



Bài báo nghiên cứu

PHƯƠNG PHÁP K-ZERO TRONG PHÂN TÍCH KÍCH HOẠT NEUTRON (k_0 - NAA)

Trương Trường Sơn

Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

Tác giả liên hệ: Trương Trường Sơn – Email: sonnt@hcmue.edu.vn

Ngày nhận bài: 11-8-2021; ngày nhận bài sửa: 17-12-2021; ngày chấp nhận đăng: 20-12-2021

TÓM TẮT

Phân tích kích hoạt neutron (NAA) là một phương pháp phân tích vật lý hạt nhân không hủy mẫu với độ nhạy và độ chính xác cao có khả năng giải quyết nhiều bài toán thực tế trong nghiên cứu địa chất, khảo cổ, nông – sinh – y, vật liệu, môi trường... Trong NAA, có 3 loại nguồn neutron thường được sử dụng: nguồn đồng vị, máy gia tốc và lò phản ứng. Sử dụng nguồn neutron từ lò phản ứng hạt nhân nghiên cứu có thông lượng neutron cao, vì vậy đây là nguồn neutron cho NAA có nhiều ưu điểm nhất trong 3 loại nguồn kể trên. NAA có các phương pháp chuẩn hoá khác nhau: tuyệt đối, tương đối, chuẩn đơn và k-zero, trong đó phương pháp k-zero của NAA (k_0 -NAA) được đánh giá là phương pháp ổn định (về mặt sai số hệ thống) có độ nhạy và độ chính xác cao, đặc biệt khi nghiên cứu một số đối tượng như bài toán môi trường, địa chất, khảo cổ... quan tâm đặc biệt đến mối tương quan giữa các nguyên tố cho nhiều mẫu nghiên cứu thì thể hiện sự ưu việt vượt trội của phương pháp. Chính vì vậy mà phương pháp k_0 -NAA đã được chọn và sử dụng ở nhiều nơi trên thế giới như một phương pháp chuẩn (tham khảo) dùng để phê chuẩn (validation) cho các mẫu chuẩn – tham khảo (standard reference materials) và cũng là phương pháp chính trong nhiều đối tượng nghiên cứu.

Từ khóa: k_0 -NAA; phân tích kích hoạt neutron

1. Mở đầu

Trên thế giới, các nước đi đầu trong việc nghiên cứu phát triển và áp dụng phương pháp k_0 -NAA đầu tiên vào cuối những năm 1970 phải kể đến là Viện INW ở Bỉ và Viện KFKI ở Hungary. Sau đó, những năm 1980, một số phòng thí nghiệm như NIST (Hoa Kỳ), Delft (Hà Lan), SACLAY (Pháp), đã tham gia lĩnh vực này. Tiếp theo những năm 1990, các nước như Viện KFA (Đức), JAERI (Nhật Bản), Trung Quốc, Việt Nam, Hàn Quốc và Malaysia đã nghiên cứu áp dụng phương pháp k_0 -NAA (Frans De Corte, 2018).

Cite this article as: Trương Trường Sơn (2021). K-zero method in neutron activity analysis (k_0 -NAA). *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science*, 18(12), 2236-2242.

Ở nước ta, phương pháp k_0 -NAA trên Lò Phản ứng Hạt nhân Đà Lạt đã được nghiên cứu từ những năm cuối của thập niên 1980 và đầu thập niên. Đầu những năm 2000, nhóm nghiên cứu của Hồ Mạnh Dũng đã phát triển phương pháp k_0 -NAA trên Lò Phản ứng Hạt nhân Đà Lạt (Ho & Pham, 2003), từ việc xác định thực nghiệm các thông số phổ neutron tại các vị trí chiếu kích hoạt mẫu trong lò phản ứng hạt nhân cho đến việc hiệu chuẩn hệ phổ kế gamma, phát triển phần mềm xử lý số liệu...

Gần đây, nhóm nghiên cứu của Hồ Mạnh Dũng ở Viện Nghiên cứu hạt nhân Đà Lạt đã phát triển thêm kỹ thuật dùng neutron trên nhiệt (epithermal neutrons) và kỹ thuật kích hoạt lặp vòng (cyclic NAA) trong phương pháp k_0 -NAA. Đặc biệt, nhóm nghiên cứu đang tiến hành đánh giá lại các số liệu hạt nhân trong phương pháp k_0 -NAA thông qua đề tài do Quỹ KHCN Quốc gia (Nafosted) tài trợ. Số liệu hạt nhân trong phương pháp k_0 -NAA bao gồm: hệ số k_0 – tổ hợp của các hằng số hạt nhân (khối lượng nguyên tử, độ phổ biến đồng vị, hiệu suất phát tia gamma và tiết diện bắt neutron nhiệt); Q_0 – tỉ số giữa tích phân cộng hưởng (I_0) và tiết diện bắt neutron nhiệt (σ_0); và \bar{E}_r – năng lượng cộng hưởng hiệu dụng. Một số trong các số liệu hạt nhân này được đo bằng thực nghiệm, trong khi một số khác thu được bằng tính toán (Ho et al., 2015).

Độ chính xác và khả năng áp dụng của phương pháp k_0 -NAA phụ thuộc đáng kể vào độ tin cậy của các số liệu hạt nhân nói trên. Việc nghiên cứu, đánh giá, phát triển các số liệu hạt nhân trong lĩnh vực khoa học và công nghệ hạt nhân nói chung và trong phương pháp k_0 -NAA nói riêng là việc làm quan trọng và hết sức cần thiết.

Phản ứng hạt nhân trong NAA phụ thuộc vào năng lượng của neutron tới bắn phá trong mẫu đóng vai trò như là hạt tới kích thích phản ứng gây ra hạt nhân phóng xạ từ trạng thái không bền phân rã phóng xạ phát tia gamma và trở về trạng thái bền. Tiết diện bắt neutron của hạt nhân nguyên tử trong mẫu cũng phụ thuộc vào năng lượng neutron. Ở vùng năng lượng thấp hay gọi là vùng năng lượng nhiệt, tiết diện bắt neutron kí hiệu là σ_0 – xác suất bắt neutron tương ứng vận tốc 2200 m/s. Ở vùng năng lượng cao hơn gọi là vùng trên nhiệt hay vùng năng lượng cộng hưởng, xác suất bắt neutron thể hiện bằng tích phân cộng hưởng (I_0 – chính là tiết diện bắt neutron cộng hưởng), vùng này hàm tiết diện không có đỉnh đơn mà là những đỉnh chồng chập rất phức tạp, thường phải tính bằng tích phân cả vùng. Trong NAA, chủ yếu dựa trên phản ứng (n, γ) gây bởi neutron vùng nhiệt và trên nhiệt hay cộng hưởng.

2. Phương pháp chuẩn hóa k – zero

Các phương pháp chuẩn hóa thông thường có một số nhược điểm cần khắc phục, người ta đã nghiên cứu đưa ra một phương pháp mới đáp ứng một số yêu cầu sau:

- + Đơn giản thực nghiệm – so với phương pháp tương đối;
- + Độ chính xác cao – so với phương pháp tuyệt đối;
- + Linh hoạt khi thay đổi điều kiện chiếu và đo – so với phương pháp chuẩn đơn;
- + Phù hợp cho việc số hóa.

Đó là lí do để phương pháp chuẩn hóa k-zero trong NAA, một trong những phát triển đáng kể nhất của NAA đã xuất hiện vào giữa những năm 70 của thế kỉ trước. Trong phương pháp này số liệu hạt nhân từ các tài liệu tra cứu được thay bằng một tổ hợp các hằng số hạt nhân được xác định một cách chính xác bằng thực nghiệm, được gọi là các hệ số k_0 (k-zero). Phương pháp này cũng có thể được xem là phương pháp chuẩn đơn được làm cho linh hoạt, và vẫn áp dụng được khi thay đổi điều kiện chiếu và đo: Hệ số k_0 xuất phát từ hệ số k của phương trình chuẩn đơn nhưng làm cho độc lập với thành phần mô tả điều kiện chiếu và đo, tức là:

$$k_{0,c}(s) = \frac{M_c \gamma_s \theta_s \sigma_{0,s}}{M_s \gamma_s \theta_c \sigma_{0,c}} \quad (1)$$

Trong đó: M là khối lượng nguyên tử, γ là xác suất phát của tia gamma, θ là độ phổ biến hay độ giàu đồng vị, σ_0 là tiết diện neutron tại vận tốc 2200 m.s⁻¹; chỉ số s biểu diễn cho nguyên tố phân tích và chỉ số c biểu diễn cho nguyên tố so sánh (chọn Au). Các hệ số $k_{0,c}(s)$ được xác định bằng thực nghiệm chủ yếu ở hai viện INW Gent (Bỉ) và KEKI Budapest (Hungary) sau đó được lập thành bảng dữ liệu để tra cứu, (Fan De Corte, 1987).

3. Kết quả

Ứng dụng của phương pháp k_0 -NAA để tính hàm lượng các nguyên tố

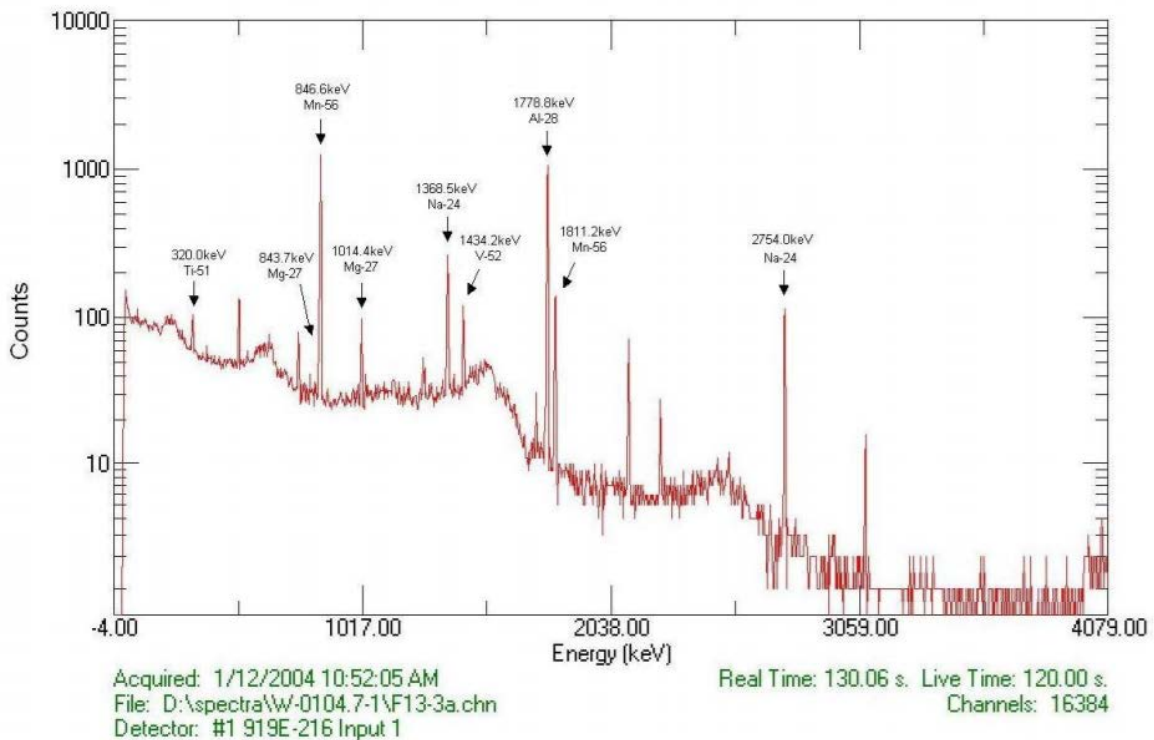
Sử dụng phương pháp k_0 để tính hàm lượng các nguyên tố theo công thức sau:

$$\rho = \frac{\left(\frac{N_p}{t_c} \right)}{A_{sp,m}} \cdot \frac{1}{k_{0,m}(a)} \cdot \frac{G_{th,m} f + G_{e,m} Q_{0,m}(\alpha)}{G_{th,a} f + G_{e,a} Q_{0,a}(\alpha)} \cdot \frac{\epsilon_{p,m}}{\epsilon_{p,a}} \quad (2)$$

Trong đó, ρ là hàm lượng của nguyên tố quan tâm, $Q_0 = I_0/\sigma_0$, N_p là số đếm đỉnh tại năng lượng quan tâm, t_c là thời gian đo mẫu, S là hệ số bão hòa trong khi chiếu, C là hệ số hiệu chỉnh sự phân rã trong khi đo, D là hệ số hiệu chỉnh sự phân rã, w là khối lượng của nguyên tố quan tâm trong mẫu, A_{sp} là tốc độ đếm riêng hay hoạt độ riêng, G_{th} là hệ số hiệu chỉnh tự che chắn neutron nhiệt, G_e là hệ số hiệu chỉnh tự che chắn neutron trên nhiệt,

$f = \frac{\Phi_{th}}{\Phi_e}$ là tỉ số thông lượng neutron nhiệt trên thông lượng neutron trên nhiệt và ϵ là hiệu suất ghi của đầu dò.

Từ phương trình xác định hàm lượng của nguyên tố (2) ta thấy, trong phương pháp k-zero, ngoài sử dụng các hệ số k_0 được lấy từ bảng số liệu thì ta cần phải xác định các hệ số f đặc trưng cho trường thông lượng neutron, chuẩn hệ phổ kế gamma (xác định hiệu suất ghi của detector) và các hiệu chỉnh khác. Việc tính toán này rất phức tạp, do đó cần phải có một phần mềm để thực hiện các thao tác trên một cách tự động.



Hình 1. Phổ gamma của mẫu phân tích trong phương pháp k_0 -NAA (Ho, 2002)

Hiện nay, Lò Phản ứng Hạt nhân Đà Lạt đã xây dựng thành công và sử dụng hiệu quả chương trình k_0 -DALAT trong việc xác định hàm lượng các nguyên tố trong mẫu phân tích. Chương trình này thực hiện các chức năng như: đọc phổ, xử lý phổ gamma, nhận diện hạt nhân, tính các thông số phổ neutron, hiệu chỉnh các phản ứng ảnh hưởng, tính hàm lượng của nguyên tố (Ho, 2002).



Hình 2. Cửa sổ chính của hệ chương trình Ko-DALAT (Ho, 2002)

Phương pháp k_0 -NAA cùng với những tính năng ưu việt của chương trình Ko-DALAT thì tại Viện Nghiên cứu Hạt nhân Đà Lạt đã xác định được chính xác hàm lượng các nguyên tố trong nhiều mẫu khác nhau như mẫu dầu thô, mẫu đá móng, mẫu bụi khí... ví dụ như trong Bảng 1 dưới đây:

Bảng 1. Hàm lượng trung bình (đơn vị ppm) của các nguyên tố trong mẫu dầu thô

(Ho, 2002).

STT	Nguyên tố	Số mẫu phân tích	Khoảng hàm lượng	Trung bình số học	Độ lệch chuẩn
1	Al	20	0.04-0.58	0.23	0.11
2	As	19	0.011-0.135	0.052	0.016
3	Br	20	0.02-12.1	0.08	0.03
4	Ca	11	0.3-5.0	2.1	0.7
5	Cl	19	1.7-22.8	10.6	1.4
6	Co	19	0.009-0.112	0.031	0.005
7	Cr	20	0.01-0.18	0.04	0.02
8	Cu	11	0.05-0.12	0.09	0.03
9	Fe	20	0.6-35.2	7.1	1.3
10	Hg	19	0.01-0.15	0.03	0.01
11	K	20	0.5-6.8	1.7	0.4
12	Mg	11	0.23-1.19	0.65	0.15

13	Na	20	0.1-138.7	21.0	2.4
14	Ni	11	0.02-0.20	0.09	0.03
15	Sb	23	0.03-1.42	0.08	0.02
16	Sr	11	54.9-69.6	62.3	3.2
17	V	23	0.003-0.052	0.018	0.006
18	Zn	23	0.06-0.85	0.22	0.04

Hiện nay trên thế giới phương pháp k_0 -NAA rất được quan tâm, nghiên cứu và ứng dụng, cụ thể Cơ quan năng lượng nguyên tử quốc tế IAEA đã phát triển đến phiên bản k_0 -IAEA version 7.16 (IAEA).

4. Kết luận và khuyến nghị

Độ chính xác và khả năng áp dụng của phương pháp k_0 -NAA phụ thuộc đáng kể vào độ tin cậy của các số liệu hạt nhân. Việc đánh giá các số liệu hạt nhân trong lĩnh vực khoa học và công nghệ hạt nhân nói chung và trong phương pháp k_0 -NAA nói riêng là việc làm quan trọng và cần thiết để từ đó xem xét lại một số các số liệu hạt nhân có thể không còn phù hợp nữa và yêu cầu xác định lại các số liệu này.

Kết quả của việc xác định lại các số liệu hạt nhân trong phương pháp k_0 -NAA sẽ góp phần cải thiện độ chính xác và độ tin cậy của phương pháp, mặt khác nó cũng góp phần thiết lập và xây dựng một cơ sở dữ liệu hạt nhân ở cấp phòng thí nghiệm hoặc cơ sở nghiên cứu và tiến tới đóng góp vào cơ sở dữ liệu hạt nhân của Việt Nam (nếu có) hoặc sẽ xây dựng trong tương lai.

❖ **Tuyên bố về quyền lợi:** Tác giả xác nhận hoàn toàn không có xung đột về quyền lợi.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Fan De Corte (1987). In: The k_0 -standardization method: a move to the optimization of neutron activation analysis. *Aggregate Thesis, Gent University, Belgium*.
- Frans De Corte (2018). The k_0 -standardization of NAA: germs, launch, breakthrough—on stage and in the wings. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 318(3), 1559-1563.
- Ho, M. D. (2002). Nghiên cứu và phát triển phương pháp k-zero trong phân tích kích hoạt neutron lo phân ứng hạt nhân cho việc xác định đa nguyên tố [Study and development of k-zero method in nuclear reactor neutron activation analysis for determining multi-elements]. *PhD thesis, VNUHCM-University Of Science*.

Ho, M. D., & Pham, D. H. (2003). The application and development of k_0 -standardization method of neutron activation analysis at Dalat research reactor. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 257(3), 643-647.

Ho, V. D., et al. (2015). Combination and optimization of the cyclic NAA modes at the Dalat research reactor for determination of selenium in biological materials using ^{75}Se . *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 309(1), 185-188.

IAEA. Retrieved from <http://www-naweb.iaea.org/napc/iachem/K0-IAEA.html>

K-ZERO METHOD IN NEUTRON ACTIVITY ANALYSIS (k_0 - NAA)

Truong Truong Son

Ho Chi Minh City University of Education, Vietnam

Corresponding author: Truong Truong Son – Email: sontt@hcmue.edu.vn

Received: August 11, 2021; Revised: December 17, 2021; Accepted: December 20, 2021

ABSTRACT

Neutron activation analysis (NAA) is a method of non-destructive nuclear physics analysis with high sensitivity and accuracy that is capable of solving many practical problems in geological, archaeological, agricultural research, in bio-medicine, materials, environment as well. In NAA, three types of neutron sources are commonly used: isotopic sources, accelerators, and reactors. This study used a neutron source from a research nuclear reactor with a high neutron flux, a neutron source for NAA with the most advantages of the three sources. NAA has different standardization methods: absolute, contrast, single standard, and k -zero, where the k -zero method of NAA (k_0 -NAA) is evaluated as a stable (in terms of error) method with high sensor and accuracy, especially when studying environmental, geological, archeological, problems. Given the relationship between prefixes for many samples, this method may demonstrate the superiority of the method. That is why the k_0 -NAA method has been selected and used widely as a standard method (reference) used for validation, standard reference materials, and the main method in many studies.

Keywords: k_0 -NAA; Neutron Activation Analysis