ANKARA ÜNİVERSİTESİ NÜKLEER BİLİMLER ENSTİTÜSÜ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

GAMA SPEKTROMETRİK YÖNTEM İLE TORYUMCA ZENGİN MALZEMELERDEKİ ²²⁶Ra VE ²³⁸U AKTİVİTE ÖLÇÜMLERİNDE KULLANILAN ANALİTİK PİKLERE SPEKTRAL GİRİŞİM YAPAN γ-IŞINLARININ İNCELENMESİ

Esra KÖSE

MEDİKAL FİZİK ANABİLİM DALI

ANKARA 2010

ANKARA ÜNİVERSİTESİ NÜKLEER BİLİMLER ENSTİTÜSÜ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

GAMA SPEKTROMETRİK YÖNTEM İLE TORYUMCA ZENGİN MALZEMELERDEKİ ²²⁶Ra VE ²³⁸U AKTİVİTE ÖLÇÜMLERİNDE KULLANILAN ANALİTİK PİKLERE SPEKTRAL GİRİŞİM YAPAN γ-IŞINLARININ İNCELENMESİ

Esra KÖSE

MEDİKAL FİZİK ANABİLİM DALI

<u>ANKARA</u> 2010

Her hakkı saklıdır

Prof. Dr. Doğan BOR danışmanlığında, Esra KÖSE tarafından hazırlanan 'Gama Spektrometik Yöntem İle Toryumca Zengin Malzemelerdeki ²²⁶Ra ve ²³⁸U Aktivite Ölçümlerinde Kullanılan Analitik Piklere Spektral Girişim Yapan γ-Işınlarının İncelenmesi' adlı tez çalışması 17 Şubat 2010 tarihinde aşağıdaki jüri tarafından oy birliği ile Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Medikal Fizik Anabilim Dalı'nda YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak kabul edilmiştir.

Başkan	: Prof. Dr. Yeter GÖKSU	İmza:	
Üye	: Prof. Dr. Doğan BOR	İmza:	
Üye	: Prof. Dr. Haluk YÜCEL	İmza:	

Yukarıdaki sonucu onaylarım.

Prof.Dr. Doğan BOR Enstitü Müdürü

ÖZET

Yüksek Lisans Tezi

GAMA SPEKTROMETRİK YÖNTEM İLE TORYUMCA ZENGİN MALZEMELERDEKİ ²²⁶Ra VE ²³⁸U AKTİVİTE ÖLÇÜMLERİNDE KULLANILAN ANALİTİK PİKLERE SPEKTRAL GİRİŞİM YAPAN γ-IŞINLARININ İNCELENMESİ

Esra KÖSE

Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Medikal Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. Doğan BOR

Bu tezde, gama spektrometrik yöntem ile doğru ve kesin bir radyoaktivite hesabı için yapılması gereken düzeltme faktörleri incelenmiş, bu düzeltme faktörlerinden spektral girişim düzeltmesi üzerinde durulmuştur. Çünkü gama spektrometrik yöntem ile radyoaktivite ölçümünde, aynı anda örneklerde bulunan doğal radyonüklitlerden ²³²Th, ²²⁶Ra, ²³⁵U, ²³⁸U ve bunların bozunma ürünleri nedeniyle karmaşık gama spektrumları elde edilir. Doğru ve hassas bir ölçüm sonucuna ulaşmak için bu spektrumların spektral çözümlenmesi ve girişim piklerinin değerlendirilmesi süreci çok önemlidir. Tez çalışmasında da, gama spektrumlarında analitik amaçlı olarak kullanılan fotopiklere bozucu etki yaparak sayım değerlerini değiştiren ve böylece yanlış bir aktivite değeri elde etmeye neden olan girişim pikleri belirlenmiştir. Elde edilen sonuçlara göre, girişim yapan piklerin etkisinin ²²⁶Ra ve ²³⁸U'un ölçülen aktivitelerinde ihmal edilmesi, önemli derecede sistematik hatalara yol açmaktadır.

2010, 98 sayfa Anahtar Kelimeler: Gamma spektroskopisi, Ge dedektör, radyoaktivite, spektral girişim, fotopik, öz soğurma, gerçek koinsidens toplam etkisi, radyum (²²⁶Ra), uranyum (²³⁸U), toryum (²³²Th).

ABSTRACT

Masters Thesis

INVESTIGATION OF SPECTRAL INTERFERENCE γ -RAY EMISSIONS TO THE ANALYTICALLY PEAKS USED IN MEASUREMENT OF ²²⁶RA AND ²³⁸U IN MATERIALS RICH IN THORIUM BY γ -RAY SPECTROMETRY.

Esra KÖSE

Ankara University Institute of Nuclear Sciences Department of Medical Physics

Supervisor: Prof. Dr. Doğan BOR

In this thesis, the required correction factors are investigated for the accurate radioactivity measurement when gamma-ray spectrometry is used. Among these corrections factors spectral interference correction is mostly emphasized for the reason that when using gamma-ray spectrometry in radioactivity measurement, we obtain complex gamma spectra from the sample containing natural radionuclides 232 Th, 226 Ra, 235 U, 238 U and with their decay products. In order to attain the accurate and precise calculation results, evaluation process for spectral analysis and interference peaks are very important. Therefore, in this thesis, the new methods for the spectral interference peaks corrections are suggested to take into account the γ -ray contributions to take analytical peaks of 226 Ra and 238 U, and their decay products. The obtained results indicate that ignoring of the contribution of the interference peaks lead to the remarkably larger systematic errors for the measured activities of 226 Ra and 238 U.

2010, 97 pages

Key words: Gamma-ray spectrometry, Ge detector, radioactivity, spectral interference, full-energy peak (photopeak), self-absorption, true coincidence summing effect, radium (²²⁶Ra), uranium (²³⁸U), thorium (²³²Th)

TEŞEKKÜR

Bana araştırma olanağı sağlayan, yönlendiren ve geniş hoşgörüsü ile destek veren danışman hocam Sayın Prof. Dr. Doğan BOR'a, bu tezin gerçekleştirilmesinde, başlangıcından sonuna kadar, gerekli bütün yardım, tavsiye ve yönlendirmeleri yapan hocam Sayın Prof. Dr. Haluk YÜCEL'e, çalışmalarım süresince desteklerinden dolayı hocam Prof. Dr. Yeter Göksu, hocam Sayın Yrd. Doç.Dr. Turan OLĞAR'a ve hep yanımda olan dolayısıyla aklıma takılan her şeyi çekinmeden sorduğum ve hep yanıt aldığım Ayşe Nur ESEN'e ve kendi tezini yazarken bulduğu her firsatta da bana yardım eden Uzm. Şule KAYA'ya ve birlikte çalıştığım tüm arkadaşlarıma, her koşulda bana verdikleri manevi ve maddi destek olmaksızın hiçbir şey yapamayacağım mükemmel aileme ve Eyüp UYAR'a sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Esra KÖSE Ankara, Şubat 2010

İÇİNDEKİLER

ÖZETi
ABSTRACTii
TEŞEKKÜRiii
SİMGELER DİZİNİvi
ŞEKİLLER DİZİNİvii
ÇİZELGELER DİZİNİix
1. GİRİŞ1
2. KURAMSAL TEMELLER4
2.1 Radyoaktif Bozunma4
2.2 Doğal Radyoaktiflik
2.3 Gama Spektrometresi
2.3.1 Dijital Sinyal İşleme Sistemleri10
2.4 Fotopik Net Sayımının Belirlenmesi10
2.4.1 Ortamdaki doğal fon sayımının fotopik sayımından çıkarılması12
2.4.2 Net fotopik sayımındaki belirsizliğin hesaplanması13
2.5 Dedektör Verimi
2.5.1 Mutlak fotopik veriminin ölçülmesi14
2.6 Ölçülebilir En Küçük Aktivitenin Hesaplanması16
2.7 Aktivite Ölçümü
2.8 Düzeltme Faktörleri
2.8.1 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörü19
2.8.1.1 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün hesaplanması (NIST veri
tabanı kullanılarak21
2.8.1.2 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün Monte Carlo simülasyon
programı kullanılarak hesaplanması21
2.8.2 Gerçek zamanlı çakışma düzeltme faktörü
2.8.3 Spektral girişim düzeltmesi
2.8.4 Ölçüm süresi düzeltme faktörü
2.8.5. Radyoaktif bozunma düzeltme faktörü
2.8.6 Rasgele vığılma düzeltme faktörü
2.9 Belirsizlik Hesabı

2.9.1 Aktivitenin belirsizliği
2.9.2 Düzeltme faktörlerinin belirsizliği
3. MATERYAL ve YÖNTEM
3.1 Gama Spektrometre Sistemi
3.2 Standart Kaynakların ve Sertifikalı Referans Malzemelerin Ölçüme
Hazırlanmasında Kullanılan Cihazlar38
3.3 Sertifikalı Referans Standart Kaynaklar ve Sertifikalı Referans Malzemeler .38
3.4 Sertifikalı Referans Standart Kaynaklar ve Sertifikalı Referans Malzemelerin
Hazırlanması
3.5 Doğal Fon Spektrumunun Ölçülmesi41
3.6 Verim Kalibrasyonu
3.6.1 Mutlak verim kalibrasyonu41
3.7 Spektral Girişim Düzeltme Yöntemi43
3.7.1 ²³⁸ U analitik piklerindeki spektral girişim düzeltme yöntemi
3.7.2 ²³⁵ U analitik piklerindeki spektral girişim düzeltme metodu
3.7.3 ²³² Th analitik piklerindeki spektral girişim düzeltme metodu
3.8. Öz Soğurma Düzeltme Faktörünün Belirlenmesi67
3.8.1 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün hesaplanması (NIST veri
tabanı kullanılarak68
3.8.2 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün Monte Carlo simülasyon
programı kullanılarak hesaplanması69
4. BULGULAR
4.1 Doğal Fon Spektrumu70
4.2 Mutlak Verim Kalibrasyon Eğrisi71
4.3 Gama-ışını Öz Soğurma Düzeltme Faktörleri72
4.4 Gerçek Zamanlı Çakışma Düzeltme Faktörü77
4.5 Spektral Girişim Düzeltme Faktörü82
5. SONUÇ ve TARTIŞMA89
KAYNAKLAR94
ÖZGEÇMİŞ98

SİMGELER DİZİNİ

NaI	Sodyum İyodür			
HPGe	Yüksek Saflıkta Germanyum			
NORM	Doğal Yollarla Oluşmuş ve İçerisinde Doğal Radyonüklitler			
	(⁴⁰ K, ²³⁸ U, ²²⁶ Ra, ²³² Th) Bulunan Maddeler			
TENORM	Teknolojik İşlem Görmüş (Fosfojips, mineral-cevher ve			
	petrol artıkları, vb) ve Radyoaktivite İçeriği Artmış			
	Maddeler			
TCS	Gerçek zamanlı çakışma			
CRM	Sertifikalı Referans Malzeme			
MDA	Ölçülebilir En Küçük Aktivite			
ADC	Analog-Sayısal Dönüştürücü			
MCA	Çok Kanallı Analizör			
DT	Ölü Zaman			
RT	Gerçek Süre			
LT	Aktif Süre			
KS	Küçük Silindir Kap			
XRF	X-ışını Floresans			

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1 Aktivitenin zamanla değişimi	5
Şekil 2.2 Uranyum (²³⁸ U) serisi	7
Şekil 2.3 Aktinyum (²³⁵ U) serisi	7
Şekil 2.4 Toryum (²³² Th) serisi	7
Şekil 2.5 HPGe dedektörlü gama spektrometre sistemi	8
Şekil 2.6 Fotoelektrik olay, compton olayı ve çift oluşumunun baskın olarak görüldüğ	ü
enerji aralıkları	9
Şekil 2.7 Net alan hesabı	12
Şekil 2.8 Silindir geometrideki numunenin dedektör üzerindeki konumu	20
Şekil 2.9 TCS etkisinin kaynak-dedektör mesafesi ile değişimi	23
Şekil 2.10 ⁶⁰ Co nüklitinin gerçek koinsidens yığılma düzeltmesinin düzeltilmesinin	
açıklanması için bozunma şeması	24
Şekil 2.11 Spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi	30
Şekil 3.1 Numune kabı doldurma yüksekliği	40
Şekil 3.2 Numune konumlanması	42
Şekil 3.3 ²¹⁰ Pb'un 46,5 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	
gösterimi	45
Şekil 3.4 ²³⁴ Th'un 63,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	
gösterimi	46
Şekil 3.5 ²¹⁴ Pb'in 351,9 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	
gösterimi	47
Şekil 3.6 ²¹⁴ Bi'in 609,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	
gösterimi	49
Şekil 3.7 ^{234m} Pa'in 1001,0 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	
gösterimi	50
Şekil 3.8 ²¹⁴ Bi'in 1120,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	
gösterimi	51
Şekil 3.9 ²¹⁴ Bi'in 1238,1 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	
gösterimi	52
Şekil 3.10 ²³⁵ U'un 143,8 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik	

gösterimi53
Şekil 3.11 ²²⁸ Ac'in 129,1 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi55
Şekil 3.12 ²²⁸ Ac'in 209,2 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi
Şekil 3.13 ²¹² Pb'un 238,6 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi
Şekil 3.14 ²¹² Pb'un 300,1 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi61
Şekil 3.15 ²²⁸ Ac'in 338,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi62
Şekil 3.16 ²²⁸ Ac'in 463,0 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi63
Şekil 3.17 ²⁰⁸ Tl'in 583,2 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi
Şekil 3.18 ²¹² Bi'in 727,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi
Şekil 3.19 ²⁰⁸ Tl'in 860,6 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi
Şekil 3.20 ²²⁸ Ac'in 911,2 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik
gösterimi
Şekil 4.1 KS geometride EGML 1215-23-1 çoklu radyonüklit standardı ile elde edilen
verim kalibrasyon eğrisi72

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 5.1 Elde edilen aktivite sonuçlarına hiçbir düzeltme faktörü uygulanmadan ve tüm düzeltme faktörleri uygulandıktan sonra sertifika değeri ile deneysel aktivite değeri arasındaki % farklar90

1. GİRİŞ

Gama spektrometrik yöntem, radyoaktivite ölçümünde en güvenilir, hızlı ve pratik bir yöntemdir. Bu yöntemde, numune hazırlaması karmaşık işlemleri gerektirmez, tahribatsız olarak doğrudan gama ışınlarının dedektörlerle (NaI ve yaygın olarak HpGe) ölçümüne dayanır. Günümüzde, yüksek ayırma güçleri nedeniyle Ge dedektörler, gama spektroskopisinde yaygın olarak kullanılmaktadır. Ge dedektörlü gama spektrometre tekniği, bileşimi ve yoğunluğu bilinmeyen herhangi bir örnekte aynı anda tek bir spektrum değerlendirmesinden bir çok sayıda gama yayınlayıcı radyonüklitin tanımlanmasına ve nicel olarak aktivitelerinin ölçülmesine imkan veren hassas bir tekniktir. Yarı-iletken teknolojisinde gelinen son durumda, düşük enerji bölgesinde (<300 keV) kullanılan düzlemsel (planar) Ge dedektörlerin özel durumlardaki uvgulamaları hariç, genellikle standart olarak p-tipi veya n-tipi eş-eksenli HPGe kristalli dedektörler kullanılmaktadır. Bunların 1,75 ila 2,3 keV'in altında bir çözme gücü (⁶⁰Co'ın 1332,5 keV enerjide YYTG cinsinden) ile çevresel yapı, cevher, jeolojik, NORM, TENORM ve benzeri malzemelerde radyoaktivite ölçümünün büyük bir kısmına uygulanmaktadır. Radyoaktivite ölçümünde, özellikle doğal toryumu (232 Th ve bozunma ürünleri dahil) yüksek miktarda içeren örneklerde, aynı zamanda uranyum ve radyum aktivitesi belirlenmek istendiğinde, bozuma şemaları nedeniyle spesifik gama yayınımlarına (emissions) bağlı olarak analiz amaçlı ilgilenilen fotopik enerjisine yakın, istenmeyen, bozucu diğer gama emisyonları da katkı yapabilmektedir (Gilmore 2000, Yücel et al. 2009). Bu bozucu etkiler, doğrudan pik sayımını artırıcı ilave pik, tek veya çift kaçış pikleri ya da gerçek koinsidens olayları (TCS) sonucu toplam pik oluşumu etkişi şeklinde olabilir. Bu girişim etkilerinin göz ardı edilmesi tamamen sistematik olarak ölçüm sonuçlarına yansıyarak hata getirmektedir. Bazen ölçüm belirsizliği sınırlarını aşan düzeylerdeki bir girişim hatasının sayım değerine girmesiyle, ölçülen aktivite değerinin değişmesi söz konusu olabilmektedir.

Numunelerin gama spektrumları elde edilirken, ilgilenilen esas analitik pike, bozucu katkı veren spektral girişim piklerinin ayıklanmaları mümkün olmadığına göre, bu bozucu gama ışınlarının analitik pike katkılarının düzeltilmesi bir gerekliliktir. Girişim piklerinin etkisi düzeltilmediği takdirde, ölçülen nicelik (örneğin; fotopik sayım değeri ve buna bağlı aktivite veya derişim) gerçekte olması gerekenden farklı çıkabilmektedir.

Yine bilindiği gibi, son yıllarda, radyoaktivite ölçümünde teknolojik gelişmelere paralel olarak kristal hacmi daha büyük HpGe yarıiletken dedektörler üretilerek kullanımı yaygınlaşmaktadır. Böylelikle daha düşük dedeksiyon sınırlarına (En küçük ölçülebilir aktivite) veya daha yüksek kesinliğe (measurement precision) kısa sayım süresinde ulaşılması mümkün olmaktadır. Fakat bu durumda, kullanılan dedektörün Ge kristal hacmi büyük olduğunda, dedektör ayırma gücü de nispeten kötüleşmektedir. Yani, spektral girişim düzeltme açısından önemli bir dezavantaj getirmektedir.

Bu takdirde, spektrum değerlendirme yazılımları kullanarak bir spektral düzeltme yapmak mümkün olmamaktadır. Buna çözüm olarak, her analitik pik için etraflıca düşünülmüş ve geçerliliği kanıtlanmış yöntemlerin geliştirilmesi ve kullanılması gerekmektedir.

Örneğin, numunelerde HpGe dedektörler ile ²³⁸U aktivitesinin ölçülmesi için bu nüklitle sürekli radyoaktif dengede olan ²³⁴Th'ün 63,3 keV (%3,8) veya 92,6 keV (%4,8) gama pikleri kullanılarak gerçekleştirilir (Huy and Luyen 2004). 92,6 keV'lik pik, uranyum Xışını bölgesinde olması, kendisinin çiftli (doublet) yapıya sahip olması ve fluoresans Xışınlarının bozucu etkisine maruz kalması nedeniyle oldukça sorunlu bir piktir. Ayrıca uranyumun ikinci bozunma ürünü ^{234m}Pa 'in yayınladığı ve yüksek enerji bölgesinde yer alan temiz, fakat zayıf şiddetli 1001 keV (0,84%) piki de analiz amaçlı kullanılmaktadır. Çünkü örneklerde uranyumdan başka toryum (²³²Th) ve bozunma ürünleri bulunması durumunda, bunların düşük enerji bölgesi piklerine (63,3 ve 92,6 keV) önemli derecede girişim yapması nedeniyle, doğru ve hassas bir analiz yapılmasına engel olmaktadır. ^{234m}Pa 'in yayınladığı 1001 keV enerjili pikede çok zayıf da olsa, toryum serisi ²²⁸Ac'in 1000,7 keV (%5,3x10⁻³) pikinin girişim yaparak katkı verdiği teorik olarak bilinmektedir (Yücel *et al.* 1998).

Spektral girişim metodu analitik pikler için tanımlanmaktadır. Tez çalışmasında 18 analitik pik için spektral girişim düzeltmesi tanımlanmıştır. Bu analitik pikler 46,5 keV(210 Pb), 63,3 keV (234 Th), 129,0 keV (228 Ac), 143,76 keV (235 U), 186,1 keV (226 Ra), 238,63 keV (212 Pb), 300,08 keV (212 Pb), 338,28 keV (228 Ac), 351,9 keV (214 Pb), 463 keV (228 Ac), 583,2 keV (208 Tl), 609,3 keV (214 Bi), 727,3 keV (212 Bi), 860,5 keV (208 Tl), 911,16 keV (228 Ac), 1001 keV (234m Pa), 1120,3 keV (214 Bi), 1238,1 (214 Bi). Bu piklerden 63,3 keV (234 Th) ve 1001 keV (234m Pa), 238 U aktivite sonucunda, 143,76 keV, 163,33 keV ve 185,715 keV (235 U), 235 U aktivite sonucunda, 228 Ac'in 129,065 keV, 209,253 keV ve

911,21 keV pikleri ile ²⁰⁸Tl'in 277,36 keV, 583,19 keV ve 860,56 keV pikleri de ²³²Th aktivite sonucunda kullanılacak analitik piklerdir.

Bu tez çalışmasında örneğin, ²³⁸U'in aktivitesinin ölçülmesinde kullanılan 63,3 keV ile 1001 keV fotopiklerine girişim yapan ²³²Th ve ²³⁵U serilerinden kaynaklanan bozucu pikler belirlenerek, bunların etkisi düzeltilmiştir. Bu amaçla önerilen spektral girişim düzeltme yöntemi açıklanmıştır. Tezin birinci bölümünde problem tanımı yapılmıştır. Tezin ikinci bölümünde radyoaktif bozunma ve radyoaktivite ölçümünün temelleri açıklanmıştır. Tezin üçüncü bölümünde kullanılan materyal ve seçilen yöntemler açıklanmıştır. Bu bölümde önerilen spektral girişim düzeltme yöntemi ayrıntıda açıklanmıştır. Dördüncü bölümde, deneysel bulgular verilmiştir. Tezin beşinci bölümünde sonuçlar tartışılmıştır.

2. KURAMSAL TEMELLER

2.1 Radyoaktif Bozunma

Radyoaktivite, atom çekirdeğinin, tanecikler veya elektromanyetik ışımalar yayarak kendiliğinden parçalanmasıdır, yani atom çekirdeğinin bozunmasıdır. Radyoaktif bozunma (parçalanma), radyonüklitlerin bir ya da daha fazla kez alfa, beta bozunumu, pozitron oluşumu, elektron yakalama ya da kendiliğinden fisyon yapmaları şeklinde gerçekleşebilir.

Radyoaktif bozunma istatistiksel yapıdadır yani herhangi bir atomun ne zaman bozunacağı bilinememektedir. Dolayısıyla radyoaktif bozunma olayı üstel davranışla, radyoaktif çekirdeklerin azaldığını gösterir.

Azalımın hızı kaynaktaki radyonüklitlerin sayısıyla doğrudan orantılıdır yani aktivite A, t anındaki radyonüklit atomlarının sayısı olan N ile doğrudan orantılıdır. Radyoaktif bozunma birinci mertebeden bir süreçtir ve aşağıdaki gibi ifade edilir.

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda \cdot N \tag{2.1}$$

Burada A, aktiviteyi göstermektedir ve zamanla azalan bir niceliktir. λ ise bozunma veya parçalanma sabitidir, birimi de karşılıklı zamandır (s⁻¹, saat⁻¹, v.b). Ortalama ömür (τ) ise bir çekirdeğin bozununcaya kadar geçirdiği ortalama süre olarak tanımlanır, bozunma sabitinin tersidir.

$$\tau = \frac{1}{\lambda} \tag{2.2}$$

 λ , bozunma sabiti ise radyonüklitin yarı ömrüne bağlı bir sabit olduğundan değişmez bir niceliktir.

$$\lambda = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} = \frac{0.693}{t_{1/2}}$$
(2.3)

Eşitlik 2.1'in basit integrali alınırsa, radyoaktif çekirdeklerin zamanla azalımı

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

şeklinde davranış gösterir. Burada, N_0 , t=0 anında bozunmamış radyonüklitlerin sayısını göstermektedir. Dolayısıyla aktivite herhangi bir numunedeki radyonüklitlerin birim zamanda bozunma sayısı, yani bozunma hızıdır.

$$A(t) = \lambda N(t) = A_0 e^{-\lambda t}$$
(2.5)

Burada A₀; t=0 anındaki başlangıç aktivitesi $(A_0 = \lambda N_0)$ 'dir.

Radyoaktif bir numunenin aktivitesi numunede birim zamandaki bozunma sayısıdır. SI birim sisteminde birimi Becquerel (Bq) olup bu da saniyede bir parçalanmaya eşittir. Aktivitenin eski birimi Curie (Ci)'dir ve başlangıçta bir gram radyumun aktivitesi olarak 1Ci \cong 3,7x 10^{10} Bq (bozunma/s) şeklinde tanımlanır.

Aktivite sadece saniyedeki parçalanma sayısını vermekte, yayınlanan radyasyonun türü veya enerjileri ile ilgili hiçbir bilgi vermemektedir. Eşitlik 2.5 aktivitenin zamanla üstel olarak azaldığını göstermektedir (Şekil 2.1). Böylece aktiviteyi, Δt kısa zaman aralıkları içindeki bozunmaları zamanın fonksiyonu olarak ölçerek belirleyebiliriz.



Şekil 2.1 Aktivitenin zamanla değişimi

2.2 Doğal Radyoaktiflik

Uranyum (²³⁸U), Toryum (²³²Th), Aktinyum (²³⁵U) ve Potasyum (⁴⁰K) gibi radyoaktif elementlerin yarı ömürleri dünyanın yaşına kıyasla oldukça uzundur ve hala radyoaktiflikleri gözlenebilmektedir. Bu radyoaktiflik, çevremizdeki doğal radyoaktifliğin esas kısmını oluşturmaktadır. Her ne kadar diğer türlerinde uzun ömürlü doğal radyoaktif elementleri varsa da günümüzde gözlenenlerin çoğu çok ağır elementlerden oluşmuşlardır ve kararlı izotopları yoktur. Bu radyonüklitler alfa (α) ve beta (β ⁻) yayınlayarak atom numarasını (Z) ve kütle numarası (A) sayılarını sonuçta kararlı ve hafif ve bir çekirdeğe ulaşıncaya kadar azaltırlar. Yani, kararlı hale gelmek için atomların kendiliğinden ışıma yapmaları doğal radyoaktif elementleri oluşturmaktadır. Atom numarası 83-92 arasındaki elementler doğal radyoaktif elementlerdir. Bunun yanında atom numarası 83'den küçük olup doğal radyoaktiflik gösteren elementler de vardır (K, C, Rb).

Radyoaktif bozunma serileri, bir radyoaktif izotopun bozunma sonucu kararlı bir çekirdek oluncaya kadar başka bir radyoaktif izotopa dönüşmesi sonucunda ortaya çıkar. Bu radyoaktif bozunma serilerinden Uranyum (²³⁸U), Toryum (²³²Th), Aktinyum (²³⁵U) serileri çevremizde doğal olarak bulunmaktadır. Ayrıca, Neptinyum (²³⁷Np) serisi de reaktörlerde yapay olarak oluşturulur. Neptinyum serisinin en uzun ömürlü nüklitinin yarı ömrü, yerin oluşumundan bu yana kadar geçen süreye göre çok kısa olduğundan bu seri doğal maddelerde gözlenmez.

Seri Adı	Türü	Ana nüklit	Kararlı son nüklit	Ana nüklitin yarı ömrü (yıl)
Uranyum	4n+2	$^{238}_{92}{ m U}$	$^{206}_{82}{ m Pb}$	4,47x10 ⁹
Toryum	4n	$^{232}_{90}{ m Th}$	$^{208}_{82}{ m Pb}$	$1,41 x 10^{10}$
Aktinyum	4n+3	²³⁵ ₉₂ U	$^{207}_{82} { m Pb}$	7,04x10 ⁸
Neptinyum	4n+1	²³⁷ ₉₃ Np	²⁰⁹ ₈₃ Bi	$2,14x10^{6}$

Çizelge 2.1 Doğal bozunma serileri

Kararlı ya da kararsız elementlerin alfa, nötron, proton gibi tanecikler ile bombardımanından oluşan elementler de radyoaktiftir. Bombardıman yoluyla elde edilen radyoaktif elementlerin bu özelliğine yapay radyoaktiflik denir.

Normal koşullar altında, doğal malzemelerde ²³⁵U/²³⁸U oranı sabit ve her bir serideki tüm nüklitler dengededir. Gama spektrometresinde yapılan hesaplamalarda bu nüklitleri içeren doğal malzemeler kullanıldığından serilerin bozunma zincirlerinin iyi anlaşılması gerekmektedir (Şekil 2.2, 2.3, 2.4).



1958 yılında ki bir derlemeye göre, 267 kararlı, 1030 radyoaktif, toplam 1297 nüklit olduğu bilinmekte iken, şu anda 3000'den fazla nüklit olduğu bilinmektedir ve bunların % 10'u

kararlıdır (Karlsruhe Nuclide Chart, 1st Edition, 1958, 2nd Edition, 1961, 3rd Edition, 1968, 4th Edition, 1974, 5th Edition, 1981, 6th Edition, 1995).

2.3 Gama Spektrometresi

Gama spektrometresi, dedektör kristaline ulaşan gama ışınlarının enerjisiyle orantılı olarak oluşan pulsların bir önyükselteç ve yükselteçte işlendikten sonra elde edilen sinyalin analog sayısal dönüştürücüde (ADC) sayısal hale getirilmesi ve çok kanallı analizörün (MCA) hafizasında spektrum olarak kaydedilmesine imkan veren bir sistemdir (Şekil 2.5).



Şekil 2.5 HPGe dedektörlü gama spektrometre sistemi

Dedektöre gelen gama ışınları dedektör içerisinde kristal atomları ile fotoelektrik, compton ve çift oluşum etkileşmeleri yapabilirler. Gelen gama ışınları ile ilgili tüm bilgilerin elde edilebilmesi için dedektörde tamamen soğurulmaları gerekir. Bu nedenle gama spektroskopisinde istenilen etkileşim türü fotoelektrik olaydır. Gama ışınının madde ile etkileşmesi sırasında, enerji ve atom numarasına olan bağımlılıkları tesir kesitleri ile aşağıda verilmektedir:

Fotoelektrik olay;
$$\tau = Z^{4.5} \cdot E_{\gamma}^{-3}$$
 (2.6)

Compton saçılması; $\tau = Z \cdot E_{\gamma}^{-1}$ (2.7)

Çift oluşumu (E >1022 keV);
$$\tau = Z^2 \cdot \ln E$$
 (2.8)



Şekil 2.6 Fotoelektrik olay, compton olayı ve çift oluşumunun baskın olarak görüldüğü enerji aralıkları

Tesir kesitlerinde de görüldüğü gibi atom numarasının büyük olması fotoelektrik etkileşme olasılığını artıracağından seçilen kristalin atom numarasının büyük olması istenir. Germanyum (Ge) yeterli sayılabilecek yüksek atom numarası (32) ve yoğunluğa (5.32 gcm⁻³) sahip bir kristaldir. Ayrıca elektron-deşik (elektron-hole) hareketlilikleri (mobility) yüksek ve birbirine yakındır (elektronun hareketliliği 36000 cm²/Vs, deşiklerin ise 42000 cm²/Vs)'dir. Dolayısıyla elektron-deşik hareketliliklerinin yüksek olmasından dolayı yük taşıyıcı özellikleri iyidir, elektron-deşik hareketliliklerinin birbirine yakın olmasından dolayı da gama spektrumlarında tamamlanamayan yük toplanmasından dolayı olan pikin sol tarafta kuyruklanması olayı bu kristallerde görülmez (Gilmore 2008, Knoll 2000). Ayrıca en büyük avantajlarından birisi ayırma güçlerinin yüksek olmasıdır. Dezavantajı ise kristal etrafındaki zırhtan ve sıvı azot kabından dolayı çok yer kaplaması ve sıvı azot ihtiyacıdır.

Günümüzde, gama spektrometresinde standart olarak n-tipi ya da p-tipi HPGe kristalli yarı iletken dedektörler kullanılmaktadır. Bununla birlikte, gelişen yarı iletken teknolojisi ile kullanılan yüksek saflıkta Ge kristallerin hacmi de çok artmıştır. Kristal hacmi arttıkça dedeksiyon verimi artar dolayısıyla minimum ölçülebilen aktivite (MDA) değeri azalır. Ayrıca sayım istatistiği iyileştirilerek (<%1) sayım hassasiyeti artar.

2.3.1 Dijital Sinyal İşleme Sistemleri

Tez çalışmasında kullanılan sinyal işleme sistemi bir dijital sinyal işleme sistemidir. Dijital sistemlerin analog sistemlere göre birçok avantajı vardır. Dijital sistemlerde daha iyi sıcaklık stabilizasyonu vardır, çünkü öncelikle puls sayısal (dijital) hale getirildiği için bunu devam eden işlemler sıcaklıktan bağımsızdır. Dijitalleştirme ve filtreleme işlemleri konvansiyonel ADC sistemlerden daha hızlı olduğundan, daha hızlı veri çıktısı (throughput) alınır. Yüksek sayım hızlarında ayırma gücü stabilizasyonu gelişmiştir. Dijital sistemlerde ayırma gücü stabilizasyonu gelişmiştir. Dijital sistemlerde, analog sistemlere göre sayım hızı arttığından pik kaymaları daha az görülür.

2.4 Fotopik Net Sayımının Belirlenmesi

Enerji spektroskopisi amaçlı kullanılan bir gama spektrometresinde esas amaç enerji soğurulmasına karşılık gelen puls yükseklik spektrumundaki fotopiklerin analizidir. Dedektörden gelen sinyallerin işlenmesiyle elde edilen gama ışını spektrumlarında gözlenen fotopiklerin her birinin altında kalan net alan, gama ışınlarının fotoelektrik etkileşmeleri ile orantılı bir nicelik olarak net sayım verdiğinden, belirlenme yöntemleri özellikle önemlidir. Çünkü fotopikin net alana karşılık gelen sayım değeri, diğer tüm hesaplanacak büyüklüklerde kullanılan, gözlenen bir niceliktir. Bu nedenle spektrumlardaki fotopik alanlarının belirlenme yöntemlerinden elde edilecek net sayım; fotopikin şekline (kuyruklanma olması ve çoklu piklerin birbirine girişim yapması), kullanılan dedektör tipine (NaI, HPGe, CZT) göre değişebildiği gibi kullanılan yazılımda seçilen algoritma farklılıklarına veya analizcinin gözlemine göre de değişebilmektedir. En yaygın ve standartlaşmış yaklaşım gözlenen gama spektrumlarında, pratikte 3xYYTG (yarı yükseklikteki tam genişlik) kriterine uygun yakınlıktaki fotopikler için sıkça kullanılan hemen hemen Gauss eğrisi şeklindeki bir fotopikin temel alınmasıdır (Anonymous 1986). Son yıllarda, yamuk (trapezoid) fotopik şekline uygun net sayım belirlenmesi de yaygın olarak kullanılmaktadır (Anonymous 2003).

Fotopikin altındaki net alan yani net fotopik sayımı (A_n) fotoelektrik etkileşmeler sonucu elde edilen sayımları ifade eder ve ROI içindeki toplam sayımdan (A_{ag}) , ilgilenilen enerjideki

compton saçılmaları nedeniyle meydana gelen sürekliliğin (B) çıkarılması esasını temel alarak hesaplanır (Şekil 2.7).

$$B = \left(\sum_{i=1}^{l+2} C_i + \sum_{i=h-2}^{h} C_i\right) \cdot \left(\frac{h-l+1}{6}\right)$$
(2.9)

Burada l, ROI'nin (fotopikin) solundaki minimum kanal sayısı, h, fotopikini sağındaki maksimum kanal sayısı, C_i, i.kanaldaki kanaldaki sayım, 6 ise kullanılan kanal sayısı (fotopikin sağ ve solundan 3'er kanal olmak üzere 6 kanal kullanılmaktadır).

$$A_g = \sum_{i=1}^{h} C_i$$
(2.10)

Ag, fotopik içindeki toplam sayımı göstermektedir.

$$A_{ag} = \sum_{i=1+3}^{h-3} C_i$$
 (2.11)

A_{ag} ise, fotopik içindeki düzeltilmiş toplam sayımı göstermektedir.

$$A_{n} = A_{ag} - \frac{B(h-l-5)}{(h-l+1)}$$
(2.12)

 A_n net pik alanı, A_{ag} fotopik içindeki düzeltilmiş toplam sayımdan düzeltilmiş compton saçılmaları nedeniyle meydana gelen sürekliliğin çıkarılması ile hesaplanır.



Şekil 2.7 Net alan hesabı

2.4.1 Ortamdaki doğal fon sayımının fotopik sayımından çıkarılması

Dedektörde herhangi bir kaynak yok iken, laboratuar ortamında var olan doğal fon spektrumu ölçülmelidir. Doğal fon spektrumundan her bir radyonüklitin ilgilenilen fotopiki için doğal fon alanları belirlenmeli ve bu değer daha sonra örnek spektrumunda ilgilenilen enerjide elde edilen fotopik alanından çıkarılmalıdır. Ortamdaki doğal fon çıkarılarak bulunan net fotopik sayımı, N_p, aşağıdaki şekilde hesaplanır.

$$N_p = G - B - N' \tag{2.13}$$

Burada G, ilgilenilen fotopikteki toplam sayım; B, toplam sayımdan çıkarılacak Compton sürekliliği; N', ortamdaki doğal fondan kaynaklanan sayımdır. Örneğin sayım süresine göre, daha uzun süreler uygulanarak elde edilen ortam doğal fon ölçümleri, örneğin sayım süresine göre normalize edilir.

$$N' = \frac{t_c}{t_d} \cdot N_d \tag{2.14}$$

Burada t_c , örnek spektrumunun sayım süresi (live time); t_d , doğal fon spektrumunun sayım süresi ve N_d , doğal fon spektrumundaki fotopikin net sayımıdır.

2.4.2 Net fotopik sayımındaki belirsizliğin hesaplanması

Net fotopik sayımının belirsizliği, düzeltilmiş toplam alanın belirsizliğinin ve düzeltilmiş compton sürekliliğin ağırlıklı hatasının toplamının kareköküyle belirlenmektedir.

$$\sigma_{A_n} = \sqrt{A_{ag} + B \cdot \left(\frac{h - l - 5}{6}\right) \cdot \left(\frac{h - l - 5}{h - l + 1}\right)}$$
(2.15)

Compton sürekliliğinin belirsizliği, düzeltilmiş compton süreklilik hesabında kullanılan kanal sayısı ile düzeltilmiş pik genişliğinin oranı ile hesaplanmaktadır.

2.5 Dedektör Verimi

Dedeksiyon verimi bağıl verim, toplam verim, özgün verim ve mutlak fotopik verimi (tüm enerji pik verimi) olarak ifade edilir. Bu kavramların tümü birbirleriyle ilişkilidir, ancak kullanıldıkları duruma göre öncelikli önem kazanırlar.

Bağıl verim, ε_r , 3"x3" boyutlarında NaI(Tl) sintilasyon dedektörünün uç kabı (end cap) üzerinde, 25 cm kaynak-dedektör mesafesine yerleştirilen bir ⁶⁰Co kaynağının 1332,5 keV gama ışın pikinin net sayım hızının, ⁶⁰Co kaynağının aktivitesine oranıdır.

$$Bağılverim = \frac{1332.5 \text{ keV pikinin net sayıa hıız} \times 100}{{}^{60}Co \text{ kay nağay naaktivitesi (Bq)} \times 0,0012} (\%)$$
(2.16)

Bu oran standart NaI(Tl) dedektörün verimine göre, Germanyum (Ge) veya başka bir dedektörün aynı mesafede ve aynı enerjideki ölçülen veriminin yüzdesi olarak ifade edilir.

Eşitlikteki 0,0012 değeri ise, 3"x3" NaI(Tl) dedektörlerin ⁶⁰Co kaynağı ile 25 cm mesafede 1332,5 keV pikindeki sayım hızları 0,0012 cps/Bq'dir.

% Bağıl verim ayrıca dedektörün genel performansının da bir ölçüsüdür.

Gama spektrometresinde amacımız radyoaktivite miktarını spektrumdaki pik alanıyla ilişkilendirmektir. Bunun için **mutlak (tüm enerji) pik verimi** kullanılır. Bu verim, belirli enerjilerdeki pik alanıyla ilgilidir. Kaynaktan yayınlanan gama ışın sayısına ve kaynak-dedektör geometrisine bağlıdır. **Mutlak (fotopik) verimi** (yani, tüm enerji fotopik verimi), ε_p , spektrumun herhangi bir yerindeki fotopik altında kaydedilen sayımın, kaynaktan yayınlanan gama ışın sayısına oranıdır.

Mutlak toplam verim, ε_T , spektrumda dedekte edilen toplam sayımın kaynaktan yayınlanan gama ışını sayısına oranıdır. Toplam verimin bilinmesi özellikle koinsidens yığılma düzeltmesinin hesabında önemli bir parametredir.

Özgün verim, ε_{int} , herhangi bir enerjideki fotopik sayımının, dedektör yüzeyinde meydana gelen gama ışın sayısına oranıdır. Bu verim dedektörün temel parametresidir ve kaynakdedektör geometrisine bağlıdır (Gilmore, 2000).

2.5.1 Mutlak fotopik veriminin ölçülmesi

Gama spektrometrik yöntemle aktivite hesabında öncelikle aktivitesi belirlenecek örneğin veriminin belirlenmesi gerekmektedir. Bunun için örnek ile aynı geometride sertifikalı referans standart kaynaklar kullanılmaktadır. Hazırlanan sertifikalı referans standart kaynak örneğin sayıldığı sayım geometrisinde sayılarak ilgilenilen enerjilerdeki fotopiklere ait net sayımlar belirlenir. Sertifikalı referans standart kaynağın aktivitesi bilindiğinden,

$$\varepsilon_{p}(E) = \frac{\left[\frac{N_{p}}{t_{c}} - \frac{N_{d}}{t_{d}}\right]}{A \cdot f_{\gamma}(E) \cdot m} \cdot K$$
(2.17)

eşitliğinden belirli enerjilerdeki fotopik verimi hesaplanır. Eşitlikteki N_p, ilgilenilen fotopikin Compton sürekliliği çıkarılmış net sayımı; t_c, sayım süresi (s); N_d, doğal fon spektrumundan elde edilen fotopikin Compton sürekliliği çıkarılmış net sayımı; t_d, doğal fon sayım süresi (s); f_{γ}(E), ilgilenilen enerjinin gama ışını yayınlanma olasılığı; A, standart kaynağın aktivitesi (Bq) ve K, kaynağın özelliklerine ve ölçüm düzeneğine bağlı farklı etkileri içeren düzeltme faktörlerinin bileşimini veren katsayıdır. Bu faktörler Bölüm 2.8'de ayrıntılı açıklanmıştır. Bir HPGe dedektör γ -sayım sisteminin verimi, dedektörün kristal büyüklüğüne, dedektör-

kaynak geometrisine, dedektör etrafındaki malzemelere ve kaynak veya malzeme matrisindeki soğurulmalara bağlıdır.

Genel olarak, belirli bir dedektör-kaynak geometrisi için yapılan verim kalibrasyonu, diğer kaynak-dedektör geometrilerinde geçerli olmayacağı için, farklı kaynak-dedektör geometrileri için verim kalibrasyon eğrileri oluşturulmalıdır. Dedektör verim kalibrasyonu hassas bir süreçtir ve dikkatli yapılmalıdır. Örneğin, kalibrasyon eğrisinin gerçek numuneye karşılık gelememesinin birçok nedeni olabilir. Bunlar; farklı kaynak dedektör mesafesi, farklı kaynak şekli, kaynak içerisinde matris bileşimi nedeniyle gama soğurulması, yüksek sayım hızlarında rasgele çakışma, yakın sayım geometrilerinde gerçek zamanlı çakışma, sayım sırasında kaynağın azalımı, sistem elektroniğinden kaynaklanan kazanç kayması ve elektronik gürültü gibi diğer problemlerdir.

Bu tez çalışmasında yapılan ölçümlerde de kullanılan n-tipi germanyum dedektörlerde verimin maksimum değeri yaklaşık 100 keV civarındadır. Bu dedektörün tipine göre değişen bir parametre olduğundan örneğin p-tipi germanyum dedektörlerde Ge dedektör dış kontak yüzeyindeki Ge-ölü tabakası nedeniyle ~150 keV civarındadır. Burada maksimum verim enerji skalasında sağa doğru kayar (Knoll, 2000). Bağıl verimi, ~%50'nin üzerindeki nispeten büyük kristalli dedektörlerde, bu değerler biraz daha yüksek olacaktır. Her iki dedektör tipinde (n veya p tipi) de maksimum ya da verim eğrisindeki omuz dönmesi değerleri dedektörlerde hemen hemen sabitken, omuzun üstündeki enerjilerde ise verim hızla azalır.

Mutlak ölçümlerde doğrudan verim kalibrasyonu eğrisi doğru bir aktivite sonucu için çok önemlidir. Sadece standart kaynaklar olarak bilinen izlenebilir sertifikalı kalibrasyon kaynakları en güvenilir sonuçları verir. Kaynağın üretildiği tarih ile spektrumun toplandığı

15

tarih arasındaki azalım düzeltmesi olarak tanımlanan zaman farkının mutlaka yapılması gerekmektedir.

2.6 Ölçülebilir En Küçük Aktivitenin Hesaplanması

Ölçülebilir en küçük aktivite (minimum detectable activity, MDA), herhangi bir radyonüklit için bir sayım sisteminde belirli şartlarda (bir kaynak-dedektör geometrisinde öngörülen madde miktarı ve ölçüm süresi dikkate alınarak) ölçülebilecek en küçük aktivite miktarını ifade eder. Doğrudan sistemin dedeksiyon sınırına, sayım sistemine ve sayım koşullarına bağlıdır. Katı ve sıvılardaki en düşük aktivite miktarı 1 kilogramdaki Bq [Bq kg⁻¹] veya 1 litredeki Bq [Bq L⁻¹] olarak genelde %95 güven seviyesinde verilir.

Bu terimin tanımı üzerinde çok farklı yorumlar hala devam etmektedir (MacLellan and Strom 1999) ve hesaplanmasında çeşitli yaklaşımlar kullanılmaktadır. Bu çalışmada, en yaygın olarak kullanılan L.A. Currie'nin (1968) önerdiği yaklaşım kullanılmıştır. Buna göre MDA;

$$MDA = \frac{L_D}{\varepsilon(E) \cdot f_{\gamma}(E) \cdot t_c \cdot m}$$
(2.18)

$$MDA = \frac{2,71+3,29 \cdot \sqrt{B \cdot (1+p/2n)}}{\varepsilon_p(E) \cdot f_y(E) \cdot t_c \cdot m},$$
(2.19)

Olarak hesaplanır. Burada dedeksiyon sınırı, $L_D = 2,71 + 3,29 \cdot \sqrt{B \cdot (1 + p/2n)}$, $\epsilon(E)$, ilgilenilen enerjideki fotopik verimi; $f_{\gamma}(E)$, ilgilenilen enerjinin gama-ışını yayınlama olasılığı; t_c , sayım süresi (s) ve m, örnek miktarıdır (kg veya L). Ayrıca, n ve p ise sırasıyla kanal sayısı ve uç kanal sayısıdır. p uç kanal sayısı fotopikin sağ ve solundaki kanal sayısı duruma göre 1, 3, 4 ve 5 seçilebilir. Bunun hangisi seçileceğine ilişkin temel bir hipotez yoktur. Ancak yakın komşuluğunda spektrumda başka bir pik yok ise, tercihen p = 4 veya 5 seçilebilir. Uç nokta sayısını artırmak fotopik altında kalan compton doğal fonunun daha hassas belirlenmesini sağlar (Gilmore 2008).

2.7 Aktivite Ölçümü

Gama spektrometrik yöntemin, radyoaktivite ölçümünde güvenilir, hızlı ve pratik bir yöntem olduğu daha önce açıklanmıştı. Alfa spektroskopisi gibi radyokimyasal işlemler gerektiren diğer nükleer analitik teknikler ile kıyaslandığında gama spektrometrik yöntemlerde numune hazırlaması karmaşık işlemleri gerektirmez ve tahribatsız olarak doğrudan gama ışınlarının dedektörlerle (NaI ve yaygın olarak HpGe) ölçümüne dayanır. Bu nedenle HPGe dedektörlü gama spektrometresi, genelde oldukça düşük aktivite içeren çevresel ve gıda örneklerinde çok etkin olarak kullanılmaktadır ve yüksek doğrulukta sonuçlar vermektedir. Yöntem, her türlü NORM ve TENORM maddelerin (çevresel ve sanayi atıkları, evsel atıklar, sanayi ham maddeleri ve ürünleri, gıda maddeleri, mineraller ve yapı malzemeleri içerebileceği aktivitelerin belirlenmesinde de kullanıldığı gibi, yüksek aktiviteler içeren nükleer atıkların ölçümüne de uygundur.

Aktivitenin ölçülmesinde iki yöntem kullanılır:

1. Örneğe uygun bir standart olmaması durumunda sistemin sayım geometrisine uygun mutlak verimin (tüm enerji fotopik verimi, ε_p) kullanıldığı doğrudan aktivite belirleme yöntemi

2. Örnekle özdeş bir standart olması durumunda verim tayini gerektirmeyen ve daha kolay olan standartla karşılaştırma yöntemi

Bu tez çalışmasında her numuneye uygun bir standart temin etmenin güç olduğu bilindiğinden doğrudan aktivite ölçüm yöntemi kullanılmıştır.

Bu yöntemde ile aktivite, spektrumdan elde edilen sayım hızı değerleri kullanılarak aşağıdaki eşitliğe göre hesaplanır:

$$A = \frac{\left[\frac{N_p}{t_c} - \frac{N_d}{t_d}\right]}{\varepsilon(E) \cdot f_{\gamma}(E) \cdot m} \cdot K$$
(2.20)

Burada N_p , örnek spektrumunda ilgilenilen enerjideki fotopikin Compton sürekliliği çıkarılmış net sayımı; t_c, örneğin sayım (live time) süresi (s); N_d, ayrıca ölçülen doğal fon

spektrumundan ilgilenilen enerjideki fotopikin Compton sürekliliği çıkarılmış net sayımı; t_d, doğal fon sayım süresi (s); f_{γ}(E), ilgilenilen enerjinin gama ışını yayınlanma olasılığı; ε_p (E), ilgilenilen enerjideki fotopik verimi; m, örneğin miktarıdır (kg veya L). K ise doğru ve kesin bir aktivite sonucunun hesaplanması için uygulanması gereken düzeltme faktörlerinin tümünü içeren birleştirilmiş bir sabittir. Eşitlik 2.21 ile hesaplanır.

Bu çalışmada $f_{\gamma}(E)$, ilgilenilen enerjilerdeki gama ışını yayınlanma olasılıkları, Table of Isotopes (Firestone and Shirley, 1996), online erişim kolaylığı sağlayan LARA (laraweb.free.fr) veritabanları ve 'Gamma- and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors' (Debertin and Hemler, 1988) kitabından alınan üç farklı değerin ortalaması alınarak belirlenmiştir.

 $\epsilon(E)$, ilgilenilen enerjideki fotopik verimi ise daha önceden örnek ile aynı geometride ölçülen standart kaynaklar ile elde edilen mutlak verim eğrisinden hesaplanmıştır.

2.8 Düzeltme Faktörleri

Doğru ve kesin bir aktivite hesabı için yapılması gereken düzeltme faktörleri gama ışını öz soğurma düzeltme faktörü, gerçek zamanlı çakışma düzeltme faktörü, spektral girişim düzeltme faktörü, radyoaktif bozunma düzeltme faktörü, ölçüm süresi düzeltme faktörü, rasgele yığılma düzeltme metodudur.

$$\mathbf{K} = \frac{\mathbf{K}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{K}_{\mathbf{s}} \cdot \mathbf{K}_{\mathbf{r}}}{\mathbf{K}_{\mathbf{b}} \cdot \mathbf{K}_{\mathbf{c}}}$$
(2.21)

Burada; K_b , radyoaktif bozunma düzeltmesi; K_c , ölçüm süresi düzeltmesi; K_k , gerçek koinsidens düzeltmesi; K_s , gama ışını öz soğurma düzeltmesi ve K_r , rasgele yığılma düzeltmesi faktörleridir.

2.8.1 Gama Işını Öz Soğurma Düzeltme Faktörü

Gama-ışını öz soğurma (self absorption) düzeltmesi, gama ışınlarının madde içerisinde soğurulmalarını hesaba katmak için yapılması gereken en önemli düzeltme faktörlerinden birisidir. Özellikle 200 keV γ-ışını enerjilerinin altında baskın bir faktördür. Düzeltme, numunenin veya kalibrasyon kaynaklarının içinden geçen gama ışınlarının, örnek matrisi ve yoğunluğu nedeniyle soğurulması sonucunda, fotopik sayımında oluşan kayıpları düzeltmek için, özellikle yüksek atom numaralı elementleri içeren ve yüksek yoğunluklu matrislerde gama ışını öz soğurma etkisi ihmal edilemeyecek seviyelerde olabilir (Galloway *et al.* 1991) Bu çalışmada kullanılan CRM'lerin ve çok nüklitli standard kaynakların kimyasal bileşimleri bilindiğinden, öz soğurma faktörleri dedektör uç kabı üzerinde silindir geometri için bilinen yaklasımlarla hesaplanır (Cutshall *et al.* 1983).

Dedektör uç kabı üzerine yerleştirilen bir silindir geometrideki numune için (Şekil 2.8) gama öz soğurma düzeltme faktörü verilen enerjilerde belirlenmektedir (ASTM E181 1998, Nir-El 2000, Korun 2000).

$$K_{s} = \frac{\mu d}{1 - e^{-\mu d}} \qquad \text{veya} \qquad K_{s} = \frac{\left(\frac{\mu}{\rho}\right) \cdot d \cdot \rho}{\left(1 - e^{-(\mu/\rho)d \cdot \rho}\right)} \qquad (2.22)$$

Burada μ (cm⁻¹), kütle azalım katsayısı μ_s (cm²g⁻¹)'nin numune miktarı (g) ile çarpılıp, numune hacmine (cm³) bölünmesiyle elde edilen lineer azalım katsayısıdır. Numune kalınlığı olarak d uzunluğu (cm) fotonların ortalama serbest yolu (mean free path) yaklaşık numune yüksekliği alınabilir ya da d_{eff} (cm) ortalama kiriş uzunluğuna (mean chard length) eşittir. ortalama kiriş uzunluğuna (d_{eff}) toplam yüzey alanı S (cm²) ve hacmi V (cm³) olan numune geometrisinin etkin yüksekliği ise d_{eff} (cm) = 4V/S'dir. Diğer bir yaklaşım olarak d uzunluğu dedektör üzerine konulan silindir numuneler için fotonların alacağı en uzun yol d_{max} (cm) aşağıdaki eşitlik ile verilir (Korun 1999, Korun 2000).

$$d_{\max} = \left(\frac{d}{d+d_c}\right) \cdot \sqrt{\left(r+r_c\right)^2 + \left(d+d_c\right)^2}$$
(2.23)

Burada d, numune kalınlığını, d_c , numune ile kristal arasındaki mesafe, r, numunenin yarıçapı, r_c ise dedektör kristalinin yarıçapıdır.



Şekil 2.8 Silindir geometrideki numunenin dedektör üzerindeki konumu

Daha sonra her bir CRM numunelerinin sertifikalarında belirtilen kimyasal bileşenleri kullanılarak $\mu/\rho = \mu_k$ değerleri NIST XCOM veri tabanından hesaplanır (CRM, 2008). Silindirik bir geometri için tez çalışmasında kullanılan çeşitli CRM numuneleri için eşitlik 2.22'den hesaplanan öz soğurma faktörleri Çizelge 4.3, Çizelge 4.4, Çizelge 4.5, Çizelge 4.6, Çizelge 4.7, Çizelge 4.8, Çizelge 4.9, Çizelge 4.10 ve Çizelge 4.11'de verilmiştir. Çizelgelerden görüldüğü gibi, öz soğurma etkileri özellikle düşük enerjili gama ışınlarında (<100 keV) fotoelektrik olayların baskın olması nedeniyle belirgin bir şekilde yüksektir. Bu da esas olarak herhangi bir γ -ışını enerjisinde matrisin etkin atom numarası ve yoğunluğuna doğrudan bağlıdır.

Öz soğurma düzeltme faktörünün belirlenmesi için numune sayım geometrileri de dikkate alınarak çeşitli yöntemler uygulanmıştır.

Bu çalışmada silindir geometri için hesaplanan gama öz soğurma faktörleri, aynı dedektörde farklı bir geometri kullanıldığında değişmektedir. Örneğin, numune dedektör kuyusunda ölçülecek olursa öz soğurma etkileri daha az olacaktır. Çünkü deney tüpüne doldurulacak numune daha incedir ve fotonların numune içinde kat edeceği ortalama serbest yol daha kısadır (Appleby *et al.* 1992, Yücel *et al.* 1998).

Öz soğurma katsayısı deneysel olarak da belirlenebilir. Bu amaçla gama transmisyon yöntemi basitçe uygun enerjili nokta kaynaklar kullanılarak numune üzerine yerleştirilerek ölçülmesi esasına dayanır (Cutshall *et al.* 1983).

2.8.1.1 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün hesaplanması (NIST veri tabanı kullanılarak)

Örneğin (veya standart kaynağın) öz soğurma faktörünün kuramsal olarak hesaplanması için kimyasal bileşiminin tam olarak bilinmesi gereklidir. Belirli bir enerjide kimyasal bileşime ait toplam kütle soğurma katsayısı

$$\mu_k = \sum_{i=1}^n w_i \mu_i \tag{2.24}$$

eşitliği ile hesaplanır. Burada μ_i , maddenin kimyasal bileşiminde bulunan her bir bileşenin kütle soğurma katsayısı; w_i ise bu bileşenlerin kütle ağırlık katsayılarıdır. Kimyasal bileşim %100'e eşit olmadığında eksik olan W_i kesirleri 1'e normalize edilerek yaklaşık olarak bileşenlere paylaştırılır.

Burada μ_k , ilgilenilen enerjideki kütle soğurma katsayısı ($\mu_k = \mu/\rho$, cm² g⁻¹); ρ , maddenin görünür yoğunluğu (g cm⁻³); d, maddenin kalınlığıdır (cm). Bu eşitlik, numune ve dedektör arasına ilave bir soğurucu konulduğunda $F_a = e^{\mu_k \rho t}$ katsayısı olarak hesaplanır. Burada t, soğurucu kalınlığı, μ_k , soğurucu kütle soğurma katsayısı, ρ ise soğurma yoğunluğudur.

NIST XCOM referans veri tabanına numunelerin önceden bilinen kimyasal element bileşimleri oranlarıyla birlikte girilerek, gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörü için gerekli kütle soğurma katsayıları (μ/ρ (cm²/g)) elde edilmektedir.

2.8.1.2 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün Monte Carlo simülasyon programı kullanılarak hesaplanması

Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün belirlenmesinde kullanılan bir diğer yöntemde GESPECOR MCNP simülasyon programının kullanılmasıdır. GESPECOR MCNP programına dedektör, geometri, zırh ve ölçülecek malzemeye ait parametrelerin tanıtılması gerekmektedir. Dedektöre ait parametreler; kristalin çapı, uzunluğu, dedektör tutucunun kalınlığı, kullanılan malzeme ve yoğunluğu, uç kabın çapı, pencere kalınlığı, kullanılan malzeme ve yoğunluğu, aktif yüzeyle giriş penceresi arasındaki mesafe,...vb), numune geometrisine ait parametreler; numune kabının geometrisi, çapı, duvar kalınlığı, kullanılan malzeme ve yoğunluğu, numune yüksekliği, dedektör uç kabı ile numune kabının arasındaki

mesafe, dedektör etrafındaki zırha ait parametreler ise zırhın iç çapı, iç yüksekliği, dış çapı, dış yüksekliği, kullanılan malzeme ve yoğunluğu, dedektör uç kabı ile zırh arasındaki mesafe, ölçülecek malzemeye, numuneye ait parametreler ise; numunenin kimyasal bileşimi, içerisinde hangi elementlerden olduğu ve bu elementlerin yüzdece ne kadar olduğu, yoğunluğudur. Tüm bu parametreler programa tanıtıldıktan sonra, program F_s değerlerini etkileşim kesitlerini kullanarak hesaplar. Dolayısıyla öz soğurma hesaplaması istenilen malzemeler (CRM'ler) ve istenen enerjiler için öz-soğurma faktörleri hesaplanmıştır. Bu durumda KORDATEN veri tabanında kütle azalım katsayıları kullanılmaktadır.

2.8.2 Gerçek zamanlı çakışma düzeltme faktörü

Herhangi bir radyonüklitin nükleer seviyelerinin ömürleri, gama spektrometre sistemlerinin çözümleme zamanından daha kısadır. Örneğin, ⁶⁰Co atomunun bozunmasında γ ve X-ışınları eş zamanlı olarak yayılır ve büyük olasılıkla dedektör tarafından aynı anda dedekte edilirler. Bu olay sonucunda da, puls iki farklı fotonu toplam enerjisini gösterecek şekilde kaydedilecektir. Bu, gerçek çakışma toplam etkisidir (true coincidence summing-TCS). Bu çakışmada sonunda yayılan iki γ -ışınının veya bir γ , bir X-ışınının toplamıdır. Bu rastgele toplamayla meydana gelen olaylar sonucunda tüm enerji (full energy) γ -ışın piklerinin sayımlarında azalma gözlenir (Garcia-Talavera *et al* 2001, Kolotov and Koskelo 1998).

Gerçek zamanlı çakışma (TCS), aynı çekirdekten yayınlanan iki gama ışınının aynı anda dedektör dahil tüm spektrometrenin çözme zamanı içinde etkileşmesi sonucu, dedektöre gelen iki veya daha fazla sayıda gama ışınının soğurularak tek bir gama ışını olarak algılanmasıdır.

İlk gelen foton (E₁) ile eş zamanlı gelen ikinci fotondan enerjisini (E₂) dedektör kristaline aktardığında, (E₁+E₂) enerjili toplam bir puls meydana gelebilir. Bu durumda, E₁ ve E₂ enerjili ilk ve ikinci fotonun meydana getireceği tüm enerji soğurma (full energy peak = photopeak) piklerinden birer puls sayım kayıbı meydana gelir. Dolayısıyla, toplam (summing-in) piklerin meydana gelme olasılığı, dedektörün toplam veriminin artmasıyla artacaktır. Diğer bir ifadeyle kaynak-dedektör arası mesafe azaldıkça toplam etkisi artar, ancak bu olaylar sayım hızından bağımsızdır. TCS etkisi; büyük hacimli dedektörlerde, karmaşık bozunma şemasına sahip çok geçişli (cascading) nüklitlerde ve kaynak dedektöre yaklaştıkça artar (Şekil 2.9).



Şekil 2.9 TCS etkisinin kaynak-dedektör mesafesi ile değişimi (Gilmore, 2000 kitabından alınmıştır)

TCS etkisinin en baskın olduğu durum ise kuyu tipi dedektör kullanılması durumudur. TCS etkisi, ancak, aynı geometride aynı radyonüklitin bir standardıyla numune karşılaştırılarak ölçülmesi özel durumunda ihmal edilebilir (Gilmore 2000).

Gerçek koinsidens yığılma etkilerini düzeltilmesi prensibinin açıklanması için basit bir bozunma şemasına sahip ⁶⁰Co nükliti ele alındığında (Şekil 2.10) ve problemi basitleştirmek için;

(i) Kaynağın nokta kaynak olduğu

(ii) Kaynaktan yayınlanan β radyasyonunun dedektör penceresinde soğurulduğu, dolayısıyla β - γ koinsidens (çakışma) etkisinin ihmal edildiği

(iii) Bremsstrahlung (frenleme) radyasyonunun ihmal edilecek derecede az olduğu

(iv) Kullanılan spektrometrenin çözme zamanı içinde (ns) enerjileri $E_1=1173,2$ keV ve $E_1=1332,5$ keV olan γ_1 ve γ_2 ışınlarının yayınlandığı

(v) γ_1 ve γ_2 ışınları arasında açısal bir ilişki olmadığı

(vi) Bu gama geçişlerinin bozunma esnasında iç dönüşüme (internal conversion) uğramayacakları varsayıldığında

23


Şekil 2.10⁶⁰Co nüklitinin gerçek koinsidens yığılma düzeltmesinin açıklanması için bozunma şeması (Table of Isotopes'den alınmıştır)

 E_1 =1173,23 keV enerjili γ_1 ışınının gama spektrometresinde meydana getireceği fotopikte sayım hızı hiçbir koinsidens etkisi yok iken;

$$N_{10} = A \cdot P_1 \cdot \varepsilon_{P1} \tag{2.25}$$

Burada A, ⁶⁰Co kaynağının aktivitesi, P₁, γ_1 enerjisinin yayınlanma olasılığı, ε_{P1} , E₁ enerjisinde dedeksiyon sisteminin tüm enerji pik verimidir.

Doğal olarak, γ_1 = 1173,2 keV enerjili fotopikte gözlenen pulslarda, gerçek koinsidens etkisi meydana geldiğinde sayım kayıpları (summing-out) oluşacağından, spektrometrede bu pikin vereceği sayım N₁, daima N₁₀ (koinsidens yok) den daha küçük olacaktır. Şekil 2.10'daki bozunma şemasından görüleceği gibi, her bir γ_1 ışını hemen hemen eş zamanlı (spektrometrenin çözme zamanı µs seviyesinden daha uzun) olarak γ_2 takip edecektir. Bu iki puls orijinal konumlarından farklı bir kanalda E_{toplam}= 1173,2+1332,5=2505,8 keV tek bir puls olarak gözleneceğinden, koinsidens yayınlanan γ_1 ve γ_2 piklerinden birer puls kaybedilmiş olacaktır.

Bu durumda, γ_1 = 1173,2 keV enerjili ⁶⁰Co'ın gama ışının fotopikindeki ölçülen sayım hızı:

$$N_1 = A \cdot P_1 \cdot \varepsilon_{P_1} - A \cdot P_1 \cdot \varepsilon_{P_1} \cdot \varepsilon_{t_2} = A \cdot P_1 \cdot \varepsilon_{P_1} (1 - \varepsilon_{t_2})$$
(2.26)

ifadesi yazılabilir. Burada γ_2 = 1332,5 keV'lik gama ışınının, koinsidens olasılığı toplam verim ε_{t2} 'ye eşittir. γ_1 = 1173,2 keV piki için gerçek koinsidens düzeltme faktörü C₁ = (İdealde fotopikte hiç kayıp olmadığı sayım hızı)/(Gerçek spektrumda gözlenen sayım hızı) olarak tanımlandığına göre yukarıdaki Eşitlik 2.25 ve Eşitlik 2.26'den TCS düzeltme faktörü

$$F_{COI-1} = \frac{N_{10}}{N_1} = \frac{1}{1 - \varepsilon_{t2}}$$
(2.27)

olur. Benzer şekilde ⁶⁰Co'ın ikinci piki γ_2 = 1332,5 keV'deki durum, γ_2 ışınlarının belirli bir kesrinin β bozunumundan önce geldiğinden γ_2 için fotopikte gözlemlenecek sayım hızını (N₂)

$$N_{2} = A \cdot P_{2} \cdot \varepsilon_{P2} - A \cdot P_{2} \cdot \varepsilon_{P2} \cdot \frac{P_{1}}{P_{2}} \cdot \varepsilon_{t1} = A \cdot P_{2} \cdot \varepsilon_{P2} \left[1 - \left(\frac{P_{1}}{P_{2}}\right) \cdot \varepsilon_{t1} \right]$$
(2.28)

olacağı düşünülürse γ_2 = 1332,5 keV'lik gama ışınının gerçek koinsidens düzeltme faktörü

$$F_{COI-2} = \frac{N_{20}}{N_2} = \frac{1}{1 - (P_1 / P_2)\varepsilon_{t2}}$$
(2.29)

olacaktır (Debertin and Helmer 1988). Burada P_1/P_2 , γ_2 'den öncelikli yayınlanan γ_1 'lerin kesridir.

Dedektörün toplam verimi ε_t , numune dedektöre yaklaştıkça (yakın sayım geometrisi) 1'e yaklaşır. Örneğin, kuyu tipi dedektörlerde ε_t 1'e yaklaşır ancak daima 1'den düşük olmalıdır. $\varepsilon_t = 0.3$ olan bir dedektör için, $F_{COI-1} = 1/(1-0,3) = 1,43$ düzeltme faktörü hesaplanır. Bunun anlamı, sayım hızında %43'lük bir düzeltme gereklidir.

⁶⁰Co'ın γ_1 ve γ_2 piklerinin dedektörün çözme zamanı içinde ⁶⁰Co'ın üçüncü piki γ_3 üzerine artırıcı bir etkisi olabilir. Bu durum, 1173,2+1332,5 = 2505,8 keV meydana gelmesiyle sonuçlanan gerçek koinsidens olayları (summing-in) etkisini hesap edebilmek için bu

olasılığın $P_{summin g-in} = P_1 \varepsilon_{P_1} \varepsilon_{P_2}$ olduğunu ve hiçbir yığılma (toplam) etkisi olmadığı durumda $\gamma_3 = 2505,8$ keV pikinde (sadece bozunma nedeniyle) sayım hızı,

$$N_{30} = A \cdot P_3 \cdot \varepsilon_{P3} \tag{2.30}$$

olduğu dikkate alınırsa spektrometrede E₃=2505.8 keV'de gözlenecek sayım hızı ise,

$$N_3 = AP_3\varepsilon_{P3} + AP_1\varepsilon_{P1}\varepsilon_{P2} \tag{2.31}$$

olacaktır. γ₃'üncü pik için gerçek koinsidens etkisini düzeltme faktörü ise

$$F_{COI-3} = \frac{N_{30}}{N_3} = \frac{1}{1 + P_1 \varepsilon_{P_1} \varepsilon_{P_2} / (P_3 \varepsilon_{P_3})}$$
(2.32)

olarak belirlenir. Eşitlik-2.32'den görüleceği üzere γ_3 =2505,8 keV toplam etkisi (summing-in) sadece dedektördeki γ_1 ve γ_2 enerjilerinin fotopik verimlerine bağımlıdır, toplam verimden bağımsızdır. ⁶⁰Co basit bir bozunma şemasına sahip ancak daha karmaşık bozunma şemalarına sahip ve bu bozunma süreçlerinde çoklu art arda geçişlerin (multicascading transitions) olduğu nüklitler için bu olasılıklar, ayrı ayrı formüllerle hesaplanır veya MCNP simülasyon programlarıyla belirlenir. Daha sonra bu TCS olasılıkları, ilgilenilen sayım geometrisine özgü ölçüm parametreleriyle birleştirilerek TCS düzeltme faktörleri hesaplanır.

Bu tez çalışmasında kullanılan TCS hesaplama modelinde, TCS faktörünün hesaplanabilmesi için toplam enerji pik verimi (FEP) ve fotopik - toplam kavramı TTP (peak-total ratio, T/P) verim eğrileri ölçüm değerlerinden elde edilmiştir.

Toplam verim ölçümlerinde kalibrasyon kaynağından yayılan, özelikle ¹⁰⁹Cd'un 88 keV enerjideki P/T oranının eğimli olmasına neden olan düşük enerjili X ışınlarının elimine edilmesi için dedektör ile kaynak arasına 3,175 mm kalınlığında Al soğurucu (840 mg cm⁻²) yerleştirilmiştir.

Toplam/pik (P/T oranı) verim eğrisi koinsidens etkisi olmayan (coincidence free) tek enerjili nokta kaynaklarla (²⁴¹Am, ⁵⁷Co, ¹⁰⁹Cd, vb) belirlenmektedir. Daha sonra Eşitlik 2.33'de verilen logaritmik polinom kullanılarak, düşük ve yüksek enerji bölgeleri için iki kısımda tanımlanmaktadır.

$$\ln\left(\frac{P}{T}\right) = \left[a_1 + a_2 \ln(E) + a_3 \ln^2(E)\right]$$
(2.33)

Daha sonra P/T verim eğrisine ait fit parametreleri $(a_1, a_2 ve a_3)$ elde edilerek bunlar kolaylıkla ulaşılabilen TCS hesaplama programı olan TrueCoinc'e girilerek herhangi bir nüklit için TCS faktörü hesaplanabilir (Sudar 2002.)

P/T oranları, ölçüm geometrisinden bağımsız olduklarından ve kaynak-dedektör mesafesi ile toplam verim (ε_T) eğrisinin şekli fazla değişmediğinden Eşitlik-2.33 ile verilir. Bu nedenle P/T oranı tek bir geometri için belirlendi.

Daha sonra P/T oranı ve FEP verim eğrilerine ait fit parametreleri elde edilmiştir. Bu parametre değerleri bir TCS hesaplama programı olan TrueCoinc programına girilerek herhangi bir nüklit için TCS faktörü hesaplanabilir.

2.8.3 Spektral girişim düzeltmesi

Bu tez çalışmasında, gama spektrumlarında analitik amaçlı olarak kullanılan fotopiklere bozucu etki yaparak sayım değerlerini değiştiren ve böylece yanlış bir aktivite değeri elde etmeye neden olan spektral girişim piklerini belirlemek ve bunların düzeltilmesi için yöntemlerin geliştirilmesi amaçlanmaktadır. Çünkü, gama spektrometrik yöntem ile radyoaktivite ölçümünde, aynı anda örneklerde bulunan doğal radyonüklitlerden ²³²Th, ²²⁶Ra, ²³⁵U, ²³⁸U ve bunların bozunma ürünleri nedeniyle karmaşık gama spektrumları elde edilir. Bu karmaşık spektrumlardaki bazı pikler, analitik piklerin üstüne katkı vererek birbirlerini etkiler. Bu olaya, **spektral girişim** adı verilir. Doğru ve hassas bir ölçüm sonucuna ulaşmak için bu spektrumların spektral çözümlenmesi ve girişim piklerinin değerlendirilmesi süreci çok önemlidir.

Örneklere ait gama spektrumları elde edilirken ilgilenilen analitik piklere bozucu katkı veren spektral girişim piklerinin ayıklanmaları mümkün değildir. Bu nedenle bu bozucu katkı veren

gama ışınlarının analitik pike girişim (interfering) katkılarının düzeltilmesi bir gerekliliktir. Girişim piklerinin etkisi düzeltilmediği takdirde, ölçülen nicelik (örneğin, fotopik sayım değeri ve buna bağlı aktivite veya derişim) gerçekte olması, ölçülmesi gereken değerden farklı çıkabilmektedir.

Spektral girişim düzeltme metodu ²³⁸U, ²³⁵U ve ²³²Th aktivite sonucunda kullanılacak analitik pikler için uygulanacaktır. Dolayısıyla öncelikle analiz amaçlı hangi piklerin kullanılacağına karar verilir. Burada dikkat edilmesi gereken nokta, kullanılan pikin spektral olarak temiz ve gama yayınlama olasılığının yüksek olmasıdır. Analitik piklere katkı yapan spektral girişim piklerinin, analitik pike olan katkısı hesaplanırken bir kriter belirlenmesi gerekmektedir. Bu tez çalışmasında, spektral girişim düzeltmesi için, analitik amaçlı olarak kullanılan fotopiklerde spektrumun, düşük enerji bölgesinde (300 keV'in altında) sistemin enerji ayırma gücü YYTG=±1 keV, yüksek enerji bölgesinde (300-2000 keV) YYTG=±2 keV içerisinde ve gama yayınlama olasılığı 1x10⁻⁴'ten daha şiddetli olan tüm pikler hesaba katılarak bir kriter konulmuştur.

Verilen bir nüklitin herhangi üst üste binen gama ışınlarının katkısı r, aşağıda gösterildiği gibi net pik alanlarının oranından hesaplanır (Yücel *et al.* 2010a)

$$r = \frac{N_{p,i}(E_i)}{N_{p,mix}(E)}$$
(2.34)

Burada $N_{pi}(E_i)$ verilen nüklitte, E_i enerjili i.nci pikin net alanı, $N_{p,mix}(E)$ ilgili nüklitten yayınlanan E enerjili girişimli pikin net alanıdır. İlgilenilen girişimli pikin üst üste binen gama ışınlarının pik alanlarının toplamı ($N_{p,mix}(E)$) Eşitlik 2.35 ile hesaplanır.

$$N_{p,mix}(E) = \sum_{i=1}^{n} N_{p,i}(E_i)$$
(2.35)

Fakat, burada dikkat edilmesi gereken en önemli nokta, girişim katkısı r evrensel bir sabit değildir, her nüklite özgü bulunan bir sabittir. Çünkü bu sadece elde edilen spektrumun karmaşıklığına ve ölçüm sisteminin ayırma gücüne bağlı olduğu gibi, aynı zamanda ölçülen numunenin nüklit içeriklerine de bağlıdır. Bu yöntemde girişimli pikin üst üste binen gama

ışınlarının gama yayınlama olasılıklarıyla da doğrudan ilişkilidir. Bu nedenle, spektral girişim düzeltmesinde ilk adım analizde kullanılacak gama ışınlarını ve bunların gama ışın yayınlama olasılıklarını belirlenmesi gerekir.

Spektral girişim metodu analitik pikler için tanımlanmaktadır. Bu tez çalışmasında analiz süreçlerindeki önemleri nedeniyle 18 analitik pik için spektral girişim düzeltmesi tanımlanmıştır. Bu analitik pikler 46,5 keV(²¹⁰Pb), 63,3 keV (²³⁴Th), 129,0 keV (²²⁸Ac), 143,8 keV (²³⁵U), 186,1 keV (²²⁶Ra), 238,6 keV (²¹²Pb), 300,1 keV (²¹²Pb), 338,3 keV (²²⁸Ac), 351,9 keV (²¹⁴Pb), 463,0 keV (²²⁸Ac), 583,2 keV (²⁰⁸Tl), 609,3 keV (²¹⁴Bi), 727,3 keV (²¹²Bi), 860,5 keV (²⁰⁸Tl), 911,2 keV (²²⁸Ac), 1001,0 keV (^{234m}Pa), 1120,3 keV (²¹⁴Bi), 1238,1 (²¹⁴Bi). Bu piklerden 63,3 keV (²³⁴Th) ve 1001,0 keV (^{234m}Pa), ²³⁸U aktivite sonucunda, 143,8 keV, 163,3 keV ve 185,7 keV (²³⁵U), ²³⁵U aktivite sonucunda, ²²⁸Ac'in 129,1 keV, 209,3 keV ve 911,2 keV pikleri ile ²⁰⁸Tl'in 277,4 keV, 583,2 keV ve 860,6 keV pikleri de ²³²Th aktivite sonucunda kullanılacak analitik piklerdir.

Tez çalışmasında önerilen spektral girişim düzeltme metodu şu şekilde çalışmaktadır: Öncelikle analitik pike katkı veren girişim pikleri genellikle spektral olarak temiz, diğer piklerle herhangi bir girişim halinde olmayan piklerden biriyle (referans pik) düzeltilir. Metot, aynı nüklite ait farklı enerjideki piklerinden hesaplansa bile aktivitelerinin eşit olacağı prensibine dayandığı için, seçilecek referans pikin girişim piki ile aynı nüklit veya aynı radyoaktif seriden nüklit olması gerekmektedir. Metodu, 46,5 keV (²¹⁰Pb) analitik piki için açıklayalım: 46,5 keV (²¹⁰Pb) analitik piki, 46,35 keV (²³¹Pa)'in piki ile girişim halindedir (Şekil 2.11). Yani, spektrumda iki ayrı pik tek bir toplam pik olarak görünmektedir. İlk olarak, bu karışık pikten, yani 46,539 keV'e spektral olarak girişim yapan ²³¹Pa (²³⁵U) 46,35 keV pikinin katkısının hesaplanması gerekmektedir.



Şekil 2.11 Spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

Bu katkının hesabında referans pik olarak ²³⁵U'in en şiddetli gama yayınlama olasılığına (%57,2) sahip ve en az gerçek çakışma etkisi (TCS) olan 185,7 keV piki kullanılmaktadır. ²³⁵U miktarının belirlenmesinde, 143,8 keV (%10,96), 163,3 keV (%5,08), 202,1 keV (%1,08), 205,3 keV (%5,01) de ²³⁵U'in kendisinden yayılan gama ışın pikleri yeterince şiddetlidir fakat kullanılmamaktadır. Bunun sebebi ise, yüksek miktarda doğal toryum içeren örneklerde, bu piklerin kendilerine yakın enerjilerdeki piklerle spektral olarak üst üste binmeleridir. ²³⁵U katkısının hesabında kullanılan 185,7 keV piki de 186,1 keV (²²⁶Ra) ile spektral girişim halindedir. Dolayısıyla öncelikle [185,7 keV ²³⁵U+186,1 keV ²²⁶Ra] karışık pikten 186,1 keV (²²⁶Ra) katkısının hesaplanması gerekmektedir. Bunun için spektral girişimin en az olduğu 295,2 keV ²¹⁴Pb (²²⁶Ra) "referans" pik olarak seçilmiştir. 295,2 keV, ²¹⁴Pb nüklitinin pikidir fakat ana radyonükliti olan ²²⁶Ra'nın yarı ömrü (1600 yıl), ürün radyonüklit olan kendi yarı ömrüne (26,8 dakika) göre değerlendirildiğinde sürekli denge

halindedirler. Bu metod, ²³⁸U (4,468×10⁹ yıl) ile ilk bozunma ürünü olan ²³⁴Th (24,1 gün) ve hemen arkasından ²³⁴Pa (1,17 dakika) ile yine sürekli dengede olduğu varsayımına dayanır.

Dolayısıyla metodun uygulanmasının başlangıç noktası olan aynı nüklitin farklı enerjideki piklerin aktivitelerinin eşit olması öncelikle ²²⁶Ra nükliti için uygulanmıştır (Eşitlik 2.36).

$$A[186.1 \text{ keV}, \ ^{226}\text{Ra}] = \frac{(N_p)_{186.1 \text{ keV}, \ ^{226}\text{Ra}}}{(I_{\gamma} \varepsilon_p F_{\text{COI}} F_{\text{s}})_{_{186.1 \text{ keV}, \text{Ref}}}}$$
(2.37)

$$A[295.2 \text{ keV}, {}^{226}\text{Ra}] = \frac{(N_p)_{295.2 \text{ keV}, {}^{226}\text{Ra}}}{(I_{\gamma} \varepsilon_p F_{\text{COI}} F_s)_{}_{}_{_{295.2 \text{ keV, Ref}}}}$$
(2.38)

Daha önce açıklandığı gibi A, ilgilenilen radyonükliti içeren standardın aktivitesi; N_p, net sayım hızı, I_γ, gama yayınlama olasılığı, ε_p , ilgilenilen enerjideki mutlak fotopik (FEP) verimi, F_{COI}, (TCS) gerçek çakışma toplam düzeltme faktörü ve F_s öz-soğurma düzeltme faktörüne bağlıdır. Dolayısıyla, Eşitlik-2.36'daki aktivite bağıntısında ki tüm bu parametreler yerlerine konulduğunda;

Eşitlik 2.37 ve 2.38, Eşitlik 2.36'da yerlerine konulduğunda;

$$\frac{N_{p}\left[186,1keV,\ ^{226}Ra\right]}{\left[I_{\gamma}\epsilon_{p}F_{COI}F_{s}\right]_{186,1keV}} = \frac{N_{p}\left[295,2keV,\ ^{214}Pb\right]}{\left[I_{\gamma}\epsilon_{p}F_{COI}F_{s}\right]_{295,2keV}}$$
(2.39)

elde edilir. Buradan düzeltilmesi istenen nüklite (186,1 keV (²²⁶Ra)) ait net sayım hızı bulunabilir (Eşitlik 2.39).

$$N_{p} [186.1 \text{ keV}, {}^{226}\text{Ra}] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{1861 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{295.2 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} [295.2 \text{ keV}, {}^{214}\text{Pb}]_{\text{Ref}}$$
(2.40)

Burada, alt indisle gösterilen "Ref", referans pik ise genellikle spektral olarak temiz, diğer piklerle herhangi bir girişim halinde olmayan piklerden seçilmelidir. Ayrıca, Eşitlik 2.35'de ²²⁶Ra katkısı değerlendirilirken, ²¹⁴Pb (²²⁶Ra)'in 295,213 keV'in dışında, 351,9 keV pikide referans pik olarak kullanılabilir. Bazı ölçümlerde, bu iki referans pikin ağırlıklı ortalamaları alınarak da hesaplanmıştır. Bu şekilde 186,1 keV'den gelen katkı hesaplanarak, 46,35 keV'in düzeltilmesinde kullanılacak 185,7 keV'in net sayım hızı belirlenmiş oldu.

46,53 keV (²¹⁰Pb) pikine ait net sayım hızı hesaplamasında da benzer eşitlikler kullanılmaktadır. 46,35 keV'e ait net sayım hızı,

$$N_{p}\left[46.35 \text{ keV}, \frac{231}{1}\text{Th}\right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{\text{COI}} F_{s}\right]_{46.35 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{\text{COI}} F_{s}\right]_{185.7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p}\left[185.7 \text{ keV}, \frac{235}{1}\text{U}\right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(2.41)

eşitliğinden hesaplanmaktadır. Burada f, doğal uranyum içeren örneklerdeki ²³⁸U/²³⁵U aktivite oranıdır. Bu tez çalışmasında, f değeri IUPAC veritabanına göre $f \cong 21.72 \pm 0.03$ alınmıştır (Rosman ve Taylor, 1998). Sertifikalı referans malzemelerde ²³⁴Th ve ^{234m}Pa nüklitlerinin ²³⁸U ile seküler dengede olduğu varsayılır. Bu nedenle, doğal uranyumda ²³⁴Th, ^{234m}Pa ve ²³⁵U'in bozunma hızları oranı 1:1:1/21.72 alınır.

Dolayısıyla, Eşitlik 2.41'de 46,35 keV ve 185,7 keV'e ait parametreler girildiğinde analitik pike (46,539 keV(²¹⁰Pb)), 46,35 keV (²³¹Th) katkısı belirlenmiş olur.

2.8.4 Ölçüm süresi düzeltme faktörü

Ölçümlerde örneğe ait spektrumun sayıldığı aktif sayım süresi olarak live time (LT) kullanılır. LT, sistemin aktif olarak sayım yaptığı ölü zaman nedeniyle olan sayım kayıplarının düzeltildiği süredir. Gerçek zaman saati (real time), ölü zaman nedeniyle olan kayıplarında sayıldığı toplam süreyi gösterdiği için live time süresine göre daha uzundur. Bunu hesaba katmak için ölçme anındaki gerçek zamana göre bir düzeltme faktörü hesaplanır. Ölçüm süresi boyunca oluşan bozunma için düzeltme faktörü

$$K_{c} = \frac{t_{1/2}}{\ln 2 \cdot t_{r}} \left(1 - \exp\left(-\frac{\ln 2 \cdot t_{r}}{t_{1/2}}\right) \right)$$
(2.42)

ile verilir. Burada t_r, ölçüm boyunca geçen gerçek süredir (real time). Yarı ömrü çok uzun olan nüklitler için $K_c \cong 1$ kabul edilir (Dovlete and Povinec 2004). Tez çalışmasında aktivitesi hesaplanan radyonüklitlerin (²³⁸U- 4,468×10⁹ yıl, ²³⁵U- 7,04×10⁸ yıl, ²³²Th-1,405×10¹⁰ yıl) yarı ömrü çok uzun olduğundan K_c ölçüm süresi düzeltme faktörü 1 alınmıştır.

2.8.5 Radyoaktif bozunma düzeltme faktörü

Radyoaktif bozunma istatistiksel yapıdadır yani herhangi bir atomun ne zaman bozunacağı bilinememektedir ve bozunma olayı üstel kanuna uymaktadır. Dolayısıyla, radyonüklitlerin aktivitesi zamanla azalacağı için hesaplamalarda bu azalım,

$$K_{b} = \exp\left(-\frac{\ln 2 \cdot \Delta t}{t_{1/2}}\right)$$
(2.43)

eşitliği ile dikkate alınmaktadır. Eşitlikteki Δt , örneğin toplanmasından ölçümün başladığı zamana kadar geçen süre (s) ve t_{1/2} ilgilenilen nüklitin yarı ömrüdür (s). Yarı ömrü çok uzun olan nüklitler için K_b \cong 1 kabul edilir (Dovlete and Povinec 2004). Tez çalışmasında aktivitesi hesaplanan radyonüklitlerin yarı ömrü çok uzun olduğundan, K_b radyoaktif bozunma düzeltme faktörü de, K_c ölçüm süresi düzeltme faktöründe olduğu gibi 1 alınmıştır.

2.8.6 Rasgele yığılma düzeltme faktörü

Rasgele yığılma, spektrometrenin çözme zamanı içinde, sistemde art arda oluşan iki veya daha fazla pulsun gelmesi sonucu, aynı veya farklı enerjili art arda oluşan iki pulsun eş zamanlı olarak dedekte edilmesinin bir sonucudur. Yani, iki gama ışının meydana getireceği pulslar, spektrometrenin belirli bir çözme zamanı içinde aynı sayım sistemine ulaşırlarsa, bunlar ayrık olaylar olarak ayırt edilemeyerek, bunun yerine toplam bir enerjiye karşılık tek

bir puls olarak kaydedilecektir (Örneğin ¹³⁷Cs kaynağında 661,6+661,6=1323,2 keV'de olabileceği gibi). Bu durumda gerçekte kaydedilmesi gereken puls sayısında kayıplar olacaktır. Rasgele yığılma etkisi, toplam sayım hızının ve sistemdeki yükseltecin puls genişliğinin bir fonksiyonudur. Bu nedenle, bu puls yığılması etkisi, pulsların toplam genişliği daraltılarak (şekillendirme zamanı azaltılarak) en aza indirilebileceği gibi, kaynak-dedektör mesafesi değiştirilerek (veya uygun kaynak aktivitesi sağlanarak) sayım hızı düşürülerek de azaltılabilir. Yüksek sayım hızlarında sayı olarak daha fazla pulsun sistemin çözme zamanı içerisinde birbirinden etkilenmesi söz konusudur. Pratik uygulamalarda, örneğin, sistemin ölü zaman %10'u geçtiğinde genelde puls yığılması düzeltmesi yapılması gerekir.

$$\mathbf{K}_{\mathrm{r}} = \exp(-2 \cdot \mathbf{R} \cdot \mathbf{\tau}) \tag{2.44}$$

Burada, R, spektrumdaki toplam (integral) sayım hızı (sayım/s) ve τ , sistemin çözümleme zamanıdır. Çevresel örneklerde aktivite düzeyi oldukça düşük olduğu için, dedektör hacmi ne kadar büyük olursa olsun rasgele yığılma nedeniyle oluşabilecek sayımdaki kayıplar ihmal edilebilecek düzeydedir ve $K_r \cong 1$ kabul edilir (Dovlete and Povinec 2004). Tez çalışmasında kullanılan malzeme CRM olduğu için çevresel örneklere göre aktivite düzeyi biraz daha yüksek olduğu için, K_r rasgele yığılma düzeltme faktörü tüm ölçümlerde hesaplanmıştır.

2.9 Belirsizlik Hesabı

Aktivite hesabında tek bir veri değil, birçok nicelikten yararlanılmaktadır. Kullanılan tüm niceliklerin belirsizlikleri hesaba katılmalıdır. Herhangi bir rakamsal sonuç verilirken, belirsizliği ile verilmesi gerekir. Dolayısıyla aktivite hesabında kullanılan tüm niceliklerin belirsizleri sırayla hesaplanmalı ve toplam ölçüm belirsizliği verilmelidir (ISO 1995, EURACEM/CTAC Guide CG4 2000). Bu durumda ölçüm değerinin belirsizliği birleştirilmiş standart belirsizlik olarak verilir (Çizelge 2.2).

Çizelge 2.2 Sertifikalı referans malzemeler ve standart kaynak için aktivite ve P/T ölçümleri için belirsizlik kaynakları

Belirsizlik kaynakları	Standart belirsizlik değerleri ya da	
	aralıkları (%)	
Sertifikalı referans malzemeler için pik alanı	0,06 - 7,95	
(tekrarlanan ölçümleri, fit işlemlerini ve		
background düzeltmesini içeren)		
CRM'lerin sertifika aktiviteleri	0,6 - 2,69	
Ep için pik alanı (tekrarlanan ölçümleri, fit	0,05 - 0,75	
işlemlerini ve background düzeltmesini içeren)		
EGML'lerin sertifika aktiviteleri	1,45 - 1,55	
Radyoaktif azalım (Decay)	0,1	
Numune ağırlığı	0,01	
Numune yüksekliği	1,5 - 1,7	
Gama yayınlama olasılığı	0,01 - 4,5	
Gama ışını öz-soğurma düzeltme etkileri	-	
Gerçek çakışma düzeltme etkileri	0,75 - 1,02	
Rasgele çakışma düzeltme etkileri	<1	
Toplam belirsizlik	2,5-10	

Teorik olarak numune pozisyonundan tekrarlanan ölçümlerde aynı sayım geometrisi sağlanamadığı için genelde % 0,5 belirsizlik gelmekte iken bu tez çalışmasında, Bölüm 3.6.1'de neden ve nasıl kullanıldığı açıklanan numune tutucu kullanıldığından numune pozisyonunda kaynaklanan bu belirsizlik ortadan kaldırılmıştır.

2.9.1 Aktivitenin belirsizliği

Herhangi bir örneğin doğrudan ölçme yöntemi ile belirlenen aktivitesindeki belirsizlik, ilgilenilen radyonüklitin belirli enerjisindeki fotopikin net sayım hızının, ilgilenilen enerjideki gama yayınlanma olasılığının, fotopik veriminin, örneğin madde miktarının ve düzeltme faktörlerinin bir fonksiyonudur. Buna göre Eşitlik 2.20 ile hesaplanan aktivite niceliğinin belirsizliği

$$u(A) = A \cdot \sqrt{\left(\frac{u(N_p)}{N_p}\right)^2 + \left(\frac{u(f_\gamma)}{f_\gamma}\right)^2 + \left(\frac{u(\varepsilon)}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{u(m)}{m}\right)^2 + \left(\frac{u(K)}{K}\right)^2}$$
(2.45)

ile verilir. Burada A, örneğin aktivitesi; N_p, fotopikin Compton sürekliliği ve doğal fon sayımı çıkarılmış net sayımı; $u(N_p)$, net fotopik sayımının belirsizliği; ε , fotopik verimi; $u(\varepsilon)$, fotopik veriminin belirsizliği; f_{γ} , ilgilenilen enerjinin gama ışını yayınlama olasılığı; $u(f_{\gamma})$, gama ışını yayınlanma olasılığının belirsizliği; m, örneğin miktarı; u(m), örneğin miktarındali belirsizlik; K, düzeltme faktörlerinin bileşimi; u(K) ise tüm düzeltme faktörlerini kapsayan belirsizliktir.

2.9.2 Düzeltme faktörlerinin belirsizliği

Verim hesabında kullanılan standart kaynağın ve örneğin aktivitesi belirlenirken uygulanan düzeltme faktörlerindeki belirsizlik,

$$u(K) = K \cdot \sqrt{\left(\frac{u(K_s)}{K_s}\right)^2 + \left(\frac{u(K_c)}{K_c}\right)^2 + \left(\frac{u(K_k)}{K_k}\right)^2 + \left(\frac{u(K_b)}{K_b}\right)^2 + \left(\frac{u(K_r)}{K_r}\right)}$$
(2.46)

eşitliği ile hesaplanır. Burada K, uygulanan düzeltme faktörlerinin bileşimidir. K_b, radyoaktif bozunma düzeltme faktörü; $u(K_b)$, radyoaktif bozunma düzeltme faktörünün belirsizliği; K_c, ölçüm süresi düzeltme faktörü; $u(K_c)$, ölçüm süresi düzeltme faktörünün belirsizliği; K_k, gerçek koinsidans yığılma düzeltme faktörü; $u(K_k)$, gerçek koinsidans yığılma düzeltme faktörü; $u(K_k)$, gerçek koinsidans yığılma düzeltme faktörü; $u(K_s)$; gama ışını öz soğurma düzeltme faktörü; $u(K_s)$; gama ışını öz soğurma düzeltme faktörü ve $u(K_r)$, rasgele yığılma düzeltme faktörünün belirsizliği.

3. MATERYAL ve YÖNTEM

3.1 Gama Spektrometre Sistemi

Ölçümler, Çizelge 3.1'de özellikleri verilen bir n-tipi 0,5 mm kalınlıkta Be pencereli eş eksenli Ortec marka GMX70P4-S model HPGe dedektör kullanılmıştır. Ortamdaki doğal fon radyasyonunun etkisinin en aza indirilmesi için dedektör Ortec marka HPLBS1 model zırh ile zırhlanmıştır. Bu zırh 9,5 mm kalınlığındaki çelik iskelet içinde 10 cm kalınlığında kurşun dökümüdür. Ayrıca zırhın iç kısmı floresans X-ışını sonucu ve diğer saçılan X-ışınlarını önlemek amacıyla 0.5 mm kalınlığında kalay ve kalay X-ışınlarını (24-28 keV) önlemek için 1,6 mm kalınlığında bakır ile kaplanmıştır. Zırhın taban kısmında halka şeklinde bir kurşunla kapatılmış 11,4 cm çapında boşluk vardır. Bu boşluktan dikey geometrili kriyostat (CPG-P4) ve dedektör kabloları geçmektedir. Dedektör, zırh içindeki saçılan radyasyonu en aza indirmek için zırhın merkezine yerleştirilmiştir. Ayrıca, numune etrafındaki radon ve toron kontaminasyonunu temizlemek için zırh içerisine akış hızı dakikada 0,6 litre/gün olacak şekilde azot gazı gönderilmiştir. Dedektörün azot soğutması için de 30 L hacminde, çift duvarlı (vakumlu) bir sıvı azot kabı kullanılmıştır.

Dedektör geometrisi ve kristal tipi		Eş eksenli, n-tipi	
Bağıl verimi		% 76.5	
Aktif hacmi		\sim 315 cm ^{3*}	
Ge kristali	Çap	69.9 mm	
	Yükseklik	82.6 mm	
Kriyostat kuyusu	Çap	9.2 mm	
	Derinlik	73.8 mm	
Enerji ayırma gücü (FWHM)	122 keV (⁵⁷ Co)	0.8 keV	
	1332,5 keV (⁶⁰ Co)	2.08 keV	
Pik-Compton orani	1332,5 keV (⁶⁰ Co)	74:1	

Çizelge 3.1 HPGe dedektörün özellikleri

*Teorik olarak hesaplanmıştır.

Direnç geri beslemeli önyükselteç (A257N) ve sızdırmaz HV filtreli dedektöre Ortec DSPEC jr 2.0 dijital sinyal işleme sistemi bağlanmıştır. Dedektöre bağlı dijital sinyal işleme sistemi ile yükselteç, ADC ve MCA ayarları bilgisayardan kontrol edilmiştir. Spektrumlar, Ortec Gamma Vision versiyon 6.01 gama spektroskopi yazılımı ile kontrol edilebilen sabit dönüşüm zaman ve 14 bit (16K) analog sayısal dönüştürme kazançlı çok kanallı ADC/MCA analizör ile kaydedilmiştir.

3.2 Standart Kaynakların ve Sertifikalı Referans Malzemelerin Ölçüme Hazırlanmasında Kullanılan Cihazlar

Standart kaynakların ve sertifikalı referans malzemelerin ölçüme hazırlanmasında, 200°C'ye kadar ayarlanabilen SalvisLab marka Thermocenter TC-100 etüv ve hassasiyeti \pm %10⁻²-10⁻⁴ olan And marka GR-202 hassas terazi kullanılmıştır.

3.3 Sertifikalı Referans Standart Kaynaklar ve Sertifikalı Referans Malzemeler (CRM)

Tez çalışmasında dedektörün verim kalibrasyonunun elde edilmesinde NIST tarafından izlenebilir kabul edilen Isotope Products Inc firmasından temin edilmiş sertifikalı EGML 1215-23-1 çok nüklitli (Pb-210, Cd-109, Co-57, Te-123m, Cr-51, Sn-113, Sr-85, Cs-137, Y-88, Co-60) gama referans standart kaynağı kullanılmıştır (Çizelge 3.2).

Nüklit	E (keV)	\mathbf{f}_{γ} (%)	t _{1/2}	A (kBq)	Toplam belirsizlik ²⁾ (%)
²¹⁰ Pb	47	4,18	22,3±0,2 yıl	56,1	11,4 ³⁾
¹⁰⁹ Cd	88	3,63	462,6±0,7 gün	53,3	3,1
⁵⁷ Co	122	85,6	271,79±0,09 gün	1,96	2,9
^{123m} Te	159	84,0	119,7±0,1 gün	2,54	2,9
⁵¹ Cr	320	9,86	27,706±0,007gün	65,8	3,0
¹¹³ Sn	392	64,9	115,09±0,04 gün	10,4	2,9
⁸⁵ Sr	514	98,4	64,489±0,004 gün	12,4	3,0
¹³⁷ Cs	662	85,1	30,17±0,16 yıl	8,68	2,9
⁸⁸ Y	898	94,0	106,630±0,025 gün	19,7	2,9
⁶⁰ Co	1173	99,86	5,272±0,001 yıl	10,3	2,9
⁶⁰ Co	1333	99,98	5,272±0,001 yıl	10,3	2,9
⁸⁸ Y	1836	99,4	106,630±0,025 gün	19,7	2,9

Cizelge 3.2 Sertifikalı EGML 1215-23-1 çoklu radyonüklit standardının özellikleri¹⁾

¹⁾ m= 1700,4 \pm 0,2 g, Referans tarihi: 01.10.2006

²⁾ Toplam belirsizlik k=2 genişletme katsayısı ile çarpılarak $\pm 2\sigma$ aralığında verilmiştir.

^{3) 210}Pb nüklitinin aktivitesindeki toplam belirsizliğin, beklenenden büyük olması gama ışını yayınlanma olasılığındaki belirsizlikten (4,18±0,23)% kaynaklanmaktadır (NCRP Report No. 058, 1985)

Tez çalışmasında malzeme olarak Kanada CANMET (Canadian Certified Reference Material Project)'den temin edilmiş U-Th cevheri içeren OKA-2, DL-1a, DH-1a, UTS-1, 2 ve 3 Sertifikalı Referans Malzeme (CRM) örnekleri kullanılmıştır. Ayrıca diğer mevcut CRM'ler (BL-2, BL-3, BL-2a, BL-5, CUP-1, CUP-2, RL-1) de kullanılmıştır (Çizelge 3.3)

Malzeme tanımı ^{a)}	Kod	Derişim ^{b)} (%)	
		Uranyum miktarı	Toryum miktarı
Nadir element-Toryum cevheri ^{c)}	OKA-2	2.893±0.058	0.020±0.0008
Uranyum-Toryum cevheri ^{d)}	DL-1a	0.008 ± 0.0004	0.012 ± 0.0003
Uranyum-Toryum cevheri ^{e)}	DH-1a	0.091±0.003	0.263 ± 0.0003
Uranyum cevher artığı ^{f)}	UTS-1	Bildirilmemiş	Bildirilmemiş
Uranyum cevher artığı ^{f)}	UTS-2	Bildirilmemiş	Bildirilmemiş
Uranyum cevher artığı ^{f)}	UTS-3	Bildirilmemiş	Bildirilmemiş
Uranyum cevheri ^{g)}	BL-2	Bildirilmemiş	0.453 ± 0.005
Uranyum cevheri ^{g)}	BL-3	Bildirilmemiş	1.020±0.010
Uranyum cevheri ^{g)}	BL-2a	Bildirilmemiş	0.426 ± 0.002
Uranyum cevheri ^{g)}	BL-4a	Bildirilmemiş	0.125±0.001

Çizelge 3.3 Sertifikalı referans malzemelerdeki radyonüklitler için tavsiye edilen değerler

a) Sertifikalı referans malzemeler 'Certified Reference Materials (CRM)' CANMET-Mining and Mineral Sciences Laboratories, Canada'dan temin edilmiştir.

b) Tüm değerler 95% güven aralığında verilmiştir.

c) Britolit (nadir toprak elementi) cevheri kütlece % 3,292 ThO₂ içerir, kalan komponentlerin çoğunu %33,51'le nadir element oksitleri ($RE_2O_3 + Y_2O_3$), %14.72 SiO₂, %25.32 CaO ve %5,83 Fe₂O₃ oluşturur.

d) Matris, solgun sarı arkoz (birleşiminde feldspat bulunan, kum taşı türünden bir tortul kayaç) kumtaşı (sandstone) DH-1a olarak kodlanan DH-1a radyoaktif cevherini içermektedir.

e) Cevher matrisi, % 10 pyrite içeren serisitik, feldspatik kuarsit olup, en önemli bileşenleri % 79,75 SiO₂, % 5,17 Fe, % 4,82 S ve % 3,44 Al olarak sertifikalandırılmıştır.

f) UTS-1, UTS-2 ve UTS-3 uranyum cevher artıkları için uranyum ve toryum derişim değerleri verilmemiştir.

g) BL-2, BL-3, BL-2a, BL-4a ve RL-1 uranyum cevherleri için toryum derişim değerleri verilmemiştir.

3.4 Sertifikalı Referans Standart Kaynak ve Sertifikalı Referans Malzemelerin (CRM) Hazırlanması

Sertifikalı referans malzemelerden 1-2 g (en fazla 5g) alınarak etüvde 105-110°C'de en az 4 saat veya bir gece (14-15 saat) kurutularak % nem tayini yapılmıştır. Aktivite sonuçları kuru ağırlık üzerinden (dry mass) verilmiştir.

Daha sonra, standart kaynak (EGML 1215-23-1) ile sertifikalı referans malzemeler (CRM) küçük silindir (KS) adını verdiğimiz iç çapı 4,3 cm olan plastik silindirik kaplar içerisine numune yüksekliği 3.6 cm olacak şekilde doldurulmuştur (Şekil 3.1). Örnekler ile standart kaynağın aynı boyutlarda ki numune kabında hep aynı seviyede numune yüksekliğinde ve homojenlikte doldurulması sağlanmış olduğuna dikkat edilmiştir.



Şekil-3.1 Numune kabı doldurma yüksekliği

Hazırlanan standart kaynakların ve CRM'lerin net ağırlıkları belirlendikten sonra silikonla örnek kaplarının hermetik sızdırmazlıkları sağlanarak, ²²⁶Ra'nın ürün nükliti ²²²Rn ile radyoaktif dengeye gelmesi için tüm numuneler ölçümden önce en az bir ay süreyle bekletilmiştir.

Sertifikalı Referans Malzeme (CRM)	$m \pm u(m)^{(1)}(g)$	
UTS-1	86,911±0,011	
UTS-2	82,185±0,011	
UTS-3	82,091±0,011	
DL-1a	64,097±0,008	
DH-1a	67,474±0,008	
OKA-2	92,763±0,011	
OKA-2+CaCO3	51,754±0.006	
CUP-1	74,152±0,009	
BL-2	67,638±0,008	
BL-3	67,624±0,008	
BL-5	74,960±0,009	
BL-2a	67,696±0,008	
BL-4a	68,352±0,008	
RL-1	51,742±0,006	

Çizelge 3.4 Hazırlanan sertifikalı referans malzemelerin miktarları (g)

¹⁾Miktarlardaki belirsizlik, $\pm 1\sigma$ güven aralığında $u(m) = [0,0002 + 0,0001215 \times m(g)]/2$ ile hesaplanmıştır.

3.5 Doğal Fon Spektrumunun Ölçülmesi

Herhangi bir numunenin doğru ve kesin bir şekilde aktivite sonucunun belirlenmesi için, laboratuar ortamının da doğal fon spektrumunun ölçülmesi gerekmektedir. Tez çalışmasında, farklı zamanlarda numune ölçüm süresinden daha uzun, örneğin, her biri 2 veya 3 günden fazla süreyle alınan üç farklı ölçümün ortalaması alınarak doğal fon sayımları belirlenmiştir.

3.6 Verim Kalibrasyonu

Dedektörün verim kalibrasyonu, radyonüklite özgü (radionuclide specific) verim kalibrasyonu yöntemi ve mutlak verim kalibrasyonu (absolute efficiency) yöntemleri ile belirlenebilir. Bu tez çalışmasında, mutlak verim kalibrasyonu yöntemi kullanılmıştır.

3.6.1 Mutlak verim kalibrasyonu

Gama spektrometrik yöntemle doğru ve kesin bir aktivite hesabında, yapılması gereken tüm enerji pik verimi (mutlak verim) kalibrasyonunda, aktivitesi bilinen sertifikalı referans standart kaynakların içerisindeki nüklitlerin belirli enerjileri için verim değerleri ölçülmektedir. Belirli enerjilere karşılık gelen verim değerleri fiziksel olarak dedektörün enerji veya bağıl verim tepkisine uygun bir eğriye göre çizildiğinde, bilinmeyen herhangi bir enerjideki verim değeri interpolasyon veya ekstrapolasyon yöntemine göre hesaplanabilir. Yani yöntem bilinen verilerden yararlanarak, bilinmeyeni bulmayı esas alır. Bu şekilde belirlenen verim değerlerine ayrıca gerçek koinsidens ile numune ve standart malzemelerin kimyasal bileşimleri ve yoğunlukları farklı olduğundan öz soğurma düzeltmeleri de hesaba katılmıştır.

Verim kalibrasyonunun elde edilmesinde, Bölüm 2.5.1'de açıklanan yöntem uygulanarak tipik küçük silindir (KS) geometrisindeki standart kaynak dedektör uç kabının (end-cap) üzerine konulan numune tutucu (sample locater) ile birlikte ölçülmüştür. Diğer ölçümlerde de kullanılan numune tutucu, numunenin dedektörün tam ortasında sayılmasını sağlamak ve tüm ölçümlerde aynı geometriyi sağlayarak belirli bir ölçüm geometrisi elde etmek için kullanılmaktadır (Şekil 3.2).



Şekil 3.2 Numune konumlanması

Radyoaktif standart kaynaklardan yeterli sayım istatistiğinin elde edilebilmesi için 12-24 saat arasında değişen sürelerde ölçümler yapılmıştır. Bu ölçümlerde, sayım hızları düşük olduğundan, ölü zaman %0,1-1 düzeyindedir ve bu nedenle rastgele yığılma düzeltmesi $k_r = 1$ alınmıştır.

Her bir standart kaynağın ölçülen spektrumundan fotopik veriminin deneysel olarak belirleneceği enerjilerdeki net sayımlar ve belirsizlikleri; dedektörde herhangi bir kaynak yok iken alınan ortamdaki doğal fon spektrumundan aynı enerjilerdeki doğal fon sayımları ve belirsizlikleri elde edilmiştir. Eşitlik 2.61'den ilgilenilen enerjilerde deneysel fotopik verimleri, ε_d ve Eşitlik 2.76'dan fotopik veriminin belirsizliği, $u(\varepsilon_d)$ (±1 σ aralığında) hesaplanmıştır. Her geometride ölçümler üç defa tekrar edilmiştir ve her enerjide elde edilen deneysel verim değeri ve belirsizliği, ölçümler birbirinden bağımsız olduğu için üç ölçümün ağırlıklı ortalaması alınarak hesaplanmıştır (Eşitlik 3.1).

$$\overline{\varepsilon_d} = \left[\sum_{i=1}^n \frac{(\varepsilon_d)_i}{u_i^2(\varepsilon_d)}\right] / \sum_{i=1}^n (1/u_i^2(\varepsilon_d))$$
(3.1)

Burada $\overline{\epsilon_d}$, ortalama deneysel verim değeri; $(\epsilon_d)_i$, i'nci ölçümün deneysel verim değeri ve $u_i(\epsilon_d)$ ise i'nci ölçümün belirsizliğidir. Ağırlıklı ortalamaya göre, ortalama deneysel verimin belirsizliği,

$$u(\varepsilon_d) = \left[1 / \left(\sum_{i=1}^n (1/u_i(\varepsilon_d)^2)\right)\right]^{1/2}$$
(3.2)

eşitliği ile hesaplanır. Ölçümlerde kullanılan ağırlıklı ortalamanın, aritmetik ortalamaya göre en önemli üstünlüğü gerçek değere yaklaşması bakımından ölçülen değerin belirsizliğinin de ortalamaya etki etmesidir. Ancak, belirsizlik değeri, $u(\varepsilon_d)$ aritmetik ortalamaya göre daha da küçüktür. Deneysel olarak bulunan veriler, Eşitlik 3.3 ile verilen bir eğriye uyarlanarak (Debertin and Helmer 1988) verim kalibrasyonu yapılmıştır.

$$\ln \varepsilon = \sum_{i=0}^{n=4} a_i \cdot \ln^i(E)$$
(3.3)

Burada $\ln \varepsilon = a_0 + a_1 \cdot \ln(E) + a_2 \cdot \ln^2(E) + a_3 \cdot \ln^3(E) + a_4 \cdot \ln^4(E)$ şeklindeki bir logaritmik fonksiyon ve a_i, regresyon sabitleridir. Verim kalibrasyonu eğrisinden ilgilenilen enerjilerde uyarlanan verim değerleri, ε_u elde edilmiştir ve deneysel verim değerleri ile uyarlanan verim değerleri arasındaki fark Eşitlik 3.4 ile hesaplanmıştır.

$$\% Fark = \left(\frac{\varepsilon_u}{\varepsilon_d} - 1\right) x100 \tag{3.4}$$

İlgilenilen enerjilerde deneysel fotopik verimlerine KS geometride EGML 1215-23-1 sertifikalı referans malzemenin kimyasal bileşimi SiO₂ (ρ =1,7±0,1)gcm⁻³ olarak bilindiğinden kolaylıkla öz soğurma düzeltmeleri uygulanmıştır.

3.7 Spektral Girişim Düzeltme Yöntemi

Spektral girişim yöntemi analitik pikler için tanımlanmaktadır. Bu tez çalışmasında uranyum ve toryum analizinde sıkça kullanılan 18 analitik pik için spektral girişim düzeltmesi tanımlanmıştır.

Bu analitik pikler 46,5 keV(²¹⁰Pb), 63,3 keV (²³⁴Th), 129,0 keV (²²⁸Ac), 143,8 keV (²³⁵U), 209,2 keV (²²⁸Ac), 238,6 keV (²¹²Pb), 300,0 keV (²¹²Pb), 338,3 keV (²²⁸Ac), 351,9 keV (²¹⁴Pb), 463,0 keV (²²⁸Ac), 583,2 keV (²⁰⁸Tl), 609,3 keV (²¹⁴Bi), 727,3 keV (²¹²Bi), 860,5 keV (²⁰⁸Tl), 911,2 keV (²²⁸Ac), 1001,0 keV (^{234m}Pa), 1120,3 keV (²¹⁴Bi), 1238,1 (²¹⁴Bi). Bu piklerden 63,3 keV (²³⁴Th) ve 1001,0 keV (^{234m}Pa), ²³⁸U aktivite sonucunda, 143,8 keV, 163,3 keV ve 185,7 keV (²³⁵U), ²³⁵U aktivite sonucunda, ²²⁸Ac'in 129,0 keV, 209,2 keV ve 911,2 keV pikleri ile ²⁰⁸Tl'in 277,4 keV, 583,2 keV ve 860,6 keV pikleri de ²³²Th aktivite sonucunda kullanılacak analitik piklerdir. ²³⁸U, ²³⁵U ve ²³²Th için spektral girişim düzeltmesi uygulanan analitik pikler ve her bir analitik pike katkı veren girişim piklerinin düzeltme yöntemlarının şematik gösterimi ve yöntemde kullanılan bağıntılar bölüm 3.7.1, 3.7.2 ve 3.7.3'te verilmektedir.

3.7.1²³⁸U analitik piklerindeki spektral girişim düzeltme yöntemi

²³⁸U analitik piklerindeki spektral girişim düzeltmesi 46,5 keV(²¹⁰Pb), 63,3 keV (²³⁴Th), 351,9 keV (²¹⁴Pb), 609,3 keV (²¹⁴Bi), 1001 keV (^{234m}Pa), 1120,3 keV (²¹⁴Bi), 1238,1 (²¹⁴Bi) analitik piklerine uygulanmıştır. Bu yöntemin grafiksel gösterimi girişim yapan bozucu piklerle birlikte şematik olarak her pik için çizilerek gösterilmiştir. Bunlar;

a) 46,5 keV (²¹⁰Pb) piki:



Şekil 3.3²¹⁰Pb'un 46,5 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi

$$N_{p} \left[186,1 \,\mathrm{keV}, \,\,^{226}Ra \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{186,1 \,\mathrm{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{295,2 \,\mathrm{keV}, \,\mathrm{Ref}}} \times N_{p} \left[295,2 \,\mathrm{keV}, \,\,^{214}Pb \right]_{\mathrm{Ref}}$$
(3.5)

$$N_{p} \Big[46,35 \,\mathrm{keV}, \,\,^{231}Pa \Big] = \frac{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{46,35 \,\mathrm{keV}}}{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{185,7 \,\mathrm{keV}, \,\mathrm{Ref}}} \times N_{p} \Big[185,7 \,\mathrm{keV}, \,\,^{235}U \Big]_{\mathrm{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.6)

eşitlikleri uygulanarak düzeltilebilir. Burada N_p, ilgilenilen enerjideki fotopik net sayım hızı, I_γ, gama yayınlama olasılığı, ε_p , ilgilenilen enerjideki mutlak fotopik (FEP) verimi, F_{COI}, gerçek çakışma toplam düzeltme faktörü, c öz-soğurma düzeltme faktörü, f ise doğal uranyum içeren örneklerdeki ²³⁸U/²³⁵U aktivite oranıdır.

b) 63,3 keV (²³⁴Th) piki:



Şekil 3.4²³⁴Th'un 63,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

63,3 keV (²³⁴Th) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} \left[63,86 \,\mathrm{keV}, \,\,^{231}Th \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{63,86 \,\mathrm{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \,\mathrm{keV}, \,\mathrm{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \,\mathrm{keV}, \,\,^{235}U \right]_{\mathrm{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.7)

$$N_{p} [63,81 \,\text{keV}, \,^{232}Th] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{63,81 \,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{338,32 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} [338,32 \,\text{keV}, \,^{228}Ac]_{\text{Ref}}$$
(3.8)

c) 351,9 keV (²¹⁴Pb) piki:



351,9 keV (²¹⁴Pb) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} \left[351,06 \text{ keV}, \, {}^{211}Bi \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{351,06 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \text{ keV}, \, {}^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.9)

$$N_{p} \left[350,43 \,\text{keV}, \,\,^{227}Th \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{350,43 \,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \,\text{keV}, \,\,^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.10)

$$N_{p} \left[352,61 \,\text{keV}, \,\,^{227}Th \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{352,61 \,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \,\text{keV}, \,\,^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.11)

$$N_{p} [351,9 \text{ keV}, {}^{214}Bi] = \frac{[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}]_{351,9 \text{ keV}}}{[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}]_{295,213 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} [295,213 \text{ keV}, {}^{214}Pb]_{\text{Ref}}$$
(3.12)

$$N_{p}\left[351,9\,\text{keV},\,^{234}Pa\right] = \frac{\left[I_{\gamma}\varepsilon_{p}F_{COI}F_{s}\right]_{351,9\,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma}\varepsilon_{p}F_{COI}F_{s}\right]_{100103\,\text{keV},\text{Ref}}} \times N_{p}\left[1001,03\,\text{keV},\,^{234m}Pa\right]_{\text{Re}f}$$
(3.13)

d) 609,3 keV (²¹⁴Bi) piki:



Şekil 3.6²¹⁴Bi'in 609,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

609,3 keV (²¹⁴Bi) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} \left[609,32 \text{ keV}, \, {}^{223}Ra \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{609,32 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \text{ keV}, \, {}^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.14)

$$N_{p} \left[610,64 \text{ keV}, \ ^{228}Ac \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{610,64 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{338,32 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} \left[338,32 \text{ keV}, \ ^{228}Ac \right]_{\text{Ref}}$$
(3.15)

e) 1001,0 keV (^{234m}Pa) piki:



Şekil 3.7^{234m}Pa'in 1001,0 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

1001,0 keV (^{234m}Pa) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

$$N_{p} [1000,69 \text{ keV}, {}^{228}Ac] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{1000,69 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{338,32 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} [338,32 \text{ keV}, {}^{228}Ac]_{\text{Ref}}$$
(3.16)

f) 1120,3 keV (²¹⁴Bi) piki:



Şekil 3.8²¹⁴Bi'in 1120,3keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

1120,3 keV (²¹⁴Bi) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitikler:

$$N_{p} \left[1120,6 \text{ keV}, {}^{234}Pa \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{11206 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{100103 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} \left[1001,03 \text{ keV}, {}^{234\text{m}}Pa \right]_{\text{Re}f}$$
(3.17)

$$N_{p} [1121,7 \text{ keV}, {}^{234}Pa] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{11217 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{100103 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} [1001,03 \text{ keV}, {}^{234\text{m}}Pa]_{\text{Ref}}$$
(3.18)

g) 1238,1 keV (²¹⁴Bi) piki:



Şekil 3.9 ²¹⁴Bi'in 1238,1 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

1238,1 keV (²¹⁴Bi) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

$$N_{p} \left[1237,24 \text{ keV}, {}^{234}Pa \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{1237,24 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{100103 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} \left[1001,03 \text{ keV}, {}^{234}Pa \right]_{\text{Ref}}$$
(3.19)

3.7.2²³⁵U analitik piklerindeki spektral girişim düzeltme yöntemi

²³⁸U analitik piklerindeki spektral girişim düzeltmesi 143,8 keV (²³⁵U) analitik pikine uygulanmıştır.

a) 143,8 keV (²³⁵U) piki:



Sekil 3.10²³⁵U'un 143,8 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin sematik gösterimi.

143,8 keV (²³⁵U) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} \left[144,232 \text{ keV}, \ ^{223}Ra \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{144,232 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \text{ keV}, \ ^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.20)

$$N_{p} [143,872 \text{ keV}, {}^{230}Th] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{143,872 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{295,213 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} [295,213 \text{ keV}, {}^{214}Pb]_{\text{Ref}}$$
(3.21)

$$N_{p} [143,7 \text{ keV}, {}^{234}Pa] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{143,7 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{100103 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} [1001,03 \text{ keV}, {}^{234\text{m}}Pa]_{\text{Ref}}$$
(3.22)

şeklinde yazılabilir.

3.7.3 ²³²Th analitik piklerindeki spektral girişim düzeltme yöntemi

²³⁸U analitik piklerindeki spektral girişim düzeltmesi 129,0 keV (²²⁸Ac), 209,2 keV (²²⁸Ac),
238,6 keV (²¹²Pb), 300,0 keV (²¹²Pb), 338,3 keV (²²⁸Ac), 463 keV (²²⁸Ac), 583,2 keV (²⁰⁸Tl),
727,3 keV (²¹²Bi), 860,5 keV (²⁰⁸Tl), 911,2 keV (²²⁸Ac) analitik piklerine uygulanmıştır.

a) 129,0 keV (²²⁸Ac) piki:



Şekil 3.11²²⁸Ac'in 129,0 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

129,0 keV (²²⁸Ac) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} [130,59 \text{ keV}, {}^{219}Rn] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{130,59 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} [185,7 \text{ keV}, {}^{235}U]_{\text{Re}f} \times \frac{1}{f}$$
(3.23)

$$N_{p} \left[131,613 \,\text{keV}, \,\,^{228}Th \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{131,613 \,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{338,32 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} \left[338,32 \,\text{keV}, \,\,^{228}Ac \right]_{\text{Ref}}$$
(3.24)

$$N_{p} [131,3 \text{ keV}, {}^{234}Pa] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{131,3 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{100103 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} [1001,03 \text{ keV}, {}^{234\text{m}}Pa]_{\text{Ref}}$$
(3.25)

b) 209,2 keV (²²⁸Ac) piki:



Şekil 3.12. ²²⁸Ac'in 209,2 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi

209,2 keV (²²⁸Ac) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} \Big[210,65 \text{ keV}, \ ^{227}Th \Big] = \frac{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{210,65 \text{ keV}}}{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} \Big[185,7 \text{ keV}, \ ^{235}U \Big]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.26)

$$N_{p} \left[211,40 \text{ keV}, {}^{208}Tl \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{211,40 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{338,32 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} \left[338,32 \text{ keV}, {}^{228}Ac \right]_{\text{Ref}}$$
(3.27)

$$N_{p} \left[209,9 \text{ keV}, \, {}^{234}Pa \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{209,9 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{100103 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} \left[1001,03 \text{ keV}, \, {}^{234\text{m}}Pa \right]_{\text{Ref}}$$
(3.28)

c) 238,6 keV (²¹²Pb) piki:



Şekil 3.13²¹²Pb'in 238,6 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi

238,6 keV (²¹²Pb) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} [237,8 \text{ keV}, {}^{231}Th] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{237,8 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{185,7 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} [185,7 \text{ keV}, {}^{235}U]_{\text{Re}f} \times \frac{1}{f}$$
(3.29)
$$N_{p} [238,4 \text{ keV}, {}^{214}Pb] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{238,4 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s}\right]_{295,213 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} [295,213 \text{ keV}, {}^{214}Pb]_{\text{Ref}}$$
(3.30)

$$N_{p} \Big[240,2 \text{ keV}, \, {}^{234}Pa \Big] = \frac{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{240,2 \text{ keV}}}{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{100103 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} \Big[1001,03 \text{ keV}, \, {}^{234m}Pa \Big]_{\text{Re}f}$$
(3.31)

d) 300,0 keV (²¹²Pb) piki:



Şekil 3.14²¹²Pb'in 300,0 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi

300,0 keV (²¹²Pb) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve $N_{p} \left[300 \text{ keV}, \, {}^{227}Th \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{300 \text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \text{ keV}, \, {}^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$ (3.32)

$$N_{p} \left[300,07 \text{ keV}, \ ^{231}Pa \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{300,07 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \text{ keV}, \ ^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.33)

e) 338,3 keV (²²⁸Ac) piki:



Şekil 3.15²²⁸Ac'in 338,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

338,3 keV (²²⁸Ac) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

Eşitlik 3.5 ve

$$N_{p} \left[338,28 \text{ keV}, \ ^{223}Ra \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{338,28 \text{ keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{185,7 \text{ keV}, \text{Ref}}} \times N_{p} \left[185,7 \text{ keV}, \ ^{235}U \right]_{\text{Ref}} \times \frac{1}{f}$$
(3.34)

f) 463,0 keV (²²⁸Ac) piki:



Şekil 3.16²²⁸Ac'in 463,0 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

463,0 keV (²²⁸Ac) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

$$N_{p} \Big[462,1 \,\text{keV}, \,\,^{214}Pb \Big] = \frac{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{462,1 \,\text{keV}}}{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{295,213 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} \Big[295,213 \,\text{keV}, \,\,^{214}Pb \Big]_{\text{Ref}}$$
(3.35)

$$N_{p} \Big[464,2 \text{ keV}, \, {}^{234}Pa \Big] = \frac{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{464,2 \text{ keV}}}{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{100103 \text{ keV}, \text{ Ref}}} \times N_{p} \Big[1001,03 \text{ keV}, \, {}^{234\text{m}}Pa \Big]_{\text{Ref}}$$
(3.36)

g) 583,2 keV (²⁰⁸Tl) piki:



Şekil 3.17²⁰⁸Tl'in 583,2 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

583,2 keV (²⁰⁸Tl) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

$$N_{p} \left[583,41 \,\text{keV}, \,\,^{228}Ac \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{583,41 \,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{338,32 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} \left[338,32 \,\text{keV}, \,\,^{228}Ac \right]_{\text{Ref}}$$
(3.37)

$$N_{p} \left[584,1 \,\text{keV}, \,\,^{234}Pa \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{584,1 \,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{100\,103 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} \left[1001,03 \,\text{keV}, \,\,^{234\text{m}}Pa \right]_{\text{Ref}}$$
(3.38)

h) 727,3 keV (²¹²Bi) piki:



Şekil 3.18²¹²Bi'in 727,3 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

727,3 keV (²¹²Bi) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

$$N_{p} \left[726,863 \,\text{keV}, \,\,^{228}\text{Ac} \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{726,863 \,\text{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{338,32 \,\text{keV}, \,\text{Ref}}} \times N_{p} \left[338,32 \,\text{keV}, \,\,^{228}\text{Ac} \right]_{\text{Ref}}$$
(3.39)

$$N_{p} \Big[727,8 \,\mathrm{keV}, \,\,^{214}Bi \Big] = \frac{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{727,8\mathrm{keV}}}{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{295,213\mathrm{keV},\mathrm{Ref}}} \times N_{p} \Big[295,213 \,\mathrm{keV}, \,\,^{214}Pb \Big]_{\mathrm{Re}f}$$
(3.40)

$$N_{p} \Big[727,8 \,\mathrm{keV}, \,{}^{234}Pa \Big] = \frac{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{727,8 \mathrm{keV}}}{\Big[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \Big]_{1001,03 \mathrm{keV},\mathrm{Ref}}} \times N_{p} \Big[1001,03 \,\mathrm{keV}, \,{}^{234\mathrm{m}}Pa \Big]_{\mathrm{Ref}}$$
(3.41)

şeklinde yazılabilir.

i) 860,6 keV (²⁰⁸Tl) piki:



Şekil 3.19²⁰⁸Tl'in 860,6 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

860,6 keV (²⁰⁸Tl) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

$$N_{p} \left[860 \,\mathrm{keV}, \,\,^{210}Tl \right] = \frac{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{860 \,\mathrm{keV}}}{\left[I_{\gamma} \varepsilon_{p} F_{COI} F_{s} \right]_{295,213 \,\mathrm{keV}, \,\mathrm{Ref}}} \times N_{p} \left[295,213 \,\mathrm{keV}, \,\,^{214}Pb \right]_{\mathrm{Ref}}$$
(3.42)

şeklinde yazılabilir.

j) 911,2 keV (²²⁸Ac) piki:



Şekil 3.20²²⁸Ac'in 911,2 keV pikinin spektral girişim düzeltme yönteminin şematik gösterimi.

911,2 keV (²²⁸Ac) pikin girişim düzeltmesinde kullanılan eşitlikler:

$$N_{p}\left[910 \text{ keV}, {}^{210}Tl\right] = \frac{\left[I_{\gamma}\varepsilon_{p}F_{COI}F_{s}\right]_{910\text{keV}}}{\left[I_{\gamma}\varepsilon_{p}F_{COI}F_{s}\right]_{295,213\text{keV},\text{Ref}}} \times N_{p}\left[295,213\text{ keV}, {}^{214}Pb\right]_{\text{Re}f}$$
(3.43)

şeklinde yazılabilir.

3.8 Öz Soğurma Düzeltme Faktörünün Belirlenmesi

Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörleri KS geometride, standart kaynak ve sertifikalı referans malzemeler için belirlenmiştir.

3.8.1 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün hesaplanması (NIST veri tabanı kullanılarak)

Bölüm 2.8.1'de açıklandığı gibi, kimyasal element bileşimi bilinen numuneler için, NIST XCOM veri tabanı kullanılarak kütle soğurma katsayıları hesaplanmıştır.

NIST XCOM veri tabanından elde edilen μ/ρ (cm²/g) değerleri, tezde kullanılan CRM'lerin sertifikalarında verilen kimyasal bileşimleri Eşitlik 2.24'te kullanılmıştır (Çizelge 3.5). Verim kalibrasyonunda kullanılan EGML 1215-23-1 çoklu radyonüklit standardının kimyasal bileşimi kum (SiO₂) olduğundan CRM'lerin matriks etkisi beklenildiği gibi farklı μ_k değerlerine sahiptir.

	% Bileşimi						
Element	DL-1a	DH-1a	UTS-1	UTS-2	UTS-3	OKA-2	
SiO ₂	85.5	79.75				3.592	
Al	5.3	3.44	6.24	2.71	5.80		
Fe	0.9	5.17	4.87	3.20	3.25		
S	0.4	4.82	1.00	3.23	0.23		
К	0.2	1.43					
Mg	0.2	0.07					
Ca	0.3	0.04	5.24	0.42	4.03		
H ₂ O	0.2	0.07					
Na	0.09	0.04					
С		0.05					
Ti	0.09		0.54	0.18	0.23		
SO_4			2.64	0.84			
Ba			0.0324	0.0464	0.0212		
U			0.0049	0.0056	0.0513		
Th			0.0138	0.0174	0.0010		
CaCO ₃						76.017	
Y_2O_3						8.177	
CaO						6.179	
P_2O_5						2.179	
Fe ₂ O ₃						1.423	
ThO ₂						0.803	

Çizelge 3.5 Sertifikalı referans malzemelerin sertifikalarında verilen kimyasal bileşimleri

F			0.312
MgO			0.303
Al_2O_3			0.200

Kimyasal bileşimi bilinen maddeler için, ilgilenilen enerjideki öz soğurma düzeltme faktörü, küçük silindir (KS) geometrisinde o enerjideki kütle azalım katsayısı (cm² g⁻¹), maddenin yoğunluğu (g cm⁻³) ve kalınlığı (cm) kullanılarak Eşitlik 2.22'den hesaplanmıştır.

3.8.2 Gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün Monte Carlo simülasyon programı kullanılarak hesaplanması

Bölüm 2.8.1.2'de detaylarıyla anlatıldığı gibi, gama-ışını öz soğurma düzeltme faktörünün belirlenmesinde kullanılan bir diğer yöntem de GESPECOR MCNP simülasyon programıdır. Bu yöntemle ve NIST XCOM veri tabanı kullanılarak elde edilen öz-soğurma faktörleri tüm sertifikalı referans malzemeler için Çizelge 4.3, Çizelge 4.4, Çizelge 4.5, Çizelge 4.6, Çizelge 4.7, Çizelge 4.8, Çizelge 4.9, Çizelge 4.10 ve Çizelge 4.11'de verilmiştir.

4. BULGULAR

4.1. Doğal Fon Spektrumu

Gama spektrometrik yöntemle aktivite analizinde öncelikle doğal fon (background) spektrumu Bölüm 3.5'de açıklandığı gibi belirli aralıklarla alınmıştır. Doğal fon spektrumunda, ²³⁸U, ²³⁵U, ²³²Th ve ⁴⁰K nüklitlerinin kendilerinden ve ürün nüklitlerinden kaynaklanan fotopikler gözlenmektedir (Çizelge 4.1)

Çizelge 4.1 %76,5 bağıl verimli n-tipi Ge dedektör için doğal fon spektrumu ortalama sayım hızları

Bozunma Serisi	Nüklit	Enerji (keV)	Sayım hızı (sayım/s)±belirsizlik
²³⁸ U	²¹⁰ Pb	46,539	0,0244±0,0006
²³⁸ U	²³⁴ Th	63,29	0,0166±0,0005
²³⁸ U	²³⁴ Th	92,35	0.0277+0.001
²³⁸ U	²³⁴ Th	92,78	0,0277±0,001
²³⁵ U	²³⁵ U	143,76	0,0027±0,0005
²³⁵ U	²³⁵ U	185,72	0.0120+0.0005
²³⁸ U	²²⁶ Ra	186,21	0,0130±0,0005
²³² Th	²¹² Pb	238,632	0,0190±0,0004
²³⁸ U	²¹⁴ Pb	295,207	0,0104±0,0004
²³⁸ U	²¹⁴ Pb	351,925	0,0182±0,0004
-	Yok olma fotonu	511	0,0380±0,0007
²³² Th	²⁰⁸ T1	583,181	0,0073±0,0003
²³⁸ U	²¹⁴ Bi	609,318	0,00166±0,0004
²³² Th	²⁰⁸ T1	860,56	0,0012±0,0003
²³² Th	²²⁸ Ac	911,21	0,0017±0,0002
²³² Th	²²⁸ Ac	968,97	0,0010±0,0003
²³⁸ U	²³⁴ Pa	1001,03	0,0012±0,0002
²³⁸ U	²¹⁴ Bi	1120,285	0,0035±0,0002
-	40 K	1460,83	0,0040±0,0003
²³⁸ U	²¹⁴ Bi	1764,515	0,0022±0,0002
²³² Th	²⁰⁸ Tl	2614,533	0,0036±0,0002

4.2 Mutlak Verim Kalibrasyon Eğrisi

%76.5 verimli n-tipi Be pencereli HPGe dedektörün mutlak verim kalibrasyonu, KS silindirik sayım geometrisinde EGML 1215-23-1 çoklu radyonüklit standart kaynağı ile yapılmıştır. Verim kalibrasyonu eğrisinin elde edilmesinde çoklu radyonüklit standart kaynağı ile alınan üç farklı spektrumun ortalaması kullanılmıştır. Elde edilen ölçülen (deneysel) verim değerleri (ε_d) ve $y = \exp(a + b \cdot \ln(x) + c \cdot \ln(x^2) + d \cdot \ln(x^3))$ logaritmik polinom denklemine göre fit edilmiş verim değerleri (ε_u) çizelge 4-2'de verilmiştir.

	verim degener	1				
			Fotopik verimi (%) KS geometrisi			
Nüklit	E (keV)	$\mathbf{f}_{\gamma} \pm \mathbf{u}(\mathbf{f}_{\gamma}) \ (\%)$				
			$\varepsilon_d \pm u(\varepsilon_d)$	ε _u	% Fark	
²¹⁰ Pb	46,539	4,24±0,09	0,111±0,004	0,109	-2,00	
¹⁰⁹ Cd	88,034	3,65±0,06	0,131±0,002	0,133	2,04	
⁵⁷ Co	122,061	85,68±0,13	0,123±0,001	0,120	-2,46	
^{123m} Te	158,970	83,99±0,08	0,094±0,003	0,104	9,73	
¹¹³ Sn	391,698	64,89±0,17	0,054±0,001	0,054	0,06	
¹³⁷ Cs	661,660	85,2±0,2	0,037±0,001	0,037	-0,22	
⁸⁸ Y	898,036	94,1±0,5	0,029±0,001	0,029	0,18	
⁶⁰ Co	1173,228	99,89±0,02	0,024±0,001	0,024	0,69	
⁶⁰ Co	1332,492	99,983±0,001	0,022±0,001	0,022	0,41	
⁸⁸ Y	1836,052	99,36±0,05	0,017±0,001	0,018	1,07	

Çizelge 4.2 KS geometride EGML 1215-23-1 çoklu radyonüklit standardı ile elde edilen verim değerleri



Şekil 4.1 KS geometride EGML 1215-23-1 çoklu radyonüklit standardı ile elde edilen verim kalibrasyon eğrisi

4.3 Gama-ışını Öz Soğurma Düzeltme Faktörleri

Bölüm 3.7'de açıklandığı gibi kimyasal bileşimleri bilinen (sertifikasında verilen) küçük silindir (KS) kap geometrisinde sertifikalı referans malzemeler için gama öz soğurma düzeltme faktörleri NIST XCOM veritabanı ve GESPECOR MCNP programı kullanılarak iki farklı yöntemle hesaplanmıştır. Belirli enerjilerde elde edilen gama öz soğurma düzeltme faktörleri Çizelge 4.3, Çizelge 4.4, Çizelge 4.5, Çizelge 4.6, Çizelge 4.7, Çizelge 4.8, Çizelge 4.9, Çizelge 4.10 ve Çizelge 4.11'de verilmiştir. Ayrıca, çizelgelerde GESPECOR MCNP programından belirlenen ve NIST veri tabanından hesaplanan gama öz soğurma düzeltme faktörleri arasındaki uyumu gösteren %fark değerleri de verilmiştir. % fark değerleri ise, % fark = (NIST/MCNP-1)*100 eşitliğinden yararlanarak hesaplanmıştır.

nes	apianan oz sogarma			
NÜRT İT	ENED II (I-AV)	ÖZ SOĞUR	MA DÜZELTME FA	KTÖRÜ (K _s)
NUKLII	ENEKJI (KEV)	MCNP MODELİ*	NIST XCOM ^{**}	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	1,793	1,807	+0,79
²³⁴ Th	63,29	1,497	1,497	+0,02
²²⁸ Ac	129,06	1,308	1,305	- 0,21
²³⁵ U	143,76	1,295	1,291	- 0,28
²²⁶ Ra	186,10	1,268	1,264	- 0,29
²²⁸ Ac	209,25	1,257	1,253	- 0,29
²¹² Pb	238,63	1,244	1,240	- 0,39
²¹² Pb	300,08	1,224	1,220	- 0,35
²²⁸ Ac	338,32	1,213	1,209	- 0,40
²¹⁴ Pb	351,92	1,210	1,206	- 0,32
²²⁸ Ac	463,01	1,187	1,184	- 0,33
²⁰⁸ Tl	583,19	1,169	1,166	- 0,32
²¹⁴ Bi	609,31	1,166	1,162	- 0,31
²¹² Bi	727,33	1,153	1,149	- 0,31
²⁰⁸ Tl	860,56	1,141	1,138	- 0,30
^{234m} Pa	1001,03	1,131	1,128	- 0,27
²¹⁴ Bi	1120,28	1,124	1,121	- 0,28
²¹⁴ Bi	1238,11	1,117	1,115	- 0,26

Çizelge 4.3. KS silindirik numune geometrisinde DL-1a sertifikalı referans malzemesi için hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

Çizelge 4.4 KS silindirik numune geometrisinde DH-1a sertifikalı referans malzemesi için hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

	ENED II (LoV)	ÖZ SOĞURMA DÜZELTME FAKTÖRÜ (K _s)				
NUKLII	ENERJI (KEV)	MCNP MODELİ*	NIST XCOM ^{**}	%FARK		
²¹⁰ Pb	46,53	2,132	2,175	+ 1,97		
²³⁴ Th	63,29	1,631	1,635	+0,24		
²²⁸ Ac	129,06	1,335	1,332	- 0,20		
²³⁵ U	143,76	1,319	1,315	- 0,24		
²²⁶ Ra	186,1	1,285	1,282	- 0,30		
²²⁸ Ac	209,25	1,273	1,267	- 0,41		
²¹² Pb	238,63	1,259	1,255	- 0,27		
²¹² Pb	300,08	1,236	1,232	- 0,36		
²²⁸ Ac	338,32	1,225	1,220	- 0,40		
²¹⁴ Pb	351,92	1,222	1,218	- 0,34		
²²⁸ Ac	463	1,197	1,194	- 0,33		
²⁰⁸ Tl	583,19	1,178	1,174	- 0,34		
214 Bi	609,31	1,175	1,171	- 0,33		
²¹² Bi	727,33	1,161	1,157	- 0,31		
²⁰⁸ T1	860,56	1,149	1,145	- 0,30		
^{234m} Pa	1001,03	1,138	1,134	- 0,29		
²¹⁴ Bi	1120,28	1,130	1,127	- 0,28		
²¹⁴ Bi	1238,11	1,124	1,120	- 0,29		

		ÖZ SOĞUR	ÖZ SOĞURMA DÜZELTME FAKTÖRÜ (K₅)				
NUKLIT	ENERJI (keV)	MCNP MODELİ*	NIST XCOM**	%FARK			
²¹⁰ Pb	46,53	5,040	5,645	+ 10,72			
²³⁴ Th	63,29	2,746	2,869	+4,28			
²²⁸ Ac	129,06	1,525	1,523	- 0,08			
²³⁵ U	143,76	1,475	1,473	- 0,17			
²²⁶ Ra	186,1	1,394	1,390	- 0,29			
²²⁸ Ac	209,25	1,368	1,365	- 0,28			
²¹² Pb	238,63	1,344	1,339	- 0,34			
²¹² Pb	300,08	1,308	1,305	- 0,25			
²²⁸ Ac	338,32	1,291	1,286	- 0,42			
²¹⁴ Pb	351,92	1,286	1,282	- 0,34			
²²⁸ Ac	463	1,253	1,249	- 0,35			
²⁰⁸ Tl	583,19	1,228	1,223	- 0,35			
²¹⁴ Bi	609,31	1,223	1,219	- 0,34			
²¹² Bi	727,33	1,205	1,201	- 0,34			
²⁰⁸ Tl	860,56	1,189	1,185	- 0,34			
^{234m} Pa	1001,03	1,175	1,171	- 0,32			
²¹⁴ Bi	1120,28	1,165	1,161	- 0,32			
²¹⁴ Bi	1238,11	1,157	1,153	- 0,30			

Çizelge 4.5 KS silindirik numune geometrisinde UTS-1 sertifikalı referans malzemesi için hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

Çizelge 4.6 KS silindirik numune geometrisinde UTS-2 sertifikalı referans malzemesi için
hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

	ENED II (1.4V)	ÖZ SOĞURI	ÖZ SOĞURMA DÜZELTME FAKTÖRÜ (K _s)				
NUKLII	ENERJI (KEV)	MCNP MODELİ*	NIST XCOM ^{**}	%FARK			
²¹⁰ Pb	46,53	5,073	5,686	+ 10,78			
²³⁴ Th	63,29	2,751	2,877	+ 4,38			
²²⁸ Ac	129,06	1,516	1,517	+0,10			
²³⁵ U	143,76	1,463	1,463	+0,02			
²²⁶ Ra	186,1	1,379	1,376	- 0,18			
²²⁸ Ac	209,25	1,352	1,349	- 0,22			
²¹² Pb	238,63	1,327	1,322	- 0,37			
²¹² Pb	300,08	1,291	1,287	- 0,37			
²²⁸ Ac	338,32	1,275	1,272	- 0,26			
²¹⁴ Pb	351,92	1,270	1,266	- 0,33			
²²⁸ Ac	463	1,238	1,234	- 0,32			
²⁰⁸ Tl	583,19	1,214	1,210	- 0,33			
²¹⁴ Bi	609,31	1,210	1,206	- 0,34			
²¹² Bi	727,33	1,193	1,189	- 0,33			
²⁰⁸ Tl	860,56	1,178	1,174	- 0,33			
^{234m} Pa	1001,03	1,165	1,161	- 0,32			
²¹⁴ Bi	1120,28	1,155	1,152	- 0,30			
²¹⁴ Bi	1238,11	1,148	1,144	- 0,31			

NIÏUZI İT	ENED II (L.V)	ÖZ SOĞURMA DÜZELTME FAKTÖRÜ (K _s)				
NUKLII	ENEKJI (KEV)	MCNP MODELİ [*]	NIST XCOM ^{**}	%FARK		
²¹⁰ Pb	46,53	2,438	2,517	+ 3,16		
²³⁴ Th	63,29	1,749	1,761	+0,69		
²²⁸ Ac	129,06	1,390	1,386	- 0,30		
²³⁵ U	143,76	1,360	1,356	- 0,28		
²²⁶ Ra	186,1	1,306	1,302	- 0,31		
²²⁸ Ac	209,25	1,287	1,283	- 0,37		
²¹² Pb	238,63	1,269	1,266	- 0,26		
²¹² Pb	300,08	1,242	1,237	- 0,36		
²²⁸ Ac	338,32	1,229	1,226	- 0,28		
²¹⁴ Pb	351,92	1,225	1,221	- 0,34		
²²⁸ Ac	463	1,199	1,195	- 0,34		
²⁰⁸ Tl	583,19	1,179	1,175	- 0,32		
²¹⁴ Bi	609,31	1,176	1,172	- 0,32		
²¹² Bi	727,33	1,161	1,158	- 0,32		
²⁰⁸ Tl	860,56	1,149	1,145	- 0,31		
^{234m} Pa	1001,03	1,138	1,135	- 0,28		
²¹⁴ Bi	1120,28	1,130	1,127	- 0,29		
²¹⁴ Bi	1238,11	1,124	1,121	- 0,27		

Çizelge 4.7 KS silindirik numune geometrisinde BL-2a sertifikalı referans malzemesi için hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

Çizelge 4.8 KS silindirik numune geometrisinde BL-4a sertifikalı referans malzemesi için
hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

NÜLZI İT	ENED II (I-AV)	ÖZ SOĞURI	ÖZ SOĞURMA DÜZELTME FAKTÖRÜ (K _s)				
NUKLII	ENERJI (KEV)	MCNP MODELİ*	NIST XCOM ^{**}	%FARK			
²¹⁰ Pb	46,53	2,303	2,360	+2,40			
²³⁴ Th	63,29	1,697	1,704	+0,38			
²²⁸ Ac	129,06	1,358	1,355	- 0,21			
²³⁵ U	143,76	1,336	1,332	- 0,27			
²²⁶ Ra	186,1	1,295	1,290	- 0,37			
²²⁸ Ac	209,25	1,280	1,276	- 0,34			
²¹² Pb	238,63	1,265	1,261	- 0,27			
²¹² Pb	300,08	1,240	1,238	- 0,24			
²²⁸ Ac	338,32	1,229	1,226	- 0,24			
²¹⁴ Pb	351,92	1,225	1,221	- 0,34			
²²⁸ Ac	463	1,200	1,196	- 0,33			
²⁰⁸ Tl	583,19	1,180	1,177	- 0,32			
²¹⁴ Bi	609,31	1,177	1,173	- 0,33			
²¹² Bi	727,33	1,163	1,159	- 0,30			
²⁰⁸ Tl	860,56	1,150	1,146	- 0,31			
^{234m} Pa	1001,03	1,139	1,136	- 0,29			
²¹⁴ Bi	1120,28	1,131	1,128	- 0,28			
²¹⁴ Bi	1238,11	1,125	1,122	- 0,28			

NÜKLİT		ÖZ SOĞURMA DÜZELTME FAKTÖRÜ (K _s)		
	ENEKJI (KEV)	MCNP MODELİ [*]	NIST XCOM ^{**}	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	2,771	2,902	+ 4,50
²³⁴ Th	63,29	1,857	1,874	+ 0,92
²²⁸ Ac	129,06	1,372	1,368	- 0,27
²³⁵ U	143,76	1,344	1,341	- 0,27
²²⁶ Ra	186,1	1,296	1,292	- 0,33
²²⁸ Ac	209,25	1,279	1,275	- 0,34
²¹² Pb	238,63	1,263	1,258	- 0,34
²¹² Pb	300,08	1,237	1,232	- 0,40
²²⁸ Ac	338,32	1,225	1,221	- 0,38
²¹⁴ Pb	351,92	1,222	1,217	- 0,35
²²⁸ Ac	463	1,197	1,193	- 0,33
²⁰⁸ Tl	583,19	1,177	1,173	- 0,34
²¹⁴ Bi	609,31	1,174	1,170	- 0,33
²¹² Bi	727,33	1,160	1,156	- 0,31
²⁰⁸ Tl	860,56	1,147	1,144	- 0,30
^{234m} Pa	1001,03	1,137	1,133	- 0,30
²¹⁴ Bi	1120,28	1,129	1,126	- 0,29
²¹⁴ Bi	1238,11	1,122	1,119	- 0,28

Çizelge 4.9 KS silindirik numune geometrisinde BL-3 sertifikalı referans malzemesi için hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

Çizelge 4.10 KS silindirik numune geometrisinde RL-1 sertifikalı referans malzemesi için
hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

NÜKLİT	ENED II (1-AV)	ÖZ SOĞURMA DÜZELTME FAKTÖRÜ (K _s)		
	ENERJI (KEV)	MCNP MODELİ*	NIST XCOM ^{**}	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	2,525	2,154	- 17,20
²³⁴ Th	63,29	1,775	1,571	- 12,92
²²⁸ Ac	129,06	1,380	1,279	- 7,93
²³⁵ U	143,76	1,352	1,259	- 7,46
²²⁶ Ra	186,1	1,303	1,223	- 6,59
²²⁸ Ac	209,25	1,286	1,208	- 6,41
²¹² Pb	238,63	1,269	1,196	- 6,07
²¹² Pb	300,08	1,242	1,177	- 5,58
²²⁸ Ac	338,32	1,230	1,168	- 5,30
²¹⁴ Pb	351,92	1,226	1,165	- 5,28
²²⁸ Ac	463	1,200	1,147	- 4,69
²⁰⁸ T1	583,19	1,181	1,132	- 4,28
²¹⁴ Bi	609,31	1,177	1,129	- 4,21
²¹² Bi	727,33	1,163	1,119	- 3,90
²⁰⁸ T1	860,56	1,150	1,110	- 3,64
^{234m} Pa	1001,03	1,139	1,102	- 3,38
²¹⁴ Bi	1120,28	1,131	1,096	- 3,22
²¹⁴ Bi	1238,11	1,125	1,091	- 3,07

	apraniani 02 008anina			
NÜKLİT	ENED II (I.W)	OZ SOGURMA DUZELTME FAKTORU (K _s)		
	ENEKJI (KEV)	MCNP MODELİ [*]	NIST XCOM ^{**}	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	3,849	3,939	+2,28
²³⁴ Th	63,29	2,253	2,216	- 1,65
²²⁸ Ac	129,06	1,426	1,398	- 1,96
²³⁵ U	143,76	1,380	1,354	- 1,91
²²⁶ Ra	186,1	1,305	1,285	- 1,61
²²⁸ Ac	209,25	1,282	1,263	- 1,48
²¹² Pb	238,63	1,261	1,242	- 1,46
²¹² Pb	300,08	1,230	1,215	- 1,24
²²⁸ Ac	338,32	1,217	1,203	- 1,17
²¹⁴ Pb	351,92	1,213	1,197	- 1,35
²²⁸ Ac	463	1,187	1,174	- 1,14
²⁰⁸ T1	583,19	1,168	1,156	- 1,08
²¹⁴ Bi	609,31	1,165	1,152	- 1,06
²¹² Bi	727,33	1,151	1,140	- 1,01
²⁰⁸ T1	860,56	1,139	1,129	- 0,94
^{234m} Pa	1001,03	1,129	1,119	- 0,89
²¹⁴ Bi	1120,28	1,122	1,112	- 0,84
²¹⁴ Bi	1238.11	1.115	1,106	- 0.82

Çizelge 4.11 KS silindirik numune geometrisinde OKA-2 sertifikalı referans malzemesi için hesaplanan öz soğurma düzeltme faktörleri

4.4 Gerçek Zamanlı Çakışma Düzeltme Faktörü

Bölüm 2.8.2'de anlatıldığı gibi gerçek çakışma düzeltme faktörü (TCS) SUDAR'ın geliştirdiği TRUECOINC yarı deneysel program ve GESPECOR programı ile MCNP simülasyon modeli kullanılarak iki farklı yöntemle hesaplanmıştır (Sudar 2002, Arnold and Sima 2006). Belirli enerjilerde elde edilen gerçek zamanlı çakışma düzeltme faktörleri Çizelge 4.12, Çizelge 4.13, Çizelge 4.14, Çizelge 4.15, Çizelge 4.16, Çizelge 4.17, Çizelge 4.18 ve Çizelge 4.19'da verilmiştir. Ayrıca, çizelgelerde GESPECOR MCNP programından belirlenen ve TRUECOINC programından hesaplanan gama öz soğurma düzeltme faktörleri arasındaki %fark değerleri de verilmiştir.

dene yser vermiere dayan gerçek çakişina dazenine taktorieri				
ΝΪΙΖΙ ΙΤ	ENED II (IraV)	GERÇEK ZAMANLI ÇAKIŞMA FAKTÖRÜ (TCS)		
NUKLII	ENERJI (KEV)	GESPECOR [*]	TRUECOINC **	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	129,06	0,79	0,84	+5,95
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	209,25	0,88	0,89	+ 1,12
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0
²¹² Pb	300,08	0,81	0,84	+ 3,57
²²⁸ Ac	338,32	0,96	0,95	1,05
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	+ 1,20
²⁰⁸ Tl	583,19	0,82	0,88	+ 6,82
²¹⁴ Bi	609,31	0,86	0,87	+ 1,15
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0
²⁰⁸ Tl	860,56	0,94	0,98	+4,08
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0
²¹⁴ Bi	1120,28	0,84	0,85	+ 1,18
²¹⁴ Bi	1238,11	0,85	0,85	0

Çizelge 4.12 KS geometride DL-1a sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve denevsel verimlere dayalı gerçek cakısma düzeltme faktörleri

^{*}GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır. ^{**}TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması

verilerinden hesaplanmıştır.

Çizelge 4.13 KS geometride DH-1a sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve	9
deneysel verimlere dayalı gerçek çakışma düzeltme faktörleri	

_	ENERJİ (keV)	GERCEK ZAMANLI CAKISMA FAKTÖRÜ (TCS)		
NUKLIT		GERÇER ZAN	TRUECOINC**	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	129,06	0,79	0,84	+5,95
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	209,25	0,88	0,89	+ 1,12
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0
²¹² Pb	300,08	0,82	0,84	+ 2,38
²²⁸ Ac	338,32	0,96	0,95	1,05
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	+ 1,20
²⁰⁸ Tl	583,19	0,82	0,88	+ 6,82
²¹⁴ Bi	609,31	0,86	0,87	+ 1,15
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0
²⁰⁸ Tl	860,56	0,94	0,98	+4,08
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0
²¹⁴ Bi	1120,28	0,84	0,85	+1,18
²¹⁴ Bi	1238,11	0,85	0,85	+0,85

*GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır.

**TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması verilerinden hesaplanmıştır.

NÜLZI İT	ENED II (I. N)	GERÇEK ZAMANLI ÇAKIŞMA FAKTORU (TCS)		
NUKLII	ENEKJI (KEV)	GESPECOR [*]	TRUECOINC**	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	129,06	0,78	0,84	+ 7,14
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	209,25	0,89	0,89	0
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0
²¹² Pb	300,08	0,85	0,84	1,19
²²⁸ Ac	338,32	0,97	0,95	2,11
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	+ 1,20
²⁰⁸ Tl	583,19	0,82	0,88	+ 6,82
²¹⁴ Bi	609,31	0,85	0,87	+2,30
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0
²⁰⁸ T1	860,56	0,94	0,98	+4,08
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0
²¹⁴ Bi	1120,28	0,84	0,85	+1,18
²¹⁴ Bi	1238,11	0,85	0,85	0

Cizelge 4.14 KS geometride UTS-1 sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve denevsel verimlere davalı gercek cakısma düzeltme faktörleri

*GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır. **TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması

verilerinden hesaplanmıştır.

²¹⁴Bi

²¹⁴Bi

deneysel verimlere dayalı gerçek çakışma düzeltme faktörleri					
NÜLZI İT	ENED II (L.V)	GERÇEK ZAMANLI ÇAKIŞMA FAKTÖRÜ (TCS)			
NUKLII	ENERJI (KEV)	GESPECOR*	TRUECOINC**	%FARK	
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0	
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0	
²²⁸ Ac	129,06	0,79	0,84	+ 5,95	
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0	
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0	
²²⁸ Ac	209,25	0,89	0,89	0	
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0	
²¹² Pb	300,08	0,86	0,84	2,38	
²²⁸ Ac	338,32	0,96	0,95	1,05	
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0	
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	0	
²⁰⁸ Tl	583,19	0,83	0,88	+ 5,68	
²¹⁴ Bi	609,31	0,86	0,87	+ 1,15	
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0	
²⁰⁸ Tl	860,56	0,94	0,98	+4,08	
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0	

Cizelge 4.15 KS geometride UTS-2 sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve

GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır.

1120,28

1238,11

**TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması verilerinden hesaplanmıştır.

0,84

0,85

0,85

0,85

+1,18

0

NÜLZI İT	ENED II (I. A)	GERÇEK ZAMANLI ÇAKIŞMA FAKTORU (TCS)		
NUKLII	ENEKJI (KEV)	GESPECOR [*]	TRUECOINC**	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	129,06	0,79	0,84	+5,95
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	209,25	0,89	0,89	0
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0
²¹² Pb	300,08	0,82	0,84	+ 2,38
²²⁸ Ac	338,32	0,96	0,95	1,05
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	+ 1,20
²⁰⁸ Tl	583,19	0,82	0,88	+ 6,82
²¹⁴ Bi	609,31	0,86	0,87	+ 1,15
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0
²⁰⁸ T1	860,56	0,94	0,98	+4,08
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0
²¹⁴ Bi	1120,28	0,84	0,85	+1,18
²¹⁴ Bi	1238,11	0,85	0,85	0

Çizelge 4.16 KS geometride BL-2a sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve denevsel verimlere davalı gercek cakısma düzeltme faktörleri

^{*}GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır. ^{**}TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması

verilerinden hesaplanmıştır.

Çizelge 4.17 KS geometride BL-4a sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve
deneysel verimlere dayalı gerçek çakışma düzeltme faktörleri

	2	<u> </u>		
ΝΪΙΖΙ ΪΤ	ENED II (IroV)	GERÇEK ZAMANLI ÇAKIŞMA FAKTÖRÜ (TCS)		
NUKLII	ENERJI (KEV)	GESPECOR*	TRUECOINC **	%FARK
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	129,06	0,79	0,84	+ 5,95
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	209,25	0,88	0,89	+ 1,12
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0
²¹² Pb	300,08	0,82	0,84	+2,38
²²⁸ Ac	338,32	0,96	0,95	1,05
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	+ 1,20
²⁰⁸ Tl	583,19	0,82	0,88	+ 6,82
²¹⁴ Bi	609,31	0,86	0,87	+ 1,15
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0
²⁰⁸ Tl	860,56	0,94	0,98	+4,08
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0
²¹⁴ Bi	1120,28	0,84	0,85	+1,18
²¹⁴ Bi	1238,11	0,85	0,85	0

^{*}GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır.

**TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması verilerinden hesaplanmıştır.

NÜLZI İT	ENED II (1-5V)	GERÇEK ZAMANLI ÇAKIŞMA FAKTORU (TCS)						
NUKLII	ENEKJI (KEV)	GESPECOR [*]	TRUECOINC**	%FARK				
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0				
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0				
²²⁸ Ac	129,06	0,79	0,84	+5,95				
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0				
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0				
²²⁸ Ac	209,25	0,89	0,89	0				
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0				
²¹² Pb	300,08	0,83	0,84	+ 1,19				
²²⁸ Ac	338,32	0,96	0,95	1,05				
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0				
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	+ 1,20				
²⁰⁸ Tl	583,19	0,82	0,88	+ 6,82				
²¹⁴ Bi	609,31	0,86	0,87	+ 1,15				
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0				
²⁰⁸ Tl	860,56	0,94	0,98	+4,08				
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0				
²¹⁴ Bi	1120,28	0,84	0,85	+1,18				
²¹⁴ Bi	1238,11	0,85	0,85	0				

Cizelge 4.18 KS geometride BL-3 sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve denevsel verimlere davalı gercek cakısma düzeltme faktörleri

*GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır. **TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim degerleri ile NNDC bozunma seması

verilerinden hesaplanmıştır.

Çizelge 4.19 KS geometride RL-1 sertifikalı referans malzemenin MCNP simülasyon ve
deneysel verimlere dayalı gerçek çakışma düzeltme faktörleri
CEDCEL ZAMANI I CALISMA FALTÖDÜ (TCS)

νιΐμαι ίτ	ENED II (I-aV)	GERÇEK ZAMANLI ÇAKIŞMA FAKTÖRÜ (TCS)					
NUKLII	ENERJI (KeV)	GESPECOR*	TRUECOINC**	%FARK			
²¹⁰ Pb	46,53	1,00	1,00	0			
²³⁴ Th	63,29	1,00	1,00	0			
²²⁸ Ac	129,06	0,79	0,84	+ 5,95			
²³⁵ U	143,76	0,99	0,99	0			
²²⁶ Ra	186,1	1,00	1,00	0			
²²⁸ Ac	209,25	0,89	0,89	0			
²¹² Pb	238,63	1,00	1,00	0			
²¹² Pb	300,08	0,82	0,84	+ 2,38			
²²⁸ Ac	338,32	0,96	0,95	1,05			
²¹⁴ Pb	351,92	1,00	1,00	0			
²²⁸ Ac	463	0,82	0,83	+ 1,20			
²⁰⁸ T1	583,19	0,82	0,88	+ 6,82			
²¹⁴ Bi	609,31	0,86	0,87	+ 1,15			
²¹² Bi	727,33	0,95	0,95	0			
²⁰⁸ T1	860,56	0,94	0,98	+4,08			
^{234m} Pa	1001,03	1,01	1,01	0			
²¹⁴ Bi	1120,28	0,84	0,85	+ 1,18			
²¹⁴ Bi	1238,11	0,85	0,85	0			

*GESPECOR: Verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak hesaplanmıştır.

**TRUECOINC: Verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması verilerinden hesaplanmıştır.

4.5 Spektral Girişim Düzeltme Faktörü

Spektrumlardaki üst üste binen (girişimli) piklerin dekonvolüsyon yöntemiyle spektral çözümlenmesi çok önemli bir adımdır. Dekonvolüsyon yöntemiyle de ayrıştırılamayan girişim piklerinin değerlendirilmesi ise Bölüm 2.8.3.'te açıklandığı gibi spektral girişim düzeltme yöntemi ile yapılmıştır. İlgilenilen her analitik pik için spektral girişim düzeltmeleri Bölüm 3.7.1, 3.7.2. ve 3.7.3'te şematik gösterimleri ve bağıntıları verilmiştir. Bu önerilen yönteme göre elde edilen spektral girişim düzeltme faktörleri ise Çizelge 4.20, Çizelge 4.21, Çizelge 4.22, Çizelge 4.23, Çizelge 4.24 ve Çizelge 4.25'de verilmiştir.

Numune kodu	Sertifika		²³⁸ U aktivitesi (Bq kg ⁻¹)					
	aktivite değeri	Hiçbir düzeltme yapılmadan (Görünen	% fark	Tüm düzeltmeler yapıldıktan sonra (Deneysel aktivite) ^{a)}	% fark	Spektral girişim düzeltme	Teorik hesap MCNP ^{b)}	% fark
		aktivite)				faktörü		
DL-1a	1432±37	1029±34	39	1506±70	5	0.963	1676±55	15
DH-1a	32462±37	19449±599	67	31309±1382	4	0.985	37644±1161	14
BL-2a	52600±247	34113±1050	54	59983±2612	12	0.998	81295±2507	35
BL-4a	15410±86	8687±273	77	16447±655	6	0.999	18109±570	15
BL-3	125945±1235	76288±2350	65	142628±6221	12	0.923	190455±5889	34
RL-1	24818±35	18289±562	36	28700±1247	14	1.000	32620±1286	24
OKA-2 ^{c)}	2699±52	1715±80	57	3706±207	27	0.982	4106±248	34

Çizelge 4.20 63,3 keV (²³⁴Th) analitik pikinden hesaplanan ²³⁸U aktivite sonuçları ve spektral girişim düzeltme faktörleri

^{a)} Deneysel aktivite değerleri üç bağımsız ölçümün ağırlıklı ortalamaları alınarak belirlenmiştir. Sertifika aktiviteleri %95 güven aralığında verilmiştir. Ancak, bu çalışmada karşılaştırma amacıyla %68 güven aralığında (±1σ güven sınırları içerisinde) kullanılmıştır.

^{b)} GESPECOR programıyla Monte Carlo Simülasyon (MCNP) yöntemiyle hesaplanan verim değerlerinden hesaplanan aktivite değerleri

^{c)} Yüksek Th aktivitesi nedeniyle ölü zaman etkisini asgariye indirmek için OKA-2 malzemesi %72,3 CaCO₃ matriksi ile seyreltilerek ölçülmüştür.

^{d)} 63,3 keV (²³⁴Th) analitik pikine katkı veren girişim piklerinin etkisini gösterir.

13	aktorieri								
Numune kodu	Sertifika		²³⁸ U aktivitesi (Bq kg ⁻¹)						
	aktivite değeri	Hiçbir düzeltme yapılmadan (Görünen aktivite)	% fark	Tüm düzeltmeler yapıldıktan sonra (Deneysel aktivite) ^{a)}	% fark	Spektral girişim düzeltme faktörü ^{d)}	Teorik hesap MCNP ^{b)}	% fark	
DL-1a	1432±37	1152±72	24	1386±104	3	0.999	1155±72	24	
DH-1a	32462±37	26761±708	21	29925±1540	8	0.999	27153±722	20	
BL-2a	52600±247	48203±1243	9	53940±2756	2	1.000	48668±1269	8	
BL-4a	15410±86	10979±348	40	14253±687	8	1.000	11115±357	39	
BL-3	125945±1235	109751±2781	15	122653±6255	3	1.000	110951±2846	14	
RL-1	24818±35	21934±584	13	23832±1228	4	1.000	22263±594	11	
OKA-2 ^{c)}	1432±37	1152±72	24	1386±104	3	0.999	1155±72	24	

Çizelge 4.21 1001 keV (^{234m}Pa) analitik pikinden hesaplanan ²³⁸U aktivite sonuçları ve spektral girişim düzeltme faktörleri

^{a)} Deneysel aktivite değerleri üç bağımsız ölçümün ağırlıklı ortalamaları alınarak belirlenmiştir. Sertifika aktiviteleri %95 güven aralığında verilmiştir. Ancak, bu çalışmada karşılaştırma amacıyla %68 güven aralığında (±1^o güven sınırları içerisinde) kullanılmıştır.

^{b)} GESPECOR programıyla Monte Carlo Simülasyon (MCNP) yöntemiyle hesaplanan verim değerlerinden hesaplanan aktivite değerleri

^{c)} Yüksek Th aktivitesi nedeniyle ölü zaman etkisini asgariye indirmek için OKA-2 malzemesi %72,3 CaCO₃ matriksi ile seyreltilerek ölçülmüştür.

^{d)} 1001,0 keV (^{234m}Pa) analitik pikine katkı veren girişim piklerinin etkisini gösterir.

10	akturieri									
Numune kodu	Sertifika	232 Th aktivitesi (Bq kg ⁻¹)								
	aktivite değeri	Hiçbir düzeltme yapılmadan (Görünen aktivite)	% fark	Tüm düzeltmeler yapıldıktan sonra (Deneysel aktivite) ^{a)}	% fark	Spektral girişim düzeltme faktörü ^{c)}	Teorik hesap MCNP ^{b)}	% fark		
DL-1a	308±16	209±10	47	287±20	7	0.977	281±14	10		
DH-1a	3692±122	2333±70	58	3431±184	8	0.912	3209±96	15		
UTS-1	680±16	366±13	86	620±34	10	0.693	580±21	17		
UTS-2	880±18	476±17	85	789±47	12	0.737	736±27	20		

Çizelge 4.22 209.2 keV (²²⁸Ac) analitik pikinden hesaplanan ²³²Th aktivite sonuçları ve spektral girişim düzeltme faktörleri

a) Deneysel aktivite değerleri üç bağımsız ölçümün ağırlıklı ortalamaları alınarak belirlenmiştir. Sertifika aktiviteleri %95 güven aralığında verilmiştir. Ancak, bu çalışmada karşılaştırma amacıyla %68 güven aralığında (±1σ güven sınırları içerisinde) kullanılmıştır.

^{b)} GESPECOR programıyla Monte Carlo Simülasyon (MCNP) yöntemiyle hesaplanan verim değerlerinden hesaplanan aktivite değerleri

^{c)} 209,2 keV (²²⁸Ac) analitik pikine katkı veren girişim piklerinin etkisini gösterir.

1	aktorieri							
Numune kodu	Sertifika ²³² Th aktivitesi (Bq kg ⁻¹)							
	aktivite değeri	Hiçbir düzeltme yapılmadan (Görünen aktivite)	% fark	Tüm düzeltmeler yapıldıktan sonra (Deneysel aktivite) ^{a)}	% fark	Spektral girişim düzeltme faktörü ^{c)}	Teorik hesap MCNP ^{b)}	% fark
DL-1a	308±16	220±6	40	288±15	7	0.988	285±8	8
DH-1a	3692±122	3003±71	23	3939±200	6	0.983	4026±117	8
UTS-1	680±16	415±10	61	602±31	13	0.892	594±14	14
UTS-2	880±18	515±13	74	814±45	8	0.995	719±18	22

Çizelge 4.23 583,2 keV (²⁰⁸Tl) analitik pikinden hesaplanan ²³²Th aktivite sonuçları ve spektral girişim düzeltme faktörleri

^{a)} Deneysel aktivite değerleri üç bağımsız ölçümün ağırlıklı ortalamaları alınarak belirlenmiştir. Sertifika aktiviteleri %95 güven aralığında verilmiştir. Ancak, bu çalışmada karşılaştırma amacıyla %68 güven aralığında ($\pm 1\sigma$ güven sınırları içerisinde) kullanılmıştır.

^{b)} GESPECOR programıyla Monte Carlo Simülasyon (MCNP) yöntemiyle hesaplanan verim değerlerinden hesaplanan aktivite değerleri ^{c)} 583,2 (²⁰⁸Tl) analitik pikine katkı veren girişim piklerinin etkisini gösterir.

16	aktoricri								
Numune kodu	Sertifika		²³⁵ U aktivitesi (Bq kg ⁻¹)						
	aktivite değeri	Hiçbir düzeltme yapılmadan (Görünen aktivite)	% fark	Tüm düzeltmeler yapıldıktan sonra (Deneysel aktivite) ^{a)}	% fark	Spektral girişim düzeltme faktörü ^{c)}	Teorik hesap MCNP ^{b)}	% fark	
DL-1a	68±2	56±2	21	60±2	13	0,912	54±3	26	
DH-1a	1541±7	1348±5	14	1456±5	6	0,983	1321±5	17	
BL-2a	2496±13	2109±10	18	2287±10	9	0,934	2095±8	19	
BL-4a	731±10	612±8	19	691±7	8	0,982	634±5	15	
BL-3	5977±59	4569±43	31	5468±40	9	0,998	4512±42	32	
RL-1	1178±35	913±24	29	1127±27	5	0,945	903±22	30	
OKA-2	128±5	87±3	47	112±5	14	0,823	84±2	52	

Çizelge 4.24 143,8 keV (²³⁵U) analitik pikinden hesaplanan ²³⁵U aktivite sonuçları ve spektral girişim düzeltme faktörleri

^{a)} Deneysel aktivite değerleri üç bağımsız ölçümün ağırlıklı ortalamaları alınarak belirlenmiştir. Sertifika aktiviteleri %95 güven aralığında verilmiştir. Ancak, bu

çalışmada karşılaştırma amacıyla %68 güven aralığında ($\pm 1\sigma$ güven sınırları içerisinde) kullanılmıştır.

^{b)} GESPECOR programıyla Monte Carlo Simülasyon (MCNP) yöntemiyle hesaplanan verim değerlerinden hesaplanan aktivite değerleri ^{c)} 143,8 (²³⁵U) analitik pikine katkı veren girişim piklerinin etkisini gösterir.

10									
Numune kodu	Sertifika		²²⁶ Ra aktivitesi (Bq kg ⁻¹)						
	aktivite değeri	Hiçbir düzeltme yapılmadan (Görünen aktivite)	% fark	Tüm düzeltmeler yapıldıktan sonra (Deneysel aktivite) ^{a)}	% fark	Spektral girişim düzeltme faktörü ^{c)}	Teorik hesap MCNP ^{b)}	% fark	
DL-1a	1400±40	1033±24	36	1380±69	1	0,783	1289±31	9	
DH-1a	31500±1100	23442±549	34	31550±1575	0	0,934	29715±698	6	
UTS-1	3670±38	2492±58	47	3491±174	5	0,985	3421±81	7	
UTS-2	5600±46	3798±89	47	5264±263	6	0,934	5121±120	9	
UTS-3	13300±71	9876±231	35	13686±683	3	0,992	13256±314	0	
BL-4a	15500±255	10493±202	48	14146±712	10	1,000	13244±259	17	

Çizelge 4.25 609,3 keV (²¹⁴Bi) analitik pikinden hesaplanan ²²⁶Ra aktivite sonuçları ve spektral girişim düzeltme faktörleri

a) Deneysel aktivite değerleri üç bağımsız ölçümün ağırlıklı ortalamaları alınarak belirlenmiştir. Sertifika aktiviteleri %95 güven aralığında verilmiştir. Ancak, bu çalışmada karşılaştırma amacıyla %68 güven aralığında (±1σ güven sınırları içerisinde) kullanılmıştır.

^{b)} GESPECOR programıyla Monte Carlo Simülasyon (MCNP) yöntemiyle hesaplanan verim değerlerinden hesaplanan aktivite değerleri

^{c)} 609,3 (²²⁶Ra) analitik pikine katkı veren girişim piklerinin etkisini gösterir.

5. SONUÇ ve TARTIŞMA

Yapılan tez çalışmasında, gama spektrometrik yöntemle radyoaktivite ölçümünde uygulanması gereken düzeltme faktörlerinin doğru ve güvenilir bir aktivite sonucu için yapılmasının gerekliliğinin önemi ortaya konmuştur. Yapılması gereken düzeltme faktörleri arasında spektral girişim düzeltmesinin aktivite sonucuna etkisi incelenmiştir.

Öncelikle aktivitesi belirlenecek numunelerle aynı KS silindirik geometride hazırlanan standart EGML çoklu radyonüklit kaynağı kullanılarak sistemin verim kalibrasyonu yapılmıştır. Daha sonra tez çalışmasında kullanılan standart kaynağın ve tüm sertifikalı referans malzemelerin kimyasal bileşimleri bilindiğinden öz-soğurma düzeltme faktörleri NIST XCOM veritabanı ve Monte Carlo simülasyon programı kullanılarak hesaplanmıştır. Bölüm 2.8.1'de anlatıldığı gibi öz-soğurma etkisinin düşük enerji bölgesinde, özellikle 200 keV'in altında baskın olduğu elde edilen verilerde gösterilmiştir (Çizelge 4.3, Çizelge 4.4, Çizelge 4.5, Çizelge 4.6, Çizelge 4.7, Çizelge 4.8, Çizelge 4.9, Çizelge 4.10 ve Çizelge 4.11). NIST XCOM ve Monte Carlo simülasyon programı olmak üzere iki farklı yöntemle hesaplanan öz-soğurma düzeltme faktörleri tüm malzemeler için hesaplanmış ve birbiri ile uyumlu olduğu görülmüştür. En büyük düzeltme faktörünün düşük enerji bölgesinde yer alan, 46,5 keV ve 63,3 keV piklerinde olduğu görülmüştür (Maksimum fark ise, RL-1 numunesinin 46,5 keV düşük enerji bölgesinde hesaplanan % 17 değeridir).

Benzer şekilde, gerçek çakışma etkileri de Sudar'ın geliştirdiği TRUECOINC algoritmasından hesaplanan ve Gespecor Monte Carlo simülasyonu olmak üzere iki farklı yöntemle tüm sertifikalı referans malzemeler için ayrı ayrı hesaplanmıştır. Gespecor Monte Carlo simülasyonu ile verilen numune-dedektör geometrisinin MCNP modellemesi yapılarak, Sudar'ın geliştirdiği algoritma TRUECOINC programı ise, verilen numune-dedektör geometrisinde deneysel verim değerleri ile NNDC bozunma şeması verilerinden hesaplanmıştır. Bölüm 2.8.2'de anlatıldığı gibi en büyük gerçek çakışma düzeltme etkisi kompleks azalım şemalarına sahip olan ²²⁸Ac ve ²⁰⁸Tl nüklitlerinde bulunmuştur (Çizelge 4.12, Çizelge 4.13, Çizelge 4.14, Çizelge 4.15, Çizelge 4.16, Çizelge 4.17, Çizelge 4.18, Çizelge 4.19). Sonuçlar incelendiğinde Sudar'ın geliştirdiği TRUECOINC algoritmasından hesaplanan ve Gespecor Monte Carlo simülasyonu ile belirlenen gerçek çakışma düzeltme faktörlerinin birbiri ile uyumlu olduğu görülmüştür.

Özellikle doğal toryumu yüksek miktarda içeren OKA-2 gibi örneklerde, aynı zamanda uranyum ve radyum aktivitesi belirlenmek istendiğinde, bozunma şemaları nedeniyle analiz amaçlı ilgilenilen analitik piklere katkı yapan girişim pikleri dolayısıyla daha fazla olacağından bu piklerde spektral girişim düzeltmesi yapmak daha zor olmuştur.

Elde edilen aktivite sonuçlarına öncelikle Eşitlik 2.21'de K harfi ile ifade edilen birleşik düzeltme faktörlerinden hiçbiri uygulanmadan görünen (apparent) aktivite değeri hesaplanmıştır. Hiçbir düzeltme faktörü uygulanmadan hesaplanan bu aktivite değeri, numunelerin sertifika aktivite değerleri ile kıyaslandığında ²³⁸U için % 9 - 77, ²³²Th için % 23 - 86, ²²⁶Ra için % 34 - 48, ²³⁵U için % 14 - 47 aralıklarında değişen farklar gözlenmiştir.

Tüm düzeltme faktörleri (gama ışını öz soğurma düzeltme faktörü, gerçek koinsidens düzeltme faktörü, rasgele yığılma düzeltme faktörü, radyoaktif bozunma düzeltme faktörü, ölçüm süresi düzeltme faktörü ve spektral girişim düzeltme faktörü) uygulandıktan sonra deneysel aktivite değeri hesaplanmıştır. Elde edilen deneysel aktivite değeri ile sertifika aktivite değeri kıyaslandığında bu farkların, ²³⁸U için % 3 - 27, ²³²Th için: % 6 - 13, ²²⁶Ra için: % 0 - 10, ²³⁵U için % 5 - 14 aralıklarında değiştiği gözlenmiştir. Tüm düzeltme faktörleri yapıldıktan sonra elde edilen aktivite sonuçlarının ölçüm belirsizlikleri aralığına indirgendiği, dolayısıyla yeterince düzeltme uygulandığını değerlendirmekteyiz.

Çizelge 5.1	Elde edilen aktivite sonuçlarına hiçbir düzeltme faktörü uygulanmadan ve tüm
	düzeltme faktörleri uygulandıktan sonra sertifika aktivite değeri ile deneysel
	aktivite değeri arasındaki % farklar

	Sertifika aktivite değeri ile deneysel aktivite değeri arasındaki % fark								
Nüklit	Hiçbir düz uygula	eltme faktörü anmadan	Tüm düzeltm	e faktörleri uygulandıktan sonra					
	En az (%)	En fazla (%)	En az (%)	En fazla (%)					
²³⁸ U	9	77	3	27					
²³² Th	23	86	6	13					
²²⁶ Ra	34	48	0	10					
²³⁵ U	14	47	5	14					

Tüm düzeltme faktörleri arasında spektral girişim düzeltmesinin etkisi ise Çizelge 4.21, Çizelge 4.22, Çizelge 4.23, Çizelge 4.24, Çizelge 4.25 ve Çizelge 4.26'da tablolarda verilen spektral girişim düzeltme faktörleri incelendiğinde 63,3 keV (²³⁴Th) analitik pikinde 0,923 ile 1 aralığında değiştiği yani maksimum % 8'lik bir spektral girişim düzeltme etkisi olduğu hesaplanmıştır. 1001 keV (^{234m}Pa) analitik pikinde 0,999 ile 1 aralığında değiştiği yani maksimum % 0,1'lik bir spektral girişim düzeltme etkisi olduğu hesaplanmıştır. 209,2 keV (²²⁸Ac) analitik pikinde 0,693 ile 0,979 aralığında değiştiği yani maksimum % 31'lik bir spektral girişim düzeltme etkisi olduğu hesaplanmıştır. 583,2 keV (²⁰⁸Tl) analitik pikinde 0,892 ile 0,995 aralığında değiştiği yani maksimum % 11'lik bir spektral girişim düzeltme etkisi olduğu hesaplanmıştır. 143,76 keV (²³⁵U) analitik pikinde 0,823 ile 0,998 aralığında değiştiği yani maksimum % 18'lik bir spektral girişim düzeltme etkisi olduğu hesaplanmıştır. 609,3 keV (²¹⁴Bi) analitik pikinde 0,783 ile 1 aralığında değiştiği yani maksimum % 22'lik bir spektral girişim düzeltme etkisi olduğu hesaplanmıştır.

İncelenen piklerin geneli dikkate alındığında, düzeltme faktörleri arasında spektral girişim düzeltmesinin, aktivite sonucunu % 0 (spektral girişim yok) ile % 31 arasında ki bir aralıkta değiştirebildiği hesaplanmıştır. Ayrıca, bazı nüklit enerjileri için spektral girişim düzeltmesinde kullanılan TCS etkileri hesaplanamadığından spektral girişim etkileri de hesaplanamamıştır.

Aktivite hesabında kullanılan tüm niceliklerin belirsizlikleri sırayla hesaplanarak, toplam ölçüm belirsizliği verilmiştir. Sertifikalı referans malzemeler için pik alanından (tekrarlanan ölçümleri, fit işlemlerini ve background düzeltmesini içeren) % 0,06 ile 7,95 arasında değişen belirsizlik, CRM'lerin sertifika aktivitelerinden % 0,6 ile 2,69 arasında değişen, verim değeri ep için pik alanından (tekrarlanan ölçümleri, fit işlemlerini ve background düzeltmesini içeren) % 0,05 ile 0,75 arasında değişen, EGML'lerin sertifika aktivitelerinden % 1,45 ile 1,55 arasında değişen, radyoaktif azalımdan % 0,1, numune ağırlığında % 0,01, numune yüksekliğinden % 1,5 ile 1,7 arasında değişen, gama yayınlama olasılığından % 0,01 ile 4,5 arasında değişen, gerçek çakışma düzeltme etkilerinden % 0,75 ile 1,02 arasında değişen, rasgele çakışma düzeltme etkilerinden <1 belirsizlik gelmektedir (Çizelge 2.2). Tüm bu değerlerin ortalaması alınarak toplam belirsizlik hesaplandığında, toplam belirsizlik % 2,5 ile % 10 arasında değiştiği bulunmuştur. Dolayısıyla HPGe dedektörlü mevcut radyoaktivite ölçüm metodunda zaten en az % 2,5, en fazla da % 10 olmak üzere ölçümlerde bir belirsizlik kaynağı vardır. Bu değerler, KS silindirik numune kabında, Bölüm 3.4'te verilen Eşitlik 2.45

ile hesaplanan aktivitenin belirsizliğine doğrudan katılması gereken birleştirilmiş standart belirsizlik değerleridir.

Bu tez çalışması sonucunda, bir HPGe dedektör kullanılarak radyoaktivite ölçümünde dikkat edilmesi gereken tüm parametreler incelenmiş ve hesaba katılmıştır. Bu parametrelerden spektral girişim etkisinin önemi üzerinde durulmuştur. Spektral girişim etkisi içerisinde uranyum ve toryumu aynı anda bulunduran örneklerde incelenmiştir. Bu örneklerde incelenecek olan analitik pike, hem uranyum hem de toryumun gama ışın piklerinden katkı geldiği için, yani bu pikler dedektörün enerji ayırma gücü (122 keV için 0,8 keV, 1332,5 keV için 2,08 keV) sınırları içerisinde kaldığından, bu girişim pikleri üst üste binmiş ve spektrumda toplam bir pik olarak görünmüştür. Spektrumlardaki bu şekilde görünen multiplet piklerin dekonvolüsyon yöntemiyle spektral çözümlenmesinin çok önemli bir adım olduğu, dekonvolüsyon yöntemiyle de ayrıştırılamayan girişim piklerinin değerlendirilmesi süreci ise bu çalışmada önerilen yöntemlere benzer şekilde analizci tarafından ayrıca yapılması gerektiği elde edilen deneysel verilerle de desteklenerek gösterilmiştir.

Dolayısıyla bu çalışmayla, doğru ve kesin bir aktivite sonucu için analizcinin, özellikle düşük enerji bölgesindeki piklerden aktivite sonucu vermesi durumunda, kesinlikle öz-soğurma düzeltmesinin hesaba katılması, yakın mesafe sayım geometrilerinde ve karmaşık bozunma şemasına sahip nüklitlerde koinsidens (TCS) düzeltmesini dikkate alması gerektiği vurgulanmıştır.

Aynı anda potasyum, toryum ve doğal uranyumun bulunduğu cevher örneklerinin, ağır kum minerallerinin (monazit, zirkon, v.b.) ve nadir toprak elementleri içeren diğer monazit içerikli cevherlerin, NORM malzemelerin, yapı malzemelerinin ve sediment örneklerinin içerisinde bulunan ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K aktiviteleri belirlenirken kesinlikle bu düzeltmelerin yapılması gerekmektedir.

Sediment örnekleri gibi çeşitli örnekler kullanılarak yapılan tarihlendirme çalışmalarında toryum nedeniyle oluşacak (sadece) spektral girişim düzeltilmediği takdirde doz hızında 63 keV piki kullanıldığında, %'6'lık bir sistematik hata gelir. Örneğin, ölçülen numunenin 2000 yıl ömrü olduğu hesaplansa, sadece spektral girişim nedeniyle yapılacak hata 120 yılı geçer.

Bu tez çalışması sonucunda, analitik piklere girişim yapan bozucu pikler belirlenerek, bunların etkisi düzeltilmiştir. Bu amaçla önerilen düzeltme faktörlerinden birisi olan spektral

girişim düzeltme yöntemi tüm ayrıntılarıyla incelenmiş ve her bir analitik pik için yöntemler geliştirilmiştir.

Ayrıca, bilindiği gibi her dedektörün kendine özgü bir enerji ayırma gücü olduğundan, çözümlemede kullanılan dedektörün özelliklerine ve ölçülen spektrumun karmaşıklığına bağlı olarak spektral girişim pikleri belirlenmeli ve analitik piklere girişim varsa bunlar uygun yöntemlerle düzeltilmelidir. Bu konuda bu çalışmanın devamı olarak ayrıca gelecekte spektral girişim düzeltmesi için bu tezde önerilen bağıntılar ve prosedür programize edilerek daha kullanışlı hale getirilebilir. Bu amaçla bir program yazılması gerekmektedir. Her nüklitin kendine özgü pikleri olduğundan, bu tezde önerilen yöntemler kullanılarak konunun kapsamı daha da genişletilebilir. Böylelikle gama spektrometrik yöntem ile ²²⁶Ra ve ²³⁸U analitik değerlerinin özellikle toryumca zengin malzemelerde ölçülmesinde daha hassas ve güvenilir radyoaktivite sonuçları rapor edilebilir.

KAYNAKLAR

- Anonymous. 1986. IEEE Standart Test Procedures for Germanium Gamma-Ray Detectors. ANS/ IEEE Std 325-1986.
- Anonymous. 2003. GammaVision-32 Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulator for Microsoft Windows 2000 Professional and XP Professional A66-B32 Software User's Manual. Advanced Measurement Technology Inc.
- Anonymous. 2004. Genie 2000 3.0 Customization Tools Manual. Canberra Industries Inc.
- Anilkumar, S., Deepa, A. K., Narayani, K., Rekha, A. K. Achuthan, P. V., Krishnamachari, G., Sharma, D.N., 2007. Estimation of ²³⁵U concentration in some depleted uranium samples by high resolution gamma-ray spectrometry using 185 keV and 1001 keV gamma-energies of ²³⁵U and ^{234m}Pa. J. Radioanal Nucl. Chem. 274 (1), 161-166.
- Appleby, P.G., Richardson, N. and Nolan, P.J. 1992. Self absorption correction for well-type germanium detectors. Nuclear Instruments and Methods in Physics Section B, 71; 228-233.
- Arnold, D., Sima, O., 2006. Calculation of coincidence summing corrections for X-ray peaks and for sum peaks with X-ray contributions. Appl. Radiat. Isot. 64, 1297-1302.
- ASTM E 181, 1998. Standard test methods for detector calibration and analysis of radionuclides. Annual Book of Standards. Vol 12.02, 9-28, USA (2003).

- Currie, L.A. 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Analytical Chemistry, 40; 586-593.
- Cutshall, N.H., Larsen, I.L. and Olsen, C.R. 1983. Direct analysis of ²¹⁰Pb in sediment samples: Self absorption correstions. Nuclear Instruments and Methods, 206; 309-312.
- CRM, 2008. Canadian Certified Reference Materials (CRM), CANMET-Mining and Mineral Sciences Laboratories, Canada in Web page: < <u>http://www.nrcan.gc.ca/mms/canmet-mtb/mmsl-lmsm/ccrmp/</u> >
- Debertin, K. and Helmer, R.H. 1988. Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors. Elsevier Science Publishers B.V., 399, Amsterdam
- Dovlete, C. and Povinec, P.P. 2004. Quantification of uncertainty in gammaspectrometric analusis of environmental samples. IAEA TECDOC 1401, 103-126.
- EURACEM/CTAC Guide CG4, 2000. Quantifying Uncertainty in Analytical Measurement, second edn. (Geneva, Switzerland). ISBN 0-948926-15-5.
- Firestone, R.B., Shirley, V.S., 1996. Table of Isotopes, eighth ed. CD-ROM Ver. 1.0, ayrıca ENSDF veritabanı web sayfası: <u>http://www.nndc.bnl.gov/ensdf</u>.
- Firestone, B.R., Baglin, C.M. and Frank Chu, S.Y. 1988. Table of isotopes eight edition 1998 update in CD-ROM. John Wiley and Sons, New York.
- Galloway, R.B., 1991. Correction for sample self-absorption in activity determination by gamma spectrometry. Nucl. Instr. and Meth. A 300, 367-373.
- Garcia-Talavera, M., Laedermann, J.P., Decombaz, M., Daza, M.J. and Quintana, B. 2001. Coincidence summing corrections for the natural decay series in γray spectrometry. Journal of Radiation and Isotopes, 54; 769-776.
- Gilmore, G.R., 2008. Practical Gamma-ray Spectrometry, second ed. Wiley, Chichester, England.
- Huy, N.Q. and Luyen, T.V. 2004. A method to determine ²³⁸U activity in environmental soil samples by using 63,3 keV photopeak-gamma HPGe spectrometer. Applied Radiation and Isotopes, 61(6); 1419-1424.
- ISO (International Organization for Standardization), 1995. Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement, first edn. (Genewa, Switzerland). ISBN92-67-10188-9.
- Karlsruhe Nuclide Chart, 1st Edition, 1958, 2nd Edition, 1961, 3rd Edition, 1968, 4th Edition, 1974, 5th Edition, 1981, 6th Edition, 1995.
- Knoll, F.G. 2000. Radiation Detection and Measurement Third Edition.Wiley, 816, New York.
- Kolotov, V.P., Koskelo, M.J., 1998. Testing of different true coincidence correction approaches for gamma-ray spectrometry of voluminous sources. J. Radioanal. Nucl. Chem. 223(1-2), 95-100.
- Korun, M., 2000. Calculation of self-attenuation factors in gamma-ray spectrometry for samples of arbitrary shape. J. Radioanal. Nucl. Chem. 244(3), 685-689.

- MacLellan, J.A. and Strom, D.J. 1999. Traditional formulas for decision level are wrong for small numbers of counts. Pacific Nortwest National Laboratory; 6.
- NCRP Report No. 058, 1985. A Handbook of Radioactivity Measurements Procedures, 2nd edition.
- Rosman, K.J.R., Taylor, P.D.P, 1998. Isotopic compositions of the elements 1997. IUPAC Database, Pure Appl. Chem., 70(1), 217-236.
- Sudár, S., 2002. "TrueCoinc" a software utility for calculation of the true coincidence correction, in the Specialized software utilities for gamma spectrometry, IAEA-TECDOC-1275, pp.37-38, International Atomic Energy Agency, Vienna, ISSN 1011-4289.
- XCOM: Photon Cross Sections Database, 1998. Web sitesi. <u>http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/Text/XCOM.html</u>. Erişim Tarihi: 2008
- Yücel, H., Solmaz, A.N., Köse, E., Bor, D. 2009. Spectral interference corrections for the measurement of ²³⁸U in materials rich in thorium by a high resolution γray spectrometry. Applied Radiation and Isotopes, 67 (11); 2049-2056.
- Yücel, H., Çetiner, M.A. and Demirel H. 1998. Use of the 1001 keV peak of ^{234m}Pa daughter of ²³⁸U in measurement of uranium concentration by HPGe gamma-ray spectrometry. Nuclear Instruments and Methods in Physics Section A, 413; 74-82.

ÖZGEÇMİŞ

Adı Soyadı	: Esra KÖSE
Doğum Yeri	: Ankara
Doğum Tarihi	: 01 / 01 / 1984
Medeni Hali	: Bekar
Yabancı Dili	: İngilizce
Eğitim Durumu:	
Lise	:Çankaya Lisesi, (1998-2002)

	· ; ··································
Lisans	:Ankara Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü, (2003-2007)
Yüksek Lisans	:Ankara Üniversitesi Nükleer Bilimler Enstitüsü Medikal Fizik
	Anabilim Dalı (Eylül 2007-Şubat 2010)

Yayınları (SCI):

Yücel, H., Solmaz, A.N., Köse, E., Bor, D. "True coincidence-summing corrections for the coincident γ -rays measured with coplanar grid CdZnTe detectors", Applied Radiation and Isotopes, Vol.68, 1040-1048 (2010).

Yücel, H., Solmaz, A.N., Köse, E., Bor, D. "Methods for spectral interference corrections for direct measurements of 234 U and 230 Th in materials by γ -ray spectrometry", Radiation Protection Dosimetry, Oxford Journals Vol.138, No.3, 264-277 (2010).

Yücel, H., Solmaz, A.N., Köse, E., Bor, D. "A semi-empirical method for calculation of true coincidence corrections for the case of a close-in detection in γ -ray spectrometry", Journal Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.283, 305-312 (2010).

Yücel, H., Solmaz, A.N., Köse, E., Bor, D. "Spectral interference corrections for the measurement of 238 U in materials rich in thorium by a high resolution γ -ray spectrometry", Applied Radiation and Isotopes, Vol.67, No.11, 2049-2056 (2009).