

Nghiên cứu nâng cao độ nhạy phép đo nồng độ các đồng vị phóng xạ trong lương thực thực phẩm trên hệ phổ kế gamma phân giải cao

Lưu Tam Bát^{1,*}, Lưu Như Quỳnh¹, Nguyễn Như Vũ¹, Lưu Việt Hưng¹, Trần Thị Vân¹,
Lưu Văn Đông¹, Nguyễn Công Đoàn¹, Hà Thị Len¹, Nguyễn Thị Soát¹,
Nguyễn Thị Khang¹, Đặng Tuyết Ly¹, Nguyễn Thị Minh¹, Nguyễn Văn Thoãn²,
Khổng Nam Khang²; Trương Thị Hồng Loan³, Trương Hữu Ngân Thy³, Thái Mỹ Phê⁴

¹Viện nghiên cứu Môi trường và các vấn đề Xã hội; ²Viện Y học phóng xạ và U bướu Quân đội;

³Trường Đại học KHTN, thành phố Hồ Chí Minh; ⁴Trung tâm hạt nhân thành phố Hồ Chí Minh

Nhận ngày 12 tháng 01 năm 2016

Chỉnh sửa ngày 29 tháng 01 năm 2016; Chấp nhận đăng ngày 10 tháng 3 năm 2016

Tóm tắt: Hệ phổ kế gamma phân giải cao với đầu đo bán dẫn siêu tinh khiết Germani được sử dụng để xác định các đồng vị phóng xạ phát bức xạ gamma. Các quy trình hiện có để xác định nồng độ các đồng vị phóng xạ trong lương thực thực phẩm, đo với các hộp đựng mẫu hình trụ với thời gian 84.600s khó xác định được ¹³⁷Cs và một số đồng vị phóng xạ khác, do hoạt độ phóng xạ nhỏ nhất có thể đo được trong trường hợp này ở mức $0,12 \div 0,5\text{Bq}$ đối với ¹³⁷Cs. Do nồng độ các đồng vị phóng xạ trong lương thực thực phẩm hiện nay rất thấp, có sự mất cân bằng của ²³⁸U và ²²⁶Ra trong các mẫu phân tích. Hơn nữa, để xác định nồng độ ¹³⁷Cs, cần có giải pháp nâng cao độ nhạy của hệ đo. Bài báo này trình bày một số giải pháp tối ưu như: Nâng hiệu suất ghi, tăng khối lượng mẫu, tăng thời gian đo mẫu một cách hợp lý; nhờ đó, độ nhạy được nâng cao rõ rệt, giá trị nhỏ nhất có thể đo được đạt tới $0,03\text{Bq} \div 0,08\text{Bq}$, đáp ứng được yêu cầu phân tích hầu hết nồng độ các đồng vị phóng xạ trong LTTP, kể cả hoạt độ của ¹³⁷Cs. Phương pháp này được sử dụng để xây dựng cơ sở dữ liệu về nồng độ các đồng vị phóng xạ trong lương thực thực phẩm có nguồn gốc tại khu vực biên giới tiếp giáp với nhà máy điện hạt nhân của Trung Quốc.

Từ khóa: ¹³⁷Cs, phổ kế gamma, lương thực, thực phẩm.

1. Mở đầu

Nồng độ các đồng vị phóng xạ trong lương thực, thực phẩm (LTTP) đã được nhiều nước trên thế giới cũng như các tổ chức Quốc tế quan tâm nghiên cứu, nhất là từ sau sự cố hạt nhân của tổ máy số 4, nhà máy điện hạt nhân Chernobyl thì các tiêu chuẩn về nồng độ các

đồng vị phóng xạ trong LTTP chính thức được ban hành ở nhiều nước và được kiểm soát chặt chẽ [1-3]. Đã có nhiều công trình nghiên cứu công phu về nồng độ phóng xạ trong LTTP được thực hiện, nhất là trong những năm gần đây khi xu thế ứng dụng năng lượng hạt nhân ngày càng tăng trên toàn cầu. Các công trình này hầu hết đều sử dụng hệ phổ kế gamma phân giải cao với đầu đo bán dẫn siêu tinh khiết (HPGe); một số công trình đã sử dụng các phương pháp tách hóa phóng xạ xác định thêm

* Tác giả liên hệ. ĐT: 84-985791515.
Email: luutambat47@gmail.com

các đồng vị ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{210}Po và cả đối với ^{238}U trong một số trường hợp [4-6].

Phương pháp sử dụng phổ kế gamma phân giải cao có ưu điểm là xác định được hầu như tất cả các đồng vị phóng xạ tự nhiên và các đồng vị phóng xạ nhân tạo phát bức xạ gamma.

Một vấn đề đặt ra trong nghiên cứu xác định nồng độ các đồng vị phóng xạ trong LTTP trong điều kiện bình thường bằng hệ phổ kế gamma phân giải cao là nồng độ phóng xạ tự nhiên và nhân tạo trong LTTP rất thấp (đặc biệt là các LTTP đã qua xử lý, chế biến), chính vì vậy có một số đồng vị phóng xạ không thể xác định được và phải chấp nhận lấy giá trị nhỏ hơn nồng độ (hoạt độ) phóng xạ nhỏ nhất có thể đo được (MDC hay MDA), đặc biệt đối với ^{137}Cs [7,8].

Thực tế đã chỉ ra rằng, để có thể xác định được nồng độ đồng vị phóng xạ ^{137}Cs cũng như một số đồng vị phóng xạ tự nhiên khác trong các mẫu LTTP ở thời điểm hiện nay cần sử dụng đồng bộ các giải pháp nâng cao độ nhạy của hệ đo hiện có.

Bài báo này trình bày một số giải pháp nâng cao độ nhạy của phép đo phóng xạ trong LTTP bằng phổ kế gamma phân giải cao, nhằm nâng cao khả năng xác định nồng độ các đồng vị phóng xạ và giảm sai số cho các giá trị đo được.

2. Phương pháp nghiên cứu

Độ nhạy của hệ đo, ký hiệu là χ có liên quan đến hoạt độ phóng xạ nhỏ nhất của một đồng vị phóng xạ mà thiết bị có thể đo được (MDA).

Giá trị MDA của mỗi đồng vị phóng xạ với một hệ phổ kế gamma được xác định bằng cách đo mẫu trắng (gọi là mẫu phông) với cùng kích thước, mật độ và thành phần hoá học (matrix) giống như mẫu nghiên cứu nhưng không có đồng vị phóng xạ ta quan tâm. Ví dụ cần tính MDA đối với đỉnh ^{137}Cs thì tạo mẫu trắng không có ^{137}Cs nhưng có tất cả các đồng vị phóng xạ khác (dãy ^{238}U , dãy ^{232}Th , ^{40}K , ...)

giống như mẫu nghiên cứu. Khi đó, MDA tính theo công thức sau [3,9,10,11]:

$$\text{MDA (Bq/kg)} = \frac{2,71 + 3,29\sigma_B \sqrt{1 + \frac{t_B}{t}}}{t_B \times \text{EFF} \times Y \times m_B} \quad (2.1)$$

Trong đó:

N_B : Diện tích đỉnh trên phổ phông trắng.

$\sigma_B = \sqrt{N_B}$: Độ lệch chuẩn của phông.

t: Thời gian đo mẫu nghiên cứu (s)

t_B : Thời gian đo mẫu trắng (phông) (s)

EFF: Hiệu suất của đỉnh toàn phần tại năng lượng xem xét.

Y: Tỷ số phân nhánh (%).

m_B : Khối lượng mẫu trắng (kg)

Khi $t_B = t$ thì công thức trên trở thành:

$$\text{MDA (Bq/kg)} = \frac{2,71 + 4,66\sigma_B}{t_B \times \text{EFF} \times Y \times m_B} \quad (2.2)$$

Có thể dùng công thức (2.2) để tính gần đúng MDA cho mỗi đồng vị.

Cách tính độ lệch chuẩn: $\sigma_B = \sqrt{N_B}$, trong đó N_B là diện tích đỉnh của phổ phông. Bề rộng miền năng lượng tính N_B trên phổ phông bằng bề rộng miền năng lượng tính diện tích đỉnh tương ứng trên phổ nghiên cứu.

Độ nhạy của hệ đo đối với một đồng vị, χ được tính bởi:

$$\chi = \frac{1}{\text{MDA}} \quad (2.3)$$

Như vậy, để nâng cao được độ nhạy trong việc xác định một đồng vị phóng xạ cần làm sao để giảm MDA nhỏ nhất có thể được đối với đồng vị phóng xạ đó.

Biểu thức (2.3) cho thấy để nâng cao độ nhạy thì phải có MDA nhỏ, để có MDA nhỏ cần tối ưu các yếu tố để đạt được các yêu cầu sau đây:

1. Phông của hệ đo (N_B): Cần giảm phông của hệ đo tới mức tối đa có thể được.

2. Tăng khối lượng mẫu đo (m_B): Khi tăng khối lượng mẫu đo sẽ góp phần tăng độ nhạy của hệ đo.

3. Tăng thời gian đo mẫu (t_B): Độ nhạy tỷ lệ thuận với thời gian đo, thời gian đo một mẫu nên từ 86.400s trở lên, thời gian đo một mẫu có thể lên tới 300.000s [5], hoặc lớn hơn nữa.

4. Tăng hiệu suất ghi của hệ đo (EFF): Với một khối lượng mẫu (tương đương với một thể tích nhất định), người ta có thể tối ưu cấu hình đo giữa các thông số của mẫu và đầu đo, bằng

cách tối ưu hóa để nâng cao hiệu suất hình học đối với một detector xác định sẽ cho một hiệu suất đo cao nhất đối với các mức năng lượng khác nhau, có tính tới hiệu chỉnh tự hấp thụ. Hiệu suất ghi của hệ phổ kế gamma phân giải cao với detector bán dẫn siêu tinh khiết (HpGe) phụ thuộc vào năng lượng và hình học mẫu đo được trình bày tại bảng 1.

Bảng 1. Hiệu suất ghi (%) của đầu dò có hiệu suất ghi tương đối 55% với các hình học mẫu đo khác nhau [2]

Đỉnh năng lượng (keV)	Phin lọc (hình trụ), nhỏ hơn 50 cm ³	Hình trụ 50 cm ³	Hộp nhôm 90 cm ³	Hộp hình giếng 600 cm ³
60	15,6	14,6	11,6	5
88	15,2	14,2	11,3	7,4
122	15,1	12,6	10,2	8,4
166	12	9,6	8	7,9
279	9,3	7,4	6	6,1
392	7,2	5,5	4,5	4,8
514	5,4	4,2	3,5	3,8
662	4,7	3,6	3	3,1
835	3,9	2,9	2,4	2,7
898	3,1	2,4	2,1	2,2
1115	3	2,3	1,9	2,1
1173	2,6	2	1,7	1,8
1333	2,3	1,8	1,5	1,6
1836	1,7	1,3	1,2	1,3

Bảng 1 cho thấy, thể tích mẫu càng nhỏ thì hiệu suất ghi càng lớn, nhất là ở vùng năng lượng thấp. Mẫu đo hình trụ của phin lọc (được nén dạng hình trụ thường có thể tích nhỏ hơn 50 cm³), hộp đựng mẫu bằng PE hình trụ có thể tích 50 cm³, hộp đựng mẫu hình trụ bằng nhôm có thể tích 90 cm³ đều có hiệu suất ghi lớn hơn nhiều so với mẫu đo hình giếng (Marinelli) 600 cm³; khi năng lượng gamma tới gần 900 keV hiệu suất ghi của chúng gần như tương đương đối với các thể tích đựng mẫu khác nhau. Như vậy, đối với các mẫu LTTP, khi nghiên cứu xây dựng cơ sở dữ liệu về nồng độ các đồng vị phóng xạ cần xác định chính xác nhiều đồng vị phóng xạ tự nhiên và nhân tạo thì giải pháp sử dụng mẫu đo hình trụ có thể tích mẫu đo từ 50 cm³ đến 120 cm³ là phù hợp với lượng tro thu được từ tất cả các loại mẫu; trong trường hợp khối lượng mẫu lớn sẽ dẫn tới nồng độ ⁴⁰K cao gây khó khăn hơn cho việc đo mức thấp và ở

vùng năng lượng thấp, nhưng xét về tổng thể thì vẫn có lợi hơn cả [2,12-14].

Ngay cả ở vùng năng lượng thấp, giữa ép mẫu làm tăng mật độ và làm giảm thể tích để có một hiệu suất ghi cao hơn và hiệu ứng tự hấp thụ đã được tính toán kỹ, qua đó cho thấy việc ép mẫu vẫn có lợi hơn.

Như vậy, để nâng cao độ nhạy của phép đo nồng độ các đồng vị phóng xạ trong LTTP trên phổ kế gamma phân giải cao với đầu dò bán dẫn, ta cần có các giải pháp đồng bộ về: Lấy khối lượng mẫu tươi phù hợp, đủ lớn cho từng loại mẫu, làm giàu bằng phương pháp tro hóa, tính toán tối ưu cấu hình mẫu - đầu đo để nâng cao hiệu suất ghi của hệ đo, cuối cùng là tăng thời gian đo thích hợp để nồng độ các đồng vị phóng xạ có thể xác định với sai số chấp nhận được.

Thực nghiệm

Sử dụng 80 kg gạo tẻ BC15, thu gom tại Đông Triều, Quảng Ninh để tro hóa ở nhiệt độ nhỏ hơn 450 °C và thu được 520,43 g tro theo quy trình chuẩn quốc tế và trong nước [1,2,3,10]. Mẫu tro được đồng nhất bằng cách trộn trong một máy nghiền có lưỡi dao phủ titan. Mẫu sau đó được chia thành các phần gửi tới các Phòng thí nghiệm (PTN) để phân tích xác định ^{137}Cs và ^{40}K trên hệ phổ kế gamma phân giải cao. Các PTN đều sử dụng hộp đựng mẫu hình trụ có đường kính trong là 72 mm, đường kính này phù hợp với tất cả các hệ đo trong nước.

Có 5 PTN trong nước và 1 PTN quốc tế tham gia phân tích xác định nồng độ các đồng vị phóng xạ ^{137}Cs và ^{40}K trong tro mẫu gạo, vừa có tính chất so sánh vừa nghiên cứu đánh giá những điều kiện tối ưu để nâng cao độ nhạy của hệ đo. Trước khi tham gia các nghiên cứu này, các PTN đều đã có quy trình xác định nồng độ các đồng vị phóng xạ trong LTTP, của riêng mình hoặc vận dụng quy chuẩn quốc tế, quốc gia về đo phóng xạ trong LTTP. Các hệ phổ kế gamma phân giải cao của 5 PTN đều đạt tiêu chuẩn đo phóng xạ mức thấp, tuy nhiên chất lượng khác nhau chủ yếu ở hiệu suất ghi và khả năng đáp ứng giải năng lượng rộng:

- PTN số I (Viện nghiên cứu hạt nhân): sử dụng hệ phổ kế gamma phân giải cao của Hãng Canberra với đầu đo GX3019, hiệu suất ghi tương đối 30%; độ phân giải năng lượng FWHM là 1,90 keV tại đỉnh năng lượng 1332 keV của ^{60}Co , được đặt trong buồng giảm nhiễu hình trụ đường kính 50 cm và độ cao 5 cm; với các lớp che chắn, gồm: 3 mm Al, 3 mm Cu và 10 cm Pb siêu sạch phóng xạ, phòng tích phân của hệ thống từ 100÷2000 KeV cỡ 2 xung/s. Phần mềm thu và xử lý phổ là MAESTRO®-32; phần mềm xử lý phổ là GAMMAW.

- PTN số II (Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội): sử dụng hệ phổ kế gamma phân giải cao của Hãng Canberra với đầu đo BEGe5030, hiệu suất ghi tương đối 50%, độ phân giải là 1,8 keV tại đỉnh 1332 keV

của ^{60}Co , giải năng lượng đo được rất rộng từ 3 keV cho tới 3 MeV, được đặt trong buồng giảm nhiễu hình trụ đường kính 50 cm và độ cao 55 cm.

- PTN số III (Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia thành phố Hồ Chí Minh): sử dụng hệ phổ kế của Canberra với đầu đo GC3520 đáp ứng năng lượng từ khoảng 30 keV – 10 MeV. Hiệu suất ghi tương đối 38%, độ phân giải 1,77 keV đối với đỉnh 1.332 keV của ^{60}Co . Phần mềm chuyên dụng Genie 2000 3.2.1 để thu phổ, xử lý và tính toán kết quả. Hệ đo thứ 2 của Hãng Ortec với đầu đo GMX35P4-70; ghi nhận bức xạ từ khoảng 3 keV–3MeV, hiệu suất ghi tương đối 33 %, độ phân giải 1,9 keV đối với đỉnh 1.332 keV của ^{60}Co . Ghi nhận, xử lý phổ gamma, tính toán kết quả bằng phần mềm chuyên dụng Gamma Vision-32V 6.09, buồng giảm nhiễu hình trụ đường kính 50 cm và độ cao 55 cm.

- PTN số IV (Trung tâm hạt nhân thành phố Hồ Chí Minh): Sử dụng hệ phổ kế gam phòng thấp của Ortec với đầu đo bán dẫn siêu tinh khiết có hiệu suất ghi tương đối 30%, đáp ứng năng lượng từ 40 keV đến 3.000 keV; độ phân giải 0,82 keV (122 keV) và 1,81 keV (1.332 keV). Chương trình thu nhận và xử lý phổ Gamma Vision.

- PTN số V (Viện Y học phóng xạ và u bướu quân đội): sử dụng hệ phổ kế gamma phân giải cao của Canberra với đầu đo HpGe siêu tinh khiết model GC1518, đường kính tinh thể HpGe 5,2 cm, dày 3,5 cm hiệu suất ghi tương đối là 18%, độ phân giải là 1,9 keV ở đỉnh 1.332 keV của ^{60}Co , giải đo từ 65 keV đến 2.108 keV. Kích thước buồng giảm nhiễu: cao 41 cm, bề dày 11,5 cm làm bằng Pb siêu sạch, đường kính giếng đo 28 cm. Phần mềm chuyên dụng Genie 2000 v2.1 để thu, xử lý phổ và tính toán kết quả.

- PTN số VI (Phòng thí nghiệm nghiên cứu môi trường biển tại Monaco, MEL tại Vương quốc Monaco): Là PTN chuyên đo phóng xạ mức thấp các mẫu môi trường trong đó có LTTP của Cơ quan năng lượng quốc tế. PTN được đặt dưới lòng đất, hệ phổ kế gamma

phông thấp với các đầu đo HpGe siêu tinh khiết có hiệu suất ghi tương đối rất lớn, tới 150%.

Như vậy các PTN trong nước đều sử dụng các hệ đo chuyên dụng, trong đó PTN số 5 có hiệu suất ghi tương đối thấp (18%), không đáp ứng giải năng lượng rộng. Các hệ đo khác đều có hiệu suất ghi từ 30% đến 50% (so với đầu đo nhập nháy hình trụ có kích thước tinh thể 3 inch×3 inch) và đều đáp giải năng lượng đo rộng.

3. Kết quả và thảo luận

Sự khác biệt lớn nhất giữa các loại đầu đo bán dẫn siêu tinh khiết HpGe đang được sử dụng là hiệu suất ghi, thông số về hiệu suất ghi tương đối, kết quả xác định nồng độ của 2 đồng vị phóng xạ (ĐVPX) ^{137}Cs và ^{40}K được trình bày trên bảng 2. Sai số đối với nồng độ các đồng vị phóng xạ bao gồm sai số thống kê và các sai số hệ thống khác như sai số do xác định hiệu suất ghi và hiệu chỉnh tự hấp thụ, sai số do các công đoạn thu gom, xử lý, làm tiêu bản đo.

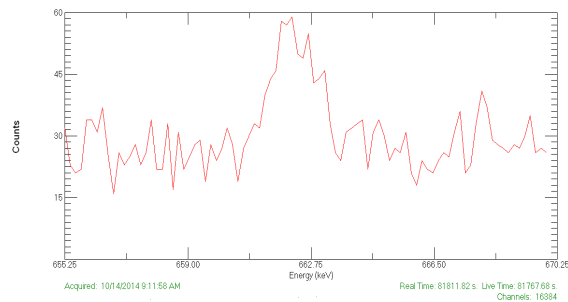
Bảng 2. Thông số các hệ đo và kết quả đo hoạt độ phóng xạ mẫu thử nghiệm với tro của gạo BC15

Số TT	Phòng thí nghiệm	Hiệu suất ghi tương đối, %	Khối lượng mẫu, g	Thời gian đo, s	Kết quả đo (Bq/kg tro khô)	
					^{137}Cs	^{40}K
1	PTN số I	30	50,30	86.400	< 2,00	5.456 ± 250
2	PTN số II	50	82,01	81.767	2,11 ± 0,36	4.642 ± 437
3	PTN số III	38	111,06	147.592	2,88 ± 0,32	4.846 ± 280
4	PTN số IV	30	110,24	143.000	2,30 ± 0,34	5.615 ± 370
5	PTN số V	18	105,37	150.360	2,45 ± 0,60	5.350 ± 476
6	PTN số VI	150	60	895.000	2,65 ± 0,15	5.115 ± 139

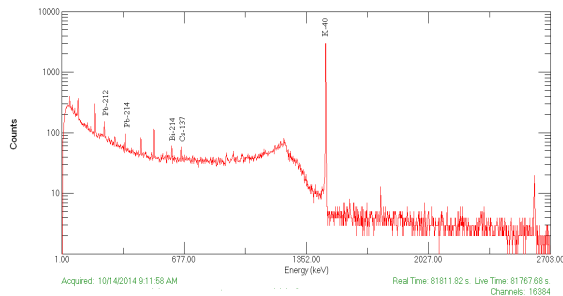
Kết quả đo của các PTN từ bảng 2 cho thấy:

Tại PTN số I, sử dụng lượng tro 50,3 g tro (khoảng 8 kg gạo), đo trong thời gian 86.400 s đã không thể xác định được ^{137}Cs (MDA là 0,25 Bq/kg.tươi), nhưng xác định được tốt ^{40}K do nồng độ của đồng vị này rất lớn trong LTTP.

PTN số II với hệ đo có hiệu suất ghi cao hơn, nhất là ở vùng năng lượng thấp và trung bình nên khi sử dụng 82,01 g tro (khoảng 13 kg gạo), đo trong khoảng thời gian 81.767 s, đã xác định được nồng độ của ^{137}Cs và ^{40}K , phổ đo mẫu được trình bày trên hình 1a và đỉnh phổ ^{137}Cs được thể hiện trên hình 1b, đỉnh ^{137}Cs có thể quan sát được rất rõ.



Hình 1b. Phổ đo ĐVPX ^{137}Cs trong mẫu gạo, PTN II.



Hình 1a. Phổ đo ĐVPX trong mẫu gạo, PTN II.

Tại PTN số III với hệ đo có hiệu suất ghi tương đối là 38%, sử dụng lượng tro, sử dụng 111,06 g (khoảng 17 kg gạo), đo trong thời gian 147.592 s đã xác định được nồng độ của ^{137}Cs , ^{40}K với sai số thấp hơn.

PTN số IV với hệ đo có hiệu suất ghi tương đối 30%, sử dụng 110,24 tro (khoảng 17 kg gạo), đo với thời gian 143.000 s, đã xác định được nồng độ ^{137}Cs , ^{40}K với sai số thấp hơn.

PTN số V với hệ đo có hiệu suất ghi tương đối là 18%, sử dụng 105,37 g tro (khoảng 16 kg gạo), đo với thời gian 150.000 s, đã xác định được nồng độ ^{137}Cs , ^{40}K với sai số cao hơn so với các PTN số III, IV. là

Tại PTN số VI, PTN của IAEA, hiệu suất ghi của đầu đo là 150%, với khối lượng tro sử dụng 60 g tro (khoảng 9 kg gạo) với thời gian 895.000s, nồng độ các đồng vị ^{137}Cs là $2,6 \pm 0,10$, ^{40}K là 5.115 ± 37 , sai số đo đối với nồng độ ^{137}Cs và của ^{40}K thấp hơn nhiều so với các PTN khác. Từ kết quả đo ở trên có thể nhận thấy:

Các quy trình đang sử dụng của các PTN, trong đó quy định lấy mẫu lượng thực 8 kg (gạo, ngô, khoai, sắn), các mẫu rau 5÷7 kg (rau củ quả, quả),... và đo với thời gian 84.600s thì hầu hết vẫn không xác định được ^{137}Cs và một số đồng vị khác trong dãy U, Th. Hoạt độ phóng xạ nhỏ nhất (MDA) có thể đo được thực tế ở mức 0,12 Bq đến 0,5 Bq đối với ^{137}Cs . Như vậy, để nâng cao độ nhạy của hệ đo, cần giảm hơn nữa giá trị MDA. Trong nghiên cứu này đã tập trung vào 3 giải pháp:

- Nâng cao hiệu suất ghi của hệ đo: Tro thu được, nếu ép nhẹ như vẫn thường làm sẽ cho khối lượng riêng từ $0,6 \div 0,7 \text{ g/cm}^3$; nếu được ép với máy ép tay thì khối lượng riêng nhận

được từ $0,9 \div 1,0 \text{ g/cm}^3$, như vậy sẽ giảm được độ cao của mẫu, đủ mức nâng cao hiệu suất ghi thực tế lên 15% đến 25% hoặc cao hơn nữa, tùy theo từng loại tro, máy ép, tự hấp thụ cũng ở mức chấp nhận được, nhất là đối với vùng năng lượng thấp.

- Tăng khối lượng mẫu đo: Tùy theo loại mẫu để chọn khối lượng mẫu tươi đủ lớn, phù hợp, hầu hết phải tăng khối lượng mẫu tươi từ 1,5 đến 2 lần; để có thể xác định được ^{137}Cs và một số đồng vị trong của U, Th trong gạo phải sử dụng 10 ÷ 15 kg hoặc lớn hơn; với rau, củ, quả cần tối thiểu là 10 kg đến 20 kg phần ăn được.

- Tăng thời gian đo: Tăng thời gian đo một cách hợp lý có kết quả tốt như đã chỉ ra ở bảng 2. Để đánh giá hiệu quả tăng thời gian đo trong việc nâng cao độ nhạy, chúng tôi đã thực hiện đo cùng một mẫu tro gạo BC15 với các khoảng thời gian đo khác nhau. Hệ đo phổ gamma với đầu đo GMX35P4-70, sử dụng mẫu tro gạo BC15 với khối lượng tro 94,715 g (khoảng 15 kg gạo). Kết quả được trình bày trên bảng 3.

Bảng 3. Kết quả phân tích nồng độ các đồng vị phóng xạ trong mẫu tro gạo BC15, khối lượng 94,715 g với các khoảng thời gian đo khác nhau, (Bq/kg tro khô)

Đồng vị	Đo 50.000 s	Đo 86.900 s	Đo 172.585 s	Đo 259.385 s	Đo 328.823 s
U-238/Th-234	$4,94 \pm 2,52$	$4,87 \pm 1,3$	$5,17 \pm 1,21$	$5,28 \pm 1,07$	$4,87 \pm 0,49$
K-40	5.268 ± 276	5.291 ± 261	5.276 ± 246	5.274 ± 239	5.281 ± 236
Ac-228	$1,74 \pm 1,23$	$2,72 \pm 1,38$	$1,92 \pm 0,89$	$2,07 \pm 0,78$	$2,26 \pm 0,71$
Pb-212	$1,55 \pm 0,30$	$1,55 \pm 0,43$	$1,41 \pm 0,17$	$1,63 \pm 0,18$	$1,8 \pm 0,17$
Pb-214	$6,54 \pm 1,90$	$1,2 \pm 0,33$	$1,35 \pm 0,29$	$1,63 \pm 0,16$	$1,97 \pm 0,35$
Bi-214	$1,47 \pm 0,38$	$2,18 \pm 0,44$	$1,75 \pm 0,35$	$1,76 \pm 0,29$	$1,9 \pm 0,26$
Tl-208	$0,61 \pm 0,11$	$0,57 \pm 0,09$	$0,44 \pm 0,05$	$0,36 \pm 0,03$	$0,64 \pm 0,06$
Th-228	< 18,43	< 21,95	< 15,32	< 12,56	< 9,14
Ra-226	$3,95 \pm 1,94$	$2,31 \pm 0,81$	$2,3 \pm 0,69$	$3,28 \pm 0,74$	$2,87 \pm 0,63$
Ce-144	< 0,64	< 0,48	< 0,17	< 0,13	< 0,11
Cs-137	$3,19 \pm 1,54$	$2,49 \pm 1,16$	$2,91 \pm 0,87$	$2,63 \pm 0,82$	$2,96 \pm 0,43$
Bi-212	$1,69 \pm 0,30$	$1,59 \pm 0,241$	$1,22 \pm 0,14$	$1,01 \pm 0,11$	$1,79 \pm 0,17$
Th-232	$1,74 \pm 1,23$	$1,55 \pm 0,43$	$1,92 \pm 0,89$	$2,07 \pm 0,78$	$2,26 \pm 0,70$
Pa-234m	< 40,5	< 29,01	< 16,65	< 17,47	< 15,42
U-235	$0,23 \pm 0,11$	$0,22 \pm 0,05$	$0,33 \pm 0,08$	$0,32 \pm 0,03$	$0,22 \pm 0,02$
Be-7	< 0,95	< 0,95	< 0,53	< 0,43	< 0,37
Pb-210	$19,97 \pm 6,18$	$16,17 \pm 4,30$	$16,32 \pm 3,11$	$16,97 \pm 2,74$	$15,27 \pm 2,46$

Phân tích kết quả trên bảng 3 cho thấy: Đo mẫu với thời gian 50.000 s và 86.900 s vẫn cho kết quả với sai số lớn. Khi đo khoảng 2 ngày đêm và 3 ngày đêm, sai số nhỏ hơn nhưng sai số giữa hai khoảng thời gian đo này không cho thấy sự khác biệt, tuy nhiên khi đo tới 4 ngày đêm thì kết quả xác định được với sai số thấp hơn hẳn. Như vậy, với một mẫu gạo ta có thể sử dụng khoảng 15 kg tươi, tro hóa, ép mẫu bằng máy ép tay, đo với thời gian khoảng 2 ngày đêm (172.800 s) là có thể đạt được kết quả với sai số chấp nhận được đối với các phép đo phóng xạ mức thấp như LTTP.

Từ kết quả bảng 4 có thể nhận thấy kết hợp các giải pháp ép mẫu giảm thể tích để tăng hiệu suất ghi, tăng khối lượng mẫu đo và thời gian đo hợp lý có ý nghĩa quan trọng, MDA đã giảm được 4 đến 6 lần (đối với ^{137}Cs là $0,03 \div 0,08\text{Bq}$), nhờ đó hầu hết nồng độ các đồng vị phóng xạ trong mẫu được xác định với sai số chấp nhận được. Trên 300 mẫu đã được đo theo giải pháp này (gồm gạo và các loại LTTP khác), góp phần quan trọng cho việc xây dựng cơ dữ liệu về phóng xạ trong LTTP ở khu vực biên giới, gần với nhà máy điện hạt nhân của Trung quốc. Bảng 4 trình bày một vài kết quả đã thực hiện.

Bảng 4. Kết quả xác định nồng độ một số đồng vị phóng xạ trong mẫu LTTP ở Quảng Ninh (Bq/kg.tươi)

Đồng Vị	Gạo tẻ SI 23, xã Quảng Lâm, Đầm Hà, Quảng Ninh	Gạo nếp, xã Hải Đông, Móng Cái, Quảng Ninh	Hàu, xã Vạn Ninh, Móng Cái, Quảng Ninh	Rau muống, thị trấn Đông Triều, Quảng Ninh	Rau cải, Đoàn Kết, Huyện Vân Đồn, Quảng Ninh	Nghêu, xã Vạn Ninh, Móng Cái, Quảng Ninh
^{137}Cs	1,114 ± 0,169	0,268 ± 0,058	0,005 ± 0,002	0,026 ± 0,008	0,014 ± 0,005	0,014 ± 0,014
^{40}K	55,595 ± 4,187	47,76 ± 4,078	51,265 ± 4,46	91,839 ± 6,233	87,7 ± 5,743	55,383 ± 4,39
^{232}Th	0,031 ± 0,007	0,03 ± 0,009	0,215 ± 0,037	0,257 ± 0,032	0,151 ± 0,041	0,572 ± 0,125
^{228}Ac	0,033 ± 0,011	0,023 ± 0,007	0,215 ± 0,037	0,27 ± 0,025	0,152 ± 0,032	0,566 ± 0,074
^{228}Th	0,031 ± 0,006	0,022 ± 0,005	<1,364	0,106 ± 0,017	0,138 ± 0,016	0,457 ± 0,095
^{212}Pb	0,025 ± 0,004	0,023 ± 0,005	0,225 ± 0,020	0,16 ± 0,015	0,097 ± 0,016	0,449 ± 0,040
^{212}Bi	0,022 ± 0,006	-	0,083 ± 0,053	-	0,075 ± 0,052	0,686 ± 0,243
^{208}Tl	0,106 ± 0,008	0,116 ± 0,011	0,077 ± 0,009	0,106 ± 0,015	0,026 ± 0,005	0,174 ± 0,020
^{238}U	0,267 ± 0,060	0,217 ± 0,063	0,359 ± 0,030	0,227 ± 0,068	0,051 ± 0,011	0,42 ± 0,114
^{234}Th	0,267 ± 0,060	0,217 ± 0,063	0,359 ± 0,030	0,227 ± 0,068	0,051 ± 0,011	0,42 ± 0,114
^{226}Ra	0,048 ± 0,012	0,051 ± 0,007	0,076 ± 0,010	0,212 ± 0,018	0,043 ± 0,021	0,169 ± 0,052
^{214}Pb	0,017 ± 0,005	0,02 ± 0,005	0,073 ± 0,009	0,165 ± 0,017	0,073 ± 0,025	0,2 ± 0,047
^{214}Bi	0,027 ± 0,006	0,031 ± 0,007	0,078 ± 0,011	0,216 ± 0,016	0,011 ± 0,004	0,137 ± 0,032
^{210}Pb	0,613 ± 0,159	0,345 ± 0,072	2,007 ± 0,566	0,75 ± 0,205	0,617 ± 0,071	0,886 ± 0,229

Trong số các mẫu nghiên cứu, có một số mẫu hoạt độ phóng xạ ^{40}K lớn, hoặc ^{137}Cs rất nhỏ, mặc dù đã tăng khối lượng mẫu (ví dụ như gạo đến 15kg), tăng thời gian đo đến 172.800 s nhưng vẫn không xác định được ^{137}Cs và một vài đồng vị khác, đối với các mẫu này kết quả xác định nồng độ các đồng vị phóng xạ chấp nhận là giá trị MDA, đồng thời cũng cho thấy việc tăng khối lượng mẫu hay tăng thời gian đo là hữu hạn đối với mỗi hệ đo cần được xác định một cách hợp lý.

4. Kết luận

Để xác định nồng độ mức thấp các đồng vị phóng xạ trong LTTP trên hệ phổ kế gamma phân giải cao với đầu đo bán dẫn siêu tinh khiết HpGe cần chú ý cải thiện điều kiện hình học đo để tăng hiệu suất ghi, tăng lượng mẫu, tăng thời gian đo; mẫu được tro hóa và đo với các hộp đựng mẫu hình trụ có đường kính trong 72 mm, độ dày mẫu có thể thay đổi theo khối lượng tro.

Kết quả nghiên cứu đã chỉ ra rằng: Cải thiện cấu hình đo mẫu-detector theo hướng giảm thể tích để tăng hiệu suất ghi của hệ đo; Tăng khối lượng mẫu đo, tăng thời gian đo mẫu cho phép xác định được nồng độ các đồng vị phóng xạ thấp hơn nhiều, dưới mức MDA đạt được theo quy trình thường dùng. Đối với ^{137}Cs là 0,03Bq đến 0,08Bq.

Lời cảm ơn

Nghiên cứu được tài trợ bởi đề tài “Nghiên cứu xây dựng cơ sở dữ liệu về phóng xạ trong lương thực và thực phẩm có nguồn gốc tại khu vực biên giới tiếp giáp với nhà máy điện hạt nhân của Trung Quốc”, Mã số KC05.21/11-15.

Tài liệu tham khảo

- [1] International Atomic Energy Agency (1989), Measurement of radionuclides in food and the environment, TRS 295, Vienna.
- [2] United States Environmental Protection Agency. National Institute of Standards and technology (2014), Multi-Agency Radiological Laboratory Analytical Protocols Manual (MARLAP). Part I, II: Chapters 1-17 Appendix F.
- [3] FDA Office of Regulatory Affairs (2010), Winchester Engineering and Analytical Center, WEAC. RN. Method 3.0 (Ver 7.1), Determination of Gamma-Ray Emitting Radionuclides in Foods by High-Purity Germanium Spectrometry. Laboratory procedure FDA Office of Regulatory Affairs. Winchester Engineering and Analytical Center.
- [4] Dasep Wahidin (2013), Radioactive contamination on foods and feeds. A comparative study protection system in the EU, the USA, Indonesia, and at international. Master of food safety law and governance group Wageningen UR.
- [5] Hideo Sugiyama, Hiroshi Terada, Mitsuko Takahashi, Ikyo Iijima, and Kimio Isomura (2007). Contents and Daily Intakes of Gamma Ray Emitting Nuclides, ^{90}Sr , and ^{238}U using Market-Basket Studies in Japan. Journal of Health Science, 53(1) p.107.
- [6] E. Mahiban Rossa, Y. Lenin Raj, S. Godwin Wesley, M.P. Rajan (2013). Selected natural and fallout radionuclides in plant foods around the Kudankulam Nuclear Power. Project, India. Journal of Environmental Radioactivity, Vol. 115, p.201.
- [7] M. A. Saeed, N. A. A. Wahab, I. Hossain, R. Ahmed, H.Y. Abdullah, A. T. Ramli and Bashir Ahmed Tahir (2011), Measuring radioactivity level in various types of rice using hyper pure germanium (HPGe) detector. International Journal of the Physical Sciences Vol. 6 (32), p.7335.
- [8] V. Changizi, Z.Jafarpoor, M. Naseri (2010), Measurement of ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{137}Cs and ^{40}K in edible parts of two types of leafy vegetables cultivated in Tehran province-Iran and resultant annual ingestion radiation dose.. Iran. J. Radiat. Res., 8 (2), p.103.
- [9] L. A. Currie (1968), Anal. Chem., Vol. 40, No. 3, p.586.
- [10] Viện nghiên cứu hạt nhân, Đà Lạt (2009), Phóng xạ trong lương thực, thực phẩm - Xác định đồng thời hoạt độ các đồng vị Be-7, K-40, Cs-137, Ra-226, U-238, Pb-210, Tl-208, Ac-228 VÀ Th-232.
- [11] Cục An toàn bức xạ và hạt nhân (2009), Quy trình phân tích chuẩn cho hệ phổ kế gamma sử dụng đầu dò bán dẫn siêu tinh khiết.
- [12] M. Barrera, I. Ramos-Lerate, R.A. Ligerro, M. Casas-Ruiz (1999), Optimization of sample height in cylindrical geometry for gamma spectrometry measurements. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 421.
- [13] Lưu Tam Bát, Lê Hồng Khiêm, Một số kết quả nghiên cứu tối ưu trong phép đo hoạt độ phóng xạ bụi khí. Báo cáo tại Hội nghị toàn quốc lần thứ nhất về Vật lý và Kỹ thuật hạt nhân, Hà Nội 1996.
- [14] Low-level counting. Proceedings of Second International Conference low Radioactivities 80. Physics and Applications, Vol. 8, Bratislava, 1982.

Research to Improve the Measurement Sensitivity of Radioactive Isotopes in Food by High Resolution Gamma Spectrometer

Lưu Tam Bát¹, Lưu Như Quỳnh¹, Nguyễn Như Vũ¹, Lưu Việt Hưng¹, Trần Thị Vân¹,
Lưu Văn Đông¹, Nguyễn Công Đoàn¹, Hà Thị Len¹, Nguyễn Thị Soát¹,
Nguyễn Thị Khang¹, Đặng Tuyết Ly¹, Nguyễn Thị Minh¹, Nguyễn Văn Thoãn²,
Khổng Nam Khang²; Trương Thị Hồng Loan³, Trương Hữu Ngân Thy³, Thái Mỹ Phê⁴

¹*Institute of Environment and Social problem*, ²*Military Institute of Radiation Medicine and Cancer*

³*University of Natural Sciences, Ho Chi Minh City*, ⁴*Nuclear center in Ho Chi Minh City*

Abstract: Gamma spectrometer with high resolution detector ultrapure semiconductor germanium was used to determine the gamma radiation of radioactive isotope. The concentration of radioactive isotopes in food was normally detected with using the cylindrical sample container and measurement time 84.600s. In this measurement condition, ¹³⁷Cs and some other radioactive isotopes in low level was not detected and minimum radioactivity detectable in this case at 0,12Bq - 0,5Bq for ¹³⁷Cs. Due to the concentration of radioactive isotopes in food is very low, there is no equilibrium of ²³⁸U and ²²⁶Ra in samples analyzed. Therefore, for determine the concentration of ¹³⁷Cs, necessary solution was improve of the sensitivity of the measurement system.

This paper presents three optimal solutions to improve of the sensitivity of the measurement system, including improving measurement efficiencies, increase sample weight, rise measurement time reasonable. With this optimal solutions, the measurement sensitivity of system was improved markedly and minimum measurement levels reaches 0,03Bq - 0,08Bq. This method was satisfies most requirements to analysis radioactive isotopes in food, including the activity of ¹³⁷Cs. This method was used to build databases of concentration of radioactive isotopes in food originating in the border areas of Vietnam adjacent to the nuclear power plants in China.

Keywords: ¹³⁷Cs, Gamma spectrometer, food.