

**ELEKTRON SPİN REZONANS (ESR)
YÖNTEMİ İLE GERİYE DÖNÜK DOZİMETRE ÇALIŞMALARI**

Muharrem BÜYÜM

**DOKTORA TEZİ
FİZİK**

**GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**TEMMUZ 2007
ANKARA**

Muharrem BÜYÜM tarafından hazırlanan ELEKTRON SPİN REZONANS (ESR)YÖNETİMİ İLE GERİYEDÖNÜK DOZİMETRE ÇALIŞMALARI adlı bu tezin Yüksek Lisans tezi olarak uygun olduğunu onaylarım.

Prof.Dr. A. Güneş TANIR

Tez Yöneticisi

Bu çalışma, jürimiz tarafından oy birliği ile FİZİK Anabilim Dalında Doktora tezi olarak kabul edilmiştir.

Başkan: : Prof. Dr. Osman YILMAZ

Üye : Prof. Dr. Fatma ERDOĞAN

Üye : Prof. Dr. Güneş TANIR

Üye : :Prof. Dr. Başar ŞARER

Üye : Doç. Dr. Eyyüp TEL

Tarih : 17 / 7 / 2007

Bu tez, Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü tez yazım kurallarına uygundur.

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, ayrıca tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada orijinal olmayan her türlü kaynağa eksiksiz atıf yapıldığını bildiririm.

Muharrem BÜYÜM

**ELEKTRON SPİN REZONANS (ESR)
YÖNTEMİ İLE GERİYE DÖNÜK DOZİMETRE ÇALIŞMALARI
(Doktora Tezi)**

Muharrem BÜYÜM

**GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

Temmuz 2007

ÖZET

Bu çalışmada, ^{137}Cs - γ kaynağı ile ışınlanan bazı diş ve kemik örneklerinde oluşan serbest radikallerin dozimetrik özellikleri, Elektron Spin rezonans (ESR) tekniği ile incelendi. Gama kaynağında ışınlanan sekiz adet toz haldeki diş ve kemik örneklerine eklemeli doz metodu uygulandı. Işınlama aralığı 76,25 Gy ile 508,35 Gy arasındadır. Örnekler için ESR’ de uygulanan “eklemeli doz” metodu yardımıyla, her örnek için eşdeğer doz (D_E) belirlendi. Dozu belirlemedeki yöntem analitik olarak geriye doğru tahmin yapılarak belirlendi. Daha sonra, bu doz değerlerinden faydalanarak örneklerin arkeolojik tarihlendirmesi yapıldı. ESR yaşı, yaklaşık olarak $10,4 \times 10^3$ yıl ile $54,6 \times 10^3$ yıl arasında bulundu. Eklemeli doz grafiğinden elde edilen en düşük “eşdeğer” doz değeri 6,2 Gy’ dir. Aynı tür örneklerden üç tanesi için sıcaklık çalışması 123K ile 400K arasında yapıldı.

ESR şiddetinin oda sıcaklığı civarında kararlı hale geldiği ve ışınlama sonucu oluşan CO₂ radikalinin 12 saat sonra kararlı hale geldiği gözlenmiştir.

Bilim Kodu : 202.1.108

Anahtar Kelimeler : Elektron Spin Rezonans (ESR), Dozimetre, Yaş tayini, Eklemeli doz, İyonlaştırıcı radyasyon.

Sayfa Adedi : 64

Tez Yöneticisi : Prof. Dr. A.Güneş TANIR

**AN APPLICATION OF RETROSPECTIVE DOSIMETRY BY USING
ELECTRON SPIN RESONANCE (ESR)**

(Ph.D. Thesis)

Muharrem BÜYÜM

**GAZİ UNIVERSITY
INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY**

July 2007

ABSTRACT

In this study free radicals in some tooth and bone samples irradiated by $^{137}\text{Cs-}\gamma$ source and their dosimetric properties have been investigated by using Electron Spin Resonance (ESR) method. Additive dose method has been applied to eight number of these samples irradiated by gamma source. Irradiation range is from 76,25 Gy to 508,35 Gy. For all samples, equivalent dose (ED) has been determined by means of additive dose method. Archeologic dating has been performed by using equivalent dose values. ESR age has been found approximately in the range from $10,4 \times 10^3$ to $54,6 \times 10^3$ years. The lowest “equivalent dose” has been found as 6,2 Gy from additive dose curve. The temperature dependence has been studied for three samples in the temperature range from 123K to 400 K. The intensity of ESR peak was found stable at room temperature. It has been observed that radical of carbon dioxide (CO_2) occurred by irradiation was stable after 12 hours.

Retrospective dosimetry in an important aspect of radiation related accident investigation.

Science Code : 202.1.108
Key Words : Electron Spin Resonance(ESR), Dosimetry, Dating, Additive dose, Ionising radiation.
Page Number : 64
Adviser : Prof. Dr. A.Güneş TANIR

TEŞEKKÜR

Bu çalışmada, beni destekleyen, bilgi ve tecrübelerinden yararlandığım sayın hocam Prof. Dr. A.Güneş TANIR' a, çalıştığım kurumda, çalışmalarım süresince bana kolaylık sağlayan, Doç. Dr. Haluk YÜCEL, Hikmet SEÇKİN, Ömer GÜNDÜZ ve Dr. Erdal TAN' a; çalışma arkadaşlarımdan özellikle numune hazırlama aşamasında yardımını esirgemeyen Dr. Mahmut EKEN, numune analizlerinde ölçümleri alan Doç. Dr. Selçuk KERVAN, Dr. Erhan AKSU, Dr. Nurcan CALINLI, Dr. Yusuf AĞUŞ' a, doz hızı belirlenmesinde, yardımcı olan Aydın PARMAKSIZ, Bengü DEMİRCİOĞLU ve Hasan DİKMEN' e; malzeme birimindeki arkadaşlara ve Gazi Üniversitesindeki değerli hocalarım ve araştırma görevlisi arkadaşlara;

Ayrıca başından beri bana destek olup, anlayış gösteren değerli eşim Elmas, oğullarım Alperen ve Buğrahan BÜYÜM' e en içten teşekkürü bir borç bilirim.

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖZET	iv
ABSTRACT.....	vi
TEŞEKKÜR.....	viii
İÇİNDEKİLER	ix
ÇİZELGELERİN LİSTESİ.....	xi
ŞEKİLLERİN LİSTESİ	xii
RESİMLERİN LİSTESİ	xiv
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	xv
1. GİRİŞ	1
2. ESR SPEKTROSKOPİSİNİN TEMEL TEORİSİ.....	4
2.1. ESR Sistemi.....	5
2.1.1. Mikrodalga köprüsü	8
2.1.2. Kavite	9
3.ESR DOZİMETRİSİ VE YAŞ TAYİNİ	11
3.1. Manyetik Alanda Elektron.....	12
3.1.1. Rezonans koşulu.....	12
3.1.2. Spin hamiltoniyeni.....	13
3.2. İyonlaştırıcı Radyasyon ve Paramanyetizma.....	16
3.3. ESR ile Yaş Tayini.....	16
3.4. Yıllık Doz Hızının Belirlenmesi.....	19
3.4.1. Dış doz ($D_{dış}$) oluşumu ve hesaplanması.....	20

Sayfa

3.4.2. İç doz oluşumu ve hesaplanması.....	21
4. DENEYSEL İŞLEMLER.....	22
4.1. Eklemeli Doz Metodu.....	22
4.2. Doz Cevap Eğrisi.....	23
4.3. Örnek Hazırlama.....	24
4.4. Örneklerin Işınlanması.....	24
4.5. ESR Spektrum Parametrelerinin Belirlenmesi.....	26
4.6. Güç Çalışması ve Sinyal Doyumu.....	28
5. ÖLÇÜMLER VE DEĞERLENDİRME.....	31
5.1. Toz Halindeki Kemik ve Diş Örneklerinin Yapısal Analizleri.....	32
5.2. ESR Ölçümlerinin Alınması.....	34
5.2.1. Eklemeli doz metodu ölçümleri.....	34
5.3. Yıllık Doz Hızının Deneysel Olarak Belirlenmesi.....	43
5.4. ESR Tekniği ile Yaş Tayini.....	45
5.5. ESR’de Spektrum Değişimini Etkileyen Unsurlar.....	47
5.5.1. Tavlamanın ESR spektrumuna etkisi.....	47
5.5.2. Sıcaklık ile ESR sinyalindeki değişimler.....	48
5.5.3. Zamana bağlı değişimler.....	53
6. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	55
KAYNAKLAR	57
EKLER.....	62
EK-1 Dünyada bazı bölgelerde yapılmış ESR yaş tayini çalışmaları.....	63
ÖZGEÇMİŞ	64

ÇİZELGELERİN LİSTESİ

Çizelge	Sayfa
Çizelge 3.1. U, Th ve K için doz hızı hesaplamaları.....	18
Çizelge 4.1. ^{137}Cs kaynağında Işınlanan numunelerin açık adları.....	26
Çizelge 4.2. ESR spektrum parametreleri.....	28
Çizelge 5.1. CO_2^- radikalinin element analizi.....	32
Çizelge 5.2. Eklemeli doz çalışılan numunelere ait veriler.....	35
Çizelge 5.3. MT8 numunesine ait deneysel veriler.....	36
Çizelge 5.4. Gama spektrometresinden elde edilen U,Th ve K değerleri.....	45
Çizelge 5.5. ESR tekniği ile hesaplanan ESR yaşları.....	46
Çizelge 5.6. MT11, MB ve AT4 için sıcaklık ölçümleri verileri.....	49

ŞEKİLLERİN LİSTESİ

Şekil	Sayfa
Şekil 2.1. Elektromanyetik soğuruma ait geçiş.....	4
Şekil 2.2. ESR spektrometrelerinin sınıflandırılması a) MD rezonans alanlarına göre b) ESR frekanslarına göre adlandırılmaları.....	5
Şekil 2.3. ESR sisteminin blok diyagramı.....	7
Şekil 2.4. Mikrodalga köprüsünün blok diyagramı a) Kaynak b) Zayıflatıcı c) Çember d) Kavite e) Algılayıcı diyod f) Referans kolu g) Sinyal çıkışı.....	8
Şekil 2.5. Kavite, dalga klavuzu ve iris'in genel görünümü.....	10
Şekil 2.6. Numune haznesinde mikrodalga eşleşmesi.....	10
Şekil 3.1. Soğurmaya karşı gelen ESR spektrumu.....	15
Şekil 3.2. Bir katı yapının şematik gösterimi.....	17
Şekil 3.3. İnsan kalıntılarının direk tarihlendirilmesi için kullanılan bazı metotların yaklaşık aralıkları.....	19
Şekil 3.4. Doz hızı hesaplamaları için gerekli doğal radyasyonun farklı dış bileşenlerinin şematik gösterimi.....	21
Şekil.4.1. Eklemeli doz metodunda doz-cevap eğrisi.....	23
Şekil 4.2. Sezyum kaynağındaki ışınlamada numunelerin yerleşimi a) Işınlama tablası b) Işınlama tablasındaki numunelerin şematik görünümü.....	25
Şekil 4.3. 100Gy ışınlanmış insan kemiği örneğinin MD güç çalışması grafiği.....	27
Şekil 4.4. Boltzman dağılımında α ve β durumlarına göre spin sayılarının durumu.....	29
Şekil 4.5. Doğrusal ve doyum bölgelerinin spin yoğunluğu açısından durumu.....	30
Şekil 4.6. ESR sinyali parametreleri.....	30
Şekil 5.1. İnsan kemiğinin XRD toz kırınım deseni.....	33

Şekil	Sayfa
Şekil 5.2. İnsan dişinin XRD toz kırınım deseni.....	33
Şekil 5.3. Toz haldeki İnsan dişi (MT8) numunesinin doz-ESR şiddeti grafiği.....	37
Şekil 5.4. İnsan dişinin ışınlanmadan önceki ilk ESR spektrumu.....	37
Şekil 5.5. MT8 numunesinin ESR spektrumlarının aynı anda gösterimi.....	38
Şekil 5.6. AT4 (101,3) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.....	39
Şekil 5.7. AT4 (506,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.....	40
Şekil 5.8. EK1 (76,25) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.....	40
Şekil 5.9. EK1 (507,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.....	41
Şekil 5.10. KK3 (507,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.....	42
Şekil 5.11. MB (507,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.....	43
Şekil 5.12. MB örneğinin 70 °C’de ESR spektrumu.....	48
Şekil 5.13. Hayvan dişi numunesinin sıcaklık çalışması.....	50
Şekil 5.14. MB örneğinin sıcaklık-şiddet değişim grafiği.....	52
Şekil 5.15. MT11 örneğinin sıcaklık-şiddet değişim grafiği.....	52
Şekil 5.16. Hidroksiapatit yapıdaki CO ₂ radikalinin zamana göre değişimi.....	53
Şekil 5.17. Ek1 (507 Gy) ve MB (101,5 Gy) için ESR sinyalinin sönümü.....	54

RESİMLERİN LİSTESİ

Resim	Sayfa
Resim 2.1. ESR sisteminin genel görünümü: a) Magnetler b) Spektrometre.....	6
Resim 4.1. Sezyum-137 ışınlama kaynağının genel görünümü.....	25
Resim 5.1. Yıllık doz tespiti için hazırlanan örnekler.....	44

SİMGELER VE KISALTMALAR

Bu çalışmada kullanılmış bazı simgeler ve kısaltmalar, açıklamaları ile birlikte aşağıda sunulmuştur.

Simgeler	Açıklama
μ_e	Elektronun manyetik dipol momenti
μ_B	Bohr Manyetonu
h	Planck Sabiti
B	Manyetik Alan
T_1	Spin durulma Zamanı
N_β/N_α	Sürekli Dalga Spin sayıları
g	Spektroskopik Yarıлма Çarpanı
Kısaltmalar	Açıklama
ESR	Elektron Spin Rezonans
TD	Toplam Doz
T-T	ESR sinyali Tepe-Tepe değeri
ED	Eşdeğer Doz
SI	Kullanılan Uluslararası Birim Sistemi
TAEK	Türkiye Atom Enerjisi Kurumu
SANAEM	Sarayköy Nükleer Araş. ve Eğitim Merk.
DPPH	Diphenylpicrylhydrazyl

1.GİRİŞ

Elektromanyetik radyasyonun maddeyle etkileşmesinin bir sonucu olarak, çeşitli spektroskopik yöntemlerle maddenin yapısı hakkında önemli bilgiler elde edilebilir. Elde edilen spektrumlar veya enerji bantları, enerji seviyeleri arasındaki elektronik geçişleri temsil eder. Manyetik Rezonans (MR) olarak adlandırılan spektroskopiler üç farklı teknik isimle sınıflandırılırlar: Nükleer Manyetik Rezonans (NMR), Manyetik Rezonans Görüntüleme (MRI) ve Elektron Paramanyetik Rezonans (EPR) veya Elektron Spin Rezonans (ESR). ESR spektrometresi elektromanyetik spektrumda mikrodalga bölgesine düşer ve rezonans frekansı GHz seviyesindedir. NMR spektrometresi radyo frekansı bölgesine denk düşer ve MHz mertebesinde rezonans frekansına sahiptir.

Statik bir manyetik alanda elektron spinleri veya çiftlenmemiş elektronların enerji soğurmaları sonucunda bir ESR spektrumu gözlenir. ESR spektrometresi ile, “paramanyetik” özellik gösteren, elektriksel iletkenliği minimum, nemli veya sulu olmayan toz veya katı durumdaki bütün numunelerin spektrumları alınabilir. Paramanyetik materyaller, çiftlenmemiş elektron içerirler. Kristaldeki metal iyonları, yarı iletkenlerdeki alıcı ve verici safsızlıklar, serbest radikaller içeren yapılar çiftlenmemiş elektronlara sahiptirler. Bu durumda net spin manyetik momenti sıfırdan farklıdır. ESR sadece çiftlenmemiş elektrona sahip molekülleri tespit edebilmesine karşın, bazı metal iyonları için de ESR spektrumu gözlenebilir. Serbest radikaller çok reaktiflerdir ve böyle yapıları yorumlamak ve çözmek için uzmanlık gerektiren bazı tekniklere ihtiyaç duyulur.

ESR tekniği ile diş, kemik vb. gibi örneklerle yapılan dozimetrik çalışmaların temeli, bu numuneler tarafından soğurulan toplam radyasyon dozunun belirlenmesi esasına dayanır. Bu tür numunelerde elektron paramanyetik rezonans dozimetri, diş minesinde soğurulan toplam dozun ölçülmesinde kullanılan tek katı hal yöntemidir [1-6]. Işınlanmış toz diş minesinde EPR tekniği ile doz tespiti, ışınlama ile oluşturulan hidroksiapatit ($\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$) kristalindeki CO_2^- radikalinin sinyalinin büyüklüğünün ölçümüne dayanır. Bu sinyal şiddeti soğurulan dozla

orantılıdır. Hidroksiapatit kristali, diş minesinde %95-97, dentin tabakasında %70-75 ve kemikte ise %60-70 oranında bulunur [7].

ESR veya diğer bilinen ismi ile EPR ilk defa 1945 yılında Yevgeniy Zavoyskiy tarafından ortaya atılmıştır [8]. Tekniğin uygulamaları, daha sonraki yıllarda manyetik alan içine yerleştirilen örnek tarafından soğurulan ışıma frekansının, çekirdeklerin kimyasal çevrelerine bağlı olduğunu göstermesi ile başlamıştır. ESR 1966 yıllarda Fourier dönüşümlerinin kullanımı ile geliştirilmiştir.

ESR Zavoyskiy tarafından keşfedildiğinden bu yana, çeşitli yoğun madde ve kimya problemlerinde, jeolojide, paleontolojide, biyolojide ve radyasyon dozimetresinde kullanılmaktadır [9]. ESR özellikle radyasyon biliminde, medikal fizikte, geriye dönük kaza dozimetrelerinde, arkeolojide radyasyon dozimetresi olarak hızla önem kazanan bir tekniktir [10]. En ilgi çekici araştırmalar geriye dönük doz hesabı ile arkeoloji ve jeolojide yapılan tarihlendirme çalışmalarıdır. Geriye dönük doz hesabı, ısılanmış gıdaların incelenmesinde ve radyasyon kaza dozimetresi olarak da geniş kullanım alanına sahiptir.

ESR tekniği; Çernobil reaktör kazasındaki mağdur insanlardan alınan diş minesindeki dozların, Hiroşima'daki nükleer patlamada insanların ve bölgenin maruz kaldığı dozların tespitinde kullanılmaktadır. ESR ile yapılan tarihlendirme çalışmalarından biri de paleosismik çalışmalar yani geçmiş depremler üzerine yapılan çalışmalardır. Diş minesinde yapılan ESR tarihlendirme çalışmaları sayesinde insanın biyolojik ve kültürel gelişimi hakkında bilgiler elde edilmektedir [10-12]. Materyallerin ESR sinyallerinin davranışı ve dozimetrik özellikleri yeni tekniklerin geliştirilmesinde de önemli bir temel bileşendir. ESR metodu birkaç bin yıl ile bir iki milyon yıl arasında yaş tayini için uygulanabilir bir tekniktir [13 , 14].

Atom ve moleküllerin yapısının aydınlatılmasında spektroskopik yöntemler çok önemli yer tutarlar. Bir manyetik alan içine yerleştirilen maddenin manyetik momentlerinin manyetik alanla etkileşmesi sonucu bir enerji soğurulması gerçekleşir. Soğurulan enerji spin-yukarı olan durumu, spin aşağı yapabilecek kadarsa spinler

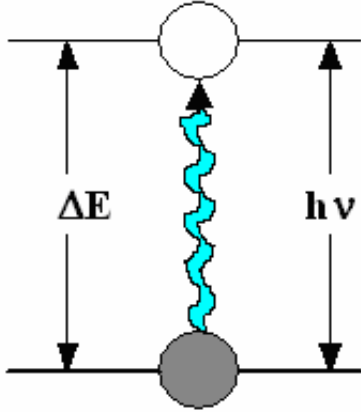
yönelimlerini değıştirirler. Üst duruma çıkan bu spinler taban duruma dönerken aldıkları enerjiyi salarlar. ESR cihazı bu salınan enerjiyi algılayarak bir spektrum olarak verir. ESR spektroskopisi, moleküllerin, iyonların ve çekirdeklerin kuantumlanmış enerji düzeylerini belirleyen bir yöntemdir. Spektrumlar, soğurma ve ışıma olmak üzere ikiye ayrılır. İki düzey arasındaki geçişe karşı gelen soğurma enerjisine spektral çizgi ya da spektrum denir. Spektroskopide, geçiş frekanslarına karşı gelen spektrumlar gözlenir ve bu spektrumların yerleri frekans olarak belirlenir. Elektronların ya da çekirdeklerin farklı elektronik yapılarına göre farklı uyarılmış enerji düzeyleri bulunduğu için bu düzeyler arasındaki geçişlere karşı gelen spektrum çizgileri, elektromanyetik spektrumun oldukça farklı aralıklarına düşerler. Bu aralığın büyüklüğü, incelenmekte olan sistem içindeki atom, çekirdek ya da iyonlar üzerinde etkin rol oynayan etkileşmelere bağlıdır.

2. ESR SPEKTROSKOPİSİNİN TEMEL TEORİSİ

Geçen yüzyılın başlarında, bilim adamları kuantum mekaniğinin başlıca uygulamalarından olan, atom veya moleküllerin, uygun enerjilerde seviyelere ayrıldığını buldular. Spektroskopi, atomik ve moleküler durumlar arasındaki enerji farklılıklarının yorumu ve ölçülmesidir. Bu enerji farklılıklarının (ΔE) bilinmesiyle, çalışılan numunenin dinamik yapısı hakkında bilgiler elde edilebilir. Elektromanyetik ışımının soğurulması ve ΔE enerjisi arasında önemli bir bağlantı vardır. Planck yasasına göre soğurulan enerji eşitliği:

$$\Delta E = h\nu \quad (2.1)$$

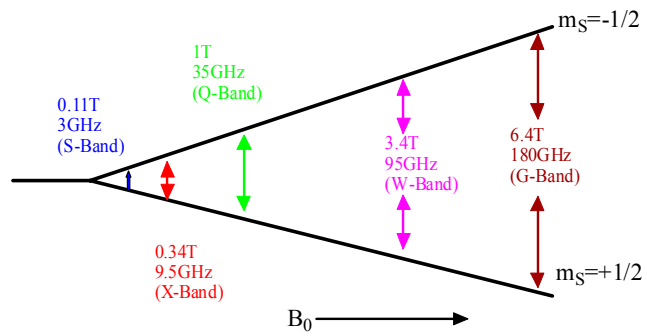
şeklindedir. Burada h planck sabiti ve ν , ışınım frekansıdır. Enerji soğurulması daha düşük bir enerji seviyesinden daha yüksek bir enerji seviyesine geçiş sebebidir. Alışlagelmiş spektrometrelerde frekans aralığı taranır. Bu frekans taraması sonucunda, EM radyasyon soğurarak geçiş yapar (Şekil 2.1). Bu geçiş tek bir spin için bir ESR spektrumu verir.



Şekil 2.1. Elektromanyetik soğuruma ait geçiş.

Mikrodalga Bandı	Frekans (GHz)	$B_{rez.}^1$ (G)
L	1,1	390
S	4,0	1430
X	9,75	3480
Q	34,0	12100
W	94,0	33500

(a)



(b)

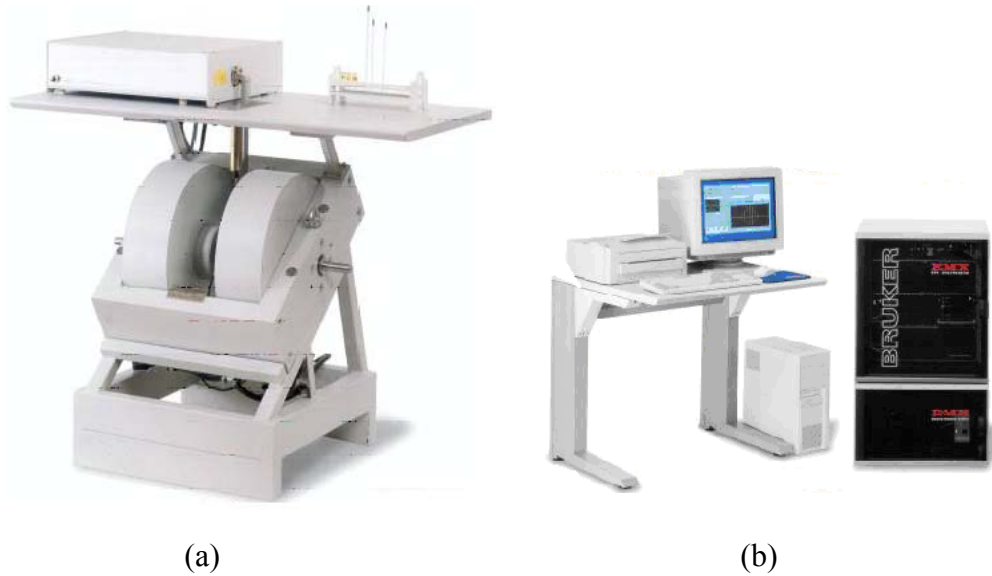
Şekil 2.2. ESR spektrometrelerinin sınıflandırılması a) MD rezonans alanlarına göre b) ESR frekanslarına göre adlandırılmaları [17]

X-Band ESR sistemi, en çok kullanım alanı olan bir cihazdır ve dalgaboyu (λ) 3 ile 3,3 cm arasındadır. Bu aralık kaviteye yerleştirilen numune boyutlarıyla yakından ilgilidir. Ancak çalışma şartlarına uygunluk, hassasiyet ve çalışma konuları ve amaca yönelik olarak ESR spektrometreleri çeşitlilik gösterirler. Frekans değerlerine göre de çeşitli isimlerle ve buna bağlı parametre değerleri ile tanımlanırlar. Düşük frekans (GHz) değerlerinden yüksek değerlere gidildikçe bu sistemlere S-band, X-band, K-band, Q-band ve W-Band spektrometreler denilmektedir. Bütün modellerin frekans ve rezonans alan değerleri Şekil 2.2.(a) ve Şekil 2.2. (b)'de gösterilmiştir.

2.1. ESR Sistemi

Burada ESR sisteminin genel görünümü verilmiştir. ESR ilk kez deneysel olarak 1945 yılında Zavoyskiy tarafından uygulanmıştır [8]. Günümüze kadar birçok ESR spektrometreleri üretilmiştir. Bu gelişim, çalışma amacına yönelik yapılan veya geliştirilen ESR donanım ve modellerini oluşturma yönünde olmuştur. En basit şekilde tanımlanan bir ESR spektrometresi üç ana bileşenden oluşmaktadır: ışınım

¹ Spektrometre çeşitlerinde rezonans manyetik alan değeridir.

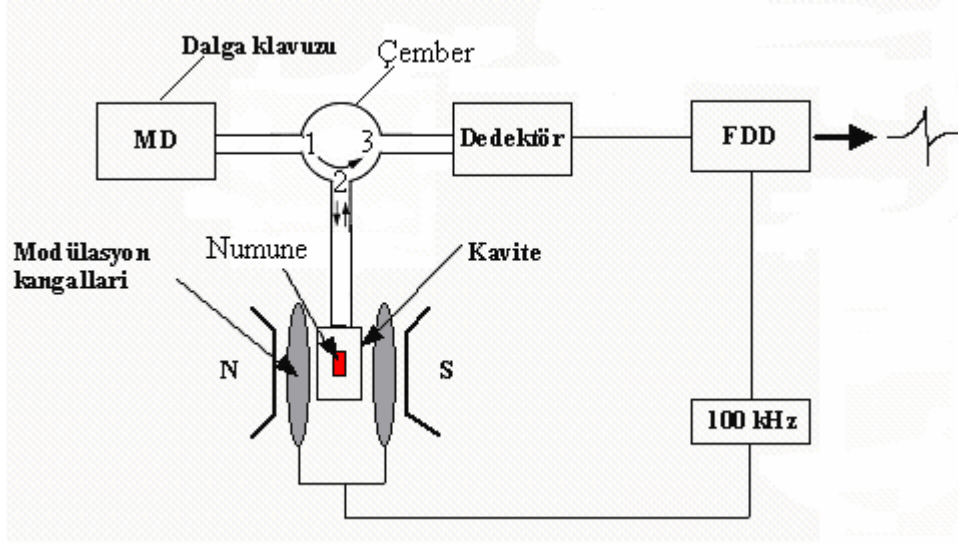


Resim 2.1. ESR sisteminin genel görünümü: a) Magnetler b) Spektrometre [17]

kaynağı, numune ve dedektör'dür. Bazen de bu üç donanım mikrodalga, magnetler ve spektrometre olarak adlandırılır[16].

X-Band ESR sisteminde sabit frekanslı mikrodalga alanında, 9,8 GHz manyetik alan taranarak ($B \sim 0,35$ T) soğurulan mikrodalga enerjisi B alanının fonksiyonu olarak belirlenir. Burada $B = 0,35$ T, X-Band ESR spektrometrelerinin yaklaşık olarak B_{rez} değeridir (Bakınız Şekil 2.2.a). Modülasyon genliği, ESR sinyal şiddetinde önemli bir etkiye sahiptir ve 0,01-3 mT aralığında değişir. Genelde düşük modülasyon genliği değerleri yüksek çözme güçlü ESR sinyalleri verir. Modülasyon sinyali artarken ESR sinyal şiddeti de artar. Ancak yüksek genlik değerlerinde ESR sinyalindeki çizgi şeklinde bozulmalar gözlenebilir.

X-band ESR sistemi; Bruker marka 8 inç magnet (1T manyetik alan üreten), 2,7 kW güç kaynağı olan, 100 – 500K sıcaklık aralığında ölçüm yapabilen, EMX model, sürekli X- band mikrodalga üreten bir sistemdir. Sistemin blok diyagramı ve genel görüntüsü Şekil.2.3.'te görülmektedir. Bu şemada görünmeyen bir de kapalı devre soğutma ünitesi vardır. Genel olarak bir ESR sistemi, güç kaynağı, spektrometre



Şekil 2.3. ESR sisteminin blok diyagramı [17]

kısmı, magnetler, mikrodalga, kavite, sıcaklık kontrol ünitesi, bilgisayar ve soğutma ünitesinden oluşur. Bazı modellerde sistem bazı değişiklikler gösterebilir.

Spektroskopi sistemini oluşturan ana unsurlardan biri mikrodalga kaynağıdır. *Sabit frekansta ve değişen manyetik alan* prensibine göre çalışan X-Band spektroskopisinde çalışma frekansı (9-10 GHz) bölgesindedir. Sistemi oluşturan ikinci ana unsur ise MD gücündeki değişimleri ölçebilen bir kristal dedektör ve bu dedektörün çıkış sinyalini kaydeden bir kaydediciyi içeren spektrometredir; Ana unsurlardan bir diğeri de, her bir değişimi lineer olarak 0,35T değişebilen, homojen bir manyetik alan sağlayabilme kapasitesine sahip manyetik kangallardır. Modülasyon frekansı 100 kHz' dir ve MD içerisinde sabit değerdedir. manyetik alanı modüle ederek çıkış sinyaline katkıda bulunur.

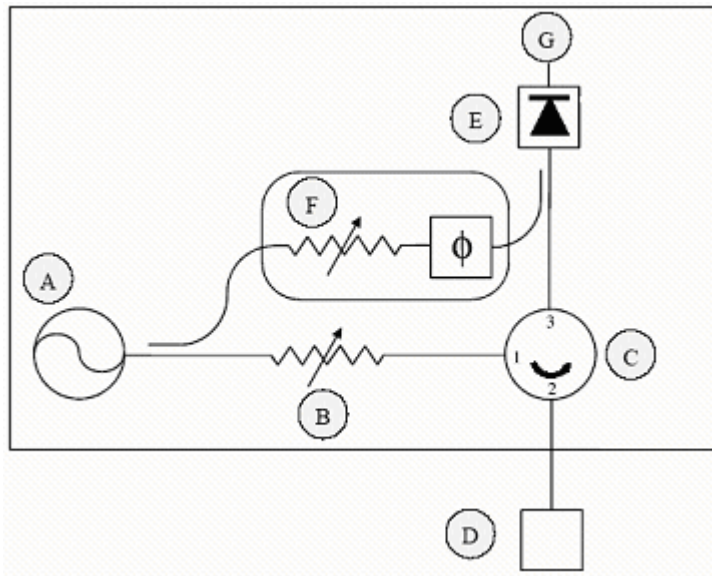
Bunların yanı sıra sistemde düşük ve yüksek sıcaklık ölçümleri için bir *sıcaklık kontrol ünitesi*, spektrumların kaydedilmesi için *bilgisayar*, değişen çalışma şartlarına göre değişik geometrilerde kullanılabilen kaviteler mevcuttur. ESR sisteminde bunlara ek olarak; numunede (özellikle tek kristal numunelerinde) açığa bağlı değişimlerin ESR spektrumlarını almaya yarayan ganyometre ile sadece 77 K'de (sıvı azot sıcaklığı) ölçüm almamıza yarayan parmak sıvı azot kabı (finger

dewar) bulunmaktadır. ESR sistemi ve temel bileşenlerinin genel görünümü Resim 2.1' de görülmektedir.

2.1.1. Mikrodalga köprüsü

Mikrodalga köprüsü, içerisinde temel anlamda, mikrodalga kaynağını ve dedektörü bulundurur. Diğerleri ise, sistem kontrolü, güç kaynağı ve elektronik güvenlikle ilgilidir. Şekil.2.4'deki A noktası mikrodalga kaynağıdır. Kaynağın çıkış gücü genellikle değişmezdir. B noktası ise mikrodalga kaynağından gelen ışını zayıflatıcı olarak adlandırılır. Zayıflatıcı mikrodalga gücü, tam olarak kontrol edilebilir. ESR spektrometrelerinin çoğunda göze çarpan teknik bir özellik de, numuneden yani D noktasından yansıyan ışınların miktarındaki değişikliğin ölçülmesidir. C noktası ile gösterilen düzenek bu işi yapar ve bir düzenleyici çember olarak bilinir. Kaynaktan gelen ışınların direk olarak algılayıcıya geçmesini önler.

Kavitedeki numuneye 2 yoluyla gelen ışın, yansıdıktan sonra doğruca algılayıcıya ulaşır. Yansıyan ışınlar tekrardan kaynağa dönmezler. Faz duyarlı dedektörler ESR sinyal çıkışının son aşamasını oluşturur.



Şekil 2.4. Mikrodalga köprüsünün blok diyagramı a) Kaynak b)Zayıflatıcı c) Çember d) Kavite e) Algılayıcı diyod f) Referans kolu g) Sinyal çıkışı [17]

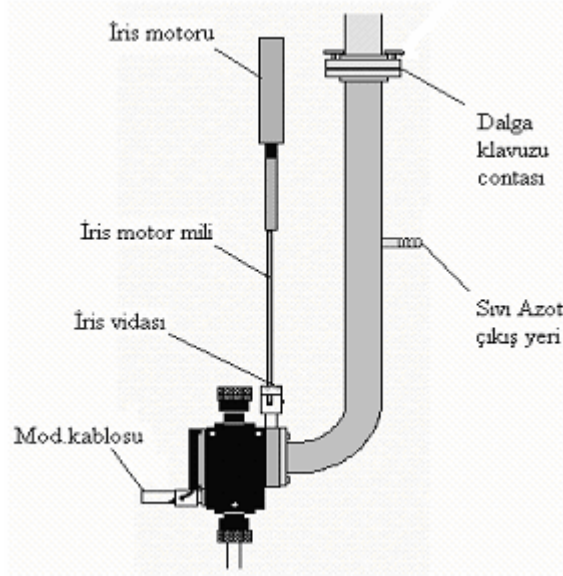
2.1.2. Kavite

ESR spektrometresinde en önemli donanımlardan birisi de kavitedir(numune tutucu). Kaviteler dikdörtgen ve silindirik geometrilerde olabilir. Dikdörtgen şeklindeki bir X-band ESR kavitesinin boyutları (1x2x3) cm şeklindedir (Şekil 2.5). Örnek yerleşimi, laboratuvar ortamında üretilen etkin manyetik alana dik gelecek şekildedir. Burada manyetik alan bileşeni B en yüksek değerdedir. Kaviteyi tanımlarken K faktörünü tanımlamak gerekir (Eş.2.2). Kalite faktörü ESR spektrumundaki duygunluğun ve hassasiyetin kavite açısından bir ölçüsüdür. Aslında K faktörü kavitenin ne kadar mikrodalga enerjisi depoladığını gösterir.

$$K = \frac{2\pi(\text{depolanan enerji})}{(B.D.K.E.)} \quad (2.2)$$

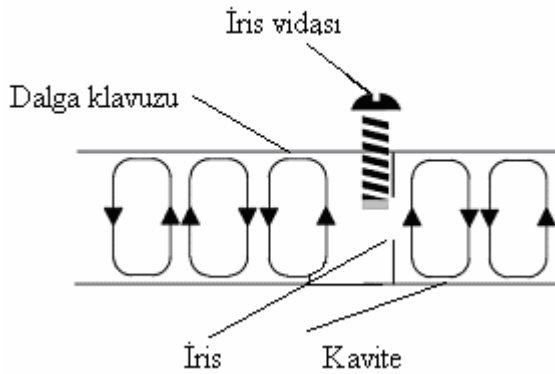
Yani K, “*Birim mikrodalga dolanımı boyunca kaybolan enerji*” başına “*depo edilen enerji*” olarak tanımlanabilir. BDKE¹ bir mikrodalga periyodu boyunca kaybolan enerjinin toplamıdır. Rezonans sonucunda kavite içinde elektromanyetik dalga oluşur. Bu dalgalar kavite duvarlarında elektrik akımı meydana getirirler. Kavite duvarları yüksek derecede iletkenlik gösteren metallerden yapılmıştır [18]. Kaviteyi, mikrodalga klavuzu ile birlikte mikrodalga kaynağına bağlayan İris (Şekil 2.6.)’tir. İris’in görevi, kavite ve mikrodalga arasındaki empedans uyuşmasını sağlamaktır. Bunu ise iris vidası ile yapar.

¹ Birim Dolanım Başına Kaybolan Enerji.



Şekil 2.5. Kavite, dalga klavuzu ve iris'in genel görünümü [17]

X-Band ESR spektrometrelerinde, en yaygın olarak kullanılanı “çınlayan kavite”dir. Paralelyüzlü dikdörtgen mikrodalga kaviteler çok sık kullanılanlardır. Kullanışlı bir ESR kavitesi, K değeri yüksek, mikrodalga manyetik alan bileşeni B_0 'a dik ve numune yerleşimi olan yerde, B_0 en yüksek değerde, elektrik alan E ise en düşük değerde olmalıdır. Rezonans durumunda kavite duvarlarında durağan dalgalar oluşur. Durağan dalgalar B ve E bileşenlerinin çıkış fazlarına sahiptirler [17-21].



Şekil 2.6. Numune haznesinde mikrodalga eşleşmesi

3. ESR DOZİMETRİSİ VE YAŞ TAYİNİ

Nükleer radyasyon kazası sonucu soğurulan dozun duyarlı bir şekilde ölçülmesi, insan sağlığı açısından önemlidir. Uygulanacak tedavinin önemi soğurulan dozun duyarlı bir şekilde belirlenmesine bağlıdır. Bu yüzden “kaza dozimetresi” çalışmaları bilim dünyasında yoğun çalışılan konular arasındadır.

Günümüzde, iyonlaştırıcı radyasyon kazasına maruz kalan bir kişinin, üzerinde bir dozimetre taşımıyorsa, maruz kaldığı radyasyon dozunu hemen belirlemek mümkün değildir. Böyle muhtemel bir nükleer radyasyon kazası sırasında, herkesin her zaman dozimetre taşıması mümkün olamayacağından, soğurulan dozun belirlenmesinde farklı alternatif yollara başvurulmaktadır.

Radyasyon kazalarında, kazazedeler üzerinde bulunan bazı dozimetreler (film dozimetresi vb.), yüksek doz değerlerinde güvenilir sonuç vermezken, bazıları da soğurulan radyasyonun çeşidine uygun olmamakta ve böylece soğurulan doz miktarı belirlenememektedir. Radyasyonun birey üzerinde moleküler düzeyde oluşturduğu değişimleri, ESR ile belirlemek mümkündür.

Radyasyonla oluşturulan radikal konsantrasyonları ile ölçülen, sinyal şiddetleri doğrusal olarak artar [22-27]. Bu da geriye dönük dozların bulunabilmesini sağlar. ESR tekniğine alternatif yöntemler 1930’lardan beri kullanılan Termoluminesans (TL) tekniği ve 1985’den sonra gündeme gelen Optik Uyarmalı Luminesans (OSL)’dir.

ESR tekniği çeşitli kemik ve benzeri türü maddeler içeren numunelerde (kemik, diş, balık kılçığı, tavuk kemiği vb.) ; soğurulan dozların belirlenmesinde kullanılan etkili bir yöntemdir. Bu yöntemin özellikleri, sonuçları ve uygulanması çeşitli çalışmalarla geliştirilmiş ve bir çok uluslararası bilimsel yayınlarda sunulmuştur [22, 28-33]. Doğal ESR sinyalinin büyüklüğü ile numunenin tanecik yapısı arasındaki bağlantıyı ise Haskell ve ark., 1996 yılında yaptıkları çalışma ile göstermişlerdir.

3.1. Manyetik Alanda Elektron

Elektronun spin hareketinden kaynaklanan manyetik momenti $\mu_e = -g_e \mu_B \frac{S}{\hbar}$ ile ifade edilir. Burada g_e serbest elektron için g-faktörü veya spektroskopik yarıлма çarpanıdır. Serbest elektron için $g_e = 2,002319$ 'dur. μ_B Bohr manyetonu, değeri $(eh/2\pi m_e) = 9,27401540 \times 10^{-24}$ J/T, m_e elektronun kütlesi ve S spin açısal momentumdur. Manyetik alanda B ile μ_e arasındaki etkileşme Hamiltoniyen olarak

$$H = -\mu_e \cdot B = g_e \mu_B \frac{\vec{S} \cdot \vec{B}}{\hbar} \text{ verilir. Manyetik alan } z \text{ yönünde ise, Hamiltoniyen ifadesi } H =$$

$g_e \mu_B \vec{S}_z \cdot \vec{B}$ şeklinde, enerji özdeğerleri $E = -g_e \mu_B m_s B = \pm 1/2 g_e \mu_B B$ ve burada $m_s \hbar$, S_z spin operatörünün özdeğerleridir. Böylece elektron için mümkün olan iki yarıлма durumu vardır. Ayrılma enerjisi, ΔE manyetik alan B ile doğrusal olarak artar. Bu durum Zeeman yarıłmasında E_+ için α , E_- için ise β olarak da gösterilebilir.

3.1.1. Rezonans koşulu

ESR spektrometrelerinde rezonans koşulu denklemi Eş.2.1.' in yardımı ile

$$h\nu = g_e \mu_B B \quad (3.1)$$

olarak yazılır. Spektroskopik parametre hesaplamalarında, g-değeri, Eş. 3.1 ile bulunur. Bu eşitlik yardımı ile hem rezonans alanı için g-spektroskopik yarıлма çarpanı, hem de referans alınan standart için B değeri kullanılarak deneysel g-değeri hesaplanabilir.

$$g = g_{ref} \frac{B_{ref}}{B_{rez}} \quad (3.2)$$

ESR sisteminde kalibrasyon için standart olarak, DPPH (diphenylpicrylhydrazyl) kullanıldı. DPPH için g-değeri $2,0036 \pm 0003$ 'tür. Rezonans şartının sağlanması için,

manyetik alana dik bir elektromanyetik dalga uygulandığında yani $h\nu = \Delta E = g_e \mu_B B$ sağlandığında bir spin durumundan diğer duruma geçiş olur. Başka bir ifade ile, soğurma ($\beta \rightarrow \alpha$) veya uyarılmış ışıнімda ($\alpha \rightarrow \beta$) şeklindedir. Rezonans koşulu sağlandığında sistem enerji soğurur. Bu soğurulan enerjinin belirlenmesi ESR spektroskopisi sisteminin temelini oluşturur. Soğurma enerji hızı,

$$dE = nP\Delta E \quad (3.3)$$

veya

$$dE = n_0 \Delta E \frac{P}{(1 + 2PT_1)} \quad (3.4)$$

şeklinde verilir. Burada $n = N_\beta - N_\alpha$ sürekli dalga durumları altında spin sayısı farklılıklarıdır. P ise uyarılmış geçiş olasılığı, n_0 da termal dengedeki spin sayısı farklılığıdır ve T_1 spin örgü durulma zamanıdır. Birinci dereceden yaklaşıklıkla,

$$dE/dt \sim N(\Delta E)^2 P / [kT(1 + 2PT_1)] \quad (3.5)$$

yazılabilir. Buradan görülebildiği gibi ESR sinyal şiddeti, numunedeki çiftlenmemiş elektronların sayısı ile orantılıdır.

3.1.2. Spin hamiltoniyeni

Elektronun yüklü olması nedeniyle hareket ettiği yörüngede bir elektrik akımı oluşturur. Bunun sonucu da elektronun bulunduğu bölgede bir manyetik alan oluşur. Bu manyetik alan diğer elektronlar, atomlar veya moleküllerin manyetik alanları ile etkileşir. Elektronun bu alanlarla etkileşimi normalde etkin spin Hamiltoniyeni olarak tanımlanır. Uygulanan manyetik alanda tek bir çiftlenmemiş elektron için etkin spin hamiltoniyeni şöyledir:

$$H = H_{\text{elektron Zeemann}} + H_{\text{nükleer Zeemann}} + H_{\text{aşırı inceyapı}} + H_{\text{kuadropol}} \quad (3.6)$$

İlk iki terimin daha açık ifadesi,

$$H = g_e \mu_B \frac{\vec{B} \cdot \vec{S}}{\hbar} - g_N \mu_N \frac{\vec{B} \cdot \vec{I}}{\hbar} \quad (3.7)$$

olarak yazılır. Burada g spektroskopik yarıma çarpanı, g_N ve μ_N nükleer g -faktörü ve nükleer manyeton için değeri $(eh/2\pi m_p) = 5,0507866 \times 10^{-27}$ J/T dir. m_p protonun kütlesidir. I ise nükleer spin değeridir. K kuadrupol çiftlenim tensörü ve A da aşırı ince çiftlenim tensörleridirler.

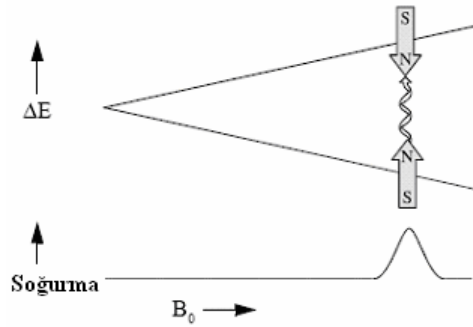
Zeeman yarılmaları

ESR tekniğini kullanarak laboratuvar ortamında alınan ölçümlerin temelinde yatan fiziksel olay, sistem tarafından oluşturulan dış manyetik alan ile numunedeki çiftlenmemiş elektronların spinlerinin etkileşmeleridir. Oluşan enerji farklılığının (E_1 ve E_2) nedeni, “Zeeman olayı”nın meydana gelmesi olarak açıklanabilir. Çiftlenmemiş elektronlar, spinlerinin hareketinden dolayı sahip oldukları manyetik moment nedeniyle; küçük bir mıknatıs gibi davranırlar. Bu mıknatıscık manyetik alana yerleştirilirse, μ manyetik momentinden dolayı bir kısmı manyetik alan yönünde yönelir, bir kısmı manyetik alana zıt yönde yönelir. Bu durumda elektronlar arasında bir enerji farkı olacaktır. Bu fark manyetik alana zıt yönde yönelenler ile aynı yönde yönelen elektronlar arasındadır. Enerjileri:

$$E = g\mu_B B_0 m_s = \pm \frac{1}{2} g\mu_B B_0 \quad (3.8)$$

burada $m_s = \pm \frac{1}{2}$ olup,

$$\Delta E = E_{\frac{1}{2}} - E_{-\frac{1}{2}} = g\mu_B B_0 \equiv h\nu \quad (3.9)$$



Şekil 3.1. Soğurmaya karşı gelen ESR spektrumu [17]

olur. Burada h Planck sabiti ($h = 6,63 \times 10^{-34}$ J.s), g -değeri mıknatıslanmaya katkı derecesini gösteren bir sabittir. μ_B Bohr manyetonu olup değeri ($9,27 \times 10^{-24}$ J/T)'dir. B_0 dış manyetik alan değerini gösterir.

Manyetik dipol momentlerin manyetik alan ile etkileşmesi sonucu, söz konusu momentlerin her biri birer mıknatıs gibi davranır ve sahip oldukları spin değerlerine göre mümkün olan enerji seviyelerine yarılır. Bu olaya “Elektron Zeeman Etkisi” veya “Zeeman Yarılması” denir. Seviyeler arası mümkün geçişlere bağlı olarak bir ESR spektrumu gözlenir.

İki enerji durumu arasındaki fark mikrodalga enerjisine eşit olduğunda mikrodalga numune tarafından soğurulur ve bir soğurma spektrumu gözlenir (Şekil 3.1). Klasik mekaniğe göre; rezonans olayının iki titreşim frekansının uyumlu olması hali olarak bilinmektedir.

Elektromanyetik ışık ile bir elektronu uyardığımızı düşünelim. Uyarılan elektron enerji kazanarak bir üst duruma geçer. Daha sonra kazandığı enerjiyi vererek taban durumuna geçer. Birinci durumdaki spektrum çizgisi, “soğurulma” ikinci durumdaki spektrum çizgisi ise “emisyon çizgisi” olarak adlandırılır. Manyetik alanda çizgi yarılması ilk olarak Zeemann tarafından 1897 yılında gözlenmiştir. Bu iki çizgi aynı ise rezonans durumu vardır. Manyetik rezonans deyimi aslında dış bir etkenin, manyetik sistemin doğal frekansıyla uyumlu olduğunu belirtmek için kullanılır. ESR sisteminde doğal frekans Larmor frekansı, dış etken ise Mikrodalga (MD)'dir.

3.2. İyonlaştırıcı Radyasyon ve Paramanyetizma

Yüksek dozlardaki nükleer radyasyon hedefte serbest radikallerin meydana gelmesine neden olur. Serbest radikallerin çiftlenmemiş elektronları da paramanyetizmanın oluşma sebebidir. Çiftlenmemiş elektron sayısı arttıkça paramanyetik özellik artar. Paramanyetik maddelerde sıcaklık arttıkça χ değeri değişmez veya azalır. Burada χ değeri, manyetik alınganlığın ölçüsüdür ve birim manyetik alan başına mıknatıslanma olarak tanımlanır ve ESR tekniği ile belirlenebilir.

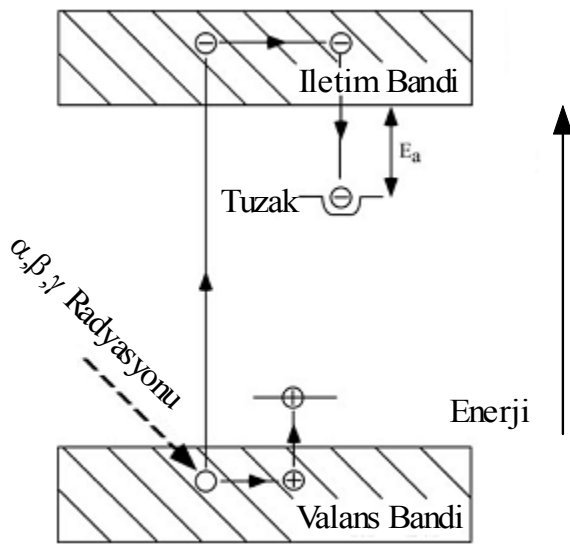
Paramanyetik merkezler, çiftlenmemiş elektronların spinlerinin dönmesinden oluşan kalıcı manyetik momente sahiptirler ve negatif yüklüdürler. Dış manyetik alanda bu manyetik momentlerin iki enerji durumunda olduğu kabul edilir: manyetik alan yönünde yönelmiş taban durumu ve ters yönde yönelmiş uyarılmış durum. Manyetik momentlerin düşük enerji seviyesinden yüksek enerji seviyesine geçişleri ayrı frekansta EM dalganın soğurulması ile belirtilebilir. Mikrodalga soğurumunun miktarı direk olarak paramanyetik merkezlerin sayısı ile orantılıdır. İyonlaştırıcı radyasyon, serbest radikal oluşturduğundan bu metotlarla iyonlaştırıcı radyasyonun etkilerini çalışmak mümkündür.

Doz, birim kütle başına soğurulan radyasyon enerjisidir. SI birim sisteminde soğurulan doz birimi gray (Gy)' dir ve $1\text{Gy} = 1\text{J/kg}$ olarak tanımlanır. ESR dozimetrisinin önemi, bazı ışınlanmış materyallerde radyasyonun oluşturduğu çiftlenmemiş elektronların göreceli konsantrasyonunu ölçerek dozu belirlemesidir. ESR dozimetrelerinin en büyük avantajlarından biri numune tekrar tekrar ölçülebilir [38].

3.3. ESR ile Yaş Tayini

Tarihlendirme için ESR ölçümlerinde, paramanyetik merkezlerin mutlak sayısının belirlenmesi gerekliliği yoktur. Sadece ESR sinyal şiddeti, doz-cevap eğrisini oluşturmak yeterlidir. Tarihlendirme Termoluminesans (TL) tekniği ile yapılyorsa

bu kusur merkezleri “*tuzaklar*” olarak bilinir. Materyalin sıcaklık ile uyarılmasıyla, tuzaklanmış elektronlar iletim bandına geçerler. İletim bandından tekrar birleşme yerlerine dönerlerse luminesans yayınlanır veya radyoaktif olmayan bölgelere ulaşırlar luminesans yayınlanmaz. Bütün mineraller kusur yerleri içerirler. Tuzaklanmış yükün iletim bandına geçebilmesi için gerekli olan enerjiye aktivasyon enerjisi denir. Bu tuzaklanan elektronlar direk olarak ESR tarafından ölçülebilirler.



Şekil 3.2. Bir katı yapının şematik gösterimi [15].

Şekil 3.2'deki (E_a) aktivasyon enerjisi veya tuzaklanma derinliğidir. ESR sinyali şiddeti de, bu tuzakların sayısına bağlı olarak değişim gösterir [10-15]

ESR tekniği ile yapılan tarihlendirme çalışmalarının temeli, iyonlaştırıcı radyasyon tarafından oluşturulan paramanyetik merkezlerin konsantrasyonunun belirlenmesine dayanır [10-35]. Verilen bir numunenin ESR ile tarihlendirilmesi, eklemeli doz metodu ile tespit edilen eşdeğer dozun, yıllık doza oranı ile bulunur. Eşdeğer doz,

$$D_E = \int_0^T D_y(t) dt$$

Eğer doz hızı $D_y(t)$ sabit ise

$$T = \frac{D_E}{D_y} \quad (3.9)$$

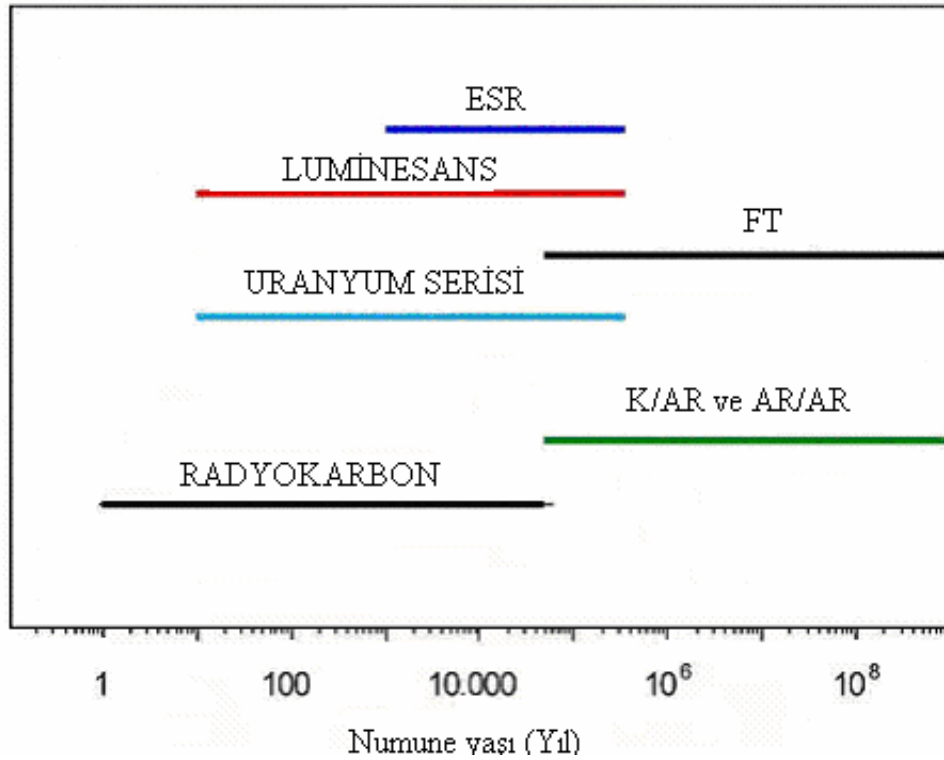
olur. Eşdeğer doz, “kaza dozu”, “paleodoz” gibi isimlerle de tanımlanır. D_y ise iç ve dış dozları da kapsayan yıllık doz hızıdır. D_y yıllık doz hızı farklı ölçüm yöntemleri ile belirlenebilir. Bu metotlardan biri numunedeki radyoaktif elementlerin (U, Th ve K) tespiti ile doz hızının belirlenmesidir. Diğer iki metot ise, kimyasal analiz ve numune alınan bölgeye gömülen termolüminesans (TLD) dozimetreleridir. Bu dozimetreler bir yıl gömülü olarak durduktan sonra çıkarılarak, TLD okuyucularda okutulup yıllık doz değeri belirlenir. Radyoaktif elementlerin ölçülen aktiviteleri soğurulan doza (Gray) dönüştürülebilir (Çizelge 3.1).

Çizelge 3.1. U, Th ve K için doz hızı hesaplamaları [36]

Radyoaktif element konsantrasyonu	$\dot{D}_\alpha$	$\dot{D}_\beta$	$\dot{D}_\gamma$	Doz hızı
1 ppm $^{238}\text{U} + ^{235}\text{U}$	2780	146	113	$\mu\text{Gy/yıl}$
1 ppm ^{232}Th	732	27	48	$\mu\text{Gy/yıl}$
1 % K		782	243	$\mu\text{Gy/yıl}$

Doz hızı, numunelerin radyoaktif elementlerinin konsantrasyonundan hesaplanır. Sadece U, Th bozunum çemberi ve ^{40}K miktarı [37] ve kozmik ışın katkısı bilinmelidir. Alfa parçacıkları, ESR sinyal şiddeti oluşumunda Beta ve Gama ışınlarından daha az etkilidir [38].

Numunelerdeki radyoaktif elementlerin konsantrasyonu birbirinden bağımsız olarak iç doz hız ($D_{iç}$) ve dış doz ($D_{dış}$) hızı olarak ele alınır. Bunlara ilave olarak deniz seviyesinde yaklaşık olarak $300\mu\text{Gy/yıl}$ olan kozmik ışın değeri doz hızı hesaplarına katılır. Bu değer doğal olarak deniz seviyesinden olan yükseklikle değişir [39].



Şekil 3.3. İnsan kalıntılarının direk tarihlendirilmesi için kullanılan bazı metotların yaklaşık aralıkları [40]

3.4. Yıllık Doz Hızının Belirlenmesi

Bu çalışmada, doz hızının tespiti Gama spektrometresi ile yapıldı. Hem numunelerdeki iç doz hızı (D_i) hem de numunelerin çıkarıldığı bölgedeki toprak örneklerinin dış doz hızı (D_d), içerdikleri radyoaktif elementlerin aktivitelerinin belirlenmesi neticesinde, dönüşüm oranları (Çizelge 3.1) kullanılarak yıllık doz hızı bulundu. Toplam doz hızı iki ana doz bileşeninin toplamından oluşmaktadır:

$$D_{Toplam} = D_i + D_d \quad (3.10)$$

Bunlara ek olarak kozmik ışınlardan gelen katkı da göz önüne alınır ($D_{kozmetik}$),

$$D_{Toplam} = D_i + D_d + D_{kozmetik} \quad (3.11)$$

Ancak, kozmik ışınlardan yıllık doz hızına gelen katkı çok düşük olduğu (deniz seviyesinde 300 $\mu\text{Gy/yıl}$) [39] için doz hızı hesaplamalarında çoğu zaman dikkate alınmaz. Ayrıca (Eş.3.11)'deki $D_{iç}$ ' in açık ifadesi,

$$D_{iç} = kD_{\alpha} + D_{\beta} \quad (3.12)$$

veya

$$D_{iç} = D_U + D_{Th} + D_K \quad (3.13)$$

Burada D_U , D_{Th} , ve D_K Uranyum, Toryum ve Potasyum izotopları kaynağından soğurulan doz değerleridir [35].

Aynı şekilde $D_{dış}$ ise,

$$D_d = D_{\alpha} + D_{\beta} + D_{\gamma} \quad (3.14)$$

olarak yazılır. Toplam doz hızı birimi Gray (Gy) olarak hesaplanır. Şimdi iç ve dış doz hızı içeriğine kısaca bakalım.

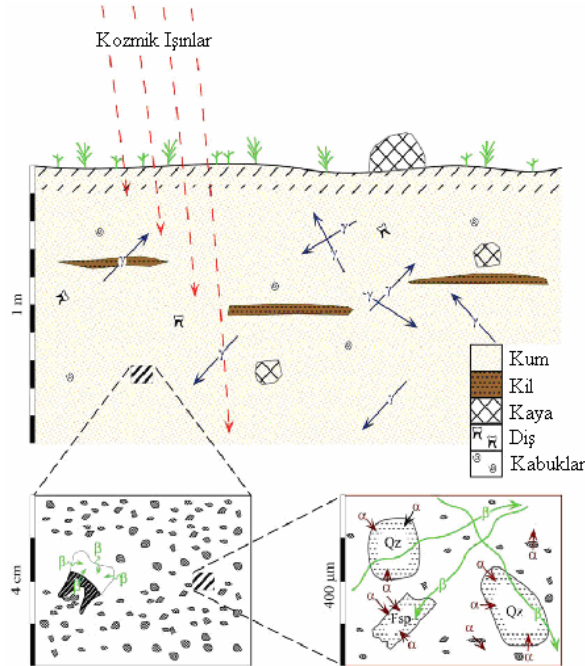
3.4.1. Dış doz ($D_{dış}$) oluşumu ve hesaplanması

Dış doz hızının hesaplanması numunenin boyutlarına bağlıdır (Şekil.3.4). Boyutları 50 μm 'nin dışında olan numunelerde, dış alfa ışınlamasının katkısı ihmal edilir. Ancak insan dişleri ile çalışılırken bu yapılamaz. Alfa ışınlamasının dış doz hızına katkısı yüzde bir kaçtır (1-3%) [41]. İnsan diş minesi kalınlığı 0,8-1,2 mm kalınlığındadır. Bundan dolayı numunenin aldığı dış beta dozu numune derinliği ile azalır. Sonuç olarak, dış beta doz hızı dış gama dozundan ayrı olarak hesaplanmalıdır. Nedeni ise beta dozunun numuneye tutunan tortuda meydana geldiği içindir. Oysa gama dozu 30cm yarıçapındaki tüm numunelerde oluşur (Şekil 3.4).

Tortuda oluşan beta doz hızı hesabı, kimyasal analiz (U,Th ve K) yoluyla yapılır. Gama doz oranı normal olarak laboratuvar analizinden belirlenemez. Ancak, taşınabilir gama spektrometresi veya TL dozimetresi ile belirlenebilir. Çevresel şartların çoğu, toprak katmanlarının çeşitliliğinden dolayı radyoaktif elementlerin dağılımında, homojen olmayan bir durum gösterir. Killer, tortulardan veya taşlardan daha yüksek radyoaktiflik gösterirler [13].

3.4.2. İç doz oluşumu ve hesaplanması

İç doz hızı temelde, numunedeki elementlerden yayınlanan alfa ve beta ışınları tarafından oluşur. Alfa ışını etkisini belirlemek, ESR ölçümleri için boyut gerekliliğinden dolayı zordur. ESR sinyal oluşumunda, alfa'ların etkisi beta ve gamadan daha azdır. Yaygın olarak dış minesi için kullanılan değer alfa sabiti $K_\alpha = 0,13 \pm 0,02$ dir [38]. Ancak bu değerler başka bir çalışmada $0,223 \pm 0,013$ olarak da ölçülmüştür [43]. Dış minesi için doz hızı hesaplamaları, üzerinde zamanla biriken Uranyum yüzünden karmaşıktır.



Şekil 3.4. Doz hızı hesaplamaları için gerekli olan doğal radyasyonun farklı dış bileşenlerinin şematik gösterimi [40]

4. DENEYSEL İŞLEMLER

4.1. Eklemeli Doz Metodu

Eklemeli doz yöntemi, materyallerde oluşan paramanyetik merkezlerin (serbest radikallerin) belirlenmesinde kullanılan metottur. Daha önceden TL çalışmaları için geliştirilen bu teknik daha sonra ESR’ da da kullanılmaya başlamıştır. Eklemeli doz metodunda, ESR dozimetrik sinyalinin radyasyon dozuna olan cevabı göz önüne alınır.

ESR sinyal şiddeti laboratuvar ışınlaması ile oluşturulmuş soğurma dozunun bir fonksiyonu olarak artar. Q laboratuvar da eklemeli doz oranı veya eklenmiş doz miktarı, D ışınlama kaynağının doz hızı ve ışınlama zamanı t’nin bir fonksiyonudur. Başka bir ifade ile:

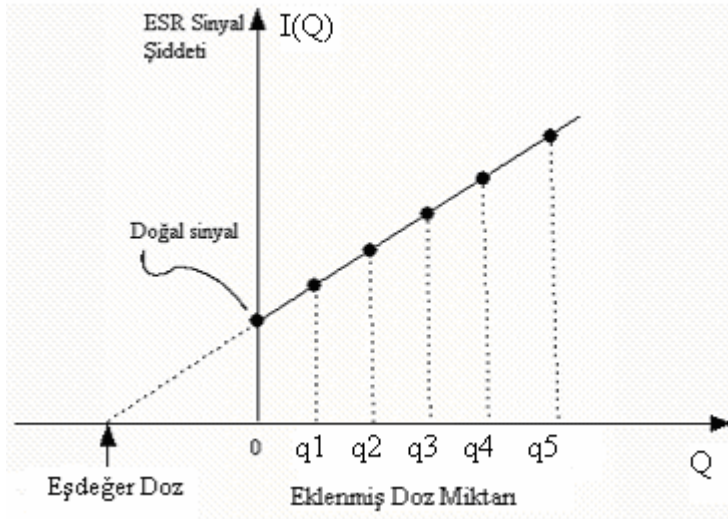
$$Q=Dt \quad (4.1)$$

şeklindedir. D_E kaza dozu veya eşdeğer dozu da düşünerek eklemeli doz metodunun analitik denklemi,

$$I(Q)=I_0(1+Q/D_E) \quad (4.2)$$

olarak yazılır [22]. Burada $I(Q)$ eklemeli doz ile numuneden elde edilen ESR sinyal şiddetidir. I_0 doğal halde bulunan numunenin, ESR spektrumundan ölçülen şiddet değeridir.

Eşdeğer doz numunenin toprak altında kaldığı süre içinde soğurduğu dozu hesaplamak için laboratuvar da ölçülen doz değeridir. Numune dozu geçmişte çok enerjili alfa, beta, gama ve kozmik ışınlar a maruz kalan numunenin soğurduğu nükleer radyasyon dozu’dur. Böylece deneysel olarak belirlenen doz değeri doğal olarak alınan beta veya gama eşdeğerindedir [42].



Şekil 4.1. Eklemeli doz metodunda doz-cevap eğrisi [22]

Eklemeli doz metodunda, örneğin doğal halinin önce ESR spektrumu alınır. Sonra aynı numuneye 4-6 adımda eklemeli doz uygulanır. Her ışınlama dozundan sonra, ESR spektrumu alınır. ESR spektrumlarındaki dozimetrik sinyalin ölçümleri, doz-cevap grafiğine aktarılır. Doz-cevap grafiğinin doz eksenini kestiği nokta eşdeğer doz D_E ’ yi verir (Şekil 4.1).

4.2. Doz Cevap Eğrisi

ESR ile yapılan ve dozimetrik çalışmaların içerisinde temel olarak, *doz-cevap eğrisi*’nin oluşturulması esastır. Dozimetrik materyallerde, ESR spektrumlarından ölçülen sinyal şiddetinin, numunenin soğurduğu doza karşı “doğrusal” bir değişim göstermesi gerektiği daha önce belirtildi. Ancak bu çoğu numune için geçerli olmayabilir [11] ve doğrusal olmayan bir değişim de gösterebilir. Bu doğrusal değişimin üst sınırı bazı örneklerin dozimetrik çalışmalarında için 100 Gy’e kadar olsa da 700 Gy’e kadar dış minesini için doğrusal bir değişim genel olarak gözlenmiştir [42]. Doz-cevap eğrisinin bu özelliği bize, tarihlendirme çalışmalarında bazı kolaylıklar sağlar. Geriye dönük olarak numunenin almış olduğu eşdeğer doz miktarını belirlemek için bu grafikten yararlanılır [22, 44]. İyonlaştırıcı radyasyonla oluşturulan radikallerin konsantrasyonlarının 10 mGy ve 10 kGy aralığında sinyal şiddetlerinin doğrusal olarak arttığı ve eşdeğer dozlarının ölçülebildiği M. Ikeya

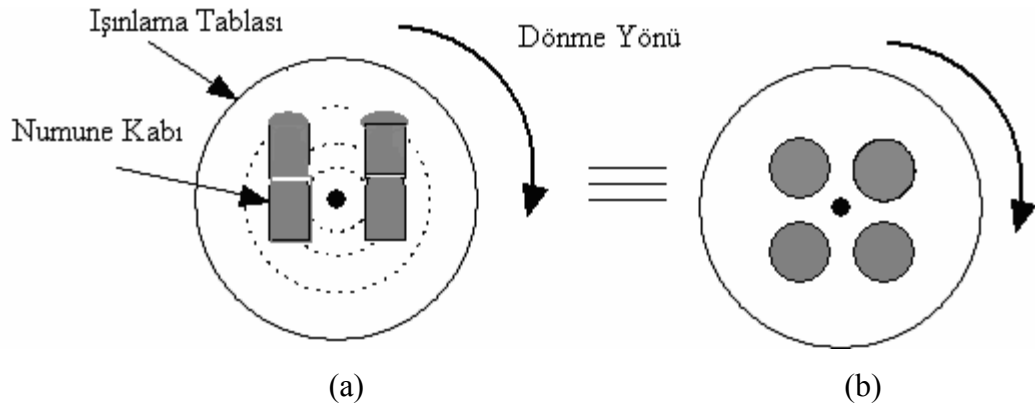
tarafından rapor edilmiştir [22]. İnsan dişlerinde şimdiye kadar yapılan EPR dozimetri çalışmalarında en düşük eşdeğer doz değeri 29 mGy olarak tespit edildi [45].

4.3. Örnek Hazırlama

ESR tekniği ile yapılan spektroskopik çalışmalarda numune hazırlığı önemli bir işlemdir. Numune hazırlaması sırasında, numune üzerinde yapılan işlemler (çeşitli kimyasal işlemler, ultrasonik banyo) herhangi bir ilave ESR sinyali oluşturmaz. Saf alkolle iyice yıkanarak temizlenen dişlerin her biri dentin ve mine tabakalarının ayrıştırılması için elmas kesici uçlu dişçi matkabı ile kök uçları kesilerek üst kısmı ortasından 2 parçaya ayrıldı. 25 ml' lik küçük cam beherlere konularak, distile suyla dolu ultrasonik banyo cihazında oda sıcaklığında yaklaşık 3 gün bekletildi. Diş örnekleri distile su ile yıkanarak watman2 filtre kağıdından süzülerek oda sıcaklığında kurutuldu. Dişler kuruduktan sonra matkap ile mine tabakasında kalan dentinler dikkatli bir şekilde kazındı. Daha sonra agat havanda mine ve dentin olarak ayrı ayrı öğütüldü. Örnek büyüklükleri; 50µm - 125µm aralığında elek sarsma cihazında elenerek, ışınlama ve diğer işlemler için örnek saklama kaplarına konuldu.

4.4. Örneklerin Işınlanması

Daha önceden hazırlanan toz numuneler, çalışma boyunca camsı mika tüpler ile orta boy eppendorf tüplerde saklandı. Güneş ışınlarından ve diğer görünür ışık kaynaklarından korundu. Işınlama işlemlerinin tamamı Türkiye Atom Enerjisi Kurumu (TAEK), Sarayköy Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi (SANAEM)' de bulunan gama kaynaklarından biri olan (Resim 4.1) ve doz hızı 0,609 kGy/Saat olan Mark I-22M model yarı ömrü 30,2 yıl olan, Sezyum (^{137}Cs) kaynağında, oda sıcaklığında ve üç bölümde gerçekleştirildi. Özellikle eklemeli doz ölçümlerinde, örnek her defasında ışınlama kabına konarak , her ışınlama adımından sonra ESR



Şekil 4.2. Sezyum kaynağındaki ışınlamada numunelerin yerleşimi a) Işınlama tablası b) Işınlama tablasındaki numunelerin şematik görünümü.

spektrumu alındı (Şekil 4.1'deki q1-q5). Böylece her ışınlama adımında hem numune taneleri arasında bir homojenlik sağlandı hem de, her adımda da tartılarak olası bir kütle kaybının önüne geçildi.

Işınlama işlemi spektrum alınan ESR tüpü ile değil, ayrı bir ışınlama kabında yapılmıştır (Şekil 4.2.). Toz haldeki numuneler 100 mg tartılarak iç çapları 3 mm ve 5 mm olan kuvars tüplere konarak, aşağıda belirtilen spektrometre parametrelerinde (tüm örnekler için) ESR ölçümleri alındı. Sıcaklık ölçümleri haricindeki her bir ESR spektrumu 10'ar kez tekrarlanarak alındı. Işınlama işlemlerinin tamamı oda sıcaklığında yapıldı. Işınlamalar, boyu 2,2 cm ve çapı 1 cm olan silindir cam bir kaptaki ve tek tek konarak gerçekleştirildi. Her ışınlamada numune ışınlama kaynağındaki ışınlama tablasının tam ortasına konarak tablanın saat yönünde dönmesi sağlanarak işlem yapıldı. Hatta örnek her ışınlamaya başlamadan önce, silindir kabı içerisindeki numune seviyesi kontrol edilmiştir.



Resim 4.1. Sezyum-137 ışınlama kaynağının genel görünümü [21]

Eklemeli doz metodu kullanılarak alınan ESR ölçümlerinde, iki farklı ışınlama dozu AT4, AB1, KKP3, MB, EK1 numunelerine uygulandı. Kullanılan numunelerin açık adları, kodları ile Çizelge 4.1’ de verildi. İlk olarak 20,26, 40,52, 60,78, 81,04, 101,3 Gy’lik adımlarda toplam 101,3 Gy, sonra ise 101,3; 202,6; 303,9; 405,2; 506,5’lik adımlarla da toplam, her bir numune 506,5 Gy ışınladı.

Çizelge 4.1. ^{137}Cs kaynağında ışınlanan numunelerin açık adları [49]

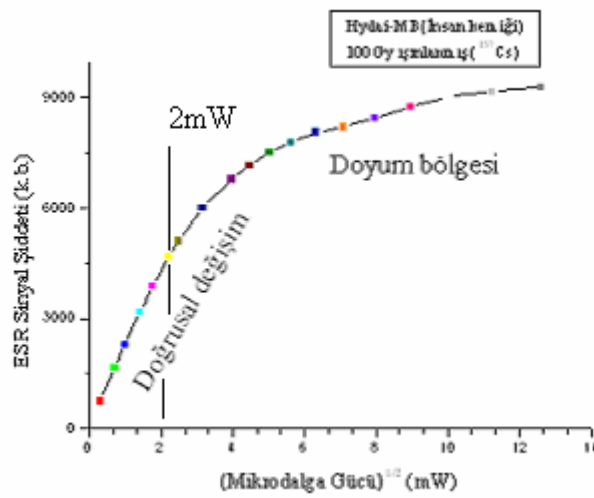
Numune Kodu	Numune adı ve kaynağı	Numune Kodu	Numune adı ve kaynağı
AK2	İnsan aşık kemiği	KK3	İnsan kafatası kemiği
AK3	İnsan aşık kemiği	MB	İnsan kemiği
MT8	İnsan dişi	MT4	İnsan dişi
AT4	Hayvan dişi	MT11	İnsan dişi
EK1	İnsan ayak parmağı eklem kemiği		

Sezyum kaynağında ışınlama yaparken, bazen numune koyup almadan kaynaklanan süreden (1-2 saniye) dolayı bazı numunelerdeki ışınlama dozu miktarlarında bir miktar değişiklik oldu (örneğin 507,5Gy). İkinci adımda, sıcaklık kontrollü ölçümler için, AK3, AT4, MB, MT11 numuneleri toplam doz olarak 202,6 Gy, ayrıca AT4 numunesi 506,5 Gy ve EK1 numunesi de 76,25 Gy olarak ışınladı. Gama kaynağındaki son ışınlama ise, numunelerde oluşan radikalın zamanla değişiminin incelenmesine yönelik olarak AK3, AT4, MB ve MT11 numuneleri için tek bir doz değerinde yapıldı.

4.5. ESR Spektrum Parametrelerinin Belirlenmesi

ESR spektrometresinde ölçüm için hazırlanan toz numuneler, tartılarak ve kuvars tüplere konarak spektrum almaya uygun hale getirildi. Burada esas amaç bundan sonra alınacak ESR ölçümleri için ve bu numunelere has olan “spektrum

parametrelerinin” belirlenmesidir. Bunun için hazırlanan ölçüm tüpü sistemde bulunan dikdörtgen kaviteye, kangalların sağladığı *manyetik alan doğrultusu üzerinde* olacak şekilde yerleştirildi. Eğer, kaviteye konan numunenin merkezi etkin alan diye tanımladığımız bu doğrultu ile çakışmaz ise spektrum parametreleri belirlemede yanılgıya düşülebilir. Bu yanılgılar genelde, Q değerinde azalma, T-T genlik değerinde değişme veya ESR sinyalinde şekil olarak bozulma şeklinde olabilir.



Şekil 4.3. 100Gy ışınlanmış insan kemiği örneğinin MD güç çalışması grafiği [17]

Bunun anlamı çalışma boyunca tüm ESR spektrumları 2mW gücünde alındı. Güç belirlendikten sonra numune (Hydai-MB), mümkün olduğu kadar geniş bir manyetik alan bölgesinde tarandı. Tarama alanı genişliği X-band ESR spektrometreler için en fazla 1 Tesla olabilir. Geniş alanda taramanın özelliği ESR sinyalinin yerini tespit etmek içindir. Diğer parametreler de şöyle belirlendi:

Çizelge 4.2. ESR spektrum parametreleri [18,19]

Merkez Alan 3480 G	Alıcı Çarpanı 1×10^4	Modülasyon Genliği 2 G
Mikrodalga Gücü 2mW	Tarama zamanı 41 s	Çözünürlük (veri noktası sayısı) 1024 nokta
Modülasyon frekansı 100 kHz	Tarama Geniřlięi 100 G	Mikrodalga frekansı 9,79 GHz

Parametrelerinin belirlenmesinde izlenen yol řöyledir: ilk önce elektronik terazide 100 mg tartılan Hydai-MB numunesi, Gama kaynaęında 100Gy ıřınlandı (^{137}Cs doz hızı 0,609kGy/saat). İlk olarak mikrodalga gücü deęiřtirilerek alınan ESR spektrumlarının sinyel řiddetleri belirlendi ve gücün karekökü ile tepeden-tepeye řiddet eęrisi ($P^{1/2}$ -TT) çizilerek, sonraki alıřmalar için en uygun mikrodalga gücü belirlendi (řekil 4.3.). Bu deęiřim karakteristik olarak bellidir. Elde edilen güç grafięindeki doęrusal deęiřim bölgesinden seilen herhangi bir güç deęeri alıřma için uygun güç deęeridir. Iřınlamaya tabi tutulan (100Gy) insan kemięi örneęi için elde ettięimiz güç grafięinde uygun güç deęeri olarak 2mW olarak (20 dB'e karřı gelir) tespit edilmiřtir. Bu alıřma için belirlenen ESR parametreleri Çizelge 4.2' de verilmiřtir.

4.6. Güç alıřması ve Sinyel Doyumu

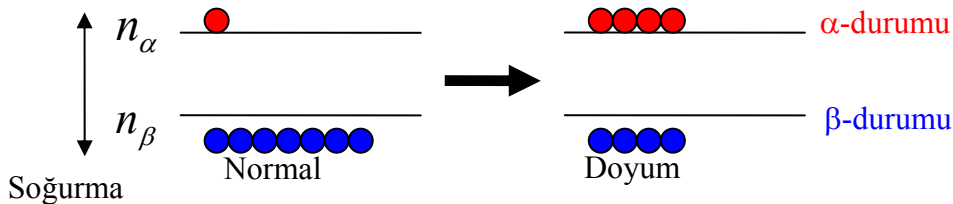
Spektrum parametrelerini belirlemeden önce yapılan güç alıřması grafięine tekrar bakacak olursak (řekil 4.3), ESR sinyeli, mikrodalga gücünün doyum deęerine kadar, gücün karekökü ile orantılı olarak artar ve sinyel řiddeti doyumdan sonra azalır. Mikrodalga gücünün deęiřimi doęal ESR sinyeli ile dozimetrik sinyelin ayrılmasına izin verir. Bu sırada spektrometredeki S/N (Sinyel/Gürültü) oranı artar. Mikrodalga gücü artırılarak, S/N oranı düşerken dozimetrik sinyel/doęal sinyel oranı düşer [46].

Mikrodalga gücü arttıkça önce doğrusal artan sinyal şiddeti değişimi, belli bir eşik değerinden sonra doğrusallıktan sapma göstererek bozunmaya uğramıştır. Doyum bölgesi olarak adlandırdığımız bu bölge ESR çalışmalarında tercih edilmeyen çalışma bölgesidir. Nedeni ise kısaca şöyle açıklanabilir: Daha önce de belirtildiği üzere bir ESR spektrumu, aslında bir Gausien veya Lorenziyen eğrisinin birinci türevidir. Bu eğri altındaki spin yoğunluğu ya da çiftlenmemiş elektron sayısı dağılımı “Boltzman dağılımı”na göre davranış gösterirler [18, 19].

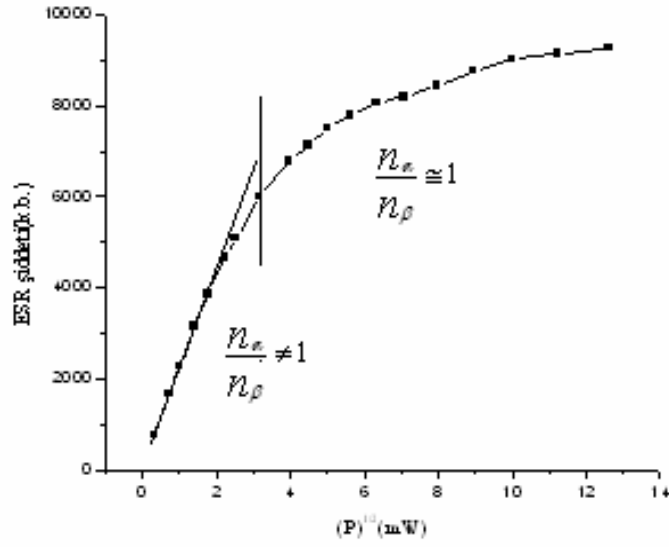
$$\frac{n_{\alpha}}{n_{\beta}} = e^{-\frac{\Delta E}{kT}} \quad \Delta E = g\mu B \quad (4.3)$$

Burada, Spin dağılımı için $\frac{n_{\alpha}}{n_{\beta}}$ sayıları oranı 0.998 dir. Düşük sıcaklık değerlerinde

hassasiyet ve şiddet artar. Doğrusal olarak artan bölgede N_{α} ve N_{β} sayıları arasında büyük bir farklılık olmasına karşın (Şekil 4.4), doyum bölgesine gelindiğinde bu dağılımlar arasında bir denge olduğunu görüyoruz (Şekil 4.5). Oda sıcaklığında Boltzmann dağılımına uyan spin sayılarının oranı yani $(N_{\alpha} / N_{\beta}) = 0,998'$ dir. Başka bir ifade ile; $\Delta m_s = \pm 1$, $\Delta m_l = 0$ seçim kurallarına göre, α -durumunda ($m_s = +1/2$ ve $E = (1/2)g\mu B$) bulunan elektron spinlerinin sayısının, β -durumundaki ($m_s = -1/2$ ve $E = -(1/2)g\mu B$) spinlerin sayısına oranı birden 0,002 eksiktir. Düşük seviyedeki spinler 0.002 kadar sayıca daha fazla bulunurlar. Çünkü düşük enerji düzeyli kuantum durumunda daha fazla elektrona sahiptir.

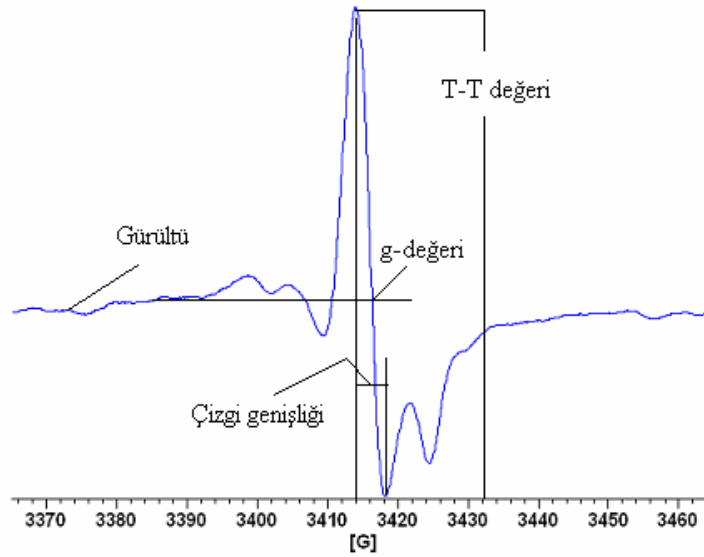


Şekil 4.4. Boltzmann dağılımı için α ve β durumlarında spin sayılarının durumu[18]



Şekil 4.5. Doğrusal ve doyum bölgelerinin spin yoğunluğu açısından durumu

Bir ESR spektrumunda deneysel parametrelerin sinyal üzerinde şematik olarak gösterimi Şekil 4.6.' da verilmektedir.



Şekil 4.6. ESR sinyali parametreleri

5. ÖLÇÜMLER VE DEĞERLENDİRME

Çalışmanın bu bölümünde deneysel ölçümlerle ilgili değerlendirmeler yer almıştır. İncelenecek kısımlar, Işınlama, spektrum parametrelerinin belirlenmesi, eklemeli doz ölçümleri, spektrumların analizi ve değerlendirme aşamalarından oluşur.

Numunelerin Gama kaynağında ışınlanması, hazırlanan numunelerin tüm eklemeli doz ölçümleri, etüv çalışmaları ve ESR spektrumlarının zamana göre değişim ölçümlerinin tamamı, kontrolsüz oda sıcaklığında alındı. ESR çalışmalarında sıcaklık kontrol ünitesi kullanılmadan ölçüm alınıyorsa, alınan ESR ölçümü “kontrolsüz” ölçüm olarak bilinir ve tahmini ortam sıcaklığı yaklaşık $\sim 300\text{K}$ ’ dir. Düşük sıcaklık ESR ölçümleri ise ($123\text{K}-298\text{K}$) aralığında alındı. ESR sisteminde sıcaklık kontrolü, sisteme kavite ile birlikte bağlanan “ısıtıcı” ya sıvı azot buharının bilgisayar kontrolünde gönderilmesi ile sağlanır.

Kontrolsüz ESR ölçümlerinde sıcaklık ünitesi devre dışı olduğundan sıcaklık ayarlaması söz konusu değildir. Alınan spektrumun sıcaklık değeri ortamın sıcaklığı olarak kaydedilir. Yüksek sıcaklık ölçümlerinde üst sınır olarak ise en fazla 470K ’e kadar çıkıldı. Ancak yüksek sıcaklık ölçümlerindeki değişim numunedeki bazı parametrelerdeki değişime bağlı olarak daha geriden başladı. ESR deneyleri esnasında ölçümden sonra tüm numuneler ışık ve nemden korunarak sonraki ölçümlere kadar saklandı.

Toz halinde hazırlanan diş ve kemik örnekleri, ESR ölçümleri için, 100’er miligram tartılarak, çapları 3-5 mm, uzunlukları 20-25 cm arasında değişen kuvars tüpler kullanıldı. Tartım işlemi “Sartorius” marka maksimum 120gr tartabilen 0,1mg hassasiyetinde olan, dört göstergeli elektronik terazide yapıldı. Numunelerin nemden etkilenmemesi için ölçüm tüplerin ağızları parafilm ile kapatıldı.

5.1. Toz Halindeki Kemik ve Diş Örneklerinin Yapısal Analizleri

Diş ve kemik türü numunelerde, radyasyon etkisi ile oluşan radikallerin çoğu karbonat türevleridir. Yani CO_2^- , CO_3^- , $\text{CO}^- \text{CO}_3$ ve fosfatın türevi olan PO_4^{2-} ve oksijen de sayılabilir [56]. Bu tür numunelerde ESR sinyalinde baskın olan sinyal CO_2^- radikalinden oluşur.

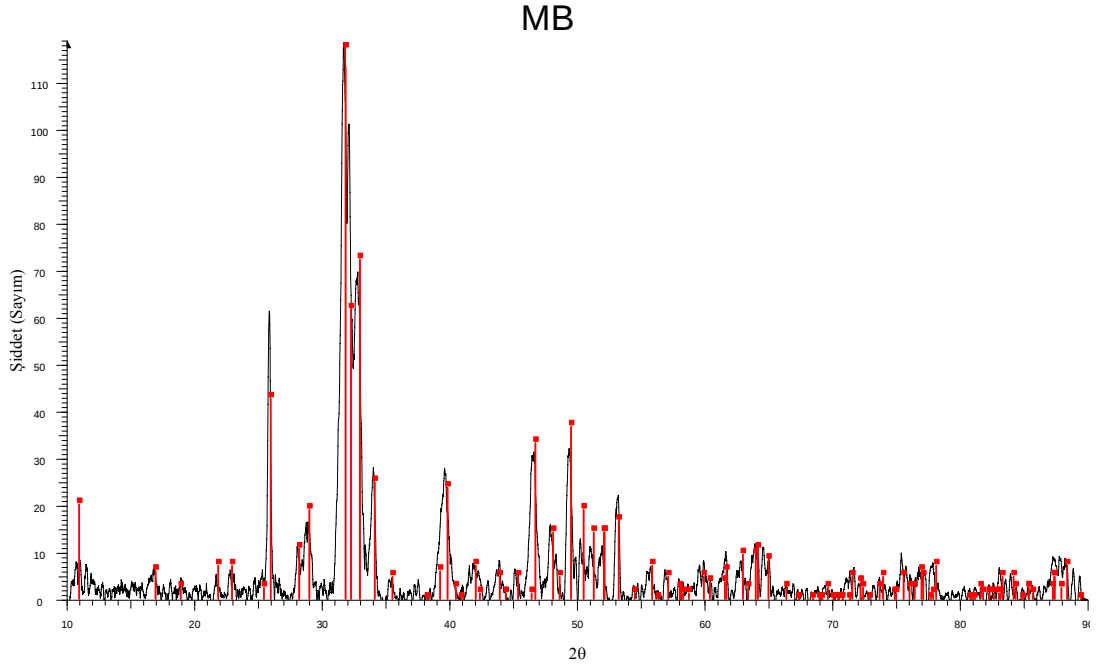
Çizelge 5.1. CO_2^- radikalinin element analizi

Element Adı	AT4	MB	MT11	AK2
Ca	% 36,3	% 35,2	% 36,6	% 34,8
P	% 17,0	% 16,3	% 17,5	% 15,3

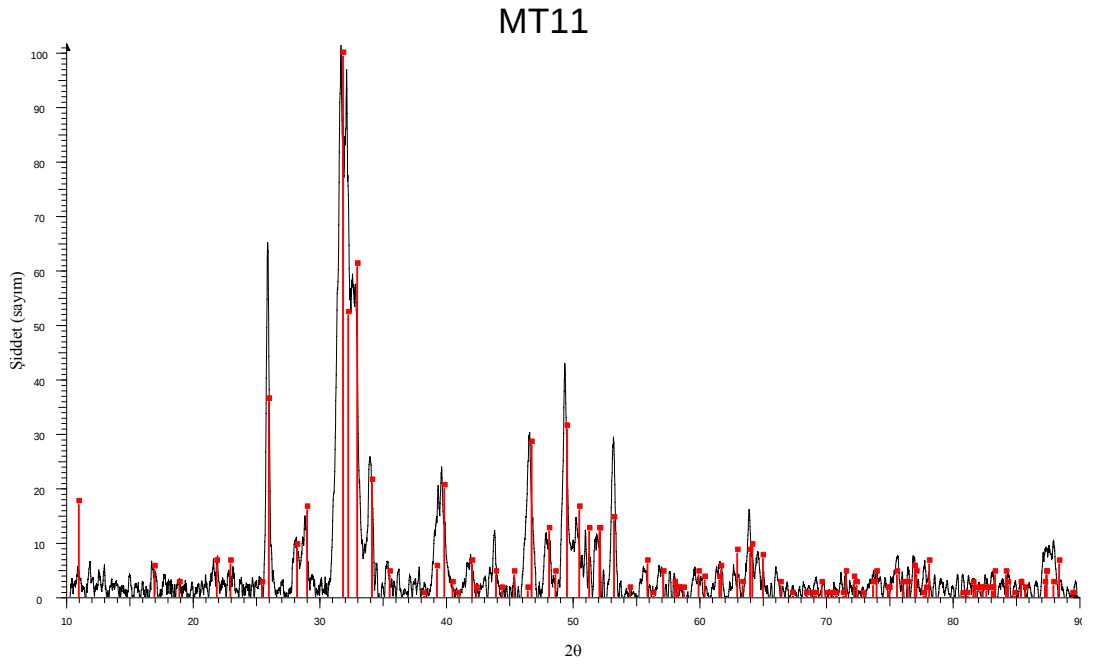
Diş ve kemik içeren örneklerde iyonlaştırıcı radyasyonla oluşturulan CO_2^- radikalinin ömrü yaklaşık 10^7 yıl'dır [55]. Numunelerin X-Işınları Floresans (XRF) analizinde de Kalsiyum (Ca) ve Fosfor (P) oranlarına bakıldığında, diş örneklerinde ve kemik türü örneklerle göre daha dengeli olduğu görülmektedir. (Çizelge 5.1).

ESR tarihlendirmesi kapsamında, diş ve kemik örnekleri, AT4, MB, MT11, ve AK2 için XRD analiz ölçümleri, Bruker D8 Advance X-Işını Toz kırınım Metodu sisteminde ve oda sıcaklığında alınmıştır. Toz haldeki diş ve kemik örneklerinden yaklaşık olarak (200-300) mg tartılarak alınan XRD sonuçları Şekil 5.1 ve Şekil 5.2'de verilmiştir.

Analiz sonuçlarına göre bir değerlendirme yapılırsa, insan ve hayvanlara ait diş ve kemik örneklerinin yapısında bulunan hidroksiapatit kristali, yapıdaki faz ile birebir örtüşmektedir. Grafiklerdeki *kırmızı çizgi* ile gösterilen sistemin kendi kütüphanesinde bulunan o faza ait referans pikleridir. *Siyah çizgi* ile olan spektrum ise deneysel olarak ölçülen piktir. İkisinin uyuşması yani üst üste binmesi gösteriyor ki örnek yapısı ile eşleşen faz aynıdır.



Şekil 5.1. İnsan kemiğinin XRD toz kırınım deseni



Şekil 5.2. İnsan dişinin XRD toz kırınım deseni

5.2. ESR Ölçümlerinin Alınması

ESR ölçümleri için, SANAEM, Teknoloji Bölümü, Malzeme Birimi'nde bulunan, sürekli dalga üreten X-Band (9-10 GHz) Bruker marka ESR spektrometresi kullanıldı. Örneklerin X-Işınları Toz Kırınım Ölçümleri “Bruker D8 Advance X-Işını Toz Kırınım Metodu (XRD)” sisteminde ve oda sıcaklığında alındı. Çalışmada kullanılan numuneler; Muğla ili yöresinde bulunan ve M.Ö. 3000 yıllarında yaşamış oldukları tahmin edilen Hyдай (Karya) medeniyetinde, “*ilk kez açılan ve en az iki dönem kullanılmış geç geometrik dönem*” e ait diş ve kemik örnekleridir [49].

5.2.1. Eklemeli doz metodu ölçümleri

ESR ile yapılan tarihlendirmede, numunenin yaşını belirlemede eşdeğer dozun önemli bir parametre olduğu bilinmektedir. Deneyisel olarak ESR ile alınan eklemeli doz metoduna dayalı ölçümler şu numunelere uygulandı: insan dişi MT8, hayvan dişi AT4, insan kafatası kemiği KK3, insan kemiği MB, insan dişi MT11, insan ayak parmağı eklem kemiği EK1'dir. Bu örneklerden bazılarında farklı miktarda iki ayrı doz uygulanmıştır. Bu dozlar, AT4 için 101,3 ve 506,5 Gy ile EK1 için 76,25 ve 502,5 Gy'dir. Çizelge 5.2'de numunelere uygulanan doz değerleri verilmiştir.

Eklemeli doz metodunda izlenen yol şöyledir: Toz halde eppendorf veya benzeri tüplerde saklanan numunelerden yaklaşık olarak 150 mg tartıldı. Tartılan miktar silindirik şeklindeki ışınlama kabına konarak ağzı kapatıldı. Daha sonra ışınlama kaynağı tablasının tam ortasına (Şekil 4.2) dik şekilde yerleştirildi ve saat yönünde sabit hızla döndürme mekanizması devreye sokuldu. Saatteki doz hızı bilinen gama kaynağında, bir zaman ölçer yardımı ile süre başlatılarak ışınlama başlatıldı. Birinci adım için öngörülen doz miktarı kadar numune ışınlandıktan sonra (d_1 noktası, bakınız Şekil 4.1) laboratuvara getirildi ve elektronik terazide 100 mg tartılarak, ESR ölçüm tüpüne konuldu. Daha önceden hazır olan sistemde belirlenen parametrelerde (Çizelge 4.2) ESR spektrumu alındı.

Bu işlem aynı numune için ve beş adım boyunca (q_1, q_2, q_3, q_4, q_5) deneysel şartlar değiştirilmeden bir defada yapıldı. Daha sonraki aşamalarda diğer her bir numune için aynı adımlar tekrar edildi. Eklenen doz miktarlarındaki artışlar bir öncekinin iki katı şeklinde oldu (101,3, 202,6 vs) Örneğin 506,5 Gy ışınlanan bir AT4 numunesine her ışınlamada 101,3 Gy doz verildi ve 5. ışınlamada (q_5) numunenin aldığı doz miktarı 506,5 Gy oldu.

Çizelge 5.2. Eklemeli doz çalışılan numunelere ait veriler

Numune Adı	Numune kodu	İşinlama dozu(Gy)	D_E (Gy)	Doğrusal eşleşme (R^2)	g-değeri	Çizgi genişliği (G)
Hayvan dişi	AT4 ¹	101,30	13,0	0,999	2,0071	4,5
"	AT4 ²	506,50	11,6	0,998	2,0071	-
İnsan kafatası kemiği	KK3	507,50	32,5	0,999	2,0057	4,4
İnsan kemiği	MB	507,50	15,1	0,999	2,0061	4,5
İnsan dişi	MT11	506,50	14,1	0,997	2,0078	4,4
Ayak parmağı eklem kemiği	EK1 ³	76,25	9,6	0,999	2,0057	4,3
"	EK1 ⁴	507,50	6,2	0,999	2,0057	-
İnsan dişi	MT8	508,35	16,1	0,999	2,0067	4,1

Eklemeli doz metodu deneysel sonuçları, Çizelge 5.2' de verildi. Üçüncü sütunda bulunan doz değerleri için elde edilen doz-cevap grafiklerinden, geriye doğru tahmin yoluyla elde edilen eşdeğer doz değerleri, üçüncü sütunda ise grafiklerin doğrusal olarak fit edilmesinden elde edilen R^2 değerleridir. Ortalama 0,99 iyi bir eşleşmeyi

¹ AT4 numunesine uygulanan ilk eklemeli doz metodu.

² AT4 numunesine uygulanan ikinci eklemeli doz metodu.

³ EK1 numunesine uygulanan ilk eklemeli doz metodu.

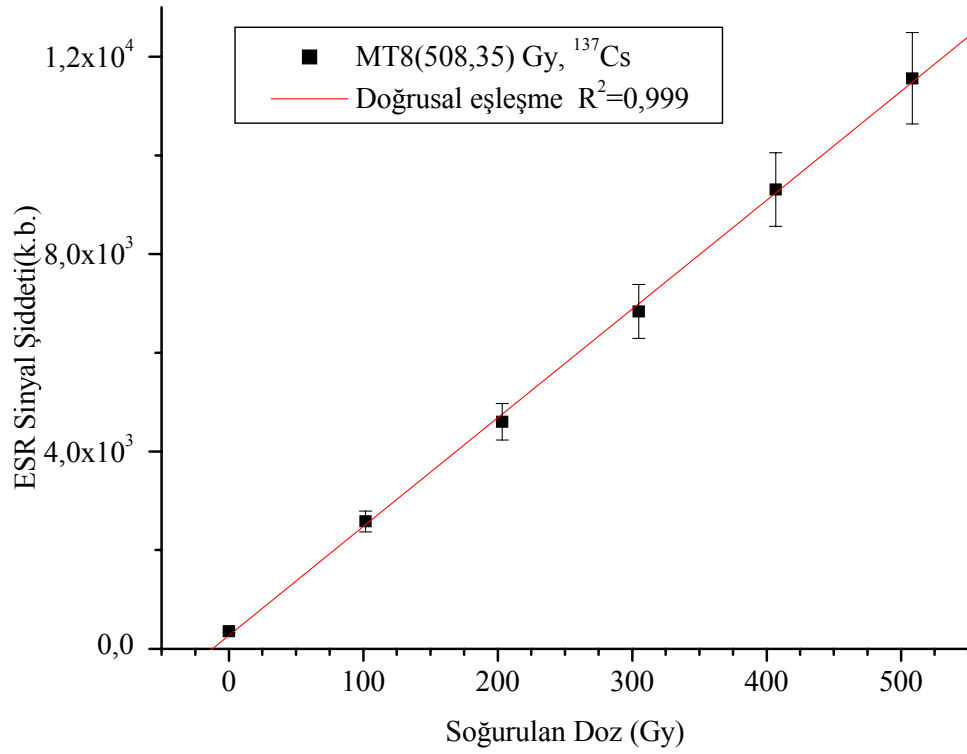
⁴ EK1 numunesine uygulanan ikinci eklemeli doz metodu.

Çizelge 5.3. MT8 numunesine ait deneysel veriler

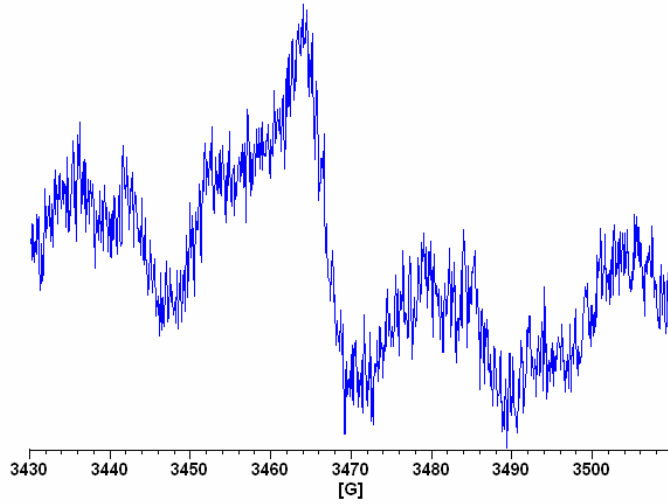
Verilen Doz (Gy)	ESR şiddeti (k.b.)	Çizgi genişliği (G)
0,00 (Doğal)	440	4,204
101,67	2581	4,203
203,34	4603	4,105
305,01	6840	4,203
406,68	9309	4,105
508,35	11561	4,204

göstermektedir. Son iki sütun ise iki parametrenin deneysel olarak ESR ölçümleri ile hesaplanan iki parametredir.

İnsan dişi (MT8) numunesine uygulanan eklemeli doz metodunda, verilen 508,35 Gy'lık soğurma dozuna karşılık ESR sinyal şiddeti grafiği Şekil 5.3'te gösterildi. Doz-cevap grafiği beklenildiği gibi doğrusal bir değişim göstermiştir. Doğrusal eşleştirme değeri $R^2 = 0,999$ olarak hesaplandı. MT8 numunesine ait grafik bilgileri Çizelge 5.3'te verildi. Analitik olarak, eklemeli doz metodu yardımı ile bulunan eşdeğer doz değerinin, bazı dozimetrik çalışmalarda “kaza dozu” olarak da kullanıldığı bilinmektedir. Retrospektif (geriye dönük) ESR dozimetri çalışmalarının içinde, birikmiş doz, paleodoz veya eşdeğer doz'un, herhangi bir radyasyon kazasında alınan kaza dozuna eşdeğer olduğu için terimlerin eşanlamlı olarak kullanılması pek yanlış sayılmaz.



Şekil 5.3. Toz haldeki İnsan dişi (MT8) numunesinin doz-ESR şiddeti grafiği



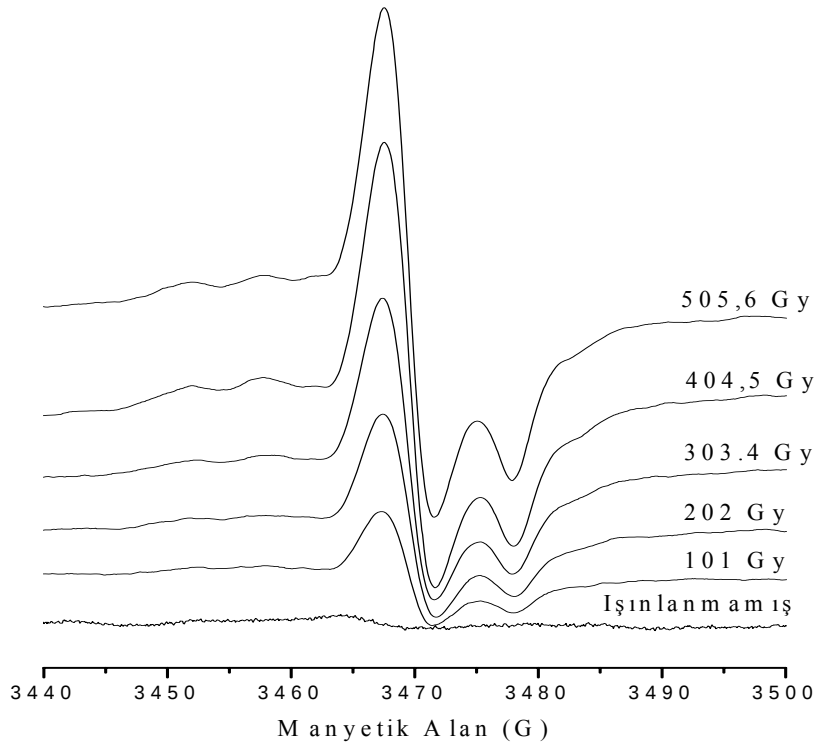
Şekil 5.4. İnsan dişinin ışınlanmadan önceki ilk ESR spektrumu

Soğurulan dozun miktarı ESR spektrumlarında şiddet olarak yansır. Numune henüz laboratuvarında ışınlanmamışken yani doğal haldeyken de bir ESR sinyali verebilir. Ancak numunenin doğal ESR sinyalinin büyüklüğü ışınlama sinyallerine göre

oldukça düşüktür. Bazen ESR çalışmalarında ışınlanmamış sinyaldeki dozimetrik sinyali tespit etmek güç olabilir.

Doğal sinyalin şiddet olarak büyüklüğü spektroskopide bazen “gürültü” diye tanımlanır ve T-T değeri çok küçük (20-40) değerlerde olabilir. MT8 örneğinin doğal ESR spektrumunu Şekil 5.4’de gösterildi. Işınlamanın etkisi ile dozimetrik sinyal karakteristik olarak aynı kalacak fakat sinyal şiddeti alınan dozla orantılı olarak artacaktır. Verilen dozlara göre ESR spektrumundaki artışı veren grafik Şekil 5.5’te verilmektedir.

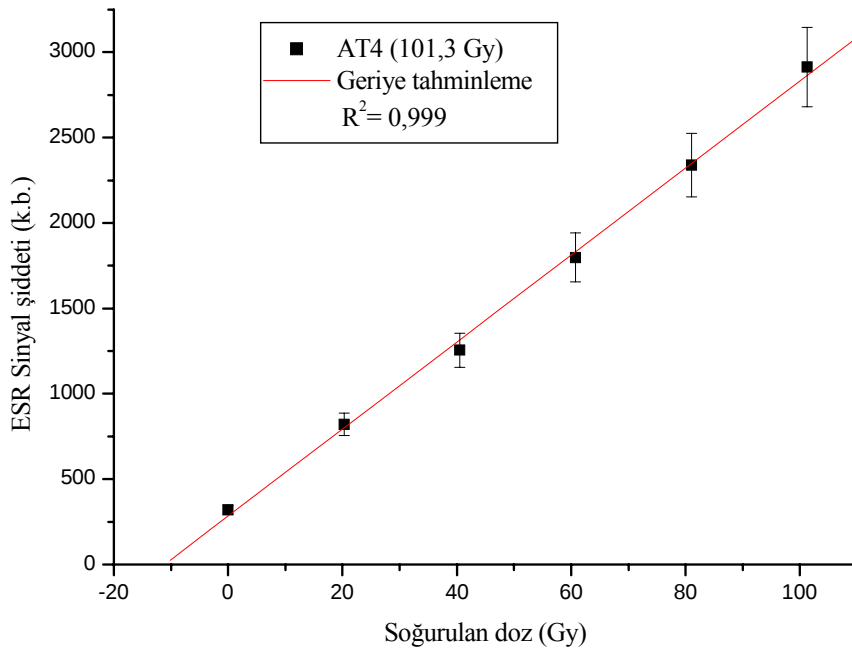
Grafiğe bakılırsa karakteristik CO_2^- radikalinin verilen dozlarda şiddet yönünden bir değişim gösterdiğini, görmekteyiz. Spin yoğunluğuna bağlı olarak doz değerleri arttıkça dozimetrik sinyalin şiddetinin arttığı görülmektedir. Doğal (ışınlanmamış) sinyal en alttaki sinyaldir.



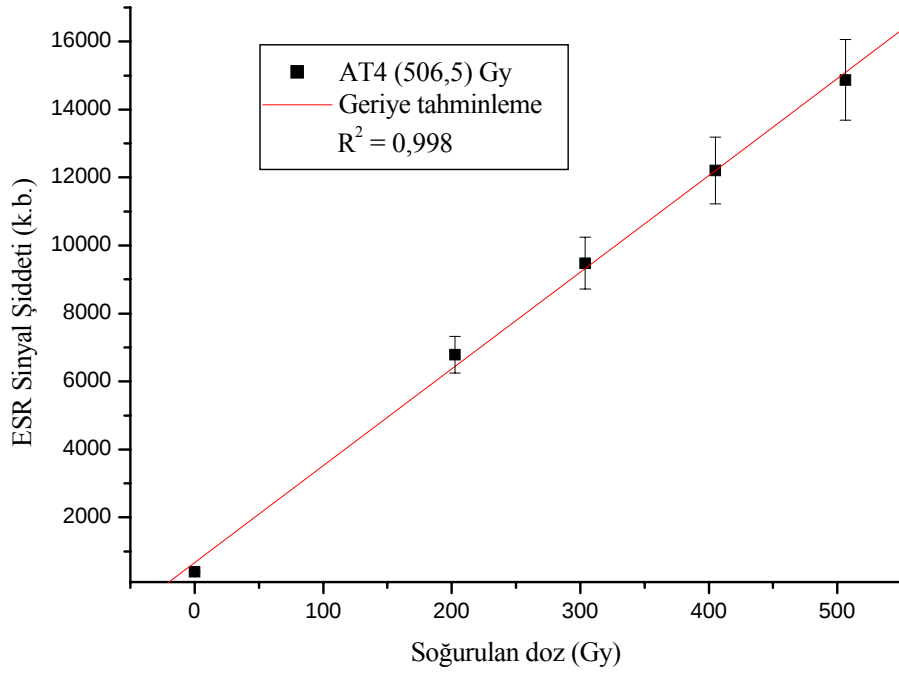
Şekil 5.5. MT8 numunesinin ESR spektrumlarının aynı anda gösterimi

Şekil 5.4'deki ışınlanmamış, sinyalin diğer dozlardaki spektrumlarla aynı ölçekte bir arada çizildiğinde neredeyse düz bir çizgiyi ifade ettiği görülmektedir. Eklemeli Doz metodunun uygulandığı diğer numunelerden elde edilen doz-cevap grafiklerini aşağıda sıra ile inceleyelim: İki farklı dozda eklemeli doz uygulanan numunelerden biri de AT4 numunesidir. Toplam olarak 101,3 ve 506,5 Gy dozlarda; aynı numuneye iki defa ek doz uygulandı. Elde edilen doz-cevap grafikleri sırasıyla Şekil 5.6 ve Şekil 5.7'de görülmektedir. Toplam doz miktarı farklı da olsa AT4 numunesinin soğurulan dozlara karşı davranışının değişmediğini (doğrusal anlamda) ve eşdeğer dozlarda da bir yakınlık, görülmektedir (13 Gy ve 11,6 Gy).

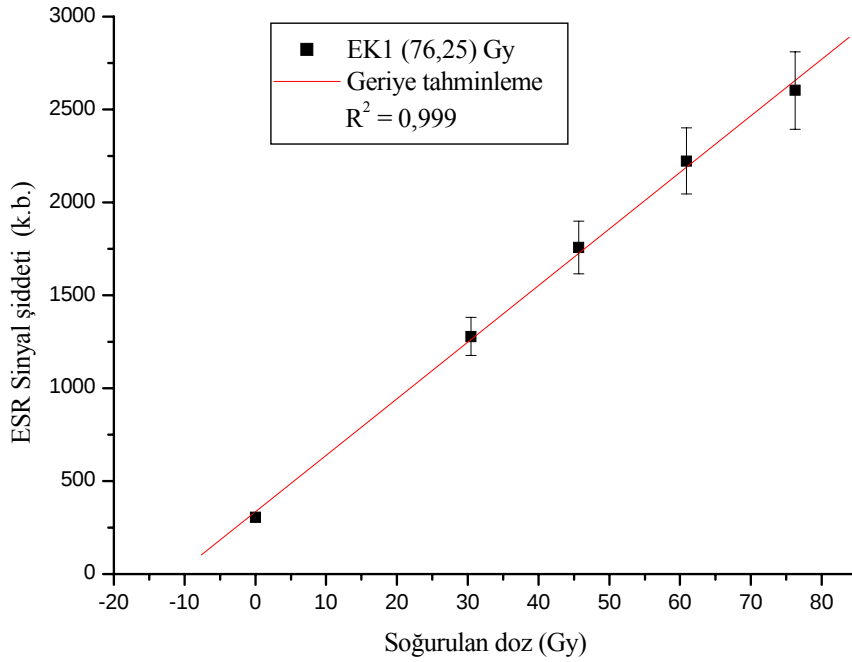
Bir başka çift doz değeri uygulanan numune EK1 Numunesidir. Düşük doz (76,25 Gy) değeri ile daha yüksek doz değeri (507,5 Gy) içi elde edilen doz cevap grafikleri dozimetrik davranış olarak uyum içerisindedirler (Şekil 5.8 ve Şekil 5.9). Yani grafikleri doğrusal olarak eşleştirildiğinde çok uyumlu (her ikisinde de R^2 değeri 0,999) olduğu görülür.



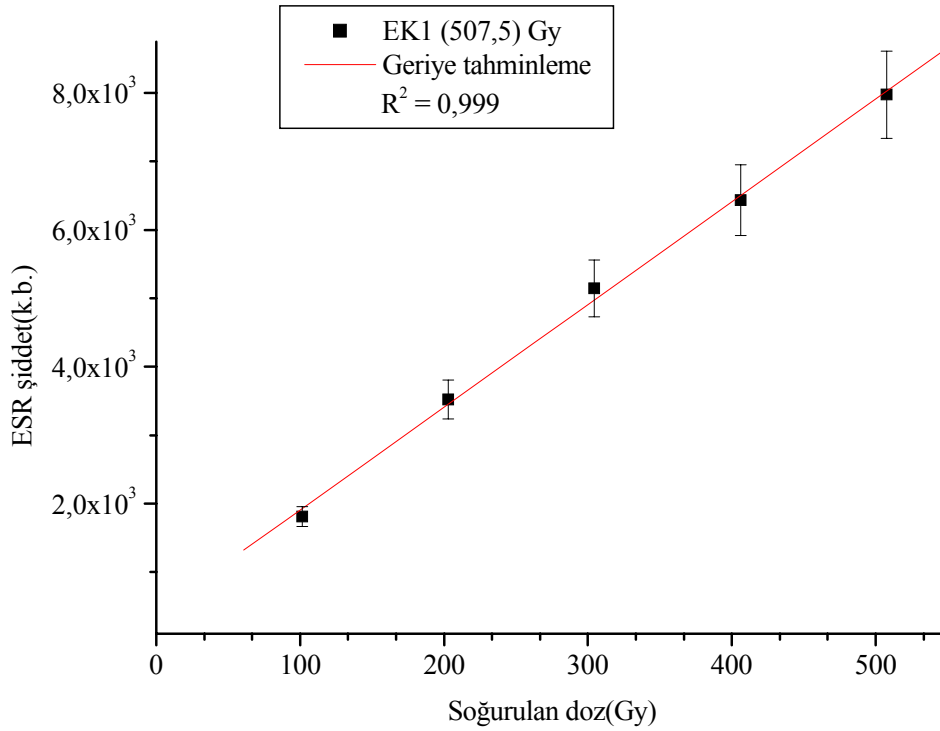
Şekil 5.6. AT4 (101,3) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği



Şekil 5.7. AT4 (506,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.

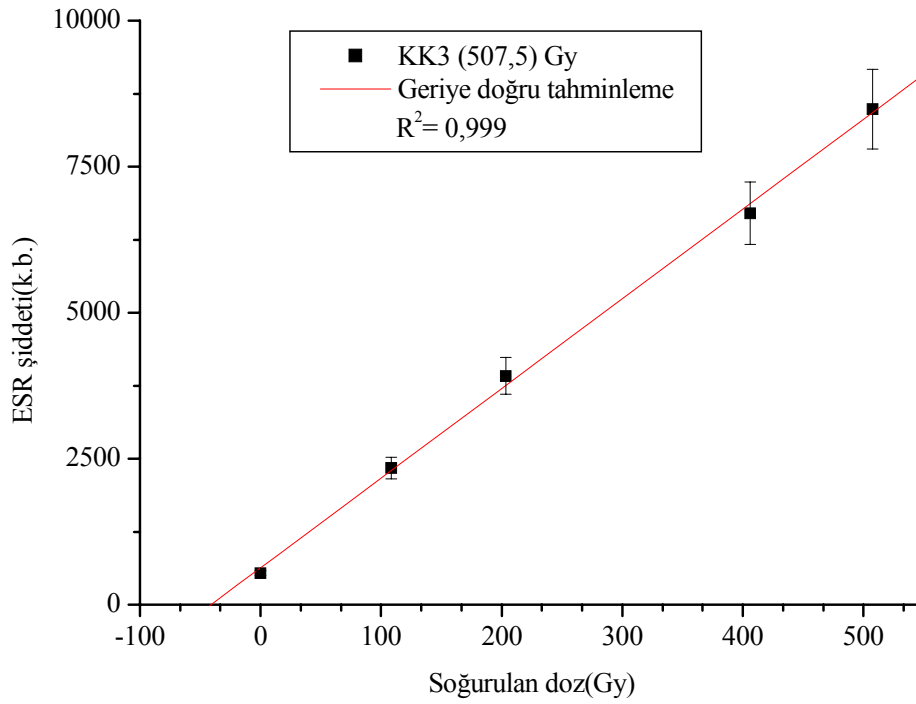


Şekil 5.8. EK1 (76,25) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.



Şekil 5.9. EK1 (507,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.

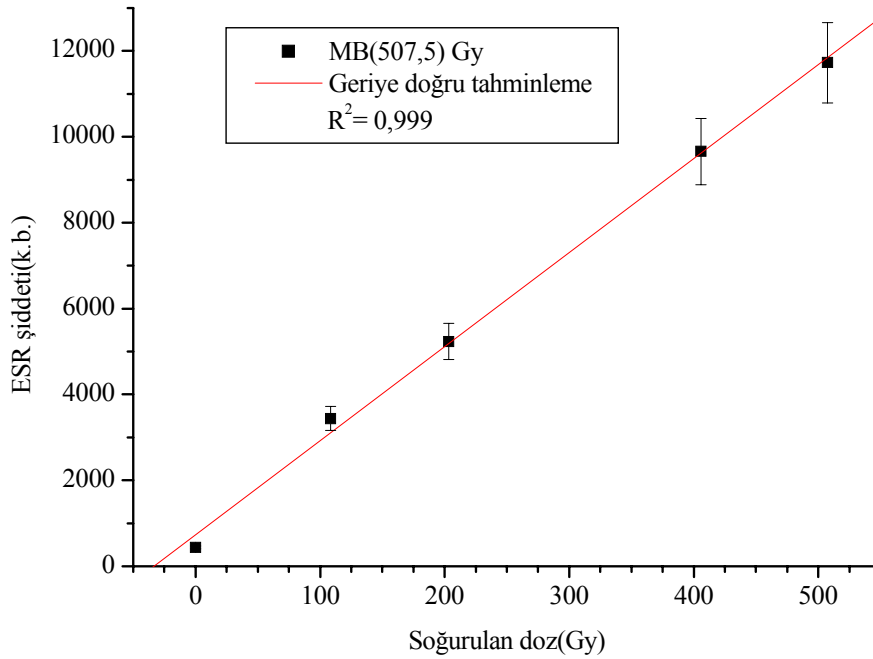
İnsan ayak parmağı eklem (EK1) kemiklerinden sonra, insan kafatası KK3 (Şekil 5.10) ve insan kemiği MB (Şekil 5.11) için uygulanan doz-cevap grafiklerine bakalım: Kemik türü numunelerin aynı doza vermiş oldukları spektroskopik yanıt, temelde aynı olmasına karşın, nitelik olarak farklı sonuçlar ortaya çıkmaktadır. Deneysel olarak temelde aynı olan, doğrusal eşleşmedeki uyumluluktur (her iki numunede de $R^2 = 0,999$). Nitelik olarak ortaya çıkan farklılık ise eşdeğer dozlarının farklı olmasından dolayı hesaplanan ESR yaşlarının aynı çıkmayacağıdır.



Şekil 5.10. KK3 (507,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.

Kemikler gözenekli yapılarından dolayı farklı özellikler gösterebilmektedirler. Aynı tanecik yapısına sahip olmasına rağmen, bir diş minesi ile aynı homojen yapıya sahip olmayabilir. Sonuç olarak aynı miktarda iki numuneyi aynı radyasyon dozuna maruz bırakılırsa bile elde edilen doz-cevap grafikleri farklılık gösterebilir [50-51].

Genel olarak, eklemeli doz metodu ile yapılan ölçümlerdeki grafiklerden çıkan sonuçlara (Çizelge 5.2) göre, doz-cevap kalibrasyonları doğrusal eşleşme açısından beklenen deneysel sonuçları vermiştir. Zaten diş, kemik benzeri arkeolojik örneklerin doz-cevap kalibrasyonları yaklaşık 700 Gy'e kadar "doğrusal değişim" göstermektedir [42].



Şekil 5.11. MB (507,5) Gy için eklemeli doz-cevap grafiği.

5.3. Yıllık Doz Hızının Deneysel Olarak Belirlenmesi

Numunelerin daha önce, en az iki dönem kullanılan geç geometrik döneme ait bir mezara ait olduğu belirtilmişti. Bu numunelerin alındığı mezarın içinden ve dışından alınan toprak örnekleri ve toz haldeki, yine mezara ait diş ve kemik örneklerinin gama spektrometresinde yapılan ölçümleri ile “yıllık doz” hızı belirlendi. Yıllık doz tespiti TAEK, SANAEM’de bulunan, spektrometre, %40 reaktif verimli, yüksek çözünürlüklü HpGe (High Purity Germanium) dedektörleri olan Ortec marka gama spektrometresinde alındı. Ölçümlerde RG-U, RG-Th, RG-K, IAEA¹-SOIL-375 ve IAEA-SOIL-6 standartları kullanıldı. Ölçümler için 7 adet numune hazırlandı. Bunlardan üç tanesi toprak örnekleri, diğerleri ise diş ve kemik örneklerinden oluşturuldu.

¹ International Atomic Energy Agency.



Resim 5.1. Yıllık doz tespiti için hazırlanan örnekler

Toprak örnekleri mezarın dış bölgesinden alınan, $M_{dış} = 141,7595$ g ve iç bölgesinden alınan, $M1_{iç} = 139,4748$ g ile $M2_{iç} = 130,4229$ g olarak tartıldı. Dış ve kemik toz örnekleri (AT, MB, KK3, AK1) ise ikişer gram tartıldı (Resim 5.1). Verilen ağırlık değerleri “net” olarak tartılan değerlerdir. Numuneler hazırlanırken, tartılan net miktarlar uygun kaplara ve tüplere konuldu. Kabin ve tüplerin ağzı önce parafilm ile sarıldı. Daha sonra kapakları kapatıldı ve tekrar parafilm ile kapağı da saracak şekilde ve boşluk bırakmadan iyice sarıldı. Yaklaşık 40 gün seküler denge için normal laboratuvar şartlarında bekletildi. Bu sürenin sonunda gama spektrometresi ölçümleri alındı. Sonuçlar Çizelge 5.4’ te verilmektedir.

Çizelge 5.4’de görüldüğü gibi, toprak numunesi için (ppm) mertebesinde U, Th ve %K değerleri yerine ölçüm sonuçları doğrudan saat başına soğurulan doz (nGy) olarak alındı. Dolayısıyla yıllık doz değerinin ortalama hesabı tüm toprak örneklerinin ortalaması alınarak hesaplama yapıldı ve altı ölçümün ortalaması olarak $D_{dış} (ort) = 0,000395$ Gy/yıl hesaplandı. Bu değer kozmik ışınların etkisi ile beraber; Eş. 3.11’ den yıllık doz hızı:

$$D_{Toplam} = D_i + D_d + D_{kozmetik} \quad (5.1)$$

$$D_y = D_{du} + 300\mu Gy^*$$

$$D_y = 0,000595 \text{ Gy/yıl}$$

$$D_y = 595 \times 10^{-6} \text{ Gy/yıl}$$

olarak bulunur.

Çizelge 5.4. Gama spektrometresinden elde edilen U,Th ve K değerleri

Numune adı	Ra-226 (Bq/kg)	Th-232 (Bq/kg)	K-40 (Bq/kg)	Ra-226 Eşdeğer aktivitesi (Bq/kg)	Aktivite Derişim İndisi	Tahmini Soğurulmuş gama Doz Hızı (nGy/saat)	Yıllık Doz Oranı (nGy/yıl)
M _{diş} -1	26,3 ± 0,5	31,1 ± 0,5	376,2 ± 1,6	99,7 ± 4,2	0,4	46,6	408216
M _{diş} -1	22,8 ± 0,5	28,2 ± 1,0	381,7 ± 1,7	92,4 ± 3,9	0,3	43,5	381060
M _{iç} 1-(1) ¹	9,6 ± 0,7	26,6 ± 2,3	112,0 ± 5,2	56,2 ± 6,9	0,2	25,2	220752
M _{iç} 1-(2)	5,6 ± 0,6	21,2 ± 1,9	108,3 ± 5,4	44,2 ± 6,3	0,2	19,9	174324
M _{iç} 2-(1)	7,2 ± 0,7	24,4 ± 2,2	103,1 ± 5,3	50,0 ± 7,0	0,2	22,4	196224
M _{iç} 2-(2)	8,0 ± 0,8	20,7 ± 2,2	113,2 ± 5,6	46,2 ± 7,0	0,2	20,9	183084

Numunelere ait D_{iç} yıllık doz ölçümleri elde edilemedi (D_{iç} = 0). Zaten Diş ve kemik örnekleri Uranyum açısından çok az bir miktar içerirler [52]. Deneysel olarak tespit edilememesinin nedeni, sayım piklerinin spektrometrenin doğal pikleri, background seviyesinde ile hemen hemen aynı seviyede çıkmıştır. Çoğu zaman iç doz değerleri ihmal edilebilir [53].

5.4. ESR Tekniği ile Yaş Tayini

ESR tekniği ile numunelerin yaş tayininin hesabını yapmak için Çizelge 5.2.'deki verileri kullanarak; Eş. 3.9'un yardımıyla:

$$ESR_T = \frac{D_e}{D_y} \quad (5.2)$$

* Kozmik ışınların yıllık doza katkısı deniz seviyesi civarında böyle kabul edilir [39].

¹ Parantez içindeki sayılar kaç kez ölçüldüğünü verir.

denklemini kullanarak [10, 42], eklemeli doz metodu ile eşdeğer dozları bulunan sekiz adet numunenin arkeolojik yaşları hesaplandı ve Çizelge 5.5’ te bu sonuçlar verildi.

Çizelge 5.5. ESR tekniği ile hesaplanan ESR yaşları

Numune	AT4 ⁽¹⁾	AT4 ⁽²⁾	MT8	MT11	MB	EK1 ⁽¹⁾	EK1 ⁽²⁾	KK3
ESR yaşı (x10 ³ Yıl)	21,9±1,8	19,5±1,6	27,1±2,2	24,2±2,0	25,4±2,0	16,1±1,3	10,4±0,8	54,6±4,4

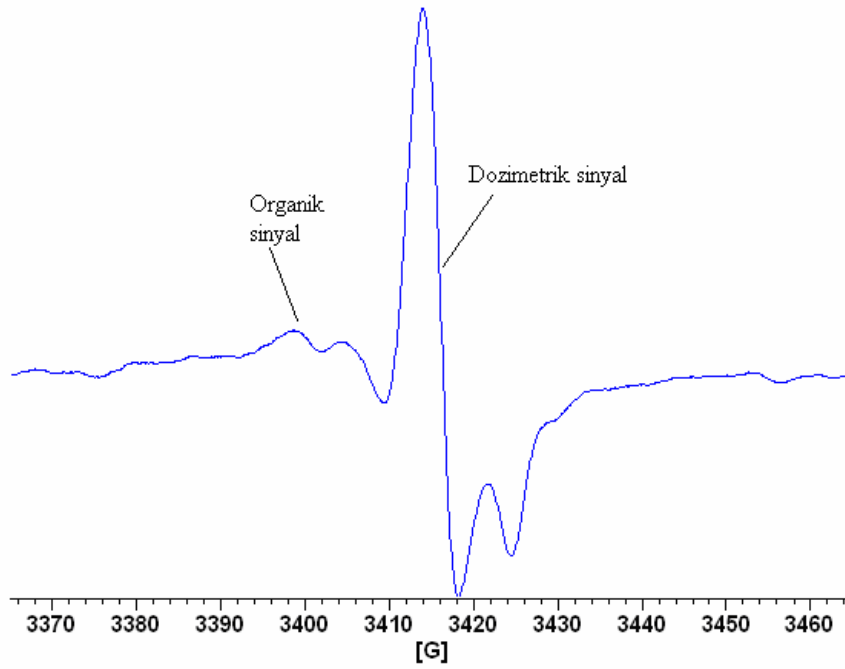
Eklemeli doz metodu kullanılarak belirlenen eşdeğer doz yardımı ile hesaplanan ESR yaşları, 16,1x10³ yıl ile 54,6x10³ yıl arasında değişim göstermektedir. Sadece KK3 numunesi hariç diğer numuneler yaklaşık olarak 15-20 bin civarında değişim göstermektedir. Bu sonuçlar Şekil 3.3’te verilen “ESR Tarihlendirmesi” aralığına uymaktadır. Önemli bir hususu daha belirtmek gerekirse, numunenin alındığı yerin, daha önceki kısımlarda bahsedilirken, yani numunelerin alındığı mezarın “en az iki” dönem kullanıldığı söylendi. Dolayısıyla ait olduğu medeniyetin geçmişi ile numunelerin tarihleri arasında bu durum bir tezatmış gibi görülebilir. Kaldı ki bu numunelerin yaşanan medeniyete ait olduğunu belgeleyen bir kanıt da şu an için yoktur.

5.5. ESR’de Spektrum Değişimini Etkileyen Unsurlar

ESR spektrumları alınırken, tarihlendirme çalışmasının yanında numunelerdeki bazı bazı temel parametrelerin etkileri de (Sıcaklık, zaman vb.) incelendi. Genel anlamda dozimetri çalışmalarının temelinde, uygulanan hangi yöntem ve metot olursa olsun, eşdeğer dozun düşük seviyelerde tespiti esastır. Yani belirlenebilir doz miktarının düşük olması istenir. Dozimetrik amaca yönelik çalışmaların her aşaması, numune hazırlamada uygulanan bazı özel metotlar, numunenin saklanma koşulları, ön ısıtma çalışmaları, ESR sisteminde alınan ölçümlerdeki kalibrasyon hassasiyeti ve hatta ESR spektrometresinin modeli, ölçümlerde kullanılan model ve tekniklerin hepsi belirlenen dozun hassasiyetini artırır.

5.5.1. Tavlamanın ESR spektrumuna etkisi

Dozimetri çalışmalarında en önemli etkenlerden biri de oluşan radikalın sönüm zamanıdır. Oluşan radikal kısa sürede sönüyorsa yani ESR sinyal şiddetinde bir azalma söz konusu ise onun dozimetrik özelliğinden bahsedilemez ve dozimetrik malzeme olarak kullanılması pek düşünülmez. Herhangi bir yolla numunede oluşan serbest radikalın sinyal şiddetine (spin yoğunluğuna) ve şekline tesir eden etkenlerden biri de sıcaklıktır. Sıcaklığın dozimetrik bir materyalde oluşan ESR sinyaline etkisi iki aşamada değerlendirilebilir. İlk olarak toz numune, ışınlamadan önce veya sonra fırında bir süre tavlatabilir. Bundan sağlanan kazanç bazı halojen veya geçici sinyallerin yok edilmesidir. Başka bir ifade ile, organik sinyallerden gelebilecek artık sinyallerin dozimetrik sinyale katkıların en aza indirgenmesidir. Eğer ölçülen ana sinyale başka katkılar gelirse (organik, başka bir radikal ile üst üste binmesi ve sistemden gelen aşırı dalgalanma veya gürültü) bu direk olarak hesaplanan parametre değerlerine etki eder. En başta ESR sinyal şiddeti T-T değişim gösterir, g-değeri kayabilir veya spektrum çizgi genişliği değişebilir (Şekil 5.12). İkincisi ise sıcaklığa bağlıdır: oda sıcaklığının üzerinde ve düşük sıcaklık değerlerinde oluşan radikalın gerek sinyal şiddetinde, gerekse sinyal şekline yansıyan etkilerinin meydana getirdiği değişimlerdir.



Şekil 5.12. MB örneğinin 70 °C’de ESR spektrumu

ESR spektrumlarının aslında bir Gausien veya Lorenziyen eğrisinin birinci türevi ve alan altındaki spin yoğunluğunun sinyal şiddetini temsil ettiği biliniyor. Aynı zamanda bu eğrilerin altındaki spin sayıları Boltzmann dağılımına uyarlar [18-19]. Boltzmann denklemini Eş. 4.1’i düşünürsek, düşük sıcaklıklarda duyarlılık ve şiddet artar. ESR spektroskopisinde incelenen bir başka parametre ise oluşan serbest radikalin “ömürü” yani sinyalin sönüm zamanıdır.

5.5.2. Sıcaklık ile ESR sinyalindeki değişimler

Toz haldeki insan dişi, insan kemiği ve hayvan dişi örnekleri 100’er mg tartılarak, düşük sıcaklık ve yüksek sıcaklık ESR spektrumları alındı. MT11 ve MB örneği, doz hızı 0,608 kGy/saat olan sezyum kaynağında 202,6 Gy ışınladı. Diğer numune AT4 ise 506,5 Gy ışınladı. Düşük sıcaklıklarda ESR ölçümleri çalışma aralığı 123 K; yüksek sıcaklıklarda ise (370-400) K’ e kadar alındı (Çizelge 5.6). Düşük sıcaklıklarda özellikle 150 K’ den sonra sıcaklık düştükçe, ESR sinyal şiddetinde bazı dalgalanmalar gözlemlendi.

Çizelge 5.6. MT11, MB ve AT4 için sıcaklık ölçümleri verileri

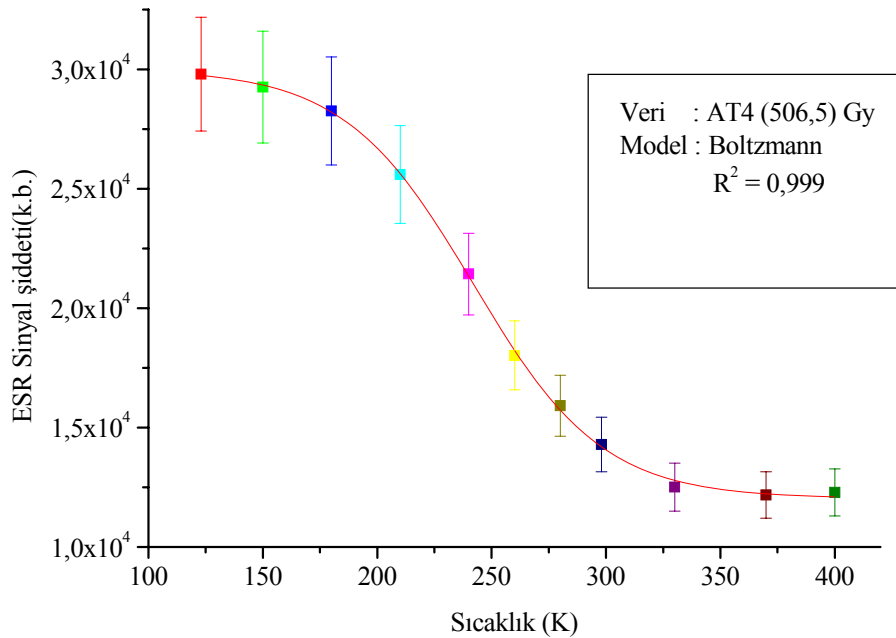
MT11 (202,6 Gy)		MB (202,6 Gy)		AT4 (506.5 Gy)	
Sıcaklık (K)	ESR Sinyal Şiddeti (k.b.)	Sıcaklık (K)	ESR Sinyal Şiddeti (k.b.)	Sıcaklık (K)	ESR Sinyal Şiddeti (k.b.)
150	6803	150	7396	123	29800
180	6813	180	7263	150	29256
210	6534	210	6787	180	28259
240	5792	240	5673	210	25597
260	5358	260	5380	240	21430
280	5029	298	4770	260	18025
298	4666	330	4761	280	15921
330	4292	370	4696	298	14295
370	4177	- ¹	-	330	12508
400	4086	-	-	370	12180
-	-	-	-	400	12292

Bu değişimler, şiddet azalmalarının yanında, spektrum şeklindeki bazı değişimler ile de kendini gösterir. Yüksek sıcaklıklarda özellikle 370 K’ den sonra yine benzer bazı düzensizlikler gözlemlendi. Sıcaklık değişimlerine karşı gelen ESR sinyal şiddeti, Çizelge 5.6’ da verildi.

ESR sistemlerinde sıcaklık ölçümlerini gerçekleştirmemizi sağlayan bileşen sıcaklık kontrol ünitesidir. Tamamen bilgisayar kontrollü olan sıcaklık değişimlerini gerçekleştiren unsur, soğutmada kullanılan “sıvı azot”’tur. Bilindiği üzere sıvı azot sıcaklığı 77 K yani -196°C ’dir. Sıvı azot tankı içine doldurulan yaklaşık 20-25 lt sıvı azotun buharı, kaviteye bağlı olan transfer hattı camlı borularla numuneye iletilir. Sıvı azot içerisinde daldırılmış olan sıvı azot algılayıcısının bilgisayar yardımı ile istenilen sıcaklık değeri sisteme kurulmuş veya ayarlanmış olur. Ayarlanan sıcaklığa göre de azot buharının numuneyi kumandası değişir. Şayet 123 K için ayarlanmış ise numuneyi soğutmak için buharlaşma (numuneye azot buharını üfleme hızı) daha hızlı olur. 300 K civarında bu çok daha yavaş olur. Oda sıcaklığının üstündeki

¹ Bu kısımların boşluğu; bu adımda ölçüm alınmadığını veya ESR sinyal karakterinin bozulduğunu gösterir.

ölçümlerde sıvı azot kontrolü etkisi neredeyse sıfırdır. Hatta buhar üflemesi, bilgisayardaki kontrol birim çerçevesinden “kapalı” duruma getirilebilir ve sadece ısıtıcı “açık” durumda olabilir. Ayrıca sıcaklık kontrol ünitesi biriminin içerisinden “kuru azot” gazı (N_2) geçirilir ve ESR sistemi kapalı devre soğutma sistemi ile soğutulur. Sıcaklık ölçümleri için izlenen yol, kontrollü oda sıcaklığında başladı ve kademeli olarak 20, 30 veya 40 K’ lik adımlarla, sıvı azot kullanılarak düşük sıcaklıklara inildi ve her sıcaklık adımında ESR spektrumları alındı. Numune kaviteden çıkartılmadan, sistem oda sıcaklığına getirilerek, bu kez de oda sıcaklığından yüksek sıcaklıklara aynı adımlarla çıkılarak ESR sinyalleri alındı. Burada önemli bir bulguyu belirtmek gerekir: sıcaklık çalışması sırasında numune kaviteden hiç çıkarılmadan oda sıcaklığında üç defa oda sıcaklığında ESR spektrumu alındı. İlk durumda, düşükten yüksek sıcaklığa geçerken ve yüksek sıcaklıktan tekrar oda sıcaklığına düşerken alındı. Üç ESR spektrumunun da sinyal şiddetleri farklı ölçüldü. Deneysel olarak, Boltzmann dağılımına uyan ölçüm “oda sıcaklığında” alınanın doğru olduğu belirlendi (Şekil 5.13).

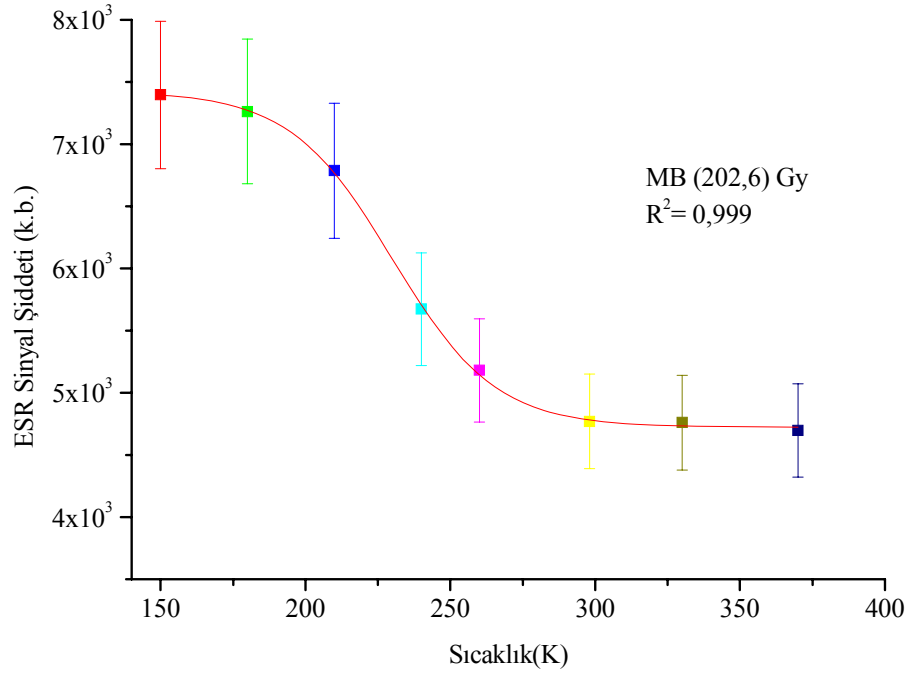


Şekil 5.13. Hayvan dişi numunesinin sıcaklık çalışması

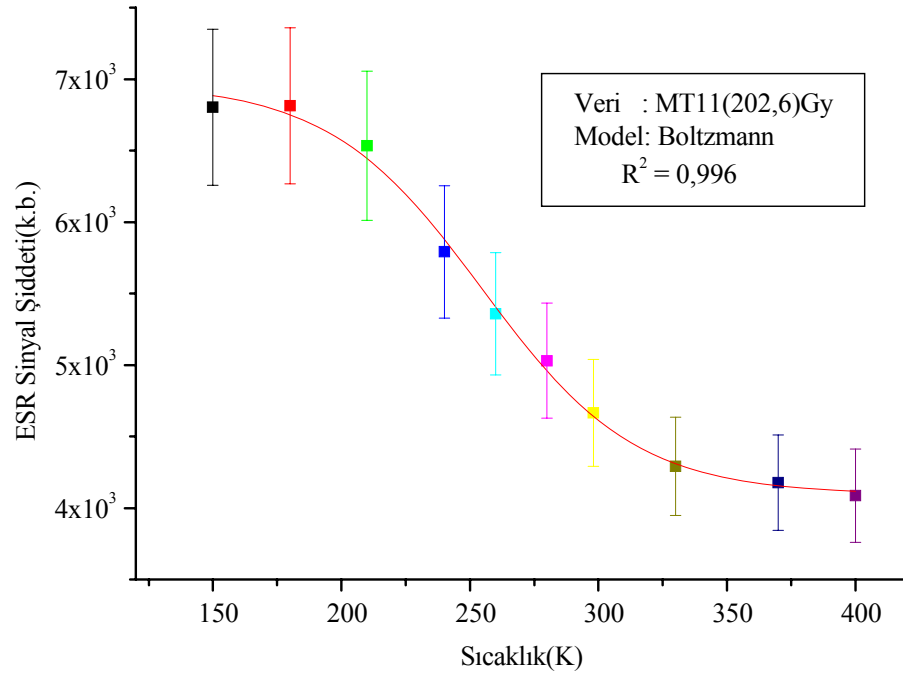
İki farklı doz değerinde ve üç numuneden elde edilen sıcaklık ölçümlerinde, düşük sıcaklıklara gidildikçe spin yoğunluğunun arttığı görülmektedir. Spin yoğunluğundaki artış, ESR sinyal şiddetindeki artış demektir. Bu, Eş. 4.3'e bakıldığında, sıcaklığın değişimi (N_α/N_β) $\neq 1$ oranının sağlanması için enerjideki değişimi mümkün kılar [21]. Işınlama dozuna bağlı bir değişim gözlenmemiştir. Yani farklı dozlarda ıslanılan aynı tür numunelerde (AT4, MT11) ve MB örneğinde ESR sinyali karakteristik özelliğini kaybetmeden sıcaklığa karşı şiddet değişimi aynı tepkiyi vermiştir.

Çiftlenmemiş elektron sayısındaki düşüş her üç eğride de hemen hemen aynı noktadan ($\sim 200\text{K}$) başlamaktadır (Şekil 5.13, Şekil 5.14, Şekil 5.15). Fakat grafiklerden de görüleceği gibi MB numunesinde oda sıcaklığına geliş daha erken olmasına karşın diğ minesi örneklerinde AT4 ve MT11' de bu seyir, düşüş aynı seviyede başlamasına rağmen daha gecikerek yayvan bir şekilde olmaktadır. Bunun sebebi şöyle yorumlanabilir: Bu tür numunelerde oluşan radikalın CO_2^- radikali olduğu ve kemikte %60-70 olmasına karşın diğ minesinde bu oranın daha yüksek olduğu daha önce belirtildi. Miktar olarak aynı olmalarına karşın aynı doz miktarına karşı MB ve MT11 numunesinin sıcaklığa karşı davranışı farklıdır. Bu farklılık ESR spektrumunu teşkil eden radikalın her iki numunede farklı oranlarda bulunmasından ve kemiğin yapısından kaynaklanmaktadır.

Kemikte bilindiği gibi iki farklı yapı mevcuttur. Kabuksu yapı ve demete benzer yapıdır. Bu yapılar arasındaki inorganik fazların yapısal farklılığı ve Ca/P oranı (Çizelge 5.1) da belirleyici olmaktadır [54]. Her iki kategorideki numunelerdeki ıslamlamalar için farklı doz değerlerinde de grafik eşleşmesi uyumlu çıkmıştır. Oda sıcaklığı civarında kararlı bir değişim gözlenmektedir.



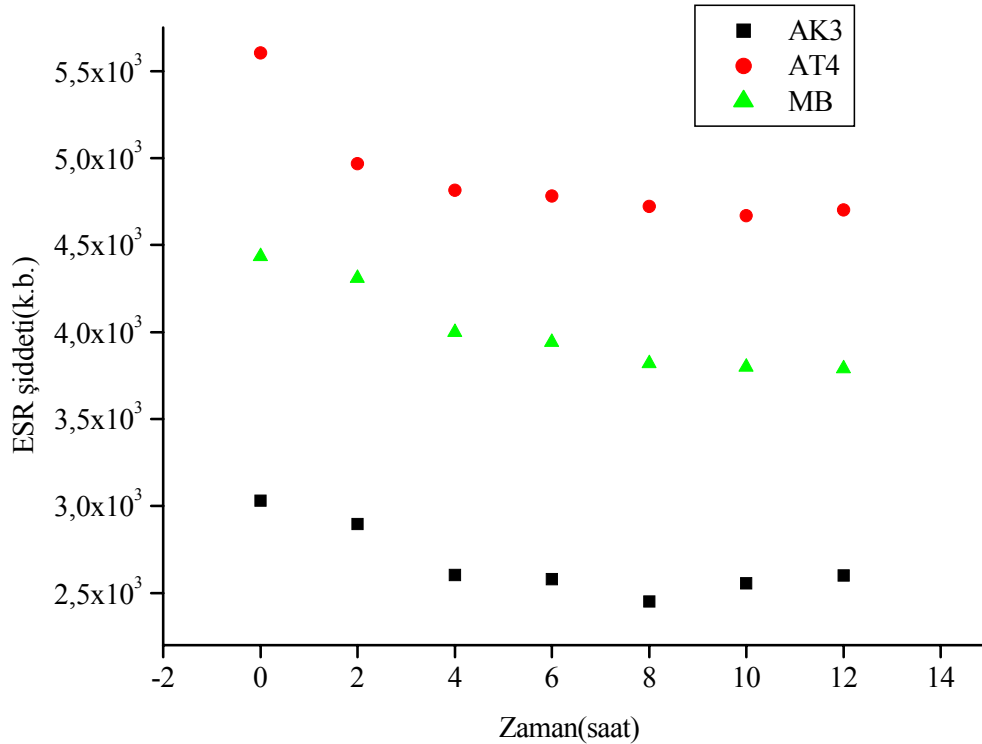
Şekil 5.14. MB örneğinin sıcaklık-şiddet değişim grafiği



Şekil 5.15. MT11 örneğinin sıcaklık-şiddet değişim grafiği

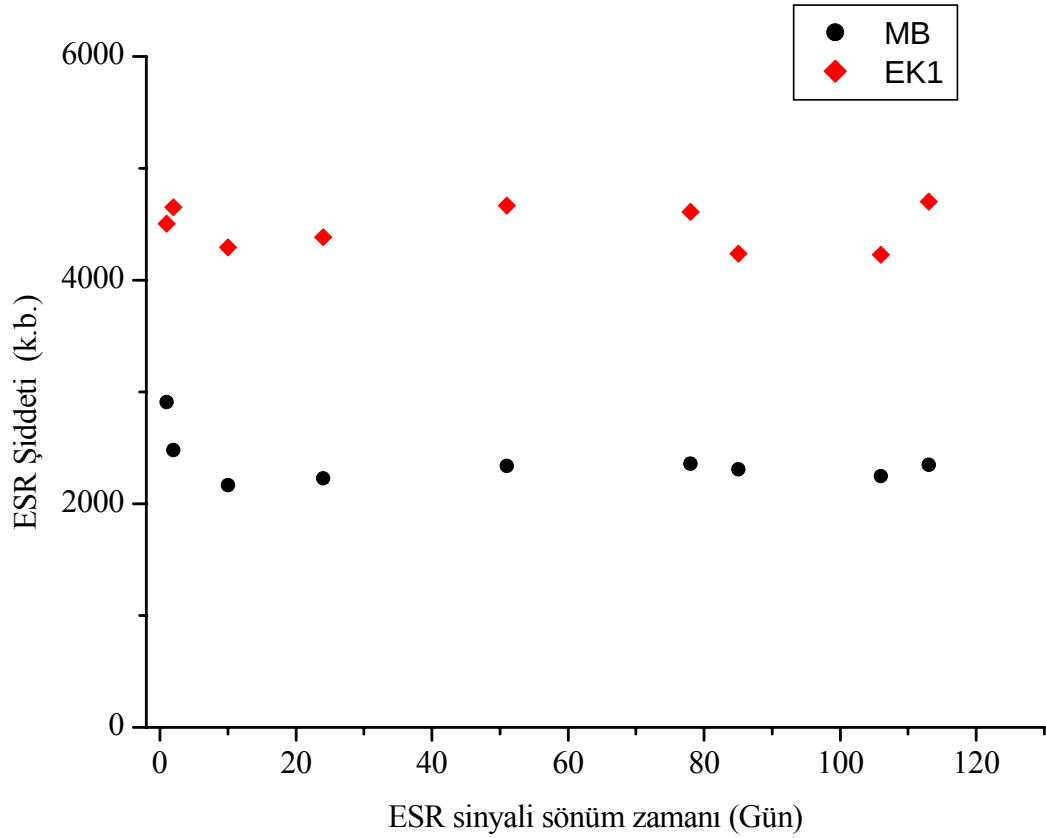
5.5.3. Zamana bağılı değişimler

Çalışmanın bu aşamasında, Sezyum kaynağında, 202,6 Gy doz verilerek ışınlanan üç farklı, toz haldeki örnekte oluşan CO_2 radikalinin “sönüm zamanı” incelenmiştir. Daha önceki kısımlarda belirtildiği gibi; diş ve kemik türü örneklerde oluşan hidroksiapatit yapıdaki CO_2 radikalinin ömrü 10^7 yıl idi. Önce ışındandıktan 12 saat sonra radikalın ESR spektrum şiddetindeki değişimi incelendi (Şekil 5.16). AK3, AT4 ve MB numuneleri için ilk saatlerdeki spektrum değişimi ancak 12 saat sonra kararlı hale geldiği görülmektedir. Grafiğe göre diş ve kemik türü örneklerin sönüm eğrilerinin az da olsa farklılık gösterdiği tespit edildi. AT4 üstel olarak daha keskin düşmesine karşın, kemik türü (AK3, MB) örneklerdeki düşme daha yavaştır. Örneğin ilk 2 saat sonunda hayvan dişi örneğinde ESR şiddetindeki azalma diğerlerinden daha fazladır. Bu örnekte geçici sinyallerin diğerlerine göre fazla olduğu ortaya çıkmaktadır.



Şekil 5.16. Hidroksiapatit yapıdaki CO_2 radikalının zamana göre değişimi

Genel olarak CO₂ radikalinin sönüm zamanı çok uzun olmasına karşın, ilk ışınlamadan sonra kararlı hale gelmesi yaklaşık 12 saat gibi bir süre alıyor. ESR sinyal şiddetinin değişim grafiği daha uzun süre için kaydedilseydi, grafik başlangıçtan hemen sonra doğrusal olarak değişecekti. Örneğin Şekil 5.17’de, olduğu gibi yaklaşık 120 gün boyunca izlenen ESR sinyal şiddetindeki azalma, kararsız radikallerin ilk zamanlardaki değişimi dikkate alınmaz ise, doğrusal bir değişim göstermektedir.



Şekil 5.17. Ek1 (507 Gy) ve MB (101,5 Gy) için ESR sinyalinin sönümü

6. SONUÇLAR VE ÖNERİLER

Bu çalışmada, Muğla yöresinde, antik bir mezardan alınan, insan ve hayvanlara ait diş ve kemik türü örneklerin, eklemeli doz metodu uygulanarak ESR spektroskopisi tekniği ile numunelerin dozimetrik özellikleri incelendi ve tarihlendirmesi yapıldı. Örneklerin yapısında oluşan CO₂ radikalinin düşük sıcaklıklarda ve yüksek sıcaklardaki ESR spektrumları alındı. Oluşan radikalın zamanla sönümü ya da başka bir anlatım ile ESR sinyal şiddetindeki değişim, yaklaşık 120 gün boyunca ölçümler tekrarlanarak alındı. Radikal sönümünün ilk ölçümlerden 12 saat sonra kararlı hale geldiği gözlemlendi.

Eklemeli doz metodu uygulanarak elde edilen *eşdeğer doz* değerleri 6,2 Gy ile 32,5 Gy arasında bulundu. Hesaplanan ESR yaşları, $10,4 \times 10^3$ ile $54,6 \times 10^3$ yıl arasında bulunmuştur. Bulunan yaş değerleri, ESR tekniği ile tespit edilebilen tarihlendirme sınırları içerisindedir [13]. Ancak numunelerin alındığı yerde yaşamış olan medeniyetin tarihine bakınca bir uyumsuzluk var gibi görülebilir. Fakat numunenin elde edilmiş şekline bakarsak, mezarın ilk açılışı olması, mezarın en az iki dönem kullanıldığının tespiti numunelerin yaşanan medeniyetin tarihi ile birebir örtüşemeyeceği sonucunu vermektedir. Bunu, diğer tarihlendirme metotları ile de tekrarlamak ve desteklemek gerekmektedir [49].

Diş ve kemik türü numunelerle yapılan diğer tarihlendirme çalışmalarına baktığımızda, ESR tekniğinin yanında başka metotlarla da desteklendiği görülmektedir. Kemikler ile yapılan bir çalışmada [60], ESR ile bulunan 21×10^3 yıl yaşı ¹⁴C metodu ile 34×10^3 yıl ve ²³⁰Th/²³⁴U metodu ile de 33×10^3 yıl olarak hesaplanmıştır. Rusya'da bir mağarada kemikler için yapılan bir çalışmada da ESR yaş aralığı 32×10^3 ile 45×10^3 yıl tespit edilmiştir[57]. Fas'ta diş minesinde eşdeğer doz 18-38 Gy bulunarak ESR yaşı 39×10^3 ile 62×10^3 yıl bulunmuştur[58].

Bunlardan başka Tabun mağarasında (İsrail) insan dişi için 82×10^3 ile 92×10^3 yıl [56], 300×10^3 ile 575×10^3 yıl [55] diğer ESR yaş tayini çalışmalarından bazılarıdır. Dişte biriken uranyum miktarının dentin tabakasına doğru hareket ettiği ancak oranın

bilinemediğini belirtmek gerekir. İnsan kafatası üzerine bir çalışmada 100-135 bin yıl olarak ESR yaşı tespit edilmiştir[59].

Dozimetri çalışmaları içerisinde fiziksel bir teknik olan ESR ile yaş tayini, tarihi açıdan da geçmiş yaşamlara ait kültürel yapılar hakkında da fikir verebilir. Ancak başka metot ve tekniklerle de aynı çalışmaların doğrulanması gerekir. Dozimetrik çalışmalarda esas amaç eşdeğer doz değerinin aşağıya çekilmesi hedefidir. Burada seçeneklerden biri dozimetrik özellikleri iyi olan yeni malzemeler bulmak, üretmek veya kullanılan mevcut teknikleri geliştirmek ya da yeni teknikler geliştirmektir (EK-1'e bakılabilir). Örneğin, toz haldeki bir diş örneği izotropik (açığa bağlı olmayan) sinyal vermesine rağmen ganyometre ile belli açılarda döndürülerek ESR ölçümleri alınmış ve ESR sinyal şiddetindeki değişim incelenmiştir [61]. Burada doldurma etkisi denen etkiyi de dikkate almak gerekir. Retrospektif ESR dozimetre çalışmalarında çok uygun bir materyal olan ve Hidroksiapatit kristali içerisinde CO₂ radikali içeren diş ve kemik türü örnekler üzerindeki sıcaklık çalışmaları da ESR sinyalinin temelinde olan Boltzmann dağılımına uyan deneysel sonuçlar vermiştir.

ESR yaş tayini çalışmaları ve geriye dönük doz belirleme çalışmaları sonuçları itibariyle, bazı yönlerden eleştirilere açıktır: Doz-cevap eğrisindeki zaman bağımlılığı, diş minesinde ve uranyum birikmesindeki belirsizlikler, saklama koşulları ve deneysel hataların düşürülmesi vs. Bu kabullenilen faktörler ESR tarihlendirmesi çalışmalarında çalışma güvenliğini ve yeni metotlar ortaya çıkarma gereğini işaret ediyor. Bu ise, metottaki güvenilirlik temelini oluşturan ESR toplulukları ile diğer araştırmacılara verilen yükü artırıyor. Gelecekteki bir çok dozimetrik çalışmaların, doz belirlemedeki metotların geliştirilmesi ve standart hale getirilmesi donanım olarak daha pratik tedbirler hedeflenmelidir.

KAYNAKLAR

1. Romanyukha, A.A., Degteva, M.O., Kozheurov, V.P., Wieser, A., Ignatiev, E.A., Vorobiova, M.I., Jacop, P., “Pilot study of the population of the Ural Region by EPR tooth dosimetry”, **Radiat. Envir. Biophys.**, 35: 305–310 (1996).
2. Chumak, V., Sholom, S., Pasalskaya, L., “Application of high precision EPR dosimetry with teeth for reconstruction of doses to Chernobyl populations”. **Radiat. Prot. Dosim.** 84 (1-4): 515-520 (1999).
3. Desrosiers, M.F., Romanyukha, A.A., “Technical aspects of the electron paramagnetic resonance method for tooth enamel dosimetry”. Biomarkers: Medical and Workplace Applications. Mendelsohn M.L., Mohr L.C., Peters J.P., Eds.- Washington, DC, **Joseph Henry Press**, 53-64, (1998).
4. Haskell, E.H., Hayes, R.B., Romanyukha, A.A., Kenner, G.H., “Preliminary report on the development of a virtually nondestructive additive dose technique for EPR dosimetry”. **Appl. Radiat. Isot.**, 52: 1065–1070 (2000).
5. Hayes, R.H., Haskell, E.H., Romanyukha, A.A., Kenner, G.H., “Technique for increasing reproducibility in EPR dosimetry of tooth enamel”, **Meas. Sci. Technol.** 9: 1994-3006 (1998).
6. Ivannikov, Skvortsov, V.G., Stepanenko, V.F., Tikunov, D.D., Takada, J., Hoshi, M., “EPR tooth enamel dosimetry: optimization of the automated spectra deconvolution routine”. **Health Phys.**, 81: 124–137 (2001).
7. Desrosiers, M., Schauer, D.A., “Electron paramagnetic resonance (EPR) biodosimetry”. **Nucl Instrum Meth.**, 184: 219–228 (2001).
8. Zavoyskiy, Y., "Spin-magnetic resonance in paramagnetics," **J., Phys.**, USSR 9: 245 (1945).
9. Khan, F.H., “Biophysical dose measurement using electron paramagnetic resonance in rodent teeth”, **Applied Radiation and Isotopes**, 59: 189-196 (2003).
10. Rink, W.J., “Electron spin resonance (ESR) dating and ESR applications in Quaternary science and archaeometry”. **Radiation Measurements.**, 27: 975-1025 (1997).
11. Jonas, M., “Concepts and methods of ESR dating”. **Radiation Measurements** 27: 943-973 (1997).
12. Ikeya, M., “Dating a stalactite by electron paramagnetic resonance”. **Nature**, 255: 48-50 (1975).

13. Schwarcz, HP., Grün, R., and Tobias, PV., “ESR dating studies of the australopithecine site of Sterkfontein”, South Africa., ***Journal of Human Evolution***, 26: 175-81 (1994).
14. Grün, R., and Stringer, C.B., “ESR dating and the evolution of modern humans”. ***Archaeometry***, 33: 153-99 (1991).
15. Grün, R., “Electron spin resonance dating”, In Chronometric and Allied Dating in Archaeology, Taylor RE, Aitken MJ (eds)., ***Plenum***, New York, 217–261 (1997).
16. Apaydın, F., “Magnetik Rezonans”, ***Hacettepe Ünv. Yay.***, Ankara, 2-27 (1991).
17. Bruker, “EPR Basics”, ***Bruker Analytik GmbH***, Karlsruhe, 80 (2001).
18. Wertz, J.E., Bolton, J.R., “Electron spin resonance; elementary theory and practical Applications”, ***McGraw-Hill***, New York, 1-31 (1972).
19. Atherton, N.M., “Electron spin resonance: theory and applications”, ***Chichester (England), E. Horwood; Halsted Pres***, New York, 1-19 (1973).
20. Brik, A.B., Haskell, E.H., Brik, V.B., Atamanenko, O.N., and Scherbina, O.I., “Anisotropy effects of EPR signals and mechanisms of mass transfer in tooth enamel and bones”, ***Appl. Radiat. Isot.***, 52: 1077–1083 (2000).
21. IAEA, “Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment”, ***IAEA-TECDOC-1331***, 64 (2002).
22. Ikeya, M., “New Applications of Electron Spin Resonance - Dating, Dosimetry and Microscopy”. ***World Scientific***, Singapore, 1: 23-123 (1993).
23. Desrosiers, M.F., “Assessing radiation dose to food”, ***Nature***, 345: 485-488 (1990).
24. Ishii, H., Ikeya, M., “An electron spin resonance system for in vivo human tooth dosimetry”, ***Jpn. J. Appl. Phys.***, 29: 871–875 (1990).
25. Lee, H.K., Rink, W.J., Schwarcz, H.P., “Comparison of ESR signal dose responses in modern and fossil tooth enamels”, ***Radiat. Meas.***, 27: 405–411 (1997).
26. Polyakov, V., Haskell, E.H., Kenner, G.H., Hütt, G., Hayes, R.B., “Effect of mechanically induced background signal on EPR dosimetry of tooth enamel”, ***Radiat. Meas.***, 24: 249–254 (1995).
27. Wieser, A., Göksu H.Y., Regulla D.F., Vogenauer A., “Dose rate assessment in tooth enamel”, ***Quat. Sci. Rev.***, 7: 491–495 (1988).

28. Schauer, D., Desrosiers, M., Le, F., Seltzer, S., Links, J., “EPR dosimetry of cortical bone and tooth enamel irradiated with X and gamma rays: study of energy dependence”, **Radiat. Res.**, 138: 1–8 (1994).
29. Romanyukha, A.A., Regulla, D.F., Vasilenko, E., Wieser, A., “South Ural nuclear workers: Comparison of individual doses from retrospective EPR dosimetry and operational personal monitoring”, **Appl. Radiat. Isot.**, 45: 1195–1199 (1994).
30. Romanyukha, A.A., Regulla, D.F., “Aspects of retrospective ESR dosimetry”, **Appl. Radiat. Isot.**, 47: 1293–1297 (1996).
31. Romanyukha, A.A., Regulla, D.F., Vasilenko, E.K., Wieser, A., Drozhko, E.G., Lyzlov, A.F., Koshurnikova, N.A., Shilnikova, N.S., Panfilov, A.P., “Verification of occupational doses at the first nuclear plant in the former Soviet Union”, **Appl. Radiat. Isot.**, 47: 1277–1280 (1996).
33. Egersdörfer, S., Wieser, A., Muller, A., “Tooth enamel as a detector material for retrospective EPR dosimetry”, **Appl. Radiat. Isot.**, 47: 1299–1304 (1996).
33. Haskell, E.H., Hayes, R.B., Kenner, G.H., “Preparation-induced Errors in EPR dosimetry of enamel: pre- and post-crushing sensitivity”, **Appl. Radiat. Isot.**, 47: 1305–1310 (1996).
34. Regulla, D., “From dating to biophysics-20 years of progress in applied ESR spectroscopy”, **Appl. Radiat. Isot.**, 52: 1023–1030 (2000).
35. Magdalena, F., Ryszard, K., Helena, H., “Electron paramagnetic resonance in dating of fossil organic remains”, **Geochronometria**, 19: 59-64 (2000).
36. Adamiec, G., and Aitken, M.J., “Dose-rate conversion factors: update”, **Ancient TL**, 16: 37-50 (1998).
37. Aitken, M.J., “Thermoluminescence Dating”, **Academic Press**, New York, 1-351 (1985).
38. Grün, R., and Katzenberger-Apel, O., “An alpha irradiator for ESR dating”, **Ancient TL** 12: 35-38 (1994).
39. Prescott, J.R., and Hutton, J.T., “Cosmic ray and gamma ray dosimetry for TL and ESR”, **Nuclear Tracks and Radiation Measurements**, 14: 223-227 (1988).
40. Aitken, M.J., and Xie J., “Moisture correction for annual gamma dose”, **Ancient TL**, 8: 6-9 (1990).
41. Grün, R., “Alpha dose attenuation in thin layers”, **Ancient TL**, 5(3): 6-8 (1987).

42. Grün, R., “Direct dating of human fossils”., *Yearbook of physical anthropology* 49: 2-48 (2006).
43. Chem, T.M., Yang, Q. and Wu, E., “Antiquity of *Homo sapiens* in China”. *Nature.*, 368: 55-56 (1994).
44. Blackwell, B., “Electron spin resonance (ESR) dating in karst environments”, *Acta carsologica.*, 35: 123-153 (2006).
45. Romanyukha,, A.A., Nagy, V., Sleptchonok, O., Desrosiers, M.F., Jiang J., Heiss, A., “Individual biodosimetry at the natural radiation background level” , *Health Phys.*, 80: 71–73 (2001).
46. Pavlenko, A., “Electron spin resonance for accumulated dose measurement”, Ph.D. Thesis, *Ins., of Biom.*, Riga, 1-111 (2006).
47. Schwarcz, H.P., “ESR study of tooth enamel”., *Nucl. Tracks*, 10: 865–867 (1985).
48. Callens, F., Vanhaelewyn, G., Matthys, P., Boesman, E., “EPR of carbonated derived radicals: Applications in dosimetry, dating and detection of irradiated food”., *Appl. Magn. Reson.*, 14: 235–254 (1998).
49. Diler, A., “Muğla yöresine ait örneklerin ESR ile tarihlendirilmesine dair protokol” Muğla üniversitesi, *Fen.Bil. Ens.*, Muğla, (2002).
50. Sholom, S. V., Haskell, E. H., Hayes, R. B., Kenner, G. H. and Chumak, V. V. “Influence of Crushing and Additive Irradiation Procedures on EPR of Tooth Enamel”., *Radiat. Meas.*, 29: 105–111 (1998).
51. Costa, Z.M. Pontuschka, A. , Campos, L “Study of the ESR signal of gamma irradiated hydroxyapatite for dose assessment”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.*, 218: 283–288 (2004).
52. Tandon, L, Iyengar GV, Parr RM., “A review of radiologically important trace elements in human bones”., *Appl Radiat Isot.*, 49: 903–910 (1998).
53. Hefne, J. Yamani A., Al-Dayell, O., Ikeya, M. and Al-Osaimil, S., “ESR Dating of Tooth from Pre-Islamic Saitin Saudi Arabia”., *Advances in ESR Applications*, 18: 119-121 (2002).
54. Bigi, A., et al., “Chemical and structural characterization of the mineral phase from cortical and trabecular bone”., *Journal of Inorganic Biochemistry*, 68: 47-51 (1997).

55. Debuyst, R., Callens, F., Frechen, M., Dejehet, F., “ESR study of elephant tooth enamel from the karlich-seeufer site in germany”., ***Applied radiation and Isotopes***, 52: 1327-1336 (2000).
56. Copa, A., Grün, R., Stringer, C., Eggins, S., Vargiu, R., “Newly recognized pleistocene human teeth from Tabun cave, Israel”, ***journal of human evolution***, 49: 301-315 (2005).
57. Skinner, R., Blackwell, B. Martin, S., Ortega, A.,. Blickstein, J., Golovanova, V., Doronichev, B., ”ESR dating at Mezmaiskaya Cave, Russia” ***Applied Radiation and Isotopes***, 62: 219–224 (2005).
58. Wrinn, P. J.,” ESR Dating of Tooth Enamel From Aterian Levels at Mugharet el Aliya (Tangier, Morocco)”, ***Journal of Archaeological Science*** 30: 123–133 (2003).
59. Grün, R., at all., “U-series and ESR analyses of bones and teeth relating to the human burials from Skhul”., ***Journal of Human Evolution.***, 49: 316-334 (2005).
60. Wencka, M., Hoffmann, S.K. and Hercman, H., “EPR Dating of Hydroxyapatite from Fossil Bones. Transient Effects after γ and UV Irradiation”., ***Acta physica polonica A***, 108: 331-337(2005).
61. Haskell, E.H, Hayes, R.B, Kenner, G.H., “Improved accuracy of EPR dosimetry using a constant rotation goniometer”., ***Radiat. Meas.***, 27: 325–329 (1997).

EKLER

EK 1. Dünya'nın çeşitli bölgelerinde yapılmış, bazı ESR yaş tayini çalışmaları.

Avery <i>et al.</i> (1997)	Die Kelders, South Africa	Middle Stone Age lithics
Bahain <i>et al.</i> (1993)	Piégue, France	Middle Palaeolithic Flake Industry
Bahain <i>et al.</i> (1993)	Biache Saint-Vaast, France	Hominids and Mousterian Lithics
Bahain <i>et al.</i> (1993)	Aragó, France	Tautavel Hominid
Bahain <i>et al.</i> (1993)	Vallonnet, France	Archaic Pebble lithics
Bahain <i>et al.</i> (1992)	Isernia la Pineta	Lower Palaeolithic lithics
Blackwell (1995) (cited in)	Yarumburgaz, Turkey	Ursus deningerii
Blackwell (1995) (cited in)	Sterkfontein, Swartkrans, South Africa	Australopithecines
Blackwell (1995) (cited in)	Swartkrans, South Africa	Australopithecines
Blackwell <i>et al.</i> (1992)	La Chaise-de-Vouthon, France	
Blackwell and Schwarcz (1993)	Bau de l'Aubiesier, France	
Blackwell <i>et al.</i> (1993)	Longola, Zambia	Middle Stone Age lithics
Borziac <i>et al.</i> (1997)	Ciuntu, Moldova	Upper Palaeolithic lithics
Brooks <i>et al.</i> (1995)	Katanda, Zaire	Bone Harpoons
Çetin <i>et al.</i> (1994)	Karaın, Turkey	Mousterian lithics
Chen <i>et al.</i> (1994b)	Jinniushan, China	Hominids
Chen <i>et al.</i> (1997a)	Yunxian, China	Hominids
Ciochon <i>et al.</i> (1996)	Tham Khuyen Cave, Vietnam	Hominids and <i>Gigantopithecus</i>
Falguères <i>et al.</i> (1990)	Caverna delle Fate, Italy	Hominids
Falguères <i>et al.</i> (1997)	La Micoque, France	Lithics
Grün and Brunnacker (1987)	Stuttgart, Germany	Mammoth
Grün <i>et al.</i> (1990a)	Border Cave, South Africa	Hominids and Howiesons Poort lithics
Grün <i>et al.</i> (1990b)	Klasies River Mouth Cave, South Africa	Middle Stone Age Hominids and lithics, and Howiesons Poort Lithics
Grün <i>et al.</i> (1991a)	Tabun Cave, Israel	Neanderthals, Modern Humans, Lower and Middle Palaeolithic lithics
Grün <i>et al.</i> (1991b)	Pech de l'Aze II, France	Acheulian and Mousterian lithics
Grün <i>et al.</i> (1996)	Florisdad, South Africa	Hominid
Grün <i>et al.</i> (1997a)	Zhoukoudian, China	<i>Homo erectus</i> and lithics
Grün <i>et al.</i> (1997b)	La Quina, France	Lithics
Grün and Stringer (1991)	Amud Cave, Israel	Neanderthals, Levallois Mousterian lithics
Grün and Stringer (1991)	Jebel Ihroud, Morocco	Neanderthals and Middle Palaeolithic lithics
Grün and Stringer (1991)	La Chapelle-aux-Saints, France	Neanderthal and Quina Mousterian lithics
Huang <i>et al.</i> (1991a)	Zhoukoudian, China	<i>Homo erectus</i> and lithics
Huang <i>et al.</i> (1991b)	Zhoukoudian, China	<i>Homo erectus</i> and lithics
Huang <i>et al.</i> (1995)	Longgupo, China	Hominid
Lau <i>et al.</i> (1997)	Divje Babe, Slovenia	Lithics and Bone Flute
Marks <i>et al.</i> (1997)	Starosele, Crimea	Staroselian Lithics
McDermott <i>et al.</i> (1996)	Singa, Sudan	Middle Pleistocene Hominid
McDermott <i>et al.</i> (1993)	Skhul, Tabun, Qafzeh, Israel	Hominids and Lithics
Mellars and Grün (1991)	Le Moustier, France	Mousterian Lithics
Monigal <i>et al.</i> (1997)	Starosele, Crimea	Staroselian Lithics
Rink <i>et al.</i> (1994)	Karaın, Turkey	Charentian Mousterian lithics
Rink <i>et al.</i> (1995)	Krapina, Croatia	Neanderthals and Mousterian lithics
Rink <i>et al.</i> (1996b)	Kůlna, Czech Republic	Neanderthals and Micoquian lithics
Rink <i>et al.</i> (1996a)	El Castillo, Spain	Aurignacian Lithics
Rink <i>et al.</i> (1997)	El Castillo, Spain	Mousterian Lithics
Rink <i>et al.</i> (1998)	Starosele, Crimea	Stanoselian Lithics
Rink <i>et al.</i> (1998)	Kobazi II, Crimea	West Crimean, Mousterian Lithics
Rink <i>et al.</i> (1998)	Kobazi, V, Crimea	Stanoselian Lithics
Stringer <i>et al.</i> (1989)	Es Skhul, Israel	Neanderthal, Late Middle Palaeolithic lithics
Schwarcz <i>et al.</i> (1991)	Grotte Breuil, Italy	Modern Humans
Schwarcz <i>et al.</i> (1991)	Grotte Guattari, Italy	Neanderthal, Late Middle Palaeolithic lithics
Schwarcz <i>et al.</i> (1989)	Grotte di San Agostino, Italy	Neanderthal, Pontinian lithics
Schwarcz and Grün (1988)	Kebara, Israel	Middle Palaeolithic lithics
Schwarcz and Grün (1993)	La Micoque, France	Neanderthal, Mousterian lithics
Schwarcz and Grün (1994)	Hoxne, England	Acheulian lithic
Schwarcz <i>et al.</i> (1988a)	Bir Tarfawi, Egypt	Acheulian lithics
Schwarcz <i>et al.</i> (1988b)	Bilzingsleben, Germany	Paleoclimate and lithics
Schwarcz <i>et al.</i> (1994)	Qafzeh, Israel	Hominid, Lower Palaeolithic lithics
Swisher <i>et al.</i> (1996)	Sterkfontein, South Africa	Modern Humans, Middle Palaeolithic lithics
Swisher <i>et al.</i> (1996)	Ngandong, Java	Australopithecines
Whitehead <i>et al.</i> (1986)	Sambungmachan, Java	Hominids
Ziaei <i>et al.</i> (1990)	Taumako, Solomon Islands	Hominids
	Quneitra, Israel	Namu hominids
		Mousterian lithics

ÖZGEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Soyadı, adı : BÜYÜM, Muharrem
 Uyuğu : T.C.
 Doğum tarihi ve yeri : 20.03.1967 Develi/ Kayseri
 Medeni hali : Evli
 Telefon : 0 (312) 815 43 00
 Faks : 0 (312) 815 43 06
 e-mail : muhamrem.buyum@taek.gov.tr

Eğitim

Derece	Eğitim Birimi	Mezuniyet tarihi
Yüksek lisans	Ankara Üniversitesi /Fizik Bölümü	1997
Lisans	Ankara Üniversitesi /Fizik Bölümü	1992
Lise	Ankara Gazi Lisesi	1984

İş Deneyimi

Yıl	Yer	Görev
1992-2001	Ankara Üniversitesi	Araştırma Görevlisi

Yabancı Dil

İngilizce, Fransızca

Yayınlar

1. B.Çalışkan, E. Aras, B.Aşık. M. Büyüm, M. Birey, “EPR of Gamma irradiated Single Crystal of Cholesterol Benzoate”, Rad. Effects and Def. In Solids, Vol 159,1-5, 2004
2. E. Aras, B. Aşık, B. Çalışkan, M. Büyüm and M. Birey “ Elektron Paramagnetic Resonance study of irradiated tetramethyl-4-piperidion” Radiation Effects & Defects in Solids, Vol. 59, pp. 353–358, June 2004.
3. E. Aras, B. Aşık, M. Büyüm and M. Birey “EPR spectroscopy of γ -irradiated single crystals of 5-methyle–2-nitrophenol”Radiation Effects & Defects in Solids Vol. 161, No. 1, 69–73 January 2006.

Hobiler

Futbol, Türk Halk Müziği, Şiir ve Kitap.