



## YBO<sub>3</sub> Fosforunun Termolüminesans Dozimetrik Pikinin Kinetik Parametreleri

Sibel AKÇA\*<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Çukurova Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, 01330, Adana, Türkiye

\*yazışılan yazar e-posta: sakca@cu.edu.tr

(Alınış / Received: 17.03.2020, Kabul / Accepted: 15.04.2020, Yayınlanma / Published: 31.05.2020)

**Özet:** Bu çalışmanın amacı, katkısız itriyum borat (YBO<sub>3</sub>) fosforunun termolüminesans (TL) kinetik parametrelerini belirlemektir. Yanma reaksiyonu ile sentezlenen YBO<sub>3</sub> fosforu pelet formuna getirilerek TL ölçümleri gerçekleştirilmiştir. Örnekler, 0,1-5 Gy aralığında beta dozuna maruz bırakılarak 2°C/s'lik sabit hızla oda sıcaklığından 500°C'ye kadar ısıtılmıştır. Örneğe ait TL ışımaya eğrileri, hem farklı dozlar hem de farklı ısıtma hızları için elde edilmiştir. Elde edilen TL sinyalleri analiz edilerek 210°C'de merkezlenen TL dozimetrik pikinin tuzak parametrelerinin hesaplanması için mevcut pik şekli (PS), farklı ısıtma hızları (VHR) ve ışımaya eğrisi ayrıştırma (GCD) metodları kullanılmıştır. Farklı dozlarda sergilenen TL pikine Chen'in PS metodu uygulandığında ortalama aktivasyon enerjisi ( $E$ ) 0,847 eV, frekans faktörü ( $s$ )  $10^7$  s<sup>-1</sup> mertebesinde bulunmuştur. İki farklı VHR metodu kullanılarak elde edilen  $E$  ve  $s$  değerleri, biri için sırasıyla  $1,050 \pm 0,05$  eV ve  $10^9 \pm 10^3$  s<sup>-1</sup> mertebesinde diğeri için 0,890 eV ve  $10^8$  s<sup>-1</sup> mertebesinde bulunmuştur. GCD metodu R-studio programının "tgcd" paketi kullanılarak uygulanmıştır. Ayrıştırma, 0,5 ve 5 Gy beta dozlarından elde edilen pik maksimuma uygulanmış ve 1. dereceden kinetiğe uyan iki pikten oluştuğu görülmüştür. Ayrıştırılmış piklerin (pik 1)  $E$  değerleri sırasıyla 0,889 ve 0,868 eV olarak bulunurken  $s$  değerleri ise her ikisi için de  $10^8$  s<sup>-1</sup> mertebelerinde bulunmuştur.

**Anahtar kelimeler:** İtريum borat, Termolüminesans, Aktivasyon enerjisi, Frekans faktörü

### Kinetic Parameters of Thermoluminescence Dosimetric Peak of YBO<sub>3</sub> Phosphor

**Abstract:** The aim of this study is to determine the thermoluminescence (TL) kinetic parameters of pure yttrium borate (YBO<sub>3</sub>) phosphor. The YBO<sub>3</sub> phosphor synthesized by combustion reaction was converted into pellet form and TL measurements were made. The samples exposed to the beta dose in the range of 0.1-5 Gy were heated from room temperature to 500°C at a constant rate of 2°C/s. TL glow curves of the sample were obtained for both different doses and various heating rates. The current peak shape (PS), various heating rates (VHR) and glow curve deconvolution (GCD) methods were used to calculate the trap parameters of the TL dosimetric peak centered at 210°C by analyzing the obtained TL signals. When Chen's PS method was applied to TL peak displayed in different doses, the average activation energy ( $E$ ) and frequency factor ( $s$ ) were found to be 0.847 eV and in the order of  $10^7$  s<sup>-1</sup>. The  $E$  and  $s$  values obtained using two different VHR methods were  $1.050 \pm 0.05$  eV and in the order of  $10^9 \pm 10^3$  s<sup>-1</sup> for one and 0.890 eV and in the order of  $10^8$  s<sup>-1</sup> for the other. The GCD method was applied using the 'tgcd' package of the R-studio program. As a result of applying deconvolution to the peak maximum obtained in beta doses of 0.5 and 5 Gy, two peaks matching the 1<sup>st</sup> order kinetics were obtained. The  $E$  values of the deconvolved peaks (peak 1) were found as 0.889 and 0.868 eV whereas the  $s$  values were in the order of  $10^8$  s<sup>-1</sup>.

**Key words:** Yttrium borate, Thermoluminescence, Activation energy, Frequency factor

## 1. Giriş

Toprak alkali metaller (Mg, Ca, Ba, vb.), geçiş metalleri (Zn, Zr, Cd, vb.) ve nadir toprak elementleri (lantanitler, Sc ve Y) ile oluşturulan borat bileşikler, doza karşı gösterdikleri doğrusal cevap, tekrar kullanılabilirlik, termoluminesans (TL) sinyalinin uzun ömrü vb. gibi özellikleri nedeniyle dozimetrik malzeme olmaya potansiyel adaylardır.  $BaB_4O_7$  [1],  $ZnB_2O_4$  [2],  $CdB_4O_7$  [3],  $MgB_4O_7$  [4] gibi borat bileşiklerinin TL özelliklerinin belirlenmesi amacıyla pek çok çalışma gerçekleştirilmiştir. Bu borat bileşiklerine özellikle lantanit grubu ( $Eu^{+2,+3}$ ,  $Gd^{+3}$ ,  $Nd^{+3}$ ,  $Tb^{+3}$ ,  $Sm^{+3}$ ,  $Tm^{+3}$  vb.) aktivatör iyonlar katkılanarak dozimetrik özelliklerinin geliştirilmesi amaçlanmaktadır.

Nadir toprak elementi olan itriyum (Y) ile oluşturulan  $Eu^{+3}$ ,  $Tb^{+3}$  ve  $Nd^{+3}$  katkılı  $YBO_3$  bileşikler üzerine son yıllarda pek çok çalışma yapılmıştır [5-7]. Bu çalışmalar bileşiğin yüksek termal ve kimyasal kararlılığı nedeniyle daha çok fotoluminesans özelliklerini içermektedir. Literatürde  $YBO_3$  fosforu ile ilgili sadece birkaç TL çalışması yapılmış olup bunlar da  $Eu^{+3}$  katkılı  $YBO_3$  bileşiğinin çeşitli ışınlama türlerinde sergilenen genel TL davranışı üzerinedir [8-9]. Malzemelerin TL özelliklerinin belirlenmesinde, belirli bir sıcaklıktaki TL sinyalinin kararlılığının bilgisini veren aktivasyon enerjisi ve frekans faktörü gibi temel kinetik parametre hesaplamalarına da başvurulur. Yani, TL olgusunu daha iyi anlamak için TL ölçümlerindeki temel tuzak parametrelerinin belirlenmesi önem taşımaktadır. Bu parametrelerin değerleri, çalışılan malzemenin bazı özel durumlarından kaynaklı olarak anormal değerler de gösterebilir [10]. Kinetik parametrelerin değerlendirilmesi için uygulanan pek çok yöntem vardır. Bunların en bilinenleri, başlangıçtaki artış (IR) [11], pik şekli (PS) [12], farklı ısıtma hızları (VHR) [13-16] ve ışınma eğrisi ayrıştırma (GCD) [17] yöntemleridir.

Literatür araştırması yapıldığında saf  $YBO_3$  fosforunun genel TL özellikleri ve kinetik parametrelerinin değerlendirilmesi üzerine herhangi bir çalışmanın yapılmadığı görülmektedir. Mevcut çalışmada, yanma yöntemi ile hazırlanan saf  $YBO_3$  örneklerinin aktivasyon enerjisi ve frekans faktörü gibi temel tuzak parametreleri PS, iki farklı VHR ve GCD yöntemleri kullanılarak belirlenmiştir.

## 2. Materyal ve Metot

### 2.1 $YBO_3$ Fosforunun Yanma Metodu ile Sentezi

İtriyum Borat ( $YBO_3$ ) fosforu yanma yöntemi ile sentezlenmiştir [18-19]. Bu yöntemde başlangıç bileşenleri, itriyum (III) nitrat heksahidrat ( $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ , Alfa Aesar, % 99,9 saf), borik asit ( $H_3BO_3$ , Sigma Aldrich,  $\geq$ % 99,5 saf), amonyum nitrat ( $NH_4NO_3$ , Merck, % 99,9 saf) ve üre ( $CO(NH_2)_2$ , Merck,  $\sim$ % 99,5 saflık)'dir. Burada amonyum nitrat oksitleyici, üre ise yakıt olarak kullanılmıştır. Toz formundaki bileşenlerin her birinden 0,01 mol alınarak öğütülmek üzere agat havanlara konulmuştur. Öğütme işleminden sonra, bir porselen krozeeye konulan karışım,  $80^\circ C$ 'de manyetik bir karıştırıcı üzerinde 20 dakika karıştırılmıştır.  $YBO_3$  fosforunu elde etmek üzere karışım  $500^\circ C$ 'de 30 dakika fırında bekletilerek yanma reaksiyonu gerçekleştirilmiştir.

Yanma reaksiyonu sırasında oluşan gaz halindeki  $H_2O$ ,  $CO_2$  ve  $NO_x$  buharlaşarak ortamdaki uzaklaştırılmıştır. Yanmayı takiben, elde edilen tozlar  $900^\circ C$ 'de 1 saat boyunca sinterlenmiş ve normal atmosferik basınç altında aniden oda sıcaklığına soğutulmuştur. Sinterlenmiş toz halindeki fosfor tekrar öğütülerek  $90 \mu m$  'lik eleklerle elenerek daha küçük parçacıklar haline getirilmiştir.

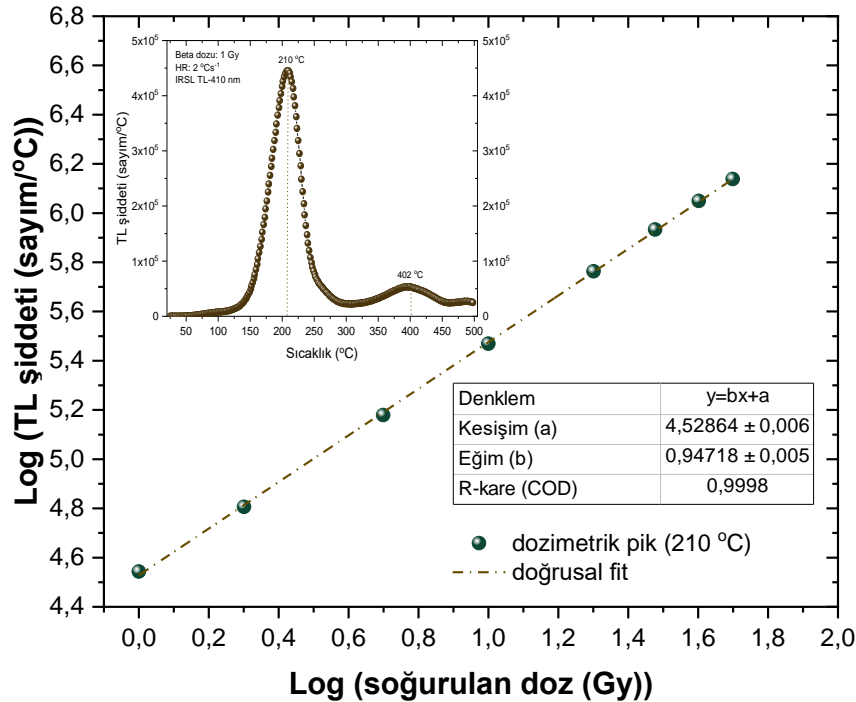
## 2.2 Deneysel süreç ve Yöntemler

TL ölçümleri,  $0,1 \text{ Gy}^{-1}$ 'lık doz hızına sahip  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  beta ışınlama, ısıtma ve PMT (fotoçoğaltıcı tüp) algılama birimlerini içeren Lexsyg Smart TL/OSL okuyucu sistemi ile gerçekleştirilmiştir. Toz  $\text{YBO}_3$  örnekleri  $20 \text{ mg}$  tartılarak  $2 \text{ ton/cm}^2$ 'lik basınç altında  $10$  dakika boyunca  $0,70 \text{ mm}$  yüksekliğe ve  $6,00 \text{ mm}$  çapa sahip pelet formuna dönüştürülerek TL ölçümleri yapılmıştır. Üç ayrı pelet halinde hazırlanan numunelerin TL sinyalleri, azot ortamında IRSL TL-410 nm'lik optik filtre kullanılarak  $2^\circ\text{C/s}$ 'lik sabit ısıtma hızı ile oda sıcaklığından  $500^\circ\text{C}$ 'ye kadar ısıtılarak kaydedilmiştir.

Deneysel sürecin ardından,  $\text{YBO}_3$  örneklerine ait kaydedilen TL sinyalleri analiz edilerek tuzak parametrelerinin belirlenmesi için çeşitli yöntemlere başvurulmuştur. Bu yöntemlerden en bilinenleri; pik şekli (PS), farklı ısıtma hızları (VHR), başlangıçtaki artış (IR) ve ışınım eğrisi ayrıştırma (GCD) yöntemleridir. Bu yöntemler, TL ışınım piklerinin doz, ısıtma hızı, pik maksimum sıcaklığı vb. değişkenlere göre davranışını incelenerek uygulanır. Mevcut çalışmada,  $\text{YBO}_3$  fosforunun TL kinetik parametrelerinin elde edilmesi için PS, VHR ve GCD metotları kullanılmıştır.

## 3. Bulgular

Hazırlanan  $\text{YBO}_3$  örneklerinin TL davranışını,  $0,1-5 \text{ Gy}$  aralığındaki farklı beta ışınlamalarının ardından  $2^\circ\text{C/s}$ 'lik sabit ısıtma hızı ile oda sıcaklığından  $500^\circ\text{C}$ 'ye kadar ısıtılarak incelenmiştir. Örneklerin TL ışınım eğrisi, yaklaşık olarak  $210$  ve  $402^\circ\text{C}$ 'de merkezlenen iki TL pik maksimumdan oluşmaktadır.  $210^\circ\text{C}$ 'deki keskin TL pikinin dozimetrik pik olduğu ve oldukça yüksek şiddete sahip olduğu görülmüştür (Şekil 1). Şekil 1'de dozimetrik pikin farklı beta dozlarına karşı TL cevabı incelenmiştir. Doza karşı verilen cevap,  $y = bx + a$  denklemine göre  $\log I = b \log D + a$ 'nın uyarlanması şeklinde olup  $b = 0,95$  olarak bulunmuştur. Burada  $I$  TL şiddetini,  $D$  dozu,  $b$  doğrunun eğimini,  $-a$  ise kesişim değerini ifade etmektedir. Elde edilen  $0,95$ 'lik eğim,  $\text{YBO}_3$  fosforunun doza karşı TL cevabının doğrusal olduğunu yani doza bağımlılığının yüksek olduğunu göstermektedir.

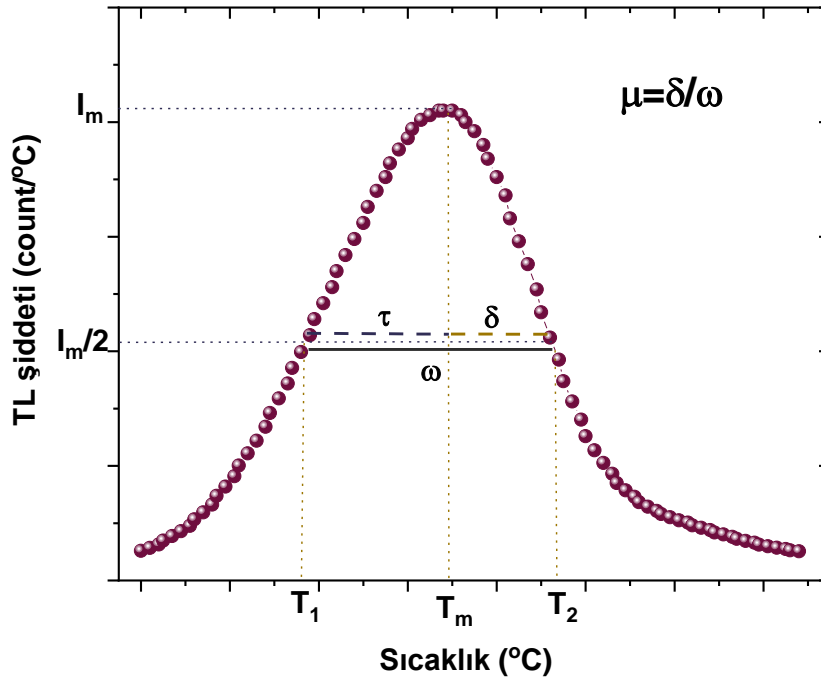


Şekil 1.  $\text{YBO}_3$  örneğinin TL dozimetrik pikinin farklı beta dozlarına karşı TL cevabı. İçteki şekil, 1 Gy dozda kaydedilen TL ışınım eğrisini göstermektedir.

Sentezlenen  $YBO_3$  fosforunun  $210^\circ C$ 'de konumlanan TL dozimetrik pikinin aktivasyon enerjisi ve frekans faktörü gibi tuzak parametrelerinin belirlenmesi için PS, VHR ve GCD yöntemleri uygulanmıştır. Bu yöntemler ve sonuçları aşağıda detaylı olarak verilmiştir.

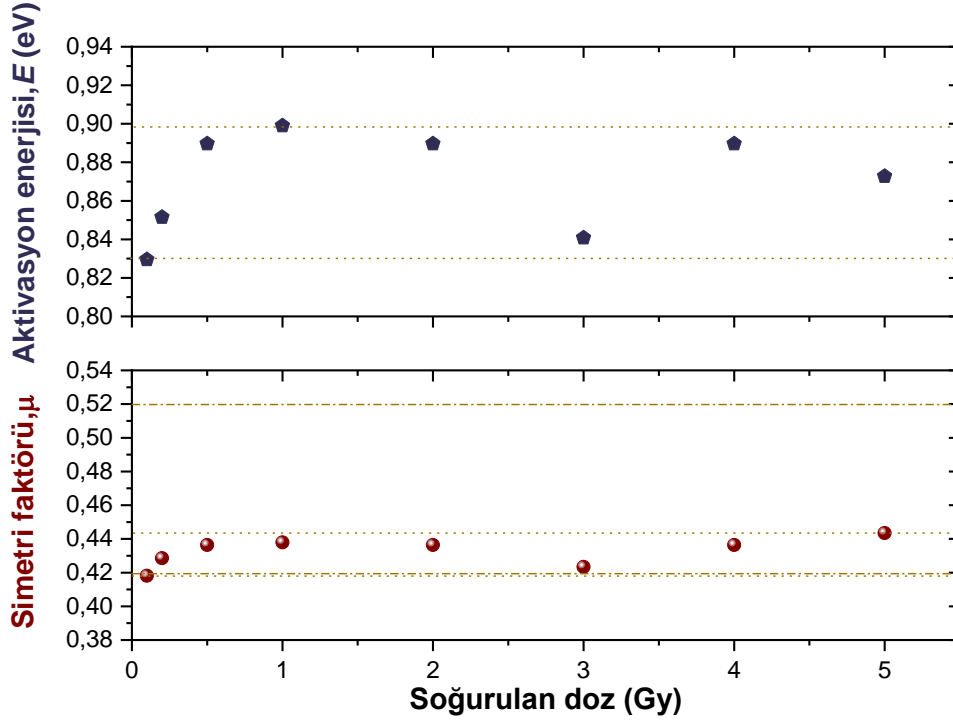
### 3.1 PS Yöntemi

TL ışınım pikinden yararlanılarak temel parametrelerin değerlendirilmesine olanak sağlayan en temel yöntem, pik şekli (PS) yöntemi olarak bilinir. PS yöntemi, doğrudan TL pikinin şekline dayanır. Yöntemde bilinmesi gerekenler Şekil 2'de detaylandırılmıştır. Şekil 2'de görülen  $\tau = T_m - T_1$  pikin düşük sıcaklık kısmına ait yarı genişliği,  $\delta = T_2 - T_m$  ise yüksek sıcaklık kısmına ait yarı genişliği ifade etmektedir. Bu yöntemde,  $\mu = \delta/\omega$  simetri faktörü 0,42 ise TL piki 1. dereceden kinetiğe, 0,52 ise 2. dereceden kinetiğe sahiptir. Bu çalışmada Chen'e ait PS yöntemi uygulanmış olup, bu yöntem 0,1 eV ve 2,0 eV arasında geniş bir enerji yelpazesi ve  $10^5$  ile  $10^{13} s^{-1}$  arasındaki frekans faktörleri için uygundur [20].



Şekil 2. PS yöntemi karakterize eden parametreler

$YBO_3$  fosforunun 0,1-5 Gy doz aralığında  $2^\circ C/s$ 'lik sabit ısıtma hızı ile ısıtılarak  $210^\circ C$ 'de gözlenen TL dozimetrik pik maksimum incelenerek simetri faktörü  $\mu$  ve Chen'in PS denklemi kullanılarak  $E$  ve  $s$  değerleri hesaplanmıştır [12,21]. 0,1-5 Gy arasındaki her bir beta dozu ışınlanmasında, dozimetrik pik maksimumun  $\mu$  ve  $E$  değerleri Şekil 3'deki gibi bir değişim göstermiştir. Şekil 3'den görüldüğü gibi  $\mu$  değeri 0,42 ve 0,44 aralığında değişmekte olup bu değerler dozimetrik pik maksimumun 1. dereceden kinetiğe sahip olduğuna işaret etmektedir. Chen'in PS denkleminde elde edilen aktivasyon enerjisi varyasyonları olan  $E_\tau$ ,  $E_\omega$  ve  $E_\delta$ 'nin ortalaması olan  $E$  değerleri 0,83-0,90 eV aralığında bulunmuştur.



Şekil 3. 0,1-5 Gy aralığındaki dozlara karşı dozimetrik pik maksimumun  $\mu$  ve  $E$  değerlerinin değişimi

Dozimetrik pik maksimumun farklı doz miktarları için, Chen düzeltmeli PS Metodu kullanılarak elde edilen kinetik parametrelerinin ortalaması ise Tablo 1’de verilmiştir. Bu sonuçlara göre ortalama  $E$  ve  $s$  değerleri sırasıyla 0,847 eV ve  $6,21 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$  olarak bulunmuştur.

**Tablo 1.** 0,1-5 Gy arasında değişen dozlarda dozimetrik pik maksimuma ait Chen düzeltmeli PS metodu kullanılarak elde edilen kinetik parametrelerin ortalaması

| $T_m$ (°C) | $\tau$ | $\omega$ | $\delta$ | $\mu = \delta/\omega$ | $E_\tau$ | $E_\omega$ | $E_\delta$ | $E$ (eV)     | $s$ ( $\text{s}^{-1}$ )              |
|------------|--------|----------|----------|-----------------------|----------|------------|------------|--------------|--------------------------------------|
| 210        | 32,0   | 55,6     | 23,7     | <b>0,425</b>          | 0,829    | 0,849      | 0,865      | <b>0,847</b> | <b><math>6,21 \times 10^7</math></b> |

### 3.2 VHR Yöntemi

#### 3.2.1 Hoogenstraaten VHR Yöntemi

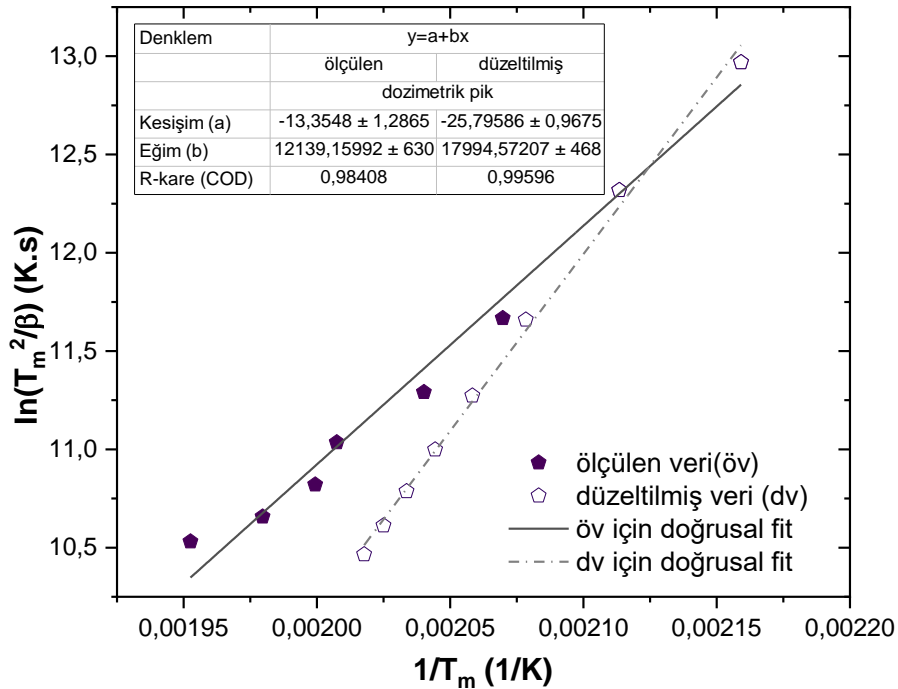
Hoogenstraaten tarafından önerilen [13] farklı ısıtma hızları (VHR) yöntemi,  $\text{YBO}_3$  fosforunun  $E$  ve  $s$  gibi kinetik parametrelerini tahmin etmek için uygulandı. Bu yöntem, ısıtma hızı (HR) arttırıldığında pik maksimum sıcaklığının ( $T_m$ ) yüksek sıcaklıklara doğru kaymasından faydalanılarak uygulanır. Yöntem, birinci dereceden kinetiğe sahip TL ışıma eğrileri için önerilmiş olmasına rağmen, bugüne kadar yapılan çalışmalar diğer kinetik mertebedeki piklere de uygulanabileceğini göstermiştir [20,22]. Bu yöntemde kinetik parametreler,  $\ln(T_m^2/\beta)$  ve  $(1/T_m)$  arasındaki doğrusal ilişkiden yararlanılarak elde edilir. Hoogenstraaten’in VHR yöntemi ile  $E$  ve  $s$  değerleri aşağıda verilen Denklem 1 kullanılarak hesaplanır.

$$\ln\left(\frac{T_m^2}{\beta}\right) = \left(\frac{E}{k}\right)\left(\frac{1}{T_m}\right) + \ln\left(\frac{E}{ks}\right) \quad (1)$$

Denklem 1’de  $T_m$  (K), her  $\beta$  (K/s) ısıtma hızındaki pik maksimum sıcaklığını,  $s$  ( $\text{s}^{-1}$ ) frekans faktörünü,  $E$  (eV) aktivasyon enerjisini ifade eder.  $k$  boltzman sabiti olup değeri  $8.617 \times 10^{-5}$  (eV/K)’dir. Bu nedenle, Denklem 1’deki sıcaklık değerleri Kelvin birimine

çevrilmiştir. Bu denklem,  $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin  $(1/T_m)$ 'ye karşı grafiği çizildiğinde elde edilen doğrunun eğiminin  $\left(\frac{E}{k}\right)$ 'ya kesişimin  $\ln\left(\frac{E}{ks}\right)$ 'ye eşit olduğunu ifade eder. Böylelikle,  $E$  ve  $s$  değerleri hesaplanabilir.

Bu çalışmada, VHR yöntemi ile kinetik parametrelerin hesaplanabilmesi için 0,5 ve 7°C/s arasında değişen sekiz farklı ısıtma hızının YBO<sub>3</sub> fosforunun TL ışıma eğrisi üzerine etkisi incelenmiştir. Isıtma hızının, TL sinyalleri üzerine etkisi incelenirken sıcaklık gecikmesi (TLA) etkisi de göz önünde bulundurulmaya çalışılmıştır. TLA etkisi, TL ölçümü esnasında ısıl çift ile örnek arasındaki sıcaklık farkından kaynaklanmakta olup, bu etki ile  $T_m$  değeri daha yüksek sıcaklıklara kaymaktadır. Bu nedenle, Kitis ve Tuyn tarafından [23] önerilen sıcaklık düzeltmesi formülü kullanılarak  $T_m$  değerlerinde düzeltme yapılmıştır. YBO<sub>3</sub> fosforunun dozimetrik pikinin 0,5 ve 7°C/s aralığındaki farklı ısıtma hızlarında  $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin  $(1/T_m)$ 'ye karşı grafiği Şekil 4'de verilmiştir. Hem ölçülen hem de düzeltilen  $T_m$  değerleri için hesaplama yapılmıştır. Şekil 4'den de görüldüğü gibi ölçülen ve hesaplanan değerler için lineer fitlerin korelasyonu  $R^2$  sırasıyla 0,98 ve 0,99 olup iyi bir korelasyon içindedir.



Şekil 4. Dozimetrik pik maksimumunun 0,5-7 °C/s aralığındaki farklı ısıtma hızları için  $\ln(T_m^2/\beta)$ 'nin  $(1/T_m)$ 'ye karşı değişimi

Şekil 4'deki doğruların eğim ve kesişim değerleri, Denklem 1'de yerine konularak Tablo 2'de verilen  $E$  ve  $s$  değerleri belirlenmiştir. Elde edilen  $E$  değeri ölçülen  $T_m$  değeri için  $1,05 \pm 0,05$  eV, düzeltilmiş  $T_m$  değeri için  $1,55 \pm 0,04$  eV olarak bulunmuştur. Elde edilen  $s$  değerleri ise ölçülen ve düzeltilen  $T_m$  değerleri için sırasıyla  $10^9 \pm 10^3$  ve  $10^{15} \pm 10^3$  mertebelerinde bulunmuştur.

Tablo 2. Hoogenstraaten'e ait VHR metodu kullanılarak elde edilen ölçülmüş ve düzeltilmiş  $E$  ve  $s$  değerleri

| Ölçülen değerler |   | Düzeltilmiş değerler |  |
|------------------|---|----------------------|--|
| $E$ (eV)         | $s$ ( $s^{-1}$ )                        | $E$ (eV)             | $s$ ( $s^{-1}$ )                           |
| $1,05 \pm 0,05$  | $7,66 \times 10^9 \pm 2,29 \times 10^3$ | $1,55 \pm 0,04$      | $3,87 \times 10^{15} \pm 1,23 \times 10^3$ |

### 3.2.2 Booth, Bohum ve Porfianovitch VHR Yöntemi

Booth (1954) [14], Bohum (1954) [15] ve Porfianovitch (1954) [16] birbirlerinden bağımsız yaptıkları çalışmalarla  $E$  ve  $s$  kinetik parametrelerini 1. dereceden kinetikler için değerlendirmişlerdir.  $E$  değeri,  $\beta_1$  ve  $\beta_2$  gibi iki farklı ısıtma hızlarına karşılık gelen  $T_{m1}$  ve  $T_{m2}$  pik maksimum sıcaklıklarının değişimine dayandırılır [20].

$$E = \frac{kT_{m1}T_{m2}}{T_{m1}-T_{m2}} \ln \left( \frac{\beta_1}{\beta_2} (T_{m2} - T_{m1})^2 \right) \quad (2)$$

$E$ 'nin bilinmesi ile  $s$  değeri aşağıdaki denklem yardımı ile bulunur:

$$s = \frac{E}{k} \exp \left\{ \left[ T_{m2} \ln \frac{T_{m2}^2}{\beta_2} - \ln \frac{T_{m1}^2}{\beta_1} \right] / (T_{m1} - T_{m2}) \right\} \quad (3)$$

Denklem 2 ve 3 kullanılarak  $YBO_3$  fosforunun dozimetrik pikinin ( $210^\circ C$ )  $E$  ve  $s$  değerleri hesaplanmıştır. Bu değerler aşağıdaki Tablo 3'de verilmiştir.

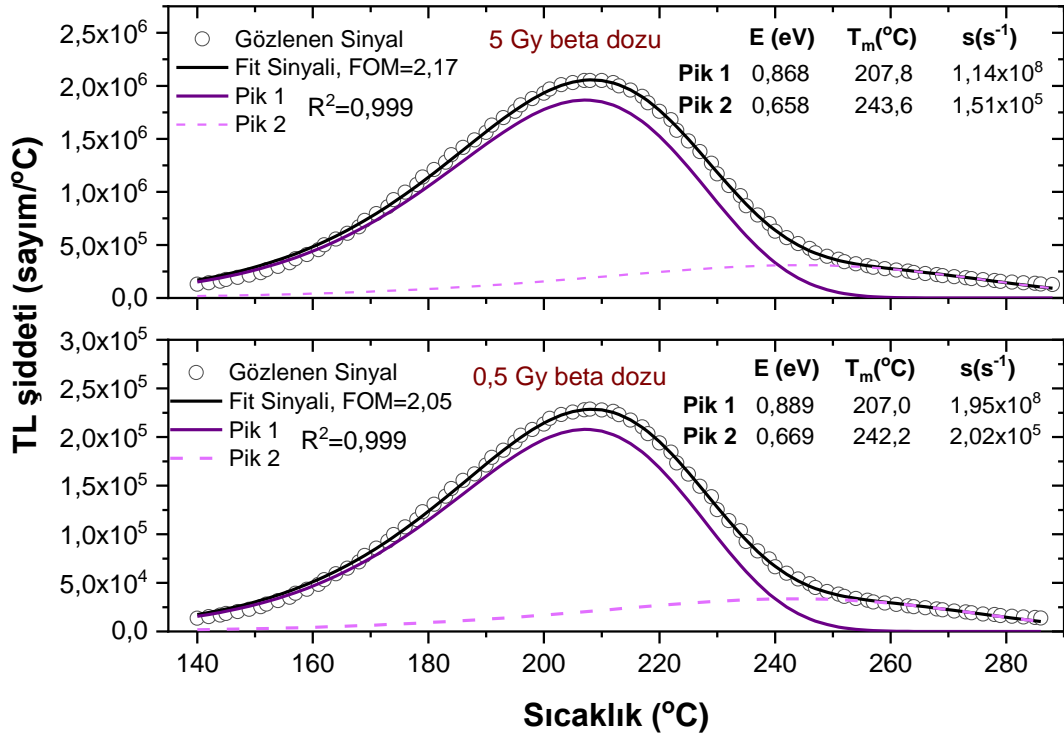
**Tablo 3.** Booth, Bohum ve Porfianovitch'e ait VHR metodu kullanılarak elde edilen  $E$  ve  $s$  değerleri

| $\beta_1$                   | $\beta_2$ | $E$ (eV) | $s$ ( $s^{-1}$ )   | $\beta_1$                     | $\beta_2$ | $E$ (eV) | $s$ ( $s^{-1}$ )   |
|-----------------------------|-----------|----------|--------------------|-------------------------------|-----------|----------|--------------------|
| 0,5                         | 7         | 1,016    | $3,18 \times 10^9$ | 2                             | 4         | 0,873    | $1,13 \times 10^8$ |
| 2                           | 6         | 0,964    | $1,11 \times 10^9$ | 2                             | 7         | 0,835    | $4,27 \times 10^7$ |
| 3                           | 6         | 0,900    | $2,34 \times 10^8$ | 3                             | 5         | 0,993    | $2,36 \times 10^9$ |
| 4                           | 7         | 0,791    | $1,51 \times 10^7$ | 3                             | 7         | 0,746    | $5,13 \times 10^6$ |
| $E_{ort.} = 0,890 \pm 0,09$ |           |          |                    | $s_{ort.} = 8,82 \times 10^8$ |           |          |                    |

Tablo 3'den görüldüğü gibi, farklı ısıtma hızlarından elde edilen  $E$  değerleri 0.746-0.993 eV arasında değişmekte olup 0.890 eV'luk ortalama değere sahiptir. Elde edilen  $s$  değerleri ise  $10^6$ - $10^9$  mertebesi arasında değişmekte olup ortalaması  $8.82 \times 10^8 s^{-1}$  bulunmuştur.

### 3.3 GCD Yöntemi

$YBO_3$  fosforunun kinetik parametre hesabı,  $210^\circ C$ 'de merkezlenen dozimetrik pik maksimumun tek bir ışına pikinden oluştuğu varsayılarak yapılmıştır. Bu maksimumun tam olarak kaç bileşenin kombinasyonu olduğunu kontrol etmek için Işıma Eğrisi Ayırıştırma (GCD) yöntemi uygulanmıştır. Dozimetrik pik maksimum, R-studio programında bulunan "tged" paketi kullanılarak ayırıştırılmıştır [24]. Şekil 5'te sentezlenmiş  $YBO_3$  örneğinin 0,5 ve 5 Gy beta dozlarında sergilediği dozimetrik pik maksimumun iki ayırıştırılmış pikten oluştuğu görülmektedir. Ayırıştırılmış bu pikler yaklaşık olarak 207 (pik 1) ve 242 (pik 2)  $^\circ C$ 'lerde maksimum vermektedirler. Ayırıştırılmış pikler detaylı incelendiğinde, pik 1'in dozimetrik maksimumun özelliklerini taşıdığı pik 2'nin ise çok anlamlı olmayıp yüksek sıcaklık pikine geçişten dolayı ortaya çıktığı anlaşılmaktadır. Bu ayırıştırma 1. dereceden kinetik teoriye göre yapılmış olup 0,5 ve 5 Gy beta dozlarında deneysel verilerle fit eğrisi arasındaki uyumu ifade eden FOM değerleri sırasıyla 2,05 ve 2,17 olarak elde edilmiştir. Pik 1'i simgeleyen tuzakların aktivasyon enerjisi 0,5 ve 5 Gy'lik dozlar için sırasıyla 0,889 ve 0,868 eV olarak bulunmuştur. İyonlaştırıcı radyasyona maruz bırakıldıktan sonra elektronların tuzaklardan kaçış olasılığını ifade eden frekans faktörü değeri ise 0,5 ve 5 Gy'lik dozlar için sırasıyla  $1,95 \times 10^8$  ve  $1,14 \times 10^8$ 'dir (Pik 1 için).



Şekil 5. 0,5 ve 5 Gy beta dozlarında TL dozimetrik pik maksimumunun R-studio ile GCD yöntemi kullanılarak elde edilen ayrıştırılmış pikleri ve tuzak parametreleri

Öte yandan, PS metodu, Chen'in denklemi kullanılarak temel ayrıştırılmış pike (pik 1) tekrar uygulanmıştır. Pik 1'in 0,5 ve 5 Gy dozlarında PS metodu uygulanarak elde edilen kinetik parametreleri Tablo 4'te verilmiştir. Tablo 4'e göre, 0,5 ve 5 Gy dozda pik 1 için  $E$  değeri sırasıyla yaklaşık olarak 0,92 ve 0,89 eV olarak hesaplanmıştır. Frekans faktörü  $s$  ise her iki doz için de  $10^8$  mertebesinde bulunmuştur.

Bu çalışmada kullanılan bütün yöntemler kullanılarak elde edilen frekans faktörü değerleri incelendiğinde  $10^6$ - $10^9$  s<sup>-1</sup> aralığında bulunmuştur. Bu değerlerin,  $10^{12}$ - $10^{14}$  s<sup>-1</sup> aralığında olan örgü titreşim frekansı değerinden daha küçük olduğu görülmektedir. Düşük frekans faktörünün nedeninin, elektronların iletim bandına geçiş yapmadan lokal geçişlerle ışıma gerçekleşmesi şeklinde olduğu düşünülür [25,26].

Tablo 4. R-studio programı ile 0,5 ve 5 Gy'lik dozlarda ayrıştırılmış piklerin (pik 1) Chen düzeltmeli PS Metodu kullanılarak elde edilen kinetik parametreleri

|              | T <sub>m</sub> (°C) | $\tau$ | $\omega$ | $\delta$ | $\mu=\delta/\omega$ | $E_{\tau}$ | $E_{\omega}$ | $E_{\delta}$ | $E$ (eV) | $s$ (s <sup>-1</sup> ) |
|--------------|---------------------|--------|----------|----------|---------------------|------------|--------------|--------------|----------|------------------------|
| <b>0,5Gy</b> | 207                 | 29,5   | 51,5     | 22,0     | 0,427               | 0,899      | 0,919        | 0,930        | 0,916    | 3,86x10 <sup>8</sup>   |
| <b>5Gy</b>   | 207                 | 30,2   | 52,7     | 22,5     | 0,427               | 0,874      | 0,894        | 0,906        | 0,891    | 2,04x10 <sup>8</sup>   |

#### 4. Sonuç ve Yorum

Yanma reaksiyonu ile sentezlenen katkısız YBO<sub>3</sub> fosforunun termoluminesans (TL) dozimetrik pik maksimumunun kinetik parametrelerini belirlemek için 0,1-5 Gy aralığında farklı dozlarda 2°C/s'lik sabit hızla ve 0,5 Gy'lik beta ışınlanmasıyla 0,5-7°C/s'lik farklı ısıtma hızlarında TL ışıma pikleri kaydedilmiştir. 210°C'de konumlanan TL dozimetrik maksimumunun aktivasyon enerjisi ( $E$ ) ve frekans faktörü ( $s$ ) gibi parametre tayini pik şekli (PS), farklı ısıtma hızları (VHR) ve ışıma eğrisi ayrıştırma (GCD) yöntemleri kullanılarak yapılmıştır. 0,1-5 Gy aralığındaki çeşitli dozlarda elde edilen TL pik maksimumuna PS metodu uygulanmış ve simetri faktörü ( $\mu$ ) 0,42-0,44 aralığında bulunarak 1.dereceden kinetiğe sahip olduğu görülmüştür. Chen'in PS denklemi kullanılarak



ortalama aktivasyon enerjisi ( $E$ ) ve frekans faktörü ( $s$ ) değerleri sırasıyla 0,847 eV ve  $10^7 \text{ s}^{-1}$  mertebesinde bulunmuştur. Hoogenstraaten'e ait VHR metodu kullanılarak elde edilen  $E$  ve  $s$  değerleri sırasıyla  $1,050 \pm 0,05 \text{ eV}$  ve  $10^9 \pm 10^3 \text{ s}^{-1}$  mertebesinde, Booth, Bohum ve Porfianovitch'e ait VHR metodu kullanılarak elde edilen değerlerin ortalaması ise sırasıyla 0,890 eV ve  $10^8 \text{ s}^{-1}$  mertebesinde bulunmuştur. R-studio programının "tgcd" paketi kullanılarak uygulanan GCD metodunda, 0,5 ve 5 Gy beta dozlarında elde edilen TL pik maksimum 1. dereceden kinetiğe uyan üst üste binmiş pikten oluştuğu görülmüştür. Bu ayrıştırılmış pikler (pik 1 ve pik 2) her iki doz için de benzer sıcaklıklarda elde edilmiştir. Dozimetrik pik maksimum ile benzer sıcaklığa sahip olan yaklaşık  $207^\circ\text{C}$ 'deki ayrıştırılmış pikin (pik 1) her iki doz için FOM değeri 2,05 ve 2,17 olarak elde edilmiştir. 0,5 ve 5 Gy'lik dozlar için  $E$  değerleri sırasıyla 0,889 ve 0,868 eV olarak bulunurken  $s$  değerleri her ikisi için  $10^8 \text{ s}^{-1}$  mertebelerinde bulunmuştur. Bu sonuçlara göre, yanma yöntemi ile sentezlenen saf  $\text{YBO}_3$  fosforunun dozimetrik piki 1. dereceden kinetiğe uymaktadır. Yani, dozimetrik piki temsil eden tuzaklarda bulunan elektronlar serbest kaldığında tekrar tuzaklanmadan ya yeniden birleşme merkezinde bir deşikle birleşir ya da değerlik bandına gider. Booth, Bohum ve Porfianovitch'e ait VHR metodu kullanılarak elde edilen enerji değerlerinin ortalaması, GCD metodu uygulanarak elde edilen sonuçlarla oldukça iyi uyum içindedir. Bu da,  $\text{YBO}_3$  örneğinin dozimetrik pikini simgeleyen tuzağın derinliğinin yaklaşık olarak 0,87-0,89 eV olduğunu göstermektedir. Ayrıca, yöntemlerde elde edilen düşük frekans faktörünün, elektronların iletim bandına geçmeden lokal geçişlerle ışımaya yapmasından kaynaklandığı düşünülmektedir.

### **Araştırmacıların Katkı Oranı Beyanı**

Sibel Akça: Araştırma, Materyal/Malzeme Temini, Orijinal Taslak Yazımı, İnceleme ve Düzenleme

### **Destek ve Teşekkür Beyanı**

Bu çalışma süresi boyunca yaptığı her türlü bilimsel katkılarından dolayı Çukurova Üniversitesi Fizik Bölümü öğretim üyesi Prof. Dr. Mustafa Topaksu'ya ve malzeme hazırlama sürecindeki katkılarından dolayı Çukurova Üniversitesi Seramik Bölümü öğretim üyesi Dr. Y. Ziya Halefoğlu'na en içten teşekkürlerimi sunarım.

### **Çatışma Beyanı**

Bu çalışmanın yazarları olarak herhangi bir çatışma beyanımız bulunmadığını bildiririz.

### **Etik Kurul Onayı ve/veya Aydınlatılmış Onam Bilgileri**

Bu çalışmanın yazarları olarak herhangi bir etik kurul onayı ve/veya aydınlatılmış onam bilgileri beyanımız bulunmadığını bildiririz.

### **Kaynakça**

- [1] A. N. Yazici, M. Dogan, V. E. Kafadar, and H. Toktamis, "Thermoluminescence of undoped and Ce-doped  $\text{BaB}_4\text{O}_7$ ," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B* 246 (2), 402–408, 2006.
- [2] T. Dogan, L. Tormo, S. Akca, N. Kucuk, J. Garcia Guinea, Y. Karabulut, M. Ayvacikli, M. Oglakci, M. Topaksu, and N. Can, "Cathodoluminescence and thermoluminescence of  $\text{ZnB}_2\text{O}_4:\text{Eu}^{3+}$  phosphors prepared via wet-chemical synthesis," *Ceram. Int.*, 45, 4918–4925, 2019.
- [3] T. N. Khamaganova, T. G. Khumaeva, A. K. Subanakov, and A. V. Perevalov, "Synthesis and thermoluminescence properties of  $\text{CdB}_4\text{O}_7:\text{Tb}^{3+}$  and  $\text{CdB}_4\text{O}_7:\text{Mn}^{2+}$ ," *Inorg. Mater.*, 53, 81-85, 2017.
- [4] V. Pagonis, N. Brown, G.S. Polymeris, and G. Kitis, "Comprehensive analysis of thermoluminescence signals in  $\text{MgB}_4\text{O}_7:\text{Dy},\text{Na}$  dosimeter," *J. Lumin.*, 213, 334-342, 2019.
- [5] R. Balakrishnaiah, Yi. S. Soo, K. Jang, S. Ho Lee, B.K. Moon, and J.H. Jeong, "Enhanced luminescence properties of  $\text{YBO}_3:\text{Eu}^{3+}$  phosphors by Li-doping," *Mater. Res. Bull.* 46, 621–626, 2011.
- [6] R. G. Nair, S. Nigam, V. Sudarsan, R. K. Vatsa, and V. K. Jain, " $\text{YBO}_3$  versus  $\text{Y}_3\text{BO}_6$  host on  $\text{Tb}^{3+}$  luminescence," *J. Lumin.*, 195, 271–277, 2018.

- [7] L. J. Q. Maia, A. L. Mourab, J. Vladimir, Cid B. de Araújo, "Structural properties and near infrared photoluminescence of Nd<sup>3+</sup> doped YBO<sub>3</sub> nanocrystals," *Opt. Mater.*, 95, 109227, 2019.
- [8] V. Dubey, J. Kaur, S. Agrawal, N.S. Suryanarayana, K.V.R. Murthy, "Effect of Eu<sup>3+</sup> concentration on photoluminescence and thermoluminescence behavior of YBO<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup> phosphor," *Superlattice Microst.*, 67, 156–171, 2014.
- [9] V. Dubey, N. V. Dubey, S. J. Dhoble, and H. C. Swart, "TL glow curve analysis and kinetics of UV, β and γ irradiated YBO<sub>3</sub>: Eu<sup>3+</sup> and Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Eu<sup>3+</sup> phosphors," *J. Mater. Sci: Mater. Electron.*, 28, 13565–13578, 2017.
- [10] R. Chen, V. Pagonis, J. L. Lawless, "Evaluated thermoluminescence trapping parameters-What do they really mean?," *Radiat. Meas.*, 91, 21-27, 2016.
- [11] G.F.J. Garlick, A.F. Gibson, "The electron trap mechanism of luminescence in sulphide and silicate phosphors," *Proc. Phys. Soc.*, 60 (6), 574-590, 1948.
- [12] R. Chen and S.A.A. Winer, "Effects of heating rates on glow curves," *J. Appl. Phys.*, 41, 52227–55232, 1970.
- [13] W. Hoogenstraaten, "Electron Traps in Zinc Sulphide Phosphors," *Philips Res. Repts.*, 13, 515-693, 1958.
- [14] A.H. Booth, "Calculation of electron trap depths from thermoluminescence maxima," *Canad. J. Chem.*, 32, 214-215, 1954.
- [15] A. Bohun, "Thermoemission und photoemission von Natriumchlorid," *Czech. J. Phys.* 4, 91-93, 1954.
- [16] I. A. Parfianovich, "On the determination of the energy depth of capture levels in crystal phosphors," *J. Exp. Theor. Phys., SSSR* 26, 696-703, 1954.
- [17] R. Chen, S. W. S. McKeever, *Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena*, Singapore: World Scientific, 1997, pp. 272.
- [18] S. Akça, Z. G. Portakal, T. Dogan, N. Kucuk, A. Canimoglu, M. Topaksu, N. Can, "Thermoluminescence properties of Tb doped Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> after beta irradiation," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., B* 458, 12–20, 2019.
- [19] Y. Z. Halefoglu, "Luminescent properties and characterisation of LaB<sub>3</sub>O<sub>6</sub>:Eu<sup>3+</sup> phosphor synthesized using the combustion method," *Appl. Radiat. Isot.*, 148, 40–44, 2019.
- [20] C. Furetta, *Handbook of Thermoluminescence*, World Scientific publishing Co. Pre.Ltd., 2003, pp. 260-263, pp. 440, pp.435
- [21] R. Chen and Y. Kirsh, *Analysis of Thermally Stimulated Processes*. New York: Pergamon Publishing Co. Pvt. Ltd., 1981, pp. 162.
- [22] S. W. S. McKeever, *Thermoluminescence of Solids*, Cambridge: Cambridge Univ. Press., 1985, pp. 90-92.
- [23] G. Kitis, and J.W.N. Tuyn, "A simple method to correct for the temperature lag in TL glow-curve measurements," *J. Phys. D Appl. Phys.*, 31, 2065–2073, 1998.
- [24] J. Peng, Z. Dong and F. Han, "tgcd: An R package for analyzing thermoluminescence glow curves," *SoftwareX*, 5, 112–120, 2016.
- [25] S. W. S. McKeever, M. Moscovitch, and P. D. Townsend, *Thermoluminescence Dosimetry Materials: Properties and Uses*, Ashford, United Kingdom: Nuclear Technology Publishing, 1995, pp. 63-66.
- [26] Y. Jin, Y. Hu, L. Chen, X. Wang, Z. Mou, G. Ju, and F. Liang, "Luminescent properties of a reddish orange emitting long-lasting phosphor CaO:Pr<sup>3+</sup>," *Mater. Sci. Eng. B*, 178(18), 1205-1211, 2013.