

REPUBLICA ARGENTINA  
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA



CONSTRUCCION DE UN GENERADOR DE  $^{234}\text{Th}$

por

A. A. Suárez, A. M. L. G. de Batistoni y M. González



BUENOS AIRES  
1972

INIS CLASSIFICATION AND KEYWORDS

B 16

THORIUM 234  
URANIUM 238  
ORGANIC ION EXCHANGERS  
SODIUM SULFATES  
NATURAL URANIUM  
URANYL COMPOUNDS  
CHEMICAL PREPARATION

## CONSTRUCCION DE UN GENERADOR DE $^{234}\text{Th}$

A.A. Suñer, A.M.L.G. de Batistoni y  
M. Gonzalez

### RESUMEN

Se describe la construcción de un generador de  $^{234}\text{Th}$ . Está formado por una columna rellena con resina de intercambio aniónico. En ella se fija  $^{238}\text{U}$  en forma de complejo uranyl sulfato.

El  $^{234}\text{Th}$  (producido por la desintegración del  $^{238}\text{U}$ ) se eluye con una solución 0,05 M de ácido sulfúrico y 0,025 M de sulfato de sodio. Estas concentraciones fueron encontradas midiendo los coeficientes de distribución de ambos isótopos entre la resina Dowex 2 y la solución.

Uno de los generadores construidos, con 500 ml de resina, produce una solución con  $1.000 \text{ des. min}^{-1}\text{ml}^{-1}$  de torio 234, libre de uranio.

### *CONSTRUCTION OF A THORIUM - 234 GENERATOR*

### SUMMARY

The construction of a generator of  $^{234}\text{Th}$  is described. It is made of a column packed with anionic-ion exchange resin charged with  $^{238}\text{U}$  in the uranyl-sulfate form.

The  $^{234}\text{Th}$  (produced by the desintegration of  $^{238}\text{U}$ ) is eluted with a 0.05 M sulfuric acid -0,025 M sodium sulphate solution.

Both concentrations were found by determining the distribution coefficients of the isotopes between the resin Dowex 2 and the solution.

A generator with 500 ml of resin was constructed which produces a solution of  $1.000 \text{ dis min}^{-1} \text{ ml}^{-1}$  of  $^{234}\text{Th}$  free of uranium.

### INTRODUCCION

La bibliografía no registra la existencia de un generador sencillo de torio de actividad moderada\*; en consecuencia, fue necesario desarrollarlo. Se proyectó construirlo con una columna rellena con un material absorbente sobre el que se fija uranio, nucleído que por desintegración radiactiva produce torio, el cual se eluye posteriormente.

El uranio contenido en los minerales de la naturaleza, está formado por una mezcla de tres isótopos:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  y  $^{234}\text{U}$ . Cuando se procesan químicamente estos minerales para obtener compuestos de uranio, resultan con una relación isotópica igual a la del mineral; cada uno de ellos desintegra por emisión  $\alpha$ , produciendo 3 isótopos del torio. Por lo tanto, todo compuesto de uranio preparado químicamente con una anterioridad mayor de 6 meses (ver Fig. 1), contiene diversos isótopos del torio en las proporciones siguientes:  $^{234}\text{Th}$ : 96%;  $^{231}\text{Th}$ : 4% y  $^{230}\text{Th}$ : despreciable.

El material absorbente elegido fue una resina de intercambio iónico. Los procesos que registra la bibliografía sobre tipos de intercambiadores que fijan uranio y condiciones en que lo realizan, no separan eficientemente el uranio del torio; por ello, fue necesario programar una serie de ensayos con el fin de encontrar un medio que sea eficaz absorbente del uranio y a la vez efectivo eluyente del torio.

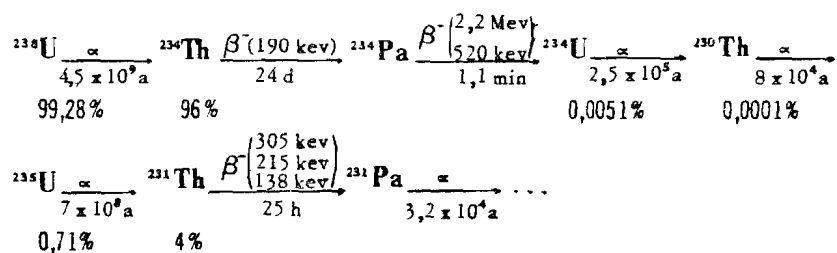


Figura 1

\* El generador de Carswell y Laurence (5) es eficaz, pero de construcción y operación complejas.

PARTE EXPERIMENTAL

a) *Reactivos.* Las soluciones de sulfato de uranilo se obtuvieron por pesada de la cantidad conveniente de  $UO_3$  y agregado de  $SO_4H_2$ . Las resinas de intercambio iónico empleadas fueron Dowex 2x8 y 50 Wx8.

b) *Equipos.* Las mediciones de pH se hicieron con peachímetros Pye ó Sargent, indistintamente, empleando electrodos de vidrio. Las mediciones de radiactividad fueron hechas en tubos Geiger Muller de ventana de  $2-3 \text{ mg} \times \text{cm}^{-2}$  acoplados a un escalímetro rápido marca Nuclear. Para las mediciones espectrofotométricas se empleó un espectrofotómetro Spectronic 20 de Bausch y Lomb.

c) *Métodos de determinación de  $K_d$ .* Las determinaciones de  $K_d^*$  se hicieron en "batch", agitando hasta alcanzar el equilibrio de la resina con la solución correspondiente. La concentración de uranio se determinó con agua oxigenada en medio alcalino (3). El torio fue precipitado de la fase líquida con hipofosfato de sodio en medio ácido (4); luego se filtró y se midió la actividad del precipitado. Se hallaron los valores de concentración en la resina por diferencia entre los valores en el líquido antes y después de contactarlo con la misma.

d) *Ensayos realizados.* Se hicieron ensayos con una columna de resina, catiónica (Dowex 50 W x 8) complejando el torio con EDTA, como indica Strelow (1), pero no se pudo obtener separación neta de torio y uranio.

Se orientaron los ensayos a las resinas aniónicas. La bibliografía registra valores de  $K_d$  en medio de ácido sulfúrico (2). Ellos indican que hay una marcada diferencia entre los  $K_d$  de los mencionados elementos (ver figura 2).

Se absorbió uranio y torio en Dowex 2 x 8 y posteriormente se eluyó con  $SO_4H_2$  a diversas concentraciones entre 0,1 y 2 N; los resultados demostraron que, si bien se conseguía una buena elución del torio, el frente de uranio avanzaba en la columna. Ello hacía que no se pudiese aplicar para un uso moderadamente prolongado del generador.

\*  $K_d = \text{constante de distribución} = C_r/C_s$

Donde:

$C_r$  = concentración de uranio en la resina, en gramos de uranio por gramo de resina seca,

$C_s$  = concentración de uranio en la solución, en gramos de uranio por mililitro de solución.

Ambas concentraciones se miden cuando el sistema esta en equilibrio. Análogamente se mide  $K_d$  para el torio.

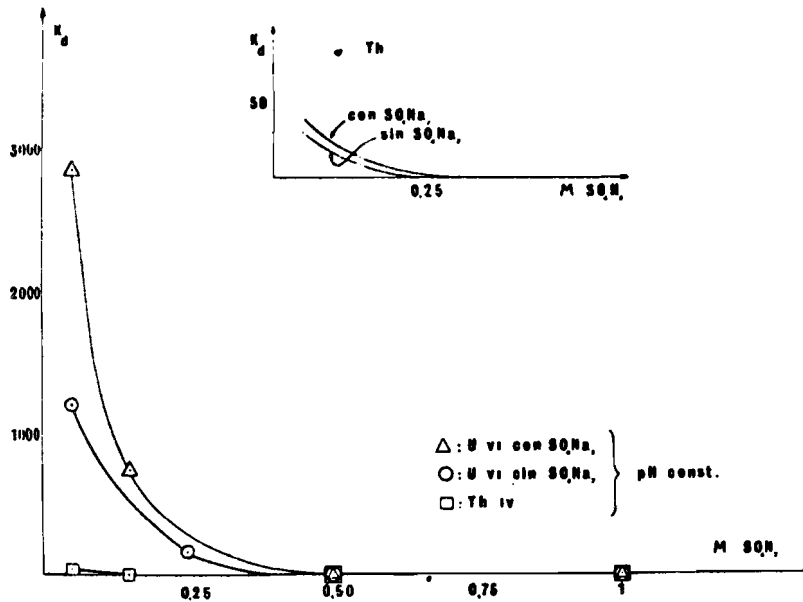


Figura 2

En consecuencia, se planearon y se llevaron a cabo ensayos sistemáticos para lograr aumentar el valor del  $K_d$  para el uranio sin que aumentara apreciablemente el correspondiente del torio.

Una solución mixta de ácido sulfúrico 0,05 M y sulfato de sodio 0,025 M dió los resultados que se pueden observar en la figura 2.

e) *Construcción del generador de  $^{234}Th$ .* Se construyeron diversas columnas conteniendo resina Dowex 2 x 8, malla 20-50 en forma de cloruro, la cual se pasó a forma sulfato mediante una solución 0,05M de  $SO_4H_2$  y 0,025 M de  $SO_4Na_2$ . Luego se hizo absorber el sulfato de uranio en solución sulfúrica a pH 1,4.

Se debe proteger la columna de la luz, envolviéndola en papel negro, pues sino adquiere un tono verdoso producido probablemente por reducción del uranio.

La absorción y elución posterior se hizo haciendo entrar el líquido por el pie de la columna y salir por la parte superior de la misma. Ello permite obtener frentes más nítidos, eliminando así fenómenos de difusión por diferencia de densidad del líquido.

Se describe en detalle una operación completa de carga y elución de uno de los generadores preparados:

- a) Se utiliza una columna de vidrio de 5 cm de diámetro y 45 cm de alto con placa de vidrio filtrante (puede usarse lana de vidrio) al pie.
- b) Se carga con 500 ml Dowex 2 x 8, malla 20-50, en forma cloruro, que se regenera y acondiciona haciéndole pasar aproximadamente 2 litros de una solución 0,05 M de ácido sulfúrico y 0,025 M de sulfato de sodio, a un caudal de 20 ml x min<sup>-1</sup>.
- c) Se cubre la columna por fuera con papel negro.
- d) Se hacen absorber 34 g de sulfato de uranio disueltos en 2,5 l de solución 0,05 M de ácido sulfúrico y 0,025 M de sulfato de sodio y con 0,25 mg de nitrato de torio 232 como portador, a un caudal de 10 ml x min<sup>-1</sup>.
- e) El efluente de absorción proveniente de la operación (d) contiene torio 234, que se puede emplear como trazador (actividad aproximada 1.000 dpm x ml<sup>-1</sup>).
- f) El generador puede ser eluído, según las necesidades con solución 0,05 M en ácido sulfúrico y 0,025 M en sulfato de sodio.
- g) Este generador fue usado durante 6 meses sin detectar uranio en el efluente.

#### CONCLUSIONES

1- El uranio en solución 0,05 M de ácido sulfúrico y 0,025 M de sulfato de sodio, es absorbido selectivamente por una resina Dowex 2 x 8, malla 20-50, En estas condiciones, el torio no es absorbido.

2- En las condiciones descriptas en (1) se puede construir un generador de torio 234.

3- La resina cargada con uranio natural no manifiesta daños por radiación después de seis meses de uso. La dosis recibida por la resina se estima en 20 rads.

#### BIBLIOGRAFIA

1. STRELOW, F.W.E.: *Analytical Chemistry*, 32, (1960), 1185.
2. KRAUS, K.A. and NELSON, F.: *Proc. Int. Conf. Peac. Uses of Atomic Energy*, vol. 7, (1956), 113.
3. RODDEN, C.J.: *Analytical Chemistry of Manhattan Project*, (1950), 94.
4. HYDE, E.K.: *NAS-NS 3004. The Radiochemistry of Thorium*, (1960), 6.
5. CARSWELL, D.J. and LAWRENCE, J.: *J. Chem. Ed.* 36, (1959), 499.