

# SO SÁNH GIỚI HẠN PHÁT HIỆN CỦA CÁC NGUYÊN TỐ TRONG PHÂN TÍCH KÍCH HOẠT DỤNG CỤ KHI CHIẾU MẪU CÓ BỌC VÀ KHÔNG BỌC CADMIUM TRÊN Lò PHẢN ỨNG HẠT NHÂN ĐÀ LẠT

Mai Văn Nhơn<sup>(1)</sup>, Trần Văn Hùng<sup>(2)</sup>

(1) Khoa Vật lý, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên – Đại học Quốc gia Tp. HCM

(2) Trung tâm Nghiên cứu và Triển khai Công nghệ Bức xạ

(Bài nhận ngày 28 tháng 03 năm 2005, hoàn chỉnh sửa chữa ngày 26 tháng 7 năm 2005)

**TÓM TẮT:** Dựa vào tỷ số Cadmium tại vị trí chiếu và hệ số đóng góp trong nền phong của phổ gamma của các nguyên tố gây nhiễu tại đỉnh năng lượng của nguyên tố cần phân tích, đã đưa ra biểu thức tính giới hạn phát hiện các nguyên tố trong phân tích kích hoạt nơtron trên lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt. Xác định định lượng tỷ số giới hạn phát hiện trong phép chiếu có bọc và không bọc Cadmium. Các kết quả tính toán được so sánh với thực nghiệm đối với một số quặng vàng đã biết hàm lượng của các nguyên tố.

## 1. MỞ ĐẦU

Một trong các phương pháp tăng độ nhạy trong phân tích kích hoạt nơtron dụng cụ (INAA) là tìm phương pháp giảm nền phong ở dưới đỉnh của nguyên tố cần phân tích. Muốn vậy phải nghiên cứu tương quan giữa thời gian chiếu, đợi và thời gian đo [1-4], phổ nơtron, thông lượng và các detector thích hợp [5,6].

Đối với một số nguyên tố có tích phân cộng hưởng lớn hơn tiết diện kích hoạt của nơtron nhiệt thì việc chiếu có bọc Cadmium sẽ có nhiều ưu điểm: Giảm được nền phong dưới đỉnh của nguyên tố cần phân tích, rút ngắn thời gian đợi, rút ngắn khoảng cách giữa detector và mẫu, giảm phản ứng phân chia do  $U^{235}$  có trong mẫu,... Tuy nhiên, việc chiếu có bọc Cadmium trong lò phản ứng cũng có một số nhược điểm vì tính chịu nhiệt và tính bền vững phóng xạ của Cadmium kém, nên không thể tiến hành đối với những phép chiếu dài. Trong chế độ chiếu tự động, việc đưa một lượng Cadmium vào lò phản ứng sẽ gây khó khăn trong việc điều khiển lò phản ứng. Để tránh những phiền phức không cần thiết và tăng độ nhạy của phép phân tích, cần phải nghiên cứu giới hạn phát hiện các nguyên tố trong hai phép chiếu, từ đó có thể lựa chọn được phép chiếu thích hợp.

Mục đích của công trình này là đưa ra phương pháp đánh giá tỷ số giới hạn phát hiện của nguyên tố cần phân tích trong mẫu chiếu có bọc và không bọc Cadmium dựa vào các đặc trưng thông lượng nơtron và phổ gamma của mẫu. Vì phép chiếu không bọc Cadmium sẽ không gây khó khăn gì cho việc điều khiển lò phản ứng, nên trong báo cáo này lựa chọn phổ gamma của mẫu đã được chiếu không bọc Cadmium để tính toán. Thực nghiệm đã được tiến hành trên kênh chuyển mẫu khí nén 7-1 của lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt.

Trong phân tích kích hoạt, giới hạn phát hiện của nguyên tố  $i$  được xác định như sau:

$$L_i = 3 \sqrt{S_{\phi_i}(E_j) \times C_i / S_i(E_i)} \quad (1)$$

Trong đó:  $S_{\phi_i}(E_j)$  là diện tích phong ở dưới đỉnh năng lượng  $E_i$  của nguyên tố cần phân tích  $i$ ,  $S_i$  là diện tích đỉnh có năng lượng  $E_i$  của nguyên tố cần phân tích  $i$ ,  $C_i$  là hàm lượng của nguyên tố  $i$ .

Nếu đưa ra hệ số  $\alpha_{ij} = S_{\phi_i}(E_i) / S_j(E_j)$ , trong đó  $S_{\phi_i}(E_i)$  là diện tích phong ở vùng năng lượng  $E_i$  do nguyên tố nhiễu  $j$  gây ra,  $S_j(E_j)$  cường độ đỉnh năng lượng của nguyên tố gây



nhiều j. Như vậy, trong trường hợp mẫu đa nguyên tố có n nguyên tố gây nhiễu lên vùng đỉnh  $E_i$  của nguyên tố cần phân tích i, ta sẽ có biểu thức:

$$L_i = 3 \sqrt{\sum_{j=1}^n \alpha_{ij} S_j(E_j) \times C_i / S_i(E_i)} \quad (2)$$

Nếu mẫu chiếu trong thông lượng có bọc Cadmium thì giới hạn phát hiện sẽ là:

$$L_{icd} = 3 \sqrt{\sum_{j=1}^n \alpha_{ij} S_{jcd}(E_j) \times C_i / S_i(E_i)} \quad (3)$$

Vì  $S_{icd}(E_i) = S_i(E_i) / R_i$  và  $S_{jcd}(E_j) = S_j(E_j) / R_j$ , trong đó  $R_i$  và  $R_j$  là tỷ số Cadmium của nguyên tố i và j tại vị trí chiếu xạ,  $S_{icd}$  và  $S_{jcd}$  là diện tích của các đỉnh tại năng lượng  $E_i$  và  $E_j$  của nguyên tố i và j tương ứng, nên tỷ số giới hạn phát hiện trong hai phép chiếu sẽ là:

$$K = L_i / L_{icd} = 1 / R_i \sqrt{\frac{\sum \alpha_{ij} S_j(E_j)}{\sum \alpha_{ij} R_j^{-1} S_j(E_j)}} \quad (4)$$

Trong biểu thức (4), tổng được lấy theo j từ 1 đến n. K gọi là hệ số so sánh trong hai phép chiếu.

Trong trường hợp chỉ có một nguyên tố gây nhiễu chủ yếu, còn các nguyên tố khác có thể bỏ qua thì biểu thức (4) sẽ rất đơn giản, chỉ phụ thuộc vào tỷ số Cadmium của hai nguyên tố và có thể viết như sau:

$$K = 1 / R_i \sqrt{R_j} \quad (5)$$

Rõ ràng rằng, trong biểu thức (4) cho phép so sánh hai giới hạn phát hiện khi chiếu có và không bọc Cadmium khi chỉ cần biết phổ gamma của mẫu đã chiếu trong thông lượng tích phân ( tức khi chiếu mẫu không bọc Cadmium), đặc trưng trường nơtron tại vị trí chiếu mẫu ( $R_i, R_j$ ) và đặc trưng phổ gamma của hệ đo ( $\alpha_{ij}$ ). Nếu hệ số so sánh  $K > 1$  thì chiếu mẫu có bọc Cadmium sẽ ưu điểm hơn, còn nếu  $K < 1$  thì ngược lại, mẫu chiếu trong thông lượng tích phân sẽ có ưu điểm hơn.

## 2. THỰC NGHIỆM

Để so sánh kết quả tính toán theo biểu thức (4) với thực nghiệm, bốn mẫu quặng Au đặc trưng đã biết rõ hàm lượng của các nguyên tố gây nhiễu đã được sử dụng. Mẫu quặng Au được nghiền nhỏ đến 200 mess, khối lượng từ 1 đến 2g, được nén thành viên có dạng hình trụ và được chiếu có bọc và không bọc Cadmium trong kênh 7-1 của lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt, với thông lượng cỡ  $7 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$  có tỷ số  $\phi_{\text{nhiệt}} / \phi_{\text{epi}}$  là 14,3 khi công suất lò 500 Kw, thời gian chiếu mẫu 1 giờ. Độ dày của Cadmium cỡ 0,5 đến 1 mm. Các mẫu chiếu có bọc và không bọc Cadmium được chiếu, đợi và đo trong điều kiện hoàn toàn giống nhau. Mẫu đã chiếu xạ được đo sau 5 đến 7 ngày để rã. Thời gian đo từ 10 đến 15 phút trên hệ phân tích 4096 kênh nối với detector Ge(HP) có thể tích  $70 \text{ cm}^3$ , độ phân giải 2,2 KeV của  $\text{Co}^{60}$ .

Hệ số  $\alpha_{ij}$  được xác định từ phổ gamma của các đơn nguyên tố. Trong báo cáo này, các nguyên tố gây nhiễu thường gặp trong các loại quặng Au được kích hoạt trong lò và đo trong thời gian 10 đến 15 phút trên hệ phổ kể ở trên. Giá trị  $\alpha_{ij}$  là hệ số đóng góp vào nền phong của đỉnh quang điện  $E_j$  vào vùng năng lượng của đỉnh quang điện  $E_i$  ( $E_j > E_i$ ). Tỷ số Cadmium tại vị trí chiếu mẫu được xác định như trong công trình [7]

### 3. KẾT QUẢ VÀ BÀN LUẬN

Các mẫu quặng Au có hàm lượng các nguyên tố gây nhiễu được đưa ra trong bảng 1. Phổ gamma của các mẫu này rất phức tạp và cũng rất đặc trưng cho các loại phổ quặng Au của Việt nam khi được chiếu xạ trên lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt. Trong đa số quặng Au của Việt nam, các nguyên tố gây nhiễu thường là Na, As, Sb, La, Zn, Co, Fe và một số nguyên tố khác. Trong phân tích Au bằng phương pháp kích hoạt neutron trên lò phản ứng, đỉnh năng lượng đặc trưng 411,8 KeV của Au trong phổ gamma đã được sử dụng.

**Bảng 1. Hàm lượng một số nguyên tố trong mẫu quặng Au (ppm)**

Tên mẫu	Zn	Na	Fe	Sc	Co	Sb	As	La	Ag	Au
GLN102	43600	16000	18000		20,1	350			390	0,32
GHN203	64600	11000	65000		24	260		4,8	587	0,25
GHN122	6620	6500	30000	5,8	19	150		10	217	0,12
NL001	1800		12000		3	14	6570			19,0

Bảng 2 đưa ra kết quả xác định hệ số  $\alpha_{ij}$  của hệ phổ kế do các đỉnh gamma của nguyên tố gây nhiễu lên vùng đỉnh 411,8 KeV của Au và tỷ số Cadmium  $R_{Au}$  và  $R_j$  của các nguyên tố gây nhiễu tại vị trí chiếu mẫu trong kênh 7-1, đồng thời cũng đưa ra hệ số so sánh tính toán theo biểu thức (5).

**Bảng 2. Hệ số Cadmium  $R_j$ , hệ số  $\alpha_{ij}$  và hệ số so sánh K được tính theo biểu thức (5) khi chiếu mẫu tại kênh 7-1 và đo trên hệ phổ kế 4096 kênh với detector Ge(HP) 70 cm<sup>3</sup>**

Đồng vị	$E_j$ (KeV)	$\alpha_{ij}$	$R_j$	K
Au <sup>198</sup>			1,9	
As <sup>76</sup>	559,5	0,0135	1,9	0,72
Na <sup>24</sup>	1368,5	0,0142	15,4	2,06
Sb <sup>122</sup>	564	0,0125	1,3	0,60
Sb <sup>124</sup>	602,7	0,0120	1,3	0,60
Co <sup>60</sup>	1332	0,0191	6,8	1,37
La <sup>140</sup>	1596,5	0,0300	8,8	1,56
Ag <sup>110m</sup>	657,7	0,0374	1,8	0,71
Sc <sup>46</sup>	1120,5	0,0248	23,5	2,55
Zn <sup>65</sup>	1115,4	0,0116	5,5	1,23
Fe <sup>59</sup>	1291,6	0,0190	13,3	1,92

Kết quả của bảng 2 cho thấy khi phân tích Au trong các mẫu có các nguyên tố gây nhiễu chủ yếu như As, Sb và Ag, hệ số so sánh K sẽ nhỏ hơn 1. Điều đó có nghĩa rằng, giới hạn phát hiện đối với Au khi chiếu mẫu không bọc Cadmium sẽ tốt hơn khi chiếu mẫu có bọc Cadmium; còn các mẫu có các nguyên tố gây nhiễu như Na, Co, La, Sc, Zn và Fe sẽ có  $K > 1$ , thì muốn tăng độ nhạy của phép phân tích cần phải chiếu mẫu trong vỏ bọc Cadmium.



**Bảng 3. Kết quả tính toán theo biểu thức (4) và thực nghiệm đối với hệ số K trong mẫu đa nguyên tố, thời gian đo sau 5 ngày để rã**

Tên mẫu	K tính theo biểu thức (4)	K thực nghiệm
GNL 102	0,71	0,66
GHN 203	0,67	0,70
GHN 122	0,65	0,68
NL 001	0,76	0,78

Tuy nhiên, khi mẫu có nhiều nguyên tố gây nhiễu khác nhau lên vùng đỉnh của nguyên tố cần phân tích sẽ phức tạp hơn. Trong bảng 3 đưa ra kết quả tính toán theo biểu thức (4) và kết quả thực nghiệm đối với 4 mẫu quặng Au đã được lựa chọn ở trên. Kết quả thực nghiệm và tính toán được xác định cho các trường hợp mẫu sau 5 ngày để rã. Kết quả cho thấy giữa thực nghiệm và tính toán hoàn toàn trùng hợp nhau với sai số không vượt quá 10%.

Cũng như kết quả trong bảng 2 và 3, trong thực tế phổ gamma của đa số mẫu quặng Au của Việt nam được chiếu trong kênh 7-1, cường độ đỉnh 559,5 KeV của  $As^{76}$ , 564 KeV của  $Sb^{124}$  rất mạnh, gây nên một nền phong chủ yếu trong vùng đỉnh 411,8 KeV của  $Au^{198}$ , nên việc xác định Au trong đa số các mẫu quặng Au của Việt nam khi kích hoạt mẫu có bọ Cadmium trong kênh 7-1 có giới hạn phát hiện không tốt bằng khi chiếu mẫu không bọ Cadmium, mặc dù giá trị phong ở dưới đỉnh 411,8 KeV có giảm đi.

#### 4. KẾT LUẬN

Từ kết quả thực nghiệm và tính toán trên một số mẫu quặng Au của Việt nam cho thấy rằng, nếu biết tỷ số Cadmium của các nguyên tố tại vị trí chiếu, biết các hệ số  $\alpha_{ij}$  của các nguyên tố gây nhiễu lên vùng đỉnh gamma của nguyên tố cần phân tích, dựa vào phổ gamma của mẫu đã kích hoạt, có thể dùng biểu thức (4) hoặc (5) để dàng xác định được hệ số so sánh K và từ đó có thể nhận đoán được việc chiếu mẫu có bọ hay không bọ Cadmium sẽ ưu điểm hơn hay kém hơn về giới hạn phát hiện. Từ đó cho phép chúng ta lựa chọn được phép chiếu thích hợp, nhằm nâng cao độ nhạy, độ chính xác của phép phân tích đối với các nguyên tố cần quan tâm.

### COMPARISON OF THE DETECTION LIMITS OF ELEMENTS IN INSTRUMENT NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS FOR THE SAMPLES WITHOUT AND COVER CADMIUM ON DALAT REACTOR

Mai Van Nhon<sup>(1)</sup>, Tran Van Hung<sup>(2)</sup>

(1) Department of Physics, University of Natural Science – VNU-HCM

(2) Research and Development Center for Radiation Technology

**ABSTRACT:** Based on Cadmium ratios at the irradiation position and factors of contribution to background at gamma peak of analysis element due to interfering element ( $\alpha_{ij}$ ), the comparison factor K of detection limits in the integral and epithermal neutron activation can be determined. These factors of the gold ore samples were calculated and compared to experimental results.

## TÀI LIỆU TAM KHẢO

- [1]. Isenhour I. L., et all, *Proc International Conference Moden Trends in Activation Analysis*, Texas, p.123, 1965.
- [2]. Isenhour I. L, Morrison G. H., *Analytical Chemistry*, 36, No 6, 1086, 1964.
- [3]. Eguadarov B. A., Diubko V. G., Novikov A. I., *Năng lượng Nguyên tử*, T 24, Số 5, Tr. 435 ( tiếng Nga), 1968.
- [4]. Obradovskii E. G., et all, *Tạp chí Hoá phân tích*, T. 4, Tr. 617 (Tiếng Nga), 1984.
- [5]. Parry S., *J. Radional. Chem.*, V. 59, No 2, P. 423, 1980.
- [6]. Drunkin V. I., et all, *Năng lượng Nguyên tử*, T. 55, Số 5, Tr. 300. (Tiếng Nga), 1983.
- [7]. Trần Văn Hùng, *Xác định một số đặc trưng thông lượng neutron của lò IVV-9 Đà Lạt phục vụ cho phân tích kích hoạt và sản xuất đồng vị*. Hội nghị toàn quốc lần thứ nhất " Vật lý & Kỹ thuật hạt nhân", Tr. 85-88, Hà nội 14-15/5/1996.