



علوم محیطی

علوم محیطی سال هشتم، شماره اول، پاییز ۱۳۸۹  
ENVIRONMENTAL SCIENCES Vol.8, No.1, Autumn 2011

۳۹-۵۰

## انتخاب مناسب‌ترین روش نمونه‌سازی در اندازه‌گیری میزان ایزوتوپ‌های اورانیوم در نمونه‌های خاک، به روش طیف‌نگاری آلفا

فاطمه شایان پویا، فریدون عباسی دوانی\*، محمدصادق ناصری

گروه کاربرد پرتوها، دانشکده مهندسی هسته‌ای، دانشگاه شهید بهشتی تهران، ایران

### Choosing the Most Suitable Sample Preparation Method for Measuring Uranium Isotopes in Soil Samples by Alpha Spectroscopy

Fatemeh Shayan Pooya, Fereydoon Abbasi Davani\*,  
Mohammad Sadegh Naseri  
Department of Radiation Application Group, Faculty of Nuclear  
Engineering, Shahid Beheshti University.

#### Abstract

The sampling process in alpha spectroscopy for measuring the activity and concentration of uranium isotopes is a very sensitive one due to the short range of alpha particles in special compounds of uranium in soil and the close energy peaks of the alpha particles emitted from its isotopes. In this research, the effect of certain parameters such as the quality of acid dissolution, the presence of a tracer in the sample, pH, electro deposition, spectroscopic electronics and so on were investigated in sampling and spectroscopy, according to ASTM. The average yield of  $(64.4 \pm 15.7) \%$  was achieved after eight times of sampling by incorporating IAEA, ASTM and Talvite electro deposition methods. A BU-014-300-500 PIPS detector was utilized in this study.

**Keywords:** Uranium, alpha spectroscopy, ASTM, Talvite electrodepositing, chemical yield.

#### چکیده

فرآیند نمونه‌سازی در طیف‌نگاری آلفا، برای اندازه‌گیری غلظت‌های جرمی و اکتیویته ایزوتوپ‌های اورانیوم، با توجه به برد کوتاه ذرات آلفا، ترکیبات خاص اورانیوم در خاک و محدوده نزدیک انرژی ذرات آلفای گسیل شده از ایزوتوپ‌های آن، بسیار حساس می‌باشد. در این تحقیق، با مبنای قرارداد روش استاندارد ASTM، اثر برخی پارامترها از جمله کیفیت انحلال اسیدی، pH، روند الکترونشانی در نمونه‌سازی و سامانه طیف‌نگاری بررسی شده و با استفاده از روش ترکیبی آژانس انرژی اتمی، ASTM و الکترونشانی Talvite و استفاده از آشکارساز PIPS BU-014-300-500، پس از ۸ بار آزمایش نمونه‌سازی، راندمان شیمیایی متوسط  $(64.4 \pm 15.7) \%$  به دست آمد.

کلید واژه‌ها: اورانیوم، طیف‌نگاری آلفا، ASTM، روش الکترونشانی Talvite، راندمان شیمیایی.

\* Corresponding author. E-mail Address: fabbasi@sbu.ac.ir

## مقدمه

وجود اورانیوم در خاک، به عنوان عنصری با چندین ایزوتوپ طبیعی گسیلنده آلفا، در مطالعات زیست‌محیطی اهمیت بسیاری دارد. حضور این عنصر ناشی از زنجیره‌های طبیعی، بارش‌های هسته‌ای، وجود راکتورهای تحقیقاتی در محل، استفاده از سلاح‌های نظامی هسته‌ای و غیره است (AEOI, 1380).

روش‌های زیادی برای آنالیز ایزوتوپ‌های اورانیوم در نمونه‌های زیست‌محیطی بکار رفته است که شامل روش طیف‌سنجی جرمی پلاسمای جفت‌شده القایی<sup>(۱)</sup>، طیف‌سنجی جرمی یونیزاسیون گرمایی<sup>(۲)</sup>، آنالیز فعال‌سازی نوترونی<sup>(۳)</sup>، طیف‌نگاری آلفا و غیره می‌باشند (Miller, 2006).

از میان روش‌های مذکور، طیف‌نگاری آلفا و ICP-MS (برای اندازه‌گیری غلظت‌های بسیار کم)، روش‌های متداولی هستند که هم‌زمان با اندازه‌گیری ایزوتوپ‌های اورانیوم، قادر به آشکارسازی مقادیر کم و پایین اورانیوم (کمتر از ng/l) هستند. با وجود این، روش‌های گسترده-ای برای تهیه نمونه، جهت بدست آوردن نتایج دقیق، لازم است. روش طیف‌نگاری آلفا کم هزینه و با حساسیت و دقت بالا بوده و می‌تواند بطور گسترده‌ای در آنالیز ایزوتوپی استفاده شود (Jia, 2001).

پژوهش‌های بسیاری در زمینه تعیین غلظت‌های ایزوتوپی اورانیوم، در کشورهای مختلف جهان انجام گرفته است که از آن میان می‌توان به تحقیقی در کشور ژاپن در پی بمباران اتمی هیروشیما (Takada, 1983)، بررسی میزان اورانیوم تهی شده در خاک صربستان در پی جنگ بالکان (McLaughlin, 2003)، در خاک کشور ایتالیا (Jia, 2001) و کشور ویتنام (Quang Huy, 2006) با هدف سنجش‌های زیست‌محیطی، در کشور آرژانتین به جهت بررسی روش کروماتوگرافی استخراج در تهیه

چشمه (Serdeiro, 2004)، در کشور بریتانیا با هدف آزمایش سلاح هسته‌ای (Oliver, 2007) اشاره کرد. مرحله حساس نمونه‌سازی آلفا در تحقیقات ذکر شده، به علت حصول بهترین قدرت تفکیک طیفی، اغلب الکترون‌شانی بوده است (Elbaradei, 2003) که در آن، پس از انجام مراحل تهیه نمونه، در مرحله تهیه چشمه یون‌های مثبت اورانیوم با برقراری اختلاف پتانسیل در سلول الکترون‌شانی، بر روی قرص کاتد می‌نشینند.

با توجه به حساسیت مراحل طیف‌نگاری آلفا و خصوصاً فرآیند نمونه‌سازی در آن، در این کار پژوهشی سعی شده است تا با تبعیت از روش استاندارد<sup>(۴)</sup> ASTM (ASTM, 2000) با مراحل انحلال اسیدی، هم‌رسوبی، استخراج اتری، ستون تبادل آنیونی و تهیه چشمه به روش الکترون‌شانی، با اعمال تغییراتی هر چند کوچک در فرآیند نمونه‌سازی و طیف‌نگاری، بالاترین راندمان شیمیایی و سازگارترین غلظت‌های ایزوتوپی اورانیوم با مقادیر طبیعی موجود در خاک، حاصل شود (Shayan pooya, 2010).

## مواد و روش‌ها

در کلیه روش‌های نمونه‌سازی، چشمه آلفا به روش الکترون‌شانی تهیه و از ایزوتوپ<sup>۲۳۵</sup>U به عنوان ردیاب استفاده شده است و در تمام موارد، به جای رزین Biorad مندرج در استاندارد ASTM، رزین Dowex شرکت آلمانی Merck، مورد استفاده قرار گرفته است. هم‌چنین در هر دو روش، از ۴ ویال ۵۰ میلی‌لیتری سانتی‌فیوژ، استفاده شده در حالی که در پروتکل ASTM، از ۲ ویال ۲۵۰ میلی‌لیتری استفاده شده است.

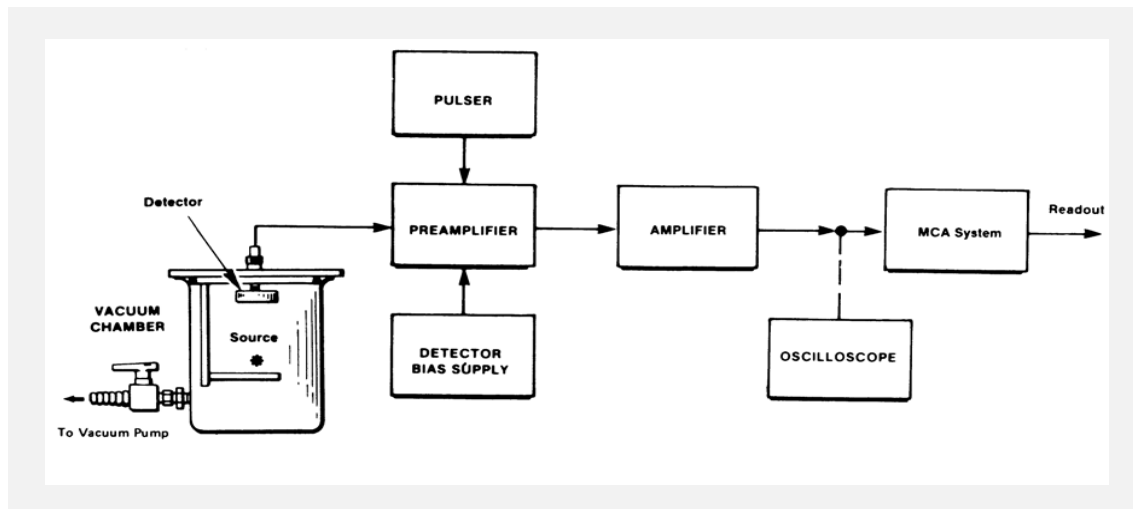
نمونه‌های سطحی به روش لایه‌ای برداشته شده و برای نمونه‌سازی استفاده شده‌اند (Osuli, 2009). نمونه‌سازی به دو روش صورت گرفته است. یکی

روش انحلال اسیدی با ۲ اسید (Balcerzak, 2002) و دیگری روش انحلال اسیدی با ۱ اسید است و آن‌ها را به ترتیب روش ۱ و روش ۲ نام‌گذاری می‌کنیم. با شرایط یکسان نمونه‌سازی و طیف‌نگاری، مرحله انحلال اسیدی در روش ۱ به این صورت بود که: نمونه پس از سرد شدن به بشر تفلونی انتقال داده شده و با ۶۰ میلی‌لیتر اسید نیتریک غلیظ و ۳۶ میلی‌لیتر اسید هیدروفلوئوریک ۴۰٪، به مدت ۱ ساعت حرارت داده شد و این مرحله بار دیگر نیز تکرار گردید. ۲۰ میلی‌لیتر اسید کلریدریک غلیظ به نمونه افزوده و با اعمال حرارت نمونه را تا حجم ۲۰ میلی‌لیتر کاهش دادیم. پس از آن ۰/۵ گرم اسیدبوریک به آن افزوده و مجدداً حرارت دادیم تا تمام نمک‌های نمونه، در محلول حل شود. نمونه پس از سرد شدن به دو لوله سانتریفیوژ منتقل و به مدت ۵ دقیقه با ۲۰۰۰ دور در دقیقه سانتریفیوژ کردیم. فاز آبی را به لوله‌های دیگری انتقال دادیم. رسوب بدست آمده را با ۱۰ میلی‌لیتر اسید کلریدریک ۱ مولار شستشو دادیم. در روش ۲، مرحله شستشوی اسیدی با اسید نیتریک غلیظ جایگزین مرحله انحلال اسیدی با اسید نیتریک و اسید فلئوریک در روش ۱ گردید. در مرحله هم‌رسوبی فاز آبی را به لوله‌های دیگری انتقال دادیم. رسوب بدست آمده را با ۱۰ میلی‌لیتر اسید کلریدریک ۱ مولار شستشو دادیم. پس از انتقال به لوله‌ها، pH محیط توسط آمونیاک، به حدود ۹-۱۰ رسانده شد. در انتها ۵ میلی‌لیتر آمونیاک اضافی به آن افزوده و دوباره سانتریفیوژ کردیم و محلولی را که در بالای لوله سانتریفیوژ قرار گرفته بود، دور ریختیم و رسوب را در حداقل حجم اسید کلریدریک غلیظ حل کرده و حجم آن را با افزودن اسید کلریدریک ۸ مولار، به ۵۰ میلی‌لیتر رساندیم. در مرحله استخراج اتری نمونه را به قیف<sup>(۵)</sup> منتقل کرده و ۶۰ میلی‌لیتر اتر به آن افزوده و به مدت ۲ دقیقه تکان دادیم تا ناخالصی آهن به فاز آلی منتقل شود. فاز آلی جدا شده و مجدداً این مرحله را تا

زمانی که آهن در نمونه نمانده باشد، ادامه دادیم. در مراحل بعدی ۵ میلی‌لیتر اسید کلریدریک غلیظ به محلول اضافه شد. نمونه را پس از استخراج، به مدت ۱۵ دقیقه جوشانده و در مرحله گذر از ستون تبادل آنیونی آن را به ستونی که از قبل با ۴ برابر حجمش توسط ۸۰ میلی‌لیتر اسید کلریدریک ۱ مولار احیا شده بود، منتقل و با سرعت ۲ میلی‌لیتر بر دقیقه از ستون عبور دادیم. ستون را با ۶ برابر حجمش از اسید کلریدریک ۶ مولار حاوی ۲ میلی‌لیتر اسید هیدرویدریک برای حذف آهن و پلوتونیوم، شستشو داده و برای بار دیگر، توسط ۲ برابر حجمش اسید کلریدریک ۶ مولار، شستیم. در انتها، ستون را با ۶ برابر حجمش اسید کلریدریک ۱ مولار شسته و نمونه را در یک بشر تمیز جمع‌آوری کردیم. برای انجام مرحله الکترونشانی، نمونه را تا حجم ۲۰ میلی‌لیتر تبخیر کرده و به آن ۵ میلی‌لیتر اسید نیتریک غلیظ افزودیم و تا نزدیک خشک شدن حرارت دادیم. سپس ۲ میلی‌لیتر سولفات سدیم در اسید سولفوریک ۱ مولار و ۵ میلی‌لیتر اسید نیتریک غلیظ به آن افزوده و باز هم تا رسیدن به مرحله خشک شدن حرارت دادیم. ۵ میلی‌لیتر کترولیت به نمونه افزوده و مجدداً حرارت دادیم. نمونه را به سلول الکترونشانی انتقال و بشر را توسط محلول کترولیت، چند مرتبه شستشو دادیم و به آن ۴-۳ قطره معرف تیمول بلو<sup>(۶)</sup> افزودیم و pH آن را، با آمونیاک و اسید سولفوریک ۱/۸ مولار، به ۲ تا ۲/۳ رساندیم و الکترونشانی را به مدت ۱ ساعت در جریان ۱/۲ آمپر انجام دادیم. سپس ۱ میلی‌لیتر آمونیاک غلیظ به سلول اضافه کرده و الکترونشانی را به مدت ۱ دقیقه ادامه دادیم. آند را از سلول خارج کرده و جریان را قطع کردیم و سلول را با آمونیاک ۰/۱۵ مولار سه مرتبه شستشو دادیم. در ادامه پولک را از سلول خارج کرده و با اتیل الکل بازی و آب مقطر شستشو دادیم. مدت نمونه‌سازی در روش ۱، ۲۸ ساعت و در روش

نتایج آن در جدول (۱)، از لحاظ بالا بودن راندمان شیمیایی و غلظت اکتیویته ایزوتوپ‌های اورانیوم و نسبت مقایسه شده است.

۲، ۲۲ ساعت به طول انجامید. سپس با تجهیز سیستم طیف نگاری آلفا مطابق شکل (۱)، طیف آلفای حاصل از نمونه‌های تهیه شده در این دو روش تحلیل شده و



شکل ۱- سیستم طیف نگاری آلفا (ORTEC, 1984)

جدول ۱- غلظت‌های اکتیویته ایزوتوپ‌های اورانیوم و نسبت غلظت اکتیویته  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  و بهره شیمیایی روش‌های (ا و ب)

سیستم	روش	نمونه	$^{234}\text{U}$ (Bq/g)	$^{235}\text{U}$ (Bq/g)	$^{238}\text{U}$ (Bq/g)	نسبت اکتیویته $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	Y (%)
BU-35-2000-500	روش اول	C1	$0.030 \pm 0.003$	غ.ق.آ*	$0.035 \pm 0.003$	$0.86 \pm 0.13$	$27.8 \pm 2.6$
		C2	$0.023 \pm 0.016$	غ.ق.آ*	$0.02 \pm 0.02$	$0.9 \pm 1.1$	$39 \pm 28$
		C3	$0.030 \pm 0.004$	غ.ق.آ*	$0.036 \pm 0.004$	$0.84 \pm 0.15$	$17.1 \pm 2.2$
		C4	$0.025 \pm 0.003$	غ.ق.آ*	$0.027 \pm 0.003$	$0.92 \pm 0.17$	$33.1 \pm 3.6$
	روش دوم	H1	$0.037 \pm 0.003$	غ.ق.آ*	$0.019 \pm 0.002$	$1.9 \pm 0.2$	$52.0 \pm 4.2$
		H2	$0.019 \pm 0.002$	غ.ق.آ*	$0.011 \pm 0.001$	$1.7 \pm 0.2$	$23.6 \pm 1.9$
		H3	$0.099 \pm 0.009$	غ.ق.آ*	$0.053 \pm 0.005$	$1.85 \pm 0.22$	$54.9 \pm 4.2$
		H4	$0.071 \pm 0.003$	غ.ق.آ*	$0.038 \pm 0.003$	$1.86 \pm 0.20$	$59.9 \pm 4.2$
BU-50-3000-500	روش اول	C1	$0.10 \pm 0.02$	غ.ق.آ*	$0.091 \pm 0.017$	$0.88 \pm 0.23$	$8.3 \pm 1.4$
		C2	$0.020 \pm 0.001$	غ.ق.آ*	$0.020 \pm 0.015$	$1.0 \pm 0.2$	$59.2 \pm 7.2$
		C3	$0.038 \pm 0.008$	غ.ق.آ*	$0.078 \pm 0.003$	$0.48 \pm 0.14$	$17.3 \pm 3.2$
		C4	$0.025 \pm 0.005$	غ.ق.آ*	$0.014 \pm 0.003$	$1.84 \pm 0.5$	$17.4 \pm 3.2$
	روش دوم	H1	$0.003 \pm 0.003$	غ.ق.آ*	$0.018 \pm 0.002$	$0.86 \pm 0.12$	$48.6 \pm 4.4$
		H2	$0.023 \pm 0.002$	غ.ق.آ*	$0.012 \pm 0.001$	$1.88 \pm 0.22$	$18.8 \pm 1.7$
		H3	$0.087 \pm 0.008$	غ.ق.آ*	$0.048 \pm 0.004$	$2.0 \pm 0.13$	$52.69 \pm 4.1$
		H4	$0.009 \pm 0.001$	غ.ق.آ*	$0.049 \pm 0.005$	$1.80 \pm 0.11$	$50.7 \pm 5.0$

\* غیر قابل آشکارسازی

طیف‌نگاری و حضور قله انرژی آلفای ناشی از  $^{235}\text{U}$  در طیف، روش اول با بکارگیری یک سیستم آشکارسازی با قدرت تفکیک  $14\text{ keV}$  انجام شد. از این مرحله به بعد، آشکارساز  $^{60}\text{Co}$  PIPS از شرکت ارتک<sup>(۸)</sup> مورد استفاده قرار گرفته است. در جدول (۲) و (۳)، غلظت‌ها و نسبت‌های ایزوتوپی را در محدوده طبیعی به دست دادند که این بار شامل ایزوتوپ  $^{235}\text{U}$  نیز بود اما متوسط راندمان شیمیایی،  $(23/8 \pm 6/1)\%$  بوده و بهبود چندانی نداشت.

متوسط راندمان شیمیایی برای روش ۱،  $(27/5 \pm 6/4)\%$  و برای روش ۲،  $(45/2 \pm 3/7)\%$  می‌باشد. با این حال روش ۱ از لحاظ مقادیر غلظت اکتیویته ایزوتوپ‌های  $^{234}\text{U}$  و  $^{238}\text{U}$  و به خصوص نسبت‌های اکتیویته آن‌ها، نتایج در محدوده طبیعی را نشان می‌دهد. نسبت اکتیویته  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  در اورانیوم طبیعی بین ۰/۵ تا ۱/۲ و در مورد  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ، در حدود ۰/۰۴۶ می‌باشد [Roberto, 2004]. بنابراین برای بهبود قدرت تفکیک

جدول ۲- غلظت‌های ایزوتوپی اکتیویته و بهره بدست آمده در بهبود آشکارساز روش اول

نمونه	$^{238}\text{U}$ (Bq/gr)	$^{235}\text{U}$ (Bq/gr)	$^{234}\text{U}$ (Bq/gr)	Y(%)	نسبت اکتیویته $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	نسبت اکتیویته $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
۱C	$0.02 \pm 0.04$	$0.0004 \pm 0.0011$	$0.01 \pm 0.03$	$7/5 \pm 29/9$	$0.02 \pm 0.03$	$0.5 \pm 0.8$
۲C	$0.04 \pm 0.04$	$0.0004 \pm 0.0012$	$0.02 \pm 0.04$	$5/8 \pm 22/5$	$0.03 \pm 0.03$	$1/0 \pm 0.9$
۳C	$0.02 \pm 0.04$	$0.0004 \pm 0.0007$	$0.01 \pm 0.03$	$4/5 \pm 17/6$	$0.01 \pm 0.02$	$0.5 \pm 0.8$
۴C	$0.01 \pm 0.03$	$0.0005 \pm 0.0010$	$0.01 \pm 0.03$	$7/6 \pm 30/0$	$0.02 \pm 0.03$	$0.5 \pm 0.9$
۷C	$0.02 \pm 0.03$	$0.0002 \pm 0.0005$	$0.01 \pm 0.03$	$7/6 \pm 30/2$	$0.01 \pm 0.02$	$0.5 \pm 0.9$
۸C	$0.02 \pm 0.03$	$0.0004 \pm 0.0009$	$0.01 \pm 0.03$	$2/4 \pm 8/7$	$0.02 \pm 0.03$	$0.6 \pm 1.0$
۹C	$0.02 \pm 0.03$	$0.0004 \pm 0.0011$	$0.01 \pm 0.03$	$7/0 \pm 27/6$	$0.02 \pm 0.04$	$0.6 \pm 0.9$
۱۰C	$0.02 \pm 0.03$	$0.0004 \pm 0.0012$	$0.01 \pm 0.02$	$8/5 \pm 33/8$	$0.02 \pm 0.04$	$0.5 \pm 0.8$
۱۱C	$0.02 \pm 0.04$	$0.0003 \pm 0.0008$	$0.01 \pm 0.03$	$3/0 \pm 11/3$	$0.01 \pm 0.02$	$0.5 \pm 0.7$
۱۲C	$0.01 \pm 0.04$	$0.0006 \pm 0.0019$	$0.01 \pm 0.03$	$6/7 \pm 26/5$	$0.02 \pm 0.05$	$0.5 \pm 1.0$

جدول ۳- غلظت‌های ایزوتوپی جرمی در بهبود آشکارساز روش اول

نمونه	$^{238}\text{U}$ (ppm)	$^{235}\text{U}$ (ppb)	$^{234}\text{U}$ (ppb)	نسبت جرمی $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	نسبت جرمی $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
۱C	$2/9 \pm 1/5$	$14/3 \pm 5/3$	$0/13 \pm 0/5$	$0/05 \pm 0/03$	$0/00005 \pm 0/00002$
۲C	$3/4 \pm 2/3$	$14/9 \pm 7/9$	$0/16 \pm 0/7$	$0/04 \pm 0/05$	$0/00005 \pm 0/00005$
۳C	$3/2 \pm 1/5$	$8/7 \pm 4/4$	$0/14 \pm 0/5$	$0/03 \pm 0/02$	$0/00004 \pm 0/00002$
۴C	$2/8 \pm 1/2$	$12/9 \pm 5/7$	$0/13 \pm 0/5$	$0/05 \pm 0/03$	$0/00005 \pm 0/00003$
۷C	$2/7 \pm 1/4$	$6/7 \pm 3/1$	$0/13 \pm 0/4$	$0/02 \pm 0/02$	$0/00005 \pm 0/00003$
۸C	$2/6 \pm 1/4$	$11/7 \pm 5/5$	$0/14 \pm 0/5$	$0/04 \pm 0/03$	$0/00006 \pm 0/00003$
۹C	$2/5 \pm 1/2$	$14/3 \pm 4/6$	$0/12 \pm 0/4$	$0/06 \pm 0/04$	$0/00005 \pm 0/00003$
۱۰C	$2/4 \pm 1/2$	$15/0 \pm 5/0$	$0/10 \pm 0/4$	$0/06 \pm 0/04$	$0/00004 \pm 0/00003$
۱۱C	$3/0 \pm 1/4$	$9/90 \pm 3/8$	$0/12 \pm 0/6$	$0/03 \pm 0/02$	$0/00004 \pm 0/00003$
۱۲C	$2/9 \pm 0/9$	$23/3 \pm 7/5$	$0/15 \pm 0/5$	$0/08 \pm 0/04$	$0/00005 \pm 0/00002$

در نمونه‌سازی‌های بعدی، با استفاده از آنالیت اورانیوم پولک‌هایی مطابق با روش ASTM تهیه شد تا روش اول بهینه شده و راندمان شیمیایی بالاتری بدست آید. به این منظور در مرحله انحلال اسیدی، تلاش شد تا تمامی توده‌های خاکی نمونه در اسید حل شوند. هم‌چنین با استفاده از ویال‌های سانتریفیوژ ۲۵۰ میلی‌لیتری و صرف ۲۸ ساعت زمان برای نمونه‌سازی و افزایش زمان شمارش و ثبت داده از ۸۶۴۰۰ ثانیه به ۱۷۲۸۰۰ ثانیه با هدف داشتن شمارش بیشتر و در نتیجه آمار دقیق‌تر، داده‌های

لازم جمع‌آوری و نتایج آن در جداول (۴) و (۵) ارائه شده‌اند. جدول (۶) نیز نتایج بدست آمده با بهبود نهایی روش اول بر یک نمونه استاندارد را با مقادیر مرجع آن مقایسه می‌کند که سازگاری خوبی با هم دارند. با استفاده از داده‌های ۳ جدول (۴)، (۵) و (۶) نتیجه می‌شود که به کارگیری روش نمونه‌سازی ASTM، استفاده از الکترونیک شامل آشکارساز 500-300-014-BU، متوسط راندمان شیمیایی تا  $(12/8 \pm 47/7)\%$  بیشتر شده و غلظت‌های ایزوتوپی بدست آمده، با مقادیر مرجع و طبیعی (Roberto, 2004) سازگارند.

جدول ۴- غلظت‌های ایزوتوپی اکتیو و بهره بدست آمده در نمونه‌سازی با ASTM

نمونه	$^{238}\text{U}(\text{Bq/g})$	$^{235}\text{U}(\text{Bq/g})$	$^{234}\text{U}(\text{Bq/g})$	Y(%)	نسبت اکتیو $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$	نسبت اکتیو $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$
۱C	$0.033 \pm 0.008$	$0.0016 \pm 0.0003$	$0.030 \pm 0.004$	$30.2 \pm 7.5$	$0.048 \pm 0.014$	$0.92 \pm 0.25$
۲C	$0.037 \pm 0.009$	$0.0014 \pm 0.0003$	$0.029 \pm 0.005$	$26.6 \pm 6.6$	$0.038 \pm 0.012$	$0.79 \pm 0.22$
۱۵C	$0.020 \pm 0.005$	$0.0007 \pm 0.0001$	$0.017 \pm 0.004$	$65.2 \pm 17.8$	$0.037 \pm 0.01$	$0.86 \pm 0.28$
۱۶C	$0.017 \pm 0.004$	$0.0007 \pm 0.0002$	$0.016 \pm 0.003$	$72.4 \pm 19.7$	$0.043 \pm 0.015$	$0.96 \pm 0.30$
۱۷C	$0.028 \pm 0.007$	$0.0010 \pm 0.0003$	$0.023 \pm 0.005$	$57.5 \pm 15.7$	$0.035 \pm 0.013$	$0.84 \pm 0.28$
۱۸C	$0.024 \pm 0.006$	$0.0010 \pm 0.0002$	$0.021 \pm 0.005$	$34.3 \pm 9.6$	$0.043 \pm 0.015$	$0.86 \pm 0.29$

جدول ۵- غلظت‌های ایزوتوپی جرمی در نمونه‌سازی با ASTM

نمونه	$^{238}\text{U}(\text{ppm})$	$^{235}\text{U}(\text{ppb})$	$^{234}\text{U}(\text{ppb})$	نسبت جرمی $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$	نسبت جرمی $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$
۱C	$2.67 \pm 0.61$	$20.0 \pm 3.5$	$0.13 \pm 0.02$	$0.007 \pm 0.002$	$0.0005 \pm 0.0001$
۲C	$3.00 \pm 0.69$	$17.8 \pm 4.0$	$0.13 \pm 0.02$	$0.006 \pm 0.002$	$0.0004 \pm 0.0001$
۱۵C	$1.57 \pm 0.40$	$9.0 \pm 2.4$	$0.07 \pm 0.01$	$0.006 \pm 0.002$	$0.0005 \pm 0.0002$
۱۶C	$1.35 \pm 0.34$	$9.0 \pm 2.3$	$0.07 \pm 0.01$	$0.007 \pm 0.002$	$0.0005 \pm 0.0002$
۱۷C	$2.28 \pm 0.59$	$12.4 \pm 3.3$	$0.10 \pm 0.02$	$0.005 \pm 0.002$	$0.0005 \pm 0.0001$
۱۸C	$1.93 \pm 0.50$	$13.0 \pm 2.8$	$0.09 \pm 0.02$	$0.007 \pm 0.002$	$0.0005 \pm 0.0002$

برای دستیابی به راندمان شیمیایی بالاتر و غلظت‌های دقیق‌تر ایزوتوپی، نمونه‌سازی به روش دیگری نیز انجام شد. در این روش، آماده‌سازی نمونه و روش انحلال اسیدی، طبق پروتکل آژانس بین‌المللی انرژی اتمی انجام گرفت [IEAE]. مراحل استخراج اتری و جداسازی به روش تبادل یون، طبق پروتکل ASTM و مرحله الکترونشانی، طبق روش تالویت انجام گرفت (Talvite, 1972). در روش تالویت<sup>(۹)</sup>، به دلیل استفاده از pH متر دیجیتال و تهیه محلول استاندارد با pH مشخص و هم‌چنین مقایسه pH الکتروولت نمونه ساخته شده با محلول شاهد، قادر به بهبود راندمان الکترونشانی می‌باشد. این روش الکترونشانی، چشمه‌ای با ضخامت بسیار پایین بر روی پولک قالب گیری می‌کند. مرحله انحلال اسیدی آژانس نیز بسیار کامل و طولانی است. شایان ذکر است که pH محلول‌ها در حین مراحل استخراج و الکترونشانی

بسیار دقیق تنظیم شده‌اند. نمونه‌سازی در این روش ۳۲ ساعت طول کشید. با اعمال این موارد در نمونه‌سازی و در زمان‌های شمارش متفاوت برای هر نمونه، داده‌های لازم جمع‌آوری و نتایج آن در جداول (۷) و (۸) ارائه شده‌اند. با استفاده از این داده‌ها نتیجه می‌شود که متوسط راندمان شیمیایی روش سوم، به مقداری بالاتر از ۵۰٪ (۶۶/۴ ± ۱۵/۲) رسیده است که این، صحت نمونه‌سازی را نشان می‌دهد. هم‌چنین در جدول (۹)، غلظت‌های اکتیویته مرجع ۲ نمونه استاندارد بیان شده است. با توجه به این که نمونه SST9، نمونه استاندارد ۱ و نمونه SST10 تا SST13، نمونه استاندارد ۲ می‌باشند. طبق جداول (۷) و (۹)، سازگاری غلظت‌های اکتیویته، با نتایج نمونه‌های استاندارد تهیه شده با روش سوم نمونه‌سازی و راندمان بالای شیمیایی بدست آمده، برتری این روش را به سایر روش‌های ذکر شده، نشان می‌دهد.

**جدول ۶- مقایسه غلظت‌های ایزوتوپی اکتیویته و بهره بدست آمده در نمونه استاندارد با مقادیر مرجع [IAEA, 2002]**

نمونه IAEA-315	<sup>238</sup> U(Bq/kg)	<sup>235</sup> U(Bq/kg)	<sup>234</sup> U(Bq/kg)	Y(%)	نسبت اکتیویته <sup>235</sup> U / <sup>238</sup> U	نسبت اکتیویته <sup>234</sup> U / <sup>238</sup> U
مقادیر تجربی این پژوهش	۱۳/۹ ± ۲/۹	۰/۷ ± ۰/۲	۱۸/۹ ± ۳/۱	۷۱/۶ ± ۱۷/۵	۰/۰۵ ± ۰/۰۲	۱/۳ ± ۰/۳
مقادیر مرجع	۱۷/۶ ۸/۶-۲۴/۲	۰/۸۴ ۰/۶۵-۱/۲۰	۱۷/۸ ۲۰/۰۰-۱۶/۶۰	-	-	-

**جدول ۷- غلظت‌های ایزوتوپی اکتیویته و بهره بدست آمده در روش سوم**

نمونه	وزن (g)	زمان (s)	<sup>238</sup> U(Bq/g)	<sup>235</sup> U(Bq/g)	<sup>234</sup> U(Bq/g)	Y(%)	نسبت اکتیویته <sup>238</sup> U/ <sup>235</sup> U	نسبت اکتیویته <sup>238</sup> U/ <sup>234</sup> U
SST ۹	۳/۵۴۸۲	۱۶۲۵۰۰	۰/۰۲۰ ± ۰/۰۰۵	۰/۰۰۱۳ ± ۰/۰۰۰۳	۰/۰۲۰ ± ۰/۰۰۳	۷۸/۲ ± ۱۹/۳	۰/۰۷ ± ۰/۰۲	۱/۰۳ ± ۰/۲۹
SST ۱۰	۷/۰۹۵۹	۱۳۳۷۰۰	۰/۰۲۹ ± ۰/۰۰۵	۰/۰۰۱۶ ± ۰/۰۰۰۳	۰/۰۲۶ ± ۰/۰۰۳	۷۲/۶ ± ۱۷/۷	۰/۰۶ ± ۰/۰۱	۰/۹۲ ± ۰/۱۹
SST ۱۱	۷/۰۱۵۵	۱۳۳۷۰۰	۰/۰۲۶ ± ۰/۰۰۵	۰/۰۰۱۲ ± ۰/۰۰۰۲	۰/۰۲۵ ± ۰/۰۰۲	۸۰/۸ ± ۱۹/۷	۰/۰۵ ± ۰/۰۱	۰/۹۷ ± ۰/۲۰
SST ۱۲	۷/۶۷۹۴	۸۶۴۰۰	۰/۰۲۶ ± ۰/۰۰۶	۰/۰۰۱۷ ± ۰/۰۰۰۴	۰/۰۲۵ ± ۰/۰۰۴	۶۲/۰ ± ۱۵/۲	۰/۰۷ ± ۰/۰۲	۰/۹۶ ± ۰/۲۶
SST ۱۳	۷/۰۴۲۸	۸۶۴۰۰	۰/۰۲۹ ± ۰/۰۰۷	۰/۰۰۱۰ ± ۰/۰۰۰۳	۰/۰۲۸ ± ۰/۰۰۴	۶۷/۱ ± ۱۶/۴	۰/۰۴ ± ۰/۰۱	۰/۹۷ ± ۰/۲۸
SST ۱۴	۱۰/۰۳۷۱	۸۶۴۰۰	۰/۰۵۲ ± ۰/۰۱۱	۰/۰۰۲۳ ± ۰/۰۰۰۴	۰/۰۴۸ ± ۰/۰۰۷	۶۳/۲ ± ۱۵/۶	۰/۰۴ ± ۰/۰۱	۰/۹۳ ± ۰/۲۵
SST ۱۵	۱۰/۱۴۱۴	۱۷۲۸۰۰	۰/۰۵۰ ± ۰/۰۰۸	۰/۰۰۲۵ ± ۰/۰۰۰۴	۰/۰۲۸ ± ۰/۰۰۵	۶۲/۰ ± ۱۵/۱	۰/۰۵ ± ۰/۰۱	۰/۷۷ ± ۰/۱۵
SST ۱۶	۱۰/۰۳۷۱	۸۶۴۰۰	۰/۰۴۸ ± ۰/۰۱۲	۰/۰۰۲۵ ± ۰/۰۰۰۶	۰/۰۴۱ ± ۰/۰۰۷	۴۵/۴ ± ۱۱/۱	۰/۰۵ ± ۰/۰۲	۰/۸۵ ± ۰/۲۷

## نتایج

۴/۷۳ مگاالکترون ولت گسیل می‌نماید، باعث بالا بردن زمینه در طیف شده و به خصوص در مورد  $^{234}\text{U}$ ، ما را از دریافت نتایج ایده آل محروم می‌کند.

## بحث

طبق جدول (۱)، با وجود حصول بهره شیمیایی بالاتر در روش دوم نسبت به روش اول، غلظت‌های ایزوتوپی بدست آمده و نسبت آن‌ها با این روش، مطابق این مقادیر در اورانیوم طبیعی نمی‌باشد. این موضوع به این دلیل است که در روش دوم، ردیاب اضافه شده به خاک، مورد هدف قرار گرفته و از خاک جدا شده و وارد فرآیند می‌شود و بنابراین، راندمان و بهره شیمیایی روش بالاتر است در صورتی که روش اول، ذرات ماده را مورد هدف قرار می‌دهد. (Alloway, 1990). از آنجایی که روش‌های شیمیایی نمونه‌سازی مانند روش دوم، تنها با عناصر سر و کار دارند و نه ایزوتوپ‌ها، بکارگیری روش اول مناسب‌تر می‌باشد. هم‌چنین در هر دو طیف، قله  $^{235}\text{U}$ ، به علت غلظت پایین آن در خاک و قدرت تفکیک ضعیف سیستم آشکارسازی به کار رفته، شمارش نمی‌شود.

با استفاده از روش‌های متفاوت نمونه‌سازی شامل: روش ASTM، مرحله انحلال اسیدی با یک اسید، مرحله انحلال اسیدی به روش آژانس انرژی اتمی، مرحله الکترونشانی تالویت با استفاده از pH متر دیجیتالی، برای استفاده در طیف نگاری آلفا به دلیل حساسیت نمونه‌سازی و برد کوتاه ذره آلفا، روش تلفیقی آژانس انرژی اتمی، ASTM و الکترونشانی به روش تالویت مناسب‌تر تشخیص داده می‌شود.

با به کارگیری سیستم‌های طیف نگاری آلفا که نتایج حاصل از آن در جداول ۱-۳ تا ۳-۳ ثبت شده است، مشخص شد که استفاده از آشکارساز BU-۰۱۴-۳۰۰-۵۰۰ برای طیف نگاری آلفا مناسب‌تر است و به دلیل بهبود قدرت تفکیک‌ای آشکارساز، نتایج بهتری نسبت به آشکارسازهای BU-۰۳۵-۲۰۰۰-۵۰۰ و BU-۵۰-۳۰۰۰-۵۰۰ می‌دهد؛

با توجه به حضور عوامل مداخله‌گر از جمله دخترهای آلفازای  $^{232}\text{U}$  و هم‌چنین پروتاکتینیوم<sup>(۱۰)</sup> که حاصل از واکنش آلفازای  $^{235}\text{U}$  و واپاشی آن به توریوم<sup>(۱۱)</sup> و واپاشی بتازای آن به پروتاکتینیوم می‌باشد، و آلفاهایی با انرژی‌های ۵/۰۶ و ۵/۰۳ و ۵/۰۱ و ۴/۹۵ و

جدول ۸- غلظت‌های ایزوتوپی جرمی بدست آمده در روش سوم

نمونه	وزن (گرم)	زمان (ثانیه)	$^{238}\text{U}$ (Bq/g)	$^{235}\text{U}$ (Bq/g)	$^{234}\text{U}$ (Bq/g)	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
SST9	۳/۵۴۸۲	۱۶۲۵۰۰	$۱/۶ \pm ۰/۴$	$۱۶/۴ \pm ۴/۰$	$۰/۰۹ \pm ۰/۰۱$	$۰/۰۱۰ \pm ۰/۰۰۴$	$۰/۰۰۰۶ \pm ۰/۰۰۰۲$
SST10	۷/۰۹۵۹	۱۳۳۷۰۰	$۲/۳ \pm ۰/۴$	$۱۹/۹ \pm ۳/۶$	$۰/۱۱ \pm ۰/۰۱$	$۰/۰۰۹ \pm ۰/۰۰۲$	$۰/۰۰۰۵ \pm ۰/۰۰۰۱$
SST11	۷/۰۱۵۵	۱۳۳۷۰۰	$۲/۱ \pm ۰/۴$	$۱۵/۹ \pm ۲/۹$	$۰/۱۱ \pm ۰/۰۱$	$۰/۰۰۸ \pm ۰/۰۰۲$	$۰/۰۰۰۵ \pm ۰/۰۰۰۱$
SST12	۷/۶۷۹۴	۸۶۴۰۰	$۲/۱ \pm ۰/۵$	$۲۱/۵ \pm ۵/۰$	$۰/۱۱ \pm ۰/۰۲$	$۰/۰۱۰ \pm ۰/۰۰۳$	$۰/۰۰۰۵ \pm ۰/۰۰۰۱$
SST13	۷/۰۴۲۸	۸۶۴۰۰	$۲/۳ \pm ۰/۶$	$۱۲/۸ \pm ۳/۳$	$۰/۱۲ \pm ۰/۰۱$	$۰/۰۰۶ \pm ۰/۰۰۲$	$۰/۰۰۰۵ \pm ۰/۰۰۰۱$
SST14	۱۰/۰۳۷۱	۸۶۴۰۰	$۴/۲ \pm ۰/۹$	$۲۸/۷ \pm ۴/۷$	$۰/۲۱ \pm ۰/۰۳$	$۰/۰۰۷ \pm ۰/۰۰۲$	$۰/۰۰۰۵ \pm ۰/۰۰۰۱$
SST15	۱۰/۱۴۱۴	۱۷۲۸۰۰	$۴/۰ \pm ۰/۶$	$۳۱/۳ \pm ۴/۶$	$۰/۱۷ \pm ۰/۰۲$	$۰/۰۰۸ \pm ۰/۰۰۲$	$۰/۰۰۰۴ \pm ۰/۰۰۰۱$
SST16	۱۰/۰۳۷۱	۸۶۴۰۰	$۳/۸ \pm ۱/۰$	$۳۰/۷ \pm ۶/۹$	$۰/۱۸ \pm ۰/۰۳$	$۰/۰۰۸ \pm ۰/۰۰۳$	$۰/۰۰۰۵ \pm ۰/۰۰۰۱$



جدول ۹- مقادیر غلظت اکتیویته مرجع نمونه‌های استاندارد [IAEA,2002]

SAMPLE	<sup>238</sup> U(Bq/g)	<sup>235</sup> U(Bq/g)	<sup>234</sup> U(Bq/g)
مقادیر مرجع ۱	۰/۰۱۷۶ ۰/۰۰۸۶-۰/۰۲۴۲	۰/۰۰۰۸۴ ۰/۰۰۰۶۵-۰/۰۰۱۲۰	۰/۰۱۷۸ ۰/۰۲۰۰-۰/۰۱۶۶
مقادیر مرجع ۲	۰/۰۲۴۴ ۰/۰۱۹-۰/۰۲۹۸	-	۰/۰۲۵۰ ۰/۰۱۷۰-۰/۰۳۲

SST9، نمونه استاندارد ۱ و نمونه SST10 تا SST13، نمونه استاندارد ۲ می‌باشند، طبق جداول (۷) و (۹)، مقادیر بدست آمده با روش سوم، با مقادیر مرجع نمونه‌های استاندارد سازگاری داشته و راندمان شیمیایی بالاتر از ۵۰٪ یعنی (۶۶/۴ ± ۱۵/۲)٪ را بدست می‌دهد. هم‌چنین مشاهده می‌شود که در نمونه‌های با زمان طیف‌نگاری بالاتر، نتایج رضایتبخش‌تر است.

#### پی‌نوشت‌ها

- 1- ICP-MS : Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry
- 2- TIMS: Thermal Ionization Mass Spectrometry
- 3- NAA : Neutron Activation Analysis
- 4- American Society for Testing and Material
- 5- Decontor
- 6- Thymol blue
- 7- Passivated Implanted Planar Silicon
- 8- Ortec
- 9- Talvite
- 10- <sup>231</sup>Pa
- 11- <sup>231</sup>Th

طبق جداول (۲) و (۳)، پس از بهبود روش اول با استفاده از آشکارساز با قدرت تفکیک بهتر، با وجود شمارش <sup>235</sup>U و قرار داشتن غلظت‌های ایزوتوپی اورانیوم در محدوده طبیعی آن، راندمان شیمیایی تغییری نیافت. طبق جداول (۴) و (۵)، نمونه‌سازی به روش ASTM به علت استفاده از تعداد ویال‌های کمتر به علت افزایش حجم ویال‌های سانتریفیوژ و زمان طیف‌نگاری بیشتر که موجب شمارشی دقیق‌تر و کاهش خطا می‌شوند، راندمان شیمیایی بالاتری به دست می‌دهد.

مقایسه مقادیر تجربی غلظت‌های اکتیویته نمونه استاندارد تهیه شده با روش ASTM، با مقادیر مرجع آن در جدول (۶)، سازگاری خوبی نشان می‌دهد که دلیل صحت این روش می‌باشد.

طبق جداول (۷) و (۸)، روش سوم که تلفیقی از پروتکل‌های آرژانس انرژی اتمی، ASTM و الکترونشانی تالویت می‌باشد، کامل‌ترین مرحله انحلال اسیدی را در بردارد به طوری که به جز رسوبات احتمالی و بی‌اثر سیلیس، رسوبی برجای نمی‌گذارد. هم‌چنین ثابت و دقیق ماندن مقدار pH در خلال نمونه‌سازی، به ثبات محلول کمک مهمی کرده و روش الکترونشانی تالویت نیز روشی مناسب می‌باشد که در این پژوهش دقت آن توسط pH متر دیجیتالی بسیار بالا رفته و راندمان شیمیایی را نزدیک به ۱۰۰٪ رساندیم. با توجه به این که نمونه

- [“Determination of uranium isotopes in environmental samples by alpha-spectrometry Italy”](#). National Environmental Protection Agency. Via V. Brancati, 48: 406-395.
- L’Annunziata, M., (2003). “*Handbook of Radioactivity*”. Amesterdom: Academic Press.
- McLaughlin, J.P., L. Leo’n Vintro, K.J. Smith, P.I. Mitchell and Z.S.Zunic (2003). “Actinide analysis of a depleted Uranium penetrator from a 1999 target site in southern Serbia”. *Journal of Environmental Radioactivity*, 64:155–165.
- Oliver, I.W., M.C. Graham, A.B. Mackenzie, R.M Ellam and J.G. Farmer (2007). “[Assessing depleted uranium \(DU\) contamination of soil, plants and earthworms at UK weapons testing sites](#)”. *Journal of environment monitoring*, 9: 740-747.
- Osouli, A. (2009). “Measurement of <sup>137</sup>Cs in soils of Tehran province”. Msc. Thesis on Nuclear Engineering, Radiation application group, Shahid Beheshti University, Tehran, Iran.
- ??????Quang Huy , Ngo., Trinh. Thi Bich and Nguyen. Van Suc (2006). “Determination of uranium and thorium isotopes in soil samples by coprecipitation”. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 269 (1): 129–133.
- منابع  
Alloway, B.J. (1990). “Heavy Metals in Soils”. New York: John Wiley and Sons.
- Al-Masri, M.S. and ??????et al , International Atomic Energy Agency (2003). “Reference Materials Catalogue”. Austria: IAEA.
- Balcerzak, M. (2002). “Sample Digestion Methods for the determination of Traces of Precious Metals by Spectrometric Techniques”. *Analytical Sciences*, 18:747-750.
- C. Miller, A. (2006). “[depleted uranium-Properties, Uses, and Health Consequences](#)”. UK: CRC press.
- EG & G ORTEC (1984). "Experiments in Nuclear Science AN34". U.S.A: Third Edition.
- International Atomic Energy Agency (IAEA).”Determination of Pu radioisotopes, Am, Sr in soils, sediments and air filter by combined procedure”. IAEA Standard operating procedures. chemistry unit.
- ??????Jenkins, Joseph., et al , *Standard Test Method for Radiochemical Determination of Uranium Isotopes in Soil by Alpha Spectrometry* “Annual book of ASTM Standard”. c 1000.00, (2000), 1-5.
- Jia G., M. Belli, U. Sansone, S. Rosamilia, R. Ocone and S. Gaudino (2001).

Danesib Pier, R., S. Barbizzia, M. Bellia, M. Campbellb, S. Gaudinoa, G. Jiaa, R. Oconeaa, A. Patia, S. Rosamiliaa and L. Stellatoa (2004). "Radioecological survey at selected sites hit by depleted uranium ammunitions during the 1999 Kosovo conflict". Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 262 (2): 433- 441.

Serdeiro N.H. and S. Marabini (2004). "A Rapid Method for Determination of Uranium, Americium, Plutonium and Thorium in soil sample". 11<sup>th</sup> International Congress on the International Radiation Protection Association. Madrid, España, 23-28 mayo .

Shayan pooya, F. (2010). "investigation of amounts and kinds of alpha emitters in the soil of Tehran". Msc. Thesis on Nuclear Engineering, Radiation application group. Shahid Beheshti University, Tehran, Iran.

???????Takada, Jun., Masaharu. Hoshi, Show. Sawada, and Masanoue (1983). "[Uranium Isotopes in Hiroshima Black Rain](#)". [J.Eadiat. Res, 24: 229-236.](#)

Talvitie, N.A. (1972). "Electrodeposition of Actinides for Alpha spectrometric determination". Analytical Chemistry, 44 (2): 280-283.



