

文章编号 : 0253-9950(2004)04-0249-04

尿中氚水和总氚的分析测定

王兰新,张太明,阮光林,刘学军,罗 宁

中国工程物理研究院 核物理与化学研究所,四川 绵阳 621900

摘要:用蒸馏-液闪法和氧化蒸馏-液闪法分别测量了氚污染人员尿中的氚水和总氚(氚水和有机氚)的浓度。根据 72 个高于本底水平的尿中氚水和总氚浓度分析结果比较,认为在氚内污染工作人员的尿中,有机氚与氚水的浓度比值为 $(5.4 \pm 3.7) \%$ 。

关键词:氚水;总氚;尿;氧化蒸馏

中图分类号: O615.4 **文献标识码:** A

氚是主要的核材料之一,随着核工业的发展,氚的生产量和使用量越来越大,因而氚对人体及环境的污染日益引起人们的关注。环境中的氚大多以氚水(HTO)形式存在^[1]。氚水和氚水蒸汽很容易通过吸入、皮肤渗透和食入三种途径进入人体。据文献[2]报道,氚气还可以通过同位素交换反应或其它化学反应形成有机化合物进入人体造成危害。为保证从事氚工作人员的身体健康,必须经常对其尿进行常规监测。

据文献[3,4]报道,测定尿中氚的浓度最常用的方法是液体闪烁计数法。由于尿颜色的猝灭效应和尿中有机物、无机盐等杂质的干扰,限制了尿的直接液闪测量方法的灵敏度和准确度,因而对待测尿样必须进行预处理。尿样预处理通常采用活性炭脱色法、蒸馏法等。活性炭脱色法和蒸馏法程序简便、快速,但只是测出了尿中氚水的浓度,通常对于氚内照射剂量的评价,多以尿中氚水测定结果为依据,一般认为误差不大。然而,文献[5]根据模拟动物计算,认为有机结合氚可达总剂量的 9%。文献[6]报道,对 7 名事故摄入 HTO 的人员,根据体内氚滞留函数方程计算,有机结合氚可占总剂量的 9%~30%。更有甚者,据 Eakins 报道^[7],如果受照射人员用手摸过附有氚气的金属后未经清洗去污便进食,则尿中有机氚的浓度可达尿中氚水浓度的 60 倍。由此可见,究竟尿中有机氚占总氚的多少比例,还是一个没有完全解决的问题。

由于尿的化学成分复杂并且存在生物化学过程,因此,无法用人造尿模拟尿中氚水和总氚(氚水和有机氚)的对比分析实验。本文对近百个核退役工作人员尿样进行氚水和总氚的分析测定,并将尿中氚水和总氚数据进行分析比较,以期得到一定规律,为今后尿氚监测和氚内照射剂量估算提供参考。

1 实验部分

1.1 主要试剂和仪器

碱性苦味酸和肌酐,分析纯。闪烁液用低水平闪烁液。

TR2550/LL 型液体闪烁计数器,美国 Packard 公司生产,仪器本底 4 min^{-1} 。

1.2 实验方法

1.2.1 尿中氚水的测定 尿中氚水测定用蒸馏法。弃去前 2 mL 蒸馏尿液,取 8 mL 蒸馏尿液与 8 mL 闪烁液混合,避光 2 h 后用低本底液体闪烁计数器测量尿中氚浓度。

1.2.2 尿中总氚的测定 尿样中氚的化学状态主要分为两类,即氚水和有机结合氚。要测出有机结合氚,首先要将尿中的有机物全部氧化破坏成 H_2O 和 CO_2 。破坏尿中有机物一般以尿中的主要有机物成分之一——肌酐作代表^[8],进行条件实验。

按文献[9]的方法,用碱性苦味酸与肌酐反应,生成黄红色复合物,与同样处理的肌酐标准液

收稿日期:2002-10-28; 修订日期:2003-02-11

作者简介:王兰新(1941—),男,河北阜城人,副研究员,放射化学专业。

一起分别在分光光度计于 520 nm 处,测定其吸光值,并根据标准曲线得到尿中肌酐的质量浓度。

破坏尿中肌酐的方法有二种:方法一,按文献[8]方法取尿液 30 mL,加入 6 g $K_2S_2O_8$,加热回流 20 min,煮沸 5 min,冷却后测量尿中肌酐质量浓度。方法二,往 30 mL 尿样中加入 8 g $K_2S_2O_8$,回流时间延长至 30 min,煮沸 10 min,冷却后测量尿中肌酐质量浓度。

比较二种方法的测量结果可知,第二种方法能将尿中的肌酐质量浓度破坏至 0.1 mg/mL 以下,尿样无色。因此,尿中总氚测量取 30 mL 尿样,于蒸馏装置中加入 8~9 g $K_2S_2O_8$,加热回流 30~35 min,煮沸 10~15 min,取 8 mL 蒸馏液和 8 mL 闪烁液,混合均匀后进行液闪测量。

2 结果和讨论

2.1 本底测量

当测量时间为 2 h 时,探测下限为 3.62 Bq/L,实验室蒸馏水氚浓度为 1.196×10^2 Bq/L,实验室自来水氚浓度为 1.183×10^2 Bq/L。2 名从未接触过氚的人员尿中氚水浓度分别为 1.131×10^2 Bq/L 和 1.746×10^2 Bq/L。

2.2 尿中氚水和总氚的分析测量结果

取核设施退役过程中接触氚的工作人员尿样,加入 1 滴浓 HNO_3 防腐,在冰箱的冷藏室内(4~5℃)放置。按前述方法分析测量尿中氚水和总氚。测量结果列入表 1。由表 1 的数据可见,有机氚与氚水浓度的平均比值为 $(5.4 \pm 3.7) \%$ 。

表 1 尿中氚水和总氚的分析测量结果

Table 1 The results of the measurements of the tritium water and the total tritium in urine

No.	$c(\text{HTO}) / (\text{kBq} \cdot \text{L}^{-1})$	$c(^3\text{H}_{\text{total}}) / (\text{kBq} \cdot \text{L}^{-1})$	$r_1 / \%$	$r_2 / \%$
1	2.938	3.160	107.5	7.5
2	3.722	3.942	105.9	5.9
3	85.804	88.510	103.2	3.2
4	38.671	39.952	103.3	3.3
5	50.646	52.203	103.1	3.1
6	2.885	3.182	110.3	10.2
7	10.301	11.065	107.4	7.4
8	192.097	205.320	106.9	6.9
9	22.949	23.412	102.0	2.0
10	31.933	33.325	104.4	4.4
11	4.962	5.286	106.5	6.5
12	5.097	5.643	110.7	10.7
13	1.420	1.482	104.4	4.4
14	5.366	5.590	104.2	4.2
15	59.563	62.365	104.7	4.7
16	49.415	51.912	105.1	5.1
17	9.541	10.166	106.5	6.5
18	14.123	15.021	106.6	6.6
19	7.477	7.896	105.6	5.6
20	7.367	7.960	108.0	8.0
21	9.006	9.435	104.8	4.8
22	12.415	12.885	103.8	3.8
23	18.636	20.308	109.0	9.0
24	213.763	219.214	102.6	2.6
25	10.508	11.435	108.8	8.8
26	22.733	23.238	102.2	2.2
27	34.898	36.842	105.6	5.6
28	86.984	89.273	102.6	2.6
29	58.966	60.550	102.9	2.9
30	38.807	40.182	103.5	3.5
31	29.567	31.506	106.6	6.6

续表

No.	$c(\text{HTO}) / (\text{KBq L}^{-1})$	$c(^3\text{H})_{\text{tal}} / (\text{KBq L}^{-1})$	$r_1 / \%$	$r_2 / \%$
32	54.798	55.977	102.2	2.2
33	40.058	43.241	107.9	7.9
34	45.163	46.482	102.9	2.9
35	42.368	44.900	106.0	6.0
36	49.359	52.633	106.6	6.6
37	80.091	84.470	105.7	5.5
38	95.126	102.336	107.6	7.6
39	162.846	172.566	105.9	5.9
40	99.717	104.311	104.6	4.6
41	90.092	94.193	104.6	4.6
42	178.692	189.675	106.1	6.1
43	56.787	60.669	106.8	6.8
44	186.995	198.808	106.3	6.3
45	187.071	197.061	105.3	5.3
46	5.697	5.988	105.1	5.1
47	26.070	27.852	106.8	6.8
48	65.174	67.850	104.1	4.1
49	7.385	7.752	105.0	5.0
50	8.798	9.254	105.2	5.2
51	11.486	12.224	106.4	6.4
52	9.792	10.173	103.9	3.9
53	8.017	8.253	102.9	2.9
54	12.202	13.230	108.4	8.4
55	10.944	11.383	104.0	4.0
56	14.796	15.703	106.1	6.1
57	12.110	12.765	105.4	5.4
58	13.833	14.696	106.2	6.2
59	30.909	33.007	106.8	6.8
60	20.896	21.749	104.1	4.1
61	20.373	21.618	106.1	6.1
62	2.875	3.022	105.1	5.1
63	41.776	43.571	104.3	4.3
64	43.002	44.824	104.2	4.2
65	41.958	43.913	104.7	4.7
66	54.217	57.673	106.4	6.4
67	105.271	109.521	104.0	4.0
68	108.542	112.457	103.6	3.6
69	138.943	147.853	106.4	6.4
70	163.581	169.757	103.8	3.8
71	236.540	249.585	105.5	5.5
72	242.177	253.385	104.6	4.6

注(Note): $r_1 = c(^3\text{H})_{\text{tal}} / c(\text{HTO})$, $r_2 = (c(^3\text{H})_{\text{tal}} - c(\text{HTO})) / c(\text{HTO})$

根据文献[5],以氚水形态进入体内的氚量,可用简化的二项指数函数计算:

$$R(t) = Ae^{-0.693t/T_1} + Be^{-0.693t/T_2}$$

式中, $R(t)$ 为 t 时刻的体内氚量,Bq; t 为人体摄入氚至留取尿的时间,d; T_1 为氚水的生物半排期,d; T_2 为有机结合氚的生物半排期,d。式中,第一项和第二项分别为氚水和有机氚对剂量的贡献, T_1 和 T_2 分别为成人的氚水和有机氚的

生物半排期。根据ICRP56号出版物对二项指数函数推荐值: $A = 0.97$, $T_1 = 10$ d; $B = 0.03$, $T_2 = 40$ d。采用此数据,二项指数函数将比单项指数函数给出的待积有效剂量值增高9%。本项目所测有机氚增高5.4%,显然比上述值低。造成这种差别的原因可能是上述参数是理论值的缘故。例如据文献[6]报道,测量了99名,其 T_1 值范围为4.5~16 d,平均值为8.6 d,与推荐值10 d相

差 14 %。本项目所测值在合理的范围之内。

然而,国外的动物试验^[10]表明,进入到血液中的氚水有 1 % ~ 5 % 掺入到了非挥发性的有机成分之中。换句话说,有机氚应占氚水的 1 % ~ 5 %。人应该与动物相似,因此,本实验结果应该是合理的。

3 结 论

用蒸馏-液闪法测量尿中氚水浓度,用氧化蒸馏-液闪法测量了尿中总氚(氚水和有机氚)浓度。根据 72 个样品的测量结果,得到有机氚(总氚减去氚水浓度)浓度与氚水浓度的比值为 $(5.4 \pm 3.7) \%$ 。

参考文献:

- [1] BELLONI P, CLEMENTE G F, PIETROS S D. Tritium Levels in Blood and Urine Samples[J]. Radiation Protection Dosimetry, 1983, 2(2):109 ~ 113.
- [2] 王朝清,曲治华. 氚气(T_2 , TH)内照射剂量监测的特征性[J]. 辐射防护, 1982, 2(2):94 ~ 102.
- [3] 董柳灿,孔繁信. 用双道液体闪烁计数器测量尿中氚[J]. 原子能科学技术, 1976, 3:295 ~ 298.
- [4] 马忠乾,杨宏秀,王齐祖. 尿中氚含量的测定[J]. 辐射防护通讯, 1987, (2):39 ~ 41.
- [5] 杨怀远. 氚的安全与防护[M]. 北京:原子能出版社, 1997. 122.
- [6] 黄建学,任室清,晁德胜,等. 氚污染工作人员体内氚排出规律的观察[J]. 辐射防护, 1985, 5(2):81 ~ 86.
- [7] EAKIN J D, HUTCHINSON W P, LALL Y A E. The Radiological Hazard From Tritium Sorbed on Metal Surface [J]. Health Physics, 1975, 28:213 ~ 224.
- [8] 杜秀领,贾国纲. 氧化蒸馏-液闪法测定尿中氚[J]. 辐射防护, 1999, 24 ~ 30.
- [9] 朱中勇,陈之航. 临床医学检验[M]. 上海:上海科学技术出版社, 1981. 304 ~ 305.
- [10] TAKEDA H, KASIDA Y. Biological Behaviour of Tritium After Administration of Tritium Water in the Rat [J]. J Radiat Res, 1979, 20:174 ~ 185.

STUDY ON MEASUREMENT AND COMPARATIVE ANALYSIS OF TRITIUM WATER AND TOTAL TRITIUM IN URINE

WANG Lan-xin, ZHANG Tai-ming, RUAN Guang-lin, LIU Xue-jun, LUO Ning

Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of
Engineering Physics, Mianyang 621900, China

Abstract: Tritium water in urine is determined by distillation and liquid scintillation method and the total tritium (tritium oxide and organic tritium) in urine is determined by oxidation distillation and liquid scintillation method. Tritium water and total tritium in 72 samples of urine in which tritium concentrations is higher than radioactive background of the workers in the course of the facility decommissioning in 1999 are determined at the same time. Tritium oxide and organic tritium concentrations are compared, so the value $(5.4 \pm 3.7) \%$ of the ratios of organic tritium concentrations to tritium oxide is obtained.

Key words: tritium water; total tritium; urine; oxidation distillation