

T.C.

EGE ÜNİVERSİTESİ

Fen Bilimleri Enstitüsü

**FOSFOR VEYA SİLİSYUM İÇEREN
NANOPARÇACIK TEMELLİ YENİ SIVI
SİNTİLASYON MATERYALLERİNİN SENTEZİ**

Zehra AÇIKGÖZ

Danışman : Prof. Dr. Perihan ÜNAK

Nükleer Bilimler Anabilim Dalı

Nükleer Uygulamalar Yüksek Lisans Programı

İzmir

2019

Zehra AÇIKGÖZ tarafından Yüksek Lisans tezi olarak sunulan “**Fosfor Veya Silisyum İçeren Nanoparçacık Temelli Yeni Sıvı Sintilasyon Materyallerinin Sentezi**” başlıklı bu çalışma EÜ Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliği ile EÜ Fen Bilimleri Enstitüsü Eğitim ve Öğretim Yönergesi’ nin ilgili hükümleri uyarınca tarafımızdan değerlendirilerek savunmaya değer bulunmuş ve 10.06.2019 tarihinde yapılan tez savunma sınavında aday oybirliği/oyçokluğu ile başarılı bulunmuştur.

Jüri Üyeleri:

İmza

Jüri Başkanı

: Prof.Dr. Perihan ÜNAK

Raportör Üye

: Dr. Öğr. Üyesi Coşkun HARMANSAH

Üye

: Prof. Dr. Türkan ERTAY

İşbu tez, Marmara Üniversitesi’nde sunulmuş ve kabul edilmiş olmalıdır. Bu tez, Marmara Üniversitesi’nde beşka bir tez sunulmuştur.

Yazılım teknolojisi ve teknik planlama konularında, bilimsel kadro tarafından en fazla 100000 TL maliyetle, teknik sorumluluğu üstlenen öğrencilerin sunuslarının bu tezde yer almaması durumunda, bu tez 1000 TL para ile satılır, bu tezin sahibi TÜBİTAK’da kaydedilir.

EGE ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

ETİK KURALLARA UYGUNLUK BEYANI

Ege Üniversitesi Lisansüstü eğitim ve Öğretim Yönetmeliği' nin ilgili hükümleri uyarınca Yüksek Lisans Tezi olarak sunduğum “**Fosfor Veya Silisyum İçeren Nanoparçacık Temelli Yeni Sıvı Sintilasyon Materyallerinin Sentezi**” başlıklı bu tezin kendi çalışmam olduğunu, sunduğum tüm sonuç, doküman, bilgi ve belgeleri bizzat ve bu tez çalışması kapsamında elde ettiğimi, bu tez çalışmasıyla elde edilmeyen bütün bilgi ve yorumlara atif yaptığımı ve bunları kaynaklar listesinde usulüne uygun olarak verdiğim, tez çalışması ve yazımı sırasında patent ve telif haklarını ihlal edici bir davranışımın olmadığını, bu tezin herhangi bir bölümünü bu üniversite veya diğer bir üniversitede başka bir tez çalışması içinde sunmadığımı, bu tezin planlanmasıdan yazımına kadar bütün safhalarla bilimsel etik kurallarına uygun olarak davrandığımı ve aksının ortaya çıkması durumunda her türlü yasal sonucu kabul edeceğimi beyan ederim.

10 / 06 / 2019



Zehra AÇIKGÖZ

ÖZET

Fosfor Veya Silisyum İçeren Nanoparçacık Temelli Yeni Sıvı Sintilasyon Materyallerinin Sentezi

AÇIKGÖZ, Zehra

Yüksek Lisans Tezi, Nükleer Bilimler Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Perihan ÜNAK

Haziran 2019, 96 Sayfa

Bu tez çalışmasının amacı, daha çevreci, ekonomik yeşil sentez denebilecek doğal bileşikler ve nanomateryaller sentezlenerek yeni sıvı sintilasyon materyalleri oluşturmaktır. Oluşturulan yapılardan birisi Lawson molekülünün (2-hydroxy-1,4-naphthoquinone) fosfat içeren türevi olan Lawson diphosphate (Lawson-P)'dır. Bunun için çıkış maddesi olarak kına (*Lawsonia inermis*) bitkisinin bileşenlerinden biri olan Lawson molekülü fosforillenerek Lawsondiphosphate (Lawson-P) sentezlenmiştir. Daha sonraki aşamada ise silikanarak silikalı Lawson-P (LW-P-O-(Si(OH)₃) oluşturulmuştur.

Üzerinde çalışılan diğer sistem ise TiO₂ nanoparçacıkları ve silikalı ve silanolü türevleridir. Bunun için TiO₂ nanoparçacıkları sentezlenmiş, silika ile kaplanarak silikalı TiO₂ nanoparçacıkları (TiO₂-O-Si(OH)₃) ve silanolı TiO₂ nanoparçacıkları (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) oluşturulmuştur.

Oluşan yapıların kalite kontrol işlemleri için yüksek performanslı sıvı kromatografisi (HPLC) cihazı kullanılarak her bir sentez aşamasının HPLC analizi yapılmıştır. Fourier dönüşümlü kızıl ötesi spektrometresi (FT-IR) yöntemi ile kimyasal yapı analizleri, florimetrik analiz ile floresans özellikleri incelenmiştir. Yüzey özelliklerini için taramalı elektron mikroskopu (SEM), dinamik ışık saçılımı methodu (DLS) ile yapılmıştır.

I- 131, Tc- 99m, Sr- 90 ve I- 125 radyonüklidleri kullanılarak sentezi yapılan nanosistemlerin sıvı sintilatör olarak kullanılabilirliği incelenmiş ve ticari sıvı sintilatör materyali olarak kullanılan diisopropylnaphthalene ile karşılaştırılmıştır.

Sonuçlar kına bitkisinden elde edilen Lawson molekülünün özellikle silikalı türevinin ve TiO₂ nanoparçacıklarının silikalı türevlerinin geleneksel ticari sintilatörlere göre alternatif olabileceğini göstermiştir.

Anahtar sözcükler: Lawson, TiO₂, sintilatör, sıvı sintilasyon sayacı, sıvı sintilasyon cihazı, I-131, Tc-99m, Sr-90

ABSTRACT**Synthesis of New Liquid Scintillation Materials Based on Phosphorus or Silicium Containing Nanoparticles**

AÇIKGÖZ, Zehra

MSc in Nuclear Sciences Department

Supervisor: Prof. Dr. Perihan ÜNAK

June 2019, 96 pages

The aim of this thesis is to create new liquid scintillation materials by synthesizing natural compounds and nanomaterials which can be called greener synthesis. One of the compound was Lawson diphosphate (Lawson-P), a phosphate-containing derivative of the Lawson molecule (2-hydroxy-1,4-naphthoquinone). For this purpose, the Lawson molecule, one of the main molecules of the henna (*Lawsonia inermis*) plant, was phosphorylated and Lawsondiphosphate (Lawson - P) was formed. In the next step, Lawson-P (LW-P-O- (Si (OH) 3) was formed, which was silicified by silica. The other system studied is TiO₂ nanoparticles and their silicate and silane derivatives. TiO₂ nanoparticles were synthesized, coated with silica to form TiO₂ nanoparticles (TiO₂-O-Si (OH)₃) and silanated to form silane coated TiO₂ nanoparticles (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂). HPLC analysis of each synthesis step was performed by using high performance liquid chromatography (HPLC) equipment for quality control of the resulting structures. Fourier transformed infrared spectrometry (FT-IR) method, chemical structure analysis, fluorometric spectra were investigated. The scanning electron microscope (SEM) for surface properties was performed by dynamic light scattering method (DLS).

The use of nanosystems synthesized using I-131, Tc-99m, Sr-90 and I- 125 radionuclides as liquid scintillators was investigated and compared with diisopropylnaphthalene used as commercial liquid scintillator material.

The results showed that the silicon derivatives of the Lawson molecule obtained from the henna plant and the silicate derivatives of the TiO₂ nanoparticles could alternatively be an alternative because they did not show toxicity with respect to conventional commercial scintillators.

Keywords: *Lawsonia inermis*, TiO₂, Scintillator, Liquid scintillation counter, Liquid scintillation device, I-131, Tc-99m . Sr- 90

ÖNSÖZ

Bu çalışmada oluşturulan yapılardan birisi Lawson molekülünün (2-hydroxy-1,4-naphthoquinone) fosfat içeren türevi olan Lawson diphosphate (Lawson-P)'dır. Bunun için çıkış maddesi olarak kına (*Lawsonia inermis*) bitkisinin ana moleküllerinden biri olan Lawson molekülü fosforillenerek Lawsons diphosphate (Lawson-P) oluşturulmuştur. Daha sonraki aşamada ise silikalanarak silikalı Lawson-P (LW-P-O-(Si(OH)₃) oluşturulmuştur.

Üzerinde çalışılan diğer sistem ise TiO₂ nanoparçacıkları ve silikalı ve silanolü türevleridir. Bunun için TiO₂ nanoparçacıkları sentezlenmiş, silika ile kaplanarak silikalı TiO₂ nanoparçacıkları (TiO₂-O-Si(OH)₃) ve silanolı TiO₂ nanoparçacıkları (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) oluşturulmuştur.

Bu tez çalışmasında I-131, Tc-99m, Sr- 90 ve I- 125 radyonüklidleri kullanılarak sentezi yapılan nanosistemlerin sıvı sintilatör olarak kullanılabilirliği incelenmiş ve ticari sıvı sintilatör materyali olarak kullanılan diisopropynaphthalene ile karşılaştırılmıştır.

İZMİR

10/06/2019

Zehra AÇIKGÖZ

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖZET.....	viii
ABSTRACT.....	x
ÖNSÖZ.....	xii
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	xvii
TABLOLAR DİZİNİ.....	xxii
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ.....	xxiii
1.GİRİŞ.....	1
2.GENEL BİLGİLER.....	5
2.1 Sintilasyon Dedektörleri.....	5
2.1.1 İnorganik Kristaller.....	6
2.1.1.1 Bazı sintilatörlerin özellikleri.....	9
2.1.1.2 Sintilatörlerde ışık toplanması.....	10
2.1.1.3 Fotoçoğaltıcı tüpler.....	11
2.1.1.4 Fotokatot.....	11
2.1.1.5 Kuantum etkinliği ve spektral cevap.....	12
2.1.1.6 Sintilatörlerde puls analizi.....	12
2.1.2 Organik kristaller.....	13
2.1.2.1 Organik sintilatör tipleri.....	14
2.2 İyot, İyot İzotopları ve Radyoizotopları.....	15
2.3 Teknesyum	16
2.3.1 Fiziksel özellikler.....	17
2.3.2 Kimyasal özellikler.....	17

İÇİNDEKİLER (devam)

Sayfa

2.3.3 Oluşumu ve üretimi.....	18
2.3.4 Kullanım alanları.....	18
2.4 Stronsiyum ve Özellikleri.....	19
2.4.1 Doğada bulunduğu ve oluşumu.....	19
2.4.2 İzotopları.....	20
2.4.3 Fiziksel ve kimyasal özellikleri.....	20
2.4.4 Stronsiyum bileşikleri.....	21
2.4.5 Toksisitesi.....	22
3.GEREÇ VE YÖNTEM.....	24
3.1 Kullanılan Kimyasallar ve Cihazlar.....	24
3.1.1 Kullanılan kimyasallar.....	24
3.1.2 Kullanılan cihazlar.....	25
3.1.3 Dowex -50W reçinesinin hazırlanması.....	27
3.2 Lawsondiphosphate (Lawson – P) Sentezi.....	27
3.2.1 Lawson- P (LW-P-O-(Si(OH) ₃) ‘nin Silikalanma Reaksiyonu.....	31
3.3 TiO ₂ Nanoparçacıkların Sentezi.....	33
3.3.1 TiO ₂ nanoparçacıkları silikalanma işlemi (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃).....	35
3.3.2 TiO ₂ nanoparçacıklarının silanlanması ((TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂).....	36
3.4 Kalite Kontrol İşlemleri.....	37
3.4.1 Sentezlenen nanoparçacıkların HPLC analizleri.....	37
3.5 Sentezlenen Nanoparçacıkların FT-IR Yöntemi ile Yapı Analizi.....	37
3.6 Sentezlenen Nanoparçacıkların Florimetrik Analizi.....	37

İÇİNDEKİLER (devam)

Sayfa

3.7 Sentezlenen Lawson Molekülü Türevleri ve TiO ₂ Nanoparçacıkların Hidrodinamik çap (boyut) ve Yüzey özelliklerinin Karakterizasyonları.....	39
3.7.1 Lawson ve TiO ₂ nanoparçacıkları ve türevlerinin hidrodinamik çap (boyut) ve zeta potansiyeli analizleri.....	39
3.8 SEM Analizleri.....	40
3.9 Sentezlenen Nanoparçacıkları ve Türevlerinin Sıvı Sintilasyon Analizleri.....	41
3.9.1 I- 131 radyoizotobu ile hazırlanan örnekler.....	41
3.9.2 Tc – 99m ile hazırlanan örnekler.....	44
3.9.3 Sr-90 ile hazırlanan örnekler.....	47
3.9.4 I- 125 ile hazırlanan örnekler.....	50
4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA.....	53
4.1 Sentezlenen Molekül ve Nanokonjugatların Yapı ile ilgili Analiz Sonuçları	53
4.1.1 HPLC Analiz Sonuçları.....	53
4.2 Sentezlenen Nanoparçacıkların FTIR (Fourier Transform Infrared) Yapı Analiz Sonuçları.....	55
4.3 Sentezlenen Nanoparçacıkların Florimetrik Analiz Sonuçları.....	57
4.4 Sentezlenen Lawson Molekülü Türevleri ve TiO ₂ Nanoparçacıkların Hidrodinamik çap ve Yüzey özelliklerinin incelenmesine ilişkin Sonuçlar.....	59
4.4.1 Sentezlenen nanoparçacıkların hidrodinamik çap (boyut) ve zeta potansiyellerinin sonuçları.....	59

İÇİNDEKİLER (devam)

Sayfa

4.5 SEM Analiz Sonuçları.....	64
4.6 Sıvı Sintilasyon Sonuçları.....	66
4.6.1 I- 131 ile alınan sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	66
4.6.2 Tc- 99m ile alınan sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	72
4.6.3 Sr- 90 ile alınan sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	78
4.6.4 I- 125 ile alınan sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	83
5. SONUÇ VE ÖNERİLER.....	85
KAYNAKLAR DİZİNİ.....	86
TEŞEKKÜR.....	95
ÖZGEÇMİŞ.....	96

ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
2.1 Sintilatörde Dedeksyon Sistemi.....	9
2.2 Teknesyum elementi.....	17
3.1 Dowex 50 W reçine kolonunun hazırlanması.....	27
3.2 Lawson Sentezi.....	27
3.3 Argon gazı kullanılarak piridinin ortamdan uzaklaştırılması.....	28
3.4 İki fazlı karışım.....	28
3.5 pH ölçme.....	28
3.6 LiOH ve saf suyun sonikatörde çözünmesi.....	29
3.7 pH'ı 12 olan karışımın son hali.....	29
3.8 pH 'ı 6 olan karışım.....	29
3.9 Su banyosu.....	30
3.10 Su banyosu tamamlandıktan sonra.....	30
3.11 Karıştırma işlemi.....	30
3.12 Silikalama için.....	31
3.13 FTIR için.....	31
3.14 Silikalama işlemi.....	31
3.15 Karışımın silikanlanmış hali.....	32
3.16 Santrifüj işlemi.....	32
3.17 1. Santrifüj sonrası.....	32
3.18 3. Santrifüj sonrası.....	32
3.19 TiCl ₄	33
3.20 TiCl ₄ ve metanol karışımı.....	33
3.21 Dodecylamine ısıtma işlemi.....	33

ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa</u>
3.22 Sıcaklık kontrolü.....	33
3.23 Örnek fırınlanmadan önce.....	34
3.24 Fırın.....	34
3.25 Örnek fırınlandıktan sonra.....	34
3.26 TiO ₂ Silikalama işlemi.....	35
3.27 Geri soğutma işlemi.....	35
3.28 Silikanılmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH)3	36
3.29 Silanlama işlemi.....	36
3.30 I- 125 ile hazırlanan örnekler.....	50
3.31 Sıvı Sintilasyon dedektörüne yerleştirilen örnekler.....	51
3.32 Tri- Carb 2100 TR sıvı sintilasyon cihazı.....	51
4.1 Lawson (LW) molekülünün HPLC kromatogramı.....	54
4.2 Lawson – P (LW- P) molekülünün HPLC kromatogramı.....	54
4.3 Silikanılmış Lawson- P ‘ nin (LW – P- O- (Si (OH) 3) HPLC kromatogramı.....	54
4.4 TiO ₂ nanoparçacıklarının HPLC kromatogramı.....	54
4.5 Silanlanmış TiO ₂ nanoparçacıklarının (TiO ₂ - O- Si (CH ₂) ₃ NH ₂) HPLC Kromatogramı.....	54
4.6 (A) Sentezlediğimiz Lawson molekülünün FTIR spektrumu; yapı analiz sonucu (B) Literatür Datası olarak Lawson FTIR spektrumu.....	55
4.7 Lawson- P ‘ nin FTIR yapı analiz sonucu.....	56

ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
4.8 LW- P- O- (Si (OH)3) FTIR yapı analiz sonucu.....	56
4.9 Lawson (LW) ‘ nin emisyon spektrumu.....	58
4.10 Lawson – P ‘ nin emisyon spektrumu.....	58
4.11 TEOS ile silikalanmış LW- P nanokonjugatı (LW- P- O- (Si (OH) 3) ‘in emisyon spektrumu.....	58
4.12 TiO ₂ nanoparçacıklarının emisyon spektrumu.....	58
4.13 Silanlanmış TiO ₂ (TiO2 (TiO2- O- Si- (CH2) 3 (NH2) ‘ nin emisyon Spektrumu.....	58
4.14 Silikalanmış TiO ₂ (TiO2- O- Si (OH) 3’in emisyon spektrumu.....	58
4.15 Lawson molekülünün hidrodinamik çap (boyut) analiz diyagramı.....	59
4.16 Lawson- P ‘ nin hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.....	60
4.17 Lawson – P- Si ‘ nin hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.....	60
4.18 TiO ₂ nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.....	60
4.19 Silikalanmış TiO ₂ (TiO2- O- Si (OH)3 nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.....	61
4.20 Silanlanmış TiO ₂ (TiO2- O- Si (CH2)3NH2) nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.....	61
4.21 Lawson molekülünün zeta potansiyeli analizi diyagramı.....	61
4.22 Lawson – P ‘ nin zeta potansiyeli analizi diyagramı.....	62
4.23 Lawson – P – Si ‘ nin zeta potansiyeli analizi diyagramı.....	62
4.24 TiO ₂ zeta potansiyeli analizi diyagramı.....	62

ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
4.25 Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃ · nin zeta potansiyeli analizi diyagramı.....	63
4.26 Silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ - O- Si (OH) ₃ ‘ nin zeta potansiyeli analizi diyagramı.....	63
4.27 Silikalı Lawson – P ‘ nin SEM analiz görüntüleri.....	64
4.28 Silikalı TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃ ‘ nin SEM analiz görüntüleri	65
4.29 Silikalı Lawson – P ‘ nin EDX analiz sonucuna ait grafik.....	65
4.30 Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃ nanoparçacıklarının EDX analiz sonucuna ait görüntüler.....	66
4.31 Lawson sayım sonucu – I -131 aktivitesi.....	68
4.32 Lawson – P sayım sonucu – I-131 aktivitesi.....	68
4.33 Lawson – P – Si sayım sonucu – I-131 aktivitesi.....	69
4.34 TiO ₂ sayım sonucu – I-131 aktivitesi.....	69
4.35 Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃ sayım sonucu – I-131 aktivitesi.....	70
4.36 Silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂) sayım sonucu – I-131 aktivitesi.....	70
4.37 Sintilasyon kokteyli sayım sonucu – I-131 aktivitesi.....	71
4.38 Lawson molekülünün sintilatör olarak kullanıldığı Tc99m sayım grafiği	73
4.39 Lawson - P sayım sonucu – Tc99m aktivitesi.....	73
4.40 Lawson – P - Si sayım sonucu – Tc99m aktivitesi.....	74
4.41 TiO ₂ sayım sonucu – Tc99m aktivitesi.....	74

ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

<u>Şekil</u>	<u>Sayfa</u>
4.42 Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃) sayım sonucu – Tc99m aktivitesi.....	75
4.43 Silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂) sayım sonucu – Tc99m aktivitesi.....	76
4.44 Sintilasyon kokteyli sayım sonucu – Tc-99m aktivitesi.....	76
4.45 Lawson molekülünün sintilatör olarak kullanıldığı Sr - 90 sayım grafiği	79
4.46 Lawson - P sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi.....	79
4.47 Lawson – P - Si sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi.....	80
4.48 TiO ₂ sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi.....	81
4.49 Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃) sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi.....	81
4.50 Silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂) sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi.....	82
4.51 Sintilasyon kokteyli sayım sonucu – Sr -90 aktivitesi.....	82

TABLOLAR DİZİNİ

<u>Tablo</u>	<u>Sayfa</u>
2.1 Stronsiyum' un fiziksel özellikleri.....	21
3.1 HPLC çalışma koşulları.....	37
3.2 I- 131 radyoizotobu ile yapılan sıvı sintilasyon sayım koşulları.....	43
3.3 Tc- 99m ile yapılan sıvı sintilasyon sayım koşulları.....	46
3.4 Sr - 90 ile yapılan sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	49
3.5 I- 125 ile yapılan sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	52
4.1 Sentezlenmiş molekül ve nanokonjugatların HPLC alikonma Süreleri (Mobil faz ACN, Dedektör DAD).....	53
4.2 Hidrodinamik çap- zeta potansiyeli n= 3.....	63
4.3 Lawson, Lawson- P, Lawson – P – O (SiOH ₃) n , TiO ₂ NP , silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ – O- Si (OH) ₃ , silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ – O- Si- (CH ₂) ₃ NH ₂) ve ticari sıvı sintilasyon kokteyli ile alınan farklı aktivitelerdeki I- 131 ' in sıvı sintilasyon sonuçları.....	67
4.4 Sentezlenen nanoparçacıklar ve türevlerinin Tc- 99m kullanılarak elde edilen sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	72
4.5 Sentezlenen nanoparçacıklar ve türevlerinin Sr - 90 kullanılarak elde edilen sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	78
4.6 Sentezlenen nanoparçacıklar ve türevlerinin I - 125 kullanılarak elde edilen sıvı sintilasyon sayım sonuçları.....	84

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

<u>Simgeler</u>	<u>Açıklama</u>
LW	Lawsonia inermis (kına)
NP	Nano parçacık
LSC	Liquid Scintillation Counter
PM tüp	Fotoçögaltıçı tüp
NaI	Sodyum Iyodür
CsI	Sezyum Iyodür
BGO	Bizmut Germanyum
BaF ₂	Baryum Florür
ZnS	Çinko Sülfat
NE	Nuclear Enterprises
<i>eV</i>	Elektron volt
<i>nsn</i>	Nano saniye
μg	Mikro gram
SEM	Scanning Electron Microscopy
DLS	Dynamic Light Scattering
FTIR	Fourier Transform Infrared Spectroscopy
HPLC	Yüksek Performanslı Sıvı Kromatografisi
<i>Rt</i>	Alikonma Süresi
μL	Mikro litre
μCi	Mikro Curie
MBq	Mega Becquerel
<i>CPMA</i>	Count per Minute (Dakikadaki sayı)

1. GİRİŞ

Bu tez çalışması ile daha çevreci, ekonomik yeşil sentez denebilecek doğal bileşikler ve nanomateryaller kullanılarak yeni sıvı sintilasyon materyalleri oluşturulması amaçlanmıştır. Oluşturulan yapılardan birisi Lawson molekülünün (2-Hydroxy-1,4-Naphthoquinone) fosfat içeren türevi olan Lawson diphosphate (Lawson-P)'dır. Bunun için çıkış maddesi olarak kına (*Lawsonia inermis*) bitkisinin ana moleküllerinden biri olan Lawson molekülü fosforillenerek Lawsondiphosphate (Lawson-P) sentezlenmiş, daha sonraki aşamada ise silikanarak silikalı Lawson-P ($LW\text{-}P\text{-}O\text{-}(Si(OH)_3)$) oluşturulmuştur.

Üzerinde çalışılan diğer sistem ise TiO_2 nanoparçacıkları ve silikalı ve silanlı türevleridir. Bunun için TiO_2 nanoparçacıkları sentezlenmiş, silika ile kaplanarak silikalı TiO_2 nanoparçacıkları ($TiO_2\text{-}O\text{-}Si(OH)_3$) ve silanlı TiO_2 nanoparçacıkları ($TiO_2\text{-}O\text{-}Si\text{-}(CH_2)_3NH_2$) oluşturulmuştur.

En çok kullanılan ticari sıvı sintilasyon materyallerinden biri olan diisopropil naftalen özellikle sular ve deniz canlıları açısından tehlikeli olarak tanımlanmış bir kimyasaldır. Diğer sıvı sintilasyon materyalleri de benzer özellik taşımaktadır. Bu tip kimyasalların kullanımını azaltmak ancak çevreci yeşil yaklaşımlarla aynı özelliklere sahip yeni moleküllerin üretilmesi ile olabilir. Bu nedenle bu yaklaşımla bu tez çalışmasında daha çevreci bir yaklaşımla bilinen bitkisel moleküllerden çıkılarak ve nanopartiküler kullanılarak yeni sıvı sintilasyon materyallerinin oluşturulması ve özelliklerinin incelenmesi amaçlanmıştır.

Antik çağdan beri bilinen bitkiler arasında önemli bir yeri olan kına bitkisinin kimyasal bileşenleri arasında lawsone, gallik asit, glikoz, mannos, reçine, zamk, alkoloid, α - ve β -iyononlar, azotlu bileşikler, oleik asit, behenik asit, arakidik asit, stearik asit, palmitik asit, linoleik asitten oluşan kompozit, balmumu ve renklendirici maddeler bulunmaktadır (Gagandeep, 2010).

Kına yaprakları, tüysüz, küçük, koyu yeşil renkli ve mızrak şeklindedir. Kırmızı-turuncu renklendirici maddeler içermektedir. Yapraklarında luteolin-7-o-glikozid, luteolin-3-o-glikozid, stigmasterol, kozmosin, asasetin, p-kumarik asit, fraksetin, skopoletin, eskuletin, naftalen, lawsoniasit, lariosit, apiin, apigenin, lupeol, betulin, betulinik asit bileşikleri bulunmaktadır. Yapraklarının antifungal,

antihiperglisemik, hepatoprotektif, antioksidan, antibakteriyel, analjezik ve antipiretik aktiviteleri yapılan çalışmalar ile ortaya konmuştur (Malekzadeh F., 1968; Mohsin et al., 1989; Dasgupta et al., 2003; Hemalatha et al., 2004; Arayne et al., 2007; Endrini et al., 2007; Saadabi, 2007).

Kına bitkisindeki ana bileşik ise lawsone (2-Hydroxy -1,4 Naphthoquinone) ($C_{10}H_6O_3$) dur. Türe ismini veren bu bileşik bitkinin en çok yapraklarında mevcuttur. Saf hali turuncu renkte ve hidrofiliktir (Cartwright-Jones, 2000). Yapılan çalışmalar Lawsone bileşığının, HbSS anemi hücrelerini inhibe ettiğini, kan oksijen affinitesini artırdığını, tripsin enzimi inhibitör etkisi yarattığını, antikoagulant ve antioksidan etkilere sahip olduğunu, bakteriostatik ve bakterisidal aktivitesinin bulunduğu göstermiştir (Kumar et al., 1985; Endrini et al. 2007; Yogisha et al., 2002; Sultana et al., 2009; Sujit et al., 2011). Bu çalışmada oluşturulan sistemler, çıkış maddesi olarak kına (*Lawsonia inermis*) bitkisinin ana moleküllerinden biri olan Lawson molekülü (2-Hydroxy-1,4-Naphthoquinone), fosfat içeren türevi olan Lawson diphosphate (Lawson-P) ve Lawson diphosphate silikalananarak silikalı Lawson-P ($LW\text{-}P\text{-}O\text{-}(Si(OH)_3)_2$)' dir.

Üzerinde çalışılan diğer sistem ise TiO_2 nanoparçacıkları, TiO_2 nanoparçacıklarının silikalı ve silanlı türevleridir. TiO_2 kristal yapısına bağlı olarak yakın UV bölgede soğurma yapan yaklaşık olarak 3- 3,2 eV bant aralığına (band gap) sahip bir metal oksittir. Bir molekülün band aralığı o molekülün soğurma yaptığı en uzun dalga boyu hakkında da bilgi verir. Hava ve sudan organik kirleticilerin degredasyonu için yarı iletkenlerden biri olan TiO_2 , fiziksel ve kimyasal kararlılık, yüksek katalitik aktivite, yüksek oksidatif güç, düşük maliyetle elde edilmesi ve üretim kolaylığından dolayı geniş bir kullanım alanına sahiptir (Fujishima et al 1972,2000, Hoffmann et al 1995, Hisanga et al 1990).

TiO_2 nanoparçacıkların var olan ve gelecekte umut edilen uygulamaları; boyacı, diş macunu, UV ışığından korunma, fotokataliz, fotovoltaik, sensör ve elektrokromiklerdedir. TiO_2 nanoparçacıklar elektron band boşluğu 3eV' den yüksek ve UV bölgede yüksek absorbsiyona sahiptir. Optik ve biyolojik özellikleri UV ışığından korunma uygulamalarının da kullanımına olanak sağlar (Gupta et al, 2002, Hwang et al, 2003, Kim et al, 2002, Mahltig et al, 2005, Popov et al, 2005, Zhang et al, 2000). TiO_2 nanoparçacıklar cam üretimlerinde sis (bugü) önleyici fonksiyonlarıyla gözlüklerde, aynalarda ve süperhidrofilik, süperhidrofobik

yüzeylerde kullanılır (Gu et al, 2002, Sirghi et al, 2003, Takata et al, 2000,2003). Bu çalışmada TiO_2 nanoparçacıkları sentezlenmiş, silika ile kaplanarak silikalı TiO_2 nanoparçacıkları ($TiO_2-O-Si(OH)_3$) ve silanlı TiO_2 nanoparçacıkları ($TiO_2-O-Si-(CH_2)_3NH_2$) oluşturulmuştur.

Bu tez çalışmasında $I-131$, $Tc-99m$, $Sr-90$ ve $I-125$ radyonüklidleri kullanılarak sentezi yapılan nanosistemlerin sıvı sintilatör olarak kullanılabilirliği incelenmiş ve ticari sıvı sintilatör materyali olarak kullanılan diisopropylnaphthalene ile karşılaştırılmıştır.

Sıvı sintilasyon sayım sistemi (Liquid Scintillation Counter (LSC)) yaygın olarak düşük enerjili beta yayıcılarının ölçülmesi ve radyasyonun varlığının araştırılması için kullanılan bir tekniktir.

Bu ölçüm tekniğinde örnekler aromatik çözücü (önceleri benzen ya da toluen, son zamanlarda daha az tehlikeli çözeltiler) ve sintilatör olarak bilinen diğer katkı maddelerinin az miktarını içeren bir kokteylde çözünür. Beta parçacıkları çözücü molekülden örneğe enerji transferi sırasında yayılır; böylece her beta yayılımı bir ışık pulsu meydana getirir. Sıvı sintilasyon kokteylleri radyoizotopların yaydığı enerjiyi soğurur ve ışık parıldamaları (sintilasyon) gibi yeniden yayar (emisyon). Bu iki işlemi, yani soğurma ve emisyonu gerçekleştirmek için, kokteyl iki temel bileşen, çözücü ve çözünen içerir. Çözücü, radyoaktif bozunma enerjisini soğurma işlemini gerçekleştirir. Çözücü içinde çözülmüş çözünen molekülleri, soğrulan enerjiyi ışığa dönüştürür. Pek çok farklı kokteyl farklı numune kompozisyonlarında kullanım aralığını genişletmek için ek maddeler içerir, fakat sintilasyonu çözücü ve çözünen karışımı sağlar.

Sıvı sintilasyon ölçüm yönteminde örnekler saydam ya da yarı saydam (cam, plastik) küçük vialler içine konulur ve sıvı sintilasyon sayacı içine yerleştirilir. Sayacılar 2 adet fotoçoğaltıcı tüpe sahiptir.

Sıvı sintilasyon sayacının ideal şartlardaki sayım verimi düşük enerjili beta yayıcı olan trityum için yaklaşık %30, yüksek enerjili beta yayıcı olan fosfor-32 için yaklaşık olarak %100 oranındadır. Bazı kimyasal bileşikli ve yüksek oranda renkli (boyalı) örnekler sayım işlemini engelleyebilir. Quench (sönüüm) olarak bilinen bu engel veri düzeltmesi ya da örneğin dikkatli bir şekilde hazırlanmasıyla aşılabilir. P-32 gibi yüksek enerjili beta yayıcılar kokteylsiz sintilasyon sayıcısında

sayılabilir. Cherenkov sayımı olarak bilinen bu teknik, fotoçoğaltıcı tüp tarafından doğrudan algılanan Cherenkov radyasyonuna dayanır. Bu deneysel içerik içindeki Cherenkov sayımı genellikle hızlı kaba ölçümlerde kullanılır, çünkü örnek geometrisinin neden olduğu değişimlere daha duyarlıdır.

(http://en.wikipedia.org/wiki/Liquid_scintillation_counting)



2. GENEL BİLGİLER

2.1 Sintilasyon dedektörleri

Sintilatörler, iyonlaştırıcı radyasyonun bu maddeler içerisinde geçtiğinde ışık pırıltısı veren katı, sıvı ve gaz materyallerdir. İlk olarak 1910 yılında Rutherford tarafından alfa saçılması deneylerinde kullanılmıştır. Alfa parçacıkları ZnS (çinko sülfit) ekran üzerine çarptırılmış ve ekran üzerinde pırıltılar gözlemlenmiştir. Pratik sintilasyon dedektörlerinin yapılması 1947 yılında Kallman ve diğer araştırmacılar tarafından fotoçoğaltıcı tüplerin ışık dedektörü olarak kullanılmasıyla mümkün olmuştur (Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiations, 1988). İdeal bir sintilasyon maddesinin özellikleri aşağıdaki gibi olmalıdır:

- Yüklü parçacıkların kinetik enerjilerini yüksek bir sintilasyon etkinliği ile dedekte edebilecek ışığa çevirmelidir.
- Bu dönüşüm doğrusal olmalıdır, yani ışık verimi soğurulan enerji ile geniş bir aralıkta orantılı olmalıdır.
- Işığın etkin bir şekilde toplanması için ortam kendi salınım dalga boyunu geçirgen olmalıdır.
 - Hızlı sinyal pulslarının oluşumu için oluşan lüminesansın (aydınlanması) azalım zamanı kısa olmalıdır.
- Materyalin optik kalitesi iyi olmalı ve istenilen boyutta dedektör yapılabilmelidir.
 - Sintilasyon ışığının fotoçoğaltıcı tüpe (PM tüp) etkin bir şekilde aktarımı için kırılma indeksi camın indeksine yakın olmalıdır.

Hiç bir materyal aynı zamanda bu kriterleri sağlayamaz, bazı özellikleri iyi olan sintilatörlerin diğer özellikleri istenildiği gibi olamaz. İnorganik kristaller arasında sodyum iyodür, organiklerde ise plastik ve organik yapılı sıvılar en popüler olanlardır. İnorganiklerin ışık verimi ve doğrusallığı en iyiyken, cevap zamanları nispeten yavaştır. Organik sintilatörler ise daha az ışık verimindedirler ama çok hızlıdırlar. Bileşik maddelerinin yüksek atom numaraları ve yoğunlukları inorganikleri gama spektroskopisi için en uygun yaparken, organikler beta spektroskopisi ve hızlı nötron dedeksyonunda tercih edilirler.

Floresans, herhangi bir şekilde uyarılmış bir yapının aniden görünür ışık salmasıdır. Fosforesans ise floresansa göre daha uzun dalga boylu ışığın daha yavaş bir sürede salınmasıdır. Gecikmiş floresans ise ani floresans ile aynı emisyon spektrumunda ancak uyarılma sonrası uzun salınım zamanı ile karakterize edilir (Gündüz aldığı güneş ışığını gece geri veren ateş böceği bu olaya güzel bir örnektir). Dedeksiyon işleminde gelen radyasyonun etkileşmesinden hemen sonra ışık salınması gereklidir.

Radyasyon dedeksiyon işleminin gerçekleştirilebilmesi için bu ışık dağılımının bir yük pulsuna çevrilmesi gereklidir, bunun için de fotoçoğaltıcı tüpler sintilatörlerle beraber kullanılır ve tüpün katotuna ulaşan sintilasyon fotonları burada elektronlara çevrilirler. Daha sonra tüp anotunda bir yük pulsu elde edilir.

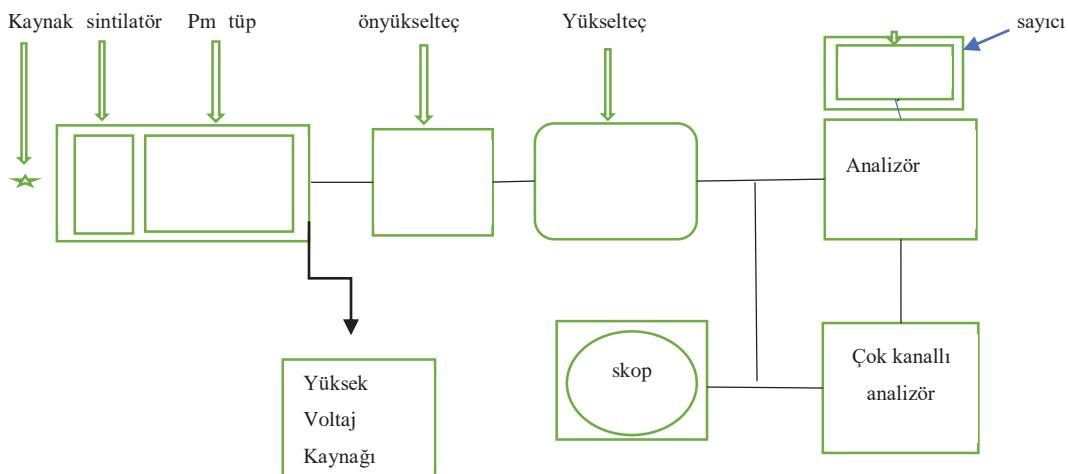
2.1.1 İnorganik Kristaller

İnorganik maddelerde sintilasyon mekanizması maddenin kristal lassis ile belirlenmiş enerji durumlarına bağlıdır. Elektronlar, yalıtkan ya da yarı iletken olarak sınıflandırılan maddelerde sadece ayrık enerji bandlarında bulunurlar. Alt band, enerji değerlik bandı olarak isimlendirilir ve lassis merkezlerine bağlı elektronları temsil ederken, iletkenlik bandı ise kristal boyunca serbest olarak hareket edebilecek yeterli enerjiyi kazanmış elektronları temsil etmektedir. Arada ise saf bir kristalde elektronların hiçbir zaman bulunamayacakları ve adına yasak band denilen ara enerji bandı vardır. Enerjinin soğurulmasıyla değerlik banttan bir elektron, geride bir boşluk (hole) bırakarak iletkenlik bandına yükselir. Saf bir kristalde elektronun tekrar değerlik banda dönerken bir foton yayılması etkin bir işlem değildir. Ayrıca tipik bant genişliklerinde salınacak bu fotonlar görünür bölgede değildirler. Görünür bölgede foton salınma olasılığının artırılması için küçük miktarda safsızlıklar inorganik kristallere ilave edilirler. Aktivatör denilen bu safsızlıklar yasak bant içerisinde bazı enerji seviyeleri oluşturarak saf kristalin enerji bant yapısını değiştirirler. Sonuçta elektronun tekrar değerlik bandına donebileceği enerji seviyeleri yaratılmış olur ve bu geçişlerde salınan fotonlar görünür bölgededirler. Dedeksiyon ortamından geçen bir yüklü parçacık, değerlik banttan birçok elektronu iletkenlik bandına yükselterek çok sayıda elektron-boşluk çiftleri yaratır. Pozitif boşluklar hemen aktivatörün olduğu noktaya hareket ederek onu iyonize ederler, bu sırada iletkenlik bandında serbestçe hareket eden elektron iyonize edilmiş aktivatör ile karşılaşınca bu safsızlık merkezine düşerek, kendine

özgü uyarılmış enerji seviyeleri olan nötral safsızlık konfigürasyonu yaratırlar. Eğer aktivatörün bu uyarılmış seviyelerinden taban seviyeye bir geçiş izni varsa, bir foton salınımı ile uyarılma sona erer. Aktivatörün uygun seçimi ile bu fotonun görünür bölgede olması sağlanır ve seviyelerin tipik yarı ömürleri 10^{-7} saniye mertebesindedir. Elektronun hareket süresi çok daha kısa olduğundan safsızlık konfigürasyonlarının hepsinin uyarılması bir anda olur ve daha sonra uyarılan seviyenin yarı-ömür özelliği ile uyarılma biter. Salınan sintilasyon ışığının zaman özellikleri bu seviyelerin azalım zamanı ile belirlenir. Bu olaylar ile yarış içerisinde olan başka işlemler de vardır. Örneğin safsızlık merkezinde elektron tarafından yaratılan uyarılmış seviyelerden taban seviyeye geçiş yasaklanmış olabilir. Bu seviyeler, taban seviyeye geçişin müsait olduğu daha üst seviyelere geçmek için ilave bir enerjiye ihtiyaç bulabilirler. Bu enerjinin bir kaynağı termal enerji olabilir ve akabinde fosforesans ışığı salınabilir. Üçüncü bir olasılık elektron aktivatör merkezine yakalandığı zaman söz konusu olur. Hiçbir radyasyon yayınlanmadan taban seviyeye geçişler de mümkündür. Bu işlemler sintilasyon verimini etkilerler ve sönüm olarak isimlendirilirler. Elektron ve boşluğun birbirinden bağımsız hareketine bir alternatif ise, çiftin adına exiton denilen daha gevşek bağlı bir konfigürasyon halinde beraber hareket etmesidir. Bu durumda elektron ve boşluk birbirleri ile bağlı kalıp bir aktivatör atomu ile karşılaşincaya kadar kristalde serbestçe hareket ederler. Benzer olarak uyarılmış aktivatör konfigürasyonları gene meydana gelir ve taban duruma geçişte sintilasyon ışığı salınır. Sintilasyon işleminin etkinliği basit olarak hesaplanabilir. Bir çok materyalde bir elektron boşluk çiftinin yaratılabilmesi için ortalama olarak enerji bant genişliğinin üç katı kadar enerji sağlanmalıdır. Sodyum iyodüre (NaI) bunun için 20 eV 'luk enerji, yüklü parçacıklar tarafından transfer edilmelidir. 1 MeV enerji soğurumunda 5×10^4 elektron-boşluk çifti yaratılır. Bir çok deneysel çalışma NaI(Tl) kristalinin etkinliğinin % 12 olduğunu göstermiştir. Bu nedenle 1 MeV enerji soğurumunda salınan toplam enerji $1.2 \times 10^5\text{ eV}$ ya da ortalama enerjisi 3 eV olan 4×10^4 foton meydana gelir. Bu verim ise bir elektron-boşluk için 1 fotona karşı gelmekte olup aktivatör merkezlerine etkin bir enerji transferi vardır. Daha önce ifade edildiği gibi kristal kendi ışığına geçirgen olmalıdır. Saf kristalde, elektron-boşluk çiftinin tekrar birleşmesi durumunda yeniden uyarılabilmesi için aynı miktar enerji gereklidir. Yani salınım ve soğurum spektrumları üst üste binmiş olup anlamlı ölçüde kendi kendine soğurum olacaktır. Ancak salınım aktivatör merkezlerinden olduğu zaman enerji

geçisi, bir elektron-boşluk çiftinin yaratılması için gerekli enerjiden azdır. Salınım spektrumu daha büyük dalga boylarına kaydığınından kristalin optik soğurulma bandından etkilenmez.

Sintilasyon dedektörlerinde, sintilatörlerle radyasyon enerjisinin aktarılmasının ardından sintilatör tarafından görünür veya görünür bölgeye yakın dalga boylarında bir foton yayılır. Sintilatörlerde üretilen ışığın genliği çok küçüktür. Bu yüzden puls veya başka bir şekilde kaydedilebilmesi için önce yükseltilmesi gereklidir. Sintilatör ışığının yükseltilmesi fotoçoğaltıcı tüp (PM) ile yapılır. Fotoçoğaltıcı tüp bu ışığı defalarca yükseltir ve çıkışında güçlü bir puls olarak verir. Bu tüpe gönderilen her pırıldama için bir elektron çığı meydana gelir. Sonuçta aldığımız akım gelen radyasyonun enerjisile orantılıdır. Çünkü radyasyonun enerjisi ne kadar büyükse oluşturacağı elektron-hol çifti sayısı o kadar çok olacak, akım da bu oranda büyüyecektir. Kısaca sintilasyon dedektörlerinin çalışması şu şekilde özetlenebilir: Sintilatör yardımıyla, gelen radyasyonun enerjisinin absorbsiyonu ve elektromagnetik spektrumun görünür bölgesindeki fotonların oluşması Fotoçoğaltıcı tüp yardımıyla ışığın yükseltilmesi ve çıkış pulsunun oluşması Sintilasyon dedektörlerinde, fotoçoğaltıcı tüp ile kullanılan sintilatörü değiştirerek farklı tipteki radyasyonlar dedekte edilebilir. İlk pırıltılarının sintilatörün çeşitli kısımlarında meydana gelmesi ve bu pırıltıların süresinin çok kısa olması nedeniyle sintilatörlerin ölü zamanı genellikle kısadır. Böylece çok yüksek aktiviteler kayıpsız olarak sayılabilir. Sahip olduğu bu özellikler nedeniyle sintilasyon dedektörleri diğer radyasyon dedektörlerinden daha üstündür. Şekil 2.1'de sintilatör kullanılan bir dedeksiyon sistemi verilmiştir.



Şekil 2.1: Sintilatörde dedektör sistemi

2.1.1.1 Bazı Sintilatörlerin özellikleri

A) NaI (Tl)

Günümüzde en fazla kullanılan sintilatördür. Saf NaI kristaline 10^{-3} mol kadar Talyum(Tl) aktivatör olarak ilave edilir. Higroskopik olduğu için atmosfere maruz bırakılırsa su soğurarak bozulur. Bu nedenle bir kılıf içerisinde kullanılmaktadır. En önemli özelliği son derece yüksek ışık verimidir. Elektronlara (dolayısıyla gama ışınlarına) olan cevabı önemli bir enerji aralığında doğrusaldır. Gama ışın spektroskopisinde yaygınla kullanılır. Bir çok boyut ve şekilde imal edilebilir. Ancak mekanik ve termal şoklara karşı hayli kırılgandır. Dominant azalım zamanı 230 saniye olup yüksek sayımları için uygun değildir.

B) CsI (Tl) ve CsI (Na)

CsI kristali, Tl ya da Na aktivatör ilavesiyle sintilatör olarak kullanılmaktadır. CsI, NaI ile kıyaslandığı zaman birim boyutu başına daha fazla gama soğurum katsayısı vardır, kullanılacak hacimin sınırlı olduğu durumlarda tercih edilir ayrıca daha dayanıklıdır. CsI (Tl)'nin en faydalı özelliği farklı parçacıklara karşı değişik azalım zamanlarının olmasıdır. Bu sayede farklı tipteki radyasyonların ayrılabilmesi için puls ayırım teknikleri kullanılabilir. Bilhassa proton ve alfaların elektronlardan ayırımı çok iyi gerçekleştirilebilir. Emisyon salınımı NaI (Tl) kristaline göre çok daha uzun dalga boylarında yoğunlaşmaktadır. Bu nedenle foto

tüp ile kullanımlarında düşük ışık verimi elde edilir. Ancak ölçümler foto diyonlar ile yapıldığında spektrumun kırmızı bölgesine kadar bir genişleme sağladığından, sintilasyon verimi tüm sintilatörlerden fazla olur. CsI (Na) kristalinin emisyon spektrumu NaI (Tl) kristalinin emisyon spektrumuna çok benzer, ışık verimi biraz daha fazladır ancak son derece yavaş azalımı vardır.

C) Bizmut Germanyum (BGO)

BGO' nun en dikkate çarpan özelliği yüksek atom numarası ($Z_{Bi} = 83$) ve yoğunluğudur ($\rho = 7.3 \text{ gr/cm}^3$), böylelikle gama ışın etkileşimelerinde fotoelektrik olay olasılığı yüksektir. Ancak NaI (Tl) kristaline göre çok düşük ışık verimi (% 10-20) vardır. Yani yüksek sayıml etkinliği yanında enerji ayırma gücü düşüktür.

D) Baryum Florür (BaF₂)

Bu saf inorganik sintilatörün en önemli özelliği yüksek atom numarası ve 1 nanosaniyeden az olan azalım zamanıdır. Foto diyonlarla kullanıldığı zaman yüksek ışık verimi vermekle beraber bu verim yine de NaI kristalinin % 20' si kadardır. Düşük enerji ayırma gücüne karşılık hızlı sayıml uygulamalarında kullanılmaktadır.

E) ZnS(Ag)

Gümüş aktivite edilmiş çinko sülfatının (ZnS) NaI (Tl) kristaline göre çok yüksek sintilasyon etkinliği vardır ancak sadece çok kristalli toz halinde elde edilebilmektedir. Bu nedenle ince ekranlar halinde daha ziyade alfa sayımlı için kullanılırlar. 25 mg/cm^2 den fazla kalınlıklarda çok kristalli tabakalar kendi ışığına karşı geçirgen değildirler.

2.1.1.2 Sintilatörlerde ışık Toplanması

Her türlü sintilatörde iyonize parçacığın yolu boyunca izotropik olarak salınan ışığın mümkün olan en büyük kesrinin toplanmasına çalışılır. Sintilatör yüzeylerinde ortaya çıkan kayıplar ve sintilatör içerisindeki soğurulma ışık

toplanmasında ortaya çıkan iki önemli sorundur. Ancak pratikte kullanılan sintilatör boyutlarında esas problem yüzeydeki sorundur.

Sintilasyon ışığı tüm yönlerde dağıldığı için sadece belirli bir kesri foto tüpün (ya da foto diyotun) olduğu kısma doğru yönelmiştir, diğer tarafa gidenler kenarlarda yansımalarla uğrarlar.

Sintilatörün foto tüpe olan optik bağlantısı araya yerleştirilen ve kırılma indeksi sintilatör ile aynı olan bir geçirgen ortam ile sağlanır. Genelde viskozitesi yüksek olan silikon yağı, kristal - foto tüp arasına koyulur.

Sintilatörün dışarıdan gelebilecek ışığa karşı korunması gerektiğinden tüm sistem metal bir kılıf içerisine yerleştirilmiştir. Sintilatörün ışık toplanacak yüzeyi ise bir cam ya da kuvartz ile kaplanmıştır. Radyasyonun dedekte edileceği diğer yüzeydeki ince metal plaka ile alçak enerjideki radyasyonun geçmesi önlenir.

Çoğu zaman foto tüpün direkt olarak sintilatöre bağlanması mümkün değildir ve tüp ile kristal arasına yerleştirilen ışık kılavuzu (light pipe) ile sintilasyon ışığının yüksek bir etkinlik ile tüpe yönlendirilmesi mümkün olur. Bu tabakanın bir diğer yararı, üzerine gelen ışığı tüm fotokatot üzerine yaymasıdır. İşık kılavuzları optik geçirgenliği olan maddelerden yapılırlar.

2.1.1.3 Fotoçoğaltıcı Tüpler

Sintilatörlerden çıkan düşük verimdeki ışığın elektrik pulsuna çevrilmesi işlemi fotoçoğaltıcı (PM) tüp ile gerçekleştirilir. Fotokatotta ışık fotonlarının alçak enerjide elektronlara dönüşmesi gerçekleşir. Oluşan fotoelektronların sayısı sadece birkaç yüz olduğundan bu pulsun elektronik devrelerde kullanılması mümkün değildir. Tüpün dynotlardan oluşan elektron çoğaltıcı kısmında elektronların sayısı artar. Tipik bir sintilasyon pulsunda 10^7 - 10^{10} elektron vardır. Bu yük PM tüpün anotunda elde edilir ve tüm süre 10^{-9} saniye kadardır.

PM tüplerde elektron çoğalması lineer bir şekilde yapılır, yani anotta oluşan pulsun genliği fotokatottaki orijinal elektron sayısı ile orantılıdır.

2.1.1.4 Fotokatot

PM tüpün ilk işlevi ışık fotonlarının elektronlara dönüşmesidir. Önce gelen foton soğrularak enerjisi katottaki elektrona aktarılır, bu elektron yüzeye hareket ederek katot dışına kaçar. Sintilatörlerden yayılan mavi ışığın enerjisi 3 eV

mertebesindedir. Elektronun hareketi esnasında bu enerjinin bir kısmı kayıp olmakla beraber gene de elektronun yüzeyden kopması yani katotun potansiyel bariyerini aşması için bir enerji kalır. Bu bariyer (bazen iş fonksiyonu da denir) birçok metalde 3-4 eV ‘den büyüktür. Elektronların yüzeye doğru hareketi boyunca enerji kayıp hızı minimum olmalıdır, böylece katotun derin kısımlarından çıkan elektronların hala potansiyel bariyerini aşacak enerjide olmaları mümkün olur. Ancak metallerdeki enerji kaybı fazladır ve elektronların birkaç nanometrelük hareketleri ile enerjileri bariyer enerjisi altına düşer. Bu nedenle fotokatotun yüzeyindeki birkaç nanometrelük çok ince bir katman fotoelektron üretimi için elverişlidir.

Fotokatottaki elektronların oda sıcaklığındaki termal kinetik enerjileri 0.025 eV’luk bir ortalama değerdedir. Bu enerji dağılıminin üst sınırındaki bazı elektronların sonunda potansiyel bariyerini geçecek bir enerji kazanmaları mümkündür. Eğer bu elektron yüzeye yakın ise katottan kaçarak bir sinyal oluşturabilir (termoionik gürültü).

Fotokatotlar saydam ya da yarı geçirgen bir yapıda tasarımlanırlar. Saydam elektronlar ışığın geldiği yüzey tarafından toplanırlarken yarı geçirgenlerde bu işlem diğer yüzeyden gerçekleştirilir. Fotokatot kalınlığının tüm boyutta homojen olması gereklidir, aksi takdirde katot üzerinde pozisyonuna bağlı hassasiyet değişikliği olacaktır.

2.1.1.5 Kuantum Etkinliği ve Spektral Cevap

Fotokatotun hassasiyetinin belirlenmesindeki bir yöntem kuantum etkinliğidir ve aşağıdaki gibi tanımlanır;

$$QE = \text{Salınan fotoelektron sayısı} / \text{Gelen foton sayısı}$$

İdealde %100 olması gereken bu değer genelde % 20- 30 civarındadır. Fotokatotun diğer önemli özelliği, spektral hassasiyeti yani hangi dalga boylarındaki ışığın daha fazla soğuracağıdır. Kullanılan fotokatotun spektral hassasiyetinin sintilatörden salınan ışık ile tam olarak uyması gereklidir.

2.1.1.6 Sintilatörlerde Puls Analizi

Fototüpün anotunda oluşan voltaj pulsunun şekli, anot devresinin zaman sabitine bağlıdır. Bu zamanın seçiminde sintilasyon olayının azalım sabiti dikakte

alınır. Uzun bir zaman sabiti ile tüm yükün toplanması gerçekleşir ancak yüksek sayımlarında sorun ortaya çıkacaktır. Kısa zaman sabitinin seçimi ile bu sorun çözülür ancak puls yüksekliği yük miktarının ölçüsü olmayacağıdır.

2.1.2 Organik Kristaller

Organik kristallerdeki floresans işlemi tek bir molekülün enerji seviye yapısındaki geçişlerden ortaya çıkar ve kristalin fiziksel yapısından bağımsızdır. Örneğin antrasenin floresans özelliği katı, sıvı ve gaz hallerinde gözlenebilir. Bu durum sintilasyon işlemi için düzenli bir latis yapısı isteyen inorganik kristallere göre farklıdır.

Moleküllerin enerji soğurmasında iki yol vardır; elektronlar daha yukarı seviyelere uyarılabilirler, ya da moleküldeki atomlar birbirine göre titreşirler.

Organik kristallerde bazı elektronlar kuvvetli bağ yaparlarken bazıları çok daha gevşektir, örneğin benzen gibi aromatik hidrokarbonlarda karbonun dört değerlik elektronundan üç tanesi karbonlar arasında kuvvetli bir şekilde bağlanmışlardır (σ orbitalları), dördüncü elektron (π orbitali) sıkı bir şekilde bağlanmamıştır. İşte gevşek bağlı olan π elektronu sintilasyon işlemini gerçekleştirir.

İnorganik ve organik kristaller arasındaki en önemli fark cevap zamanıdır; organik kristaller 10 nsn' lik süre ile çok hızlı sintilatörlerdir.

Tüm organik kristallerde uyarılma enerjisi, foton salınımı olmadan önce bir molekülden diğerine transfer edilir. Bu transfer işlemi bilhassa yapısında birden fazla molekül bulunan organik kristallerde önemlidir. Eğer etkin bir sintilatörün az bir miktarı esas çözücüye (solvent) eklenirse, başlangıçta bir çözücüde soğurulan enerji, transfer işlemi ile etkin sintilatör molekülüne ulaşıp o noktada foton salınımı gerçekleştirebilir.

Üçüncü bir komponent, primer sintilatörden yayınlanan ışığı soğurarak tekrar bir başka dalga boyunda yayar. Salınan spektrumdaki bu değişikliğin amacı salınan

ışığın dalga boyunun foto tüpün spektral hassasiyetine uygun yapmak ve sintilatör içerisindeki soğurulmaları önlemek içindir.

2.1.2.1 Organik Sintilatör Tipleri

A) Saf Organik Kristaller

Antrasen, kullanılan en eski organik kristaldir ve hepsine göre arasında sintilasyon etkinliği (soğurulan birim enerji başına salınan ışık fotonu sayısı) en yüksek olanıdır. Ancak yine de bu etkinlik NaI(Tl) kristaline göre üç kat daha azdır, sönüm zamanı hayli kısadır (30 nsn). Stilbenin etkinliği ise daha azdır (antrasenin yarısı kadar), ancak yüklü parçacıkların ve elektronların oluşturdukları sintilasyonların ayırt edilebilmesi için puls ayırimının kullanılacağı durumlarda tercih edilirler. Her iki materyal de hayli kırılgandır.

B) Sıvı organik Kristaller

Organik bir sintilatörün uygun bir çözücüde çözülmesiyle elde edilirler. Ayrıca dalga boyunu değiştiren üçüncü madde de kolaylıkla eklenebilir.

Bazı uygulamalarda ölçümü yapılacak radyoaktif madde de sintilatör solüsyonuna karıştırılır. Sayım etkinliğinin % 100 ‘ü bulduğu bu uygulamalarda düşük beta sayımları (C- 14 veya Tritium) yapılır.

Ticari Sıvı Sintilatörler

NE211, NE213, NE216, NE220, NE224, NE226 ve NE314 bazı ticari organik sıvı sintilatörlerin kodlarını göstermektedir.

NE213 (sıvı) sintilatörün yoğunluğu 0.784 gr/ cm^3 olup kırılma indis 1.508 dir. Kaynama sıcaklığı 141°C ‘dir. Sintilasyon ana bileşenin gecikme sabiti 3.7 ns ‘ dir. Maksimum salınımın dalga boyu 350- 450 nm arasındadır. Sıvı içindeki

hidrojen atomun karbon atomuna oranı 1.213 ‘ tür. Sintilasyon verimi yaklaşık olarak % 60 ‘ tır.

NE211 , NE213, NE226 ve NE314 organik sıvı sintilatörlerinin bozunma süreleri sırasıyla; 2.26 ns, 3.58ns, 3 ns ve 2.34 ns ‘dir.

C) Plastik Sintilatörler

Eğer bir çözücüde çözülmüş olan bir organik sintilatör akabinde polimerize edilirse katı bir çözelti eşdeğeri oluşturulabilir. Stiren monomer içeren bir çözelti buna örnektir. Stiren daha sonra polimerize edilerek katı plastik şeklini alır. Plastik ise işlenmesi hayli kolay olan bir maddedir. Ancak sintilasyon ışığının ortamındaki soğurulması bir sorundur.

Plastik sintilatörlerin çok ince filmleri (20 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$) delicilik gücü çok zayıf olan ağır iyonların dedeksiyonunda kullanılır.

2.2 İyot, İyot İzotoplari ve Radyoizotoplari

İyot, VIIA (Halojen) grubunda, 53 atom numarasına sahip olan ametal bir elementtir. Yoğunluğu 4.933 g/cm^3 , ergime noktası 386.85 K (113.85 °C) ve kaynama noktası 457.4 K (184.4 °C) dir.

I- 108 den I-144 e kadar bilinen 37 izotopu bulunmaktadır; ama sadece I- 127, kararlı halde doğada bulunmaktadır. En uzun yarı ömre sahip radyoizotopu, 15.7 milyon yıl ile I-129’dur. Diğer tüm radyoizotoplari 60 günden az yarılanma ömrüne sahiptir. I-123, I-124, I-125 ve I-131 gibi radyoizotoplari nükleer tıpta teşhis ve tedavi amacıyla kullanılmaktadır. I-135 radyoizotopu 7 saatte az bir yarılanma ömrüne sahiptir, bu durum biyolojik olarak kullanılmasını zorlaştırmaktadır.

I-123’ün yarı ömrü 13.3 saatdir. Çekirdeğinde 53 proton 70 nötron vardır. β radyasyonu bulunmadığı için klinik görüntülemede ideal bir SPECT radyonüklididir. Siklotron ürünü olduğu için pahalıdır, bu sebeple yaygın olarak kullanılmaz. Tiroid görüntüleme çalışmaları için ideal özelliklere sahiptir. İyot radyoizotoplari içinde, 159 keV’ lik enerjisiyle in vivo çalışmalar için en uygunudur. I-124 yarı ömrü 18 gündür. Te-124 ‘ den % 74.4 elektron yakalama, % 25.6 pozitron emisyon ile I- 124’ e bozunmaktadır (Audi et al., 2003). Bu nedenle

hem PET radyonüklid olarak kullanılabilir. Bozunma sırasında açığa çıkan Auger elektronları nedeniyle terapi potansiyeli de mevcuttur.

I-125'in yarı ömrü 60 gündür. Görüntüleme sırasında maksimum 35 keV enerjili gama ışınları ve elektron yakalaması ve iç dönüşüm sonucu oluşan Auger ve iç dönüşüm (internal conversion) elektronları nedeniyle hedefe yönelik terapi potansiyeli de mevcuttur. Ancak düşük enerjili gama ışınları derin bölgelerde önemli derecede absorblandığı için görüntüleme potansiyeli düşüktür. Nükleer reaktörlerde üretilmektedir ve *in vitro* çalışmalarında kullanılmaktadır. Elektron yakalama yaptığı için I- 131'e göre radyolitik etkisi azdır. Düşük enerjili gama ışınması nedeniyle iç radyasyon kaynağı olarak brakiterapide implant kapsül olarak kullanılmaktadır (Narr et al., 1992).

I-128 yarı ömrü sadece 25 dakikadır. β bozunumu ile Te- 128'e, elektron yakalama ile Xe-128'e bozunabilir. Spesifik aktivitesi 2.177×10^6 TBq/g'dır (Audi et al., 2003).

I-131 radyoizotopu 8 günlük yarı ömrü ve 364 keV'lik enerjisi ile hem teşhis hem de tedavi ajanı olarak kullanıma çok uygundur. Bu nedenle ticari üretimi fazladır ve nükleer tipta ^{99m}Tc 'den sonra en çok kullanılan radyonükliddir. Tiroid tarafından tutulduğu için, özellikle bu organın görüntülenmesinde ve daha yüksek aktivitelerde tiroid kanserlerinin radyonüklid tedavi ile tedavisinde kullanılmaktadır. I-131 nükleer reaktörde U-235'in termal nötron ile bombardımanı sonucu fision ürünü olarak üretilmektedir.

2.3 Teknesyum

1937 yılında Carlo Perrier and Emilio Segr'e tarafından keşfedilen teknesyumun atom numarası 43 olup, atom numarası 42 olan molibdenin proton ve nötronların bombardıman edilmesiyle meydana gelen yapay bir elementtir (Rimshaw, 1968). Tc-99 izotopu 1979 yılından beri inorganik kimyacılar tarafından araştırmalarda ilgi odağı olmuştur. Başka bir izotop olan Tc- 99m ise daha çok nükleer tipta kullanılmaktadır (Rimshaw, 1968). Tc-99m'in çeşitli kitlerle

bağlanması ile oluşan radyofarmasörikler, hastalığın teşhisini için SPECT radyofarmasötikleri olarak hala en yaygın olarak kullanılan radyofarmasötiklerdir.

Tc-99m'in 6 saatlik yarılanma ömrü ve 140 keV gama ışını yayma özelliği ile hastanelerde kullanılan gama kameraları için çok idealdir. Alfa veya beta ışınlarını yaymaz (Rimshaw, 1968).

2.3.1 Fiziksel Özellikleri

Teknesyum doğada bulunmaz. Platin benzeri bir görünüme sahip olan gümüş gri radyoaktif bir metaldir. Yaygın olarak gri bir toz şeklinde elde edilir (Hammond 2004). Teknesyumin karakteristik emisyon çizgisi şu dalga boylarındadır. 363,3 nm, 403,1 nm, 426,2 nm, 429,7 nm, ve 485,3 nm (Lide 2004). Metal formu az oranda paramanyetiktir. Yani Manyetik bir alan içerisinde manyetik kutuplar belli bir hızda dizilir. Fakat manyetik alan kaldırıldığında belirsiz dairesel hareketler yapmaya başlar (Rimshaw , 1968). Saf metalik, tek kristalli teknesyum 7,6 °K'nın altındaki sıcaklıklarda süper iletken özelliği kazanır (Schwochau, 2000). Bu sıcaklığın altında Teknesyum'un manyetik derinliği çok büyütür. Niobyuma kadarki en büyük manyetik etkinliğine sahip elementtir (Autler, 1968).



Şekil 2.2 Teknesyum elementi

2. 3.2. Kimyasal Özellikleri

Teknesyum periyodik cetvelde 7B grubunda Mangan ve Renyum arasına yerleşmiştir. Periyodik cetvelde bu şekilde sıralanmasının sebebi kimyasal özellikleri bakımından bu iki elementle ortak noktalarının olmasıdır. Bu iki elementin arasında teknesyum en çok gereklidir kimyasal özellikleri bakımından gereklidir.

kovalent bağların yapısı bakımından renyuma benzemektedir (Greenwood 1997). Teknesyum derişik nitrik asit, kral suyu, sülfürük asit ‘te çözünür (Hammond 2004).

2.3.3 Oluşumu ve Üretimi

Uranyum cevheri teknesyum izlerini içinde barındırır. Uranyum cevheri içinde belli bir oranda kendiliğinden fisyon sonucu ürünü olarak yer kabugunda doğal bir şekilde bulunur. Bir kilogram uranyum 1 nano gram (10^{-9} g) teknesyum içerir (Curtis et al. 1999). Tc-99m radyoizotopu, çeşitli moleküllere (fosfonat, tetrafosmin vb.) kolayca bağlanabildiği için radyofarmasötik olarak kullanılabilmektedir. Tıpta kullanılan radyoizotopların bir kısmı üretim, taşıma ve depolama gibi bazı problemleri nedeniyle doğrudan üretimleri hızlandırıcıılarda ya da reaktörlerde üretilmezler. Bunun yerine daha az masraflı ana radyonüklid üretilir ve bu sistemden sağlanan yavru nüklid birkaç defa kendini yenileyebilir. Radyoizotop jeneratörleri bozunmaya uğrayan ana radyonüklid ve üretilen yavru nüklid çiftinden oluşur. Ana nüklid iyon değişimine olanak sağlayan alüminyum kolon tarafından tutulur. Daha uzun yarı ömre sahip ana nüklidin bozunuşuyla yavru nüklid oluşur. Yavru nüklidin alınması olayına sağlam denir. Serum fizyolojikle sağlam yapılan yavru nüklid sütunun alt ucunda birikir. Yapılan sağlamda genellikle önceki gün sağlanan radyoaktivite miktarının %75-80’i Tc- 99m aktivitesi sağlanmaktadır. Sağım işleminden sonra yavru nüklid üretimi 4 tekrar yenilenir ve 24 saat sonra maksimum düzeye ulaşır. Bir hafta kadar bir süre yüksek oranda radyoizotop üretimi sağlanabilir (Faik et al. 2013).

2.3.4 Kullanım alanları

Nükleer tıp ve biyoloji Nükleer tıpta radyoaktif elementlerin tedavide kullanılmasında temel prensip, bir organ veya doku içerisinde lokal olarak verilen veya metabolik taşıyıcılar aracılığı ile hedef dokuya yönlendirilen radyoaktif maddelerin, çevresine yaydığı işimalar yoluyla hedef hücrelerde oluşturduğu yıkıcı etkiden faydalananmaktır. Bu amaçla gerek onkolojik amaçlı gerekse onkoloji uygulamaları dışında, etkinliği ve güvenilirliği kanıtlanmış birçok radyonüklidin tedavi amaçlı uygulaması bulunmaktadır (Neslihan 2012). Genel olarak kanser tedavisinde kullanılan lokal (cerrahi, radyoterapi ve lokal kemoterapi) veya 9999sistemik (kemoterapi) tedavi yaklaşımlarından farklı olarak nükleer tıp, kanser tedavisinde hedefe yönlendirilmiş sistemik tedavi yaklaşımını kullanmaktadır.

(Neslihan 2012). Bu tedavilerde amaç, hedef hücrelerde radyasyon etkisine bağlı sitotoksik etki oluşturularken, hedef hücreleri çevreleyen dokularda hücre hasarını mümkün olan en az seviyede tutmak ve vucudun geri kalan kısımlarını radyasyonun zararlı etkilerinden korumaktır (Neslihan 2012). ^{99m}Tc ("m" bir yarı kararlı nükleer izomer olduğunu gösterir) Grave's hastalığına yakalanan hastalarının boynuna, teknesyum sintigrafisinde radyoaktif izotop olarak tıbbi testlerde kullanılmaktadır. Mesela, radyoaktif izleyici olarak tıbbi cihazların insan vücudunda tespit edebilmesi için (Emsley 2001). Bu role iyi uymaktadır çünkü kolayca saplanan 140 keV gamma ışıntıları yaymaktadır ve yarı ömrü 6.01 saatdir. (bunun yaklaşık %99'u 24 saat içinde $^{99m}\text{Tc}'a$ bozunur) (Rimshaw 1968). Görüntüleme ve beyin, miyokard, tiroid, akciğer, karaciğer, safra kesesi, böbrek, iskelet, kan ve tümörlerin fonksiyonel çalışmaları için Tc-99m' in dayalı olarak en az 31 yaygın kullanılan radyo-farmasöтикleri vardır (Schwochau 2000). 61 günlük bir yarı ömrür ile daha uzun ömürlü izotop Tc- 95m, çevre ve bitki ve hayvan sistemlerinde teknesyum hareketini çalışma radyoaktif bir işaretleyici olarak kullanılmaktadır (Schwochau 2000).

2.4 Stronsiyum ve Özellikleri

Stronsiyum, periyodik tablonun ikinci grubunda yer alan toprak alkali bir metaldir. Bu grup içerisinde kalsiyum ile baryum arasında yer alır. Atom numarası 38 ve atom ağırlığı 87,62 akb'dir. Stronsiyum ilk olarak A. Crawford tarafından 1790'da keşfedilmiştir. (CRC, 1984)

2.4.1 Doğada bulunduğu ve oluşumu

Stronsiyum, yer kabuğunda %0.04 ortalama konsantrasyon ile en çok bulunan elementler arasında 15. sırada bulunur. Deniz suyunda ise %0.0008 konsantrasyon ile 10. sıradadır. Doğal olarak oluşan stronsiyum bileşiklerinden sadece strontianite (stronsiyum karbonat, SrCO_3) ve celestite (stronsiyum sülfat, SrSO_4) mineralleri ekonomik öneme sahiptir. Celestite, deniz suyu birikintilerinin çökmesi ile oluşur. Hidrotermal oluşumu da mümkündür. Agonite, calcite, anhydrite stronsiyum içeren başlıca minerallerdir. Bu minerallerin kristal kafesinde yer alan stronsiyum dışarı salınır ve sülfat içeren çözeltiler ile celestite olarak çöker. Celestite, temelde nodül, tabaka şeklinde veya karbonat, alçıtaşısı, kil gibi sediment kayalardaki çatlakları

dolduran maddeler şeklinde oluşurlar. Strontianite stronsiyum bileşiklerinin üretimi için 1870-1920 yılları arasında başlangıç materyali olarak kullanılmıştır. Bugünlerde yerini celestite almıştır. Stronsiyum yatakları başlıca İspanya, Meksika, Türkiye, Çin ve İran olmak üzere Cezayir, Kıbrıs, Arjantin ve Fas gibi ülkelerde işletilmektedir (CRC, 1984).

2.4.2 İzotoplari

Stronsiyum'un kütle numarası 73-83, 85, 89-104 arasında değişen bilinen 28 tane izotopu vardır. Doğal stronsiyum, dört kararlı izotopun (^{84}Sr , ^{86}Sr , ^{87}Sr , ^{88}Sr) karışımından oluşur. Doğadaki bollukları sırası ile %0.56, 9.86, 7.02, 82.56'dır. Kararsız izotopların yarı-ömürleri 150ns (^{75}Sr) ile 28.1 yıl (^{90}Sr) arasında değişir. Fisyon ürünlerinde, kütle numarası 88'in üzerinde olan tüm stronsiyum radyoizotopları bulunur. Bu izotoplardan ^{90}Sr , 28.1 yıl yarı-ömür ile en önemlididir. ^{90}Sr yüksek enerjili β^- ($E\beta^- = 0.546\text{MeV}$) yaymayıcısıdır (CRC, 1984).

2.4.3 Fiziksel ve kimyasal özellikler

Stronsiyum gümüş beyazı rengindedir ve parlaktır. Ancak oksitli yapının oluşmasından dolayı rengi çok çabuk sarıya döner. Bazı fiziksel özellikleri tablo 2.1'de verilmiştir. Stronsiyum genelde magnezyum ve kalsiyumdan daha reaktif ancak baryumdan daha az reaktiftir. Havada oksitlenir, kerosen içinde saklanmalıdır. Stronsiyum, H_2O , O_2 , N_2 , F_2 ve S ile reaksiyona girerek çeşitli bileşikler oluşturur ve bu bileşiklerde +2 değerlikte bulunur. Stronsiyum güçlü bir indirgendir. Su ile reaksiyona girer, $\text{Sr}(\text{OH})_2$ oluşur ve H_2 açığa çıkar. Stronsiyum metali asitlerle kuvvetli reaksiyona girer, hidrojen çıkışıyla beraber +2 yüklü katyonlar oluşur. Nitrik asit ile olan reaksiyonu çok hızlıdır ve azot oksitler oluşur. Seyreltik sülfürük asitle olan reaksiyonu, çözünmeyen sülfatların oluşmasından dolayı çok yavaştır. Stronsiyumun çözünebilir tuzları, asetat, klorür, bromür, iyodür, nitrat, nitrit, permanganat, sülfit, klorat, bromat, perklorat'tan oluşur. Stronsiyum hidroksitin çözünürlüğü ($K_{\text{ç}\text{ç}}\text{Sr}(\text{OH})_2 = 3.2 \times 10^{-4}$ 25 °C'da) düşüktür. Stronsiyum genelde radyokimyasal ve analitik işlemlerde karbonat, nitrat, okzalat ve sülfatları şeklinde çöktürülür. Stronsiyum karbonat ($K_{\text{ç}\text{ç}}\text{SrCO}_3 = 7 \times 10^{-10}$ 25 °C'da), okzalat ($K_{\text{ç}\text{ç}}\text{SrC}_2\text{O}_4 = 5.6 \times 10^{-8}$ 25 °C'da), kromat ($K_{\text{ç}\text{ç}}\text{SrCrO}_4 = 3.6 \times 10^{-5}$ 25 °C'da), sülfat ($K_{\text{ç}\text{ç}}\text{SrSO}_4 = 3.2 \times 10^{-7}$ 25 °C'da) ve fosfat çökeleklerinin ($K_{\text{ç}\text{ç}}\text{Sr}_3(\text{PO}_4)_2$

$= 1 \times 10^{-31}$ 25 °C'da) sudaki çözünürlükleri çok düşüktür yada çözünmezler, ancak bu çökelekler asitte çözünebilirler (CRC, 1984).

Tablo 2.1 Stronsiyum'un fiziksel özellikleri

Özellikler	Değerleri
Atom numarası	38
Atom ağırlığı, akb	87.62
Erime noktası, °C	768
Kaynama noktası, °C	1381
Yoğunluk, g/cm ³ , 20 °C' da	2.63
Atomik yarıçap, Å°	2.45
Kovalent yarıçap, Å°	1.19
İyonik yarıçap, Å°	1.12
Elektron konfigürasyonu, temel düzey	[Kr]5s2
İyonizasyon potansiyelleri, eV	1. 5.695 2. 11.03 3. 43.60

2.4.4 Stronsiyum bileşikleri

Stronsiyum bileşikleri, diğer toprak alkali metal bileşikleri gibi beyaz ve renksizdir. Bu bileşiklerden stronsiyum karbonatının (SrCO_3) molekül ağırlığı 147.63, yoğunluğu 3.70g.cm^{-3} , erime noktası 1497 °C'dır. Çözünürlüğü 25 °C'da 10^{-3} g/100mL'dir ve 924 °C'nin altında rombik yapıda kristaller, bu sıcaklığın üstünde ise hekzagonal kristaller oluşur. Stronsiyum karbonat üretiminde stronsiyum sülfür başlangıç maddesi olarak kullanılır. Stronsiyum sülfür çözeltisinin karbondioksit ile çökmesi sonucu stronsiyum karbonat ve hidrojen sülfür oluşur. $\text{SrS} + \text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{SrCO}_3 + \text{H}_2\text{S}$ Karbondioksit yerine sodyum karbonat kullanıldığında, $\text{SrS} + \text{Na}_2\text{CO}_3 \rightarrow \text{SrCO}_3 + \text{Na}_2\text{S}$ reaksiyonu gerçekleşir. Stronsiyum karbonat, stronsiyum bileşikleri içerisinde endüstride kullanılan en önemli bileşiktir. Stronsiyum metalinin, diğer stronsiyum bileşiklerinin, elektroseramiklerin, süperiletken oksitlerin, seramik mıknatısların üretiminde ve

katot işini tüplerinde x-ışını absorplayan camların yapımında kullanılır. Stronsiyum nitratın ise (SrNO_3) molekül ağırlığı 211.63, yoğunluğu, 2.986 g/cm^3 , erime noktası 570°C 'dir. Yüzey merkezli kübik kristaller oluşur. Çözünürlüğü 20°C 'da $40.7\text{g}/100\text{mL}$ 'dir. Stronsiyum nitrat stronsiyum karbonatın %60 nitrik asit içerisinde çözünmesi ile elde edilir. Stronsiyum klorür (SrCl_2), molekül ağırlığı 158.53, yoğunluğu 3.052g.cm^{-3} , erime noktası 875°C 'dir. Kübik kristaller oluşur. Çözünürlüğü 20°C 'da $34.5\text{g}/100\text{mL}$ 'dir. Stronsiyum klorür, stronsiyum karbonatın derişik hidroklorik asitte çözünmesi ile oluşur. Bu bileşik diğer stronsiyum bileşiklerinin üretiminde kullanılır. Stronsiyum kromatının (SrCrO_4) molekül ağırlığı 203.61, yoğunluğu 3.895g.cm^{-3} . Çözünürlüğü 15°C 'da $0.12\text{g}/100\text{mL}$ su dur. Kristal yapısı monokliniktir. Kromat iyonlarının stronsiyum tuzu ile çöktürülmesi ile yada stronsiyum hidroksit çözeltisinin kromik asit ile reaksiyonu sonucu oluşur. Korozyona karşı dayanıklı bir bileşiktir, gemi ve uçakların yapımında kullanılır. Stronsiyum metali vakumlu ortamda stronsiyum oksitin alüminyum ile indirgenmesi ile oluşur. $4\text{SrO} + 2\text{Al} \rightarrow 3\text{Sr} + \text{SrO.Al}_2\text{O}_3$ Stronsiyum metalinin üretimi için kullanılan diğer yöntemler ise klorür eriyiğinin elektrolizi ve sulu çözeltisinin civa elektrot kullanılarak elektrolizidir. (CRC, 1984)

2.4.5 Toksisitesi

Stronsiyum iyonunun toksisitesi düşüktür. Stronsiyumun kimyasal ve biyolojik davranışları kalsiyuma benzer. İnsan vücudunda kemiklerde ve dişlerde birikir. Stronsiyum oksit ve stronsiyum hidroksitin özellikle gözlere olmak üzere

deri ve mukoza üzerinde tahriş edici etkisi vardır. Stronsiyum laktatın büyümeyi durdurduğu ve kemik mineralizasyonunu azalttığı bilinmektedir.

(CRC, 1984; <http://mineral.galleries.com>; <http://webmineral.com>)

3.GEREÇ VE YÖNTEM

3.1 Kullanılan Kimyasallar Ve Cihazlar

3.1.1 Kullanılan Kimyasallar

- Fosforil Klorür (POCl₃) (Sigma- Aldrich)
- Diklorometan (Metilen klorür) (CH₂Cl₂) (Ricdel-de-haen)
- Lityum Hidroksit (LiOH)
- Tetraetil ortosilikat(TEOS) (Merck Millipore)
- Amonyak (%25 NH₃) (Merck Millipore)
- Etanol (%96 C₂H₆O) (Teksan Solvent)
- Titanyum tetraklorid (TiCl₄)
- Metanol (CH₃OH)
- Dodecylamine
- Aseton
- (3-aminopropyl) triethoxysilane (APTES) (Sigma- Aldrich)
- Dowex 50 katyon reçine (Sigma-Aldrich)
- Dekstroz monohidrat %20 (Medifleks)
- Piridin (Sigma-Aldrich)
- Diisopropynaphthalene (Zinsser Analytic Ltd.)

3.1.2 Kullanılan Cihazlar

- Brand Transfer Pipetleri (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Thermo Scientific Transfer Pipetleri (Finnipipette) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Hassas terazi (Ohaus, Pioneer PA214C) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Sentez Ünitesi (Heildolph MR – Hal End Starfish Workstation) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Vortex Cihazı (Heildolph Reax Top) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Vortex cihazı (IKA Genius 3) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Manyetik Karıştırıcılı Isıtıcı (IKA RCT Basic) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Ultrasonik Banyo (CEIA CP104 Standard Ultrasonic Cleaner) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Ultrasonik Homojenizatör (Bandelin, Sonoplus HD 2070) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Su banyosu (Memmert) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Nüve Etüv (FN 400 kuru hava sterilizatör) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Pro Research Santrifüj Cihazı (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Laminar Flow Kabin (Thermo) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- DLS Zeta Size ve Zeta Potansiyel Ölçüm Cihazı (Dynamic Light Scattering) (Malvern Nano- ZS) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- HPLC (Shimadzu SCL- 10 AVP) (LC- 10 Atvp quarterner pompalı,SPD-10 AV UV dedektörü) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)

- SEM Thermo Scientific Apreo S (Ege Üniversitesi, MATAL)
- Thermo Varioskan Florimetri cihazı (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Doz kalibratörü (Bidex AtomLab 100 Plus) (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)
- Perkin- Elmer Spektrum Two Infrared IR Spektrofotometresi(Fourier Transform Near Infrared Spectroscopy) (FT- NIR) (Sabahattin Zaim Üniversitesi Beslenme ve Diyetetik Bölümü)
- Packard Tri- Carb 2100 TR Sıvı Sintilasyon Cihazı (Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı)



3.1.3 Dowex-50W Reçine'sinin Hazırlanması

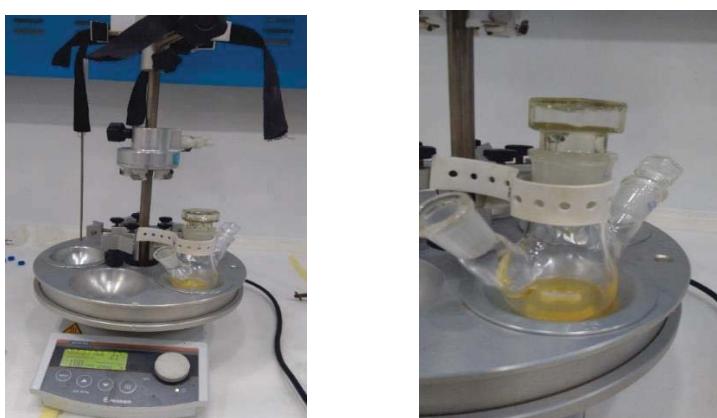
5 mL' lik steril plastik enjektörün çıkış ucuna bir miktar pamuk konularak reçineye destek ortamı sağlandı. Pamuğu ıslatmak için bir miktar su geçirildi. Daha sonra enjektöre 2 cm olacak şekilde Dowex-50W(sigma) reçinesi ilave edildi ve tekrar ıslatılarak, ucu parafilm ile iyice kapatıldı. Reçinenin şişmesi için buzdolabında 1 gece boyunca bekletildi.



Şekil 3.1: Dowex 50W Reçine kolonunun hazırlanması

3.2 Lawsondiphosphate (LAWSON-P) Sentezi

Üç boyunlu balonun içerisinde 4 mL kuru piridin konulmuştur. Manyetik karıştırıcı üstünde, oda sıcaklığında ve karanlık ortamda, üzerine 0.1 mmol (17.4 mg) Lawson (LAWSON) bileşiği ilave edilmiştir. 100 μ L POCl₃ damla damla eklenmiş olup, reaksiyon oda sıcaklığında (22°C) , 100 rpm'de 1 gün boyunca devam etmiştir.



Şekil 3.2: Lawson sentezi

Karışım bir gece(24saat) bekletildikten sonra piridinin tamamen uçurulması için ortamdan 5 saat boyunca argon gazi geçirildi.



Şekil 3.3: Argon gazi kullanılarak piridinin ortamdan uzaklaştırılması

Üç boyunlu balondaki Lawson P ham ürünün içine 5 mL saf su ve 6 mL diklorometan ilave edildi. (Diklorometanın yoğunluğu 1.318 g/cm^3 , suyun yoğunluğu 1g/cm^3 'tür.) Böylece karışım iki fazlı oldu. (Alttaki faz diklorometan, üstteki faz su) Oluşan bu karışım behere boşaltıldı ve pH'sı ölçüldü.



Şekil 3.4: İki fazlı karışım

Şekil 3.5: pH ölçme

Burada pH'sı nötralleştirmek için LiOH kullanılmıştır. LiOH'un hazırlanma aşaması;

LiOH: 23.95gr, 1litrede hazırlarsak 1M

$$3 * 23.95 * 0.01 = 0.72 \text{ gr}$$

6 mL suda 216 mg LiOH hazırlandı. Karışım sonikatör (ultrasonik banyo) yardımcı ile çözündü.



Şekil 3.6: LiOH ve saf suyun sonikatörde çözünmesi

Oluşan iki faz ayrıldıktan sonra behere boşaltılan karışımın pH'ı ölçüldü. Daha sonra üzerine yavaş yavaş LiOH damlatılarak pH değeri 12 'ye ayarlandı. Karışımın rengi kahverengi oldu.



Şekil 3.7: pH'ı 12 olan karışımın son hali



Şekil 3.8: pH'ı 6 olan karışım

Hazırladığımız reçine'den LiOH çözeltisi ile pH'ı 12 olan reaksiyon karışımı geçirilerek Lawson-P ürünü asit formuna geçirildi.

Karışımın içindeki sıvıyı uçurmak için su banyosu yapıldı. Kristallendirme için karışımın içine 30mL olacak şekilde etanol ilave edildi. Sıcakta çözünüp çözünmediğini anlamak için ısıtma işlemi yapıldı. Geriye 15mL karışım kalana kadar (saflaşana kadar) işleme devam edildi.

Karışım yavaş yavaş soğumaya bırakılıp, işlem bir sonraki gün kontrol edildi.



Şekil 3.9: Su banyosu



Şekil 3.10: Su banyosu tamamlandıktan sonra

Ertesi gün karışım su banyosundan alınıp, 30 mL olacak şekilde tekrar etanol eklendi. Manyetik bar yardımı ile karıştırma işlemeye başlandı. Karıştırma işlemi yaklaşık 1 saat sürdü. Karışımın 20 mililitresi sıklaması için, 10 mililitresinin de pH'sı LiOH yardımı ile pH = 10' a yükseltilerek FTIR için ayrıldı. FTIR için ayrılan karışım kuruması için vakumlu etüve konuldu.



Şekil 3.11: Karıştırma işlemi



Şekil 3.12: Silikalama için



Şekil 3.13: FTIR için

3.2.1 Lawson P'nin Silikalama Reaksiyonu (LW-P-O-(Si(OH)_3)

Silikalama reaksiyonu için; pH'ı 6 olan karışımın %75'i balona alınarak üzerine; öncelikle 2,5mL TEOS (tetraetil ortosilikat) daha sonra 2mL amonyak ilave edildi. Amonyum hidroksit çözeltisinin pH'ı 11'e ayarlandı. Balonun ağızı kapatılarak, manyetik ısıtıcı üzerinde reaksiyona 40°C ve 300 rpm karıştırma hızında bir gece boyunca devam edildi. Kalan %25'lük karışım silikalama işleminin gerçekleşip gerçekleşmediğini anlamak için (FTIR için) ayrıldı. Ertesi gün reaksiyon kontrol edildi ve silikalama işleminin gerçekleştiği gözlandı.



Şekil 3.14: Silikalama işlemi



Şekil 3.15: Karışımın silikalanmış hali

Silikaladığımız Lawson-P, 10 dak 10000 rpm parametreleri ile 3 defa santrifüj edildi. Her santrifüj işlemi sonrasında istenmeyen ürünlerden kurtulmak için çöktürülen silikalı Lawson-P'nin üzerine etanol ilave edilerek yıkama işlemi tamamlandı.



Şekil 3.16: Santrifüj işlemi



Şekil 3.17: 1.Santrifüj sonrası



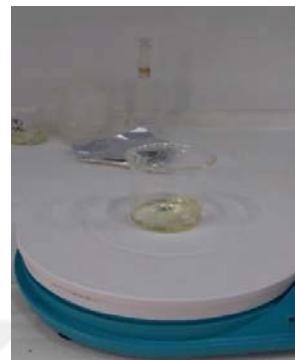
Şekil 3.18: 3.Santrifüj sonrası

3.3 TiO₂ Nanoparçacıkların Sentezi

0.75 mg (1.98mL~2mL) TiCl₄ pipet yardımıyla cam behere alındı. Üzerine 10 mL metanol yavaş yavaş ilave edildi. Manyetik bar yardımıyla karışması sağlandı. Karıştırma işlemi bir saat sürdü. Toplam 12 mL olan karışım ısıtma işlemi sonucunda 8 mL'ye düştü.

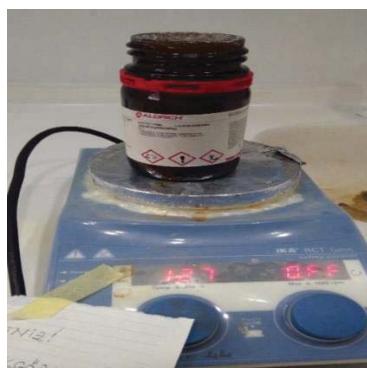


Şekil 3.19: TiCl₄



Şekil 3.20: TiCl₄ ve metanol karışımı

Karıştırma işlemi tamamlandıktan sonra örnek üç boyunlu balona alınarak üzerine 80 mL saf su ilave edildi. Üzerine 5 mL ısıtılarak (sıvı) hale getirilmiş dodecylamine ilave edildi. Geri soğutma işlemi ile sıcaklığın 100°C'ye getirilmesi beklandı. Ara ara termometre yardımıyla sıcaklık kontrol edildi. Ancak maksimum sıcaklığın 93.5°C olduğu gözlandı.



Şekil 3.21 Dodecylamine ısıtma işlemi



Şekil 3.22 Sıcaklık kontrolü

Reaksiyon bir saat boyunca 100 °C'de sürdürüldü. Isıtma işlemi bir saat olacak şekilde tamamlandı. Sentezlenen TiO₂ nanoparçacıklar santrifüj için 4 adet

falkon tüpüne, her tüpte eşit miktarda (25 mL) olacak şekilde pay edildi. 5dk 5000rpm'de santrifüj yapıldı. İkinci santrifüj için aseton behere boşaltıldı ve falkon tüpüne yeniden 25 mL olacak şekilde aseton enjekte edildi ve vortexlendi. 5dk 5000rpm santrifüj yapıldı. Üçüncü santrifüj için aseton behere boşaltıldı ve falkon tüpüne yeniden 25 mL olacak şekilde aseton enjekte edildi ve vortexlendi. 5dk 5000rpm santrifüj yapıldı. Aseton behere boşaltıldı. Üç defa santrifüj yapılarak yıkama işlemi tamamlanmış oldu. 4 adet falkon tüpünden bir tanesi alınarak içindeki aseton boşaltıldı. 4 mL oleik asitte örneğimizin dağılması sağlandı. Örnek teflon tüpüne alındı. Fırına alınıp 5°C/min. 250°C'ye gelene kadar 2 saat boyunca inkübasyon sağlandı.



Şekil 3.23: örnek
firmanızdan önce



Şekil 3.24: Fırın



Şekil 3.25: örnek
firmanızdan sonra

Örnek falkon tüpüne alınarak 5 mL aseton ile yıkama işlemi yapıldı. 7mL örnek içeren içeren falcon santrifüj tüpü karşısına 7mL'de saf sulu içeren falkon santrifüj tüpü konarak 5dk süre ile 5000 rpm'de santrifüjlendi.

İkinci santrifüj için falkon tüpündeki aseton behere alınıp üzerine toplam 7 mL olacak şekilde tekrar 5mL aseton ilave edilerek vortexlendi ve 5dk 5000rpm santrifüj yapıldı. Üçüncü santrifüj için falkon tüpündeki aseton behere alınıp üzerine toplam 7 mL olacak şekilde tekrar 5 mL aseton ilave edilerek vortexlendi ve 5dk 5000rpm santrifüj yapıldı.

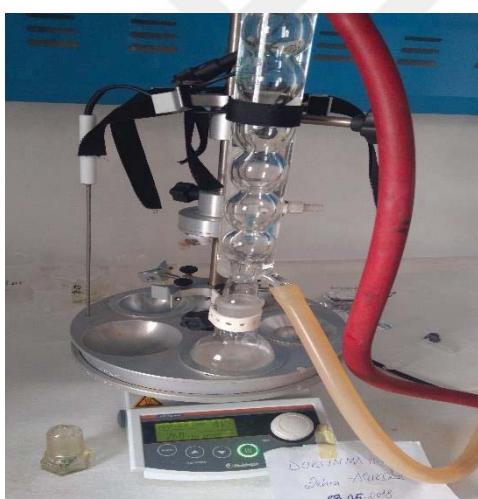
Örnek etüve kuruması için konuldu.

3.3.1 TiO₂ Nanoparçacıkları Silikalama İşlemi (TiO₂-SiO₂)_n

Etüvde kurutulan TiO₂ ‘den 2 mg alınarak, 1 mL asetonda 25°C’de 5dk boyunca sonikatörde çözünmesi sağlandı. Tek boyunlu balona alındı ve üzerine 500 µL TEOS, ardından %25’lik amonyaktan 2 mL eklendi. Reaksiyon 40°C 500 rpm’de 12 saat boyunca geri soğutucu altında devam etti.

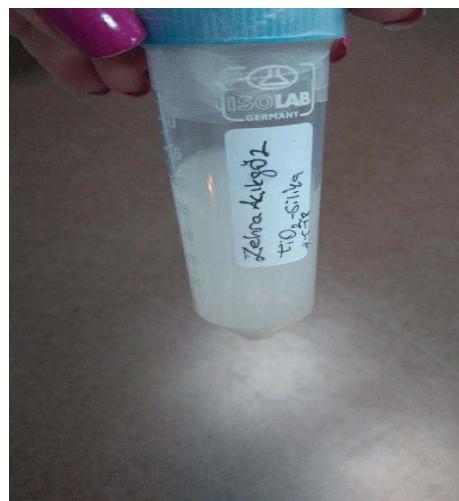


Şekil 3.26 TiO₂ silikalama işlemi



Şekil 3.27: Geri soğutma işlemi

Geri soğutma işlemi tamamlandıktan sonra örnek falkon tüpe alındı ve ağzı parafilm ile iyice kapatıldı.



Şekil 3.28: Silikalanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$)

3.3.2 TiO_2 Nanoparçacıkların Silanlanması

Elimizde bulunan 4 adet falcon tüpünden bir tanesi ele alınarak; 7 mL'lik karışım üç boyunlu balona alındı. Üzerine 13 mL etanol, 1 mL (3-aminopropyl) triethoxysilane ilave edildi, ardından karışımıma manyetik bar atıldı. Geri soğutucu işlemi yapılarak 60°C'de 12 saat silanlanmaya bırakıldı.



Şekil 3.29: Silanlama işlemi

Silanlama işlemi tamamlandıktan sonra yıkama işlemine geçildi:

Silanlanan karışım falkon tüpüne alındı, üç boyunlu balondaki kalan silanlı karışım çalkalanarak falkon tüpüne alındı. Karışım toplam hacmi 35 mL oldu. 5dk 1500 rpm'de santrifüj yapıldı. II.santrifüj için;sıvı faz behere döküldü. Üzerine 35 mL olacak şekilde etanol ilave edilip vortexlendi. 5dk 1500rpm'de santrifüj yapıldı. III. santrifüj için; sıvı faz behere döküldü. Üzerine 35 mL olacak şekilde etanol ilave edilip vortexlendi. 5dk 1500 rpm'de santrifüj yapıldı.

3.4 Kalite Kontrol İşlemleri

3.4.1 Sentezlenen nanoparçacıkların HPLC analizleri

Yüksek performanslı Sıvı Kromatografisi (High Performance Liquid Chromatography, HPLC) kullanılarak, sentezlenen molekül ve hazırlanan nanoparçacıklar ile konjugasyonu yapılan nanokonjugatlar her bir sentez aşamasına ilişkin HPLC analizleri yapılmıştır. HPLC analiz koşulları tablo 3.1' de verilmiştir.

Tablo 3.1 HPLC çalışma koşulları

Mobil Faz	MeOH / ACN
Akış Hızı	1 mL / dk
Sıcaklık	25°C
Enjeksiyon Süresi	30 dk
Enjeksiyon Hacmi	10 µL
Kolon	Intertsil C- 18, ODS- 3 4.6x250mm, GL Sciences Inc
Dedektör	DAD, FL

3.5 Sentezlenen nanoparçacıkların FT-IR yöntemi ile yapı analizi

Lawson, Lawson-P, Lawson- P- Si, TiO₂, Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃, Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) nanoparçacıklar Perkin-Elmer Spectrum Two IR spektrofotometresi (ATR (attenuated Total Reflection) yöntemi ile) ile yapı analizleri gerçekleştirılmıştır. Analiz sonuçları yorumlanarak sentezlenen maddeler literatür bilgileriyle karşılaştırılmıştır.

3.6 Sentezlenen nanoparçacıkların florimetrik analizi

Lawson, Lawson-P, Lawson-P-Si (LW-P-O-(Si(OH)₃), TiO₂, silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃, silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) nanoparçacıkların Thermo, Varioskan Florimetri ile analizleri gerçekleştirılmıştır.

Lawson (LW) molekülünün florimetrik analizi için 1 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.6mg Lawson 2mL saf su) + 199 μ L etanol, 10 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.6 mg Lawson 2mL saf su) + 190 μ L etanol alınarak florimetriye bakıldı. Eksitasyon dalgaboyu olarak 250 nm ve emisyon piki 315 nm de floresans spektrumu gözlandı.

Fosforillenmiş Lawson molekülü (LW-P) için: 1 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu : 17.4 mg Lawson, 4mL kuru piridin, 100 μ L POCl_3) + 199 μ L etanol, 10 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 17.4 mg Lawson, 4mL kuru piridin, 100 μ L POCl_3) + 190 μ L etanol alınarak florimetrik spektrum alındı. Eksitasyon dalgaboyu olarak 250 nm ve emisyon piki 315 nm de floresans spektrumu gözlandı.

TEOS ile silikanlanmış LW-P nanokonjugatı (LW-P-O-(Si(OH)3) için: 1 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu : 17.4 mg Lawson, 4mL kuru piridin, 100 μ L POCl_3 , 2.5mL TEOS, 2mL amonyak) + 199 μ L etanol, 10 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 17.4 mg Lawson, 4mL kuru piridin, 100 μ L POCl_3 , 2.5mL TEOS, 2mL amonyak) + 190 μ L etanol alınarak florimetrik spektrum alındı. 250 nm eksitasyon dalgaboyunda 318 nm'de emisyon piki gözlandı.

TiO_2 nanoparçacıkları için: 1 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.98mL TiCl_4 , 10mL metanol) + 199 μ L etanol, 10 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.98mL TiCl_4 , 10mL metanol)+190 μ L etanol alınarak florimetriye bakıldı. 250 nm eksitasyonda ve 318 nm'de emisyon piki gözlandı.

Silanlanmış TiO_2 nanoparçacıkları ($\text{TiO}_2\text{-O-Si-(CH}_2)_3\text{NH}_2$) için: 1 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.98mL TiCl_4 , 10mL metanol, 1mL 3-aminopropil-triethoksilan) + 199 μ L etanol, 10 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.98mL TiCl_4 , 10mL metanol , 1mL 3-aminopropil-triethoksilan) + 190 μ L etanol alınarak florimetri spektrumu alındı. 250 nm uyarılmasında emisyon piki 316 nm olan floresans gözlemlendi.

Silikalanmış TiO_2 nanoparçacıklarında 1 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.98mL TiCl_4 , 10mL metanol, 5mL %25 amonyak, 2mL TEOS) + 199 μ L etanol, 10 μ L stoktan (Stok konsantrasyonu: 1.98mL TiCl_4 , 10mL metanol , 5mL %25 amonyak, 2mL TEOS) + 190 μ L etanol alınarak florimetri spektrumu alındı. 250 nm uyarılmasında emisyon piki 318 nm olan emisyon spektrumu gözlandı.

3.7 Sentezlenen Lawson Molekülü Türevleri ve TiO₂ Nanoparçacıkların Hidrodinamik Çap ve Yüzey Özelliklerinin Karakterizasyonları

3.7.1 Lawson ve TiO₂ nanoparçacıkları ve Türevlerinin Hidrodinamik çap (boyut) ve Zeta potansiyeli Analizleri

Sentezlenen nanoparçacıkların boyutları Ege Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı'nda Malvern Nano-ZS DLS (Dynamic Light Scattering) cihazı analizi ile incelenmiştir.

Lawson'un Hidrodinamik çap (boyut) ve Zeta potansiyeli Analizleri:

Bunun için 1.6mg Lawson 2mL su ile sonikatörde çözüldü. (30dk 25°C). Eppendorf tüpüne 2 mL su, üzerine 10 µL Lawson ilave edildi. Bu karışımından 100 µL alınıp, 1.9 mL su içerisinde seyreltme gerçekleştirildi. (En küçük boyutu bulabilmek için aynı deney 10 defa tekrarlanarak ortalaması alındı).

(Seyreltme işlemi hidrodinamik çapı küçültmek için yapıldı). (Lawson için Refraktif indeks tayini yapıldı).

Lawson-P' nin Hidrodinamik çap (boyut) ve Zeta Potansiyeli Analizleri:

Eppendorf tüpüne 2 mL su, üzerine 10 µL Lawson-P ilave edildi. Bu karışımından 100 µL alınıp 1.9 mL su içerisinde seyreltme gerçekleştirildi. (En küçük boyutu bulabilmek için aynı deney 10 defa tekrarlanarak ortalaması alındı).

(Lawson-P için Refraktif indeks tayini yapıldı: 1.363)

Lason-P-Si ' nin Hidrodinamik çap (boyut) ve Zeta Potansiyeli Analizleri:

Eppendorf tüpüne 2 mL su, üzerine 10 µL Lawson-P-Si (LW-P-O-(Si(OH)₃) ilave edildi. Bu karışımından 100 µL alınıp 1.9 mL su içerisinde seyreltme gerçekleştirildi. (En küçük boyutu bulabilmek için aynı deney 10 defa tekrarlanarak ortalaması alındı).

(Lawson-P-Si için Refraktif indeks tayini yapıldı: 1.345)

TiO₂ Nanoparçacıklarının Hidrodinamik çap (boyut) ve Zeta potansiyeli Analizleri:

990 µLetanol, 10µL TiO₂ eppendorfa alınarak, 20dk 25°C'de sonikatörde tutuldu. (En küçük boyutu bulabilmek için aynı deney 10 defa tekrarlanarak ortalaması alındı).

Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) ‘nin Hidrodinamik çap (boyut) ve Zeta potansiyel Analizleri:

990 µL etanol, 10 µL silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) eppendorfa alınarak, 20dk 25°C'de sonikatörde tutuldu. (En küçük boyutu bulabilmek için aynı deney 10 defa tekrarlanarak ortalaması alındı)

Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) ‘nin Hidrodinamik çap (boyut) ve Zeta potansiyel Analizleri:

990 µL etanol, 10µL silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) eppendorfa alınarak, 20 dk sonikatörde tutuldu. (En küçük boyutu bulabilmek için aynı deney 10 defa tekrarlanarak ortalaması alındı).

3.8 SEM analizleri

Sentezlenen Lawson ve TiO₂ nanoparçacıkların SEM analizleri Ege Üniversitesi MATAL’da yapılmıştır. SEM Analizlerine örnek hazırlamak için 1*1 cm’lik alüminyum folyo kesildi. Hazırlanan alüminyum folyo ve lam etanolde yıkandı. Silikalı Lawson-P ve Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) nanoparçacıklarından 10’ ar µL eppendorfa alındı. Silikalı Lawson- P için 990 µLetanol, silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) için 990 µLaseton çekilerek eppendorfa boşaltıldı. Eppendorftaki çözeltilerden 100’er µL alınarak alüminyum ve cam yüzeye dağıtıldı. Örnekler 40 °C ‘de etüvde 1 gün kurutuldu. Petri kabında muhafaza edilip SEM analizi için Ege MATAL'a götürüldü. SEM Thermo Scientific Apreo S cihazı ile SEM görüntüleri alındı.

3.9 Sentezlenen Nanoparçacıkları ve türevlerinin Sıvı Sintilasyon Analizleri

Lawson, Lawson-P, Lawson-P-Si, TiO₂, silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃), silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) nanoparçacıkları ve türevleri Packard Tri-Carb 2100 TR Sıvı Sintilasyon Cihazı ile analizleri gerçekleştirilmiştir.

Deneyclerde aşağıdaki örnekler hazırlandı:

3.9.1 I-131 radyoizotobu ile hazırlanan örnekler

Lawson için; (175µL Lawson+815µL su)+ 0,66 µCi (0,0244 MBq) I-131,

(175 µL Lawson+815 µL su)+ 0,45 µCi (0,0166 MBq) I-131,

(175 µL Lawson+815 µL su)+ 0,40 µCi (0,0148 MBq) I-131,

(175µL Lawson+815µLsu)+ 0,20 µCi (0,0074 MBq) I-131

Lawson-P için; (350µLLawson-P+640µLsu) + 0,66 µCi (0,0244 MBq)

I-131,

(350µL Lawson-P+640µLsu) + 0,45 µCi (0,0166 MBq) I-131,

(350µLLawson-P+640µLsu) + 0,40 µCi (0,0148 MBq) I-131,

(350µLLawson-P+640µLsu) + 0,20 µCi (0,0074 MBq) I-131

Lawson-P-Si için; (500µLLawson-P-Si+490µLsu) + 0,66 µCi (0,0244 MBq) I-131,

(500 µL Lawson-P-Si+490 µL su) + 0,45 µCi (0,0166 MBq) I-131,

(500µLLawson-P-Si+490µLsu) + 0,40 µCi (0,0148 MBq) I-131,

(500µLLawson-P-Si+490µLsu) + 0,20 µCi (0,0074 MBq) I-131

TiO₂ için; (900µLTiO₂+ 90µLsu) + 0,66 µCi (0,0244 MBq) I-131,

(900µLTiO₂+ 90µLsu) + 0,45 µCi (0,0166 MBq) I-131,

(900µLTiO₂+ 90µLsu) + 0,40 µCi (0,0148 MBq) I-131,

(900µLTiO₂+ 90µLsu) + 0,20 µCi (0,0074 MBq) I-131,

Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ için; (550µL silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃+350µL su) + 0,66 µCi(0,0244 MBq) I-131,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃+350 μ L su) + 0,45 μ Ci (0,0166 MBq) I-131,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃+350 μ L su) + 0,40 μ Ci (0,0148 MBq) I-131,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃+350 μ L su) + 0,20 μ Ci (0,0074 MBq) I-131,

Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) için; (550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH)+350 μ L su) + 0,66 μ Ci (0,0244 MBq) I-131,

(550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂)+350 μ L su) + 0,45 μ Ci (0,0166 MBq) I-131,

(550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂)+350 μ L su) + 0,40 μ Ci (0,0148 MBq) I-131,

(550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂)+350 μ L su) + 0,20 μ Ci (0,0074 MBq) I-131,

Sintilasyon kokteyli için ; 950 μ Lsintilasyon kokteyli+ 0,66 μ Ci (0,0244 MBq) I-131 , 970 μ Lsintilasyon kokteyli+ 0,45 μ Ci (0,0166 MBq) I-131,

990 μ Lsintilasyon kokteyli+ 0,40 μ Ci (0,0148 MBq) I-131,

999 μ Lsintilasyon kokteyli + 0,20 μ Ci (0,0074 MBq) I-131

Burada :

50 μ L I-131 = 0,66 μ Ci I-131 = 0,0244 MBq I-131

30 μ L I-131 = 0,45 μ Ci I-131 = 0,0166 MBq I-131

10 μ L I-131 = 0,40 μ Ci I-131 = 0,0148 MBq I-131

1 μ L I-131 = 0,20 μ Ci I-131 = 0,0074 MBq I-131 aktiviteye karşılık gelmektedir.

Tablo 3.2 I-131 radyoizotobu ile yapılan sıvı sintilasyon sayım koşulları

Vial	Süre (dakika)	Örnek	Aktivite (μ Ci)
1	2	Lawson	0.66
2	2	Lawson-P	0.66
3	2	Lawson – P- Si	0.66
4	2	TiO ₂	0.66
5	2	Silikalı TiO ₂	0.66
6	2	Silanlı TiO ₂	0.66
7	2	Ticari kokteyl	0.66
8	2	Lawson	0.45
9	2	Lawson-P	0.45
10	2	Lawson – P- Si	0.45
11	2	TiO ₂	0.45
12	2	Silikalı TiO ₂	0.45
13	2	Silanlı TiO ₂	0.45
14	2	Ticari kokteyl	0.45
15	2	Lawson	0.40
16	2	Lawson-P	0.40
17	2	Lawson – P- Si	0.40
18	2	TiO ₂	0.40
19	2	Silikalı TiO ₂	0.40
20	2	Silanlı TiO ₂	0.40
21	2	Ticari kokteyl	0.40
22	2	Lawson	0.20
23	2	Lawson-P	0.20
24	2	Lawson – P- Si	0.20
25	2	TiO ₂	0.20
26	2	Silikalı TiO ₂	0.20
27	2	Silanlı TiO ₂	0.20
28	2	Ticari kokteyl	0.20

3.9.2 Tc-99m ile hazırlanan örnekler

Lawson için; (175 μ L Lawson+815 μ Lsu)+ 4,5 μ Ci (0,1665 MBq) Tc-99m,

(175 μ L Lawson+815 μ Lsu)+ 2,7 μ Ci (0,0999 MBq) Tc-99m,

(175 μ L Lawson+815 μ Lsu)+ 0,9 μ Ci (0,0333 MBq) Tc-99m,

(175 μ L Lawson+815 μ Lsu)+ 0,09 μ Ci (0,0033 MBq) Tc-99m,

Lawson-P için; (350 μ L Lawson-P+640 μ Lsu) + 4,5 μ Ci (0,1665 MBq)

Tc-99m,

(350 μ L Lawson-P+640 μ Lsu) + 2,7 μ Ci (0,0999 MBq) Tc-99m,

(350 μ L Lawson-P+640 μ Lsu) + 0,9 μ Ci(0,0333 MBq) Tc-99m,

(350 μ L Lawson-P+640 μ Lsu) + 0,09 μ Ci (0,0033 MBq) Tc-99m,

Lawson-P-Si için; (500 μ L Lawson-P-Si+490 μ Lsu) + 4,5 μ Ci (0,1665 MBq)

Tc-99m,

(500 μ L Lawson-P-Si+490 μ Lsu) + 2,7 μ Ci (0,0999 MBq) Tc-99m,

(500 μ L Lawson-P-Si+490 μ Lsu) + 0,9 μ Ci (0,0333 MBq) Tc-99m,

(500 μ L Lawson-P-Si+490 μ Lsu) + 0,09 μ Ci (0,0033 MBq) Tc-99m,

TiO₂ için; (900 μ L TiO₂+ 90 μ Lsu) + 4,5 μ Ci (0,1665 MBq) Tc-99m,

(900 μ L TiO₂ + 90 μ Lsu) + 2,7 μ Ci (0,0999 MBq) Tc-99m,

(900 μ L TiO₂ + 90 μ Lsu) + 0,9 μ Ci (0,0333 MBq) Tc-99m,

(900 μ L TiO₂ + 90 μ Lsu) + 0,09 μ Ci (0,0033 MBq) Tc-99m,

Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ için; (550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-

O-Si(OH)₃ +350 μ Lsu) + 4,5 μ Ci (0,1665 MBq) Tc-99m,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ +350 μ Lsu) + 2,7 μ Ci

(0,0999 MBq) Tc-99m,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ +350 μ Lsu) + 0,9 μ Ci

(0,0333 MBq) Tc-99m,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ +350 μ Lsu) + 0,09 μ Ci

(0,0033 MBq) Tc-99m,

Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) için; (550µL silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) +350µLsu) + 4,5 µCi (0,1665 MBq) Tc-99m,

(550µL silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) +350µLsu) + 2,7 µCi

(0,0999 MBq) Tc-99m,

(550µL silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) +350µLsu) + 0,9 µCi

(0,0333 MBq) Tc-99m,

(550µL silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) +350µLsu) + 0,09 µCi

(0,0033 MBq) Tc-99m,

Sintilasyon kokteyli için; 950 µL sintilasyon kokteyli + 4,5 µCi

(0,1665 MBq) Tc-99m ,

970 µL sintilasyon kokteyli+ 2,7 µCi (0,0999 MBq) Tc-99m,

990 µL sintilasyon kokteyli+ 0,9 µCi (0,0333 MBq) Tc-99m,

999 µL sintilasyon kokteyli + 0,09 µCi (0,0033 MBq) Tc-99m,

Burada ;

50µL Tc-99m = 4,5 µCi Tc-99m = 0,1665 MBq Tc-99m

30µL Tc-99m = 2,7 µCi Tc-99m = 0,0999 MBq Tc-99m

10µL Tc-99m = 0,9 µCi Tc-99m = 0,0333 MBq Tc-99m

1µL Tc-99m = 0,09 µCi Tc-99m = 0,0033 MBq Tc-99m aktiviteye karşılık gelmektedir.

Hazırlanan örnekler 2 mL ‘ lik eppendorflara alınarak sıvı sintilasyon cihazında sayımları yapıldı.

Tablo 3.3 Tc-99m ile yapılan sıvı sintilasyon sayım koşulları

Vial	Süre (dakika)	Örnek	Aktivite (μ Ci)
1	2	Lawson	4.5
2	2	Lawson-P	4.5
3	2	Lawson – P- Si	4.5
4	2	TiO ₂	4.5
5	2	Silikalı TiO ₂	4.5
6	2	Silanlı TiO ₂	4.5
7	2	Ticari kokteyl	4.5
8	2	Lawson	2.7
9	2	Lawson-P	2.7
10	2	Lawson – P- Si	2.7
11	2	TiO ₂	2.7
12	2	Silikalı TiO ₂	2.7
13	2	Silanlı TiO ₂	2.7
14	2	Ticari kokteyl	2.7
15	2	Lawson	0.9
16	2	Lawson-P	0.9
17	2	Lawson – P- Si	0.9
18	2	TiO ₂	0.9
19	2	Silikalı TiO ₂	0.9
20	2	Silanlı TiO ₂	0.9
21	2	Ticari kokteyl	0.9
22	2	Lawson	0.09
23	2	Lawson-P	0.09
24	2	Lawson – P- Si	0.09
25	2	TiO ₂	0.09
26	2	Silikalı TiO ₂	0.09
27	2	Silanlı TiO ₂	0.09
28	2	Ticari kokteyl	0.09

3.9.3 Sr-90 ile hazırlanan örnekler

Lawson için; (175 μ L Lawson+ 815 μ L su)+ 146,6*10⁻⁶ μ Ci (5,43*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(175 μ L Lawson+ 815 μ L su)+ 88*10⁻⁶ μ Ci (3,26*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(175 μ L Lawson+815 μ L su)+ 29,4*10⁻⁶ μ Ci (1,09*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(175 μ LLawson+815 μ Lsu)+ 2,94*10⁻⁶ μ Ci (0,109*10⁻⁶ MBq) Sr – 90

Lawson-P için; (350 μ L Lawson-P+640 μ Lsu) + 146,6*10⁻⁶ μ Ci (5,43*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(350 μ L Lawson-P+640 μ Lsu) + 88*10⁻⁶ μ Ci (3,26*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(350 μ LLawson-P+640 μ Lsu) + 29,4*10⁻⁶ μ Ci (1,09*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(350 μ LLawson-P+640 μ Lsu)+ 2,94*10⁻⁶ μ Ci (0,109*10⁻⁶ MBq) Sr – 90

Lawson-P-Si için; (500 μ LLawson-P-Si+490 μ Lsu) + 146,6*10⁻⁶ μ Ci (5,43*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(500 μ L Lawson-P-Si+490 μ L su) + 88*10⁻⁶ μ Ci (3,26*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(500 μ LLawson-P-Si+490 μ Lsu) + 29,4*10⁻⁶ μ Ci (1,09*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(500 μ LLawson-P-Si+490 μ Lsu)+ 2,94*10⁻⁶ μ Ci (0,109*10⁻⁶ MBq) Sr – 90

TiO₂ için; (900 μ LTiO₂+ 90 μ Lsu) + 146,6*10⁻⁶ μ Ci (5,43*10⁻⁶ MBq)

Sr - 90 ,

(900 μ LTiO₂+ 90 μ Lsu) + 88*10⁻⁶ μ Ci (3,26*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(900 μ LTiO₂+ 90 μ Lsu) + 29,4*10⁻⁶ μ Ci (1,09*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(900 μ LTiO₂+ 90 μ Lsu)+ 2,94*10⁻⁶ μ Ci (0,109*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ için; (550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃+350 μ L su) + 146,6*10⁻⁶ μ Ci(5,43*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ +350 μ L su) + 88*10⁻⁶ μ Ci (3,26*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ +350 μ L su) + 29,4*10⁻⁶ μ Ci (1,09*10⁻⁶ MBq) Sr – 90 ,

(550 μ L silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ +350 μ L su) + 2,94*10⁻⁶ μ Ci (0,109*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) için; (550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH)+350 μ L su) + 146,6*10⁻⁶ μ Ci (5,43*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

(550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂)+350 μ L su) + 88*10⁻⁶ μ Ci (3,26*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

(550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) + 350 μ L su) + 29,4*10⁻⁶ μ Ci (1,09*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

(550 μ L silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) + 350 μ L su) + 2,94*10⁻⁶ μ Ci (0,109*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

Sintilasyon kokteyli için ; 950 μ L sintilasyon kokteyli+ 146,6*10⁻⁶ μ Ci (5,43*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

970 μ L sintilasyon kokteyli+ 88*10⁻⁶ μ Ci (3,26*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

990 μ L sintilasyon kokteyli+ 29,4*10⁻⁶ μ Ci (1,09*10⁻⁶ MBq) Sr - 90 ,

999 μ L sintilasyon kokteyli + 2,94*10⁻⁶ μ Ci (0,109*10⁻⁶ MBq) Sr - 90

Burada ;

50 μ L Sr - 90 = 146,6*10⁻⁶ μ Ci Sr - 90 = 5,43*10⁻⁶ MBq Sr - 90

30 μ L Sr - 90 = 88*10⁻⁶ μ Ci Sr - 90 = 3,26*10⁻⁶ MBq Sr - 90

10 μ L Sr - 90 = 29,4*10⁻⁶ μ Ci Sr - 90 = 1,09*10⁻⁶ MBq Sr - 90

1 μ L Sr - 90 = 2,94*10⁻⁶ μ Ci Sr - 90 = 0,109*10⁻⁶ MBq Sr - 90 aktiviteye karşılık gelmektedir.

Hazırlanan örnekler 2 mL ‘ lik eppendorflara alınarak sıvı sintilasyon cihazında sayımları yapıldı.

Tablo 3.4 Sr – 90 ile yapılan sıvı sintilasyon sayım koşulları

Vial	Süre (dakika)	Örnek	Aktivite (*10 ⁻⁶ µCi)
1	60	Lawson	146.6
2	60	Lawson-P	146.6
3	60	Lawson – P- Si	146.6
4	60	TiO ₂	146.6
5	60	Silikalı TiO ₂	146.6
6	60	Silanlı TiO ₂	146.6
7	60	Ticari kokteyl	146.6
8	60	Lawson	88
9	60	Lawson-P	88
10	60	Lawson – P- Si	88
11	60	TiO ₂	88
12	60	Silikalı TiO ₂	88
13	60	Silanlı TiO ₂	88
14	60	Ticari kokteyl	88
15	60	Lawson	29.4
16	60	Lawson-P	29.4
17	60	Lawson – P- Si	29.4
18	60	TiO ₂	29.4
19	60	Silikalı TiO ₂	29.4
20	60	Silanlı TiO ₂	29.4
21	60	Ticari kokteyl	29.4
22	60	Lawson	2.94
23	60	Lawson-P	2.94
24	60	Lawson – P- Si	2.94
25	60	TiO ₂	2.94
26	60	Silikalı TiO ₂	2.94
27	60	Silanlı TiO ₂	2.94
28	60	Ticari kokteyl	2.94

3.9.4 I-125 ile hazırlanan örnekler

5 adet eppendorf tüpüne her bir tüpe ayrı olacak şekilde $190\mu\text{L}$ etanol, her bir tüpe ayrı olacak şekilde $10\mu\text{L}$ sintilasyon kokteyli, $10\mu\text{L}$ Lawson, $10\mu\text{L}$ Lawson-P, $10\mu\text{L}$ Lawson-P-Si ve $10\mu\text{L}$ Lawson-P-Si-TiO₂ eklendi. Her tüpte $200\mu\text{L}$ olacak şekilde örnekler hazırlandı (Şekil 1) .

Ayrıca 5 farklı tüpe de $900\mu\text{L}$ sintilasyon kokteyli konuldu. Önceki tüplerde hazırlanan ve toplamda $200\mu\text{L}$ olan örneklerden 100'er μL alınarak tüplere ilave edildi.



Şekil 3.30 I- 125 ile hazırlanan örnekler

Öte yandan $10\mu\text{Ci}$ I-125 suda karıştırıldı ve eppendorflara $2\mu\text{Ci}$ olacak şekilde pay edildi. Sıvı sintilasyon dedektörü için 5 farklı vial numaralandırılarak cihaza yerleştirildi.(Şekil 3.31)

1 numaralı vial: Sintilasyon kokteyli+ I-125

2 numaralı vial: Lawson+ I-125

3 numaralı vial: Lawson-P+ I-125

4 numaralı vial: Lawson-P-Si + I-125

5 numaralı vial: Lawson-P-Si-TiO₂ + I-125



Şekil 3.31 Sıvı sintilasyon dedektörüne yerleştirilen örnekler

Tri-Carb 2100 TR sıvı sintilasyon cihazı kullanılarak 20 dakika sayılmalıdır (Her örnek için 4 dakika süre gereklidir).



Şekil 3.32 Tri-Carb 2100 TR sıvı sintilasyon cihazı

Tablo 3.5 I-125 ile yapılan sıvı sintilasyon sayım sonuçları

Vial	Süre(dakika)	Örnek	Aktivite (μ Ci)
1	4	Sintilasyon kokteyli+ I-125	2
2	4	Lawson+ I-125	2
3	4	Lawson-P+ I-125	2
4	4	Lawson-P-Si+ I- 125	2
5	4	Lawson-P-Si- TiO_2+ I-125	2

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

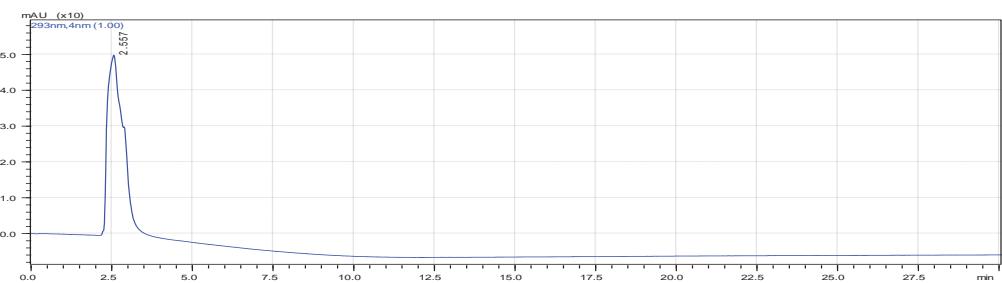
4.1 Sentezlenen Molekül ve Nanokonjugatların Yapı ile İlgili Analiz Sonuçları

4.1.1 HPLC Analiz Sonuçları

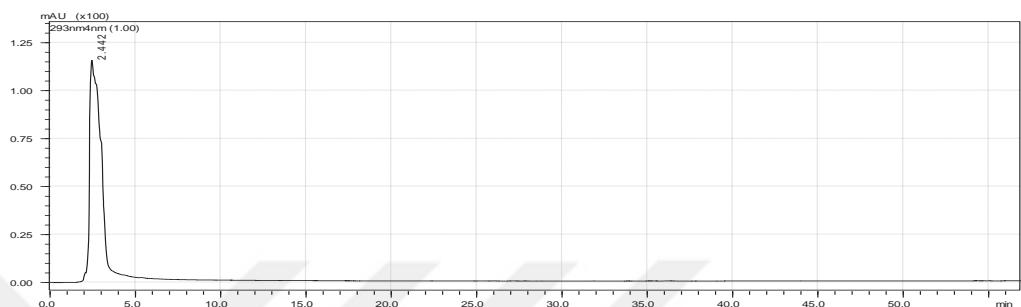
Lawson molekülü (LW), fosforillenmiş Lawson molekülü (LW-P), TEOS ile silikanlanmış LW-P nanokonjugatı (LW-P-O-(Si(OH)₃), TiO₂ nanoparçacıkları, ve silanlanmış TiO₂ nanoparçacıklarının (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) deneyel bölümde verilmiş olan koşullarda yapılmış olan HPLC kromatogramları şekil 4. 1, şekil 4. 2, şekil 4. 3, şekil 4. 4 ve şekil 4. 5'de verilmiştir. Bu kromatogramlardan elde edilen alikonma süreleri de tablo 4.1 'de görülmektedir. LW molekülünün alikonma süresi 2.55 dakika iken fosforillendikten sonra oluşan LW-P'nin 2.45, silikalama sonucu oluşan LW-P-O-(Si(OH)₃)'nin de 2,75 dakika bulunmuştur. Sonuçlar sentezlenmiş moleküllerin yeterince saf olduğunu göstermektedir. TiO₂ nanoparçacıklarının aynı koşullarda alikonma süresi 4.11 dakika bulunmuştur. Aminosilan ile kaplandıktan sonra 3,17 dakika'da görülen pikin silanlanmış TiO₂ nanoparçacığına ait diğer küçük pikin de silanlanmadan kalan TiO₂'e ait safsızlık piki olduğu düşünülmektedir.

Tablo 4.1 Sentezlenmiş molekül ve nanokonjugatların HPLC alikonma süreleri (Mobil faz: ACN, Dedektör DAD)

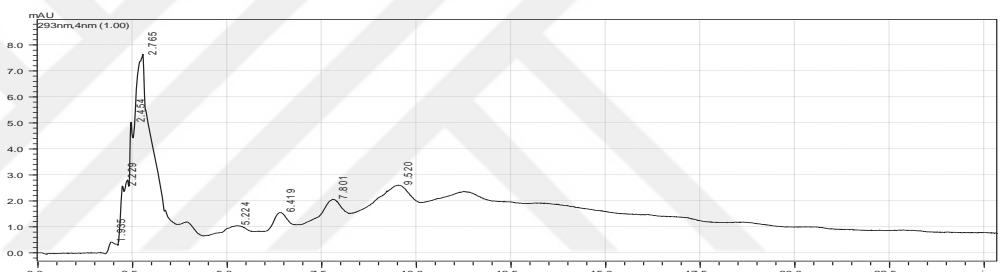
Örnek	Rt (dak.)
LW	2.55
LW-P	2.45
LW-P-O-(Si(OH) ₃)	2.75
TiO ₂	4.11
TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂	3.75-4.17



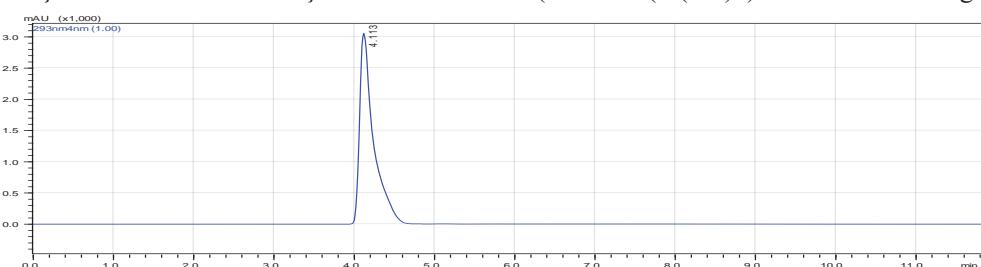
Şekil 4.1: Lawson (LW) molekülünün HPLC kromatogramı



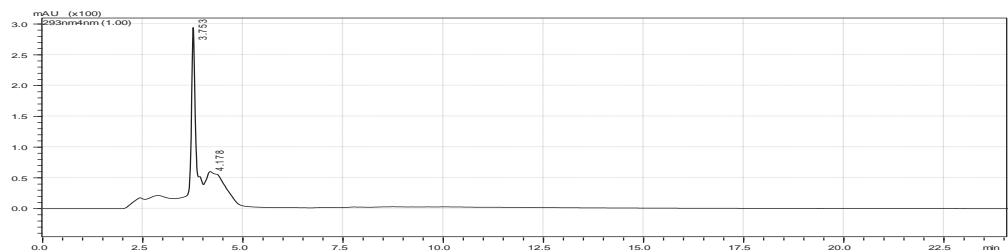
Şekil 4.2: Lawson-P (LW-P) molekülünün HPLC kromatogramı



Şekil 4.3: Silikallanmış Lawson- P'nin (LW-P-O-(Si(OH)3) HPLC kromatogramı



Şekil 4.4: TiO₂ nanoparçacıklarının HPLC kromatogramı

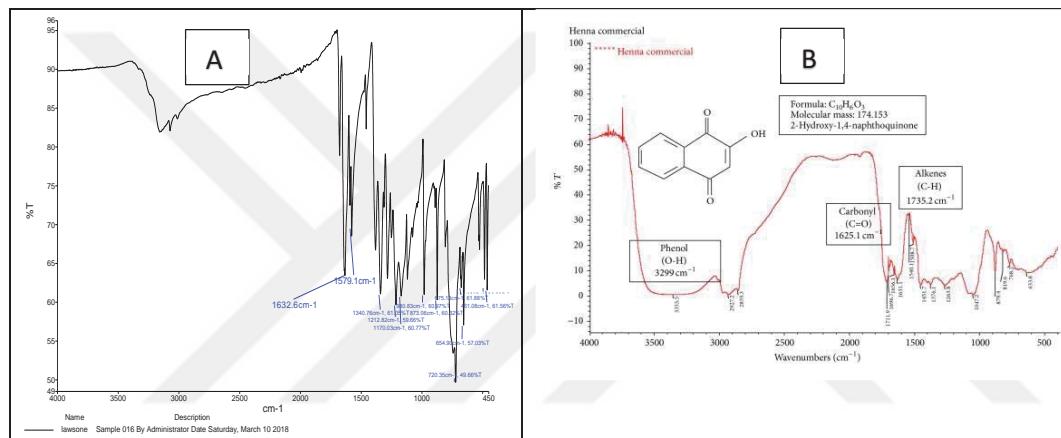


Şekil 4.5: Silanlanmış TiO₂ nanoparçacıklarının (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) HPLC kromatogramı

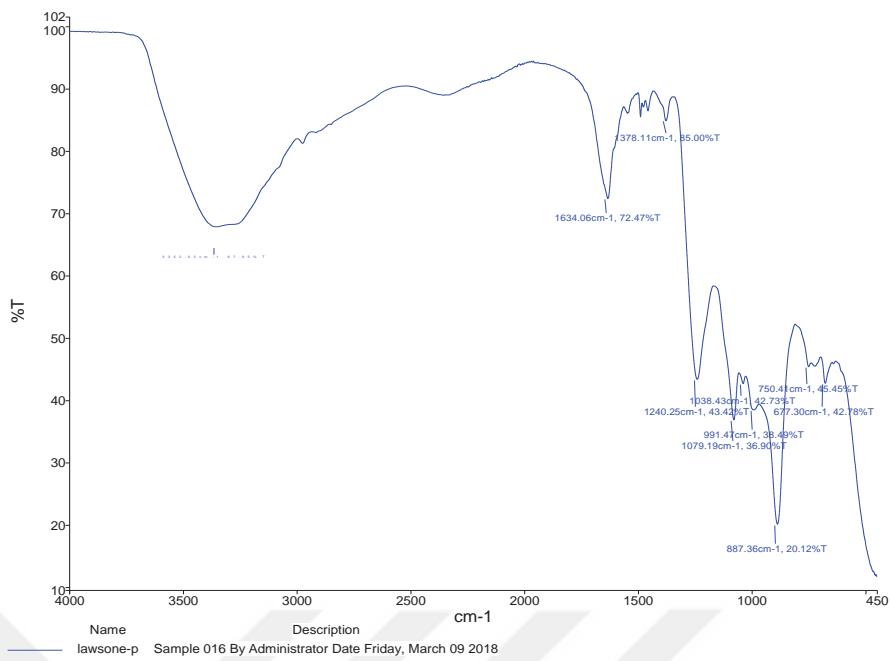
4.2 Sentezlenen Nanoparçacıkların FTIR (Fourier Transform Infrared) Yapı Analiz Sonuçları

Şekil 4. 6, Şekil 4. 7, Şekil 4. 8 Lawson, Lawson-P ve silikalanmış Lawson-P'nin (LW-P-O-(Si(OH)₃)'nin FTIR spektrumlarını göstermektedir.

FTIR analiz sonuçlarına göre; 3299 cm⁻¹'de fenolik yapının OH gerilmesini, 1632 cm⁻¹'de C=O gerilmesini, 1579 cm⁻¹'de de aromatik C-H pikleri görmektektir. Çıkış maddemiz olan lawson molekülünün FTIR spektrumu da bekendiği gibi literatür ile uyumlu çıkmıştır (Hajar, vd., 2016) .

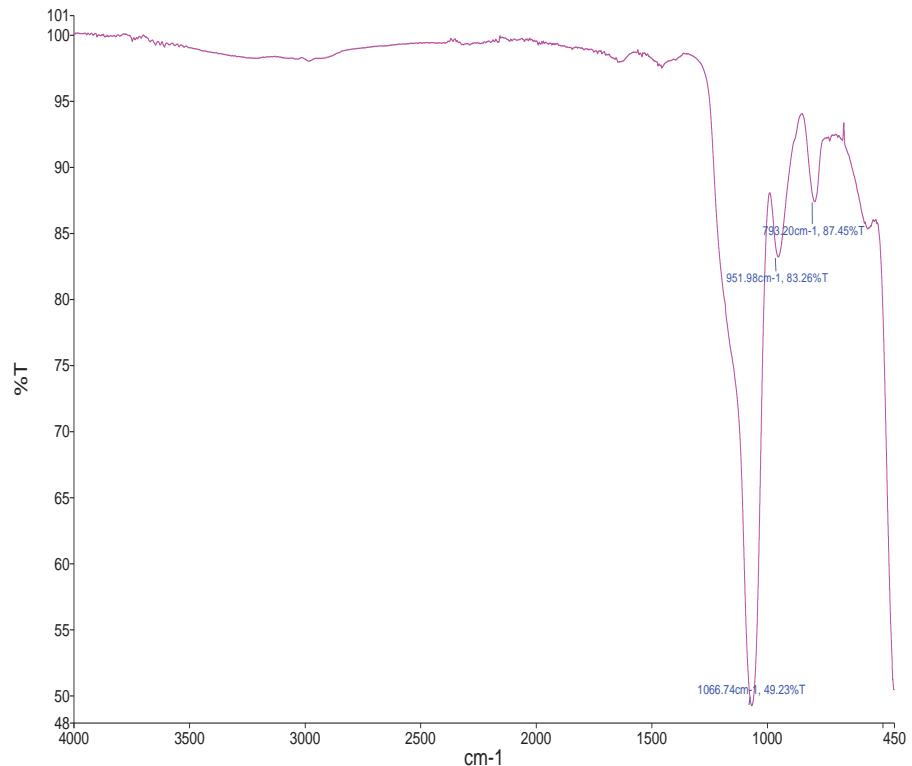


Şekil 4.6 (A) Sentezlediğimiz Lawson molekülünün FTIR spektrumu; yapı analiz sonucu (B) Literatür Datası olarak Lawson FTIR spektrumu (Hajar, vd., 2016)



Şekil 4.7: Lawson- P'nin FTIR yapı analiz sonucu

Sentezlediğimiz Lawson-P'nin FTIR spektrumunda ise C=O grubunun fosforillenmesi ve C=O grubunun C-O-P-OH'ye dönmesi nedeniyle OH grupları korunmuş, C=O piklerinin yerine 800-1200 cm⁻¹ arasında POH gerilme pikleri oluşmuş, aromatik yapının da korunduğu görülmüştür (Sun vd., 2015).



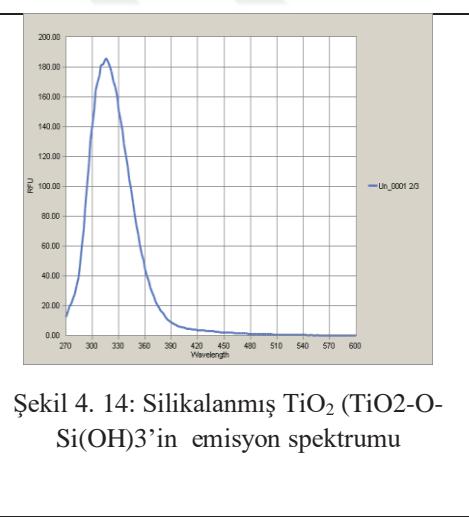
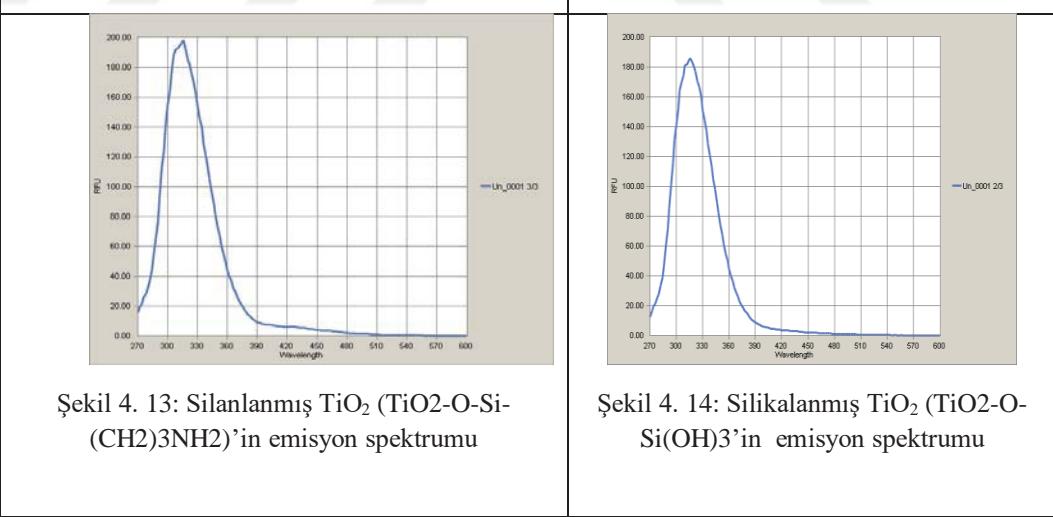
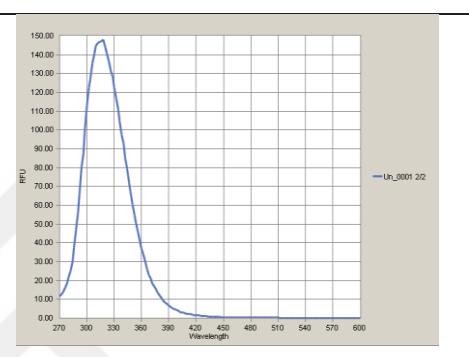
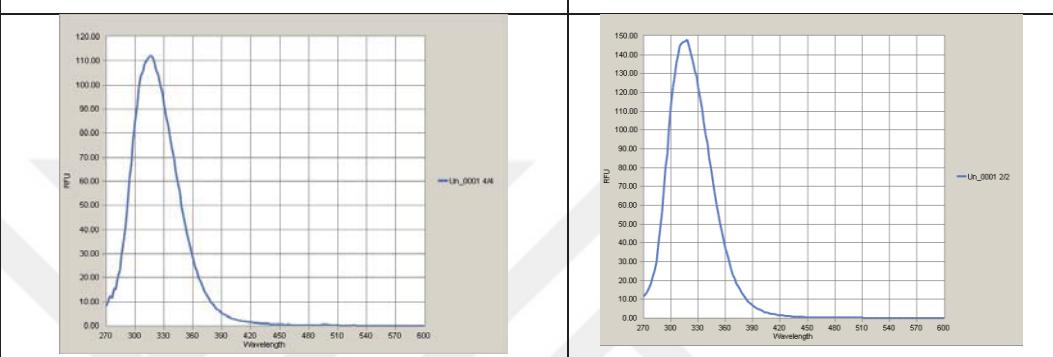
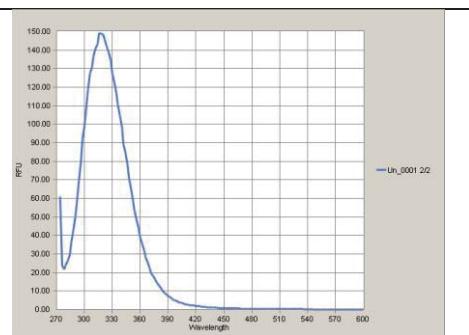
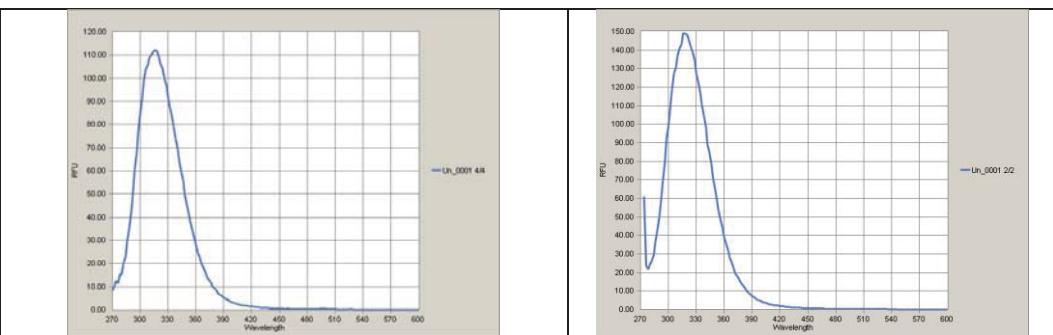
Şekil 4.8: LW-P-O-(Si(OH)₃) FTIR yapı analiz sonucu

Şekil 4.8 silikalanmış Lawson-P'nin FTIR spektrumunu göstermektedir. Yapıda baskın olan pikler silika konsantrasyonun daha yüksek olması nedeniyle 1066 cm^{-1} , 951 cm^{-1} ve 793 cm^{-1} 'de görülen silica nanoparçacıklarının (Si–O–Si) gerilmelerine alt olan piklerdir. Lawson-P' ye ilişkin yukarda açıklanan pikler silika nanoparçacıklarının daha yüksek konsantrasyonda ve daha baskın olması nedeniyle çok küçük pikler halinde görülmüştür (Antsiferova vd. 2013).

4.3 Sentezlenen Nanoparçacıkların Florimetrik Analiz Sonuçları

Şekil-4.9, şekil-4.10, şekil-4.11, şekil-4.12, şekil-4.13 250 nm uyarılma ve 318 nm emisyon dalgaboyunda görülen floresans emisyon spektrumlarını göstermektedir. Şekiller hazırlanan molekül ve nanokonjugatların UV bölgede floresans özelliğe sahip olduklarını göstermektedir.

TiO₂ nanoparçacıklarının boyuta bağlı floresans özellikleri bilinmektedir (Song vd., 2008). Bilinen floresans özellikleri nedeniyle TiO₂ nanoparçacıklarının çok disiplinli olarak zararlı atıkların giderilmesinden tıbbi uygulamalarına kadar çeşitli kullanım alanlarında uygulamaları incelenmiştir (Noman vd., 2019). Bu çalışmada ise sıvı sintilasyon sayımında lüminisansa katkısı olup olmayacağı araştırılmıştır. Ancak, TiO₂ nanoparçacıklarının da oluşturmaya çalıştığımız nanokonjugat, Lawson molekülü veya fosfatlı türevlerinin de sıvı sintilasyon sayım sisteminde uygulamalarına ilişkin literatürde rapor bulunmamaktadır.

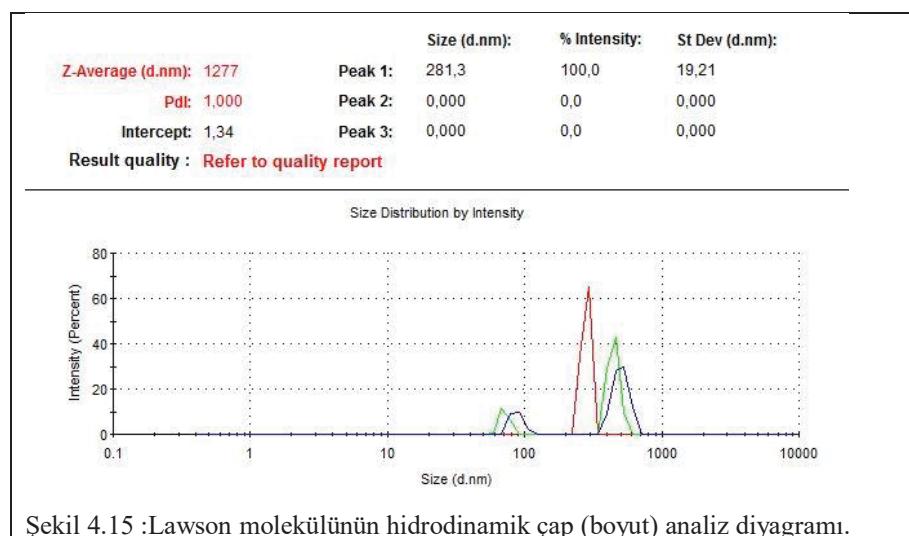


4. 4 Sentezlenen Lawson Molekülü Türevleri ve TiO₂ Nanoparçacıkların Hidrodinamik Çap ve Yüzey Özelliklerinin İncelenmesine İlişkin Sonuçlar

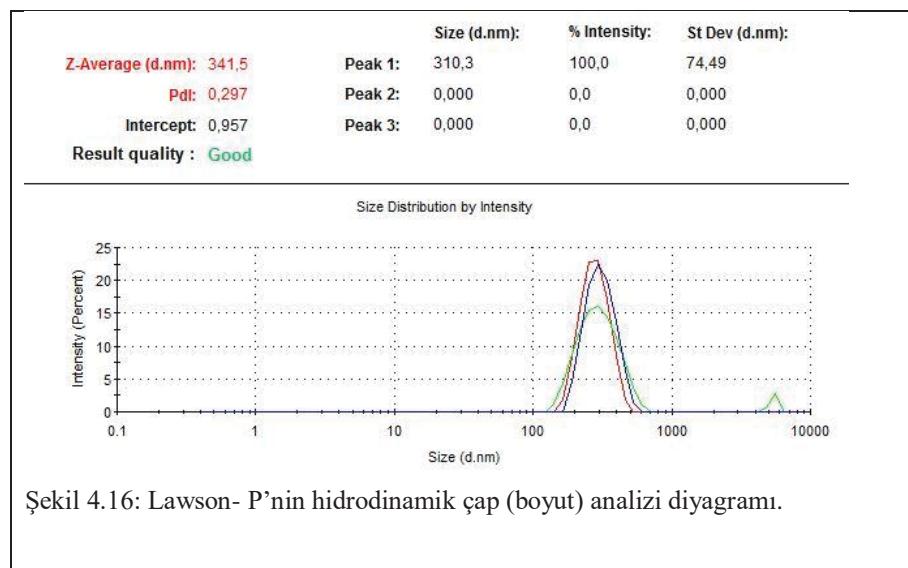
4.4.1 Sentezlenen Nanoparçacıkların Hidrodinamik Çap (boyut) ve Zeta Potansiyellerinin Sonuçları

Sentezlenen nanoparçacıkların boyutları Ege Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı'nda Malvern Nano-ZS DLS (Dynamic Light Scattering) cihazı analizi ile incelenmiştir. Şekil 4.15, Lawson molekülünün hidrodinamik çap (boyut) analiz diyagramını; şekil 4.16 Lawson-P'nin hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramını; şekil 4.17, Lawson-P-Si hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramını; şekil 4.18, TiO₂ nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramını; şekil 4.19, Silikanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramını; şekil 4.20, silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramını göstermektedir.

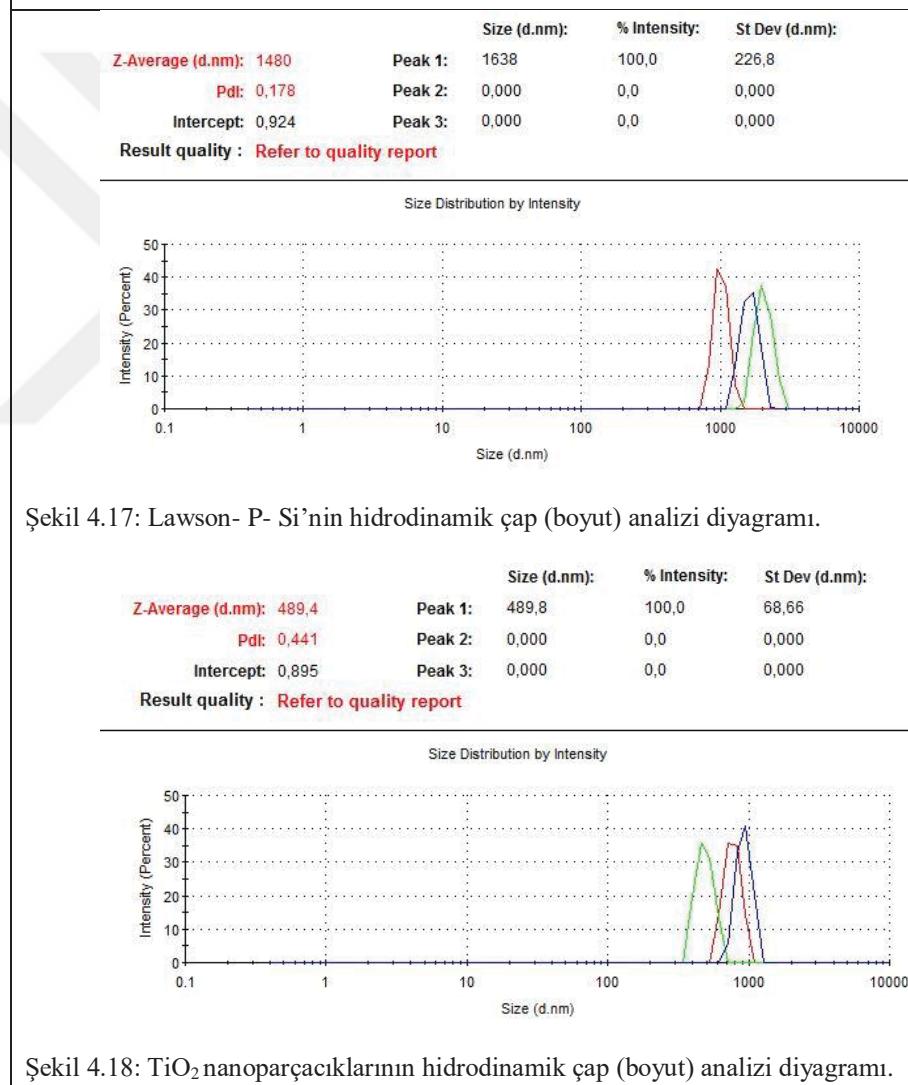
Malvern Nano-ZS cihazı ile bulunan çaplar parçacığın etrafındaki solvent molekülleri ile birlikte olduğundan hidrodinamik çapı vermektedir. Bu nedenle bulunan değerler SEM (Scanning Electron Mikroskop) değerlerinden daha büyük olmaktadır.



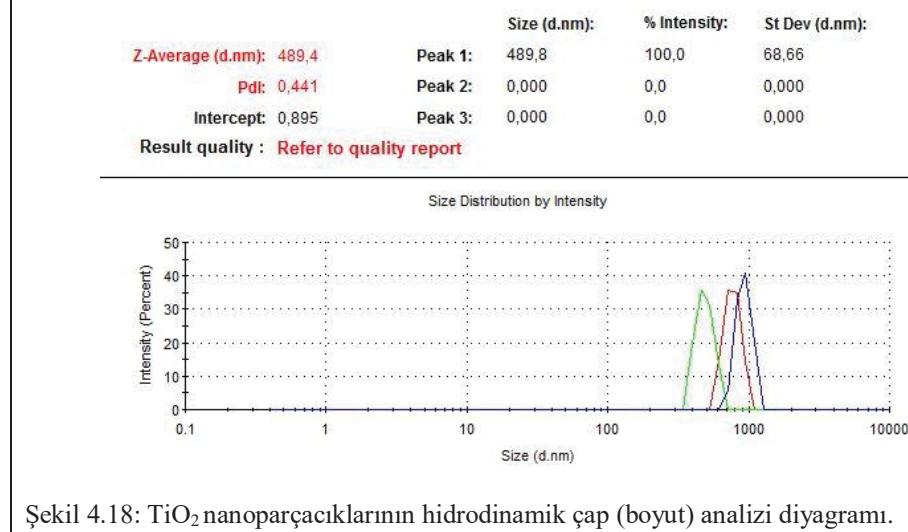
Şekil 4.15 :Lawson molekülünün hidrodinamik çap (boyut) analiz diyagramı.



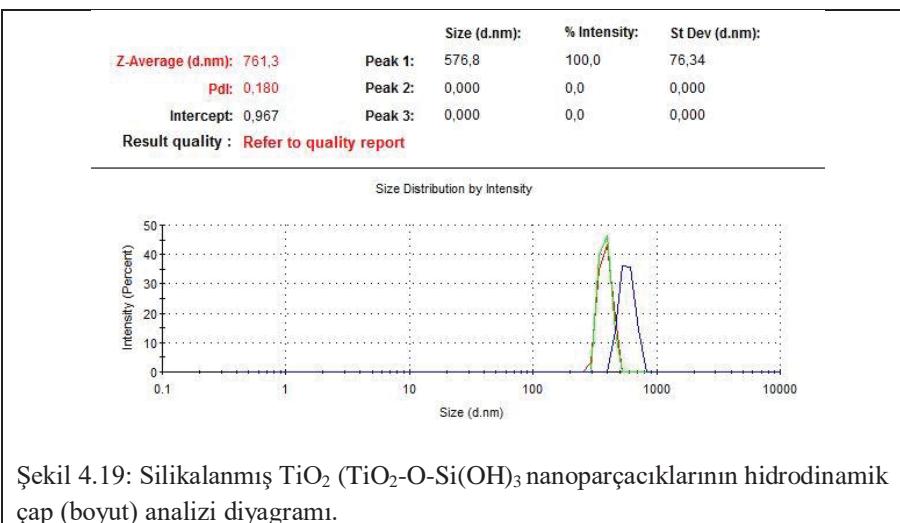
Şekil 4.16: Lawson- P'nin hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.



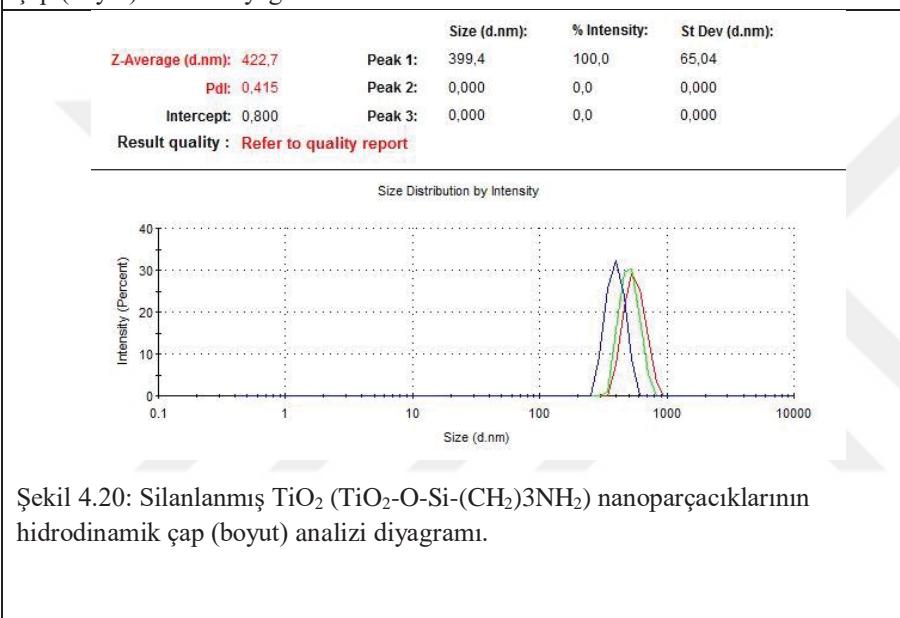
Şekil 4.17: Lawson- P- Si'nin hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.



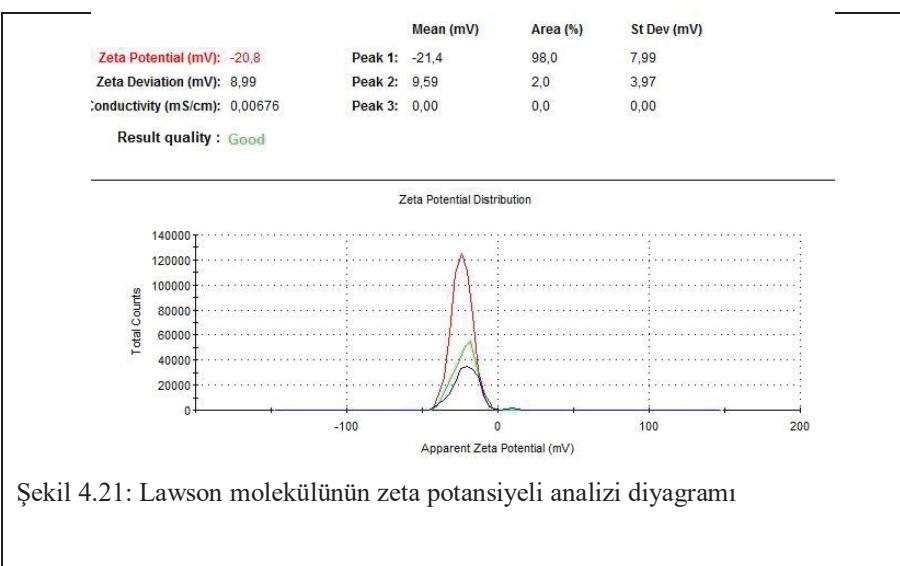
Şekil 4.18: TiO₂nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.



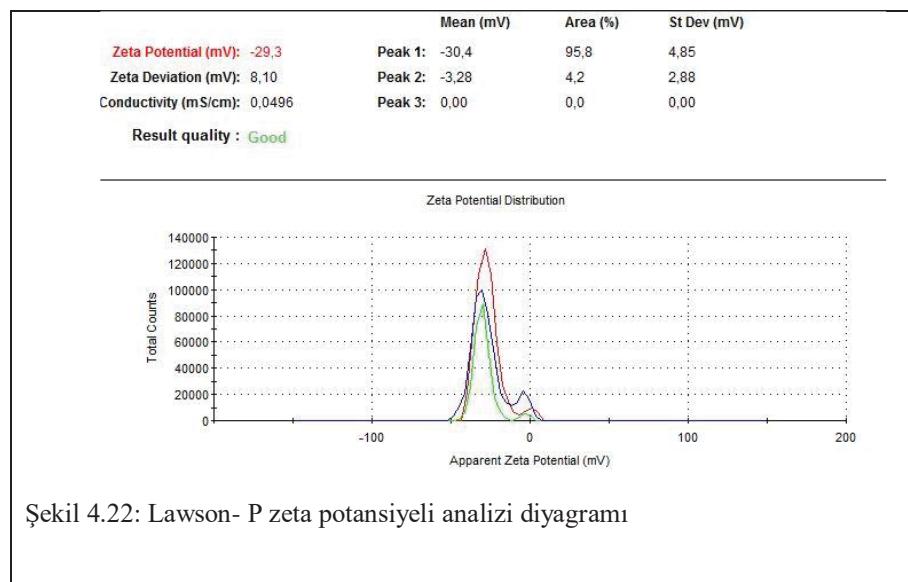
Şekil 4.19: Silikalanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$) nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.



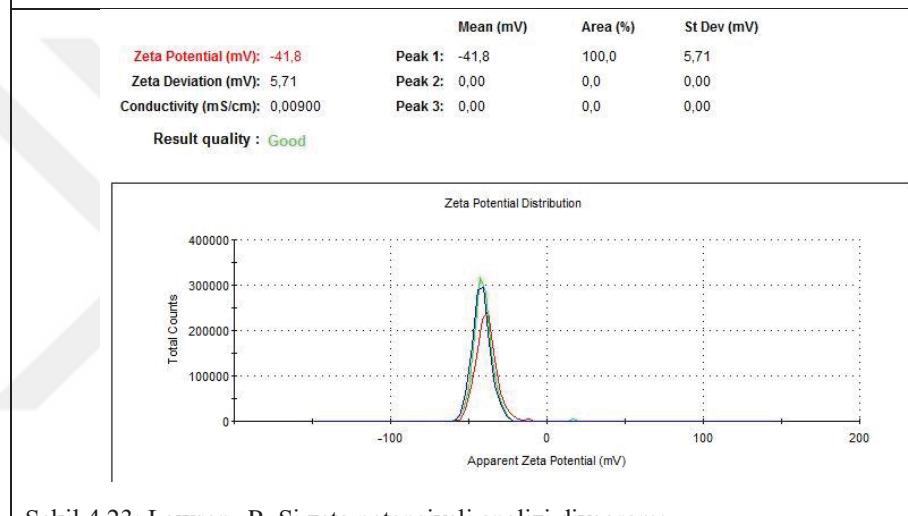
Şekil 4.20: Silanlanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si-(CH}_2\text{)}_3\text{NH}_2$) nanoparçacıklarının hidrodinamik çap (boyut) analizi diyagramı.



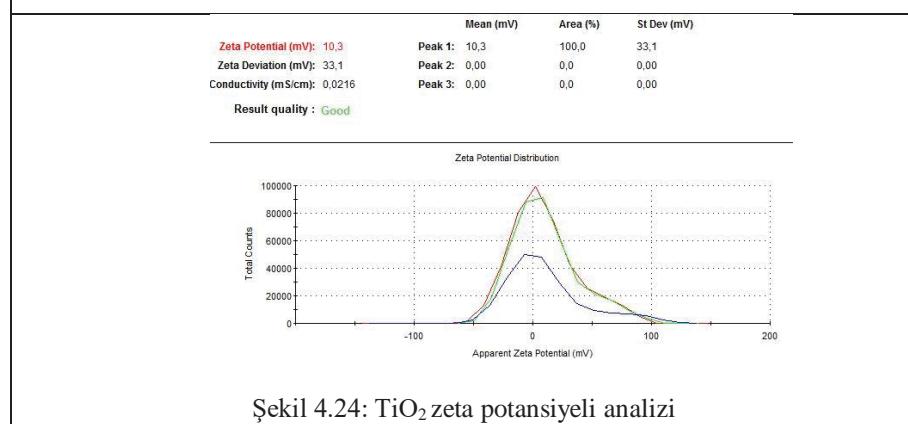
Şekil 4.21: Lawson molekülünün zeta potansiyeli analizi diyagramı



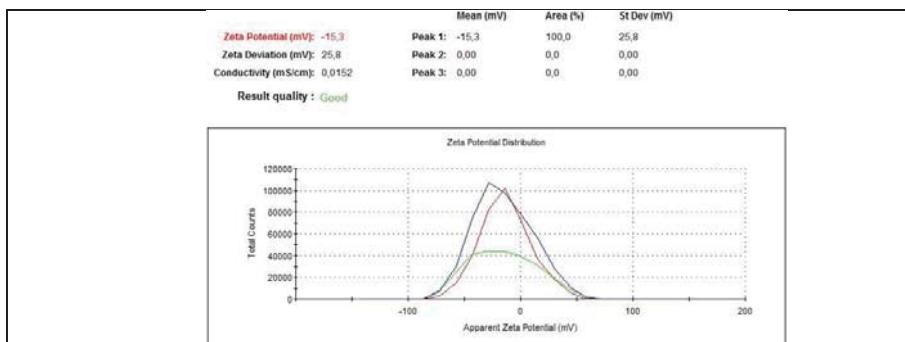
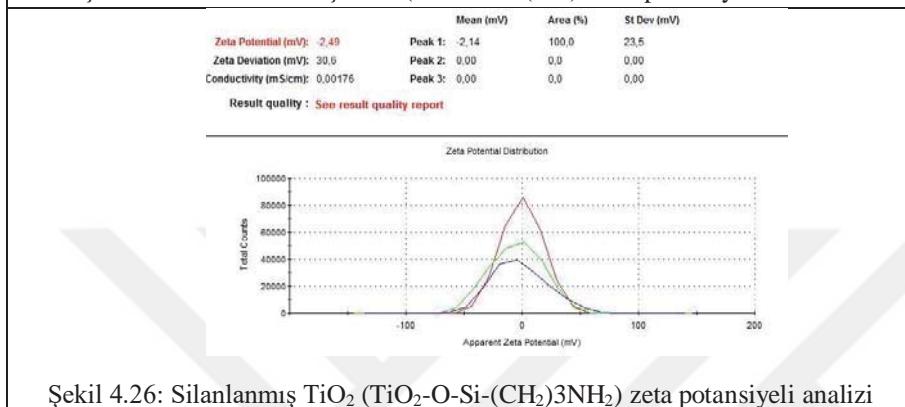
Şekil 4.22: Lawson- P zeta potansiyeli analizi diyagramı



Şekil 4.23: Lawson- P- Si zeta potansiyeli analizi diyagramı



Şekil 4.24: TiO₂ zeta potansiyeli analizi

Şekil 4.25: Silikalanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$) zeta potansiyeli analiziŞekil 4.26: Silanlanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si-(CH}_2\text{)}_3\text{NH}_2$) zeta potansiyeli analizi

Tablo 4. 2: Hidrodinamik çap- zeta potansiyeli n=3

	Hidrodinamik çap (nm) (n=3)	Zeta potansiyeli (mV) (n=3)
Lawson	281,3±19,2	-21,4±7,99
Lawson-P	310,0±74,5	-30,4±8,1
Lawson- P- Si	1638,0±226,8	-41,8±5,7
TiO_2	489,8±68,7	-10,3±33,1
Silikalanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$)	576,8±76,3	-15,3±25,8
Silanlanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si-(CH}_2\text{)}_3\text{NH}_2$)	399,4±65,0	-2,4±23,5

Fosforilleme reaksiyonu Lawson molekülünün hidrodinamik çapını ve zeta potansiyeli değerini bir miktar attırmış gibi görünülmektedir. Ancak silikalama reaksiyonu ile hem boyutta hem yükte ciddi bir artış görülmektedir. Benzer durum TiO_2 nanoparçacıklarında da görülmüştür. Silanlama reaksiyonunda silanın ucunda bulunan amin gruplarının pozitif yükü zeta potansiyel değerlerini düşürmüştür bu durumda hidrodinamik çap da düşmüştür (Brzicova vd., 2019).

Sıfırın üzerinde veya altında 10 ila 20 mV arasındaki zeta potansiyeli değerleri göreceli olarak nanoparçacığın bulunduğu ortamdaki kararlılığını göstermektedir (Patel and Agrawal, 2011). Bununla birlikte, van der Waals

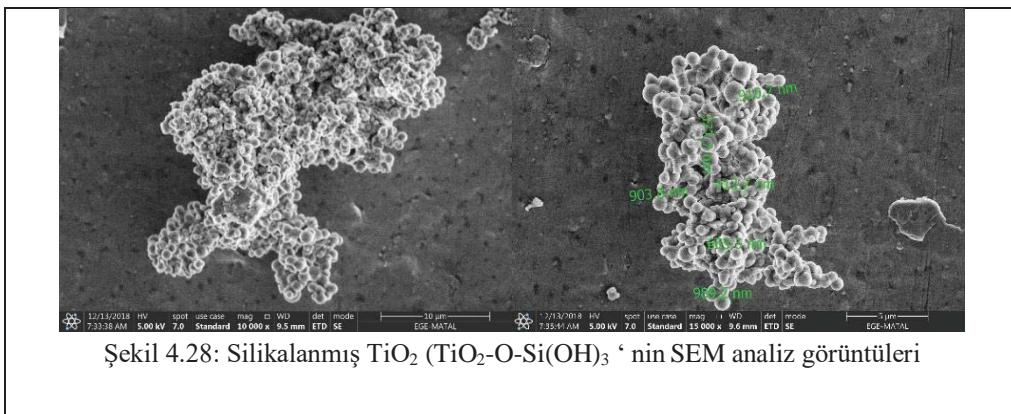
kuvvetleri de nanoparçacıkların bulundukları ortamda kararlılıklarını artırabilir (Bhattacharjee, 2016) ve hafif elektrostatik itme özelliğine sahip nanoparçacıklar (10 ila 15 mV arasında zeta potansiyeli) bir süspansiyonu kararlı tutmak için yeterli olabilir.

4. 5 SEM analiz sonuçları

Zeta potansiyel ölçümleri ile TiO_2 nanoparçacıklarının Limbach ve arkadaşlarının raporuna da uyumlu olarak kararlılık göstermesine rağmen, SEM görüntüleri, TiO_2 nanoparçacıklarında özellikle silikalardan sonra agregasyon oluşturduğunu göstermiştir. (Limbach et al., 2005). Lawson-P'de bu durum daha belirgindir. Lawson-P molekülleri silikalardan sonra hidrodinamik çap ve zeta potansiyel değerleri büyümüş ve aggregatlaşma görülmüştür. Zeta potansiyel değerleri ve hidrodinamik çaptaki büyümeyenin aggregatlaşmadan kaynaklandığı anlaşılmaktadır. TiO_2 nanoparçacıkları ile kendi sonuçlarımıza karşılaştırıbmemezse rağmen Lawson-P'nin ilk defa sentezlenmiş olması nedeniyle literatür dasası mevcut olmadığından sonuçların karşılaştırılması mümkün olmamıştır. Ancak benzer bir fosforillemeye reaksiyonu Enstitümüzde CuInP nanoparçacıklarla yapılmış ve fosforillemeye reaksiyonu diethyl stilbestrol üzerinden yürülmüştür (DES-CIP). Bu çalışmada oluşan nanoparçacıkların 50 nm civarında olduğu rapor edilmiştir. İlaveten nanoparçacıkların kararlı olduğu ve aggregatlaşmanın hem SEM görüntülerinde hem ve hidrodinamik çap ölçümleinde görülmemiği rapor edilmiştir (Moharrami vd., 2017).



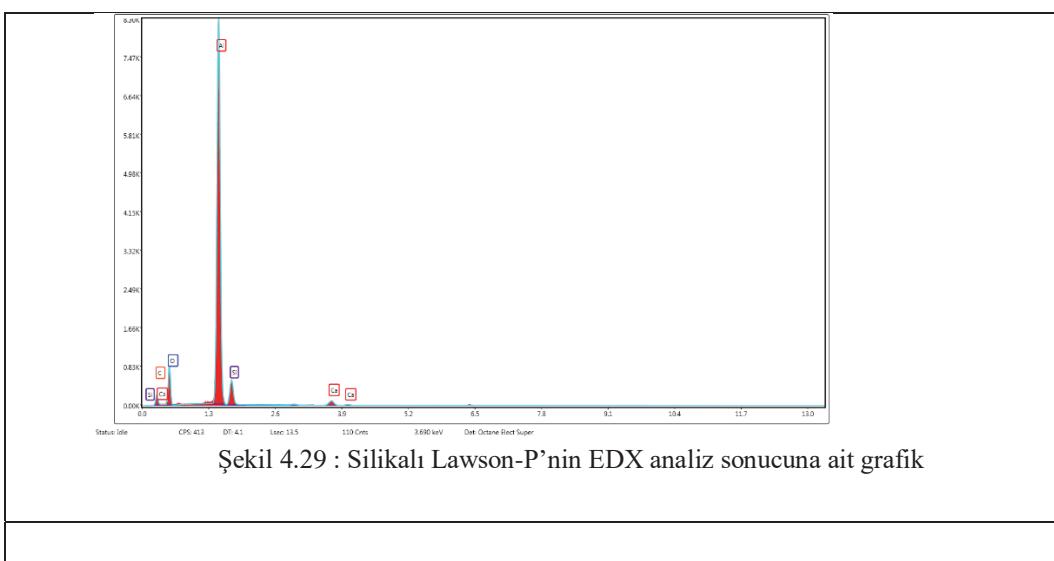
Şekil 4.27: Silikalı Lawson-P'nin SEM analiz görüntülerı



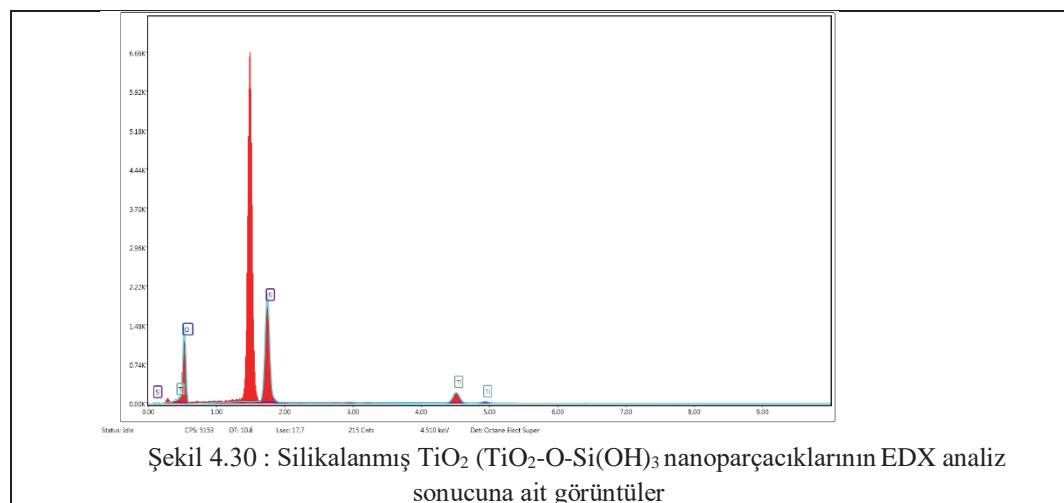
Şekil 4.28: Silikalanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$) ‘nin SEM analiz görüntüleri

Elementel analiz sonucunu veren EDX analiz silikalı Lawson-P (Şekil 4.29) ve silikalanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$ (Şekil 4.30) nanoparçacıkları için yaplılmıştır. EDX sonuçlarında görülen Al nanoparçacıkların SEM görüntüsü için Al foil üzerinde hazırlanmasından kaynaklanmaktadır. Bunun dışında Lawson-P için yapıda beklenen C, O ve Si pikleri görülmektedir. P piki peryotlar cetvelinde komşu iki element olan P ve Si’ ait değerlerin birbirine çok yakın olması nedeniyle görülememiştir. P için $K\alpha$ değeri 2.1455 keV iken Si için 1.8389 keV’dur (http://skuld.bmsc.washington.edu/scatter/AS_periodic.html).

Silikalanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$ nanoparçacıkların EDX analizleri örnek hazırlama koşullarından gelen Al safsızlık piki dışındaki Ti, Si ve O piklerini vermiştir.



Şekil 4.29 : Silikalı Lawson-P’nin EDX analiz sonucuna ait grafik



4.6 Sıvı Sintilasyon Sonuçları

4.6.1 I-131 ile Alınan Sıvı Sintilasyon Sayım Sonuçları

Tablo 4.3, Lawson, Lawson-P, Lawson-P-O(SiOH_3)_n, TiO_2 NP, silikanlanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$, silanlanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si-(CH}_2)_3\text{NH}_2$), ve ticari sıvı sintilasyon kokteyli ile alınan farklı aktivitelerdeki I-131'in sıvı sintilasyon sayım sonuçlarını karşılaştırmaktadır. Sonuçlar artan I-131 aktivitesi ile orantılı olarak her bir bileşen için farklı oranlarda artış olduğunu göstermektedir.

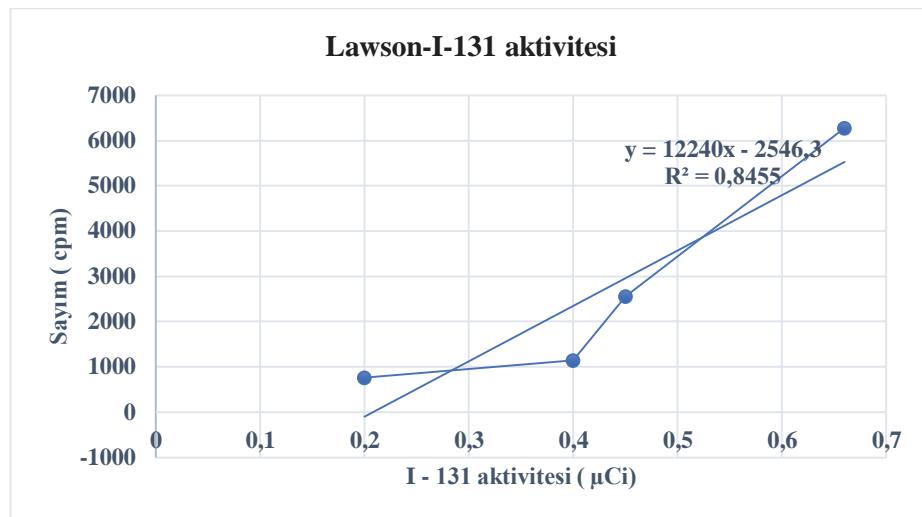
Tablo 4.3: Lawson, Lawson-P, Lawson-P-O(SiOH₃)_n, TiO₂ NP, Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃), silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) ve ticari sıvı sintilasyon kokteyli ile alınan farklı aktivitelerdeki I-131'in sıvı sintilasyon sayım sonuçları

I-131 aktivite si (μ Ci)	Lawson Sayım Sonucu (CPM)	Lawson-P Sayım Sonucu (CPM)	Lawson-P-Si Sayım Sonucu (CPM)	TiO ₂ Sayım Sonucu (CPM)	Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃) Sayım Sonucu (CPM)	Silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂) Sayım Sonucu (CPM)	Ticari Sintilasyon Kokteyli Sayım Sonucu (CPM)
0,66	6275,5	19245,5	19048,5	21651	20346,5	19135	817822
0,45	2562	10259,5	11518	17578	10775	10213,5	407698
0,40	1138,5	3556,5	5605,5	5478,5	7012	3252,5	167729
0,20	768,5	1381,5	2273	940,5	1693,5	4502,5	14150

Sentezlenen nanoparçacıkları ve türevlerinin sıvı sintilasyon sonuçlarında, Sayım sonucu- aktivite grafiklerinde yer alan

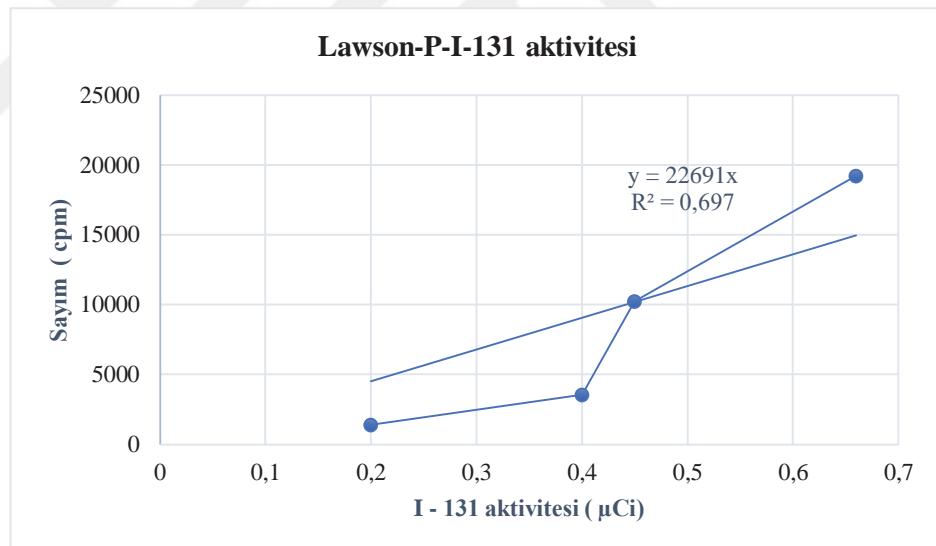
X (bağımsız değişken) bileşeni μ Ci biriminden aktivite değerlerini belirlerken,

Y (bağımlı değişken) bileşeni cpm (sayım/dakika) cinsinden sayım sonuçlarını vermektedir.



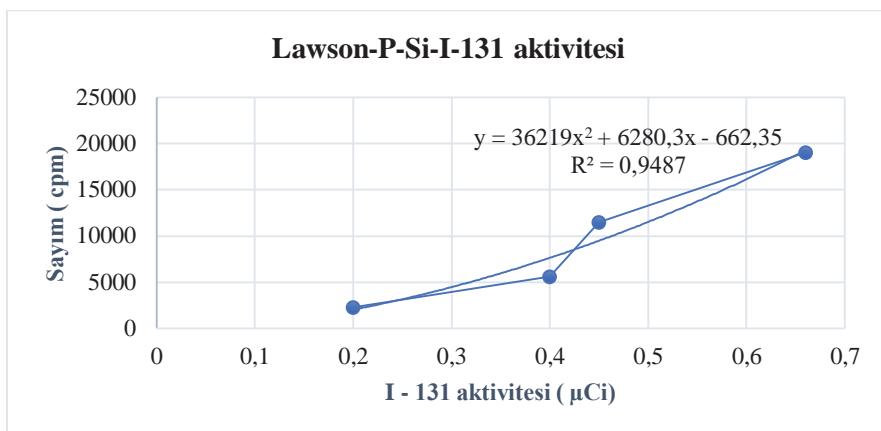
Şekil 4.31 : Lawson sayımları sonucu- I-131 aktivitesi

Lawson- I-131 aktivitesi grafiğinde, doğrusal bir denklem elde edilmiştir. Sayımların değişiklikleri aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,85 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %85 olarak kalibrasyon eğrisinde doğruluk anlamına gelmektedir.



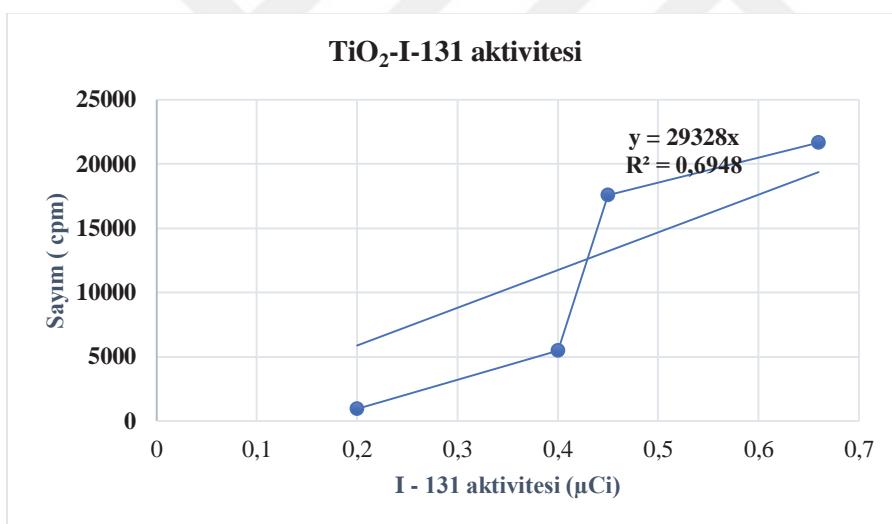
Şekil 4.32: Lawson-P sayımları sonucu – I-131 aktivitesi

Lawson – P’nin I-131 aktivitesi sayımları grafiğinde, artan aktivite ile doğrusal olarak artış gösteren lineer bir grafik elde edilmiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,70 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %70 ‘ lik doğruluk anlamına gelmektedir.



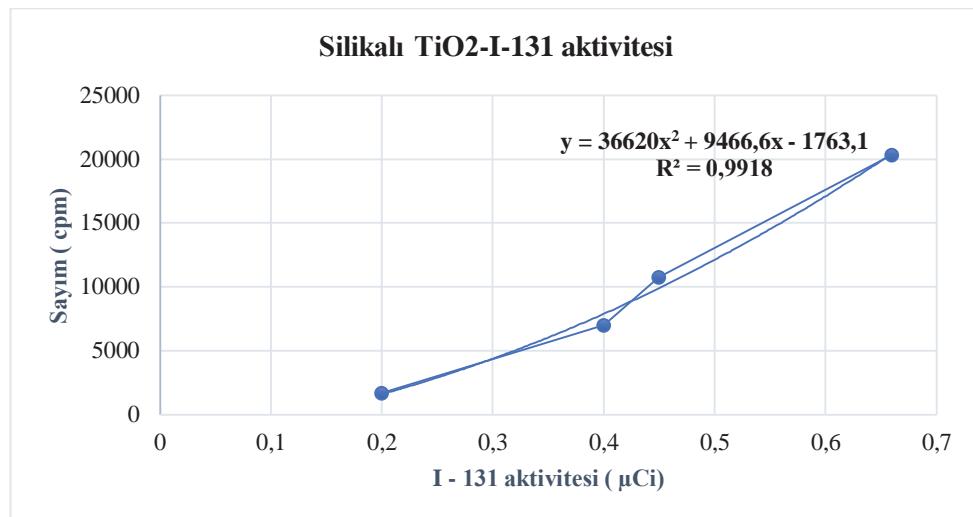
Şekil 4.33: Lawson-P-Si (LW-P-O-(Si(OH)₃) sayım sonucu- I-131 aktivitesi

Silikalanmış Lawson – P (Lawson-P-O(SiOH₃)_n)'nın sintilasyon sıvısı olarak kullanıldığı I-131 aktivitesi sayımları için kalibrasyon grafiği polinom olarak elde edilmiştir. R² değeri yaklaşık 0,95 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %95 ' lik doğruluk anlamına gelmektedir.



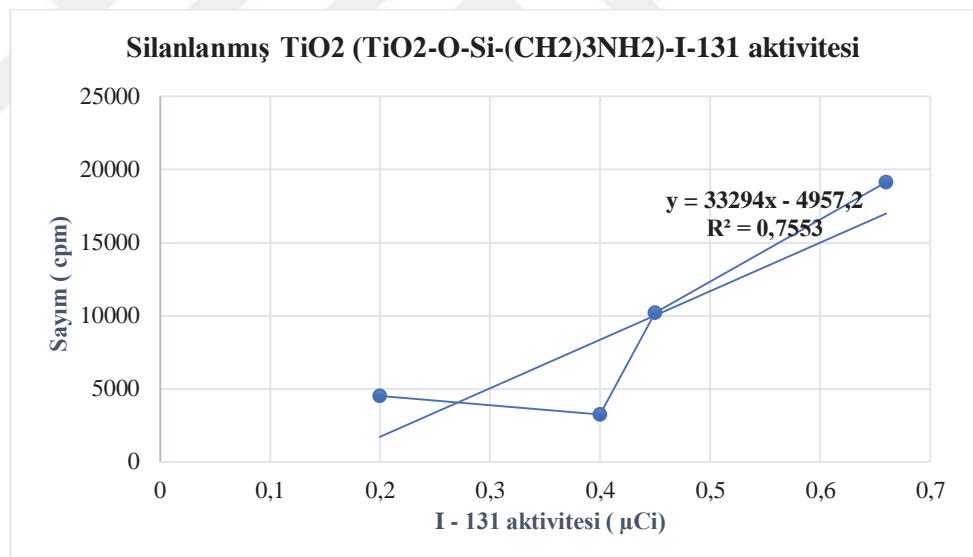
Şekil 4.34: TiO₂ sayım sonucu- I-131 aktivitesi

TiO₂ nanoparçacıklarının sintilasyon materyali olarak kullanıldığı I-131 sayım grafiğinde, doğrusal bir grafik elde edilmiştir. Ancak R² değeri 0,69 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %69 ' luk doğruluk anlamına gelmektedir.



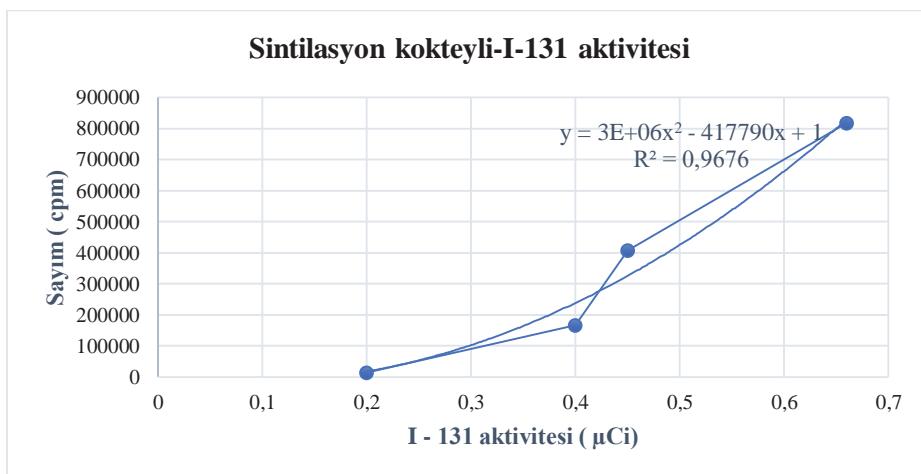
Şekil 4.35: Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) sayım sonucu- I-131 aktivitesi

Silikalanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) - I-131 aktivitesi grafiğinde kalibrasyon grafiği polinom olarak elde edilmiştir. R² değeri 0,99 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %99 ‘ luk doğruluk anlamına gelmektedir.



Şekil 4.36: Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) sayım sonucu- I-131 aktivitesi

Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂)-I-131 aktivitesi grafiğinde de doğrusal bir denklem elde edilmiştir. Sayım sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R² değeri yaklaşık 0,76 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %76 ‘ lik doğruluk anlamına gelmektedir.



Şekil 4.37: Sintilasyon kokteyi sayımlar sonucu- I-131 aktivitesi

Karşılaştırma için I-131 aktivitesi ticari olarak kullanılan sintilasyon sıvısı ile de sayılmıştır. Bu sayımlarda kullanılan ticari sintilasyon sıvısı diisopropylnaphthalene'den oluşmaktadır. Ticari sintilasyon kokteylinin kullanıldığı I-131 aktivitesi sayımlar grafiğinde, polinom elde edilmiştir. Sayımlar sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,97 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %97'lik doğruluk anlamına gelmektedir.

R^2 değeri 1'e yaklaşıkça istatistiksel açıdan yapılan çalışmanın geçerli olduğu söyleyebilir. Sonuçları bu açıdan karşılaştırırsak R^2 değeri 1'e en yakın olan kalibrasyon eğrisi silikanmış ($R^2 \approx 99$) olan TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$)'ne ve yine silikanmış olan ($R^2 \approx 95$) değeri silikanmış Lawson-P (Lawson-P- $\text{O}(\text{SiOH}_3)$)'ye aittir. Bu sonuçlara bakılarak silikanmanın sintilasyon sayımlarındaki doğruluğu arttırmada bir faydası olduğu söyleyebilir.

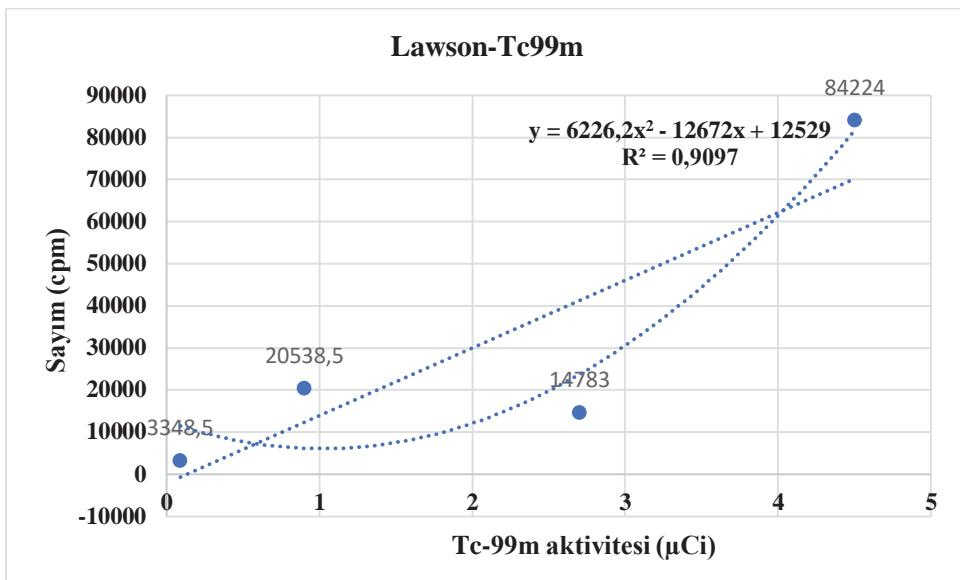
İlk defa bu çalışmada kullanıldığı için Lawson-P'nin sintilasyon sayımlarında kullanılabilirliği konusunda herhangi bir veri mevcut değildir. Sintilasyon özelliği bilinmesine ve atık gidermeden antibakteriyel özelliğe kadar pek çok çalışmada kullanılmasına rağmen TiO_2 nanoparçacıkları ile hazırlanmış olan nanokonjugatların da çevreci bir yaklaşımla bu amaçla kullanılabilirliğine dair bir rapor bulunamamıştır. Farklı bir yaklaşım olarak triethylphosphate'a Gadalyum (Gd) katkısı ile nötron ve nötrino ölçümünde kullanılabilirliği incelenmiştir (Lightfoot vd., 2004).

4.6.2 Tc-99m ile Alınan Sıvı Sintilasyon Sayım Sonuçları

Tablo 4.4 farklı aktivitelerdeki Tc-99m'in hazırladığımız nanokonjugatların sintilatör olarak kullanıldığı sıvı sintilasyon sonuçlarını ve diisopropylnaphthalene'dan oluşan ticari organik sintilatör ile karşılaşmasını göstermektedir. Artan Tc-99m'in aktivitesi ile orantılı olarak her bir bileşen için sayımların da arttığı görülmektedir. Ancak linearite açısından kalibrasyon eğrileri farklı regresyon katsayıları vermiştir. Şekil 4.45'den şekil 4.51'e kadar olan grafikler Tc-99m aktivitesine karşı farklı bileşenlerin sintilatör olarak kullanıldığı sayım grafiklerini vermektedir.

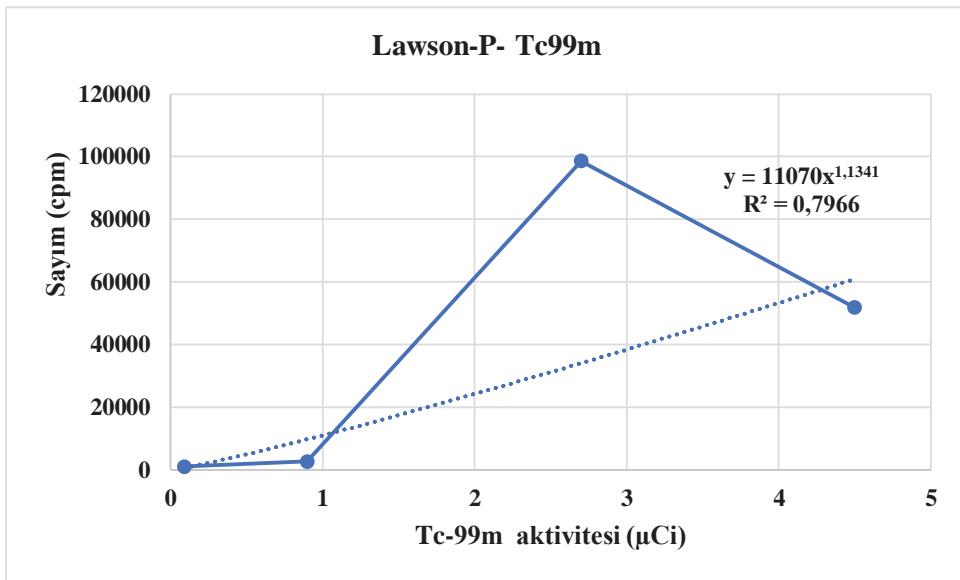
Tablo 4.4 : Sentezlenen nanoparçacıklar ve türevlerinin Tc-99m kullanılarak elde edilen sıvı sintilasyon sayım sonuçları

Tc-99m Aktivitesi (μCi)	Lawson Sayım Sonucusu (CPM)	Lawson-P Sayım Sonucusu (CPM)	Lawson-P-Si Sayım Sonucusu (CPM)	TiO ₂ Sayım Sonucusu (CPM)	Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃) Sayım Sonucusu (CPM)	Silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂) Sayım Sonucusu (CPM)	Ticari Sintilasyon Kokteyli Sayım Sonucusu (CPM)
4,5	84224	51850,5	25837	19693,5	12784	36236	Sature
2,7	14783	98614	29496,5	25047	28027,5	8644,5	6397599
0,9	20538,5	2699	7926,5	9170	2145	44952,5	1954360
0,09	3348,5	1068,5	1936,5	3548	122224,5	1378,5	276623



Şekil 4.38: Lawson molekülünün sintilatör olarak kullanıldığı Tc-99m sayıı grafi

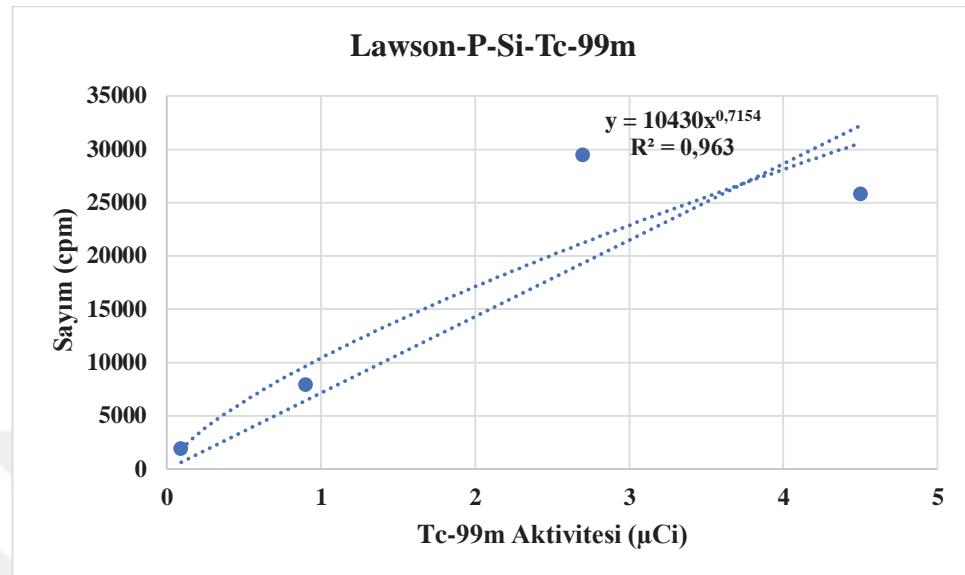
Şekil 4.38'de gösterilen Lawson molekülünün sintilatör olarak kullanıldığı Tc-99m sayıı grafiinde, kalibrasyon eğrisi polinom olarak elde edilmişdir. Sayıı sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,91 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %91 'lik doğruluk anlamına gelmektedir.



Şekil 4.39: Lawson- P sayıı sonucu- Tc-99m aktivitesi

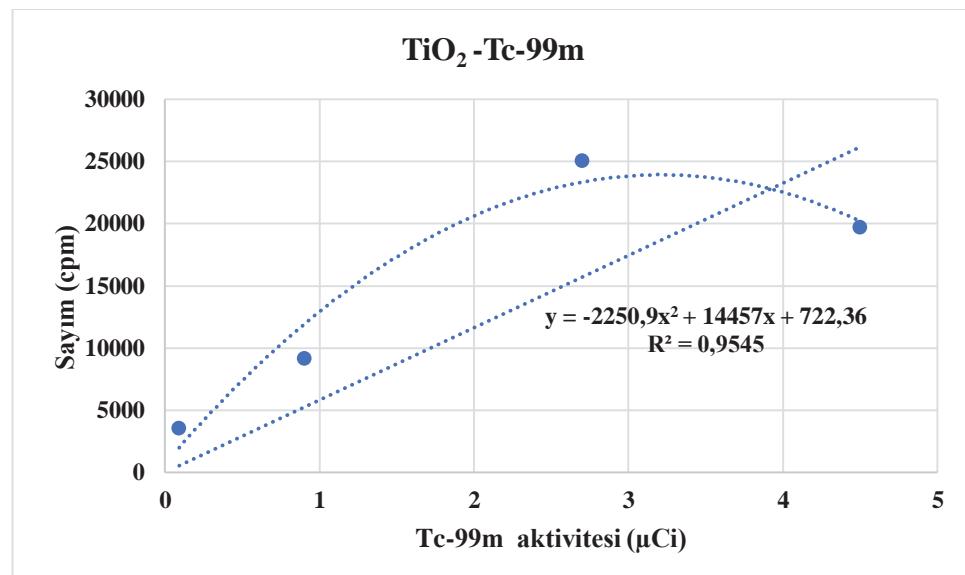
Şekil 4.39'da gösterilen fosforilenmiş Lawson molekülünün (Lawson -P) sintilatör olarak kullanıldığı Tc-99m'in sayıı grafiinde, eksponansiyel bir

denklem elde edilmiştir. R^2 değeri yaklaşık olarak 0,80 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %80 ‘lik doğruluk anlamına gelmektedir.



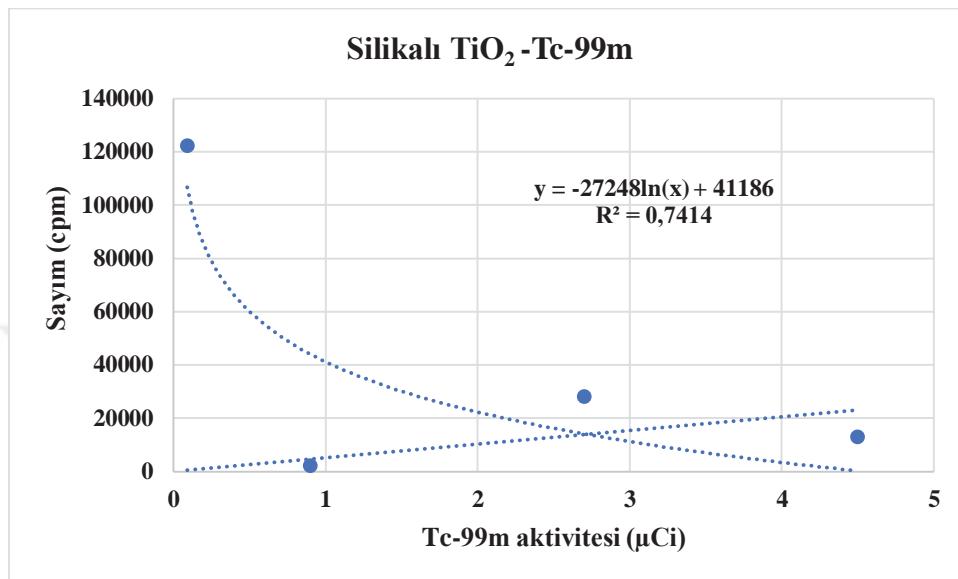
Şekil 4.40: Lawson- P- Si (LW-P-O-(Si(OH)₃) sayım sonucu-Tc-99m aktivitesi

Şekil 4.40’da gösterilen Lawson-P-Si’ün(LW-P-O-(Si(OH)₃) sintilatör olarak kullanıldığı Tc99m sayım grafiğinde de ekponensiyel bir denklem elde edilmiştir. Sayım sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,96 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %96 ‘lik doğruluk anlamına gelmektedir.



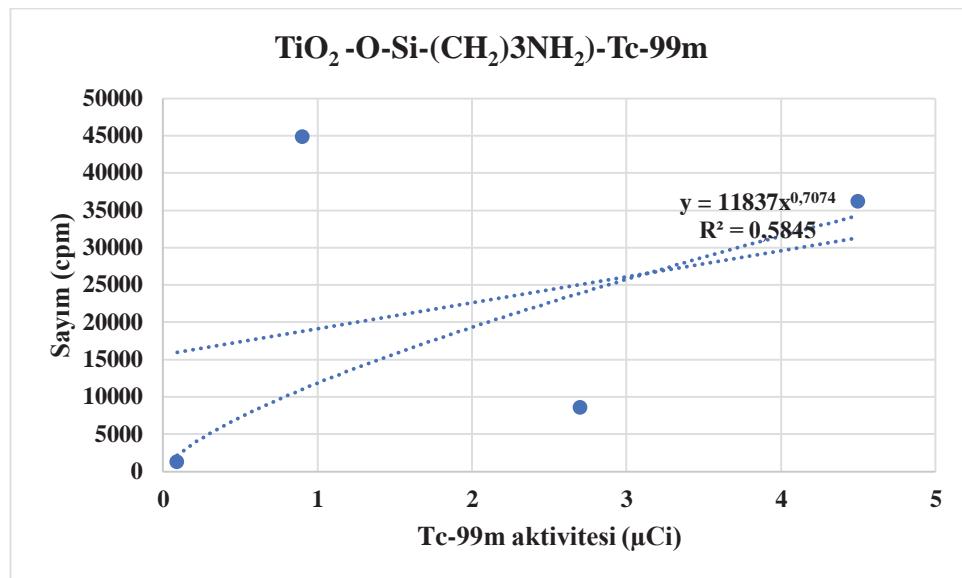
Şekil 4.41 : TiO₂ sayım sonucu- Tc-99m aktivitesi

Şekil 4.41'de gösterilen TiO_2 nanoparçacıklarının sintilatör olarak kullanıldığı Tc-99m sayım grafiğinde artan aktivite ile sayımlar artmaktadır. Kalibrasyon grafiği polinom şeklinde elde edilmiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,95 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %95'lik doğruluk anlamına gelmektedir.



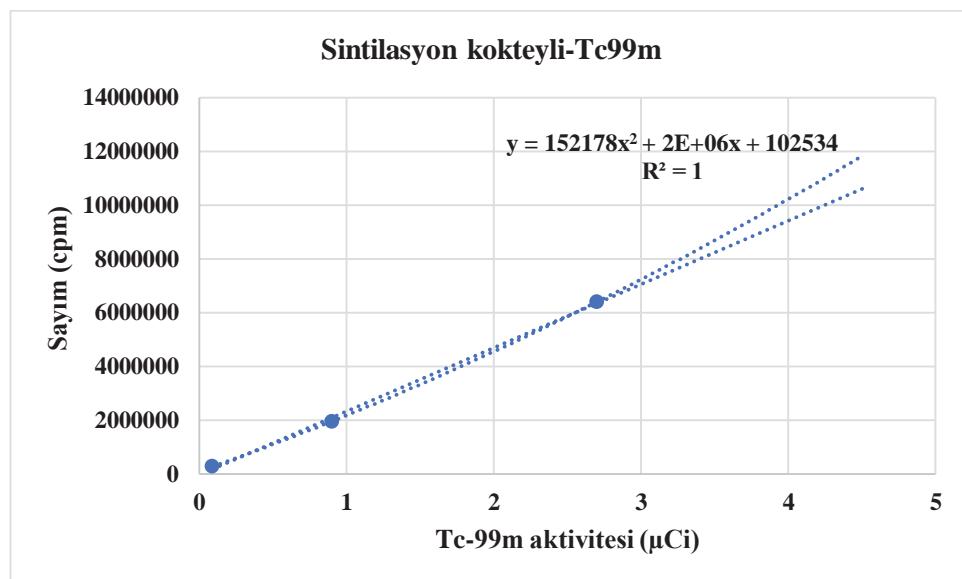
Şekil 4.42: Silikanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$)'un sintilatör olarak kullanıldığı Tc-99m sayım grafiği

Şekil 4.42'de verilen silikanmış TiO_2 ($\text{TiO}_2\text{-O-Si(OH)}_3$ - Tc-99m sayım grafiğinde üstel bir denklem elde edilmiştir. Sayım sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,74 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %74'lük doğruluk anlamına gelmektedir. Kalan %26'lık kısmı için başka değişkenlere ihtiyaç duyulduğu anlaşılmaktadır.



Şekil 4.43: Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂)'un sintilatör olarak kullanıldığı Tc-99m sayımları sonucu

Şekil 4.43'de gösterilen silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂)'un sintilatör olarak kullanıldığı Tc-99m sayımları grafiğinde, üstel bir denklem elde edilmiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,58 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %58 'lik doğruluk anlamına gelmektedir.



Şekil 4.44: Sintilasyon kokteyli sayımları sonucu- Tc-99m aktivitesi

Karşılaştırma için kullandığımız diisopropylnaphthalene içeren ticari sintilasyon kokteyli ile alınan Tc99-m sayımları grafiğinde de kalibrasyon eğrisi olarak bir polinom elde edilmiştir. R^2 değeri 1 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %100 'lük doğruluk anlamına gelmektedir.

Ticari olarak kullanılan sıvı sintilasyon ajanları 1- ve 2-methylnaphthalene, phenylxylylethane (fp120C), methylnaphthalene (fp 82C), hydroxytoluene (fp 93C) ve diisopropynaphthalene (fp 150 °C)'dir. Ticari sıvı sintilatörler bazı sıvı sintilatör tabanları ile karışabilirliği iyi olsa da, düşük kaynama noktasına sahip olmaları yanıcı özelliklerini arttırmır. İlaveten yüksek toksik özellik göstermeleri nedeniyle çevre için önemli bir toksik atık problemi oluştururlar. Lipofil özellikleri nedeniyle suda çözünürlükleri de iyi değildir (Lightfoot et al., 2004). Bu nedenle bu çalışmada çevre için daha az atık problemi oluşturan, daha az toksik olan ve daha kararlı, suda çözünür sintilatörlerin hazırlanmasına odaklanılmış ve sonuçlar ticari olarak sıvı sintilasyon sayımlarında kullandığımız diisopropynaphthalene ile karşılaştırılmıştır.

Bu çalışmada kullandığımız Lawson molekülü ise kına bitkisindeki (Lawsonia inermis) ana bileşik olan 2-hidroksi-1,4 naftakinon ($C_{10}H_6O_3$)'dur. Türe ismini veren bu bileşik bitkinin en çok yapraklarında mevcuttur. Saf hali turuncu renkte ve hidrofiliktir. Yapılan çalışmalar lawsone bileşığının, HbSS anemi hücrelerini inhibe ettiğini, kan oksijen affinitesini artttırdığını, tripsin enzimi inhibitör etkisi yarattığını, antikoagulant ve antioksidan etkilere sahip olduğunu, bakteriostatik ve bakterisidal aktivitesinin bulunduğu göstermiştir (Kumar et al., 1985; Endrini et al. 2007; Yogisha et al., 2002; Sultana et al., 2009; Sujit et al., 2011, Tekin vd 2014).

Hem silikalı Lawson türevlerinin hem silikalı TiO_2 nanoparçacıklarının uçucu, yanıcı, patlayıcı özellikler göstergememesi nedeniyle de ticari sintilatörlere göre daha güvenli oldukları söylenebilir.

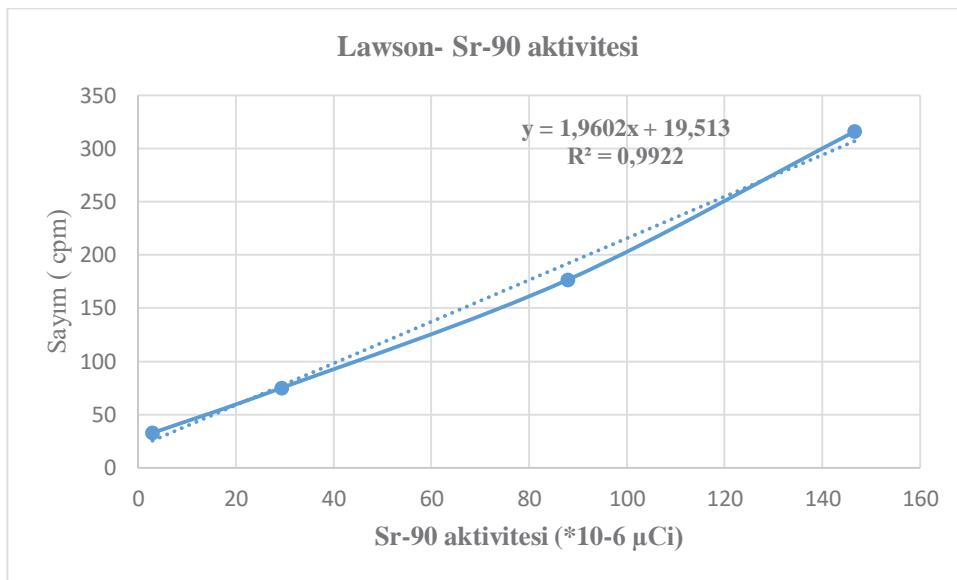
TiO_2 nanoparçacıklarının ise toksik özellikleri ile ilgili çok sayıda rapor olmasına rağmen bu çalışmada çözelti içinde ve kimyasal olarak kullanıldıkları için sintilatör olarak güvenli olduklarını söyleyebiliriz. İlaveten TiO_2 nanoparçacıkların canlı hücresi üzerindeki toksisitelerinin nanoparçacığın boyutuna bağlı olduğu ve kristal büyülüğu ile doğrusal olmayan bir ilişki olduğu gösterilmiştir. 20 ila 60 nm arasındaki büyülükteki parçacıklar daha toksik iken, daha küçük ve daha büyük olanların sitotoksitesi düşük olduğu rapor edilmiştir (Brzicova et al., 2019). Bizim çalışmamızda silikalardan sonra daha büyük nanoparçacıklar elde ettiğimizden hazırladığımız sistemden düşük sitotoksite beklediğimizi söyleyebiliriz.

4.6.3 Sr-90 ile Alınan Sıvı Sintilasyon Sayım Sonuçları

Tablo 4.5 farklı aktivitelerdeki Sr - 90'ın hazırladığımız nanokonjugatların sintilatör olarak kullanıldığı sıvı sintilasyon sonuçlarını ve diisopropylnaphthalene'dan oluşan ticari organik sintilatör ile karşılaştırılmasını göstermektedir. Artan Sr-90 'ın aktivitesi ile orantılı olarak herbir bileşen için sayımların da arttığı görülmektedir. Ancak lineerite açısından kalibrasyon eğrileri farklı regresyon katsayıları vermiştir. Şekil 4.45'den şekil 4.51'e kadar olan grafikler Sr - 90 aktivitesine karşı farklı bileşenlerin sintilatör olarak kullanıldığı sayım grafiklerini vermektedir. Sr – 90 ile 3 farklı sayım alımı olup, sayım sonuçları Tablo 4.5 'dedir.

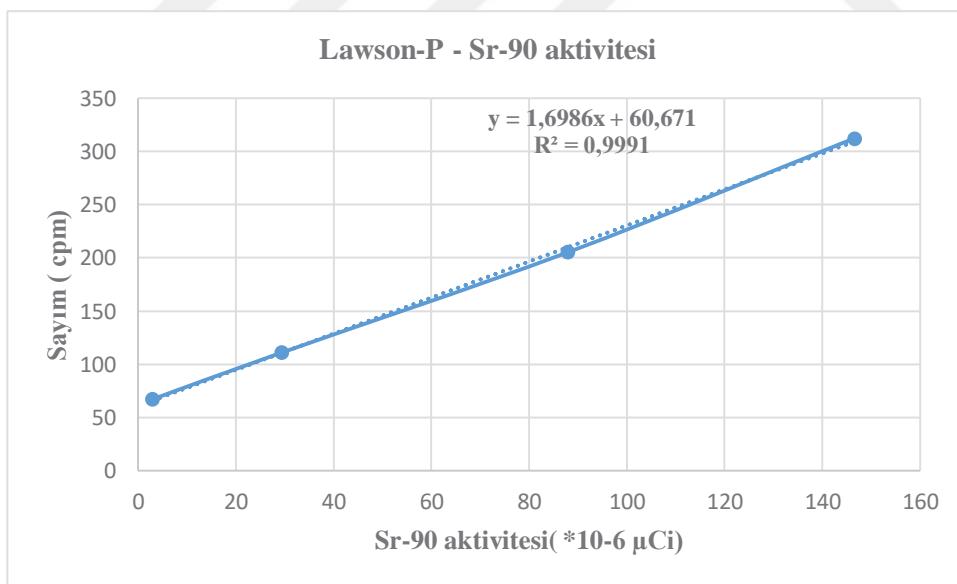
Tablo 4.5 : Sentezlenen nanoparçacıklar ve türevlerinin Sr – 90 kullanılarak elde edilen sıvı sintilasyon sayım sonuçları

Sr – 90 Aktivitesi (*10 ⁻⁶ µCi)	Lawson Sayım Sonucu (CPM) (n = 3)	Lawson -P Sayım Sonucu (CPM) (n = 3)	Lawson -P-Si Sayım Sonucu (CPM) (n = 3)	TiO ₂ Sayım Sonucu (CPM) (n = 3)	Silikalanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si(OH) ₃) Sayım Sonucu (CPM) (n = 3)	Silanlanmış TiO ₂ (TiO ₂ -O-Si-(CH ₂) ₃ NH ₂) Sayım Sonucu (CPM) (n = 3)	Ticari Sintilasyon Kokteyli Sayım Sonucu (CPM) (n = 3)
146,6	316,1±36 .5	312,4±16 .3	323,8±10 .4	316,6±6	237,2±14.2	304,8±4.7	910,1±99.4
88	177±5.6	205,4±14 .7	197,9±0.8	199,4±4 .8	157,9±6.7	198,8±1.8	553,4±31.3
29,4	75,3±0.9	111,1±2.5	112,3±1.4	35,3±1.4	60,2±7	83,9±3.9	179,5±6.4
2,94	32,9±0.7	67,2±1.9	66,9±2.2	61±1.3	54,2±3.2	79,8±4.1	131,1±6.2



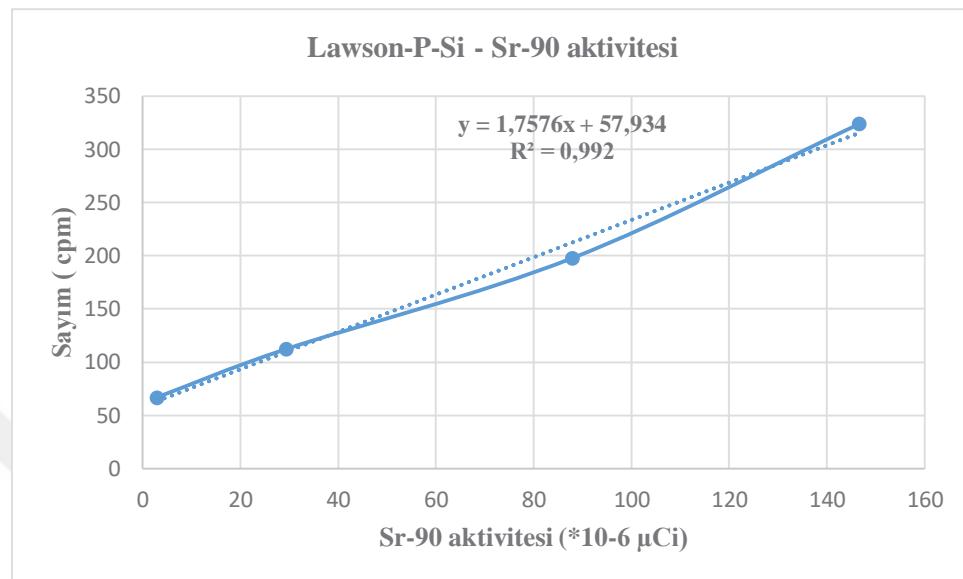
Şekil 4.45 : Lawson sayım sonucu – Sr – 90 aktivitesi

Lawson – Sr - 90 aktivitesi grafiğinde, doğrusal bir denklem elde edilmiştir. Sayım sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,99 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan % 99 ‘ luk doğruluk anlamına gelmektedir.



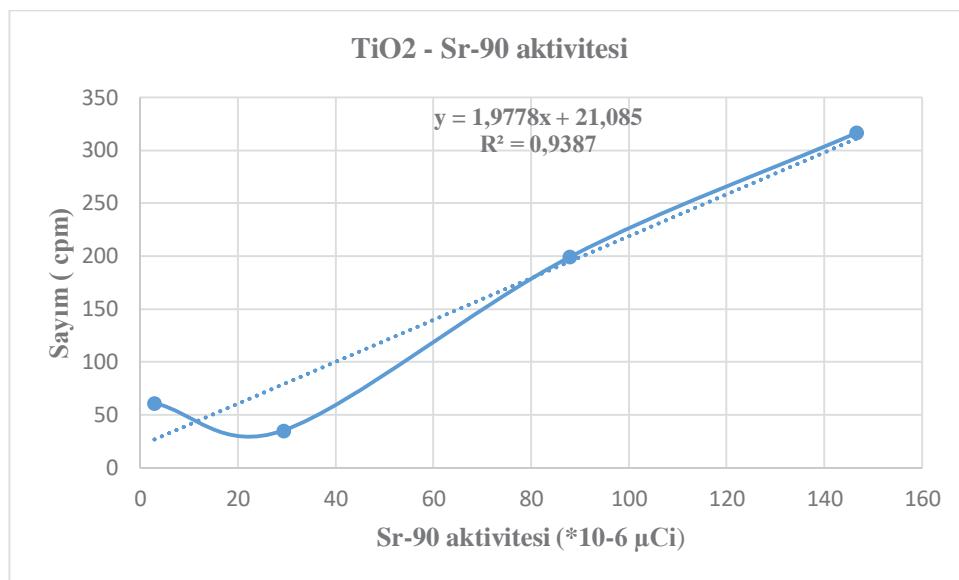
Şekil 4.46: Lawson-P sayım sonucu - Sr – 90 aktivitesi

Lawson - P'nin – Sr - 90 aktivitesi sayım grafiğinde, artan aktivite ile doğrusal olarak artış gösteren lineer bir grafik elde edilmiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,99 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %99 ' luk doğruluk anlamına gelmektedir.



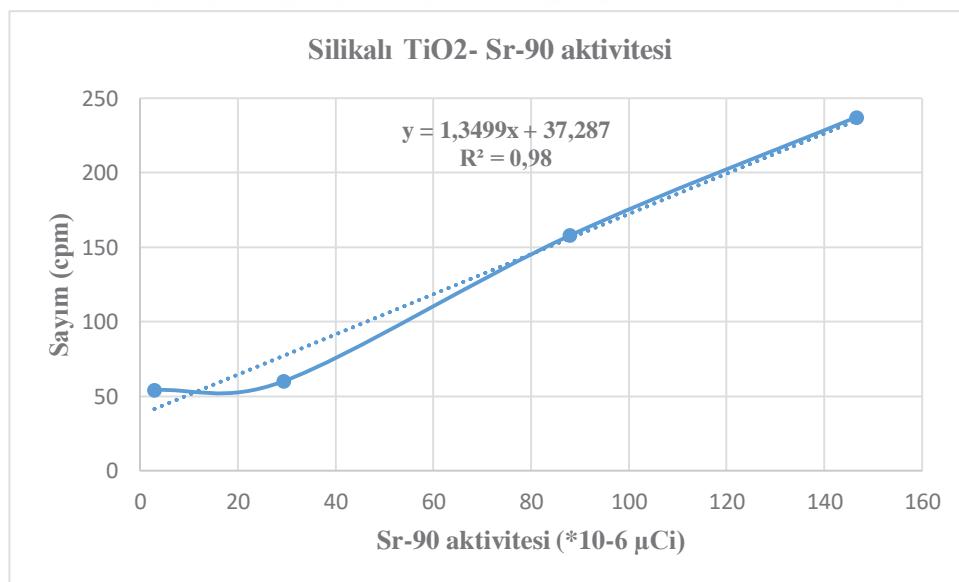
Şekil 4.47: Lawson-P-Si (LW-P-O-(Si(OH)₃)_n) sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi

Silikalanmış Lawson – P (Lawson-P-O(SiOH₃)_n)'nin sintilasyon sıvısı olarak kullanıldığı Sr - 90 aktivitesi sayımları için kalibrasyon grafiği doğrusal olarak elde edilmiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,99 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %99 ' luk doğruluk anlamına gelmektedir.



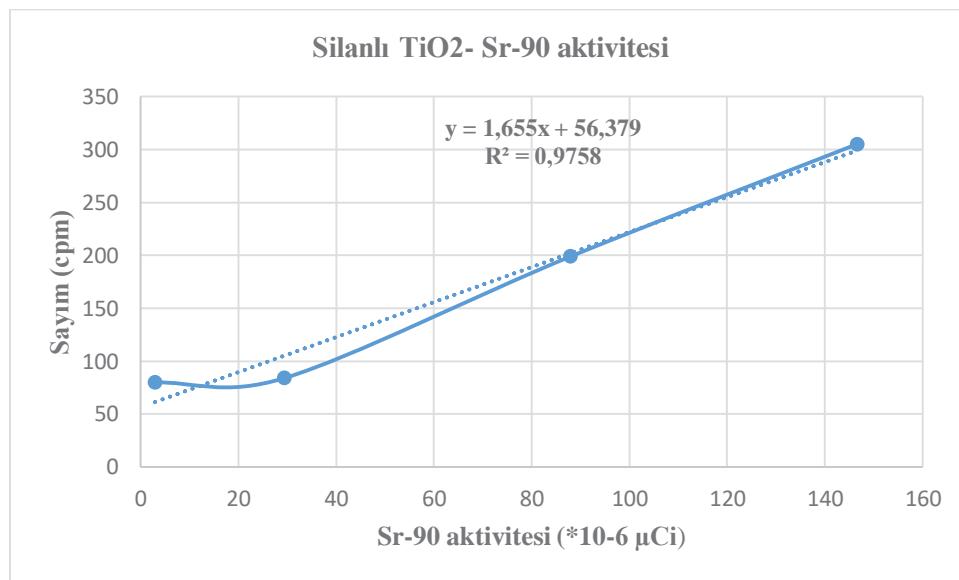
Şekil 4.48: TiO₂ sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi

TiO₂ nanoparçacıklarının sintilasyon materyali olarak kullanıldığı Sr - 90 sayım grafiğinde, doğrusal bir grafik elde edilmiştir. R² değeri yaklaşık olarak 0,94 bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %94 ‘ lük doğruluk anlamına gelmektedir.



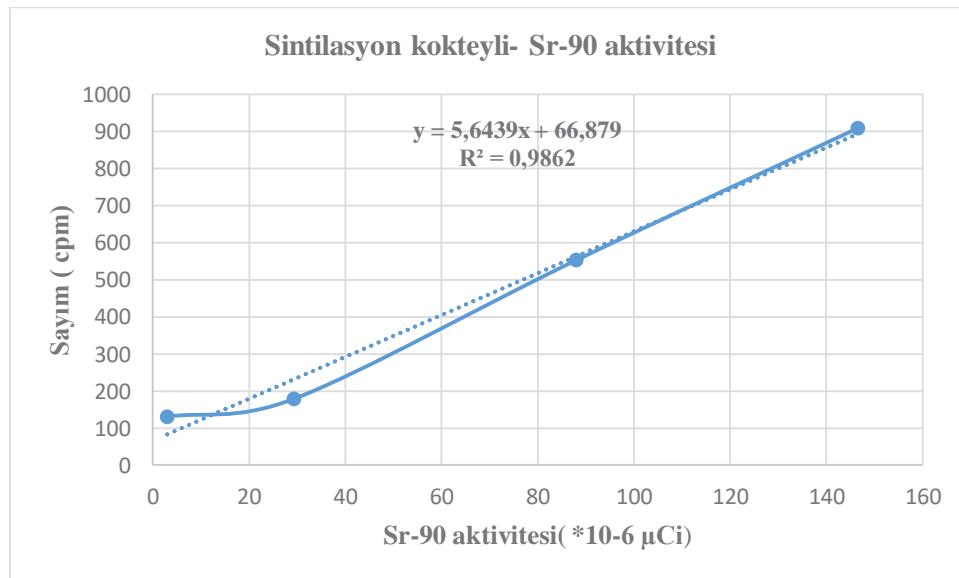
Şekil 4.49 : Silikanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃) sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi

Silikanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si(OH)₃ – Sr - 90 aktivitesi grafiğinde kalibrasyon grafiği doğrusal olarak elde edilmiştir. R² değeri 0,98 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %98 ‘ lik doğruluk anlamına gelmektedir.



Şekil 4.50: Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi

Silanlanmış TiO₂ (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) – Sr - 90 aktivitesi grafiğinde de doğrusal bir denklem elde edilmiştir. Sayım sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R² değeri yaklaşık 0,98 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %98 ‘lik doğruluk anlamına gelmektedir.



Şekil 4.51: Sintilasyon kokteyli sayım sonucu – Sr - 90 aktivitesi

Karşılaştırma için Sr - 90 aktivitesi ticari olarak kullanılan sintilasyon sıvısı ile de sayılmıştır. Bu sayımlarda kullanılan ticari sintilasyon sıvısı diisopropylnaphthalene'den oluşmaktadır. Ticari sintilasyon kokteylinin kullanıldığı Sr - 90 aktivitesi sayım grafiğinde, doğrusal bir grafik elde edilmiştir. Sayım sonucundaki değişiklikler aktivite miktarına göre farklılık göstermiştir. R^2 değeri yaklaşık 0,99 olarak bulunmuştur. Bu da istatistiksel açıdan %99 'luk doğruluk anlamına gelmektedir.

R^2 değeri 1' e yaklaşıkça istatistiksel açıdan yapılan çalışmanın geçerli olduğu söylenebilir. Sonuçları bu açıdan karşılaştırırsak Sr – 90 ile alınan tüm sayım sonuçları doğrusal olup, R^2 değeri 1'e yakındır.

Sr-90 sayımlarında hazırladığımız Lawson ve TiO₂ naoparçacıkları içeren tüm örneklerde ticari sıvı sintilasyon materyali ile benzer kalibrasyon eğrileri elde edilmiştir. Diğer çalışılan radyonüklidlerin hepsi gama ışını salıcı da olmasına rağmen saf beta ışını salıcı olan Sr-90'un sıvı sintilasyon sayım sistemlerine daha yaygın kullanılması nedeniyle bu uyum sıvı sintilasyon materyalleri olarak çalıştığımız sistemlerin kullanılabilirliğini artttırmaktadır.

4.6.4 I-125 ile alınan Sıvı Sintilasyon Sayım Sonuçları

Tablo 4.6 aynı aktivitelerdeki (2 μ Ci) I – 125 ile hazırladığımız nanokonjugatların sintilatör olarak kullanıldığı sıvı sintilasyon sonuçlarını ve diisopropylnaphthalene'dan oluşan ticari organik sintilatör ile karşılaştırılmasını göstermektedir.

Tablo 4.6 : Sentezlenen nanoparçacıklar ve türevlerinin I – 125 kullanılarak elde edilen sıvı sintilasyon sayım sonuçları

Vial	Süre(dakika)	Sayım(CPMA)	Örnek
1	4	2.034.664	Sintilasyon kokteyli+ I-125
2	4	538.774	Lawson+ I-125
3	4	2.315.390	Lawson-P+ I-125
4	4	2.014.877	Lawson-P-Si+ I-125
5	4	1.883.079	Lawson-P-Si-TiO ₂ + I-125

I – 125 ile alınan ölçümlerde aktivite miktarı sabit ($2 \mu\text{Ci}$) tutulmuştur. Alınan sıvı sintilasyon sayım ölçümlerinde Lawson – P sayım sonucunun diisopropylnaphthalene'dan oluşan ticari organik sintilatörden daha yüksek sayı miktari verdiği anlaşılmıştır. Ayrıca silikalanmış Lawson- P ‘ nin de diisopropylnaphthalene'dan oluşan ticari organik sintilatöre yakın sayı miktari verdiği tabloda görülmektedir.

5.SONUÇ VE ÖNERİLER

Bu çalışmada daha çevreci, ekonomik yeşil sentez denebilecek doğal bileşikler ve nanomateryaller sentezlenerek kullanılarak iki farklı nanosistem sentezlenerek sıvı sintilasyon materyali olarak kullanılabilirliği incelenmiştir. Oluşturulan yapılardan birisi Lawson molekülünün 2-hydroxy-1,4-naphthoquinone fosfat içeren türevi olan Lawson diphosphate (Lawson- P) ’dir. Bunun için oluşturulan sistemlerden biri olarak çıkış maddesi olarak kına (*Lawsonia inermis*) bitkisinin ana moleküllerinden biri olan Lawson molekülü fosforillenerek Lawsondiphosphate (Lawson – P), daha sonraki aşamada ise silikanarak silikalı Lawson-P (LW-P-O-(Si(OH)₃) oluşturulmuştur.

Üzerinde çalışılan diğer sistem ise TiO₂ nanoparçacıkları ve silikalı ve silanolü türevleridir. Bunun için TiO₂ nanoparçacıkları sentezlenmiş, silika ile kaplanarak silikalı TiO₂ nanoparçacıkları (TiO₂-O-Si(OH)₃) ve silanolü TiO₂ nanoparçacıkları (TiO₂-O-Si-(CH₂)₃NH₂) oluşturulmuştur.

I-131, Tc-99m, Sr-90, I-125 radyonüklidleri kullanılarak sentezi yapılan nanosistemlerin sıvı sintilatör olarak kullanılabilirliği incelenmiş ve ticari sıvı sintilatör materyali olarak kullanılan diisopropylnaphthalene ile karşılaştırılmıştır.

Sonuçlar kına bitkisinden elde edilen Lawson molekülünün bu çalışmada sentezlenen P ve Si içeren türevlerinin alternatif olarak yeşil kimya diyebileceğimiz çevreci bir yaklaşımla geleneksel ticari sintilatörlere göre daha az toksik özelliğe sahip olmaları nedeniyle de alternatif olabileceğini göstermiştir.

Üzerinde çalışılan diğer sistem olan TiO₂ nanoparçacıklarının da silikanmış türevleri ile sıvı sintilasyon kullanılabileceği sonucuna varılmıştır.

İlerde yapılacak çalışmalarda bu çalışmada teknik olarak temin edemediğimiz farklı alfa ve düşük enerili beta ışını salan radyonüklidlerle de çalışılarak etkinlikleri belirlenmesi üzerinde çalışılan sistemlerin potansiyellerinin belirlenmesi açısından faydalı olacaktır.

KAYNAKLAR DİZİNİ

- Almquist , C. B. , Biswas , P. ,** 2002 , Role of Synthesis Method and Particle Size of Nanostructured TiO₂ on Its Photoactivity, *Journal of Catalysis*, 145-156pp.
- Ananth , S., Vivek, P., Arumanayagam, T., Murugakoothan, P.,** 2014, Natural dye extract of lawsonia inermis seed as photo sensitizer for titanium dioxide based dye sensitized solar cells, *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 128,420-426pp.
- Anas,K.,**2017,*Scintillations*,<https://www.slideshare.net/AnasKinia/scintillations-principle-working-merits-demerits-applications>
- Antsiferova Y., Sotnikova N., Parfenyuk EV., Parfenyuk E.,** 2013, Different Effects of the Immunomodulatory Drug GMDP Immobilized onto Aminopropyl Modified and Unmodified Mesoporous Silica Nanoparticles upon Peritoneal Macrophages of Women with Endometriosis, *BioMed Research International* (1):924362
- Arayne M.S., Sultana N., Mirza A.Z., Zuberi M.H. and Siddiqui F.A.,** 2007, In vitro hypoglycemic activity of methanolic extract of some indigenous plants, *Pak J Pharm Sci.*, 20(4):268-273pp.
- Audi, G., Wapstra, A.H., Thibault, C.,** 2003, *The AME2003 Atomic Mass Evaluation*, 337-676pp.
- Bhattacharjee S.,** 2016, DLS and zeta potential - What they are and what they are not? *J Control Release*, 235, 337-351pp.
- Brzicova T, Sikorova J, Milcova A, Vrbova K, Klema J, Pikal P, Lubovska Z, Philimonenko V., Franco F., Topinka J., Rossner P.** 2019, Nano-TiO₂ stability in medium and size as important factors of toxicity in macrophage-like cells, *Toxicology In Vitro*, 54, 178-188pp.
- Boduroğlu, N.,** 2009, Metal doplanmış TiO₂ , sentezi ve fotokatalitik aktivitesinin incelenmesi, Ege Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Yüksek Lisans tezi
- Bor, M.D.,** 2014,FZM 447 Radyasyon Dedeksiyon ve Ölçüm Yöntemleri , Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

Bor, M.D., 2009, Radyasyon Ölçüm Yöntemleri, Konu 4, Sintilasyon Dedektörleri, Ankara Üniversitesi Mühendislik Fakültesi, Fizik Mühendisliği Ders Notları

Bransome, E.D., Sharpe, S.E., 1972, Measurement I-131 and I-125 by Liquid Scintillation Counting, *Analytical Biochemistry*, 343-352pp.

Charles, J., Passo, Jr., 1994, Handbook of environmental liquid scintillation spectrometry, Packard,156p.

Cartwright-Jones J, 2006, Developing Guideles on Henna: A Geographical Approach, Essay for Masters Degree, Kent State University, Kent, Ohio, USA, www.hennapage.com, August 2006.

Chopin, G., Liljenzin, J.O., Rydberg, J., Ekberg, C., 2013, Dedection and Measurement Techniques, Radiochemistry and Nuclear Chemistry (Fourth Edition), 239-295pp.

Choppin, G. R., Rydberg, J., 2002, Liquid Scintillator Dedectors, Radiochemistry and Nuclear Chemistry (Third Edition), 192-238pp.

Craun, R.L., Smith, D.L., 1970, Analysis of response data for several organic scintillators, *Nuclear Instruments and Methods*, 80(2), 239-244.

Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation, 1988, National Academy of Sciences-National Research Council, Washington, D.C., USA

CRC Handbook of Chemistry and Physics, 1984, CRC Press inc., Florida, 2303p.

Curtis, D., Fabryka-Martin, June., Dixon, Paul., Cramer, Jan., 1999, Nature's uncommon elements: plutonium and technetium, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63(2), 275-285pp.

D' Ambrosio, C., Gys, T., 2005, Scintillation and Photodedection, CERN,252p.

Dasgupta T., Rao A.R. and Yadava P.K., 2003, Modulatory effect of Henna leaf (*Lawsonia inermis*) on drug metabolising phase I and phase II enzymes, antioxidant enzymes, lipid peroxidation and chemically induced skin and forestomach papillomagenesis in mice, *Molecular and Cellular Biochemistry*, 245, 11-22 pp.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

Elmalı, A., 1995, Sintilasyon Dedektörleri için Yanıt Fonksiyonlarının Belirlenmesi, İstanbul Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Yüksek Lisans Tezi

Endrini S., Rahmat A., Ismail P. and Taufiq-Yap Y.H., 2007, Comparing of the cytotoxicity properties and mechanism of *Lawsonia inermis* and *Strobilanthes crispus* extract against several cancer cell lines, *J Med Sci*, 7,7,1098-1102pp.

Gagandeep C., Sandeep G. and Priyanka P., 2010, *Lawsonia inermis Linnaeus: A Phytopharmacological Review*, *International Journal of Pharmaceutical Sciences and Drug Research*, 2, 2, 91-98pp.

Greenwood.N.N., 1997, *Chemistry of the Elements*, Science Direct, 1040-1069pp

Gupta A, Saifi AQ, Modi NT, Mishra N, 1986, Anti-inflammatory activity of some active principles of *Lawsonia inermis* leaves, *Indian Journal of Pharmacology*; 18(2), 113-114pp.

Günther, E.W., 1994, Standardization of Fe-59 and I-131 by Liquid Scintillation Counting, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, spectrometers, detectors and associated Equipment*, 402-407.

Hammond, C. R., 2004. “The Elements”. Handbook of Chemistry and Physics (81st ed.). CRC press

Hajar, H. M., Zulkifli, F., Mohd Sabri, M. G., Wan Nik, W. B., 2016, Protection against Corrosion of Aluminum Alloy in Marine Environment by *Lawsonia inermis*, *International Journal of Corrosion*, Article ID 4891803.

Hemalatha K., Natraj H.N. and Kiran A.S., 2004, Hepatoprotective activity of leaves of *Lawsonia alba*. *Indian J Nat Prod*, 20(4):14-17.

Hisanaga, T., Harada, K., & Tanaka, K. (1990). Photocatalytic degradation of organochlorine compounds in suspended TiO₂. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 54, 1, 113–118pp.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Hoffmann, M. R., Martin, S. T., Choi, W., & Bahnemann, D. W.,** 1995. Environmental Applications of Semiconductor Photocatalysis. *Chemical Reviews*, 95, 1, 69–96pp.
- Horrocks, D.L., Peng, C.T.,** 1970, Organic Scintillators and Liquid Scintillation Counting, Academic Press, 965pp.
- Kessler, M.J.,** 1986, Liquid Scintillation analysis: Science and technology, Packard.174p.
- Knoll, G.F.,** 1989, Radiation Dedection and Measurement, John Wiley& Sons, Inc., U.S.A,774p.
- Knoll, G.F.,** 1999, Radiation Dedection and Measurement 3rd ed, New York, 802.
- Kossert, K.,** 2013, Measurement of wavelength- dependent refractive indices of liquid scintillation cocktails, *Applied Radiation and Isotopes*, 382-388pp.
- Krane, K.,** 1988,Introductory Nuclear Physics, Oregon Universty,870p.
- Krane, K.S.,** 2002, Nükleer Fizik, Palme Yayıncılık, Çeviri editörü: Şarer B., Ankara, 2. Cilt
- Kumar R.A., Kokate C.K., Rambhau D. and Rao Y.M.,** 1985, Studies in *Lawsonia inermis* lawsone and its oxazine derivatives as potential anticoagulant agents, Indian Journal of Pharmaceutical Sciences, 47p.
- Kumar, A., Pandey, G.,** 2018, Different Methods Used for the Synthesis of TiO₂ Based Nanomaterials: A review , *American Journal of Nano Research and Applications*, 6(1), 1- 10pp.
- Lawrance, R.S., Ochs, G.R., Clifford, S.F,** 1972, Use of Scintillations to measure Average wind across a light beam, Applied Optics, 239-243pp.
- Lewis, R.E,** 1971, Production of high specific activity molybdenum-99 for preparation of technetium- 99m generators, *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 603-605pp.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Lightfoot P.K., Kudryavtsev V.A., Spooner N.J.C., Liubarsky I., Luscher R., Smith N.J.T.** 2004, Development of a gadolinium-loaded liquid scintillator for solar neutrino detection and neutron measurements, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 522, 439–446pp.
- Limbach, L.K., Li, Y., Grass, R.N., Brunner, T.J., Hintermann, M.A., Muller, M., Gunther, D., Stark, W.J.,** 2005, Oxide nanoparticle uptake in human lung fibroblasts: Effects of particle size, agglomeration, and diffusion at low concentrations. *Environ. Sci. Technol.* 39 (23), 9370–9376pp.
- Lkhagvajav, N.,** 2010, Astarlik deriler üzerinde, Ag, TiO₂ ve Ag-TiO₂ nanofilmlerinin uygulanması ve antimikrobiyal etkilerinin araştırılması, Ege Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Doktora tezi
- Mahltig, B.; Haufe, H.; Böttcher,** 2005, H. Functionalisation of textiles by inorganic sol-gel coatings. *J. Mater. Chem.* , 15, 4385-4398.
- Malekzadeh F.,** 1968, Antimicrobial activity of *Lawsonia inermis*, *L. Appl. Microbiol.*; 16, 663-664pp.
- Masa-at, P., 2007, Non-imaging devices in Nuclear Medicine ,**
<https://www.slideshare.net/nunapawita/non-imaging>
- Moharrami, P., Unak, P., Guldu, OK., Medine EI., Gumuser G., Bilgin, ES., Aras, O,** 2017, Multifunctional molecular imaging probes for estrogen receptors: Tc-99m labeled diethylstilbestrol (DES) conjugated, cuinp quantum dot nanoparticles (DESCIP), *Journal Of Radioanal.Nucl. Chem.*, 314, 3, 2609-2620pp.
- Mohsin A., Shah A.H., Al-Yahya M.A., Tariq M., Tanira M.O.M. and Ageel A.A.,** 1989, Analgesic, antipyretic activity and phytochemical screening of some plants used in traditional Arab system of medicine, *Fitoterapia*, 60, 2, 174-177pp.
- Mousny, J.M., Myttenaere, C,** 1981, Absorption of technetium by plants in relation soil type, contamination level and time, Universite Catholique Louvain, Laboratoire de Physiologic vegetale, 403- 412pp.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

Nakashima, T., Kimizuka, N, 2003, Interfacial Synthesis of Hallow TiO₂ Microspheres in Ionic Liquids, *Journal of the American Chemical Society*, 6386-6387.

Nakata K., Fujishima A, 2012, TiO₂ photocatalysis: Design and applications, *Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews*, 169-189pp.

Narra, V.R, 1992, Radiotoxicity of some Iodine- 123, Iodine- 125, and Iodine-131 Labeled Compounds in Mouse Testes: Implications for Radiopharmaceutical Design, *Jounal of Nuclear Medicine* 33, 12, 2196-2201pp.

National Diagnostics, 2004, Principles and Applications of Liquid scintillation Counting, National Diagnostic Laboratory Staff,2p.

Nicholson, P.W.,1973, Nuclear Electronics, New York

Noman MT, Ashraf MA, Ali A, 2019. Synthesis and applications of nano-TiO₂: a review, *Environmental Science and Pollution Research*, 26, 4, 3262-3291pp.

Oliver, D.B., Knoll, G.F., 1968, Anisotropy of scintillation response of anthracene to neutron generated recoil protons and carbon ions, *IEEE Nuclear and Plasma Sciences Society*, 15, 122-126pp.

Patel VR, Agrawal YK., 2011. Nanosuspension: An approach to enhance solubility of drugs, *Journal of Advanced Pharmaceutical Technology&Research*, 2(2),81p.

Popov, Y. O, 2005. Evaporative deposition patterns: Spatial dimensions of the deposit. *Physical Review E*, 71, 3,1-17pp.

Raafat, A.I., Ali, A.E.H, 2018, A novel *Lawsonia inermis* (Henna)/(Hydroxyethylcellulose/ polyvinylpyrrolidone) wound dressing hydrogel: radiation synthesis, characterization and biological evaloation, *Polymer Bulletin*, 1-18pp.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Rahmoun, N.M., Boucherit- Atmani, Z., Benabdallah, M., Bouchers, K., Villemin, D., Choukchou- Braham, N.**, 2013, Antimicrobial Activities of the Henna Extract and Some Synthetic Naphthoquinones Derivates, *American Journal of Medical and Biological Research*, 1(1), 16- 22pp.
- Rimshaw, S.J.**, 1968, The Encyclopedia of Chemical Elements, New York
- Rimshaw, S. J., Hampel, C. A., ed.** The Encyclopedia of the Chemical Elements. New York: Reinhold Book Corporation. 689–693pp.
- Ross, H., Noakes, J.E., Spaulding, J.D.**, 1991, Liquid Scintillation Counting and Organic Scintillators, Lewis Publishers, 705p.
- Ruano Sanchez, A.B., Martin Sanchez, A., de la Torre Perez, J.**, 2013, On the use of different scintillation cocktails for determining gross alpha and beta activities in water samples, *Applied Radiation and Isotopes*, 175-178pp.
- Saadabi, M.A.A.**, 2007, Evaluation of *Lawsonia Inermis* Linn. (Sudanese Henna) Leaf Extracts as an Antimicrobial Agent, *Research Journal of Biological Sciences*, 2,419- 423pp.
- Sangster, R.C., Irvine Jr, J.W**, 1955, Study of organic scintillators, *The Journal of Chemical Physics*, 670-715pp.
- Schwochau, K.**, 2000, Technetium: Chemistry and radiopharmaceutical application, Wiley – VCH,446p.
- Seifers, S., Künstler, J.U., Gupta, A., Funke, H., Reich, T., Pietzsch,H.J., Alberto, R., Johannsen, B.**, 2001, Reactivity of Technetium thioether carbonyl complexes toward histidine, *Inorganica Chimica Acta*, 322(1-2)79-86pp.
- Shoushtrarian, A.**, 2009, Liquid Scintillation counter and contamination monitoring training, <https://www.slideserve.com/tate/liquid-scintillation-counter-and-contamination-monitoring-training>
- Sjölin, P. G.**, 1965, The scintillation decay of some commercial organic scintillators, *Nuclear Instruments and Methods*, 37,45- 50pp.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

Song CH, Li YT, Li J, Wei YJ, Hu YZ, Wei Y, 2008, Fluorescence spectra and quantum yield of TiO₂ nanocrystals synthesized by alcohothal method, *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 28, 1, 169-173pp.

Sujit T.K., Savita R.K., Sohrab A.S.A., Manikrao M., 2011, Bactericidal and Bactriostatic Activity of Isolated Naphtoquinone Fraction of *Lawsonia inermis* and synthetic Lawsone on *Staphylococcus epidermidis*, *Pharmacologyonline*, 2, 156-163pp.

Sultana N., Choudhary M.I., Khan A.J., 2009, Protein glycation inhibitory activities of *Lawsonia inermis* and its active principles, *Enzyme Inhib Med Chem.*, 24, 1, 257-261pp.

Sun ST, Jiang L, Liu, J.W., Heine, N., Yacovitch, T. I., Wende T., Asmis K. R., Neumark D. M., Liu Z.F., 2015, Microhydrated dihydrogen phosphate clusters probed by gas phase vibrational spectroscopy and first principles calculations, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 17, 25714.

Tekin V, Muftuler FZB, Kilcar AY, Unak P, 2014. Radioiodination and biodistribution of isolated lawsone compound from *Lawsonia inermis* (henna) leaves extract, *J.Radioanal.Nucl.Chem.*, 302, 1, 225-232pp.

UNSCEAR, 1977, Sources and effects of ionizing radiation United Nations Scientific Cominittee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly.

UNSCEAR, 1988, Sources, effects and risks of ionizing radiation, United Nations, New York, 647pp.

Vinardell, M.P., Rimbau, V., Mitjans, M., 2004, Potential eye irritation of some “ biodegradable “ liquid scintillation cocktails determined in vitro, food and chemical, *Toxicology* , 42(8), 1287-1290pp.

Winyard, R. A., Lutkin, J.E., McBeth, G.W., 1971, Pulse shape discrimination in inorganic and organic scintillators, *Nuclear Instruments and Methods*, 141-153pp.

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

Yamagishi, I., Kubota, M., 2012, Separation of technetium with Active Carbon, *Jornal of Nuclear Science and Technology*, 26(11), 60-66pp.

Yates, E. C., Crandall, D. G., 1966, Decay Times of Commercial Organic Scintillators, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 13, 3, 153- 158pp.

Yang, H.G., Liu, G., Qiao, S.Z., Sun, C.H., Jin, Y.G., Smith,S.C.,Zou,J., Cheng, H.M., Lu, G.Q., 2009, Solvothermal Synthesis and Photoreactivity of Anatase TiO₂ Nanosheets with Dominant {001} Facets, *Journal of the American Chemical Society*, 4078-4083pp.

Yeh, M., Hans, S., Beriguete, W., Rosero, R., Hu, L., Hahn, R.L., Diwon, M.V., Jaffe, D.E., Kettell, S.H., Littenberg, L., 2011, A new water-baced liquid scintillator and potential applications, *Nuclear Instruments and Methods in Physics research section A: Accelerators, spectrometers, Dedectors and Associated Equipment*, 660(1), 51-56pp.

Yogisha S., Samiulla D.S., Prashanth D., Padmaja R., Amit A., 2002, Trypsin inhibitory activity of *Lawsonia inermis*. Fitoterapia, 73, 690-691pp.

Zhang, Y.X., Li, G.H., Jin, Y.X., Zhang, Y., Zhang, J., Zhang, L.D., 2002, Hydrothermal synthesis and photoluminescence of TiO₂ nanowires, *Chemical Physics Letters*, 365(3), 300-304pp.

Zhao, Z., Tian, J., Sang, Y., Cabot, A., Liu, H., 2015, Structure, Synnthesis and Applications of TiO₂ Nanobelts, *Advanced Materials*, 27,2557-2582pp.

Zhong, J., Chen, F., and Zhang, J., 2009, Carbon- Deposited TiO₂ : Synthesis, Characterization, and Visible Photocatalytic Performance, *The Journal of Phsical Chemistry*, 114(2), 933-939pp.

http://skuld.bmsc.washington.edu/scatter/AS_periodic.html

TEŞEKKÜR

Tez konusunu seçerken isteklerimi göz önünde bulundurup, tez çalışmam boyunca özgün fikirleri ile her türlü desteği sağlayan, deneyimleriyle yol gösteren başta tez danışmanım, çok değerli hocam Prof. Dr. Perihan ÜNAK' a, FTIR spektrumlarının alınmasına destek olan sayın Doç. Dr. Süleyman İnan ' a, çalışmalarımın başından sonuna kadar bilgi ve desteğini esirgemeyen, soru ve sorunları çözümlemeye her türlü yardımı sağlayan değerli arkadaşım doktora öğrencisi Volkan TEKİN' e , kıymetli zamanlarını ayırip sabırla ve büyük bir ilgiyle bana faydalı olabilmek için elliinden gelenin fazlasını yapan değerli arkadaşım Arş. Gör. Özge KOZGUŞ GÜLDÜ, doktora öğrencisi Buğra Gökhun BULDUK ve doktora öğrencisi Volkan YASAKÇI' ya teşekkürü borç bilirim.

Teşekkürlerin az kalacağı Prof. Dr. M. Doğan BOR ve Prof. Dr. Şengül KURU 'ya bana lisans hayatım boyunca kazandırdıkları her şey için ve beni gelecekte söz sahibi yapacak bilgilerle donattıkları için teşekkürlerimi sunuyorum.

Çalışmamda desteğini ve bana olan güvenini benden esirgemeyen değerli hocam Nükleer Tıp Uzmanı, Uzm. Dr. Ahmet BASKAN' a teşekkürlerimi sunarım.

Beni, bu günlere sevgi ve saygı kelimelerinin anlamlarını bilecek şekilde yetiştiren ve benden hiçbir zaman desteğini esirgemeyen canım babam Ahmet AÇIKGÖZ ve canım annem Fatma AÇIKGÖZ' e , varlığı ile hayat veren canım yeğenim Ahmet Salih AÇIKGÖZ' e , bu hayattaki en büyük şansım olan aileme sonsuz teşekkürler.

10 / 06 / 2019



Zehra AÇIKGÖZ

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı: Zehra AÇIKGÖZ

Doğum Yeri: Antakya/ HATAY

Doğum Yılı: 01.04.1986

Öğrenim Durumu:

Lise: Antakya Necmi Asfuroğlu Anadolu Lisesi (2000-2003)

Lisans: Ankara Üniversitesi Fen Fakültesi , Fizik (2009-2014)

Yüksek Lisans: Ege Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü, Nükleer Uygulamalar Anabilim Dalı, (2017-2019)

Bilimsel etkinlikler:

- Yüksek Enerji Fiziği (izyef) İzmir Yüksek Teknoloji Enstitüsü , Eylül 2013.
- Luminescence applications in natural sciences and engineering , Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü, Şubat 2014.
- SANAEM teknik gezi ,Türkiye Atom Enerjisi Kurumu (TAEK), Mayıs 2014
- Akyurt Tesisleri teknik gezi, ASELSAN (mikroelektrik güdüm ve elektro-optik) , Nisan 2014
- Türkiye Atom Enerjisi Kurumu (TAEK) NükleerTİpta Radyofarmösötikler ve Radyasyondan Korunma Kursu, ÇNAEM , 14- 17 Mayıs 2018
- Uygulamalı Radyofarmasi Kursu, Ege Üniversitesi, Nükleer Bilimler Enstitüsü , 22-25 Kasım 2018.