

**TERS ELEKTROTLU GERMANYUM DEDEKTÖRLE
NUMUNELERDEKİ URANYUMUN DOĞRUDAN ÖLÇÜLMESİ İÇİN
GAMA SPEKROMETRİK BİR METOT**

İsmet ERGİN

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
(FİZİK EĞİTİMİ)**

93563

**GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**TC YÜKSEKÖĞRETİM KURULU
DOKÜMANTASYON MERKEZİ**

Nisan 2000

ANKARA

İsmet ERGİN tarafından hazırlanan TERS ELEKTROTLU GERMANYUM DEDEKTÖRLE NUMUNELERDEKİ URANYUMUN DOĞRUDAN ÖLÇÜLMESİ İÇİN GAMA SPEKTROMETRİK BİR METOT adlı bu tezin Yüksek Lisans tezi olarak uygun olduğunu onaylarım.



Doç. Dr. Haluk YÜCEL

Tez Yöneticisi

Bu çalışma jürimiz tarafından Fizik Eğitimi (Nükleer Fizik) Anabilim Dalında Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

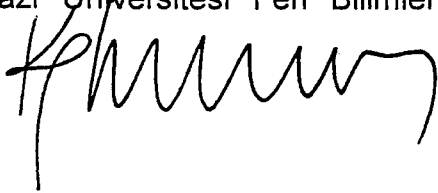
Başkan : Prof. Dr. H. İzzet Özmen

Üye : Prof. Dr. Mustafa Tan

Üye : Doç. Dr. Haluk YÜCEL

Üye :

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



İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ÖZET	i
ABSTRACT	ii
TEŞEKKÜR	iii
ÇİZELGELERİN LİSTESİ	iv
ŞEKİLLERİN LİSTESİ	vi
SİMGELER VE KISALTMALAR	vii
1. GİRİŞ	1
2. TEORİ	8
2.1. Uranyum ve Özellikleri	8
2.2. Türkiye'deki Uranyum Cevheri	9
2.3. Radyoaktivite	10
2.4. Gama Işınları ve Özellikleri	12
2.4.1. Gama bozunması	12
2.5. Radyoaktif Bozunma Kanunu	14
2.5.1. Radyoaktivite birimi	16
2.6. Zincirleme (Peşpeşe) Radyoaktif Parçalanma Kanunu	16
2.7. Radyoaktif Denge Durumları	19
2.7.1. Radyoaktif dengenin kurulmadığı durum	20
2.7.2. Geçici denge durumu	21
2.7.3. Sürekli (kalıcı) denge durumu.....	23
2.8. Doğal Radyoaktif Seriler	24
3. GAMA SPEKTROMETRESİ VE SPEKTRUM DEĞERLENDİRMESİ	28
3.1. Gama Işınlarının Madde ile Etkileşimi	28
3.2. Gama Spektrometresi	31
3.3. Yüksek Saflıkta Germanyum Dedektörler (HPGe)	34

3.4.	Enerji Kalibrasyonu	37
3.5.	Numunedeki Radyoaktivitenin Belirlenmesi	39
3.5.1.	Pik alanı hesaplama metodu	39
3.5.2.	Pik alanında belirsizlik hesabı	41
3.5.3.	Aktivite hesaplama metodu	42
3.5.4.	Numunedeki gama ışını yayılım hızının ölçülmesi	43
4.	DENEY	44
4.1.	Deneysel Düzenek	44
4.2.	Dedektörün Veriminin Ölçülmesi	44
4.3.	Numune Hazırlama	49
4.4.	REGe Dedektörle Numunelerin Sayımı	49
4.5.	Öz-Soğurma Düzeltmesi	51
5.	SONUÇ VE TARTIŞMA	57
5.1.	Uranyum Aktivite Sonuçları	57
KAYNAKLAR		67
EKLER		71
ÖZGEÇMİŞ		81

**TERS ELEKTROTLU GERMANYUM DEDEKTÖRLE NUMUNELERDEKİ
URANYUMUN DOĞRUDAN ÖLÇÜLMESİ İÇİN
GAMA SPEKTROMETRİK BİR METOT
(Yüksek Lisans Tezi)**

İsmet ERGİN

**GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
Nisan 2000**

ÖZET

Bu tezde, katı numunelerdeki uranyumun doğrudan “mutlak” tayini için gama spektrometrik bir metot açıklanmıştır. Gama spektroskopisiyle numunelerdeki ^{238}U ölçümünden kesin bir bilgi elde etmek için ^{238}U ’in ürünlerinden biriyle radyoaktif dengede olması gerekir. Bu şart, ^{238}U ’e göre çok kısa ömürlü ^{234}Th (24.1 gün) ve $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (1.17 dk.) ilk yakın ürünleriyle sağlanır. Bu yüzden, sunulan analitik metot, ^{234}Th ’dan yayınlanan 63.3 keV ile $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ’den yayınlanan 1001 keV pikini kullanır. Numunelerdeki uranyumun ölçülmesi için düşük enerjili gama ışınları bölgesinde(<120 keV) yüksek verime sahip ters elektrotlu-Be pencereci saf Germanyum (REGe) dedektör kullanılmıştır. Dedektörün 40-2000 keV enerji aralığındaki verimi, toz radyoaktif kaynak kullanılarak ölçülmüştür. Polystyrene tüplere doldurulan yaklaşık 8 g kurutulmuş toz uranyum standart numunelerin, 75 000 s ilâ 125 000 s arasında değişen sayım sürelerinde, spektrumları alınmıştır. Belirli bir numune-detektör geometrisinde, standart referans numunelerin kimyasal bileşimlerindeki değişimler nedeniyle olan öz soğurma etkileri belirlenmiştir. Uygulanan öz-soğurma faktörleri; 46.5 keV (^{210}Pb) piki için %10.5-33.1, 63.3 keV (^{234}Th) piki için %4.9-18.4 ve 1001 keV($^{234\text{m}}\text{Pa}$) piki için %0.1-3.9 aralıklarında değişmektedir. Uranyum numunelerindeki radyoaktif dengenin varlığı, ^{238}U ’in yakın ürünü ^{234}Th ve uzak ürünü ^{210}Pb aktiviteleri oranlanarak kontrol edilmiştir. ^{234}Th ’ün 63.3keV pikinden belirlenen ^{238}U aktiviteleri, konsantrasyon aralığı %0.022±0.001 ilâ %1.02±0.01 arasındaki referans uranyum numunelerinin sertifika edilen aktivite değerleriyle, %0.1-6.9 arasında bir uyum sergilemiştir. $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ’in 1001 keV pikinden belirlenen ^{238}U aktiviteleri ise, aynı numunelerin sertifika edilen aktiviteleriyle %0.01-4.7 uyumludur. REGe dedektörde yaklaşık 1.5 cm kalınlıkta hazırlanan numunelerde uranyum ölçümleri yapıldığında, konsantrasyonlar, uygun öz-soğurma düzeltmeleri uygulanan 63.3 keV(^{234}Th) pikiyle %7 belirsizlikle tayin edilebilir. Bu numunelerde, $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ’nın 1001 keV piki ise, ihmal edilebilir bir öz-soğurma düzeltmesiyle doğru sonuç vermektedir. 1001 keV piki aracılığı ile uranyum tayininde bu gama piki için öz-soğurma düzeltmesi gerekmez, ancak 1.5 cm’den daha kalın numunelerde öz-soğurma düzeltmesi yapılmalıdır.

Bilim Kodu : 404.04.01
Anahtar Kelimeler : Uranyum, konsantrasyon, ölçme, gama-ışını spektroskopisi, öz-soğurma
Sayfa Adedi : 81
Tez Yöneticisi : Doç. Dr. Haluk YÜCEL

**A GAMMA SPECTROMETRIC METHOD FOR DIRECT MEASUREMENT OF
URANIUM CONTENTS IN SAMPLES BY A REGE DETECTOR
(M. Sc. Thesis)**

İsmet ERGİN

**GAZİ UNIVERSITY
INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY
April 2000**

ABSTRACT

In this thesis, a gamma spectrometric method is described for the direct “absolute” determination of uranium contents in solid samples. To obtain the exact information about the measurement of ^{238}U in samples by gamma-ray spectroscopy, it is essential that any one of the daughters of ^{238}U should exist in radioactive equilibrium with ^{238}U . This condition is mainly fulfilled by one of the first two daughters, namely, ^{234}Th (24.1 d) and $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (1.17 min) because these daughters are very short-lived compared with ^{238}U . Therefore, the present analytical method employs direct determination of ^{238}U via the 63.3 keV gamma emission from ^{234}Th and via the 1001 keV gamma emission from $^{234\text{m}}\text{Pa}$. A gamma-ray spectrometer with a reverse-electrode high pure Germanium (REGe) detector which has high efficiencies for low energy gamma rays (<120 keV) has been used for the measurements of uranium concentrations in samples. The absolute photopeak efficiency data in the range of 40 keV to 2000 keV for the detector used is measured using a powder radioactive standard source. Only a small amount, about 8 g of powdered the certified uranium samples filled into the tubes, are counted for the time predetermined between 75 000 s and 125 000 s. The measured activities of ^{238}U of the samples via the 63.3 keV (^{234}Th) and via the 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) are corrected for self-absorption effects due to changes in composition of standard reference materials in a given sample-detector geometry. The self-absorption factors applied to the 46.5 keV (^{210}Pb) peak and the 63.3 keV (^{234}Th) peak results ranged from 10.5% to 33.1% and from 4.9% to 18.4%, respectively. For the 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) gamma emission, the necessary self-absorption factors varied between 0.1% and 3.9%.

The results obtained from the 46.5 keV of ^{210}Pb being far distant member of ^{238}U and those of the 63.3 keV from ^{234}Th are used to check whether the equilibrium exists in the uranium samples. The results of ^{238}U via the 63.3 keV peak of ^{234}Th for the uranium standards agreed to within 0.1 to 6.9% with the certified values of ^{238}U in the samples with uranium concentration ranging from 0.022 ± 0.01 to 1.02 ± 0.01 wt%. The results of ^{238}U via the 1001 keV peak of $^{234\text{m}}\text{Pa}$ agreed well to within 0.01 to 4.7% with the certified activity values of ^{238}U of the same samples. When the measurements of the uranium are carried out in a REGe detector system, the results indicate that the uranium concentrations in the samples can be determined to the average 7% error by using the 63.3 keV (^{234}Th) gamma emission with appropriate corrections for self-absorption effects. The 1001 keV peak of $^{234\text{m}}\text{Pa}$ gives also accurate results for the determination of ^{238}U in the same samples and the need for self absorption correction for the 1001 keV emission seems to be negligible, except in case of thicker samples than those with thickness of about 1.5 cm.

Science code : 404.04.01

Key Words : Uranium, concentration, measurement, gamma-ray spectrometry, self absorption

Page Number : 81

Adviser : Assoc. Prof. Dr. Haluk YÜCEL

TEŞEKKÜR

Bu Yüksek Lisans tezinin gerçekleşmesi için, bana tez çalışması yapma imkanını sağlayan, ilmi görüşleriyle yardımcı olan ve tecrübelerinden yararlandığım değerli hocam Sayın Prof. Dr. Mustafa TAN'a çok teşekkür ederim. Tez çalışmasının konusunu belirleyen, deneylerin yapılmasından, deneysel verilerin elde edilmesine ve tezin yazımına kadar her konuda yardımlarını gördüğüm, bilgisinden ve tecrübesinden yararlandığım, çalışmamın her aşamasında büyük bir özveri ve sabırla yanımda olan, ANAEM Nükleer Fizik Bölümü araştırmacılarından tez yöneticim Sayın Doç. Dr. Haluk YÜCEL'e teşekkür ederim.

Deneysel çalışmalarım sırasında, elde edilen gama spektrumlarının değerlendirilmesinde yardımcı olan ve desteklerini esirgemeyen ANAEM Nükleer Fizik Bölümü araştırmacılarından Sayın Dr. İsmet ÇELENK'e, Sayın Dr. Halil DEMİREL'e ve Sayın Dr. M.Atif ÇETİNER'e teşekkür ederim. Ayrıca çalışmalarım sırasında her zaman yanımda olan ve büyük bir sabırla bana destek veren eşim Meral ŞAFAK ERGİN'e teşekkür ederim.

ÇİZELGELERİN LİSTESİ

Çizelge	Sayfa
Çizelge 2.1. Dört radyoaktif seri	25
Çizelge 3.1. Ters elektrotlu saf germanyum (REGe) dedektörün özellikleri	35
Çizelge 3.2. Enerji kalibrasyonu için uygun radyoizotoplar	38
Çizelge 4.1. Kalibrasyon için kullanılan sertifikalı radyoaktif standart kaynak	46
Çizelge 4.2. Ters elektrotlu germanyum (REGe) dedektörün verim değerleri	47
Çizelge 4.3. Gama spektrometrik ölçümleri yapılan sertifikalı uranyum numuneleri	50
Çizelge 4.4. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için S-1 referans uranyum malzemelerinin (ağırlık yüzdeleriyle birlikte) kütle soğurma katsayıları	54
Çizelge 4.5. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için S-3 referans uranyum malzemelerinin (ağırlık yüzdeleriyle birlikte) kütle soğurma katsayıları	55
Çizelge 4.6. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için BL-2 referans uranyum malzemelerinin (ağırlık yüzdeleriyle birlikte) kütle soğurma katsayıları	56
Çizelge 4.7. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için BL-4 referans uranyum malzemelerinin (ağırlık yüzdeleriyle birlikte) kütle soğurma katsayıları	56
Çizelge 5.1. Sertifikalı referans uranyum numunelerinin malzemelerin gama spektrometrik ölçüm sonuçları	59
Çizelge 5.2. S-1 ve S-3 numunelerinde 46.5 keV, 63.3 keV ve 1001 keV enerjili gama ışınları için öz-soğurma faktörleri	60

Çizelge 5.3.	BL-2 ve BL-4 numunelerinde 46.5 keV, 63.3 keV ve 1001 keV enerjili gama ışınları için öz-soğurma faktörleri	60
Çizelge 5.4.	Sertifikalı referans uranyum numunelerinin gama spektrometrik ölçüm sonuçları (öz-soğurma düzeltmesi yapılan)	61
Çizelge 5.5.	^{234m}Pa 'in 1001 keV gama ışınının çıkış şiddeti	62
Çizelge 5.6.	Sertifikalı uranyum malzemeleri için ^{238}U 'in bozunma zincirinde yakın ve uzak kız çekirdekleri arasındaki denge durumları	65



ŞEKİLLERİN LİSTESİ

Şekil		Sayfa
Şekil 1.1.	$^{238}\text{U} - ^{234\text{m}}, ^{234}\text{Pa} - ^{234}\text{U}$ zincir bozunma şeması	5
Şekil 2.1.(a)	^{238}U 'in bozunma şeması	13
Şekil 2.1.(b)	^{234}Th 'ün bozunma şeması	14
Şekil 2.2.	^{238}U 'in bozunma serisi	27
Şekil 3.1.	Gama ışınlarının madde ile etkileşimi	29
Şekil 3.2.	Gama spektrometresinin prensip şeması	33
Şekil 3.3.	Kullanılan REGe dedektör ve Ge kristaline elektrot bağlanma düzeni	36
Şekil 3.4.	Pik alanı hesaplama yöntemi	39
Şekil 4.1.	REGe dedektörlü gama sayım sistemi	45
Şekil 4.2.	Ters elektrotlu germanyum dedektör verim eğrisi	48
Şekil 5.1.	BL-3 No:11 numunesine ait gama spektrumu	72
Şekil 5.2.	63.3 keV (^{234}Th) enerji değeri için aktivite-konsantrasyon grafiği	63
Şekil 5.3.	1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) enerji değeri için aktivite-konsantrasyon grafiği	64

SİMGELER VE KISALTMALAR

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

Simgeler	Açıklama
A	Aktivite, kütle numarası, kanal sayısı,relatif sayım hatasının tersi
akb	Atomik kütle birimi
B	Ortalama sayım miktarı, doğal fon sayımı
Bq	Bequerel
Ci	Curie
D	Bozunma faktörü
DL	Dedeksiyon sınırı
dc	Doğru akım
e	Elektron
eV	Elektronvolt
E	Enerji
E_B	Bağlanma enerjisi
E_C	Coulomb enerjisi
E_γ	Gama ışını enerjisi
g	Gün, gram
GBq	Gigabecquerel
I	Şiddet
I_γ	Bozunma başına yayınlanan foton sayısı
K	Fotopik uç noktalarındaki sayım
keV	Kilo elektron volt
m	Kütle
MeV	Milyon elektron volt
N	Çekirdek sayısı, fotopik alanında ilgilenilen kanal sayısı

N_A	Avagadro sayısı
N_0	$t = 0$ anındaki çekirdek sayısı
$N(t)$	t anındaki çekirdek sayısı
p	Proton
ppm	Milyonda bir (Part Per Million), $10^{-6} \text{ g/g} = 1 \mu\text{g/g}$
S	Pikin net alanındaki belirsizlik
s	Saniye
t	Zaman
$t_{1/2}$	Yarı ömür
t_c	Sayım süresi
v	Volt
X_a	a. Kanaldaki sayım miktarı
X	Kanal numarası
Z	Atom numarası (Proton sayısı)
α	Alfa parçacığı (Helyum çekirdeği)
β	Beta parçacığı
γ	Gama ışını
ε	Dedektör verimi (İlgilenilen enerjide tüm-enerji pik verimi)
λ	Radyoaktif çekirdek bozunma sabiti
τ	Ortalama ömür

Kısaltmalar

ADC	Analog to Digital Converter
ANAEM	Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi
DC	Doğru Akım
DPT	Devlet Planlama Teşkilatı
Ge (Li)	Lityum Sürüklenmiş Germanyum Dedektör
HPGe	Yüksek Safılıkta Saf Germanyum Dedektör
MCA	Çok Kanallı Analizör

MTA	Maden Tetkik ve Arama
Nal (TI)	Talyum Katkılı Sodyum Iyodür Dedektörü
RAM	Random Access Memory (Rastgele Erişilebilir Hafıza)
ROM	Read Only Memory (Sadece Okunabilir Hafıza)
REGe	Ters Elektrotlu Germanyum Dedektör
CRM	Sertifikalı Referans Malzemeler
NIM	Nuclear Instrument Modules (NIM Standardına uygun elektronik cihaz birimleri)



1. GİRİŞ

1939 yılında, atom çekirdeğinin parçalanması (filyon) olayının keşfinden sonra, stratejik öneme sahip olduđu görölen uranyum malzemesi üzerindeki çalışmalar, aralıksız süregelmektedir [1]. Bilindiğı gibi, uranyumun filyonunda ortaya çıkan çekirdek enerjisinin gücü, II. Dünya savaşında Japonya'daki Nagasaki ve Hiroşima'ya atılan atom bombalarının oluşturduđu etkiyle denenmiştir. Ancak, bu denemeyi, barışcıl amaçlarla nükleer enerjiden yararlanmak için "filyon reaksiyonunun" kontrollü bir şekilde gerçekleştirildiğı nükleer reaktörlerin kurulması izlemiştir. Yakıt olarak uranyum, toryum veya plutonyum malzemelerinin kullanıldığı nükleer reaktörler, günümüzde ekonomik yarar sağlayan amaçlar (örneğin, ısı veya elektrik enerjisi üretimi, denizaltılar ve buz kırıcılarda motor gücü elde edilmesi gibi) için kullanılmaktadır. Doğal uranyum (%0.72 ^{235}U içeriğıyle), %2-3 oranında ^{235}U izotopunca zenginleştirilerek termal reaktörlerin yakıt malzemesi olarak kullanıldığı gibi, doğal UO_2 'ye %15-20 PuO_2 ilave edilerek hızlı üretken reaktörlerin yakıtı olarak da kullanılmaktadır. Diğer taraftan, zenginleştirme teknikleri ile ^{235}U 'in %90 ve daha fazla zenginleştirilmesiyle veya reaktörlerde, ^{232}Th ve ^{238}U üretken çekirdeklerin, termal nötronları yakalaması sonucu oluşan ^{233}U , ^{239}U 'dan ^{239}Pu eldesiyle veya yüksek zenginlikteki ^{235}U , araştırma reaktörlerinde ve özellikle atom bombası yapımında kullanıldığı bilinmektedir.

Doğal uranyumun, termal nötronlarla (0,025 eV enerjili) kolayca parçalanabilir (fissile) izotopu ^{235}U (%0.72 bollukta ve uzun yarı-ömürlü = 7.038×10^7 yıl) ile yüksek enerjili (≈ 1 MeV'den daha yüksek) nötronlarla filyona uğratılabilen üretken (fertile) izotopu ^{238}U (%99.2745 bollukta ve daha da uzun yarı-ömürlü = 4.468×10^9 yıl) iki temel izotopu vardır. Bu izotopların her ikisi de alfa bozunumu yapan radyoaktif çekirdeklerdir.

Çevredeki radyoaktivitenin en belirgin kaynaklarından birisi, doğanın

kendisidir. Bu nedenle, yerkürenin oluşumundan itibaren var olan $^{235,238}\text{U}$, ^{232}Th , ve ^{40}K gibi radyoaktif nüklitler, giderek artan çevre araştırmalarının çoğunda araştırma konusu olmaktadır. Özellikle, maden jeolojisi sahalarında doğal olarak var olan potasyum gibi, uranyum ve toryum bozunma zincirinden üreyen radyoaktif çekirdekler önemlidir. Yerkürede radyoaktif çekirdeklerin uzun dönemdeki göç hareketlerinin tahmin edilmesi için en kullanışlı yöntemlerden birisinin uranyum serisi bozunma ürünleri veya fisyon ürünleri kullanılarak yapılan modelleme-doğal analogi (natural analogue) çalışmaları olduğu bilinmektedir [2,3,4].

Ayrıca son yıllarda, özellikle U, Th ve K gibi elementleri çok az miktarlarda bulunduran malzemelerin araştırılıp bulunması ve üretilmesi gereksinimi ortaya çıkmıştır. Düşük radyoaktivite içeren malzemelere, zırhlama, gıda üretimi, çimento gibi yapı elemanları üretimi ve diğer çeşitli alanlarda artan bir ihtiyaç söz konusudur. Bu nedenle, uygulanan radyoaktivite ölçme tekniklerinin, düşük seviyeli aktiviteyi ölçebilme yetenekleri ve dolayısıyla dedeksiyon sınırlarının bilinmesi de önemlidir. Nükleer alanda, nükleer yakıt olarak kullanılan uranyumun, maden cevheri olarak çıkarılmasından, cevherin işlenmesinden, reaktör yakıtı olarak kullanılmasından ve kullanılmış yakıtların nihai olarak depolanmasına kadar geçen “nükleer yakıt çevriminin” tüm aşamalarında, uranyum konsantrasyonu veya aktivitesi ölçülmesi gerekmektedir. Bunun için hızlı, pratik ve doğru sonuç veren teknikler kullanılmasına ihtiyaç duyulmaktadır [5].

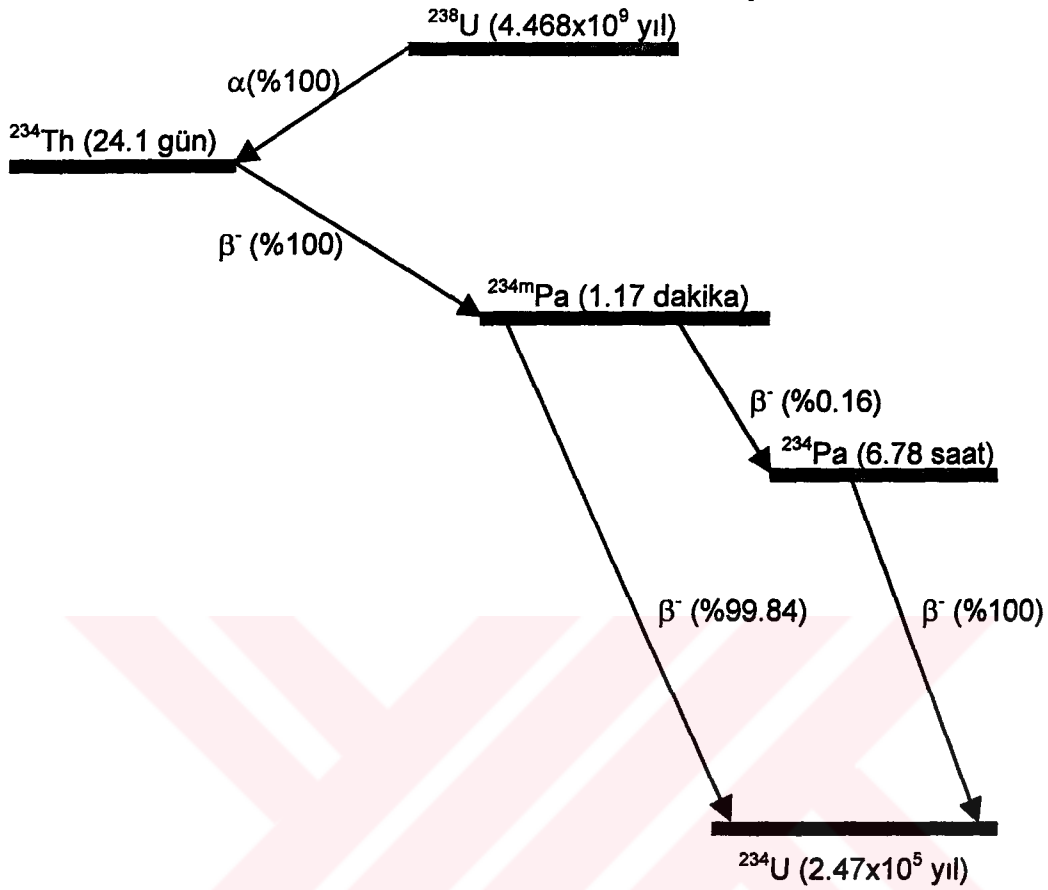
Günümüzde, herhangi bir numunede uranyum veya toryum aktivitesinin (veya konsantrasyonunun) ölçülmesi için en kullanışlı teknik, gama spektrometrik yöntemdir. Uranyum ve alfa yayınlı bozunma ürünlerinin ölçülmesi için, belirli radyokimyasal ayırma işlemlerini takiben uygulanabilen alfa spektrometresi geçmişte yaygın olarak kullanılmıştır. Ancak, alfa spektrometrik yöntem çok karmaşık işlemleri ve uygulanması uzun analiz zamanını gerektirmesi nedeniyle pratik değildir [6,7]. Buna karşılık, gama

spektrometresi basit, tahribatsız, hızlı ve güvenilir bir yöntem olması nedeniyle daha çok uygulanmaktadır. Ayrıca bu yöntem, aynı anda birden fazla radyoaktif çekirdek için numuneden veri alınmasını ve bu verilerin eş zamanlı analiz edilebilmesi imkanını sağlamaktadır. Bu yüzden, numunedeki uranyum ve toryumun nicel analizinde (örneğin kayaç numunelerindeki uranyum miktarının mutlak tayini için), yüksek çözme güçlü gama spektrometrik yöntem uygulanmıştır [8,9]. Gama spektrometrik teknikte, analizci, numunedeki ^{235}U içeriğinden bağımsız olarak ^{238}U miktarını ölçmek istediğinde, ^{238}U izotopunun çok zayıf bir gama ışını, 49,55 keV (%0,064) yani, hem enerjisi hem de şiddeti düşük bu ışını yayınlaması sorunuyla karşılaşmaktadır. Bu nedenle ^{238}U 'den doğrudan yayınlanan 49,55 keV'lik gama ışını ölçülerek, ^{238}U tayini mevcut dedektörlerle mümkün değildir. Dolayısıyla, ^{238}U 'in doğrudan gama ışını spektrometrik ölçümlerinde, ilk çalışmalar [10,11], verimi yüksek, ancak enerji çözme gücü düşük NaI(Tl) sintilasyon dedektörleriyle, uranyum bozunma zincirindeki ^{210}Pb , ^{214}Pb ve ^{214}Bi gibi ana çekirdekten daha uzak bozunma ürünleri (daha düşük atom numaralı ürünler) kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Geçmişte, NaI(Tl) dedektörlü sistemlerle ^{226}Ra , ^{228}Ra ve ^{238}U 'in diğer bozunma ürünlerinin suda, toprakta, kömürde, külde ve sediment numunelerinde ölçümleri yapılmıştır [12,13]. Ancak son yıllarda, düşük atom numaralı ürünler kullanılarak NaI(Tl) dedektör sistemleriyle yapılan uranyum analizlerin yeterli doğrulukta olmadığı bilinmektedir. Çünkü, bir çok halde, doğada (doğal sistemde) bu ürünler arasında radyoaktif denge, jeolojik farklılıklar nedeniyle oluşmamaktadır. Bu yüzden radyoaktif denge durumu önceden tayin edilmemiş numunelerde, ^{210}Pb (46.5 keV), ^{214}Pb (352 keV) ile ^{214}Bi (609 keV) gibi uzak ürünlerin temel gama piklerini kullanarak yapılan ölçümler yanlış sonuç vermektedir. Bu tür çalışmalarda, ^{226}Ra veya ^{214}Bi 'ün ürünleri ile ^{238}U arasında sürekli (kalıcı) bir denge olduğu varsayılarak numunelerdeki konsantrasyonlar tayin edilir.

Bu varsayım, ürünlerin yer-kimyası davranışlarındaki farklılıklar (geochemical behavior) sonucu veya çok uzun ömürlü ürün (kız) çekirdekler yüzünden meydana gelebilecek “denge bozulması (disequilibrium)” durumlarının varlığında, geçerliliğini kaybeder. Son zamanlarda yüksek çözme güçlü saf germanyum dedektörler geliştirildiğinden ölçümlerin doğruluğu da önemli ölçüde artmıştır. Böylece, uranyum ölçümünde ^{238}U 'in uzak ürünlerinin (^{214}Pb ve ^{214}Bi) temel piklerinin (352 keV ve 609 keV) kullanımı tercih edilmemektedir. Çünkü; ^{226}Ra 'nın kız (ürün) çekirdeği ^{222}Rn (asalgaz) numune kabından kaçma olasılığı mümkündür. Dolayısıyla radyoaktif denge bozulmaktadır. 3.8 gün yarı ömre sahip olan ^{222}Rn 'un numune kabından kaybının önlenmesi için sıkıca kapatılması ve ^{238}U serisi çekirdeklerle dengeye ulaşması için gerekli en az 3 hafta, numunenin kap içinde bekletilmesiyle sağlanacak çözümlerin de pratik olmadığı anlaşılmıştır [45].

^{238}U 'in kendisinden yayınlanan doğrudan ölçülebilir herhangi bir gama ışını olmadığından ve ^{238}U 'in kalıcı radyoaktif denge varsayımına izin verilmediği durumlarda ^{238}U 'in gama spektrometresi ile ölçümünü tam doğrulukla yapmak için ^{238}U ile onun bozunma ürünleri arasındaki radyoaktif dengenin kurulması zorunludur. Bu şart, ^{238}U 'in ilk üç ürününden ilk önce, birincisi olan ^{234}Th (24.1 gün), sırasıyla, $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (1.17 dakika) ve ^{234}Pa (6.78 saat) arasında gerçekleşir (Şekil 1.1).

Şekil 1.1'de görüldüğü gibi bu ilk üç ürün çekirdeğin her birinin yarı ömrü ^{238}U ile kıyaslandığında çok kısadır. Dolayısıyla radyoaktif denge hızlı bir şekilde elde edilir. Örneğin; ilk ürün ^{234}Th , ^{238}U ile yaklaşık 168 günde radyoaktif dengeye ulaşır (Bölüm 2.7.2, “Eş. 2.18”). Diğer bir deyişle; bu ürün çekirdekler (^{234}Th , ^{234}Pa , $^{234\text{m}}\text{Pa}$), ^{238}U ile sürekli dengededirler. Bozunma zincirinde ^{226}Ra 'nın kız (ürün) çekirdeğin ^{222}Rn (asalgaz) numuneden kaçmasıyla bozulan radyoaktif denge hallerinde uzak ürünler (^{214}Pb , ^{214}Bi) kullanılarak yapılan ölçümlerde söz konusu olan hatalar giderilmiş olmaktadır.



Şekil 1.1. $^{238}\text{U} - ^{234\text{m}}, ^{234}\text{Pa} - ^{234}\text{U}$ zincir bozunma şeması [17]

^{234}Th 'ün analitik amaçlı kullanılabilecek pikleri 63.3 keV ile 93.3 keV'dir [9,14]. Ancak, NaI(Tl) sintilasyon dedektörleri bu düşük enerji bölgesinde bu gama ışınlarını diğer gama ve X-ışınlarından ayırabilme kabiliyetine (enerji çözme güçleri zayıf olduğundan) sahip değildir. Bu durumda, analizci,şayet yüksek çözme güçlü yarı iletken germanyum dedektör kullanıyor olsa bile, başka bir sorunla yüz yüze gelmektedir. Bu sorun, ^{234}Th 'ün 93 keV'lik pikinin çiftlenimli (doublet) olmasıdır. Çünkü, ^{234}Th 'ün 93 keV'lik gama yayını gerçekte 92.370 keV (%2.61) ile 92.793 keV (%2.58) ışınlarından meydana gelmektedir [15]. Ayrıca bu enerjide numune içerisinde toryum bulunması halinde toryumun (K) X-ışını piki 93 keV olarak ilâve katkı yapar. Dolayısıyla analitik amaçlar için 93 keV enerjili pik kullanılamaz [9].

Ancak, ^{234}Th 'ün 63.3 keV (%4.5) piki uranyum analizi için özellikle yüksek çözme gücüne sahip germanyum dedektörlü, düşük enerjili foton spektrometreleri kullanıldığından, daha temiz bir pik olarak kullanışlıdır. Bununla birlikte 63.3 keV pikine, numunede toryum safsızlığı varsa ^{232}Th 'den yayınlanan 63.9 keV (%0.255) ve ^{231}Th 'den yayınlanan 63.9 keV (%0.023) ile ^{234}Th 'den yayınlanan 62.9 keV (%0.018) enerjili ışınlardan katkılar olması söz konusudur [16]. Bu katkılardan ^{231}Th , ^{235}U 'in bir ürün çekirdeği olduğundan bunun piki 63.9 keV'in özellikle ^{235}U izotopunca yüksek derecede zenginleştirilmiş numuneler için önemli bir katkısı olabilir. Ancak doğal numunelerde ^{235}U konsantrasyonu çok düşük (%0.71) olduğundan, ^{231}Th 'in katkısı ihmal edilebilir.

Bu çalışmanın amacı, herhangi bir katı numunedeki uranyum miktarının doğrudan gama spektrometrik metot ile ölçülmesinde, düşük gama enerji bölgesinde (40-100 keV) verimi yüksek ters elektrotlu bir Ge dedektörle, ^{238}U ile sürekli radyoaktif dengede olan birinci ve ikinci ürünlerinden (^{234}Th) 63.3 keV ile ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) 1001 keV fotopikler kullanılarak daha doğru sonuçlar elde edilebileceğini göstermektir. Araştırmanın sonucunda, REGe dedektörlü Düşük Enerjili Foton Spektrometresi kullanıldığında, toryum safsızlığı fazla olan numunelerde $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 'in 1001 keV'lik piki kullanılarak uranyum tayininin daha doğru sonuç verdiği ve 1001 keV pik sonuçlarında öz-soğurma etkisinin ihmal edilebilir olduğu ile özellikle toryum safsızlığı düşük numunelerde 63.3 keV (^{234}Th) pikinin uranyum tayini için kullanılmasının daha kullanışlı ve doğru sonuç vereceği, ancak numunenin kalın olması halinde 63.3 keV pik için öz-soğurma düzeltilmesi yapılması gerektiğini vurgulayan bir gama spektrometrik metot sunulmuştur.

Bu tez çalışması, ANAEM (Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi) Nükleer Fizik laboratuvarındaki deneysel imkânlar kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Bu laboratuvarda yapılan uranyum ölçüm metodu geliştirilmesi çalışmasının devamı niteliğindedir [17].

Çalışmanın giriş bölümünde, uranyum malzemesinin stratejik önemi ve analizi için uygulanan analitik yöntemlerden söz edilmiştir. Bu tezin araştırma kapsamındaki, gama spektrometrik tekniğin uranyum analizine uygulanması, araştırmanın gerekçesi ve amacı açıklanmıştır. Tezin giriş bölümünden başka dört bölümü vardır. Bölüm-1’de bu araştırmanın temeliyle ilgili olan; radyoaktivite, radyoaktif parçalanma ve radyoaktif denge ve radyoaktif seriler açıklanmıştır. Bölüm-2’de gama spektrometresi, gama spektrumlarının değerlendirilmesinden söz edilerek, kullanılan germanyum dedektörün özellikleri ve sistemin enerji, verim kalibrasyonu açıklanmıştır. Bölüm-3’de kullanılan deneysel düzenek ve ölçümler gösterilmiştir. Bölüm-4’de ise sonuçlar tartışılmıştır.



2. TEORİ

2.1. Uranyum ve Özellikleri

Uranyum, nükleer enerji üretiminde nükleer reaktörlerin yakıt malzemesi olarak kullanılmaktadır. Doğada, çok sayıda uranyum minerali oluşmuştur. Bunlardan bazıları; pitchblende, uraninite, carnotite, autunite, uranophane, davidite ve tobernite olarak adlandırılır. Ayrıca uranyum, fosfat kayalarında, linyit ve monazite kumları içinde de bulunmaktadır. Yerkabuğu, ortalama 4 ppm uranyum, 20 ppm toryum içeriğine sahip bulunmasına rağmen, uranyum ve toryum cevher yatakları diğer maden yataklarına kıyasla daha az sayıda yatak oluşturlar. Bu 4 ppm uranyum, diğer elementler içinde dağılım frekansı bakımından 50'nci sırayı almaktadır. Örneğin; uranyum, doğada demirden 10.000 defa daha az, altından 1000 defa daha fazladır. Yine de uranyum nadir element değildir. Civa, antimon, gümüş ve kadmiyumdaki daha fazla bolluğudur. Buna rağmen, uranyum diğer cevher yataklarından zor şartlarda konsantre olmakta, dolayısıyla daha az sayıda yatak oluşturmaktadır [19].

En önemli uranyum minerali, pitchblende, $U_3O_8(UO_2 \cdot 2H_2O)$ 'dir. Carnotite uranyum minerali, $K_2(UO_2)_2(VO_4) \cdot 3H_2O$ 'de doğada yaygın olarak bulunmaktadır. Cevherden uranyum metalinin eldesi, 1841 yılında Peligot tarafından potasyumlu susuz (anhydrous) klorlu bileşikler kullanılarak gerçekleştirilmiştir [18,19]. Uranyum metal, $CaCl_2$, $NaCl$ tuzlarında çözündürülmüş Na_2UCl_6 gibi bileşiklerin KUF_5 veya UF_4 'ün elektroliziyle üretilmektedir. Uranyum, yüksek sıcaklıklarda uranyum oksitleri, alüminyum, karbon veya kalsiyumla indirgenerek ya da uranyum tuzları (uranyum halides), alkali veya alkaline metallerle indirgenerek de elde edilebilmektedir. Uranyum metal, koyu gümüş beyazı, UO_2 siyah, U_3O_8 şekli ise koyu zeytin yeşili görünümündedir. Uranyum metal, havada oksit tabakasıyla kaplanır, asitlerde çözünür, fakat alkali bileşiklerden etkilenmez.

Uranyum, atom numarası 92, atom ağırlığı 238.0289 g/mol, yoğunluğu $\sim 18.95 \text{ g/cm}^3$ ve bütün izotopları radyoaktif olan bir elementtir. Erime noktası, $1132 \pm 0.8 \text{ }^\circ\text{C}$ 'dir [18,20].

2.2. Türkiye'deki Uranyum Cevheri

Türkiye'de uranyum aramalarına 1990 yılı sonuna kadar devam edilmiş ve 5 yatakta toplam 9,129 ton görünür uranyum rezervi ortaya konulmuştur. Bu yatakların ortalama tenör ve rezervleri, aranıp bulundukları yıllarda dünyaca kabul edilen ekonomik sınırlarda olmalarına rağmen, bugün için, bu değer söz konusu sınırların oldukça altında kalmıştır. Bunun nedeni, son yıllarda nükleer santral plânlamalarındaki önemli değişimler ve özellikle Kanada ve Avustralya'da yüksek tenörlü, üretim maliyetleri çok düşük uranyum yataklarının bulunmasıdır.

Türkiye'de geçmiş dönemlerde, laboratuvar çapında da MTA tarafından önemli teknolojik çalışmalar yapılmıştır. Uranyum cevherinden sarı pasta üretilmesi ve sarı pastanın (yellow cake: %70 U_3O_8 konsantrasyon) nükleer yakıt haline getirilmesinin ön aşamaları gerçekleştirilmiştir. Ülkemizin durumuna bakıldığında, elektrik üretiminde kullanılabilecek yüksek kalorili büyük kömür rezervlerimiz, zengin petrol ya da doğal gaz kaynaklarımız yoktur. Ayrıca hidroelektrik potansiyel kullanımı da doyum noktasına gelmek üzeredir. 2000'li yıllarda karşılaşılabilecek enerji sıkıntısını aşabilmek için nükleer enerji kullanımı alternatif bir seçenek olarak gözükmemektedir [44]. Bunun yanı sıra "yenilenebilir" enerji kaynaklarından özellikle "en temiz" atıksız ve kaynağı bedava olan "güneş enerjisi" ise dünyada teknolojik geliştirmesi hızla devam eden bir seçenektir. Henüz konvansiyonel elektrik enerjisi üretim santralleriyle (fosil yakıtlı, nükleer veya hidroelektrik) ticari anlamda rekabet edilebilir olmayan "güneş enerjisi" sistemleri gelecekte yaygın kullanılacaktır [21].

Uranyumun diğer madenler gibi kolayca alınıp satılamaması, ülkeler arasındaki bazı anlaşmalara ve de uluslararası denetime bağlı olması nedeniyle, nükleer santral kuran veya kurmayı plânlayan ülkeler, kendi uranyum kaynaklarını bularak değerlendirmeyi amaçlamaktadırlar. Uluslararası piyasalarda, sarı pastanın en az %60 uranyum içermesi istenmekte ve arıtılmış bir uranyum bileşiğinde, diğer elementlerin toplamının, 1 gr uranyum için 300 ppm'den fazla olmaması gerekmektedir. Sarı pasta üretim tesislerinde, asit, baz ve radyasyon tehlikesinden ziyade, asit prosesi sırasında, cevherdeki radyumun çözünerek ana çözeltiye geçmesi ve atık sularla çevreyi kirletmesi tehlikesi de önemlidir. Radyumun çöktürülmesi ve seviyesinin kontrolü için tesislere oldukça pahalı sistemler ilâve edilmektedir [44].

Türkiye'de uranyum cevheri bulunma olasılığı fazla olan sahalarda daha önceki yıllarda belirlenmiştir. Ancak son yıllarda, arama faaliyetlerini sürdüren tek kuruluş olan MTA, finansal kaynak yetersizliği nedeniyle, bu sahalarda yapılması gerekli çalışmaları sürdürememektedir [44].

2.3. Radyoaktivite

1898 yılında bayan Marie Curie ve eşi Pierre Curie yaptıkları deneylerde, bazı maddelerin radyoaktif olduklarını keşfetmişlerdir. Uranyum tuzundan başka bazı maddelerinde radyasyon yayınladıkları gözlemlendi. Herhangi bir dış etki olmaksızın kendi kendine durmadan radyasyon yayınlayan maddelere radyoaktif maddeler, yayınlanan ışınlara radyoaktif ışınlar veya radyasyon bu olaya da "radyoaktivite" adı verilmiştir [22]. Bir maddenin radyoaktifliği, onun doğrudan doğruya atom çekirdeğinin özelliğinden ileri gelir, yani maddenin kimyasal durumuna bağlı değildir [26]. Bir numunenin radyoaktifliği (veya aktifliği) fiziksel ve kimyasal değişimlerden etkilenmez. Yani basınç, hacim, sıcaklık ve kimyasal yapıdaki değişimler radyasyon yayınlama hızını değiştirmez. Radyoaktivitenin, atomların kendiliğinden parçalanmasına göre

olduğu ve böylece meydana gelen yeni nükleitlerin ana nükleitlerden çok farklı özelliklere sahip olabileceği fikri ilk olarak 1902'de E.Rutherford ve P.Soddy tarafından ileri sürüldü [22-25]. Rutherford'un alfa parçacıklarının saçılması ile ilgili meşhur çalışması dahil, sonraki tüm deneyler radyoaktifliğin, kararsız çekirdeklerin parçalanması sonucu meydana geldiğini gösterdi [27].

Radyoaktif elementlerin çekirdekleri durmadan ve dış etkiler olmaksızın kendi kendilerine parçalanıp ve bu arada parçacık veya ışınlar yayınlayarak, yeni çekirdeklere dönüşürler ve bu yeni çekirdekler de radyoaktif olursa bunlar da parçalanırlar. En sonunda radyoaktif olmayan kararlı bir çekirdeğin oluşumu ile radyoaktivite sona erer [24,26].

Atom çekirdeklerinin parçalanması her ne kadar kendiliğinden olan bir olay ise de aktivite birkaç saniye ile milyonlarca yıl arasında süren bir özelliktir. Radyoaktivitenin keşfinden sonra, radyoaktif çekirdeklerden yayınlanan radyasyonların özelliklerinin belirlenmesine yönelik çok sayıda araştırma yapılmıştır [22,25]. Rutherford tarafından gerçekleştirilen, bir çalışma sonucunda radyoaktif maddeden yayınlanan üç tip radyasyon alfa (α), beta (β) ve gama (γ) olarak adlandırılmıştır. Bu radyasyonlar, sahip oldukları elektrik yüküne, maddeye giriciliğine ve havada meydana getirdikleri iyonizasyona göre sınıflandırılmışlardır. Alfa (α) bozunmasından alfa parçacıkları yayınlanır. Alfa parçacıkları ${}^4\text{He}$ çekirdekleridir. Beta (β) bozunmasında ya elektron ya da pozitron yayınlanır. Gama bozunmasında gama ışını yayınlanır. Bunlar yüksek enerjili fotonlardır. Pozitron tüm özellikleri ile elektrona benzeyen bir parçacıktır (elektronun antimaddesi). Sadece elektrik yükü farklıdır, +e yüküne sahiptir. β^- ve β^+ sembolleri, sırasıyla beta bozunmasındaki yayınlanan elektron ve pozitronu temsil eder [22,23,27].

2.4. Gama Işınları ve Özellikleri

Atom yörüngelerindeki geçişlerden yayınlanan X-ışınları ve esas kaynakları çekirdek seviyelerindeki geçişler olan gama ışınları elektromanyetik radyasyonlardır. Çekirdeklerin yayınladığı gama ışınları elektromanyetik dalgalar olarak dalga boyları; $\lambda = 1 \text{ Å} - 0.05 \text{ Å}$ arasında değişir. Bir gama fotonunun enerjisi $E = h \nu$ bağıntısı ile yayınlanma frekansı (ν) ya da $\lambda = c/\nu$ dalga boyuyla ilişkilidir. Radyoaktif çekirdeklerin yayınladıkları gamaların enerjileri 12 keV–2.5 MeV arasında değişebilmektedir [24,28]. Gama ışınları da floresans meydana getirdikleri gibi (örneğin NaI(Tl) kristalinde) bir gazın iyonlaşmasına da sebep olurlar, ancak iyonizasyon etkileri α ve β yüklü parçacıklarından daha az derecededir. γ -ışınlarının girme gücü, β ışınlarından ~100 defa daha büyüktür. γ -ışınlarını santimetrelerce kalınlığındaki alüminyum levha durduramaz, fakat daha yüksek Z'li elementler, örneğin 10 cm'lik kurşun tuğlalar büyük bir kısmını durdurabilir.

Gama ışınları, yüksüz olduklarından elektrik ve manyetik alanda sapma göstermezler ve elektromanyetik dalgaların bütün özelliklerini gösterirler. Aslında γ -ışınları çok kısa dalgaboylu X-ışınlarıdır. Gama ışınları elektromanyetik dalga olduklarından ışık hızıyla giderler [22-24].

2.4.1. Gama bozunması

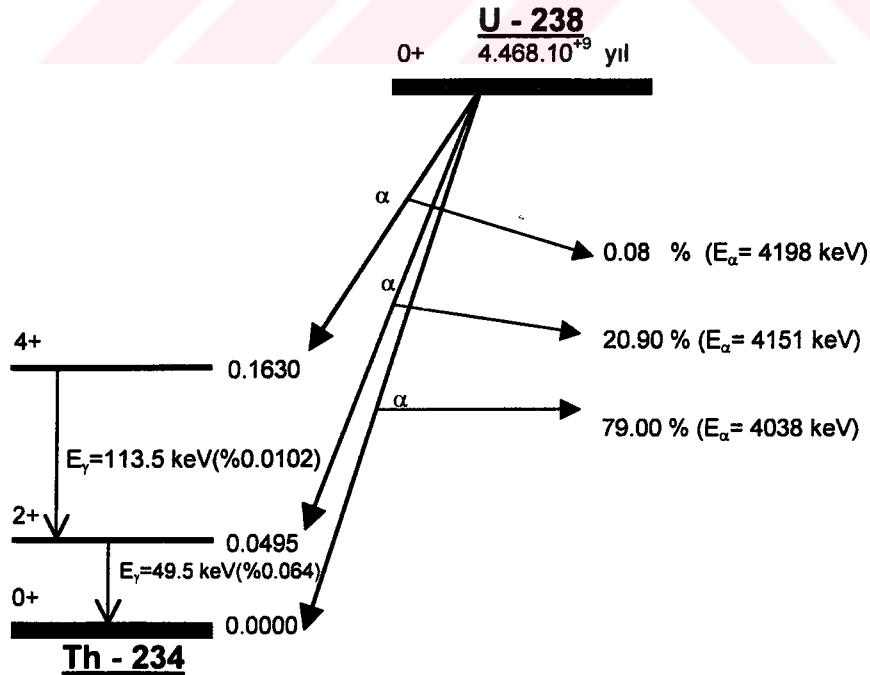
Bir çekirdekten alfa veya beta parçacığı gibi parçacık yayınlanması genellikle çekirdeği uyarılmış durumda bırakır. Daha düşük bir enerji durumuna ya da temel hale geçişten elde edilmesi mümkün olan enerji, ya başka bir parçacığın yayınlanmasına yetecek büyüklükte değildir, ya da parçacık yayınlanması ile bozunma o kadar yavaştır ki, elektromanyetik etkileşme ile yayınlanma etkin olmaktadır. Yüksek bir enerji durumundan (E_i) daha düşük bir enerji durumuna (E_f) geçen bir çekirdek fazla enerjiyi ($\Delta E = E_i - E_f$) şu üç yoldan biriyle dışarı atar; (a) Gama-ışını yayınlanması, (b) dahili dönüşüm,

(c) dahili çift oluşum. Bunlardan gama yayınlanması diğer iki işlemten daha sık görülür. Atomik spektrumda olduğu gibi, çekirdeklerin gama spektrumları keskin çizgilerden ibarettir ve bir çekirdek farklı enerji seviyelerine sahiptir. Yayınlanan gama ışınının enerjisi;

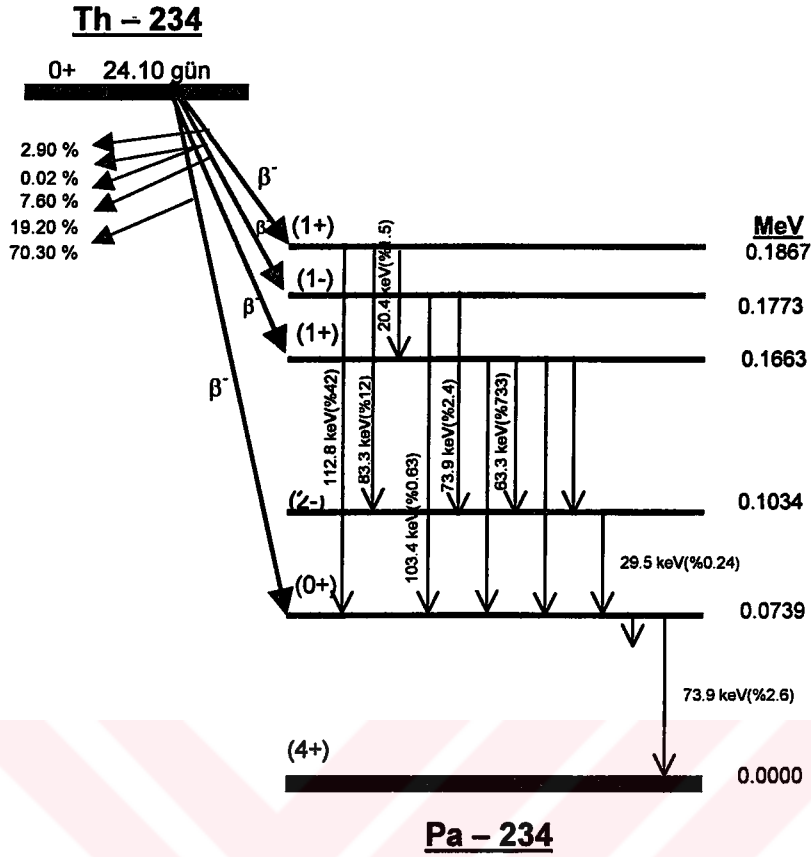
$$h\nu = \Delta E = E_i - E_f \quad (2.1)$$

bağıntısıyla verilir. Şayet E_f temel hale karşılık ise daha fazla foton yayınlanması mümkün olmayacaktır, ancak aksi halde çekirdek temel hale gitmeden önce bir veya daha fazla fotonlar yayınlayacaktır (Şekil 2.1).

Şekil 2.1.(a)'da α -bozunmasını ve Şekil 2.1 (b)'de beta bozunmasını müteakiben gama ışınlarının yayınlanması ($h\nu = E_i - E_f$) görülmektedir. ^{238}U ve ^{234}Th 'ün bozunma şemalarında yayınlanan gama ışınlarının enerjileri ve yayınlanma olasılıkları görülmektedir. Alfa ve beta bozunmasından farklı olarak, gama bozunması çekirdeğin atom veya kütle numarasında bir değişikliğe sebep olmaz. Alfa ve beta yayınlayıcılara kıyasla gama yayınlayıcılar çok küçük yarı-ömlere (10^{-12} s) sahiptirler [22,25].



Şekil 2.1.(a). ^{238}U 'ün bozunma şeması [29]



Şekil 2.1.(b). ^{234}Th 'ün bozunma şeması [29]

2.5. Radyoaktif Bozunma Kanunu

Bir atom çekirdeğinden bir alfa parçacığı, bir beta parçacığı, bir gamma ışını veya atom çekirdeğinin, yörünge elektronlarından bir elektron yakalaması şeklinde gerçekleşen olaylara radyoaktif bozunma kanunu adı verilir.

Deneysel ölçmeler göstermektedir ki, radyoaktif bozunma exponansiyel (üstel) bir kanuna göre olmaktadır. Şayet bozulmanın rastgele bir tabiata sahip olduğu kabullenirse, bu kanunun türetilmesi mümkün olur. Bu rastgele tabiat hangi anda hangi atomun bozunacağını bilinmesinin mümkün olmadığını ima eder. Hangi atomun ve dolayısıyla çekirdeğin ne zaman bozunacağı bilinmez, ancak toplam çekirdeklerin zamana bağlı olarak bozunma ihtimalleri ve dolayısıyla buna bağlı olarak sayıları bulunabilir.

Bozunmamış her bir çekirdeğin (veya bozunmamış atomun) gelecek bir saniye içindeki bozunma olasılığına λ denilirse ve aynı zamanda $\lambda \ll 1$ olduğunu kabul edilirse, istatistik teorisinin temel varsayımı λ 'nın zamandan ve mevcut diğer çekirdeklerin tip ve sayılarından bağımsız olmasını gerektirir. O halde bir dt zaman aralığında her bir atomun bozunma olasılığı $P(t) = \lambda \cdot dt$ olacaktır. Verilen bir t zamanında şayet N sayıda bozunmamış atom varsa dt gibi küçük zaman aralığında bozunacak olanların sayısı;

$$dN = -\lambda N dt \quad (2.2)$$

olur. Bu eşitlikten anlaşılacağı üzere kısa bir dt süresindeki bozunma sayısı bozunmamış atomların sayısı (N) ve dt zaman aralığıyla doğru orantılıdır. Baştaki eksi işareti (t) arttıkça N 'nin azaldığını göstermektedir. (2.2) bağıntısı;

$$-\frac{dN}{N} = \lambda dt \quad (2.3)$$

şeklinde yazılıp $t = 0$ iken radyoaktif atomların sayısının N_0 olduğu kabul edilerek integral alınırsa;

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2.4)$$

elde edilir. Burada $N(t)$, t anında mevcut radyoaktif atomların sayısını göstermektedir. "Eş.2.4"deki λ , radyoaktif çekirdeklerin bozunma ihtimaliyetini veya kısaca parçalanma sabitini (veya bozunma sabiti) ifade eder. Numunenin radyoaktivitesi veya aktivitesi,

$$\text{Aktivite} = \left| \frac{dN}{dt} \right| = \lambda N_0 e^{-\lambda t} = \lambda N \quad (2.5)$$

eşitliği ile verilir. Böylece bir numunenin aktivitesi, mevcut radyoaktif atomların sayısına (N) ve bozunma sabitine (λ) bağlı bir niceliktir [22,24].

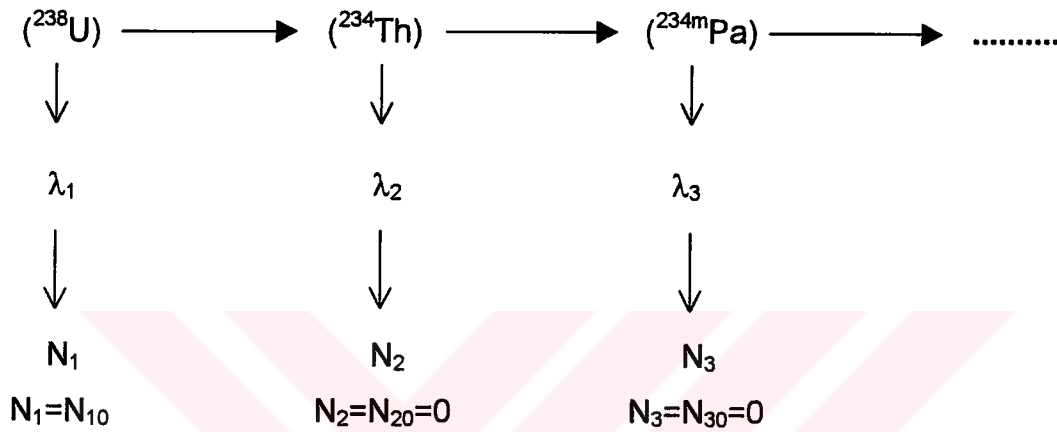
2.5.1. Radyoaktivite birimi

Radyoaktif numunede mevcut radyoaktif atomların sayısını bilmekten ziyade saniyede parçalanmış atom sayısı ile radyoaktiviteyi tanımlamak daha kullanışlıdır. Bu yüzden radyoaktivite birimi olarak, birim zamandaki parçalanma sayısı esas alınmıştır. Radyoaktivitenin eski birimi Curie'dir. 1 Curie, 1 gram radyum ile dengede bulunan radonun aktivitesi olarak tanımlanmıştır. 1 gram radonun bir saniyede 3.7×10^{10} tane alfa taneciği yayınladığı ölçülmüştür. Bugün, saniyede 3.7×10^{10} atomu parçalanmış herhangi bir radyoaktif madde miktarı, yayınladığı ışıma ne olursa olsun, 1 Curie olarak tanımlanmaktadır. Ancak, ölçme metodlarının gelişmesiyle, daha kesin ölçülen yarı-ömler nedeniyle 1 Curie (Ci)'lik aktivitenin tam 1 g radyum aktivitesine eşdeğer olmadığı hesaplanmıştır. En son ölçümlere göre $1 \text{ g } ^{226}\text{Ra} = 0,989 \text{ Ci}$ 'dir. Günümüzde ise daha yaygın olarak SI birim sistemindeki aktivite birimi olarak, saniyedeki bir parçalanmayı esas alan tanım, Becquerel birimi ($1 \text{ Bq} = 1 \text{ parçalanma/1 saniye}$) kullanılmaktadır. Radyoaktivite seviyelerine göre, $1 \text{ mCi} = 10^{-3} \text{ Ci}$; $1 \mu\text{Ci} = 10^{-6} \text{ Ci}$; $1 \text{ nCi} = 10^{-9} \text{ Ci}$ veya $1 \text{ kBq} = 10^3 \text{ Bq}$; $1 \text{ MBq} = 10^6 \text{ Bq}$; $1 \text{ GBq} = 10^9 \text{ Bq}$ birimleri yaygın olarak kullanılır [22,23,25].

2.6. Zincirleme (Peşpeşe) Radyoaktif Parçalanma Kanunu

Bir bozunma olayında ana radyoaktif çekirdek, başka bir ürüne bozunur. Şayet bu üründe radyoaktif ise bu da başka bir çekirdeğe bozunur ve bu böylece devam ederek ürünlerden birinin kararlı bir çekirdeğe dönüşmesi ile son bulur. Bu olaya "peşpeşe radyoaktif parçalanma kanunu" adı verilir. Bu peşpeşe parçalanma olayı hem tabii olarak bulunan radyoaktif çekirdeklerde hem de yapay olarak meydana getirilen radyoizotoplardaki bozunma şekillerinde meydana gelebilir. Genelde, radyoaktif ana izotopun belli sayıda atomlarıyla başlanmışsa verilen herhangi bir zamanda bozunma ürününün atomlarının sayısı şu şekilde hesaplanabilir.

Herhangi bir t anında, λ_1 bozunma sabitiyle ürüne bozunacak ana nüklit atom sayısı N_1 olsun. Ürün nüklit atomlarının sayısını N_2 ile gösterelim. Bunlar da λ_2 bozunma sabitiyle başka bir nüklite bozunacaklardır. λ_3 bozunma sabitiyle bozunacak nüklitlerin sayısı ise N_3 olsun. Bunlara ilaveten $t = 0$ iken $N_1 = N_{10}$, $N_2 = N_{20} = 0$ ve $N_3 = N_{30} = 0$ olduğunu kabul edilirse, zincirleme radyoaktif parçalanma aşağıdaki gibi temsil edilebilir;



Aktivite, saniyedeki bozunma sayısı olduğuna göre; $N_1({}^{238}\text{U})$, $N_2({}^{234}\text{Th})$ ve $N_3({}^{234\text{m}}\text{Pa})$ çekirdekleri için;

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (2.6)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (2.7)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \quad (2.8)$$

bozunma eşitlikleri yazılır. “Eş. 2.6” N_1 ’in bozunma hızını verir. “Eş. 2.7” N_2 tipindeki atomların $\lambda_1 N_1$ hızıyla üretildikleri ve $\lambda_2 N_2$ hızıyla bozunduklarını göstermektedir. “Eş. 2.8” ile N_3 atomlarının üretim hızı elde edilir.

$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$ eşitliğinin $t = 0$, $N_1 = N_{10}$ şartıyla integrali alınır;

$$N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad (2.9)$$

elde edilir. N_1 'in bu değeri "Eş. 2.7" da yerine konulacak olursa;

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2$$

veya

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad (2.10)$$

elde edilir. Bu bağıntının iki tarafı $e^{-\lambda_2 t}$ ile çarpılarak,

$$e^{\lambda_2 t} \frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 e^{\lambda_2 t} = \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} e^{\lambda_2 t}$$

veya

$$\frac{d}{dt} (N_2 e^{\lambda_2 t}) = \lambda_1 N_{10} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} \quad (2.11)$$

bulunur. Integral alınır;

$$N_2 e^{\lambda_2 t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} + C \quad (2.12)$$

elde edilir. Buradaki C integral sabitinin değeri, $t = 0$ da $N_2 = N_{20} = 0$ değeri yerine konularak,

$$C = -\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10}$$

şeklinde bulunur. C'nin bu değeri "Eş. 2.12" de yerine konulup her iki taraf $e^{\lambda_2 t}$ 'ye bölünürse;

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.13)$$

olur. Benzer şekilde (2.8) bağıntısı, $t = 0$ da $N_3 = N_{30} = 0$ şartıyla çözülürse,

$$N_3 = N_{10} \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} \right) \quad (2.14)$$

bulunur. Böylece (2.9), (2.13), (2.14) eşitlikleri yardımıyla herhangi bir t anında mevcut olan atomların sayısı bulunabilir. Bu eşitlikler, $t = 0$ da $N_1 = N_{10}$ ve $N_{20} = N_{30} = 0$ özel durumları için türetildi. Bundan sonra N_{20} ve N_{30} , $t = 0$ iken sıfır olmasalar bile N_1 , N_2 ve N_3 için genel bağıntılar aşağıdaki şekilde türetilebilir. Bu ifadeler;

$$N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad (2.15)$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{20} e^{-\lambda_2 t} \quad (2.16)$$

$$N_3 = N_{30} + N_{20} (1 - e^{-\lambda_2 t}) + N_{10} \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} \right) \quad (2.17)$$

şeklinde olacaktır.

2.7. Radyoaktif Denge Durumları

Bir radyoaktif bozunma sırasında oluşan bozunma ürünleri ayrılıp alınmazsa, belirli bir süre sonra bir üye hangi oranda parçalanırsa o kadar miktarda yeniden oluşacaktır, yani bu zaman sonunda radyoaktif sırada oluşan ve

bozunan radyoaktif nüklitler birbirine eşit olduğundan bunların miktarları artık değişmeyecektir. İşte, bu hale “radyoaktif denge” denir [26].

Radyoaktif denge durumunda zincirleme bozunma eşitliklerinin bazı özel durumları söz konusudur. Radyoaktif denge durumları;

1. Radyoaktif dengenin kurulmadığı durum ($\lambda_1 \gg \lambda_2$),
2. Geçici denge durumu ($\lambda_1 \cong \lambda_2$),
3. Sürekli denge durumu ($\lambda_1 \ll \lambda_2$)

şeklinde tanımlanabilir.

2.7.1. Radyoaktif dengenin kurulmadığı durum ($\lambda_1 \gg \lambda_2$)

$\lambda_1 \gg \lambda_2$ durumunda radyoaktif denge kurulamaz. Çünkü; ana çekirdeğin kız çekirdeğe göre çok daha kısa yarılanma sürelili olması halidir. Bunun anlamı, ana çekirdeklerin hepsinin ürün çekirdeğe bozunması demektir yani $(t_{1/2})_1 \ll (t_{1/2})_2$ olması demektir. Daha önceden türetilen “Eş. 2.13” tekrar yazılırsa;

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})$$

$$\frac{\lambda_2}{\lambda_1} \ll 1, \quad e^{-\lambda_1 t} \approx 0, \quad N_2 \Rightarrow (N_2)_{\max}, \quad t = t_{\max} \text{ yaklaşımı yapılarak,}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = 0$$

$$\frac{\lambda_1}{\lambda_2} = e^{(\lambda_1 - \lambda_2)t_{\max}}$$

$$t_{\max} = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \quad \text{olur ve} \quad e^{-\lambda_1 t} \ll e^{-\lambda_2 t}$$

N_2 atomları maksimumdan geçtikten sonraki bozunum davranışı,

$$e^{-\lambda_1 t} = \frac{1}{e^{\lambda_1 t}} \Rightarrow 0$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (0 - e^{-\lambda_2 t})$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1 N_{10}}{\lambda_1 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t}$$

eşitliği ile ana çekirdekten oluşan 2. kız nükleit sayısı zamanın fonksiyonu olarak ifade edilir.

2.7.2. Geçici denge durumu ($\lambda_1 \cong \lambda_2$)

Bir ana çekirdeğin λ_1 bozunma sabitiyle 1. ürüne bozunduğunu ve bunun da λ_2 bozunma sabitiyle bozunduğunu düşünelim. Bu iki tür çekirdeğin de ortalama ömürlerinin aynı mertebede olduğunu yani $\tau_1 \approx \tau_2$ dolayısıyla $\lambda_1 \approx \lambda_2$ olduğunu kabul edelim. Bu durumda 1. ürün atomlarının sayısı önce belirli bir maksimum değere ulaşır sonra bunlardan uzun ömürlü olanın bozunma hızıyla azalmaya başlar. “Eş. 2.13” tekrar yazılırsa,

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})$$

N_2 'nin maksimuma ulaştığı $t_{\max}$ değerlerini bulabiliriz. Bu eşitliğin t'ye göre türevi alınıp sıfıra eşitlenirse;

$$\frac{dN_2}{dt} = 0 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (-\lambda_1 e^{-\lambda_1 t_{\max}} + \lambda_2 e^{-\lambda_2 t_{\max}}) \quad \text{veya}$$

$$t_{\max} = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \ln \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \quad (2.18)$$

elde edilir. $t_{\max}$ zamanından sonra 1. ürünün bozunma hızına (dN_2/dt)'ye λ_1 ve λ_2 'den hangisi küçükse o etkili olacaktır. Şöyle ki;

1. Şayet $\lambda_1 < \lambda_2$ ise (ki bunun manası ana nüklitin ortalama ömrü 1. ürününkünden daha büyüktür). “Eş. 2.13” bağıntısında $e^{-\lambda_2 t}$ terimi $e^{-\lambda_1 t}$ teriminden daha süratli olarak sifıra ulaşacaktır ve dolayısıyla bu terim ihmal edilebilecektir. Böylece;

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (N_{10} e^{-\lambda_1 t})$$

veya

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (N_1) \quad (2.19)$$

ya da

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (2.20)$$

olacaktır. Halbuki 1. ürünün aktivitesinin ana nüklitin aktivitesine oranı,

$$\frac{dN_2 / dt}{dN_1 / dt} = \frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (2.21)$$

olur. “Eş.2.19” eşitliği 1. ürünün ana nüklitin bozunma hızıyla bozunduğunu gösterir. Yani; λ_1 , 1. ürünün elementinin bozunma hızını belirler. “Eş.2.20” eşitliği N_2/N_1 oranının sabit olduğunu ifade eder. Böyle bir durumda ana nüklele 1. ürünün elementinin geçici dengede olduğu söylenir.

2. Şayet $\lambda_2 < \lambda_1$ ise;

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{-\lambda_2 t} \quad (2.22)$$

olduğu gösterilebilir. Bu ise belirli bir zamandan sonra 1. ürün elementinin kendisi için belirlenmiş olan λ_2 bozunma sabitiyle bozunacağı anlamını verir. Tek zincirleme (ikili) bozunmadan daha çok bozunmalarda bile bu ifade geçerlidir. Belirli bir müddetten sonra ana nüklit bitecek ve 1. üründe kendi bozunma hızıyla bozunmasına devam edecektir.

2.7.3. Sürekli (kalıcı) denge durumu ($\lambda_1 \ll \lambda_2$)

Ana nüklitin yarı ömrü, 1. ürününkine kıyasla çok çok uzun ($\lambda_1 \ll \lambda_2$) olursa, bu durumda, $\lambda_2 - \lambda_1 = \lambda_2$ ve $e^{-\lambda_1 t} = 1$ olduğundan "Eş. 2.13" ile verilen,

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.13)$$

eşitliği,

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_{10} (e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.23)$$

eşitliği indirgenir. Bundan başka şayet t, 1. ürünün ortalama ömrüne kıyasla çok büyükse yani $t > 1/\lambda_2$ ise o zaman $e^{-\lambda_2 t}$ de 1'in yanında ihmal edilerek "Eş. 2.23" eşitliği,

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_{10} \quad (2.24)$$

şeklinde yazılır. Bu eşitlik, ana çekirdeğin parçalanmasından oluşan 1. ürün nüklit miktarının (N_2) sabit olduğunu gösterir. Bu durumda 1. ürün nüklitin ana nüklitle sürekli veya kalıcı dengede olduğu söylenir. Ana nüklitin yarı ömrü çok büyük olduğundan miktarı yaklaşık sabittir. ($N_{10} \cong N_1$) ve dolayısıyla,

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1$$

dir. Böylece kalıcı veya sürekli denge için şart;

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 \quad (2.25)$$

veya

$$\frac{N_1}{N_2} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} = \frac{\tau_1}{\tau_2} \quad (2.26)$$

şeklinde yazılabilir. “Eş. 2.26”da verilen bir zamanda iki madde miktarlarının bozunma sabitleriyle ters veya ortalama ömürleriyle doğru orantılı olduğu görülmektedir [22-25].

2.8. Doğal Radyoaktif Seriler

Doğal olarak bulunan nüklitlerden, atom numarası $Z = 81$ ile $Z = 92$ arasında bulunan nüklitlerin çok sayıda radyoizotopu vardır. Bunun sebebi yüksek atom numaralı (Z) nüklitlerde protonlar arasındaki Coulomb itmesinin bu elementleri daha az kararlı yapmasıdır. Bu Coulomb itmesinin etkisini azaltmak için, çekirdek α -bozunmasına maruz kalır ve böylece alfa parçacığı şeklinde iki proton ve iki nötronunu kaybeder. Birçok hallerde olduğu gibi çekirdek nötron yayınlamaktan ziyade elektron (veya beta ışını) yayınlatabilir. β yayınlaması işleminde toplam yükü korumak üzere bir nötron bir protona dönüşür. Bu, α ve β bozunma zinciri izotop kararlı bir duruma ulaşıncaya kadar devam eder. Böyle zincirleme bozunmalar tabiatta oluşan dört farklı radyoaktif seride gayet açıkça görülmektedir [22-25].

Radyoaktif çekirdekler genel olarak iki grupta sınıflandırılır.

1. Doğada kararsız çekirdekler, doğal radyoaktivite denen olaya sebep olanlar (U, Th, K gibi),
2. Laboratuvarlarda çekirdek reaksiyonlarının (çekirdeklerin parçacıklarla veya radyasyonla bombardıman edilmesiyle, nükleer fisyon, nükleer füzyon gibi) sonucunda elde edilen çekirdekler yani, yapay radyoaktivite gösterenler.

Doğal radyoaktif çekirdek ile başlayan üç seri vardır (Çizelge 2.1). Her bir seri, yarı ömrü ürünlerinin hepsinin yarı ömründen büyük olan uzun yarı ömürlü bir radyoaktif çekirdek ile başlar. Üç doğal seri, ^{238}U , ^{235}U ve ^{232}Th

izotoplarıyla başlar ve kurşunun üç izotopu ^{206}Pb , ^{207}Pb ve ^{208}Pb ile kararlılığa ulaşır. Çizelge 2.1'de verilen dördüncü seri, ^{237}Np ile başlar ve kararlı ^{209}Bi ile son bulur. ^{237}Np elementi uranyum ötesi (transuranyum) elementidir (atom numarası uranyumun $Z=92$ 'den büyük olan elementlerden), doğada bulunmaz. Bu elementin yarı ömrü 2.14×10^6 yıl'dır [20,27].

$Z = 81$ ile $Z = 92$ arasında olan ve tabii olarak bulunan radyoaktif izotoplar A kütle numaralarına bağlı olarak dört seriden birine dahildirler.

Çizelge 2.1. Dört radyoaktif seri [22,27]

Seriler	Başlangıç İzotopu	Yarı Ömrü (yıl)	Kütle Numarası (A)	Kararlı Son Ürün
Uranyum	$^{238}_{92}\text{U}$	4.47×10^9	$A = 4n+2$	$^{206}_{82}\text{Pb}$
Aktinyum	$^{235}_{92}\text{U}$	7.04×10^8	$A = 4n+3$	$^{207}_{82}\text{Pb}$
Toryum	$^{232}_{90}\text{Th}$	1.41×10^{10}	$A = 4n$	$^{208}_{82}\text{Pb}$
Neptünyum	$^{237}_{93}\text{Np}$	2.14×10^6	$A = 4n+1$	$^{209}_{83}\text{Bi}$

Burada n bir tam sayıdır. Bir alfa bozunmasında kütle dört birim ($\Delta A = 4$) değişeceğinden ve bir beta veya gama bozunmasında kütlede bir değişme olmayacağından bu gruplardan birinde başlayan bir bozunma işlemi tekrar aynı grupta bitecektir [22].

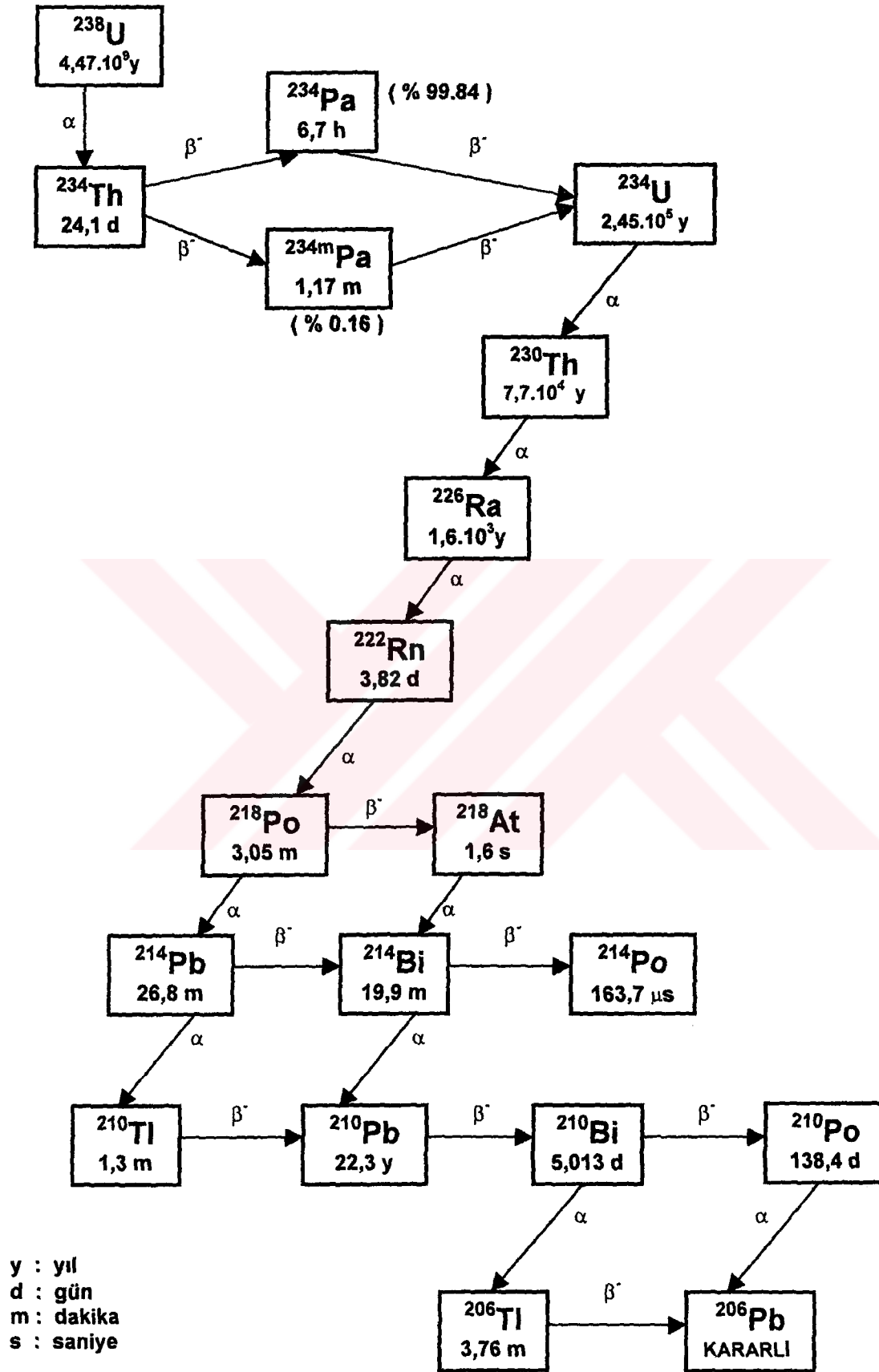
İki uranyum serisi, ^{232}Th serisinden daha karmaşıktır. Doğada, bu serilerin hiç birisinin üyesi olmayan ^{14}C (5730 yıl) ve ^{40}K (1.277×10^9 yıl) gibi çok sayıda doğal olarak meydana gelmiş radyonüklit vardır.

Radyoaktif serilerin doğadaki varlıkları, çevremizdeki radyoaktif elementlerin sabit çoklukta bulunmalarını sağlar. Aksi halde, özellikle kısa yarı ömürlü radyoaktif atomlar parçalanıp biterlerdi. Örneğin; güneş sistemi yaklaşık

5×10^9 yıl yaşındadır. Yarı ömrü 4.468×10^9 yıl olan ^{238}U ile başlayan seri olmalıydı, ^{226}Ra (yarı ömrü sadece 1600 yıldır) radyoaktif bozunma nedeniyle bu güne kadar biterdi [20,27].

Şekil 2.2'de bu çalışmada üzerinde durulan ^{238}U serisinin peşpeşe (zincirleme) meydana gelen parçalanmaları görülmektedir. ^{238}U ilk ürünü olarak alfa bozunumu ile ^{234}Th 'e dönüşür. ^{234}Th beta bozunmasıyla $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ve ^{234}Pa 'e dönüşür. $^{234,234\text{m}}\text{Pa}$ ise, ^{234}U 'e beta bozunumu yaparak bozunum serisi devam eder ve sonuçta ^{206}Pb kararlı çekirdeğe ulaştığında parçalanma serisi son bulur [27].

Bu serilerin varlığı, Neptünyumun bulunduğu seri hariç, her serideki ana elementlerin uzun ömürlü olması gerçeğine göredir. Yapay Neptünyum serisinin ana elementlerinin (^{237}Np) nispeten kısa yarı ömürlü olmasından dolayı ($t_{1/2}=2.14 \times 10^6$ yıl) bu ana elementler tabiatta bulunmazlar. ^{237}Np elementi meydana geldikten $\sim 5 \times 10^9$ yıl sonra tamamen bozunmuş olacaktır [22].

Şekil 2.2. ^{238}U 'in bozunma serisi

3. GAMA SPEKTROMETRESİ VE SPEKTRUM DEĞERLENDİRMESİ

3.1. Gama Işınlarnının Madde İle Etkileşmesi

Gama ışınları çok yüksek giriciliğe sahip elektromanyetik dalgalarıdır. Bunlar fazla iyonlaşmaya sebep olmazlar ve elektrik veya manyetik alandan sapmazlar. Gerçekte, gama ışınlarının maddeyle etkileşmeleri, yüklü parçacıklarınkinden önemli ölçüde farklıdır. Gama ışınlarının maddeyle etkileşerek enerjilerini kaybetmelerinde üç temel olay vardır. Bu olaylar;

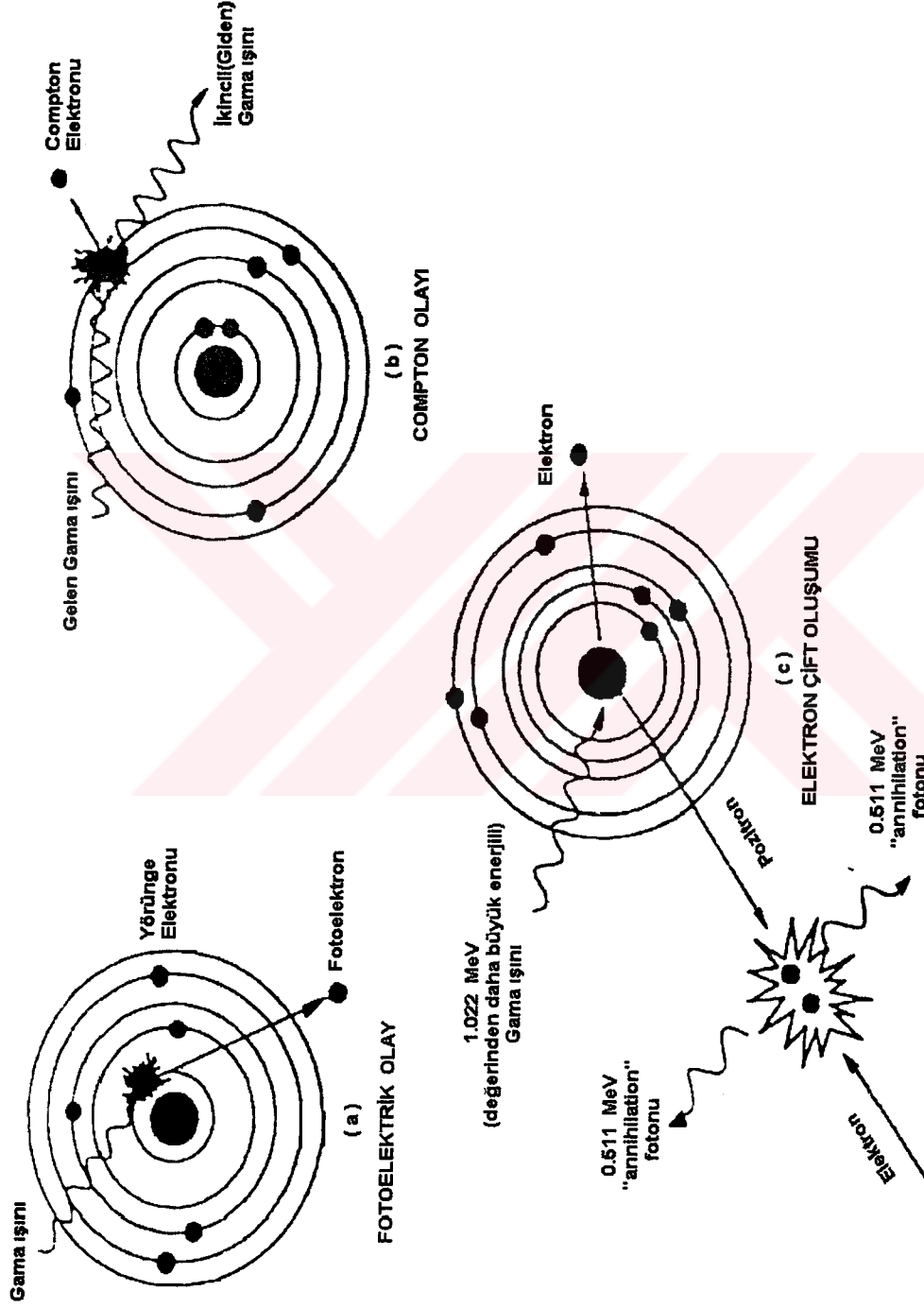
- Fotoelektrik etki,
- Compton olayı veya compton saçılması,
- Çift oluşumu (pair production)'dur.

Bu bağımsız üç fiziksel olayın sebep olduğu, γ -radyasyonun soğurulmasında, her bir olayın kendine ait soğurma katsayısı vardır;

$$\mu_{\text{Toplam}} = \mu_{\text{fotoelektrik}} + \mu_{\text{Compton}} + \mu_{\text{çift oluşum}}$$

Bu üç olayın foton enerjisinin farklı aralıklarındaki baskınlıkları ise; ~ 0.01 MeV'den ~ 0.5 MeV'e kadar fotoelektrik olay, ~ 0.1 MeV'den ~ 10 MeV'e kadar compton saçılması baskındır. Elektron çift oluşumu ise, 1.02 MeV'den başlayarak artan gama enerjisiyle artar [30,31]. Şekil 3.1'de gama ışınlarının maddeyle etkileşmeleri sırasında gerçekleşen bu üç temel olay şematik olarak gösterilmiştir.

Gama ışınlarının madde ile etkileşmesi ilkesine dayanan gama veya X-ışını dedeksiyonunda; gama ışınları veya X-ışınları bir katıhal dedektörü (yarı iletken) ile etkileştiklerinde bu üç türlü fiziksel olayla enerjilerini kristale aktarırlar. Bunlar; Compton Saçılması, Fotoelektrik Olay ve Çift Oluşumu'dur. İlgiilenilen elektromanyetik radyasyon (X-ışınları veya γ -ışınları) atomun bağlı hallerinden ($E_{\text{max}} < 150$ keV) de-excitation ile üretilenlere X-ışınları ve çekirdeklerden üretilen elektromanyetik radyasyona ise gama ışınları ($E_{\text{max}} < 3$ MeV) denilmektedir [30,31].



Şekil 3.1. Gama ışınlarının madde ile etkileşimi

gama fotonu kaybolur, çıkan elektrona ise fotoelektron denir. Fotoelektronun taşıdığı enerji ise, gelen foton enerjisinden elektronun bağlanma enerjisinin çıkarılmasıyla hesaplanır,

$$E_{e^-} = E_{\gamma} - E_B \quad (3.2)$$

E_B : Elektronun yörüngeye bağlanma enerjisi, E_e : Fotoelektronun kazandığı enerji,

Gelen bir foton, $E_{\gamma} = h\nu$ enerjili yörünge elektronuna toplam enerjisini aktarır. $E_{\gamma} > 1.022 \text{ MeV}$ ise; Compton olayı ve fotoelektrik etkileşimleri olduğu gibi ilâve olarak "çift oluşumu" meydana gelebilir. Çift oluşumuyla bir gama ışını (1.022 MeV veya daha büyük enerjiye sahip) çekirdeğin elektrik alanında bir elektron pozitron çifti (e^- , e^+) oluşturur. Elektron-pozitron çiftinin durgun kütlelerine karşılık gelen enerji $m_0c^2 = 0.511 \text{ MeV}$ dir. Pozitron daha sonra durgun hale geldiğinde ve bir elektronla beraber yok olarak iki tane 0.511 MeV'lik "annihilation" radyasyonu üretilir. Dedektöre verilen enerji, gelen gamanın enerjisi (E_{γ}) ile, 0.511 MeV, $E_{\gamma} - 1.022 \text{ MeV}$ ve $E_{\gamma} - 0.511 \text{ MeV}$ lik enerjilerle orantılı çıkış pulsları üretilir. Bunlara sırasıyla annihilation, tek kaçak ve çift kaçak pikleri adı verilir [30,31,32].

3.2. Gama Spektrometresi

Yüksek saflıkta Germanyum (HPGe), Ge(Li) gibi bir yarı iletken veya NaI(Tl) gibi bir sintilasyon dedektör ile bir dizi elektronik modül ve çok kanallı bir analizörün (MCA) uygun bir kombinasyonuna gama spektrometresi denir. Diğer bir ifade ile gama spektrometresi, radyoaktif çekirdeklerden yayınlanan γ -fotonlarının sayımı ve enerji spektrumlarını kayıt eden ölçüm düzeneğidir.

Yarı iletken dedektörlerden X-ışınlarının dedeksiyonun da Lityum (Li) katkılı silisyum, Si(Li), gama ışınlarının dedeksiyonun da ise önceleri Ge(Li) ve gelişen teknoloji sonucu yüksek saflıkta (10^{10} atom/cm³) üretilmesiyle Ge [p-tipi veya n-tipi] yarı iletken dedektörler yaygın olarak kullanılmaktadır. Prensip olarak Ge dedektör kristaline gelen γ -fotonları, kristalde elektron-hole (deşik) çifti oluşturur. Ge kristalde bir elektron-deşik çifti oluşturmak için 2.96 eV'luk enerji gerekir. Kristale uygulanan yeterli derecede yüksek dc bir gerilimle meydana getirilen elektrik alan etkisiyle $\vec{F} = q\vec{E}$ hareket ederler. Dolayısıyla foton enerjisiyle orantılı oluşan elektron akımının bir direnç üzerinden geçirilerek bir pulsa dönüştürülmesi imkânı ortaya çıkar. Saf Ge dedektörler, NaI(Tl) sintilasyon dedektörlerine göre daha düşük gama sayım verimine sahip olmalarına karşın, daha yüksek çözme gücüne sahiptirler. Örneğin; NaI(Tl) çözme gücü, 1332 keV ⁶⁰Co'nun yayınladığı gama ışını için 50-60 keV iken Ge dedektörlerin 1332 keV çözme gücü 1.8-2 keV'dir. Ge dedektörlerin, yüksek enerji çözme güçleri, bu tür dedektörlerin γ -spektrometrik ölçümlerin analiz yeteneğini artırdıklarından dolayı daha yaygın olarak kullanılmalarına sebep olmuştur.

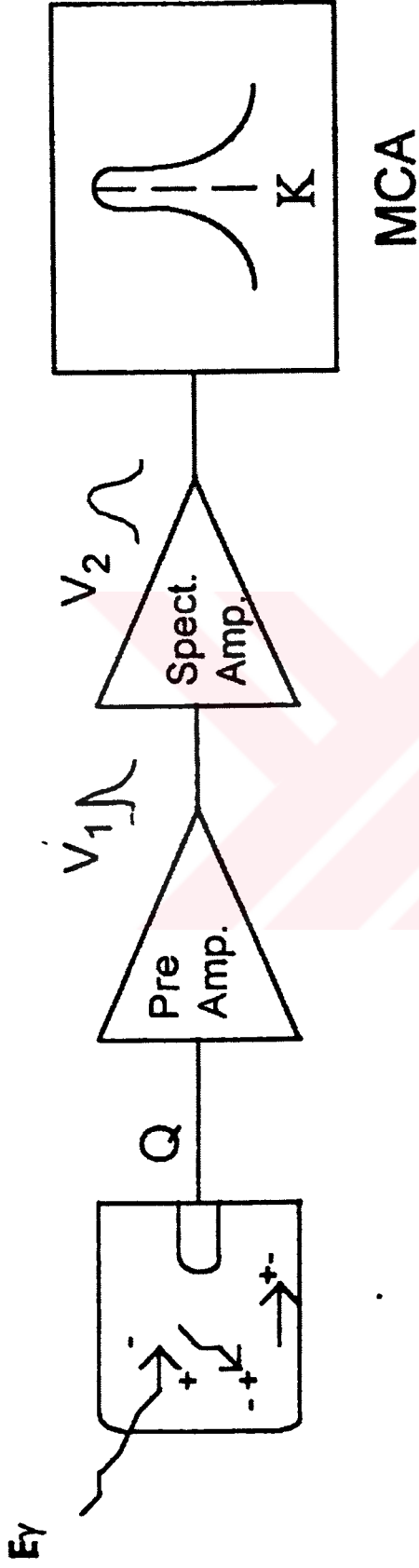
Gama spektrometresinde, dedektör kristaline ulaşan gama ışınlarının enerjilerine bağlı olarak oluşan elektrik pulslarının, puls işleme aşamalarından geçmesi gerekir. Bunun için pulslar, bir önyükseltici, lineer yükseltici ve elektrik sinyalinin sayılabilir niceliklere dönüştüren bir ADC (Analog-to-Digital-Converter) elektronik modül vasıtasıyla uygun

adresleme düzeninde çok kanallı analizörün hafızasına kayıt edilir ve numunenin verdiği γ - spektrumu analizör ekranında gözlenebilir veya bir bilgisayara aktarılabilir. Çok kanallı analizör, spektrum analizinin kolayca yapılabilmesine imkân veren elektronik bir sistemdir.

Sinyal işleme aşamasında, hafızada kayıt edilen spektrum monitörde gözlenir, analiz edilir ve yazıcı/çizici ünitesine aktarılabilir. Gama spektrometrelerinde, çok kanallı analizörler bilgi saklama ve işleme ünitesidir. Bir MCA, bir mikroişlemci ve birbiriyle ilişkili hafıza, monitör, sinyal işlemcisi, kullanıcı paneli ve veri girdi/çıktısı kısımlarından meydana gelmektedir. Mikroişlemci bir kontrol ünitesi olup , hafızada sürekli kalan ve silinmeyen bir programdan analizörle ilgili bilgileri okuyan kısımdır. Bu kısım, MCA fonksiyonlarını kontrol ederek anakart (mainboard) üzerinden gönderdiği emirlerle diğer kısımların işlevlerini yönlendirir.

MCA hafızası, yapımçı tarafından önceden programlanmış ve mikroişlemcinin özelliklerini ihtiva eden; sadece okunabilir – silinmeyen hafıza (Read Only Memory – ROM) bölümü ile kullanıcının girdiği bilgileri (sayım süresi, tarih, saat, pik genişliği v.b) ve spektrum verilerini depolayan hafıza (Random Access Memory – RAM) bölümünden oluşur. RAM hafızadaki spektrum bilgileri, gerektiğinde değiştirilebilir ve silinebilir.

Sinyal işleme kısmı, bir önyükselteç ve anayükselteçten geçirilen analog sinyallerin bir ADC vasıtasıyla sayılabilir niceliklere dönüştürülmesi ve uygun yerleşim düzeninde MCA hafızasına adreslenmesi ve depolanması sürecidir. Sinyal işleme aşamasında; hafızada kayıt edilen spektrum monitörde gözlenir, analiz edilir ve yazıcı ünitesine aktarılabilir. Şekil 3.2'de bir gama spektrometresinin prensip şeması görülmektedir.



- E_γ = Dedektöre gelen gama ışını enerjisi
- N = Dedektörde oluşan elektron-deşik çiftlerinin sayısı
- Q = Dedektörden önyükseltece aktarılan yük
- V_1 = Önyükseltecin çıkış pik gerilimi
- V_2 = Anayükseltecin çıkış pik gerilimi
- K = MCA'da pikin oluştuğu kanal

Şekil 3.2. Gama spektrometresinin prensip şeması

Gama spektrometrelerinde;

- (i) Aynı numunede, farklı radyoizotopların tek tek ve aynı anda analizi mümkün,
- (ii) Numune hazırlanması karmaşık kimyasal işlemler gerektirmediği için kolay,
- (iii) Yaygın olarak, numuneler üzerinde tahribatsız ölçme yapılmaktadır,
- (iv) Ölçümlerdeki yüksek kararlılık, bilgi işlemedeki hız ve doğruluk, analizde elde edilen verilerin (data) güvenilirlik düzeyleri yüksektir,
- (v) Dedeksiyon sınırı düşüktür.

Bu üstünlüklere sahip olması nedeniyle gama spektrometreleri, çevresel radyoaktivite ölçümlerinde yaygın olarak kullanılır.

3.3. Yüksek Saflıkta Germanyum Dedektörler (HPGe)

Gama ışını spektroskopisinde, HPGe dedektörler 1980'li yılların başında kullanılmaya başlanmıştır. Dolayısıyla HPGe dedektörler, lityum katkılı germanyum yarı iletken dedektörlere Ge(Li) alternatif olmuşlardır. Enerji çözme gücü, dedeksiyon verimi gibi önemli özellikleri birbirine çok yakın olan bu dedektör tiplerinden, Ge(Li) yarı iletken dedektörler sürekli olarak sıvı azot sıcaklığında (77°K) tutulması gerektiğinden, kullanımı ekonomik olmadığı gibi, aynı zamanda dedektörün sıvı azotsuz kalması durumunda dedeksiyon özelliğini kaybetme riski de vardır. Çünkü, sıvı azot sıcaklığı sağlanamadığı bir anda Ge içine sürüklenmiş lityum iyonlarının kaybedilmesi ihtimali yüksektir. Bu temel nedenden dolayı, oda sıcaklığında muhafaza edilebilen ve germanyum atomlarının saflığı 10^{10} atom/cm³ mertebesinde olan HPGe yarı iletken dedektörlerin kullanımı tercih edilmektedir.

HPGe dedektörü, normalde sıvı azot sıcaklığında (77°K) çalıştırılır ve bu şekilde, gürültü sinyalinin en az olduğu durum sağlanır. Dolayısıyla oda sıcaklığından ileri gelebilecek termal etkiler giderilmiş olur. Bu çalışmada, deneysel ölçümlerde kullanılan ters elektrotlu saf Germanyum (REGe) dedektörünün özellikleri Çizelge 3.1'de verilmiştir.

Çizelge 3.1.Ters elektrotlu saf germanyum (REGe) dedektörün özellikleri [33]

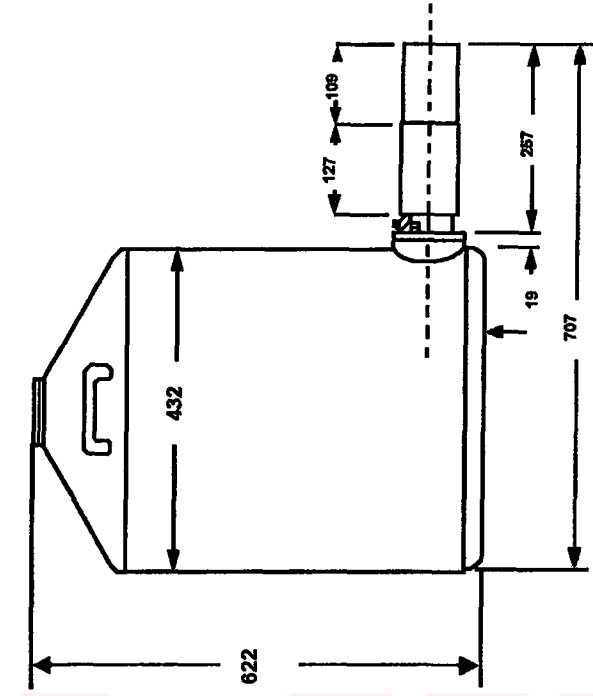
Dedektör geometrisi	Ters Elektrotlu Kapalı Uç- Koaksiyel
Dedektör penceresi	Berilyum (0.5 mm)
Cryostat tipi	Vakumlu (7905–30 SL)
Azot kabı	30 L sıvı azot
Günlük azot tüketimi	< 1.5 Litre
Ge kristali	n–tipi
Çapı	50 mm
Yükseklği	51 mm
Pencereyi gören etkin alan	19.63 cm ²
Ge kristalin etkin hacmi	~ 100 cm ³
Kristalin pencereye uzaklığı	5 mm
Çalışma voltajı	(-) 5000 V dc
Relatif verimi *	% 20
Çözme gücü (FWHM) **	2 keV
Çözme gücü (FWHM) ***	1 keV
Pik–Compton oranı	46 : 1

* : 7.62 cm x 7.62 cm NaI (TI) detektör verimine göre

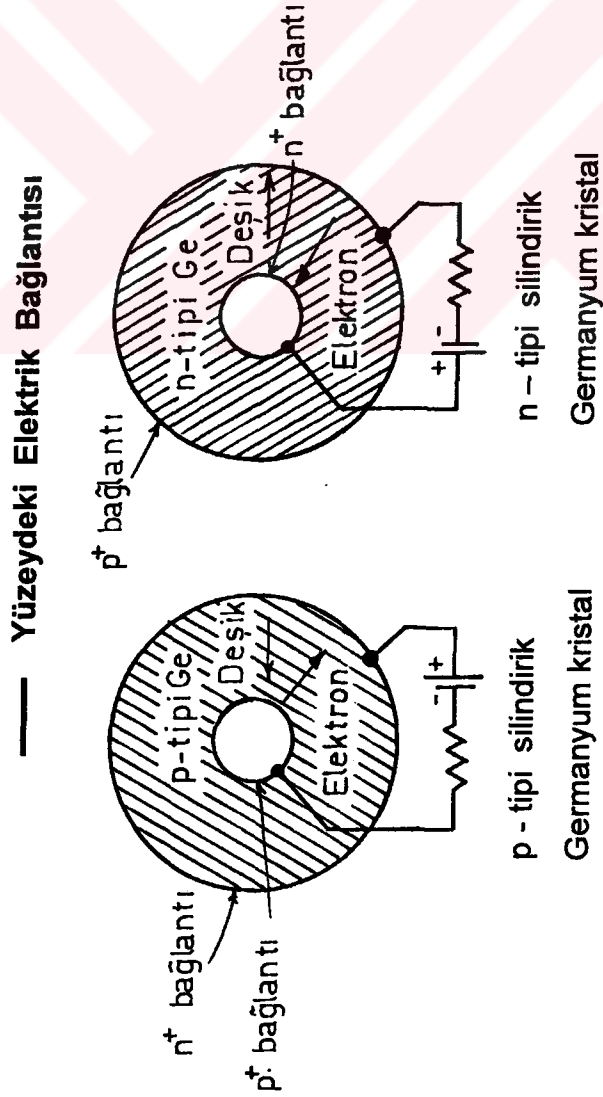
* * : ⁶⁰Co' ın 1332.5 keV gama enerjisindeki değeri

* * * : ⁵⁷Co' ın 122 keV gama enerjisindeki değeri

Ayrıca deneylerde kullanılan Ge-kristali n-tipi koaksiyel yapıda olup Şekil 3.3'de gösterildiği gibidir. Cryostat yatay geometrili olarak bağlanmıştır. Ge-kristal ters elektrotlu olduğundan negatif 5000 V dc gerilimle beslenir.



**Ters Elektrotlu Germanyum Dedektör
(7905 SL – 30 Yatay Cryostat)**



Şekil 3.3. Kullanılan REGe dedektör ve Ge kristale elektrot bağlanma düzeni (Boyutlar mm'dir.)

3.4. Enerji Kalibrasyonu

Bir gama spektrumunda gözlenen piklerin tek tek hangi foton enerjisine karşılık geldiğinin bilinmesi ve bu enerjilerin de doğru olarak belirlenebilmesi için sayım sisteminin enerji kalibrasyonunun yapılması gereklidir. Enerji kalibrasyonu, dedektöre gelen fotonun enerjisine (E_γ) ve pulsun analizördeki kanal numarası (x) arasındaki bir ilişkidir. En basit şekliyle enerji ile kanal numarası arasında büyük ölçüde doğrusal bir ilişki vardır;

$$E_\gamma (x) = a_1 + a_2 \cdot x \quad (3.3)$$

Modern gama sayım sistemlerinde (deneylerde kullanılan Canberra 95 MCA gibi) geliştirilen bilgi işleme özellikleriyle, enerji kalibrasyon işlemi duyarlı bir şekilde yapılabilmektedir. Sayım sistemindeki lineerlikten sapmaları gideren veya bu sapmaları bütün kanallar üzerinde önemli ölçüde azaltabilen ve hata oranlarını uniform olarak dağıtan quadratic bir fonksiyon seçilerek enerji kalibrasyonu yapılabilmektedir.

$$E_\gamma (x) = a_1 + a_2 \cdot x + a_3 \cdot x^2 \quad (3.4)$$

şeklinde bir fonksiyon seçilerek enerji kalibrasyonu yapılır. Burada ; a_1 , a_2 ve a_3 sabit katsayılar olup, değerleri; en az üç pikin, genellikle dörtten fazla pikin enerjileri ve kanal numaraları girdi olarak kullanılarak en küçük kareler fit yöntemi esasına göre hesaplanır. Bu hesaplanan değerler Canberra 95 serisi çok kanallı analizörde mevcut olan bir programın gelişmiş fonksiyonları kullanılarak, MCA hafızasına kayıt edilir. Bu şekilde veri analizinde bir çok kolaylıklar sağlanır. Enerji kalibrasyonu için uygun radyoizotoplar, genelde nokta kaynaklar olarak kullanılmaktadır. Bunlardan yaygın kullanılanları, Çizelge 3.2'de verilmiştir [34]. Belirli bir kazançta (amplifier gain), deneylere başlamadan önce kullanılan gama spektrometresinin (REGe dedektör + 95 MCA) enerji kalibrasyonu nokta referans gama kaynakları (^{241}Am , ^{137}Cs , ^{60}Co gibi) kullanılarak yapılmıştır.

Çizelge 3.2. Enerji kalibrasyonu için uygun radyoizotoplar

Radyoizotop	Yarıömür	Enerji (keV)	Foton / Bozunma (%)
²⁴¹ Am	432.7 y	59.54	35.90
¹⁰⁹ Cd	462.6 g	88.03	3.65
⁵⁷ Co	271.8 g	122.06	85.68
⁵⁷ Co	271.8 g	136.47	10.67
¹³⁹ Ce	137.6 g	165.85	79.90
⁵¹ Cr	27.7 g	320.08	9.85
¹³⁷ Cs	30.25 y	661.66	85.20
⁵⁴ Mn	321.3 g	834.84	99.97
⁸⁸ Y	106.63 g	898.04	94.10
⁶⁰ Co	5.27 y	1173.24	99.89
⁶⁰ Co	5.27 y	1332.50	99.98
²² Na	950.4 g	274.54	99.93

d : Gün y : Yıl

Enerji kalibrasyonu eşitliği;

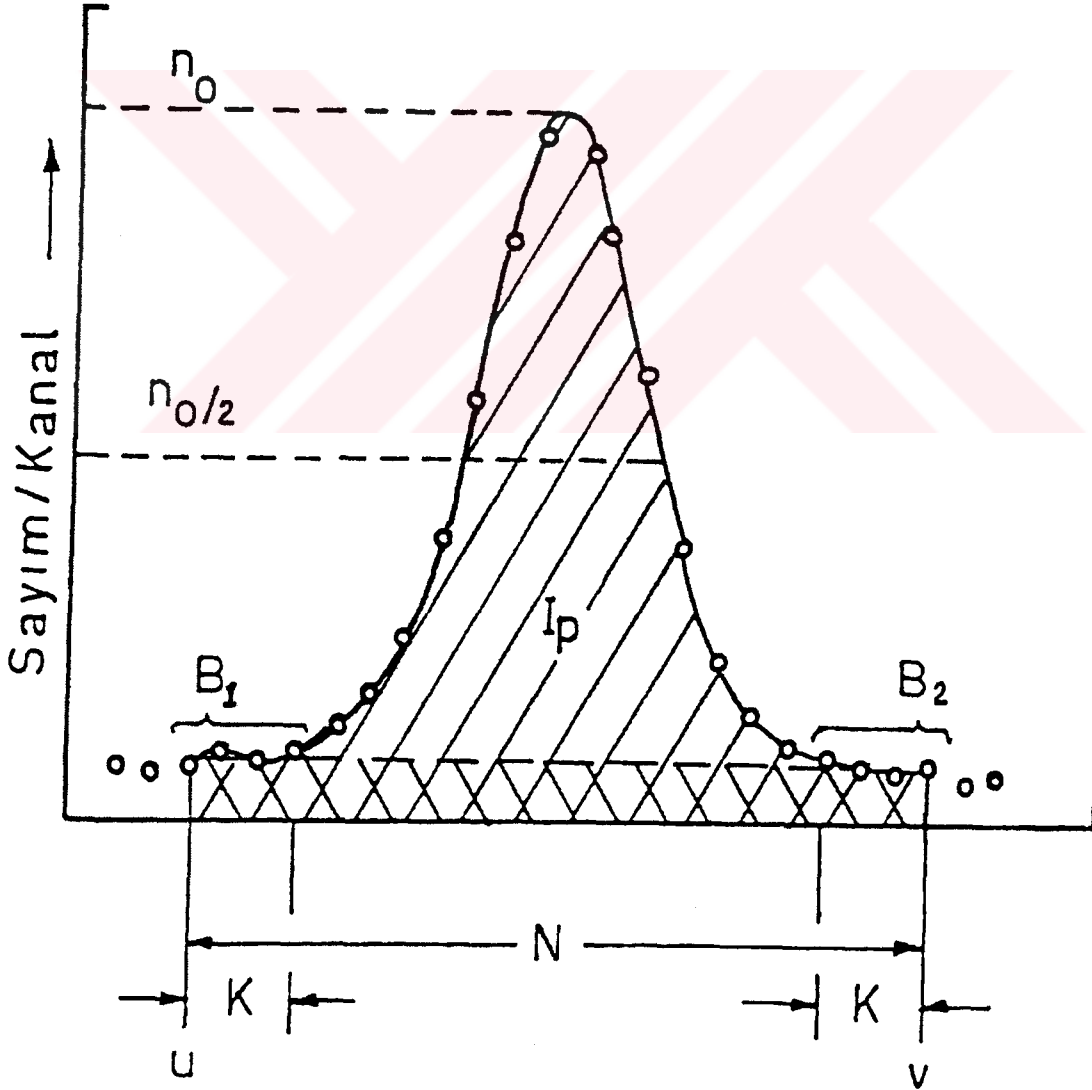
$$E_{\gamma}(x) = 4,8785 + 4,7245 \times 10^{-1} \cdot x - 1,0476 \times 10^{-7} \cdot x^2 \quad (3.5)$$

şeklinde elde edilmiştir. Kalibrasyon eğrisinden görüldüğü gibi üzere, spektrometrenin enerji kalibrasyonu büyük ölçüde lineerdir. Çünkü; $a_3 = 1,0476 \times 10^{-7}$ katsayısı çok küçüktür.

3.5. Numunedeki Radyoaktivitenin Belirlenmesi

3.5.1. Pik alanı hesaplama metodu

Radyoaktif bozunma bir ihtimaliyet olayıdır ve istatistik bir yaklaşım söz konusudur. Bu yüzden, çok kanallı analizörde oluşan piklerde, istatistiksel olarak ve dedektörün çözme gücünden ileri gelen bir dağılım meydana gelir. Bu sebeple pikin maksimum noktası yerine, bu dağılımın altında kalan alanı değerlendirmek gerekir. Pik alanı, ilgilenilen enerjideki pikin sürekli compton fonunun (background) üstündeki toplam sayım olarak tanımlanır. Bu alanın hesabı, Şekil 3.4'de verilen örnek bir pik üzerinde açıklanmıştır [35].



Şekil 3.4. Pik alanı hesaplama yöntemi

Covel metodu olarak da bilinen bu pik alanı hesaplama metodunda, önce pikin uç noktalarındaki kanal sayısı tespit edilir. Sonra, her bir kanalda biriken sayımların toplamından tabii fon alanı çıkarılarak net pik alanı (N) belirlenir.

$$\text{Net Pik Alanı} = \text{Toplam Alan} - \text{Tabii Fon Alanı}$$

Bu alanların hesaplanması için matematiksel ifadeler;

$$\text{Toplam Alan} = \sum_{a=u}^v X_a \quad (3.6)$$

$$\text{Tabii Fon Alanı} = \left[\left(\frac{A}{2} \right) (B_1 + B_2) \right] \quad (3.7)$$

$$\text{Net Pik Alanı (N)} = \sum_{a=u}^v X_a - \left[\left(\frac{A}{2} \right) (B_1 + B_2) \right] \quad (3.8)$$

Burada ;

u : İlgilenilen pikin başlangıç kanal numarasını,

v : İlgilenilen pikin bitiş kanal numarasını,

A : İlgilenilen piki oluşturan tüm kanalların sayısını ($A = v - u + 1$),

X_a : a. Kanaldaki sayım miktarını,

$$B_1 = \left(\sum_{a=u}^{u+K-1} X_a / K \right) : \text{Pikin sol tarafındaki tabii fon ortalama sayım miktarını,}$$

$$B_2 = \left(\sum_{a=v-K+1}^v X_a / K \right) : \text{Pikin sağ tarafındaki tabii fon ortalama sayım miktarını,}$$

K : Pikin uç noktalar sayısıdır (pikin durumuna göre keyfi olarak seçilir. seçilir. Genelde $K = 4$ alınır),

X_u : u. kanaldaki sayımı,

X_v : v. kanaldaki sayımı göstermektedir.

3.5.2. Pik alanında belirsizlik hesabı

Net pik alanındaki belirsizlik Şekil 3.4'de gösterilen bir fotopik için aşağıdaki formülle hesaplanabilir;

$$S_{NA} = \sqrt{G_s + \left(\frac{N}{2n}\right)^2 (B_{1s} + B_{2s}) + \left(\frac{T_s}{T_b}\right)^2 (S_{1b})^2} \quad (3.9)$$

Burada;

$$S_{1b} = \sqrt{G_b + \left(\frac{N}{2n}\right)^2 (B_{1b} + B_{2b})} \quad (3.10)$$

S_{NA} : Pikin net alanındaki belirsizlik (1σ güvenilirlik düzeyinde),

G_s : Numune spektrumunun ilgilenilen ROI pikindeki toplam (gross) sayım,

G_b : Doğal fon spektrumunun ilgilenilen ROI pikindeki toplam (gross) sayım,

N : Ilgilenilen pikteki kanalların sayısı,

n : Her bir kenardaki süreklilik kanallarının sayısı (Bu eşitliklerin geçerli olması için her iki taraftaki süreklilik kanal sayısının aynı olduğu varsayılır; $n = K = 4$ alınabilir),

B_{1s} : Numune spektrumunda ROI pikinin sol tarafındaki süreklilik sayımı,

B_{2s} : Numune spektrumunda ROI pikinin sağ tarafındaki süreklilik sayımı,

B_{1b} : Doğal fon spektrumunda ROI pikinin sol tarafındaki süreklilik sayımı,

B_{2b} : Doğal fon spektrumunda ROI pikinin sağ tarafındaki süreklilik sayımı,

T_s : Numune spektrumunun sayım zamanı,

T_b : Doğal fon spektrumunun sayım zamanıdır.

Ayrıca doğal fon ölçümü yoksa veya doğal fon çıkarması yapılmazsa;

$S_{1b} = 0$ alınır.

3.5.3. Aktivite hesaplama metodu

Herhangi bir numunenin ihtiva ettiği aktivite, bir standart ile karşılaştırılarak veya doğrudan ölçümle tespit edilebilir. Standartla karşılaştırma yönteminde, istenilen geometriye ve her numuneye uygun bir standart temin edilmesi her zaman zordur. Bu yüzden; uygulamada, gama spektrometresi ile herhangi bir numunenin aktivitesinin belirlenmesinde, daha ucuz ve pratik olan doğrudan ölçme yöntemi tercih edilir. Bunun için belirli bir numune dedektör geometrisinde her pik için toplam enerji pik verimi önceden belirlenir. Sonra, gama sayım sisteminde numunenin spektrumu elde edilir ve numunedeki aktivite; ilgilenilen radyoizotoplara özgü fotopikleri seçilmek suretiyle aşağıdaki formülden hesaplanır;

$$A \text{ (Bq)} = \frac{\text{NetPikAlanı} / t_c}{\epsilon(E_\gamma) I_\gamma D} \quad (3.11)$$

Burada;

A : Aktivite (1 Bq = 1 sn⁻¹),

t_c : Dedektörde numunenin sayım süresi (sn),

I_γ : Radyoizotopun bozunması başına yayınlanan foton sayısı
(ilgilenilen enerjide),

ε(E_γ) : Belli bir geometride radyoizotopun ilgilenilen foton enerjisindeki, tüm enerji-pik verimidir,

D : Bozunma faktörü, bozunma düzeltmesi yapılmadığında D = 1 alınır.

Bozunma düzeltmesi uygulandığında; $D = e^{-0,693.T/t_{1/2}}$ ifadesinden hesaplanır. Burada;

T : Numunenin hazırlandığı (sertifika) tarihi ile MCA 'da sayıldığı tarih arasında geçen zaman,

t_{1/2} : Radyoizotopun yarı ömrüdür.

3.5.4. Numunedeki gama ışını yayılım hızının ölçülmesi

Verim kalibrasyonu için kullanılan belirli bir kaynak-detektör mesafesine, ölçülecek numune yerleştirilir. Sayım süresi önceden tespit edilerek, gama ışını spektrumu elde edilir. Çok sayıda piki olan veya çok radyoaktif çekirdekli kaynaklardan yayınlanan gama ışınlarının (ilgilenilen enerji aralığının tümü üzerinde) pik merkezlerine karşılık gelen kanal sayıları belirlenerek, sabit bir kazançta, dedektör sisteminin enerji kalibrasyonu (gamma ışını enerjisine karşı kanal numarası olarak) tayin edilir. Kalibrasyonda, gerekiyorsa doğrusallıktan sapma faktörleri belirlenir. Enerji kalibrasyonunun kullanılması ile mevcut gama ışınlarının enerjisi belirlenir. Her standart kaynak için uyumlu sonuçları verebilecek Bölüm 3.5.1'deki metot kullanılarak tüm-enerji gama pikinde veya piklerinde (ilgilenilen bölgenin toplam sayım hızından, Compton sürekliliği sayım hızı ve gerekirse aynı bölge içindeki laboratuvar doğal fonu sayım hızı çıkartılarak) net sayım hızı elde edilir. Tüm enerji pikinin her biri için birim sayım zamanı başına yayınlanan gama ışınlarının sayısı;

$$\epsilon(E_\gamma) = \frac{N_p}{N_\gamma} = \frac{\text{NetPikAlanı}/t_c}{A \cdot I_\gamma \cdot D} \quad (3.12)$$

formülünden hesaplanır. Ölçülen bu nicelik, ilgili enerjideki foton için dedektör verimidir. Tüm-enerji pik verimi olarak da adlandırılan dedektör verimi, gerçekte, birim zamanda kaynağın yayınladığı gamaların, dedektörde sayılabilenlere oranıdır. Burada;

I_γ : Gama ışını yayınlanma olasılığı,

N_γ : Kaynaktan çıkan gama-ışını sayım hızı (saniyedeki γ -ışını sayısı),

N_p : Tüm-enerji pikindeki net gama-ışını sayımı (sayma zamanının (live time) bir saniyesindeki sayım),

A : Kaynağın aktivitesi (Bq),

D : Referans tarihinden itibaren aktivitenin bozunması için gerekli düzeltme faktörüdür ($D = e^{-\lambda \cdot T}$).

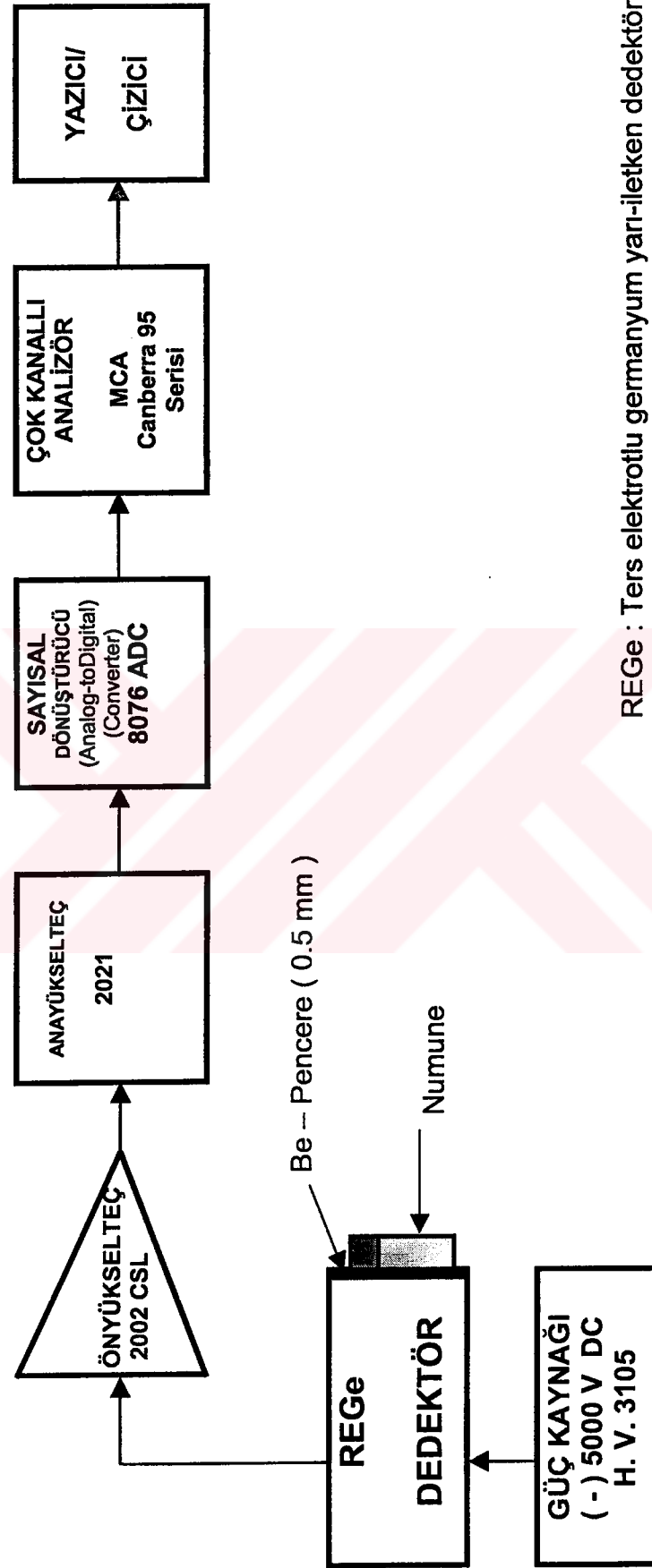
4. DENEY

4.1. Deneysel Düzenek

Ölçümler, ANAEM (Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi) Nükleer Fizik Laboratuvarında bulunan ve özellikleri Bölüm-3 Çizelge 3.1'de verilen $\sim 100 \text{ cm}^3$ toplam aktif kristal hacimli, Be-pencereli ve ters elektrotlu germanyum (REGe) dedektör kullanılarak yapılmıştır. Dedektör, 10 cm kalınlığında kurşun tuğlalarla ve demir iskelet içinde yatay dedektör geometrisine uygun, olarak zırhlanmıştır. Zırhlama, çevredeki doğal fon (background) radyasyonu en aza indirecek şekilde tasarlanmıştır. REGe dedektörlü gama sayım sistemi Şekil 4.1'de gösterilmiştir. Sinyal önyükseltici, termal etkilerle oluşan gürültüleri azaltmak için kristali çevreleyen Alüminyum kılıf içine monte edilmiş, dedektör çıkış sinyali NIM standart kasadan enerjisini sağlayan bir spektroskopi ana yükseltecine verilir. Ana yükselteç tarafından şekillendirilen ($4\mu\text{s}$ puls şekillenim zamanına ayarlı) sinyali yaklaşık gauss biçimli tek yönlü (unipolar) bir analog sinyal olarak sayısal dönüştürücü biriminde, puls genliğine ve gelen puls sayısına göre elektronik olarak işlenerek çok kanallı analizöre (Canberra 95 MCA) gönderilir. Ölçümler için gama sayım sistemi, dedektörün sıvı azotu varken dedektöre (-5000 V dc) gerilim uygulandıktan sonra hazır hale getirilir. Enerji kalibrasyonu kontrol edilir. Sayım süresi, MCA'nın RAM hafızasına kaydedilir.

4.2. Dedektör Veriminin Ölçülmesi

Sertifikalı uranyum referans malzemelerin (CRM) aktivitelerini (konsantrasyonlarını) ölçmek için sunulan gama spektrometrik metodun değerlendirilmesinde, kullanılan REGe dedektörün dedeksiyon verimi ölçülmüştür. Dedektör veriminin belirlenmesi için, Çizelge 4.1'de özellikleri verilen (Isotope Products Laboratories'den temin edilen) kalibrasyon amaçlı sertifikalı radyoaktif standart kaynak kullanılmıştır.



REGe : Ters elektrotlu germanyum yarı-iletken dedektör.

Şekil 4.1. REGe dedektörlü gama sayım sistemi

Çizelge 4.1. Kalibrasyon için kullanılan sertifikalı radyoaktif standart kaynak *

Radyoizotop	Gama-Işını Enerjisi (keV)	Yarı Ömrü	Gama Çıkış Olasılığı (%)	Aktivite (μCi)	Gama Şiddeti (gama/s)	Toplam Belirsizlik (%)
^{109}Cd	88.03	462.6 ± 0.7 d	3.63	1.437	1.930	3.1
^{57}Co	122.06	271.8 ± 0.09 d	85.6	0.0553	1.752	3.0
$^{123\text{m}}\text{Te}$	159.00	119.7 ± 0.1 d	84.0	0.0639	1.988	3.0
^{51}Cr	320.08	27.7 ± 0.007 d	9.86	1.847	6.738	3.1
^{113}Sn	391.69	115.1 ± 0.04 d	64.89	0.2767	6.643	3.0
^{85}Sr	513.99	64.85 ± 0.004 d	98.4	0.3899	14.200	3.0
^{137}Cs	661.66	30.17 ± 0.16 y	85.1	0.2438	7.677	3.0
^{88}Y	898.02	106.6 ± 0.025 d	94.0	0.5472	19.030	3.0
^{60}Co	1173.24	5.272 ± 0.001 y	99.86	0.3055	11.290	3.0
^{60}Co	1332.50	5.272 ± 0.001 y	99.98	0.3055	11.300	3.0
^{88}Y	1836.01	106.6 ± 0.025 d	99.36	0.5472	20.120	3.0

* Kaynak No : 614 – 28 – 2,
 Sertifika Tarihi : 01 Ekim 1998 12:00
 Toplam Aktivite : 191.1 Bq
 Kapsül Tipi : Plastikten yapılmış 127 C Marinelli kabı.
 Aktif Maddenin Yapısı : Kum (SiO_2) matriks içine dağıtılmış radyoizotoplar
 (Matriks yoğunluğu $\approx 1.7 \text{ g/cm}^3$)
 Hacmi / Miktarı : 1 litre / $\approx 1708 \text{ g}$.
 Kaynak : Isotope Products Laboratories'den temin edilmiştir.

d : Gün, y : Yıl

Dedektör veriminin, gama ışını enerjisinin bir fonksiyonu olarak belirlenmesinde, SiO_2 matriksinde birden fazla kalibrasyon radyoizotopu bulunan referans kalibrasyon kaynağı geniş enerji aralığında (88-1836 keV), 11 farklı enerjideki, yayınlanan γ -ışını kullanılarak ölçümler yapılmıştır. Bunun için, 4,5 cm boyunda ve 1,4 cm iç çapında polystyrene tüpe, analitik terazide tartımı (10^{-4}g hassasiyetle) yapılan toz şeklindeki radyoaktif standart doldurulmuştur.

Hazırlanan radyoaktif standart kaynak numunesi, verim değerindeki kesinliği, artırmak için spektrometrik ölçümler, 4 kez tekrarlanmıştır. Alınan gama spektrumlarındaki istatistik kaliteyi yükseltmek için de spektrum toplama süreleri 85 000 saniye ile 100 000 saniye arasında olmak üzere uzun tutulmuştur. Ölçüm sonuçları Bölüm 3.5.3 ve 3.5.4'de açıklandığı şekilde değerlendirilmiş ve her enerjideki deneysel verim değerleri "Eş.3.12" den hesaplanmıştır. Her bir enerjideki verim değeri, farklı dört ölçümün ortalamasıdır. Belirlenen deneysel verim değerleri, hataları ile birlikte Çizelge 4.2'de verilmiştir.

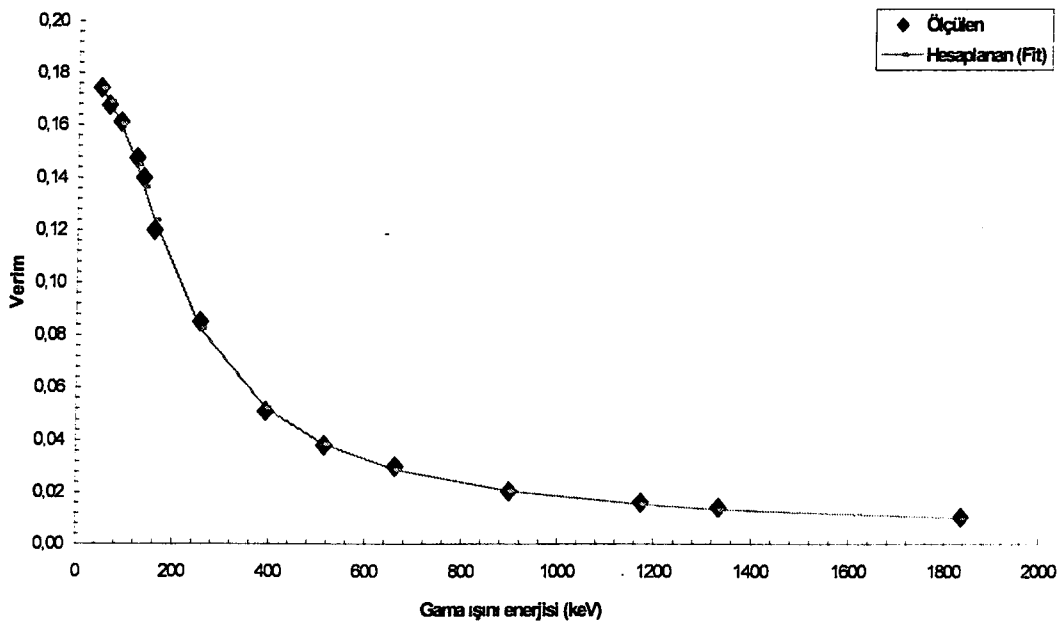
Çizelge 4.2.Ters elektrotlu germanyum (REGe) dedektörün verim değerleri

Gama Işını Enerji (keV)	Deneysel Verim	Hesaplanan (Fit)
46,50	$0,174320 \pm 0,00141$	0,173982
63,30	$0,167688 \pm 0,00673$	0,168898
88,03	$0,161254 \pm 0,00105$	0,160354
122,06	$0,147355 \pm 0,00115$	0,144796
136,48	$0,139805 \pm 0,00292$	0,136417
159,00	$0,119938 \pm 0,00063$	0,123699
255,06	$0,085175 \pm 0,00529$	0,082555
391,69	$0,050898 \pm 0,00027$	0,052293
513,99	$0,037863 \pm 0,00027$	0,038347
661,66	$0,029950 \pm 0,00005$	0,028653
898,02	$0,020472 \pm 0,00008$	0,020292
1173,24	$0,015888 \pm 0,00002$	0,015248
1332,50	$0,014092 \pm 0,00001$	0,013412
1836,01	$0,010420 \pm 0,00006$	0,009988
<u>Tüm Enerji Aralığı Üzerinde</u>		<u>Düşük Enerji Bölgesinde</u>
r = 0,9994553		r = 1,000
a = 0,17166736		a = 0,1796373
b = 0,16713909		b = 0,51683728
c = 1952,3389		c = 30,40561
d = - 1,4493558		d = - 0,49673223

Çizelge 4.2'deki düşük gama enerji bölgesindeki (40 keV-120 keV) dedektör verimi için S-1 ve BL-3 radyoaktif uranyum standartları 150 000 saniye süreyle sayılarak, 46.5 keV ile 63.3 keVde verim tayini yapılmıştır. REGe dedektörünün verimi; en küçük kareler yöntemiyle yapılan uyarlamadan (fit),

$$\varepsilon(E_\gamma) = a - b \cdot \exp(-c \cdot E_\gamma^d)$$

şeklinde bir fonksiyona uygun elde edilmiştir. Burada; E_γ : Foton enerjisi, $\varepsilon(E_\gamma)$: İlgilenilen enerjideki dedektör verimi. Düşük enerji bölgesinde ve tüm deneysel verim değerleri kullanılarak elde edilen uyarlamanın (fit) katsayıları; a, b, c, d ile korelasyon katsayısı r'nin değerleri Çizelge 4.2'de görülmektedir. Korelasyon katsayısının, $r=0,9994553$ bulunması seçilen fonksiyona yapılan uyarlamanın uygunluğunu göstermektedir. Bununla beraber, yapımcısının dedektör spesifikasyonlarında belirttiği düşük enerji bölgesindeki verimin yüksekliğini ve bu bölgedeki dedektör veriminin enerjiyle değişiminin belirlenmesi için, düşük enerji bölgesi ile yüksek enerji bölgesinin çakışma (crossover) noktası olan yaklaşık 122 keV enerjiye kadar olan verim değerleri kullanılarak ayrıca bir fit yapılmıştır. Düşük enerji bölgesi dedeksiyon veriminin daha yavaş değişen aynı $\varepsilon(E_\gamma) = a - b \cdot \exp(-c \cdot E_\gamma^d)$ şeklinde bir fonksiyona uygunluğu gözlenmiştir (Şekil 4.2).



Şekil 4.2. Ters elektrotlu germanyum dedektör verim eğrisi

4.3. Numune Hazırlama

Çizelge 4.3'de orijinleri ve uranyum konsantrasyonları ile bunlara karşılık gelen aktiviteleri bilinen, sertifikalı radyoaktif standart toz numuneler, fırında 70°C 'de kurutulduktan sonra analitik terazide (10^{-4}g hassasiyetle) tartımları yapılmıştır. Numuneler, 6,5654 g ile 8,3786 g arasında değişen miktarlarda, iç çapı 1.4 cm, numune yüksekliği 4.4 cm olacak şekilde polystyrene plastik tüplere doldurulmuştur. Çizelge 4.3'de standart No:4 beş farklı (% 0.142, % 0.136, % 0.149, % 0.137, %0.136) ve standart No:10 dört farklı (% 0.527, % 0.527, % 0.526, % 0.475) sertifikalı konsantrasyon değerlerinin ortalaması alınarak ölçümlerde kullanılmıştır.

4.4. REGe Dedektörle Numunelerin Sayımı

Bu araştırmada Çizelge 4.3'de özellikleri verilen, uranyum konsantrasyonları $\%0,022\pm0,001$ - $\%1,020\pm0,01$ arasında değişen ve farklı uranyum cevherlerinden hazırlanmış sertifikalı 11 adet uranyum standardı (CRM) kullanılmıştır. Bu CRM standartlarının, sertifika aktiviteleri; $2,966\text{ }\mu\text{g}$ doğal uranyumun ($^{238}\text{U}:\%99.2745$) eşdeğer aktivitesinin yaklaşık 0.037 Bq olduğu dikkate alınarak hesaplanmıştır. Bazı standartların U_3O_8 içeriğinin $\%84.8$ 'e uranyuma eşit olduğu gözönüne alınmıştır. Polystyrene plastik tüplerde sertifikalı uranyum referans numuneler, enerji ve verim kalibrasyonu daha önceden yapılmış REGe dedektörlü gama spektrometresinde (Şekil 4.1'deki sayım geometrisinde) her bir numunenin 75 000-125 000 saniye arasında en az üç kez gama spektrumları elde edilmiştir.

Çizelge 4.3. Gama spektrometrik ölçümleri yapılan sertifikalı uranyum numuneleri

Sertifika Edilen Değerler					
Standart No	Standart Kodu	Uranyum İçeriği	Uranyum Konsantrasyonu (% wt.)	²³⁸ U Aktivitesi (Bq/g)	Numune Ağırlığı (g)
1	BL-1 ^(b)	Doğal Uranyum	0,022	2,716	6,5654
2	S-13 ^(a,i)	U ₃ O ₈	0,039	4,083	7,9910
3	RGU-1 ^(c)	Doğal Uranyum	0,040	4,939	6,9013
4	OIEA-27 ^(a,h)	U ₃ O ₈	0,140	14,658	6,8079
5	BL-4 ^(b)	Doğal Uranyum	0,173	21,360	6,0710
6	S-4 ^(d)	U ₃ O ₈	0,375	39,263	8,2298
7	S-3 ^(e)	U ₃ O ₈	0,418	43,765	8,3786
9	S-1 ^(f)	U ₃ O ₈	0,471	49,314	7,9188
10	OIEA-7 ^(a,g)	U ₃ O ₈	0,514	53,790	6,6537
8	BL-2 ^(b)	Doğal Uranyum	0,453	55,931	6,8443
11	BL-3 ^(b)	Doğal Uranyum	1,020	125,938	7,5757

* Sertifika Edilen Değerler.

a) Junta De Energia Nuclear (JDEN), Madrid, Spain'de hazırlanmıştır.

b) Canadian Centre for Mineral and Energy Technology, Ottawa, Ontario, Canada'da hazırlanmıştır.

c) Silica ile seyreltilen uranyum cevheri IAEA Analytical Quality Control Service, Vienna,Austria'da hazırlanmıştır.

d) Düşük dereceli uranyum cevheri : URANINITE (Origin : Australia)

e) Düşük dereceli uranyum cevheri : CARNOTITE (Origin :USA)

f) Düşük dereceli uranyum cevheri : TORBERNITE (Origin : Australia)

g) Ortalama değer,dört sertifika değerinden hesaplanmıştır : %0.527, %0.527, %0.526 ve %0.475.

h) Ortalama değer,dört sertifika değerinden hesaplanmıştır : %0.142, %0.136, %0.149, %0.137 ve %0.136.

i) IAEA Uranyum cevher standartı (Pitchblende).

Bulunan gama spektrometrik metodun doğru sonuç verdiğini kanıtlamak için özellikle sayım süresi uzun tutulmuştur. Böylece, verilerdeki istatistiki kalite sağlanmıştır. Ayrıca, ölçümler en az üç kez tekrarlanarak, istatistiksel kesinlik sağlanmıştır. Her fotopik alanından elde edilen sayım, sayım süresine bölünerek sayım hızı hesaplanmıştır. Belirlenen sayım hızından ilgilenilen

radioaktif çekirdek aktivitesi (^{210}Pb , ^{234}Th veya $^{234\text{m}}\text{Pa}$) Bölüm 3.5.3'deki mutlak aktivite hesaplama metoduna göre hesaplanmıştır. Belirlenen aktivite değerleri numune miktarına bölünerek, özgül aktivite (Bq/g) olarak ifade edilmiştir.

4.5. Öz-Soğurma Düzeltmesi

Gama spektrometrik yöntemle herhangi bir numunenin ölçülmesinde, numuneden yayınlanan özellikle düşük enerjili fotonların, örneğin; 46.5 keV (^{210}Pb), 59.6 keV (^{241}Am), 63.3 keV (^{234}Th) doğru sonuç vermesi için fotopik alanlarından elde edilen sayım hızlarının öz-soğurma (self-absorption) düzeltmeleri yapılması gerekmektedir. [36,37,38]. Öz-soğurma, numune yoğunluğu ve numune bileşimindeki farklılıklar yüzünden, ilgilenilen her enerjideki foton kütle soğurma katsayısı, μ (cm^2/g) numune kalınlığına bağlı olmaktadır. Belirli bir numuneden elde edilen sayım hızlarına (ve dolayısıyla ölçülen aktiviteye) uygulanacak düzeltme faktörünü, Cutshall ve arkadaşları [39], gama ışınlarının madde içerisindeki transmisyonunu tanımlayan aşağıdaki eşitlikle ilişkilendirmişlerdir;

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu \rho x} \quad (4.1)$$

Burada;

I : Ölçülen (zayıflayan) gama demet şiddeti,

I_0 : Numunenin gerçek gama yayılım şiddeti,

μ : Toplam zayıflatma katsayısı (kütle soğurma katsayısı, cm^2/g),

ρ : Numune yoğunluğu (g/cm^3),

x : Gama ışını geçiş yolu uzunluğudur (cm).

‘Eş. 4.1’ de, kullanılan numunenin (kaynağın) şekli, bileşimi ile kaynak-dedektör mesafesi sabit kaldığı durumda, homojen yayılmış bir soğurucu malzeme için aktivite;

$$A_c = A_o \cdot e^{\mu \rho x} = A_o \cdot f_s \quad (4.2)$$

şeklinde yazılır. Burada;

A_c : Öz-soğurma düzeltmesi yapılmış aktivite (saniyedeki bozunma sayısı, Bq),

A_o : Dedektörde ölçülen aktivite (saniyedeki bozunma sayısıdır, Bq),

f_s : $e^{\mu \rho x}$ ise öz-soğurma düzeltme faktörüdür.

Ancak uygulamada, kullanılan numunelerin kimyasal bileşimindeki değişiklikler sebebiyle, ilgilenilen her enerjideki öz-soğurma düzeltme faktörüne numunenin kimyasal bileşiminin (chemical composition) etkisinin katılması gerekmektedir. Buna göre, numunenin (kaynağın) şekli ve dedektör-kaynak mesafesi sabit tutulduğunda, malzeme bileşiminin öz-soğurma etkisi aşağıdaki gibi düzeltilebilir;

$$A_c = A_o \frac{\mu \rho x}{1 - e^{-\mu \rho x}} \quad (4.3)$$

veya silindirik bir tüp için,

$$\rho \cdot x = \frac{m}{V} \cdot x = \frac{m}{\pi \cdot r^2 \cdot L} \cdot x \quad \text{ve gama ışınlarının \%50'sinin tüpün yarıçapı}$$

uzunluğunda bir yolu malzeme içinde katettikleri kabul edildiğinde;

$$x = \frac{(r + 2r)}{2} \quad \text{yaklaşımı yapılarak,}$$

$$\rho \cdot x = \frac{m}{\pi \cdot r^2 \cdot L} \left(\frac{3}{2} r \right) = \left(\frac{3}{2} \frac{1}{\pi r L} \right) \cdot m = k \cdot m$$

şeklinde numune miktarına ve kütle soğurma katsayısına bağlı olarak;

$$A_c = A_o \frac{\mu k m}{1 - e^{-\mu k m}} \quad (4.4)$$

daha kullanışlı bir biçimde yazılabilir. Bu dönüştürme işleminde;

- m : Numune miktarı (g),
 V : Silindirik tüpün iç hacmi (cm^3),
 r : Tüpün yarıçapı (cm),
 L : Tüpün boyu (Numune yüksekliği, cm),
 x : Gama ışını etkin geçiş yolu uzunluğu (cm),
 k : Geometri faktörü (cm^{-2})'dir.

'Eş. 4.4' den silindirik biçimli numune kabı (kaynak) için öz-soğurma düzeltme faktörü,

$$f_s = \frac{\mu km}{1 - e^{-\mu km}} \quad (4.5)$$

formülüyle hesaplanabilir. İlgilenilen her bir enerjiye karşılık gelen toplam kütle soğurma katsayısı μ (cm^2/g) bileşimi bilinen bir malzemede,

$$\mu = \sum_i w_i \cdot \mu_i \quad (4.6)$$

eşitliği ile hesaplanır. Burada;

w_i : i. bileşenin kesri,

μ_i : i. bileşenin kütle soğurma katsayısıdır.

Örnek olması bakımından, S-1, S-3, BL-2 ve BL-4 referans uranyum malzemeleri içindeki bileşenlerin ağırlık yüzdeleri (w_i) sertifika değerlerinden alınmış ve ilgilenilen enerjideki bileşenlerin kütle soğurma katsayıları (μ_i) literatür değerlerinden [40] interpolasyon yöntemiyle hesaplanmıştır. 46.5 keV, 63.3 keV ve 1001 keV gama ışınları için veriler, Çizelge 4.4, Çizelge 4.5, Çizelge 4.6, ve Çizelge 4.7de verilmiştir.

Çizelge 4.4. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için S-1-referans uranyum malzemesinin (ağırlık yüzdesiyle birlikte) kütle soğurma katsayıları [40]

Bileşeni	Ağırlık (%)	Kütle Soğurma Katsayısı * ($\text{cm}^2 \text{g}^{-1}$)		
	S-1	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV
Al_2O_3	6.400	2.159×10^{-2}	1.403×10^{-2}	4.001×10^{-3}
B_2O_3	0.040	8.410×10^{-5}	6.960×10^{-5}	2.490×10^{-5}
BaO	0.030	4.726×10^{-3}	1.889×10^{-3}	1.760×10^{-5}
CaO	0.060	5.931×10^{-4}	2.704×10^{-4}	3.830×10^{-5}
Cr_2O_3	0.010	1.437×10^{-4}	6.120×10^{-5}	6.100×10^{-6}
CuO	0.040	1.097×10^{-3}	4.336×10^{-4}	2.400×10^{-5}
Fe_2O_3	3.600	6.778×10^{-2}	2.644×10^{-2}	2.199×10^{-3}
Ga_2O_3	0.002	6.030×10^{-5}	2.380×10^{-5}	1.200×10^{-6}
K_2O	1.100	1.042×10^{-2}	4.767×10^{-3}	6.867×10^{-4}
Li_2O	0.006	1.150×10^{-5}	9.800×10^{-6}	3.600×10^{-6}
MgO	0.390	1.251×10^{-3}	8.372×10^{-4}	2.467×10^{-4}
MnO	0.030	5.280×10^{-4}	2.166×10^{-4}	1.790×10^{-5}
Na_2O	0.100	2.954×10^{-4}	2.033×10^{-4}	6.170×10^{-5}
NiO	0.002	5.210×10^{-5}	2.050×10^{-5}	1.200×10^{-6}
P_2O_5	0.700	2.725×10^{-3}	1.666×10^{-3}	4.402×10^{-4}
PbO	0.020	1.907×10^{-3}	7.753×10^{-4}	1.410×10^{-5}
SiO_2	85.000	3.121×10^{-1}	1.968×10^{-1}	5.411×10^{-2}
SrO	0.040	2.034×10^{-3}	7.870×10^{-4}	2.500×10^{-5}
ThO_2	0.001	1.225×10^{-4}	5.040×10^{-5}	8.000×10^{-7}
TiO_2	0.500	5.105×10^{-3}	2.293×10^{-3}	3.041×10^{-4}
U_3O_8	0.471	5.699×10^{-2}	2.343×10^{-2}	3.609×10^{-4}
V_2O_5	0.030	3.190×10^{-4}	1.414×10^{-4}	1.840×10^{-5}

* : Literatür verilerinden interpolasyon yöntemiyle hesaplanmıştır.

Çizelge 4.5. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için S-3 referans uranyum malzemesinin (ağırlık yüzdesiyle birlikte) kütle soğurma katsayıları [40]

Bileşeni	Ağırlık (%)	Kütle Soğurma Katsayısı* (cm ² g ⁻¹)		
	S-3	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV
Al ₂ O ₃	6.000	2.024 x 10 ⁻²	1.315 x 10 ⁻²	3.751 x 10 ⁻³
B ₂ O ₃	0,003	6.300 x 10 ⁻⁶	5.200 x 10 ⁻⁶	1.900 x 10 ⁻⁶
BaO	0,040	6.302 x 10 ⁻³	2.519 x 10 ⁻³	2.340 x 10 ⁻⁵
CaO	0,550	5.436 x 10 ⁻³	2.479 x 10 ⁻³	3.513 x 10 ⁻⁴
Cr ₂ O ₃	0,004	5.750 x 10 ⁻⁵	2.450 x 10 ⁻⁵	2.400 x 10 ⁻⁶
CuO	0,020	5.487 x 10 ⁻⁴	2.168 x 10 ⁻⁴	1.200 x 10 ⁻⁵
Fe ₂ O ₃	0,500	9.414 x 10 ⁻³	3.672 x 10 ⁻³	3.054 x 10 ⁻⁴
K ₂ O	2,500	2.367 x 10 ⁻²	1.083 x 10 ⁻²	1.561 x 10 ⁻³
MgO	1,200	3.848 x 10 ⁻³	2.576 x 10 ⁻³	7.590 x 10 ⁻⁴
MnO	0,090	1.584 x 10 ⁻³	6.498 x 10 ⁻⁴	5.370 x 10 ⁻⁵
Na ₂ O	1,050	3.102 x 10 ⁻³	2.135 x 10 ⁻³	6.478 x 10 ⁻⁴
P ₂ O ₅	0,100	3.893 x 10 ⁻⁴	2.379 x 10 ⁻⁴	6.290 x 10 ⁻⁵
SiO ₂	80,000	2.937 x 10 ⁻¹	1.852 x 10 ⁻¹	5.093 x 10 ⁻²
SrO	0,040	2.034 x 10 ⁻³	7.870 x 10 ⁻⁴	2.500 x 10 ⁻⁵
ThO ₂	0,0004	4.900 x 10 ⁻⁵	2.020 x 10 ⁻⁵	3.000 x 10 ⁻⁷
TiO ₂	0,330	3.369 x 10 ⁻³	1.513 x 10 ⁻³	2.007 x 10 ⁻⁴
U ₃ O ₈	0,418	5.057 x 10 ⁻²	2.079 x 10 ⁻²	3.203 x 10 ⁻⁴
V ₂ O ₅	0,580	6.166 x 10 ⁻³	2.733 x 10 ⁻³	3.548 x 10 ⁻⁴
ZnO	0,040	1.219 x 10 ⁻³	4.792 x 10 ⁻⁴	2.410 x 10 ⁻⁵

* : Literatür verilerinden interpolasyon yöntemiyle hesaplanmıştır.

Çizelge 4.6. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için BL-2 referans uranyum malzemesinin (ağırlık yüzdesiyle birlikte) kütle soğurma katsayıları [40]

Bileşeni	(%) Ağırlık	Kütle Soğurma Katsayısı* (cm ² g ⁻¹)		
	BL – 2	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV
Al	6,620	2.877×10^{-2}	1.665×10^{-2}	4.069×10^{-3}
Ca	4,060	5.246×10^{-2}	2.264×10^{-2}	2.594×10^{-3}
Fe	4,750	1.232×10^{-1}	4.615×10^{-2}	2.847×10^{-3}
K	0,330	3.610×10^{-3}	1.599×10^{-3}	2.052×10^{-4}
Mg	1,500	5.727×10^{-3}	3.534×10^{-3}	9.444×10^{-4}
Na	3,420	1.091×10^{-2}	7.198×10^{-3}	2.086×10^{-3}
SiO ₂	59,120	2.171×10^{-1}	1.369×10^{-1}	3.764×10^{-2}
H ₂ O	0,190	5.060×10^{-5}	3.770×10^{-5}	1.340×10^{-5}
U	0,453	6.445×10^{-2}	2.642×10^{-2}	3.576×10^{-4}
Pb	0,090	9.227×10^{-3}	3.746×10^{-3}	6.390×10^{-5}
S	0,036	2.590×10^{-5}	1.280×10^{-5}	2.300×10^{-6}

* : Literatür verilerinden interpolasyon yöntemiyle hesaplanmıştır.

Çizelge 4.7. 46.5 keV, 63.3 keV, 1001 keV gama ışınları için BL-4 referans uranyum malzemesinin (ağırlık yüzdesiyle birlikte) kütle soğurma katsayıları [40]

Bileşeni	(%) Ağırlık	Kütle Soğurma Katsayısı (cm ² g ⁻¹)		
	BL – 4	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV
Al	6,750	2.934×10^{-2}	1.698×10^{-2}	4.149×10^{-3}
Ca	3,270	4.225×10^{-2}	1.823×10^{-2}	2.089×10^{-3}
Fe	5,260	1.364×10^{-1}	5.110×10^{-2}	3.153×10^{-3}
K	0,360	3.939×10^{-3}	1.744×10^{-3}	2.238×10^{-4}
Mg	1,380	5.268×10^{-3}	3.251×10^{-3}	8.688×10^{-4}
Na	3,240	1.033×10^{-2}	6.819×10^{-3}	1.976×10^{-3}
SiO ₂	61,220	2.248×10^{-1}	1.417×10^{-1}	3.897×10^{-2}
H ₂ O	0,160	4.260×10^{-5}	3.170×10^{-5}	1.130×10^{-5}
U	0,173	2.461×10^{-2}	1.009×10^{-2}	1.366×10^{-4}
Pb	0,031	3.178×10^{-3}	1.290×10^{-3}	2.200×10^{-5}
S	0,031	2.230×10^{-5}	1.100×10^{-5}	2.000×10^{-6}

* : Literatür verilerinden interpolasyon yöntemiyle hesaplanmıştır.

5. SONUÇ VE TARTIŞMA

5.1. Uranyum Aktivite Sonuçları

Standartla karşılaştırma metoduyla da bir numunenin aktivitesi ölçülebilir. Ancak, numune matriksine uygun bir standart temini her zaman zordur. Çalışmada önerilen “doğrudan” veya “mutlak” gama spektrometrik uranyum ölçme metodu için belli uranyum cevherinden hazırlanmış ve konsantrasyonları farklı 11 adet sertifikalı referans uranyum malzemeleri ile ölçümler yapılmıştır. Kullanılan CRM numunelerinden birine ait gama spektrumu Ek 1’de (Şekil 5.1) görülmektedir. Spektrum incelendiğinde ^{238}U ’in ürün (kız) çekirdeklerine ait çok sayıda gama ışını piki gözlenmektedir. Tezin Giriş bölümünde gerekçesi açıklanan bu uranyum ölçme metodunda; uranyum tayininde 63.3 keV (^{234}Th) ile 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) enerjili gama ışınları kullanılmıştır. Her numune en az 3 kez, farklı sayım sürelerinde REGe dedektörlü gama spektrometresinde sayılmıştır. Elde edilen gama spektrumları Bölüm 3.5’de açıklanan işlemlere göre değerlendirilerek, 46.5 keV (^{210}Pb), 63.3 keV (^{234}Th) ve 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) fotopik alanları belirlenmiş ve dolayısıyla spektrum alma süresi hesaba katılarak sayım hızları ölçülmüştür. Bölüm 3.5.3’deki aktivite hesaplama eşitliğinde “Eş. 3.11” denge sözkonusu olduğu için $D=1$ alınarak, numunelerin ihtiva ettiği ^{210}Pb , ^{234}Th ve $^{234\text{m}}\text{Pa}$ aktiviteleri belirlenmiştir. Sonuçlar özgül aktivite (Bq/g) olarak Çizelge 5.1’de verilmiştir. Ölçülen değerlerin ortalama ve standart sapması Çizelge 5.1’de gösterilmiştir. Aktivitedeki toplam belirsizlik, “Eş. 3.11” deki niceliklerin hatası kullanılarak;

$$\frac{\Delta A}{A} = \sqrt{\left(\frac{\Delta P}{P}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \epsilon}{\epsilon}\right)^2 + \left(\frac{\Delta I_\gamma}{I_\gamma}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m}{m}\right)^2}$$

hesaplanmıştır. Burada,

- ΔA : Ölçülen aktivite değerindeki toplam (combined) belirsizlik,
 ΔP : Pik alanındaki belirsizlik (ölçüm istatistiğinden hesaplanan ~%2),
 $\Delta \epsilon$: Dedektör veriminin belirsizliği (~%1-2),
 ΔI_γ : Gama yayınlanma şiddetinin belirsizliği (literatür değerlerinden elde edilen),
 Δm : Numune ağırlığının duyarlılığı (%10⁻²)

Çizelge 5.1'deki 46.5 keV (²¹⁰Pb), 63.3 keV (²³⁴Th) ile 1001 keV (^{234m}Pa) pik sonuçlarına göre belirlenen aktivite değerleri incelendiğinde, 1001 keV (^{234m}Pa) piki aracılığı ile ölçülen ²³⁸U aktivitelerinin sertifika edilen değerleriyle en iyi uyumu sağladığı, ancak 46.5 keV (²¹⁰Pb) piki ve 63.3 keV (²³⁴Th) piki sonuçlarından hesaplanan ²³⁸U aktivitelerinin, bu düşük enerjilerin öz-soğurulmaları (self-absorption) nedeniyle sertifika değerlerinden daha düşük çıktığı görülmektedir. Düşük enerji bölgesindeki, 46.5 keV (²¹⁰Pb) piki ve 63.3 keV (²³⁴Th) piki verileriyle ölçülen aktivitelerin normal olarak düşük çıkması beklenen bir sonuçtur. Öz-soğurma etkilerini en azda tutmak için uygulanan bu gama spektrometrik yöntemde, numunenin etkin kalınlığı (1,4 cm) mümkün olduğunca düşük yapılmıştır. Bununla beraber, Çizelge 5.1'deki sonuçlardan 63.3 keV (²³⁴Th) piki aracılığı ile uranyum aktivitesi belirlendiği takdirde, ölçülen değerler üzerinde gama öz-soğurma düzeltmesinin yapılması gerektiğini göstermektedir. Bunun için Bölüm 4.5'deki öz-soğurma düzeltmesi için verilen "Eş. 4.5" kullanılarak, 46.5 keV, 63.3 keV ile 1001 keV gama ışınlarının öz-soğurma faktörleri hesaplanarak, büyüklükleri belirlenmiştir.

Çizelge 5.2'de ve Çizelge 5.3'de örnek öz-soğurma faktörünün hesabındaki değerlendirmeler, S-1,S-3, BL-2 ve BL-4 kodlu referans uranyum numuneleri için verilmiştir. Her bir numune için 46.5 keV, 63.3 keV ve 1001 keV gama ışınları için belirlenen öz-soğurma faktörleri, ölçülen aktivite değerleriyle çarpılarak, düzeltilmiştir. Sonuçlar, Çizelge 5.4'de verilmiştir.

- ΔA : Ölçülen aktivite değerindeki toplam (combined) belirsizlik,
 ΔP : Pik alanındaki belirsizlik (ölçüm istatistiğinden hesaplanan ~%2),
 $\Delta \epsilon$: Dedektör veriminin belirsizliği (~%1-2),
 ΔI_γ : Gama yayınlanma şiddetinin belirsizliği (literatür değerlerinden elde edilen),

Δm : Numune ağırlığının duyarlılığı (% 10^{-2})

Çizelge 5.1'deki 46.5 keV (^{210}Pb), 63.3 keV (^{234}Th) ile 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) pik sonuçlarına göre belirlenen aktivite değerleri incelendiğinde, 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) piki aracılığı ile ölçülen ^{238}U aktivitelerinin sertifika edilen değerleriyle en iyi uyumu sağladığı, ancak 46.5 keV (^{210}Pb) piki ve 63.3 keV (^{234}Th) piki sonuçlarından hesaplanan ^{238}U aktivitelerinin, bu düşük enerjilerin öz-soğurulmaları (self-absorption) nedeniyle sertifika değerlerinden daha düşük çıktığı görülmektedir. Düşük enerji bölgesindeki, 46.5 keV (^{210}Pb) piki ve 63.3 keV (^{234}Th) piki verileriyle ölçülen aktivitelerin normal olarak düşük çıkması beklenen bir sonuçtur. Öz-soğurma etkilerini en azda tutmak için uygulanan bu gama spektrometrik yöntemde, numunenin etkin kalınlığı (1,4 cm) mümkün olduğunca düşük yapılmıştır. Bununla beraber, Çizelge 5.1'deki sonuçlardan 63.3 keV (^{234}Th) piki aracılığı ile uranyum aktivitesi belirlendiği takdirde, ölçülen değerler üzerinde gama öz-soğurma düzeltmesinin yapılması gerektiğini göstermektedir. Bunun için Bölüm 4.5'deki öz-soğurma düzeltmesi için verilen "Eş. 4.5" kullanılarak, 46.5 keV, 63.3 keV ile 1001 keV gama ışınlarının öz-soğurma faktörleri hesaplanarak, büyüklükleri belirlenmiştir.

Çizelge 5.2'de ve Çizelge 5.3'de örnek öz-soğurma faktörünün hesabındaki değerlendirmeler, S-1, S-3, BL-2 ve BL-4 kodlu referans uranyum numuneleri için verilmiştir. Her bir numune için 46.5 keV, 63.3 keV ve 1001 keV gama ışınları için belirlenen öz-soğurma faktörleri, ölçülen aktivite değerleriyle çarpılarak, düzeltilmiştir. Sonuçlar, Çizelge 5.4'de verilmiştir.

Çizelge 5.1. Sertifikalı referans uranyum numunelerinin gama spektrometrik ölçüm sonuçları

No	Radyoaktif Standart Kodu	Uranyum	Uranyum Konsantrasyonu (Sertifika Edilen) (%wt).	²³⁸ U aktivitesi (Sertifika Edilen) (Bq/g)	Ölçülen ²¹⁰ Pb Aktivitesi** (46.5 keV) (Bq/g)	Ölçülen ²³⁴ Th Aktivitesi** (63.3 keV) (Bq/g)	Ölçülen ^{234m} Pa Aktivitesi** (1001 keV) (Bq/g)
1	BL-1	Doğal Uranyum	0.022	2.716	2.587 ± 0.272	2.564 ± 0.250	2.741 ± 0.563
2	S-13	U ₃ O ₈	0.039	4.083	4.053 ± 0.331	3.565 ± 0.321	4.006 ± 0.639
3	RGU-1	Doğal Uranyum	0.040	4.939	4.880 ± 0.074	4.614 ± 0.053	4.969 ± 0.660
4	OIEA-27	U ₃ O ₈	0.140	14.658	12.601 ± 2.109	12.817 ± 2.382	14.353 ± 2.588
5	BL-4	Doğal Uranyum	0.173	21.360	17.926 ± 0.199	18.686 ± 0.886	21.143 ± 1.378
6	S-4	U ₃ O ₈	0.375	39.263	28.414 ± 0.179	33.563 ± 4.178	38.234 ± 0.494
7	S-3	U ₃ O ₈	0.418	43.765	30.424 ± 0.382	35.739 ± 0.249	39.313 ± 1.241
9	S-1	U ₃ O ₈	0.471	49.314	40.735 ± 0.334	40.739 ± 0.388	49.818 ± 1.601
10	OIEA-7	U ₃ O ₈	0.514	53.790	45.016 ± 2.798	45.399 ± 1.761	50.415 ± 2.515
8	BL-2	Doğal Uranyum	0.453	55.931	44.450 ± 0.267	45.573 ± 0.251	55.851 ± 1.734
11	BL-3	Doğal Uranyum	1.020	125.938	95.960 ± 6.313	104.718 ± 1.267	124.716 ± 3.153

* : Radyoaktif standartların sertifika edilen konsantrasyon değerlerinden hesaplanmıştır.

** : Öz-soğurma düzeltilmesi yapılmamış, direkt ölçülen aktivite değerleri.

Çizelge 5.2. S-1 ve S-3 numunelerinde 46.5 keV, 63.3 keV ve 1001 keV enerjili gama ışınları için öz-soğurma faktörleri

Faktör	S – 1			S – 3		
	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV
k	0.155	0.155	0.155	0.155	0.155	0.155
m	7.919	7.919	7.919	8.3786	8.3786	8.3786
μ	0.4899	0.2752	0.06260	0.4318	0.2500	0.05938
$k\mu m$	0.601	0.338	0.077	0.561	0.325	0.077
f_s	1.331	1.178	1.039	1.306	1.171	1.039

k : Geometri faktörü (cm^{-2}),
m : Numune ağırlığı,
 μ : Toplam kütle soğurma katsayısı ($\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$),
 $k\mu m$: “Eş. 4.5.” de kullanılan boyutsuz katsayı,
 f_s : Öz-soğurma düzeltme faktörü.

Çizelge 5.3. BL-2 ve BL-3 numunelerinde 46.5 keV, 63.3 keV ve 1001 keV enerjili gama ışınları için öz-soğurma faktörleri

Faktör	BL – 2			BL – 4		
	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV	46.5 keV	63.3 keV	1001 keV
k	0.155	0.155	0.155	0.155	0.155	0.155
m	6.844	6.844	6.844	6.071	6.071	6.071
μ	0.5155	0.2648	0.05082	0.4802	0.2513	0.05160
$k\mu m$	0.5470	0.2810	0.0539	0.4519	0.2365	0.0486
f_s	1.2983	1.1471	1.0272	1.2429	1.1229	1.0245

k : Geometri faktörü (cm^{-2}),
m : Numune ağırlığı,
 μ : Toplam kütle soğurma katsayısı ($\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$),
 $k\mu m$: “Eş. 4.5” de kullanılan boyutsuz katsayı,
 f_s : Öz-soğurma düzeltme faktörü.

Çizelge 5.4. Sertifikalı referans uranyum numunelerin gama spektrometrik ölçüm sonuçları (öz-soğurma düzeltmesi yapılan)

No	Radyoaktif Standart Kodu	Uranyum	Uranyum Konsantrasyonu (Sertifika Edilen) (% wt)	^{238}U Aktivitesi (Sertifika Edilen) (Bq/g)	Ölçülen ^{238}U Aktivitesi (^{234}Th , 63.3 keV) (Bq/g)	Ölçülen ^{238}U Aktivitesi ($^{234\text{m}}\text{Pa}$ 1001keV) (Bq/g)
1	BL-1	Doğal Uranyum	0.022	2.716	2.692	2.745
2	S-13	U_3O_8	0.039	4.083	4.075	4.049
3	RGU-1	Doğal Uranyum	0.040	4.939	4.849	4.979
4	OIEA-27	U_3O_8	0.140	14.658	14.643	14.625
5	BL-4	Doğal Uranyum	0.173	21.360	20.981	21.661
6	S-4	U_3O_8	0.375	39.263	39.074	39.205
7	S-3	U_3O_8	0.418	43.765	41.850	40.877
9	S-1	U_3O_8	0.471	49.314	47.989	51.760
10	OIEA-7	U_3O_8	0.514	53.790	53.775	52.331
8	BL-2	Doğal Uranyum	0.453	55.931	52.276	57.358
11	BL-3	Doğal Uranyum	1.020	125.938	124.562	126.586

* : Radyoaktif standartların sertifika edilen konsantrasyon değerlerinden hesaplanmıştır.

Konsantrasyonları %0.022 ile %1.02 arasında değişen referans numunelerin, 63.3 keV (^{234}Th) piki aracılığı ile ölçülen ^{238}U aktiviteleri (Çizelge 5.4'ün 5. sütunu), sertifika edilen aktivite değerleriyle (Çizelge 5.4'ün 4. sütunu) %0.1- 6.9 uyum göstermiştir. Sayım istatistiği yüksek olan 63.3 keV (^{234}Th) pik sonuçlarını, öz-soğurma bu gama ışınının düşük enerjili olması nedeniyle etkilediği anlaşılmaktadır. Ayrıca numunenin toryum safsızlığı nedeniyle, ^{232}Th 'den yayınlanan 63.9 keV (%0.255), numunedeki ^{235}U 'ün bozunma ürünü ^{231}Th 'den yayınlanan 63.9 keV (%0.023) ile ^{234}Th 'ün analitik amaçlı piki 63.3 keV (%4.5) doubleti sayılabilecek, 62.9 keV (%0.018)'lik gamasından girişim yapmaktadır [41]. Söz konusu girişim piklerinin sayıma ilâve katkıları ya da bozucu etkileri, numunedeki toryum miktarının fazla olması veya

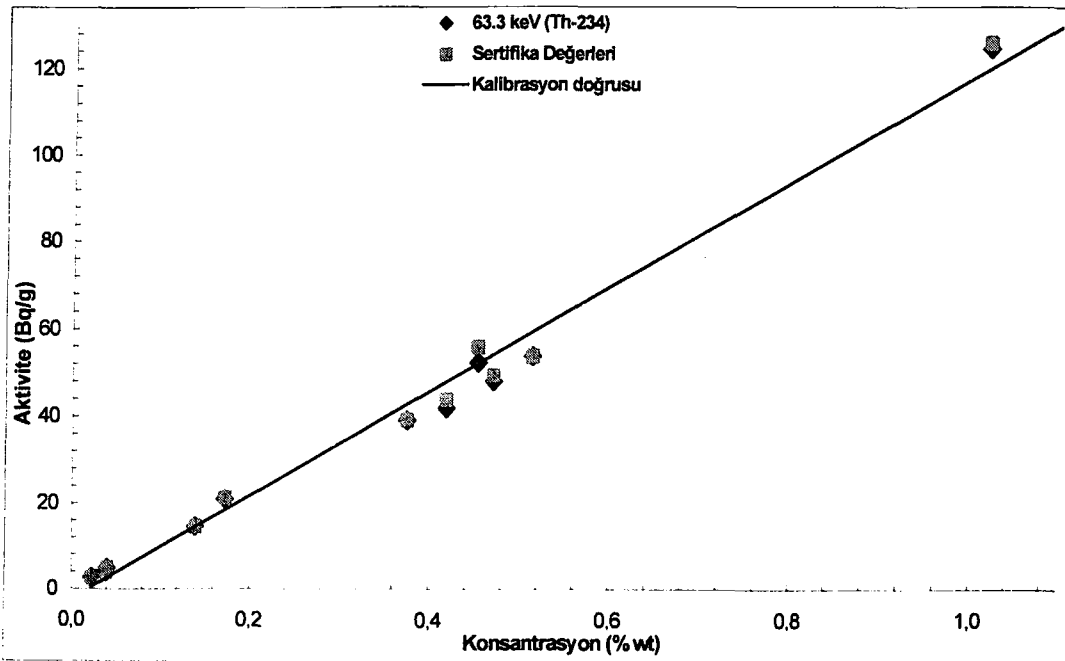
numunenin ^{235}U izotopunca zenginleştirilmiş ($>0.71\%$) olması halinde önemli bir rol oynar. Ancak numunenin doğal uranyum içermesi durumunda ^{231}Th 'den gelen katkı ihmal edilebilir. Çalışmada kullanılan sertifikalı referans uranyum numunelerinin, 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) piki aracılığı ile ölçülen ^{238}U aktiviteleri (Çizelge 5.4'ün 6. sütununda gösterilen), referans uranyum numunelerin sertifika edilen aktiviteleriyle $0.01-4.7\%$ uyumlu ölçülmüştür. $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 'in 1001 keV gama pikinden belirlenen aktivitelerin, ^{234}Th 'ün 63.3 keV gama pikinden belirlenen aktivitelerden daha iyi bir uyum göstermesi, temelde iki nedene bağlanabilir. Birincisi 1001 keV (^{234}Pa) gama ışını, yüksek enerjili olduğu için öz-soğurma etkisi ihmal edilebilir düzeydedir. Çünkü; 63.3 keV gama ışını için, numune bileşimine göre $4.9-18.4\%$ arasında bir öz-soğurma olurken, 1001 keV'lik gama ışını için aynı numunelerde sadece $0.1-3.9\%$ arasında değişen bir öz-soğurma etkisi belirlenmiştir. İkinci neden ise, 1001 keV'lik pik Ek-1'deki gama spektrumundan da görüleceği gibi, başka gama ışınlarının girişim yapmadığı, "temiz" bir gama pikidir. Dolayısıyla, 1001 keV pikinden elde edilen spektrum verisi, doğrudan numunedeki uranyumun göstergesidir. 1001 keV gama pikinin ^{238}U tayinindeki en büyük dezavantajı ise, bu ışının bozunma başına foton yayınının (gama çıkış şiddeti; I_γ) düşük olmasıdır [42]. Üstelik, literatürde I_γ (1001 keV) değerleriyle ilgili ölçümler kesinlik kazanmamıştır (Çizelge 5.5).

Çizelge 5.5. $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 'in 1001 keV gama ışınının çıkış şiddeti

<u>%</u>	
0.92 $\pm$ 0.02	Anilkumar, S. et al (1999)
0.59 $\pm$ 0.022	Bjornholm and Nielsen (1963)
0.845 $\pm$ 0.021	Sienmon et al (1992)
0.839 $\pm$ 0.005	Scot and Marlow (1990)

Dolayısıyla aktivite hesaplamalarında, kullanılan I_γ 'nın kesin değeri üzerinde ölçümler devam etmektedir. Bu çalışmada, en son literatür değeri, $I_\gamma = 0.92 \pm 0.02$ % kullanılmıştır. 1001 keV (^{234m}Pa) pikinin ^{238}U tayininde kullanılmasının diğer bir dezavantajı ise, Çizelge 5.5'de görüldüğü gibi, I_γ değeri küçüktür, bu nedenle elde edilen gama spektrumunda 1001 keV'lik fotopikinin sayım istatistiği kötüdür. Bunu gidermek için numunenin miktarı ve sayım süresi artırılması gerekmektedir. Sunulan analitik metotta; öz-soğurma etkisini azaltmak için numune miktarı (dolayısıyla kalınlığı) düşük tutulmuştur, ancak sayım süresi (75 000 s ile 125 000 s arasında değişen) uzun seçilmiştir.

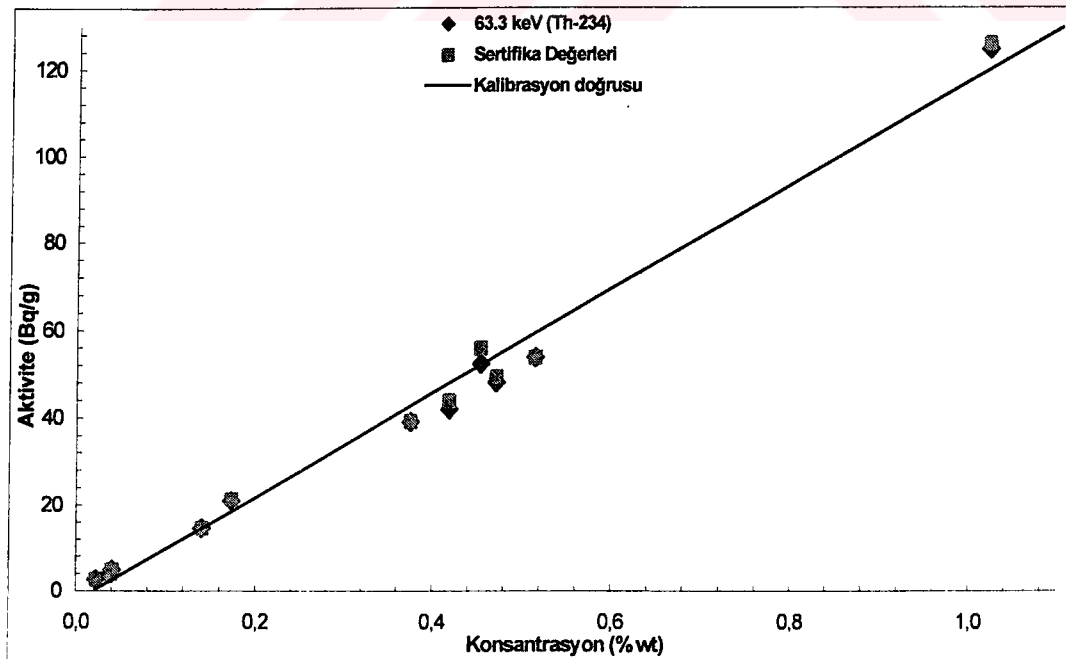
Şekil 5.2 ve Şekil 5.3'de, numunelerin konsantrasyonlarına (%ağırlık) karşı, 63.3 keV (^{234}Th) pik ve 1001 keV(^{234m}Pa)'den ölçülen ^{238}U aktiviteleri çizilerek kalibre edilmiştir. Kalibrasyon grafikleri incelendiğinde, ölçülen ve sertifika edilen aktivitelerin iyi bir uyum sergilediği görülmektedir. Ancak, bazı referans numunelerin, sertifika edilen konsantrasyonları farklı olduğundan, kullanılan ortalama değerlerinden sapmalar göze çarpmaktadır.



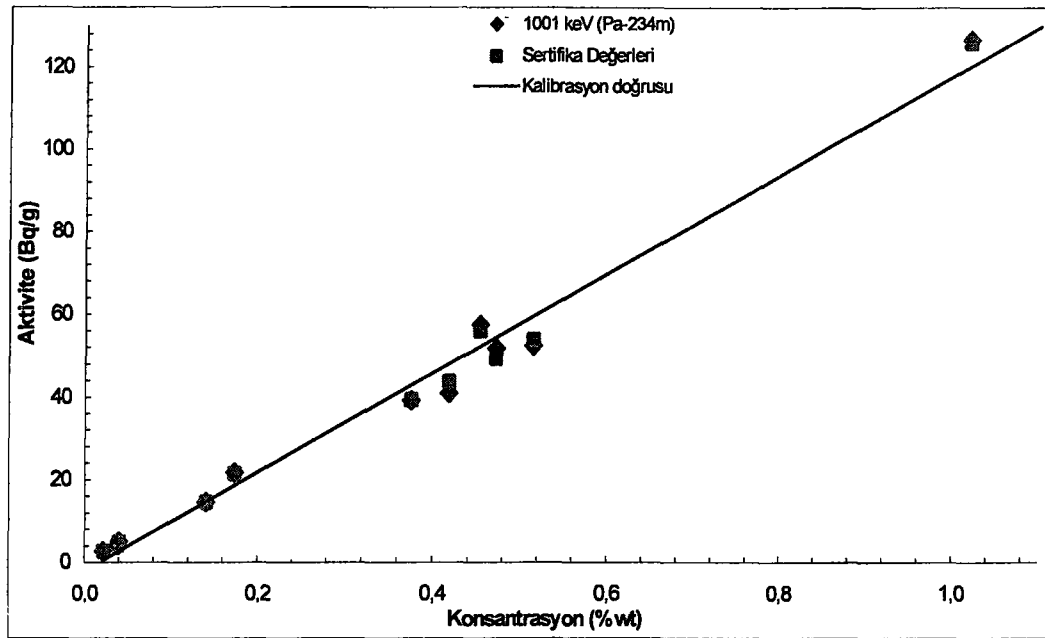
Şekil 5.2. 63.3 keV (^{234}Th) gama ışını için aktivite – konsantrasyon grafiği

Dolayısıyla aktivite hesaplamalarında, kullanılan I_γ 'nın kesin değeri üzerinde ölçümler devam etmektedir. Bu çalışmada, en son literatür değeri, $I_\gamma = 0.92 \pm 0.02$ % kullanılmıştır. 1001 keV (^{234m}Pa) pikinin ^{238}U tayininde kullanılmasının diğer bir dezavantajı ise, Çizelge 5.5'de görüldüğü gibi, I_γ değeri küçüktür, bu nedenle elde edilen gama spektrumunda 1001 keV'lik fotopikin sayım istatistiği kötüdür. Bunu gidermek için numunenin miktarı ve sayım süresi artırılması gerekmektedir. Sunulan analitik metotta; öz-soğurma etkisini azaltmak için numune miktarı (dolayısıyla kalınlığı) düşük tutulmuştur, ancak sayım süresi (75 000 s ile 125 000 s arasında değişen) uzun seçilmiştir.

Şekil 5.2 ve Şekil 5.3'de, numunelerin konsantrasyonlarına (%ağırlık) karşı, 63.3 keV (^{234}Th) pik ve 1001 keV(^{234m}Pa)'den ölçülen ^{238}U aktiviteleri çizilerek kalibre edilmiştir. Kalibrasyon grafikleri incelendiğinde, ölçülen ve sertifika edilen aktivitelerin iyi bir uyum sergilediği görülmektedir. Ancak, bazı referans numunelerin, sertifika edilen konsantrasyonları farklı olduğundan, kullanılan ortalama değerlerinden sapmalar göze çarpmaktadır.



Şekil 5.2. 63.3 keV (^{234}Th) gama ışını için aktivite – konsantrasyon grafiği



Şekil 5.3. 1001 keV (^{234m}Pa) gama ışını için aktivite-konsantrasyon grafiği

Farklı konsantrasyonlara sahip (%0.022-1.02) sertifikalı referans uranyum numunelerinin elde edilen gama spektrumlarından ^{238}U 'in bozunma zincirindeki uzak ürün (düşük atom numaralı) ^{210}Pb aktivitesi belirlenmiştir. ^{210}Pb 'un yayınladığı 46.5 keV gama ışını, daha yüksek yayınlanma ihtimaliyetine ($I_\gamma = 4.05\%$) sahip olmasına karşın, düşük enerjili olması nedeniyle öz-soğurma etkisi daha fazladır. Bölüm 4.5'de açıklanan öz-soğurma düzeltmesi işlemlerine göre, 46.5 keV (^{210}Pb) pik sonuçları için uygulanan öz-soğurma faktörleri, %10.5-33.1 arasında değişmiştir. Öz-soğurma düzeltmesi yapılan ^{210}Pb aktiviteleri Çizelge 5.6'da verilmiştir. Çalışmada kullanılan referans uranyum malzemelerinde radyoaktif dengenin kurulup kurulmadığını (Bölüm 2.7'de açıklanan) deneysel ölçümlerle kontrol etmek için, ^{238}U 'in yakın ürün ^{234}Th 'ün aktivitesiyle, uzak ürünü ^{210}Pb 'un aktivitesi Çizelge 5.6'da verildiği gibi, birbirine oranlanmıştır. Sonuçlar, kullanılan CRM numunelerinde ortalama bir değer olarak ifade edildiğinde, %94 düzeyinde radyoaktif dengenin varlığı gözlenmektedir.

Çizelge 5.6.Sertifikalı uranyum numuneleri için ^{238}U 'in bozunma zincirinde yakın ve uzak kız çekirdekleri arasındaki denge durumları

No	Radyoaktif Standart Kodu	Uranyum Konsantrasyonu (Sertifika Edilen) (% wt)	^{234}Th Yakın Ölçülen Aktivite (63.3 keV) (Bq/g)	^{210}Pb Uzak Ölçülen Aktivite* (46.5keV) (Bq/g)	$^{234}\text{Th}/^{210}\text{Pb}$ Denge
1	BL-1	0.022	2.692	2.858	0.942
2	S-13	0.039	4.075	4.742	0.859
3	RGU-1	0.040	4.849	5.832	0.901
4	OIEA-27	0.140	14.643	15.763	0.929
5	BL-4	0.173	20.981	22.282	0.942
6	S-4	0.375	39.074	37.932	1.030
7	S-3	0.418	41.850	39.733	1.053
9	S-1	0.471	47.989	54.218	0.885
10	OIEA-7	0.514	53.775	58.655	0.916
8	BL-2	0.453	52.276	57.709	0.906
11	BL-3	1.020	124.562	124.978	0.996

* : Öz-soğurma düzeltmesi yapılmış değerler.

Çok düşük uranyum içeriğine sahip numuneler için gama spektrometresinin dedeksiyon sınırının bilinmesi de önemlidir. Dedeksiyon sınırı, kullanılan dedektördeki fotopik verim değeri ve her pik bölgesindeki tabi fon (background) sayımları kullanılarak, aşağıdaki eşitlikten hesaplanabilir [43];

$$DL = \frac{A}{\epsilon \cdot I_{\gamma} \cdot t_c \cdot W} \left(\frac{A}{2} + \sqrt{2B + \frac{A^2}{4}} \right) \quad (5.1)$$

Burada;

DL : Dedeksiyon sınırı (Bq / g veya Bq / l),

- ϵ : Fotopik verimi,
 I_γ : Gama ışını yayılım hızı,
 t_c : Sayım zamanı (s),
 W : Numune ağırlığı (g) veya hacmi (l),
 B : İlgilenilen her pik bölgesinin doğal fon (background) sayımları,
 A : Relatif sayım hatasının tersi (Eğer $A = 3$ kullanılırsa, bu sayım hatasıyla ölçülen konsantrasyonların verilerden ileri gelen sayım belirsizliğinin %33'ü giderilmiş olur).

En düşük uranyum konsantrasyonlu (BL-1, %0.022) CRM numuneden elde edilen pik alanına "Eş. 5.1" uygulandığında dedeksiyon sınırının ^{210}Pb için 1.5×10^{-3} Bq/g, ^{234}Th 63.3 keV için 2×10^{-3} Bq/g olduğu hesaplanmıştır.

Bu tezde, açıklanan gama spektrometrik metot uygulanarak numunelerdeki ^{238}U aktivitesinin (veya konsantrasyonun) doğrudan ölçülmesi ve spektral değerlendirme için 63.3 keV (^{234}Th) ile 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) fotopiklerinin doğru sonuç vererek kullanılabilir, gama yayınımları olduğu gösterilmiştir. Özellikle düşük enerjili foton spektrometrelerinde 63.3 keV pikin uygun öz-soğurma düzeltmeleri yapılarak kullanılabilirliği, yüksek miktarda toryum safsızlığı ve zenginleştirme olması halinde, ^{238}U 'in 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) pikinden tayininin daha doğru sonuç vereceği gösterilmiştir. Numunelerdeki ^{235}U izotopu doğal bollukta (%0.71) olduğu için ve ^{235}U 'in bozunma ürünü ^{231}Th 'in temiz analitik bir piki 143.5 keV (%0.36) bulunduğundan, ^{235}U analizi üzerinde durulmamıştır. Sonuçta saf germanyum dedektörlü gama spektrometreleri kullanılarak numunelerdeki ^{238}U konsantrasyonlarının, hızlı, pratik ve güvenilir olarak, 63.3 keV (^{234}Th) veya 1001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) gama pikleriyle belirlenebildiği gösterilmiştir. Sunulan metot, çevresel radyoaktivite ölçümlerinde ve uranyum yakıt çevriminin çeşitli aşamalarında analizlenecek numunelere uygulanabilecektir.

KAYNAKLAR

1. Physics and Chemistry of Fission, 1965, **Intstrum. Atomic Energy Agency**, Vol. 1, 2, Vienna.
2. Vargas, M. J., Tome, A.M., Sanchez, F.V., 1995, "Behaviour of uranium, thorium and ^{226}Ra in surface waters from a river passing through a granitic region in the southwest of Spain", **Nuclear Geophysics**, 9 (6), 567 – 578.
3. Bouhlassa, S., Stiki, K., 1994, "Mobility of some natural and fallout radionuclides in soil – water interface in a Moroccan watershed", **International Symposium On Radiation Physics (ISRP-6)**, 6, 2, Rabat (Morocco).
4. Yücel, H., Özmen, A., 1995, "Migration of ^{137}Cs Extracted Tea in Sandy Clay Soil" **J. Nuclear Science and Technology**, Vol. 32, No:6, 547–555.
5. Jagam, P., Simpson, J.J., 1993, "Measurements of Th, U and K. Concentrations in variety of minerals", **Nuclear Instruments and Methods in Physics**, Section A 324, 389 - 398.
6. Horrocks, D.L., 1974, "Measurements of low levels of normal uranium in water and urine by liquid scintillation alpha counting", **Nuclear Instruments and Methods**, Vol. 177, 589 - 595.
7. Ivanovich, M., Harmon, R.S., 1992, "Uranium – series disequilibrium: applications to earth, marine and environmental sciences", **Clarendon Press**, 910, 2nd Edition, Oxford.
8. Nagi, F.I., Mubarakmand, S., Chaudhry, P., 1973, **Journal Nat. Sci. and Math.**, 13, 295.
9. Mubarakmand, S., Chaudhry, P., Nagi, F.I., 1977, "Absolute determination of uranium concentration in rocks by gamma – ray spectroscopy", **Nuclear Instruments and Methods**, Vol.140, 133 – 335.
10. Hurley, P.M., 1965, **Bull. Geol. Sec. Am.**, 67, 395.
11. Adams, J.A.S., Richardson, K.E., Templeton, C.C., 1958, **Geochim, Cosmochim.**, 13, 270, Acta.
12. Lukas, H.F., Markun, F., Environ, J., 1992, "The determination of ^{226}Ra in water and solids by the Least squares Gamma Spectrometric Method", **Radioactivity**, 15, 1 - 18.

13. Yener, G., Uysal, I., 1996, "Low energy scintillation spectrometry for direct determinations of ^{238}U and ^{210}Pb in Coal and Ash samples", **Applied Radiation and Isotopes**, 47 (1), 93 - 96.
14. Lau, H.M., Sakonoue, M., Komura, K., 1982, "Absolute determination of uranium by Hyperpure Germanium LEPS", **Nuclear Instruments and Methods**, Vol. 200, 561 – 565.
15. Coursol, N., Lagoutine, F., Duchemin, B., 1990, "Evaluation of non-neutron nuclear data for the uranium-238 decay chain", **Nuclear Instruments and Methods in Physics**, Section A, 286, 589 – 594.
16. Joshi, S.R., 1987, "Nuclear spectrometric determination of uranium isotopes without use of radiochemical yield monitors", **Nuclear Instruments and Methods in Physics**, Section A, 254, 349 – 354.
17. Yücel, H., Çetiner, M.A., Demirel, H., 1998, "Use of the 1001 keV peak of $^{234\text{m}}\text{Pa}$ daughter of ^{238}U in measurement of uranium concentration by HPGe gamma-ray spectrometry", **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, Section A, 413, 74 – 82.
18. CRC Handbook of Chemistry and Physics, 1980, **CRC Press. Inc.**, 60 th Edition, Vienna.
19. Türkiye'de Uranyum ve Toryum Kaynaklarının Değerlendirilmesi Semineri Bildiriler, 1983, **Başbakanlık Atom Enerji Kurumu**, 23–26, Ankara.
20. Nuclear Wallet Cards, 1990, **Nat. Nuclear Data Center, BNL, USA**.
21. Yücel, H., 1999, **Nükleer Enerji Raporu**.
22. Arya, A.P., Çev:Şahin, Y., 1989, **Çekirdek Fiziğinin Esasları**, 22–42, 324, Erzurum.
23. Henry, S., 1939, **Introduction to Atomic and Nuclear Physics**, Fourth Edition, 331-550, The city college of the city University of New York.
24. Edward, A., 1976, **Experimental Reactor Physics**, **John Willey and Sons**, 1-805, Nuclear Engineering University of California, Santa Barbara.
25. Irving, K., 1956, **Nuclear Physics**, Brookhaven National Laboratory **Addison-Wesley Publishing Company**, Inc. Reading, Massachusetts. 1-599.

26. Baykut, F., 1984, Modern Genel Anorganik, **İstanbul Üniversitesi Yayınları**, 3135, 219–224, 768, İstanbul.
27. Serway, R.A., Çev : Çolakoğlu, K., 1996, Fen ve Mühendislik İçin Fizik, **Palme Yayıncılık**, 3, 1354–1369, Ankara.
28. Tanyel, B., 1994, Nükleer Fizik, **Ege Üniversitesi Basımevi**, 1–96, Bornova, İzmir.
29. Akovalı, Y.A., 1994, **Nuclear Data Sheet**, 71–181.
30. Tsoulfanidis, N., 1983, Measurement and Detection of Radiation, Hemisphere Publishing Corporation, **Mc Graw-Hill Book Company**.
31. Radiation Detection and Measurement, 1989, **John Willey and Sons, Inc.**, 2 nd Edition.
32. Keller, C., 1988, "Radiochemistry", **John Willey and Sons, Inc.**, Section 3,3.
33. Canberra REGe Detector Specification and Performance Data, 1997, **Canberra Industries**, Meriden, CT, USA.
34. Radiation Sources, 1995, **Isotope Products Laboratories**, Burbank, U.S.A.
35. Canberra MCA Series 95 User's Manual, 1986, **Canberra Industries**, Meriden, CT, U.S.A.
36. Galloway, R.B., 1991, "Correction for sample self-absorption in activity determination by gamma spectrometry", **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, Section A, 300, 367–373.
37. Miller, K.M., 1987, "Self-Absorption Corrections for Gamma Ray Spectral Measurements of ^{210}Pb in Environmental Samples", **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, Section A, 258, 281–285.
38. Hussain, N., Kim, G., Church, T.M., Carey, W., 1996, "A Simplified Technique for Gamma-Spectrometric Analysis of ^{210}Pb in Sediment Samples", **Applied Radiation and Isotopes**, 47(4), 473-477.
39. Cuthall, N.R., Larsen, I.L., Olsen, C.R., 1983, "Direct Analysis in Sediment Samples: Self-Absorption Corrections", **Nuclear Instruments and Methods**, 206, 309-312.

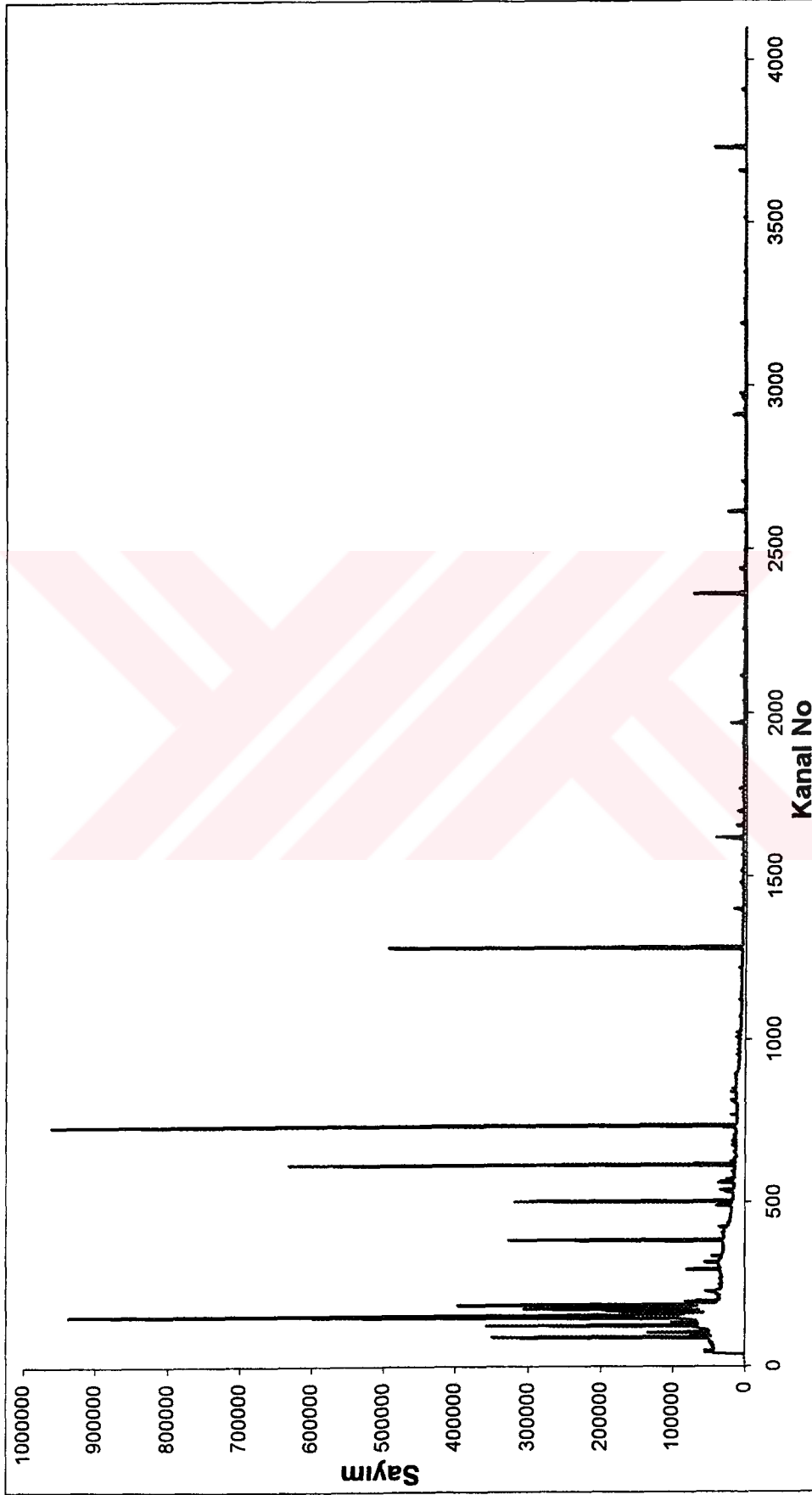
40. Hubbel, J.H., 1982, "Photon Mass Attenuation and Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV", **Int. J. Applied Radiation and Isotopes**, Vol:33, 1269-1290.
41. Joshi, S.R., 1987, "Nuclear Spectrometric Determination of Uranium Isotopes Without Use of Radiochemical Yield Monitors", **Nuclear Instruments and Methods**, Section A, 349-354.
42. Anilkumar, S., Narayani, K., Abani, M.C., 1999, "Application of fundamental parameter method for investigation of the branching intensity of 1001 keV gamma energy of ^{234m}Pa ", **Applied Radiation and Isotopes**, 51, 725-728.
43. Cooper, J.A., 1970, **Nuclear Instruments and Methods**, Vol:82, 269-273.
44. Yedinci 5 Yıllık Kalkınma Planı Özel İhtisas Komisyonu Raporu, 1996, DPT, 1-22, Ankara.



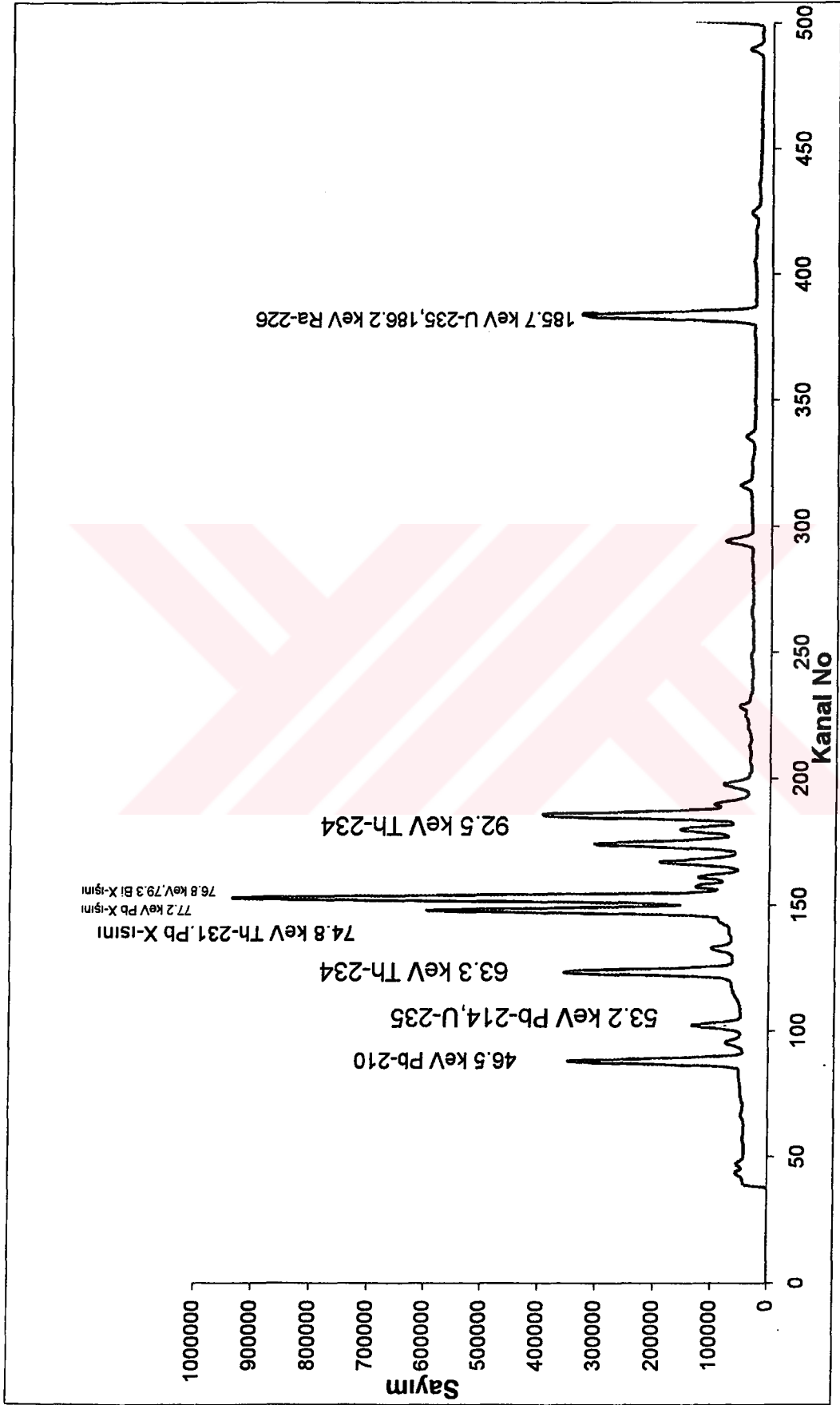


EKLER

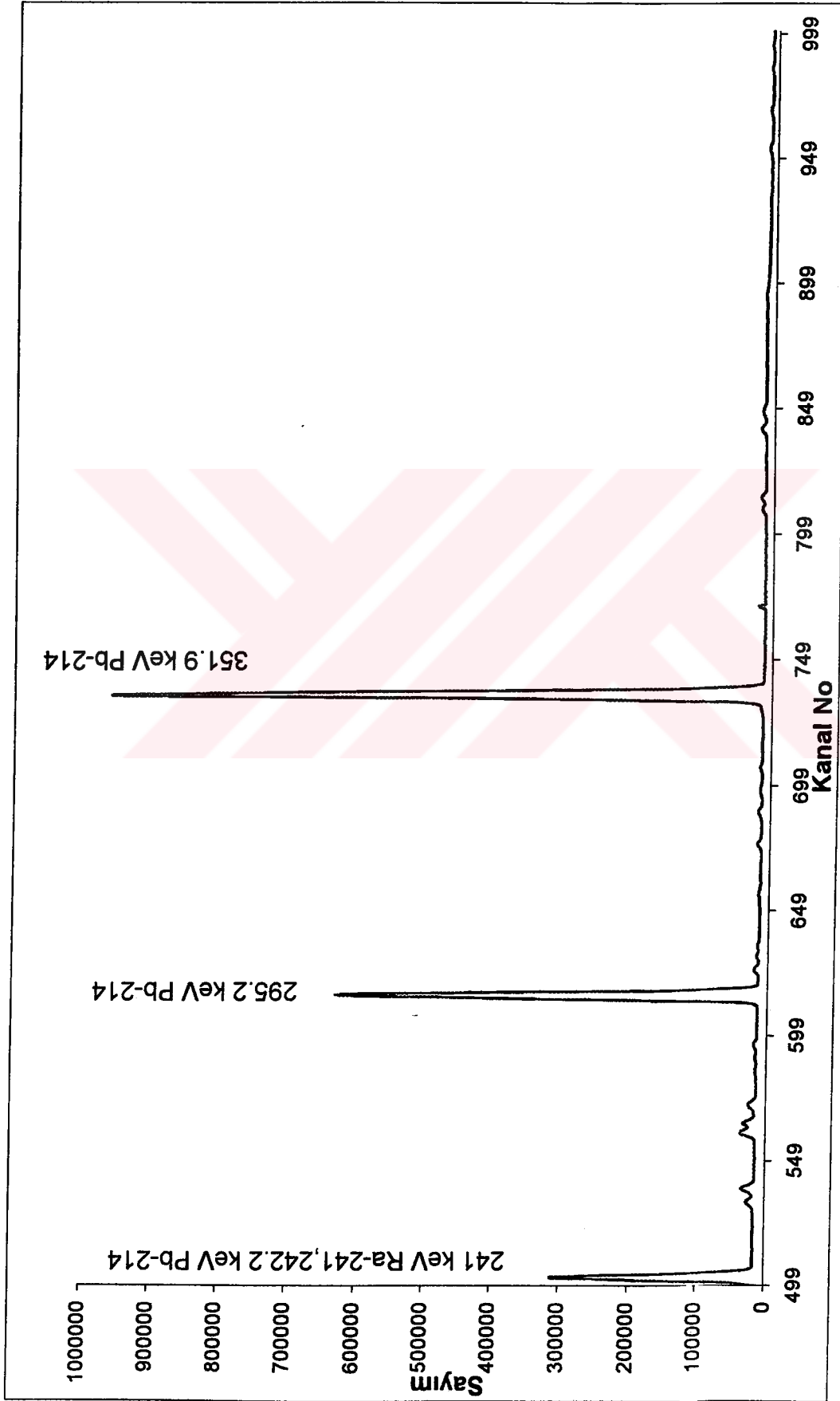
EK-1
BL-3 STANDARĐININ GAMA SPEKTRUMU



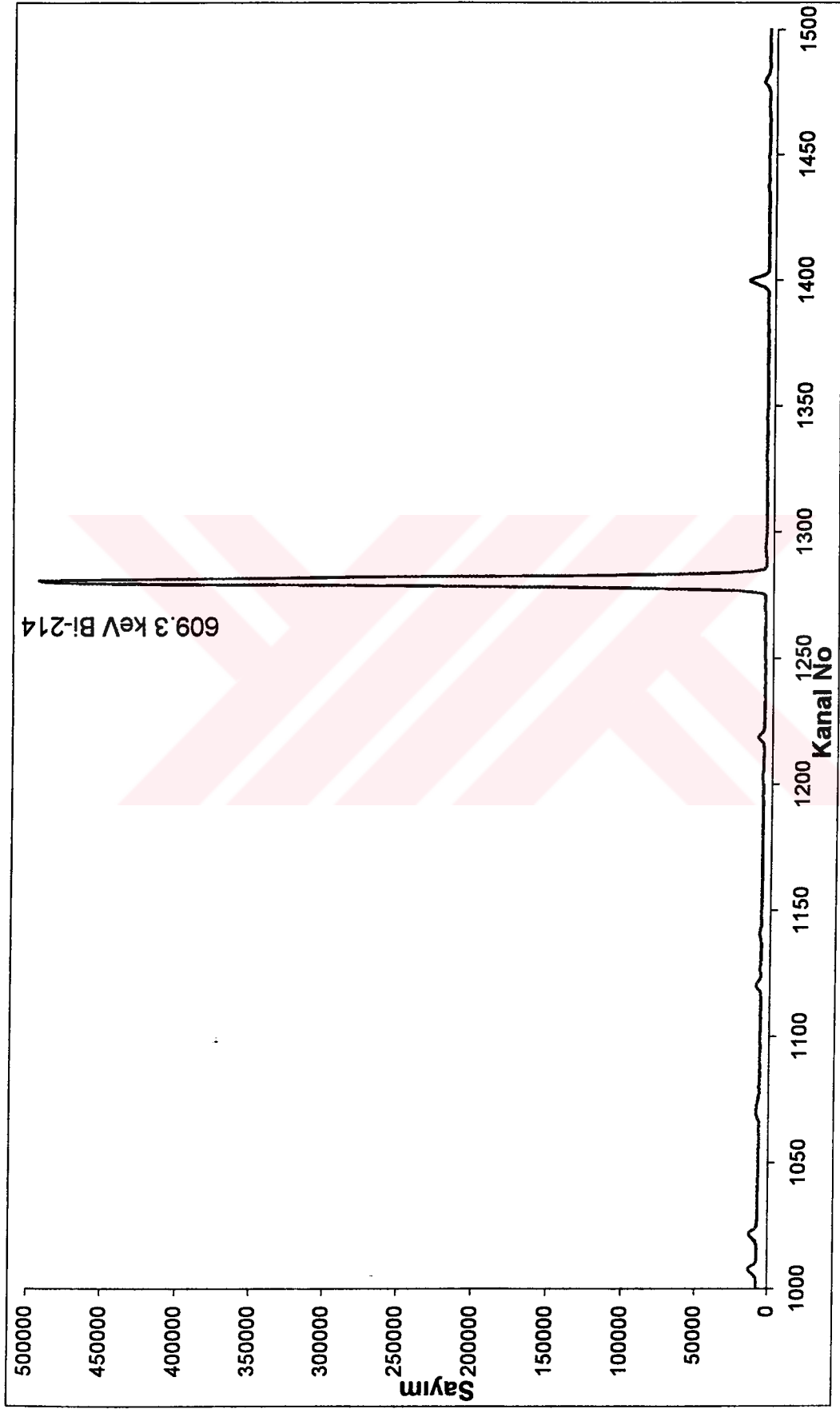
Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu (Tüm kanallar için)



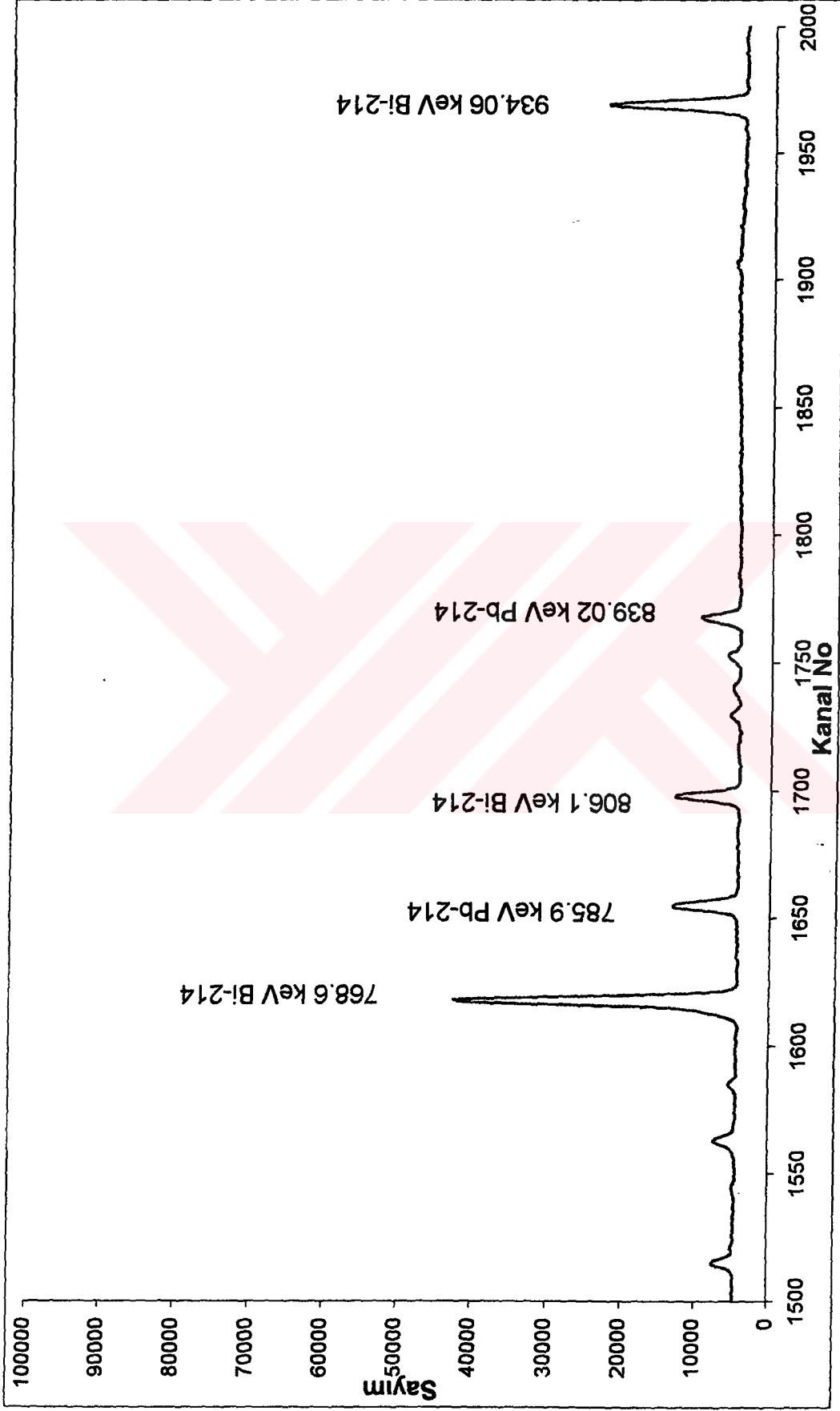
Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu



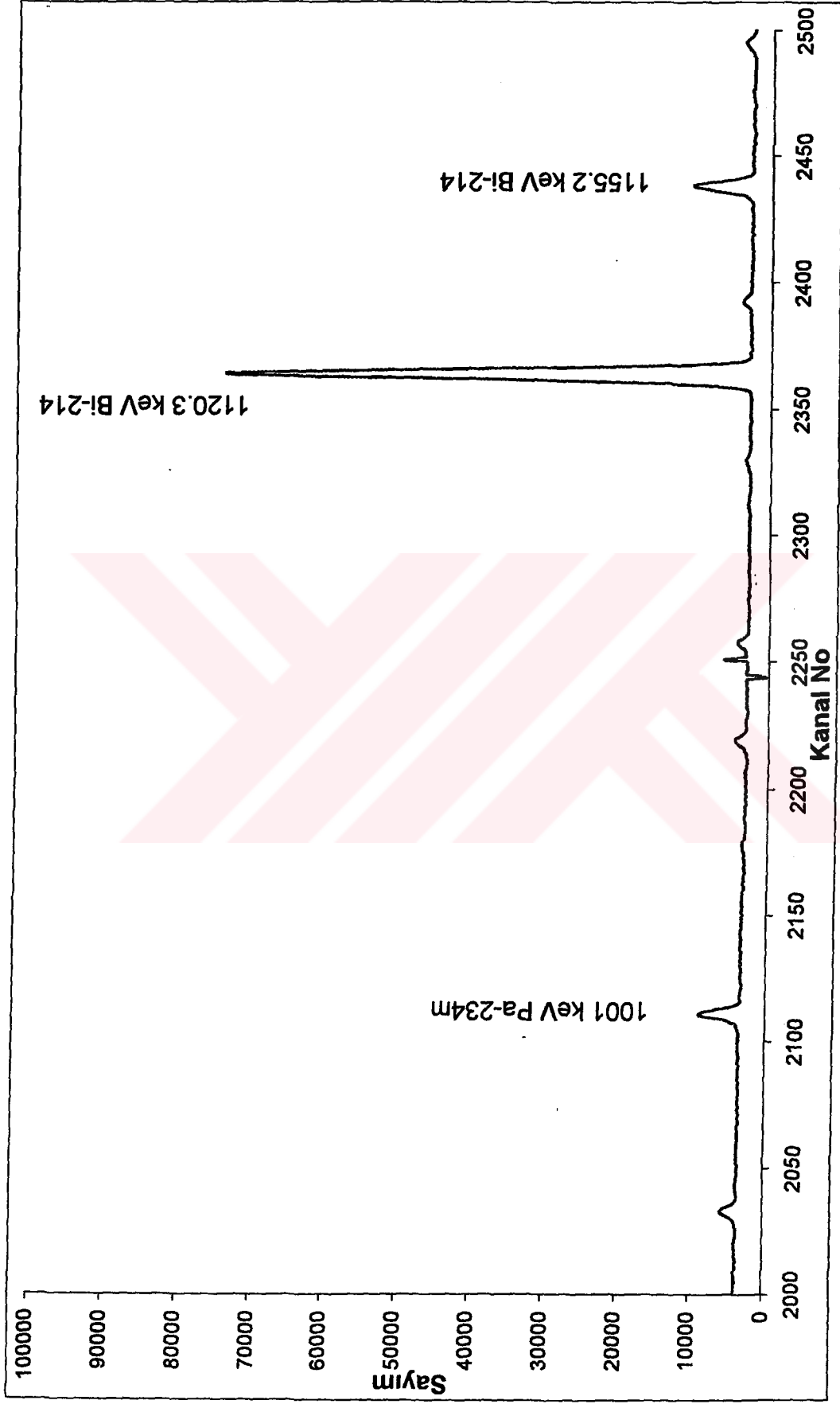
Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu



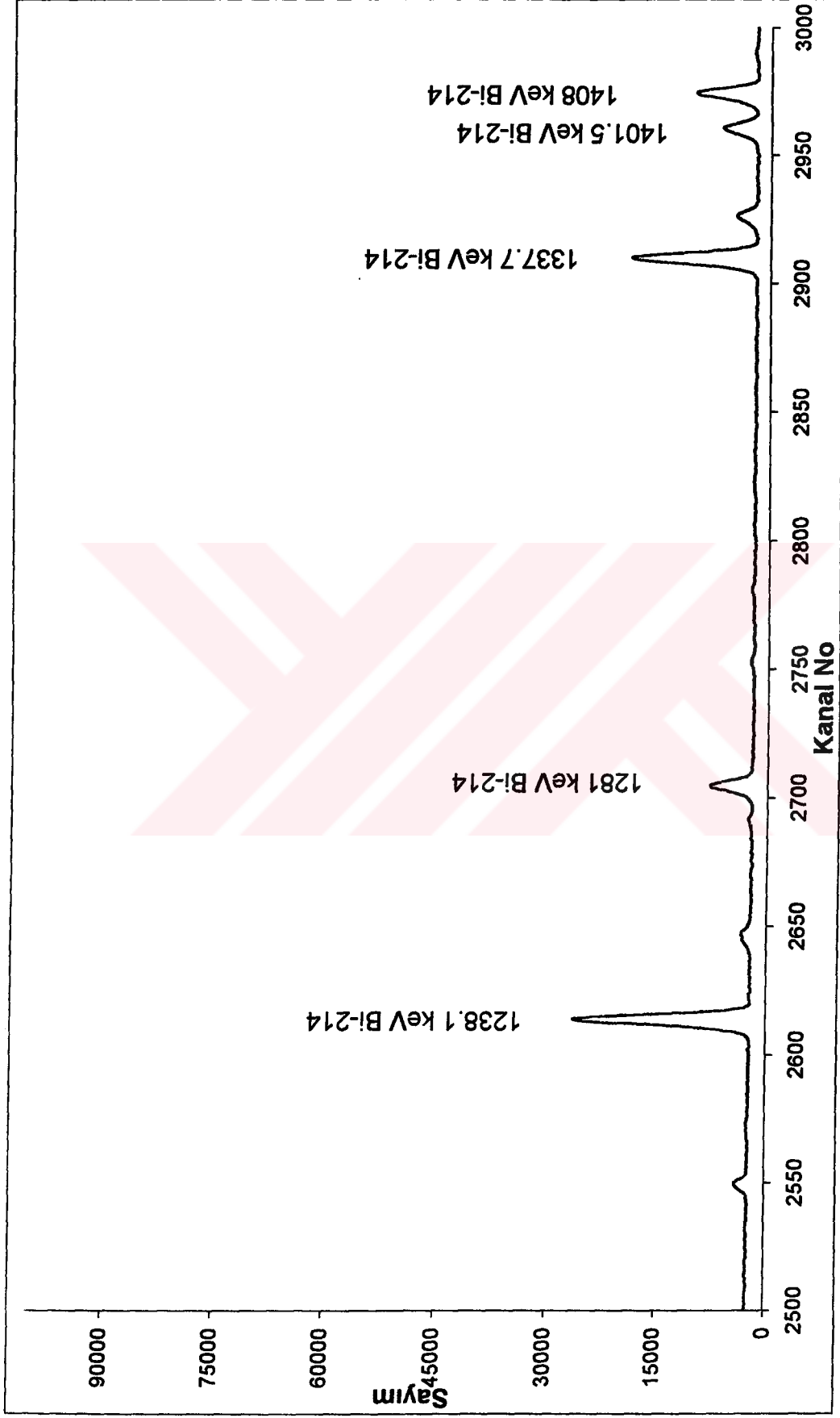
Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu



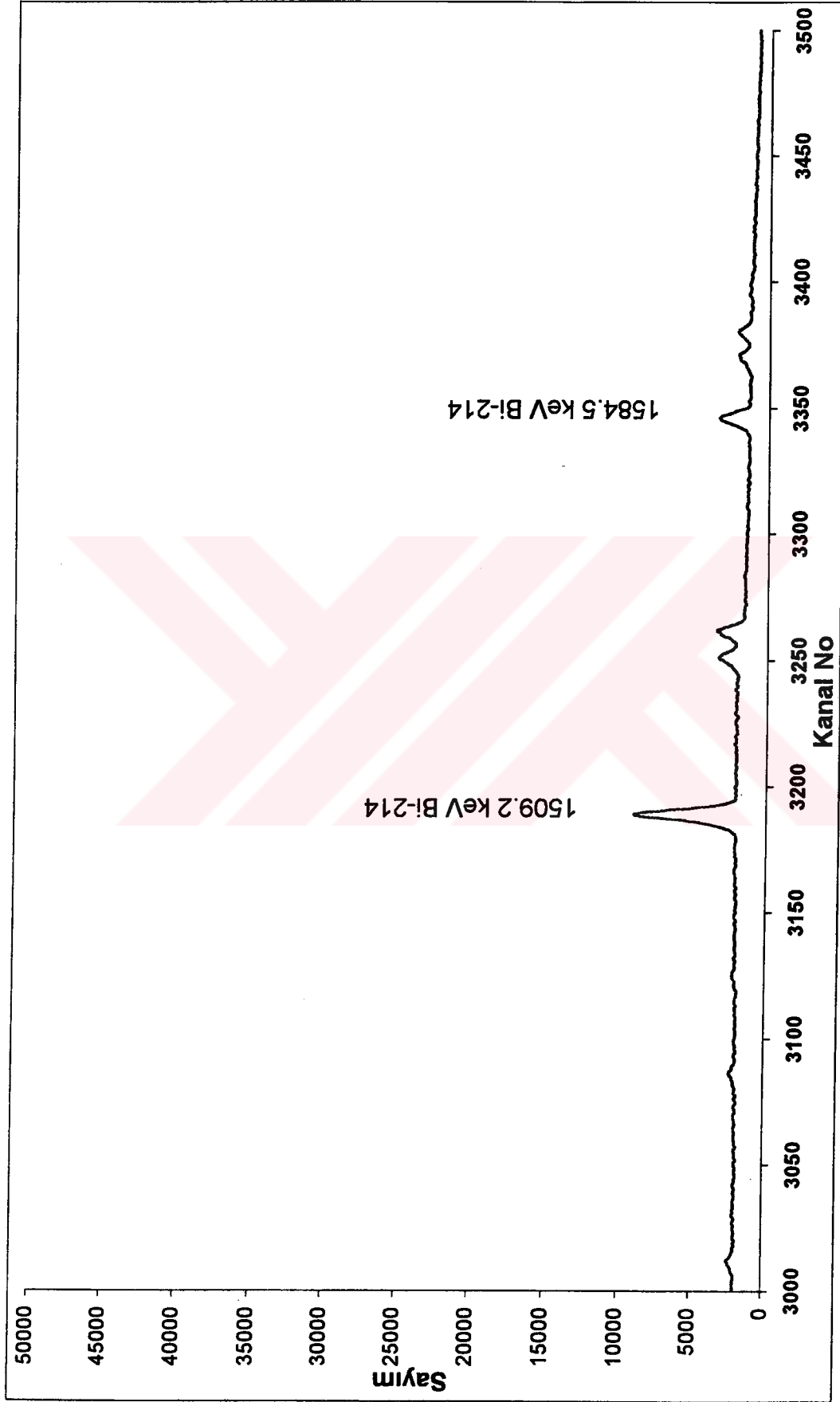
Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu



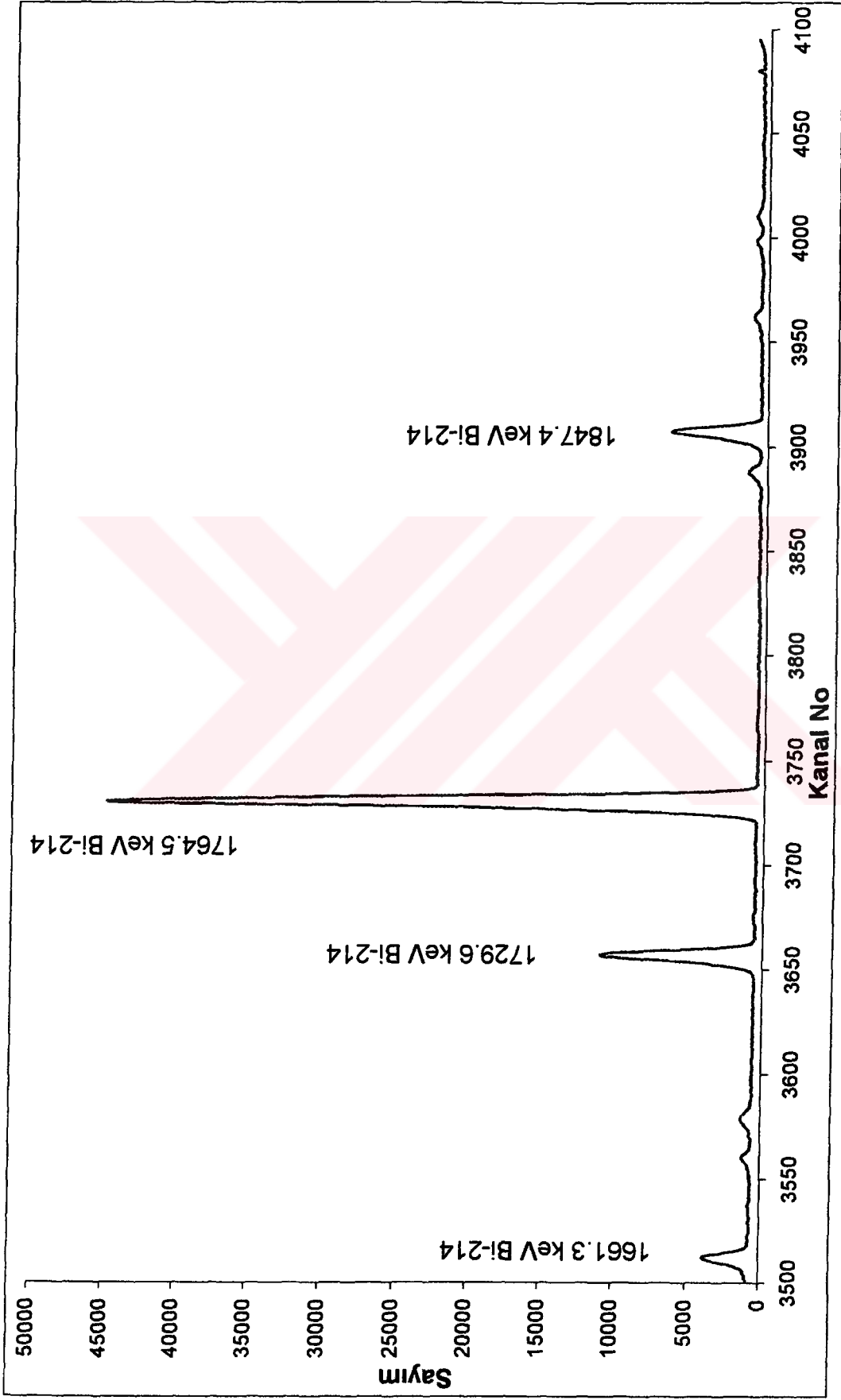
Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu



Şekil 5.1 BL-3 standardının gama spektrumu



Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu



Şekil 5.1. BL-3 standardının gama spektrumu

ÖZGEÇMİŞ

İsmet ERGİN, 1974 yılında Gaziantep'te doğdu. İlk, orta ve lise öğrenimini Gaziantep'te tamamladı. Yüksek öğrenimini Gazi Üniversitesi Gazi Eğitim Fakültesi Fizik Eğitimi Bölümü'nde tamamlayarak, 1996 yılı bahar döneminde lisans diploması aldı. Aynı yıl Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Eğitimi Anabilim Dalında yüksek lisans programına kaydoldu. Yirmi ay M.E.B bünyesinde öğretmenlik yaptı. 1998 yılı Mayıs ayında Kara Kuvvetleri Komutanlığına bağlı Çok Programlı Astsubay Hazırlama Okulu Komutanlığı'nda Öğretmen Teğmen olarak göreve başladı. Halen öğretmen subay olarak bu görevine devam etmektedir.

