

# **Verfahren zur alphaspektrometrischen Bestimmung von Plutoniumisotopen im Abwasser**

H- $\alpha$ -SPEKT-AWASS-03

Bearbeiter:

Th. Bünger  
H.U. Fusban<sup>†</sup>  
H. Rühle  
I. Gans

Diese Version entspricht der Druckfassung mit den Lieferungen 1 bis 7, Stand: 1.3.2006
--

Leitstelle für die Überwachung der Radioaktivität in Trinkwasser,  
Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm, Reststoffen und Abfällen



# 18 Verfahren zur alphaspektrometrischen Bestimmung von Plutoniumisotopen im Abwasser

## 1 Anwendbarkeit

Die Methode dient zur Bestimmung der Plutoniumisotope Pu-238 und Pu-239 + Pu-240 nebeneinander im Abwasser. Die Methode ist anwendbar auf Abwässer aus kerntechnischen Anlagen, Abwässer von Isotopenanwendern und Abwässer bzw. gereinigte Abwässer aus Kläranlagen. Sinngemäß läßt sie sich – gegebenenfalls nach Anreicherung durch Eindampfen großer Volumina – auch auf andere Wasserarten, wie z. B. Grundwasser, Trinkwasser und Oberflächenwasser übertragen.

## 2 Probeentnahme

Nähere Angaben zur Probenauswahl und zur Probeentnahme sind den Vorschriften H- $\gamma$ -SPEKT-AWASS-01 und H- $\gamma$ -SPEKT-TWASS-01 zu entnehmen. Im allgemeinen ist ein Probenvolumen von 1 l ausreichend. Die Wasserproben werden zur Stabilisierung mit etwa 1 ml Salpetersäure ( $14 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) je Liter angesäuert. In Polyethylenflaschen können die so behandelten Proben bis zur Weiterverarbeitung gelagert werden.

## 3 Analytik

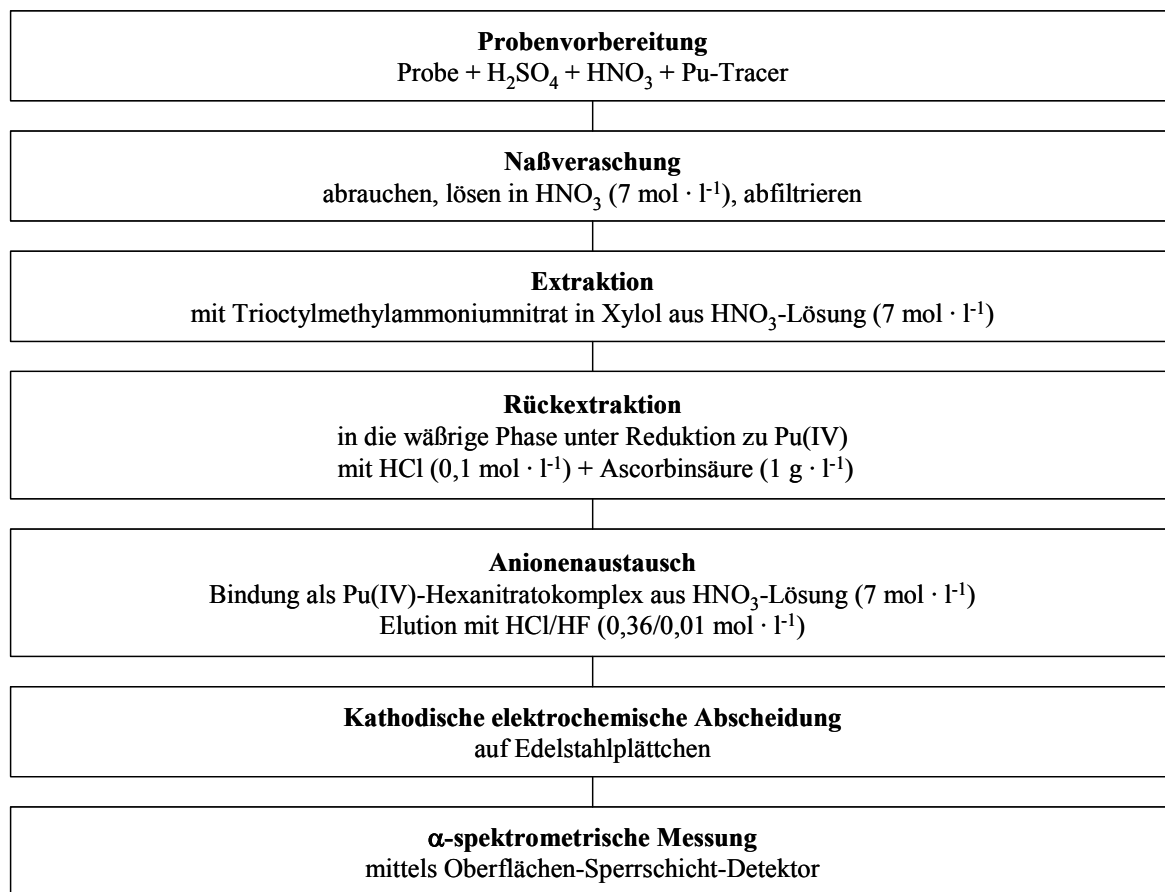
### 3.1 Prinzip der Methode

Plutonium wird zusammen mit Uran aus salpetersaurer Lösung mittels Trioctylmethylammoniumnitrat extrahiert, anschließend durch Anionenaustausch als Hexanitratokomplex isoliert und von Begleitelementen (z. B. Uran, Thorium, Eisen) befreit. Die Aktivität wird durch  $\alpha$ -spektrometrische Messung von Dünnschichtpräparaten, die durch elektrochemische Abscheidung des Plutoniums in hydroxidischer Form auf Edelstahlplättchen erhalten werden, ermittelt. Zur Bestimmung der chemischen Ausbeute an Plutonium wird als Tracer Pu-236 oder Pu-242 bekannter Aktivität zugesetzt. Das Prinzip der Methode ist schematisch in Abb. 1 dargestellt.

#### Anmerkungen

Aufgrund des begrenzten Energieauflösungsvermögens bei der  $\alpha$ -Spektrometrie (Halbwertsbreite etwa 50 keV) ist es nicht möglich, die Linien der Plutoniumisotope Pu-239 ( $E_\alpha = 5,157 \text{ MeV}$ ) und Pu-240 ( $E_\alpha = 5,168 \text{ MeV}$ ) getrennt auszuwerten. Angegeben wird deshalb stets die Summe aus Pu-239 und Pu-240.

Steht Pu-242 als Tracer zur Verfügung, so ist dieses dem Pu-236 vorzuziehen, da die Pu-242-Linie bei niedrigerer Energie als die  $\alpha$ -Energien sowohl des Pu-238 als auch des Pu-239 + Pu-240 liegt und somit ein störender Einfluß der Pu-236-Linie infolge von Tailing-Effekten ausgeschlossen werden kann.



**Abb. 1:** Prinzip der Bestimmung von Plutoniumisotopen im Abwasser

Pu-236 enthält als Verunreinigung häufig Pu-238 in geringer Aktivitätskonzentration, dessen Einfluß bei der Ermittlung des Pu-238-Gehaltes der Probe gegebenenfalls rechnerisch korrigiert werden muß.

## 3.2 Probenvorbereitung

Ein hinreichendes Volumen der Probe (im Normalfall 1 l) wird mit Pu-236-Tracer (ca. 0,5 Bq), 5 ml Schwefelsäure (18 mol · l<sup>-1</sup>) und 10 ml Salpetersäure (14 mol · l<sup>-1</sup>) versetzt und bis zur Trockene abgeraucht.

### Anmerkung

Die der Probe als Tracer zugesetzte Aktivität an Pu-236 sollte so bemessen sein, daß die Pu-236-Linie im  $\alpha$ -Spektrum etwa die zu erwartende Größe der Linie der gesuchten Pu-Isotope hat. Bei höheren Aktivitäten sind ggf. kleinere Probenvolumina einzusetzen. Der abgekühlte Rückstand wird mit 2 ml Schwefelsäure (18 mol · l<sup>-1</sup>) und 5 ml Salpetersäure (14 mol · l<sup>-1</sup>) versetzt und erneut zur Trockene abgeraucht. Dieser Schritt ist sooft zu wiederholen, bis der Rückstand keine organischen Bestandteile mehr enthält.

### 3.3 Radiochemische Trennungen

**3.3.1** Der Rückstand wird mit 100 ml Salpetersäure ( $7 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) versetzt und ca. 1 Stunde in der Wärme bei aufgesetztem Uhrglas durch Rühren gelöst; die Lösung wird zur Entfernung von Kieselsäurespuren durch eine Fritte mit aufgelegtem Membranfilter (Porenweite  $0,45 \mu\text{m}$ ) gesaugt.

**3.3.2** Man läßt das Filtrat auf etwa  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  abkühlen. Anschließend wird 2mal je 5 Minuten mit je 50 ml Trioctylmethylammoniumnitrat in Xylol mittels Schüttelapparatur extrahiert (zur Vorbereitung des Extraktionsmittels wird auf Abschnitt 7.1.2 verwiesen). Die beiden organischen Phasen (oben) werden vereinigt und 1mal mit 50 ml Salpetersäure ( $7 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) gewaschen.

#### Anmerkung

Bei der Verarbeitung größerer Abwasservolumina ( $> 1 \text{ l}$ ) kann es zum Ausfallen von Salzen aus der abgekühlten Lösung kommen. Es muß dann mit größeren Volumina gearbeitet werden. Die Extraktion des Plutoniums wird mit jeweils frischer Trioctylmethylammoniumnitrat-Lösung aus einzelnen Portionen von etwa 100 ml vorgenommen.

**3.3.3** Plutonium wird aus der gewaschenen organischen Phase 5mal mindestens je 5 Minuten mit je 100 ml ca.  $50 \text{ }^\circ\text{C}$  warmer Salzsäure ( $0,1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ), die 1 g Ascorbinsäure pro Liter enthält, rückextrahiert. Die wäßrigen Phasen werden vereinigt und zur Trockene eingedampft. Die organische Phase wird verworfen (in Lösungsmittelabfallsammelbehältern entsorgt).

**3.3.4** Der schwarze Eindampfrückstand wird solange mit 5 ml Salpetersäure ( $14 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) und 2 ml Schwefelsäure ( $18 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) bis zur Trockene abgeraucht, bis ein eventuell noch vorhandener Rückstand hell gefärbt ist.

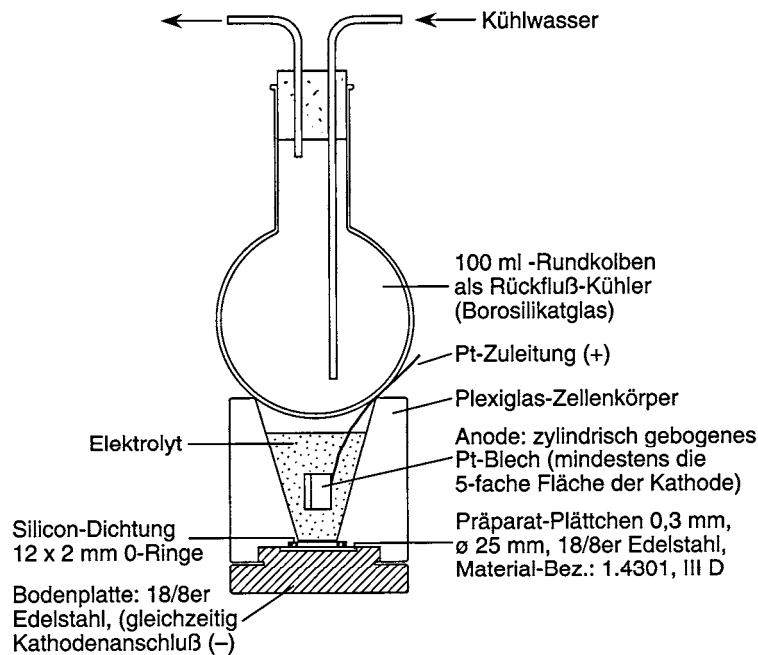
**3.3.5** Der Rückstand wird in der Wärme in 50 ml Salpetersäure ( $7 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) gelöst, auf  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  abgekühlt und mit 1 ml Natriumnitrit-Lösung ( $2,9 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) oder mit einer Spatelspitze festem Natriumnitrit (schäumt stark) versetzt, um Pu(VI) zu Pu(IV) zu reduzieren. Anschließend wird die Lösung mit einer Durchlaufgeschwindigkeit von 1 bis 2 ml pro Minute über den konditionierten Anionenaustauscher gegeben (zur Konditionierung des Austauschers siehe Abschnitt 7.1.1). Danach wird nacheinander mit 120 ml Salpetersäure ( $7 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) und 100 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) gewaschen. Auslauf und Waschlösungen werden verworfen.

#### Anmerkung

Die vereinigten Durchläufe können zur Uranbestimmung benutzt werden.

**3.3.6** Die Elution des Plutoniums erfolgt mit 100 ml Salzsäure/Flußsäure-Lösung ( $0,35 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$  bzw.  $0,01 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ). Das Eluat wird mit 1 ml Natriumhydrogensulfat-Lösung ( $0,1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) versetzt und auf dem Sandbad zur Trockene eingedampft. Falls noch wesentliche Ionenaustauscherreste vorhanden sind, müssen diese durch wiederholtes Abrauchen mit 2 ml Schwefelsäure ( $18 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) und 5 ml Salpetersäure ( $14 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) zerstört werden.

**3.3.7** Der Trockenrückstand wird mit 5 ml Schwefelsäure ( $1,5 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) aufgenommen, auf 2 ml eingeeengt, abgekühlt und quantitativ in die vorbereitete Elektrolysezelle (vergl. Abschnitt 7.2.1 und Abb. 2) überführt. Hierzu wird das Becherglas dreimal mit je etwa 2 ml Schwefelsäure ( $0,5 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) nachgespült und die einzelnen Portionen werden zur Hauptlösung in die Elektrolysezelle überführt. Der Lösung wird 1 Tropfen Methylrot und bis zum Farbumschlag Ammoniak ( $13 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) zugefügt. Durch Zugabe einiger Tropfen



**Abb. 2:** Elektrolysezelle

Schwefelsäure ( $1,5 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) wird ein pH-Wert von 2,4 bis 2,5 (Kontrolle durch Acilitpapier) eingestellt und ca. 4 Stunden bei 300 mA elektrolysiert. 1 Minute vor Beendigung der Elektrolyse wird 1 ml Ammoniak ( $13 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) hinzugesetzt. Danach wird der Zelleninhalt abgossen, die Zelle demontiert, das Stahlplättchen mit dest. Wasser gespült und mit Aceton getrocknet.

## 4 Messung der Aktivität

Zu grundlegenden Ausführungen zur  $\alpha$ -Spektrometrie wird auf das Kapitel IV.2 dieser Meßanleitungen verwiesen.

### 4.1 Kalibrierung

Die Messung der elektrochemisch abgeschiedenen Plutonium-Isotope erfolgt mittels eines Meßplatzes für  $\alpha$ -Spektrometrie. Als solcher dient ein im Vakuum (ca.  $10^3 \text{ Pa}$  Restdruck) mit etwa 100 V Spannung betriebener Oberflächen-Sperrschichtzähler in Verbindung mit einem Vielkanalanalysator und Datenausgabereinheit.

Die Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit der Meßanordnung erfolgt mit Hilfe von festen U-233- und Am-241-Präparaten bekannter Aktivität und vernachlässigbar kleiner Schichtdicke (siehe Abschnitt 7.2). Der Kalibrierfaktor ist innerhalb des Bereichs von ca. 3 bis 7 MeV nahezu konstant.

Zur Überprüfung der Energiekalibrierung werden feste (im Handel erhältliche) Präparate verwendet, die mehrere  $\alpha$ -Strahler enthalten (z. B. U-233, Pu-239, Am-241, Cm-244, Cf-250 und Cf-252).

### Anmerkungen

Die Zählzelle hängt wesentlich von der aktiven Fläche des Detektors und dem Abstand zwischen Präparat und Detektor ab. Bei geringem Abstand ( $< 5$  mm) besteht insbesondere bei schlechter elektrolytischer Abscheidung von Proben höherer Aktivität die Gefahr, daß infolge des Rückstoßes beim  $\alpha$ -Zerfall der Detektor kontaminiert werden kann. Durch einen größeren Abstand (z. B. 30 mm) ist dies zu vermeiden, allerdings reduziert sich dadurch die Zählzelle erheblich (z. B. um den Faktor 5 bis 10). Bei geringem Durchsatz von Meßproben kann dies durch Verlängerung der Meßzeit kompensiert werden. Insbesondere bei der Einarbeitung unerfahrener Laborkräfte in die Methode der  $\alpha$ -Spektrometrie ist die Einhaltung eines größeren Abstandes des Präparates vom Detektor empfehlenswert.

Bei der Kalibrierung des Meßplatzes muß sichergestellt sein, daß die Kalibrierpräparate den gleichen Durchmesser besitzen wie die Meßpräparate. Gegebenenfalls sind rechnerische Korrekturen für die Abhängigkeit der Zählzelle von der Meßgeometrie erforderlich (z. B. nach (7)). Weitere Anmerkungen finden sich im Kapitel IV.2 dieser Meßanleitungen.

## 4.2 Messung der Probe

Die Messung der Probe erfolgt in der gleichen geometrischen Anordnung, in der kalibriert wurde. Typische Meßzeiten sind 10 und mehr Stunden.

### Anmerkung

Infolge unsauberer, d. h. amorpher oder grobkristalliner elektrochemischer Abscheidung des Plutoniums auf dem Stahlplättchen oder durch Verunreinigungen des Präparates kann

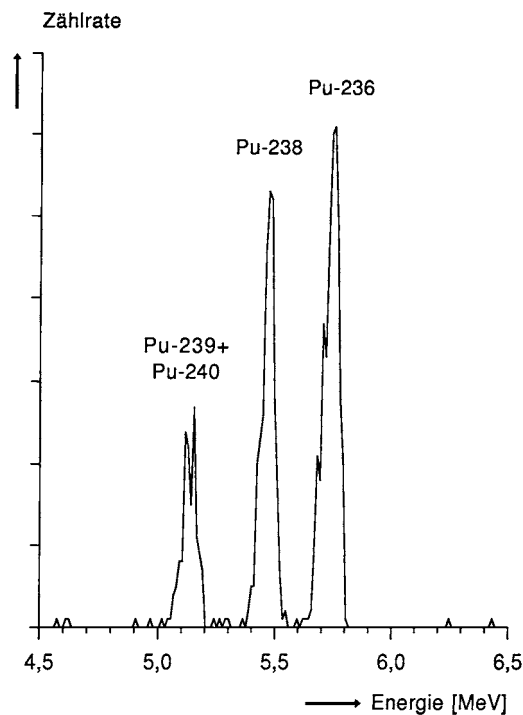


Abb. 3:  $\alpha$ -Spektrum einer Plutoniumprobe

es bei der  $\alpha$ -spektrometrischen Messung zu einer starken Linienverbreiterung kommen (insbesondere zum niederenergetischen Bereich hin). In derartigen Fällen ist durch Reinigung des Präparates eine Verbesserung möglich. Zu diesem Zweck wird das Plutonium mit Salzsäure ( $8 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) ca. 1 Sekunde vom Stahlplättchen abgelöst und mit dest. Wasser abgespült. Die Lösung wird bis zur Trockene eingedampft. Anschließend wird nach Punkt 3.3.4 und folgenden verfahren.

Ein typisches  $\alpha$ -Spektrum einer Abwasserprobe eines Kernbrennstoffverarbeiters ist in Abb. 3 dargestellt.

## 5 Berechnung der Analysenergebnisse

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration  $c_r$  der einzelnen Plutonium-Isotope erfolgt nach Gleichung (1):

$$c_r = \frac{\varphi_A}{V \cdot \eta \cdot p_{\alpha r}} \cdot (R_b - R_0) \quad (1)$$

Darin bedeuten:

- $\varphi_A$  = Kalibrierfaktor in  $\text{Bq} \cdot \text{s}$
- $\eta$  = chemische Ausbeute; Zahl  $< 1$
- $p_{\alpha r}$  = Emissionswahrscheinlichkeit für  $\alpha$ -Strahlung des Nuklids  $r$
- $R_b$  = Bruttozählrate im Bereich der Linie bei  $E_\alpha$  in  $\text{s}^{-1}$
- $R_0$  = Mittlere Nulleffektzählrate im Bereich der Linienfußbreite bei  $E_\alpha$  in  $\text{s}^{-1}$
- $V$  = eingesetztes Volumen der Probe in l

### 5.1 Rechenbeispiel

Bei der Bestimmung des Plutoniumgehaltes einer Abwasserprobe liegen folgende Daten vor:

- $\varphi_A$  = 5,46  $\text{Bq} \cdot \text{s}$
- $\eta$  = 0,472 (47,2 %)
- $p_{\alpha r}$  = 1,0
- $t_m$  = 158230 s (44 h)
- $R_0$  =  $5,7 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  im Bereich der Pu-238-Linie
- $R_0$  =  $3,2 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  im Bereich der Pu-239/Pu-240-Linie
- $R_b$  =  $3,86 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  im Bereich der Pu-238-Linie
- $R_b$  =  $5,06 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  im Bereich der Pu-239/Pu-240-Linie
- $R_n$  =  $3,29 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  im Bereich der Pu-238-Linie
- $R_n$  =  $4,74 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  im Bereich der Pu-239/Pu-240-Linie
- $V$  = 1 l

Mit diesen Werten ergeben sich für die Pu-Isotope nach Gleichung (1) folgende Aktivitätskonzentrationen:

$$c_{\text{Pu-238}} = 3,81 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

$$c_{\text{Pu-239+Pu-240}} = 5,48 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$



## 5.2 Fehlerbetrachtung

Zur Berechnung der Standardabweichung der statistischen Zählfehler wird auf das Kapitel IV.5 dieser Meßanleitungen verwiesen.

Zur Abschätzung der Gesamtunsicherheit der berechneten Aktivitätskonzentration  $c_r$  ist neben dem statistischen Zählfehler  $s$  der Fehler bei der Zählausbeutebestimmung (Kalibrierfehler) und der Fehler bei der Bestimmung der chemischen Ausbeute zu berücksichtigen, während der Fehler bei der Bestimmung des eingesetzten Probenvolumens zu vernachlässigen ist. Der relative Fehler der Zählausbeute liegt bei  $\pm 5\%$ , der relative Fehler der chemischen Ausbeute schwankt in Abhängigkeit von der jeweils erzielten chemischen Ausbeute im Mittel zwischen  $\pm 5$  und  $\pm 10\%$ .

Bei Aktivitätskonzentrationen, die in der Größenordnung des oben genannten Beispiels liegen (ca.  $2 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ) ist mit relativen Gesamtunsicherheiten von etwa  $\pm 10\%$  zu rechnen, bei deutlich niedrigeren Aktivitätskonzentrationen mit  $\pm 20\%$  und darüber.

## 6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Zur Abschätzung von Nachweisgrenzen wird auf das Kapitel IV.5, Abschnitte 2.1, 2.3 und 4.8 dieser Meßanleitungen verwiesen. Der Ansatz zur Bestimmung der Nachweisgrenze besteht hierbei darin, daß man die Auswertung einer  $\alpha$ -Linie mit der Linienfußbreite  $b$  als integrale Messung mit einem Einkanalanalysator auffaßt.

In der Praxis ist die Untergrundzählrate  $R_b$  an Blindproben zu bestimmen, die unter den gleichen Bedingungen hergestellt werden wie die zu untersuchenden Proben. Die dabei registrierten Untergrundzählraten können höher als die der Nulleffektmessung einer Leerprobe, z. B. eines unbehandelten Stahlplättchens sein.

Die Größenordnung der erreichbaren Nachweisgrenzen wird im folgenden Beispiel abgeschätzt:

Durch Langzeitmessungen wurden an den Stellen der Linien von Pu-238 sowie Pu-239 + Pu-240 die folgenden mittleren Nulleffektzählraten für die benutzte Meßanordnung ermittelt:

Isotop	E (MeV)	Peakfußbreite (Kanäle)	$R_o$ in $\text{s}^{-1}$ im Bereich $b$	$R_o$ in $\text{s}^{-1}$ pro Kanal
Pu-238	5,49	20	$5,7 \cdot 10^{-5}$	$2,9 \cdot 10^{-6}$
Pu-239 + Pu-240	5,15	20	$3,2 \cdot 10^{-5}$	$1,6 \cdot 10^{-6}$

Nach Gleichung 2.4 im Abschnitt 2.1.2 des Kapitels IV.5 ergeben sich bei Meßzeiten  $t_m$  (Probe) und  $t_o$  (Nulleffekt) von 84600 s, einem Kalibrierfaktor  $\varphi_A = 5,46 \text{ Bq} \cdot \text{s}$  und einem Wert von  $k_{1-\alpha} + k_{1-\beta} = 4,65$  als Nachweisgrenze der Aktivität z. B. für Pu-239 + Pu-240 etwa 1,4 mBq.

Die Nachweisgrenzen  $g_r$  der Aktivitätskonzentrationen erhält man nach Gleichung (2):

$$g = \frac{G}{V \cdot \eta \cdot p_{ur}} \quad (2)$$

Bei einem eingesetzten Abwasservolumen von  $V = 1$  l und einer radiochemischen Ausbeute von  $\eta = 0,472$  (47,2 %) erhält man als Nachweisgrenze für die Pu-239 + Pu-240-Aktivitätskonzentration etwa  $3 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$ .

## 7 Verzeichnis der Chemikalien und Geräte

### 7.1 Chemikalien

Nach Möglichkeit sind analysenreine Chemikalien zu verwenden:

- Aceton,  $\text{CH}_3 \cdot \text{CO} \cdot \text{CH}_3$
- Acilit-Papier, pH 0,5 bis 5,0
- Ammoniak,  $\text{NH}_3$ :  $13 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Anionenaustauscher: DOWEX  $1 \times 2$ , 100 bis 200 mesh,  $\text{Cl}^-$ -Form
- Ascorbinsäure,  $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_6$
- Eluierlösung  $\text{HCl}/\text{HF}$ :  $0,36 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$  bzw.  $0,01 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Flußsäure,  $\text{HF}$ :  $23 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Methyrot:  $0,01 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$  in Ethanol
- Natriumhydrogensulfat,  $\text{NaHSO}_4$ :  $0,1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Natriumnitrit  $\text{NaNO}_2$ :  $2,9 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Pu-242- oder Pu-236-Tracerlösung, ca.  $300 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$  (z. B. Amersham/Buchler)
- Reinigungsmittel, z. B. RBS-50- oder Mucosol-Konzentrat: 10 %ige Lösung
- Salzsäure,  $\text{HCl}$ : 0,1; 8 und  $9 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Salpetersäure,  $\text{HNO}_3$ : 7 und  $14 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Schwefelsäure,  $\text{H}_2\text{SO}_4$ : 0,5; 1,5 und  $18 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Seesand, mit Säure gereinigt und geglüht
- Trioctylmethylammoniumchlorid,  $[(\text{C}_8\text{H}_{18})_3 \cdot \text{CNH}_3]\text{Cl}$ : 10 %ige Lösung in Xylol
- Xylol, Isomerengemisch,  $\text{C}_6\text{H}_4 \cdot (\text{CH}_3)_2$

#### 7.1.1 Vorbehandlung des Anionenaustauschers

Der etwa 24 h mit dest. Wasser vorgequollene Anionenaustauscher wird luftblasenfrei in die Säule eingeschlämmt und mit 100 ml Salpetersäure ( $7 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) unmittelbar vor der Aufgabe der vorbereiteten Probenlösung konditioniert.

#### 7.1.2 Vorbehandlung des Extraktionsmittels

100 ml Trioctylmethylammoniumchlorid (10 %ige Lösung in Xylol) werden unmittelbar vor der Extraktion zweimal mit je 50 ml Salpetersäure ( $7 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) gewaschen. Es entsteht das zur Trennung benötigte Trioctylmethylammoniumnitrat. Die wäßrigen Phasen werden verworfen. Die organische Phase wird zur Extraktion verwendet.

### 7.2 Geräte

- Edelstahlplättchen (V2A-Stahl, austhenitisch,  $\varnothing = 25 \text{ mm}$ , Dicke  $0,3 \text{ mm}$ )
- Elektrolysezelle: s. Abb. 2
- Gleichstromquelle, nach Möglichkeit mit Stromkonstanthaltung
- Ionenaustauschersäulen: Länge  $20 \text{ cm}$ ,  $\varnothing = 1,5 \text{ cm}$ , Fritte G0
- Membranfilter, Porenweite  $0,45 \mu\text{m}$

- Meßplatz für die  $\alpha$ -Spektrometrie, bestehend aus:  
Oberflächensperrschichtzähler (z. B. 400 mm<sup>2</sup> aktive Fläche, 100  $\mu$ m Tiefe der Verarmungszone, 25 keV Auflösung), Vakuumkammer, Vakuumpumpe, Spannungsversorgung, Verstärker, Analog-Digital-Konverter (ADC), Vielkanal-Impulshöhenanalysator, Datenausgabegerät/Rechner.
- U-233- und Am-241-Standardpräparate (z. B. Commissariat a l'Energie Atomique, Laboratoire de Metrologie des Rayonnements Ionisants)
- Übliche Ausrüstung eines radiochemischen Labors

### 7.2.1 Vorbereitung der Elektrolysezelle

Die Elektrolysezelle und das Edelstahlplättchen werden in ca. 10 %iger RBS-50-Lösung aufbewahrt. Vor Elektrolysebeginn ist die Zelle in der RBS-50-Lösung etwa 10 Minuten zu erwärmen und danach mit dest. Wasser gründlich zu spülen. Das Edelstahlplättchen ist nach der RBS-50-Behandlung mit Schwefelsäure (0,5 mol  $\cdot$  l<sup>-1</sup>) und anschließend mit dest. Wasser zu spülen.

### Literatur

- (1) Anderson, R.F. and A.P. Fler: Determination of Natural Activities and Plutonium in Marine Particulate Material, *Analytical Chemistry* 54 (1982), S. 1142 ff.
- (2) Delle Site, A., G. Santori and S. Bazzarri: Determination of Plutonium-239 in Animal Tissues and Excreta. The Application of Liquid Scintillation Counting and Extraction Chromatography. RT/PROT (74) 23, Comitato Nazionale Energia Nucleare, Roma, Sept. 1973
- (3) Frindik, O.:  $\alpha$ -spektrometrische Methoden zur Bestimmung von Plutonium und Uran in Lebensmitteln, biologischem Material und Böden. BFE-Bericht 1980/6, Bundesforschungsanstalt für Ernährung, Karlsruhe, Juli 1980
- (4) Godoy, J.M., H. Schüttelkopf und M. Pimpl: Die Bestimmung von Pu-241 durch Flüssigszintillations-spektrometrie in der Umgebung des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Kfk 3531, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Hauptabteilung Sicherheit, April 1983
- (5) Harley, J.H.: EML Procedures Manual HASL 300, Environmental Measurements Laboratory of U. S. Department of Energy, E-Pu-01 bis E-Pu-09
- (6) Pimpl, M., H. Schüttelkopf und M. Afsar: Die Plutonium-Kontamination des Altrheins: Die Kontamination der Sedimente. Kfk 2892, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Hauptabteilung Sicherheit, Dez. 1979
- (7) Schüttelkopf, H.: Entwicklung einer Analysenmethode für Plutonium im Femtogramm/gramm-Bereich und ihre Anwendung auf Umweltproben. Kfk 3035, Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Hauptabteilung Sicherheit, Sept. 1981
- (8) Schwochau, K., L. Astheimen, H.J. Schenk, E.G. Witte: On the Extraction of Uranium from Sea Water by a Complexing Resin, *Zeitschrift für Naturforschung* 37b (1982), S. 214 ff.