

## ÁP DỤNG KỸ THUẬT TRÙNG PHÙNG GAMMA-GAMMA XÁC ĐỊNH SELENIUM TRONG MẪU SMELL

Trương Văn Minh<sup>1</sup>  
Vũ Hoàng Nguyệt Nương<sup>1</sup>

### TÓM TẮT

Tại Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt, phương pháp trùng phùng gamma-gamma đã khá thành công trong nghiên cứu số liệu hạt nhân. Đã thử nghiệm phân tích kích hoạt trên các mẫu địa chất, mẫu sinh học và mẫu môi trường, với kết quả đã công bố [1,2] cho thấy khả năng áp dụng của phương pháp khá thành công. Trong bài báo này, trình bày kết quả xác định hàm lượng Selenium trong mẫu Smell bằng phương pháp trùng phùng gamma - gamma. Kết quả cho thấy phương pháp này đã loại bỏ ảnh hưởng của nền phông Compton và đã cải thiện được tỷ số đỉnh trên phông 12,8 lần, giới hạn phát hiện 9,5 lần so với phương pháp đo đơn sử dụng một detector.

**Từ khóa:** Phân tích kích hoạt, trùng phùng gamma-gamma, Selenium

#### 1. Mở đầu

Hiện nay, phương pháp trùng phùng gamma - gamma được ứng dụng chủ yếu trong nghiên cứu số liệu và cấu trúc hạt nhân. Nhờ khả năng giảm phông và chọn lựa các cặp đỉnh gamma nổi bật trong sơ đồ phân rã, nên phương pháp được nghiên cứu ứng dụng trong phân tích kích hoạt (INAA) [1, 2, 4]. Các nghiên cứu áp dụng phương pháp trùng phùng gamma - gamma trong phân tích kích hoạt đã cho thấy tỷ số đỉnh trên phông tại các đỉnh quan tâm của các đồng vị tăng lên đáng kể so với đo đơn sử dụng một detector.

Phân tích Selenium các mẫu địa chất, sinh học, môi trường bằng phương pháp đo sử dụng hệ một detector bị nhược điểm lớn cản trở quá trình phân tích xác định hàm lượng của Selenium là vì các đỉnh gamma của <sup>75</sup>Se bị các đỉnh năng lượng của các đồng vị khác

can nhiễu, như là <sup>152</sup>Eu, <sup>181</sup>Hf, <sup>182</sup>Ta, <sup>203</sup>Hg [1, 2].

Để giải quyết vấn đề trên, kỹ thuật tách hóa được sử dụng để loại bỏ các đồng vị nhiễu. Vấn đề tách hóa đòi hỏi kỹ thuật, kinh phí và rất phức tạp trong phân tích. Một phương pháp nữa cũng đã thực hiện là đo các đặc trưng của đồng vị sống ngắn <sup>77m</sup>Se, nhưng khi sử dụng đồng vị này đòi hỏi phải có các hệ phân tích nhanh hoặc phân tích kích hoạt neutron lập vòng. Tuy nhiên hiện nay kỹ thuật đo trùng phùng gamma - gamma ghi theo phương pháp “sự kiện - sự kiện”, xử lý phổ bằng phương pháp cộng biên độ các xung trùng phùng để xác định hàm lượng nguyên tố Selenium trong mẫu phân tích rất hiệu quả và có độ chính xác cao [1, 2].

Tiếp theo những thành công của nghiên cứu trước đây, chúng tôi tiếp tục áp dụng phương pháp trùng phùng gamma - gamma ghi theo phương pháp

<sup>1</sup>Trường Đại học Đồng Nai  
Email: truongminhdnu@gmail.com

“sự kiện - sự kiện” để xác định Selenium trong mẫu Smell để đánh giá thêm về khả năng áp dụng của phương pháp trên nhiều đối tượng mẫu phân tích khác nhau, chuẩn bị cho việc hoàn thiện quy trình phân tích.

## 2. Phương pháp nghiên cứu

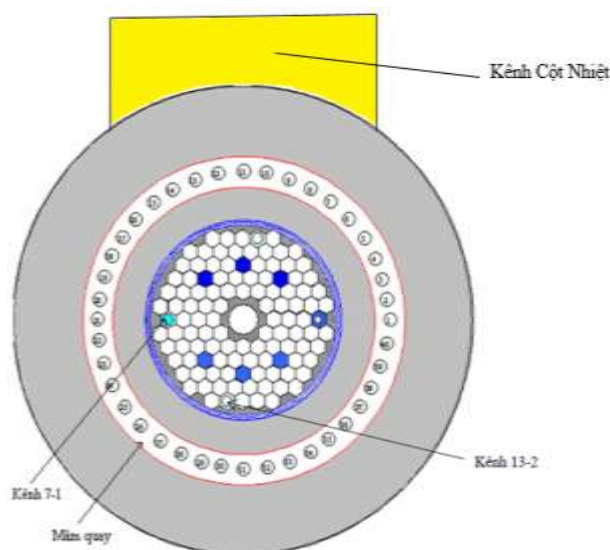
### 2.1. Chuẩn bị mẫu

Mẫu phân tích được sử dụng là mẫu mẫu SMELL [6], mẫu được chuẩn bị gồm hai mẫu: SM-14g khối lượng mẫu 84,5mg và SM-14h khối lượng mẫu 88,4mg. Mẫu được đựng trong túi nylon

sạch hàn kín, kích thước 10 mm × 10 mm. Mẫu được chiếu tại mâm quay của Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt. Thông lượng neutron tại vị trí chiếu mẫu  $\sim 3,76 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>/s. Thời gian chiếu đối với tất cả các loại mẫu là 10 giờ. Mỗi container đem chiếu chứa các mẫu phân tích cùng với một lá dò Vàng và một mẫu chuẩn để kiểm soát quy trình. Bảng 1 và hình 1 trình bày các thông số phổ neutron tại vị trí chiếu mẫu và mặt cắt ngang vùng hoạt của lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt.

**Bảng 1:** Thông số phổ neutron tại vị trí chiếu mẫu [3]

$\phi_{th}$ (n/cm <sup>2</sup> /s)	$\phi_{fast}$ (n/cm <sup>2</sup> /s)	A	F
$3,76 \times 10^{12}$	$0,32 \times 10^{12}$	0,102	30,10



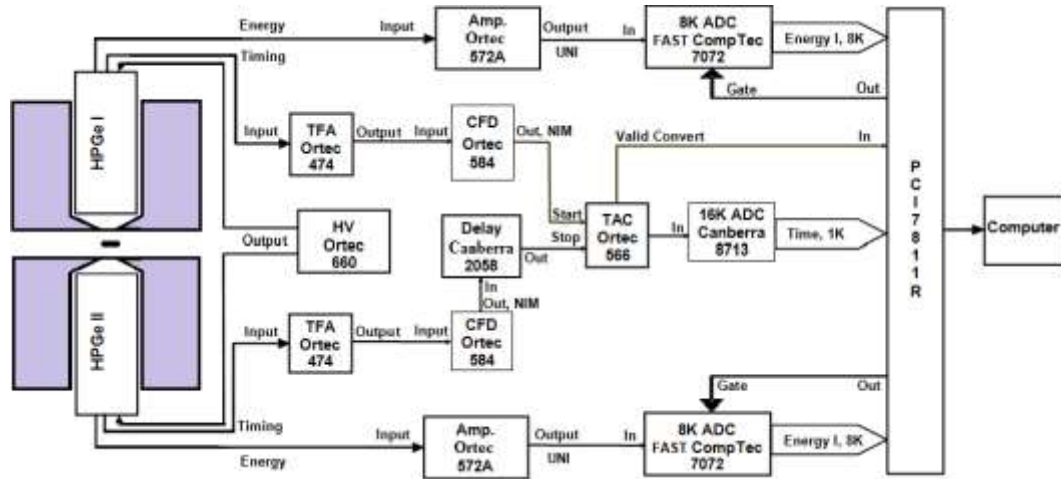
**Hình 1:** Mặt cắt ngang vùng hoạt của Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt

Các mẫu sau khi chiếu được để rã trong thời gian 70 ngày. Trong suốt quá trình thu thập số liệu, mẫu luôn được đặt cố định tại vị trí giữa và song song với bề mặt hai detector và tất cả các mẫu được đo ở hai chế độ là đo đơn sử dụng một detector và đo trùng phùng với cùng

điều kiện hình học giống nhau để tiện cho việc so sánh kết quả giữa hai phương pháp đo.

### 2.2. Sơ đồ hệ thực nghiệm

Cấu hình hệ đo trùng phùng sử dụng trong nghiên cứu được mô tả trên hình 2.



**Hình 2:** Hệ đo và cách bố trí thí nghiệm

Trong đó: HPGe I và HPGe II là hai detector bán dẫn GMX35, hiệu suất ghi tương đối và độ phân giải tại năng lượng 1332 keV của detector I là 35% và 1,9keV; detector II là 38% và 1,9 keV.

Mẫu đo được đặt giữa hai detector, song song với mặt của các detector, khoảng cách từ mẫu tới mỗi detector là 4 cm. Các tham số của hệ đo được lựa chọn theo phương pháp trong tài liệu tham khảo [1, 2].

Ở chế độ đo thường, vì hiệu suất ghi lớn, nên mẫu được đo với thời gian 1 giờ. Trong chế độ trùng phùng, hiệu suất ghi thấp nên mẫu được đo với thời gian 75 giờ. Số liệu lưu trữ theo phương pháp “sự kiện - sự kiện” nhằm loại bỏ vấn đề trôi kênh với phép đo dài, và xử lý theo phương pháp cộng biên độ các xung trùng phùng.

**2.3. Xử lý số liệu**

Phổ đo trong chế độ đo đơn thông thường, chương trình FitzPeak được sử

dụng để xác định diện tích các đỉnh quan tâm trong phổ.

Trong chế độ đo trùng phùng “sự kiện - sự kiện”, để đánh giá tốc độ trùng phùng của một đỉnh quan tâm nào đó với các đỉnh khác và đánh giá phông do trùng phùng ngẫu nhiên gây ra trong phổ, phổ phông được chọn bằng kỹ thuật bù trừ với các vùng phông lân cận của đỉnh quan tâm, phương pháp chọn phổ gate đã được sử dụng [1, 2]. Phổ chưa loại trừ phông sẽ được trừ cho phổ phông, diện tích của một đỉnh trong phổ trùng phùng sẽ được tính bằng cách tổng số đếm của các kênh trong vùng đỉnh với độ tin cậy 2σ.

Tỷ số diện tích đỉnh/phông trong cả hai trường hợp được sử dụng để đánh giá giới hạn phát hiện giữa hai phương pháp. Ngoài ra giới hạn phân tích cũng được đánh giá theo công thức sau [7]:

$$C_{DL} = \frac{3,29C \sqrt{\left(1 + \frac{\eta_p}{\eta_B}\right)}}{\sqrt{\left(\frac{P}{B}\right)\left(\frac{P}{t}\right)t}}$$

trong đó:

$C_{DL}$  là giới hạn đo tính theo đơn vị hàm lượng (ppm);

$C$  là hàm lượng của đồng vị quan tâm trong mẫu phân tích (ppm);

$P$  là diện tích đỉnh phổ (số đếm);

$B$  là diện tích nền phong dưới đỉnh (số đếm);

$t$  là thời gian đo mẫu (giây);

$\eta_P$  và  $\eta_B$  là hằng số.

Hàm lượng của Selenium trong mẫu (ở chế độ đo đơn và đo trùng phùng) được xác định bằng công thức sau:

$$\rho = \frac{\left( \frac{N_p / t_c}{W \times D \times C} \right)_a}{\left( \frac{N_p / t_c}{W \times \rho \times D \times C} \right)_s}$$

trong đó:

$\rho$  là hàm lượng của nguyên tố cần phân tích;

$N_p$  là số đếm đỉnh của đồng vị quan tâm trong mẫu chuẩn và mẫu phân tích;

$W$  là khối lượng mẫu phân tích (g);

$W$  là khối lượng nguyên tố quan tâm trong mẫu chuẩn = hàm lượng  $\times$  khối lượng mẫu chuẩn (g);

$D$  là hệ số rã =  $\exp(-\lambda t_d)$ ,  $t_d$  là thời gian phân rã;

$C$  là hệ số đo =  $[1 - \exp(-\lambda t_c)] / (\lambda t_c)$ ;

Ký hiệu:  $a$  chỉ mẫu phân tích và  $s$  chỉ mẫu chuẩn.

Áp dụng công thức truyền sai số ta có công thức tính sai số tương đối như sau:

$$\sigma_{\rho}^2 = \rho^2 \left[ \left( \frac{\sigma_{N_a}}{N_a} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{N_s}}{N_s} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{w_s}}{w_s} \right)^2 + \left( \frac{\sigma_{W_a}}{W_a} \right)^2 \right] \quad (3)$$

Với  $^{75}\text{Se}$ , các cặp đỉnh 121 keV - 279 keV và 136 keV - 264 keV là những cặp gamma nối tầng có cường độ lớn. Căn cứ vào các phân tích sơ đồ phân rã của các hạt nhân  $^{75}\text{Se}$ , cặp đỉnh gamma 136 keV - 264 keV phát nối tầng có cường độ lớn nhất, do đó cặp này sử dụng để tính lượng Se trong mẫu.

### 3. Kết quả thảo luận

#### ❖ Chế độ đo trùng phùng

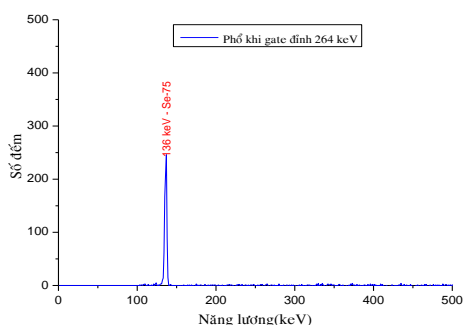
Kết quả tính diện tích đỉnh, diện tích phong, tỷ số đỉnh/phong của các đỉnh quan tâm của đồng vị  $^{75}\text{Se}$  trong mẫu SM-14g bằng phương pháp trùng phùng được trình bày trong bảng 2.

**Bảng 2:** Kết quả phân tích Selenium bằng phương pháp trùng phùng

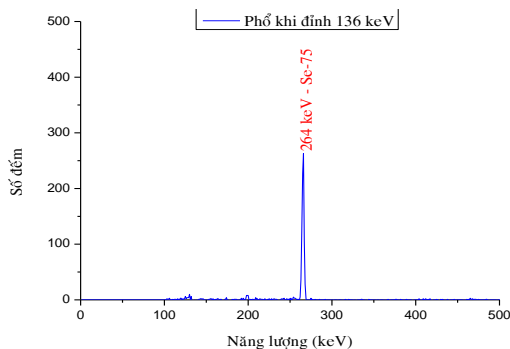
Năng lượng (keV)	Diện tích đỉnh (số đếm)	Diện tích phong (số đếm)	Tỷ số đỉnh/phong	Giới hạn đo (ppm)
136	816 ± 28	24 ± 1	34,0	0,26
264	786 ± 27	22 ± 1	35,7	0,54

Phổ thu được khi gate đỉnh 264 keV và khi gate đỉnh 136 keV của mẫu SM-14g được trình trong hình 3 và hình 4. Kết quả cho thấy phổ sau khi gate đỉnh

cần quan tâm hiện rất rõ, các đỉnh nhiễu gần như được loại bỏ hết. Đây chính là lợi thế của kỹ thuật đo trùng phùng xử lý bằng phương pháp gate.



**Hình 3:** Phổ gamma của mẫu SM-14g thu được khi gate đỉnh 264 keV



**Hình 4:** Phổ gamma của mẫu SM-14g thu được khi gate đỉnh 136 keV

❖ **Chế độ đo đơn**

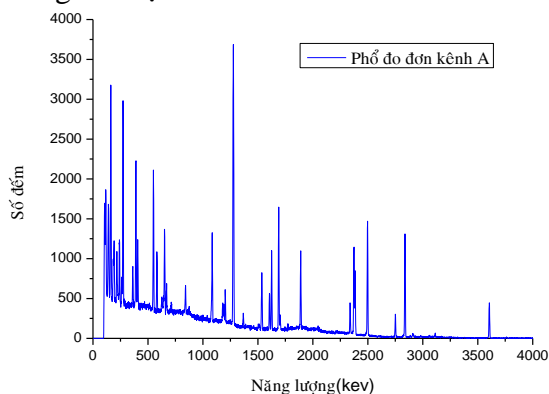
Đối với chế độ đo đơn, xử lý bằng chương trình GammaVision và kết quả

về diện tích đỉnh, diện tích phổ, tỷ số đỉnh/phổ của <sup>75</sup>Se được trình bày ở bảng 3.

**Bảng 3:** Kết quả phân tích Selen bằng phương pháp đo đơn

Năng lượng (keV)	Diện tích đỉnh (số đếm)	Diện tích phổ (số đếm)	Tỷ số đỉnh/phổ	Giới hạn đo (ppm)
136	17056 ± 375	4698 ± 106	3,6	2,48
264	11809 ± 259	4403 ± 92	2,8	3,35

Phổ thu được trong chế độ đo đơn của mẫu SM-14g được trình trong hình 5. Kết quả cho thấy phổ trong chế độ đo đơn có nền phổ rất cao, các đỉnh nhiễu và các đỉnh của đồng vị khác có trong mẫu đều có mặt trong phổ. Việc này gây khó khăn trong quá trình xác định các yếu tố liên quan đến phổ. Đây chính là khó khăn trong chế độ đo đơn.



**Hình 5:** Phổ gamma của mẫu SM-14g thu được khi đo đơn

❖ **Tính hàm lượng**

Sau khi xác định các thông tin cần quan tâm của đỉnh phổ trong hai chế độ đo của mẫu SM-14g ta tiến hành xác định hàm lượng Se có trong mẫu bằng phương pháp chuẩn hóa tương đối và áp dụng công thức (2) cho chế độ đo trùng phùng và chế độ đo đơn, với mẫu cần tính là mẫu SM-14g còn mẫu chuẩn là SM-14h. Kết quả về hàm lượng Se trong mẫu được trình bày trong bảng 4.

**Bảng 4:** Kết quả phân tích hàm lượng Se trong mẫu SM-14g

Chế độ đo	Đỉnh quan tâm	Hàm lượng (ppm)	Chứng nhận (ppm) [6]
Trùng phùng	136keV	127,3 ± 1,26	131 ± 6
Đo đơn	136keV	135,9 ± 1,55	131 ± 6

Phông trong chế độ đo trùng phùng đã được bỏ rất nhiều, cụ thể tỷ số đỉnh trên phông trong chế độ đo đơn là 3,6 đối với đỉnh 136 keV và 2,8 đối với đỉnh 264 keV, còn trong chế độ đo trùng phùng là 34,0 đối với đỉnh 136 keV và 35,7 đối với đỉnh 264 keV. Như vậy, trong kỹ thuật đo trùng phùng đã giảm được 9,4 (34/3,6) lần khi dùng đỉnh 136 keV và 12,8 (35,7/2,8) lần khi dùng 264 keV so với đo đơn.

Giới hạn phát hiện trong chế độ đo trùng phùng cũng nhạy hơn trong chế độ đo đơn. Cụ thể, giới hạn phát hiện trong chế độ đo trùng phùng là 0,26 và 0,54 còn đo đơn là 2,48 và 3,35. Như vậy giới hạn phát hiện trong chế độ đo trùng phùng đã được cải thiện 9,5 lần (2,48/0,26) khi sử dụng đỉnh 136 keV và 6,2 lần (3,35/0,54) khi sử dụng đỉnh 264 keV.

Các kết quả trên còn được thể hiện trên phổ, cụ thể khi sử dụng đỉnh gate để xác định các đỉnh quan tâm của  $^{75}\text{Se}$ , ta thấy nền phông Compton và các đồng vị gây nhiễu lên đỉnh quan tâm gần như đã được loại bỏ hoàn toàn. Trong khi đó, phổ trong chế độ đo đơn có nền phông Compton rất cao và đỉnh năng lượng của các đồng vị có trong mẫu đều xuất hiện trên phổ, gây khó khăn trong

quá trình xử lý và có thể độ chính xác không cao.

Từ bảng 4 cho thấy số liệu về hàm lượng Se trong mẫu Smell cho thấy: Hàm lượng Se trong đo trùng phùng là 127,3 và trong đo đơn là 135,9 đều lệch so với số liệu được cho trong chứng nhận. Tuy nhiên các giá trị này đều gần với giá trị đã được chứng nhận. Như vậy, có thể thấy rằng các giá trị xác định được từ thực nghiệm là chính xác và nằm trong giới hạn cho phép. Tuy nhiên trong phép đo đơn nền phông và đồng vị nhiễu không được loại bỏ hoàn toàn nên độ chính xác của phép đo này chưa tốt bằng đo trùng phùng.

Thực tế ta thấy phương pháp trùng phùng nó có những lợi thế nhất định, nhưng có hạn chế là tốn thời gian đo, để có sai số thống kê như nhau trong hai phép đo trùng phùng và đo đơn thì phép đo trùng phùng phải đo rất lâu, gây tốn kém và trong một số trường hợp cụ thể sẽ không thực sự hiệu quả.

#### 4. Kết luận

Đã loại bỏ được các đồng vị nhiễu, tỷ số đỉnh/phông và giới hạn phát hiện đã được cải thiện đáng kể. Xác định được hàm lượng Se trong mẫu Smell bằng kỹ thuật đo trùng phùng và đo đơn theo phương pháp chuẩn hóa tương đối.

Các kết quả thu được trong quá trình phân tích gần với giá trị chứng nhận, điều này cho phép khẳng định các kết quả thực nghiệm trong bài báo này là đáng tin cậy và có độ chính xác cao.

Tuy nhiên để đạt được cùng sai số thống kê thì trong phép đo trùng phùng phải đo rất lâu, gây tốn kém và trong một số trường hợp cụ thể sẽ không thực sự hiệu quả.

**Lời cảm ơn:**

*Nhóm tác giả xin chân thành cảm ơn Ban lãnh đạo Viện Nghiên cứu Hạt nhân, Ban lãnh đạo Phòng Vật lý điện tử đã tạo điều kiện cho nhóm được tiến hành thực nghiệm trên hệ phổ kế trùng phùng gamma - gamma tại kênh thực nghiệm số 3 của Lò phản ứng hạt nhân Đà Lạt.*

**TÀI LIỆU THAM KHẢO**

1. Nguyen Xuan Hai, Truong Van Minh, Pham Dinh Khang, Ho Huu Thang, Nguyen Ngoc Anh, *Determination of selenium in geological sample by event–event coincidence technique*, J Radioanal Nucl Chem, Vol 304, 2015, pp 1179–1183
2. Truong Van Minh, *Determination of selenium in environmental sample by gamma–gamma coincidence method*, International Journal of Environmental Engineering–IJEE, Vol 2, 2015, pp 108 – 111
3. Cao Dong Vu, *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, 2014. 4(1): p. 70-75
4. S. Horne, S. Landsberger, “*Selenium and mercury determination in biological samples using gamma–gamma coincidence and Compton suppression*”, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 291, 2012, 49-53
5. <http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/chartNuc.jsp>
6. IAEA, *Certificate of analysis smels*
7. D.A. Gedcke, How counting statistics controls detection limits and peak precision, AN59 Application Note, ORTEC

**DETERMINATION OF SELENIUM CONTENT IN BIOLOGICAL SAMPLE BY GAMMA - GAMMA COINCIDENCE METHOD**

**ABSTRACT**

*At Dalat nuclear research reactor, the gamma - gamma coincidence method is more successful in data nuclear research. This method tested neutron activation analysis of geological sample, biological sample and environmental sample. The published results shows the successful application of the method. In this paper, we*

*showed the activated results of Selenium in Smell sample by gamma – gamma coincidence method. The results showed that this method reduced the effect of Compton and scattered up to 12,8 times of peak counts/background counts ratio, up to improved detection limits for Selenium in biological sample move to 9,5 times to compare one detector system.*

**Keywords:** *Neutron activation analysis, gamma - gamma coincidence, Selenium*

(Received: 27/2/2018, Revised: 9/4/2018, Accepted for publication: 28/5/2018)