



بررسی مدل سازی سنگ معدن wiikit به صورت ماتریکس پسماند پرتوزا با مطالعه‌ی رفتار اتم‌های U و Th در آن

محمد حسین پور خانمیری*

دانشکده‌ی رادیوشیمی، مرکز مندلیف، دانشگاه دولتی سن پترزبورگ، کدپستی: ۱۹۹۰۳۴، سن پترزبورگ - روسیه

چکیده: در این پژوهش، مدل سازی سنگ معدن اورانیم wiikit به منظور ذخیره‌ی پسماند پرتوزای HLW بررسی شد. ابتدا با استفاده از روش بلورشناسی پرتو ایکس مشخص شد که wiikit ساختار متامیکت دارد. هم چنین، روش SEM نشان داد نمونه شامل فاز U و فازهای مختلف معدنی است که خود دلیل بر ساختار بی شکل سنگ معدن است. به منظور تعیین ترکیب شیمیایی نمونه، روش EMP استفاده شد که حاکی از وجود ۴٪ U در نمونه است. با بهره گیری از کروماتوگرافی تبادل یونی به وسیله‌ی مبادله کننده‌های آنیونی Dowex AB-۱۷-۸، عناصر پرتوزای U و Th جداسازی و تخلیص شدند. سپس با آبکاری مولکولی، چشمه‌های U و Th تهیه شد و طیف نگاری آلفای چشمه‌های U و Th کاهش قابل توجهی را در نسبت پرتو زایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ نشان داد که ناقض تعادل پایدار در سری پرتو زایی ^{238}U است. در نهایت، براساس اطلاعات به دست آمده از رفتار اتم های U و Th در این نوع wiikit، این نتیجه حاصل شد که مدل شدن wiikit به صورت ماتریکس پسماندهای پرتوزای ^{241}Am ، ^{244}Cm ، ^{237}Np و ^{239}Pu و سایر رادیوایزوتوپ های سنگین، مشروط به افزودن اکسیدهای خنثی مثل Al_2O_3 ، SiO_2 و Fe_2O_3 است.

کلیدواژه‌ها: بلورشناسی پرتو ایکس، روش SEM و EMP، اورانیم، توریم، طیف نگاری آلفا، کروماتوگرافی تبادل یون، ذخیره‌ی پسماند پرتوزا

The Modelling Investigation of Wiikit Ore as Radioactive Waste Matrices by Studying Behavior of its U and Th Atoms

M. Hosseinpour Khanmiri*

Radiochemistry Faculty, Mendeleev Center, Saint Petersburg State University, 199034, Saint Petersburg - Russia

Abstract: This research is dedicated to modeling the wiikit uranium ore for HLW radioactive waste storing. At first, during X-ray Crystallography it was determined that wiikit has metamict structure. Then SEM revealed the U phase and different mineral phases that could be regarded as a reason for being amorphous. EMP was used to determine the chemical composition of the sample showing that wiikit contains 4% of uranium. The radioactive elements U and Th were separated by ion exchange chromatography using Dowex AB-17-8 anion exchanger. During the next stage, the U and Th sources were prepared by molecular plating. Alpha-spectroscopy of the U and Th sources revealed high deficit in $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios, which violates secular equilibrium in the series of ^{238}U decay. Finally, according to the results obtained by the behavior analysis of the U and Th atoms in this wiikit, modeling of the wiikit as ^{237}Np ، ^{239}Pu ، ^{241}Am ، ^{242}Cm ، ^{244}Cm radioactive waste matrices and other heavy radioisotopes was performed when neutral oxides such as Al_2O_3 ، SiO_2 ، Fe_2O_3 were added.

Keywords: X-Ray Crystallography, SEM, EMP, Uranium, Thorium, Alpha Spectroscopy, Ion Exchange Chromatography, Storage of Radioactive Waste



۱. مقدمه

پسماندهای پرتوزای سطح بالا^(۱) HLW مدل‌سازی کنند تا با در نظر گرفتن خصوصیات مکانیکی و فیزیکی - شیمیایی پسماندهای پرتوزا، از نفوذ آن‌ها به بیوسفر جلوگیری شود. در حال حاضر، سنگ‌های معدن پرتوزا از گروه تیتانیم-تانتالوم-نیوبیم یکی از بهترین ماتریکس‌های بلورین برای پسماندهای پرتوزا به شمار می‌روند [۱۰-۱۲]. هم‌چنین کانی‌های دیگر دارای تیتانیم-تانتالوم-نیوبیم در پژوهش‌های [۱۳، ۱۴] مطالعه شده‌اند. طبق این پژوهش‌ها، نسبت پرتوزایی $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ در کانی تانتال-نیابات^(۱۱) برابر ۰/۸۶، و در کانی سامارسکیت^(۱۲) ۰/۹۹ است. نقض شدید تعادل پایدار در کانی تانتال-نیابات، عدم مقاوم بودن این کانی در برابر تغییرات محیط را نشان می‌دهد. بنابراین نتیجه می‌شود که ماتریکس مناسبی برای رادیوایزوتوپ‌های سنگین نخواهد بود و در مقابل با توجه به حفظ تعادل پایدار در کانی سامارسکیت امکان بررسی اولیه برای سنتز ماتریکس وجود خواهد داشت، ولی در مورد سایر پارامترهای دخیل نیز باید پژوهش صورت گیرد.

۲. بخش آزمایش

۲.۱ معرفی مواد شیمیایی

در این آزمایش، رزین آنیونی Dowex AB-۱۷-۸ با دانه‌بندی ۱۰۰ تا ۲۰۰ مش و اسید کلریک، اسید نیتریک، اسید فلئوئوریک غلیظ، اسید آسکوربیک، ایزوپروپیل الکل و دی متیل سولفوکسید استفاده شدند. نمونه‌ی سنگ معدن wiikit از دانشکده‌ی زمین‌شناسی دانشگاه دولتی سن‌پترزبورگ^(۱۳) روسیه تهیه، و از ^{232}U به عنوان ردیاب^(۱۴) برای محاسبه‌ی خروجی آزمایش استفاده شد.

۲.۲ لوازم و دستگاه‌ها

برای جداسازی و تخلیص U و Th از سنگ معدن، دو ستون کروماتوگرافی در ابعاد بزرگ (۱۰۰×۱۰mm) و کوچک (۷۵×۶mm) انتخاب شد. برای تشخیص فازهای بلورین و متامیکت، دستگاه بلورشناسی پرتو ایکس^(۱۵) Diffractometer Difr-۴۰۱ (ساخت کشور آلمان)، و به منظور تعیین ترکیب شیمیایی نمونه، دستگاه میکروپروب الکترونی Oxford Instruments (EMP) (ساخت کشور

طی ده سال اخیر واژه‌ی متامیکت^(۱) هم‌معنی ساختار بی‌شکل (آمورف) استفاده می‌شود. کانی‌های متامیکت در سومین گروه مواد آمورف طبقه‌بندی می‌شوند که ابتدا ساختار بلورین داشته، اما در طی تاریخ زمین‌شناسی این ساختار خود را از دست داده، و به صورت آمورف در آمده‌اند. در ترکیب همه‌ی کانی‌های متامیکت [۱] عناصر پرتوزای اورانیم و توریم یافت می‌شود که بیش‌تر این کانی‌ها شامل گروه تیتانیم-تانتالوم-نیوبیم و عناصر خاکی کمیاب و فسفر هستند. در برخی موارد، ثابت شده است که احتمال متامیکت‌شدگی^(۲) با افزایش درصد اورانیم و توریم در ترکیب کانی‌ها و هم‌چنین با افزایش عمر معدنی بیش‌تر می‌شود. چردينچف^(۳) و چالوف^(۴) اثر جزء به جزء شدن^(۵) طبیعی اورانیم را در سال ۱۹۵۴ میلادی [۲، ۳] کشف کردند. اولین پژوهش‌های مربوطه در انستیتو آکادمی علوم قرقیزستان انجام شد. این پژوهش‌ها نشان دادند که غلظت ^{234}U در اکسیدهای طبیعی به صورت U^{6+} بیش‌تر است، فارغ از آن که کانی مربوطه دارای چه مقدار U باشد. چردينچف و چالوف هم‌چنین مشاهده کردند که نسبت پرتوزایی $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ در آب‌های زیرزمینی و آب دریاچه‌ها و رودخانه‌ها از تعادل پایدار پیروی نمی‌کند. در شکستگی‌های پوسته‌ی زمین نیز کاهش قابل‌توجهی در نسبت پرتوزایی $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ مشاهده شده است [۴، ۵]. اثر جزء به جزء شدن طبیعی چردينچف و چالوف در واقع بسط و گسترش پژوهش‌های استاریک^(۶) [۶] و همکارانش بود که مدل موینگی^(۷) فروشویی^(۸) را ارائه داده بودند. استاریک و همکارانش در پژوهش‌های خود تأکید کردند که نمی‌توان حد و مرز دقیقی را بین ساختار شبکه‌های معدنی تخریب شده و شبکه‌هایی که دست نخورده باقی مانده‌اند، تعیین کرد. آن‌ها براساس مدل موینگی غنی شدن آب با ^{234}U نشان دادند که نسبت ایزوتوپی بین عناصر در ریزشکته‌های آمورفی نسبت به شبکه‌های بلورین متفاوت است. هم‌چنین این فرضیه را مطرح کردند که در زمان فروشویی، اتم‌های پس‌زده‌ای^(۹) (اتم‌های دختر حاصل فروپاشی) وارد محلول می‌شوند که در قسمت‌های آمورفی مواد معدنی قرار دارند [۷-۹]. براساس اطلاعاتی که از رفتار عناصر پرتوزای مثل اورانیم و توریم در طبیعت و سنگ‌های معدن به دست می‌آید، این امکان فراهم می‌شود که با استفاده از این داده‌ها، سنگ‌های معدن مناسب را برای ذخیره و نگهداری



ای پراش براگ^(۱۶) با داده های منابع تعیین شد. آشکارساز مورد استفاده از نوع تناسبی گازی، لوله ی استفاده شده برای پرتو ایکس از نوع BSV-۳۳، جنس آند از عنصر کرم، آنالیز در ولتاژ ۱۶ kV و جریان ۶ mA انجام گرفت.

۶.۲ آنالیز SEM

با استفاده از آنالیز SEM، اسکنی از سطح مشخصی از نمونه تهیه شد. آشکارساز مورد استفاده از نوع AsB(Zeiss) بود و آنالیز در ولتاژ ۱۵ kV و محدوده ی جریان ۱۰ pA تا ۳۰۰ nA انجام گرفت.

۷.۲ آنالیز EMP

برای تعیین ترکیب شیمیایی نمونه از روش EMP استفاده شد، اسپکترومتر مورد استفاده از نوع EDS Oxford Instruments Inca X-act، تفنگ الکترونی^(۱۷) از نوع کاتد تنگستنی و قدرت تفکیک در خلأ ۳ تا ۳/۵ nm انتخاب شد.

۸.۲ انحلال سنگ معدن wiikit در اسید فلئوریک ۲۳M

میزان ۷mg از سنگ معدن مورد آزمایش در ۱۰ ml اسید فلئوریک غلیظ ۲۳ M همراه با ۱۰۰ µl، ^{۲۳۲}U به صورت ردیاب به مدت ۷۰min در ظروف تفلونی در دمای آزمایشگاه حل شد. محلول به دست آمده از انحلال کامل سنگ معدن ابتدا تا مرحله ی نیمه خشک شدن، و سپس به منظور خروج گاز SiF_۴ سه بار متوالی (هر بار ۳ ml) با اسید نیتریک غلیظ ۱۴M و برای خروج گاز NO_۲ سه بار با اسید کلریک غلیظ ۱۲ M حرارت داده شد. در نهایت، نمونه ی نیمه خشک را سه بار با اسید کلریک ۶ M حرارت داده، و محلول پس از افزودن ۲ml اسید کلریک ۶M به ستون کروماتوگرافی انتقال داده شد.

۹.۲ کروماتوگرافی تبادل یون آنیونی

برای جداسازی و تخلیص U و Th، روش کروماتوگرافی تبادل یون آنیونی با رزین آنیونی Dowex AB-۱۷-۸ انتخاب شد. U در محلول اسید کلریک تشکیل کمپلکس های [UO_۲Cl_۳]⁻ و [UO_۲Cl_۴]^{-۴} می دهد که با افزایش غلظت اسید، میزان جذب U به رزین های مبادله کننده نیز بیش تر می شود [۱۸]. با توجه به

آلمان)، و برای عکس برداری از فازهای شامل اتم های U، از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) AsB(Zeiss) (ساخت کشور آلمان) استفاده شد. به منظور تهیه ی چشمه های U و Th از دستگاه رسوب دهی الکترولیتی (ساخت کشور روسیه)، اندازه گیری پرتو زایی آن ها از دستگاه طیف نگاری آلفا (ساخت کشور روسیه)، و برای اندازه گیری فروپاشی بتای ^{۲۳۴}Th از آشکارساز گایگر-مولر (ساخت کشور روسیه) استفاده شد.

۳.۲ ویژگی های عمومی سنگ معدن wiikit

زمین شناس فنلاندی به نام F.Wiik سنگ معدن wiikit را در سال ۱۸۸۹ میلادی در پگماتیت ها در سه نوع (۱) سیاه با ساختار بلورین (۲) قهوه ای تیره با ساختار بلورین غیر واضح (۳) قهوه ای با ساختار آمورف کشف کرد [۱۵-۱۷]. این سنگ معدن از گروه تیتانیم-تانتالیم-نیوبیم با فرمول عمومی (Y,Ce)(U^{IV},Fe,Ca)(Nb,Ta,Ti,Si)_۲(O,OH) است و عمر زمین شناسی آن ۱/۵ میلیارد سال است. در سال ۱۹۸۴ میلادی، کانی زرد رنگ با درصد U بیش تر کشف شد که آن را نیز wiikit نامیدند. ویژگی همه ی wiikit های کشف شده آن است که

در ترکیب همه ی آن ها کانی های آمورف حاوی عنصرهای Y, Nb, Ta, Ti, U, Th یافت می شود به طوری که در طی فعل و انفعالات زمین شناسی ساختار بلورین خود را از دست داده و به صورت آمورف (متامیکت) در آمده اند. wiikit انواع مختلفی دارد که بر اساس ترکیب شیمیایی و خصوصیات فیزیکی و تفاوت در نوع گروه تیتانیم-تانتالیم-نیوبیم از هم متمایز می شوند.

۴.۲ آزمایش نمونه

به منظور انجام آزمایش و آنالیزهای شیمی هسته ای و فیزیک هسته ای، ۵ g از نمونه ی مورد آزمایش wiikit تا اندازه ی ذرات کم تر از ۰/۱۲ mm خرد، و در اهداف مورد نظر استفاده شد.

۵.۲ آنالیز بلورشناسی پرتو ایکس

آنالیز بلورشناسی پرتو ایکس نمونه ی خرد شده در تفرق سنج پراش-۴۰۱ تحت زاویه ی ۲θ بین پرتو ایکس تابشی و سطح نمونه انجام شد. ترکیب فازها با مقایسه کردن موقعیت های زاویه-



۱۱.۲- آلفا- اسپکتروسکوپی

چشمه‌های حاوی U و Th در دستگاه طیف‌نگاری آلفا در یک محفظه‌ی خلأ قرار داده شد. آشکارساز مورد استفاده از نوع نیمه‌رسانای سد سطحی^(۱۹) با قدرت تفکیک ذاتی ۲۵ تا ۳۵ keV و با توجه به کیفیت چشمه‌های تهیه شده و طول مدت اندازه‌گیری، قدرت تفکیک ۳۰ تا ۹۰ keV قابل افزایش، و طیف‌نگاری در بازه‌ی انرژی ۳/۶ تا ۹ MeV امکان‌پذیر است. مساحت فعال آشکارساز 3cm^2 ، و آنالیز آلفا- طیف با یک برنامه‌ی کامپیوتری مدل‌سازی شده انجام گرفته است.

۱۲.۲ آشکارسازی پرتو بتای ^{234}Th

همان‌طور که اشاره شد، در تخلیص U، ایزوتوپ ^{232}U به صورت ردیاب در محاسبه‌ی بازدهی واکنش استفاده می‌شود. اما بازدهی مربوط به تخلیص Th از فروپاشی بتای ایزوتوپ ^{234}Th که اولین هسته‌ی پرتوزای دختر پس‌زده‌ی ^{238}U است با استفاده از آشکارساز گایگرمولر محاسبه شد.

۳. نتایج و بحث

۱.۳ آنالیز بلورشناسی پرتو ایکس wiikit

شکل ۱، طیف حاصل از آنالیز بلورشناسی پرتو ایکس برای سنگ معدن wiikit را نشان می‌دهد. با استفاده از داده‌های حاصل از این آنالیز و استفاده از سایت مرجع www.webmineral.com/، فقط دو فاز کوارتز^(۲۰) و سلاسانیت^(۲۱) قابل مشاهده‌اند و بقیه‌ی کانی‌های شامل اورانیم در آنالیز مشاهده نشده‌اند. بلورشناسی پرتو ایکس، آمورف بودن wiikit را نشان می‌دهد، چرا که فقط کانی‌هایی با ساختار بلورین، دارای خطوط در طیف این نوع آنالیز هستند و کانی‌های آمورف غیر قابل مشاهده‌اند.

این که میزان جذب کمپلکس‌های Fe^{3+} به رزین نیز مانند U است، لذا از اسید آسکوربیک برای کاهش Fe^{3+} به Fe^{2+} استفاده شد. پس از اشباع کردن هر دو ستون بزرگ و کوچک با اسید کلریک ۶ M، محلول آزمایشی به ستون کروماتوگرافی بزرگ منتقل، و دو بار با اسید کلریک ۶ M شسته شد. در این حالت فقط اورانیم جذب رزین، و Ra، Th، عناصر خاکی کمیاب، آهن و عناصر دیگر از ستون خارج می‌شوند. سپس، اورانیم با اسید

۰.۱M از ستون جدا، و بعد از حرارت دادن مثل روش قبل برای تخلیص بهتر و کامل‌تر، عمل جداسازی از طریق ستون کوچک انجام شد. در نهایت، U خالص به دست آمده به دستگاه رسوب‌دهی الکترولیتی منتقل شد. برای جداسازی Th از بقیه‌ی عناصر، از اسید نیتریک استفاده شد [۱۸]. در اسید نیتریک ۸ M Th جذب رزین‌های مبادله‌کننده‌ی آنیونی، و بقیه‌ی عناصر از ستون جدا، و در اسید نیتریک ۰.۱M Th از رزین‌ها جدا می‌شود. قبل از انتقال محلول حاوی Th به ستون، باید هم‌زمان با حرارت دادن، اسید نیتریک غلیظ برای خارج کردن اسید آسکوربیک به محلول افزود. در نهایت، محلول اشباع با اسید نیتریک ۸ M به ستون کروماتوگرافی که رزین‌های مبادله‌کننده-ی یون نیز با اسید نیتریک ۸M اشباع شده‌اند، منتقل شد.

۱۰.۲ رسوب‌دهی الکترولیتی برای تهیه‌ی چشمه‌های U و Th

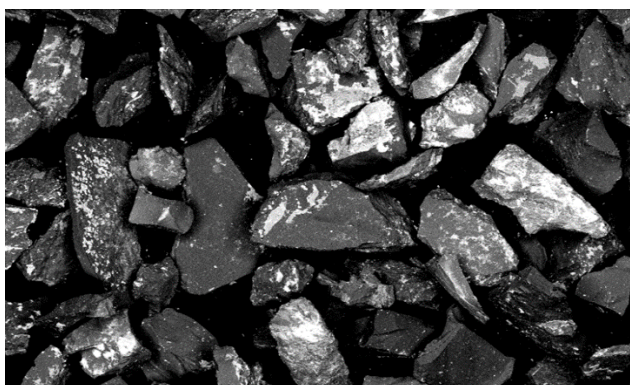
دقت اصلی و اولیه در تهیه‌ی چشمه‌های آلفا از ایزوتوپ‌های U و Th، پوشیدن رخ جلوی آن با نازک‌ترین و یکنواخت‌ترین لایه‌ی ممکن مادی از اتم‌های پرتوزا است در غیر این صورت به خاطر جذب بالای ذرات آلفا در چشمه‌ی انتخابی، خطای قابل توجهی در طیف آلفا خواهیم داشت. بنابراین، از روش آبکاری مولکولی^(۱۸) برای تهیه‌ی چشمه‌ها استفاده شد. آبکاری مولکولی U در محیط ایزوپروپیل الکل در پتانسیل ۴۰۰ تا ۶۰۰ V با عبور جریان ۲۵ تا ۳۰ mA [۱۹، ۲۰] و آبکاری مولکولی Th در محیط دی متیل سولفوکسید در پتانسیل ۱۰۰V و جریان ۱۰ تا ۱۵mA انجام شد [۲۱]. در هر دو آبکاری، جنس آند از پلاتین و جنس کاتد (چشمه) که اتم‌های پرتوزای احیا روی آن نشانده می‌شوند، از نیکل انتخاب شد. هر دو رسوب‌دهی به مدت ۶۰ تا ۹۰ min در درون سلول تفلنی با حجم ۵ ml انجام شد.



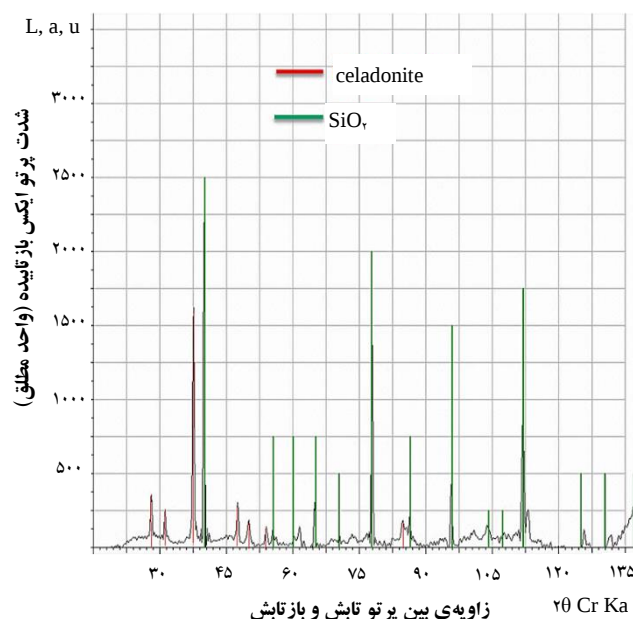
نقطه ای انتخابی در نمونه استفاده شده است. ترکیب شیمیایی نمونه از روی طیف پرتوهای ایکس معین شده اند.

۴.۳ آنالیز چشمه ی اورانیم

برای بررسی سنگ معدن به صورت ماتریکس پسماند پرتوزا، نخست باید نسبت پرتوزایی ایزوتوپی هسته های پرتوزای موجود در ترکیب سنگ معدن را به دست آورد. تعیین این نسبت، اطلاعات مفیدی در مورد رفتار سنگ معدن ها، کانی های مربوطه و رفتار هسته ی پرتوزا را طی تاریخ زمین شناسی نشان می دهد که ممکن است تحت تأثیر عوامل طبیعی شیمیایی و فیزیکی و بیوشیمی قرار گرفته باشند. شکل ۴، آلفا- طیف ایزوتوپ های اورانیم در سنگ معدن wiikit را نشان می دهد. به خاطر تفاوت در انرژی ذرات آلفای خارج شده از ایزوتوپ های اورانیم، طیف جداگانه ای با آشکارساز برای هر ایزوتوپ ثبت می شود. همان- طور که از طیف مشاهده می شود، تا این جا وجود سری های طبیعی ^{238}U و ^{235}U در wiikit اثبات می شود. در جدول ۲، نسبت پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ محاسبه شده با استفاده از آلفا- طیف نشان داده شده است.



شکل ۲. تصویر SEM از سطح نمونه با قدرت تفکیک ۱۰۰ میکرون.



شکل ۱. طیف آنالیز بلورشناسی پرتو ایکس.

۲.۲ آنالیز SEM با قدرت تفکیک ۱۰۰ میکرون

شکل ۲، نتیجه ی اسکن SEM را نشان می دهد که بر پایه ی الکترون های منعکس شده از سطح نمونه با قدرت تفکیک ۱۰۰ میکرون انجام شده است. همان طور که مشاهده می شود، سنگ معدن مورد آزمایش دارای فازهای مختلف با ترکیب های متفاوت است. این فازها برحسب میزان روشن و تیره بودن در شکل از هم متمایز می شوند. جایی که در شکل روشن تر دیده می شود، حاکی از وجود مقادیر زیادی الکترون است. با توجه به این که عنصر اورانیم بیشترین الکترون را در بین عناصر طبیعی دارد، بنابراین فازهای روشن، مربوط به این عنصر است. هم چنین با

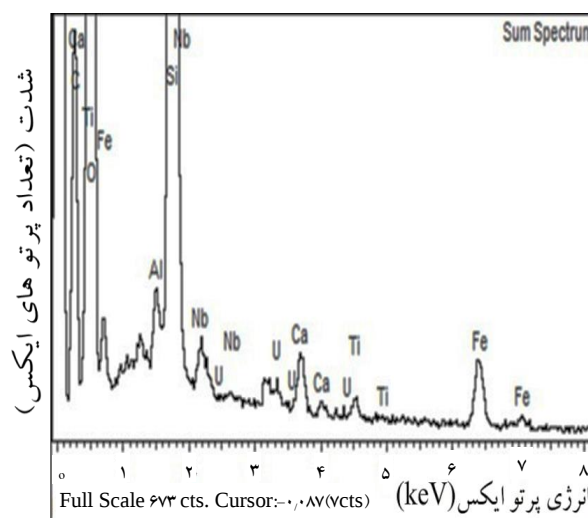
می توان نتیجه گرفت که کانی های شامل اورانیم طی تاریخ زمین شناسی، فرم بلورین خود را از دست داده و به فرم آمورف تغییر شکل داده اند زیرا در طیف بلورشناسی پرتو ایکس هیچ کانی شامل اورانیم مشاهده نشد. در شکل ۳، هم زمان طیف بینی اشعه ی ایکس برای سطح اسکن شده ی نمونه نشان داده شده است.

۳.۳ تعیین ترکیب شیمیایی wiikit

جدول ۱، ترکیب شیمیایی wiikit و نتیجه ی آنالیز میکروپروب الکترونی را نشان می دهد. در این آنالیز از باریکه ی بسیار متمرکزی از الکترون برای برانگیختن و گسیل پرتوهای ایکس از



شکل ۳. طیف‌بینی اشعه‌ی ایکس شکل ۲.

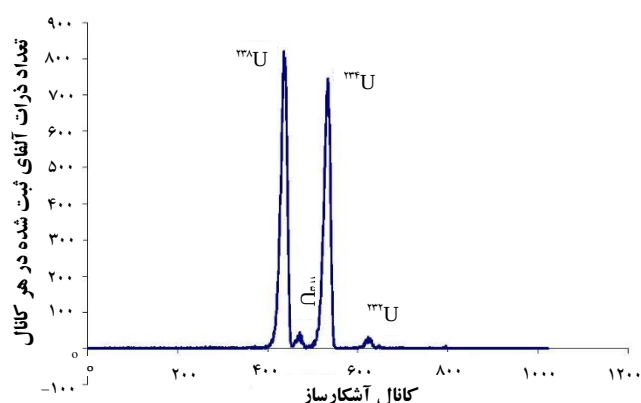


جدول ۱. آنالیز میکروپروب الکترونی

عنصر	O	C	Mg	Al	Si	Cl	Ca	Ti	Mn
درصد	۳۸٫۱۸	۰٫۳۴	۱٫۵۴	۳٫۴۴	۱۲٫۷۲	۰٫۱۵	۰٫۲۴	۷٫۳۹	۰٫۱۷

عنصر	Fe	Co	Y	Nb	Yb	Ta	Th	U
درصد	۷٫۳۴	۰٫۴۹	۴٫۷۰	۹٫۲۰	۱٫۱۳	۷٫۳۰	۱٫۶۵	۴٫۱۲

باید برابر یک باشد، در حالی که نسبت به دست آمده از آزمایش فوق خیلی کم‌تر از یک است. از این کسری قابل توجه در نسبت پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ استنباط می‌شود که اورانیم موجود در سنگ معدن wiikit تحت تأثیر آب‌های طبیعی و سایر عوامل طبیعی شیمیایی، فیزیکی، بیوشیمی از سنگ معدن wiikit فروشویی شده است. با استفاده از نیمه‌عمر ^{234}U و مقدار دقیق $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ می‌توان پیش‌بینی محاسباتی کرد که wiikit در کم‌تر از ۱٫۵ میلیارد سال پیش تحت تأثیر این عوامل طبیعی قرار نگرفته است. از آن‌جا که wiikit نسبت به عوامل طبیعی مقاوم نیست نتیجه می‌شود که سنتر wiikit به صورت ماتریکس پسماند پرتوزایی HLW تولید شده در راکتورهای هسته‌ای مانند ^{235}U ،



شکل ۴. آلفا- طیف ایزوتوپ‌های اورانیم.

جدول ۲. نسبت پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ و بازدهی آزمایش

شماره‌ی آزمایش	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ (Bq Bq ⁻¹)	بازدهی آزمایش $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
۱	0.935 ± 0.020	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ در سنگ معدن wiikit
۲	0.927 ± 0.021	پسماند پرتوزا، اکسیدهای خنثی مثل SiO_2 و Fe_2O_3
۳	0.930 ± 0.019	پسماند پرتوزا، اکسیدهای خنثی مثل Al_2O_3
۴	0.925 ± 0.016	پسماند پرتوزا، اکسیدهای خنثی مثل Al_2O_3
۵	0.929 ± 0.020	پسماند پرتوزا، اکسیدهای خنثی مثل Al_2O_3
مقدار میانگین	0.929 ± 0.019	پسماند پرتوزا، اکسیدهای خنثی مثل Al_2O_3

سنگین مناسب نیست. با توجه به پژوهش‌های انجام شده [۲۴-۲۲] پیشنهاد می‌شود در صورت سنتر wiikit به صورت ماتریکس پسماند پرتوزا، اکسیدهای خنثی مثل SiO_2 و Fe_2O_3 به ته‌کب wiikit اضافه شود. زیرا با انجام پدیده‌ی جانشینی ایزومورفی، اتم‌های حاصل از فروپاشی، جانشین فلز اکسیدهای ذکر شده می‌شود و از طرف دیگر به علت پدیده‌ی وارد شدن

در سری اورانیم، ^{234}U یکی از هسته‌های دختر پس‌زده‌ی ^{238}U است. طبق قانون تعادل پایدار، نسبت پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$



شماره ی آزمایش	$^{232}\text{Th}/^{238}\text{Th}$ (Bq Bq ⁻¹)	بازده ی تخلیص اور
۱	0.989 ± 0.020	۵۲
۲	0.980 ± 0.021	۶۸
۳	0.981 ± 0.019	۵۳
مقدار میانگین	0.984 ± 0.020	۵۶

۴. نتیجه گیری

- با استفاده از روش های بلورشناسی ایکس و روش های SEM و EMP اطلاعات مفیدی در تشخیص بلوری و آمورف بودن مواد معدنی و تعیین ترکیب شیمیایی نمونه ها می توان به دست آورد.
- با تعیین دقیق نسبت پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ و با استفاده از نیمه عمر ^{234}U این نتیجه حاصل شد که wiikit، حدود ۱/۵ میلیارد سال پیش تحت تأثیر عوامل هیدروترمال قرار گرفته است.
- تجزیه و تحلیل داده های حاصل از تخلیص اورانیم و توریم نشان داد که سرعت فروشویی اورانیم بیش تر از توریم است.
- کسری قابل توجه در نسبت پرتوزایی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ (نقض تعادل پایدار) در wiikit نشان داد که ^{234}U طی تاریخ زمین شناسی تحت تأثیر عوامل طبیعی به شدت فروشویی، وارد طبیعت شده است.
- مدلیزه شدن سنگ معدن wiikit به صورت ماتریکس رادیوایزوتوپ های سنگین موجود در پسماند پرتوزای HLW، به دلیل قابلیت کم این نوع wiikit در مقابل فروشویی تنها با در نظر گرفتن پارامترهای دیگر از جمله افزودن اکسیدهای خنثی، نتیجه ی مطلوبی خواهد داشت.

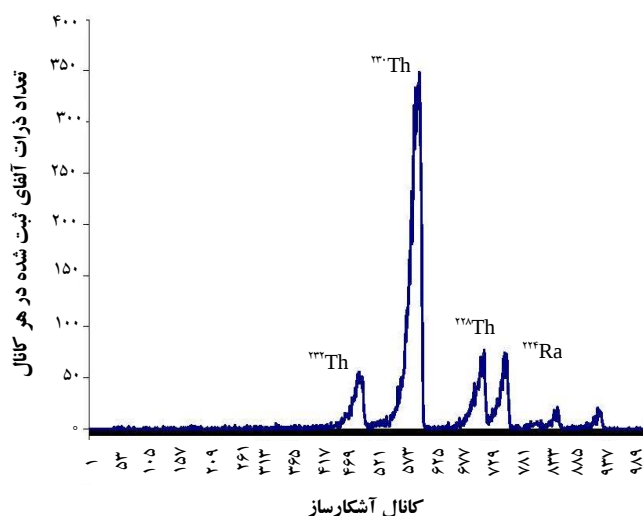
پی نوشت ها

1. Metamict

اتم پس زده به داخل شبکه و یا قرار گرفتن در سطح شبکه ی چنین اکسیدهایی، احتمال ورود آن ها به طبیعت کاهش می یابد.

۵.۳. آنالیز چشمه ی توریم

شکل ۵، آلفا- طیف ایزوتوپ های توریم و جدول ۳ نسبت پرتوزایی $^{232}\text{Th}/^{238}\text{Th}$ محاسبه شده با استفاده از طیف را نشان می دهد. با توجه به وجود ایزوتوپ ^{232}Th نتیجه می شود که wiikit، هر سه سری پرتوزای طبیعی را همراه دارد. به دلیل نزدیک بودن نسبت پرتوزایی $^{232}\text{Th}/^{238}\text{Th}$ به عدد یک (برخلاف نسبت $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$) و میانگین خطای ۰/۰۲۰، دو فرضیه مطرح می شود؛ ۱- اگر $0.984 \pm 0.020 = 1$ در نظر گرفته شود، در آن صورت تعادل پایدار در سری ^{232}Th برقرار است، یعنی ایزوتوپ های توریم طی تاریخ زمین شناسی نسبت به شرایط و عوامل طبیعی شیمیایی و فیزیکی و بیوشیمی مقاوم بوده اند و عمل فروشویی انجام نگرفته است؛ ۲- اگر $0.984 - 0.020 = 0.964$ در نظر گرفته شود، در این حالت تعادل برقرار نیست. یعنی توریم نیز مثل اورانیم تحت تأثیر عوامل طبیعی فروشویی شده است. از طرفی با توجه به فرض دوم و از آن جا که توریم عمدتاً در pH های کم تر از ۳ مورد فروشویی قرار می گیرد، این نتیجه حاصل می شود که سنگ معدن wiikit در شرایط اسیدی خفیف فروشویی شده است، و مدل سازی آن به صورت ماتریکس پسماند پرتوزا، به دلیل عدم مقاومت آن نسبت به عوامل طبیعی، تنها با در نظر گرفتن پارامترهای دیگر مثل افزودن اکسیدهای خنثی اثر مطلوب خواهد داشت.



شکل ۵. طیف نگاری آلفای ایزوتوپ های توریم.

جدول ۳. نسبت پرتوزایی $^{232}\text{Th}/^{238}\text{Th}$ و بازده ی آزمایش



2. Metamictization
3. Cherdynstev
4. Chalov
5. Fractionation
6. Starik
7. Capillarity
8. Leaching
9. Recoil Atom
10. High Level Waste
11. Tantalum-Niobate
12. Samarskite
13. Saint Petersburg State University
14. Tracer
15. X-Ray Crystallography
16. Bragg Diffraction
17. Electron Cun
18. Molecular Plating
19. Surface Barrier
20. Quartz
21. Celadonite

مراجع

[1] H. Muller, Metamict minerals as model substances for radwaste, Conference on the treatment and containment of radioactive waste and its disposal in environments, Cape Town, South Africa, 7-12 September (1986).

[2] B.B. Чердынцев. Уран-234. М., Атомиздат, (1969). (V.V. Cherdynstev, "Uranium-234", Atomizdat (1969)) (in Russian).

[3] П.И. Чалов. Изотопное фракционирование природного урана. Фрунзе, (1967). (P.I. Chalov, "Isotopic fractionation of natural uranium, Frunze (1967) (in Russian).

[4] J.K. Osmond, J.B. Cowart, Natural uranium and thorium series disequilibrium: New approaches to geochemical problems, *Nuclear Sci. Appl.* **1** (1982) 303–352.

[5] N. Ivanovich, R.S. Harmon, eds., Uranium Series Disequilibrium. Application to Environmental Problems, Clarendon Press, Oxford (1982).

[6] И.Е. Старик, Форма нахождения и условия первичной миграции радиоэлементов в природе, *Успехи химии.* **12** (1943) 287. (I.E. Starik, Forma nakhozhdeniya i usloviya

pervichnoy migratsii radioelementov v prirode, *Uspekhi Khimii.* **12** (1943) 287 (in Russian).

[7] И.Е. Старик и др. Труды V сессии комиссии по определению абсолютного возраста геологических формаций. М. *Акад. Наук СССР.* (1958). (I.E. Starik i dr. Trudy V sessii komissii po opredeleniyu absolyutnogo vozrasta geologicheskikh formatsiy. M. *Akad. Nauk SSSR.* (1958) (in Russian).

[8] И.Е. Старик, К.Ф. Лазарев, О форме нахождения атомов урана и тория в радиоактивных минералах, *Радиохимия.* **1** (1959) 60–65. (I.E. Starik, K.F. Lazarev, On the form of uranium and thorium atoms in radioactive minerals, *Radiokhimiya.* **1** (1959) 60–65 (in Russian).

[9] И.Е. Старик, Н.И. Полевая, Выщелачиваемость ThX и RdTh из минералов, *Труды Радиового института Акад. Наук СССР.* **6** (1957) 104–118. (I.E. Starik, N.I. Polevaya, Viishelachivaemost ThX i RdTh iz mineralov, *Trudy radiyevogo instituta Akad. Nauk SSSR,* **6** (1957) 104–118. (in Russian).



- [10] A. Kobashi, T. Tominaga, Study on physicochemical states of uranium, thorium, and radium isotopes in Some Radioactive minerals by the leaching method, *Radiochim. Acta.* **30** (1982) 205–212.
- [11] G.R. Lumpkin, E.M. Foltyn, R.C Ewing, Thermal recrystallization of alpha-recoil damaged minerals of the pyrochlore structure type, *J. of Nuclear Materials.* **139** (1986) 113–120.
- [12] G.R. Lumpkin, R.C. Ewing, Transmission electron microscopy of alpha-decay damage and alteration of betafite, *45th Annual Meeting of the Electron Microscopy Society of America.* (1987) 376–377.
- [13] K.A. Richardson, Thorium, uranium, and potassium in the Conway granite. New Hampshire, U.S.A. *Natural Radiation Environment* (J. A. S. Adams and W.M. Lewder, eds.) Chicago: University of Chicago Press. (1963) 39–50.
- [14] A. Kobashi, J. Sato, N. Saito, Radioactive disequilibrium with uranium, thorium and radium isotopes leached from euxenite, *Radiochim. Acta.* **26** (1979) 107–111.
- [15] М.В. Соболева, И.А. Пудовкина, Минералы урана. М. (1957) 332–340 (M.V. Coboleva, I.A. Pudovkina, Uranium minerals. M. (1957) 332–340 (in Russian).
- [16] Минералогическая энциклопедия. Под ред. К. Фрея. Л., «Недра», 489 (1985). (Encyclopedia of minerals. Edited by K. Freya. L., «Nedra», 489 (1985) (in Russian).
- [17] A.E. Ringwood, Disposal of high-level nuclear Wastes: A geological perspective, *Mineral Mag.* **49** (1985) 159.
- [18] О. Самуэльсон, Ионнообменные разделения в аналитической химии, (1966) 288–301 (O. Samuelson, Ion exchange separation in analytical chemistry, (1966) 288–301 (in Russian).
- [19] W. Parker, R. Falk, Molecular plating: a method for the electrolytic formation of thin inorganic films, *Nucl. Instrum. Meth.* **16** (1962) 355–359.
- [20] W. Parker, H. Bildstein, N. Getoff, Quantitative Electrodeposition of Thorium and Uranium, *Nature.* **200** (1963) 457–458.
- [21] M. Weber, N. Trautmann, H. Menke, Herstellung duenner Praeparate durch Molecularplating, Inst. für Kernchemie der Univ. Mainz Jahresbericht 1974, *Mainz.* (1975) 118–121.
- [22] P.J. Shirvington, Fixation of radionuclides in the ²³⁸U decay series in the vicinity of mineralized zones: the Austatom Uranium Prospect, Northern Territory, Australia, *Geochim. Cosmochim. Acta.* **47** (1983) 403–412.
- [23] Z.Z. Sheng, P.K. Kuroda, Isotopic fractionation of uranium: extremely high enrichments of ²³⁴U in the acid-residues of a



Colorado carnotite, *Radiochim. Acta.* **39** (1986) 131–138.

[24] Z.Z. Sheng, P.K. Kuroda, Further studies on the separation of acid residues with extremely high $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios from a Colorado Carnotite, *Radiochim. Acta.* **40** (1986) 95–102.