

ĐẠI HỌC QUỐC GIA HCM
TRƯỜNG ĐH KHOA HỌC TỰ NHIÊN

PHƯƠNG PHÁP PHÂN TÍCH KÍCH HOẠT NEUTRON

HUỲNH TRÚC PHƯƠNG

Email: htphuong.oarai@gmail.com

NỘI DUNG

- CÁC TÍNH CHẤT CƠ BẢN
- PHƯƠNG TRÌNH CƠ BẢN TRONG PTKH
- CÁC PHƯƠNG PHÁP CHUẨN HÓA TRONG PTKH
- CÁC PHƯƠNG PHÁP THỰC NGHIỆM XÁC ĐỊNH THÔNG SỐ PHỔ NEUTRON
- CÁC PHẢN ỨNG NHIỀU

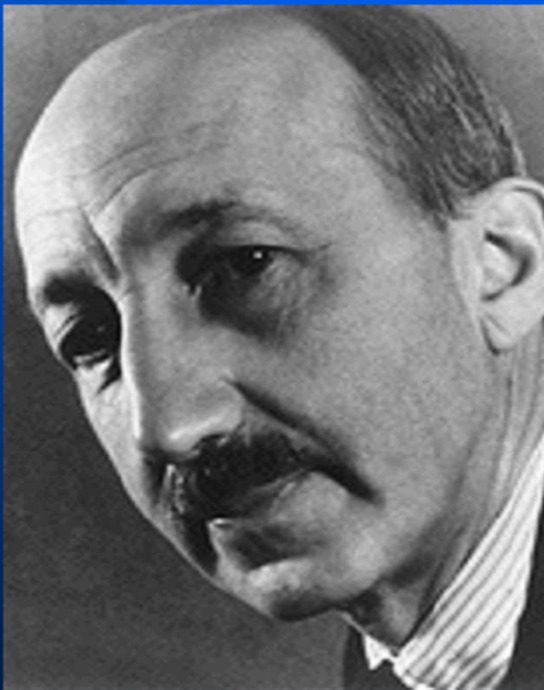
Chương 1

CÁC TÍNH CHẤT CƠ BẢN VỀ PTKH NEUTRON

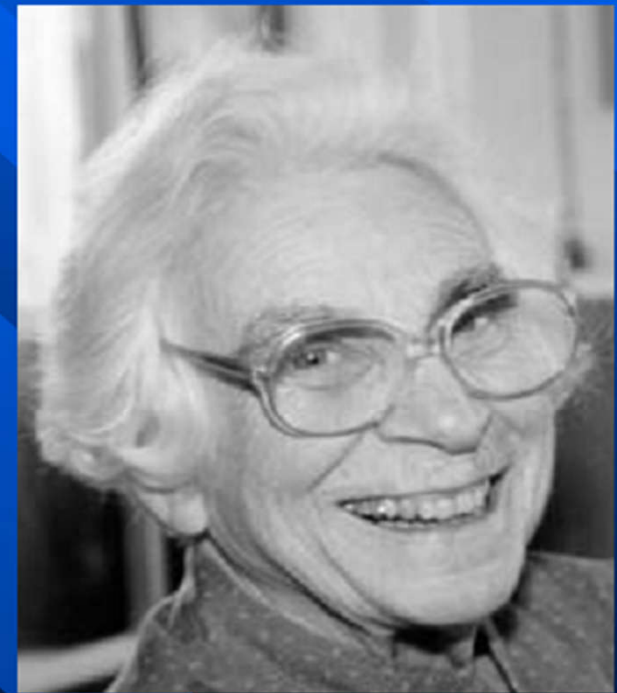
(NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS: **NAA**)

1.1. KHÁM PHÁ RA NAA

- ❑ PTKH neutron được khám phá ra vào năm 1936 khi Hevesy và Levi đã phát hiện ra rằng các mẫu chứa nguyên tố đất hiếm trở nên phóng xạ cực mạnh sau khi được chiếu bởi nguồn neutron



George de Hevesy: 1885 - 1966.
The Nobel Prize in Chemistry 1943.

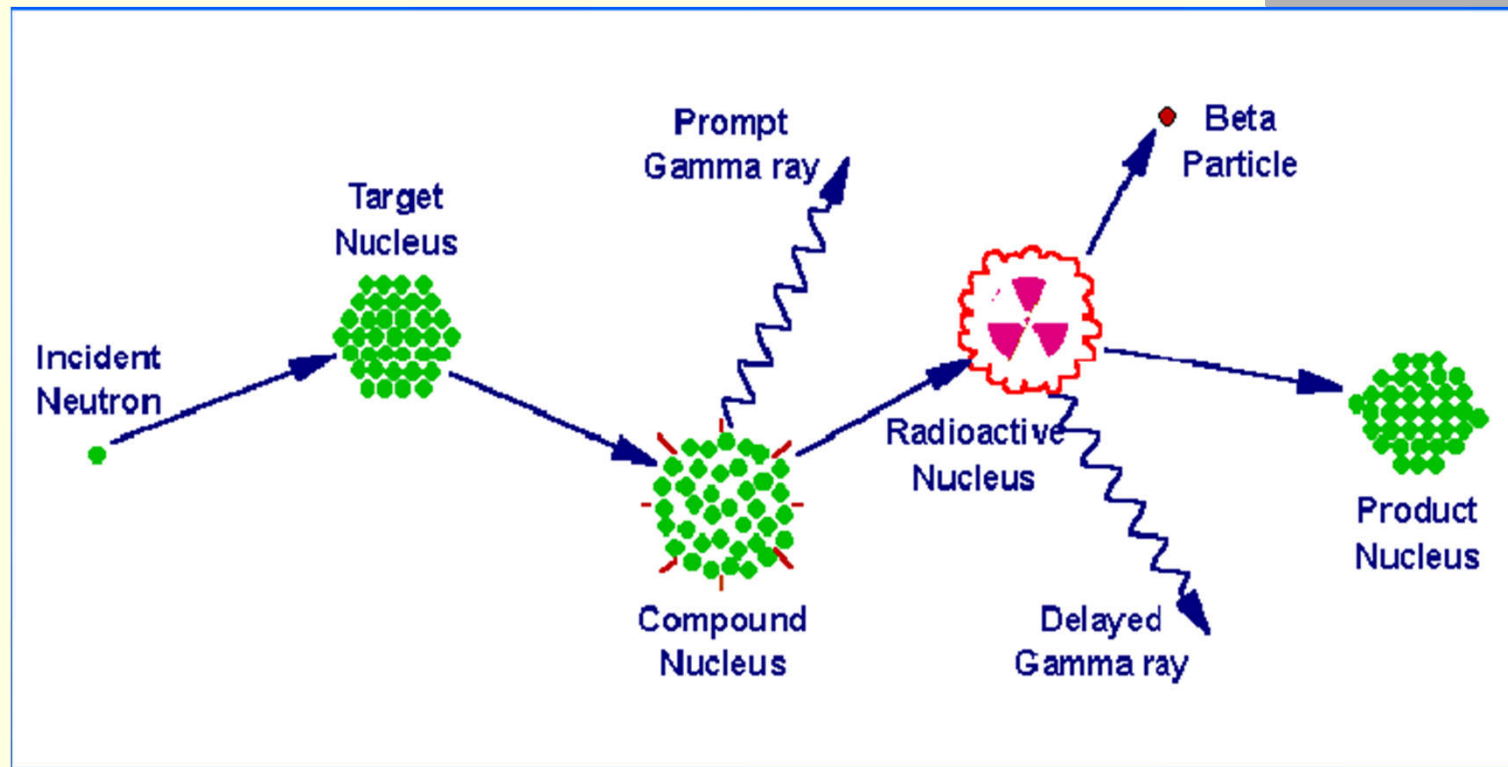


Hilde Levi: 1909 - 2003

1.2. CÁC ĐẶC ĐIỂM CỦA NAA

- ❑ NAA là một kỹ thuật phân tích có độ nhạy cao cho việc phân tích cả định tính và định lượng đa nguyên tố trong mẫu thuộc các lĩnh vực khoa học và kỹ thuật.
- ❑ NAA đạt đến độ nhạy mà phương pháp khác không thể đạt được, tức là độ nhạy có thể đạt được pg/g.
- ❑ Do độ chính xác và độ tin cậy cực cao của nó, mà NAA được xem như là “Phương pháp chuẩn hóa” cho các phương pháp khác.
- ❑ Phân tích không hủy thể

1.3. CÁC KỸ THUẬT NAA

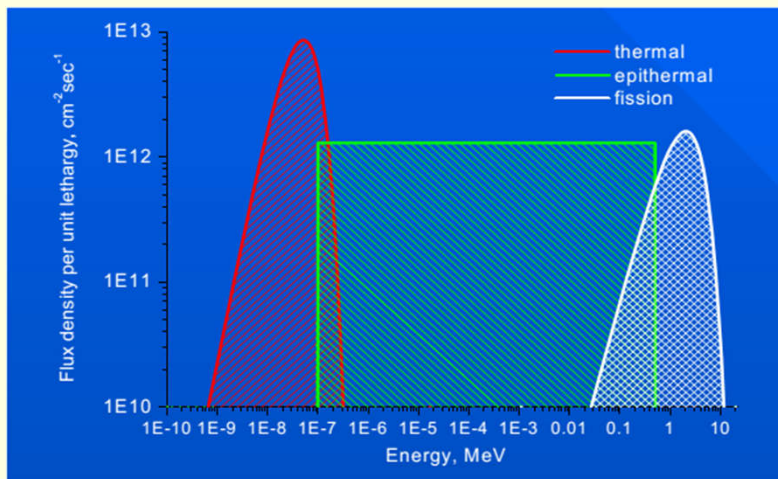


Tùy theo sản phẩm đo, NAA chia thành 02 kỹ thuật:

- PTKH neutron với tia gamma tức thời (PGNAA)
- PTKH neutron với tia gamma trễ (DGNAA)

1.3. CÁC KỸ THUẬT NAA

Neutron từ lò phản ứng



Neutron nhanh: $E_n > 0,5 \text{ MeV}$

Phản ứng: (n, p) , (n, α) , $(n, 2n), \dots$

FNAA

Neutron nhiệt: $E_n \leq 0,5 \text{ eV}$

Phản ứng (n, γ)

TNAA

Neutron trên nhiệt: $0,5 \text{ eV} < E_n \leq 0,5 \text{ MeV}$

Mẫu được bọc bằng một tấm
Cd dày 1mm

(n, γ)

ENAA

1.3. CÁC KỸ THUẬT NAA

Kỹ thuật phân tích kích hoạt dụng cụ (INAA)

- ❑ Áp dụng hoàn toàn bằng dụng cụ và đây là phương pháp thuận lợi nhất của NAA so với các phương pháp khác.

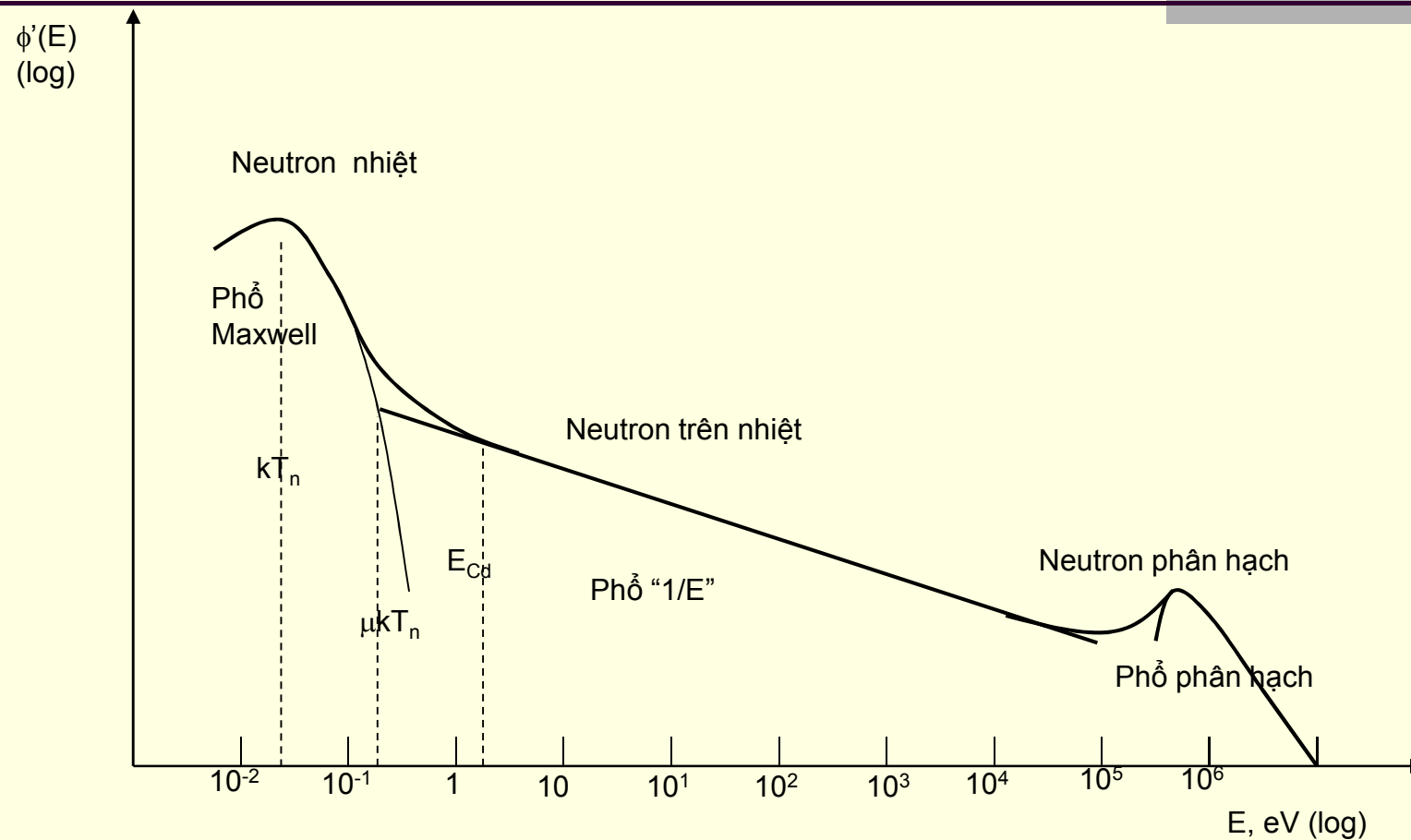
Kỹ thuật phân tích kích hoạt có xử lý hóa học (RNAA)

- ❑ Nếu mẫu sau khi chiếu xạ có tách hóa nhằm loại bỏ nhiễu và tăng hàm lượng đồng vị phóng xạ quan tâm được gọi là kỹ thuật RNAA.

Ion exchange is a commonly used technique for post-irradiation sample treatment in RNAA



1.4. PHỔ NEUTRON TRONG Lò PHẢN ỨNG



Hình 1: Sơ đồ phổ thông lượng neutron của một lò phản ứng phân hạch hạt nhân

1.4. PHỔ NEUTRON TRONG Lò PHẢN ỨNG

Neutron nhiệt: $E_n < 0,5 \text{ eV}$

Thông lượng:

$$\phi'_{th}(E) = \phi_{th} \frac{E}{(kT_n)^2} e^{-E/(kT_n)}$$

Neutron trên nhiệt: $0,5 \text{ eV} < E_n < 0,5 \text{ MeV}$

Thông lượng:

$$\phi'_e(E) = \frac{\phi_e}{E}$$

hay

$$\phi'_e(E) = \frac{\phi_e}{E^{1+\alpha}} (1\text{eV})^\alpha$$

với α là hằng số đặc trưng cho sự lệch phổ khỏi phổ lí tưởng và nó độc lập với năng lượng, hay còn gọi là *độ lệch phổ neutron trên nhiệt*, $-1 \leq \alpha \leq 1$

1.4. PHỔ NEUTRON TRONG Lò PHẢN ỨNG

Neutron phân hạch: $E_n > 0,5 \text{ MeV}$

- Phổ phân hạch của Watt

$$\phi'_f(E) = 0,484 \phi_f e^{-E} \sinh \sqrt{2E}$$

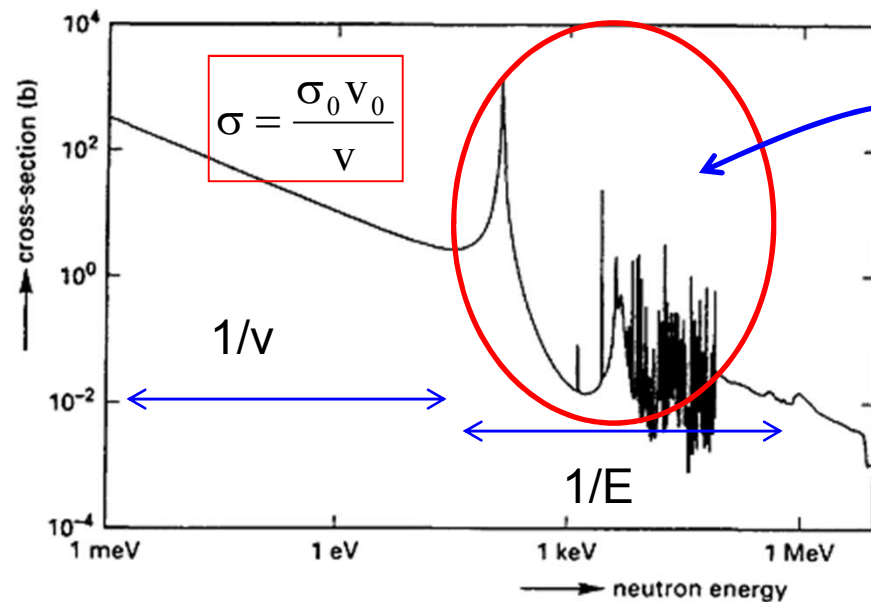
- Phổ phân hạch của Cranberg

$$\phi'_f(E) = 0,453 \phi_f e^{-E/0,965} \sinh \sqrt{2,29E}$$

- Phổ phân hạch của Grundl và Usner

$$\phi'_f(E) = 0,77 \phi_f \sqrt{E} e^{-0,776E}$$

1.5. TIẾT DIỆN NEUTRON



Tuân theo công thức Breit-Wigner

$$I_0 = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E} = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma_{1/v}(E) \frac{dE}{E} + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma_r(E) \frac{dE}{E}$$

Tiết diện tích phân cộng hưởng

Luật $1/v$

Breit-Wigner

$$I_0 = I_{1/v} + I'$$

$$I_{1/v} = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma_{1/v}(E) \frac{dE}{E}$$

$$I' = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \sigma_r(E) \frac{dE}{E}$$

Cả neutron nhiệt và trên nhiệt đều cho ra phản ứng (n, γ)

1.6. TÍCH PHÂN CỘNG HƯỞNG VÀ NĂNG LƯỢNG CỘNG HƯỞNG HIỆU DỤNG

Năm 1969, Revas đưa ra khái niệm về năng lượng cộng hưởng hiệu dụng: \bar{E}_r

Năm 1979, Moens tính tiết diện tích phân cộng hưởng:

$$I_0'(\alpha) = I_0' \cdot (1\text{eV})^\alpha / \bar{E}_r^\alpha$$

Với

$$I_0' = I_0 - \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\sigma_0 v_0}{v} \frac{dE}{E} = I_0 - 2\sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E_{Cd}}}$$

$$E_0 = 0,0253 \text{ eV}$$

$$E_{Cd} = 0,55 \text{ eV}$$

và

$$\begin{aligned} I_0'(\alpha) &= I_0(\alpha) - \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\sigma_0 v_0}{v} (1\text{eV})^\alpha \frac{dE}{E^{1+\alpha}} \\ &= I_0(\alpha) - 2\sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E_{Cd}}} \frac{(1\text{eV})^\alpha}{(1+2\alpha)E_{Cd}^\alpha} \end{aligned}$$

Năng lượng cộng hưởng hiệu dụng:

$$\ln(\bar{E}_r) \approx \frac{\sum_i w_i \ln(E_{r,i})}{\sum_i w_i}$$

Năm 1986, De Corte cuối cùng tính được:

$$I_0(\alpha) = \frac{I_0 - 0,429\sigma_0}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0,429\sigma_0}{(2\alpha + 1) \times 0,55^\alpha}$$

Được lập thành bảng

$$w = (g \cdot \Gamma_\gamma \cdot \Gamma_n / \Gamma) / E_r^2$$

g = trọng số thống kê

1.7. TỐC ĐỘ PHẢN ỨNG

1. Định nghĩa:

Tốc độ phản ứng (n, γ) đối với mỗi hạt nhân của đồng vị quan tâm chịu sự chiếu xạ bởi dòng neutron có thông lượng $\phi(E)$ là:

$$R = \int_0^{\infty} \phi(E) \sigma(E) dE$$

Hay biểu diễn theo tốc độ v của neutron

$$R = \int_0^{\infty} \phi(v) \sigma(v) dv$$

1.7. TỐC ĐỘ PHẢN ỨNG

2. Tốc độ phản ứng với neutron trên nhiệt:

Khi hạt nhân được bọc bằng một tấm Cd dày 1mm, thì các neutron nhiệt bị hấp thụ hoàn toàn và phản ứng chỉ xảy ra đối với neutron trên nhiệt.

Hệ số truyền qua của neutron trên nhiệt đối với tấm Cd dày 1mm là

$$T_{Cd}(E) = \text{Exp}[-\sigma_{\text{tot}}(E)N_{Cd}]$$

Tiết diện hấp thụ
toàn phần

Số nguyên tử
Cd trên cm^3

Tốc độ phản ứng:

$$R_e = \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi(E)\sigma(E)dE$$

$E_{Cd} = 0,55\text{eV}$, với lớp Cd có dạng hộp trụ, dày 1mm và chiều cao/đường kính = 2.

1.7. TỐC ĐỘ PHẢN ỨNG

3. Theo qui ước Hogdahl:

$$R = \int_0^{\infty} \phi(E) \sigma(E) dE = \int_0^{v_{Cd}} \phi(v) \sigma(v) dv + \int_{E_{Cd}}^{\infty} \phi(E) \sigma(E) dE$$

hay

$$\begin{aligned} R &= \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{Cd}} n(v) dv + \phi_e \int_{E_{Cd}}^{\infty} \frac{\sigma(E)}{E^{1+\alpha}} dE \\ &= \phi_{th} \sigma_0 + \phi_e I_0(\alpha) \end{aligned}$$

Tốc độ phản ứng
neutron nhiệt, R_{th}

Tốc độ phản ứng
neutron trên nhiệt, R_e

1.7. TỐC ĐỘ PHẢN ỨNG

3. Theo qui ước Hogdahl:

Bằng cách đặt:

$$f = \frac{\phi_{th}}{\phi_e}$$

Tỉ số thông lượng neutron nhiệt/trên nhiệt

$$Q_0 = \frac{I_0}{\sigma_0} \rightarrow Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0}$$

Tỉ số tiết diện tích phân cộng hưởng/tiết diện neutron ở vận tốc 2200 m/s

Khi đó, tốc độ phản ứng được viết lại:

$$R = \sigma_0 \phi_e [f + Q_0(\alpha)]$$

Trong thực tế, thì tốc độ phản ứng được tính:

$$R = \sigma_0 \phi_e [G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)]$$

- G_{th} : hệ số tự che chắn neutron nhiệt.
- G_e : hệ số tự che chắn neutron trên nhiệt

1.7. TỐC ĐỘ PHẢN ỨNG

3. Theo qui ước Hogdahl:

Tốc độ phản ứng đối với neutron trên nhiệt (bọc bởi lớp Cd)

$$(R_e)_{Cd} = G_e \cdot F_{Cd} \cdot \phi_e \cdot I_0(\alpha)$$

Tốc độ phản ứng đối với neutron nhiệt (dưới ngưỡng Cd)

$$R_{th} = R - R_e = R - (R_e)_{Cd} / F_{Cd}$$

với F_{Cd} là hệ số truyền qua lớp Cd đối với neutron trên nhiệt

Thường thì $F_{Cd} = 1$, trừ Au: $F_{Cd,Au} = 0,991$

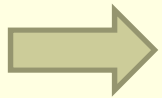
1.8. TỈ SỐ CADMI

Định nghĩa:

$$R_{Cd} = \frac{R}{(R_e)_{Cd}} = \frac{G_{th}\phi_{th}\sigma_0 + G_e\phi_e I_0(\alpha)}{G_e F_{Cd}\phi_e I_0(\alpha)}$$

hay

$$R_{Cd} F_{Cd} = \frac{G_{th} \cdot f}{G_e Q_0(\alpha)} + 1$$



Tỉ số Cd của Au:

$$R_{Cd,Au} F_{Cd,Au} = \frac{G_{th,Au} \cdot f}{G_{e,Au} Q_{0,Au}(\alpha)} + 1$$

Thực nghiệm đo tỉ số Cd như thế nào?

Tính tỉ số Cd của hạt nhân X khi đo được tỉ số Cd của Au?

BÀI TẬP ÁP DỤNG

Tính tốc độ phản ứng của Au^{197} khi chiếu mẫu tại vị trí trong lò phản ứng có $\phi_{\text{th}} = 2 \cdot 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, $\phi_{\text{e}} = 5 \cdot 10^{10} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ và $\alpha = -0,025$ trong các trường hợp sau:

- Mẫu có dạng dây hợp kim Al-0,1%Au, khối lượng $w = 50\text{mg}$. Bỏ qua các hệ số tự che chắn neutron nhiệt và trên nhiệt.
- Mẫu có dạng tấm, dày $t = 1\text{mm}$, khối lượng $w = 50\text{mg}$, độ tinh khiết 99,9%. Hệ số tự che chắn neutron nhiệt phụ thuộc bề dày như sau: $G_{\text{th}} = 1 - 0,75 \cdot \ln(22,9 \cdot t)$, t đơn vị cm. Hệ số tự che chắn neutron trên nhiệt phụ thuộc bề dày như sau: $G_{\text{e}} = 1 - 0,55 \cdot \ln(30,3 \cdot t)$, t đơn vị cm.
- Tính tỉ số Cd của Au. Suy ra tỉ số Cd của Cu.

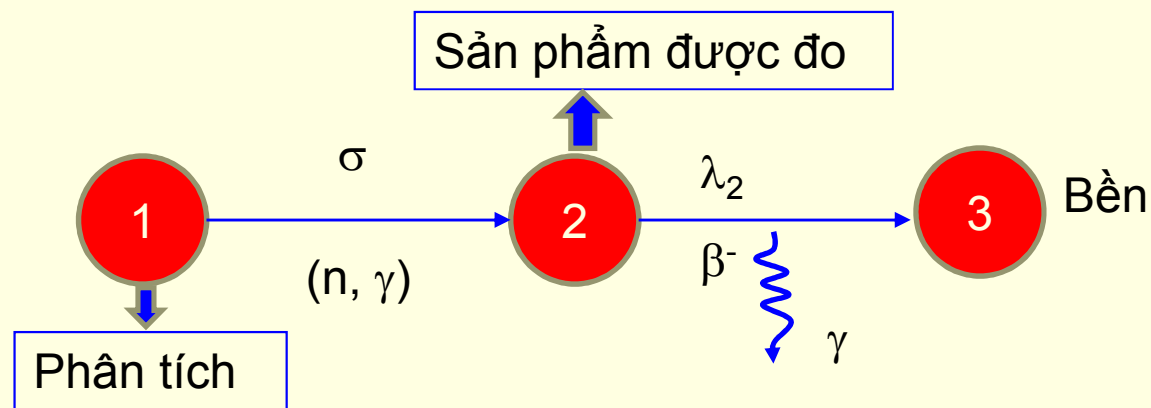
Biết: $\sigma_{0,\text{Au}} = 98,8 \text{ barn}$ và $Q_{0,\text{Au}} = 15,7$

Chương 2

PHƯƠNG TRÌNH CƠ BẢN TRONG PTKH NEUTRON

2.1. TRƯỜNG HỢP ĐƠN GIẢN

Xét sơ đồ kích hoạt:



Số hạt nhân (2) được hình thành trong suốt thời gian chiếu là

$$\frac{dN_2}{dt} = R_1 \cdot N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (2.1)$$

Số hạt nhân (2) sau thời gian chiếu là

$$\frac{dN_2}{dt} = -\lambda_2 N_2 \quad (2.2)$$

2.1. TRƯỜNG HỢP ĐƠN GIẢN

Khi kết thúc chiếu ở thời gian t_i và sau thời gian phân rã t_d , số hạt nhân (2) còn lại trong mẫu là

$$N_2(t_d) = \frac{R_1 N_1}{\lambda_2} \left[1 - e^{-\lambda_2 \cdot t_i} \right] e^{-\lambda_2 \cdot t_d} \quad (2.3)$$

Số hạt nhân (2) bị phân rã trong khoảng thời gian $[t_d, t_d + t_m]$ và được đo trong khoảng thời gian này:

$$\begin{aligned} \Delta N_2 &= N_2(t_d) - N_2(t_d + t_m) \\ &= \frac{R_1 N_1}{\lambda_2} \left[1 - e^{-\lambda_2 t_i} \right] e^{-\lambda_2 t_d} \left[1 - e^{-\lambda_2 t_m} \right] \end{aligned} \quad (2.4)$$

Tốc độ đếm ghi nhận được bởi detector tại đỉnh năng lượng gamma có xác suất phát gamma γ và hiệu suất ghi ε_p :

$$\frac{N_p}{t_m} = \gamma \varepsilon_p \frac{\Delta N_2}{t_m} \quad (2.5)$$

2.1. TRƯỜNG HỢP ĐƠN GIẢN

hay

$$\frac{N_p}{t_m} = \frac{R_1 N_1}{\lambda_2 t_m} \gamma \varepsilon_p \left[1 - e^{-\lambda_2 t_i} \right] e^{-\lambda_2 t_d} \left[1 - e^{-\lambda_2 t_m} \right] \quad (2.6)$$

Đặt:

$$N_1 = \frac{W \cdot \theta \cdot N_A}{M}$$

$$R_1 = \sigma_0 \phi_e [G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)]$$

$$S = \left[1 - e^{-\lambda_2 t_i} \right]$$

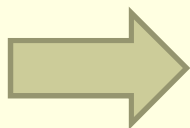
Hệ số hiệu chỉnh thời gian chiếu

$$D = \left[e^{-\lambda_2 t_d} \right]$$

Hệ số hiệu chỉnh thời gian rã

$$C = \left[1 - e^{-\lambda_2 t_i} \right] / \lambda_2 t_m$$

Hệ số hiệu chỉnh thời gian đo



$$\frac{N_p}{t_m} = \frac{W \cdot \theta \cdot N_A}{M} \gamma \varepsilon_p \sigma_0 \phi_e [G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)] S \cdot D \cdot C \quad (2.7)$$

2.1. TRƯỜNG HỢP ĐƠN GIẢN

Khối lượng của nguyên tố quan tâm là

$$W(g) = \left(\frac{N_p / t_m}{S.D.C} \right) \frac{M}{N_A \cdot \theta \cdot \gamma \cdot \sigma_0} \frac{1}{\phi_e [G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)]} \frac{1}{\varepsilon_p} \quad (2.8)$$

Hàm lượng của nguyên tố trong mẫu:

$$\rho(g/g) = \left(\frac{N_p / t_m}{w.S.D.C} \right) \frac{M}{N_A \cdot \theta \cdot \gamma \cdot \sigma_0} \frac{1}{\phi_e [G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)]} \frac{1}{\varepsilon_p} \quad (2.9)$$

w: Khối lượng của mẫu (g).



Phương trình cơ bản của NAA

2.2. TRƯỜNG HỢP CHÁY MẪU

Khi chiếu mẫu với thông lượng neutron lớn hoặc thời gian chiếu dài thì xảy ra hiệu ứng cháy mẫu.

Trong trường hợp này, người ta đưa ra một “hằng số biến mất”

$$\Lambda = \lambda + R$$

Lời giải cũng tương tự như trường hợp đơn giản, ta tìm được:

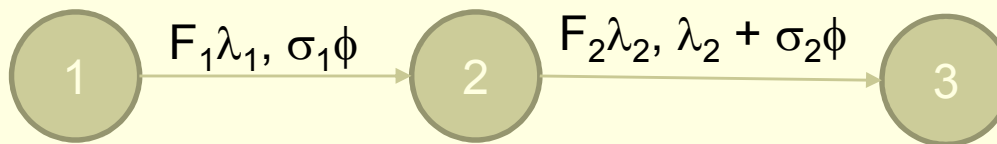
$$\begin{aligned} \Delta N_2 &= N_2(t_d) - N_2(t_d + t_m) \\ &= \frac{\Lambda_1 N_1}{\Lambda_2 - \Lambda_1} \left[e^{-\Lambda_1 t_i} - e^{-\Lambda_2 t_i} \right] e^{-\lambda_2 t_d} \left[1 - e^{-\lambda_2 t_m} \right] \end{aligned} \quad (2.10)$$

Tốc độ đếm ghi nhận được bởi detector tại đỉnh năng lượng gamma có xác suất phát gamma γ và hiệu suất ghi ε_p :

$$(2.11) \quad \frac{N_p}{t_m} = \gamma \varepsilon_p \frac{\Delta N_2}{t_m} \quad \longrightarrow \quad \text{Hàm lượng } \rho(\text{g/g})$$

2.2. TRƯỜNG HỢP CHÁY MẪU

Thật vậy, ta xét sơ đồ sau:



$$\begin{aligned}\frac{dN_1}{dt} &= -\sigma_1\phi.N_1 - \lambda_1 N_1 = -(\sigma_1\phi + \lambda_1)N_1 \\ &= -\Lambda_1 N_1\end{aligned}$$

$$\Lambda_1 = \lambda_1 + \sigma_1\phi = \lambda_1 + R_1$$

$$\Lambda_1^* = \lambda_1^* + \sigma_1\phi = \lambda_1^* + R_1$$

$$\lambda_1^* = F_1\lambda_1$$

$$\begin{aligned}\frac{dN_2}{dt} &= F_1\lambda_1 N_1 + \sigma_1\phi.N_1 - \lambda_2 N_2 - \sigma_2\phi.N_2 \\ &= (\sigma_1\phi + F_1\lambda_1)N_1 - (\sigma_2\phi + \lambda_2)N_2 \\ &= \Lambda_1^* N_1 - \Lambda_2 N_2\end{aligned}$$

$$\Lambda_2 = \lambda_2 + \sigma_2\phi = \lambda_2 + R_2$$

2.2. TRƯỜNG HỢP CHÁY MẪU

Ta giải phương trình (1):

$$\frac{dN_1}{dt} = -\Lambda_1 N_1 \quad (1) \quad \Rightarrow \quad N_1(t_i) = N_{01} \cdot e^{-\Lambda_1 \cdot t_i} \quad (2.12)$$

Dẫn đến:

$$\frac{dN_2}{dt} = \Lambda_1^* N_{01} \cdot e^{-\Lambda_1 \cdot t_i} - \Lambda_2 N_2$$

$$\begin{aligned} \frac{dN_2}{dt} \left[e^{+\Lambda_2 \cdot t_i} \right] + \Lambda_2 N_2 \left[e^{+\Lambda_2 \cdot t_i} \right] &= \Lambda_1^* N_{01} \cdot e^{-\Lambda_1 \cdot t_i} \left[e^{+\Lambda_2 \cdot t_i} \right] \\ \frac{d}{dt} \left[N_2 \cdot e^{+\Lambda_2 \cdot t_i} \right] &= \Lambda_1^* N_{01} \cdot e^{(\Lambda_2 - \Lambda_1) \cdot t_i} \end{aligned}$$

Giải phương trình vi phân, ta thu được

$$N_2(t_i) = \frac{\Lambda_1^* N_{01}}{\Lambda_2 - \Lambda_1} \left[e^{-\Lambda_1 \cdot t_i} - e^{-\Lambda_2 \cdot t_i} \right]$$

(2.13)

$$N_2(t_d) = \frac{\Lambda_1^* N_{01}}{\Lambda_2 - \Lambda_1} \left[e^{-\Lambda_1 \cdot t_i} - e^{-\Lambda_2 \cdot t_i} \right] e^{-\Lambda_2 \cdot t_d}$$

(2.14)

BÀI TẬP ÁP DỤNG

Mẫu có dạng dây nhỏ bằng hợp kim Al-0,1%Au, khối lượng dây $w=50\text{mg}$ được chiếu trong thời gian 15 phút tại vị trí trong lò phản ứng có tỉ số $R_{\text{Cd,Au}}=3,44$, $\phi_e=5.10^{10}\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ và $\alpha=-0,025$. Sau thời gian chờ 2 giờ, mẫu được đo trên hệ phổ kế gamma với detector HPGe trong thời gian 30 phút. **Hãy ước tính tốc độ đếm mà hệ phổ kế có thể ghi nhận được trong quá trình phân rã phóng xạ của Au^{198} .**

Biết hiệu suất của detector tại vị trí đo là: $\log(\epsilon_p)=-5,29+7,28*\log(E_\gamma)-2,28*(\log(E_\gamma))^2$

Chương 3

CÁC PHƯƠNG PHÁP CHUẨN HÓA TRONG PTKH NEUTRON

3.1. Phương trình cơ bản

Theo Hogdahl, phương trình cơ bản cho việc xác định hàm lượng một nguyên tố dùng phản ứng (n, γ) và phổ kế γ là

$$N_p / t_m = \frac{W \cdot \theta \cdot N_A}{M} \cdot \varepsilon_p \cdot \gamma \cdot [G_{th} \phi_{th} \sigma_0 + G_e \phi_e I_0(\alpha)] S.D.C \quad (3.1)$$

Khối lượng (g) của nguyên tố thu được

$$W = \frac{N_p / t_m}{S.D.C} \cdot \frac{M}{\theta \cdot N_A \cdot \gamma} \cdot \frac{1}{[G_{th} \phi_{th} \sigma_0 + G_e \phi_e I_0(\alpha)]} \cdot \frac{1}{\varepsilon_p} \quad (3.2)$$

Hay

$$\rho(\%) = \frac{N_p / t_m}{w \cdot S.D.C} \cdot \frac{M}{\theta \cdot N_A \cdot \gamma \cdot \sigma_0} \cdot \frac{1}{\phi_e} \cdot \frac{1}{[G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)]} \cdot \frac{1}{\varepsilon_p} \quad (3.3)$$

3.2. Phương pháp chuẩn hóa tuyệt đối

Hàm lượng nguyên tố ρ ($\mu\text{g/g}$) có thể thu được bằng việc chiếu kèm một monitor chuẩn, kí hiệu (*). Ta có:

$$\rho(\mu\text{g/g}) = \frac{\frac{N_p}{t_m}}{w.S.D.C} \cdot \frac{M.\theta^*.\sigma_0^*.\gamma^*}{A_{sp}^*} \cdot \frac{\left[G_{th}^* f + G_e^* Q_0^*(\alpha) \right]}{M^* \theta.\sigma_0.\gamma} \cdot \frac{\left[G_{th} f + G_e Q_0(\alpha) \right]}{\varepsilon_p} \cdot \frac{\varepsilon_p^*}{\varepsilon_p} \cdot 10^6 \quad (3.4)$$

với w – khối lượng mẫu (g)

$$A_{sp}^* = \left(\frac{N_p / t_m}{W.S.D.C} \right)^* \quad (\text{phân rã/giây/gam});$$

$$f = \frac{\phi_{th}}{\phi_e}; \quad Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0}$$

$$Q_0(\alpha) = \left[\frac{Q_0 - 0.429}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0.429}{(2\alpha + 1)(0.55)^\alpha} \right]$$

3.3. Phương pháp chuẩn hóa tương đối

Phương pháp này bao gồm việc chiếu mẫu kèm theo một mẫu chuẩn với hàm lượng của nguyên tố biết trước. Khi đó:

$$\rho(\mu\text{g/g}) = \frac{\frac{N_p / t_m}{w.S.D.C}}{\left(\frac{N_p / t_m}{W.S.D.C} \right)_{St}} \cdot 10^6 \quad (3.5)$$

Với điều kiện là mẫu và chuẩn được đo trong cùng điều kiện thực nghiệm và không có việc hiệu chỉnh tự che chắn neutron và sự suy giảm tia gamma.

Vấn đề khó khăn của phương pháp này là phân tích mẫu đa nguyên tố, bởi vì việc tạo ra mẫu chuẩn đồng dạng mẫu phân tích là rất khó khăn.

3.4. Phương pháp chuẩn hóa đơn nguyên tố

Vào 1965, Girardi và cộng sự đã đưa ra một phương pháp mới gọi là phương pháp so sánh đơn. Theo phương pháp này, mẫu và một chất so sánh bất kỳ (đã biết hàm lượng) được chiếu đồng thời, khi đó nồng độ nguyên tố tính bởi phương trình:

$$\rho(\mu\text{g/g}) = \frac{N_p / t_m}{A_{spSt}^*} \cdot \frac{1}{k} 10^6 \quad (3.6)$$

Với **k** là hệ số xác định bằng thực nghiệm, và

$$k = \frac{M^* \theta \sigma_0 \gamma}{M \theta^* \sigma_0^* \gamma^*} \cdot \frac{G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)}{G_{th}^* f + G_e^* Q_0^*(\alpha)} \cdot \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_p^*} \quad (3.7)$$

Với phương pháp này, việc phân tích đa nguyên tố trở nên dễ dàng. Tuy nhiên, vấn đề là ta phải xác định chính xác hệ số k. **Hệ số k phụ thuộc vào dạng phổ neutron, hiệu suất ghi của detector,...** Do đó sẽ hạn chế về tính linh hoạt trong phương pháp này.

3.5. Phương pháp chuẩn hóa k_0

Hệ số k_0 được định nghĩa như sau:

$$k_0 = \frac{M^* \theta \sigma_0 \gamma}{M \theta^* \sigma_0^* \gamma^*} \quad (3.8)$$

VẬY

$$\rho(\mu\text{g/g}) = \frac{N_p / t_m}{w.S.D.C.} \cdot \frac{1}{k_0} \cdot \frac{[G_{th}^* f + G_e^* Q_0^*(\alpha)]}{[G_{th} f + G_e Q_0(\alpha)]} \cdot \frac{\varepsilon_p^*}{\varepsilon_p} \cdot 10^6 \quad (3.9)$$

Measurement
parameters

Nuclear
data

Neutron
spectrum
parameters

Detector
efficiency

3.4. Phương pháp chuẩn hóa k_0

Hệ số k_0 được De Corte (1989) xác định bằng thực nghiệm cho tất cả các đồng vị với độ chính xác cao ($\sim 1\%$). Chất so sánh được dùng là $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$

$$k_{0,\text{Au}}(a) = \frac{M(\text{Au})\theta(a)\sigma_0(a)\gamma(a)}{M(a)\theta(\text{Au})\sigma_0(\text{Au})\gamma(\text{Au})} \quad (3.10)$$

Như vậy, để xây dựng phương pháp chuẩn hóa k_0 cần:

1. Xác định các thông số phổ neutron tại vị trí chiếu xạ
2. Xác định đường cong hiệu suất của detector tại vị trí đo
3. Xác định hằng số k_0 cho các đồng vị (không cần vì đã có database)
4. Hiệu chỉnh diện tích đỉnh phổ gamma

BÀI TẬP ÁP DỤNG

Để phân tích hàm lượng Cd trong mẫu gạo bằng kỹ thuật KH neutron, ta đem 100mg (đã hóa bột và cho vào túi chuyên dụng) kèm 100mg mẫu gạo chuẩn SRM-1527 (hàm lượng Cd là 15ppm) chiếu trong lò phản ứng trong thời gian 30 phút. Sau thời gian chờ 1 giờ, mẫu được đo trên hệ phổ kế gamma HPGe trong thời gian 2 giờ. Ngay sau khi đo mẫu, chuẩn được đo trong thời gian 2 giờ. Sau thời gian đo mẫu và chuẩn, diện tích đỉnh 527,9keV của Cd^{115} thu được lần lượt là 12500 số đếm và 15230 số đếm.

Hãy xác định hàm lượng Cd trong mẫu gạo trên.

BÀI TẬP ÁP DỤNG

Để phân tích hàm lượng Cd trong mẫu gạo bằng kỹ thuật KH neutron, ta đem 100mg (đã hóa bột và cho vào túi chuyên dụng) chiếu trong lò phản ứng trong thời gian 30 phút. Sau thời gian chờ 1 giờ, mẫu được đo trên hệ phổ kế gamma HPGe trong thời gian 2 giờ. Sau thời gian đo mẫu, diện tích đỉnh 527,9keV của Cd^{115} thu được lần lượt là 12500 số đếm.

Hãy xác định hàm lượng Cd trong mẫu gạo trên.

Biết hoạt độ riêng của Au^{198} là $2 \cdot 10^6$ Bq/g và hằng số chuẩn đơn $k_{\text{Cd,Au}} = 121.2$.

BÀI TẬP ÁP DỤNG

Để phân tích hàm lượng Cd trong mẫu gạo bằng kỹ thuật KH neutron, ta đem 100mg (đã hóa bột và cho vào túi chuyên dụng) kèm monitor Al-0,1%Au khối lượng 0,017mg chiếu trong lò phản ứng tại vị trí có $f= 120$ và $\alpha= 0,012$ trong thời gian 30 phút. Sau thời gian chờ 1 giờ, mẫu và monitor được đo đồng thời trên hệ phổ kế gamma HPGe trong thời gian 2 giờ. Sau thời gian đo, diện tích đỉnh 411,8keV của Au^{198} và 527,9keV của Cd^{115} thu được lần lượt là 175000 số đếm và 2300 số đếm.

Hãy xác định hàm lượng Cd trong mẫu gạo trên.

Biết rằng hiệu suất của detector tại vị trí đo là: $\log(\epsilon_p) = -5,29 + 7,28 \cdot \log(E_\gamma) - 2,28 \cdot (\log(E_\gamma))^2$

Bỏ qua các hệ số tự che chắn neutron nhiệt và trên nhiệt.

Chương 4

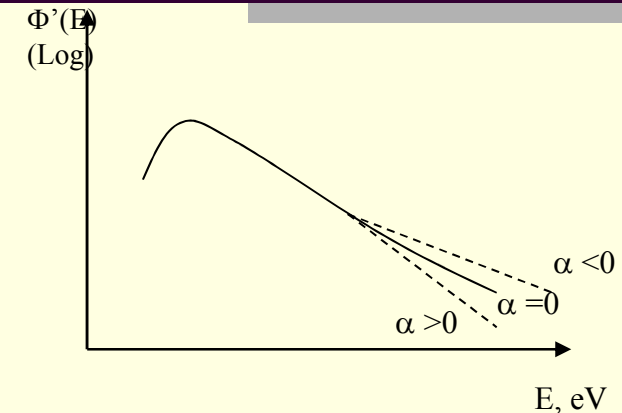
CÁC PHƯƠNG PHÁP THỰC NGHIỆM XÁC ĐỊNH THÔNG SỐ PHỔ NEUTRON

4.1. Xác định hệ số α

- Sự phân bố thông lượng neutron trên nhiệt $1/E$ chỉ có thể đúng trong trường hợp phổ lý tưởng, tuy nhiên trong thực tế thì chúng không tuân theo $1/E$. Khi đó, phổ thông lượng neutron có thể biểu diễn dưới dạng:

$$\phi'(E) = (1\text{eV})^\alpha \frac{\phi_e}{E^{1+\alpha}}$$

- với ϕ_e là thông lượng neutron trên nhiệt theo qui ước và α là hằng số âm (phổ cứng) hay dương (phổ mềm), $\alpha = [-1, +1]$



Hình 1. Phổ neutron trên nhiệt $\phi(E) \sim 1/E^{1+\alpha}$

4.1. Xác định hệ số α

1. Phương pháp “Tỉ số Cd cho đa lá dò”

Ở đây ta dùng 1 bộ monitor $i = 1, \dots, N$, mỗi monitor đặc trưng bởi năng lượng cộng hưởng hiệu dụng, $\bar{E}_{r,i}$, được chiếu có bọc và không bọc Cd. Mỗi monitor, tỉ số Cd được cho bởi:

$$R_{Cd,i} \cdot F_{Cd,i} = 1 + \frac{G_{th,i} \phi_{th}}{G_{e,i} \phi_e Q_{0,i}(\alpha)} = \frac{A_{sp,i}}{A_{sp,i}^{epiCd}} \quad (4.1)$$

Với $A_{sp,i}$ và $A_{sp,i}^{epiCd}$ là hoạt độ riêng của monitor i tương ứng chiếu trần và chiếu bọc Cd. Hệ số α tính được từ phép đo hệ số góc của đường thẳng

$$\log \frac{\bar{E}_{r,i}^{-\alpha}}{(F_{Cd,i} R_{Cd,i} - 1) Q_{0,i}(\alpha) G_{e,i} / G_{th,i}} \quad \text{theo} \quad \log \bar{E}_{r,i}$$

Ví dụ:



4.1. Xác định hệ số α

2. Phương pháp “Tỉ số Cd cho hai lá dò”

Phương pháp này dùng 2 monitor được chiếu có bọc Cd, khi đó tỉ số tốc độ phản ứng của (1) và (2) là

$$\frac{(R_{Cd} \cdot F_{Cd} - 1)_2}{(R_{Cd} \cdot F_{Cd} - 1)_1} = \frac{Q_{0,1}(\alpha)}{Q_{0,2}(\alpha)} \quad (4.2)$$

hay

$$\frac{(R_{Cd} \cdot F_{Cd} - 1)_2}{(R_{Cd} \cdot F_{Cd} - 1)_1} = \frac{[Q_{0,1} - 0.429] \bar{E}_{r,1}^{-\alpha} + \frac{0.429}{(2\alpha + 1)0.55^\alpha}}{[Q_{0,2} - 0.429] \bar{E}_{r,2}^{-\alpha} + \frac{0.429}{(2\alpha + 1)0.55^\alpha}} \quad (4.3)$$

Giải phương trình (4.3) ta thu được α

4.1. Xác định hệ số α

2. Phương pháp “Tỉ số Cd cho hai lá dò”

Dùng dây Zn để xác định hệ số α : $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ và $^{68}\text{Zn}(n,\gamma)^{69}\text{Zn}$.
Biết $R_{\text{Cd}}(^{65}\text{Zn})=8.28$ và $R_{\text{Cd}}(^{69}\text{Zn})= 5.48$

```
FindRoot[((1.908-0.4290)*2560^(-x)+0.429*0.55^(-x)/(2 x  
+1))/((3.19-0.429)*590^(-x)+0.429*0.55^(-x)/(2 x  
+1))]==0.615385,{x,0.1}]
```

4.1. Xác định hệ số α

3. Phương pháp “Ba lá dò chiếu trần”

Dùng 3 monitor có năng lượng cộng hưởng E_r khác biệt, được chiếu trần.
Khi đó hệ số α thu được từ phương trình:

$$(a - b)[Q_0(\alpha)]_1 - a[Q_0(\alpha)]_2 + b[Q_0(\alpha)]_3 = 0 \quad (3.4)$$

$$[Q_0(\alpha)]_i = (Q_0 - 0.429)\bar{E}_{r,i}^{-\alpha} + \frac{0.429}{(2\alpha + 1)0.55^\alpha} \quad (3.5)$$

$$a = \frac{1}{1 - \frac{A_{sp,2}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}}} \quad (3.6)$$

$$b = \frac{1}{1 - \frac{A_{sp,3}}{A_{sp,1}} \cdot \frac{k_{0,Au}(1)}{k_{0,Au}(3)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,3}}} \quad (3.7)$$

Dùng 3 đồng vị Au^{197} , Zr^{94} và Zr^{96}

- Thực nghiệm xác định a , b
- Giải phương trình bằng phương pháp lặp

4.2. Xác định tỉ số f

1. Phương pháp “tỉ số Cd”

$$f = (F_{Cd,r} R_{Cd,r} - 1) Q_{0,r}(\alpha) G_{e,r} / G_{th,r} \quad (3.8)$$

r = monitor với Q_0 được biết chính xác

2. Phương pháp “ba lá dò chiếu trần”

$$f = \frac{G_{e,1} \frac{k_{0,c}(1)}{k_{0,c}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}} Q_{0,1}(\alpha) - G_{e,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} \cdot Q_{0,2}(\alpha)}{G_{th,2} \frac{A_{sp,1}}{A_{sp,2}} - G_{th,1} \frac{k_{0,c}(1)}{k_{0,c}(2)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1}}{\varepsilon_{p,2}}} \quad (3.9)$$

4.3. Xác định tỉ số Q_0

Để xác định tỉ số tiết diện tích phân cộng hưởng/tiết diện neutron nhiệt, Q_0 , của một hạt nhân X bất kỳ, ta dùng phương pháp tỉ số Cd và so sánh với một monitor (thường là Au) có Q_0 biết trước:

$$Q_{0,x}(\alpha) = \frac{F_{Cd,r} R_{Cd,r} - 1}{F_{Cd,x} R_{Cd,x} - 1} \cdot \frac{G_{th,x}}{G_{th,r}} \cdot \frac{G_{e,r}}{G_{e,x}} Q_{0,r}(\alpha) \quad (3.10)$$