

# ÁP DỤNG PHƯƠNG PHÁP CHUẨN HÓA K<sub>0</sub>-INAA PHÂN TÍCH HÀM LƯỢNG NGUYÊN TỐ Sm VÀ La TRONG MẪU BỤI CÓ TÍNH ĐẾN VIỆC HIỆU CHỈNH TRÙNG PHÙNG THỰC

Huyền Trúc Phương, Mai Văn Nhơn  
Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQG-HCM

## 1. GIỚI THIỆU

Phương pháp chuẩn hóa k<sub>0</sub>-INAA trong phân tích kích hoạt neutron đã được Simonits và De Cotre[3] giới thiệu và đã ứng dụng thành công trong việc xác định hàm lượng nguyên tố trong mẫu mà không dùng mẫu chuẩn.

Từ trước đến nay ta chỉ quan tâm phân tích các đồng vị phát tia gamma vùng năng lượng vài trăm keV trở lên mà chưa chú ý đến vùng năng lượng thấp. Đặc biệt khi phân tích hàm lượng nguyên tố thuộc họ đất hiếm thì việc ứng dụng phương pháp k<sub>0</sub>-INAA cần phải hiệu chỉnh điện tích đỉnh năng lượng bởi vì đa số các đồng vị này khi kích hoạt neutron chủ yếu phát tia gamma vùng năng lượng thấp cũng như do chúng có sơ đồ phân rã phức tạp.

Do sơ đồ phân rã phức tạp này mà sẽ có xác suất những tia gamma khác hoặc tia X phát ra do bắt electron hoặc do biến hoán trong nên điện tích đỉnh phổ có thể bị mất số đếm (trùng phùng summing-out) hay tăng số đếm (trùng phùng summing-in). Vì vậy, việc phân tích hàm lượng nguyên tố mà dùng các đỉnh đặc trưng trong vùng năng lượng thấp thì ta phải hiệu chỉnh điện tích đỉnh phổ thu được.

## 2. PHƯƠNG PHÁP VÀ TÍNH TOÁN

### 2.1. Phương trình phân tích kích hoạt

Giả sử một mẫu sau khi chiếu xạ neutron trong lò phản ứng, sau thời gian phân rã và được đo với phổ kế gamma, nồng độ nguyên tố quan tâm được tính theo công thức [3]:

$$r(mg/g) = \frac{N_p/t_m}{A_{sp}^*} \cdot \frac{1}{k_{0,Au}} \cdot \frac{G_{th}^* f + G_e^* Q_0^*(a) \cdot \epsilon_p^*}{G_{th} f + G_e Q_0(a) \cdot \epsilon_p} \cdot 10^6 \quad (1)$$

Trong đó,

$N_p/t_m$  - tốc độ xung đo được tại đỉnh năng lượng quan tâm (phân rã/giây);

$N_A$  - hằng số Avogadro;

$W$  - khối lượng nguyên tố được chiếu xạ (g);

$w$  - khối lượng mẫu (g);

$\theta$  - độ phổ cập đồng vị bia;

$M$  - khối lượng nguyên tử của nguyên tố bia;

$G_{th}$  - hệ số hiệu chỉnh cho việc tự che chắn neutron nhiệt;

$G_e$  - hệ số hiệu chỉnh cho việc tự che chắn neutron trên nhiệt;

$S = 1 - \exp(-\lambda t_i)$ ,  $t_i$  - thời gian chiếu;

$D = \exp(-\lambda t_d)$ ,  $t_d$  - thời gian phân rã;

$C = [1 - \exp(-\lambda t_m)]/(\lambda t_m)$ ,  $t_m$  - thời gian đo.

$\gamma$  - cường độ tuyệt đối của tia gamma được đo;

$\epsilon_p$  - hiệu suất ghi tại đỉnh năng lượng.

$$A_{sp} = \frac{N_p / t_m}{W.S.D.C} : \text{Hoạt độ riêng (phân rã/giây).}$$

$$f = \frac{\Phi_s}{\Phi_e} : \text{tỉ số thông lượng neutron nhiệt/trên nhiệt.}$$

$$Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0} = \left[ \frac{Q_0 - 0,429}{(\bar{E}_r)^\alpha} + \frac{0,429}{(2\alpha + 1)(0,55)^\alpha} \right] (1\text{eV})^\alpha. \quad (2)$$

$\bar{E}_r$  : năng lượng cộng hưởng trung bình(eV).

### 2.2. Hệ số hiệu chỉnh trùng phùng thực

Khi xác định đỉnh năng lượng quan tâm trong vùng năng lượng thấp hoặc đo mẫu tại vị trí gần bề mặt detector thì có thể trùng phùng giữa tia  $\gamma$ - $\gamma$  hoặc  $\gamma$ -KX phát ra từ mẫu. Khi đó, diện tích đỉnh phổ phải được tính:

$$N_{p,A}^{(\text{correct})} = \frac{N_{p,A}^{(\text{observed})}}{\text{COI}} \quad (3)$$

$N_{p,A}^{(\text{observed})}$  : diện tích đỉnh phổ đo được.

$N_{p,A}^{(\text{correct})}$  : diện tích đỉnh phổ đã được hiệu chỉnh.

và 
$$\text{COI} = (1 - \text{SO}[A])(1 + \text{SI}[A]) \quad (4)$$

Với: SO[A] là trùng phùng thực do sự mất mát số đếm tại đỉnh A.

SI[A] là trùng phùng thực do sự tăng số đếm tại đỉnh A.

Để tính các hệ số SO[A] và SI[A] ta cần phải biết sơ đồ phân rã của các đồng vị phóng xạ, tỉ số phân nhánh, cường độ tuyệt đối tia gamma, hệ số biến hoán trong, hiệu suất ghi của detector, tỉ số P/T (đỉnh/toàn phần),.....

### 3. THỰC NGHIỆM

Nguyên tố La và Sm chứa trong các mẫu bụi được lấy tại các trạm ở Tp.HCM, huyện Đạh, Lâm đồng và các tác giả[1] đã dùng phương pháp chuẩn hóa K0-INAA tính được hàm lượng nhưng chưa tính đến hiệu chỉnh trùng phùng thực. Cũng với những mẫu trên và với những điều kiện thí nghiệm hoàn toàn tương tự, phổ của các mẫu sau khi chiếu xạ neutron lò phản ứng Hạt nhân Đà Lạt các tác giả [1] đã gửi cho chúng tôi tính lại hàm lượng La và Sm nhưng có tính đến hiệu chỉnh trùng phùng thực.

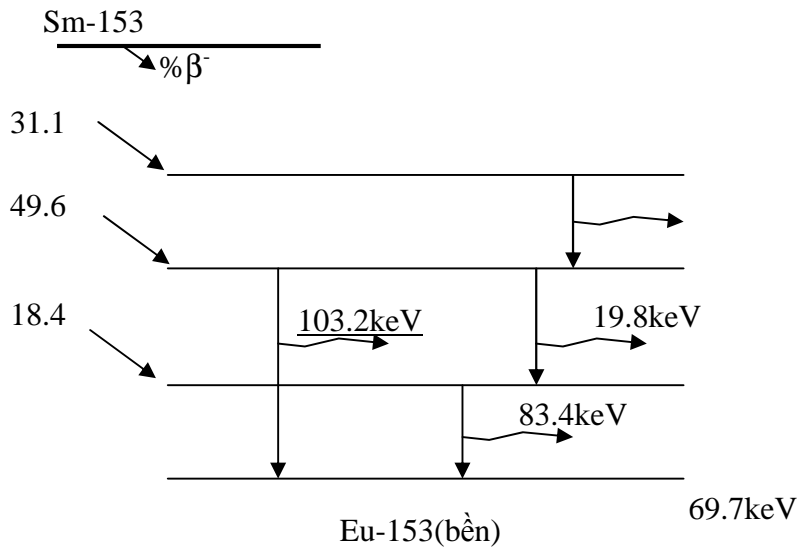
Trong phép phân tích này chúng tôi dùng phản ứng  $\text{La}^{139}(n, \gamma)\text{La}^{140}$ ,  $\text{Sm}^{152}(n, \gamma)\text{Sm}^{153}$  với số liệu hạt nhân cho ở bảng 1.

**Bảng 1.** Số liệu hạt nhân liên quan của các đồng vị[5]

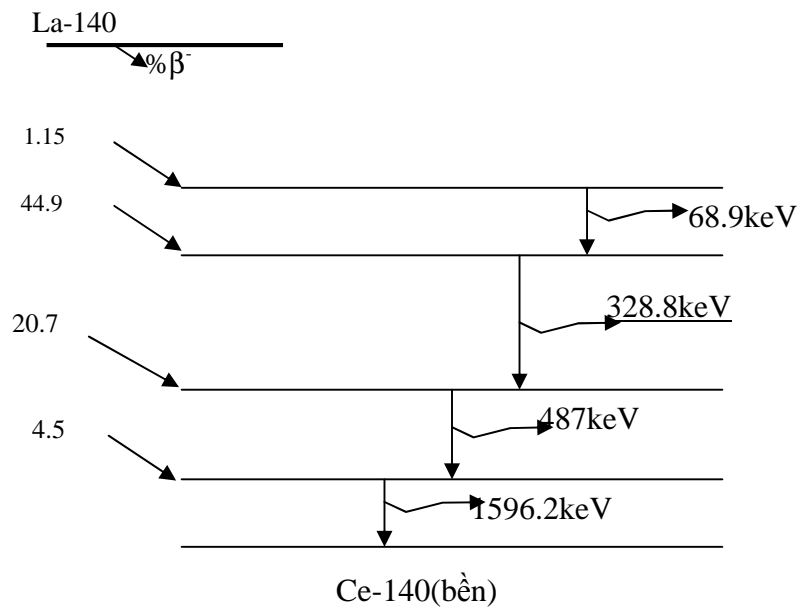
Hạt nhân	$T_{1/2}$	Năng lượng quan tâm (keV)	$E_r$ (eV)	$Q_0$	$k_{0,Au}$

La-140	1.68 ngày	328.8	76	1.24	0.0287
Sm-153	46.5 giờ	103.2	8.53	14.4	0.231

Qua nghiên cứu sơ đồ phân rã của La-140 và Sm-153, ta có thể biểu diễn theo sơ đồ như hình 1 và hình 2:



**Hình 1.** Sơ đồ phân rã của Sm-153 (chỉ lấy các mức quan tâm)



**Hình 2.** Sơ đồ phân rã của La-140 (chỉ lấy các mức quan tâm)

Các số liệu hạt nhân nguyên tử lấy từ [4] và được tổng kết trong bảng 2.

**Bảng 2.** Các số liệu hạt nhân dùng cho việc tính hệ số COI

Hạt nhân	E (keV)	a	c	$\alpha_K$	$\gamma(\%)$
La-140	328.8	0.48	0.96	-	20.6
	487.0	1.0	0.99	$9.5 \cdot 10^{-3}$	-
	1596.2	1.0	0.99	$6.83 \cdot 10^{-4}$	-
	68.9	0.32	0.22	2.0	0.076
Sm-152	69.7	0.97	0.16	4.50	5.25
	103.2	0.99	0.37	1.35	28.3
	19.8	0.005	0.0	-	$1.2 \cdot 10^{-4}$
	83.4	1.0	0.21	2.37	-

a: tỉ số phân nhánh;  $c = (1 + \alpha_T)^{-1}$ ,  $\alpha_T$ : hệ số biến hoán trong toàn phần.

Từ sơ đồ phân rã (hình 1 và hình 2), bảng số liệu (bảng 2), đường cong hiệu suất, đường cong P/T (peak/total),....hệ số hiệu chỉnh trùng phùng tính được:

	Sm-153	La-140
Hệ số COI	0.95	0.97

Các mẫu được chiếu tại lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt tại vị trí có các thông số sau:

Thông số	Kênh 7-1 (Chiều ngắn)	Mâm quay (Chiều dài)
$A_{sp}(Au)$ (phân rã/giây)	$9.155 \cdot 10^{10}$	$2.428 \cdot 10^{10}$
$\epsilon_p$ (411.8keV)	$3.009 \cdot 10^{-2}$	$2.796 \cdot 10^{-2}$
$\alpha$	0.017	0.073
f	9.8	40
$\phi_{th}$ (n/cm <sup>2</sup> .s)	$4.12 \cdot 10^{12}$	$2.237 \cdot 10^{12}$

Ở đây chúng tôi nhận được 4 mẫu bất kỳ từ các tác giả [1], chúng tôi tính và thu được kết quả cho ở bảng 3.

**Bảng 3.** Kết quả tính hàm lượng có hiệu chỉnh

tên mẫu	Nguyên tố	Năng lượng	Hàm lượng <sup>(a)</sup> ( $\mu\text{g/g}$ )	Hàm lượng <sup>(b)</sup> ( $\mu\text{g/g}$ )	k0-Dalat ( $\mu\text{g/g}$ )
DA102T	Sm	103.2	0.18	0.20	0.164
	La	328.8	5.91	6.12	6.882
DA103T	Sm	"	0.25	0.27	0.215
	La	"	1.32	1.37	1.71

DA104T	Sm	"	0.32	0.34	0.257
	La	"	2.06	2.13	2.09
F31-1B	Sm	"	1.01	1.06	1.078
	La	"	6.50	6.73	không có giá trị

- Hàm lượng<sup>(a)</sup>: chưa tính hiệu chỉnh
- Hàm lượng<sup>(b)</sup>: có tính hiệu chỉnh.
- Mẫu F31-1B là mẫu chuẩn NIST-1632c

Nhận xét: qua kết quả tính chúng tôi nhận thấy trong phép tính có hiệu chỉnh trùng phùng thực thì hàm lượng của nguyên tố Sm và La trong mẫu chính xác hơn so với khi chưa có hiệu chỉnh. Điều này được thể hiện khi so sánh với mẫu chuẩn NIST-1632c (lệch nhau cỡ 2%). Khi so sánh với kết quả tính từ các tác giả [1] (kết quả K0-Dalat) thì có sự sai biệt cũng không đáng kể. Điều này có thể lý giải là do sự chú quan trọng việc tính diện tích đỉnh phổ.

#### 4. KẾT LUẬN

Phương pháp chuẩn hóa k<sub>0</sub>-INAA là một phương pháp phân tích hiện đại và có độ tin cậy cao. Tuy nhiên, việc phân tích các đồng vị phát gamma trong vùng năng lượng thấp thì theo chúng tôi cần phải hiệu chỉnh trùng phùng  $\gamma$ - $\gamma$  và  $\gamma$ -KX.

Kết quả chúng tôi tính hàm lượng của La từ 1.37 $\mu$ g/g đến 6.12 $\mu$ g/g và Sm từ 0.20 $\mu$ g/g đến 0.34 $\mu$ g/g trong mẫu bụi (có hiệu chỉnh trùng phùng thực). Trong khi đó các tác giả [1] tính được: La từ 1.71 $\mu$ g/g đến 6.882 $\mu$ g/g và Sm từ 0.164 $\mu$ g/g đến 0.257 $\mu$ g/g trong mẫu bụi. Với kết quả này chúng tôi thấy là chính xác, điều này được khẳng định qua phép phân tích La và Sm trong mẫu chuẩn (kết quả trong bảng 3).

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Cao Đông Vũ, Hồ Mạnh Dũng, Trương Ý, N.T.Bình, *Xác định nguyên tố vết trong mẫu bụi khí thu góp trong năm 2004 ở hai vùng Đạ-têh-Lâm đồng và Tp.HCM bằng kỹ thuật k<sub>0</sub>-NAA trên lò phản ứng Đà Lạt*, Hội nghị KH&CN Hạt nhân lần VI, Đà Lạt (2005).
- [2]. M.C. Freitas, F. De Corte, *Correction for summing effects with counting using an LEPC*, Proceedings of the International k<sub>0</sub> Users workshop – GENT (1992) 63-67.
- [3]. F. De Corte, *The k<sub>0</sub>- Standardization Method: A move to the Optimization of Neutron Activation Analysis*, Agrégé Thesis, Gent University, 1987.
- [4]. E. Browne, R.B. Firestone, *Table of Radioactive Isotopes*, J. Wiley & Sons, N.Y., 1999
- [5]. F.D. Corte, A. Simonits, *Recommend nuclear data for use in the k<sub>0</sub> standardization of neutron activation analysis*, Atomic data and Nuclear data Tables 85 (2003) 47-67