

MEASUREMENT OF THERMAL NEUTRON CROSS-SECTION FOR $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$

TRINH VAN CUONG, Centre for Nuclear Physics and Electronics, Nuclear Research Institute, 01
Nguyen Tu Luc Street, Da Lat City.

Abstract

Thermal neutron cross-section for the $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ reaction was measured within the activation method. The samples with and without Cd cover (1mm thickness) were irradiated in the neutron field at the Dalat nuclear reactor. The induced activities in the samples were counted by a high-resolution gamma spectrometer. Thermal neutron cross-section for $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ reaction has been obtained: $\sigma_0 = 0.115 \pm 0.007$ the result was compared with the previous values.

Keywords: Thermal cross-section, Molybden, Dalat nuclear reactor.

ĐO TIẾT DIỆN NEUTRON NHIỆT PHẢN ỨNG $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$

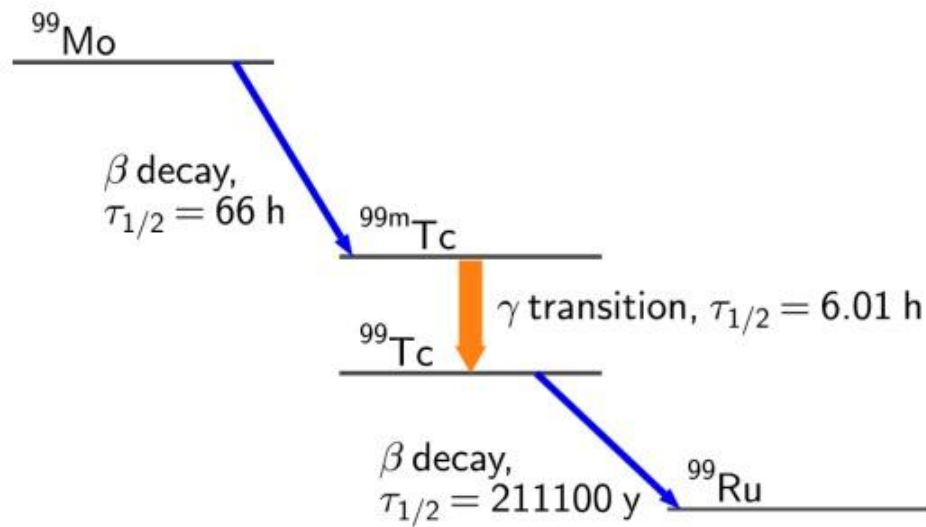
TRINH VĂN CƯỜNG, Trung tâm Vật lý – Điện tử hạt nhân, Viện nghiên cứu hạt nhân, 01 đường
Nguyễn Tử Lạc, Thành phố Đà Lạt

Bản tóm tắt

Tiết diện neutron nhiệt của phản ứng $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ được đo bằng phương pháp kích hoạt. Các mẫu thí nghiệm được chiếu không bọc và có bọc trong hộp Cd (dày 1mm) được chiếu trong trường neutron lò phản ứng tại lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt. Hoạt độ phát ra của mẫu được đo bằng hệ phổ kế gamma độ phân giải cao. Tiết diện neutron nhiệt của phản ứng $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ thu được : $\sigma_0 = 0.115 \pm 0.007$ kết quả được so sánh với các số liệu trước đây.

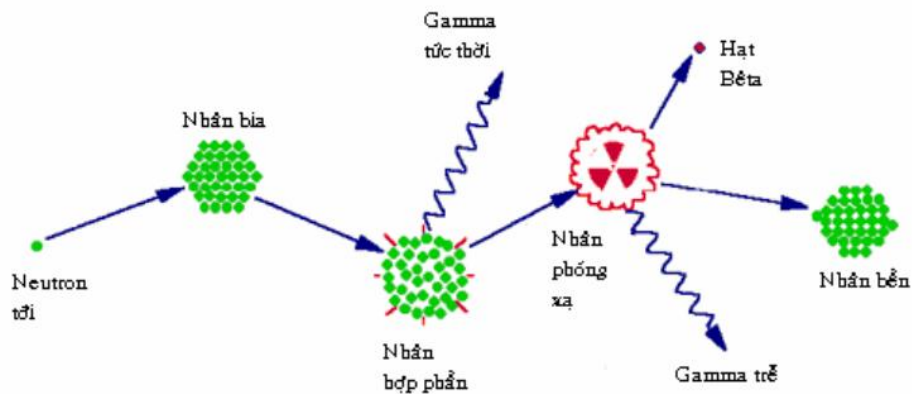
I. MỞ ĐẦU

$^{98}\text{Mo} (n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ là phản ứng quan trọng trong chuỗi phản ứng hạt nhân điều chế $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (Hình 1), $^{99\text{m}}\text{Tc}$ là hạt nhân phóng xạ được ứng dụng trong lĩnh vực y học hạt nhân ở nhiều nước trên thế giới với mục đích chẩn đoán các bệnh ung thư. Để tính hoạt độ của sản phẩm $^{99\text{m}}\text{Tc}$ cần thiết phải biết chính xác giá trị tiết diện neutron nhiệt của phản ứng $^{98}\text{Mo} (n, \gamma)^{99}\text{Mo}$. Mục đích của bài báo cáo này là kiểm chứng giá trị tiết diện neutron nhiệt của phản ứng $^{98}\text{Mo} (n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ được đo tại lò phản ứng hạt nhân nghiên cứu (tại Đà Lạt).



Hình 1. Sơ đồ phân rã từ hạt nhân ^{99}Mo thành hạt nhân ^{99}Tc

Tiết diện neutron nhiệt của phản ứng $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ được đo bằng phương pháp kích hoạt lá dò. Phản ứng xảy ra giữa hạt nhân bia và chùm neutron tới tạo thành các hạt nhân hợp phần. Các nhân hợp phần này phân rã tia gamma tức thời để trở về trạng thái cơ bản bền của hạt nhân sản phẩm. Trong quá trình phân rã β^- , kèm theo phát các tia gamma đặc trưng (gamma trễ). Quá trình phản ứng của hạt nhân bia và chùm neutron tới được biểu diễn tổng quát như Hình 2.



Hình 2. Phản ứng bắt neutron của hạt nhân bia

Các mẫu được chiếu trong thí nghiệm của bài báo cáo này là các lá dò trong Bảng 1 dưới đây.

Bảng 1. Các phản ứng hạt nhân và các số liệu hạt nhân.

Phản ứng hạt nhân	Thời gian bán rã β^- (h)	Năng lượng gamma (keV)	Cường độ gamma (%)
$^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$	65.94	740	12.26%
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	64.68	411	95.58%

Mối liên hệ giữa tốc độ phản ứng R (Reaction rate) và số đếm N_p thu được tại đỉnh hấp thụ năng lượng toàn phần biểu diễn theo phương trình sau:

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

Với N_A là số Avogadro, W- khối lượng của các lá dò trong thí nghiệm, θ - độ giàu đồng vị, M - khối lượng nguyên tử của hạt nhân bia, σ_0 - tiết diện bắt neutron của các hạt nhân tại mức năng lượng nhiệt 0,0253 eV, $I_0(\alpha)$ - tích phân cộng hưởng cho phổ neutron $1/E^{1+\alpha}$,

$$I_0(\alpha) = (1 \text{ eV})^\alpha \left(\frac{I_0 - 0.426\sigma_0}{\bar{E}_r^\alpha} + \frac{0.426\sigma_0}{(2\alpha+1)E_{Cd}^\alpha} \right) \quad (2)$$

I_0 là tích phân cộng hưởng của hạt nhân và α là hệ số mô tả độ lệch phổ neutron trên nhiệt so với quy luật $1/E$, 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, γ – cường độ phát gamma tương đối tương ứng với đỉnh năng lượng, ε_p – Hiệu suất ghi tuyệt đối tương ứng với đỉnh, N_p là diện tích đỉnh hấp thụ năng lượng toàn phần.

$$S=1-e^{-\lambda t_i}, D=e^{-\lambda t_d}, C=\frac{1-e^{-\lambda t_m}}{\lambda t_m};$$

Trong đó S là hệ số hiệu chỉnh cho sự phân rã trong quá trình chiếu, λ là hằng số phân rã, D là hệ số hiệu chỉnh cho sự phân rã trong quá trình rã, C là hệ số hiệu chỉnh cho sự phân rã trong quá trình đo và t_i, t_d, t_m là thời gian chiếu, thời gian rã, thời gian đo, tương ứng.

Cường độ gamma là xác suất phát tia gamma ứng với năng lượng đã biết trước trên mỗi hạt nhân phóng xạ.

$$A_{sp} \text{ hoặc } A_{sp,e} = \frac{N_p}{S.D.C.W} \quad (3)$$

$$R_s = \frac{A_{sp} \cdot M}{N_A\theta\varepsilon_p\gamma} \quad (4)$$

$$R_{s,Cd} = \frac{A_{sp,e} \cdot M}{N_A\theta\varepsilon_p\gamma} \quad (5)$$

Với A_{sp} là hoạt độ của lá dò không bọc Cd, $A_{sp,e}$ là hoạt độ của lá dò bọc Cd. R_s là tốc độ phản ứng của lá dò không bọc Cd và $R_{s,Cd}$ là tốc độ phản ứng của lá dò bọc Cd.

Trong thí nghiệm này các yếu tố chính đóng góp đến sai số của tiết diện đo đặc σ_0 theo công thức (1) bao gồm sai số diện tích đỉnh σ_{N_p} , sai số của tiết diện σ_{σ_0} và sai số của hiệu suất ghi σ_{ε_p} , sai số của tích phân cộng hưởng I_0 .

$$\sigma_z = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \cdot \sigma_{x_i} \right)^2} \quad (6)$$

Trong đó $f(x_i)$ là một hàm của các biến số x_i . Các hàm $f(x_i)$ tương ứng với vế trái của các công thức (1) đến (5) và (7), và các biến số x_i ở đây chính là các thành phần đóng góp sai số trong vế phải của các phương trình từ (1) đến (5) và (7).

Từ phương trình (1) ta có tốc độ phản ứng đối với neutron nhiệt là:

$R_0 = G_{th} \cdot \phi_0 \cdot \sigma_0$, suy ra:

$$\sigma_{0,Mo} = \frac{(R_s - R_{s,Cd})_{Mo} (G_{th})_{Au}}{(R_s - R_{s,Cd})_{Au} (G_{th})_{Mo}} \sigma_{0,Au} \quad (7)$$

Từ công thức (7), với các hệ số hiệu chỉnh bằng 1, kết hợp với công thức truyền sai số (6), ta có sai số tiết diện neutron nhiệt của Mo.

$$\sigma_{\sigma_{0,Mo}} = \left(\begin{aligned} & \left[\frac{\sigma_{0,Au}}{(R_s - R_{s,Cd})_{Au}} \right]^2 \sigma_{R_s,Mo}^2 + \left[\frac{-\sigma_{0,Au}}{(R_s - R_{s,Cd})_{Au}} \right]^2 \sigma_{R_s,Cd,Mo}^2 + \\ & \left[\frac{(R_s - R_{s,Cd})_{Mo}}{(R_s - R_{s,Cd})_{Au}} \right]^2 \sigma_{\sigma_{0,Au}}^2 + \left[-\frac{(R_s - R_{s,Cd})_{Mo} \sigma_{0,Au}}{(R_s - R_{s,Cd})_{Au}^2} \right]^2 \sigma_{R_s,Cd,Au}^2 \\ & + \left[-\frac{(R_s - R_{s,Cd})_{Mo} \sigma_{0,Au}}{(R_s - R_{s,Cd})_{Au}^2} \right]^2 \sigma_{R_s,Au}^2 \end{aligned} \right)^{1/2} \quad (8)$$

II. THỰC NGHIỆM

Như chúng ta đã biết, trường neutron lò phản ứng là một trong những trường neutron được sử dụng phổ biến cho các đo đạc thực nghiệm, vì thông lượng trường neutron lò phản ứng tương đối lớn có thể lên đến $10^{14} - 10^{15} (n \cdot s^{-1} \cdot cm^{-2})$ mà các nguồn neutron khác khó có thể đạt được và trong môi trường chất làm chậm năng lượng neutron phân bố trong khoảng 0 đến 20 MeV.

II.1. Các mẫu được sử dụng trong thí nghiệm.

Trong thí nghiệm sử dụng 4 lá dò, các lá dò đủ mỏng và có thể bỏ qua hiệu ứng tự che chắn neutron trong mẫu và được phân loại trong Bảng 2.

Bảng 2. Khối lượng các lá dò dùng để kích hoạt.

Bọc Cd	Tên mẫu	Khối lượng(g)	Hàm lượng
	Au-J	0.1282	100.00%
Mo-o	0.0913	100.00%	
Không bọc Cd	Au-G	0.1250	100.00%
	Mo-p	0.0909	100.00%

Các lá dò không bọc Cd và các lá dò bọc Cd được chiếu cùng vị trí tại tâm lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt và cùng khoảng thời gian chiếu như sau:

Bắt đầu chiếu: 14/8/2015 10:16:00 và kết thúc chiếu: 14/8//2015 12:16:00.

Bảng 3. Các dữ liệu thời gian đối với các lá dò.

Tên mẫu	Thời gian chiếu (h)	Thời gian rã (h)	Thời gian đo (h)
Au-J	2	1398.38	0.83
Mo-o	2	578.53	2.74
Au-G	2	1397.43	0.88
Mo-p	2	571.2	6.82

II.2. Hệ phổ kế gamma dùng detector HPGe

Đầu dò được sử dụng trong báo cáo này là đầu dò bán dẫn siêu tinh khiết HPGe GEM50P4 (loại đồng trục), đây là loại đầu dò ghi nhận phổ gamma phổ biến hiện nay, chúng có ưu điểm là độ phân giải cao, có khả năng nhận biết các phổ gamma phức tạp nhiều đỉnh. Các thông số về đầu dò được nêu cụ thể sau đây:

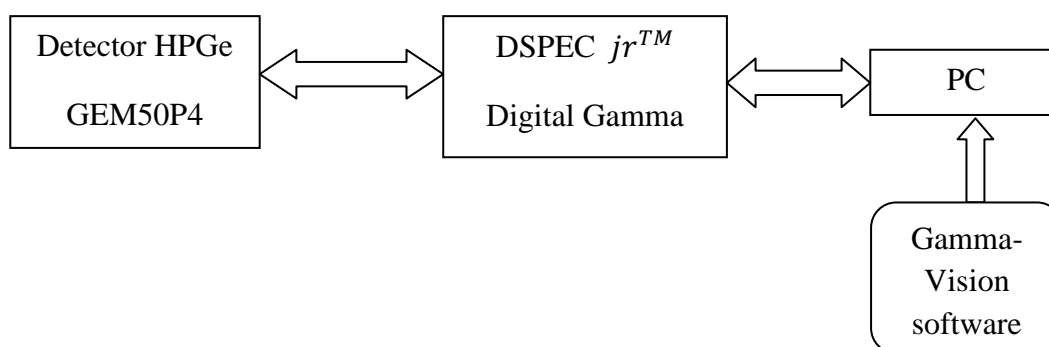
Loại đầu dò : GEM50P4 (Ortec)

Đường kính tinh thể : 69.4 mm; Độ dài tinh thể : 67.1 mm.

Khoảng cách từ nắp đến tinh thể : 4mm

Bề dày cửa sổ detector : 1 mm Aluminum

Độ phân giải **FWHM = 1.9 keV** tại đỉnh năng lượng 1332 keV của nguồn Co-60.



Hình 3. Sơ đồ hệ phổ kế Gamma sử dụng đầu dò GEM50P4

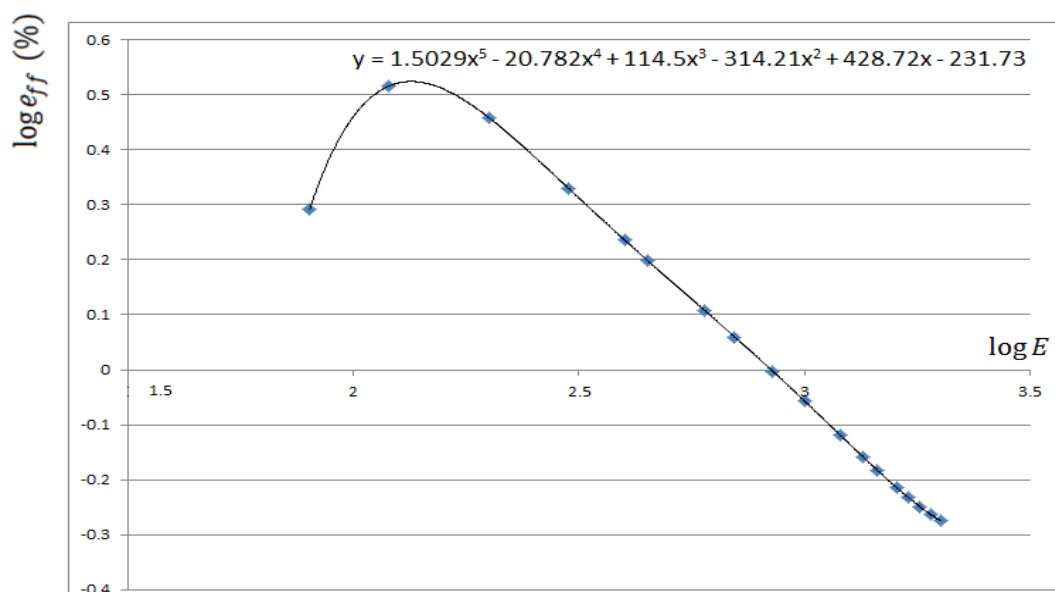
Khối DSPEC được tích hợp các chức năng:

+ Cung cấp nguồn nuôi HV (High Volt) cho detector, khuếch đại tín hiệu từ detector, tích hợp chức năng của các khối ADC, MCA, các hiệu chỉnh đường không (pole zero) và hiệu chỉnh thời gian chết (dead time).

+ Khối DSPEC được kết nối với máy tính bằng cáp USB, máy tính được cài đặt sẵn phần mềm GammaVision, với các chức năng của một phần mềm thu nhận và xử lý phổ.

Hiệu suất ghi của hệ phổ kế được đo tại khoảng cách 5cm đến detector sử dụng bộ nguồn chuẩn: ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{133}Ba , ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{65}Zn , ^{60}Co . Ta thu được đường cong hiệu suất theo năng lượng theo Hình 4.

Đường cong hiệu suất tại vị trí đo cách detector 5cm được biểu diễn như hình sau:



Hình 4. Đồ thị hiệu suất ghi theo năng lượng tại vị trí 5cm, $y(=\log \text{eff})$ là hàm làm khớp của các biến $x(=\log E)$.

III. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Bảng 4. Diện tích đỉnh và sai số diện tích đỉnh, tiết diện hiệu dụng đối với neutron nhiệt, hiệu suất ghi đỉnh hấp thụ năng lượng toàn phần tương ứng của các lá dò bọc Cd.

Lá dò bọc Cd	Tên mẫu	Năng lượng gamma (keV)	Hiệu suất đỉnh (ϵ_p)	Sai số hiệu suất đỉnh σ_{ϵ_p}	Diện tích đỉnh (N_p)	Sai số diện tích đỉnh σ_{N_p}
	Au-J	411	0.0169	2.00%	28204	0.66%
	Mo-o	740	0.0110	2.00%	203870	0.49%

Bảng 5. Diện tích đỉnh và sai số diện tích đỉnh, tiết diện hiệu dụng đối với neutron nhiệt, hiệu suất ghi đỉnh hấp thụ năng lượng toàn phần tương ứng của các lá dò không bọc Cd.

Lá dò không bọc Cd	Tên mẫu	Năng lượng gamma (keV)	Hiệu suất đỉnh (ϵ_p)	Sai số hiệu suất đỉnh σ_{ϵ_p}	Diện tích đỉnh (N_p)	Sai số diện tích đỉnh σ_{N_p}
	Au-G	411	0.0169	2.00%	213098	0.29%
	Mo-p	740	0.0110	2.00%	905831	0.22%

Từ dữ liệu các Bảng 1, 2, 3, 4, 5 và các công thức (3), (4), (5), (6) giá trị hoạt độ, tốc độ phản ứng và sai số các lá dò thu được trong Bảng 6,7.

Bảng 6. Hoạt độ và tốc độ phản ứng đối với lá dò bọc Cd.

Bọc Cd	Tên mẫu	Năng lượng gamma (keV)	Hoạt độ (Bq)	Sai số hoạt độ (Bq)	Tốc độ phản ứng (Phản ứng / giây)	Sai số tốc độ phản ứng (Phản ứng / giây)
	Au-J	411	1.12E+10	9.41E+06	2.27E-10	0.05E-10
	Mo-O	740	4.84E+06	2.17E+03	2.39E-12	0.05E-12

Bảng 7. Hoạt độ và tốc độ phản ứng đối với lá dò không bọc Cd.

Lá dò không bọc Cd	Tên mẫu	Năng lượng gamma (keV)	Hoạt độ (Bq)	Sai số hoạt độ (Bq)	Tốc độ phản ứng (Phản ứng / giây)	Sai số tốc độ phản ứng (Phản ứng / giây)
	Au-J	411	8.15E+10	2.96E+07	1.66E-09	0.03E-09
	Mo-O	740	8.19E+06	1.65E+03	4.05E-12	0.08E-12

Kết quả thu được giá trị thông lượng neutron nhiệt và trên nhiệt:

$$\phi_0 = 1.45 \times 10^{13} \pm 0.03 \times 10^{13} (n \cdot s^{-1} \cdot cm^{-2})$$

$$\phi_e = 2.90 \times 10^{10} \pm 0.08 \times 10^{10} (n \cdot s^{-1} \cdot cm^{-2})$$

Từ các Bảng 6, Bảng 7 và áp dụng công thức (7), (8) kết quả tiết diện neutron nhiệt của phản ứng $^{98}Mo (n, \gamma) ^{99}Mo$ là: $\sigma_{0,Mo} = 0.115 \pm 0.007 \text{ barn}$

Sai số hiệu suất ghi của detector (trong Hình 4) được tính bằng phương pháp bình phương tối thiểu. Sai số của hoạt độ, tốc độ phản ứng, thông lượng và tiết diện neutron nhiệt được tính toán bằng công thức truyền sai số (6).

Các kết quả tính toán trong bản báo cáo này phù hợp với số liệu đo đạc gần đây.

Phản ứng	Năng lượng neutron (eV)	Tác giả	Tiết diện(barn)
$^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$	0.0253	Trong báo cáo này	0.115 ± 0.007
$^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$	0.0253	A.ElAbd	0.137 ± 0.014
$^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$	0.0253	N.V. Do	0.136 ± 0.007
$^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$	0.0253	M. Kurosawa	0.150 ± 0.030

Sự phù hợp giữa số liệu tiết diện neutron nhiệt của phản ứng $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$ được đo tại lò nghiên cứu hạt nhân Đà Lạt và các kết quả được công bố trước đây cho ta thấy khả năng sử dụng nguồn neutron của lò phản ứng hạt nhân nghiên cứu (tại Đà Lạt) trong thực nghiệm vật lý hạt nhân và đào tạo.

Tài liệu tham khảo:

1. Đo tiết diện bắt bức xạ neutron nhiệt và tích phân cộng hưởng của ^{185}Re và ^{187}Re , Chu Thị Hồng Hải, Luận văn Thạc sỹ Vật lý.
2. Measurement of thermal neutron cross-section and resonance integral for $^{71}\text{Ga} (n, \gamma) ^{72}\text{Ga}$ and $^{75}\text{As} (n, \gamma) ^{76}\text{As}$ by using $^{241}\text{Am} - \text{Be}$ isotopic neutron source, Mustafa Karadag, Haluk Yücel, Mustafa Tan, Atilla Özmen.
3. A. ElAbd, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Vol.284,p.321
4. NguyenVan Do,et al, Nucl. Instrum. Methods in Physics Res.,Sect B Vol.267.p.462
5. M.Kurosawa and K. Shimizu. Journal of the Atomic Energy Society of Japan Vol.21. Issue.6. p.505