FEN BİLİMLERİ VE MATEMATİKTE GÜNCEL ARAŞTIRMALAR

EDİTÖRLER
PROF. DR. HASAN AKGÜL
PROF. DR. MURAT KÜTÜK
PROF. DR. HÜSNİYE SAĞLIKER
DOÇ. DR. NESLİHAN İYİT
DR. ÖĞR. ÜYESİ FÜSUN ERTEN

MART 2022

gece kitaplığı

İmtiyaz Sahibi / Publisher • Yaşar Hız

Genel Yayın Yönetmeni / Editor in Chief • Eda Altunel

Editörler / Editors • Prof. Dr. Hasan Akgül

Prof. Dr. Murat Kütük

Prof. Dr. Hüsniye Sağlıker

Doç. Dr. Neslihan İyit

Dr. Öğr. Üyesi Füsun Erten

Kapak & İç Tasarım / Cover & Interior Design • Gece Kitaplığı

Birinci Basım / First Edition • © Mart 2022

ISBN • 978-625-430-041-7

© copyright
Bu kitabın yayın hakkı Gece Kitaplığı'na aittir.
Kaynak gösterilmeden alıntı yapılamaz, izin
almadan hiçbir yolla çoğaltılamaz.

The right to publish this book belongs to Gece Kitaplığı.
Citation can not be shown without the source, reproduced in any way
without permission.

Gece Kitaplığı / Gece Publishing
Türkiye Adres / Turkey Address: Kızılay Mah. Fevzi Çakmak 1.
Sokak Ümit Apt. No: 22/A Çankaya / Ankara / TR
Telefon / Phone: +90 312 384 80 40
web: www.gecekitapligi.com
e-mail: gecekitapligi@gmail.com

Baskı & Cilt / Printing & Volume
Sertifika / Certificate No: 47083

Fen Bilimleri ve Matematikte Güncel Araştırmalar

Mart 2022

Editörler

Prof. Dr. Hasan Akgül
Prof. Dr. Murat Kütük
Prof. Dr. Hüsniye Sağlıker
Doç. Dr. Neslihan İyit
Dr. Öğr. Üyesi Füsun Erten

BÖLÜM 12

TARİHLENDİRME YÖNTEMLERİ*

Ülkü SAYIN[1], Mustafa TOPAKSU[2],
Mehmet YÜKSEL[3], Ayhan ÖZMEN[4],
Hamide AVCI[5], Emel ECE[6]

* Yazar Katkıları Eşittir

1 Prof. Dr., Selçuk Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü Atom ve Molekül Fiziği ABD, ulkusayin@gmail.com, ORCID ID: 0000-0002-5098-1578
2 Prof. Dr., Çukurova Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Nükleer Fizik ABD, mats@cu.edu.tr, ORCID ID: 0000-0002-0231-6818
3 Doç. Dr., Çukurova Üniversitesi Fen-Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü Nükleer Fizik ABD, myuksel@cu.edu.tr, ORCID ID: 0000-0002-9921-3756
4 Prof. Dr., Selçuk Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü Atom ve Molekül Fiziği ABD, ayhanozmen61@gmail.com, ORCID ID: 0000-0003-0370-9915
5 Dr., Selçuk Üniversitesi Fen Fakültesi Fizik Bölümü Nükleer Fizik ABD, himalavci@gmail.com, ORCID: 0000-0003-2097-6054
6 Karamanoğlu Mehmetbey Üniversitesi Kâmil Özdağ Fen Fakültesi Genel Fizik ABD, benemeleceyim@gmail.com, ORCID ID: 0000-0002-5954-3689

Giriş

İnsanlar için geçmiş olayların gerçekleşme zamanı ve nesnelerin yaşı her zaman merak konusu olmuştur. Yaşamı birçok yönden etkileyen olaylar ve nesnelere ait bu tarihler, milyar yılları bulabileceği gibi çok kısa da olabilir. Bu konuda yapılan çalışmalar ve elde edilen bilgiler, birçok olayın anlaşılmasına ve çözümlenmesine yardımcı olurken bilimin gelişmesine de önemli katkılar sağlamıştır. Geçmişi aydınlatan ve çok sayıda bilim dalının en önemli dayanağı olan çalışmalara "tarihlendirme" denir. Bu amaçla, farklı hassasiyet ve kabiliyetlere sahip çeşitli tarihlendirme yöntemleri kullanılmakta olup, daha hassas yaş değerleri elde etmek amacıyla da geliştirilmektedir. Tarihlendirme için materyalin bulunma ve elde edilebilme imkanının yanında, zaman aralığı, hata payı, ölçüm ve hesaplama süreleri ile maliyet gibi faktörler de oldukça önemlidir. Dolayısıyla en uygun tarihlendirme yöntemi, tüm bu faktörlerin bir değerlendirmesi sonucunda seçilir. Tarihlendirme yöntemleri adli bilimlerde de birçok olayın aydınlatılması amacıyla kullanılmakta ve önemli bilgiler sağlamaktadır. Bu kitap bölümünde, yaygın olarak kullanılan bazı tarihlendirme yöntemlerinin fiziksel prensipleri ve uygulama alanları özetlenerek verilmiştir.

1. Radyoaktif Çekirdek Bozunumuna Dayalı Olarak Geliştirilen Tarihlendirme Yöntemleri

Radyoaktivite; kararsız bir atom çekirdeğinin alfa (α), beta (β) parçacıkları ve gama (ɣ) ışınları şeklinde radyasyon yayarak enerji kaybettiği süreç olarak tanımlanır. Radyoaktif bir çekirdeğin zamanla bozunma hızı (aktiflik) üstel kanuna uyar. Radyoaktivite rastgele bir süreçtir dolayısıyla kararsız bir çekirdeğin ne zaman bozunacağı tam olarak bilinemez, ancak birim zamandaki bozunma olasılığı yani bozunma sabiti, λ, belirlenebilir. Eğer bir numunede N tane radyoaktif çekirdek varsa, radyoaktif çekirdeğin bozunma hızı yani aktifliği, A, aşağıdaki denklemle verilir.

$$= -\frac{dN}{dt} = \lambda N \tag{1}$$

Çekirdek birkaç farklı son duruma bozunuyorsa, yani farklı bozunma dallarına sahipse, λ tüm bozunma dallarının olasılıklarının toplamıdır. Denk. (1)'in integrali alınarak aşağıdaki üstel radyoaktif bozunma kanunu elde edilir.

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \tag{2}$$

Burada N_0, t=0 anındaki bozunmamış ana çekirdeklerin sayısıdır. Ana çekirdeklerin yarısının bozunması için geçen süre yarı ömür, $T_{1/2}$, olarak tanımlanır ve Denk. (2)'de $N=N_0/2$ yazılarak, $T_{1/2}=\ln 2/\lambda$ elde edilebilir. Tarihlendirmede kullanılacak radyoaktif çekirdeğin yarı ömrü, tarihlendirilecek zaman aralığının sınırlarını belirleyen en önemli parametredir. Ana ve ürün çekirdeklerin şimdiki anda (t_1) gözlenen bağıl sayısı, başlangıç anında (t_0) sadece ana çekirdeklerin olduğu gerçeği ve ana çekirdeğin ürün çekirdeğe bozunum süreci dikkate alınarak aşağıdaki denklemler yardımı ile materyalin yaşı hakkında bilgi edinilebilir.

$$_{Ü}(t_1) + \ _A(t_1) = \ _A(t_0) \tag{3}$$

$$_A(t_1) = \ _A(t_0)e^{-\lambda(t_1-t_0)} \tag{4}$$

$$\Delta t \equiv t_1 - t_0 = \frac{1}{\lambda} ln \frac{N_A(t_0)}{N_A(t_1)} \qquad \text{ve} \qquad \Delta t = \frac{1}{\lambda}\left(1 + \frac{N_Ü(t_1)}{N_A(t_1)}\right) \tag{5}$$

Burada; N_A ana çekirdek sayısını, $N_Ü$ ise ürün çekirdek sayısını temsil etmektedir. Denk. (5) ifadesinde λ ve ürün çekirdeklerin ana çekirdeklere şimdiki oranlarının verilmesiyle numunenin yaşı doğrudan bulunabilir. Elde edilen sonucun kesinliği λ ile ilgili bilgimize, N_A ve $N_Ü$'nün sayma istatistiğine bağlıdır.

1.1. Radyokarbon (^{14}C) Yöntemi

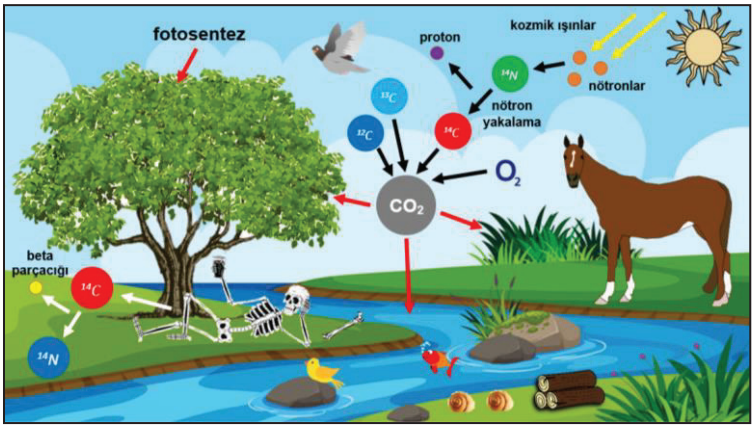
Karbon içeren malzemelerin yaşını belirlemek için kullanılan radyokarbon (^{14}C) yöntemi, 2. Dünya Savaşı'nı izleyen yıllarda W.F. Libby (1908-1980) ve çalışma arkadaşları tarafından bulunmuştur (Arnold ve Libby, 1949). Libby bu önemli buluşuyla 1960 yılı Nobel Kimya Ödülü'nü almıştır. Bu yöntem, tarihlendirme çalışmalarında 1950 yılından günümüze kadar arkeoloji, jeoloji ve antropoloji gibi bilim dallarında başarıyla kullanılmaktadır.

Doğada karbonun üç izotopu (^{12}C, ^{13}C ve ^{14}C) bulunmakta olup, tüm karbon atomlarının %98.9'u ^{12}C, %1.1'i ^{13}C ve bir trilyon karbon atomundan yalnızca biri ^{14}C'tür. Bu izotoplardan ^{14}C kararsızdır ve β^- parçacıklarının yayınımı yoluyla azot atomunun kararlı izotopu olan ^{14}N'ye dönüşür. ^{14}C izotopuna "radyokarbon" denilmesinin sebebi de bu kararsızlık yani radyoaktivite durumudur (Walker, 2005).

Yöntemin temeli, uzaydan gelen termal nötronların atmosferdeki azot atomlarıyla nükleer reaksiyonu sonucunda karbonun radyoaktif izotopu olan ^{14}C oluşmasına dayanır. Bu radyoaktif karbon diğer karbon izotoplarıyla (^{12}C, ^{13}C) birlikte atmosferdeki oksijenle birleşerek CO_2 gazını oluşturur ve atmosfere dağılır. Bu gazın önemli bir kısmı karbonat çözeltisi olarak deniz, göl ve nehirlere de geçer. Havadaki CO_2 gazı fotosentez yoluyla bitkilere, karbonat çözeltileri vasıtasıyla sularda yaşayan canlıların kabuklarına geçer. Dolayısıyla, besin zinciri yoluyla az

miktarda da olsa bütün canlı organizmalarda ^{14}C mevcuttur. Şekil 1'de ^{14}C izotopunun bahsedilen bu döngüsü verilmiştir.

Bütün canlı organizmalar, karbondioksit biçiminde atmosferle sürekli olarak karbon değiş tokuşu yaptıkları için, yaşamları süresince ^{14}C'nin ^{12}C'ye oranı atmosferdeki değerle ($^{14}C/^{12}C \cong 1.3x10^{-12}$) aynı kalır. Ancak canlılar öldüğünde bu geçiş durur ve ölümden sonra radyoaktif olan ^{14}C betalar yayarak bozunmaya başlar. Böylece organizmadaki ^{14}C yoğunluğu ve beta aktivitesi zamanla azalır. İşte bu aktivite ya da yoğunluk ölçülerek canlının ne kadar zaman önce öldüğü belirlenebilir (Taylor, 1987; Walker, 2005).



Şekil 1. ^{14}C izotopunun döngüsü.

^{14}C'nin yarı ömrü ($T_{1/2}$), 5730 yıl değerindedir. Yani canlının ölümü sonrasında organizmada bulunan ^{14}C miktarı bu süre sonrasında yarıya düşecektir. ^{14}C'deki bu azalma, başlangıç miktarının bilindiği varsayılarak geçen zamanı ölçmek için bir "saat" olarak kullanılabilir. ^{14}C'nin bir beta (hızlı elektron) yayarak tekrar ^{14}N'ye bozunması üstel bir fonksiyona uyar. Dolayısıyla, tarihlendirilmek istenen canlı fosilinin yapısındaki ^{14}C miktarının (veya aktivitesinin) başlangıçtaki (N_0) ve şu andaki değerleri (N(t)) Denk. (2) ifadesinde kullanılarak organizmanın yaşı aşağıdaki ifadeden elde edilebilir (Aitken, 1990).

$$t = 8267\ ln\left(\frac{N_0}{N(t)}\right) \tag{6}$$

Organizmanın yaşı (N_0/N(t))'nin doğal logaritması ile doğru orantılıdır. Dolayısıyla bu orantı ne kadar büyükse organizmanın yaşı da o kadar büyük olacaktır. Tarihlendirmede günümüzden önce (Before Present; BP) kısaltması kullanılmaktadır. Günümüz "1950" olarak alınmaktadır.

Tarihlendirilecek numunenin radyokarbon yaşının belirlenebilmesi için iki önemli husus vardır. İlk husus, canlının öldüğü zaman sahip

olduğu ^{14}C yoğunluğunun ya da aktivitesinin bilinmesi gereklidir ve bu doğrudan ölçülemez. ^{14}C aktivitesi, dolaylı yoldan canlının öldüğü zamandan bu yana atmosferde ve sularda ^{14}C yoğunluğunun değişmediği kabul edilerek günümüz canlılarından (*modern canlı*) ölçülebilir. Ancak her araştırmacının kendi seçtiği bir modern canlıdan N_0 kullanması yerine, laboratuvarlar arasında bir standart sağlamak amacıyla, Ulusal Standartlar ve Teknoloji Enstitüsü (National Institute of Standards and Technology, NIST) tarafından 1955 yılında şeker pancarından standart "oksalik asit I" maddesi üretilmiş ve ilgili laboratuvarlara dağıtılmıştır. Daha sonra üretilen bu madde tükenince 1997 yılında yine pancar şırasından üretilen "oksalik asit II" maddesinin ^{14}C aktivitesi N_0 için standart olarak kabul edilmiş ve radyokarbon yöntemi kullanarak tarihlendirme çalışmaları yapan laboratuvarlara dağıtılmıştır. Günümüzde bu alanda çalışan tüm laboratuvarlar radyokarbon yaşlarını bu iki standarttan birine göre hesaplayarak vermektedirler. İkinci husus ise; tarihlendirilecek örnekteki ^{14}C izotopunun miktarı yani $N(t)$, betaları sayarak veya yoğunluğu ölçülerek belirlenmelidir. 1980'li yıllara kadar ^{14}C bozunması sonucunda çıkan beta parçacıklarını sayarak izotop miktarı belirlenmiştir. Bu teknikle çalışılabilmesi için hem çok miktarda (gram mertebesinde) örneğe ihtiyaç duyulmakta hem de sayma hassasiyeti nedeniyle 30 bin yıl yaşlarına kadar tarihlendirme yapılabilmektedir. 1980'lerden sonra hızlandırılmış kütle spektrometrelerinin (Accelerator Mass Spectrometry; AMS) gelişmesiyle miligram miktarındaki örneklerden ^{14}C izotopu doğrudan çok daha hassas bir şekilde ölçülmüş, böylece tarihlendirmenin üst sınırı 50 bin yıl değerlerine kadar çıkarılmıştır. AMS tekniğinin başka bir üstün tarafı da aynı anda radyoaktif olmayan ^{13}C izotopu ölçülerek yaşlarda düzeltmeler yapılmasını sağlamasıdır (Mahaney, 1984).

Sonuç olarak, bu yöntemde ^{14}C izotopunun radyoaktif olarak bozunması ve atmosferdeki izotop dengesi durumları göz önüne alınarak örneklerin yaş belirlemeleri yapılmaktadır. Ancak yanardağ patlaması ya da Güneş'teki patlamalar gibi bazı doğa olaylarının yanı sıra kömür, petrol, doğalgaz gibi yakıtların kullanımı ya da nükleer silah denemeleri gibi insan faaliyetleri neticesinde bu denge değişmektedir. Bu nedenle radyokarbon tarihlendirmede bazı kabuller ve düzeltmeler yapılmıştır. Bu kabuller ve düzeltmeler aşağıda verilmiştir (Mahaney, 1984; Walker, 2005; Bradley, 2015):

1) Libby yaptığı çalışmalarda ^{14}C yarı ömrünü, $T_{1/2}$, 5568 yıl ve ortalama ömrünü, $T_{1/2}/\ln 2$, 8033 yıl olarak ölçmüştür (Libby, 1955). Libby'nin hesapladığı yarı ömre göre hesaplanan yaşlara "*konvansiyonel radyokarbon yaşı"* denir. Daha sonra yapılan hassas deneylerde yarı ömür 5730 yıl ve ortalama ömür 8267 yıl olarak ölçülmüştür. Yeni yarı

ömre göre yaşı belirlemek istersek konvansiyonel yaşı 5730/5568=1.03 ile çarpılmalıdır.

2) Aynı ortamda bulunan iki canlı bünyesine karbon elementinin üç izotopunu (^{12}C, ^{13}C, ^{14}C) aynı oranda almazlar yani izotop seçicilikleri aynı değildir. Bunun sonucunda her canlı başlangıçta bünyesine farklı yoğunlukta ^{14}C alacaktır. Bu nedenle radyoaktif olmayan ^{13}C miktarı ölçülerek değişmez olan $^{13}C/^{12}C$ oranından hareketle ^{14}C yoğunluğunda gerekli düzeltmeler yapılmalıdır.

3) Radyokarbon tarihlendirme yönteminde en önemli konu kirlenmedir. Kirlenme, örneğe daha genç ya da daha yaşlı bir malzemenin karışması nedeniyle hesaplanan yaşlarda meydana gelen sapmalar olarak ifade edilir. Bitki kökleri, küf ve mantarlar veya paketleme malzemeleri gibi kirlenme durumları örneğin daha genç, yer altı sularının karışması gibi kirlenme durumları ise örneğin daha yaşlı görünmesine sebep olacaktır. Tarihlendirme çalışmalarında bu durumlar dikkate alınmalıdır.

Fosilin tarihi süresince atmosferde ve sulardaki ^{14}C miktarının değişmediği, yani canlı öldüğü zamanki N_0 değerinin günümüz canlılarındaki ile aynı olduğu kabul edilir. Bu kabul yaş belirlemelerinde hatalara sebep olmaktadır. Yerin manyetik alanının değişimi dolayısıyla kozmik ışınlar saptırılmakta ve atmosfere girememesinden dolayı yaklaşık 9-10 bin yıl periyotla atmosferde ve sulardaki ^{14}C miktarı harmonik olarak dalgalanmaktadır. Ayrıca, Güneş'teki manyetik fırtınalar ^{14}C miktarında değişimlere neden olmakta ve bunun sonucunda yaşlarda 0.5 bin yıl değerinden daha az olmak üzere sapmalara neden olmaktadır. ^{14}C üretimindeki bu değişkenlik *de Vries Etkisi* olarak bilinir. *Suess Etkisi* olarak tanımlanan bir başka etken ise 1900'lü yıllardan sonra endüstri devrimi ve fosil yakıtlar nedeniyle ortamdaki ^{14}C miktarının bağıl olarak azalmasıdır. 1950'lerden sonra atılan atom bombaları ve yapılan atom bombası denemeleri atmosferdeki ^{14}C miktarlarında önemli artışlara neden olmuştur, bu etki de literatürde *Bomba etkisi* olarak yer almaktadır. Araştırmacılar, yukarıda bahsedilen etkilere bağlı olarak son 11 bin yıl içinde atmosferde ve sulardaki ^{14}C yoğunluğunun değişimi hakkında ayrıntılı bilgiler elde etmiştir. Bir ağaç halkasının Dendrokronolojik yöntemlerle elde edilen yaşı ile radyokarbon yaşı arasındaki fark incelenmiş ve son 8 bin yıl için kıyaslamalar yapılarak bir karşılaştırma eğrisi oluşturulmuştur. Bu düzeltmeleri yapan programlar (CalPal, 2021; Oxcal, 2021) mevcut olup, bu programlar yardımıyla konvansiyonel radyokarbon yaşları girilerek düzeltilmiş yaşlar elde edilebilir.

Radyokarbon yöntemi esas olarak 300 yıl ile 50 bin yıl yaş aralığında olan ve yapısında karbon içeren; odun, odun kömürü, tohumlar, yapraklar, reçine, liken, turba, humus, bataklık gazı, kemik, fildişi, doku, saç, yumuşakça kabukları, yumurta kabukları, ikincil

karbonatlar (traverten ve mağara çökeli gibi), toprak ve tortu gibi jeolojik, arkeolojik ve antropolojik materyallerin yaşlarını belirlemek için en sık kullanılan standart metottur. Bununla birlikte, radyokarbon laboratuvarlarında günlük bazda tarihlendirilen örneklerin çoğu bitki makrofosilleri, odun kömürü, turba, organik göl çamuru, deniz mikrofaunası ve mikrofloradır, kabuk ve kemiklerin yaşlandırma çalışmaları ise oldukça seyrektir. Tarihlendirilecek numunenin boyutu; karbon içeriği, korunma derecesi, kontaminasyon derecesi ve seçilen ^{14}C analiz yöntemi dikkate alınarak belirlenmelidir (Gupta ve Polach 1985; Taylor, 1987, Geyh ve Schleicher, 1990; Walker, 2005).

Radyokarbon tarihlendirme yöntemi, rutin olarak arkeolojik ve çevresel örneklere uygulanmakla birlikte, adli örnekler için de çok güçlü bir araç olarak kullanılmaktadır. Geleneksel antropolojik yöntemler, genç iskelet kalıntıları için nispeten doğru bir ölüm yaşı sağlayabilir, ancak yetişkin (40 yaşından büyük) bireyler için bu yöntemlerle elde edilen yaşlara güvenilmez. Birey ne kadar yaşlıysa, yöntemlerle verilen yaş aralığı da o kadar geniş olur. Bireyin ölümü ile kalıntıların keşfi arasında meydana gelen bir dizi ölüm sonrası faktör nedeniyle kalıntılar eksikse veya kötü korunmuşsa daha fazla belirsizlikle karşılaşılabilir. İnsan kalıntılarının radyokarbon yöntemiyle tarihlendirilmesi, geleneksel yaklaşımların sağlayamayacağı bilgileri sağlayabilir, örneğin, yumuşak dokuların yokluğunda ölüm yılını belirlemek için tırnakların en uygun doku olduğu bilinmektedir (Brock ve Cook, 2017). Adli bilimlerin önemli amaçlarından biri, suç eylemleriyle ilişkili materyalleri analiz ederek geçmiş olayları kronolojik olarak sıralamaktır. Bunun için; kemiklerden, saçtan, deriden ve adli öneme sahip diğer karbon içeren materyallerden ekstrakte edilen spesifik moleküler bileşikler radyokarbon yöntemiyle tarihlendirilebilir (Zoppi ve ark., 2004). Bu yöntemin kullanıldığı adli öneme sahip popüler tarihi uygulama örnekleri arasında; İnka Atahualpa'nın 1530'ların başlarında Francisco Pizarro tarafından öldürülmesi (Zoppi ve ark., 2000), Otzi olarak isimlendirilen Tyrolean Buzadamı'nın 5300 yıl önceki olası cinayeti (Prinoth-Fornwagner and Niklaus, 1994) ve İsa Peygamber'in çarmıha gerilmesiyle ilişkili olduğu iddia edilen gömü bezlerinin analizi sayılabilir (Damon ve ark., 1989). Bu yöntem, geçmişte gerçekleşmiş savaş suçlarına da uygulanmıştır. En çarpıcı örneklerden birisi, Naziler tarafından II. Dünya Savaşı'nın sonunda Serniki'de (Ukrayna) gerçekleştirildiği iddia edilen toplu katliamlarla ilgili soruşturmalarda radyokarbon yönteminin kullanılmış olmasıdır. Bu olayda, adli arkeolojik kazılar 1990 yılında birkaç ceset içeren bir toplu mezar ortaya çıkarmış ve Nazi soykırım inkarcıları, toplu cinayetleri Stalin'e veya Rus Devlet Güvenlik Komitesi'ne bağlamışlardır. Bu nedenle olayı tarihlendirmek ve katilleri belirlemek hayati öneme sahip hale gelmiştir. Saç örneklerinin radyokarbon ile tarihlendirilmesiyle, tüm görgü tanıklarının ifadelerinin aksini belirtir

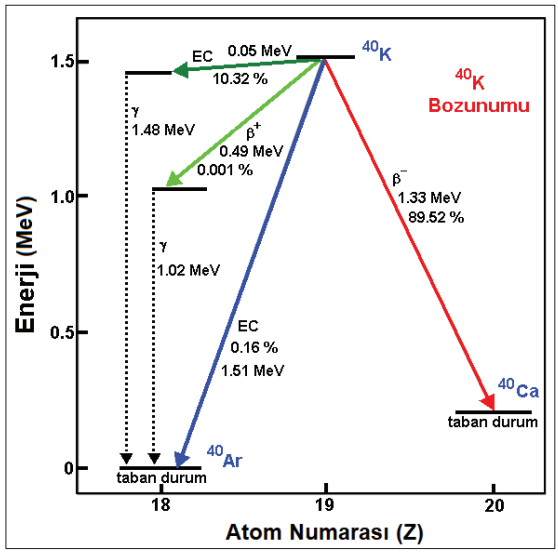
şekilde 1941 ile 1952 arasındaki cinayetleri sıralamak mümkün olmuştur. Toplanan tüm kanıtlara dayanarak, savaş suçlarından yargılanan tek Avustralyalı olan Ivan Polyukhovich tutuklanarak Yahudileri öldürmekle ve 1942 ile 1943'te Nazi işgali altındaki Ukrayna'da 850 kadar kişinin ölümüne karışmakla suçlanmıştır (Tuniz ve ark., 2004). Ayrıca biyoterorizm suçlarında da radyokarbon yöntemi kullanılabilmektedir. 2001'de şarbon sporları içeren mektuplar, ABD'de posta yoluyla gönderilerek beş kişinin ölümüne neden olmuştur. O dönemde, şarbon sporlarının 1980'lerin başında hazırlanan ilk laboratuvar örneklerinden elde edildiği düşünülmüş, ancak ABD Federal Araştırma Bürosu radyokarbon yöntemini kullanarak şarbon sporlarını tarihlendirmiş ve son 2 yıl içinde dondurulduklarını belirlemiştir. Bu bulgu ışığında, araştırmacılar artık teröristlerin daha fazla şarbon sporu üretebilecekleri bir mikrobiyoloji laboratuvarına sahip olmasından endişe duymuştur (Tuniz ve ark., 2004). Radyokarbon yönteminin sahteliği ve sahtekarlıkları ortaya çıkarmak için kullanılması köklü bir uygulamadır ve günümüzde de popülerliğini korumaktadır. Tekniğin minimum hasar verme potansiyeli sayesinde, nadir bulunan eserler tarihlendirilebilir. Örneğin, değerli resimlerin yaşları ve seramik kalıntılarından elde edilen minik kömür parçaları kullanılarak doğrudan ilgilenilen nesnenin tarihi tayin edilebilir. Yöntem, sanat eserleri ve antikalar dışında da değerli ürünleri tarihlendirmek ve analiz etmek için kullanılmaktadır. Örneğin, Avustralya şaraplarının doğrulanması ve izinsiz katkı maddelerinin ve şarap "sahteciliğinin" tespiti, endüstri için büyük önem taşımaktadır. Bu sebeple ülkede gıda ve şaraplara doğal veya sentetik kökenli malzemelerin eklenip eklenmediğini ayırt etmede radyokarbon yöntemi kullanılmaktadır (Zoppi ve ark., 2004). ^{14}C analizleri hayvanların deri ve tüylerine de uygulanmaktadır. Hatta bir hayvanın ölüm tarihinin belirlenmesinde tüyün en güvenilir materyal olabileceği önerilmiştir. Günümüzde bu yöntem, Dünya Doğa ve Doğal Kaynakları Koruma Birliği (International Union for Conservation of Nature, IUCN)'nin Tehdit Altındaki Türlerin Kırmızı Listesi'nde yasadışı olarak avlanan hayvanların kürklerinin belirlenmesinde de kullanılmaktadır (Geyh, 2001). Radyokarbon yöntemi, son 50 bin yıl içinde gerçekleşmiş depremlerin ve oluşan jeolojik katmanların tarihlendirilmesinde de oldukça önemlidir. Bununla birlikte, kriminoloji konusu olan fildişi, gergedan boynuzu, kürk ve hayvana ait başka kısımların yasa dışı ticaretinin yapılması durumlarında da bu yönteme başvurulur. Ayrıca, ^{14}C izotopunun analizi yalnızca tarihlendirme amaçlı değil, karakterizasyon amaçlı da tercih edilmektedir. Örneğin bir malzemenin biyolojik mi yoksa sentetik mi olduğu, bir yakıtın biyodizel mi yoksa petrol bazlı mı olduğu, ya da sanayide farklı amaçlarla yaygın olarak kullanılan etanolün tarımsal kökenli mi yoksa sentetik kökenli mi olduğu ^{14}C analizleriyle belirlenebilir (Doğan, 2018).

1.2. Potasyum-Argon (K-Ar) ve Argon-Argon (Ar-Ar) Yöntemleri

Potasyum, kayaçların yapısında yaygın olarak bulunmakta olup, doğada ^{39}K (%93.2581), ^{40}K (%0.0117) ve ^{41}K (%6.7302) olmak üzere üç izotopu olan bir elementtir. Bunlardan ^{40}K yarılanma ömrü $1.3x10^{9}$ yıl olan radyoaktif bir izotoptur. ^{40}K, %89.1 oranında beta (β^-) yayarak ^{40}Ca'ya ve %10.9 oranında elektron yakalama (electron capture, EC) yoluyla ^{40}Ar'ye olmak üzere iki farklı yolla bozunmaktadır (Dalrymple ve Lanphere 1969). Ayrıca çok nadir de olsa pozitron (β^+) veya nötrino emisyonu ile meydana gelen ^{40}Ar'ye bozunmanın küçük bir kısmı da vardır. Şekil 2'de ^{40}K için bozunum diyagramında (McDougall ve ark., 1999) gösterildiği gibi, her ne kadar ^{40}K radyoaktif bozunumunun birden fazla yolu olması durumu (üç yolla ^{40}Ar'ye ve bir yolla ^{40}Ca'ya) karmaşık gözükse de K-Ar tarihlendirme yönteminin 1950'lerin ortalarından beri önemli jeolojik problemleri çözmek için kullanılmıştır (Dalrymple ve Lanphere, 1969). Ardından Reynolds (1956) tarafından ultra yüksek vakumlu kütle spektrometrelerinin geliştirilmesi ile jeolojik olarak genç örnekler üzerinde hassas K-Ar ölçümleri yapılmasının yolu açılmıştır.

Kayaç içerisinde çok fazla miktarda ^{40}Ca elementi bulunmaktadır. Dolayısıyla, minerallerdeki ^{40}Ca miktarının ne kadarının doğal olarak bulunan ^{40}Ca olduğunu ve ne kadarının ^{40}K'nın radyoaktif bozunumu sonucu oluştuğunu belirlemek zordur. Bu nedenle, ^{40}K'nın ^{40}Ca'ya bozunumunun bir tarihlendirme yöntemi olarak kullanımı çok tercih edilmez, ancak yararlı olduğu bazı özel durumlar da vardır (Geyh ve Schleicher, 1990; Walter, 1997).

Lavlar gibi volkanik kayaçlar veya volkanik küllerin kristal bileşenleri erimiş haldeyken, lavın içerisindeki ^{40}K izotopunun bozunumu sonucu ^{40}Ar gazı atmosfere salınmaktadır; ancak kayalar veya mineraller soğumaya başladığında ^{40}Ar artık kaçamaz, mineralin kristal örgülerinde hapsolur ve burada jeolojik zaman boyunca bolluğu artar. Yani, volkanik kayaçlar için lavın soğuması jeolojik anlamda saati sıfırlayan bir olaydır. Laboratuvarda kaya örneklerindeki ^{40}K ve ^{40}Ar konsantrasyonları belirlenerek; $^{40}K/^{40}Ar$ oranı hesaplanabilir ve böylece volkanik kayacın ne zaman soğuduğu, dolayısıyla da volkanik aktivitenin ne zaman gerçekleştiği belirlenebilir.



Şekil 2. ^{40}K için bozunum diyagramı (McDougall ve ark., 1999; düzeltilerek alınmıştır.)

K-Ar tarihlendirmesi yapılırken aşağıda verilen iki temel varsayım göz önüne alınır (Walker, 2005):

1) Volkanik olay sonrasında sistemin tümüyle kapalı kaldığı; yani lavın soğumasını takiben kristalleşme gerçekleştikten sonra sistemden argon çıkışı olmadığı kabul edilir. Mineral numunesi bozulmuş veya herhangi bir sebeple yeniden ısıtma olayı olmuş ise argon kaybı meydana gelebilir. Her iki durumda da numunenin yaşı, olması gerekenden daha genç hesaplanır. Kayaçta yeniden kristalleşme sonucu oluşan ve ayrışmanın kanıtı olan ikincil mineraller petrografik analizlerle belirlenebilir. Daha güvenilir bir yaş değeri için hem tüm kayada hem de onun mineral parçalarında tarihlendirme analizleri yapılarak yaşların uyumu kontrol edilebilir.

2) Örnek içerisindeki ^{40}Ar miktarının tümünün ^{40}K bozunumundan üretilmiş olduğu, yani kirlenmenin gerçekleşmemiş olduğu kabul edilir.

Tarihlendirilecek numune yapısına kirlenmenin kaynağı olarak atmosferik ^{40}Ar karıştığı durumda hesaplanan yaş değeri olması gerekenden daha büyük elde edilir. Numunede, atmosferik ^{40}Ar izotopuyla birlikte yalnızca atmosfer kaynaklı olan ^{36}Ar izotopu da mevcuttur ve atmosferdeki $^{40}Ar/^{36}Ar$ oranı (=295.5) bilinmektedir (Nier, 1950). Bu oran kullanılarak, numuneye karışan atmosferik ^{40}Ar miktarı belirlenir ve böylece yalnızca radyojenik ^{40}Ar miktarı kullanılarak hesaplanan yaş değerinde düzeltme yapılır.

K-Ar yöntemi, genellikle alev fotometrisi veya başka kimyasal teknikler kullanılarak kayaç örneğinin bir bölüntüsünden (alikot) ^{40}K konsantrasyonunun ölçülmesini gerektirir. Kayacın başka bir bölüntüsünden ise radyojenik ^{40}Ar (veya $^{40}Ar^*$) konsantrasyonu, numuneyi ultra yüksek vakumlu bir sistemde eriterek ve Ar izotoplarını bir kütle spektrometresinde ölçerek belirlenir. Oluşumu sırasında $^{40}Ar^*$'nin tamamının kayaçtan uzaklaştırıldığı varsayılarak, numunenin yaşı aşağıdaki ifadeden elde edilir.

$$t = \frac{1}{\lambda} ln\left\{1 + \frac{\lambda}{\lambda_e}\frac{^{40}Ar^*}{^{40}K}\right\} \quad (7)$$

Burada λ, ^{40}K için toplam bozunma sabitidir ve $5.543x10^{-10}$ $yıl^{-1}$ değerindedir. λ_e ise ^{40}K'nın elektron yakalama yoluyla ^{40}Ar'a bozunma sabitidir ve $0.581x10^{-10}$ $yıl^{-1}$ değerindedir (Steiger ve Jager, 1977). Yaklaşık 20 milyon yıldan daha az yaşlar için, Denk. (7) aşağıdaki gibi yazılarak kullanılır.

$$t = \frac{1}{\lambda_e}\frac{^{40}Ar^*}{^{40}K} \quad (8)$$

Yukarıda belirtildiği gibi tarihlendirilecek örnekler içerisindeki radyojenik ^{40}Ar, volkanik bir kayadaki tek ^{40}Ar değildir. Günümüz atmosferinde yaklaşık %1 oranında Ar elementi bulunur ve bunun %99.60 oranı ^{40}Ar, %0.063 oranı ^{38}Ar ve %0.337 oranı ^{36}Ar izotoplarından oluşur. Bazalt kayaçların bütünü ve K-feldispat mineralleri yapısında az da olsa tuzaklanmış veya çözünmüş atmosferik ^{40}Ar içerebilir (Dalrymple ve Lanphere, 1971). Bir numunedeki atmosferik ^{40}Ar miktarı, ^{36}Ar konsantrasyonu ölçülerek ve atmosferik ^{40}Ar'nin ^{36}Ar'ye oranının 295.5 olduğuna dikkat edilerek tahmin edilebilir. Böylece numunedeki radyojenik ^{40}Ar değeri aşağıdaki ifadeden belirlenebilir.

$$^{40}Ar^* = {}^{40}Ar_{\text{ölçülen}} - 295.5\,{}^{36}Ar \quad (9)$$

Böylece Denk. (8) yeniden yazılırsa Denk. (10) elde edilir.

$$t = \frac{1}{\lambda_e}\frac{^{36}Ar}{^{40}K}\left\{\left(^{40}Ar/^{36}Ar\right)_{\text{ölçülen}} - 295.5\right\} \quad (10)$$

Kuvaterner örnekler için, numunedeki $^{40}Ar/^{36}Ar$ ile 295.5 arasındaki fark son derece küçük olabilir bu durum yöntemin kesinliğini sınırlayan temel faktördür. ^{36}Ar bolluğu her zaman çok küçük olduğundan, bunun ölçümündeki hata hesaplanan yaştaki baskın hata kaynağıdır (Hall ve York, 1984).

K-Ar yönteminde tarihlendirme için ölçülen potasyum miktarının çok az bir kısmının (%0.0117) radyoaktif ^{40}K olması, bu miktarın yine az bir kısmının (%10.9) ^{40}Ar'ye dönüşmesi ve bu radyoaktif bozunmanın

yarı ömrünün çok uzun ($1.3x10^9$ yıl) olması durumları bu yöntemi yaşlı örnekleri (milyar yıllar) tarihlendirmek için kullanışlı kılmakla birlikte, genç örneklerin tarihlendirilmesinde sınırlamalar getirmektedir. Örneğin, numuneden elde edilebilecek 10 g (bu miktar bile abartılmıştır) potasyumdan 1.3 milyar yıl sonra bozunma ile yaklaşık olarak 10 mg ^{40}Ar oluşacaktır, dolayısıyla genç örnekler için çok hassas kütle spektrometreleri gerekmektedir. Bu nedenlerle 100 bin yıl altındaki yaşları K-Ar yöntemiyle tarihlendirmek oldukça zordur.

Geleneksel K-Ar tarihlendirme yönteminde K ve Ar ölçümlerinin farklı alikotlarda yapılmasından dolayı tarihlendirilecek numunenin heterojen olduğu (bazaltlar gibi) durumlarda hatalı yaşlara neden olabildiği için; örnekteki ^{39}Ar miktarının ^{39}K izotopuyla orantılı olması, ^{39}K izotopunun ise ^{40}K izotopuyla orantılı olmasından hareketle örnekteki $^{40}Ar/^{40}K$ oranı tek bir kütle spektrometresi ölçümüyle de belirlenebilir. Tek bir alikot üzerinden bu ölçümler yapılırken bulunan ^{40}Ar ve ^{39}Ar oranlarından hareketle aynı zamanda $^{40}Ar/^{39}Ar$ olarak da bilinen Argon-Argon (Ar-Ar) tarihlendirme yöntemi geliştirilmiştir. Bu yöntemde, ^{40}Ar içeriği daha önce K-Ar yönteminde anlatıldığı gibi doğrudan ölçülür, ancak ^{40}K konsantrasyonu potasyum ve argon izotopları arasındaki bilinen oranlar kullanılarak dolaylı olarak ölçülmektedir. Kayacın tek bir parçasından alınan örnek bir nükleer reaktöre yerleştirilir ve hızlı nötronlarla (E>1MeV) ışınlanır. Bu işlem, kararlı ^{39}K izotoplarının bir kısmını doğada oluşmayan ve yaklaşık 270 yıllık bir yarılanma ömrüne sahip radyoaktif bir argon izotopu olan ^{39}Ar'a dönüştürür. Kütle spektrometresi ölçümüyle belirlenen ^{39}Ar bolluğu, ^{39}K'nın ve dolayısıyla ^{40}K'nın belirlenmesi için vekil olarak kullanılır (McDougall ve Harrison, 1999; Walker, 2005). Bu tarihlendirme yönteminde malzemenin yaşı aşağıdaki ifadeden elde edilmektedir.

$$t = \frac{1}{\lambda}\ln[J\,{}^{40}Ar^{*}/{}^{39}Ar_{K} + 1] \qquad (11)$$

Burada λ; ^{40}K için toplam bozunma sabiti, J; nötron akı parametresi olarak adlandırılan orantılılık faktörü, $^{40}Ar^{*}$, ^{40}K'nın bozunma sürecinde oluşan radyojenik ^{40}Ar, $^{39}Ar_K$ ise ^{39}K'un nötron aktivasyonu ile oluşturulan argon izotopudur. Denklemdeki J değeri, yaşı bilinen bir kalibrasyon malzemesi kullanılarak elde edilmektedir.

Yakın zamanda yukarıda bahsedilen işlemlere alternatif olarak Ar-Ar yaş tahminlerinin hem doğruluğunda hem de kesinliğinde önemli bir iyileşme sağlayan Tek Kristal Lazer Füzyonu (Single Crystal Lazer Fusion) $^{40}Ar/^{39}Ar$ tarihlendirme yöntemi geliştirilmiştir. Bu yöntemde 1 mg veya daha düşük mertebede tek kristal mineralleri hedef alınarak, süper hassas bir kütle spektrometresinde ölçülmesi için argonun uzaklaştırılmasını sağlayan yüksek güçlü bir lazer kullanılmaktadır (Lee, 2013).

Pratikte Ar-Ar yöntemi, K-Ar yöntemine göre bazı avantajlara sahip olmakla birlikte her iki yöntemle de kayaç için oldukça yakın yaşlar elde edilmektedir. Ar-Ar yöntemiyle özellikle 100 bin yıldan daha genç örnekler hassas bir şekilde tarihlendirilebilir. Tek bir numune kullanarak istatistiksel değerlendirme yapmaya olanak sağlayacak şekilde birkaç tarihlendirme sonucu elde edilebilir ve böylece daha hassas yaş değerine ulaşılması mümkün olabilmektedir. K-Ar tarihlendirme yönteminde yaş elde etmek için bir kayacın farklı noktalarından ölçüm alınırken Ar-Ar yönteminde kayaç örneğinin aynı noktasından ölçüm yapılmaktadır. Bu da kayacın heterojen olması durumunda oluşabilecek hataları engelleyen bir avantaj olarak görülmektedir. Ar-Ar yönteminde argon gazı ölçülürken, reaktördeki sıcaklık oda sıcaklığından kristalin erime sıcaklığına (>1500 ^{o}C) adım adım çıkarılır, bu esnada hem ^{40}Ar hem de ^{39}Ar izotopu her bir sıcaklık adımında ölçülerek yaş hesaplaması yapılır. Her bir sıcaklık adımında hesaplanan yaşların aynı çıkması, numunenin kapalı sistem olması kabulüyle örtüşür. Bu durum, her bir sıcaklıkta serbest kalan argon miktarı ve hesaplanan yaşlar kullanılarak oluşturulacak yaş eğrisinde "plato" gözlenmesiyle anlaşılabilir. Yani, Ar-Ar tarihlendirme yönteminde numunenin kapalı sistem davranışı gösterip göstermediği de belirlenebilir (Walter, 1997).

K-Ar ve Ar-Ar yöntemleriyle volkanik aktivite yaşları doğrudan belirlenebildiği gibi, volkanik olmayan jeolojik üniteler, faylar, tektonik havzalar gibi çeşitli jeolojik ve akarsu terasları, morenler, kıyı platformları gibi jeomorfolojik birimler de bağıl olarak tarihlendirilebilmektedir. Tarihlendirme amacıyla seçilen numunenin gözeneksiz ve bozulmamış yüzeye sahip olması ve volkanik kayacın iç kısmından alınmış olması gerekir (Bekaroglu, 2013). Prensip olarak, potasyum içeren herhangi bir mineral veya kaya, K-Ar ve Ar-Ar tarihlendirme yöntemlerinde kullanılabilir. Pratikte ise, tarihlendirilebilen numune çeşitliliği oldukça sınırlıdır. Her iki teknik de esas olarak magmatik ve metamorfik kayaçlara uygulanır, ancak bazı durumlarda tortul kayaçlar üzerindeki ölçümler de yararlı olabilir. K-Ar yönteminin önemli bir uygulaması, bazaltlar ve doleritler gibi genç mafik volkanik kayaçların tarihlendirilmesidir. Ayrıca, çökeltilerin doğrudan tarihlendirilmesi için artan bir kullanım alanı bulmaktadır. Örneğin, kırıntılı mineraller kaynakları hakkında bilgi sağlayabilirken, sedimantasyon veya diyajenez yaşı, kil minerallerinin analizi ile elde edilebilir. Potasyum tuzlarının tarihlendirilmesi, K-Ar yönteminin ilk uygulaması olmasına rağmen bugün bu alanda fazla kullanılmamaktadır. Oluşumu açık bir şekilde epitermal olan kil mineralleri ve mikalar ise hidrotermal yatakların K-Ar yöntemi ile tarihlendirilmesi için iyi bir seçenektir. K-Ar yöntemi, ay örnekleri ve göktaşlarını tarihlendirmek için de kullanılmaktadır, ancak son yıllarda büyük ölçüde yerini Ar-Ar yöntemine bırakmıştır (Geyh ve Schleicher, 1990).

K-Ar ve Ar-Ar tarihlendirme yöntemleri yaygın kullanılan jeokronometrelerden ikisi olup jeolojik zaman ölçeğinin kalibrasyonunda önemli araçlardır. Bu yöntemler milyon yıl mertebesinde yaşa sahip kayaç ve mineraller için kullanışlı olmakla birlikte, günümüzde birkaç bin yıllık daha genç malzemeler de tarihlendirilebilir, ancak böyle çalışmalar argon miktarının tespitinde oldukça dikkatli olmayı gerektirir. Böylelikle, bu tarihlendirme yöntemleri, Kuvaterner jeolojisi ve arkeoloji çalışmalarında da faydalı araçlar haline gelmişlerdir (Geyh ve Schleicher, 1990). Bu yöntemlerin Kuvaterner araştırmalarına en önemli katkıları; Afrika'da erken hominid (insansı) buluntularıyla ilişkili olduğu düşünülen lav ve diğer volkanik malzemelerin tarihlendirilmesinde, Yukon ve Patagonia çalışmalarında olduğu gibi buzul çökeltileri ile iç içe geçmiş tefraların tarihlendirilmesi yoluyla buzul kronolojilerinin geliştirilmesinde, Kuvaterner döneminde en büyük patlama olarak belgelenmiş Sumatra'daki Toba Yanardağı'nın yaşının yaklaşık 75 bin yıl olarak elde edilmesi gibi önemli volkanik olayların tarihlendirilmesinde ve paleomanyetik zaman ölçeği için bir kronoloji sağlanmasında olmuştur (Walker, 2005). K-Ar yönteminin genç volkanik kayaları tarihlendirmek için yapılan ilk uygulamaları, esas olarak hominid evriminin zaman ölçeğini kalibre etmek için gerçekleştirilmiştir (Leakey ve ark., 1961). Bu çalışmalardan sonra K-Ar jeokronolojisi, oldukça geniş bir zaman aralığında jeolojik ve biyolojik olayların kalibre edilmesinde giderek daha önemli bir rol oynamıştır (Walter, 1997). Bu uygulamalar göz önüne alındığında her iki yöntemin de adli bilimler açısından önemli olduğu görülmektedir.

1.3. Uranyum-Toryum (^{230}Th/^{234}U) Yöntemi

Uranyum-Toryum (U-Th) yöntemi Kuvaterner biliminde radyokarbondan sonra en yaygın kullanılan radyometrik tarihlendirme yöntemidir. İkinci Dünya Savaşı'nı izleyen yıllarda geliştirilen ve başlangıçta derin okyanus çökeltilerinin tarihlendirilmesine uygulanan bu yöntem, 1960'lardan sonra hem deniz hem de karasal karbonatlar için rutin olarak kullanılmıştır (Walker, 2005). Doğada aktinitler olan ^{238}U, ^{237}Np, ^{235}U, ^{232}Th ile başlayan dört doğal radyoaktif bozunma zinciri vardır ve bu zincirler sırasıyla kararlı çekirdekler olan ^{206}Pb, ^{209}Bi, ^{207}Pb, ^{208}Pb ile sonlanırlar. Ancak bunlardan Np serisinin en uzun ömürlü çekirdeğinin yarı ömrü (2.14×10^6 yıl) dünyanın yaşından çok küçük olduğundan bu zincir sonlanmıştır. Diğer zincirlerin en uzun ömürlü elemanının yarı ömrü dünyanın yaşı ile kıyaslandığında aynı veya daha büyük olmasından dolayı doğal olarak gözlenmektedir. Bu zincirlerdeki radyoizotoplarının yarı ömrüne bağlı olarak bozunma dengesizliğinden yararlanarak farklı tarihlendirme yöntemleri geliştirilmiştir. U-Th yöntemi bunlardan biridir. Bu yöntemde Şekil 3'te üst kısmı verilen ^{238}U

bozunma zincirindeki $2.4x10^5$ yıl yarı ömürlü ^{234}U elementinin ^{230}Th elementine alfa yayarak bozunumu kullanılmaktadır. İzotopların ölçüm hassasiyetlerine bağlı olarak yarı ömrün birkaç katı yaşlı örnekler tarihlendirilebilir.

Ana çekirdek miktarı zamanla değişmiyorsa, yani yarı ömrü ürün çekirdeğe göre çok uzunsa, yarı ömrün birkaç katı zaman sonra ana çekirdekle ürün çekirdek radyoaktif dengeye gelecektir. Bu değer tarihlendirmenin üst sınırını belirleyecektir. Şekil 3'ten görülebileceği gibi ^{238}U izotopunun yarı ömrü ^{234}U'nun yarı ömründen çok uzundur. Dolayısıyla tarihlendirilecek örneğe göre bir miktar değişse de hassas bir kütle spektrometresiyle ölçüm yapılması durumunda tarihlendirmenin üst sınırı ^{234}U'nun yarı ömrünün birkaç katı olana kadar (600 bin yıl) çıkarılabilir.

Uranyumun yer kabuğundaki ortalama yoğunluğu 2-4 ppm arasındadır ve birçok mineralin yapısında doğal olarak bulunabilmektedir. U'nun en bol izotopu ^{238}U olup doğada %99.27 oranında bulunmaktadır. Th'nin en bol izotopu ise ^{232}Th (%100)'dir.



Şekil 3. ^{238}U bozunma zincirinin üst kısmı

U ve Th elementlerinin tarihlendirilecek örnekler ve ortamlar içerisinde bulunma oranlarının farklı olmasının sebebi farklı jeokimyasal davranışlarından kaynaklanır. U doğada ana olarak iki okside durumda, U^{+4} ve U^{+6} değerlikli olarak bulunur. Yer yüzeyinde bunlardan suda çözünebilir olan U^{+6}, uranül iyonu $(UO_2)^{+2}$ ve çeşitli uranül karbonatlar olarak, baskın biçimde bulunur. İndirgen ortamlarda ise U^{+4} durumu daha baskındır. Ancak bu formu suda çözünmediğinden U^{+6}'dan daha az hareketli, dolayısıyla örneklerin yapılarına sızma şansı azdır. Bunların aksine Th karasal malzemeler içerisinde genel olarak Th^{+4} okside durumunda olup, doğal sularda çözünmediğinden doğal şartlarda mineraller olarak ya da parçacıkların yüzeyine yapışarak taşınırlar. Bunun sonucunda, yer altı sularında, ırmak sularında, deniz sularında çözünmüş U mevcut olup, hiç Th yoktur. Bu sebeple yumuşakçalar kavkılarını oluştururken, ya da tufa, traverten, mağara sarkıt ve dikitleri gibi ikincil karbonatlar oluşurken yapılarına U^{+6} girebilir ancak Th hiçbir zaman giremez ve böylece oluşumlarında Th/U dengesizliği kurulur (Scholz ve Hoffmann, 2008).

$^{234}U/^{238}U$ izotop oranı α-bozunması (çarpışması) sonucunda değişkenlik gösterir. Bu bozunmanın izotop oranları üzerine iki etkisi vardır: (1) Bir He çekirdeği olan α-parçacığı sınırlı bir kinetik enerjiye sahiptir. Bu nedenle ürün çekirdek ana çekirdekten az bir miktar

ayrılabilir, böylece ya komşu yapılara doğru yayılır ya da kolayca ortamı terk edebilir. (2) α-parçacığı gittiği yörüngesi boyunca örgüde hasarlar oluşturabilir. Bu sebeple ayrışma sürecinde ürün çekirdekler ana çekirdekten daha hareketli olur ve sonuçta yer altı ve ırmak sularında $^{234}U/^{238}U$ izotop oranı genellikle denge değerinden yüksek olur (Bourdon ve ark., 2003).

Radyoaktif çekirdek bozunumuna dayalı olarak geliştirilen tarihlendirme yöntemlerinde Denk. (1)'deki genel ifade kullanılarak ve radyoaktif çekirdeklerin aktiviteleri ve aktivite oranları parantez içerisinde gösterilerek, bir bozunma zinciri içinde tek tek izotopların aktivitelerinin zamansal değişimi, standart yöntemlerle çözülebilen bir diferansiyel denklem sistemi ile tanımlanır. Buna göre, ^{238}U zinciri içerisindeki izotopların aktivitelerinin zamanla değişimi çözülürse, ^{234}U'nun aktifliğinin ^{238}U'nun aktifliğine oranının zamanla değişimi aşağıdaki gibi bulunur (Ivanovich ve Harmon, 1992).

$$\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)(t) = \left[\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)_{baş} - 1\right] e^{-\lambda_{234} t} + 1 \qquad (12)$$

U-Th yönteminde iki önemli kabul yapılmaktadır:

1) Tarihlenecek numuneye hiçbir Th giriş çıkışı olmamıştır. Yani, Th başlangıçta suda çözünüp yapıya giremediğinden birikmesi ve aktivitesi sıfır alınmıştır.

2) Bozunma sürecinde sistemin kapalı olduğu varsayılmış, yani sistem oluştuktan sonra sisteme U ve Th giriş çıkışı olmamıştır. Ayrıca bu eşitlikte, ^{238}U ile ^{234}U arasındaki çok kısa yarı ömürlü izotoplar radyoaktif dengede olup göz ardı edilmiştir. Denk. (12) kullanılarak yaşın hesaplanabilmesi için ^{234}U'nun başlangıçtaki aktivitesinin ^{238}U'nun başlangıçtaki aktivitesine oranının, $(^{234}U/^{238}U)_{baş}$ bilinmesi gerekir. Ancak, bu değeri bilemeyiz ve ayrıca bu değer örnekten örneğe değişecektir. Bu durumdan kurtulmak için ^{230}Th'nin ve ^{238}U'nun aktifliklerinin oranını yazarsak aşağıdaki ifadeyi elde ederiz.

$$\left(\frac{^{230}Th}{^{238}U}\right)(t) = \left(1 - e^{\lambda_{230} t}\right) + \left[\left(\frac{^{234}U}{^{238}U}\right)(t) - 1\right] \frac{\lambda_{230}}{\lambda_{230} - \lambda_{234}} \left(1 - e^{-(\lambda_{230} - \lambda_{234}) t}\right) \qquad (13)$$

Burada λ'lar ^{230}Th için; λ_{230}=9.1577x10^{-6} yıl^{-1} ve ^{234}U için; λ_{230}= 2.8263x10^{-6} yıl^{-1} değerindedir (Cheng ve ark. 2000). Yukarıda bahsedilen iki kabulden biri bozulursa örneğin yaşı doğru olmayacaktır. Bu iki kural sağlanıyorsa; $(^{230}Th/^{238}U)$ ve $(^{234}U/^{238}U)$ aktivite oranlarını bulmak için örnekteki ^{238}U, ^{234}U, ^{230}Th birikmeleri ölçülür ve aktivite oranları hesaplanarak Denk. (13)'den örneğin *t* yaşı sayısal veya grafiksel tekniklerle hesaplanabilir (Ivanovich ve Harmon, 1992).

Tarihlendirmede gerekli olan ^{238}U, ^{234}U ve ^{230}Th izotoplarını ölçmek için temelde iki teknik kullanılır. Bu izotoplar farklı kütleli olduğundan ve hepsi de α yayınımı ile bozunduğundan ya hassas alfa spektrometresi veya hassas kütle spektrometresi kullanılarak bu izotopların miktarları belirlenebilir. Ölçülmesi gereken tüm izotoplar farklı enerjili α parçacıkları yayarak bozundukları için, bir alfa spektrometresiyle izotopların bolluklarıyla orantılı olan bu farklı enerjili alfalar sayılarak aktiflik oranları belirlenebilir. Bu teknik eski bir teknik olup çok miktarda örnek (1µg'den fazla U, bu onlarca gram örneğe karşılık gelebilir) ve izotop ölçümü için uzun süre (birkaç gün) gerektirir. Ayrıca hassasiyeti dolayısıyla bu teknikle en fazla 350 bin yıl değerine kadar tarihlendirme yapılabilmektedir. Bu tekniğin yanı sıra, saflaştırılmış ve ayrıştırılmış örnekteki ölçülmesi gerekli izotoplar bir kütle spektrometresiyle doğrudan ölçülebilir. 1980'lerden sonra Termal İyonizasyonlu Kütle Spektrometresi (Thermal Ionization Mass Spectrometry, TIMS), ve son 20-25 yıldır daha ileri bir teknik olan Çok Kollektörlü İndüktif Çiftlenimli Kütle Spektrometresi (Multicollector-Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer, MC-ICPMS) kullanılmaktadır. Kütle spektrometrelerinin kullanılmasıyla çok az miktarda (5-10 ng) örnek ile kısa zamanda (birkaç saat) daha hassas ölçümler yapılabilmekte ve 500 bin yıla kadar yaşa sahip örnekleri tarihlendirmek mümkün olmaktadır. Hassas alfa spektrometresi ve hassas kütle spektrometresinin kullanıldığı her iki teknikte de ölçümden önce U ve Th izotopları kimyasal ayrıştırma ve saflaştırma yöntemleri ile örnekten ayrıştırılırlar. Bu iki izotopun ayrıştırma yöntemleri farklı olduğundan aynı oranda ayrıştırılıp ayrıştırılmadığını ölçmek için bu kimyasal işlemden önce örneğe oranları hassas bir şekilde bilinen ^{236}U ve ^{229}Th izotoplarının bulunduğu çözelti katılır. Bu bilinen oranlardan yola çıkarak tarihlendirmede kullanılan izotopların kimyasal ayrıştırma ile hangi oranda ayrıldığını tespit etmek için örneğe karıştırılan izotoplar da ölçülmelidir. Son olarak yapıya dışarıdan aşınma yoluyla Th girmiş ise düzeltme yapmak için ^{232}Th miktarı da ölçülmelidir (Walker, 2005; Scholz ve Hoffmann, 2008).

U-Th yöntemi genellikle kalsiyum karbonat ($CaCO_3$) yapıdaki karasal ve denizel depoların, tarihlendirilmesinde kullanılmaktadır. Son 2.6 milyon yılı kapsayan Kuvaterner döneminde meydana gelen paleoiklim ve paleoortam değişimlerinin araştırılmasında önemli malzemeler olan mercan resiflerine, traverten ve tufa gibi ikincil karbonat çökellerine ya da sarkıt, dikit, akartaş gibi mağara çökellerine uygulanmaktadır (Bekaroglu, 2013). Mağara çökelleri ve tufalar, paleoiklimsel verilerin elde edilmesinde ve değerlendirilmesinde çok önemlidir. Ancak bu malzemelerde kırıntılı Th kontaminasyonu ve açık sistem U kaybının söz konusu olması elde edilen yaşlardaki önemli hata kaynakları olarak dikkate alınmalıdır (Garnett ve ark., 2004). U-Th yönteminin uygulanmasında en başarılı malzemelerden biri fosil

mercanlardır. Bunun nedeni, ölümden sonra mercan iskeletlerinin, mercan çözünene veya kalsite dönüşene kadar etkin bir şekilde kapalı sistem olarak kalmasıdır (Walker, 2005). Bu yöntem, mercanların, yumuşakçaların ve denizaltı karbonat platformlarından gelen tortuların tarihlendirilmesi yoluyla, özellikle denizin buzullararası yüksek kısımlarıyla ilişkili deniz seviyesi değişiminin kronolojilerini türetmek için kullanılmaktadır (Jedoui ve ark., 2003; Henderson ve Slowey, 2000).

U-Th tarihlendirme yöntemi adli bilimlerde de oldukça önemlidir. Özellikle nükleer santrallerde yakıt olarak kullanılmak üzere üretilen nükleer malzemelerin uluslararası kaçakçılığı olaylarında bu malzemelerin üretim tarihi ve menşeini belirlemek amacıyla kullanılmaktır (Stanley, 2012; Moody ve ark., 2005). Örneğin, Wallenius ve ark. (2006) çalışmalarında Almanya'da bulunan ve yüksek düzeyde radyoaktif materyallerin taşınması ve depolanmasıyla ilgili risklere karşı Avrupa vatandaşının korunması için bilimsel bir temel sağlamayı amaçlamış olan Transuranyum Elementler Enstitüsü (Institute for Transuranium Elements, ITU)'ne gelen nükleer madde kaçakçılığı şüphelisi iki vakayı incelemişlerdir. Bu vakaların ilki 2003 yılında Litvanya'dan gelen 4 farklı uranyum-dioksit pelet malzemesi, ikincisi ise Çek Cumhuriyeti'nden gelen 4 farklı uranyum toz malzemesidir. U-Th tekniğiyle tarihlendirilen pelet malzemelerin yaşı 12.6±0.8 yıl ve toz malzemelerin yaşı 27±1.2 yıl olarak hesaplanmıştır. Buna göre U-Th metodunun malzemenin U içeriğine bağlı olarak ve hassas teknolojik cihazların da kullanılmasıyla adli bilimlerde genç yaştaki nükleer malzemelere uygulanabileceğini söylemek mümkündür.

2. Doğal Işınımın Biriktirdiği İzlerden Yararlanılarak Geliştirilen Tarihlendirme Yöntemleri

Doğal radyoaktif elementlerin yaydığı radyasyon mineral veya fosiller gibi katılarda atomik veya elektronik kusurlar üretmektedir. Doğal radyasyon etkisiyle oluşan bu kusurlar çeşitli fiziksel yöntemlerle ölçülerek incelenen numune için jeolojik/arkeolojik saat olarak kullanılmaktadır. Bu bölümde bu prensibe dayalı olarak çalışan Elektron Spin Rezonans (ESR), Termolüminesans (TL), Optik Uyarımlı Lüminesans (OSL) ve Fizyon İzleri tarihlendirme yöntemleri özetlenerek anlatılmıştır. Ayrıca kimyasal oksidasyonla oluşan radikallerin kullanıldığı Kimyasal ESR tarihlendirme yöntemine de kısaca değinilmiştir.

2.1. Elektron Spin Rezonans (ESR) Tarihlendirme Yöntemi

Elektron Spin Rezonans (ESR), bir diğer adıyla Elektron Paramanyetik Rezonans (EPR), kristal ve amorf malzemelerdeki

paramanyetik merkezleri yani manyetik kusurları inceleyen ve Manyetik Rezonans (MR) prensibine göre çalışan spektroskopik bir yöntemdir. Çiftlenimsiz elektrona sahip paramanyetik örnekler doğal olarak mevcut olabildiği gibi fiziksel ya da kimyasal etkilerle de oluşabilir. Radyasyon (UV, X-ışını, α- ve β-parçacıkları, γ-ışınları ve kozmik ışınlar), malzeme yapısında paramanyetik merkez ya da radikal oluşturabilen önemli fiziksel etkilerden birisidir. Radyasyon, enerjisine bağlı olarak moleküler yapıdan bir elektronu koparark ve sürükleyerek örgüde tuzaklanmasına neden olabilir; elektronun sürüklenmesi sonucu arkada kalan elektron deşiği tuzaklanabilir; moleküler bağı koparark radikaller oluşturabilir ya da elektronları uyararak bir üst seviyeye geçirebilir. Paramanyetik merkeze ait ESR sinyal şiddeti, paramanyetik merkezin yoğunluğu ile orantılıdır. Elektron-deşik çifti, radikaller veya uyarılmış olan elektron bir etki ile ya da kendiliğinden geri birleşebilirler. Bu durum paramanyetik merkezin sönmesine sebep olabilir. Ancak bazı paramanyetik merkezler dışarıdan bir etki görmedikçe çok uzun zaman kararlı halde kalabilir. İşte böyle kararlı radikaller doğal radyasyona duyarlı ise örneğin yaşını bulmak için iyi bir ölçektir (Ikeya, 1993).

Jeolojik/Arkeolojik bir numunenin çevresinde ve içinde bulunan Uranyum (^{238}U, ^{235}U), Toryum (^{232}Th) ve Potasyum (^{40}K) gibi doğal radyoaktif maddeler ve onların ürün çekirdekleri radyasyon yayarak madde içinde paramanyetik merkezlerin oluşmasına neden olurlar. ESR ile algılanabilen ve yukarıda belirtilen süreçlerle yoğunluğu artan bu paramanyetik merkezlerin oda sıcaklığındaki yarı ömürlerine bağlı olarak milyon yıl mertebesinden günler mertebesinde yaşları tespit etmek mümkündür.

Numune içerisindeki paramanyetik tuzak sayısının azalmasına ve böylece paramanyetik merkezlerin sönmesine neden olan etkiler "sıfırlayıcı olay" ya da "saati sıfırlayan olay" olarak tanımlanır. Yeniden kristalleşme, ısınma, optik ağarma, mekanik ağarma ya da tavlama, asit ya da asidik su ile yıkanma en önemli sıfırlayıcı olaylar olarak tanımlanır ve paramanyetik merkezleri sıfırladıkları için "yaşın başlangıcı" olarak alınırlar. Örneğin, kristalleşme sıfırlayıcı olayı nedeniyle yumuşakça kabukları, mercanlar ve kemikler gibi biyolojik yapıların ve sarkıt, dikit, akmataş, traverten ve tufa gibi karasal karbonatların oluşum yaşları belirlenebilir. Bununla birlikte, jeolojik zaman içerisinde malzemenin kısmen yeniden kristalleşmesi de yanıltıcı genç yaşlar verebilir. Böyle durumları belirlemek için numunelerin XRD analizleri yapılarak mineral yapıları tayin edilmelidir. Bir başka örnek de çanak ve çömleğin fırınlanarak tavlanmasıdır. Isıl etkiyle doğal kil minerallerinin (kuvars, feldispar) yapısındaki paramanyetik merkezler sıfırlanır ve bu etki kullanılarak arkeolojik seramikler tarihlendirilebilir. Benzer şekilde volkanik patlamalar ve jeotermal etkiyle ortaya çıkan ısının kayaç numunelerinin yapısındaki paramanyetik merkezleri sıfırlaması durumu

kullanılarak volkanik aktivite ve jeotermal oluşum yaşları belirlenebilir. Mekanik ağarma ya da tavlamaya en güzel örnekler ise fay ve buzul hareketleridir. Bu şiddetli jeolojik etkiler katı içerisinde atomların yer değiştirmesine ve dolayısıyla paramanyetik tuzakların boşalmasına neden olacağı için buradaki numunelerin yaşları, hareketlerin meydana geldiği tarihe karşılık gelecektir. Yani, sıfırlayıcı olaylar tarihlendirilmek istenen numune için başlangıç kabul edilir, ancak aynı zamanda doğru yaş tayini için dikkat edilmesi gereken olaylardır.

Numunenin yaşı; oluşumundan veya herhangi bir sıfırlayıcı olaydan günümüze kadar çevresel radyoaktif elementler nedeniyle soğurduğu toplam doz (*TD*) miktarı ile ortalama yıllık doz (*D*) arasındaki bağıntıdan elde edilir. Numunenin soğurduğu toplam doz, jeolojik doz (*JD*) veya arkeolojik doz (*AD*) olarak da tanımlanmaktadır. Tarihlendirilecek numunelerin laboratuvar ortamında yapay olarak ışınlanmasıyla soğurduğu dozdan hareketle hesaplanan eşdeğer doz değerine D_E ve bulunduğu çevrede bir yılda soğurduğu doza da *D* dersek, örneğin yaşı en genel anlamıyla aşağıdaki ifadelerden hesaplanabilir.

$$T_{\mathrm{ESR}} = TD/D, T_{\mathrm{ESR}} = D_{\mathrm{E}}/D \tag{14}$$

Numunelerin ESR spektroskopisiyle tarihlendirilmesinde kullanılmak üzere çok sayıda metot geliştirilmiştir. Bunlar: "Eklemeli Doz Metodu", "Bekle ve Gör Metodu", "Kimyasal Tepkimelerle Yaşlandırma Metodu", "ESR Dendrokronoloji", "Plato Metodu", "Teorik Büyüme Eğrisinden Direkt Yaş Tayini" şeklindedir. Bununla birlikte, eşdeğer doz hesabı için kullanılan farklı metotlar arasında en yaygın olanı Eklemeli Doz Metodu'dur. Oluşan paramanyetik merkezlerin yoğunluğu soğurulan radyasyon dozuna kalibre edilmedikçe ESR sinyal şiddeti örneğin yaşıyla ilişkili olmayabilir. Eğer belirli bir zaman diliminde radyasyonla veya diğer etkilerle oluşan kusur yoğunluğunun (paramanyetik merkez sayısı) zamanla değişimi biliniyorsa, şimdiki yoğunluğundan geçmiş zaman dilimini tespit etmek mümkün olur. Bu nedenle numuneleri suni olarak yaşlandırmak için, laboratuvarda yapay olarak γ radyasyonuna maruz bırakılır. Böylece numune içindeki kusur yoğunluğu radyasyon dozuna bağlı olarak arttırılır. Uygulanan bu işlem bir zaman makinesi gibi çalışır ve "Eklemeli Doz Metodu" olarak tanımlanır.

Kusur yoğunluğu ile orantılı olan ESR sinyal şiddeti, yapay ışınlamanın soğurulan *Q* dozunun bir fonksiyonu olarak artar. *D'*, yapay ışınlamanın doz hızı ve *t'*, yapay ışınlama zamanı olmak üzere soğurulan doz aşağıdaki gibi ifade edilir.

$$Q = D't' \tag{15}$$

Özellikle genç numunelerde soğurulan Q dozu ile ESR sinyal şiddeti arasında aşağıda verilen lineer bir bağıntı vardır.

$$I(Q) = I_0\,(1 + Q)/D_{\mathrm{E}} \tag{16}$$

Bu ifade kullanılarak çizdirilen doz-cevap eğrisi yardımıyla D_{E} belirlenebilir. Burada I_0 ve $I(Q)$ sırasıyla ışınlamadan önce (doğal) ve Q dozunda ışınlanmış örneğin ESR sinyal şiddetleridir. Bazı durumlarda ise büyüme eğrisi aşağıdaki biçimde üstel olarak doyuma giden bir eğriye fit edilir.

$$I(Q) = I_{\mathrm{s}}\{1 - \exp[(-Q + D_{\mathrm{E}})/SD]\} \tag{17}$$

Bu durum genellikle jeolojik olarak yaşlı örneklerde gözlenir. Burada I_{s}, doyum (satürasyon) durumunda ESR sinyal şiddeti, SD ise doyum dozudur (Ikeya, 1993).

Eklemeli Doz Metodu yardımıyla çizdirilen ve sırasıyla Denk. (16) ve Denk. (17)'de lineer ve üstel fonksiyonlara uyan doz-cevap eğrisinde en küçük kare fit yöntemi kullanılarak veri noktalarının sıfır ordinata ekstrapolasyonu ile eşdeğer dozu ifade eden D_{E} değeri belirlenir. Numunelerin yaş hesabı için ESR tekniği ile elde edilecek D_{E} değerine ek olarak bir yılda soğurduğu radyasyon dozuna karşılık gelen yıllık doz (D) değeri de hesaplanmalıdır. Bunun için kullanılan iki farklı yol vardır. İlki, numunenin alındığı yere dozimetre gömülmesi ve en az 6 ay kalması gereken bu dozimetrenin soğurduğu dozdan hareketle numunenin moleküler yapısı da dikkate alınarak yıllık dozun belirlenmesidir. İkincisi ise, numunenin içindeki ve 30 cm çevresindeki uranyum, toryum ve potasyum radyoaktif madde miktarlarının Indüktif Eşleşmiş Plazma-Kütle Spektrometresi (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer, ICP-MS) yöntemi kullanılarak hassas bir şekilde (ppm, ppb düzeyinde) belirlenmesi ve literatürde sunulan 1 ppm ^{238}U, ^{232}Th ve %1 K_2O için nükleer veri tablosundaki değerler (Guerin ve ark., 2011) göz önüne alınarak ICP-MS ile elde edilen miktarların kullanılmasıyla yıllık dozun hesaplanmasıdır.

Numunelerin ESR yaşının hesabında, tarihlendirme sinyalini oluşturan radikalin ısıl ömrünün (τ) bilinmesi gerekli ve önemlidir. Radikalin ısıl ömrü, kusur merkezinde tuzaklanan çiftlenimsiz elektronun aktivasyon enerjisi (E) ile yani tuzak derinliği ile orantılıdır. Dolayısıyla, hem ilgili radikalin ESR yaş tayinine uygunluğu hem de bu radikalle elde edilebilecek ESR yaş üst limiti konusunda bilgi sağlar. Bu nedenle ESR tarihlendirme çalışmalarında, radikallerin ısıl davranışlarının incelenerek kararlılıklarının saptanması amacıyla eş-süreli (isochronal) ve eş-ısıl (isothermal) tavlama deneylerinin yapılması da önemlidir. Bu çalışmalar sonucu elde edilen verilerle τ ve E hesaplanır (Ikeya, 1993).

ESR yöntemi yaklaşık olarak bin yıllar ile birkaç milyon yıl arasındaki örnekleri tarihlendirmede oldukça başarılıdır. Tarihlendirme üst yaş limiti kullanılan radikalin yarı ömrünün 1-1.5 katı mertebesine kadar çıkabilir. Tarihlendirme yaş limitlerinin tüm Kuvaterner dönemi kapsaması nedeniyle jeolojik ve arkeolojik çok sayıda farklı örneğin tarihlendirilmesinde güvenilirlikle kullanılmaktadır. Diğer tarihlendirme yöntemlerine göre en önemli avantajı geniş tarihlendirme yaş aralığıdır. ESR yönteminin diğer önemli avantajları: (i) hem organik hem de inorganik örneklerin incelenebilmesi, (ii) ölçüm ve hesaplama süresinin makul oluşu, (iii) çevre dostu oluşu, (iv) maliyetinin ucuzluğu, (v) inceleyebildiği örnek çeşitliliğinin fazla olması, (vi) örnek hazırlamanın kolaylığı, (vii) kullanılan örnek miktarının azlığı (~1-2 g), (viii) tarihlendirmedeki hata oranının makul (~5 – 10 %) oluşu ve en önemlisi (ix) örneklerden istenildiği tekrarda ölçüm alınabilmesi yani ölçüm sırasında paramanyetik merkezler sönmediği için tahribatsız ölçüme izin vermesidir. Bir başka önemli avantajı ise, aynı numune için birden fazla paramanyetik merkez kullanarak yaş tayini yapabilmesidir (Ikeya, 1988; Hennig ve Grün, 1983). Örneğin; kalsit ve aragonit minerallerinde izotropik SO_3^-, ortorombik CO_2^- ve izotropik CO_2^- sinyalleri, kuvars mineralinde ise Al, Ti, Ge ve E' merkezleri kullanılarak yaş hesaplamak mümkündür (Ikeya, 1993; Blackwell ve ark., 2016).

ESR tarihlendirme yönteminin ilk başarılı uygulaması, Japonya'da yer alan Akiyoshi Mağarası'ndaki Kuvaterner döneme ait $CaCO_3$ oluşumu sarkıt örnekleri için gerçekleştirilmiştir (Ikeya, 1975). Bu öncü çalışmanın ardından, bu alandaki çalışmalar hızlı bir gelişme sürecine girmiş ve antropolojik çalışmalarda kemiklere, sedimentlerdeki kabuklar ve mercanlara, derin deniz sedimentlerindeki planktonik deniz hayvanlarına ve yanmış çakmak taşlarına başarıyla uygulanmıştır. Günümüzde ise ESR, çok sayıda farklı jeolojik ve arkeolojik materyale güvenilirlikle uygulanmaktadır. Paleoiklimsel ve/veya paleoortamsal değerlendirmeler yapmak üzere; mağara çökelleri (sarkıt, dikit, akmataş), karasal karbonat çökelleri (traverten, tufa), kaynak birikintileri, kalkrit mineralleri, fosil yumuşakça kavkıları, mercanlar, foraminiferler, anhidrit mineralleri, göl ve deniz birikintileri, fosil yumurta kabukları, zirkon, feldispar ve kuvars içeren kayaç ve çökeller, evaporitler, volkanik taşlar ve başkalaşmış taşlar tarihlendirilmektedir. Bununla birlikte, geçmiş depremlerin jeokronolojisinin tespiti ve olası yeni depremlerin tahmini için kuvars mineralleri kullanılarak fay hatları yaşlandırılabilmektedir. Diş minesi ve kemik numuneleri arkeolojik alanların yaşını belirlemek için oldukça önemlidirler ve ESR yöntemiyle başarıyla tarihlendirilebilmektedir. Bu numuneler arkeolojik sahalarda yaygın olarak bulunabileceğinden örneklemesi kolaydır ve ESR yönteminde uzun ömürlü radikaller kullanıldığından ^{14}C yönteminin üst yaş limitinin

de ilerisinde yaşların elde edilmesini mümkün kılmaktadır (Grün, 1989; Ikeya, 1993; Rink, 1997; Blackwell ve ark., 2016).

ESR tarihlendirmenin önemli bir özelliği, tuzaklanmış elektron/deşik merkezlerinin yoğunluğunu malzemeleri ısıtmaksızın oda veya düşük sıcaklıkta ölçebilmesidir. Yani, ESR ölçümlerinde yanma söz konusu olmadığı için, organik materyal içeren fosiller de ESR için tarihlendirme materyali olarak kullanılabilir. Hatta bu avantaj, organik materyallerin kendilerinin de ESR ile tarihlendirilebilmesini mümkün hale getirmektedir. Biyolojik malzemelerde organik radikaller, yukarıda ayrıntısıyla bahsedildiği gibi radyasyonla (Gordy ve ark., 1955) oluşabilmelerinin yanı sıra fotokimyasal süreçler, kimyasal ayrışma veya oksidasyon (Fritsch ve ark. 1974) yoluyla da üretilirler. Radyasyon, malzemede radikaller oluşturabilmekte ancak soğurulan doz genel olarak arkeolojik ve tarihi organik materyallerde oksidasyon yoluyla radikal oluşumunun kimyasal süreciyle rekabet etmek için çok düşük kalmaktadır. Çoğu organik radikal türünün ömrü nispeten kısadır. Bu nedenle, organik malzemeler genellikle jeolojik ESR tarihlendirmesinin nesneleri olamazlar, ancak limitler dahilinde tarihi ve adli materyaller için kullanılabilirler. Oksidasyon yoluyla radikal oluşumu ve değerlik değişimi gibi kimyasal reaksiyonlar ESR ile tespit edilebilir ve bu, bir tarihlendirme yöntemi olarak kullanılabilir. Eklemeli ışınlama yapmak yerine, doğal zamanın geçişinde oksidasyon sürecini inceleyen Kimyasal ESR Tarihlemesi (Chemical ESR Dating), ilk olarak patates cipsinin (Ikeya ve Miki, 1980), ardından lipid peroksi radikalleri vasıtasıyla tavşan derilerinin yaş hesabı için kullanılmıştır (Ikeya ve Miki, 1986). Daha sonra ölü hayvanlardan elde edilen deri ve kürk, kan damlası, tarihi kağıtlar ve selüloz, ipek, yün, kahve çekirdeği ve tahıl taneleri gibi organik malzemelerde geçen zamana bağlı olarak kimyasal oksidasyonla oluşan radikaller ESR yöntemiyle incelenmiştir (Ikeya, 1993). Patates cipsi tarihlendirmek için kullanılan sinyal yoğunluğundaki günden güne artış ölçümleri, adli tıp biliminde kan lekelerinin tarihlendirilmesi için de uygulanabilir. Ayrıca, arkeolojik nesneler ve tarihi malzemeler, sıcaklık değişimi sınırlaması dahilinde tarihlendirilebilir.

Adli bilim uygulamasında, bir suçun işlendiği zamanın doğru belirlenmesi en önemli ölçülerden biridir ve olay yerinde bulunan çeşitli izler bu amaçla incelenir. Kimyasal ESR tarihlendirme yöntemi organik bazı deliller için faydalı olabilir. Shankar ve ark. (2021) çalışmalarında suç mahallinde bulunabilecek dökülmüş saç tellerinin yaşını tahmin etmek amacıyla ESR yöntemini kullanmışlar ve farklı renklerdeki saçlarda melanin kaynaklı serbest radikallerin zamana bağlı değişimlerini inceleyerek, kontrollü koşullar (nem, sıcaklık, ışık) altında yaşlanan saç tellerinde bu radikallerin zamanla bozulma gösterdiğini belirlemişlerdir. Saçtaki eumelanin (koyu renkli saçların baskın pigmenti) türevi radikallerin kararlı (oda sıcaklığında yarı ömrü 22±2 gün) olduğunu,

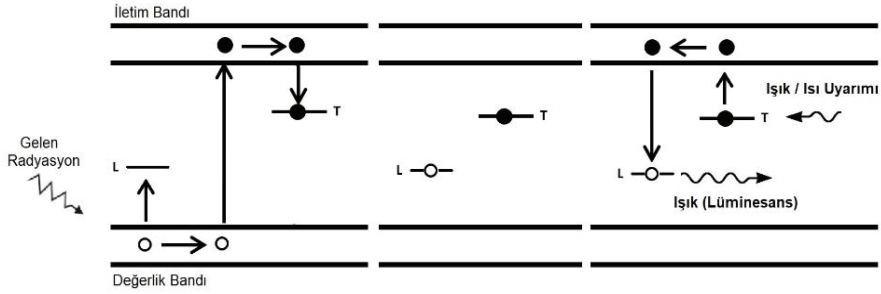
dolayısıyla adli vakalarda olay yerindeki saçların bozulmasını incelemek amacıyla bu radikalin ESR tekniği ile takip edilebileceğini ifade etmişlerdir.

Adli vakalarda oldukça önemli bir diğer iz de kan lekesidir. Fujita ve ark. (2005) çalışmalarında insan kan lekelerinin yaşını tahmin etmek için ESR tekniğinin uygunluğunu ve sınırlamalarını incelemişler, kurumuş kan lekelerinde hemoglobin denatürasyonunun demir iyonunun ESR ile ölçülebilen spin durum değişikliği ile yönetildiğini bildirmişlerdir. Araştırmacılar, kan lekelerinin 77 K sıcaklığında sırasıyla yüksek-spin heme Fe^{+3} (g6), yüksek-spin nonheme Fe^{+3} (g4), düşük-spin heme Fe^{+3} (H) ve lipid peroksi serbest radikal türleri (R)'ni temsil eden g=6.2 (g6), 4.3 (g4), 2.27 (H) ve 2.005 (R) bölgelerinde dört adet dikkat çekici ESR sinyali verdiğini ve kan lekesi yaşının H/g4 sinyal şiddet oranıyla ilişkili olabileceğini ifade ederek, ESR yöntemiyle kanamadan sonra geçen sürelerin 2 gün ile 2.5 yıl arasında olduğunu bildirmişlerdir. Kan lekeleriyle ilgili Miki ve ark. (1987) tarafından yapılan çalışmada da g=4.3'te sinyal veren yüksek-spin nonheme Fe^{+3} sinyalinin (g4), kanama veya yaralanmadan sonraki süreyi tahmin etmek amacıyla ($I_{4.3}/I_{6.0}$ veya $I_{4.3}/I_R$ ölçülerek) kullanılabileceği belirtilmiştir. Ancak, çevresel faktörler (nem, ışığa maruz kalma, depolama sıcaklığındaki dalgalanmalar) kanamanın meydana gelmesinden bu yana geçen sürenin yanlış tahmin edilmesine neden olabileceği için bu faktörlerin dikkate alınması gereklidir. Ayrıca, ESR ölçümleri tahribatsız olsa da kan substratlarının 77 K sıcaklığına kadar soğutulması gerekir ve tüm substratlar bu koşullara dayanmak için uygun olmayabilir (Fujita ve ark., 2005; Bremmer ve ark., 2011, 2012).

2.2. Lüminesans Tarihlendirme Yöntemleri

Fosfor olarak adlandırılan yalıtkan ya da yarı iletken bir madde radyasyona maruz kaldığında, gelen radyasyon enerjisinin bir kısmını soğurur. Enerjinin soğurulmasından sonraki bir süreçte fosforun ısı ve ışık gibi bir kaynakla uyarılması durumunda ise soğurulan bu enerji ışık olarak yeniden yayılır. Bu türden ışığın yayılması olayında, yayılan ışığın dalga boyu ışıma yapan fosforun karakteristiğini yansıtır ve bu olay "lüminesans" olarak adlandırılır. Lüminesans olayının fotolüminesans, termolüminesans, sonolüminesans, katodolüminesans, elektrolüminesans, optik uyarımlı lüminesans gibi birçok çeşidi bulunmaktadır. Örneğin lüminesans özellik gösteren fosforlar ısı ya da ışıkla uyarıldıklarında fiziksel olarak meydana gelen ışıma olayları, ısıtma ile uyarım yapıldığında Termolüminesans (TL), ışıkla uyarım yapıldığında ise Optik Uyarımlı Lüminesans (OSL) olarak adlandırılmaktadır. Günümüzde TL ve OSL yöntemleri, tıp alanında teşhis ve tedavide maruz kalınan radyasyon dozlarının belirlenmesi, dozimetrik malzemelerin incelenmesi,

kişisel ve çevresel radyasyon dozlarının ölçülmesi gibi alanlarda kullanıldığı gibi arkeolojik ve jeolojik eserlerin tarihlendirilmesi çalışmalarında da kullanılan önemli yöntemlerdendir. Lüminesans özellik gösteren bir fosforda radyasyon enerjisinin depolanması ve fosforun kontrollü olarak ısıtılması ya da ışıkla uyarılması sonucunda meydana gelen olaylar Şekil 4'te görülmektedir.



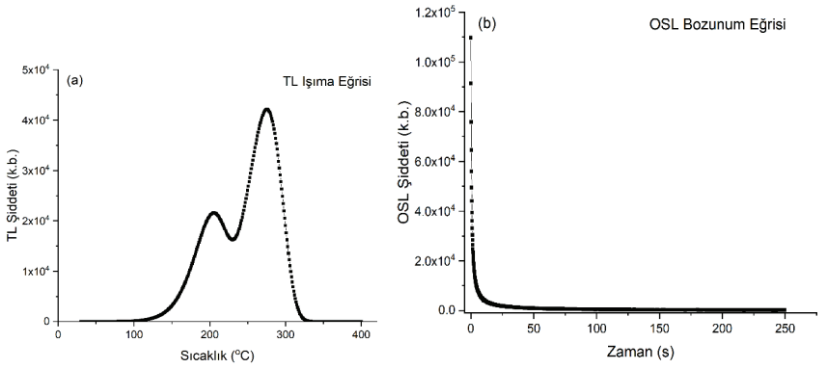
Şekil 4. Lüminesans mekanizmasının temel yapısı.

Şekilden görüldüğü gibi iyonlaştırıcı radyasyon fosforun içinden geçerken hem serbest elektronlar hem de deşikler oluşturur. Değerlik bandında yer alan serbest elektronlar yasak enerji aralığını aşıp kısa bir süreliğine iletim bandına geçerler ve değerlik bandına geri dönüşleri sırasında fosforun kafes yapısında bulunan ve elektron tuzakları olarak görev yapan kristal kusurlarının oluşturduğu bu tuzaklara yakalanırlar. Gelen radyasyonun şiddeti ne kadar yüksekse ya da fosfor ne kadar uzun süre radyasyona maruz kalmışsa tuzaklara yakalanan elektron sayıları da o kadar fazla olacak ve kristal kusurları çevresinde tuzaklara yakalanan elektron yoğunlukları o kadar artacaktır. Kararlı ve derin tuzaklara yakalanan elektronlar iç ve dış etkilere maruz kalsalar dahi uzun yıllar boyunca tuzaklarda kalmaya devam ederler (Aitken, 1998; Furetta ve Weng, 1998; Munyikwa, 2014). Fosforun uygun bir sıcaklığa kadar ısıtılması ya da uygun dalga boyuna sahip bir ışıkla uyarılması sonucunda elektronlar tuzak derinliklerine bağlı olarak bulundukları tuzaklardan yavaş yavaş kurtulurlar. Tuzaklardan (T) çıkan elektronlar, yeniden birleşme merkezi olarak adlandırılan lüminesans merkezlerinde (L) deşiklerle birleştiğinde sahip oldukları enerji ışık olarak yayılır. Yayılan ışığın şiddeti tuzaklardan çıkan elektronların yoğunluğuyla dolayısıyla da fosforun soğurduğu radyasyon enerjisi ile orantılıdır. Böylece yayılan ışık uygun bir dedektör ve cihazla kaydedilebilir. Kaydedilen lüminesans şiddetinin, sıcaklığın bir fonksiyonu olarak çizilmesi sonucunda TL ışıma eğrileri (Şekil 5a), zamanın bir fonksiyonu olarak çizilmesi sonucunda da OSL bozunum eğrileri (Şekil 5b) elde edilir.

Jeolojik/arkeolojik materyallerin yaşlarının belirlenmesinde kullanılan önemli yöntemlerden biri de lüminesans tarihlendirme

tekniğidir. Toprak, tuğla/kiremit, çanak, çömlek parçaları, sediment, kum taşı, seramik, porselen, çökeltiler, volkanik tüf, kalsit (sarkıt-dikit), çakmaktaşı, göktaşları ve cam (Aitken, 1985; 1998) gibi materyallerin yaşları lüminesans (TL ya da OSL) tarihlendirme teknikleri kullanılarak tespit edilebilmektedir. Yapılan tarihlendirme çalışmalarında, bir takım kimyasal ayrıştırma teknikleri kullanılarak bu malzemelerden özellikle kuvars ve feldspat olmak üzere kalsit ve zirkon gibi mineraller ayrıştırılıp ayrıştırılan bu minerallerin en son ısı ya da ışık gördükleri zaman belirlenebilmektedir. Böylece kullanılan mineralin özelliğine ve tarihlendirme çalışmalarında başvurulan lüminesans tekniğine bağlı olarak 10 yıl gibi küçük zaman dilimlerinden bir milyon yıla (Munyikwa, 2014) kadar tarihlendirme yapılabilmektedir.

Lüminesans mekanizmasının işleyişi kısaca özetlenecek olursa, tarihlendirme çalışmalarına konu olan materyallerin kristal yapılarında mevcut bulunan elektron tuzakları ısı ya da ışık gördüklerinde boşalır ve lüminesans saati sıfırlanır. Meydana gelen bu olaydan sonra bu materyallerin toprak altında kaldıkları süre boyunca çevrelerini saran ya da kendi yapılarında bulunan U, Th ve K gibi doğal radyoaktif elementlerden ve kozmik ışınlardan kaynaklı radyasyonların etkisi ile elektron tuzakları tekrar dolar. Lüminesans saatinin tekrar işlemeye başladığı bu süreçte söz konusu materyal, ısı ya da ışık görmeden geçirdiği süre boyunca radyasyonu soğurur. Materyalin son sıfırlanma olayından sonra soğurduğu ve "eşdeğer doz" (D_E) olarak adlandırılan niceliğin materyalin gömülü bulunduğu çevreye ait "yıllık doz"a oranı bu materyalin yaşını verir ve böylece son ısı ya da ışık gördüğü zaman belirlenmiş olur (Aitken, 1985). Bir materyalin yaşı, *t=eşdeğer doz/yıllık doz* şeklinde basit bir matematiksel ifade kullanılarak hesaplanabilir. Bu yaş eşitliğinde verilen eşdeğer doz ya da diğer bir adıyla paleodoz, materyalin toprak altında kaldığı süre boyunca çevresinde ya da kendi yapısında bulunan radyoaktif kaynaklardan soğurduğu toplam radyasyon dozu, yıllık doz ise materyalin gömülü olduğu çevrede 1 yılda maruz kaldığı radyasyon dozudur.



Şekil 5. (a) TL ışıma (Yüksel, 2018) ve (b) OSL bozunum eğrileri.

Yaş tayini yapılacak olan ve toprak altından alınan materyallerden, bir takım kimyasal ayrıştırma teknikleri kullanılarak kuvars, feldspat gibi minerallerin ayrıştırılması ve örneklerin ölçüme hazır hale getirilmesi süreci tarihlendirme çalışmalarının olmazsa olmazlarındandır. Örneğin kuvars minerali ile çalışılmak isteniyorsa toprak altından alınan materyalin içerisinde bulunabilecek olan kuvars dışındaki feldspat, florit, organik yapılar, karbonat ve demir gibi materyallerin mutlaka temizlenmesi gerekir. Bu temizleme ve ayrıştırma sürecinde ıslak eleme yapılması, hidroklorik asit, hidrojen peroksit, hidroflorik asit gibi kimyasallarla aşındırma sonrasında saf su ile yıkama etüvde kurutma gibi birtakım işlemlerin uygulanması ve gerektiğinde ağır sıvı ayrıştırıcılar ile çalışılmak istenen mineralin elde edilmesi gerekmektedir. Tarihlendirme işleminde kullanılacak olan mineralin türüne ve boyutuna göre bu süreç farklılıklar göstermekte olup yayımlanmış olan birçok çalışmada bu süreçler detaylı olarak anlatılmakta olduğundan ilgili kaynaklardan faydalanılabilir.

Herhangi bir materyalin yaş tayininin yapılması çalışmalarında D_E, doz yenileme veya doz ekleme yöntemleri kullanılarak belirlenmektedir. Doz yenileme yönteminde, mineral örneklerinden birine herhangi bir laboratuvar dozu ilavesi yapılmadan D_E belirleme protokolü uygulanarak TL ya da OSL ölçümü yapılır. Yapılan ölçüm sonucunda elde edilen doğal TL ya da OSL sinyali materyalin toprak altında kaldığı sürece maruz kaldığı toplam radyasyon dozuna (D_E) karşılık gelir. Ölçüm yapılan minerale ait sinyaller sıfırlandıktan sonra mineral her seferinde farklı ve artan miktarlarda dozlar verilerek her bir doz için uygulanan protokol tekrarlanır. Ölçüm sonuçlarının analiz edilmesi sonucunda Şekil 6a'da görülen doz-cevap grafiği çizilir. Grafik yardımıyla ölçüm noktalarına karşılık elde edilen doğru denklemi ($y=mx+n$) belirlenerek bu denklem yardımıyla ilk ölçümde elde edilen doğal lüminesans sinyaline karşılık gelen D_E belirlenebilir.

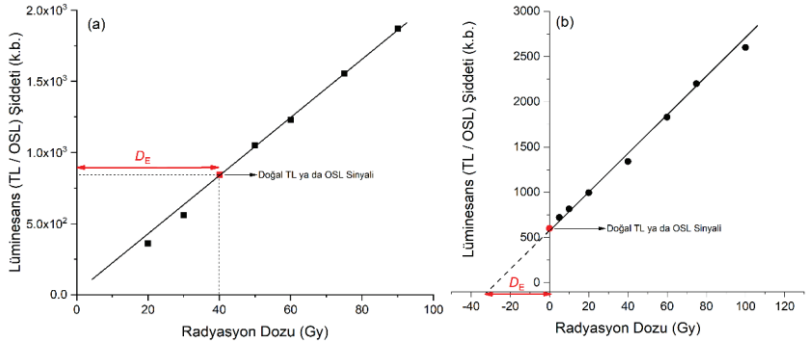
Doz ekleme yöntemi ile D_E'nin belirlenmesi çalışmalarında ise mineral örneklerinden birkaç grup halinde birçok örnek hazırlanır. Hazırlanan örneklerden bir grup dışındaki diğer gruplara laboratuvarda farklı ve artan miktarlarda ilave dozlar verilir. Hazırlanan her gruba D_E belirleme protokolü uygulanarak TL ya da OSL ölçümü yapılır. Yapılan ölçüm sonucunda bilinen ilave laboratuvar dozları ile elde edilen sinyaller ölçeklendirilerek Şekil 6b'de görüldüğü gibi doz-cevap grafiği çizilir. İlave laboratuvar dozu verilmeyen gruptaki örneklerden elde edilen sinyaller yardımıyla D_E tespit edilir. Bu yöntemin uygulanması sırasında tüm örneklere ait sinyaller mutlaka normalize edilmelidir.

Tarihlendirme çalışmalarına bazı temel varsayımlarla başlanmaktadır. Bu varsayımların ilki, materyalin en son ısı ya da ışık gördüğü anda lüminesans saatinin sıfırlanmış olduğunun ve bu an itibarı

ile materyalin içinde tuzaklanmış hiçbir yükün olmadığının kabulüdür. İkinci varsayım ise materyalin gömülü bulunduğu zaman dilimi içerisinde maruz kaldığı doz hızının zamanla değişmediğinin kabulüdür. Bu varsayımlar ışığında, yıllık dozun belirlenmesi için doğrudan ya da dolaylı birtakım yöntemler kullanılmaktadır (Hossain, 2003).

Yıllık dozun doğrudan belirlenmesi için kazı alanına termolüminesans dozimetreler (TLD) gömülerek gama ve kozmik radyasyon katkıları belirlenebilmektedir. Beta radyasyonunun yıllık doza katkısı ise laboratuvar ortamında yapılan çalışmalarla yine TLD'ler kullanılarak yapılmaktadır (Ege ve ark., 2009). Yıllık dozun TLD'ler kullanılarak hesaplanması sürecinde ölçüm hatalarını en aza indirmek için dozimetreler en az 1 yıl gömülü olarak tutulmalı ve toprağın nemlilik analizleri mutlaka yapılmalıdır.

Yıllık dozun dolaylı olarak belirlenmesi için kazı alanından alınan toprak örneklerinin doğal radyoaktivite değerlerinin ölçülmesi ve bu ölçümler sonucunda elde edilen aktivite değerlerinin radyasyon dozu karşılıklarının hesaplanması gerekmektedir. Bu ölçüm işlemleri, nötron aktivasyon analizi, alfa ve beta sayımı, gama spektrometresi ile aktivite analizi ve kütle analizi yapılabilen ICP-MS gibi yöntemler kullanılarak yapılabilmektedir.



Şekil 6. (a) Doz yenileme yöntemi ve (b) doz ekleme yöntemi.

2.2.1. Termolüminesans (TL) Tarihlendirme

Termolüminesans (TL) olayına ait ilk gözlem 1663 yılında Boyle tarafından yapılmış olmasına rağmen TL ilk olarak 1885 yılında Becquerel tarafından tespit edilmiştir. TL yöntemi kullanılarak arkeolojik ve jeolojik eserlerin yaşlarının belirlenebileceğine dair ilk öneri, 1953 yılında Daniels ve arkadaşları (Daniels ve ark., 1953; Aitken, 1964) tarafından Wisconsin Üniversitesi'nde yapılmıştır. TL yöntemi kullanılarak yapılan ilk tarihlendirme çalışması Roma dönemine ait seramik ve yanmış tuğla örnekleri ile Bern Üniversitesi'nde çalışan

Grögler ve arkadaşları tarafından yapılmış olup (Grögler ve ark., 1958) bu çalışmayla birlikte TL yönteminin tarihlendirme çalışmalarında kullanılabileceği açıkça ortaya konmuştur.

Tarihlendirme çalışmalarında toprak altından alınan çanak, çömlek ve seramik gibi birçok kalıntının en son ısı gördüğü zamanın belirlenmesi için kullanılan teknik TL tarihlendirme tekniğidir. Bu teknikte, ayrıştırma işlemleri yapılıp mineral ölçüme hazır hale getirildikten sonra hazırlanan mineral örnekleri oda sıcaklığından belirli bir sıcaklığa kadar sabit bir sıcaklık artışı uygulanarak ısıtılır. Isıtma sırasında, kristal yapıda farklı derinliklerde bulunan tuzak gruplarının sıcaklığı, kendilerine özgü olan boşalma sıcaklıklarına ulaştığında tuzaklar sırasıyla boşalır. Böylece lüminesans mekanizması işlemeye başlar ve TL ölçümü yapılan mineralden bir ışık çıkışı meydana gelir. Çıkan ışık TL cihazı içerisinde bulunan dedektörlerle kaydedilerek sıcaklığa karşılık ışıma şiddetini gösteren Şekil 5a'da da görüldüğü gibi bir TL ışıma eğrisi elde edilir ki bu ışıma eğrisinin altında kalan alan ya da her bir TL ışıma tepesine ait şiddet (TL sinyali), mineralin maruz kaldığı radyasyonla orantılıdır. Elde edilen sinyalin değeri Şekil 6a ve Şekil 6b'de de görüldüğü gibi "doğal TL sinyali" olup mineralin maruz kaldığı radyasyon dozuna (D_E) karşılık gelir. TL yöntemi ile belirlenen D_E yıllık doza bölünerek tarihlendirme işlemi tamamlanır.

2.2.2.Optik Uyarımlı Lüminesans (OSL) Tarihlendirme

TL yönteminin tarihlendirme çalışmalarında kullanılabilecek önemli bir yöntem olduğunun ortaya çıktığı dönemlerde yapılan çalışmalar sonucunda yalıtkan ya da yarı iletken materyallerin ışıkla uyarılması sonucunda da lüminesans gözlendiği tespit edilmiştir. Tuzaklanmış elektronların tuzaklardan kurtulması için mavi, yeşil ya da kızılötesi (infrared, IR) ışığın kullanılabileceğinin belirlenmiş olması (Munyikwa, 2014) OSL yöntemi ile de tarihlendirme çalışmalarının yapılabileceği gerçeğini gözler önüne sermiştir. Buna bağlı olarak 1985 yılında Huntley ve arkadaşları sediment örneklerinin yaşlarını OSL yöntemi ile belirlemişlerdir (Huntley ve ark., 1895). Sonraki yıllarda, kuvars mineralinin mavi ışıkla ve feldspat mineralinin kızılötesi ışıkla uyarılmasına dayalı birçok protokolün geliştirildiği ve bu protokollerin OSL tarihlendirme çalışmalarına kaynaklık ettiği yıllar olmuştur (Wintle, 2008). Yakın dönemde, IR uyarımla antropolojik açıdan kemik ve dişlerin (Meriç ve ark., 2008), kumlu çökeltilerin kullanılması ile tsunami yataklarının gömülme yaşlarının (Huntley ve Clague, 1996; Riedesel ve ark., 2018), yaşam alanlarının peyzaj evrimlerinin, yerleşim ve iklim değişikliklerinin (Bailiff ve ark., 2014) ve kültürel bir kronoloji oluşturmaya dönük olarak iskelet kalıntılarının ve kafatasına gömülü

tortuların (Lail ve ark., 2013) tarihlendirme çalışmalarının OSL yöntemi kullanılarak yapıldığı görülmektedir.

OSL yönteminde, elektronların tuzaklardan doğrudan dışarı atılma hızı materyal üzerine gelen fotonlara bağlı olup bazı tuzakların gelen fotona duyarlılıklarının farklı olması elektron çıkışını etkilemektedir. Tarihlendirmede kullanılan minerallerinin ışıkla uyarılması sırasında ilk aşamada tuzaklardan kurtulan elektronların yoğunluğuna bağlı olarak dedektör tarafından kaydedilen ışık yoğunluğu da oldukça yüksek olmaktadır. Uyarım devam ettikçe ışık yoğunluğu kademeli olarak azaldığından elde edilen OSL sinyali Şekil 5b'de de görüldüğü gibi üstel bir azalım göstermektedir. Bu nedenle zamana karşılık OSL şiddetini gösteren bu eğriye OSL bozunum eğrisi adı verilmektedir.

Çalışma alanından alınan arkeolojik ya da jeolojik kalıntıların en son ışık gördüğü zamanın belirlenmesi için kullanılan teknik OSL tarihlendirme tekniğidir. OSL tarihlendirme tekniğinde, TL tekniğinde olduğu gibi mineraller ölçüme hazır hale getirilip örnekler hazırlanır. Hazırlanan örneklerdeki mineralin özelliğine göre seçilmiş olan OSL yaş tayini protokolü kullanılarak örnekler mavi, yeşil ve IR gibi farklı ışık kaynakları ile uyarılırlar. Bu uyarımlar yapılırken seçilmiş protokole uygun olacak şekilde ön ısıtma, kesme sıcaklığı gibi istenmeyen TL sinyallerinin silinmesi için bir takım ısısal uyarım yöntemleri de kullanılabilmektedir. OSL ölçümlerinin tamamlanmasından sonra elde edilen bozunum eğrileri analiz edilerek mineralin maruz kaldığı radyasyon dozuna karşılık gelen sinyalin değeri Şekil 6a ve Şekil 6b'de de görüldüğü gibi "doğal OSL sinyali"dir. OSL yöntemi ile belirlenen D_E yıllık doza bölünerek tarihlendirme işlemi tamamlanır.

2.3. Nükleer İzler ve Fizyon İzleriyle Tarihlendirme Yöntemi

Elektrik yüklü atom çekirdekleri yalıtkan katı bir madde içinde hareket ederken hareket doğrultusu boyunca o madde içinde, aynı çamurda yürüyen bir insanın arkasında bıraktığı gibi iz bırakır. Oluşan bu hasar izine "yüklü parçacık izi" veya "nükleer iz" denir. Meydana gelen izleri kaydeden bu katıya da dedektör adı verilir. Örneğin bir alfa parçacığı helyum atomunun yüklü çekirdeğidir, önüne bir plastik yerleştirildiği zaman plastikte iz bırakır. Aynı şekilde bazı radyoaktif çekirdekler özellikle atom numarası büyük olanlar bazen kendiliğinden bazen de nötronlarla bombardıman edildiğinde çok yüksek enerjili ve iyonize edebilme özelliği olan yüklü çekirdeklere bölünürler. Atom çekirdeğinin bu şekilde bölünmesine fizyon (fisyon) denir. Fizyon olayı sonunda ortaya çıkan yüklü enerjik çekirdekler de bulundukları ortamda hareket ederken arkalarında iz bırakırlar. Örneğin, camsı bir yapıya sahip olan obsidiyen içinde doğal olarak bulunan ^{238}U kendiliğinden fizyona uğrar ve obsidiyen içinde iz bırakır, burada dedektör obsidiyenin

kendisidir. Kendiliğinden fizyon olayı sadece ağır çekirdeklerin atom numaralarının Z>90 ve kütle numaralarının A>230 olduğu durumlarda meydana gelir. Fizyona uğrayan bu çekirdekler periyodik cetvelde aktinit serilerine ait olan elementlerin izotoplarıdır. Oluşan bu nükleer izin uzunluğu, dedektörün yapısına yani katıya, parçacığın enerjisine ve yüke bağlı olarak değişir. İzlerin uzunluğu 1 μm ile birkaç mm arasında değişmektedir. İzlerin genişliği ise 6-10 nm mertebesindedir. Çok küçük olan bu nükleer izleri direkt olarak elektron mikroskopları ile gözlemek mümkün olsa da genellikle iz oluşan maddenin uygun kimyasallarla yıkanmasından sonra optik mikroskop altında gözlenmesi ve sayılmasıyla gerçekleştirilir (Bean ve ark., 1970). Kimyasal yıkama şartlarının önceden belirlenmesi gerekmektedir. Bu işlemde kullanılan kimyasalların konsantrasyonu, sıcaklık ve yıkama süreleri fizyon izlerinin görülmesi için önemli parametrelerdir. Fizyon izi tarihlendirmesinde kullanılan minerallerde izlerin ortaya çıkması için kullanılan kimyasalların konsantrasyonu ve bunların uygulanma süreleri ve sıcaklıkları Hamilton'un yaptığı çalışmalarda (Hamilton, 1965) ayrıntılı olarak verilmektedir.

Katılarda, özellikle dielektrik ve yalıtkan maddelerde fizyon iz oluşumunu anlayabilmek için katıya çarpan yüklü parçacıkların davranışlarına bakmak gerekmektedir. Yüklü parçacık, katı madde içerisinde yüksek bir hızla ilerlerken bu madde ile etkileşimde bulunur. İz oluşmasını sağlayan yüklü parçacık katı madde ile iki türlü etkileşime girer: (1) Gelen parçacıklar, katı maddenin atomlarıyla esnek veya esnek olmayan çarpışmalar sonucunda yer değiştirebilirler. (2) Katı madde içerisinde hareket eden yüklü parçacık, içinden geçtiği maddedeki atomların elektronlarını kopartır ve oluşan aynı yüklü iyonlar da birbirini iteceği için madde içinde boşluklar oluşur. Bu etkileşim parçacık durana kadar devam eder ve bu sırada parçacığın kinetik enerjisinde azalma meydana gelir. Burada parçacığın yer değiştirme uzunluğuna "menzil", bu menzil boyunca parçacığın kaybettiği enerjinin uzunlukla değişim hızına, -dE/dx, ise "durdurucu güç" denir (Fleischer ve ark., 1965).

Fizyon izi tarihlendirmesi, kıtasal kabuğun ısısal tarihini, volkanik olayların zamanlamasını, farklı arkeolojik eserlerin kaynağını ve yaşını anlamada önemli bir etkiye sahip olan radyometrik tarihleme yöntemlerinden biridir. Fizyon izleriyle tarihlendirme yöntemi örnek içerisindeki ^{238}U miktarının ölçülmesine ve kendiliğinden fizyona uğradığında bıraktığı izlerin sayılmasına dayanır. Doğada $^{235}U/^{238}U$ oranı bilindiğinden, ^{238}U miktarı, ^{235}U miktarının ölçülmesiyle belirlenir. Çünkü ^{235}U'nun fizyona uğrama tesir kesiti ^{238}U'dan yüksektir. Tarihlendirilecek örneğin bir parçası üzerinde izler direkt ölçülerek ^{238}U'nun kendiliğinden (ρ_s) izleri saptanırken, diğer parça nötronlarla ışınlanarak ^{235}U'nun fizyonu sonunda oluşan izlerin (ρ_i) sayımı yapılır.

Doğru ve kesin tarihlendirme yapılabilmesi için çok sayıda fizyon izi sayılabilir olmalıdır. Birim alana, cm^2, düşen fizyon izi yoğunluğu 10'dan az ise bu örneklerde yaş hesaplamalarında güçlükler yaşanmaktadır. Fakat, birçok mineral ve camda birkaç yüz ya da birkaç bin fizyon izi mevcuttur. Doğal ve yapay olarak elde edilen fizyon izleri optik mikroskop ile sayımı yapıldıktan sonra aşağıda verilen yaş eşitliği ile örneğin fizyon izi yaşı (t) elde edilir (Price ve Walker, 1963).

$$t = 1/\lambda_d\{\ln\left[1 + \left(\lambda_d/\lambda_f\right)\left(\frac{\rho_s}{\rho_i}\right) g\, I\, \sigma\, \phi\right]\} \qquad (18)$$

Burada; λ_d=^{238}U için toplam bozunma sabiti ($1.551x10^{-10}$ $yıl^{-1}$; Jaffey ve ark., 1971), λ_f=^{238}U ($7.03x10^{-17}$ $yıl^{-1}$; Roberts ve ark., 1968) atomunun kendiliğinden fizyonu için bozunma sabiti; σ=^{235}U ($580x10^{-24}$ cm^2 ; Hanna ve ark., 1969) atomunun termal nötron kaynaklı fisyonu için tesir kesiti, I=^{235}U/^{238}U izotopik oranı ($7.252x10^{-3}$), Φ=termal nötron akısı (nötronlar/cm^2), g=geometrik faktör (cam için 1'e eşittir-IPTFT metodu; Zirkon dış dedektör yöntemi için 0.5), ρ_s=^{238}U atomundan doğal oluşan alansal iz yoğunluğu (izler/cm^2), ρ_i=^{235}U atomundan yapay alansal iz yoğunluğu (izler/cm^2) olarak verilir. Denk. (18)'de verilen parametrelerin değerleri yerine yazılarak aşağıdaki yaş denklemi elde edilir.

$$t = 6.45x10^9\{In[1 + 9.28x10^{-18}\left(\frac{\rho_s}{\rho_i}\right)\Phi \qquad (19)$$

İzlerin büyüklüğü malzemenin içinde bulunduğu ortamın sıcaklığına ve süresine bağlı olduğu için nükleer iz yönteminin en önemli kullanım alanlarından biri de yer üst kabuğunun ısısal tarihinin incelenmesi olmuştur. Fizyon izleriyle tarihlendirme çoğunlukla volkanik camlarda kullanılır. Bu camlar; süngertaşı (Fleischer ve ark., 1965f), obsidiyen (Fleischer ve ark., 1965g, Miller ve Wagner, 1981) ve basaltik derin su camlarıdır (Storzer ve Selo, 1978). Ayrıca, yüksek uranyum içeren apatit, zirkon, sfen, epidot, allanit, titanit ve monazit mineralleri fizyon izi tarihlendirmesi için uygun materyallerdir. Bu mineralleri ay taşı, tektit, meteorit, volkanik ve yapay cam gibi materyaller içlerinde ihtiva edebilirler. Fizyon izleri, materyallerin ısınması veya iyonların doğal difüzyonu ile silinebilmektedir. Bu durum fizyon izlerinin tarihlendirmesinde problem oluşturmaktadır. Zirkon ve titanit gibi mineraller ısıya karşı dayanıklı oldukları ve izler silinmeye uğramadıkları için fizyon izi tarihlendirmesinde tercih edilen minerallerdir. Fizyon izi tarihlendirme yöntemi, volkanik cam ve zirkonlara başarılı bir şekilde uygulanabildiği için Kuvaterner silisik volkanizmadan etkilenen bölgelerde Kuvaterner olayların açıklanmasında faydalı bir yöntemdir (Walker, 2005). Fizyon izi tarihlendirmesi arkeoloji yönünden de önemli bir yere sahiptir. Bu yöntemin arkeolojiye uygulanması ile tarihsel değeri

olan birçok eser zirkon minerali kullanılarak yaşlandırılmıştır (Wagner, 1978, 1981).

Arkeolojik olarak obsidiyenlerin tarihlendirilebilmesi için kullanıldığı tarihte yanmış veya ısıtılmış olmaları gerekmektedir. Şekil 7a'da kullanıma hazırlanmış obsidiyen malzemeler ve Şekil 7b'de ise tarihlendirme için kimyasal yıkama işleminden sonra optik mikroskopta görüntülenen fizyon izleri gösterilmiştir. Yangın geçirmiş tabakalardan toplanan obsidiyenlerle, tabakanın yanma tarihi, yanmamış obsidiyenlerle de onların oluşum yaşı yani volkanik patlamaların yaşını saptayarak onlara ait kaynak belirleme çalışmaları yapılmıştır (Yeğingil ve Göksu, 1981; Yeğingil 1991; Bigazzi ve ark., 1990).

Her tarihlendirme yönteminde olduğu gibi fizyon izleri ile tarihlendirmenin de sorunları ve hata kaynakları vardır. Bunları şu şekilde sıralayabiliriz: (1) Her şeyden önce kendiliğinden fizyon olayının yarılanma süresi tam olarak bilinmemektedir. Bundan dolayı beklenen hata %5'den az olamaz. (2) Kimyasal yıkama işlemi sırasında bazı izler, özellikle yüzeye yatay olan fizyon izleri, kaybolabilir. (3) İzlerin zamanla solup kaybolması (fading) söz konusu olabilir. (4) Yaş tayini yapılan madde içinde bulunan uranyum o madde içinde düzgün dağılmamış olabilir. (5) Radyoaktif parçalanmanın doğasından kaynaklanan istatistiksel hatalar söz konusu olabilir. Belirtilen sorunlar ve hatalar göz önüne alındığında fizyon izi tarihlendirmesi ile elde edilen yaştaki hata %10'dan az değildir.



Şekil 7. (a) Kullanım için hazırlanmış obsidiyen malzemeler, (b) fizyon izleri (Göksu ve ark., 1991).

Fizyon izleri yöntemi adli bilimlerde, yüklü parçacıklar plastik üzerinde iz bıraktıkları için, illegal radyoaktif madde kaçakçılığının saptanmasında kullanılabilir. Yasadışı radyoaktif madde kaçakçılığının radyoaktivitenin ortaya çıktığı ilk günlerinden beri var olduğu bilinmektedir. Nükleer adli tıp, radyoaktif endüstrinin materyallerini ve süreçlerini tanımakla ilgilenir. Malzemelerin özellikleri, malzemenin kaynağı ve orijinal kullanımı hakkında ipucu verebilir. Yasadışı kaçakçılığın en yaygın radyoaktif malzemesi uranyumdur. Uranyum, her yerde bulunabilen yaygın doğal bir elementtir. Uranyumun doğal zenginleşmesi, %0.72 civarında küçük bir aralıkta değişmektedir ve bu da

uranyum kaynağının bir göstergesidir. Antropojenik uranyumun zenginleştirilmesi, malzemenin amacına ve kullanımına bağlı olarak değişebilir. Nükleer enerji santralleri, araştırma reaktörleri ve askeri kullanımlar için farklı zenginleştirmeler mevcuttur. Uranyumun özelliklerinin ölçülmesi, zenginleşmesini, diğer elementlerin yani safsızlıkların varlığını ve niteliğini gösterebilir, bu da kökenini bulmaya yardımcı olabilir. Bulunan malzemenin geçmişi hakkında daha fazla bilgi edinmek için doğru izotopik ölçümlere ihtiyaç vardır. ^{230}Th ve ^{234}U arasındaki oran, malzemenin son kimyasal temizliğinden ne kadar zaman geçtiğine dair iyi bir tahmin verebilir. Bu işlem geliştirilen Lexan dedektörleri üzerinde oluşan fizyon izinin sayılması ile gerçekleştirilmektedir (Halevy ve ark., 2018).

KAYNAKLAR

Aitken, M.J.: Thermoluminescence Dating, London: Academic Press (1985)

Aitken, M.J.: Science-based dating in archaeology, Taylor&Francis Group, London (1990)

Aitken, M.J.: An Introduction to Optical Dating, Oxford: Oxford University Press (1998)

Aitken, M.J., Tite, M.S. and Reid, J.: Thermoluminescent dating of ancient ceramics, Nature 202, 1032-1033 (1964)

Arnold, J.R.; Libby, W.F.: Age Determinations by Radiocarbon Content: Checks with Samples of Known Age, Science. 110 (2869): 678–80 (1949)

Bailiff, I.K., French, C.A., Scarre, C.J.: Application of luminescence dating and geomorphological analysis to the study of landscape evolution, settlement and climate change on the Channel Island of Herm, Journal of Archaeological Science, 41, 890-903 (2014)

Bean, C.P., Doyle, M.V. and Entine, G.: Etching of submicron pores in irradiated mica, J. Appl. Phys. 141, 1454-1459 (1970)

Bekaroglu, E.: Radyometrik Tarihleme Metodları, Kitap: Coğrafya Araştırma Yöntemleri, Arı Y. ve Kaya İ. (ed.) Coğrafyacılar Derneği, Balıkesir (2013)

Blackwell, B.A.B., Skinner, A.R., Blickstein, J.I.B., Montoya, A.C., Florentin, J.A, Baboumian, S.M., Ahmed, I.J., Deely, A.E.: ESR in the 21st century: From buried valleys and deserts to deep ocean and tectonic uplift, Earth Science Reviews, 158, 125-159, (2016)

Bigazzi, G., Marton, P., and Rozloznik, L.: Fission Track Dating of Carpathian obsidian and Provenance identification, Radiation Measurements, 17, 391-396 (1990)

Bourdon, B., Henderson, G.M., Lundstrom, C.C. and Turner, S.P. (Eds.): Uranium-series Geochemistry, Washington, DC (Mineralogical Society of America) (2003)

Bradley, R.S.: Paleoclimatology: Reconstructing Climates of the Quaternary, Elsevier, China, pp55-101 (2015)

Bremmer, R.H., Nadort, A., Van Leeuwen, T.G., Van Gemert, M.J. ve Aalders, M. C.: Age estimation of blood stains by hemoglobin derivative determination using reflectance spectroscopy, Forensic Science International, 206 (1-3), 166-171 (2011)

Bremmer, R.H., de Bruin, K. G., van Gemert, M.J., van Leeuwen, T.G. ve Aalders, M.C.: Forensic quest for age determination of bloodstains, Forensic Science International, 216 (1-3), 1-11. (2012)

Brock F., and Cook G.T.: Forensic Radiocarbon Dating of Human Remains: The Past, the Present, and the Future, Archaeological and Environmental Forensic Science, 3-16 (2017)

CalPal: http://www.calpal-online.de/, Erişim tarihi: 06.04.2021

Cheng, H., Edwards, R.L., Hoff, J., Gallup, C.D., Richards, D.A. and Asmerom, Y.: The half lives of uranium-234 and thorium-230, Chemical Geology, 169: 17-33 (2000)

Dalrymple, G.B. and Lanphere, M.A.: Potassium-Argon Dating: Principles, Techniques, and Applications to Geochronology, Freeman and Company, San Francisco (1969)

Dalrymple, G.B. and Lanphere, M.A.: 40Ar/39Ar technique of K/Ar dating: a comparison with the conventional techniques: Earth and Planetary Science Letters, 12(3), 300-308 (1971)

Damon, P.E., Donahue, D.J., Gore, B., Hatheway, A., Jull, A.T., Linick, T., Sercel, P., Toolin, L., Bronk, C. and Hall, E.: Radiocarbon dating of the Shroud of Turin, Nature, 337 (6208), 611-615 (1989)

Daniels, F., Boyd, C.A. and Saunders, D.F.: Thermoluminescence as a research tool, Science 117, 343-349, (1953)

Doğan, T.: Karbon 14'ün Hikayesi, Bilim ve Teknik Dergisi, Mart Sayısı (2018)

Ege, A., Ekdal Tekin, E., Karalı, T., Can, N.: Lüminesans tarihlendirmede yıllık dozun belirlenmesinde karşılaşılan problemler. X. Ulusal Nükleer Bilimler ve Teknolojileri Kongresi; 2009 Ekim 6-9; Muğla, Türkiye, pp.80-88.

Fleischer, R.L., Price P.B. and Walker, R.M.: Charged Particle Tracks: Tools for Geochronology and Meteorite Studies, J. Appl. Phy., 417-435 (1965)

Fleischer, R.L., Price P.B. and Walker, R.M. and Leakey L.S.B.: Fission track dating of bed I, Olduvai Gorge, Science 148, 72-74 (1965f)

Fleischer, R.L., Price P.B., Walker, R.M. and Leakey L.S.B., Fission track dating of a mesolithic knife, Nature 205, 1138 (1965g)

Fritsch, G., Lopez, C. and Rodriguez, L.: Generation and recombination of free radicals in organic materials studied by electron spin resonance. J. Magn. Reson. 16, 48-55 (1974)

Fujita, Y., Tsuchiya, K., Abe, S., Takiguchi Y., Kubo S., Sakurai H.: Estimation of the age of human bloodstains by electron paramagnetic resonance spectroscopy: long-term controlled experiment on the effects of environmental factors, Forensic Sci. Int. 152, 39-43 (2005)

Furetta, C., Weng, P. S.: Operational Thermoluminescence Dosimetry. World Scientific. Singapore (1998)

Garnett, E.R., Gilmour, M.A., Rowe, P.J., Andrews, J.E. and Preece, R.C., 230Th/234U dating of Holocene tufas: possibilities and problems, Quaternary Science Reviews, 23, 947–958 (2004)

Geyh, M.A. and Schleicher, H.: Absolute Age Determination Physical and Chemical Dating Methods and Their Application, Springer Verlag, Berlin Heidelberg (1990)

Geyh, M.A.: Bomb radiocarbon dating of animal tissues and hair, Radiocarbon, 43 (2B), 723-730 (2001)

Gordy, W., Ard, W.B. and Sheilds, H.: Microwave spectroscopy of biological substances: I paramagnetic resonance in X-irradiated amino acids and proteins. Proc. Nat Acad. Sci 41, 983-996 (1955)

Göksu, H.Y., Oberhofer, M., Regulla, D., Scientific Dating Methods, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht (1991)

Grögler, N., Houtermans. F.G., and Stauffer, H.: Radiation damage as a research tool for geology and prehistory. Convegno sulle dotazioni con metodi nucleari. In 5a Rass Internazion Elettr Nucl, Sezione Nucl, Roma, pp.5-15 (1958)

Grün, R.: Electron Spin Resonance (ESR) Dating, Quaternary International, 1, 65-109 (1989)

Guérin, G., Mercier, N., Adamiec, G.: Dose-Rate Conversion Factors: Update, Ancient TL, 29 (1), 5 (2011)

Gupta S.K., Polach H.A.: Radiocarbon dating practices at ANV. Handbook. ANV, Canberra, 173pp (1985)

Halevy, I., Admon, U., Chinea-Cano, E., Weiss A.M., Dzigal N., Boblil E., Dagan M., Orion I. and Radus R. Advances in fission-track detection and analysis for nuclear forensics and safeguards investigations, Progress in Nuclear Science and Technology, 5, 175-178 (2018)

Hall C.M. and York D., The Applicability of 40Ar/39Ar Dating to Young Volcanics. In: Mahaney W.C. (ed) Quaternary Dating Methods, Vol 7, Elsevier Science, New York (1984)

Hamilton, E.İ.: Applied Geochoronology; Radiation Damage Methods 8-156, University of Capetown (1965)

Hanna, G.C., Wescott, C.H., Lemmel, H.D., Leonard, B.R., Story, J.S., Attree P.M.: Revision of values for the 220 m/s neutron constants for four fissile nuclides, Atomic Energy Review 7(4): 3-92 (1969)

Henderson, G.M. and Slowey, N.C.: Evidence from U-Th dating against northern Hemisphere forcing of the penultimate deglaciation, Nature, 404, 61–66 (2000)

Hennig, G.J. and Grün, R.: ESR Dating in Quaternary Geology, Quaternary Science Reviews, 2, 157-238 (1983)

Hossain, S.M.: A critical comparison and evaluation of methods for the annual radiation dose determination in the luminescence dating of sediments, PhD Thesis, Ghent University (2003)

Huntley, D.J., Godfrey-Smith, D.I, and Thevalt, M.L.W.: Optical dating of sediments, Nature 313, 105-107 (1985)

Huntley, D.J., Clague, J.J.: Optical dating of tsunami-laid sands. Quaternary Research 46, 127-140 (1996)

Ikeya, M.: Dating a Stalactite by Electron Paramagnetic Resonance, Nature, 255, 48-50 (1975)

Ikeya, M.: Dating and Radiation Dosimetry with Electron Spin Resonance, Magnetic Resonance Review, 13, 91-134 (1988)

Ikeya, M.: New Applications of Electron Spin Resonance, Dating Dosimetry and Microscopy, World Scientific Pub. Co. Pte. Ltd. (1993)

Ikeya, M. and Miki, T.: A new dating method with a digital ESR. Naturwissen schaften 67, 191-192 (1980)

Ikeya, M. and Miki, T.: Organic ESR dating in archaeology. J. Archaeol. Chem. 4, 1-10 (1986)

Ivanovich, M. and Harmon, R.S.: Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences, Oxford University Press 911pp (1992)

Jaffey, A.H., Flynn, K.F., Glendenin L.E., Bentlet W.C., Essling A.M.: Precision measurement of half-lives and specific activities of 235U and 238U, Physical Review C4:1889-1906 (1971)

Jedoui, Y., Reyss, J.-L., Kallel, N., Montacer, M., Ismail, H.B., Davaud, E.: U-series evidence for two high Late Interglacial sea levels in southeastern Tunisia, Quaternary Science Reviews, 22, 343-351 (2003)

Lail, W.K., Sammeth, D., Mahan, S. and Nevins, J.: A non-destructive method for dating human remains, Advances in Archaeological Practice: A Journal of the Society for American Archaeology, 91-103 (2013)

Lee, J.K.W.: Single crystal laser fusion, Encyclopedia of scientifict dating methods, 1-5 (2013)

Leakey, L.S.B., Evernden, J.F. and Curtis, G.H.: Age of Bed I, Olduvai Gorge, Tanganyika. Nature 191: 478-479 (1961)

Libby, W.F.: Radiocarbon Dating, University of Chicago Press, Chicago (1955)

Mahaney W.C.: Quaternary Dating Methods: Developments in Palaeontology and Stratigraphy, Elsevier, Netherlands, pp1-15 (1984)

McDougall, I. and Harrison, T.M.: Geochronology and Thermochronology by the 40Ar/39Ar Method, 2nd Ed., Oxford (1999)

Meriç, N., Koşal, M., Atlıhan, M.A., Yüce, Ü.R.: OSL properties of anthropological bone and tooth, Radiation Physics and Chemistry, 77(6), 685-689 (2008).

Miki, T., Kai, A. and Ikeya, M.: Electron spin resonance of bloodstain and its application to the estimation of the time after bleeding. Forensic Sci. Intern. 35, 149-158 (1987)

Miller, D.S. and Wagner, G.A.: Fission track ages apllied to obsidian artifacts from South America using the plateau-annealing and the track–size age-correction techniques, Nucl. Tracks 5 ,147-155 (1981)

Moody, K.J., Hutcheon, I.D. and Grant, P.M.: Nuclear Forensic Analysis, CRC Press Taylor and Francis Group, Boca Raton, FL (2005)

Munyikwa, K.: Luminescence chronology. In: Morner, N.A. (ed.) Geochronology-Methods and Case Studies, pp.31-71, IntechOpen, DOI: 10.5772/58554 (2014)

Nier, A.O.: A redetermination of the relative abundances of the isotopes of carbon, nitrogen, oxygen, argon and potassium, Physical Review 77: 789-793 (1950)

Oxcal: http://www.rlaha.ox.ac.uk/, Erişim tarihi: 06.04.2021

Price, P.B. and Walker, R.M., Fossil tracks of charged particles in mica anda ge of minerals, Journal of Geophysical Research 68: 4847-4862 (1963)

Prinoth-Fornwagner R. and Niklaus Th.R.: The man in the ice: results from radiocarbon dating, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 92, 282-290 (1994)

Reynolds, J.: High sensitivity mass spectrometer for noble gas analysis. Review of Scientific Instruments 27: 928-934 (1956)

Riedesel, S., Brill, D., Roberts, H.M., Duller, G.A.T., Garrett, E., Zander, A.M., King, G.M., Tamura, T., Burow, C., Cunningham, A., Seeliger, M., Batist, M.D., Heyvaert, V.M.A., Fujiwara, O., Brückner, H.: Single-grain feldspar luminescence chronology of historical extreme wave event deposits recorded in a coastal lowland, Pacific coast of central Japan. Quaternary Geochronology 45, 37-49 (2018)

Rink, W.J.: Electron Spin Resonance (ESR) Dating and ESR Applications in Quaternary Science and Archeometry, Radiation Measurements, 27, 975-1025 (1997)

Roberts, J.H., Gold, R., Armani, R.J.: Spontaneous fission decay constant of 238U, Physical Review 174:1482-1484 (1968)

Scholz, D. and Hoffmann, D.: 230Th/U-dating of fossil corals and speleothems, Eiszeitalter und Gegenwart Quaternary Science Journal, 57(1-2), 52-76 (2008)

Shankar, N., Guimarães, A.O., Napoli, E. and Giulivi, C.: Forensic determination of hair deposition time in crime scenes using electron paramagnetic resonance, Journal of Forensic Sciences, 66(1), 72-82 (2021)

Stanley, F.E.: A beginner's guide to uranium chronometry in nuclear forensics and safeguards, J. Anal. At. Spectrom., 27, 1821-1830 (2012)

Steiger, R.H. and Jager, E.: Subcommission on geochronology: Convention on the use of decay constants in geo- and cosmochronology, Earth and Planetary Science Letters, 36, 359-362 (1977)

Storzer, D. and Selo, M.: Fission track ages of magnetic anomaly M-Zero and some aspects of sea-water weathering, in T. Donnelly et.al (eds), İnitial Reports of the Deep Sea Drilling Project, Vols.51-53, Washington, 1129-1133 (1978)

Taylor R.E.: Radiocarbon Dating: An Archaeological Perspective. Academic Press, New York (1987)

Tuniz, C., Zoppi, U. and Hotchkis, M.: Sherlock Holmes counts the atoms, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: beam interactions with materials and atoms, 213, 469-475 (2004)

Wagner, G.A.: Archeological Applications of Fission Track Dating, Nuclear Track Detection 2, 51-62 (1978)

Wagner, G.A.: Fission Tracks Ages and Their Geological Interpretation, Nuclear Tracks, 5, 15-25 (1981)

Walker M.: Quaternary Dating Methods, John Wiley&Sons, Ltd, England (2005)

Wallenius, M., Mayer, K., Ray, I.: Nuclear forensic investigations: Two case studies, Forensic Science International 156, 55–62 (2006)

Walter, R.C.: Potassium-Argon/Argon-Argon Dating Methods. In: Taylor R.E., Aitken M.J. (eds) Chronometric Dating in Archaeology. Advances in Archaeological and Museum Science, vol 2. Springer, Boston, MA (1997)

Wintle, A.G.: Fifty years of luminescence dating. Archaeometry, 50: 276-312 (2008)

Yeğingil, Z., and Göksu, H.Y.: Fission Track Dating of Obsidians, Nuclear Tracks, 6, 43-48 (1981)

Yeğingil, Z.: Fission Track Dating and its Application in Advance Scientific Techniques Vol 1, Scientific Dating Methods, Göksu H.Y., Oberhofer M., Regulla D. (Eds), Kluwer Academic Publishers, Dordrecht 317 (1991)

Yüksel, M.: Termolüminesans Yöntemi ve Dozimetrik Çalışmalar, In: Yakar, A. Topaklı, H. (eds.) Fen Bilimleri ve Matematik Temel Alanı Örnek Araştırmaları Kitabı, Nobel Akademik Yayıncılık, Ankara, pp.171-192 (2018)

Zoppi, U., Hua, Q., Jacobsen, G., Sarkissian, G., Lawson, E., Tuniz, C. and Minelli, L.L.: AMS and controversies in history: The Spanish conquest of Peru, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: beam interactions with materials and atoms, 172 (1-4), 756-760 (2000)

Zoppi, U., Skopec, Z., Skopec, J., Jones, G., Fink, D., Hua, Q., Jacobsen, G., Tuniz, C. and Williams, A.: Forensic applications of 14C bomb-pulse dating, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: beam interactions with materials and atoms, 223, 770-775 (2004)