

T. C.
ATATÜRK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
FİZİK ANABİLİM DALI

XRS'LE YAPILAN ANALİZLERDE GÖZLENEN TEMEL SAYMA,
ESCAPE, PILE-UP, SATELLITE VE SAÇILMA PİKLERİNİN
İNCELENMESİ

Rıdvan DURAK

Yönetici: Doç. Dr. Yusuf ŞAHİN

Doktora Tezi

T.C. YERLİ VE YABANCI DİL
DOKÜMANTASYON MERKEZİ

ÖZET

Bu çalışmada temel sayma, Ge'un escape pikleri, pile-up pikler, karakteristik radyasyonun saçılma pikleri ve $K\alpha L^1$ satellite pikler incelenmiştir.

Öncelikle spektral temel saymaya tabii radyasyonun katkısını belirlemek amacıyla temel sayma ölçümleri yapılmıştır. 0-520 keV enerji aralığında zırhlanmamış ve zırhlanmış dedektörle yapılan ölçümlerde hem temel saymada hem de fotopik şiddetlerinde, özellikle uranyum toryum serisinden kaynaklanan pik şiddetlerinde önemli derecede azalmalar tesbit edilmiştir. Zırhlanmamış dedektörde temel sayma hızı 24 keV'de 1.72 s/d keV'den 511 keV'de 4×10^{-3} s/d keV'e düşerken fotopik sayma hızı 24 keV'de 1.19 s/d keV'den 3×10^{-2} s/d keV'e düştüğü görülmüştür.

$40 \leq Z \leq 70$ elementler bölgesinde Ge'un escape pikleri incelenmiştir. Elde edilen sonuçlar için dedektör verimi, parçacık büyüklüğü, öz-soğurma düzeltmesi yapılmış ve *escape pik/fotopik* şiddet oranlarının enerji ve kolimasyona bağımlılıkları incelenmiştir. Düzeltilmiş değerlerin hata sınırları içerisinde teorik değerlerle uyum içinde olduğu görülmüştür.

Kuantitatif analizlerde gözönüne alınması gereken diğer bir etki, puls pile-up etkisidir. Pile-up pikleri incelemek için ^{55}Fe 'in bozunmasından elde edilen Mn 'in karakteristik pikleri $\sim 0.3 - 9$ kcps sayma hızı aralığında ölçülmüş ve *pile-up pik/fotopik* oranının sayma hızına ve ölü zamana bağımlılıkları incelenmiştir. Pile-up pik şeklindeki bozulmanın, sayma hızının bir fonksiyonu olduğu görülmüştür.

Ge(Li) dedektörde fotopik şiddetine floresans radyasyonunun numuneden saçılmasının etkisi incelenmiştir. Kalınlıkları $\sim 0.06 - 0.19$ g/cm² aralığında değişen *Ba* numuneler kullanılarak *Compton piki/fotopik* alanı oranları tayin edilmiştir. ^{241}Am radyoizotop halka kaynak uyarımı için numune kalınlığının fonksiyonu olarak *Compton piki/fotopik* oranları verilmiştir. Sonuçların diğer araştırmacıların teorik ve

deneysel sonuçları ile uyum içerisinde olduğu görülmüştür.

İkincil uyarıcılarla (Fe, Co, Ni ve Cu) uyarılmış Cr, Mn ve Fe numunelerinin KL^1 satelite spektrumları incelenmiş ve KL^1/KL^0 şiddet oranları hesaplanmıştır. Sonuçlar diğer araştırmacıların deneysel sonuçları ile mukayese edilmiştir.



SUMMARY

In this study, background, Ge escape peak, pile-up peaks, scattering peaks of the characteristic radiation and $K\alpha L^1$ satellite peaks were investigated.

To determine contribution of natural radiation to background in the measurements made by detector with and without a lead shield, we observed attenuation for both individual peak counts and background. Especially most of the peaks originating from the uranium and thorium series are significantly reduced. While in the lead covered detector background counting rate decrease from about 1.72 c/min keV at 24 keV to less than 4×10^{-3} c/min keV at 511 keV, photopeak counting rate decrease from 1.19 c/min to 3×10^{-2} c/min at 24 keV.

Ge escape peaks are studied in the atomic number range $40 \leq Z \leq 70$. Corrections such as, detector efficiency, particle size, self absorption correction has been done for obtained results. The dependence of the *escape peak/photopeak* ratios on the energy and collimation was studied. Our results were seen to be in good agreement with the theoretical values.

Another effect that should be considered in quantitative analysis is the puls pile-up effect. In order to investigate pile-up peaks, Mn characteristic peaks obtained from ^{55}Fe decay were measured in the range of counting rate of $\sim 0.3 - 9$ *kcps* and investigated the dependence of *pile-up peak/photopeak* ratio to the counting rate and the died time. The distortion in pile-up peak was observed as a function of the counting rate.

In Ge(Li) detector, the contribution to photopeak intensity due to Compton scattering of fluorescence radiation in the sample was studied. By using Ba samples in the thickness range 0.06 - 0.19 g/cm^2 *Compton peak/photopeak* area ratios measured. The area ratios of *Compton peak/photopeak* was presented as a function of sample

thickness for ^{241}Am annular radioisotope source excitation. Our results were seen to be in good agreement with the experimental results of Kis-Varga and Végh (1993).

KL^1 satellite spectra of Cr, Mn and Fe samples excited with secondary excitor were measured and KL^1/KL^0 intensity ratios were calculated. The results were compared with the Parrat's experimental results and were seen to be higher than Parrat's.



TEŞEKKÜR

Çalışmalarım boyunca değerli görüş ve yardımlarını esirgemeyen tez hocam sayın Doç.Dr.Yusuf ŞAHİN'e derin minnettarım. Onunla çalışmak benim için bir şanstı.

Çalışmalarım boyunca beni destekleyen ve yardımlarını esirgemeyen Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü elemanlarına ve Kâzım Karabekir Eğitim Fakültesi Fizik Eğitimi Anabilim Dalı elemanlarına teşekkür ederim.

Atatürk Üniversitesinde çalışmama imkân sağlayan Yüzüncü Yıl Üniversitesi Rektörlüğüne ve Fen-Edebiyat Fakültesi Dekanlığına teşekkür ederim.

Rıdvan DURAK

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ÖZET	i
SUMMARY	iii
TEŞEKKÜR	v
İÇİNDEKİLER	vi
1. GİRİŞ	1
2. TEORİK BİLGİ	4
2.1 X-Işını Spektrometresiyle Gözlenen Spektrumun Ana Özellikleri	4
2.2 Spektrumların Değerlendirilmesi	5
2.2.1 Karakteristik Pikler	5
2.2.2 Temel Sayma (Spectral Background)	8
2.2.3 Uydu (Satellite) Pikler	10
2.2.4 Kaçak (Escape) Pikler	17
2.2.5 Pile-Up Pikler	19
2.2.6 Saçılma Pikleri	21
3. SAYMA SİSTEMİ	23
3.1 Enerji Ayırımı X-Işını Spektrometresi	23
3.2 Ge(Li) Dedektörü	25
4. ÖLÇÜM ve HESAPLAMALAR	27

4.1 Temel Sayma Ölçümleri	27
4.2 Escape Pik Ölçümleri.....	30
4.3 Pile-up Pik Ölçümleri	44
4.4 Saçılma Ölçümleri	48
4.5 K α Satellite Ölçümleri.....	53
5. SONUÇ ve TARTIŞMA	56
6. KAYNAKLAR	59



1 GİRİŞ

Elemental analiz tekniği XRF, özellikle EDXRF tekniği, çoklu-element analizi (multi-element analysis), tahribatsız analiz, birkaç miligramdan daha az madde ile kantitatif analiz, analiz numunesinin çok değişik şekil ve halde hazırlanabilme imkânı, kısa süreli analiz, hemen hemen periyodik tablodaki tüm elementlerin ($Z > 11$) analizi, [son zamanlarda şeffaf (transparent) pencereci dedektör sistemlerinin geliştirilmesi ile carbon veya bor'dan daha düşük atom numaralı elementler sayılabilmektedir], v.s. gibi özelliklerinden dolayı bilim ve teknolojide yaygın kullanım alanı bulmuştur¹.

X-ışını spektrumlarında enerji ve şiddetin hassas olarak elde edilmesi ve dedektör cevap fonksiyonunun (response function) doğru fonksiyonel temsili, spektrumun oluşumunda rol alan olayların detaylı bir şekilde incelenmesini gerektirir. X-ışını spektroskopisi ile ilgili birçok uygulamada, meselâ EDXRF analizörlerinin tam pulsyüksellik spektrumlarını tahmin etmek için Monte Carlo simülasyonu (MCS) kullanıldığı zaman, doğru dedektör cevap fonksiyonuna ihtiyaç duyulur (He, et al., 1990). Atom fizikinde elektron, proton ve ağır iyonlarla ışınlanarak içtabaka iyonizasyonu için tesir kesiti hesaplamalarında, iyonizasyon sonucu K ve/veya L x-ışınlarının emisyon oranlarının tayininde karakteristik x-ışınlarının pik alanlarının doğru ve hassas hesaplanması gerekir (Watanabe, et al., 1986).

XRS ile spektral analizlerde gözlenen etkiler ve bunların analitik temsili, birçok araştırmacı tarafından çalışılmıştır. Bazı araştırmacılar spektrumun en önemli kısmını teşkil eden fotopikleri analitik olarak temsil etmiş ve pik alanlarını hesaplamışlardır (Şahin vd., 1990; Campbell ve Wang, 1992; Helmer ve Lee, 1980; Çiftçioğlu, 1980; Siegert ve Janssen, 1990). Malm, et al. (1984), temel sayma düzeltmesi, materyal seçimi, geometri ve zırlama, Gunicheva, et al. (1992), Westmeier (1981)

¹2000 enerji ayırmalı (ED) ve 14000 dalga boyu ayırmalı (WD) spektrometre dünyanın çeşitli bölgelerinde araştırma laboratuvarlarında, kalite kontrol servislerinde ve endüstride kullanılmakta ve 1970'den beri bu konuda her yıl yaklaşık 300 ilâ 500 makale yayımlanmaktadır (Markowicz ve Van Grieken, 1988; 1990)

ve Pratt (1972), Ge(Li) dedektörlerde temel sayma düzeltmesi için metodlar önermişlerdir. Nian, et al. (1989), Tenney (1984) ve Cohen (1974) EDXR spektrumlarında pile-up pikleri incelemiş ve bunların sebep olduğu hataları düzeltmek için metodlar ve formüller geliştirmişlerdir. Campbell ve Wang (1991) ve Shima, et al.(1983), fotopiklerin düşük enerjili taraflarında gözlenen kuyruklanmaları detaylı bir şekilde incelemişlerdir. Eggert (1990) ve Short (1991), kaçak pikleri incelemiş ve bir düzeltme işlemi geliştirmiş, Huang (1979), Wielopolski ve Gardner (1979), Van Espen, et al. (1980) ve He, et al. (1990), tam bir x-ışını spektrumunu temsil etmek için metodlar sunmuşlardır. Bazen bir spektrumda pikler içiçe girer ve bazen de birkaç pik üstüste binebilir (overlap). Bazı araştırmacılar bu piklerin analizi için metodlar ve bilgisayar programları geliştirmişlerdir (Bortels, et al., 1990; Keyser, 1990; Delbrouck, et al., 1984; Watanabe, et al., 1986; Mukoyama, 1981; Schulte, et al., 1980). Babu, et al. (1987) ve Deutsch (1989), düşük Z'li atomlarda *satellite* piklerini, Urch (1970), düşük enerji *satellite* şiddetlerini ve kaynağını araştırmıştır. Richard, et al. (1972), Briand, et al. (1976) ve Salem, (1979), $K\alpha$ *hipersatellitelerini*, Richard, et al. (1973), $K\beta$ *hipersatellitelerini* incelemişlerdir. Sartori ve Fernández (1992), çoklu saçılma (multiple scattering) piklerini, Fernández (1992) ve Campbell, et al. (1989), Compton ve koherent saçılma piklerinin x-ışını spektrumlarına katkılarını incelemişlerdir. Kis, et al. (1993), numuneden saçılmış radyasyonun, çizgi şekli üzerine etkisini araştırmışlardır. Dyck, et al. (1986), geri-saçılma (backscattering) piklerinin Monte Carlo simülasyonunu, Fernández ve Sumini (1991), EDXR spektrumlarının bilgisayar simülasyonunu, He, et al. (1988) ve Gardner, et al. (1986), Monte Carlo yaklaşımıyla dedektör cevap fonksiyonu için etkileşme mekanizmalarını çalışmışlardır.

Bu çalışmanın amacı, x-ışını spektrumlarının tam ve doğru bir temsilini yapabilmek için spektrumda gözlenen ana etkiler yanında ikinci derece etkileri de gözönüne almak ve spektral verinin doğru analitik yorumunu yapmaktır.

Bu amaçla x-ışını spektrometresiyle (XRS) elde edilen spektrumlarda gözlenen karakteristik pikler, temel sayma [sayma sisteminin performansının bir ölçüsü olan *pik/temel sayma*, temel saymanın hassas hesaplanmasına bağlıdır (Paulus ve Keyser, 1990)], kaçak pikler (escape peak), üstüste binme pikleri (pile-up peak), numune-

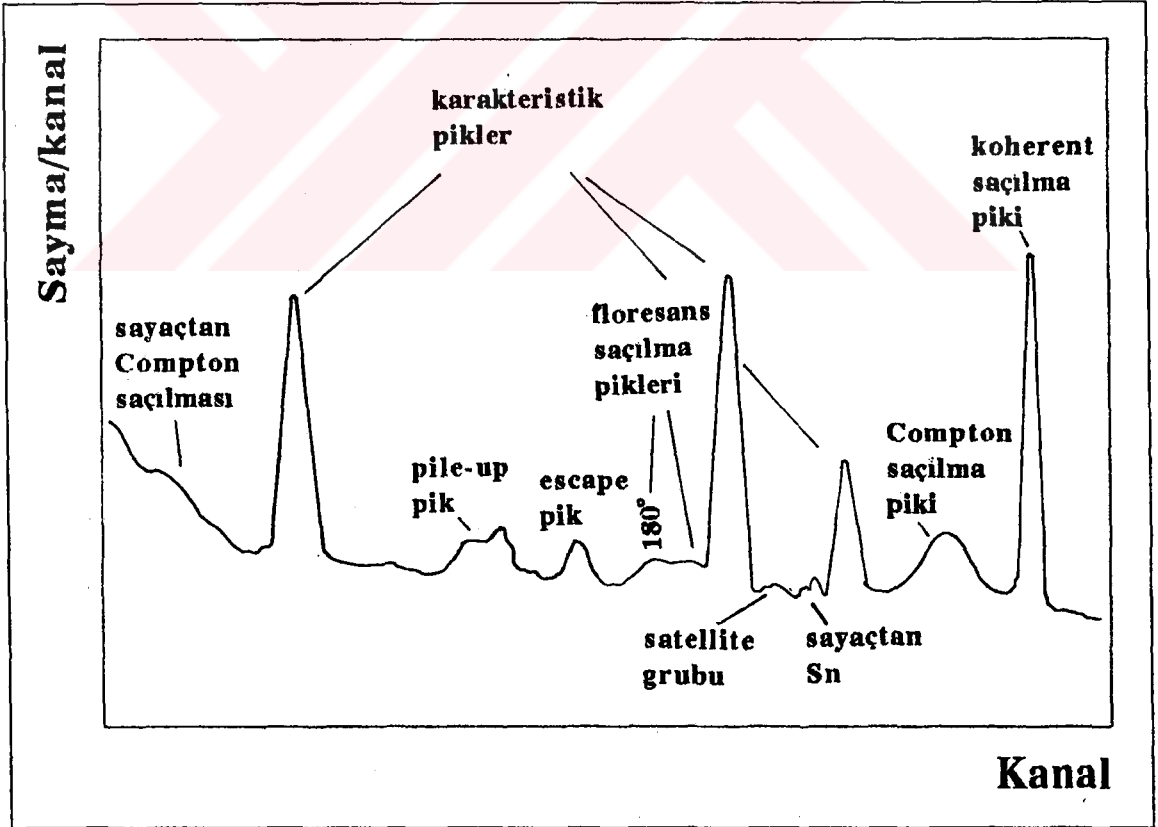
den, havadan ve kolimatörden Compton saçılma pikleri ve uydu pikler (satellite peak) incelenmiştir.



2 TEORİK BİLGİ

2.1 X-Işını Spektrometresiyle Gözlenen Spektrumun Ana Özellikleri

X-ışını spektrometresiyle gözlenen spektrumun genel bir şekli Şekil 2.1'de görülmektedir. Spektrumun en baskın özelliği, geniş saçılma pikleri (Compton, koherent, geri saçılma ve çoklu saçılma pikleri) olup bunlar gözlenen toplam sayımın büyük bir kısmını oluştururlar. Bu saçılmalar numuneden, havadan ve dedektörden olabilirler. Ayrıca spektrumda numune, dedektör, kolimatör ve kolimatör kirliliklerine ait karakteristik pikler, kaçak pikler, üstüste binme pikleri, uydu pikler (satellite) ve temel sayma gözlenebilmektedir.



Şekil 2.1. X-ışını spektrometresiyle gözlenen spektrumun şematik temsili.

2.2 Spektrumların Değerlendirilmesi

Normal olarak bir spektrumdaki elementlerin pik alanları, bu pikler ile istenmeyen piklerin üst-üste binmesinden (overlap) dolayı doğrudan elde edilemez. Spektrum değerlendirmede esas fikir, spektrumun bir matematiksel modelini $[f(i)]$ kurmak ve deneysel spektrumun $[f_i]$ en iyi *fit* edilmiş değerini buluncaya kadar onun parametrelerini ayarlamaktır. Fitin iyiliği *kalanların karelerinin* ağırlıklı toplamıyla (χ^2) ölçülür.

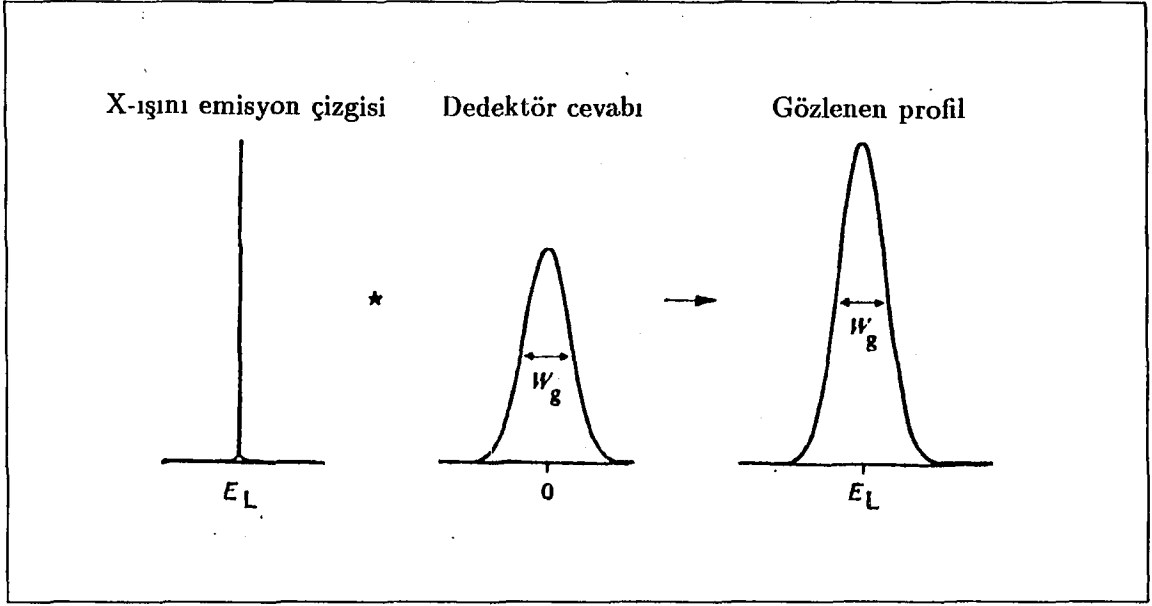
$$\chi^2 = \frac{1}{n - m} \sum_i \frac{[f_i - f(i)]^2}{f_i} \quad (1)$$

Burada n , veri noktalarının sayısı (kanal), m , fitte kullanılan parametrelerin sayısı ve $n - m$ *serbestlik derecesi* sayısıdır. $f(i)$ ve f_i sırasıyla i . kanalda hesaplanan ve ölçülen sayımlardır. Fitin iyiliği, kurulan matematiksel modele bağlıdır. Bu sebeple uygun matematiksel modelin seçilmesi çok önemlidir. Bir x-ışını spektrumunun matematiksel modeli, esas itibariyle karakteristik pikler ve temel saymadan oluşur. Ancak satellite piklerine, escape piklerine, saçılma piklerine ve pile-up piklerine göre düzeltmeler modeli daha uygun hale getirecektir.

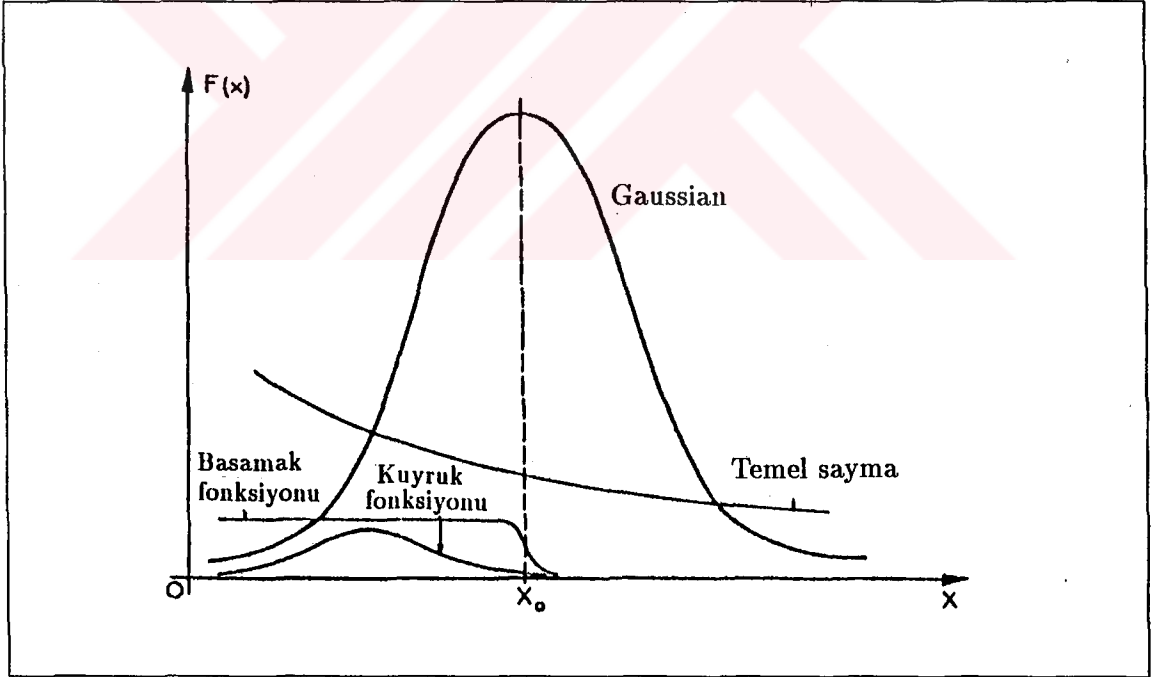
2.2.1 Karakteristik Pikler

X-ışını emisyon çizgileri, atomların uyarılmış seviyelerinin yarı ömürleri kısa ancak sonlu olmasından dolayı karakteristik x-ışınlarının tekenerjili (monoenergetic) olmamasından (Scofield, 1969), yük oluşum istatistiğinden ve gürültüden dolayı yarı yükseklikteki tam genişlikleri (FWHM) 1-4 eV olan, Lorenziyan'lardır (Campbell ve Wang, 1992). Diğer taraftan dedektörün enerji cevabı geniş bir Gaussian'dır ve x-ışını tabii genişliğinden yaklaşık 50 kez daha büyüktür. Bu iki fonksiyonun karışımından (convolution) gözlenen EDXRF çizgi şekli yaklaşık olarak bir Gaussian ile temsil edilebilir (Şekil 2.2). Ancak bazı sebeplerden dolayı pikin düşük enerjili tarafında Gaussian'dan sapmalar (tailing) gözlenir (Durak, 1990). Bu sebeple bir fotopikin analitik temsili için sıkça (1) Gaussian pik, (2) eksponansiyel bir kuyruklanma, (3) bir adım fonksiyonu ve (4) temel sayma fonksiyonları kullanılır.

Bu bileşenler şematik olarak Şekil 2.3'de verilmiştir.



Şekil 2.2. Dar x-ışını emisyon çizgisi ve geniş Gaussian dedektör cevap fonksiyonunun birleşimi geniş Gaussian benzer bir profil oluşturur.



Şekil 2.3. Potopikin fonksiyonel formunun şematik temsili.

Pik şekil fonksiyonları için önerilen analitik formların önemli bazıları Tablo 2.1'de özetlenmiştir.

Tablo 2.1. Pik şekil fonksiyonları*

No	Kaynak	Ana kısım	Fonksiyon	Kuyruklanma
1	Birçok	Gaussian	$= Y e^{-(x-X)^2/2\sigma^2}$ $= Y e^{[-(x-X)/w/(4\ln 2)^{1/2}]^2}$	Yok
2	Routti ve Prussin, (1969)	$e^{-(x-X)^2/2\sigma^2}$	için $x > X - J$	
		$e^{J(2x-2X+J)/2\sigma^2}$	için $x < X - J$	Yok
3	Philips ve Marlow, (1976)	Gaussian	$0.5P_1 e^{(x-X)/P_2} \operatorname{erfc} \left(\frac{x-X}{\sqrt{2\sigma P_5}} + \frac{\sqrt{2\sigma P_6}}{2P_2} \right)$ $+ 0.5P_3 e^{(x-X)/P_4} \operatorname{erfc} \left(\frac{x-X}{\sqrt{2\sigma P_6}} + \frac{\sqrt{2\sigma P_6}}{2P_4} \right)$	
4	Campbell ve Jorch, (1979)	Gaussian	$P_1 e^{-(x-P_2)^2/2P_3^2}, x > P_2 - \frac{2P_3^2}{P_4}$ $P_1 e^{-(x-P_2)/P_4}, x < P_2 - \frac{2P_3^2}{P_4}$	
5	Helmer ve Lee, (1980)	Gaussian	$P_1 e^{-P_2(x-X)} (1 - e^{-P_3(x-X)^2/2\sigma^2})$ $+ P_4 e^{(x-X)/P_5} \operatorname{erfc} \left(\frac{x-X}{\sqrt{2\sigma P_6}} - \frac{\sqrt{2\sigma P_6}}{2P_5} \right)$	
6	Schulte et al., (1980)	Voigt	$= Y \left(\frac{A}{\pi} \right) \left\{ \frac{e^{t^2} dt}{(v-t^2)+A^2} \right\}$	$\frac{1}{2} P_1 e^{(x-X)/P_2} \operatorname{erfc} \left(\frac{x-X}{\sqrt{2\sigma P_5}} + \frac{\sqrt{2\sigma P_6}}{2P_2} \right)$ $+ \frac{1}{2} P_3 e^{(x-X)/P_4} \operatorname{erfc} \left(\frac{x-X}{\sqrt{2\sigma P_6}} + \frac{\sqrt{2\sigma P_6}}{2P_4} \right)$
7	Bortels ve Collaers, (1987)	$Y_P e^{(E-E_\gamma)/\Delta E_P}, 0 \leq E \leq E_\gamma$ 0, $E > E_\gamma$	$Y_T e^{(E-E_\gamma)/\Delta E_T}, 0 \leq E \leq E_\gamma$ 0, $E > E_\gamma$	
8	Campbell ve Wang, (1991)	Gaussian	$\frac{1}{2} H_D e^{(x-X)/\beta}$ $\times \operatorname{erfc} \left(\frac{x-X}{\sqrt{2\sigma}} + \frac{\sigma}{\sqrt{2\beta}} \right)$	
9	Boman ve Isakson, (1991)	$= Y e^{-(x-a_{2i})^2/a_3}, x \geq \varepsilon$ $= Y e^{(a_4+2x-a_{2i})/a_3 a_4}, x \leq \varepsilon$		Yok
10	Kis et al., (1993)	Gaussian	$\frac{1}{2} T^S e^{(E_i-E_0)/\beta} \times \operatorname{erfc} \left(\frac{E_i-E_0}{\sqrt{2\sigma}} + \frac{\sigma}{\sqrt{2\beta}} \right)$ $\frac{1}{2} T^L e^{(E_i-E_0)/\alpha} \times \operatorname{erfc} \left(\frac{E_i-E_0}{\sqrt{2\sigma}} + \frac{\sigma}{\sqrt{2\alpha}} \right)$	
11	Sarode, (1993)	$\frac{I_M}{1+(E-E_M)^2/\Gamma^2}$		Yok

Semboller:
 x, E_i : kanal numarası, kanal enerjisi (veya bağımsız değişken),
 X, E_0, E_γ, E_M : pik merkezi (kanal ve enerji cinsinden),
 Y, Y_P : Gaussian genliği (sayım cinsinden),
 w : FWHM,
 $\sigma, \Delta E_P, \Delta E_T$: Gaussian genişlik parametresi, $w : (8\ln 2)^{1/2}\sigma$,
 J, ε : Gaussian fonksiyonun exponansiyeye değiştiği noktanın pik merkezine mesafesi (kanal),
 $P_1, P_2, \dots, P_6, a_{2i}, a_3, a_4, T^S, T^L, Y_T, Y_D, \alpha, \beta$: deneysel verinin fitinden tayin edilen parametreler,
 erfc : tamamlayıcı hata fonksiyonu,

*Önceki yıllara ait bir literatür özeti Lepy ve Morel tarafından verilmiştir (Lepy ve Morel, 1990).

Gaussian dağılım fonksiyonu,

$$F_i = \frac{A_g}{\sqrt{2\pi}\sigma_g} \exp\left[-\frac{(E_i - E_m)^2}{2\sigma_g^2}\right] \quad (2)$$

ile verilir. Burada E_i , i . kanalın enerjisi; E_m , pik merkezinin enerjisi; A_g , pik alanı; σ_g , pik genişliğidir (eV). E_i , sıfırıncı kanal enerjisi *SIFIR* (zero) ve keV/kanal cinsinden *KAZANÇ* (gain) kullanılarak,

$$E_i = \text{SIFIR} + \text{KAZANÇ} \times i \quad (3)$$

ifadesinden hesaplanabilir. Genişlik, tipik olarak bir Ge(Li) spektrometresinde $Mn-K\alpha$ çizgisi için 190 eV kadardır. Bu, amplifikasyon işleminin elektronik gürültüsü ve sayma işleminin istatistik dağılımından dolayı birkaç eV'luk tabii genişlikten oldukça büyüktür. σ_g parametresi, E_m 'nin fonksiyonu olarak

$$\sigma_g = \left[\left(\frac{\text{GÜRÜLTÜ}}{2.3548} \right)^2 + \varepsilon \times \text{FANO} \times E_m \right]^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$

şeklinde yazılabilir. Burada *GÜRÜLTÜ* (noise), pik genişliğine elektronik katkı; *FANO*, değeri germanyum için 0.0305–0.0755 olan Fano faktörü olup, iyonlaşma sayısında gözlenen dalgalanmanın ortalamasının karesinin iyonlaşma sayısına oranı olarak tanımlanır ve ε bir elektron-hole çifti meydana getirmek için gerekli olan ortalama enerji olup germanyum için 2.9 eV'tur. *SIFIR*, *KAZANÇ*, *GÜRÜLTÜ* ve *FANO* için başlangıç değerleri bir spektrometrenin doğru enerji ve rezolüsyon kalibrasyonları yapılarak deneysel olarak elde edilebilir.

2.2.2 Temel Sayma (Spectral Background)

Ge(Li) spektrometreleri birçok gama ve x-ışını spektrum ölçümleri için tercih edilen sistemlerdir. Bir EDXRF spektrumunun temel sayma şeklini, primer uyarma spektrumu (excitation spectrum), numuneden primer x-ışınlarının saçılması ve soğurulması, Ge(Li) dedektörde etkileşmeler ve mümkün difraksiyon etkileri ve tabii radyasyon gibi bazı faktörler belirler (Jenkins, et al., 1981; Durak, 1990). Temel saymaya en önemli katkı numuneden saçılmış primer spektrumdan gelir. Kaynak aktivitesi düşük olduğu zaman temel saymanın azaltılması gerekir. Meselâ, tabii

radasyondan kaynaklanan temel saymayı azaltmak için dedektörün zırhlanması gerekir (Malm, et al., 1984).

Temel sayma şekli ve bölgesine bağlı, değişik temel sayma fit modelleri kullanılabilir (Janssens, 1989). Yaklaşımlardan biri, temel saymayı tanımlamak için bir analitik fonksiyon kullanmaktır. İstatistik dalgalanmalar dışında bir pik veya pik demeti altındaki temel saymayı, sürekli ve enerjinin (yada kanalın) düzgün değişen bir fonksiyonu olduğundan, lineer bir polinom ile temsil etmek yeterlidir:

$$f_B(i) = \sum_j^n a_j(i)^j \quad (5)$$

Burada $f_B(i)$, i . kanaldaki temel saymadır. Genellikle $n = 2$ olarak seçilir.

Diğer bir yaklaşım, numuneye benzer bir standarttan alınmış spektrumla ölçülmüş spektrumu karşılaştırmaktır. Temel sayma tayini için diğer faydalı bir metod tekrarlı soyuma (iterative stripping) metodudur (Clayton ve Duerden, 1987). Bu yaklaşımda temel fikir, uygun temel sayma seviyesine pik sayımı içeren kanalların yüksekliklerini tekrarlı olarak aşağıya çekmektir. Temel sayma şekli iterasyon sayısı ile tayin edilir.

X-ışını elementel analiz ölçümlerinde dedeksiyon limiti çok önemlidir. Dedeksiyon limiti ne kadar küçük olursa analizin hassasiyeti ve miktar analizlerinde çalışma aralığı o derece artar. Dedeksiyon limiti

$$C_{MDL,i} = \frac{\sqrt[3]{N_{B,C_i}}}{N_{P,C_i}} C_i \quad (6)$$

ifadesi ile tanımlanır. Burada N_{B,C_i} , numunedeki konsantrasyonu veya kütlesi C_i olan i elementinin temel sayması ve N_{P,C_i} net pik sayımıdır. Denklemden de görüldüğü gibi dedeksiyon limitini mümkün olduğu kadar küçültmek için temel saymayı veya pik-temel sayma (peak-to-background) oranını o derecede büyütmek gerekir. Bu ise temel saymanın kaynaklarının iyi belirlenmesi ve buna göre tedbirlerin alınması ile mümkün olabilir.

2.2.3 Uydu (Satellite) Pikler

X-ışınları ve diğer çeşitli etkileşmeler, atomların iç yörüngelerinden elektronların sökülmesine sebep olabilirler. Bu geçişlerin yer aldığı atomun karakteristik x-ışınlarının yayınlanmasıyla meydana gelen boşluklar daha dış yörüngelerden elektronlarla doldurulurlar. Çoğu kez kaynağı kolayca izah edilebilen ana (principal) frekanslara (bunlara *diyagram çizgileri* denir; yani $K\alpha$: $2p \rightarrow 1s$ veya $K\beta$: $3p \rightarrow 1s$, v.s.) ilaveten, *nandiyagram çizgiler* olarak isimlendirilen çizgiler veren çok sayıda *uydu* frekanslar da gözlenir (Urch, 1970). Bu uydu çizgiler ana çizgiden daha düşük veya daha büyük enerjili olabilirler. Bu çizgiler, içtabakalarında çoklu iyonize olmuş atomlardaki geçişlerden kaynaklanmaktadır. Meselâ, K serisindeki en genel dubletler olan $K\alpha_{3,4}$ ve $K\alpha_{5,6}$, $K\alpha_{1,2}(K \rightarrow L)$, ana çizgilerin uydu çizgileridir ve bunlar iki kere iyonlaşmış $KL \rightarrow LL$, $KK \rightarrow KL$ geçişlerinden meydana gelirler (Şekil 2.4)(Jenkins, 1988; Condon ve Shortley, 1991). Bunlar iç-atomik elektron korelasyonu, uyarma dinamiği, durulma (relaxation) ve x-ışını yayınlama işlemlerine tesir eden diğer etkiler hakkında bilgiler verdiğinden önemlidirler (Deutsch, 1989).

Atom numarası Z olan bir elementin $K\alpha_{1,2}(K \rightarrow L)$ ana çizgisine eşlik eden $K\alpha_{3,4}(KL \rightarrow LL)$ uydu çizgilerinin enerjisi için

$$(h\nu_{K\alpha_{3,4}})_Z = (KL)_Z - (LL)_Z, \quad (7)$$

ana çizgi için ise

$$(h\nu_{K\alpha_{1,2}})_Z = (K)_Z - (L)_Z \quad (8)$$

yazılabilir. İlk yaklaşımda

$$(KL)_Z = K_Z + L_{Z+1} \quad (9)$$

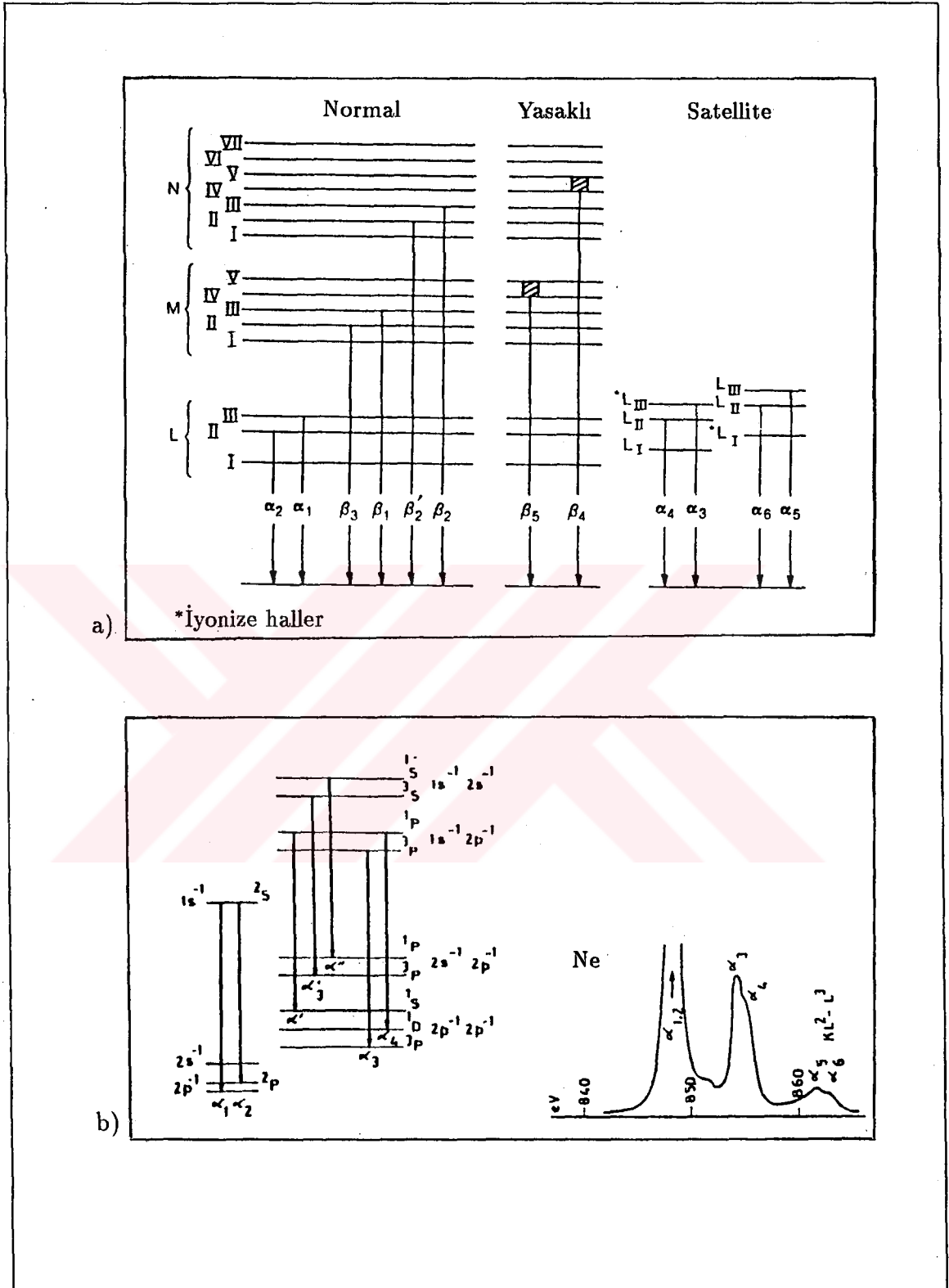
$$(LL)_Z = L_Z + L_{Z'+1} \quad (10)$$

olup burada $Z' + 1$, L' 'de bir elektronun eksilmesinden dolayı biraz daha az perdelenmiş nükleer yükü göstermektedir. Bu nedenle

$$L_{Z+1} > L_{Z'+1} \quad (11)$$

dir. Böylece

$$(h\nu_{K\alpha_{3,4}})_Z = (h\nu_{K\alpha_{1,2}})_Z + \Delta \quad (12)$$



Şekil 2.4. *K* serisinde gözlenen geçişler: a) X-ışını gösterimi, b) Spektroskopik gösterim.

yazılabilir. Burada $\Delta = (L_{Z+1} - L_{Z'+1}) > 0$ küçük pozitif bir niceliktir. Böylece bir $L_{III}(2p)$ elektronunun sökülerek $K\alpha_3(KL_{III} \rightarrow L_{III}L_{III})$, $K\alpha_4(KL_{III} \rightarrow L_{III}L_{II})$ uydu piklerinin meydana gelmesi $L(2p)$ ve $K(1s)$ seviyeleri arasındaki mesafeyi, dolayısıyla enerji farkını artırır. Deney ve kuantum mekanik hesaplamalar beş $K\alpha$ uydu pikinin bulunduğunu göstermektedir (Mikkola, et al., 1983; Nigam ve Soni, 1985; Babu, et al., 1986; Agarwal, 1991) (Tablo 2.2).

Tablo 2.2. $K\alpha$ uydu (satellite) pikleri.

Başlangıçtaki konfigürasyon	Geçiş	Multiplet	Satellite
$KL_{II,III}$	$(1s^{-1}2p^{-1})^1P \rightarrow (2p^{-1}2p^{-1})^1S$	$^1P \rightarrow ^1S$	α'
KL_I	$(1s^{-1}2s^1)^3S \rightarrow (2s^12p^{-1})^3P$	$^3S \rightarrow ^3P$	α'_3
KL_I	$(1s^{-1}2s^{-1})^1S \rightarrow (2s^{-1}2p^{-1})^1P$	$^1S \rightarrow ^1P$	α''
$KL_{II,III}$	$(1s^{-1}2p^{-1})^3P \rightarrow (2p^{-1}2p^{-1})^3P$	$^3P \rightarrow ^3P$	α_3
$KL_{II,III}$	$(1s^{-1}2p^{-1})^1P \rightarrow (2p^{-1}2p^{-1})^1D$	$^1P \rightarrow ^1D$	α_4

Gelen fotonun enerjisi bir atomdan iki elektron koparmak için yeterli ise uydu pikler gözlenebilir. İkincil uyarımda, gelen fotonun enerjisi Z atomundan bir K elektronunu ve $Z + 1$ atomundan bir L elektronunu koparmaya yetecek enerjiye sahipse α satellite $K\alpha_{3,4}$ gözlenebilir (Aberg, et al., 1970; Babu, et al., 1987). Meselâ bir $NiK\alpha_1$ fotonu Fe 'nin sadece $K\alpha_{1,2}$ çizgilerini uyarabilir, buna karşılık bir $CuK\alpha_1$ fotonu Fe 'in $K\alpha_{3,4}$ satellite çizgilerini de uyarabilir.

$K\beta_{1,3}$ ana çizgisinin uydu piki $K\beta'''$, $KL_{III} \rightarrow L_{III}M_{II,III}$ geçişlerinden meydana gelen fotonlar tarafından oluşturulur (Nigam ve Arora, 1986). Bu piklerle ilgili enerji ifadeleri, ana çizgi için

$$(h\nu_{K\beta_{1,3}})_Z = K_Z - (M_{II,III})_Z \quad (13)$$

ve uydu pik için

$$(h\nu_{K\beta''})_Z = (KL_{III})_Z - (L_{III}M_{II,III})_Z \quad (14)$$

ile verilmektedir.

Diğer taraftan (14) ifadesi,

$$(\hbar\nu_{K\beta^m})_Z = [K_Z + (L_{III})_{Z+1}] - [(L_{III})_Z + (M_{II,III})_{Z+1}] \quad (15)$$

$$= (K - L_{III})_Z + (L_{III} - M_{II,III})_{Z+1} \quad (16)$$

$$= (K - M_{II,III})_Z + [(L_{III} - M_{II,III})_{Z+1} - (L_{III} - M_{II,III})_Z] \quad (17)$$

$$= (\hbar\nu_{K\beta_{1,3}})_Z + \Delta \quad (18)$$

şeklinde de yazılabilir. Burada

$$\Delta = (L_{III} - M_{II,III})_{Z+1} - (L_{III} - M_{II,III})_Z \quad (19)$$

$$= \Delta_{Z+1} - \Delta_Z \quad (20)$$

dir. $L_{III} \rightarrow M_{II,III}$ yasaklı bir geçiş ($\Delta\ell = 0$) olmakla beraber Δ_Z ve Δ_{Z+1} atom numarası Z ve $Z+1$ olan atomların bilinen enerji seviyeleri cinsinden hesaplanabilir. Açıktır ki, satellite foton enerjisi yalnızca Z atomunun enerji seviyeleri arasındaki geçişlerden izah edilemez. Moseley kanunundan $\Delta_{Z+1} > \Delta_Z$, $\Delta > 0$ olup, satellite'nin ana çizginin yüksek enerji tarafına doğru kaymasını temsil etmektedir.

Moseley kanunu kullanılarak $L_{III} \rightarrow M_{II,III}$ yasaklı (nondiagram) çizgi için

$$\Delta_{Z+1} = \bar{\nu}_{Z+1}/R_\infty = a^2[(Z+1) - \sigma]^2 \quad (21)$$

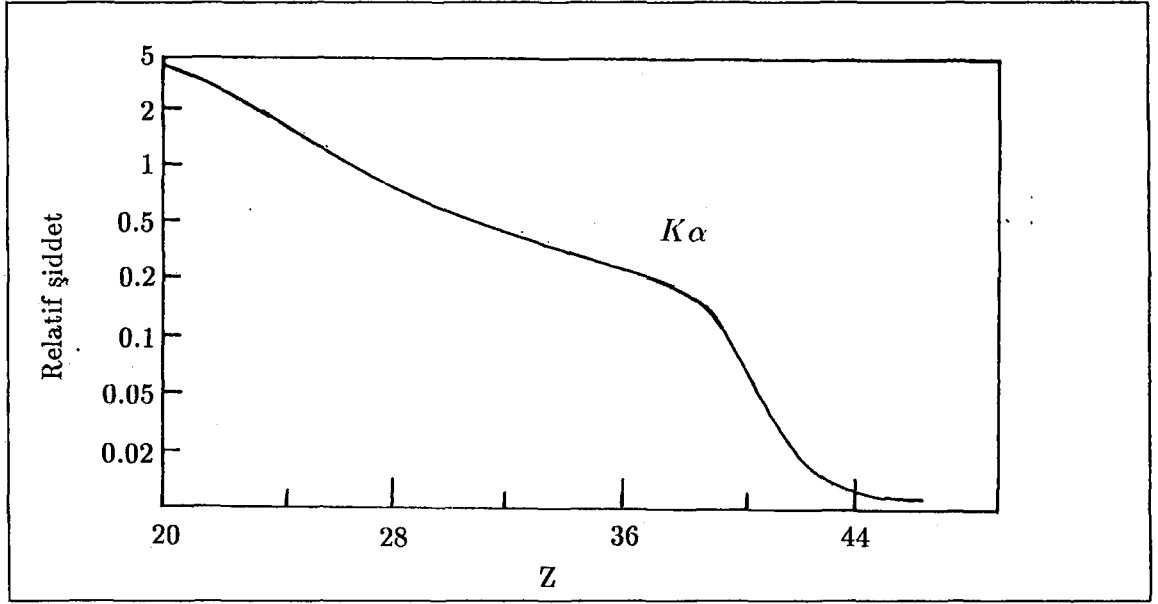
$$\Delta_Z = \bar{\nu}_Z/R_\infty = a^2(Z - \sigma)^2 \quad (22)$$

$$\Delta = (\Delta\bar{\nu})/R_\infty = 2a^2[Z - (\sigma - 1/2)] \quad (23)$$

yazılabilir. Denklemlerden $\Delta \propto Z$ olduğu görülmektedir. Bu bağıntıları doğrulamak, satellite çizgilerinin ana çizginin eteklerinde belirsiz ve yayvan olarak gözlenmesinden dolayı zordur. Gerçekte bazı araştırmacılar satellite'ler için $(\Delta\bar{\nu}/R_\infty)^{1/2} - Z$ çiziminin elementlerin sınırlı bir aralığı için doğrusal olduğunu gösterdiler. $K\alpha$ satellite'lerinin gözlenen relatif şiddeti artan Z ile azalmaktadır (Şekil 2.5).

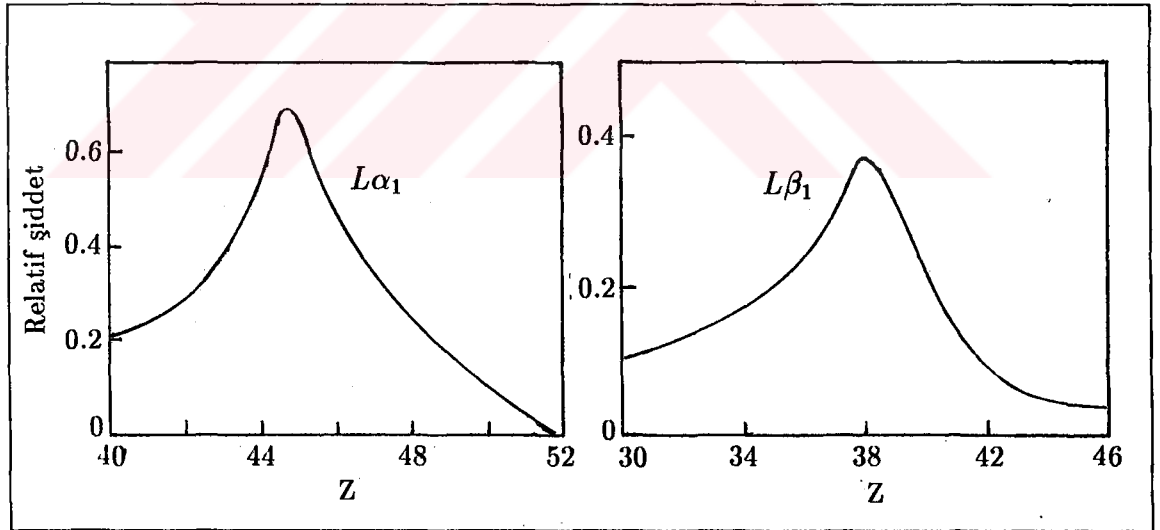
Bu grafik bir tek (single) K iyonizasyonuna göre, KL ikili (duble) iyonizasyonunun ihtimaliyetinin Z ile değişimini yansıtmaktadır (Scofield, 1974; 1974; 1975).

Yüksek enerjili satelliteler L ve M spektrumlarında da gözlenmiştir (Brundle ve Baker, 1979). Bu spektrumların iki kez iyonlaşmış atomun Öje olayını müteakiben L serisi satellite'leri yayınlanması sonucunda meydana geldiği düşünülmektedir (Coster ve Cronig, 1935).



Şekil 2.5. $K\alpha$ ana çizgisine göre relatif satellite çizgi şiddetinin Z ile değişimi.

Şekil 2.6 ana çizgiye göre $L\alpha_1(L_{III} \rightarrow M_V)$ ve $L\beta_1(L_{II} \rightarrow M_{IV})$ satellite şiddetlerinin oranının Z ile değişimini göstermektedir.

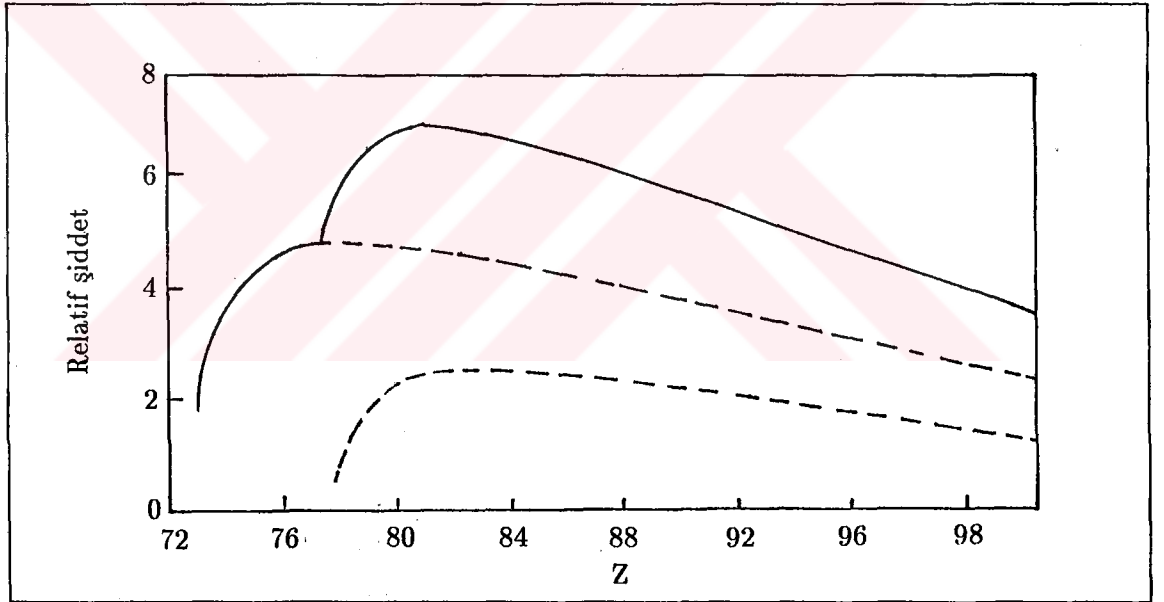


Şekil 2.6. $L\alpha_1$ ve $L\beta_1$ ana çizgisine göre relatif satellite çizgi şiddetinin Z ile değişimi.

Şekilden görüldüğü gibi ($L_I \rightarrow L_{II}M_{IV,V}$) Coster-Kronig geçiş ihtimali $Z = 40$ için maksimum ve $Z = 42$ için sıfırdır. ($L_I \rightarrow L_{III}M_{IV,V}$) Coster-Kronig geçiş ihtimali $Z = 45$ veya $Z = 46$ da maksimum ve $Z = 52$ de sıfırdır. Bu olaylar, $L_I \rightarrow L_{III}$ geçiş

enerjisi M_V alt tabakasını iyonlaştırmaya yetecek bir enerjiye sahip olduğu zaman ($Z > 73$), tekrar mümkün olabilecektir. $Z > 77$ için bu enerji M_{IV} alt tabakasını da iyonize edebilir. $L\alpha_1$ 'in satellitelerinin relatif şiddetleri $Z > 73$ ve $Z > 77$ 'de keskin bir yükseliş göstermektedir (Şekil 2.7).

Coster-Kronig teorisi, L serisi satellite'ler için yeterli bir izah getirmektedir. M serisinde de $M\alpha_1$ ($M_V \rightarrow N_{VII}$) çizgisinin yüksek enerjili satellite'i ($M_V N_{IV,V} \rightarrow N_{IV,V} N_{VII}$) yine Coster-Kronig geçişlerinden meydana gelmektedir. Bu çizginin relatif şiddeti ^{78}Pt 'den ^{82}Pb 'ye kadar artar, ^{90}Th ve ^{92}U 'da keskin bir şekilde azalır. Bunun sebebi, $M_{III} \rightarrow M_V$ ışımaz geçişinin, M_V seviyesinde ve aynı anda $Z > 89$ için N_{IV} seviyesi (Öje elektronu yayınlanmış) ve $Z > 91$ için N_V seviyesinde bir boşluk meydana getirmemesidir.



Şekil 2.7. $L\alpha_1$ ana çizgisine göre relatif satellite çizgi şiddetinin $Z(> 72)$ ile değişimi.

X-ışını K ve L satellitele'ri ana çizgilerin düşük enerjili taraflarında da gözlenmiştir. Bunlara düşük enerji satelliteleri (low-energy satellite) denir. ^{10}Ne 'den ^{32}Ge 'a kadar olan birçok elementte $K\beta$ serisi satellite'ler gözlenmiştir. Bunlar $K\eta$ ve $K\ell$ (uzun dalga boylu olan) çizgileri olarak da bilinmektedir. Bu olay için yapılan izahlardan biri, $K \rightarrow M_I$ yasaklı geçiş esnasında Fermi seviyesine bir $M_{II,III}$ elektronunun geçmesidir. Diğer bir izah iki kere iyonlaşmış bir atomda iki elektron atlama sonucu

bu çizgilerin meydana geldiğidir:

$$K\eta = KL_{III} - L_I M_I = K_Z + (L_{II})_{Z+1} - (L_I)_Z - (M_I)_{Z+1} \quad (24)$$

$$K\ell = KL_{III} - L_I M_I = K_Z + (L_{III})_{Z+1} - (L_I)_Z - (M_I)_{Z+1} \quad (25)$$

$K\alpha$ serisi satellite'ler de gözlenmiştir.

Düşük enerji satellite'ler için en iyi izah, aynı anda bir dış tabaka elektronunun uyarılması ve bir x-ışını fotonunun yayınlanmasıdır. Bu *ışımali Öje olayı (radiative auger effect)* olarak isimlendirilir. Dış tabakadaki elektron ışıma enerjisinin bir kısmını soğurduğundan satellite'in enerjisi ana çizgininkine göre relatif olarak azalır.

İşımali Öje geçişleri ikili-elektron (duble-electron transition) geçişidir. Bir dış tabaka elektronu ($n_f \ell_f$), iç tabakadaki bir boşluğa ($n_i \ell_i$) geçerken aynı anda diğer bir dış tabaka elektronu ($n_{f'} \ell_{f'}$) bir banda veya sürekli bir hale ($\epsilon \ell$) uyarılır (eğer ϵ bir band veya optik hal ise geçiş *yarı Öje geçişi* olarak adlandırılır). Bu geçişler,

$$h\nu = E_i - E_{ff'} - \epsilon \quad (26)$$

foton enerjilerinin kesikli ve sürekli bir dağılımına uyarlar. Burada E_i , nötral sistemin $n_i \ell_i$ iyonlaşma enerjisi ve $E_{ff'}$ nötral sistemden $n_f \ell_f$ ve $n_{f'} \ell_{f'}$ elektronlarının aynı anda iyonlaşması için gerekli enerjidir. $E_i - E_{ff'}$, $i \rightarrow ff'$ ışımasız geçişinde Öje elektronunun enerjisidir.

Buraya kadar satellite çizgilerin oluşumuna sebep olan birçok olaydan bahsettik. Bunlardan başka aynı iç tabakada iki kere iyonize olmuş atomun yayınladığı ve satellite çizgilerinden daha zayıf çizgiler de gözlenmiştir (Richard, et al., 1972; 1973; Briand, et al., 1976). Bunlara *hipersatellite* ($K\alpha^h$, $K\beta^h$, $L\alpha^h$ v.s.) çizgiler denilmektedir. Hipersatellite'ler L spektrumlarında da meydana gelmektedir. Efektif perdeleme parametreleri kullanılarak $K\alpha$ hipersatellite'in ($K^{-2} \rightarrow K^{-1}L^{-1}$) enerjisi,

$$\Delta Z = [B_{K^2}(Z) - B_K(Z)] / [B_K(Z+1) - B_K(Z)] \quad (27)$$

ifadesiyle bulunabilir. Burada B_K , nötr bir atom için bir K elektronunun bağlanma enerjisi, B_{K^2} ise bir K iyonize atomdan bir K elektronunu koparmak için gerekli enerjidir. Böylece ΔZ birinci ve ikinci K iyonizasyonu arasındaki perdelemenin değişimini temsil eder (Crasemann, 1985).

2.2.4 Kaçak Pikler

Dedektöre gelen x-ışını fotonunun enerjisi, dedektörün soğurma kıyısı enerjisinden daha büyük olduğu zaman dedektörde meydana gelen karakteristik x-ışınları dedektörden kaçabilir ve bir kaçak pike sebep olabilirler. Kaçma ihtimali gelen foton enerjisi ile değişir. Bu durumda, puls yükseklik dağılımında, gelen x-ışını enerjisiyle orantılı puls yüksekliğine sahip (V_p) bir *ana pik*, dedektörün $K\alpha$ x-ışını ve gelen x-ışını fotonu enerjileri arasındaki farkla orantılı ortalama bir puls yüksekliğine sahip (V_e) bir *kaçak pik* (single escape peak) ve bazen bir *ikili kaçak pik* (double escape peak) olmak üzere iki veya üç pik gözlenebilir (Siegert ve Janssen, 1990). Böylece

$$V_p \propto E(x) \quad (28)$$

$$V_e \propto E(x) - E(GeK\alpha) \quad (29)$$

olur. Dedektöre gelen birden fazla enerji içeren şüadaki her bir x-ışını için, bir ana pik ve dedektör kristalini uyarabilenlerden herbiri için bir kaçak pik gözlenir. Bu pikler relatif olarak geniş pikler olduklarından diğer bir kaçak pikle üstüste binebilir (overlap) veya analit çizgisinin ana piki bir başka ana pikle yahut başka bir elementin kaçak pikiyle üstüste binebilir.

Kaçak pikin ana pike göre relatif şiddeti;

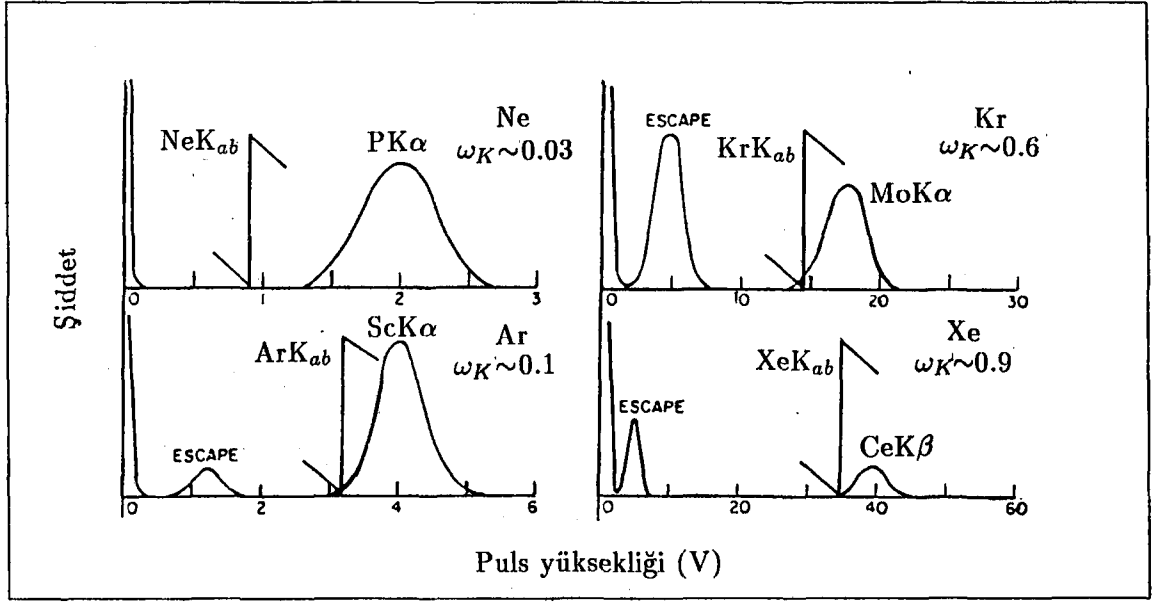
1-X-ışınlarının dalga boyu dedektör soğurma kıyısının kısa dalga boyu sınırına yakınsa,

2-Dedektörün floresans verimi büyükse,

3-Dedektör yolu kısa ise,

büyük olur (Bertin, 1975). Dedektörün floresans verimi arttıkça kaçak pik şiddeti, ana pik şiddetine göre artar (Şekil 2.8).

Genellikle düşük enerjilerde kaçak pikler dedektör gürültüsü içerisinde bulunurlar.



Şekil 2.8. Dedektörün ω_K floresans veriminin ana ve kaçak pikin relatif şiddetleri üzerine etkisi.

Genelde kaçak pikler analitik x-ışını spektrometrelerinde önemli bir problem oluşturmazlar. Ge(Li) dedektörlerde, atom numarası 32 (Germanyum) ve aşağısı olan elementler *Ge K* soğurma kıyısını uyaramazlar ve atom numarası 75 ve yukarısı olan elementlere ait ana ve kaçak pikler ayırdedilemezler. Bu yüzden kaçak pikler sadece atom numarası 32-75 arası olan elementler için problem yaratabilirler. Çok düşük ve çok yüksek atom numaralı elementler için *Ge K* floresans verimi düşük olduğundan relatif olarak zayıf kaçak pikler oluşur.

Ana pikler gibi kaçak pikler de x-ışını spektral çizgilerinden kaynaklanır. Bu sebeple analizör ekranı her iki piki ihtiva edecek şekilde analog enerji kalibrasyonu yapılmalıdır. Bununla beraber,

- 1- Kaçak pikler dedektör gürültüsü içerisinde kaybolacak kadar küçük puls yüksekliğine sahip olduğu,
- 2- Diğer bir elementin ana veya kaçak piki ile kısmen veya tamamen giriştiği, durumlarda ana ve kaçak pikleri ayırd etmek mümkün olmayabilir. Bu durumda ana ve kaçak piklere set edilmiş iki analizör kullanılarak bu sıkıntıların üstesinden gelinebilir.

Kaçak pikler iki bakımdan sıkıntı çıkarabilirler. Yukarıdaki sebeplerden dolayı her iki piki gözlemek mümkün olmaz ise bu durumda gözlenen şiddet gözlenemeyen pik şiddeti kadar eksik sayılır. Keza kaçak pikler enerji spektrumunu karmaşık hale sokar ve üst üte binme ihtimalini artırırılar.

Esas itibariyle kaçak pikler, ana pikten Ge(Li) dedektörlerde 9.9 keV ($E_e = E_0 - 9.9$), Si(Li) dedektörlerde 1.74 keV daha düşük enerjilerde meydana gelirler.

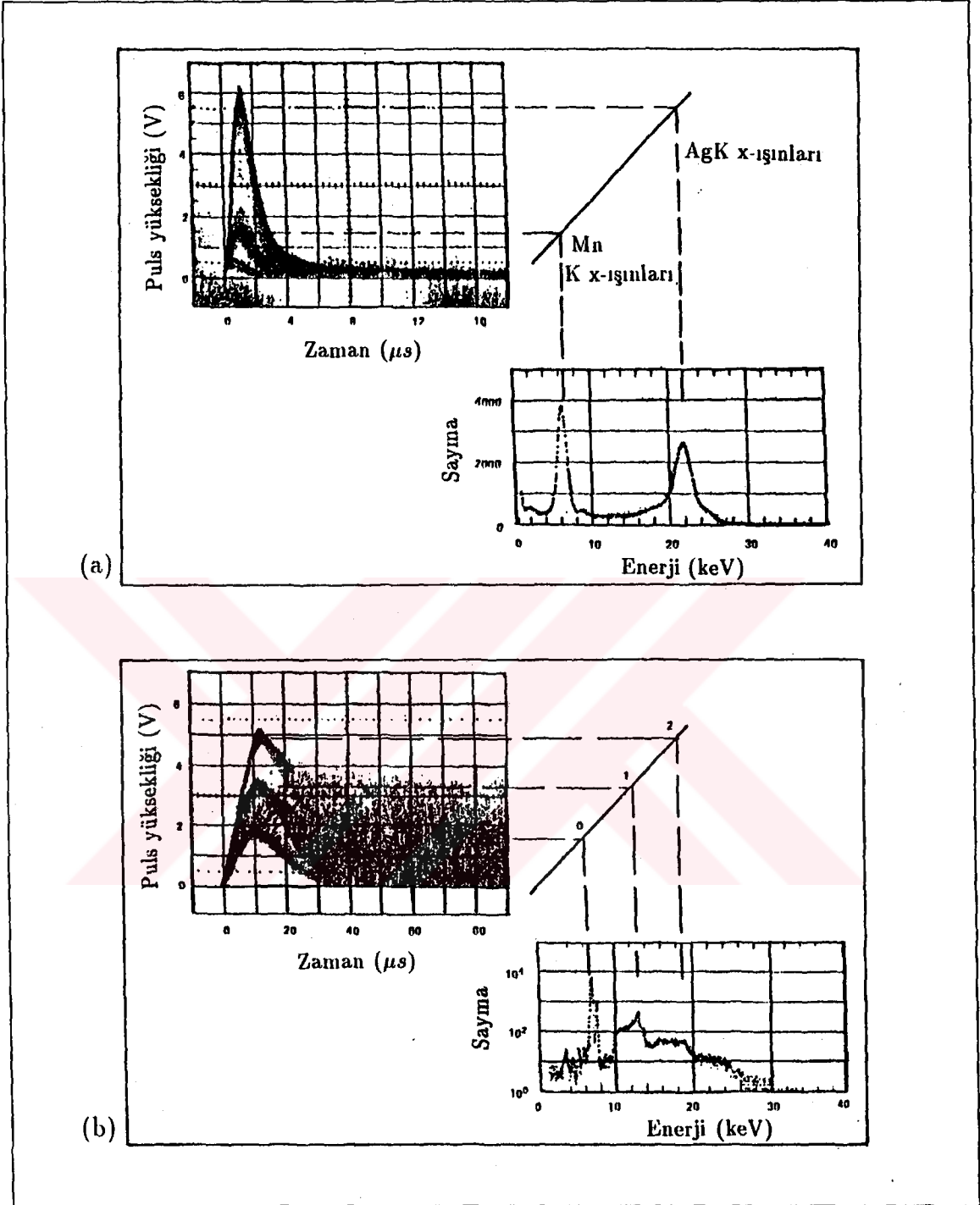
2.2.5 Pile-up Pikler

Rasgele meydana gelen olayların enerji spektrumu ve frekansını ölçmek için yapılan teşhis sistemleri puls pile-up etkisiyle sınırlıdır. İki veya daha fazla foton, teşhis sisteminin cevap verme süresinden daha kısa bir süre içerisinde meydana gelirse sistem, herbir fotonun enerjilerinin toplamından biraz daha düşük enerjili bir fotonmuş gibi cevaplar. Ölçülen foton sayma hızı buna uygun olarak gerçek foton hızını düşürür ve ölçülen spektrum şekli gerçek spektrum şeklinden bozuk olur (Tenney, 1984) (Şekil 2.9).

Pile-up'lar zincirleme γ -ışınlarının üstüste gelmesinden, x- ve γ -ışınlarının üstüste gelmesinden ve x-ışınlarının üstüste gelmesinden meydana gelebilirler (Yoshizawa, et al., 1980). Bunlar ana pikin yüksek enerjili tarafında temel saymanın artmasına sebep olabilirler.

Kuantitatif analizlerde ve bir γ -pikindeki toplam sayımdan spesifik bir gama geçişine ait mutlak sayma hızı hesaplamalarında, birçok düzeltmenin yanısıra toplam sayım için pile-up düzeltmesinin de gözönüne alınması gerekir. Deney geometrisi değiştirilmeden farklı şartlar altında alınan spektrumlardan gama yada x-ışını sayma hızları karşılaştırılmak isteniyorsa o zaman sadece sistemin ölü zamanı (dead-time) ve pile-up için düzeltme yapmak gerekir (Cohen, 1974).

Pile-up'lar özellikle yüksek sayma hızlarında ve/veya düşük enerjili (<1.5 keV) x-ışınlarını içeren spektrumlarla çalışıldığında önem kazanır (Gui-Nian ve Turner, 1989; Jenkins, et al.,1981).



Şekil 2.9. Amplifikatör çıkış puls yüksekliğinin x-ışını enerji spektrumuna şekillendirilme işlemi: a) *Mn* ve *Ag K* x-ışınlarını ihtiva eden puls şekillendirme amplifikatör çıktısının osiloskopta gözlenen şekli ve x-ışını enerji spektrumu, b) yüksek sayma hızlarında pile-up pulsler ve bunların enerji spektrumları.

2.2.6 Saçılma Pikleri

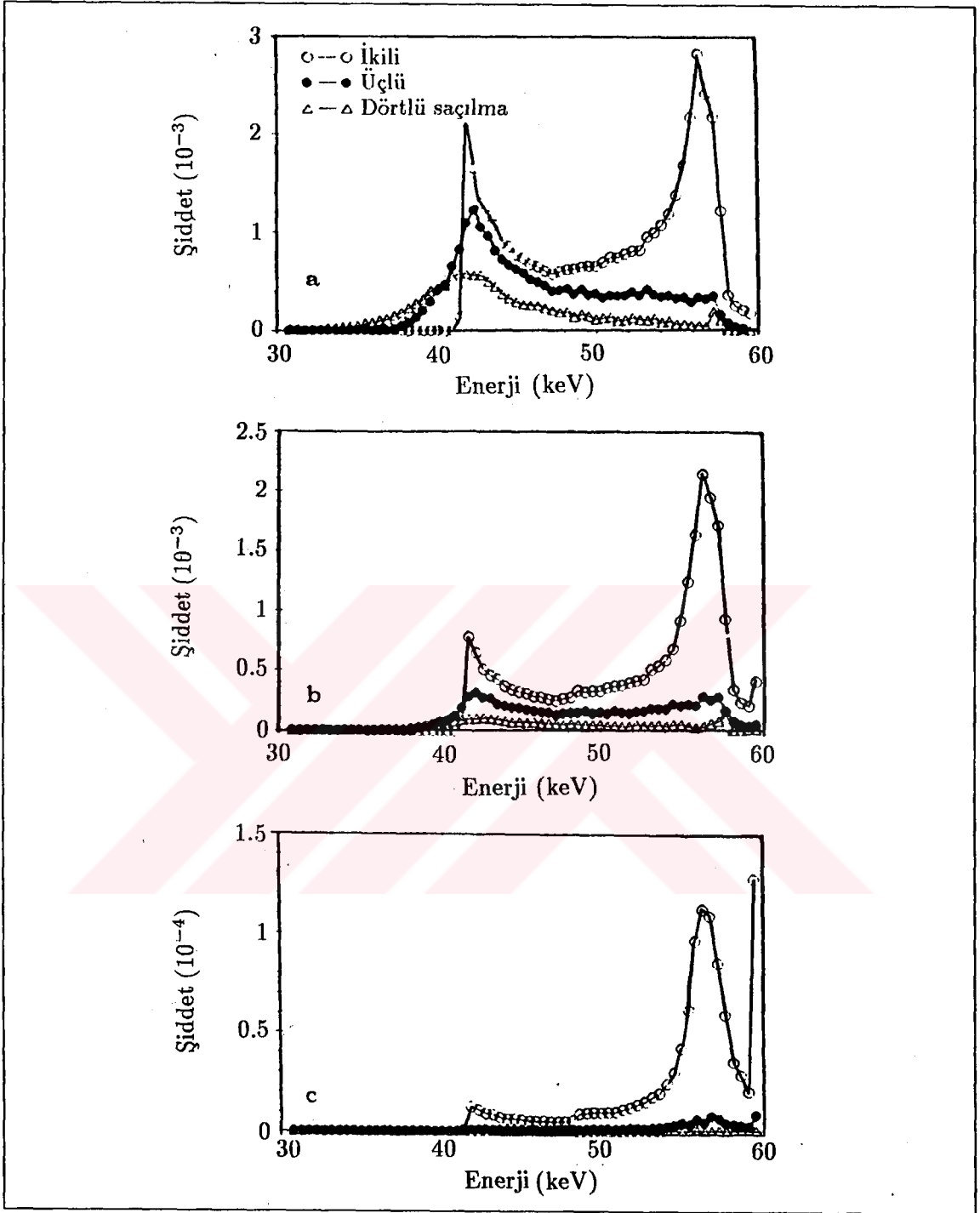
X-ışını floresans (XRF) analizlerde, özellikle kalın ve hafif matrisli numunelerde meydana gelen saçılma olayları önemli rol oynar. Uyarıcı (primer) radyasyonun saçılması, sürekli bir spektral temel sayma, spektrumun sonunda yüksek enerjilerde geri-saçılmış bir bölge meydana getirir ve floresans çizgiyi şiddetlendirir (Fernández, 1992; Varga, et al., 1993). Primer ve floresans radyasyonun saçılmasından dolayı karakteristik çizgilerin şiddetlendirilmesi foton-foton etkileşmeleri gözönüne alınarak izah edilmektedir (Keith ve Lommis, 1978).

Floresans radyasyonun koherent saçılması sadece fotopik şiddetini artırırken Compton saçılması 15 keV'den büyük enerjili fotopiklerin düşük enerjili taraflarında bir pik oluşmasına sebep olur.

Bu temel saçılmalardan (birinci derece saçılmalar) başka ikinci derece saçılmalara (Compton-fotoelektrik, fotoelektrik-Compton, koherent-fotoelektrik, fotoelektrik-koherent) ait spektrumlarda gözlenebilir² (Fernández, et al., 1991). Bu etkileşmeler de XRF şiddeti artırır. Saçılmalardan gelen katkılar gelen şuanın enerjisine bağlıdır. Düşük enerjilerde koherent katkılar daha baskındır.

Geçen ve geri saçılan spektrumlara saçılmanın katkısının bilinmesi, soğurma katsayısı ölçümleri, tesir kesiti ölçümlerinde, Compton profil belirlenmesi ve hafif elementli matrislerde x-ışını floresans analizi gibi birçok x-ışını deneyinde temel sayma düzeltmesinde önemlidir (Singh, et al., 1989). Şekil 2.10 farklı elementler için ikinci, üçüncü ve dördüncü mertebeden saçılmış spektrumları göstermektedir (Sartori, et al., 1992).

²İki ve daha yüksek mertebeden saçılmalar için teorik hesaplamalar Fernández tarafından geliştirilmiş olan *transport teorisi* ile yapılmaktadır (Fernández,1990).



Şekil 2.10. $\theta_{gel} = 15^\circ$, $\theta_{sac} = 45^\circ$ olan bir geometride 59.54 keV'lik radyasyonla uyarılan (a) oksijen (b) alüminyum (c) bakır numuneleri için çoklu saçılma spektrumları.

3 SAYMA SİSTEMİ

3.1 Enerji Ayırmalı X-Işını Spektrometresi

Bu çalışmada yapılan ölçümler için EDXRF sistemi kullanılmıştır. Sistemin esas bileşenleri, x-ışını uyarıcı kaynak, Ge(Li) katıhal sayacı, ön-amplifikatör (preamplifier), ana amplifikatör (spectroscopy amplifier), çokkanallı puls yükseklik analizörü (MCPHA) ve diğer elektronik bileşenlerdir. Sistemin blok diagramı Şekil 3.1'de verilmiştir.

Sayaç p-i-n tipi bir diyottan ibarettir. p-tipi single kristalin bir yüzü uygun katkı atomları ile n-tipine dönüştürülerek ve elektriksel öz direnci artırmak için kontrollü şartlar altında germanyuma (yüzeyler arasına bir voltaj uygulanarak, yüksek sıcaklık altında) lityum sürüklenmek suretiyle i-tipi (intrinsic) bölge elde edilmiştir. n-tipi bölgede doğrultucu olmayan bir kontak oluşturmak için buharlaştırma ile altın tabaka meydana getirilmektedir (Jenkins, et al., 1981). Sayaç yüzeyinin ince p-tipi tabakası aktif değildir. Sayma işlemine katkısı olmayan bu tabaka ölü tabaka olarak bilinmektedir. Ölü tabakada dedektörle etkileşen fotonlar ya anormal olarak düşük puls yüksekliğinde ölçülür yada hiç ölçülmez. Bu problem bu tabakada soğurulma ihtimali yüksek olan, çok düşük enerjili x-ışınları için çok önemlidir.

Dedektöre ulaşan x-ışını fotonları dedektörle fotoelektrik olayla etkileşerek elektron-hole çiftlerinden ibaret iyonizasyon bulutu oluştururlar. Üretilen iyon çifti sayısı gelen foton enerjisi E ile orantılı olup,

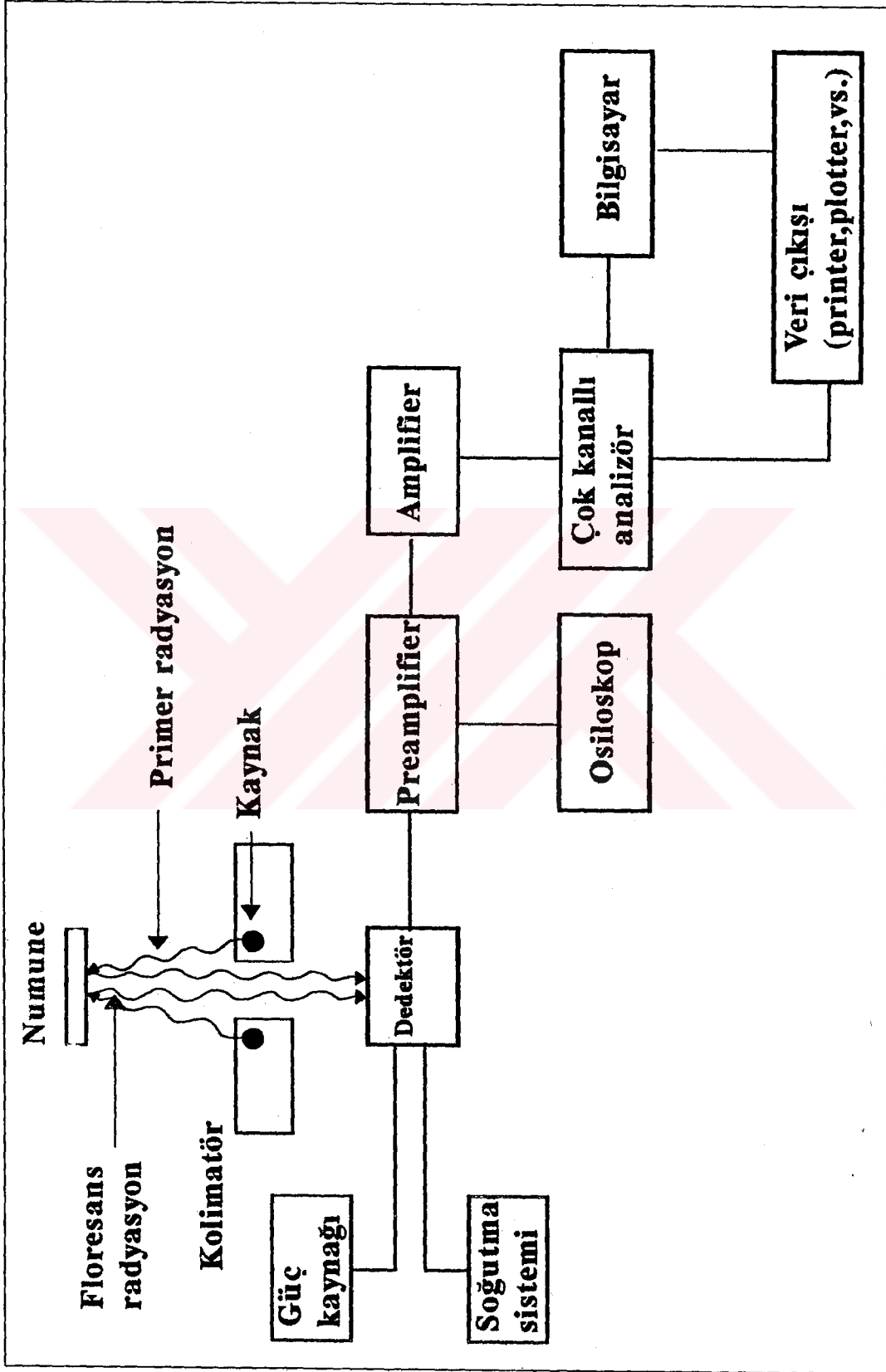
$$n = \frac{E}{\epsilon} \quad (30)$$

ile verilir. Arka kontakta biriken toplam yük,

$$Q = \frac{E}{\epsilon} e \quad (31)$$

dir. Bu yük

$$V_0 = \frac{Q}{C_f} = \frac{E}{\epsilon} \frac{e}{C_f} \quad (32)$$



Şekil 3.1. Enerji ayırımı x-ışını spektrometresinin temel bileşenleri.

genlikli bir voltaj pulsu meydana getirmek için C_f kapasitansına yüklenir. Yük birikme zamanı çok kısa olup 25–50 ns aralığındadır. Yük birikme zamanı, dedektör besleme voltajına, dedektör kalınlığına ve dedektör içerisinde foton etkileşme pozisyonuna bağlıdır. Bu akım pulsu önampifikatörün giriş katında bulunan bir FET (field effect transistor) devresiyle yükseltilerek potansiyel pulsuna dönüştürülür. Ön ampifikatörden gelen sinyal küçük ve sinyal-gürültü oranı düşüktür. Bu nedenle hem gelen pulsu, analizi yapılabileceği 0–10 V aralığına yükseltmek hem de sinyal-gürültü oranının çok düşük olduğu aşırı düşük ve aşırı yüksek frekansları filtre etmek için spektroskopik ampifikatör kullanılır. Çok kanallı analizörün girişinde bulunan analog dijital dönüştürücü (ADC) her bir ampifikatör çıkış pulsunun yüksekliğini ölçerek bu genliği bir tam sayıyla temsil eder. Dedekte edilen her bir yükseklikteki puls kadar sayı, puls yükseklik spektrumu şekline göre analizör hafızasında biriktirilir. Daha sonra bu bilgiler ekrana aktarılır.

Dedektör elektronik gürültüyü azaltmak ve uygun rezolüsyonu sağlamak için sıvı azot kaynama sıcaklığında (77 K) tutulur.

3.2 Ge(Li) Dedektörü

Bu çalışmada kullanılan x- ve gamma-ışını spektrometresi, düşük enerjili bir foton spektrometresi (Low Energy Photon Spectrometer LEPS) olup aşağıdaki özelliklere sahip bir Ge(Li) dedektör ihtiva etmektedir (Ortec, Application Note, Ortec Inc., 1984). Bu Ge(Li)'nin karakteristikleri şöyledir:

- geometri: düzlem,
- boyutlar: 10 mm aktif çap, 5 mm aktif derinlik,
- polarizasyon voltajı: 1000 V,
- rezolüsyonu (FWHM) : 5.9 keV'de (^{55}Fe) 190 eV, 122 keV'de (^{57}Co) 491 eV,
- kullanışlı enerji aralığı: 3 keV–1 MeV,
- kontaklar: n+ lityum, p–iyon-implantasyon [iyon-implante edilmiş ön kontak x-ışını spektral girişimlerini (interference) elimine eder ve kuyruk (tail) spektrumunu azaltır (Shima, et al., 1983)],

- pencere: 130 μm kalınlığında berilyum,
- altın tabaka kalınlığı: 40.0 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$,
- ölü tabaka kalınlığı: merkezde $\sim 0.26 \mu\text{m}$ Ge,
- pencere-kristal merkezi uzaklığı: 7 mm.



4 ÖLÇÜM ve HESAPLAMALAR

Bu tezde çalışılan konular, bu konularla ilgili ölçümlerde kullanılan radyoizotop kaynaklar ve özellikleri Tablo 4.1'de verilmiştir. Ölçümlerin çoğunluğunda x-ışını laboratuvarlarında monokromatik radyasyonun en yaygın kaynaklarından biri olan ^{241}Am kaynağı kullanılmıştır.

Tablo 4.1. Çalışılan konular ve kullanılan kaynaklar.

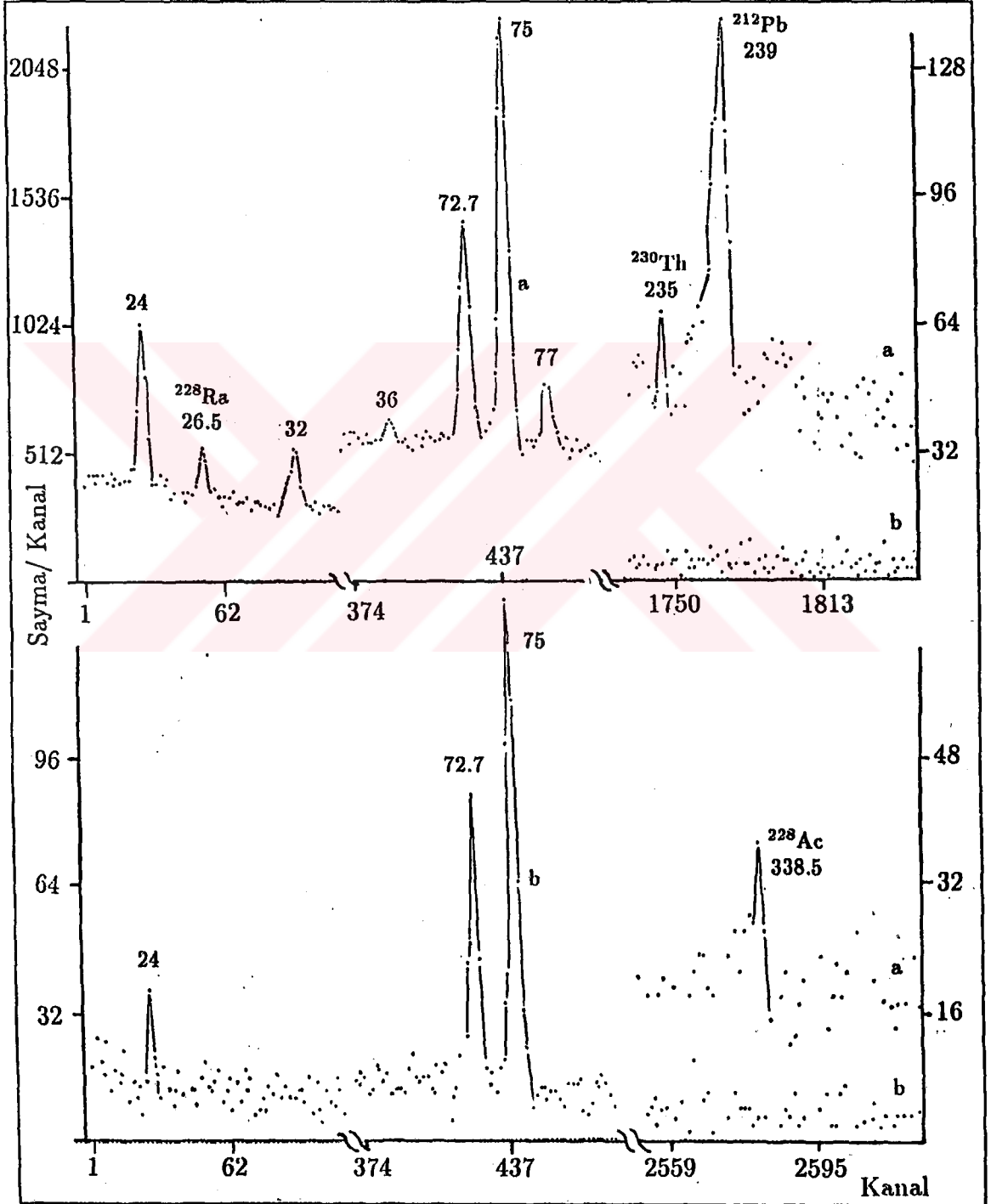
Çalışılan konu	Kullanılan kaynağın simgesi	Aktivitesi (mCi)	Şekli
temel sayma	–	–	–
escape pikler	^{57}Co , ^{241}Am	100	halka
pile-up pikler	^{55}Fe	50	halka
saçılma pikleri	^{241}Am	100	halka
satellite pikleri	^{241}Am	100	halka

Halka kaynaklarla yapılan ölçümlerde en iyi deney geometrisini, yani maksimum floresans şiddetin elde edildiği geometriyi elde etmek için Monte Carlo simülasyon tekniği kullanılmıştır (Budak, 1992).

4.1 Temel Sayma Ölçümleri

Bir Ge spektrometre ile gözlenen temel sayma spektrumuna, uranyum toryum serisi, ^{40}K , kozmik ışınlar, floresans radyasyon (kozmetik ve tabii radyasyonun dedektör grubu ve zırhla etkileşmesiyle meydana gelir) ve dedektör grubu maddelerinden meydana gelen tabii radyasyonun önemli katkısı vardır. Dedektör grubundaki her bir kısmın tabii aktiviteye katkısı onun dedektöre uzaklığına ve gördüğü katı açığa bağlıdır (Wogman, 1981; Camp et al., 1974).

Bu çalışmada spektral temel saymaya tabii radyasyonun katkısını belirlemek amacıyla temel sayma ölçümleri yapılmıştır. Önce dedektör çevresi (endcap) ve pencere zırhlanmadan 30 saat ölçüm yapılmış daha sonra dedektör çevresi ve pencere 44 mm kalınlığında (500 keV'de kurşun zırhın etkin kalınlığı $\mu_l^{-1} = 5.7$ mm'dir. Burada μ_l lineer soğurma katsayısıdır.) kurşunla zırhlanarak tekrar 30 saat ölçüm yapılmıştır. Gözlenen spektrumlar Şekil 4.1'de karşılaştırılmış ve sayısal sonuçlar Tablo 4.2'de verilmiştir.



Şekil 4.1. Zırhlanmamış (a) ve zırhlanmış (b) dedektörden elde edilen spektrumlar.

Tablo 4.2. Zırhlanmamış ve zırhlanmış spektrometreyle gözlenen çizgiler ve bunların temel saymalarının sayma hızları (sayma/dakika).

Enerji (keV)	İzotop*	Zırhlanmamış spektrometre		Zırhlanmış spektrometre	
		TS (s/keV/d)	Pik (s/d)	TS (s/keV/d)	Pik (s/d)
24	?	1.72 ± 0.033	1.19 ± 0.036	0.088 ± 0.010	0.030 ± 0.012
26.5	²²⁸ Ra	1.48 ± 0.023	0.24 ± 0.030	0.077 ± 0.009	0.020 ± 0.011
32	?	1.22 ± 0.023	0.39 ± 0.030	0.078 ± 0.008	0.002 ± 0.010
36	?	0.83 ± 0.017	0.11 ± 0.022	0.073 ± 0.007	0.0 ± 0.009
72.7	²⁰⁷ Pb	3.53 ± 0.045	1.85 ± 0.050	0.15 ± 0.020	0.20 ± 0.019
75	²⁰⁷ Pb	3.46 ± 0.054	3.57 ± 0.054	0.098 ± 0.026	0.44 ± 0.021
77	?	2.72 ± 0.032	0.52 ± 0.040	0.10 ± 0.008	0.0 ± 0.011
84.9	²⁰⁷ Pb	3.55 ± 0.040	1.24 ± 0.048	0.048 ± 0.019	0.24 ± 0.015
87.3	²⁰⁷ Pb	2.9 ± 0.032	0.44 ± 0.041	0.069 ± 0.012	0.07 ± 0.012
239	²¹² Pb	0.39 ± 0.016	0.28 ± 0.017	0.057 ± 0.006	0.07 ± 0.009
295	²¹⁴ Pb	0.17 ± 0.008	0.047 ± 0.010	0.031 ± 0.004	0.0 ± 0.006
338.5	²²⁸ Ac	0.11 ± 0.007	0.036 ± 0.008	0.022 ± 0.006	0.02 ± 0.006
351	²¹⁴ Bi	0.16 ± 0.010	0.11 ± 0.011	0.050 ± 0.005	0.0 ± 0.007
511	yok olma	0.009 ± 0.002	0.005 ± 0.002	0.0042 ± 0.001	0.0 ± 0.002

TS: Temel sayma

* Lederer, et al., (1967)

? Kaynağı kesin olarak bilinmeyen radyasyon.

Kurşunun karakteristik K x-ışınları kozmik ve tabii radyasyonun dedektör grubu maddeleri ile etkileşmesinden meydana gelmektedir. Ayrıca 511 keV'lik yok olma piki de başlıca kozmik ışıklardan kaynaklanmaktadır.

Temel sayma radyasyonunun kaynakları bilinmesine rağmen tabii radyasyonun değişik bileşenlerinden gelen katkılar daha az bilinmektedir. Bu, belli bir deney geometrisinde özellikle düşük aktiviteli numune veya kaynaklarla çalışılırken zaman ve gayretin relatif olarak daha az öneme sahip bir katkının azaltılması için harcanmasına sebep olur. Bu nedenle tabii radyasyonu iyi tanımak ve buna göre uygun deney geometrisi kurmak XRF analizlerde zaman ve işgücü tasarrufu bakımından oldukça önemlidir.

4.2 Escape Pik Ölçümleri

Escape piklerin ve escape/fotopik şiddet oranlarının enerji ve kolimatör yarıçapına göre değişimi incelenmiştir (Şekil 4.4). Bu ölçümlerde belirgin ve izole escape pikler elde edilebilmesi için dedektör veriminin yüksek olduğu enerji bölgesinde karakteristik fotopiklere sahip elementler numune olarak seçilmiştir. Tablo 4.3' de özellikleri verilen maddelerden 10 mm çaplı numuneler hazırlanmıştır.

Tablo 4.3. Escape pik ölçümlerinde kullanılan numuneler ve özellikleri.

Z	Numune	Kalınlık (g/cm ²)	Form	Parçacık büyüklüğü *(mesh)	Saflık (%)
40	Zr	0.01622	levha		99.7
42	Mo	0.10200	levha		99.9
47	Ag	0.02625	levha		99.97
49	In	0.03655	levha		99.999
50	Sn	0.01825	levha		99.95
56	Ba	0.06366	toz	~40	97.0
58	Ce	0.06366	toz	-40	99.9
64	Gd	0.06366	toz	-40	99.9
66	Dy	0.06366	toz	~40	99.9
68	Er	0.06366	toz	-40	99.9
70	Yb	0.06366	toz	-40	99.9

Analizör 2048 kanala ayarlandıktan sonra analog-enerji ve enerji kalibrasyonları yapılmıştır. Numuneleri uyarmada 100 mCi'lik ²⁴¹Am ve ⁵⁷Co radyoizotop halka kaynaklar kullanılmış, ölçümler aynı geometride ve K α x-ışınları 10⁵ sayılık toplam sayıma ayarlanarak yapılmıştır. Deney geometrisi Şekil 4.2'de verilmiştir.

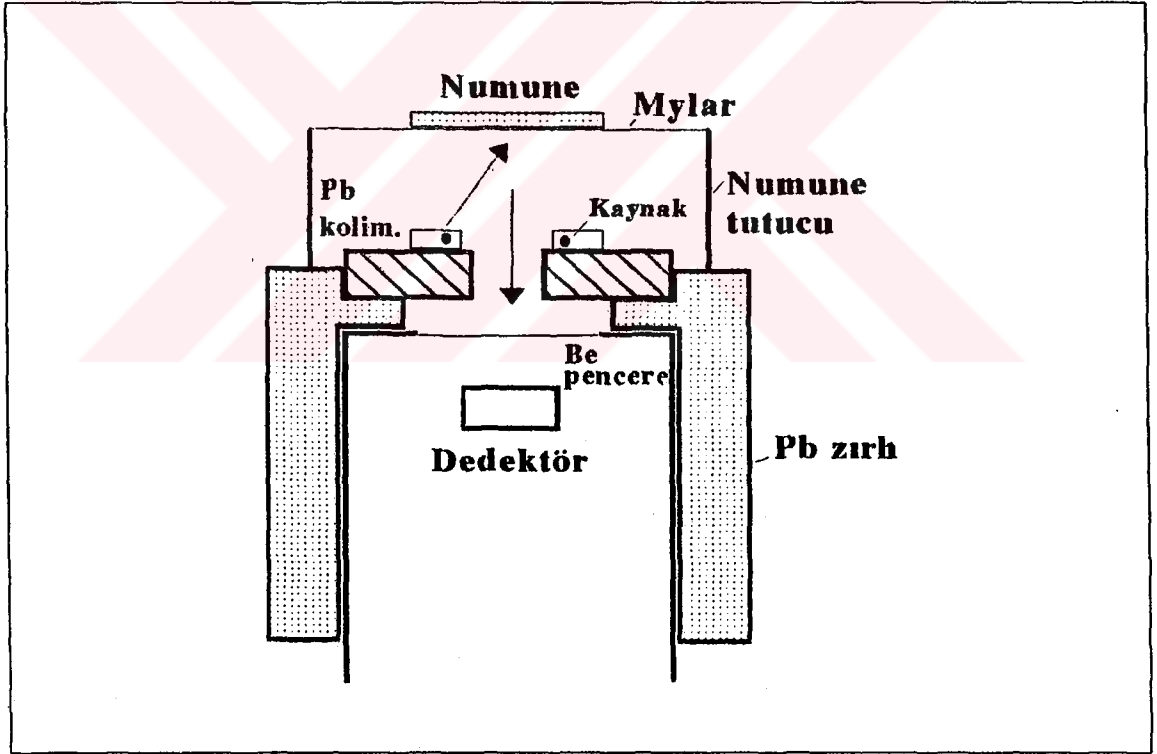
K α ve K β escape pik/fotopik şiddet oranları ve escape ihtimali teorik ve deneysel

*Parçacık büyüklüğü MESH ile ölçülür. Mesh, lineer inch başına düşen elek gözü sayısı olarak tanımlanır.

olarak hesaplanmıştır. Teorik hesaplamalar için

$$P_e(E) = \frac{N_e}{N_e + N_f} = \frac{1}{2} \omega_K \left(1 - \frac{1}{r}\right) \left[1 - \frac{\mu_K}{\mu_I} \ln \left(1 + \frac{\mu_I}{\mu_K}\right)\right] \quad (33)$$

denklemini kullanılmıştır (Van Espen et. al, 1980; Eggert, 1990). Burada $P_e(E)$, E enerjisi için escape ihtimali; N_e , escape pik sayımı; N_f , fotopik sayımı; $\omega_K = 0.54$, GeK floresans verimi; r , germanyumun K soğurma sıçrama oranı (jump ratio) olup $1-1/r=0.862$ 'dir; μ_K ve μ_I sırasıyla germanyumun K x-ışınları ve gelen radyasyon için germanyumun kütle soğurma katsayılarıdır (Reed ve Ware, 1972).



Şekil 4.2 Deney geometrisi.

Kütle soğurma katsayıları Storm ve Israel (1970) tarafından verilen tablolardan log-log lineer interpolasyonla hesaplanmıştır.

Spektrumlar değerlendirilirken 3σ 'lık pik bölgesi dışında pikin her iki tarafındaki

temel sayma bir tek lineer veya ikinci derece polinoma fit edilerek temel sayma çıkarması yapılmış ve net pik sayımları hesaplanmıştır. Net pik sayımlarının standart sayma hatası (% 68.3 güvenilirlik seviyesi)

$$\begin{aligned}\sigma_{net} &= (\sigma_{top}^2 + \sigma_{t.say}^2)^{1/2} \\ &= (N_{top} + N_{t.say})^{1/2}\end{aligned}\quad (34)$$

ifadesi ile hesaplanmıştır.

Sayacın veriminin enerji ile değiştiği bilinmektedir. Bu sebeple ^{54}Mn , ^{133}Ba , ^{137}Cs ve ^{241}Am standart nokta kaynaklar kullanılarak sayacın düşük-enerji bölgesi (6-80 keV) için verim eğrisi tayin edilmiştir. Bu enerji aralığı için havanın soğurma etkisi ihmal edilmiştir (Cummings ve Donahue, 1970). Dedektörün belli bir enerjideki verimi bütün geometri ve soğurma faktörlerini ihtiva eden

$$\epsilon = \frac{C_E}{N_E D} \quad (35)$$

ifadesi kullanılarak hesaplanmıştır (Hansen et al., 1973). Burada C_E , E enerjisinde birim zamanda kaynaktan gelip dedektörde sayılan fotonların sayısı; N_E , kaynakta bozunma başına E enerjisinde yayınlanmış fotonların kesri ve D , aktivitesidir. Ölçümlerde gama ve x-ışınları için escape düzeltmesi yapılmıştır. Bu çalışmada kullanılan dedektörün sayma verimi eğrisi Şekil 4.3'te verilmektedir. 10 keV'in altındaki düşük enerji bölgesinde verim sayılan x-ışınlarının enerjisine oldukça fazla bağlıdır. Bu, bu bölgede verimin tayin edilmesinde olduğu kadar spektrumların değerlendirilmesinde de problemler yaratır. Kullanılan çizgiler için dedektörün verimi bu eğriden tayin edilmiştir.

Toz numuneler için parçacık büyüklüğü düzeltmesi

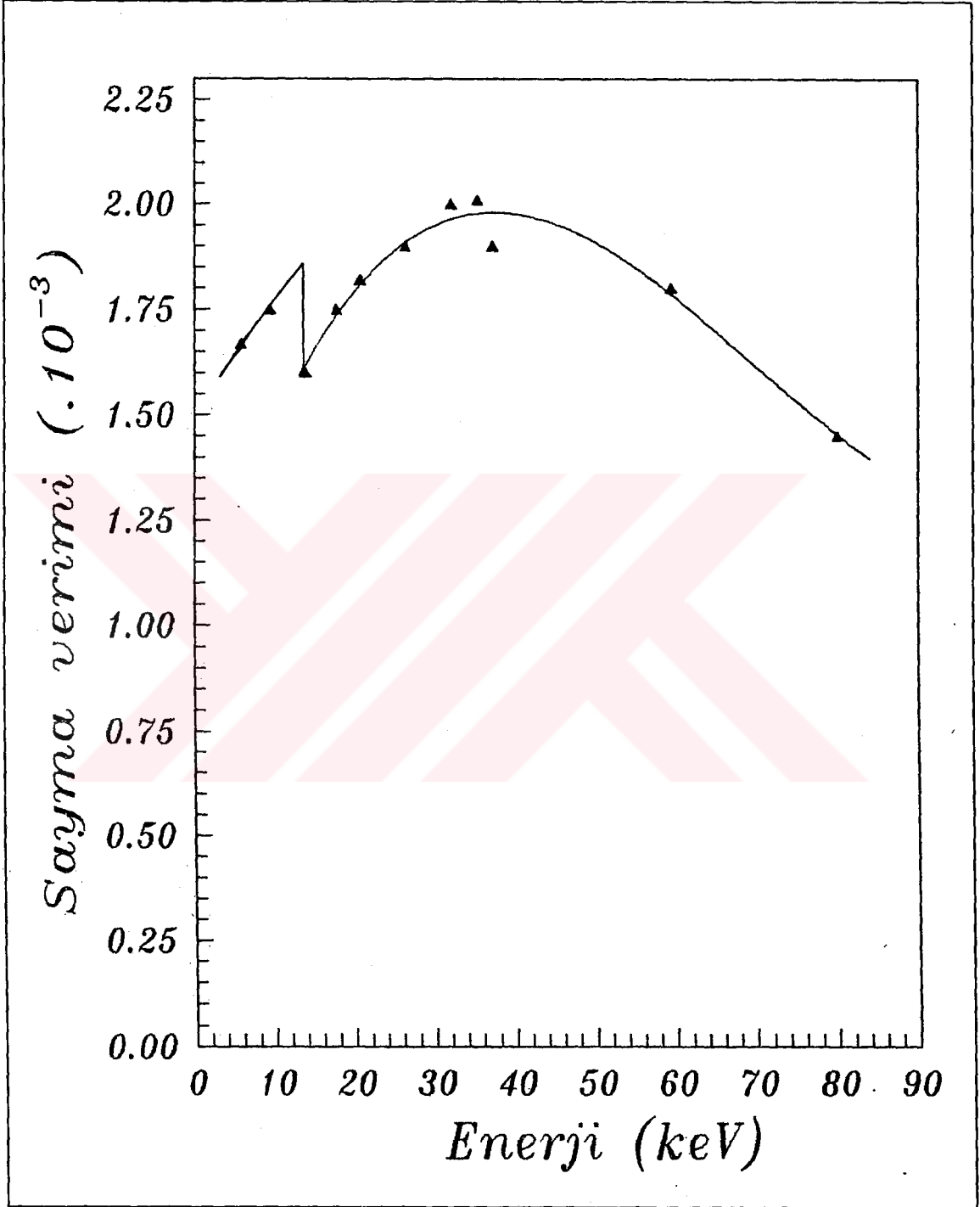
$$P = \frac{1 - \exp(-\mu_l \cdot d)}{\mu_l \cdot d} \quad (36)$$

bağıntısıyla yapılmıştır. Burada P , parçacık büyüklüğü faktörü; μ_l (cm^{-1}), numunenin karakteristik x-ışını ve uyarıcı radyasyon için lineer soğurma katsayılarının toplamı ve d , ortalama parçacık büyüklüğüdür.

Lineer soğurma katsayıları

$$\mu_l = \mu \cdot \rho \quad (37)$$

ifadesinden hesaplanmıştır. Burada μ (cm^2/g), kütle soğurma katsayısı, ρ ise numune yoğunluğudur (Rhodes ve Hunter, 1972; Bertin, 1975).



Şekil 4.3. Ge(Li) dedektörünün sayma verimi eğrisi.

Foil numuneler için soğurma düzeltmesi

$$A = \frac{1 - \exp[-(\mu_0 \csc \varphi_1 + \mu_1 \csc \varphi_2)m]}{(\mu_0 \csc \varphi_1 + \mu_1 \csc \varphi_2)m} \quad (38)$$

ifadesi ile yapılmıştır (Markowicz et al., 1992). Burada A , soğurma düzeltme faktörü; m (g/cm^2), numune kalınlığı; φ_1 ve φ_2 sırasıyla primer ve floresans radyasyonun numune yüzeyinin normali ile yaptığı açılar, μ_0 ve μ_1 (cm^2/g) sırasıyla uyarıcı ve floresans radyasyon için numunenin kütle soğurma katsayılarının toplamıdır.

Escape pik/ fotopik oranlarının standart hatası

$$\sigma_{escape/fotopik} = \left(\frac{N(E_e)}{N(E_f)} \right) \left[\left(\frac{\sigma(E_e)}{N(E_e)} \right)^2 + \left(\frac{\sigma(E_f)}{N(E_f)} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (39)$$

ifadesiyle hesaplanmıştır (Tertian ve Claisse, 1982). Hesaplamalardan sonra elde edilen düzeltme faktörleri Tablo 4.4 ve Tablo 4.5'te, deneysel ve teorik escape/fotopik oranları ve escape ihtimalleri Tablo 4.6-4.8'de verilmiştir.

Tablo 4.4. Numunelerin $K\alpha$ karakteristik ve escape pikleri için düzeltme faktörleri.

Numune	$E(K\alpha)$ (keV)	$\epsilon(K\alpha)$ ($\times 10^{-3}$)	$P(K\alpha)$	$A(K\alpha)$	$\epsilon(K\alpha e)$ ($\times 10^{-3}$)	$P(K\alpha e)$	$A(K\alpha e)$
Zr	15.746	1.6773		0.8295	1.7054		0.1287
Mo	17.443	1.7263		0.4141	1.7868		0.2655
Ag	22.103	1.8362		0.8215	1.5591		0.8376
In	24.138	1.8736		0.7884	1.6300		0.8258
Sn	25.192	1.8905		0.8922	1.6638		0.9778
Ba	32.062	1.9633	0.9268		1.8377	0.8550	
Ce	34.564	1.9750	0.8777		1.8825	0.7656	
Gd	42.750	1.9661	0.8837		1.9678	0.8083	
Dy	45.714	1.9476	0.8609		1.9781	0.7825	
Er	48.801	1.9210	0.8682		1.9786	0.8111	
Yb	52.014	1.8865	0.8974		1.9690	0.8626	

Tablo 4.5. Numunelerin $K\beta$ karakteristik ve escape pikleri için düzeltme faktörleri.

Numune	$E(K\beta)$ (keV)	$\epsilon(K\beta)$ ($\times 10^{-3}$)	$P(K\beta)$	$A(K\beta)$	$\epsilon(K\beta e)$ ($\times 10^{-3}$)	$P(K\beta e)$	$A(K\beta e)$
Zr	17.700	1.7332		0.8710	1.8233		0.6295
Mo	19.648	1.7827		0.5083	1.8598		0.2973
Ag	25.008	1.8877		0.8660	1.6580		0.8071
In	27.354	1.9202		0.8415	1.7270		0.5879
Sn	28.573	1.9342		0.9211	1.7591		0.7996
Ba	36.535	1.9791	0.9470		1.9113	0.8995	
Ce	39.431	1.9777	0.9004		1.9439	0.9041	
Gd	48.918	1.9199	0.8972		1.9785	0.8575	
Dy	52.352	1.8825	0.8894		1.9675	0.8470	
Er	55.930	1.8366	0.8766		1.9450	0.8335	
Yb	59.652	1.7823	0.9094		1.9113	0.8856	

Tablo 4.6. Deneysel ve teorik $K\alpha_e/K\alpha$ şiddet oranları.

Element	$N(K\alpha)$	$N(K\alpha_e)$	Deneysel		Teorik
			$\frac{N(K\alpha_e)}{N(K\alpha)}$	$\frac{N(K\alpha_e)}{N(K\alpha)} \frac{\epsilon(K\alpha)}{\epsilon(K\alpha_e)} \frac{A(K\alpha)}{A(K\alpha_e)}$	$\frac{P_e(K\alpha)}{1-P_e(K\alpha)}$
Zr	98789 \pm 319	9800 \pm 109	0.09919 \pm 0.0011	0.13056 \pm 0.0011	0.12100
Mo	99134 \pm 318	8514 \pm 100	0.08588 \pm 0.0010	0.12938 \pm 0.0010	0.10394
Ag	99012 \pm 318	5585 \pm 84	0.05640 \pm 0.0008	0.06515 \pm 0.0005	0.06871
In	97857 \pm 320	4870 \pm 90	0.04976 \pm 0.0009	0.05461 \pm 0.0005	0.05767
Sn	98268 \pm 321	6358 \pm 123	0.06470 \pm 0.0012	0.06708 \pm 0.0005	0.05286
Ba	97032 \pm 320	2161 \pm 68	0.02227 \pm 0.0007	0.02579 \pm 0.0002	0.03064
Ce	97210 \pm 315	1918 \pm 80	0.01973 \pm 0.0008	0.02373 \pm 0.0002	0.02546
Gd	98216 \pm 320	1531 \pm 55	0.01560 \pm 0.0005	0.01702 \pm 0.0001	0.01477
Dy	96346 \pm 322	1148 \pm 45	0.01191 \pm 0.0004	0.01292 \pm 0.0010	0.01240
Er	95253 \pm 323	1053 \pm 47	0.01105 \pm 0.0005	0.01148	0.01043
Yb	96048 \pm 318	1050 \pm 47	0.01081 \pm 0.0005	0.01089	0.00882

Tablo 4.7. Deneysel ve teorik $K\beta_e/K\beta$ şiddet oranları.

Element	N(K β)	N(K β_e)	Deneysel		Teorik
			$\frac{N(K\beta_e)}{N(K\beta)}$	$\frac{N(K\beta_e)}{N(K\beta)} \frac{\epsilon(K\beta)}{\epsilon(K\beta_e)} \frac{A(K\beta)}{A(K\beta_e)}$	
Zr	18759 ± 141	1732 ± 52	0.08609 ± 0.0028	0.12142 ± 0.0037	0.11805
Mo	19118 ± 143	1127 ± 46	0.05164 ± 0.0024	0.10516 ± 0.0039	0.10080
Ag	19343 ± 155	969 ± 42	0.04395 ± 0.0022	0.06119 ± 0.0027	0.06544
In	20635 ± 158	774 ± 62	0.03274 ± 0.0030	0.05969 ± 0.0048	0.05456
Sn	20316 ± 163	845 ± 84	0.04159 ± 0.0041	0.05268 ± 0.0052	0.04979
				$\frac{N(K\alpha_e)}{N(K\alpha)} \frac{\epsilon(K\alpha)}{\epsilon(K\alpha_e)} \frac{P(K\alpha)}{P(K\alpha_e)}$	
Ba	22650 ± 152	707 ± 58	0.03121 ± 0.0025	0.03402 ± 0.0028	0.02809
Ce	23070 ± 157	546 ± 40	0.01987 ± 0.0017	0.02398 ± 0.0077	0.02322
Gd	25691 ± 172	661 ± 47	0.02476 ± 0.0018	0.02612 ± 0.0018	0.01335
Dy	24106 ± 164	425 ± 41	0.01568 ± 0.0017	0.01771 ± 0.0017	0.01119
Er	25022 ± 168	-	-	-	0.00942
Yb	25464 ± 174	-	-	-	0.00796

Tablo 4.8. Deneysel ve teorik $K\alpha$ escape ihtimalleri.

Element	K α -escape ihtimali			K β -escape ihtimali		
	Deneysel		Teorik	Deneysel		Teorik
	$\frac{N(K\alpha_e)}{N(K\alpha)+N(K\alpha_e)}$	$E\alpha_1^a$	$P_e(K\alpha)$	$\frac{N(K\beta_e)}{N(K\beta)+N(K\beta_e)}$	$E\beta_1$	$P_e(K\beta)$
Zr	0.09024 ± 0.0010	0.11940 ± 0.0013	0.10794	0.07927 ± 0.0026	0.10827 ± 0.0032	0.10560
Mo	0.07909 ± 0.0009	0.11455 ± 0.0013	0.09415	0.04910 ± 0.0023	0.09515 ± 0.0035	0.09157
Ag	0.05340 ± 0.0008	0.06117 ± 0.0009	0.06429	0.04210 ± 0.0021	0.05766 ± 0.0025	0.06142
In	0.04740 ± 0.0009	0.05178 ± 0.0010	0.05452	0.03170 ± 0.0029	0.05633 ± 0.0045	0.05174
Sn	0.06078 ± 0.0011	0.06286 ± 0.0012	0.05020	0.03996 ± 0.0040	0.05004 ± 0.0050	0.04743
		$E\alpha_2^b$			$E\beta_2$	
Ba	0.02178 ± 0.0007	0.02514 ± 0.0008	0.02973	0.03027 ± 0.0025	0.03290 ± 0.0027	0.02732
Ce	0.01934 ± 0.0008	0.02318 ± 0.0010	0.02483	0.01964 ± 0.0017	0.02341 ± 0.0017	0.02269
Gd	0.01534 ± 0.0005	0.01674 ± 0.0006	0.01456	0.02417 ± 0.0018	0.02545 ± 0.0052	0.01318
Dy	0.01177 ± 0.0004	0.01442 ± 0.0038	0.01224	0.01544 ± 0.0017	0.01740 ± 0.0017	0.01107
Er	0.01093 ± 0.0005	0.01135 ± 0.0005	0.01032	-	-	0.00933
Yb	0.01070 ± 0.0005	0.01077 ± 0.0005	0.00874	-	-	0.00790

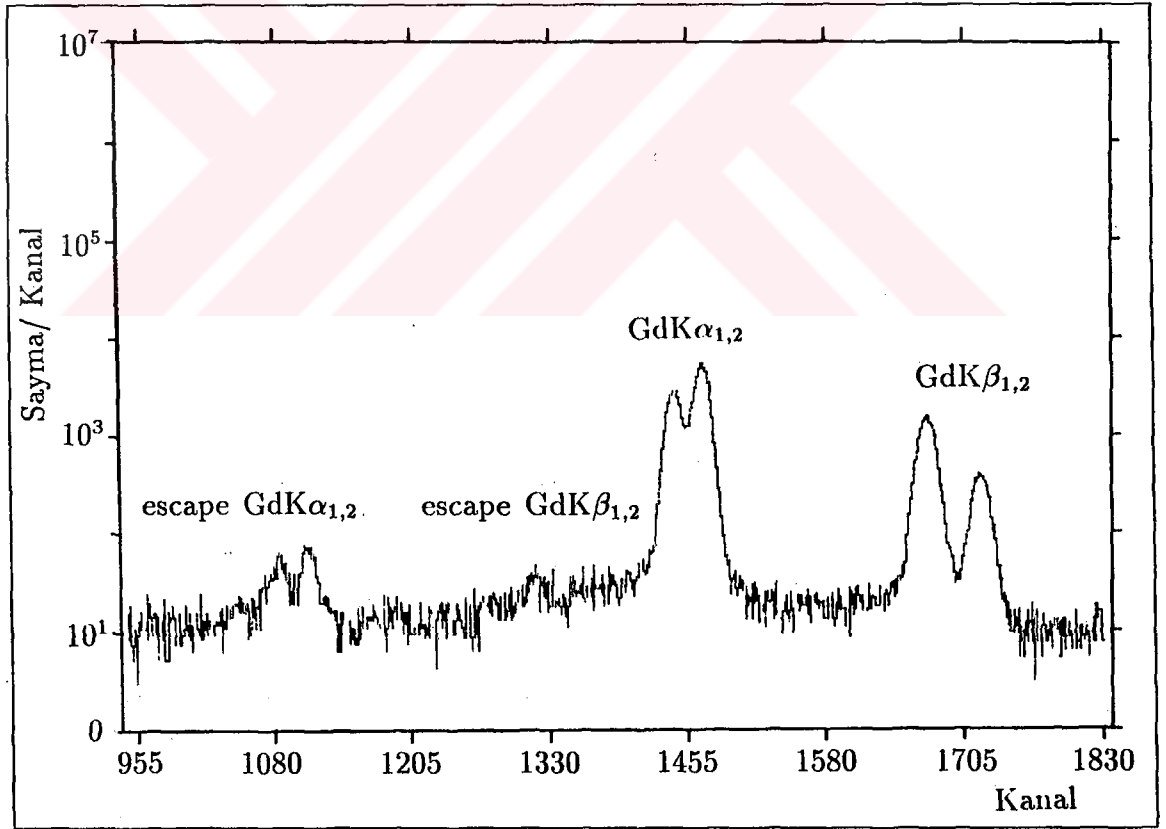
$$^a E\alpha_1 = \frac{N(K\alpha_e)\epsilon(K\alpha)A(K\alpha)}{N(K\alpha_e)\epsilon(K\alpha)A(K\alpha)+N(K\alpha)\epsilon(K\alpha_e)A(K\alpha_e)}$$

$$^b E\alpha_1 = \frac{N(K\alpha_e)\epsilon(K\alpha)P(K\alpha)}{N(K\alpha_e)\epsilon(K\alpha)P(K\alpha)+N(K\alpha)\epsilon(K\alpha_e)P(K\alpha_e)}$$

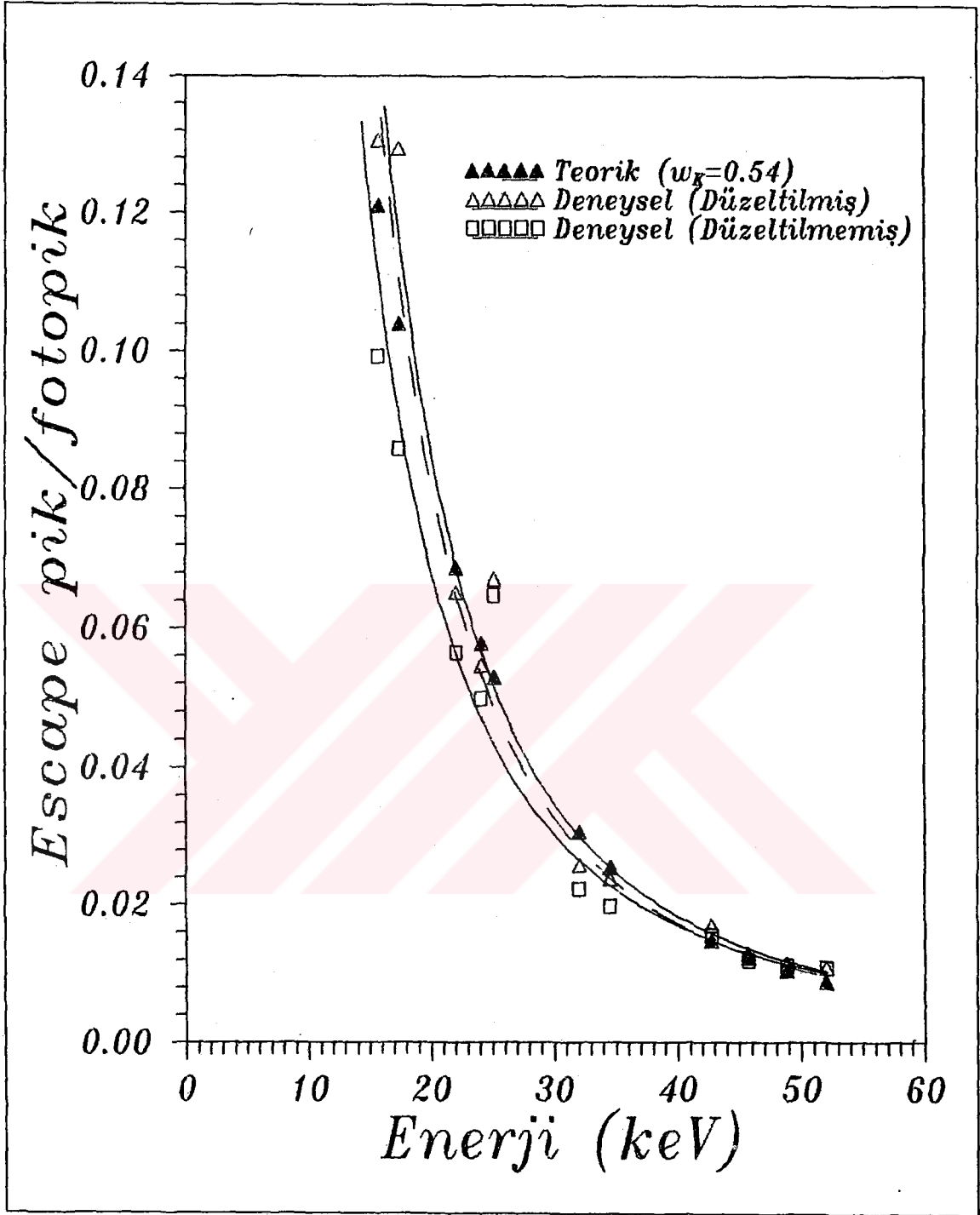
Deneyisel [$K\alpha$ için $K_{\alpha e}/K_{\alpha}$] ve teorik [$P_e(E)/[1 - P_e(E)]$] $K\alpha$ ve $K\beta$ escape oranları ve escape ihtimallerinin [$P_e(E)$] enerjiye bağımlılığı Şekil 4.5-4.8'de verilmiştir.

Şekillerden de görüldüğü gibi $K\alpha$ 'larda özellikle yüksek enerji bölgesinde şiddet oranları ve escape ihtimali teoriyle iyi bir uyum göstermektedir. Deneyisel değerlerin düşük enerji bölgesinde teoriden sapmasının bir sebebi, yüksek enerji bölgesinde Compton saçılma piklerinin fotopiklerden açıkça ayrılabilmesine karşılık düşük enerji bölgesinde bu piklerin üst-üste binmesinden dolayı fotopik şiddetinin artması olabilir (Bland, et. al, 1992).

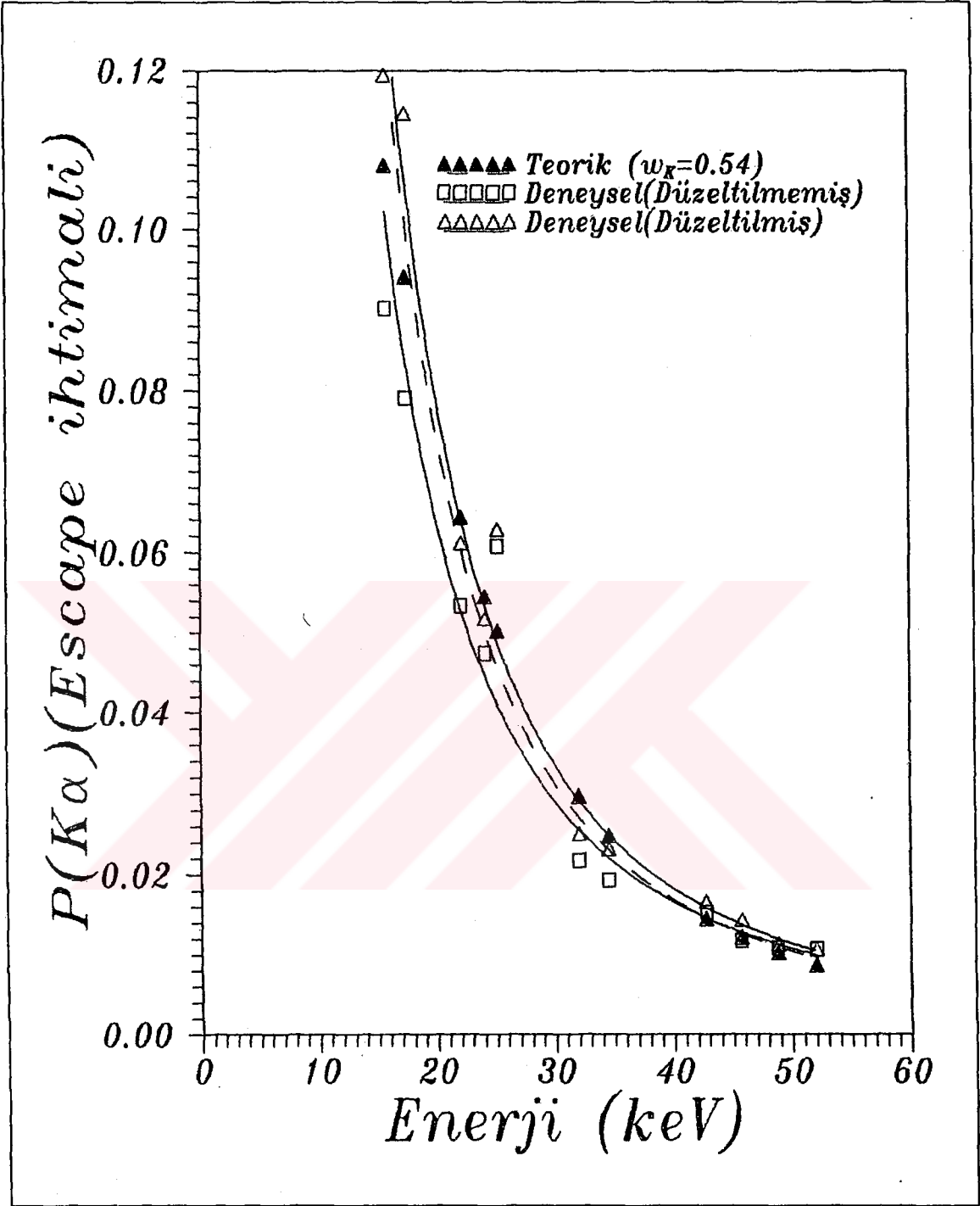
$K\beta$ escape oranları ve escape ihtimallerinde teoriden sapmaların önemli sebeplerinden biri $K\beta$ escape bölgesinde istatistiğin çok düşük olmasıdır.



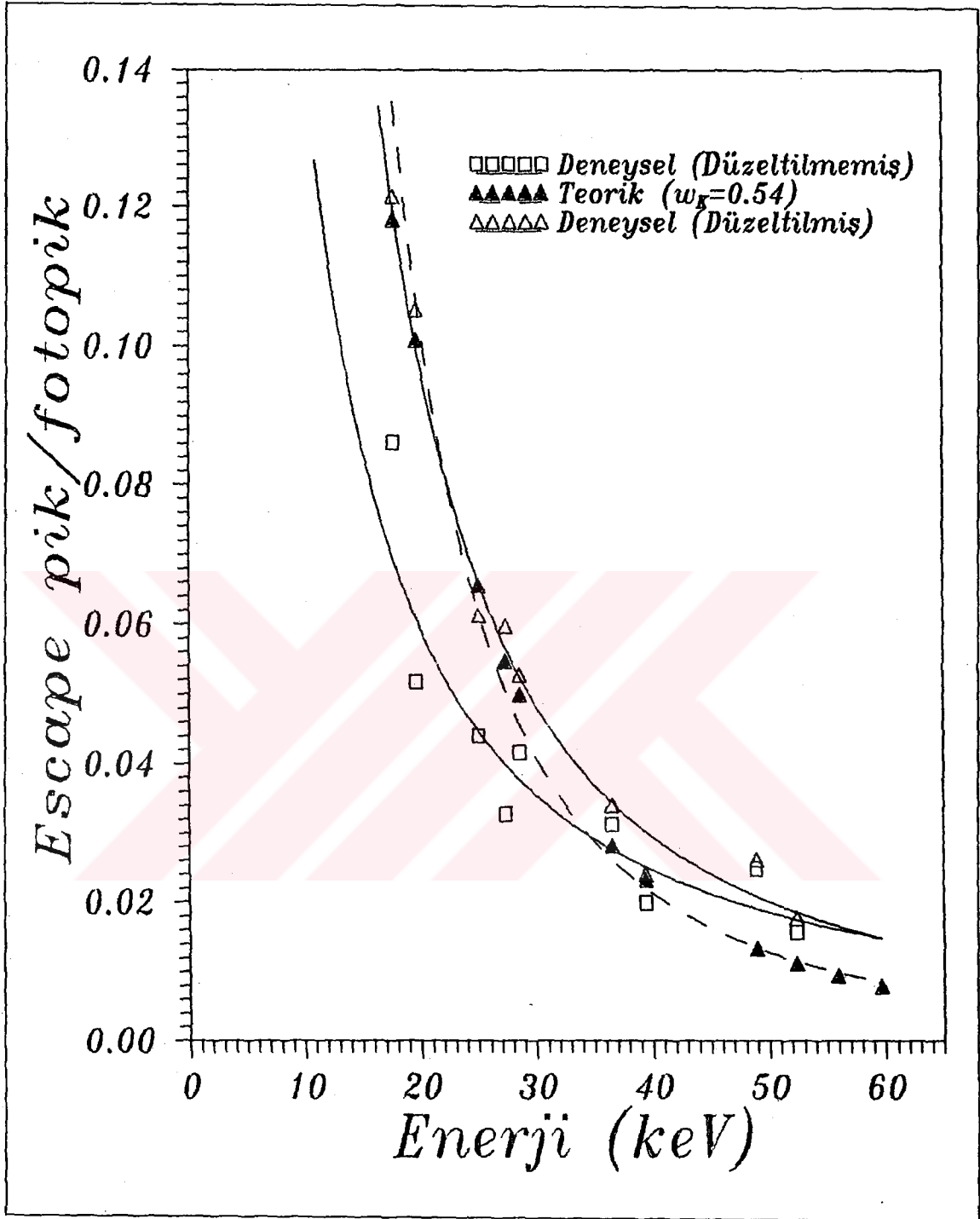
Şekil 4.4. Gd'un karakteristik x-ışını spektrumu.



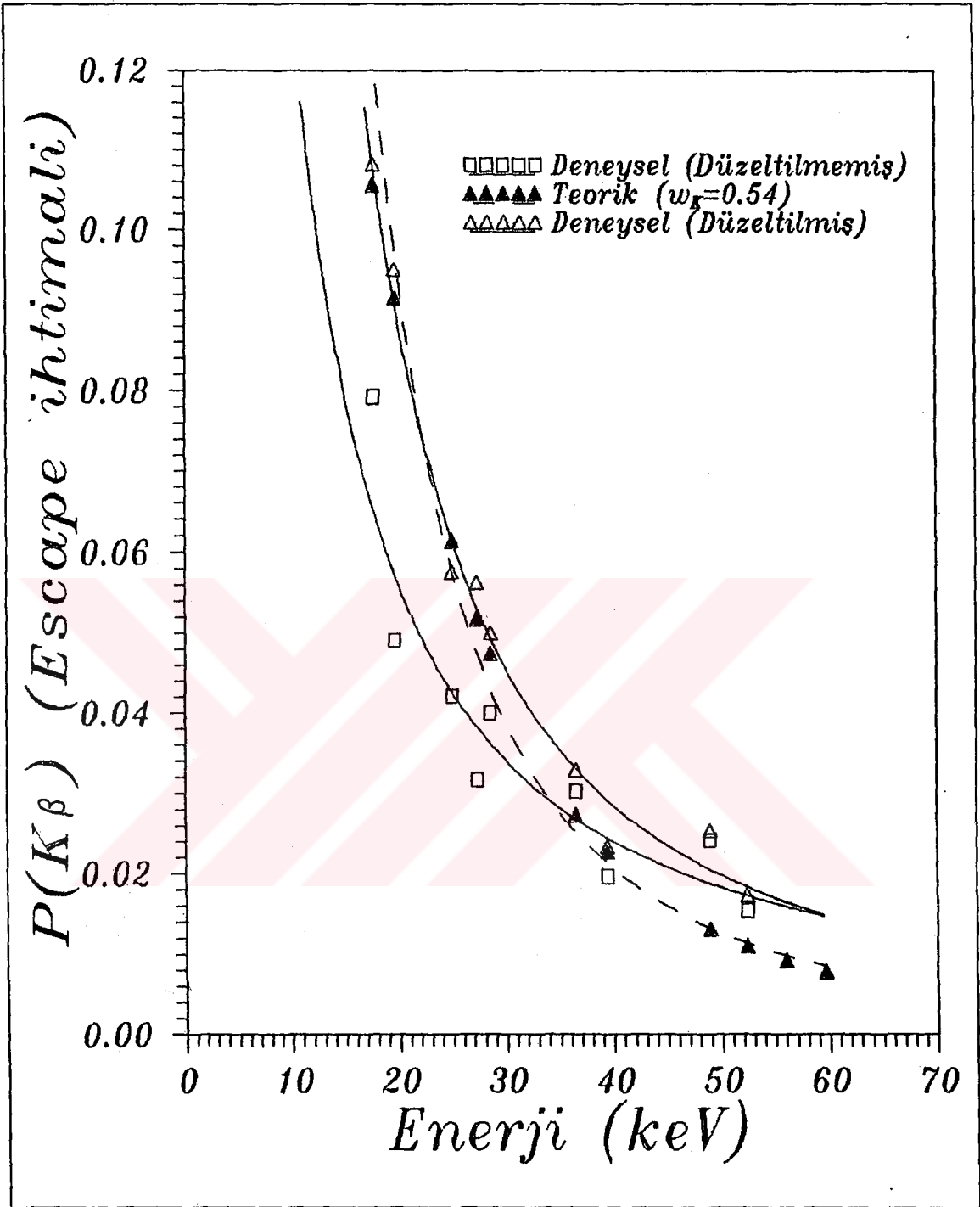
Şekil 4.5. $K\alpha$ için *escape pik/fotopik* şiddet oranlarının enerjiye bağımlılığı.



Şekil 4.6. $K\alpha$ escape ihtimalinin enerjiye bağımlılığı.



Şekil 4.7. $K\beta$ için escape pik/fotopik şiddet oranlarının enerjiye bağımlılığı.



Şekil 4.8. $K\beta$ escape ihtimalinin enerjiye bağımlılığı.

Pik şiddetleri üzerine kolimasyonun etkisinin varlığı göz önüne alınarak escape pik-fotopik şiddet oranları üzerine kolimasyonun etkisi incelenmiştir. 2-9 mm çaplı kurşun kolimatörler kullanılarak toz numune baryum ^{57}Co uyarıcı radyoizotop halka kaynağı ile uyarılarak Ba'un escape ve fotopik çizgileri ölçülmüştür. Ba'un $K\beta_2$ escape piki dedektörden gelen Sn pikiyle çakıştığından Ba'un $K\beta_2$ çizgisi için şiddet oranları değerlendirilmemiştir. Sonuçlar Tablo 4.9'da, $K\alpha$ ve $K\beta_1$ çizgileri için şiddet oranlarının kolimatör çapına göre değişimi Şekil 4.9'da verilmiştir.

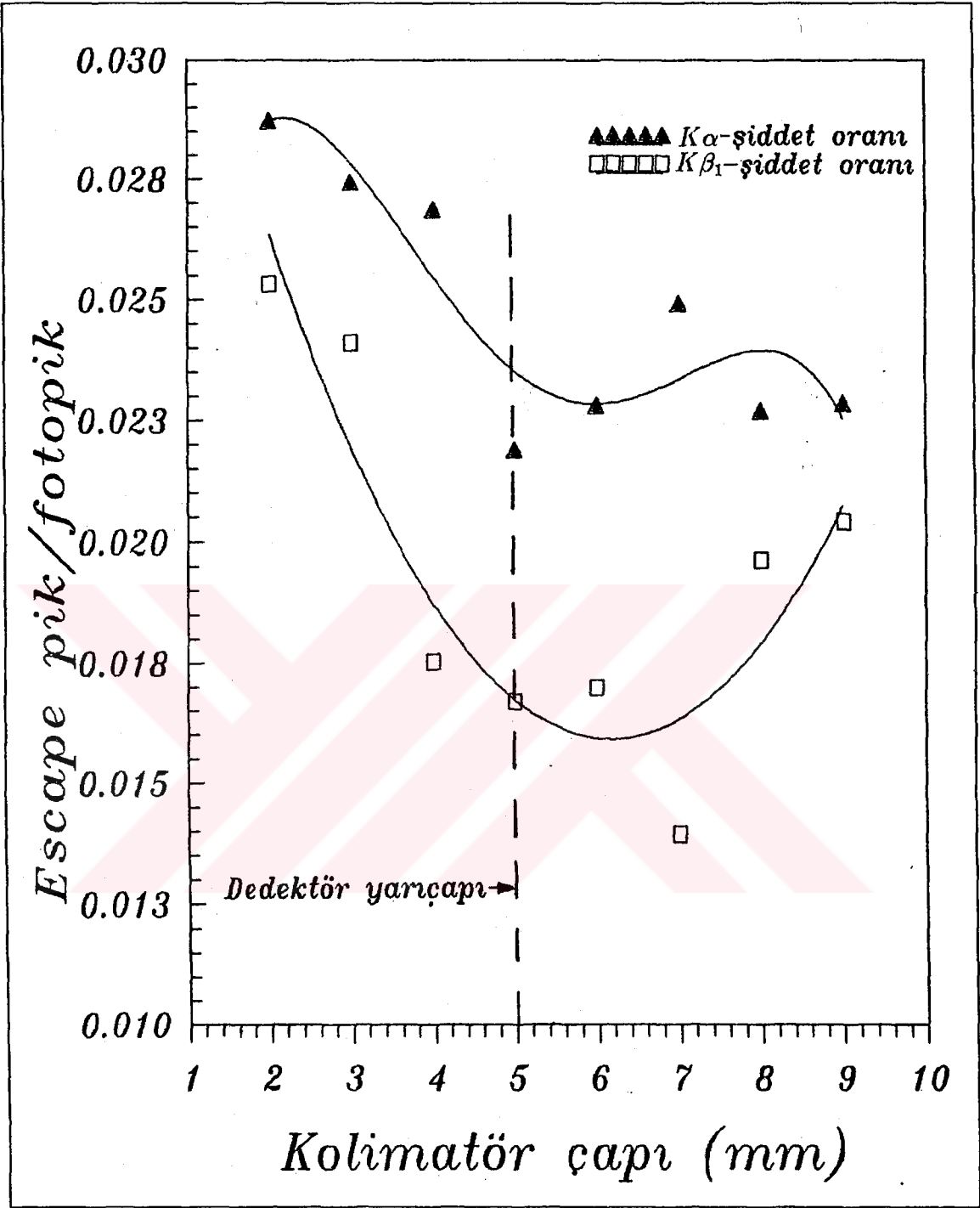
Tablo 4.9. Kolimatör çapına göre $K\alpha$ ve $K\beta$ escape pik/fotopik şiddet oranları.

Çap (mm)	N($K\alpha$)	N($K\beta_1$)	N($K\alpha e$)	N($K\beta_{1e}$)	N($K\alpha e$)/N($K\alpha$) ($\times 10^{-3}$)	N($K\beta_{1e}$)/N($K\beta_1$) ($\times 10^{-3}$)
2	97451	20712	2799	524	28.722	25.303
3	97281	20777	2670	501	27.446	24.113
4	97668	20192	2624	354	26.866	17.531
5	98028	20596	2147	344	21.902	16.702
6	97364	20771	2222	353	22.821	17.010
7	97613	20794	2434	290	24.935	13.946
8	97032	20724	2161	407	22.271	19.639
9	97073	20136	2219	411	22.859	20.411

Spektrumların incelenmesi sonucu escape piklerin fotopiklerden daha dar ve düzgün Gaussian pikler olduğu görülmüştür. Escape piklerin fotopiklerden daha dar olması onların single çizgiler olması ile izah edilebilir. Bu nedenle kolimasyon etkisini de hesaba katarak escape pikler analitik olarak,

$$G_e(i) = C_{col} \times A_e \exp \left[-\frac{(E_i - E_m - 9.9)^2}{2\sigma_e^2} \right] \quad (40)$$

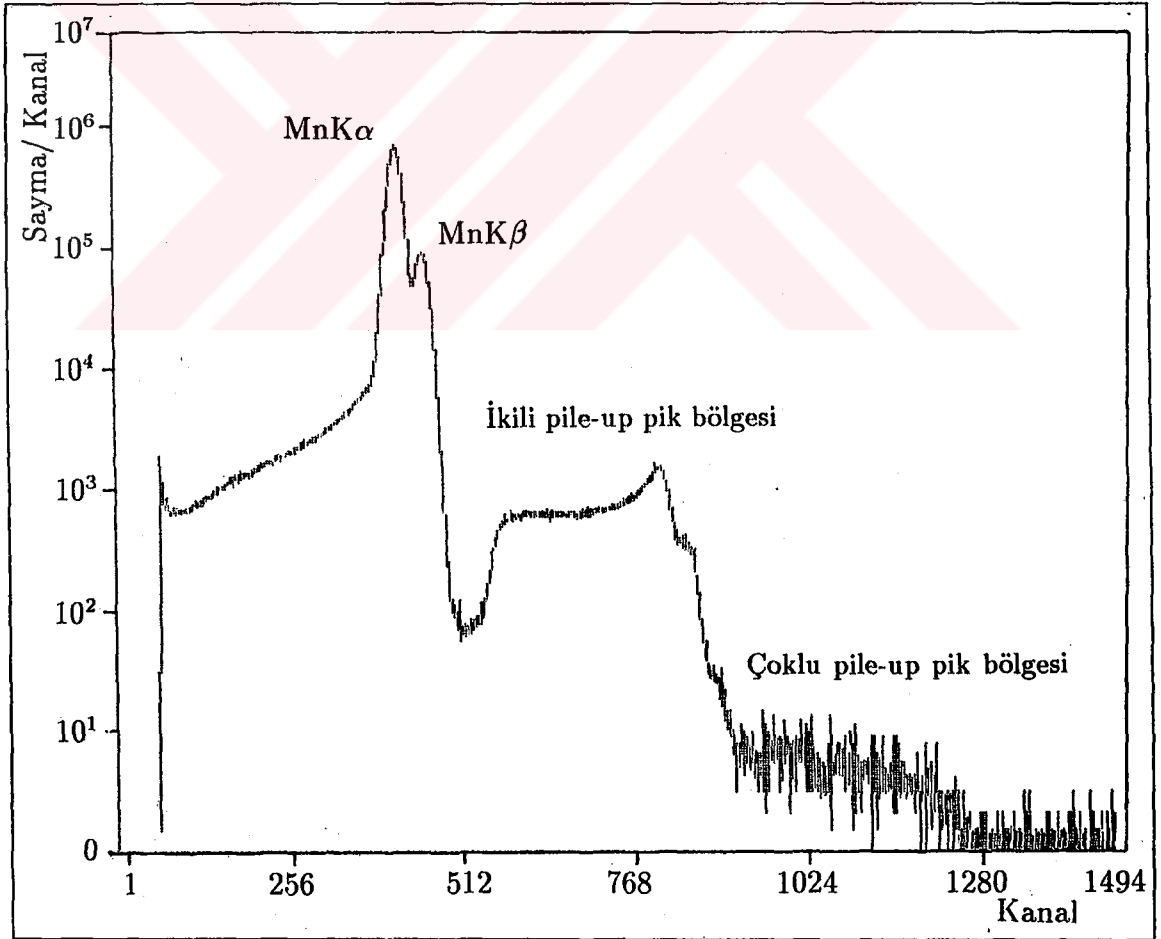
ifadesi ile temsil edilebilir. Burada E_m , gelen x-ışını enerjisi (pik merkezinin enerjisi); E_i , puls yükseklik enerjisi; σ_e , escape pikin genişlik parametresi; 9.9 (keV), Ge $K\alpha$ x-ışını enerjisi; A_e , escape pikin genliği ve C_{col} , kolimasyona ait sabittir.



Şekil 4.9. $K\alpha$ ve $K\beta$ escape pik/fotopik oranlarının kolimasyona bağımlılığı.

4.3 Pile-up Pik Ölçümleri

Bu ölçümlerde numune olarak 100 mCi'lik ^{55}Fe radyoaktif kaynağı kullanılmıştır. Bu kaynak Mn'a bozduğundan pile-up ölçümleri için Mn'nun $K\alpha_{1,2}$ (5.887 keV, $\%8.2 \pm 0.7$; 5.898 keV, $\%16.3 \pm 0.12$) ve $K\beta_1$ (6.490 keV, $\%3.3 \pm 0.3$) karakteristik x-ışınları kullanılmıştır. Amplifikatör puls şekillendirme zamanı (puls shaping time) $1 \mu\text{s}$ olarak seçilmiş analizör 2048 kanala ayarlanmıştır. Daha sonra kaynak dedektör mesafesi değiştirilerek sayma hızı değiştirilmiş ve pile-up pik şiddetinin sayma hızıyla değişimi incelenmiştir. Sayma hızı, 1800 s'lik gerçek sayma zamanı (live time) içerisinde ilgilenilen karakteristik pikler bölgesinde rastgele zamanlarda alınan 50 sayma hızının ortalaması alınarak bulunmuştur. Fotopik bölgesinde ortalama sayma hızı 5123 sayım/s olan Mn'ın pile-up piklerine ait spektrum Şekil 4.10'da, elde edilen sonuçlar ise Tablo 4.10'da verilmiştir.



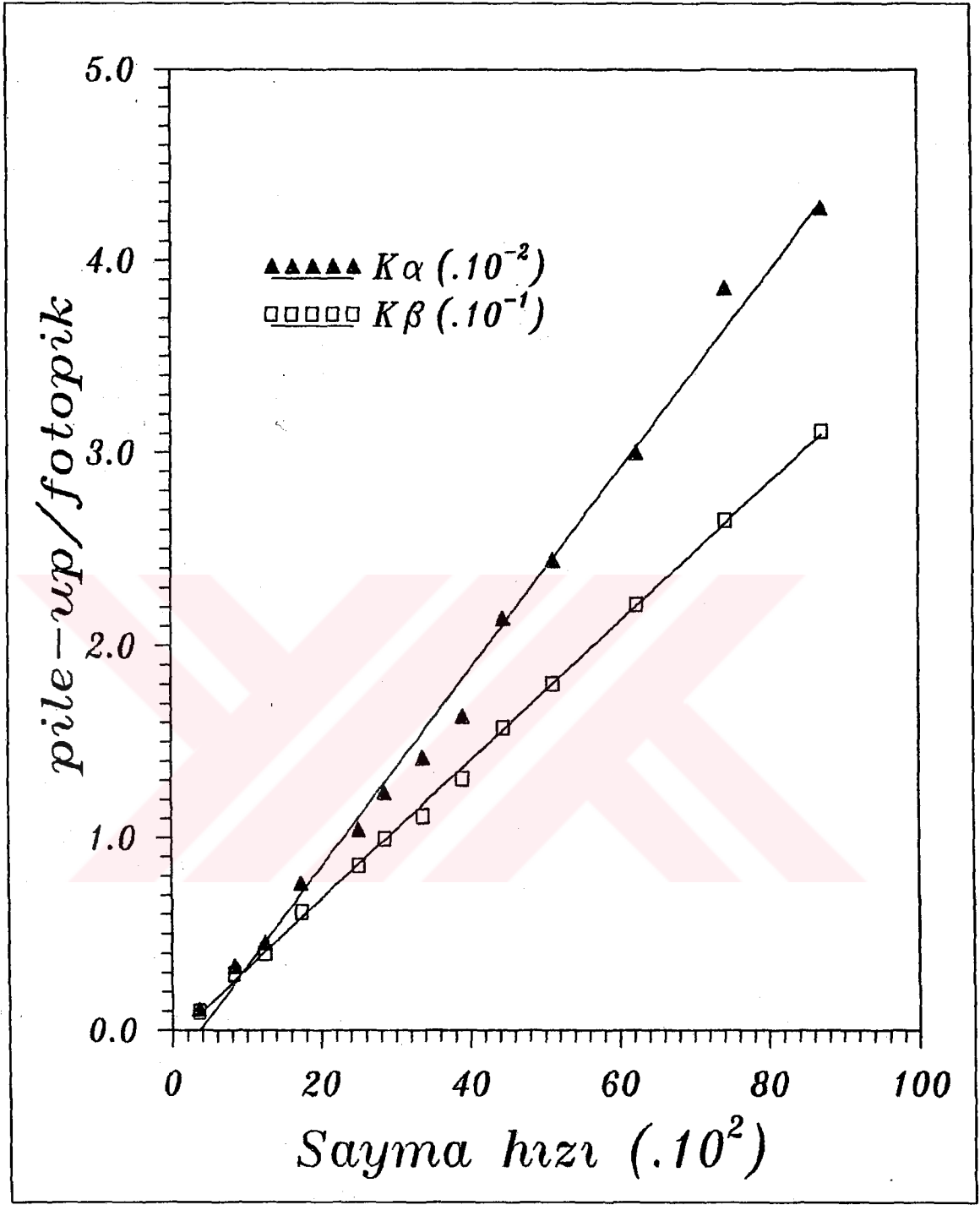
Şekil 4.10 Pile-up pik spektrumu (puls şekillendirme zamanı $1 \mu\text{s}$).

Tablo 4.10 Fotopik ve pile-up pik şiddetleri.

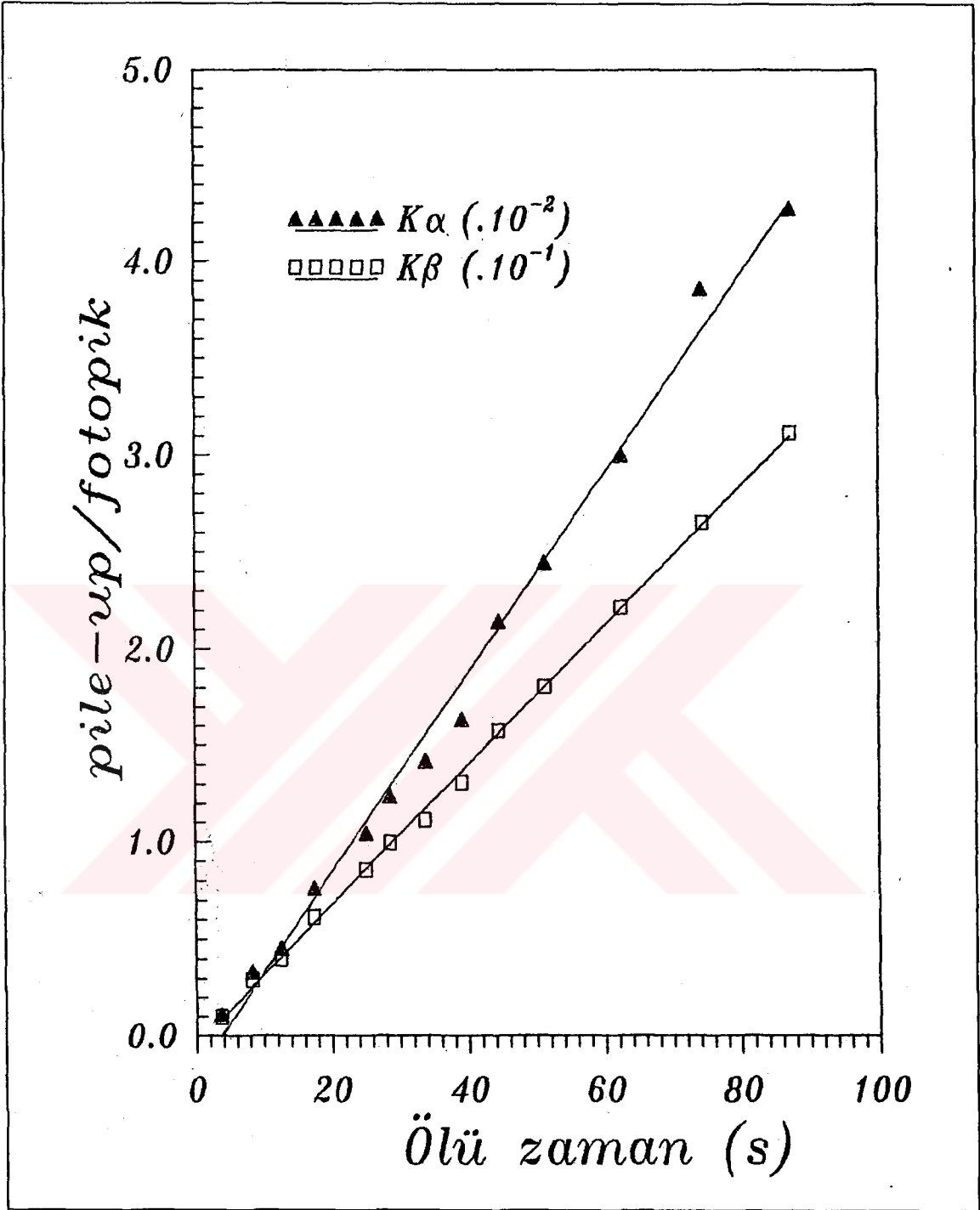
Cps (c/s)	T_D (s)	H_{SD} (mm)	$K\alpha_{1,2}$ ($\times 10^5$)	$K\beta_1$ ($\times 10^5$)	pile-up pik ($\times 10^5$)	pile-up/ $K\alpha_{1,2}$ ($\times 10^{-2}$)	pile-up/ $K\beta_1$
8715	345	23	146.11773	10.64829	4.54846	3.11287	0.42715
7431	292	26	125.02924	8.58079	3.31067	2.64791	0.38582
6247	243	29	104.76794	7.72904	2.31905	2.21351	0.30004
5123	198	32	85.79961	6.32709	1.54631	1.80223	0.24439
4455	172	35	74.69013	5.48865	1.17589	1.57435	0.21420
3910	147	38	65.05052	5.21272	0.85083	1.30795	0.16322
3377	127	42	56.40443	4.53737	0.64392	1.11416	0.14191
2861	107	45	47.65237	3.82658	0.47405	0.99480	0.12388
2513	94	55	41.90636	3.43337	0.35823	0.85483	0.10433
1741	65	65	28.89605	2.33490	0.17759	0.61458	0.07605
1254	46	80	20.89718	1.83669	0.08356	0.39986	0.04549
836	30	100	13.74880	1.20555	0.04031	0.29319	0.03343
360	12	130	5.93369	0.53131	0.00593	0.09994	0.01116

Tabloda Cps, sayma hızını; T_D , ölü zamanı ve H_{SD} , kaynak-dedektör mesafesini belirtmektedir.

$K\alpha$ ve $K\beta$ pile-up pik/fotopik şiddet oranlarının sayma hızına ve ölü zamana bağımlılıkları Şekil 4.11 ve 4.12'de verilmektedir.



Şekil 4.11. $K\alpha$ ve $K\beta$ pile-up pik/fotopik şiddet oranlarının sayma hızına bağımlılığı.



Şekil 4.12. $K\alpha$ ve $K\beta$ pile-up pik/fotopik şiddet oranlarının ölü zamana bağımlılığı.

Düşük sayma hızlarında (analizör için düşük ölü zaman) fotopikler daha keskin olup yüksek enerjili taraflarında gürültüden kaynaklanan bozukluklar bulunmaktadır. Artan sayma hızlarında pile-up pikler belirgin bir hale gelmekte ve ikili pile-up pik bölgesindeki plato üstel olarak azalarak çoklu pile-up pik bölgesine genişlemektedir. Pile-up pikinin şeklinin sayma hızının bir fonksiyonu olduğu görülmüştür.

Spektrumlarda artan sayma hızı veya ölü zamanla fotopikin düşük enerjili tarafında artma gözlenmiştir. Bu artma, bu bölgedeki pile-up'ların fotopik bölgesine düşmesinden olup fotopik için bir kazançtır. Ayrıca tüm pikler, puls pile-up'tan dolayı fotopik kanalları yerine pile-up pik bölgesine düşen puls kesri kadar eksik sayılmaktadır. Bu da fotopik için bir kayıptır. Bu nedenle fotopikin hem düşük enerjili hem de yüksek enerjili bölgesine düşen pile-up pikler için düzeltme yapılması gerekir.

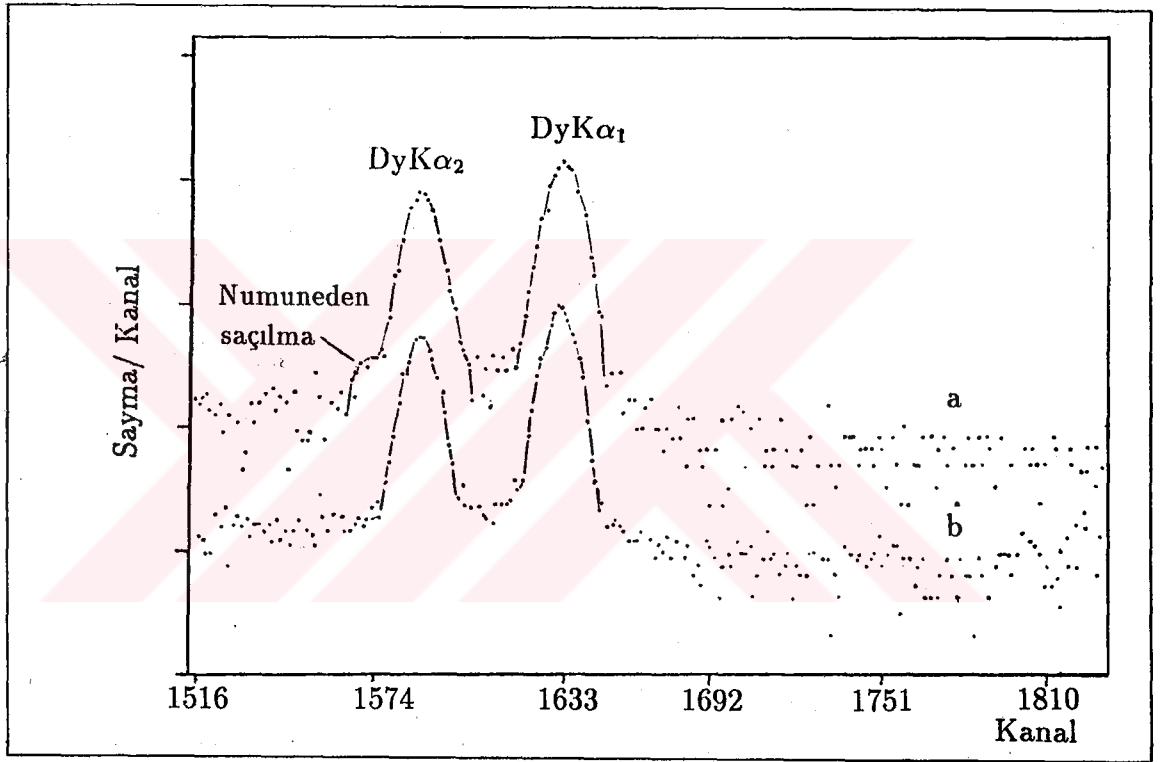
Bu çalışmada kullanılan spektrometre ile karakteristik fotonların birbirleriyle oluşturdukları pile-up piklerin birbirine çok yakın pozisyonlarda yerleştiği tesbit edilmiştir. Bu sebeple kullandığımız dedektörle bu piklerin şiddetlerini ayrı ayrı bulmak mümkün olmamıştır. Ayrıca bu piklerin aynı enerjide yerleşmiş normal bir pikten daha geniş pikler olduğu gözlenmiştir.

4.4 Saçılma Ölçümleri

Uyarıcı ve floresans radyasyonun numuneden, dedektörü kuşatan maddelerden ve havadan Compton saçılması mümkündür. Floresans radyasyonun saçılma piklerini tesbit etmek amacıyla 3 cm çaplı ince (0.025 g/cm^2) Dy numune ^{241}Am radyoizotop kaynağı ile uyarılmıştır. Dy'un karakteristik x-ışınları için Ge(Li) dedektörünün verimi yüksek [$\epsilon(K\alpha) = 1.9476 \times 10^{-3}$ ve $\epsilon(K\beta) = 1.8825 \times 10^{-3}$] ve bu enerjide Ge $K\alpha$ escape ihtimali oldukça düşüktür. Bu ölçümlerde 3 mm yarıçaplı konik kurşun kolimatör kullanılmıştır. Böylece hem düşük enerjili radyasyonun sayılması önlenmiş, hem de saçılmış floresans radyasyonun büyük bir çoğunluğunun dedektörü görmesi sağlanmıştır. Sayma hızı düşük tutulmuş ve saçılma bölgesinde iyi bir istatistik elde etmek için $K\alpha$ pikleri 1.5×10^4 sayıya ayarlanmıştır. Elde edilen spek-

trumda fotopikin düşük enerjili tarafında fotopikten daha büyük genişliğe sahip pik gözlenmiştir. Aynı ölçümler 1 mm yarıçaplı konik kurşun kolimatör kullanılarak yapıldığında bu pikin şiddetinde bir azalma tesbit edilmiştir (Şekil 4.13).

He et al. (1990) 'a göre bu pikler numune ve dedektörü kuşatan maddelerden küçük açılarda Compton saçılmalarından meydana gelmektedir. Ancak bu piklere havadan saçılmaların da katkısının olmadığını söylemek mümkün değildir.



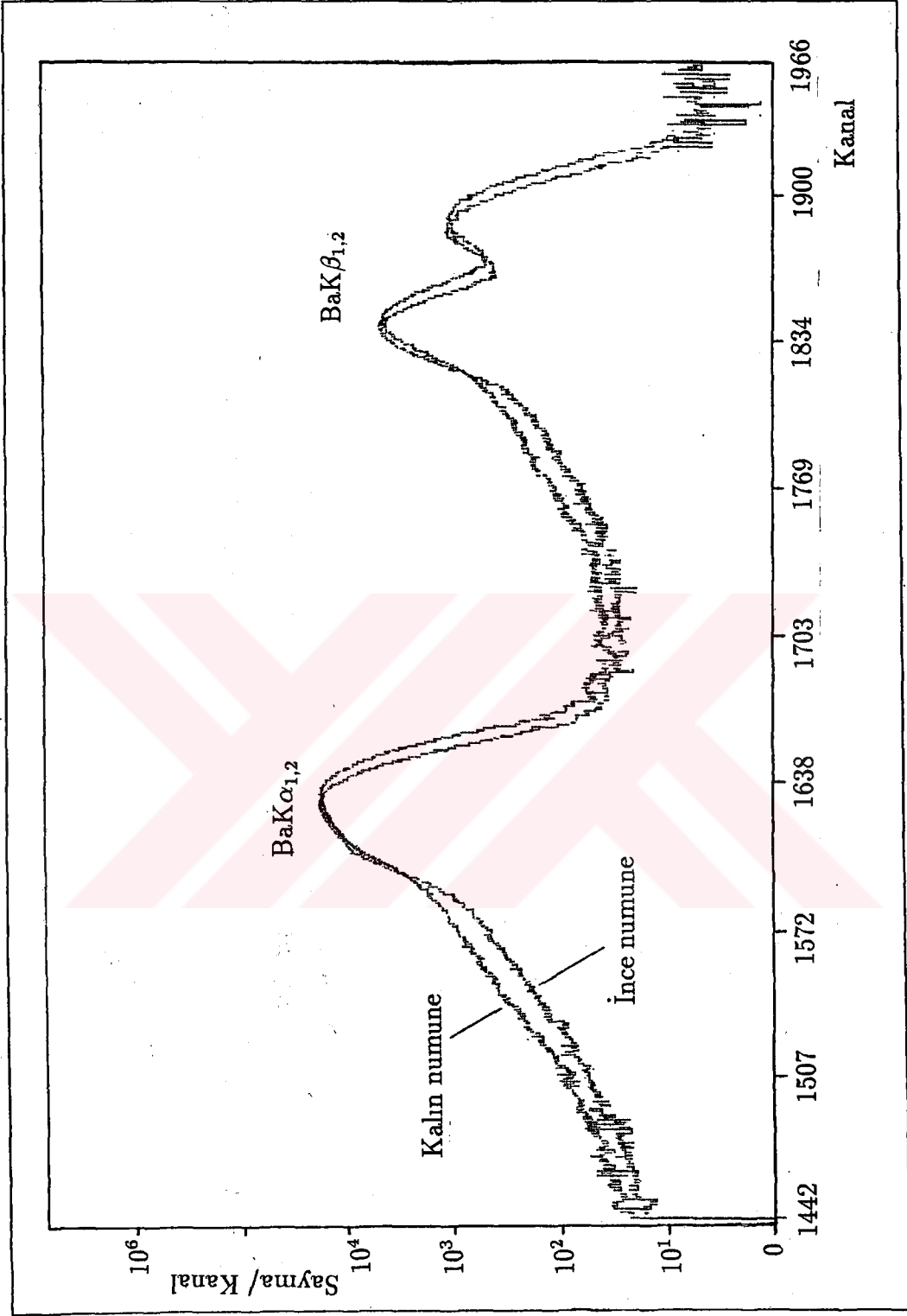
Şekil 4.13. ^{241}Am kaynağı ile uyarılmış Dy'un (a) 3 mm, (b) 1 mm yarıçaplı kolimatörlerle alınmış x-ışını spektrumları.

Numuneden saçılmaları ölçmek için farklı kalınlıkta *Ba* tabletler hazırlanmış, 3 mm yarıçaplı konik kurşun soğurucu kullanılmıştır. Havadan saçılmaları azaltmak için kaynak-dedektör mesafesi 2.5 cm tutulmuştur (Cummings ve Donahue, 1970). İyi bir istatistik ve kıyaslama için ilgilenilen pik bölgesi ($K\alpha+K\beta$) 7.5×10^5 sayıma set edilmiştir. Artan numune kalınlığı ile saçılma piklerinde bir artma gözlenirken $K\alpha$ fotopik bölgesinde bir azalma tesbit edilmiştir (Şekil 4.14). Aslında, artan numune kalınlığı ile fotopik şiddetinde artma beklenir. Ancak kullanılan numunelerin kalınlığı, *Ba*'un karakteristik x-ışınları için sonlu olduğundan karakteristik

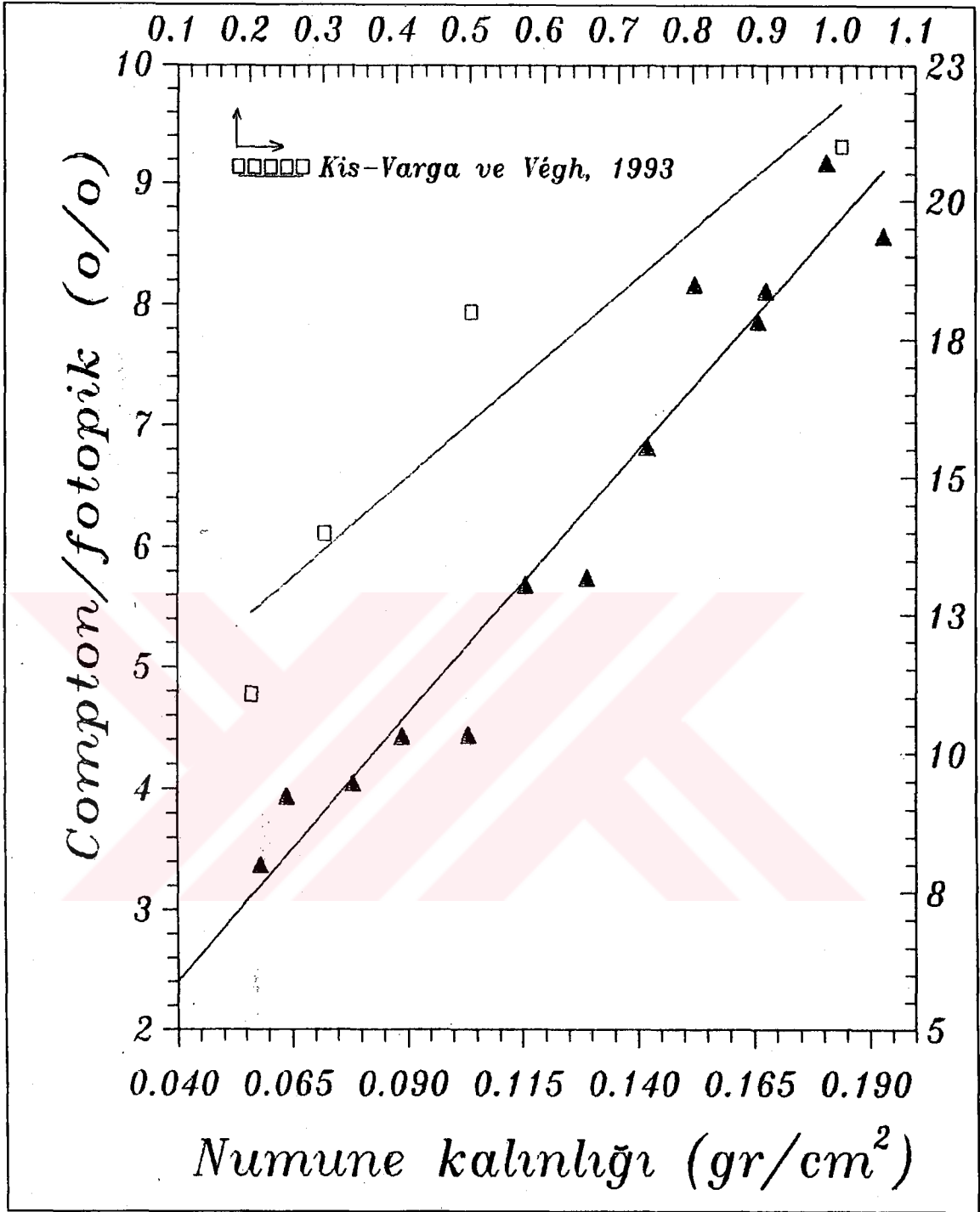
çizgi şiddetlerinde bir artma gözlenmemiştir. Numune kalınlığının artması ile numunede floresans radyasyonun Compton saçılması ihtimali artmıştır. Bu nedenle karakteristik pik bölgesinde bir azalma olurken saçılma bölgesinde bir artma gözlenmiştir. Hesaplamalarda karakteristik pikler için escape pik düzeltmesi yapılmıştır. Ölçümlerde aynı numune kullanıldığından parçacık büyüklüğü ve verim için bir düzeltme yapılmamıştır. Elde edilen sonuçlar Tablo 4.11'de ve *Compton piki/K α -fotopik* şiddet oranının numune kalınlığına bağlılığı Şekil 4.15'de verilmiştir.

Tablo 4.11. Numune kalınlığına göre *Compton piki/K α -fotopik* oranları.

Numune kalınlığı (g/cm ²)	$N_{K\alpha C}$	$N_{K\alpha}$	$N_{K\alpha C}/N_{K\alpha}$
0.05811	17386	515195	0.03374
0.06398	21902	555786	0.03940
0.07838	22371	552634	0.04048
0.08907	24311	549034	0.04428
0.10340	24267	546537	0.04440
0.11579	32482	538844	0.05685
0.12917	30983	539234	0.05745
0.14208	36320	532074	0.06826
0.15238	42624	521642	0.08171
0.16603	41034	521318	0.07871
0.16761	42169	519049	0.08124
0.18074	47362	515575	0.09186
0.19305	44323	516784	0.08576



Şekil 4.14. En ince ve en kalın Ba numuneleri için x-ışını spektrumları.

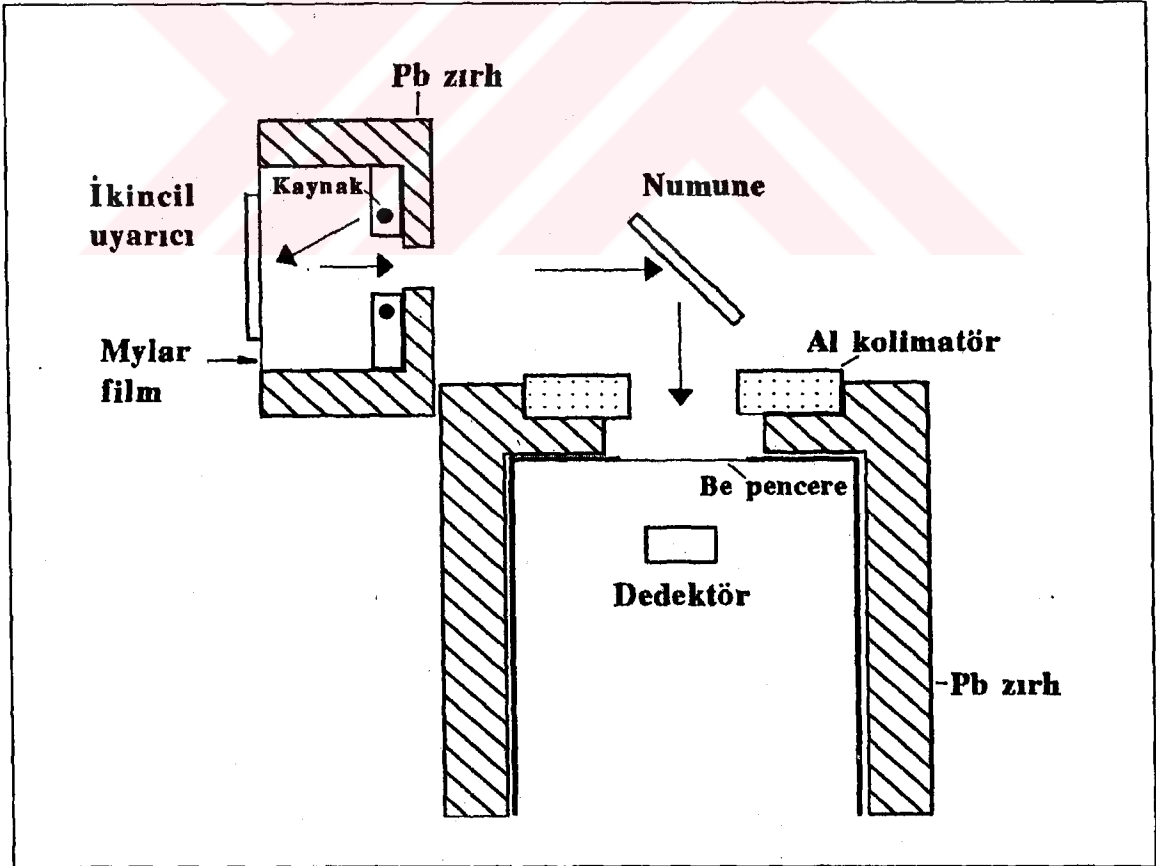


Şekil 4.15. Ba'nın K α çizgileri için numune kalınlığının fonksiyonu olarak Compton/fotopik alanı oranları.

4.5 $K\alpha$ Satellite Ölçümleri

Bir K tabakası ve bir veya birden fazla L tabakasının iyonizasyonu $K\alpha$ x-ışını satellite'lerinin meydana gelmesine sebep olmaktadır. Bunlar kesim 2.2.3'te de bahsedildiği gibi KL^N şeklinde gösterilmektedir. Burada N , L tabakasında meydana getirilmiş boşluk (hole) sayısını belirtmektedir. Meselâ, $N = 0$ için KL^0 , $K\alpha$ x-ışını (diyagram çizgiyi) belirtmektedir.

Satellite çizgiler ağır iyon uyarımı (Demarest ve Watson, 1978; Langenberg ve Watson, 1981) ile çalışılmakta ancak elektron ve foton uyarımı (Ramesh Babu, et al., 1987; Maskil ve Deutsch, 1988) kullanılarak ta gözlenebilmektedir. Bu çalışmada ikincil uyarıcılar (foton uyarımı) kullanılarak Cr, Mn ve Fe'in $K\alpha L^1$ satellite çizgi grubu ($K\alpha_{1,2}$ ana çizgisinin satellite çizgi grubu $K\alpha_3$, $K\alpha_4$, $K\alpha_3'$, $K\alpha'$ ve $K\alpha''$) incelenmiştir. Deney geometrisi Şekil 4.16'da verilmektedir.



Şekil 4.16. Satellite ölçümleri için kullanılan deney geometrisi.

Toz halindeki Cr, Mn ve Fe bileşiklerinden 30 mm çapında kalın tablet numuneler hazırlanarak 8 saat (live time) sayılmıştır (Şekil 4.17). Numunelerin $K\alpha L^1$ satellite enerjileri kesim 2.2.2'de verilen

$$E(K\alpha_{3,4})_Z = E(K\alpha_{1,2})_Z + \Delta E \quad (41)$$

ifadesinden hesaplanmıştır. Burada $E(K\alpha_{3,4})_Z$, Z atom numaralı elementin $K\alpha L^1$ satellite enerjisi; $E(K\alpha_{1,2})_Z$, Z atom numaralı elementin ortalama $K\alpha$ enerjisi ve ΔE ise $K\alpha$ ana çizgisine göre $K\alpha_{3,4}$ satellite'nin enerji kaymasıdır. Ortalama $K\alpha$ x-ışını enerjileri Storm ve Israel (1970) tarafından verilen tablolardan, ΔE enerji kaymaları ise Bhattacharya et al. (1988) tarafından teorik olarak [analitik SCF dalga fonksiyonları (self-consistent-field wave functions) kullanılarak] hesaplanmış değerlerden alınarak $K\alpha L^1$ satellite enerjileri hesaplanmıştır (Tablo 4.12).

Numuneler, önce onların sadece KL^0 ana çizgilerini uyaracak ikincil uyarıcılarla, daha sonra da hem KL^0 ana çizgilerini hem de KL^1 satellite çizgilerini uyaracak ikincil uyarıcılarla uyarılarak spektrumları kaydedilmiştir. İkincil uyarıcı Fe, Co, Ni ve Cu'nun ω_K floresans verimleri farklı olduğundan (sırasıyla 0.324, 0.358, 0.392, 0.425; Bertin, 1970) sayma süresi içerisinde ikincil kaynaklardan yayınlanan foton sayıları farklı olacaktır. Satellite'li ve satellite'siz ölçümler arasında bir kıyaslama yapabilmek için ikincil uyarıcı şiddetlerinin floresans verim için düzeltilmesi gerekmektedir. Düzeltme işlemi yapıldıktan sonra elde edilen sonuçlar Tablo 4.13'te verilmiştir.

Tablo 4.12. Numunelerin çift (double) iyonlaşma ve $K\alpha L^1$ -satellite enerjileri (eV).

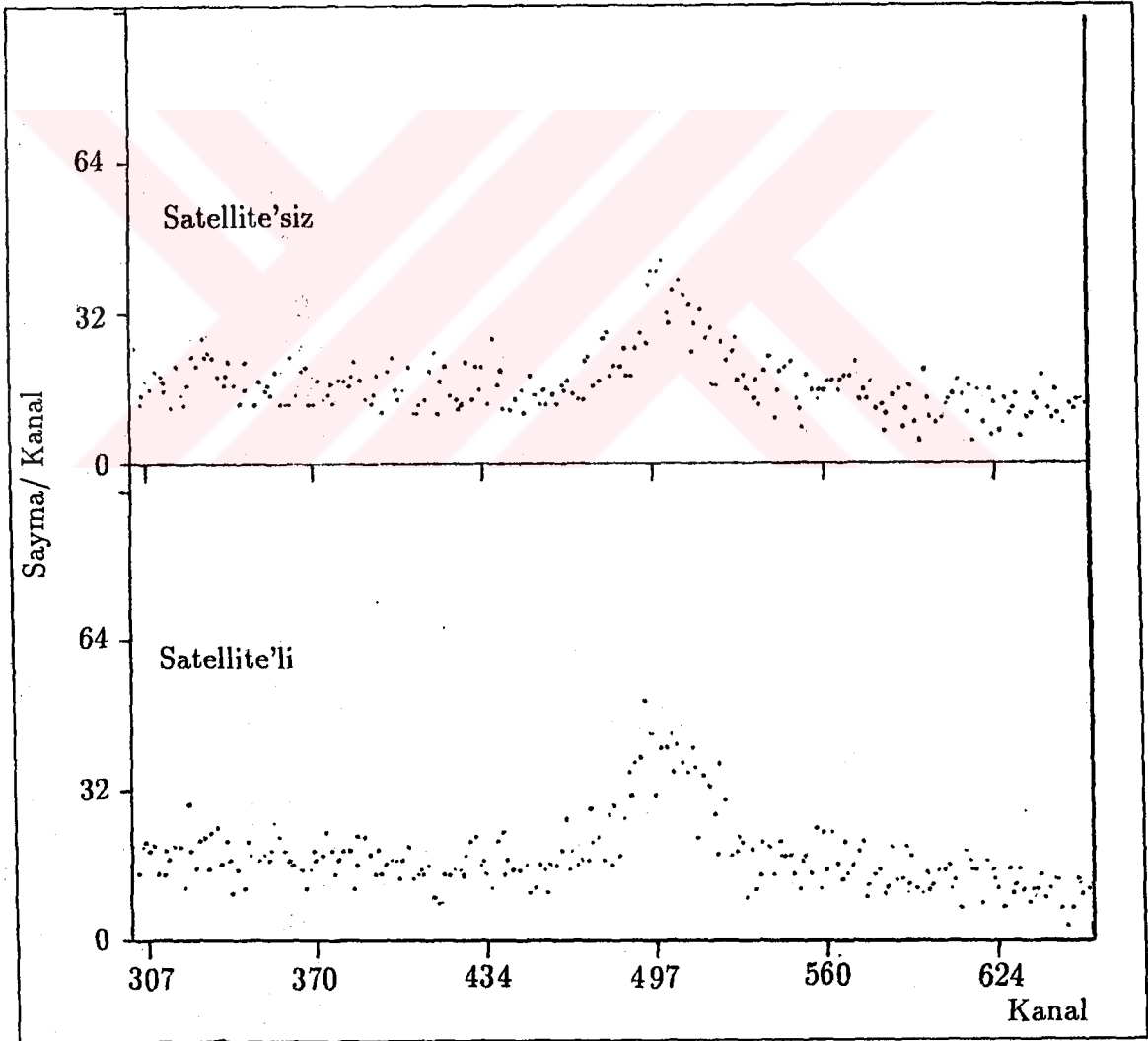
Numune	K_Z iyonlaşma enerjisi	$^aL_{Z+1}$ iyonlaşma enerjisi	$K_Z + L_{Z+1}$ çift iyonlaşma enerjisi	KL^0 ana çizgi enerjisi	ΔE enerji kayması	KL^1 satellite enerjisi
Cr	5988	654	6642	5411	29.7	5440.7
Mn	6537	720	7257	5895	31.4	5926.4
Fe	7111	796	7907	6400	33.2	6433.2

^aSawada et al.,1959

Tablo 4.13. İkincil uyarıcı enerjileri ve KL^1/KL^0 şiddet oranları.

Element	Uyarıcı foton enerjisi (eV)	Uyarılan çizgiler	Şiddet	Düzeltilmiş şiddet	DeneySEL KL^1/KL^0	DeneySEL* KL^1/KL^0
Cr	6400 (Fe $K\alpha$)	KL^0	776	776		
	6925 (Co $K\alpha$)	KL^0, KL^1	1018	921	0.18	0.19
Mn	6925 (Co $K\alpha$)	KL^0	2477	2477		
	7472 (Ni $K\alpha$)	KL^0, KL^1	3943	3601	0.45	0.13
Fe	7472 (Ni $K\alpha$)	KL^0	6457	6457		
	8041 (Cu $K\alpha$)	KL^0, KL^1	8570	7904	0.18	0.10

*Parrat, 1936.

Şekil 4.17. Cr'un $K\alpha$ x-ışını spektrumları.

5 SONUÇ ve TARTIŞMA

Bu çalışmada, öncelikle spektral temel saymaya tabii radyasyonun katkısını belirlemek amacıyla temel sayma ölçümleri yapılmıştır. 0-520 keV enerji aralığında zırhlanmamış ve zırhlanmış dedektörle yapılan ölçümlerde hem temel saymada hem de fotopik şiddetlerinde, özellikle uranyum toryum serisinden kaynaklanan pik şiddetlerinde önemli derecede azalmalar tesbit edilmiştir. Zırhlanmamış dedektörde temel sayma hızı 3.55-0.009 s/d ve fotopik sayma hızı 3.57-0.005 s/d arasında değişirken zırhlanmış dedektörde temel sayma hızı 0.15-0.004 s/d ve fotopik sayma hızı 0.44-0 s/d 'ya kadar azalmıştır.

Temel sayma radyasyonunun kaynakları bilinmesine rağmen tabii radyasyonun değişik bileşenlerinden gelen katkılar daha az bilinmektedir. Bu, belli bir deney geometrisinde özellikle düşük aktiviteli numune veya kaynaklarla çalışılırken zaman ve gayretin relatif olarak daha az öneme sahip bir katkının azaltılması için harcanmasına sebep olur. Bu nedenle tabii radyasyonu iyi tanımak ve buna göre uygun deney geometrisi kurmak XRF analizlerde zaman ve işgücü tasarrufu bakımından oldukça önemlidir.

Çalışmada daha sonra, $40 \leq Z \leq 70$ elementler bölgesinde Ge'un *escape pik/fotopik* (escape pikler e indisi ile gösterilmiştir) şiddet oranları incelenmiştir. Elde edilen sonuçlardan $K\alpha_e/K\alpha$ şiddet oranlarının artan Z ile % 13 - % 1 arasında, $K\alpha$ escape ihtimallerinin % 12 - % 1 arasında, $K\beta_e/K\beta$ şiddet oranlarının %12 - % 1 arasında ve $K\beta$ escape ihtimallerinin ise % 10.8 - % 1.7 arasında değiştiği görülmüştür (Tablo 4.6-4.8).

Teorik hesaplamalar için Reed ve Ware (1972) tarafından geliştirilmiş olan ifade (Denk. 33) kullanılmış ve K tabakası floresans verimi için $\omega_K = 0.054$ olarak (Campbell ve McNelles, 1974) alınmıştır. Deneysel değerlerle teorik değerlerin karşılaştırması Şekil 4.5-4.8'de verilmiştir. Deneysel $K\alpha_e/K\alpha$ şiddet oranları en çok % 2.5 farkla teoriyle iyi bir uyum göstermektedir. $K\beta_e/K\beta$ şiddet oranları en çok % 1 farkla teoriyle uyusmaktadır. Ancak, yüksek enerjili bölgede teoriden sapmalar

gözlenmektedir. Bu, M-K ($K\beta$) tipi geçişlerin, L-K ($K\alpha$) tipi geçişlerin % 20' si mertebesinde olması, dolayısıyla istatistiğin düşük olmasından kaynaklanmaktadır.

Ayrıca, *escape pik/fotopik* şiddet oranlarının kolimatör çapıyla değişimi incelenmiş ve bu oranların kolimasyona bağlı olduğu görülmüştür (bkz. Şek.4.9). Bu sonuç, Fioratti ve Piermattei (1971) 'nin *escape pik/fotopik* şiddet oranlarının geometriye bağlı olduğunu belirten sonuçları ile uyuşmaktadır. Özellikle dedektör yarıçapına ulaşmaya kadar *escape pik/fotopik* şiddet oranının giderek azalması ve bundan sonra tekrar artması ilginçtir.

$32 < Z < 50$ elementler bölgesinde (Ge(Li) dedektörle $32 < Z < 36$ olan elementlerin *escape pik*lerini ilave bir sistem olmadan ölçmek mümkün değildir) Ge'un *escape* ihtimali oldukça yüksek olduğundan (% 13-6) mutlaka *escape* düzeltmesi yapılmalıdır.

Fotopik şiddetine pile-up piklerin etkisini belirlemek amacıyla ^{55}Fe 'in bozunmasından elde edilen Mn'nin karakteristik pikleri $\sim 0.3-9$ *kcps* sayma hızı aralığında incelenmiştir. Mn $K\beta_1$ fotopikinde pile-up'tan dolayı kayıpların Mn $K\alpha_{1,2}$ fotopikindeki pile-up kayıplarına nazaran daha fazla olduğu görülmüştür. Bu, Gui-Nian et al. (1989)'un ifade ettiği gibi pile-up pik şiddetinin x-ışını enerjisine bağlı olmasından kaynaklanabileceği gibi, $K\alpha_{1,2}$ fotopikinin düşük enerjili tarafındaki spektrumdan pile-up'ların bu pik kanallarına düşmesinden de kaynaklanabilir. 8715 c/s lik sayma hızında $K\alpha$ pikindeki sayma kaybı \sim % 3 iken $K\beta$ pikinde % 30 kadardır.

Yüksek sayma hızlarında çalışılırken amplifikatör ölü zamanı, amplifikatör puls şekillendirme zamanıyla dolayısıyla pile-up etkisi ile ilgili olduğundan (Short, 1991; Cohen, 1974) zaman sabiti küçük seçilmeli ve mutlaka pile-up düzeltmesi yapılmalıdır.

Çalışmada üçüncü olarak, Ge(Li) dedektörde fotopik şiddetine floresans radyasyonunun numuneden Compton saçılmasının etkisi incelenmiştir. Sonuçlardan *Compton piki/ $K\alpha$ fotopik* oranının artan numune kalınlığı ile arttığı ve kolimasyona bağlı olduğu görülmüştür. Sonuçlar, Kis-Varga ve Végh (1993)'in ^{241}Am radyoizotop

halka kaynak uyarımı ile elde ettikleri deneysel deęerlerle karřılařtırılmıř ve bunlarla uyum ierisinde olduęu grlmřtr (bkz. Őek.4.15). Halka kaynak uyarımlı bir geometride numuneden saılmıř Őiddetin ihmal edilemeyeceęi sonucuna varılmıřtır.

alıřmanın son kısmında, ikincil uyarıcılarla (Fe, Co, Ni ve Cu) uyarılmıř Cr, Mn ve Fe numunelerinin KL^1 satellite spektrumları incelenmiř ve KL^1/KL^0 Őiddet oranları hesaplanmıřtır. Sonular, Parrat (1936)'ın deneysel sonuları ile karřılařtırmalı olarak Tablo 4.13'te verilmiřtir. Cr'un relatif satellite Őiddet oranı Parrat'ın sonucuyla uyumda olmasına raęmen Mn ve Fe'in relatif satellite Őiddet oranları iin olduka byk deęerler elde edilmiřtir. Halbuki relatif satellite Őiddetinin artan Z ile azalması gerekmektedir. Bunun sebebi, auger satellite ve dřk enerjili satellite'ler iin bir dzeltme yapılmamıř olmasıdır. Buradan Ge(Li) dedektrlerle yapılan satellite lmlerinde yukarıda bahsedilen etkilerinde gznne alınması gerektięi sonucuna varılmıřtır.

Sonu olarak, enerji ayırımı x-ıřını spektrumlarının deęerlendirilmesinde bu etkileri gzardı veya ihmal etmek, spektral analizlerde nemli hatalara ve hatalı deęerlendirmelere sebep olabilir. Bu nedenle temel saymanın kaynaklarının, escape piklerin, pile-up piklerin, saılma piklerinin ve satellite piklerin relatif Őiddetlerinin, pik Őekillerinin, piklerin meydana gelme ihtimallerinin ve bu piklere ana kaynakları dıřından olan katkılarının bilinmesinin ve hesaba katılmasının daha doęru sonular elde edilmesi bakımından nemli olduęu ortaya konulmuřtur.

6 KAYNAKLAR

- 1 - Agarwal, B. K., 1991, X-Ray Spectroscopy an Introduction, Springer-Verlag, USA, 178-185.
- 2 - Aberg, T., Graeffe, G., Utriainen, J. and Linkoaho, M., 1970, J. Phys. C: Solid State Phys., 3, 1112.
- 3 - Babu, G.R., Gopalakrishna, V., Parthasaradhi, K., Radha Krishna Murty, V., Murti, M. V. R. and Rao, K. S., 1986, Physica 138C, 201.
- 4 - Babu, G.R., Gopalakrishna, V., Raju, M. L. N., Parthasaradhi, K., Radha Krishna Murty, V., Murti, M. V. R. and Rao, K. S., 1987, Phys. Rev. A36, 1, 386-389.
- 5 - Bertin, E.P., 1975, Prenciples and Practice of X-Ray Spectrometric Analysis, Plenum Press, New York, 52,240,241,980.
- 6 - Bhattacharya, J., Laha, U. and Talukdar, B., 1988, Phys. Rev. A37, 3162.
- 7 - Bland, C. J., Morel, J., Etcheverry, E. and Lepy, M. C., 1992, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., A312, 323-333.
- 8 - Boman, J. and Isakson, J., 1991, X-Ray Spectrom., 20, 305-314.
- 9 - Bortels, G., Mouchel, D., Garcia-Toraño, E. and Aceña, M. L., 1990, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., A286, 429-432.
- 10 - Briand, J. P., Touati, A., Frilley, M., Chevallier, P., Johnson, A., Rozet, J. P., Tavernier, M., Shafroth, S. and Krause, M. O., 1976, J. Phys. B: Atom, Molec. Phys., 9, 7, 1055-1064.
- 11 - Brundle, C. R. and Baker, A. D., 1979, Electron Spectroscopy: Theory, Techniques and Applications, Academic Press, London, 13-15.
- 12 - Budak, G., 1992, X-Işını Floresans Tekniğinde Dairesel Numunelerde Şiddet Dağılımının Ölçülmesi ve Monte Carlo Yaklaşımı. Yüksek Lisans Tezi, Atatürk Üniversitesi, Erzurum (yayınlanmamış).
- 13 - Camp, D. C., Gatrousis, C. and Maynard, L. A., 1974, Nucl. Instrm. Meth., 117, 189-211.
- 14 - Camp, D. C., 1985, Adv. X-Ray Anal., 28, 91-98.
- 15 - Campbell, J. L. and McNelles, L. A., 1974, Nucl. Instrm. Meth., 117, 519-532.
- 16 - Campbell, J. L. and Jorch, H. II., 1979, Nucl. Instrm. Meth., 159, 163-170.

- 17 - Campbell, J. L., Wang, J.-X. and Teesdale, W. J., 1989, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., B43, 490-496.
- 18 - Campbell, J. L. and Wang, J.-X., 1991, X-Ray Spectrom., 20, 191-197.
- 19 - Campbell, J. L. and Wang, J.-X., 1992, X-Ray Spectrom., 21, 223-227.
- 20 - Clayton, E. and Duerden, P., 1987, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., B22, 64-67.
- 21 - Cohen, E.J.; 1974, Nucl. Instrm. Meth., 121, 25-32.
- 22 - Condon, E. U. and Shortley, G. H, 1991, The Theory of Atomic Spectra, Cambridge University Press, Cambridge, 323-326.
- 23 - Coster, D. and Kronig, R. L., 1935, Physica 2, 13.
- 24 - Crasemann, B., 1985, Atomic Inner-Shell Physics, Plenum Press, New York, 61-64.
- 25 - Çiftçioğlu, Ö., 1980, Nucl. Instrm. Meth., 174, 209-220.
- 26 - Cummings, J. E. and Donahue, D. J., 1970, Nuclear Physics, 609-618.
- 27 - Demarest, J. A. and Watson, R. L., 1978, Phys. Rev. A17, 1302-1313.
- 28 - Delbrouck-Habaru, J. M., Robaye, G., Weber, G., Reolandts, I. and Idelouali, H., 1984, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., B3, 315-318.
- 29 - Deutsch, M., 1989, Phys. Rev., A39, 3, 1077-1081.
- 30 - Durak, R., 1990, Bazı γ -Pikleri ve Ağır Elementler Bölgesindeki $K\beta_{1,3,5}$ -Piklerinin Spektral Analizleri, Yüksek Lisans Tezi, Atatürk Üniversitesi, Erzurum (yayınlanmamış).
- 31 - Eggert, F., 1990, X-Ray Spectrom., 19, 97-103.
- 32 - Fernandez, J. E. and Sumini, M., 1991, X-Ray Spectrom., 20, 315-319.
- 33 - Fernandez, J. E., 1992, X-Ray Spectrom., 21, 57-68.
- 34 - Fiorotti, M. P. and Piermattei, S. R., 1971, Nucl. Instrm. Meth., 96, 605-608.
- 35 - Gardner, R. P., Yacout, A. M., Zhang, J. and Verghese, K., 1986, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., A242, 399-405.
- 36 - Gui-Nian, D. and Turner, K. E., 1989, X-Ray Spectrom., 18, 57-62.
- 37 - Gunicheva, T. N., Afonin, V. P. and Finkelshtein. A. L., 1992, X-Ray Spectrometry, 21, 253-258.
- 38 - Hansen, J. S., McGeorge, J. C., Nix, D., Schmidt-Ott, W. D., Unus, I. and Fink, R. W., 1973, Nucl. Instrm. Meth. 106, 365-379.
- 39 - He, T., Zhang, T., Shang, R. and Xu, S., 1988, Nucl. Instrm. Methods Phys.

- Res., A272, 847-854.
- 40 - He, T., Gardner, R. P. and Verghese, K., 1990, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., A299, 354-366.
- 41 - Helmer, R. G. and Lee, M. A., 1980, Nucl. Instrm. Meth., 178, 499-512.
- 42 - Huang, T. C., 1979, IBM J. Res. Develop. 23, 2, 206-213.
- 43 - Janssens, K., 1989, Automated Data Handling in X-Ray Analysis, Ph.D Thesis of University of Antwerp, Belgium (unpublished).
- 44 - Jenkins, R., Gould, R. W. and Gedcke, D., 1981, Quantitative X-Ray Spectrometry, Marcel Dekker, New York, 132-135, 170.
- 45 - Jenkins, R., 1988, X-Ray Fluorescence Spectrometry, Wiley-Interscience, New York, 628.
- 46 - Keyser, R. M., 1990, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., A286, 403-408.
- 47 - Keith, H. D. and Lommis, T. C., 1978, X-Ray Spectrom., 7, 225.
- 48 - Kis-Varga, M. and Vegh, J., 1993, X-Ray Spectrom., 22, 166-171.
- 49 - Langenberg, A. and Watson, R. L., 1981, Phys. Rev. A23, 1177-1187.
- 50 - Lepy, M. C. and Morel, J., 1990, Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants, Rapport Interne, 99.
- 51 - Lederer, C. M., Hollander, J. M. and Perlman, I., 1967, Table of Isotops, J. Wiley, New York. 561.
- 52 - Malm, H. L., Watt, M. M., Bostock, I., Campbell, J. L., Jagam, P. and Simpson, J. J., 1984, Nucl. Instrm. Meth., 223, 420-425.
- 53 - Markowicz, A. and Van Grieken, R. E., 1988, Anal. Chem. 60, 28R-40R.
- 54 - Markowicz, A. and Van Grieken, R. E., 1990, Anal. Chem. 62, 28R-40R.
- 55 - Markowicz, A., Haselberger, N., El Hassan, H. S. and Sewando, M. S. A., 1992, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 158, 2, 409-415.
- 56 - Maskil, N. and Deutsch, M., 1988, Phys. Rev. A38, 3467-3472.
- 57 - Mikkola, E., Keski-Rahkonen, O., Latinen, J. and Reinkainen, K., 1983, Phys. Scr., 28, 188.
- 58 - Mukoyama, T., 1981, Nucl. Instrm. Meth., 180, 553-556.
- 59 - Nigam, A. N. and Soni, S. N., 1985, Physica 132C, 407.
- 60 - Nigam, A. N. and Arora, S., 1986, Physica 141C, 115.
- 61 - Ortec, Application Note, Ortec Inc., 1984.
- 62 - Parrat, L. G., 1936, Phys. Rev., 50, 1.
- 63 - Paulus, T. J. and Keyser, R. M., 1990, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res.,

A286, 364-368.

- 64 - Pratt, T. A. E. C., 1972, Nucl. Instrm. Meth., 99, 205-216.
- 65 - Ramesh Babu, G., Gopalakrishna, V., Raju, M. L. N., Parthasaradhi, K.,
Radha Krishna Murty, V., Murti, M. V. R., Rao, K. S., 1987, Phys.
Rev. A36, 386-389.
- 66 - Reed, S. J. B. and Ware, N. G., 1972, J. Phys. E: Sci. Instrum., 582.
- 67 - Richard, P., Hodge, W. and Fred Moore, C., 1972, Phys. Rev. Letters, 29, 7,
393-395.
- 68 - Richard, P. R., Olsen, D. K., Kauffman, R. and Fred Moore, C., 1973, Phys.
Rev. A7, 4, 1437-1438.
- 69 - Rhodes, J. R. and Hunter, C. B., 1972, X-Ray Spectrom., 113, 126-133.
- 70 - Salem, S. I., 1979, Phys. Rev. A21, 853-860.
- 71 - Sartori, R. and Fernandez, J. E., 1992, X-Ray Spectrom., 21, 299-302.
- 72 - Sawada, M., Tsutsumi, K., Shiraiwa, T., Ishimura, T. and Obashi, M., 1959,
Ann. Rep. Sci. Works, Osaka Univ. 7,1.
- 73 - Schulte, et al., 1980, Nucl. Instrm. Meth., 174, 549-553.
- 74 - Scofield, J. H., 1969, Phys. Rev., 179, 9.
- 75 - Scofield, J. H., 1974, Phys. Rev. A9, 1041.
- 76 - Scofield, J. H., 1974, Phys. Rev. A10, 1507.
- 77 - Scofield, J. H., 1975, Phys. Rev. A12, 345.
- 78 - Shima, K. Nagai, S., Mikumo, T. and Yasumi, S., 1983, Nucl. Instrm. Meth.,
217, 515-519.
- 79 - Short, M. A., 1991, Advances in X-Ray Analysis, 34, 319-324.
- 80 - Siebert, H. and Jaissen, H., 1990, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., A286,
415-420.
- 81 - Singh, S., Metha, D., Kumar, S., Garg, M. L., Sing, N., Mangal, P. C. and
Trehan, P., N., 1989, X-Ray Spectrom., 18, 193-198.
- 82 - Storm, E. and Israel, H. I., 1970, Nuclear Data Tables A7, 565-681.
- 83 - Şahin, Y., Durak, R., Kurucu, Y. and Erzeneoğlu, S., 1990, Erc. Üniv. Fen
Bil. Der., 6, 1-2, 976-988.
- 84 - Tenney, F. H., 1984, Nucl. Instrm. Meth., 219, 165-172.
- 85 - Tertian, R. and Claisse, F., 1982, Principle of Quantitative X-Ray Fluores-
cence Analysis, Heyden-Son Ltd., London, 334-355.
- 86 - Urch, D. S., 1970, J. Phys. C: Solid St. Phys., 3, 1275-1291.

- 87 - Van Dyck, P., Török, S. and Van Grieken, R., 1986, X-Ray Spectrom., 15, 231-238.
- 88 - Van Espen, P, Nullens, H. and Adams, A., 1980, X-Ray Spectrom., 9, 3, 126-133.
- 89 - Watanabe, et al, 1986, Nucl. Instrm. Methods Phys. Res., B17, 81-85.
- 90 - Westmeier, W., 1981, Nucl. Instrm. Meth., 180, 205-210.
- 91 - Wielopolski, L. and Gardner, R. P., 1979, Nucl. Instrm. Meth., 165, 297-306.
- 92 - Wogman, N. A., 1981, IEEE Trans. on Nuclear Sci., 28, 275-281.
- 93 - Yoshizawa, Y.,Iwata, Y. and Inuma, Y.,1980, Nucl. Instrm. Meth., 174, 133-139.

