T.C.

TRAKYA ÜNİVERSİTESİ

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

NÖTRON AKTİVASYON YÖNTEMİ İLE MERİÇ HAVZASI ÖRNEKLERİNİN İNCELENMESİ

Canan DOĞAN

YÜKSEK LİSANS TEZİ

FİZİK ANABİLİM DALI

Tez Danışmanı: Yrd. Doç. Dr. Nimet ZAİM

EDİRNE-2015

T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü onayı

Prof. Dr. Mustafa ÖZCAN
Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürü

Bu tezin Yüksek Lisans tezi olarak gerekli şartları sağladığını onaylarım.

Prof. Dr. Serap DALGIÇ
Anabilim Dalı Başkanı

Bu tez tarafımızca okunmuş, kapsamı ve niteliği açısından Fizik Anabilim Dalında bir Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

Yrd. Doç. Dr. Nimet ZAİM
Tez Danışmanı

Bu tez, tarafımızca okunmuş, kapsam ve niteliği açısından Fizik Anabilim Dalında bir Yüksek Lisans tezi olarak oy birliği/çokluğu ile kabul edilmiştir.

Jüri Üyeleri (Ünvan, Ad, Soyad):	İmza
Doç. Dr. Fikret İŞIK	.....
Doç. Dr. Çiğdem BATIGÖÇ	.....
Yrd. Doç. Dr. Nimet ZAİM	.....

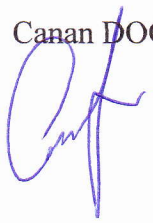
Tarih: 25/12/2014

T.Ü. FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
FİZİK YÜKSEK LİSANS PROGRAMI
DOĞRULUK BEYANI

İlgili tezin akademik ve etik kurallara uygun olarak yazıldığını ve kullanılan tüm literatür bilgilerinin kaynak gösterilerek ilgili tezde yer aldığını beyan ederim.

25/12/2014

Canan DOĞAN



Yüksek Lisans Tezi

Nötron Aktivasyon Yöntemi ile Meriç Havzası Örneklerinin İncelenmesi

T.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü

Fizik Anabilim Dalı

ÖZET

Nötron aktivasyon analizi (NAA), bir çok alanda eser elementlerin tespitinde en yararlı yöntemdir, bu alanlar; biyoloji, gıda, sağlık, jeoloji, katı hal fiziği ve kriminoloji vb.

Metodun temelini, örneğin aktive edilmesi ve aktive edilmiş örneğin gamma bozunumunun spektroskopisinin incelenmesi oluşturur.

Bu metot başlıca iki kısımdan oluşur; *i*) örneğin reaktörde epitermal nötronlarla aktive edilmesi, *ii*) gamma spektrumunun ölçülmesi ve değerlendirilmesi.

Gamma radyasyonunun ölçümünde referans örnek kullanılmadan ve referans örnek kullanılarak, olmak üzere başlıca iki metot kullanılmaktadır. Birincisi "birincil direk metot" ikincisi ise, bilinmeyen örnekle aynı özelliklere sahip standart örneğin ölçümlerinin oranlanmasına dayanan "birincil karşılaştırılmalı metot" (PRM) dur. Bu çalışmada PRM gerekli parametrik denklemler ile verilmektedir.

Bu metot, Meriç Havzası'ndan toplanan toprak örneklerinde ağır metal elementlerinin tespitinde uygulandı. Sonuçlar bölgede ziraat ve halk sağlığı açısından değerlendirildi.

Yıl **:** 2015

Sayfa Sayısı **:** 63

Anahtar Kelimeler **:** Nötron aktivasyon analizi, Gamma bozunumu, Gamma spektroskopisi

Master Thesis

Investigation of Maritza (Meriç) basin samples using Neutron Activation Analysis

Trakya University Institute of Natural Sciences

Physics Department

ABSTRACT

Neutron activation analysis (NAA) determining trace element is an useful method employed is many research field such as biology, nutritional and health related studies, geological, solid state physics and criminology.

Method based on activation of sample, and successively exploring its gamma decay spectrum.

The method mainly consist of two steps; i.e. *i*) the activation of sample with the epithermal neutrons in nuclear reactor, *ii*) recording and exploring its gamma spectrum.

Gamma radiation measurements can be carried out with and without reference sample. The first is called “primary direct method” and the second is called “primary ratio method” (PRM) that measured the ratio of unknown sample to a standard sample of the same quantity. In this study the PRM is together with the requirement is of parametric equations.

Adopted to investigate the concentration of heavy metals in Meriç (Maritza) basin. The results can be locally evaluated in agricultural and healthcare aims.

Year : 2015

Number of Pages : 63

Keywords : Neutron Activation Analysis, , Gamma Decay, Gamma Spectroscopy,

Önsöz

Geçen yüzyılın başında atom çekirdeğinin keşfi ile gelişen nötron aktivasyon analizinin tarihçesini kısa vermek gerekirse, aşağıdaki gibi bir özet yapılabilir.

Nötronun, 1932' de Chadwick tarafından keşfini, 1934' de, Ferederic ve Irene Curie'nin radyoaktivite üzerine çalışmaların bir sonucu olan, yapay radyoaktivitenin keşfi takip etti. Bu keşfin "nadir toprak elementlerinin" tayininde kullanımı, ilk Enrico Fermi ve George de Hevesy tarafından yapıldı.

Yapay radyoaktivitenin ilk adımında; Rn^{222} gibi alfa radyoaktif bir çekirdek tarafından yayınlanan alfa parçacığının (He^4), berilyum ile reaksiyonu sonucu, nötron yayınlanır; $He^4 + Be^9 \rightarrow C^{12} + n^1$. Elde edilen nötron, analiz edilecek örneğin aktivasyonunda (yapay radyoaktivitede) kullanılır. Bu yöntemin özellikle nadir toprak elementlerinin analizinde, 1936'ya kadar kullanılan kimyasal ve spektroskopik, X-ray, manyetik metotlardan, daha üstün olduğu görülmüştür [1].

1946'da Boyd aktivasyonda "zincirleme reaksiyonu" geliştirirken [2], aynı yıllarda Brown ve Goldberg, aktivasyon açısından daha verimli bir metot geliştirmiştir [3]. Yine 1946'da Kohman, radyoaktivite ölçümündeki hataların başlıca kaynaklarından olan; örnekteki yutulmalar ve ölçümde kullanılan geometri gibi faktörler üzerinde çalışmıştır [4].

1950 ve 1960 yıllarında, bu alandaki çalışmalar; radyoaktif bozunumun analizi bakımından, yayınlanan radyasyonun absorplanma karakteristikleri ve radyokimyasal ayrıştırmalar açısından incelemelerle sürmüştür. Gamma-ışını spekrometresi-ilk kullanılan sintilasyon dedektörleri- bu alandaki önemli gelişmelerdendir. Ancak kimyasal ayrıştırma o yıllarda hala gerekliydi. 1960'lı yılların başlarında, yarı-iletken dedektörlerin (semiconductor dedektor) kullanımıyla bu kimyasal işlemlere de gerek kalmamıştır. Kimyasal işlemlere gerek duyulmadan, radyoaktif bileşikten, istenilen radyonüklidin belirlenebilmesi bu yöntemin diğer analiz yöntemlerinin önüne çıkmasına neden olmuştur. Çeşitli uygun kanallar tarafından uyarılmalara (aktivasyonlara) ve hesaplara dayanan bu metot ilk olarak "Entrümental Aktivasyon Analizi" (INAA) olarak adlandırılmıştır.

Bu yöntem geliştirilirken karşılaşılan güçlüklerin başında gelen; nötron akısının konuma bağlı hesabı ve geometriye bağlı olarak sayım etkinliği üzerine birçok çalışmalar yapılmıştır [5-12].

Bu amaçla, NAA yönteminde kullanılan, referans (standart) örneklerinin hazırlanması için "National Bureau of Standards (NBS), şimdiki "National Institute of Standards and Technology (NIST) ve "International Atomic Energy Agency (IAEA) işbirliği yapmıştır [13,14]. Yine bu konunun yer aldığı başlıca konferanslardan biri, "International Conference in Modern Trends in Activation Analysis" ; 1968, 1970 ve 1990'a kadar, analizdeki hatalara üzerine yapılan çalışmalara geniş yer verilmiştir [15,16].

Bizim bu tezde kullanacağımız NAA yöntemi için örnek toplama, hazırlamada yardımlarını esirgemeyen Doç. Dr. Şaban Aktaş (TU) ve yüksek lisans öğrencisi Hakan Atlas'a ve analizin diğer safhalarında önemli katkılarından dolayı Yük. Kimyager Zeyneb Camtakan'a teşekkür ederim.

Bu tez, Trakya Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi (TÜBAP-2012/183) tarafından desteklenmiştir.

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖZET……...……...i

SUMMARAY…..……....ii

ÖNSÖZ……..…….....iii

İÇİNDEKİLER…….....v

SEMBOLLER…….vii

KISALTMALAR…….ix

TABLOLARIN LİSTESİ…….x

ŞEKİLLERİN LİSTESİ……..xii

1 GİRİŞ ve AMAÇ…….1

2 AKTİVASYON ANALİZİNİN TEMELLERİ……2

2.1 Aktivasyon…….2

2.2 Bozunum……4

2.3 Ölçme…….4

2.4 NAA Uygulaması……..9

2.5 Analiz Denklemleri……..10

2.6 Bozunum ve Ölçüm…….15

2.7 Ölçüm……...17

2.8 Kalibrasyon……..17

2.9 Analitik Özellikler……...20

2.10 NAA'nın Uygulanması……22

3 DENEYSEL ÇALIŞMA……..25

3.1 Çok Kanallı Analizör(MCA)……...……....25

3.2 MCA için Kalibrasyon……...26
3.3 Örnek Toplama……..27
3.4 Örneklerin Hazırlanması……33
3.5 Örneklerin Aktiflenme İşlemi……....34
3.6 Sayım İşlemi ve Analiz……..35
4 SONUÇLAR VE TARTIŞMA……....38
4.1 Sonuçlar……38
4.2 Sonuçların Değerlendirilmesi…….……...51
KAYNAKLAR……61

SEMBOLLER

a Sabit

b Sabit

B γ-ışınım pikinin "background"tudur

C Kanal sayısı

C E_γ enerjisinin γ-ışınım pikindeki net sayım

D Sayım limiti

D Bozunum hızı

ε_i Etkileşme verimliliği

ε Dedektörün tam fotopik enerji verimliliği; yayınlanan belli enerjili fotonun dedekte edilme; spektrumdaki E_γ enerjili fotopike katkıda bulunma olasılığıdır

G_f Geometrik faktör

λ Bozunum sabiti

Ω Katı açı

p_t Toplam pik oranı

σ(v) Hızı v olan nötronlar için tesir kesiti

n*(* v *)*dv Belirli bir zaman aralığında, hızı v ile v+dv arasında olan nötronların yoğunluğudur

N_0 Hedefteki çekirdek sayısı

N Radyoaktif çekirdek sayısı

λ Bozunum sabiti

$t_{1/2}$ Radyoaktif çekirdeğin yarı ömrü

ϕ_{th} Termal nötron akısı

σ_0 Termal nötron aktivasyon tesir kesiti

v_0 Olası nötron hızı,

I_0 Sonsuz seyreltik rezonans integrali

ϕ_{epi} Birim enerji aralığındaki epitermal nötron akısı,

ϕ_{eff} *Etkin (effective)* tesir kesiti

t_d Bozunum veya bekleme süresi; aktivasyon işleminin bitiminden sayma, işlemi başlayıncaya kadar geçen süre

t_m Ölçüm süresi

M_X Aktive edilmiş elementin kütlesi

M_a Atomik kütle

N_A Avagadro sayısı

Γ Gamma-ışınımı bolluğu;çekirdeğin E_γ enerjili foton yayınlayarak bozunma olasılığı

R Reaksiyon hızı

R_θ Bilinmeyen örnek ve calibratör için izotopik bolluk oranı

R_ϕ Bilinmeyen örnek ve calibratör için nötron akı oranı

R_σ Eğer nötron spekrum şekli bilinenden farklı ise effektive tesir kesiti oranı

R_ε Bilinmeyen örnek ve calibratör için sayma verimliliği oranı

v Nötron hızı

KISALTMALAR

FWHM	Full width at half maxsimum
NAA	Nötron aktivasyon analizi
MCA	Multi channel analyzer

TABLOLARIN LİSTESİ

Tablo 2.1 NAA yönteminde deney koşullarının tipik aralıklarına ait örnekler(5-500 mg). Nötron akı yoğunluğu $10^{16} - 10^{18} m^{-2} s$……. ……..9

Tablo2.2 Bitki ve toprak elementleri için sayım limiti ($mgkg^{-1}$)..……..22

Tablo 3.1 Bosnaköy'e ait örneklerin coğrafi koordinatları ve kodları.……29

Tablo 3.1.a Pazarkule'ye ait örneklerin coğrafi koordinatları ve kodları.....30

Tablo 3.1.b Söğütlük'ye ait örneklerin coğrafi koordinatları ve kodları.…….……31

Tablo 4.1 Bosnaköy'de su baskınlarından büyük ölçüde etkilenen bölgeye ait element miktarları (ppm)……...……....39

Tablo 4.1.a Bosnaköy'de su baskınlarından az ölçüde etkilenen bölgeye ait element miktarları (ppm)……..40

Tablo 4.1.b Bosnaköy'de su baskınlarından etkilenmeyen bölgeye ait element miktarları (ppm)…….……...41

Tablo 4.1.c Pazarkule'de su baskınlarından etkilenen bölgeye ait element miktarları (ppm)…….……...42

Tablo 4.1.d Pazarkule'de su baskınlarından etkilenmeyen bölgeye ait element miktarları (ppm)…….……...43

Tablo 4.1.e Söğütlük için element miktarları (ppm)…….……..44

Tablo 4.1.f Bosnaköy'de üç ana istasyona ait ortalama element miktarları (ppm)..……...45

Tablo 4.1.g Pazarkule'de iki ana istasyona ait ortalama element miktarları (ppm)..……46

Tablo 4.1.h Söğütlü'ye ait ortalama element miktarları (ppm)…….……..47

Tablo 4.2 (B-1)- (B-6) örneklerinin literatür ile karşılaştırılması ($mgkg^{-1}$)…….....54

Tablo 4.2.a (B-7) ve (B-12) örneklerinin literatür ile karşılaştırılması ($mgkg^{-1}$)…….55

Tablo 4.2.b (B-13) ve (B-18) örneklerinin literatür ile karşılaştırılması ($mgkg^{-1}$)..…56

Tablo 4.2.c (P-19) ve (P-24) örneklerinin literatür ile karşılaştırılması ($mgkg^{-1}$)..……57

Tablo 4.2.d (P-25) ve (P-30) örneklerinin literatür ile karşılaştırılması ($mgkg^{-1}$)..……58

Tablo 4.2.e (S-31) ve (S-36) örneklerinin literatür ile karşılaştırılması ($mgkg^{-1}$).....59
Tablo 4.2.f NAA'nın doğruluk sınırlarının standartlar ile karşılaştırılması (ppm).....60

ŞEKİLLERİN LİSTESİ

Şekil 2.1 Co^{60}ın bozunum şeması…….3

Şekil 2.2 Bir kaynaktan yayınlanan radyasyonların enerji ölçümlerinde kullanılabilen elektronik düzeneğin şematik gösterimi ……...…5

Şekil 2.2.a Gamma-ışınımı ölçümünde meydana gelen olaylar……...6

Şekil 2.2.b Ge yarı-iletken dedektöründe Co^{60}ın gamma-ışınımı spektrumunda 1173 ve 1332 keV luk tam enerji fotopikleri, Compton süreci, yok olma pikleri, tek (S.E.) ve çift (D.E.) görülmektedir ……..8

Şekil 2.3 Nötron aktivasyonundan sonra çeşitli zaman aralıklarına ait gamma-ışını spektrumu…….……10

Şekil. 2.4 Nükleer bir reaktörde nötron akı yoğunluğunun şematik gösterimi……12

Şekil.2.4.a Co^{59}(n,γ)Co^{60} reaksiyonu için nötron tesir kesiti ile nötron enerjisi arasındaki bağıntı ……...…….12

Şekil 3.1 Kanal sayılarına karşılık sayım sayıları.……25

Şekil 3.1.a MCA için bir enerji spektrumu…….…..……..26

Şekil 3.2 Enerji kalibrasyonu grafiği…….…..27

Şekil 3.3 Toplanan örnekler…….28

Şekil 3.3.a Örneklerin toplandığı konumlar……32

Şekil 3.3.b Örneklerin toplandığı konumlar……32

Şekil 3.4 Örneklerin paketlenmesi……...33

Şekil 3.4.a Örnekleri reaktörde aktive edileceği tüp…….……..33

Şekil 3.5 Reaktörden bir görüntü……34

Şekil 3.6 HPGe dedektörü……..…….35

Şekil 3.6.a HPGe dedektörü……...…….35

Şekil 3.6.b Örnek 1'in gama spektrumu…….……...……..37

Şekil 4.1 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Cr miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir……...48

Şekil 4.1.a 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Mn miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir……...48

Şekil 4.1.b 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Co miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir……...49

Şekil 4.1.c 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Zn miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir……...49

Şekil 4.1.d 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere As miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir……..50

Şekil 4.1.e 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Cd miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir……..50

Şekil 4.1.f 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Ba miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir……..51

BÖLÜM 1

GİRİŞ ve AMAÇ

NAA metodu element tayininde kullanılan en son ve en güvenilir metotlardandır. Analiz edilecek örnek, nötronlarla reaktif bir ortamda; genelde nükleer santrallerde, bombardıman edilir. Bu reaksiyonlar sonucu, kararlı durumda bulunan örnek uyarılmış duruma geçer; yani radyoaktif bozunumu söz konusudur. Bundan sonraki safhada uyarılmış örneğin radyoaktif bozunumu esnasındaki ölçümler gelir. Bu ölçüm radyoaktif örneğin bozunum karakteristiklerine göre; hemen uyarılma anında veya bozunum sabitine; yani yarı ömrüne, bağlı olarak belirlenecek sürelerde yapılır.

Radyoaktif bozunumun başlıcaları, alfa, beta parçacıklarının atılması ve gamma ışınının yayınlanmasıdır. Bunların içinden en seçilebilir ve ölçülebilir olanı gamma ışınıdır ve kullandığımız yöntemde bu enerjinin ölçülmesi metodun önemli bir bölümünü oluşturur. Ölçüm aşamasında, elde edilen spektroskopinin yorumlanması; yani radyoaktif özelliklerine bağlı olarak, element tayini yapılır.

Bu çalışmada, literatürde özellikle son yıllara ait, verilere rastlamadığımız, Meriç Havzası'ndan aldığımız örnekler üzerinde çalıştık. Tezin öne çıkan ilk önemi ise, çalışılan bölgelerde, NAA yönteminin ilk olarak kullanılmasıdır. Meriç Havzası'nda, önemli bir yerleşim bölgesi olan Edirne ilinde, üç ana istasyon ve bunların birini üç, diğerini iki istasyona bölerek, örnekler topladık. Örnekleri ağır metaller açısından inceledik.

Sonuçların, bölgede tarımın önemli bir yer aldığını göz önüne alırsak, tarım ve insan sağlığı açısından yararlı olacağına inanıyoruz.

BÖLÜM 2

AKTİVASYON ANALİZİNİN TEMELLERİ

2.1. Aktivasyon

Aktivasyon, karalı çekirdeklerin reaktör ortamında nötronlarla bombardıman edilerek kararsız hale getirilmesi işlemidir. Bu işlem sonucunda çekirdek radyoaktif hale geçer. Reaktör ortamının özellikleri nicel analiz için önem taşır.

Aktivasyon süresince, her atom çekirdeği bir nötron yutar ve kütlenin arttığı bu reaksiyon süresince (yaklaşık 10^{-14} s) fazlalık enerji foton halinde ve/veya parçacık halinde yayınlanır. Uyarılmış çekirdeğin tekrar kararlı düzeye geçmesi α-bozunumu, β^- bozunumu, elektron yakalama, β^+-bozunumu ve bunları takip eden gamma yayınlanması ile iç dönüşüm olayıdır. Gamma yayınlanması ile yarışan bir olay olan iç dönüşüm; bir çekirdek enerjisinin doğrudan doğruya bir atom elektronuna aktararak bozunmasıdır, laboratuvarda bir serbest elektron gözlenir. Bu olay β bozunumundan çok farklıdır, çünkü Z ve N sayıları değişmez, atom uyarılmış durumda kalır. Gamma yayınlanması ile yarışan diğer bir olay, X-ışını yayınımıdır, genelde γ ve X-ışını birlikte yayınlanır.

Bir atom çekirdeğinin nötronla reaksiyonunda, hedef çekirdek olarak örneğin kobalt alınırsa,

$$Co^{59} + n^{1} \rightarrow Co^{60} + (ani)\gamma - radyasyon$$

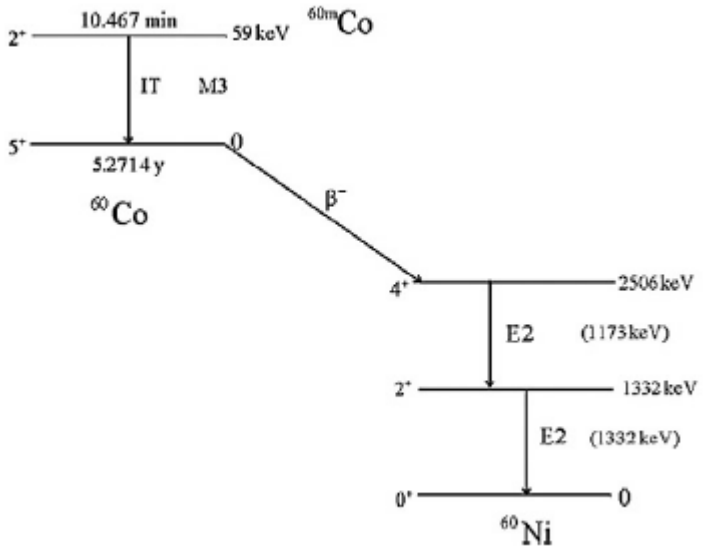
reaksiyonu gerçekleşir.

Radyoaktif Co^{60} çekirdeği, β^- bozunumu ile Ni^{60} çekirdeğinin uyarılmış bir düzeyine geçer, γ – radyasyonu ile uyarılmış haldeki çekirdek temel seviyeye geçişini tamamlar Şekil 2.1 [17]. Genelde bu reaksiyon kısaca

$$Co^{59}(n,\gamma)Co^{60}$$

şeklinde yazılır, buradaki γ ani gammalardır.

NAA yönteminde, (n,γ) yanında az da olsa, (n,p), (n,α), (n,n') ve $(n,2n)$ reaksiyonları ile karşılaşılır. Nötron yutma tesir kesiti, σ, olası reaksiyonun çeşidini, elementleri ve enerjiyi belirlemede önemli bir parametredir. U^{235} gibi, bazı fisil çekirdekler, nötron yutarak fisyon reaksiyonunu gerçekleştirirler, bu reaksiyon şeklinde gösterilir, sonuçta fisyon ürünleri ve hızlı (yüksek enerjili) nötronlar yayılır.



Şekil 2.1 Co^{60} ın bozunum şeması.

Nötron elde etme yolları da aşağıdakiler gibi sıralanabilir [18];

i. $Ra^{226}(Be)$, $Sb^{124}(Be)$, $Am^{241}(Be)$, Cf^{252} gibi izotopik nötron kaynaklarıyla farklı enerjilerde, maksimum 3-4 MeV enerjili nötronlar elde edilebilir.

ii. Parçacık hızlandırıcıları veya nötron üreticileridir, burada döteryum iyonları sırasıyla döteryum ve trityumla etkileşir: $H^2(H^2,n)He^3$ ve $H^3(H^2,n)He^4$. Birinci reaksiyon, (D,D) şeklinde de gösterilebilir, yayınlanan 2.5 MeV'lik monoenerjili nötronlar için bozunum sabiti sırasıyla 10^8-10^{10} s^{-1}; ikinci

reaksiyon (D,T) için ise monoenerjili nötronlar için değerler, 14.7 MeV ve 10^9-10^{11} s^{-1} dir.

iii. Nükleer araştırma reaktörlerinde elde edilen nötronların enerjileri reaktörün dizaynına ve diğer birçok aktivasyon elemanlarına bağlıdır. Örneğin hafif su moderatörlü reaktörde nötronların çoğunun enerjisi çok düşüktür.

NAA yönteminde aktive edilecek örneğin katı, sıvı veya gaz halinde olmasının bir önemi yoktur.

2.2. Bozunum

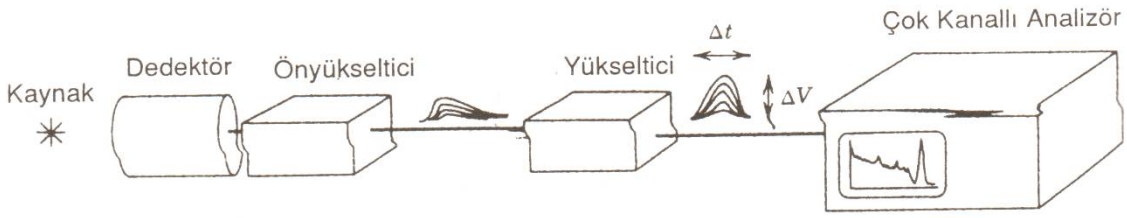
Aktive olmuş örneğin bozunumuyla oluşan ürünlerin kütlesi ilk kütleden azdır ve bozunum sürecinde, kararlı seviyeye ulaşıncaya kadar çeşitli türde radyasyon yayınlanır. Radyoaktif bozunum süreci rastgele (veya istatistiki) bir süreçtir; yani uyarılmış bir çekirdeğin belli bir zaman aralığında bozunma olasılığından söz edebiliriz. Bu süreç, ilk ürünün kimyasal kinetiğine bağlı olarak, fiziksel bir yasa ve denklemle verilir.

Bozunum şemaları, bozunuma ait birçok bilgileri içerir; enerji seviyeleri, yarı ömürler, geçişler, spinler, dallanma oranları, radyasyon çeşitleri, göreceli yoğunlukları, dönüşüm sabitleri [19]. Bozunum şemalarının dataları deneysel sonuçlara dayanır, Şekil 2.1. buna bir örnektir.

2.3. Ölçme

Radyoaktivite ölçümü, radyoaktif çekirdeğin bozunumu süresince, radyasyonun ölçümüyle gerçekleşir. Bu ölçümler; beta bozunumu ile sıkça bunu takip eden gamma bozunumudur. NAA yöntemiyle sadece, yüksek geçiş yeteneğine sahip, fotonların kesikli enerji seviyelerine sahip olmalarından dolayı, gamma- radyasyonunu ölçülebilir. Beta radyasyonun önemli farkı sürekli oluşudur. Gamma ve X-radyasyonunun madde ile etkileşmesi sonucu, iyonizasyon sürecinde elektrik sinyalleri (akımı) oluşur ve bunlar tespit edilip, kaydedilir. Böylece radyasyon dedektörü, radyasyon enerjisini

absorplayıp ölçülebilen şekle çevirecek bir materyal ve bu son ürünü ölçebilecek sistemden oluşur, Şekil 2.2. [20].



Şekil 2.2 Bir kaynaktan yayınlanan radyasyonların enerji ölçümlerinde kullanılabilen elektronik düzeneğin şematik gösterimi. Ön yükseltici ve yükseltici arasındaki pulslar genellikle kısa yükselme zamanına (ns) ve uzun bozunma zamanına (ms) sahiptir. Genlikleri milivolt kadardır. Δt (μs) genişlik ve ΔV (birkaç volt) yüksekliğindeki pulslar daha simetriktir. Çok kanallı analizör ekranı, ΔV'yı yatay eksende gösterir.

İyonizasyon dedektörlerinde (gaz ve yarı iletkenli gibi) iyon ve elektronlar elektrik alan yardımıyla yutucu ortam üzerinde toplanır ve bu serbest yükler elektrotlara taşınır. İyon çiftlerinin madde ile etkileşmesinde, yasak enerji aralığını geçişine bağlı olarak, enerji tespit edilir. Sintilasyon dedektörlerinde ölçümler daha hassas yapılır. Her iki detektörden de elde edilen, akım (pulse) darbesidir. Yani iyonizasyon enerjisi akım darbesine dönüştürülür, akım darbesinin de bir şekli elde edilir.

Bu şekil fotonun dedektör materyeliyle etkileşmesine bağlıdır, Şekil. 2.2.a. [20] da etkileşmelerin bazıları gösterilmektedir. Bu etkileşmeler; foto elektrik olay, Compton saçılması ve çift oluşumudur. Fotoelektrik etkide fotonun tüm enerjisi E_γ, atomun elektronuna aktarılır. Fotoelektron $E_\gamma - E_b$ kadar enerji kazanacaktır. Elektron kabuğundaki boşluk dolarken, X-ışını veya Auger elektronu şeklinde, E_b enerjisi açığa çıkar. Düşük enerjili Auger elektronu tarafından taşınan enerji, tamamen yutucuya aktarılır. Burada depolanan enerjinin toplamı $E_\gamma - E_b + E_b = E_\gamma$ dır ve gamma-ışınımı spektrumunda, fotopik olarak adlandırılır.

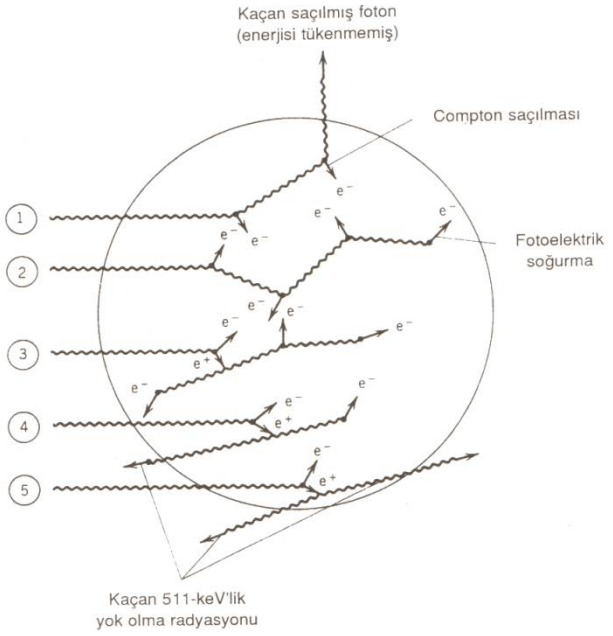
Compton saçılması ikinci etkileşmedir, burada saçılan gamma ışını daha az enerjiye sahiptir, kalan enerji yine bir fotopike neden olur. Enerjisi 1022 keV'un altında olan fotonlar atomun çekirdeğinin elektrik alanıyla etkileşebilirler. Bu etkileşme sonucunda foton, elektron ve pozitrona dönüşür, bu olaya çift oluşumu denir. 1022 keV üzerindeki enerji 2 elektronun kinetik enerjisi olarak saklanır. Başlangıçta bu enerji yutucu tarafından absorplanır. Pozitron kinetik enerjisini kaybedince, elektronla birleşir ve yok olur (annihilation); her birinin enerjisi 511 keV olan, iki foton yok olur.

Bu fotonların enerjilerinin bir kısmı veya tamamı yutucuda toplanır, diğer kısmı kaçar. Bu nedenle, çift oluşumunun sonucu absorplanan enerji [18]:

i) yok olma fotonlarından biri detektörü terk ederse: $(E_\gamma - 511)$ keV

ii) yok olma fotonlarının her ikisi de dedektörü terk ederse: $(E_\gamma - 1022)$ keV

iii) yok olma fotonlarından ikisi yutulursa: (E_γ) keV, kadardır.



Şekil 2.2.a Gamma-ışınımı ölçümünde meydana gelen olaylar. (1) Foton birkaç kez Compton saçılması yapar ve enerjisinin tamamını kaybetmeden önce dedektörü terk eder. (2) Pek çok Compton saçılmasından sonra fotoelektrik soğurma yapar ve enerjisinin tamamını kaybeder. (3)

Çift oluşumu, pozitron yok olması, Compton saçılması ve fotoelektrik soğurma takip eder ve yine enerjinin tamamı aktarılır. (4) Yok olma fotonlarından biri dedektörü terk eder ve γ-ışınları511 keV'lik enerjisinin tamamını terk eder. (5) Yok olma fotonlarının her ikisi de dedektörü terk ederken 1022 keV'lik enerjiyi dedektör materyeline aktarır. (4) ve (5) deki işlemler sadece γ-ışını enerjisinin 1022 keV'den fazla olduğu durumlarda meydana gelir.

Gamma spektrumunda, yok olma fotonlarının kaçışı sonucu oluşan pikler, sırasıyla tek ve çift kaçış pikleri olarak adlandırılır. Şekil.2.2.b. de [18], Ge yarı iletken dedektöründe, Co^{60} ın gamma spektrumunda, fotoelektrik yutma sonucu oluşan fotopik, Compton süreci sonucu kristalde depolanan enerji ve çift oluşumundan sonra oluşan tek ve çift pikleri görülmektedir. Üç etkileşme, fotonun enerjisine bağlı olduğundan, ölçüme ilişkin verimlilikte enerjiye bağlıdır. Ölçme verimliliği, kaynak tarafından yayınlanan radyasyon miktarı ile orantılıdır. Ölçme etkinliği (verimliliği) üç parametreye dayanır:

(i) Etkileşme verimliliği; ε_i, dedektörün duyarlı hacmine çarpan radyasyon oranı

(ii) Geometrik faktör; G_f, tüm yayılan radyasyondan, dedektör doğrultusunda yayınlananın oranı. Geometrik faktör katı açı ile orantılıdır, Ω: $G_f = \Omega / (4\pi)$.

(iii) Toplam pik oranı; p_t, belirlenen olaya ait oran, bu yayınlanan radyasyonun enerjisine uyan fotopik ile belirlenir.

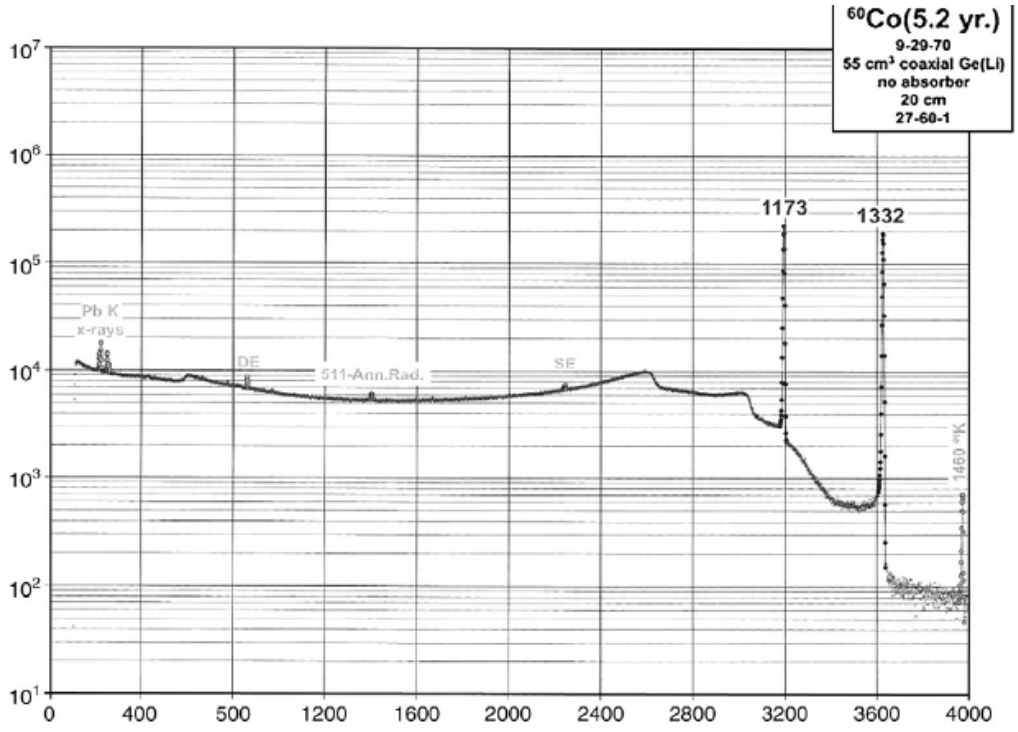
Ölçme verimliliği ayrıca kaynak ve dedektör arasındaki materyele bağlı olarak "zayıflama" katsayısına da bağlıdır.

Etkileşme verimliliği ve geometrik faktör toplam verimlilik olarak ε_γ: $\varepsilon_\gamma = \varepsilon_i G_f$ şeklinde ifade edilirken, toplam verimlilik ve toplam pik oranı, tam fotopik enerji verimliliği ε_p: $\varepsilon_p = \varepsilon_\gamma p_t$ şeklinde ifade edilir.

Gamma ışını dedektörünün enerji çözünürlülüğü, dedektörde depolanan enerjinin bir fonksiyonudur. Dedektördeki iyonizasyon ve uyarılma sayılarındaki dalgalanmalar spektrumda piklere neden olur, bunlar sonlu genişlikte ve Gaussian dağılımı şeklindedirler. Söz konusu yükler için ilk Poission istatistiği uygulanabilir.

Spektrumdaki çözünürlük detektördeki kristalin boyutuna, cinsine ve hatta sıcaklığına bağlı iken, pik genişliği radyasyon türüne bağlıdır.

Spektrum analizi piklerin yerlerini belirlemekle başlar. İkinci adımda piklerin, kesin yerlerini ve net alanlarını belirlemek amacıyla uyarlamalar yapılır.



Şekil 2.2.b Ge yarı-iletken dedektöründe Co^{60} ın gamma-ışınımı spektrumunda 1173 ve 1332 keV luk tam enerji fotopikleri, Compton süreci, yok olma pikleri, tek (S.E.) ve çift (D.E.) görülmektedir.

Konumlar- multi- kanallı yüksek darbe (puls) çözücüsünün hafızasındaki kanal sayısı olarak ifade edilen-yayınlanan radyasyon enerjisine çevrilebilir; bu radyoaktif çekirdeğin belirlenmesinin temelidir. Pik bölgesinin alanı, tam fotopik enerji verimliliği kullanılarak, radyo nüklidin radyoaktivitesinin miktarını hesaplamak için kullanılabilir. Nötron akı yoğunluğu ve tesir kesiti bilinirse elementlerin miktarı belirlenebilir. Pratik olarak pik alanından elementlerin kütleleri, bilinen örneğin aynı şekilde aktive edilmesi ile elde edilen radyoaktif ürünler ile karşılaştırılarak, bulunabilir. Eğer farklı enerjili fotonlar yayınlanıyorsa ve her radyonüklidin yarı ömrü belirli ise yayınlanan radyasyonun enerjisinin kombinasyonu, yoğunluğa bağlı olarak, NAA da nitel bilgilerin

temelini verir. Radyasyon miktarı, üretilen radyoaktif çekirdeğin sayısı ile doğrudan orantılıdır ve dolayısıyla reaksiyona giren kararlı izotop sayısı ile; bu bağlantı NAA yönteminde nicel bilgilerin edinilmesini sağlar.

Ölçülen radyonüklidin bozunan çekirdek sayısıdır. Belirli periyotlardaki sayım sayısı, bozunum sayısıdır bu kararlı çekirdek sayısı ile de orantılıdır. Bu sayı elementteki çekirdek sayısı ve dolayısıyla elementteki örneğin miktarı hakkında bilgi verir. NAA yöntemdeki başlıca adımlar aşağıdaki bölümlerde açıklanmaktadır.

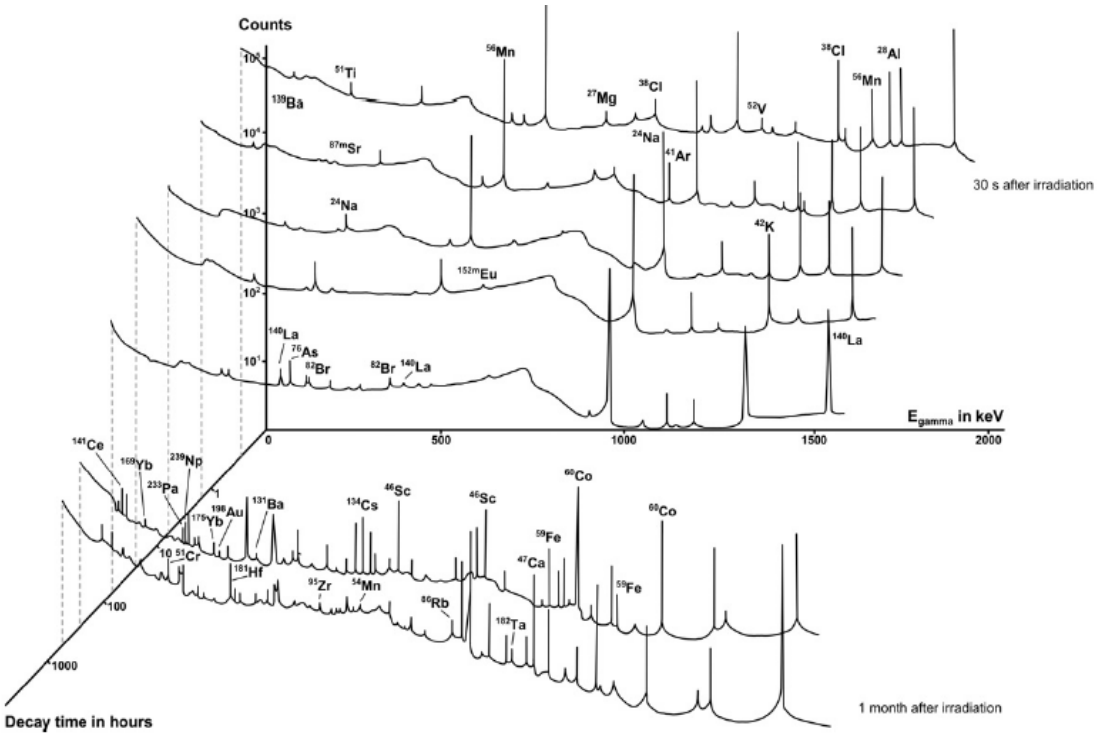
2.4. NAA Uygulaması

NAA yöntemi, bilinmeyen ve bilinen aynı miktardaki örneklerin aynı anda ve sürede aktive edilmesinden sonra, üretilen radyasyonun birlikte ölçülmesi esasına dayanır, başlıca adımlar aşağıdaki gibidir:

i. Örnek hazırlama, örneği kurutma, bu aşamada çözünme işlemine gerek duyulmamaktadır
ii. Kapsülleme işlemi
iii. Her iki örneğin aynı anda nötronlarla aktive edilmesi işlemi
iv. Herhangi bir kimyasal işlem yoktur, malzeme bozulmadan kalır
v. Aktivasyon işleminden sonra, bir veya daha fazla bozunma periyodu için geçen süre beklenerek, gamma spektroskopisi ile bilinmeyen ve bilinen örneklerin radyoaktiviteleri ölçülür. Şekil.2.3. ve Tablo 2.1 [18] bu işleme bir örnektir.
vi. Elementleri cinsleri ve miktarları üzerine yorumlamalar yapılır.

Tablo 2.1 NAA yönteminde deney koşullarının tipik aralıklarına ait örnekler (5-500 mg).Nötron akı yoğunluğu 10^{16}-$10^{18}$$m^{-2}s$

Aktivasyon	Bozunum	Ölçüm
5-30 s	5-600 s	15-300 s
1-8 saat	3-5 gün 20 gün	1-4 saat 1-16 saat



Şekil 2.3 Nötron aktivasyonundan sonra çeşitli zaman aralıklarına ait gamma-ışını spektrumu.

2.5. Analiz Denklemleri

Her nötron yakalayan çekirdek için reaksiyon hızı

$$R = \int_0^\infty n(v)v\sigma(v)dv \qquad (2.1)$$

ile verilir. Bu denklemde

v nötron hızı (m s^{-1})

$\sigma(v)$ hızı v olan nötronlar için tesir kesiti (m^2)[1]

$n(v)dv$ belirli bir zaman aralığında, hızı v ile v+dv arasında olan nötronların yoğunluğudur (m^3).

---

1. Tesir kesiti birimi barn (1 barn=$10^{-28}m^2$)

Radyoaktif çekirdeklerin üretimi; yani sayısının zamanla değişimi

$$\frac{dN}{dt} = RN_0 - \lambda N \tag{2.2}$$

ile verilir ve burada

N_0 hedefteki çekirdek sayısı

N radyoaktif çekirdek sayısı

λ bozunum sabiti (s^{-1}); $\lambda = ln\,2 / t_{1/2}$

$t_{1/2}$ radyoaktif çekirdeğin yarı ömrü (s)

dir.

Aktivasyon süresi; t_i sonunda, oluşan radyoaktif çekirdeklerin bozunum hızı

$$D(t_i) = N(t_i)\lambda = N_0 R(1 - e^{-\lambda t_i}), \tag{2.3}$$

ve

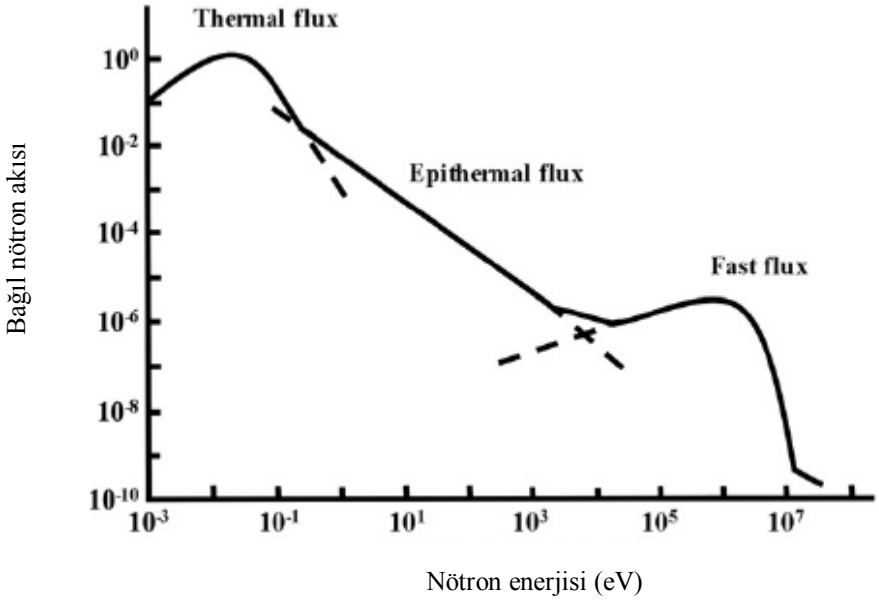
D bozunum hızı; (Bq)[1], t=0 anında N=0 ve N_0 sabit varsayılmak üzere,

ile verilir.

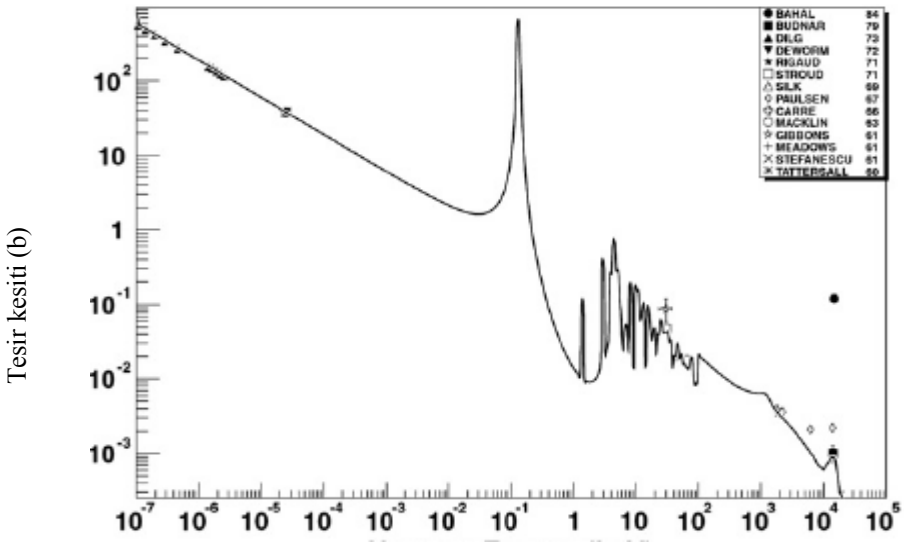
Tesir kesiti ve nötron akısı nötronların enerjilerine bağlıdır. Nötron kaynağı olan bir nükleer reaktörde Şekil 2.4. de gösterildiği gibi üç tip nötron üretilebilir. Şekil. 2.4.a. da da $Co^{59}(n,\gamma)Co^{60}$ örneği için tesir kesitinin, enerjiye göre değişimi verilmektedir [18].

---

1. Becquerel, aktiflik birimidir, saniyede bir bozunuma eşittir, ancak Curie aktiflik birimi olarak uzun yıllardan beri kullanıldığından, bazı yerlerde Curie'ye rastlanılmaktadır; 1 Curie, 1 saniyedeki $3.7x10^{10}$ bozunum sayısıdır.



Şekil. 2.4 Nükleer bir reaktörde nötron akı yoğunluğunun şematik gösterimi.



Şekil.2.4.a $Co^{59}(n,\gamma)Co^{60}$ reaksiyonu için nötron tesir kesiti ile nötron enerjisi arasındaki bağıntı.

Üç tip nötron şunlardır:

(*i*) U^{235} in fisyonundan açığa çıkan, ani fisyon veya hızlı nötronlar; hızları 100 keV ile 25 MeV arasında değişmekte, 2 MeV civarında olanlar çoğunluktadır.

(*ii*) Epitermal nötronlar; hızlı nötronların yavaşlatıcı ile çarpışarak yavaşlamasıyla oluşur, enerjileri 0.5 eV ile 100 keV arasındadır.

(*iii*) Termal nötronlar; yani reaktör ortamıyla termal dengede olanlar; 0.025 eV; 20 ^{0}C de hızları 2200 ms^{-1}dır.

Bir nükleer reaktörde termal nötron akısı 10^{16}-10^{18} $m^{-2}s^{-1}$arasında değerlere sahiptir. Şekil.2.4. de görüldüğü gibi termal nötron en büyük akı değerine sahiptir. (n,γ) ve (n,f) reaksiyonlarına ait tesir kesitleri için en yüksek; (0.1-100 b) değerlere, termal nötronlar sahiptir. Şekil.2.4.a. da nötron tesir kesitinin nötron enerjisine karşı 'rezonans piki' görülmektedir.

Tesir kesiti ve akı yoğunluğunun enerjiye bağımlılığı denklem (2.1) de dikkate alınırsa termal ve epitermal enerji bölgeleri E_n=0.55 eV için (cadmiyum kesme enerjisi) bölünebilir. Bu yaklaşım Hoghdahl yaklaşımı olarak bilinir [21], bu yaklaşıma göre reaksiyon hızı yeniden yazılır

$$R = \int_0^{v_{Cd}} n(v)v\sigma(v)dv + \int_{v_{Cd}}^{\infty} n(v)v\sigma(v)dv . \qquad (2.4)$$

Burada

$$n = \int_0^{v_{Cd}} n(v)dv \qquad (2.5)$$

termal nötron yoğunluğu olmak üzere, ilk terim

$$\int_0^{v_{Cd}} n(v)v\sigma(v)dv = v_0\sigma_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v)dv = nv_0\sigma_0 \qquad (2.6)$$

yazılır ve $\Phi_{th} = nv_0$ olarak tanımlanır

Φ_{th} termal nötron akısı, $m^{-2}s^{-1}$, 0.55 eV üzeri enerji için,

σ_0 termal nötron aktivasyon tesir kesiti, m^2, 0.025 eV için,

v_0 olası nötron hızı, 2200 ms^{-1}, 20 ^0C de.

İkinci terim ise nötron hızı yerine nötron enerjisi cinsinden ifade edilir, sonsuz seyreltik rezonans integrali (I_0) olarak adlandırılan bu integral *(infinite dilution resonance integral)*

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E_n)dE_n}{E_n} \tag{2.7}$$

şeklinde ifade edilir. İkinci terim ise bu integral cinsinden ve

Φ_{epi} birim enerji aralığındaki epitermal nötron akısı, 1 eV için

$$\int_{v_{Cd}}^{\infty} n(v)v\sigma(v)dv = \Phi_{epi}\int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E_n)dE_n}{E_n} = \Phi_{epi} I_0 \tag{2.8}$$

yazılır.

Bu eşitlikten epitermel nötron akısının enerji bağımlılığının $1/E_n$ şeklinde olduğu görülmektedir.

Ancak oran yeterli olmayıp, bir α parametresi ile düzeltme yapılır:

$$I_0(\alpha) = (1\ eV)^{\alpha}\int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma(E_n)dE_n}{E_n^{(1+\alpha)}}. \tag{2.9}$$

Bu yaklaşımla reaksiyon hızı aşağıdaki gibi ifade edilir

$$R = \Phi_{th}\sigma_0 + \Phi_{epi} I_0(\alpha). \tag{2.10}$$

Termal nötron ile epitermal nötron akı oranları; $f = \Phi_{th} / \Phi_{epi}$ ve rezonans integrali ile termal aktivasyon tesir kesiti, σ_0 oranı; $Q_0(\alpha) = I_0(\alpha) / \sigma_0$ ifadeleri ile etkin *(effective)* tesir kesiti

$$\sigma_{eff} = \sigma_0 (1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f}) \tag{2.11}$$

şeklinde tanımlanabilir.

(2.10) denklemi daha basit haliyle

$$R = \Phi_{th} \sigma_{eff} \tag{2.12}$$

halini alır.

2.6. Bozunum ve Ölçüm

Nükleer geçişlerde nükleer bozunum sayısı esas alınır. Aktive edilmiş çekirdek sayısı, ölçümün başlangıcında[3]

$$N(t_i, t_d) = \frac{RN_0}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \tag{2.13}$$

ve ölçüm süresince bozunan çekirdek sayısı

$$\Delta N(t_i, t_d, t_m) = \frac{RN_0}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_m})^3 \tag{2.14}$$

t_d bozunum veya bekleme süresi; aktivasyon işleminin bitiminden sayma, işlemi başlayıncaya kadar geçen süre

t_m ölçüm süresi

olmak suretiyle verilir.

Hedef çekirdeklerin sayısı N_0 yerine (N_A m/M) ve denklem (2.12) kullanılarak, ilgilenilen foton enerjisiyle ilgili olarak, spektrumdaki, pikteki sayımlar, aktivasyon formülü yardımıyla, yaklaşık olarak verilebilir:

$$C = \Delta N \gamma \varepsilon = \Phi_{th} \sigma_{eff} \frac{N_A \theta m_x}{M_a} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \frac{(1 - e^{-\lambda t_m})}{\lambda} \Gamma \varepsilon \ , \qquad (2.15)$$

C E_γ enerjisinin γ-ışınım pikindeki net sayım

N_A Avogadro sayısı, mol^{-1}

Θ hedef izotopun izotopik bolluğu

m_x aktive edilmiş elementin kütlesi, g

M_a atomik kütle, g mol^{-1}

Γ gamma-ışınımı bolluğu; çekirdeğin E_γ enerjili foton yayınlayarak bozunma olasılığı (bozunum^{-1})

ε dedektörün tam fotopik enerji verimliliği; yayınlanan belli enerjili fotonun dedekte edilme; spektrumdaki Eγ enerjili fotopike katkıda bulunma olasılığıdır.

Yayınlanan fotonların enerji aralığı birkaç 10 keV'dan MeV' e kadar ve yüksek geçiş yeteneğine sahip olmalarına rağmen, örneğin boyutlarına, yapısına ve foton enerjisine bağlı olarak yutulur veya saçılır. Bu etki gamma-ışınımı yavaşlama etkisi olarak adlandırılır.

---

3. Bu denklem basitlik amacıyla, radyoaktif çekirdeğin tek radyoaktif dönüşümü söz konusu olduğunda geçerlidir. Oysa, çekirdeğin birinci bozunumundan radyoaktif çekirdek oluşur ise, örneğin; $Ca^{46}(n,\gamma)Ca^{47}(\beta^-)Sc^{47}$ reaksiyonunda olduğu gibi, verilen denklem düzeltilmelidir.

Denklem (2.15) net pik sayısı cinsinden

$$m_x = C\frac{\lambda}{(1-e^{-\lambda t_i}).e^{-\lambda t_d}.(1-e^{-\lambda t_m}).\Phi_{th}.\sigma_{eff}.\Gamma.\varepsilon\ \theta.N_A}\frac{M_a}{} \qquad (2.16)$$

yazılabilir.

2.7. Ölçüm

Oluşturulan radyoaktivite veya diğer bir deyişle gamma ışını, dedektörde etkileşme ile iyonizasyona ve sonuç olarak elektrik akımına neden olur. Böylece akımın doğrudan doğruya bozunan radyoaktif çekirdek sayısı ile orantılı olduğunu söyleyebiliriz. Bozunan çekirdek sayısı da izotoptaki bozunmamış radyoaktif çekirdek sayısı ile orantılıdır. Bu sayı da elementteki toplam çekirdek sayısı ile orantılıdır ve dolayısı ile aktive edilmiş kütle hesaplanabilir.

2.8. Kalibrasyon

Kalibrasyon faktörü F, gamma spektrumundaki net pik bölgesi alanının, örnekteki element miktarına oranı olarak alınabilir.

$$F = \frac{C}{m} \qquad (2.17)$$

Orantıyı hesaplayabilmek için gerekli parametreler θ, N_A, M, σ_{eff}, Γ, λ literatürden alınır. Birçok (n,γ) reaksionları ve radyonüklidler için σ_{eff} ve θ değerleri kesin bir şekilde bilinememektedir. Her parametreden gelen belirsizlik veya hata sonuca toplanarak eklenir. Diğer parametreler m_x, ϕ, ϵ, t_i, t_d, t_m hesaplanarak veya ölçülerek belirlenir, belirsizlikleri de bulunur. Bu metot kesin kalibrasyon metodu olarak adlandırılır.

Relative kalibrasyon metotları da kullanılır; bunlar direk karşılaştırma metodu, tekli karşılaştırma metodu ve k_0-karşılaştırma metotlarıdır.

Direk karşılaştırma metodu

Analiz edilecek örnek aranılan elementleri içeren belirli miktardaki kalibratör ile birlikte aktive edilir. Kalibratör ve analiz edilecek örnek aynı şartlarda ölçülür. İstenilen elementin kütlesi iki ölçümden elde edilen net pik alanının karşılaştırılması ile hesaplanabilir:

$$m_{x(unk)} = m_{x(cal)} \frac{\left(\frac{C}{t_m . e^{-\lambda t_d} . (1 - e^{-\lambda t_m})} \right)_{unk}}{\left(\frac{C}{t_m . e^{-\lambda t_d} . (1 - e^{-\lambda t_m})} \right)_{cal}} \qquad (2.18)$$

$m_{x(unk)}$, $m_{x(cal)}$ bilinmeyen örnekteki ve kalibratördeki aranılan elementin kütlesi, g olarak.

Bu metot yüksek derecede doğruluk istendiğinde kullanılmalıdır.

Tekli karşılaştırma metodu

Deney süresince deney şartlarının değişmediği varsayılarak, bütün elementler için kalibratörler sırayla seçilen tek karşılaştırma elementi ile aktive edilirler. Her element için hassaslık aşağıda tanımlanan k_i katsayısı ile verilir [22].

$$k_i = \frac{(M_a)_{i,cal} \gamma_{comp} \varepsilon_{comp} \theta_{comp} \sigma_{eff,comp}}{M_{a,comp} \gamma_{i,cal} \varepsilon_{i,cal} \theta_{i,cal} (\sigma_{eff})_{i,cal}} \qquad (2.19)$$

Her i elementi için kütle, bunlar için k_i faktörlerinden hesaplanabilir,

$$m_{x(unk)} = m_{x(comp)} \frac{\left(\frac{C}{(1-e^{-\lambda t_i}).t_m.e^{-\lambda t_d}.(1-e^{-\lambda t_m})} \right)_{unk}}{\left(\frac{C}{(1-e^{-\lambda t_i}).t_m.e^{-\lambda t_d}.(1-e^{-\lambda t_m})} \right)_{comp}} .k_i \qquad (2.20)$$

$m_{x(comp)}$ karşılaştırmadaki x elementinin kütlesi, g olarak.

Bu metot direk karşılaştırma metodundan daha kesin sonuç verir. Fakat k-faktörü özel dedektörler için geçerlidir.

k_0-karşılaştırma metodu

Belçika, Ghent'de "Institute for Nuclear Sciences" da, spektrometre sonuçlarını nötron akısından bağımsız belirleme girişiminde bulunulmuştur. Bu amaçla, effective (etkin) tesir kesiti ($\sigma_0(1+\frac{Q_0(\alpha)}{f})$) ve ϵ verimliliği denklem (2.19) daki k-faktöründe ayrılmıştır, sonuç olarak k_0-faktörü [23]

$$k_0 = \frac{1}{k_i} \frac{1+\frac{Q_{0,comp}(\alpha)}{f}}{1+\frac{Q_{0,cal}(\alpha)}{f}} \frac{\varepsilon_{comp}}{\varepsilon_{cal}} = \frac{M_{comp}\theta_{cal}\sigma_{0,cal}\gamma_{cal}}{M_{cal}\theta_{comp}\sigma_{0,comp}\gamma_{comp}} \qquad (2.21)$$

ve kütle

$$m_{x(unk)} = m_{x(comp)} \frac{1+\frac{Q_{0,comp}(\alpha)}{f}}{1+\frac{Q_{0,unk}(\alpha)}{f}} \frac{\varepsilon_{comp}}{\varepsilon_{unk}} \frac{\left(\frac{C}{(1-e^{-\lambda t_i}).t_m.e^{-\lambda t_d}.(1-e^{-\lambda t_m})} \right)_{unk}}{\left(\frac{C}{(1-e^{-\lambda t_i}).t_m.e^{-\lambda t_d}.(1-e^{-\lambda t_m})} \right)_{comp}} \frac{1}{k_i} \qquad (2.22)$$

denklemleri ile verilmektedir.

Tüm bu denklemler termal enerji bölgesinde tesir kesitinin enerji ile ters orantılı değiştiği varsayılarak türetilmektedir. Bu metotta Au karşılaştırma elementi olarak önerilir.

Relative metotlar direk metotlara oranla daha az hata verirler.

Daha basitçe bu denklemler

$$A_0 = \frac{\lambda C e^{\lambda t_d}}{(1-e^{-\lambda t_m}).(1-e^{-\lambda t_i})} \tag{2.23}$$

$$m_{unk} = m_{cal} \frac{A_{0(unk)}}{A_{0(cal)}} R_\theta R_\phi R_\sigma R_\varepsilon \ , \tag{2.24}$$

R_θ bilinmeyen örnek ve calibratör için izotopik bolluk oranı

R_ϕ bilinmeyen örnek ve calibratör için nötron akı oranı

R_σ eğer nötron spekrum şekli bilinenden farklı ise effektive tesir kesiti oranı

R_ϵ bilinmeyen örnek ve calibratör için sayma verimliliği oranı (geometri ve zırhdan kaynaklanan farklılıklar)

tanımları yardımıyla verilir.

2.9. Analitik Özellikler

NAA yönteminde kimyasal bir işlem yapılmadığından, herhangi bir kirlilikten de kaçınılmış olunmaktadır. Yöntemin diğer bir avantajı, aktivasyon süresince bazı elementlerin buharlaşarak kaybının da söz konusu olmamasıdır; örneğin Hg ve Br. Yöntem süresince gerçekleşen olaylar; nükleer reaksiyon, bozunum ve radyasyonun yayınlanması, bazı istisnalar dışında, bu olaylar atom çekirdeğinin özelliğine bağlıdır. Bu nedenle, analiz süresince üretilen radyoaktivitenin ölçümü, kimyasal ve fiziksel

durumundan bağımsızdır, dolayısı ile örneğin organik veya anorganik oluşunun bir önemi yoktur.

Yarı-ömür ve gamma enerjisi radyonüklidin belirlenmesinde yeterli olmaktadır. Bir radyonüklidin farklı pik alanından nicel sonuçlar elde edilebildiği gibi, aynı elementin farklı radyonüklidlerinden de aynı sonuçlar elde edilir. Sonuç olarak aynı radyonüklidin, farklı bozunum aralıklarından sonra aynı sonuçlar elde edilir.

Aktivasyon süresince girişim meydana gelebilir. Örnek olarak, Al^{28}, $Al^{27}(n,\gamma)Al^{28}$, $Si^{28}(n,p)Al^{28}$ ve $P^{31}(n,\alpha)Al^{28}$ reaksiyonları sonucu girişim elde edilebilir. Bu tür girişimler belirlenip, ölçülüp, düzeltir. Benzer girişimlerle, ölçüm süresince de karşılaşılır, örneğin 320 keV'luk gamma-ışını, Ti^{51} ve Cr^{51} bozunumundan elde edilir. Burada tespit yarı-ömür yardımıyla yapılır; Ti^{51}: 5.8 dak.. Cr^{51}: 27.7 gün. Ayrıca bu radyonüklidlerden oluşanlar da analiz için gerekli bilgiyi sağlar; Ti^{51} 605keV ve 928 keV arasında gamma yayınlarken, bu Cr^{51} için söz konusu değildir.

Ölçüm için toplam kütle 10^{-6} ile 10^{-9} g olabilir. Aranılan radyonüklidin gamma spektrumundaki fotopiki bir sinyaldir. Compton sürecinde yüksek enerjili γ-ışınlarının etkileşmesinden, girişimlerden veya "overlapping" piklerden, sayımda "noise" diye adlandırılan sinyaller oluşur. Sayım limiti aktivasyona bağlıdır, yani bozunum ve sayım şartlarına. Sayım limiti genel olarak Currie formülü ile belirlenir [24]:

$$D_L = 2.71 + 4.65\sqrt{B} \qquad (2.25)$$

D_L sayım limiti, B γ-ışınım pikinin "background"tudur.

Sayım limiti aşağıdaki durumlara bağlıdır:

i. aktivasyon ve sayım işlemi için materyalin miktarına,
ii. nötron akısına,
iii. aktivasyon süresi,
iv. yabancı veya istenmeyen radyoaktivitenin belirlenmesi,
v. sayacın ölçülerine, geometrisine ve koruyucunun özelliklerine.

Tüm bu özellikler her her materyal ve analiz için farklıdır. Tablo. 2.2. [18] de çeşitli bitki ve toprak elementleri için örnekler verilmektedir.

Tablo2.2 Bitki ve toprak elementleri için sayım limiti (mg kg^{-1}). Deney koşulları: bitki: t_i=4 saat ($5x10^{16}$ $m^{-2}s^{-1}$), t_d=5 gün, t_m=0.5 gün coaxsial detektörde, takiben t_d=3 hafta, t_m=2 saat well-type dedektörde; örnek ölçümü=200 mg; toprak: t_i=1.5 saat ($5x10^{16}$ $m^{-2}s^{-1}$), t_d=5 gün, t_m=1 saat coaxsial detektörde; takiben t_d=3 hafta, t_m=1 saat well-type dedektörde; örnek ölçümü=200 mg.

	Plant	Soil		Plant	Soil
Na	2	10	K	200	1500
Ca	700	4000	Sc	0.001	0.02
Cr	1	1	Fe	8	100
Co	0.02	0.3	Ni	2	30
Zn	0.4	6	Ga	2	10
As	0.2	0.8	Se	0.1	1
Br	0.3	0.8	Rb	0.4	6
Sr	5	60	Zr	5	80
Mo	4	10	Ag	0.2	2
Cd	3	8	Sn	10	20
Sb	0.02	0.2	Te	0.3	3
Cs	0.02	0.3	Ba	10	40
La	0.1	0.3	Ce	0.2	1
Nd	0.7	8	Sm	0.01	0.03
Eu	0.006	0.05	Tb	0.008	0.1
Yb	0.03	0.2	Lu	0.004	0.02
Hf	0.01	0.1	Ta	0.01	0.2
W	0.3	1	Re	0.08	0.2
Os	0.1	0.6	Ir	0.0006	0.004
Au	0.003	0.01	Hg	0.05	0.4
Th	0.01	0.1	U	0.2	2

2.10. NAA' nın Uygulanması

NAA yöntemi diğer eser element analizleri gibi kesin sonuç veren bir yöntem değildir. Bu yöntemin seçilmesindeki en önemli neden kimyasal işleme gerek duyulmamasıdır.

Bu yöntem kullanılırken analiz edilecek elementin radyoaktif özellikleri; aktivasyon hızı, aktive edilen ürünün bozunum özellikleri; yarı ömrü, gamma ışınımı enerjisi vb. önemlidir. Örneğin Pb aktivasyonu sonucu, radyoaktivitesi ölçülecek

element miligram mertebesinde elde edildiğinden, bu yöntem için uygun bir element değildir.

B, Cd, Gd ve Dy gibi elementlerin ise termal nötron absorpsiyon özelliği yüksek olduğundan, bu elementleri yüksek oranda içeren örnekler, standarttan hemen fark edilecek nötron enerji dağılımları gösterirler. Diğer yandan çok yüksek nötron absorpsiyonu α-parçacığı gibi yüklü parçacıkların oluşumuna neden olması da istenmeyen bir durumdur. Bu istenmeyen sonuç B, Li ve U için söz konusudur, bu sonuç, aktivasyon süreleri boyunca aşırı ısı oluşumuna neden olur.

NAA yöntemine uygun örnekleri şöyle sıralayabiliriz:

* kimyasal bir işlemin uygulanması zor olan materyaller veya durumlar

*kirlilikten kaçınılmasının önemli olduğu durumlar

-ultra saf madde: Si yarıiletken materyalin kullanımı

-ultra küçük parçacık: havadaki parçacıklar ve kozmik tozlar

-biyolojik dokular ve akışkanlar (kan, serum ve üre)

*özel ve bütünlüğünün bozulmaması gereken örnekler

-adli analizler

-arkeolojik, kültürel ve sanatsal değeri olan objeler

*diğer yöntemler (XRF, LIBS, ICP) gibi, örneğin bütünlüğünü bozabileceğinden uygun değildir.

Bu avantajlara uygun örnekleri de şöyle sıralayabiliriz:

1. Arkeoloji-kehribar, kemik, seramik, madeni para, cam, mücevher, metal veya taş eserler, çanak-çömlek, kil

2. Biyomedikal-insan ve hayvan dokuları, kan, ilaç, bitki, diş, tırnak, safra taşı

3. Çevre bilimi-atmosferik parçalar, fosil yakıtlar, onların külleri, hayvanlar, yosunlar, likenler,

4. Adli-bomba enkazları, kurşun

5. Jeolojik-aspest, kömür, petrol, kozmik parçacıklar,

6. Endüstriyel ürünler-alaşımlar, katalizörler, seramik, gübre, fosiller, plastik,

7. Beslenme- yiyecek, bal, tohum, süt vs.

Yöntemi tanıtmayı tamamlarken bazı yönlerini de gözden geçirmek gerekir. İlk aşama olarak, bir nükleer araştırma reaktörüne ihtiyaç bulunmaktadır. NAA laboratuvarlarının bir kısmı reaktörün yanında yer almasına rağmen, küçümsenmeyecek sayıda laboratuvar, 100 km den uzakta bulunabilmektedir. Bu uzaklıklar radyonüklidin yarı ömrü göz önüne alınarak belirlenmelidir. Analiz için reaktör dizaynı; nötron akı yoğunluğu, nötron enerji dağılımı belirlemek, kapsül materyali seçimini doğru yapmak ve aktivasyon süresini belirlemek vb. önemlidir. Spektrum analizleri ve software yorumları International Atomic Energy Agency ile uyum içersinde olmalıdır. Görüldüğü gibi analiz için fiziksel ve kimyasal disiplinler birlikte kullanılmaktadır. Söz konusu analiz laboratuvarları yasal yaptırımlara uymak zorundadır. Çalışma süresince radyolojik halk sağlığı ekibine ihtiyaç duyulmaktadır.

BÖLÜM 3

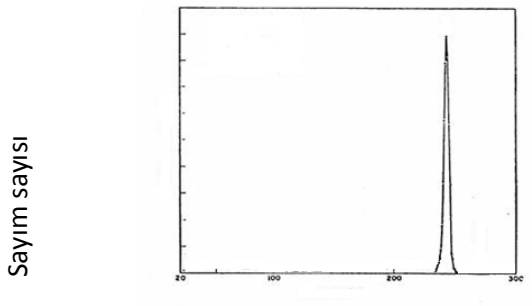
DENEYSEL ÇALIŞMA

Bölüm 2.3 de açıklanan gamma spektroskopisi için kısaca, gamma ışınının incelenen örnek ile etkileşmesinin analizine ait bir tekniktir ve elde edilen verilere topluca spektrum diyebiliriz. Spektrum, gamma enerjilerinin, çeşitli gamma yoğunluklarına karşı değişimini veren bir eğridir.

Spektrumun analizinden; nitel olarak örneğin cinsi tespit edilirken, nicel olarak miktarı da tespit edilir. Herhangi bir radyoaktif kaynaktan yayınlanan, gamma ışını kesikli ve karakteristiktir. Gamma ışınımının bu özelliği, bize radyoaktif kaynağın nitel ve nicel olarak belirlenmesini sağlar.

3.1. Çok Kanallı Analizör (MCA)

Radyoaktif örneğin enerji spektrumunu tespit etmek demek; kaynaktan yayılan parçacıkların darbelerini (sinyal veya vuruş) ölçmek ve kayıt etmek demektir. Bu işlem, üretilen iyonizasyon voltajı ve ona karşılık gelen enerjinin, MCA (multi channel analyzer) yardımıyla kayıt edilmesi ile gerçekleşir. MCA darbeleri yüksekliklerine göre sınıflandırır ve her yüksekliğe ait darbe sayısını belli adreslerde depolar; bu adreslere "kanallar" denir. Böylece MCA, yükselteçten gelen darbeleri boylarına ve sayılarına göre ayrıştırmış olur Şekil 3.1 [25].

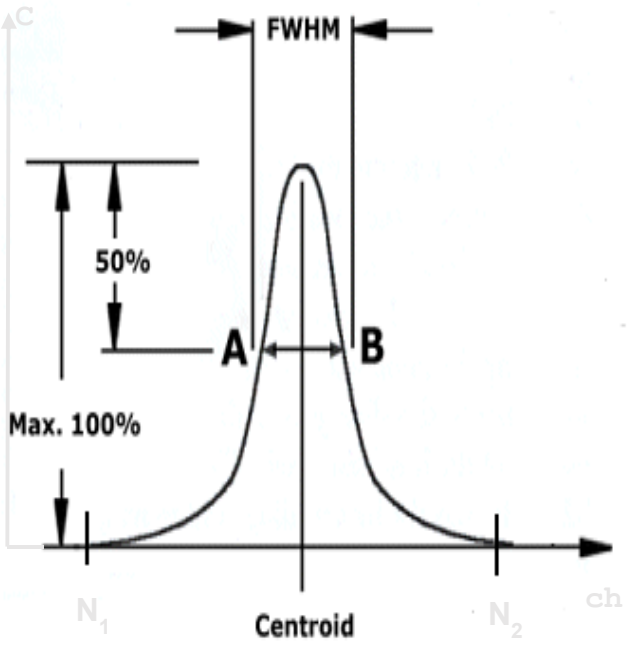


Şekil 3.1 Kanal sayılarına karşılık sayım sayıları.

Kanal sayısı aşağıdaki (3.1) denklemi ile bulunur.

$$\text{Kanal sayısı} = k\frac{\text{enerji aralığı}}{\Gamma} \qquad 3.1$$

Γ, Şekil 3.1.a da gösterilen, dedektörün full width at half maxsimum (FWHM) değeridir, [25]. k Pikin FWHM' nunda veya üzerindeki kanal sayısına eşittir.



Şekil 3.1.a MCA için bir eneji spektrumu

3.2 MCA için Kalibrasyon

Kalibrasyon için;

* İlgili enerji aralığını doğru tespit etmek gerekir.

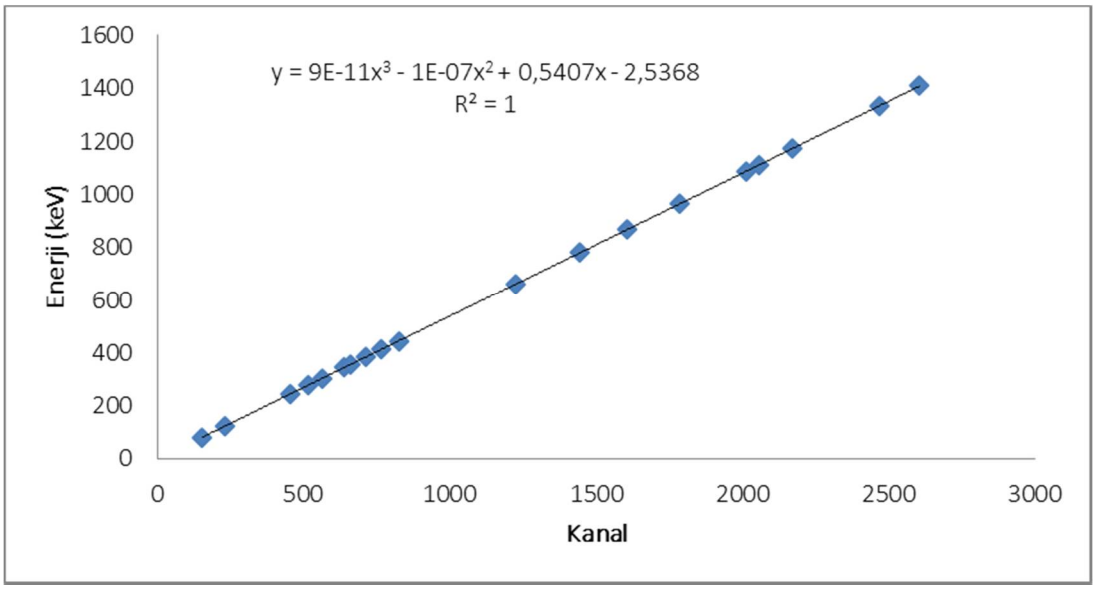
* Pikleri değerleri bilinen en az iki kaynak kullanılır.

* Enerji- kanal değerleri arasında

$$E = a + b * C \qquad 3.2$$

denklemi bulunur. a ve b katsayılar, C ise kanal sayısına eşittir.

Kalibrasyonda kullanılan kaynakların gamma enerji değerleri bilinmektedir (^{60}Co için 1173.2 keV, ^{133}Ba için 53.2 keV, ^{137}Cs için 604.7 keV, vb.), dedektörde bu enerji değerleri için maksimum sayım sayısına karşılık gelen kanal numaraları tespit edilir. Böylece kanal sayılarına karşılık, enerji değerleri ile bir grafik elde edilmiş olur, bunun şekli genellikle bir doğrudur. Kalibrasyon sayesinde incelenen örneklerin spektrumlarındaki piklerinin enerjileri doğru olarak belirlenir. Enerji kalibrasyonu grafiği Şekil 3.2'de görülmektedir.



Şekil 3.2 Enerji kalibrasyonu grafiği

3.3 Örnek Toplama

07.12.2012 Tarihinde, incelenecek havzada, seçilen istasyonlardan örnekler alınmıştır. Bosnaköy (kumlu toprak), Pazarkule (toprak) ve Söğütlük (organik özelliği olan humuslu toprak) olmak üzere, üç temel istasyon seçilmiştir. Selden etkilenen bölgeler ve tarım alanları göz önüne alınarak, Bosnaköy'de üç, Pazarkule' de iki alt istasyon seçilmiştir.

Örnek alma yöntemine uyularak, her istasyonda 2 m ara ile üç nokta tespit edilerek, örnekler alınmıştır. Yine her noktada toprağın ilk 20 cm ve ikinci 20 cm'den örnek almak suretiyle 36 adet örnek toplanmıştır Şekil 3.3.



Şekil 3.3 Toplanan örnekler.

Örneklere ait coğrafi koordinatlar ve kodlar, Bosnaköy için Tablo 3.1 de, Pazarkule için Tablo 3.1.a da ve Söğütlük için Tablo 3.1.b de yer almıştır.

Tablo 3.1 Bosnaköy'e ait örneklerin coğrafi koordinatları ve kodları.

istasyonlar		Örneklerin seviyeleri	Koordinatlar	Kodlar
Su baskınlarından azami ölçüde etkilenen bölge	1. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,585 N 026^0 34.772 E	**B-1**
		ikinci 20 cm	41^0 37,585 N 026^0 34.772 E	**B-2**
	2. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,585 N 026^0 34.772 E	**B-3**
		ikinci 20 cm	41^0 37,585 N 026^0 34.772 E	**B-4**
	3. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,585 N 026^0 34.772 E	**B-5**
		ikinci 20 cm	41^0 37,585 N 026^0 34.772 E	**B-6**
Su baskınlarından asgari ölçüde etkilenen bölge	1. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,420 N 026^0 34.730 E	**B-7**
		ikinci 20 cm	41^0 37,420 N 026^0 34.730 E	**B-8**
	2. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,420 N 026^0 34.730 E	**B-9**
		ikinci 20 cm	41^0 37,420 N 026^0 34.730 E	**B-10**
	3. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,420 N 026^0 34.730 E	**B-11**
		ikinci 20 cm	41^0 37,420 N 026^0 34.730 E	**B-12**
Su baskınlarından Etkilenmeyen bölge	1. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,368 N 026^0 34.719 E	**B-13**
		ikinci 20 cm	41^0 37,368 N 026^0 34.719 E	**B-14**
	2. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,368 N 026^0 34.719 E	**B-15**
		ikinci 20 cm	41^0 37,368 N 026^0 34.719 E	**B-16**
	3. nokta	İlk 20 cm	41^0 37,368 N 026^0 34.719 E	**B-17**
		ikinci 20 cm	41^0 37,368 N 026^0 34.719 E	**B-18**

Tablo 3.1.a Pazarkule'ye ait örneklerin coğrafi koordinatları ve kodları.

istasyonlar		Örneklerin seviyeleri	Koordinatlar	Kodlar
Su baskınlarından etkilenmeyen bölge	1. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,859 N 026^0 30.463 E	**P-1**
		ikinci 20 cm	41^0 39,859 N 026^0 30.463 E	**P-2**
	2. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,859 N 026^0 30.463 E	**P-3**
		ikinci 20 cm	41^0 39,859 N 026^0 30.463 E	**P-4**
	3. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,859 N 026^0 30.463 E	**P-5**
		ikinci 20 cm	41^0 39,859 N 026^0 30.463 E	**P-6**
Su baskınlarından asgari ölçüde etkilenen bölge	1. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,884 N 026^0 30.469 E	**P-7**
		ikinci 20 cm	41^0 39,884 N 026^0 30.469 E	**P-8**
	2. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,884 N 026^0 30.469 E	**P-9**
		ikinci 20 cm	41^0 39,884 N 026^0 30.469 E	**P-10**
	3. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,884 N 026^0 30.469 E	**P-11**
		ikinci 20 cm	41^0 39,884 N 026^0 30.469 E	**P-12**

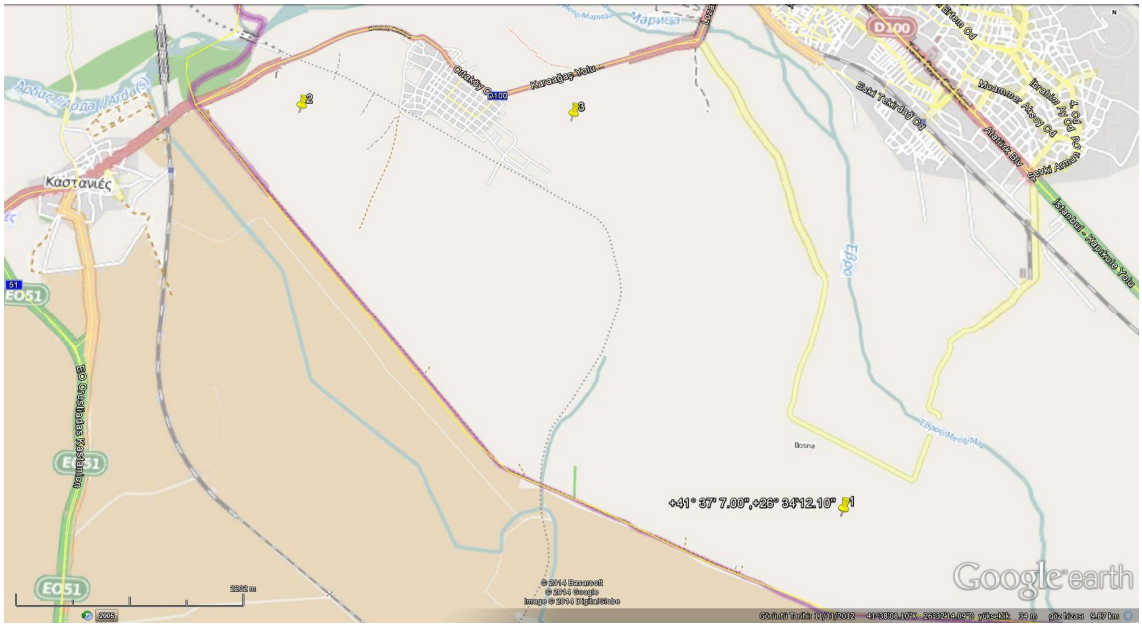
Tablo 3.1.b Söğütlük'ye ait örneklerin coğrafi koordinatları ve kodları.

istasyonlar		Örneklerin seviyeleri	Koordinatlar	Kodlar
Su baskınlarından etkilenmeyen bölge	1. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,834 N 026^0 32.548 E	**S-1**
		ikinci 20 cm	41^0 39,834 N 026^0 32.548 E	**S-2**
	2. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,834 N 026^0 32.548 E	**S-3**
		ikinci 20 cm	41^0 39,834 N 026^0 32.548 E	**S-4**
	3. nokta	İlk 20 cm	41^0 39,834 N 026^0 32.548 E	**S-5**
		ikinci 20 cm	41^0 39,834 N 026^0 32.548 E	**S-6**

Örneklerin toplandığı konumlar Şekil 3.3.a ve b'de gösterildiği gibidir.



Şekil 3.3.a



Şekil 3.3.b

3.4 Örneklerin Hazırlanması

Toplanan ve kodlanan örnekler ilk kurutma işleminden sonra 2 mm lik elek ile elenip, 100 ^{0}C de, 12 saat kurutulmuştur. Her örnekten yaklaşık 200 mg alınarak, özel ambalaj ile paketlenmiştir Şekil 3.4 ve aktive edileceği tüpe yerleştirilmiştir Şekil 3.4.a.



Şekil 3.4 Örneklerin paketlenmesi



Şekil 3.4.a Örnekleri reaktörde aktive edileceği tüp.

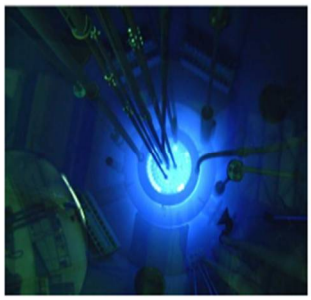
Ambalaj malzemesinin radyasyona ve yüksek sıcaklığa dayanıklı olması,

aktiflenecek elementten mümkün olduğu kadar az miktarda içermesine dikkat etmek gerekir.

3.5 Örneklerin Aktiflenme İşlemi

Örnekler sayılarından dolayı üçe bölünerek, 28.06.2013, 20.09.2013 ve 09.01.2014 tarihlerinde, İstanbul Teknik Üniversitesi, Enerji Enstitüsü, Nükleer Bilimler Anabilim Dalındaki, TRIGA-Mark II reaktöründe ışınlanmıştır, Şekil 3.5.

Aktivasyon işleminin gerçekleştirildiği TRIGA-Mark II reaktörü; hafif su soğutuculu, açık tank tipi bir reaktör olup, grafit yansıtıcılı ve zenginleştirilmiş Uranyum yakıtın Zirkonyum hidrit yavaşlatıcısıyla homojen bir şekilde karıştırılması sonucu oluşturulmuş, katı yakıt elemanları ile çalışmaktadır. Kararlı ve darbeli olarak tanımlanan iki farklı şekilde çalıştırılabilen reaktörde, kararlı çalışmada 250 kW' a, darbeli çalışma da ise çok kısa bir zaman aralığında 1200 MW güç seviyelerine çıkılmaktadır. Bizim çalışmamız kararlı çalışma ile yürütülmektedir. Projemiz kapsamındaki deneylerde örnekler merkezi ışınlama kanalında 6 saat 250 kW güçte ışınlanmıştır. Nötron akısı merkezi ışınlama kanalı için 1.2x10E12 (nötron sayısı/$cm^{-2}s^{-1}$) büyüklüğündedir.



Şekil 3.5 Reaktörden bir görüntü

3.6 Sayım işlemi ve Analiz

Reaktörde, nötron bombardımanı ile elde edilen radyoizotopların gamma spektrumlarının analizi için ”Reverse Electrode Coaxial Ge Dedektors (ReGe)” dedektörü kullanılmıştır. Bu dedektör 3 keV ile 10 MeV enerji aralığında %70’lik enerji kalibrasyonuna (Be için) sahiptir, Şekil 3.6 ve Şekil 3.6.a.



Şekil 3.6 HPGe dedektörü



Şekil 3.6.a HPGe dedektörü

Aktiflenen örneklerin gamma spektroskopilerinin analiz işlemine yaklaşık dört gün sonra başlanmış ve üç-dört gün ara ile en az dört sayım alınmıştır.

Analiz için "FitzPeak32" programı [26] ve analiz sonucu elde edilen datalardan; pik alanlarından, eser madde miktarının hesabı için, "Excel 2013" versiyonu ile yazdığımız program kullanılmıştır.

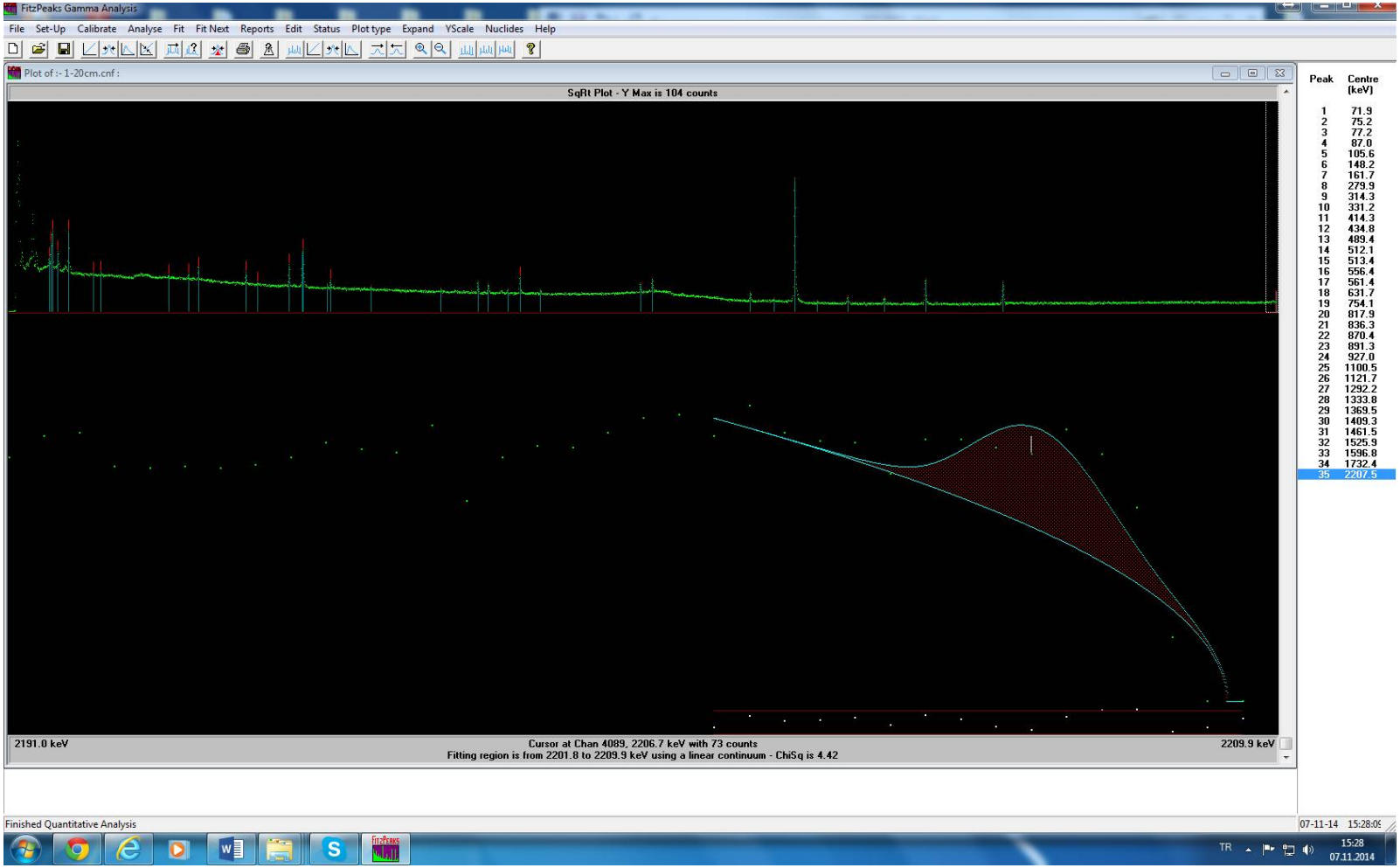
Bu çalışmada kullanılan karşılaştırma metodu için, *"Certificate of Certified Reference Material Soil"* [27] standartları ile çalışılmıştır. Standartlardan da örnekler kadar alınan miktarlar, örnekler ile birlikte reaktörde aynı sürede aktiflenmiştir.

Analiz sonucu tespit etmek istediğimiz ağır elmentlere ait

i) radyasyon çeşitleri
ii) gamma enerjisinin değeri
iii) gamma enerjisinin yayınlanma olasılığı
iv) radyonüklide ait yarı ömür, vb

bilgiler çeşitli kaynaklardan [28, 29, 30, 31] seçilerek, karşılaştırılma metodunda kullanılmıştır.

Örnek 1 e ait spektrum Şekil 3.6.b deki gibidir.



Şekil 3.6.b Örnek 1'in gama spektrumu

BÖLÜM 4

SONUÇLAR VE TARTIŞMA

4.1 Sonuçlar

Çalışmamızın ilk hedefi, bölümümüzde NAA yöntemi ile elementlerin saptanması çalışmalarını başlatmak, gama spektroskopisi ile ilgili bilgi ve deneyim kazanmaktır. Analizi yapılacak elementlerin yarı ömürleri, ışınlanma ve analiz süreleri dakika mertebesinden, yıllar mertebesine kadar farklılık göstermektedir. Biz gerek ışınlama gerekse analiz için ortalama bir süre seçtiğimizden, sonuçlar için belli bir kısıtlama getirmiş oluyoruz. Bu nedenle gözlenemeyen elementler için açıklamalar şöyle sıralanabilir: ürün çekirdeğin yarı ömrünün kısalığı, uzunluğu veya çıkardığı gammaların şiddetinin yetersizliği, reaksiyon tesir kesitinin küçük olması ve girişim olayları, vb.

Seçtiğimiz üç ana istasyona bağlı 36 noktanın 18 i toprağın yüzeyinden itibaren ilk 20 cm den alınan örneklerdir, bunların kodları; Bosnaköy için: B-1, B-3,…,B-17, Pazarkule için: P-19, P-21,…,P-29, Söğütlük için: S-31, S-33, S-35,…vb. Yüzeyden 20 cm derinlikten itibaren alınan örneklerin kodları ise; B-2, B-4,…, B-18, P-20, P-22,…, P-30, S-32, S-34, S-36, olarak verilmiştir.

Tablo 4.1'den, Tablo 4.1.e'ye kadar 36 nokta için, analiz ettiğimiz Cr, Mn, Co, Zn, As, Mo, Cd ve Ba ağır elementlerinin sonuçları yer almaktadır. Üç ana istasyona ait altı alt istasyon için 8 elementin ortalama değerleri ise, Tablo 4.1.f, Tablo 4.1.g ve Tablo 4.1.h'de ppm (µg/g) cinsinden verilmektedir. Bu değerlere ait grafikler de Şekil 4.1, 1.a, 1.b, 1.c, 1.d, 1.e, 1.f'de görüldüğü gibidir.

Tablo 4.1 Bosnaköy'de su baskınlarından büyük ölçüde etkilenen bölgeye ait element miktarları (ppm)

	Madde miktarları					
Elementler	**B-1**	**B-2**	**B-3**	**B-4**	**B-5**	**B-6**
$^{51}_{24}Cr$	46.6267	72.898	66.5077	70.2000	40.3306	88.2455
$^{54}_{25}Mn$	631.0549	621.2013	602.8173	677.16	440.6225	734.5103
$^{60}_{27}Co$	8.1333	11.3466	10.9113	11.3256	5.3604	9.9666
$^{65}_{30}Zn$	127.2839	DY	101.262	107.508	151.465	74.1939
$^{76}_{33}As$	8.3091	11.9175	11.8571	10.9867	4.7618	12.955
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	0.0548	0.0836	0.0668	0.0668	0.0428	DY
$^{131}_{56}Ba$	449.4543	646.24	626.6153	693.4735	272.2933	577.338

DY; Değer Yok: yukarıda açıklanan
nedenlerden dolayı element tayin edilmemiştir.

Tablo 4.1.a Bosnaköy'de su baskınlarından az ölçüde etkilenen bölgeye ait element miktarları (ppm)

	Madde miktarları					
Elementler	**B-7**	**B-8**	**B-9**	**B-10**	**B-11**	**B-12**
$^{51}_{24}Cr$	80.1353	79.7736	89.5969	77.0769	96.1258	69.6945
$^{54}_{25}Mn$	708.564	725.3735	724.6715	825.3673	690.1558	618.5173
$^{60}_{27}Co$	12.2871	14.0843	14.2947	16.1461	12.6819	11.9342
$^{65}_{30}Zn$	164.398	84.2105	143.434	163.022	134.269	93.637
$^{76}_{33}As$	6.4793	8.2666	8.8479	12.3943	7.1048	7.6546
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	0.0889	0.0231	0.0913	0.04331	0.0216	0.0829
$^{131}_{56}Ba$	653.03	886.1377	757.4357	578.4073	720.7817	680.8633

Tablo 4.1.b Bosnaköy'de su baskınlarından etkilenmeyen bölgeye ait element miktarları (ppm)

	Madde miktarları					
Elementler	**B-13**	**B-14**	**B-15**	**B-16**	**B-17**	**B-18**
$^{51}_{24}Cr$	70.8153	92.0776	79.9032	77.1976	75.3339	84.2981
$^{54}_{25}Mn$	565.805	725.6977	621.8373	496.5897	476.6315	669.613
$^{60}_{27}Co$	8.8356	9.3849	7.7568	9.7531	5.6469	11.6106
$^{65}_{30}Zn$	66.6336	123.934	80.7204	99.2461	57.9097	79.8078
$^{76}_{33}As$	10.4931	20.149	11.4147	21.2463	10.5317	13.3369
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{131}_{56}Ba$	736.079	760.269	625.094	765.499	773.266	770.962

Tablo 4.1.c Pazarkule'de su baskınlarından etkilenen bölgeye ait element miktarları (ppm)

	Madde miktarları					
Elementler	**P-19**	**P-20**	**P-21**	**P-22**	**P-23**	**P-24**
$^{51}_{24}Cr$	78.1731	59.1376	58.4373	81.8862	128.2145	83.4562
$^{54}_{25}Mn$	820.5867	587.3173	693.5	710.65	415.363	625.8373
$^{60}_{27}Co$	15.0027	13.0693	4.5990	4.9029	DY	7.8624
$^{65}_{30}Zn$	97.2269	112.6497	83.8748	74.238	DY	78.4037
$^{76}_{33}As$	10.2308	20.2308	8.3502	8.5568	10.5375	11.114
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{131}_{56}Ba$	987.975	690.853	576.338	740.028	662.057	784.924

Tablo 4.1.d Pazarkule'de su baskınlarından etkilenmeyen bölgeye ait element miktarları (ppm)

	Madde miktarları					
Elementler	**P-25**	**P-26**	**P-27**	**P-28**	**P-29**	**P-30**
$^{51}_{24}Cr$	110.266	63.4334	84.3199	89.5358	46.7443	67.5678
$^{54}_{25}Mn$	723.37	445.2303	543.7337	781.203	434.3973	584.7483
$^{60}_{27}Co$	17.3333	6.9879	13.0074	13.5071	7.0989	11.2606
$^{65}_{30}Zn$	141.577	55.452	151.571	81.0641	61.0195	168.866
$^{76}_{33}As$	11.9835	4.6797	9.7043	8.2446	4.0738	8.2176
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	0.1387	0.1251	0.2088	0.1714	0.1506	0.2116
$^{131}_{56}Ba$	1277.4733	917.0057	810.7323	1447.6075	889.596	695.5793

Tablo 4.1.e Söğütlük için element miktarları (ppm)

	Madde miktarları					
Elementler	**S-31**	**S-32**	**S-33**	**S-34**	**S-35**	**S-36**
$^{51}_{24}Cr$	70.7539	90.1752	76.745	86.6578	81.8499	78.6407
$^{54}_{25}Mn$	633.7657	625.506	588.2347	657.798	618.5037	647.718
$^{60}_{27}Co$	12.6661	17.9288	12.3258	13.3492	15.4955	13.4965
$^{65}_{30}Zn$	DY	18.8146	132.159	81.2222	73.7334	58.8105
$^{76}_{33}As$	8.7945	20.7378	7.6614	12.0804	11.0314	10.2986
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	0.1116	0.1738	0.0925	0.1351	0.1109	0.1284
$^{131}_{56}Ba$	703.6698	955.3998	818.773	1022.6995	984.2958	849.6508

Tablo 4.1.f Bosnaköy'de üç ana istasyona ait ortalama element miktarları (ppm)

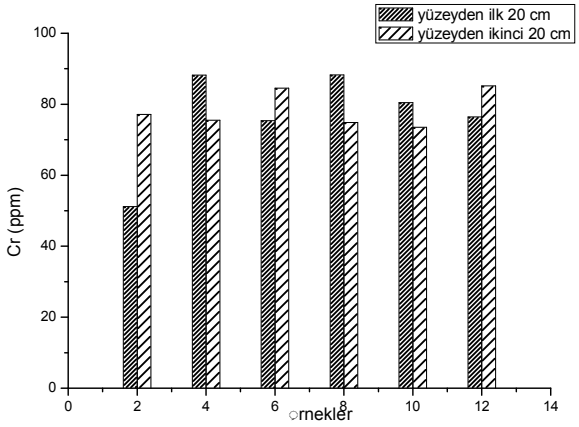
	(B-1)-(B-6) numaraları örnekler		(B-7)-(B-12) numaraları örnekler		(B-12)-(B-18) numaraları örnekler	
Elementler	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	İlk 20 cm	İkinci 20 cm
$^{51}_{24}Cr$	51.1550	77.1145	88.1933	75.515	75.3508	84.5244
$^{54}_{25}Mn$	558.1649	677.6239	707.7971	723.0860	554.7579	621.6335
$^{60}_{27}Co$	8.135	10.8796	13.0879	14.0549	7.4131	10.2495
$^{65}_{30}Zn$	126.6703	90.8509	147.367	113.6232	68.4212	100.995997
$^{76}_{33}As$	8.31	11.9531	7.4773	9.4385	10.8132	18.2441
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	0.0548	0.0752	0.0673	0.0498	DY	DY
$^{131}_{56}Ba$	449.4543	639.0172	710.4158	715.1361	711.4797	765.5767

Tablo 4.1.g Pazarkule'de iki ana istasyona ait ortalama element miktarları (ppm)

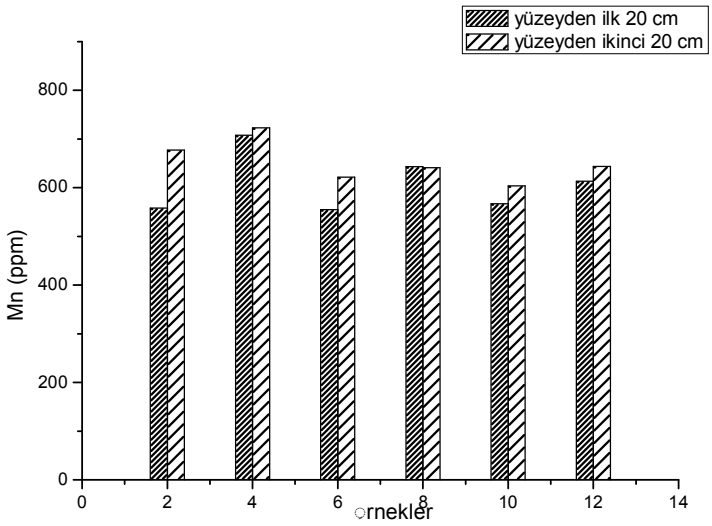
	(P-19)-(P-24) numaraları örnekler		(P-25)-(P-30) numaraları örnekler	
Elementler	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	İlk 20 cm	İkinci 20 cm
$^{51}_{24}Cr$	88.2749	74.8267	80.4434	73.5123
$^{54}_{25}Mn$	643.1499	641.2682	567.167	603.7272
$^{60}_{27}Co$	9.8001	8.6114	12.4799	10.5852
$^{65}_{30}Zn$	90.5509	88.4305	118.0558	101.7940
$^{76}_{33}As$	9.7062	13.3005	8.5872	7.0473
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	DY	DY	0.1660	0.1694
$^{131}_{56}Ba$	742.1233	738.6017	992.6005	1020.0642

Tablo 4.1.h Söğütlü'ye ait ortalama element miktarları (ppm)

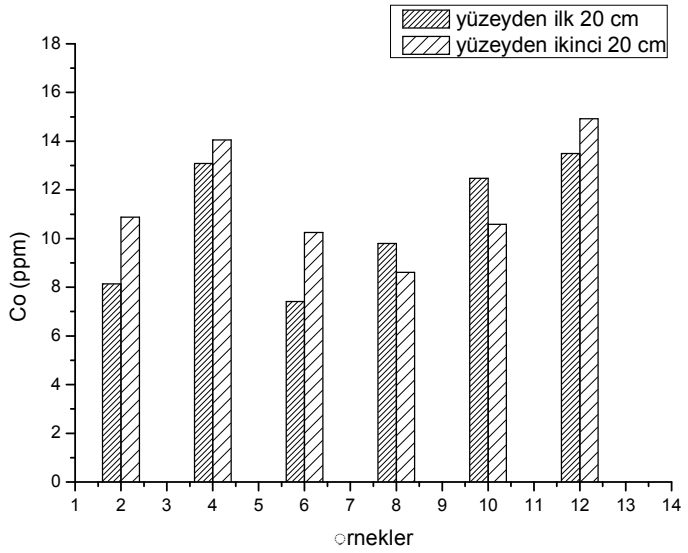
	(S-31)-(S-36) numaraları örnekler	
Elementler	İlk 20 cm	İkinci 20 cm
$^{51}_{24}Cr$	76.4496	85.1579
$^{54}_{25}Mn$	613.5014	643.674
$^{60}_{27}Co$	13.4958	14.9247
$^{65}_{30}Zn$	102.9462	52.9491
$^{76}_{33}As$	9.1624	14.3723
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY
$^{109}_{48}Cd$	0.105	0.1458
$^{131}_{56}Ba$	835.5795	942.5834



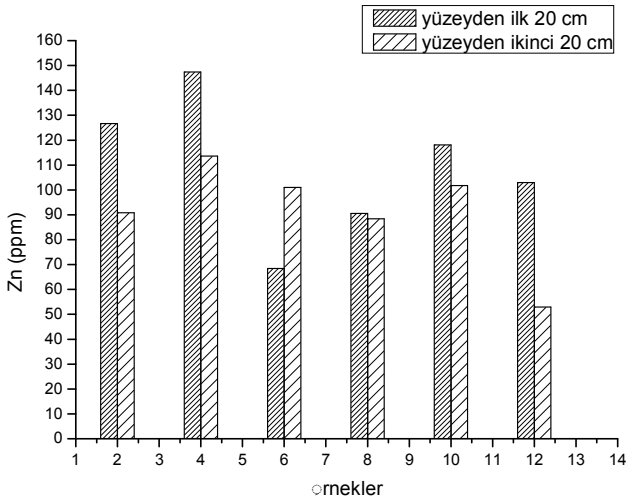
Şekil 4.1 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Cr miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir.



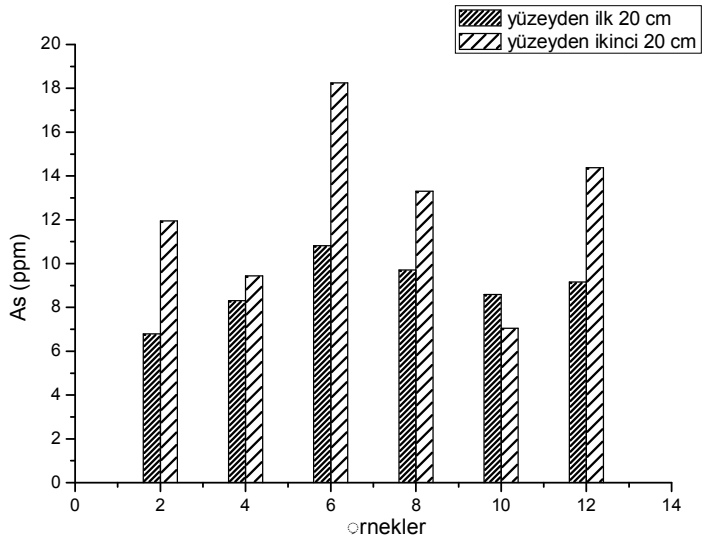
Şekil 4.1.a 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Mn miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir.



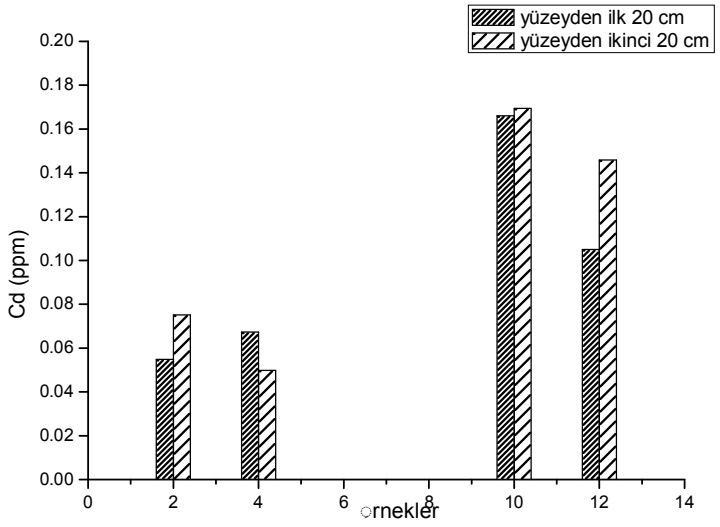
Şekil 4.1.b 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Co miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir.



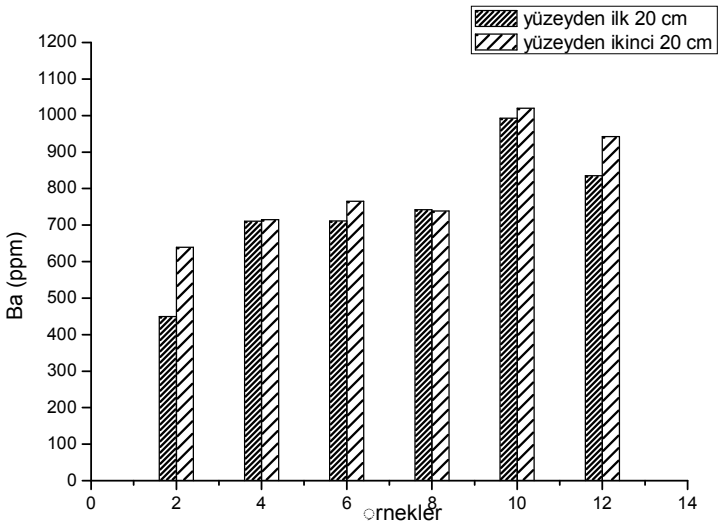
Şekil 4.1.c 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Zn miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir.



Şekil 4.1.d 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere As miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir.



Şekil 4.1.e 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Cd miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir.



Şekil 4.1.f 2, 4, 6 numaralı noktalar Bosnaköy, 8, 10 numaralı noktalar Pazarkule, 12 numaralı nokta Söğütlük için olmak üzere Ba miktarı ppm cinsinden gösterilmektedir.

4.2 Sonuçların Değerlendirilmesi

Tablo 4.1-Tablo 4.1.e'deki her noktadaki değerlerin, altı alt istasyondaki ortalama değerlere yakın olduğu, Tablo 4.1.f, Tablo 4.1.g ve Tablo 4.1.h'de görülmektedir. Bu nedenle elde ettiğimiz madde miktarlarını literatür ile karşılaştırırken, ortalama değerleri aldık.

Karşılaştırma yaptığımız üç literatür [32], [33] ve [34]'dür. [33]'üncü kaynak element miktarlarını verirken, her ülkenin toprağının cinsine, iklim ve tarımsal özelliklerine göre, element değerlerini vermiştir. Biz de incelediğimiz istasyonlardaki toprakları cinslerine göre ayırdık.

Tablo 4.2-Tablo 4.2.e'de bulduğumuz sonuçları, Cr, Mn, Co, Zn, As, Mo, Cd ve Ba için karşılaştırdık. Bütün bölgeler için Mo ve Bosnaköy ve Pazarkule'deki bazı bölgeler için Cd konsantrasyonu ölçülebilir limit değerleri altında kalmıştır.

Tablo 4.2, 2.a, 2.b'den görüldüğü gibi, Ref[33]'e göre Bosnaköy'de üç alt istasyonda Mn, Co, As ve Ba konsantrasyonları üst limiti değil ama ortalama değerleri

aşmaktadır. Cr ve Zn konsantrasyonları ise Kanada, Avustralya'daki değerlere göre maksimum limiti aşmaktadır. Ref[32] ve Ref[34]'e göre ise Ba hariç Cr, Mn, Co, Zn, As ve Cd değerleri düşüktür.

Pazarkuledeki iki alt istasyon için Cr, Mn, Zn, As ve Ba değerleri, Danimarka, Kanada Avustralya Bulgaristan ve UA ile karşılaştırıldığında üst limiti aşan değerlerle karşılaşılmaktadır. Ba konsantrasyonu ise üst limitin yaklaşık on katına çıkmaktadır Ref[11]. Bu sonuçlar Tablo 4.2.c, 2.d'de görülmektedir. Yine Ba hariç Cr, Mn, Co, Zn, As ve Cd için düşük konsantrasyon değerleri söz konusudur Ref[32], Ref[34].

Tablo 4.2.e'ye göre, Söğütlük için sonuçlar; Cr, Mn, Co, Zn, As ve Ba, UA, Danimarka, Bulgaristan, Kanada ve Avustralya için maksimum limitin üzerindedir. Ba hariç Cr, Mn, Co, Zn, As ve Cd için Ref[32], Ref[34]'e göre, düşük konsantrasyon değerlerine rastlanmaktadır.

Ba dışındaki elementler için genelde ortalama değerlerin dışına çıkılmadığı görülmektedir. Ancak Ba için bulunan değerler izin verilebilen değerlerin üst sınırına yakın veya üst sınırı geçtiği görülmektedir. Literatüre göre bunun nedeni örneklerin alındığı bölgelerin yakınında altın yataklarının bulunması, havasal kaynaklar veya P- gübresinin kullanımıdır. Yine literatüre göre, topraktaki Ba'un bazı tarım ürünleri için gerekli bir element olmasına rağmen, yüksek konsantrasyon etkisinin insan sağlığına etkisi incelenmelidir.

Bu çalışmada alınan sonuçların ötesinde, araştırmacılar yöntemin uygulanması sırasındaki değişik adımlarda örneğin; örnek hazırlama, ışınlama, sayma ve değerlendirme aşamalarında; gama spektrumu analizi, analitik hesaplamalar, program yazma vb. deneyim kazanmış, değerli bilgiler edinmiştir. Ayrıca bu tür analizlerin daha iyi bir şekilde yapılabilmesi için bölümümüzün gereksinimleri ortaya çıkmıştır.

Aldığımız verilerle, kullandığımız analiz yönteminden daha başka bir yöntemle analizi tekrarlamak ve sonuçları karşılaştıracak bir çalışma yapmak mümkündür.

Işınlama tarihleri verilen örneklerin aktifliği yaklaşık bir-iki yıl sürdüğünden, yarı ömrü uzun olan örneklerin analizini tekrarlamak faydalı ve gerekli olabilir.

Deneyde standartta olmayıp örneklerde bulunan elementler de gözlenmiştir. Bunların miktarlarını karşılaştırma metodu ile hesaplamak mümkün olamayacağı açıktır. İleriki çalışmalarda mutlak yöntem kullanılarak yapılabilir.

Yaptığımız literatür araştırmasında, bulduğumuz sonuçları karşılaştıracak, az sayıda çalışmaya rastladık [35, 36, 37]. Bu nedenle kullandığımız örneklerin diğer yöntemlerle, Flame Atomic Absorption Spectroscopy (FAAS), Inductive Coupled Atomic Emission

Spectroscopy (ICP-AES), Inductive Coupled Mass Spectroscopy (ICP-MS), vb analiz edilmesi ve sonuçların karşılaştırılması gerekli görülmektedir.

Yöntemimizin hassaslığını ve dğruluğunu, NAA'yı kullandığımız standart örneklerine uygulayarak Tablo 4.2.f'de gösterdik.

Tablo 4.2 **(B-1)- (B-6)** örneklerinin literatür ile karşılaştırılması (mg kg^{-1})

Isotops in Nature	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	Ref.[32]	Ref.[33] (UA)	Ref.[33] (Danimarka)	Ref.[33] (Avusturya)	Ref.[33] (Almanya)	Ref.[33] (Bulgaristan)	Ref.[33] (Kanada)	Ref.[33] (Avustralya)	Ref.[34]
				Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	
$^{51}_{24}Cr$	51.1550	77.1145	-	3-200 (mean 40)	-	1.4-3.5	-	-	2.6-34	-	100
$^{54}_{25}Mn$	558.1649	677.6239	-	7-2000 (mean 345)	-	9-59	25-200	451-883	-	900-1000	850
$^{60}_{27}Co$	8.135	10.8796	-	0.4-20 (mean 3.5)	-	-	0.8-6	-	-	-	50
$^{65}_{30}Zn$	126.6703	90.8509	10-100	5-164 (mean 40)		-	40-76 -	-	-	39-86	300
$^{76}_{33}As$	8.31	11.9531	0.1-55	<0.1-30 (mean 5.1)	-	-	-	-	1.1-28.9 (mean 5.8)	39-86	20
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	-	-	-	-	-	-	0.40-2.46	2.6-3.7	-
$^{109}_{48}Cd$	0.0548	0.0752	0.1-1	0.08-0.47 (mean 0.21)	-	-	-	-	0.10-1.80	-	-
$^{131}_{56}Ba$	449.4543	639.0172	10-100	20-1500 (mean 400)	-	-	-	-	-	- (mean 207)	-

Tablo 4.2.a **(B-7)** ve **(B-12)** örneklerinin literatür ile karşılaştırılması (mg kg^{-1})

Isotops in Nature	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	Ref.[32]	Ref.[33] (UA)	Ref.[33] (Danimarka)	Ref.[33] (Avusturya)	Ref.[33] (Almanya)	Ref.[33] (Bulgaristan)	Ref.[33] (Kanada)	Ref.[33] (Avustralya)	Ref.[34]
				Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	
$^{51}_{24}Cr$	88.1933	75.515	-	3-200 (mean 40)	-	1.4-3.5	-	-	2.6-34	-	100
$^{54}_{25}Mn$	707.7971	723.0860	-	7-2000 (mean 345)	-	9-59	25-200	451-883	-	900-1000	850
$^{60}_{27}Co$	13.0879	14.0549	-	0.4-20 (mean 3.5)	-	-	0.8-6	-	-	-	50
$^{65}_{30}Zn$	147.367	113.6232	10-100	5-164 (mean 40)		-	40-76 -	-	-	39-86	300
$^{76}_{33}As$	7.4773	9.4385	0.1-55	<0.1-30 (mean 5.1)	-	-	-	-	1.1-28.9 (mean 5.8)	39-86	20
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	-	-	-	-	-	-	0.40-2.46	2.6-3.7	-
$^{109}_{48}Cd$	0.0673	0.0498	0.1-1	0.08-0.47 (mean 0.21)	-	-	-	-	0.10-1.80	-	-
$^{131}_{56}Ba$	710.4158	715.1361	10-100	20-1500 (mean 400)	-	-	-	-	-	- (mean 207)	-

Tablo 4.2.b **(B-13)** ve **(B-18)** örneklerinin literatür ile karşılaştırılması (mg kg^{-1})

Isotops in Nature	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	Ref.[32]	Ref.[33] (UA)	Ref.[33] (Danimarka)	Ref.[33] (Avusturya)	Ref.[33] (Almanya)	Ref.[33] (Bulgaristan)	Ref.[33] (Kanada)	Ref.[33] (Avustralya)	Ref.[34]
				Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	Kumlu toprak	
$^{51}_{24}Cr$	75.3508	84.5244	-	3-200 (mean 40)	-	1.4-3.5	-	-	2.6-34	-	100
$^{54}_{25}Mn$	554.7579	621.6335	-	7-2000 (mean 345)	-	9-59	25-200	451-883	-	900-1000	850
$^{60}_{27}Co$	7.4131	10.2495	-	0.4-20 (mean 3.5)	-	-	0.8-6	-	-	-	50
$^{65}_{30}Zn$	68.4212	100.995997	10-100	5-164 (mean 40)		-	40-76 -	-	-	39-86	300
$^{76}_{33}As$	10.8132	18.2441	0.1-55	<0.1-30 (mean 5.1)	-	-	-	-	1.1-28.9 (mean 5.8)	39-86	20
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	-	-	-	-	-	-	0.40-2.46	2.6-3.7	-
$^{109}_{48}Cd$	DY	DY	0.1-1	0.08-0.47 (mean 0.21)	-	-	-	-	0.10-1.80	-	-
$^{131}_{56}Ba$	711.4797	765.5767	10-100	20-1500 (mean 400)	-	-	-	-	-	- (mean 207)	-

Tablo 4.2.c **(P-19**) ve **(P-24)** örneklerinin literatür ile karşılaştırılması (mg kg^{-1})

Isotops in Nature	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	Ref.[32]	Ref.[33] (UA)	Ref.[33] (Danimarka)	Ref.[33] (Avusturya)	Ref.[33] (Almanya)	Ref.[33] (Bulgaristan)	Ref.[33] (Kanada)	Ref.[33] (Avustralya)	Ref.[34]
				Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	
$^{51}_{24}Cr$	88.2749	74.8267	-	1-100 (mean 20)	1.8-10 (mean 7)	-	-	-	4-39 (mean 15)	-	100
$^{54}_{25}Mn$	643.1499	641.2682	-	7-1500 (mean 260)	43-200 (mean 100)	-	-	-	240-540 (mean 338)	-	850
$^{60}_{27}Co$	9.8001	8.6114	-	3-10 (mean 6)	- (mean 1.6)	-	-	1.7-49	3.1-13.1 (mean 6.8)	-	50
$^{65}_{30}Zn$	90.5509	88.4305	10-100	5-108 (mean 34)	48-130 (mean 72.5)	-	-	- (mean 80)	48-130 (mean 72.5)	21-34 (mean 27)	300
$^{76}_{33}As$	9.7062	13.3005	0.1-55	<1-93 (mean 7)	-	-	-	2-10.4 (mean 5.6)	<1-30 (mean 5.8)	-	20
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	-	-	-	-	-	-	0.69-3.2 (mean 1.9)	-	-
$^{109}_{48}Cd$	DY	DY	0.1-1	0.36-1.44 (mean 0.72	0.8-2.2 (mean 1.05)	-	-	-	0.19-1.22 (mean 0.57)	-	-
$^{131}_{56}Ba$	742.1233	738.6017	10-100	10-700 (mean 265)	-	-	-	492-2368 (mean 838)	262-867 (mean 669)	-	-

Tablo 4.2.d (P-25) ve **(P-30)** örneklerinin literatür ile karşılaştırılması (mg kg^{-1})

Isotops in Nature	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	Ref.[32]	Ref.[33] (UA)	Ref.[33] (Danimarka)	Ref.[33] (Avusturya)	Ref.[33] (Almanya)	Ref.[33] (Bulgaristan)	Ref.[33] (Kanada)	Ref.[33] (Avustralya)	Ref.[34]
				Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	
$^{51}_{24}Cr$	80.4434	73.5123	-	1-100 (mean 20)	1.8-10 (mean 7)	-	-	-	4-39 (mean 15)	-	100
$^{54}_{25}Mn$	567.167	603.7272	-	7-1500 (mean 260)	43-200 (mean 100)	-	-	-	240-540 (mean 338)	-	850
$^{60}_{27}Co$	12.4799	10.5852	-	3-10 (mean 6)	- (mean 1.6)	-	-	1.7-49	3.1-13.1 (mean 6.8)	-	50
$^{65}_{30}Zn$	118.0558	101.7940	10-100	5-108 (mean 34)	48-130 (mean 72.5)	-	-	- (mean 80)	48-130 (mean 72.5)	21-34 (mean 27)	300
$^{76}_{33}As$	8.5872	7.0473	0.1-55	<1-93 (mean 7)	-	-	-	2-10.4 (mean 5.6)	<1-30 (mean 5.8)	-	20
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	-	-	-	-	-	-	0.69-3.2 (mean 1.9)	-	-
$^{109}_{48}Cd$	0.1660	0.1694	0.1-1	0.36-1.44 (mean 0.72	0.8-2.2 (mean 1.05)	-	-	-	0.19-1.22 (mean 0.57)	-	-
$^{131}_{56}Ba$	992.6005	1020.0642	10-100	10-700 (mean 265)	-	-	-	492-2368 (mean 838)	262-867 (mean 669)	-	-

Tablo 4.2.e **(S-31**) ve **(S-36)** örneklerinin literatür ile karşılaştırılması (mg kg^{-1})

Isotops in Nature	İlk 20 cm	İkinci 20 cm	Ref.[32]	Ref.[33] (UA)	Ref.[33] (Danimarka)	Ref.[33] (Avusturya)	Ref.[33] (Almanya)	Ref.[33] (Bulgaristan)	Ref.[33] (Kanada)	Ref.[33] (Avustralya)	Ref.[34]
				Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	Organik toprak	
$^{51}_{24}Cr$	76.4496	85.1579	-	1-100 (mean 20)	1.8-10 (mean 7)	-	-	-	4-39 (mean 15)	-	100
$^{54}_{25}Mn$	613.5014	643.674	-	7-1500 (mean 260)	43-200 (mean 100)	-	-	-	240-540 (mean 338)	-	850
$^{60}_{27}Co$	13.4958	14.9247	-	3-10 (mean 6)	- (mean 1.6)	-	-	1.7-49	3.1-13.1 (mean 6.8)	-	50
$^{65}_{30}Zn$	102.9462	52.9491	10-100	5-108 (mean 34)	48-130 (mean 72.5)	-	-	- (mean 80)	48-130 (mean 72.5)	21-34 (mean 27)	300
$^{76}_{33}As$	9.1624	14.3723	0.1-55	<1-93 (mean 7)	-	-	-	2-10.4 (mean 5.6)	<1-30 (mean 5.8)	-	20
$^{99}_{42}Mo$	DY	DY	-	-	-	-	-	-	0.69-3.2 (mean 1.9)	-	-
$^{109}_{48}Cd$	0.105	0.1458	0.1-1	0.36-1.44 (mean 0.72	0.8-2.2 (mean 1.05)	-	-	-	0.19-1.22 (mean 0.57)	-	-
$^{131}_{56}Ba$	835.5795	942.5834	10-100	10-700 (mean 265)	-	-	-	492-2368 (mean 838)	262-867 (mean 669)	-	-

Tablo 4.2.f NAA'nın doğruluk sınırlarının standartlar ile karşılaştırılması (ppm)

Elementler	GBW07424 (GSS-10)		GBW07425 (GSS-11)		GBW07426 (GSS-12)	
	Bu çalışma	Standart değeri	Bu çalışma	Standart Değeri	Bu çalışma	Standart Değeri
Cr	59.88	58±2	59.79	59±3	57.19	59±2
Mn	680.68	681±13	581.39	572±14	774.24	774±19
Co	10.82	11.7±0.5	12.57	11.6±0.4	11.95	12.6±0.3
Zn	69.93	60±4	55.76	65±5	68.47	78±5
As	10.70	8.9±0.9	7.33	7.4±0.5	12.31	12.2±0.8
Mo	ND	ND	ND	ND	ND	ND
Cd	0.91	0.105±0.013	0.12	0.125±0.012	0.15	0.15±0.02
Ba	622.27	613±12	630.57	634±10	483.14	492±20

KAYNAKLAR

[1] G. Hevesy, Hilde Levi, "***The Action of Neutrons on the Rare Earth Elements***", Det. Kgl. Danske Videnskabernes Selskab, Mathematisk-fysiske Meddelelser XIV, 5 (1936) 3–34.

[2] G.E. Boyd, "***Method of Activation Analysis***", Anal. Chem. 21 (1949) 335–347.

[3] H. Brown, E. Goldberg, "***The Neutron Pile as a Tool in Quantitative Analysis***", The Gallium and Palladium Content of Iron Meteorites, Science 109 (1949) 347–353.

[4] T.P. Kohman, "***Measurement Techniques of Applied Radiochemistry***", Anal. Chem. 21 (1949) 352–364.

[5] W.B. Lewis, "***Isotope production, how to choose irradiation times***", Nucleonics 12 (1954) 30–33.

[6] W.B. Lewis, "***Flux perturbations by material under irradiation***", Nucleonics 13 (1955) 82–88.

[7] R.C. Plumb, J. E. Lewis, "***How to minimize errors in neutron activation analysis***", Nucleonics 13, (1955) 42–46.

[8] L.H. Rietjens, G.J. Arkenbout, G.F. Wolters, J.C. Kluyver, "***Influence of distance between source and crystal on detection efficiency of gamma-ray scintillation spectrometers***", Physica 21 (1955) 110–116.

[9] G. Leliart, J. Hoste, J. Eeckhaut, "***Activation analysis of Vanadium in high alloy steels using Manganese as internal Standard***", Anal. Chim. Acta 19 (1958) 100–107.

[10] G.B. Cook, "***Radioactivation analysis in a nuclear reactor***", Pure and Applied Chemistry 1(1960) 15–30.

[11] H.J.M. Bowen, D. Gibbons, "***Radioactivation Analysis***", Oxford University Press, Oxford, UK, 1963, 295 pp.

[12] D. De Soete, R. Gijbels, J. Hoste, "***Neutron Activation Analysis***", Wiley-Interscience, London, 1972.

[13] Advisory Group of the International Atomic Energy Agency, "***Quality assurance in biomedical neutron activation analysis***", Anal. Chim. Acta 165 (1984) 1–29.

[14] H. Kawamura, R.M. Parr, H.S. Dang,W. Tian, R.M. Barnes, G.V. Iyengar, "***Analytical quality assurance procedures developed for the IAEA's***" Reference Asian Man Project (Phase 2), J. Radioanal. Nucl. Chem. 245, (2000) 123–126.

[15] P. Bode, J.P. van Dalen, "***Accreditation: a prerequisite, also for neutron activation analysis laboratories"***, J. Radioanal. Nucl. Chem.179 (1994)141–148.
[16] M. Rossbach, J. Gerardo-Abaya, A. Fajgelj, P. Bode, P. Vermaercke, M. Bickel, "***Quality system implementation in Member States of the IAEA***", Accred. Qualit. Assur. 10 (2006) 583–589.
[17] D.D. Sood, A.V.R. Reddy, N. Ramamoorthy, "***Fundamentals of Radiochemistry***", IANCAS, Mumbai, India, 2000.
[18] R.R. Greenberg, P. Bode, E.A. Fernandes***, Neutron activation analysis: A primary method of measurement,*** Spectrochimica Acta Part B, 66, 193-241, 2011.
[19] Table of Isotopes, Eight Edition, R.B. Firestone, V.S. Shirley, Eds., J. Wiley, New York, 1996.
[20] K.S. Krane***, "Nuclear Physics"*** Vol.1, John Wiley & Sons, 1988.
[21]] O.T. Høgdahl, "***Neutron Absorption in Pile Neutron Activation Analysis***", Michigan Memorial Phoenix Project, Univ. of Michigan, Ann Arbor, USA, Report MMPP-226-1 (1962).
[22] F. Girardi, G. Guzzi, J. Pauly, "***Reactor Neutron Activation Analysis by the Single Comparator Method***", Anal. Chem 37 (1965) 1085–1092.
[23] A. Simonits, F. de Corte, J. Hoste, "***Single Comparator Methods in Reactor Neutron Activation Analysis***", J. Radioanal. Chem. 24 (1975) 31–46.
[24] L.A. Currie, "***Limits for qualitative detection and quantitative determination — application to radiochemistry***", Anal. Chem., 40 (1968) 586–593.
[25] A. Yüksel, "***Gamma Spektrometri Yönteminde, Radyoaktivite Öçlme ve Değerlendirme***".
[26] http://www.jimfitz.demon.co.uk/fitzpeak.htm
[27] ***"Certificate of Certified Reference Material Soil"***, GBW07423-GBW07430, Institute of Geophysical and Geochemical Exploration (Langfang China).
[28] ***"Gamma-Ray Spectrum Catalogue, Ge and Si Detector Spectra"***, Fourth Edition, in memory of R.L. Heath, Original Work Published-March 1974, Electronic Versiyon with updated nuclear data and decay schemes addeSeptember 1998, Idaho National Engineering&Enviromental Laboratory.
[29] Glascock, M. (1996), ***"Tables for Neutron Activation Analysis".*** University of Missouri
[30] Sonzogni, A., ***"Chart of Nuclides"***, National Nuclear Data Center. <http://www.nndc.bnl.gov/chart/> April 2012
[31] Browne, E., Buryn, A., Dairiki, J., Doebler, R., Jardine, L., Shihad-Eldin, A., Tuli, J., (1978), ***"Table of Isotopes Seventh Edition"***. University of California.
[32] Brian J. Alloway, ***"Heavy Metals in Soils"***, 2012, Sringer
[33] Alina Kabata-Pendias, ***"Trace Elements in Soils and Plants,"***, "Table of World Average", 2001, CRCPress LCC.

[34] ***"Permissible Limits of the Elements in Soil",*** H.J. Bowen, 1979, A. Kloke, 1979, A. Kabata-Pendais, H. Pendais, 1984.
[35] Y. Aktas, A. Kocabas, ***Determination of Chromium, Cadmium and Mercury in Roadside Soil in Edirne, Turkey***, Journal of Environmental Protection and Ecology, Volume:12, Issue:3, Pages:878-886, 2011.
[36] Y. Aktas, A. Kocabas, ***Heavy Metal Content of Roadside Soil İn Edirne, Turkey***, Analytical Letters, Volume: 43, Issue: 12, Pages: 1869-1878, Article Number: DOI: 10.1080/00032710903502181, 2010.
[37] D. Bakircioglu, Y. B. Kurtulus, H. Ibar, ***Investigation of trace elements in agricultural soils by BCR sequential extraction method and its transfer to wheat plants***, Environmental Monıtoring and Assessment, Volume: 175, Issue: 1-4, Pages: 303-314 DOI: 10.1007/s10661-010-1513-5, APR 2011.