

PHÁT TRIỂN KỸ THUẬT PHÂN TÍCH KÍCH HOẠT NEUTRON TRÊN NHIỆT TẠI Lò PHẢN ỨNG HẠT NHÂN ĐÀ LẠT

TRẦN QUANG THIÊN, HỒ MẠNH DŨNG, HỒ VĂN DOANH, NGUYỄN THỊ SỸ, TRẦN QUỐC DƯỠNG

Viện nghiên cứu hạt nhân, 01 Nguyễn Tử Lực, Đà Lạt

Email: tranquangthien@outlook.com

Tóm tắt: Kỹ thuật phân tích kích hoạt neutron trên nhiệt (ENAA) đã được nghiên cứu phát triển trên lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt. Các mẫu chuẩn (SRMs) và lá dò được đặt trong hộp Cd dày 1,0 mm và được chiếu trong trường neutron của Lò Đà Lạt. Phần mềm MCNP đã được dùng để mô phỏng sự nhiễu loạn trường neutron và đánh giá điều kiện chiếu là an toàn với Cd. Các mẫu sau khi chiếu được đo trên hệ phổ kế gamma dùng detector HPGe đã được hiệu chuẩn. Dùng chương trình ANGLE để chuyển đổi hiệu suất từ dạng hình điểm sang hình học thực tế của mẫu. Phương pháp tỉ số Cd cho đa lá dò đã được áp dụng để tính hệ số lệch phổ (α). Chương trình Ko-DALAT mới được nâng cấp chức năng kích hoạt neutron trên nhiệt đã được dùng để xử lý số liệu. Số liệu thực nghiệm cho thấy, ENAA cho kết quả độ nhạy tăng từ 2 đến 5 lần đối với các nguyên tố có giá trị Q0 lớn hơn 1 như: I, Sm, U, Th, W,... Đồng thời ENAA giảm sự ảnh hưởng của nền phong tạo bởi các nguyên tố Al, Cl, Na, Sc, Fe... trong mẫu.

Từ khóa: *Phân tích kích hoạt neutron trên nhiệt, k0-ENAA, lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt*

I. Giới thiệu

Kỹ thuật phân tích kích hoạt neutron trên nhiệt (ENAA) dựa trên tính chất của một số nguyên tố có tiết diện bắt neutron trên nhiệt (hay còn gọi là tích phân cộng hưởng - I_0) lớn hơn tiết diện bắt neutron nhiệt (σ_0). Về mặt thực nghiệm, để sử dụng neutron trên nhiệt trong LPU người ta thường dùng vật liệu Cd (hoặc B) để làm vỏ bọc mẫu kích hoạt. Cd có tiết diện hấp thụ rất cao đối với neutron có năng lượng 0,35 đến 1,50 eV. Nếu chiếu mẫu có bao phủ lớp Cd dày 0,7 mm đến 1,0 mm thì các neutron nhiệt hoàn toàn bị hấp thụ, vì thế neutron đi qua chỉ còn lại neutron trên nhiệt. Bằng việc sử dụng Cd để lọc các neutron nhiệt khi kích hoạt, ENAA sẽ làm giảm nền phong từ các nguyên tố nhiễu có σ_0 lớn và tăng độ nhạy cho một số nguyên tố có I_0 lớn [1].

ENAA đã được phát triển trên các LPU nghiên cứu trên thế giới như Mỹ, Hà Lan và Hàn Quốc. Một số ứng dụng tiêu biểu của ENAA là phân tích các nguyên tố đất hiếm, uranium và thori trong các mẫu đất đá hay phân tích nhóm nguyên tố halogen trong các mẫu sinh học và trầm tích biển.

Ở trong nước, kỹ thuật NAA được triển khai từ những ngày đầu khôi phục lò phản ứng, các nghiên cứu về phương pháp k0-NAA cũng được phát triển hơn 15 năm qua. Tuy nhiên, các nghiên cứu về kỹ thuật ENAA trước đây ở Lò phản ứng (LPU) hạt nhân Đà Lạt chủ yếu được thực hiện trên kênh chiếu 7-1 và Mâm quay, các kết quả nghiên cứu chủ yếu là tập trung xác định tỉ số Cd và thử nghiệm chiếu mẫu để phân tích các nguyên tố có đồng vị sống ngắn. Trong báo cáo này, trình bày các kết quả phát triển kỹ thuật phân tích kích hoạt neutron trên nhiệt (ENAA), bao gồm cả việc phát triển phần mềm xử lý số liệu nhằm xây dựng quy trình ENAA hoàn chỉnh trên LPU Đà Lạt. Mục tiêu của nghiên cứu là để cải thiện độ nhạy phân tích cho các mẫu có matrix đất đá và sinh học và đặc biệt là phát triển phương pháp k0 cho ENAA [2].

Để đánh giá độ cải thiện đối với độ nhạy của việc dùng neutron trên nhiệt, người ta đưa ra khái niệm tỉ số tích phân cộng hưởng trên tiết diện bắt neutron nhiệt I_0/σ_0 hoặc bằng cách tính hệ số lợi (Advantage factor – AF), các hệ số lợi AF của hầu hết các đồng vị quan tâm cũng được xác định trong nghiên cứu này [1].

Các mẫu chuẩn (SRMs) và lá dò được đóng gói trong các hộp Cd bề dày 1,0 mm và được kích hoạt trên Kênh 7-1 (chiều ngắn) và Mâm Quay (chiều dài) của Lò phản ứng, các hộp Cd được mô phỏng và đánh giá là an toàn bằng chương trình MCNP5 khi đưa vào các kênh chiếu xạ. Các mẫu sau khi kích hoạt được đo trên hệ phổ kế HPGe đã được chuẩn hiệu suất và chương trình ANGLE cũng được sử dụng để chuyển đổi hiệu suất từ hình học của nguồn sang hiệu suất của mẫu và lá dò. Các lá dò được sử dụng để tính độ lệch phổ (α), chương trình k0-DALAT được dùng để tính thông lượng neutron cùng với hàm lượng của các nguyên tố.

Để đánh giá kết quả phân tích các mẫu chuẩn bằng phương pháp ENAA chúng tôi sử dụng một số thông số sau:

Độ đúng

Truiness (Độ đúng) chỉ sự gần nhau giữa trung bình số học của một số lớn kết quả thử nghiệm và giá trị thực hoặc giá trị quy chiếu được chấp nhận.

$$Truiness(\%) = \frac{\bar{x}}{X_{Cert}} \cdot 100\%$$

Z-score và Zeta-score

Thông số Z-score được tính từ phương trình:

$$Z_{score} = \frac{x-X}{\sigma}$$

Trong đó x là giá trị phân tích, X là giá trị chứng nhận hoặc giá trị tham khảo, σ là độ lệch chuẩn tính từ hàm Horwitz.

Thông số Zeta-score được tính từ phương trình:

$$zeta_{score} = \frac{x-X}{\sqrt{\sigma_x^2 + \sigma_X^2}}$$

Trong đó σ_x và σ_X là độ lệch chuẩn (1σ) của giá trị phân tích và giá trị tham khảo.

Nếu giá trị của Z-score và Zeta-score (viết tắt là |z|):

- $|z| \leq 2.0$ giá trị phân tích là chấp nhận được.
- $2.0 < |z| \leq 3.0$ giá trị phân tích tạm chấp nhận nhưng cần xem lại quy trình phân tích.
- $|z| \geq 3.0$ giá trị phân tích bị loại.

Trong trường hợp mẫu chuẩn thiếu thông tin về độ lệch chuẩn hàm Horwit được sử dụng để thay thế

$$\sigma_R = \begin{cases} 0.22c & \text{if } c < 1.2 \times 10^{-7} \\ 0.02c^{0.8495} & \text{if } 1.2 \times 10^{-7} \leq c \leq 0.138 \\ 0.01c^{0.5} & \text{if } c > 0.138 \end{cases}$$

Trong đó c là giá trị chứng nhận hoặc giá trị tham khảo của nguyên tố biểu diễn dưới dạng trọng số khối lượng, σ_R là độ lệch chuẩn [3-8].

II. Thực nghiệm

1. Phát triển chương trình Ko-Dalat cho chức năng trên nhiệt

Việc xử lý phổ gamma đo được của mẫu kích hoạt và tính hàm lượng các nguyên tố bằng phương pháp chuẩn hóa k₀-NAA được thực hiện bằng cách sử dụng chương trình k₀-DALAT, chương trình được phát triển bởi TS. Hồ Mạnh Dũng [2], trong nghiên cứu này của chúng tôi, chương trình đã được phát triển thêm chức năng xử lý cho ENAA dựa theo phương trình tính toán hàm lượng nguyên tố bằng phương pháp k₀ cho trường hợp bọc Cd.

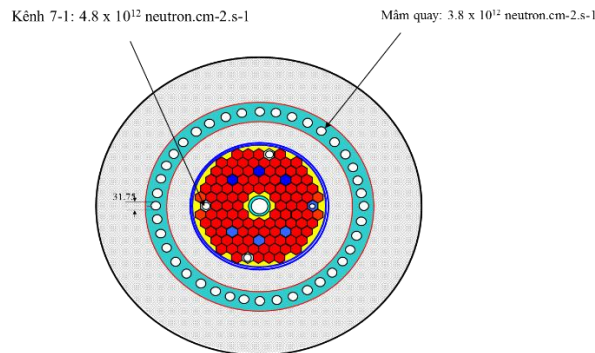
$$\rho = \frac{\left(\left(\frac{N_p}{S.D.C.W.t} \right)_a \right)_{Cd}}{(A_{sp,m})_{Cd}} \cdot \frac{1}{k_{0,m}(a)} \cdot \frac{F_{Cd,m} \cdot G_{e,m} \cdot Q_{0,m}(\alpha)}{F_{Cd,a} \cdot G_{e,a} \cdot Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\varepsilon_{p,m}}{\varepsilon_{p,a}}$$

Quy trình thực nghiệm k_0 -DALAT với ENAA bao gồm chuẩn bị một bộ 2 monitor Au-Zr. Một bộ chiếu trần dùng để tính α (nếu α đã được xác định trước thì chỉ cần chuẩn bị một monitor Au dùng để tính $(A_{sp,Au})_{Cd}$), chiếu các monitor này cùng với mẫu trong hộp Cd chuẩn (dày khoảng 0.5 - 1.0 mm), sau khi chiếu để rã với thời gian thích hợp rồi mở hộp Cd đem monitor và mẫu ra đo. Trước khi tính toán thì thực hiện đổi phổ ra dạng ASCII.

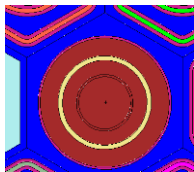
2. Dùng phần mềm MCNP để mô phỏng sự nhiễu loạn trường neutron

Trong thực tế việc đưa Cd vào kênh chiếu xạ, tức là đã đưa vào lò một độ phản ứng âm, khi lấy Cd ra khỏi lò, tức là đưa vào lò một độ phản ứng dương và nếu quá trình này xảy ra một cách đột ngột (như trong quá trình chiếu ngắn trên kênh 7-1) sẽ ảnh hưởng cho việc vận hành LPU bởi sự thay đổi công suất đột ngột có thể dẫn đến dập lò phản ứng. Chúng tôi đã tiến hành mô phỏng MCNP cho các quá trình đưa Cd vào khi lò phản ứng đang hoạt động để đánh giá độ an toàn.

Code input cho chương trình MCNP được viết trên hai kênh chiếu sử dụng kích thước hộp Cd như sau: Hộp Cd sử dụng trên kênh 7-1 có hình trụ, bề dài 0,5mm, đường kính 12,7mm (0.5 inch), chiều cao ~10mm (inch), khối lượng khoảng 3,0 gram. Hộp Cd sử dụng trên Mâm quay có hình trụ, bề dài 0,5mm, đường kính 20,0mm, chiều cao ~20mm khối lượng khoảng 8,0 gram.



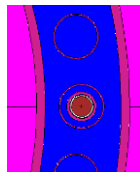
Hình 1. Mặt cắt ngang vùng hoạt lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt



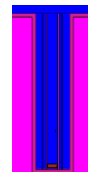
Hình 2.1. ảnh mô phỏng kênh chiếu mẫu 7-1



Hình 2.2. ảnh mô phỏng container và hộp Cd chiếu trên kênh 7-1



Hình 2.3. ảnh mô phỏng kênh chiếu mẫu mâm quay



Hình 2.4. ảnh mô phỏng container nhôm và hộp Cd chiếu trên mâm quay

Bảng 1. Kết quả tính toán mô phỏng MCNP độ dư trữ phản ứng trên kênh 7-1 và Mâm Quay

Vật liệu	Độ dư trữ phản ứng
Hộp Cd Kênh 7-1 (3,3 g)	-2.5 cents
Blank Container 7-1 + Blank Container 13-2 (23,9 g)	+2.2 cents
Blank Container 7-1 (12,4 g)	+1.0 cents
Blank Container 7-1 (12,4 g) + Blank Container 13-2 (8,0 g) + Hộp Cd Kênh 7-1 (3,3 g)	-1.5 cents
Hộp Cd Mâm quay(4.14 g)	0 cents
Container Nhôm (92.5 g) + Hộp Cd Mâm quay (4.14 g)	0 cents

Chú ý: ngưỡng an toàn khi đưa vào độ dư trữ phản ứng $-10 \text{ cents} < \text{độ dư trữ} < 10 \text{ cents}$

Kết quả mô phỏng MCNP khi đưa hộp Cd vào kênh chiếu 7-1 và mâm quay trong Bảng 1, kênh 7-1 chiếu hộp Cd với khối lượng 2-3 gram không ảnh hưởng đến hoạt động của lò phản ứng. Theo quy định trước đây của Viện nghiên cứu hạt nhân thì khối lượng Cd đưa vào chiếu trên kênh 7-1 không được quá 5 gram thì kết quả này hoàn toàn phù hợp. Đối với Mâm quay, do các hốc chiếu hoàn toàn ở ngoài vùng hoạt nên khối lượng hộp Cd sử dụng khoảng từ 4 gram hoàn toàn không có ảnh hưởng gì.

Bảng 2. Kết quả tính toán mô phỏng MCNP hồng lượng neutron ở kênh 7-1 và Mâm Quay

Thông lượng neutron ($\text{n/cm}^2/\text{s}$)	Kênh 7-1		Mâm quay	
	Bên ngoài hộp Cd	Bên trong hộp Cd	Bên ngoài hộp Cd	Bên trong hộp Cd
Nhiệt	6.01E+12	0.00E+00	2.14E+12	0.00E+00
Trên Nhiệt	6.21E+11	5.04E+11	7.11E+10	5.58E+10
Nhanh	7.03E+12	7.00E+12	3.19E+11	3.51E+11

Ngoài kết quả mô phỏng trên, chúng tôi đã thực hiện 03 thí nghiệm chiếu hộp Cd thực tế trên kênh chiếu 7-1 (01 phép chiếu, hộp Cd ~3gram) và Mâm quay (02 phép chiếu, hộp Cd 4,1 gram và 6,3 gram). Kết quả thực nghiệm cho thấy khi đưa mẫu chiếu vào hốc chiếu mâm quay thì không có sự thay đổi gì đối với công suất của lò phản ứng, riêng kênh 7-1 khi chiếu hộp Cd 3 gram thì độ phản ứng dư trữ đưa vào là khoảng -3 cents (kết quả mô phỏng là -2,5 cents) kết quả này không ảnh hưởng đến hoạt động của lò phản ứng.

Kết quả mô phỏng MCNP trong bảng 2 còn chỉ ra với độ dày của tấm Cd là 10 mm, hầu như không có neutron nhiệt vượt qua được bề dày này.

3. Tính toán các hệ số lợi (Advantage factor – AF)

Hệ số lợi được tính như sau:

$$AF = \frac{(R_{Cd})_X}{(R_{Cd})_Y} = \frac{\frac{A_{sp,X}}{(A_{sp,X})_{Cd}}}{\frac{A_{sp,Y}}{(A_{sp,Y})_{Cd}}}$$

Ở đây, $A_{sp,X}$ và $A_{sp,Y}$ là hoạt độ phóng xạ của các đồng vị quan tâm và đồng vị ảnh hưởng tương ứng [1].

Tùy theo chu kỳ bán hủy, các đồng vị sẽ được tính toán hệ số lợi dựa trên các đồng vị ảnh hưởng khác nhau. Đối với các nguyên tố có chu kỳ bán hủy <10 phút, chúng tôi sử dụng đồng vị ảnh hưởng là ^{28}Al , các nguyên tố có chu kỳ bán hủy trong khoảng từ 10 phút đến khoảng 8 giờ là ^{56}Mn , thông số phổ neutron trên kênh 7-1 được sử dụng để tính toán hệ số lợi. Đối với các đồng vị có chu kỳ bán hủy từ 10 giờ đến 6 ngày chúng tôi sử dụng nhân ảnh hưởng là ^{24}Na , các đồng vị có chu kỳ bán hủy >10 ngày là ^{46}Sc , thông số phổ neutron trên mâm quay được sử dụng để tính hệ số lợi cho các đồng vị này [9].

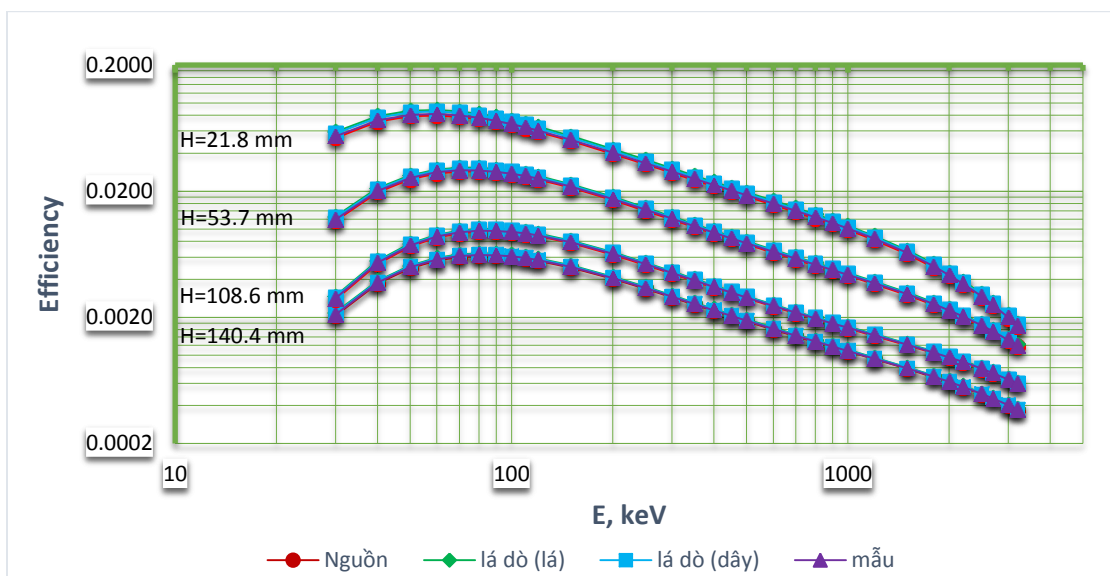
Bảng 3. Kết quả tính hệ số lợi AF cho các nguyên tố

Nguyên tố	Đồng vị (ngắn)	AF	Nguyên tố	Đồng vị (trung bình)	AF	Nguyên tố	Đồng vị (dài)	AF
F	F-20	3.24	Na	Na-24	1	Sc	Sc-46	1
Mg	Mg-27	0.94	K	K-41	1.4	Cr	Cr-51	1.12
Al	Al-28	1	Ga	Ga-72	8.52	Fe	Fe-59	1.79
Si	Si-31	1.55	As	As-76	15.8	Co	Co-60	3.52
S	S-37		Zn	Zn-69m	4.04	Zn	Zn-65	2.85
Ca	Ca-49	0.57	Br	Br-82	20	Se	Se-75	17.2
Ti	Ti-51	0.98	Mo	Mo-99	36.7	Rb	Rb-86	17.5
V	V-52	0.72	Pd	Pd-109	27	Sr	Sr-85	16.7
Cu	Cu-66	1.35	Cd	Cd-115	27.9	Zr	Zr-95	6.42
Se	Se-77m	1.01	Sb	Sb-122	32.6	Ru	Ru-102	5.89
Ag	Ag-110	8.36	La	La-140	1.86	Ag	Ag-110m	26.5
Rh	Rh-104	4.91	Pr	Pr-142	2.05	Sn	Sn-117m	46.6
Mn	Mn-56	1	Sm	Sm-153	18.3	Sb	Sb-124	34.7
Cl	Cl-38	0.7	Gd	Gd-159	28.8	Cs	Cs-134	16.7
Er	Er-171	3.16	Ho	Ho-166	15.3	Ba	Ba-131	30
I	I-128	6.9	Lu	Lu-177	3.84	Ce	Ce-141	1.47
In	In-116m	5.66	W	W-187	17.7	Nd	Nd-147	3.25
Dy	Dy-165	0.11	Au	Au-198	21.2	Eu	Eu-152	3.21
Au	Au-198	10.1	Pt	Au-199	18.7	Eu	Eu-154	11.2
Zr	Zr-95	7.2	Ba	Ba-131	25	Tb	Tb-160	26
Na	Na-24	0.56	U	Np-239	52.7	Tm	Tm-170	23.3
K	K-41	0.98				Yb	Yb-169	11.7
Zn	Zn-69m	2.65				Hf	Hf-181	4.39
Ga	Ga-72	4.11				Ta	Ta-182	39.8
As	As-76	5.73				Os	Os-191	3.62
Br	Br-80m	5.6				Hg	Hg-203	1.58
Br	Br-82	6.53				Th	Pa-233	17.3
Mo	Mo-99	8.15				In	In-114m	36.4
La	La-140	1.1						
Sm	Sm-153	5.53						
Sr	Sr85m	6.05						
Sr	Sr87m	3.15						
Cs	Cs134m	5.08						
Ba	Ba139	0.94						
Eu	Eu152m	0.65						
Lu	Lu176m	7.36						
U	U239	8.62						
Sb	Sb-122	7.26						

Trong các đồng vị sử dụng để tính hệ số lợi, đồng vị sống ngắn chỉ có 27/38 (71%) đồng vị có hệ số lợi ≥ 1 , trong khi đó các đồng vị sống trung bình có 21/21 (100%) và đồng vị sống dài có 28/28 (100%) đồng vị có $AF \geq 1$. Như vậy, các đồng vị sống trung bình và dài có ưu thế hơn so với các đồng vị sống ngắn trong phân tích kích hoạt neutron trên nhiệt.

4. Chuẩn hiệu suất cho detector HPGe

Trong quá trình thực nghiệm, việc chuẩn hệ phổ kế gamma có ý nghĩa cực kỳ quan trọng trong việc ghi nhận tín hiệu và tính toán kết quả sau này. Để chuẩn hệ phổ kế gamma HPGe GMX30190, trong nghiên cứu này sử dụng nguồn ^{152}Eu , ^{241}Am , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{133}Ba .



Hình 4. Đường cong hiệu suất (fitted) của Detector 30190.

Bảng 4. Kích thước hình học của nguồn, lá dò và mẫu khai báo trong chương trình ANGLE 3

Loại mẫu	Đường kính d (mm)	Chiều cao h (mm)
Nguồn chuẩn	5	3,18
Lá dò (lá)	3	0,125
Lá dò (dây)	1	1
Mẫu	12	2

Sau khi tính được các giá trị hiệu suất, chúng tôi dùng chương trình ANGLE 3 để chuyển đổi hiệu suất từ hình học của nguồn sang hình học của mẫu và lá dò. Trong quá trình chuyển đổi chúng tôi khai báo hình học của các loại nguồn, lá dò và mẫu là dạng hình trụ

Tại các vị trí, tỷ số hiệu suất giữa các hình học có sự khác biệt. Khác biệt lớn nhất là tại vị trí 21.8 mm (vị trí đo gần detector nhất), tỷ số hiệu suất hình học của lá dò dạng lá với hình học của nguồn chuẩn là lớn nhất trong các hình học của mẫu, khoảng 11,7% tại mức năng lượng 30 keV và 6,8% tại 3200 keV trong khi đó tỷ số hiệu suất hình học mẫu dạng túi PE với hình học nguồn chỉ là 2,9% tại mức năng lượng 30 keV và 2,0% tại 3200 keV và hiệu suất hình học lá dò dạng dây là 8,3% tại 30 keV và 4,7% tại 3200 keV. Vị trí 140,4 mm (vị trí đo xa detector nhất) cũng có xu hướng tương tự, các giá trị tỷ số thấp hơn các vị trí khác, độ lệch cao nhất tại vị trí đo này thuộc về hình học nguồn với hình học mẫu lá dò dạng lá (6% tại 30 keV và 2,3% tại 3200 keV), trong khi đó độ lệch thấp nhất thuộc về hình học nguồn với hình học mẫu (2,2% tại 30 keV và 0,8% tại 3200 keV). Điều này cho thấy vị trí các xa detector, tỷ số giữa các loại hình học mẫu giảm đi.

5. Xác định các thông số phổ neutron

Các lá dò Au, Zr, Ni được sử dụng để tính các thông số phổ neutron trên các kênh chiếu, mỗi loạt chiếu một bộ lá dò có bọc và không bọc Cd.

Bảng 5. Các chế độ chiếu – rã – đo cho bộ lá dò Au và Zr

- Thời gian chiếu/vị trí chiếu + Lá dò (khối lượng)	Thời gian rã	Thời gian đo	Đồng vị cần đo [$T_{1/2}$, $E\gamma(\text{keV})$]
- 10 phút/Kênh 7-1 - 10 giờ/Mâm quay + Al-0,1% Au (~4mg) + 99,8% Zr (~15mg) + 99,8% Ni (~15mg)	~1 ngày	- 600s cho lá dò Au - 1800s cho lá dò Zr	^{198}Au [2,7d, 411,8] ^{97}Zr [16,7h, 743,4]
	~3 ngày	- 10800s cho lá dò Zr	^{95}Zr [64d, 756,7]; ^{95}Nb [64d, 765,8]; ^{58}Co [70,8d, 810,8]

Bảng 6. Kết quả thông số phổ neutron khi chiếu không bọc Cd tại Mâm Quay

Neutron parameter	Bare (n=6)		Cd covered (n=5)		Bare/ Cd covered
	Aver.	%Std.	Aver.	%Std.	
α	0.0889	45.80%	0.0781	17.38%	1.138
ϕ -thermal	2.67E+12	2.56%	-	-	
ϕ -epithermal	7.82E+10	17.74%	9.358E+10	30.54%	0.836
ϕ -fast	1.35E+11	35.78%			

Bảng 7. Kết quả thông số phổ neutron khi chiếu không bọc Cd tại Kênh 7-1

Neutron parameter	Bare (n=6)		Cd covered (n=3)		Bare/ Cd covered
	Aver.	%Std.	Aver.	%Std.	
α	-0.00588	48.55%	0.000239	142.1%	-24.6
ϕ -thermal	4.38E+12	8.25%	-	-	
ϕ -epithermal	3.80E+11	10.19%	5.76E+11	9.4%	0.66
ϕ -fast	3.58E+12	24.28%	-		

Kết quả tính toán hệ số α tại Mâm Quay không có nhiều khác biệt giữa chiếu trần và chiếu bọc Cd, độ lệch của chiếu trần và bọc Cd là khoảng 13.8%, trong khi đó thông lượng neutron trên nhiệt khi chiếu trần thấp hơn khi chiếu bọc Cd khoảng 16.4%. Tại Kênh 7-1, kết quả α lại khác nhau, kết quả khi chiếu trần là -0.00588 trong khi chiếu bọc Cd là 0.000239, cả hai kết quả cho thấy giá trị α xấp xỉ bằng không. Đối với thông lượng neutron trên nhiệt, kết quả cũng tương tự như Mâm Quay, thông lượng neutron trên nhiệt khi chiếu trần thấp hơn khi chiếu bọc Cd khoảng 34%.

6. Xác định hàm lượng các nguyên tố bằng phương pháp ENAA

Các mẫu chuẩn đất đá được sấy ở nhiệt độ 105⁰C (NIST 1633b, NIST 2711a, NIST 278) và 60⁰C đối với các mẫu chuẩn sinh học (IAEA 436, NIST 1566b, NIST 1577b) trong 3 giờ rồi được đem đi xác định khối lượng bằng cân điện tử với độ chính xác cao (0,01 mg) tại phòng thí nghiệm và đóng gói mẫu lần lượt khoảng 50 mg (chiều ngắn) và 150 mg (chiều dài), sau đó được cho vào các gói mẫu rồi được hàn kín miệng bằng mỏ hàn. Các gói mẫu này sau đó được bỏ vào trong hộp Cd (1x1 cm đối với Kênh 7-1, 2x2 cmm đối với Mâm Quay).

Đối với phép phân tích đa nguyên tố bằng ENAA cần có 2 chế độ chiếu: ngắn ($t_i=120$ giây đối với nhóm mẫu đất đá, 300 giây đối với nhóm mẫu sinh học), trung bình và dài ($t_i=10$ giờ cho cả hai nhóm) để xác định những nhóm nguyên tố có chu kỳ bán hủy khác nhau.

Việc xử lý phổ gamma đo được của mẫu kích hoạt và tính hàm lượng các nguyên tố bằng phương pháp chuẩn hóa k_0 -NAA được thực hiện bằng cách sử dụng chương trình k_0 -DALAT đã được phát triển chức năng xử lý cho ENAA.

III. Kết quả và thảo luận

Kết quả phân tích của các mẫu chuẩn đất đá trong bảng 8 cho thấy phương pháp ENAA có thể phân tích được rất nhiều các đồng vị, mẫu chuẩn NIST 1633b phân tích được 54 đồng vị, mẫu chuẩn NIST 2711a phân tích được 55 đồng vị, mẫu chuẩn NIST 278 phân tích được 43 đồng vị. Tổng cộng có 17/54 (7 nguyên tố không có giá trị chứng nhận) đối với NIST 1633b, 20/55 (10 nguyên tố không có giá trị chứng nhận) đối với NIST 2711a và 18/43 (2 nguyên tố không có giá trị chứng nhận) đối với NIST 278 có Z-score và/hoặc Zeta-score lớn hơn 2. Khi so sánh với các quy trình phân tích đã được chứng nhận ISO/IEC17025:2005 tại phòng thí nghiệm của chúng tôi trước đây (Quy trình phân tích được phê duyệt phân tích khi chiếu không bọc CD phân tích được khoảng <25 nguyên tố trong mẫu đất đá) với quy trình phân tích bằng kỹ thuật ENAA thì ENAA hoàn toàn chiếm ưu thế.

Bảng 8. Kết quả phân tích các mẫu chuẩn đất đá

No.	Ele.	NIST 1633b					NIST 2711a					NIST 278				
		Conc ± SD	Cert ± SD	T	Z	Zeta	Conc ± SD	Cert ± SD	T	Z	Zeta	Conc ± SD	Cert ± SD	T	Z	Zeta
1	Al	191000±4370	150500±2700	126.9%	10	7.9	131000±3558	67200±600	194.9%	32	17.7	141000±3755	74900±800	188.30%	29.9	17.2
2	V	409±26	296±36	138.3%	5.6	2.5	122±9	81±6	151.2%	6.2	3.7					
3	Ti	7180±302	7910±140	90.8%	-2.2	-2.2										
4	Na	5160±228	2010±30	256.7%	31	13.7	15500±580	12000±100	129.2%	7.5	5.9	42100±1356	35900±400	117.30%	5.2	4.4
5	K	19600±708	19500±300	100.5%	0.1	0.1	24900±868	25300±1000	98.4%	-0.5	-0.3	29600±1006	34500±200	85.80%	-4.3	-4.8
6	Mn	187±13.6	131.8±1.7	141.9%	5.5	4	752±44	675±18	111.4%	1.9	1.6	425±27	400±15	106.30%	1	0.8
7	Ga	62.7±5.4					12.1±1.3					17.9±1.9	11±1.2	162.70%	5.6	3.1
8	As	135±10.3	136.2±2.6	99.1%	-0.1	-0.1	105±8	107±5	98.1%	-0.2	-0.2					
9	Sr(Sr ^{87Sm})	1060±59	1041±14	101.8%	0.3	0.3										
10	Sr(Sr ^{87Sm})	1490±79	1041±14	143.1%	7.7	5.6	316±21	242±10	130.6%	4.4	3.1					
11	In	0.163±0.034					1.04±0.17	1±0.16	104.0%	0.3	0.2	0.07±0.02	0.04±0.01	157.10%	2.6	1.4
12	Sb						27.3±2.7	23.8±1.4	114.7%	1.5	1.2					
13	I						3.87±0.5									
14	Cs	12.7±1.4	11±1.2	115.5%	1.4	0.9										
15	Ba	740±44	709±27	104.4%	0.7	0.6	806±47	730±15	110.4%	1.8	1.5	924±53	1140±63	81.10%	-3.4	-2.6
16	Sm	22.2±2.2	20±2	111.0%	1.1	0.7	5.54±0.68	5.93±0.28	93.4%	-0.5	-0.5	7.85±0.92	5.7±0.7	137.70%	3.1	1.9
17	Eu	3.47±0.5	4.1±0.5	84.6%	-1.2	-0.9	0.98±0.16	1.1±0.2	88.6%	-0.7	-0.5					
18	Dy	35.9±3.4	17±1.8	211.2%	11	5	11±1.2	5±0.6	220.0%	9.6	4.4	11.6±1.3	6.3±0.8	185.0%	7	3.6
19	Lu	1.54±0.2	1.2±0.2	128.3%	1.8	1.1										
20	U	7.67±0.9	8.8±0.4	87.3%	-1.1	-1.2	3.03±0.41	3.01±0.12	100.7%	0	0	4.49±0.57	4.58±0.04	98.0%	-0.2	-0.2
21	Na	3757±170	2010±30	186.9%	17	10.1	17900±361	12000±100	149.2%	13	15.8	52400±954	35900±400	146.0%	13.9	16
22	K	19900±819	19500±300	102.1%	0.6	0.5	31333±1474	25300±1000	123.8%	6.9	3.4	41833±3781	34500±200	121.3%	6.4	1.9
23	Ga	58.8±6					18.8±1.7					11±1.23				
24	As	137.3±1.2	136.2±2.6	100.8%	0.1	0.4	118±3	107±5	110.6%	1.3	1.9	4.53±0.25	4.39±0.56	103.3%	0.3	0.2
25	Br	3.09±0.11	2.9±0.4	106.7%	0.5	0.5	4.11±0.16					2.48±0.33	2.37±0.33	104.6%	0.3	0.2
26	Mo	26.3±2.3					4.65±0.59					4.18±1.17	3.2±0.43	130.6%	2.3	0.8
27	Cd						119±17	54±1	220.6%	14	3.8					
28	Cd						121±16	54±1	224.30%	14	4.2					
29	Sb	5.15±0.15	6±0.73	85.8%	-1.2	-1.1	23±1.5	23.8±1.4	96.6%	-0.3	-0.4	1.42±0.23	1.5±0.23	94.4%	-0.4	-0.3
30	Ba	667±98	709±27	94.1%	-1	-0.4	718±38	730±15	98.3%	-0.3	-0.3	1066±324	1140±63	93.5%	-1.2	-0.2
31	La	93±2.8	94±7.6	99%	-0.1	-0.1	45±1.3	38±1	118.3%	2	4.2	33.1±0.5	30±2.9	110.2%	1.1	1.1
32	Sm	17.8±0.3	20±2	88.8%	-1.1	-1.1	6.11±0.16	5.93±0.28	103.0%	0.2	0.5	5.69±0.11	5.7±0.7	99.9%	0	0
33	Ho	4.56±0.5	3.5±0.46	132.8%	2.5	1.7						1.29±0.07	1.31±0.2	98.7%	-0.1	-0.1
34	W	5.32±0.3	5.6±0.69	95.0%	-0.4	-0.4	3.48±0.07					1.73±0.68	2.1±0.3	82.2%	-1.2	-0.5
35	Au	0.09±0.09					0.02±0.01									
36	U	8.69±0.19	8.79±0.36	98.9%	-0.1	-0.2	3.35±0.17	3.01±0.12	111.2%	0.8	1.6	4.43±0.3	4.58±0.04	96.7%	-0.3	-0.5
37	Se	51.3±3.5	41±3.8	125.2%	2.8	2	12.4±0.6	8.5±0.1	145.5%	3.9	5.9	7.58±0.32	5.1±0.64	148.6%	3.9	3.5
38	Cr	320±27	198±5	161.6%	8.5	4.5	88.4±14	52.3±2.9	169.0%	7.8	2.5					
39	Fe	92033±4102	77800±2300	118.3%	6.2	3	36500±1803	28200±400	129.4%	8.6	4.5	19000±1054	14300±200	132.9%	8.7	4.4
40	Co	48.8±0.7	50±4.4	97.7%	-0.3	-0.3	10.5±0.2	9.9±0.2	106.5%	0.6	2.3	1.87±0.16	1.5±0.23	124.7%	1.6	1.3
41	Zn	321±127	210±15	152.9%	7.4	0.9	579±35	414±11	139.9%	6.2	4.5	61.5±10.6	55±4.8	111.8%	1.4	0.6
42	Se	12.6±0.8	10.3±0.2	122.8%	2	2.8	5.03±1.3	2±0.29	251.5%	11	2.3	2.38±0.3				
43	Rb	151.7±5.5	140±10.6	108.3%	1.1	1	136±1	120±3	113.1%	1.7	5.1	139±8	128±10	109.0%	1.2	1.4
44	Sr	770±476	1041±14	74%	-4.6	-0.6	339±21	242±10	140.2%	5.7	4.3	92.3±7.3	63.5±0.1	145.4%	5.3	4
45	Zr	485±102					642±98					532±72	272±19	195.5%	13.9	3.5
46	Mo						11.7±1.3									
47	Ag	0.45±0.22					4.72±0.38									
48	In						3.9±2.47	1±0.16	390.3%	18	1.2	2.6±0.27	0.04±0.01	5963.3%	229	9.5
49	Sb	5.4±0.68	6±0.73	90%	-0.8	-0.6	24.6±1	23.8±1.4	103.5%	0.4	0.5	1.61±0.28	1.5±0.23	107.6%	0.5	0.3
50	Cs	9.57±0.56	11±1.23	87%	-1.2	-1.1	6.16±0.31	6.7±0.2	91.9%	-0.7	-1.5	4.83±0.42	5.5±0.68	87.8%	-1	-0.8
51	Ba						803±99	730±15	110.0%	1.7	0.7	1072±134	1140±63	94.1%	-1.1	-0.5
52	Ce	281.3±19.8	190±13.8	148.1%	6.6	3.8	122±11	70±6	173.8%	8.7	4.2	107±5	62±5	172.0%	8.4	6.1
53	Nd	91.6±3.5	85±7	107.7%	0.9	0.8	49.8±4.4	29±2	171.7%	7.4	10.4					
54	Eu	4.83±2.3	4.1±0.53	117.9%	1.4	0.3	0.78±0.07	1.1±0.2	71.1%	-1.8	-1.5	0.97±0.1	0.84±0.14	115.4%	0.9	0.8
55	Eu	3.39±0.42	4.1±0.53	82.6%	-1.3	-1.1	1.43±0.37	1.1±0.2	129.7%	1.9	0.8	0.76±0.12	0.84±0.14	90.4%	-0.6	-0.4

56	Tb	2.82±0.62	2.6±0.36	108.5%	0.6	0.3	0.77±0.02	0.8±0.13	95.7%	-0.3	-0.3	0.88±0.14	1±0.16	87.6%	-0.8	-0.6
57	Tm	2.12±0.04	2.1±0.3	100.8%	0.1	0.1										
58	Yb	8.33±2.66	7.6±0.9	109.6%	0.8	0.3	3.24±0.29	3±0.41	108.0%	0.6	0.5	3.83±0.62	4.5±0.57	85.0%	-1.2	-0.8
59	Hf	6.17±0.15	6.8±0.82	90.7%	-0.8	-0.8	9.61±1.29	9.2±0.2	104.4%	0.4	0.3	8.12±0.35	8.4±0.98	96.7%	-0.3	-0.3
60	Ta	0.73±0.12	1.8±0.26	40.4%	-4.1	-3.7	0.57±0.09	1±0.16	57.1%	-2.7	-2.4	0.52±0.08	1.2±0.19	43.7%	-3.6	-3.3
61	Th	25.7±0.4	25.7±1.3	100.0%	0	0	16.1±1.5	15±1	107.30%	0.7	0.6	12.5±1.3	12.4±0.3	100.50%	0	0

Đơn vị hàm lượng: mg/kg ; Conc: Hàm lượng; SD: Sai số/độ lệch chuẩn; Cert: Giá trị chứng nhận; T: độ đúng; Z: z-score; Zeta: Zeta-score.

Bảng 9. Kết quả phân tích các mẫu chuẩn sinh học.

No.	Ele.	NIES No.9					NIST 1577b					IAEA 436					NIST 1566b				
		Conc ± SD	Cert ± SD	T (%)	Z	Zeta	Conc ± SD	Cert ± SD	T (%)	Z	Zeta	Conc ± SD	Cert ± SD	T (%)	Z	Zeta	Conc ± SD	Cert ± SD	T (%)	Z	Zeta
1	Al(%)	2.04±0.07	1.70 ±0.08	120.0	5.4	3.1	1260±69	3±0	42000	3090	18.3										
2	Ca(%)	4.61±0.14	5.10±0.16	90.4	-3.1	-2.3	0.0192±0.0014	0.016±0.0008	120.0	2.7	2										
3	Na(%)	5.98±0.18	6.10±0.20	98.0	-0.6	-0.4	0.309±0.015	0.242±0.006	127.7	5.6	4.2	0.20±0.010	0.15±0.012	135.2	6.6	3.4	0.42±0.019	0.33±0.005	128.3	6	4.7
4	Cl	24.3±2.4	21.2±1	114.6	1.4	1.2	2790±135	2780±60	100.4	0.1	0.1	2420±120					5330±234	5140±100	103.7	0.8	0.7
5	K(%)						1.14±0.045	0.99±0.002	114.7	3.7	3.3	1.31±0.05	1.23±0.06	106.5	1.7	1	0.66±0.028	0.652±0.009	101.1	0.3	0.2
6	Mn	119±9	115±9	103.5	0.4	0.3	13.3±1.4	10.5±1.7	126.7	2.4	1.3						20.7±2.1	18.5±0.2	111.9	1.2	1
7	Zn																1850±95	1424±46	129.9	5.6	4
8	As																8.72±1.01	7.65±0.65	114.0	1.2	0.9
9	Br	272±19	270±19	100.7	0.1	0.1	10.8±1.2	9.7±1.1	111.3	1	0.7	18.6±1.9	14.8±1.5	125.7	2.4	1.6	61.7±5.3				
10	U						0.047±0.01										0.33±0.06	0.26±0.01	127.5	1.4	1.1
11	Sr	1080±60	1000±30	108.0	1.4	1.2															
12	Sr	1310±71	1000±30	131.0	5.5	4															
13	I	628±38	520±32	120.8	3.3	2.2						1.05±0.17					4.08±0.53				
14	Na(%)	2.26±0.08	1.70±0.08	132.9	8.9	5	0.32±0.015	0.242±0.006	132.2	6.5	0.4	0.191±0.011	0.15±0.012	127.2	5.1	0.4	0.37±0.017	0.33±0.005	112.7	2.7	0.2
15	K(%)	6.8±0.2	6.1±0.2	111.5	3.8	2.5	1.13±0.044	0.99±0.020	113.7	3.4	0.2	1.25±0.72	1.23±0.06	101.6	0.4	0	0.64±0.027	0.65±0.090	97.5	-0.6	0
16	Zn																1370±74	1424±46	96.2	-0.7	-0.1
17	As	124±10	115±9	107.8	1	0.7						1.85±1.07	1.98±0.17	93.2	-0.5	-0.1	6.85±0.82	7.65±0.65	89.5	-0.9	-0.2
18	Br	263±18	270±19	97.4	-0.4	-0.3	9.3±1.06	9.7±1.1	95.9	-0.4	-0.1	14.6±8.4	14.8±1.5	98.6	-0.1		43.6±3.9				
19	Mo						4.73±0.6	3.5±0.3	135.1	2.7	0.4										
20	Sc	0.11±0.02	0.09±0.02	116.7	0.7	0.5	0.11±0.02					0.07±0.04					0.08±0.02				
21	Fe						363±24	184±15	197.3	13.3	0.8		89.3±4.2				328±22	206±7	159.4	8.3	5.3
22	Co	0.29±0.06	0.12±0.01	240.8	6.4	3	0.49±0.09					0.04±0.01					0.6±0.1	0.37±0.01	162.1	3.3	0.6
23	Zn	22.9±2.3	15.6±1.2	146.8	4.4	2.8	153±11	127±16	120.5	2.7	0.3	25.1±14.6	19±1.3	132.1	3.1	0.4	1545±82	1424±46	108.5	1.6	0.1
24	Se						0.8±0.13	0.73±0.06	109.5	0.6	0.1	3.76±2.17	4.63±0.48	81.1	-1.5	-0.4	2.14±0.3	2.06±0.15	103.6	0.3	0.1
25	Sr	1210±67	1000±30	121.0	3.7	2.9															
26	Rb	23.5±2.3	24±2	97.9	-0.2	-0.2	11.5±1.3	13.7±1.1	83.9	-1.5	-0.3	3.48±2.02	2.41±0.27	144.4	3.2	0.5	2.84±0.39	3.26±0.14	87.1	-1	-0.2
27	Ag																0.48±0.09	0.67±0.01	71.5	-1.7	-0.7
28	Ba																7.08±0.84	8.6±0.3	82.3	-1.5	-0.4
29	Eu																0.11±0.02				
30	Sb											0.11±0.07									
31	Cs											0.12±0.07									
32	Hg											8.22±4.76	4.19±0.36	196.2	7.5	0.8	4.27±0.55	0.04±0.01	11509	434	3256

Đơn vị hàm lượng: mg/kg ; Conc: Hàm lượng; SD: Sai số/độ lệch chuẩn; Cert: Giá trị chứng nhận; T: độ đúng; Z: z-score; Zeta: Zeta-score

Bảng 3.21. Giá trị LOD trong một số mẫu chuẩn đất đá (phân tích bằng ENAA) và trong các TCCS (phân tích bằng NAA)

Mẫu đất đá						Mẫu Sinh Học						
No.	Ele.	NIST 1633b	NIST 2711a	NIST 278	NAA TCCS	No.	Ele.	NIES No.9	NIST 1577b	IAEA 436	NIST 1566b	NAA (TCCS)
1	Al	2220	2180	1480	2000	1	Al		37			30
2	V	50	32		20	2	Ti					1300
3	Ti	6410			3000	3	V					0.8
4	Na	162	194	373		4	Cu		52			
5	K	3290	4120	5160		5	Dy					0.4
6	Mn	4.2	3	14	4	6	Na	354	81	61	91	
7	Ga	8.9	9.9	13.3		7	Cl	973	187	146	246	70
8	As	10	10			8	K	6950	1590	1460	1540	
9	Sr(Sr85m)	349	116			9	Mn	2.4	0.6		3.6	2
10	Sr(Sr87m)	111				10	Zn(Zn69m)				1050	
11	In	0.016	0.02	0.02		11	As	12		0.24	3.32	
12	Sb		11.5			12	Br	24	3.1	0.3	6.3	
13	Cs	5.8				13	Sr(Sr85m)	579				
14	I		3.01			14	Sr(Sr87m)	164				
15	Ba	324	332	421		15	I	6		0.57	0.79	
16	Sm	1.4	1.16	1.59		16	U		0.046		0.08	
17	Eu	0.5	0.49			1	Na	241	28		28	4
18	Dy	4.8	4.1	5.5	1.4	2	K	12100	937		747	1400
19	Lu	0.7				3	Zn				516	
20	U	0.3	0.3	0.36		4	As	3			0.38	0.4
1	Na	77	119	204	24	5	Br	3	0.32		0.5	
2	K	3443	4263	5857	850	6	Mo		1.8			
3	Ga	20.1	19.9	23.15		7	La					0.1
4	As	1.8	2	0.79	4	8	Sm					0.01
5	Br	1.03	0.59	0.96		1	Sc	0.08	0.08	0.07	0.1	0.002
6	Mo	3.9	2.72	2.98		2	Fe		511	437	307	15
7	Cd(Cd115)		29			3	Co	0.35	0.38	0.24	0.36	0.01
8	Cd(In115m)		18			4	Zn	17.5	17	15.5	25	1.5
9	Sb	0.17	1.1	0.13		5	Se		0.68	0.64	0.68	0.08
10	Ba	233	220	277		6	Sr	65				
11	La	1.9	3.2	4.8	0.5	7	Rb	4.7	2.5	1.98	2.22	1
12	Sm	0.1	0.15	0.05	0.09	8	Sb			0.04		0.4
13	Ho	0.47		0.34		9	Cs			0.05		0.05
14	Lu				0.1	10	Hg			2.64	2.18	0.07
15	W	1.14	0.86	1.18		11	Ag				0.18	
16	Au	0.01	0.01			12	Ba				5.73	
17	U	0.45	0.48	0.48	2.5	13	Eu				0.05	
1	Sc	0.3	0.2	0.16	0.03	14	Ce					0.2
2	Cr	26	22.6		2.5	15	Cr					0.3
3	Fe	1091	816	587	180	16	Hf					0.02
4	Co	0.8	0.7	0.28	0.2	17	Th					0.05
5	Zn	105	59	42.8	28							
6	Se	1.1	1.02	0.8								
7	Rb	6.6	5	5	8							
8	Sr	91	69	51.7								
9	Zr	242.7	170	142								
10	Mo		9									
11	Ag	0.46	0.33									
12	In		1.27	1								
13	Sb	0.49	0.2	0.08	3							
14	Cs	0.18	0.13	0.11	3							
15	Ba		60	62	150							
16	Ce	11.2	9	8	1.4							
17	Nd	41.8	16.1		30							
18	Eu(Eu152)	0.12	0.2	0.11	0.06							
19	Eu(Eu154)	1.18	0.52	0.61								
20	Tb	0.12	0.09	0.15	0.75							
21	Tm	0.18										
22	Yb	0.44	0.41	0.36								
23	Hf	0.55	1.34	0.38								
24	Ta	0.02	0.02	0.02								
25	Th	0.2	0.2	0.2	0.5							

Đơn vị: mg/kg

Một số các đồng vị của các nguyên tố trong mẫu đất đá có hệ số lợi thấp như Al, Dy, Na, K, Sc, Fe, Ce... các nguyên tố này có hệ số lợi nhỏ hơn 2, hệ số Q_0 thấp nên không thích hợp khi phân tích bằng ENAA, kết quả cho thấy Z-score, zeta-score của các nguyên tố này đều lớn hơn 2. Ngoài ra, một số nguyên tố này còn bị nhiễu bởi các phản ứng từ neutron nhanh hoặc từ phản ứng phân hạch. Nguyên tố Al với phản ứng $^{27}\text{Al}(n,g)^{28}\text{Al}$ bị nhiễu bởi $^{28}\text{Si}(n,p)^{28}\text{Al}$ và $^{31}\text{P}(n,\alpha)^{28}\text{Al}$; nguyên tố Na với phản ứng $^{23}\text{Na}(n,g)^{24}\text{Na}$ bị nhiễu bởi $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$ và $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$; các nguyên tố Ce, Zr với các phản ứng $^{140}\text{Ce}(n,g)^{141}\text{Ce}$ và $^{94}\text{Zr}(n,g)^{95}\text{Zr}$ bị nhiễu bởi $^{235}\text{U}(n,\text{Fission})^{141}\text{Ce}$ và $^{235}\text{U}(n,\text{Fission})^{95}\text{Zr}$.

Tương tự như các mẫu chuẩn đất đá, kết quả các mẫu chuẩn sinh học trong bảng 9 cũng có một số nguyên tố có hệ số lợi thấp bị lệch so với giá trị chứng nhận khi phân tích bằng ENAA như Al, Na, Sc, Fe... ngoài ra một số nguyên tố còn bị nhiễu bởi các phản ứng từ neutron nhanh hoặc các đỉnh gamma có xác suất phát cao bị nhiễu từ các đồng vị nhạy với ENAA khác như ^{203}Hg (đỉnh 279,2 keV) bị nhiễu bởi ^{75}Se (đỉnh 279,5 keV), ...

Giá trị LOD của một số mẫu chuẩn khi phân tích bằng ENAA được so sánh với giá trị LOD khi chiếu trần (NAA) trong các tiêu chuẩn cơ sở đã được chứng nhận phù hợp với tiêu chuẩn ISO/IEC 17025: 2005 tại Trung tâm Phân tích, Viện nghiên cứu hạt nhân trong bảng 10 [9-14]. Kết quả cho thấy một số nguyên tố As, Tb, U, Th có LOD thấp hơn từ 2 đến 5 lần; Rb, Mn khoảng 1,5 lần; điều này cho thấy ENAA có ưu điểm hơn khi chiếu bọc Cd vì cho độ nhạy thấp hơn NAA, một số nguyên tố Al, V, Na, Sc... thì ngược lại, các nguyên tố này cho giá trị LOD bằng (Al) hoặc thấp hơn (LOD cao hơn từ 2 đến 10 lần) khi chiếu trần do chúng có tiết diện bắt neutron nhiệt cao. Ngoài ra, ENAA cũng phân tích được nhiều đồng vị nguyên tố hơn mà toàn bộ là các nguyên tố có tiết diện bắt neutron trên nhiệt cao

IV. Kết luận

Khi sử dụng phần mềm MCNP nhằm đánh giá độ an toàn khi đưa Cd vào các kênh chiếu xạ đồng thời tính toán sự thay đổi trường neutron bên trong và bên ngoài vỏ bọc Cd; Các kết quả cho thấy khi chiếu bọc Cd trên Kênh 7-1 với kích thước hộp Cd là 1x1 cm và Mâm Quay với kích thước 2x2 cm không gây ra các hiệu ứng đáng kể đến vận hành an toàn lò phản ứng. Kết quả mô phỏng cũng cho thấy hầu như không có neutron nhiệt vượt qua được bề dày 1 mm của vỏ Cd.

Các hệ số lợi (AF) cho các đồng vị của các nguyên tố quan tâm bao gồm 38 đồng vị trong chế độ chiếu ngắn (Kênh 7-1), 21 đồng vị trong chế độ chiếu trung bình và 28 đồng vị trong chế độ chiếu dài đã được xác định. Kết quả cho thấy hầu hết các nguyên tố trong chế độ chiếu trung bình và dài đều có hệ số lợi lớn hơn 1 và do đó các nguyên tố trong các chế độ này có ưu thế hơn khi phân tích bằng ENAA. Ngoài ra, ENAA cũng phân tích được thêm nhiều đồng vị hơn, đặc biệt là trong chế độ chiếu ngắn.

Hiệu suất của nguồn chuẩn tại 4 vị trí đo của detector GMX-30190 đã được xác định và chuyển đổi từ hình học của nguồn chuẩn sang hình học của các lá dò và mẫu phân tích. Kết quả cho thấy có sự khác biệt đáng kể (~1-10) giữa hình học của nguồn chuẩn với hình học của lá dò và mẫu phân tích. Sự khác biệt hiệu suất giữa các loại hình học này tăng khi khoảng cách đo đến detector giảm.

Kết quả tính toán các thông số phổ neutron cho thấy thông lượng neutron trên nhiệt trong hộp Cd cao hơn so với chiếu trần. Điều này có thể là do các túi PE và giấy lọc bọc mẫu, các vật liệu này lại làm chậm một số neutron nhanh và làm tăng neutron trên nhiệt.

Hàm lượng và giá trị LOD của các nguyên tố khi phân tích bằng ENAA đối với các mẫu chuẩn đất đá cho thấy phương pháp ENAA phân tích được nhiều đồng vị của các nguyên tố hơn NAA do làm giảm nền phông từ các nguyên tố nhạy với neutron nhiệt như Al, Na, Sc,... dẫn đến một số nguyên tố có LOD thấp hơn khi chiếu trần nhiều lần như As, U, Tb, Th, Rb, Sb, ... Các đồng vị có hệ số lợi thấp không phù hợp khi phân tích bằng ENAA khi chúng có độ lệch với giá trị chứng nhận lớn và LOD cao hơn khi chiếu trần, đồng thời nhiều nguyên tố còn bị nhiễu bởi các phản ứng từ neutron nhanh, phản ứng phân hạch hoặc các đỉnh gamma có xác suất phát cao bị nhiễu từ các đồng vị nhạy với ENAA khác

(Al, Na, Hg, Zr,...). Do đó, khi phân tích ENAA cho các nguyên tố này thì các hiệu chỉnh cần được thực hiện.

Tài liệu tham khảo

[1] E. Steinnes, (1971), *Epithermal neutron activation analysis of geological material*, Institutt for Atomenergi, Isotope Laboratories, Kjeller, Norway.

[2] H. M. Dũng, (2002), *Nghiên cứu phát triển phương pháp k-zero trong phân tích kích hoạt neutron lò phản ứng hạt nhân cho xác định đa nguyên tố*, Luận án tiến sĩ Vật lý, Đại học KHTN, Đại học Quốc gia Tp.HCM.

[3] C. Burgess, (2001), *Valid Analytical Methods Procedures*, Royal Society of Chemistry, 1st edition, (P.57-59).

[4] W. Horwitz, L. R. Kamps, and K. W. Boyer, (1980), *Quality Assurance in the Analysis of Foods for Trace Constituents*, J. Assoc. Off. Anal. Chem., **63**, 1344-1354.

[5] W. Horwitz and R. Albert, (2006), *The Horwitz Ratio (HorRat): A Useful Index of Method Performance with Respect to Precision*, Journal of AOAC International Vol **89** (4): 1095-1109.

[6] M. Thompson, (2000), *Recent trends in inter-laboratory precision at ppb and sub-ppb concentrations in relation to fitness for purpose criteria in proficiency testing*, The Analyst Communication, **125**, 385-386.

[7] M. Thompson, (2007), *Limitations of the application of the Horwitz Equation: A rebuttal*, Trends in Analytical Chemistry, **26** (7), 659-661.

[8] EURACHEM, (2011), *Selection, use and interpretation of proficiency testing (PT) schemes*, 2nd Edition.

[9] C. D. Vu, T. Q. Thien, H. V. Doanh, P. D. Quyet, T. T. T. Anh, N. N. Dien, *Characterization of neutron spectrum parameters at irradiation channels for neutron activation analysis after full conversion of the Dalat nuclear research reactor to low enriched uranium fuel*, Nuclear Science and Technology, Volume 4, Number 1, March 2014, p. 70-75. Hanoi, Vietnam.

[10] Trung tâm phân tích, (2010), TCCS-MDD-01

[11] Trung tâm phân tích, (2010), TCCS-MDD-02

[12] Trung tâm phân tích, (2010), TCCS-MDD-03

[13] Trung tâm phân tích, (2010), TCCS-MSH-01

[14] Trung tâm phân tích, (2010), TCCS-MSH-02

[15] Trung tâm phân tích, (2010), TCCS-MSH-03

DEVELOPMENT OF EPITHERMAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS AT NUCLEAR RESEARCH INSTITUTE IN DALAT

TRAN QUANG THIEN, HO MẠNH DUNG, HO VAN DOANH, NGUYEN THI SY

Nuclear Research Institute, 01 Nguyen Tu Luc Street, Da Lat, Vietnam

Email: tranquangthien@outlook.com

Abstract: The Epi-thermal Neutron Activation Analysis (ENAA) technique was developed at Nuclear Research Institute in Da Lat. The standard reference materials (SRMs) and comparators were packed in the Cd boxes for the irradiation channels. The results of MCNP shown that the neutron spectra and the irradiation condition was safety for reactor. After irradiation, the samples were measured on HPGe spectroscopy system, the ANGLE software also be used to convert efficiency from sources to sample

geometry. The Cd-ratio for multi-monitors was used to determine α and the new update of k0-DALAT computer program was calculated neutron flux and the concentration of the elements. Results showed that, the ENAA techniques increased the sensitivity of some elements by 2 to 5 times such as: I, Sm, U, Th, W, ... which have Q_0 higher than 1, it was results of reducing the influence of background of other elements such as: Al, Cl, Na, Sc, Fe ... in the samples.

Keywords: *epi-thermal neutron activation analysis, k0-ENAA, Dalat nuclear research institute*