

## LỜI CẢM ƠN

Em xin gửi lời cảm ơn chân thành này tới các Thầy Cô, đặc biệt là Thầy Cô - Bộ môn Vật lí Hạt nhân và Kỹ thuật Hạt nhân, trường Đại học Khoa học Tự nhiên - ĐHQG TP.HCM, đã tận tình hướng dẫn và giúp đỡ em trong suốt quá trình học tập tại trường.

Em xin chân thành cảm ơn đến Cô ThS. Huỳnh Nguyễn Phong Thu, cô đã nhiệt tình và tận tụy, chia sẻ những kiến thức và kinh nghiệm cần thiết trong suốt thời gian thực hiện nghiên cứu này. Đặc biệt, ngoài trách nhiệm là một cán bộ hướng dẫn, Cô còn là người thân, luôn quan tâm động viên, chia sẻ những bài học cuộc sống, khuyến khích em vượt qua những khó khăn để hoàn thành tốt khóa luận này.

Em xin gửi lời cảm ơn Thầy ThS. Phan Long Hồ, đã dành thời gian đọc và có những góp ý quý báu để khóa luận được hoàn thiện hơn.

Em xin cảm ơn Cô PGS. TS. Trương Thị Hồng Loan và Thầy PGS. TS. Lê Công Hảo, đã truyền nhiệt huyết và kinh nghiệm nghiên cứu trong suốt quá trình nghiên cứu khoa học này. Em xin chân thành cảm ơn tất cả Thầy - Cô thuộc bộ môn Vật lí Hạt nhân và phòng thí nghiệm Kỹ thuật hạt nhân, đã hướng dẫn tận tình và truyền đạt những kinh nghiệm quý báu, đồng thời hỗ trợ và tạo mọi điều kiện cho em trong suốt quá trình học tập và nghiên cứu. Em xin gửi lời cảm ơn sâu sắc đến Thầy Cô trong Hội đồng và dành nhiều thời gian đọc và có những ý kiến đóng góp sâu sắc và thiết thực cho đề tài này được hoàn thiện hơn.

Em xin chân thành cảm ơn Thầy ThS. Nguyễn Văn Thắng đã quan tâm và tận tình giúp đỡ em trong suốt quá trình thực hiện thí nghiệm và hoàn thành khóa luận.

Cuối cùng, em xin gửi lời cảm ơn đến gia đình và bạn bè cùng đồng hành, động viên trong quá trình học tập. Mặc dù, em đã có nhiều cố gắng và nỗ lực để hoàn thiện khóa luận, nhưng không thể tránh khỏi những thiếu sót, rất mong nhận được ý kiến góp ý của Thầy Cô và các anh chị học viên, em xin chân thành cảm ơn.

TP. Hồ Chí Minh, Ngày 18 tháng 7 năm 2019

## MỤC LỤC

LỜI CẢM ƠN .....	i
MỤC LỤC .....	ii
DANH MỤC CÁC TỪ VIẾT TẮT .....	iii
DANH MỤC CÁC BẢNG .....	iv
DANH MỤC CÁC ĐỒ THỊ VÀ HÌNH VẼ .....	v
LỜI MỞ ĐẦU .....	vii
CHƯƠNG 1: TỔNG QUAN .....	1
1.1.  Tình hình nghiên cứu về radium trên thế giới .....	1
1.1.1.  Các nghiên cứu về radium trong đất và phương pháp chiết tách BCR .....	1
1.1.2.  Các nghiên cứu về radium trong nước tự nhiên .....	3
1.2.  Các đồng vị của radium trong tự nhiên .....	5
1.3.  Tính chất vật lí và hóa học của radium .....	7
1.4.  Phân bố radium trong tự nhiên .....	8
1.4.1.  Phân bố radium trong đất .....	9
1.4.2.  Phân bố radium trong nước ngầm .....	10
1.4.3.  Phân bố radium trong không khí .....	11
1.5.  Ảnh hưởng của radium đến sức khỏe con người .....	12
CHƯƠNG 2: QUY TRÌNH THỰC NGHIỆM CHIẾT TÁCH $^{226}\text{Ra}$ TRONG ĐẤT VÀ NƯỚC .....	14
2.1.  Quy trình thực nghiệm chiết tách $^{226}\text{Ra}$ trong đất .....	14
2.1.1.  Xác định hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong đất .....	14
2.1.2.  Quy trình chiết tách $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu đất .....	16
2.2.  Quy trình lọc tách $^{226}\text{Ra}$ trong nước .....	21
2.2.1.  Xác định nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong nước trước khi lọc .....	21
2.2.2.  Quy trình điều chế sợi tổng hợp tẩm mangan dioxit .....	22

CHƯƠNG 3: KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN.....	26
3.1. Kết quả lọc tách $^{226}\text{Ra}$ bằng quy trình phân đoạn BCR .....	26
3.1.1. Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu đất .....	26
3.1.2. Đánh giá hiệu suất quy trình chiết tách $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu đất.....	27
3.1.3. Phân tích tương quan và thành phần chính ảnh hưởng đến hiệu suất .....	30
3.2. Kết quả lọc chiết $^{226}\text{Ra}$ trong nước giếng.....	39
3.2.1. Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong các mẫu nước giếng .....	39
3.2.2. Đánh giá mức độ hấp thụ $\text{MnO}_2$ trên sợi tổng hợp.....	41
3.2.3. Đánh giá ảnh hưởng của độ pH lên khả năng hấp thụ $^{226}\text{Ra}$ trên sợi $\text{MnO}_2$ .....	41
3.2.4. Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu nước sau khi lọc .....	43
KẾT LUẬN.....	45
KIẾN NGHỊ VÀ HƯỚNG PHÁT TRIỂN CỦA ĐỀ TÀI.....	47
TÀI LIỆU THAM KHẢO .....	1
PHỤ LỤC .....	5

## DANH MỤC CÁC TỪ VIẾT TẮT

Từ viết tắt	Tiếng Anh	Tiếng Việt
BCR	The Community Bureau of Reference	Viện tiêu chuẩn và đo lường Châu Âu
EPA	Environmental Protection Agency	Cơ quan bảo vệ môi trường Mỹ
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation	Ủy ban khoa học Liên Hiệp Quốc về những ảnh hưởng của bức xạ nguyên tử
WHO	World Health Organization	Tổ chức Y tế Thế giới
PCA	Principal Component Analysis	Phân tích thành phần chính
CA	Cluster Analysing	Phân tích cụm
EDTA	Ethylene diamine tetra axetic axit	Axit ethylene diamine tetra axetic
EDDS	Ethylene diamine-N	Ethylene diamin-N

## DANH MỤC CÁC BẢNG

Bảng 1. 1: Các đồng vị phóng xạ của radium trong tự nhiên [15].....	7
Bảng 1. 2: Độ tan của muối radium ở nhiệt độ 20°C [15] .....	8
Bảng 1. 3: Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong một số loại đất khác nhau [15] .....	10
Bảng 1. 4: Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong nước ngầm ở một số khu vực [15].....	12
Bảng 2. 1: Thiết bị, dụng cụ và hóa chất thuộc quy trình chiết tách BCR .....	16
Bảng 2. 2: Thiết bị, dụng cụ và hóa chất thuộc quy trình hấp thụ $\text{MnO}_2$ .....	22
Bảng 3. 1: Giá trị trung bình của hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ và hiệu suất chiết tách trong ba cụm .....	33
Bảng 3. 2: Ma trận nhân tố của các thành phần chính: .....	37
Bảng 1. Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong từng phân đoạn .....	7
Bảng 2: Hiệu suất lọc tách $^{226}\text{Ra}$ qua ba phân đoạn trong quy trình BCR.....	8
Bảng 3: Hàm lượng Fe, Al, Si và Mn trong các mẫu .....	11
Bảng 4: Nồng độ các mẫu phân tích trước và sau khi lọc bằng sợi tổng hợp tẩm $\text{MnO}_2$ .....	12
Bảng 5: Hàm lượng $\text{MnO}_2$ hấp thụ trên sợi vải tổng hợp .....	13
Bảng 6: Hiệu suất hấp thụ theo độ pH trong nước .....	14

## DANH MỤC CÁC HÌNH VẼ VÀ ĐỒ THỊ

Hình 1. 1: Sơ đồ của ba chuỗi phân rã phân rã tự nhiên [15] .....	6
Hình 1. 2: Mô hình phát tán radium trong tự nhiên [15] .....	9
Hình 1. 3: Sơ đồ các con đường di chuyển của radium từ môi trường vào cơ thể người [15] .	13
Hình 2. 1: Tóm tắt quy trình xử lý nhiễm bẩn $^{226}\text{Ra}$ trong đất .....	20
Hình 2. 2: Dụng cụ lấy mẫu nước .....	21
Hình 2. 4: Tóm tắt quy trình xử lý nhiễm bẩn $^{226}\text{Ra}$ trong nước .....	25
Hình 3. 1: Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong các mẫu đất phân tích .....	26
Hình 3. 2: Đồ thị so sánh hiệu suất chiết tách giữa các mẫu .....	28
Hình 3. 3: Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ chiết tách trong từng phân đoạn .....	29
Hình 3. 4: Biểu đồ Dendrogram mô tả phân cụm (cluster).....	31
Hình 3. 5: Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong các cụm phân tích .....	32
Hình 3. 6: Hiệu suất chiết tách trong các cụm phân tích .....	34
Hình 3. 7: Đồ thị biểu diễn hệ số tải nhân tố .....	36
Hình 3. 8: Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong các mẫu nước giếng khảo sát .....	39
Hình 3. 9: Đồ thị thể hiện tương quan giữa độ pH và nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong nước .....	40
Hình 3. 10: Độ pH của dung dịch ảnh hưởng hiệu suất lọc chiết $^{226}\text{Ra}$ trong nước .....	42
Hình 3. 11: Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong nước giếng trước, sau khi lọc và hiệu suất lọc tương ứng ...	44
Hình 1: Sơ đồ lấy khí radon trong mẫu nước và đo bằng RAD7 .....	5
Hình 2: Mô hình hệ máy gia tốc 5SDH-2.....	9

## LỜI NÓI ĐẦU

Các hoạt động khai thác quặng, dầu và khí tự nhiên, các mạch nước ngầm gây ra phơi nhiễm phóng xạ tự nhiên trong môi trường. Điều này dẫn đến hàm lượng phóng xạ tại các địa điểm diễn ra các hoạt động trên có khả năng vượt ngưỡng an toàn phóng xạ cho phép. Trong số các đồng vị phóng xạ,  $^{226}\text{Ra}$  được xem là một đồng vị quan trọng do có chu kỳ bán rã dài, khả năng ion hóa cao và có tính chất hóa học tương đồng với nhiều kim loại kiềm thổ khác trong đất. Các đồng vị con cháu của  $^{226}\text{Ra}$  cũng có khả năng ion hóa cao, đặc biệt  $^{226}\text{Ra}$  còn sinh ra  $^{222}\text{Rn}$ , một đồng vị phóng xạ dạng khí có khả năng phân tán vào môi trường rất cao [1] [2].

Trên thế giới, có nhiều công trình nghiên cứu cho thấy, chất thải tự nhiên do các hoạt động khai thác quặng, dầu khí,... gây ra có hàm lượng phóng xạ rất cao trong đất, có vùng lên đến 1000 kBq/kg [2]. Do đó, vấn đề đặt ra cho các nhà khoa học là cần xác định mức độ ô nhiễm phóng xạ tại các khu vực này và xây dựng các quy trình chuẩn nhằm giảm thiểu tối đa phơi nhiễm phóng xạ, phục hồi tình trạng môi trường. Nhiều nhà nghiên cứu trên thế giới đã áp dụng phương pháp chiết tách phân đoạn BCR để lọc tách các kim loại nặng trong đất, nổi bật như nghiên cứu của Mark D. Ho và cộng sự (1997) [3], G. Rauret và cộng sự (1998) [4], Nusa Pustisek và cộng sự (2000) [5]. Phương pháp chủ yếu dựa vào tính chất hóa học, khả năng linh động của các kim loại mà xây dựng quy trình lọc tách phù hợp. Trong khóa luận, chúng tôi áp dụng quy trình chiết tách phân đoạn BCR để chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  từ pha rắn (đất) sang pha lỏng. Đây cũng được xem là một trong những phân đoạn của kỹ thuật làm giàu  $^{226}\text{Ra}$  từ các mẫu có chứa hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  cao trong môi trường. Trong khóa luận, chúng tôi chưa có mẫu chất thải tự nhiên có hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  cao. Vì vậy, quy trình lọc tách được áp dụng trên các mẫu đất có hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trên mức trung bình thế giới.

Bên cạnh ô nhiễm phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất, các hoạt động khai thác nhiên liệu của con người cũng làm tăng đáng kể nồng độ phóng xạ trong nước ngầm, đặc biệt là  $^{226}\text{Ra}$ . Hầu hết các loại nước sinh hoạt sử dụng tại khu vực địa phương huyện Ninh Sơn đều có nguồn gốc từ nước ngầm. Người dân khi tiêu thụ nhiều lượng nước có chứa nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  cao có nguy cơ dẫn đến mắc các bệnh ung thư, đặc biệt là ung thư xương. Vì vậy, việc xử lý nhiễm bẩn phóng xạ trong các nguồn nước ngầm là vấn đề cần thiết trong thực tiễn. Trong khóa luận, tác giả xây dựng quy trình lọc tách  $^{226}\text{Ra}$  trong nước bằng sợi polyester tẩm  $\text{MnO}_2$  để lọc tách  $^{226}\text{Ra}$  trong nước giếng dựa trên phương pháp của nhóm Willard S. Moore (1973) [6]. Phương pháp sử dụng cho kết quả khả quan: hiệu suất lọc  $^{226}\text{Ra}$  trong nước từ 80 đến 99%.

Khóa luận được chia thành ba chương:

**Chương 1:** Trình bày tổng quan về tình hình nghiên cứu trong và ngoài nước liên quan đến mục đích nghiên cứu của khóa luận. Các tính chất vật lý và hóa học của radium, tính linh động, quá trình di chuyển và phân bố của radium trong tự nhiên, ảnh hưởng của radium đến sức khỏe con người cũng như tác động đến môi trường cũng được trình bày trong chương 1.

**Chương 2:** Trình bày quy trình xác định hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất, lọc tách radium trong đất theo quy trình chiết tách phân đoạn BCR. Quy trình lọc chiết  $^{226}\text{Ra}$  trong nước giếng bằng phương pháp hấp thụ trên sợi tổng hợp tẩm  $\text{MnO}_2$  được trình bày trong chương này.

**Chương 3:** Trình bày kết quả lọc tách  $^{226}\text{Ra}$  trong đất và nước ngầm. Các đánh giá và nhận xét liên quan cũng được trình bày trong chương này.



## CHƯƠNG 1 : TỔNG QUAN

### 1.1 Tình hình nghiên cứu về radium trên thế giới

#### 1.1.1 Các nghiên cứu về radium trong đất và phương pháp chiết tách BCR

Năm 1997, Mark D. Ho và Greg J. Evans thuộc khoa kỹ thuật hóa học, trường đại học Toroto, Canada đã thực hiện quy trình chiết tách các nguyên tố Cd, Cu, Pb và Zn trong mẫu đất chuẩn NIST bằng quy trình BCR. Hàm lượng các nguyên tố được xác định bằng phương pháp quang phổ hấp thụ khí acetylene. Kết quả cho thấy quy trình chiết tách phân đoạn BCR có khả năng tách được các kim loại nặng Cd, Cu, Pb, và Zn với hiệu suất từ 83 đến 100% [3].

Năm 2001, Nusa Pustisek cùng cộng sự đã áp dụng quy trình chiết tách phân đoạn BCR để tách các nguyên tố Cd, Pb và Zn ra khỏi các mẫu đất thuộc thung lũng Mezica (Slovakia). Đây là khu vực tập trung nhiều nhà máy công nghiệp luyện kim. Hàm lượng của mẫu phân tích trước và sau khi tách chiết được phân tích bằng phương pháp quang phổ nguyên tử hấp thụ. Kết quả phân tích cho thấy, hiệu suất chiết tách Cd khá cao khoảng 80%. Với Pb, hiệu suất đạt khoảng 50%. Giá trị này đạt 70% đối với Zn. Hàm lượng các kim loại nặng trong đất ô nhiễm tại vùng Mezica rất cao, việc áp dụng quy trình BCR để xử lý nhiễm bẩn kim loại nặng tại khu vực này là vấn đề cấp bách [5].

Năm 2009, Shigeo Uchida và Keiko Tagami thuộc Viện nghiên cứu quốc gia về phóng xạ Nhật Bản đã đánh giá hoạt độ phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất và sự vận chuyển  $^{226}\text{Ra}$  từ đất vào cây lúa tại 61 điểm ở Nhật Bản. Mẫu đất được nhốt trong 1 tháng để đạt cân bằng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  và con cháu. Hàm lượng được xác định bằng hệ phổ kế HPGe. Nhóm tác giả đã thực hiện chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trong gạo bằng phương pháp đồng kết tủa  $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ . Sau đó, mẫu được nhốt trong 2 tuần và đo bằng đầu dò nhấp nháy lỏng. Kết quả cho thấy (1) Hoạt độ  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu đất ở Tây Nam (trung bình 40,4 Bq/kg) cao hơn các mẫu đất tại Đông Bắc (trung bình 27,8 Bq/kg); (2) Hệ số vận chuyển  $^{226}\text{Ra}$  từ

đất vào cây lúa (TF) dao động từ 0,07 đến 1,58 ( $\times 10^{-3}$ ). Hệ số vận chuyển  $^{226}\text{Ra}$  từ đất vào cây lúa cao hơn so với hệ số vận chuyển từ đất vào rau củ [7].

Năm 2013, C. Prieto và cộng sự thuộc trường đại học Salamanca, Tây Ban Nha đã tiến hành nghiên cứu về khả năng rửa giải radium trong đất bằng citrat, EDTA và EDDS. Các mẫu đất được thu thập tại vùng khai thác quặng Los Ratones, Tây Ban Nha. Radium trong các dung dịch rửa giải được chiết tách bằng phương pháp đồng kết tủa bari sulfat. Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  được xác định bằng hệ phổ kế alpha. Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất trung bình đạt  $838 \pm 108$  (Bq/kg). Nhóm tác giả kết luận (1) Độ rửa giải của radium bằng citrate cao nhất khi nồng độ citrate bằng 50 (mmol/kg); (2) với EDTA, nồng độ 5 (mmol/kg), độ rửa giải radium đạt giá trị cao nhất vào ngày đầu tiên, trong khi đối với citrate, độ rửa giải radium cao nhất vào ngày thứ 4; (3) với EDDS nồng độ 15 (mmol/kg) tại pH bằng 4, sau 6 ngày, độ rửa giải radium vẫn tiếp tục tăng [8].

Năm 2016, Jamal Al Abdullah cùng cộng sự thuộc Ban an toàn phóng xạ, Ủy ban Năng lượng Nguyên tử Syria đã áp dụng quy trình BCR để chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  ra khỏi đất. Mẫu đất nhiễm phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  được lấy từ giếng dầu tại Palmyra thuộc Syria, hoạt độ phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  đo được dao động từ  $1030 \pm 90$  đến  $7780 \pm 530$  (Bq/kg), giá trị trung bình là  $2840 \pm 1840$  (Bq/kg). Quy trình chiết tách BCR phù hợp và hiệu quả để chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trong đất ô nhiễm phóng xạ, giảm nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất dưới ngưỡng an toàn phóng xạ theo tiêu chuẩn IAEA-2004. Hiệu suất tách chiết  $^{226}\text{Ra}$  thay đổi đối với các mẫu đất khác nhau, dao động từ 45 đến 99 % [2].

Quy trình BCR được nhiều nhóm nghiên cứu trên thế giới áp dụng tách chiết các nguyên tố kim loại ra khỏi đất. Một số ít nhóm nghiên cứu đã áp dụng tách chiết phóng xạ. Vì vậy, vẫn cần có nhiều nghiên cứu liên quan đến hướng nghiên cứu này.

### 1.1.2 Các nghiên cứu về radium trong nước tự nhiên

Năm 1975, Willard S. Moore cùng cộng sự thuộc phòng thí nghiệm phân tích hải dương học Naval, Hoa Kỳ đã áp dụng phương pháp lọc nước nhiễm phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  bằng sợi acrylic tẩm  $\text{MnO}_2$ . Các mẫu nước được lấy tại các địa điểm cách vùng Felde (miền nam Texas) từ 300 m – 8 km. Đây là khu vực có nhiều nhà máy tập trung khai thác quặng uranium. Ông đã dùng sợi acrylic tẩm  $\text{MnO}_2$  (phần trăm khối lượng của Mn từ 12-15%) để lọc các mẫu nước thu thập được. Các mẫu nước sau khi lọc đều có lượng  $^{226}\text{Ra}$  dưới 3 pCi/L, giá trị này nằm trong ngưỡng an toàn theo tiêu chuẩn của Mỹ. Do đó phương pháp lọc radium bằng sợi acrylic tẩm  $\text{MnO}_2$  phù hợp để lọc các nguồn nước mặt, nước ngầm nhiễm phóng xạ radium [9].

Năm 1979, David F. Reid và cộng sự thuộc bộ môn Hải dương học, trường đại học Texas, Hoa Kỳ đã tiến hành cải tiến phương pháp hấp thụ radium bằng màng lọc acrylic tẩm  $\text{MnO}_2$ . Phương pháp được áp dụng để lọc tách radium, thorium và americium trong nước biển. Kết quả cho thấy màng lọc có hiệu suất tách các đồng vị phóng xạ trong nước biển cao. Đối với radium và actinium, hiệu suất tách bằng màng lọc từ 80 - 95% [10].

Năm 1993, M.T.Crespo và cộng sự cũng áp dụng phương pháp trên để hấp thụ các đồng vị phóng xạ của U, Th, Pu, Am và Ra trong các mẫu nước. Kết quả nghiên cứu cho thấy đối với các đồng vị của radium, hiệu suất hấp thụ đạt từ 87% đến 97% trong môi trường trung tính. Trong khi đó, đối với các nguyên tố phóng xạ U, Th, Am và Pu, hiệu suất hấp thụ cao hơn trong môi trường có độ pH thấp [11].

Năm 1996, Gordana cùng cộng sự thuộc viện nghiên cứu y học và sức khỏe nghề nghiệp Zegred, Croatia đã tiến hành khảo sát nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước suối nóng và suối khoáng tại Croatia. Mẫu nước sau đó được chiết lọc bằng phương pháp đồng kết tủa  $\text{BaSO}_4$ . Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong suối nước khoáng, suối nước nóng và nước giếng dao động từ 0,07 đến 4,40 (Bq/L). Giá trị này vượt quá ngưỡng khuyến cáo của Tổ chức Y tế Thế giới WHO là 1 (Bq/L) [12].

Năm 2003, R.M.R. Almeida cùng cộng sự thuộc khoa Xây dựng, đại học Federal Fluminense, Brazil đã tiến hành khảo sát nồng độ phóng xạ của radium, radon và uranium trong nước ngầm tại Região dos Lagos, Brazil. Các mẫu nước phân tích được lấy tại suối khoáng, nước giếng tại các hộ gia đình. Nhóm nghiên cứu đã áp dụng phương pháp đồng kết tủa barium sulfat để xác định nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  và  $^{228}\text{Ra}$  trong nước. Nhóm tác giả thực hiện thêm dung dịch axit sulfuric và bari clorua cùng axit acetic (độ pH bằng 4,5 đến 5,0) vào 1L mẫu nước thực hiện liên tục ba lần, để tạo thành phức tủa. Phần kết tủa được tách ra và nhốt trong 1 tháng để đạt cân bằng phóng xạ. Nồng độ phóng xạ được đo bằng hệ phổ kế alpha. Nồng độ radium dao động từ dưới 0,01 đến 1,5 (Bq/L), vượt ngưỡng tiêu chuẩn an toàn phóng xạ alpha trong nước sinh hoạt của Brazil (0,1 Bq/L). Kết quả cho thấy, nồng độ phóng xạ của radium trong nước cao khi pH của dung dịch thấp (dưới 5,5) [13].

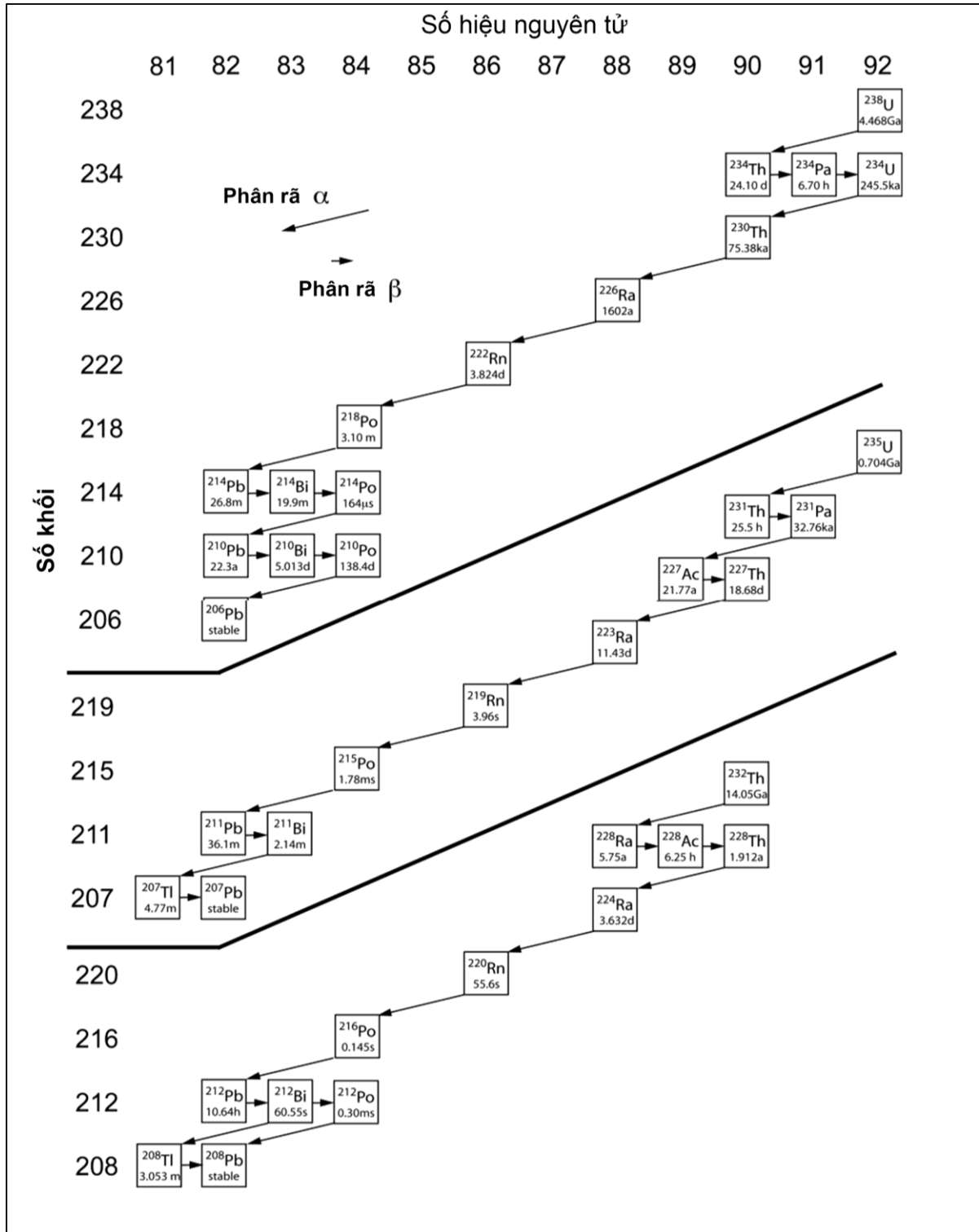
Năm 2009, Richard N. Peterson cùng cộng sự thuộc bộ môn Hải dương học, trường đại học Florida, Hoa Kỳ đã tiến hành so sánh các phương pháp xác định nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước biển. Ông sử dụng sợi acrylic tẩm  $\text{MnO}_2$  để hấp thụ các đồng vị của radium trong mẫu nước. Các mẫu nước sau đó được xác định hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  bằng các hệ thiết bị khác nhau, bao gồm RAD7, RaDeCC, hệ đo radon vết và hệ phổ kế gamma HPGe. Kết quả cho thấy sợi acrylic tẩm  $\text{MnO}_2$  hấp thụ cao các đồng vị của radium gồm  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{223}\text{Ra}$  và  $^{228}\text{Ra}$ . Tác giả đề nghị tùy theo điều kiện và mục đích nghiên cứu, có thể lựa chọn phương pháp phân tích phù hợp. Hệ đo RAD7 có ưu điểm ghi đo tự động, thời gian nhốt mẫu thấp. Hệ đo radon vết và RaDeCC có hiệu suất ghi cao, thời gian ghi đo và nhốt mẫu thấp phù hợp để ghi đo bức xạ của  $^{223}\text{Ra}$  và  $^{224}\text{Ra}$ . Quy trình chuẩn bị mẫu phân tích cho hệ phổ kế gamma khá đơn giản, hệ phổ kế ghi nhận được đồng thời  $^{226}\text{Ra}$  và  $^{228}\text{Ra}$  [14].

## 1.2 Các đồng vị của radium trong tự nhiên

Trong tự nhiên, radium chủ yếu có bốn đồng vị chính gồm  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  và  $^{224}\text{Ra}$ , là con cháu của các chuỗi phân rã  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  và  $^{232}\text{Th}$ . Thông tin về các đồng vị của radium được trình bày trong bảng 1.1. Hình 1.1 trình bày sơ đồ phân rã của ba họ phóng xạ tự nhiên. Ba chuỗi phân rã này có một số đặc điểm chung [1]:

- Đồng vị mẹ trong mỗi chuỗi có thời gian bán rã rất dài, gần bằng tuổi Trái đất. Đồng vị  $^{232}\text{Th}$ , thời gian bán rã dài khoảng  $1,4 \cdot 10^{10}$  năm, hầu như hàm lượng không thay đổi quá nhiều trong thời gian tồn tại của Trái đất. Đồng vị  $^{238}\text{U}$  có thời gian bán rã  $4,9 \cdot 10^9$  năm, đã bị phân rã một phần, tạo ra nhiều đồng vị con cháu tồn tại trong môi trường.
- Mỗi chuỗi phân rã đều có một đồng vị phóng xạ tồn tại dạng khí, là các đồng vị khác nhau của radon. Đồng vị  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{219}\text{Rn}$  và  $^{220}\text{Rn}$  lần lượt là các thành viên của chuỗi phân rã  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  và  $^{232}\text{Th}$ . Trong đó, đồng vị  $^{222}\text{Rn}$  có thời gian bán rã dài nhất, 3,825 ngày, là đồng vị có ý nghĩa nhất trong các nghiên cứu này.
- Mỗi chuỗi phân rã đều kết thúc bằng các đồng vị bền của chì. Chuỗi  $^{238}\text{U}$  kết thúc bằng đồng vị  $^{206}\text{Pb}$ . Đồng vị  $^{207}\text{Pb}$  và  $^{208}\text{Pb}$  lần lượt là các đồng vị cuối của các chuỗi phân rã  $^{235}\text{U}$  và  $^{232}\text{Th}$ .

Các đồng vị của radium như  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  và thường sử dụng làm chất đánh dấu trong các nghiên cứu liên quan đến địa chất, thủy văn [15]. Đồng vị  $^{226}\text{Ra}$  có chu kỳ phân rã dài nhất (1600 năm), độ phổ cập trên 99%, phát cả bức xạ alpha và gamma trong quá trình phân rã nên được xem là đồng vị phóng xạ tự nhiên nguy hiểm nhất đối với con người và môi trường [16].



Hình 1. 1: Sơ đồ của ba chuỗi phân rã phân rã tự nhiên [15]

Bảng 1. 1: Các đồng vị phóng xạ của radium trong tự nhiên [15]

Đồng vị	Thời gian bán rã	Loại phân rã, E(MeV)	Hoạt độ riêng (Bq/g)	Đồng vị con
$^{223}\text{Ra}$	11,43 ngày	$\alpha_3; 5,745(9,1\%)$ $\alpha_4; 5,714(53,7\%)$ $\alpha_5; 5,605(26,0\%)$ $\alpha_6; 5,538(9,1\%)$	$1,896 \times 10^{15}$	$^{219}\text{Rn}$
$^{224}\text{Ra}$	3,632 ngày	$\alpha_0; 5,685(94,9\%)$ $\alpha_1; 5,685(5,1\%)$	$5,92 \times 10^{15}$	$^{220}\text{Rn}$
$^{226}\text{Ra}$	1600 năm	$\alpha_0; 4,784(94,55\%)$ $\alpha_1; 4,601(5,45\%)$	3,66	$^{222}\text{Rn}$
$^{228}\text{Ra}$	5,75 năm	$\beta; 0,046$	$1,0 \times 10^{13}$	$^{228}\text{Ac}$

### 1.3 Tính chất vật lí và hóa học của radium

Radium là kim loại phóng xạ thuộc nhóm IIA trong bảng tuần hoàn nguyên tố hóa học, kí hiệu Ra, số hiệu Z=88, cấu hình electron  $[\text{Rn}]7s^2$ , nhiệt độ nóng chảy là 973 độ K. Radium có màu trắng xám, là kim loại mềm. Radium tinh khiết được điều chế bằng phương pháp điện phân nóng chảy  $\text{RaCl}_2$  [15].

Radium hóa đen trong không khí do bị oxi hóa tạo thành oxit  $\text{RaO}$ . Kim loại và các muối của radium đều là các chất phát quang. Tính chất hóa học của radium tương tự các kim loại kiềm thổ khác trong nhóm như barium và canxi. Trong các phản ứng trao đổi ion, radium thường tồn tại dạng  $\text{Ra}^{2+}$ . Bên cạnh đó, radium trong nước dễ dàng tạo phức đồng kết tủa với bari sulfat hoặc chì sulfat. Vì vậy, phương pháp đồng kết tủa thường được áp dụng để tách và cô lập radium trong nước [15]. Radium phản ứng mạnh với các axit vô cơ như axit clohydric, axit nitric tạo thành các muối tan. Độ tan các muối

radium được thể hiện trong bảng 1.2. Các muối sulphat, cacbonat và photphat của radium thường ít tan hơn so với muối clorua và nitrat của nó.

Radium hydroxit là bazơ có khả năng tan hơn nhiều so với các bazơ hydroxit của kiềm thổ khác nhóm IIA như canxi hydroxit, bari hydroxit. Riêng radium hydroxit trong dung dịch có thể dễ dàng được tách ra bằng cách thêm dung dịch ammoni hydroxit để hình thành phức kết tủa [15].

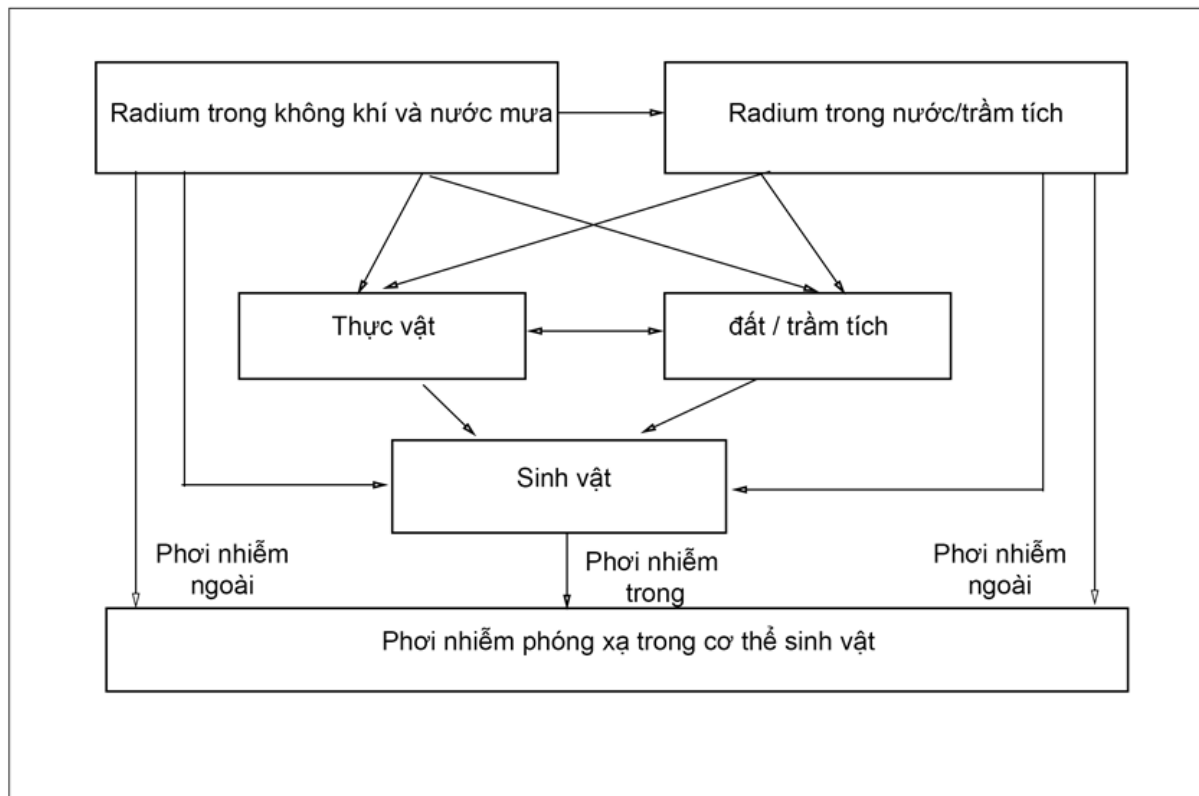
Bảng 1. 2: Độ tan của muối radium ở nhiệt độ 20°C [15]

Muối	Độ tan (g/100g H <sub>2</sub> O)
RaCl <sub>2</sub>	24,5
RaBr <sub>2</sub>	70,6
Ra(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	13,9

#### 1.4 Phân bố radium trong tự nhiên

Radium phân bố trong tự nhiên (không khí, đất và nước) thông qua các quá trình hóa-lí phức tạp. Qua các tác nhân của tự nhiên và con người, radium có thể phân bố trong đất đá, khoáng sản, nước, khí quyển. Các đồng vị của radium cũng tồn tại một phần trong cơ thể động, thực vật và con người thông qua các chuỗi thức ăn và trao đổi chất với môi trường. Hình 1.2 thể hiện các phương thức phát tán radium trong môi trường [15].





Hình 1. 2: Mô hình phát tán radium trong tự nhiên [15]

#### 1.4.1 Phân bố radium trong đất

Đất được hình thành từ quá trình phong hóa của đá mẹ dưới tác động của các yếu tố tự nhiên như: sự thay đổi nhiệt độ, độ ẩm, tác động của thời tiết, biến đổi khí hậu, tác động sinh học của động thực vật và con người. Do đó, các loại đất thường khác nhau về thuộc tính tùy thuộc vào đặc trưng của đá mẹ và các tác nhân ảnh hưởng từ tự nhiên. Trong quá trình phong hóa đá mẹ hình thành đất, radium được phân bố lại từ đá sang đất. Sự di chuyển của radium trong hạt đất chịu tác động rất nhiều bởi các yếu tố tự nhiên. Một phần radium được hòa tan trong nước ngầm, nước suối. Thông qua các chuỗi thức ăn, radium có thể tồn tại trong động thực vật. Phần còn lại bị lắng đọng dưới dạng phù sa, hoàng thổ hoặc hấp thụ trong đá hoặc đất [15].

Radium trong đất thể hiện các đặc điểm hóa học của một kim loại kiềm thổ. Radium hoạt động hóa học mạnh, ái lực cao. Các phản ứng trao đổi ion trong đất đóng vai trò quan trọng, ảnh hưởng đến quá trình di chuyển radium. Mỗi loại đất có các đặc tính khác nhau, khả năng trao đổi ion của các muối radium trong mỗi loại đất cũng khác nhau. Điều này ảnh hưởng đáng kể đến phân bố hàm lượng radium trong đất. Bảng 1.3 thể hiện hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong một số loại đất khác nhau. Theo đó, hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất dao động từ 3,7 đến 125,8 (Bq/kg). Đáng chú ý là đất nâu sa mạc ở CHLB Nga là loại đất có hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  khá cao, từ 70,3 đến 125,8 (Bq/kg) [15].

Bảng 1. 3: Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong một số loại đất khác nhau [15]

Loại đất	Địa điểm	Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ (Bq/kg)
Đất sét đỏ	Florida, Hoa Kỳ	7,4
Đất cát	Tây Ban Nha	14,0
Đất Podzol	CHLB Nga	33,3
Đất rừng xám	CHLB Nga	37,1
Đất sét đen	CHLB Nga	29,6
Đất rừng nâu	CHLB Nga	29,6
Đất đỏ	CHLB Nga	40,7
Đất xám/ đất sa mạc	CHLB Nga	18,5
Đất nâu sa mạc	CHLB Nga	70,3-126

#### 1.4.2 Phân bố radium trong nước ngầm

Radium trong nước ngầm là kết quả tương tác của dòng chảy mạch nước ngầm qua bề mặt, khe nứt của đá,... Các tương tác này tạo điều kiện cho radium sinh ra từ đồng vị mẹ dễ dàng hoà tan vào nước. Hàm lượng phóng xạ radium trong nước còn phụ thuộc

mạnh vào các đặc điểm địa chất, độ sâu mực nước, độ pH, tốc độ dòng chảy, nhiệt độ môi trường nước, thời điểm lấy nước và lượng mưa [15] [1]. Bên cạnh đó, các quá trình khai thác nhiên liệu, khai thác quặng uranium để sản xuất nguyên liệu hạt nhân, khai thác quặng photphat - apatit để sản xuất phân lân, vàng, than đá, ... cũng góp phần làm tăng đáng kể hàm lượng phóng xạ radium trong nước [2].

Với đặc tính dễ hòa tan của muối radium và tạo phức kết tủa với muối sulphat của barium và canxi, qua các khe nứt của thành đá gây ra bởi các hoạt động khai thác của con người, radium dễ dàng có mặt trong mạch nước [15]. Quá trình khai thác dầu khí tạo ra một lượng lớn bùn thải. Việc xử lý bùn thải do khai thác dầu khí thường rất tốn kém nên đa phần được chôn lấp. Điều này dẫn đến nhiều rủi ro ô nhiễm phóng xạ, đặc biệt là mạch nước ngầm tại các khu vực dễ tiếp xúc với bùn thải [2] [15].

Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước ngầm tại một số khu vực trên thế giới được thể hiện trong bảng 1.4. Theo đó,  $^{226}\text{Ra}$  có nồng độ khá cao trong một số loại nước ở các khu vực khác nhau như khoáng nóng tại Nhật Bản (1300-7840 mBq/L), nước ngầm tại vùng khai thác uranium ở Texas - Hoa Kỳ (14,8-6290 mBq/L), nước nóng của địa nhiệt tại miền Tây - Hoa Kỳ (1,52-55,500) [15].

#### **1.4.3 Phân bố radium trong không khí**

Bên cạnh tập trung trong đất và nước ngầm, một phần radium cũng tồn tại trong các hạt bụi khí nhỏ. Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trung bình trong bụi khí trên thế giới khoảng 1,5  $\mu\text{Bq/kg}$  [15]. Các hoạt động khai thác nhiên liệu của con người góp phần làm tăng nồng độ radium trong bụi khí. Đặc biệt, trong đó, ngành công nghiệp nhiệt điện là một trong những ngành làm tăng đáng kể nồng độ radium trong không khí. Trong quá trình đốt than, nhiệt độ lên đến 1700°C, than được nung nóng chảy thành tro. Tro bay cùng với hơi nước được thải ra ngoài khí quyển, đóng góp đáng kể vào lượng radium trong không khí. Bên cạnh đó, lượng tro bay này có thể lắng đọng xuống mặt đất, thảm thực vật hoặc nước mặt và thậm chí có thể xâm nhập vào nước ngầm [15].

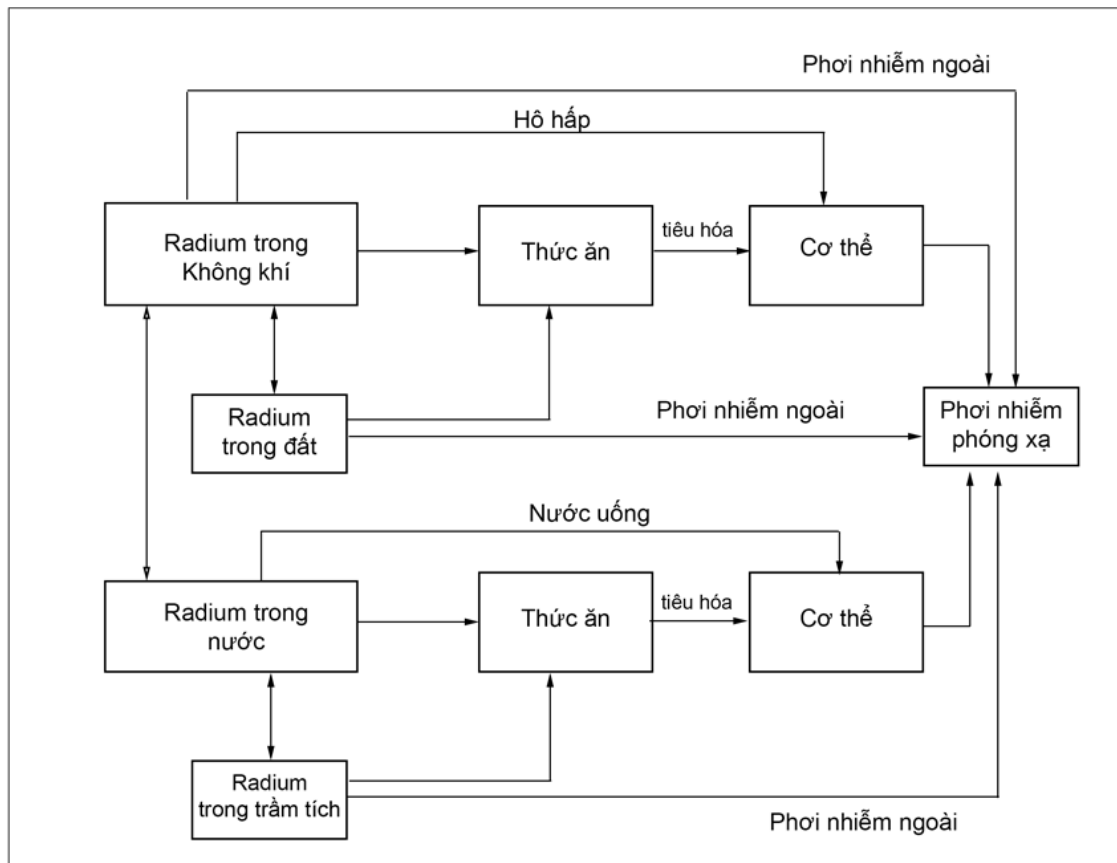
Bảng 1. 4: Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước ngầm ở một số khu vực [15]

Địa điểm	Nguồn nước	Mô tả	Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ (mBq/L)
Helsinki, Phần Lan	Nước giếng khoan		<3,7 - 9 470
Anh	Nước khoáng nóng		374 - 525
Nhật Bản	Nước khoáng nóng		1 300 - 7 840
Ả Rập Xê Út	Nước suối		699
Đài Loan	Nước khoáng nóng		1,85 - 588
Grants ,Hoa Kỳ	Nước ngầm	Nhà máy khai thác, quặng uranium	1,9 - 1 960
Texas, Hoa Kỳ	Nước ngầm	Nhà máy khai thác, nghiền quặng uranium	14,8 - 6 290
Miền Tây, Hoa Kỳ	Nước nóng của địa nhiệt	Rò rỉ nguồn nước địa nhiệt	1,52 - 55 550

### 1.5 Ảnh hưởng của radium đến sức khỏe con người

Thông qua nhiều chuỗi chuyển hóa sinh - hóa và chuỗi thức ăn, radium có thể tồn tại trong cơ thể con người và sinh vật. Hình 1.3 thể hiện tóm tắt quá trình chuyển hóa radium từ môi trường tự nhiên vào cơ thể con người. Quá trình này diễn ra phức tạp và chịu ảnh hưởng bởi nhiều yếu tố trong môi trường và sinh vật. Về cơ bản, radium từ môi trường đi vào cơ thể con người chủ yếu qua đường hô hấp và tiêu hóa [15].

Trong cơ thể con người, radium phân rã alpha, hình thành các đồng vị con cháu phân rã alpha, beta hoặc gamma [15]. Đồng vị  $^{226}\text{Ra}$  là đồng vị phóng xạ nguy hiểm hơn cả do chu kỳ bán rã lớn, xác suất phát alpha cao, năng lượng phân rã lớn. Trong cơ thể con người,  $^{226}\text{Ra}$  chủ yếu tích tụ trong xương, răng. Với khoảng 2,5 mg của  $^{226}\text{Ra}$  trong cơ thể, con người sẽ nhận một liều chiếu khoảng 25 Sv. Các bệnh thường gặp khi bị nhiễm xạ radium chủ yếu tập trung ở xương như ung thư xương, thoái hóa xương, răng,... [1].



Hình 1. 3: Sơ đồ các con đường di chuyển của radium từ môi trường vào cơ thể người [15]

## **CHƯƠNG 2 : QUY TRÌNH THỰC NGHIỆM CHIẾT TÁCH $^{226}\text{Ra}$ TRONG ĐẤT VÀ NƯỚC**

### **2.1 Quy trình thực nghiệm chiết tách $^{226}\text{Ra}$ trong đất**

Do không có các mẫu đất có hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  rất cao để được xem là chất thải tự nhiên, chúng tôi thực hiện quy trình chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trên một số mẫu đất được thu thập tại khu vực huyện Ninh Sơn, tỉnh Ninh Thuận.

#### **2.1.1 Xác định hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong đất**

##### **Chuẩn bị mẫu đất**

Mẫu đất tại hiện trường được lấy ở độ sâu từ 20 – 30 cm. Sau khi được di chuyển về phòng thí nghiệm, mẫu được hong khô, nhặt sạch các dị vật: sỏi, đá, rác,... Mẫu đất được xác định pH theo quy trình 9045D của EPA [32].

- Mẫu đất khô được nghiền nhỏ, rây qua rây có đường kính lỗ 0,2 mm để đảm bảo mẫu được đồng nhất. Tiếp tục sấy mẫu ở nhiệt độ 105°C trong 8 (giờ) và đóng mẫu vào hộp trụ. Mẫu cần được đóng đồng đều, chiều cao khoảng 2 cm, đảm bảo độ kín của hộp tốt nhất có thể.

- Nhốt mẫu ít nhất 30 ngày để tạo cân bằng phóng xạ giữa  $^{226}\text{Ra}$  và các đồng vị con cháu trước khi đo bằng hệ phổ kế gamma.

##### **Xác định hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ bằng hệ phổ kế gamma**

Thiết bị được sử dụng để phân tích hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  là hệ phổ kế gamma GC3520 của hãng Canberra đặt tại Phòng thí nghiệm Kỹ thuật Hạt nhân. Hệ đo được thiết lập để ghi nhận bức xạ gamma với khoảng năng lượng từ 40 keV đến 3 MeV. Hệ đo gồm các thiết bị: đầu dò và nguồn nuôi cao thế cho đầu dò, bộ phận khuếch đại và tiền khuếch đại, bộ phân tích đa kênh, buồng chì che chắn phòng bao quanh đầu dò và nguồn, thiết bị làm lạnh cho đầu dò. Đầu dò có đường kính 76 mm, chiều dài 73,8 mm, có độ phân giải năng lượng và hiệu suất ghi tương đối tại đỉnh phổ có năng lượng 1332

keV của đồng vị  $^{60}\text{Co}$  tương ứng là khoảng 1,95 keV và 40%. Buồng chì được bao phủ bên ngoài bằng một lớp thép có hàm lượng carbon thấp với bề dày 12,7 mm, tiếp đó là một lớp chì với bề dày 10,1 cm. Mục đích của việc sử dụng buồng chì là để che chắn, giảm phong môi trường trong quá trình ghi nhận bức xạ từ mẫu. Bộ phân tích đa kênh có chức năng: cung cấp cao thế cho đầu dò, có khả năng tạo ra cao thế xấp xỉ 5000 V với cường độ dòng 100  $\mu\text{A}$ . Phần mềm được sử dụng để điều khiển hệ đo và phân tích phổ là Genie 2000. Hiệu suất được tính toán dựa vào mẫu chuẩn và phần mềm Angle.

Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  được xác định thông qua các đỉnh năng lượng của các đồng vị con cháu, gồm  $^{214}\text{Bi}$  (609,3 keV, 1120,3 keV, 1238,1 keV, 1764,5 keV) và  $^{214}\text{Pb}$  (295,2 keV, 351,9 keV). Hàm lượng phóng xạ ứng với một đỉnh gamma được xác định theo công thức (2.1).

$$A = \frac{N}{\epsilon \cdot I_\gamma \cdot t \cdot m} \quad (2.1)$$

Sai số hoạt độ được xác định theo công thức (2.2)

$$\sigma_A = A \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_\epsilon}{\epsilon}\right)^2} \quad (2.2)$$

Trong đó:

- A (Bq/kg) là nồng độ hoạt độ của đồng vị quan tâm.
- N là diện tích đỉnh phổ đã trừ phong và hiệu chỉnh thời gian chết.
- m (g) là khối lượng mẫu đo, t (s) là thời gian đo;  $\epsilon$  và  $I_\gamma$  lần lượt là hiệu suất tuyệt đối của đầu dò và xác suất phát của đỉnh gamma quan tâm.

## 2.1.2 Quy trình chiết tách $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu đất

### 2.1.2.1 Thiết bị, dụng cụ và hóa chất

Các thiết bị, dụng cụ và hóa chất cần cho quy trình chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  được liệt kê trong bảng 2.1.

Bảng 2. 1: Thiết bị, dụng cụ và hóa chất thuộc quy trình chiết tách BCR

	Tên	Mô tả/Xuất xứ
<b>Thiết bị</b>	Hệ thiết bị RAD7	Hãng DurrIDGE, Mỹ
	Máy li tâm loại PLC series	Mã số 1804790/Công ty Gemmy, Đài Loan.
	Máy lắc sang mẫu đất SKL-330	Mã số TBTN01013/ Việt Nam
	Cân điện tử tiểu li (Cân 5 số model PR227/E2018)	Khối lượng phân tích tối đa 200g±0,01mg/Công ty OHAUS, Mỹ
	Đèn sấy hồng ngoại	Công suất 250W/ Công ty NTE, Việt Nam.
	Bút đo pH điện tử pHTestr30 Waterproof	Giới hạn phân tích độ pH từ -1,00 – 15,00 pH, ở nhiệt độ 0 – 50°C/Công ty OAKTON, Mỹ.
<b>Dụng cụ &amp; vật liệu</b>	Nhiệt kế thủy ngân	Số lượng 1 (cái)/ Giới hạn phân tích từ 0-100°C, sai số 0,1°C)
	Đũa thủy tinh (20cm) và muỗng nhôm	Số lượng 5 (cái)
	Bình thủy tinh chia vạch (50mL, 200mL, 400mL và 500mL), pipet (2mL), micropipet.	Số lượng 3 (bình) ứng với từng thể tích phân tích/ Hãng DURAN, Đức.
	Lọ thủy tinh (250mL)	Số lượng 6 (lọ) /Hãng DURAN, Đức.



Giấy lọc Whatman loại 1  
(11 micron)

Hãng Whatman, Mỹ.

---

<b>Hóa chất</b>	Dung dịch axit $\text{HNO}_3$ (65%)	Thể tích 300mL/Hãng Merck, Mỹ
	Dung dịch hydroperoxit $\text{H}_2\text{O}_2$ (80%)	Thể tích 300mL/Hãng Merck, Mỹ
	Dung dịch axit acetic $\text{CH}_3\text{COOH}$ (90%)	Thể tích 1,5L/Hãng Merck, Mỹ
	Dung dịch $\text{NH}_4\text{OH}$ (30%)	Thể tích 300mL/Hãng Merck, Mỹ
	Bột Hydroxylammoni clorua $\text{HONH}_2\text{HCl}$ (98,5%)	Khối lượng 25g/ Công ty Xilleng Scientific, Đà Loan.
	Bột ammoni axetat $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ (98,5% )	Khối lượng 500g/ Công ty Xilong Chemical, Trung Quốc

---

#### 2.1.2.2 Quy trình thực hiện

##### Chuẩn bị dung dịch và mẫu đất

- Ống nghiệm và lọ đựng phải được rửa sạch và tráng bằng dung dịch cồn (90 độ) để hạn chế bụi bẩn và nấm mốc.
- Mẫu đất được trộn đều, sấy khô bằng tủ sấy ở nhiệt độ  $105^\circ\text{C}$  trong 3 giờ, sau đó, lấy 10 (g) mẫu để thực hiện thí nghiệm.
- Chuẩn bị một số hóa chất cần thiết cho thí nghiệm: Dung dịch axit acetic (0,11M-400mL), dung dịch hydroxylammoni clorua (0,1M-400mL), dung dịch ammoni axetat (1M-500mL).

**Phân đoạn A:** Phân đoạn trao đổi ion và axit hóa

Cho 10 (g) mẫu đất (đã rây qua rây có đường kính 0,045 mm) vào 400 mL dung dịch axit acetic 0,11M, điều chỉnh pH của hỗn hợp bằng 2,8 với dung dịch axit nitric và amoni hydroxit loãng. Hỗn hợp gồm đất và axit acetic đựng trong bình thủy tinh được đậy kín. Hỗn hợp được lắc trộn đều ở nhiệt độ 30°C trong 16 giờ. Sau đó, phần đất và phần dung dịch được tách ra bằng cách li tâm hỗn hợp trong vòng 20 phút. Phần rắn được rửa lại bằng nước cất để loại bỏ lượng axit còn tồn đọng. Phần dung dịch được nhốt kín trong 10 ngày để xác định hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  đã được tách ra trong bước này.

**Phân đoạn B:** Phân đoạn khử

Cho vào phần rắn sau phân đoạn A vào 400 mL dung dịch hydroxylammoni clorua 0,1M, điều chỉnh pH của hỗn hợp bằng 2 với dung dịch axit nitric và amoni hydroxit loãng. Hỗn hợp được lắc đều trong 16 giờ tương tự như trong phân đoạn A. Phần rắn và phần lỏng được tách riêng biệt bằng cách li tâm hỗn hợp trong vòng 20 phút. Phần rắn được rửa sạch bằng nước cất. Phần dung dịch được nhốt kín để xác định hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  đã được tách ra trong bước này.

**Phân đoạn C:** Phân đoạn oxi-hóa

Thêm 100 mL dung dịch hydro peoxit 8,8M vào phần mẫu rắn ở phân đoạn B. Hỗn hợp mẫu được lắc đều trong 1 giờ ở nhiệt độ phòng. Sau đó, mẫu được đun nóng ở nhiệt độ khoảng 85°C trong 1 giờ. Tiếp tục thêm 100 mL dung dịch hydro peoxit 8,8M và đun nóng hỗn hợp trong 1 giờ ở nhiệt độ 85°C đến khi dung dịch còn khoảng 3mL thì dừng lại. Phần đất được để nguội, sau đó thêm vào 500 mL dung dịch amoni axetat 1M, điều chỉnh pH của hỗn hợp bằng 2 với dung dịch axit nitric và amoni hydroxit. Mẫu được lắc đều trong 16 giờ tương tự các phân đoạn trên. Phần rắn đất và phần lỏng được tách riêng biệt bằng li tâm hỗn hợp. Phần rắn được rửa sạch bằng nước cất, sấy khô ở nhiệt độ 105°C. Phần mẫu lỏng được nhốt kín để xác định hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  đã được tách ra trong bước này.

### 2.1.2.3 Phân tích nồng độ $^{226}\text{Ra}$ sau khi chiết tách được trong từng phân đoạn

Các mẫu lỏng chứa  $^{226}\text{Ra}$  tách ra từ mỗi phân đoạn được nhốt trong vòng 10 ngày. Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  được xác định thông qua đồng vị con  $^{222}\text{Rn}$  đo trên hệ thiết bị RAD7, tương tự quy trình phân tích nồng độ  $^{222}\text{Rn}$  trong mẫu nước. Nguyên lý xác định nồng độ  $^{222}\text{Rn}$  trong mẫu nước được trình bày trong phần phụ lục 1.

Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong phần lỏng thu được qua mỗi bước chiết tách được xác định gián tiếp thông qua nồng độ  $^{222}\text{Rn}$  theo công thức (2.3). Sai số kết quả đo được xác định theo công thức (2.4).

$$C_{\text{Ra}} = \frac{k \cdot C_{\text{Rn}} \cdot V}{(1 - e^{-\lambda t}) \cdot m} \quad (2.3)$$

$$\sigma_{C_{\text{Ra}}} = C_{\text{Ra}} \sqrt{\left(\frac{\sigma_{C_{\text{Rn}}}}{C_{\text{Ra}}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_k}{k}\right)^2} \quad (2.4)$$

Trong đó:

- $C_{\text{Rn}} \pm \sigma_{C_{\text{Rn}}}$  (Bq/L) là nồng độ phóng xạ của  $^{222}\text{Rn}$  trong dung dịch mẫu; V (lít) là thể tích dung dịch mẫu; m = 0,01 (kg) là khối lượng mẫu đất đem phân tích.
- $C_{\text{Ra}} \pm \sigma_{C_{\text{Ra}}}$  (Bq/kg) là nồng độ phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong phần lỏng sau khi lọc tách trong mỗi bước của mẫu cần phân tích.
- t là thời gian nhốt mẫu;  $\lambda$  là hằng số phân rã của  $^{222}\text{Rn}$ .
- Hệ số k =  $1,25 \pm 0,03$ , là hệ số hiệu chỉnh sự thất thoát radon trong quá trình nhốt mẫu. Giá trị này được lấy từ kết quả của công trình [1].

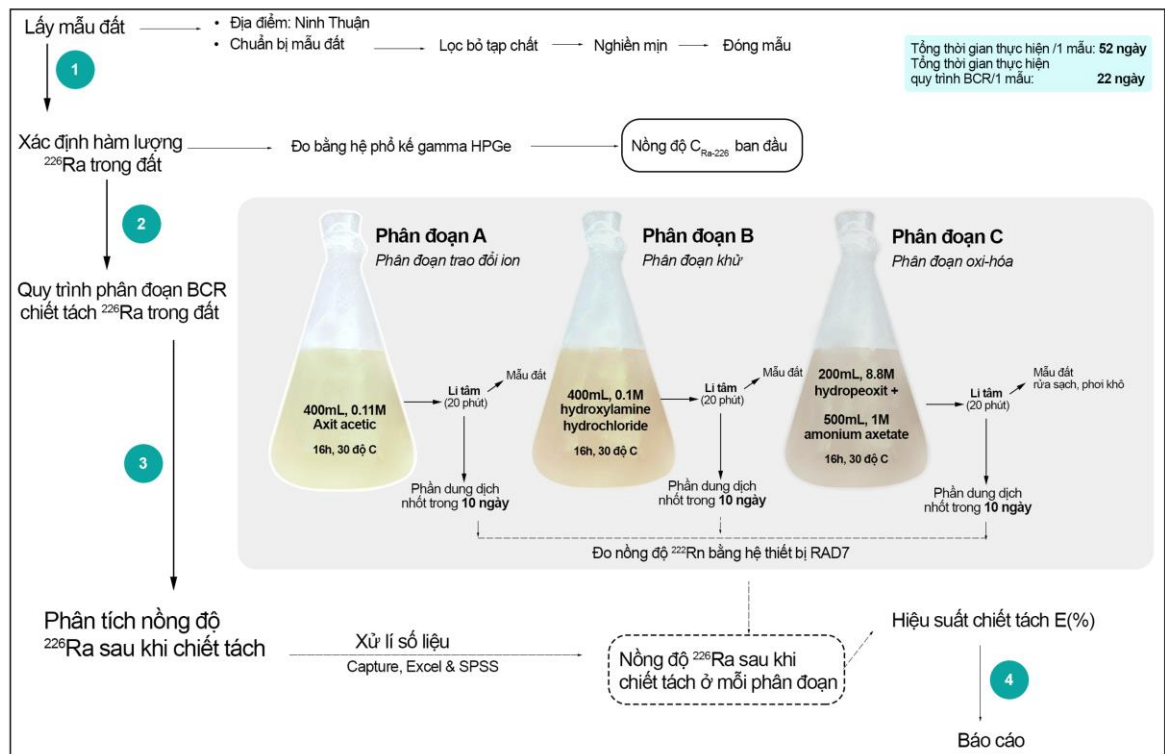
Hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$ , E (%) trong mẫu đất của từng phân đoạn được xác định theo công thức (2.5). Sai số kết quả được xác định theo công thức (2.6).

$$E(\%) = \frac{C_{\text{ex}}}{C_0} \cdot 100\% \quad (2.5)$$

$$\sigma_E = E \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma_{C_0}}{C_0}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_{\text{ex}}}}{C_{\text{ex}}}\right)^2} \cdot 100\% \quad (2.6)$$

Trong đó:  $C_0 \pm \sigma_{C_0}$  (Bq/kg) là hàm lượng phóng xạ trong mẫu đất trước khi chiết tách.  
 $C_{ex} \pm \sigma_{C_{ex}}$  (Bq/kg) là hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách được trong từng phân đoạn.

Hiệu suất chiết tách tổng E của cả quy trình chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trong đất được tính bằng tổng các hiệu suất của từng phân đoạn. Phần hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  còn dư sau phân đoạn C được ước lượng dựa vào hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trước và hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách của từng phân đoạn. Hình 2.1 mô tả tóm tắt quy trình xử lý nhiễm bẩn  $^{226}\text{Ra}$  trong đất bằng quy trình chiết tách phân đoạn BCR.

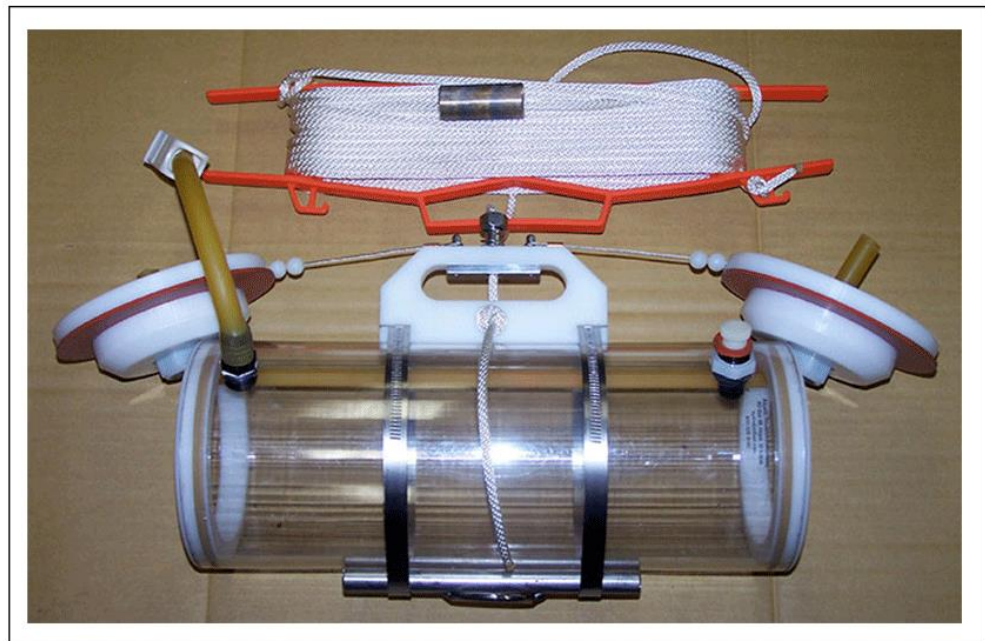


Hình 2. 1: Tóm tắt quy trình xử lý nhiễm bẩn  $^{226}\text{Ra}$  trong đất

## 2.2 Quy trình lọc tách $^{226}\text{Ra}$ trong nước

### 2.2.1 Xác định nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong nước trước khi lọc

Các mẫu nước sử dụng cho mục đích nghiên cứu của khóa luận là nước giếng được thu thập tại một số giếng đào thuộc khu vực huyện Ninh Sơn, tỉnh Ninh Thuận, thời điểm lấy mẫu từ ngày 05 đến 13/11/2018. Bộ dụng cụ lấy nước giếng có thể thấy trong hình 2.2. Đây là bộ dụng cụ có thể được sử dụng để lấy các mẫu nước ở tầng giữa của sông, hồ, biển, giếng đào,... Độ sâu lấy mẫu khoảng 1 m tính từ bề mặt nước. Thể tích mỗi mẫu được lấy là 1 lít. Các mẫu nước được bảo quản trong môi trường pH bằng 2 .



Hình 2. 2: Dụng cụ lấy mẫu nước

Mẫu sau khi lấy được đo đặc nhanh tại hiện trường một số thông số hóa lý như: nhiệt độ, độ pH. Mỗi mẫu nước sau khi chuyển về phòng thí nghiệm được lấy 250 ml để định lượng  $^{226}\text{Ra}$ .

Mỗi lọ 250 ml nước giếng được khử sạch radon bằng cách bơm đẩy khí ra ngoài lọ. Sau đó, lọ chứa nước giếng được nhốt kín khoảng 10 ngày trước khi xác định nồng độ

$^{226}\text{Ra}$ . Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  được xác định thông qua nồng độ  $^{222}\text{Rn}$ . Quy trình xác định nồng độ  $^{222}\text{Rn}$  trong các mẫu nước được trình bày trong phần phụ lục 1.

## 2.2.2 Quy trình điều chế sợi tổng hợp tấm mangan dioxit

### 2.2.2.1 Thiết bị, dụng cụ và hóa chất

Một số thiết bị, dụng cụ và hóa chất sử dụng trong quy trình lọc tách  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu nước giếng được liệt kê trong bảng 2.2.

Bảng 2. 2: Thiết bị, dụng cụ và hóa chất thuộc quy trình hấp thụ  $\text{MnO}_2$

	Tên	Mô tả/Xuất xứ
<b>Thiết bị</b>	Hệ thiết bị RAD7	Hãng DurrIDGE, Mỹ
	Cân điện tử tiểu li (Cân 5 số model PR227/E2018)	Khối lượng phân tích tối đa 200g±0,01mg/Công ty OHAUS, Mỹ
	Đèn sấy hồng ngoại	Công suất 250W/ Công ty NTE, Việt Nam.
	Bút đo pH điện tử pHTestr30 Waterproof	Giới hạn phân tích độ pH từ -1.00 – 15,00 pH, ở nhiệt độ 0 – 50°C/ Công ty OAKTON, Mỹ.
<b>Dụng cụ &amp; vật liệu</b>	Nhiệt kế thủy ngân	Số lượng 1 (cái)/ Giới hạn phân tích từ 0-100 độ C, sai số 0,1°C)
	Đũa thủy tinh và muỗng nhôm	Số lượng 2 (cái)
	Bình thủy tinh chia vạch (100mL, 200mL), pipet (2mL).	Số lượng 1 (bình) ứng với từng thể tích phân tích/ Hãng DURAN, Đức.
	Lọ thủy tinh (250mL)	Số lượng 1(lọ) với 1 mẫu /Hãng DURAN, Đức.
	Giấy lọc Whatman loại 1 (11 micron)	Hãng Whatman, Mỹ.

	Phễu lọc sứ và phễu lọc thủy tinh	Số lượng 1 (cái) / Đường kính phễu 75mm/ Công ty Genlab, Trung Quốc.
	Bộ giá đỡ thí nghiệm.	Số lượng 1 (cái) / Công ty Bách Khoa, Việt Nam
	Vải sợi tổng hợp Polyester	Thành phần: 90% polyester và sợi polyamid và cotton/ Kích thước 20cm x 50cm/ Công ty Đông Châu, Việt Nam.
	Bông gòn	Khối lượng 100g/ Công ty Bông Bạch Tuyết, Việt Nam.
	Dây truyền dịch	Số lượng 4 (cái) / Chiều dài 50cm/ Công ty Vinamed, Việt Nam.
<b>Hóa chất</b>	Bột $\text{KMnO}_4$	Độ tinh khiết 98,5%, tinh thể loại P.A, /Khối lượng 500g/ Hãng Merck, Mỹ.
	Dung dịch axit HCl (36,5%)	Thể tích 300mL/Hãng Merck, Mỹ
	Dung dịch hydro peroxit $\text{H}_2\text{O}_2$ (80%)	Thể tích 300mL/Hãng Merck, Mỹ
	Dung dịch $\text{NH}_4\text{OH}$ (30%)	Thể tích 300mL/Hãng Merck, Mỹ

#### 2.2.2.2 Quy trình chuẩn bị sợi tổng hợp tẩm $\text{MnO}_2$

- Lấy 24,06g bột  $\text{KMnO}_4$  hòa tan trong nước cất với thể tích 270mL để thu được dung dịch  $\text{KMnO}_4$  (0,5M, 300mL).

- Ngâm sợi tổng hợp với dung dịch HCl (20mL - 5%), hydro peroxit (10mL-80%) trong 200mL nước cất ở nhiệt độ phòng trong thời gian 2 giờ. Thực hiện bước này nhằm loại bỏ hóa chất nhuộm vải và các chất bẩn có trong vải sợi, hạn chế các điều kiện bên ngoài tác động đến các liên kết của sợi vải.

**Bước 1:** Ngâm sợi tổng hợp polyester trong dung dịch 0,5M  $\text{KMnO}_4$  trong 1 giờ ở nhiệt độ khoảng từ 50 – 65°C.  $\text{KMnO}_4$  bị oxy hóa tạo thành  $\text{MnO}_2$  bám lên bề mặt sợi

tổng hợp polyester. Sau 1 giờ, sợi chuyển dần sang màu cam và cuối cùng chuyển thành màu nâu đen ( $\text{MnO}_2$ ).

**Bước 2:** Sợi sau khi tẩy được lấy ra, rửa sạch bằng nước cất, lắc nhẹ để loại bỏ  $\text{KMnO}_4$  dư và phần  $\text{MnO}_2$  chưa được hình thành liên kết với sợi.

**Bước 3:** Sấy khô sợi ở  $80^\circ\text{C}$  trong 30 phút.

### 2.2.2.3 Các bước lọc $^{226}\text{Ra}$ trong nước bằng sợi tổng hợp tẩm $\text{MnO}_2$

**Bước 1** Chuẩn bị dụng cụ, hóa chất

Phễu lọc được bọc lót cẩn thận với 3 tấm lọc: Lớp lọc trên cùng là vải sợi tẩm  $\text{MnO}_2$  độ dày 5mm, phần giữa là bông gòn và giấy lọc, dưới cùng là vải sợi tẩm  $\text{MnO}_2$  độ dày 10 mm. Sau đó, điều chỉnh pH của mẫu nước bằng 8 bằng dung dịch axit clorua và amoni hydroxit loãng.

**Bước 2:** Lọc nước

Thực hiện lọc mẫu nước trong vòng từ 30-45 phút ở nhiệt độ phòng. Lưu ý, phải điều chỉnh tốc độ dòng chảy của nước ổn định ở mức 2 (mL/phút), hạn chế tác động ngoại lực lên phễu lọc để nước thấm đều tấm lọc và hạn chế nước tràn ra ngoài. Nước sau khi lọc được đựng trong lọ thủy tinh 250mL và nhốt trong vòng 10 ngày.

**Bước 3:** Đo mẫu phân tích

Mẫu nước sau khi nhốt được đo trên hệ thiết bị RAD7. Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  được xác định thông qua nồng độ  $^{222}\text{Rn}$ . Nguyên lý đo và xác định trình bày trong phụ lục 1.

### 2.2.2.4 Hiệu suất quy trình lọc chiết $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu nước giếng

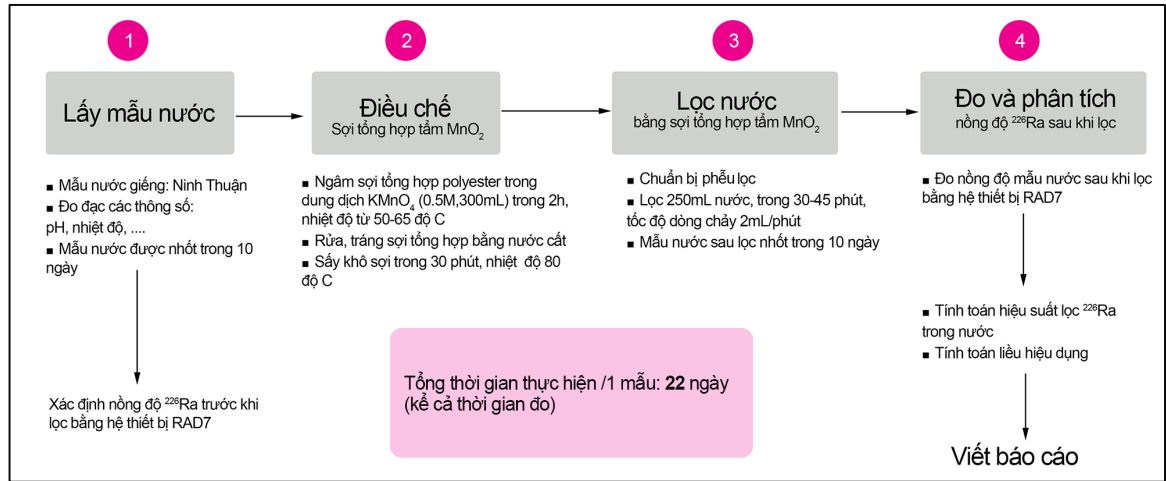
Hiệu suất quy trình lọc chiết  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu nước bằng sợi tổng hợp polyester tẩm  $\text{MnO}_2$  được tính theo công thức (2.7). Sai số kết quả được xác định theo công thức (2.8).

$$E(\%) = \left(1 - \frac{C_2}{C_1}\right) \cdot 100\% \quad (2.7)$$

$$\sigma_E(\%) = \left(\frac{C_2}{C_1}\right) \sqrt{\left(\frac{\sigma_{C_1}}{C_1}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_2}}{C_2}\right)^2} \cdot 100\% \quad (2.8)$$

Trong đó:  $C_1 \pm \sigma_{C_1}$  ( $\text{Bq/m}^3$ ),  $C_2 \pm \sigma_{C_2}$  ( $\text{Bq/m}^3$ ) lần lượt là nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu nước trước và sau khi lọc.





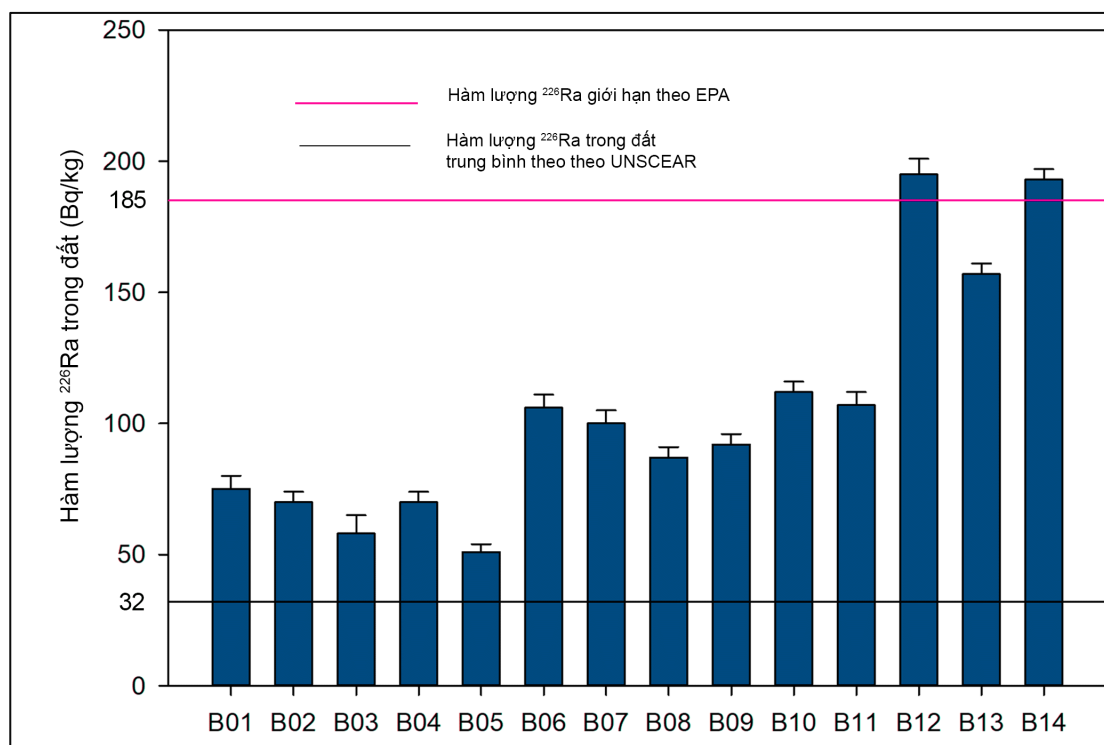
Hình 2. 3: Tóm tắt quy trình xử lý nhiễm bản  $^{226}\text{Ra}$  trong nước

## CHƯƠNG 3 : KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

### 3.1 Kết quả lọc tách $^{226}\text{Ra}$ bằng quy trình phân đoạn BCR

#### 3.1.1 Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu đất

Có 14 mẫu đất được chọn khảo sát trước khi thực hiện quy trình chiết tách gồm B1, B2, B3, B4, B5, B6, B7, B8, B9, B10, B11, B12, B13 và B14. Hàm lượng phóng xạ trong các mẫu dao động từ  $51 \pm 3$  đến  $195 \pm 6$  Bq/kg, giá trị được thể hiện trên đồ thị hình 3.1. Hàm lượng phóng xạ trung bình đạt  $105 \pm 5$  Bq/kg. Trong 14 mẫu đất khảo sát, có hai mẫu (B12, B14) có hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất vượt giới hạn theo tiêu chuẩn EPA (185 Bq/kg) [17]. Tất cả các mẫu còn lại đều có hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất vượt mức trung bình theo UNSCEAR (32 Bq/kg) [18]. Các mẫu đất được chọn có nguồn gốc và thành phần khác nhau, được sử dụng để tiến hành quy trình chiết tách  $^{226}\text{Ra}$ .

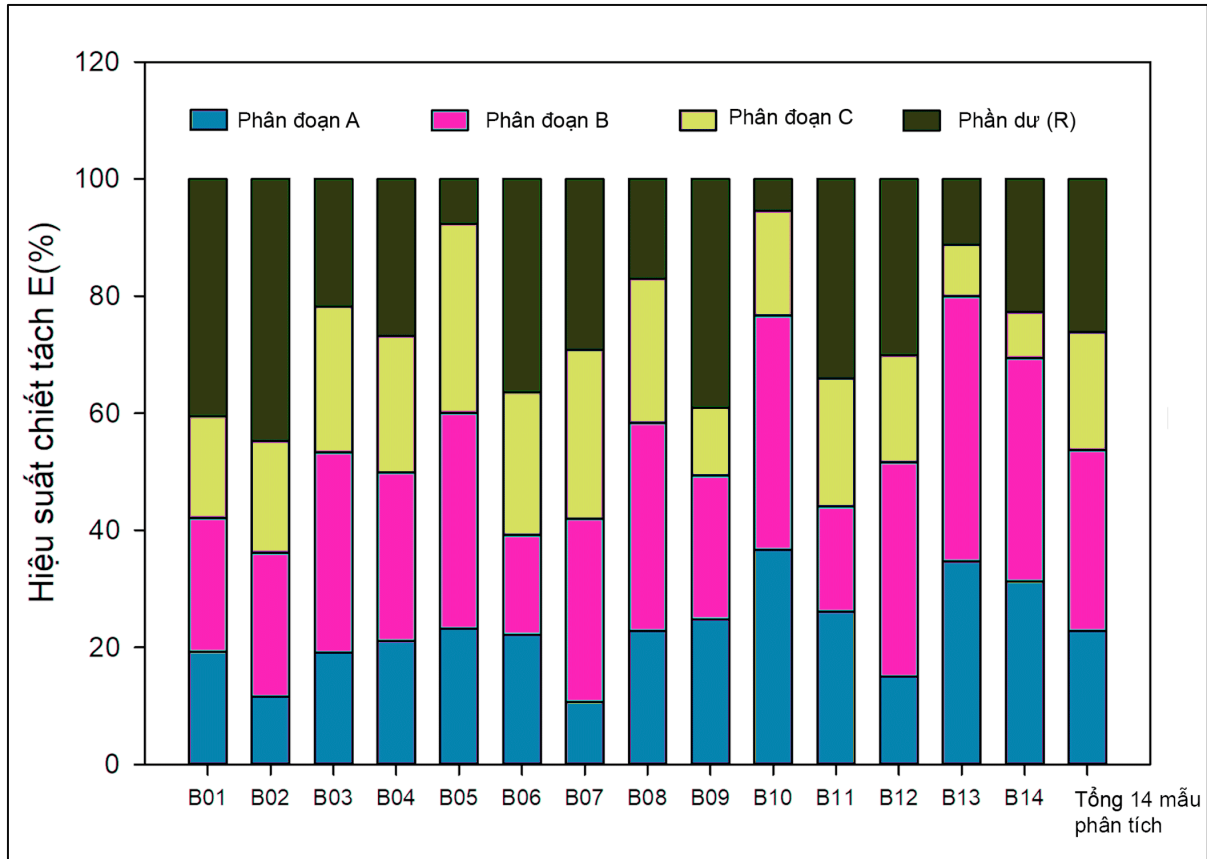


Hình 3. 1: Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong các mẫu đất phân tích

### 3.1.2 Đánh giá hiệu suất quy trình chiết tách $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu đất

Quy trình chiết tách được áp dụng theo ba phân đoạn: (A) Phân đoạn trao đổi ion và axit hóa, (B) Phân đoạn khử/axit, và (C) Phân đoạn oxi-hóa/sulphua, (R) là phần dư chủ yếu gồm các tinh thể silica và oxit của sắt mangan chưa hòa tan [2] [4] [5]. Hiệu suất lọc  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu đất được đánh giá trên từng phân đoạn và trên cả toàn bộ quy trình. Hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  của mỗi phân đoạn thể hiện trong đồ thị hình 3.2 và bảng 2 - phụ lục 2.

Hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách trong phân đoạn A thay đổi theo các mẫu, dao động từ  $8,16 \pm 1,30$  đến  $60,26 \pm 8,13$  (Bq/kg) với giá trị trung bình là  $25,02 \pm 3,90$  Bq/kg, kết quả chi tiết thể hiện trong bảng 1 – phụ lục 2. Hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  ở phân đoạn này (E1) thay đổi từ  $10,7 \pm 1,8$  đến  $36,7 \pm 9,7$  %, thể hiện trong hình 3.3. Giá trị trung bình, trung vị và trung bình hình học của hiệu suất là  $22,8 \pm 3,7$ ,  $22,5 \pm 2,2$  và  $21,5 \pm 3,3$  (%). Dựa vào các giá trị thống kê mô tả trên, ta thấy rằng hiệu suất chiết tách ở phân đoạn A này khá cao và đa phần ở các mẫu đều thì có giá trị dao động xung quanh từ 21 đến 22%. Giá trị hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  ở phân đoạn A tương đương với kết quả của tác giả Jamal Al Abdullah, giá trị trung bình đạt 19,2% [2]. Trong phân đoạn A,  $^{226}\text{Ra}$  thể hiện khả năng linh động cao trong dung dịch có tính axit mạnh (vùng pH từ 2 đến dưới 4). Trong môi trường này, các muối của radium trong dung dịch phân ly và tồn tại dạng ion  $\text{Ra}^{2+}$ , tham gia vào các phản ứng trao đổi ion  $\text{H}^+$  cũng như các anion khác trong dung dịch đất (như  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ). Vì vậy, lượng  $\text{Ra}^{2+}$  tồn tại trong đất có thể bị giải hấp thụ với một số thành phần của đất và bị hòa tan vào dung dịch [2] [15]. Trong tự nhiên, nếu các tác động tự nhiên và nhân tạo làm cho pH của môi trường đất hoặc chất thải tự nhiên nhỏ hơn 4,  $^{226}\text{Ra}$  sẽ có khả năng hòa tan cao và dễ dàng phân tán vào môi trường, gây ra mối nguy hại lớn về mặt phóng xạ cho môi trường và con người, đặc biệt là môi trường nước [15] [2] [11].

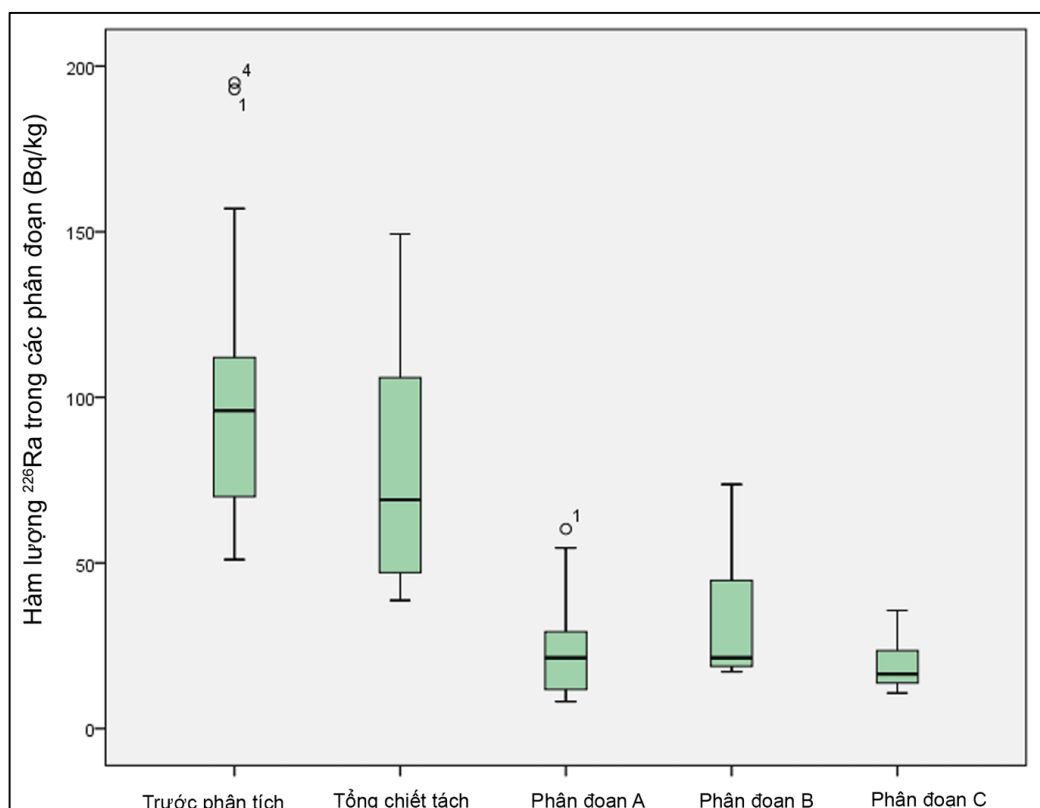


Hình 3. 2: Đồ thị so sánh hiệu suất chiết tách giữa các mẫu

Trong phân đoạn B, hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách được dao động từ  $17,12 \pm 1,82$  đến  $73,74 \pm 12,20$  Bq/kg, giá trị trung bình đạt  $33,99 \pm 3,98$  Bq/kg. Kết quả được thể hiện trong đồ thị hình 3.4. Hiệu suất chiết tách ở phân đoạn này (E2) dao động trong khoảng từ  $17,0 \pm 2,4$  đến  $45,3 \pm 6,2$  (%). Giá trị trung bình, trung vị và trung bình hình học của hiệu suất lần lượt đạt  $31,0 \pm 3,9$ ,  $32,8 \pm 3,6$  và  $29,8 \pm 3,8$  (%). Phân đoạn B là phân đoạn đưa lại hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  cao nhất so với các phân đoạn khác, điều này thể hiện rõ trong hình 3.3, phân đoạn này đóng góp tới 42% hiệu suất chiết tách tổng. Trong tự nhiên, ở điều kiện bình thường,  $^{226}\text{Ra}$  trong đất đá có khả năng bị hấp thụ rất tốt bởi các oxit và hydroxit của sắt và mangan [2] [8] [15]. Phân đoạn B tập trung giải hấp thụ  $^{226}\text{Ra}$  ra khỏi các hợp chất của sắt và mangan. Các mẫu đất được khảo sát trong khóa luận đều được khai thác từ vùng có nhiều đá và chứa hàm lượng sắt khá cao. Hầu

hết các mẫu đất đều ngả sang màu nâu hoặc nâu đỏ. Điều này có thể làm tăng hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trong phân đoạn B [15].

Hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách được trong phân đoạn C có giá trị dao động trong khoảng từ  $10,68 \pm 1,74$  đến  $35,65 \pm 4,70$  Bq/kg. Giá trị trung bình hàm lượng là  $19,23 \pm 2,78$  Bq/kg. Hiệu suất chiết tách của phân đoạn này (E3) thay đổi từ  $7,9 \pm 1,0$  đến  $32,3 \pm 4,8$  (%) đối với các mẫu khảo sát. Giá trị trung bình, trung vị và trung bình hình học đạt  $20,2 \pm 3,2$ ,  $20,6 \pm 3,0$ , và  $18,8 \pm 2,8$  (%). So với 2 phân đoạn A và B thì hiệu suất phân đoạn này là thấp nhất, minh họa trong hình 3.3. Đối chiếu kết quả phân tích của công trình [2], hiệu suất chiết tách tại phân đoạn C trong khóa luận cao hơn khoảng 8%. Theo công trình này, ở phân đoạn C, hiệu suất chiết tách dao động từ 2,4 đến 26,6 (%), giá trị trung bình đạt 11,9 (%) [2].



Hình 3. 3: Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách trong từng phân đoạn

Nhìn chung, sau ba phân đoạn, hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách được dao động từ  $38,69 \pm 3,00$  đến  $149,30 \pm 15,2$  Bq/kg. Giá trị trung bình đạt  $78,23 \pm 6,57$  Bq/kg. Hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách được giảm dần từ phân đoạn  $B > A > C$  tương ứng với giá trị trung bình lần lượt là  $33,99 \pm 3,98$  (Bq/kg)  $> 25,02 \pm 3,90$  (Bq/kg)  $> 19,23 \pm 2,78$  (Bq/kg). Các kết quả được thể hiện bằng đồ thị hình 3.4.

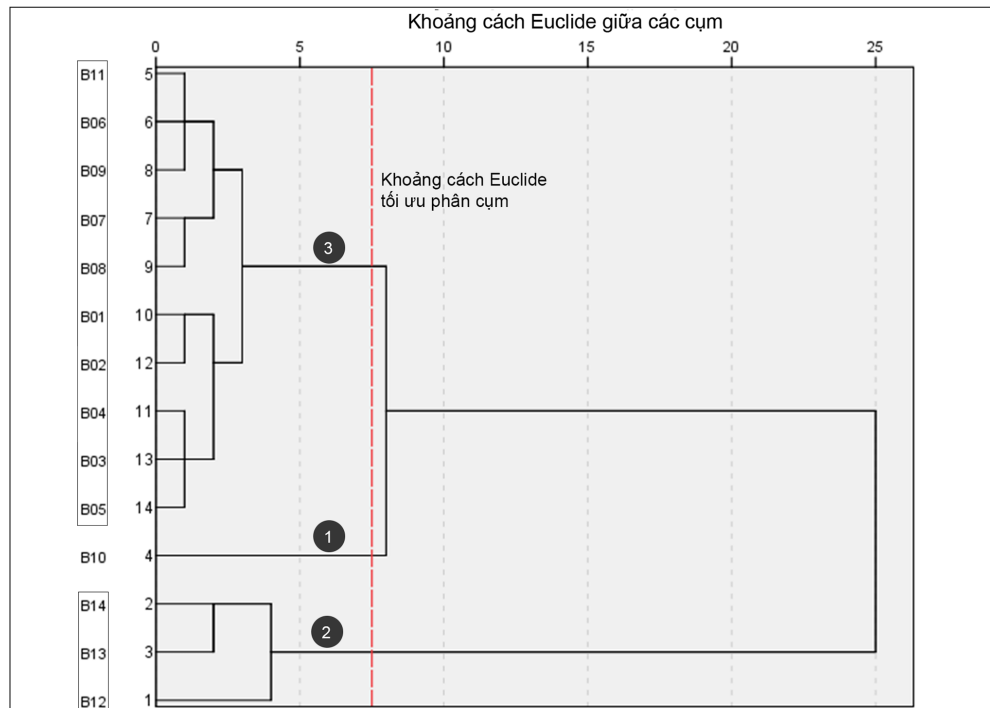
Hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong phần dư hay hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  vẫn chưa được chiết tách ước lượng dao động từ  $3,92 \pm 4,78$  đến  $58,71 \pm 8,86$  (Bq/kg), với giá trị trung bình là  $26,98 \pm 8,6$ . Hiệu suất chiết tách tổng E (%) của quy trình dao động từ  $55,3 \pm 4,7$  đến  $94,6 \pm 11,5$  %. Giá trị trung bình, trung vị và trung bình hình học của hiệu suất chiết tách lần lượt là  $73,8 \pm 6,5$ ,  $72,1 \pm 5,5$  và  $72,9 \pm 6,2$  (%). Có thể thấy rằng, hiệu suất chiết tách tổng E của quy trình khá cao, hầu hết các mẫu đều có giá trị trên 72%. Hiệu suất chiết tách tổng E được phân tích của tác giả cũng tương đương với kết quả phân tích của công trình [2], giá trị E dao động từ 45,2 đến 99,3%, với giá trị trung bình là  $71,9 \pm 20,1$  %.

### **3.1.3 Phân tích tương quan và thành phần chính ảnh hưởng đến hiệu suất**

#### **3.1.3.1 Phân tích cụm cluster (Cluster analysing)**

Phân tích cụm là phân tích thống kê đa biến nhằm phân loại các đối tượng (mẫu nghiên cứu) vào cụm dựa vào các đặc tính được chọn để phân tích. Trong nội bộ một cụm, các đối tượng phân tích sẽ đồng nhất cao các thuộc tính và khác biệt lớn đối với các biến thuộc các cụm khác [19] [20]. Trong khóa luận, phương pháp phân tích cụm (CA) bằng thuật toán phân cụm thứ bậc và thủ tục Ward – Clasify của bộ thống kê IBM-SPSS được áp dụng. Theo thủ tục Ward, ta sẽ tính giá trị trung bình tất cả các đối tượng cho từng cụm một; sau đó, tính khoảng cách Euclid bình phương giữa các phần tử trong cụm với giá trị trung bình của cụm, rồi lấy tổng tất cả các khoảng cách bình phương này. Ở mỗi giai đoạn tích tụ, hai cụm có phần tăng trong tổng các khoảng cách bình phương trong nội bộ cụm nếu kết hợp với nhau là nhỏ nhất sẽ được kết hợp [19].

Trong phần phân tích này, tác giả sử dụng các biến phân loại: pH (độ pH), CRa, CRa1, CRa2, CRa3 và CRaF lần lượt là hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trước khi chiết tách, hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách ở phân đoạn A, B, C và hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách tổng (A+B+C); E1, E2, E3 và E tương ứng là hiệu suất chiết tách ở phân đoạn A, B, C và hiệu suất chiết tách tổng. Kết quả phân tích sẽ cho ta cái nhìn tổng quan về hiệu suất chiết tách hay chất lượng của quy trình chiết tách BCR trong các mẫu.



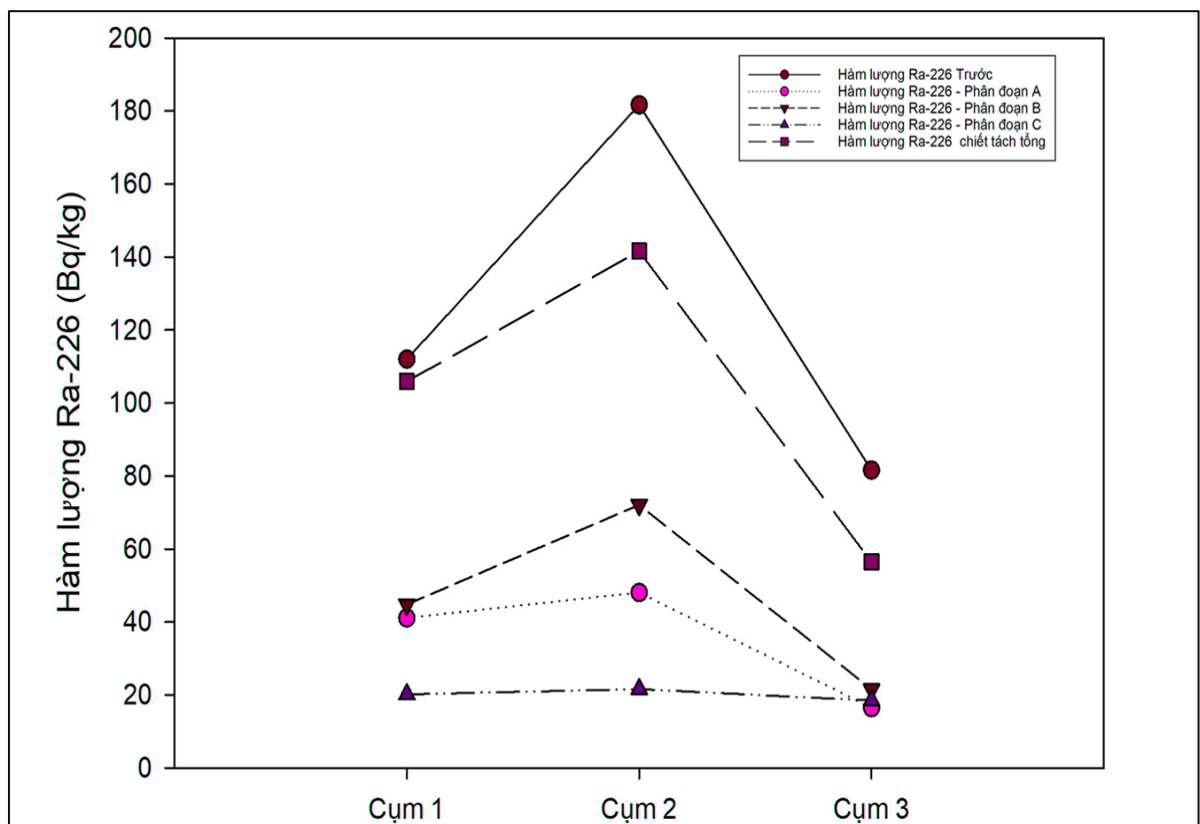
Hình 3. 4: Biểu đồ Dendrogram mô tả phân cụm (cluster)

Dựa vào biểu đồ phân tích cụm Dendrogram (hình 3.5) và kết quả phân tích các giá trị được trình bày trong bảng 3.1, các mẫu đất phân tích được phân thành 3 cụm như sau:

Cụm 1 gồm một mẫu B10. Cụm 1 nổi bật với giá trị hiệu suất chiết tách ở phân đoạn A và hiệu suất chiết tách tổng vượt trội so với hai cụm còn lại, thể hiện trong bảng 3.1. Mặc dù cụm 1 có giá trị hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất ở mức khá cao (112 Bq/kg), cao gấp 3,5 lần giá trị trung bình của  $^{226}\text{Ra}$  trong đất trên thế giới là 32 Bq/kg theo UNSCEAR [18], nhưng sau ba phân đoạn chiết tách thì hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  còn lại ở mức rất thấp, chỉ

6,04 Bq/kg. Do đó, có thể xem cụm 1 là cụm có chất lượng quy trình chiết tách cao nhất. Độ pH của mẫu đất trong cụm 1 có tính kiềm trung bình (7,98).

Cụm 2 gồm 3 mẫu B12, B13 và B14. Các giá trị độ pH, hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất trước và sau chiết tách trong phân đoạn A, B, C và tổng (A+B+C) cao hơn hai cụm còn lại, thể hiện trong hình 3.6. Hiệu suất chiết tách tổng của cụm 2 cao ở mức trung bình, đạt khoảng 78,67%, chỉ cao hơn khoảng 8% so với cụm 3. Tính kiềm trong các mẫu đất ở cụm 2 cao (độ pH trung bình là 8,07). Các mẫu trong cụm 2 đều có hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất khá cao, cao gấp 5,6 lần giá trị trung bình hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong đất trên thế giới theo UNSCEAR [18]. Sau ba phân đoạn chiết tách của quy trình BCR với hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách đạt được cao nhất so với hai cụm còn lại, hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trung bình còn lại chỉ 40,02 (Bq/kg).



Hình 3. 5: Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong các cụm phân tích

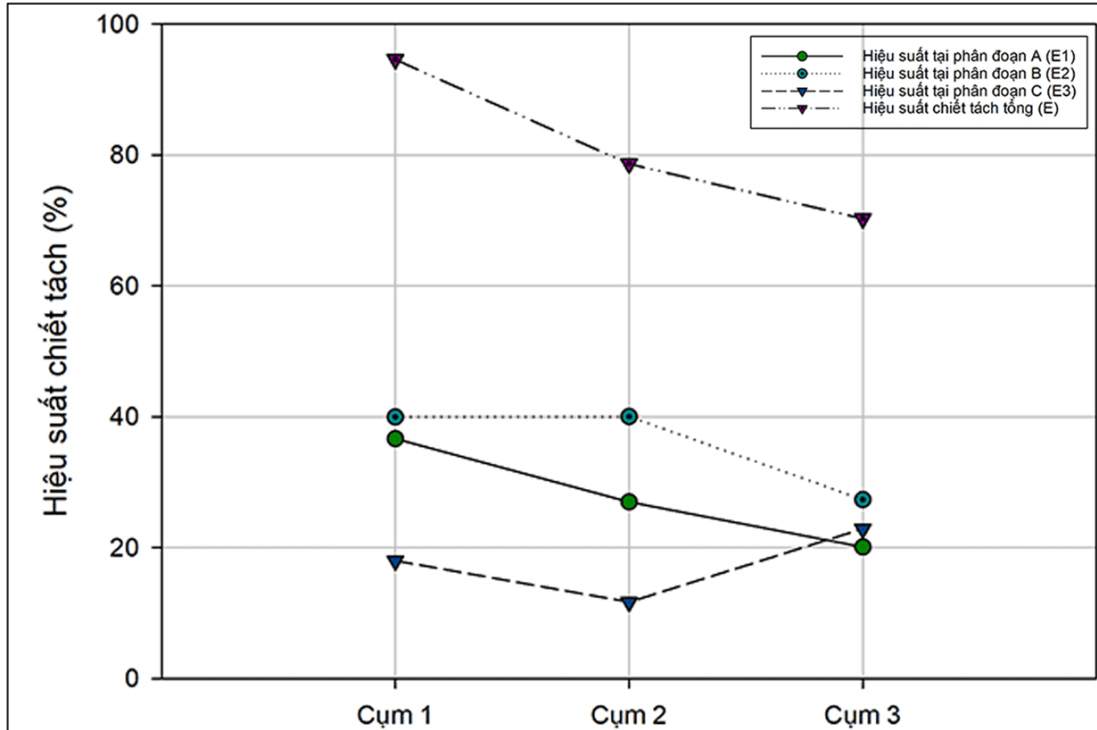


Bảng 3. 1: Giá trị trung bình của hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  và hiệu suất chiết tách trong ba cụm

Biến phân loại	Cụm 1	Cụm 2	Cụm 3
	Giá trị trung bình		
Độ pH	7,98	<b>8,14</b>	7,83
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trước (Bq/kg)	112,00	<b>181,67</b>	81,60
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ chiết tách phân đoạn A (Bq/kg)	41,05	<b>48,01</b>	16,51
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ chiết tách phân đoạn B (Bq/kg)	44,76	<b>72,05</b>	21,50
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ chiết tách phân đoạn C (Bq/kg)	20,15	<b>21,58</b>	18,43
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ chiết tách tổng (Bq/kg)	105,96	<b>141,65</b>	56,44
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong phần dư (Bq/kg)	6,04	40,02	<b>25,16</b>
Hiệu suất tại phân đoạn A: E1 (%)	<b>36,65</b>	26,98	20,09
Hiệu suất tại phân đoạn B: E2 (%)	39,96	<b>40,02</b>	27,34
Hiệu suất tại phân đoạn C: E3 (%)	17,99	11,66	<b>22,88</b>
Hiệu suất chiết tách tổng E (%)	<b>94,60</b>	78,67	70,31

Cụm 3 gồm 10 mẫu (B01, B02, B03, B04, B05, B06, B07, B08, B09, B11). Các giá trị hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách trong các phân đoạn và chiết tách tổng thấp hơn so với 2 cụm còn lại. Hiệu suất chiết tách tổng của cụm này vẫn cao, giá trị trung bình của cụm đạt 70,31%, nhưng vẫn thấp hơn so với cụm 1 và cụm 2, thể hiện trong bảng 3.1 và hình 3.7. Các mẫu trong cụm 3 có hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất thấp nhất so với cụm 1 và 2. So với giá trị hàm lượng trung bình trên thế giới, hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong cụm này chỉ cao hơn 2,5 lần. Trải qua 3 phân đoạn chiết tách, hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong phần dư còn 25,16 Bq/kg, thấp hơn 1,2 lần giá trị  $^{226}\text{Ra}$  trong đất trên thế giới theo UNSCEAR [18].

Vậy quy trình chiết tách phân đoạn BCR đã làm giảm thiểu đáng kể hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong các mẫu đất.



Hình 3. 6: Hiệu suất chiết tách trong các cụm phân tích

### 3.1.3.2 Khái niệm về phương pháp phân tích thành phần chính

Phân tích thành phần chính (Principal component analysis - PCA) là một kỹ thuật phân tích dữ liệu thống kê đa biến được sử dụng để trích xuất các dữ liệu quan trọng từ tập hợp các biến. PCA sẽ làm biến đổi dữ liệu bằng cách xoay các giá trị của các điểm xung quanh giá trị trung bình của chúng nhằm tập hợp chúng phù hợp với các trục thành phần (thành phần chính) [20] [21] [22]. Có thể hiểu đơn giản, phương pháp PCA được áp dụng để giảm số chiều của dữ liệu bao gồm nhiều biến có tương quan với nhau, trong khi dữ liệu trích được tối đa vẫn có ý nghĩa phân tích thống kê. So với các phương pháp thống kê đa biến dựa trên trị riêng của biến như: hồi quy bội, phân tích biệt số, phân tích phương sai,... phương pháp PCA là phương pháp phân tích đơn giản nhất

Các tham số trong phân tích PCA bao gồm [23]:

- Trị riêng: đại diện cho lượng biến thiên được giải thích bởi thành phần. Chỉ có những thành phần chính nào có trị riêng lớn hơn 1 mới được giữ lại để phân tích. Các thành phần chính có trị riêng nhỏ hơn 1 không có ý nghĩa trích thông tin tốt từ biến gốc.
- Hệ số tải nhân tố: là những hệ số tương quan đơn giữa các biến vào thành phần chính (PC).
- Ma trận nhân tố: chứa tất cả các hệ số tải nhân tố của tất cả các biến đổi đối với thành phần chính (PC) được trích ra.
- Phần trăm phương sai trích: phần trăm phương sai được giải thích bởi từng thành phần chính được trích ra.

Trong phần này, phương pháp phân tích thành phần chính được tiến hành nhằm đánh giá mối liên hệ giữa hiệu suất chiết tách trong từng phân đoạn, hiệu suất chiết tách tổng và các biến quan sát. Các biến quan sát gồm:

- Các biến thuộc về thuộc tính của đất: Độ pH (pH), hàm lượng của các kim loại (Fe, Al, Mn) và Si. Trong đó, độ pH của mẫu đất được xác định tại thời điểm lấy mẫu. Quy trình xác định và kết quả hàm lượng các nguyên tố này được trình bày trong bảng 3 - phần phụ lục 3.
- Các biến về hoạt tính phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất: Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trước phân tích (CRa), hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách trong từng phân đoạn A, B và C (CRa1, CRa2, CRa3).

Các biến phân tích là các biến thuộc hiệu suất chiết tách từng phân đoạn và hiệu suất chiết tách tổng.

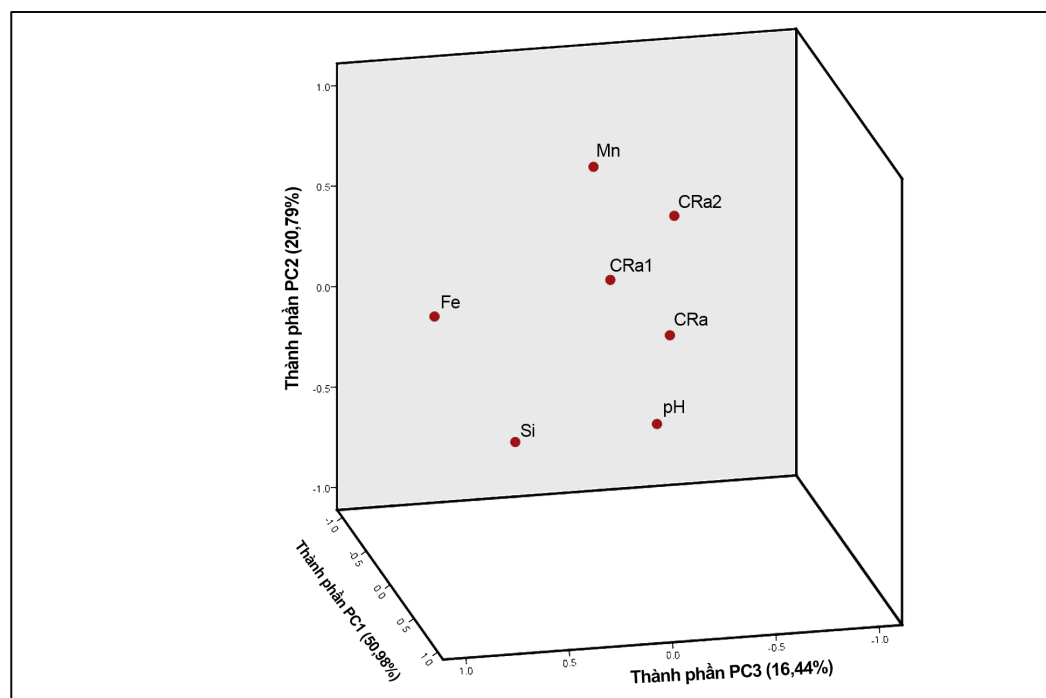
Tác giả đánh giá độ tin cậy của việc sử dụng các biến quan sát cho phương pháp phân tích PCA bằng hệ số Cronbach's Alpha. Theo tiêu chuẩn này, phép phân tích có thể được thực hiện khi hệ số Cronbach's Alpha có giá trị từ 0,7 đến 0,8 và các biến phải có hệ số tương quan với biến tổng lớn hơn hoặc bằng 0,3 [20]. Tác giả thực hiện kiểm định với 9 biến gồm (pH), (Fe), (Al), (Si), (Mn), (CRa), (CRa1), (CRa2), (CRa3), hệ số Cronbach's Alpha bằng  $0,518 < 0,7$ , riêng hai biến (CRa3) và (Al) có hệ số tương quan

với biến tổng nhỏ hơn 0,3. Để kết quả tin cậy, tác giả loại bỏ 2 biến này. Với bảy biến còn lại, hệ số Cronbach's Alpha bằng 0,793 và các biến đều có tương quan với biến tổng trên 0,3.

Nhằm đánh giá sự phù hợp của việc áp dụng phương pháp phân tích PCA với dữ liệu phân tích, tác giả thực hiện kiểm định Bartlett. Kết quả kiểm định Bartlett cho thấy, giá trị  $\chi^2_{21} = 41,19$ , p-value = 0,005, nhỏ hơn mức ý nghĩa alpha (0,05). Vì vậy, phương pháp phân tích PCA phù hợp với tập dữ liệu đang xét.

### 3.1.3.3 Kết quả phân tích thành phần chính

Các phép phân tích trị riêng vector và xoay ma trận tải nhân tố đã phân biệt được 3 thành phần chính có trị riêng lớn hơn 1, với tổng phương sai trích là 88,2% , tức là 88,2% sự thay đổi của kết quả các thành phần được giải thích bởi các biến quan sát, kết quả thể hiện trong hình 3.7 và trong bảng 3.2.



Hình 3. 7: Đồ thị biểu diễn hệ số tải nhân tố của các thành phần chính

Bảng 3. 2: Ma trận nhân tố của các thành phần chính

Các biến quan sát	PC1	PC2	PC3
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trước (CRa)	<b>0,952</b>	0,103	-0,227
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong phân đoạn A (CRa1)	<b>0,969</b>	-0,078	0,112
Hàm lượng $^{226}\text{Ra}$ trong phân đoạn B (CRa2)	<b>0,840</b>	-0,483	-0,100
Độ pH (pH)	<b>0,809</b>	<b>0,501</b>	-0,275
Hàm lượng Fe (Fe)	0,151	0,133	<b>0,876</b>
Hàm lượng Mn (Mn)	<b>0,434</b>	-0,699	0,331
Hàm lượng Si (Si)	0,391	<b>0,669</b>	0,353
Phần trăm phương sai (%)	<b>50,98</b>	20,79	16,44
Tổng phần trăm phương sai tích lũy (%)	50,98	71,77	<b>88,20</b>
Giá trị trị riêng (eigenvalue)	<b>3,57</b>	1,46	1,15

Thành phần PC1 chiếm 50,98% tổng phương sai, và đây cũng là thành phần quan trọng nhất ảnh hưởng đến kết quả phân tích. Trong thành phần PC1, các biến có hệ số tải nhân tố dương lớn gồm hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trước (0,952), hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách ở phân đoạn A (0,969), phân đoạn B (0,840), độ pH (0,809) và hàm lượng Mn (0,434). Thành phần PC2 chiếm 20,79% tổng phương sai của biến phân tích, với các biến có hệ số tải nhân tố dương là độ pH (0,501), hàm lượng Si (0,669). Biến hàm lượng Fe với hệ số tải nhân tố là 0,876, đóng góp đáng kể về phương sai của thành phần PC3. Tuy nhiên, thành phần PC3 chỉ chiếm 16,44 % của tổng phương sai trích của biến phân tích.

Các biến về hàm lượng chiết tách ở phân đoạn A và B chiếm tỉ trọng lớn trong thành phần PC1, điều đó cho thấy phân đoạn A và B đóng vai trò quan trọng đối với hiệu suất chiết tách tổng cũng như hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách tổng.

Độ pH trong đất có mặt trong thành phần PC1 và PC2, thể hiện đây là nhân tố quan trọng ảnh hưởng tích cực đến quá trình hấp thụ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất cũng như hiệu suất chiết

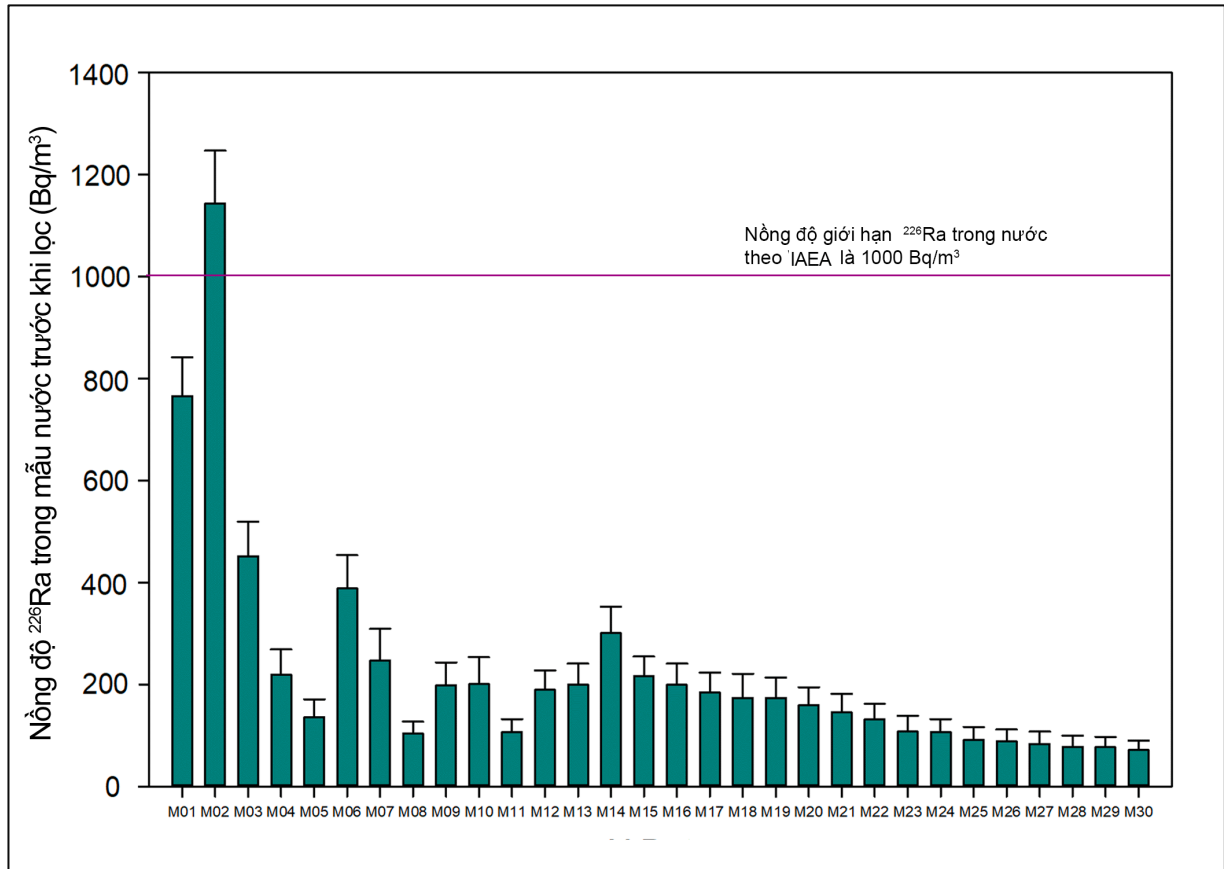
tách trong phân đoạn A và B. Khi độ pH của đất cao (từ 7,5 trở lên), dẫn đến khả năng trao đổi cation của đất (CEC) sẽ tăng. Trong điều kiện này, đất có lượng anion lớn cũng như bề mặt tĩnh điện tích điện âm, dẫn đến các cation của kim loại trong đó có ion  $Ra^{2+}$  có ái lực cao sẽ bị hấp thụ và giữ lại trong đất [2] [15] [24].

Hàm lượng mangan và sắt lần lượt đóng góp đáng kể vào phương sai của thành phần PC1 và PC3. Điều này thể hiện, sắt và mangan là những yếu tố ảnh hưởng đến quá trình giải hấp thụ  $^{226}Ra$  trong phân đoạn (A), (B) cũng như hiệu suất chiết tách. Các oxit và oxyhidroxit của sắt và mangan có khả năng hấp thụ  $^{226}Ra$  có trong hạt đất và khoáng vật trong đá mẹ [16] [24]. Theo kết quả nghiên cứu của công trình [24] thể hiện rằng khi độ pH của dung dịch xuống thấp dưới 4, liên kết của các kim loại như đồng, sắt, mangan, kẽm với bề mặt hạt đất bị phá vỡ, dẫn đến một lượng lớn  $^{226}Ra$  trong hạt đất được giải hấp thụ, phân li và trao đổi ion trong dung dịch. Trong phân đoạn khử (B), các hóa chất được sử dụng với mục đích giải hấp thụ  $^{226}Ra$  trong các liên kết với các oxit và oxyhidroxit của sắt, mangan [2] [15].

Mặc dù kết quả phân tích PCA không có mặt của các biến quan sát thuộc phân đoạn C, nhưng không vì thế ta đánh giá thấp tầm quan trọng và bỏ qua phân đoạn này. Công trình [2] chỉ ra rằng thành phần hữu cơ đóng một vai trò quan trọng trong việc giữ lại  $^{226}Ra$  cùng một số các kim loại khác hấp thụ  $^{226}Ra$  trong đất như: sắt, mangan, canxi,... Trong phân đoạn C, các hóa chất được sử dụng với mục đích tạo ra các quá trình oxi hóa, cắt các liên kết hữu cơ của hợp chất hữu cơ và liên kết sulfua, giúp tăng cường giải hấp thụ  $^{226}Ra$  và tham gia trao đổi ion trong dung dịch có tính axit cao [2] [15]. Do đó, hiệu suất chiết tách trong phân đoạn này chủ yếu phụ thuộc vào hàm lượng các chất hữu cơ trong đất, không phụ thuộc nhiều vào các biến đang xét. Mặt khác, hàm lượng sét của đất là một trong những đặc trưng quan trọng của đất và cũng là yếu tố tác động đến hiệu suất chiết tách ở phân đoạn A và hiệu suất chiết tách tổng [2]. Tuy nhiên, trong khóa luận, chúng tôi chưa thực hiện phân tích hàm lượng hữu cơ trong đất và hàm lượng sét nên đây là một nội dung nên được tiến hành trong các nghiên cứu tiếp theo.

## 3.2 Kết quả lọc chiết $^{226}\text{Ra}$ trong nước giếng

### 3.2.1 Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong các mẫu nước giếng

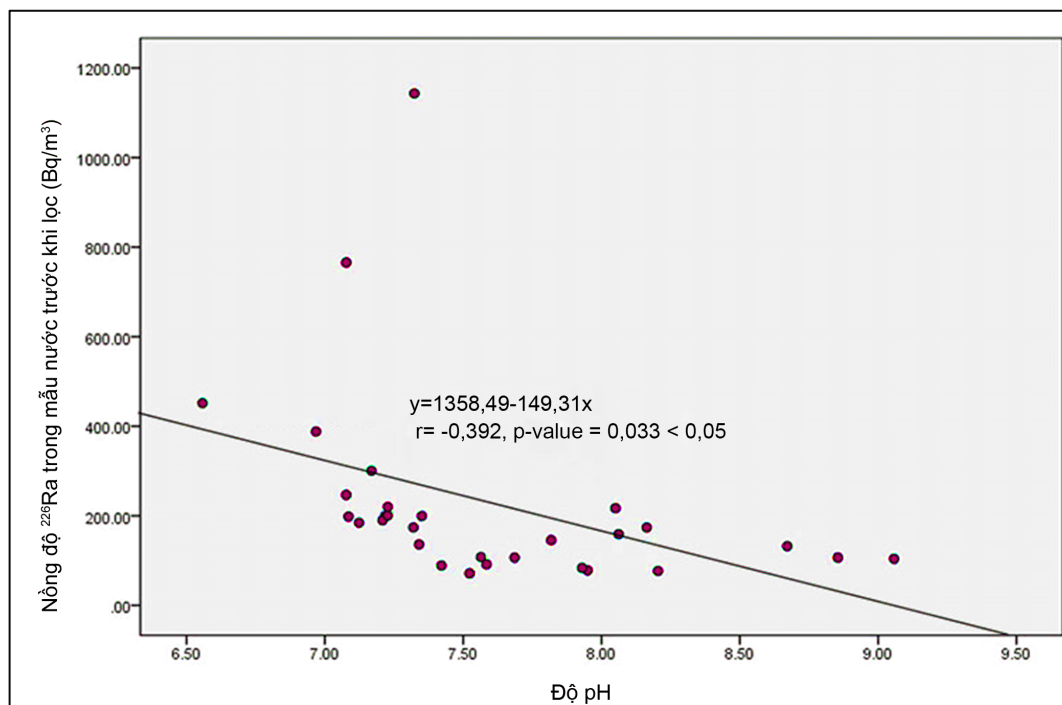


Hình 3. 8: Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong các mẫu nước giếng khảo sát

Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong các mẫu nước giếng dao động từ  $71,45 \pm 18,76$  đến  $1143,14 \pm 103,40$  ( $\text{Bq/m}^3$ ). Giá trị trung bình trên 30 mẫu đo được là  $224,72 \pm 41,08 \text{ Bq/m}^3$ , kết quả được thể hiện trong đồ thị hình 3.8. Trong 30 mẫu khảo sát, chỉ có mẫu M02 có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  ( $1143,1 \pm 103,4 \text{ Bq/m}^3$ ) vượt giới hạn an toàn theo tiêu chuẩn IAEA ( $1000 \text{ Bq/m}^3$ ) [25]. Trị trung bình nồng độ của các mẫu này đạt  $363,15 \pm 56,28 \text{ Bq/m}^3$ . Các mẫu còn lại có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước thấp hơn ngưỡng giới hạn của IAEA [25].

Kết quả kiểm tra pH các mẫu nước giếng cho thấy hầu hết tất cả mẫu nước khảo sát đều có tính kiềm. Độ pH đo được có giá trị dao động từ 6,56 đến 9,06, giá trị trung bình

là  $7,59 \pm 0,58$ . Để đánh giá ảnh hưởng của pH lên nồng độ phóng xạ của  $^{226}\text{Ra}$  trong các mẫu nước, tác giả thực hiện kiểm định tương quan tuyến tính Pearson giữa hai yếu tố này trong 30 mẫu nước giếng khảo sát.



Hình 3. 9: Đồ thị thể hiện tương quan giữa độ pH và nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước

Kết quả cho thấy độ pH và nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước có mối tương quan nghịch, hệ số tương quan Pearson đạt xấp xỉ -0,4 và giá trị kiểm định p-value là 0,033, bé hơn mức ý nghĩa 0,05. Tức là các mẫu nước có độ pH càng thấp thì nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu càng cao và ngược lại, được mô tả trong hình 3.9. Điều này phù hợp với kết quả nghiên cứu của R.M.R. Almeida [13]. Khi pH tăng từ 7 trở đi dẫn đến thay đổi độ trao đổi ion dương (CEC) của bề mặt pha rắn, lúc này,  $^{226}\text{Ra}$  tồn tại trong pha rắn là chủ yếu, do bị hấp thụ bởi các ion dương trong đất đá như các ion của sắt, mangan, nhôm... nên nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  hòa tan thấp. Ngược lại, khi pH thấp, từ 4 trở xuống,  $^{226}\text{Ra}$  được giải hấp thụ từ pha rắn và trao đổi ion dạng  $\text{Ra}^{2+}$  trong pha lỏng, nên nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  hòa tan sẽ tăng [13] [15]. Tuy nhiên, nồng độ phóng xạ của  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu nước còn phụ thuộc vào nhiều yếu tố



khác như tính chất của tầng đất đá nơi nước chảy qua, độ sâu của giếng nước lấy mẫu, cũng như ảnh hưởng của các yếu tố thời tiết (lượng mưa, nhiệt độ, độ ẩm,...) [15] [13] [1]. Vì vậy, hệ số tương quan chỉ đạt mức trung bình.

### **3.2.2 Đánh giá mức độ hấp thụ $\text{MnO}_2$ trên sợi tổng hợp**

Các mẫu sợi vải tổng hợp được cân khối lượng trước và sau khi tẩm  $\text{MnO}_2$  để xác định lượng  $\text{MnO}_2$  bám trên mẫu vải. Khảo sát được thực hiện trên 6 mẫu vải có kích thước 6 cm×6 cm. Với thời gian ngâm là 60 phút, hàm lượng  $\text{MnO}_2$  hấp thụ được tính bằng tỉ lệ khối lượng  $\text{MnO}_2$  trên vải sau khi tẩm và khối lượng vải trước khi tẩm. Giá trị trung bình của hàm lượng  $\text{MnO}_2$  hấp thụ trên sợi vải là  $292,00 \pm 11,89$  (mg/g). Phần trăm theo khối lượng  $\text{MnO}_2$  hấp thụ đạt giá trị trung bình  $29,21 \pm 1,19$  %.

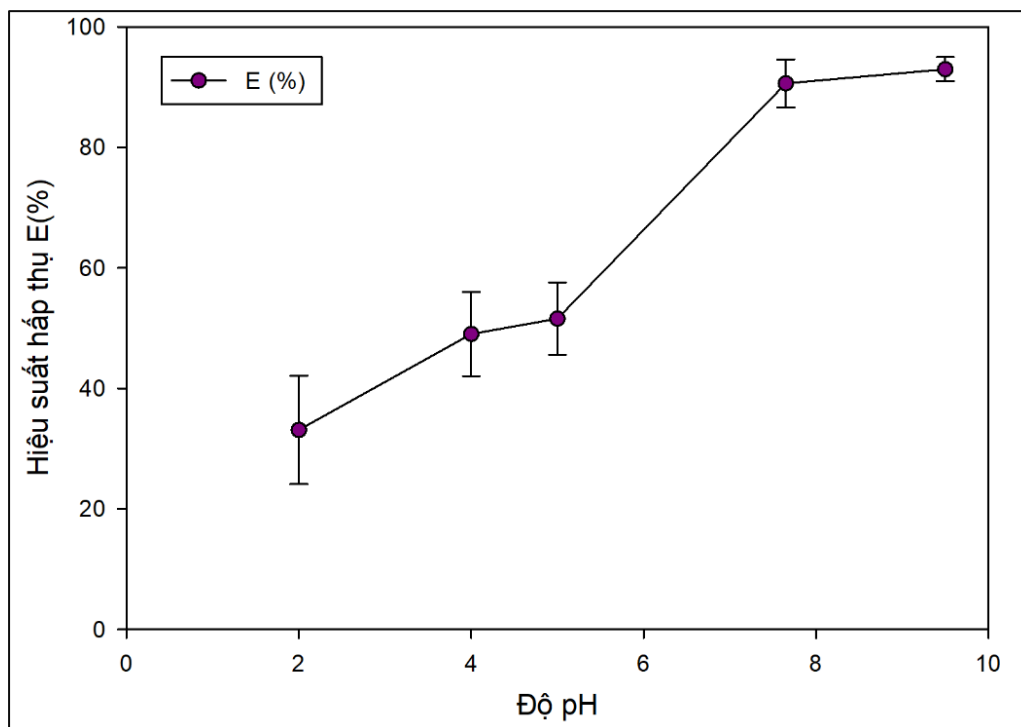
Một số kết quả nghiên cứu trên thế giới về khả năng hấp thụ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước của các sợi  $\text{MnO}_2$  thể hiện rằng hiệu suất hấp thụ  $^{226}\text{Ra}$  tỉ lệ thuận với hàm lượng  $\text{MnO}_2$  hấp thụ trên sợi vải [6] [26]. Theo các kết quả nghiên cứu của Willard S. Moore, lượng  $\text{MnO}_2$  hấp thụ trên sợi vải gần 30% là phù hợp để đưa lại hiệu suất lọc  $^{226}\text{Ra}$  cao [9] [6]. Lượng  $\text{MnO}_2$  hấp thụ trên sợi vải trong khóa luận cũng gần đạt được mức này.

Thời gian ngâm vải cũng là yếu tố quyết định mức độ hấp thụ  $\text{MnO}_2$  trên sợi vải. Trong quá trình thực nghiệm cũng như tham khảo các công trình nghiên cứu khác [6] [13] [26], tác giả thấy rằng khoảng thời gian ngâm sợi vải trong dung dịch  $\text{KMnO}_4$  hợp lí là từ 45 đến 60 phút. Trong quá trình này, mẫu vải từ màu cam vàng dần hóa nâu đen và dung dịch  $\text{KMnO}_4$  tại thời điểm sau khi ngâm có thể tích từ 50 đến 80 mL.

### **3.2.3 Đánh giá ảnh hưởng của độ pH lên khả năng hấp thụ $^{226}\text{Ra}$ trên sợi $\text{MnO}_2$**

Độ pH là yếu tố quan trọng ảnh hưởng đến hiệu suất lọc. Để đánh giá ảnh hưởng của độ pH dung dịch đến hiệu suất hấp thụ  $^{226}\text{Ra}$  trên sợi tổng hợp tẩm  $\text{MnO}_2$ , tác giả thực hiện lọc nước trên mẫu M4 với độ pH tăng dần từ 2 đến 9,5. Kết quả thể hiện trong hình 3.10 và bảng 6 – phần phụ lục 6. Hiệu suất lọc đạt dưới 50% khi pH của dung dịch có tính axit cao, độ pH từ 2 đến 4. Tại pH bằng 5, hiệu suất đạt 51,59%. Hiệu suất tăng lên đáng kể trong khoảng pH từ 5,5 đến 7,5. Tại pH bằng 7,5, hiệu suất đạt 90,63 %. Khi pH

tăng dần từ 7,5 đến 9,5, hiệu suất tăng lên không đáng kể, từ 90,63 đến 92,99 %. Kết quả này có phần phù hợp với kết quả của các công trình [6] [27]. Theo đây, hiệu suất lọc  $^{226}\text{Ra}$  trong nước bằng sợi tẩm  $\text{MnO}_2$  trong vùng pH từ 7,5-8,0 là trên 90%.

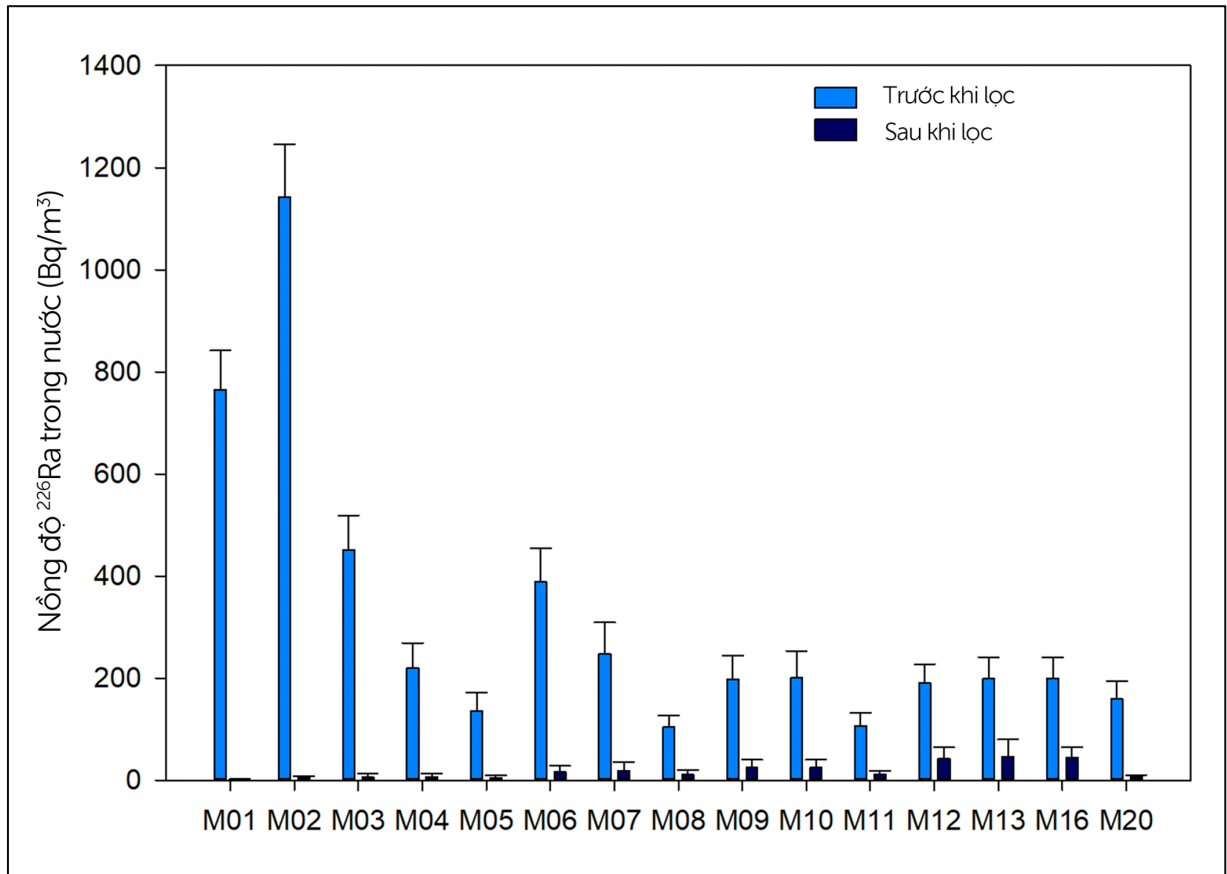


Hình 3. 10: Độ pH của dung dịch ảnh hưởng hiệu suất lọc chiết  $^{226}\text{Ra}$  trong nước

Trong điều kiện độ pH của dung dịch có tính axit (pH dưới 4), trong dung dịch tồn tại nhiều ion  $\text{H}^+$  dẫn đến bề mặt hấp thụ của  $\text{MnO}_2$  có tích điện dương, ngăn cản khả năng hấp thụ các ion dương trong dung dịch trong đó có  $\text{Ra}^{2+}$  lên bề mặt. Khi độ pH của dung dịch đạt từ 7 đến 11, nhóm  $\text{OH}^-$  có mặt nhiều trong dung dịch, bề mặt hấp thụ của  $\text{MnO}_2$  lúc này tích điện âm. Điều này sẽ giúp các ion dương trong đó có  $\text{Ra}^{2+}$  dễ dàng hấp thụ nhiều trên bề mặt. Khi pH tăng dần từ 11, radium bắt đầu thủy phân dạng  $\text{Ra}(\text{OH})^+$ ,  $\text{Ra}(\text{HCO}_3)^+$  và  $\text{Ra}(\text{CO}_3)$  trong dung dịch [13] [26] [27]. Như vậy, vùng pH dung dịch từ 7 đến 8 là vùng phù hợp để bề mặt  $\text{MnO}_2$  hấp thụ tốt  $^{226}\text{Ra}$  trong dung dịch. Dựa vào các kết quả phân tích, tác giả điều chỉnh độ pH của dung dịch bằng 8 cho tất cả mẫu nước chuẩn bị lọc bằng dung dịch  $\text{NH}_4\text{OH}$  và  $\text{HCl}$  để tối ưu hóa hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trong nước.

### 3.2.4 Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong mẫu nước sau khi lọc

Trong 30 mẫu nước khảo sát, chúng tôi chọn 15 mẫu nước giếng gồm M1, M2, M3, M4, M5, M6, M7, M8, M9, M10, M11, M12, M13, M16 và M20 có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trung bình  $313,91 \pm 50,80 \text{ Bq/m}^3$  để áp dụng thực hiện quy trình lọc chiết  $^{226}\text{Ra}$ . Kết quả được thể hiện trong hình 3.11 và bảng 4 - phụ lục 4.



Hình 3. 11: Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước giếng trước, sau khi lọc và hiệu suất lọc tương ứng

Các mẫu nước giếng sau khi lọc có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  dao động từ 1,48 đến 45,83 Bq/m<sup>3</sup>, giá trị trung bình đạt  $16,09 \pm 11,23 \text{ Bq/m}^3$ . Kết quả này cho thấy các mẫu nước sau khi lọc có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  thấp hơn đáng kể (thấp hơn khoảng 12 lần) so với ngưỡng an toàn theo tiêu chuẩn của USEPA. Kết quả cho thấy trong 15 mẫu được lọc, giá trị của hiệu suất lọc chiết  $^{226}\text{Ra}$  ra khỏi mẫu nước giếng đều trên 75%, dao động từ  $77,03 \pm 17,65$  đến

99,81±0,08 %, giá trị trung bình của hiệu suất đạt 90,81±6,33 %. Kết quả này phù hợp khi so sánh với công trình [6]. Theo tác giả, hiệu suất lọc  $^{226}\text{Ra}$  trung bình trong các mẫu nước đạt trên 90%. Tương tự, công trình [28] đã thực hiện quy trình lọc  $^{226}\text{Ra}$  trong nước bằng tấm lọc  $\text{MnO}_2$ , hiệu suất hấp thụ dao động từ 80 từ 97%. Phương pháp sử dụng trong khóa luận phù hợp để xử lý các mẫu nước giếng có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  cao [13].

## KẾT LUẬN

Khóa luận đã thực hiện được những nội dung sau:

- Phân tích nồng độ phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong 14 mẫu đất và 30 mẫu nước giếng được thu thập tại khu vực huyện Ninh Sơn, tỉnh Ninh Thuận.
- Dựa trên quy trình chiết tách kim loại trong trong mẫu đất của một số công trình trên thế giới, tác giả đã xây dựng được quy trình xử lý nhiễm bẩn phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất. Áp dụng quy trình chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  xử lý nhiễm bẩn cho 14 mẫu đất có hàm lượng phóng xạ cao hơn hàm lượng trung bình trên thế giới theo UNSCEAR [18].
- Xây dựng được quy trình xử lý nhiễm bẩn phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước bằng sợi vải tổng hợp tấm  $\text{MnO}_2$ . Quy trình được áp dụng lọc tách  $^{226}\text{Ra}$  trong 15 mẫu nước giếng.
- Áp dụng các kỹ thuật phân tích thống kê mô tả và phân tích thống kê đa biến nhằm đánh giá các nhân tố ảnh hưởng đến hiệu suất chiết tách của quy trình chiết tách phân đoạn BCR và quy trình hấp thụ trên sợi vải tấm  $\text{MnO}_2$ .

Từ các kết quả thu được, có thể rút ra một số kết luận sau:

### **Đối với quy trình chiết tách phân đoạn BCR:**

Hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trong các mẫu đất có giá trị phù hợp với một số công trình trên thế giới. Hiệu suất chiết tách tổng trung bình của quy trình đạt  $73,8 \pm 6,5$  (%). Có thể kết luận đây là quy trình phù hợp để xử lý nhiễm bẩn phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  trong đất. Hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  chiết tách được giảm dần từ phân đoạn khử (B) > phân đoạn trao đổi/axit hóa (A) > phân đoạn oxi-hóa/sulphua (C).

Từ dữ liệu thống kê, tác giả thực hiện phân tích cụm cluster nhằm đánh giá hiệu suất chiết tách trong từng cụm mẫu. Ba cụm mẫu được chia từ dữ liệu thu được. Trong đó, cụm 1 và cụm 2 thể hiện hiệu suất chiết tách cao hơn so với cụm 3 [18].

Kết quả phân tích PCA thể hiện ba thành phần chính với tổng phương sai trích 88,2%. Phân đoạn A và B là hai phân đoạn đóng góp chính vào hiệu suất chiết tách của quy trình BCR. Độ pH là yếu tố chi phối hàm lượng phóng xạ  $^{226}\text{Ra}$  ban đầu trong các

mẫu đất. Hàm lượng nguyên tố Fe, Mn trong đất cũng là các yếu tố có ảnh hưởng đến hiệu suất chiết tách  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu đất.

**Đối với quy trình hấp thụ  $^{226}\text{Ra}$  trên sợi tổng hợp  $\text{MnO}_2$ :**

Trong 30 mẫu nước giếng khảo sát, chỉ có một mẫu (M02) có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong nước vượt giới hạn theo tiêu chuẩn IAEA [25]. Các mẫu nước còn lại có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  ở mức an toàn phóng xạ.

Sau khi thực hiện một số thí nghiệm xác định các điều kiện tiến hành trong quy trình lọc tách  $^{226}\text{Ra}$ , tác giả áp dụng một số điều kiện tối ưu gồm: thời gian tẩm sợi tổng hợp trong dung dịch  $\text{KMnO}_4$  kéo dài từ 45 đến 60 phút, khối lượng  $\text{MnO}_2$  bám trên sợi vải phù hợp đề nghị của một số công trình nghiên cứu trên thế giới, mẫu nước lọc luôn được chuẩn bị với pH bằng 8.

Các mẫu nước giếng sau khi lọc có nồng độ trung bình  $^{226}\text{Ra}$  đạt  $16,09 \pm 11,23 \text{ Bq/m}^3$ . Hiệu suất lọc chiết trung bình  $90,81 \pm 6,33 \%$ , giá trị này phù hợp với một số công bố trên thế giới. Có thể kết luận phương pháp sử dụng trong khóa luận phù hợp để xử lý các mẫu nước giếng có nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  cao.

## KIẾN NGHỊ VÀ HƯỚNG PHÁT TRIỂN

Các mẫu đất được phân tích trong khóa luận chỉ là những mẫu có hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  cao trên mức trung bình. Quy trình chiết tách phân đoạn BCR cần được áp dụng phân tích trên các mẫu được xem là chất thải tự nhiên có nguồn gốc từ các quá trình khai thác quặng uranium, quặng vàng, dầu mỏ,... Bên cạnh đó, quy trình BCR chỉ được áp dụng trên 14 mẫu đất. Cần thực hiện nhiều phân tích trên nhiều loại đất khác nhau để có kết luận có thể mang tính đại diện cho tất cả các loại đất.

Lượng mẫu sử dụng trong các phép phân tích thống kê còn khá ít. Cần có nhiều kết quả đo đạc để việc đánh giá được chính xác, tổng quát hơn. Bên cạnh một số yếu tố đã được đánh giá trong khóa luận, hàm lượng hữu cơ trong đất, hàm lượng canxi và hàm lượng sét trong đất cũng là các yếu tố ảnh hưởng đến hiệu suất chiết tách. Đây là một nội dung cần được thực hiện trong các nghiên cứu tiếp theo.

Quy trình lọc tách  $^{226}\text{Ra}$  trong nước nên được áp dụng thực hiện trên các mẫu nước có nồng độ phóng xạ cao hơn. Cần tiến hành đánh giá khả năng hấp thụ  $^{226}\text{Ra}$  của sợi  $\text{MnO}_2$  theo một số yếu tố khác nhau như hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong mẫu, lượng mẫu sử dụng, nhiệt độ môi trường,....

## TÀI LIỆU THAM KHẢO

### Tiếng Việt

- [1] Huỳnh Nguyễn Phong Thu (2014), *Khảo sát nồng độ phóng xạ  $^{222}\text{Rn}$  và  $^{226}\text{Ra}$  trong nước sinh hoạt tại khu vực Thủ Đức, TP Hồ Chí Minh,* Luận văn Thạc sĩ, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQG-HCM.

### Tiếng Anh

- [2] Jamal Al Abdullah, Mohammad Said Al-Masri, Yusr Amin, Ibrahim Awad, Zuhair Sheuib (2016), *Chemical fractionation of radium-226 in NORM contaminated soil from oilfields*, Journal of Environmental Radioactivity, vol. 165, pp. 47-53.
- [3] Mark D. Ho, Greg J. Evans (1997), *Operational Speciation of Cadmium, Copper, Lead and Zinc in the NIST Standard Reference Materials 2710 and 2711 (Montana Soil) by the BCR Sequential Extraction Procedure and Flame Atomic Absorption Spectrometry*, Analytica Chimica Acta, vol. 34, pp. 363-364.
- [4] G. Rauret, J. F. López-Sánchez, A. Sahuquillo, R. Rubio, C. Davidson, A. Ure and Ph. Quevauviller (1998), *Improvement of the BCR three step sequential extraction procedure prior to the certification of new sediment and soil reference materials*, Journal of Environmental Monitoring, vol. 1, pp. 57-61.
- [5] Nuša Ptistišek, Radmila, Milačič, Marjan Veber (2001), *Use of the BCR Three-step Sequential Extraction Procedure for the Study of the Partitioning of Cd, Pb and Zn in Various Soil Samples*, Journal of Environmental Monitoring, vol. 1, no. 1, pp. 25–29.
- [6] Willard S. Moore, David F. Reid (1973), *Extraction of Radium from Natural Waters Using Manganese-Impregnated Acrylic Fibers*, Journal of Geophysical Research, vol. 78, no. 36, pp. 8880-8886.
- [7] Shigeo UCHIDA, Keiko TAGAMI (2009), *Transfer of Radium-226 from Soil to Rice: A Comparison of Sampling Area Differences*, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 46, no. 1, pp. 49-54.



- [8] C.Prieto, J.C.Lozano, P. Blanco Rodríguez, F. VeraTomé (2013), *Enhancing radium solubilization in soils by citrate, EDTA, and EDDS chelating amendments*, Journal of Hazardous Materials, vol. 250–251, pp. 439-446.
- [9] Willard S. Moore, Lewis M. Cook (1975), *Radium is absorbed from natural waters on to acrylic fibres impregnated with oxides of manganes,"* International Journal of Science and Nature, vol. 253, p. 262–263.
- [10] David F.Reid, Robert M.Key, David R.Schink (1979), *Radium, thorium, and actinium extraction from seawater using an improved manganese-oxide-coated fiber*, Earth and Planetary Science Letters, vol. 43, no. 2, pp. 223-226.
- [11] M.T.Crespo, J.L.Gascón, M.L.Aceña (1993), *Techniques and analytical methods in the determination of uranium, thorium, plutonium, americium and radium by adsorption on manganese dioxide*, Science of The Total Environment, vol. 130–131, pp. 383-391.
- [12] Gordana Marović, Jasminka Senčar, Zdenko Franić, Nevenka, Lokobauer (1996), *Radium-226 in Thermal and Mineral Springs of Croatia and Associated Health Risks*, Journal of Environmental Radioactivity, vol. 33, no. 3, pp. 309-317.
- [13] R.M.R.Almeida, D.C.Lauria, A.C.Ferreira, O.Sracek (2003), *Groundwater radon, radium and uranium concentrations in Região dos Lagos, Rio de Janeiro State, Brazil*, Journal of Environmental Radioactivity, vol. 73, no. 3, pp. 323-334.
- [14] Richard N. Peterson (2009), *Comparison of measurement methods for radium-226 on manganese-fiber*, Sciences of Limnology and Oceanography, vol. 7, no. 2, pp. 196-205.
- [15] IAEA (2014), *The Environmental Behaviour of Radium: Revised Edition*, Vol.1, No.476: IAEA, Vienna.
- [16] IAEA (1990), *The Environmental Behaviour of Radium: Revised Edition* Vol.1, No.31, IAEA, Vienna.

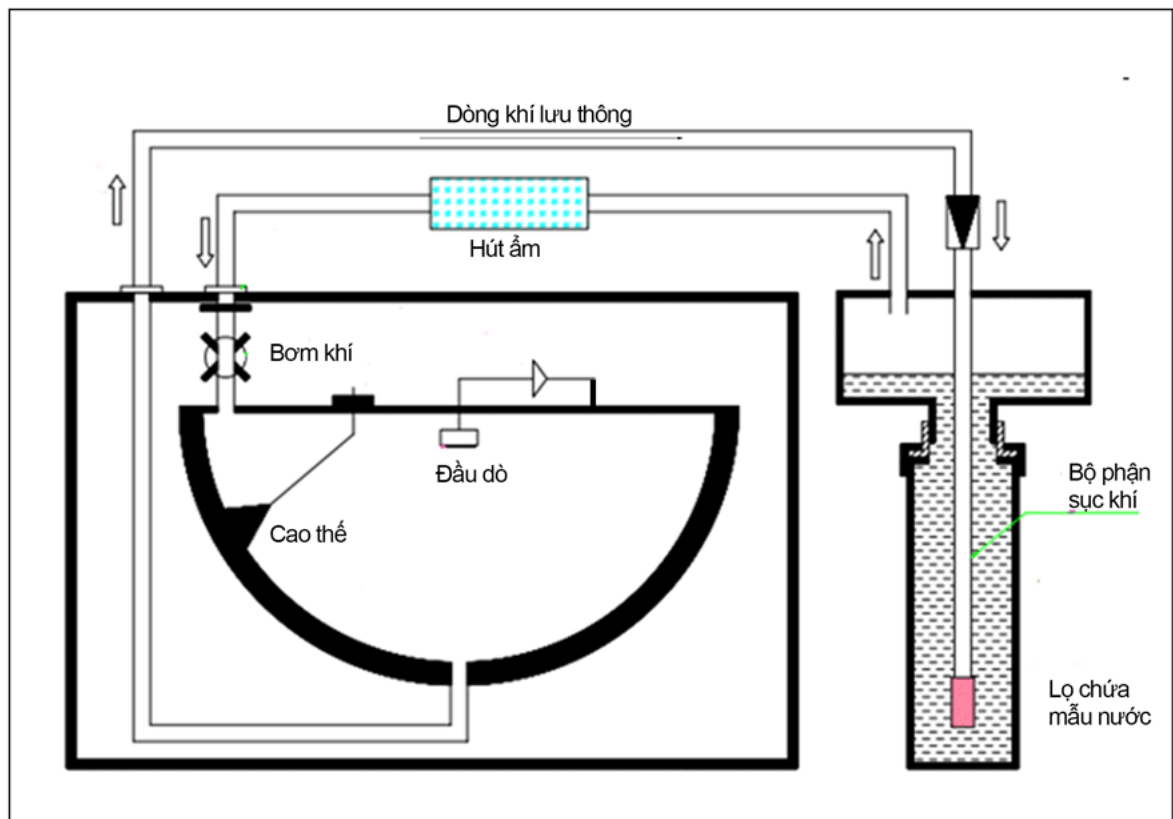
- [17] UNSCEAR (2008), *Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report to General Assembly with Scientific Annexes*. United Nations, New York.
- [18] EPA (2018), *Rapid Method for Radium in Soil Incorporating the Fusion of Soil and Soil-Related Matrices with the Radioanalytical Counting Method for Environmental Remediation Following Radiological Incidents*, EPA-600-R-12-635.
- [19] Shafiq ur Rehman, Zakir Hussain, Shabnam Zafar, Hidayat Ullah, Shakeel Badshah, Sheikh Saeed Ahmad and Javeria Saleem (2018), *Assessment of Ground Water Quality of Dera Ismail Khan, Pakistan, Using Multivariate*, Science, Technology and Development, vol. 37, no. 4, pp. 173-183 .
- [20] Andy Field (2017), *Discovering Statistics Using IBM SPSS Statistics*, 5th ed., SAGE edge, 2017, pp. 166-627.
- [21] Jianing Liu, Xiaoxu Wu, Chenlu Li, Bing Xu, LuoJia Hua, Jin Chen, Shuang Dai (2016), *Identification of weather variables sensitive to dysentery in disease-affected county of China*, Science of the Total Environment, vol. 575, no. 1, pp. 956-962.
- [22] Mrunmayee M.Sahoo, K.C.Patra, K.K.Khatua (2015), *Inference of Water Quality Index using ANFIA and PCA*, Aquatic Procedia, vol. 4, pp. 1099-1106.
- [23] Y.Gao, W.Baeyens, S.De Galan, A.Poffijn, M.Leermakers (2010), *Mobility of radium and trace metals in sediments of the Winterbeek: application of sequential extraction and DGT techniques*, Environmental Pollution, vol. 158, no. 7, pp. 2439-2445.
- [24] Phong Thu Huynh Nguyen, Van Thang Nguyen, Ngoc Ba Vu, Van Dong Nguyen, Hao Le Cong (2018), *Soil radon gas in some soil types in the rainy season in Ho Chi Minh City, Vietnam*, Journal of Environmental Radioactivity, vol.193–194, pp.27-35
- [25] IAEA (2016), *Criteria for Radionuclide Activity Concentrations for Food and Drinking Water*, IAEA TECDOC, No. 1788, pp 11-13, Vienna.
- [27] R. Patel, Dennis, A. Clifford (1991), *Radium removal from water by manganese dioxide adsorption and diatomaceous-earth filtration*. Enviromental Protection Agency, Vols. EPA/600/2-91/063 (NTIS PB92115260).

- [28] Mahmoud Nasr, Hoda Farouk, Zahran (2016), *Performance evaluation of agricultural drainage water using modeling and statistical approaches*, The Egyptian Journal of Aquatic Research, vol. 42, no. 2, pp. 141-148.
- [29] P.van Beek, M.Bourquin, J.-L.Reyss, M.Souhaut, M.A.Charette, C.Jeandel (2008), *Radium isotopes to investigate the water mass pathways on the Kerguelen Plateau (Southern Ocean)*, Deep-Sea Research, vol. 55, no. 5-7, pp. 622-637.
- [30] Katherine F Mossop, Christine M Davidson (2003), *Comparison of original and modified BCR sequential extraction procedures for the fractionation of copper, iron, lead, manganese and zinc in soils and sediments*, Analytica Chimica Acta, vol.478, no. 1, pp. 111-118.
- [31] WHO (2008), *Guidelines for Drinking-water Quality*, WHO Press, Geneva.
- [32] EPA (2015), *Method 9045D: Soil and Waste pH, part of Test Methods for Evaluating Solid Waste, Physical/Chemical Methods*, OSWER, Office of Resource Conservation and Recovery, USA.
- [33] Abdou A Abdou, Mohamed S Nagar, Reda A Ghazala (2018), *Removal of Radium from Uranium Effluent by Manganese Oxide Coated Modified Bentonite (Mn-NaB)*, Mediterranean Journal of Chemistry, vol. 7, no. 2, pp. 105-114

## PHỤ LỤC

### Phụ lục 1: Quy trình xác định nồng độ $^{222}\text{Rn}$ trong nước [1]

Sơ đồ hệ thí nghiệm đo nồng độ radon trong nước được thể hiện trên hình 1. Khi bắt đầu quá trình đo, bơm trong RAD7 súc khí vào lọ đựng mẫu, đẩy khí phóng xạ hòa tan trong lọ ra khỏi nước và tạo thành dòng lưu thông khép kín đi qua buồng đo. Hiệu suất tách radon khỏi nước, đưa vào vòng không khí khoảng 94% đối với lọ 250 ml. Radon thoát khỏi mẫu nước, liên tục tuần hoàn qua ống hút ẩm, buồng đo và sau đó trở về mẫu nước để thiết lập trạng thái cân bằng giữa radon trong nước và không khí. Sau 5 phút, bơm trong RAD7 sẽ dừng hoạt động. Ngắt kết nối giữa mẫu và RAD7, hệ thiết bị được đóng kín và hoạt động đo trong 4 đến 5 giờ.



Hình 1: Sơ đồ lấy khí radon trong mẫu nước và đo bằng RAD7

Buồng đo khí phóng xạ bên trong RAD7 có hình bán cầu, được phủ phía trong một lớp dẫn điện. Bộ phận ghi nhận tín hiệu làm bằng tấm silicon phẳng và được đặt ở tâm bán cầu. Mạch điện cung cấp điện áp (2000 - 2500) V, tạo nên điện trường trong toàn bộ buồng đo. Điện trường giúp đẩy các hạt tích điện đến đầu dò. RAD7 xác định nồng độ radon dựa vào việc đo phổ năng lượng của tia alpha. Khi bắt đầu quá trình đo, máy bơm đưa khí chứa radon (đã được làm khô) vào buồng. Đầu lọc khí chỉ cho khí hiếm đi qua và ngăn cản các đồng vị con cháu gây ảnh hưởng đến kết quả đo. Radon là nguyên tử khí trung hòa về điện nên không được hệ đo ghi nhận cho đến khi phân rã, tạo thành  $^{218}\text{Po}$ , tồn tại dạng ion dương. Điện trường trong buồng đo mang các hạt tích điện dương đến đầu dò. Đồng vị  $^{218}\text{Po}$  phân rã ngay trên bề mặt đầu dò. Hạt alpha tạo ra có khả năng đập vào đầu dò và tạo nên xung điện có độ lớn tỷ lệ thuận với năng lượng. Các quá trình phân rã tiếp tục diễn ra tạo thành các hạt alpha có năng lượng khác nhau, sinh ra các tín hiệu có biên độ khác nhau, được khuếch đại và chuyển thành tín hiệu số nhờ các mạch điện. Bộ xử lý thu nhận các tín hiệu, lưu trữ trong bộ nhớ theo năng lượng của từng hạt alpha và xây dựng các đỉnh phổ năng lượng riêng biệt. Số đếm ở các cửa sổ A ( $^{218}\text{Po}$ ) và C ( $^{214}\text{Po}$ ) để xác định nồng độ radon vì chúng ghi nhận alpha từ phân rã của các con cháu radon. Số đếm ở các cửa sổ B ( $^{216}\text{Po}$ ) và D ( $^{212}\text{Po}$ ) được ghi nhận để xác định nồng độ thoron vì chúng chứa số đếm từ các con cháu của thoron. Hình 2.2 minh họa ví dụ một phổ alpha lấy từ RAD7. Thông thường, khoảng sau 3 giờ, số đếm ở cửa sổ C sẽ cân bằng với số đếm ở cửa sổ A. Vì vậy, 3 giờ đầu, nồng độ radon sẽ được xác định dựa vào số đếm ở cửa sổ A, sau đó, cả số đếm ở cửa sổ A và cửa sổ C đều được dùng để xác định nồng độ radon. Ngoài ra, RAD7 gộp các tín hiệu nhiễu và số đếm alpha ghi nhận được từ đồng vị  $^{210}\text{Po}$  vào cửa sổ O.  $^{210}\text{Po}$  là đồng vị con cháu của radon xuất hiện khi máy được sử dụng trong một thời gian dài. Các số đếm này không đóng góp vào nồng độ radon vì đã được đưa vào một cửa sổ khác. Đây là điểm ưu việt của RAD7.

## Phụ lục 2: Đánh giá hiệu suất quy trình lọc chiết BCR

Bảng 1. Hàm lượng  $^{226}\text{Ra}$  trong từng phân đoạn chiết tách

Tên mẫu	Độ pH	Trước phân tích (Bq/kg)	Tổng chiết tách (Bq/kg)	Phân đoạn A (Bq/kg)	Phân đoạn B (Bq/kg)	Phân đoạn C (Bq/kg)
B01	7,66	75±5	44,65±3,02	14,42±1,36	17,12±1,82	13,11±1,99
B02	7,35	70±4	38,69±3,00	8,16±1,30	17,12±1,82	13,41±1,99
B03	7,22	58±7	45,36±3,15	11,12±1,55	19,82±2,01	14,42±1,87
B04	8,10	70±4	51,29±3,35	14,76±1,81	20,15±2,10	16,38±1,88
B05	7,88	51±3	47,08±3,73	11,83±1,78	18,81±2,39	16,45±2,24
B06	7,88	106±5	67,44±4,18	23,52±2,32	18,03±2,48	25,88±2,44
B07	8,05	100±5	70,91±4,88	10,72±1,68	31,27±2,67	28,92±3,72
B08	8,06	87±4	72,26±4,42	19,82±2,23	30,94±2,79	21,50±2,60
B09	7,93	92±4	56,04±4,08	22,85±2,32	22,51±2,87	10,68±1,74
B10	7,98	112±4	105,96±12,67	41,05±10,72	44,76±4,15	20,15±5,31
B11	8,14	107±5	70,64±8,51	27,90±3,72	19,21±4,32	23,52±6,32
B12	8,05	195±6	136,29±6,10	29,25±2,56	71,38±4,68	35,66±2,96
B13	8,24	157±4	139,35±15,79	54,53±12,45	71,04±9,54	13,78±1,83
B14	8,13	193±4	149,30±15,19	60,26±8,82	73,74±12,20	15,30±2,00
<b>Trung bình</b>	7,91±0,30	105,2±4,6	78,2±6,6	25,0±3,9	34,0±4,0	19,2±2,8

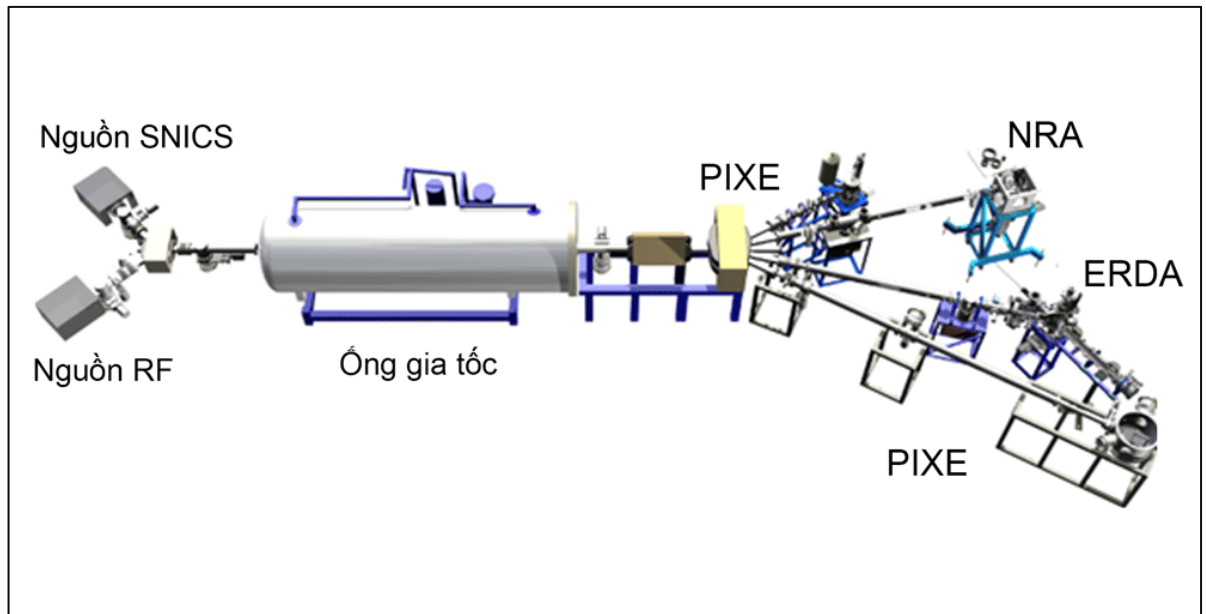
Bảng 2: Hiệu suất lọc tách  $^{226}\text{Ra}$  qua ba phân đoạn trong quy trình BCR

Tên mẫu	Phân đoạn A	Phân đoạn B	Phân đoạn C	Tổng (A+B+C)
	E1 (%)	E2 (%)	E3(%)	E (%)
B01	19,2±2,2	22,8±2,9	17,5±2,9	59,5±4,6
B02	11,7±2,0	24,5±3,0	19,2±3,1	55,3±4,7
B03	19,2±3,5	34,2±5,4	24,9±4,4	78,2±7,8
B04	21,1±2,9	28,8±3,4	23,4±3,0	73,3±5,4
B05	23,2±3,8	36,9±5,2	32,3±4,8	92,3±8,0
B06	22,2±2,4	17,0±2,5	24,4±2,6	63,6±4,3
B07	10,7±1,8	31,3±3,1	28,9±4,0	70,9±5,4
B09	24,8±2,7	24,5±3,3	11,6±2,0	60,9±4,7
B08	22,8±2,8	35,6±3,6	24,7±3,2	83,1±5,6
B10	36,7±9,7	40,0±4,0	18,0±4,8	94,6±11,5
B11	26,1±3,7	18,0±4,1	22,0±6,0	66,0±8,2
B12	15,0±1,4	36,6±2,7	18,3±1,6	69,9±3,4
B13	34,7±8,0	45,3±6,2	8,8±1,2	88,8±10,2
B14	31,2±4,6	38,2±6,4	7,9±1,1	77,4±7,9
<b>Trung bình</b>	22,8±3,7	31,0±4,0	20,1±3,2	73,8±6,5

### Phụ lục 3: Xác định hàm lượng các nguyên tố Fe, Al, Si và Mn trong mẫu đất

Hàm lượng bốn nguyên tố Fe, Mn, Al và Si trong các mẫu đất được phân tích bằng hệ máy gia tốc tĩnh điện 5SDH-2 kép của Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Hà Nội.

Máy có điện áp gia tốc cực đại lên đến 1,7 MV, có thể gia tốc nhiều loại ion khác nhau với khoảng năng lượng rộng. Mô hình hệ máy gia tốc được trình bày trong hình 2.



Hình 2: Mô hình hệ máy gia tốc 5SDH-2

Máy gia tốc có hai nguồn ion với cơ chế khác nhau:

Nguồn ion trao đổi điện tích RF: dùng để tạo proton và helium. Helium hoặc proton được phun vào bình thạch anh qua một van định lượng để duy trì áp suất cỡ 10 – 15  $\mu$ Torr. Máy tạo dao động cao tần (khoảng 100 MHz) sẽ tạo ra trạng thái plasma trong ống thạch anh. Hiệu điện thế một chiều được áp vào để gia tốc các ion dương.

Nguồn SNICS (Source of Negative Ions by Cesium Sputtering): Nguồn này cho phép tạo các ion từ hydrogen tới bismuth. Hơi cesium đi vào thể tích kín giữa cathode lạnh và bề mặt nóng của điện cực ion hóa. Một số nguyên tử cesium ngưng tụ trên bề



mặt cathode. Một số nguyên tử cesium bị ion hóa trên bề mặt nóng của điện cực tạo thành ion  $\text{Cs}^+$ . Các ion  $\text{Cs}^+$  được gia tốc tới cathode với vận tốc lớn sẽ gây ion hóa trên cathode. Các ion từ vật liệu của cathode bị ion hóa, các ion này đi qua lớp cesium ngưng tụ trung hòa ngay trước bề mặt cathode. Tùy theo vật liệu mà khi các ion  $\text{Cs}^+$  được phun vào sẽ tạo ra ion âm, ion dương hoặc trung hòa. Các hạt này sẽ bắt thêm các electron khi chúng đi qua lớp cesium ngưng tụ trung hòa và tạo thành ion âm. Các ion âm này sẽ được hút ra để đưa tới các bộ phận hội tụ, gia tốc tiếp theo.

Các ion được tạo ra sẽ được gia tốc qua buồng gia tốc chính. Các ion gia tốc phục vụ cho các hệ phân tích thành phần nguyên tố dựa vào cơ chế tán xạ ngược Rutherford – RBS, phân tích thành phần nguyên tố dựa vào tia X đặc trưng được tạo ra khi chiếu chùm proton – PIXE, phân tích thành phần nguyên tố dựa vào phản ứng hạt nhân – NRA và phân tích H, He dựa vào cơ chế tán xạ đàn hồi – ERDA.

Thành phần nguyên tố trong các mẫu đất được xác định bằng kỹ thuật PIXE. Trong báo cáo, chúng tôi sử dụng chùm proton năng lượng 1,7 MeV chiếu vào mẫu 20 phút, làm phát ra các tia X đặc trưng cho mỗi nguyên tố. Khi đó, thành phần và hàm lượng nguyên tố trong các mẫu đất được xác định dựa vào năng lượng và số tia X đặc trưng phát ra. Mẫu được chuẩn bị với bề dày 0,1 mm và đường kính 13 mm. Đường kính hạt đất của các mẫu nhỏ hơn 0,1 mm. Thiết bị để ghi nhận bức xạ phát ra là detector bán dẫn Si (Li).

Bảng 3: Hàm lượng Fe, Al, Si và Mn trong các mẫu

Tên mẫu	Hàm lượng Fe (ppm)	Hàm lượng Al (ppm)	Hàm lượng Si (ppm)	Hàm lượng Mn (ppm)	Độ pH
B01	39591	122604	198775	426	7,66
B03	38013	81405	249142	1038	7,35
B05	49707	143098	200575	296	7,22
B06	40320	33125	264840	125	8,10
B07	34152	132967	203915	11	7,88
B08	28800	69300	228977	480	7,88
B09	52800	87990	272973	330	8,05
B11	40500	33540	264974	150	8,14
B13	45300	80298	234219	1171	8,24
<b>Trung bình</b>	41020	87148	235377	448	7,84

**Phụ lục 4: Nồng độ  $^{226}\text{Ra}$  trong các mẫu nước giếng trước và sau khi thực hiện lọc bằng sợi tổng hợp tẩm  $\text{MnO}_2$**

Bảng 4: Nồng độ các mẫu phân tích trước và sau khi lọc bằng sợi tổng hợp tẩm  $\text{MnO}_2$

Tên mẫu	Độ pH	Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trước khi lọc ( $\text{Bq/m}^3$ )	Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ sau khi lọc ( $\text{Bq/m}^3$ )	Hiệu suất lọc chiết E(%)
M01	7,08	765,69±76,18	1,48±0,58	99,81±0,08
M02	7,32	1143,14±103,40	4,04±3,78	99,65±0,33
M03	6,56	451,59±67,25	6,74±6,35	98,51±1,42
M04	7,23	219,73±49,25	6,74±5,95	96,93±2,79
M05	7,34	136,15±35,09	5,39±4,38	96,04±3,38
M06	6,97	388,24±65,37	16,18±12,14	95,83±3,20
M07	7,08	246,69±62,27	18,87±16,70	92,35±7,04
M08	9,06	103,80±23,46	10,78±8,63	89,61±8,64
M09	7,09	198,16±45,12	25,61±14,88	87,07±8,07
M10	7,23	200,86±52,62	24,26±16,19	87,92±8,66
M11	8,85	106,50±25,87	10,78±8,09	89,87±7,99
M12	7,21	190,07±37,55	41,79±22,37	78,01±12,55
M13	7,35	201,50±45,43	45,83±33,89	77,03±17,65
M16	7,22	199,51±41,43	44,49±19,80	77,70±10,95
M20	8,06	159,07±35,69	6,74±3,18	95,76±2,21
<b>Trung bình</b>	7,44±0,69	313,91±50,80	17,98±11,79	90,81±6,33

### Phụ lục 5: Hàm lượng MnO<sub>2</sub> hấp thụ trên sợi vải tổng hợp

Bảng 5: Hàm lượng MnO<sub>2</sub> hấp thụ trên sợi vải tổng hợp

Tên mẫu	Khối lượng vải trước khi tẩm MnO <sub>2</sub> (g)	Khối lượng vải sau khi tẩm MnO <sub>2</sub> (g)	Khối lượng MnO <sub>2</sub> hấp thụ (mg)	Hàm lượng MnO <sub>2</sub> hấp thụ trên vải (mg/g)	Phần trăm khối lượng MnO <sub>2</sub> hấp thụ (%)
A1	0,3753	0,4928	117,45	312,95	31,29
A2	0,3786	0,4868	108,12	285,56	28,56
A3	0,3784	0,4845	106,08	280,32	28,03
A4	0,3669	0,4754	108,48	295,65	29,57
A5	0,3864	0,496	109,6	283,64	28,36
A6	0,3849	0,4983	113,35	294,49	29,45
<b>Trung bình</b>	0,3785±0,007	0,4889±0,008	110,52±4,16	292±11,89	29,21±1,19

**Phụ lục 6: Ảnh hưởng của độ pH đến hiệu suất chiết lọc  $^{226}\text{Ra}$  bằng phương pháp hấp thụ trên sợi tổng hợp tẩm  $\text{MnO}_2$  (mẫu M04)**

**Bảng 6: Hiệu suất hấp thụ theo độ pH trong nước**

Tên mẫu	Độ pH của nước	Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong nước trước khi lọc (Bq/m <sup>3</sup> )	Nồng độ $^{226}\text{Ra}$ trong nước sau khi lọc (Bq/m <sup>3</sup> )	Hiệu suất chiết lọc $^{226}\text{Ra}$ (%)
M4-1	2,00	$211,64 \pm 42,1$	$141,54 \pm 77,92$	$33,12 \pm 39,15$
M4-2	4,00	$211,64 \pm 42,1$	$107,84 \pm 50,02$	$49,04 \pm 25,72$
M4-3	5,00	$211,64 \pm 42,1$	$102,45 \pm 38,36$	$51,59 \pm 20,53$
M4-4	7,65	$215,69 \pm 48,4$	$20,22 \pm 11,47$	$90,63 \pm 5,72$
M4-5	9,50	$211,64 \pm 42,1$	$14,83 \pm 8,56$	$92,99 \pm 4,68$