Abstrakt

Cílem diplomové práce bylo vypracování rešerše a nalezení vhodné metody pro stanovení americia ze vzorků provozních radioaktivních odpadů. Rešeršní část pojednává nejprve o vlastnostech americia, poté o členění radioaktivních odpadů a nakládání s nimi. Dále je rešeršní část zaměřena na teorii separačních metod a na příklady jejich užití pro separace americia (či minoritních aktinoidů jako celku) z provozních radioaktivních odpadů. Závěrem první části práce jsou ukázány a popsány používané metody detekce americia s důrazem na spektrometrii záření α, jejíž součástí je i kapitola o přípravě vzorků elektrodepozicí.

Pro experimenty byla zvolena separace americia z roztoku koncentrátu kyseliny borité z odparky jaderné elektrárny Dukovany pomocí extrakčně chromatografického systému TODGA-PAN/kyselina šťavelová. Zkoumány byly závislosti hmotnostních rozdělovacích koeficientů americia z roztoků koncentrátu o různém ředění i modelového roztoku kyseliny borité na pH v kyselé oblasti (upraveno pomocí HNO_3), kinetická závislost sorpce americia na čase, vlivy vybraných složek koncentrátu na hodnoty hmotnostních rozdělovacích koeficientů, kapacita extrakčně chromatografického systému a profil eluce americia roztokem kyseliny šťavelové. Vybrané charakteristiky jako kinetika a závislost hmotnostních rozdělovacích koeficientů na pH koncentrátu byly porovnány s komerčním extrahentem DGA.

Bylo zjištěno, že v prostředí 40% koncentrátu z odparky probíhá sorpce americia poměrně rychle a je dosaženo ~ 97 % rovnováhy již po půlhodinovém kontaktu fází. Americium sorbované na kolonu naplněnou materiálem TODGA-PAN z roztoku 40% koncentrátu bylo eluováno roztokem 0,25M kyseliny šťavelové. Během tohoto experimentu bylo zjištěno že, elucí americia o aktivitě ~ 6 kBq získáme téměř všechnu aktivitu (97,43 ± 0,97 % resp. 98,26 ± 1,77 %, dle použité detekční metody) již po průtoku cca 1,7 mL (7,1 BV) elučního roztoku. Kapacita kolony při sorpci americia ze 40% koncentrátu je však daleko vyšší a bylo ukázáno, že při průchodu 238 BV mobilní fáze dochází k průniku pouze necelého 1 % americia. Nižší stupeň ředění však není vhodný ani z hlediska hodnot hmotnostních rozdělovacích koeficientů, ani z hlediska kapacity kolony. Při porovnání vlastností extrahentů TODGA-PAN a DGA bylo zjištěno, že TODGA-PAN má několikrát rychlejší kinetiku, avšak při sorpci americia na TODGA-PAN se uplatňuje sorpce na nosič, kdežto u DGA nikoliv.

Klíčová slova: *americium, extrakční chromatografie, elektrodepozice, radioaktivní odpady, extrahent TODGA-PAN, extrahent DGA, koncentrát kyseliny borité*

Abstract

The diploma thesis is focused on research work and on developing of an experimental method on the “Determination of americium in operational radioactive waste” topic. At first, theoretical part discusses americium properties and radioactive waste classification and management. Subsequently, this part is also focused on general theory of selected separation methods and related examples of americium (or minor actinide group) separation from operational radioactive wastes. Last part of this research chapter deals with americium detection methods with emphasis on alpha spectroscopy, including extensive subchapter devoted to samples preparation via electrodeposition method.

In the experiments, the attention was paid to separation of americium from boric acid concentrate coming from the Dukovany Nuclear Power Plant by an extraction chromatographic system of TODGA-PAN resin/oxalic acid. The system characterization consisted of americium weight distribution ratios determination in the system dependence on pH in acidic region (adjusted by HNO_3), measurement of kinetics of this process, determination of influence of selected concentrate components on weight distribution ratios, capacity experiments of this extraction chromatographic system, and elution profile of americium stripped by oxalic acid determination. In addition, some selected characteristics (kinetics and weight distribution ratios and their pH dependence) were compared to results obtained with commercial DGA resin.

As a result of kinetics study, it was found out that about 97 % of the equilibrium has been reached after half an hour of phase contact. After americium loading on the TODGA-PAN resin filled column from the 40% boric acid concentrate, a stripping with 0.25M oxalic acid solution was carried out. This study revealed that almost all of the loaded approximately 6 kBq activity (97.43 ± 0.97 % or 98.26 ± 1.77 %, depending on the detection method used) was stripped by about 1.7 mL (7.1 BV) of stripping solution. Furthermore, when loaded from 40% concentrate solution, americium can be captured on the column in much greater quantity. Capacity experiments revealed that only about 1 % of loaded americium have brokenthrough after loading 238 BV of this mobile phase. However, lower dilution ratio is not suitable for this separation method when weight distribution ratios and column capacity should be taken into consideration. In the end, comparison of mentioned resins showed that DGA has considerably slower kinetics but there is no sorption on its inert matrix.

Key words: *americium, extraction chromatography, electrodeposition, radioactive wastes, TODGA-PAN resin, DGA resin, boric acid concentrate*