç kısmında gözlenen azalan sinyalin türünün belirlenmesi amacıyla CW-OSL ve fosforesans yaklaşımı uygulanmıştır. CW-OSL uygulanması durumunda σ 'nın hesaplanmasında kullanılacak eşitlik, Eşitlik 2.48'den biraz farklıdır. Burada ana deneysel yöntem LM-OSL'dir, bu nedenle uyarım gücü % 0 ile % 100 arasında maksimum güce kadar doğrusal olarak artmaktadır. CW-OSL bileşeni LM-OSL eğrisinin ilk kısmına eklendiğinde, uyarım şiddeti sabit değildir. Dolayısıyla, φ foton akısı, CW-OSL bileşeninin yeniden birleşme ömrüne (τ) kadar hesaplanmalıdır. Foton akısı $\varphi_i = q \cdot \tau_i$ olarak tanımlanabilir, burada *i*, parametrenin uyarım sıcaklığına bağlı olduğunu göstermektedir. Bu durumda, fotoiyonizasyon tesir-kesiti Eşitlik 2.50 ile hesaplanabilir:

$$\sigma_i = \frac{1}{\tau_i \varphi_i} = \frac{1}{\tau_i (q \cdot \tau_i)} = \frac{1}{\tau_i^2 q}$$
(2.50)

q, foton akış hızıdır. mavi LED'lerin maksimum şiddetinin (40 mW·cm⁻²) uyarım süresine (T = 200 s) oranı olarak hesaplanmaktadır (Polymeris vd. 2006b, Choi vd. 2006).

2.7 Doğrusallık (k) ve minimum ölçülebilen doz limiti (MDDL)

Radyasyon doz cevabı çalışmalarında, belirli bir radyasyon dozunun aşılmasından sonra, buna karşılık gelen sinyal şiddeti artmaya başlar ve bu, minimum ölçülebilen doz limitini (minimum detectable dose limit, MDDL) tanımlamaktadır (Göksu vd. 1998, Furetta 2010, Azorín-Nieto 1990). MDDL aşıldığında, radyasyon doz cevap eğrisi, tuzakların dolduğunu gösteren doygunluk seviyesine doğru yükselmeye başlar. MDDL ve doygunluk seviyesi arasındaki bölgede radyasyon doz cevabı özellikle dozimetri çalışmalarında önemlidir. Halperin ve Chen'e (1966) göre, TL yönteminde doz bağımlılığı Eşitlik 2.51ile tanımlanabilir:

$$I_{max} \sim \alpha D^k, \tag{2.51}$$

Burada α , orantılılık katsayısıdır ve k, eğrinin doğrusallığını gösteren bir sabittir (Nikiforov vd. 2017). D radyasyon dozunun bir fonksiyonu olarak I_{max} maksimum şiddeti log-log eksende çizildiğinde, bu denklem k eğimine sahip düz bir çizgi vermektedir. MDDL ve doygunluk seviyesi arasındaki bölgede k, malzemenin radyasyon dozu doğrusallık özellikleri hakkında bilgi sağlayabilir. k > 1, artışın supra-lineer olduğunu ve k < 1 doz yanıt eğrisi davranışının sub-lineer olduğunu göstermektedir. İdeal k = 1, malzemenin doğrusal radyasyon doz cevabı olduğunu göstermektedir (Halperin ve Chen 1966, Chen ve Leung 2001). Dozimetri çalışmalarında doğrusal bir radyasyon doz cevabı istenmektedir. Ancak birçok maddede, özellikle doğal oluşumlarda, radyasyon doz cevabı doğrusallıktan farklıdır (Nikiforov vd. 2017).

Chen ve McKeever (1994), TL radyasyon doz cevabının türevinin artan değerleri için süper-lineerlik (super-linearity) kavramının kullanılmasını önermiştir. Ölçülen TL sinyali

S(D) olmak üzere, S(D)'nin türevindeki artış, ikinci türevin $d^2S / dD^2 > 0$ olmasıyla ifade edilir. $d^2S / dD^2 < 0$ durumu sub-lineerlik olarak nitelendirilir ve durumlar $d^2S / dD^2 = 0$ durumu ise lineer (doğrusal) bir radyasyon doz cevabı olarak tanımlanır. Aynı yazarlar, süper-lineerlik indeksi g(D) olarak adlandırılan aşağıdaki Eşitlik 2.52 boyutsuz niceliğini tanımlamıştır (Pagonis vd. 2006):

$$g(D) = \left[\frac{DS''(D)}{S'(D)}\right] + 1.$$
 (2.52)

S(D) > 0 olduğu sürece, g(D) > 1 değeri süper-lineerliği belirtirken g(D) = 1 değeri lineer radyasyon doz tepkisini belirtir ve g(D) < 1 değeri sub-lineerliği belirtmektedir (Pagonis vd. 2006).

Mische ve McKeever (1989) radyasyon doz cevabı davranışını, supra-lineerite indeksi veya doz cevap fonksiyonu f(D) olarak adlandırılan fonksiyon ile belirlemişlerdir:

$$f(D) = \left[\frac{S(D)}{D}\right] / \left[\frac{S(D_1)}{D_1}\right].$$
(2.53)

buradaki D_1 , başlangıçtaki doğrusal aralıktaki normalizasyon dozudur. $S(D_1)$, D_1 dozundaki TL şiddetidir. $S(D_i)$, D_i dozundaki TL şiddetidir. Buna göre, herhangi bir numunenin ideal radyasyon doz cevabı eğrisi için. f(D) = 1 eşit olmalıdır, bu radyasyon doz cevabının lineer davranışa sahip olduğu anlamına gelir. f(D) < 1 ve f(D) > 1 değerleri için sırasıyla sub-lineerlik ve supra-lineerlik gösterir (Mische ve McKeever 1989). D_1 dozunun uygun şekilde seçilmesi önemlidir, aksi takdirde hatalı sonuçlar elde edilebilir.

2.8 Isısal Sönümleme

Isısal sönümleme (thermal quenching), sıcaklığın artmasıyla lüminesans veriminin düşmesi olayıdır. Bir maddede önceki dış uyarılmadan sonra sistemin elektronik denge durumuna dönmesiyle oluşur. Buna rağmen, ışımalı yeniden birleşmeler enerji dağılımını gösteren tek olay değildir. Bir maddede, ışınlama ve enerji transferinin ardından lüminesans oluşup oluşmaması, onun ışımalı ve ışımasız geçiş olasılıklarına bağlıdır. Genellikle lüminesans verimi η şu şekilde ifade edilir (Furetta 2003):

$$\eta = \frac{P_r}{P_r + P_{\rm nr}},\tag{2.54}$$

burada P_r ve P_{nr} sırasıyla, ışımalı geçiş olasılığı ve ışımasız geçiş olasılığıdır.

Verim η , büyük ölçüde sıcaklığa bağlıdır: Belli bir sıcaklığa kadar yaklaşık sabit kalır, bu sıcaklığın üzerinde ise verim hızla düşer. Çünkü ışımasız geçiş olasılığı P_{nr} sıcaklığa Boltzmann faktörü $e^{(-W/kT)}$ ile bağlıdır, ışımalı geçiş olasılığı P_r sıcaklıkla değişmez. Böylece Eşitlik 2.54 şöyle ifade edilir:

$$\eta = \frac{1}{1 + C \cdot \exp\left(-\frac{W}{kT}\right)},\tag{2.55}$$

burada *W*, ısısal sönümlemenin aktivasyon enerjisi ve *C*, bir sabittir. Eşitlik 2.55 ısısal sönümleme için Mott-Seitz modeli olarak bilinmektedir (Mott ve Gurney 1948, Seitz 1940).

Doğru aktivasyon enerjisi, hesaplanan lüminesans verimi kullanılarak Eşitlik 2.56'da gösterildiği şekilde düzeltilmiştir (Petrov ve Bailiff 1997):

$$E_c = E + \Delta E = E + [1 - \eta(T)] \cdot W \tag{2.56}$$

 ΔE , sıcaklığa bağlı düzeltme enerjisini (eV) temsil etmektedir.

2.9 Termal Kararlılık

Geriye dönük Dozimetre çalışmalarında kullanılan bir malzemenin lüminesans sinyalinin temel özelliklerinden biri termal kararlılıktır. Termal kararlılık, radyasyon dozu ile orantılı olarak tuzaklanan elektronların ne kadar uzun süre ilgili yarı-kararlı enerji seviyesinde depolanabileceğinin bir göstergesidir. Sıcaklığın arttırılmasıyla (dolayısıyla tuzağın aktivasyon enerjisi arttıkça) gözlenen lüminesans pikinin/sinyalinin şiddetindeki değişim incelendiğinde tuzağın elektronu depolama süresi hakkında bilgi elde edilmektedir (McKeever 1985). Daha uzun süre elektronu depolayabilen tuzaklar aktivasyon enerjisi yüksek olan derin tuzaklardır ve sığ tuzaklara göre daha kararlıdırlar.

2.10 Hassasiyet Değişimi

Bir TL malzemenin hassasiyeti, birim kütlede birim soğurulan radyasyon dozu başına ölçülen lüminesans şiddeti olarak tanımlanır. Bu durumda, eşit ağırlıktaki iki örnek aynı radyasyon dozu ile ışınlanırsa, ısıtılması sonucu elde edilen TL şiddeti yüksek olan örnek daha hassastır. Bir dozimetrik malzemenin hassasiyetindeki değişime ilk örnek yüksek radyasyon dozları ile ışınlama sonucunda lüminesans şiddetindeki artış verilebilir, bu hassaslaştırma işlemidir ve mekanizma supra-lineerite olayı ile açıklanabilir (McKeever 1985). Bunun dışında yüksek sıcaklıklara ısıtılan ve ışınlanan dozimetrik malzemelerde de hassaslaştırma işleminin gerçekleştiği gözlenmiştir (Zimmerman 1971, Fleming 1973, McKeever 1985).

2.11 Kuvarsın Moleküler Yapısı ve Kusurları

Kuvars, yeryüzünde feldispattan sonra en bol bulunan ikinci mineraldir. Birçok magmatik, metamorfik ve sedimenter kayaçlarda yaygın olarak bulunmakta ve önemli bir kısmı hidrotermal, metamorfik veya magmatik kaynaklı damarlarda gözlenir. Kuvars içerisindeki iz elementleri (safsızlıklar) ve yapısal bozukluklar, oluşumu sırasındaki farklı kristalleşme ortamı ve sıcaklık, basınç gibi fiziksel koşullar tarafından belirlenir (Preusser vd. 2009).

Silika (Silisyum dioksit, SiO₂) esas olarak kristal formda kuvars olarak görülür. Düşük sıcaklık formunda (α -kuvars) ve yüksek sıcaklık modifikasyonunda (β -kuvars) olmak üzere iki farklı faz şeklinde gözlenir. Yüzey koşulları altında (örneğin 20 ° C ve 105 Pa), SiO₂'nin kararlı formu α -kuvars modifikasyonudur (Şekil 2.17). Yüksek sıcaklıkta gözlenen β -kuvars 105 Pa'da sadece 573 °C'nin üzerinde bulunur (Deer vd. 2004). α -kuvars 573 °C'nin üzerine ısıtıldığında ilk faz değişimi gözlenir ve β -kuvars'a dönüşür. Bu dönüşüm tersinirdir (çift yönlü tepkime) (Deer vd. 2004). 870 °C ikinci faz değişiminin gözlendiği sıcaklıktır. Bu geçişte β -kuvars tridimite dönüşür. Bu dönüşüm tersinir değildir (tek yönlü tepkime) (Şekil 2.17) (McKeever 1985).



Şekil 2.17 α ve β kuvarsın kararlılık alanları ile magmatik ve metamorfik kayaçların oluşum koşullarını gösteren Basınç-Sıcaklık diyagramı (Preusser vd. 2009)

α-kuvarsın temel yapısal birimi SiO₄ tetrahedrondur (dört yüzlü). Dört oksijen atomu vardır, bunlardan biri düzenli bir tetrahedronun her tepesinde, tek silikon atomu ise merkezinde bulmaktadır (Şekil 2.18). Tetrahedronlar oksijen bağları ile birbirine bağlanmaktadır (Salh 2011). Kristal morfolojisinin en yaygın şekli hexagonal (altıgen) prizma ve rombohedral (eşkenar dörtgen) biçimlerinden oluşur (Preusser 2009).



Şekil 2.18 Düzenli silika yapısının üç boyutlu şeması. Henderson ve Baker (2002) tarafından yapı birkaç parametre ile tanımlanır; Si-O bağ uzunluğu (d), tetrahedral açı (φ), tedrahedral bağ açısı (α) ve bağ burulma açıları (δ_1 , δ_2) (Salh 2011)

Kuvars, % 100 Si0₂'ye çok yakın bir bileşime sahiptir. Farklı oluşumlardan gelen kuvars, kökenin de teşhis edilebileceği eser miktarda farklı iyonları yapısında bulundurur. Eser elementler, kuvars örgüsünde yerleşik veya arada bulunan Si ile yer değiştiren Al, Ti, Fe, Ge, P ve Ga veya yapıda oluşan kanallarda belirli yerleri işgal eden H, Li, Na ve Fe'dir. Schrön vd. (1988) ve Larsen vd. (2004) tarafından yapılan çalışmalara göre genel olarak, Ti⁴⁺ ve Fe³⁺ gibi uyumlu iyonlar en yüksek konsantrasyonlarda daha yüksek sıcaklıkta, volkanik veya plütonik gibi erken oluşmuş kuvarsta bulunurken, P⁵⁺, Ge⁴⁺, Al³⁺ ve Li⁺ daha düşük sıcaklıklarda oluşan eriyik ve pegmatit gibi kuvarsta daha yaygın olarak bulunur (Preusser 2009).

2.11.1 Kuvarsın noktasal kusurları

Kuvars örneğinde yapıdaki kusurlar ve safsızlıklar lüminesans yayılımı için gerekli olan yarı-kararlı enerji seviyelerini oluştururlar. Bu kusur ve safsızlıklar kuvarsın oluşumu

sırasındaki çevresel faktörlere göre çeşitlilik göstermektedir. Bu bölümde, kuvarsta gözlenen safsızlık ve yapı kusurları hakkında bilgi verilmiştir.

2.11.1.1 Yapı içi (intrinsic) kusurlar

Oksijen boşluk merkezleri:

En basit O boşluk türü, ideal bir α -kuvarsdan bir O atomunun çıkarılarak iki Si atomu arasında doğrudan bir bağın bulunduğu diyamanyetik merkezdir (Feigl vd. 1974). Genellikle bir "nötr Boşluk" olarak bilinir. İyonlaştırıcı parçacıklar veya nötronlar ile ışınlama sonucu oluşmaktadır. Diğer O boşluk merkezi türleri, paramanyetik E' merkezleri olan E'₁, E'₂ ve E'₄'tür. E'₁ merkezi, nötr bir O boşluğundaki deşik olarak tanımlanabilir. Ortaya çıkan kusurlar, iki Si atomundan birinde eşleşmemiş bir elektron içerirken, pozitif yüklü diğer Si iyonu boşluktan yakın bir düzlem konfigürasyonuna geçmektedir (Şekil 2.19) (Rudra ve Fowler 1987). E'₁ merkezinin sadece alkali iyonları içeren kuvarsta mevcut olduğu ve [AlO₄]⁰ merkezlerinin termal davranışları ile bir korelasyon olduğu gösterilmiştir (Bossoli vd. 1982, Martini vd. 1995). E'₂ ve E'₄ merkezleri H iyonlarının varlığı ile ilgilidir. Her iki merkez de O boşluğu içindeki bir H atomundan oluşur. E'₂ ve E'₄'ün aslında aynı merkez olduğu bildirilmiştir. Ancak, EPR verilerinden (Fowler vd. 1988), eşleştirilmemiş elektronun E'₂'nin kısa bağında veya E'₄'ün uzun bağında yerleşik olduğu görünmektedir (Şekil 2.19) (Preusser vd. 2009).

Oksijen fazlası olan merkezler:

Amorf silikada O fazlası olan merkezlerin varlığı bilinmektedir, ancak bu kusurlardan sadece köprü oluşturmayan (non-bridging) Oksijen deşik merkezleri (NBOHC) ve Peroksi radikalleri (POR) nötron ile ışınlanan kuvarsta (Skuja 2000) tespit edilmiştir (Şekil 2.19). Skuja (2000) tarafından fark edildiği gibi, nötron ışınlaması nano boyutlu amorf bölgeler oluşturur ve ortaya çıkan kusurlar amorf, kristal olmayan bir ortama sahip olabilir. Bir NBOHC, bir O yörüngesinde eşlenmemiş bir elektronla (Si atomuna bağlı olmadan) bağ yapar (Şekil 2.19). Bir POR aynı zamanda paramanyetik bir kusurdur,

ancak eşleşmemiş spinin tek bir Si atomuna bağlı iki O atomu arasında paylaşıldığı bir kusurdur (Şekil 2.19) (Preusser vd. 2009).



Şekil 2.19 Kuvarsın yapı içi (intrinsic) kusurları (Preusser vd. 2009)

Silikon boşluk merkezleri:

O boşluk merkezlerinin ve iyi tanımlanmış safsızlıkların aksine, kuvarstaki Si boşluk delik merkezleri ayrıntılı olarak karakterize edilmemiştir (Nilges vd. 2008). O fazlası olan merkezlerin tamamlayıcı bir Si boşluğuna ihtiyaç duymaları beklenir, ancak kuvarsta kararlı yapıda değildirler. Bir istisna Nilges vd. (2008) tarafından gözlenmiştir ve iki O atomunun bir Si boşluğu ile ilgilidir ve komşu tetrahedronda Al^{3+} iyonu ile stabilize edilir (Daha sonra O_2^{3-} ve O_2 merkezleri oluşturulur). Bir Si boşluğu ayrıca H kusurları H₃O₄ ve H₄O₄ oluşturan üç veya dört H iyonuna da ev sahipliği yapabilir.

2.11.1.2 Safsızlıklardan kaynaklanan kusurlar

Kuvars kristalinin oluşumu sırasında, birçok farklı element örgüye girmekte ve safsızlıklarla ilgili kusurları oluşturmaktadır (Weil 1984). Buna ek olarak mevcut kusurların ışınlama ya da difüzyon yoluyla değiştirilmesi, yeni safsızlık kusurlarının

üretilmesine neden olmaktadır. Kuvarsta iki ana kusur merkezi türü bilinmektedir: i) Si yerine geçebilecek Al, Ge, Ti, P ve Fe gibi elementler, ii) tek değerlikli olup yerine geçebilen elementlere ek olarak, radyasyon ile serbest bırakıldıktan sonra hareket edebilen küçük geçiş iyonları (çoğunlukla Li, Na ve H)'dır. Ayrıca hidrojen, Si için bir küme olarak mevcut olabilir (Preusser vd. 2009).

i. Yer değiştirmeyle oluşan safsızlık merkezleri:

Al merkezleri

Birçok yer değiştirebilen iyon arasında, Al^{3+} her yerde bulunur. Al^{3+} , Si^{4+} ile yer değiştirebilir. Bir iyon⁺ mevcudiyetinden yük dengelemesi genellikle Li⁺, Na⁺ veya H⁺ ve daha az bir ölçüde K⁺, Ag⁺ veya Cu⁺ ile sağlanır. Başka bir olasılık, bir Al iyonu çevresinde pozitif bir deşik tuzaklanmasıdır. Yük, alkali iyon (M⁺), hidrojen iyonu veya deşik ile telafi edildiğinde, ortaya çıkan merkezler sırasıyla [AlO₄/M⁺]⁰, [AlO₄/H⁺]⁰ ve [AlO₄]⁰ olarak ifade edilir (Malik vd. 1981) (Şekil 2.20). Bunlardan sadece [A1O₄]⁰ paramanyetik bir kusurdur (Preusser vd. 2009).

Fe merkezleri

Demir içeren doğal kuvars çeşitleri arasında ametist, sitrin ve dumanlı kuvars bulunur. Fe³⁺ ile ilgili merkezler Al³⁺ merkezlerine benzer, ayrıca yapıda Fe²⁺ veya Fe⁴⁺ olarak da bulunabilir (Weil, 1984). Demir için S₁ ([FeO₄/Li⁺]⁰), S₂ ([FeO₄/H⁺]⁰) ve S₃ ([FeO₄/Na⁺]⁰) olmak üzere üç paramanyetik merkez Hantehzadeh vd. (1990) tarafından gözlenmiş, ışınlama ve termal işlemlerinin bir fonksiyonu olarak bağıl konsantrasyonları incelenmiştir.

Ge merkezleri

Germanyum da kuvarsta safsızlık olarak görülmektedir. [GeO₄]⁻ paramanyetik merkezinin, diyamanyetik özellik gösteren [GeO₄]⁰'ün elektron yakalanmasıyla oluştuğu

düşünülmektedir. 20 °C'nin üzerinde kararsızdır ve Ge bölgesinde yük dengeleyici M^+ katyonlarının difüzyonuyla muhtemel kararlı [GeO₄/M⁺]⁰ merkezine bozulur (Weil, 1984). [GeO₄/Li⁺]⁰ oda sıcaklığında stabil iken [GeO₄/Na⁺]⁰ sabit değildir. H⁺ ile oluşmuş [GeO₄/H⁺]⁰ tipi Ge merkezi bilinmemektedir (Preusser vd. 2009).



[AlO₄/Na⁺]⁰

Şekil 2.20 Şekil 2.20 Kuvarsın safsızlık kusurları (Preusser vd. 2009)

Ti merkezleri

Doğal gül kuvars rengini titanyumdan almaktadır. $[TiO_4]^0$ bir diyamanyetik merkezdir. Bu merkezin 20 K'de X-ışını ile ışınlanması sonucu elektron yakalanmasıyla $[TiO_4]^$ paramanyetik merkezinin oluştuğu düşünülmektedir (Marfunin 1979). Işınlanmış kuvarsın ısıtılması M⁺ iyonlarının $[TiO_4]^-$ 'e difüzyonuna neden olur ve yükleri dengelenen $[TiO_4/Li^+]^0$ ve $[TiO_4/Na^+]^0$ merkezleri oluşur. H⁺ ile ilgili $[TiO_4/H^+]^0$ ve $[TiO_4/H^+]^+$ olmak üzere iki tip merkez tespit edilmiştir (Weil 1984, Preusser vd. 2009).

P merkezleri

Fosfor iyonları P⁵⁺ olarak bulunur. Işınlamadan sonra P⁵⁺ bir elektron yakalar ve paramanyetik [PO₄]⁰ merkezi oluşturulur (Weil 1984). Maschmeyer ve Lehmann (1983) tarafından yapılan çalışmada P⁵⁺, Si bölgesinde gül renkli kuvarsta gözlendiği raporlanmıştır. Tek değerlikli anyonların yük dengesini sağlaması bilinmediğinden, P⁵⁺ baskın olarak Al³⁺ ile [O₃POAlO₃]⁻ kusur merkezi olarak değerlendirilmektedir (Preusser vd. 2009).

ii. Geçiş (interstitial) iyonları:

H⁺, Li⁺ ve Na⁺ gibi geçiş iyonları bulundukları ortama zayıf bir şekilde bağlanır (Weil 2000). Geçiş alkali iyonları radyasyonla serbest bırakıldıktan sonra yapıdaki kanallar boyunca hareket edebilir ve bu da oda sıcaklığında saatler içinde azalan radyasyona bağlı iyonik iletkenliğe neden olur. Esas olarak Al iyonlarıyla ilişkili olduğu görülmüştür. H⁺ iyonları ayrıca AlO₄ tetrahedronda oksijene yakın) Al için yük dengeleyici olarak [AlO₄/H⁺]⁰ merkezi şeklinde bulunabilir (Preusser vd. 2009).

Alkali iyonları

Tek değerlikli alkali katyonlar, yapıdaki kanallarda dört veya altı kat koordinasyonlu büyük geçiş bölgelerine dahil edilir. Li⁺ en bol olanıdır, ancak Na⁺ ve K⁺ da ortaya

Kusur	Tavlama sıcaklığı	Manyetik Özellik	Kaynak
Yapı içi (intrinsic)			
[O ₃ Si:SiO ₃]	Termodinamik denge	Diyamanyetik	Weil (1984)
[O ₃ SiOOSiO ₃]	Termodinamik denge	Diyamanyetik	Marfunin (1979)
E'-merkezleri	400 °C	Paramanyetik	Feigl vd. (1974)
E"-merkezleri	60-100 °C	Paramanyetik	Bossoli vd. (1982)
NBOHC	500 °C	Paramanyetik	Botis vd. (2005)
[O ₃ SiOO ⁻]	300-350 °С	Paramanyetik	Marfunin (1979)
Safsızlıkla ilgili kusurlar			
$[H_4O_4]^0$	Kararlı	Diyamanyetik	
$[H_3O_4]^0$	90-150 °C	Paramanyetik	Yang ve McKeever (1990)
$[AlO_4 H^+]^0$	Kararlı	Diyamanyetik	Marfunin (1979)
$[AlO_4 M^+]^0$	Kararlı	Diyamanyetik	Marfunin (1979)
$[AlO_4]^0$	260 °C	Paramanyetik	Marfunin (1979), Yang ve McKeever (1990)
$[AlO_4 H^+]^+$	<-123 °C		Halperin (1990)
$[FeO_4 H^+]^0$	300-450 °C, demir oksitlerin ayrılması	Paramanyetik	Schmetzer (1989)
$[FeO_4 M^+]^0$	300-450 °C, demir oksitlerin ayrılması	Paramanyetik	Schmetzer (1989)
$[FeO_4]^0$	300-450 °C, demir oksitlerin ayrılması	Paramanyetik	Schmetzer (1989)
[TiO ₄] ⁰	Kararlı, yüksek sıcaklıklarda oluşur	Diyamanyetik	Marfunin (1979)
$[TiO_4 M^+]^0$	200-300 °C	Paramanyetik	Marfunin (1979)
$[TiO_4 H^+]^0$			Weil (1984)
$[TiO_4 H^+]^+$			Weil (1984)
$[TiO_4]^-$??	Paramanyetik	Weil (1984)
$[GeO_4]^0$	Kararlı	Diyamanyetik	Marfunin (1979)
$[GeO_4 Li^+]^0$	300 °C	Paramanyetik	McKeever vd. (1985)
$[GeO_4 Na^+]^0$	< 20 °C	Paramanyetik	McKeever vd. (1985)
$[GeO_4]^-$	20 °C	Paramanyetik	Weil (1984)
$[SiO_4^{-} M^+]^0$	-93 °C	Paramanyetik	Wilson vd. (1986)
$[SiO_4 Li^0]^0$	<-83 °C		Jani vd. (1986)
[O ₃ POAlO ₃]	Kararlı	Diyamanyetik	Mashmeyer ve Lehmann (1983)
$[O_3POAlO_3]^+$	200 °C	Paramanyetik	Mashmeyer ve Lehmann (1983)

Çizelge 2.2 Kuvarsın bilinen kusurları (Preusser vd. 2009)

çıkabilir. Bu iyonlar, yer değiştirebilecek üç değerlikli safsızlıkların yük dengesi için önemlidir, aynı zamanda düşük sıcaklıklarda bir SiO₂ karmaşık yapısında tuzaklanan elektronlara da bağlanabilir ([SiO₄-/M⁺]⁰) (Halperin 1990, Halperin ve Sucov 1993). Alkali katyon, 200 K'den yüksel olan sıcaklıklarda kuvars kafesinden H⁺ 'ya benzer şekilde kolay hareket edebilir (Preusser vd. 2009).

Hidrojen iyonları

Hidrojen iyonları kuvarsta çok sayıda kusurda ortaya çıkar. Kristalin oluşumu sırasında ya da daha sonraki zamanlarda yapıya girebilirler veya yüksek sıcaklık işlemleri sonucunda elimine edilebilirler (Martini vd. 1995). IR absorpsiyon ölçümleri (Kats 1962), Al bölgesindeki OH^- gruplarının sadece $[AIO_4/H^+]^{0}$ daki basit Al ile değil, aynı zamanda ek olarak M^+ iyonlarıyla da bağlantılı olduğunu göstermektedir. Bu durumda daha karmaşık kristal yapıları oluşturur. H^+ iyonları ayrıca Si boşluğuna girebilir ve H₃O₄ ve H₄O₄ oluşturabilir. Her iki merkez de düşük sıcaklıkta ışınlama nedeniyle bir deşik yakalayabilir ve bu da sırasıyla $[H_3O_4]^0$ ve $[H_4O_4]^+$ merkezlerine neden olmaktadır (Nuttall ve Weil 1980, Preusser vd. 2009).

Kuvarsın kusur merkezlerinin belirlenmesi amacıyla farklı araştıma grupları tarafından elde edilen tavlama sıcaklığı ve manyetik özelliklerinin yer aldığı bilgiler Çizelge 2.2'de özetlenmiştir.
3. MATERYAL

Bu bölümde tez çalışması kapsamında kullanılan kuvars örneği ve deneysel ölçümler için kullanılan cihazlar/ sistemler hakkında bilgi verilmiştir.

3.1 Kuvars

Bu çalışmada, üretim sırasında yıkanmış ve kalsine edilmiş, piyasada bulunan Merck α kuvars Merck şirketinden (Darmstadt, Almanya) satın alınmıştır. Malzemenin satın alınmasından bu yana tavlama yapılmamıştır. Boyutları 90 µm ile 140 µm arasında olan kuvars taneleri kullanılmıştır, TL ve OSL ölçümleri için 5 mg örnek paslanmaz çelik kaplara yerleştirilmiştir. Kütle hataları ±% 5 dahilinde tutulmuş ve tüm ölçümlerde kütle normalizasyonu yapılmıştır.

3.2 Lüminesans Ölçüm Sistemi

TL, CW-OSL ve LM-OSL ölçümleri, Şekil 3.1'de gösterilen A. Ü. Nükleer Bilimler Enstitüsü Retrospektif Dozimetri Laboratuvarı'nda bulunan Risø DA-20 TL/OSL sistem ile gerçekleştirilmiştir.



Şekil 3.1 Risø TL/OSL Sistemi a) örneklerin yerleştirildiği, uyarımın ve ışınlamanın yapıldığı kısım, b) sinyal işleme, kaydedilme ve aktarılmanın yapıldığı kısım.

Sistemin ana komponentleri: ışık dedeksiyon sistemi, lüminesans uyarım sistemi (optik ve termal) ve ışınlama kaynağıdır (Şekil 3.1) (Anonymous 2013).

Risø TL/OSL Sistemi iki üniteden oluşur (Anonymous 2013):

- a) Okuyucu ünitesi: Şekil 3.1a'da gösterildiği gibi; örneklerin yerleştirildiği, optik veya termal olarak uyarıldığı, dedekte edildiği ve radyasyon kaynağı ile ışınlandığı ünitedir.
- b) Kontrol ünitesi: Sistemin elektronik kontrol kısmını oluşturur, Programlar ile okuyucu arasında köprü görevi görür (Şekil 3.1b) ve örnekler için hazırlanan ölçüm parametrelerinin uygulanmasını sağlar. Yüksek voltajın uygulanması, vakum ortamının sağlanması, örnek taşıyıcının açılması ve kapanması kontrol ünitesi tarafından yapılmaktadır.



Şekil 3.2 Risø TL/OSL okuyucunun a) şematik gösterimi, b) örnek diskleri ve planşetleri, c) örnek karuseli

Risø TL/OSL otomatik ölçüm sistemi ile hem TL hem de OSL ölçümleri yapılabilmektedir. Işık dedeksiyon sistemi, fotoçoğaltıcı tüp ve uygun optik dedeksiyon filtresinden oluşmaktadır (Şekil 3.2). Işık dedeksiyon sisteminin ana komponentleri fotoçoğaltıcı tüp (PMT) ve uygun optik filtrelerdir. Bu filtrelerin kullanım amacı, saçılan

ışığın PMT'e ulaşmasını engellemek ve spektral dedeksiyon penceresi oluşturmaktır. Lüminesans uyarım sisteminde, OSL için optik uyarım ve TL için ısıtma komponentleri bulunur. Bu iki komponent birlikte veya ayrı ayrı kullanılabilir. Sistemde birde dahili ⁹⁰Sr/⁹⁰Y beta ışınlama kaynağı bulunmaktadır. Sistemde bulunan örnek taşıyıcıya 48 tane örnek yerleştirilebilir ve uygulama programı kullanılarak her örnek için farklı ışınlama, okuma prosedürü kullanılabilir. Örnekler oda sıcaklığından 700°C'ye kadar ısıtılabilir. TL ölçümleri saf azot akımı altında yapıldığı gibi, vakumlu ortamda da alınabilir (Anonymous 2013).

Risø TL/OSL okuyucu içindeki standart PMT'lerde bialkali EMI 9235QB tüp kullanılmaktadır ve maksimum dedeksiyon verimi 200 nm ile 400 nm arasındadır. Bu özelliği ile kuvars ve feldspatın lüminesans ölçümleri için uygundur. Sistemde örnek ile katot arasındaki mesafe 55 mm'dir ve dedeksiyon katı açısı yaklaşık 0.4 steradyandır (Anonymous 2013).

Uyarma ışığının şiddeti yayılan ışığın şiddetinden yaklaşık 10^{18} kat daha büyüktür. Bu nedenle yayılan lüminesansın ölçülebilmesi için, uyarımda kullanılan ışığın PMT'e ulaşımının uygun optik filtrelerle engellenmesi gerekir. Risø TL/OSL Okuyucuda, aşağıdaki üç tip optik filtre kullanılmaktadır:1) Hoya U-340 (7.5 mm kalınlığında, $\emptyset =$ 45 mm), 2) Schott BG 39 (2 mm kalınlığında, $\emptyset =$ 45 mm), 3) Corning 7-59 (4 mm kalınlığında, $\emptyset =$ 45 mm) ve bu filtrelerin geçirgenlik spektrumları Şekil 3.3'te gösterilmiştir (Anonymous 2013).

Genelde, OSL sistemlerinde örnekler, sabit ışık şiddetiyle uyarılırlar. Elektron tuzaklarının bu şekilde boşaltılmasıyla eksponansiyel azalan lüminesans sinyali üretilir. Standart Risø TL/OSL okuyucuda (Bøtter-Jensen vd. 2000) örneğin uyarılması için iki seçenek vardır: 1) IR LED : Üç grup halinde toplam 21 adet IR LED bulunmaktadır. Toplam 21 LED'in maksimum gücü örnek pozisyonunda yaklaşık 145 mW/cm²'dir ve 870 nm dalga boyunda ışık yayar, 2) Mavi LED: Dört adet grup halinde toplam 28 adet Mavi LED bulunmaktadır. Toplam 28 LED'in maksimum gücü 40 mW/cm²'dir ve 470 nm dalga boyunda ışık yayar (Anonymous 2013).



Şekil 3.3 RISØ TL/OSL okuyucuda kullanılan optik filtrelerin geçirgenlik spektrumları (Ankara Üniversitesi Fizik Mühendisliği Bölümü Optik Araştırma Laboratuvarı'ndaki UV-1800 model Shimadzu marka cihaz kullanılarak filtrelerin geçirgenliği 190-1100 nm dalga boyu aralığında incelenmiştir)

Sistemde bir de dahili ⁹⁰Sr/⁹⁰Y beta ışınlayıcı kaynak bulunmaktadır. Etrafında kurşun zırh bulunmaktadır. Kaynak maksimum enerjisi 2.27 MeV olan beta parçacıkları yayar. Yarı-ömrü 30 yıldır, aktivitesi 1.48 GBq'dir (40 mCi, 2009) ve kaynağın altında 7 mm mesafede tutulan bir kuvars örneğinin aldığı doz saniyede yaklaşık 115 mGy'dir (Anonymous 2013).

3.3 EPR Sistemi

Tez çalışmasında, A. Ü. Nükleer Bilimler Enstitüsü Elektron Paramanyetik Rezonans Laboratuvarı'nda bulunan Bruker EMX plus X-band EPR sistemi kullanılmıştır. EPR sistemi, spektrometre (dedektör + kaydedici), mikrodalga kaynağı, güç kaynağı, magnetler ve kavite olmak üzere beş ana bileşenden oluşmaktadır (Şekil 3.4).

Elektromanyetik radyasyon kaynağı (mikrodalga kaynağı) ve dedektörün bulunduğu kısma mikrodalga köprüsü denir. Örnek, mikrodalga kavitesi içine yerleştirilir. Kavite,

örnekten elde edilen zayıf sinyalleri yükseltmeye yardımcı olmaktadır. Bunlara ek olarak sinyal işleme, elektronik kontrol konsolu ve bilgisayar sisteme dahil edilmiştir. Bilgisayar spektrumun toplanması için tüm birimlerin koordinasyonu ve data analizi için kullanılmaktadır.



Şekil 3.4 Bruker EMX plus X-band EPR sistemi ve bileşenleri

Mikrodalga köprüsü mikrodalga kaynağı ve dedektörü kapsar. Şekil 3.5'te (A) mikrodalga kaynağıdır. Mikrodalga kaynağının çıkış gücü kolayca değişmez fakat sinyalin şiddeti güç seviyesindeki oynamalar ile değiştirilir. (B)'de değişken azaltıcı (attenuator) yer alır ve mikrodalganın ilerleyişini (akışını) önler. Azaltıcı ile tamamen ve doğru bir şekilde örneğin giden mikrodalga gücü kontrol edilir. Çoğu EPR spektrometreleri yansıma spektrometreleridir. Örneği içeren kaviteden (D) geriye yansıyan radyasyon farkını ölçerler. Dedektörde sadece kaviteden geriye yansıyan mikrodalga radyasyonunu görür. (C) noktasındaki çevirici (circulator), bu geri yansıyan mikrodalga direk kavite içindeki örneğe gönderilir, yansıyan mikrodalga ise direk olarak dedektöre yönlendirilir (Weber vd. 1998).



Şekil 3.5 Mikrodalga köprüsünün blok diyagramı (Weber vd. 1998)

Yansıyan mikrodalganın dedekte edilmesi için diyot (Schottky barrier diode) kullanılır (E) ve bu diyot mikrodalga gücünü elektrik akımına çevirir. Düşük güç seviyelerinde (<1 μ W), diyot akımı mikrodalga gücü ile orantılıdır. Yüksek güç seviyelerinde (>1 mW) diyot akımı mikrodalga gücünün karekökü ile orantılıdır. Bu dedektörlere lineer dedektörler denir. Kantitatif sinyal şiddeti ölçümleri ve optimal hassasiyet için diyot lineer bölgede çalıştırılmalıdır. En iyi sonuçlar dedektör akımının yaklaşık 200 μ A olduğunda elde edilir. Dedektörün bu seviyede çalıştığından emin olmak için (F) ile gösterilen referans kol bulunur, bu dedektöre extra mikrodalga gücü ya da "bias" sağlar. Kaynak gücünün bir kısmı referans kolda kapatılır (tapped off) ikinci bir azaltıcı güç seviyesini optimal performans için kontrol eder. Ayrıca dedektör diyotunda iki sinyal bir araya geldiğinde referans koldaki mikrodalga ve yansıyan sinyalle aynı fazda olduğundan emin olmak için faz kaydırıcı da bulunur. Dedektör diyotları mikrodalga gücünün aşılması ile oluşan hasara çok hassastır ve yavaşça hassasiyetlerini kaybederler. Bundan korunmak için köprüde diyotun akımını gösteren koruma devresi bulunur. Akım 400 μ A'i geçince köprü, mikrodalga güç seviyesini düşürerek diyotu otomatik olarak korur (Weber vd. 1998).

Kavite örnekten gelen zayıf sinyalleri yükseltmek için kullanılır. Kavite, mikrodalgayla rezonansa giren dikdörtgen veya silindirik basit metal kutudur. Rezonans, kavitenin mikrodalga enerjisini depolaması anlamına gelir böylece, kavitenin rezonans frekansında geriye yansıyan mikrodalga olmaz, kavitenin içinde kalır (Weber vd. 1998).

Kaviteler kalite faktörüne (Q) göre karakterize edilir. Kalite faktörü, kavitenin mikrodalga enerjisini ne kadar etkin olarak depoladığını gösterir. Q faktörü yükseldikçe, spektrometrenin hassasiyeti de yükselir. Q faktörü şu ifade ile tanımlanır (Weber vd. 1998):

$$Q = \frac{2\pi \text{ (deponanan enerji)}}{\text{çevirim başına harcanan enerji}},$$
(3.1)

Burada, bir çevirim başına harcanan enerji, bir mikrodalga periyotundaki enerji kaybının miktarıdır. Enerji, kavitenin yan duvarlarında kaybolabilir çünkü mikrodalga yan kısımlarda elektrik akımı oluşturur bu da, ısıya dönüşür. Q faktörü (Weber vd. 1998):

$$Q = \frac{\nu_{rez}}{\Delta \nu},\tag{3.2}$$

ile kolayca hesaplanır. Burada v_{rez} kavitenin rezonans frekansı, Δv ise rezonansın yarı yüksekliğindeki genişliktir.

Rezonansın sonucu olarak kavite içinde duran dalga elde edilir. Duran elektromanyetik dalgalar faz dışı elektrik ve manyetik alan bileşenlerine sahiptir (manyetik alanın maksimum, elektrik alanın minimum olması gibi). Kavitede genellikle kullanılan elektrik ve manyetik alan şiddetinin uzaysal dağılımı Şekil 3.6'da gösterilmektedir.



Şekil 3.6 Standart EPR kavitesinde manyetik ve elektrik alan şekli (Weber vd. 1998)

Kavitedeki elektrik ve manyetik alanın uzaysal ayırımını avantaj olarak kullanabiliriz. Çoğu örneğin elektrik alanı ile rezonansa girmeyen soğurması vardır ve Q, enerji dağılımındaki artış ile azalır, manyetik alan soğurmayı zorlar. Eğer örneğimizi elektrik alanın minimum, manyetik alanın maksimum olduğu alan koyarsak, en büyük sinyali ve en yüksek hassasiyeti elde ederiz. Kaviteler örneğin optimal yerleştirilmesi için tasarlanmıştır (Weber vd. 1998).



Şekil 3.7 Dalga klavuzu ile kavitenin eşleştirilmesi (Weber vd. 1998)

Kavite içine mikrodalga iris adı verilen bir delikten gönderilir. İrisin boyutu kaviteden yansıyacak ve kaviteye girecek olan mikrodalga miktarını kontrol eder. İris dalga klavuzu ve kavitenin impedansını eşleştirmek veya dönüştürmek için dikkatlice gerçekleştirir.

Eşleştirmenin ayarlanması için irisin önünde vida bulunur. Bu vida yukarı ve aşağı hareket ederek iris boyutunu ayarlar (Şekil 3.7) (Weber vd. 1998).

EPR kullanıcıları, spektrometrenin hassasiyetini arttırmak amacı ile faz duyarlı dedeksiyon tekniğini kullanırlar. Bu, dedeksiyon diyotunun daha az gürültüsünü içerir ve DC elektroniğindeki sapmalardan kaynaklanan taban seviye kararsızlıklarını elimine eder. Ayrıca EPR sinyalinin kaynak gürültüsünden ayırt edilmesini sağlar. Sinyal kanalı, spektrometre konsolu içinde faz duyarlı dedeksiyon için gerekli elektroniği içeren kısımdır. Örneğin gördüğü manyetik alan, modülasyon frekansında sinüs eğrisi şeklinde ayarlanmıştır. Eğer bir EPR sinyali varsa alan modülasyonu hızlıca sinyalin bir kısmını tarar ve kaviteden yansıyan mikrodalga aynı frekansta genlik modülasyonludur. Bir zaman aralığında modülasyon genliği kadar geniş olan yaklaşık lineer EPR sinyal, sinyalin eğimi ile orantılı genlikteki sinüs dalgasına çevrilir (Şekil 3.8) (Weber vd. 1998).



Şekil 3.8 Alan modülasyon ve faz duyarlı dedeksiyon (Weber vd. 1998)

Faz duyarlı dedektör, module edilmiş EPR sinyalinin genliği ile orantılı DC sinyal üretir. Bu modüle edilen sinyal ile alan modülasyonuyla aynı frekansa sahip referans sinyali karşılaştırır ve sadece alan modülasyonuyla aynı frekans ve faza sahip sinyallere duyarlıdır. Bu şartları sağlamayan sinyaller (gürültü ev elektriksel etkileşim) durdurulur. Daha fazla hassasiyet için, gürültüyü filtreleyen zaman sabiti kullanılır. EPR sinyalinin bozulmaması için uygun modulasyon genliği, frekans ve zaman sabiti seçilmelidir (Weber vd. 1998).



Şekil 3.9 a) Modülasyon genliğinin arttırılması ile sinyalin bozulması, b) zaman sabitinin arttılmasıyla sinyalin bozulması ve kayması (Weber vd. 1998)

Manyetik alan modülasyonunu fazla uygularsak dedekte edilen sinyal şiddeti artar, ancak modulasyon genliğinin çok fazla arttırılması ile sinyal genişler ve bozulur. Sinyal şiddeti ile sinyal bozulması arasındaki en iyi ayırım manyetik alan modulasyonu sinyalin genişliğine eşit seçilirse elde edilir. Eğer modülasyon genliğini iki EPR sinyalinin ayrımından geniş seçilirse iki sinyali elde edilememektedir (Şekil 3.9a) (Weber vd. 1998).

Zaman sabiti spektrometrenin yanıt süresini yavaşlatarak gürültüyü filtreler. Zaman sabiti artarsa, gürültü seviyeleri düşer. Eğer zaman sabiti manyetik alan tarama hızından çok uzun seçilirse sinyal bozulur veya gürültüden çıkarılacak çok sayıda sinyali de filtrelemiş oluruz ve rezonans için görünen alan kayar. Eğer zayıf bir sinyali görmek için uzun zaman sabiti seçilecekse, yavaş tarama hızı seçilmelidir. Güvenli olması açısından tarama için gerekli süre, zaman sabitinin uzunluğunun en az on katı olmalıdır (Şekil 3.9b) (Weber vd. 1998).

Manyetik alan kontrol ünitesi manyetik alanı kontrollü bir şekilde taramamızı sağlar. İki kısımdan oluşur; taranan alanın zamanlamasını ve alan değerini ayarlayan kısım ile ayarlanan manyetik alan değeri için magnet sargılarında akımı düzenleyen kısımdır (Weber vd. 1998).

Manyetik alan düzenlemesi magnetlerin arasında yer alan Hall probu ile düzenlenir, proba dik yöndeki manyetik alana bağımlı voltaj üretir. Aradaki ilişki lineer değildir ve voltaj sıcaklıkla değişir. Fakat bu probun sabit sıcaklıkta, oda sıcaklığının biraz üzerinde tutulması ve non-lineerliğin belirlenmesi ile kompanse edilebilir. Böylece mikroişlemci uygun düzeltmeleri yapar. Düzenleme, kontrol ünitesinin farklı bir kısmından verilen referans voltaj ile Hall probundan voltajının karşılaştırılması ile elde edilir. iki voltaj arasında fark varsa, düzeltme voltajı magnet sargılarından geçirilen akımı değiştiren magnet güç sağlayıcısına gönderilir (Weber vd. 1998).

4. YÖNTEM

Bu bölümde tez çalışması sırasında yapılan tüm deneylere ait yöntemler anlatılmış ve protokoller çizelgeler halinde sunulmuştur. Çalışmada kullanılacak Merck kuvarsın kökeni bilinmediğinden, lüminesans verimini etkileyecek olan hazırlama aşamasında herhangi bir ısıtma işlemine maruziyetinin belirlenmesi için termal aktivasyon çalışması yapılmıştır. Tez çalışması her ne kadar Merck kuvarsın yüksek sıcaklık TL pikleri ile ilgili olsa da ilk aşamada lüminesans özellikleri iyi bilinen 110 °C TL piki ele alınmış ve farklı optik filtre kombinasyonları kullanılarak doz-cevap eğrileri üzerine çalışmalar yapılmıştır. İkinci aşamada ise 110 °C TL pikinden elde edilen sonuçlardan yola çıkarak Merck kuvarsın yüksek sıcaklık TL pikleri detaylı bir şekilde çalışılmıştır. Bu çalışmalara ek olarak LM-OSL eğrilerinde ağartmanın etkisi tavlama işleminin TL, OSL sinyallerine etkisi belirlenmiştir. Son olarak tarihlendirme çalışmalarında eşdeğer doz belirleme amaçlı kullanılan doz yeniden oluşturma tekniği ile laboratuvar ortamında ışınlanan örneğin eşdeğer dozun belirlenmesi çalışması yapılmıştır.

4.1 Merck Kuvarsın Kalsinasyon Sıcaklığının Belirlenmesi

Kalsinasyon, kalsiyum veya magnezyum karbonat içeren malzemelerin ısıtılması/yakılması anlamına gelen genel bir terimdir. Bu nedenle, laboratuvarda kullanılmadan önce Merck kuvarsın gerçekten ısıtıldığını varsaymak mümkündür.

Adım	İşlem
1	Tavlama, $T_i = 300, 400, 500, 550, 600, 650, 700, 750, 800, 850, 900, 950, 1000 \ ^\circ C, 1 \ saat$
2	Işınlama D = 50 Gy
3	Ön-1s1tma, 180 °C, 1 °C/s 1s1tma h1z1, Hoya U-340 optik filtresi,180 veri noktas1
4	TL ölçümü, 500 °C 1 °C/s ısıtma hızı, Hoya U-340 optik filtresi, 500 veri noktası

Çizelge 4.1 Merck kuvarsın kalsinasyon sıcaklığının belirlenmesi için kullanılan deney protokolü

Merck kuvarsın üretim aşamaları bilinmediğinden, örneğin daha önce ısıtılıp ısıtılmadığını belirlemek amacıyla, 300-1000 °C aralığındaki tavlama sıcaklıklarında TL hassasiyetinin değişimi incelenmiştir. Her adımda tavlama bir saat yapılmıştır ve hızlı soğumaya bırakılmıştır (Çizelge 4.1). Değerlendirme toplam alan kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

4.2 110 °C TL Pikinin Deneysel Ölçümleri

Merck kuvarsın düşük sıcaklık bölgesinde gözlenen 110 °C TL pikinin lüminesans özelliklerinin incelenmesi amacıyla tekrarlanan ölçümlerde ısıtma ve ışınlama işlemlerinin TL sinyaline etkisi, radyasyon doz cevabı davranışı incelenmiş ve analiz sırasında ışıma eğrisi ayrıştırma yöntemiyle tuzak parametreleri belirleme çalışmaları yapılmıştır.

4.2.1 110 °C TL pikinin ısıtma ve ışınlama ile hassasiyet değişimi

Merck kuvarsın TL ölçümlerinin elde edilmesi sırasında hem 500 °C'ye kadar ısıtma yapılmakta hem de ölçümler arasında radyasyon dozu ile ışınlanmaktadır. Aynı örnek üzerinde çalışılması durumunda tekrarlanan ölçümler sırasında hassasiyetteki değişimin gözlenebilmesi amacıyla hazırlanan kuvars örneğine 50 Gy radyasyon dozunun verilmesinin ardından 500 °C'ye 1 °C/s ısıtma hızı ile TL ölçümü alınmıştır. Bu ölçüm 10 kez aynı örnek kullanılarak tekrarlanmıştır. Hoya U-340, Schott BG39 & Corning 7-59, Schott BG39 ve Corning 7-59 olmak üzere dört farklı optik filtre kombinasyonu için her biri 7 mg olmak üzere birer ısıtılmamış kuvars örneği kullanılmıştır.

4.2.2 110 °C TL pikinin ayrıştırması

Merck kuvarsın 110 °C TL pikinin elde edilen ışıma eğrisinde ayrıştırılması için Eşitlik 2.43 kullanılmıştır. Kuvarsın birinci derece kinetiğe sahip olması nedeniyle *b* parametresinin başlangıç değeri 1,000001 olarak kullanılmış ve eşitlik birinci mertebeye indirgenmiştir.

4.2.3 110 °C TL pikinin radyasyon doz cevabı

Dört farklı optik filtre kombinasyonu (Hoya U-340, Schott BG-39, Corning 7-59 ve son ikisinin kombinasyonu) 110 °C TL piki emisyon bandını elde etmek için kullanılmıştır. Optik filtrelerin, kuvars için doz cevabı üzerindeki etkisinin incelenmesi, kullanılan geniş bantlı geçirgenlik filtreleri kullandığında oldukça zordur. Ancak, bu filtre ve kombinasyonları, ölçmeye çalıştığımız dalga boyu aralıklarını kapsamaktadır. Bununla birlikte, bu dört optik filtre, dünyadaki Risø TL/OSL DA-20 okuyucularla ticari olarak temin edilebilmekte ve genellikle kuvars kullanan tarihleme ve geriye dönük dozimetri uygulamalarında kullanılmaktadır. Bu optik filtre kombinasyonları ile 0.13-266 Gy arasında değişen radyasyon dozları için radyasyon doz-cevap eğrileri elde edilmiştir (Çizelge 4.2). Charitidis vd. (1999) 3 - 250 Gy arasındaki ön-doz verilmiş örnekler için radyasyon doz-cevap eğrisini yaklaşık 60 Gy'e kadar doğrusal olduğunu göstermiştir. Bu nedenle, ön-dozun radyasyon doz-cevap eğrilerine etkisini araştırmak için kuvars numunelerine ön-doz amaçlı 50 Gy radyasyon dozu verilmiştir. Işınlamadan sonra, kuvars örnekleri, karanlık ortamda (etüvde) ve 110 ° C TL pik şiddetinin Charitidis vd. (1999) tarafından kabul edilen metodolojiye benzer şekilde tamamen azalması için 48 saat boyunca 30 °C'de saklanmıştır.

Çizelge 4.2 110 °C TL piki radyasyon doz-cevabı ölçüm protokolü

Sıra	Işlem
1	D_i dozu ile ışınlama (D_i = 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 133, 266 Gy)
2	200 °C'de TL ölçümü, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi, 200 veri noktası
	2. işlem sırası a) Hoya U-340, b) Schott BG39 & Corning 7-59, c) sadece Schott BG39, d) sadece Corning 7-59 optik filte konbinasyonları ile tekrar edilmiştir.

Örnek üzerinde sıcaklık farkını önlemek için tüm TL okumaları 1 °C/s ısıtma oranında 200 °C'ye kadar yapılmıştır (Kitis vd. 2015). Radyasyon doz - cevabı eğrilerinin davranışını anlamak için, supra-lineer radyasyon doz cevabı fonksiyonu olarak da bilinen Mische ve McKeever (1989) tarafından önerilen f(D) indeksi (Eşitlik 2.53) kullanılarak hesaplanmıştır.

4.3 Yüksek Sıcaklık TL Piklerinin Deneysel Ölçümleri

Bu bölümde, Merck kuvarsında 180 °C ile 500 °C arasında gözlenen HTTL piklerinin lüminesans ve EPR sinyalleri incelenmiştir. Düşük sıcaklıktaki TL piklerini elimine etmek için kuvars örneği 180 °C'ye kadar ısıtılarak ön-ısıtma yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019). Şekil 4.1'de (A) hem 110 °C hem de HTTL piklerini içeren ön-ısıtma yapılmadan ölçülen tüm ışıma eğrisini, (B) 180 °C'ye kadar ön-ısıtma yapıldıktan sonra sadece HTTL piklerinin elde edildiği ışıma eğrisini ve (C) Herhangi bir radyasyon dozuyla ışınlanmamış, TL okumaları ile aynı şartlarda alınan, Merck kuvarsın arka plan (backgorund) sinyalini göstermektedir. (A) ve (B)'de örnekler 33 Gy radyasyon dozuyla ışınlanmıştır. Ölçümler Hoya U-340 optik filtresi ile yapılmıştır.



Şekil 4.1 Merck kuvarsın A, ön ısıtma yapılmamış ışıma eğrisidir, hem 110 ° C TL pikini hem de HTTL'ler içerir, B, TL ışıma eğrisinin 180 ° C'ye kadar ön ısıtmadan sonra elde edilen HTTL pikleridir ve C, Merck'in arka plan (background) sinyalidir (Kaya-Keleş vd. 2019)

Deneysel ölçümlerin tümünde arka plan çıkarımı yapılmıştır. Bu, özellikle Corning 7-59 optik filtresi için oldukça önemlidir. Bu filtre 700 nm'nin ötesinde ikinci bir iletim penceresine sahiptir ve bu da yüksek sıcaklıklarda kara cisim ışıması nedeniyle yoğun bir termal arka plana yol açmaktadır (Burch 1967). Arka plan sinyalleri, radyasyon dozuyla

orantılı sinyalin tamamen silinmesinden sonra, herhangi bir radyasyon dozuyla ışınlama olmadan alınan ikincil ölçümlerdir (Şekil 4.1, C).

4.3.1 HTTL piklerinin tuzak parametrelerinin belirlenmesi

Merck kuvarsın yüksek sıcaklık bölgesinde gözlenen TL piklerinin, CW-OSL ve LM-OSL eğrilerinin tuzak parametreleri ayrıştırma yöntemi kullanılarak incelenmiştir. TL piklerinin ayrıştırılmasında kullanılacak başlangıç parametrelerinin belirlenmesi için kesikli ışıma tekniği analizi kullanılmıştır. Merck kuvarsın EPR sinyalleri elde edilmiş, lüminesans sinyalleri EPR sinyallerinin ile termal kararlılık, radyasyon doz cevabı davranışı incelenerek korelasyon çalışması yapılmıştır. Bu bölümde yapılan deneysel çalışmalarda kullanılan yöntemler anlatılmıştır.

4.3.1.1 Kesikli ışıma tekniği analizi

Ayrıştırma işleminde ilgili piklerin tuzak parametrelerinin belirlenmesi için sisteme doğru başlangıç parametreleri girilmesi gerekmektedir. Başlangıç parametresi olarak her pikin aktivasyon enerjilerinin belirlenmesi amacıyla kesikli ışıma tekniği kullanılmıştır. Bu amaçla 7 mg ısıtılmamış Merck kuvars örneği 50 Gy radyasyon dozu ile ışınlanmış ve ardından 180 °C ile 500 °C arasında 5 °C aralıklarla TL ölçümü alınmış. Her bir T_m değerinde elde edilen TL ışıma eğrisinin $\ln(I) - 1/kT_m$ eğrileri çizdirilerek eğim değerlerinden aktivasyon enerjisi elde edilmiştir. T_m değerine karşılık elde edilen aktivasyon enerjisi çizildiğinde gözlenen platolar her bir TL ışıma pikinin aktivasyon enerjisi için ayrıştırma analizinde başlangıç parametresi olarak kullanılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).

4.3.1.2 HTTL piklerinin ayrıştırma analizi

Bu çalışmada TL ışıma eğrisinde HTTL piklerinin ayrıştırılması için Eşitlik 2.43 kullanılmıştır. Bu denklem genel derece kinetiğe sahiptir. Kuvars için b = 1,000001 başlangıç parametresi olarak kullanılmıştır. Eşitlik tek bir bileşeni temsil etmektedir. Tüm

eğrinin fit edilmesi için bir çok bileşenin toplamı alınmıştır. Ayrıştırma işlemi sonucunda I_m , T_m , E ve b tuzak parametreleri elde edilmiştir (Kaya-Keleş vd. 2019).

4.3.2 CW-OSL azalım eğrilerinin ayrıştırılması ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi

Bu çalışmada CW-OSL azalım eğrileri için Eşitlik 2.44 kullanılarak ayrıştırma işlemi yapılmıştır. Eşitlik tek bir bileşeni temsil etmektedir. Tüm eğrinin fit edilmesi için bir çok bileşenin toplamı alınmıştır. Ayrıştırma işlemi sonucunda I_0 , τ ve *b* tuzak parametreleri elde edilmiştir.

4.3.3 LM-OSL eğrilerinin ayrıştırılması ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi

Bu çalışmada LM-OSL ölçümleri için Eşitlik 2.45 kullanılarak ayrıştırma işlemi yapılmıştır. Eşitlik tek bir bileşeni temsil etmektedir. Tüm eğrinin fit edilmesi için birçok bileşenin toplamı alınmıştır. Ayrıştırma işlemi sonucunda I_{max} , t_{max} ve b tuzak parametreleri elde edilmiştir.

4.3.4 EPR ölçüm parametrelerinin optimizasyonu

EPR'de radyasyon doz yanıtı davranışını ölçmeden önce, ilk adım sistemin optimum ölçüm koşullarının belirlenmesidir. EPR ölçümlerinde kullanılmak üzere 200 μ m ve 250 μ m arasındaki boyutlarda kuvars tanecikleri seçilmiştir; 3 mm iç çaplı kuvars tüplere 50 mg kuvars yerleştirilmiştir. Örnekler 266 Gy ile ışınlanmıştır. Tüm örnekler kavite içinde aynı pozisyona yerleştirilmiştir. EPR spektrumları oda sıcaklığında kaydedilmiştir. g₁ = 2.0004, g₂ = 1.9975 ve g₃ = 1.9958 (Weil 1984, Mackey 1963)'de gözlemlenen Ge merkezinden kaynaklanan EPR sinyali olduğu düşünülerek üzerinde değerlendirme yapılmıştır (Şekil 4.2a). (Bundan sonra Ci_{EPR} sembolü, EPR sinyalinin i'nci bileşenini ifade etmektedir). Spektrumda, daha önceki çalışmalarda elde edilen tanımlanmamış bir EPR sinyali bulunmaktadır. EPR sinyalinin maksimum şiddetindeki g-değeri 2.0017'dir ve bu bileşen C4_{EPR} olarak tanımlanmıştır (Şekil 4.2a). EPR sinyallerinin üst üste binmesi</sub> nedeniyle, C4_{EPR} için çözünürlük düşüktür; Bu nedenle, optimum deney parametrelerinin seçimi için, g₂'de gözlenen EPR sinyali dikkate alınmıştır. Şekil 4.2b, artan radyasyon dozları ile EPR sinyal şiddetinin değişimini göstermektedir.



Şekil 4.2 a) 266 Gy ile ışınlanarak oda sıcaklığında ölçülen ısıtılmamış Merck kuvarsın EPR spektrumundaki tanımlanmamış bileşen (C4_{EPR}) ve Ge merkezi (C1_{EPR}, C2_{EPR}, C3_{EPR}) olarak adlandırılan sinyaller; A_{pp} , EPR sinyalinin şiddetini göstermektedir, b) farklı radyasyon dozlarıyla ışınlanmış Merck kuvarsın EPR spektrumlarının örneği (Kaya-Keleş vd. 2019).

Uygun mikrodalga gücünü seçmek için, kuvars spektrumları 0.002 mW ve 200 mW arasındaki değerlerde taranmıştır. Mikrodalga gücünün kareköküne (\sqrt{mW}) karşı çizilen C2_{EPR} (Şekil 4.2a) sinyalinin maksimum tepe-tepe sinyal şiddeti göz önüne alınarak (A_{pp}) en uygun mikrodalga gücü olarak 2 mW seçilmiştir (Şekil 4.3a). Merck kuvarsın EPR spektrumunda, g₁ = 2.0004'teki Ge merkezinden ve g₄ = 2.0017'deki C4_{EPR} sinyallerinin A_{pp} değerleri, taban çizgisi (baseline) ile maksimum şiddet arasındaki yükseklik olarak belirlenmiştir (Kaya-Keleş vd. 2019).

Modülasyon genliğini optimize etmek için, spektrum, 2 mW mikrodalga gücüde 0.1, 0.2, 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 G (Şekil 4.3b) olmak üzere farklı modülasyon genlikleri kullanılarak taranmıştır. $C2_{EPR}$ sinyalinin çözünürlüğü ve eğimi dikkate alınarak, modülasyon genliği 2 G olarak seçilmiştir.

Optimum sinyal gürültü oranının elde edildiği modülasyon genliği ve mikrodalga gücü seçiminden sonra diğer EPR parametreleri (tarama süresi, tarama sayısı, tarama genişliği

vb.) Meriç vd. (2018)'ndeki gibi seçilerek spektrum toplanmıştır. Bu çalışmanın tüm EPR spektrumları, Çizelge 4.3 ve 4.5'te sunulan parametreler kullanılarak kaydedilmiştir.



Şekil 4.3 a) Optimum mikrodalga gücünün belirlenmesi için değişken mikrodalga gücünün kareköküne karşılık çizilen C2_{EPR} sinyalinin A_{pp} değeri; modülasyon genliği 2 G ve tarama süresi 80 s (10 tarama) kullanılmıştır, b) 2 mW'ta, 80 s x 10 tarama parametreleri kullanılarak farklı modülasyon genliklerinde (0,2, 1, 2, 5 G) elde edilen EPR spektrumları (Kaya-Keleş vd. 2019).

4.3.5 Termal kararlılık deneyleri

Hem CW-OSL hem de EPR sinyallerinin olası korelasyonunu araştırmak için ön-ısıtma sıcaklığının arttırılması ile termal kararlılık deneyleri yapılmıştır (Çizelge 4.3). Bu spesifik deneyler için Merck kuvars 300 Gy radyasyon dozuyla ışınlanmıştır. Numuneler, 1 °C/s'lik düşük ısıtma hızı kullanılarak 25 °C'lik adımlarla oda sıcaklığından (RT) 425 °C'ye kadar ısıtılmıştır. CW-OSL eğrileri, 0.05 s'lik kısa bir uyarım yapılarak, yani sadece hızlı bileşeni uyarılarak ölçülmüştür, bu kısa uyarımdaki en büyük katkı yaklaşık % 95 olmak üzere CW-OSL azalım eğrisinin hızlı bileşeninden kaynaklanmaktadır (Bulur 2014, Kitis vd. 2011). Kısa süreli mavi ile uyarılma sonucu elde edilen OSL sinyallerinin ölçümünün ardından örnekler kuvars tüp içine yerleştirilmiş ve karanlık bir ortamda EPR ölçümleri yapılmıştır. CW-OSL ve EPR ölçümleri arasında, örnek kütleleri ölçülerek kütle normalizasyonu yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).

Çizelge 4.3 Termal kararlılık ölçüm protokolü

Sıra	İşlem
1	300 Gy radyasyon dozu ile ışınlama.
2	CW-OSL ölçümü, uyarım gücü % 90, oda sıcaklığında, uyarım süresi 50 ms, HOYA U-340 optik filtresi, 50 veri noktası.
3	EPR ölçümü, merkezi alan: 3520 G, tarama genişliği: 20 G, mikrodalga gücü: 2 mW, modülasyon genliği: 2 G, tarama süresi: 81.92 s ve tarama sayısı: 10.
4	T _i sıcaklığına kadar ön-ısıtma, ısıtma hızı 1 °C/s.
5	CW-OSL ölçümü, uyarım gücü % 90, oda sıcaklığında uyarım süresi 50 ms, HOYA U-340 optik filtresi, 50 veri noktası.
6	EPR ölçümü, merkezi alan: 3520 G, tarama genişliği: 20 G, mikrodalga gücü: 2 mW, modülasyon genliği: 2 G, tarama süresi: 81.92 s ve tarama sayısı: 10.
	4. sıradaki T_i = 50, 75, 100, 125, 150, 175, 200, 225, 250, 275, 300, 325, 350, 375, 400, 425 °C'dir. 5. ve 6. İşlemler T_i ön-ısıtma sıcaklıkları için tekrarlanmıştır.

4.3.6 HTTL piklerinin TL, OSL ve EPR yöntemleriyle radyasyon doz cevabının incelenmesi

Radyasyon doz cevabının incelenmesi için yapılan çalışmada örneklere 50 Gy ön-doz uygulanmıştır (ön-doz değeri için Bölüm 4.2.3'ü inceleyiniz). 110 °C TL pikin katkısının elimine edilmesi için oda sıcaklığında 48 saat karanlık ortamda bekletilmiştir. TL, OSL (hem LM, hem de CW) ve EPR ölçümlerinde radyasyon dozu ile ışınlanan örneklere 180 °C'ye kadar ön-ısıtma uygulanmıştır. Böylece çalışmanın amacı olan yalnızca HTTL pikleri kullanılmıştır (Çizelge 4.4 ve 4.5) (Kaya-Keleş vd. 2019).

Çizelge 4.4 TL, CW-OSL ve LM-OSL yöntemleri kullanılarak radyasyon doz-cevabı ölçüm protokolü

Sıra	İşlem		
Protokol A: TL			
1	$ \begin{array}{l} D_i \mbox{ radasyon dozu ile 1} sinlama (D_i = 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 133, \\ 266 \mbox{ Gy}) \end{array} $		
2	180 °C'ye kadar ön-ısıtma, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi, 180 veri noktası		
3	500 °C'ye kadar TL ölçümü, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi, 500 veri noktası		
	2. ve 3. işlemler a) Hoya U-340, b) Schott BG39 & Corning 7-59, c) sadece Schott BG39, d) sadece Corning 7-59 optik filte konbinasyonları ile tekrarlanmıştır.		
Protokol	B: CW-OSL		
1	D_i radyasyon dozu ile ışınlama ($D_i = 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 133, 266$ Gy)		
2	180 °C'ye kadar ön-ısıtma, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi, 180 veri noktası		
3	CW-OSL ölçümü, uyarım gücü % 90, uyarım süresi 200 s, uyarım sıcaklığı 125 °C'de, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi, 200 veri noktası		
4	500 °C'ye kadar Kalan-TL (Residual-TL, RTL) ölçümü, ısıtma hızı 1 °C/s, 500 veri noktası		
Protokol C · I M OSI			

Protokol C: LM-OSL

1	D_i radyasyon dozu ile ışınlama (D_i = 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 133, 266 Gy)
2	180 °C'de ön-1sıtma, 1sıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi ile ,180 veri noktası
3	LM-OSL ölçümü, uyarım gücü % 0- 90 arasında, uyarım süresi 500 s, uyarım sıcaklığı 125 °C'de, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi, 500 veri noktası
4	500 °C'ye kadar Kalan-TL (Residual-TL, RTL) ölçümü, ısıtma hızı 1 °C/s, 500 veri noktası

Sıra	İşlem
1	D_i radyasyon dozu ile ışınlama ($D_i = 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 133, 266$ Gy)
2	180 °C'ye kadar ön-ısıtma, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi, 180 veri noktası
3	EPR sinyali ölçümü, merkezi alan: 3520 G, tarama genişliği: 20 G, mikrodalga gücü: 2 mW, modülasyon genliği: 2 G, tarama süresi: 81.92 s ve tarama sayısı: 10.

Çizelge 4.5 EPR yöntemi kullanılarak radyasyon doz cevabı ölçüm protokolü

4.4 Ağartma işleminden sonra kuvarsta olağan dışı LM-OSL eğri şekillerinin incelenmesi

Kuvars örneğinde ağartma işleminin LM-OSL sinyallerine etkisinin incelenmesi amacıyla yapılan çalışmada Çizelge 4.6'da verilen ölçümler uygulanmıştır. Elde edilen LM-OSL eğrilerine ayrıştırma işlemi uygulanmış ve her bir bileşen ayrı ayrı incelenmiştir. Ayrıştırma işlemi sırasında LM-OSL eğrilerinin başlangıç kısmında tipik LM-OSL piklerinden farklı olarak azalan bir eğri gözlenmiştir. Bu durumda örneğin elde edilen LM-OSL eğrilerinin başlangıçtaki kısmının kaynağının araştırılması için çalışmalar yapılmıştır. Bu amaçla artan ağartma sürelerindeki değişime ek olarak farklı uyarım sıcaklığında da (T_i) ölçümler yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2020).

Uyarım ve ağartma işlemleri için mavi LED'ler ve uyarımdan sonra kuvars örneğinden yayılan ışığı dedekte etmek için Hoya U-340 filtresi kullanılmıştır. LM-OSL ölçümü, 0 ile 40 mW·cm⁻² arasında 0.2 mW·cm⁻²·s⁻¹ hızında doğrusal arttırılarak ölçülmüştür. Işınlama ve TL/OSL okuması arasında, Risø TL/OSL DA 20 sisteminin varsayılan ayarlarına göre 60 saniyelik bir gecikme bulunmaktadır (Kaya-Keleş vd. 2020).

Adım 4'ün iki amacı vardır: (a) bu iki adımlı ağartma protokolünden en çok hangi TL piklerinin etkilendiğini incelemek ve (b) 110 °C TL pikinde fototransfer edilen TL (phototranferred TL, PTTL) sinyalini kontrol etmektir (Ankjærgaard ve Jain 2010, Chithambo vd. 2019]. Adım 2 ve 3 arasındaki zaman aralığının 15 s'dir ve her uyarım

sıcaklığı T_i için, yeni örnek kullanılmıştır, dolayısıyla çoklu örnek hazırlama protokolü uygulanmıştır (Kaya-Keleş vd. 2020).

Çizelge 4.6 Ağartmanın kuvarsın LM-OSL bileşenlerine etkisinin incelenmesi

Adım	İşlem
1	200 Gy ile ışınlama
2	Ağartma işlemi, t_i sürelerinde, oda sıcaklığında, % 90 optik uyarım gücü, mavi LED ($t_i = 0, 2, 5, 25, 50, 75, 100, 200$ s).
3	LM-OSL, T_i ölçüm sıcaklığında, 200 s, % 0 -100 optik uyarım gücü, Hoya U-340 optik filtre, 200 ver noktası
4	RTL ölçümleri, 500 °C'ye kadar, 1 °C/s ısıtma hızı, Hoya U-340 optik filtre, 500 veri noktası
	1-4 arasındaki adımlar, farklı T_i = 75, 100, 125, 150, 175 ve 200 °C uyarım sıcaklıklarında azot ortamında 1 °C/s ısıtma hızı ile tekrarlanmıştır.

LM-OSL eğrisinin ayrıştırılmasında başlangıçtaki hızlı azalan bileşenin ayrıştırılması için iki farklı yaklaşım kullanılmıştır: i) CW-OSL azalım eğrisi ve ii) fosforesans bileşeni. Bu yaklaşımların eğriye uyarlanması için sırasıyla Eşitlik 2.44 ve 2.46 Kullanılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2020).

4.5 TL, CW-OSL ve LM-OSL Sinyallerinin Tavlama Sıcaklığı İle Değişimi

Merck kuvarsı kullanılarak 500°C ile 1000°C arasında tavlanan örneklerde TL, CW-OSL (Oda sıcaklığında ve 125°C'de) ve LM-OSL (Oda sıcaklığında ve 125°C'de) sinyallerinin incelenmesi amacıyla yapılan çalışmada; 90-140 µm boyutundaki Merck kuvars örnekleri yaklaşık 15 mg ölçülerek seramik kaplar içinde tavlanmıştır. Örnekler 500°C'den 1000°C'ye kadar 50°C aralıklarla 1 saat tavlandıktan sonra fırından çıkarılarak laboratuvar ortamında soğumaya bırakılmıştır. Tüm ölçümlerde Hoya U-340 optik filtresi kullanılmıştır (Çizelge 4.7).

Adım	İşlem
1	Tavlama, $T_i = 500, 550, 600, 650, 700, 750, 800, 850, 900, 950, 1000 ^{\circ}C$, 1 saat
2	Işınlama D = 50 Gy
3	Ön-1s1tma, 180 °C, 1 °C/s 1s1tma h1z1, Hoya U-340 optik filtresi,180 veri noktas1
4	TL ölçümü, 500 °C 1 °C/s ısıtma hızı, Hoya U-340 optik filtresi, 500 veri noktası
4. Adın	1;
i.	Oda sıcaklığında CW-OSL, mavi LED, optik güç değeri % 90, 200 s, 200 veri noktası,
ii.	125 °C'de (5 °C/s 1s1tma h1z1 ile) CW-OSL, mavi LED, optik güç değeri % 90, 200 s,
	200 veri noktası,
iii.	Oda sıcaklığında LM-OSL, mavi LED, optik güç değeri % 0-90, 500 s, 500 veri
1V.	125 °C'de (5 °C/s isitma hizi ile) LM-OSL, mavi LED, optik güç değeri % 0-90, 500
	s, 500 veri noktasi için tekrarlanmıştır.

Çizelge 4.7 TL, CW-OSL (Oda sıcaklığında ve 125°C'de) ve LM-OSL (Oda sıcaklığında ve 125°C'de) sinyallerinin tavlama sıcaklığı ile değişimi

4.6 Doz Yeniden Oluşturma Testi

Tarihlendirme çalışmalarında eşdeğer dozun geçerliliğini test etmek amacıyla yapılan doz yeniden oluşturma testi (dose recovery test) ile ölçümler sırasında meydana gelen hassasiyet değişiminin gözlenmesi ve düzeltme yapılabilmesi amacıyla Çizelge 4.8'da verilen doz yeniden oluşturma ölçümü yapılmıştır.

Adım	İşlem	Amaç
1	% 90 güçteki mavi LED'ler ile ağartma işlemi	Sıfırlama
2	50 Gy radyasyon dozu ile ışınlama	Doğal doz benzetimi
		(simülasyon)
3	Di radyasyon dozu ile ışınlama	$D_i = Doğal, 9, 35, 69, 104, 0, 9$
		Gy
4	Ôn-1s1tma, 180-260 °C, 20 °C adımlarla, 1s1tma h1z1 5 °C/s	
5	CW-OSL ölçümü, uyarım gücü % 90, uyarım süresi 200	L _i belirleme
	s, 125 °C'de, 1sitma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi	
	ile, 200 veri noktası	
6	11,5 Gy test dozu ile ışınlama	
7	Ön-1sıtma, 180 °C'de, 1sıtma hızı 5 °C/s, 180 veri noktası	
8	CW-OSL ölçümü, uyarım gücü % 90, uyarım süresi 200	T _i belirleme
	s, 125 °C'de, ısıtma hızı 1 °C/s, Hoya U-340 optik filtresi	
	ile, 200 veri noktası	
9	Adım 1'den tekrarlama	
	$D_i = Doğal, 9, 35, 69, 104, 0, 9 Gy$	

Çizelge 4.8 Doz yeniden oluşturma ölçüm protokolü

5. BULGULAR

5.1 Merck Kuvarsın Kalsinasyon Sıcaklığının Belirlenmesi

Genellikle kalsinasyon kuvarsın saflaştırılması için kullanılan 900 °C civarında bir sıcaklıkta gerçekleşir (Veronese vd. 2004). Bu işlem, daha önce hidrotermal damardan elde edilen kuvars için gösterildiği gibi kristal yapının tahrip edilmesine ve safsızlık elemanlarının yapıdan serbest bırakılmasına neden olur (Lin vd. 2017). Bununla birlikte, özellikle kuvarsta kalsinasyon, kuvarsın hassasiyetinde değişikliğe neden olan 573 °C'nin üzerinde gözlenen faz geçişini önlemek için çoğunlukla 250-300 °C'den yüksek olmayan sıcaklıklarda gerçekleşir (Polymeris vd. 2007).



Şekil 5.1 Merck kuvarsın TL ışıma eğrisinde 200 °C ile 500 °C arasındaki toplam TL şiddeti kullanılarak 300-1000 °C aralığındaki tavlama sıcaklıklarına karşı TL hassasiyetinin değişimi (Kaya-Keleş vd. 2019)

Şekil 5.1'de, 200 °C ile 500 °C arasındaki toplam TL sinyali kullanılarak elde edilen hassasiyet değişimini göstermektedir. Tüm tavlama sıcaklığı bölgesi boyunca, toplam TL şiddeti monoton bir artış göstermektedir. Lüminesans yöntemi kullanılarak kuvarsın tavlama sıcaklığının belirlenmesinde kullanılan metodolojiye göre (Polymeris vd. 2007, Polymeris vd. 2014, Sanjurjo-Sánchez vd. 2018), bu özellik Merck kuvarsın tavlama sıcaklığının 300 ° C'nin altında olduğunu göstermektedir. Başka bir deyişle, özgün kuvars

numunesinin kalsinasyonunun, 300 °C'nin altındaki sıcaklıklarda yapılan tavlama ile gerçekleştirildiğini gösteren deneysel destek sağlanmıştır.

5.2 110 °C TL Piki İçin Elde Edilen Sonuçlar

Bu bölümde Merck kuvarsın düşük sıcaklık bölgesinde gözlenen 110 °C TL piki için yapılan deneysel çalışmalar sonucunda elde edilen bulgulara yer verilmiştir.

5.2.1 110 °C TL pikinin hassasiyet değişimi

Şekil 5.2, dört farklı filtre kombinasyonu için 500 °C'de ardışık on ışınlama ve TL okuma döngüsü için elde edilen Merck kuvarsın 110 °C TL piklerinin hassasiyetini göstermektedir. Hoya U-340 ve Corning 7-59 filtrelerinin kullanıldığı 360-380 nm aralığındaki lüminesansın dedekte edildiği durum için hassasiyetin daha yavaş arttığı gözlenmektedir. Aksine, Schott BG39 filtresi kullanılarak ölçülen 420 nm yayılımı, tek başına veya Corning 7-59 filtre kombinasyonu ile belirlenen hassasiyet artışı çok daha yüksektir (Kaya-Keleş vd. 2016).



Şekil 5.2 Farklı optik filtre kombinasyonları için ayrıştırılarak elde edilen 110 °C TL pikinin ilk değere normalize edilmiş TL hassasiyeti (Kaya-Keleş vd. 2016)

5.2.2 110 °C TL pikinin ayrıştırılması

Şekil 5.3, ön-doz verilmemiş kuvars için dört farklı filtre kombinasyonuna karşılık gelen TL ışıma eğrilerini göstermektedir. Benzer şekilde, Şekil 5.4, ön-doz verilmiş kuvars için elde edilen ışıma eğrilerini göstermektedir. Grafikler, 266 Gy maksimum radyasyon dozu için verilmiştir. Ön-doz verilen kuvars örneklerinin 266 Gy ile ışınlanmasından sonra, TL ışıma eğrilerinin şekilleri benzer olsa da, dört farklı filtre için belirlenen aktivasyon enerjileri ve yayılım dalga boyu farklıdır (Kaya-Keleş vd. 2016).



Şekil 5.3 Ön-doz verilmemiş Merck kuvarsın Optik filtreler için ışıma eğrileri a) Hoya U-340, b) Schott BG39 ve Corning 7-59 kombinasyonları, c) Schott BG39 ve d) Corning 7-59. Numuneler 266 Gy ile ışınlanmıştır, ısıtma hızı 1 °C/s kullanılarak 200 °C'ye kadar ölçülmüştür (Kaya-Keleş vd. 2016).

Ön-doz verilmemiş kuvars örneğinde, 110 °C TL piki tek ve belirgindir. Bununla birlikte, ön-doz verilen kuvars örneğinde, asıl 110 °C TL piki ile birlikte ikincil TL pikleri de belirginleşmeye başladığından, ayrıştırma işleminin gerekliliği önem kazanmaktadır. Kullanılan her bir filtre konfigürasyonu için aktivasyon enerjisi ortalama değerleri Çizelge 5.1'de verilmiştir. Uygulanan düşük ısıtma hızı nedeniyle TL pikindeki T_{max} değerinin 70-75 °C civarında olduğu gözlenmiştir. Ön-doz verilmeyen kuvarsta olduğu gibi, ön-doz verilen örneklerde de benzer ışıma eğrisi şekilleri ve benzer aktivasyon enerjileri elde edilmektedir, ancak farklı optik filtreler ve filtre kombinasyonları için farklı lüminesans yayılımı ölçülmüştür. Ön-doz verilen örneğin hassasiyeti, spesifik kuvars numuneleri için gözlenen hassasiyetteki azalma (de-sensitization) nedeniyle, öndoz verilmemiş örneklere göre daha düşüktür (Şekil 5.3 ve 5.4) (Kaya-Keleş vd. 2016).



Şekil 5.4 Optik filtreler için 50 Gy ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılmış ışıma eğrileri a) Hoya U-340, b) Schott BG39 ve Corning 7-59 kombinasyonları, c) Schott BG39 ve d) Corning 7-59. Numuneler 266 Gy ile ışınlanmıştır, ısıtma hızı 1 °C/s kullanılarak 200 °C'ye kadar ölçülmüştür (Kaya-Keleş vd. 2016).

Optik Filtre	Ön-doz verilmemiş örnekler için aktivasyon enerjisi (eV)	Ön-doz verilen örnekler için aktivasyon enerjisi (eV)
Hoya U-340	0.73 ± 0.06	0.75 ± 0.06
Schott BG-39 & Corning 7-59	0.60 ± 0.03	0.63 ± 0.04
Schott BG-39	0.65 ± 0.05	0.68 ± 0.06
Corning 7-59	0.69 ± 0.06	0.72 ± 0.06

Çizelge 5.1 Farklı filtre kombinasyonları için aktivasyon enerjilerinin ortalama değerleri

5.2.3 110 °C TL pikinin radyasyon doz cevabı

Kuvars örneklerinin radyasyon doz-cevap eğrilerinin elde edilmesi için, hem ön-doz verilmemiş hem de ön-doz verilen örnekler 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 132 ve 266 Gy radyasyon dozlarıyla ışınlanmıştır. Şekil 5.5 ve 5.6, sırasıyla ön-doz verilmemiş ve ön-doz verilmiş örneklerin ışıma eğrilerini göstermektedir. Sunulan her bir ışıma eğrisi, aynı doz için ayrı ayrı ölçülen iki ışıma eğrisinin ortalama değeridir (Kaya-Keleş vd. 2016).

Şekil 5.5 ve 5.6'da, ön-doz verilmiş ve verilmemiş örneklerin ışıma eğrisinin şekli, optik filtrelerden bağımsız olarak her grupta benzerdir. Ön-doz verilen kuvarsın ışıma eğrilerindeki daha yüksek sıcaklıktaki TL pikleri ön-doz verilmemiş örneğin ışıma eğrilerindekine göre daha baskındır. 110 °C TL pikinin radyasyon doz-cevap eğrilerinin elde edilmesi ayrıştırma yöntemi kullanılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2016).

Şekil 5.7a'da içi boş semboller, ön-doz verilmemiş örneklerin doz cevabını göstermektedir. Tüm filtre kombinasyonlarında, radyasyon doz-cevap eğrisi 32 Gy'ye kadar lineerdir ve ve Hoya U-340 hariç 32 Gy'nin üzerine sub-lineer olarak artmaktadır. Hoya U-340 filtresinin kullanıldığı ışıma eğrisi, 32 Gy'den sonra doyuma ulaşmaktadır.



Şekil 5.5 Ön-doz verilmemiş örneklerin farklı optik filtreler için 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 132 ve 266 Gy radyasyon dozları ile ışınlanmasının ardından elde edilen ışıma eğrileri a) Hoya U-340, b) Schott BG39 ve Corning 7-59 kombinasyonu, c) Schott BG39 ve d) Corning 7-59 (Kaya-Keleş vd. 2016).

Şekil 5.7b'deki içi dolu semboller, ön-doz verilmiş örneklerin verilerini göstermektedir. Artan radyasyon dozlarında hem ön-doz almış hem de ön-doz verilmemiş örnekler farklı filtre kombinasyonları kullanarak benzer radyasyon doz-cevap eğrilerine sahiptir. Corning 7-59, Schott BG-39, Corning 7-59 ve Schott BG-39'un kombinasyonu ile elde edilen ışıma eğrilerinde 32 Gy üzerindeki dozlarda sub-lineerdir ön-doz almamış örneklerdeki gibi Hoya U-340 optik filtresi ile elde edilen eğrilerde TL şiddeti doyuma ulaşmaktadır (Kaya-Keleş vd. 2016).



Şekil 5.6 Ön-doz verilmiş örneklerin farklı optik filtreler için 0.13, 0.26, 0.5, 1, 2, 4, 8, 16, 33, 66, 132 ve 266 Gy radyasyon dozları ile ışınlanmasının ardından elde edilen ışıma eğrileri a) Hoya U-340, b) Schott BG39 ve Corning 7-59 kombinasyonu, c) Schott BG39 ve d) Corning 7-59 (Kaya-Keleş vd. 2016).

Farklı optik filtreler kullanılarak elde edilen 110 °C TL pikinin radyasyon doz – cevap davranışını analiz etmek için supra-lineer indeksleri f(D) hesaplanmıştır. Şekil 5.8a'da görüldüğü gibi, tüm optik filtreler ile f(D) değerleri artan radyasyon dozu ile azalmakta ve 1'in altında kalmaktadır, bu da radyasyon doz cevabının sub-lineer olduğunu göstermektedir (Kaya-Keleş vd. 2016).

Kuvars örneklerinin 50 Gy ön-doz ile ışınlanmasından sonra, radyasyon doz cevabında farklılıklar gözlenmiştir (Şekil 5.8b). Hoya U-340 ve Corning 7-59 filtreleri için 4 Gy'e kadar, f(D) 1'e eşittir; bu nedenle, radyasyon doz yanıtları doğrusaldır, daha yüksek radyasyon dozları için, birden küçüktür, bu nedenle sub-lineer radyasyon doz cevabı göstermektedir.



Şekil 5.7 Merck kuvarsın a) ön-doz verilmemiş ve b) ön-doz verilmiş durumları için 110 °C TL pikinin radyasyon doz-cevap eğrisi (Kaya-Keleş vd. 2016)

Schott BG39 ile Schott BG39 ve Corning 7-59 kombinasyonları ile elde edilen TL şiddetleri için f(D) indeksleri 1'den büyüktür ve supra-lineer radyasyon doz davranışı göstermektedir (Kaya-Keleş vd. 2016).



Şekil 5.8 Merck kuvarsın a) ön-doz verilmemiş ve b) ön-doz verilmiş durumları için 110 °C TL pikinin supra-lineerlik indeksi. D₁ = 0.13 Gy olarak alınmıştır (Kaya-Keleş vd. 2016).

5.3 Yüksek Sıcaklık TL Piklerinin Deneysel Bulguları

Merck kuvars örneğinin HTTL piklerinin incelenmesi amacıyla TL, CW-OSL, LM-OSL ve EPR ölçümleri yapılmıştır. Lüminesans ve EPR ölçümleri ile ayrıştırılan sinyallerin birbirleriyle korelasyonunun incelenmesi için termal kararlılık ve radyasyon doz cevabı bulguları bu bölümde verilmiştir.

5.3.1 HTTL piklerinin tuzak parametrelerinin belirlenmesi

Kuvarsın HTTL piklerinin tuzak parametrelerinin belirlenmesi amacıyla kesikli ışıma tekniği analizi yapılmış ve buradan elde edilen veriler ayrıştırma yönteminde başlangıç parametreleri olarak kullanılmıştır.

5.3.1.1 Kesikli ışıma tekniği analizi

Kesikli ışıma tekniği (Fractional Glow Technique, FGT) ile yapılan analiz işleminde ölçümler, 200 °C ile 500 °C arasındaki sıcaklıklarda, 5 °C'lik artışlarla HOYA U-340 optik filtresi kullanılarak yapılmıştır.

Bu kesme sıcaklıklarının (cut-heat) her biri için (Şekil 5.9, inset a), tipik başlangıçtaki yükselme tekniğine benzer şekilde bir Arrhenius analizi yapılmıştır (Şekil 5.9, inset b). Son olarak, tahmini *E*'nin kesim sıcaklıklarına karşı grafiği Şekil 5'te dolgulu kareler olarak çizilmiştir. Termal sönümün etkisi nedeniyle asıl plato bölgeleri gözlenememektedir. Bu noktada, kuvarstaki termal sönüm etkisinin incelenmesi gerekmektedir (Petrov ve Bailiff 1997, Subedi vd. 2011). Bu nedenle, Petrov ve Bailiff'in (1997) metodolojisine göre Subedi vd. (2011) belirlediği *W* ve *C* değerleri lüminesans veriminde $\eta(T)$ Eşitlik 2.55 ve 2.56 kullanılarak düzeltme yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).

Düzeltilmiş aktivasyon enerjileri, Şekil 5.9'da kırmızı nokta olarak gösterilmektedir. Düzeltilmiş değerler için, şu bilgiler elde edilebilir: (a) Genel TL sinyalinde en az beş farklı tuzağın bölgeye katkıda bulunduğunu belirten beş farklı belirgin plato bölgesi gözlenmektedir, (b) Her plato bölgesi için, y ekseni içindeki ortalama değerler aktivasyon enerjilerini verir. Bu değerler E fit parametreleri için başlangıç değerleri olarak kullanılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).



Şekil 5.9 Kesikli ışıma tekniğini kullanarak elde edilen analiz sonuçları: 5 °C'lik adımlarla, 200 °C - 500 °C arasındaki sıcaklık seçilen maksimum sıcaklık değerlerine karşılık elde edilen a) aktivasyon enerjisi platoları, b) ilgili TL ölçümlerini, c) TL ölçümlerinin Arrhenius grafiklerini göstermektedir (Kaya-Keleş vd. 2019).

5.3.1.2 HTTL ışıma eğrisinde ayrıştırma analizi

TL ölçümlerinde elde edilen ışıma eğrileri genellikle farklı tuzak merkezlerinden kaynaklanan örtüşen TL piklerinden oluşur. Bu nedenle, Merck kuvarsın TL piklerinin ayrı ayrı analiz edilmesi için ayrıştırılması gereklidir.

Şekil 5.10, ön-doz verilmiş kuvars için dört farklı optik filtre kombinasyonuna karşılık gelen TL ışıma eğrilerininin ayrıştırılan piklerini göstermektedir. Farklı optik filtrelerle elde edilen tüm ışıma eğrileri için, bu filtrelere bağlı olarak, üst üste gelen altı TL piki

elde edilmiştir. Farklı optik filtreler kullanılarak elde edilen ışıma eğrileri birbirinden farklı görünse de, pik sayısı her ışıma eğrisi için aynıdır.

Optik filtrelerin farklı dalga boyu bölgelerindeki geçirgenliğine bağlı olarak (Şekil 5.10) sadece TL şiddetleri değişmektedir. Elde edilen TL pikleri sayısının yanı sıra kinetik özelliklerinin de daha önce Subedi vd. (2011) tarafından bildirilen sonuçlarla uyum içinde olduğu gözlenmiştir.



Şekil 5.10 Ön-doz verilen Merck kuvarsın farklı optik filtre kombinasyonları için ayrıştırılan TL ışıma eğrileri a) Hoya U-340, b) Schott BG39 & Corning 7-59, c) sadece Schott BG39, d) sadece Corning 7-59. Kesintisiz çizgiler, fit edilen verilere karşılık gelmekte, boş çember sembolleri ise deneysel verileri temsil etmektedir. Tekrar ısıtma yapılarak arka plan çıkarımı yapılmıştır. Corning 7-59 optik filtre kullanılarak yapılan ölçümde arka plan çıkarım işleminden sonra, yüksek sıcaklıktaki TL sinyalinin oldukça yüksek olması ilginçtir. Insetler fitlerin deneysel ile arasındaki farkı (residual) göstermektedir (Kaya-Keleş vd. 2019).

Şekil 5.10d'nin bir başka ilginç özelliği, 400 °C'nin üstündeki sıcaklık aralığında Corning 7-59 optik filtresi için tekrar ısıtma işlemi ile arka plan sinyalinin çıkarımı yapılmasına rağmen yüksek TL şiddetinin elde edilmesidir. Bu yüksek yoğunluk, termal bir arka plan olarak tanımlanamamaktadır. Bunun yerine, herhangi bir radyasyon dozu verilmeden tekrarlanan TL ölçümlerinin sinyalin çok derin tuzaklardan kaynaklandığını göstermiştir (Polymeris 2016).

Örtüşen TL pikleri için FGT yöntemi ile pik sayısının belirlenmesi tavsiye edilirken, analizin çözünürlüğü, TL pik şiddetine bağlıdır ve TL şiddetinin artmasıyla çözünürlük de iyileşmektedir. Bu zayıf çözünürlük, FGT'nin öne çıkan beş platoyu tanımlayabilmesine neden olmuştur, ancak ayrıştırma analizi sonucunda toplam altı TL piki elde edilmiştir; bu altıncı TL pikinin şiddeti düşüktür ve bu nedenle FGT tarafından kolayca çözülememektedir (Kaya-Keleş vd. 2019).

Maksimum şiddetteki sıcaklık (T_m) ve aktivasyon enerjileri (E), sırasıyla Çizelge 5.2 ve 5.3'ün gösterdiği gibi, hata sınırları dahilinde oldukça benzerdir. Başka bir deyişle, farklı optik filtre kombinasyonlarına rağmen aynı tuzaklar dedekte edilmektedir.

	T_m (°C)			
	Hoya U-340	Schott BG39 ve Corning 7-59	Schott BG39	Corning 7-59
Pik 1	209 ± 4	203 ± 3	206 ± 3	210 ± 3
Pik 2	248 ± 4	244 ± 9	248 ± 3	255 ± 9
Pik 3	288 ± 8	280 ± 7	277 ± 4	292 ± 16
Pik 4	321 ± 7	309 ± 6	303 ± 6	315 ± 5
Pik 5	366 ± 8	344 ± 6	352 ± 7	346 ± 9
Pik 6	405 ± 8	384 ± 7	380 ± 9	384 ± 5

Çizelge 5.2 Ön-doz verilmiş Merck kuvarsın farklı optik filtre kombinasyonları için ayrıştırmadan sonra elde edilen T_m değerleri
	<i>E</i> (eV)						
	Hoya U-340	Schott BG39 ve Corning 7-59	Schott BG39	Corning 7-59			
Pik 1	1.04 ± 0.03	1.00 ± 0.07	1.08 ± 0.02	1.03 ± 0.04			
Pik 2	1.11 ± 0.01	1.10 ± 0.03	1.11 ± 0.01	1.11 ± 0.01			
Pik 3	1.16 ± 0.01	1.14 ± 0.01	1.15 ± 0.03	1.15 ± 0.01			
Pik 4	1.20 ± 0.01	1.19 ± 0.01	1.19 ± 0.01	1.19 ± 0.01			
Pik 5	1.27 ± 0.01	1.27 ± 0.01	1.27 ± 0.01	1.27 ± 0.01			
Pik 6	1.34 ± 0.04	1.33 ± 0.02	1.30 ± 0.01	1.33 ± 0.01			

Çizelge 5.3 Ön-doz verilmiş Merck kuvarsın farklı optik filtre kombinasyonları için ayrıştırmadan sonra elde edilen aktivasyon enerjileri

5.3.2 CW-OSL azalım eğrilerinin ayrıştırılması ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi

CW-OSL ölçümlerinde, elde edilen eğriler, genellikle farklı tuzaklardan kaynaklanan bileşenlerden oluşmaktadır. Merck kuvarsın CW-OSL eğrilerinin analiz edilmesi için ayrıştırma işlemi gerekmektedir.

CW-OSL eğrisi tek bir bozulma eğrisi gibi görünse de, birkaç enerji seviyesinden gelen örtüşen OSL bileşenlerinden oluşabilir. Bu bileşenleri tanımlamak için, azalım eğrileri azalım sürelerine (τ) göre hızlı, orta ve yavaş adlı üç bileşene ayrılmıştır (Bailey vd. 1997). Şekil 5.11, ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılan bileşenlerinin bir örneğini göstermektedir.

Ayrıştırma işlemiyle CW-OSL bileşenlerinin kinetik parametreleri hakkında bilgi edinilmektedir. Çizelge 5.4'ten görüldüğü gibi, Merck kuvarsın tüm OSL bileşenleri birinci dereceden kinetiğe (*b*) sahiptir. Bu analizlerde, CW-OSL için τ ve *b* parametrelerinin değerleri ayrıştırma sonucu elde edilmiş ve σ bu verilerden yararlanılarak hesaplanmıştır (Bøtter-Jensen vd. 2003). *b*, τ ve σ ortalama değerleri ve

hataları, artan radyasyon dozlarıyla ışınlanan kuvarstan elde edilen verilere göre yapılan ayrıştırma analizi ile hesaplanmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).



Şekil 5.11 Ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılan CW-OSL (125 °C'de) eğrisi. Örnekler 266 Gy radyasyon dozu ile ışınlanmış ve 180 °C'de 1°C/s ısıtma hızı ile ön-ısıtma yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).

Çizelge 5.4 Ön-doz verilen Merck kuvarsın 125 °C'de ölçülen CW-OSL eğrilerinin ayrıştırma işleminden sonra elde edilen tuzak parametreleri

	CW-OSL (125 °C'de)					
	Hızlı	Orta	Yavaş			
b	1.06 ± 0.03	1.04 ± 0.06	1.02 ± 0.07			
τ (s)	0.85 ± 0.02	7.61 ± 0.43	369.38 ± 0.89			
σ (cm ²)	$(1.23 \pm 0.03) \times 10^{-17}$	$(1.10 \pm 0.05) \times 10^{-18}$	$(2.85 \pm 0.01) \times 10^{-20}$			

5.3.3 LM-OSL eğrilerinin ayrıştırma analizi ve tuzak parametrelerinin belirlenmesi

LM- OSL eğrileri, tek bir pikten değil farklı tuzak merkezlerinden kaynaklanan birbiri ile girişen piklerden oluşmaktadır. Merck kuvarsın LM-OSL eğrilerinin analiz edilmesi ve için ayrıştırma işlemi yapılmıştır.

LM-OSL eğrilerinin dekonvolüsyonu, t_m değerlerine göre adlandırılmış üst üste binen beş bileşenin varlığını ortaya koymuştur (Bundan sonra Ci_{LM-OSL} sembolü, LM-OSL eğrisinin

bileşenine atıfta bulunacaktır). Şekil 5.12, ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılan bileşenlerini göstermektedir. C5_{LM-OSL} hariç, diğer bileşenlerin son kısmı gözlenebilmektedir (Kaya-Keleş vd. 2019).



Şekil 5.12 Ön-doz verilen Merck kuvarsın ayrıştırılan LM-OSL (125 °C'de) eğrisi. Örnekler 266 Gy radyasyon dozu ile ışınlanmış ve 180 °C'de 1°C/s ısıtma hızı ile ön-ısıtma yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).

Ayrıştırma işlemiyle LM-OSL bileşenlerinin kinetik parametreleri hakkında bilgi edinilmektedir. Çizelge 5.5'dan görüldüğü gibi, Merck kuvarsın tüm LM-OSL bileşenleri birinci dereceden kinetiğe (*b*) sahiptir. Bu analizlerde, LM-OSL için t_m ve *b* parametrelerinin değerleri ayrıştırma sonucu elde edilmiş ve σ ve τ bu verilerden yararlanılarak hesaplanmıştır (Bulur 1996, Bulur vd. 2000). *b*, τ ve σ ortalama değerleri ve hataları, artan radyasyon dozlarıyla ışınlanan kuvarstan elde edilen verilere göre yapılan ayrıştırma analizi ile hesaplanmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).

Isıtılmamış Merck kuvarsın CW-OSL ve LM-OSL eğrileri, sırasıyla üç bileşen ve beş bileşen tarafından oluşmuştur. Üç farklı CW-OSL bileşeninin olması, beş LM-OSL bileşeninin varlığı hem kuvars (Kıyak vd. 2007, 2008), hem de CaF₂:N (Angeli vd. 2017)'nin tipik bir özelliğidir. Teorik olarak, aynı örneğin CW-OSL ve LM-OSL ile elde edilen bileşenlerin aynı enerji seviyelerine sahip, aynı sayıda bileşene sahip olmalıdır; ancak, LM-OSL, bu enerji seviyelerinin tanımlanmasına yöntem olarak daha elverişlidir.

Başka bir deyişle, ayrıştırma çözünürlüğü LM-OSL yönteminde çok daha gelişmiştir (Kitis ve Pagonis 2008).

_	LM-OSL (125 °C'de)						
_	C1lm-osl	C2LM-OSL	C3LM-OSL	C4LM-OSL	C5LM-OSL		
b	1.01 ± 0.02	1.02 ± 0.01	1.02 ± 0.01	1.03 ± 0.03	1.05 ± 0.01		
τ (s)	0.19 ± 0.01	1.11 ± 0.01	5.77 ± 0.16	21.99 ± 0.53	2299.86 ± 3.82		
σ (cm ²)	(5.47±0.12) ×10 ⁻¹⁷	(9.57±0.07) ×10 ⁻¹⁸	(2.80±0.04) ×10 ⁻¹⁸	(4.81 ± 0.01) $\times10^{-19}$	(4.60±0.01) ×10 ⁻²¹		

Çizelge 5.5 Ön-doz verilen Merck kuvarsın 125 °C'de ölçülen LM-OSL eğrilerinin ayrıştırma işleminden sonra elde edilen tuzak parametreleri

LM-OSL ölçümlerindeki birçok bileşenin toplamı, CW-OSL'deki tek bir bileşene karşılık gelir. Çalışmamızda, Çizelge 5.4 ve 5.5'te verilen sonuçlara dayanarak, CW-OSL'nin hızlı bileşeni ile C2_{LM-OSL} arasında bir ilişki olabileceği aynı zamanda, C4_{LM-OSL} ve C5_{LM-OSL}'nin toplamı, yakın mertebedeki sonuçlara bağlı olarak CW-OSL bozulma eğrisinin yavaş bileşeni ile gösterilebilir (Angeli vd. 2017).

5.3.4 Termal kararlılık

Radyasyon kaynaklı lüminesans veya EPR sinyalinin termal kararlılığı, bir malzemenin dozimetri çalışmalarında kullanılabilmesi için temel özelliklerden biridir. Tuzaklar, ölçüm zamanına kadar radyasyon dozunu depolayabilmelidir. Kuvars numunesinin ışınlanması nedeniyle, yapıdaki diyamanyetik [GeO4]⁰ merkezleri paramanyetik Ge merkezlerine dönüşmektedir. Bilinen paramanyetik Ge merkezleri [GeO4]⁻ (Weil 1984), [GeO4/Li⁺]⁰ (McKeever vd. 1985) ve [GeO4/Na⁺]⁰ (McKeever vd. 1985)'dir. Weil (1984) ve McKeever vd. (1985)'ne göre, [GeO4]⁻ ve [GeO4/Na⁺]⁰ merkezleri oda sıcaklığında kararlı değildir. Ancak [GeO4/Li⁺]⁰ paramanyetik merkezleri kararlıdır (Preusser vd. 2009, McKeever vd. 1985). Çalışmada, EPR ölçümleri oda sıcaklığında yapılmıştır, bu nedenle [GeO4/Li⁺]⁰, dedekte edilen asıl paramanyetik merkez olarak düşünülmüş ve tez kapsamında değerlendirme yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2019).



Şekil 5.13 a) EPR spektrumundaki C1_{EPR}, C2_{EPR} and C4_{EPR} ve CW-OSL azalım eğrisindeki hızlı bileşenin termal kararlılık eğrileri. Şiddetler başlangıç şiddetine normalize edilmiştir, b) TL pikleri ile ön-ısıtmaya bağlı azalan sinyal bileşenlerinin karşılaştırılması için verilen 33 Gy ile ışınlanmış ve 180 °C'ye kadar (ısıtma hızı 1 °C/s) ısıtılmış kuvarsın ışıma eğrisi (Kaya-Keleş vd. 2019).

Hızlı CW-OSL bileşeni (kısa OSL sinyali), C4_{EPR}, g₁ ve g₂'deki [GeO₄/Li⁺]⁰ merkezlerinin (sırasıyla C1_{EPR} ve C2_{EPR}) termal kararlılığı, bu sinyaller arasında olası bir korelasyonu incelemek amacıyla ayrı ayrı incelenmiştir. Şekil 5.13a'da görüldüğü gibi, eğrilerin başlangıçtaki şiddete göre normalize edildiği durumlarda, C4_{EPR} bileşeni 225 °C'ye kadar olan ön ısıtma sıcaklığına kadar görünür haldedir. Sinyal şiddeti 175 °C ile 225 °C arasında azalmaktadır. C4_{EPR} bileşeni 175 °C'ye kadar kararlı iken, CW-OSL'nin hızlı bileşeni, EPR sinyalleri C1_{EPR} ve C2_{EPR} 275 °C'ye kadar kararlıdır; bu sıcaklıktan sonra 325 °C'ye ısıtılan C1_{EPR} sinyali kaybolmaktadır. Hem hızlı OSL bileşeni hem de C2_{EPR}'nin şiddetleri, oda sıcaklığı ile 425 °C arasındaki ön ısıtma değerlerinde benzer şekilde değişmektedir. 375 °C'nin üstünde her iki sinyal de tamamen kaybolmuştur. Ek olarak, şiddetteki azalım hızı her ikisi için de aynıdır (Şekil 5.13a ve 5.13b) (Kaya-Keleş vd. 2019).

5.3.5 Radyasyon doz cevabı

Kuvarsın HTTL piklerinin radyasyon doz cevap eğrileri TL, CW-OSL, LM-OSL ve EPR yöntemleri ile incelenmiştir. Burada elde edilen veriler kullanılarak radyasyon doz-cevap eğrilenin doğrusallık ve MDDL özellikleri elde edilmiştir.

5.3.5.1 TL radyasyon doz cevabı

Ön-doz verilmiş kuvarsın TL yöntemi kullanılarak radyasyon doz cevabının belirlenmesi için, örnekler 0.13 Gy ile 266 Gy arasında farklı radyasyon dozlarında ışınlanmıştır.



Şekil 5.14 Ön-doz verilmiş Merck kuvarsın a) Hoya U-340, b) Schott BG39 & Corning 7-59, c) sadece Schott BG39, d) sadece Corning 7-59 optik filtre kombinasyonları kullanılarak elde edilen HTTL pikleri için radyasyon dozcevap eğrileri. Düz çizgiler k değerinin hesaplanması için kullanılan lineer doz cevap bölgesini göstermektedir (Kaya-Keleş vd. 2019)

Örneklerin Hoya U-340 optik filtresi ile elde edilen radyasyon doz cevabı protokolü, farklı emisyon dalga boylarındaki lüminesans sinyalleri hakkında bilgi edinmek için Schott BG39 & Corning 7-59, Schott BG39, Corning 7-59 optik filtre kombinasyonları kullanılarak tekrar edilmiştir. Şekil 5.14, ayrıştırılan TL pikleri ve her bir filtre kombinasyonunun artan radyasyon dozuyla TL sinyalinin değişimini göstermektedir. Her veri noktası, iki bağımsız ölçümün ortalama değerine karşılık gelmektedir.

Ölçümlerde kullanılan çoğu dozimetrik malzemede, sadece radyasyon dozu verildiğinde değil ışınlamanın yapılmadığı durumda da lüminesans veya EPR sinyali elde edilebilir. Radyasyon dozundan bağımsız olarak elde edilen şiddet, malzemenin yapısından veya safsızlıklardan kaynaklanabilir. Buna göre, malzemeye bağlı olarak düşük radyasyon dozlarında radyasyon doz cevabı eğrisinin ilk kısmı radyasyon dozu ile değişmemektedir. Bu bölge, düşük radyasyon dozlarında gözlenen sub-lineerite bölgesidir. Şekil 5.14, dedeksiyon bantlarının tüm durumları için, TL sinyalinin düşük radyasyon dozlarında sub-lineer olduğunu göstermektedir. Düşük radyasyon dozu bölgelerinde sinyal şiddeti kararlıdır. Sub-lineerlik, kullanılan optik filtrelere bağlı olarak 8 - 12 Gy'e kadar devam etmektedir. Bu nedenle, optik filtrelerin dedeksiyon dalgaboyu için çeşitli TL piklerinin farklı MDDL'e sahip olması beklenmektedir. Tüm optik filtre kombinasyonları için, düşük radyasyon dozlarında, düşük şiddetli fakat belirgin bir TL sinyali gözlenmektedir. Radyasyon doz eksenine paralel devam eden bölge radyasyon doz bağımlılığı göstermemektedir. Bu durum, gürültüden dolayı ölçülemeyen zayıf bileşene değil, herhangi bir 1s1l işleme tabi tutulmayan kuvars örneğinin düşük hassasiyetine bağlanmaktadır. Bu nedenle, HTTL piklerini kullanarak ısıtılmamış kuvars numunesini incelemek için, lüminesans veriminden dolayı kuvarsın 110 °C TL pikinin aksine yüksek radyasyon dozlarında ışınlamalar yapılmalıdır (Kaya-Keleş vd. 2016). Her bir TL piki için farklı optik filtre kombinasyonlarında MDDL incelendiğinde (Çizelge 5.7) yaklaşık 10 Gy'den daha yüksek radyasyon dozlarında TL piki şiddetlerinin artış gösterdiği görülmektedir (Kaya-Keleş vd. 2019).

5.3.5.2 CW-OSL ve LM-OSL radyasyon doz cevabı

CW-OSL ve LM-OSL eğrileri, aynı uyarım tekniğine, ancak farklı uyarım modlarına dayanmaktadır, LM-OSL yöntemi uyarım gücünün lineer arttırılması nedeniyle bileşenler hakkında daha ayrıntılı bilgi sunar. Bu OSL eğrilerinin ayrıştırılması mekanizmanın anlaşılmasını kolaylaştırmaktadır. Şekil 15a ve 15b'den görüldüğü gibi, Merck kuvarsın düşük radyasyon doz bölgesinde, 125 °C'de hem CW-OSL hem de LM-OSL sinyallerinin radyasyon doz cevabı eğrilerinin davranışı her bileşeni için supra-lineerdir ve TL yöntemiyle elde edilen radyasyon doz cevabı eğrilerine benzer. Genel olarak, yaklaşık 16 Gy'den 266 Gy'e kadar lineer olarak büyümektedir. Sadece LM-OSL eğrisinin ilk bileşeni (C1_{LM-OSL}) için yaklaşık 90 Gy'den sonra doygunluk seviyesi (saturation level) gözlenmektedir. LM-OSL radyasyon doz cevabı eğrilerinde, diğer bileşenlerden farklı olarak, C1_{LM-OSL}, 16 Gy ve 66 Gy arasında doğrusal bir radyasyon doz cevabına sahiptir ve 66 Gy üzerindeki davranışı sub-lineerdir (Kaya-Keleş vd. 2019).



Şekil 5.15 Ön-doz verilen Merck kuvarsın a) 125 °C'de ölçülen CW-OSL azalım eğrileri ve b) 125 °C'de ölçülen LM-OSL eğrilerinden ayrıştırılarak elde edilen radyasyon doz-cevap eğrileri. Düz çizgiler k değerinin hesaplanması için kullanılan lineer doz cevap bölgesini göstermektedir (Kaya-Keleş vd. 2019).

5.3.5.3 EPR radyasyon doz cevabı

Çalışmanın bu bölümünde, C4_{EPR}, C1_{EPR} ve C2_{EPR} sinyallerinin EPR radyasyon doz cevabı incelenmiştir. A_{pp} değeri EPR şiddeti olarak kullanılmıştır (Şekil 4.2a). Şekil 5.16'da gösterildiği gibi, C2_{EPR}'nin sinyali, C4_{EPR}'den neredeyse iki kat daha yüksek şiddete sahiptir. Bu sinyallerin her ikisi de aynı radyasyon doz eşiğinden, yani sırasıyla 16 Gy ve 20 Gy'den artmaya başlamaktadır. C1_{EPR} sinyali diğer iki EPR sinyali kadar hassas değildir. Artan radyasyon dozlarında EPR sinyallerinin artış hızı doğrusal gibi görünse de C4_{EPR}'nin eğimi diğerlerinden daha yüksektir.



Şekil 5.16 Ön-doz verilen Merck kuvarsın C1_{EPR}, C2_{EPR} and C4_{EPR} bileşenlerinin EPR radyasyon doz cevapları. Düz çizgiler k değerinin hesaplanması için kullanılan lineer doz cevap bölgesini göstermektedir (Kaya-Keleş vd. 2019).

5.3.6 Doğrusallık (k) ve minimum ölçülebilen doz limiti (MDDL)

Bu çalışmada, *Solver* eklentisi kullanılarak Microsoft Excel yazılım paketinde *k* değerleri, EPR sinyalleri, ayrıştırılmış TL pikleri ve OSL bileşenleri için hesaplanmış ve radyasyon doz cevabı eğrisi davranışlarının karşılaştırılmasında kullanılmış ve sonuçlar Çizelge 5.6'da verilmiştir.

Çizelge 5.6 Merck kuvarsın farklı filtre kombinasyonları ile ölçülen TL, CW-OSL (125 °C'de), LM-OSL (125 °C'de) ve EPR (oda sıcaklığında) yöntemleriyle belirlenen radyasyon doz cevabı eğrilerinden elde edilen k değerleri. Regresyon analizinin varyansını belirlemek için kullanılan *R-kare* değeri % 0,85 ile % 0,99 arasında değişmektedir.

	k değeri								
Pik / Bileşen	TL	TL	TL	TL	CW OSI	I M OSI	EDD		
	Hoya U-340	Schott BG39 & Corning 7- 59	Schott BG39	Corning 7-59	(125 °C)	(125 °C)	(RT)		
1	0,81	1,23	1,64	1,24	$0,90^{*}$	0,53	1,44†		
2	0,89	1,08	0,80	1,02	1,06**	0,83	1,05††		
3	0,56	0,59	0,56	0,50	1,08***	0,89	0,85 ^{†††}		
4	0,40	0	0	0	-	0,43	-		
5	0,44	0,50	0,30	0,27	-	0,76	-		
6	0,60	0,54	0,19	0,32	-	-	-		

* CW-OSL azalım eğrisinin hızlı bileşeni.

** CW-OSL azalım eğrisinin orta bileşeni.

*** CW-OSL azalım eğrisinin yavaş bileşeni.

[†] Tanımlanmamış EPR sinyali (C4_{EPR}).

^{††} $[GeO_4/Li^+]^0$ merkezinin g_1 'deki EPR sinyali (C1_{EPR}).

^{†††} $[GeO_4/Li^+]^0$ merkezinin g₂ 'deki EPR sinyali (C2_{EPR}).

Çizelge 5.6'da görüldüğü gibi, elde edilen birçok sinyal, doğrusallığa yakın 0,8 ila 1,24 arasında değişen k değerlerini göstermektedir. Bununla birlikte, 325 °C TL piki için 0,4 - 0,5 değerleri ve k değeri 1,44 olan EPR sinyali de dahil olmak üzere istisnalar bulunmaktadır (Kaya-Keleş vd. 2019).

Çizelge 5.7'de ön-doz verilmiş Merck kuvarsın TL tepelerinin (dört farklı optik filtre kombinasyonu için), CW-OSL ve LM-OSL bileşenlerinin ve EPR sinyallerinin MDDL değerleri verilmiştir. MDDL değerleri, radyasyon doz cevabı eğrilerinde radyasyon dozunun artmasıyla doğrusal değişen şiddet bölgesinin başladığı radyasyon doz değeri olarak belirlenmiştir.

MDDL (Gy) Pik / TL TL TL TL **CW-OSL** LM-OSL EPR Bileşen Hoya Schott BG39 & Schott Corning (125 °C) (125 °C) (RT) U-340 Corning 7-59 **BG39** 7-59 11 12 12 16 18^{*} 16 20^{\dagger} 1 2 33** 33^{††} 16 16 4 8 16 3 8 16*** 16 16††† 16 16 4 4 33 16 8 5 33 8 8 8 6 8 16 16 16

Çizelge 5.7 Merck kuvarsın farklı filtre kombinasyonları ile ölçülen TL, CW-OSL (125 °C'de), LM-OSL (125 °C'de) ve EPR (oda sıcaklığında) yöntemleriyle belirlenen radyasyon doz cevabı eğrilerinden elde edilen MDDL değerleri. MDDL'lerin ortalama standart sapması ± % 8'dir.

* CW-OSL azalım eğrisinin hızlı bileşeni.

** CW-OSL azalım eğrisinin orta bileşeni.

*** CW-OSL azalım eğrisinin yavaş bileşeni.

[†] Tanımlanmamış EPR sinyali (C4_{EPR}).

^{††} $[GeO_4/Li^+]^0$ merkezinin g₁ 'deki EPR sinyali (C1_{EPR}).

^{†††} [GeO₄/Li⁺]⁰ merkezinin g₂ 'deki EPR sinyali (C2_{EPR}).

5.4 Ağartma işleminden sonra kuvarsta olağan dışı LM-OSL eğri şekillerinin incelenmesi

Hem ağartılmış hem de ağartılmamış kuvars örneklerinin 2 s ile 100 s aralığındaki zaman periyotlarında yapılan ağartma (CW-OSL) işlemi için elde edilen LM-OSL eğrileri Şekil 5.17a'da sunulmaktadır., Ağartma sürelerinin artmasıyla azalan LM-OSL şiddetinin yanı sıra, başlangıçta gözlenen baskın azalım bileşeni oldukça belirgindir. Böyle bir LM-OSL eğrisinin beş LM-OSL bileşenine ayrıştırılmış örneği Şekil 5.17b'de sunulmaktadır. Ek olarak, uyarımın başlangıcında gözlenen olağan dışı bileşeni doğru bir şekilde tanımlamak için, LM-OSL ayrıştırma bileşenlerine CW-OSL veya PH bileşeni (Şekil 5.17b'de siyah hatta karşılık gelen) dahil edilmiştir. Beş OSL bileşeninin varlığı, tüm LM-OSL eğrileri için yaygındır (Kaya-Keleş vd. 2020).



Şekil 5.17 200 Gy ile ışınlanan Merck kuvarsın LM-OSL eğrileri: a) 125 °C uyarım sıcaklığında (T_i), 2, 5, 25, 50, 75, 100 s ağartma süresinin ardından ağartılmamış ve ağartılmamış LM-OSL sinyalleri, b) log-log ölçeğinde, 100 s ağartma işlemini takiben 125 °C'de ölçülen LM-OSL eğrisinin ayrıştırılması: siyah çizgi, CW-OSL veya PH bileşeni olarak eklenen azalım eğrisine karşılık gelmektedir. boş semboller deneysel verileri temsil etmektedir (Kaya-Keleş vd. 2020).

CW-OSL ve PH olayları birbirine benzemektedir. PH'da tuzaklanmış elektronlar, herhangi bir merkezle birleştirilmeden önce termal uyarım yoluyla iletim bandına salınır (Randall ve Wilkins 1945, McKeever ve Chen 1997, Chen ve Pagonis 2008), CW-OSL'de tuzaklanan elektronların uyarılması bir ışık kaynağı tarafından gerçekleştirilir (Bøtter-Jensen vd. 2003, Chen ve Pagonis 2008). Her iki durumda da, tespit edilen sinyal hızlı bir azalım eğrisine neden olur. Gözlenen olağan dışı bileşenin CW-OSL veya PH ile temsil edilip edilemeyeceğini araştırmak için ayrıştırmada elde edilen fit parametrelerinin 75 °C ile 200 °C arasındaki altı farklı uyarım sıcaklığında LM-OSL ölçümleri yapılmıştır (Kaya-Keleş vd. 2020).

Şekil 5.18a, farklı uyarım sıcaklıklarında ölçülen LM-OSL eğrilerini göstermektedir. Tüm çizimler aynı koşullardaki ağartma (CW-OSL) sonrasında ölçülen t = 0'daki şiddete normalize edilmiştir. Şekil 5.18a'da görüldüğü gibi, LM-OSL sinyalinin başlangıç kısmındaki hızlı azalım, tüm sıcaklıklar için ve özellikle düşük uyarım sıcaklığı aralığında baskındır. Şekil 5.18b'de sunulan RTL ışıma eğrilerine göre, ağartma işleminin ardından çeşitli sıcaklıklarda LM uyarımı çoğunlukla beklendiği gibi 110 °C TL pikini ve az ölçüde 325 °C'yi etkilemektedir. Son olarak, Şekil 5.18b'nin bir başka ilginç özelliği, 125 °C'den yüksek uyarım sıcaklıkları için 110 °C TL pikinde fototransfer-TL (PTTL) sinyalinin olmamasıdır (Kaya-Keleş vd. 2020).



Şekil 5.18 a) Merck kuvarsın başlangıç sinyal şiddetine normalize edilmiş ölçüm sıcaklığına bağlı olarak değişen LM-OSL eğrileri, b) LM-OSL ölçümlerinden sonra ölçülen RTL eğrileri (Kaya-Keleş vd. 2020).

Her iki analiz yaklaşımında da, LM-OSL bileşeninin sayısında veya özelliklerinde herhangi bir değişiklik olmamıştır. Bu ifade Çizelge 5.8'in içeriği ile doğrulanabilir. Değerler, uygulanan tüm ağartma sürelerindeki ortalamalara karşılık gelirken, hatalar 1 σ 'ya karşılık gelmektedir.

Bununla birlikte, olağan dışı bileşenin fit parametrelerinin uyarım sıcaklığına bağımlılığı oldukça ilginçtir. PH olayı azalım katsayısı λ ile tanımlanırken, CW-OSL eğrisi için yeniden birleşme ömrü (τ), karşılık gelen CW-OSL bileşeninin fotoiyonizasyon kesiti ile doğrudan ilişkilidir. Yukarıda bahsedilen parametrelerin her biri uygun fit parametrelerdir ve karşılık gelen değerler Çizelge 5.9'da gösterilmiştir. Farklı uyarım sıcaklıklarına göre CW-OSL bileşenlerinin kinetik derecesi *b*, 1.03 - 1.13 aralığında elde edilmiştir, böylece birinci dereceden kinetik varsayım doğrulanmıştır. Ortalama τ ve λ parametreleri için elde edilen varyasyonlar farklı sürelerde ağartılmış olan değerler ile hesaplanmıştır (Kaya-Keleş vd. 2020).

Bileşen	Vaklasım*	t_{max} (s)					
	Takiaşını	75 °C	100 °C	125 °C	150 °C	175 °C	200 °C
C1	CW-OSL	10 ± 1	11 ± 1	11 ± 1	11 ± 1	12 ± 1	10 ± 1
CI	PH	12 ± 1	11 ± 1	11 ± 1	11 ± 1	12 ± 1	11 ± 1
C2	CW-OSL	21 ± 1	21 ± 1	21 ± 1	21 ± 1	21 ± 1	22 ± 1
	PH	22 ± 2	21 ± 1	21 ± 1	22 ± 1	22 ± 2	22 ± 1
C3	CW-OSL	43 ± 2	43 ± 2	43 ± 2	43 ± 2	44 ± 1	42 ± 2
	PH	43 ± 1	43 ± 1	43 ± 1	43 ± 3	43 ± 1	44 ± 1
C4	CW-OSL	107 ± 1	105 ± 2	105 ± 2	105 ± 2	106 ± 2	106 ± 2
	PH	104 ± 1	104 ± 1	104 ± 1	105 ± 2	104 ± 1	104 ± 1
C5	CW-OSL	1071 ± 2	1072 ± 2	1072 ± 2	1072 ± 1	1069 ± 1	1069 ± 1
	PH	1070 ± 2	1070 ± 1	1070 ± 1	1070 ± 2	1071 ± 2	1071 ± 2

Çizelge 5.8 CW-OSL veya PH bileşenleri eklenerek elde edilen Merck kuvarsın farklı uyarım sıcaklıklarında elde edilen LM-OSL bileşenlerinin *t_{max}* değerleri. Hatalar, tüm farklı uyarım sıcaklığı sonuçları üzerinden elde edilen parametrelerin ortalama değerleri ile hesaplanmıştır.

*Olağan dışı sinyalin ayrıştırılmasında kullanılan yöntem

Şekil 5.19a'da PH bileşeninin azalım katsayıları λ , farklı uyarım sıcaklığına göre sunulmuştur.

Çizelge 5.9 Ayrıştırılmış LM-OSL eğrilerine dahil edilen hem CW-OSL hem de PH bileşenlerinin fit parametreleri. Hatalar, tüm farklı uyarım sıcaklığı sonuçları üzerinden elde edilen parametrelerin ortalama değerleri ile hesaplanmıştır.

T_i (°C)	(CW-OSL bileşer	PH bileşeni		
	<i>I</i> ₀ (k.b.)	σ (cm ²)	τ (s)	<i>I</i> ₀ (k.b.)	λ (s ⁻¹)
75	62223 ± 250	2.84×10^{-18}	13.18 ± 2.24	59393 ± 244	0.20 ± 0.03
100	51896 ± 229	9.64×10^{-17}	2.54 ± 0.30	48833 ± 221	0.23 ± 0.02
125	12143 ± 110	3.43×10^{-17}	3.79 ± 0.10	11494 ± 107	0.25 ± 0.01
150	5855 ± 77	$2.47\times10^{\text{-}17}$	4.47 ± 0.10	5876 ± 77	0.23 ± 0.03
175	3631 ± 60	$2.36\times10^{\text{-}17}$	4.57 ± 0.63	3457 ± 59	0.23 ± 0.02
200	3113 ± 56	1.77×10^{-17}	5.27 ± 0.34	3129 ± 56	0.22 ± 0.02

Benzer şekilde, CW-OSL bileşeni için yeniden birleşme ömürleri τ hata sınırları içinde Şekil 5.19b'de verilmiştir. Aynı Şekil 5.19b ayrıca yeniden birleşme ömrüne (τ) göre hesaplanan CW-OSL bileşenlerinin fotoiyonizasyon kesitinin σ sıcaklığına bağımlılığını da vermektedir (Bøtter-Jensen vd. 2003).

Beş LM-OSL bileşeninin hepsinin fotoiyonizasyon tesir kesitleri, tüm farklı uyarım sıcaklıkları için hesaplanmıştır (Çizelge 5.10). Her bileşen için fotoiyonizasyon tesir kesitlerindeki değişiklikler uyarım sıcaklığına göre ihmal edilebilir seviyededir ve tüm LM-OSL bileşenleri için 10⁻¹⁷ - 10⁻²¹ cm² arasındadır (Çizelge 5.10).



Şekil 5.19 a) Merck kuvarsın başlangıç sinyal şiddetine normalize edilmiş ölçüm sıcaklığına bağlı olarak değişen LM-OSL eğrileri, b) LM-OSL ölçümlerinden sonra ölçülen RTL eğrileri (Kaya-Keleş vd. 2020).

Bileşen .	$\sigma ({ m cm}^2)$								
	75 °C	100 °C	125 °C	150 °C	175 °C	200 °C			
C1	5.29×10^{-17}	4.37×10^{-17}	4.37×10^{-17}	4.37×10^{-17}	3.67×10^{-17}	5.29×10^{-17}			
C2	1.20×10^{-17}	1.20×10^{-17}	1.20×10^{-17}	1.20×10^{-17}	1.20×10^{-17}	1.09×10^{-17}			
C3	$2.86 imes 10^{-18}$	$2.86 imes 10^{-18}$	2.86×10^{-18}	$2.86 imes 10^{-18}$	2.73×10^{-18}	3.00×10^{-18}			
C4	4.62×10^{-19}	4.80×10^{-19}	4.80×10^{-19}	4.80×10^{-19}	4.71×10^{-19}	4.71×10^{-19}			
C5	4.61 × 10 ⁻²¹	4.60×10^{-21}	4.60×10^{-21}	4.60×10^{-21}	4.63×10^{-21}	4.63×10^{-21}			

Çizelge 5.10 Farklı uyarım sıcaklıklarında LM-OSL bileşenlerinin fotoiyonizasyon tesir kesitleri

5.5 Tavlama İle TL, CW-OSL ve LM-OSL Sinyallerinin Değişimi

Tavlama işlemi özellikle doğal malzemelerde hassasiyet değişimine neden olabilmektedir. Merck kuvarsın tavlama işlemi sonucunda TL, CW-OSL ve LM-OSL sinyallerinin değişimi incelenmiştir ve elde edilen veriler kullanılarak tavlama sıcaklığı ile sinyal şiddetlerindeki değişimi gösteren bulgular bu bölümde verilmiştir.

5.5.1 TL ışıma eğrilerinin farklı tavlama sıcaklıklarındaki değişimi

TL ölçümünde kullanılacak 50 Gy radyasyon dozu ile ışınlanan kuvars örneğinin 500°C'ye kadar 1°C/s ile ısıtılarak ışıma eğrileri elde edilmiş ve tavlama sıcaklığının lüminesans sinyaline etkisi incelenmiştir (Şekil 5.20).



Şekil 5.20 Farklı tavlama sıcaklıkları için elde edilen TL ışıma eğrileri

Merck kuvars örneği için daha önce yapılan ısısal temizleme çalışması ile HTTL piklerinin elde edilmesi için 180°C'ye kadar ön-ısıtma yapılması gerektiği belirlenmiştir. Bu nedenle farklı tavlama sıcaklıklarının TL sinyal şiddetine etkisi Şekil 5.1'de (Bölüm

5.1) görülen ışıma eğrilerinde 200°C-500°C arasındaki integral alan kullanılarak belirlenmiştir.

5.5.2 CW-OSL azalım eğrilerinin farklı tavlama sıcaklıklarındaki değişimi

Oda sıcaklığındaki CW-OSL ölçümünde kullanılacak 50 Gy radyasyon dozu ile ışınlanan kuvars, Mavi LED ile optik güç değeri % 90 olmak üzere 200 s uyarılarak oda sıcaklığında ve 125 °C'de (5 °C/s ısıtma hızı ile) ısıtılarak CW-OSL sinyalleri elde edilmiştir (Şekil 5.21a ve Şekil 5.21b). 125 °C'deki oda sıcaklığında alınan CW-OSL eğrileri incelendiğinde uyarımın başladığı ilk zaman diliminde 900 °C ve üzerindeki sıcaklıklarda yapılan tavlamalar sonucunda lüminesans şiddetinin oldukça yüksek olması ölçüm sisteminde yer alan fotoçoğaltıcı tüpün doyuma (over-load) ulaşmasına neden olmuş ve bu bölgede lüminesans sinyali doğru ölçülememiştir.



Şekil 5.21 Farklı tavlama sıcaklıkları için elde edilen a) oda sıcaklığında, b) 125 °C'de ölçülen CW-OSL azalım eğrileri

Farklı tavlama sıcaklıklarının, oda sıcaklığında ve 125 °C'de ölçülen CW-OSL eğrilerinin şiddetine etkisinin belirlenmesi için yapılan çalışmanın değerlendirmesinde ilk 3 saniyedeki sinyal şiddetinin toplamı kullanılmıştır (Şekil 5.22).



Şekil 5.22 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen CW-OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi

5.5.3 LM-OSL azalım eğrilerinin farklı tavlama sıcaklıklarındaki değişimi

Oda sıcaklığında ve 125 °C'de LM-OSL ölçümünde kullanılacak örneklere 13 Gy radyasyon dozu verilmiş ve ardından Mavi LED ile uyarılmıştır. Optik güç değeri %0-90 aralığında değiştirilerek 500 s ölçüm alınmıştır (Şekil 5.23).



Şekil 5.23 Farklı tavlama sıcaklıkları için elde edilen a) oda sıcaklığında, b) 125 °C'de ölçülen LM-OSL azalım eğrileri

Farklı tavlama sıcaklıklarının, oda sıcaklığında ve 125 °C'de ölçülen LM-OSL eğrilerinin şiddetine etkisinin belirlenmesi için yapılan çalışmanın değerlendirmesinde ilk 100 saniyedeki sinyal şiddetinin toplamı kullanılmıştır (Şekil 5.24).



Şekil 5.24 Farklı tavlama sıcaklıkları ile a) oda sıcaklığında b) 125 °C'de ölçülen LM-OSL şiddetinin ilk üç saniye verileri kullanılarak elde edilen değişimi

5.6 Doz Yeniden Oluşturma Testi

Özellikle doğal örnek ile çalışılıyorsa; aynı ölçüm dizisi içinde ilgilenilen pikin/sinyalin dışında kalan bölgeyi silmek için ısıtılan, laboratuvar ortamında artan radyasyon dozları verilerek doz-cevap eğrisi oluşturmak amacıyla ışınlanan ve her yeni ışınlamadan önce tuzakların temizlenmesi için ağartılan (illumination) örneğin hassasiyetinde değişimler gözlenebilir.



Şekil 5.25 a) Farklı ön-ısıtma sıcaklıkları için ölçülen ED değerlerinin değişimi, b) Artan radyasyon dozları sonucu ölçülen OSL şiddetinin (L_i) test dozu uygulanmasının ardından elde edilen OSL şiddetine (T_i) oranı.

Doz yeniden oluşturma testi; örneğe verilen radyasyon dozu ile ölçülen radyasyon dozunun karşılaştırılması ve eğer ölçümler arasında hassasiyet değişimi varsa bunun düzeltilmesine olanak tanır. Bu çalışmada ilgili testin ölçüm dizisine 180 – 260 °C arasında farklı ön-ısıtma sıcaklıkları da eklenerek ön-ısıtma sıcaklığının da eşdeğer doz (ED) a etkisi incelenmiştir. Ön-ısıtma sıcaklığına göre elde edilen ED değerlerinin değişimi Şekil 5.25a'da gösterilmektedir.

Çalışma kapsamında HTTL pikleri kullanıldığı için ön-ısıtma sıcaklığının başlangıç değeri 180 °C'dir. Eşdeğer dozun belirlenmesinde OSL sinyallerinin ilk 3 s'si kullanılmıştır. Arka plan değerinin elde edilmesi için her sinyalin son 5 s'lik kısmı kullanılmıştır.

6. TARTIŞMA VE SONUÇ

Merck kuvars, ticari olarak temin edilen doğal bir kuvars örneğidir. Kuvars örneğinin hazırlık aşamasında maruz kaldığı işlemlerin (ısıtma, ışınlama, vb.) kristal yapısındaki kusurlara etki edeceğinden bilinmesi gerekmektedir. Örneğin hazırlanmasında kalsinasyon amaçlı ısıtıldığı sıcaklık değerinin belirlenmesi amacıyla tavlama sıcaklığının belirlenmesinde kullanılan metodolojiye göre (Polymeris vd. 2007, Polymeris vd. 2014, Sanjurjo-Sánchez vd. 2018) işlem gerçekleştirilmiştir. Böylece Merck kuvarsının kalsinasyon sırasında 300 °C'nin altındaki sıcaklıklarda yapılan tavlama ile gerçekleştirildiğini gösteren deneysel destek sağlanmıştır.

110 °C TL pikinin davranışı, diğer kuvars TL pikleri gibi, büyük ölçüde örneğin oluşum koşullarına bağlıdır. Farklı optik filtreler için elde edilen ve Çizelge 5.1'de gösterilen aktivasyon enerjileri, birinci derece kinetik ifadeler kullanılarak ayrıştırma yöntemi ile belirlenmiştir. Elde edilen verilere göre hem ön-doz verilmiş hem de ön-doz verilmemiş örnekler için aktivasyon enerjileri benzerdir. Her iki durumda da tuzak parametrelerinin tekrarlanabilirliği, birinci dereceden model varsayımı doğruluğunun test edilmesi için en iyi yöntemi sağlar (Polymeris vd. 2011). Genel olarak, kuvars örneklerinin ana yapısı (şekli, pik konumu ve tuzak parametreleri), tavlama işleminden sonra da dar sınırlar içinde değişmektedir (Polymeris vd. 2006a). Pagonis vd. (2002), bu spesifik TL pikinin ana yapılarını çeşitli kuvars örneklerinde incelemişlerdir. Hem sentetik hem de doğal kuvars tiplerini kullanıp, şekillerin veya pik konumlarının değişmediğini, sadece şiddetlerinin örneğin kökenine bağlı olarak değiştiğini göstermişlerdir. Aynı çalışmada, başlangıçtaki artış T_m - T_{stop} ve ışıma eğrisi ayrıştırma (GCD) yöntemleri kullanılarak ışıma eğrilerinin aktivasyon enerjileri de tanımlanmıştır. 110 °C TL piki için aktivasyon enerjileri (E) T_m - T_{stop} yöntemi ile 0.85 eV ve GCD yöntemi ile 0.86 ± 0.12 eV olarak belirlenmiştir. Ek olarak bu örnekleri 500 °C ve 900 °C'ye ısıttıktan (tavlama) sonra da parametrelerin değişmediğini göstermişlerdir. Yapılan tez çalışmasında da benzer sonuçlar gözlenmiş, ayrıştırma işlemi yapılarak elde edilen TL pik konumu ve tuzak parametrelerinin de ölçülen dalgaboyu ve uygulanan ön-doz işleminden bağımsız olduğu sonucuna varılmıştır (aktivasyon enerjileri Çizelge 5.1'de gösterilmektedir). Bu çalışmada elde edilen aktivasyon enerji değerlerinin literatürdeki diğer çalışmalara göre

biraz daha büyük olduğu bildirilmektedir (Pagonis vd. 2002, Mebhah vd. 2006), çünkü bu çalışmada kullanılan ısıtma hızı 1 °C/s iken Pagonis vd.'nin çalışmasında (2002) 2 °C/s ve Mebhah vd.'nde ise (2006) 5 °C/s'dir. Optik filtre kombinasyonları kullanıldığında ve radyasyon doz cevabı göz önüne alındığında *E* değerlerinin büyük ölçüde değişmediği gözlenmiştir. Bununla birlikte, çalışmalarımızın sonuçları Subedi vd. (2012) tarafından elde edilen sonuçlar ile benzerdir.

Laboratuvarda ışınlanan kuvars için üç ana TL emisyonları tespit edilmiştir; Bunlar genellikle, sırasıyla 600-650 nm, 460-500 nm ve 360-440 nm dalga boylarında tespit edilen kırmızı, mavi ve UV emisyonları olarak bildirilmektedir (Krbetschek vd. 1997). 110 ° C TL piki, UV'ye yakın 360-380 nm'de emisyonda baskındır (Krbetschek vd. 1997, Yang ve McKeever 1988, Franklin vd. 1995, Preusser vd. 2009). Bununla birlikte, McKeever (1984), Koul (2008) ve Preusser vd.'ne (2009) göre, TL piklerini belirli tuzak ve yeniden birleşme merkezleriyle ilişkilendirmek kolay değildir, çünkü çeşitli emisyonlardan sorumlu olan kusurlar hala açıkça tanımlanamamıştır. Bu kısmen kusurlar arasındaki karmaşık ilişkilerden kaynaklanmaktadır ve 110 °C TL pik emisyonunun karmaşık emisyon spektrumundan oluştuğunu söylemektedir (Koul 2008). Bu nedenle, bu çalışmanın spesifik filtre kombinasyonlarını kullanarak, 110 °C TL kuvars pik değeri, asağıdaki spektral bölgelerde ortalanan üç olası emisyon dalga boyunun toplamı olarak elde edilir: Sırasıyla 360-380 nm, 420 nm ve 450- 470 nm, yani UV ve mavi emisyon bölgeleri içindedir. Hem 360 - 380 nm (Halperin ve Sucov 1993, Martini vd. 1995) hem de 470 nm (Yang ve McKeever 1990) emisyonları [AlO₄]⁰ yeniden birleşme merkezi ile bağlanırken, 420 nm'de merkezlenen geniş emisyon piki doğrudan 325 °C TL pikiyle ilgilidir (Scholefield vd. 1994), ve bu kuvarsta OSL sinyalinin kaynaklandığı tuzak olarak kabul edilir (Spooner 1994). Itoh vd. (2002), bu son emisyonun, termal olarak salınan ve [AlO₄]⁻ yeniden birleşme merkezi ile birleşen bir alkali iyonundan kaynaklandığını ileri sürmüştür. Bununla birlikte, 110 °C TL pikini kuvars ilk OSL sinyali ile ilişkilendirmek için yapılan çok sayıda başarılı girişim bulunmaktadır (Bøtter-Jensen vd. 1995, Aitken ve Smith 1988, Stoneham ve Stokes 1991, Stokes 1994, Murray ve Roberts 1998, Wintle and Murray 1998, Chen vd. 2000b, Koul ve Chougaonkar 2007), böylece iki lüminesans sinyali ile 110 °C TL pik emisyon spektrumu arasında güçlü bir ilişki için kanıt sağlanmıştır.

Sawyer marka kuvars örneği gibi diğer sentetik kuvars örneklerinden farklı olarak, öndoz ile ışınlanmamış Merck kuvars için supra-lineerlik indeksi kullanılan optik filtrelerden bağımsız olarak birin altındadır; bu yüzden ön-doz verilmemiş Merck kuvars örneği uygulanan optik filtreden bağımsız olarak sub-lineer radyasyon doz davranışı göstermiştir. 50 Gy ön-doz ile ışınlandıktan sonra, aynı radyasyon dozu aralığındaki davranış, spektral emisyona bağlı olarak lineer veya supra-lineer olmaktadır. Bu durumda, farklı optik filtreler kullanmak farklı emisyon dalgaboylarını ayırt etmemize izin vermektedir. Hoya U-340 optik filtre kullanarak, geçirgenlik bölgesi nedeniyle 110 °C TL pikinin yalnızca 360-380 nm emisyonunu tespit edebilmekteyiz (Şekil 3.3). Bu emisyonun spesifik TL pikinin baskın emisyonu olması beklenmektedir. Hoya U-340 filtresi için radyasyon doz-cevap eğrileri incelendiğinde, 360-380 nm emisyonunun, öndoz verilmiş örneklerin doğrusallığından sorumlu olduğu gözlenmiştir. Hoya U-340 filtresine benzer şekilde, Corning 7-59 optik filtresinin durumu, hem 420 nm hem de 450-470 nm spektral bölgelerin olabileceği gerçeğine rağmen, baskın geçirgenlik bölgesinin 360-380 nm aralığında olduğunu göstermiştir (Şekil 3.3). Bu nedenle iki optik filtre kombinasyonu baskın olan 360-380 nm emisyonunu işaret eden benzer deneysel özellikler göstermektedir. Tersine, yukarıda belirtilen üç spektral bölgenin her biri, Schott BG39 filtresi kullanılarak tespit edilebilir olsa da, baskın geçirgenlikler, 400 nm'nin üzerindeki spektral bölgelere sahip olanlardır. Schott BG39 optik filtresinin kullanılması durumunda sadece ön-doz verilmiş örneğin radyasyon doz cevabı aşırı doğrusallık vermiştir. Corning 7-59 ve Schott BG39 kombinasyonunda, geçirgenlik hem 360-380 nm'de hem de 420 nm'de baskındır, 450-470 nm spektral bölgeleri kısmen tespit edilebilmiştir. Bununla birlikte, bu son ikili kombinasyonun deneysel özellikleri, sadece Schott BG39 optik filtresi için üretilen özelliklerle tamamen benzerdir. Her iki optik filtrenin deneysel konfigürasyonunda, ön-doz verilmemiş örnekler için sub-lineerlik ve ön-doz verilmiş Merck kuvars için zayıf supra-lineerlik elde edilmiştir.

Radyasyon doz cevabı özellikleri Çizelge 6.1'de özetlenmiştir. Merck kuvarsın supralineerliğinin baskın gözlendiği durumlarda bile, Sawyer sentetik kuvarsı için elde edilen supra-lineerlik ile karşılaştırıldığında çok daha zayıf olduğu dikkat çekmektedir (Petrov ve Bailiff 1995, Chen vd. 1988, Charitidis vd. 1999, Bøtter-Jensen vd. 1995, Kitis vd. 1995).

Kullanılan optik filtrele (bant genişliği)	Dedekte edilen emisyon	f(D) Ön-doz verilmemiş Merck kuvars	f(D) Ön-doz verilmiş Merck kuvars
Hoya U-340 (290-370 nm)	360-380 nm	Sub-lineer	Lineer (<10 Gy)
Schott BG39 (330-620 nm)	360-380 nm 420 nm 450-470 nm	Sub-lineer	Supra-lineer
Corning 7-59 (320-480 nm)	360-380 nm 420 nm 450-470 nm	Sub-lineer	Lineer (<10 Gy)
Schott BG39 & Corning 7-59 (330-470 nm)	360-380 nm 420 nm 450-470 nm	Sub-lineer	Supra-lineer

Çizelge 6.1 Ön-doz verilmiş ve verilmemiş Merck kuvarsın ölçülen emisyonu ve radyasyon doz cevabı davranışları

Baskın 360-380 nm emisyonu için en muhtemel ışımalı yeniden birleşme merkezlerinin $[H_3O_4]^0$ deşik merkezleri, üç hidrojen atomu tarafından işgal edilen silikon boşlukları ve bir tuzak (Franklin vd. 1995, Polymeris vd. 2009) olduğu yaygın olarak kabul edilmiştir. Bu, 110 °C TL pik elektronlarının yeniden birleştiği baskın iki merkez arasında, oda sıcaklığında 380 nm'de yayılan sentetik hidrotermal kuvars için düşünülmüştür (Yang ve McKeever 1990). Bununla birlikte, son deneysel veriler (Halperin ve Sucov 1993, Martini vd. 1995), 360 - 380 nm emisyonunun, en azından sentetik kuvars numuneleri için [AlO₄]⁰ merkezlerinde yeniden birleşmeden kaynaklandığını göstermektedir (Yang ve McKeever 1990). Yang ve McKeever (1990)'ın yaptığı çalışma, 470 nm kuvars emisyonunun ön-doz işleminden etkilenmediğini göstermiştir. Supra-lineerlik ve ön-doz etkisi hassaslaştırma açısından yakından ilişkili olgular (Koul 2008) olduğu için, Merck kuvarsın 470 nm'deki emisyonunun supra-lineerlik sağlaması beklenmemektedir. Bununla birlikte, bu son emisyon $[AlO_4]^0$ merkezleri ile de ilişkilendirilmektedir. Bu durumda, belirtilen gerekçelere göre, [AlO₄]⁰ merkezine, yani 360 - 380 nm ve 450 - 470 nm aralığına, atfedilen emisyonların ne hassaslaştırmadan ne de lineerlikten etkilenmediği sonucuna varılabilir. Hoya U-340 ve Corning 7-59 optik filtre kullanımında ölçülen emisyonların, 50 Gy ön-doz uygulamasından sonra bile, herhangi bir doğrusallık

özelliği göstermemesi nedeni budur. Ön-doz verilmemiş Merck kuvars için supralineerlik eksikliğinin, kuvarstaki 110 °C TL pikinin baskın 360-380 nm spektral emisyonundan kaynaklandığı açıkça ortaya çıkmaktadır. Bu tez çalışması çerçevesinde, sadece 420 nm emisyonunun hem hassaslaşmaya hem de supra-lineerlik etkilerine yoğun bir şekilde maruz kalmaktadır.

Şekil 5.2'ye göre; (a) supra-linnerite ile hassaslaşma arasındaki güçlü deneysel bağlantı ve (b) Schott BG39 filtresi kullanıldığında 420 nm emisyonunun dedekte edildiği gözlenmektedir. Bu nedenle, Merck kuvars için hem yüksek doğrusallığı hem de güçlü hassaslaştırmayı belirleme, Schott BG39 optik filtresinin tek başına veya Corning 7-59 optik filtresi ile birlikte kullanılması durumunda gözlenebilecektir, çünkü son emisyonun ağırlıklı olarak dedekte edildiği optik filtre kombinasyonu budur. Yukarıda belirtilen tüm sonuçlar, ticari Risø TL / OSL okuyucularında yer alan geniş bantlı geçirgenlik filtreleri kullanılarak, belirli kuvars numuneleri için radyasyon doz cevabı üzerinde optik filtrelerin etkisi incelenmesi ile yapılmıştır. Bu filtrelerin ve filtre kombinasyonlarının çeşitli dalga boyu aralıklarında çok anlamlı bir şekilde üst üste gelmelerinin yanı sıra, elde edilen cevabın önemli derecede farklılaşmasını sağladığı gözlenmiştir. Isıtma sırasındaki merkezler arasındaki rekabet (competition) modelinin izlenen düşük supralineerlikten sorumlu olduğunu varsayarsak, bu çalışmada 50 Gy'nin ön-dozun tuzak popülasyonunun farklı bir derecesini temsil ettiği görülmüştür. Bu nedenle, hem ısıtma modelleri sırasındaki rekabetin öngörüleri hem de Charitidis vd. (1999)'nin deney sonuçlarına göre, rekabet halindeki tuzakların popülasyonu arttıkça, supra-lineerlik derecesinin düşmesi beklenir. Fakat, mevcut sonuçlar için durum böyle değildir. Spesifik örnek ve ilgili çalışmamız için, McKeever ve Chen (1997) tarafından tartışılan supralineerlik modeli, tek TL tuzağı ve iki yeniden birleşme merkezinden oluşan bir model ile kullanılmalıdır. İkinci yeniden birleşme merkezi, termal olarak salınan elektronlar için ışımalı yeniden birleşme merkezi ile rekabet etmektedir (McKeever ve Chen 1997, Banerjee 2001). Ön-doz arttıkça, rekabet eden merkezlerin sayısı radyasyon dozu ile artar, bu nedenle benzer olarak bu tez çalışması çerçevesinde sunulan sonuçlara göre 110 °C TL pikinin orta düzeyde olmasına rağmen supra-lineerite davranışı (McKeever ve Chen 1997) artmıştır.

Bu çalışmanın temel amacı, ısıtılmamış, ön-doz verilmiş Merck kuvarsın çeşitli sinyal ve çeşitli bileşenleri arasındaki olası korelasyonları araştırmaktır. Bu gibi korelasyonların elde edilmesi, özellikle kuvars örneğinde olduğu gibi, çoklu pike sahip TL ışıma eğrisinde oldukça zordur. Bu çalışmada, ayrıştırılmış TL pikleri ve OSL bileşenlerinin ve ayrıca EPR sinyallerinin, termal kararlılık, radyasyon doz cevabı, doğrusallık ve MDDL değerleri gibi sonuçlarına dayanarak olası korelasyonlar incelenmiştir. Benzer bir radyasyon doz cevabı korelasyon çalışması da Oniya vd. (2012c) tarafından Nijerya kökenli ısıtılmış kuvarsın TL ve OSL sinyalleri arasında yapılmıştır.

İlk olarak, CW-OSL sinyalinin üç bileşeninin LM-OSL sinyaline karşılık gelen beş bileşeni ile ilişkilendirilecektir. Angeli vd. (2017)'ne göre, CW-OSL'nin hızlı bileşeni doğrudan $C2_{LM-OSL}$ ve $C3_{LM-OSL}$ ile ilişkili olabilir; ayrıştırma sonuçları ve Çizelge 5.4 ve 5.5'te sunulan ilgili fotoiyonizasyon tesir kesiti değerlerine dayanarak bu korelasyondan bahsedilebilir. $C1_{LM-OSL}$ en hızlı bileşen olmasa da, $C1_{LM-OSL}$ 'yi herhangi bir CW-OSL bileşeni ile ilişkilendirmek oldukça zordur. En az iki veya üç LM-OSL bileşeninin, Kitis vd. (2007) ve Kiyak vd. (2007, 2008) durumlarına benzer şekilde "hızlı" bileşenler olarak nitelendirilebileceğini vurgulamakta fayda vardır. Ayrıca, ikinci CW-OSL bileşeni ile $C3_{LM-OSL}$ arasında bir korelasyondan bahsedilebilir. Son olarak, son iki LM-OSL bileşeninin (C4_{LM-OSL} ve C5_{LM-OSL}) toplamı yavaş CW-OSL bileşeni olarak temsil edilebilir. CW-OSL'deki Daha az bileşen yerine beş LM-OSL bileşeninin varlığı, LM ve CW-OSL eğrilerindeki ayrıştırma analizindeki farklı çözünürlük olarak yorumlanabilir (Kitis ve Pagonis 2008).

TL pik 3, hızlı OSL bileşeninden sorumlu TL pik olarak tanımlanabilir. Bu TL pikinin k değeri, kullanılan optik filtreden bağımsız görünmektedir. Bu TL pikinin yalnızca MDDL'si filtrenin geçirgenlik dalga boyu ile değişmektedir. TL pik 3 ile hızlı OSL bileşeni arasında bir ilişki olduğunu göstermektedir. Bunun Merck kuvarsın LM-OSL sinyalleri için geçerlidir, C1_{LM-OSL}'nin MDDL'i ile *k* değerleri benzerlik göstermektedir. Bununla birlikte, aşağıdaki iki ilgili özelliğe dikkat etmek oldukça önemlidir; (a) sadece hızlı CW-OSL bileşeni ile TL pik 3 arasında korelasyon yoktur, (b) hem doğrusallığa hem de MDDL özelliklerine göre TL pik 3, muhtemelen C4_{LM-OSL} ile de ilişkilendirilebilir. Bir kez daha, bir TL pikinin iki LM-OSL bileşeninden fazlasını besleyebildiğine dair deneysel bir kanıt elde edilebilir (Kitis vd. 2010, Angeli vd. 2017); bu son özellik, CaF₂:N (Angeli vd. 2017) ve KMgF₃:Ce⁺³ (Veronese vd. 2004, Dallas vd. 2010) gibi çoklu pik içeren TL ışıma eğrileri veren malzemeler için gösterilmiştir. Bununla birlikte, ilk kez kuvars için rapor edilmiştir. Ne yazık ki, EPR bileşeniyle bir korelasyon elde edilememiştir.

Geri kalan TL piklerinde doğrusallık ve MDDL özellikleri filtrelerin geçirgenliğine bağlıdır. Bu nedenle, TL ve OSL arasındaki korelasyon, HOYA U-340 optik filtresinin kullanıldığı durumlar için incelenecektir. Çizelge 5.6 ve 5.7'de, TL pik 4'e dikkat etmek gerekmektedir, çünkü k değeri ve MDDL sadece Hoya U-340 optik filtresi için hesaplanabilmiştir. Bu sonuç bize bu pikin sadece Hoya U-340 optik filtresi ile ölçebileceğimiz 290 nm ve 320 nm (diğer optik filtrelerin dışındaki bant genişliği) arasında dar emisyonlu bir merkez olduğunu göstermektedir. Buna göre, hızlı CW-OSL bileşeni, C2_{LM-OSL} ve C3_{LM-OSL} ile aynı merkeze bağlanır. C2_{EPR} sinyalinin doğrusallık ve MDDL özelliklerinin uyumluluğu oldukça ilginçtir. Ayrıca, Çizelge 5.6 ve 5.7'e göre, bu OSL bileşenlerinin, TL pikleri 1 ve 2 gibi aynı tuzaklardan elektron aldığı anlaşılmaktadır. Bu çalışma aynı zamanda, iki farklı TL pikinin de aynı CW-OSL bileşenine katkıda bulunabileceğini göstermektedir. Bu deneysel özellik, daha önce literatürde de CaF₂:N (Angeli vd. 2017) ve özellikle de kuvarsın hızlı OSL bileseni (Kitis vd. 2010) için de gösterilmiştir. Bu belirtilen üçlü korelasyon, termal kararlılık deneyi ile de desteklenmiştir. CW-OSL azalım eğrisinin hızlı bileşeninin termal kararlılık davranışını ve EPR sinyalinde C2_{EPR}'nin davranışı karşılaştırıldığında aralarındaki olası bir ilişkiden bahsedilebilir. Bu durumda, [GeO₄/Li⁺]⁰ merkezinin yalnızca 300 °C'ye kadar olan TL pikleri ile ilişkisi olduğu söylenebilir.

 $C5_{LM-OSL}$ bileşeni, TL pik 5 ve TL pik 6 ile benzer doğrusallık ve MDDL özellikleri sağlar. Ancak, bu iki TL pikinin sıcaklığına (T_m) dayanarak, bu spesifik LM-OSL bileşeni, yalnızca TL pik 5 ile ilişkili olabilir, çünkü TL pik 6, mavi (470 nm) ışık uyarımı (Preusser vd. 2009, Wintle ve Adamiec 2017, Bøtter-Jensen vd. 2003) kullanılarak ortam sıcaklığında ağartılamaz. Dahası, başka bir TL veya LM-OSL bileşeniyle ilişkilendirilemeyen orta hızdaki CW-OSL bileşeni, C1_{EPR} ile benzer doğrusallık ve MDDL özellikleri göstermektedir. Herhangi bir TL tepe noktası ile korelasyon olmamasına dayanarak ve bu spesifik CW-OSL bileşeni üzerindeki önceki çalışmalara göre (Polymeris vd. 2009), bu C1_{EPR}'nin oda sıcaklığı ve 180 °C arasında T_m sıcaklığına sahip TL pikleri ile ilgili olabileceği sonucuna varılabilir. Vaccaro vd. (2017)'na göre, [GeO₄]⁻ merkezinden kaynaklanan sinyal 110 °C TL pik emisyondan sorumludur; bu nedenle C1_{EPR}, 110 °C ile 180 °C arasındaki diğer düşük sıcaklıktaki TL pikleriyle ilişkili olabilir. Bu çalışmada, yapılan ön-ısıtmaya rağmen bu bileşen mevcuttur. Bununla birlikte, Şekil 5.11'e göre, orta hızlı CW-OSL bileşeninin toplam CW-OSL sinyaline katkısının yaklaşık % 10 gibi oldukça düşüktür. Bu nedenle, bu CW-OSL bileşeninin kaynağı, transfer etkisinin gözlenmesinden dolayı düşük sıcaklıktaki TL pikleri olabilir. Bu sonuç, ilgili EPR bileşeninin termal kararlılığı ile oldukça uyumludur.

Bu çalışma kapsamında literatürde tanımlanmamış ilk kez g = 2.0017'de elde edilen C4_{EPR} sinyali ile TL pik 1 ortak MDDL ve doğrusallık özelliklerine sahiptir. Bu ilişki sadece TL yönteminde Schott BG39 filtresi (veya Schott BG39 ve Corning 7-59 TL filtrelerin bir kombinasyonuna alternatif olarak) için uygundur. Bu bilgi bize TL pikinin asıl emisyon dalga boyunun mavi bölgede, yani 400 nm'den daha yüksek dalga boyunda olduğunu açıklamaktadır. Bununla birlikte, bu TL pikinin mor dalgaboyu bölgesinde başka bir yeniden birleşme merkezi kullandığı söylenebilir. Hoya U-340 filtresi kullanılırken bu pikin radyasyon doz cevabının sub-lineer olmasının sebebi budur, diğer tüm optik Dedeksiyon filtreleri için supra-lineer olur. Bu nedenle, bu bağlamda, $T_m = 206 \pm 3$ °C'de bulunan TL pik 1'in, mor emisyonunun C2_{EPR} sinyali ve buna karşılık gelen OSL bileşenleri ile korele olduğu, mavi emisyonun ise C4_{EPR} ile ilişkilendirilebileceği söylenebilir.

TL pik 1'e benzer şekilde, TL pik 2'te hem mor hem de mavi bölgelerde iki farklı yeniden birleşme merkezi kullanır. Ayrıca, Çizelge 5.6 ve 5.7'ye göre, TL pik 3, kullanılan tüm optik filtreler için aynı doz cevabı özellikleri vermektedir. Bu nedenle, bu pikin yeniden birleşme merkezinin tek olduğu, kullanılan tüm filtre kombinasyonları arasında, yani 350 - 380 nm arasında, ortak dalga boyu bölgesinde olduğu söylenebilir (Şekil 3.3). Son olarak, TL pik 4 için emisyon dalga boyunun 340 nm civarında veya altında olduğu sonucuna varılabilir.

Her durumda, sadece *k*-değeri ve MDDL kullanarak, belirli TL, EPR ve OSL sinyal bileşenlerinin kesin bir korelasyonunu kurmanın mümkün olmadığı vurgulanmalıdır; Bu bilgiler olası ilişkiler hakkında ipuçları sunmaktadır. Doz cevabı bölgesinin seçimi, OSL ve TL sinyallerinin doyma seviyelerine ulaşmaması için dikkatlice yapılmıştır. Tabii ki, bu çalışmadaki termal kararlılık çalışması ayrıca korelasyonlar hakkındaki bu ipuçlarını da desteklemektedir. Termal ve optik sinyal taraması sırasında ilgili elektron tuzaklarının termal ve optik kararlılığı ve ayrıca ağartma işlemi sırasındaki azalımların daha ayrıntılı incelenmesi için daha fazla çalışma gereklidir.

LM-OSL sinyallerinin başlangıç kısmında gözlenen olağan dışı azalım eğrisinin araştırılmasında LM-OSL eğrilerinin farklı sürelerde ağartılarak farklı uyarım sıcaklıklarında ölçülmesi yöntem olarak belirlenmiştir. Buna göre elde edilen eğriler ayrıştırılarak başlangıçtaki azalım eğrisini odaklanılmış ve CW-OSL veya PH yaklaşımı kullanılmıştır. PH ve CW-OSL bileşenlerinin fit parametrelerinin optimum yaklaşımı seçmeye yönelik davranışı araştırılmıştır.

Bu verilerden yararlanarak ilk olarak, ultra hızlı OSL bileşeninin olasılığı tartışılmalıdır. Singarayer ve Bailey (2003), Jain vd. (2003), Kitis vd. (2007) ve Jain vd. (2008)'nin kuvars lüminesans sinyalinin ayrıştırıldığı çalışmalara göre, ultra hızlı OSL bileşeni için fotoiyonizasyon tesir kesitleri 10⁻¹⁶ cm² aralığında olmalıdır. Diğer hızlı, orta ve yavaş bileşenler, kuvars için 10⁻¹⁷-10-²¹ cm² arasında fotoiyonizasyon tesir kesitlerine sahiptir. Eğer bu olağan dışı bileşen ultra hızlı bir OSL bileşeni ise (a) bu olağan dışı bileşenin yukarıda belirtilen fotoiyonizasyon tesir kesiti 10⁻¹⁷ cm²'den daha büyük olması gerekirdi ve (b) LM-OSL bileşeninin ilkine karşılık gelen fotoiyonizasyon tesir kesiti daha düşük olurdu. Tesir kesiti hesaplarına dayanarak, ultra hızlı bir bileşenin varlığı böylece hariç tutulmuştur. Ayrıca, bu olağan dışı bileşenin 125 °C'den düşük sıcaklıklar için fotoiyonizasyon tesir kesit değerleri, kuvarstaki 110 °C TL pikinin fotoiyonizasyon kesitleri ile aynı büyüklüktedir (Kiyak vd. 2008, Polymeris vd. 2009).

Herhangi bir CW-OSL bileşeni için, yeniden birleşme ömrünün (τ) artan sıcaklıkla azalması beklenmektedir, bu nedenle ilgili fotoiyonizasyon tesir kesitinin artması gerekmektedir (Bøtter-Jensen vd. 2003, Polymeris vd. 2018). τ (s), tuzaktaki elektronların uyarım olasılığı (*p*) ile ters orantılıdır, böylece $p(s^{-1}) = 1 / \tau$ 'dir. Aslında *p*, özellikle eşzamanlı termal ve optik uyarım gerçekleştiğinde uyarım yöntemine bağlıdır. OSL teorisine göre, oda sıcaklığı (RT) ölçümlerinde, toplam *p* (*p*_{total}) sadece optik uyarım katkılıdır (Kitis vd. 2010) ve Eşitlik 6.1 olarak belirlenir (Bøtter-Jensen vd. 2003):

$$p_{optical} = p(E_0) = \sigma(E_0) \cdot \varphi, \tag{6.1}$$

burada, σ fotoiyonizasyon tesir kesitidir (cm²) ve φ optik uyarım şiddetidir; Ayrıca, burada E_0 eşik optik uyarım enerjisidir (eV). Bununla birlikte, yüksek sıcaklıklarda uyarım sırasında, Arrhenius denklemi tarafından verilen termal bileşen (p_{termal}) de dikkate alınmalıdır (Furetta 2003).

$$p_{thermal} = s \cdot exp\left(-\frac{E}{k \cdot T}\right),\tag{6.2}$$

Bu nedenle p_{HT} (yüksek sıcaklıkta uyarım hızı) aşağıdaki iki bileşenin toplamı aşağıdaki gibi olmalıdır (Polymeris 2015):

$$p_{HT} = p_{optical} + p_{thermal} = \sigma(E_0) \cdot \varphi + s \cdot exp\left(-\frac{E}{k \cdot T}\right).$$
(6.3)

Bu nedenle, yüksek sıcaklıktaki OSL ölçümleri için τ , 1 / p_{HT} 'dir:

$$\tau_{HT} = \frac{1}{\sigma(E_0) \cdot \varphi + s \cdot exp\left(-\frac{E}{k \cdot T}\right)}.$$
(6.4)

Eşitlik 6.4'e göre, τ artan uyarım sıcaklığı (*T*) ile azalmaktadır (Polymeris 2015). Yukarıda sözü edilen teorik olarak elde edilen Eşitlik 6.4 ile iyi uyum gösteren deneysel sonuçlar Bøtter-Jensen vd. (2003), Polymeris (2015) ve McKeever (2001) tarafından verilmiştir. Ayrıca kuvarsta *T*'nin artmasıyla τ 'nun azalımı için başka bir olası açıklama termal sönümleme olabilir (Bailiff 2000, Chithambo ve Galloway 2001, Chithambo 2002, Pagonis vd. 2010). Şekil 5.19b'de sunulan uyarım sıcaklığına hem yeniden birleşme ömrünün hem de fotoiyonizasyon tesir kesitinin bağımlılığı, özellikle 100 ° C'den yüksek uyarım sıcaklıkları için bir CW-OSL bileşeninin varlığından bahsedilemeyeceğini söylemektedir.

Yakın tarihli bir makalede, Ankjærgaard ve Jain (2010) optik uyarımlı fosforesans (OSP) sinyali kavramını getirmişlerdir. Bu yazarlar, herhangi bir OSP bileşeni için hem şiddetin hem de azalım sabitinin uyarım sıcaklığına göre değişmesinin beklendiğini belirtmiştir. Bununla birlikte, bu davranışın ne basit ne de monotonik olması beklenmemektedir. Bu çalışmada, azalım katsayısı λ 'nın Şekil 19a'nın uyarım sıcaklığına bağımlılığı (ve dolayısıyla yeniden birleşme ömrünün $\tau = \lambda^{-1}$ 'in uyarım sıcaklığına bağımlılığı), Ankjærgaard ve Jain (2010)'deki gibi milisaniye - saniye aralığında OSP sinyali sönümleme ömrünün bağımlılığına benzerdir (Şekil 6.1b). Bu nedenle, bu çalışmanın geleneksel olmayan bileşeninin bir OSP bileşeni olduğu sonucuna varmak mümkündür. Her iki çalışmada da (aynı zamanda Ankjærgaard ve Jain (2010)'de bu bileşen, tek bir bileşen olarak fit edilebilir. Ayrıca, Şekil 6.1a'da gösterildiği gibi, bu OSP bileşeninin sinyali, 75 °C ve 100 °C'de uyarıldığında daha yüksek şiddet vermektedir.



Şekil 6.1 a) CW-OSL ve OSP bileşenlerinin 75 ila 200 °C arasındaki uyarım sıcaklıklarına (T_i) kadar başlangıç şiddeti (I_0) değişimi ve b) OSP için ln(τ_{OSP}) ve 1 / kT'ye karşı Arrhenius grafikleri. Isıtma hızı tüm koşullar için 1 °C/s'dir (Hatalar düşük olduğu için görünmemektedir).

Kuvarstaki OSP sinyalinin 125 °C ve üzerinde ölçülen hızlı OSL bileşenine kıyasla önemsiz olduğu açıktır. Bu ikinci özellik, 125 °C ve altındaki uyarım sıcaklıkları için bu

sinyalin kaynağının 110 °C TL piki olduğuna dair bir ipucu sağlayabilir. Şekil 5.19b'nin düşük uyarım sıcaklıklarına karşılık gelen fotoiyonizasyon tesir kesiti ayrıca düşük uyarım sıcaklıkları için 110 °C pikinden türetilen OSP bileşenini de desteklemektedir. 125 ° C'de optik uyarım için bile, 0,2 sn'lik oldukça küçük azalım ömrüne rağmen 110 °C TL piki önemli bir rol oynamaktadır (Ankjærgaard ve Jain 2010). 1 / *kT*'ye karşı ln (*t*OSP) ile çizilen Arrhenius grafiği, Şekil 4b'de OSP için görülmektedir. Açıkça görüldüğü gibi, düşük uyarım sıcaklıklarına karşılık gelen üç veri noktasını kullanan lineer bir regresyon, 110 °C TL pikinin aktivasyon enerjisiyle tutarlı olmakla birlikte, biraz daha düşük 0.79 eV'lik bir aktivasyon enerjisini göstermektedir (Polymeris 2015, Pagonis vd. 2002). Daha yüksek uyarım sıcaklıkları için, sinyalin 110 °C tuzağı ile aynı yeniden birleşme merkezlerini kullanan diğer TL tuzaklarından kaynaklanması beklenmektedir.

Farklı tavlama sıcaklıklarında elde edilen TL, CW-OSL ve LM-OSL sonuçları; kuvarsın, toplam lüminesans eğrisinin değişimemesine rağmen, faz dönüşüm sıcaklıklarında (573 °C ve 870 °C) lüminesans veriminin değişimine sebep olduğunu göstermiştir. Bu değişim, 573 °C civarında ve üzerindeki sıcaklıklarda artış, 870 °C civarında ise doyuma ulaşma olarak gözlenmektedir. Ölçüm sonucunda elde edilen toplam OSL eğrilerinin ayrıştırılması, her bir pikin veya bileşenin tavlama sonucundaki davranışını incelemeye olanak sağlayacaktır. Ayrıca bu ölçümlerin verilen test dozunun uygun seçilmesiyle veya şiddet azaltıcılar kullanılmasıyla yüksek sıcaklıklarda tavlanan örneklerde gözlenen doyum problemini ortadan kaldıracağı düşünülmektedir.

Doz yeniden oluşturma testi, farklı ön-ısıtma sıcaklıklarının da OSL sinyal şiddetine etkisini içerecek şekilde yapılmıştır. Buna göre; 180 - 220 °C aralığında seçilen ön-ısıtma sıcaklığı çalışmada kullandığımız kuvars için uygundur. Kuvarsa doğal radyasyon dozunu temsil etmesi için uygulanan 50 Gy'lik radyasyon dozu verilmiştir. Uygulanan test sonucunda ortalama örneğin eşdeğer dozu (tüm ön-ısıtma sıcaklıklarının sonuçları da dahil edilerek) 47.8 ± 0.9 Gy olarak elde edilmiştir. Ölçülen ile verilen radyasyon dozu arasında yaklaşık % 5'lik bir fark elde edilmiştir. Ölçüm sırasında uygulanan ısıtma, ışınlama vb. işlemlerden kaynaklı hassasiyet değişiminin incelenmesi ve düzeltme yapılması gerekmektedir. Bu amaçla hesaplanan L_i/T_i oranının artan radyasyon dozları ile değişimi bize örneğin hassasiyet davranışı hakkında bilgi vermektedir. Çalışmamızda

kullandığımız kuvars örneği için L_i/T_i oranının lineer arttığı ancak yüksek radyasyon dozlarına çıkıldıkça (>50 Gy) lineerlikten saptığı gözlenmiştir. Bu da bu örneğin eşdeğer dozunun belirlenmesi için hassasiyet düzeltmesi yapılması gerektiğini göstermektedir.

Literatürde kuvarsın yapısını, lüminesans mekanizmasını anlamaya yönelik farklı kaynaklardan elde edilen kuvarslar ile elde edilen deney sonuçlarının bir araya getirilmesi çabası dikkate alındığında, bu proje, tek bir tip kuvars örneği kullanılarak yapılan deneyler dizisinin sonucunda mekanizma hakkında farklı yöntemlerle desteklenmiş bilgiler sunmaktadır.

7. DEĞERLENDİRME

Tez çalışmasının ilk aşamasında ısıtılmamış Merck kuvarsın 110 °C TL pikinin şekli, aktivasyon enerjisi ve radyasyon doz cevabı davranışı, Hoya U-340, Schott BG39, Corning 7-59 ve son ikisinin bir kombinasyonu olarak dört farklı optik filtre konfigürasyonu kullanılarak incelenmiştir. Ek olarak, 50 Gy ön-dozun bu parametreler üzerindeki etkisi incelenmiştir. Çalışmaya göre, aşağıdaki özellikler elde edilmiştir: i. 110 °C TL pikinin ayrıştırılması sonucu elde edilen aktivasyon enerjileri, kullanılan optik filtrelere veya uygulanan ön-doza bağımlılık göstermemektedir. Ayrıca, aktivasyon enerji değerleri, literatürde bildirilen diğer kuvars örneklerine kıyasla azalmıştır. ii. Ön-doz verilmiş Merck kuvars, birin altındaki supra-lineerlik indeksi f(D) değeri ile supralineerlik etkisinin gözlenmediğini göstermiştir. Bu sonuç, kullanılan optik filtrelerin yanı sıra D_1 değerinin seçiminden de bağımsızdır. iii. 50 Gy'lik bir ön doz, radyasyon dozcevabı davranışını önemli ölçüde etkilemektedir. Aslında, Hoya U-340 ve Corning 7-59 optik filtreleri, baskın 360-380 nm emisyonu ile ilişkili, 10 Gy'ye kadar olan radyasyon dozları için doğrusallık dahil olmak üzere benzer deneysel özellikleri göstermektedir. Corning 7-59 ile veya tek başına kullanıldığında Schott BG39 filtresi için baskın geçirgenlik 400 nm'nin üzerindeki spektral bölgelerdedir. Merck kuvars için supralineerlik, calışılan radyasyon doz aralığı boyunca sadece bu sonraki iki optik filtre kombinasyonu için gözlenmiştir. iv. Supra-lineerlik sadece 420 nm kuvars emisyonunda elde edilmiştir, bu da interstisyel bir alkali iyonunun termal olarak salınması ve bir [AlO₄]⁻ merkezinde yeniden birleşmesi sonucu ortaya çıkmaktadır. Diğer iki spektral bölgedeki 360-380 nm ve 470 nm emisyonları [AlO₄]⁰ merkezlerinde yeniden birleştiği için supra-lineerlikten etkilenmemektedir. McKeever ve Chen (1997) tarafından önerilen supra-lineerlik modeli, tek bir TL tuzağı ve rekabet eden iki yeniden birleşme merkezinden oluşan radyasyon dozuna bağlı supra-lineerlik davranışını açıklayabilir.

Lüminesans odaklı çalışmalar için Merck kuvarsın referans malzemesi olarak oluşturulmasına yönelik mevcut çabalar vardır. Literatürde ilk kez, ısıtılmamış kuvars örneği, TL, LM-OSL, CW-OSL ve EPR (oda sıcaklığında) ölçümlerini içeren entegre bir çalışmaya tabi tutulmuştur. Bu çalışma tamamen 180 °C'nin üzerindeki lokalizasyon sıcaklığı (T_m) ile HTTL piklerine odaklanmıştır. Çalışmada kullanılan spesifik kuvars

numunesi konusundaki önceki deneyimlerimize dayanarak (Kaya-Keleş vd. 2016), farklı yöntemlerle çeşitli sinyalleri, bileşen ya da TL pikleri arasındaki korelasyonu incelemek için ön-doz verilmiş kuvars kullanılmıştır. Altı TL piki, üç CW-OSL bileşeni ve beş LM-OSL bileşeni, birinci dereceden kinetiğe sahip denklemler ile analiz edilerek ayrıştırılmıştır. EPR sinyalinde, deneysel elde edilen verilere dayanarak Ge merkezi olduğu düşünülen sinyalin yanı sıra, g = 2.0017'deki daha önce tanımlanmamış bir bileşenden de literatürde ilk kez bahsedilmiştir. Kuvarsın kullanıldığı durumda, ayrıştırma prosedüründeki farklı çözünürlükler nedeniyle, CW-OSL sinyallerine karşılık gelen LM-OSL'den daha az bileşenden oluşmaktadır. Bu nedenle, metodolojik açıdan, kuvars ve benzer durumlarda, CW-OSL yerine TL / EPR ve LM-OSL bileşenleri arasında korelasyonun incelenmesi tavsiye edilmektedir. Bu EPR bileşeninin spektral özellikleri aşağıdaki gibidir. Bu EPR bileşeni, TL yönteminde Schott BG39 (veya Corning 7-59 ile bir kombinasyonu) kullanarak elde edilen TL pik 1 ile benzer doğrusallık özellikleri ve MDDL değerleri göstermektedir. Bu nedenle, olası bir korelasyon elde edilebilir. Sadece burada OSL ölçümlerinde kullanılmayan bir optik filtre kullanılarak elde edilmiş bir TL pikidir. Bu çalışma literatürde ilk kez hızlı CW-OSL bileşeni ve C2_{LM-OSL} ve C3_{LM-OSL} ve 209 ± 4 °C ve 248 ± 4 °C 'de gözlenen sırasıyla hem TL pik 1 hem de TL pik 2 için üçlü bir korelasyon sunmaktadır; tüm bu lüminesans sinyalleri C2_{EPR}'ye bağlanmaktadır. Ayrıca, bir kez daha bu çalışma, (i) bir TL pikinin iki LM-OSL bileşeninden fazlasını destekleyebileceğine ve (ii) iki farklı TL pikinin de aynı OSL bileşenine katkıda bulunabileceğine dair deneysel kanıtlar sunmaktadır. Burada, çalışılan kuvarsın sinyallerinde sadece TL pik 3 hızlı LM-OSL'nin kaynağıdır.

Retrospektif dozimetri çalışmalarında ön ısıtma veya yüksek sıcaklıklarda ölçüm gibi birçok termal işlem uygulanır. Genellikle, bu termal işlemler olağan dışı şekillere sahip LM-OSL eğrileri ile sonuçlanabilir. Ayrıştırma, bu işlemler sonucunda elde edilen bu tür verilerin analizi için sık kullanılan bir yöntemdir. Bu çalışma, başlangıç uyarım zamanlarında hızla azalan baskın bir bileşenin gözlendiği kuvars LM-OSL eğrisi için iki ayrıştırma yaklaşımı sunmaktadır. Bu başlangıç, baskın azalım bileşeni başka bir CW-OSL değildir, çünkü bağlantı parametrelerinin (τ ve σ) sıcaklık bağımlılıkları standart OSL teorisiyle çelişmektedir. Bu geleneksel olmayan bileşen, azalım katsayısının λ deneysel olarak doğrulanmış uyarım sıcaklığına bağlı olarak yoğun bir optik uyarımlı fosforesans (OSP) bileşenine bağlanabilir. Bu sinyal 125 °C ve altındaki uyarım sıcaklıklarında yoğundur, bu argümanlarda sinyalin 110 °C TL tuzağından kaynaklandığını gösteren çeşitli argümanlar bulunmuştur.
KAYNAKLAR

- Afouxenidis, D., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2012. Computerised curve deconvolution of TL/OSL curves using a popular spreadsheet program. Radiation Protection Dosimetry, 149(4); 363-370.
- Aitken, M. J. 1979. Pre-dose Dating: Predictions from the Model in Séminaire de recherches consacrées à la datation par thermoluminescence. Pact. Revue du Groupe Européen d'Etudes pour les Techniques Physiques, Chimiques et Mathématiques Appliquées à l'Archéologie Rixensart, (3); 319-324.
- Aitken, M. J., Smith, B. W. 1988. Optical dating: recuperation after bleaching. Quaternary Science Reviews, 7(3-4); 387-393.
- Angeli, V., Polymeris, G. S., Sfampa, I. K., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2017. Component resolved bleaching study in natural calcium fluoride using CW-OSL, LM-OSL and residual TL glow curves after bleaching. Applied Radiation and Isotopes, 122; 89-95.
- Ankjærgaard, C., Jain, M. 2010. Optically stimulated phosphorescence in quartz over the millisecond to second time scale: insights into the role of shallow traps in delaying luminescent recombination. Journal of Physics D: Applied Physics, 43(25); 255502.
- Anonymous. 2013. Guide to "The Risø TL/OSL Reader". DTU, 72, Denmark.
- Apaydın, F. 1991. Magnetik Rezonans. Hacettepe Üniversitesi Yayınları, 578, Ankara.
- Azorín-Nieto, J. 1990. Luminescence dosimetry: theory and applications. Ediciones Tecnico Cientificas, 108, Mexico.
- Bailey, R. M., Smith, B. W., Rhodes, E. J. 1997. Partial bleaching and the decay form characteristics of quartz OSL. Radiation measurements, 27(2); 123-136.
- Bailiff, I. K., Haskell, E. H. 1983. The use of the pre-dose technique for environmental dosimetry. Radiation Protection Dosimetry, 6(1-4); 245-248.
- Bailiff, I. K. 1994. The pre-dose technique. Radiation Measurements, 23(2-3); 471-479.
- Bailiff, I. K. 2000. Characteristics of time-resolved luminescence in quartz. Radiation measurements, 32(5-6); 401-405.
- Balian, H. G., 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(2); 389-395.
- Banerjee, D. 2001. Supralinearity and sensitivity changes in optically stimulated luminescence of annealed quartz. Radiation Measurements, 33(1); 47-57.

Becker, K. 1973. Solid state dosimetry. CRC Press, 141, Ohio.

- Benny, P. G., Bhatt, B. C. 1997. Sensitization of 220 °C TL peak in quartz separated from sand. Radiation measurements, 27(1); 67-69.
- Bos, A. J. J. 2006. Theory of thermoluminescence. Radiation measurements, 41, 45-56.
- Bossoli, R. B., Jani, M. G., Halliburton, L. E. 1982. Radiation-induced E" centers in crystalline SiO₂. Solid State Communications, 44(2); 213-217.
- Botis, S., Nokhrin, S. M., Pan, Y., Xu, Y., Bonli, T., Sopuck, V. 2005. Natural radiationinduced damage in quartz. I. correlations between cathodoluminence colors and paramagnetic defects. The Canadian Mineralogist, 43(5); 1565-1580.
- Bøtter-Jensen, L., Larsen, N. A., Mejdahl, V., Poolton, N. R. J., Morris, M. F., McKeever, S. W. S. 1995. Luminescence sensitivity changes in quartz as a result of annealing. Radiation Measurements, 24(4); 535-541.
- Bøtter-Jensen, L., Duller, G. A. T., Murray, A. S., Banerjee, D. 1999. Blue light emitting diodes for optical stimulation of quartz in retrospective dosimetry and dating. Radiation Protection Dosimetry, 84(1-4); 335-340.
- Bøtter-Jensen, L., Bulur, E., Duller, G. A. T., Murray, A. S. 2000. Advances in luminescence instrument systems. Radiation Measurements, 32(5-6); 523-528.
- Bøtter-Jensen, L., McKeever, S.W.S., Wintle, A.G. 2003. Optically stimulated luminescence dosimetry. Elsevier Science, 374, Amsterdam.
- Bulur, E. 1996. An alternative technique for optically stimulated luminescence (OSL) experiment. Radiation Measurements, 26(5); 701-709.
- Bulur, E. 1998. Investigation of paramagnetic properties of tooth enamels by electron spin resonance (ESR) technique. Ph.D. thesis, Middle East Technical University, Ankara.
- Bulur, E., Bøtter-Jensen, L., Murray, A. S. 2000. Optically stimulated luminescence from quartz measured using the linear modulation technique. Radiation Measurements, 32(5-6); 407-411.
- Bulur, E. 2014. More on the TR-OSL signal from BeO ceramics. Radiation measurements, 66; 12-20.
- Burch, W. M. 1967. Thermoluminescence, low radiation dosage and black-body radiation. Physics in Medicine and Biology, 12(4); 523-530.
- Charitidis, C., Kitis, G., Charalambous, S. 1996. Supralinearity of the Synthetic Quartz at different irradiation temperatures. Radiation Protection Dosimetry, 65(1-4); 347-350.

- Charitidis, C., Kitis, G., Furetta, C., Charalambous, S. 1999. Superlinearity of synthetic quartz: dependence on pre-dose. Radiation protection dosimetry, 84(1-4); 95-98.
- Charitidis, C., Kitis, G., Furetta, C., Charalambous, S. 2000. Superlinearity of synthetic quartz: dependence on the firing temperature. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 168(3); 404-410.
- Chen, R. 1979. Saturation of sensitization of the 110 °C TL peak in quartz and its potential application in the pre-dose technique. European PACT J.; 3325-3335.
- Chen, R., Yang, X. H., McKeever, S. W. S. 1988. The strongly superlinear dose dependence of thermoluminescence in synthetic quartz. Journal of Physics D: Applied Physics, 21(9); 1452-1457.
- Chen, R., Abu-Rayya, M., Kristianpoller, N. 1991. Sensitization of thermoluminescence in synthetic quartz – heat treatment and radiation effects. Journal of Luminescence (48, 49); 833-837.
- Chen, R., McKeever, S. W. S. 1994. Characterization of nonlinearities in the dose dependence of thermoluminescence. Radiation measurements, 23(4); 667-673.
- Chen, R., McKeever, S.W.S. 1997. Theory of thermo-luminescence and related phenomena. World Scientific, Singapore.
- Chen, G., Li, S. H. 2000a. Studies of quartz 110 °C thermoluminescence peak sensitivity change and its relevance to optically stimulated luminescence dating. Journal of Physics D: Applied Physics, 33(4); 437-443.
- Chen, G., Li, S. H., Murray, A. S. 2000b. Study of the 110 °C TL peak sensitivity in optical dating of quartz. Radiation Measurements, 32(5-6); 641-645.
- Chen, R., Leung, P. L. 2001. Nonlinear dose dependence and dose-rate dependence of optically stimulated luminescence and thermoluminescence. Radiation measurements, 33(5); 475-481.
- Chen, R., Pagonis, V. 2003. Modelling thermal activation characteristics of the sensitization of thermoluminescence in quartz. Journal of Physics D: Applied Physics, 37(2); 159-164.
- Chen, R., Pagonis, V. 2008. A unified presentation of thermoluminescence (TL), phosphorescence and linear-modulated optically stimulated luminescence (LM-OSL). Journal of Physics D: Applied Physics, 41(3); 035102.
- Chithambo, M. L., Galloway, R. B. 2001. On the slow component of luminescence stimulated from quartz by pulsed blue light-emitting diodes. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 183(3-4); 358-368.

- Chithambo, L. M. 2002. Time-resolved luminescence from annealed quartz. Radiation protection dosimetry, 100(1-4); 273-276.
- Chithambo, M. L., Folley, D. E., Chikwembani, S. 2019. Phototransferred thermoluminescence from natural quartz annealed at 1000 °C: Analysis of timedependent evolution of intensity and competition effects. Journal of Luminescence, 216; 116730.
- Choi, J. H., Duller, G. A. T., Wintle, A. G. 2006. Analysis of quartz LM-OSL curves. Ancient TL, 24(1); 9-20.
- Curie, D. 1963. Luminescence in crystals. John Wiley Press, 332, Methuen, London.
- Dallas, G. I., Polymeris, G. S., Stefanaki, E. C., Afouxenidis, D., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2008. Sample dependent correlation between TL and LM-OSL in Al₂O₃:C. Radiation measurements, 43(2-6); 335-340.
- Dallas, G. I., Polymeris, G. S., Afouxenidis, D., Tsirliganis, N. C., Tsagas, N. F., Kitis, G. 2010. Correlation between TL and OSL signals in KMgF₃:Ce³⁺: Bleaching study of individual glow-peaks. Radiation Measurements, 45(3-6); 537-539.
- Deer, W.A., Howie, R.A., Wise, W.S., Zussman, J., 2004. Rock-Forming Minerals, Framework Silicates: Silica Minerals, Feldspathoids and the Zeolites. 2nd edition. The Geological Society, London.
- Duin E.C, 2019. Web sitesi. <u>http://webhome.auburn.edu/~duinedu/epr/1_theory.pdf</u>. Erişim tarihi: 05.10.2019.
- Mott, F., Gurney, R. W. 1948. Electronic processes in ionic crystals. Oxford Clarendon Press, 275, Lincoln, United Kingdom.
- Feigl, F. J., Fowler, W. B., Yip, K. L. 1974. Oxygen vacancy model for the E₁' center in SiO₂. Solid State Communications, 14(3); 225-229.
- Fleming, S.J. 1969. The Acquisition of Radioluminescence by Ancient Ceramics. Unpublished Ph.D. Thesis, Oxford University.
- Fleming, S.J. 1973. The pre-dose technique: a new thermo-luminescent dating method. Archaeometry, 15(1); 13-30.
- Fowler, W. B. 1997. Theory of defects and defect processes in silicon dioxide. Journal of Non-Crystalline Solids, 222; 33-41.
- Franklin, A. D., Prescott, J. R., Scholefield, R. B. 1995. The mechanism of thermoluminescence in an Australian sedimentary quartz. Journal of Luminescence, 63(5-6); 317-326.
- Furetta, C. 2003. Handbook of Thermoluminescence. World Scientific, Singapore.

- Garlick, G. F. J., Gibson, A. F. 1948. The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors. Proceedings of the physical society, 60(6); 574-590.
- Garlick, G. F. J. 1949. Luminescent materials. Clarendon Press, 254, Gloucestershire.
- Gobrecht, H., Hofmann, D. 1966. Spectroscopy of traps by fractional glow technique. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 27(3); 509-522.
- Göksu, H. Y., Weiser, A., Regulla, D. F. 1989. 110 °C TL peak records the ancient heat treatment of flint. Ancient TL, 7(1); 15-17.
- Göksu, H. Y., Wieser, A., Stoneham, D., Bailiff, I. K., Figel, M. 1996. EPR, OSL, TL and spectral studies of porcelain. Applied radiation and isotopes, 47(11-12); 1369-1374.
- Göksu, H. Y., Stoneham, D., Bailiff, I. K., Adamiec, G. 1998. A new technique in retrospective TL dosimetry: pre-dose effect in the 230 °C TL glow peak of porcelain. Applied Radiation and Isotopes, 49(1-2); 99-104.
- Palmer, G.1985. The electron paramagnetic resonance of metalloproteins. Biochem. Soc. Trans. 1, 13 (3); 548–560.
- Guzzo, P. L., Khoury, H. J., Miranda, M. R., Barreto, S. B., Shinohara, A. H. 2009. Point defects and pre-dose requirements for sensitization of the 300 °C TL peak in natural quartz. Physics and Chemistry of Minerals, 36(2); 75-85.
- Whitely, V. H., McKeever, S. W. S. 2002. Linear modulation optically stimulated luminescence and thermoluminescence techniques in Al₂O₃:C. Radiation protection dosimetry, 100(1-4); 61-66.
- Halperin, A., Chen, R. 1966. Thermoluminescence of semiconducting diamonds. Physical Review, 148(2); 839-845.
- Halperin, A., Jani, M. G., Halliburton, L. E. 1986. Correlated ESR and thermoluminescence study of the [SiO₄/Li]⁰ center in quartz. Physical Review B, 34(8); 5702-5707.
- Halperin, A. 1990. Single irradiation excitation of the thermoluminescence (TSL) related to the $[SiO_4/Li]^0$ center in quartz. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 51(4); 303-306.
- Halperin, A., Sucov, E. W. 1993. Temperature dependence of the X-ray induced luminescence of Al-Na-containing quartz crystals. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 54(1); 43-50.
- Han, Z. Y., Li, S. H., Tso, M. Y. W. 2000. Effects of annealing on TL sensitivity of granitic quartz. Radiation measurements, 32(3); 227-231.

- Hantehzadeh, M. R., Han, C. S., Halliburton, L. E. 1990. Radiation-induced mobility of interstitial alkali ions in iron-doped quartz. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 51(5); 425-429.
- Henderson, G. S., Baker, D. R. 2002. (Eds) Synchrotron Radiation: Earth, Environmental and Materials Sciences Applications. Mineralogical Magazine, 66(6), 1104-1106.
- Hübner, S., Göksu, H. Y. 1997. Retrospective dosimetry using the OSL pre-dose effect in porcelain. Applied radiation and isotopes, 48(9); 1231-1235.
- Huntley, D. J., Godfrey-Smith, D. I., Thewalt, M. L. 1985. Optical dating of sediments. Nature, 313(5998); 105-107.
- Huntley, D. J., Godfrey-Smith, D. I., Haskell, E. H. 1991. Light-induced emission spectra from some quartz and feldspars. International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 18(1-2); 127-131.
- Itoh, N., Stoneham, D., Stoneham, A. M. 2002. Ionic and electronic processes in quartz: mechanisms of thermoluminescence and optically stimulated luminescence. Journal of Applied Physics, 92(9); 5036-5044.
- Jain, M., Murray, A. S., Bøtter-Jensen, L. 2003. Characterisation of blue-light stimulated luminescence components in different quartz samples: implications for dose measurement. Radiation Measurements, 37(4-5); 441-449.
- Jain, M., Choi, J. H., Thomas, P. J. 2008. The ultrafast OSL component in quartz: Origins and implications. Radiation Measurements, 43(2-6); 709-714.
- Jani, M.G., Halliburton, L.E., Halperin, A., 1986. Observation of a simple lithium associated electron trap in crystalline SiO₂. Physical Review Letters, 56; 1392–1395.
- Kats, A., 1962. Hydrogen in alpha-quartz. Philips Research Reports, 17; 133–279.
- Kaya-Keleş, Ş., Meriç, N., Polymeris, G. S. 2016. Dose response on the 110 °C thermoluminescence peak of un-heated, synthetic Merck quartz. Physica B: Condensed Matter, 493; 17-24.
- Kaya-Keleş, Ş., Polymeris, G. S., Meriç, N. 2019. A component resolved study on the stable signal of Merck α-quartz: Tentative correlation among TL peaks, OSL components and EPR signals. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 458; 44-56.
- Kaya-Keleş, Ş., Polymeris, G. S., Perçinler, B., Meriç, N. 2020. Dealing with nonconventional LM-OSL curve shapes in quartz following bleaching; a deconvolution approach. Journal of Luminescence, 117026.
- Kitis, G., Spiropulu, M., Charalambous, S., Weber, E. R. 1995. Supralinearity of the 100 °C thermoluminescence glow-peak of synthetic quartz obtained with isothermal

measurements. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 101(3); 255-257.

- Kitis, G., Gomez-Ros, J. M., 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(19); 2636-2641.
- Kitis, G., Pagonis, V., Chen, R., Polymeris, G. 2006. A comprehensive comparative study of the predose effect for three quartz crystals of different origin. Radiation protection dosimetry, 119(1-4); 438-441.
- Kitis, G., Polymeris, G. S., Kiyak, N. G. 2007. Component-resolved thermal stability and recuperation study of the LM-OSL curves of four sedimentary quartz samples. Radiation Measurements, 42(8); 1273-1279.
- Kitis, G., Pagonis, V. 2008. Computerized curve deconvolution analysis for LM-OSL. Radiation Measurements, 43(2-6); 737-741.
- Kitis, G., Kiyak, N., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C. 2010. The correlation of fast OSL component with the TL peak at 325 °C in quartz of various origins. Journal of Luminescence, 130(2); 298-303.
- Kitis, G., Polymeris, G., Kiyak, N., Pagonis, V. 2011. Preliminary results towards the equivalence of transformed continuous-wave Optically Stimulated Luminescence (CW-OSL) and linearly-modulated (LM-OSL) signals in quartz. Geochronometria, 38(3); 209-216.
- Kitis, G., Kiyak, N. G., Polymeris, G. S. 2015. Temperature lags of luminescence measurements in a commercial luminescence reader. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 359; 60-63.
- Kiyak, N. G., Polymeris, G. S., Kitis, G. 2007. Component resolved OSL dose response and sensitization of various sedimentary quartz samples. Radiation Measurements, 42(2); 144-155.
- Kiyak, N. G., Polymeris, G. S., Kitis, G. 2008. LM-OSL thermal activation curves of quartz: relevance to the thermal activation of the 110 °C TL glow-peak. Radiation Measurements, 43(2-6); 263-268.
- Koul, D. K., Chougaonkar, M. P. 2007. The pre-dose phenomenon in the OSL signal of quartz. Radiation Measurements, 42(8); 1265-1272.
- Koul, D. K. 2008. 110 °C thermoluminescence glow peak of quartz A brief review. Pramana, 71(6); 1209-1229.
- Koul, D. K., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2010. Possibility of pure thermal sensitization in the pre-dose mechanism of the 110 °C TL peak of quartz. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 268(5); 493-498.

- Koul, D. K. 2012. Response of pre-dosed TL and OSL emissions of quartz to various stimuli. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 281; 82-88.
- Krbetschek, M. R., Götze, J., Dietrich, A., Trautmann, T. 1997. Spectral information from minerals relevant for luminescence dating. Radiation Measurements, 27(5-6); 695-748.
- Kreutzer, S., Friedrich, J., Sanderson, D., Adamiec, G., Chruścińska, A., Fasoli, M., Martini, M., Polymeris, G. S., Burbidge, C., Schmidt, C. 2017. Les sables de Fontainebleau: A Natural Quartz Reference Sample and its Characterisation. Ancient TL, 35(2); 21-31.
- Kuhns, C. K., Larsen, N. A., McKeever, S. W. S. 2000. Characteristics of LM-OSL from several different types of quartz. Radiation Measurements, 32(5-6); 413-418.
- Larsen, N. A. 1999. Dosimetry based on thermally and optically stimulated luminescence. PhD thesis, University of Copenhagen, Denmark.
- Larsen, N. A., Bulur, E., Bøtter-Jensen, L., McKeever, S. W. S. 2000. Use of the LM-OSL technique for the detection of partial bleaching in quartz. Radiation Measurements, 32(5-6); 419-425.
- Larsen, R. B., Henderson, I., Ihlen, P. M., Jacamon, F. 2004. Distribution and petrogenetic behaviour of trace elements in granitic pegmatite quartz from South Norway. Contributions to Mineralogy and Petrology, 147(5); 615-628.
- Li, S. H., Chen, G. 2001. Studies of thermal stability of trapped charges associated with OSL from quartz. Journal of Physics D: Applied Physics, 34(4); 493-498.
- Li, S. H. 2002. Luminescence sensitivity changes of quartz by bleaching, annealing and UV exposure. Radiation Effects and Defects in Solids, 157(3); 357-364.
- Li, B., Li, S. H. 2006. Studies of thermal stability of charges associated with thermal transfer of OSL from quartz. Journal of Physics D: Applied Physics, 39(14); 2941-2949.
- Lin, M., Pei, Z., Lei, S. 2017. Mineralogy and processing of hydrothermal vein quartz from Hengche, Hubei Province (China). Minerals, 7(9); 161-177.
- Lomax, J., Mittelstraß, D., Kreutzer, S., Fuchs, M. 2015. OSL, TL and IRSL emission spectra of sedimentary quartz and feldspar samples. Radiation Measurements, 81; 251-256.
- Chithambo, M.L. 2002. Time-resolved luminescence from annealed quartz. Radiation Protection Dosimetry, 100(1-4); 273-276.
- Mackey Jr, J. H. 1963. EPR Study of Impurity-Related Color Centers in Germanium-Doped Quartz. The Journal of Chemical Physics, 39(1); 74-83.

- Malik, D. M., Kohnke, E. E., Sibley, W. A. (1981). Low-temperature thermally stimulated luminescence of high quality quartz. Journal of Applied Physics, 52(5); 3600-3605.
- Marfunin, A. S. 1979. Physics of minerals and inorganic materials: an introduction. Springer, 342, Switzerland.
- Martini, M., Paleari, A., Spinolo, G., Vedda, A. 1995. Role of [AlO₄]⁰ centers in the 380nm thermoluminescence of quartz. Physical Review B, 52(1); 138-142.
- Martini, M., Fasoli, M., Galli, A. 2009. Quartz OSL emission spectra and the role of [AlO₄]⁰ recombination centres. Radiation measurements, 44(5-6); 458-461.
- Martini, M., Fasoli, M., Villa, I. 2014. Defect studies in quartz: Composite nature of the blue and UV emissions. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 327; 15-21.
- Maschmeyer, D., Lehmann, G. 1983. A trapped-hole center causing rose coloration of natural quartz. Zeitschrift für Kristallographie-Crystalline Materials, 163(1-4); 181-196.
- May, C.E., Patridge, J.A. 1964. Thermoluminescent kinetics of alpha-irradiated alkali halides. The Journal of Chemical Physics, 40; 1401-1409.
- McKeever, S. W. S. 1984. Thermoluminescence in quartz and silica. Radiation Protection Dosimetry, 8(1-2); 81-98.
- Mckeever, S. W. S. 1985. Thermoluminescence of Solids. Cambridge University Press, 382, London New York.
- McKeever, S. W., Chen, C. Y., Halliburton, L. E. 1985. Point defects and the pre-dose effect in natural quartz. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 10(4-6); 489-495.
- McKeever, S. W. S., Chen, R. 1997. Luminescence models. Radiation Measurements, 27(5-6); 625-661.
- McKeever, S. W. S. 2001. Optically stimulated luminescence dosimetry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 184(1-2); 29-54.
- Mebhah, D., Imatoukene, D., Abdelazziz, F. Z., Lounis-Mokrani, Z. 2006. Evaluation of trap parameters associated with thermoluminescence peaks in fired quartz. Radiation measurements, 41(7-8); 813-818.
- Meriç, N., Aşlar, E., Şahiner, E., Kadioğlu, Y. K., Polymeris, G. S. 2018. Step annealing and fading studies on EPR signals of Durango apatite for various grain size fractions at the edge of the nano-scale; comparison with the corresponding luminescence results. Radiation Measurements, 120; 241-246.

- Mische, E. F., McKeever, S. W. S. 1989. Mechanisms of supralinearity in lithium fluoride thermoluminescence dosemeters. Radiation protection dosimetry, 29(3); 159-175.
- Murray, A. S., Roberts, R.G. 1998. Measurement of equivalent dose in quartz using a regenerative-dose single-aliquot protocol. Radiation Measurements, 29; 503-515.
- Nikiforov, S. V., Pagonis, V., Merezhnikov, A. S. 2017. Sublinear dose dependence of thermoluminescence as a result of competition between electron and hole trapping centers. Radiation Measurements, 105; 54-61.
- Nilges, T., Kersting, M., Pfeifer, T. 2008. A fast low-pressure transport route to large black phosphorus single crystals. Journal of solid state chemistry, 181(8); 1707-1711.
- Nuttall, R.H.D., Weil, J.A. 1980. Two hydrogenic trapped hole species in alpha-quartz. Solid State Communications 33; 99–102.
- Oniya, E. O., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2012a. Behavior of various Nigerian quartz samples to repeated irradiation and heating. Geochronometria, 39(3); 212-220.
- Oniya, E. O., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2012b. On the pre-dose sensitization of the various components of the LM-OSL signal of annealed quartz; comparison with the case of 110 °C TL peak. Radiation measurements, 47(9); 864-869.
- Oniya, E. O., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2012c. Radiation dose response correlation between thermoluminescence and optically stimulated luminescence in quartz. Journal of luminescence, 132(7); 1720-1728.
- Oniya, E. O., Polymeris, G. S., Jibiri, N. N., Tsirliganis, N. C., Babalola, I. A., Kitis, G. 2013. Influence of entire glow-curve structure of quartz on MATAC of its 110 °C TL glow peak. Physica status solidi (a), 210(11); 2463-2470.
- Pagonis, V., Tatsis, E., Kitis, G., Drupieski, C. 2002. Search for common characteristics in the glow curves of quartz of various origins. Radiation protection dosimetry, 100(1-4); 373-376.
- Pagonis, V., Kitis, G., Chen, R. 2003. Applicability of the Zimmerman predose model in the thermoluminescence of predosed and annealed synthetic quartz samples. Radiation Measurements, 37(3); 267-274.
- Pagonis, V., Kitis, G., Furetta, C. 2006. Numerical and practical exercises in thermoluminescence. Springer Science & Business Media, 208, USA.
- Pagonis, V., Ankjærgaard, C., Murray, A. S., Jain, M., Chen, R., Lawless, J., Greilich, S. 2010. Modelling the thermal quenching mechanism in quartz based on timeresolved optically stimulated luminescence. Journal of luminescence, 130(5); 902-909.

- Petrov, S. A., Bailiff, I. K. 1995. The '110 °C' TL peak in synthetic quartz. Radiation measurements, 24(4); 519-523.
- Petrov, S. A., Bailiff, I. K. 1997. Determination of trap depths associated with TL peaks in synthetic quartz (350–550 K). Radiation Measurements, 27(2); 185-191.
- Polymeris, G., Kitis, G., Pagonis, V. 2006a. The effects of annealing and irradiation on the sensitivity and superlinearity properties of the 110 °C thermoluminescence peak of quartz. Radiation Measurements, 41(5); 554-564.
- Polymeris, G. S., Kitis, G., Tsirliganis, N. C. 2006b. Correlation between TL and OSL properties of CaF₂:N. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 251(1); 133-142.
- Polymeris, G. S., Sakalis, A., Papadopoulou, D., Dallas, G., Kitis, G., Tsirliganis, N. C. 2007. Firing temperature of pottery using TL and OSL techniques. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 580(1); 747-750.
- Polymeris, G. S., Afouxenidis, D., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2009. The TL and room temperature OSL properties of the glow peak at 110 °C in natural milky quartz: A case study. Radiation Measurements, 44(1); 23-31.
- Polymeris, G. S., Afouxenidis, D., Raptis, S., Liritzis, I., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2011. Relative response of TL and component-resolved OSL to alpha and beta radiations in annealed sedimentary quartz. Radiation measurements, 46(10); 1055-1064.
- Polymeris, G. S., Oniya, E. O., Jibiri, N. N., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2012. Inhomogeneity in the pre-dose sensitization of the 110 °C TL peak in various quartz samples: The influence of annealing. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 274; 105-110.
- Polymeris, G. S., Kiyak, N. G., Koul, D. K., Kitis, G. 2014. The Firing Temperature of Pottery from Ancient Mesopotamia, Turkey, Using Luminescence Methods: A Case Study for Different Grain-Size Fractions. Archaeometry, 56(5); 805-817.
- Polymeris, G. S. 2015. OSL at elevated temperatures: Towards the simultaneous thermal and optical stimulation. Radiation Physics and Chemistry, 106; 184-192.
- Polymeris, G. S. 2016. Thermally assisted OSL (TA-OSL) from various luminescence phosphors; an overview. Radiation Measurements, 90; 145-152.
- Polymeris, G. S., Şahiner, E., Aşlar, E., Kitis, G., Meriç, N. 2018. Deconvolution of isothermal TA–OSL decay curves from sedimentary quartz using combinations of various contemporary models. Radiation Measurements, 119; 93-101.
- Poolton, N. R. J., Smith, G. M., Riedi, P. C., Bulur, E., Bøtter-Jensen, L., Murray, A. S., Adrian, M. 2000. Luminescence sensitivity changes in natural quartz induced by high temperature annealing: a high frequency EPR and OSL study. Journal of Physics D: Applied Physics, 33(8); 1007-1017.

- Preusser, F., Chithambo, M. L., Götte, T., Martini, M., Ramseyer, K., Sendezera, E. J., Susino, G., Wintle, A. G. 2009. Quartz as a natural luminescence dosimeter. Earth-Science Reviews, 97(1-4); 184-214.
- Randall, J. T., Wilkins, M. H. F. 1945. The phosphorescence of various solids. Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences, 184(999); 347-364.
- Rendell, H. M., Townsend, P. D., Wood, R. A., Luff, B. J. 1994. Thermal treatments and emission spectra of TL from quartz. Radiation Measurements, 23(2-3); 441-449.
- Rudra, J. K., Fowler, W. B. 1987. Oxygen vacancy and the E₁'center in crystalline SiO₂. Physical Review B, 35(15); 8223-8230.
- Salh, R. 2011. Defect related luminescence in silicon dioxide network: a review. InTech, pp. 135-172, Rijeka.
- Sanderson, D. C. W., Clark, R. J. 1994. Pulsed photostimulated luminescence of alkali feldspars. Radiation Measurements, 23(2-3); 633-639.
- Sanjurjo-Sánchez, J., Fenollós, J. L. M., Polymeris, G. S. 2018. Technological aspects of Mesopotamian Uruk pottery: estimating firing temperatures using mineralogical methods, thermal analysis and luminescence techniques. Archaeological and Anthropological Sciences, 10(4); 849-864.
- Schilles, T., Poolton, N. R. J., Bulur, E., Bøtter-Jensen, L., Murray, A. S., Smith, G. M., Reidi, P. C., Wagner, G. A. 2001. A multi-spectroscopic study of luminescence sensitivity changes in natural quartz induced by high-temperature annealing. Journal of Physics D: Applied Physics, 34(5); 722-731.
- Schmetzer, K. 1989. Types of water in natural and synthetic emerald. Neues Jahrbuch für Mineralogie Monatshefte, (1); 15-26.
- Schmidt, C., Friedrich, J., Adamiec, G., Chruścińska, A., Fasoli, M., Kreutzer, S., Martini, M., Panzeri, L., Polymeris, G. S., Przegietka, K., Valla, P. G., King, G. E., Sanderson, D. C. W. (2017) Fontainebleau Quartz - 110 °C Thermoluminescence Peak and Isothermal Decay Measurements. Interdisciplinary Earth Data Alliance (IEDA). doi:10.1594/IEDA/100711
- Schmidt, C., Friedrich, J., Adamiec, G., Chruścińska, A., Fasoli, M., Kreutzer, S., Martini, M., Panzeri, L., Polymeris, G. S., Przegietka, K., Valla, P., King, G., Sanderson, D.C.W. (2018) How reproducible are kinetic parameter constraints of quartz luminescence? An interlaboratory comparison for the 110 °C TL peak. Radiation measurements, 110; 14-24.
- Scholefield, R. B., Prescott, J. R., Franklin, A. D., Fox, P. J. 1994. Observations on some thermoluminescence emission centres in geological quartz. Radiation Measurements, 23(2-3); 409-412.

- Schrön, W., Schmädicke, E., Thomas, R., Schmidt, W. 1988. Geochemische Untersuchungen an Pegmatitquarzen. Zeitschrift für geologische Wissenschaften, 16(3); 229-244.
- Seitz, F. 1940. The modern theory of solids (Vol. 548). New York: McGraw-Hill, 698, New York.
- Singarayer, J. S. 2003. Linearly modulated optically stimulated luminescence of sedimentary quartz: physical mechanisms and implications for dating. PhD Thesis. University of Oxford, Oxford.
- Singarayer, J. S., Bailey, R. M. 2003. Further investigations of the quartz optically stimulated luminescence components using linear modulation. Radiation Measurements, 37(4-5); 451-458.
- Singarayer, J. S., Bailey, R. M. 2004. Component-resolved bleaching spectra of quartz optically stimulated luminescence: preliminary results and implications for dating. Radiation Measurements, 38(1); 111-118.
- Skuja, L. 2000. Optical properties of defects in silica. In Defects in SiO₂ and related dielectrics: Science and Technology, Springer, pp. 73-116, Dordrecht.
- Spooner, N. A. 1994. On the optical dating signal from quartz. Radiation Measurements, 23(2-3); 593-600.
- Stokes, S. 1994. The timing of OSL sensitivity changes in a natural quartz. Radiation Measurements, 23(2-3); 601-605.
- Stoneham, D., Stokes, S. 1991. An investigation of the relationship between the 110 °C TL peak and optically stimulated luminescence in sedimentary quartz. International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 18(1-2); 119-123.
- Subedi, B., Oniya, E., Polymeris, G. S., Afouxenidis, D., Tsirliganis, N. C., Kitis, G. 2011. Thermal quenching of thermoluminescence in quartz samples of various origin. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 269(6); 572-581.
- Subedi, B., Polymeris, G. S., Tsirliganis, N. C., Pagonis, V., Kitis, G. 2012. Reconstruction of thermally quenched glow curves in quartz. Radiation measurements, 47(4); 250-257.
- Thomsen, K. J. 2004. Optically stimulated luminescence techniques in retrospective dosimetry using single grains of quartz extracted from unheated materials. PhD Thesis. Risø-DTU, 176, Denmark.
- Timar-Gabor, A. 2018. Electron spin resonance characterisation of sedimentary quartz of different grain sizes. Radiation Measurements, 120; 59-65.

- Toktamiş, H., Yazici, A. N., Topaksu, M. 2007. Investigation of the stability of the radiation sensitivity of TL peaks of quartz extracted from tiles. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 262(1); 69-74.
- Topaksu, M., Yüksel, M., Dogan, T., Nur, N., Akkaya, R., Yegingil, Z., Topak, Y. 2013. Investigation of the characteristics of thermoluminescence glow curves of natural hydrothermal quartz from Hakkari area in Turkey. Physica B: Condensed Matter, 424; 27-31.
- Toyoda, S., Ikeya, M. 1994. Formation of oxygen vacancies in quartz and its application to dating. Quaternary Science Reviews, 13(5-7); 607-609.
- Vaccaro, G., Panzeri, L., Paleari, S., Martini, M., Fasoli, M. 2017. EPR investigation of the role of germanium centers in the production of the 110 °C thermoluminescence peak in quartz. Quaternary Geochronology, 39; 99-104.
- Vaccaro, G., Panzeri, L., Monti, A. M., Martini, M., Fasoli, M. 2019. Optical bleaching of the 375 °C TL peak, [GeO₄/Li⁺]⁰ EPR center and OSL signal in irradiated natural quartz. Journal of Luminescence, 205; 61-65.
- Veronese, I., Giussani, A., Göksu, H. Y., Martini, M. 2004. The trap parameters of electrons in intermediate energy levels in quartz. Radiation measurements, 38(4-6); 743-746.
- Weber, R.T., Jiang, J., Barr, D. P. 1998. EMX user's manual, Manual Version 2.0, Part Number 6130858, EPR Division, Bruker Instruments, Inc., Billerica, MA USA
- Weil, J. A. 1984. A review of electron spin spectroscopy and its application to the study of paramagnetic defects in crystalline quartz. Physics and Chemistry of Minerals, 10(4); 149-165.
- Weil, J. A., Bolton, J. R. 2007. Electron paramagnetic resonance: elementary theory and practical applications. John Wiley & Sons, 664, Canada.
- Wiedemann, F., Schmidt, G. C. 1895. Gefärbte Alkalihalogenide. Annalen der Physik, 54; 604-625.
- Wilson, M., Madden, P. A., Hemmati, M., Angell, C. A. 1996. Polarization effects, network dynamics, and the infrared spectrum of amorphous SiO₂. Physical review letters, 77(19); 4023-4026.
- Wintle, A. G., Murray, A. S. 1997. The relationship between quartz thermoluminescence, photo-transferred thermoluminescence, and optically stimulated luminescence. Radiation Measurements, 27(4); 611-624.
- Wintle, A. G., Murray, A. S. 1998. Towards the development of a preheat procedure for OSL dating of quartz. Radiation Measurements, 29(1); 81-94.

- Wintle, A. G., Murray, A. S. 2006. A review of quartz optically stimulated luminescence characteristics and their relevance in single-aliquot regeneration dating protocols. Radiation measurements, 41(4); 369-391.
- Wintle, A. G., Adamiec, G. 2017. Optically stimulated luminescence signals from quartz: A review. Radiation Measurements, 98; 10-33.
- Yang, X. H., McKeever, S. W. S. 1988. Characterization of the pre-dose effect using ESR and TL. International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part D. Nuclear Tracks and Radiation Measurements, 14(1-2); 75-79.
- Yang, X. H., McKeever, S. W. S. 1990. The pre-dose effect in crystalline quartz. Journal of Physics D: Applied Physics, 23(2); 237-244.
- Yazici, A. N., Topaksu, M. 2003. The analysis of thermoluminescence glow peaks of unannealed synthetic quartz. Journal of Physics D: Applied Physics, 36(6); 620-627.
- Zimmerman, J. 1971. The radiation-induced increase of the 100 °C thermoluminescence sensitivity of fired quartz. Journal of Physics C: Solid State Physics, 4(18); 3265-3276.

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı : Şule KAYA KELEŞ

Doğum Yeri: Elazığ

Doğum Tarihi: 05.01.1984

Medeni Hali: Evli

Yabancı Dili: İngilizce

Eğitim Durumu (Kurum ve Yıl)

Lise : Polatlı Anadolu Lisesi (2002)

- Lisans : Ankara Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Fizik Mühendisliği Bölümü (2006)
- Yüksek Lisans : Ankara Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Sağlık Fiziği Programı (2009)

Çalıştığı Kurum/Kurumlar ve Yıl

Ankara Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Medikal Fizik A.B.D., Öğretim Görevlisi (2010 – devam ediyor)

Yayınları (SCI ve diğer)

Projeler

15.03.2018-2019 TÜBİTAK 1002 Hızlı Destek Projesi, "Kuvarsta ısıtma, ışınlama ve ağartma işlemlerinin lüminesans sinyallerine etkisi ve EPR sinyalleri ile olası ilişkinin incelenmesi" (Yürütücü)

2010-2011 TÜBİTAK 1002 Hızlı Destek Projesi, "Türkiye Kaynaklı Doğal Kuvarsların Lüminesans Özelliklerinin, Beta Kaynaklarının Kalibrasyonu Amacı İle İncelenmesi" (Bursiyer)

03-12-2008 DPT Projesi (2005K120130), "Radyasyon Uygulamaları ve Teknolojileri Geliştirme Projesi" (Proje Asistanı)

Yayımlanan makaleler:

Kaya-Keleş, Ş., Polymeris, G. S., Perçinler, B., & Meriç, N. (2020). Dealing with nonconventional LM-OSL curve shapes in quartz following bleaching; a deconvolution approach. Journal of Luminescence, 117026.

Kaya-Keleş, Ş., Polymeris, G. S., & Meriç, N. (2019). A component resolved study on the stable signal of Merck α -quartz: Tentative correlation among TL peaks, OSL components and EPR signals. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 458, 44-56.

Kaya Keleş, Ş., Meriç, N., & Polymeris, G. S. (2016). Dose response on the 110° C thermoluminescence peak of un-heated, synthetic Merck quartz. Physica B: Condensed Matter, 493, 17-24.

Tanir, A. G., Gulec, O., Sahiner, E., Bolukdemir, M. H., Koc, K., Meric, N., & Keles, S. K. (2016). Direct determination of radiation dose in human blood. NeuroQuantology, 14(1), 28-35.

Meriç, E., Öner, E., Avşar, N., Nazik, A., Kapan-Yeşilyurt, S., Göksu, Y., Kaya-Keleş, Ş., Yokeş, B., Kam, E., Candan, O., Dinçer, F. (2014). Gökçeada kuzeydoğusundaki Saklı koy'da paleontolojik verilere dayalı yeni bir bulgu: Büyük Dere Koyu. TPJD Bülteni, 26(1), 67-97.

Kucuk, N., Kucuk, I., Cakir, M., & Keles, S. K. (2013). Synthesis, thermoluminescence and dosimetric properties of La-doped zinc borates. Journal of Luminescence, 139, 84-90.

Uluslararası/ulusal bilimsel toplantılarda sunulan ve bildiri kitabında (Proceedings) basılan bildiriler

A. Sözlü Bildiriler

Burak PERÇİNLER, Şule KAYA KELEŞ, George S. POLYMERIS, Niyazi MERİÇ. "Kuvars Örneğinde Ağartma İşleminin Lüminesans Sinyallerine Etkisinin İncelenmesi". II. Nükleer Bilimler Lisansüstü Öğrenci Kongresi, 3-5 Mayis 2019, Ankara.

Şule Kaya Keleş, George S. Polymeris, Niyazi Meriç. "Thermal stability of the Merck quartz CW-OSL and EPR signals". Sixth International Conference on Radiation and Applications in Various Fields of Research (RAD 2018), 18-22 June 2018, Ohrid, Macedonia.

Şule Kaya Keleş, Niyazi Meriç, Ayşe Kaşkaş. "TLD-100 Dozimetreleri İle Çevresel Radyasyon Dozu Ölçümü". Nükleer Bilimler Lisansüstü Öğrenci Kongresi, 11-13 Mayıs 2018, Ankara, Türkiye.

Şule Kaya Keleş, Niyazi Meriç, George S. Polymeris. "Phase transitions and the effect of annealing temperature on TL, CW-OSL AND LM-OSL signals using Merck quartz". Turkish Physics Society 33th International Physics Conference, 6-10 September 2017, Bodrum, Türkiye.

Şule Kaya Keleş, Niyazi Meriç, G.S. Polymeris, "Deconvolution of High Temperature TL Peaks of Merck Quartz Using Different Optical Filter Combinations and Comparison Dose Response Curves for Each TL Peaks and CW-OSL Components", 10th International Conference on Luminescence and ESR Dosimetry (LumiDoz-10), 5-7 September 2016, Çukurova University, Adana, TURKEY

Serap Çatlı Dinç, Engin Aşlar, Petek Erpolat, Şule Kaya Keleş, Niyazi Meriç, Hüseyin Bora. "Tüm Vücut Işınlaması Sırasında Oluşan Nötron Dozunun Ölçülmesi" 12. Ulusal Radyasyon Onkolojisi Kongresi 20 -24 Nisan 2016 Antalya, Türkiye.

Şule Kaya Keleş, George S. Polymeris, Niyazi Meriç. Dose response curves of synthetic merck quartz; towards a supralmearity study. 9th International Conference on Luminescence and ESR Dosimetry (LumiDoz 9) 2-4 Eylül 2015 Antalya, Türkiye.

Şule Kaya Keleş, George S. Polymeris, Niyazi Meriç. "Dose response correlation between TL peaks at high temperatures and component resolved OSL signals of quartz samples". 8. Lüminesans ve ESR Dozimetri Kongresi 27-29 Ağustos 2014 Ankara, Türkiye.

G. S. Polymeris, M.Ö. Daş, Ş. Kaya Keleş, E. Şahiner, N. Meriç, V. Giannoulatou, A. Kyriakidou, I.K. Sfampa, G. Theodorou, O.M. Goudouri, G. Kitis, K.M. Paraskevopoulos. "Bioactivity characterization of 45s5 bioactive material using TL/OSL and EPR". 8. Lüminesans ve ESR Dozimetri Kongresi 27-29 Ağustos 2014 Ankara, Türkiye.

Ayşe Güneş Tanır, Özge Güleç, Eren Şahiner, Mustafa Hicabi Bölükdemır, Kemal Koç, Niyazi Meriç, Şule Kaya Keleş. "Direct determination of radiation dose in human blood". 8. Lüminesans ve ESR Dozimetri Kongresi 27-29 Ağustos 2014 Ankara, Türkiye

Ş.Kaya Keleş, E. Meriç, E. Öner, "Fosil Deniz Kabuklarının Termolüminesans Yöntemi İle Tarihlendirilmesindeki Sorunlar" LUMİDOZ-VI Lüminesans Dozimetri Kongresi 11-14 Eylül 2012 Çeşme/İzmir

H.Y. Göksu, A.G. Buyan, Ş. Kaya-Keleş, A. Barış, "Lüminesans Laboratuvarlarında Radyasyondan Korunma ve Güvenlik" LUMİDOZ-VI Lüminesans Dozimetri Kongresi 11-14 Eylül 2012 Çeşme/İzmir

N. Küçük, M. Çakır, Ş. Kaya Keleş, İ. Küçük, "Nitrik Asit Yöntemiyle Sentezlenen La Katkılı Çinko Borat Toz Örneklerin Termolüminesans ve Dozimetrik Özelliklerinin İncelenmesi" LUMİDOZ-VI Lüminesans Dozimetri Kongresi 11-14 Eylül 2012 Çeşme/İzmir

S. Keski, Ş. Kaya, N. Nur, M. Topaksu, "Doğal Floritlerin Rutin Çevre Dozimetresi Olarak Hazırlanması" LÜMİDOZ V Lüminesans Dozimetri Kongresi, 8-9 Eylül 2011, Mersin

Ş.Kaya, H.Y. Göksu, "İnce α-Al2O3:C TL Dozimetreleri Kullanılarak Beta Dozunun Ölçümü", LÜMİDOZ V Lüminesans Dozimetri Kongresi, 8-9 Eylül 2011, Mersin

B. Kozanlılar, Ş. Kaya, E. Köse, H.Y. Göksu, Y.K. Kadıoğlu, Ç. Tarımcı, Y..Moğulkoç, "Ayrışmış Volkanik Kayaçların Optik ve Termal Uyarımlı Lüminesans Özellikleri" LUMİDOZ-IV Lüminesans Dozimetri Kongresi 20-22 Eylül 2010 Gaziantep Üniversitesi

N. Küçük, Ş. Kaya, V. Bilgin, İ. Küçük, H.Y. Göksu, "Ultrasonik Kimyasal püskürtme Yöntemi İle Büyütülen Co Katkılı ZnO İnce Filmlerin Termolüminesans Özelliklerinin incelenmesi" LUMİDOZ-IV Lüminesans Dozimetri Kongresi 20-22 Eylül 2010 Gaziantep Üniversitesi

Ş. Kaya, Y. Topak, M. Topaksu, H.Y. Göksu, "Berrak ve Dumanlı Kuvarsların Termal Aktivasyon Özellikleri" LUMİDOZ-IV Lüminesans Dozimetri Kongresi 20-22 Eylül 2010 Gaziantep Üniversitesi

Ş. Kaya, K. Duruer, B. Kozanlılar, H.Y. Göksu, "Bir Beta Kaynağının Lüminesans ölçümleri için Kalibrasyonu" LUMİDOZ-IV Lüminesans Dozimetri Kongresi 20-22 Eylül 2010 Gaziantep Üniversitesi

B. Kozanlılar, Ş. Kaya, E. Köse, H.Y. Göksu, "Ayrışmış Kayaçların Optik ve Termal Uyarımlı Lüminesans Özelliklerinin İncelenmesi" Türk Fizik Derneği 27. Uluslararası Fizik Konferansı, 14-17 Eylül 2010, İstanbul

Ş. Kaya, E. Köse, H.Y. Göksu, "Türkiye Kaynaklı Doğal Kuvarsın Lüminesans Özellikleri ve Geriye Dönük Dozimetri Çalışmalarında Kullanımı" Türk Fizik Derneği 27. Uluslararası Fizik Konferansı, 14-17 Eylül 2010, İstanbul

Ş. Kaya, D. Bor, H.Y. Göksu," Pilot Uçuş Dozunun Farklı TL Dozimetreler Kullanılarak Belirlenmesi ve Karşılaştırılması" LÜMİnesans DOZimetri (LÜMİDOZ 2), 21-23 Ağustos 2008, Manisa

B. Poster Bildiriler

Niyazi Meriç, Merve Gündoğmuş, Şule Kaya Keleş, George S. Polymeris. Luminescence dosimetric properties of borate minerals; the cases of ulexite and colemanite. 9th International Conference on Luminescence and ESR Dosimetry (LumiDoz 9) 2-4 Eylül 2015 Antalya, Türkiye

Sanaz Hendi, George S. Polymeris, Şule Kaya Keleş, Eren Şahiner, Niyazi Meriç. "Neutron dose measurements in mixed gamma-neutron field using TLD-600 and TLD-700". 8. Lüminesans ve ESR Dozimetri Kongresi 27-29 Ağustos 2014 Ankara, Türkiye /Poster

S. Özenci, R. Kurt, Ş. Kaya, H.Y. Göksu, poster bildiri, "Baş ve Boyun Bölgesine Radyoterapi Alan Hastaların Çekim Endikasyonu Olan Dişlerinden Almış Olduğu Radyasyon Dozunun EPR Yöntemi İle Değerlendirilmesi" XIII. Ulusal Medikal Fizik Kongresi 17-19 Kasım 2011 Çeşme/ İzmir

Eren H., Kaya-Keleş Ş., Görgün S., Bor D. "Dijital Ve Konvansiyonel İntraoral Ve Panoramik Görüntüleme Sistemlerinde Etkin Dozların Değerlendirmesi". Oral Diagnoz

ve Maksillofasiyal Radyoloji Derneği 5. Bilimsel Sempozyumu, 25-28 Nisan 2013, Erzurum

İnceoğlu B., Kaya-Keleş Ş. Eren H., Bulur E., Görgün S. "Is acetic acid change the radiation signals of tooth enamel by electron paramagnetic resonance measurement?" 19. International Congress of Dentomaxillofacial Radiology (İADMFR), 22-27 June 2013, Bergen - NORWAY.