



Bài báo nghiên cứu

PHƯƠNG PHÁP XÁC ĐỊNH CÁC THAM SỐ VẬT LÝ ẢNH HƯỞNG ĐẾN NỒNG ĐỘ RADON TRONG ĐẤT

Huỳnh Nguyễn Phong Thu*, Nguyễn Văn Thắng, Vũ Ngọc Ba, Lê Công Hảo

Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

**Tác giả liên hệ: Huỳnh Nguyễn Phong Thu – Email: hnpthu@hcmus.edu.vn*

Ngày nhận bài: 02-9-2020; ngày nhận bài sửa: 20-10-2020; ngày duyệt đăng: 27-03-2021

TÓM TẮT

Trong bài báo này, chúng tôi xây dựng các quy trình xác định ba tham số vật lý ảnh hưởng đến nồng độ phóng xạ radon trong đất gồm hàm lượng phóng xạ ^{226}Ra , hệ số phát và hệ số khuếch tán radon. Hàm lượng phóng xạ ^{226}Ra trong đất được phân tích bằng phương pháp phổ alpha và gamma. Trong đó, đối với phương pháp phổ alpha, các đĩa MnO_2 được sử dụng cho việc chuẩn bị mẫu phân tích. Hệ số phát và khuếch tán radon được xác định trong phòng thí nghiệm và tại hiện trường bằng hệ thiết bị chuyên dụng đo radon – RAD7 cùng với hệ thống nhốt mẫu được thiết kế bởi nhóm nghiên cứu. Để kiểm chứng độ tin cậy của các phương pháp áp dụng và tính phù hợp giữa chúng, chúng tôi sử dụng phương pháp kiểm định giả thuyết thống kê theo từng cặp dữ liệu và so sánh trị trung bình kết quả thu được theo phân bố Student. Độ sai biệt các kết quả xác định từ các phương pháp đều ở mức có thể chấp nhận với độ tin cậy 95%.

Từ khóa: RAD7; sự khuếch tán; sự phát radon; radon trong đất

1. Giới thiệu

Khoảng 50% liều bức xạ con người nhận được trong đời sống hằng ngày có nguồn gốc từ radon (UNSCEAR, 2008). Trong đó, 80% lượng radon trong khí quyển được phát tán từ đất (Domis et al., 2009). Radon sinh ra từ phân rã của ^{226}Ra có năng lượng 86 keV (Ishimori et al., 2013). Với năng lượng này, radon hoặc có thể vẫn tồn tại bên trong hạt đất, hoặc có thể đi vào khoảng không gian giữa các hạt đất, có thể gọi là khí đất. Hệ số phát radon trong đất được định nghĩa là số các nguyên tử radon thoát khỏi hạt đất và tự do di chuyển trong khí đất. Khi đã đi vào khí đất, radon luôn có khuynh hướng di chuyển lên trên bề mặt đất, đi vào khí quyển. Sự di chuyển radon từ lòng đất lên bề mặt chủ yếu thông qua cơ chế khuếch tán. Hệ số khuếch tán radon trong đất đặc trưng cho khả năng dao động của các nguyên tử radon ở nhiệt độ lớn hơn nhiệt độ tuyệt đối. Sự dao động này làm cho các nguyên tử radon di chuyển từ nơi có nồng độ cao sang nơi có nồng độ thấp. Vậy, nồng

Cite this article as: Huynh Nguyen Phong Thu, Nguyen Van Thang, Vu Ngoc Ba, & Le Cong Hao (2021). Determination of physical parameters affecting radon concentration in soil. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science*, 18(3), 488-499.

độ radon trong đất và thông lượng radon gửi qua bề mặt đất phụ thuộc vào hàm lượng phóng xạ ^{226}Ra , hệ số phát và khuếch tán radon trong đất. Mục tiêu chính của bài báo là xây dựng quy trình thực nghiệm xác định ba tham số vật lý này. Các quy trình cũng có thể được áp dụng để xác định các tham số trên trong các mẫu vật liệu xây dựng, chất thải và các vật liệu nói chung có chứa radium và radon. Đối với các ngành khoa học Trái Đất và khí quyển, các tham số vật lý ảnh hưởng đến nồng độ radon góp phần dự đoán một số hiện tượng động học của đất, là dấu hiệu để nhận biết các mỏ quặng phóng xạ, dò tìm các mỏ hydrocacbon... (Baskaran, 2016). Việt Nam hầu như chưa có công trình đánh giá về hệ số phát và khuếch tán radon trong đất. Quy trình xác định hàm lượng phóng xạ ^{226}Ra trong các mẫu đất bằng phương pháp phổ alpha hầu như chưa được xây dựng hoàn chỉnh. Thế giới có một số công trình nghiên cứu có liên quan đến các nội dung này (Hansen, & Damkjaer, 1987; Kumar, & Chauhan, 2013; Prasad et al., 2012; Rogers, & Nielson, 1991). Tuy nhiên, các phương pháp cũng như kết quả thực nghiệm không thể áp dụng tùy ý vào điều kiện về vật chất cũng như đặc điểm các loại đất ở Việt Nam. Từ đó cho thấy, vẫn cần có nghiên cứu để thảo luận các vấn đề liên quan đến hướng nghiên cứu này.

2. Vật liệu và phương pháp

2.1. Quy trình chuẩn bị mẫu

2.1.1. Xác định hàm lượng ^{226}Ra bằng phương pháp phổ gamma

Các mẫu đất sau khi thu thập được sấy khô ở 105°C trong 24 giờ, trộn đều và lấy 150g cho việc phân tích hàm lượng ^{226}Ra bằng hệ phổ kế gamma. Mẫu được đóng vào hộp trụ polyethylene với chiều cao không quá 2 cm, dán kín và được nhốt ít nhất 30 ngày để tạo cân bằng phóng xạ giữa ^{226}Ra và các đồng vị con cháu. Hệ phổ kế gamma GC3520 của hãng Canberra được sử dụng để xác định hàm lượng ^{226}Ra . Đầu dò HPGe có đường kính 76 mm, chiều dài 73,8 mm. Độ phân dải năng lượng và hiệu suất ghi tương đối của đầu dò tại đỉnh phổ 1332 keV của đồng vị ^{60}Co tương ứng là 1,95 keV và 40%. Hàm lượng ^{226}Ra được xác định thông qua các đỉnh năng lượng của các đồng vị con cháu gồm ^{214}Bi và ^{214}Pb .

2.1.2. Xác định hàm lượng ^{226}Ra bằng phương pháp phổ alpha

a. Hòa tan mẫu

Đối với phương pháp phổ alpha, mẫu phân tích cần được hòa tan hoàn toàn. Đồng vị cần phân tích phải được tách khỏi các thành phần khác của mẫu và chuẩn bị dưới dạng một nguồn đo không có bề dày và khối lượng. Thông thường, mẫu được hòa tan bằng cách đun với hỗn hợp các acid. Để giảm bớt lượng acid sử dụng gây ô nhiễm môi trường, chúng tôi thực hiện nung mẫu ở nhiệt độ cao với hóa chất thích hợp. Phần mẫu chưa tan còn lại được tiếp tục phá hủy bằng acid. Quy trình thực hiện như sau:

- Lấy 1 g mẫu đất ở trạng thái khô kiệt, nghiền mẫu sao cho kích thước hạt nhỏ hơn $45\mu\text{m}$.
- Đặt mẫu vào cốc nickel, thêm 2 g bột Na_2CO_3 và 2 g bột Na_2O_2 , trộn đều. Nung mẫu ở nhiệt độ 600°C trong 2 giờ.

- Lọc mẫu sau khi nung với 150 mL HNO_3 0,2 M. Mẫu lúc này được chia thành hai phần, gồm phần lỏng A và phần rắn chưa tan B.

- Phần rắn tiếp tục được đun với hỗn hợp 10 mL HF và 3 mL HClO_4 ở 100°C cho đến khi dung dịch vừa khô cạn. Mẫu lúc này đã tan ra và trở thành dung dịch không màu C.

b. Tạo đĩa MnO_2

- 4,74g KMnO_4 khan được cho vào 300 mL nước cất để tạo thành dung dịch KMnO_4 0,1 M.

- Lót một màng nhựa PVC lên đáy một khay phẳng. Cho dung dịch KMnO_4 vào khay trên màng nhựa. Ngâm màng trong dung dịch KMnO_4 ở nhiệt độ $65-70^\circ\text{C}$ trong 3,5 giờ. Lúc này, KMnO_4 nhiệt phân tạo ra MnO_2 , có khả năng được hấp thụ trên màng nhựa.

- Rửa sạch và sấy khô màng, ta thu được màng MnO_2 có màu nâu như Hình 1.

- Dán màng MnO_2 lên các đĩa kim loại để tạo thành đĩa MnO_2 có khả năng hấp thụ ^{226}Ra .



Hình 1. Các bước chuẩn bị đĩa MnO_2 . a) Màng PVC ngâm dưới KMnO_4 đang nhiệt phân
b) Màng MnO_2 sau khi hoàn tất. c) Đĩa đồng được dán màng MnO_2

c. Hấp thụ ^{226}Ra lên đĩa MnO_2

- Trộn phần lỏng A và C tạo thành dung dịch mẫu. Thêm 0,1 g $\text{EDTA} \cdot 2\text{Na}$ và khuấy đều. Điều chỉnh $\text{pH} = 7,0 - 7,5$ trong dung dịch mẫu bằng HNO_3 và $\text{NH}_4(\text{OH})$.

- Cho đĩa MnO_2 vào dung dịch mẫu và khuấy mẫu liên tục trong 6 giờ ở nhiệt độ phòng.

d. Xác định hoạt độ ^{226}Ra trên đĩa mẫu bằng hệ phổ kế alpha

Hàm lượng ^{226}Ra được xác định bằng hệ phổ kế alpha sử dụng đầu dò PIPS với diện tích vùng hoạt 1200 mm^2 . Độ phân giải năng lượng $\sim 20 \text{ keV}$ khi đo nguồn ở cách đầu dò 25 mm. Hiệu suất ghi nhận của đầu dò ở khoảng cách 5 mm đạt 30%. Hàm lượng phóng xạ được xác định theo phương trình 1.

$$C_{\text{Ra}} = \frac{\text{CPS}}{\epsilon_d I_\alpha \epsilon_p m} \quad (1)$$

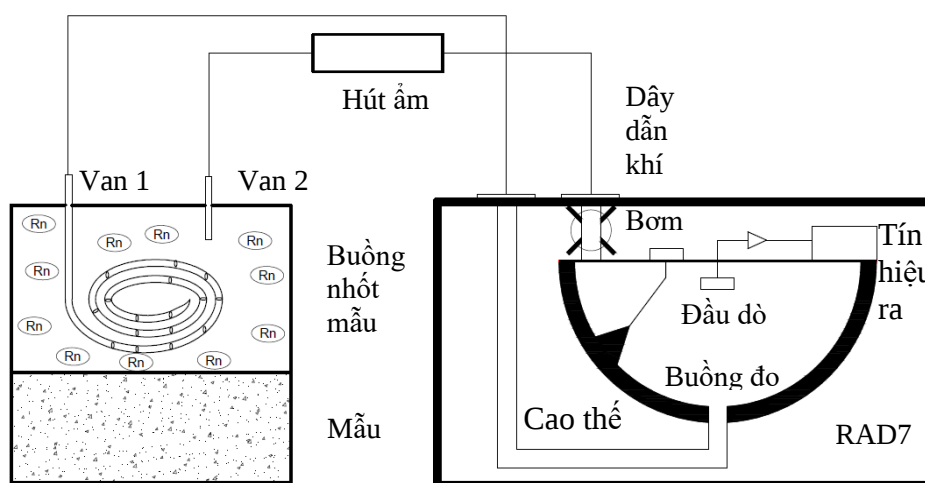
Trong đó, CPS là số đếm đầu dò ghi nhận được trong một giây của đỉnh phổ alpha ^{226}Ra ; m (kg) là khối lượng mẫu phân tích; ϵ_d là hiệu suất ghi nhận của đầu dò; I_α là xác suất phát alpha của ^{226}Ra ; ϵ_p là hiệu suất quá trình chuẩn bị mẫu đo. Giá trị này được xác định bằng cách áp dụng quy trình phân tích hoàn toàn tương tự đối với mẫu chuẩn IAEA-314 có hoạt độ phóng xạ ^{226}Ra $732 \pm 37 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Hiệu suất chuẩn bị mẫu là tỉ số giữa hoạt độ đo được và hoạt độ trong 1 g mẫu chuẩn được cung cấp bởi nhà sản xuất.

2.2. Xác định hệ số phát radon trong phòng thí nghiệm

2.2.1. Thiết kế hộp nhốt mẫu

Để xác định hệ số phát radon, một buồng nhốt mẫu tương thích với hệ đo được thiết kế. Buồng nhốt mẫu được làm bằng kim loại, hình trụ, đường kính 9,6 cm và chiều cao 18 cm. Để đưa khí từ mẫu vào buồng đo, buồng mẫu được gắn thêm hai van 1 và 2. Trong đó, van 1 được kết nối với bơm đẩy khí ở cổng ra của RAD7 để đẩy khí sinh ra trong buồng qua van 2. Van 1 được gắn với một ống dây được cuộn tròn và có các lỗ kim nhỏ để đẩy hết lượng khí sinh ra trong buồng nhốt mẫu vào buồng đo RAD7. Van 2 được kết nối với cổng thu khí vào của RAD7.

2.2.2. Đo nồng độ radon trong mẫu đất bằng thiết bị RAD7



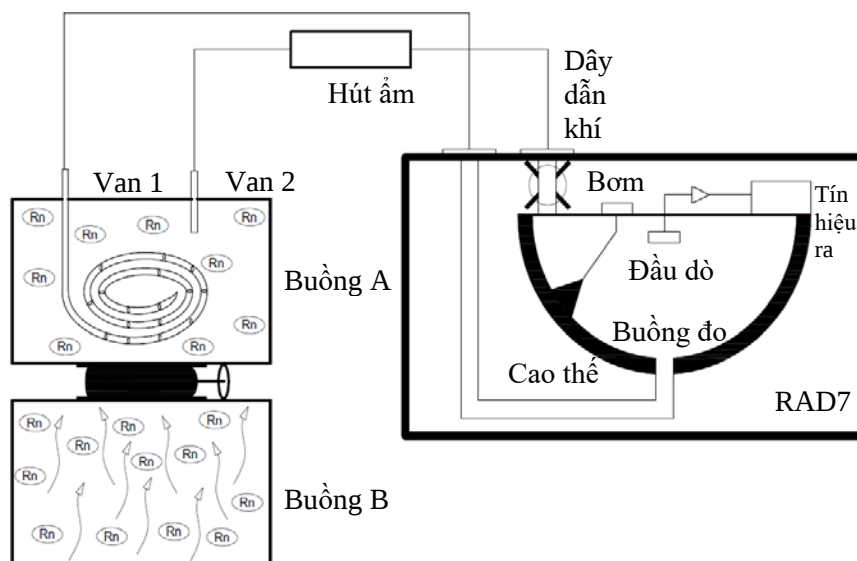
Hình 2. Sơ đồ hệ thí nghiệm xác định hệ số phát radon trong mẫu đất

Mẫu đất được chuẩn bị và được đóng vào buồng nhốt mẫu. Khi nồng độ radon sinh ra đủ lớn, buồng nhốt mẫu được kết nối với hệ đo theo sơ đồ Hình 2. Khí đưa vào buồng đo qua van 2 sau đó lại được đưa trở lại buồng nhốt mẫu qua van 1 tạo thành một vòng khép kín. Khi đó, nồng độ radon trong buồng đo bằng nồng độ trong buồng nhốt mẫu. Bộ phận ghi nhận tín hiệu trong buồng đo RAD7 làm bằng tấm silicon phẳng. Nồng độ radon được xác định qua hai đồng vị con cháu gồm ^{218}Po và ^{214}Po (Durrige Company, 2017). Hệ số phát radon E được xác định dựa vào nồng độ radon và hàm lượng ^{226}Ra theo công thức 2 (Ishimori et al., 2013).

$$E = \frac{C_{\text{Rn}} V}{(1 - e^{-(\lambda + \lambda_L)t}) M C_{\text{Ra}}} \quad (2)$$

Trong đó, C_{Rn} (Bq.m^{-3}) là nồng độ radon đo được từ RAD7; V (m^3) là thể tích hiệu dụng của buồng nhốt mẫu, buồng đo và phụ kiện; λ là hằng số phân rã của radon; λ_L là hệ số rò radon trong quá trình nhốt mẫu, giá trị này được xác định bằng các kết quả đo đặc thực nghiệm, quy trình xác định được trình bày bên dưới; M (kg) là khối lượng của mẫu ở trạng thái khô; t là thời gian nhốt mẫu và C_{Ra} (Bq.kg^{-1}) là hàm lượng phóng xạ ^{226}Ra trong mẫu.

2.2.3. Xác định hệ số rò radon trong quá trình nhốt mẫu



Hình 3. Sơ đồ hệ thí nghiệm xác định hệ số rò radon trong quá trình nhốt mẫu

Hệ thí nghiệm xác định hệ số rò radon được thiết kế như sơ đồ Hình 3. Hệ gồm hai buồng kín A và B được kết nối với nhau qua van 3. Trong đó, nguồn ^{226}Ra được nhốt trong buồng kín B 10 ngày để lượng khí radon sinh ra đủ lớn. Buồng nhốt mẫu cần xác định độ kín là buồng A lúc này không chứa mẫu và hoàn toàn không kết nối với buồng B. Sau đó, buồng B được kết nối với buồng A. Radon trong buồng B khuếch tán sang buồng A. Sau 2 giờ, van 3 được đóng lại để cô lập buồng A với buồng B. Nồng độ radon đo được lúc này tạm gọi là nồng độ tại thời điểm ban đầu, C_0 . Nồng độ radon trong buồng A được xác định sau các khoảng thời gian t (từ 12 đến 192 giờ), C_t . Hệ số rò radon được xác định bằng cách làm khớp bộ số liệu thực nghiệm ứng với các thời gian t khác nhau theo dạng hàm 3. Hệ số rò radon thu được có giá trị $(30,4 \pm 0,7) \cdot 10^{-8} \text{ s}^{-1}$. Hệ số này được sử dụng để hiệu chỉnh cho các kết quả đo đặc trong bài báo.

$$C_t = C_0 e^{-(\lambda + \lambda_L)t} \quad (3)$$

2.3. Xác định hệ số khuếch tán radon trong phòng thí nghiệm

Hệ số khuếch tán radon được xác định bằng hệ thiết bị RAD7. Chúng tôi thiết kế thêm hệ thí nghiệm tương tự hệ thí nghiệm xác định hệ số rò rỉ radon được mô tả trong hình 3. Trong trường hợp này, mẫu cần xác định hệ số khuếch tán được đặt trong buồng A. Đầu tiên, nguồn ^{226}Ra được nhốt trong buồng B khoảng 30 ngày. Sau đó, buồng A và buồng B được kết nối với nhau. Đến một thời điểm, nồng độ radon trong buồng A đạt được giá trị bão hòa. Ta gọi trạng thái này là trạng thái dừng. Phương pháp xác định hệ số khuếch tán dựa vào nồng độ radon ở thời điểm này gọi là phương pháp trạng thái dừng (Kumar, & Chauhan, 2013).

Quá trình khuếch tán radon trong vật liệu xốp nói chung và trong đất nói riêng tuân theo định luật Fick II (Domis et al., 2009; Kumar, & Chauhan, 2013; Prasad et al., 2012).

$$\frac{\partial C(z,t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C(z,t)}{\partial z^2} - (\lambda + \lambda_L) C(z,t) \quad (4)$$

Trong đó, $C(z, t)$ ($Bq.m^{-3}$) là nồng độ radon trong buồng chứa mẫu A; D ($m^2.s^{-1}$) là hệ số khuếch tán radon trong mẫu đất; z (m) là bề dày của mẫu đất trong buồng A; t (s) là thời gian cho sự khuếch tán radon từ buồng B sang buồng A; λ và λ_L (s^{-1}) lần lượt là hằng số phân rã của khí radon và hệ số rò rỉ của buồng nhốt mẫu.

Ở trạng thái dừng, nồng độ radon trong buồng A không thay đổi theo thời gian, phương trình 4 có thể được viết lại dưới dạng 5.

$$D \frac{d^2 C(z)}{dz^2} - (\lambda + \lambda_L) C(z) = 0 \quad (5)$$

Nghiệm phương trình 5 có dạng 6.

$$C(z) = A e^{z \sqrt{\frac{\lambda + \lambda_L}{D}}} + B e^{-z \sqrt{\frac{\lambda + \lambda_L}{D}}} \quad (6)$$

Ta tìm các hệ số A, B của phương trình 6 bằng cách xác định nồng độ radon ứng với hai bề dày mẫu khác nhau. Tác giả chọn đo tại hai bề dày $z=0$ (C_0) và $H=8$ cm (C_1). Khi đó, nghiệm của phương trình 5 được viết dưới dạng 7.

$$C(z) = \frac{1}{2 \sinh \left(H \sqrt{\frac{\lambda + \lambda_L}{D}} \right)} \left[\left(C_1 - C_0 e^{-H \sqrt{\frac{\lambda + \lambda_L}{D}}} \right) e^{z \sqrt{\frac{\lambda + \lambda_L}{D}}} + \left(C_0 e^{H \sqrt{\frac{\lambda + \lambda_L}{D}}} - C_1 \right) e^{-z \sqrt{\frac{\lambda + \lambda_L}{D}}} \right] \quad (7)$$

Vậy, với phương pháp trạng thái dừng, hệ số khuếch tán radon trong mẫu đất có thể được xác định dựa vào nồng độ radon ứng với ba bề dày mẫu khác nhau. Nồng độ radon trong buồng nhốt mẫu A ở trạng thái dừng được xác định ứng với ba bề dày được chọn lần lượt là 0, 8 và 12 cm. Hệ số khuếch tán D được suy ra theo phương trình 7. Phương trình này được giải bằng phần mềm tính toán Mathematica.

2.4. Phương pháp xác định hệ số phát và khuếch tán radon tại hiện trường

Sự di chuyển radon trong một lớp đất đồng nhất được thể hiện trong phương trình 8 (Domis et al., 2009).

$$\frac{\partial C(z,t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C(z,t)}{\partial z^2} - v \frac{\partial C(z,t)}{\partial z} - \lambda C(z,t) + \lambda C_\infty \quad (8)$$

Trong đó, $C(z, t)$ ($Bq.m^{-3}$) là nồng độ radon trong khí đất tại một độ sâu z (m) và một thời điểm t bất kỳ; C_∞ ($Bq.m^{-3}$) là nồng độ radon ở rất sâu trong lòng đất; D ($m^2.s^{-1}$) và v ($m.s^{-1}$) lần lượt là hệ số khuếch tán và vận tốc đối lưu của radon trong đất; λ (s^{-1}) là hằng số phân rã của radon.

Nồng độ radon trong đất tại hiện trường gần như không thay đổi tức thời trong thời gian đo, vì vậy, phương trình 8 có thể viết lại dưới dạng phương trình 9.

$$D \frac{\partial^2 C(z)}{\partial^2 z} - v \frac{\partial C(z)}{\partial z} - \lambda C(z) + \lambda C_\infty = 0 \quad (9)$$

Áp dụng điều kiện biên, ở bề mặt đất, nồng độ radon rất nhỏ nên có thể giả sử bằng 0, $C(0)=0$. Tại vị trí rất sâu trong lòng đất, nồng độ radon gần như không thay đổi, ta có phương trình 10.

$$\left. \frac{dC(z)}{dz} \right|_{z=\infty} = 0 \quad (10)$$

Trong trường hợp chỉ tính đến sự khuếch tán, bỏ qua sự đối lưu, $v=0$, nghiệm của phương trình 9 có thể được viết dưới dạng 11.

$$C(z) = C_\infty \left(1 - e^{-\sqrt{\frac{\lambda}{D}} z} \right) \quad (11)$$

Dựa vào phương trình 11, hệ số khuếch tán radon có thể được xác định dựa vào nồng độ radon tại hai độ sâu trong đất. Giả sử C_1 và C_2 lần lượt là nồng độ radon tại hai độ sâu z_1 và z_2 , trong đó, độ sâu thứ hai gấp đôi độ sâu thứ nhất, $z_2=2z_1$. Thay các giá trị nồng độ radon và các độ sâu tương ứng này vào phương trình 11, ta có thể tìm được sự phụ thuộc của hệ số khuếch tán vào nồng độ radon ở hai độ sâu như trên theo công thức 12.

$$D = \frac{\lambda z_1^2}{\left[\ln \left(\frac{C_2}{C_1} - 1 \right) \right]^2} \quad (12)$$

Nồng độ radon tại độ sâu vô cùng được tính theo phương trình 13.

$$C_\infty = \frac{EA_{Ra}\rho}{\eta} \quad (13)$$

Trong đó, E là hệ số phát radon trong đất; ρ (kg.m^{-3}) là mật độ khối đất khô; η là độ xốp của đất. Từ 11, 12 và 13, hệ số phát radon có thể được xác định theo phương trình 14 với giả sử lớp đất đồng nhất.

$$E = \frac{C_1 \eta}{\left(2 - \frac{C_2}{C_1} \right) A_{Ra} \rho} \quad (14)$$

Với các dẫn dắt như trên, tại hiện trường, để xác định hệ số phát và khuếch tán khí radon, nồng độ radon trong đất cần được đo ít nhất tại hai độ sâu, trong đó, độ sâu thứ hai gấp đôi độ sâu thứ nhất. Chúng tôi chọn xác định nồng độ radon tại hai độ sâu 30 và 60 cm. Nồng độ radon tại hiện trường được xác định bằng thiết bị RAD7 và một thanh thu khí được cắm vào lòng đất ở độ sâu cần đo.

3. Kết quả và thảo luận

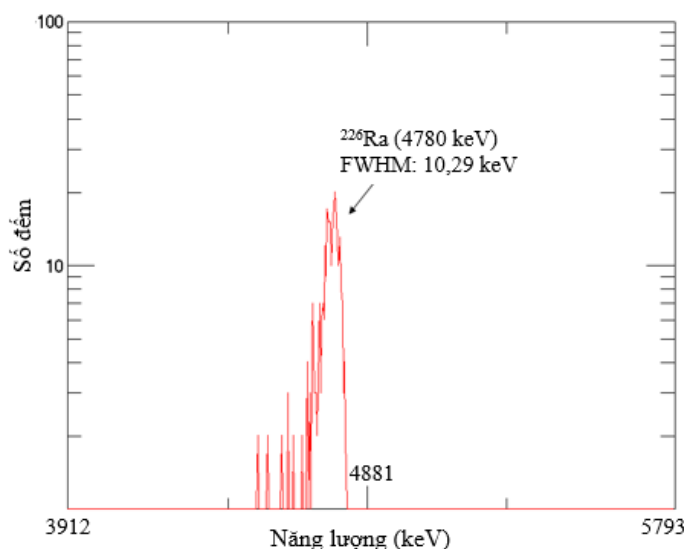
3.1. Hàm lượng ^{226}Ra trong đất xác định bằng phương pháp phổ gamma và phổ alpha

Bảng 1. Hàm lượng ^{226}Ra xác định bằng phương pháp phổ gamma và phổ alpha

Mẫu	Hàm lượng ^{226}Ra xác định bằng hệ phổ kế gamma (Bq.kg^{-1})	Hàm lượng ^{226}Ra xác định bằng hệ phổ kế alpha (Bq.kg^{-1})	Độ sai biệt (%)	Mẫu	Hàm lượng ^{226}Ra xác định bằng hệ phổ kế gamma (Bq.kg^{-1})	Hàm lượng ^{226}Ra xác định bằng hệ phổ kế alpha (Bq.kg^{-1})	Độ sai biệt (%)
M1	51 ± 3	44 ± 2	14	M16	33 ± 3	28 ± 1	15
M2	66 ± 4	60 ± 3	9	M17	34 ± 3	37 ± 2	9
M3	75 ± 5	65 ± 3	13	M18	33 ± 3	35 ± 2	6
M4	40 ± 3	46 ± 2	15	M20	47 ± 3	42 ± 2	11
M5	39 ± 3	44 ± 2	13	M19	40 ± 3	48 ± 2	20
M6	34 ± 3	35 ± 2	3	M21	25 ± 2	28 ± 2	12
M7	34 ± 3	36 ± 2	6	M22	100 ± 6	80 ± 3	20
M8	38 ± 3	41 ± 2	8	M23	90 ± 5	79 ± 3	12
M9	58 ± 4	55 ± 2	5	M24	34 ± 3	37 ± 2	9
M10	50 ± 3	44 ± 2	12	M25	54 ± 4	51 ± 2	6
M11	51 ± 3	46 ± 2	10	M26	45 ± 3	46 ± 2	2
M12	56 ± 4	51 ± 2	9	M27	50 ± 4	48 ± 2	4
M13	87 ± 5	88 ± 3	1	M28	51 ± 4	44 ± 2	14
M14	38 ± 3	43 ± 2	13	M29	42 ± 3	35 ± 2	17
M15	30 ± 2	33 ± 2	10	M30	50 ± 4	43 ± 2	14

Hiệu suất các quy trình chuẩn bị mẫu đo cho hệ phổ kế alpha được xác định 10 lần trên mẫu chuẩn IAEA-314 với quy trình hoàn toàn tương tự như đối với mẫu phân tích. Kết quả cho thấy hiệu suất quy trình chuẩn bị mẫu dao động từ 77 ± 6 đến $(83 \pm 7)\%$, hiệu suất trung bình đạt $(79 \pm 2)\%$. Ví dụ một phổ đo mẫu đất M16 bằng hệ phổ kế alpha được thể hiện trong Hình 4.

Kết quả trong Bảng 1 cho thấy, độ sai biệt giữa hàm lượng phóng xạ xác định bằng hai phương pháp dao động từ 1 đến 20%, độ lệch trung bình 10%. Sự sai lệch trong kết quả giữa hai phương pháp có thể do nhiều nguyên nhân. Đối với phương pháp phổ gamma, các nguồn có thể dẫn đến sai số bao gồm sai số trong cân đo xác định khối lượng mẫu, mật độ mẫu, sai số xác định đường chuẩn hiệu suất đo, sai số ngẫu nhiên của phép đo và xác định số đếm diện tích đỉnh... Đối với phương pháp phổ alpha, sai số phân tích có thể bao gồm sai số cân đo mẫu, sai số do hiệu suất chuẩn bị mẫu chuẩn và mẫu phân tích khác nhau, một phần lượng mẫu trong quá trình chuẩn bị mẫu bị hao hụt, sai số ngẫu nhiên và xác định số đếm diện tích đỉnh phổ... Tuy nhiên, khi được kiểm định theo phân bố Gauss chuẩn, sự sai lệch trị trung bình kết quả của hai phương pháp vẫn nằm trong giới hạn chấp nhận với mức ý nghĩa 5%. Kết quả này cho thấy mặc dù hiệu suất chuẩn bị mẫu để xác định hàm lượng ^{226}Ra bằng phương pháp phổ alpha chưa cao, song, đây là quy trình khá đơn giản, giá thành thấp, phù hợp để áp dụng trong phân tích mẫu môi trường với giới hạn phát hiện thấp. Cả hai phương pháp phân tích đều có thể được áp dụng trong phân tích hàm lượng phóng xạ ^{226}Ra .



Hình 4. Phổ alpha của đồng vị ^{226}Ra trong mẫu M16 đo bằng hệ phổ kế alpha

3.2. So sánh hệ số phát radon xác định trong phòng thí nghiệm và tại hiện trường

Kết quả hệ số phát radon được xác định tại hiện trường và trong phòng thí nghiệm được so sánh trên 30 mẫu đất. Đối với mỗi mẫu khảo sát, đất được lấy tại hai độ sâu 30 và 60 cm (vị trí đã đo nồng độ radon tại hiện trường). Mật độ khối đất, độ xốp và độ ẩm trong đất được xác định tại cả hai độ sâu và lấy trung bình. Tại phòng thí nghiệm, đất được lấy ở hai độ sâu được trộn đều với tỉ lệ 1:1 sau khi đã sấy khô. Thêm một lượng nước cát vừa đủ vào mẫu và trộn đều trên khay để tạo độ ẩm trong mẫu bằng độ ẩm tại hiện trường. Cho mẫu đất vào hộp nhốt mẫu và nén sao cho mật độ khối lượng mẫu tương đương giá trị lúc thu thập tại hiện trường.

Kết quả trong Bảng 2 cho thấy, có sự chênh lệch giữa hệ số phát radon được xác định trong phòng thí nghiệm và tại hiện trường. Hệ số phát radon trong phòng thí nghiệm dao động từ $0,12 \pm 0,01$ đến $0,47 \pm 0,03$. Kết quả nằm trong khoảng $0,11 \pm 0,01$ đến $0,41 \pm 0,02$ đối với các phép đo tại hiện trường. Độ sai biệt kết quả giữa hai phương pháp dao động từ 8 đến 50%, độ lệch trung bình 25%. Sự sai khác này có thể do nhiều nguyên nhân. Đất tại hiện trường dưới tác động của ánh nắng mặt trời và các tương tác xảy ra trong lòng đất làm cho nhiệt độ trong các mẫu đất luôn cao hơn so với nhiệt độ các mẫu đất đặt trong phòng thí nghiệm (25°C). Các đặc trưng của mẫu tại hiện trường được xác định chỉ ngay thời điểm đo, trong khi các yếu tố này đã ảnh hưởng lên hệ số phát radon trong một thời gian dài. Đối với các mẫu trong phòng thí nghiệm, các đặc trưng này hầu như luôn được giữ ổn định trong quá trình lưu mẫu và xác định hệ số phát radon. Bên cạnh đó, sai số hệ thống và sai số ngẫu nhiên của các phép đo, sai số trong quy trình xác định các đặc trưng của mẫu đất... cũng là các yếu tố quan trọng gây ra các sai lệch cho kết quả thu được. Mặc dù, có sự chênh lệch trong kết quả của từng cặp mẫu giữa phương pháp phòng thí nghiệm và hiện trường, trị trung bình hệ số phát radon của các mẫu đất xác định trong phòng thí nghiệm, $0,24 \pm 0,01$, và tại hiện trường, $0,26 \pm 0,02$, lại có sự chênh lệch nằm trong sai số. Đồng thời,

các kết quả này đều phù hợp với hệ số phát radon trung bình trong đất của các nước trên thế giới, $0,24 \pm 0,04$ (Ishimori et al., 2013). Thực hiện kiểm định theo phân bố Gauss chuẩn, kết quả cho thấy hệ số phát radon xác định từ hai phương pháp có sự chênh lệch ở mức chấp nhận được. Giả thiết hai trị trung bình bằng nhau được chấp nhận với mức ý nghĩa 5%. Vậy, cả hai phương pháp đều có thể được áp dụng để xác định hệ số phát radon trong đất tùy vào mục đích nghiên cứu. Phương pháp đo đạc tại hiện trường thường tốn nhiều công sức, thời gian và giá thành. Đặc biệt, việc di chuyển thiết bị thường xuyên và đo đạc bên ngoài dưới tác động của thời tiết dễ làm giảm tuổi thọ. Với kết quả thu được như trên, các phép đo trong phòng thí nghiệm có thể được áp dụng thay thế phương pháp đo tại hiện trường. Trong trường hợp này, các kết quả cần được chấp nhận ở một mức sai số nhất định.

3.3. So sánh hệ số khuếch tán radon xác định trong phòng thí nghiệm và tại hiện trường

Các mẫu được chuẩn bị với quy trình hoàn toàn tương tự quy trình xác định hệ số phát radon trong phần 3.2. Kết quả trên 30 mẫu khảo sát cho thấy có sự chênh lệch giữa hệ số khuếch tán xác định trong phòng thí nghiệm và tại hiện trường. Hệ số khuếch tán xác định tại hiện trường dao động từ $(7,1 \pm 0,8) \cdot 10^{-7}$ đến $(31,8 \pm 2,0) \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Kết quả dao động từ $(8,6 \pm 0,3) \cdot 10^{-7}$ đến $(31,0 \pm 1,2) \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ khi được xác định trong phòng thí nghiệm. Trị trung bình hệ số khuếch tán xác định trong phòng thí nghiệm và tại hiện trường lần lượt đạt $(16,6 \pm 0,6) \cdot 10^{-7}$ và $(16,3 \pm 1,3) \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Các kết quả này gần như nằm trong khoảng kết quả thu được của Rogers (Rogers, & Nielson, 1991) (từ $1,16 \cdot 10^{-7}$ đến $82,0 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), Prasad (Prasad et al., 2017) (từ $1,27 \cdot 10^{-7}$ đến $81,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) và Hansen (Hansen, & Damkjaer, 1987) (từ $8 \cdot 10^{-7}$ đến $62 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$). Độ sai biệt kết quả giữa hai phương pháp dao động từ 9 đến 39%, với độ lệch trung bình 22%. Sự sai khác giữa các kết quả thu được do nhiều nguyên nhân gây nên. Mẫu đất tại hiện trường luôn có nhiệt độ cao hơn do tác động của ánh nắng mặt trời vào ban ngày và các tương tác xảy ra trong lòng đất. Các mẫu đất trong phòng thí nghiệm được đo ở điều kiện nhiệt độ 25°C . Tại hiện trường, nồng độ radon trong mẫu đất chịu ảnh hưởng bởi các đặc trưng của đất trong một thời gian dài trước thời điểm đo trong khi các đặc trưng này chỉ được tác giả xác định tại thời điểm đo và thu thập mẫu. Các điều kiện bên ngoài có thể làm thay đổi một số đặc trưng của đất theo thời gian. Đây có thể là nguyên nhân thứ hai gây ra sự sai lệch. Các mẫu đất tại hiện trường và trong phòng thí nghiệm chưa thật sự đồng nhất trong khi các phương trình khuếch tán được giải với giả sử các mẫu đất đồng nhất. Mật độ, độ xốp và độ ẩm của mẫu đất trong phòng thí nghiệm có thể có sự sai khác so với các giá trị thực tế. Ngoài ra, sai số hệ thống và sai số ngẫu nhiên cũng gây ra những sai lệch cho kết quả thu được. Thực hiện kiểm định theo phân bố Gauss chuẩn, ta thấy trị trung bình kết quả của hai phương pháp vẫn còn nằm trong vùng được xem là chênh lệch không đáng kể. Giả thiết hai trị trung bình bằng nhau được chấp nhận với mức ý nghĩa 5%. Vậy, cả hai phương pháp đều có thể được áp dụng để xác định hệ số khuếch tán radon trong đất tùy vào mục đích thực hiện. Phương pháp phòng thí nghiệm có thể áp dụng thay thế các phép đo hiện trường. Trong trường hợp này, các kết quả cần được chấp nhận ở một mức sai số nhất định.

Bảng 2. Hệ số khuếch tán radon xác định trong phòng thí nghiệm và tại hiện trường

Mẫu	Độ ẩm (%)	Độ xốp	Hệ số phát radon đo trong phòng thí nghiệm	Hệ số phát radon đo tại hiện trường	Độ sai biệt (%)	Hệ số khuếch tán radon đo trong phòng thí nghiệm ($\times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	Hệ số khuếch tán radon đo tại hiện trường ($\times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	Độ sai biệt (%)
T1	10	0,41	$0,12 \pm 0,01$	$0,11 \pm 0,01$	29	$27,9 \pm 1,1$	$31,2 \pm 2,5$	12
T2	10	0,40	$0,18 \pm 0,01$	$0,23 \pm 0,02$	28	$28,5 \pm 1,1$	$31,8 \pm 2,0$	12
T3	20	0,22	$0,36 \pm 0,02$	$0,32 \pm 0,02$	10	$12,1 \pm 0,5$	$15,2 \pm 0,8$	26
T4	20	0,20	$0,35 \pm 0,02$	$0,28 \pm 0,02$	20	$11,2 \pm 0,3$	$14,0 \pm 0,7$	25
T5	25	0,21	$0,36 \pm 0,02$	$0,31 \pm 0,02$	14	$10,5 \pm 0,3$	$12,5 \pm 0,8$	19
T6	20	0,23	$0,30 \pm 0,02$	$0,34 \pm 0,02$	12	$10,8 \pm 0,3$	$13,8 \pm 0,7$	28
T7	15	0,22	$0,29 \pm 0,02$	$0,33 \pm 0,02$	14	$13,6 \pm 0,6$	$17,1 \pm 1,0$	26
T8	15	0,22	$0,20 \pm 0,01$	$0,28 \pm 0,02$	37	$10,8 \pm 0,4$	$12,8 \pm 1,0$	19
T9	16	0,23	$0,20 \pm 0,01$	$0,30 \pm 0,02$	52	$14,4 \pm 0,4$	$9,8 \pm 1,2$	32
T10	13	0,22	$0,24 \pm 0,01$	$0,30 \pm 0,02$	27	$12,3 \pm 0,5$	$15,9 \pm 1,0$	29
T11	15	0,24	$0,24 \pm 0,02$	$0,30 \pm 0,02$	23	$13,2 \pm 0,4$	$17,3 \pm 1,1$	31
T12	18	0,22	$0,20 \pm 0,01$	$0,30 \pm 0,02$	51	$11,0 \pm 0,4$	$8,4 \pm 1,1$	24
T13	18	0,25	$0,19 \pm 0,01$	$0,25 \pm 0,02$	31	$13,2 \pm 0,4$	$8,0 \pm 1,1$	39
T14	14	0,26	$0,21 \pm 0,01$	$0,15 \pm 0,01$	29	$15,4 \pm 0,5$	$19,2 \pm 1,5$	24
T15	22	0,22	$0,47 \pm 0,03$	$0,41 \pm 0,02$	12	$11,2 \pm 0,5$	$13,7 \pm 0,9$	22
T16	18	0,20	$0,32 \pm 0,02$	$0,27 \pm 0,02$	15	$10,1 \pm 0,3$	$7,1 \pm 0,8$	30
T17	22	0,18	$0,47 \pm 0,04$	$0,40 \pm 0,02$	15	$8,6 \pm 0,3$	$10,0 \pm 0,8$	16
T18	16	0,22	$0,23 \pm 0,01$	$0,28 \pm 0,02$	21	$12,0 \pm 0,5$	$9,1 \pm 1,0$	24
T19	9	0,40	$0,12 \pm 0,01$	$0,16 \pm 0,01$	38	$31,0 \pm 1,2$	$22,8 \pm 2,6$	26
T20	10	0,39	$0,13 \pm 0,01$	$0,15 \pm 0,01$	14	$26,7 \pm 1,1$	$19,8 \pm 1,9$	26
T21	8	0,40	$0,19 \pm 0,01$	$0,25 \pm 0,02$	31	$29,8 \pm 1,2$	$25,6 \pm 2,6$	14
T22	17	0,22	$0,25 \pm 0,02$	$0,20 \pm 0,02$	20	$11,4 \pm 0,3$	$13,5 \pm 1,1$	18
T23	14	0,25	$0,20 \pm 0,01$	$0,26 \pm 0,02$	32	$13,4 \pm 0,4$	$16,8 \pm 1,1$	25
T24	13	0,30	$0,12 \pm 0,01$	$0,18 \pm 0,01$	44	$18,0 \pm 0,7$	$14,3 \pm 1,0$	21
T25	16	0,22	$0,20 \pm 0,01$	$0,27 \pm 0,02$	37	$11,1 \pm 0,4$	$9,1 \pm 0,9$	18
T26	16	0,20	$0,19 \pm 0,01$	$0,26 \pm 0,02$	38	$11,2 \pm 0,5$	$12,4 \pm 0,9$	11
T27	9	0,40	$0,15 \pm 0,01$	$0,20 \pm 0,02$	34	$29,2 \pm 1,2$	$21,3 \pm 2,9$	27
T28	9	0,38	$0,19 \pm 0,01$	$0,21 \pm 0,02$	13	$25,4 \pm 1,0$	$28,0 \pm 2,0$	10
T29	8	0,37	$0,17 \pm 0,01$	$0,20 \pm 0,02$	20	$29,8 \pm 0,9$	$21,7 \pm 2,6$	27
T30	15	0,25	$0,38 \pm 0,03$	$0,32 \pm 0,02$	15	$15,1 \pm 0,5$	$16,4 \pm 1,2$	9

4. Kết luận

Bài báo đã trình bày các phương pháp xác định ba tham số vật lý ảnh hưởng đến nồng độ radon trong đất và lượng radon từ đất đi vào khí quyển gồm hàm lượng ^{226}Ra , hệ số phát và hệ số khuếch tán radon. Mỗi tham số đều được xác định bằng hai phương pháp thực nghiệm khác nhau. Sự chênh lệch kết quả thu được từ hai phương pháp đều ở mức có thể chấp nhận với độ tin cậy 95%. Đồng thời, các kết quả thu được có sự phù hợp với khoảng tham chiếu của một số công trình trên thế giới. Các quy trình xác định hàm lượng ^{226}Ra , hệ số phát và hệ số khuếch tán radon có thể được áp dụng trong các nghiên cứu tương lai liên quan đến hướng nghiên cứu này.

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

❖ **Lời cảm ơn:** Nghiên cứu được tài trợ bởi Đại học Quốc gia Thành phố Hồ Chí Minh (ĐHQG-HCM) trong khuôn khổ Đề tài mã số C2019-18-04.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Baskaran, M. (2016). *Radon: A Tracer for Geological, Geophysical and Geochemical Studies*. Springer Geochemistry.
- Domis, M. A., Xanthos, S., Clouvas, A., & Alifrangis, D. (2009). Experimental and theoretical study of radon distribution in soil. *Health Physics*, (97), 322-331.
- Durridge Company (2017). *Rad7 radon detector*. Bedford, MA, U.S.A.
- Hansen, J. S., & Damkjær, A. (1987). Determining ^{222}Rn diffusion lengths in soils and sediments. *Health Physics*, (53), 455-459.
- Ishimori, Y., Lange, K., Martin, P., Mayya, Y. S., & Phaneuf, M. (2013). *Measurement and Calculation of Radon Releases from NORM Residues*. International atomic energy agency Vienna, Technical Reports Series No. 474, Austria.
- Kumar, A., & Chauhan, R. P. (2013). Active and passive measurements of radon diffusion coefficient from building construction materials. *Environmental Earth Sciences*, (72), 251-257.
- Prasad, G., Ishikawa, T., Hosoda, M., Sorimachi, A., & Janik, M. (2012). Estimation of radon diffusion coefficients in soil using an updated experimental system. *Review of Scientific Instruments*, (83), 093503.
- Rogers, V. C., & Nielson, K. K. (1991). Correlations for predicting air permeabilities and ^{222}Rn diffusion coefficients of soils. *Health Physics*, (61), 225-230.
- UNSCEAR (2008). *Sources and effects of ionizing radiation*. Report to General Assembly, Annex B, UNSCEAR, New York.

DETERMINATION OF PHYSICAL PARAMETERS AFFECTING RADON CONCENTRATION IN SOIL

Huỳnh Nguyễn Phong Thu*, Nguyen Van Thang, Vu Ngoc Ba, Le Cong Hao

University of Science, Vietnam National University Ho Chi Minh City, Vietnam

*Corresponding author: Huỳnh Nguyễn Phong Thu – Email: hnpthu@hcmus.edu.vn

Received: September 02, 2020; Revised: October 20, 2020; Accepted: March 27, 2021

ABSTRACT

The study presents the procedures for determining three physical parameters affecting radioactive concentration of radon in soils, including radioactive concentrations of ^{226}Ra , emanation coefficient, and diffusion coefficient of radon. The activity content of ^{226}Ra in soils was analyzed by gamma-ray and alpha-particle spectrometry. For alpha-particle spectrometry, MnO_2 discs were used to preconcentrate ^{226}Ra from the soil samples. Coefficient emanation and diffusion coefficient of radon were determined in the laboratory and in the field by using a specialized equipment for radon measurement - RAD7 and a sample storage system designed in this study. To verify the reliability and suitability of the applied methods, Student's paired t-test was performed and compared with the mean of the results. The differences of the results from each method were acceptable with the confidence of 95%.

Keywords: RAD7; radon diffusion; radon emanation; radon in soil