

CÁC PHẢN ỨNG HẠT NHÂN TRONG PHÂN TÍCH KÍCH HOẠT NEUTRON LÒ PHẢN ỨNG

HỒ MẠNH DŨNG

*Trung tâm Hạt nhân Tp. Hồ Chí Minh, 217 Nguyễn Trãi, Quận 1, Tp. Hồ Chí Minh
Email: homdung@yahoo.com*

Tóm tắt: Tổng quan về các phản ứng hạt nhân trong phân tích kích hoạt neutron (NAA), đặc biệt là NAA trên lò phản ứng hạt nhân nghiên cứu sử dụng phương pháp chuẩn hóa k_0 (viết tắt là k_0 -NAA) được thực hiện và trình bày trong báo cáo. Các phản ứng hạt nhân gây ra bởi các neutron ở những vùng năng lượng khác nhau: neutron nhiệt, neutron trên nhiệt và neutron nhanh hay neutron phân hạch, đóng góp vào tổng hoạt độ phóng xạ tạo thành với những lượng khác nhau được phân tích và đánh giá. Phản ứng hạt nhân được quan tâm chủ yếu trong NAA là phản ứng (n, γ) , tuy nhiên, những phản ứng ảnh hưởng (nhiều) như các phản ứng ngưỡng (n, p) cũng được quan tâm. Khi tổng quan các phản ứng hạt nhân, tốc độ phản ứng và mối liên hệ của chúng với các số liệu hạt nhân cơ bản cần được xem xét. Ngoài ra, việc đánh giá độ không bảo đảm đo (sai số) của các số liệu hạt nhân, nguồn sai số và sự lan truyền sai số đến tốc độ phản ứng cũng được nhận diện. Sau cùng, việc tổng quan các phản ứng hạt nhân trong NAA - phân tích mối liên hệ giữa các phản ứng hạt nhân với các số liệu hạt nhân cơ bản (hệ số k_0 , Q_0 , năng lượng cộng hưởng hiệu dụng \bar{E}_r và các số liệu liên quan khác). Vì vậy, việc tổng quan về các phản ứng hạt nhân trong NAA là cần thiết và bổ ích nhằm phát triển phương pháp luận NAA và xây dựng những phương pháp xác định thực nghiệm phù hợp cho việc hiệu chỉnh những phản ứng hạt nhân ảnh hưởng (nhiều) từ đó nâng cao độ chính xác của các kết quả phân tích.

Từ khóa: *Phân tích kích hoạt neutron; phương pháp chuẩn hóa k_0 ; phản ứng hạt nhân; tốc độ phản ứng.*

I. MỞ ĐẦU

Do tính chọn lọc và độ nhạy cao, phân tích kích hoạt neutron (NAA) chiếm một vị trí quan trọng trong số các phương pháp phân tích vật lý và hóa học. NAA là một kỹ thuật phân tích không hủy mẫu cho việc xác định hàm lượng ở mức bằng hoặc dưới ppm ($\mu\text{g/g}$) đối với khoảng 60 nguyên tố, bằng cách thực hiện hai phép chiếu và một số phép đo phổ gamma sau những thời gian rã khác nhau. Độ chính xác của NAA do hiệu ứng matrix (hiệu ứng nền) hầu như có thể bỏ qua và cơ sở vật lý hoàn toàn khác biệt khi so sánh với các kỹ thuật phân tích khác, làm cho NAA đặc biệt phù hợp để phê chuẩn các vật liệu tham khảo (Standard Reference Materials - SRMs).

Phương pháp chuẩn hóa k_0 của NAA (k_0 -NAA), một khái niệm được đưa ra vào năm 1975 [1], có thể được hiểu là một phương pháp chuẩn hóa tuyệt đối [2,3]. Phương pháp này dựa vào các hệ số k_0 , Q_0 và một vài số liệu khác là các hằng số vật lý có thể được lấy từ bộ số liệu hạt nhân cơ bản [4]. Trong thực tế, các hệ số k_0 và các số liệu hạt nhân liên quan thường được xác định bằng thực nghiệm vì các bộ số liệu hạt nhân cơ bản thường không nhất quán [5,6,7].

Mục đích của công việc này là xem xét một cách tổng quan về các phản ứng hạt nhân trong NAA trên lò phản ứng hạt nhân nghiên cứu. Vấn đề quan trọng nhất của phản ứng hạt nhân là tính tốc độ phản ứng và mối liên hệ của chúng với các số liệu hạt nhân cơ bản. Cuối

cùng là phân tích mối liên hệ giữa các phản ứng hạt nhân trong NAA với các số liệu hạt nhân cơ bản (hệ số k_0 , Q_0 , năng lượng cộng hưởng hiệu dụng \bar{E}_r và các số liệu hạt nhân liên quan khác).

1.1 Hoạt độ riêng

Khi mẫu được đặt trong trường neutron, hạt nhân trong mẫu có thể bắt neutron để tạo thành hạt nhân kích thích, sau đó các hạt nhân kích thích sẽ trở về trạng thái cơ bản bằng cách phát ra bức xạ gamma - gọi là phản ứng (n, γ) . Thông thường các tia gamma phát ra một cách tức thời từ sản phẩm bắt neutron bị kích thích hoặc phát ra sau một khoảng thời gian trễ nhất định.

Nếu việc chiếu xạ được thực hiện trong trường neutron với một phân đáng kể neutron năng lượng cao, có thể xảy ra một số phản ứng ngưỡng (threshold reactions) trên các hạt nhân khác có trong mẫu tạo ra hạt nhân sản phẩm giống như hạt nhân được đo. Ngoài ra, nếu một số nguyên tố phân hạch có trong mẫu có thể gây ra sự phân hạch tạo thành các hạt nhân trùng với hạt nhân sản phẩm do phản ứng (n, γ) . Đây là những phản ứng nhiễu và phải được tính đến trong quá trình xác định tốc độ phản ứng.

Trong quá trình chiếu xạ, một số sản phẩm bắt neutron rồi phân rã và một số lại có thể tiếp tục bắt neutron để tạo thành một hạt nhân khác và bị mất đi hay còn gọi là phản ứng đốt cháy (burn-up). Ở mật độ thông lượng neutron cao, các hạt nhân bia có thể bị suy giảm, điều này cũng ảnh hưởng đến việc đo các hạt nhân sản phẩm. Phương trình vi phân tính đến sự thay đổi tốc độ phản ứng hạt nhân quan tâm được biểu diễn như sau:

$$\frac{dN_c}{dx} = \phi N_m \sigma_m + \phi N_h \sigma_h + \phi N_f \sigma_f \gamma_f - \phi N_c \sigma_c - \lambda_c N_c \quad (1)$$

Trong phương trình (1), ϕ là thông lượng neutron, σ là tiết diện phản ứng, N là số hạt nhân trong mẫu, λ là hằng số phân rã và γ là xác suất phân hạch. Các chỉ số: “ m ” chỉ thị cho hạt nhân đo, “ c ” chỉ thị cho hạt nhân sản phẩm sau quá trình bắt neutron, “ f ” chỉ thị cho hạt nhân phân hạch và “ h ” chỉ thị cho hạt nhân tạo thành hạt nhân “ c ” do phản ứng ngưỡng của các neutron có năng lượng cao với tiết diện phản ứng σ_h .

Hoạt độ riêng của mẫu là hoạt độ được đo khi kết thúc chiếu, được hiệu chỉnh sự thay đổi hàm lượng của hạt nhân phân rã trong thời gian đo, thời gian rã và thời gian chiếu. Do đó, từ hoạt độ đo được, ta có thể xác định tốc độ phản ứng và do đó hàm lượng của hạt nhân đo, miễn là chúng ta biết chính xác thông lượng neutron và hằng số hạt nhân tương ứng. Như vậy, bài toán còn lại là tính tốc độ phản ứng và các hằng số hạt nhân liên quan.

1.2 Tốc độ phản ứng

Tốc độ phản ứng A khi các hạt neutron đi qua mẫu chứa các hạt nhân được thông số hóa bằng tiết diện phản ứng $\sigma(v)$ - đặc trưng cho hạt nhân và phổ thông lượng neutron $\varphi(v)$ - liên quan đến mật độ số neutron đi qua mẫu $n(v)$ với tốc độ v :

$$\varphi(v) = v n(v) \quad (2)$$

Biểu diễn theo động năng E của neutron (hạt tới) tương đương với tốc độ v ,

$$E = \frac{mv^2}{2} \quad (3)$$

Trong phương trình (3), m là khối lượng neutron, khi đó tốc độ phản ứng sẽ là:

$$A = K \int_0^{\infty} \sigma(E) \varphi(E) dE \quad ; \quad \varphi(1eV) = 1. \quad (4)$$

Hằng số K đảm bảo rằng tích phân $\varphi(E)$ theo năng lượng tạo ra thông lượng neutron toàn phần. Biểu thức tương đương cho tốc độ phản ứng theo vận tốc neutron:

$$A = K \int_0^{\infty} \sigma(v)v \cdot n(v) dv \quad (5)$$

Tích phân có thể chia thành hai phần, một phần đối với năng lượng neutron dưới cadmium (tương ứng với vận tốc neutron v_{cd}) và phần neutron có năng lượng trên nhiệt.

$$A = K \left[\int_0^{E_{cd}} \sigma(E) \varphi(E) dE + \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma_{r,f}(E) \varphi(E) dE \right] \quad (6)$$

Hơn nữa, thông lượng neutron trên nhiệt lại được chia thành phần năng lượng cộng hưởng và phần neutron nhanh (hay neutron phân hạch).

$$\varphi_E(E) = \varphi_r(E) h \varphi_f(E) \quad (7)$$

Thực tế, phần đóng góp của phổ neutron phân hạch trong việc tính tốc độ phản ứng toàn phần là không đáng kể đối với vị trí chiếu neutron được nhiệt hoá tốt. Tuy nhiên, tại các vị trí có thành phần neutron trên nhiệt (epithermal neutrons) cao, đặc biệt trường hợp phổ neutron nhanh (phân hạch) đáng kể, lúc đó phản ứng ngưỡng sẽ đóng góp đáng kể:

$$A = K \left[\int_0^{E_{cd}} \sigma(E) \varphi(E) dE + \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma_r(E) \varphi_r(E) dE + h \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma_f(E) \varphi_f(E) dE \right] \quad (8)$$

Những biểu thức trên được biểu diễn một cách chính xác về mặt vật lý và toán học, tuy nhiên thực tế cả tiết diện và thông lượng neutron không được xác định bằng thực nghiệm một cách đủ chính xác. Việc biểu diễn chi tiết phải tính đến hiệu ứng giãn nở Doppler vì ảnh hưởng nhiệt độ neutron và hiệu ứng tự che chắn neutron.

Không làm mất đi tính tổng quát về mặt vật lý, phương trình tích phân (8) có thể được suy ra dưới dạng biểu thức qua các hằng số [9]:

$$A = \phi_t \sigma_0 g G_{th} + \phi_e (I_0 G_e + J_0 h) = \phi_{th} \sigma_0 \left[g G_{th} + \frac{1}{f} (Q_0 G_e + H_0 h) \right] \quad (9)$$

Trong phương trình (9), các ký hiệu có ý nghĩa như sau:

- ϕ_t - Thông lượng neutron nhiệt;
- ϕ_e - Thông lượng neutron trên nhiệt;
- f - Tỷ số thông lượng neutron nhiệt trên thông lượng neutron trên nhiệt;
- σ_0 - Tiết diện bắt neutron nhiệt;
- g - Hệ số biểu diễn độ lệch của tiết diện nhiệt ra khỏi quy luật $1/v$;
- I_0 - Tích phân cộng hưởng (tiết diện bắt neutron cộng hưởng);
- J_0 - Tích phân phân hạch (tiết diện bắt neutron phân hạch);
- Q_0 = I_0/σ_0 , Tỷ số tích phân cộng hưởng trên tiết diện bắt neutron nhiệt;
- H_0 = J_0/σ_0 , Tỷ số tích phân phân hạch trên tiết diện bắt neutron nhiệt;
- h - Hệ số phổ phân hạch;

- G_{th} - Hệ số suy giảm neutron nhiệt;
 G_e - Hệ số suy giảm neutron trên nhiệt;

Khả năng áp dụng và độ chính xác của biểu thức trên phụ thuộc vào các xấp xỉ gần đúng liên quan đến việc xác định các hằng số hạt nhân.

Phương pháp chuẩn hóa k_0 của NAA dựa vào phép đo tỷ số hoạt độ riêng (và tốc độ phản ứng) của hạt nhân cần xác định và nguyên tố được chọn làm chuẩn thường là vàng (Au), vì nó có tiết diện và tia gamma đã biết chính xác (411.8keV).

Tỷ số giữa hoạt độ riêng của mẫu A_a trên hoạt độ riêng của chuẩn A_s chính là tỷ số của các tốc độ phản ứng, tương ứng, được cho bởi biểu thức như sau:

$$\frac{A_a}{A_s} = k_{0,a} \frac{G_{tf} G_a + G_{e,a} Q_{0,a} + H_{0,a} h}{G_{tf} G_s + G_{e,s} Q_{0,s} + H_{0,s} h} \quad (10)$$

Trong phương trình (10),

$$k_{0,a} = \frac{M_s \theta_a \gamma_a \sigma_{0,a}}{M_a \theta_s \gamma_s \sigma_{0,s}} \quad (11)$$

Các chỉ số “a” và “s” chỉ thị cho mẫu và chuẩn, tương ứng,

- M_x - Khối lượng nguyên tử Mol,
 θ_x - Độ phổ biến đồng vị trong tự nhiên,
 γ_x - Xác suất phát gamma của tia gamma đo được,
 $\sigma_{0,x}$ - Tiết diện bắt neutron nhiệt.

1.3 Các hệ số tiết diện σ_0 , g-Westcott và tự che chắn neutron nhiệt G_{th} :

Sự đóng góp của neutron nhiệt vào tốc độ phản ứng được biểu diễn theo vận tốc:

$$A_{th} = \int_0^{v_{cd}} \sigma(v) \cdot v \cdot n(v) dv \quad (12)$$

Đối với nguyên tố tuân theo quy luật $1/v$ thì tiết diện sẽ được biểu diễn:

$$\sigma(v) = \sigma_0 \frac{v_0}{v} \quad (13)$$

Trong pt (13),

- v_0 - Vận tốc neutron nhiệt, 2200 m/s,
 σ_0 - Tiết diện bắt neutron ở vận tốc v_0 .

Thay vào phương trình (12), ta có:

$$A_{th} = \sigma_0 v_0 \int_0^{v_{cd}} n(v) dv = \sigma_0 v_0 N_t \quad (14)$$

Trong pt (14), N_t là mật độ neutron nhiệt toàn phần, nghĩa là: Tổng số các neutron nhiệt trên đơn vị thể tích - total number of thermal neutrons per unit volume).

Biểu diễn theo năng lượng, tốc độ phản ứng được định nghĩa như sau:

$$A_{th} = \int_0^{E_{cd}} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (15)$$

Thay thế động năng vào pt (13), ta có:

$$\sigma(E) = \sigma_0 \sqrt{\frac{E_0}{E}} \quad (16)$$

Trong đó, E_0 là năng lượng của neutron nhiệt tương ứng với $v_0 = 0,0253$ eV.

Giả sử rằng thông lượng neutron nhiệt có phân bố Maxwell:

$$\phi(E) = E e^{-E/kT} \quad (17)$$

Trong pt (17), k là hằng số Boltzmann, T là nhiệt độ neutron và K là hằng số:

$$A_{th} = K \int_0^{E_{cd}} \sigma(E) E e^{-E/kT} dE \quad (18)$$

Đối với các hạt nhân tuân theo quy luật $1/v$,

$$A_{th} = K \sigma_0 \sqrt{E_0} \int_0^{E_{cd}} \sqrt{E} e^{-E/kT} dE \quad (19)$$

Tiết diện bắt neutron nhiệt trung bình được định nghĩa như sau:

$$\sigma_{th} = \frac{\int \sigma(E) \phi(E) dE}{\int \phi(E) dE} = \frac{K \sigma_0 \sqrt{E_0} \int \sqrt{E} e^{-E/kT} dE}{K \int E e^{-E/kT} dE} \quad (20)$$

Mở rộng giới hạn tích phân từ 0 đến ∞ , thay tích phân ở tử số của pt (20) bằng hàm $\Gamma(3/2)$ và sử dụng mối liên hệ giữa năng lượng và nhiệt độ $E_0 = kT_0$, tiết diện neutron:

$$\sigma_{th} = \frac{K \sigma_0 (kT)^{3/2} \sqrt{kT_0} \sqrt{\pi}/2}{K (kT)^2} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sigma_0 \sqrt{\frac{T_0}{T}} \quad (21)$$

Lưu ý rằng pt (21) chỉ đúng đối với những hạt nhân tuân theo quy luật $1/v$ trong một phổ neutron thuần phân bố Maxwell.

Trong thực tế, tiết diện có thể lệch khỏi quy luật $1/v$ và phổ neutron có thể bị biến dạng (tùy thuộc vào vị trí chiếu) ra khỏi thuần phân bố Maxwell. Tác giả Westcott đã cố gắng điều chỉnh cho những trường hợp hạt nhân có tiết diện không lý tưởng bằng cách giới thiệu hệ số g -Westcott, nhưng vẫn giả sử rằng phổ neutron có phân bố Maxwell. Thậm chí Westcott đã gặp khó khăn khi tách phần đóng góp $1/v$ của tiết diện ra khỏi vùng phía trên của năng lượng cộng hưởng E_{cd} .

Vào thời điểm những năm 1960's khi hình thức luận Westcott được phát triển, kiến thức về hàm tiết diện còn thiếu và việc xác định phổ neutron còn hạn chế, trong đó chủ yếu dựa vào các phương pháp tính giải tích.

Chúng ta có thể giới thiệu một định nghĩa thay thế cho hệ số g -Westcott bằng hệ số g tổng quát để tính tốc độ phản ứng và áp dụng cho các hạt nhân không tuân theo quy luật $1/v$ cũng như đối với phổ neutron bị lệch khỏi phân bố Maxwell. So sánh các pt (6) và (9):

$$\phi_{th} \sigma_0 g G_{th} = K \int_0^{E_{cd}} \sigma(E) \phi(E) dE \quad (22)$$

Một cách tùy ý:

$$\phi_{th} = K \frac{\sqrt{\pi}}{2} \int_0^{E_{cd}} \phi(E) dE \quad (23)$$

Bỏ qua hệ số suy giảm thông lượng neutron nhiệt G_{th} trong thời điểm xem xét (giả sử nó bằng 1), định nghĩa của hệ số g tổng quát sau:

$$g = \frac{\int_0^{E_{cd}} \sigma(E) \phi(E) dE}{\sigma_0 \frac{\sqrt{\pi}}{2} \int_0^{E_{cd}} \phi(E) dE} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{\sigma_{th}}{\sigma_0} \quad (24)$$

Thay thế σ_{th} đối với những hạt nhân tuân theo quy luật $1/v$ trong phổ neutron có phân bố Maxwell, mối liên hệ giữa hệ số g -Westcott (g_w) và g -tổng quát (g) như sau:

$$g_w = \sqrt{\frac{T_0}{T}} g. \quad (25)$$

Ngoài khả năng áp dụng phổ tùy ý, sự khác biệt chính trong định nghĩa hệ số g -tổng quát là giới hạn tích phân trên E_{cd} , thường được lấy là 0,55 eV.

1.4 Tích phân cộng hưởng I_0 , hệ số truyền qua cadmium (F_{cd}) và hệ số Q_0

Tích phân cộng hưởng tham khảo I_0 thường được xác định bằng tiết diện bắt neutron trên nhiệt trong điều kiện phổ neutron lý tưởng tuân theo phân bố thuần $1/E$,

$$I_0 = \int_{E_{cd}}^{E_3} \sigma(E) \omega(E) dE; \quad \omega(E) = \frac{\phi(E)}{E} \quad (26)$$

Tương tự, hệ số Q_0 tham khảo được cho,

$$Q_0 = \frac{I_0}{\sigma_0} \quad (27)$$

Các phép đo phổ neutron thường được thực hiện trong lò phản ứng hạt nhân nghiên cứu, một cách gần đúng tuân theo quy luật $1/E$ trong vùng năng lượng neutron trên nhiệt.

Tiết diện bắt neutron toàn phần của cadmium được biểu diễn trong Hình 1 (Phần a). Tích phân cộng hưởng có thể được tính gần đúng thông qua tốc độ phản ứng I_{cd} .

Việc giới thiệu hàm truyền qua cadmium $t(E)$ - một định nghĩa chính xác hơn về tích phân cộng hưởng đo được dưới lớp vỏ bọc cadmium I_{cd} trong phổ neutron thực $\phi^*(E)$:

$$I_{cd} = \int_0^{\infty} t(E) \sigma(E) \phi^*(E) dE \quad (28)$$

Phương trình (28) giảm xuống đến mức lý tưởng nếu vùng tích phân được giới hạn từ cận dưới E_{cd} đến cận trên E_3 , phổ neutron trên nhiệt thuần dạng $1/E$ và $t(E)$:

$$t(E) = \begin{cases} 0 & \text{đối với } E < E_{cd} \\ 1 & \text{đối với } E \geq E_{cd} \end{cases} \quad (29)$$

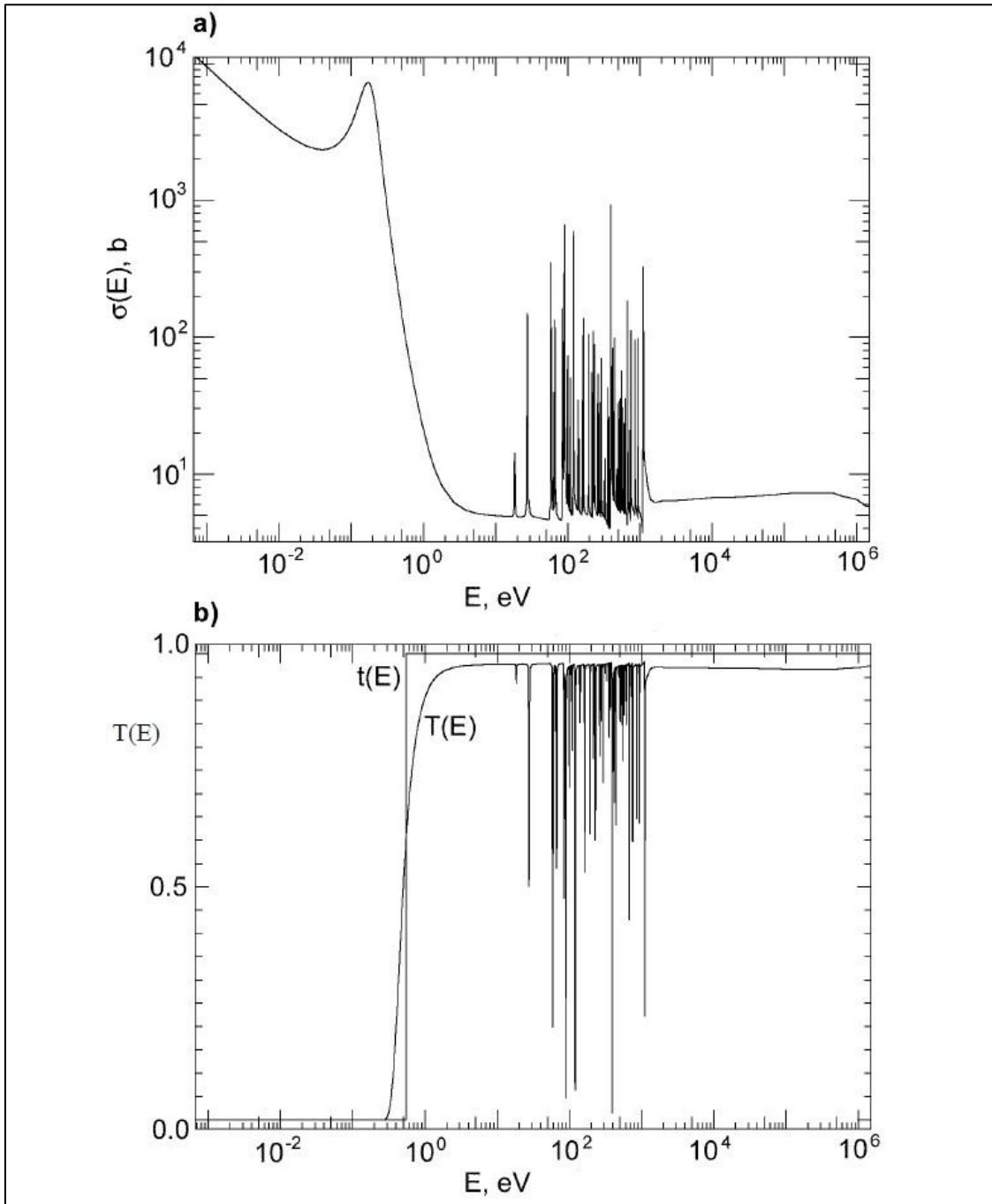
Một dạng thực tế hơn của hàm truyền qua cadmium thu được bằng cách giả sử sự suy giảm theo hàm mũ của neutron đi qua vỏ bọc cadmium:

$$t(E) = e^{-N_{cd}d\sigma_{cd}(E)} \quad (30)$$

Trong đó, d là bề dày lớp vỏ bọc cadmium, σ_{cd} là tiết diện bắt neutron của cadmium và N_{cd} là mật độ số nguyên tử cadmium trong lớp vỏ bọc. Nó được tính như sau:

$$N_{cd} = \frac{\rho_{cd}N_A}{M_{cd}} \quad (31)$$

Trong đó ρ_{cd} là mật độ cadmium, N_A là số Avogadro và M_{cd} khối lượng nguyên tử Mol của cadmium.



Hình 1. a) Tiết diện bắt neutron toàn phần của vật liệu cadmium; b) Hàm truyền qua cadmium đối với vỏ bọc Cd có bề dày 1 mm.

Đối với chùm neutron hẹp chiếu vào một bia nhỏ, sử dụng tiết diện toàn phần của cadmium σ_{cd} , hàm truyền qua cadmium sẽ được tính một cách chính xác.

$$I = \int_{E_{cd}}^{E_3} \sigma(E) \phi(E) dE = \frac{1}{F_{cd}} \int_0^{\infty} t(E) \sigma(E) \phi(E) dE \quad (32)$$

Từ pt (32), ta suy ra,

$$F_{cd} = \frac{\int_0^{\infty} t(E) \sigma(E) \phi(E) dE}{\int_{E_{cd}}^{E_3} \sigma(E) \phi(E) dE} \quad (33)$$

Độ lệch của giá trị F_{cd} ra khỏi đơn vị (=1) phát sinh từ hàm truyền qua cadmium và sự khác biệt trong việc lấy giới hạn tích phân cận trên.

Trong các cơ sở dữ liệu NAA, có rất ít hạt nhân có hệ số F_{cd} khác đơn vị (=1). Ví dụ, giá trị được dùng phổ biến đối với ^{186}W là $F_{cd} = 0,908$ [5].

Với tích phân cộng hưởng được xác định duy nhất, giá trị Q cho phổ neutron tổng quát cũng có thể được xác định theo cách tương tự với phương trình (27):

$$Q = \frac{I}{\sigma_0} \quad (34)$$

Giá trị Q_0 tham khảo cho phổ $1/E$ lý tưởng đã được xác định bởi phương trình (27).

2.5 Hệ số tự che chắn neutron cộng hưởng G_f

Trong trường hợp không có chất hấp thụ mạnh trong lò, phổ neutron là một hàm theo năng lượng và là một hàm trơn. Khi các chất hấp thụ cộng hưởng hiện diện với số lượng đáng kể, các cộng hưởng có xu hướng tạo ra các độ dốc trong phổ neutron.

$$\phi^*(E) = \frac{\sigma_0 + \lambda \sigma_p(E)}{\sigma_0 + \lambda \sigma_a(E) + \sigma_s(E)} \phi(E) \quad (35)$$

Trong pt (35):

- σ_0 - Tiết diện nền Bondarenko là số đo độ pha loãng hiệu dụng của vật liệu hấp thụ cộng hưởng,
- σ_a - Tiết diện hấp thụ của vật liệu hấp thụ cộng hưởng,
- σ_s - Tiết diện tán xạ của vật liệu hấp thụ cộng hưởng,
- σ_p - Tiết diện tán xạ thể của vật liệu hấp thụ cộng hưởng,
- λ - Tham số Goldstein-Cohen – “số đo” độ rộng cộng hưởng,
- $\phi(E)$ - Phổ trơn (không bị nhiễu loạn bởi các cộng hưởng).

Lý thuyết cộng hưởng dựa trên giả định rằng nguyên tử hấp thụ được bao quanh bởi một vật liệu làm chậm có tiết diện xấp xỉ là hằng số,

$$\sigma_0 = \frac{1}{N_a} \sum_i N_i \lambda_i \sigma_i \quad (36)$$

Trong pt (36),

- Na - Mật độ số nguyên tử hấp thụ Na,
 Ni - Mật độ số Ni của hạt nhân điều hành thứ i,
 σ_i - Tiết diện bắt neutron của hạt nhân làm chậm thứ i,
 λ_i - Tham số (liên quan đến tham số Goldstein-Cohen) đo lường độ hiệu dụng của vật liệu làm chậm. Theo định nghĩa, $\lambda_i = 1$ đối với hydro.

Suy diễn ở trên có thể áp dụng cho môi trường đồng nhất vô hạn, nhưng các mẫu kích hoạt có kích thước hữu hạn.

$$\sigma_0 = \frac{1}{N_a} [\Sigma_e + \sum_i N_i \lambda_i \sigma_i] \quad (37)$$

Tiết diện thoát được biểu diễn một cách đơn giản như sau:

$$\Sigma_e = \frac{a}{l} \quad (38)$$

Ở đây,

a - Hệ số Bell (luôn luôn được giả định là hằng số có giá trị =1.16),

l - độ dài quãng đường trung bình.

Độ dài quãng đường trung bình cho một thể tích V được cho bởi,

$$l = \frac{4V}{S} \quad (39)$$

Trong đó, V là thể tích và S là diện tích bề mặt.

Hệ số tự che chắn neutron trên nhiệt mô tả ảnh hưởng của sự hấp thụ cộng hưởng có thể được xác định bởi:

$$G_f = \frac{\int_{E_{cd}}^{E_3} \sigma(E) \phi^*(E) dE}{\int_{E_{cd}}^{E_3} \sigma(E) \phi(E) dE} \quad (40)$$

2.6 Năng lượng cộng hưởng hiệu dụng \bar{E}_r

Tích phân cộng hưởng I_0 và hệ số Q_0 phụ thuộc vào dạng phổ neutron trên nhiệt.

$$\phi(E) \sim \frac{1}{E^{1+\alpha}} \quad (41)$$

Trong pt (41), α là hằng số biểu diễn độ lệch phổ neutron trên nhiệt ra khỏi dạng $1/E$; Giả sử các cộng hưởng có thể biểu diễn bằng công thức Breit-Wigner, hệ số $Q_0(\alpha)$:

$$Q_0(\alpha) = \frac{Q_0 - 0.429}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0.429}{E_{cd}^\alpha (2\alpha + 1)} (1eV)^\alpha \quad (42)$$

Bằng cách đảo ngược phương trình (42), biểu thức tính năng lượng cộng hưởng hiệu dụng phụ thuộc và độ lệch phổ neutron trên nhiệt $\bar{E}_r(\alpha)$. Ta thu được [5,6]:

$$\bar{E}_r(\alpha) = \left\{ \frac{Q_0 \times 0.429}{Q_0(\alpha) - \frac{0.429}{E_{cd}^\alpha (2\alpha + 1)}} \right\}^{1/\alpha} \quad (43)$$

Năng lượng cộng hưởng hiệu dụng được tính qua tích phân như sau:

$$\bar{E}_r = \frac{1}{\alpha_{hi} - \alpha_{lo}} \int_{\alpha_{lo}}^{\alpha_{hi}} \bar{E}_r(\alpha) d\alpha \quad (43)$$

Giới hạn tích phân α_{hi} và α_{lo} là cận trên +0.1 và cận dưới -0.1, tương ứng.

2.7 Sự đóng góp của phổ phân hạch vào tốc độ phản ứng

Phổ phân hạch tích phân có thể được biểu diễn một cách toán học như sau:

$$J = \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi_h(E) dE = \frac{1}{h} \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) [\phi_e(E) + h\phi_h(E)] dE - \frac{1}{h} \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \phi_e(E) dE \quad (44)$$

Phần phổ phân hạch h phụ thuộc vào việc chuẩn hóa phổ.

$$\frac{A_a}{A_s} = k_{0,a} \times \frac{I_a + J_a h}{G_{thf} g_s + G_{f,s} Q_{0,s} + H_s h} \quad (45)$$

Trong đó,

$$k_{0,a} = \frac{M_s \theta_a \gamma_a}{M_a \theta_s \gamma_s \sigma_{0,s}} \quad (46)$$

III. KẾT LUẬN

Các phản ứng hạt nhân trong NAA được xem xét một cách tổng thể, trong đó, các neutron ở những vùng năng lượng khác nhau: neutron nhiệt, neutron trên nhiệt và neutron nhanh, tạo ra các hoạt độ phóng xạ đóng góp vào tổng hoạt độ phóng xạ của hạt nhân tạo thành với những lượng khác nhau đã được phân tích và đánh giá. Phản ứng hạt nhân được quan tâm chủ yếu trong NAA là phản ứng (n, γ) , tuy nhiên, những phản ứng ảnh hưởng (nhiều) như các phản ứng ngưỡng (n, p) cũng được quan tâm.

Khi tổng quan các phản ứng hạt nhân, tốc độ phản ứng và mối liên hệ của chúng với các số liệu hạt nhân cơ bản đã được xem xét.

Sau cùng, việc tổng quan các phản ứng hạt nhân trong NAA - phân tích mối liên hệ giữa các phản ứng hạt nhân với các số liệu hạt nhân cơ bản (hệ số k_0 , Q_0 , năng lượng cộng hưởng hiệu dụng \bar{E}_r và các số liệu liên quan khác).

Vì vậy, việc tổng quan về các phản ứng hạt nhân trong NAA là cần thiết và bổ ích nhằm phát triển phương pháp luận NAA và xây dựng những phương pháp xác định thực nghiệm phù hợp cho việc hiệu chỉnh những phản ứng hạt nhân ảnh hưởng (nhiều) từ đó nâng cao độ chính xác của các kết quả phân tích [10,11].

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Simonits A, De Corte F, Hoste J (1975) Single-comparator methods in reactor neutron-activation analysis. J Radioanal Chem 24:31-46.
2. De Corte F (1987) In: The k_0 -standardization method: a move to the optimization of neutron activation analysis. Aggregate Thesis, Gent University, Belgium.
3. Ho Manh Dung, Pham Duy Hien, Application and development of k_0 -standardization method of neutron activation analysis at Dalat research reactor, J Radioanal Nucl Chem 257 (2003) 643-647.

4. Jovanovic S, De Corte F, Simonits A, Moens L, Vukotic P, Hoste J (1987) The effective resonance energy as a parameter in (n, γ) activation analysis with reactor neutrons. J Radioanal Nucl Chem 113:177–185.
5. M. Blaauw: The Derivation and Proper Use of Stewart's Formula for Thermal Neutron Self-Shielding in Scattering Media, Nucl. Sci. Eng., 124, 431 (1996).
6. De Corte F, Simonits A (1989) k_0 -measurements and related nuclear-data compilation for (n, γ) reactor neutron-activation analysis. J. Radioanal Nucl Chem 133:43–130.
7. De Corte F, Van Lierde S (2001) Determination and evaluation of fission k_0 -factors for correction of the U-235(n, f) interference in k_0 -NAA. J Radioanal Nucl Chem 248:97–101.
8. De Corte F, Simonits A (2003) Recommended nuclear data for use in the k_0 standardization of neutron activation analysis. At Data Nucl Data Tables 85:47–67.
9. A. Simonits, F. De Corte, T. El Nimr, L. Moens, J. Hoste: Comparative study of measured and critically evaluated resonance integral to thermal cross-section ratios, Part II, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 81 (1984) 397.

NUCLEAR REACTIONS IN REACTOR NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

HO MANH DUNG

Center for Nuclear Techniques, 217 Nguyen Trai Street, District 1, Ho Chi Minh City
E-mail: homdung@yahoo.com

Abstract: Overview of nuclear reactions in neutron activation analysis (NAA), especially on research reactors using the k_0 -standardized method (k_0 -NAA) has been performed and presented in the report. Nuclear reactions caused by neutrons in different energy regions: thermal neutrons, epithermal neutrons and fast neutrons or fission neutrons, contributing to the total radioactivity formed with different amounts have been analyzed and evaluated. The nuclear reaction being of primary interest in NAA is the (n, γ) reaction, however, the interference reactions such as threshold reaction (n, p) are also of interest. Once reviewing nuclear reactions, the reaction rate and their relationship with basic nuclear data have also been considered. In addition, the assessment of uncertainty of the nuclear data, the source of errors and the uncertainty propagation to the reaction rate have also been identified. Finally, the review of nuclear reactions in NAA - analyzing the relationship between nuclear reactions and basic nuclear data (k_0 , Q_0 , effective resonance energy \bar{E}_r and related data). Therefore, an overview of nuclear reactions in NAA is necessary and useful to develop the NAA methodology and to establish the appropriate experimental methods for the correction of interference nuclear reactions, thereby improving the accuracy of the analytical results.

Keywords: *Neutron activation analysis; k_0 -standardized method; nuclear reactions; interference reactions; reaction rate.*