

XÁC ĐỊNH HOẠT ĐỘ PHÓNG XẠ TRITI (^3H) TRONG MẪU NƯỚC BẰNG PHƯƠNG PHÁP ĐẾM NHẮP NHÁY LỎNG - TRI-CARB 3180TR/SL

Đến tòa soạn 11 – 8 – 2014

**Nguyễn Thị Linh, Nguyễn Đình Tùng, Trương ý, Lê Như Siêu
Nguyễn Văn Phúc, Nguyễn Văn Phú, Nguyễn Kim Thành**
Viện Nghiên cứu Hạt nhân Nguyễn, Tử Lực- Đà Lạt – Lâm Đồng

SUMMARY

DETERMINING THE RADIONUCLIDE OF TRITUM IN THE WATER SAMPLES IN DALAT BY USING LIQUID SCINTILLATION COUNTING (Tri-Carb 3180TR/SL)

Triti is a radioactive isotope that occurs in the environment and is associated with the interaction of cosmic rays in the atmosphere. However, the most significant sources of triti in the environment results from nuclear weapons testing in the atmosphere carried out during the late 1950s and early 1960s. Today, the most important new sources of triti in the environments, such as power stations, processing and using of isotopes released the local triti. The objective of this study is the application of the liquid scintillation technique to triti analysis in water samples (rain, and surface waters). Following the Eichrom Triti Column technique, an aliquot of the passed triti resin sample (10 mL) is mixed with 10 mL of scintillation cocktail (Ultima Gold LLT, Packard) in 20-mL plastic- container vials and the sample activity is determined using a liquid scintillation spectrometer, Tri-carb 3180TR/SL. Counting efficiency is evaluated with internal standards. The triti activity concentrations of water samples that were collected from Dalat, Lamdong range between 0 to 8.4 TU.

Key word: Triti in water samples, Eichrom's Triti Column, TRI-CARB 3180TR/SL.

1. MỞ ĐẦU

Triti là đồng vị phóng xạ của Hydro, có số khối 3, chu kỳ bán rã 12.32 năm, phát bức xạ beta năng lượng rất thấp tạo

thành ^3He . Năng lượng trung bình là 5.7keV và năng lượng cực đại $E_{\text{max}} = 18.6 \text{ keV}$. Hằng năm hoạt độ của nguyên tử triti giảm 5.576%. Trong môi trường,

đồng vị ^3H sinh ra do tương tác của bức xạ vũ trụ ở tầng trên khí quyển, và tạo thành từ phản ứng bắt neutron; đồng vị ^3H được hình thành sẽ kết hợp với ôxy của tầng bình lưu để tạo thành nước (thành phần của nước mưa). Hoạt độ phóng xạ của ^3H trong rơi lắng thay đổi từ 4 TU ở vùng xích đạo đến 25 TU ở vùng vĩ độ cao [1,2,3].

Nguồn nhân tạo sinh ra triti do hoạt động của con người như: các vụ thử vũ khí hạt nhân trong khí quyển, sự cố hạt nhân dẫn đến mức phóng thích ^3H trong khí quyển tăng đáng kể khoảng 10.000 Ci/năm và hàm lượng ^3H đo được trong nước ở mức cao khoảng 10^6 pCi/lít. Hàm lượng ^3H trong nước mưa trên toàn cầu tăng rất mạnh và đạt giá trị cực đại vào những năm 1962-1963, triti sinh ra từ nguồn này đã giảm tương ứng với chu kỳ bán rã của triti (Okada và Momoshima, 1993). Hiện nay, nguồn ^3H nhân tạo quan trọng nhất có trong môi trường được sinh ra từ các hoạt động của nhà máy điện hạt nhân, nhà máy tái xử lý nhiên liệu hạt nhân, cơ sở ứng dụng đồng vị hạt nhân sinh ra nguồn triti cục bộ.

Trong môi trường, triti (HTO) luân chuyển tương tự như chu trình nước (H_2O), có thể xâm nhập vào con người thông qua chuỗi thực phẩm, hít thở và hấp thụ qua da. Khi đi vào cơ thể nó được phân bố trong mô, và liều chiếu xạ của ^3H phụ thuộc vào lượng nước tồn tại trong cấu trúc tế bào. Lượng nước trong cơ thể con người luôn trao đổi nên lượng

triti nhanh chóng được đào thải ra ngoài sau khoảng thời gian một hoặc vài tháng qua quá trình bài tiết. Vì vậy, quan trắc hoạt độ phóng xạ ^3H sinh ra từ các nguồn trong môi trường đảm bảo an toàn cho dân chúng là một vấn đề cần thiết. Trên thế giới, ^3H là một thông số cần phải quan trắc xung quanh cơ sở hạt nhân bao gồm cả quan trắc mức nền phóng xạ trước khi cơ sở hạt nhân đi vào hoạt động. Hiện nay, các nước châu Âu và một số quốc gia khác trên thế giới đưa ra giới hạn cho phép của triti trong nước uống với giá trị cực đại 100Bq/lít dựa vào giới hạn mức liều dân chúng (0.1mSv/năm)[4].

Đối với phương pháp phân tích ^3H trong môi trường bằng kỹ thuật phân tích nhấp nháy lỏng thường áp dụng 3 phương pháp làm giàu, tinh chế mẫu như: 1) Chung cất, thêm chuẩn trực tiếp hay không thêm chuẩn; 2) Làm giàu bằng điện phân; 3) Kết hợp các kỹ thuật tinh chế mẫu như lọc, trao đổi ion, đông cô, chung cất hỗn hợp. Việc lựa chọn phương pháp dựa trên cơ sở hàm lượng triti có trong mẫu với yêu cầu độ chính xác cần thiết. Quy trình tinh chế mẫu bằng cột nhựa triti để thay thế kỹ thuật chung cất đã tăng độ chính xác và giảm thời gian chuẩn bị mẫu đo có thể đáp ứng yêu cầu quan trắc hoạt độ phóng xạ triti trong mẫu môi trường [2,9].

2. THỰC NGHIỆM

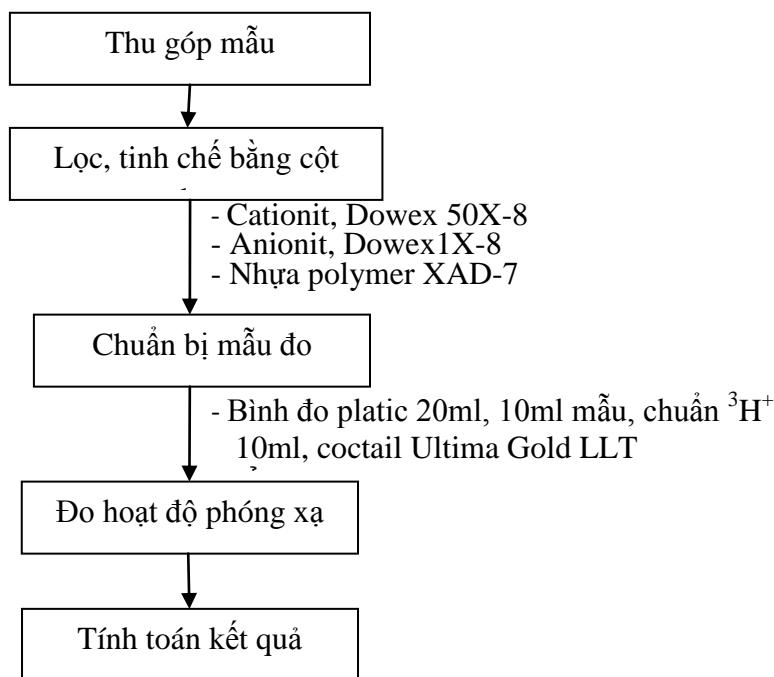
1. Thu góp mẫu

Mẫu nước mưa được thu góp tại Viện Nghiên cứu hạt nhân, số 01 Nguyễn Tử

Lực, Đà Lạt, Lâm Đồng (vĩ độ: 11°57' N, kinh độ: 108°26' E). Mẫu nước ao hồ được thu góp ở Hồ Xuân Hương (vĩ độ: 11°57' N, kinh độ: 108°26' E) và Hồ Suối Vàng (vĩ độ 12° 00' N, kinh độ: 108°22' E).

Khi thu góp cần được đo các thông số hóa lý như: pH, độ dẫn điện, nhiệt độ, vv...; Mẫu được đựng trong chai thủy tinh hoặc chai nhựa, đậy nắp kín không cho không khí lọt vào, mẫu được chuyển về phòng thí nghiệm, bảo quản ở nơi sạch, ở nhiệt độ lạnh 5⁰C, tránh nhiễm bẩn mẫu từ bên ngoài [2].

2. Thủ tục phân tích



Hình 1. Sơ đồ tóm tắt quy trình phân tích ³H trong mẫu nước

3. Đo mẫu

Mẫu sau khi đã chuẩn bị được đặt vào giá chứa mẫu đo của hệ đếm nhấp nháy lỏng phòng thấp Tri-Carb 3180TR/SL. Số mẫu đưa vào đo gồm mẫu phong, mẫu đã tinh chế, mẫu đã tinh chế có

Mẫu nước được lọc qua phin lọc kích thước lỗ 0.45µm. Sau đó, phần dung dịch mẫu được cho qua cột nhựa đã chuẩn bị trước để loại các yếu tố cản. Dùng pipete hút dung dịch mẫu, cocktail nhấp nháy ULLT theo tỷ lệ 1:1 cho vào bình đo, trộn đều, lắc kỹ và đo trên hệ Tri-Carb 3180TR/SL. Hiệu chỉnh hiệu ứng quenching (hiệu ứng làm giảm cường độ màu của mẫu đo), xác định hiệu suất bằng phương pháp thêm chuẩn nội ³H có hoạt độ đã biết. Quy trình phân tích hoạt độ triti trong mẫu nước sử dụng kỹ thuật tinh chế bằng cột nhựa triti được tóm tắt sơ đồ sau:

thêm chuẩn ³H, mẫu chuẩn, mẫu phong chuẩn hóa của thiết bị. Cài đặt thông số đo: chu kỳ đo lặp 10 lần cho mỗi mẫu, tổng thời gian đo mỗi mẫu khoảng 1000 phút; cửa sổ vùng đếm: A (0.5 - 4.5

KeV); B (0.5 – 5.5 KeV); C (0.5 – 18.6KeV) [2, 3, 7].

4. Tính toán kết quả

Hiệu suất đếm của mẫu được tính theo công thức sau:

$$E = \frac{C_{s+I} - C_s}{D_i} \quad (1)$$

Trong đó: E là hiệu suất đếm;

C_s là tốc độ đếm mẫu, cpm;

C_{s+I} là tốc độ đếm mẫu có thêm chuẩn nội, cpm;

D_i là tốc độ phân rã mẫu chuẩn nội ^3H , dpm.

Tốc độ phân rã của mẫu, dpm (D_s):

$$D_s = \frac{C_s}{E} \quad (2)$$

Hoạt độ ^3H tại thời điểm đo:

$$A_{(H-3)} = \frac{C_s - C_B}{E \times V \times 60} \quad (3)$$

Trong đó: $A_{(H-3)}$ là hoạt độ phóng xạ triti (Bq/lít); C_B là tốc độ đếm phông, cpm; V là thể tích mẫu đo, lít.

Hoạt độ tại thời điểm thu góp mẫu $A_{0(H-3)}$ (Bq/lít):

$$A_{0(H-3)} = A_{(H-3)} / \exp\left(-\frac{0.693 \times t}{T_{1/2}}\right) \quad (4)$$

Trong đó: $T_{1/2}$ là chu kỳ bán hủy của ^3H , 4500 ngày;

5. Độ không đảm bảo đo:

$$\sigma_{A_{H-3}} = A_{H-3} \sqrt{\left(\frac{\sigma_{C_s}}{C_s}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_{st}}}{C_{st}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_{st}}}{C_{st}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{A_{st}}}{C_{st}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_D}{D}\right)^2} \quad (5)$$

Trong đó: σ_{C_s} , $\sigma_{C_{st}}$, $\sigma_{A_{st}}$, σ_D là sai số tuyệt đối của tốc độ đếm mẫu, đếm chuẩn đã trừ phông, hoạt độ nguồn chuẩn và hiệu chỉnh phân rã của nguồn chuẩn tương ứng ở mức tin cậy 95%; C_{st} , D là tốc độ đếm chuẩn và tốc độ phân rã chuẩn nội sử dụng[2,3,7].

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

Sau khi thực hiện phân tích ^3H theo quy trình đã thiết lập, kết quả tính toán hoạt độ ^3H trong các mẫu thu góp chỉ ra ở bảng và hình sau:

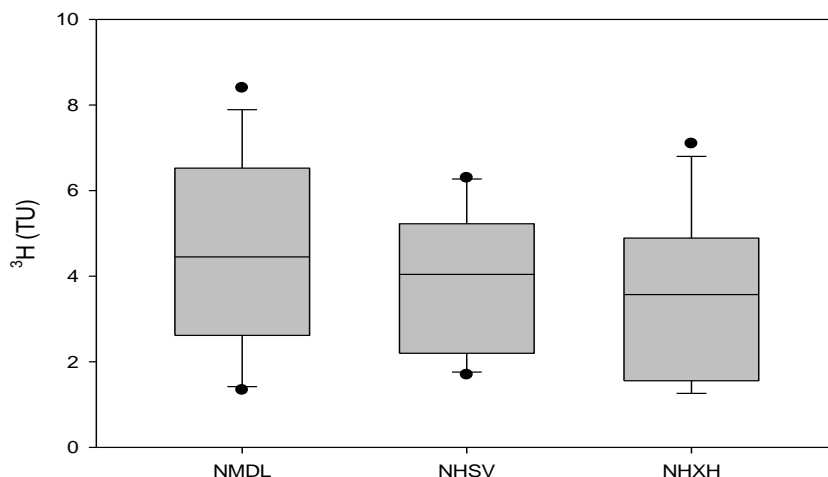
Bảng 1. Hoạt độ phóng xạ ^3H trong mẫu nước tại Đà Lạt.

TT	Ngày thu góp mẫu	Hoạt độ					
		TU			Bq/L		
I	<i>Nước mưa</i>						
1	25/11/2013	6.2	±	0.2	0.73	±	0.02
2	29/11/2013	1.3	±	0.1	0.16	±	0.01
3	29/11/2013	2.4	±	0.4	0.29	±	0.04
4	2/1/2014	6.4	±	0.3	0.75	±	0.03
5	6/1/2014	6.6	±	0.6	0.78	±	0.07
6	3/3/2014	6.7	±	0.7	0.79	±	0.08
7	30/3/2014	3.2	±	0.4	0.38	±	0.05
8	7/4/2014	8.4	±	0.7	0.99	±	0.08
9	14/4/2014	4.4	±	0.4	0.52	±	0.05
10	21/4/2014	1.6	±	0.2	0.19	±	0.02
11	29/4/2014	3.6	±	0.4	0.42	±	0.04

12	29/4/2014	4.1	±	0.4	0.48	±	0.05
13	6/5/2014	5.7	±	0.4	0.67	±	0.05
II Nước Hồ Suối Vàng							
14	25/2/2013	1.3	±	0.2	0.15	±	0.02
15	25/5/2013	5.3	±	0.6	0.62	±	0.07
16	2/8/2013	5.1	±	0.6	0.60	±	0.07
17	25/11/13	3.9	±	0.4	0.46	±	0.04
18	2/2/2014	2.5	±	0.3	0.30	±	0.03
19	10/2/2014	4.3	±	0.4	0.51	±	0.05
20	10/2/2014	6.2	±	0.6	0.73	±	0.06
21	28/2/2014	1.9	±	0.2	0.22	±	0.02
22	1/3/2014	4.2	±	0.4	0.50	±	0.05
23	7/3/2014	1.7	±	0.3	0.20	±	0.04
24	7/3/2014	3.3	±	0.4	0.39	±	0.05
25	7/3/2014	2.1	±	0.2	0.25	±	0.03
26	30/3/2014	7.2	±	0.6	0.85	±	0.07
27	30/3/2014	6.6	±	0.6	0.78	±	0.07
III Nước Hồ Xuân Hương							
28		4.6	±	0.2	0.54	±	0.02
29	2/2/2013	1.3	±	0.1	0.15	±	0.01
30	2/7/2013	1.7	±	0.4	0.20	±	0.04
31	2/8/2013	2.7	±	0.3	0.32	±	0.03
32	2/10/2013	4.2	±	0.9	0.50	±	0.11
33	2/10/2013	3.6	±	0.3	0.42	±	0.03
34	2/11/2013	1.6	±	0.3	0.18	±	0.04
35	2/11/2013	1.3	±	0.1	0.15	±	0.01
36	2/10/2013	4.9	±	0.9	0.58	±	0.11
37	2/10/2013	3.6	±	0.3	0.42	±	0.03
38	2/11/2001	1.8	±	0.3	0.22	±	0.03
39	2/1/2014	1.3	±	0.1	0.15	±	0.02
40	2/3/2014	7.1	±	0.6	0.84	±	0.07
41	2/4/2014	5.3	±	0.5	0.63	±	0.06
42	2/4/2014	6.2	±	0.6	0.73	±	0.07

Ghi chú: * 1TU tương đương với tỉ số đồng vị $^3\text{H}/^1\text{H}$ là 10^{-18} , 1 lít nước có hàm lượng 1 TU= 7.19 dpm/lít (0.118 Bq/lít)[2].

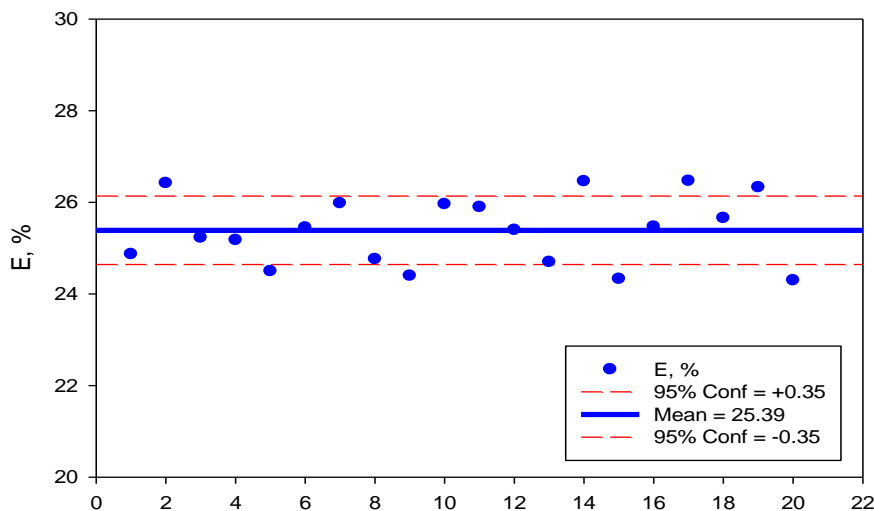
Sơ đồ biểu diễn kết quả phân tích triti trong mẫu nước hồ và nước mưa thu góp tại Đà Lạt chỉ ra ở hình sau:



Hình 2. Biến thiên hoạt độ ^3H (TU) trong một số mẫu môi trường thu gộp năm 2013.

Sơ đồ kiểm soát hiệu suất chuẩn nội triti sử dụng để hiệu chỉnh quenching

màu, xác định hiệu suất đếm mẫu được trình bày trên Hình 3.



Hình 3. Biến thiên hiệu suất xác định ^3H bằng phương pháp thêm chuẩn nội

Từ sơ đồ biểu diễn hiệu suất đo mẫu sử dụng chuẩn nội ^3H (hình 3), với giá trị trung bình là $(25.39 \pm 0.35)\%$, có thể kết luận rằng kỹ thuật tinh chế mẫu bằng sử dụng cột nhựa, thêm chuẩn nội (hiệu chỉnh hiệu ứng quenching mẫu) cho kết quả xác định với hiệu suất khá ổn định. Kết quả phân tích hoạt độ ^3H trong các

mẫu nước mưa, nước Hồ Suối Vàng và Hồ Xuân Hương là từ 1.3 – 8.4 TU, 1.3 – 7.2 TU và 1.3 – 7.1 TU, tương ứng. So sánh kết quả phân tích hoạt độ ^3H mẫu nước mưa Hà Nội từ năm 2002-2012 [8,11], phân tích 112 mẫu với mức hoạt độ từ 0 - 7.5 TU (giá trị trung bình 3.07 ± 1.59 TU); kết quả phân tích nước hồ tại

Đà Lạt (1.3 - 7.2 TU) tương tự như hoạt độ triti trong nước Sông Hồng, Hà Nội (Trình Văn Giáp và cộng sự, 2003 [8,10] kết quả từ 2.2 đến 4.9 TU.

4. KẾT LUẬN

Từ các kết quả phân tích ^3H trong một số mẫu nước ao hồ và nước mưa thu góp năm 2013 và 2014 có thể kết luận rằng: quy trình phân tích ^3H trong mẫu nước đo trên hệ Tri-Carb 3180TR/SL có thể áp dụng để định lượng hoạt độ triti trong một số đối tượng mẫu môi trường khác nhau.

Tuy nhiên, khi định lượng hoạt độ ^3H trong các đối tượng mẫu mức hoạt độ thấp như mẫu nước biển, nước ngầm, vv... nếu hệ đếm nhấp nháy lỏng Tri-carb 3180TR/SL được trang bị thêm hệ điện phân ^3H , độ chính xác của số liệu quan trắc phóng xạ môi trường sẽ tốt hơn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. S.A. Mc Quarrie, C. Ediss, L.I. Wiiebe (1983), *Advances in Scintillation Counting*, Canada.
2. Charles J.Passo, Gordon T.Cook (2006), *Handbook of Environmental Liquid Scintillation Spectrometry: A comparision of Theory and methods*, USA.
3. Michael F. L'Annunziata (Ed.); (2003) "Handbook of radioactivity analysis, Second Edition" Academic Press, San Diego.
4. ISBN. (2008) 978-0-662-47497-5: "*Standards and Guidelines for Triti in Drinking Water*"; Published by the Canadian Nuclear Safety Commission (CNSC).
5. Stanis. *Overview of The Environmental Monitoring Program for Triti in Spanish River Waters*, *Advances in Liquid Scintillation Spectrometry*, 2005.
6. S. Forkapic, J. Nikolov, N. Todorovic, D. Mrdja and I. Biki "Triti Determination in Danube River Water in Serbia by Liquid Scintillation Counter", *World Academy of Science, Engineering and Technology* 76, 2011.
7. Nguyễn Thị Linh, (2013) Báo cáo tổng kết đề tài cấp cơ sở về: "*Nghiên cứu, xác định hoạt độ phóng xạ H-3 trong mẫu nước và rơi lắng bằng phương pháp nhấp nháy lỏng trên hệ thiết bị Tri-carb 3180TR/LS*", mã số: CS/13/01-06, Viện Nghiên cứu Hạt nhân.
8. Trình Văn Giáp, (2003) Báo cáo tổng kết đề tài cấp bộ về: "*Thiết lập quy trình xác định hàm lượng các đồng vị của Hidro và Oxi trong nước nhằm tiến tới nghiên cứu nước ngầm Hà nội*", mã số: BO 02/04-02, Hà Nội.
9. Z Tosheva, A Kies, P Letissier, M Langer "Easy and rapid Estimation of Environmental Triti with Eichrom Column and LSC measurment" *LSC 2005, Advance in LSC*, pp.395-400.
10. Ji-Gen Lua, Yan-Jun Huang, Li-Hua Wang, Fang Li, Shu-Zhen Li, Yuan-Fu Hsia, " ^3H and ^{90}Sr background in water around Tianwan NPP, China; *Radiation measurments* 42 (2007), pp.74-79.
11. Đinh Thị Bích Liễu, (2013) "*Hàm lượng triti (^3H) trong mẫu nước mưa khu vực Hà Nội (2002-2012)*"; Báo cáo hội nghị Khoa học & Công nghệ toàn quốc lần thứ 10.