

RADIOHEMIJSKA SEPARACIJA I ALFA-SPEKTROMETRIJSKO ODREĐIVANJE AMERICIJUMA U RAZLIČITIM MATRIKSIMA

Mirjana RADENKOVIĆ, Jasminka JOKSIĆ i Dragica PALIGORIĆ

Institut za nuklearne nauke VINČA, Beograd, Srbija,

E-mail: mirar@vinca.rs, jasnaj@vinca.rs

SADRŽAJ

U radu je opisan postupak separacije i alfa-spektrometrijskog određivanja americijuma, razvijen u Institutu za nuklearne nauke VINČA, za određivanje ^{241}Am u matriksima uzoraka iz životne sredine kao i biološkim i uzorcima humanog porekla. Postupak se može koristiti za određivanje veoma niskih koncentracija, uz primenu ^{243}Am kao traseru za određivanje radiohemijjskog prinosa.

1. Uvod

Radionuklid ^{241}Am je transuranijski radionuklid ($T_{1/2}=432.2$ god) visoke specifične aktivnosti (0.13 TBq) koji pripada grupi metala aktinida. Spada u proizvedene radionuklide a dobija se izlaganjem ^{239}Pu sukcesivnim neutronske zahvatima do ^{241}Pu , koji beta-raspadom prelazi u fisibilni ^{241}Am . Pored toga što se može naći u isluženom reaktorskom gorivu, metalni americijum ima brojne primene kao izvor alfa/gama zračenja i neutrona, između ostalog u proizvodnji jonizacionih komora – detektora dima, u neutronske izvorima, radiologiji i industrijskim procesima. U detektorima dima nalazi se u obliku AmO_2 i to najčešće u količini 0.28 μg , što odgovara aktivnosti od 1 μCi u trenutku proizvodnje. Nakon toga se raspadom povećava koncentracija ^{237}Np ($T_{1/2} = 2.14 \times 10^6$ god) u izvoru, koja dostiže 5% nakon 32 godine. Obzirom na mogućnost kontakta i zadržavanje u životnoj sredini, može se reći da je ^{241}Am potencijalno izvor radioaktivne kontaminacije u životnoj i u radnoj sredini, te se razvoj pogodne metode za njegovo određivanje u različitim matriksima može smatrati svrsishodnim, naročito sa zdravstvenog aspekta.

U literaturi se najčešće sreću postupci za sekvencijalno određivanje niskih koncentracija americijuma u uzorcima gde postoji smeša sa drugim transuranijskim elementima u okviru monitoringa životne sredine [1], a ređe metoda primenljiva i za analizu bioloških i humanih uzoraka, kakva će ovde biti opisana.

2. Eksperimentalni deo

U prvoj fazi procedure, konzervirani uzorci (sediment, voda, urin) se dovode u stanje rastvora, oslobođenog organskih komponenti postupcima mineralizacije na 480 °C ili mokrog spaljivanja.[2] Uz dodatak 0.1 Bq traserskog rastvora ^{243}Am , obezbeđuje se kisela alkoholna sredina dodavanjem 1-oktanola i conc. HNO_3 . Uzorku se dodaje 1.25M $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ a zatim se nakon ključanja izvodi koprecipitacija Am na talogu $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ pomoću NH_3OH pri pH 9. Nakon filtriranja na Whatman 42 filter papiru, vrši se oksidacija pomoću 30% H_2O_2 u kiselost sredini, čime se razgrađuju zaostale organske materije. Dobijeni rastvor sadrži smešu transuranijskih elemenata, koji se dalje razdvajaju postupkom jonoizmenjivačke hromatografije u sledećoj fazi postupka.

U drugoj fazi se rastvor dovodi na jonoizmenjivačku smolu DOWEX 1x8 (100 mesh) u Cl^- obliku, koja se kondicionira u NO_3^- oblik pomoću 1M HNO_3 i 90% CH_3OH . Pri prolasku

alkoholnog rastvora uzorka kroz jonoizmenjivačku kolonu, joni americijuma ostaju vezani na smoli u anjonskom alkoholnom kompleksu, dok ostali transuranijumski elementi bivaju eluirani. Nakon toga se frakcija americijuma skida sa kolone pomoću 0.5M HNO₃ u 80% CH₃OH. Prečišćavanje uzorka od tragova eventualno prisutnog stroncijuma vrši se na koloni pomoću 1M HNO₃ u 90% CH₃OH, pri čemu se za eluiranje čistog americijuma koristi rastvor 1.5M HCl u 86% CH₃OH.

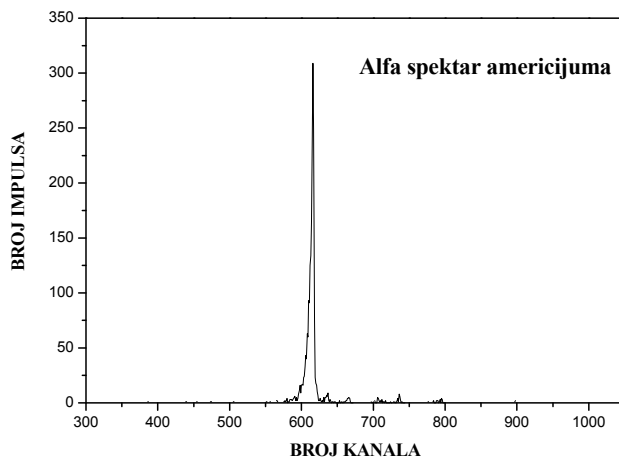
Treća faza postupka podrazumeva pripremu tankoslojnog alfa-izvora za merenje, elektro-hemijskom depozicijom rastvora americijuma na pločice od nerđajućeg čelika, po proceduri Talvitie. [3].

Za merenja je korišćen Canberra alfa-spektrometrijski sistem sa PIPS detektorom, površine 100 mm², efikasnosti 7.9%, sa kalibracionim faktorom 8.5 keV po kanalu. Kalibracija je urađena pomoću elektro-deponovanog alfa izvora ²²⁹Th sa potomcima, prevučenog VYNS folijom, koja sprečava potencijalnu kontaminaciju detektora usled alfa uzmaca izvora. Energije alfa-raspada potomaka radionuklida ²²⁹Th: ²³⁹Pu, ²²⁵Ac, ²²¹Fr, ²¹⁷At i ²¹³Po potpuno pokrivaju energetska oblast u kojoj se očekuju ²⁴¹Am i ²⁴³Am. Neophodno vreme merenja alfa izvora americijuma je 2-4x10⁶ s.

3. Rezultati i diskusija

Americijum spada u aktinide sa relativno velikim brojem valentnih stanja, te je izabrani postupak morao da eliminiše niz drugih mogućnosti za hemijsko vezivanje a istovremeno da bude dovoljno selektivan u odnosu na transuranijumske elemente sličnog fizičko-hemijskog ponašanja. Radiohemijski prinos jonizmenjivačkog postupka, određen na osnovu merenja trasera ²⁴³Am, kretao se u opsegu od 42-60% za uzorke sedimenta, a 8-27% za uzorke urina. Prinos postupka elektrohemijske depozicije iznosio je oko 50%. U literaturi se pojavljuju slične vrednosti pokazatelja efikasnosti postupka separacije, kada je korišćen isti tip smole. Međutim, za efikasnije postupke prečišćavanja americijumske frakcije, mogla bi se koristiti TEVA smola (alifatični kvarterni amin na neaktivnom nosaču), sa koje se lantanidi lako spiraju kao tiocijanatni kompleksi, dok se americijumska frakcija čvrsto veže za smolu i potom eluira pomoću 2M HCl.[4,5]

Na slici 1. je prikazan primer alfa spektra americijuma nakon separacije iz uzorka urina, sa linijama 5.1798 MeV (1.1%), 5.2343 MeV (11%) i 5.2766 MeV (88%) u oblasti 593-627 kanala, koje pripadaju ²⁴³Am. Linije nisu potpuno razdvojene, što je posledica bliskih energija ali i nešto više površinske gustine izvora. S obzirom da se u spektru ne pojavljuju druge linije niti interferencije sa drugim radionuklidima, može se tvrditi da je izvor hemijski i radiohemijski čist, što znači da je postupak separacije i prečišćavanja dobar a usvojena metoda pogodna za ispitivane matrikse. Traser ²⁴³Am je pogodno odabran, jer se pojavljuje u istoj energetskoj oblasti kao i ²⁴¹Am, koji ima značajnije alfa-linije na E₁=5.4431 MeV (12.8%) i E₂=5.4857 (85.2%), a njegova specifična aktivnost je 17 puta niža od aktivnosti ²⁴¹Am. Minimalna detektibilna koncentracija za navedene uslove merenja iznosila je 10-50 mBq po uzorku



Slika 1. Alfa spektrar američijuma, sa linijama ^{243}Am : 5.2766 MeV (88%); 5.2343 MeV (11%) i 5.1798 MeV (1.1%) u oblasti 593-627 kanala; vreme merenja 3×10^6 s

4. Zaključak

Razvijena metoda radiohemijske separacije i alfa-spektrometrijskog određivanja ^{241}Am , zasnovana na principima jonizmenjivačke hromatografije pogodna je za analizu uzoraka složenih matriksa, jer omogućava dobijanje radiohemijski čistih izvora. Za bolju rezoluciju u spektru američijuma potrebno je još smanjiti površinsku gustinu elektrodeponovanih alfa-izvora, što bi se moglo postići primenom smole TEVA, koja efikasnije uklanja lantanide.

Usvajanje metode za određivanje ^{241}Am u uzorcima humanog porekla, omogućava utvrđivanje potencijalne interne kontaminacije, što je veoma značajno uzimajući u obzir visoku radiotoksičnost ovog radionuklida.

5. Literatura

- [1] P.Tavčar, R.Jakopič and L.J.Benedik, Sequential Determination of ^{241}Am , ^{237}Np , Pu radioisotopes and ^{90}Sr in Soil and Sediment Samples, *Acta Chim. Slov.* 52(2005) 60–66.
- [2] M.Radenković, Uticaj kontaminacije uranijumom na hemijske i radiološke osobine ekosistema, 2008, Fakultet za fizičku hemiju, Univerzitet u Beogradu.
- [3] N.A.Talvitie, Electrodeposition of actinides for alpha spectrometric determination, *Anal. Chem.* 44(1972)280-283.
- [4] M.Pimpl and R.H.Higgy, Improvement of Am and Cm determination in soil samples, *J. Radioan. Nucl.Chem.* 248(2001)537-541.
- [5] D.Arginelli, M.Monalto et al. Radioanalytical determination of americium in human urines by extraction chromatography and high resolution alpha-spectrometry, *J. Radioan. Nucl.Chem.* 263(2005)275-279.

ABSTRACT

RADIOCHEMICAL SEPARATION AND ALPHA-SPECTROMETRIC DETERMINATION OF AMERICIUM IN DIFFERENT MATRIXES

Mirjana RADENKOVIĆ, Jasminka JOKSIĆ and Dragica PALIGORIĆ

Institute of Nuclear Sciences VINČA, Beolgrade, Serbia,

E-mail: mirar@vinca.rs, jasnaj@vinca.rs

A method of separation and alpha-spectrometric determination of americium, developed in VINČA Institute of Nuclear Sciences is described in the paper. The procedure is convenient to be used for ^{241}Am determination in environmental matrixes as well as samples of human origin if a very small concentrations are expected, using ^{243}Am as a tracer for radiochemical yield recovery.