

**GAMA SPEKTROMETRİK YÖNTEM İLE FOSFOJİPSTEKİ ²²⁶Ra,
²³²Th, ⁴⁰K AKTİVİTELERİNİN ÖLÇÜLMESİ**

Aydın PARMAKSIZ

**YÜKSEK LİSANS TEZİ
(FİZİK)**

**GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

HAZİRAN 2004

Aydın PARMAKSIZ tarafından hazırlanan GAMA SPEKTROMETRİK YÖNTEM İLE FOSFOJİPSTEKİ ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K AKTİVİTELERİNİN ÖLÇÜLMESİ adlı bu tezin Yüksek Lisans tezi olarak uygun olduğunu onaylarım.

Prof. Dr. Hüseyin KORU
Tez Yöneticisi

Bu çalışma, jürimiz tarafından Fizik Anabilim Dalında Yüksek Lisans tezi olarak kabul edilmiştir.

Başkan: : _____

Üye : _____

Üye : _____

Üye : _____

Üye : _____

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

İÇİNDEKİLER

	Sayfa
ÖZET.....	i
ABSTRACT.....	ii
TEŞEKKÜR.....	iii
ÇİZELGELERİN LİSTESİ.....	iv
ŞEKİLLERİN LİSTESİ.....	v
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	vi
1. GİRİŞ.....	1
2. FOSFOJİPS VE KULLANIM ALANLARI.....	4
2.1. Fosfojipsin Elde Edilişi.....	4
2.2. Fosfojipsin X-Işını Spektrometresiyle Elementel Analizi.....	5
2.3. Kullanım Alanları.....	6
3. TEMEL KAVRAMLAR VE KURAM.....	7
3.1. Radyoaktivite ve Bozunum Süreçleri.....	7
3.2. Doğal Radyoaktif Seriler	8
3.3. Zincirleme Bozunum Süreci.....	11
4. GAMA SPEKTROMETRESİ VE AKTİVİTE ÖLÇME YÖNTEMLERİ.....	16
4.1. Gama Spektrometresi.....	16
4.2. Pik Alanı Hesabı.....	20
4.3. ²²⁶ Ra, ²³² Th ve ⁴⁰ K Radyonüklitlerin Analizinde Kullanılan Fotopiklerin Seçimi.....	22
4.4. Aktivite Ölçme Yöntemleri.....	23
4.4.1. Doğrudan ölçme.....	23
4.4.2. Standartla karşılaştırma yöntemi.....	25

5. DENEY VE ÖLÇME İŞLEMİ.....	28
5.1. Örneklerin Toplanması ve Analize Hazırlanması.....	28
5.2. HPGe Dedektörün Mutlak Verim Kalibrasyonu.....	28
5.3. Ölçme İşlemi.....	30
6. SONUÇ VE TARTIŞMA.....	32
6.1. Doğrudan Ölçme Yöntemiyle Elde Edilen Aktivite Değerleri.....	32
6.2. Standartla Karşılaştırma Yöntemiyle Elde Edilen Aktivite Değerleri.....	34
6.3. ^{226}Ra , ^{232}Th ve ^{40}K Radyonüklitlerinden Kaynaklanan Gama Doz Hızlarının Hesaplanması.....	36
6.4. Verilerin Değerlendirilmesi.....	37
KAYNAKLAR.....	40
ÖZGEÇMİŞ.....	42

GAMA SPEKTROMETRİK YÖNTEM İLE FOSFOJİPSTEKİ ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K AKTİVİTELERİNİN ÖLÇÜLMESİ

(Yüksek Lisans Tezi)

Aydın PARMAKSIZ

GAZİ ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

Haziran 2004

ÖZET

Fosfatlı gübreler, doğal radyonüklitler ^{238}U gibi ve bunların ürünlerini ihtiva eden fosfat madeni kayalarının endüstriyel işlenmesi sonucunda üretilir. Fosforik asit ve fosfatlı gübre üretiminde oldukça büyük miktarda bir yan ürün olarak ortaya çıkan fosfojips (PG), fosforik asit endüstrisinde ciddi depolama ve çevresel problemlere sebep olmaktadır. Fosforik asit üretim işlemi sırasında kimyasal olarak kalsiyuma benzeyen ^{226}Ra ($t_{1/2}=1600$ yıl), fosfojipste kalır. Fosfatlı gübre üreten fabrikaların yanındaki büyük miktarlarda biriken fosfojips yığınları oldukça ciddi çevresel radyoaktivite sorunu ortaya çıkarır. Bu çalışmada, yığın halinde (60 000 ton) bekletilen fosfojips atığından alınan 80 fosfojips örneğinin, yüksek ayırma güçlü germanyum dedektörü olan bir gama spektrometresi kullanılarak doğal radyoaktivitesi ölçülmüştür. İncelenen fosfojips örneklerinde ^{226}Ra aktivitesinin ortalama olarak 546 Bq.kg^{-1} olduğu bulunmuştur. Fosfojips örneklerindeki ^{232}Th ve ^{40}K aktiviteleri ise ihmal edilebilecek kadar küçük gözlenmiştir. İncelenen fosfojipsin yer seviyesinden 1 m yukarıda, 1 m^2 yüzey alanına 1-1,5 kg'ı yayılması durumunda, havaya verilen fazladan gama radyasyon doz hızı $\sim 241 \text{ nGy/h}$ olarak hesaplanmıştır.

Bilim Kod : 218

Anahtar Kelimeler : Fosfojips, ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K , radyonüklit, aktivite, gama spektrometrisi

Sayfa Adedi : 43

Tez Yöneticisi : Prof. Dr. Hüseyin KORU

THE MEASUREMENT OF ACTIVITIES OF ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K IN
PHOSPHOGYPSUM BY GAMMA RAY SPECTROMETRY

(M.Sc. Thesis)

Aydm PARMAKSIZ

GAZI UNIVERSITY

INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY

June 2004

ABSTRACT

Phosphatic fertilizers are produced from the industrial processing of rock phosphate ores which are known to contain naturally occurring radionuclides such as ^{238}U and its daughter products. A high volume by-product known as phosphogypsum (PG) from the production of phosphoric acid and phosphate fertilizer causes serious storage and environmental problems in phosphoric acid industries. During the phosphoric acid production process, ^{226}Ra ($t_{1/2}=1600$ y) ends up in PG which has chemical analogous to calcium periodical table. Since the stockpiles of PG near the phosphatic fertilizer plants are huge amounts, the radioactivity contained in PG has to be measured in view of environmental radioactivity problem. In this work, the natural radioactivity in eighty PG samples, issued from a stock of about 60.000 tones was measured by a high resolution gamma ray spectrometer with a HPGe detector. The averaged activity of ^{226}Ra in PG has been found to be 546 Bq.kg^{-1} . However, the activities of ^{232}Th and ^{40}K measured in PG samples are negligibly small. The extra gamma radiation dose rate arising from 1 -1.5 kg of PG is estimated to be about 241 nGy/h from 1 m ground level applied in 1 m^2 surface area of field.

Science Code : 218

Key Words : Phosphogypsum, ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K , radionuclide, activity, gamma ray spectrometry

Page Number: 43

Adviser : Prof. Dr. Hüseyin KORU

TEŐEKKÜR

Bu alıőmada bütn aőamalarda ki yardımlarından ve rahatsız olduėu sıralarda bile yoėunluėunun arasında deėerli zamanını benimle paylaőan Hocam, Sayın Prof. Dr. Hüseyin KORU'ya, alıőmanın gerekleőmesi için beni yönlendiren, bilimsel görüşlerini ve tecrübelerini aktaran, Ankara Nükleer Araőtırma ve Eėitim Merkezi (ANAEM) Müdür, Sayın Do. Dr. Haluk YÜCEL'e teőekkr bir bor bilirim.

alıőmam süresince beni teővik ederek deneyleri planlayan, verileri deėerlendirmede görüşlerinden faydalandıėım, ANAEM, Nükleer Fizik Bölm Baőkanı, Sayın Dr. Halil DEMİREL'e, en yoėun anında bile bilimsel görüşlerini paylaőan, yazım aőamasındaki yapıcı eleőtirilerinden dolayı ANAEM Müdür Yrd., Sayın Dr. őeref TURHAN'a teőekkr ederim.

Eėitimci dikkati ile her zaman yanımda olan, manevi desteėi ile beni teővik eden sevgili eőim Serap PARMAKSIZ'a ve aileme özverilerinden dolayı teőekkr ederim.

ÇİZELGELERİN LİSTESİ

Çizelge	Sayfa
Çizelge 2.1. Fosfojipsin XRF metoduyla elementel analiz sonuçları.....	5
Çizelge 4.1.a. Yüksek saflıkta germanyum dedektörün özellikleri.....	19
Çizelge 4.1.b. Yüksek saflıkta germanyum dedektörün özellikleri.....	20
Çizelge 4.2. Verim kalibrasyonu standardı.....	24
Çizelge 4.3. Verim kalibrasyonu standardı referans bilgileri.....	25
Çizelge 4.4. IAEA/RGU-1 (Uranyum standardı).....	27
Çizelge 4.5. IAEA/RGTh-1 (Toryum standardı).....	27
Çizelge 4.6. IAEA/RGK-1 (Potasyum standardı).....	27
Çizelge 4.7. Standartların kütle ve sayım süreleri.....	27
Çizelge 4.8. Standartlarda kullanılan enerjiler ve şiddetleri.....	27
Çizelge 5.1. Verim kalibrasyonu verileri.....	29
Çizelge 6.1. Doğrudan ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri.....	32
Çizelge 6.2. (Devam)Doğrudan ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri.....	33
Çizelge 6.3. Aktivite gözlenen örneklerin ortalamaları.....	34
Çizelge 6.4. Standartla karşılaştırma yöntemine göre ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri.....	34
Çizelge 6.5. (Devam)Standartla karşılaştırma yöntemine göre ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri	35
Çizelge 6.6. Standartlarla karşılaştırma yöntemine göre aktivite gözlenen örneklerin ortalamaları.....	36
Çizelge 6.7. Fosfat kayalarındaki radyonüklitlerin fosforik aside ve fosfojipse geçme oranı (%)......	38
Çizelge 6.8. Çeşitli ülkelerde üretilen fosfojips örneklerinin aktiviteleri	38

ŞEKİLLERİN LİSTESİ

Şekil	Sayfa
Şekil 2.1. Fosforik asit üretim işlemi.....	4
Şekil 3.1. ^{238}U bozunum serisi ve radyonüklitlerin yarıömürleri.....	9
Şekil 3.2. ^{235}U bozunum serisi ve radyonüklitlerin yarıömürleri.....	10
Şekil 3.3. ^{232}Th bozunum serisi ve radyonüklitlerin yarıömürleri.....	10
Şekil 4.1. Dikey geometrili gama spektrometresi.....	18
Şekil 4.2. Pik alanı hesabı.....	21
Şekil 4.3. MCA'dan alınmış bir fosfojips için gama spektrumu.....	23
Şekil 5.1. Kalibrasyon ve ölçümler için kullanılan plastik örnek kabı.....	28
Şekil 5.2. %12,4 Bağlı verimli HPGe dedektörün mutlak verim eğrisi	30

SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler	Açıklama
A	Kütle numarası
A _s	Standardın aktivitesi
A _x	Örneğin aktivitesi
B	Doğal fon
Bq	Becquerel
C	İntegral sabiti
C _K	K derişimi (Özgül aktivite)
C _{Th}	Th derişimi (Özgül aktivite)
C _U	U derişimi (Özgül aktivite)
D	Radyasyon dozu
dt	Küçük zaman aralığı
E	Elektrik alan
E _i	İlk enerji
E _f	Son enerji
E _γ	Gama enerjisi
F	Kuvvet
f _γ	Gama yayınlanma olasılığı
G	İlgilenilen bölgedeki pikin toplam alanı, sayım sayısı
g	Gram
h	Planck sabiti, saat
K	Potasyum
keV	Kiloelektrovolt
kg	Kilogram
m	Güven katsayısı
m _s	Standardın kütlesi
m _x	Örneğin kütlesi
N	Radyoaktif çekirdek sayısı, ilgilenilen pikin sağında ve

	solundaki kanal sayısı
n	E enerjili fotopikin altındaki net alan, seçilen uç kanal sayısı
nGy	Nanogrey
N_0	Başlangıçtaki çekirdek sayısı, kaynağın aktivitesi
N_P	Pik alanı
P	Bozunma olasılığı
P_2O_5	Fosforik asit
$P_\gamma(E)$	E enerjili gama fotopikinin yayınlanma olasılığı,
S	Net pik alanı
t	Zaman, sayım zamanı
$t_{1/2}$	Yarı ömür
t_d	Bozunum süresi
t_s	Standartın sayım süresi
t_x	Numunenin sayım süresi
Th	Toryum
X	X- ışını
Z	Atom numarası
α	Alfa
β	Beta
ΔE	Enerji farkı
ε	Verim
γ	Gama
λ	Radyoaktif bozunma sabiti
μCi	Microcurie
μSv	Microsievert
σ	Standart sapma
τ	Ortalama ömür
U	Uranyum
ν	Frekans

Kısaltmalar	Açıklama
ADC	Analog-sayısal dönüştürücü
ANAEM	Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi
ASTM-E181	Dedektör enerji, verim kalibrasyonlarında ve analizlerde kullanılan Amerika'nın 181 numaralı standart prosedürü
CaSO ₄ .2H ₂ O	Fosfojips
EPA	Amerikan Çevre Koruma Örgütü
HPGe	Yüksek saflıkta germanyum
H ₂ SO ₄	Sülfürik asit
IAEA/RGK-1	UAEA Potasyum standardı
IAEA/RGTh-1	UAEA Toryum standardı
IAEA/RGU-1	UAEA Uranyum standardı
IPL	Karışık radyonüklitlerden oluşan kalibrasyon kaynağı
MCA	Çok kanallı analizör
MDA	Minimum dedeksiyon aktivitesi
NaI(Tl)	Talyum aktive edilmiş sodyum iyodür dedektör
PG	Fosfojips
Si(Li)	Lityum sürüklenmiş silisyum dedektör
UNSCEAR	Birleşmiş Milletler Radyoaktivite Etkileri Bilimsel Komitesi
XRF	X-Işını flüoresans

1. GİRİŞ

Doğal uranyum-radyum (^{238}U - ^{226}Ra), toryum (^{232}Th), aktinyum (^{235}U) radyoaktif serilerine ait radyonüklitler ve bu serilerin dışında doğal olarak varolan ^{40}K , vb. radyonüklitler çevredeki radyoaktivitenin en önemli kaynaklarını oluştururlar. Uranyum-radyum doğal radyoaktif serisinin ana radyonükliti ^{238}U (% 99,2745 ^{238}U , % 0,7200 ^{235}U ve % 0,0055 ^{234}U)'un yarılanma süresi; $4,468 \times 10^9$ yıl, özgül aktivitesi; 0,33 $\mu\text{Ci/g}$ ve derişimi yeryüzü kabuğunda ortalama 2,7 mg/kg dır (1). Ancak ^{238}U derişimi kayaların çeşidine bağılı olduğundan bölgeden bölgeye değişmektedir. Özellikle fosfat (yaklaşık 120 mg/kg) ve granit uranyum içeriğı açısından zengindir.

Su, toprak, kaya vb. çevresel örneklerde ve gıdalarda mevcut olan değişik radyonüklitlerin bilinmesi ve aktivitelerinin belirlenmesi, hem sağlık fiziğı hem de yer bilimi arařtırmalarında önemli rol oynar.

Çevresel örneklerdeki doğal radyoaktif serilere ait alfa yayınlıyıcı radyonüklitlerin belirlenmesi için, bir çok radyoanalitik yöntem kullanılmaktadır. Bunlardan; tahribatsız olarak gama spektrometrisi ile doğrudan gama ışının ölçülmesi, kimyasal ayırma işleminden sonra gama spektrometrik yöntem ile gama ışınlarının ölçülmesi, alfa spektrometrisi ve sıvı sintilasyon tekniğı en yaygın olanlarıdır.

Tarımda kullanılan fosfatlı gübrelerin temel malzemelerinden biri fosforik asittir (P_2O_5). Fosforik asidin endüstriyel üretim işlemi fosfat filizi kayalarının sülfürik asit (H_2SO_4) ile kimyasal tepkimesiyle meydana gelir. Fosfojips; bu reaksiyon esnasında oluşan bir yan üründür (atık ürün) (2).

Kalsiyum bakımından zengin olduğundan fosfojipsin, tarımda toprak ıslah materyali olarak kullanılabilirliğı arařtırılmaktadır(3). Gübre üretimi esnasında kimyasal işlemler sonucunda ^{226}Ra , büyük ölçüde fosfojipsle birlikte ortamdan uzaklaşır. Fosfojipsin araziye uygulamasıyla radyumun toprağı daha sonra da diğere canlılara geçmesi, toprak ıslahı için taşıma ve uygulama sırasında tozla taşınan radyoaktif

nüklitlerin solunması, radyoaktivitenin artması ile toprakta ve yeraltı sularında radon gazının artışının olacağı araştırılan konulardır (4).

Fosfojipsin uygulandığı arazilerde içerdiği radyonüklitlerin yerüstü ve yeraltı sularında hareketi söz konusu olabileceğinden besin zinciriyle bu radyonüklitlerin canlılara ulaşma olasılığı vardır. Radyonüklitlerin ne kadarının bitkilere, besin zinciriyle ne kadarının hayvanlara ve insanlara geçtiği, hayvansal ürünlerin alınmasıyla insanın alabileceği radyoaktivite dozu, araştırılması gereken diğer önemli konulardır (4).

Yapılan araştırmalara göre fosfojips yığınlarındaki ^{226}Ra ve ürün çekirdeklerinin radyoaktivite derişimi, genellikle 10-1300 Bq/kg sınırları arasında değişmektedir. Radon gazının yayılım faktörü ise yaklaşık 0,2'dir. 1992 yılında Amerikan Çevre Koruma Örgütünün (EPA) kabul ettiği kurala göre; tarım ve inşaat sektöründe kullanılacak fosfojipsin ^{226}Ra konsantrasyonu 370 Bq/kg'dan büyük olmamalıdır (5). Aktivitesi 370 Bq/kg olan ^{226}Ra , yaklaşık $0,15 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ 'lik ilave doza karşılık gelmektedir. ^{232}Th ve ^{40}K radyonüklitlerinden kaynaklanan ilave doz da dikkate alınırsa bu değer daha da artar (6).

Gübre sanayisinde yan ürün olarak elde edilen fosfojipsin, tarım alanları ve yol yapımı gibi diğer alanlarda kullanılmasına karar verebilmek için, içerdiği radyoaktivitesinin bilinmesi gerekmektedir. Radyoaktivite ölçümlerinin ardından fosfojips kullanımının çevresel radyolojik etkilerinin kabulü için bir veri oluşturulmalıdır. Bu çalışma söz konusu verileri elde etmek için yapılmış bir ön araştırmadır.

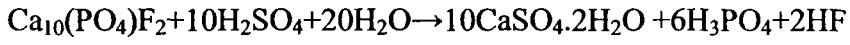
Bu çalışmada örneklerin aktivite tayinleri Türkiye Atom Enerjisi Kurumu, Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi, Nükleer Fizik Laboratuvarı'nda, yatay ve dikey geometriyle yüksek saflıkta iki germanyum dedektörü, çok kanallı analizör ve ilgili donanımlardan oluşan gama spektrometreleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

Bu tez giriş bölümü ile birlikte altı bölümden oluşmaktadır. Birinci bölümde giriş, ikinci bölümde fosfojips ve kullanım alanları, üçüncü bölümde temel kavramlar ve kuram, dördüncü bölümde gama spektrometresi ve aktivite ölçme teknikleri, beşinci bölümde deney ve ölçme işlemi, altıncı bölümde ise sonuç ve tartışma ile literatürdeki çalışmalarla kıyaslama ve değerlendirmelere yer verilmiştir. Sonuç ve tartışma bölümde ayrıca elde edilen veriler, Amerika Çevre Koruma Örgütü ve Birleşmiş Milletler Sağlık Komisyonu'nun verdiği sınırlarda olup olmadığı araştırılmıştır.

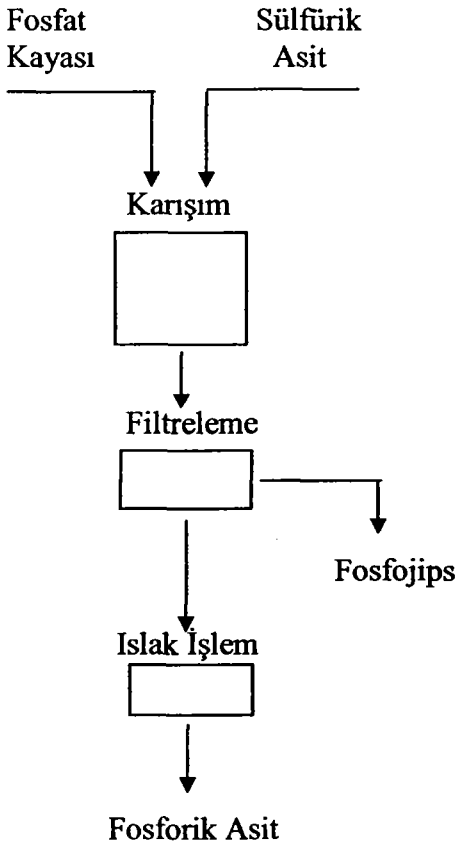
2. FOSFOJİPS VE KULLANIM ALANLARI

2.1. Fosfojipsin Elde Edilişi

Yerkabuğu orjinli uranyum (^{238}U), radyum (^{226}Ra) ve toryum (^{232}Th) doğal radyoaktif çekirdekler, fosfatlı kayalar gibi bazı bölgelerde normal seviyeden daha yüksek oranda bulunurlar (1). Fosfojips; fosfatlı kayaların sülfürik asitle tepkimesi esnasında ortaya çıkan bir yan üründür (7).



Fosfojips; jips ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), fosfat, florid, organik maddeler ve alkalilerden oluşmaktadır.



Şekil 2.1. Fosforik asit üretim işlemi (7)

2.2. Fosfojipsin X-Işını Spektrometresiyle Elementel Analizi

Fosfojipsin elementel analizi ANAEM, Nükleer Fizik Bölümünde, enerji dağılımı X-Ray Fluorescence Spektrometresi (Compact Oxford ED2000 EDXRF 50 W, 1000 mA, 190 eV'tan 5,9 keV'a kadar çözünürlüklü Si(Li) dedektör) kullanılarak yapılmış ve 60 örneğin analiz sonuçlarının ortalaması çizelge 2.1.'de verilmiştir (3).

Çizelge 2.1. Fosfojipsin XRF metoduyla elementel analiz sonuçları.

Elementler (Kütlece yüksek miktarda)	Derişim (g.kg ⁻¹)
Ca	219.4
S	197.8
P	5.3
Al	2.3
Fe	1.2
F	Gözlenemedi
Elementler (Kütlece düşük miktarda)	Derişim (mg.kg ⁻¹)
K	255.5
Ba	129.5
Ti	116.2
Sr	90.0
Y	81.3
Zn	65.3
Cu	28.0
Cr	23.0
Ni	16.8
Zr	10.0
Mo	4.4

2. 3. Kullanım Alanları

Fosfojip çoğu ülkede, kalsiyum bakımından zengin olduğundan (Çizelge 2.1.) daha iyi ürün almak için toprakta katkı maddesi olarak kontrollü kullanılmaktadır. Fosfojipsin; kağıt endüstrisi, çimento sanayi, toprak ıslahı, cam ve seramik ürünler için camsılaştırma (çatı, kiremit vb.), yol dolgusu, çukurların doldurulması, yapı malzemeleri vb (9). kullanım alanları vardır.

Radyoaktivite sınırı altında olan fosfojipsten pek çok ürün yapılabilir. Fakat yüksek aktiviteli atıkların depolanması ve kullanılması, ekonomik olmaması ve çevresel nedenlerden dolayı zordur. Kaygılardan biri de radyonüklitlerin biyolojik yollardan yaşayan organizmalara geçmesidir. Kalsiyum'a kimyasal benzerliği nedeniyle ^{226}Ra öncelikle kemiklerde birikmeye yatkındır. ^{226}Ra , α yayınlayarak bir soygaz olan ^{222}Rn ($t_{1/2}$: 3,8 gün)'a dönüşür. Yüksek derişimli uranyum serisi çekirdekler; özellikle ^{226}Ra (yarı ömrü 1620 yıl) içerdiği için fosfojipsin çok dikkatli kullanılması gerekmektedir .

Fosfatlı gübre üreten fabrikaların yanında istiflenmiş milyonlarca ton fosfojips yığınları bulunmaktadır. Sadece Samsun Gübre ve Fosforik Asit Fabrikası'nın yanında 13 milyon ton yığın halinde fosfojips istiflenmiştir. Türkiye'de Bandırma, İzmit ve Mersin'de de gübre fabrikaları vardır.

3. TEMEL KAVRAMLAR VE KURAM

3.1. Radyoaktivite ve Bozunum Süreçleri

1800'lerin sonlarına doğru, Alman Fizikçisi Wilhelm Röntgen, bir elektron demetinin cama çarptığında, yeni ve garip bir ışının oluştuğunu keşfetti. Bu ışınlar bilinmeyen bir yapıda olduklarından, "X ışınları" olarak isimlendirildi. Bu keşiften iki ay sonra, Fransız Fizikçi Henri Becquerel, değişik elementleri siyah foto grafik plakalarla sardığı bir deney yaptı. Amacı, bu elementlerin ışın yayıp yaymadıklarını öğrenmekti. Becquerel, uranyum gibi bir kaç elementin, herhangi bir enerji girişi olmadan enerjili ışınlar yaydıklarını buldu. Becquerel'in deneyinin anlamı; bazı elementlerin enerjili X ışınları yaymalarından sorumlu olduklarıdır. Bu da göstermektedir ki, bazı elementler doğal olarak kararsızdırlar. Çünkü bu elementler, değişik enerji çeşitlerini kendiliğinden salmaktadırlar. X ışınları gibi enerjili parçacıklar kararsız atomların bozunumlarından yayınlanmaktadır. Becquerel'den sonra Fransız Fizikçiler Pierre ve Marie Curie de radyoaktivite üzerine araştırma yapmışlardır. Uzun seneler süren çalışmalar sonunda, radyoaktif olaylardan (radyasyon) oluşan birkaç değişik parçacık sınıfı tanımlamışlardır. Benzer radyoaktif özellikleri bulunan diğer elementler üzerinde çalışmaya başlamışlar ve 1898 yılında radyumu keşfetmişlerdir. Radiumun keşfi uranyumun sistematik incelenmesine yol açmış, bunun sonucunda da yeni radyoaktif elementler bulunmuştur.

Atomların çekirdeklerini teşkil eden nükleonların oranı hafif elementlerde bir iken, ağır elementlere doğru gidildikçe nötronlar lehine artmaya başlar ve bir noktadan sonra çekirdek içindeki kararlılık tamamen bozulur. Radyonüklit adı verilen bu tür çekirdekler bol miktarda nükleonları nedeniyle kararsızdırlar ve bünyelerindeki fazla enerjiyi radyasyon (elektromanyetik veya parçacık) yayarak düzenlemeye çalışırlar. İşte çekirdeklerin gerek bu doğal yol, gerekse dışarıdan verilen bir uyarımla bombardımanı neticesinde yapay olarak parçalanmasına radyoaktivite veya radyoaktif parçalanma adı verilmektedir.

3.2. Doğal Radyoaktif Seriler

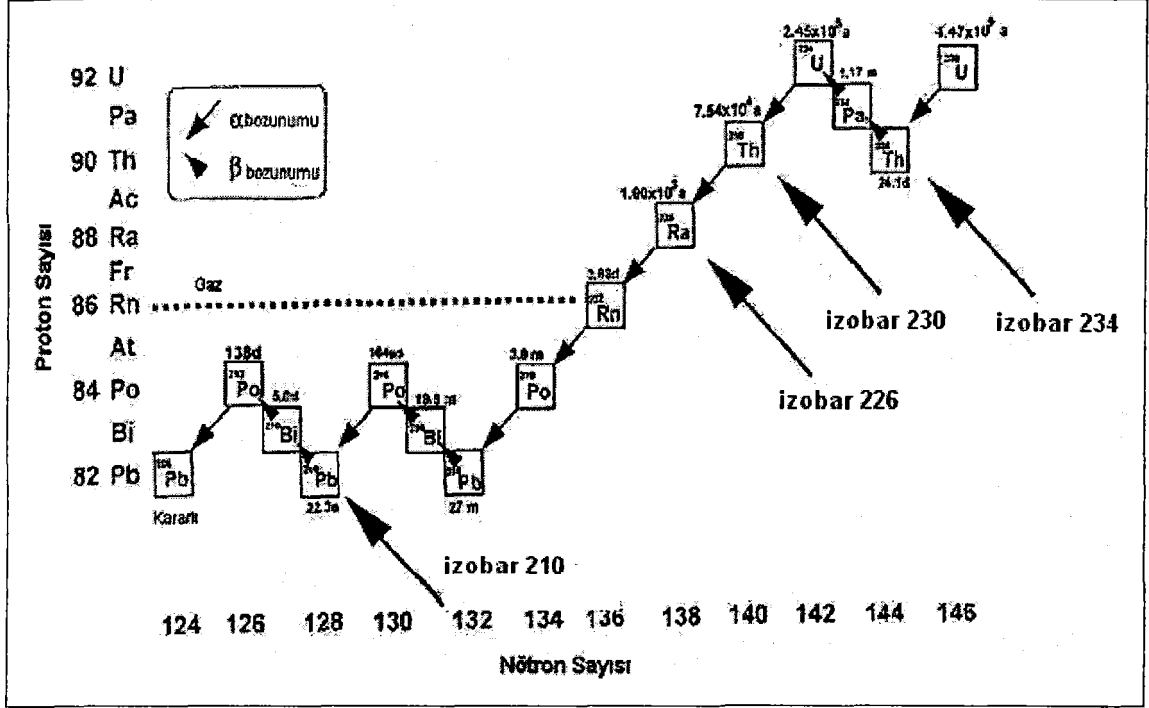
15 milyar yıl önce gerçekleşen Büyük Patlama (Big Bang) sonucunda oluşan hidrojen ve helyumdan; çok sonra demir, karbon, oksijen, silisyum bakımından zengin maddeler ve ağır elementler oluşmuştur. Büyük Patlama'dan güneş sisteminin yoğunlaşmasına kadar geçen 10 milyar yıl boyunca hidrojen ve helyum; yıldızlar, novalar ve süpernovalardaki ağır elementleri oluşturmuştur. Bu şekilde oluşan elementlerin büyük bir kısmı radyoaktiftir fakat o zamandan beri kararlı çekirdeklere bozunmaktadırlar. Bazı radyoaktif elementlerin yarı ömrü dünyanın yaşına kıyasla çok uzundur ve bugün hala bunların radyoaktiflikleri gözlenebilmektedir. Bu radyoaktiflik, aslında çevremizin esas kısmını oluşturmakta ve muhtemelen dünya benzeri gezegenlerin iç sıcaklığından sorumludurlar (1).

Doğal radyoaktif çekirdekler α ve β yayınlayarak Z ve A sayılarını sonuçta kararlı ve hafif çekirdeğe ulaşıncaya kadar azaltırlar. Bozunma işlemi çekirdeği, zincirin en uzun ömürlü üyesine götürme eğilimindedir. Eğer bu çekirdeğin ömrü dünyanın yaşından daha büyükse aktiflik bugünde gözlenebilecektir. Dört doğal radyoaktif seriden, (toryum ${}_{90}^{232}\text{Th} \rightarrow {}_{82}^{208}\text{Pb}$, uranyum ${}_{92}^{238}\text{U} \rightarrow {}_{82}^{206}\text{Pb}$, aktinyum ${}_{92}^{235}\text{U} \rightarrow {}_{82}^{207}\text{Pb}$, (Şekil 3.1., Şekil 3.2., Şekil 3.3.) Neptinyum serisinin en uzun ömürlü üyesinin yarı-ömrü, yerin oluşumundan bu güne kadar geçen süreye oranla çok küçük olduğundan bu serideki elementler doğal maddelerde gözlenmez.

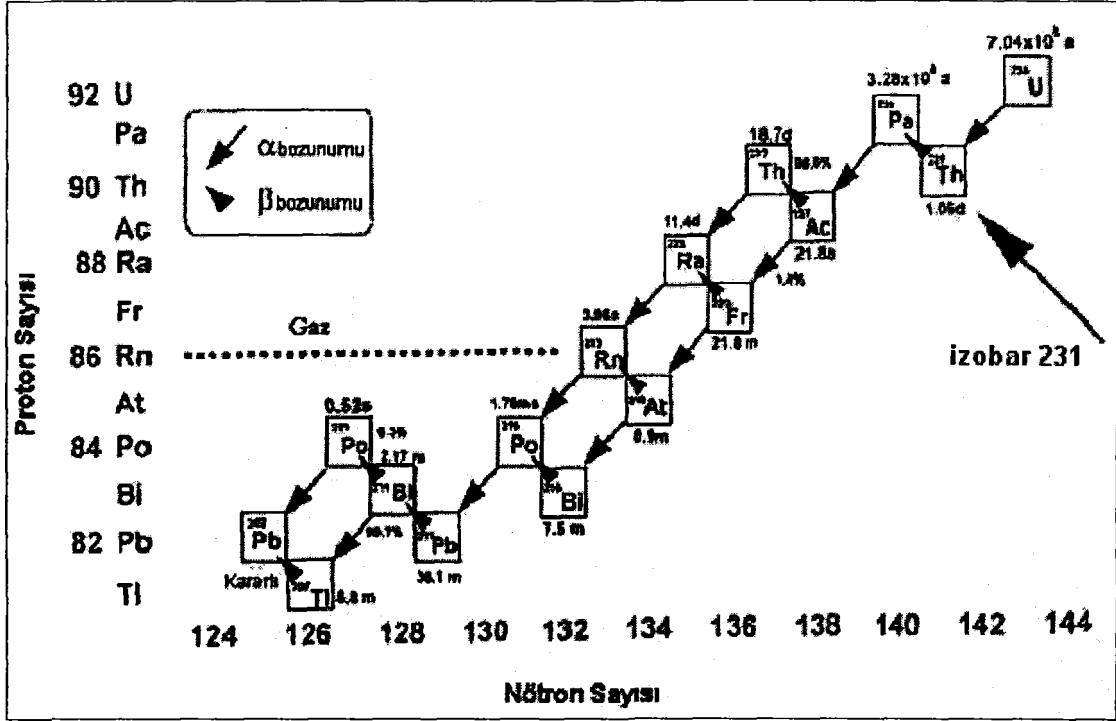
Doğada rastladığımız elementlerin büyük bir kısmının atom numarası 81-92 arasındadır. Bunların dışında atom numarası 81'den küçük radyoaktif elementlerde mevcuttur. Bunlardan bazılarına ${}^3\text{H}$, ${}^{14}\text{C}$, ${}^{40}\text{K}$, ${}^{37}\text{Rb}$, ${}^{90}\text{Sr}$, ${}^{142}\text{Ce}$, ${}^{147}\text{Sm}$, ${}^{176}\text{Lu}$, ${}^{190}\text{Pt}$ ve ${}^{204}\text{Pb}$ örnekler verilebilir.

Bu radyoaktif izotoplar çevremizdeki yoğunlaşmış kaya ve minerallerde bulunurlar. Genellikle minerallere sıkıca bağlıdırlar ve sağlığınıza zararlı değildirler. Ancak radyoaktif serideki radon gazının, yeryüzündeki çatlaklardan ve kayalardan yüzeye ulaşım solunmasıyla sağlık yönünden sakıncalı durumlar ortaya çıkabilir. İnşaat

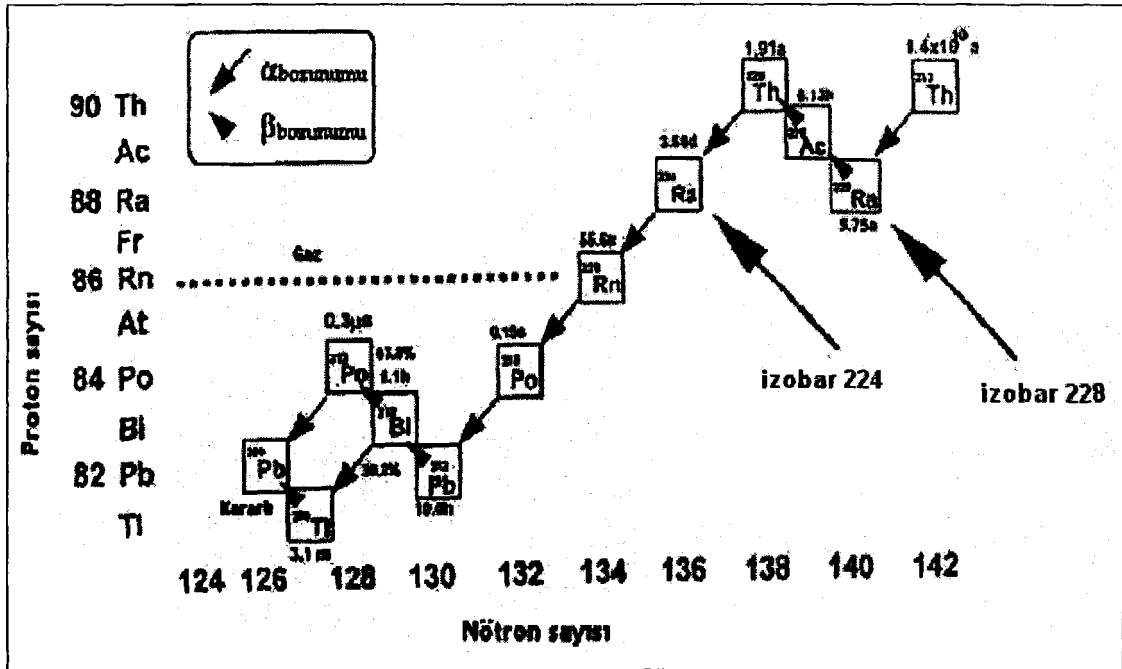
sektöründe kullanılan bazı radyoaktif çekirdekler içeren yapı malzemelerinden de radon gazı çıkış olasılığı vardır.



Şekil 3.1. ^{238}U bozunum serisi ve radyonüklitlerin yarı-ömürleri



Şekil 3.2. ^{235}U bozunum serisi ve radyonüklitlerin yarı-ömürleri



Şekil 3.3. ^{232}Th bozunum serisi ve radyonüklitlerin yarı-ömürleri

3.3. Zincirleme Bozunum Süreci

Yapılan deneysel çalışmalar sonucunda radyoaktif bozunumun üstel bir yasaya göre değiştiği gözlenmiştir. Bu yasanın türetilmesi de; hangi anda hangi atomun bozunuma uğrayacağını bilinmesinin mümkün olmadığı, rastgele bir tabiata sahip olması kabul edildiğinde mümkündür. Bu yasaya göre hangi çekirdeğin ne zaman bozunuma uğrayacağı bilinemez. Ancak toplam çekirdeklerin zamana bağlı olarak bozunma olasılıkları, buna bağlı olarak sayıları bulunabilir.

Bozunuma uğramış bir çekirdeğin gelecek bir saniye içindeki bozunma olasılığı λ ile gösterilir ve $\lambda \approx 1$ olarak alınır, istatistik kuramın temel varsayımı; λ 'nın zamandan ve mevcut diğer çekirdeklerin tip ve sayılarından bağımsız olmasını gerektirir. Bu durumda bir dt zaman aralığında her bir atomun bozunma olasılığı $P(t)=\lambda \cdot dt$ ile verilir. Verilen bir t zamanında şayet N sayıda bozunuma uğramamış atom varsa, dt gibi küçük bir zaman aralığında bozunuma uğrayacakların sayısı;

$$dN = -\lambda N dt \quad [3.1]$$

olur. Bu eşitlikten anlaşılacağı üzere kısa bir dt süresindeki bozunma sayısı, bozunmamış atomların sayısı (N) ve dt zaman aralığıyla doğru orantılıdır. Eksi işareti, (t) arttıkça N 'nin azaldığını göstermektedir. Bu taktirde bağıntı;

$$-\frac{dN}{N} = \lambda dt \quad [3.2]$$

şeklinde yazılıp, $t = 0$ iken radyoaktif atomların sayısı N_0 olduğu kabul edilerek integral alınır;

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad [3.3]$$

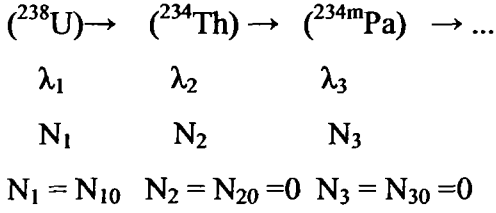
elde edilir. Burada $N(t)$; t anındaki mevcut radyoaktif atomların sayısını λ ise radyoaktif çekirdeklerin bozunma ihtimalini veya kısaca bozunum sabitini ifade

eder. “Eş. [3.3]”teki radyoaktif atomların sayısı yerine aktivite (A) yazılırsa:

$$A = \lambda N_0 e^{-\lambda t} = \lambda N \quad [3.4]$$

eşitliği elde edilir. Böylece bir örneğin aktivitesi; A, radyoaktif atomların sayısına (N) ve bozunma sabitine (λ) bağlı bir niceliktir.

Herhangi bir t anında λ_i bozunum sabitiyle ürün çekirdeğe bozunacak ana çekirdek atom sayısı N_i olsun. Ürün çekirdek atomlarının sayısı N_2 ile gösterelim. Bunlarda λ_2 bozunum sabitiyle başka bir çekirdeğe bozunacaklardır. λ_3 bozunum sabitiyle bozunacak çekirdeklerin sayısı ise N_3 olsun. Bunlara ilaveten t = 0 iken $N_1 = N_{10}$, $N_2 = N_{20}$ ve $N_3 = N_{30}$ olduğu kabul edilirse, zincirleme radyoaktif parçalanma aşağıdaki gibi temsil edilebilir.



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

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad [3.5]$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad [3.6]$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \quad [3.7]$$

bozunma eşitlikleri yazılır. Bu ifade N_1 'in bozunma hızını verir. “Eş. 3.6” N_2

tipindeki nüklitlerin $\lambda_1 N_2$ hızıyla üretildiklerini $\lambda_1 N_2$ hızıyla bozduklarını göstermektedir. “Eş. 3.7” ise N_3 çekirdeklerinin üretim hızını verir.

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad [3.8]$$

eşitliğinin $t=0$, $N_1 = N_{10}$ şartlarıyla integrali alındığında;

$$N_1 = e^{-\lambda_1 t}$$

bu değer “Eş. 3.6” da yerine konulduğunda;

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 N_2 \quad [3.9]$$

veya

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad [3.10]$$

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

$$e^{\lambda_2 t} \frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 e^{\lambda_2 t} = \lambda_1 N_{10} e^{-\lambda_1 t} e^{\lambda_2 t} \quad [3.11]$$

veya

$$\frac{d}{dt} (N_2 e^{\lambda_2 t}) = \lambda_1 N_{10} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} \quad [3.12]$$

bulunur. Bu eşitliğin integrali alındığında;

$$N_2 e^{\lambda_2 t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{(\lambda_2 - \lambda_1)t} + C \quad [3.13]$$

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

$$C = -\frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} \quad [3.14]$$

elde edilir. C'nin bu değeri "Eş.3.13" de yerine konulup her iki taraf $e^{\lambda_2 t}$ 'ye bölüldüğünde;

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad [3.15]$$

olur. Benzer şekilde [3.8] bağıntısı t = 0 da $N_3 = N_{30} = 0$ şartıyla çözümlerse,

$$N_3 = N_{10} \left[1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} \right] \quad [3.16]$$

bulunur. Böylece [3.8], [3.15], [3.16] eşitlikleri yardımıyla herhangi bir t anında mevcut olan atomların sayısı bulunabilir. Bu eşitlikler, t = 0 da $N_1 = N_{10}$ ve $N_{20} = N_{30} = 0$ özel durumları için türetildi. Bundan sonra N_{20} ve N_{30} , t = 0 iken sıfır olmasalar bile N_1 , N_2 ve N_3 için genel bağıntılar aşağıdaki şekilde türetilirler.

$$N_1 = N_{10} e^{-\lambda_1 t} \quad [3.17]$$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{20} e^{-\lambda_2 t} \quad [3.18]$$

$$N_3 = N_{30} + N_{20}(1 - e^{-\lambda_2 t}) + N_{10} \left(1 + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_2 t} - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} \right) \quad [3.19]$$

şeklinde olacaktır. “Eş. 3.17”, “Eş. 3.18” bağıntılarıyla örneğin; ^{238}U , ^{234}Th ve $^{234\text{m}}\text{Pa}$ nüklitlerinin zincirleme bozunma durumunda, $A(^{238}\text{U}) = \lambda_1 N_1$, $A(^{234}\text{Th}) = \lambda_2 N_2$ ve $A(^{234\text{m}}\text{Pa}) = \lambda_3 N_3$ aktivitelerinin zamanla değişimini verir.

4. GAMA SPEKTROMETRESİ VE AKTİVİTE ÖLÇME YÖNTEMLERİ

Çevresel örneklerdeki doğal radyoaktif serilere ait radyonüklitlerin belirlenmesi için bir çok radyoanalitik yöntem kullanılmaktadır. Bunlardan en yaygın olanları; gama spektrometrisi, alfa spektrometrisi, sıvı sintilasyon sayımı ve orantılı sayaçlar ile α - β toplam sayımı gibi tekniklerdir. Sintilasyon NaI(Tl) dedektörü (verimi yüksek, çözme gücü düşük) ve yarı iletken (HPGe; verimi düşük, çözme gücü yüksek) dedektörlerin kullanıldığı gama spektrometrik yöntem, radyokimyasal ayırma işlemlerine gerek duyulmadan doğrudan, tahribatsız, hızlı ve radyonüklitleri aynı anda ölçme imkânı sağlamaktadır.

Yarıiletken dedektörlerle foton ölçümlerinin amacı, kaynak tarafından yayınlanan fotonların sayısı ve enerjilerini belirlemektir. Çoğu uygulamada bu bilgi kaynak içinde bulunan radyonüklitlerin tanımlanması ve kaynak içindeki bu radyonüklitlerin aktivitesini bulmak için kullanılmıştır. Ölçümde ilgilenilen nicelik foton enerjisi olabileceği gibi bir foton grubunun bağıl yayınlanma oranı olabilir. Gama spektrometrisinde esas amaç, enerji soğurmaya karşılık gelen darbe yüksekliği spektrum piklerinin analizidir.

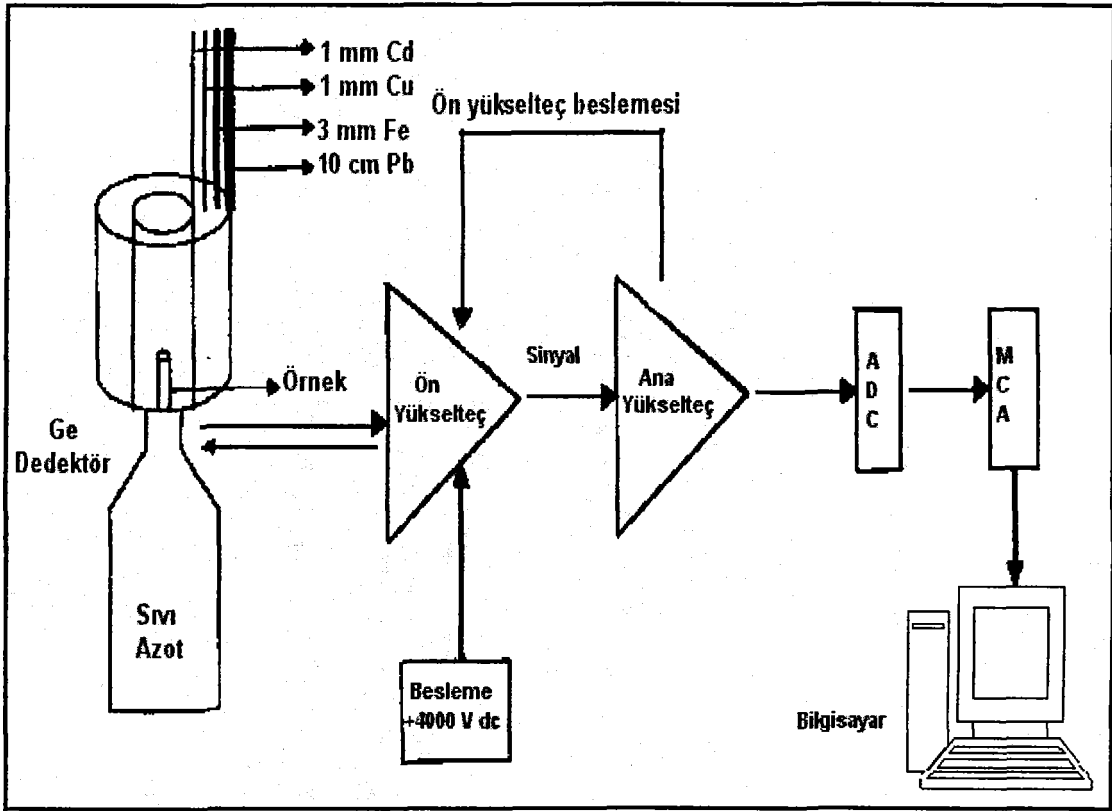
4.1. Gama Spektrometresi

Yüksek saflıkta germanyum (HPGe), lityum sürüklenmiş germanyum (Ge(Li)) gibi bir yarıiletken veya talyum aktive edilmiş sodyum iyodür (NaI(Tl)) gibi sintilasyon dedektör ile birlikte bir dizi elektronik modül ve çok kanallı analizörün (MCA) uygun kombinasyonuna gama spektrometresi denir (Şekil 4.1.). Gelişen teknoloji sonucu yüksek saflıkta germanyum (HPGe, p-tipi veya n-tipi) yarıiletken dedektörler (10^{10} atom/cm³ saflıkta kristaller) yaygın olarak kullanılmaktadır (10).

Bir gama spektrometresine gelen γ -ışınları, dedektör içindeki germanyum kristali ile etkileşerek (X-ışınları için Si), bir elektron deşik çifti oluşturur ve kristal içinde bir elektrik akımı meydana getirirler. Germanyum kristalde bir elektron deşik çifti oluşturmak için gerekli enerji 2,96 eV'tur. Oluşan elektronlar ve deşikler, kristale

dedektörün sıvı azotsuz kalması durumunda dedeksiyon özelliğini kaybetme riskide vardır. Çünkü azot sıcaklığının sağlanamadığı bir anda Ge içine sürüklenmiş lityum iyonlarının kaybedilmesi ihtimali yüksektir. Bu temel nedenden dolayı, oda sıcaklığında muhafaza edilebilen ve germanyum atomlarının saflığı 10^{10} atom/cm³ derecesinde olan HPGe yarı iletken dedektörlerin kullanımı tercih edilmektedir.

HPGe dedektör sıvı azot sıcaklığında (77 °K) çalıştırılır ve bu şekilde gürültü sinyalinin en az olduğu durum sağlanır. Dolayısıyla oda sıcaklığından ileri gelebilecek termal etkiler giderilmiş olur.



Şekil 4.1. Dikey geometrili gama spektrometresi

Radyoaktivite ölçümlerinde biri yatay diğeri dikey geometrili iki p-tipi HPGe dedektör kullanıldı. Dikey geometride kullanılan dedektörün bağıl verimi %12.4 ve çözünürlüğü ⁶⁰Co 'ın 1332.5 keV 'u için 2 keV'tur. Çizelge 4.1.'de verilen yatay

geometrilik dedektörün bağıl verimi % 11,7 ve çözünürlüğü aynı enerji için 1.8 keV'tur.

Deney düzeneği; Çizelge 4.1.a ve Çizelge 4.1.b'de özellikleri verilen iki p-tipi HPGe dedektör, Canberra 3105 model yüksek voltaj güç kaynağı, Canberra 2001 model bir önyükseltici, Canberra 2021 model spektroskopi yükselticisi, Canberra 8075 model bir ADC, çok kanallı analizörler (Canberra 35 ve Canberra 95) ve bilgisayarlardan oluşmaktadır. Dedektöre ulaşan doğal fon radyasyonunu en aza indirmek için, dedektör zırhlanmıştır. Dedektörler, demir iskeletler içine yerleştirilen 100 mm kalınlıkta kurşun zırh içine konulmuştur. Bu zırh da Pb-X ışınlarını azaltmak için 1 mm Cu ve 1 mm Cd levhalarla kaplanmıştır. Zırhlardan birinin kapağı kaldırma diğerininki ise sürgü sistemiyle açılıp kapatılabilmektedir.

Dedektör enerji ve verim kalibrasyonlarında; dedektör kalibrasyonlarında ve analizlerde standart metot olarak kullanılan ASTM-E181 kullanıldı (11). Gama sayım sistemi uranyum ihtiva eden bir geometrideki referans standartlar ile kalibre edilmiştir.

Çizelge 4.1.a. Yüksek saflıkta germanyum dedektörün özellikleri.

Dedektör modeli	Canberra HPGe Detector
Bağıl verim (25 cm kaynak-dedektör mesafesinde, 7,62 cm x 7,62 cm NaI(Tl) sintilasyon dedektör verimine göre)	%12,4
Enerji ayırma gücü ve pik/Compton oranı ⁶⁰ Co'nun 1332,5 keV enerjideki yarı maksimumdaki tam genişliği	1,69 keV ve 42,1:1
Dedektör geometrisi ve kristal tipi	Kapalı uçlu, eş eksenli ve p-tipi Ge
Çapı ve yüksekliği	45 mm ve 36 mm
Pencere malzemesi, kalınlığı ve aktif yüzey alanı	Al, 0,5 mm ve 15,9 cm ²
Pencereden uzaklık	5 mm
Kriyostat ve azot kabı	Dikey geometrilik

Çizelge 4.1.b. Yüksek saflıkta germanyum dedektörün özellikleri.

Dedektör modeli	Canberra HPGe Detector
Bağıl verim (25 cm kaynak-dedektör mesafesinde, 7,62 cm x 7,62 cm NaI(Tl) sintilasyon dedektör verimine göre)	%11,7
Enerji ayırma gücü ve pik:Compton oranı ⁶⁰ Co'nun 1332,5 keV enerjideki yarı maksimumdaki tam genişliği	1,69 keV ve 44,1:1
Dedektör geometrisi ve kristal tipi	Kapalı uçlu, eş eksenli ve p-tipi Ge
Çapı ve yüksekliği	43,5 mm ve 38 mm
Pencere malzemesi, kalınlığı ve aktif yüzey alanı	Al, 5 mm ve 14,6 cm ²
Pencereden uzaklık	5 mm
Kriyostat ve azot kabı	Dikey geometrili

4.2. Pik Alanı Hesabı

Tek pikin net alanı (Şekil 4.3.)

$$S = G - B \quad [4.1]$$

ile elde edilir. Burada;

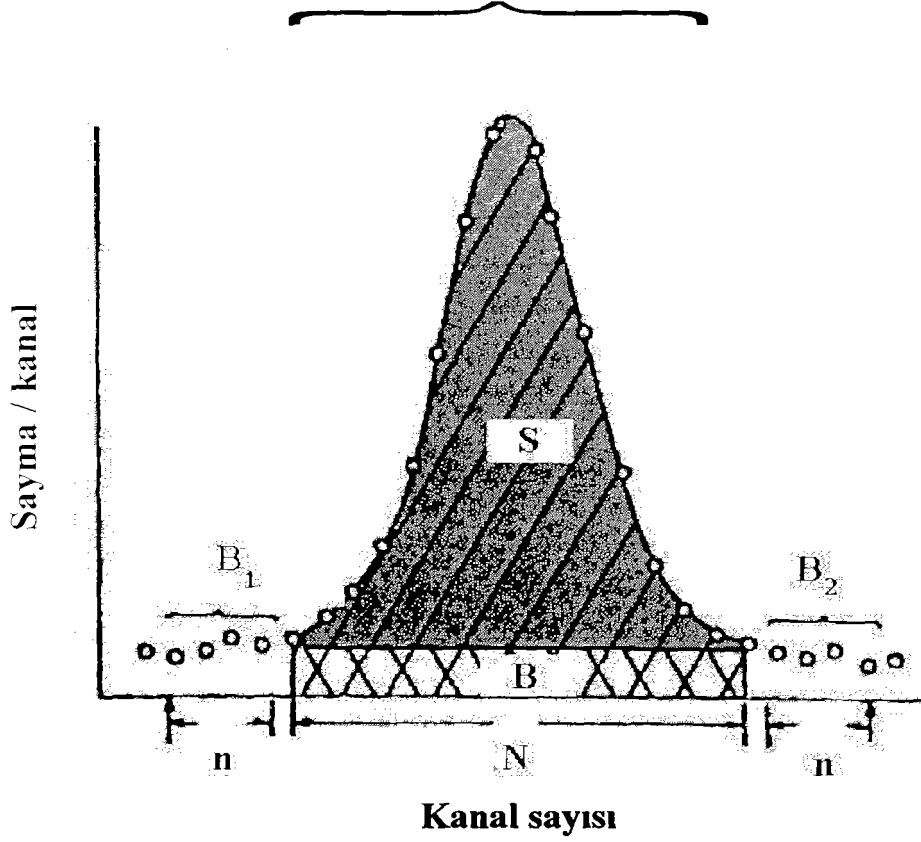
S: Net pik alanı,

G: İlgili bölgedeki toplam sayım sayısı,

B: Doğal fondur. Şekil 4.3.'te gösterilen pikte B alanı,

$$B = \left(\frac{N}{2n} \right) (B_1 + B_2) \quad [4.2]$$

eşitliğinden elde edilir. Burada ;



Şekil 4.3. Pik alanı hesabı (12)

N: İlgili pikteki kanalların sayısı,

n: Pikin sağındaki ve solundaki doğal pik kanal sayısı ,

$$B_1 = \left(\sum_{a=x_1}^{x_1+n-1} x_a \right) / n \quad \text{fotopikin sol tarafındaki doğal fon sayımının ortalaması,}$$

$$B_2 = \left(\sum_{a=x_2-n+1}^{x_2} x_a \right) / n \quad \text{fotopikin sağ tarafındaki doğal fon sayımının ortalaması,}$$

Net pik alanındaki belirsizlik Şekil 4.3.'de gösterilen bir fotopik için aşağıdaki formülle hesaplanır.

$$\sigma = \sqrt{G + \left(\frac{N}{2}\right)^2 \frac{(B_1 + B_2)}{n}} \quad [4.3]$$

σ : Standart sapma

G : Pikteki toplam alan (sayım)

N : İlgilenilen pikteki toplam kanal sayısı

n : Seçilen uç kanal sayısı (4 veya 2)

B₁ ve B₂ daha önce tanımlanmıştı. Hesaplanan pik alanındaki sayım istatistiğini yeterli derecede vurgulamak için, “yüzde hatası” aşağıdaki formülle hesaplanır:

$$\% \text{ Hata} = m\sigma/N_p \quad [4.4]$$

N_p: Pik alanı

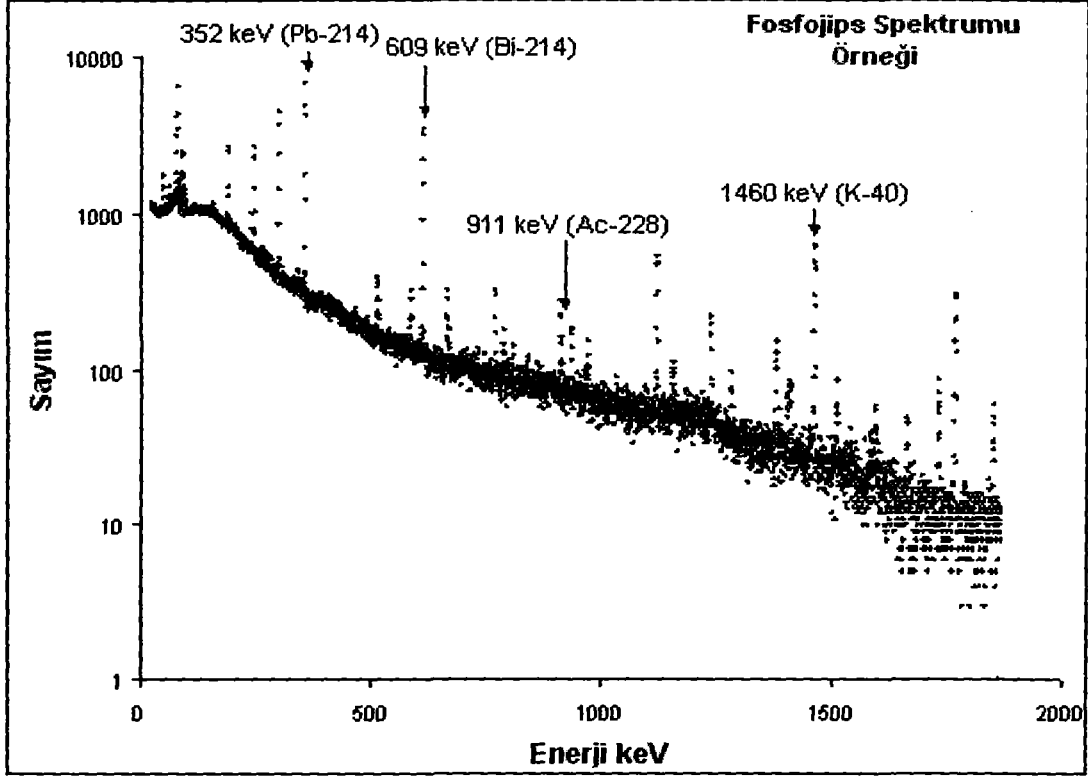
σ : Standart sapma

m : Güven katsayısı

4.3. ²²⁶Ra, ²³²Th ve ⁴⁰K Radyonüklitlerinin Analizinde Kullanılan Fotopiklerin Seçimi

Temiz Analitik Pik: Analiz edilecek örneklerde varolabilen uranyum-radyum bozunum zincirine veya diğer doğal radyoaktif serilere ait radyonüklitlerin yayınladıkları gamaların katkısının olmadığı (veya çok az olduğu), bunlar ile girişimde bulunmayan ve gama yayınlanma olasılıkları yüksek olan pik anlamına gelmektedir.

Fosfojips numunelerinin analizinde ²²⁶Ra aktivitesi için; ²¹⁴Bi’ün 609 keV lik fotopiki ve ²¹⁴Pb ‘ün 351 keV’lik fotopiki kullanılmıştır (13). ²²⁸Ra için ²²⁸Ac’un 911 keV enerjili fotopiki kullanılmıştır. ²³²Th için ²⁰⁸Tl’in 583 keV enerjili fotopiki kullanılmıştır. ⁴⁰K aktivitesi için 1460 keV enerjili fotopik kullanılmıştır (14).



Şekil 4.2. MCA'dan alınmış bir fosfojips için gama spektrumu

4.4. Aktivite Ölçme Yöntemleri

4.4.1. Doğrudan ölçme

Dedektörün mutlak verimi veya tüm enerji üzerinden fotopik verimi; kaynak dedektör mesafesine ve kaynağın geometrisine bağlı olarak yarılanma süreleri, aktiviteleri ve gama yayınlanma olasılıkları kesin olarak bilinen, farklı geometrilerdeki (nokta, ampul, çeşitli hacimlerdeki Marinelli kabı) katı veya sıvı standart kaynaklar kullanılarak istenen enerji aralığında, gama enerjilerinin bir fonksiyonu olarak doğrudan deneysel ölçmeler sonucunda, aşağıda verilen formülle belirlenir.

$$\varepsilon(E) = \frac{n}{t \cdot P_\gamma \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda t_d}} \quad [4.5]$$

Burada;

n : E enerjili fotopikin altındaki net alan (sayım),

t : sayım zamanı,

P_γ : Verilen bir E enerjisindeki gama fotopikin yayınlanma olasılığı,

N_0 : Kaynağın aktivitesi (Bq),

λ : Bozunum sabiti ($\ln 2/t_{1/2}$, $t_{1/2}$: radyonüklitin yarılanma süresi),

t_d : Bozunum süresi. Kaynağın referans tarihinden ölçme işlemi için kullanıldığı tarih arasında geçen süredir.

Çizelge 4.2. Verim kalibrasyonu standardı

Gama Enerjisi (keV)	Radyonüklit	Yarı ömür	Yayınlanma olasılığı (%)	Aktivite (μCi)	Saniyedeki gama çıkışı	Toplam belirsizlik (%)
88	Cd-109	462,6±0,7 gün	3,63	1,437	1,930	3,1
122	Co-57	271,79±0,09 gün	85,6	0,05533	1,752	3,0
159	Te-123m	119,7 ± 0,1 gün	84,0	0,06398	1,988	3,0
320	Cr-51	27,706±0,007 gün	9,86	1847	6,738	3,1
392	Sn-113	115,09±0,04 gün	64,89	0,2767	6,643	3,0
514	Sr-85	64,849±0,004 gün	98,4	0,3899	14,200	3,0
662	Cs-137	30,17±0,16 yıl	85,1	0,2438	7,677	3,0
898	Y-88	106,630±0,025 gün	94,0	0,5472	19,030	3,0
1173	Co-60	5,272±0,001yıl	99,86	0,3055	11,290	3,0
1333	Co-60	5,272±0,001yıl	99,98	0,3055	11,300	3,0
1836	Y-88	106,630±0,025 gün	99,36	0,5472	20,120	3,0

Çizelge 4.3. Verim kalibrasyonu standardı referans bilgileri

Katalog No	EG-ML	Referans Tarihi	1 Ekim 1998	12 : 00
Kaynak No	614-28-2	Toplam Radyoaktivite	5,166	µCi
Kütle	86,1432 gr.	Toplam Radyoaktivite	191,1	kBq

4.4.2. Standartla karşılaştırma yöntemi

Radyoaktif örneklerin aktivitelerinin hesaplanması için alternatif ve güvenilir bir yöntem de, standartla karşılaştırma yöntemidir. Bu yönteme göre, örnekleri ölçeceğimiz geometri ile aynı geometride daha önceden aktivitesi bilinen standartlar ölçülür. Daha sonra aynı geometride hazırlanan örnekler ölçülür. Standartın aktivitesi bilindiği için sayım hızları oranından örneklerin aktivitesi kolaylıkla, daha güvenli bir şekilde hesaplanabilir. Bu yöntemin en önemli avantajı, sayım hızları oranlanırken dedektör verimlerinin birbirini yok etmesi ve bunun sonucunda da verime bağlı hataların ortadan kalkmasıdır.

A_s : Standartın aktivitesi.

A_x : Örneğin aktivitesi.

m_s : Standartın kütlesi.

m_x : Örneğin kütlesi.

t_s : Standartın sayım süresi.

t_x : Örneğin sayım süresi.

ϵ : Dedektör verimi.

f_γ : Gama yayınlanma olasılığı.

Sayım / t = Sayım hızı olarak gösterilirse standartın aktivitesi;

$$A_s = \frac{(\text{Sayım})_s / t_s}{\epsilon f_\gamma m_s} \times 1000$$

[4.6]

$$A_x = \frac{(\text{Sayım})_x / t_x}{\epsilon f_\gamma m_x} \times 1000 \quad [4.7]$$

İki bağıntı birbirine oranlandığında;

$$\frac{A_s}{A_x} = \frac{\frac{(\text{Sayım})_s / t_s \times 1000}{\epsilon f_\gamma m_s}}{\frac{(\text{Sayım})_x / t_x \times 1000}{\epsilon f_\gamma m_x}} \quad [4.8]$$

$$\frac{A_s}{A_x} = \frac{(\text{Sayım})_s t_x m_x}{(\text{Sayım})_x t_s m_s} \quad [4.9]$$

elde edilir. (Sayım/t) = sayım hızı olduğuna göre, ifade yeniden düzenlendiğinde;

$$\frac{A_s}{A_x} = \frac{(\text{Sayım})_s}{t_s} \times \frac{t_x}{(\text{Sayım})_x} \times \frac{m_x}{m_s} \quad [4.10]$$

$$A_s/A_x = (\text{Sayım hızı})_s m_x / (\text{Sayım hızı})_x m_s \quad [4.11]$$

Buradan A_x çekilirse;

$$A_x = A_s \cdot (\text{Sayım hızı})_x m_s / (\text{Sayım hızı})_s m_x \quad [4.12]$$

elde edilir.

Çizelge 4.4., Çizelge 4.5. ve Çizelge 4.6.'da bu metotta kullanılan radyoaktif standartlar verilmiştir. Çizelge 4.7.'de standartların kütle ve sayım süreleri, Çizelge 4.8'de ise standartlarda kullanılan radyoizotopların enerji ve şiddetleri verilmiştir.

Çizelge 4.4. IAEA/RGU-1 (Uranyum standartı)

Element	Derişim
Uranyum	400± 2 µg/g
Toryum	1 µg/g'dan daha az
Potasyum	20 µg/g'dan daha az

Çizelge 4.5. IAEA/RGTh-1 (Toryum standartı)

Element	Derişim
Toryum	800± 16 µg/g
Uranyum	6,3± 0,4 µg/g
Potasyum	0,02± 0,01 %

Çizelge 4.6. IAEA/RGK-1 (Potasyum standartı)

Element	Derişim
Potasyum	44,8± 0,3 %
Uranyum	0,001 µg/g'dan daha az
Toryum	0,01 µg/g'dan daha az

Çizelge 4.7. Standartların kütle ve sayım süreleri.

	IAEA-RGU-1	IAEA-RGTH-1	IAEA-RGK-1
Sayım Süresi	25.782	27.000	50.000
Kütle (g)	65,2066	77,1526	72,818

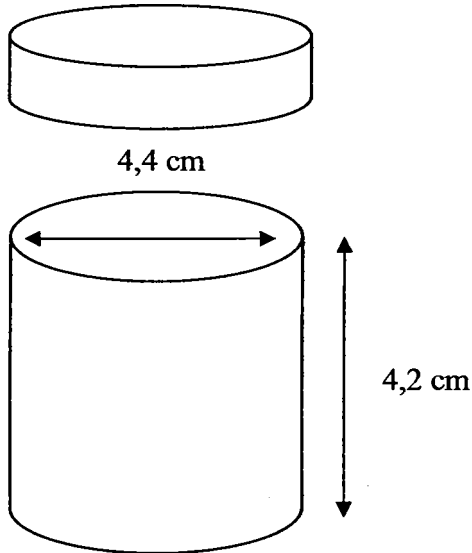
Çizelge 4.8. Standartlarda kullanılan enerjiler ve şiddetleri

Enerji (keV)	İzotop	Şiddet
351,9	Pb-214(Ra)	38,90
583,1	Tl-208(Th)	31,05
609,3	Bi-214(Ra)	43,30
911,1	Ac-228(Th)	27,70
1.460,8	K-40	10,70

5. DENEY VE ÖLÇME İŞLEMİ

5.1. Örneklerin Toplanması ve Analize Hazırlanması

Samsun Gübre ve Fosforik Asit Fabrikasında üretilmiş yığınlar halinde bulunan yaklaşık 60.000 ton fosfojipsten, her bir yığını temsilen 10-15 cm. derinlikten, her biri 1,5-2 kg arasında 60 örnek alınmış, etiketlenerek sızdırmaz polietilen torbalara konulmuştur. Bu örnekler Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi'ne getirilerek, Nükleer Fizik Bölümü, Örnek Hazırlama Laboratuvarı'nda ilk olarak elenmiş sonra fırında 110 °C sıcaklıkta 12 saatte kurutulmuştur. Tekrar elenen örnekler daha önceden aynı geometride spektrometrelerin kalibre edildiği plastik kaplar (Şekil 5.1.) içerisine konularak hassas terazide tartılmıştır. Daha sonra kapların sızdırmazlığı sağlanarak Radyoaktif dengeye erişmesi için 4 hafta bekletilmiştir.



Şekil 5.1. Kalibrasyon ve ölçümler için kullanılan plastik örnek kabı.

5.2. HPGe Dedektörün Mutlak Verim Kalibrasyonu

%12.4 verimli HPGe dedektöründe, standart ile değişik mesafelerden ölçülerek her mesafe için ortalama veriler bulunmuştur (Çizelge 5.1.). Deneysel olarak bulunan veriler eğriye uyarlanarak dedektörün mutlak verim eğrisi elde edilmiştir (Şekil 5.2.).

Çizelge 5.1. Verim kalibrasyonu verileri

Radyoizotop	Enerji (keV)	Deneyisel	Verim Fit
Cd-109	88,03	0,048220	0,0480420
Co-57	122,06	0,049872	0,0505130
Te-123m	159	0,044386	0,0441320
Sn-113	255,06	0,030808	0,0286650
Cr-51	320,08	0,019779	0,0221430
Sn-113	391,69	0,017221	0,0173580
Cs-137	661,66	0,009981	0,0092890
Y-88	898,02	0,005383	0,0053460
Co-60	1173,24	0,004702	0,0048050
Co-60	1332,5	0,003533	0,0035920
Y-88	1836,01	0,048220	0,0480420

Deneyisel olarak bulunan veriler uygun bir fonksiyona uyarlanırsa;

$$Y = c_0 \ln x + \sum_{i=1}^4 c_i \frac{\ln(x^{i+1})}{x} \quad [5.1]$$

elde edilir. Fonksiyondaki sabitlerin değerleri;

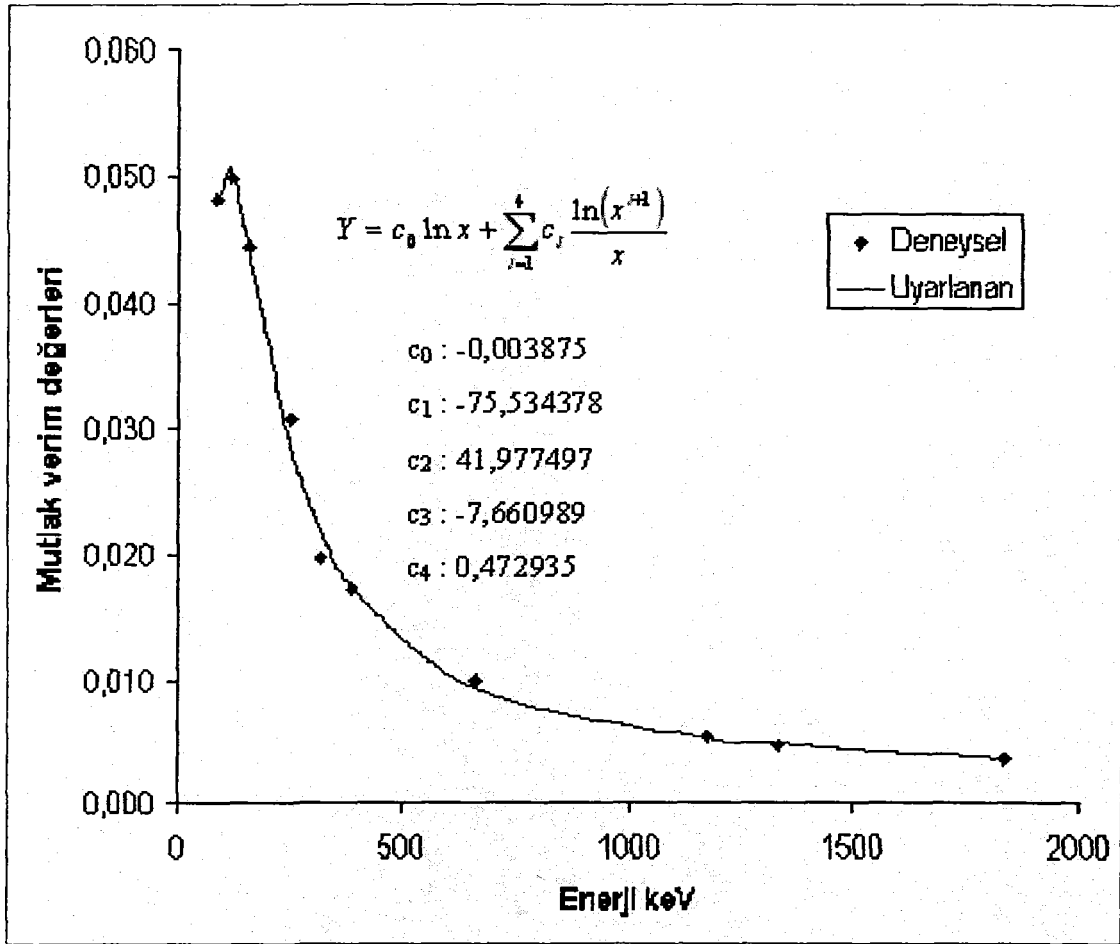
$$c_0 : -0,003875$$

$$c_1 : -75,534378$$

$$c_2 : 41,977497$$

$$c_3 : -7,660989$$

$$c_4 : 0,472935$$



Şekil 5.2. %12,4 Bağıl verimli HPGe dedektörün mutlak verim eğrisi

5.4. Ölçme İşlemi

Fosfojipsin aktivitesinin ölçümü iki farklı yöntemle yapılmıştır. Birinci yöntemde fosfojipsler gama spektrometresinde verim kalibrasyonu yapılarak doğrudan ölçmeyle, 50 örnek, plastik örnek kaplarında her biri 80.000 saniye sayım süresince spektrumları kaydedildi. Sayım sonuçları çok kanallı analizöre aktarılarak ilgili pikler seçilmiş sonra spektrum verileri bilgisayar ortamına aktarılarak radyonüklitlerin aktiviteleri hesaplanmıştır.

İkinci yöntemde örnekler standartla karşılaştırma yöntemiyle ölçülmüştür. Bu yöntemde önce aktiviteleri bilinen aktif uranyum, toryum ve potasyum standartları ölçüm yapılacak geometriye göre hazırlanarak dedektöre uygun

geometride yerleřtirilmiř ve gama spektrumları elde edilmiřtir. Standartların sayım hızları bulunmuř sonra aynı geometride hazırlanan 30 örneęin her biri için 80.000 saniye sayım süresi uygulanmıřtır. Spektrumlar ilgili radyonüklitler analizörde seçilerek, bilgisayar ortamına transfer edilmiř, bilgisayar ortamında sayım hızları hesaplanan örnekler standartların sayım hızlarıyla oranlanarak her örneęin özgül aktivitesi hesaplanmıřtır.

6. SONUÇ VE TARTIŞMA

6.1. Doğrudan Ölçme Yöntemiyle Elde Edilen Aktivite Değerleri

Bu çalışmada 50 örnek ilk olarak dedektörlerde doğrudan ölçülmüş, ölçüm sonuçları Çizelge 6.1. ve Çizelge 6.2.'de verilmiştir. Doğrudan ölçüme tüm örneklerde ^{226}Ra gözlenmiştir. Bunun yanında ölçülen 50 örneğin sadece 3 tanesinde ^{232}Th gözlenmiştir. Geri kalan 47 örnekte toryum dedeksiyon limitlerinin (MDA) altına düşmüştür. 11 örnekte ^{40}K gözlenmiş, geri kalan 39 örnekte aktivite gözlenememiştir.

Çizelge 6.1. Doğrudan ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri

	Ra-226				Th-232				K-40			
	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA
1	289,67	±	7,93		8,91	±	1,01		< MDA			32,92
2	464,35	±	8,63		<MDA			7,79	< MDA			32,92
3	426,34	±	8,82		<MDA			8,82	< MDA			30,08
4	420,64	±	9,07		<MDA			9,13	< MDA			30,04
5	417,41	±	7,17		<MDA			5,08	< MDA			18,10
6	408,43	±	8,13		<MDA			8,05	< MDA			27,32
7	444,16	±	9,55		<MDA			9,76	< MDA			33,62
8	365,40	±	7,25		<MDA			5,54	< MDA			17,40
9	365,79	±	7,97		<MDA			5,58	< MDA			18,17
10	397,88	±	8,16		<MDA			8,25	< MDA			29,21
11	356,84	±	8,10		< MDA			5,38	< MDA			20,06
12	531,44	±	9,35		<MDA			7,40	< MDA			12,46
13	376,44	±	8,43		<MDA			5,64	< MDA			20,46
14	437,34	±	9,18		<MDA			4,44	< MDA			20,63
15	511,37	±	10,13		<MDA			10,31	< MDA			37,87
16	425,54	±	9,19		<MDA			5,13	< MDA			21,32
17	505,12	±	9,95		<MDA			13,74	< MDA			31,50
18	339,20	±	7,12		<MDA			3,69	< MDA			13,14

Çizelge 6.2. (Devam) Doğrudan ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri

	Ra-226			Th-232			K-40					
	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA
19	374,53	±	8,03		28,75	±	7,13		< MDA			29,47
20	417,70	±	9,61		<MDA			10,20	< MDA			33,09
21	410,41	±	9,77		<MDA			10,17	< MDA			36,20
22	362,38	±	7,43		<MDA			3,93	<MDA			13,84
23	479,56	±	9,02		<MDA			9,71	< MDA			30,67
24	452,57	±	7,65		<MDA			5,14	98,97	±	25,69	
25	460,68	±	8,85		<MDA			9,25	< MDA			27,47
26	536,36	±	8,85		<MDA			5,61	85,47	±	25,62	
27	531,00	±	9,56		<MDA			9,96	< MDA			32,25
28	541,66	±	8,72		<MDA			5,48	91,51	±	27,64	
29	576,90	±	9,29		<MDA			6,21	71,97	±	40,25	
30	598,54	±	14,37		<MDA			10,27	< MDA			31,61
31	678,73	±	13,71		50,36	±	8,13		74,25	±	28,67	
32	520,75	±	8,54		<MDA			5,40	90,59	±	30,37	
33	535,27	±	10,22		<MDA				< MDA			
34	547,01	±	9,85		<MDA			8,67	< MDA			30,52
35	509,72	±	7,03		<MDA			5,92	109,46	±	18,19	
36	494,83	±	9,60		<MDA			8,85	< MDA			29,58
37	575,82	±	9,79		<MDA			8,66	< MDA			32,39
38	479,87	±	7,10		<MDA			5,44	91,57	±	15,83	
39	458,94	±	8,81		<MDA			9,44	< MDA			29,79
40	492,29	±	7,09		<MDA			5,63	86,74	±	28,05	
41	468,41	±	8,57		<MDA			8,94	< MDA			29,79
42	530,80	±	7,54		<MDA			6,02	97,09	±	20,15	
43	530,61	±	9,87		<MDA			10,91	< MDA			37,69
44	509,29	±	7,28		<MDA			5,72	75,07	±	18,99	
45	471,68	±	7,12		<MDA			9,38	< MDA			29,78
46	505,62	±	7,18		<MDA			8,62	< MDA			28,00
47	581,25	±	9,07		<MDA			10,69	< MDA			36,11
48	465,54	±	6,99		<MDA			9,06	< MDA			28,61
49	532,16	±	7,29		<MDA			8,87	< MDA			34,75
50	499,05	±	9,28		<MDA			8,54	< MDA			31,37

MDA*: Minimum Detectable Activity (Ölçülebilecek en düşük aktivite)

MDA'nın üzerinde ölçülen radyum, toryum ve potasyum aktivitelerinin ortalamaları Çizelge 6.3'te verilmiştir.

Çizelge 6.3. Aktivite gözlenen örneklerin ortalamaları.

Ra-226 (50 örneğin ortalaması)			Th-232 (3 örneğin ortalaması)			K-40 (11 örneğin ortalaması)		
Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			Aktivite (Bq.kg ⁻¹)		
472,27	±	10,09	29,33	±	9,77	88,43	±	3,63

6.2. Standartla Karşılaştırma Yöntemiyle Elde Edilen Aktivite Değerleri

Radon gazının kaçma ihtimaline karşı dört haftadan az olmamak üzere yalıtılarak bekletilmiş örnekler, dedektörlerde ölçülmüş (Çizelge 6.4. ve Çizelge 6.5.). Daha önce aynı geometride ölçülen standartların sayım hızları ile oranlanarak aktiviteleri hesaplanmıştır.

Çizelge 6.4. Standartla karşılaştırma yöntemine göre ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri (Aktivite derişimi cinsinden)

	Ra-226			Th-232			K-40		
	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			Aktivite (Bq.kg ⁻¹)		
			MDA*			MDA*			MDA*
1	661,45	±	9,54	<MDA		6,18	47,81	±	15,64
2	355,73	±	6,44	<MDA		9,09	<MDA		28,45
3	608,16	±	9,24	<MDA		6,27	28,25	±	12,12
4	527,56	±	8,39	<MDA		8,78	<MDA		28,80
5	592,01	±	8,76	<MDA		5,32	87,38	±	17,28
6	477,32	±	8,07	<MDA		8,79	<MDA		27,57
7	590,09	±	9,32	<MDA		6,09	58,91	±	13,93

Çizelge 6.5. (Devam)Standartla karşılaştırma yöntemine göre ölçülen örneklerdeki radyonüklit aktiviteleri

	Ra-226				Th-232				K-40			
	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA*	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA*	Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			MDA*
8	540,44	±	8,57		<MDA			9,15	< MDA			29,75
9	495,98	±	8,63		<MDA			9,57	< MDA			30,46
10	505,73	±	8,55		<MDA			5,57	53,99	±	13,03	
11	529,95	±	8,57		< MDA			6,34	53,30	±	16,19	
12	524,78	±	8,71		<MDA			8,82	< MDA			30,08
13	551,38	±	7,44		<MDA			5,89	59,06	±	14,67	
14	605,31	±	9,02		<MDA			9,01	< MDA			30,60
15	618,11	±	7,85		<MDA			6,45	67,63	±	20,19	
16	586,60	±	8,97		<MDA			8,76	< MDA			30,27
17	562,17	±	7,42		<MDA			9,85	< MDA			30,34
18	443,41	±	8,07		<MDA			5,22	84,45	±	17,84	
19	436,94	±	7,82		9,27	±	3,10		58,80	±	13,50	
20	456,88	±	8,77		<MDA			9,58	< MDA			28,47
21	467,86	±	8,19		<MDA			5,41	71,98	±	15,88	
22	498,53	±	8,72		<MDA			9,12	<MDA			28,84
23	577,76	±	8,96		<MDA			5,90	51,79	±	13,49	
24	558,78	±	7,43		<MDA			8,85	< MDA			32,43
25	566,04	±	8,89		<MDA			5,01	60,03	±	16,93	
26	601,59	±	8,30		<MDA			9,60	< MDA			31,15
27	612,09	±	9,13		<MDA			5,45	53,81	±	14,98	
28	597,61	±	9,02		<MDA			9,38	< MDA			30,33
29	618,11	±	9,83		<MDA			5,63	63,17	±	20,87	
30	632,94	±	9,37		< MDA			9,29	< MDA			28,69

MDA*: Minimum Detectable Activity (Ölçülebilecek en düşük aktivite)

Toplam 30 örnek ölçülmüş, bu örneklerin hepsinde ortalama $546,71 \pm 12,96$ Bq.kg⁻¹ aktivitede ²²⁶Ra gözlenmiştir. ²³²Th, sadece 1 örnekte gözlenmiş, diğer 29 örnekte dedeksiyon limitlerinin altında kaldığından dolayı, ihmal edilebilecek kadar düşük

seviyededir. Örneklerdeki ortalama radyonüklit aktiviteleri aşağıdaki çizelge 6.6.'da verilmiştir.

Çizelge 6.6. Standartlarla karşılaştırma yöntemine göre aktivite gözlenen örneklerin ortalamaları.

Ra-226 (30 örneğin ortalaması)			Th-232 (1 örnek)			K-40 (14 örneğin ortalaması)		
Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			Aktivite (Bq.kg ⁻¹)			Aktivite (Bq.kg ⁻¹)		
546,71	±	12,96	9,27	±	3,10	30,01	±	8,10

Ölçülen 30 örnekten 14 tanesinde ⁴⁰K gözlenmiş, diğer 16 örnekte ⁴⁰K gözlenememiştir. ⁴⁰K aktivitesi 28,25±12,12 Bq.kg⁻¹ ile 87,38±17,28 Bq.kg⁻¹ arasında değişmektedir. Ortalama 30,01±8,10 Bq.kg⁻¹ aktivitesi bulunan ⁴⁰K dedeksiyon limitlerinin altında kalan diğer örnekler düşünülürse bu değerinde çok düşük olduğu görülmektedir.

6.3. ²²⁶Ra, ²³²Th ve ⁴⁰K Radyonüklitlerden Kaynaklanan Gama Doz Hızlarının Hesaplanması

Birleşmiş Milletler'in radyasyon etkilerinden sorumlu komitesinin raporlarına göre ²³⁸U, ²³²Th ve ⁴⁰K aktivitelerinin doz hızına dönüştürme faktörleri sırasıyla 0,427; 0,662; 0,043 olarak verilmiştir. Bu faktörler kullanılarak yer seviyesinden 1 m yukarıdaki havada toplam soğurulan doz hızı:

$$D(\text{nGy.h}^{-1})=0,427.C_U+0,662.C_{Th}+0,043.C_K \quad [6.1]$$

ifadesiyle hesaplanır. C_U, C_{Th}, C_K sırasıyla U, Th, K 'un özgül aktivitelerini belirtir(15).

Bu çalışmada kullanılan fosfojipsteki toplam soğurulan gama doz hızı ^{238}U , ^{232}Th ve ^{40}K radyonüklitlerin aktivitelerinden hesaplanmıştır. ^{238}U aktivitesi yerine ^{226}Ra kullanılmıştır.

$$D(\text{nGy.h}^{-1}) = 0,427.C_U + 0,662.C_{\text{Th}} + 0,043.C_K$$

$$D(\text{nGy.h}^{-1}) = 0,427.(546,71) + 0,662.(9,27) + 0,043.(30,01) = 240,87 \cong 241$$

bulunur. Fosfojipslerdeki soğurulan doz hızı bu formüle göre 241 nGy.h^{-1} (yaklaşık $0,24 \mu\text{Sv.h}^{-1}$) hesaplanır. Eğer ^{232}Th ve ^{40}K aktiviteleri ihmal edilirse (çoğu örnekte ^{232}Th ve ^{40}K aktivitesi dedeksiyon limitinin altında çıkmıştı) soğurulan doz hızı;

$$D(\text{nGy.h}^{-1}) = 0,427.(546,71) = 233,45 \text{ olarak hesaplanır.}$$

6.4. Verilerin Değerlendirilmesi

Kimyasal işlem sırasında fosfatlı kayaların sülfürik asitle tepkimesi sonucunda, ^{238}U ve ürün çekirdekleri, ^{232}Th ve ürün çekirdekleri arasındaki radyoaktif denge bozulur. Radyonüklitler, fosforik asit veya fosfojipsteki çözünürlüklerine bağlı olarak ayrılırlar. ^{228}Th ve ^{230}Th 'un büyük bir kısmı fosforik aside; ^{226}Ra , ^{210}Pb ve ^{210}Po ise fosfojipse geçmektedir (12).

Fosfojipsteki gözlenen en aktif radyonüklit ^{226}Ra 'dır. Literatürdeki diğer çalışmalarda da farklı orjinli fosfojipsler araştırılmış, aynı radyonüklit bulunmuştur. ^{226}Ra , fosfatlı kayaların sülfürik asitle reaksiyonu sonucunda atık fosfojipse, toryum ve potasyum ise kimyasal işlemlere, safsızlıklara bağlı olarak genellikle fosforik aside (P_2O_5) geçmektedir (16).

Çizelge 6.7. Fosfat kayalarındaki radyonüklitlerin fosforik aside ve fosfojipse geçme oranı (%). (16)

Radyonüklitler	Fosforik Asit	Fosfojips
²³⁸ U	97,5	2,5
²³⁴ U	97,5	2,5
²³² Th	93,8	6,2
²³⁰ Th	93,8	6,2
²²⁸ Th	93,8	6,2
²¹⁰ Po	0,7	99,3
²²⁶ Ra	0,4	99,6
²²⁸ Ra	1,4	98,6

Çizelge 6.8. Çeşitli ülkelerde üretilen fosfojips örneklerinin aktiviteleri (8).

Kıta	Eyalet/Ülke	²²⁶ Ra (Bq.kg ⁻¹)
Kuzey Amerika	Florida	907
	Louisiana	1100
	Alberta	910
Güney Amerika	Brezilya	273-591
Avrupa	Hollanda	800
	İspanya	508
Afrika	Tanzanya	3219
	Fas	1420

Literatürde Afrika, Avrupa ve Kuzey Amerika'da birçok araştırmacının yaptığı çalışmalarda ²²⁶Ra aktiviteleri 15-3219 Bq.kg⁻¹ arasında değişmektedir (Çizelge 6.7.).

Fosfojipslerdeki soğurulma doz hızı 241 nGy.h⁻¹ (yaklaşık 0,24 µSv.h⁻¹) bulunmuştur. Fosfojips içeriğindeki ²³²Th ve ⁴⁰K aktiviteleri ihmal edilecek derecede

düşük olduğuna göre değer doza en büyük katkının radyumdan kaynaklandığını göstermektedir. UNSCEAR raporlarına göre dünyadaki ^{238}U , ^{232}Th ve ^{40}K 'tan gelen topraktaki ortalama soğurulma doz hızı 43 nGy.h^{-1} 'dir (yaklaşık $0,043 \mu\text{Sv.h}^{-1}$) (15). Fosfojipste hesaplanan gama doz hızı, yeryüzü toprağındaki dünya ortalama gama doz hızından 5-6 kat fazla bulunmuştur.

EPA (U.S. Environmental Protection Agency), 1-1,5 kg arasındaki fosfojipsten yayınlanan radon gazı çıkışı için, $2664 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ değerini maksimum limit olarak kabul etmiştir (5). Buna göre fosfojipsteki radon gazı çıkış oranı $546,71 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ile $820,07 \text{ Bq.kg}^{-1}$ arasında değişmektedir. Bu da EPA'nın verdiği limitten daha düşüktür. EPA'nın tarımda kullanılabilmesi için verdiği aktivite limitinin 370 Bq.kg^{-1} olduğu düşünülürse, tarımda koruyucu tedbirlerle kullanılması (sulandırılarak, radyumun ayrıştırılması vb.), yani aktivitenin 370 Bq.kg^{-1} 'lık limitin altına çekilmesi gerekmektedir. Fosfojipsin inşaat sektöründe (yol yapımında vb.) kullanılabilirliğinin ayrıca değerlendirilmesi gerekmektedir.

Ancak yinede fosfojips örneklerinin EPA limit değerinin üstünde ^{226}Ra aktivitesi içermeleri, çevresel bir risk kaygısı doğurmaktadır. Bu nedenle, Türkiye'deki tüm Fosforik Asit Gübre Fabrikalarının fosfojips atıklarının daha geniş ölçekli incelenmesinde çevre ve insan sağlığı açısından yarar vardır.

KAYNAKLAR

1. Krane. K. S., "Nükleer Fizik", 1. Cilt, Çeviri Editörü, Başar Şarer, *Palme Yayıncılık*, Ankara, 160-244, (2001).
2. Mays, D. A., Mordvedt, J. J., "Management effects on cadmium accumulation by peanut and soybean", *Environmental Quality*, 15, 78-81 (1986).
3. Yücel, H., Demirel, H., Parmaksız, A., Karadeniz, H., Çakır, İ. T., Çetiner, B., Zararsız, A., Kaplan, M., Özgür, S., Kışlalı, H., Halitligil, M. B., Tükenmez, İ., "Measurement of Natural Radioactivity in Phosphogypsum in Turkey by High-Resolution Gamma-Ray Spectrometry", Radiation Safety Problems in the Caspian Region, *NATO Science Program, Advanced Research Workshop (ARW)*, *Kluwer Academic Publishers* (in press), Baku-Azerbaijan, 11-14 September 2003.
4. Azouazi, Y., Ouahidi, Y., Fakhi, S., Andres, Y., Abbe, J. Ch., Benmansour, M., "Natural Radioactivity in phosphates, phosphogypsum and natural waters in Morocco", *Journal of Environmental Radioactivity*, 54, 231-242, (2001).
5. United States Federal Law, *Code of Federal Regulations*, Title 40, Vol.7 parts 61.202 and 61.204 (40 CFR61.202 and 40CFR 61.204), (1998).
6. Kumar, S., "A perspective study on fly ash–lime–gypsum bricks and hollow blocks for low cost housing development", *Construction and Building Materials* 16, 519-525 (2002).
7. Yücel, H., Demirel, H., Karadeniz, H., Çetiner, B., Parmaksız, A., Turhan, Ş., "Low Level Radioactivity Measurements of ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K and ^{137}Cs in the Environmental and Industrial Samples by High Resolution Gamma-Ray Spectrometry", *Environmental Protection Against Radioactive Pollution*, Kluwer Academic Publishers, 115-122, Netherlands, (2003).
8. Silva, N. C., Fernandes, E. A. N., Cipriani, M., Taddei, M. H. T., "The Natural Radioactivity of Brazilian Phosphogypsum", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 249, No.1, 251-255 (2001).
9. Karkunen, J., Vermulen, S., "Natural Radioactivity of Phosphates and Phosphogypsum". *Phosphorus & Potassium. Fertilizer International No. 378*. Pp 75-81. Brian Birky. Ph. D. (September/October 2000).
10. Budak, M. G., "İzotropik Nötron Alanında Sonlu Silindir Numune Geometrisi için Numune Miktarı ile Termal Nötron Öz Soğurma Faktörünün İlişkisi", Yüksek Lisans Tezi, *Gazi Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü*, Ankara, 49-54, Ağustos 2002.

11. Wilhelm D. M., *Annual Books of ASTM Standards*, Vol.12, 02, E181, 1-28 (1993).
12. *Canberra MCA Series 95 User's Manual*, Canberra Industries, Meriden, CT, U.S.A., (1986).
13. Haridasan, P. P., Paul, A. C., Desai, M. V. M., "Natural radionuclides in the aquatic environment of phosphogypsum disposal area", *Journal of Environmental Radioactivity*, 53, 155-165, (2001).
14. Mazzilli, B., Palmiro, V., Saueia, C., Nisti, M. B., "Radiochemical characterization of Brazilian Phosphogypsum", *Journal of Environmental Radioactivity*, 49, 113-122, (2000).
15. UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiations), Sources, Effect and Risks of Ionizing Radiation. *Report to the General Assembly, with Anexes, United Nations*, New York (1988).
16. Bolívar, J. P., Rafael, G. T., José, L. M. and Vaca, F., "Radioactive impact in sediments from an estuarine system affected by industrial wastes releases", *Journal of Environmental Radioactivity*, 639-645, (2002).
17. Fernandes, E. A. N., Fukuma, H. T., Quinelato A. L., "Distribution of natural radionuclides during the processing of phosphate rock from Itataia-Brazil for production of phosphoric acid and uranium concentrate" *Radiochimica Acta*, Vol. 88, Issue 09/11, 809 (2001).

ÖZGEÇMİŞ

1970 yılında Diyarbakır'da doğdu. İlk, orta ve lise öğretimini sırasıyla Diyarbakır Devrim İlkokulu, Merkez Ortaokulu ve Diyarbakır Lisesi'nde tamamladı. 1990 yılında Dicle Üniversitesi, Eğitim Fakültesi, Fizik Bölümü'nü kazanarak 1994 yılında mezun oldu. 1995'ten 2000 yılına kadar Konya ve Ardahan'da Milli Eğitim Bakanlığı'na bağlı okullarda Fizik Öğretmeni olarak görev yaptı. 2001 yılında Türkiye Atom Enerjisi Kurumu, Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi, Nükleer Fizik Bölümü'nde Araştırmacı-Fizikçi olarak göreve başladı. Halen aynı merkezde, Nükleer Fizik Bölümü'nde araştırmacı olarak görevini sürdürmektedir.