

ĐẠI HỌC QUỐC GIA TP. HCM
TRƯỜNG ĐẠI HỌC KHOA HỌC TỰ NHIÊN

NGUYỄN VĂN THẮNG

NGHIÊN CỨU SỰ THAY ĐỔI HOẠT ĐỘNG
CỦA ĐỒNG VỊ PHÓNG XẠ ^{226}Ra TRONG
ĐẤT NÔNG NGHIỆP

Ngành: Vật lý nguyên tử và hạt nhân

Mã số ngành: 9440106

TÓM TẮT LUẬN ÁN TIẾN SĨ

Công trình được hoàn thành tại: Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQG-HCM

Người hướng dẫn khoa học:
PGS. TS. Lê Công Hào

Phản biện 1: PGS. TS. Phạm Đức Khuê

Phản biện 2: PGS. TS. Nguyễn Xuân Hải

Phản biện 3: TS. Võ Xuân Ân

Phản biện độc lập 1: miễn

Phản biện độc lập 2: miễn

L luận án sẽ được bảo vệ trước Hội đồng chấm luận án cấp cơ sở
đào tạo họp tại Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, vào hồi ...
giờ ngày tháng ... năm 2025

Có thể tìm hiểu luận án tại thư viện:

- Thư viện Khoa học Tổng hợp TP.HCM
- Thư viện Đại học Quốc gia TP.HCM
- Thư viện Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQG-HCM

MỞ ĐẦU

Trong tự nhiên tồn tại 4 đồng vị của Radium (Ra) là ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{228}Ra và ^{226}Ra . Tất cả 4 đồng vị này đều là đồng vị phóng xạ. Đồng vị ^{223}Ra [thời gian bán rã ($T_{1/2}$)=11,43 ngày] thuộc chuỗi phân rã actini (^{235}U) có độ phổ cập trong tự nhiên thấp và rất khó phát hiện. Hai đồng vị ^{224}Ra ($T_{1/2}$ =3,63 ngày) và ^{228}Ra ($T_{1/2}$ =5,75 năm) thuộc chuỗi phân rã thori (^{232}Th) có độ phổ cập khá cao và có thể đo được trong tự nhiên. Đồng vị ^{226}Ra ($T_{1/2}$ =1.600 năm) thuộc chuỗi phân rã uran (^{238}U), có độ phổ cập cao, thời gian bán rã dài và dễ dàng đo được trong tự nhiên [1]. Do đó, ^{226}Ra là một trong những đồng vị phóng xạ tự nhiên được quan tâm nhiều nhất trong các nghiên cứu về phóng xạ môi trường.

Sự tồn tại của đồng vị ^{226}Ra trong đất nông nghiệp gây ảnh hưởng xấu đến con người theo nhiều cách: Tia gamma phát ra từ đồng vị ^{226}Ra có thể chiếu trực tiếp vào người nông dân; Đồng vị ^{222}Rn sinh ra từ phân rã của ^{226}Ra tồn tại ở dạng khí, còn được gọi là khí radon, là một chất khí có khả năng gây ung thư cao khi con người hít phải [2]; Đồng vị ^{226}Ra có thể di chuyển xuống mạch nước ngầm gây ô nhiễm nguồn nước; Cây trồng có thể hấp thu đồng vị ^{226}Ra và từ đó đi vào cơ thể người khi ăn uống. Một số nghiên cứu cho thấy quá trình canh tác nông nghiệp có thể gây tích lũy nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất [3-5].

Luận án đề xuất một mô hình dự đoán sự thay đổi nồng độ hoạt độ của đồng vị ^{226}Ra trong đất nông nghiệp. Mô hình này được áp dụng để đánh giá cho 12 cánh đồng ở Việt Nam. Toàn bộ nội dung nghiên cứu của luận án được trình bày trong 4 chương:

Chương 1. Tổng quan: Tóm tắt một số kết quả nghiên cứu trong và ngoài nước có liên quan đến hướng nghiên cứu của luận án; Sự cần thiết và ý nghĩa của nghiên cứu; Lý thuyết tổng quan về đối tượng nghiên cứu.

Chương 2. Thu thập và phân tích mẫu: Trình bày chi tiết phương pháp thu thập mẫu và phương pháp phân tích đồng vị ^{226}Ra trong các mẫu môi trường.

Chương 3. Phương pháp đánh giá sự thay đổi hoạt độ phóng xạ ^{226}Ra trong đất: Đề xuất mô hình lý thuyết về sự thay đổi nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất; Phương pháp so sánh, đánh giá kết quả dự đoán.

Chương 4. Kết quả và thảo luận: Nêu chi tiết các kết quả đạt được của luận án; So sánh kết quả đạt được với các kết quả được công bố trước đó; Thảo luận về độ tin cậy, tính mới và khả năng ứng dụng của kết quả.

Chương 1. TỔNG QUAN

1.1. Sự cần thiết của nghiên cứu

Đồng vị phóng xạ ^{226}Ra thuộc chuỗi phân rã ^{238}U , là một đồng vị có thời gian bán rã dài ($T_{1/2}=1.600$ năm), độ phổ cập trong tự nhiên lớn, và rất nguy hiểm khi đi vào cơ thể con người. Sự tồn tại của đồng vị này trong đất gây nhiều tác hại do: tia gamma phát ra từ ^{226}Ra trong đất, khí radon (^{222}Rn) sinh ra từ ^{226}Ra phát tán vào không khí và sự di chuyển của ^{226}Ra từ đất đến nguồn nước sinh hoạt. Nếu ^{226}Ra tồn tại trong đất nông nghiệp thì ảnh hưởng của nó sẽ nhiều hơn do sự vận chuyển của lên cây trồng.

Trên thế giới, nhiều nghiên cứu cho thấy có sự gia tăng nồng độ hoạt độ của ^{226}Ra trong đất nông nghiệp. Nguyên nhân chủ yếu được cho là đến từ việc bón phân hóa học [3-5]. Ở Việt Nam, nồng độ hoạt độ của ^{226}Ra trong đất nông nghiệp vẫn chưa cao đến mức báo động [6-8]. Tuy nhiên, với việc bón một lượng lớn phân hóa học có chứa ^{226}Ra [9, 10], và tưới nước có nồng độ hoạt độ ^{226}Ra cao (đặc biệt là nước ngầm) [11, 12], nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất ở một số cánh đồng dự kiến tăng cao trong tương lai. Do đó, việc nghiên cứu một mô hình dự đoán đúng sự thay đổi nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất nông nghiệp là rất cần thiết.

1.2. Lý thuyết liên quan đến đối tượng nghiên cứu

1.2.1. Tính chất lý-hóa của đồng vị ^{226}Ra

Nguyên tố Radium (ký hiệu Ra) có số thứ tự 88, là một nguyên tố kim loại kiềm thổ và ở nhóm thứ II trong Bảng hệ thống tuần hoàn các nguyên tố hóa học. Nhóm này còn có các nguyên tố khác như Be, Mg, Ca, Sr và Ba. Ở dạng đơn chất Ra là chất rắn có màu trắng nhưng bị hóa đen khi để trong không khí do Ra phản ứng với khí nitơ tạo thành Ra_3N_2 có màu đen. Trong tự nhiên Ra tồn tại dưới dạng các hợp chất như bazơ, axit, muối và các oxit với hóa trị là +2. Các hợp chất của Ra có thể tìm thấy trong tự nhiên là RaO ,

$\text{Ra}(\text{HO})_2$, RaCl_2 , $\text{Ra}(\text{NO}_3)_2$. Hầu hết các muối của Ra đều là muối tan và độ tan của muối Ra phụ thuộc vào pH của dung dịch. Ra bị hấp thụ mạnh trong axit humic và các chất hữu cơ khác và do đó nó thường tập trung trong các cặn hữu cơ hoặc được vận chuyển trong các chất keo hữu cơ [13].

Về đặc tính phóng xạ, ^{226}Ra thuộc chuỗi phân rã tự nhiên ^{238}U . Đồng vị ^{226}Ra phân rã alpha thành đồng vị ^{222}Rn . Quá trình phân rã của hạt nhân ^{226}Ra có thể diễn ra theo hai cách. Thứ nhất, hạt nhân ^{226}Ra có thể phân rã thành hạt nhân ^{222}Rn ở trạng thái cơ bản và phát hạt alpha có năng lượng 4,784 MeV. Xác suất xảy ra của phân rã theo dạng này là 94,04%. Thứ hai, hạt nhân ^{226}Ra có thể phân rã thành hạt nhân ^{222}Rn ở trạng thái kích thích và phát hạt alpha có năng lượng 4,601 MeV. Xác suất xảy ra của phân rã alpha theo dạng này là 5,96%. Hạt nhân ^{222}Rn khi chuyển về trạng thái cơ bản sẽ phát ra gamma có năng lượng là 0,185 MeV [14].

Dựa vào đặc tính phóng xạ, ^{226}Ra có thể được đo dễ dàng đo được bằng phổ kế alpha. Do xác suất phát gamma thấp, ^{226}Ra khó có thể được đo trực tiếp bằng phổ kế gamma.

1.2.2. Sự thay đổi hoạt độ ^{226}Ra trong đất nông nghiệp

Trong đất nông nghiệp, nồng độ hoạt độ ^{226}Ra luôn thay đổi. Những yếu tố làm tăng cường ^{226}Ra có thể là:

a. *Roi lắng từ khí quyển*: Vẫn có một lượng nhỏ ^{226}Ra từ khí quyển rơi lắng xuống mặt đất, nhưng không đáng kể do nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong khí quyển thấp. Các đồng vị tự nhiên được tìm thấy nhiều trong khí quyển như: ^7Be và ^3H được tạo ra do tương tác của các hạt nhân bền với các tia bức xạ vũ trụ có năng lượng lớn, ^{210}Pb sinh ra do khí radon (^{222}Rn) trong không khí phân rã tạo thành [15].

b. *Sử dụng phân bón*: Việc sử dụng phân bón thường xuyên có thể bổ sung nhiều nguyên tố độc hại vào đất trong đó có các nguyên tố phóng xạ. Phân bón

phốt–phát được sản xuất từ quặng phốt–phát có hàm lượng phóng xạ tự nhiên cao nên nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong loại phân này cũng cao. Nhiều nghiên cứu trên thế giới cho thấy việc sử dụng loại phân bón này thường xuyên có thể tích lũy ^{226}Ra trong đất nông nghiệp [3-5].

c. Hệ thống tưới tiêu: Nước tưới tiêu chứa một lượng đáng kể các đồng vị phóng xạ tự nhiên trong đó có ^{226}Ra . Đặc biệt, nước ngầm có nồng độ hoạt độ ^{226}Ra khá cao [11, 12], nên việc thường xuyên tưới tiêu bằng nước ngầm có thể làm tăng nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất.

d. Sinh ra từ đồng vị ^{230}Th : ^{226}Ra trong đất liên tục được tạo ra từ phân rã của đồng vị ^{230}Th với thời gian bán rã là $7,54.10^4$ năm. Tuy nhiên, với thời gian bán rã dài như vậy cộng với nồng độ hoạt độ ^{230}Th trong đất khá thấp nên lượng ^{226}Ra sinh ra từ phân rã của ^{230}Th là rất ít.

Những yếu tố làm giảm nhẹ nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất nông nghiệp có thể là:

a. Cây trồng hấp thu: Cây trồng hấp thu một lượng đáng kể các đồng vị phóng xạ có trong đất. Do tính chất hấp thu nước và dinh dưỡng của các loại cây trồng, khả năng hấp thu đối với các đồng vị khác nhau là không giống nhau và được đặc trưng bởi hệ số vận chuyển (TF) [16]. Hệ số TF của ^{226}Ra phụ thuộc vào loại cây trồng, tính chất lý–hóa của đất, thời tiết, khí hậu, v.v. [16, 17].

b. Phân rã phóng xạ: Quá trình phân rã phóng xạ làm cho số hạt nhân phóng xạ bị giảm đi và đồng vị phóng xạ sẽ chuyển thành một đồng vị khác. Hiện tượng này xảy ra đối với các đồng vị phóng xạ ở bất kỳ môi trường nào và chỉ phụ thuộc vào bản chất phóng xạ của đồng vị phóng xạ đó (đó là thời gian bán rã) chứ không phụ thuộc vào các tính chất của môi trường. Đối với những đồng vị có thời gian bán rã dài như ^{226}Ra thì tốc độ suy giảm nồng độ hoạt độ phóng xạ trong đất là không đáng kể nếu chỉ nghiên cứu trong thời gian vài chục năm.

c. Khuếch tán trong đất: Đồng vị ^{226}Ra có thể khuếch tán xuống lớp đất sâu hoặc nước ngầm. Quá trình này nhanh hay chậm phụ thuộc nhiều vào tính chất lý-hóa của đất, đặc biệt là sự phân bố ^{226}Ra giữa các pha của đất. Phần ^{226}Ra trong pha nước của đất sẽ dễ dàng di chuyển trong đất hơn [18].

d. Sự rửa trôi bề mặt: Sự rửa trôi đất bề mặt hay còn được gọi là là quá trình xói mòn đất xảy ra do nước chảy qua bề mặt đất và mang theo các hạt đất. Theo Renard và cộng sự (1997), tốc độ rửa trôi đất phụ thuộc vào các tham số quan trọng như sau: Lượng mưa hay lượng nước bổ sung vào đất; Độ dốc và sự bằng phẳng của đất; Loại đất liên quan đến kết cấu đất; Độ che phủ của thực vật; Hệ thống thoát nước [19]. Quá trình này làm mất đi cả lớp đất bề mặt chứ không chỉ mang theo các đồng vị phóng xạ trong đất.

Chương 2. THU THẬP VÀ PHÂN TÍCH MẪU

2.1. Thu thập mẫu

Trong luận án này, đất ở 12 cánh đồng được lựa chọn để nghiên cứu (Hình 2.1). Các cánh đồng này thuộc ba khu vực khác nhau:

a. *Khu vực A*: Gồm cánh đồng lúa (A1), ngô (A2), cà chua (A3) và khoai tây (A4) thuộc tỉnh Phú Yên (miền Trung Bộ).

b. *Khu vực B*: Gồm cánh đồng lúa (B1), rau muống (B2), khoai mì (B3) và cà chua (B4) thuộc tỉnh Bình Dương và Đồng Nai (miền Đông Nam Bộ)

c. *Khu vực C*: Gồm cánh đồng lúa (C1), ngô (C2), khoai lang (C3) và rau muống (C4) thuộc các tỉnh An Giang và Trà Vinh (miền Tây Nam Bộ).

Số lượng các mẫu đất, cây trồng, phân bón và nước khác nhau ở các cánh đồng, số lượng các mẫu là: đất (36 mẫu), cây trồng (36 mẫu), nước (84 mẫu) và phân bón (22 mẫu).

2.2. Chuẩn bị mẫu đo

Mục đích của quá trình chuẩn bị mẫu đo trong luận án này là đưa các dạng mẫu khác nhau (đất, thực vật, nước và phân bón) với các cấu trúc phức tạp về dạng mẫu mỏng, đồng đều để phân tích trên hệ phổ kế alpha. Quá trình này có thể chia thành 2 giai đoạn (Hình 2.6):

a. *Hủy mẫu*: Các mẫu sau khi thu thập được sấy khô, cô cạn, nung để làm giảm thể tích và phá hủy một phần kết cấu mẫu. Luận án này sử dụng quy trình phá mẫu bằng axit dưới tác dụng của nhiệt độ. Các loại axit được sử dụng bao gồm HCl, HNO₃, HF, HClO₄, H₂SO₄ và các hóa chất khác. Sau giai đoạn này, thu được dung dịch mẫu trong suốt, thể tích 200 mL và pH trong khoảng 7~7,5.

b. *Lắng đọng ²²⁶Ra lên đĩa MnO₂*: Dung dịch mẫu sau thu được ở giai đoạn 1 được thêm vào 0,1 g EDTA và được khuấy đều trong 3 phút để hòa tan hoàn toàn EDTA. pH của dung dịch được điều chỉnh về 7~7,5 bằng cách thêm dung

dịch $\text{NH}_4(\text{OH})$ hoặc HCl . Hệ thí nghiệm lắng đọng ^{226}Ra lên đĩa MnO_2 được mô tả ở Hình 2.8. Tốc độ quay của con cá từ là 300 vòng/phút, thời gian quay là 6 giờ.

2.3. Đo, tính toán và hiệu chỉnh hoạt độ

Các mẫu được đo bằng hệ phổ kế alpha ở Phòng thí nghiệm Kỹ thuật hạt nhân, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQG-HCM. Hệ có tên gọi là Alpha Ensemble được sản xuất bởi hãng ORTEC. Hệ gồm có 2 buồng đo hút chân không tương ứng với 2 đầu dò nuôi cấy ion thu động (PIPS).

Hiệu suất ghi của các đầu dò được chuẩn bằng nguồn hỗn hợp Mixed alpha của hãng Eckert Ziegler, nguồn gồm bốn đồng vị ^{238}U , ^{234}U , ^{232}Th và ^{241}Am . Hiệu suất ghi ở cả 2 đầu dò đều lớn hơn 24% ở khe đo số 2 (cách bề mặt đầu dò 12 mm).

Hiệu suất thu hồi ^{226}Ra được xác định bằng dung dịch chuẩn ^{226}Ra từ NIST số hiệu SRM 4967A, hoạt độ chuẩn 2.482 Bq/g. Hiệu suất thu hồi trung bình đối với mẫu đất, thực vật, phân bón, và nước lần lượt là 87,1%; 84,7%; 90,2%; và 91,1%.

Phương pháp phân tích hoạt độ ^{226}Ra bằng hệ phổ kế alpha được áp dụng trong các công trình [CTTG.2], [CTTG.3], [CTTG.4], [CTTG.5], [CTTG.6].

Chương 3. PHƯƠNG PHÁP ĐÁNH GIÁ SỰ THAY ĐỔI HOẠT ĐỘ PHÓNG XẠ ^{226}Ra TRONG ĐẤT

3.1. Đề xuất mô hình đánh giá

Quy luật thay đổi nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất nông nghiệp C(t) được dự đoán theo công thức (3.4). Theo đó, các yếu tố bổ sung ^{226}Ra vào đất (gồm bón phân và tưới nước) và các yếu tố làm thất thoát ^{226}Ra trong đất (gồm cây trồng hấp thu và khuếch tán) được tính đến. Độ chênh lệch nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất trong 1 năm (ΔC_{1y}) được tính theo công thức (3.5). Theo mô hình lý thuyết này, để biết được quy C(t) hay ước lượng được ΔC_{1y} thì cần phải xác định các tham số sau:

3.1.1. Tốc độ bổ sung ^{226}Ra từ phân bón (R_f)

R_f có thể ước lượng từ nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong phân bón (Bq/kg), lượng sử dụng phân bón cho mỗi vụ ($\text{kg}/\text{m}^2.\text{vụ}$) và số vụ gieo trồng trong năm ($\text{vụ}/\text{năm}$). R_f có đơn vị là ($\text{Bq}/\text{m}^2.\text{năm}$) được tính theo công thức (3.9).

3.1.2. Tốc độ bổ sung ^{226}Ra từ nước tưới (R_w)

R_w có thể ước lượng từ nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong nước tưới (Bq/L), lượng nước tưới cho mỗi vụ ($\text{L}/\text{m}^2.\text{vụ}$) và số vụ gieo trồng trong năm ($\text{vụ}/\text{năm}$). R_w có đơn vị là ($\text{Bq}/\text{m}^2.\text{năm}$) được tính theo công thức (3.10).

3.1.3. Tốc độ hấp thu ^{226}Ra của cây trồng (R_p)

R_p có thể ước lượng từ nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong cây trồng (Bq/kg), mật độ cây trồng ($\text{kg}/\text{m}^2.\text{vụ}$), và số vụ gieo trồng trong năm ($\text{vụ}/\text{năm}$). R_p có đơn vị là ($\text{Bq}/\text{m}^2.\text{năm}$) được tính theo công thức (3.12).

3.1.4. Tốc độ khuếch tán ^{226}Ra trong đất (R_d)

Luận án sử dụng 3 phương pháp để dự đoán R_d bao gồm: chương trình Soil model (phương pháp 1), chương trình HYDRUS-1D (phương pháp 2) và thí nghiệm được đề xuất (phương pháp 3).

a. *Soil model* được cung cấp miễn phí bởi Viện Mô phỏng Môi trường (CEMC), Đại học Trent, Canada. Phiên bản 2.0 sử dụng trong luận án này có giao diện là Microsoft Visual Basic. Chương trình mô phỏng dựa trên nguyên lý hoạt áp (fugacity) [18].

b. *HYDRUS-1D* là một chương trình mô phỏng khá phổ biến dùng để tính toán sự phân bố nhiệt, sự di chuyển của nước và các chất hóa học trong đất. Nguyên lý mô phỏng của HYDRUS dựa trên phương trình Richards và định luật Fick [20].

c. *Thí nghiệm được đề xuất trong luận án* này dựa trên nguyên lý hai pha (rắn–lỏng) của đất. Theo đó, R_ℓ được tính từ tốc độ thoát nước ra khỏi lớp đất (G_w) và nồng độ ^{226}Ra trong pha nước của đất (C_w) theo phương trình (3.36).

Phương pháp 1 và 2 được áp dụng để dự đoán R_ℓ của ^{226}Ra trong các công trình [CTTG.1] và [CTTG.2]. Phương pháp 3 được áp dụng để dự đoán R_ℓ của ^{226}Ra trong các công trình [CTTG.5] và [CTTG.6].

3.2. Đánh giá sự phù hợp giữa các phương pháp và sự trùng khớp với đo đạc thực tế

Để đánh giá sự phù hợp của các phương pháp dự đoán, giá trị ΔC_{1y} được dự đoán bằng ba phương pháp. Một số khái niệm sau đây được sử dụng:

a. Tỷ số f_i giữa ΔC_{1yi} có được từ phương pháp i với giá trị trung bình $\overline{\Delta C_{1y}}$ được tính theo công thức (3.37).

b. Độ lệch tương đối d_i (%) giữa ΔC_{1yi} có được từ phương pháp thứ i và giá trị trung bình $\overline{\Delta C_{1y}}$ được tính theo công thức (3.38).

c. Hệ số z -score (z_i) của ΔC_{1yi} có được từ phương pháp thứ i và giá trị trung bình $\overline{\Delta C_{1y}}$ được tính theo công thức (3.39).

d. *Hệ số Q^2 -score (Q_i^2)*: Để đánh giá tổng thể sự phù hợp kết quả ΔC_{1yi} của một phương pháp so với với các phương pháp khác, hệ số *Q^2 -score (Q_i^2)* được tính theo công thức (3.40).

Để so sánh giữa các phương pháp dự đoán với đo đặc thực tế, tỷ số (f_i), độ lệch tương đối (d_i), hệ số *z -score (z_i)* và hệ số *Q^2 -score (Q_i^2)* cũng được sử dụng. Các đo đặc thực tế được thực hiện ở các cánh đồng B1, B3 và C3.

So sánh giữa các mô hình với nhau cũng như so sánh giữa các mô hình và thực tế được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.3], và [CTTG.5].

Chương 4. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

4.1. Tốc độ bổ sung ^{226}Ra từ phân bón (R_f)

Nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong phân bón đo được từ 2,2 Bq/kg đến 150,5 Bq/kg. Nồng độ hoạt độ ^{226}Ra cao ở những mẫu phân bón có hàm lượng photpho cao như phân lân và phân hỗn hợp (NPK và DAP) và thấp ở phân đạm và kali. R_f dao động từ 0,46 Bq/m².năm (cánh đồng B4) đến 41,6 Bq/m².năm (cánh đồng A4), và phụ thuộc vào nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong phân bón. R_f trong luận án này thấp hơn giá trị tham khảo ở một số nghiên cứu trên thế giới mặc dù lượng phân bón sử dụng ở các cánh đồng tại Việt Nam khá lớn [3-5,21]. Hoạt độ ^{226}Ra trong phân bón và R_f được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.2] và [CTTG.4].

4.2. Tốc độ bổ sung ^{226}Ra từ nước tưới (R_w)

Nồng độ hoạt độ ^{226}Ra thấp nhất là 4,7 mBq/L (ở cánh đồng C2) và cao nhất là 121 mBq/L (ở cánh đồng C3). Nước ngầm có nồng độ hoạt độ ^{226}Ra cao hơn nước mặt. R_w dao động từ 28 đến 865 Bq/m².năm. Giá trị thấp nhất là tại cánh đồng ngô ở tỉnh Trà Vinh (C2) và cao nhất là ở cánh đồng ngô ở tỉnh Phú Yên (A2). R_w cao ở những cánh đồng sử dụng nước ngầm để tưới vì hoạt độ phóng xạ trong nước ngầm cao. So sánh các giá trị R_f và R_w cho thấy, nước tưới là yếu tố quan trọng hơn phân bón đối với sự tích tụ ^{226}Ra trong đất trồng. Tỷ lệ này là từ 47,7% tại cánh đồng rau muống ở tỉnh Đồng Nai (B2) đến 99,5% ở cánh đồng cà chua ở tỉnh Bình Dương (B4).

Các kết quả đo ^{226}Ra trong nước tưới và tốc độ bổ sung R_w được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.2] và [CTTG.4].

4.2. Tốc độ hấp thu ^{226}Ra của cây trồng (R_p)

Nồng độ hoạt độ trung bình của ^{226}Ra trong các loại cây trồng dao động từ < 1,03 đến 15,33 Bq/kg. Giá trị nồng độ hoạt độ cao nhất được tìm thấy trong cây khoai lang, một loại cây trồng lấy củ. Các giá trị R_p dao động từ 8,2 đến

128 Bq/m².năm (giá trị trung bình là 50,4 Bq/m².năm). Các loại cây trồng khác nhau thì R_p cũng khác nhau và phụ thuộc vào hệ số vận chuyển (TF) (r = 0,83). R_p cũng tương quan thuận nồng độ hoạt độ ²²⁶Ra trong pha nước của đất (C_w) (r = 0,65).

Các kết quả đo nồng độ hoạt độ ²²⁶Ra trong cây trồng, hệ số vận chuyển (TF) và tốc độ hấp thu (R_p) được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.2] và [CTTG.5].

4.4. Tốc độ khuếch tán của ²²⁶Ra khỏi lớp đất mặt

Giá trị R_t (dự đoán bằng phương pháp 3) dao động từ 13,5 đến 44,6 Bq/m².năm với giá trị trung bình là 29,36 Bq/m².năm. Giá trị R_t cao nhất trong đất ở cánh đồng ngô (A2) và thấp nhất ở cánh đồng ngô (C2). Các kết quả có được từ 3 phương pháp có khác nhau có sự khác biệt nhưng không quá lớn. Trị tuyệt đối của z-score ≤ 1,14 ở phương pháp 1, ≤ 1,12 ở phương pháp 2 và ≤ 1,14 ở phương pháp 3. Giá trị Q²-score của ba phương pháp lần lượt là 0,79; 0,39 và 0,83. Điều này cho thấy các kết quả R_t từ phương pháp 2 (sử dụng HYDRUS-1D model) là gần với trị trung bình nhất.

Sự phù hợp của giá trị R_t có được từ 3 phương pháp được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.3], và [CTTG.5].

4.5. Kết quả dự đoán sự thay đổi hoạt độ ²²⁶Ra trong đất theo thời gian

Sự mất cân bằng giữa tốc độ bổ sung ²²⁶Ra (R_i = R_f + R_w) và tốc độ suy giảm ²²⁶Ra (R_j = R_p + R_t) gây nên sự tăng/giảm nồng độ hoạt độ ²²⁶Ra trong đất nông nghiệp. Kết quả nghiên cứu về sự mất cân bằng hoạt độ ²²⁶Ra trong đất trồng được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.2] và [CTTG.5].

Nồng độ hoạt độ ²²⁶Ra dự đoán theo phương pháp 3 giảm ở các cánh đồng A3 (đất trồng khoai tây), B2 (đất trồng rau muống), C1 (đất trồng lúa), C2 (đất trồng ngô) và C4 (đất trồng rau muống) nhưng sự thay đổi này không quá lớn.

Tỷ lệ giảm sau 1 năm dưới 1%. Ngoại trừ đất ở các cánh đồng A3, B2, C1, C2 và C4, nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất ở các cánh đồng khác có xu hướng tăng. Sự gia tăng hoạt độ phóng xạ theo nhiều mức độ khác nhau. Giá trị ΔC_{1y} dao động từ 0,019 Bq/kg.năm đến 3,114 Bq/kg.năm. Sau 1 năm, tỷ lệ gia tăng nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong đất ở các cánh đồng này là từ 0,06% đến 11%. R_i cao đáng kể ở những cánh đồng sử dụng nước ngầm để tưới tiêu. Cần có những biện pháp can thiệp đối với các cánh đồng này như thay đổi nguồn nước tưới, thay đổi loại cây trồng hay tính chất của đất.

Kết quả nghiên cứu về quy luật tích tụ ^{226}Ra trong đất ở các cánh đồng và so sánh kết quả với các nghiên cứu trên thế giới được trình bày trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.2] và [CTTG.5].

Kết quả dự đoán ΔC_{1y} từ các chương trình Soil model (phương pháp 1) và HYDRUS-1D model (phương pháp 2) cũng phù hợp với kết quả từ phương pháp 3. Trị tuyệt đối của $z\text{-score} \leq 0,99$ ở phương pháp 1, $\leq 0,99$ ở phương pháp 2 và $\leq 1,68$ ở phương pháp 3.

Kết quả so sánh C(t) dự đoán bằng 3 phương pháp và giá trị đo được ở các cánh đồng B1, B3 và C3 (Bảng 4.10) và giá trị $z\text{-score}$ và $Q^2\text{-score}$ (Bảng 4.11) cho thấy, C(t) dự đoán bằng các phương pháp khá gần với đo đạc thực nghiệm ($|z\text{-score}| \leq 0,92$ và $|Q^2\text{-score}| \leq 1,62$).

Sự trùng khớp trong kết quả dự đoán hoạt độ bằng ba phương pháp được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.3], và [CTTG.5].

KẾT LUẬN VÀ KIẾN NGHỊ

a. Kết quả nghiên cứu của luận án

Nồng độ hoạt độ phóng xạ ^{226}Ra được đo trong các mẫu đất, cây trồng, phân bón và nước tưới thu thập ở 12 cánh đồng ở Việt Nam. Theo phân loại WRB của FAO, các loại đất trồng thuộc hai nhóm đất là *Fluvisols* (đất phù sa) và *Arenosols* (đất cát). Theo phân loại đất của USDA dựa vào kết cấu đất, các mẫu đất thuộc vào bốn nhóm: *sandy loam* (đất thịt pha cát), *loam* (đất thịt), *clay loam* (đất thịt pha sét) và *silty clay loam* (đất thịt pha limon sét). Nồng độ hoạt độ của ^{226}Ra trong các mẫu được phân tích bằng các hệ phổ kế alpha. Kết quả cho thấy nồng độ hoạt độ phóng xạ trong các môi trường đất, nước, phân bón và cây trồng ở mức độ trung bình và ảnh hưởng không đáng kể đến người dân khi sử dụng các sản phẩm nông nghiệp.

Đồng vị ^{226}Ra được bổ sung từ phân bón và nước tưới. Đối với 12 cánh đồng nghiên cứu, tốc độ bổ sung ^{226}Ra từ phân bón (R_f) là từ 0,46 đến 41,6 Bq/m².năm, tốc độ bổ sung ^{226}Ra từ nước tưới (R_w) là từ 28 đến 865 Bq/m².năm. Kết quả cho thấy, nước tưới là yếu tố quan trọng hơn phân bón đối với sự tích tụ ^{226}Ra trong đất trồng. Nồng độ hoạt độ của đồng vị ^{226}Ra trong đất giảm do đồng vị này bị cây trồng hấp thu và khuếch tán xuống lớp đất sâu. Đối với 12 cánh đồng nghiên cứu, tốc độ suy giảm hoạt độ ^{226}Ra do cây trồng hấp thu (R_p) là từ 9,2 đến 128 Bq/m².năm, tốc độ suy giảm hoạt độ ^{226}Ra do khuếch tán (R_ℓ) là từ 13,5 đến 44,6 Bq/m².năm.

Đã dự đoán được quy luật thay đổi nồng độ hoạt độ của ^{226}Ra trong đất tại 12 cánh đồng nghiên cứu. Giá trị tăng/giảm nồng độ hoạt độ trong một năm (ΔC_{1y}) là từ -0,266 đến 3,114 Bq/kg.năm. Kết quả ΔC_{1y} có được từ 3 phương pháp đề xuất gần với nhau, độ chênh lệch là dưới 5%, đặc biệt ở những cánh đồng có giá trị ΔC_{1y} cao thì độ chênh lệch này là dưới 2,8%. Áp dụng để dự đoán hoạt độ $C(t)$ ở 3 cánh đồng B1, B3 và C3 cho kết quả phù hợp với đo đạc thực tế với z -score nhỏ hơn 1.

b. Những điểm mới của luận án

Luận án đề xuất một mô hình mới để dự đoán hoạt độ của đồng vị phóng xạ ^{226}Ra trong đất nông nghiệp. Một số phương pháp mô phỏng và thực nghiệm được áp dụng cho kết quả dự đoán phù hợp với nhau và gần với kết quả đo đạc thực tế. Mô hình được áp dụng để dự đoán sự thay đổi nồng độ hoạt độ phóng xạ của ^{226}Ra trong đất ở 12 cánh đồng. Kết quả nghiên cứu cho thấy, tình trạng canh tác nông nghiệp hiện tại có thể gây ra một sự tích tụ ^{226}Ra đáng kể trong một số loại đất. Nồng độ hoạt độ ^{226}Ra dự đoán tăng cao ở những cánh đồng sử dụng nước ngầm để tưới tiêu. Nội dung này được công bố trong các công trình [CTTG.1], [CTTG.2] và [CTTG.5].

Dựa trên lý thuyết về sự phân bố phóng xạ giữa pha rắn và lỏng của đất, một thí nghiệm được thiết lập để đo tốc độ khuếch tán ^{226}Ra trong đất. Kết quả đo được phù hợp với các kết quả dự đoán bằng Soil model và HYDRUS-1D model. Nội dung này được công bố trong các công trình [CTTG.5] và [CTTG.6].

Đồng vị ^{226}Ra trong đất mặt có thể bị cây trồng hấp thu hoặc khuếch tán ra khỏi lớp đất. Tốc độ hấp thu ^{226}Ra của cây trồng (R_p) tương quan thuận với hệ số vận chuyển (TF) và nồng độ hoạt độ ^{226}Ra trong pha nước của đất (C_w) ($|r| > 0,6$). Tốc độ khuếch tán của ^{226}Ra (R_ℓ) tương quan thuận với tốc độ thoát nước (G_w) và tương quan nghịch với hệ số phân bố (K_d) ($|r| > 0,6$). Nội dung này được công bố trong công trình [CTTG.6].

c. Những đề nghị nghiên cứu tiếp theo

Trong đề tài này số lượng các cánh đồng là khá lớn. Tuy nhiên, các cánh đồng này trồng các loại cây trồng khác nhau và ở các khu vực địa lý khác nhau nên chưa đánh giá được cùng một loại cây trồng, cùng một điều kiện trồng trọt thì quy luật của $C(t)$ khác nhau không. Cần phải có nghiên cứu kỹ hơn về tương quan của $C(t)$ với các tính chất và thành phần của đất. Khi đó, các điều kiện trồng trọt có thể phải được kiểm soát trong điều kiện phòng thí nghiệm.

Kết quả nghiên cứu này sẽ cho biết sự thay đổi nào trong cách trồng trọt sẽ làm tăng hoặc giảm sự tích tụ phóng xạ trong đất.

Phương pháp nghiên cứu này có thể áp dụng cho các đồng vị phóng xạ có thời gian bán rã dài (như ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , v.v.) mà ở đó ảnh hưởng của sự phân rã lên sự suy giảm hoạt độ của nó trong đất không đáng kể. Đối với các đồng vị có thời gian bán hủy ngắn (như ^{210}Po và ^{228}Ra) thì đóng góp của yếu tố phân rã phóng xạ vào sự suy giảm hoạt độ phóng xạ trong đất cần được chú ý đến.

Kết quả luận án cho thấy, cùng một đồng vị nhưng có những loại cây trồng hấp thu mạnh (TF lớn), có những cây trồng hấp thu yếu (TF nhỏ). Có thể lợi dụng tính chất này để chọn loại cây trồng có thể hấp thu tốt phóng xạ trong đất. Đây có thể là một phương pháp hiệu quả để thu hồi chất phóng xạ trong đất. Bên cạnh đó, TF có tương quan đến tỷ lệ sét, hữu cơ và hệ số K_d trong đất. Điều này cho thấy có thể nghiên cứu thay đổi các tính chất của đất để giảm khả năng vận chuyển đồng vị ^{226}Ra lên cây trồng.

DANH MỤC CÔNG TRÌNH KHOA HỌC CỦA TÁC GIẢ

- [CTTG.1] Nguyen VT, Huynh NPT, Le CH (2020). Accumulation rates of natural radionuclides (^{40}K , ^{210}Pb , ^{226}Ra , ^{238}U , and ^{232}Th) in topsoils due to long-term cultivations of water spinach (*Ipomoea Aquatica* Forssk.) and rice (*Oryza Sativa* L.) based on model assessments: a case study in Dong Nai province, Vietnam. *J Environ Manage* 271: 111001.
- [CTTG.2] Nguyen VT, Huynh NPT, Vu NB, Le CH (2021). Long-term accumulation of ^{226}Ra in some agricultural soils based on model assessment. *Agr Water Manage* 243: 106453.
- [CTTG.3] Nguyen VT, Le BA, Huynh NPT, Le CH (2021). Levels of ^{226}Ra in some paddy soils in the Mekong Delta region (Vietnam): Current status and long-term assessment, *J Radioanal Nucl Chem* 329: 829–838.
- [CTTG.4] Nguyen VT, Huynh NPT, Huynh TYH, Truong HNT, Le CH (2022). Effects of agricultural activities on long-term accumulations of ^{226}Ra and ^{210}Po in topsoil. *J Radioanal Nucl Chem* 331: 4287–4295.
- [CTTG.5] Nguyen VT, Huynh NPT, Le CH (2024). Distribution coefficients and accumulation rates of Ra-226 and Po-210 in some agricultural soils. *Eurasian Soil Sci* 57: 524–535.
- [CTTG.6] Nguyen VT, Huynh NPT, Huynh TYH, Truong HNT, Le CH (2024). Mitigation of radium-226 in agricultural soils and influence of soil-to-plant transfer factor and physical-chemical properties of soil. *J Radioanal Nucl Chem* 333: 2155–2162.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] IAEA (2014). The environmental behaviour of radium: revised edition. Technical Reports series No. 476. International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna.
- [2] Al-Zoughool M, Krewski D (2009). Health effects of radon: review of the literature. *Int J Radiat Biol* 85: 57–69.
- [3] Schnug E, Haneklaus N (2015). Uranium in phosphate fertilizers—review and outlook. In: Merkel B, Arab A (Eds.). *Uranium – Past and future challenges*, Springer, Cham.
- [4] Pearson AJ, Gaw S, Hermanspahn N, Glover CN, Anderson CWN (2019). Radium in New Zealand agricultural soils: Phosphate fertiliser inputs, soil activity concentrations and fractionation profiles. *J Environ Radioact* 205–206: 119–126.
- [5] Schipper LA, Sparling GP, Fisk LM, Dodd MB, Power IL, Littler RA (2011). Rates of accumulation of cadmium and uranium in a New Zealand hill farm soil as a result of long-term use of phosphate fertilizer. *Agric Ecosyst Environ* 144: 95–101.
- [6] Huy NQ, Hien PD, Luyen TV, Hoang DV, Hiep HT, Quang NH, Long NQ, Nhan DD, Binh NT, Hai PS, Ngo NT (2012). Natural radioactivity and external dose assessment of surface soils in Vietnam. *Radiat Prot Dosim* 151: 522–531.
- [7] Vu NB, Nguyen VT, Nguyen QD, Huynh NPT, Truong THL (2019). Study on the characteristics of natural radionuclides in surface soil in Ho Chi Minh City, Vietnam and radiological health hazard. *Environ Earth Sci* 78:28.
- [8] Huynh NPT, Nguyen VT, Truong THL, Nguyen VD, Le CH (2019). Natural radioactivity and radon emanation coefficient in the soil of Ninh Son region, Vietnam. *Appl Geochem* 104: 176–183.
- [9] Truong THL, Vu NB, Nguyen VTB, Truong HNT, Huynh TYH, Ngo QH (2018). Natural radioactivity and radiological health hazard assessment of chemical fertilizers in Viet Nam. *J Radioanal Nucl Chem* 316: 111–117.
- [10] Nguyen VT, Vu NB, Huynh NPT, Le CH, Truong THL (2018). Gross alpha, gross beta and activity concentration of ^{226}Ra in some fertilizers commonly used in the south of Vietnam and health risk due to radionuclides transferred from fertilizers to food crops *J Radioanal Nucl Chem* 317: 463–471.

- [11] Le CH, Huynh NPT, Nguyen VT, Le QB (2015). Radon and radium concentrations in drinkable water supplies of the Thu Duc region in Ho Chi Minh City, Vietnam. *Appl Radiat Isot* 105: 219–224.
- [12] Phan LH, Le DH, Vu TM, Dang VC, Tran TT, Chau VT (2020). Assessment of radioactivity and chemical contaminants in domestic water at supply stations in Long Phu District, Vietnam, to prevent public health risks. *Sci Total Environ* 737:140291.
- [13] IAEA (2014). The environmental behaviour of radium: revised edition. Technical Reports series No. 476. International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna.
- [15] Duenas C, Fernandez MC, Gordo E, Canete S, Perez M (2011). Gross alpha, gross beta activities and gamma emitting radionuclides composition of rainwater samples and deposition to ground. *Atmos Environ* 45: 1015–1024.
- [16] IAEA (2010). Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical Report Series No. 472. The International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna.
- [17] Vandenhove H, Olyslaegers G, Sanzharova N, Shubina O, Reed E, Shang Z, Velasco H (2009). Proposal for new best estimates of the soil-to-plant transfer factor of U, Th, Ra, Pb and Po. *J Environ Radioact* 100: 721–732.
- [18] Mackay D, Stiver W (2001). Predictability and environmental chemistry, CRC Press, Boca Raton, Florida, pp. 281–297 (Chapter 8).
- [19] Renard KG, Foster GR, Weesies GA, McCool DK, Yoder DC (1997). Predicting soil erosion by water: a guide to conservation planning with the Revised Universal Soil Loss Equation (RUSLE). Agriculture Handbook No. 703, USDA–ARS.
- [20] Simunek J, Sejna M, Saito H, Sakai M, Genuchten MT (2008). The HYDRUS–1D Software package for simulating the one-dimensional movement of water, heat, and multiple solutes in variably saturated media. The Emergence of Agriculture, Scientific American Library, A Division of HPHLP, New York.
- [21] Taylor MD (2007). Accumulation of uranium in soils from impurities in phosphate fertilisers. *Landbauforschung Völkenrode* 2(57): 133–139.