

BỘ GIÁO DỤC VÀ ĐÀO TẠO

BỘ KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ

VIỆN NĂNG LƯỢNG NGUYÊN TỬ VIỆT NAM

PHAN SƠN HẢI

NGHIÊN CỨU TƯƠNG QUAN TỶ SỐ CÁC
ĐỒNG VỊ PHÓNG XẠ MÔI TRƯỜNG VÀ ỨNG
DỤNG TRONG BÀI TOÁN ĐÁNH GIÁ
NGUỒN GỐC TRẦM TÍCH

LUẬN ÁN TIẾN SĨ VẬT LÝ

ĐÀ LẠT - 2013

BỘ GIÁO DỤC VÀ ĐÀO TẠO

BỘ KHOA HỌC VÀ CÔNG NGHỆ

VIỆN NĂNG LƯỢNG NGUYÊN TỬ VIỆT NAM

PHAN SƠN HẢI

**NGHIÊN CỨU TƯƠNG QUAN TỶ SỐ CÁC
ĐỒNG VỊ PHÓNG XẠ MÔI TRƯỜNG VÀ ỨNG
DỤNG TRONG BÀI TOÁN ĐÁNH GIÁ
NGUỒN GỐC TRẦM TÍCH**

Chuyên ngành: Vật lý nguyên tử và hạt nhân

Mã số: 62440501

LUẬN ÁN TIẾN SĨ VẬT LÝ

CÁN BỘ HƯỚNG DẪN KHOA HỌC

1. GS. TS. PHẠM DUY HIỂN

2. PGS. TS. VƯƠNG HỮU TẤN

ĐÀ LẠT - 2013

LỜI CAM ĐOAN

Tôi xin cam đoan đây là công trình nghiên cứu của riêng tôi và các cán bộ hướng dẫn. Các số liệu, kết quả nêu trong luận án là trung thực và chưa từng được sử dụng trong bất kỳ công trình nào khác. Luận án cũng đã sử dụng một số thông tin từ nhiều nguồn số liệu khác nhau, các thông tin đều được trích dẫn rõ nguồn gốc.

Phan Sơn Hải

LỜI CẢM ƠN

Tôi xin bày tỏ lời cảm ơn chân thành đến:

Thầy GS. TS. Phạm Duy Hiển, Thầy PGS. TS. Vương Hữu Tấn đã tận tình hướng dẫn, giúp đỡ và động viên tôi trong suốt quá trình thực hiện luận án.

Ban lãnh đạo Viện Nghiên cứu hạt nhân đã tạo mọi điều kiện thuận lợi để tôi hoàn thành bản luận án.

Ban lãnh đạo Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam, Ban lãnh đạo và cán bộ của Trung tâm đào tạo thuộc Viện Năng lượng nguyên tử Việt Nam đã giúp tôi hoàn tất các thủ tục cần thiết để bảo vệ luận án.

Tập thể cán bộ thuộc Trung tâm môi trường - Viện Nghiên cứu hạt nhân đã giúp đỡ trong quá trình làm thực nghiệm và khảo sát hiện trường.

Các bạn bè, đồng nghiệp, người thân đã luôn động viên và tạo điều kiện thuận lợi cho tôi trong suốt quá trình thực hiện luận án.

Xin trân trọng cảm ơn!

Phan Sơn Hải

BẢNG KÝ HIỆU VÀ CHỮ VIẾT TẮT

Bq	: Becquerel - Đơn vị đo hoạt độ phóng xạ (1 Bq = 1 phân rã/1 giây)
Bq/kg	: Becquerel/ kilôgam - Đơn vị đo hoạt độ riêng
Ci	: Curie - Đơn vị đo hoạt độ phóng xạ (1 Ci = 3,7 x 10 ¹⁰ Bq)
cm	: Xentimét - Đơn vị đo độ dài
cps	: Counts per second - Số đếm trong 1 giây
d	: Day - Ngày
dpm	: Disintegrations per minute - Số phân rã trong 1 phút
eV	: Electron volt - Đơn vị đo năng lượng (1 eV = 1,602176 x 10 ⁻¹⁹ J)
g	: Gam - Đơn vị đo khối lượng
GS	: Giáo sư
IAEA	: International Atomic Energy Agency - Cơ quan Năng lượng Nguyên tử Quốc tế
keV	: Kiloelectron volt - Đơn vị đo năng lượng (1 keV = 10 ³ eV)
kg	: Kilôgam - Đơn vị đo khối lượng
ksec	: Kilosecond - Đơn vị đo thời gian (1 ksec = 10 ³ s)
L	: Lít - Đơn vị đo thể tích
m	: Mét - Đơn vị đo độ dài
MeV	: Megaelectron volt - Đơn vị đo năng lượng (1 MeV = 10 ⁶ eV)
mi	: minute - Phút
mm	: milimét - Đơn vị đo độ dài
PGS	: Phó Giáo sư
pH	: Độ pH
ppb	: Parts per billion - Phần tỷ (1 ppb = 10 ⁻⁹)
ppm	: Parts per million - Phần triệu (1 ppm = 10 ⁻⁶)
r	: Hệ số tương quan giữa hai đại lượng ngẫu nhiên
σ	: Độ lệch chuẩn
s	: Second - Giây
SE	: Sai số chuẩn của trung bình mẫu
T _{1/2}	: Chu kỳ bán rã của hạt nhân phóng xạ (T _{1/2} = ln2/λ)
y	: Year - Năm
α	: Hạt alpha - Hạt nhân ${}^4_2\text{He}$

β	: Hạt beta
λ	: Hằng số phân rã phóng xạ (s^{-1})
$\mu\text{g/L}$: Microgam/lít
μs	: Microsecond - Micro giây
ρ	: Mật độ (g/cm^3)
\bar{x}	: Trung bình của tập hợp mẫu
%	: Phần trăm
γ	: Bức xạ gamma
<	: Nhỏ hơn
>	: Lớn hơn

MỤC LỤC

Mở đầu	1
Chương 1: Tổng quan	6
1.1. Các đồng vị phóng xạ môi trường	6
1.1.1. Hoạt độ phóng xạ và sự cân bằng vĩnh cửu	6
1.1.2. Hàm lượng khối lượng và hàm lượng phóng xạ	7
1.2. Sơ lược về địa hoá của các actinit	9
1.2.1. Tính chất của các actinit	9
1.2.2. Sự liên kết địa hóa	9
1.2.3. Ảnh hưởng của sự phong hóa	10
1.2.4. Các chu trình địa hóa	11
1.2.4.1. Sự linh động và vận chuyển trong chất lỏng	11
1.2.4.2. Sự linh động và vận chuyển trong pha keo	11
1.2.4.3. Sự linh động và vận chuyển trong chất hạt	12
1.2.4.4. Sự linh động và vận chuyển trong pha khí	12
1.2.5. Các quá trình kết lắng trong môi trường gần bề mặt	12
1.2.5.1. Kết tủa sinh học và vô cơ	12
1.2.5.2. Sự hấp phụ	13
1.2.5.3. Trầm tích	13
1.3. Sự mất cân bằng phóng xạ	13
1.3.1. Sự tách phân đoạn các đồng vị urani	13
1.3.2. Sự tách phân đoạn các actinit khác và con cháu của chúng	14
1.3.2.1. Các đồng vị thori	14
1.3.2.2. Các đồng vị protactini	14
1.3.2.3. Các đồng vị radi	14
1.3.2.4. Các đồng vị radon	15
1.3.3. Sự mất cân bằng phóng xạ trong đất	15
1.3.3.1. Giai đoạn chớm phong hóa	15
1.3.3.2. Sự mất cân bằng trong đất	15
1.3.4. Sự mất cân bằng phóng xạ trong trầm tích	16
1.3.4.1. Trầm tích sông	16
1.3.4.2. Trầm tích biển	16
1.4. Chu trình xói mòn trong tự nhiên	17
1.5. Phân tích đồng vị phóng xạ môi trường tại Việt Nam	18
1.5.1. Phân tích các đồng vị phóng xạ môi trường trên phổ kế gamma	18
1.5.2. Phân tích các đồng vị phóng xạ môi trường trên phổ kế alpha	22
1.6. Tình hình nghiên cứu liên quan đến đề tài luận án trên thế giới	22
1.7. Tình hình nghiên cứu liên quan đến đề tài luận án tại Việt Nam	23

Chương 2: Các giả thuyết và phương pháp nghiên cứu	25
2.1. Các giả thuyết đưa ra	25
2.2. Phương pháp kiểm định giả thuyết	25
2.3. Các phương pháp phân tích	26
2.3.1. Phân tích các đồng vị phóng xạ môi trường	26
2.3.1.1. Phân tích đồng vị phóng xạ trên hệ phổ kế gamma	26
2.3.1.2. Phân tích các đồng vị thori trên hệ phổ kế alpha	33
2.3.2. Phân tích nguyên tố bằng huỳnh quang tia X (XRF)	39
2.3.3. Phân tích cỡ hạt	39
2.4. Đối tượng và phương pháp thu góp mẫu	39
2.4.1. Đối tượng nghiên cứu	39
2.4.2. Vị trí nghiên cứu và phương pháp thu góp mẫu	40
2.4.2.1. Vị trí nghiên cứu	40
2.4.2.2. Thu góp mẫu	43
2.4.3. Xử lý mẫu và phân tích	47
2.5. Phương pháp xử lý số liệu	48
Chương 3: Kết quả và thảo luận	49
3.1. Phương pháp phân tích	49
3.1.1. Phương pháp phân tích đồng vị phóng xạ trên phổ kế gamma	49
3.1.2. Phương pháp phân tích các đồng vị thori bằng phổ kế alpha	60
3.2. Phân bố ^{137}Cs trong đất và trầm tích	64
3.2.1. Phân bố ^{137}Cs theo độ sâu	65
3.2.2. Hàm lượng ^{137}Cs trong trầm tích và trong đất gốc	67
3.2.3. Tóm tắt kết quả khảo sát	69
3.3. Phân bố các đồng vị dãy urani và thori trong đất và trầm tích	69
3.3.1. Các đồng vị phóng xạ dãy urani và thori trong đất bề mặt	69
3.3.1.1. Phân bố hàm lượng các đồng vị phóng xạ theo độ sâu	69
3.3.1.2. Phân bố hàm lượng các đồng vị phóng xạ theo không gian	73
3.3.1.3. Tóm tắt kết quả khảo sát	90
3.3.2. Các đồng vị phóng xạ dãy urani và thori trong trầm tích	92
3.3.2.1. Các đồng vị phóng xạ trong trầm tích và trong đất gốc	93
3.3.2.2. Hàm lượng các đồng vị phóng xạ theo độ sâu lớp trầm tích	96
3.3.2.3. Tóm tắt kết quả khảo sát	101
3.3.3. Phân bố các đồng vị phóng xạ theo cấp hạt	102
3.3.3.1. Phân bố các đồng vị phóng xạ theo cấp hạt trong đất bề mặt	102
3.3.3.2. Phân bố các đồng vị phóng xạ theo cấp hạt trong trầm tích	106
3.3.3.3. Tóm tắt kết quả khảo sát	109
Chương 4: Các ứng dụng điển hình	111

4.1. Nghiên cứu nguồn gốc trầm tích từ lưu vực hồ Xuân Hương	111
4.1.1. Vị trí nghiên cứu và thu góp mẫu	111
4.1.2. Xử lý mẫu và phân tích	112
4.1.3. Kết quả và thảo luận	112
4.1.3.1. Sự cân bằng phóng xạ	113
4.1.3.2. Quan hệ giữa ^{226}Ra và ^{232}Th , giữa ^{230}Th và ^{232}Th	113
4.1.3.3. Đánh giá nguồn gốc trầm tích tại hồ lắng	116
4.2. Nghiên cứu nguồn gốc trầm tích hồ Thác Mơ	118
4.2.1. Vị trí nghiên cứu	118
4.2.2. Thu góp mẫu	119
4.2.2.1. Thu góp mẫu đất lưu vực	119
4.2.2.2. Thu góp mẫu trầm tích hồ	121
4.2.3. Phân tích mẫu	122
4.2.4. Kết quả và thảo luận	122
4.2.4.1. Kết quả phân tích	122
4.2.4.2. Sự cân bằng phóng xạ	122
4.2.4.3. Quan hệ giữa ^{226}Ra và ^{232}Th , giữa ^{230}Th và ^{232}Th	123
4.2.4.4. Tỷ số $^{226}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ và $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ đối với các vùng	126
4.2.4.5. Đánh giá nguồn gốc không gian của trầm tích hồ	130
4.2.4.6. Thông tin về nguồn gốc trầm tích từ các nguyên tố vết	134
4.2.4.7. Nhận biết nguồn gốc trầm tích dựa vào ^{137}Cs	135
Kết luận	137
Khuyến nghị	139
Tài liệu tham khảo	141
Phụ lục A: Hàm lượng các nuclit phóng xạ trong các lớp đất theo profin	A-1÷A-3
Phụ lục B: Hàm lượng ^{137}Cs trong các lớp đất đối với một số dạng sử dụng đất khác nhau	B-1÷B-2
Phụ lục C: Hàm lượng các nuclit phóng xạ quan tâm trong đất bề mặt tại 11 vị trí nghiên cứu	C-1÷C-7
Phụ lục D: Hàm lượng các nuclit phóng xạ quan tâm trong trầm tích tại các vị trí nghiên cứu	D-1÷D-3
Phụ lục E: Thành phần cấp hạt của các mẫu đất và trầm tích	E-1
Phụ lục F: Hàm lượng các nuclit phóng xạ theo cấp hạt	F-1÷F-3
Phụ lục G: Hàm lượng các nuclit phóng xạ trong mẫu trầm tích lưu vực hồ Xuân Hương	G-1÷G-2
Phụ lục H: Hàm lượng các nuclit phóng xạ trong đất lưu vực và trầm tích hồ Thác Mơ	H-1÷H-5
Phụ lục I: Hàm lượng một số nguyên tố trong trầm tích hồ Thác Mơ	I-1÷I-2

DANH MỤC BẢNG

Bảng 1.1. Dãi hàm lượng trung bình của urani, thori và tỷ số Th/U trong các loại đá khác nhau	10
Bảng 1.2. Các nhóm chính trong dãy urani, thori và các vạch gamma quan tâm	19
Bảng 2.1. Đặc trưng phong của hệ phổ kế gamma HPGe30/19	27
Bảng 2.2. Phong gamma khi đo mẫu nhựa Reversol P-9509 NW	28
Bảng 2.3. Số liệu phân rã alpha của các đồng vị thori	34
Bảng 2.4. Khái quát về vị trí nghiên cứu và số mẫu thu góp	46
Bảng 3.1. Thay đổi số đếm theo bề dày mẫu đối với vạch 46 keV	50
Bảng 3.2. Thay đổi số đếm theo bề dày mẫu đối với vạch 63 keV	50
Bảng 3.3. Thay đổi tốc độ đếm theo thời gian nhốt radon đối với mẫu chuẩn đất IAEA-312	52
Bảng 3.4. Giới hạn phát hiện với độ tin cậy 95% đối với các đồng vị phóng xạ trong mẫu đất và trầm tích, thời gian đo 24 giờ	56
Bảng 3.5. Kết quả phân tích các mẫu chuẩn so sánh	57
Bảng 3.6. Kết quả phân tích so sánh quốc tế do IAEA tổ chức	57
Bảng 3.7. Đặc trưng thống kê của $\delta_{230}(\%)$ và $\delta_{232}(\%)$	62
Bảng 3.8. Đặc trưng thống kê của $\delta_{232}(\%)$ với số mẫu $n = 97$	64
Bảng 3.9. Đặc trưng thống kê của hoạt độ ^{137}Cs trong các lớp đất	66
Bảng 3.10a. Các thông số thống kê về đồng vị phóng xạ của profin ESP1	70
Bảng 3.10b. Các thông số thống kê về đồng vị phóng xạ của profin ESP2	70
Bảng 3.10c. Các thông số thống kê về đồng vị phóng xạ của profin ESP3	71
Bảng 3.10d. Các thông số thống kê về đồng vị phóng xạ của profin FSP1	72
Bảng 3.10e. Các thông số thống kê về đồng vị phóng xạ của profin FSP2	72
Bảng 3.11. Các thông số thống kê chính về đồng vị phóng xạ tại vị trí A	74
Bảng 3.12. Các thông số thống kê chính về đồng vị phóng xạ tại vị trí B	75
Bảng 3.13. Các thông số thống kê chính về đồng vị phóng xạ tại vị trí C	76
Bảng 3.14. Các thông số thống kê chính về đồng vị phóng xạ tại vị trí D	78
Bảng 3.15. Các thông số thống kê chính về đồng vị phóng xạ tại vị trí E	79
Bảng 3.16a. Các thông số thống kê chính về đồng vị phóng xạ tại vị trí F1	81
Bảng 3.16b. Các thông số thống kê chính về đồng vị phóng xạ tại vị trí F2	82