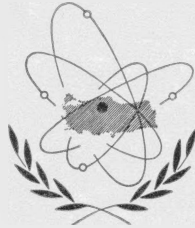


**T. C.
ATOM ENERJİSİ KOMİSYONU**

HIZLI NÖTRON AKTİVASYON ANALİZİ İLE
BUĞDAYLARDA AZOT TAYİNİ

H. SEVİMLİ-H. ÖZYOL-E. BARUTÇUGİL-S. DİNÇER

Aralık, 1973



ANKARA NÜKLEER ARAŞTIRMA MERKEZİ

Teknik Rapor : RNF-4-73

HIZLI NÖTRON AKTİVASYON ANALİZİ İLE
BUĞDAYLARDA AZOT TAYİNİ

H. SEVİMLİ-H. ÖZYOL-E. BARUTÇUGİL-S. DİNÇER

Aralık, 1973

* Bu çalışma TÜBİTAK IV. Bilim
Konresine sunulmuştur.

ÖZET

Bu çalışmada, Türkiye topraklarında yetiştirilen bazı buğday türlerine ait çeşitli numunelerdeki azot miktarları, 14.7 MeV enerjili nötronların azotla etkileşmesiyle oluşan $^{14}\text{N}(n,2n)^{13}\text{N}$ reaksiyonu yardımı ile tayin edilmiştir.

Uygulanan karşılaştırmalı nötron aktivasyon metodunda, Milletlerarası Atom Enerjisi Ajansı'ndan sağlanan ve içerisindeki azot miktarları bilinen arpa taneleri standart olarak kullanılmıştır.

Onbeş tür buğdaya ait numunelerde, çalışma sonucu elde edilen değerler $\%(2.69 \pm 0.10)$ ve $\%(1.53 \pm 0.08)$ arasında bulunmuştur.

SUMMARY

The nitrogen amounts of wheat samples were determined by the use of $^{14}\text{N}(n,2n)^{13}\text{N}$ reaction produced from the interaction of 14.7 MeV neutrons with ^{14}N . Barley samples with known nitrogen contents were provided from the IAEA and used as standards for the comparative fast neutron activation analysis.

As a result, the amounts of nitrogen in 15 kinds of wheat samples were found between $(2.69 \pm 0.10) \%$ and $(1.53 \pm 0.08) \%$.

HIZLI NÖTRON AKTİVASYON ANALİZİ İLE BUĞDAYLARDA AZOT TAYİNİ

H. SEVİMLİ, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.
H. ÖZYOL, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.
E. BARUTÇUGİL, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.
S. DİNÇER, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.

GİRİŞ

Beslenmede önemli bir yer tutan proteinin esas maddesini azot teşkil etmektedir. Bu bakımdan, halkımızın beslenmesinde yer alan gıda maddeleri arasında ön sırayı işgal eden buğdayın azotça zenginliğinin bilinmesinde büyük yarar vardır.

Bugün için tahıllardaki azot miktarının tayininde, klasik Kjeldahl metodunun yanında çeşitli nükleer metodlar uygulanmaktadır (1) (2) (3) (4). Kjeldahl metodunda incelikli sonuçlar alınmakla beraber uzun bir süre gerekmekte ve analiz esnasında numune bünyesi, kimyasal işlemler yüzünden değişikliğe uğratılmaktadır (4). Nükleer metodlar arasında bulunan hızlı nötron aktivasyon analizinde ise, incelikli sonuçlar, çok daha kısa bir sürede alındığı gibi, numune bünyesinde bir değişiklik de meydana gelmemektedir.

Nötron aktivasyon analizi ile azot tayininde, $^{14}\text{N}(n, 2n)^{13}\text{N}$ reaksiyonundan yararlanılmaktadır. Bu reaksiyonun 14.7 MeV enerjili nötronlar için tesir kesiti çok küçük (5.67 mb) olup yeterli aktivite elde etmek için en az 10^8 n/cm². sn mertebesinde nötron akısı gerekmektedir. Reaksiyon sonucu oluşan ^{13}N radyoizotopu, 10 dk.lık bir yarılanma ömrü ile, 1.67 MeV enerjili pozitronlar neşretmektedir. Bu pozitronların herbiri 0.511 MeV enerjili ve zıt yönde yayılan iki yokolma (annihilation) gama ışınına dönüşmektedir. Bu ışınların uygun bir dedektör ve bağlı elektronik düzenele dedekte edilmesi sonucu, aynı şartlar altında nötron ışınlamasına tabi tutulan numune ve standardın kazanmış oldukları aktiviteler saptanmaktadır.

Kazanılmış aktiviteler, numune ve standart içindeki azot miktarları ile orantılı olduklarından, bunların karşılaştırılması sonucu, numune içerisindeki bilinmeyen madde miktarının tayinine gidilmektedir.

UYGULANAN TEKNİK ve KULLANILAN DENEL DÜZENEK

Ölçme Metodları

Işınlanan numunelerin aktivitelerini ölçmek için iki metod kullanılmıştır. Bunlar, gama ışınları spektrum analizi ve gama-gama koinsidens metodlarıdır. Spektrum analizinde, ışınlanan numune ve standarda ait gama ışınları spektrumları gama spektrometresi yardımıyla alınmış ve bu spektrumlardaki 0.511 MeV enerjili gama ışınlarının fotopik alanları Covell metoduna göre hesaplanmıştır (7). Numune ve standarda ait spektrumlar, (Şekil-1) ve (Şekil-2)'de görülmektedir. Gama-gama koinsidens ölçme tekniğinde ise, pozitronun yokolması sonucu, aynı anda ve zıt yönde yayınlanan gama ışınları arasındaki koinsidens sayımından yararlanılmıştır (8).

Nümune ve standartların hazırlanması

Buğday nümuneleri Toprak Mahsulleri Ofisi'nden, standart olarak kullanan arpa ise Milletlerarası Atom Enerjisi Ajansı'ndan sağlanmıştır.

Spektrum analizi metodu ile ölçme tekniğinde, aynı anda üç nümune ve bir standart, (Şekil-3)'de görüldüğü gibi, 15 mm. çapında, 60 mm. yüksekliğinde ve 2mm. kalınlığında polietilen tüplere konulmuştur. Her tüp, içinde 5-6 gr. nümune olduğu halde jeneratörün hedefi önüne yerleştirilmiş ve ışınlama yapılmıştır. Tüpler içine eksen doğrultusunda yerleştirilen bakır teller akı normalizasyonunda kullanılmıştır.

Koinsidens ölçme tekniğinde, sayma statistiğini yükseltmek için, aktiflenecek madde miktarı artırılmış ve jeneratör hedefini tamamen kaplayacak çapta polietilen kaplar kullanılmıştır (Şekil-4). Bu kaplar içerisine 30-35 gr. arasında nümune ve standart konulmuş ve ışınlama yapılmıştır. Akı normalizasyonu için, parafin blok içine yerleştirilmiş bulunan BF_3 sayacı kullanılmıştır.

Ölçmeler

İşinlamalar için, nötron kaynağı olarak, KAMAN A-1001 tipi nötron jeneratörü kullanılmıştır. Jeneratörde, $^3\text{H}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ reaksiyonu ile, ortalama $1.28 \times 10^8 \text{ n/cm}^2$ sn lik nötron akısı elde edilmiş ve nümuneler 10 dk. süre ile ışınlamaya maruz bırakılmıştır. Işınlamadan sonra, nümune içinde bulunan kısa yarı-ömürlü radyoizotopların, özellikle, $^{31}\text{P}(\text{n}, \text{n})^{30}\text{P}$, $^{28}\text{Si}(\text{n}, \text{p})^{28}\text{Al}$ ve $^{16}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{16}\text{N}$ reaksiyonlarından oluşan ^{30}P , ^{28}Al ve ^{16}N 'un soğuması için yeterli gecikmeden sonra, ölçüye esas olan radyoizotopun yarı-ömrü ve uygun sayma statistiği gözönüne alınarak spektrumlar ve sayımlar alınmıştır.

ÖLÇÜLERİN DEĞERLENDİRİLMESİ ve SONUÇLAR

Aktivitelerin ölçümünde kullanılan her iki metotta da yokolma gamalarından yararlanılmıştır. Bu yüzden, karşılaştırma sonucu bulunan değerlerindeki doğruluğu, aktiflenen nümune içinde ^{13}N radyoizotopunun kine yakın yarı-ömürle pozitron veya 0.511 MeV civarında gama neşreden başka bir radyoizotopun bulunup bulunmamasına bağlıdır. Buğdayda esas radyoizotopla ilgili işlemleri karıştıran bu tür girişim kaynakları aşağıdaki gibi sıralanabilir :

1. Işınlama esnasında kapta bulunan havadaki serbest azotun tesiri, ışınlamadan hemen sonra, gözenekli polietilen kaplar içinden basınçlı azot gazı geçirmek suretiyle giderilmiştir.

2. Nümune içerisinde mevcut potasyumdan $^{39}\text{K}(\text{n}, \text{n})^{38}\text{K}$ reaksiyonuyla oluşan ^{38}K , 7.7 dk.lık yarılanma ömrü ile 0.511 MeV enerjili yokolma gama ışınları yayınlar. Buradan gelecek etkinin giderilmesi için K_2CO_3 dan bir nümune hazırlanarak ışınlanmış ve spektrumu alınmıştır (Şekil-5). Spektrumdaki 0.511 MeV enerjili gama ışınına ait fotopik alanı, 2.16 MeV enerjili gama ışınına ait fotopik alanına oranlanarak elde edilen katsayı, nümunedeki potasyumun etkisinin giderilmesinde düzeltme faktörü olarak kullanılmıştır.

3. Hızlı nötronların nümune içerisinde elastik saçılma yapmaları ve ayrıca $^{12}\text{C}(\text{n}, \text{p})^{12}\text{B}$ reaksiyonu sonucu ortaya çıkan protonların oksijen ve karbonla yaptıkları, $^{16}\text{O}(\text{p}, \alpha)^{13}\text{N}$, $^{13}\text{C}(\text{p}, \text{n})^{13}\text{N}$ ve $^{12}\text{C}(\text{p}, \gamma)^{13}\text{N}$ reaksiyonlarıyla ^{13}N oluşmaktadır (5) (6). Bu etkinin giderilmesi için nümune kabı, boş ve saf sakkaroz ($\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$) ile dolu olduğu halde ışınlanmış ve spektrumları alınmıştır (Şekil-6) ve (Şekil-7). Nümunenin ihtiva ettiği karbon, hidrojen ve oksijen miktarları sakkarozunkine oranlanarak bir katsayı bulunmuştur. Boş kaba ait fotopik alanı, sakkaroz ve nümune için tabii fon kabul edilerek net alanlar bulunmuş ve sakkarozuza ait alan

HIZLI NÖTRON AKTİVASYON ANALİZİ İLE BUĞDAYLARDA AZOT TAYİNİ

H. SEVİMLİ, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.
 H. ÖZYOL, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.
 E. BARUTÇUGİL, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.
 S. DİNÇER, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi, Ankara.

GİRİŞ

Beslenmede önemli bir yer tutan proteinin esas maddesini azot teşkil etmektedir. Bu bakımdan, halkımızın beslenmesinde yer alan gıda maddeleri arasında ön sırayı işgal eden buğdayın azotça zenginliğinin bilinmesinde büyük yarar vardır.

Bugün için tahıllardaki azot miktarının tayininde, klasik Kjeldahl metodunun yanında çeşitli nükleer metodlar uygulanmaktadır (1) (2) (3) (4). Kjeldahl metodunda incelikli sonuçlar alınmakla beraber uzun bir süre gerekmede ve analiz esnasında nümune bünyesi, kimyasal işlemler yüzünden değişikliğe uğratılmaktadır (4). Nükleer metodlar arasında bulunan hızlı nötron aktivasyon analizinde ise, incelikli sonuçlar, çok daha kısa bir sürede alındığı gibi, nümune bünyesinde bir değişiklik de meydana gelmemektedir.

Nötron aktivasyon analizi ile azot tayininde, $^{14}\text{N}(n, 2n)^{13}\text{N}$ reaksiyonundan yararlanılmaktadır. Bu reaksiyonun 14.7 MeV enerjili nötronlar için tesir kesiti çok küçük (5.67 mb) olup yeterli aktivite elde etmek için en az 10^8 n/cm^2 sn mertebesinde nötron akısı gerekmektedir. Reaksiyon sonucu oluşan ^{13}N radyoizotopu, 10 dk.lık bir yarılanma ömrü ile, 1.67 MeV enerjili pozitronlar neşretmektedir. Bu pozitronların herbiri 0.511 MeV enerjili ve zıt yönde yayılan iki yokolma (annihilation) gama ışınına dönüşmektedir. Bu ışınların uygun bir dedektör ve bağlı elektronik düzenele dedekte edilmesi sonucu, aynı şartlar altında nötron ışınlamasına tabi tutulan nümune ve standardın kazanmış oldukları aktiviteler saptanmaktadır.

Kazanılmış aktiviteler, nümune ve standart içindeki azot miktarları ile orantılı olduklarından, bunların karşılaştırılması sonucu, nümune içerisindeki bilinmeyen madde miktarının tayinine gidilmektedir.

UYGULANAN TEKNİK ve KULLANILAN DENEL DÜZENEK

Ölçme Metodları

Işınlanan nünunelerin aktivitelerini ölçmek için iki metod kullanılmıştır. Bunlar, gama ışınları spektrum analizi ve gama-gama koincidens metodlarıdır. Spektrum analizinde, ışınlanan nümune ve standarda ait gama ışınları spektrumları gama spektrometresi yardımıyla alınmış ve bu spektrumlardaki 0.511 MeV enerjili gama ışınlarının fotopik alanları Covell metoduna göre hesaplanmıştır (7). Nümune ve standarda ait spektrumlar, (Şekil-1) ve (Şekil-2)'de görülmektedir. Gama-gama koincidens ölçme tekniğinde ise, pozitronun yokolması sonucu, aynı anda ve zıt yönde yayılan gama ışınları arasındaki koincidens sayımından yararlanılmıştır (8).

Nümuneye ve standartların hazırlanması

Buğday nümuneleri Toprak Mahsulleri Ofisi'nden, standart olarak kullanılan arpa ise Milletlerarası Atom Enerjisi Ajansı'ndan sağlanmıştır.

Spektrum analizi metodu ile ölçme tekniğinde, aynı anda üç nümuneye ve bir standart, (Şekil-3)'de görüldüğü gibi, 15 mm. çapında, 60 mm. yüksekliğinde ve 2mm. kalınlığında polietilen tüplere konulmuştur. Her tüp, içinde 5-6 gr. nümuneye olduğu halde jeneratörün hedefi önüne yerleştirilmiş ve ışınlama yapılmıştır. Tüpler içine eksen doğrultusunda yerleştirilen bakır teller akı normalizasyonunda kullanılmıştır.

Koinsidens ölçme tekniğinde, sayma statistiğini yükseltmek için, aktiflenecek madde miktarı artırılmış ve jeneratör hedefini tamamen kaplayacak çapta polietilen kaplar kullanılmıştır (Şekil-4). Bu kaplar içerisine 30-35 gr. arasında nümuneye ve standart konulmuş ve ışınlama yapılmıştır. Akı normalizasyonu için, parafin blok içine yerleştirilmiş bulunan BF_3 sayacı kullanılmıştır.

Ölçmeler

İşinlamalar için, nötron kaynağı olarak, KAMAN A-1001 tipi nötron jeneratörü kullanılmıştır. Jeneratörde, $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$ reaksiyonu ile, ortalama $1.28 \times 10^8 \text{ n/cm}^2$ sn lik nötron akısı elde edilmiş ve nümuneler 10 dk. süre ile ışınlamaya maruz bırakılmıştır. Işınlamadan sonra, nümuneye içinde bulunan kısa yarı-ömürlü radyoizotopların, özellikle, $^{31}\text{P}(n,2n)^{30}\text{P}$, $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$ ve $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$ reaksiyonlarından oluşan ^{30}P , ^{28}Al ve ^{16}N 'un soğuması için yeterli gecikmeden sonra, ölçüye esas olan radyoizotopun yarı-ömrü ve uygun sayma statistiği gözönüne alınarak spektrumlar ve sayımlar alınmıştır.

ÖLÇÜLERİN DEĞERLENDİRİLMESİ ve SONUÇLAR

Aktivitelerin ölçümünde kullanılan her iki metoddada yokolma gamalarından yararlanılmıştır. Bu yüzden, karşılaştırma sonucu bulunan değerlerindeki doğruluğu, aktiflenen nümuneye içinde ^{13}N radyoizotopunun yakınına yakın yarı-ömürle pozitron veya 0.511 MeV civarında gama neşreden başka bir radyoizotopun bulunup bulunmamasına bağlıdır. Buğdayda esas radyoizotopla ilgili işlemleri karıştıran bu tür girişim kaynakları aşağıdaki gibi sıralanabilir :

1. Işınlama esnasında kapta bulunan havadaki serbest azotun tesiri, ışınlamadan hemen sonra, gözenekli polietilen kaplar içinden basınçlı azot gazı geçirmek suretiyle giderilmiştir.

2. Nümuneye içerisinde mevcut potasyumdan $^{39}\text{K}(n,2n)^{38}\text{K}$ reaksiyonuyla oluşan ^{38}K , 7.7 dk.lık yarılanma ömrü ile 0.511 MeV enerjili yokolma gama ışınları yayınlar. Buradan gelecek etkinin giderilmesi için K_2CO_3 dan bir nümuneye hazırlanarak ışınlanmış ve spektrumu alınmıştır (Şekil-5). Spektrumdaki 0.511 MeV enerjili gama ışınına ait fotopik alanı, 2.16 MeV enerjili gama ışınına ait fotopik alanına oranlanarak elde edilen katsayı, nümunedeki potasyumun etkisinin giderilmesinde düzeltme faktörü olarak kullanılmıştır.

3. Hızlı nötronların nümuneye içerisinde elastik saçılma yapmaları ve ayrıca $^{12}\text{C}(n,p)^{12}\text{B}$ reaksiyonu sonucu ortaya çıkan protonların oksijen ve karbonla yaptıkları, $^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$, $^{13}\text{C}(p,n)^{13}\text{N}$ ve $^{12}\text{C}(p,\gamma)^{13}\text{N}$ reaksiyonlarıyla ^{13}N oluşmaktadır (5) (6). Bu etkinin giderilmesi için nümuneye kabı, boş ve saf sakkaroz ($\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$) ile dolu olduğu halde ışınlanmış ve spektrumları alınmıştır (Şekil-6) ve (Şekil-7). Nümunenin ihtiva ettiği karbon, hidrojen ve oksijen miktarları sakkarozunkine oranlanarak bir katsayı bulunmuştur. Boş kaba ait fotopik alanı, sakkaroz ve nümuneye için tabii fon kabul edilerek net alanlar bulunmuş ve sakkarozuza ait alan

yukarıda belirtilen katsayı ile çarpılmak ve nümuneye ait alandan çıkarılmak suretiyle etki giderilmiştir.

4. Bir diğer girişim de nümune içindeki bakırdan ileri gelmektedir. Fakat buğdaydaki bakır konsantrasyonu çok küçük (~ 5 ppm) (2) olduğundan bu etki ihmal edilmiştir.

Yukarıda açıklanan bütün etkenler gözönüne alınarak 15 çeşit buğday nümunesi üzerinde her iki ölçme tekniği ile yapılan ölçmelerin sonuçları Tablo-1 ve Tablo-2'de verilmiştir. Sonuçlar üzerindeki hata, statistik hatalardan ibarettir. Tablolardan görüldüğü gibi, bulunan değerler ağırlıkça ve yüzde olarak (2.69 ± 0.10) ile (1.53 ± 0.08) arasında değişmektedir. Şüphesiz bu değerler, yalnız buğdayın cinsine göre değil yetiştirildiği toprak ve iklim şartlarına ve tanelerin başaktaki sıralanış durumlarına göre de değişmektedir. Bu bakımdan, buğday türlerine ait azot analizlerinde nümune seçilirken yukarıdaki hususlar gözönünde tutulmalıdır.

A. Ü. Ziraat Fakültesi'nde Kjeldahl metoduna göre analizi yapılan üç buğday nümunesindeki azot miktarı, nötron aktivasyon analizi ile de tayin edilmiştir. Her iki metodun verdiği sonuçların, hata sınırları içerisinde uygunluk gösterdiği Tablo-2'de görülmektedir.

Tablo-1 Buğday nümunelerinde nötron aktivasyon analizi ile bulunan azot yüzdeleri

Buğday Cinsi	Azot Miktarı (%)
Anadolu Beyazı	1.82 ± 0.07
Kızılca	1.89 ± 0.06
Topbaş	1.76 ± 0.05
Sert	1.93 ± 0.06
Makarnalık Sert	1.75 ± 0.05
Tır	1.60 ± 0.05
Sünter	2.05 ± 0.08
Penjoma (Meksika)	1.89 ± 0.06
Yektay (Meksika)	1.96 ± 0.06
Floransa	1.93 ± 0.06
Vanşer (Rus)	1.53 ± 0.08
Bezostaja (Rus)	1.94 ± 0.08

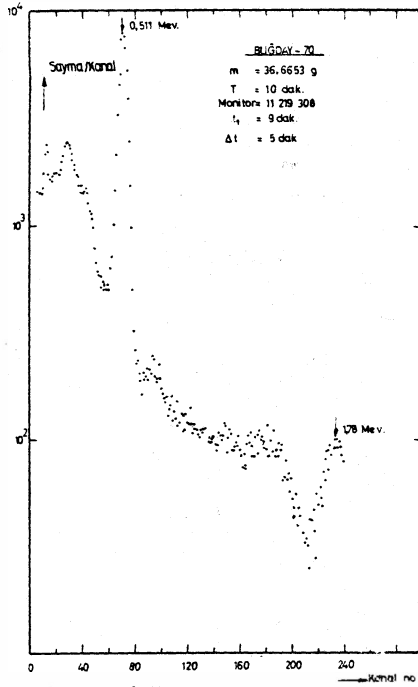
Tablo-2 Bazı buğday nümunelerinde Kjeldahl ve nötron aktivasyon analizine göre tayin edilmiş azot yüzdeleri

Nümune No.	Nötron Aktivasyon Analizi	Kjeldahl	Sapma (%)
29	2.69 ± 0.10	2.688	+ 0.4
70	2.12 ± 0.08	2.037	+ 4.0
72	2.15 ± 0.06	2.107	+ 2.0

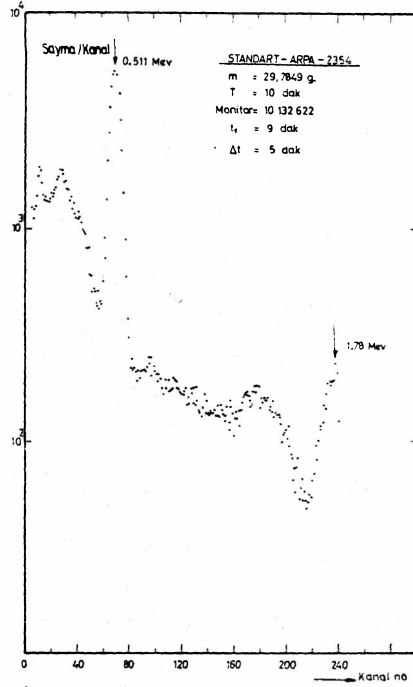
REFERANSLAR

- (1) D. E. Wood, P. L. Jessen, R. E. Jones
52nd Annual Meeting of the American Association of Cereal Chemists,
April 2-6, 1967, Los Angeles, Calif., U.S.A.
- (2) L. Kosta, V. Ravník
New Approaches to Breeding for Improved Plant Protein, Proceeding of a
Panel, Röstanga, Sweden, June 17-21, 1968, (FAO, IAEA), Vienna, 161-168
(1969)
- (3) D. Brune, A. Arroyo
Anal. Chim. Acta, 56, No.3, 473 (1971)
- (4) C.C. Tsen, E.E. Martin
American Association of Cereal Chemists, Vol.48, 721(1971)
- (5) J.T. Gilmore, D.E. Hull
Modern Trends in Activation Analysis, Texas A and M University, College
Station, 1961, pp. 32-35
- (6) M. Geisler, E. Maul, H. Panse
Radiochem. Radioanal. Lett., 8, No.6, 349-355 (1971).
- (7) D.F. Covell
Anal. Chem., 31, 1785 (1959)
- (8) T. Nakajima
Nucl. Instr. Meth., 109, 125-135 (1973).

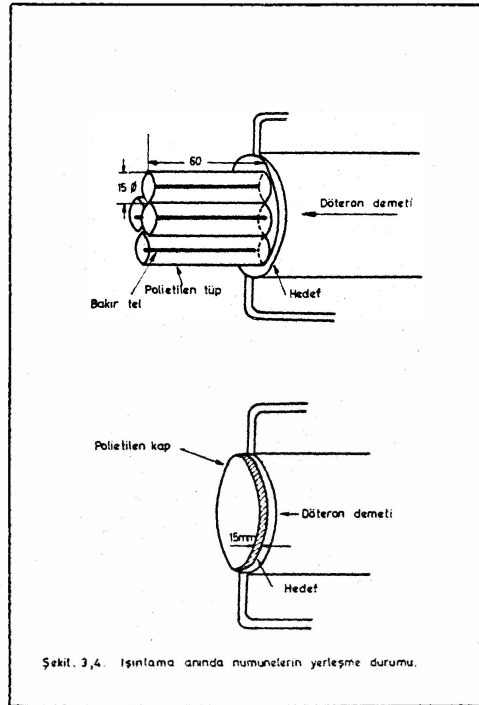
HIZLI NÖTRON AKTİVASYON ANALİZİ İLE BUĞDAYLARDA AZOT TAYİNİ



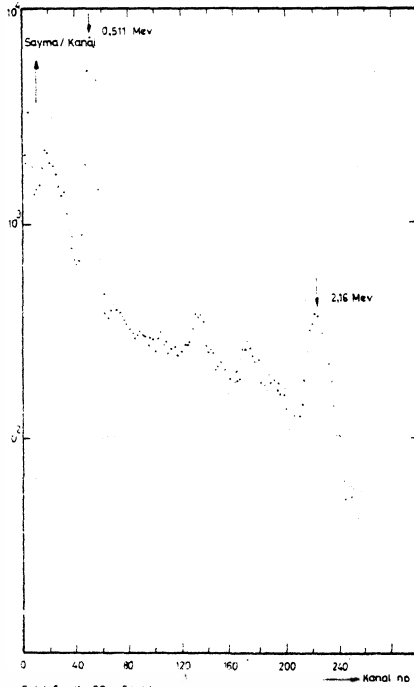
Şekil 1. Numune Spektrumu.



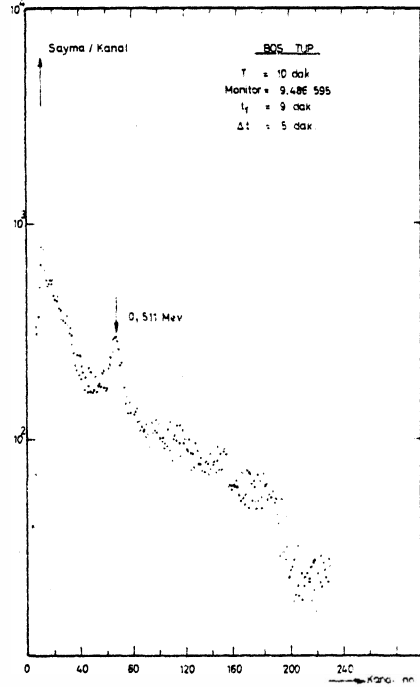
Şekil 2. Standart Spektrumu.



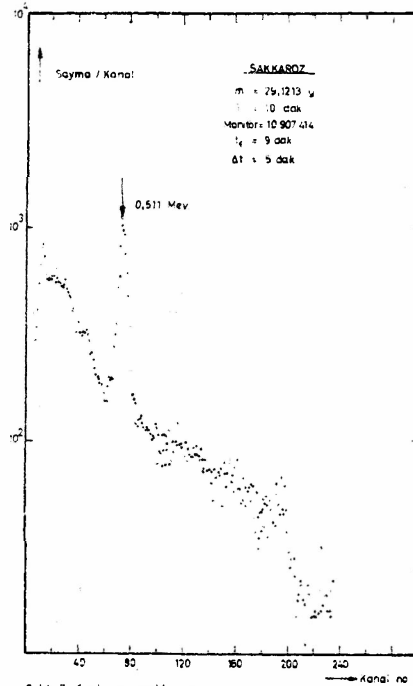
Şekil 3,4. Işınlama anında numunelerin yerleşme durumu.



Şekil 5. K_2CO_3 Spektrumu



Şekil 6. Bas numune kabı Spektrumu



Şekil 7. Sakkaroz spektrumu