

NGHIÊN CỨU SỬ DỤNG K_2FeO_4 ĐỂ LOẠI BỎ URANIUM TRONG DUNG DỊCH CHUẨN

^aNguyễn Phạm Tường Minh, ^aHuỳnh Uyên Chi, ^aTô Xuân Phương, ^aLê Thùy Nhi, ^aVõ Thị Tô Vy, ^aNguyễn Lâm Thùy Linh, ^aTrần Thị Thùy Linh, ^{a,b}Huỳnh Nguyễn Phong Thu, ^aNguyễn Văn Thắng, ^{a,b}Lê Công Hào.

a Bộ môn Vật lý hạt nhân, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên – ĐHQG, Tp.HCM.

b Phòng thí nghiệm kỹ thuật hạt nhân, Trường Đại học Khoa học Tự nhiên – ĐHQG, Tp.HCM.

227 Nguyễn Văn Cừ, Quận 5, Tp.HCM.

Email: nptuongminh1002@gmail.com

Tóm tắt: Trong nghiên cứu này, chúng tôi đã sử dụng K_2FeO_4 (kali ferrat) để loại bỏ nhân phóng xạ uranium có trong dung dịch chuẩn. Thông qua kết tủa tạo ra trong phản ứng hóa học với chất oxy hóa K_2FeO_4 , uranium bị loại khỏi dung dịch kèm theo sản phẩm sau phản ứng là oxit sắt (Fe_2O_3) – một chất không gây ô nhiễm môi trường và an toàn với người sử dụng. Các kết quả cho thấy hơn 80% nồng độ uranium ban đầu đã được loại bỏ khỏi dung dịch. Kết quả đạt được sẽ tạo tiền đề cho nghiên cứu K_2FeO_4 mở rộng hơn và khả năng ứng dụng thực tế trong tương lai là rất lớn.

Từ khóa: *kali ferrat, uranium, hóa phóng xạ.*

1. MỞ ĐẦU

Ngày nay, nhu cầu nghiên cứu và áp dụng Vật lý hạt nhân ngày càng sâu rộng. Đặc biệt, việc đánh giá liều lượng và ảnh hưởng của phóng xạ lên môi trường và sức khỏe con người đang là một trong những vấn đề thu hút sự nghiên cứu của các nhà khoa học. Đáng chú ý gần đây nhất, năm 2011, vụ nổ nhà máy điện hạt nhân Fukushima ở Nhật Bản đã để lại hậu quả không hề nhỏ. Xử lý nguồn nước chứa lượng phóng xạ khổng lồ được lưu trữ tại nhà máy điện sau sự cố đang là thách thức lớn đối với các nhà khoa học cùng chính quyền Nhật Bản nói riêng và cả thế giới nói chung.

Năm 2016, Masashi Kato và cộng sự [6] đã lấy 227 mẫu nước giếng ở Kabul, Afghanistan và phát hiện ra 19,4% tổng số mẫu được kiểm tra chứa uranium vượt mức cho phép của WHO. Đồng thời, Masashi cũng đã đề xuất phương án sử dụng hợp chất magie – sắt (Mg – Fe) để loại bỏ uranium tự nhiên có trong nước ở Kabul. Sang năm 2017, Bajwa B.S. và cộng sự [1] đã tiến hành lấy 498 mẫu nước ở SW-Punjab, Ấn Độ với mục đích khảo sát hàm lượng uranium có trong nước ngầm dùng để uống và xác định mức độ ảnh hưởng của nó. Thông qua phân tích định lượng, Bajwa thu được lượng uranium trong 498 mẫu dao động trong khoảng 0,5 – 579 $\mu\text{g/l}$. Tính trung bình ra khoảng 73,5 $\mu\text{g/l}$, con số này vượt quá giới hạn cho phép 30 $\mu\text{g/l}$ của tổ chức WHO năm 2011, đồng thời có 216 mẫu vượt ngưỡng 60 $\mu\text{g/l}$ được khuyến cáo bởi AERB, DAE, Ấn Độ năm 2004. Trên đây là hai ví dụ điển hình của tình trạng đáng báo động về lượng uranium có trong nước, đặt ra yêu cầu cấp thiết cần phải tìm ra cách làm giảm bớt lượng uranium đó.

Đã có nhiều phương pháp xử lý nước được ứng dụng nhằm cải thiện nguồn nước, chẳng hạn như sử dụng Clo để lọc nước là cách mà ai cũng biết nhưng lại rất ít người biết rằng có một số loại vi sinh vật miễn nhiễm với Clo, do đó mức độ tẩy không cao, đồng thời quan trọng hơn là sản phẩm Clo tạo ra, ví dụ *Trihalomethanes* (3 trong 4 nguyên tử Hydro của khí metan CH_4 bị thay thế bằng nguyên tử Halogen – Clo) lại là chất gây ung thư [3]. Để loại bỏ uranium trong nước thải, phương pháp đồng kết tủa sử dụng canxi hydroxit ($Ca(OH)_2$) hoặc natri hydroxit (NaOH) để đưa uranium về dạng kết tủa uranyl-dihydroxit ($UO_2(OH)_2$) đã được triển khai. Ngoài ra, các phương pháp khác như hấp phụ hay kết hợp khử - kết tủa bằng kim loại sắt cũng đã được nghiên cứu [9]. Vào năm 1996, Delaude và Laszlo [4] đã nghiên cứu

tìm ra một chất mới, được gọi là ferrat (Fe(VI)), là chất oxy hóa mạnh và phản ứng của nó với các chất gây ô nhiễm xảy ra nhanh kèm theo sự hình thành các sản phẩm phụ là Fe(III) không độc hại và không gây ô nhiễm môi trường.... Sự oxy hóa của Fe(VI) phụ thuộc vào độ pH của môi trường, độ pH càng thấp thì tốc độ phản ứng xảy ra càng nhanh. Fe(VI) còn cho thấy tính khử trùng tốt và vô hiệu hóa nhiều loại vi sinh vật ở liều lượng thấp. Do đó, nó đã được ứng dụng trong quá trình làm sạch nước và xử lý nước thải [5]. Chính vì lẽ đó, chúng tôi tiến hành thực hiện nghiên cứu, áp dụng phương pháp vật lý hạt nhân thực nghiệm kết hợp phương pháp hóa phóng xạ với mục đích sử dụng kali ferrat (K_2FeO_4) để loại bỏ các nhân phóng xạ có trong nước. Đối tượng nghiên cứu ban đầu là uranium trong mẫu dung dịch chuẩn uranyl nitrate ($UO_2(NO_3)_2$). Để hỗ trợ cho việc nghiên cứu và ghi nhận số liệu, tôi đã sử dụng ống đếm Geiger-Muller ở Phòng thí nghiệm chuyên đề Vật lý Hạt nhân, Trường Đại học Khoa Học Tự Nhiên, ĐHQG Thành phố Hồ Chí Minh.

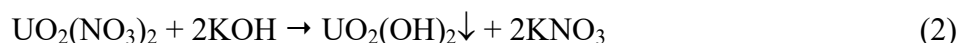
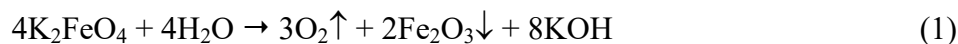
2. NỘI DUNG

2.1 Đối tượng và phương pháp

Qua nhiều công trình nghiên cứu, vào năm 1987, hai nhà khoa học Bielski và Thomas [2] đã tổng kết lại, hiện nay Fe(VI) có thể được tạo thành bằng 3 phương pháp chủ yếu, bao gồm phương pháp ướt, phương pháp khô và phương pháp điện phân. Ngoài các hóa trị +2, +3 mà ta thường biết, thì sắt còn có hóa trị cao nhất là +6, do đó, Fe(VI), cụ thể FeO_4^{2-} – gốc ferrat, là một chất oxi hóa mạnh, nhất là trong môi trường nước. Đặc biệt, ở điều kiện axit, ion Fe(VI) thể hiện tính oxi hóa cao nhất so với bất kỳ chất oxy hóa nào khác được sử dụng trong lọc nước và quy trình xử lý chất thải.

Sản phẩm tạo thành là Fe(III) – một chất không gây ảnh hưởng đến sức khỏe con người mà còn thân thiện với môi trường. Hơn nữa, oxit sắt (Fe_2O_3) được sản xuất từ Fe(VI) đóng vai trò như một tác nhân đồng kết tủa với tác dụng lôi kéo kim loại, phi kim loại và nhân phóng xạ tạo thành kết tủa, kết quả các chất này bị loại khỏi dung dịch. Bên cạnh đó, Fe(VI) còn là chất có thể tái sử dụng được nhiều lần và có khả năng lọc chất thải trong nước đạt hiệu quả cao [7].

Các nhân phóng xạ nói chung, uranium nói riêng bị loại khỏi dung dịch thông qua kết tủa tạo ra trong phản ứng hóa học với chất oxy hóa K_2FeO_4 . K_2FeO_4 rắn được tạo thành từ phương pháp khô cho vào nước cất để pha chế các dung dịch có nồng độ 0,1M; 0,01M và 0,001M. Phương trình (1) cho thấy, khi kali ferrat gặp nước dễ bị phân hủy thành oxit sắt (Fe_2O_3) kết tủa và kali hydroxit (KOH) tan trong dung dịch [7]. Tiếp theo, cho vào ống ly tâm mỗi nồng độ dung dịch K_2FeO_4 ở trên và dung dịch chuẩn urani nitrate ($UO_2(NO_3)_2$) có pH = 4,5÷5 đã chuẩn bị trước đó với tỉ lệ 1:20 và 1:10. KOH tạo thành sẽ phản ứng với urani nitrate thể hiện ở phương trình (2), thu được uranyl-dihydroxit ($UO_2(OH)_2$) mà nguyên tử uranium trong chất này mang hóa trị +6 nên khó tan trong nước. Vì vậy, $UO_2(OH)_2$ sẽ kết tủa và lắng xuống cùng Fe_2O_3 . Điều này tạo cơ sở cho việc xuất hiện kết tủa hợp chất của uranium để đi đến kết luận cuối cùng là chất phóng xạ uranium bị loại bỏ khỏi dung dịch.



Khi các phản ứng đã xảy ra, đem toàn bộ ống ly tâm cho vào máy ly tâm quay với tốc độ 2500 vòng trong 40 phút. Sau đó, lấy 1 ml dung dịch trong ống ly tâm cho vào planchets và đem hong khô trên bếp điện ở nhiệt độ thấp. Tiến hành cài đặt ống đếm G-M như hình 1 và đo số đếm trong 100 giây ở điện áp 500V. Lần lượt ghi nhận số liệu của phông, dung dịch chuẩn và dung dịch trong hỗn hợp.



Hình 1. Hệ thiết bị ghi đo phóng xạ sử dụng ống đếm G-M trong PTN hạt nhân của trường ĐH Khoa Học Tự Nhiên, ĐHQG TpHCM.

2.2 Kết quả

Ghi nhận kết quả số đếm của ống đếm G-M hiển thị. Tính các giá trị trung bình, sai số và phần trăm hoạt độ của chất phóng xạ bị giảm khi cho K_2FeO_4 vào dung dịch chuẩn. Các kết quả số đếm/giây của phòng, dung dịch chuẩn và các mẫu thu được từ ống đếm G-M trong hai ngày đo 4/4/2017 và 11/4/2017 thể hiện ở **bảng 1** và **bảng 2** tương ứng với tỉ lệ **1:20** (0,250ml Fe(VI) và 5ml dung dịch chuẩn) và **1:10** (0,5ml Fe(VI) và 5ml dung dịch chuẩn).

Bảng 1: Số đếm/giây ghi nhận được của tỉ lệ 1:20

Số lần đo	Phòng	Dung dịch chuẩn	Mẫu 1		Mẫu 2		Mẫu 3	
			1.1	1.2	2.1	2.2	3.1	3.2
<i>Ngày 4/4/2017</i>								
Lần 1	0,32	0,96	0,58	0,42	0,42	0,55	0,47	0,56
Lần 2	0,40	1,01	0,55	0,42	0,43	0,48	0,54	0,45
Lần 3	0,45	1,15	0,47	0,42	0,43	0,55	0,50	0,60
TB mẫu	9 ± 0,05	1,04 ± 0,07	0,48 ± 0,06		0,48 ± 0,05		0,52 ± 0,02	
<i>Ngày 11/4/2017</i>								
Lần 4	0,42	1,31	0,56	0,62	0,60	0,55	0,56	0,65
Lần 5	0,37	1,28	0,58	0,54	0,58	0,72	0,61	0,58
Lần 6	0,40	1,12	0,57	0,55	0,56	0,61	0,62	0,55
Lần 7	0,35	1,35	0,62	0,61	0,58	0,59	0,69	0,70
Lần 8	0,39	1,13	0,59	0,58	0,60	0,52	0,63	0,57
TB mẫu	9 ± 0,02	1,24 ± 0,09	0,58 ± 0,01		0,59 ± 0,01		0,62 ± 0,01	

Bảng 2: Số đếm/giây ghi nhận được của tỉ lệ 1:10

Số lần đo	Phòng	Dung dịch chuẩn	Mẫu 1		Mẫu 2	
			1.1	1.2	2.1	2.2
<i>Ngày 4/4/2017</i>						
Lần 1	0,32	0,96	0,42	0,39	0,39	0,47
Lần 2	0,40	1,01	0,43	0,42	0,47	0,48
Lần 3	0,45	1,15	0,49	0,37	0,43	0,42
TB mẫu	0,39 ± 0,05	1,04 ± 0,07	0,42 ± 0,03		0,44 ± 0,01	
<i>Ngày 11/4/2017</i>						
Lần 4	0,42	1,31	0,49	0,48	0,60	0,60
Lần 5	0,37	1,28	0,50	0,58	0,49	0,55
Lần 6	0,40	1,12	0,48	0,49	0,52	0,56
Lần 7	0,35	1,35	0,50	0,42	0,57	0,60
Lần 8	0,39	1,13	0,46	0,63	0,48	0,60
TB mẫu	39 ± 0,02	1,24 ± 0,09	0,50 ± 0,02		0,56 ± 0,03	

Dựa vào số đếm/giây trung bình, ta có thể tính được phần trăm hoạt độ chất phóng xạ đã giảm khi cho K_2FeO_4 vào dung dịch chuẩn. Hay nói cách khác, hiệu suất loại bỏ uranium của K_2FeO_4 được thể hiện qua công thức (1):

$$H = \frac{S_d - S_s}{S_d} \cdot 100\% \quad (1)$$

Với H là hiệu suất loại bỏ nhân phóng xạ (%)

S_d là trung bình số đếm/giây của dung dịch chuẩn uranium đã trừ phòng.

S_s là trung bình số đếm/giây của dung dịch mẫu lọc đã trừ phòng.

Phần trăm hoạt độ chất phóng xạ giảm đi khi cho dung dịch Fe(VI) vào dung dịch chuẩn thể hiện qua **bảng 3**.

Bảng 3: Phần trăm hoạt độ chất phóng xạ giảm đi

Mẫu	4/4/2017		11/4/2017	
	<i>Tỉ lệ Fe(VI) và dung dịch chuẩn</i>			
	1:20	1:10	1:20	1:10
1	86,87	95,39	77,00	86,27
2	86,87	91,80	75,94	79,93
3	80,00	--	73,00	--

2.3 Bàn luận

Từ **bảng 3** cho thấy rằng, kali ferrat có thể loại bỏ được trung bình hơn 80% nhân phóng xạ ra khỏi dung dịch chuẩn. Kết quả này phù hợp với kết quả nghiên cứu của Petrov và cộng sự [8] thực hiện vào năm 2016 trình bày ở **bảng 4**.

Bảng 4: Phần trăm đồng vị uranium bị loại khỏi dung dịch trong nghiên cứu của Petrov và cộng sự [8].

Nước thường		Nước biển	
Đồng vị	Tỉ lệ (%)	Đồng vị	Tỉ lệ (%)
Đồng vị phát alpha			
$^{(238+233)}\text{U}$	81±3	$^{(238+233)}\text{U}$	79±5

Các kết quả trình bày **bảng 3** cho ta kết luận rằng khi nồng độ dung dịch K_2FeO_4 càng lớn hoặc nếu tỉ lệ giữa lượng Fe(VI) và mẫu dung dịch chuẩn tăng (từ 1:20 lên 1:10) thì khả năng loại bỏ chất phóng xạ càng cao. Bên cạnh đó, có thể thay thế ống đếm G-M bằng hệ đo khác có tính ưu việt hơn để vấn đề nghiên cứu được mở rộng và tìm hiểu sâu hơn nếu trường hợp có thêm đồng vị phóng xạ khác được loại bỏ thông qua các phản ứng với kali ferrat. Bên cạnh đó, quá trình loại bỏ này lại cho ra sản phẩm kết tủa chứa uranium $\text{UO}_2(\text{OH})_2$, do đó vấn đề đặt ra là phải tìm phương pháp để loại bỏ chất thải này. Như vậy, K_2FeO_4 còn cần được nghiên cứu nhiều hơn trong việc sử dụng vào đời sống con người, cho thấy tiềm năng phát triển trong tương lai rất lớn. Những ứng dụng đầu tiên nổi bật đó là sử dụng K_2FeO_4 để loại bỏ chất phóng xạ trong nước sinh hoạt hoặc tái chế nước thải.

3. KẾT LUẬN

Với các kết quả thực nghiệm đạt được, có thể đã khẳng định lần nữa việc sử dụng kali ferrat (K_2FeO_4) để loại bỏ chất phóng xạ uranium trong nước là vô cùng khả quan. Đặc biệt, sản phẩm phụ tạo ra kèm theo trong quá trình phản ứng không gây hại môi trường. Điều này sẽ mở ra thêm hướng nghiên cứu triển vọng trong tương lai, đặc biệt là ứng dụng trong việc loại bỏ các đồng vị phóng xạ ra khỏi nước giếng hoặc nước ngầm.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Bajwa B.S., Kumar S., Singh S., Sahoo S.K., Tripathi R.M. (2017), “Urani and other heavy toxic elements distribution in the drinking water samples of SW-Punjab, India”, *Journal of radiation research and applied sciences*, 10, 13 - 19.
- [2]. Bielski B.H.J., Thomas M.J. (1987), “Studies of hypervalent iron in aqueous solutions. 1. Radiation induced reduction of iron (VI) to iron (V) by CO_2^- ”, *J. Am. Chem. Soc.*, 109, 7761 – 7764.
- [3]. Boorman G.A., Vicki Dellarco, Dunnick J.K., Chapin R.E., Sid Hunter, Fred Hauchman, Hank Gardner, Mike Cox and Robert C. Sills (1999), “Drinking water disinfection byproducts: review and approach to toxicity evaluation”, *Environmental Health Perspectives*, 107, 207 - 217.
- [4]. Delaude L. and Laszlo P. (1996), “A novel oxidizing reagent based on kali ferrate (VI)”, *J. Org. Chem.*, 61, 6360 – 6370.
- [5]. Li C., Li X.Z., Graham N. (2005), “A study of the preparation and reactivity of kali ferrat”, *Chemosphere*, 61, 537 – 543.
- [6]. Masashi K., Mohammad D.A., Said H.F., Muhammad D.F., Md. Zahirul H., Nobuyuki H., Shoko O., Tomomi O., Masao M., Masafumi Y. (2016), “Uranium in well drinking water of Kabul, Afghanistan and its effective, low – cost deputation using Mg – Fe based hydrotalcite – likes compounds”, *Chemosphere*, 165, 27-32.

- [7]. Sharma V.K. , Futaba Kazama, Hu Jiangyong and Ajay K.Ray (2005), “Ferrats (iron (VI) and iron (V)): Environmentally friendly oxidants and disinfectants”, *Journal of Water and Health*: 45 – 58.
- [8]. Vladimir G. Petrov, Yury D. Perfiliev, Sergey K. Dedushenko, Tatiana S. Kuchinskaya, Stepan N. Kalmykov (2016), “Radionuclide removal from aqueous solutions using kali ferrate (VI)”, *J. Radioanal Nucl. Chem*: 347 – 352.
- [9]. Nguyễn Văn Phú, Nguyễn Thị Bích Hương, Đỗ Quang Trung (2016), “Nghiên cứu điều kiện tách và thu hồi urani trong nước thải của quá trình thủy luyện quặng đất hiếm Việt Nam bằng phương pháp trao đổi anion”, *Tạp chí Khoa học ĐHQGHN: Khoa học tự nhiên và Công nghệ*, 32 (4), 161 – 166.
-

STUDY ON USING K_2FeO_4 FOR REMOVING URANIUM FROM STANDARD SAMPLES

^aNguyen Pham Tuong Minh, ^aHuynh Uyen Chi, ^aTo Xuan Phuong, ^aLe Thuy Nhi, ^aVo Thi To Vy, ^aNguyen Lam Thuy Linh, ^aTran Thi Thuy Linh, ^{a,b}Huynh Nguyen Phong Thu, ^aNguyen Van Thang, ^{a,b}Le Cong Hao.

a VNUHCM-University of Science, Faculty of Physics and Engineering Physics, Ho Chi Minh City.

b VNUHCM-University of Science, Nuclear Technique Laboratory, Ho Chi Minh City.

227 Nguyen Van Cu Street, District 5 - Ho Chi Minh City.

Email: nptuongminh1002@gmail.com

Abstract: In this study, we conducted to use K_2FeO_4 (potassium ferrate) to remove uranium in the standard samples. Through precipitation produced in the chemical reaction with K_2FeO_4 , uranium is removed from the solution attached to the product after the reaction is iron oxide (Fe_2O_3) - a non-toxic, non-mutant substance. When using experimental nuclear physics combined with radioactive chemical methods, the results showed that the percentage of radioactive substances was lower than the original by more than 80%. The results have created a chance for research K_2FeO_4 to expand and the possibility of future application.

Từ khóa: *Potassium ferrates, uranium, radioactive chemicals.*