

بررسی محاسباتی پارامترهای زمانی و تأثیر ماتریس نمونه بر نسبت سیگنال به نویز در آنالیز فعال سازی نوترونی چرخه‌ای برای ^{75}mSe در آرد برنج

ندا نعمتی^۱، محمدحسین چوپان دستجردی^{۲*} و جواد مختاری^۲

^۱ گروه مهندسی هسته‌ای، دانشکده فیزیک، دانشگاه اصفهان، اصفهان، ایران.

^۲ پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، ایران.

* اصفهان، روشن‌دشت، منطقه هسته‌ای اصفهان، پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای، صندوق پستی: ۸۱۴۶۵/۱۵۸۹.

پست الکترونیکی: mdastjerdi@aeoi.org.ir

چکیده

آنالیز فعال‌سازی نوترونی چرخه‌ای (CNAA) یکی از روش‌های پیشرفته، دقیق و غیرمخرب برای شناسایی ایزوتوپ‌های پرتوزای کوتاه‌عمر است که بر تکرار سه مرحله‌ای پرتودهی، انتقال و شمارش نمونه در قالب چرخه‌های زمانی طراحی شده استوار است. موفقیت این روش وابسته به طراحی دقیق و بهینه‌سازی پارامترهای زمانی هر مرحله و نیز شناخت صحیح ترکیب ماتریس نمونه است. در این پژوهش، با بهره‌گیری از معادلات تحلیلی، تأثیر پارامترهایی نظیر زمان پرتودهی t_d ، زمان انتقال یا واپاشی t_d ، زمان شمارش t_c ، تعداد چرخه‌ها n و ساختار ماتریس نمونه بر نسبت سیگنال به نویز (SNR) بررسی شد. نتایج نشان داد که برای زمان‌های پرتودهی و شمارش، یک بازه بهینه وجود دارد که در خارج از آن، پارامتر SNR به‌طور محسوس کاهش می‌یابد. در مورد زمان انتقال نیز یافته‌ها حاکی از آن است که با کاهش این زمان به مقادیر نزدیک به صفر، سیگنال مؤثر حفظ شده و SNR افزایش می‌یابد. همچنین، افزایش تعداد چرخه‌ها به‌طور کلی موجب بهبود SNR می‌گردد، اگرچه نرخ رشد آن در چرخه‌های بالا کاهش می‌یابد. به دلیل این که در این نوع آنالیز ترکیب ماتریس نمونه تغییر داده نمی‌شود، بررسی عناصر موجود در آن نیز بررسی شد. تحلیل نقش ماتریس نمونه نیز نشان داد که برخی عناصر موجود در ترکیب نمونه می‌توانند از طریق تولید ایزوتوپ‌های مداخله‌گر و تداخل طیفی، بر کیفیت پاسخ اثرگذار باشند.

کلیدواژگان: آنالیز فعال‌سازی نوترونی چرخه‌ای، ایزوتوپ‌های کوتاه‌عمر، زمان پرتودهی، زمان انتقال، نسبت سیگنال به نویز، ایزوتوپ‌های مداخله‌گر، بهینه‌سازی پارامترهای زمانی، ماتریس نمونه.

۱. مقدمه

در روش آنالیز فعال‌سازی نوترونی (NAA^1)، نمونه توسط چشمه نوترون پرتودهی و پرتوزا می‌شود سپس گاما‌های تاخیری گسیل شده از آن، شمارش می‌شود. ایزوتوپ‌های کوتاه‌عمر به سرعت به فعالیت اشباع می‌رسند و بعد از آن با افزایش زمان پرتودهی، فعالیت افزایش نمی‌یابد. همچنین فعالیت آن‌ها بعد از زمان کوتاهی کاهش می‌یابد و بعد از آن با گذشت زمان

¹ Neutron Activation Analysis

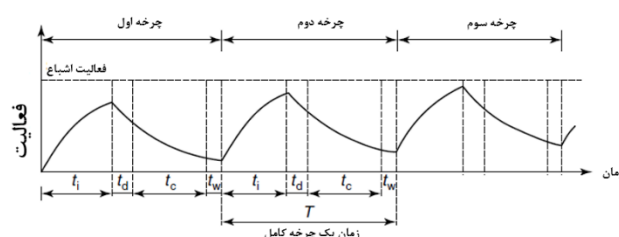
حاصل از ایزوتوپ‌های هدف تقویت شده و نسبت سیگنال به نویز قله هدف بهبود یابد [۴،۲].

۱.۱. پیشینه پژوهش

در سال ۱۹۸۰ در پژوهشی که توسط Spyrou انجام شد، با استفاده از برنامه Cyclops، تأثیر عوامل زمانی مختلف بر بهینه‌سازی SNR در CNAA بررسی گردید. نتایج این مطالعه نشان داد که کاهش زمان انتقال از محل پرتودهی به محل شمارش به‌طور معناداری می‌تواند موجب افزایش SNR شود، به‌ویژه در مورد ایزوتوپ‌هایی با نیمه‌عمر بسیار کوتاه [۲].

در سال ۱۹۸۱ در مطالعه‌ای دیگر، Tout و Chatt با استفاده از شبیه‌سازی عددی مبتنی بر معادلات حاکم بر CNAA، نقش ماتریس نمونه را در بهینه‌سازی پارامترهای زمانی بررسی کردند [۶]. آن‌ها چهار نوع ماتریس استاندارد (از جمله کبد گاو و برگ درختان میوه) را برای ایزوتوپ‌های مختلف مورد تحلیل قرار دادند و نشان دادند که تولید ایزوتوپ ^{28}Al در این ماتریس‌ها، یکی از مهم‌ترین منابع زمینه برای ایزوتوپ‌های کوتاه‌عمر به شمار می‌رود. نتایج پژوهش آن‌ها بیان‌گر آن بود که زمان‌های بهینه پرتودهی و شمارش برای بسیاری از ایزوتوپ‌های کوتاه‌عمر، در ماتریس‌های مختلف تفاوت چندانی ندارند. برای مثال، برای ایزوتوپ ^{75}Se در ماتریس ماده استاندارد مرجع کبد گاو (SRM۱۵۷۷)، مقادیر بهینه t_i و t_c حدود ۱۲ تا ۱۳ ثانیه و در ماتریس ماده استاندارد برگ درختان میوه حدود ۱۹ ثانیه گزارش شد. با این حال، اگر t_i و t_c هر دو در حدود ۱۹ ثانیه انتخاب شوند، تنها کاهش ۱ درصدی در حساسیت مشاهده خواهد شد. این یافته مهم نشان داد که می‌توان با انتخاب زمان‌های یکسان برای ایزوتوپ‌های کوتاه‌عمر، امکان آنالیز هم‌زمان چند ایزوتوپ را فراهم کرد، بدون آن‌که به‌طور قابل توجهی از حساسیت کاسته شود [۶].

شمارش بیشتری جمع‌آوری نمی‌شود و افزایش زمان شمارش، فقط شمارش زمینه ناشی از ایزوتوپ‌های بلندعمر مزاحم را افزایش می‌دهد. از طرفی به دلیل نیمه‌عمر کوتاه این رادیو ایزوتوپ‌ها، تعداد هسته‌های رادیواکتیو که در حالت اشباع قرار می‌گیرند نیز کوچک است که این امر سبب افزایش خطای آماری شمارش نیز می‌شود. بنابراین روش معمولی NAA برای ایزوتوپ‌های کوتاه‌عمر با چالش‌هایی همراه است. اما در روش فعال‌سازی نوترونی چرخه‌ای ($^{1}\text{CNAA}$)، نمونه دوباره پرتودهی شده و فعالیت و شمارش دوباره افزایش می‌یابد و این فرایند برای چندین چرخه تکرار شده و شمارش‌های جمع‌آوری شده در هر چرخه با هم تجمیع می‌شوند [۵-۱].



شکل (۱): شماتیک زمان‌بندی در CNAA.

همان‌طور که در شکل ۱ نشان داده شده است، مراحل انجام روش CNAA به صورت زیر است:

پرتودهی نوترونی کوتاه‌مدت (t_i): نمونه برای مدت زمان کوتاهی در معرض تابش نوترونی قرار می‌گیرد.

وایشی یا خنک‌سازی (t_d): پس از پرتودهی، نمونه برای مدت زمان کوتاهی به منظور کاهش پس‌زمینه پرتوزایی ناشی از ماتریس نمونه، نگهداری می‌شود.

شمارش گاما (t_c): در این مرحله، پرتوهای گامای گسیل شده از ایزوتوپ‌های پرتوزای کوتاه‌عمر اندازه‌گیری می‌شوند.

تکرار چرخه (T): این مراحل به‌طور متوالی با طی زمان اتمام شمارش و شروع پرتودهی (t_w) تکرار می‌شوند تا سیگنال‌های

در سال ۱۹۸۷، Al-Mugrabi و Spyrou مطالعه‌ای را با هدف بهینه‌سازی نسبت سیگنال به نویز در CNA انجام دادند. در این پژوهش، یک برنامه شبیه‌سازی توسعه داده شد که طیف گامای حاصل از پرتودهی چرخه‌ای نمونه‌ها را مدل‌سازی می‌کرد [۷]. این شبیه‌سازی شامل اجزایی مانند قله فوتوپیک^۱، پیوستار کامپتون^۲، قله‌های تک فراری^۳ و دو فراری^۴ و تابش ترمزی^۵ بود. خروجی این شبیه‌سازی به‌عنوان ورودی برای بهینه‌سازی نسبت سیگنال به نویز استفاده شد. در نتیجه، حساسیت‌ها و حدود تشخیص برای ایزوتوپ‌های موردنظر از طیف بهینه‌شده استخراج گردید. همچنین، تداخلات احتمالی از سایر فوتوپیک‌ها شناسایی شدند. این برنامه به‌گونه‌ای توسعه یافت که امکان شبیه‌سازی نمونه‌های فعال‌شده به‌صورت سنتی را نیز فراهم می‌کرد. مثال‌هایی برای مواد استاندارد مرجع به‌عنوان نمونه‌های کاربردی همراه با طیف‌های اندازه‌گیری‌شده، ارائه شد [۷].

در سال ۲۰۱۲ مطالعه‌ای توسط احمد، برای شبیه‌سازی تولید ^{24}Na از طریق آنالیز فعال‌سازی نوترونی چرخه‌ای در راکتور تحقیقاتی MNSR غنا انجام شد. در این تحقیق از مدل‌سازی عددی و روش ساده‌شده Westcott استفاده شد تا به‌کمک برنامه‌نویسی به‌زبان C^{++} ، توزیع زمانی پرتودهی و تولید ^{24}Na در شرایط عملیاتی مختلف شبیه‌سازی شود [۸]. هدف اصلی این شبیه‌سازی، بهینه‌سازی پارامترهای پرتودهی و انتقال به‌منظور دستیابی به بیشینه فعالیت ممکن از نوکلید ^{24}Na بود. نتایج نشان داد که فعالیت تولیدی در توان کامل راکتور، یعنی شار نوترون برابر با $10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ تقریباً دو برابر فعالیت در توان نیمه، یعنی شار نوترون برابر با $10^{11} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ $\times 5$ است. همچنین یافته‌های حاصل از این شبیه‌سازی‌ها، اهمیت بهینه‌سازی

پارامترهای زمانی چرخه‌ای نظیر زمان پرتودهی، انتقال و شمارش را در جهت افزایش راندمان CNA به‌ویژه در راکتورهای کم‌قدرت مانند MNSR نشان داد [۸].

در سال ۲۰۲۱، پژوهشی توسط لانی و همکاران در دانشگاه ایالتی پنسیلوانیا با هدف بهینه‌سازی عملکرد سیستم پنوماتیکی آنالیز CNA در راکتور تحقیقاتی Breazeale انجام شد. در این پژوهش، از شبیه‌سازی‌های دقیق مبتنی بر نرم‌افزار Geant^۴ برای مدل‌سازی آشکارسازهای گامای به‌کار رفته در سیستم CNA استفاده شد [۹]. این شبیه‌سازی‌ها شامل طراحی هندسی کامل آشکارساز HPGe، بررسی اثرات جمع قله‌های گاما^۶ و بررسی پاسخ انرژی آشکارساز در برابر نمونه‌های کالیبراسیون با جرم‌های مختلف بود. هدف اصلی این پروژه، تعیین مقادیر بهینه برای جرم نمونه‌های استاندارد گاما و نیز طراحی چرخه‌های پرتودهی و شمارش به‌گونه‌ای بود که منجر به افزایش دقت و تکرارپذیری در شناسایی و کمی‌سازی نوکلیدهای بسیار کوتاه‌عمر شود. همچنین، اثرات ناشی از زمان مرده^۷ و انباشت طیف^۸ نیز در این تحلیل‌ها لحاظ شد و روش‌هایی برای تصحیح آن‌ها پیشنهاد گردید [۹].

حدود ۷۰ عنصر به سهولت با روش متداول NAA تعیین می‌شوند. اما این تکنیک برای برخی عناصر با چالش‌های زیادی همراه است. زیرا ایزوتوپ‌های تولید شده از پرتودهی نوترونی برخی عناصر، پایدار هستند و یا نیمه‌عمرهای بزرگی دارند. از جمله رادیوایزوتوپ‌هایی که نیمه‌عمر بلندی دارند می‌توان به ^{75}Se با نیمه‌عمر ۱۱۹/۸ روز، ^{45}Sc با نیمه‌عمر ۸۴ روز، $^{110\text{m}}\text{Ag}$ با نیمه‌عمر ۲۵۰ روز و ^{181}Hf با نیمه‌عمر ۴۵ روز اشاره کرد که برای رسیدن به حساسیت بالا برای آنالیز آن‌ها، نیاز به زمان پرتودهی طولانی با شار نوترون بالا دارند [۱۰]. زمان

^۵Bremsstrahlung^۶Cascade summing^۷Dead time^۸Pulse pile-up^۱Photopeak^۲Compton continuum^۳Single-Escape Peaks^۴Double-Escape Peaks

n چرخه متوالی تکرار می‌گردد (شکل ۱). به‌طور کلی هر چرخه شامل چهار پارامتر زمانی به صورت زیر است [۲]:

$$T = t_i + t_d + t_c + t_w \quad (۱)$$

پاسخ آشکارساز برای اولین چرخه (D_1) به‌صورت رابطه زیر است [۲]:

$$D_1 = \frac{\varepsilon I \varphi \sigma N}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_i})(e^{-\lambda t_d})(1 - e^{-\lambda t_c}) \quad (۲)$$

که در آن ε بازدهی آشکارساز، I شدت فوتون گاما، φ شارنوترون، σ سطح مقطع جذب نوترون، N تعداد هسته‌های هدف و λ ثابت واپاشی ایزوتوپ مورد نظر هستند.

پاسخ تجمعی آشکارساز برای n امین چرخه برابر است با:

$$D_1 = \frac{\varepsilon I \varphi \sigma N}{\lambda} (-1 e^{-\lambda t_i})(e^{-\lambda t_d})(-1 e^{-\lambda t_c}) \quad (۳)$$

$$\left(\frac{n}{1 - e^{-\lambda T}} - \frac{e^{-\lambda T}(1 - e^{-n\lambda T})}{(1 - e^{-\lambda T})^2} \right)$$

معادله بالا، رابطه اساسی برای روش CNAA است.

۲.۲. نسبت سیگنال به نویز

برای بهینه‌سازی پارامترهای زمانی چرخه‌ها برای رادیوایزوتوپ موردنظر باید در مورد سایر عناصر دیگر ماتریس نمونه نیز اطلاعات لازم استخراج شود. به‌ویژه عناصری که پس از فعال‌سازی، رادیوایزوتوپ‌هایی تولید می‌کنند که سبب افزایش تابش زمینه می‌شوند؛ بنابراین آنچه که اهمیت دارد، نسبت سیگنال به نویز است نه صرفاً پاسخ آشکارساز.

نسبت سیگنال به نویز (SNR^1) به‌منظور بهینه‌سازی

محاسبات به‌صورت زیر بیان می‌شود [۷]:

$$SNR = \frac{D_{Cs}}{\sqrt{\sum D_{Cb}}} \quad (۴)$$

که DC_s پاسخ تجمعی آشکارساز به رادیوایزوتوپ موردنظر، $\sum D_{Cb}$ مجموع پاسخ تجمعی‌های آشکارساز برای ایزوتوپ‌هایی است که پس‌زمینه را ایجاد می‌کنند. برای محاسبه نویز، کلیه ایزوتوپ‌های موجود در ماتریس نمونه استاندارد آرد

واپاشی آن‌ها نیز در حدود چند روز یا چند هفته است که سبب طولانی شدن زمان کل آنالیز می‌شود. برخی از این عناصر مانند Se رادیوایزوتوپ‌های کوتاه عمری دارند که استفاده از آن‌ها در آنالیز، زمان کل آزمایش را به‌شدت کاهش می‌دهد.

استفاده از روش آنالیز CNAA به‌طور ویژه برای شناسایی و تعیین رادیوایزوتوپ‌های بسیار کوتاه عمر مفید است. از جمله ایزومرهای شبه پایدار نظیر ^{76}Se که اغلب همراه با گسیل گامای کم انرژی بوده و قله فوتوپیک آن‌ها در قسمت انرژی پایین طیف وجود دارند و در روش NAA به‌سختی مشاهده می‌شوند [۱۵-۱۱].

در این پژوهش، باتوجه به اهمیت فراوان وجود سلنیوم در ماده غذایی برنج و گندم که از پرمصرف‌ترین مواد غذایی هستند، شرایط آنالیز سلنیوم از طریق بررسی فوتوپیک مربوط به ^{76}Se در آنالیز CNAA، با رهیافتی محاسباتی مورد بررسی قرار گرفت. در این راستا، سه ماده مرجع استاندارد آرد گندم، آرد برنج، و خاکستر زغال‌سنگ که حاوی مقادیر متفاوت و البته مشخصی از سلنیوم با ماتریس‌های مختلفی بودند مورد ارزیابی قرار گرفت.

۲. مواد و روش‌ها

۱.۲. پاسخ تجمعی آشکارساز

در روش CNAA، نمونه به‌مدت زمان مشخص t_i تحت تابش نوترون قرار می‌گیرد تا به تعادل فعال‌سازی برسد. سپس بلافاصله با استفاده از سیستم پنوماتیک به آشکارساز منتقل می‌شود. زمان این انتقال به‌صورت t_d تعریف می‌شود. در مرحله بعد، گاما‌های تأخیری گسیل‌شده از نمونه فعال، طی بازه زمانی t_c توسط آشکارساز ثبت می‌گردند. پس از اتمام شمارش، نمونه طی زمان t_w به ناحیه تابش بازگردانده می‌شود و این فرایند برای

¹ Signal-to-Noise Ratio

برنج (NIST-SRM ۱۶۳۳) که کوتاه عمر هستند یا نیمه عمر متوسطی دارند در نظر گرفته شده اند. این ایزوتوپ ها عمدتاً شامل ^{28}Al ، ^{28}Cl ، ^{56}Mn ، ^{27}Mg و ^{19}O هستند. سایر ایزوتوپ ها یا بلند عمر بوده یا سطح مقطع واکنش بسیار پایینی داشتند.

۳.۲. آنالیز سلنیوم

روش متداول NAA برای تعیین سلنیوم با استفاده از ایزوتوپ ^{75}Se است که از طریق برهم کنش نوترون حرارتی با ^{74}Se تولید می شود. به دلیل نیمه عمر طولانی (۱۱۹/۸ روز) و فراوانی طبیعی نسبتاً پایین ۰/۸۷٪، نیازمند زمان پرتو دهی و واپاشی طولانی و نیز شار نوترونی بالا است [۱۳]. علاوه بر این، گامای حاصل از ^{75}Se در بسیاری از موارد دچار تداخل با خطوط گامای ایزوتوپ های دیگر می شود که موجب کاهش دقت و حساسیت آنالیز می گردد. در مقابل، استفاده از ^{77}Se به عنوان رادیوایزوتوپ هدف در روش CNA، مزایای متعددی دارد. این ایزومر با نیمه عمر بسیار کوتاه (۱۷/۴ s) در مدت کوتاهی به حالت اشباع می رسد و مناسب آنالیز چرخه ای است. هر چند سطح مقطع جذب نوترون حرارتی در ^{76}Se نسبت به ^{74}Se پایین تر است (۲۱ بارن در برابر ۵۱/۸ بارن)، اما به دلیل فراوانی طبیعی بالاتر ^{76}Se (۹۲/۰۲٪) توانایی گسیل گامای مشخصه با انرژی ۱۶۱/۹ keV و شدت مناسب ۵۲/۵٪، استفاده از آن در CNA بسیار مؤثر و کاربردی است. مطالعات پیشین نیز نشان داده اند که در بسیاری از نمونه های غذایی مانند برنج، سبزیجات و محصولات گیاهی، غلظت سلنیوم در محدوده های بسیار پایین و نزدیک به آستانه تشخیص قرار دارد. از این رو، استفاده از روش آنالیز CNA با بهره گیری از ^{77}Se ، در مقایسه با روش های متداول NAA، قادر است دقت و حساسیت بالاتری را در شناسایی و اندازه گیری مقادیر ناچیز این عنصر فراهم سازد. در مطالعات شبیه سازی و تجربی مختلف، احتمال

تداخل بین گامای ۱۶۱/۹ keV مربوط به ^{77}Se گامای ۱۶۲/۳ keV رادیوایزوتوپ ^{116}In بررسی شده است. با توجه به نیمه عمر بسیار کوتاه ^{116}In (۲/۱۸ s) و همچنین نادر بودن ایندیوم در ترکیب مواد غذایی، این تداخل اغلب نادیده گرفته می شود و تأثیری بر صحت نتایج CNA ندارد [۱۵، ۱۴].

با بهره گیری از معادله پاسخ تجمعی آشکارساز (رابطه ۳) برای یک نوکلید مشخص و رابطه محاسبه SNR (رابطه ۴)، نمودارهای وابستگی این نسبت به متغیرهای کلیدی تهیه شد. برای این منظور، رادیوایزوتوپ ^{77}Se با نیمه عمر ۱۷/۴ s و گامای مشخصه با انرژی ۱۶۱/۹ keV به عنوان رادیوایزوتوپ هدف انتخاب شد. این رادیوایزوتوپ به دلیل نیمه عمر کوتاه و گامای با شدت مناسب، گزینه مناسبی برای بررسی اثر پارامترهای زمانی در CNA محسوب می شود.

یکی از عوامل کلیدی که می تواند بر کیفیت نتایج در CNA تأثیرگذار باشد، نوع ماتریس نمونه است. نقش نوع ماتریس به واسطه تأثیر بر میزان تولید ایزوتوپ های مزاحم و جذب نوترون، در مقدار بهینه SNR حائز اهمیت است. برای بررسی این موضوع، سه ماده مرجع استاندارد شامل آرد برنج (NIST-SRM ۱۵۶۸)، آرد گندم (NIST-SRM ۱۵۶۷) و خاکستر زغال سنگ (NIST-SRM ۱۶۳۳) مورد استفاده قرار گرفتند. به منظور در نظر گرفتن تابش زمینه، از آنجا که ^{28}Al می تواند فعالیت اصلی پس زمینه در انواع مختلف ماتریس نمونه برای ایزوتوپ های کوتاه عمر باشد، می توان با تقریب خوبی پس زمینه را ناشی از هسته ^{28}Al در نظر گرفت بدون آن که دقت کلی تحلیل کاهش یابد. انتخاب سه ماده مذکور به آن دلیل بود که مقادیر متفاوت و البته مشخص از Al و Se هستند (جدول ۱).

پارامترهای پرتو دهی و شمارش در بازه زمانی ۹ تا ۴۰ ثانیه تغییر داده شده و نسبت SNR برای ایزوتوپ ^{77}Se برای این سه ماتریس محاسبه گردید.

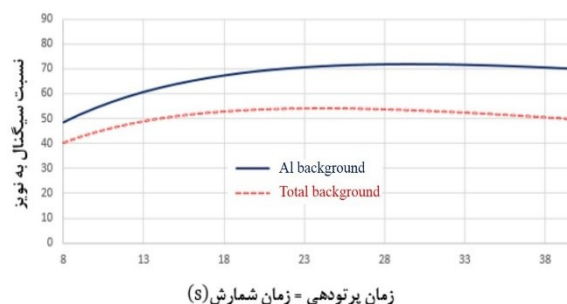
جدول (۱): غلظت عناصر Al و Se در ماتریس سه ماده استاندارد

مرجع (غلظت‌ها برحسب $\mu\text{g/g}$) [۱۶-۱۸].

ماده مرجع استاندارد	غلظت Al	غلظت Se
خاکستر زغال‌سنگ	$1/50.5 \times 10.5$	$1/0.26 \times 10.1$
آرد برنج	۴/۴	$3/8 \times 10$
آرد گندم	۵/۷	۱/۱

۳. نتایج و بحث

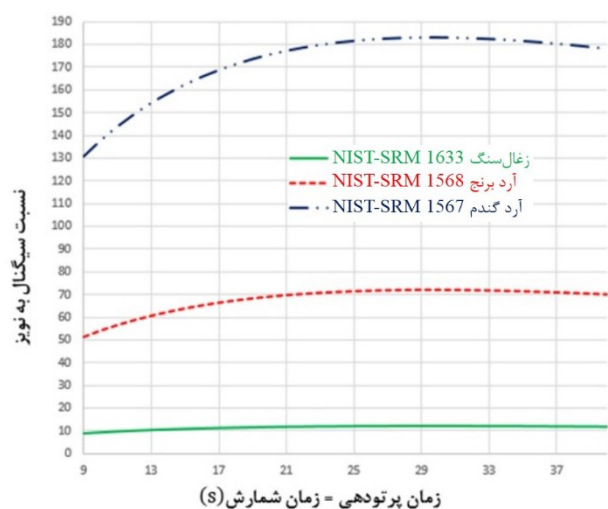
شکل ۲ مقایسه‌ای میان اثر کل تابش زمینه و سهم ویژه ^{28}Al بر روی نسبت SNR در ماتریس ماده مرجع استاندارد آرد برنج (NIST-SRM ۱۶۳۳) را نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که در حالتی که زمینه ^{28}Al تنها در نظر گرفته می‌شود، گرچه مقداری ساده‌سازی محسوب می‌شود، اما در مقایسه با مدل کل تابش زمینه، روندهای مشابه و قابل قبولی را بازتولید می‌کند. این امر در پژوهش Chatt و Tout نیز برای مواد با ماتریس‌های متفاوت از مواد مورد بررسی در پژوهش حاضر مورد بررسی و تأیید قرار گرفته بود [۶].



شکل (۲): مقایسه اثر کل تابش زمینه و سهم ویژه ^{28}Al بر روی نسبت SNR در ماتریس استاندارد آرد برنج.

شکل ۳ روند تغییرات SNR را در سه ماتریس مختلف نشان می‌دهد. نتایج حاکی از آن است که تفاوت در ترکیب عنصری ماتریس‌ها، اثر قابل‌توجهی بر SNR دارد. هرچه غلظت ایزوتوپ هدف یعنی Se کمتر و غلظت عناصر مزاحم ایجادکننده زمینه یعنی Al بیشتر باشد، میزان SNR کاهش می‌یابد. در میان نمونه‌های مورد بررسی، خاکستر زغال‌سنگ (NIST-SRM ۱۶۳۳) کمترین SNR را نشان داد. زیرا این

ماتریس دارای بیشترین غلظت آلومینیوم (عامل اصلی ایجاد زمینه) و کمترین مقدار سلنیوم است که موجب افت قابل‌ملاحظه SNR در این نمونه شده است. در همه ماتریس‌ها، SNR ابتدا با افزایش زمان پرتودهی و زمان شمارش افزایش می‌یابد اما پس از گذر از یک بازه زمانی مشخص، شیب رشد کاهش یافته و سپس SNR نزولی می‌شود. این کاهش ناشی از فعال‌سازی ایزوتوپ‌های مزاحم موجود در ماتریس نمونه مانند ^{28}Al و ^{56}Mn است که منجر به افزایش نویز می‌شود. با وجود تفاوت قابل توجه در ترکیب عنصری سه ماتریس آرد گندم، آرد برنج و خاکستر زغال‌سنگ، بازه زمانی بهینه برای پرتودهی و شمارش در همه آن‌ها تقریباً یکسان است. این یافته تأکید می‌کند که در مورد ایزوتوپ‌های کوتاه‌عمر نظیر ^{77}mSe با نیمه‌عمر ۱۷/۴ ثانیه، عامل تعیین‌کننده در انتخاب زمان پرتودهی، بیش از آن‌که به نوع ماتریس وابسته باشد، به نیمه‌عمر ایزوتوپ هدف بستگی دارد.



شکل (۳): مقایسه اثر ماتریس نمونه بر روی نسبت SNR.

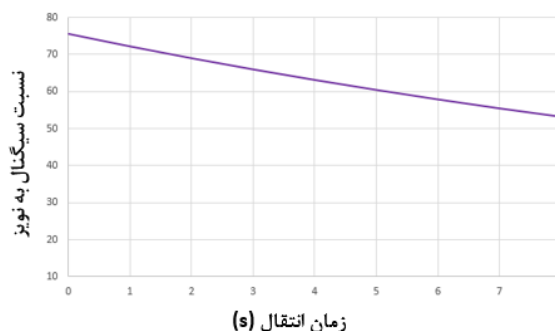
مطابق با رابطه ۳، بیشینه پاسخ تجمعی آشکارساز زمانی حاصل می‌شود که زمان انتقال صفر باشد ($t_d=0$) با این حال، در واقعیت، انتقال آنی نمونه امکان‌پذیر نیست زیرا فرآیند فیزیکی جابه‌جایی کپسول از راکتور به آشکارساز همواره با یک تأخیر زمانی همراه است.

همان‌طور که از شکل ۵ پیداست، در روش NAA معمولی ($n=1$)، SNR در ابتدا با افزایش m به سرعت افزایش می‌یابد ولی با نزدیک شدن به $m=5$ یعنی زمان کل ۵ برابر نیمه‌عمر ایزوتوپ مورد نظر ($T_t=5T_{1/2}$)، افزایش بیشتر زمان کل آزمایش در پاسخ آشکارساز تأثیر چندانی نخواهد داشت. در این حالت، که ۹۵٪ حالت اشباع است و حتی بعد از آن، افزایش زمان آزمایش به نفع افزایش فعالیت رادیوایزوتوپ ایجاد کننده پس زمینه است و SNR رادیوایزوتوپ مطلوب کاهش می‌یابد.

از سوی دیگر، در روش CNAA، نسبت SNR برای $n=4$ در $m=12$ ، یعنی زمان کل آزمایش ۱۲ برابر نیمه‌عمر ($T_t=5T_{1/2}$)، به ۹۵٪ حالت اشباع می‌رسد. این نکته نشان‌دهنده توانایی بالاتر CNAA در حفظ روند بهبود سیگنال حتی در بازه‌های زمانی طولانی‌تر است. در بازه‌های زمانی کوتاه ($m<5$)، در روش CNAA با چند چرخه کوتاه، به مقداری از SNR می‌رسد که در روش NAA معمولی تنها با صرف زمان بیشتر می‌تواند به آن نزدیک شود. همچنین حداکثر مقدار SNR در روش CNAA به‌طور قابل توجهی بالاتر از مقدار متناظر در روش NAA معمولی است. علت این امر، تجمع مؤثرتر سیگنال و کنترل بهتر زمینه به دلیل زمان‌های پرتودهی و شمارش کوتاه‌تر اما تکرارشونده است.

با طولانی‌شدن زمان آزمایش (که در روش NAA متداول است)، نوکلیدهای مزاحم با نیمه‌عمر بلند فعال می‌شوند و زمینه به‌تدریج بر سیگنال غلبه می‌کند. اما در روش CNAA، به‌دلیل توزیع زمانی بهتر و استفاده از چرخه‌های کوتاه، زمینه در سطح پایین‌تری حفظ شده و اثر کاهشی آن بر SNR تا مدت طولانی‌تری به تأخیر می‌افتد و حساسیتی بهتر از روش NAA معمولی ایجاد می‌کند.

افزایش تعداد چرخه‌های پرتودهی و شمارش به‌عنوان یکی دیگر از راهکارهای مؤثر برای افزایش نسبت SNR بررسی شد.



شکل (۴): مقایسه اثر ماتریس نمونه بر روی نسبت SNR.

شکل ۴ وابستگی تغییرات SNR به زمان انتقال نمونه را برای ایزوتوپ ^{77}mSe در آرد برنج نشان می‌دهد. همان‌طور که در این نمودار مشاهده می‌شود، حتی کاهش یک ثانیه‌ای در زمان انتقال می‌تواند به‌طور معنی‌داری SNR را بهبود بخشد و با افزایش زمان انتقال، پاسخ تجمعی و در نتیجه SNR کاهش می‌یابد.

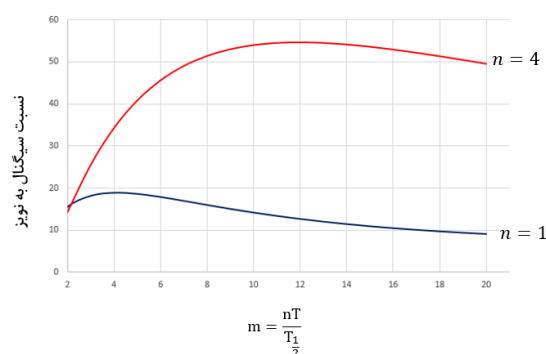
برای مقایسه‌ای بین روش CNAA و روش NAA معمولی، کمیت m را که معیاری وابسته به زمان کل آزمایش است به صورت زیر تعریف می‌کنیم:

$$m = \frac{nT}{T_{1/2}} \quad (5)$$

$$T_t = nT = mT_{1/2} \quad (6)$$

در روابط ۵ و ۶، n تعداد چرخه، T زمان کل یک چرخه

کامل، T_t زمان کل آزمایش که شامل n چرخه است، و $T_{1/2}$ نیمه‌عمر رادیوایزوتوپ مورد نظر است. شکل ۵ نسبت SNR برحسب m را نشان می‌دهد.



شکل (۵): تغییرات نسبت SNR به تعداد چرخه.

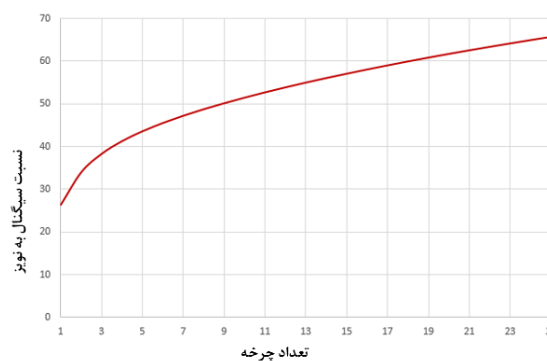
زمان خواهد برد. این در حالی است که در بسیاری از آنالیزهای معمولی به روش NAA، مدت زمان تابش و شمارش ممکن است چندین ساعت به طول انجامد؛ بنابراین حتی با افزایش تعداد چرخه‌ها، CNAА همچنان یک روش کوتاه مدت محسوب می‌شود که دقت و حساسیت بالایی در تشخیص ایزوتوپ‌های کوتاه عمر ارائه می‌دهد.

۴. نتیجه‌گیری

در این پژوهش، با تکیه بر مدل‌سازی نظری بر پایه معادلات واپاشی پرتوزا، تأثیر هر یک از پارامترهای زمانی و ترکیب ماتریس نمونه بر سیگنال نهایی و نسبت سیگنال به نویز (SNR) در روش آنالیز فعال‌سازی نوترونی چرخه‌ای (CNAА) به صورت کمی و تحلیلی بررسی شد. نتایج کلیدی این مطالعه عبارت‌اند از:

- **زمان پرتودهی (t_i):** نه تنها پارامتر تولید پرتوزایی است، بلکه در ایزوتوپ‌های کوتاه عمر، خود به یکی از عوامل افت محسوب می‌شود. برخلاف رویکرد رایج که زمان پرتودهی را تا حداکثر ممکن امتداد می‌دهد، نتایج نشان داد که در ایزوتوپ‌های کوتاه عمر مانند ^{77}Se ، پرتودهی طولانی باعث شروع واپاشی بخشی از رادیوایزوتوپ تولیدی پیش از ورود به مرحله شمارش می‌شود. این پدیده منجر به کاهش مؤثر در پاسخ آشکارساز می‌گردد. تحلیل حساسیت تابع تولید فعالیت نسبت به t_i نشان داد که بازه بهینه پرتودهی در حدود $0/7$ تا $1/2$ برابر نیمه عمر رادیوایزوتوپ قرار دارد و افزایش بیش از این مقدار نه تنها بهبود عملکردی ایجاد نمی‌کند، بلکه در برخی موارد باعث فعالیت ایزوتوپ‌های مزاحم نیز می‌شود. بنابراین، طراحی t_i باید تابعی از نیمه عمر ایزوتوپ هدف باشد.

با تکرار چندباره چرخه‌های متوالی، اثرات آماری واپاشی پرتوزا کمتر شده و پیک‌های گامای مشخصه ایزوتوپ هدف با دقت و وضوح بیشتری از تابش زمینه تفکیک می‌شوند. روند تغییرات SNR بر حسب تعداد چرخه (n) برای ایزوتوپ ^{77}Se در ماتریس استاندارد آرد برنج (NIST-SRM1۵۶۸) در شکل ۶



نشان داده شده است.

شکل (۶): روند تغییرات SNR بر حسب تعداد چرخه (n) برای ایزوتوپ ^{77}Se در ماتریس استاندارد آرد برنج.

نتایج نشان می‌دهد که افزایش تعداد چرخه‌ها منجر به افزایش SNR می‌شود. به طور مثال، در شکل بالا مقدار SNR در چرخه نهم تقریباً دو برابر مقدار آن در چرخه اول است. این بهبود به دلیل افزایش تجمعی داده‌ها و کاهش نوسانات آماری در شمارش گاماهای حاصل از واپاشی ایزوتوپ هدف است. این موضوع با معادله پاسخ تجمعی آشکارساز نیز قابل توجیه است. البته باید در نظر داشت که اگر تعداد چرخه‌ها خیلی هم زیاد باشد، نرخ افزایش SNR کاهش می‌یابد؛ به عبارت دیگر، نمودار به سمت حالت اشباع میل می‌کند. این پدیده به علت فعال‌سازی تدریجی ایزوتوپ‌های با نیمه عمر بلندتر در ماتریس نمونه و در نتیجه افزایش تابش زمینه است که مانع از رشد خطی SNR می‌شود.

اگر زمان پرتودهی و شمارش برابر ۲۰ ثانیه، و زمان انتقال ۲ ثانیه در نظر گرفته شود، زمان کل هر چرخه برابر با ۴۴ ثانیه می‌شود. در این صورت، انجام ۲۰ چرخه، کمتر از ۱۵ دقیقه

نسبت سیگنال به نویز می‌شود. با این حال، نتایج نشان داد که نرخ افزایش SNR با افزایش n به صورت غیرخطی کاهش می‌یابد. به عبارت دیگر، هرچه تعداد چرخه‌ها بیشتر شود سهم افزایشی هر چرخه در سیگنال کل به دلیل واپاشی تجمعی نسبت به چرخه‌های قبلی کمتر خواهد بود.

• **ماتریس نمونه:** ایزوتوپ‌های مداخله‌گر ناشی از ماتریس، از طریق تولید گامای ناخواسته و هم‌پوشانی طیفی، به طور مستقیم باعث افت SNR می‌شوند.

در پژوهش‌های آتی از این نتایج برای طراحی آزمایش‌های آنالیز فعال‌سازی نوترونی برای آنالیز عناصر نیمه‌عمر کوتاه از جمله سلنیوم در نمونه‌های مواد غذایی نظیر برنج و گندم استفاده خواهد شد تا مقادیر دقیق این عناصر تعیین شوند.

• **زمان انتقال یا واپاشی (t_d):** به عنوان تعیین‌کننده‌ترین عامل حفظ فعالیت شناخته شد. حتی چند ثانیه تأخیر منجر به افت شدید در سیگنال گاما شده و باعث از بین رفتن اثربخشی چرخه می‌شود. برای ایزوتوپ‌های چندثانیه‌ای، کاهش t_d به کمتر از ۲ ثانیه برای حفظ بیش از ۷۰٪ فعالیت ضروری است.

• **زمان شمارش (t_c):** باید به گونه‌ای تنظیم شود که حداکثر گامای مؤثر در بازه‌ای که واپاشی هنوز قابل توجه است، ثبت گردد. مدل‌سازی نشان داد که انتخاب t_c در بازه‌ی ۱ تا ۱/۵ برابر نیمه‌عمر، در اکثر رادیوایزوتوپ‌های هدف عملکرد بهینه دارد.

• **تعداد چرخه‌ها (n):** تعداد چرخه، تأثیر افزایشی مستقیمی بر شمارش تجمعی دارد و باعث بهبود

۵. مراجع

1. W. W. Givens, W. R. Mills Jr, R. L. Caldwell. Cyclic activation analysis. Vol. 2. National Bureau of Standards, Special Publication 312, 80 (1969) 95-103.
2. N. Spyrou. Cyclic activation analysis—A review. *J. Radioanal. Nuclear Chem.* 61 (1-2) (1981) 211-242.
3. X. Hou. Cyclic activation analysis. *Encyclopedia Anal. Chem.: Appl. Theory Instrum.* (2000) 12447-12459.
4. C. S. Munita, M. D. Glascock, R. Hazenfratz. Neutron activation analysis: An overview. In the book: Recent advances in analytical techniques. Vol. 3. (Ed. by Atta-ur-Rahman, S. A. Ozkan). Bentham Science Publishers, (2019) 179-227.
5. R. R. Greenberg, P. Bode, E. A. De Nadai Fernandes. Neutron activation analysis: A primary method of measurement. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy* 66 (3-4) (2011) 193-241.
6. R. E. Tout, A. Chatt. The effect of sample matrix on selection of optimum timing parameters in cyclic neutron activation analysis. *Anal. Chimica Acta* 133 (3) (1981) 409-419.
7. M. A. Al-Mugrabi, N. M. Spyrou. The use of simulation for the optimisation of the signal-to-noise ratio in cyclic activation analysis. *J. Radioanal. Nuclear Chem.* 110 (1987) 67-77.
8. O. M. H. Ahamed. Simulation for sodium-24 production using cyclic neutron activation analysis. (No. INIS-SD--531). Sudan Academy of Sciences, Khartoum (2012).
9. C. A. Lani, D. P. Bruce. M. L. Stephanie, M. Flaska. Optimization Simulations for a Gamma-Ray Calibration Standard for a Cyclic Neutron Activation Analysis Pneumatic System at the Penn State Breazeale Reactor. In *2021 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC)*, Piscataway, NJ, USA (2021) pp. 1-4.
10. T. Weizhi, N. Bangfa, W. Pingsheng, N. Huiling. Suitability of NAA for certification of reference materials for multielements. *J. Radioanalytical Nucl. Chem.* 245 (1) (2000) 51-56.
11. H. Zhang, Z. Chai, W. Qing, H. Chen. Cyclic neutron activation analysis for determination of selenium in food samples using ^{77m}Se . *J. Radioanalytical Nucl. Chem.* 281 (1) (2009) 23-26.
12. W. Zhang, A. Chatt. Determination of selenium in foods by pseudo-cyclic neutron activation and anti-coincidence gamma-ray spectrometry. *J. Radioanalytical Nucl. Chem.* 282 (2009) 139-143.
13. U. M. El-Ghawi, A. A. Al-Sadeq, M. M. Beje, M. B. Alamin. Determination of selenium in Libyan food items using pseudocyclic instrumental neutron activation analysis. *Biol. Trace Elem. Res.* 107 (1) (2005) 61-71.

14. I. J. Kim, P. W. Russell, M. L. Richard. Accurate and precise measurement of selenium by instrumental neutron activation analysis. *Analytical Chem.* 83 (9) (2011) 3493-3498.
15. S. Hevia, S. Resnizky, A. Chatt. Selenium content of Argentinean infant formulae and baby foods by pseudo-cyclic instrumental neutron activation analysis coupled to Compton suppression. *J. Radioanal. Nuclear Chem.* 297 (2013) 383-391.
16. R. R. Greenberg, S. K. Jean, T. E. Gills. Certification of a new NIST fly ash standard reference material. *Fresenius' J. Analytical Chem.* 352 (1995) 193-196.
17. M. M. Phillips, E. S. Katherine, S. A. Wise. Standard reference materials for food analysis. *Anal. Bioanal. Chem.* 405 (13) (2013) 4325-4335.
18. D. L. Anderson, C. William. Revalidation and long-term stability of National Institute of Standards and Technology Standard Reference Materials 1566, 1567, 1568, and 1570. *J. AOAC Int.* 83 (5) (2000) 1121-1134.