

ĐẠI HỌC QUỐC GIA HÀ NỘI
TRƯỜNG ĐẠI HỌC KHOA HỌC TỰ NHIÊN

Bùi Thị Hồng

NGHIÊN CỨU SỰ DỊCH CHUYỂN MỘT SỐ ĐỒNG VỊ PHÓNG
XẠ VÀ KIM LOẠI TỪ ĐẤT LÊN THỰC VẬT BẰNG CÁC
PHƯƠNG PHÁP PHÂN TÍCH HẠT NHÂN

Chuyên ngành: Vật lý nguyên tử và hạt nhân

Mã số: 9440130.04

TÓM TẮT LUẬN ÁN TIẾN SĨ NGÀNH VẬT LÝ

Hà Nội - 2024

Công trình được hoàn thành tại: Trường Đại học Khoa học Tự nhiên
- ĐHQGHN

Người hướng dẫn khoa học: PGS.TS Bùi Văn Loát

Phản biện: PGS. TS. Phạm Ngọc Điệp – Trung tâm Vũ trụ Việt Nam
– Viện HL KH& CN VN.

Phản biện: PGS.TS. Nguyễn Tuấn Khải – Viện Năng lượng Nguyên
tử Việt Nam – Bộ KH & CN.

Phản biện: PGS.TS. Nguyễn Văn Hùng – Viện nghiên cứu hạt nhân
Đà Lạt.

L luận án sẽ được bảo vệ trước Hội đồng đánh giá luận án tiến sĩ họp
tại Trường Đại học Khoa học Tự nhiên – ĐHQGHN vào hồi
giờ ngày tháng năm 20...

Có thể tìm hiểu luận án tại:

- Thư viện Quốc gia Việt Nam;

- Trung tâm Thư viện và Tri thức số, Đại học Quốc gia Hà
Nội

MỞ ĐẦU

Lý do lựa chọn đề tài:

Rau, củ, quả được sử dụng rộng rãi cho mục đích ẩm thực, chúng là yếu tố thiết yếu trong bữa ăn hằng ngày của con người. Trong quá trình sinh trưởng và phát triển, thực vật hấp thụ và tích tụ các nguyên tố dinh dưỡng cần thiết thông qua (i) hấp thụ từ đất qua rễ, và (ii) hấp thụ trực tiếp thông qua các bộ phận của thực vật, đồng thời cũng hấp thụ các đồng vị phóng xạ/nguyên tố kim loại nặng trong môi trường. Nghiên cứu về sự dịch chuyển của phóng xạ và kim loại nặng từ môi trường vào cây trồng thực phẩm và cuối cùng là vào cơ thể con người là rất quan trọng. Điều này không chỉ giúp hiểu rõ hơn về các cơ chế vận chuyển và tích lũy các chất ô nhiễm mà còn cung cấp cơ sở khoa học để đánh giá rủi ro và đề xuất các biện pháp giảm thiểu. Hoạt độ phóng xạ/kim loại nặng trong thực vật phụ thuộc vào đặc trưng của từng vùng miền, thổ nhưỡng, thời gian trồng, phân bón, vị trí khác nhau trên cây và loại cây khác nhau. Nhiều nghiên cứu cho thấy thực vật có tính chất siêu hấp thụ (hyperaccumulator) đối với đồng vị phóng xạ/kim loại nặng đã được đề xuất.

Bố cục luận án: Ngoài phần mở đầu và kết luận, gồm 03 chương:

- Chương 1. Tổng quan.
- Chương 2. Phương pháp và thiết bị.
- Chương 3. Kết quả và thảo luận.

Mục tiêu của luận án:

- Nghiên cứu xác định đồng thời hệ số dịch chuyển của các đồng vị phóng xạ và kim loại từ đất trồng lên rau củ quả được lựa chọn trong các vùng có chất nền địa chất khác nhau và một số yếu tố chính ảnh hưởng tới chúng.

- Xác định các chỉ số nguy hiểm do các đồng vị phóng xạ trong đất và thực vật, cũng như các chỉ số nguy cơ từ kim loại nặng trong thực vật gây ảnh hưởng sức khỏe con người.

Nội dung của luận án:

- Tổng quan về hệ số vận chuyển các nguyên tố từ đất lên cây trồng, các yếu tố ảnh hưởng tới hệ số vận chuyển;

- Lựa chọn phương pháp và đối tượng thích hợp để nghiên cứu, tiến hành thu thập mẫu và xác định hoạt độ phóng xạ và hàm lượng kim loại trong các mẫu đất và thực vật;

- Nghiên cứu nâng cao độ chính xác, giảm ngưỡng phát hiện trong phân tích hoạt độ phóng xạ đối với mẫu thực vật;

- Xác định hệ số dịch chuyển của các đồng vị phóng xạ và kim loại từ đất lên thực vật và phân tích đánh giá các yếu tố cạnh tranh và yếu tố ảnh hưởng tới hệ số dịch chuyển trên;

- Tính toán các chỉ số nguy hiểm đối với phóng xạ và kim loại nặng dùng để đánh giá ảnh hưởng của chúng đến sức khỏe con người.

Phương pháp nghiên cứu:

- Sử dụng phương pháp phân tích hạt nhân hiện đại gồm có: (1) phương pháp phổ gamma và (2) phương pháp kích hoạt neutron và đo phổ gamma để xác định hoạt độ phóng xạ riêng của ^{226}Ra , ^{228}Ac

(^{228}Ra), ^{40}K và các nguyên tố kim loại trong mẫu đất trồng và mẫu thực vật.

- Sử dụng một vài phương pháp phân tích hóa lý đất như phương pháp phân tích kết cấu đất Robinson pipet, phân tích hàm lượng hữu cơ Walkley-Black, phân tích pH đất bằng dung dịch KCl
- Sử dụng phương pháp thống kê đa biến phân tích các yếu tố ảnh hưởng tới hệ số dịch chuyển các đồng vị phóng xạ và kim loại từ đất lên cây trồng.
- Nghiên cứu, thử nghiệm các phần mềm chuyên dụng đánh giá ảnh hưởng của các đồng vị phóng xạ và nguyên tố kim loại tới sức khỏe con người.

Ý nghĩa khoa học và ứng dụng thực tiễn:

- Kết quả trong nghiên cứu của luận án là bộ số liệu thực nghiệm về hệ số dịch chuyển của các đồng vị phóng xạ và kim loại từ đất lên một số loại rau, củ, quả ở các vùng Hà Nội, Lào Cai, Phú Thọ.
- Đưa ra các cảnh báo về ô nhiễm môi trường và nguy cơ sức khỏe con người khi tiếp xúc với các đồng vị phóng xạ và kim loại nặng trong đất và tiêu thụ rau, củ, quả nhiễm phóng xạ và kim loại nặng.
- củng cố lý thuyết về sự cạnh tranh của các nguyên tố cũng như các yếu tố ảnh hưởng tới sự vận chuyển của các đồng vị phóng xạ và kim loại từ đất lên thực vật.
- Cung cấp phương pháp xác định hoạt độ phóng xạ trong các mẫu thực vật thông qua phương pháp cacbon hóa mẫu trong môi trường thiếu oxy nhằm làm giàu hoạt độ phóng xạ trong mẫu.

- Làm chủ các phương pháp phân tích hạt nhân gồm có phương pháp phổ gamma và phương pháp phân tích kích hoạt neutron trong phân tích môi trường.

CHƯƠNG I. TỔNG QUAN

1.1. Ảnh hưởng của phóng xạ/kim loại tới môi trường và sức khỏe con người

1.1.1. Ảnh hưởng của phóng xạ và kim loại nặng tới môi trường đất

1.1.1.1. Ô nhiễm môi trường đất bởi phóng xạ

Phóng xạ tự nhiên trong đất là kết quả của quá trình phong hóa nền đá, nơi lưu trữ chính của các chất phóng xạ nguyên thủy, giải phóng uranium (U), thorium (Th) và kali (K) vào đất và các thành tạo địa chất khác. Bức xạ tự nhiên không phân bố đồng đều trong đất và đá, nhưng thay đổi tùy theo hoạt động địa chất, địa lý và nhân sinh của từng vùng. Về cơ bản, tất cả các loại đất đá đều có mức độ phóng xạ tự nhiên thấp do sự phân rã của các đồng vị phóng xạ thường có số lượng rất nhỏ. Đất là nguồn phơi nhiễm bức xạ đáng kể cũng như là nguồn trực tiếp của các chất phóng xạ dẫn đến ô nhiễm đất nông nghiệp và thảm thực vật. Chúng đóng vai trò thiết yếu trong chuỗi thức ăn của con người và được sử dụng trong đánh giá rủi ro sức khỏe con người do phơi nhiễm bức xạ ion hóa trong môi trường. Mức độ ô nhiễm phóng xạ của đất tăng cao do cả nguồn tự nhiên và nhân tạo, đặc biệt là sự đóng góp của các hoạt động của con người.

1.1.1.2. Ô nhiễm môi trường đất bởi kim loại

Sự ô nhiễm môi trường đất bởi kim loại, chủ yếu gây ra bởi các kim loại nặng đặt ra một vấn đề môi trường toàn cầu chủ yếu do tính độc hại kéo dài của chúng, quá trình phân hủy tự nhiên chậm và sự tích tụ nhanh chóng. Thuật ngữ “kim loại nặng” dùng để chỉ bất kỳ nguyên tố kim loại nào có mật độ tương đối lớn hơn 4 g/cm^3 . Cũng giống như các đồng vị phóng xạ, kim loại nặng được đưa vào môi trường thông qua cả quá trình địa chất tự nhiên và các hoạt động của con người, dẫn đến sự tích tụ của những chất ô nhiễm này vào trong trầm tích thông qua các cơ chế hấp thụ hóa học và kết tinh vật lý. Kim loại nặng có thể ở trạng thái tan hoặc lơ lửng, kết tinh xuống đáy, hoặc được hấp thụ bởi các sinh vật, từ đó tạo ra một nguồn ô nhiễm trong môi trường đất và nước. Kim loại nặng khó phân hủy và nếu không được cây trồng hấp thụ hoặc rửa trôi, chúng có thể tích tụ trong đất và tồn tại trong thời gian dài.

1.1.2. Ảnh hưởng của phóng xạ và kim loại nặng tới sức khỏe con người

An ninh thực phẩm là một vấn đề ưu tiên cao trong phát triển bền vững toàn cầu cả về mặt số lượng và chất lượng. Hàm lượng kim loại nặng và phóng xạ trong môi trường cũng như thực vật đã tăng đáng kể trong những thập kỷ gần đây. Thực tế, các khu vực có hoạt độ phóng xạ tự nhiên cao trong đất thường đi kèm với nồng độ kim loại nặng đáng kể. Vì đất là nguồn dinh dưỡng cho cây trồng, nên kim loại nặng trong đất có thể được chuyển sang các loại thực phẩm khác nhau thông qua quá trình hấp thụ của cây trồng. Các nghiên cứu về hai loại ô nhiễm này cho thấy, ảnh hưởng của phóng xạ tới sức khỏe con người kể cả một số vùng có phong nền bức xạ cao là

không đáng báo động bằng các độc tố do kim loại nặng gây ra. Sự phơi nhiễm phóng xạ có thể làm tăng nguy cơ mắc các loại ung thư như ung thư tuyến giáp, ung thư xương và ung thư máu. Cũng giống như phóng xạ có thể khiến con người tiếp xúc với bức xạ thông qua việc ăn uống, việc ăn phải thực phẩm bị nhiễm kim loại nặng cũng có thể gây ra tác động độc hại về mặt hóa học đối với cơ thể chúng ta.

1.2. Hệ số dịch chuyển từ đất lên thực vật

1.2.1. Sự hấp thụ các nguyên tố bởi thực vật

Các nguyên tố có sẵn cho thực vật ở trong không khí, nước cũng như trong đất và trầm tích. Cây có khả năng hấp thụ các nguyên tố từ tất cả những môi trường này. Bộ phận của thực vật trên mặt đất có thể hấp thụ nguyên tố từ nước hoặc không khí qua lá cây và cành, trong khi rễ cây hấp thụ nguyên tố từ đất hoặc trầm tích (hoặc môi trường xung quanh). Việc hấp thụ nguyên tố phụ thuộc vào khả năng sẵn có của chúng trong vùng rễ hoặc môi trường xung quanh. Các nguyên tố khác nhau liên kết với các hạt đất/trầm tích ở mức độ nhiều hay ít, điều này còn thay đổi tùy thuộc vào hàm lượng chất hữu cơ, pH, tiềm năng oxy hóa khử, CEC của các keo, cũng như độ mặn và hàm lượng đất sét.

1.2.2. Hệ số dịch chuyển đất lên thực vật

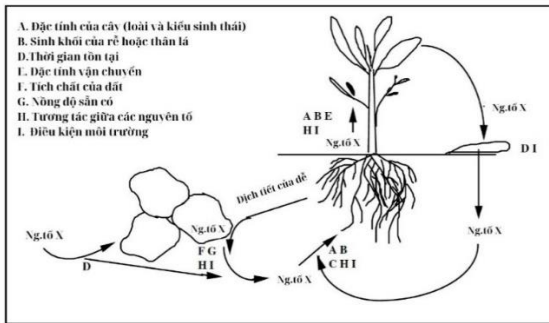
Sự hấp thụ các nguyên tố từ đất vào thực vật đại diện cho một bước quan trọng trong quá trình đưa các nguyên tố vào chuỗi thực phẩm của con người. Công thức sau mô tả cách tính TF:

$$TF = \frac{C_{i,plant}}{C_{i,soil}} \quad (1.1)$$

trong đó C_{plant} , C_{soil} lần lượt là nồng độ của nguyên tố i trong thực vật và trong đất tính dựa trên trọng lượng khô.

1.2.3. Yếu tố ảnh hưởng đến hệ số dịch chuyển

Hình 1.1 mô tả các yếu tố ảnh hưởng đến quá trình hấp thụ nguyên tố X trong đất bởi thực vật.



Hình 1. 1. Biểu đồ PCA sự phụ thuộc của hệ số dịch chuyển kim loại vào hàm lượng các nguyên tố trong đất .

1.2.2.1. Kiểu gen của cây

Hệ số dịch chuyển các nguyên tố khác nhau có thể khác nhau phụ thuộc vào kiểu gen của cây. Có những cây có khả năng loại bỏ (excluder) ngay cả khi nồng độ nguyên tố bên trong đất khá cao. Những loại cây khác, được gọi là cây tích lũy (accumulator) hoặc cây nhận (includer), có khả năng tích lũy nguyên tố cao ngay cả khi nồng độ nguyên tố bên ngoài rất thấp.

1.2.2.2. Tính chất của đất

- Chất hữu cơ trong đất
- Thành phần khoáng chất
- Kết cấu đất
- Độ pH
- Thế oxy hóa khử (Eh)
- Sự cạnh tranh của các nguyên tố trong đất

1.2.2.3. Các yếu tố môi trường

- Lượng mưa
- Biến đổi khí hậu và quản lý đất.

CHƯƠNG II. PHƯƠNG PHÁP VÀ THIẾT BỊ

2.1. Đối tượng nghiên cứu

2.1.1. Đối tượng nghiên cứu

Các loại thực vật được lựa chọn là các loại rau được sử dụng phổ biến trong các bữa ăn hàng ngày của người dân ở hai khu vực trên gồm có các loại rau ngắn ngày (dưới 30 ngày), sinh trưởng nhanh như rau muống, cải bắp, cải canh, mồng tơi, rau dền, xà lách, ... và các loại rau sinh trưởng dài hơn (từ 2-3 tháng) như cà chua, khoai tây, bí ngô, củ cải, ...

2.1.2. Khu vực lấy mẫu

- Khu vực Hà Nội
- Khu vực Lào Cai
- Khu vực Phú Thọ

2.2. Phương pháp phổ gamma

2.2.1. Cơ sở lựa chọn các đồng vị và bức xạ gamma đặc trưng

Đối với mẫu đất hoạt độ của ^{226}Ra được xác định thông qua đỉnh hấp thụ của các bức xạ đặc trưng 295,22 keV (hệ số phân nhánh là 0,1841) và 351,93 keV (0,3560) của ^{214}Pb và 609,31 keV (0,4549) và 1120,3 keV (0,1491) của ^{214}Bi . Hoạt độ phóng xạ riêng của ^{232}Th (^{228}Ra) được xác định thông qua đỉnh 338,6 keV (0,1127) và 911,1 keV (0,2580) của ^{228}Ac ; 583,19 keV (0,3055) của ^{208}Tl . Hoạt độ phóng xạ riêng của ^{40}K được xác định thông qua đỉnh 1460,83 keV (0,1066) do chính ^{40}K phát ra.

Đối với mẫu thực vật, do hoạt độ phóng xạ riêng nhỏ, thời gian đo mẫu không thể kéo quá dài, dẫn đến tốc độ đếm của các đỉnh gamma quan tâm có độ lệch chuẩn lớn. Vì vậy, để xác định hoạt độ riêng của các đồng vị phóng xạ, luận án sử dụng các đỉnh gamma năng lượng cao, hệ số phân nhánh lớn và nằm xa các đỉnh gamma của các đồng vị khác. Cụ thể, hoạt độ phóng xạ của ^{226}Ra được xác định dựa vào 351,93 keV (0,3560) của ^{214}Pb và 609,31 keV (0,4549) của ^{214}Bi . Hoạt độ của ^{228}Ra được xác định dựa vào đỉnh 911,1 keV (0,2580) của ^{228}Ac . Hoạt độ của ^{40}K được xác định dựa vào đỉnh 1460,83 keV do chính ^{40}K phát ra.

Hoạt độ phóng xạ của các đồng vị phóng xạ được xác định theo công thức sau:

$$A = \frac{n}{I_{\gamma} \times \varepsilon \times m} \quad (2.1)$$

trong đó: A là hoạt độ phóng xạ riêng (Bq/kg); n là tốc độ đếm (số đếm/giây); I_γ là hệ số phân nhánh; ε là hiệu suất ghi tuyệt đối tại năng lượng E_γ được chọn để xác định hoạt độ và m là khối lượng mẫu đo (kg).

Giới hạn phát hiện đối với hoạt độ của các đồng vị phóng xạ trong phân tích phóng xạ được xác định bằng công thức sau:

$$MDA = \frac{2,71 + 4,66\sqrt{N_B}}{\varepsilon \times I_\gamma \times m \times t} \quad (2.2)$$

trong đó: N_B là số đếm phóng nền dưới đỉnh năng lượng E_γ ; t là thời gian đo.

2.2.1.1. Hệ phổ kế gamma bán dẫn

Luận án đã sử dụng 3 hệ phổ kế gamma bán dẫn siêu tinh khiết HPGe mã GC5019, GX5519 và BE6530 do hãng Mirion Technologies (Canberra), Hoa Kỳ chế tạo. **Error! Reference source not found.** mô tả sơ đồ khối hệ phổ kế gamma HPGe cơ bản. Các bộ phận chính của một khối phổ kế bao gồm: (1) đầu dò Germanium, (2) bộ tiền khuếch đại, (3) khuếch đại, (4) máy phân tích biên độ đa kênh (MCA), (4) phần mềm Genie 2000 hiển thị phổ.

2.2.1.2. Phần mềm phân tích phổ Genie 2000

Sau khi phân tích, phổ gamma được hiển thị bằng phần mềm Genie 2000 đi kèm với hệ đo của hãng Canberra. Phần mềm này hỗ

trợ ghi nhận phổ độc lập trên nhiều detector thông qua kết nối mạng. Ngoài ra, Genie 2000 còn cung cấp đầy đủ các chức năng của một phần mềm phân tích phổ offline, gồm có hiệu chuẩn detector, phát hiện và phân tích đỉnh tự động, hoặc tùy chỉnh phân tích từng đỉnh. Quy trình hiệu chuẩn được đơn giản hóa nhờ các tệp dữ liệu hạt nhân tích hợp sẵn trong phần mềm, bao gồm thông tin về nhân phóng xạ, tỷ số phân nhánh, độ bất định,...

2.2.1.3. Phần mềm mô phỏng LabSOCS

Trong phân tích xác định hoạt độ phóng xạ của mẫu, việc xây dựng đường cong hiệu suất ghi bằng thực nghiệm không phải lúc nào cũng có thể thực hiện được một cách dễ dàng, nhất là trong điều kiện thiếu nguồn chuẩn. Phần mềm LabSOCS là một chương trình mô phỏng Monte-Carlo, được tích hợp vào phần mềm Genie 2000 của Canberra, giúp giải quyết các vấn đề đó. LabSOCS có thể được sử dụng để xây dựng đường cong hiệu suất ghi một cách chính xác cho hầu hết các dạng hình học mẫu khác nhau mà không cần dùng đến mẫu chuẩn.

Phần mềm LabSOCS có đầy đủ các thông tin chi tiết về detector, sử dụng bộ dữ liệu của Viện Tiêu chuẩn và Công nghệ Quốc gia (NIST), Mỹ và chương trình mô phỏng Monte-Carlo MCNP. Ngoài ra, cấu hình chi tiết về detector, buồng chì,... được hãng CANBERRA hiệu chỉnh riêng cho detector cụ thể, do đó, khi mô phỏng không cần thiết phải khai báo các dữ liệu này. Các yếu tố cần khai báo trong LabSOCS gồm có: hình dạng và kích thước hộp chứa mẫu, thành phần cấu tạo hộp chứa mẫu và mật độ khối của mẫu.

2.2.2. Kỹ thuật lấy và xử lý mẫu trong phân tích phổ gamma

2.2.2.1. Phương pháp xử lý mẫu đất

- Mẫu đất được lấy ở vị trí tương ứng với mẫu rau và bốn vị trí xung quanh theo một hình vuông có chiều dài 30 cm.
- Mẫu được lấy ở độ sâu từ 0-30 cm.
- Sau khi đưa về từ hiện trường, mẫu đất được loại bỏ rễ cây, sỏi đá vụn và trải đều trên khay, phơi khô ở điều kiện nhiệt độ phòng.
- Sấy mẫu.
- Nghiền mẫu thành bột và sàng nhỏ.
- Dán nhãn phân biệt mẫu.
- Nhốt mẫu trong vòng 30 ngày.

2.2.2.2. Phương pháp xử lý mẫu thực vật

- Mẫu thực vật được lấy với khối lượng từ 5 – 12 kg ở ngoài hiện trường.
- Mẫu được rửa sạch để loại bỏ bụi bẩn, chỉ nhặt lấy các phần ăn được, loại bỏ phần sâu, rễ và các phần không sử dụng để chế biến.
- Phơi khô mẫu ở nhiệt độ phòng rồi cho vào tủ sấy.
- Các mẫu khô được nghiền thành bột và sàng nhỏ.
- Mẫu được lấy từ 300-500 gram để hóa tro mẫu trong lò nung ở nhiệt độ 6000C trong vòng 2 giờ.

- Đựng mẫu trong hộp, có dán nhãn, ghi khối lượng và các thông tin cụ thể để bảo quản và đưa đi đo.
- Nhốt mẫu trong vòng 30 ngày.

2.2.3. Phương pháp than hóa

Với các mẫu thực vật được lấy trong vùng có phong nền phóng xạ trung bình và thấp, hoạt độ phóng xạ riêng của ^{226}Ra , ^{228}Ac (^{228}Ra) có giá trị rất nhỏ, còn ^{40}K thường biến thiên trong khoảng rộng có mẫu như mẫu S19 và S20 trong [61] lên tới 1600 Bq/kg trong mẫu khô. Kết quả nền tán xạ Compton liên tục từ 378 keV đến 1082 keV do đỉnh gamma năng lượng 1460,85 keV của ^{40}K phát ra tăng cao, dẫn đến diện tích dưới đỉnh của các vạch gamma 351,93 keV của ^{214}Pb , 609,31 keV của ^{214}Bi và 911,1 keV của ^{228}Ac lớn. Do đó, với các mẫu thực vật có hoạt độ riêng của ^{40}K cao, ngưỡng phát hiện của các đồng vị ^{226}Ra và ^{228}Ac thường rất lớn, độ lệch chuẩn khi xác định hoạt độ riêng của hai đồng vị này lớn. Để giảm ảnh hưởng do tán xạ của ^{40}K trong mẫu, trong [62] đưa ra giải pháp tách kali trong đó có ^{40}K ra khỏi mẫu. Tuy nhiên, đây là phương pháp phá mẫu phải sử dụng hóa chất và các dụng cụ chuyên dụng đi kèm. Luận án đã áp dụng phương pháp than hóa trong điều kiện thiếu oxy, đây là phương pháp đơn giản hơn và không yêu cầu phải tách kali ra khỏi mẫu.

2.3. Phương pháp kích hoạt neutron

2.3.1. Nguyên lý của phương pháp

Nguyên lý của phương pháp phân tích kích hoạt neutron và đo phổ gamma là biến đồng vị bền của một nguyên tố cần phân tích thành đồng vị phóng xạ thông qua phản ứng bắt neutron. Trên cơ sở đo bức xạ gamma đặc trưng của đồng vị phóng xạ được tạo thành và chu kỳ bán rã của nó sẽ nhận diện được đồng vị bền của nguyên tố đã tham gia phản ứng. Căn cứ vào cường độ tia gamma của đồng vị phóng xạ tạo thành sẽ xác định được hàm lượng nguyên tố cần phân tích.

2.3.2. Xác định hàm lượng nguyên tố bằng phương pháp k_0 – INAA

Công thức xác định hàm lượng của một nguyên tố dựa trên phương pháp chuẩn hóa k_0 được trình bày trong công thức sau:

$$p_X(\text{ppm}) = \frac{\left[\frac{N_p / t_m}{SDCW} \right]_X}{\left[\frac{N_p / t_m}{SDCW} \right]_{Au}} \cdot \frac{1}{k_{0,Au(X)}} \cdot \frac{G_{th,Au} f + G_{e,Au} Q_{0,Au}(\alpha)}{G_{th,X} f + G_{e,X} Q_{0,X}(\alpha)} \cdot \frac{\varepsilon_{Au}}{\varepsilon_X} \cdot 10^6 \quad (2.3)$$

2.3.3 Chương trình tính toán k_0 - IAEA

Trong phân tích hàm lượng nguyên tố bằng phương pháp kích hoạt neutron, chương trình k_0 -IAEA được sử dụng như một phương pháp chuẩn hóa trong phân tích hàm lượng nguyên tố do Cơ quan Năng lượng Nguyên tử Quốc tế (IAEA) hỗ trợ phát triển.

2.3.4. Bố trí thí nghiệm

2.3.4.1. Chuẩn bị mẫu

Mẫu phân tích được nghiền mịn nhằm đảm bảo độ đồng nhất, sau đó được sấy để loại bỏ độ ẩm (105°C trong 24 giờ đối với mẫu đất và 65°C trong 24 giờ đối với mẫu thực vật). Mẫu được mã hóa,

cân và đóng gói trong các túi nilông có đường kính 15 mm. Độ ẩm của mẫu được xác định bằng cân phân tích độ ẩm Ohaus MB45. Trong phân tích kích hoạt neutron theo phương pháp ko-INAA, các mẫu chuẩn tham khảo được chiếu đồng thời với mẫu phân tích để kiểm tra chất lượng quy trình (Quality Control - QC). Ngoài ra, lá dò vàng (Al + 0,1% Au, IRMM-530R, dày 0,1 mm) cũng được chiếu kèm nhằm kiểm soát sự biến động của thông lượng neutron nhiệt tại vị trí chiếu và hiệu chỉnh suy giảm thông lượng dọc theo container nhôm. Hình 2.15 mô tả quy trình chuẩn bị mẫu đo bằng phương pháp INAA.

2.3.4.2. Bố trí thí nghiệm

Đối với các đồng vị sống ngắn, mẫu được chiếu tại kênh 7-1 (**Error! Reference source not found.**). Kênh 7-1 là kênh khô được nối với hệ chuyển mẫu tự động thích hợp cho việc chiếu mẫu trong thời gian từ vài giây đến vài chục phút. Mỗi container nhựa chứa 05 mẫu bao gồm 01 mẫu chuẩn, 01 lá dò và còn lại là các mẫu phân tích. Các mẫu được sắp xếp theo hình xương cá và được chiếu 60 giây (đối với mẫu đất) và 120 giây (đối với mẫu thực vật) tại kênh 7-1 với thông lượng neutron nhiệt $\phi_{th} = 4,8 \cdot 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, hệ số $f = 9,8$ và hệ số lệch phổ trên nhiệt $\alpha = -0,038$.

Đối với các đồng vị sống dài, mẫu được chiếu tại mâm quay (**Error! Reference source not found.**). Mâm quay là kênh chiếu ướt, dùng để chiếu mẫu trong thời gian dài (> 1 giờ). Mỗi container nhôm chứa khoảng 50 mẫu bao gồm 03 mẫu chuẩn, 03 lá dò và còn lại là các mẫu phân tích. Các mẫu được sắp xếp theo hình xương cá và hàn nhiệt kín và xếp vào container bằng nhôm và chiếu 10 giờ (đối với

mẫu đất) và 15 giờ (đối với mẫu thực vật) trên mâm quay với thông lượng neutron nhiệt $\phi_{th} = 3,8 \times 10^{12} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, hệ số $f = 39,5$ và hệ số lệch phổ trên nhiệt $\alpha = 0,071$.

2.4. Phương pháp phân tích hóa lý

Trong phạm vi luận án, các tính chất lý hóa của đất như kết cấu đất (soil texture), hàm lượng cacbon hữu cơ (organic carbon) và độ pH của đất (soil pH) đã được khảo sát nhằm hiểu rõ hơn ảnh hưởng của các yếu tố này đến sự tích lũy các nhân tố phóng xạ.

2.5. Phương pháp phân tích thống kê và xử lý số liệu thực nghiệm

2.5.1. Công thức truyền sai số

Công thức đánh giá độ lệch chuẩn của đại lượng Y theo độ lệch chuẩn của các đại lượng X_i có trong công thức như sau:

$$\sigma_y = \sqrt{\sum_{i=1}^m \left(\frac{\partial f}{\partial x_i}\right)^2 \cdot \sigma_i^2} \quad (2.4)$$

2.5.2. Phương pháp phân tích thành phần chính

Phân tích thành phần chính (PCA) là một trong những kỹ thuật điển hình trong thống kê đa biến, là phương pháp đơn giản trong các thuật toán giảm chiều dữ liệu dựa trên một mô hình tuyến tính. PCA thường được ứng dụng để xử lý và khai thác thông tin từ các tập dữ liệu có số lượng biến quan sát lớn.

2.5.6. Chương trình XLSTAT

XLSTAT hỗ trợ đa dạng các kỹ thuật phân tích thống kê, từ các phương pháp cơ bản như phân tích mô tả, kiểm định giả thuyết, phân tích phương sai (ANOVA), hồi quy tuyến tính, đến các kỹ thuật nâng cao như phân tích thành phần chính (PCA), phân tích cụm (cluster analysis), và hồi quy logistic.

2.6. Các chỉ số nguy hiểm đối với phóng xạ và kim loại

2.6.1. Các chỉ số nguy hiểm phóng xạ

2.6.1.1. Hoạt độ radi tương đương - Ra_{eq} (Bq/kg) (Radium equivalent activity)

Hoạt độ radi tương đương là một chỉ số được sử dụng để đánh giá mức độ phóng xạ của vật liệu, đặc biệt là trong đất, đá hoặc vật liệu xây dựng.

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1.43A_{Th} + 0.077A_K \quad (2.5)$$

2.6.1.2. Suất liều hấp thụ gamma - D (nGy/h) (Absorbed gamma dose rate)

Suất liều hấp thụ gamma ở khoảng cách 1m so với mặt đất là tỷ lệ liều bức xạ gamma hấp thụ được trong một đơn vị thời gian, thường được đo bằng nGy/h.

$$D \left(\frac{nGy}{h} \right) = 0.46A_{Ra} + 0.62A_{Th} + 0.042A_K \quad (2.6)$$

2.6.1.3. Liều hiệu dụng hàng năm – AEDE (mSv/y) (Annual dose equivalent)

Liều hiệu dụng hàng năm dùng để ước tính tác động lâu dài của bức xạ đối với sức khỏe con người.

$$AEDE \left(\frac{mSv}{y} \right) = D \times 0,7 \left(\frac{Sv}{Gy} \right) \times 0,2 \times 8760(h) \quad (2.7)$$

2.6.1.4. Nguy cơ mắc ung thư – ELCR (Excess lifetime cancer risk)

Chỉ số nguy cơ mắc ung thư là chỉ số thể hiện xác suất một cá nhân sẽ phát triển ung thư trong suốt cuộc đời do tiếp xúc với mức độ bức xạ xác định.

$$ELCR = AEDE \times DL \times RF \quad (2.8)$$

2.6.2. Các chỉ số nguy hiểm đối với kim loại nặng

2.6.2.1. Chỉ số nguy hiểm mục tiêu (IHQ)

Chỉ số nguy hiểm mục tiêu (Target Hazard Quotient - IHQ) dùng để đánh giá mức độ nguy hiểm của các kim loại nặng trong môi trường đối với sức khỏe con người. IHQ tính toán mối quan hệ giữa mức độ ô nhiễm kim loại nặng và mức độ ảnh hưởng tiềm ẩn đến sức khỏe.

$$THQ = \frac{C_a \times C_f \times F_{IR} \times E_F \times E_D}{B_W \times R_f D \times T_A} \quad (2.9)$$

2.6.2.2. Chỉ số nguy cơ (HQ)

Chỉ số nguy cơ (Hazard Quotient - HQ) là một chỉ số được sử dụng để đánh giá mức độ nguy cơ của một chất ô nhiễm (trong

trường hợp này là kim loại nặng) đối với sức khỏe con người. Nếu $HQ > 1$, có thể coi là có nguy cơ đáng kể đối với sức khỏe, trong khi $HQ < 1$ có nghĩa là nguy cơ là không đáng kể.

$$HQ = [W_t] \times \frac{[M_t]}{R_f D \times B} \quad (2.10)$$

2.6.3. Phần mềm Rad Toolbox

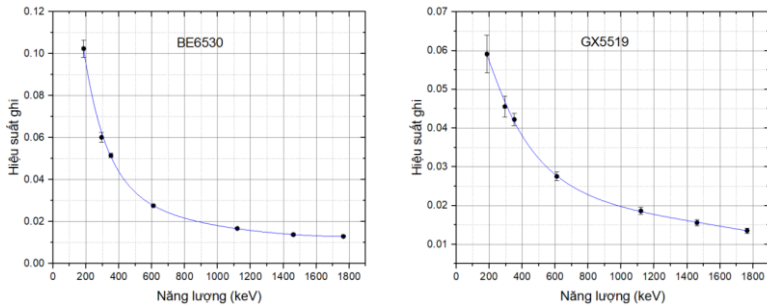
Phần mềm Rad ToolBox là một công cụ phần mềm được thiết kế để hỗ trợ trong việc tính toán, phân tích các chỉ số phóng xạ và nguy cơ sức khỏe liên quan đến bức xạ. Phần mềm này thường được sử dụng trong các nghiên cứu về môi trường và sức khỏe cộng đồng, đặc biệt trong việc đánh giá mức độ ô nhiễm phóng xạ từ các nguồn tự nhiên hoặc công nghiệp.

CHƯƠNG 3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Thử nghiệm xác định hoạt của các đồng vị phóng xạ và hàm lượng các nguyên tố trong mẫu đất và thực vật

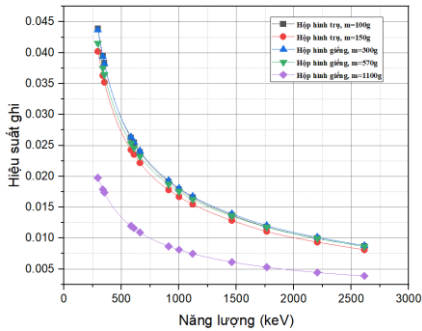
3.1.1. Phân tích xác định hoạt độ phóng xạ riêng của ^{226}Ra , ^{228}Ra và ^{40}K trong các mẫu đất và rau

3.1.1.1. Xây dựng đường cong hiệu suất ghi đối với mẫu đất



Hình 3.1. Đường cong hiệu suất ghi đối với mẫu đất trên hệ phổ kế gamma BE6530 và GX5519.

3.1.1.2. Xây dựng đường cong hiệu suất ghi đối với các mẫu thực vật



Hình 3.2. Đường cong hiệu suất ghi mô phỏng mẫu thực vật với các cấu hình đo khác nhau trên hệ GC5019.

3.1.1.3. Đánh giá chất lượng phương pháp than hóa

Độ lệch giữa hoạt độ phóng xạ riêng của 3 đồng vị ^{226}Ra , ^{228}Ra và ^{40}K được xác định chỉ lệch nhau không quá 6%. Các giá trị kiểm

tra t đều nhỏ hơn 1,96. Điều này chứng tỏ, với độ tin cậy 95 % có thể kết luận trong quá trình than hóa không dẫn tới sự mất mát các đồng vị phóng xạ.

Kết quả cho thấy với mẫu than, độ bất định của phép đo phổ gamma đối với các đỉnh 351,93 keV, 609,31 keV và 911,1 keV đã giảm xuống từ 3 đến 6 lần so với mẫu khô. Điều này chứng tỏ rằng với mẫu than hóa, độ bất định của phép đo phổ gamma đã giảm đáng kể.

3.1.2. Đánh giá kết quả phân tích hàm lượng nguyên tố

Các giá trị tiêu chuẩn cho thấy hầu hết các giá trị hàm lượng của các nguyên tố quan tâm dựa trên phương pháp INAA dựa trên các mẫu chuẩn đều phù hợp với giá trị tham chiếu, ngoại trừ một số kim loại như Zn, Eu, Th, Yb cần xem xét trước khi tính toán hàm lượng.

3.2. Xác định hệ số dịch chuyển các đồng vị phóng xạ từ đất lên thực vật

3.2.1. Hệ số dịch chuyển đối với các mẫu rau muống

Kết quả phân tích cho thấy TF ở rau muống nước cao hơn đáng kể so với rau muống cạn, đặc biệt đối với đồng vị ^{40}K . Kết quả này khẳng định rằng hệ số TF chịu ảnh hưởng đáng kể bởi sự khác biệt về kiểu sinh thái hoặc kiểu gen của cây.

Hệ số TF của ^{40}K từ đất lên rau muống ở Hà Nội và Phú Thọ không bị ảnh hưởng bởi yếu tố thời tiết và khí hậu, mà chủ yếu do đặc điểm địa chất ở từng vùng.

Hầu như không quan sát thấy có mối quan hệ nào giữa hoạt độ phóng xạ trong đất và hệ số dịch chuyển của các đồng vị còn lại ở cả hai khu vực nghiên cứu. Điều này được hiểu rằng ^{40}K có đặc tính khác biệt đáng kể so với hai đồng vị còn lại, do đó cơ chế hấp thụ và tích lũy đồng vị này đối với cây trồng cũng khác biệt so với ^{226}Ra và ^{228}Ra .

Độ pH đất và thành phần hạt mịn (silt) có mối tương quan âm với hệ số dịch chuyển của các đồng vị phóng xạ từ đất vào cây, trong khi đó cát lại có mối tương quan dương. Mối quan hệ này phù hợp với cơ sở lý thuyết về tương tác giữa đặc tính hóa lý của đất và quá trình vận chuyển các đồng vị phóng xạ.

3.2.2. Hệ số dịch chuyển đối với các mẫu rau, củ, quả khác

Hệ số dịch chuyển với ^{226}Ra và ^{228}Ra ở khu vực Lào Cai cao hơn từ 7 đến 10 lần so với Hà Nội, trong khi đó hệ số dịch chuyển của ^{40}K xấp xỉ nhau.

3.2.3. Đánh giá các chỉ số nguy hiểm

3.2.3.1. Chỉ số nguy hiểm do các đồng vị phóng xạ trong đất.

Các chỉ số nguy hiểm ở khu vực Phú Thọ là lớn nhất, sau đó đến khu vực Lào Cai và cuối cùng là Hà Nội. Kết quả đánh giá chỉ số nguy hiểm trong nghiên cứu này đưa ra cảnh báo về nguy cơ bị chiếu xạ đối với sức khỏe con người trong phạm vi các địa điểm lấy mẫu ở Phú Thọ, đặc biệt là ba vị trí gần khu vực mỏ sắt Đ.PT1, Đ.PT2 và Đ.PT3.

3.2.3.2. Liều tương đương do các đồng vị phóng xạ trong rau của quả gây ra lên các cơ quan người tiêu thụ.

Liều tương đương do tiêu thụ rau muống

Ở cả hai khu vực, liều tương đương của ^{40}K đối với ruột già trên, ruột già dưới và trực tràng cao hơn so với các cơ quan khác. Ngược lại, liều tương đương của ^{226}Ra và ^{228}Ra chủ yếu tập trung ở bề mặt xương và tủy xương đỏ.

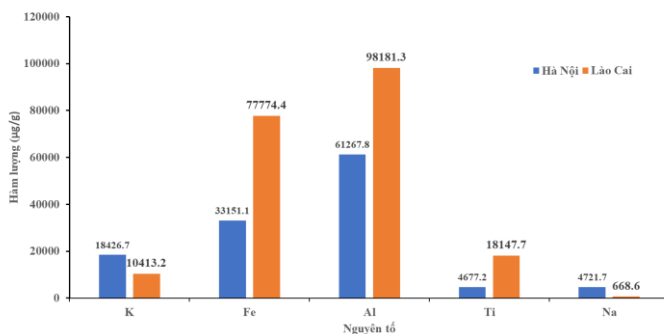
Ở khu vực Phú Thọ, liều tương đương trung bình đối với ba đồng vị phóng xạ ^{40}K , ^{226}Ra và ^{228}Ra lên các cơ quan đóng góp 30,91 %; 7,35 % và 61,74 % vào liều tương đương tổng. Ở Hà Nội, phần trăm đóng góp là 65,79 % với ^{40}K ; 15,29 % với ^{226}Ra và 18,92 % với ^{228}Ra . Có thể thấy tổng liều tương đương lên các cơ quan cơ thể khi tiêu thụ các mẫu rau muống ở Phú Thọ đều cao hơn so với Hà Nội từ 2 cho đến 6 lần.

Liều tương đương do tiêu thụ các loại rau, củ, quả khác

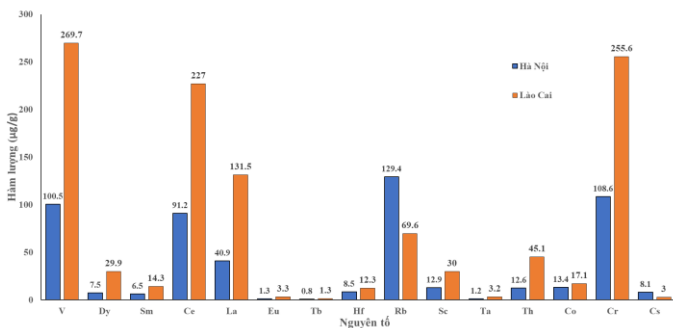
Do ảnh hưởng từ sự khác nhau giữa hoạt độ phóng xạ của các đồng vị ^{226}Ra , ^{228}Ra và ^{40}K ở các loại rau, củ, quả ở Hà Nội và Lào Cai, liều tương đương tổng mà các cơ quan nhận được ở Lào Cai đều cao hơn so với Hà Nội. Sự chênh lệch rõ ràng có thể quan sát được đối với bề mặt xương, tủy xương đỏ và gan.

3.3. Xác định hệ số dịch chuyển các nguyên tố kim loại từ đất lên thực vật

3.3.1. Hàm lượng kim loại trong các mẫu đất



Hình 3.3. Hàm lượng trung bình của các nguyên tố phổ biến trong các mẫu đất ở Hà Nội và Lào Cai



Hình 3.4. Hàm lượng trung bình của các nguyên tố vết trong các mẫu đất ở Hà Nội.

3.3.2. Hàm lượng kim loại trong mẫu thực vật

Các nguyên tố K, Cl, Na, Mg chiếm hàm lượng cao với giá trị trung bình lần lượt là 27570,2 µg/g, 9249,3 µg/g; 5103,4 µg/g và 2293,7 µg/g ở khu vực Hà Nội; 40010,3 µg/g, 4771,9 µg/g, 1543,0 µg/g, 1897,1 µg/g ở khu vực Lào Cai. Các nguyên tố khác như Fe, Mn, Zn, Br và Rb là các nguyên tố dinh dưỡng vi lượng, chiếm hàm lượng từ 20,3 đến 832,7 µg/g ở các mẫu thực vật thuộc khu vực Hà Nội, từ 22,5 đến 119,4 µg/g ở các mẫu thực vật thuộc khu vực Lào Cai.

3.3.3. Hệ số dịch chuyển các nguyên tố kim loại từ đất lên thực vật

Cây trồng chủ yếu hấp thụ các nguyên tố dinh dưỡng thiết yếu từ đất lên các loại thực vật trong nghiên cứu của luận án gồm K, Na, Fe, Mn và Rb như được trình bày trong bảng 5 – phụ lục E. Hệ số

dịch chuyển (TF) của các nguyên tố theo thứ tự $K > Na > Rb > Mn > Fe$ ở cả hai khu vực Hà Nội và Lào Cai, trong đó hệ số dịch chuyển của K và Na lớn hơn 1, các nguyên tố còn lại có giá trị nhỏ hơn 1.

3.2.4. Đánh giá chỉ số nguy hiểm mục tiêu

Các mẫu ở Hà Nội có giá trị trung bình THQ đối với từng nguyên tố quan tâm đều nhỏ hơn 1 và HI nhỏ hơn 1, cho thấy chúng an toàn đối với sức khỏe con người. Trong khi đó, các mẫu thực vật lấy ở Lào Cai, chỉ số nguy cơ HI bằng 2,59 đóng góp lớn bởi chỉ số nguy hiểm mục tiêu của Mn. Điều này cho thấy rằng Mn là nguyên tố chủ yếu có nguy cơ gây ra nguy hiểm tới sức khỏe của con người khi tiêu thụ các mẫu thực vật ở Lào Cai.

KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ

KẾT LUẬN

Luận án đã hoàn thành các mục tiêu và nội dung đề ra gồm các kết quả về:

1. Nâng cao chất lượng phân tích hoạt độ phóng xạ trong mẫu thực vật.
2. Xác định hệ số dịch chuyển của các đồng vị phóng xạ và kim loại từ đất lên cây trồng.
3. Đánh giá nguy cơ phóng xạ tại các khu vực nghiên cứu.
4. Đánh giá nguy cơ từ kim loại trong thực phẩm.

KIẾN NGHỊ

- Cần tiến hành khảo sát hệ số dịch chuyển các đồng vị phóng xạ và kim loại ở các khu vực khác nhau trên diện tích rộng hơn.
- Xây dựng các bộ số liệu về hệ số dịch chuyển các đồng vị phóng xạ và kim loại đối với từng loại rau cụ thể ở các khu vực khác nhau.
- Phân tích các tính chất hóa lý của đất và đánh giá thêm các yếu tố như bón phân, lượng mưa, thời điểm lấy mẫu để có cái nhìn tổng quan về cơ chế sự vận chuyển của các đồng vị phóng xạ và kim loại từ đất lên cây trồng.
- Phân tích hàm lượng kim loại dựa trên nhiều phương pháp khác như phương pháp TXRF, PIXE, ICP-OS để đưa ra được phương pháp tối ưu nhất trong nhận diện và phân tích hàm lượng các kim loại nặng trong đất cũng như các mẫu thực vật.

Danh mục các công trình khoa học của tác giả liên quan đến luận án.

1. **Bui, T.-H.**, Bui, V.-L., Leuangtakoun, S., Lathdavong, L., Xayhuangsy, S., Duong, D.-T., Tran, D.-K., Tran, V.-K., Le, N.-T., Phan, G., et al. (2023). Characteristics of natural radionuclides and ^{137}Cs in surface soil in Phonsavan, Xiengkhouang, Laos. *Nuclear Technology and Radiation Protection*, 38, 289–300.
2. **Bui, T.-H.**, Bui, V.-L., Duong, V.-H., Duong, D.-T., Le, N.-T., Tran, D.-K., Tran, V.-K., Ha, T.-T.-L., Phan, G.T.T., Tran, V.-H., et al. (2024). Transfer of natural radionuclides from soil to water spinach (*Ipomoea aquatica* Forssk) under flooded and unflooded conditions in Hanoi, Vietnam. *Journal of Environmental Radioactivity*, 277, 107445.
3. **Bui Thi Hong**, Vu Ngoc Ba, Nguyen An Son, Nguyen Thi Minh Sang, Bui Thi Hoa, Bui Van Loat. (2024). Transport and accumulation of nutrients in plant samples using Total Reflection X-ray Fluorescence (TXRF). *Advances in the Earth, Mining and Environmental Sciences for Safe and Sustainable Development*, 1, 113.
4. **Thi-Hong Bui**, Viet-Hoang Tran, Vu Ngoc Ba, Anh-Hung Vu, Hoai-Nam Tran, Van-Loat Bui (2025), “Evaluation of heavy metal elements in soil in Hanoi and Lao Cai using the k α – NAA method”, *IOP Journal of Physics: Conference Series (JPCS)*, 3040, 012018 (*Scopus*).
5. Nguyen The Nghia, Vu Ngoc Ba, Bui Van Loat, Nguyen Van Dung, Tran Van Khanh, **Bui Thi Hong**. (2025). Relationship between physicochemical parameters with radioactive concentration in soil and annual effective dose. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol.334 (6)