



Bài báo nghiên cứu

ÁP DỤNG PHƯƠNG PHÁP FSA ĐỂ PHÂN TÍCH PHÓNG XẠ MÔI TRƯỜNG CHO MẪU HÌNH HỌC MARINELLI

*Huỳnh Thị Yến Hồng**, *Trương Hữu Ngân Thy*, *Trịnh Hoa Lăng*

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

**Tác giả liên hệ: Huỳnh Thị Yến Hồng – Email: htyhong@hcmus.edu.vn*

Ngày nhận bài: 12-01-2021; ngày nhận bài sửa: 23-02-2021; ngày duyệt đăng: 30-03-2021

TÓM TẮT

Trong bài báo này, chúng tôi áp dụng phương pháp FSA (Full Spectrum Analysis) vào phân tích xác định hoạt độ các đồng vị phóng xạ tự nhiên ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K trong các mẫu đất hình học Marinelli bằng hệ phổ kế gamma phòng thí nghiệm. Mẫu chuẩn IAEA-SL-2, KL-01 được sử dụng làm mẫu phân tích để kiểm tra độ tin cậy của phương pháp FSA. Kết quả phân tích các mẫu đất bằng phương pháp FSA được so sánh với EWA (Energy Window Analysis). Từ đó, chúng tôi đánh giá những ưu điểm của phương pháp FSA so với phương pháp phân tích truyền thống EWA.

Từ khóa: đồng vị phóng xạ môi trường; EWA; FSA

1. Giới thiệu

Trong các phương pháp phân tích hoạt độ phóng xạ môi trường, phương pháp được sử dụng phổ biến nhất là phương pháp Energy Window Analysis (EWA). Trong phương pháp này, trước tiên diện tích các đỉnh năng lượng gamma được xác định bởi người dùng hoặc bằng các chương trình có sẵn. Sau đó, hoạt độ của các đồng vị phóng xạ sẽ được xác định dựa trên các diện tích đỉnh tính được kết hợp với các thông số như xác suất phát gamma, thời gian đo, hiệu suất ghi nhận của đầu dò... Việc xác định hoạt độ bằng phương pháp này đòi hỏi sự công phu và tốn nhiều thời gian trong việc xử lý. Bên cạnh đó, các hiệu ứng trong quá trình đo đạc như sự trùng phùng thực, tự hấp thụ hay các sai số trong số liệu từ các thư viện hạt nhân sẽ dẫn đến sự tăng thêm hay giảm bớt diện tích đỉnh và gây sai lệch đáng kể cho kết quả. Để hạn chế điều này, thay vì xác định hoạt độ dựa trên các đỉnh gamma riêng rẽ, chúng ta sẽ sử dụng một phương pháp khác nhằm xác định hoạt độ dựa trên toàn phổ gamma ghi nhận được, phương pháp này được gọi là phương pháp Full Spectrum Analysis (FSA). Do phương pháp FSA liên quan đến việc tính toán trên toàn phổ nên có một số ưu điểm nổi trội so với phương pháp EWA, chẳng hạn, như loại bỏ phần lớn các sai số do trùng phùng, do trừ phông nền Compton, do thống kê. Một ưu điểm nổi bật khác là có thể rút gọn

Cite this article as: Huynh Thi Yen Hong, Trương Hữu Ngân Thy, & Trịnh Hoa Lăng (2021). Application of fsa method to analyze environmental radioactivity with Marinelli beaker sample. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science*, 18(3), 538-547.

được thời gian tính toán. Trong phương pháp FSA, hoạt độ phóng xạ của các hạt nhân phóng xạ nguyên thủy tồn tại trong mẫu đo được tính dựa trên kĩ thuật làm khớp giữa phổ mẫu đo và các phổ chuẩn thực nghiệm của các đồng vị phóng xạ hiện diện trong mẫu.

Từ những năm 1980, phương pháp FSA đã được ứng dụng trong các công trình nghiên cứu về phong phóng xạ môi trường khảo sát dọc bờ biển, trong các giếng khoan, khí quyển hay trên mặt đất. Năm 1982, Crossley và Reid đã sử dụng kĩ thuật FSA để xác định hoạt độ của các đồng vị phóng xạ ^{40}K , ^{238}U và ^{232}Th trên mặt đất từ dữ liệu phong khí quyển. Trong công trình này, các tác giả đã đưa ra phương trình ma trận $Ax = c$, giá trị c chính là hoạt độ chưa biết, các thành phần của ma trận A lấy từ các phổ thực nghiệm (là các hằng số chuẩn hóa). Kết quả cho thấy hoạt độ của phong khí quyển thay đổi trong vài giây dọc theo đường bay, việc không xét đến vùng năng lượng thấp (0,911 MeV đối với ^{232}Th và 1,12 MeV đối với ^{238}U) ảnh hưởng nhiều đến kết quả hoạt độ đối với trường hợp kênh ghi nhận ít. Sau đó vào năm 1992, Minty đã sử dụng kĩ thuật FSA để tính toán hàm lượng ^{214}Bi trong khí quyển từ đó ước lượng nền phong của khí quyển. Nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng phổ ở trên vùng liên tục (Compton continuum) và đánh giá đóng góp của radon và uranium trên phổ ghi nhận được. Kĩ thuật này đã được sử dụng khá phổ biến trong khảo sát thực địa dùng đầu dò nhấp nháy, và gần đây kĩ thuật FSA được triển khai ứng dụng trong phân tích trên các hệ phổ kế gamma phòng thí nghiệm. Năm 2001, Hendriks và cộng sự cũng sử dụng hệ phân tích MEDUSA khảo sát thực địa phóng xạ gamma tự nhiên ^{40}K , ^{232}Th , ^{238}U trong các mẫu địa chất (trầm tích, đất đá...). Trong nghiên cứu này, tác giả đưa ra định nghĩa phổ chuẩn (standard spectra) trong phương pháp FSA. Tác giả xây dựng phổ chuẩn cho các hình học khảo sát khác nhau như: giếng khoan, dưới đáy biển, khí quyển ứng với từng đồng vị. Kết quả phân tích được so sánh với kết quả khảo sát bằng đầu dò NaI sử dụng phương pháp EWA, với độ chính xác hơn 10-20 lần. Điều này cho phép thời gian ghi nhận bằng hệ MEDUSA ngắn hơn khi sử dụng hệ đo truyền thống, và được thể hiện rõ khi khảo sát khí quyển. Năm 2008, Newman và cộng sự đã sử dụng phương pháp phân tích toàn phổ để xác định hoạt độ phóng xạ nguyên thủy trong mẫu đất, cát và quặng bằng đầu dò HPGe, kết quả từ phương pháp phân tích toàn phổ sai lệch so với phương pháp phân tích từng đỉnh ít hơn 10% ngoại trừ quặng zircon cho kết quả hoạt độ ^{40}K không hợp lí. Để hiệu chỉnh các vấn đề nội tại trong quá trình cực tiểu χ^2 dẫn đến các kết quả không hợp lí trong quá trình phân tích, Caciolli và cộng sự đã đề xuất những cải tiến cho phương pháp phân tích toàn phổ. Quá trình làm khớp không âm (Non Negative Least Square – NNLS) và hiệu chỉnh quá trình chuẩn hóa được đưa vào trong phương pháp. Nghiên cứu này, nhóm tác giả sử dụng đầu dò NaI khảo sát thực địa tại 80 vị trí ở lưu vực sông Ombrone, Tuscany. Kết quả từ phương pháp được so sánh với kết quả phân tích trên hệ phổ kế phòng thí nghiệm đối với mẫu thu thập.

Chúng tôi sử dụng kĩ thuật FSA vào phân tích đồng vị phóng xạ môi trường ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K trong các mẫu đất hình học Marinelli bằng hệ phổ kế gamma phòng thí nghiệm. Mẫu chuẩn IAEA-SL-2, KL-01 được sử dụng làm mẫu phân tích để kiểm tra độ tin cậy của

phương pháp FSA. Kết quả phân tích các mẫu đất bằng phương pháp FSA được so sánh với EWA. Từ đó, chúng tôi đánh giá những ưu điểm của phương pháp FSA so với phương pháp phân tích truyền thống EWA.

2. Vật liệu và phương pháp

Nghiên cứu sử dụng hệ phổ kế gamma thuộc Phòng Thí nghiệm Kỹ thuật Hạt nhân, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên Thành phố Hồ Chí Minh (Hình 1). Mẫu chuẩn và mẫu phân tích được đóng trong hộp dạng Marinelli, với cùng chiều cao mẫu là 8,4 cm và được đo cùng điều kiện như nhau.



Hình 1. Hệ phổ kế gamma HPGe GMX35P4 – 70 và hình học mẫu Marinelli

Các mẫu chuẩn IAEA-RGU-1, IAEA-RGTh-1, IAEA-K-1 được sử dụng để tạo phổ chuẩn trong phân tích bằng kỹ thuật FSA và dùng để xây dựng đường chuẩn năng lượng trong phân tích bằng EWA. Mẫu chuẩn IAEA-SL-2 và KL-01 (KCl tinh khiết 99%) được dùng làm mẫu phân tích để kiểm tra độ tin cậy của phương pháp FSA. Các giá trị hoạt độ xác định từ phân tích FSA và EWA được so sánh và đánh giá với giá trị chuẩn của hai mẫu này như trong Bảng 1. Phương pháp FSA được áp dụng để tính hoạt độ của các đồng vị phóng xạ ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K trong 10 mẫu đất được thu thập tại 5 vị trí khác nhau ở Tây Nguyên (Đắc Lắc: 2 mẫu, Lâm Đồng: 1 mẫu), miền Đông Nam Bộ (Tây Ninh: 1 mẫu, Bình Dương: 4 mẫu, TP Hồ Chí Minh: 2 mẫu).

Bảng 1. Thông tin các mẫu chuẩn dùng trong phân tích

	m (g)	Hoạt độ A (Bq/kg)			d (g/cm ³)
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
IAEA-RGU-1	718,0	4910-4970			1,51
IAEA-RGTh-1	719,0		3160-3340		1,51
IAEA-RGK-1	813,0			13600-14400	1,71
IAEA-SL-2	779,5			216-264	1,64
KL-01	535,0			15445-17071	1,12

Trong phương pháp phân tích EWA, giá trị hoạt độ A(Bq/kg) của các đồng vị phóng xạ được xác định:

$$A = \frac{C}{m \cdot I_\gamma \cdot \epsilon \cdot t} \tag{1}$$

trong đó, A (Bq/kg) là hoạt độ riêng của đồng vị phóng xạ tại thời điểm đo, C là tổng số đếm tại đỉnh năng lượng mà ta quan tâm, m (kg) là khối lượng mẫu, I_γ (%) là cường độ phát tia gamma, ϵ là hiệu suất ghi tuyệt đối, t (s) là thời gian đo mẫu.

Trong phương pháp FSA, phổ phân tích được làm khớp với sự kết hợp tuyến tính của các phổ chuẩn (ứng với từng đồng vị cần phân tích) và một phong nền. Phổ cần phân tích $Y(i)$ được xem như là sự chồng chập có trọng số của n phổ chuẩn $X_j(i)$ và phong nền $B(i)$, về mặt toán học có thể biểu diễn theo phương trình:

$$Y(i) = \sum_{j=1}^n C_j \cdot X_j(i) + a \cdot B(i) \tag{2}$$

trong đó, giá trị C_j là hoạt độ ứng với đồng vị j, a là hệ số phong thể hiện độ chênh lệch giữa phong của mẫu đo và phong thực nghiệm dùng làm khớp $B(i)$.

Trong công trình, chúng tôi sử dụng phương pháp làm khớp bình phương tối thiểu dạng đa thức dựa trên quá trình cực tiểu chi bình phương rút gọn χ_v^2 (Bevington, & Robinson, 2003):

$$\chi_v^2 = \frac{1}{n - m} \sum_{i=kn}^{kl} \frac{1}{\sigma_i^2} \left(Y'(i) - \sum_{j=1}^3 C_j \cdot X_j(i) - a \cdot B(i) \right)^2 \tag{3}$$

$$\frac{\partial \chi_v^2}{\partial C_j} = 0 \tag{4}$$

$$\frac{\partial \chi_v^2}{\partial a} = 0$$

Để giải hệ phương trình tuyến tính (4) tìm giá trị các tham số làm khớp C_j , a chúng tôi sử dụng phương pháp ma trận. Hệ phương trình (4) được biểu diễn thành dạng ma trận:

$$\beta = A \cdot \alpha \tag{5}$$

trong đó, ma trận A chứa giá trị các tham số làm khớp C_j , a.

Với kĩ thuật làm khớp phổ bằng phương pháp ma trận thì sai số của các tham số làm khớp σ_j :

$$\sigma_j^2 = \sigma_{j-fit}^2 \cdot \chi_v^2 \tag{6}$$

trong đó, giá trị $\sigma_{j-fit}^2 = \epsilon_{jj}$, ϵ_{jj} chính là các phần tử đường chéo của ma trận hiệp phương sai ϵ ($\epsilon = A^{-1}$, nghịch đảo của ma trận A).

Các mẫu chuẩn dùng để xây dựng phổ chuẩn cho phương pháp FSA có giá trị hoạt độ được xác định, có kèm theo giá trị sai số hoạt độ σ_{C_j-ss} . Nên khi sử dụng các phổ chuẩn để làm khớp tìm giá trị hoạt độ của từng đồng vị trong mẫu phân tích thì sai số:

$$\left(\frac{\sigma'_j}{C_j}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_j}{C_j}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_{j-ss}}}{C_{j-ss}}\right)^2 \tag{7}$$

Hai mẫu có số quan trắc n_1 và n_2 với kết quả tính được về số trung bình là μ_1 và μ_2 , giá trị phương sai tương ứng là σ_1^2, σ_2^2 . Khi đánh giá hai mẫu này có thống nhất với nhau về giá trị trung bình không thì giả thiết được đề ra áp dụng khi so sánh kết quả giá trị hoạt độ của hai phương pháp (Triola, 1992):

$$H_0 : \mu_1 = \mu_2$$

$$H_a : \mu_1 \neq \mu_2$$

Áp dụng so sánh giá trị hoạt độ của hai phương pháp, các giá trị $n_1 = n_2 < 30$, nên ta xét giá trị kiểm định t:

$$t = \frac{\mu_1 - \mu_2}{\sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}} \tag{8}$$

H_0 bị bác bỏ khi $|t| > t_{\alpha/2}$.

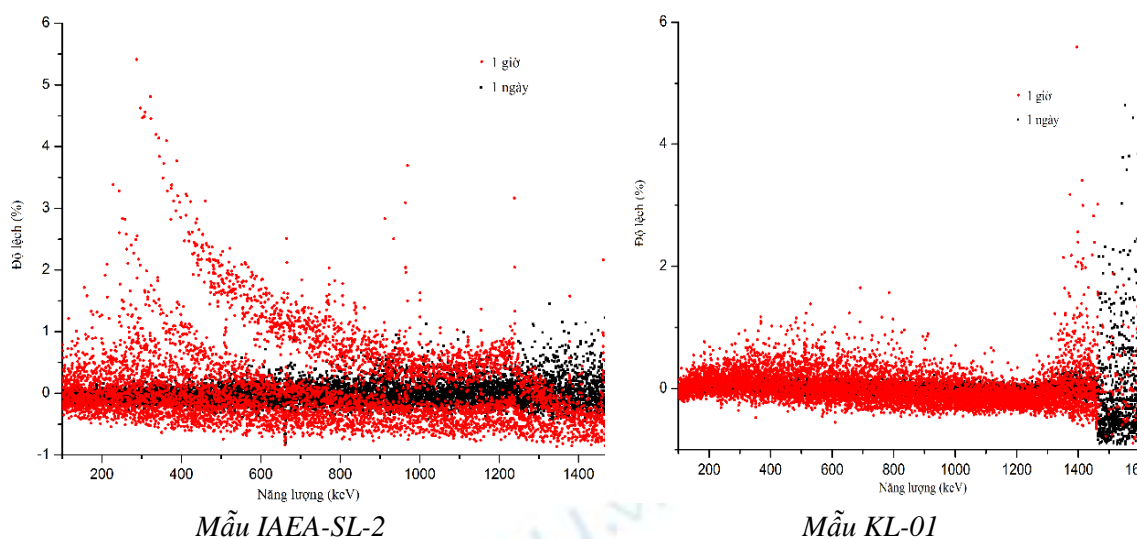
Giá trị t tuân theo phân bố Student phụ thuộc vào độ tin cậy và bậc tự do. Với độ tin cậy 95% và bậc tự do của phân bố Student từ 30 trở lên thì giá trị giới hạn của $t_{\alpha/2} = 1,96$ gần đúng bằng 2,0; nghĩa là khi $-2,0 < t < 2,0$ thì hai giá trị trung bình μ_1 và μ_2 giống nhau.

3. Kết quả và thảo luận

Các mẫu môi trường có hoạt độ thấp do đó thường đo trong khoảng thời gian dài, thông thường là 1 ngày (86.400s). Trong phân tích FSA, một lợi thế được ứng dụng nhiều chính là thời gian đo ngắn. Do đó, mẫu phân tích được đo trong hai khoảng thời gian: 1 ngày và 1 giờ (3600s), để đánh giá sự tối ưu thời gian đo giữa hai phương pháp FSA, EWA. Mẫu IAEA-SL-2 và KL-01 có giá trị hoạt độ được xác định bởi IAEA và nhà cung cấp sử dụng làm mẫu phân tích để đánh giá phương pháp phân tích bằng kỹ thuật FSA. Bên cạnh đó, phương pháp phân tích EWA được dùng để đối chiếu. Các kết quả giá trị hoạt độ ^{40}K của mẫu IAEA-SL-2 và KL-01 được trình bày trong Bảng 2 ứng với hai khoảng thời gian đo. Để so sánh giá trị hoạt độ của ^{40}K tính bằng FSA và EWA với giá trị của chuẩn, giá trị kiểm định t được sử dụng để đánh giá.

Bảng 2. Hoạt độ các mẫu chuẩn phân tích bằng FSA và EWA

Mẫu	Thời gian (s)	Hoạt độ (Bq/kg)			Giá trị kiểm định t	
		Chuẩn	FSA	EWA	FSA	EWA
IAEA-SL-2	86400	240 ± 24	256,24 ± 7,48	247 ± 7,31	0,65	0,28
	3600	240 ± 24	220,36 ± 7,67	260,46 ± 11,61	-0,78	0,77
KL-01	86400	16258 ± 465	16465 ± 471	17239 ± 495	0,31	1,44
	3600	16258 ± 465	13150 ± 380	17141 ± 499	-5,17	1,29



Hình 2. Độ lệch ứng với mỗi kênh năng lượng giữa phổ phân tích và phổ làm khớp bằng FSA

Khi đánh giá phổ làm khớp với phổ của mẫu phân tích thì giá trị độ lệch tương ứng với mỗi kênh năng lượng giữa phổ mẫu phân tích và phổ làm khớp được xét đến như trình bày trong Hình 2.

Dựa trên kết quả khi phân tích các mẫu IAEA-SL-2 và KL-01, các mẫu đất được tiến hành phân tích bằng hai phương pháp FSA, EWA khảo sát trong khoảng thời gian 1 ngày. Bảng 3 trình bày kết quả hoạt độ của ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K phân tích bằng phương pháp FSA và EWA. Giá trị kiểm định t dùng so sánh hoạt độ ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K phân tích bằng FSA với EWA đối với phép đo 1 ngày cũng được trình bày trong bảng.

Kế tiếp, để đánh giá mối quan hệ giá trị hoạt độ ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K giữa phương pháp FSA và EWA thì sự tương quan tuyến tính giữa giá trị hoạt độ tính bằng FSA và EWA được biểu diễn bằng đồ thị, các kết quả được trình bày như trong Hình 3.

Bảng 3. Hoạt độ các mẫu đất phân tích bằng FSA và EWA

Mẫu	Hoạt độ (Bq/kg)						Giá trị kiểm định t		
	FSA			EWA			^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K			
TN-01	89,33 ± 0,59	81,54 ± 2,27	42,04 ± 1,63	96,38 ± 1,04	88,27 ± 2,64	30,71 ± 1,50	- 5,90	- 1,93	5,11
CT-01	13,88 ± 0,12	14,02 ± 0,39	262,16 ± 7,63	13,68 ± 0,26	13,68 ± 0,48	250,71 ± 2,96	0,70	0,55	1,40
EH-01	48,77 ± 0,33	71,07 ± 1,97	467,95 ± 13,54	49,03 ± 0,61	70,07 ± 2,08	419,30 ± 12,27	- 0,37	0,35	2,66
EH-02	84,59 ± 0,56	114,22 ± 3,17	808,61 ± 23,31	76,03 ± 0,81	102,68 ± 3,00	656,70 ± 19,09	8,69	2,64	5,04
TD-01	28,32	60,32	180,27	26,97	57,63	157,79	2,77	1,12	3,13

	± 0,21	± 1,68	± 5,35	± 0,44	± 1,72	± 4,78			
TD-02	28,27	40,15	33,85	27,51	38,18	27,15	1,59	1,21	4,04
	± 0,21	± 1,12	± 1,26	± 0,43	± 1,18	± 1,08			
BC-01	15,89	29,06	22,81	15,05	28,25	17,02	2,47	0,67	4,62
	± 0,14	± 0,81	± 0,98	± 0,31	± 0,90	± 0,78			
BC-02	27,30	28,00	37,78	26,99	27,26	33,85	0,68	0,63	2,70
	± 0,20	± 0,78	± 1,36	± 0,41	± 0,88	± 1,23			
TA-01	12,60	23,67	68,75	11,21	21,50	56,94	7,16	2,24	4,10
	± 0,11	± 0,66	± 2,20	± 0,16	± 0,71	± 1,86			
TA-02	36,80	81,82	112,81	37,79	86,37	111,90	- 1,62	- 1,34	0,18
	± 0,27	± 2,27	± 3,52	± 0,55	± 2,53	± 3,49			

Khi phân tích mẫu IAEA-SL-2, kết quả trong Bảng 2 cho thấy, giá trị hoạt độ tính từ hai phương pháp hoàn toàn tương đương với giá trị chuẩn khi đo 1 ngày và 1 giờ, giá trị kiểm định t là 0,78 và 0,77 đối với phép đo 1 giờ, còn phép đo 1 ngày thì giá trị t là 0,65 và 0,28. Đối với mẫu KL-01 (chứa 99% KCl), giá trị kiểm định t dùng so sánh hoạt độ ^{40}K tính bằng FSA và EWA với giá trị do nhà cung cấp đưa ra được trình bày trong Bảng 2. Mẫu KL-01 có hoạt độ ^{40}K cao nên khi phân tích bằng EWA đo thời gian 1 giờ cho kết quả tương đương với giá trị nhà cung cấp đưa ra. Nhưng phân tích bằng FSA đo trong 1 giờ cho kết quả khác biệt với giá trị nhà cung cấp. Để tìm nguyên nhân sự khác biệt này, chúng tôi đánh giá độ lệch tương ứng với mỗi kênh năng lượng giữa phổ mẫu phân tích và phổ làm khớp bằng FSA đối với thời gian đo 1 ngày và 1 giờ.

Giá trị độ lệch tương ứng với mỗi kênh năng lượng trong Hình 2 cho thấy đối với thời gian đo 1 ngày trong vùng năng lượng 100-1500 keV, vùng năng lượng chứa nhiều thông tin giá trị hoạt độ ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K dùng trong phân tích, thì độ lệch ở mỗi kênh của phổ phân tích và phổ làm khớp thấp không vượt quá 1%, ở kênh năng lượng 661,6 keV của ^{137}Cs do không có thông tin mẫu chuẩn nên độ lệch ở vị trí này hơi cao. Đối với thời gian đo 1 giờ, độ lệch này khá cao ở mỗi kênh năng lượng có thể đạt đến 5%, điều này gây ra sự khác biệt giá trị hoạt độ phân tích bằng FSA và EWA. Kết quả trong Hình 2 cũng cho thấy đối với phép đo 1 giờ thì độ lệch trong vùng năng lượng quanh đỉnh 1460,8 keV khá cao, còn cao hơn vùng năng lượng thấp. Hiện tượng chạy đỉnh xảy ra với mẫu hoạt độ cao khi đo thời gian chênh lệch với mẫu chuẩn làm kết quả hoạt độ tính bằng phương pháp FSA kém chính xác so với phương pháp EWA.

Trong phương pháp EWA, hiệu ứng tự hấp thụ và trùng phùng tổng được hiệu chỉnh nhằm nâng cao độ chính xác của kết quả tính hoạt độ dùng làm cơ sở đáng tin cậy để so sánh với kết quả tính bằng FSA. Dựa vào giá trị kiểm định t trong Bảng 3, sự tương đương của hoạt độ ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K tính bằng hai phương pháp FSA và EWA được khảo sát. Đối với thời gian đo 1 ngày, mẫu TN-01, EH-02, TD-01, BC-01, TA-01 cho kết quả giá trị hoạt độ tính bằng phương pháp FSA khác biệt so với EWA. Dựa theo kết quả hoạt độ ^{226}Ra , ^{232}Th ,