

Природно-математички факултет
Радна заједница заједничких послова
Н П В + С А Д

УНИВЕРЗИТЕТ У НОВОМ САДУ
ПРИРОДНО - МАТЕМАТИЧКИ ФАКУЛТЕТ
ИНСТИТУТ ЗА ФИЗИКУ

Пријем:	18-03-1987		
Опредељен	Број:	Прилог	Вредност
03	10/7		

TEODOROVIĆ MILAN

ODREĐIVANJE DUGOŽIVEĆIH IZOTOPA
Cs U PRIRODΝIM VODAMA

DIPLOMSKI RAD

NOVI САД, MART 1987.

Ovaj diplomski rad radjen je u Laboratoriji za nuklearnu fiziku, Instituta za fiziku PMF-a u Novom Sadu.

Zahvaljujem se Dr Ištvanu Bikit, na korisnim sugestijama i savetima pri izradi ovog rada i izboru teme.

Posebnu zahvalnost dugujem Mr Ljiljanu Čonkić i Vladimиру Krajinović na svesrdnoj pomoći u toku izrade ovog rada.

S A D R Ž A J

	Strana
U V O D	1
1. KVALITATIVNA GAMA SPEKTROMETRIJSKA ANALIZA	4
1.1. FOTO EFEKAT	4
1.2. COMPTONOV EFEKAT.....	6
1.3. PAR EFEKAT	8
1.4. Ge (Li) SPEKTROMETAR	9
1.5. BLOCK ŠEMA SPEKTROMETRA.....	10
1.6. OSNOVNE KARAKTERISTIKE SPEKTROMETRA	11
1.6.1. MOĆ RAZLAGANJA SPEKTRO- METRA.....	11
1.6.2. EFIKASNOST SPEKTROMETRA... ..	12
1.6.3. MERNI OPSEG SPEKTROMETRA... ..	13
1.7. EKSPERIMENTALNO ODREDJIVANJE AKTIVNOSTI	13
2. METODE RADIOHEMIJSKE SEPARACIJE IZOTOPA Cs	16
2.1. METODE I POSTUPCI ZA SEPARACI- JU Cs IZ VODE	16
2.2. IZDVAJANJE Cs NA JONOIZMENJI- VAČKIM KOLONAMA	18
2.3. ODREDJIVANJE EFIKASNOSTI VEZIVA- NJA Cs NA ZrFC	21
2.4. MOGUĆNOST PRIMENE MOLEKULARNIH SITA (ZEOLITA) ZA TRETMAN VODA....	23
3. EKSPERIMENTALNI REZULTATI	25
3.1. METOD RADA I MERNA TEHNIKA	25
3.2. REZULTATI MERENJA	27
3.3. ZAVISNOST APSORCIJE Cs OD DU- ŽINE SMOLE	28
4. Z A K L J U Č A K	30
5. R E F E R E N C E	31

U V O D

Cezijum (Cs) pripada grupi alkalnih metala, odnosno. prvoj grupi periodnog sistema elemenata. Redni broj cezijuma je 55. atomska masa 132,905. a prirodni izotop Cs-133. To je srebrnasto beli metal. specifična težina mu je 1,873. topi se na 28,7°C, ključa na 685°C; nešto je mekši od kalijuma. Cezijum spada medju najreaktivnije alkalne metale. Na vazduhu odmah oksidiše i zapali se sam od sebe. Najviše ga ima u mineralu poluksu ($2\text{Cs}_2\text{O}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 9\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$).

Cezijum (caesium) su otkrili Bunsen i Kirhof 1860. godine pomoću spektralne analize. Karakteristična linija cezijuma je svetloplave boje, po kojoj je dobio i ime (prema latinskoj reči caesus koja znači "plav kao nebo").

U prirodi sem stabilnog izotopa cezijuma, postoje i njegovi prirodni, indukovani, veoma isparljivi, radioaktivni izotopi. koji se u fizičko-hemijskom pogledu ponašaju kao njihov stabilni izotop. Nastaju raznim nuklearnim reakcijama iz stabilnog izotopa.

		$t_{1/2}$
Cs-133	$\gamma, n \Rightarrow \text{Cs} - 132$	6,2 d
	$n, \gamma \Rightarrow \text{Cs} - 134$	2,07 god.
	$n, \gamma \Rightarrow \text{Cs} - 134m$	3,15 h

spontanom fisijom ili eksperimentalnim eksplozijama nuklearnog oružja (fisioni produkti: Cs-137 $t_{1/2} = 30,1$ god. i Cs-138 $t_{1/2} = 32,2$ min.).

U procesu cepanja jezgara teških elemenata (fisija)-ura-233,235 i 238, plutonijuma-239, torijuma-232 stvara se više od 200 izotopa 26 hemijskih elemenata, koji raspadom emituju γ -kvante, α i β -čestice. Veliki deo ovih radioizotopa su kratko živeći sa periodom poluraspada od nekoliko sekundi do nekoliko dana. Medju ovim radioizotopima najveću biološku opasnost predstavlja J-131 sa vremenom

poluraspada od 8 dana. Od dugoživećih radioaktivnih produkata fisije, za žive organizme, najopasnijim se smatraju Sr-90 i Cs-137, čija su vremena poluraspada respektivno 27,7 godina i 30,1 godina.

Prema stepenu toksičnosti izvršena je sledeća klasifikacija izotopa u četiri grupe:

I- grupa - vrlo visoka radiotoksičnost. U ovu grupu spadaju sledeći izotopi: Sr-90, Po-210, Ra-226, Ra-228.

II-grupa - visoka radioaktivnost. U ovu grupu spadaju: Na-22, Ca-45, Co-60, Sr-89, J-131, Cs-134, Cs-137, Ce-144.

III-grupa - srednja toksičnost. Predstavnici ove grupe su: O-15, Na-24, P-32, K-42, Ca-47.

IV-grupa - niska radiotoksičnost. Izmedju ostalih u ovu grupu spadaju: C-14, Cr-51 itd.

Jedna od osnovnih komponenata životne sredine-voda, ima najveći uticaj na sve ostale komponente eko-sistema, i usled toga radioekologija posebnu pažnju posvećuje upravo vodi. Stepen kontaminacije vode zavisi od rastvorljivosti radioelemenata, kao i od materijala koje mogu da formiraju komplekse i teško rastvorljive taloge sa prisutnim kontaminantima. Usled dobre rastvorljivosti Cs-137 (iCs-134) predstavlja najtoksičniji kontaminant vode. Njegovi monovalentni joni se lako, 100% resorbuju kroz crevnu sluzokožu čoveka, pa u slučaju interne kontaminacije vodom digestivni trakt predstavlja najznačajnije resoptivno područje. Za dospevanje Cs do čovečijeg organizma značajan je i lanac voda-riba-čovek; voda-mikroflora-zooplankton-riba-čovek voda-fitoplankton-riba-čovek. Akumulacija Cs-137 u mišićnom tkivu slatkovodnih riba je znatno intenzivnija od Sr-90, pri čemu je koeficijent nagomilavanja reda veličine 10^2 - 10^3 /1, dok ravnotežna koncentracija Sr-90 u mekom tkivu slatkovodnih riba ne prelazi, 0,1% njegovog sadržaja u vodi. Iz vodenog rastvora u biljke takodje znatno više prelazi Cs-137, a u lancu ishrane, u mleko prelazi oko 100 puta manje Sr-90 nego Cs-137 /2/.

Po metaboličkim osobinama Cs-137 je veoma sličan klijumu i karakteriše se izuzetnom rastvorljivošću u tkivnim tečnostima. Kako cezijum ispunjava medjućelijske prostore ne može se govoriti o nekom krtičnom organu za Cs, iako se kao i K, akumulira prvenstveno u mekim tkivima. Vreme biološke eliminacije je različito i ono varira kod pojedinih vrsta organizama. Najduže je kod preživara, dok kod čoveka iznosi oko 140 dana /3/. Koncentracija ovog izotopa u životnim namirnicama i biološkim sredinama izražava se u odnosu na koncentraciju K-40, s obzirom na to da postoji određeni odnos ova dva izotopa, slična po distribuciji (odnos $37 \cdot 10^{-3}$ Bq/l g K predstavlja tzv. cezijumovu jedinicu). Ovaj odnos kod ljudi iznosi 0,05 /2/.

Činjenica da, za beta-spekrometrijska, dovoljno precizna, merenja aktivnosti, ekstraktant mora biti visoko selektivan i visoko efikasan (izvor zračenja mora biti "čist") navela nas je na odluku o primeni gama-spektrometrijske analize. Usled velike energijske rezolucije gama-spektrometara dovoljno je da ekstraktant bude samo visoko efikasan. Ovakva visoka efikasnost ekstraktanta omogućuje korišćenje i male količine uzorka (1-10 l) za dovoljno precizna merenja aktivnosti.

Nakon akcidenta u Černobilu postojala je mogućnost da se na rastvoru, koji je po svojim osobinama i sastavu odgovarao realnom prirodnom uzorku, ispita efikasnost izdvajanja Cs na pojedinim ekstraktantima, što predstavlja cilj ovog rada.

1. KVALITATIVNA GAMA SPEKTROMETRIJSKA ANALIZA

Poluprovodnički spektrometri ($\text{Ge}(\text{Li})$). razvojem poluprovodničke integralne elektronike i tehnologije nuklearnih detektora, postali su najkvalitetniji uredjaji za merenje gama-zračenja.

Detekcija i spektrometrija gama-zračenja pomoću poluprovodničkih detektora zasniva se na tri efekta:

- 1) Foto efektu,
- 2) Comptonovom efektu,
- 3) Efektu stvaranja para elektron-pozitron.

1.1. FOTO EFEKAT

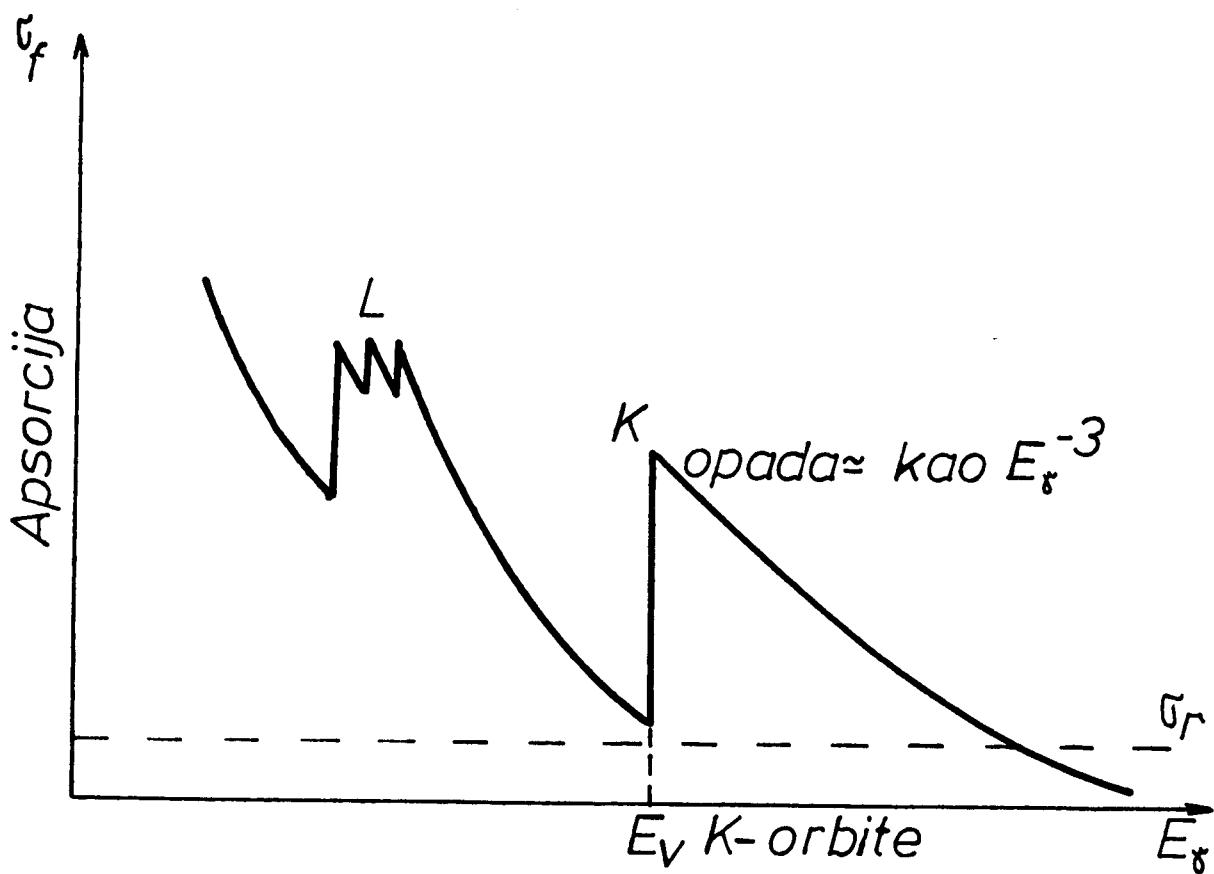
Fotoefekat je proces koji se dešava na vezanom elektronu i pri kojem se elektromagnetskim zračenjem izbacuju elektroni iz elektronskih slojeva atoma. Pri ovoj interakciji gama kvant svu svoju energiju predaje elektronu i nestaje. Ova energija se rasporedjuje na energiju veze elektrona u odgovarajućem sloju - E_i^V i na kinetičku energiju slobodnog elektrona - E_k

$$E_{\gamma} = E_i^V + E_k \quad (1)$$

Fotoefekat je jedino moguć, na osnovu jednačine (1), kada je energija upadnog gama-kvanta E_{γ} veća od vezivne energije elektrona u i -tom sloju, odnosno kada je $E_{\gamma} > E_i^V$. U suprotnom slučaju do fotoefekta neće doći.

Kako fotoefekat nastaje na vezanom elektronu, to ukoliko je veća energija veze elektrona u elektronskom omotaču atoma, to

je i veća verovatnoća nastanka fotoefekta. Verovatnoća nastanka fotoefekta meri se presekom, koji zavisi od rednog broja medijuma u kojem se fotoefekat javio, vezivne energije elektrona u elektronskom omotaču atoma i od upadne energije gama-kvanta E_γ . Ukoliko se presek za fotoefekat (za određeno Z) predstavi u funkciji energije upadnog gama-kvanta, dobija se grafik kao na slici 1.



S1.1. Promena preseka za fotoefekat u zavisnosti od upadne energije γ -kvanta

Kriva predstavlja presek za svaki sloj u atomu i opada obrnuto proporcionalno trećem stepenu energije upadnog gama kvanta. Za sve slojeve presek opada sa energijom gama-kvanta proporcionalno sa $E_\gamma^{-7/2}$. Sa slike se može videti, da je za visoke energije upadnog gama kvanta elektron u elektronskom omotaču atoma slabo vezan, pa je i

presek mali. Smanjenjem upadne energije gama-kvanta, presek raste, sve dok se energija upadnog gama-kvanta ne izjednači sa vezivnom energijom elektrona, a tada veoma brzo teži nuli (za K-sloj), ali je različit od nule za druge slojeve elektrona u elektronskom omo- taču atoma. Primenom kvantne elektrodinamike, moguće je izračunati presek za razne slojeve elektrona u atomu i razne energije gama-kvan- ta. Preseci za K-sloj su dati izrazima:

$$\tilde{\sigma}_f^K = 10^{-9} \frac{Z^5}{E_{\gamma}^{7/2}} ; \text{ za } m_e c^2 > E_{\gamma} > E_K^v \quad \left[\frac{\text{baru}}{\text{atomu}} \right] \quad (2)$$

$$\tilde{\sigma}_f^K = 1,45 \cdot 10^{-9} \frac{Z^5}{E_{\gamma}} ; \text{ za } m_e c^2 < E_{\gamma} \quad \left[\frac{\text{baru}}{\text{atomu}} \right] \quad (3)$$

Ove formule se danas ne koriste za izračunavanje preseka, jer nisu dovoljno tačne, ali su dobre da se uoči zavisnost preseka fotoefekta od rednog broja Z medijuma i energije E_{γ} upadnog ga- ma-kvanta. Slične formule mogu se dobiti i za ostale slojeve u atomu, pa se može uspostaviti odnos preseka za pojedine slojeve. Za istu energiju gama-kvanta i isti medijum ovi odnosi su:

$$\frac{\tilde{\sigma}_f^L}{\tilde{\sigma}_f^K} \sim \frac{1}{5} ; \quad \frac{\tilde{\sigma}_f^M}{\tilde{\sigma}_f^L} \sim \frac{1}{4}; \text{odnosno} \quad \frac{\tilde{\sigma}_f^M}{\tilde{\sigma}_f^K} \sim \frac{1}{20} \quad (4)$$

Na osnovu ovih odnosa preseka može se zaključiti da od ukupne verovatnoće računate za ceo atom, 80% otpada na fotoefekat u K-sloju, a 20% predstavlja verovatnoću nastanka fotoefekta u svim ostalim slojevima atoma.

1.2. COMPTONOV EFEKAT

U ovom procesu elektromagnetsko zračenje se rasejava na slobodnom elektronu. Rasejano zračenje je nekoherenčno, jer tala- sna dužina rasejanog zračenja zavisi od ugla rasejanja. Na osnovu

kvantne mehanike, Compton je objasnio nastanak nekoherentnog rasejanja, smatrajući interakciju gama-kvanta i slobodnog elektrona elastičnim sudarom. Kako pri elastičnom sudaru mora da važi zakon održanja impulsa i energije, Compton je pokazao da je energija rasejanog gama-kvanta data sledećim izrazom:

$$E_{\gamma}' = \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_e c^2} (1 - \cos \theta)} \quad (5)$$

gde je: E_{γ}' energija upadnog gama-kvanta, a θ ugao rasejanja. Energija upadnog gama-kvanta se rasporedjuje na rasejani foton i uzmaknuti elektron, koji dobija energiju:

$$E_e = E_{\gamma} - E_{\gamma}' \quad (6)$$

Elektron može imati sve vrednosti energije od nulte do neke maksimale, koja se dobija kada se gama-kvant raseje pod uglom od 180° i ona iznosi:

$$E_{e \max} = \frac{2E_{\gamma}}{m_e c^2 + 2E_{\gamma}} \quad (7)$$

Problem preseka za Comptonovo rasejanje rešavali su Klein i Nišima /18/ i pokazali da za energije gama-kvanta veće od 1MeV presek ima vrednost:

$$\sigma_c = 1.25 \cdot 10^{-25} \frac{NZ}{E_{\gamma}} \left[\ln \left(\frac{2E_{\gamma}}{m_e c^2} \right) - \frac{1}{2} \right]^{-1} \quad (8)$$

Na osnovu jednačine (8) vidimo da je presek za Comptonovo rasejanje proporcionalan elektronskoj gustini NZ, a obrnuto proporcionalan sa energijom upadnog gama-kvanta E_{γ} .

1.3. PAR EFEKAT

Kod stvaranja para elektron-pozitron celokupna energija gama kvanta se troši na kreaciju ovih čestica i na njihovu kinetičku energiju. Da bi se ovaj efekat javio, energija upadnog gama-kvanta mora biti veća od $2m_ec^2$, odnosno od 1,02 MeV. Pošto gama kvant u ovoj interakciji nestaje, tj. predaje svu energiju, višak energije je kinetička energija para:

$$E_k = E_\gamma - 1,02 \text{ MeV} \quad (9)$$

Kako presek za stvaranje para ima vrlo složenu formulu, on se može aproksimativno prikazati analitički samo u domenu energija $5 m_ec^2 < E_\gamma < 50 m_ec^2$, i tada je on dat izrazom:

$$\bar{\sigma}_p \sim Z^2 \ln E_\gamma \quad (10)$$

Sumarni presek za sva tri efekta može se predstaviti u vidu:

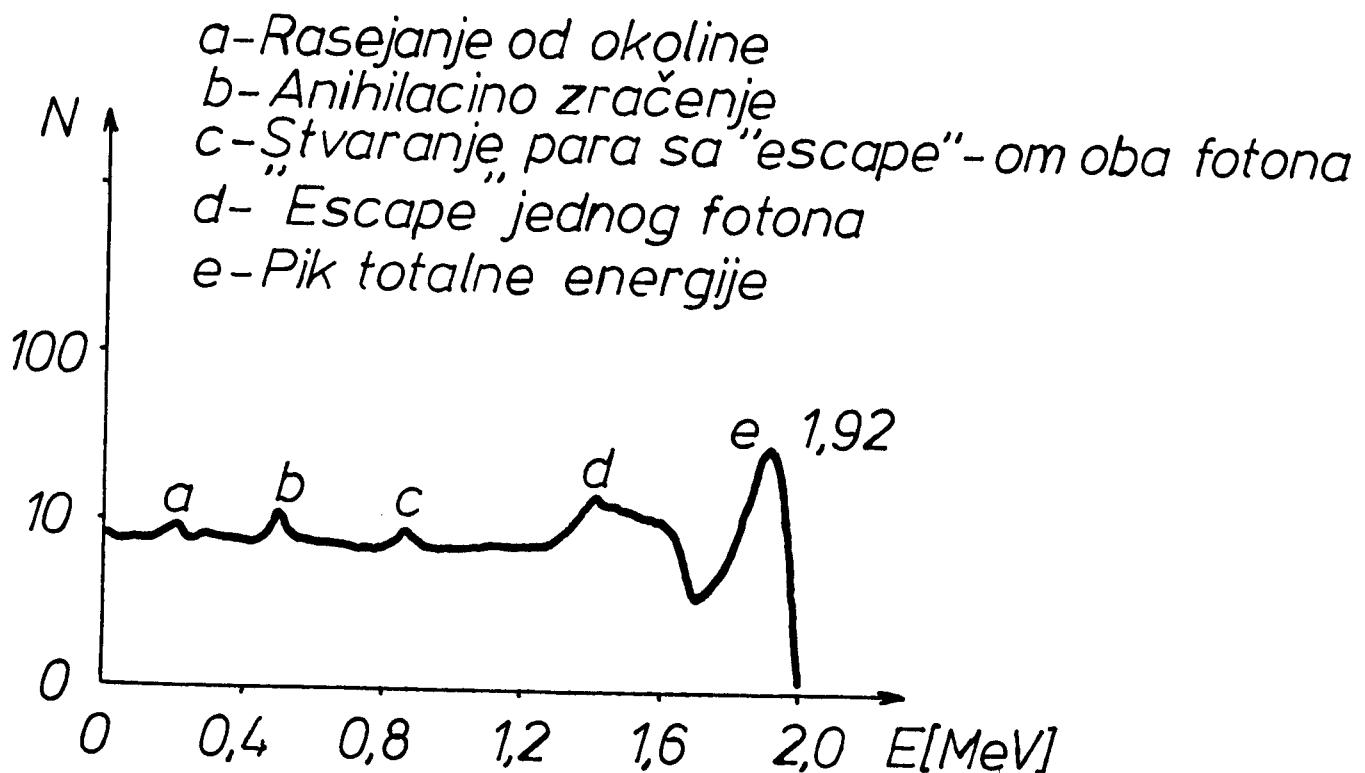
$$\bar{\sigma} = \bar{\sigma}_f + \bar{\sigma}_c + \bar{\sigma}_p \quad (11)$$

gde su preseci za svaki proces aproksimativno dati:

$$\bar{\sigma}_f \sim \frac{Z^5}{E_\gamma^{7/2}} ; \bar{\sigma}_c \sim \frac{Z}{E_\gamma} ; \bar{\sigma}_p \sim Z^2 \ln E_\gamma$$

Ovi efekti se različito manifestuju u spektru bilo kog izvora. Na slici 2 je prikazan jedan takav spektar. Kod fotoefekta, gama kvant predaje svu svoju energiju atomu apsorberu i pri tome nestaje. Na spektru se to manifestuje fotovrhom na energiji koja je jednak energiji gama-kvanta E_γ .

Ukoliko je energija gama-kvanta dovoljno velika, pored fotovrha imamo i Comptonovu raspodelu. Ako je energija gama kvanta dovoljna za stvaranje para, u spektru se javljaju linije koje potiču od stvaranja para elektron-pozitron. Anihilacijom pozitrona elektronom nastaju dva gama kvanta sa energijom od 0,511 MeV, odnosno m_ec^2 . Može se desiti da oba kvanta izbegnu detekciju linija ($E = 2m_ec^2$), da jedan bude detektovan.



Sl. 2. Spektar gama zraka

Za kvalitativnu analizu kontaminacije uzoraka koristi se određivanje položaja karakterističnog fotovrh za dati izotop, a za kvantitativno određivanje koncentracije aktivnosti se određuje čista površina fotovrh.

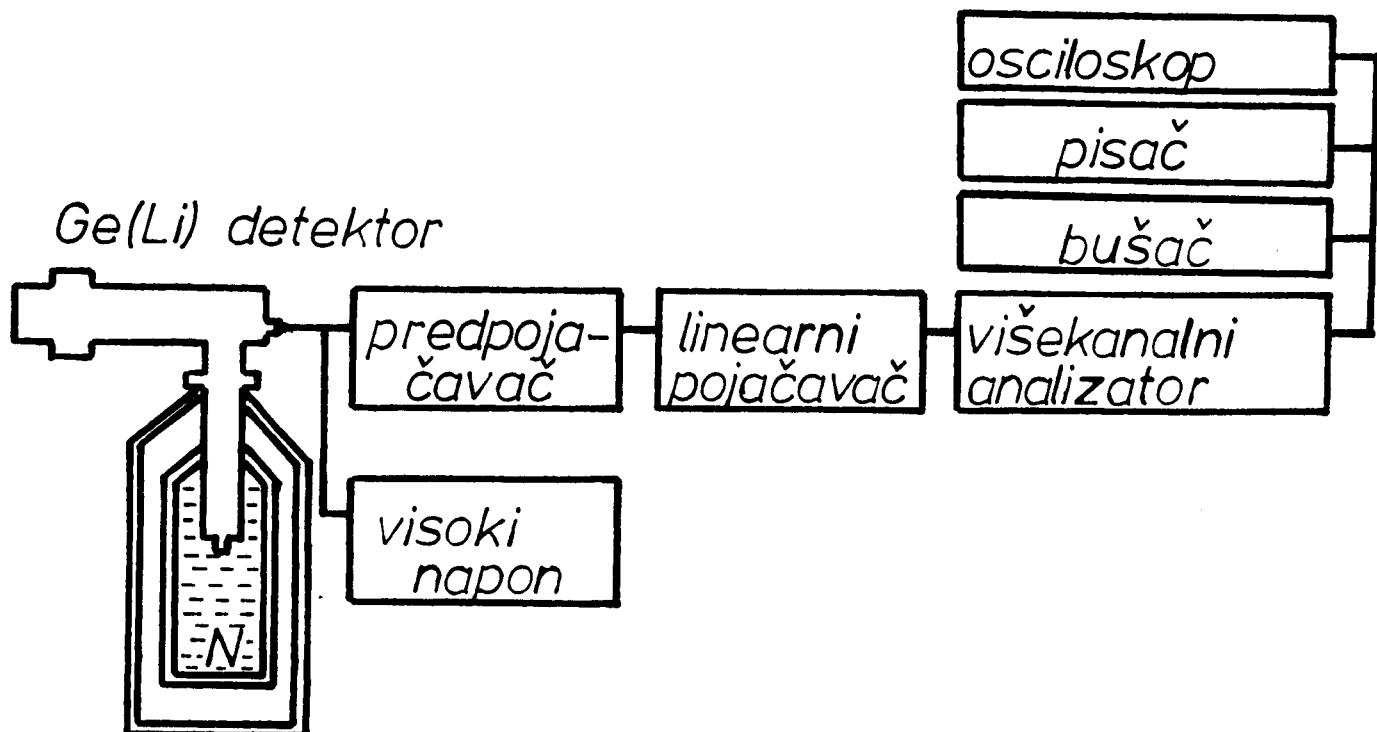
1.4. Ge (Li) SPEKTROMETAR

Prvackom nuklearnog zračenja kroz osetljivu zapremenu detektora, tj. kroz sloj prostornog nanelektrisanja, u detektoru se kreira par elektron-šupljina. Elektroni se kreću ka pozitivno polarisanom N-sloju i kada predaju svoja nanelektrisanja dobija se impuls čija je amplituda proporcionalna energiji gama zračenja ostavljenoj u efikasnoj zapremini detektora.

Povećanje efikasne zapremine detektora može se postići kompenzovanjem akceptorskih centara u P-tipu poluprovodnika driftovanjem jona Litijuma (donorske nečistoće). Na ovaj način u germanijumu nastaju donorski nivoi, pa se Litijum koristi najpre za dobijanje PN-strukture. Zatim pod dejstvom jakog električnog polja Litijumovi joni druffuju u P-deo, kompenzujući akceptorske nečistoće i do debljine od nekoliko centimetara. Na ovaj način dobijamo sloj besprimesne čistoće izmedju P i N dela poluprovodnika. Kristal germanijuma se mora kontinualno održavati na temperaturi tečnog azota (77°K), jer je pokretljivost Litijumovih jona u germanijumu znatna. To se praktično postiže postavljanjem detektora u vakuum kriostat koji obezbeđuje termalni kontakt germanijumovog kristala i rezervoara tečnog azota.

1.5. BLOK ŠEMA SPEKTROMETRA

Merni sklop Ge(Li) spektrometarskog sistema prikazan je na slici 3., i on se sastoji od: detektora, predpojačavača, linearnog pojačavača, više-kanalnog analizatora, osciloskopa, pisača i bušača traka.



Sl.3. Merni sklop Ge (Li) spektrometarskog sistema

U detektoru se energija gama zračenja pretvara u male električne signale koji su veoma slabi. Predpojačavač omogućuje prebacivanje ovih slabih signala do linearног pojačavača putem koaksijalnog kabla. Signal iz predpojačavača koaksijalnim kablom ide u linearni pojačavač, koji pojačava i ubličava impulse, da bi višekanalni analizator mogao da ih sortira po visini, i tek tada ovi impulsi daju spektar.

1.6. OSNOVNE KARAKTERISTIKE SPEKTROMETRA

Analizom spektra, koji se snima spektrometrom, dobijamo rezultate merenja, i zbog toga je potrebno definisati osnovne karakteristike spektrometra. To su:

1. Moć razlaganja spektrometra (R),
2. Efikasnost (ϵ),
3. Merni opseg spektrometra (I).

1.6.1. MOĆ RAZLAGANJA SPEKTROMETRA

Sposobnost detektora da razlikuje dva gama-kvanta bliskih energija definiše energijsku rezoluciju detektora. Kao praktična mera rezolucije uzima se širina "fotovrha" na polovini njegove visine, odnosno, instrumentalne linijske širine, jer je bitna informacija sadržana pod "fotovrhom". Instrumentalna linijska širina uvedena je zbog toga što širina jedne iste "fotolinije" zavisi od instrumenta na kome se vrši merenje. Odnos izmedju širine "fotolinije" na polovini visine i vrednosti koja odgovara položaju vrha "fotolinije" u energijskoj skali (ili impulsno-amplitudskoj skali) predstavlja kompletну definiciju rezolucije ili moći razlaganja spektrometra.

Određivanje rezolucije u energijskoj skali možemo predstaviti u sledećoj formi:

$$R = \frac{\Delta E}{E_{\gamma}} \cdot 100 [\%] \quad (12)$$

gde je ΔE širina "fotolinije" na polovini visine, a E_{γ} energija upadnog gama kvanta. Ako se na ovaj način definiše moć razlaganja spektrometra, on mora biti energijski kalibriran.

Moguće je uspostaviti vezu izmedju energijske rezolucije, broja stvorenih parova i širine linije na polovini visine, jer broj stvorenih parova sledi Gausovu raspodelu. Ako sa W označimo energiju potrebnu za stvaranje para, tada je broj parova dat kao:

$$N = \frac{E_{\gamma}}{W} \quad (13)$$

gde je E_{γ} energija gama kvanta. Pošto je širina Gausove raspodele na polovini visine $2,35 \sigma_N$ gde je $\sigma_N = \sqrt{N}$ greška gausove raspodele, uvrštanjem ovih jednačina u jednačinu (11) dobijamo da je energijska rezolucija:

$$R = \frac{2,35 \cdot \sigma_N}{N} \cdot 100 [\%] \quad (14)$$

odnosno:

$$R = 2,35 \sqrt{\frac{W}{E_{\gamma}}} \cdot 100 [\%] \quad (15)$$

Odavde se vidi da se energijska rezolucija povećava sa energijom potrebnom za stvaranje jednog para nosioca nanelektrisanja.

1.6.2. EFIKASNOST SPEKTROMETRA

Verovatnoća da će gama-kvanti biti registrovani podrazumeva se pod efikasnošću detektora. Ona se izražava kao odnos registriranih prema ukupnom broju gama-kvanata koje izvor emituje.

$$\xi = \frac{N_{det}}{N_{uk}} \quad (16)$$

Ovako definisana efikasnost zavisi od dva faktora:

- a) geometrijske efikasnosti,
- b) efikasnosti detektovanja.

Na detektor pada veći ili manji broj gama-kvanata u zavisnosti od prostornog ugla. Deo fluksa koji pada na detektor definiše geometrijsku efikasnost (ξ). Deo gama-kvanata koji pri ulazu u detektor bivaju detektovani predstavlja efikasnost detektovanja (ζ). U efikasnost spektrometra ulazi i efikasnost pretvaranja (p) jer se pri detekciji gama-kvanata, energija gama-kvanta pretvara u energiju nanelektrisanih čestica.

Na osnovu ovoga, efikasnost je u opštem slučaju data izrazom:

$$\xi = \xi \cdot \zeta \cdot p \quad (17)$$

1.6.3. MERNI OPSEG SPEKTROMETRA

Kako od energije registrovanih gama kvanata zavisi i moć razlaganja i efikasnost detektora, to svaki spektrometar ima merni opseg u kome radi sa zadovoljavajućom tačnošću. Kod poluprovodničkih detektora, gornja granica zavisi od debljine kristala i od podložnosti kristala radijacionom oštećenju. Šumom predpojačavača i debljinom mrtvog sloja detektora odredjena je donja granica mernog opsega.

1.7. EKSPERIMENTALNO ODREĐIVANJE AKTIVNOSTI

Po završetku snimanja spektra, pristupa se obradi rezultata koja se sastoji u određivanju aktivnosti.

Da bi se izračunala aktivnost potrebno je izračunati površinu pod fotovrhom. Na osnovu kanala, koji obuhvataju datu spektralnu liniju, odredjujemo ukupan odbroj u njima. Ovaj ukupan odbroj

predstavlja i ukupnu površinu pod fotovrhom odnosno spektralnom linijom. Zbog toga je od ove površine potrebno oduzeti površinu koja ne pripada datoј spektralnoј liniji, a to je površina fona pod fotovrhom. Usled povećanja tačnosti rezultata od ove aktivnosti potrebno je oduzeti aktivnost praznog nosača za dati izotop odnosno spektralnu liniju (tzv. back-ground). Na osnovu izloženog postupka dobijamo izraz za aktivnost koji glasi:

$$A = \frac{\frac{N_p - N_f}{t} - \frac{B_p - B_f}{t_B}}{m I \epsilon} \quad (18)$$

gde je:

N_p - odbroj pod fotovrhom,

N_f - srednja vrednost fona pod fotovrhom,

t - vreme snimanja spektra,

B_p - odbroj praznog nosača pod fotovrhom,

B_f - srednja vrednost fona praznog nosača,

t_B - vreme snimanja spektra praznog nosača,

m - masa uzorka,

I - intenzitet linije,

ϵ - efikasnost detektora.

Izraz za izračunavanje greške aktivnosti odredjene pomoću eksperimenta glasi:

$$\Delta A = \frac{1}{m \epsilon I} \left[\frac{N_p + N_f}{t^2} + \frac{B_p + B_f}{t_B^2} + \left(\frac{N_p - N_f}{t} - \frac{B_p - B_f}{t_B} \right) \left(\frac{\Delta I^2}{I^2} + \frac{\Delta \epsilon^2}{\epsilon^2} \right) \right]^{1/2} \quad (19)$$

Pri izračunavanju specifične aktivnosti vrednosti za intenzitet linija i efikasnost uzeti su iz tablica i one iznose:

Cs-137 $I=0,85$ i Cs-134 $I=0,976$

dok su greške na ove veličine date izrazima:

$I=0,001$ i $\Delta \epsilon = \epsilon \cdot 0,1$

TABELA EFIKASNOSTI:

d [mm]	Cs-134 (605 keV)	Cs-137 (662 keV)
40	6,0	5,5
41		
42		
43		
44		
45	5,7	5,2
46		
47		5,2
48		
49		
50	5,4	5,0
51		
52		4,9
53		
54		
55	5,1	4,7
56		
57		
58		
59		
60	4,8	4,4
61		
62		4,3
63		
64		
65	4,5	4,1
66		4,1
67		4,0
68		
69		
70	4,2	3,8



2. METODE RADIOHEMIJSKE SEPARACIJE IZOTOPA Cs

2.1. METODE I POSTUPCI ZA SEPARACIJU Cs IZ VODE

Konvencionalni postupci kao što su: koagulacija, taloženje, filtracija i destilacija, ispitani su kao prvi postupci za uklanjanje radioaktivnih materijala iz vode. Uz njih ispitani su kao pomoćni postupci: omešavanje, jonska izmena, aerizacija i slično.

Koagulacija je proces koji se bazira na stvaranju hemijskih flokula koje na svojoj površini adsorbuju materijale u nekoj tečnoj sredini. Najčešće korišćeni koagulantni su sulfat aluminijuma i hlorid gvoždja ili njihova smesa.

Prirodne mineralne supstancije predstavljale su osnov za ispitivanje mogućnosti procesa koagulacije u prečišćavanju voda koje sadrže Cs-137. Vodovodnoj vodi dodavani su aktivni ugalj (100mg/l) rastvor sode do pH 7,5, hlorid gvoždja, a zatim 200 mg/l nekog sorbensa /2/.

U toku ispitivanja primenjivane su frakcije sorbensa 0,1mm bez obrade i sorbensi sušeni na temperaturi od 650°C u toku jednog časa (tabela 1). Povećavanjem koncentracije sorbensa u vodi, povećava se i stepen prečišćenosti vode u kojoj se nalazi Cs (tabela 2). Najefikasnijim se pokazao vermikulit.

TABELA 1. Uklanjanje Cs-137 iz vodovodne vode u prisustvu sorbensa (Kuznjecov, J.V., 1974) /2/

sorbens	stepen prečišćenosti (%)	
	bez obrade	sa termičkom obradom
Biotit	48	66
Askanit	73	86
Kaolin	11	20
Bentonit	28	43
Gumbrin	68	69
Glaukonit	73	73
Montmorilonit	30	81
Vermikulit	91	-

TABELA 2.

Uticaj količine unetog sorbensa na uklanjanje Cs-137
metodom koagulacije (Kuznjecov, J.V., 1974.) /2/

Sorbens	Stepen prečišćenosti u % zavisno od količine sorbensa (g/l)							
	0,200		0,500		1,000		3,000	
	I	II	I	II	I	II	I	II
Vermikulit	91	46	95	70	95	86	98	95
Biotit	85	57	92	77	93	93	95	93
Askanit	79	43	-	64	93	82	95	89
Glaukonit	71	40	-	52	83	75	91	91
Gumbrin	84	63	-	73	94	83	97	94
Montmorilonit	76	55	-	80	95	86	97	95

Napomena: I - vodovodna voda, II - modelni rastvor, montmorilonit je termički obradjen.

U principu, postoje dve mogućnosti filtracije kroz pesak-spora i brza. Spora filtracija smatra se za veoma efikasnu metodu prečišćavanja voda većine radioaktivnih izotopa, jer se na česticama peska stvaraju slojevi aktivnog materijala. Proces brze filtracije kroz pesak zasnovan je na udaljavanju radioaktivnosti prethodno vezane sa česticama koje se stvaraju pri zapreminskoj koagulaciji (tabela 3.).

TABELA 3.

Čišćenje vode od radioaktivnih izotopa brzom filtracijom kroz pesak (Kuznjecov, J.V., 1974) /2/

Izotop	pH	stepen prečišćenosti (%)	
		interval	srednja vrednost
Cs-137-Ba-137	8,3	10-70	50
Sr-89	8,3	1-13	4
Cd-115	8,1	60-99	95
Ba-140-La-140	7,6	39-99	74
Sc-46	8,3	94-99	96
Y-91	7,0	84-89	82
ZR-95-Nb-95	7,8	91-96	93
W-185	7,1	3-18	8

Relativno dobro uklanjanje Cs objašnjava se time što se cezijum nepovratno skuplja na česticama glinjenih materijala koji se zadržavaju pri brzoj peščanoj filtraciji.

Metod destilacije, i pored nesumljive efikasnosti, nije našao širu primenu pri separaciji radioizotopa iz vode, sem u slučajevima niske i srednje aktivnosti.

2.2. IZDVAJANJE Cs NA JONOIZMENJIVAČKIM KOLONAMA

Uklanjanje radioaktivnih izotopa iz vode primenom jonoizmenjivačkih smola je veoma složen proces, a njegov efekat zavisi kako od prirode i sastava izotopa u rastvoru, tako i od tipa smole. Smole se obično koriste u kolonama (dinamička sorpcija) i u obliku praška koji se unosi u rastvor (statička sorpcija). U praktičnom radu se rastvor, sa jonima koje treba razdvojiti, propušta kroz kolonu sa izmenjivačkom smolom. Pri tome se radni uslovi (sastav rastvora, dimenzije kolone, brzina protoka) biraju tako da se pri vrhu kolone adsorbuju joni

koje želimo da odvojimo. U najprostijem slučaju, neki joni prolaze kroz kolonu bez zadržavanja, dok se drugi adsorbuju.

Jednostavni anijonski i katijonski izmenjivači, kao i izmenjivači sintetisani za izdvajanje tragova nekih radioaktivnih elemenata iz vode (Chebex - 100, Permutit S 1005) /14/ bili su nepodesni za izdvajanje tragova cezijuma. Zatim je pokušano sa amonijum-fosfomolibdatom (AMP), međutim, iako se pokazao efikasnim, znatne teškoće pri koncentraciji velikih zapremina uzorka nastale su usled njegove mikrokristalne strukture, i zbog ograničene protočne moći.

Kada je Barton sa saradnicima /4/ konstatovao da ferocijanidi i ferocijanidi prelaznih metala talože cezijum iz vodenih rastvora, i kada je Tananaev /5/ ispitao stabilnost tih taloga zaključeno je, da ova jedinjenja predstavljaju pogodne visoko selektivne apsorbente za jon cezijuma kada se nalaze u granularnoj formi. Tada, ferocijanidi teških metala počinju da se koriste za brzu separaciju /6/ i separaciju i koncentrisanje cezijuma iz različitih sredina /7,8,9,10/.

Kao najpogodniji ferocijanidni apsorbenti za koncentrisanje Cs-137 iz uzorka vode zapremine oko 100 l, izdvajaju se: kalijum-kobaltferocijanid (KCFC), kupriferocijanid (CuFC) i cirkonijumferocijanid (ZrFC).

Na osnovu komparativnih merenja /20/ utvrđeno je, da sa ove tri vrste ferocijadnih kompleksa postoji, u principu pogodna mogućnost za koncentrisanje malih količina cezijuma. Razlike koje se pojavljuju između njih uglavnom se odnose na brzinu izdvajanja Cs i na selektivnu moć samog izmenjivača. KCFC se relativno lako sintetiše, efikasan je, međutim, visok deo kalijuma smanjuje preciznost i efikasnost merenja malih količina Cs. Usled raspada K-40 u prirodnom kalijumu u spektralnoj oblasti Cs-137 pojavljuje se povećana pozadina. Znatno brže izdvajanje Cs pokazuje CuFC u odnosu na KCFC i ZrFC, ali znatan nedostatak ovog ferocijanida ogleda se u relativno niskoj selektivnoj moći s obzirom na to, da se koncentrisanje tragova Cs iz prirodnih voda vrši u prisustvu znatnih količina soli Na, K, Ca, Mg. Primenom ZrFC ove teškoće se izbegavaju, jer je on visoko selektivan

za Cs, a kalijum sadrži samo u tragovima. Pored ovih prednosti ZrFC pokazuje i znatno veću mehaničku stabilnost pri kontaktu sa vodom od KCFC i CuFC.

Poslednjih godina vršena su ispitivanja u pogledu efikasnosti separacije Cs pomoću novo sintetizovanih ferocijanidnih jedinjenja. Kao najefikasnije se pokazalo /13/ CuFC-IRA-904 odnosno, takozvana Watari smola. (Za početnu koncentraciju rastvora od 5 mole/l kapacitet ove smole je iznosio 2,8 meq/g, dok odnos zapremine rastvora i mase smole iznosi 10 ml/g, a koeficijent distribucije prilikom ekstrahovanja Cs iznosi 0,6 ml/g. Da bi se pripremila ova smola potrebno je spojiti AMBERLIT-IRA-904 sa kalijumferocijanidom. Ovaj supremenat se nakon sušenja i ispiranja dodaje tranzitnom metalnom hloridu ili nitratu. Nakon jednog ovakvog tretmana ova smola je približno 23% metalni-ferocijanid, a nakon 6-10 tretiranja ona postaje približno 60% metalniferocijanid.

Usled učestalih akcidenata u nuklearnim elektranama, kao i usled mnogih eksperimentalnih nuklearnih eksplozija, razvila se potreba za razvijanje brzih metoda separacije Cs iz vodenih rastvora, uz prisustvo svih jona u vodi. Zbog toga je ispitivana sposobnost adsorpcije Cs-137 rastvorenog u vodi koja je sadržala Ca^{2+} jone za vreme proticanja vode kroz jonoizmenjivačku kolonu oblika Na^+ (Dowex 50W-x8 od 20-50 mesh-a) sa vremenom proticanja od 0,3-1,2 l/min/cm². Na osnovu ovih ispitivanja zaključeno je da adsorcija ima eksponencijalnu funkciju koja zavisi od koeficijenta adsorpcije i dužine smole. Takođe je ustanovljeno da koeficijent adsorpcije zavisi od vremena proticanja i od koncentracije Ca^{2+} jona u vodi. Rezultati ovih istraživanja pokazali su da postoji realna mogućnost efikasne separacije Cs (više od 90% Cs-137 se može koncentrovati u slučaju da je dužina jonoizmenjivačke smole oko 40 cm) na mestu uzorkovanja i u slučaju brzog protoka vode kroz smolu. Rezultati su takođe pokazali da procenat izdvajanja zavisi od dužine kolone, brzine protoka i koncentracije ostalih jona u vodi /15/.

2.3. ODREDJIVANJE EFIKASNOSTI VEZIVANJA Cs NA ZrFC

Sinteza ZrFC izvedena je dodavanjem 0,25M $K_4Fe(CN)_6$ · $3H_2O$ (0,5 lit.) u 0,1M $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ (4,12 lit) u trajanju od 20 minuta uz neprestano mešanje. Redosled dodavanja reagensa i višak metalnog jona su važni za postizanje dobrih fizičkih osobina taloga. Svetlozeleni talog koji se tada formira ostavljen je u kontaktu s rastvorom preko noći, a zatim je filtriran kroz Büchnerov levak, ispiran je sa 6 lit. demineralizovane vode i sušen na $105^{\circ}C$ 37 časova. Osušen talog granulisan je na 10-50 mecha. Ovako formirane granule pokazale su izuzetnu stabilnost pri dužem kontaktu sa vodom. /14/

Prepostavlja se /20/ da ovako sintetisan ZrFC ima bruto formula $ZrO(OH)_2 \cdot (ZrO)_2 Fe(CN)_6$. Dileme oko tačnog hemijskog sastava i strukture sintetisanih ferocijanida pojavljuje se i u mnogo detaljnije ispitivanih KCFC /11/ i CuFC /12/. Detalji mehanizma između takodje nisu kompletno jasni /6/.

Kako postoje odredjene dileme u pogledu hemijskog sastava ZrFC, izvršeni su eksperimenti u kojima je ispitivan sastav sintetisanog ZrFC. Hemijska analiza je izvršena metodom neutronske aktivacije. Uzorak ZrFC mase 0,5 g zračen je u neutronskom fluksu od $1,8 \cdot 10^{13} s^{-1} cm^{-2}$ u trajanju od 10 časova /14/.

Na osnovu gama aktivnosti uzorka izmerene u eksperimentu bilo je moguće odrediti sadržaje Zr i Fe u uzorku (tabela 4) /14/.

TABELA 4.

ELEMENT	m(g)	SADRŽAJ (%)
Zr	$(7,5 \pm 0,1) \cdot 10^{-2}$	15
Fe	$(2,4 \pm 0,05) \cdot 10^{-2}$	5

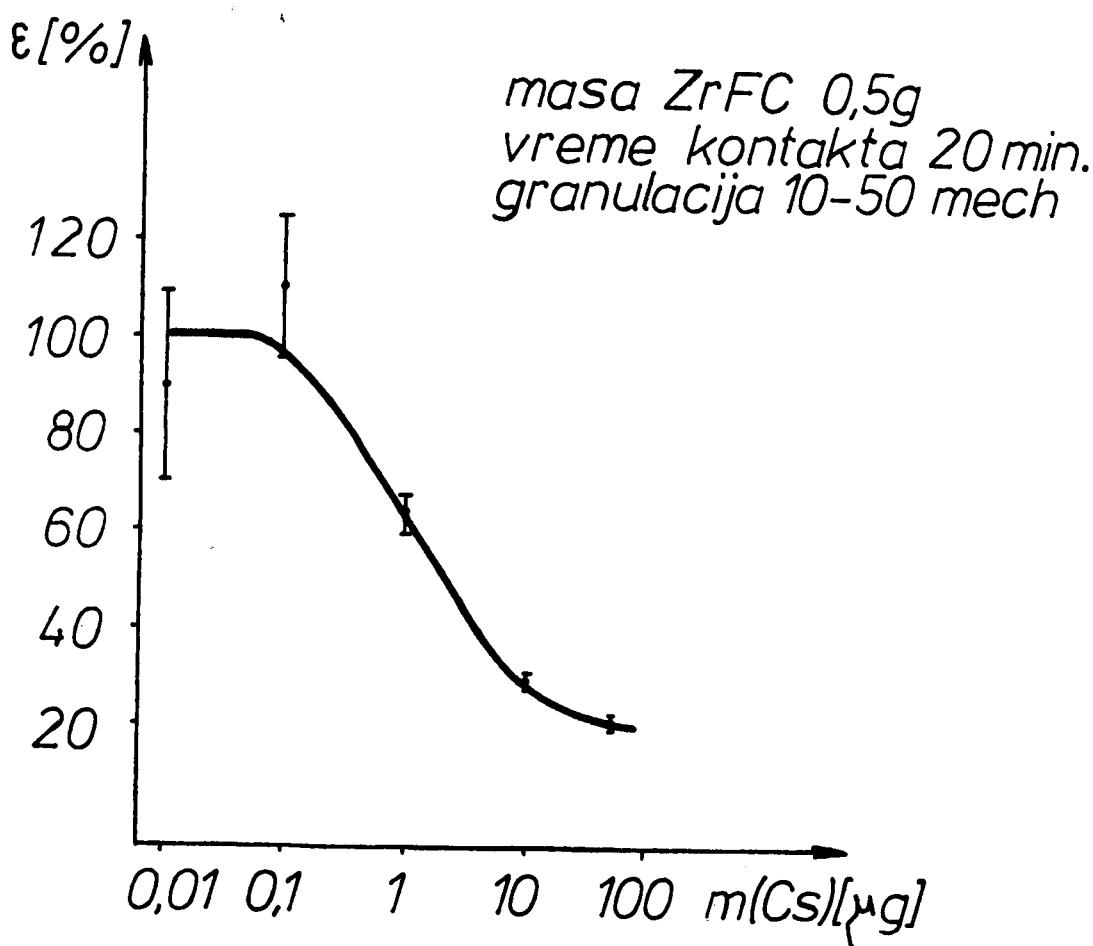
Ovi rezultati nisu potvrdjivali predpostavke /20/ o bruto formuli ZrFC. Prepostavljeni odnos masa ($Zr/Fe \approx 5$) znatno odstupa od eksperimentalno dobijenog $Zr/Fe \approx 3$, dok absolutne vrednosti ovih

masa pokazuju da ZrFC sadrži više molekulskih vrsta.

Uzorci ZrFC granulacije 10-50 mecha i mase 0,5g držani su u kontaktu s vodenim rastvorima CsJ koji su sadržali od 0,01 do $50\mu\text{g}$ Cs. Vreme kontakta je iznosilo 20 minuta. Pregled ispitivanih uzoraka sa odgovarajućim masama Cs u rastvorima (m_r) s kojima su uzorci bili u kontaktu dat je u tabeli 5.

TABELA 5.

ŠIFRA UZORKA	MASA Cs U RASTVORU m_r (μg)	ξ (%)
1	0,01	90 ± 20
2	0,1	110 ± 15
3	1	63 ± 4
4	10	29 ± 2
5	50	20 ± 1



S1. 4. Kriva efikasnosti izdvajanja Cs na jonoizmenjivaču ZrFC

Granule ZrFC su izvadjene iz rastvora, isprane i pripremljene za neutronsku aktivaciju. Ovom metodom bilo je moguće odrediti masu Cs (m_d) u svim uzorcima. Masa Cs u uzorcima odredjena je na osnovu gama spektroskopskih merenja inteziteta linije od 796 KeV na apsolutno kalibriranom Ge(Li) detektoru. Izmerene vrednosti efikasnosti izdvajanja Cs prikazane su u tabeli 5, gde je:

$$\xi = \frac{m_d}{m_r} \cdot 100\% \quad (20)$$

Sa slike 4. može se videti da je efikasnost izdvajanja oko 100% sve dok se masa Cs u rastvoru ne poveća iznad 10^{-7} g. Kako će se u praktičnoj primeni analizirati uzorci vode od 100 lit. i kako će se oni propuštati kroz kolonu koja sadrži 15g ZrFC, iz ovih rezultata može se zaključiti da će se na koloni praktično izdvojiti sav Cs iz vode, ako je njegova koncentracija u vodi manja od $3 \cdot 10^{-5}$ ppm. S obzirom da se u rečnim vodama očekuje bar 100 puta manja koncentracija ovog elementa za očekivati je da će sintetizovani jonoizmenjivač ZrFC u potpunosti izdvajati Cs iz rečnih voda pri realnim uslovima upotrebe /14/.

2.4. MOGUĆNOST PRIMENE MOLEKULARNIH SITA (ZEOLITA) ZA TRETMAN VODA

Molekularna sita (zeoliti) su hidratizovani kristalni aluminosilikati jedinstvene prostorno-mrežne strukture sastavljene od SiO_4 i AlO_4 tetraedara spojenih preko zajedničkih atoma kiseonika /22/. Specifičnost strukture zeolita ogleda se u postojanju strukturalnih šupljina medjusobno povezanih kanalima odredjenog oblika i veličine. Za određeni tip zeolita, oblik i veličina kanala i šupljina, njihovi medjusobni odnosi, su konstantni i tačno određeni kao stрукturni parametri. Opšta formula zeolita u oksidnom obliku je: $\text{Me}_{2/n} \cdot \text{Al}_2 \text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$, gde je n nabojni broj katijona Me, a x i y zavise od tipa zeolita. U dodiru sa rastvorima elektrolita, katijoni iz zeolita mogu se reverzibilno zameniti sa katijonima iz rastvora.

Pri tome, brzina zamene i kapacitet zamene zavise od mnogih faktora, kao na primer: tipa zeolita, vrste jona iz rastvora koji se zamenjuju jonima iz rastvora, koncentracije zamenjivih jona u rastvoru, jonske jačine rastvora, temperature zamene i slično. Koeficijent selektivnosti K_s , koji predstavlja afinitet zeolita prema odredjenom katijonu, definisan je na sledeći način:

$$K = \frac{C_s}{C_L} \quad (21)$$

gde je C_s količina jona vezanih po gramu zeolita, a C_L je količina istih jona rastvorenih u cm^3 rastvora pri ravnotežnim uslovima. Neki tipovi zeolita pokazuju izrazitu selektivnost u odnosu na odredjene vrste katijona, na primer afinitet mordenita prema Cs^+ jonima. Prženjem zeolita na temperaturama većim od 800°C , menja se njihova struktura, usled čega se gube jonsko izmenjivačka svojstva /20/ pa radioaktivni izotopi vezani u zeolitu ostaju nakon kalciniranja blokirani unutar strukture kalcinata s veoma malom brzinom ispuštanja radioizotopa (leaching) iz matriksa.

Osobina, kao što su: veliki kapacitet vezivanja radioizotopa, značajna termička i radiolitička stabilnost, termičke transformacije i druge; čine zeolite veoma pogodnim materijalima za tretman, separaciju i imobilizaciju izotopa cezijuma i stroncijuma iz visoko-radioaktivnih rastvora.

3. EKSPERIMENTALNI REZULTATI

Za eksperimentalnu izradu ovog rada korišćen je sledeći materijal:

- granulovani aktivni ugalj KARBOZAK H,
- jako kisele katijonske jonoizmenjivačke smole u H^+ jonskoj formi: VARION KS, DOWEX 50W, LEWATIT, S 100
- granulovani ZrFC,
- model rastvor: Ekstrakt lucerkinog brašna.

Lucerkino brašno iz PIK-a "TAMIŠ" u Pančevu predstavljalо je tipičan uzorak u kojem su se nakon akcidenta u Černobilu koncentrisali svi radioizotopi i kod kojeg je interkomparacionim merenjima /16/ konstatovan, izmedju ostalog, visok sadržaj Cs - 137:

4,75 (108) Bq/g, odnosno Cs-134: 2,49(56) Bq/g. Na osnovu ovih merenja zaključili smo da je ovaj uzorak veoma pogodan za formiranje model rastvora. Formirana su dva rastvora EKSTRAKT I (800 g lucerkinog brašna je potopljeno u 30 litara vode) i EKSTRAKT II (500 g lucerkinog brašna potopljeno u 30 litara vode) koji su zagrevani na 303 K uz mešanje 4-5 časova, pri čemu je ekstrahovano oko 70% Cs. Profiltrirani ekstrakti su korišćeni za dalji rad.

- staklena kolona unutrašnjeg prečnika 2,70 cm, visine punjenja 30 cm i vremena protoka od 1,5 l/h.

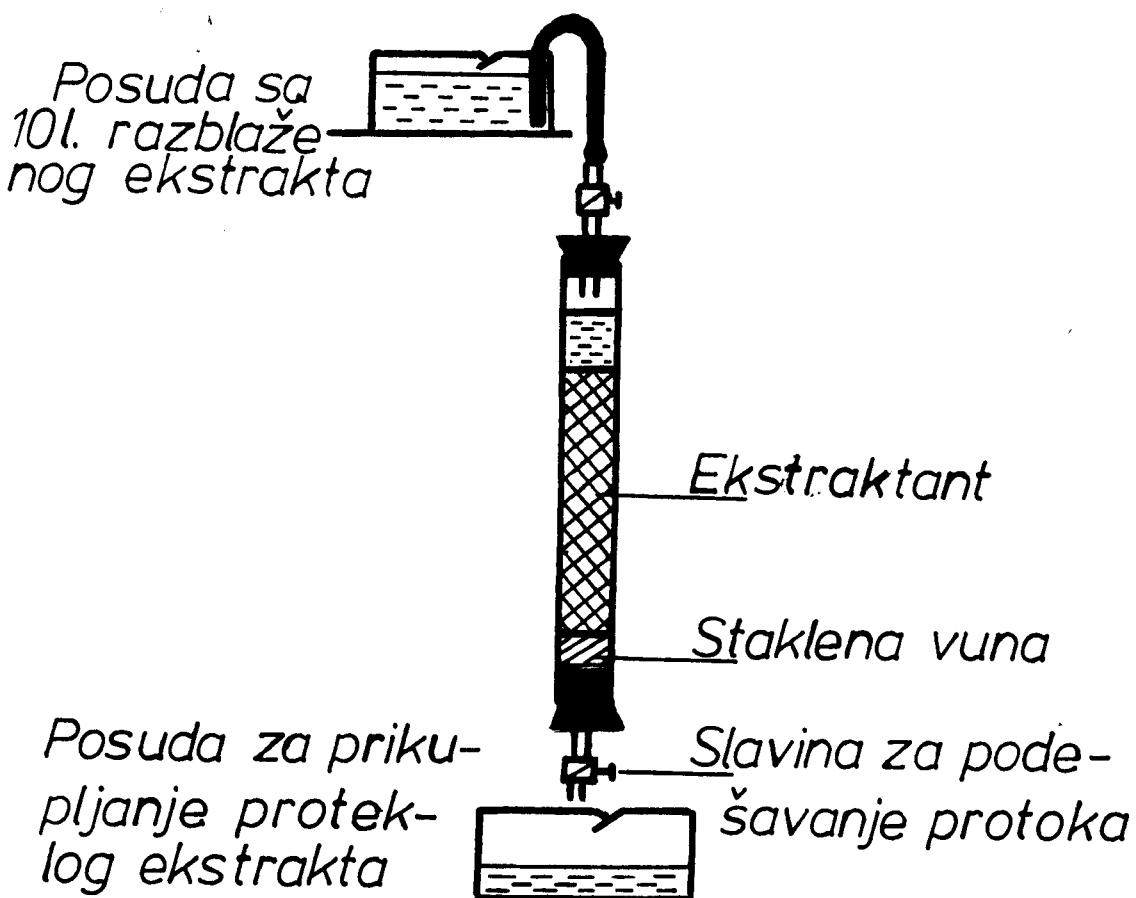
3.1. METOD RADA I MERNA TEHNIKA

Uslovi eksperimenta određeni su na osnovu preliminarnih merenja koja su pokazala da je optimalna dužina ekstraktanta u koloni 30 cm, kako zbog samog procesa vezivanja Cs, tako i zbog visine materijala u samom nosaču. Naime, ustanovljeno je, da se pri datoј geometriji

detektora, optimalna efikasnost merenja postiže ako je visina materijala u nosaču 5cm, što odgovara dužini od 30cm ekstraktanta u koloni /21/.

Nakon ovoga je izmerena, dovoljno precizno, aktivnost 1 l. EKSTRAKTA I i EKSTRAKTA II (korišćen za ispitivanje jonoizmenjivačke smole LEWATIT-a), i to na sledeći način: EKSTRAKT I odnosno EKSTRAKT II stavljeni su u nosač detektora i u vremenu od 2000 s snimljen je spektar. Na energijama merenih gama prelaza za Cs-134 i Cs-137 koje iznose 605 keV odnosno 662 keV odredjen je odbor i fon, pa je na osnovu izraza (18) i (19) izračunata aktivnost i greška aktivnosti.

Zatim je EKSTRAKT I odnosno EKSTRAKT II razblažen demineralizovanom vodom u odnosu 1:9, i takav rastvor je propuštan kroz kolonu (sl. 5) sa određenim ekstraktantom. U slučajevima kada je radjeno sa jonoizmenjivačkim smolama ove su bile aktivirane odnosno regenerisane propuštanjem 20% HCl uz uvek iste uslove.



Sl. 5. Šematski prikaz kolone

Potom je kompletan materijal izvadjen iz kolone i stavljen u nosač detektora. Na već napred rečenim energijama odredjen je odbroj i fon i na osnovu izraza (18) i (19) izračunata je aktivnost i greška aktivnosti celokupnog materijala iz kolone.

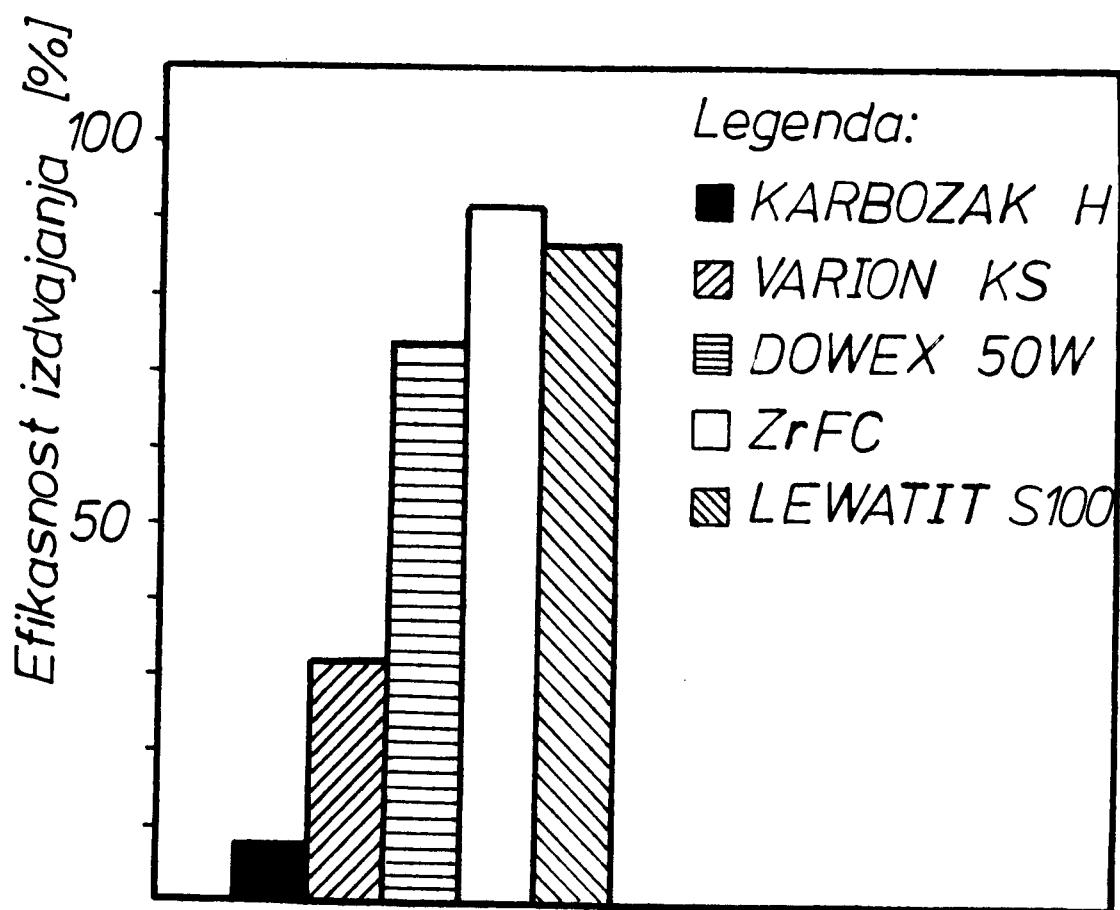
Gama-spektrometrijska merenja izvršena su pomoću "Closed and Coaxial" Ge (Li) detektora "CANBERRA" smeštenog u niskosumnu zaštitnu komoru od predratnog gvozdenog lima /17/. Signali su iz detektora preko predpojačavača "CANBERRA" 2001, vodjeni u pojačavač "CANBERRA" 1413, a spektar je registrovan na 4096 kanalnom analizatoru, "NUCLEAR DATA" NC 2400.

3.2. REZULTATI MERENJA

Rezultati merenja koncentracije aktivnosti Cs-137 i Cs-134 u EKSTRAKTU I i EKSTRAKTU II i ispitivanim materijalima (ekstraktantima) prikazani su u tabeli 6, a efikasnost ekstraktanata na slici 6. Efikasnost ekstraktanata odredili smo iz odnosa koncentracije aktivnosti ekstraktanta i odgovarajućeg EKSTRAKTA, i izrazili smo je u procentima.

TABELA 6.

MEDIJUM	KONCENTRACIJA AKTIVNOSTI [Bq/l]	
	Cs-137	Cs-134
EKSTRAKT I	87,7 ± 5,6	41,7 ± 3,3
EKSTRAKT II	59,4 ± 0,8	30,0 ± 0,7
UKUPNA AKTIVNOST [Bq]		
EKSTRAKTANT	Cs-137	Cs-134
	3,4 ± 0,5	4,8 ± 0,7
KARBOZAK H	24,2 ± 1,8	15,5 ± 1,3
VARION KS	60,3 ± 4,2	33,3 ± 2,6
DOWEX 50W	80,6 ± 1,2	38,2 ± 0,9
ZrFC	55,8 ± 0,4	24,1 ± 0,1
LEWATIT S 100		



S1.6. Efikasnost analiziranih ekstraktanata

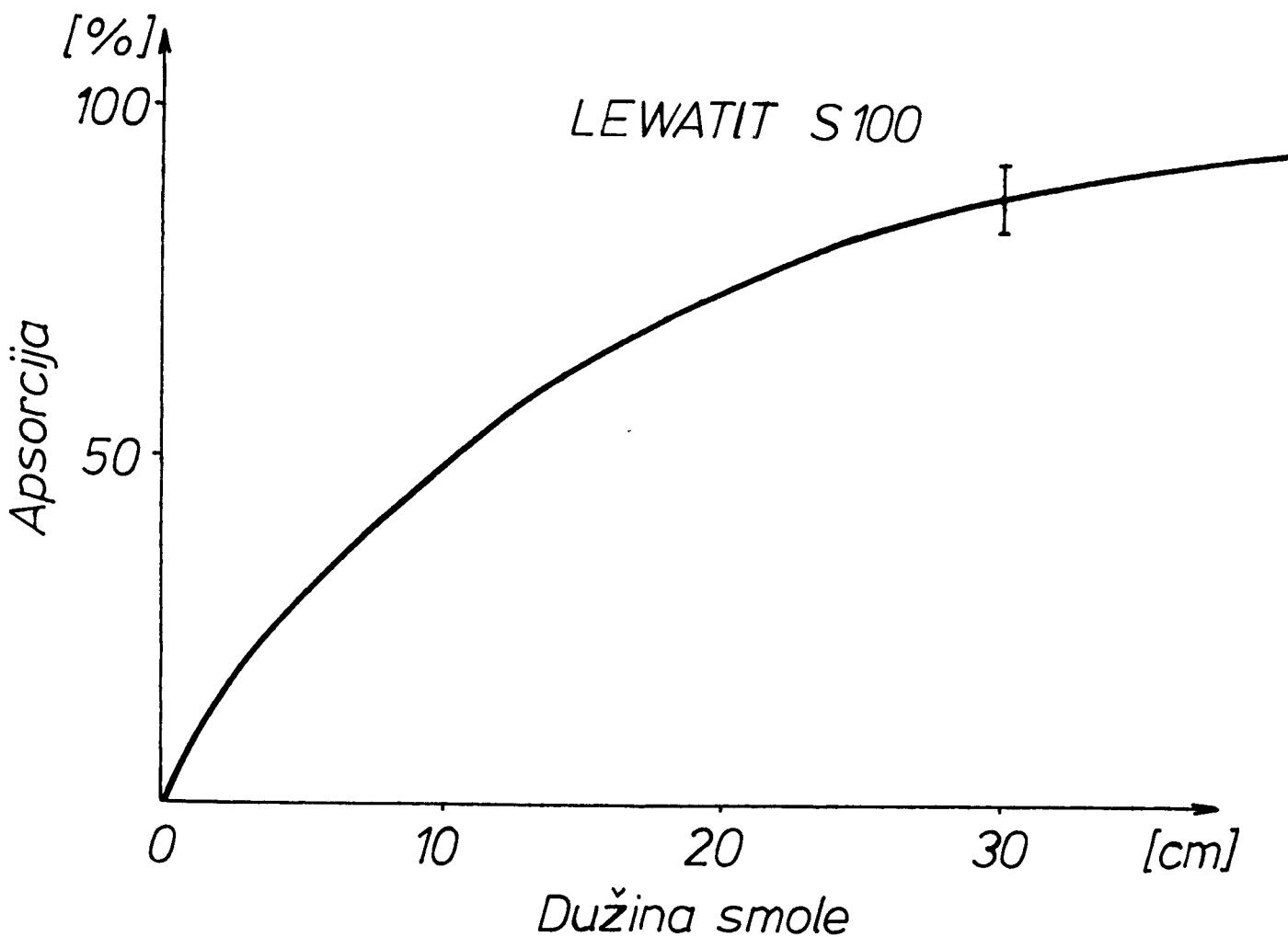
3.3. ZAVISNOST APSORCIJE Cs OD DUŽINE SMOLE

Na osnovu rada Luetzelschwab-a i Gignac-a /15/ ustanovljena je eksponencionalna zavisnost (koeficijenta) apsorpcije Cs od dužine smole. Zbog toga, frakcija izdvojenih jona u dатој dužini smole može biti predstavljena funkcijom $(1-e^{-px})$, gde je x dužina smole u koloni izražena u cm, a p koeficijent apsorpcije u cm^{-1} .

Usled eksponencijalne prirode apsorpcije, pogodno je definisati termin poludužine, odnosno dužine smole koja je potrebna da se apsorbuje polovina jona Cs koji kroz nju prolazi. Poludužina se tako može definisati:

$$x_{1/2} = \frac{\ln 2}{p} = \frac{0,693}{p}$$

Na osnovu rezultata merenja ustanovljeno je da na dužini smole od 30 cm dolazi do apsorpcije oko 87% Cs. Na osnovu relacije $1-e^{-px}$ izračunali smo koeficijent apsorpcije p , i on iznosi $p=0,068\text{cm}^{-1}$. Koristeći ovu vrednost konstruisali smo krivu zavisnosti apsorpcije od dužine smole. Ova kriva prikazana je na slici 7.



Sl. 7. Zavisnost apsorpcije Cs-137 od dužine smole
za koeficijent apsorpcije $p=0,068 \text{ cm}^{-1}$

Za datu vrednost koeficijenta apsorpcije izračunali smo i poludužinu, i ona iznosi $x_{1/2}=10,19 \text{ cm}$. Može se na osnovu ovoga zaključiti da je za 75% apsorpciju potrebno oko dve poludužine, dok je za 90% apsorpciju potrebno oko 3,5 poludužine smole.

4. Z A K L J U Č A K

Rezultati ovog rada pokazuju da je moguće brzo i efikasno izdvajanje dugoživećih izotopa Cs iz prirodnih voda. Upotrebom ekstraktanata ZrFC i LEWATIT-a, dužine 30 cm u koloni efikasnost separacije je oko 90%. Međutim, kako je za separaciju Cs iz prirodnih voda putem ZrFC potrebno svaki put sintetizovati ovo jedinjenje i kako postoje odredjene dileme u pogledu hemijskog sastava ovog jedinjenja, potrebno je uvek ispitati i efikasnost ovog ekstraktanta. Zbog toga, ove osobine ZrFC ograničavaju njegovu upotrebu u akcidentnim uslovima.

U slučajevima kada se izdvajanje Cs vrši pomoću jonoizmenjivačkih smola, efikasnost separacije Cs pojedine smole zavisi i od koncentracije ostalih jona u vodi. Ovi joni mogu zasiliti odredjenu smolu pa efikasnost separacije Cs naglo opada.

Na osnovu dobijenih rezultata ovog rada smatramo da jonoizmenjivačka smola LEWATIT predstavlja visoko efikasan ekstraktant Cs iz prirodnih voda kako je ispitivanje ovog ekstraktanta vršeno realnim uzorkom, uz prisustvo i ostalih jona u rastvoru, a postignuta efikasnost izdvajanja Cs je oko 90%, to u slučajevima akcidenta, ova jonoizmenjivačka smola može predstavljati osnovni medijum za brzo i efikasno prečišćavanje radioaktivnih voda od dugoživećih izotopa Cs.

R E F E R E N C E

1. Kuzin, A.M; Savremeni problemi radioekologije.
A.N. SSSR, tom II, Moskva, Atomizdat (1971)
2. Jovanović M.; Jonizijuća zračenja i životna sredina,
Vojnoizdavački zavod, Beograd (1983)
3. Anderson EC.; Schuck B.L., Fischer W.R., and Langham W.H.,
Science 125, 1273 (1957)
4. Barton G.B., et.al; Industr.Engng. Chem. 50, 212 (1958)
5. Tananaev I.V. et.al.; J.Inorg. Chem. 3,69 (1968)
6. Kawamura S. et. al.; J.Chromatog. 26,557 (1967)
7. Boni A.L.; Analyt. Chem. 38,89 (1966)
8. Kourim V. et.al.; J. Inorg. nucl. Chem. 26, 1111 (1964)
9. Kourim V. et.al.; J. Inorg. nucl. Chem. 27, 473 (1964)
10. Folsom J.R. et.al.; Proc. Panel Reference Methods for
Marine Radioactivity Studies, 18-22 nov. Vienna 1968.
11. Prout W.E. et. al.; J.Inorg, Nucl. Chem. 27, 473 (1965)
12. Petrow H.G. et.al.; Analyt. Chem. 38, 360 (1967)
13. Hendrickson W.F. and Riel G.K.; Health Phys. 28, 17 (1975)
14. Čonkić Lj.; Vesković M., Marinkov L., Bikit I., Vodoprivreda
15 , 196 (1983)
15. Luetzelschwab J.W. and Gignac C.; Health Phys. 27, 109 (1974)
16. L. Marinkov, I. Bikit, J.Slivka Lj. Čonkić; Interkomparacija
Jugoslovenske gama spektroskopije; Drugo savetovanje "Izlaganje
zračenju iz prirodne sredine i procenat odgovarajućeg radijacionog
. rizika", Kragujevac 6-8 oktobra 1986.

17. Bikit I. et.al. ; Low Lewel Shield for Gamma Spectrometers,
XXVIII ETAN VI/51 (1984)
18. Dr Lazar Marinkov "Osnovi nuklearne fizike" PMF-Novи Sad (1976)
19. Reference Methods for Marine Radioactivity Studies, Tehnical
Reports No 118, IAEA, Vienna, (1970)
20. Mimura, H.and Kanno, T.; Sei.Rep.Ritu, A-29 (1980) 102
21. I. Bikit, M.Vesković, Determination of the optimal length of
cylindrical sources for specific gamma activity measurements;
Nuclear Instruments and Methods in Phys. Research, A243,(1986)
227-229
22. Breck, D.W.; J.Chem. Edvc. 41, (1964)678