

## Yüksek Çözünürlüklü Fosfor Ekran Temelli X-ışınları Radyografi Detektörünün Geliştirilmesi

Program Kodu: 1003

Proje No: 113E985

Proje Yürütücüsü: Doç.Dr. Behiye YÜKSEL

<u>Araştırmacı(lar):</u> Doç. Dr. Kadri Vefa EZİRMİK Canhan ŞEN

<u>Danışman:</u> Prof. Dr. Hüsnü ÖZKAN Doç. Dr. Mustafa Erdem SAĞSÖZ Doç. Dr. Tevfik Metin SEZGİN Dr. Öğr. Üyesi Emin Argun ORAL

<u>Bursiyer:</u> Tolga TAYLI Enes Akif EZİRMİK Ozan BİNGÖL

> Ağustos 2018 İSTANBUL

#### ÖNSÖZ

TÜBİTAK TARAL 1003 projesi kapsamında yapılan bu proje çalışmasında; fiber optik plakalar üzerinde özel mikro patern oluşturulmuş ve sintilatör filmlerin bu mikroyapı üzerinde büyütülmesi sureti ile yüksek çözünürlüklü fosfor ekranlar geliştirilmiştir ki böylece herhangi bir litografi yöntemine ihtiyaç duyulmadan mikro paternlenmiş fosfor ekranların üretilmesi hedefine ulaşılmıştır. Bu proje kapsamında yürütülen çalışmalar farklı disiplinlerde çalışan üniversite, araştırma kurumları ve mikro-KOBİ tarafından bir işbirliği çerçevesinde yürütülmüştür. Yürütülen deneysel çalışmalar kapsamında sadece malzeme sentezleme, ince film kaplama ve malzeme karakterizasyonu değil bir radyoloji detektörünün tasarımı ve fosfor ekranların test edilmesine dair özgün yöntemler ortaya konulmuştur.

Bu projenin, grubumuz ve ülkemiz açısından pek çok yarar sağladığı düşünülmektedir. Öncelikle bu proje çalışması yüzeyi özel olarak işlenmiş fiber optik plakalar hazırlayıp bu plakaların üzerinde sintilatör filmlerin büyütülmesi mümkün olmuştur ki böylece mikro paternlenmiş fosfor ekranların üretimi gerçekleştirilmiştir. Elde edilen veriler benzer çalışmalara ışık tutacak nitelikte olmakla birlikte kazanılan deneyim vasıtası ile X-ışınları, UV, elektron difraksiyonu ve diğer yüksek enerjili radyasyonun görüntülenmesinde kullanılabilecek farklı sensör ve detektörlerin tasarımı, test edilmesi ve prototip üretimi için gerekli teknolojik bilgi seviyesine ulaşılmıştır. Proje, farklı disiplinlerden araştırmacıların biraraya gelmesine olanak sağladığından bundan sonraki çalışmalar için zemin hazırlamış bulunmaktadır.

Bu projenin yürütülebilmesi için mali destek sağlayan TÜBİTAK'a teşekkür ederim. Proje önerisinin verilmesinden itibaren her adımda yakın ilgi ve desteklerini gördüğüm TÜBİTAK çalışanlarına ve raporları değerlendiren kıymetli bilim insanlarına teşekkür etmek isterim. Ayrıca, projede görev alan tüm araştırmacı, danışman, proje personeli ve bursiyerlere gösterdikleri üstün çalışma azimlerinden dolayı teşekkürü bir borç bilirim.

Doç.Dr. Behiye YÜKSEL

## İÇİNDEKİLER

1.	GIRIŞ		1
2.	GENEL BILGILER	R	3
	2.1 Sintilatörler		3
	2.1.1 İ	İnorganik Sintilatörler	3
	2.1.2	Organik Sintilatörler	4
	2.1.3	Sayısal X-Işınları Radyografi Detektörü Teknolojileri	10
		ve Fosfor Ekranlarının Detektör Teknolojilerindeki Yeri	
	2.2 Seramik Sintil	atör Malzemeleri Sentezleme Yöntemleri	14
	2.2.1 Sc	ol-Gel Proses Adımları	15
	2.2.2 Pe	echini Sol – Gel Yöntemi	17
	2.3 Fiziksel Buha	r Biriktirme (PVD) Yöntemleri	18
3.	GEREÇ ve YÖNT	EMLER	25
	3.1 Malzeme Sent	ezleme ve Üretim Prosedürleri	25
	3.1.1	Seramik İntilatörlerin Sentezlenmesi ve Magnetron	27
	312 8	utunlesik Eiber Ontik Plakaların Yüzev İslemleri	34
	3.1.2 D	nce Film Kanlama Ve Fosfor Ekran Üretimi	36
	3 2 Test Düzeneğ	i Gelistirme Calısmaları	38
	3.3 Test ve Karak	torizasyon Calısmaları	43
4		SMALAR	46
ч.	4 1 Sentezlenen S	Şuinzzon Seramik Sintilatörlerin XRD Karakterizasvonu	46
	4.2 Sentezlenen S	Seramik Sintilatörlerin SEM Karakterizasyonu	50
	4.3 Sentezlenen S	Seramik Sintilatörlerin RAMAN Karakterizasyonu	58
	4.4 Sentezlenen S	Seramik Sintilatörlerin XPS Karakterizasvonu	64
	4.5 Seramik Sintila	atörlerin Radyolüminesans Özelliklerinin	78
	nai antei izasyt		
	4.6 Fiber Optik Pla	akaların Yüzey Işlemlerinin Incelenmesi	81
	4.7 Büyütülen Sint	tilatör İnce Filmlerin Karakterizasyonu	83
	4.8 Üretilen Fosfo	r Ekranların Lateral Çözünürlüklerinin Tayini	91
	4.9 Detektörde Lat	teral Çözünürlülüğün Ölçülmesi	93
	4.10 Görüntü Kalit	esi Ölçümü	95

5. SONUÇLAR ve TARTIŞMA	102
6. KAYNAKLAR	104

### TABLO LİSTESİ

Tablo 2.1	İyi bilinen sintilatörlerin spektroskopik ve diğer özellikleri						
Tablo 3.1.	Malzeme sentezleme ve üretim ile ilgili çalışmalarda kullanılan	25					
	kimyasal ve diğer sarf malzemeleri						
Tablo 3.2.	Malzeme sentezleme ve üretimle ilgili çalışmalarda kullanılan cihazlar	26					
Tablo 3.3.	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tabanlı Eu ve Tb aktivatörle sentezlenen seramik sintilatörler	30					
Tablo 3.4.	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tabanlı Eu ve Tb aktivatörle sentezlenen seramik sintilatörler	31					
Tablo 3.5.	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tabanlı Eu ve Tb aktivatörle sentezlenen seramik sintilatörler	32					
Tablo 3.6.	İnce film olarak büyütülen sintilatör kompozisyonları 3						
Tablo 3.7.	Deney düzeneğinde yer alan cihaz, alet teçhizat ve yazılımlar						
Tablo 3.8.	Test ve malzeme karaktarizasyonu çalışmalarında kullanılan makine						
	ve teçhizatlar						
Tablo 4.1.	80 kV hızlandırma potansiyeli için elde edilen <i>IQFinv</i> sonuçları	97					
Tablo 4.2.	Medikal uygulamalara göre X-ışınları görüntüleme detektörlerinin beklenilen özellikleri	99					
Tablo 4.3.	Medikal uygulamalara göre sayısal X-ışınları görüntüleme detektörlerinin etkinlik karşılaştırması	101					

## ŞEKİL LİSTESİ

Şekil 2.1.	İnorganik kristaller için bant şeması	4
Şekil 2.2.	Jablonski enerji diyagramı	5
Şekil 2.3.	Sintilasyon dedektörü	6
Şekil 2.4.	Fosfor ekranlarda uzaysal dağılım çözünürlüğünü azaltmak üzere gerçekleştirilen çalışmalar; a) Bütünleşik fiber optik altlık kullanılması, b) Sintilatörün kolonsal olarak büyütülmesi olarak sıralanabilir. Bu çalışmada sunulan çözüm önerisi, c) Sintilatörün fiber optik altlığın sadece çekirdek fiberleri üzerinde seçimli olarak büyütülmesidir.	12
Şekil 2.5.	Metal alkoksitlerin hidroliz reaksiyonu	16
Şekil 2.6.	Alkol kondenzasyonu	16
Şekil 2.7.	Su kondenzasyonu	16
Şekil 2.8.	Sitrik asit ve etilen glikol transesterifikasyon reaksiyonu	18
Şekil 2.9.	Pechini sol-jel yöntemi	18
Şekil 2.10.	Buhar fazı kaplama yöntemleri	19
Şekil 3.1.	Seramik sintilatör toz hazırlama adımları; a) Yüksek saflıktaki oksit başlangıç tozları, b) Jelleşme adımı, c) Jelleştirilmiş nitrat çözeltileri, d) Kalsinasyon sonrası numune, e) Öğütülmüş ve alümina potalara sıkıştırılarak doldurulmuş kalıntılar, f)Termal işlemden sonrası numune görüntüsü.	29
Şekil 3.2.	Üretilen tozların peletlenme evreleri;a) 25 mm çelik kalıp, b) Pres, c)Kalıptan çıkartılmış pelet,d) Peletlerin sinterlemesi, e) Sinterlenmiş numuneler.	30
Şekil 3.3.	Sintelerme işlemi sonrasında sentezlenmiş magnetron hedeflerinin görüntüsü	34
Şekil 3.4.	Fiber optik plakaların yüzey modifikasyonu için izlenen ıslak işlem adımları	35
Şekil 3.5.	Vakum sisteminde magnetronların ve numunelerin yerleşimi, kaplama prosesi esnasında ark plazmasının oluşumu.	38
Şekil 3.6.	Deney düzeneği a) Ölçüm moduna göre cihaz ve aletlerin konfigürasyonu (Toz numunelerden ölçüm alınması için tüpün çıkışı entegrasyon küresine, fosfor ekrandan ölçüm almak için ise tablaya doğru çevrilmektedir, b) Deney düzeneğinin dıştan görüntüsü, c) Test düzeneğinin iç yüzey duvarlarının kurşun kaplaması ile bağlantı yüzeylerinin ek kurşun şeritler ile kapatılması, d) Test düzeneğinin kapağının oturduğu çerçeve ile kapak arasındaki boşluğu yalıtan ek kurşun çerçeve görüntüsü	41

Şekil 3.7.	Fosfor ekranların test edilmesinde a) USAF 1951 tipi çözünürlük test hedefini ortası boşaltılmış polikarbonat plakanın altına yerleştiriyor, b) Fosfor ekranın fosfor kaplı yüzü test hedefi hedefinin üzerine gelecek şekilde polikarbonat plakanın üzerine yerleştirilmektedir.	42
Şekil 4.1.	Gd2O3:Eu2O3 numunelerine ait XRD paterni	46
Şekil 4.2.	Gd2O3:Tb4O7 numunelerine ait XRD paterni	47
Şekil 4.3.	Lu2O3:Eu2O3 numunelerine ait XRD paterni	47
Şekil 4.4.	Lu2O3:Tb4O7 numunelerine ait XRD paterni	48
Şekil 4.5.	Y2O3:Eu2O3 numunelerine ait XRD paterni	49
Şekil 4.6.	Y2O3: Tb4O7 numunelerine ait XRD paterni	49
Şekil 4.7.	Gd₂O₃: Eu₂O₃ numunelerine ait SEM görüntüleri a) 26a nolu numune, b) 56 nolu numune, c)26b nolu numune, d) 19 nolu numune, e)26c nolu numune, f) 26d nolu numune.	50
Şekil 4.8.	Gd₂O₃: Tb₄O⁊ numunelerine ait SEM görüntüleri a) 72 nolu numune, b) 50 nolu numune, c)52 nolu numune, d) 953 nolu numune, e)54 nolu numune, f) 27a nolu numune, g) 27b nolu numune, h) 27c nolu numune	51
Şekil 4.9.	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> : Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> numunelerine ait SEM görüntüleri a) 73 nolu numune, b) 74 nolu numune, c)75 nolu numune, d) 76 nolu numune, e)77 nolu numune, f) 78 nolu numune, g) 79 nolu numune, h) 80 nolu numune, j) 81 nolu numune, k) 82 nolu numune, l) 83 nolu numune.	52
Şekil 4.10.	Lu₂O₃: Tb₄O⁊ numunelerine ait SEM görüntüleri a) 60 nolu, b) 61 nolu, c)62 nolu, d) 63 nolu, e)64 nolu, f) 65 nolu, g) 66 nolu, h) 67 nolu, j)68 nolu, k) 69 nolu numune	54
Şekil 4.11.	Yb2O3 : Eu2O3 numunelerine ait SEM görüntüleri a) 28a nolu numune, b) 92 nolu numune, c)93 nolu numune, d) 20 nolu numune, e)94 nolu numune, f) 28b nolu numune, g) 21 nolu numune	55
Şekil 4.12.	Yb₂O₃: Tb₄O⁊ numunelerine ait SEM görüntüleri a) 95nolu numune, b) 96 nolunumune, c)97 nolu numune, d) 98 nolu numune, e)99 nolu numune, f) 100 nolu numune, g) 101 nolu numune, h) 102 nolu numune, j)103 nolu numune, k) 104 nolu numune	56
Şekil 4.13.	26a numunesine ait RAMAN spektrumu	58
Şekil 4.14.	Gd2O3:Eu2O3 numunelerinin toplu RAMAN spektrumları	59
Şekil 4.15.	Lu2O3:Eu2O3 numunelerinin toplu RAMAN spektrumları	60
Şekil 4.16.	Y2O3:Eu2O3 numunelerinin toplu RAMAN spektrumları	61
Şekil 4.17.	51 nolu numuneye ait RAMAN spektrumu	62
Şekil 4.18.	Gd2O3:Tb4O7 numunelerinin toplu RAMAN spektrumları	62
Şekil 4.19.	Lu2O3:Tb4O7 numunelerinin toplu RAMAN spektrumları	63

Şekil 4.20.	Y2O3:Tb4O7 numunelerinin toplu RAMAN spektrumları	64
Şekil 4.21.	Gd2O3:Eu2O3 numunelerinin toplu XPS sonuçları	64
Şekil 4.22.	Gd2O3:Eu2O3 yüksek çözünürlüklü XPS analizleri	65
Şekil 4.23.	Lu2O3:Eu2O3 numunelerinin toplu XPS sonuçları	66
Şekil 4.24.	Lu2O3:Eu2O3 yüksek çözünürlüklü XPS analizleri	66
Şekil 4.25.	Gd2O3:Tb4O7 numunelerinin toplu XPS sonuçları	67
Şekil 4.26.	Gd2O3:Tb4O7 yüksek çözünürlüklü XPS analizler	67
Şekil 4.27.	Lu2O3:Tb4O7 numunelerinin toplu XPS sonuçları	68
Şekil 4.28.	Lu2O3:Tb4O7 Yüksek Çözünürlüklü XPS Analizleri	69
Şekil 4.29	Seçilen Gd₂O₃:Eu kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 12-0797numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Gd2O3 ve <sup>*</sup> 43- 1015 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan monoklinik Gd₂O₃.	69
Şekil 4.30	Seçilen Gd₂O₃:Tb kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 12-0797 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Gd₂O₃.	70
Şekil 4.31	Seçilen Y₂O₃:Eu kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-1036 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Y₂O₃.	71
Şekil 4.32	Seçilen Y₂O₃:Tb kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-1036 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Y₂O₃.	72
Şekil 4.33	Seçilen Lu₂O₃:Eu kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-4021 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Lu₂O₃.	72
Şekil 4.34	Seçilen Lu₂O₃:Tb kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-4021 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Lu₂O₃.	73
Şekil 4.35	XRD analizleri esnasında numune yüzeyinde gözle görülebilen radyolüminesans etki. Avroyum katkılı sintilatörlerde pembe/kırmızı arası, Tb katkılı sintilatörlerde ise yeşil renkte gözlemlenmiştir.	74
Şekil 4.36	Sırasıyla Gd2O3:Eu, Lu2O3:Eu ve Y2O3:Eu tozların 632,8nm ve 532nm lazer kullanılarak alınan RAMAN spektrumları.	75
Şekil 4.37	Sırasıyla Gd2O3:Tb, Lu2O3:Tb ve Y2O3:Tb tozların 632,8nm ve 532nm lazer kullanılarak alınan RAMAN spektrumları	77
Şekil 4.38	Seramik sintilatörlerin emisyon şiddetlerini konak malzemelere göre karşılaştırılması.	79
Şekil 4.39	Her konak/katkı sistemi için en yüksek verimi sergileyen kompozisyonlar	80
Şekil 4.40.	En yüksek verim sağlayan numunelerin ışıma spektrumları	81

Şekil 4.41.	Seyreltik HF çözeltilerinin kullanıldığı numunelerde seçimli çözme işlemi çekirdek fiberlerin cam matrise göre daha hızla çözülmesi ve bütünleşik fiber optik plakaların yüzeyinde mikro kuyuların elde edilmesiyle sonuçlanmıştır a). Bu numunenin yüksek çözünürlüklü mikrografında	82
	b) soğurucu fiberlerin en yüksek hızda çözülen kompozisyon olduğu görülüyor	

- Şekil 4.42. Yüksek konsantrasyonlu HF çözeltisiyle yüzeyi dağlanmış numune 82
- Şekil 4.43. Hazırlanan NH4F içeren tampon çözeltisi için ise bu projenin 83 amaçlarına uygun olacak şekilde çekirdek fiberler korunarak matris seçimli olarak çözülmüştür a). Bu numunenin yüksek çözünürlüklü mikrografında b) matrisin açılı olarak çözüldüğü görülüyor.
- Şekil 4.44. Cam altlık üzerine büyütülmüş transparandır sintilatör filmler. 83
- Şekil 4.45. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb filmlerin X-ışınları difraksiyon paternleri. 84
- Şekil 4.46. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb filmlerin X-ışınları difraksiyon paternleri. 85
- Şekil 4.47. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> kaplamalara ait yüzey ve kesit SEM görüntüleri 86
- Şekil 4.48. %4.85 oranında Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile katkılanmış Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> filmlerin kesit (50kx) ve 86 yüzey morfolojileri (30kx-50kx-100kx).
- Şekil 4.49. Farklı Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> içeriğine sahip Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kaplamaların kesit ve 87 yüzey morfolojileri
- Şekil 4.50. Sırasıyla 30W (a), 45W (b), 60W (c) ve 75W (d) katot güçlerinde 88 biriktirilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerin kırık kesit ve yüzey ikincil elektron mikrografları.
- Şekil 4.51. 75W katot gücüyle biriktirilmiş Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerinin kırık kesit 88 mikrografları üzerinden kalınlık ve kolon çaplarının ölçülmesi
- Şekil 4.52. Biriktirilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerin X-ışınları difraksiyon analizi 89 sonuçları
- Şekil 4.53 Biriktirilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerinin ince filmlerin radyoluminesans 90 özellikleri; a) Tüm ince filmlerin ışıma spektrumları benzerdir. Eu<sup>+3</sup> iyondan kaynaklanan karakteriztik pikler spektrumda görünmektedir. B) Tümü 30 dakika süreyle kaplanan Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> filmlerin emisyon şiddetleri ve katot gücü, dolayısıla film kalığı arasındaki ilişkisi. Film kalınlığı şekil üzerinde gösterilmiştir.
- Şekil 4.54 Biriktirilen %5 atomik oranda Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> katkılandırılmış Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmin
  90 durulma zamanları ve kalıntı ışımalarının ölçümü.
- Şekil 4.55. Konvansiyonel ve yüzeyi işlenmiş fiber optik plakalar üzerinde 91 Lu2O3:Eu ince filmler ve alüminyum katmanlar büyüterek üretilmiş fosfor ekranlar.
- Şekil 4.56. Lateral çözünürlük analizi için kullanılan USAF 1951 tipi test hedefi. 92 Sağdaki şekilde çizgi gruplarını tanımlayan element ve grup numaraları

görülüyor. Tabloda hedefin grup ve elementlerine göre çözünürlük değerleri verilmiştir.

- Şekil 4.57. Hedefin mikroskop görüntüleri içerisinden ışık geçirilerek doğrudan 93 hedef yüzeyinden (1) ve X-ışınları geçirilerek konvansiyonel fosfor ekran (2) ve geliştirilmiş fosfor ekran (3) yüzeylerinden alınan görüntüler. a) 3/6, 3/5 ve 3/4 çizgi grupları b)3/2 ve 3/2 çizgi grupları c) 2/2 çizgi grupları
- Şekil 4.58. USAF 1951 tipi çözünürlük ölçüm hedefinin a) 40 kV/1600 W, b) 94 30kV/1200 W ve c)20kV/800W tüp güçlerinde alınmış X-ışınları radyografları. Sol tarafta hedefin tamamının görüntüsü, sağ tarafta ise 2 ve 3 numaralı çizgi gruplarının dijital olarak büyütülmüş görünümü verilmiştir.
- Şekil 4.59. CDRAD 2.0 matrisinin dağılımı ve genel görünümü 95
- Şekil 4.60. Kontrast-ayrıntı fantomunun birleştirilmiş ve dönüştürülmüş radyografı 97 ve CDRAD yazılımı kullanılarak hesaplatılmış *IQFinv* diyagramı.
- Şekil 4.61. Optik yollarla fosfor ekran eşleştirilmiş CCD alan detektörü örnekleri 100

#### ÖZET

Fosfor ekranlar, en basit yapısı ile bir yüzeylerine fosfor film kaplanmış ışık geçirgen plakalardır. Film kaplı yüzeyine X-ışınları ve yüksek enerjili parçacıklar düştüğünde görünür dalgaboylarında ışık yayımlanır ve altlığın diğer yüzeyinde görüntülenebilir. Fosfor ekranlar kaplama teknolojilerine göre iki temel sınıfa ayrılır. Bunlar toz ekranlar ve vakumda büyütülmüş fosfor filmlerdir. Toz ekranlar, polimer bağlayıcı içerisinde dağıtılmış seramik tozlarının altlık yüzeye sıvı fazdan kaplanması ve katılaştırılması ile üretilir. Vakumda büyütülmüş fosfor ekranlar ise genellikle RF manyetik alanda sıçratma tekniği ile üretilirler. Konvansiyonel fosfor ekranlarda genellikle Csl:Na, Csl:Tl gibi sintilatör kristaller veya Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb gibi seramik sintilatörlere yer verilmektedir. Fosfor ekranların lateral çözünürlükleri radyolüminesans filmin morfolojisine bağlı olduğu kadar kullanılan ışık geçirgen altlık ile de ilintilidir. Cam, tek kristaller ve bütünleşik fiber-optikler altlık olarak kullanılmaktadır. Fosfor film ile X-ışınlarının etkileşimi sonucunda oluşan ışıma her yönde yayılmaktadır. Işığın hem film içindeki hem de cam altlık içerisindeki saçılması fosfor ekranların çözünürlüğü üzerindeki temel etmenlerdir. Bütünleşik fiber optik plakalar farklı kompozisyonlardaki cam matris ve ışığı ileten cam fiberlerden müteşekkildir.

Gerçekleştirilen çalışmada fiber optik plakalar üzerinde özel mikro patern oluşturulması ve sintilatör filmlerin bu mikroyapı üzerinde büyütülerek yüksek çözünürlüklü fosfor ekranların geliştirilmesi amaçlanmıştır. Proje kapsamında X-ışınlarına karşı yüksek kütlesel soğurma sergileyen seramik sintilatörlerin hazırlanması, bu malzemelerin fosfor ekranların üretiminde kullanılması, üretilen mikro-paternli fosfor ekranlar ile konseptin doğrulanmasını amaçlayan CCD alan detektör prototipinin geliştirilmesi hedeflenmiştir. Çalışma kapsamında mikro-paternli fosfor ekran konsepti deneysel bir X-ışını görüntüleme detektörü yapısında kullanılarak test edilmiş ve konsept doğrulanmıştır. Geliştirilen malzeme ve detektör teknolojisi öncelikli olarak X-ışınları görüntüleme uygulamalarında kullanılabilir özellikler sergilemektedir. Hali hazırda geliştirilmiş olan cihaz küçük açı X-ışınları difraksiyonu detektörü olarak kullanılabilir nitelik göstermektedir.

**Anahtar Kelimeler:** X-ışınları, Radyografi, Sintilatör, Fosfor Ekran, Bütünleşik Fiber Optikler, Uzaysal Dağılım Çözünürlüğü

#### SUMMARY

A phosphor screens is simply an optically transparent substrate coated with radioluminescent phosphor film. Visible light can be observed from the uncoated surface of the substrate when X-ray or high-energy particles illuminate the phosphor film. Phosphor screens can be classified as powder or vacuum coated screens. Phosphor screens are produced by coating luminescent powder particles dispersed in highly optically transparent organic binder. Vacuum coated phosphor films are usually deposited by RF magnetron sputtering technique. Scintillators as CsI:Na, CsI:TI and ceramic scintillators as Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb are the most common materials used in conventional phosphor screens. Lateral resolution of a phosphor screen is related with morphology of radioluminescent film and microstructure of transparent substrate. Glass, single crystals and fused fibre optic plates are usually chosen as substrates for phosphor screens.

Improvement of lateral resolution of phosphor screens by developing special micro pattern on the surface of fused fibre optic plates is aimed in this work. Developing ceramic X-ray scintillators which represents high mass absorption coefficient, produce micro patterned phosphor screens using these phosphors and design a CCD field detector prototype which is equipped with improved phosphor screen are other studies involved by this project. The micro-patterned phosphor screen concept was tested using an experimental X-ray imaging detector construction and the concept was verified. The developed material and detector technology shown that it may primarily used for X-ray imaging applications. In addition to that, developed device can be used as a small angle X-ray diffraction detector. This detector has potential to be used in medical and industrial X-ray imaging applications by optimizing screen size used and optical coupling elements.

Key Words: X-rays, Radiography, Phosphor Screen, Fused Fiberoptics, Spatial Resolution.

#### 1. GİRİŞ

X-ışınlarının Wilhelm Konrad Röntgen tarafından ilk kez fotoğraf filmi üzerinde görüntü oluşturduğu 1895 yılından bu güne kadar; radyografi teknikleri, medikal görüntüleme, endüstriyel görüntüleme ve tahribatsız muayene, güvenlik ve bilimsel araştırmalar alanlarında vaz geçilmez uygulamalar vermiştir. X-ışınları ile aydınlatıldığında görünür renklerde ışık saçan fosfor malzemeler ve fosfor ekranların X-ışınlarının belirlenmesinde ve görüntülenmesinde kullanımı en eski tekniklerden biridir. Fosfor ekranlar, üzerine sintilatör film kaplanmış ışık geçirgen altlıklardır. Filmin üzerine X-ışınları düştüğünde görünür ışık oluşur ve altlığın diğer yüzünden gözlemlenebilir. Genellikle sintilatör film üzerine ayna görevi gören alüminyum film kaplanır.

X-ışını fosforları sayısal radyografi tekniklerinde yerlerini korumaktadırlar. Medikal radyolojide hızla yaygınlaşan ve konvansiyonel röntgen filmlerinin yerini alan silisyum tabanlı yarıiletken sayısal X-ışını görüntüleme detektörlerinde sintilatör filmlere ve fosfor ekranlara yer verilmektedir. Sintilatör filmler yarıiletken ışık alıcılarının üzerinde büyütülmekte veya fosfor ekran alıcı dizinine yapıştırılarak kullanılmaktadır.

Fosfor ekranlar hali hazırda X-ışını, yüksek enerjili radyasyon ve yüklü parçacıkların tespiti ve görüntülenmesinde üretim kolaylığı ve düşük maliyetleri ile etkin bir çözüm sunmaktadır. Özellikle CMOS sensör ve kamera teknolojilerinde son dönemde gerçekleşen teknolojik ilerleme, düşük ışık şartlarında yüksek kaliteli görüntü elde edebilmeyi mümkün kılmaktadır. Fosfor ekranların optik yollar ile gelişkin CMOS kameralar ile eşlenmesi yoluyla maliyet etkin X-ışınları alan detektörleri üretilebilir. Bununla beraber fosfor ekranların radyoloji ve diğer alanlardaki kullanımını kısıtlayan temel etmenler ise ekranların çözünürlüğü ve kuantum verimleridir. Fosfor ekranların bu zayıflıkları iyileştirilerek iyi bilinen ve kendini kanıtlamış malzeme ve tekniklerle yeni nesil detektörlerin geliştirilmesi mümkündür.

Fosfor ekranların geliştirilmesinin yolu malzeme bilimleri ve fizik disiplinlerinde gerçekleştirilmesi gereken bilimsel çalışmalardan geçmektedir. Yüksek çözünürlüklü fosfor ekranlar üretmenin en iyi bilinen yolu sintilatör filmlerin bütünleşik fiber optik plakalar üzerinde büyütülmesidir. Fosfor ekranlarda çözünürlüğü sınırlandıran asıl etmen, sintilatör filmde oluşan ışımanın her yönde dağılmasıdır. Sintilatör film içinde ve cam altlıkta saçılarak yayılan ışıma lateral (enine) çözünürlük üzerinde bozucu etki yapar. Bütünleşik fiber optik plakaların fiberli yapısı ışığın dağılmadan fosfor ekranın diğer yüzüne taşınmasını sağlayarak

çözünürlük üzerindeki altlıktan kaynaklanan bozucu etmenleri ortadan kaldırır veya azaltır. Ancak bu durum filmin içerisindeki saçılmaları engellemez. Alüminyum arka ayna, film içindeki saçılmaları arttırarak çözünürlüğün daha da azalmasına neden olur. Filmden kaynaklı bozucu etkiyi azaltmanın en iyi bilinen yolu film kalınlığını azaltmaktır. Ancak bu durumda X-ışınlarının çoğunluğu soğrulmadan geçer ve ekranın verimi önemli ölçüde azalır. Fosfor ekranların çözünürlüğünü arttırmak için yapılan önemli araştırmalar sintilatör filmin litografi teknikleri kullanılarak mikro bölmelere ayrılmasına (mikro patern oluşturma) odaklanmıştır.

Bu projede fosfor ekran teknolojilerine dair yeni bir konsept geliştirilerek doğrulanmıştır. Yüzeyi özel olarak işlenmiş fiber optik plakalar hazırlayıp bu plakaların üzerinde sintilatör filmlerin büyütülmesi yoluyla herhangi bir litografi yöntemine ihtiyaç duyulmadan mikro paternlenmiş fosfor ekranların üretilmesi hedefine ulaşılmıştır. Proje kapsamında yüksek verimli fosfor ekranların üretiminde kullanılacak, mevcut seramik ve kristal sintilatörlerden daha verimli malzemeler geliştirilmesine dair çalışmalar da bulunmaktadır. Bu projede farklı disiplinlerde çalışmalar üniversite, araştırma kurumları ve mikro-KOBİ tarafından bir arada yürütülmüştür. Yürütülen deneysel çalışmalar kapsamında sadece malzeme sentezleme, ince film kaplama ve malzeme karakterizasyonu değil bir radyoloji detektörünün tasarımı ve fosfor ekranların test edilmesine dair özgün yöntemler ortaya çıkartılmıştır. Elde edilen deneyim, X-ışınları, UV, elektron difraksiyonu ve diğer yüksek enerjili radyasyonun görüntülenmesinde kullanılabilecek farklı sensör ve detektörlerin tasarımı, test edilmesi ve prototip üretimi için taban sağlamaktadır.

#### 2. GENEL BİLGİLER

#### 2.1 Sintilatörler

Sintilatörler, X-ışınları ve diğer yüksek enerjili radyasyonu soğuran ve görünür ışık dalgaboylarında yayımlayan lüninesant malzemelerdir. Sinitilatör malzemesi olarak tek kristaller, polikristal seramikler, camlar, tozlar, plastikler ve soy gazlar gibi farklı niteliklerdeki malzemeleri kullanmak mümkün olmakla birlikte en genel anlamda sintilatör malzemeleri organik ve inorganik olmak üzere iki ana gruba ayrılmaktadır. Hiç kuşkusuz bu iki ana grup için sintilazisyon mekanizmaları da farklılık göstermektedir.

#### 2.1.1 İnorganik Sintilatörler

İnorganik sintilatörler arasında en yaygın kullanılanı alkali metallerin tek kristaleri olup talyum katkılandırılmış sodyum iodid (Nal:TI), talyum katkılandırılmış sezyum iyodür (Csl:TI), kadmiyum volframat (CdWO<sub>4</sub>) ve bizmut germanat (Bi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub>) yaygın olarak kullanılan tek kristal sintilatörlerine örnek olarak verilebilir [Rowlands, 2002; Grabmaier, 1983]. Bunlar arasında en çok kullanılan Nal:Tl olup en iyi X-ışınları ve gama algılayıcısı olarak kullanılmaktadır. Talyum ile aktivite edilmiş sodyum iyodür Nal:TI en küçük ışıltı kristalidir (Tsoulfanidis, 1995; Olçay, 2007). Yaygın kullanımı olan bir diğer sintilatör ise Csl:Tl olup oda sıcaklığında Nal(TI)' den % 10 dan daha düsük mertebelerde ışık cıkısı verecek sekilde kullanılabilir. Ancak diğerlerine göre şok dayanımı ve Nal:TI 'e göre de emme katsayısı daha yüksektir. Bu iki avantajdan dolayı da uzay taşıtlarında ve uydularda kullanılmaktadır (Olçay, 2007). İnorganik sintilatörler sınıfına giren seramik sintilatörler ise polikristalin yapıdaki oksit ve oksisülfür bileşiklerinden oluşmaktadır. Dünya genelindeki eğilim, konak olarak belirlenen bir kristalinin çok düşük konsantrasyonlarda aktivatör iyonları ile katkılandırılması ile üretilmesidir [Schaefer vd., 1989]. Evropiyum ve praseodimyum katkılı itriyum gadolinyum oksit [(Y,Gd)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu,Pr], seryum katkılı itriyum alüminat (YAIO<sub>3</sub>:Ce), seryum katkılı baryum hafniyum oksit (BaHfO<sub>3</sub>:Ce), terbiyum katkılı gadolinyum oksisülfür (Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb), seryum katkılı lütesyum alüminat (LuAlO3:Ce) uygulama imkanı bulmuş ve en çok çalışılmış örneklerdir [Eijk, 1997; Eijk, 2003; Greskovich ve Duclos, 1997; Derenzo vd., 2003; Canning vd., 2011; Kandarakis vd., 1998].

Saf bir inorganik kristalin enerji durumu elektronların bulunduğu enerji düzeyleri göz önüne alınarak Şekil 2.1'de bant şeması olarak verilmiştir. Valans bandı bağlı elektronların bulunduğu enerji konumunu, iletkenlik bandı ise serbest elektronların bulunduğu konumu göstermektedir. Valans bandındaki bir elektronu iletkenlik bandına çıkarmak için elektrona belli bir enerji vermek gerekmektedir. Bu enerjinin büyüklüğü yasak bant genişliği ile ilintilidir.



Şekil 2.1. İnorganik kristaller için bant şeması [Tapan, 2011].

Detektöre gelen radyasyon etkileşmeler yaparak enerji kaybederken kristal atomlarını uyararak elektronların uyarım (eksiton) bandına çıkmasını sağlar ya da elektron kopartarak elektron ve boşluklardan oluşan yük çiftleri meydana getirir. Kristale bir potansiyel fark uygulanarak elektriksel alan oluşturulduğunda elektronların bu alana ters yönde hareket etmeleri sağlanır. Elektron- boşluk birleşmesi sırasında veya elektron uyarılmış düzeyden taban düzeye dönerken kristale aktarılan enerjinin bir kısmı o bölgede bir foton olarak açığa çıkar. Bu ışın ya kristal tarafından soğurularak kristal vibrasyonu sonucu ısıya dönüşür ya da kristalden kaçar ki bu da sintilasyondur [Yener, 2006]. Kristale eser miktarda uygun bir safsızlık (aktivatör) eklenmesi halinde kristalin valans ve iletkenlik bandı arasında yeni enerji düzeylerinin oluşumu teşvik edilmiş olunur. Böyle katkılı (extrinsic) kristalde aktivatör atomları radyasyonun kopardığı elektronları tuzaklayarak veya bir eksitonun taban formuna geçerken yayınladığı bir fotonu soğurarak uyarılmış hale geçer. Aktivatörün bant yapısı kristalden farklı olduğu için uyarılmış aktivatör atomu taban düzeye geçerken salınan parıldama fotonu kristal tarafından soğurulamaz [Yener, 2006].

#### 2.1.2 Organik Sintilatörler

İnorganik sintilatörlere kıyasla, plastik sintilatörlerin tepki süreleri çok daha kısadır fakat ışık verimleri daha azdır. Organik sintilatörlerde moleküller arası etkileşmeler nispeten zayıftır. Elektronlar daha yüksek enerjili duruma geçebilirler ve moleküldeki atomlar titreşebilirler.

Titreşim enerji aralığı 0.1 eV iken elektronik uyarılma enerjileri için bu aralık birkaç eV civarındadır. Organik sintilatörler uygun bileşiklerin birleşimiyle şekillenir [Oliver ve Knoll, 1968].

Organik kristallerde bazı elektronlar kuvvetli bağ yaparken bazıları çok daha gevşektir. Örneğin benzen hidrokarbonlarda karbonun dört değerlik elektronundan üç tanesi karbonlar arasında kuvvetli bir şekilde bağlanmışken ( $\sigma$  orbitalleri), dördüncü elektron ( $\pi$  orbitali) sıkı bir şekilde bağlanmamıştır. Gevşek bağlı olan  $\pi$  elektronu sintilasyon işlemini gerçekleştirir. Organik bir kristalde enerji absorpsiyonu, bir valans(değerlik) elektronun en düşük elektronik titreşimsel enerji seviyesinden, uyarılmış elektronik enerji seviyelerinin herhangi bir titreşimsel enerji seviyesine geçişinde gözlenir. Işığın absorpsiyonu ile bir üst elektronik enerji seviyesinde bulunan molekülün, kararlı hali olan temel hale (S<sub>0</sub> enerji seviyesi) geçmesi için mümkün olan iki yol vardır (Şekil 2.2). Bunlardan biri ışımasız geçiş(nonradiative relaxation) olup sistem aldığı enerjiyi çevresine ısı olarak verir, diğeri ise floresans ve fosforesans olarak bilinen ışımalı geçişlerdir.



Şekil 2.2. Jablonski enerji diyagramı [Chemistry Libretexts, 2018]

Floresans, singlet uyarılmış (Excited Singlet States; S1, S2) seviyelerden, fosforesans ise triplet uyarılmış(Excited Triplet State; T1) seviyeden, singlet taban(Ground State; S0)

seviyeye olan elektronik geçişleri temsil eder. Singlet ve triplet uyarılmış haller elektron spini bakımından farklıdır. Singlet uyarılmış halde elektron spinleri zıt yönlü, triplet uyarılmış halde elektronların spinleri ise birbirine paralel yöndedir [Engin, 2012].

- Floresans: Uyarılmış durumda bulunan elektron titreşimsel enerjisini kaybederek uyarılmış enerji seviyeleri arasından en düşük enerji olan seviyeye iner. Bu noktada elektron enerjisini floresans yaparak temel hale geri döner [Rhys Williams, 2000].
- Fosforesans: Uyarılmış halden temel hale dönüş durumu esnasında fosforesans görülebilir. Sistemler arası geçiş esnasında elektron spin değiştirerek triplet hale geçer ve bu durumda daha düşük enerjili temel hale geçiş iç dönüşüm veya fosforesansla sağlanabilir. Ancak triplet halden singlet hale geçiş ihtimali singlet – singlet geçiş ihtimalinden çok daha azdır. Triplet haldeki elektron bu seviyede singlet halden daha uzun süre kalır. Bu nedenle elektronu uyaran enerji kesilse bile emisyon devam eder [Skoog vd., 2018].

Sintilatörden çıkan düşük verimdeki ışığın elektrik pulsuna çevrilmesi işlemi ise bir fotodedektör(ışığa duyarlı yüzeyi = fotokatot) ile kuplajı olan fotoçoğaltıcı tüp ile gerçekleşir (Şekil 2.3). Fotokatota, sintilasyon ışık fotonlarının fotoelektrik olay ile düşük enerjide elektronları sökmesiyle dönüşüm gerçekleşir.



#### Şekil 2.3. Sintilasyon dedektörü

Başlangıçta oluşan fotoelektronların sayısı gelen radyasyonun enrjisine bağlı olarak sadece birkaç yüz tane olduğundan bu pulsun elektronik devrede kullanılması mümkün değildir. Tüpün dynotlarda (dynode) oluşan elektron çoğaltıcı kısmında elektronların sayısı arttırılır. Elektronlar, elektrik alan sayesinde dynot adı verilen metal bir plakaya doğru hızlandırılır. Dynota çarpan elektronlar, birçok yeni elektronun serbest bırakılmasını sağlarlar. İlk dynottan fırlatılan elektronlar, elektrik alan sayesinde ikinci dynota hareket eder ve bu böylece devam eder. Her dynot, bir öncekinden daha yüksek potansiyeldedir. Ortalama olarak bir fotoçoğaltıcı tüpte 10- 12 dynot bulunur. Tipik bir sintilasyon pulsunda 10<sup>7</sup>-10<sup>10</sup> elektron vardır. Bu elektriksel yük, fotoçoğaltıcı tüpün anotunda elde edilir ve tüm süre nanosaniye (10<sup>-9</sup> s) mertebesindedir. Fotoçoğaltıcı tüplerde elektron çoğalması lineerdir yani anotta oluşan pulsun genliği fotokatotdaki orijinal elektron sayısı ile orantılıdır. [Engin, 2012].

Günümüzde sintilatörler tıbbi görüntülemede, dozimetride, güvenlik ve kontrol amaçlı uygulamalarda, petrol ve gaz keşif işlemlerinde, nükleer tıp yüksek enerji fiziği gibi alanlarda yaygın olarak kullanılabilmektedir. Bunların dışında, X-ışınları, nötronlar, elektron ve iyon demetlerinin teşhis ve karakterizasyon amaçlı belirlenmesi, görüntülenmesi enerjilerinin ve şiddetlerinin ölçülmesi ilkesine dayanan endüstriyel uygulamalarda da kullanılmaktadırlar.

Teknolojik uygulamalara uygun bir sintilatörün beklenen özellikleri aşağıda sıralanmıştır;

- Optik geçirgenlik: X-ışınlarının büyük kısmı sintilatöre düştükleri yüzeyde soğurulurlar. Ortaya çıkan görünür ışığın algılanabilmesi için sintilatör içerisinde yol alarak detektöre çiftlenmiş yüzeye ulaşması gerekmektedir. Bu durum, sintilatörün görünür dalgaboylarındaki optik geçirgenliğinin yüksek olması ihtiyacını ortaya çıkarmaktadır [Greskovıch ve Duclos, 1997].
- X-ışınları durdurma gücü: Bir sintilatörün X-ışınlarını durdurma gücü kütlesel soğurmaya bağlıdır. Atom numarası yüksek elementlerden sentezlenmiş sintilatörler daha yüksek durdurma gücüne sahiptirler. Yüksek X-ışını durdurma gücü, X-ışını fotonlarının soğrulması olasılığını, dolayısı ile malzeme içerisinde eksiton oluşturma ve lüminesant merkezlerin uyarılabilmesi olasılığını da arttıracak, çevrim veriminin yükselmesi ile sonuçlanacaktır [Blasse, 1994].
- Kuantum verimi: Sintilatörün birim zamanda soğurduğu X-ışını fotonu miktarı ile yayımladığı görünür ışık fotonlarının birbirine göre olan oranıdır. Bu oranın yüksekliği sintilatörün ve kullanıldığı detektörün verimini etkilemektedir [Greskovıch ve Duclos, 1997].
- Bozunma zamanı ve geç ışıma (afterglow): Görüntüleme uygulamalarında kullanılan sintilatörlerde tepki süresi kritiktir. Emisyondaki gecikme görüntü kalitesi ve çözünürlüğünü etkileyebilir. Emisyondaki gecikmede etkin olan iki mekanizma

bulunmaktadır. Bunların ilki bozunma zamanıdır. Bozunma zamanı, aktivatörün uyarılmış düzeyinden taban düzeyine ışımalı geçişi için gerekli olan zamandır. Diğer mekanizma olan geç ışıma, kristal hataları ve safsızlıkların iyonlaştırıcı radyasyonun ürettiği elektron ve hollerin tuzaklanmasına sebep olmasından kaynaklanmaktadır. Elektron ve holler bu tuzaklarda bozunma zamanından çok daha uzun süreler boyunca kalarak durulmalarını geciktirirler [Greskovich ve Duclos, 1997].

Radyasyon hasarı: Sintilatörün veriminin uygulanan X-ışını dozuna bağlı olarak değişikliğe uğramasıdır. Radyasyon hasarı X-ışınlarının kristal hataları oluşturmasından kaynaklanmaktadır. Bu hatalar genellikle sintilatörün emisyon dalgaboylarında optik soğurma sergileyen renk merkezleridir [Greskovich ve Duclos, 1997].

Bu özelliklerin tümü bir sintilatörün biyomedikal görüntüleme tekniklerinde kullanılıp kullanılmayacağını belirleyen faktörlerdir. Literatürde özellikleri raporlanmış sintilatörler Tablo 2.1'de verilmiştir. Bir sintilatörün X-ışınları soğurma karakteri yoğunluğuna ( $\rho$ ) ve efektif atom numarasına (Z<sub>deff</sub>) bağlıdır. Soğrulan X-ışınlarının, ışık olarak yayımlanması ise doğrudan malzemenin kuantum verimi ile alakalıdır.

Sintilatör malzeme	Yoğunluk (g/cm³)	<b>ρΖd</b> <sub>eff</sub> (x10 <sup>6</sup> )	Higroskopik özellik gösterme	Bozunma zamanı (ns)	Emisyon tepe λ (nm)	lşıma verimi (foton/MeV)
Nal:Tl	3,67	24,5	Evet	230	410	41000
LaCl <sub>3</sub> :Ce	3,86	23,2	Evet	25	330	46000
Csl:Na	4,51	38	Evet	630	420	40000
CsI:TI	4,51	38	Evet	800-6x10 <sup>3</sup>	550	66000
LaBr <sub>3</sub> :Ce	5,3	25,6	Evet	35	358	61000
YAIO3:Ce (YAP)	5,5	7	Hayır	30	350	21000
Y <sub>1.34</sub> ,Gd <sub>0.60</sub> O <sub>3</sub> : (Eu,Pr) <sub>0.06</sub>	5,9	44	Hayır	1x10 <sup>6</sup>	610	42000
CaWO <sub>4</sub>	6,1	89	Hayır	-	420	20000
Gd <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> :Ce (GSO)	6,7	84	Hayır	60	440	8000
Bi <sub>4</sub> Ge <sub>3</sub> O <sub>12</sub> (BGO)	7,1	227	Hayır	300	480	9000

Tablo 2.1. İyi bilinen sintilatörlerin spektroskopik ve diğer özellikleri

Gd₃Ga₅O <sub>12</sub> :Cr ,Ce	7,1	58	Hayır	1,4x10⁵	730	40000
Gd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S:Tb	7,3	103	Hayır	1x10 <sup>6</sup>	545	60000
Gd <sub>2</sub> O <sub>2</sub> S:Pr,Ce ,F	7,3	103	Hayır	4x10 <sup>3</sup>	510	35000
$Gd_2O_2S$ :Pr	7,3	103	Hayır	3x10 <sup>3</sup>	510	50000
Lu₂SiO₅:Ce (LSO)	7,4	143	Hayır	40	420	26000
YTaO₄:Nb	7,5	96	Hayır	-	410	40000
CaHfO <sub>3</sub> :Ce	7,5	139	Hayır	40	390	10000
SrHfO3:Ce	7,7	122	Hayır	40	390	20000
CdWO <sub>4</sub>	7,9	134	Hayır	5x10 <sup>3</sup>	495	20000
BaHfO <sub>3</sub> :Ce	8,4	142	Hayır	25	400	10000
Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu,Tb	9,4	211	Hayır	>10 <sup>6</sup>	611	30000

Dünya genelindeki eğilim, konak olarak belirlenen bir kristalin aktivatör iyonlarla katkılandırılmalarıyla üretilmeleridir [Schaefer vd., 1989]. Aktivatör iyon etkisi sayesinde elektron ve holler aynı lüminesant iyonda tuzaklanırlar. Ce<sup>3+</sup> iyonları için 5d-4f, Eu<sup>3+</sup> için ise 5d-7f orbitalleri arasındaki geçişler d ve f durumlarının zıt paritelerinin yarattığı elektrik dipolü sayesinde izinlidir. Bu iyonlar ile katkılandırılmış inorganik sintilatörlerde belirtilen geçişlerin karakteristik emisyonu görülmektedir. Lantanit serisinde görülen 5d-4f geçişleri 20 ns gibi kısa bir bozunma zamanı sergilemektedir [Derenzo vd., 2003; Canning vd., 2011; Kandarakıs vd., 1998]. Seramik sintilatörler tek kristallere göre üretim kolaylığı ve kompleks kompozisyonların sentezlenebilmesi, cam ve plastiklere göre ise yüksek yoğunluk ve yüksek X-ışınları durdurma gücü gibi avantajlar sergilemektedirler [Greskovich ve Duclos, 1997; Weber, 2002]. Bu mekanizmalar göz önüne alındığında yüksek verimli ve hızlı inorganik sintilatörlerin geliştirilmesine dair arayışta akademik ve bilimsel çalışmaların, lantanit serisindeki elementlerin özellikle 5d-4f geçişleri gerçekleştiren iyonları ile katkılanmış kristaller üzerine yoğunlaşması anlamlıdır. X-ışınları detektör yapılarında kullanılacak sintilatörlerin aranan özellikler arasında kısa bozunma zamanı ve düşük geç ışıma oranıdır. Bu özellikler, tomografi gibi gerçek zamanlı medikal görüntüleme teknikleri için önem arzetmektedir.

# 2.1.3 Sayısal X-Işınları Radyografi Detektörü Teknolojileri Ve Fosfor Ekranlarının Detektör Teknolojilerindeki Yeri

X-ışınlarını dolaylı algılayan sayısal detektörler dayandıkları teknolojiler ve sistem elemanları bakımından iki sınıfta toplanabilirler. Bunlar yassı panel detektörler ve CCD alan X-ışını detektörleridir [Yaffe ve Rowlands, 1997]. Yassı panellerin ilk örnekleri doğrudan radyografi prensibiyle çalışmaktadır. Hidrojenize edilmiş amorf silisyum (a-Si:H) ince film transistörler üzerinde aktif madde olarak amorf selenyum (a-Se) kaplanmış sayısal dizinlerden oluşan yassı panel sayısal radyoloji detektörü (Direct View) 1999 yılında birlesik devletlerde verlesik Eastman Kodak firması tarafından piyasaya sürülmüştür. Bu cihaz, göğüs radyolojisinde kullanılan film ve film-ekranların boyut standartlarına uygun 35x45 cm<sup>2</sup> aktif görüntüleme alanı ve 139 µm dizin piksel boyutuna sahip olarak imal edilmiştir [Eijk, 2002; Geijer vd.,2001]. Aynı tarihte Belcika merkezli Aqfa firması benzer bir sistemi (Dr Thorax) geliştirmiştir. Bu cihaz, a-Si:H fotodiyot dizini üzerine Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb sintilatör katmanı büyütülmüş yassı panel şeklindeki dolaylı X-ışını görüntüleme detektörüdür. Fotodiyot dizinlerinin piksel boyutları 160 µm, aktif görüntüleme alanı ise 43x43 cm<sup>2</sup> olarak üretilmiştir. İlerleyen dönemde Canon, General Electric, Varian, TRIXELL, ve yakın dönemde de Hamamatsu gibi dünya genelindeki biyomedikal görüntüleme ve yarıiletken detektör sanavinin önde gelen firmaları a-Se/a-Si:H, doğrudan veya dolaylı radyografi prensibine dayanan yassı panel detektörleri geliştirmişlerdir. Bu detektör sınıfındaki gelişme Csl:TI sintilatörlerin kullanımı ve çözünürlüğün arttırılması için piksel boyutlarının toplam görüntüleme alanından feragat edilerek küçültülmesine dair olan çalışmalardır. Yüksek çözünürlüklü modern detektörlerin piksel boyutları 50-150 µm arasında değişmekte olup, lateral çözünürlüğü yüksek sistemlerin aktif görüntüleme alanları göreceli olarak dardır. Bu cihazlar göğüs radyografisi gibi geniş alanlardan ziyade mamografi gibi daha dar detektör alanlarının kullanılabildiği ihtiyaçlara uygundur [Yaffe ve Rowlands, 1997; Eijk, 2002; Kotter ve Langer, 2002; Geijer vd., 2001; Ning vd., 2000; Garmer vd., 2000; Lee vd., 2003; Chotas vd., 1999].

CCD alan X-ışınları detektörleri, görüntü elde etme ve veri işleme amacıyla CCD dizinlerini kullanmaktadır. CCD teknolojilerinde hâlihazırda 10 µm ve altında piksel boyutlarına ulaşılması X-ışınlarının görüntülenmesinde bu cihazlara yüksek görüntü kalitesi, lateral ve uzaysal dağılım çözünürlüğü sağlamaktadır. CCD detektörler ile paralel olarak bütünleyici metal oksit yarıiletken (CMOS) detektörler de düşük gürültü oranları ile bilimsel ve endüstriyel uygulamalara uygun olarak gelişmelerini sürdürmüşlerdir. Bu cihazlarda verinin

okunması milisaniyeler mertebelerindedir. Bu durum, CCD ve CMOS detektörleri yüksek hızlı X-ışını detektörlerinin yapılarına uygulanabilir kılmaktadır. Bu cihazların da yassı paneller gibi doğrudan ve dolaylı radyoloji prensiplerine göre çalışan örnekleri bulunmaktadır. CCD alan X-ışınları detektörleri fosfor ekranlar veya sintilatör katmanlar ile birlikte çalışmaktadır. Sintilatör katmanlarının doğrudan CCD dizinleri üzerinde büyütülmesi, fosfor içinde oluşan ışığın en az yolu kat ederek detektöre geçmesini sağladığı gibi fosfor katmanının Xışınlarının aydınlattığı yüzeyin karşısında oluşan görüntüyü kaydetmekte önemli avantajlar sağlar. Bu avantajların en önemlisi geniş sayısal X-ışınları detektörleri için yüksek çözünürlük ve düşük maliyetli çözümler geliştirebilme olasılığıdır. Fosfor ekranlar, ışık geçirgen bir altlık üzerine sintilatör ince film veya katmanların büyütülmesi yoluyla üretilirler. X-ışınları gibi iyonlaştırıcı radyasyon veya yüksek enerjili parçacıklar sintilatör katman üzerine düştüğünde görünür ışığa dönüştürülür, oluşan ışıma ışık geçirgen altlığın fosfor kaplı olmayan yüzeyinde görüntülenebilir [Gruner ve Tate, 2002; Stanton vd., 1993; Allison, 1994; Castelli vd., 1997; Suzuki vd., 1999; Phillips vd., 2000; Livert vd., 2000]. Fosfor ekranlara dayalı CCD alan Xışınları detektörlerinin performanslarını belirleyen başlıca etmenler uzaysal dağılım veya lateral çözünürlük ile algılama verimidir. Her ikisi de detektörleri oluşturan fosfor ekran ve CCD dizinlerinin kendi özellikleriyle, bu iki komponentin optik çiftlenme tekniğine kuvvetle bağlıdır [Koch vd.,1998].

Fosfor ekranların uzaysal dağılım veya lateral çözünürlüğü, ekranı oluşturan fosfor katmanı ve altlık bileşenlerine bağlıdır. Radyolüminesans sonucu oluşan ışığın fosfor içinde her yönde yayılması ve saçılması, fosfor katmanından geçirgen altlığa dik gelmeyen ışığın kırılma indisi farkı yüzünden gelişine göre daha geniş bir açıyla kırılması çözünürlüğü sınırlandıran etmenlerdir. Altlıktan kaynaklanan saçılmaların azaltılması için uygulanan basit ve etkili yöntem düz camlar yerine bütünleşik fiber optik plakalar kullanmaktır (Şekil 2.4). Bütünleşik fiber optikler; görünür ışık için dalga kılavuzu görevi gören cam fiberlerin, fiberlerden farklı kompozisyona sahip cam matris içerisinde düzenli olarak dizilerek bir araya getirilmesinden oluşmaktadır. Cam matris ve fiberler arasındaki kompozisyona bağlı kırılma indisi farkı fiberlere giren ışığın matrise geçmesini engeller ve tek fiber içerisinden iletilmesini sağlar. Tipik bütünleşik fiber optiklerde cam fiberlerin çapları 3-25 µm arasında değişmektedir. Fiber çapı, bütünleşik fiber optik plakanın, dolayısı ile kullanıldıkları fosfor ekranların çözünürlüğünde ulaşılabilir sınırı belirlemektedir.

Fosfor ekranlarda kullanılan inorganik sintilatör katmanları; tek kristaller, polikristal filmler veya organik bağlayıcılar ile bir arada tutulan seramik tozlardan teşkil edilirler. Tek kristaller

içerisinde radyolüminesans ile oluşan ışık, sintilatör ve altlığı birleştiren arayüzeyde saçılmaktadır. Fosfor ekran yapılarında, sintilatörlerin X-ışınlarının düştüğü yüzeylerinde ayna görevi gören alüminyum filmler büyütülmektedir. Alüminyum filmler, fosfor içinde oluşan ışığın tamamını altlığa yönlendirerek verimini arttırırken saçılmalara sebep verdiğinden çözünürlük gücünü düşürmektedir. Tek kristal fosfor ekranlarda sintilatör kalınlığını azaltmak saçılan ışığın sintilatör içinde kat ettiği yolu da kısalttığından çözünürlükte iyileşmeye yol acabilir. Ancak bu önlem yüksek enerjili X-ışınları için yüzeye gönderilen radyasyonun tamamının soğrulmadan geçmesine, fosfor ekranın foton çevrim veriminin azalmasına neden olmaktadır. Polikristal sintilatör filmlerde tane sınırları, toz ekranlarda ise taneler ile organik bağlayıcı arasındaki arayüzeyler ışığın sintilatör içinde saçılmasına neden olur. Tane boyutlarının küçültülmesi, hatta nanometre mertebelerine indirilmesi ışığın tane sınırlarından saçılmaları arasındaki serbest yolu azaltıp daha kısa erimlerde tutarak çözünürlüğü arttırır. Tanelerin küçülmesi, inorganik sintilatör filmlerde kristal yapının düzeninin bozulduğu tane sınırlarının artmasına, bu sebeple de sintilatörün foton çevrim veriminin azalmasına neden olmaktadır. Fosfor ekranların uzaysal dağılım çözünürlüğünü arttırmak üzere sintilatör filmlerin kolonsal morfolojide büyütülmesi etkinlikle kullanılan bir yöntemdir.



Şekil 2.4. Fosfor ekranlarda uzaysal dağılım çözünürlüğünü azaltmak üzere gerçekleştirilen çalışmalar; a) Bütünleşik fiber optik altlık kullanılması, b) Sintilatörün kolonsal olarak büyütülmesi olarak sıralanabilir. Bu çalışmada sunulan çözüm önerisi, c) Sintilatörün fiber optik altlığın sadece çekirdek fiberleri üzerinde seçimli olarak büyütülmesidir.

Fiziksel buhar biriktirme (PVD) yöntemiyle üretilmiş kolonsal CsI:TI ve NaI:TI fosfor ekranlar endüstride uygulanagelmektedir. Kolonsal büyütülmüş fosfor ekranlarda emisyonun saçılması Şekil. 2. 4.b'de şematik olarak gösterilmiştir. Çözünürlüğün arttırılmasına dair diğer bir çözüm ise sintilatörlerin pikseller haline getirilmesi ve bu amaç doğrultusunda litografi yöntemlerinin kullanılmasıdır. Etkili olan bu yöntem, içerdiği kompleks teçhizat ihtiyacı ve temiz oda çalışmalarının yürütülmesinin gerekliliği gibi sebeplerden dolayı üretim zorluğu ve yüksek üretim maliyetlerine neden olmaktadır [Gruner ve Barna, 1993; Chappell ve Murray, 1984; Barna vd., 1999].

CCD teknolojisi; yüksek üç boyutlu çözünürlük, geniş dinamik aralık ve çeşitli sistem formatlarını destekleme imkânı sağlamıştır fakat bu optik detektörlerin konvansiyonel fosfor ekranlarla kullanılması durumunda, X-ışını durdurma gücü ve çözünürlüğe bağlı detektör performansı negatif olarak etkilenmektedir [Feng vd., 2013]. Bu durum yeni sintilatör malzemelerin geliştirilmesi gereksinimine neden olmaktadır. Lütesyum oksit (Lu2O3) tabanlı sintilatörler, yüksek yoğunluğu (9,4 g/cm<sup>3</sup>), radyasyon direnci ve lüminesans etkinliği (30 foton/keV) ile konvansiyonel sintilatörlerin teknolojik uygulamalarda yerlerini alabilecek bir adaydır. Literatürde lantan serisindeki elementlerin +3 değerlikli iyonları (Eu, Tb, Er, Ho, Sm) ile katkılandırılmış Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> seramiklerinin fosforesans özellikleri rapor edilmiştir. [Zych vd., 2004; Ohmi vd., 2004; Dujardin vd., 2005; Bar vd., 2003] Yaygın olarak kullanılan Csl:Tl yüksek luminesans etkinliğine sahip olmasına rağmen radyasyon hasarı, higroskopik etkileri ve düşük yoğunluğu (4,52 g/cm<sup>3</sup>) sergilemesi yerini alabilecek yeni malzemelerin arayışına neden olmaktadır. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve diğer Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tabanlı sintilatörler için dezavantaj olarak kabul edilecek en önemli nokta ise, ticari olarak uygulanabilirlik hususudur. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tek kristal üretimi için ise sınırlayıcı bir parametre 2490°C gibi yüksek ergime sıcaklığıdır. Kübik kristal yapı sergileyen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> seramiklerinin üretimi için hali hazırda kullanılan yöntemler daha önce de bahsedildiği gibi transparan optik seramik olarak geçmekte, sıcak izostalik pres ve vakum sinterleme ile yüksek yoğunluklu kitlesel (bulk) seramikler hazırlamaya altında dayanmaktadır [Tojan-Piegza vd., 2008; Lempicki vd., 2002]. Kitlesel Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu transparan optik seramiklerden ince katmanlar elde edilerek ekran olarak kullanıldığı rapor edilmiştir. Bahsedilen rapor Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ile tek kristal CsI:TI ve GOS malzemelerinin algılama kuantum verimini karşılaştırmak üzere gerçekleştirilen araştırmaları konu etmektedir. Algılama kuantum verimlerinin ölçülebilmesi amacı ile bahsedilen kitlesel malzemelerden ince katmanlar hazırlanmış ve bu katmanlar üzerinde lazer işleme kullanılarak mikron mertebesinde pikseller oluşturulmuştur. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> malzemesinden üretilen pikselli yapının teknolojik uygulamaları yaygın olan rakiplerine göre çok daha yüksek algılama kuantum

verimi sergilediği rapor edilmiştir [Toppıng ve Sarin, 2009]. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve diğer lütesyum temelli sintilatörlerin bahsedilen üretim zorlukları, ince film kaplamalar ile elde edilen fosfor ekranları teknolojik uygulamalar için kullanımını uygun kılmaktadır. Bu sintilatörlerin ince film olarak büyütülmesinde PVD, CVD ve Sol-Gel yöntemleri yaygın olarak kullanılmaktadır. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ince filmlerin büyütülmesi alanında PVD temelli tekniklerden elektron demeti biriktirme, RF manyetik alanda sıçratma ve atmalı lazer biriktirme disiplinlerine başvurulmaktadır [Topping vd., 2007].

Literatür çalışmaları incelendiğinde biyomedikal görüntüleme uygulamalarını hedefleyen çok az sayıdaki çalışmada, CsI:TI ve GOS malzemelerinin ince filmler olarak seramik sintilatörlerin fosfor ekran yapılarında kullanıldığı görülmektedir [Luo vd., 2015; Hernandez-Adame vd., 2013; Ramírez vd., 2010; Chen vd., 2016; Dhananjaya vd., 2010.]

Seramik sintilatörlerin fosfor ekranlarda kullanıldığı teknolojik uygulama ise yok denecek kadar azdır. Bu durum X-ışınları radyografi detektörleri alanında bir boşluk yaratmaktadır. Bu teknolojik uygulama boşluğunun ortaya çıkmasındaki başlıca sebepler fosfor ekranlarda kullanılan sintilatör filmlerin kalınlıklarının arttırılmasının fosfor ekranların uzaysal dağılım çözünürlüğünü düşürmesi, kalınlığın düşük olduğu filmlerde kuantum veriminin de düşmesidir. Ayrıca uzaysal dağılım çözünürlüğün geliştirilmesi için kullanılabilecek litografi yöntemlerinin ek maliyetler getirmesi, fosfor ekranların çözünürlüklerinden ziyade görüntüleme sistemlerinde yer alan yarıiletken detektörlerin çözünürlüklerini arttırılmasına dair genel bir eğilimin oluşması diğer sebepler arasında sayılabilir.

#### 2.2. Seramik Sintilatör Malzemeleri Sentezleme Yöntemleri

Literatürde seramik sintilatör malzemelerini sentezlemek amacı ile sol-jel yöntemi dışında kullanılan başka metodlar mevcut olup bunların başında "spin coating", "solution combustion synthesis" ve "melt quenching" yöntemleri gelmektedir. "Spin coating" yöntemi, bir altlık üzerine sintilatör malzemenin kaplanması esasına dayanır ki kaplama malzemesi önce uygun bir çözücüde çözülerek solvent haline getirilir. Bu solvent altlık merkezine uygulanır ve ardından sistem döndürülmeye başlanır. Dönme etkisiyle birlikte uçucu özellikteki çözücü ortamdan uzaklaştırılır ve sintilatör malzemesi kaplanmış olarak elde edilir [Taylor, 2001]. Özellikle seramik oksit tozlarının nano boyutta sentezlenmesi amaçlandığında ise yaygın olarak kullanılan yöntem "solution combustion synthesis"dir. Burada oksit tozları, metal nitratların belirli yakıtlarla oluşturduğu çözeltiler kullanılarak sentezlenmektedir. Yöntem

sonucu kendi kendine devam etmesi ve buna bağlı olarak kendiliğinden devam eden reaksiyon sonucunda toz malzemenin oluşumuna dayanmaktadır [Mukasyan, 2007]. Cam ve saydam seramik üretiminde ise kullanılan "melt quenching" yönteminde istenilen bileşimde hazırlanmış tozlar öğütülüp karıştırıldıktan sonra karışım ergiyik haline gelene kadar termal işleme tabi tutulur. Ergiyik preslenip soğutularak ilk haline gelmesi sağlanır. Ardından termal işlem ve parlatma kademeleri ile malzeme sentezi tamamlanmış olur.

Seramik sintilatörlerin sentezlenmesinde çözeltiden beraber çöktürme gibi sol-gel temelli yöntemler kullanılmakta, kübik kristal yapıya sahip sistemler için ise transparan seramik üretim yöntemlerine benzer sinterleme prosesleri uygulanmaktadır [Greskovich ve Duclos, 1997]. Sol – gel yöntemi malzemenin bilinen üretim yöntemlerine göre daha düşük bir sıcaklıkta çözelti oluşturup, bu çözeltiden malzemenin katı halini üretme esasına dayanır. Bu yöntem ile işlenebilmeleri için yüksek sıcaklığa ihtiyaç duyulan malzemelerin ergitme işlemine tabi tutulmadan istenilen özelliklerde üretilebilmesi mümkündür. Yöntem, oda sıcaklığına kadar düşen sıcaklıklarda uygulanabilirliği ve son ürüne şekil vermedeki kolaylığı [Kandarakıs vd., 1998] gibi nedenlerden dolayı günümüzde birçok alanda kullanım alanı bulmaktadır. 19.yy sonunda Ebelmen'in SiCl<sub>4</sub> ve alkol ile ilk metal alkoksidi üretip bileşimin açık hava atmosferinde jelleştiğini bulmasıyla ilk sol-jel malzeme üretimi gerçekleştirilmiştir. O dönemde beklenildiği kadar dikkat çekmeyen sol-jel yöntemi 20.yy'da tam anlamıyla keşfedilmiştir. Yöntem sayesinde alkoksitler ile oksit filmlerin üretilebileceği anlaşılmıştır. Sol - gel yöntemi temel olarak inorganik polimerlerin veya seramiklerin çözelti halinden başlayıp bir sıvı öncü oluşturmasıyla sole dönüşmesi ve ardından ağlı bir yapıya sahip olan jelin oluşmasına dayanmaktadır. Yöntemde ilk olarak uygun bir çözücü içerisinde (ör. alkol) malzemenin çözülerek kolloidal bir çözelti hazırlanması ile başlanır. Bu çözelti içerisinde meydana gelen hidroliz ve kondenzasyon reaksiyonlarıyla yapı jelleşmeye başlar. Bu yapı viskozitesi giderek artan bir biçimde dönüşümüne devam eder. Jelleşme tamamlandığında yapı kurutma ve ardından termal işleme tabi tutularak son ürün elde edilir.

#### 2.2.1 Sol-Gel Proses Adımları

#### Hidroliz ve Kondenzasyon

Prosesin ilk adımı olan homojen çözelti hazırlama aşamasında başlangıç malzemesi uygun çözücü yardımıyla çözülür. Bunlar metal tuzları için su, metal alkoksitler için ise alkoldür. Çözelti hazırlandıktan sonra alkoksitlere su eklenerek hidroliz işlemi başlatılır. Çözeltinin pH değerinin 7'den farklı olması bu aşamada reaksiyonu hızlandıracağından ortama katalizör

olarak asit ya da baz ilavesi yapılır. Hidroliz tamamlandıktan sonra solün pH değeri 7 ye çekilerek jelleşme başlatılır. Bu aşamada ıslak jel olarak adlandırılan yapı meydana gelmeye başlar [Brinker ve Scherer, 2013]. Bu adımın reaksiyonları aşağıdaki şekillerde verilmiştir (Şekil 2.5).

$$\overset{H}{\longrightarrow} O + M - OR \xrightarrow{H} O \xrightarrow{H} O \xrightarrow{} M - OR \xrightarrow{} HO - M \xrightarrow{} O \xrightarrow{R} \xrightarrow{} MOH + ROH$$

Şekil 2.5. Metal alkoksitlerin hidroliz reaksiyonu [Brinker ve Scherer, 2013].

Hidroliz aşamasını alkolün ve suyun kondenzasyon reaksiyonları takip eder (Şekil 2.6 ve Şekil 2.7)



Şekil 2.6. Alkol kondenzasyonu [Brinker ve Scherer, 2013].



Şekil 2.7. Su kondenzasyonu [Brinker ve Scherer, 2013].

Jelleşme

Jelleşme solün viskozitesinin artmasıyla elastik bir katı gibi davranmasına neden olan adım olarak tanımlanabilir. Hidroliz ve kondenzasyon adımları sonucunda metal bileşikleri kümeler halinde büyüyerek jeli oluştururlar. Bununla birlikte jel oluşumu sırasında bir kısım sol hala ortamda bulunacaktır. Son sol kümesi ile birleşmeyi tamamlamış jel yapı birleştiğinde jelleşme aşaması tamamlanmış olur. Jelleşme ile gerçekleşen reaksiyonların hızına bağlı olarak son ürünün mikroyapısı kontrol edilebilmektedir.

#### Yaşlandırma

Jelleşme adımının tamamlanması ile birlikte yapı akışkanlığını kaybederek elastik bir katı gibi davranmaya başlar. Yaşlanma adımında önceki adımlardaki gibi görsel bir değişim olmamasına rağmen jel yapısında halen aktiflik devam etmektedir. Bu aşamada yapıda polimerizasyon, kabalaşma ve faz dönüşümü olmaktadır. Polimerizasyon sırasında yapıda hapsolmuş sıvılarda kondenzasyon devam etmekte ve yapı içerisindeki bağlanma sayısı artmaktadır. Ayrıca oluşan jelin büzülmesi sonucunda sıvı atılması olayı da meydana gelmektedir. Bu durum sineriz olarak tanımlanmaktadır. Kabalaşma ya da diğer adıyla olgunlaşma prosesi ise yapı içerisindeki parçalanma, tekrar çökme reaksiyonlarıdır. Yaşlandırma sırasında meydana gelen bir diğer durum kristalizasyondur. Yapı bu aşamada ayrışıp tekrar çökme gösterdiği için tekrar organize olabilmektedir.

Kurutma

Poroz yapıdaki jelin kurutma prosesi birkaç aşamadan oluşmaktadır. Başlangıçta, buharlaşan sıvıdan dolayı açılan boşluk katı iskelette çekme meydana gelmesine neden olur. Böylece sıvı – buhar arafaz bölgesi katı iskeletin dışına taşınır. İskelet çekilme olayına direnecek kadar sertleştiği zaman ise sıvı iskelet içine girerek yüzeye yakın kısımlarda boşlukların oluşumuna neden olacaktır. Bu boşluklar hava ile dolsa bile buharlaşma bu boşluklardan devam eder. Son olarak yapıda kalan sıvı, iskelet içine hapsolur. Kuruma işlemi yapıda sıkışmış sıvının buharlaşması ve dış kısımda bulunan buharın difüzyonu ile gerçekleşmektedir.

> Sinterleme

Son olarak, katılaşan yapı sinterleme ile tamamen yoğunlaştırılır. Jellerde sinterleme sıcaklığı, hızı, atmosferi gibi değişkenler son ürünün yapısı üzerinde önemli etkilere sahiptir. Farklı uygulama parametreleriyle son üründe farklı tane boyutu ve kristal yapılar elde edilebilmektedir [Brinker ve Scherer, 2013].

#### 2.2.2 Pechini Sol – Gel Yöntemi

Pechini metodu klasik sol gel metodundaki homojen metal/sitrat komplekslerin oluşturulması esasına dayanmaktadır. Ancak yöntem, bileşimi değiştirmek suretiyle yapıdaki metal iyonlarını polimer yapı içerisine hapsetmektedir. Yöntemin amacı, organik matriksin termal etkiyle bozunmasını geciktirerek son ürünün üzerinde daha çok kontrol sağlanmasıdır.

Pechini metodundaki en önemli reaksiyon sitrik asit ve etilen glikol arasındaki transesterifikasyon reaksiyonudur (Şekil 2.8). Sentezleme aşamasının başlangıcında, metal tuzu su içerisinde etilen glikol ve sitrik asit birlikte çözülerek homojen bir çözelti hazırlanır. Solüsyonun ısıtılması ile birlikte sitrik asit ve etilen glikol arasında reaksiyon başlar. Bu reaksiyonun sonucunda yapıyı kaplayan geniş bir ağsı yapı oluşur [Danks vd., 2016].



Şekil 2.8. Sitrik asit ve etilen glikol transesterifikasyon reaksiyonu [Danks vd., 2016].

Polimer ağ yapısının oluşmasının ardından malzeme içerisindeki organik kalıntılar fırın atmosferinde yakılarak uzaklaştırılır. Bu işlem sonucunda seramik ürün elde edilmiş olur. Bu yöntemin en önemli avantajlarından biri iki veya daha fazla metalin yapıda homojen bir şekilde dağılmasına olanak vermesidir. Şekil 2.9'da Pechini sol-jel yönteminin adımları kısaca özetlenmiştir.



Şekil 2.9. Pechini sol-jel yöntemi [Danks vd., 2016].

#### 2.3 Fiziksel Buhar Biriktirme (PVD) Yöntemleri

Kaplama malzemelerinin, özellikle de yüksek ergime sıcaklığına sahip malzemelerin, fiziksel olarak buharlaştırılarak istenilen taban malzemelerin üzerine kaplanması yaygın olarak kullanılan kaplama proseslerinden biridir. Şekil 2.10'da sıklıkla kullanılan buhar fazı kaplama

prosesleri şematik olarak sıralanmıştır. Fiziksel buhar kaplama yöntemlerinde kaplama malzemesini termal olarak buharlaştırmak amacıyla rezistansla ısıtma, indüktif ısıtma, elektrik arkı ile buharlaştırma, lazerle buharlaştırma gibi buharlaştırma yöntemleri kullanılabilir. Bunlardan rezistansla buharlaştırma yönteminde buharlaştırılacak malzeme bir potaya konulur. Daha sonra pota bir elektrik rezistans yardımıyla ısıtılarak buharlaştırma işlemi gerçekleştirilir. Bu yöntemle Al, Cu, Ag, Pb gibi düşük ergime sıcaklığına sahip malzemelerin buharlaştırılması mümkündür. Rezistansla buharlaştırmada iyonlaşma ve buharlaşan parçacıkların enerjisini düşük olması nedeniyle taban malzemeye bağlanma düşük, film gözenekliliği yüksektir. İndüktif buharlaştırmada temelde rezistansla buharlaştırma yöntemine benzerdir. İndüktif buharlaştırmada metalik malzemeler pota cevresine sarılan bobinlere uygulanan indüktif akımla buharlaştırılırlar. Ark buharlaştırma yönteminde kaplama malzemesini buharlaştırmak için elektrik arkı kullanılmaktadır. Katodik ark buharlaştırma işleminde buharlaştırılacak malzeme katot olarak yerleştirilir. Katoda uygulanan düşük gerilim-yüksek akım değerleri katot üzerinde ark meydana getirerek Bu yöntemde karşılaşılan en büyük problem kaplama katodun buharlaşması sağlanır. sırasında oluşan ve damlacık (droplet) olarak isimlendirilen parçacıklardır. Bir diğer buharlaştırma yöntemi olan elektron demetiyle buharlaştırma işleminde ise yüksek enerjili elektronların hedef malzemeye odaklanması sonucunda lokal buharlaşma sağlanarak kaplama işlemi gerçekleştirilir. Bu amaçla lazer ışınları da kullanılabilir.



Şekil 2.10. Buhar fazı kaplama yöntemleri [Rickbery ve Matthews, 1991]

Fiziksel buhar biriktirme tekniklerinden bir diğeri de, hedef malzeme yüzeyinin yüksek enerjili gaz iyonları ile bombardıman edilerek atomların/atom gruplarının yüzeyden sıçratılması

esasına dayanan sıçratma (sputtering) yöntemidir. İlk olarak 1852 yılında uygulanan bu yöntemle, özellikle yüksek ergime sıcaklığına sahip ve termal olarak buharlaştırılması çok zor/imkansız olan metalik malzemelerin buharlaştırılması ve kaplanması mümkün olmuştur. Doğru akım kullanılan bu kaplama prosesinde, vakum altında tutulan ve yüksek gerilim uygulanan iletken plakalar arasına dışarıdan gönderilen inert gaz (genellikle argon) plazma fazına geçer. Plazma fazı içerisindeki pozitif yüklü Ar iyonları, negatif olarak yükleniş olan hedef malzemeyi bombardıman ederek momentum transferi sonucu hedef malzemeden atom koparırlar. İlerleyen yıllarda, oluşan plazmanın belli bir alanda sıkıştırılarak iyonizasyon ve kaplama verimini arttırmak amacıyla sıçratma sistemindeki hedef malzemelerin arkasına yüksek güçlü magnetronlar yerleştirilerek, manyetik alanda sıçratma sistemi geliştirilmiştir. Manyetik alanda sıçratma yöntemi ile plazma içerisindeki akı yoğunluğunun artması sonucu kaplamanın taban malzemeye adezyonu da arttırılmıştır. Sıçratma yönteminde doğru akım kullanılarak iletken malzemelerin kaplanması yaygın olarak kullanılır. Yalıtkan malzemelerin buharlaştırılması için doğru akım yerine alternatif akım uygulanması gerekmektedir. Bu amaçla rf sıçratma sistemleri geliştirilmiştir. Rf sıçratma sistemi kullanılarak çok yüksek ergime ve buharlaşma sıcaklığına sahip oksit seramikler gibi yalıtkan malzemelerin buharlaştırılması mümkündür.

İletken olmayan malzemelerin buharlaştırılması için yüksek frekanslı alternatif uygulanmasına ihtiyaç vardır. 50 kHz'in üzerindeki frekanslarda iyonların DC diyot benzeri bir deşarjı oluşturabilmek için yeterli hareketliliği yoktur. Elektrotlara uygulanan potansiyel elektrotlar arasında kalır. Elektrotlar arasındaki boşlukta bulunan elektronlar iyonlaşmayı sağlayacak yeterli enerjiye ulaşırlar ve elektrotlar arasındaki boşlukta plazma oluşumu gerçekleşir. Yüksek bir pik voltajı olan rf potansiyeli bir elektroda kapasitif olarak uygulandığında, yüzeyde bir sürekli olarak değişen bir pozitif / negatif potansiyel ortaya çıkar. Her bir yarı çevrimde, sıçratmaya neden olacak kadar enerjiye sahip iyonlar yüzeyde hızlandırılır, bu sayede alternatif yarı çevrimlerde, yüzeye ulaşan elektronlar yüzeyde herhangi bir yükün birikmesine engel olurlar.

Sıçratma kaplamada 0.5-30 MHz aralığında Rf frekansları kullanılabilmesine rağmen, ticari olarak kullanılan sistemlerde 13.56 MHz en yaygın olarak kullanılan frekanstır. Rf sıçratma sistemi 1mTorr dan daha düşük basınç değerlerinde kullanılabilir. Hedef malzemelerin iletken veya yalıtkan olması arasında farklılık olmamasına rağmen hedefin yalıtkan olması durumunda dielektrik kayıplar söz konusu olabilir. Yalıtkan bir hedef malzemenin metal bir elektrot tarafından desteklenmesi durumunda, yalıtkan malzemenin yüzeyin tamamını

kaplaması önemlidir. Aksi durumda açıkta kalan metal, metal-izolatör-plazma tarafından oluşturulan kapasitansı kısaltır. Rf sıçratma sisteminin sıçratma verimi düşük olmasına rağmen, elektriksel olarak yalıtkan malzemelerini püskürtmek için kullanılabilir. Dielektrik hedeflerin rf kullanılarak sıçratılmasında karşılaşılan en büyük problem, elektriksel olarak yalıtkan malzemelerin çoğunun düşük termal iletkenliğe, yüksek termal genleşme katsayısına ve genellikle gevrek karaktere sahip olmasıdır. Bombardıman sırasında çarpışma enerjisinin çoğu ısı enerjisine dönüştüğünden, sıçratmada yüksek güç seviyeleri uygulandığında büyük termal gradyanların oluşumu sonucunda hedeflerde kırılmalar oluşabilir. Yüksek güçlü rf sıçratma tekniğinde oksitlerin sıçratma verimliliği genellikle oldukça düşüktür. Bazı durumlarda, birkaç mikron kalınlığında bir SiO<sub>2</sub> filminin oluşturmak için 48 saatlik kaplama prosesine ihtiyaç duyulabilir.

Kübik kristal yapıdaki prekürsör tozlarından başlayarak optik transparan seramikler üretilebileceği ilk olarak General Electric (GE) firması tarafından gösterilmiştir. Transparan seramiklerin üretim proseslerinde iki önemli etmen bulunmaktadır. Bunlar; porozitenin %1 ve daha düşük olması yani yüksek yoğunluk ve kristal yapının optik izotropisidir. Bu etmenler tane sınırlarında kırılma indisi değişikliğini engelleyerek ışığın farklı kristal yönelimlerindeki tanelere geçişleri esnasında saçılmasını azaltırlar. İyi bilinen bir transparan optik seramik sintilatör olan (Y,Gd)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu hesaplamalı tomografi tekniğinde geniş uygulama alanı bulmuştur [Geijer vd., 2001].

Literatürde sintilatör ince film üretimi ile ilgili olarak yapılan çalışmalar incelendiğinde, kaplamaların daha önceden istenilen stokiyometride hazırlanmış seramik malzemeler kullanılarak üretildiği görülmektedir. Lütesyum oksit (Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) veya gadolinyum oksit (Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) konak malzemeler içerisine Eu veya Tb katkılamak amacıyla genellikle sol-jel yöntemleri özellikle de Pechini yöntemi kullanılmış olup kullanılan yöntemden bağımsız olarak, üretilen kaplamaların amorf yapıda olması, kristalizasyon için kaplama sonrası genelde 1200°C'nin üzerinde bir ısıl işlemi zorunlu kılmaktadır. Tıbbi görüntüleme amacıyla kullanılacak sintilatörlerde, sintilasyon fotonunun fotodedektöre verimli bir şekilde taşınması için sintilatör malzemesinin saydamlığı da kritik bir öneme sahiptir. Tavlama için çıkılan bu yüksek sıcaklıklarda bozunmadan kalabilecek malzeme sınırlı olduğundan literatürdeki çalışmalarda altlık olarak genellikle fused silika, safir veya zirkonyanın kullanıldığı görülmüştür. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> temelli sintilatörler üzerine gerçekleştirilen çalışmalar güncelliğini korumaktadır. Konuyla ilgili yapılan belli başlı çalışmaların temel alındığı literatür özeti aşağıdaki şekilde verilebilir;

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ince filmleri kaplamak amacıyla kullanılan yöntemlerden birisi elektron demeti fiziksel buhar biriktirme (electron-beam physical vapor deposition-EBPVD) yöntemidir. Bilgisayarlı tomografi cihazlarında kullanmak amacıyla Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ince filmleri, EBPVD yöntemi ile biriktiren araştırmacılar [Marton vd., 2013] bu çalışmadan sonra yaptıkları ve aynı kaplama yöntemini kullandıkları diğer bir çalışmada Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ince filmleri 600-800°C'ye ısıttıkları fused silika ve safir taban malzemeler üzerine kaplamışlardır. Kaplamalarda kullanılan Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu peletlerinde Eu miktarı molar olarak %3.5 olarak seçilmiştir. Safir malzeme üzerine yapılan kaplamalarda optik geçirgenlik miktarının %30, silika üzerine yapılan kaplamada ise %10 seviyesinde olduğunu tespit etmişlerdir [Marton vd., 2015].

Fiziksel buhar biriktirme metotlarından RF-PVD yöntemini kullanılarak yapılan başka bir çalışmada, optik geçirgenlik ve yüksek sıcaklığa dayanımın yüksek olduğu tek kristal yttria katkılanmış zirkonya taban malzemeler üzerine üretilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kaplamaların, uyarıldığında 611nm dalga boyuna sahip bir ışıma yaptığı tespit edilmiştir. Bu çalışmada, kaplama prosesi sırasında taban malzemeler 600-800°C sıcaklıklara kadar ısıtılmış, ardından 1000°C sıcaklıkta tavlanmıştır. Kaplamaların tane boyutları, kaplama prosesine bağlı olarak 300 ila 500nm arasında değişmektedir. Tavlama sonrası elde edilen yapıların 400nm çözünürlüğe sahip olacağı tespit edilmiştir [Roy vd.,2013].

Kaplama prosesi sırasında kullanılan yöntem kadar kaplama şartları da önemlidir. Darbeli lazer kaplama (Pulsed Laser Deposition-PLD) yöntemiyle fused silika taban malzemeler üzerine Eu katkılı Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamalar üretilen başka bir çalışmada, oksijen basıncı, sıcaklık ve lazer enerjisine bağlı olarak üretilen filmlerde amorftan, kübik ve monoklinik yapıya sahip farklı kristal oryantasyonlarının oluştuğunu tespit etmişlerdir. Kaplama sıcaklığının 240°C'nin altında olması durumunda yapıda monoklinik fazların baskın olduğu, yükselen kaplama sıcaklıkları ile özellikle 720°C üzerinde yapılan kaplamlarda kübik kristal yapıya ulaşıldığı görülmüştür. 10nm nin altındaki tane boyutlarına inildiğinde yapının amorfize olmasının söz konusu olması nedeniyle çözünürlüğü olumsuz etkilediği de bu çalışmada tespit edilmiştir [Martinet vd., 2006].

Topping ve arkadaşları X-ışını görüntüleme sistemlerinde kullanılması amacıyla, önce fiziksel buhar biriktirme (Physical Vapor Depoisition-PVD) yöntemiyle [Topping vd., 2007], ardından başka bir çalışmada ise kimyasal buhar biriktirme (Chemical Vapor Depoistion-CVD) tekniğini kullanarak kuartz taban malzemeler üzerine Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Eu<sup>+3</sup> ince filmler üretmişlerdir. CVD prosesinde kaplama sıcaklığı 950-1050°C aralığındadır. PVD prosesinde kaplama

sıcaklıkları düşük olduğu için yeterince kristalin yapılı kaplama elde edemedikleri için kaplamalara 900°C sıcaklıkta Ar atmosferinde 2 saat süreyle tavlama işlemi yapılmıştır. Bu çalışmada da Eu miktarı %5- 7 moldür [Topping ve Sarin, 2009].

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kaplamalara lüminesans özelliklerini iyileştirmek için Tb ilavesi oldukça yeni bir yaklaşımdır. Çok az miktarda da olsa Tb ilavesinin olumlu sonuçlar verebileceği düşünülerek yapılan bir çalışmada sol-jel yöntemiyle üretilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu filmlere %0.01 ila 0.04 oranında Tb katkılama yapılmış, Eu oranı %5'te sabit tutularak %0.01 Tb ilavesi ile 1000°C de yapılan ısıl işlem sonrası emisyon şiddetinin yaklaşık 4 kat arttığı görülmüştür. Diğer çalışmalara benzer olarak bu çalışmada da kaplamalara 600-1000°C de ısıl işlem uygulanmıştır [Ramirez vd., 2015].

Darbeli lazer biriktirme yöntemi (Pulse Laser Deposition-PLD) Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamaların üretimi için de kullanılmıştır. Bu yöntem kullanılarak, Si ve kuartz taban malzemeler üzerine ile biriktirilen Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> filmlerin optik özelliklerini incelenmiş, kaplamaların 220nm dalga boyunda önemli derecede bir absorbansa ve %70-80 oranında optik geçirgenliğe sahip olduğu tespit edilmiştir. 600°C sıcaklıkta kaplanan filmlerin 5.80 eV ile en yüksek bant aralığına sahip olduğu görülmüştür [Mishra vd., 2015].

Elektron demeti fiziksel buhar biriktirme yöntemi kullanarak Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince kaplamalar yapılan bir diğer çalışmada da, 650°C üzerinde üretilen kaplamalarda (222) düzleminde tercihli yönlenmiş yapı oluştuğu gözlemlenmiştir. Kaplama sisteminde Gd hedef malzemeden buharlaştırma yapılmış, sisteme proses gazı olarak oksijen verilmiştir. Kaplama hızına bağlı olarak taban malzeme sıcaklığın 250-650° sıcaklığa kadar çıkmakta olduğunu ve kaplamalarda bası artık gerilmelerinin oluştuğu rapor edilmiştir [Grave vd., 2014].

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gibi Eu ile katkılanmış Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamalarla ilgili pek çok çalışma vardır. Bu çalışmalarda da Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamaların üretimindekine benzer olarak ısıl işleme ihtiyaç vardır. Spin kaplama yöntemi kullanarak, üretilen Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kaplamalar 500-700°C sıcaklıklarda ısıl işleme tabi tutulmuş, ardından kaplamaların fotolüminesans özelliklerini incelenmiştir. Kaplamaların 254nm dalga boyuna sahip ışık ile uyarılması durumunda 613 ve 630nm'de emisyon yaptığı tespit edilmiştir [Choi vd., 2011].

Eu katkılı Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamaların üretimi sırasında kullanılan oksijenin kısmi basıncının kaplamaların özellikleri üzerine olan etkisini incelemek amacıyla safir taban malzemeler üzerine darbeli lazer kaplama yöntemi kullanarak kaplamalar üretilmiş, 50 mTorr basınçta

yapılan kaplamalarda kübik fazın, 5mTorr basınçta yapılan kaplamalarda ise monoklinik yapının baskın olduğu gözlemlenmiştir. Kaplamalarda emisyonların 605 nm ve 636 nm dalga boyunda olduğu görülmüştür [Wellenius vd., 2010]. Başka bir çalışmada da, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> :Eu malzemeler polimer esaslı malzemeler içerisine gömülerek kompozit sintilatörler imal edilmiştir [Oliveira vd., 2015].
# **3.GEREÇ VE YÖNTEMLER**

Proje kapsamındaki deneysel çalışmalar;

- 1. Malzemelerin sentezlenmesi
- 2. Üretim (tozların peletlenmesi, nihai ürüne giden süreçte ince film kaplamaların yapılması)
- 3. Test ve karakterizasyon
- 4. Test düzeneği geliştirme çalışmaları olarak gruplandırılabilir.

Malzeme sentezleme ve üretim çalışmaları; seramik sintilatör tozlarının sentezlenmesi, tozların sinterlenmesi, bütünleşik fiber optik plakaların yüzey modifikasyonu, vakumda ince film kaplama, prototip üretimi olarak sıralanabilir. Test ve karakterizasyon çalışmaları; toz seramik sintilatörlerin karakterizasyonu, fosfor ekranların karakterizasyonu ve testlerini kapsamaktadır. Test düzeneği geliştirme çalışmaları ise üretilen seramik sintilatörlerin ışıma özellikleri ile fosfor ekranların performanslarının test edilmesinde kullanılacak düzeneğin özel olarak tasarlanmasını kapsamaktadır. Bu çalışmalarda kullanılan malzemeler, teçhizat ve araçlar, teknik ve yöntemler aşağıda sırası ile detaylandırılmıştır.

# 3.1 Malzeme Sentezleme ve Üretim Prosedürleri

Toz sentezleme, cam yüzey işleme ve ince film büyütme çalışmalarında kullanılan sarf malzemeleri Tablo 3.1'de verilmiştir.

Tablo 3.1. Malzeme	sentezleme	ve ül	retim il	e ilgili	çalışmalarda	kullanılan	kimyasal	ve	diğer
sarf malzemeleri									

Adı	Marka	Katalog No	Özellik	Kullanım amacı
$Gd_2O_3$	Nanografi	-	%99,999 saflıkta	Sintilatör sentezleme
Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Nanografi	-	%99,999 saflıkta	Sintilatör sentezleme
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Nanografi	-	%99,999 saflıkta	Sintilatör sentezleme
Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Nanografi	-	%99,999 saflıkta	Sintilatör sentezleme
Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub>	Nanografi	-	%99,999 saflıkta	Sintilatör sentezleme
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Alfa Easer	47261	%99,997 saflıkta	Sintilatör sentezleme

HNO <sub>3</sub>	Merck	100455	%98,5 saflıkta	Sintilatör sentezleme
$C_6H_8O_7 \cdot H_2O$	Merck	100244	%99,5 saflıkta	Sintilatör sentezleme
HF	Merck	100335	%40 sulu çözelti	Fiber optik plakaların yüzey modifikasyonu
NH₄F	Merck	101164	%98 saflıkta	Fiber optik plakaların yüzey modifikasyonu
CH₃COCH₃	Merck	100012	%99,8/susuz	Fiber optik plakaların işlem öncesi yüzey temizliği
C₂H₅OH	Merck	818760	%99,5/susuz	Fiber optik plakaların işlem öncesi yüzey temizliği
Fiber optik plaka	Hamamatsu	J12221-73	50 mmx50mmx3mm 25µm fiber çapı	Altlık hazırlama

Sintilatörlerin sentezlenmesi, sinterlenmesi, mikro paternli fiber optik plakaların hazırlanması, ince filmlerin büyütülmesi ve prototip üretimi çalışmalarında kullanılan makine cihaz ve teçhizat Tablo 3.2'de sıralanmıştır.

Tablo 3.2. M	Malzeme s	entezleme v	e üretimle	ilgili g	çalışmalarda	kullanılan	cihazlar
--------------	-----------	-------------	------------	----------	--------------	------------	----------

Cihaz Adı	Marka/Model	Bulunduğu yer
İsitmali kariştirici	Heidolph / Standard	İstanbul Aydın Üniversitesi
İsıtmalı karıştırıcı	Four E'S Scientific / MI0102003	İstanbul Aydın Üniversitesi
Havalandırmalı etüv (200 °C)	Mikrotest / -	İstanbul Aydın Üniversitesi
Açık atmosfer tüp hırını (1500 °C)	Keija / 1500T	İstanbul Aydın Üniversitesi
Açık atmosfer kül fırını (1500 °C)	Protherm / PLF-150- 15	İstanbul Teknik Üniversitesi
Hidrolik pres (15 Ton)	-	İstanbul Teknik Üniversitesi
Çeker ocak	-	İstanbul Aydın Üniversitesi

Hassas kesme	Struers / Minitom	Sabancı Üniversitesi
Ultrasonik banyo	-	İstanbul Aydın Üniversitesi
Yüksek vakum ince film kaplama cihazı ve RF manyetik alanda sıçratma sistemi	Vaksis PVD Midas	Atatürk Üniversitesi
Spark plazma sinterleme sistemi		Hartek Mermer Granit İnşaat Makine ve Ekipmanları San. Tic. Ltd. Şti.
Bilgisayar destekli freze (CNC)		

# 3.1.1 Seramik İntilatörlerin Sentezlenmesi ve Magnetron Hedeflerinin Üretimi

Seramik sintilatör tozlarının sentezlenmesinde modifiye edilmiş Pechini olarak bilinen bir solgel yöntemi kullanılmıştır. Sol-gel prosesleri malzemenin bilinen üretim yöntemlerinden daha düşük bir sıcaklıkta, çözelti oluşturup bu çözeltiden takip eden işlemler sonucunda malzemenin katı halinin üretilmesi esasına dayanır. Prosesin ilk adımı olan homojen çözelti hazırlama aşamasında başlangıç malzemesi uygun çözücü yardımıyla çözülür. Bunlar metal tuzları için su, metal alkoksitler için alkoldür. Çözelti hazırlandıktan sonra alkoksitlere su eklenerek hidroliz işlemi başlatılır. Çözelti pH değerinin 7'den farklı olması bu aşamada reaksiyonu hızlandıracağından ortama katalizör olarak asit ya da baz ilavesi yapılır. Hidroliz tamamlandıktan sonra sol pH değeri 7 ye çekilerek jelleşme başlatılır. Bu aşamada ıslak jel olarak adlandırılan yapı meydana gelmeye başlar. Bu adım solün viskozitesinin artmasıyla çok elastik bir katı gibi davranmasına başladığı adım olarak tanımlanabilir. Bu esnada olan reaksiyonların hızına bağlı olarak son ürünün mikro yapısı kontrol edilebilmektedir. Hidroliz ve kondenzasyon adımları ile metal bileşikleri kümeler halinde büyüyerek jeli oluştururlar. Jel oluşumu esnasında bir kısım sol hala ortamda bulunacaktır. Son sol kümesi ile birleşmeyi tamamlamış jel yapı birleştiğinde bu aşama tamamlanmış olur. Jelleşme adımının tamamlanmasıyla birlikte yapı akışkanlığını kaybederek elastik bir katı gibi davranmaya başlar. Görsel olarak bu aşamada önceki adımlar gibi değişiklikler olmasa da yaşlanma adımında jel yapısında hala aktiflik devam etmektedir. Bu aşamada yapıda polimerizasyon, kabalaşma ve faz dönüşümü olmaktadır. Polimerizasyonda yapıda hapsolmuş sıvılarda hala

kondenzasyon görülmekte ve böylece yapı içerisindeki bağlanma sayısı artmaktadır. Ayrıca oluşan jelin büzülmesiyle sıvı atılması olayı da meydana gelmektedir. Bu sineriz olarak tanımlanır. Kabalaşma ya da diğer ismiyle olgunlaşma prosesi ise yapı içerisindeki parçalanma, tekrar çökme reaksiyonlarıdır. Yaşlandırma esnasında kristalizasyon da meydana gelmektedir. Yapı bu aşamada ayrışıp tekrar çökmeler gösterdiği için tekrar organize olur. Bu aşamadan sonra kurutma, ısıl işlem sonucu toz, tozların kalıplanıp sinterlenmesi ile kitlesel malzemeler üretilir. Pechini metodu klasik sol-gel metodunun homojen metal/sitrat komplekslerin oluşturulması esasına dayanıyor. Ancak yöntem bunu değiştirerek bileşimi değiştirmek suretiyle yapıdaki metal iyonlarını polimer yapı içerisine hapsetmektedir. Metodun amacı organik matriksin termal etkiyle bozunmasını geciktirerek son ürünün üzerinde daha çok kontrol sağlanmasıdır. Pechini metodundaki en önemli reaksiyon sitrik asit ve etilen glikol arasındaki transesterifikasyon reaksiyonudur.

Proje çalışmalarında nadir toprak elementlerinin oksit bileşikleri katkılanarak seramik sintilatör seramikler elde edilmiştir. Nadir toprak elementlerinin oksit bileşikleri nitrik asit içerisinde çözülerek nadir toprak elementlerinin nitratları üretilmiştir. Bu nitratlar sitokiyometrik oranlarda karıştırılmış ve sol-gel yönteminin sonraki adımları uygulanarak toz ve sinterlenmiş seramikler üretilmiştir.

Seramik sintilatör tozların üretilmesi için izlenen prosedürün adımları aşağıda sırasıyla verilmiştir;

- Kullanılan tüm cam ve metal ekipmanlar sırası ile alkol ve saf su ile yıkanmış ve kurutulmuştur.
- Sentezleme işleminde öncelikle konak olarak kullanılan malzemeler ısıtmalı manyetik karıştırıcı kullanılarak nitrik asit içerisinde çözülmüştür.
- Konak malzemenin çözünmesini müteakip ortama katkı malzemesi eklenmiş ve karıştırma işlemi devam etmiştir.
- Bu aşamadan sonra çözeltiye sitrik asit eklenerek jelleşme adımı başlatılmıştır. Bu adımda çözeltiden nitroz gazı çıkışı gözlenmektedir. Böylece sitrik asit ve nitrik asit reaksiyona girerek jel yapıyı oluşturmaya başlar (Şekil 3.1b ve c).
- Çözelti tamamen jel haline geldikten sonra yapıda mevcut organiklerin uzaklaştırılması ve malzemenin toz halini kazanması için kalsinasyon yapılmıştır. Kalsinasyon adımı açık hava atmosferinde 200 °C'de 12 saat sürdürülmüştür (Şekil 3.1d).

- Bu adım sonucunda jel yapı koyu renkli tozlara dönüşmüştür. Etüvden çıkarılan tozlar havanda öğütüldükten sonra açık hava atmosferinde 900 °C de 6 saat boyunca ısıl işleme tabi tutulmuştur. Bu adımla birlikte yapıda kalan son organikler ve yanma artıklarının uzaklaştırılması ve istenilen kompozisyona uygun tozların elde edilmesi hedeflenmektedir (Şekil 3.1e ve f).
- Üretilen tozlar hidrolik pres kullanılarak peletlenmiştir. Numune üretimi için 10mm x 25mm ebatlarında çelik kalıp kullanılmıştır. Numunelere uygulanan basınç değeri 240 MPa olarak hesaplanmıştır (Şekil 3.2).
- Hazırlanan peletler açık atmosfer kül fırınında 1200 °C sıcaklıkta 12 saat süreyle sinterlenmiştir.



Şekil 3.1. Seramik sintilatör toz hazırlama adımları; a) Yüksek saflıktaki oksit başlangıç tozları, b) Jelleşme adımı, c) Jelleştirilmiş nitrat çözeltileri, d) Kalsinasyon sonrası numune, e) Öğütülmüş ve alümina potalara sıkıştırılarak doldurulmuş kalıntılar, f)Termal işlemden sonrası numune görüntüsü.



Şekil 3.2. Üretilen tozların peletlenme evreleri; a) 25 mm çelik kalıp, b) Pres, c) Kalıptan çıkartılmış pelet, d) Peletlerin sinterlemesi, e) Sinterlenmiş numuneler.

Sentezlenen seramik sintilatörlerde konak malzemesi olarak gadolinyum oksit (Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), itriyum oksit (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) ve lütesyum oksit (Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) kullanılmıştır. Avroyum (Eu) ve terbiyum (Tb) katkı iyonları (aktivatör) seçilen konak kristallerde çözülerek seramik sintilatör kompozisyonları oluşturulmuştur. Sırası ile Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> konak malzemelerine farklı kompozisyonlarda Eu ve Tb ilave edilmesi ile elde edilen numunelerin kodları ve atomik oran cinsinden %bileşim değerleri sırası ile Tablo 3.3, Tablo 3.4 ve Tablo3.5'de verilmiştir.

Tablo 3.3. Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tabanlı Eu ve Tb aktivatörle sentezlenen seramik sintilatö
------------------------------------------------------------------------------------------------------

Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sistemi						
Numune Kodu	% Bileşim	Numune Kodu	% Bileşim			
55	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%1)	49	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.05)			
57	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%2)	70	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.1)			
26a	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%3)	71	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.2)			

56	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%4)	51	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.3)
58	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%5)	72	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.4)
26b	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%6)	50	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.5)
59	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%7)	52	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.7)
19	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%9)	53	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%1)
26c	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%12)	54	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%2)
26d	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%24)	27a	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%3)
		27b	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%6)
		27c	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%12)
		27b	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%24)

Tablo 3.4. Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> tabar	ılı Eu ve Tb	aktivatörle	sentezlenen	seramik	sintilatörler
-------------------------------------------------	--------------	-------------	-------------	---------	---------------

Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sistemi					
Numune Kodu	% Bileşim	Numune Kodu	% Bileşim		
73	$Lu_2O_3:Eu_2O_3$ (%1)	60	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.05)		
74	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%2)	61	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.1)		
75 (24a)	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%3)	62	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.2)		
76	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%3.5)	63	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.3)		
77	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%4)	64	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.4)		
78	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%4.5)	65	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.5)		
79	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%5)	66	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.7)		
80	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%5.5)	67	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%1)		
81 (24b)	$Lu_2O_3:Eu_2O_3$ (%6)	68	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%2)		

82	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%6.5)	69 (25a)	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%3)
83	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%7)	25b	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%6)
84	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%8)	25c	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%12)
85	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%9)	25d	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%24)
86	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%10)		
24c	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%12)		
24d	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%24)		

Tablo 3.5.  $Y_2O_3$  tabanlı Eu ve Tb aktivatörle sentezlenen seramik sintilatörler

Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Sistemi				
Numune Kodu	% Bileşim	Numune Kodu	% Bileşim	
28a	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%3)	95	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.1)	
92	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%4)	96	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.2)	
93	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%4.5)	97	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.3)	
20	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%5)	98	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.4)	
94	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%5.5)	99	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.5)	
28b	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%6)	100	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.6)	
21	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%7)	101	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.7)	
28c	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%12)	102	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%0.8)	
28d	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%24)	103	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%1)	
		29a	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%3)	
		29b	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%6)	
		29c	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> :Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (%12)	

5 nolu iş paketi çerçevesinde LuAG ve LAO tabanlı sintilatörlere yönelik çalışma aşağıda ifade edilen nedenden dolayı lütesyum oksit tabanlı sintilatörlere kaydırılmıştır. Garnet oksit yapısındaki Lu<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (LUAG); 5d-4f geçişli nadir toprak elementlerinin katkılanması ile sintilasyon uygulamalarında öne çıkan malzemeler arasında yer almaktadır [Katelnikovas ve Kareiva, 2008; Sugiyama vd., 2012; Bredol ve Micior, 2013]. LUAG yoğunlukla Chokhralsky yöntemi ile tek kristal olarak üretilerek, kullanılmaktadır [Liao vd., 2005]. Tek kristal sentezine alternatif olarak literatürdeki beraber cöktürme [Li vd., 2006a; Li vd., 2006b], sol-gel [Wang vd, 2007; Yanagida, 2012] ve solvotermal [Xing vd., 2010; Xing ve Peng; 2012] sentez yöntemlerinden sol-gel yöntemi ile proje kapsamında da sentezlenmesi hedeflenen LUAG, partikül boyutuna bağlı olarak optik özellikler ve sintilasyon bozunma süresinde değişikler göstermektedir[Li, 2012; Strek, 2007]. Sentezlemede kullanılan hammaddelerin yüksek kararlılıkları sebebiyle sentezin yüksek sıcaklıklarda gerçekleştiği bilinmektedir. Isıl işlem sürelerini arttırma yoluyla oluşan tane boyutundaki artış; stokiyometrik sapmalar, oksijen boşlukları ve benzeri latis hatalarından kaynaklabilecek ışımasız enerji tranferleri gibi teknik problemler meydana getirebileceği [Xu vd., 2014] gibi ekonomik olarak uygulanabilirlik gibi hedeflerde sapmalar meydana getireceği öngörülmesi ve projeye katacağı özgün değerin yetersiz kalacağı varsayılarak bu çalışma gerçekleştirilmemiştir. LuAG ve LAO tabanlı sintilatörlerin denenmesi çalışma planına, bu malzemelere göre daha yüksek yoğunluk ve kütlesel soğurma davranışı sergileyen lütesyum oksit tabanlı sintilatörlerde hedeflenen durulma zamanları ve kalıntı ışımaya ulaşılamama olasılığına karşın dâhil edilmiştir. Aday lütesyum oksit sintilatör kompozisyonuyla büyütülen filmler üzerinde yapılan zaman korale tek foton sayımı analizlerinde 2 ms altında durulma ve kalıntı ışıma hedeflerine ulaşılmış olunması sebebi ile alternatif malzemelerin geliştirilmesine gerek kalmamış ve imkânlar diğer çalışmalara yönlendirilmiştir.

Üretilen kompozisyonlardan başarı kriterlerine en uygun olanı belirlenerek radyolüminesant ince filmlerin büyütülmesinde kullanılmak üzere magnetron hedefi olarak üretilmiştir. Magnetron hedefleri 76 mm çapında ve 6 mm kalınlığında seramik diskler şeklindedir (Şekil 3.3a ve b). Magnetron hedefleri için numunelerle aynı sol-gel prosesi izlenerek tanımlanan ebatlarda temin edebilmek adına gerekli miktarda toz üretimi yapılmıştır.





Şekil 3.3. a ve b. Sintelerme işlemi sonrasında sentezlenmiş magnetron hedeflerinin görüntüsü

Tozların sinterlenmesi için iki farklı yöntem izlenmiştir. Bunlardan ilki 86 mm çapında çelik kalıp içerisinde 15 tonluk hidrolik pres kullanılarak kalıplanmış tozların açık atmosfer fırınında sinterlenmesi şeklindedir. Sinterleme sırasında kalıplanmış parçanın üzerinde oluşabilecek farklı sıcaklık bölgelerinin disk şeklinin bozulmasına neden olabileceğinden bu etkinin önüne geçebilmek için disk alümina tozunun içerisine gömülmüş ve fırının ısıtma rejimi değiştirilmiştir. Fırın sinterleme sıcaklığına 2 °C/dak hızla çıkartılmış ve ısıtma esnasında 500 °C, 800 °C ve 1000 °C sıcaklıklarda 1 saat süreyle bekletilmiştir. Magnetron hedeflerinin sinterlemesinde takip edilen diğer yöntem ise spark plazma sinterleme (SPS) metodudur. Tozlar az miktarda sıvı poli vinil alkol (PVA) ile karıştırılmıştır. Karıştırılma işlemi için turbula kullanılmıştır. Öncelikle tozlar kalıplanarak yaş kitle hazırlanmıştır. Düşük sıcaklıkta bağlayıcı giderme prosesi uygulanmıştır. Elde edilen kitle SPS cihazında 1000 °C sıcaklıklarda sinterlenmiştir. SPS yöntemi ile konvansiyonel proseslere göre daha düşük sıcaklıklarda sinterleme yapılarak yüksek yoğunluklara ulaşmak mümkün olmaktadır.

# 3.1.2 Bütünleşik Fiber Optik Plakaların Yüzey İşlemleri

Fiber optik plakalar bir yüzeyine gelen ışığı dağıtmadan diğer yüzeye taşıyan cam fiberler (çekirdek fiberler) ve bu fiberleri çevreleyen cam matristen oluşan ışık geçirgen altlıklardır. Cam matris ve çekirdek cam fiberlerin kompozisyonu küçük içerik farklılıkları sergilemektedir. Proje çalışmaları kapsamında cam matrisin belirli bir derinliğe kadar seçimli olarak çözülmesi ancak çekirdek fiberlerin çözülmeden bırakılması amaçlanmıştır. Bu sayede, geliştirilecek yeni fosfor ekranlar için seçimli film büyütme yapılmasına olanak sağlayacak bir altlık elde edilecektir. Bu altlık yüzeyinde, ışık geçirgen fiberlerin cam matristen çıkan kolonların şeklini aldığı özel mikro paterne sahip olması hedeflenmiştir.

Fiber optik plakalara belirtilen yüzey yapısının kazandırılması amacıyla ıslak işlemler uygulanmıştır. Bu işlemler bütünleşik fiber optik plakaların yüzeylerinin temizlenmesi ve seçimli çözülme için çözücüye daldırılmasını içermektedir. Islak işlemlerde denenmek üzere üç farklı HF çözeltisi hazırlanmıştır. Bunlar seyreltik (hacimce %10) ve derişik (hacimce %40) sulu HF çözeltileri ile HF (hacimce %10) ve NH<sub>4</sub>F (hacimce %40) içeren tampon çözeltisidir.



Şekil 3.4. Fiber optik plakaların yüzey modifikasyonu için izlenen ıslak işlem adımları

Temin edilen bütünleşik fiber optik plakalar ön denemeler için hassas kesme cihazı kullanılarak küçük parçalara ayrılmıştır. Fiber optik plakaların işlem görmesi istenmeyen yüzü maskelenmiştir. Islak işlemin adımları Şekil 3.4'de verilmiştir. Bu numuneler önce asetona ve sonra metil alkole daldırılmış ve distile suyla yıkanmıştır. Fiber optik parçalar bu hazırlanan çözücülere kısa süreler için (5 dakika) daldırılmıştır. Çözülen maddelerin yüzeyinde bir bariyer katmanı oluşturarak çözeltiyi doyurması ihtimaline karşı çözme işlemleri ultrasonik banyoda gerçekleştirilmiştir. Numuneler çözücülerden çıkartıldıktan sonra hızla distile suyla yıkanmıştır.

### 3.1.3 İnce Film Kaplama Ve Fosfor Ekran Üretimi

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb ince filmler deneysel çalışmalar kapsamında büyütülmüştür. Büyütülen Kompozisyonlar Tablo 3.6'da verilmiştir.

Katkılama Oranı (% atomik)				
Lu2O3:Tb	Lu2O3:Tb	Gd2O3:Tb	Gd2O3:Eu	
0,05	1	0,4	5	
0,7	2	2		
1	5			
2	10			
3	24			

Tablo 3.6. İnce film olarak büyütülen sintilatör kompozisyonları

Sentezlenen sintilatörler magnetron hedefi olarak üretildikten sonra yüksek vakumda radyo frekans manyetik alanda sıçratma (RF magnetron) yöntemiyle buharlaştırılmış ve sintilatör ince filmler cam altlıklar üzerinde büyütülmüştür. Magnetron, buharlaştırılmak istenen hedef malzemenin yüzeyine yüksek manyetik alan ve elektrik alan uygulanmasını sağlayan bir cihazdır. Genellikle diyot modunda çalışır ve soğuk katot boşalımlı cihazlar sınıfına girer. Hedef malzeme magnetron yüzeyine yerleştirilir ve katot görevi görür. Yüzeye yüksek doğru akım (DC) veya radyo frekanslarında (RF) potansiyel uygulanır. Yüksek voltajın neden olduğu elektrik alan yüzey yakınlarındaki gazları iyonlaştırarak plazma oluşmasını sağlar ve iyonlar elektrik alan yönünde hızlanarak hedef yüzeyini bombardıman ederler. Magnetron tarafından üretilen yüksek manyetik alan ise plazmanın yüzeye odaklanmasını sağlar. Yüzeyin bombalanması ile yüzeyden kopan atom ve moleküller hedefin karşısına yerleştirilen bir yüzey üzerinde birikirler. Hedeften sıçratılarak buhara dönüşen malzemeler, katottan çıkan yayımlanan elektronlar ve plazma içerisindeki çarpışmalar tarafından büyük oranda iyonlaştırılır ve enerji kazanır. Bu durum termal buharlaştırma yöntemlerine göre daha yoğun ince filmlerin üretilmesini sağlamaktadır. RF magnetron tekniği ile yalıtkan oksitler, katotta yük birikmesine neden olmadan kaplanabilmektedir.

İnce film kaplama sisteminde ikisi birbiri ile anahtarlanarak kullanılabilen 3 adet magnetron sıçratma sistemi ve bunlara bağlı olan iki adet RF güç kaynağı bulunmaktadır. Kaplama

sistemine ait resim, magnetronların pozisyonları ve kaplama sırasında oluşan plazmanın görüntüsü Şekil 3.5'de verilmiştir. Kaplama sistemindeki magnetronlar, düşey eksenle 30° lik bir açı yapacak şekilde konumlandırılmışlardır. Hedef malzeme ile taban malzeme arası ortalama mesafe 7 cm olarak sabitlenmiştir. Homojen bir kaplama elde edebilmek amacıyla taban malzeme tutucusu kaplama sırasında 10 devir/dakika sabit hızla döndürülmüştür. Kaplama sırasında taban malzemelere herhangi bir ısıtma işlemi uygulanmamıştır. Numunelerin büyütülmesi esnasında hedefe 50W katot gücü uygulanmıştır.

Kaplama sırasında kirlenmeleri engellemek amacıyla kaplama sistemi proses öncesinde 5x10<sup>-6</sup> torr basınca kadar indirilmiştir. Ardından sisteme proses gazı olarak %99.995 saflıkta Ar gazı 100 cm<sup>3</sup>/dak akış hızında gönderilerek sistem basıncı kaplamaların üretileceği 1x10<sup>-2</sup> torr değerine getirilmiştir. Kaplama sırasında basınç değerini sabit tutmak için ana vananın konumu değiştirilerek istenilen proses basıncı sağlanmıştır. Hedef malzeme yüzeylerinde kaplama prosesi öncesinde oluşan kirlilikleri temizlemek için taban malzeme önündeki kapama perdesi kapatılarak 10 dakika süreyle hedef malzeme temizliği yapılmıştır. Kaplama prosesinde kullanılan seramik esaslı hedef malzemelerde proses sırasında fiziksel bütünlüğün korunması için uygulanacak güç kademeli olarak arttırılmıştır. Kaplama proseslerinde ilk olarak konvansiyonel yöntemle sinterlenmiş hedef malzemeler kullanılmıştır. Kalıplama ve sinterleme esnasında malzemede oluştuğu düşünülen mikro çatlak ve gözeneklerin, kaplama prosesi sırasında ani artan sıcaklıkla beraber büyümesi sonucu hedef malzemenin proses esnasında çatladığı veya kırıldığı gözlemlenmiştir. Termal şoku engellemek amacıyla hedeflere uygulanan gücün 1 W/dakika hızla arttırılmasına, kaplama sonrası sistemin atmosfere açılmadan en az 10 saat süreyle vakum altında tutulmasına karşın hedef malzemelerde oluşan çatlama ve dağılmanın önüne geçilememiştir. Bu sebeplerden dolayı kaplama işlemlerine SPS yöntemi ile sinterlenmiş hedefler ile devam edilmiştir.

Aday olarak belirlenen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kompozisyonuna uygun biriktirme hızının tayini için bu kompozisyonla bir dizi deney yapılmıştır. Bu deneylerde farklı katot güçleri denenmiştir. Aday kompozisyon ile yapılan denemeler esnasında hedefe 30W, 45W, 60W ve 75 W güç uygulanmış ve kaplama süresi 30 dakika olarak belirlenmiştir.



Şekil 3.5. Vakum sisteminde magnetronların ve numunelerin yerleşimi, kaplama prosesi esnasında ark plazmasının oluşumu.

Uygun biriktirme hızının tayini için kaplamala esnasında hedefe 45W, 60W ve 75 W güç uygulandığı ve 30 dakika sürdürülen bir dizi deney yapılmıştır. Bu deneylerden elde edilen sonuçlar ışığında fosfor ekran hazırlama işlemlerine geçilmiştir. 50mm x 50 mm boyutlarında işlem görmemiş ve bir yüzeyi özel olarak işlenmiş fiber optik plakalar üzerinde sintilatör filmler 75W katot güç uygulanarak 6 saat proses zamanı ile büyütülmüştür. Büyütülen sintilatör filmlerin üzerinde ayna görevi görmesi amacı ile alüminyum film büyütülerek fosfor ekranlar tamamlanmıştır. Alüminyum filmlerin büyütülmesinde yine magnetron sistemi kullanılmış ancak bu sefer DC potansiyel uygulanmıştır, söz konusu aluminyum kaplama işleminde yüksek saflıkta alüminyum hedefler kullanımıştır. Proses esnasında katoda 60W güç uygulanmış ve kaplama prosesi 30 dakika sürdürülmüştür.

### 3.2 Test Düzeneği Geliştirme Çalışmaları

Sentezlenen sintilatörlerin ve üretilen fosfor ekranların X-ışınları aydınlatması altında ışıma özelliklerinin karakterize edilmesi ve performanslarının ölçülmesi amacına yönelik olarak test düzeneği tasarlanmıştır. Test düzeneğinde yer alan teçhizatın marka model ve kullanım

gerekçeleri Tablo 3.7'de verilmiştir. Bu düzenekte yer alan X-ışınları tüpü, entegrasyon küresi ve hareketli tablanın arasına yerleştirilmiştir. Toz numunelerin ışıma şiddeti ve ışıma spektrum ölçülmek istendiğinde tüpün çıkışı entegrasyon küresine çevrilmektedir. X-ışınları küre eksenindeki porttan geçerek kürenin merkezine düşmektedir. İncelenecek numune özel üretilen bir aparat ile entegrasyon küresinin merkezine, numunenin normali X-ışınlarının geliş yönüne 45° açıyla yerleştirilmektedir. Numunenin emisyonu X-ışınlarının geliş yönüne dik ve yine numune yüzeyinin normali ile 45° açıda olan porttan fiber optik kablo ile tek foton sayacı ve CCD spektrometreye taşınmaktadır.

Adı Marka/Model		Kullanım amacı		
Entegrasyon küresi	Newport / 819C-SF-4	Toz numunelerde oluşan emisyonun toplanarak ışığı detektörlere taşıyan fiber optik		
X-ışınları tüpü	Oxford / XTF5011	Numunelerin X-ışınları ile aydınlatılmasında kullanılmaktadır.		
Yüksek hızlı metal diyafram ve kontrolcüsü	ThorLabs / SHB1	X-ışını tüpünden yayımlanan radyasyonun tüpü kapatmadan kesilmesini sağlamaktadır.		
Yüksek potansiyel güç kaynağı	Oxford / Shasta	X-ışını tüpüne hızlandırma potansiyeli ve filaman akımı sürmektedir.		
Özel dizayn kontrolcü birim	-	X-ışını tüpünün hızlandırma potansiyeli ve tüp akımını ayarlamaktadır.		
Fan ve güç kaynağı	-	X-ışınları tüpünün havayla soğutulmasında kullanılmaktadır.		
CCD spektrometre	Ocean Optics / USB 2000+	Numunelerden yayımlanan ışığın sprektrumunu belirlemektedir.		
Fiber optik kablo	Ocean Optics / P600-2- UV-VIS	Numunenin emisyonunu detektöre taşımaktadır.		
Tek foton sayacı	ThorLabs / SPCM 20A-M	Numunelerden yayımlanan düşük şiddetli ışığın şiddetini belirlemektedir.		
X-Y mikro motor kontrollü mikroskop tablası	Zaber / ASM ASR100B120B-T3	Fosfor ekran numunelerinde yüzeyin taranması için kullanılmaktadır.		

Tablo 3.7. Deney düzeneğinde yer alan cihaz, alet teçhizat ve yazılımlar

X-Y mikro motor kontrolcüsü	Zaber / X-MCB2	Numune yüzeylerinin elle taranmasını sağlamaktadır.
CMOS kamera	ThorLabs / Quantalux CS2100M-USB	Düşük ışık yayan fosfor ekran numunelerinin yüzeyinden görüntü alınmasını sağlamaktadır.
Mikroskop gövdesi	Mitutoyu / VMU-V	Kamera ve mikroskop lenslerini bir optik olarak eşlemekte ve aynı eksen üzerinde birleştirmektedir.
Manüel mikroskop tareti	Mitutoyo / 176-211	Birden fazla lensin kullanımına olanak sağlamaktadır.
5X lens	Edmund Optics / M Plan APO 5X	Fosfor ekranlarda çözünürlük ölçümü ve yüzey incelemesinde kullanılmaktadır.
20X lens	Edmund Optics / M Plan APO 20X	Fosfor ekranlarda çözünürlük ölçümü ve yüzey incelemesinde kullanılmaktadır.
100X lens	Edmund Optics / M Plan APO 100X	Fosfor ekranlarda çözünürlük ölçümü ve yüzey incelemesinde kullanılmaktadır.
Tek eksenli hassas hareketli tabla	Edmund optics / 03-682	Mikroskop lenslerinin yüzeye odaklanmasını sağlamaktadır.
Spektrum okuma ve değerlendirme yazılımı	Ocean Optics / Spectra suit	CCD spektrometre tarafından toplanan veriyi incelemektedir.
Görüntü alma yazılımı	ThorLabs / ThorCam	CMOS kamera tarafından alınan veriyi görüntüye çevirmekmektedir.
Tek foton sayacı yazılımı	ThorLabs / SPCMxxA	Numunelerin ışıma şiddetlerinin ölçümünde kullanılmaktadır.

Fosfor ekranlardan ölçüm almak için tüp çıkışı hareketli tablaya çevrilmektedir. Tablanın merkezi boşlukludur ve X-ışınları bu boşluktan geçerek fosfor ekrana ulaşmaktadır. Ekranın diğer yüzünde oluşan görüntünün incelenmesi amacı ile mikroskop kullanılmaktadır. 5x, 10x ve 100x Plan APO lenslerle donatılmış mikroskop yüzeye odaklanır ve fosfor ekranın yüzeyinde oluşan X-ışınları görüntüsü düşük ışık şiddetlerinde çalışabilen bilimsel CMOS kamera ile alınmaktadır. Test düzeneğinde X-ışını kullanımı nedeniyle güvenli çalışma şartlarının oluşturulması amacı ile TAEK tarafından yayınlamış RSGD-KLV-006 kodlu "Zırhlama Hesaplamaları Kılavuzu" dökümanı ve NBS Handbook 111 "Radiation Safety for X-ray Diffraction and Fluorescence Analysis Equipment" kitabı esas alınmıştır. TAEK

dökümanında 50 kV tüp voltajı için HVL (Yarı kalınlık değeri) kurşun kalınlığı 0,06 mm ve TVL (Onda bir kalınlık değeri) kurşun kalınlığı ise 0,17 mm olarak belirtilmiştir. Deney düzeneğinde 1,5 mm kalınlığında kurşun levhalar kullanılmıştır. Deney düzeneği kutu içine alınarak tüm duvar, taban ve tavan kurşun plakalarla örtülmüş, bağlantı yüzeylerinde kurşun plakalar birbiri üzerine örtülmüştür. Bu düzeneğin yalıtım açısından en önemli alanı numune yerleştirme kapağıdır. Kapağın iç yüzeyi zırhlandığı gibi, oturduğu çerçevenin iç yüzeyine de kapakla çerçeve arasında kalan ince boşluğu örtecek ayrı bir kurşun çerçeve takılmıştır (Şekil 3.6).



Şekil 3.6. Deney düzeneği a) Ölçüm moduna göre cihaz ve aletlerin konfigürasyonu (Toz numunelerden ölçüm alınması için tüpün çıkışı entegrasyon küresine, fosfor ekrandan ölçüm almak için ise tablaya doğru çevrilmektedir, b) Deney düzeneğinin dıştan görüntüsü, c) Test düzeneğinin iç yüzey duvarlarının kurşun kaplaması ile bağlantı yüzeylerinin ek kurşun şeritler ile kapatılması, d) Test düzeneğinin kapağının oturduğu çerçeve ile kapak arasındaki boşluğu yalıtan ek kurşun çerçeve görüntüsü

Fosfor ekranların çözünürlüklerinin ölçülmesi için USAF 1951 tipi nikel çözünürlük test hedefi kullanılmıştır. Hareketli tablanın ortasına yerleştirmek üzere 5mm kalınlığında polikarbon plaka hazırlanmıştır. Polikarbon plakanın ortası lazerle test hedefinin boyutlarına uygun ölçülerde kesilerek boşaltılmıştır. Test hedefi polikarbon plakanın altına yerleştirilmektedir. Plakanın üstüne de fosfor ekran, ince film kaplı yüzeyi hedefe bakacak şekilde yerleştirilmektedir. Test hedefi X-ışınları tüpü ile fosfor ekran arasında kalmaktadır. Test esnasında tüpten yayımlanan X-ışınları test hedefinin boşluklarından geçerek fosfor kaplı

yüzeye düşmektedir ki böylece ekranda test hedefinin radyografisi oluşmaktadır. Bu görüntü mikroskop lensi ile incelenerek çözünürlük değeri belirlenmiştir. Fosfor ekran ve test hedefinin yerleşimi Şekil 3.7' de verilmiştir.



Şekil 3.7. Fosfor ekranların test edilmesinde a) USAF 1951 tipi çözünürlük test hedefini ortası boşaltılmış polikarbonat plakanın altına yerleştiriyor, b) Fosfor ekranın fosfor kaplı yüzü test hedefi hedefinin üzerine gelecek şekilde polikarbonat plakanın üzerine yerleştirilmektedir.

Bilgisayar destekli freze ile işlenmiş ve iki yüzeyi birbirine parelel hale getirilmiş 30mm kalınlığında alüminyum blok ölçüm düzeneğinin tablası olarak kullanılmıştır. Mikroskop sistemi alüminyum 45x90 sigma teknik profil ayak üzerine takılmıştır. Ayak alüminyum tablaya dik olarak monte edilmiştir. Düzenek üzerinde bulunan birçok cihaz ve aletin birbiri ile uyum içerisinde çalışabilmesini sağlamak için birçok ara parça, bağlantı parçası ve düzenek tasarlanmış, bilgisayar destekli freze ile işlenerek kullanıma hazır hale getirilmiştir. Düzenek, etraftan ışık geçişini engellemek üzere dikdörtgen prizma şeklinde bir kutu içerisine alınmıştır. Bu kutunun karkası sigma teknik profilden, kaportası ise siyah poliakrilat plakalardan yapılmıştır. Kutunun içi 1 mm kalınlığında kurşun plakalar kullanılarak zırhlanmıştır. Son olarak kurşun plakaların yüzeyine ışığı soğuran siyah sünger yapıştırılmıştır.

# 3.3 Test ve Karakterizasyon Çalışmaları

Deneysel çalışmalar kapsamında geliştirilen X-ışınları fosforları ve fosfor ekranların test ve karakterizasyonu amacı ile birçok tekniğe başvurulmuş ve gerekli test düzenekleri tasarlanmıştır. Çalışmalarda kullanılan cihazlar Tablo 3.8'de verilmiştir.

Tablo 3.8.	Test ve malz	eme karaktariz	zasyonu ça	lışmalarında	kullanılan i	makine ve	teçhizatlar
			2 3	2			2

Adı	Modeli	Bulunduğu Yer	
X-lşını Difraktometresi	PANalytical Empyrean	Atatürk Üniversitesi	
(XRD)		Sabancı Üniversitesi	
Alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu	JEOL JIB-4501	Sabancı Üniversitesi	
(FESEM)			
Alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu	ZEISS SIGMA 300	Atatürk Üniversitesi	
(FESEM)			
X-ışını fotoelektron spektrumu (XPS)	SPECS	Atatürk Üniversitesi	
Mikro RAMAN spektrometresi (532 nm)	WITech Alpha 300R	Atatürk Üniversitesi	
Mikro RAMAN	Horiba JobinYvon	İstanbul Teknik Üniversitesi	
spektrometresi (632,6 mm)			
Özel tasarlanmış fosfor ve fosfor ekran test düzeneği	-	İstanbul Aydın Üniversitesi	
Flüoresans ömür spektrometresi	Picoquant / FT300	Picoquant/Berlin/Almanya	

Test ve karakterizasyon çalışmalarında kullanılan teknikler ve takip edilen prosedürler aşağıda sırası ile verilmiştir.

# > X-lşınları Diffraksiyonu

Bu teknik monokromatik X-ışınlarının kristal malzemelerin atomlar arası düzlemlerinden Bragg yasasına uygun olarak saçılması prensibine dayanmaktadır. Sentezlenen seramik sintilatör tozlarının kristal yapılarının incelenmesi amacı ile XRD cihazı kullanılarak X-ışınları toz difraksiyonu analizleri gerçekleştirilmiştir. Sinterlenmiş numuneler gezegen tipi bilyalı değirmende öğütülerek toz haline getirilmiştir. Toz numunelerin XRD analizleri Cu K $\alpha$  ( $\lambda$  = 1.5406 Å) radyasyonu altında 20°-80° arasındaki  $\Theta$  değerleri 2°/dakika hızla taranarak gerçekleştirilmiştir.

#### RAMAN Saçılması Analizi

Bu teknik malzeme üzerine düşen lazer ışığının fonon ve moleküller arası etkileşim mekanizmaları sonucu enerji kaybetmesine ve dalgaboyu değişiminin gözlemlenmesi esasına dayanmaktadır. Sinterlenmiş seramik sintilatör numunelerin RAMAN analizleri, kristal yapıları ve kompozisyonları üzerine yapılan analizlerin doğrulanması amacı ile yapılmıştır. Analizlerde, 532 nm ve 632,8 nm dalgaboylarında farklı lazerlerle donatılmış iki farklı konfokal mikro-RAMAN spektrometresi kullanılmıştır. 0-2000 cm-1 ve 0-4000cm-1 frekans aralıklarında veriler alınmıştır. Fonon enerjileri ve lazer ile uyarılmış fotolüminesans etki belirlenmiştir.

#### Mikro Yapı Analizi

Taramalı elektron mikroskobu kullanılarak optik mikroskoplara göre daha yüksek çözünürlüklerde görüntü elde etmek mümkündür ki bunun başlıca nedeni hızlandırılmış elektronların manyetik alan kullanılarak mikron altı boyutlardaki noktalara odaklanabilmesidir. Sinterlenmiş seramik sintilatörler ve RF magnetron yöntemi ile cam altlıklar üzerinde büyütülmüş sintilatör ince filmler alan emisyonlu elektron tabancası ile donatılmış taramalı elektron mikroskobu (FE-SEM) kullanılarak incelenmiştir. İncelenen numunelerin ikincil elektron ve in-lens mikrografları oluşturulmuştur. Sinterlenmiş numunelerin yüzey ve kırık kesit mikrografları oluşturulmuş, katkı iyonlarının mikroyapı ve tane büyümesine olan etkileri araştırılmıştır. Vakumda büyütülmüş ince filmler için ise kırık kesit görüntüleri alınmış, film morfolojisi belirlenmiş ve film kalınılığı ölçülmüştür.

### Elektron Spektroskopisi Kimyasal Analizi

Monokromatik veya monokromatik olamayan X-ışınları malzeme yüzeyine düştüğünde atomlardan elektron kopartırlar. Bu elektronların enerjilerinin ölçülmesi ile atomlar arası bağlar ve malzemedeki kimyasal durum hakkında bilgi edinilmektedir. Sinterlenmiş seramik sintilatör numunelerin fotoelektron spektrumları XPS cihazı ile monokromatik AI Ka radyasyonu kullanılarak analiz edilmiştir. Analizlerde üretilen sintilatörlerde XRD, RAMAN gibi tekniklerle belirlenemeyen ikincil kimyasal durumların varlığı araştırılmış ve numunelerin ışıma özelliklerinde belirlenen olguların açıklanmasına destek sağlanmıştır. Numunelerin genel fotoelektron enerjisi spektrumları ile Gd4d, Lu4d, O1s, Tb4d ve Eu3d bölgelerinin yüksek çözünürlüklü spektrumları elde edilmiştir.

## Numunelerin Işıma Özelliklerinin Analizi

Öğütülmüş seramik sintilatörlerin ve RF magnetron yöntemi ile cam altlıklar üzerinde büyütülmüş ince filmlerin X-ışınları aydınlatması altındaki ışıma spektrumlarının belirlenmesi, ışıma şiddetlerinin ölçülerek birbirleri ile karşılaştırılması amacı ile özel tasarlanan ve proje kapsamında geliştirilen test düzeneği kullanılarak karakterizasyon çalışmaları yürütülmüştür. Radyasyon kaynağı olarak maksimum 50kV tüp voltajı ve 1mA tüp akımı uygulanabilen Cu anot ve Be X-ışını penceresi ile donatılmış kapalı X-ışını tüpü kullanılmıştır. Numunelerde X-ışınları altında oluşan radyoluminesans spektrumunun ölçümü için görünür dalgaboylarında çalışan CCD spektrometre ve ışıma şiddetinin ölçülmesi için ise tek foton sayacı kullanılmıştır. Toz numuneler kürek şeklinde yapılmış özel tasarlanmış bir aparatla entegrasyon küresinin merkezine yerleştirilerek analiz edilmiş, film numuneler ise mikroskop tablasına yerleştirilerek mikroskoba entegre edilmiş fiber konektörü yardımıyla analiz edilmiştir. Ölçüm düzeneğinin detayları bir önceki bölümde açıklanmıştır.

Fosfor ekranda kullanılmak üzere seçilen fosfor kompozisyonu ince film kaplandıktan sonra durulma zamanı ve kalıntı ışımaları zaman korale tek foton sayımı (TCSPC) tekniği kullanılarak ölçülmüştür. Bu ölçümlerde radyasyon kaynağı olarak 133 Hz frekansında çalışan ksenon flaş lambası kullanılmıştır.

### > Fosfor Ekranların Çözünürlüklerinin Belirlenmesi

Üretilen fosfor ekranların lateral çözünürlükleri özel tasarlanmış deney düzeneği kullanılarak test edilmiştir. Test yöntemi bir önceki bölümde açıklanmıştır.

# 4.BULGULAR VE DEĞERLENDİRMELER

Proje çalışmasının amacı doğrultusunda fosfor ekranı üretebilmek için en uygun seramik sintilatör bileşiminin ne olduğunu anlayabilmek adına bileşimleri ve numune numaraları Tablo 3.3., 3.4. ve 3.5'de verilen seremik sintilatörler bölüm 3.1.1'de ifade edilen şekilde sentezlenmiştir. Sentezlenen seramik sintilatörlerin karakterizasyonları ise XRD, Raman, XPS ve FE-SEM teknikleri kullanılarak yapılmış olup bunu takiben de emisyon şiddetleri ölçülmüştür. Emisyon şiddeti en yüksek olan seramik sintilatörler fosfor ekran üretimi için aday malzemeler olarak seçilmiştir.

#### 4.1 Sentezlenen Seramik Sintilatörlerin XRD Karakterizasyonu

Sinterlenmiş numuneler öğütülerek toz haline getirilmiş ve X-ışınları toz difraksiyonu yöntemi kullanılarak kristal yapıları incelenmiştir. Tüm Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> örneklerinin C-tipi kübik kristal kafesine sahip olduğu gözlemlenmiştir. Sentezlenen Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> kompozisyonlarının difraksiyon paternleri sırası ile Şekil 4.1, Şekil 4.2, Şekil 4.3, Şekil 4.4, Şekil 4.5 ve Şekil 4.6'da verilmiştir.



Şekil 4.1. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerine ait XRD paterni



Şekil 4.2. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerine ait XRD paterni

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> kompozisyonlarının difraksiyon paternleri incelendiğinde tüm numunelerin 043-1015 JCPDS kart numarası ile verilen kübik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumlu piklere sahip olduğu gözlemlenmiştir. %7 ve daha yüksek atomik oranda Eu katkılandırılmış numunelerde 73-2652 JCPDS kart numarası ile verilen monoklinik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fazı ile uyum içerisinde olan minör difraksiyon piklerinin gözlemlenmeye başlandığı tespit edilmiştir. Bu numuneler kübik fazın baskın olduğu iki kristal fazın karışımını sergilemektedir. Monoklinik faz Tb katkılandırılmış numunelerde ise gözlemlenmemiştir.



Şekil 4.3. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerine ait XRD paterni



Şekil 4.4. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerine ait XRD paterni

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerine ait XRD diyagramları incelendiğinde ise difraksiyon paternlerinin 12-078 JCPDS kart numarası ile tanımlanan kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kafes yapısı ile uyumlu olduğu tespit edilmiştir. Artan Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> katkısıyla beraber pik pozisyonlarında bir miktar kayma gözlenmiştir ki bu durum kristal yapının Lu atomlarından daha ufak olan Eu atomları nedeni ile deforme olduğunu işaret etmektedir. Ancak bu katkı miktarları konak Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>'ün kübik kafes yapısını değiştirecek miktarda değildir. Buna ilave olarak XRD paternleri incelendiğinde herhangi bir ikincil kristalin fazın varlığı tespit edilmemiştir.

Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu sistemine ait X-ışınları difraksiyon paternleri incelendiğinde tüm numunelerin 43-1036 numaralı JCDPS kartı ile tanımlanan kübik Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sistemi ile uyum içerisinde olduğu gözlemlenmiştir (Şekil 4.5). 92, 93 ve 94 deney numaralı numunelerde başta olan kübik fazın yanında en az bir faz daha yapıda yer aldığı görülmektedir. Bu fazın pikleri kübik fazın piklerinin çoğunluğu ile örtüşmektedir. Bu sebepten ötürü ikincil faz tanımlanamamıştır. Piklerdeki çatallanma tetragonal Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> olma olasılığını ortaya koymaktadır.



Şekil 4.5. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerine ait XRD paterni

Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb sistemine ait X-ışınları difraksiyon paternleri incelendiğinde tüm numunelerin tetragonal Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sistemi ile uyum içerisinde olduğu gözlemlenmiştir (Şekil 4.6). Tb katkılanmış numunelerde de tetragonal ile karışık kübik faz yapısında olan numuneler belirlenmiştir. İtriyum atomuna göre oldukça büyük olan katkı maddelerinin kübik Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yapısını tetragonal dönüşüme zorladığı anlaşılmaktadır. Bu dönüşüm RAMAN sonuçlarında bazı fonon piklerinde küçük kaymalar olarak kendini göstermektedir.



Şekil 4.6. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerine ait XRD paterni

### 4.2 Sentezlenen Seramik Sintilatörlerin SEM Karakterizasyonu

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numune gruplarına ait mikroyapı analizleri alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu kullanılarak (FE-SEM) gerçekleştirilmiş olup elde edilen görüntüler Şekil 4.7 ve Şekil4.8'de verilmiştir.



Şekil 4.7.  $Gd_2O_3$ :  $Eu_2O_3$  numunelerine ait SEM görüntüleri a) 26a nolu numune, b) 56 nolu numune, c)26b nolu numune, d) 19 nolu numune, e)26c nolu numune, f) 26d nolu numune.



Şekil 4.8.  $Gd_2O_3$ :  $Tb_4O_7$  numunelerine ait SEM görüntüleri a) 72 nolu numune, b) 50 nolu numune, c)52 nolu numune, d) 953 nolu numune, e)54 nolu numune, f) 27a nolu numune, g) 27b nolu numune, h) 27c nolu numune.

Hem  $Gd_2O_3$  :  $Eu_2O_3$  hem de  $Gd_2O_3$  :  $Tb_4O_7$  sintilatör bileşimlerinde katkı oranlarına bakılmaksızın mikroyapılarda porun varlığı bariz şekilde gözlenmekte olup,  $Gd_2O_3$ : $Eu_2O_3$  ve  $Gd_2O_3$ : $Tb_4O_7$  seramik sintilatör tozlarının tane boyutlarının 100 – 700 nm gibi geniş bir aralık içinde değişim gösterdiğini söylemek mümkündür.



Şekil 4.9.  $Lu_2O_3$  :  $Eu_2O_3$  numunelerine ait SEM görüntüleri a) 73 nolu numune, b) 74 nolu numune, c)75 nolu numune, d) 76 nolu numune, e)77 nolu numune, f) 78 nolu numune, g) 79 nolu numune, h) 80 nolu numune, j)81 nolu numune, k) 82 nolu numune, l) 83 nolu numune.



Şekil 4.9. Devam

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> :Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numune gruplarında tıpkı diğer numune gruplarında olduğu gibi mikroyapı analizleri Zeiss marka alan emisyonlu taramalı elektron mikroskobu kullanılarak numunelerinin kırık kesitlerinden ikincil elektron görüntüsü alınarak gerçekleştirilmiştir (Şekil 4.9 ve Şekil 4.10). Analizler sonucunda her iki katkı grubu için de katkı oranlarına bağlı olmamakla birlikte tüm numunelerde porozitenin varlığı gözlemlenmiştir. Genel olarak tane botuyu geniş bir aralıkta değişim göstermiş olup Tb katkısı ile mevcut tane boyutunun bir miktar daha artış gösterdiği tespit edilmiştir.



Şekil 4.10. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> : Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerine ait SEM görüntüleri a) 60 nolu, b) 61 nolu, c)62 nolu, d) 63 nolu, e)64 nolu, f) 65 nolu, g) 66 nolu, h) 67 nolu, j)68 nolu, k) 69 nolu numune.



Şekil 4.10. Devam

 $Yb_2O_3$ :  $Eu_2O_3$  ve  $Yb_2O_3$ :  $Tb_4O_7$  numune gruplarına ait mikroyapı görüntüleri Şekil 4.11 ve Şekil 4.12'de verilmiştir.



Şekil 4.11.  $Yb_2O_3$ :  $Eu_2O_3$  numunelerine ait SEM görüntüleri a) 28a nolu numune, b) 92 nolu numune, c)93 nolu numune, d) 20 nolu numune, e)94 nolu numune, f) 28b nolu numune, g) 21 nolu numune





Şekil 4.11. Devam



numune, c)97 nolu numune, d) 98 nolu numune, e)99 nolu numune, f) 100 nolu numune, g) 101 nolu numune, h) 102 nolu numune, j)103 nolu numune, k) 104 nolu numune.



Tüm numuneler için katkı oranlarına bağlı olmaksızın mikrayapılarında porozite varlığı bariz miktarda gözlemlenmiş olup bu duruma tek istisna oluşturacak numune ise 102 nolu numune (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> (%0.8)) olmuştur. Söz konusu numuneden alınan görüntü incelendiğinde çok düşük miktarda porozite varlığı tespit edilmiştir. Hem Eu hem de Tb'un farklı miktarlarda aktivatör olarak bulunduğu Yb<sub>2</sub>O<sub>3</sub> konak malzemeli seramik sintilatör tozlarının tane boyutlarının 100 – 700 nm gibi geniş bir aralık içinde değişim gösterdiği gözlemlenmiştir. Ancak Tb aktivatörlü seramik sintilatör tozlarının tane boyutlarının Eu içeren numunelere oranla bir nebze daha büyük olduğu gözlemlenmiştir.

#### 4.3 Sentezlenen Seramik Sintilatörlerin RAMAN Karakterizasyonu

Farklı kompozisyonlarda sentezlenen Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerin RAMAN analizleri 632,8 nm ve 532 nm dalgaboylarında lazer kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.13'de %3 Eu katkılandırılmış (26a) kübik kristal yapıdaki Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunesinin RAMAN kayması spektrumu detaylı irdelemenin yapılabilmesi için verilmiştir.



Şekil 4.13. 26a numunesine ait RAMAN spektrumu

Söz konusu numuneden 632,8 nm lazer kullanılarak alınan spektrumda 14 adet pik belirlenmiştir. Kübik kristal yapıdaki Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gibi üç oksijen ve 2 metal atomundan oluşan katıların optik fononlardan kaynaklı RAMAN kaymaları genellikle düşük frekanslardadır. Yüksek frekanslardaki RAMAN kaymaları ise latis titreşimleri ile değil 3 değerlikli lantanid iyonlarının valans (f kabuğundaki) elektronlarının lazer ışığı ile uyarılması ve bu elektronik geçişlerin oluşturduğu lüminesanstan kaynaklanmaktadır. Düşük frekans bölgesinde tespit edilen 95,5 cm<sup>-1</sup>, 109,36 cm<sup>-1</sup>, 144,15cm<sup>-1</sup>, 312,88 cm<sup>-1</sup>, 360,55 cm<sup>-1</sup> ve 442,53 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarındaki pikler kübik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyuşmaktadır. 360,55 cm<sup>-1</sup> pozisyonunda majör RAMAN kayması piki saptanmıştır. Özellikle 1250-1750 cm-1 arasında kalan alanda yoğunlaşan diğer pikler kristaldeki Eu+3 katkısı ve konak kristalin Gd+3 iyonlarının 632,8 nm dalga boyundaki lazer ile uyarılabilen 5D0  $\rightarrow$ 7F3 ve 5D0  $\rightarrow$ 7F4 elektronik geçişleri ile ilişkilidir. 532 nm lazer kullanılarak elde edilen spektrumda ise 2438,83 cm<sup>-1</sup> pozisyonunda, 632,8 nm dalgaboyundaki lazer ile uyarılamayan Eu+3 iyonları ile ilişkilendirilen elektronik geçişlerden kaynaklanan pikler ve 1700cm<sup>-1</sup> frekansı yakınlarındaki diğer elektronik geçişler belirlenilememiştir. 532 nm dalgaboyu, 18796,99 cm<sup>-1</sup> frekans değerine karşılık gelmektedir.



Şekil 4.14. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin toplu RAMAN spektrumları

Elde edilen majör pik ve lazer frekansı arasında 16358,16 cm<sup>-1</sup> frekansına karşılık gelecek kadar enerji farkı bulunmaktadır. Bu değerin dalgaboyu cinsinden karşılığı 611,32 nm olarak Eu+3 iyonlarının 5D0  $\rightarrow$ 7F2 ışıldar elektronik geçişine karşılık gelmektedir. Eu+3 iyonlarının lazer ile uyarılmış lüminesansının şiddeti düşük frekanslardaki RAMAN aktif fonon piklerinin gözlemlenmesini engellemektedir. Tüm Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numuneleri benzer spektrumları sergilemiş olup katkı iyonlarına bağlı piklerin Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> piklerine olan oranının katkılama oranı ile arttığı tespit edilmiştir (Şekil 4.14). RAMAN piklerinde çok küçük bir kayma meydana gelmiş olup majör pikte bu miktar maksimum 2 cm<sup>-1</sup> kadardır.

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerindekine benzer durum Şekil 4.15'de verilen, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinde de rastlanmıştır. 632,8 nm lazer kullanılarak alınan spektrumda 13 adet pik belirlenmiştir. Bunlardan 325,93 cm<sup>-1</sup>, 404,10 cm<sup>-1</sup>, 501,34 cm<sup>-1</sup>, 440,33 cm<sup>-1</sup> ve 637,66 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarındaki pikler kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyuşmaktadır. Diğer pikler kristal yapıdaki Eu+3 safsızlığından kaynaklanmaktadır. 532 nm lazer kullanılarak elde edilen spektrumda düşük frekanslardaki fonon piklerine dair pikler 2437,61 cm-1 pozisyonunda şiddetli lazer ile uyarılmış lüminesans piki tarafından gölgelenmiştir.



Şekil 4.15. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin toplu RAMAN spektrumları

Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu numunelerinden 532 nm lazer kullanılarak alınan RAMAN spektrumlarında Eu+3 iyonunun f-f elektronik geçişlerinden kaynaklanan lazerle uyarılmış öz lüminesans etkinin
pikleri 2500cm<sup>-1</sup> civarında görülmektedir (Şekil 4.16). Safsızlıktan kaynaklanan bu pikler düşük frekanslardaki fonon piklerini bastırmıştır. Kübik kristal yapıda 612 nm ışımalı geçişe karşılık gelen ana pik yerini korurken tetragonal ve kübik karışık fazlar içeren 92, 93 ve 94 numunelerinde bu pikin şiddeti azalmakta ve yeni pikler oluşmaktadır. Bu durum kübik kristal içerisinde c pozisyonuna oturan Eu+3 iyonunun tetragonale geçişle beraber elektronik çevresinin değişiminden kaynaklanmaktadır.



Şekil 4.16. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin toplu RAMAN spektrumları

Hazırlanan Tb katkılandırılmış Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinde sadece 532 nm lazer kullanılarak RAMAN analizleri gerçekleştirilmiştir. 632,8 nm dalgaboyundaki lazer Tb+3 iyonlarını uyararak f-f elektronik geçişlerine sebep olabilecek enerjiye sahip değildir. Şekil 4.17'de %0,3 atomik oranda Tb katkılandırılmış Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunesine (51) dair RAMAN kayması spektrumu verilmiştir. Spektrumda 9 adet pik belirlenmiş olup düşük frekans bölgesinde bulunan 310,79 cm<sup>-1</sup>, 361,26 cm<sup>-1</sup> ve 447,69 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarındaki pikler kübik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristalinin optik fonon pikleri ile uyuşmaktadır. Diğer pikler ise 1645,00 cm<sup>-1</sup>, 1739,14 cm<sup>-1</sup>, 1884,67 cm<sup>-1</sup>, 2053,62 cm<sup>-1</sup>, 2441,22 cm<sup>-1</sup>, 2508,04 cm<sup>-1</sup> ve 2917,06 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarında belirlenmiş olup, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristalinin Gd+3 iyonlarından kaynaklanan öz lüminesansı ile ilişkilidir. Tb+3 iyonlarının lazerle uyarılmış lüminesansına ait piklere rastlanılmamıştır. Tüm Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerinin RAMAN spektrumları incelendiğinde majör piklerde önemli bir değişim olmadığı ve 400-750 cm<sup>-1</sup> frekans aralığında gözlenmesi beklenen katkı iyonlarının lüminesansına rastlanmamıştır (Şekil 4.18).



Şekil 4.17. 51 nolu numuneye ait RAMAN spektrumu



Şekil 4.18. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerinin toplu RAMAN spektrumları

Şekil 4.19'daki Tb katkılandırılmış Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerine dair RAMAN kayması spektrumları incelendiğinde ise 397,47 cm<sup>-1</sup> pozisyonunda belirlenen majör pik, 504,32cm<sup>-1</sup> ve 618,21 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarında tespit edilen minör pikler kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristali ile uyum içindedir. 1700-2500 cm<sup>-1</sup> frekans aralığında tespit edilen pikler ise Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristalinde Lu+3 iyonlarının 532 nm lazer ile uyarılan öz lüminesansına aittir.



Şekil 4.19. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerinin toplu RAMAN spektrumları

RAMAN spektroskopisi sonuçları XRD sonuçları ile uyumlu olup üretilen tüm Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tabanlı seramik sintilatör kompozisyonlarının kübik kristal yapıda olduğu ve farklı değerlikli katkı iyonlarının yapılarında bulunmadığı belirlenmiştir. Buna karşılık 532nm lazer kullanılarak alınmış Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb raman spektrumları incelendiğinde kübik sistemden tamamen farklı olduğu görülmektedir (Şekil 4.20). 1500-2000 cm<sup>-1</sup> ve 200-2500 cm<sup>-1</sup> frekans aralığındaki pikler Tb iyonlarının 532 nm lazer tarafından uyarılabilir öz ışımasından kaynaklanmaktadır. 0-500 cm<sup>-1</sup> arası ise tetragonal kristal kafesin optik fonon piklerini ihtiva etmektedir.



Şekil 4.20. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerinin toplu RAMAN spektrumları

# 4.4 Sentezlenen Seramik Sintilatörlerin XPS Karakterizasyonu

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin XPS analizleri Şekil 4.21'de verilmiştir.



Şekil 4.21. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin toplu XPS sonuçları

Şekil 4.22'de yüksek çözünürlüklü O1s, Gd4d ve valans banda dair XPS spektrumları verilmiştir. O1s spektrumu incelendiğinde pik zarflarının düzgün bir çan şekli sergilemekten uzak olduğu, daha yüksek bağlanma enerjilerindeki omuz benzeri çıkıntılarıyla birden fazla komponenti kapsadıkları görülmektedir. Bu komponenetler arasında, Eu+3 iyonları ve Gd+3 iyonları ile etkileşen O-2 iyonlarının atomlarının neden olması beklenen iki ayrı pik bulunmaktadır. Gd+3 iyonlarının elektronegativetesi atom numarası sayesinde Eu+3 iyonlarına göre daha yüksektir. Bu durum, Gd+3 iyonlarından elektron kopartılmasını Eu+3 iyonlarına kıyasla daha zor kılar. Bu sayede Gd+3 iyonları ile etkileşen O-2 iyonlarına dair pikin daha düşük bağlanma enerjilerinde oluşması beklenmektedir. Bu durum, safsızlık miktarı artışı ile O1s pik pozisyonunda yüksek bağlanma enerjisi tarafına doğru kayma meydana getirmiştir. Gd 4d pik pozisyonlarında yüksek konsantrasyonlara kadar kayma görülmemektedir. Gd pikinde gözlenen daha yüksek bağlanma enerjisine kayma, daha yüksek bir elektronik değerliğin alındığı veya Gd iyonunu çevreleyen metal iyonlarının daha düşük değerlik aldıkları farklı bir kimyasal durumun ortaya çıkışı ile ilgili olabilir. Bu durumda yüksek katkılama konsantrasyonlarında XRD veya RAMAN analizleri ile tespit edilememiş Eu iyonlarının (-2) değerlik aldığı bir fazın yapıda bulunma olasılığı bulunmaktadır. Bu muhtemel yapı yüksek safsızlık konsantrasyonlarında emisyon şiddetinin azalmasında etmen olabilir.



Şekil 4.22. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yüksek çözünürlüklü XPS analizleri

Şekil 4.23'de Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin toplu XPS sonuçları görülmektedir. Şekil 4.24'de ise Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin yüksek çözünürlüklü O1s, Lu4d ve Eu3d bölgelerine dair XPS spektrumları verilmiştir. %1 - 5 atomik oran aralığındaki numunelerde bağlanma enerjisi piklerinin pozisyonları çakışmaktadır. Bunun daha üstündeki katkılandırma oranlarında ise tüm elementlerin bağlanma enerjisinin daha yüksek değerlere kaydığı gözlemlenmiştir. Bu durum %5 katkılama oranı aşıldığında emisyon şiddetinde gözlemlenen düşüş ile orantılıdır.

Bu durum XRD ve RAMAN analizlerinde tespit edilemeyen, ışımasız veya ışıma verimi çok düşük ikincil bir bileşiğin yapıdaki varlığına işaret etmektedir.



Şekil 4.23. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin toplu XPS sonuçları

Simetrik bir çan eğrisi şeklini göstermeyen O 1s piki içerisinde en az iki komponent bulunmaktadır bunlardan biri Lu ve diğeri Eu ile etkileşen O atomlarına aittir. Eu katkılama miktarındaki artış ile bu O1s piki içerisinde omuz olarak gözlenen komponentin şiddetinin arttığı gözlemlenmiştir.



Şekil 4.24. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yüksek çözünürlüklü XPS analizleri

Farklı kompozisyonlardaki Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerinin XPS spektrumları Şekil 4.25'de verilmiştir. Spektrum incelendiğinde Tb dışında farklı safsızlıklara rastlanılmamıştır. Tb ve Gd XPS pikleri birbirine çok yakın olduğundan incelemeye tabi tutulamamıştır.



Şekil 4.25. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerinin toplu XPS sonuçları

Bununla beraber O1s, Gd4d ve valans bandın yüksek çözünürlüklü spektrumları Şekil 4.26'da verilmiştir.



Şekil 4.26. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> yüksek çözünürlüklü XPS analizleri

O1s spektrumları incelendiğinde elektronegativite farkı sebebi ile O1s piki altında kalan komponentlerden yüksek bağlanma enerjisinde olan Gd atomları tarafından çevrelenmş O-2 iyonlarından, daha düşük bağlanma enerjilerinde olanların ise Tb atomları ile etkileşimde olan O-2 iyonlarından kaynaklanmaktadır. Yüksek katkı konsantrasyonlarında +3 ve farklı değerliklerde Gd iyonlarını içeren kimyasal yapıların oluştuğu O1s spektrumu incelenilerek söylenebilir.

Şekil 4.27'de Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerine ait toplu XPS sunuçları verilirken, Şekil 4.28'de yüksek çözünürlüklü Lu4d ve Tb3d bölgelerine dair XPS spektrumları verilmiştir. Lu4d piklerinin lokasyonlarının yüksek katkılama oranlarında dahi birbirine çok yakın olduğu gözlemlenmiştir. Ancak Tb3d piklerinde ise 0,5 ve daha yüksek katkılama oranları için yüksek bağlanma enerjilerine doğru kayma olduğu gözlemlenmiştir. Bu durum Tb katkılı numunelerin radyolüminesanslarındaki keskin düşüş ile uyumludur. Kristale katkılanan Tb iyonlarının farklı değerlikler aldıkları anlaşılmaktadır.



Şekil 4.27. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> numunelerinin toplu XPS sonuçları



Şekil 4.28. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> yüksek çözünürlüklü XPS Analizleri

Yukarıda elde edilen veriler ışığında tüm sentezlenmiş seramik sintilatörler için geniş bir aralık incelendiğinde kristal yapıdaki muhtemel dramatik değişimlerin daha net ortaya konulabileceği değerlendirilmiş ve tüm konak/katkı sistemlerinden sadece %3, %6, %12 ve %24 katkılama oranlarına dair karakterizasyon çalışması yürütülmüştür;



#### > XRD Analizleri

Şekil 4.29. Seçilen Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 12-0797 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Gd2O3 ve \* 43-1015 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan monoklinik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kompozisyonlarının XRD paternleri Şekil 4.29'de verilmiştir. Elde edilen patern, 12-0797 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan kübik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumludur. Atomik %12 ve daha yüksek oranlarda katkılanmış numunelerde 43-1015 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan monoklinik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ikincil fazı tespit edilmiştir. Bu numunelerde dahi kübik faz baskındır. Kompozisyonlardaki Eu oranının artmasına bağlı olarak Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kübik fazının (222) atomik düzlemini tanımlayan 100 pikinin daha yüksek 2Teta değerlerine doğru kaydığı belirlenmiştir.

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kompozisyonlarının XRD paternleri Şekil 4.30'de verilmiştir. Elde edilen patern, 12-0797 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan kübik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumludur. 100 piki pozisyonlarında kompozisyondaki Tb miktarının artışı ile kayma gözlemlenmektedir. Kayma %24 katkı oranına kadar düşük 2Teta değerlerine doğru kayarken, bu oranda yüksek 2Teta değerlerine doğru kaymış olduğu belirlenmiştir. İkincil bir faza rastlanmazken bu durumun ortaya çıkması yüksek katkılandırma miktarlarında, katkı atomlarının yer-alan değil ara-yer olarak kristale giriyor olabileceğinin değerlendirilmesine neden olmuştur. XRD analizleri esnasında %3 Tb katkılı numunelerin yüzeyinde Tb<sup>+3</sup> iyonlarından kaynaklanan zayıf yeşil renkteki ışıma gözlemlenmiştir. Daha yüksek katkılama oranlarındaki numunelerde çıplak gözle görülebilen ışıma kaybolmuştur.



Şekil 4.30. Seçilen Gd₂O<sub>3</sub>:Tb kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 12-0797 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Gd₂O<sub>3</sub>.

Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kompozisyonlarının XRD paternleri Şekil 4.31'te verilmiştir. Elde edilen patern 43-1036 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan kübik Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumludur. Kompozisyonlarda ikincil fazlara rastlanmamıştır. Kompozisyonlardaki Eu oranının artmasına bağlı olarak Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kübik fazının (222) atomik düzlemini tanımlayan 100 pikinin daha yüksek 2Teta değerlerine doğru kaydığı belirlenmiştir. XRD analizleri esnasında numunelerin yüzeyinde avroyumun kırmızı renkteki emisyonu gözle görülür şiddette gözlemlenmiştir.

Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kompozisyonlarının XRD paternleri Şekil 4.32'te verilmiştir. Elde edilen patern 43-1036 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan kübik Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumludur. Kompozisyonlarda ikincil fazlara rastlanılmamıştır. Düşük katkılandırma oranlarındaki numunelerin X-ışınları aydınlatması altındaki yüzeylerinde Tb elementinden kaynaklanan gözle görülür şiddetlerde yeşil renkli emisyon oluştuğu, %12 ve %24 oranlarında emisyonun kaybolduğu gözlemlenmiştir.



Şekil 4.31. Seçilen Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-1036 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.



Şekil 4.32 Seçilen Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-1036 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kompozisyonlarından oluşan 24 serisi numunelerin XRD paternleri Şekil 4.33'te verilmiştir. Elde edilen paternlerin 43-4021 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumlu olduğu gözlemlenmiş ve ikincil bir faza dair veriye rastlanılmamıştır.



Şekil 4.33. Seçilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-4021 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Kompozisyondaki Eu katkı miktarının artışına bağlı olarak pik pozisyonlarında kayma meydana geldiği gözlemlenmiştir. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kübik fazının (222) atomik düzlemini tanımlayan 100 pikinin düşük 2Teta değerlerine doğru kaydığı belirlenmiştir. Bu durum atomik düzlemler arası mesafenin katkı atomlarının miktarına göre genişlediğini göstermektedir. XRD analizleri esnasında numunelerin tümünün yüzeyinde avroyumun kırmızı renkteki emisyonu gözle görülür şiddette gözlemlenmiştir.

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kompozisyonlarının XRD paternleri Şekil 4.34'de verilmiştir. Sonuçlar, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kompozisyonları ile oldukça benzerdir. Elde edilen patern, 43-4021 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumludur ve pik pozisyonlarında kompozisyondaki Tb miktarının artışı ile 100 pikinde düşük 2Teta değerlerine doğru kayma gözlemlenmektedir. Düşük katkılandırma oranlarındaki numunelerin X-ışınları aydınlatması altındaki yüzeylerinde Tb elementinden kaynaklanan gözle görülür şiddetlerde yeşil renkli emisyon oluşurken, %12 ve %24 atomik oranlarında katkılandırılan numunelerde emisyon kaybolmuştur. XRD paternlerinde gözlemlenen tüm pikler kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> fazına ait olup ikincil bir faza dair veriye rastlanmamıştır.



Şekil 4.34. Seçilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kompozisyonlarının X-ışınları difraksiyon paterni. ▼ 43-4021 numaralı JCPDS kartıyla tanımlanan kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

XRD analizleri esnasında yüzeye düşen X-ışınları bazı numunelerde radyolüminesansı uyarmıştır. Şekil 4.35'de gonyometreye yerleştirilmiş numune, X-ışnı tüpünün yeri ve numune yüzeylerindeki parlak ışıma görülebilir.



Şekil 4.35 XRD analizleri esnasında numune yüzeyinde gözle görülebilien radyolüminesans etki. Avroyum katkılı sintilatörlerde pembe/kırmızı arası, Tb katkılı sintilatörlerde ise yeşil renkte gözlemlenmiştir.

#### RAMAN Analizleri

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu, Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb numunelerinin RAMAN analizleri 632,8 nm ve 532 nm dalgaboylarındaki lazer kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Şekil 4.36'da %3 Eu katkılandırılmış kübik kristal yapıdaki Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinin RAMAN kayması spektrumları ayrı ayrı verilmiştir.

Kübik kristal yapıdaki Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> için 632,8 nm lazer kullanılarak alınan spektrumda 14 adet pik belirlenmiştir. Kübik kristal yapıdaki Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> gibi üç oksijen ve 2 metal atomundan oluşan katıların optik fononlardan kaynaklı RAMAN kaymaları genellikle düşük frekanslardadır. Yüksek frekanslardaki RAMAN kaymaları ise latis titreşimleri ile değil 3 değerlikli lantanid iyonlarının valans (f kabuğundaki) elektronlarının lazer ışığı ile uyarılması ve bu elektronik geçişlerin neden olduğu lüminesasınstan kaynaklanmaktadır. Düşük frekans bölgesinde tespit edilen 95,5 cm<sup>-1</sup>, 109,36 cm<sup>-1</sup>, 144,15cm<sup>-1</sup>, 312,88 cm<sup>-1</sup>, 360,55 cm<sup>-1</sup> ve 442,53 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarındaki pikler kübik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyuşmaktadır. 360,55 cm<sup>-1</sup>



Şekil 4.36. Sırasıyla  $Gd_2O_3$ :Eu,  $Lu_2O_3$ :Eu ve  $Y_2O_3$ :Eu tozların 632,8nm ve 532nm lazer kullanılarak alınan RAMAN spektrumları.

Özellikle 1250-1750 cm<sup>-1</sup> arasında kalan alanda yoğunlaşan diğer pikler kristaldeki Eu<sup>+3</sup> katkısı ve konak kristalin Gd<sup>+3</sup> iyonlarının 632,8 nm dalgaboyundaki lazer ile uyarılabilen  ${}^{5}D_{0} \rightarrow {}^{7}F_{3}$  ve  ${}^{5}D_{0} \rightarrow {}^{7}F_{4}$  elektronik geçişleri ile ile ilişkilidir. 532 nm lazer kullanılarak elde edilen

spektrumda ise 2438,83 cm<sup>-1</sup> pozisyonunda, 632,8 nm dalgaboyundaki lazer ile uyarılamayan Eu<sup>+3</sup> iyonları ile ilişkilendirilen elektronik geçişlerden kaynaklanan pikler ve 1700cm<sup>-1</sup> frakansı yakınlarındaki diğer elektronik geçişler belirlenememiştir. 532 nm dalgaboyu, 18796,99 cm<sup>-1</sup> frekans değerine karşılık gelmektedir. Elde edilen majör pik ve lazer frekansı arasında 16358,16 cm<sup>-1</sup> frekansına karşılık gelecek kadar enerji farkı bulunmaktadır. Bu değerin dalgaboyu cinsinden karşılığı 611,32 nm olarak Eu<sup>+3</sup> iyonlarının başta  ${}^{5}D_{0} \rightarrow {}^{7}F_{2}$  ışıldar elektronik geçişine karşılık gelmektedir. Eu<sup>+3</sup> iyonlarının lazer ile uyarılmış lüminesansının şiddeti düşük frekanslardaki RAMAN aktif fonon piklerinin gözlemlenmesini engellemektedir. Farklı konsantrasyonlardaki Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu numuneleri benzer spektrumları sergilemiş olup katkı iyonlarına bağlı piklerin Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> piklerine olan oranının katkılama oranı ile arttığı tespit edilmiştir. Aynı duruma Şekill 4.8'te verilen, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu numunelerinde de rastlanmıştır. 632,8 nm lazer kullanılarak alınan spektrumda 13 adet pik belirlenmiştir. Bunlardan 325,93 cm<sup>-1</sup>, 404,10 cm<sup>-1</sup>, 440,33 cm<sup>-1</sup>, 501,34 cm<sup>-1</sup> ve 637,66 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarındaki pikler kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyuşmaktadır. Diğer pikler kristal yapıdaki Eu<sup>+3</sup> safsızlığından kaynaklanmaktadır. 532 nm lazer kullanılarak elde edilen spektrumda düşük frekanslardaki fonon piklerine dair pikler 2437,61 cm<sup>-1</sup> pozisyonunda siddetli lazer ile uyarılmış lüminesans piki tarafından gölgelenmiştir. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu spektrumu Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile benzerlik göstermektedir. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu numunesinden 632,8nm lazer kullanılarak elde edilen spektrumda 150-600 cm<sup>-1</sup> frakans aralığındaki pikler kübik kristal yapıdaki Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yapısını tanımlamaktadır. 600-800 cm<sup>-1</sup> arasında kalan pikler diğer konak malzemelerde de olduğu gibi Eu<sup>+3</sup> katkısından kaynaklanmaktadır. 1700cm<sup>-1</sup> civarında siddetli lazer ile uyarılmış özlüminesans pikleridir. 532 nm lazer kullanılarak elde edilen Y2O3:Eu spektrumda ise 2439 cm<sup>-1</sup> pozisyonunda, 632,8 nm dalgaboyundaki lazer ile uyarılamayan Eu+<sup>3</sup> iyonları ile ilişkilendirilen elektronik geçişlerden kaynaklanan pikler belirlenmiştir. Lazer ile uyarılmış öz lüminesans pikinin şiddeti düşük frekanslardaki fonon piklerini bastırmıştır.

Hazırlanan Tb katkılandırılmış Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerinde sadece 532 nm lazer kullanılarak RAMAN analizleri gerçekleştirilmiştir. 632,8 nm dalgaboyundaki lazer Tb<sup>+3</sup> iyonlarını uyararak f-f elektronik geçişlerine sebep olabilecek enerjiye sahip değildir. Şekil 4.37'de %0,4 atomik oranda Tb katkılandırılmış Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ve Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunelerine dair RAMAN kayması spektrumu verilmiştir. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> numunesinde 90-550 cm-<sup>1</sup> frekans aralığındaki pikler kübik Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristaline aittir. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb numunesinin kristal yapısı incelendiğinde 397,47 cm<sup>-1</sup> pozisyonunda belirlenen majör pik, 504,32 cm<sup>-1</sup> ve 618,21 cm<sup>-1</sup> pozisyonlarında tespit edilen minör pikler kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristali ile uyum içinde olduğu belirlenmiştir. 1700-2500 cm<sup>-1</sup> frekans aralığında tespit edilen pikler ise Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristalinde Lu<sup>+3</sup> iyonlarının 532 nm lazer ile uyarılan öz lüminesansına aittir. Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb Numunesinde 632,8 nm

lazer kullanılarak alınan RAMAN kayması spektrumunda 150-600 cm<sup>-1</sup> frekans aralığında tespit edilen pikler kübik yapıdaki Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristalini tanımlamaktadır.



Şekil 4.37. Sırasıyla  $Gd_2O_3$ :Tb,  $Lu_2O_3$ :Tb ve  $Y_2O_3$ :Tb tozların 632,8nm ve 532nm lazer kullanılarak alınan RAMAN spektrumları.

Avroyum ve terbiyum katkılandırılmış numunelerin ramanları arasında önemli bir fark ortaya çıkmıştır. 532 nm lazer, Eu<sup>+3</sup> öz lüminesansını uyarabilecek enerjiye sahip olduğundan Eu<sup>+3</sup> iyonları ile ilişkilendirilen şiddetli piklerin oluşmasına neden olmuştur. Aynı etki düşük enerjili 632,8 nm lazer ile sağlanamamış, iki farklı lazerle alınan RAMAN kayması spektrumları arasında önemli farklılıklar oluşmasına sebep olmuştur. Bu durum terbiyum katkılandırılmış numuneler için farklıdır. 532 nm lazer, Tb<sup>+3</sup> iyonlarının başta f-f elektronik geçişlerini uyaracak eşik enerjisine sahip değildir. Bu sebepten ötürü iki farklı lazerle alınan ve Tb özlüminesansının şiddetli pikler halinde gözlenmediği RAMAN kayması spektrumları birbirine benzerdir.

RAMAN analizi sonuçları X-ışınları difraksiyonu sonuçları ile uyumludur. Üretilen tüm Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tabanlı seramik sintilaör kompozisyonlarının kübik kristal yapıda olduğu veya farklı değerlikli katkı iyonlarının yapılarda bulunmadığını ortaya koymaktadır.

### 4.5 Seramik Sintilatörlerin Radyolüminesans Özelliklerinin Karakterizasyonu

Sentezlenen Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tabanlı seramik sintilatör kompozisyonlarının tamamının X-ışınları altındaki ışıma şiddetleri tek foton sayma tekniği kullanılarak belirlenmiş ve birbirleri ile karşılaştırılmıştır. Sintilatörlerin ışıma şiddetleri katkılama oranları arasındaki ilişkiyi gösteren grafikler Şekil 4.38'te verilmiştir.



Şekil 4.38. Seramik sintilatörlerin emisyon şiddetlerini konak malzemelere göre karşılaştırılması.

Tüm konak/katkı sistemlerinde en yüksek ışıma şiddetini sergileyen numuneler Şekil 4.39'daki çizgi grafikte bir arada gösterilmiştir. En yüksek verim %5 atomik oranda Eu katkılandırılmış Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sistemi olmuştur.



Şekil 4.39. Her konak/katkı sistemi için en yüksek verimi sergileyen kompozisyonlar

Tüm numunelerin X-ışınları altındaki ışıma spektrumları ölçülmüş olup her konak/katkı sisteminden en yüksek verimi sergileyen numunelerin ışıma spektrumları Şekil 4.40'da verilmiştir. Spektrumlar incelendiğinde Eu katkılı tüm numunelerin spektrumlarının birbirine çok yakın olduğu gözlemlenmiştir. Bu durum Tb katkılandırılmış numuneler için de geçerlidir. Eu katkılandırılmış tüm numunelerde Eu<sup>+3</sup> iyonlarının karakteristik pempe-kırmızı rengi gözlemlenmiştir. Majör emisyon piki 612 nm dalgaboyunda belirlenmiş olup bu pik  ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$ ışımalı geçişi ile ilişkilendirilmiştir.

Kübik  $Gd_2O_3$  kristalinin nadir toprak elementleri ile katkılandırılmak üzere uygun C2 ve S6 bölgelerinin bulunduğu bilinmektedir.  ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_2$  ışıldar geçişinin majör olarak gözlenmesi Eu $^{+3}$ iyonlarının C2 bölgelerine yerleştiğini göstermektedir. Diğer minör pikler ise diğer  ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F$ geçişlerinden kaynaklanmaktadır.

Tb katkılandırılmış numunelerin ışıma spektrumlarında 480-510 nm, 535-560 nm, 575-600 nm ve 615-630 nm bölgelerinde emisyon pikleri elde edilmiştir. Bunlar sırası ile  ${}^{5}D_{4} \rightarrow {}^{7}F_{6}$ ,  ${}^{5}D_{4} \rightarrow {}^{7}F_{5}$ ,  ${}^{5}D_{4} \rightarrow {}^{7}F_{4}$  ve  ${}^{5}D_{4} \rightarrow {}^{7}F_{3}$ ışıldamalı geçişleri ile ilişkilidir. Majör emisyon pikleri,  ${}^{5}D_{4} \rightarrow {}^{7}F_{5}$ ışıldar geçişlerine karşılık gelen 545 nm ve 555 nm dalgaboylarında belirlenmiştir.



Şekil 4.40. En yüksek verim sağlayan numunelerin ışıma spektrumları

### 4.6 Fiber Optik Plakaların Yüzey İşlemlerini İncelenmesi

Fiber optik plakaların yüzeylerinin işlenmesi ile ilgili prosedür uygulandıktan sonra numune yüzeylerinin mikro yapıları incelenmiştir. Çözülen numuneler taramalı elektron mikroskobu analizine tabi tutulmuştur. Seyreltik HF çözeltileri ile dağlanan numunelerin ikincil elektron FE-SEM mikrografları Şekil 4.41'de verilmiştir. Yüzeyleri incelenen numuneler değerlendirildiğinde HF çözeltilerinin ışık geçirgen çekirdek fiberleri cam matrise göre daha

hızlı çözdüğü ve çözücüdeki HF miktarının belirli bir oranı aştığı durumlarda SEM mikrografı Şekil 4.42'ten görüldüğü üzere yüzeyin homojen olmayan bir şekilde dağlandığı anlaşılmıştır.



Şekil 4.41. Seyreltik HF çözeltilerinin kullanıldığı numunelerde seçimli çözme işlemi çekirdek fiberlerin cam matrise göre daha hızla çözülmesi ve bütünleşik fiber optik plakaların yüzeyinde mikro kuyuların elde edilmesiyle sonuçlanmıştır a). Bu numunenin yüksek çözünürlüklü mikrografında b) soğurucu fiberlerin en yüksek hızda çözülen kompozisyon olduğu görülmektedir.



Şekil 4.42. Yüksek konsantrasyonlu HF çözeltisiyle yüzeyi dağlanmış numune.

En iyi SEM mikrograf sonucu Şekil 4.43'te verilen hacimce %40 HN4F içeren tampon çözeltisi ile sağlanmıştır. Çekirdek fiberlerde önemli bir tahribat olmadan cam matrisin fiberlerden daha hızlı bir şekilde çözüldüğü görülmüştür. Bu durum, tampon çözeltisinde HN<sub>4</sub>F bileşeninin matristen farklı kompozisyondaki çekirdek fiberlerin HF ile reaksiyona girmesini engellediği veya yavaşlattığı görüşüne bağlanmıştır.



Şekil 4.43. Hazırlanan NH4F içeren tampon çözeltisi için ise bu projenin amaçlarına uygun olacak şekilde çekirdek fiberler korunarak matris seçimli olarak çözülmüştür a) Bu numunenin yüksek çözünürlüklü mikrografında b) matrisin açılı olarak çözüldüğü görülmektedir.

# 4.7 Büyütülen Sintilatör İnce Filmlerin Karakterizasyonu

Cam altlıklar üzerinde büyütülen filmlerin transparan oldukları gözlemlenmiştir. Büyütülen filmlerin resimleri Şekil 4.44'te verilmiştir.

NIS	oi <	
Ō	7 2/	120
15v	757	B
1.57	245	er.
754	NA	NJ.

Şekil 4.44. Cam altlık üzerine büyütülmüş transparan sintilatör filmler.

Üretilen filmlerin kristal yapısının incelenmesi amacı ile X-ışınları difraksiyonu analizleri gerçekleştirilmiştir. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb filmlerin XRD sonuçları Şekil 4.45'te verilmiştir. Her iki sistem için de tüm numunelerin 43-4021 numaralı JCPDS kartı ile tanımlanan kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ile uyumlu olduğu gözlemlenmiştir. Eu katkılandırılmış numunelerde %2 safsızık konsantrasyonundan sonra kristal yapının (400) düzlemi yönünde düzenlendiği gözlemlenmiştir. Tb katkılandırılmış numunelerde ise böyle bir olaya rastlanılmamıştır.



Şekil 4.45. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb filmlerin X-ışınları difraksiyon paternleri.

Farklı Tb oranlarına sahip Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamalar ve %5 atomik oranda Eu katkılandırılmış Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> filmlere ait düşük açılı XRD grafikleri Şekil 4.46'da verilmiştir. Kaplamalarda monoklinik yapının baskın olduğu karışık faz yapısı görülmüştür.



Şekil 4.46. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb filmlerin X-ışınları difraksiyon paternleri.

Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamalara Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> eklenmesi durumunda oluşan mikroyapıya ait SEM fotoğrafları ise Şekil 4.47'de verilmiştir. Şekilden de görülebileceği üzere, Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> yapısının kaplamaya girmesi sonucunda kaplama miktarındaki artan Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> miktarları ile birlikte kaplama kalınlıkları azalmıştır. Kaplamaların büyüme yapısı diğer Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamalara benzer olarak kolonsaldır.



Şekil 4.47. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> kaplamalara ait yüzey ve kesit SEM görüntüleri

Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu kaplamalara ait kesit görüntüleri ve yüzey morfolojileri ise Şekil 4.48'de verilmiştir. Bu kaplamalarda elde edilen kaplamanın maksimum kalınlığı 1,349 µm olarak ölçülmüştür. Kaplamada oldukça yoğun kolonsal büyüme hakimdir. Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kaplamalar ile mukayese edildiğinde oldukça kalın bir kaplama elde edildiği gözlemlenmektedir. Kaplamaların yüzey morfolojileri de düzgün geometrik şekilli olarak görülmektedir.



Şekil 4.48 %4.85 oranında  $Eu_2O_3$  ile katkılanmış  $Gd_2O_3$  filmlerin kesit (50kx) ve yüzey morfolojileri (30kx-50kx-100kx).

Farklı Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> içeriğine sahip Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kaplamaların kesit fotoğrafları ve yüzey morfolojilerini gösteren SEM fotoğrafları ise Şekil 4.49'da verilmiştir. Kaplama kalınlıkları %0.4 Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> içeren Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kaplama için 1.418µm, % 1.8 içeriğe sahip olanda ise 484nm olarak ölçülmüştür. Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Tb kaplamalarda, Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> ilavesinin artışı ile kaplama kalınlığının azalması Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> esaslı kaplamalardakine benzer niteliktedir.



 $Gd_2O_3$ :Tb Şekil 4.49. Farklı Tb<sub>4</sub>O<sub>7</sub> içeriğine sahip  $Gd_2O_3$ :Tb kaplamaların kesit ve yüzey

morfolojileri

Sentezlenen sintilatör malzemelerin karakterizasyonu sonucunda en yüksek ışıma şiddetini sağlayan %5 atomik oranında Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> katkılandırılmış Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kompozisyonu ince film kaplamalarda kullanılmak üzere seçilmiştir. Bu malzemeden magnetron hedefleri hazırlanmıştır. Üretilen ince filmler mikro yapı, X-ışınları difraksiyonu, radyolüminesans ve zaman korale flüoresans analizlerine tabi tutulmuştur.

Farklı katot güçleri uygulanarak cam altlıklar üzerinde üretilen ince filmlerin kırık kesit ve yüzey mikro yapıları Şekil 4.50'deki ikincil elektron mikrograflarında verilmiştir. Bu yalıtkan numunelerin yüzeyi, analiz sırasında yük birikmesini önlemek üzere altın kaplanmıştır. Mikrograflar incelendiğinde film kalınlıklarının, katoda uygulanan güçle beraber eksponansiyel olarak arttığı anlaşılmaktadır. En düşük güç olan 30 W için kaplamanın kalınlığı 177.5 nm olurken uygulanan 45 W, 60 W ve 75 W ile birlikte kalınlıklar sırasıyla 333.9 nm, 474.5 nm ve 582.8 nm olarak ölçülmüştür. En yüksek katot gücünde biriktirme hızı 19 nm/dakika olarak belirlenmiştir.

Kaplamaların kolonsal yapıda büyüdüğü gözlemlenmiştir. Kolonların çapları Şekil 4.51'de de görülebileceği üzere 40nm den daha küçüktür. Bu arzu edilen bir morfolojidir. Küçük ve düzenli kolonlar ince filmlerdeki radyolüminesanla elde edilen görüntüde detay kaybının en aza indirgenmesini sağlayacaktır. Kolonlar ve altlık malzeme yüzeyinde altın kaplamanın öbekleşmesinden dolayı oluşan karnıbahar şeklinde yapılar görülmektedir. Altın kaplama yapılmaksızın yalıtkan karakterli kaplamadan yüksek büyütmelerde görüntü alma imkânı bulunmamıştır.



Şekil 4.50. Sırasıyla 30W (a), 45W (b), 60W (C) ve 75W (d) katot güçlerinde biriktirilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerin kırık kesit ve yüzey ikincil elektron mikrografları.



Şekil 4.51. 75W katot gücüyle biriktirilmiş Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerinin kırık kesit mikrografları üzerinden kalınlık ve kolon çaplarının ölçülmesi.

Üretilen ince filmlerin XRD analizi sonuçları Şekil 4.52'de verilmiştir. Analiz sonuçları incelendiğinde XRD paterninin 43-1021 JCPDS kart numarası ile tanımlanan kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> kristali ile uyum içerisinde olduğu gözlemlenmiştir. Bununla birlikte kristal yapının (400) düzlemi doğrultusunda düzenlendiği ve bu durumun film kalınlığının artmasıyla beraber doğru orantılı hale geldiği anlaşılmaktadır. Yapıda ikincil kristal fazlara rastlanılmamıştır.

İnce filmlerin radyolüminesans özellikleri X-ışınları aydınlatması altında CCD spektrometre ve tek foton sayacı kullanılarak analiz edilmiştir. Analiz yöntemi 3. bölümde detaylı olarak verilmiştir. Şekil 4.53'te elde edilen ışıma spektrumu ve farklı kalınlıklardaki filmlerin ışıma şiddetleri karşılaştırmalı olarak verilmiştir. Tüm numunelerden aynı ışıma spektrumu elde

edildiğinden sadece 75W katot gücüyle biriktirilen numunenin spektrumu çizdirilmiştir. Emisyon spektrumundaki piklerin 580 – 720 nm dalgaboyları aralığında olduğu gözlemlenmiştir. Analizde majör ışıma piki 612 nm dalgaboyunda olup 5D0 →7F2 geçişini belirtmektedir. Bu geçişin kübik Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> konak kristalinin C2 lokasyonuna yerleşmiş Eu<sup>+3</sup> iyonunun neden olduğu iyi bilinmektedir. Tek foton sayacı ile yapılan ölçümlerde film kalınlığındaki artışa bağlı olarak ışıma şiddetinin de arttığı gözlemlenmiştir. Bu beklenen durum ince filmlerde, gelen X-ışınlarının düşük miktarda soğurularak geçmesinden kaynaklanmaktadır.



Şekil 4.52. Biriktirilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerin X-ışınları difraksiyon analizi sonuçları.



Şekil 4.53. Biriktirilen Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmlerinin ince filmlerin radyoluminesans özellikleri; a) Tüm ince filmlerin ışıma spektrumları benzerdir. Eu<sup>+3</sup> iyondan kaynaklanan karakteristik pikler spektrumda görünmektedir. b) Tümü 30 dakika süreyle kaplanan Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> filmlerin emisyon şiddetleri ve katot gücü ile film kalınlığı arasındaki ilişkisi. (Film kalınlığı şekil üzerinde gösterilmiştir.)

En yüksek ışımayı veren filmin durulma zamanı ve kalıntı ışıması zaman korale tek foton sayma tekniği kullanılarak belirlenmiştir. Işıma şiddetinin aydınlatma kesildikten sonra zamana bağlı değişimini gösteren grafik Şekil 4.54'de verilmiştir. Grafikten ışıma şiddetinin %90'dan %10'a (durulma zamanı) inmesi için 1,30 ms ve %10'dan %1'e (kalıntı ışıma) inmesi için 4,50 ms zaman aralıkları ölçülmüştür.



Şekil 4.54. Biriktirilen %5 atomik oranda Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> katkılandırılmış Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ince filmin durulma zamanları ve kalıntı ışımalarının ölçümü.

# 4.8 Üretilen Fosfor Ekranların Lateral Çözünürlüklerinin Tayini

Standart bütünleşik fiber optik plaka ve yüzeyi işlenmiş fiber optik plaka üzerine Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (%5 atomik oran) kaplanarak üretilmiş fosfor ekranlar test edilmiştir. Çalışmanın daha önceki evrelerinde edinilen bilgi birikimi ile fosfor ekranları kaplamak için uygulanan ince film biriktirme hızı yaklaşık 20 nm/dak olarak seçilmiştir. Fosfor ekranların hesaplanan sintilatör kalınlığı 7,20 µm'dir. Sintilatör katman üzerine alüminyum ince film büyütülmüştür. Şekil 4.55'te üretilen fosfor ekranlar görülmektedir. Konvansiyonel fosfor ekranın yüzeyinin ayna parlaklığına yakın olduğu, mikro paternli yüzeye sahip fosfor ekranın daha koyu bir renk sergilediği görülmektedir.



Şekil 4.55. Konvansiyonel ve yüzeyi işlenmiş fiber optik plakalar üzerinde Lu2O3:Eu ince filmler ve alüminyum katmanlar büyüterek üretilmiş fosfor ekranlar.

Fosfor ekranların test edilmesi için USAF 1951 tipi çözünürlük test hedefi kullanılmıştır. Bu hedefin şekli ve değerlendirme tablosu Şekil 4.56'da verilmiştir. Dışarıdan içeriye doğru gidildikçe daha küçük açıklıklar bulunmaktadır. Hedef üzerindeki en küçük hedef olan 3/6 grup ve element numarasıyla tanımlana hedef 14,30 çizgi/mm ve en genişi olan 0/1 ise 1 çizgi/mm'dir. Yapılan analizde sadece 2. ve 3. gruplar test edilmiş ve analize en küçük çizgi grupları görüntülenerek başlanmıştır. Şekil 4.57'de çözünürlük hedefinde altı farklı çizgi grubunun 20X objektif kullanılarak alınmış görüntüleri verilmiştir. Şekilde hedeften görünür

ışık geçirilerek alınmış hedef görüntüsü ile hedeften X-ışınları geçirilerek test edilen iki farklı fosfor ekran yüzeyinden alınan görüntüler karşılaştırılmıştır. Resimde hedefin kendisinin görüntüsü 1, konvansiyonel fosfor ekranın görüntüsü 2 ve yüzeyinde mikro patern oluşturularak geliştirilmiş fosfor ekranın görüntüsü ise 3 ile kodlanmıştır. Analizde radyasyon kaynağı olarak Cu anod ile donatılmış 50W gücünde (50 kV hızlandırma potansiyeli ve 1 mA tüp akımı) X-ışı tüpü kullanılmıştır.

Fosfor ekranların ayırma gücü arasında gözle görülür bir fark ortaya çıkmıştır. Geliştirilmiş fosfor ekranda 3/6 grubu çizgiler ayırt edilebilirken konvansiyonel ekranda 3/5 çizgi grubu ayırt edilebilmektedir. Bu durumda geliştirilmiş ekranın lateral çözünürlüğü 14,30 çizgi/mm (69 µm) konvansiyonel ekranın ise 12,70 çizgi/mm (79 µm) olarak belirlenebilir. Çözünürlük değerinin geliştirilmiş ekranlarda %12,6 arttırıldığı söylenebilir.

En yüksek çözünürlüklü bölge incelendikten ve çözünürlük ölçümü yapılmasından sonra hedefin diğer düşük çözünürlük bölgelerinin incelenmesi gerekli görülmemiştir.



Şekil 4.56. Lateral çözünürlük analizi için kullanılan USAF 1951 tipi test hedefi. Sağdaki şekilde çizgi gruplarını tanımlayan element ve grup numaraları görülüyor. Tabloda hedefin grup ve elementlerine göre çözünürlük değerleri verilmiştir.

Elde edilen bu sonuçlar geliştirilen mikro patern yapılı fosfor ekran konseptini doğrulamaktadır. Kalınlığı yaklaşık 7,2 µm olarak hesaplanan fosfor film ihtiva eden bu ekranlarda 50W tüp gücü ile herhangi bir yükselticiye (görüntü yoğunlaştırıcı gibi) ihtiyaç duymadan 100 µm altında ayırt edilebilir görüntünün alınabilmesi geliştirilen fosforun ve gerçekleştirilen ince film kaplamaların etkinliğini de açıkça ortaya koymaktadır.



Şekil 4.57. Hedefin mikroskop görüntüleri içerisinden ışık geçirilerek doğrudan hedef yüzeyinden (1) ve X-ışınları geçirilerek konvansiyonel fosfor ekran (2) ve geliştirilmiş fosfor ekran (3) yüzeylerinden alınan görüntüler. a) 3/6, 3/5 ve 3/4 çizgi grupları b)3/2 ve 3/2 çizgi grupları c) 2/2 çizgi grupları

# 4.9 Detektörde Lateral Çözünürlülüğün Ölçülmesi

Geliştirilmiş X-ışınları alan detektörünün lateral çözünürlüğünün ölçülmesine USAF 1951 hedefi kullanılarak farklı X-ışını enerjileri ve tüp güçleri ile devam edilmiştir. Detektörde 1mm kalınlığında PMMA giriş penceresi olarak kullanılmıştır. X-ışınları tüpüne mamografide kullanılan X-ışınları enerji aralığı olan 20-40 kV arası hızlandırma potansiyeli uygulanmıştır. Tüm denemelerde tüp akımı 40 mA olarak sabit tutulmuş, hızlandırma potansiyeli 40, 30 ve 20 kV olarak ayarlanmıştır. 1600 W, 1200 W ve 800 W tüp güçlerinde elde edilen radyograflar Şekil 4.58'te verilmiştir.



Şekil 4.58. USAF 1951 tipi çözünürlük ölçüm hedefinin a) 40 kV/1600 W, b) 30kV/1200 W ve c)20kV/800W tüp güçlerinde alınmış X-ışınları radyografları. Sol tarafta hedefin tamamının görüntüsü, sağ tarafta ise 2 ve 3 numaralı çizgi gruplarının dijital olarak büyütülmüş görünümü verilmiştir.

Elde edilen görüntüler incelendiğinde 40kV ve 30kV hızlandırma potansiyeli kullanılan deneylerde 3/5 grubunun düşey çizgileri ayırt edilebilmektedir. 20kV için ise ancak 3/3 düşey çizgileri ayırt edilebilmiştir.

## 4.10 Görüntü Kalitesi Ölçümü

Geliştirilen X-ışınları alan detektörünün görüntü kalitesi kontrast ayrıntı açısından incelenmiştir. Bu amaç doğrultusunda Artinis Medical Systems BV marka CDRAD 2.0 fantomu ve CDRAD analiz yazılımı kullanılmıştır. Görüntü kalite ölçütü olarak *IQFinv* kullanılmıştır. Böylelikle klinik açıdan önemli olan küçük nesnelerin tespit edilebilme başarısı incelenmiştir.

CDRAD 2.0, polimetil metakralittan imal edilmiş bir plaka olup üzerinde değişik çap ve derinlikteki 225 disk şeklinde delik açılarak oluşturulmuş kontrast-ayrıntı fantomudur. Genel görünümü Şekil 4.59'da gösterilen CDRAD 2.0 fantomundaki disklerin çapı ve derinliği 0,3 mm ile 0,8 mm arasında değişmektedir. Yatay eksendeki değişik derinlikteki diskler farklı kontrast miktarlarını, dikey eksendeki değişik çaptaki diskler ise farklı ayrıntı seviyelerini oluşturmaktadır. Diskler 15x15'lik bir matris oluşturmaktadır. İlk 3 satırda merkeze yerleştirilmiş tek, sonraki satırlarda merkezdekine ilaveten köşelerden birine yerleştirilmiş bir disk daha bulunmaktadır.



#### Şekil 4.59 CDRAD 2.0 matrisinin dağılımı ve genel görünümü

CDRAD 2.0 fantomu kullanılarak gerçekleştirilen X-ışınları görüntü kalitesi ölçümü kontrastayrıntı seviyesinin görünür olup olmadığını belirlemeye dayalıdır. Bu analizde doğru gözlem oranı ve *IQFinv* incelenmektedir. Doğru gözlem oranı; gözlemlenebilen disklerin sayısının toplam disklerin sayısına oranıdır. Bu yöntemde gözlemlenen her diskin ağırlığı eşittir. Medikal X-ışınları detektörleri için küçük detayların algılanabilmesi önemli bir ölçüttür [Aksoy vd., 2012]. Doğru gözlem oranını veren denklem aşağıda verilmiştir;

$$\text{Doğru gözlem oranı} = \frac{\text{Doğru gözlem sayısı}}{225} \times 100$$
(4.1)

Doğru gözlem oranından ziyade *IQF*, küçük detayların görüntü kalitesi üzerindeki etkisini belirlemek üzere kullanıma daha uygundur. Doğru gözlemlenen disklerin sayısı ( $C_i$ ) ve bu kontrastta gözlemlenen en küçük diskin çap değeri (D (i, th)), *IQF* ölçümünde yer almaktadır. *IQF* denklemi aşağıda verilmiştir;

$$IQF = \sum_{i=1}^{15} C_i \times D(i, th)$$
(4.2)

Diskin çap değeri düştükçe görüntü kalitesi artmaktadır. Görüntü kalitesinin ölçüt ile doğrusal değişimi sağlanabilmesi için denklemin tersinin alındığı bir kalite denklemi geliştirilmiştir;

$$IQFinv = \frac{100}{\sum_{i=1}^{15} C_i \times D(i, th)}$$
(4.3)

Bu denkleme dayalı olarak oluşturulabilecek kontrast-detay eğrisi veya klasik IQF ölçüm eğrisi görüntü kalitesini değerlendirilmesinde kullanılabilecek bir araçtır. Klasik IQF ölçüm eğrisi yüksek algılama bölgesi ile düşük algılama bölgesi arasındaki geçişi temsil etmektedir. Kontrast detay fantomunun görüntüsü CDRAD yazılımı ile analiz edilerek insan kaynaklı olabilecek doğru okuma hataları en aza indirilmiştir. Sinyal ve fon ölçümü yazılım tarafından gerçekleştirilmiştir.

Elde edilen sonuçlar M. E. Aksoy ve çalışma grubu tarafından yassı panel detektörler üzerinde yapılan kontrast detay fantomu çalışmaları ile karşılaştırılmıştır. Bu çalışmada GOS ve Csl sintilatörler bulunduran 9 ayrı detektör, CDRAD 2.0 fantomu ile test edilmiştir. Csl tabanlı sistemlerin GOS tabanlı sistemlere göre daha yüksek QIFinv sergilediği ve QIFinv değerinin dozlama ile doğru orantılı olduğu belirlenmiştir. Proje çalışmlarında bu rapordaki ile benzer şartlar oluşturulmuş olsa da dozimetre kullanılamadığı için Gy cinsinden X-ışınları çalışmalarında 6,31 olarak belirlenmiştir. Bu farkın uygulanan X-ışınları doz farkından kaynaklandığı düşünülmektedir.

Konrast-ayrıntı incelemesi medikal amaçlı Philips marka konvansiyonel planar radyografi ekipmanı kullanılarak gerçekleştirilmiştir. X-ışınları kaynağı ile detektör yüzeyi arasında 100cm mesafe bırakılmış ve fantom detektör ile X-ışını kaynağı arasına yerleştirilmiştir.
Fantomun ön ve arka yüzeyine 10 adet 1cm kalınlığında PMMA plaka yerleştirilmiştir. Detektörün fosfor ekran yüzeyi 50mm x 50mm görüntüleme alanına sahip olduğundan fantomda yer alan bölgeler ayrı ayrı ölçülerek kaydedilmiş, alınan görüntüler birleştirilerek CDRAD programı tarafından okunabilir bir görüntü formatına dönüştürülmüştür. 80 kV hızlandırma potansiyeli uygulanmıştır. X-ışınları 50 mAs dozlanmıştır. Birleştirilmiş kontrast-ayrıntı fantomu görüntüsü ve CDRAD yazılımı tarafından değerlendirilen kontrast detay diyagramı Şekil 4.60'ta verilmiştir.



Şekil 4.60 Kontrast-ayrıntı fantomunun birleştirilmiş ve dönüştürülmüş radyografı ve CDRAD yazılımı kullanılarak hesaplatılmış *IQFinv* diyagramı.

CDRAD yazılımı tarafından toplam tespit miktarı %75,11 ve IQFinv değeri ise 6,31 olarak hesaplanmıştır. Elde edilen sonuçlar literatürde rapor edilmiş diğer çalışmalar ile karşılaştırılmıştır.

Tablo 4. 1 80 kV hızlandırma	a potansiyeli içiı	n elde edilen	IQFinv sonuçları
------------------------------	--------------------	---------------	------------------

Receptor	CR K	onica	C CareS	R tream	CareS	R tream	CR	Agfa	a-Si	DRX	a-Si Phili	DR ips
mAs		IQF <sub>INV</sub>										
10							4.40	0.58				
12	4.29	1.14	4.81	1.09	2.99	1.06			6.22	1.06	4.30	1.09
16			5.83	1.45								
20	5.59	1.90	6.55	1.81	3.66	1.76	5.18	1.16	4.98	1.76	6.00	1.81
32	5.54	3.04	6.38	2.90	4.97	2.82			6.22	2.82	5.14	2.90
40			6.33	3.62								
50	6.59	4.76			4.12	4.41			6.66	4.41	4.38	4.53
64	6.55	6.09	6.48	5.70	3.90	5.64	6.76	3.48	5.61	5.64	5.53	5.70
80	6.50	7.61	6.91	7.24	3.18	7.05	6.86	4.64	5.95	7.05	6.76	7.24

W. O. G. Batista ve A. G. de Carvalho tarafından ISSSD 2016'da sundukları raporda CDRAD 2.0 fantomu kullanarak farklı X-ışınları dozlarında faklı sayısal radyografi detektörleri için elde ettikleri görüntü kalitelerini değerlendirmişlerdir. Tablo 4.1'de bahsi geçen çalışmada 80 kV hızlandırma potansiyeli için elde ettikleri *IQFinv* sonuçları verilmiştir. Elde edilen sonuç literatür ile karşılaştırıldığında geliştirilen detektörün küçük detayları tespitinde modern radyoloji detektörleri ile rekabet edebilir olduğu söylenebilir.

Dünya genelindeki X-ışınları detektörü pazarında yer alan üreticilerin tümü gelişmiş ülkelerde bulunmaktadır. Bu pazardaki önemli oyuncular; Varian Medical Systems (ABD), PerkinElmer (ABD), Thales Group (Fransa), Canon (Japonya), Konica Minolta (Japonya), Teledyne DALSA (ABD), Fujifilm Holdings Corporation (Japonya), Agfa-Gevaert Group (Belçika), Carestream Health (ABD), Vieworks Co., Ltd (Güney Kore), Analogic Corporation (ABD), Rayence (Güney Kore), SwissRay (İsviçre), Apelem (Fransa), Naomi (ABD), YXLON International GmbH (Almanya), DRTECH (Güney Kore) ve Hamamatsu Photonics K.K. (Japonya) olarak sıralanabilir.

X-ışını görüntüleme detektörleri yapısal, işlevsel ve kullanım alanlarına göre geniş çeşitlilik göstermektedir. Aşağıda X-ışınları görüntüleme detektörleri karakteristikleri ve kullanım alanlarına göre sınıflandırılmıştır;

X-ışını detektörleri tiplerine göre sınıflandırılması:

- Yassı panel detektörler (FPD)
  - o Dolaylı yassı panel detektörler
  - o Sezyum iyodür (CsI) dolaylı yassı panel detektörler
  - o Galyum oksisülfür (GOS) dolaylı yassı panel detektörler
- Doğrudan yassı panel detektörler
- Hesaplamalı radyografi (CR) detektörleri
- Çizgi tarama detektörleri
- Yük iliştirilmiş cihaz (CCD) detektörleri

Yassı panel X-ışını detektörlerinin boyutlarına göre sınıflandırılması:

- Geniş alan FPD
- Dar alan FPD

X-ışını görüntüleme detektörlerinin uygulama alanlarına göre sınıflandırılması

- Medikal
  - Statik görüntüleme
    - Genel radyografi
      - Göğüs görüntüleme uygulamaları
      - Ortopedik uygulamalar
    - Mamografi
  - Dinamik görüntüleme

- Genel flüoroskopi
- Cerrahi görüntüleme
- Kardiovasküler görüntüleme
- Dental görüntüleme
- Güvenlik
- Veterinerlik
- Endüstriyel görüntüleme
- Bilimsel enstrümantasyon

Geliştirilen CCD alan detektörü medikal radyografi alanlarında statik ve dinamik uygulamalarda kullanılabileceği gibi endüstriyel ve bilimsel X-ışınları görüntüleme amaçlarıyla da kullanılabilir. Geliştirilen teknoloji ile yassı panel teknolojisini karşılaştırmak için medikal uygulamalarda kullanılabilecek detektörlerden beklenilen özellikler gözden geçirilmelidir. Bu özellikler aşağıdaki Tablo 4.2'de özetlenmiştir.

Tablo 4.2 Medikal uygulamalara göre X-ışınları görüntüleme detektörlerinin beklenilen özellikleri

Boyut				
Radyografi	43 cm x 43 cm			
Anjiografi	30 cm x 43 cm			
Tam alan mamografi	24cm x 30 cm			
Kardiyoloji	20 cm x 20 cm			
Mamografi biyopsi	5 cm x 9 cm			
Hesaplamalı tomografi	4 cm x 70 cm (Eğimli)			
Resim karesi hızı (frame rate)				
Radyografi, mamografi	0,05-2 s <sup>-1</sup>			
Anjiyoloji	2-30 s <sup>-1</sup>			
Kardiyoloji, flüoroskopi	15-60 s <sup>-1</sup>			
Hesaplamalı tomografi	2000-6000 s <sup>-1</sup>			
Uzaysal çözünürlük				
Yumuşak dokular	400-150 μm			
Kemikler	165-125 μm			
Mamografi, dental	100-25 μm			
Hesaplamalı tomografi	1 mm			

Geliştirilen CMOS alan detektörü uzaysal çözünürlük bakımından tüm uygulamalar için yeterliyken kare hızı olarak radyografi, mamografi, anjiyoloji, kardiyografi/flüoroskopi için uygundur. Bununla beraber bir konsepti kanıtlamak amacıyla geliştirilmiş modül 5 cm x 5 cm görüntüleme alanı sağlayan geliştirilmiş fosfor ekran ve optik bağlayıcılar ile donatılmıştır. Bu bakımdan mevcut prototip doğrudan uyarlanamayacak bile olsa modern bir CCD temelli X-ışını görüntüleme cihazının geliştirilmesindeki önemli bir adımı teşkil etmektedir. SwissRay, Apelem, CaresBuilt ve Naomi firmaları CCD detektörlerin yüksek uzaysal çözünürlüklerinin verdiği avantajları kullanmak üzere çok sayıda CCD detektörden oluşan CCD alan detektörleri geliştirimişler ve ticarileştirmişlerdir. Bu tip cihazlarda CCD dizinleri ayna ve lensler kullanılarak fosfor ekranlar ile eşlenmiştir. Bu detektörlerin örnekleri Şekil 4.61'de verilmiştir. Bu durum geliştirilen fosfor ekranların ticari uygulama şansı bulabileceğinin bir göstergesidir. Diğer bir gelişme de CMOS teknolojisinde yaşanan iyileştirmelerdir. Proje kapsamında geliştirilen fosfor ekranlar ile düşük ışık şartlarında görüntü alabilen CMOS detektörler başarıyla birleştirilmiştir.



Şekil 4.61 Optik yollarla fosfor ekran eşleştirilmiş CCD alan detektörü örnekleri

Mevcut a-Si:H, a-Se ve CCD/CMOS teknolojilerinin avantaj ve dezavantajlarının karşılaştırılması Tablo 4.3'de gösterilmiştir. Fosfor ekran ile eşlenmiş CCD/CMOS detektörler okuma hızı, dayanıklılık ve maliyet olarak diğer geniş panellere nazaran önemli avantajlar sağlarken görüntü kalitesi, boyut ve tomografi gibi ileri uygulamalarda kullanım alanı bulamamaları gibi sebeplerle dezavantajlar sergilemektedirler. Geliştirilen fosfor ekranlar sağladıkları yüksek lateral çözünürlükleri ile CCD/CMOS detektörlerin bu eksikliklerinin giderilmesinde rol oynayabileceği değerlendirilmektedir. Ayrıca boyut kısıtlamaları için birden fazla CCD/CMOS detektör kullanıma seçeneği mevcuttur ve ticari olarak kanıtlanmış bir konsepttir.

Tablo 4.3 M	ledikal	uygulamalara	göre	sayısal	X-ışınları	görüntüleme	detektörlerinin	etkinlik
karşılaştırma	ası							

	Detektör tipi								
Özellik		Dolaylı algılam	Fotoiletken						
	a-Si:H/GOS a-Si:H/CsI CCD/CMOS optik eşleme		200 µm a-Se	500 µm a-Se					
Okuma hızı	++	++	+++	++	++				
Görüntü kalitesi	++	+++	+	+++	++				
Çözünürlük	++	+	+++	++	+				
Dayanıklılık	+++	-	+++	-					
Boyut	+	+		+	+				
Maliyet	-	-	+++	-	-				
İleri uygulamalar	+	++	+	++	+				

CCD alan detektörlerinin yapısal özellikleri modern yassı panel a-Si:H, a-Se ve CdS detektörler kadar ince ve kolay taşınabilir olmalarını engellerken bu cihazlara göre dayanıklılıkları yüksektir. Geliştirilen fosfor ekranlarda Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tabanlı seramik sintilatör kaplamalara yer verilmesi CsI ve GOS tabanlı sintilatörler ve fosfor ekranlarla donatılmış sistemlere nazaran dayanıklılık ve servis süresini uzatacaktır. Mevcut yassı panellerden farklı olarak CCD alan detektörlerinin bakım, yenileme ve modernizasyonu daha kolay ve daha düşük maliyetlidir. CCD dizine optik yollarla eşlenen fosfor ekran kolayca değiştirilebilir, arızalanan CCD dizin fosfor ekranın değişimine gerek kalmadan değiştirilebilir veya onarılabilir. Üzerlerine fosfor kaplanmış a-Si:H tipi geniş panel detektörlerde ise bu mümkün değildir.

## 5. SONUÇLAR ve TARTIŞMA

Konvansiyonel fiber optik plakaların ıslak işlemler ile yüzeylerinde mikro paternler oluşturulması ve bu mikro paternli fiber optik plakalar üzerinde sintilatör ince filmler büyüterek yüksek çözünürlüklü fosfor ekranlar elde edilmesine dair konsept doğrulanmıştır.

Proje kapsamında, projenin amacını da oluşturan fosfor ekran prototiplerinin üretimi başarı ile gerçekleştirilmiştir. Buna bağlı olarak fiber optik plakaların ıslak işlemlerle ilgili bilgi birikimi ve deneyim elde edilmiş, teknik geliştirilmiştir.

Seramik sintilatörlerin ışıma mekanizmaları, sintilatör malzemelerin ve fosfor ekranların test edilmesi üzerinde bilimsel bilgi birikimi elde edilmiştir.

Fiber optik plakaların seçimli çözülmesi için HF ve NH₄F tampon çözeltisi ile ıslak işlemini ön gören prosedürler hazırlanmıştır.

Seramik sintilatörlerin geliştirilmesini hedefleyen çalışmalar yürütülmüş, Eu ve Tb katkılı seksenden fazla kompozisyon sentezlenmiş ve denenmiştir. Eu katkılı sintilatörlerde 612 nm majör ışıma pikinden kaynaklanan karakteristik pembe ve Tb katkılanmış sintilatörlerde ise 545 nm ve 550 nm majör ışıma piklerinden kaynaklanan karakteristik yeşil ışıma gözlemlenmiştir.Yüksek verimli Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu tabanlı sintilatörler hazırlanmıştır.

Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ve Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu birbirlerine çok benzer radyolüminesant özellikler sergilemiştir. En yüksek ışıma şiddeti Eu katkısı %5-6 arası atomik orana ulaştığında elde edilmekte ve bu değerden sonra verim dramatik olarak düşmektedir. Bu durum Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Lu2O3 için kristal kafesin deformasyonu sonucu kübik kafeste c pozisyonuna yerleşen Eu+3 iyonunun elektronik çevresinin değişmesinden kaynaklanmaktadır. Aynı durum Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> için de geçerlidir farklı olarak Y atomlarının katkı atomlarına göre çok daha küçük olmasından ötürü faz katkıyla beraber faz dönüşümü geçekleşir ve Eu+3 iyonlarının lokasyonu değişmektedir.

 $Eu_2O_3$ :Tb,  $Y_2O_3$ :Tb ve  $Lu_2O_3$ :Tb birbirlerine çok benzer radyolüminesant özellikler sergilemiştir. Bu sintilatörlerde Tb katkısı %0,4-0,5 arası atomik orana ulaştığında en yüksek emisyon değerlerine ulaşılmış ve daha yüksek katkı oranlarında ise ışıma verimi dramatik olarak azalmaktadır. Sentezlenen seramik sintilatörün karakterizasyonu sonucunda Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ve Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tabanlı sintilatör ince filmlerin üretilmesine karar verilmiştir. Üretilen ince filmler arzu edilen kolonsal mikroyapı sergilemektedir. Yüksek verimli Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu ince filmler diğer kompozisyonlara göre gösterdiği yüksek verimi ile gelişmiş fosfor ekranlarda kullanılmak üzere seçilmiştir. Bu filmler 1,3 ms durulma zamanı 1,3 ms olarak ölçülmüştür. Bu değerle, geliştirilen sistemin gerçek zamanlı X-ışınları görüntülemede kullanılabilmesi için önemli bir kriter olan maksimum 2 ms hedefine ulaşılmıştır.

RF magnetron yöntemi ile oksitlerin ve diğer yalıtkanların ince film olarak kaplanması konusunda bilgi birikimi ve deneyimi elde edilmiştir.

Fosfor malzemeler ve fosfor ekranları test edebilecek özel tasarlanmış test düzeneği geliştirilmiştir. Hassas optik test düzeneklerinin tasarımı ve kurulumu üzerinde bilgi birikimi, deneyim ve kabiliyetler elde edilmiştir.

İyonlaştırıcı radyasyon kullanılan laboratuvar ve test ortamlarının idare ve idamesi, güvenli çalışma şartlarının oluşturulması konularında bilgi birikimi, deneyim ve kabiliyetler geliştirilmiştir.

Geliştirilmiş fosfor ekranlar kullanılarak CMOS tabanlı X-ışınları alan detektörü geliştirilmiş ve bu detektör test edilmiştir. 20-40 kV arası hızlandırma potansiyelleri kullanılarak 800-1600 W arası tüp güçleri kullanılarak lateral çözünürlük belirlenmiştir. Konvansiyonel medikal radyografi cihazı kullanılarak kontrast-ayrıntı fantomu ile görüntü kalitesini belirlemeye yönelik çalışmalar gerçekleştirilmiştir. Elde edilen sonuçlar, literatür ile karşılaştırıldığında mamografi ve göğüs radyografisi için kullanılan modern sayısal detektörler ile rekabet edebilir özelliklere ulaşıldığını göstermektedir.

İstanbul Aydın Üniversitesi bünyesinde özel amaçlı bir test ve Ar-Ge laboratuvarı ve bir standart malzeme laboratuvarı kurulmuştur. Yine proje kapsamında Atatürk Üniversitesi bünyesinde bir vakumda ince film kaplama laboratuvarı kurulmuştur. Buna ek olarak ihtiyaç gereği Sabancı Üniveristesi SUNUM ve Atatürk Üniversitesi DAYTAM araştırma merkezlerinden alınan hizmetler ile bu kurumların altyapısında bulunan bilimsel cihaz ve teçhizatın verimli kullanılması sağlanmıştır.

## 6. KAYNAKLAR

Aksoy, M.E., Kamaşak, M.E., Akkue, E., Üçgül, A., Başak, M., Alaca, H. 2012. "Csl ve GOS Sintilatorlü İnce Panel Dijital Radyografi Sistemlerinin Kontrast-Ayrıntı Başarımlarının İncelenmesi", Tıp Teknolojileri Ulusal Kongresi, Antalya, 158-161.

Allinson N.M. 1994. "Development of Non-Intensified Charge-Coupled Device Area X-ray Detectors", Journal of Synchrotron Radiat, 1, 54-62.

Bar, S., Huber, G., Goizalo, J., Perea, A., Climent, A., Paszti F. 2003. "Europium-doped sesquioxide thin films grown on sapphire by PLD", Materials Science and Engineering B-Solid, 105, 30-3.

Barna, S.L., Tate, M.W., Gruner, S.M., Eikenberry, E.F. 1999. "Calibration procedures for charge-coupled device x-ray detectors", Review Of Scientific Instruments, 70(7), 2927-2934.

Blasse G. 1994. "Scintillator Materials", Chemistry of Materials, 6, 1465-75.

Bredol, M., Micior, J. 2013. "Preparation and characterization of nanodispersions of yttria, yttrium aluminium garnet and lutetium aluminium garnet", Journal of colloid and interface science, 402, 27-33.

Brinker, C. J., Scherer, G. W. 2013. Sol-gel science: The physics and chemistry of sol-gel processing (1. Baskı). USA: Academic Press

Canning, A., Chaudhry, A., Boutchko, R., Gronbech-Jensen, N. 2011. "First-Principles studies of luminescence in Ce doped inorganic scintillators", Matter Physical Review B: Condensed Matter, 125115 (83), 1-12.

Castelli C.M., Allinsonb N.M, Barnettc S.J., Clarkd G.F., Moonb G.F., Whitehous C.R. 1997. "CCDs for X-ray topography at synchrotrons", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.,391 (3), 481–484.

Chappell, J.H., Murray, S.S. 1984. "Relative efficiencies and physical characteristics for a selected group of X-ray phosphors", Proceedings of the International Workshop on X- and  $\gamma$ -Ray Imaging Techniques, 221(1), 159-167.

Chemistry Librtexts. Fluorescence and Phosphorescence. <u>https://chem.libretexts.org/Textbook\_Maps/Physical\_and\_Theoretical\_Chemistry\_Textbook\_Maps/Supplemental\_Modules\_(Physical\_and\_Theoretical\_Chemistry)/Spectroscopy/Electron\_ic\_Spectroscopy/Fluorescence\_and\_Phosphorescence\_Son\_erişim\_tarihi: 15.08.2018</u>

Chen, X., Xiang, G., Chai, F., Zhang, Z., Shi, S., Xu, F., Zhao, J. 2016. "An alternate spincoating strategy toward high-quality polycrystalline thin  $Lu_2O_3$ :  $Eu^{3+}$  film fabrication", Surface and Coatings Technology, 302, 523-527.

Choi, S., Park, B., Ahn, T., Kim, J. Y., Hong, S. C., Yi, M. H., Jung, H. 2011. "Color emission and dielectric properties of Eu-doped  $Gd_2O_3$  gate oxide thin films", Thin Solid Films, 519, 3272-3275.

Chotas, H. G., Dobbins, J. T., Ravin, C. E.1999. "Principles of Digital Radiography with Large-Area, Electronically Readable Detectors: A Review of the Basics", Radiology, 3 (210), 595-9.

Danks, A. E., Hall, S. R., Schnepp, Z. 2016. "The evolution of 'sol-gel' chemistry as a technique for materials synthesis", Materials Horizons, 3(2), 91-112.

Dhananjaya, N., Nagabhushana, H., Nagabhushana, B. M., Chakradhar, P. S., Shivakumara, C., Rudraswamy, B. 2010. "Synthesis, characterization and photoluminescence properties of Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup> nanophosphors prepared by solution combustion method", Physica B: Condensed Matter, 405(17), 3795-3799.

Derenzo, S.E., Weber, M.J., Bourret-Courchesne, E., Klintenberg, M.K. 2003. "The quest for the ideal inorganic scintillator", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 505, 111-7.

Dujardin, C., Le Luyer, C., Martinet, C., Garapon, C., Mugnier, J., Murillo, A.G., Pedrini, C., Martin, T. 2005. "Thin scintillating films of sesquioxides doped with Eu<sup>3+</sup>", Nuclear Instrumental Methods A, 537, 237-41.

Eijk, C.W.E. 1997. "Development of inorganic scintillators", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 392, 285-90.

Eijk, C.W.E. 2002. "Inorganic scintillators in medical imaging", Physics in Medicine and Biology., 47, R85–R106.

Eijk, C.W.E. 2003, "Inorganic scintillators in medical imaging detectors", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 509, 17–25.

Engin, Y. 2012. "Yaklaşık Doku Eşdeğeri Olan BC-408 Plastik Sintilatörün Radyolojik Bölgedeki 40-120 keV X- Işınlarına ve 60-1333 keV Gama Işınlarına Karşı Tepkisinin İncelenmesi", Y.Lisans Tezi.

Feng, H., Chen, C., Chou, M., Ren, G., Xu, J. 2013. "Preparation of CsI(TI) scintillation film by RF magnetron sputter method and its structural and optical characterization", Advanced Materials Research, 652-654.

Garmer M., Hennigs S.P., Jager H.J., Schrick F., van de Loo T., Jacobs A., Hanusch A., Andreas Christmann A., Mathias K. 2000. "Digital radiography versus conventional radiography in chest imaging diagnostic performance of a large-area silicon flat-panel detector in a clinical CT-controlled study", American Journal of Roentgenology, 1 (174), 75-80.

Geijer H., Beckman K.W., Andersson T., Persliden J. 2001. "Image Quality vs Radiation Dose For a Flat-Panel Amorphous Silicon Detector: A Phantom Study", European Radiolog, 11, 1704-09.

Grabmaier, B.C. 1983. "Crystal Scintillators", Nuclear Science, 1 (31), 372-6.

Grave, D. A., Schmitt, M. P., Robinson, J. A., Wolfe, D. E. 2014. "Stress induced phase transition in  $Gd_2O_3$  films by ion beam assisted reactive electron beam-physical vapor deposition (EB-PVD)", Surface & Coatings Technology, 242, 68-73.

Greskovich, G.C., Duclos, S. 1997. "Ceramic scintillators", Annual Review of Materials Science, 27, 69-88.

Gruner, S.M., Barna, S.L., Wall, M.E., Tate, M.W., Eikenberry E.F. 1993. "Characterization Of Polycrystalline Phosphors For Area X-Ray Detectors", X-ray Detector Physics and Applications II, 2009, 98-108.

Gruner S. M., Tate M.W. 2002. "Charge-Coupled Device Area X-Ray Detectors", Review of Scientific Instruments, 3 (75), 2815-42.

Hernandez-Adame, L., Medellín-Rodríguez, F., Méndez-Blas, A., Vega-Acosta, R., Palestino, G. 2013. "Synthesis of Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S:Tb nanoparticles and optical characterization", Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering (8626).

Kandarakis, I., Cavouras, D., Panayıotakıs, G.S., Triatis, D., Nomicos, C.D. 1998. "Europiunactivated phosphors for use in X-ray detectors of medical imaging systems", European Radiology, 8, 313-18.

Katelnikovas, A., Kareiva, A. 2008. "Low-temperature synthesis of lutetium gallium garnet (LGG) using sol–gel technique", Materials Letters, 62(10-11), 1655-1658.

Koch, A., Raven, C., Spanne, P., Snigirev, A. 1998. "X-ray imaging with submicrometer resolution employing transparent luminescent screens", Journal of the Optical Society of America A: Optics, Image Science, and Vision, 15 (7), 1940-51.

Kotter E., Langer M. 2002. "Digital radiography with large-area flat-panel detectors", European Radiology, 12, 2562-70.

Lee S.C., Kim H.K., Chun I.K, Cho M.H., Lee S.Y., Cho M.H. 2003. "A flat-panel detector based micro-CT system: performance evaluation for small-animal imaging", Physics in Medicine and Biology, 48, 4173-85.

Lempicki, A., Brechera, C., Szupryczynskia, P., Lingertata, H., Nagarkard, V.V., Tipnisd, S.V., Millera, S.R. 2002. "A new lutetia-based ceramic scintillator for X-ray imaging", Nuclear Instrumental Methods, 488, 579-90.

Li, H.L., Xue-Jian, L., Rong-Jun, X. 2006a. "Fabrication of Transparent Cerium-Doped Lutetium Aluminum Garnet Ceramics by Co-Precipitation Routes" Journal of the American Ceramic Society, 89(7), 2356-2358.

Li, H.-L., Xue-Jian. L, and Huang L.-P. 2006b. "Synthesis of nanocrystalline lutetium aluminum garnet powders by co-precipitation method", Ceramics international, 32(3), 309-312.

Li, J., Ji, L., Zhang, Z., Wu, X. 2012."Effective lattice stabilization of gadolinium aluminate garnet (GdAG) via Lu3+ doping and development of highly efficient (Gd, Lu) AG: Eu3+ red phosphors", Science and technology of advanced materials, 13(3), 035007.

Liao, Y.-k., D.-y. Jiang, and Sji, J.-l. 2005. "Transparent lutetium aluminum garnet sintered from carbonate coprecipitated powders", Materials Letters, 59(28), 3724-3727.

Livert, F., Bley, F., Mainville, J., Caudron, R., Mochriee, S.G.J., Geissler, E., Dolino, G., Abertnathy, D., Grubel, G., Sutton, M. 2000. "Using direct illumination CCDs as high-resolution area detectors for X-ray scattering", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 451, 596–609.

Luo, Z., Jiang, H., Jiang, J., Mao, R. 2015. "Microstructure and optical characteristics of  $Ce:Gd_3(Ga,AI)_5O_{12}$  ceramic for scintillator application", Ceramics International, 41(1, Part A), 873-876.

Martinet, C., Pillonnet, A., Lancok, J., Garapon, C. 2006. "Optical, structural and fluorescence properties of nanocrystalline cubic or monoclinic Eu:Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films prepared by pulsed laser deposition", Journal of Luminescence, 126, 807-816.

Marton, Z., Bhandari, H. B., Brecher, C., Miller, S. R., Singh, B., Nagarkar, V.V. 2013. "High performance microstructured Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu thin film scintillator for X-ray computed tomography", Medical Imaging 2013: Physics of Medical Imaging, 8668.

Marton, Z., Miller, S. R., Brecher, C., Kenesei, P., Moore, M. D., Woods, R., Almer, J. D., Miceli, A., Nagarkar, V.V. 2015. "Efficient high-resolution hard x-ray imaging with transparent Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu scintillator thin films", Medical Applications of Radiation Detectors V 2015, 9594.

Mishra, M., Kuppusami, P., Ramya, S., Ganesan, V., Singh, A., Thirumurugesan, R., Mohandas E. 2015. "Microstructure and optical properties of  $Gd_2O_3$  thin films prepared by pulsed laser deposition", Surface & Coatings Technology, 262, 56-63.

Morales-Ramírez, A. de J., García-Murillo, A., Carrillo-Romo, F. de J., Garrido-Hernández, A., García-Hernández, M. 2015. "Influence of annealing temperature on structural and optical properties of  $Lu_2O_3$ :  $Eu^{3+}$ ,  $Tb^{3+}$  transparent films", Materials Research Bulletin, 70, 173-178.

Mukasyan, A. S., Epstein, P., Dinka, P. 2007. "Solution combustion synthesis of nanomaterials". Proceedings of the Combustion Institute, 31(2), 1789-1795.

Ning R., Chen B., Yu R., Conover D., Tang X., Ning Y. 2000. "Flat panel detector-based cone-beam volume CT angiography imaging: system evaluation", Medical Imaging, 9 (19), 949-63.

Ohmi, S., Takeda, M., Ishiwara, H., Iwai, H. 2004. "Electrical Characteristics for Lu2O3 Thin Films Fabricated by E-Beam Deposition Method", Journal of Electrochemical Society, 151, G279-83.

Olçay, İ. 2007, "Radyasyon dedeksiyonunda kullanılan yarıiletken dedektör tipleri, özellikleri ve kullanım alanları", Yüksek Lisans Tezi.

Oliver, D.B., Knoll, G.F. 1968, "Neutron-Generated Heavy Charged Particles in Anthracene Crystals", IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-15(33), 122-6.

Oliveira, J., Martins, P. M., Martins, P., Correia, V., Rocha, J. G., Lanceros-Mendez, S. 2015. "Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>/PPO/POPOP/PS composites for digital imaging radiation detectors", Applied Physics A, 121, 581-587.

Phillips, W.C., Stanton, M., Stewart, A., Qıan, H., Ingersoll, C. 2000. "Sweet R.M., Multiple CCD detector for macromolecular X-ray crystallography", Journal of Applied Crystallography. 33, 243-251.

Ramírez, A. D. J. M., Garcia Murillo, A., Carillo Romo, J., Garcia Hernandes, M., Jaramillo Vigueras, D., Boyer, D. 2010. "Properties of Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup>, Tb<sup>3+</sup> nanopowders obtained by sol–gel process", Materials Research Bulletin 45(1): 40-45.

Rhys Williams A. T. 2000. An Introduction to Fluorescence Spectroscopy. United Kingdom: PerkinElmer.

Rickbery, D.S., Matthews, A. 1991. Advanced Surface Coatings: A Handbook of Surface Engineering. USA: Chapman & Hall

Roy, S., Topping, S., Sarin, V. 2010. "Growth and Characterization of Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu<sup>3+</sup> Thin Films on Single-Crystal Yttria-Doped Zirconia", JOM, 65 (4), 557-561.

Rowlands, J.A. 2002. "The physics of computed radiography", Physics in Medicine and Biology, 47, 123-66.

Schaefer, C.M., Greene, R.E., Oestmann, J.W., Kamalsky, J.M., Hall, D.A., Llewellyn, H.J., Robertson, C.L., Rhea, J.T., Rosenthal, H., Rubens, J.R. 1989. "Improved control of image optical density with low-dose digital and conventional radiography in bedside imaging", Radiology, 173 (3), 1-7.

Skoog, D.A., Holler, F. J., Crouch, S. R. 2018. Principles of instrumental analysis (7. Baskı). USA: Cengage Learning.

Stanton, M., Philips, W.C., D. O'mara, D., Naday, I., Westbrook, E. 1993. "Area detector design Part II. Application to a modular CCD-based detector for X-ray crystallography", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 325 (3) 558–567 558.

Strek, W., Bednarkiewicz, A., Hreniak, D., Mazur, P. 2007. "Fabrication and optical properties of transparent Nd3+: YAG nanoceramics", Journal of luminescence, 122, 70-73.

Sugiyama, M., Yokota, Y., Fujimoto, Y., Yanagida, T. 2012. "Dopant segregation in rare earth doped Lutetium Aluminum garnet single crystals grown by the micro-pulling down method", Journal of Crystal Growth, 352(1), 110-114.

Suzuki, M., Yamamoto, M., Kumasaka, T., Sato, K., Toyokawa, H., Aries, I.F., Jerram, P.A., Gullick, D., Ueki, T. 1999. "A multiple-CCD X-ray detector and its basic characterization", Journal of Synchrotron Radiat. 6, 6-18.

Tapan, İ.2011, Parçacık Dedektörleri-2 Sintilasyon Dedektörleri, Uludağ Üniversitesi. <u>https://slideplayer.biz.tr/slide/3068078/</u> Son erişim tarihi: 13.08.2018

Taylor, F. J. 2001. "Spin coating: An overview", Metal Finishing, 99 (1),16-21.

Tojan-Piegza, J., Zych, E., Hreniak, D., Strek W. 2008. "Comparison of Spectroscopic Properties of Nanoparticulate Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu Synthesized Using Different Techniques", Journal of Alloys and Compounds, 308, 123-9.

Topping, S.G., Park, C.H., Rangan, S.K., Sarin, V.K. 2007. "Lutetion oxide coatings by PVD", International Proceedings of the Materials Research Society fall.

Topping, S.G., Sarın, V.K. 2009. "CVD Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu coatings for advanced scintillators", Int. Journal of Refractory Metals&Hard Materials, 27, 498-501.

Tsoulfanıdıs, N. 1995, 'Measurement and dedection of radiation. United Kingdom: Taylor & Francis.

Wang, Z., Xu, M., Zhang, W., Yin, M. 2007. "Synthesis and luminescent properties of nanoscale LuAG: RE3+ (Ce, Eu) phosphors prepared by co-precipitation method", Journal of luminescence, 122, 437-439.

Weber M.J. 2002. "Inorganic scintillators: today and tomarrow", Journal of Luminescence, 100, 35-45.

Wellenius, P., Smith, E. R., Wu, P. C., Everitt, H. O., Muth, J. F. 2010. "Effect of oxygen pressure on the structure and luminescence of Eu-doped  $Gd_2O_3$  thin films", Physica Status Solidi A, 207 (8), 1949-1953.

Xing, L., Peng, L., Gu, M., Tang, G.2010. "Solvothermal synthesis of lutetium aluminum garnet nanopowders: Determination of the optimum synthesis conditions", Journal of Alloys and Compounds, 491(1-2), 599-604.

Xing, L. and L. Peng, Comparison of preparation and formation mechanism of LuAG nanopowders using two different methods. Micro & Nano Letters, 2012. 7(6): p. 529-532.

Xu, J., Fan, L., Shi, Y., Li, J., Xie, J., Lei, F. 2014. "Scintillation and Luminescent Properties of Cerium Doped Lutetium Aluminum Garnet (Ce:LuAG) Powders and Transparent Ceramics", IEEE Transactions on Nuclear Science, 61(1), 373-379.

Yaffe, M.J., Rowlands, J.A. 1997. "X-ray detectors for digital radiology", Physics in Medicine and Biology, 42, 1-39.

Yanagida, T., Fujimoto, Y., Kamada, K., Yagi, H. 2012. "Scintillation properties of transparent ceramic Pr: LuAG for different Pr concentration", IEEE Transactions on Nuclear Science, 59(5), 2146-2151.

Yener, G. 2005, Nükleer Radyasyon Fiziği 1 Ders Notları, Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü.

Zych, E., Trojan-Piegza, J., Dorenbos, P. 2004. "Radioluminescence of Lu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Eu nanocrystalline powder and vacuum sintered ceramic", Radiation Measurement, 38, 471-4.

## TÜBİTAK PROJE ÖZET BİLGİ FORMU

Proje Yürütücüsü:	Doç. Dr. BEHİYE YÜKSEL
Proje No:	113E985
Proje Başlığı:	Yüksek Çözünürlüklü Fosfor Ekran Temelli X-Işinlari Radyografi Detektörünün Geliştirilmesi
Proje Türü:	1003 - Öncelikli Alanlar (2. Aşama)
Proje Süresi:	36
Araştırmacılar:	KADRİ VEFA EZİRMİK, CANHAN ŞEN
Danışmanlar:	EMİN ARGUN ORAL, MUSTAFA ERDEM SAĞSÖZ, TEVFİK METİN SEZGİN, HÜSNÜ ÖZKAN
Projenin Yürütüldüğü Kuruluş ve Adresi:	İSTANBUL AYDIN Ü.
Projenin Başlangıç ve Bitiş Tarihleri:	01/03/2015 - 01/07/2018
Onaylanan Bütçe:	2073016.0
Harcanan Bütçe:	1436316.49
Öz:	TÜBİTAK TARAL 1003 projesi kapsamında yapılan bu proje çalışmasında; fiber optik plakalar üzerinde özel mikro patern oluşturulmuş ve sintilatör filmlerin bu mikroyapı üzerinde büyütülmesi sureti ile yüksek çözünürlüklü fosfor ekranlar geliştirilmiştir ki böylece herhangi bir litografi yöntemine ihtiyaç duyulmadan mikro paternlenmiş fosfor ekranların üretilmesi hedefine ulaşılmıştır. Bu proje kapsamında yürütülen çalışmalar farklı disiplinlerde çalışan üniversite, araştırma kurumları ve mikro-KOBİ tarafından bir işbirliği çerçevesinde yürütülmüştür. Yürütülen deneysel çalışmalar kapsamında sadece malzeme sentezleme, ince film kaplama ve malzeme karakterizasyonu değil bir radyoloji detektörünün tasarımı ve fosfor ekranların test edilmesine dair özgün yöntemler ortaya konulmuştur.
Anahtar Kelimeler:	Radyografi, Sintilatör, Fosfor Ekran, Bütünleşik Fiber Optikler, Uzaysal Dağılım Çözünürlüğü
Fikri Ürün Bildirim Formu Sunuldu Mu?:	Hayır