

ĐÁNH GIÁ ẢNH HƯỞNG CỦA HIỆU ỨNG THỜI GIAN CHẾT TRONG PHÂN TÍCH KÍCH HOẠT NEUTRON LẶP VÒNG

HỒ VĂN DOANH¹, HỒ MẠNH DŨNG²

¹*Viện Nghiên cứu Hạt nhân, 01 Nguyễn Tử Lực, Tp. Đà Lạt, Tỉnh Lâm Đồng*

²*Trung Tâm Hạt nhân, 217 Nguyễn Trãi, Quận 1, TP. Hồ Chí Minh*

Email: hovandoanh@gmail.com

Tóm tắt: Trong nghiên cứu này, ảnh hưởng của hiệu ứng thời gian chết trong phân tích kích hoạt neutron lặp vòng (CNAA) đã được đánh giá bằng phương pháp thực nghiệm trên Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt. Các hệ số hiệu chỉnh sau khi được xác định, đã được sử dụng trong việc xác định một số nguyên tố thông qua các hạt nhân sống ngắn như ^{46m}Sc (18,75 giây), ^{179m}Hf (18,67 giây), ^{165m}Dy (75,42 giây), ⁵²V (3,74 phút) và ⁵¹Ti (5,76 phút). Sau hiệu chỉnh, kết quả phân tích đã được cải thiện đáng kể khi so sánh trước và sau khi hiệu chỉnh cũng như giữa giá trị hàm lượng xác định và giá trị phê chuẩn của vật liệu chuẩn tham khảo NIST-SRM-2711A. Kết quả cho thấy phương pháp hiệu chỉnh thực hiện trong nghiên cứu này có thể áp dụng trong những trường hợp thời gian chết lên đến 50% trong phân tích kích hoạt neutron lặp vòng tại Kênh 13-2 và Cột nhiệt Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt.

Từ khóa: Thời gian chết, Phân tích kích hoạt neutron, Kích hoạt lặp vòng, CNAA.

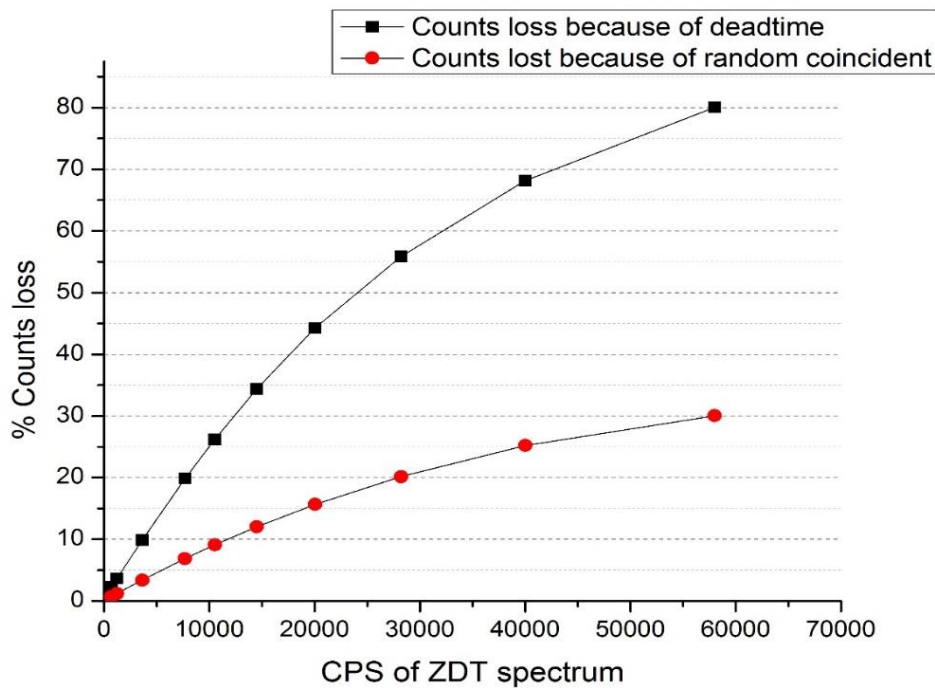
GIỚI THIỆU

Nhiều phương pháp đã từng được phát triển trong quá khứ để khôi phục sự mất số đếm do thời gian chết. Các phương pháp này bao gồm “live-time clocks” (LTC) và “loss-free counting” (LFC). Kỹ thuật mở rộng LTC hiệu chỉnh bằng cách kéo dài thời gian đo để bổ sung phần số đếm bị mất. Kỹ thuật này cho kết quả chính xác đối với thời gian chết nhỏ hơn 10% và mẫu đo có tốc độ đếm tổng hầu như không thay đổi suốt quá trình đo. Trong khi đó, kỹ thuật LFC cho kết quả tốt hơn đối với mẫu đo có hoạt độ cao và tốc độ đếm thay đổi đáng kể suốt khoảng thời gian ghi nhận. Tuy nhiên, phương pháp LFC không tính được sai số của diện tích đỉnh. Do đó, kỹ thuật “zero dead-time” (ZDT) được phát triển nhằm khắc phục nhược điểm trên, kỹ thuật ZDT có khả năng hiệu chỉnh số đếm bị mất khi đo mẫu hoạt độ cao và thay đổi nhanh trong quá trình đo, đồng thời tính toán được sai số của diện tích đỉnh [1-3].

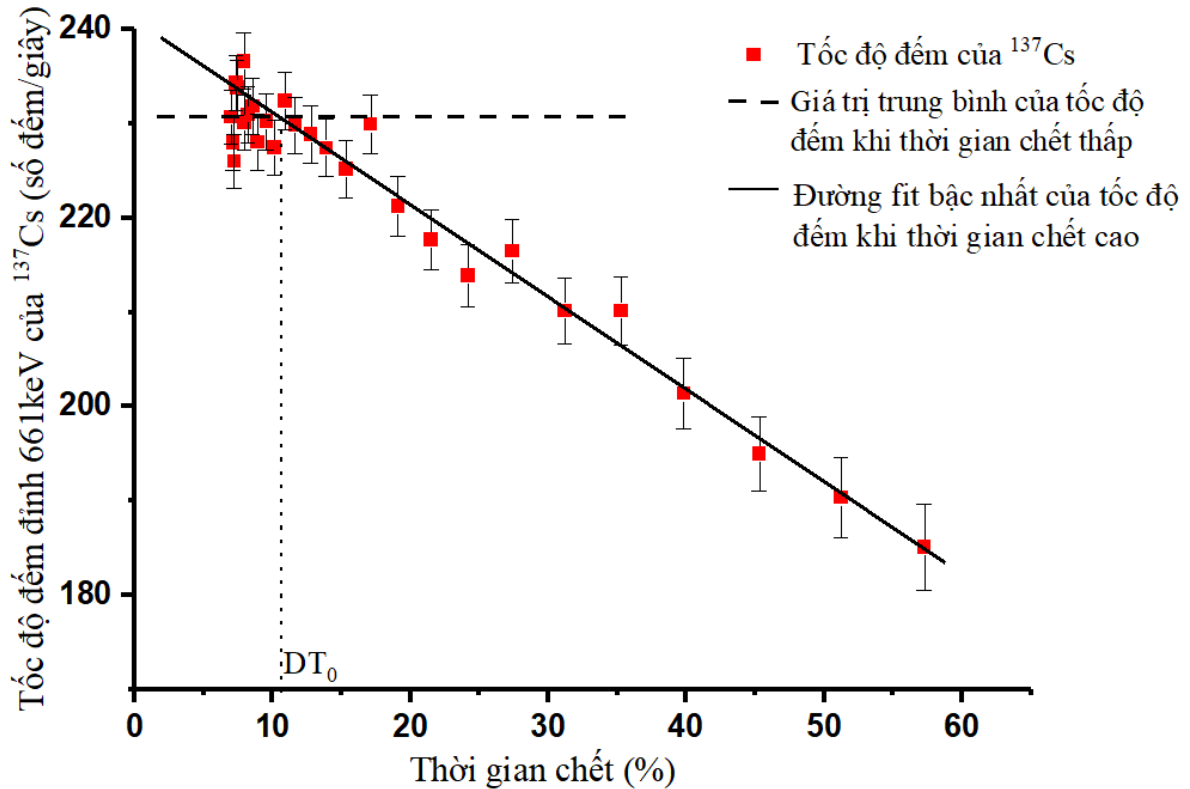
Trong phân tích kích hoạt neutron (NAA), hoạt độ của mẫu ngay sau khi kích hoạt ở các kênh chiếu trên Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt (LPUĐL) thường rất lớn. Đối với NAA sử dụng các hạt nhân sống ngắn, mẫu cần được đo ngay hoặc để rã chỉ trong một khoảng thời gian rất ngắn khoảng 1 ÷ 2 chu kỳ bán rã ($T_{1/2}$) của đồng vị quan tâm. Điều này dẫn đến thời gian chết của hệ đo rất lớn. Thời gian chết khoảng 10 ÷ 20% khi đo để xác định nhóm các hạt nhân sống ngắn như ²⁸Al, ⁵¹Ti, ⁵²V, ⁴⁹Ca và ²⁷Mg có chu kỳ bán rã khoảng 2 ÷ 10 phút. Thời gian chết khoảng 20 ÷ 50% khi đo để xác định nhóm các hạt nhân có chu kỳ bán rã ngắn hơn như ^{77m}Se, ¹¹⁰Ag, ^{179m}Hf và ^{46m}Sc có chu kỳ bán rã khoảng 10 ÷ 30 giây. Ngoài ra, khi áp dụng kỹ thuật kích hoạt neutron lặp vòng (CNAA), mẫu được chiếu và đo lại nhiều lần để tích lũy số đếm, cũng đồng nghĩa với việc hoạt độ tổng của mẫu tăng liên tục

dẫn đến thời gian chết rất cao, do đó một phần số đếm không được ghi nhận bởi hệ đo. Vì vậy, việc hiệu chỉnh mất số đếm do thời gian chết cao trong kích hoạt neutron lặp vòng cần phải được thực hiện.

Các hệ phổ kế gamma đều có sự mất số đếm trong khi ghi nhận tín hiệu, điều này gây ra bởi quá trình xử lý xung của các khối điện tử. Thông thường, số đếm bị mất gây ra bởi thời gian chết (DT) và chồng chập sự kiện trong đầu dò. Hệ đo cần một khoảng thời gian nhất định để xử lý mỗi tín hiệu tới đầu dò, do đó nếu tín hiệu thứ hai tới đầu dò trong khi tín hiệu thứ nhất đang được xử lý thì tín hiệu thứ hai sẽ bị mất đi. Hiện tượng này được gọi là sự mất số đếm do hiệu ứng thời gian chết. Trường hợp mà hai tín hiệu xuất hiện đồng thời hoặc liên sát nhau thì năng lượng của cả hai tín hiệu được cộng vào nhau, trường hợp này số đếm của cả hai tín hiệu đều bị mất do hiệu ứng chồng chập sự kiện trong đầu dò [4,5]. Dấu hiệu nhận biết có sự chồng chập sự kiện trong đầu dò là số đếm của các kênh ở phần bên phải của đỉnh phổ tăng lên so với đỉnh phổ bình thường. Hình 1 cho thấy kết quả khảo sát sự mất số đếm của hệ phổ kế dùng đầu dò GMX-4076 gây ra bởi thời gian chết cao và chồng chập sự kiện trong đầu dò. Hệ phổ kế sử dụng đầu dò GMX-4076 gắn với hệ chuyển mẫu khí nén Kênh 13-2 trên Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt được dùng để đo các mẫu kích hoạt lặp vòng cho việc xác định các hạt nhân sống ngắn.



Hình 1: Kết quả khảo sát sự mất số đếm theo hoạt độ tổng của mẫu theo thời gian chết và chồng chập sự kiện trong đầu dò đối với hệ GMX-4076



Hình 2: Sự phụ thuộc của tốc độ đếm đỉnh vào thời gian chết của hệ GMX-4076

Sự phụ thuộc tốc độ đếm vào thời gian chết của đầu dò GMX-4076 đã được khảo sát trong nghiên cứu này. Kết quả cho thấy rằng khi đo mẫu ở thời gian chết nhỏ hơn 10% thì tốc độ đếm đỉnh gần như không thay đổi nhiều, nghĩa là số đếm không bị mất đáng kể khi đo ở thời gian chết thấp. Tuy nhiên, khi đo ở thời gian chết lớn hơn 10%, tốc độ đếm của đỉnh giảm tuyến tính theo thời gian chết tăng như hình 2. Từ kết luận trên, số đếm bị mất do chồng chập sự kiện trong đầu dò khi đo ở thời gian chết cao có thể hiệu chỉnh bởi hệ số hiệu chỉnh (HSHC) được xác định bằng thực nghiệm [6]:

$$HSHC = \frac{1}{1 - a \cdot (DT - DT_0)}$$

Trong đó: Tích $a \cdot (DT - DT_0)$ biểu thị phần số đếm bị mất do chồng chập sự kiện trong đầu dò. DT là thời gian chết ứng với từng phổ đo, DT_0 là giá trị thời gian chết tối đa của hệ đo khi không cần hiệu chỉnh hiệu ứng chồng chập sự kiện trong đầu dò (có giá trị khoảng 10%), a là giá trị đặc trưng cho sự phụ thuộc của phần số đếm bị mất vào thời gian chết. Giá trị DT_0 được xác định từ giao điểm của đường làm khớp bậc nhất của các tốc độ đếm khi thời gian chết cao (>10%) với đường thẳng biểu thị giá trị trung bình của tốc độ đếm ở thời gian chết thấp (hình 2). Giá trị a được tính từ độ dốc của đường làm khớp bậc nhất của tốc độ đếm khi thời gian chết cao.

THỰC NGHIỆM

Thí nghiệm được thực hiện trên hệ kích hoạt neutron lặp vòng sử dụng đầu dò GMX-4076 gắn với hệ chuyển mẫu khí nén Kênh 13-2 trên LPUĐL. Đầu dò GMX-4076 của hãng ORTEC với hiệu suất tương đối 40%, độ phân giải ~760 eV tại đỉnh 5,9 keV của ⁵⁶Fe, độ phân giải ~2,0

keV đối với đỉnh năng lượng 1,33 MeV của ^{60}Co . Bộ tiền khuếch đại xóa bằng transistor phù hợp cho việc đo với tốc độ đếm cao, biến đổi nhanh, và khối điện tử xử lý tín hiệu kỹ thuật số (DSPEC Pro). Các lá dò nhôm (Al), Scandium (Sc), vàng (Au), Dysprosium (Dy) và nguồn chuẩn ^{137}Cs được sử dụng trong nghiên cứu này như trình bày trong Bảng 1.

Bảng 1: Thông tin của các lá dò dùng trong thực nghiệm

Lá dò	Dạng	Đường kính (mm)	Bề dày dạng lá (mm)	Chiều dài dây trung bình (mm)	Khối lượng trung bình (mg)	Khối lượng riêng (g/cm^3)
0,1% Au-Al	Lá	5,44	0,100	-	6,268	2,7
99,9% Sc	Lá	2,21	0,127	-	1,448	3,0
99,9% Al	Dây	1,00	-	1,397	2,960	2,7
1% Dy-Al	Dây	0,50	-	2,010	1,065	2,7

Các bộ lá dò được kích hoạt và đo nhiều phổ liên tiếp để có thể nghiên cứu sự phụ thuộc của tốc độ đếm theo các thời gian chết khác nhau. Mẫu được kích hoạt sao cho thời gian chết đạt 90%, sau đó mẫu được đo nhiều lần ứng với thời gian chết giảm dần xuống dưới 10%, mỗi phổ được đo trong khoảng thời gian 5 phút và được xử lý để tính diện tích đỉnh của hạt nhân quan tâm. Sau khi hiệu chỉnh thời gian rẽ đối với từng phổ, ta thu được số đếm của các phép đo rồi so sánh với giá trị số đếm ở thời gian chết thấp $DT < 10\%$ (xem như giá trị chuẩn, số đếm không sai khi $DT < 10\%$).

KẾT QUẢ

Giá trị DT_0 biểu thị thời gian chết cao nhất có thể đo mà không thực hiện hiệu chỉnh chồng chập sự kiện trong đầu dò được trình bày trong Bảng 2. Kết quả cho thấy DT_0 của hệ đo sử dụng detector GMX-4076 có giá trị bằng khoảng 10% và có xu hướng giảm khi năng lượng của đỉnh gamma tăng. Nguyên nhân có thể là do đầu dò khi xử lý một tín hiệu có năng lượng cao cần nhiều thời gian hơn khi xử lý tín hiệu có năng lượng thấp vì thế hiện tượng chồng chập sự kiện trong đầu dò dễ xảy ra hơn đối với tia gamma năng lượng cao.

Bảng 2: Kết quả xác định giá trị DT_0

Hạt nhân	Số bộ dữ liệu	E (keV)	DT_0 (%)	DT_0 (%) trung bình
^{46m}Sc	5	142,5	$11,7 \pm 1,8$	$9,9 \pm 1,1$
^{198}Au	2	411,8	$11,6 \pm 2,6$	
^{137}Cs	1	661,7	$9,7 \pm 2,6$	
^{28}Al	4	1778,9	$7,4 \pm 1,8$	

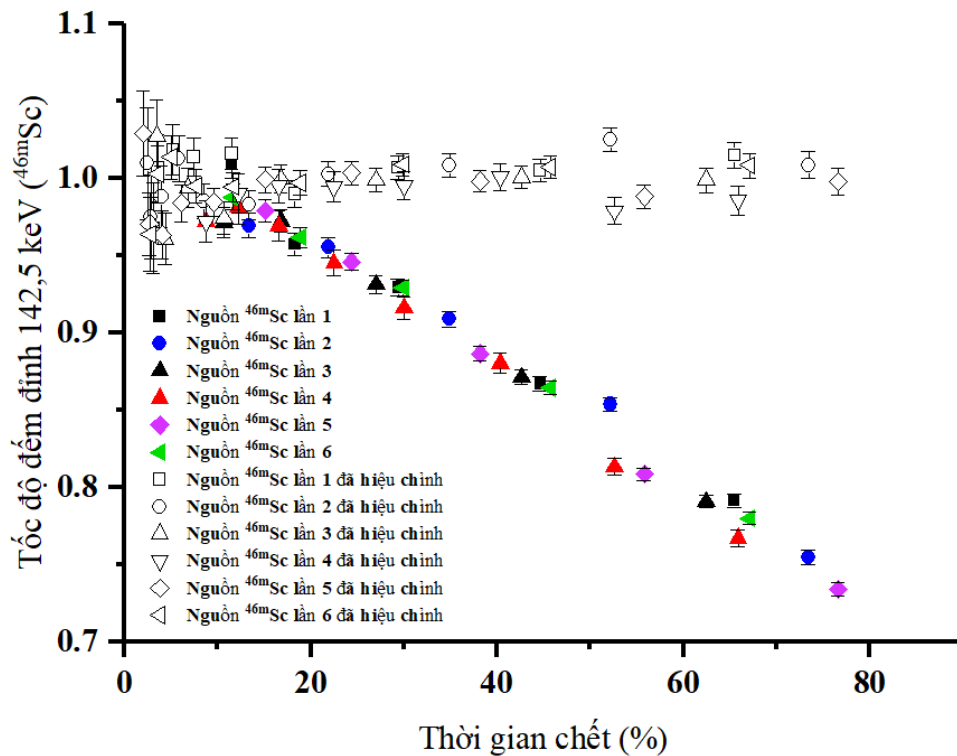
Hệ số a biểu thị cho phần số đếm bị mất do chồng chập sự kiện trong đầu dò khi thời gian chết của phổ đo tăng thêm một đơn vị. Kết quả tính hệ số a được trình bày trong Bảng 3.

Kết quả trong Bảng 3 cho thấy hệ số a hầu như không phụ thuộc vào loại nguồn và năng lượng tia gamma được đo, điều này cho thấy khả năng áp dụng của công thức hiệu chỉnh trên cho các dạng nguồn phức tạp hơn. Giá trị trung bình 0,00397 của a có ý nghĩa là khi thời gian chết của phổ đo tăng 1% thì số đếm bị mất 0,397% do chồng chập sự kiện trong đầu dò.

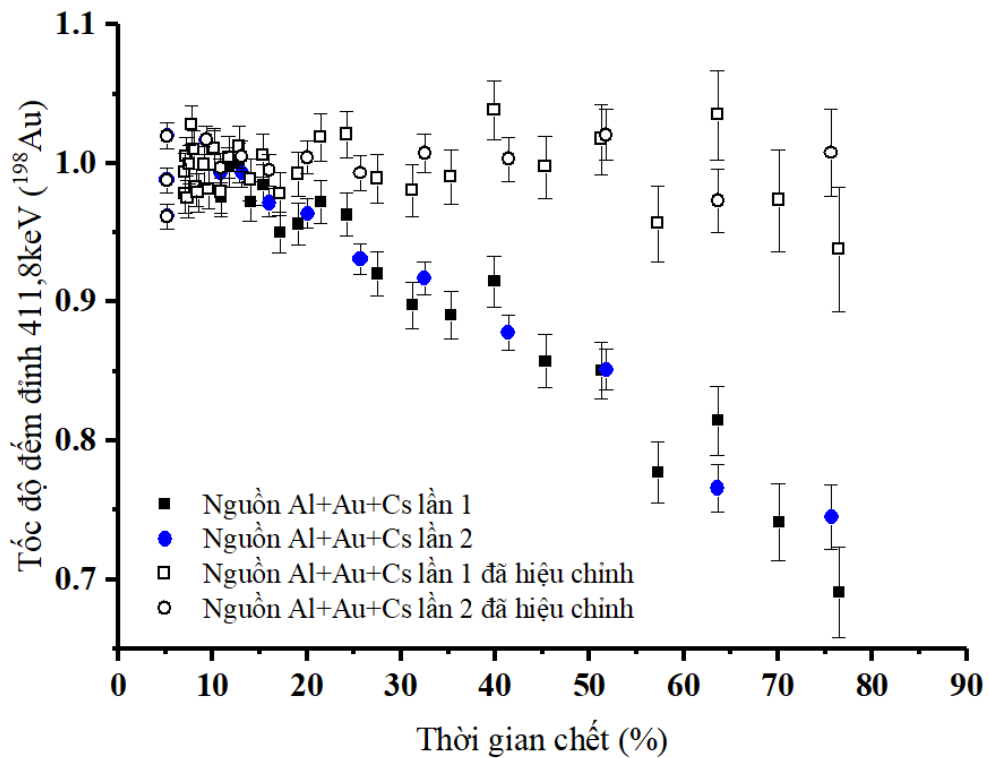
Bảng 3: Kết quả tính toán hệ số a cho hiệu chỉnh chồng chập sự kiện trong đầu dò

Bộ lá dò	E (keV)	Hệ số a
Al+Dy	108,2	0,00367±0,00022
Al	1778,9	0,00390±0,00007
Cs+Al+Au	661,7	0,00397±0,00019
Cs+Al+Au	411,8	0,00398±0,00014
Al+Au+Cs+Al+Dy	1778,9	0,00400±0,00008
Sc+Al	142,5	0,00401±0,00008
Hệ số a trung bình		0,00397±0,00004

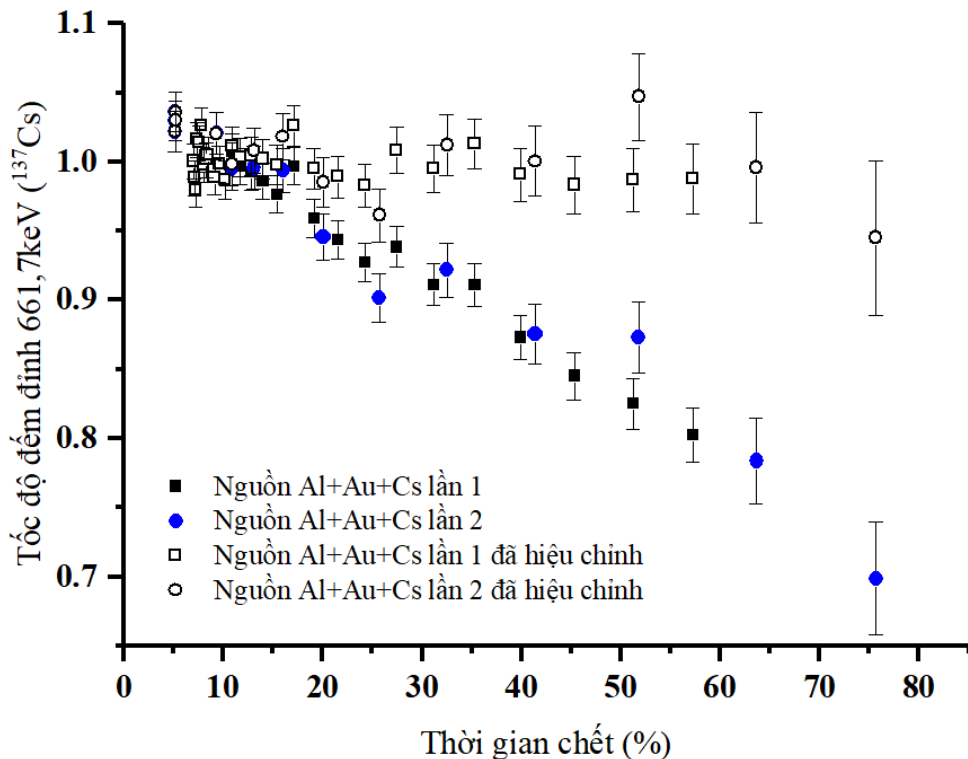
Kết quả tính tốc độ đếm đã hiệu chỉnh hiệu ứng chồng chập sự kiện trong đầu dò với giá trị DT_0 và hệ số a được trình bày từ Hình 2 đến Hình 4. Kết quả cho thấy sau khi hiệu chỉnh thì độ chính xác của tốc độ đếm đỉnh được cải thiện đáng kể, có thể hiệu chỉnh ở thời gian chết lên đến 50%.



Hình 2: Sự thay đổi tốc độ đếm đỉnh 142,5 keV ^{46m}Sc theo thời gian chết.



Hình 3: Sự thay đổi tốc độ đếm đỉnh 411,8 keV ¹⁹⁸Au theo thời gian chết.



Hình 4: Sự thay đổi tốc độ đếm đỉnh 661,7 keV ¹³⁷Cs theo thời gian chết.

Bảng 4 là kết quả phân tích của mẫu chuẩn NIST-SRM-2711a (Montana II Soil) được xác định bằng phân tích kích hoạt neutron lặp vòng sau khi đã hiệu chỉnh hiệu ứng thời gian chết. Mẫu này có khối lượng khoảng 150 mg được chiếu lặp vòng ở Cột nhiệt của LPUĐL. Mẫu được chiếu 60 giây, để rã 10,35 giây, đo 60 giây và lặp lại 4 vòng lặp. Thời gian chết của các phổ đo được tăng từ 32,43% đến 62,03%.

Bảng 4: Giá trị hàm lượng mg/kg xác định bằng CNAА so với giá trị chứng nhận (GTCN) của mẫu NIST-SRM-2711A khi đo ở thời gian chết cao.

NT.	T _{1/2} (s)	E (keV)	KQPT	GTCN	sai khác	Zeta- Score
Dy	75,42	108	4,8±0,5	5	-4,3%	-0,27
Sc	18,75	143	7±0,7	8,5±0,1	-18%	-2,07
Hf	18,7	214	10,3±1	9,2±0,2	12%	1,11
Ti	345,6	320	3689±529	3170±80	16%	0,97
V	225	1434	76,7±4,4	80,7±5,7	-5%	-0,56

Kết quả trong Bảng 4 cho thấy độ sai lệch giữa giá trị hàm lượng xác định được so với giá trị chứng nhận là không quá 18%. Kết quả này có thể chấp nhận được trong phép đo các hạt nhân sống ngắn với kỹ thuật CNAА ứng với thời gian chết lên đến 50%.

KẾT LUẬN

Kết quả cho thấy DT₀ (thời gian chết không cần hiệu chỉnh) của hệ phổ kế sử dụng đầu dò GMX-4076 gắn với hệ chuyển mẫu khí nén Kênh 13-2 trên LPUĐL có giá trị trung bình là 9,9%. Giá trị này có xu hướng giảm khi năng lượng của đỉnh gamma tăng. Hệ số a trong công thức hiệu chỉnh hầu như không phụ thuộc vào loại nguồn và năng lượng tia gamma được đo. Điều này cho thấy khả năng áp dụng của công thức hiệu chỉnh trình bày trong bài báo này đối với các dạng nguồn phức tạp hơn, phù hợp với các nền matrix trong mẫu đo trong thực tế. Đối với mẫu sau kích hoạt có hoạt độ phóng xạ cao, sau khi hiệu chỉnh thì kết quả có độ chính xác được cải thiện đáng kể và hầu như không phụ thuộc nhiều vào thời gian chết của hệ đo và có thể thực hiện đo ở thời gian chết lên đến 50%. Kết quả này giúp cho việc áp dụng kỹ thuật kích hoạt neutron lặp vòng có thể được thực hiện trong trường hợp thời gian chết cao và mở ra khả năng ứng dụng để xác định các hạt nhân sống ngắn trong mẫu địa chất.

Lời cảm ơn: Nhóm tác giả xin chân thành cảm ơn Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) thông qua đề tài mã số: 103.04-2017.75, tên đề tài: “Đánh giá các số liệu hạt nhân của các nguyên tố quan tâm trong k₀-NAA”, 2018-2019, do TS. Hồ Mạnh Dũng làm chủ nhiệm, đã tài trợ kinh phí cho nghiên cứu này.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Gordon, R. G. (2008), Practical Gamma-ray Spectrometry 2nd Edition, Gordon R. Gilmore Nuclear Training Services Ltd Warrington, UK.
- [2] Westphal, G. P. (1977), Nuclear Instrument and Method In Physis, 605 – 606.
- [3] G.P. Westphal, H. Lemmel, The perfection of loss-free counting, in, JRNC, 2008, pp. 601-607.
- [4] Gedcke, D. A. (2003), ORTEC Application Note AN59, Simply Managing Dead Time Errors in Gamma-Ray Spectrometry.
- [5] H.A. Das, E.K.H. Akaho, Dead time based correction for the combined electronic losses in INAA based on short-lived radionuclides, Journal of trace and microprobe techniques, (2003) 601-607.
- [6] Robert R. Greeberg, Peter Bode, Neutron activation analysis_A primary method of measurement, Spectrochimica Acta, (2011) 193-241.

CORRECTION OF DEAD TIME AFFECTS FOR CYCLIC NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS

VAN DOANH HO¹, MANH DUNG HO²

¹*Nuclear Research Institute, 01 Nguyen Tu Luc street, Dalat, Vietnam*

²*Center for Nuclear Technique, 217 Nguyen Trai street, District 1, Ho Chi Minh, Vietnam*

Abstract: In this work, corrections of dead-time affects have been determined by experimental method for cyclic neutron activation analysis (CNAA) method at Dalat research reactor. The correction factors were applied for determination of short-lived nuclides such as ^{46m}Sc (18.75 sec.), ^{179m}Hf (18.67 sec.), ^{165m}Dy (75.42 sec.), ⁵²V (3.74 min.), ⁵¹Ti (5.76 min.). After correction of dead-time, the analytical results were significantly improved in terms of accuracy by comparison with certificate values of NIST-2711A reference material. Moreover, these results can be applied for correction of dead-time up to 50% in CNAA method.

Keywords: Dead-time, CNAA, CNAA