

KFK-199

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Februar 1964

KFK 199

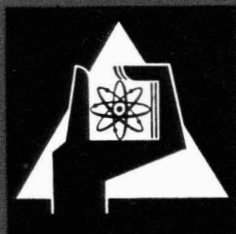
Institut für Radiochemie

Bestimmung der spezifischen Aktivität einiger Radionuklide

H. Ruf und H. Münzel

Gesellschaft für Kernforschung m. b. H.
Zentralbücherei

7. Apr 1964



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Februar 1964

K F K 199

Institut für Radiochemie

BESTIMMUNG DER SPEZIFISCHEN AKTIVITÄT EINIGER RADIONUKLIDE

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.
Zentralbücherei

7. Apr 1964

von

H. Ruf und H. Münzel

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Inhaltsverzeichnis

Einführung

	Seite
1. <u>Untersuchungen verschiedener Filter bezüglich der Reproduzierbarkeit ihrer Gewichte</u>	1
1.1. Dimension und erforderliche Eigenschaften der Filter	1
1.2. Die Waage	2
1.3. Einfluß der Luftfeuchtigkeit auf das Filtergewicht	2
1.3.1. Trocknen der Filter im Trockenschrank	2
1.3.2. Trocknen der Filter im Vakuumexsiccator	3
1.4. Einfluß wässriger Lösungen auf das Gewicht des Filters	3
1.5. Kontrolle der auf Filterpapier ermittelten Gewichte von Fällungskörpern durch Titration	4
1.6. Ergebnis	
2. <u>Herstellung der Meßpräparate</u>	5
2.1. Trägermengen und Volumen des Fällungsmediums	5
2.2. Vorbereitung des Filters	5
2.3. Das Filtergerät	5
2.4. Filtration und Auswaschen des Fällungskörpers	5
2.5. Trocknen und Wägen des Präparates	6
2.6. Montieren des Präparates	6
3. <u>Bestimmung der Zerfallsrate und der spezifischen Aktivität</u>	7
3.1. Meßgerät	7
3.1.1. Beschreibung des Meßgerätes	7
3.1.2. Einstellungen am Meßgerät	7
3.1.3. Höhe der zu messenden Aktivität	7
3.1.4. Korrekturfaktoren	8
3.2. Bestimmung des Wirkungsgrades des Meßgerätes	8
3.2.1. Messung der Selbstabsorption	8
3.2.2. Auswertung der Selbstabsorptions-Meßdaten zur Bestimmung von	8
3.2.3. Berechnung der absoluten Zerfallsrate	
3.3. Ermittlung der spezifischen Aktivität	

	Seite
4. <u>Durchführung der Bestimmungen</u>	9
4.1. Die Bestimmung von Ce-144	9
4.1.1. Die Fällung von Cer als $Ce_2(C_2O_4)_3 \cdot 3 H_2O$	9
4.1.2. Die Bestimmung der Cer-Aktivität	10
4.2. Die Bestimmung von Sr-89	10
4.2.1. Die Abtrennung der Y-90-Aktivität	10
4.2.2. Die Fällung von Sr^{2+} als $SrC_2O_4 \cdot H_2O$	10
4.2.3. Die Bestimmung der Sr-89-Aktivität	11
4.3. Die Bestimmung von Sr-90	11
4.3.1. Die Bestimmung von Sr-90 als $SrCO_3$	11
4.3.2. Die Bestimmung von Sr-90 als $SrC_2O_4 \cdot H_2O$	12
4.4. Die Bestimmung von Zr-95	12
4.4.1. Die Fällung von Zirkon als Tetramandelat	12
4.4.2. Die Bestimmung der Zr-95-Aktivität	13
4.5. Die Bestimmung von Nb-95	13
4.5.1. Die Fällung von Nb als $Nb_2O_5 \cdot x H_2O$	13
4.5.2. Die Bestimmung der Nb-95-Aktivität	14
4.5.3. Herstellung einer Nb-Trägerlösung	14
4.6. Die Bestimmung von Ru-103	14
4.6.1. Die Fällung von Ruthen als Metall	14
4.6.2. Die Bestimmung der Ru-103-Aktivität	15
4.7. Die Bestimmung von Ru-106	15
4.7.1. Die Fällung von Ru als Metall	15
4.7.2. Die Bestimmung der Ru-106-Aktivität	15
4.8. Die Bestimmung von Jod-131	16
4.8.1. Die Fällung von Jod als PdJ_2	16
4.8.2. Die Bestimmung der J-131-Aktivität	16
4.9. Die Bestimmung von Tc-99	16
4.9.1. Die Fällung von Tc mit Perrhenat als Tetraphenylarsoniumpertechnetat	16
4.9.2. Die Bestimmung der Tc-99-Aktivität	17
4.10. Die Bestimmung von Cs-137	17
4.10.1. Die Fällung von Cs als Cs_2PtCl_6	17
4.10.2. Die Bestimmung der Cs-137-Aktivität	17
5. <u>Fehlerbetrachtung</u>	18
<u>Literatur</u>	20

Zusammenfassung

Bei quantitativen Bestimmungen von Spaltprodukten nach der klassischen radiochemischen Methode setzt man der Spaltproduktlösung zunächst entsprechende inaktive Träger bekannter Mengen zu. Nachdem das zu bestimmende Nuklid mit seinem Träger analytisch von anderen Spaltproduktelementen abgetrennt ist, müssen Ausbeute und spezifische Aktivität des Trägerelements bestimmt werden.

Die vorliegende Arbeit beschreibt im einzelnen, wie Ausbeute und spezifische Aktivität der Spaltprodukte Ce-144, Sr-89, Sr-90, Tc-99, Zr-95, Nb-95, Ru-106, Ru-103, J-131 und Cs-137 bestimmt werden. Die Ausbeutebestimmung stützt sich auf die Methode der gravimetrischen Analyse bei Verwendung von Papierfiltern. Die Bedingungen für die erforderliche Gewichtskonstanz von Papierfiltern werden ausgearbeitet. Die Bestimmung der absoluten Zerfallsrate in den Meßpräparaten beruht auf der Bestimmung des Wirkungsgrades ξ des Zählgerätes mittels Aktivitäten, welche nach der 4π -Methode geeicht sind.

1. Untersuchungen verschiedener Filter bezüglich der Reproduzierbarkeit ihrer Gewichte

Bei der β -Messung an den herzustellenden Präparaten spielt die Selbstabsorption eine wesentliche Rolle. Deshalb muß mit möglichst kleinen Trägermengen gearbeitet werden, was beim Auswiegen des Fällungskörpers erhöhte Ansprüche an die Wägegenauigkeit stellt. In diesem Zusammenhang war es erforderlich, durch Versuche die Reproduzierbarkeit der einmal ermittelten Leerfiltergewichte kennen zu lernen, da der Fällungskörper durch Filtration auf einem gewogenen Papierfilter aufgenommen wird und so nach dem Trocknen zur Wägung gelangt.

1.1. Dimension und erforderliche Eigenschaften der Filter

Zur Filtration der Fällungen werden runde Papierfilter verwendet, welche einen Durchmesser von 29 mm haben. Eine solche Filterpapierscheibe wiegt etwa 50 mg.

Vom Filtermaterial wird erwartet, daß sich sein Gewicht durch den Einfluß der zu filtrierenden Lösungen bzw. Suspensionen nicht wesentlich verändert.

1.2. Die Waage

- - - - -

Zum Wägen der Filter dient die Mettler-Halbmicro-Waage des Typs B 6. Für Differenzwägungen gestattet die Waage eine Genauigkeit im optischen Bereich von $\pm 0,02$ mg.

1.3. Einfluß der Luftfeuchtigkeit auf das Filtergewicht

- - - - -

Alle Filterpapiersorten nehmen aus der Luft mehr oder weniger Feuchtigkeit bis zu einem von der relativen Luftfeuchtigkeit abhängigen Sättigungsgehalt auf. Dieses Verhalten macht sich beim Wägen unangenehm bemerkbar, da das Filter nach dem Trocknen durch Aufnahme von Luftfeuchtigkeit solange an Gewicht zunimmt, bis der Wassergehalt des Papiers mit dem der umgebenden Luft im Gleichgewicht steht. Und zwar ist die Gewichtszunahme pro Zeiteinheit nach dem Trocknen des Filters zunächst groß und wird dann allmählich vernachlässigbar klein.

1.3.1. Trocknen der Filter im Trockenschrank

- - - - -

Figur 1 (Anhang) zeigt das Gewicht verschiedener Papierfilter nach 1/2-stündigem Trocknen bei 110°C im Trockenschrank in Abhängigkeit von der Verweilzeit an der Luft. Im Diagramm kommt zum Ausdruck, daß nach Ablauf von ca. 25 Minuten die Veränderung des Filtergewichts durch Einfluß der Luftfeuchtigkeit praktisch vernachlässigt werden kann. Für die Reproduzierbarkeit des Filtergewichts macht man sich diese Eigenschaft des Papiers zunutze, indem man Brutto- und Tara-Wägungen unter gleichen Bedingungen ausführt. Auf diese Weise läßt sich das einmal ermittelte Filtergewicht mit guter Übereinstimmung wiederfinden. Tabelle 1 (Anhang) zeigt Vergleiche zwischen zwei Wäge-Ergebnissen, die jeweils an einem Filter bei Berücksichtigung der nach dem Trocknen erforderlichen Verweilzeit des Filters an der Luft erhalten werden.

1.3.2. Trocknen der Filter im Vakuumexsiccator

- - - - -

Einige kristallwasserhaltige Fällungskörper - wie Strontiumoxalat $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ - haben bereits nach Auswaschen mit Wasser, Alkohol und Äther, ferner nach Trocknen im Vakuumexsiccator definierte chemische Zusammensetzung. Auch diese Trocknungstechnik erlaubt gute Reproduzierbarkeit des Filtergewichts. Infolge der hierbei herrschenden milderen Trockenbedingungen wird dem Filterpapier weniger Wasser als bei Trocken-

schränktemperatur entzogen. Dies ermöglicht bereits nach 5 Minuten Stehen an der Luft konstantes Filtergewicht. Die Untersuchung ergab an mehreren Filterproben Gewichtsabweichungen von 0,02 - 0,04 mg bei einem Filtergewicht von ca. 50 mg. Das Filter, das auf der Hahn'schen Nutsche mit Wasser, Alkohol und Äther gewaschen war, wurde im Exsiccator wie folgt getrocknet: Zwei Minuten lang evakuieren, Exsiccator durch Öffnen des Hahns lüften. Anschließend 5 Minuten lang evakuieren, wieder lüften. Schließlich läßt man das Filter in einer halb abgedeckten Petrischale an der Luft 5 Minuten lang stehen und wägt dann. Während des Liegens an der Luft muß das Filter so abgedeckt werden, daß es einerseits vor herabfallenden Staubteilchen geschützt wird, andererseits genügender Luftzutritt gewährleistet ist.

1.4. Einfluß wässriger Lösungen auf das Gewicht des Filters

Gegenüber gebräuchlichen Lösungen bzw. Fällungsmedien sind die meisten Filterpapiersorten beständig. Ihr Gewicht verändert sich unter der Einwirkung mäßig saurer oder mäßig alkalischer Lösungen praktisch nicht. In Tabelle 2 sind beispielsweise Versuchsergebnisse zusammengestellt, welche zeigen, daß sich das Gewicht von Blauband-Filterpapier durch den Einfluß von 6 N HCl praktisch nicht verändert. Nach gründlichem Auswaschen mit Wasser kamen die Filterproben 30 Minuten lang bei 110°C zur Trocknung. Nach einer Verweilzeit von 1 Stunde an der Luft gelangten die Proben zur Wägung. - Papierfilter, welche nach der Behandlung mit Säure nicht genügend mit Wasser ausgewaschen sind, werden im Trockenschrank schwarz. (Dehydratisierung der Zellulose unter dem Einfluß der Säure.) -

1.5. Kontrolle der auf Filterpapier ermittelten Gewichte von Fällungskörpern durch Titration

Die Genauigkeit der Wägung von Niederschlägen auf Papierfiltern bei Berücksichtigung der in Kapitel 1.3. beschriebenen Erfahrungen ließ sich durch Titration des Wägeguts nachweisen. Diese Gewichtskontrolle ist an zwei verschiedenen Niederschlägen durchgeführt worden:

- a) an Ceroxalat - $\text{Ce}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$ -, welches bei 110°C im Trockenschrank getrocknet war;
- b) an Strontiumoxalat - $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ -, welches im Vakuumexsiccator getrocknet wurde. Titriert wurde mit n/20-KMnO₄-Lösung in verdünnter Schwefelsäure.

a) Ceroxalat nach dem Trocknen bei 110°C:

Tabelle 3 zeigt die gravimetrisch auf Papierfiltern ermittelten neben den maßanalytisch bestimmten Ceroxalattmengen.

b) Strontiumoxalat nach dem Trocknen im Vakuumexsiccator:

Wie Tabelle 4 zeigt, stimmen auch die nach der Vakuumtrockentechnik erhaltenen Niederschlagsgewichte auf Papierfiltern mit den durch Permanganattitration erhaltenen Wertengut überein.

1.6. Ergebnis

- - - - -

Es wurde gezeigt, daß durch Wägung von Niederschlägen auf Papierfiltern unter den beschriebenen Bedingungen genaue analytische Bestimmungen durchgeführt werden können. Bei der erwähnten Methode kann auf die Verwendung von Wägegäschchen verzichtet werden, was die Durchführung einer größeren Anzahl von Analysen vereinfacht.

Weil Blaubend-Filter (Firma Schleicher u. Schüll) für die Filtration vieler Arten von Niederschlägen geeignet sind, werden sie fast ausschließlich bei diesen Analysen verwendet.

2. Herstellung der Meßpräparate

2.1. Trägermengen und Volumen des Fällungsmediums

- - - - -

Die Lösungen, in welchen die zu bestimmenden Nuklide vorliegen, enthalten normalerweise ca. 10-20 mg des inaktiven Trägerelements. Die Ausfällung wird bei fast allen Nukliden in 50 ml-Bechergläschchen vorgenommen, wobei die wässrige Lösung ein Volumen von ca. 25-35 ml hat, Details bezüglich der Fällung werden in den Ausführungen über die einzelnen Nuklide beschrieben (Kap. 4).

2.2. Vorbereitung des Filters

- - - - -

Aus dem in Kapitel 1 gesagten ergeben sich die Richtlinien für die Behandlung des Filters vor dem Trieren. Das Filter wird vor der Leerwägung mit den selben Waschflüssigkeiten in der gleichen Reihenfolge behandelt, wie der zu wägende Niederschlag.

2.3. Das Filtergerät

- - - - -

Als Unterlage für das Papierfilter beim Filtrieren dient die Hahn'sche Fällungsnutsche aus Jenaer Glas. Die dazu gehörende Filteresse hat einen inneren Durchmesser von 18 mm und ist ca. 8 cm lang. Mit dem Radius von 9 mm ist eine Präparatefläche von $2,54 \text{ cm}^2$ gegeben.

Die Hahn'sche Nutsche wird auf einem Witt'schen Topf festgehalten, welcher das Auffanggefäß für das Filtrat enthält. Zum Saugen dient die Leybold-Minipumpe.

2.4. Filtration und Auswaschen des Fällungskörpers

- - - - -

Wegen der Selbstabsorption der β -Strahlen muß bei der Herstellung des Meßpräparates, insbesondere bei der Filtration des Niederschlags besondere Sorgfalt verwendet werden. Die Fällung muß sich auf dem Filter gleichmäßig ablagern, daß der so entstehende runde Präparatekuchen überall gleiche Schichtdicke erhält. Zu diesem Zweck wird die Fällung in ihrer Mutterlauge durch Umrühren aufgeschlämmt und mit Hilfe eines feinen Glasstäbchens - ohne am Filtergerät zu saugen - in die Esse übergeführt. Wenn sich der größte Teil der Fällung abgesetzt hat, saugt man die überstehende Lösung langsam durch das Filtergerät. Am Schluß saugt man scharf ab. Auf diese Weise erhält man einen gleichmäßig auf dem Filter verteilten Niederschlagskörper.

Beim Auswaschen verfährt man folgendermaßen:

Man tropft zunächst auf den zwischen Esse und Nutsche herausragenden Filterrand ringsum die Waschflüssigkeit und zieht diese durch Saugen in das Filtergerät hinein. In der Folge läßt man, ohne zu saugen, aus einer Tropfflasche die Waschflüssigkeit vorsichtig vom oberen Rand der Esse her ringsum auf den Filterkuchen rinnen, bis die ganze Niederschlagsschicht eben gerade von Flüssigkeit bedeckt ist. Dann erst saugt man ab und wiederholt den Vorgang etwa 3-4 mal, wobei auch der Filterrand nochmals zu waschen ist. Bei solchem Vorgehen bleibt die Schicht der gleichmäßig verteilten Präparate-Substanz auch während eines gründlichen Auswaschens erhalten. Nach Beenden des Auswaschens entfernt man die Filteresse vorsichtig. Schließlich löst man das Filter mittels einer Pinzette vom Filtergerät ab und legt es zum Trocknen in eine Petrischale.

2.5. Trocknen und Wägen des Präparates

- - - - -

Das Trocknen des Wägeguts richtet sich nach der Natur des Fällungskörpers. Im allgemeinen wird eine halbe Stunde lang im Trockenschrank bei 110°C getrocknet. Danach bleibt die Substanz 30 Minuten lang in der halb bedeckten Petrischale an der Luft stehen. Anschließend wird gewogen. Strontium, welches als Oxalat ($\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$) gefällt wird, wird nach der in Kapitel 1.3.2. beschriebenen Vakuumtrockentechnik im Exsiccator getrocknet. Danach bleibt das Strontiumoxalat 5 Minuten lang in der zur Hälfte bedeckten Petrischale an offener Luft stehen und wird dann gewogen.

2.6. Montieren des Präparates

- - - - -

Nach der gravimetrischen Ausbeutebestimmung werden die Präparate vor der Messung ihrer Aktivität mit einer festen Unterlage versehen und mit einer dünnen Folie abgedeckt.

Als Unterlage dient ein Aluminiumblech von 2 mm Dicke. Diese Dicke des Aluminiumbleches ergibt eine Sättigungsrückstreuung für fast alle β -Strahler. (Bei ca. $1/3$ der Elektronenreichweite erreicht die Rückstreuung der Elektronen einen Sättigungswert.) Das Aluminium-Blech wird auf einer Seite zunächst mit einem doppelseitig klebenden Tesafilm beklebt, auf dessen Mitte das Filter mit dem Präparat fixiert wird. Danach deckt man mit Mylar-Folie ab, welche durch Kleben auf den noch offenen Flächen-teilen des Tesa-Streifens festgehalten wird. Die Mylar-Folie hat ein Gewicht von $0,9 \text{ mg/cm}^2$.

Die elektrostatische Aufladung der Mylar-Folie kann sich beim Abdecken des Präparates störend bemerkbar machen. Bei Annäherung der Folie an das Präparat bewirkt die Elektrizität ein Zerstreuen der Präparatesubstanz. Deshalb wird die Folie kurz vor ihrer Verwendung mit einem Antistatikum behandelt. Zu diesem Zweck feuchtet man beide Seiten der Folie mit wässriger Antistatikum-Lösung an. Nach dieser Behandlung kann die mit einem Kleenextuch abgetrocknete Folie ohne Schwierigkeit zum Abdecken des Präparates verwendet werden.

3. Bestimmung der Zerfallsrate und der spezifischen Aktivität

3.1. Meßgerät

- - - - -

3.1.1. Beschreibung des Meßgerätes

- - - - -

Gemessen werden β -Strahlen. Als Zählrohr dient der Methandurchflußzähler des Typs MS MD 632/2 von TELEFUNKEN. Die Öffnung der Zählkammer ist durch ein dünnes Fenster mit Haltering verschlossen. Die Fensterfolie hat ein Gewicht von $0,9 \text{ mg/cm}^2$.

Der Methandurchflußzähler ist an den Digitalen Strahlungsmeßplatz MS Str 610/1 (TELEFUNKEN) angeschlossen.

Dicht unterhalb des Zählrohrfensters wird das Meßgerät in einer Schubfach-Vorrichtung festgehalten. Die Schubfachvorrichtung ermöglicht das Festhalten des Präparates in verschiedenen Positionen mit definierten Abständen vom Zählrohrfenster. (Siehe Skizze im Anhang.) Die Detektoranordnung mit dem Präparat befindet sich in einer Bleikammer vom Typ TELEFUNKEN Ms Blk 629/1.

3.1.2. Einstellungen am Meßgerät

- - - - -

Außer bei Ce-144 und Sr-89 sind die Einstellungen am Meßplatz durch folgende Daten bestimmt:

Meßspannung	3650 Volt
Totzeit	2 μsec
Verstärkung	200
Schwelle	3,0

Die Einstellungen bei den Messungen von Ce-144 und Sr-89 sind in Kapitel 4.1.2. angegeben.

3.1.3. Höhe der zu messenden Aktivität

- - - - -

Das Zählrohr kann Aktivitäten bis zu ca. 100 000 Imp/min registrieren, ohne daß Totzeitkorrekturen erforderlich sind. Die der Spaltproduktlösung entnommenen aliquoten Mengen sind deshalb so zu bemessen, daß die Zählraten 100 000 Imp/min nicht übersteigen.

3.1.4. Korrekturfaktoren

Um aus der Aktivitätsrate A die Zerfallsrate der Spaltnuklide zu erhalten, müssen Geometrie-, Absorption-, Selbstabsorptions- und Rückstrefaktoren berücksichtigt werden. Den alle die Faktoren umfassenden Gesamtkorrekturfaktor nennt man den Wirkungsgrad ϵ der Zählordnung. Es gilt $A = \epsilon \cdot Z$.

Fordert man, daß Meßposition, Größe, Schichtdicke, Abdeckung, Unterlage etc. aller Präparate konstant sind, so genügt im Prinzip die Bestimmung der Aktivitätsrate eines einzigen Präparates mit bekannter Zerfallsrate zur Berechnung von ϵ . Mit Ausnahme der Präparatdicke können diese Forderungen experimentell leicht erfüllt werden. Um den Einfluß der Präparatdicke auf ϵ zu bestimmen, mißt man die Aktivitätsrate einer Reihe von Präparaten mit bekannter spezifischer Zerfallsrate, jedoch unterschiedlicher Schichtdicke.

3.2. Bestimmung des Wirkungsgrades ϵ des Meßgerätes

3.2.1. Messung der Selbstabsorption

Für jedes der zu bestimmenden Spaltnuklide werden Selbstabsorptionsmessungen an einer Reihe von Präparaten durchgeführt, deren bekannte spezifische Aktivitäten innerhalb einer Präparatereihe gleich sind. Zu diesem Zweck werden aus einer Lösung bekannten Trägergehaltes und bekannter Aktivität nach Ausfällen des Nuklids jeweils Präparate verschiedener Gewichte, jedoch gleicher spezifischer Aktivität hergestellt.

Im Anhang sind die Aktivitätsraten für die untersuchten Nuklide in Abhängigkeit von der Flächenbelegung d (= mg Niederschlag/cm² Präparatefläche) graphisch dargestellt. (Figur 2 bis 12.)

3.2.2. Auswertung der Selbstabsorptionsmeßdaten zur Bestimmung von ϵ

Aus den in den Figuren 2-12 gezeigten Diagrammen kann für jede Flächenbelegung die gemessene Aktivität abgelesen werden. Da ferner die bei den Selbstabsorptionsmessungen eingesetzten wahren Aktivitäten bekannt sind, wird durch Bildung des Verhältnisses $A_{\text{gemessen}}/Z_{\text{absolut}}$ für jede Flächenbelegung und für jedes Spaltnuklid der Wirkungsgrad ϵ des Meßgerätes berechnet.

In den Figuren 13 bis 23 sind die Wirkungsgrade ϵ für die verschiedenen Nuklide gegen die Flächenbelegung d graphisch dargestellt.

3.2.3. Berechnung der absoluten Zerfallsrate

Die Beziehung $Z = \frac{A}{\epsilon}$ gestattet es, aus der gemessenen Aktivität eines Präparates von unbekannter Zerfallsrate die Zerfallsrate zu berechnen. Voraussetzung ist, daß das Präparat unter den gleichen Bedingungen gemessen wird, welche bei der Messung der Selbstabsorption geherrscht haben.

3.3. Ermittlung der spezifischen Aktivität

Nach der gewichtsanalytischen Bestimmung des Trägerelements und nach der Bestimmung der absoluten Zerfallsrate ist die spezifische Aktivität im Präparat gegeben. Sie wird definiert als Anzahl Zerfälle pro Milligramm des betreffenden Elements und pro Minute (Imp/mg · min).

4. Durchführung der Bestimmungen

Sowohl die Durchführung der Selbstabsorptionsmessungen als auch die Bestimmung der spezifischen Aktivität in den Analysenlösungen setzen sich im wesentlichen aus den folgenden drei Arbeitsgängen zusammen: Herstellen, Wägen und Messen der Präparate.

Es wird daher im folgenden nur die Bestimmung der spezifischen Aktivität an den einzelnen Nukliden beschrieben.

4.1. Die Bestimmung von Ce-144

Ce wird als Ce-III-oxalat - $Ce_2(C_2O_4)_3 \cdot 3 H_2O$ - nach der Methode von L.A.Congdon und E.L.Ray¹⁾ im schwach saueren Milieu gefällt und als solches gewogen.

4.1.1. Die Fällung von Ce als $Ce_2(C_2O_4)_3 \cdot 3 H_2O$

Die nach der Abtrennung vorliegende Ce^{3+} -Lösung ist stark salpetersauer. Bei der Fällung wird daher folgendermaßen verfahren:

Man füllt die Lösung im 50er Becher bis zu ca. 25-30 ml mit Wasser auf, versetzt mit 1 ml 5 %iger Ammoniumoxalatlösung und erhitzt fast zum Sieden. Nun versetzt man tropfenweise vorsichtig zunächst mit konz. NH_4OH . Wenn sich der an der Eintropfstelle bildende Niederschlag beim Umrühren nur noch langsam auflöst, gibt man tropfenweise 6 N NH_4OH hinzu, bis der Niederschlag eben gerade bestehen bleibt. (Gut umrühren!) Die Probe soll mit pH-Papier eben noch schwach sauer reagieren. Man läßt unter öfterem Umrühren abkühlen, filtriert durch ein Blaubandfilter und wäscht Niederschlag und Filter gut mit Wasser aus.

Trocknen bei 110°C 30 Minuten lang. 30 Minuten lang in halbbedeckter Petri-schale stehen lassen und wägen als $Ce_2(C_2O_4)_3 \cdot 3 H_2O$.

Umrechnungsfaktor für Ce: 0,4684.

4.1.2. Die Bestimmung der Ce-Aktivität

Gemessen wird die β -Strahlung des Praseodym-144 ($\beta_{\max} = 2,98$ MeV), welches mit Ce-144 im radioaktiven Gleichgewicht steht. Die Messung erfolgt in Position 2 der Meßanordnung, wobei die β -Strahlen des Ce-141 mit einer Aluminiumfolie von $201,2 \text{ mg/cm}^2$ absorbiert werden.

Die Einstellung am Meßgerät ist folgende:

3,60 kV; Schwelle 2,0; Verstärkung 400; Totzeit 2 μsec .

Der Wirkungsgrad ϵ des Meßgerätes ist für alle Flächenbelegungen bei den genannten Bedingungen: $\epsilon = 0,1422$. (Figur 13.)

4.2. Die Bestimmung von Sr-89

4.2.1. Die Abtrennung der Y-90-Aktivität

Aus Spaltprodukten abgetrenntes Sr-89 enthält Sr-90. Das Tochternuklid von Sr-90, Y-90 ist ebenfalls radioaktiv und hat eine β -Maximalenergie von 2,27 MeV.

Bei der Analyse auf Sr-89 muß deshalb vor der Endfällung Y-90 durch eine $\text{Fe}(\text{OH})_3$ -Fällung abgetrennt werden. Zu diesem Zweck füllt man die Probe in einem 50er Becher mit Wasser bis zu einem Volumen von 10 ml auf und gibt 1 ml Fe^{3+} -Trägerlösung (ca. 5 mg Fe^{3+}/ml als FeCl_3) hinzu. Nach Zugabe von 2 ml 6 N NH_4OH in der Kälte, rührt man gut um und filtriert durch ein Papierfilter (Saugnutsche), wobei die Uhrzeit bestimmt wird. Das Filtrat fängt man in einem 50er Becherglas auf, in welchem dann die Fällung des $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ vorgenommen wird.

4.2.2. Die Fällung von Sr^{2+} als $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$

Die Bestimmung von Sr^{2+} als $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ wird von Sunderman und Towley²⁾ beschrieben.

Das ammoniakalische Filtrat der $\text{Fe}(\text{OH})_3$ -Fällung, welches das zu bestimmende Strontium enthält, erhitzt man fast zum Sieden und versetzt langsam mit 5 ml 5 %iger Ammoniumoxalatlösung. Beim Abkühlenlassen rührt man öfter um und filtriert anschließend durch ein gewogenes Blaubandfilter. Man wäscht sukzessive mit Wasser, Alkohol und Äther. Das Trocknen geschieht nach der im Kapitel 1.3.2. beschriebenen Vakuumtrockentechnik. Wägen als $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$. Faktor: 0,4525.

4.2.3. Die Bestimmung der Sr-89-Aktivität

Infolge der Nachbildung von Y-90 muß die Sr-89-Aktivität noch vor Ablauf von 4 Stunden nach der $\text{Fe}(\text{OH})_3$ -Fällung gemessen werden³⁾. Gemessen wird die β -Strahlung des Sr-89 ($\beta_{\text{max}} = 1,46 \text{ MeV}$) in Position 2 der Meßanordnung, wobei eine Aluminiumfolie von 196 mg Al/cm^2 verwendet wird, um die β -Strahlen des Sr-90 zu absorbieren. Die Einstellungen am Meßgerät sind die gleichen, wie bei der Messung von Ce-144 (Kapitel 4.1.2.). Der Wirkungsgrad ϵ ist aus Figur 16 ersichtlich.

4.3. Die Bestimmung von Sr-90

4.3.1. Die Bestimmung von Sr-90 als SrCO_3

a) Die Fällung von SrCO_3

Die ca. 10-15 mg Sr-Träger enthaltende Lösung füllt man im 50er Bechergläschen mit Wasser zu ca. 20-25 ml Volumen auf und macht mit ca. 2 ml 2 N NH_4OH ammoniakalisch. Dann erhitzt man fast bis zum Sieden und gibt 2,5 ml $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ -Lösung hinzu (200 mg Ammoniumcarbaminat in 30 ml Wasser gelöst). Gut umrühren. Nach dem Abkühlen filtriert man durch ein gewogenes Blaubandfilter und wäscht mit Wasser gut aus. Trocknen: 30 Minuten bei 110°C . Danach 30 Minuten abkühlen lassen. Wägen als SrCO_3 . Umrechnungsfaktor für Sr: 0,5935. Als Trägermengen sind 10-12 mg Strontium zu empfehlen.

b) Die Bestimmung der Sr-90-Aktivität

Gemessen wird die β -Aktivität des Y-90, welches sich mit Sr-90 im radioaktiven Gleichgewicht befinden muß. Deshalb muß vom Zeitpunkt der Endfällung an noch ca. 18 Tage lang bis zur Aktivitätsmessung des Präparates gewartet werden. Bei der Messung befindet sich das Präparat in Position 2 der Meßanordnung, wobei eine Al-Absorberfolie mit einem Gewicht von 215 mg Al/cm^2 verwendet wird. Unter diesen Bedingungen beträgt der Wirkungsgrad des Zählgerätes bei allen Flächenbelegungen: $\epsilon = 0,1212$. (Figur 14.)

4.3.2. Die Bestimmung von Sr-90 als Strontiumoxalat

a) Die Fällung von $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$

Die Fällung von Sr^{2+} als Oxalat ist in Kapitel 4.2.2 bereits ausführlich beschrieben worden.

Bei Verwendung der Oxalatmethode sollten Trägermengen von 10-20 mg Sr^{2+} eingesetzt werden.

b) Die Bestimmung der Sr-90-Aktivität

Man verfährt genau so, wie in Kapitel 4.3.1. b) beschrieben ist.

Der Wirkungsgrad ϵ des Zählgerätes beträgt für alle Präparategewichte:

$$\epsilon = 0,1195. \text{ (Figur 15).}$$

4.4. Die Bestimmung von Zr-95

4.4.1. Die Fällung von Zr als Zirkontetramandelat

Zirkon wird nach Oesper und Klingenberg⁴⁾ aus salzsaurem Medium mit 16 %iger Mandelsäure als Fällungsreagens ausgefällt. Als Trägermengen sind 3-6 mg Zr zu empfehlen. Die dem entsprechenden Zirkontetramandelat- auswaagen liegen zwischen 23 und 50 mg.

Für die Messung der Aktivität muß Nb-95 zuerst abgetrennt werden. Zur Abtrennung des Nb-95 kann man nach NAS-NS 3011, The Radiochemistry of Zirconium, Seite 25, verfahren.

Die das Zirkon enthaltende Lösung (ca. 5 mg Zr) versetzt man - am besten in einem 40 ml-Zentrifugenglas - mit 1 ml konz. Salzsäure und verdünnt auf ein Volumen von 10 ml. Man erhitzt die Lösung, indem man das Zentrifugenglas in ein siedendes Wasserbad taucht. Nachdem unter Rühren 20 ml einer 16 %igen Mandelsäurelösung zugegeben worden sind, beläßt man das Gefäß noch etwa 20 Minuten im Wasserbad. In dieser Zeit koaguliert die Fällung, so daß sie sich nach dem Erkalten gut filtrieren läßt. Man filtriert durch ein gewogenes Blaubandfilter und wäscht sukzessive mit Wasser, Alkohol und Äther gut aus. Trocknen bei 110°C, 30 Minuten. Danach 30 Minuten lang an der Luft stehen lassen. Wägen als $\text{Zr}(\text{C}_6\text{H}_5\text{CHOHCOO})_4$. Faktor: 0,1311.

Beim Montieren des Präparates ist dafür Sorge zu tragen, daß auf den Präparatekuchen kein mechanischer Druck ausgeübt wird. Die Konsistenz des Fällungskörpers ist von weicher Beschaffenheit, weshalb sich durch Andrücken die Präparatefläche leicht ausdehnt. Dies führt zu anderen Selbstabsorptionsverhältnissen und damit zu falschen Meßergebnissen.

4.4.2. Die Bestimmung der Zr-95-Aktivität

Gemessen wird die β -Aktivität des Zr-95. Das Tochternuklid Nb-95 muß vor der Endfällung des Zirkons abgetrennt werden (Literaturhinweis siehe Kapitel 4.4.1.). Bei Verwendung des ermittelten Wirkungsgrades ϵ muß sich das Präparat während der Messung in Position 1 der Meßanordnung befinden. Der Wirkungsgrad ϵ ist aus Figur 17 ersichtlich.

4.5. Die Bestimmung von Nb-95

4.5.1. Die Fällung von Niob als $Nb_2O_5 \cdot xH_2O$

Meist liegt Niob nach seiner Abtrennung von anderen Spaltprodukten als Oxalat-Komplex vor. Um das Element als Oxidhydrat aus dieser Lösung auszufällen, muß der Oxalat-Komplex oxydativ zerstört werden. Man verfährt dabei folgendermaßen (Lit.: NAS-NS 3039, Seite 24):

Die Analysensubstanz, welche ca. 5-20 mg Niob als Oxalatkomplex enthalten kann (siehe Kapitel 4.5.3.), versetzt man in einem 50er Zentrifugenglas mit 3 ml Wasser und 5 ml konz. Salpetersäure. Nachdem man erhitzt hat, versetzt man portionsweise mit ca. 0,5 g $KClO_3$. Nachdem die Chlorentwicklung nachgelassen hat, erhitzt man noch etwa 5 Minuten lang weiter.

Inzwischen ist $Nb_2O_5 \cdot xH_2O$ ausgefallen. Die Fällung wird abzentrifugiert. Nach dem Dekantieren der überstehenden Lösung wäscht man den Niederschlag mit 3 ml 6 N HNO_3 aus (Zentrifuge!). In gleicher Weise wäscht man mit 2 ml 6 N NH_4OH und schließlich mit heißem Wasser (das Wasser soll etwas NH_4NO_3 enthalten, um Peptisation des Niederschlags zu vermeiden). Nun gibt man die Fällung in einem gewöhnlichen Analysentrichter auf ein aschefreies Papierfilter (Blauband) und wäscht nochmals mit NH_4NO_3 -enthaltendem Wasser gut aus.

Dann trocknet man bei ca. 110°C und verascht in einem Glühtiegel.

Anschließend glüht man 20 Minuten lang bei 800°C. Nach dem Abkühlen (Exsiccator!) schlämmt man das Glühgut mit Äthanol auf und zerreibt es mit einem am Ende rund geschmolzenen Glasstab sorgfältig zu einem sehr feinen Pulver. Nun bringt man die Fällung mittels Äthanol auf ein gewogenes Filter und sorgt wie üblich für eine gleichmäßig verteilte Präparateschicht. Auswaschen ist nicht mehr erforderlich.

Man trocknet bei 110°C (30 Minuten) und läßt abkühlen (30 Minuten).

Wägen als Nb_2O_5 . Faktor: 0,6990.

4.5.2. Die Bestimmung der Nb-95-Aktivität

Man mißt in Position 1 der Meßanordnung. Der Wirkungsgrad kann für die einzelnen Flächenbelegungen aus Figur 18 abgelesen werden.

4.5.3. Herstellung einer Nb-Trägerlösung

3,57 g Nb₂O₅ (Firma FLUKA, Schweiz) gibt man in eine Platinschale und versetzt dort mit 1 ml konz. Salpetersäure. Man engt auf schonender Flamme so oft mit jeweils 2-4 ml konz. HF ein, bis sich alles gelöst hat. (Dies dauert ca. 1-1¹/₂ h.) Dann nimmt man mit 45 ml Wasser auf und verteilt gleichmäßig auf zwei 50 ml Zentrifugengläser. Dort fällt man durch Zugabe von 2-3 ml konz. NH₄OH Nb₂O₅ · xH₂O aus. Man zentrifugiert und wäscht sukzessive mit 1 M NH₄OH und mit NH₄NO₃-enthaltendem Wasser viermal aus. Die in einem 400 ml Becherglas vereinigten Fällungen teigt man mit 1,5 ml 6 N HNO₃ an und versetzt dann mit 50 ml gesättigter Oxalsäurelösung. Nun rührt man bei Siedehitze mit dem Magnetrührer und gibt nach 1/2 h noch 25 ml gesättigte Oxalsäurelösung hinzu. In der Folge tritt rasch Aufhellung der Lösung ein. Nachdem man die Lösung filtriert hat (Blauband), füllt man bis zu einem Volumen von 250 ml auf. Diese Trägerlösung hat einen Gehalt von ca. 10 mg Nb/ml.

4.6. Die Bestimmung von Ru-103

4.6.1. Die Fällung von Ruthen als Metall

Das Ruthen wird bei seiner analytischen Bestimmung aus salzsaurem Milieu durch Reduktion mittels Magnesium-Pulver als Metall ausgefällt und als solches gewogen. Glendenin⁵⁾ beschreibt diese Methode bei der Analyse von Spaltruthen.

In einem 400er Becherglas (hoch, mit Uhrglas!) wird die Ruthenlösung, welche ca. 2 ml konz. HCl enthält, auf etwa 30 ml verdünnt. In kleinen Portionen gibt man Mg-Pulver zu, wobei man vorsichtig das Glas in schwenkender Bewegung hält. Die Mg-Zugabe erfolgt so lange (ca. 400mg Mg), bis sich die gegen Ende entstehende blaue Lösung (Ru²⁺!) nach schwarzgrau verfärbt. (Notfalls gibt man noch 0,5-1 ml konz. HCl zu.)

Nun spült man Uhrglas und Becherwandung mit wenig Wasser ab, um dann die Lösung noch 2 Minuten zum Sieden zu erhitzen. Danach setzt man zuerst ca. 0,5 ml konz. HCl zu, läßt das überschüssige Magnesiumpulver reagieren und versetzt dann noch mit 9 ml konz. HCl, indem man diese vom oberen Rand des Becherglases her langsam ringsherum in die Lösung laufen läßt. Nun spült man die Wandung wiederum mit wenig Wasser ab und läßt danach nochmals 2 Minuten lang kochen. Die über der Fällung stehende Lösung muß farblos und klar sein. Nach dem Erkalten wird durch ein gewogenes Blaubandfilter filtriert.

Um bei der Filtration eine sehr schöne und gleichmäßig verteilte Präparatsubstanz zu erhalten, hat sich folgendes Verfahren recht gut bewährt: Nach dem Erkalten der Ruthenfällung rührt man diese mit einem Magnetrührer in ihrer Mutterlauge 2-3 Minuten lang kräftig durch.

Den Niederschlag wäscht man zuerst mit Wasser, dann mit Äthanol. Trocknen bei 110°C (30 Minuten). Nach weiteren 30 Minuten wägen als Ru.

Zu empfehlende Ruthenmenge: 9-15 mg Ru.

4.6.2. Die Pestimmung der Ru-103-Aktivität

- - - - -

Die Messung erfolgt in Position 1 der Meßanordnung. Der Wirkungsgrad ist aus Figur 19 ersichtlich.

4.7. Die Bestimmung von Ru-106

- - - - -

4.7.1. Die Fällung von Ru als Metall

- - - - -

Die Methode ist in Kapitel 4.6.1. beschrieben.

4.7.2. Die Bestimmung der Ru-106-Aktivität

- - - - -

Gemessen wird die β -Strahlung des Tochternuklids Rhodium-106, welches mit Ru-106 im radioaktiven Gleichgewicht steht. Das Präparat befindet sich dabei in Position 2 der Meßanordnung. In Position 1 befindet sich ein Aluminium-Absorber von 53,9 mg Al/cm² um die β -Strahlen des Ru-103 zurückzuhalten.

Der Wirkungsgrad ϵ des Zählgerätes ist aus Figur 20 ersichtlich.

4.8. Die Bestimmung von Jod-131

4.8.1. Die Fällung von Jod als PdJ₂

Jod wird als Jodid nach Scott's Standard Methods⁶⁾ in Form des Palladiumjodids gefällt und gewogen.

Als Jodid-Trägermengen sind ca. 6-16 mg Jodid zu empfehlen. Die zu analysierende Probe füllt man in einem 50 ml Bechergläschen zu einem Volumen von etwa 25 ml auf, setzt 5 Tropfen 6 N HCl hinzu und erhitzt zum Sieden. Dann versetzt man tropfenweise mit 2 ml gesättigter PdCl₂-Lösung, während man gleichzeitig umrührt. Nun läßt man erkalten und filtriert durch ein tariertes Blaubandfilter. Den Niederschlag wäscht man zuerst mit Wasser, dann mit Alkohol gut aus. Trocknen bei 110°C (30 Minuten). Nach 30 Minuten Abkühlzeit wird gewogen als PdJ₂.

Faktor: 0,7046.

4.8.2. Die Bestimmung der J-131-Aktivität

Gemessen wird die β-Strahlung des J-131 in Position 1 der Meßanordnung. Der Wirkungsgrad des Zählgerätes ist in Figur 21 abzulesen.

4.9. Die Bestimmung von Tc-99

4.9.1. Die Fällung von Tc mit Perrhenat als Teträphenylarsoniumpertechnetat

Technetium wird als Teträphenylarsoniumpertechnetat ausgefällt, wobei Perrhenat als Trägerion dient. Über die Fällung von Perrhenat als Teträphenylarsoniumsalz berichten Villard und Smith⁷⁾.

Das beste Fällungsmedium für gute Kristallisation ist 0,5 M NaCl. Nitrate dürfen nur in Spuren anwesend sein. MnO₄⁻, JO₄⁻, ClO₄⁻, SCN⁻, J⁻, Br⁻ und F⁻ stören! Ebenso stören diejenigen Kationen, welche in Gegenwart von 0,5 M Cl⁻ Chlorokomplex bilden. Letztere können mit Teträphenylarsoniumionen ausfallen.

Die zu analysierende Probe, welche 5-10 mg Re-Träger (als Perrhenat) enthalten kann, wird in einem 50er Bechergläschen auf 11 ml aufgefüllt. Dazu gibt man 15 ml 1 M NaCl-Lösung, erhitzt zum Sieden und tropft langsam unter Rühren 3 ml 0,04 M (C₆H₅)₄AsCl-Lösung hinzu.

(457 mg $(C_6H_5)_4AsCl \cdot HCl$ in 25 ml Wasser lösen und filtrieren.)

Nach dem Erkalten filtriert man durch ein gewogenes Blaubandfilter und wäscht schließlich mit Wasser gut aus. Trocknen bei $110^\circ C$ (30 Minuten).

Nach 30 Minuten Abkühlzeit wägen als $(C_6H_5)_4AsReO_4$.

Faktor: 0,2938.

4.9.2. Die Bestimmung der Tc-99-Aktivität

Die montierte Analysenprobe wird in Position 1 der Meßanordnung gemessen. Beim Montieren des Präparates darf der Präparatekuchen nicht angedrückt werden. Hier gilt das gleiche, was in Kapitel 4.4.1. bezüglich der Veränderung der Selbstabsorptionsverhältnisse gesagt ist.

4.10. Die Bestimmung von Cs-137

4.10.1. Die Fällung von Cs als Cs_2PtCl_6 ⁸⁾

Die Analysenprobe, welche ca. 20 mg Cäsium-Träger enthalten kann, wird in einem 50 ml Bechergläschen auf 20 ml Volumen aufgefüllt. Nach dem Ansäuern mit 3 Tropfen $6 N HCl$ gibt man 1 ml 10 %ige Hexachloroplatin-IV-säure zu. Nachdem man auf dem Dampfbad bis zur Bildung einer dicken Paste eingeeengt hat, läßt man erkalten (!) und behandelt dann den Rückstand mit 80 %igem Äthanol. Danach filtriert man durch ein Blaubandfilter und wäscht mit 80 %igem Äthanol gut aus. Trocknen bei $110^\circ C$ (30 Minuten). Nach weiteren 30 Minuten wägen als Cs_2PtCl_6 .

Faktor: 0,3944

4.10.2. Die Bestimmung der Cs-137-Aktivität

Gemessen wird die β -Aktivität von Cs-137 in Position 1 der Meßanordnung. Der Wirkungsgrad ϵ ist in Figur 23 gegen die Flächenbelegung d dargestellt.

5. Fehlerbetrachtung

Die beschriebene Bestimmungsmethode birgt Quellen für systematische Fehler, auf welche in den vorangegangenen Abschnitten bereits hingewiesen wurde. Dabei bildet die Selbstabsorption die wichtigste Fehlerquelle beim Messen der Aktivität. Aber auch die veränderliche Ansprechwahrscheinlichkeit des Zählgerätes muß jeweils bei vergleichenden Messungen berücksichtigt werden, da sich mit ihr der Wirkungsgrad ϵ verändert. So haben z.B. Reparaturen am Zählgerät manchmal veränderte Zählraten an Standardproben zur Folge. Die Veränderung der Ansprechwahrscheinlichkeit im Zählgerät wird durch Messen geeigneter Standardproben kontrolliert. Die β -Energie der Standardprobe soll dabei vergleichbar sein mit derjenigen des zu bestimmenden Nuklids. Wenn es die Größe der Halbwertszeit erlaubt, hält man sich am besten von jedem zu bestimmenden Nuklid eine Standardmeßprobe zur Kontrolle bereit. Tc-99, Sr-90 und Cs-137 sind zum Beispiel dafür geeignet.

Um zu sehen, welche Genauigkeit bei den Bestimmungen erreicht werden kann, sind für jedes behandelte Nuklid ca. 5 Analysen durchgeführt worden. Zu diesem Zweck wurden trägerarme Nuklidlösungen, deren Aktivitäten mittels der 4π -Methode geeicht waren, mit bekannten Trägermengen versehen. Der Aktivitätsgehalt dieser Lösungen wurde dann nach den beschriebenen Verfahren bestimmt. Der mittlere Fehler der Einzelbestimmung

$$f_m = \pm \sqrt{\frac{\sum (f^2)}{n - 1}}$$

ist ein Maß für die Genauigkeit der Bestimmungsmethode. f ist dabei die Abweichung der gefundenen Aktivität von der vorgelegten Aktivität in %. Die Werte für f_m sind in Tabelle 6, Spalte b, für alle bearbeiteten Nuklide zusammengestellt. Die Genauigkeitsangabe bezieht sich dabei nur auf die Operationsschritte, soweit sie in der vorliegenden Arbeit beschrieben sind. Sie setzt also saubere Abtrennung der Nuklide von anderen Spaltprodukten voraus.

Auch für die Messungen bei den Selbstabsorptionsversuchen ist der mittlere Fehler der Einzelbestimmung f_m angegeben (Tabelle 6, Spalte a). Bei diesen Messungen ist f die Abweichung der einzelnen Meßpunkte von der Selbstabsorptionskurve, ebenfalls in % angegeben. Die Kurve ist in den Selbstabsorptionsdiagrammen visuell so gezeichnet worden, daß sich die Meßpunkte ihr bei stetigem Kurvenverlauf anschmiegen. Dabei wurde angenommen, daß die so gezeichnete Kurve die besten Mittelwerte für die Meßergebnisse darstellt.

Die vergleichbaren Genauigkeiten, welche in Selbstabsorptionsmeßreihen und Probeanalysen erreicht wurden, deuten auf die Richtigkeit dieser Annahme hin.

Bei allen Messungen wurden jeweils ca. 50.000 bis 80.000 Impulse registriert, was einer Standardabweichung von $\sigma \pm 0,5 \%$ entspricht.

Frau Gerlinde Kölle sei für ihre wertvolle Mithilfe bei der Durchführung dieser Arbeit gedankt.

Literatur

- 1) L.A.Congdon, E.L.Ray,
Chem. News 128, 233 (1924)
- 2) D.N.Sunderman, C.W.Townley,
NAS 3010, Seite 99
- 3) Elton Turk,
ANL - 5184 (Dez. 1953)
- 4) R.E.Oesper, J.J.Klingenberg,
Anal. Chem. 21, 1509 (1949)
- 5) L.E.Glendenin, E.P.Steinberg,
NAS-NS-3011
- 6) Scott's Standard Methods of Chem.Analysis
N.G.Furman, 5th Ed., Vol.I, p.452
- 7) H.H.Willard, G.M.Smith,
Ind.Eng.Chem., Anal.Ed.11, 305 (1939)
- 8) Scott's Standard Methods of Chem.Analysis
N.H.Furman, 5th Ed., Vol.I, p.871 f.

Tabelle 1

S. u. S. Blauband Probe Nr.	Gewicht nach der 1. Behand- lung	Gewicht nach der 2. Be- handlung	mg Abwei- chung	Abweichung in %
1	54,50	54,50	0,00	0,0
2	53,57	53,73	+0,16	0,3%
3	53,67	53,69	+0,02	0,0
4	51,19	51,18	-0,01	0,0

Tabelle 2

Filtersorte	Gewicht in mg vor Behandlung	Gewicht in mg nach Be- handlung	Differenz in mg	Differenz in %
Blauband	57,81	57,91	0,10	0,2
Blauband	54,52	54,57	0,05	0,0
Blauband	56,73	56,77	0,04	0,0

Tabelle 3

Probe Nr.	mg Ceroxalat gewogen	mg Ceroxalat titriert	Filtersorte
1	17,29	17,30	Blauband
2	16,93	16,95	Blauband
3	17,29	17,30	Blauband
4	16,90	16,95	Blauband
5	17,17	17,13	Blauband

Tabelle 4

Probe Nr.	mg $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ gewogen	mg $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ titriert	Filtersorte
1	43,43	43,45	Blauband
2	41,93	41,85	Blauband
3	20,13	20,06	Blauband
4	20,87	20,86	Blauband

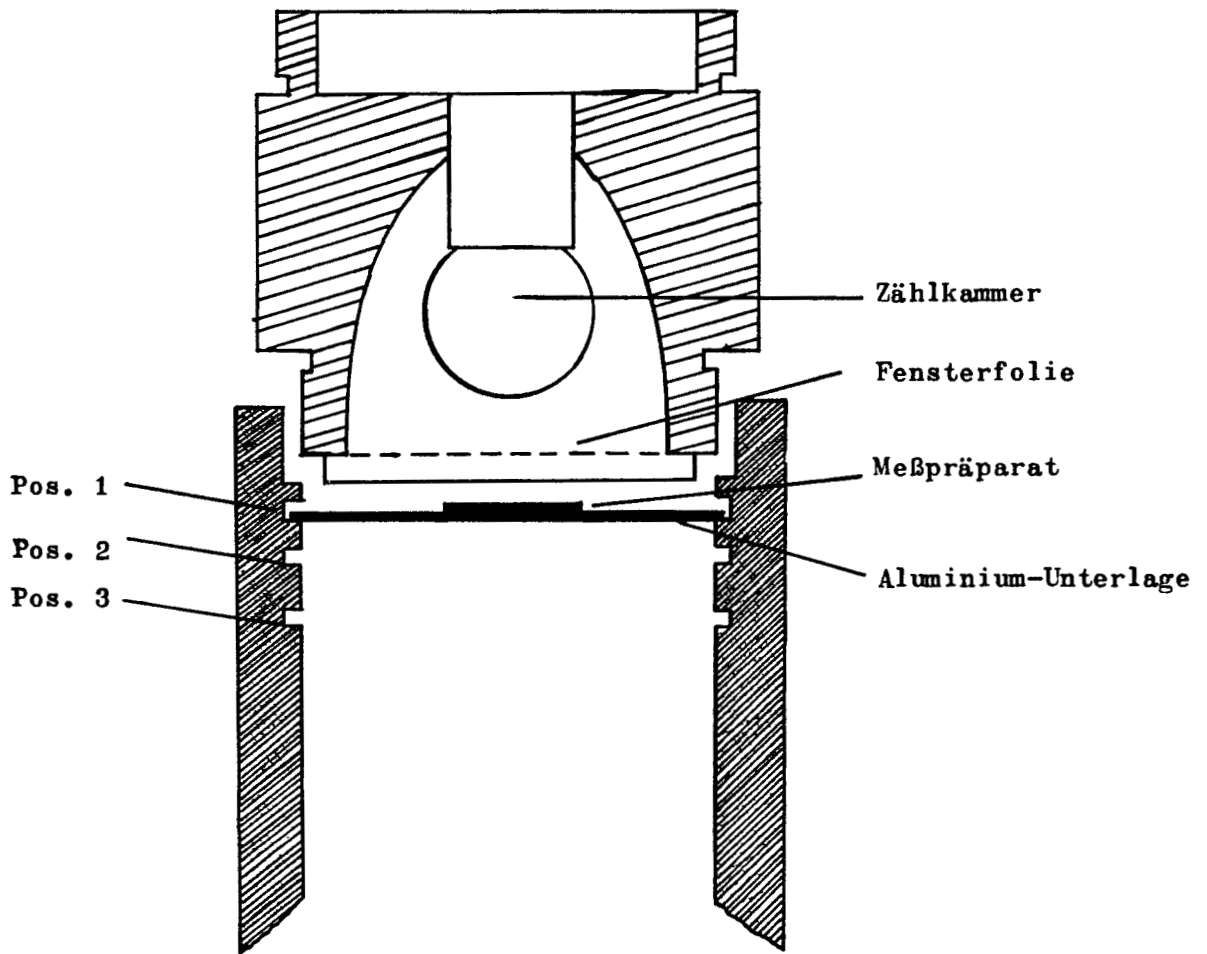
Beispiele für Beleganalysen

Tabelle 5

Nuklid	μC vorgelegt	μC gefunden	% Abweichung	Probe Nr.
Sr-89	0,01957	0,01931	-1,3	1
	0,02109	0,02102	-0,3	2
	0,02249	0,02231	-0,8	3
	0,02130	0,02111	-0,9	4
	0,02338	0,02353	+0,6	5
Sr-90	0,0235	0,0240(7)	+2,1	1
	0,0218	0,0219	+0,4	2
	0,0275	0,0274	-0,36	3
	0,0280	0,0278(2)	-0,7	4
Tc-99	0,0241	0,0241	0	1
	0,02173	0,02199	+1,0	2
	0,02572	0,0272	+5,5	3
	0,0265	0,02648	0	4
	0,03742	0,03747	0	5
	0,02507	0,02594	+3,3	6
	0,0255	0,0244	-4,2	7
Zr-95	0,03256	0,03219	-1,1	1
	0,03718	0,03737	+0,5	2
	0,05038	0,04906	-2,6	3
	0,03115	0,03207	+2,9	4
	0,04719	0,04681	-0,8	5
	0,03127	0,03062	-2	6
	0,03131	0,03132	0	7
	0,03128	0,03141	+0,4	8

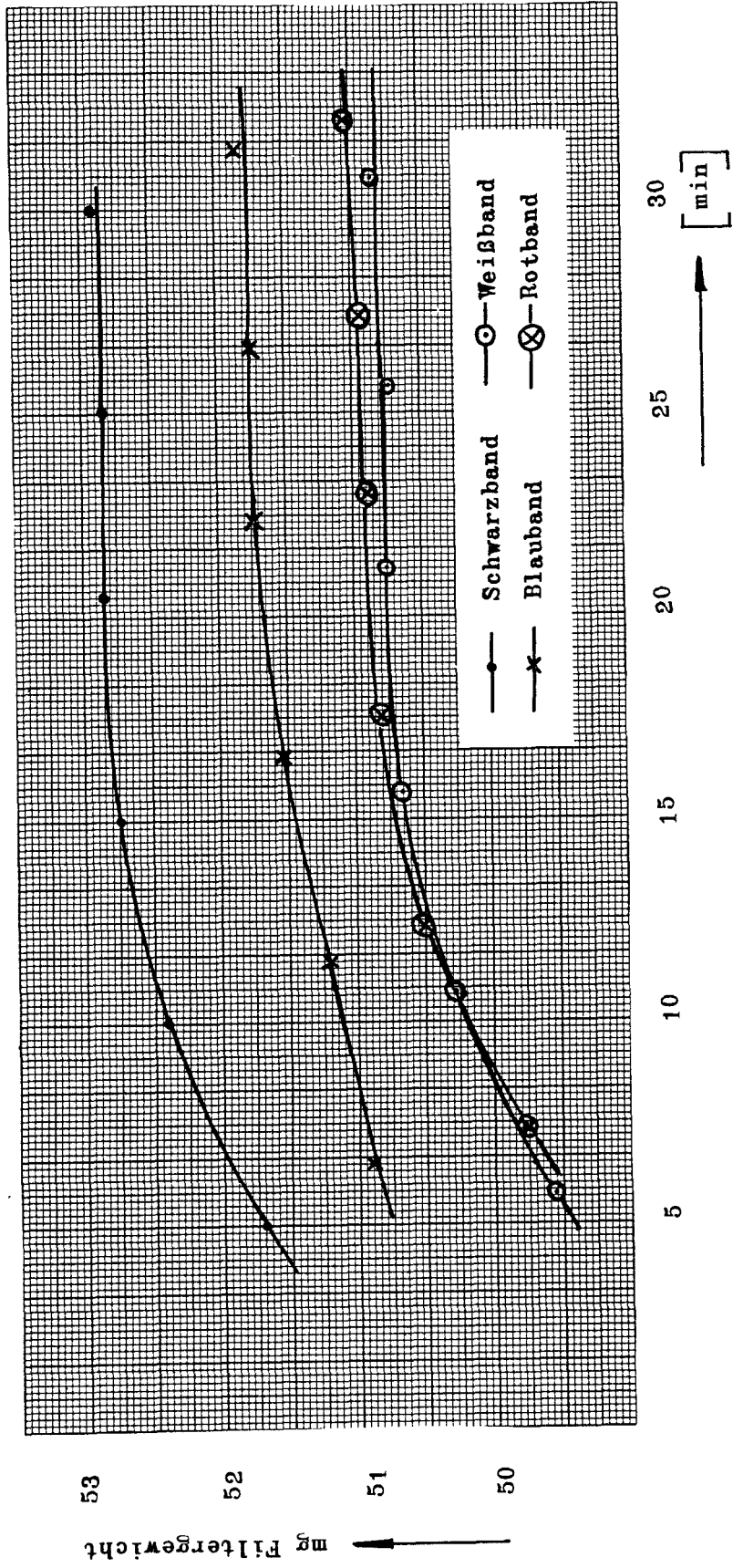
Tabelle 6

Nuklid	a)	b)	Bemerkung
	f_m in Selbstabsorptions- reihe in %	f_m in Probeanalysen in %	
Ce-144	$\pm 1,1\%$	$\pm 1,8\%$	
Sr-89	$\pm 1,2\%$	$\pm 0,9\%$	als $\text{SrC}_{204} \cdot \text{H}_2\text{O}$
Sr-90	$\pm 0,87\%$	$\pm 1,2\%$	als SrCO_3
Sr-90	$\pm 1,1\%$	$\pm 0,96\%$	als $\text{SrC}_{204} \cdot \text{H}_2\text{O}$
Zr-95	$\pm 1,3\%$	$\pm 0,8\%$	bei Auswaagen von 30-50 mg Fällung
Nb-95	$\pm 1,9\%$	$\pm 0,6\%$	
Ru-103	$\pm 0,9\%$	$\pm 1,8\%$	
Ru-106	$\pm 1,7\%$	$< \pm 1,0\%$	
J-131	$\pm 0,7\%$	$\pm 1,07\%$	
Tc-99	$\pm 0,87\%$	$\pm 1,7\%$	
Cs-137	$\pm 0,77\%$	$\pm 1,2\%$	

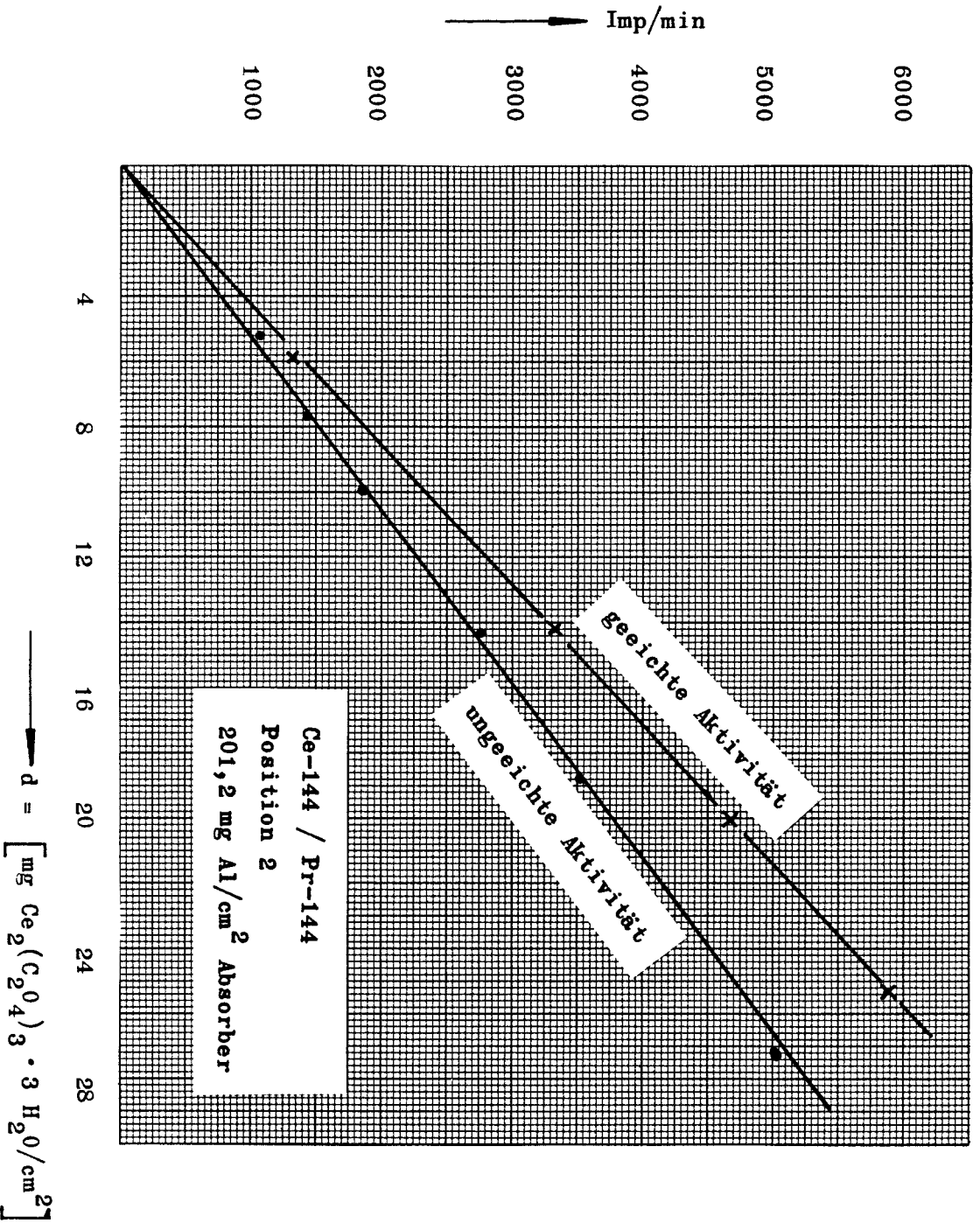


Skizze der Meßanordnung

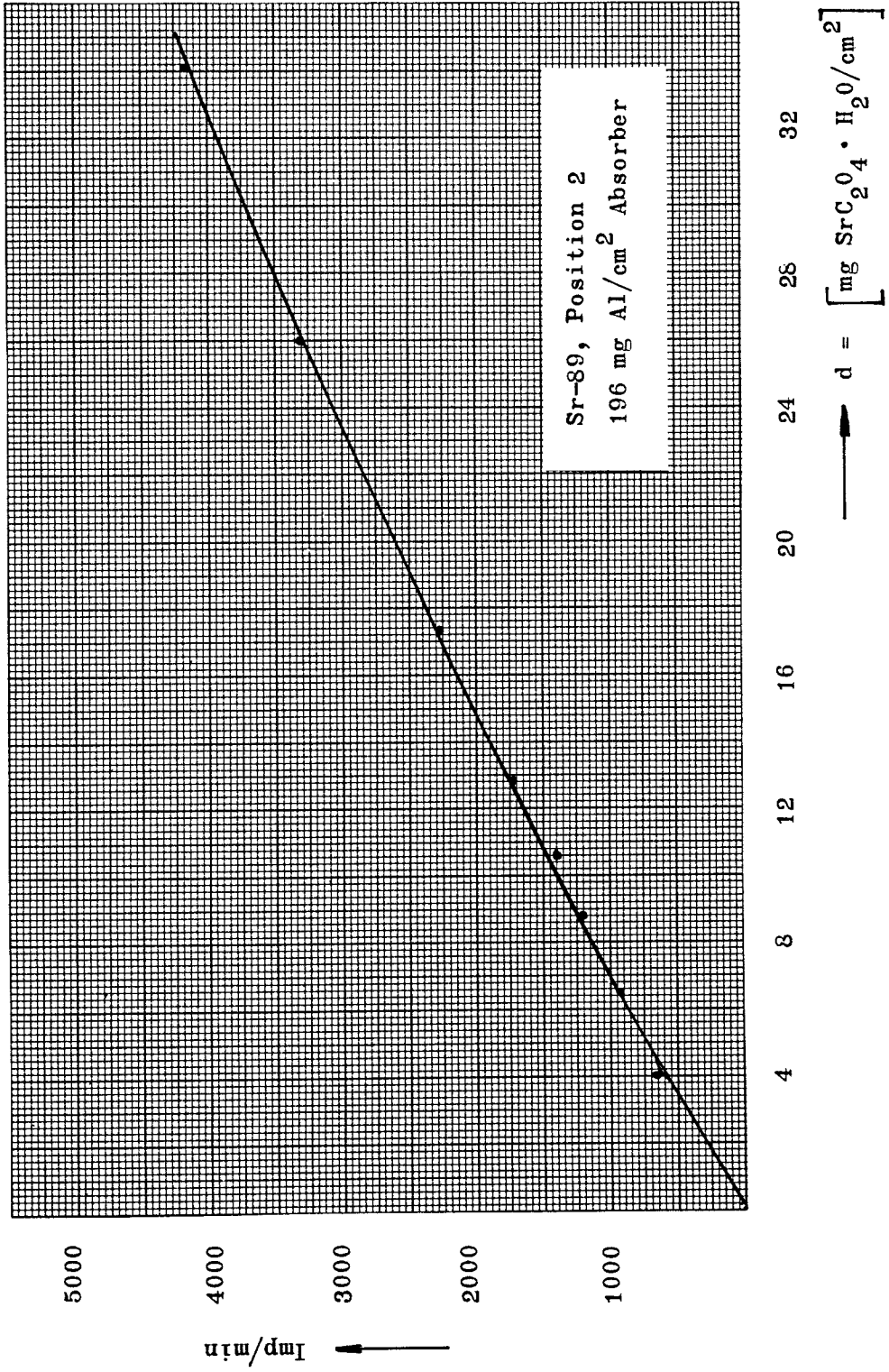
Figur 1



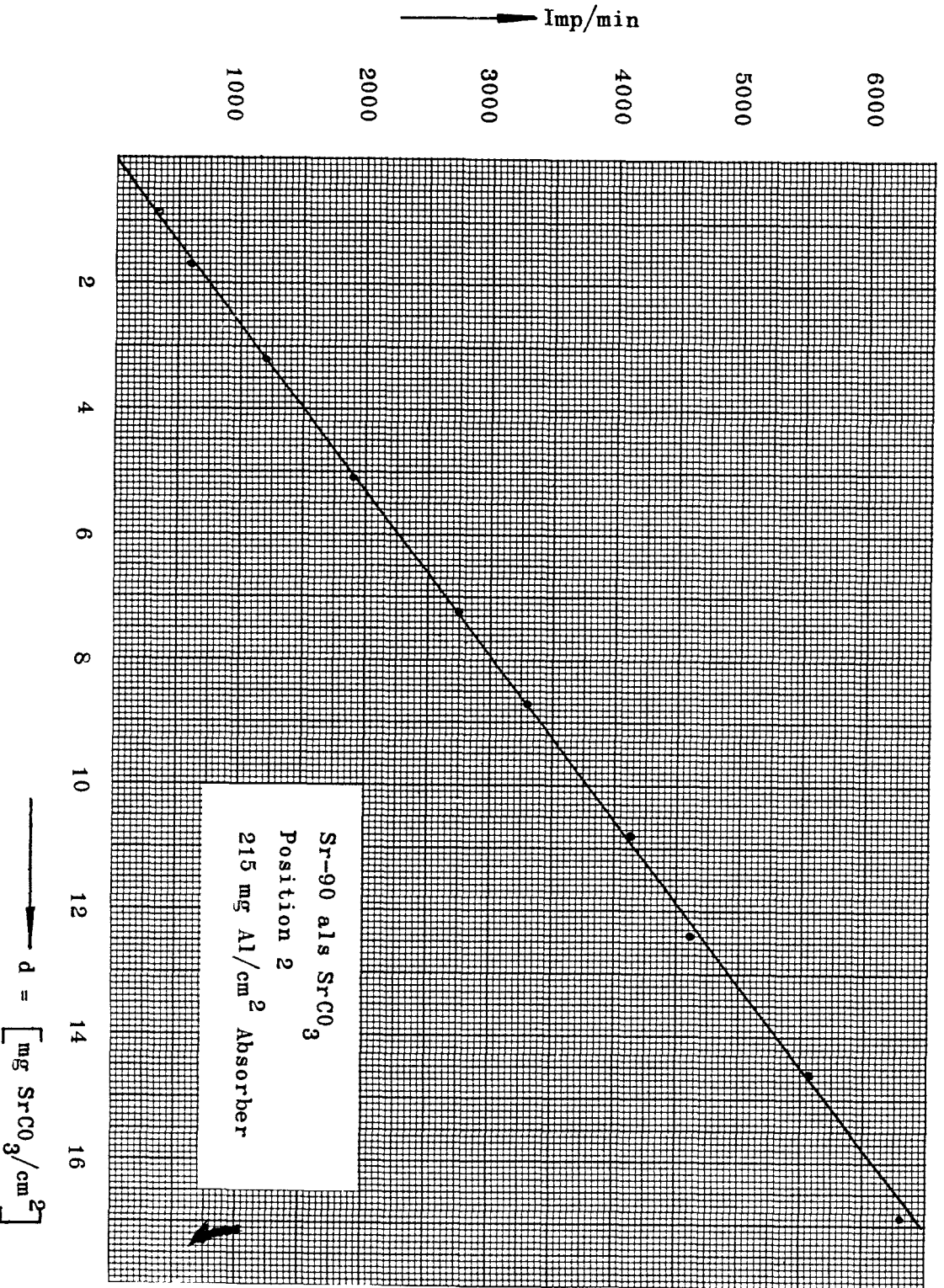
Figur 2



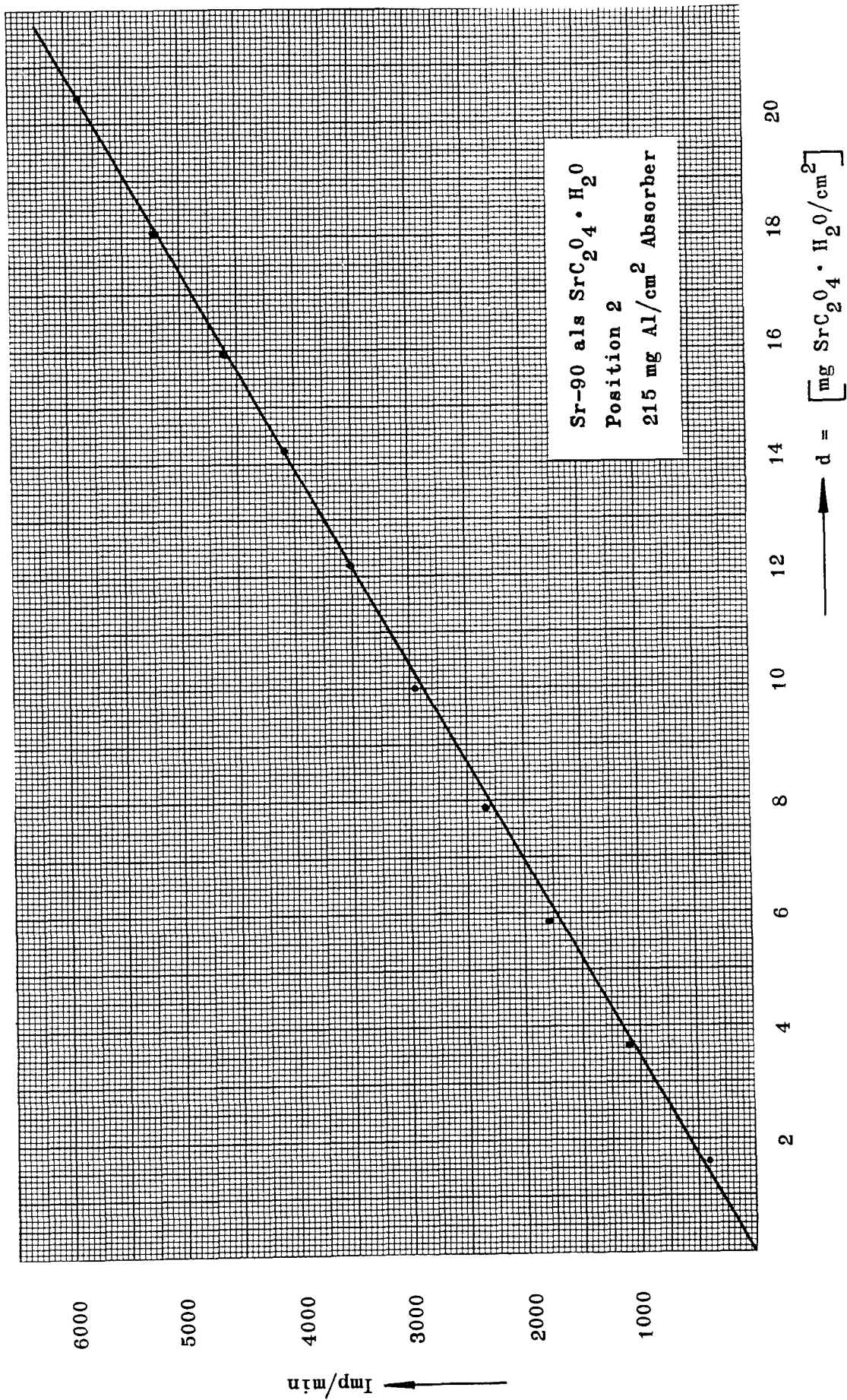
Figur 3



Figur 4



Figur 5



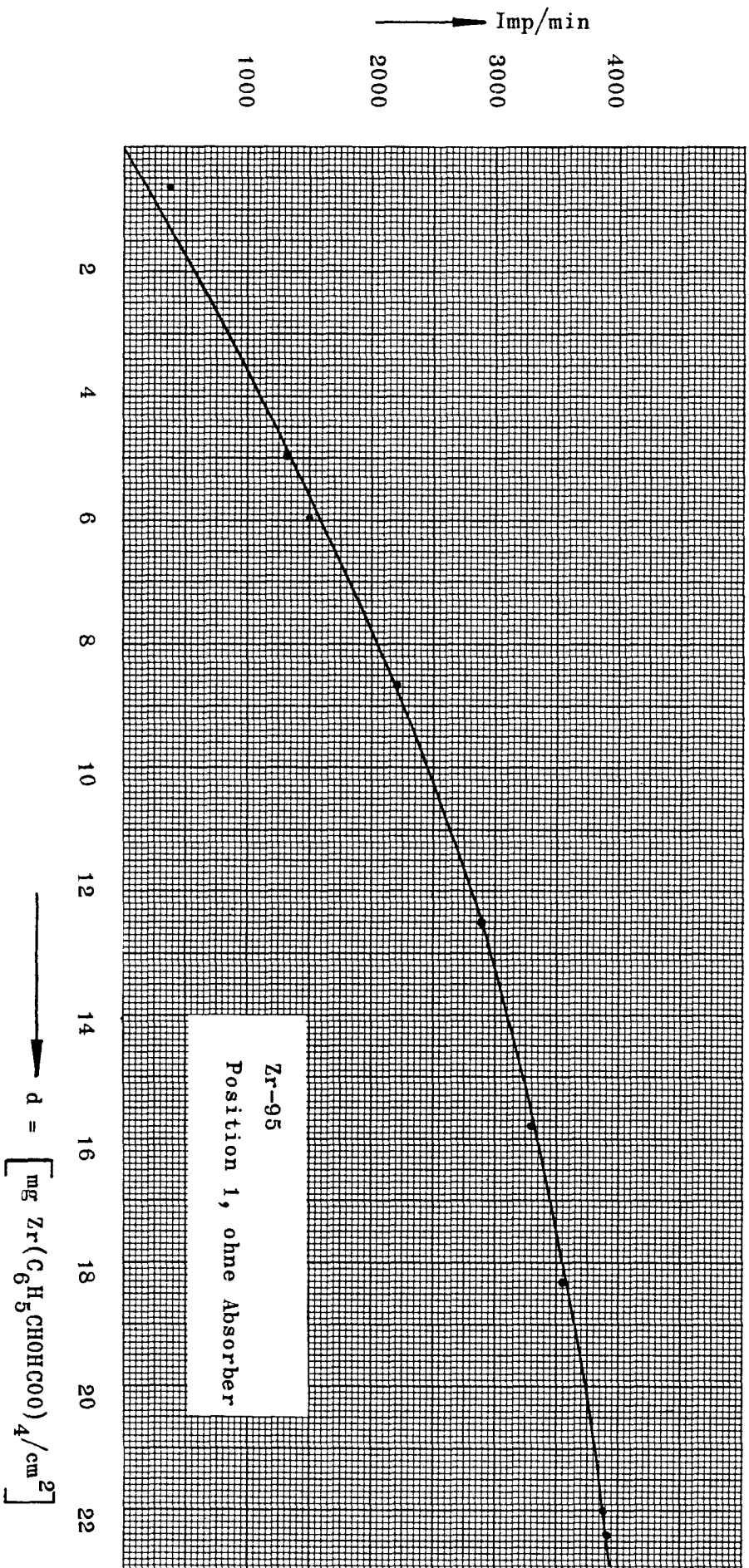
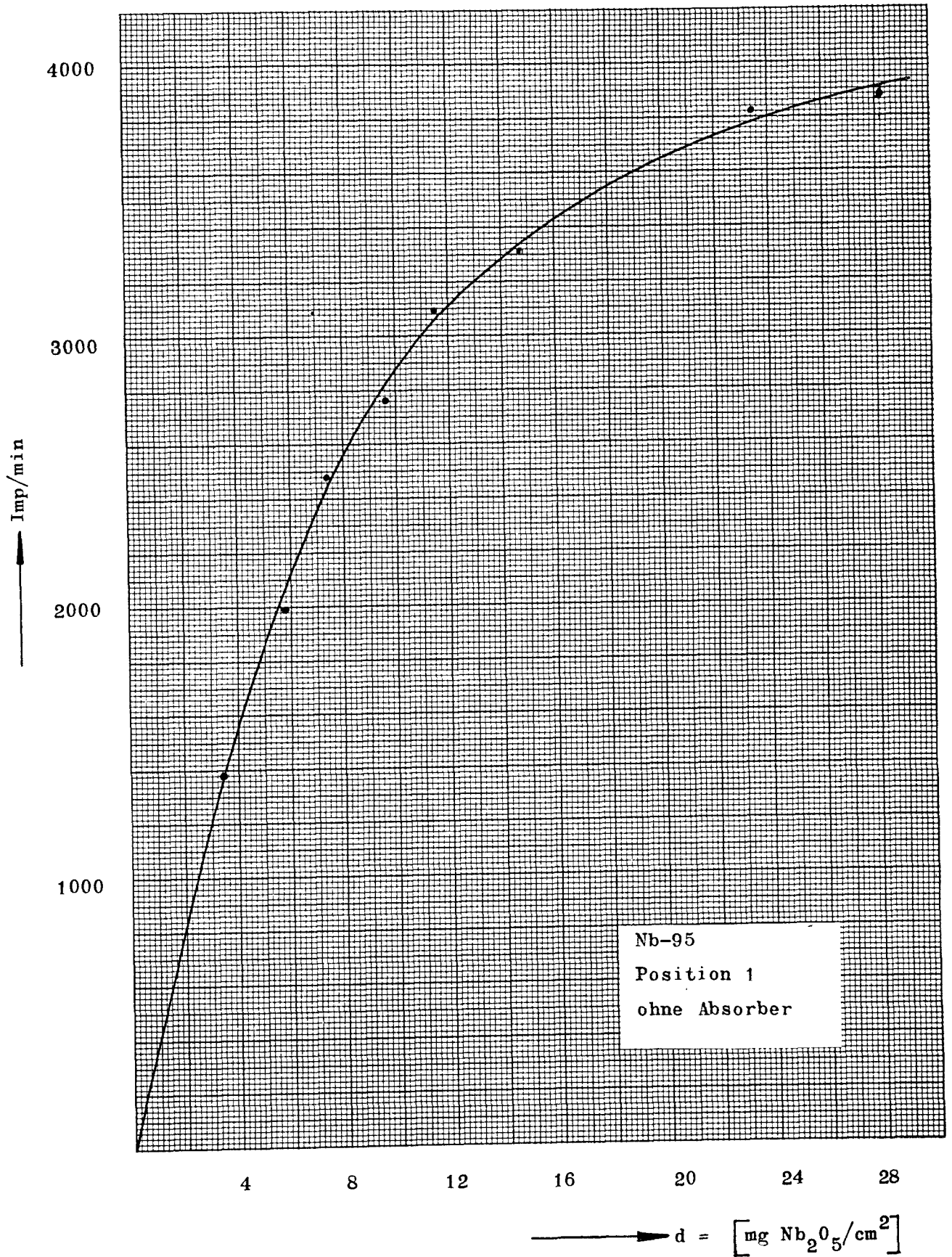
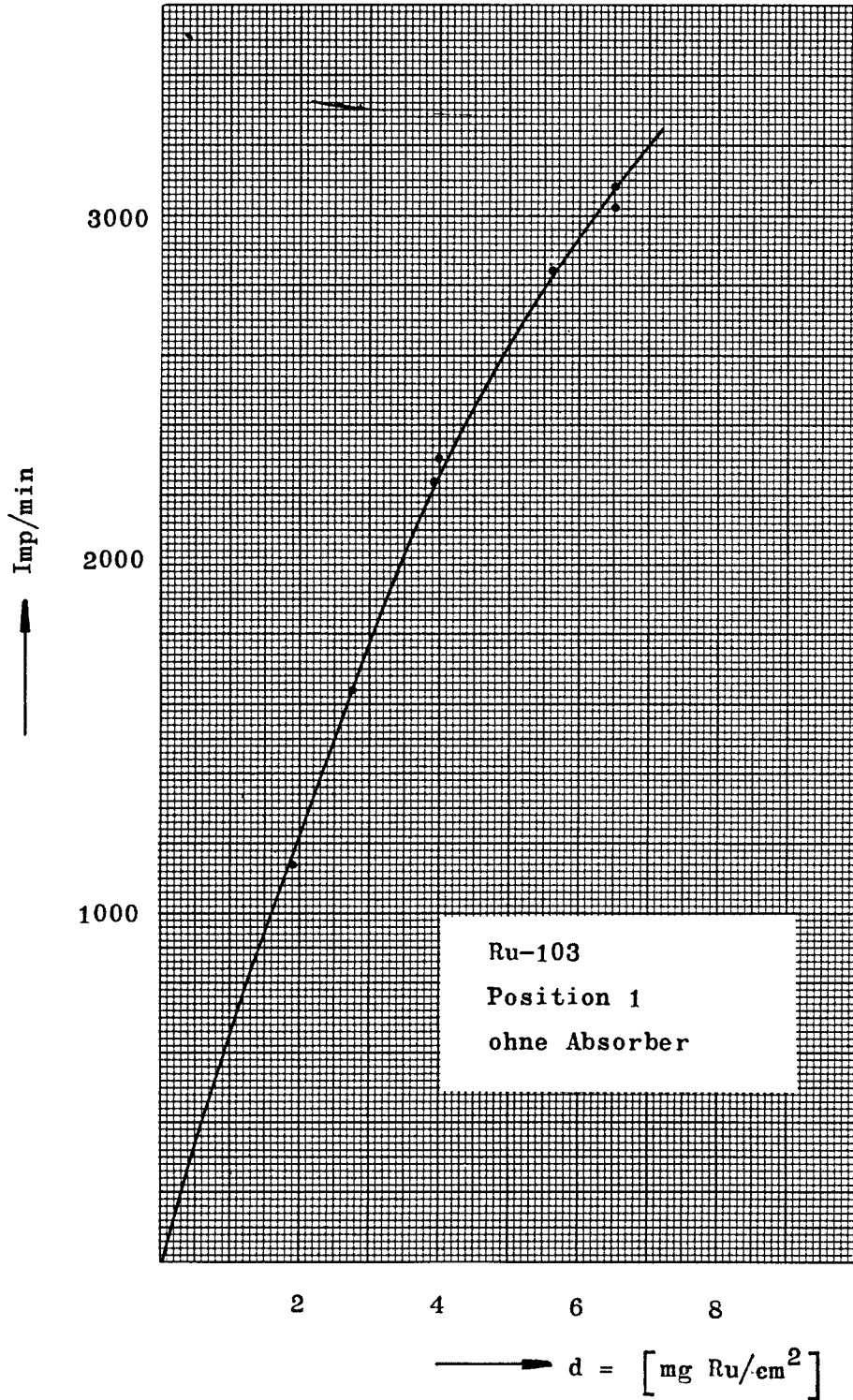


Figure 6

Figur 7



Figur 8



Figur 9

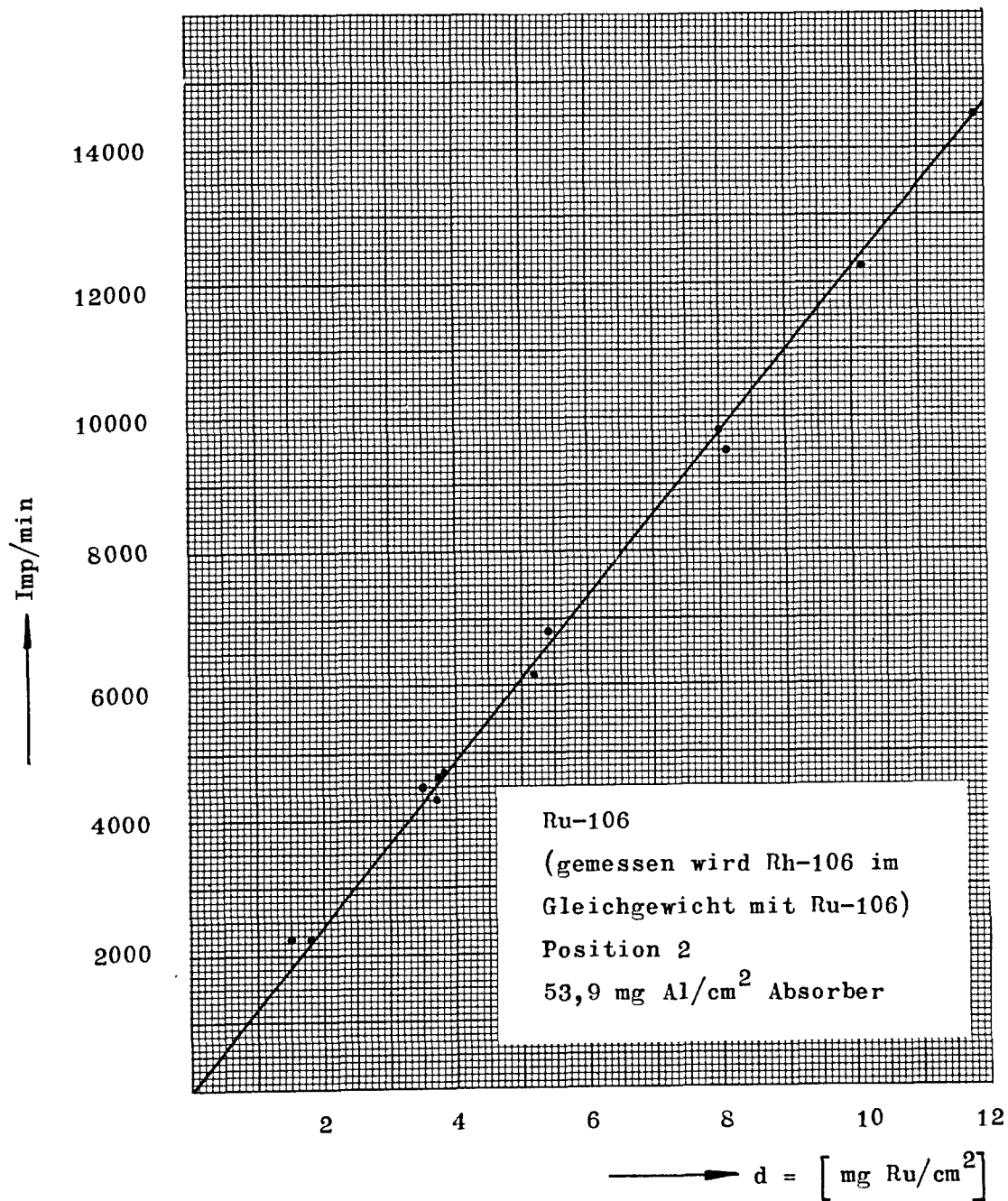
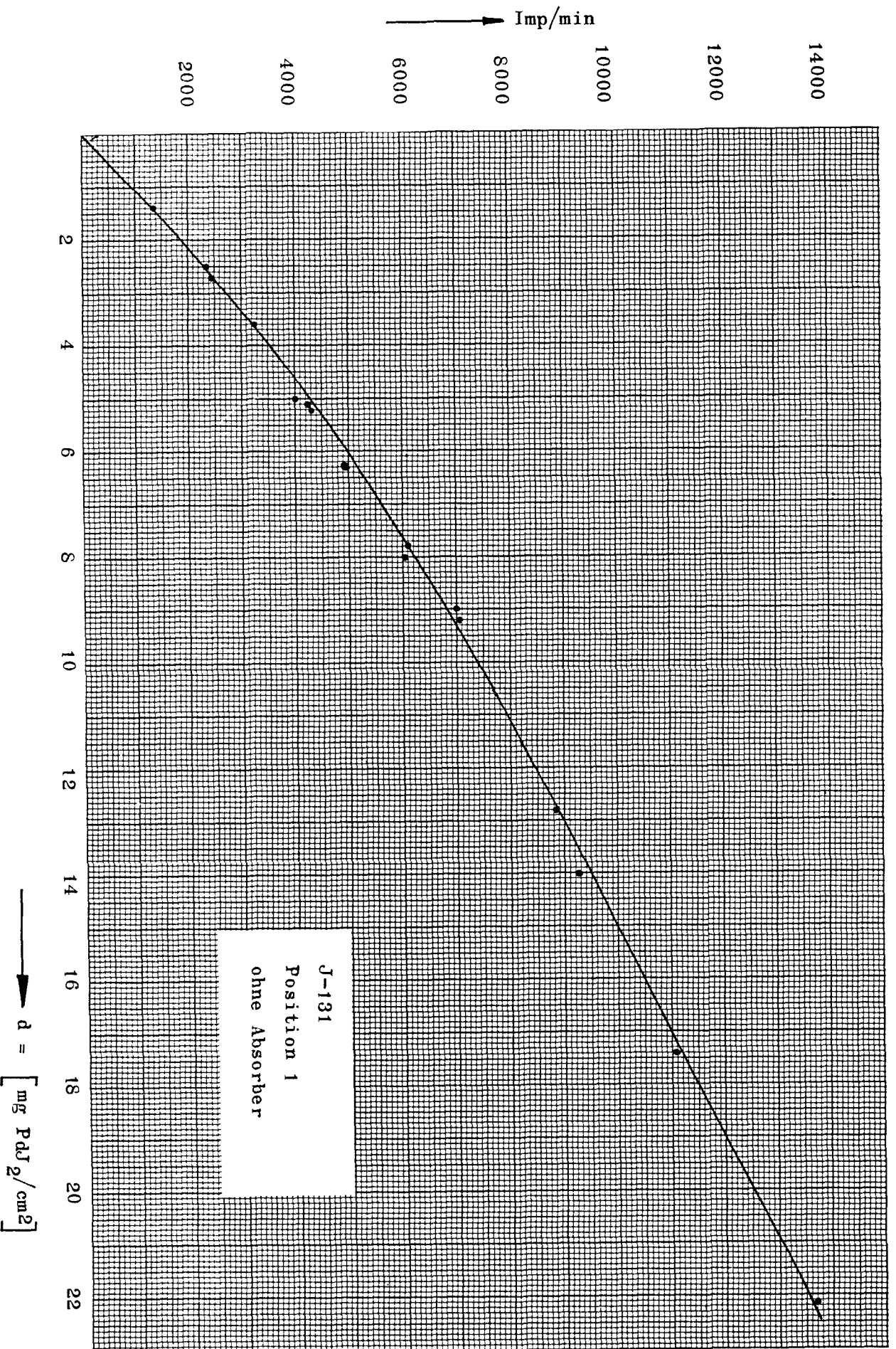


Figure 10



Figur 11

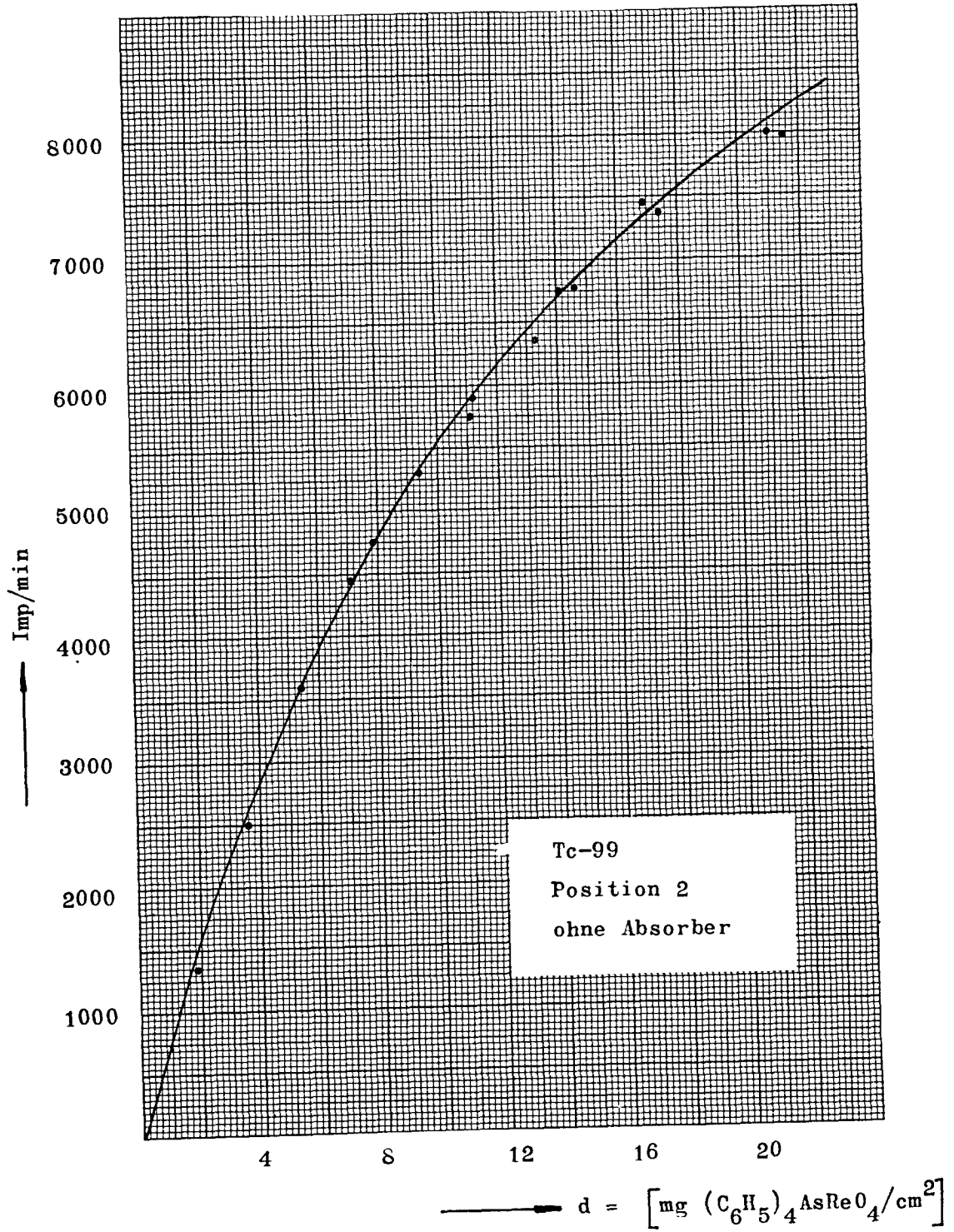
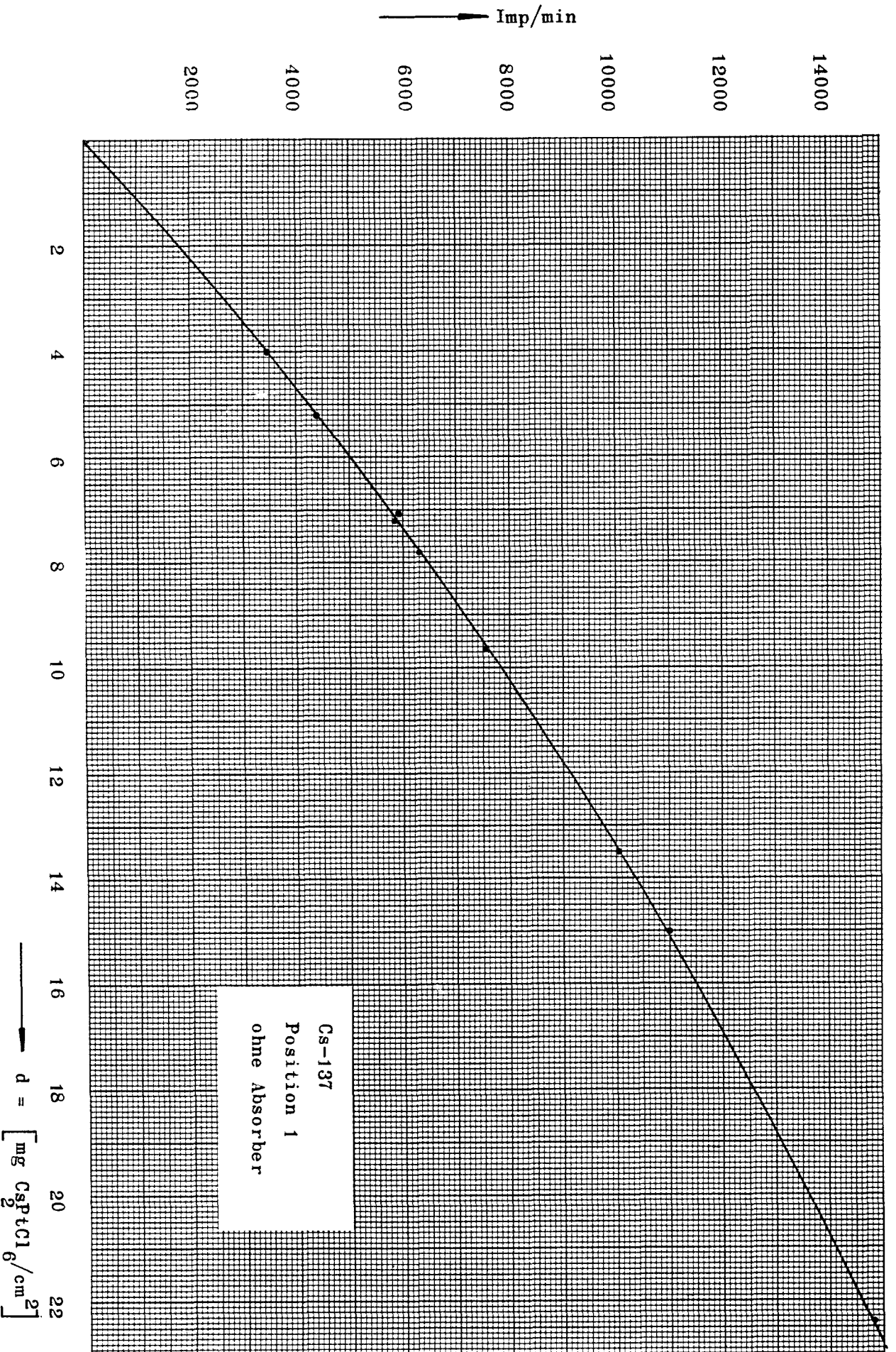
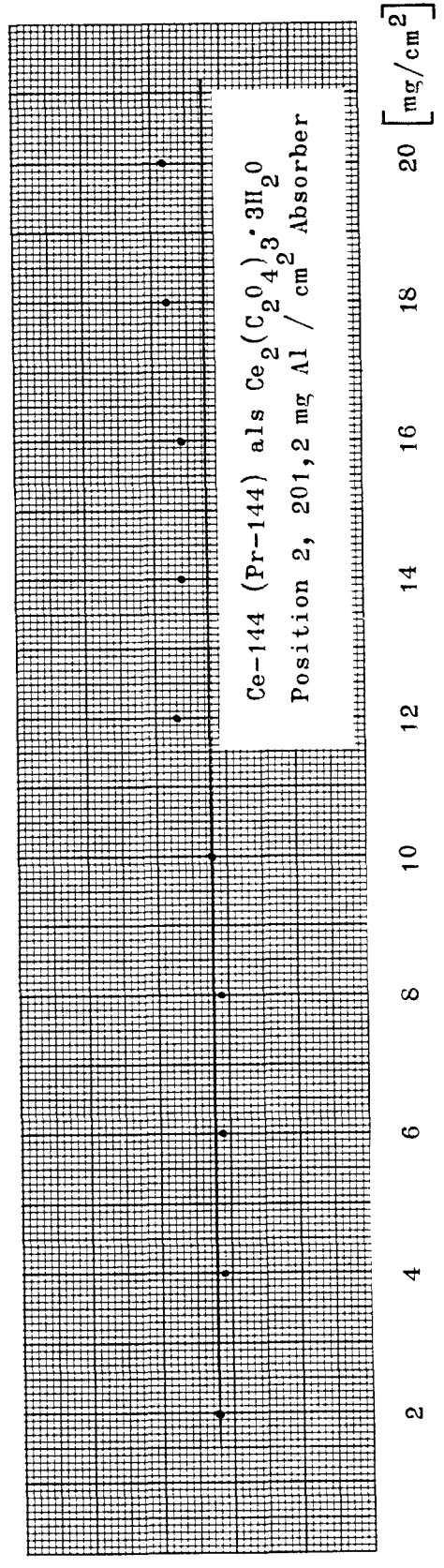
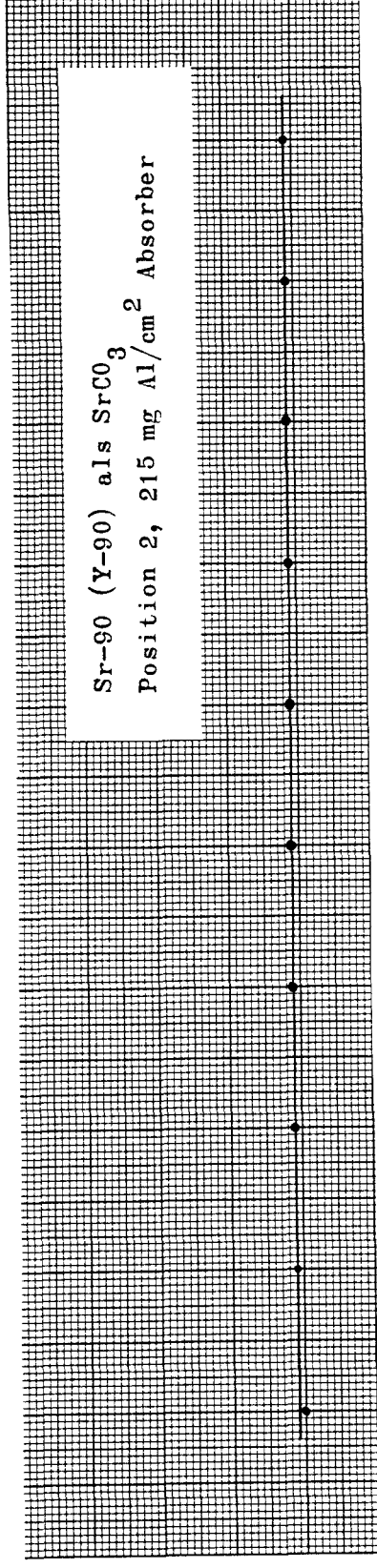
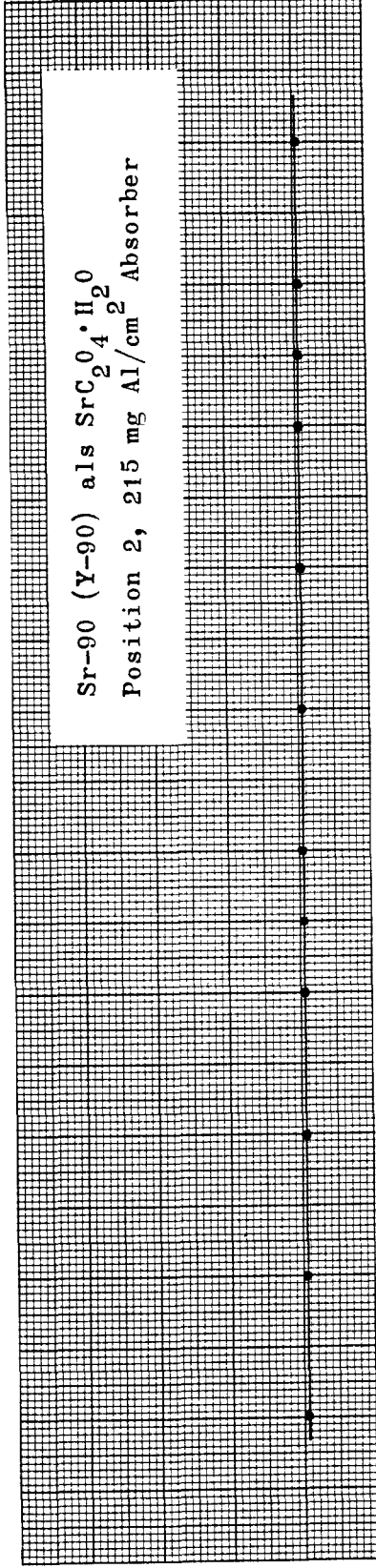


Figure 12

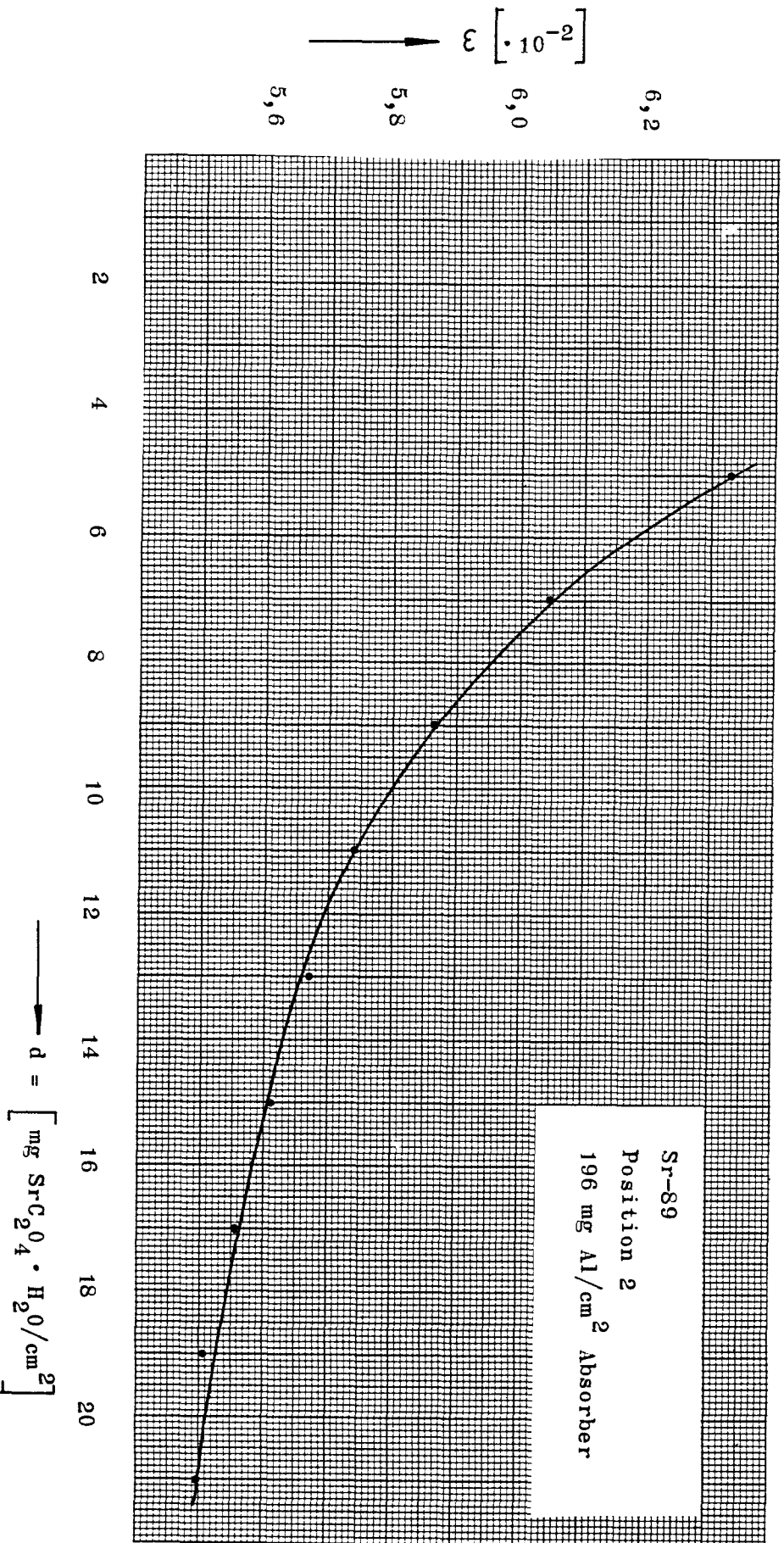


Figuren 13, 14 und 15

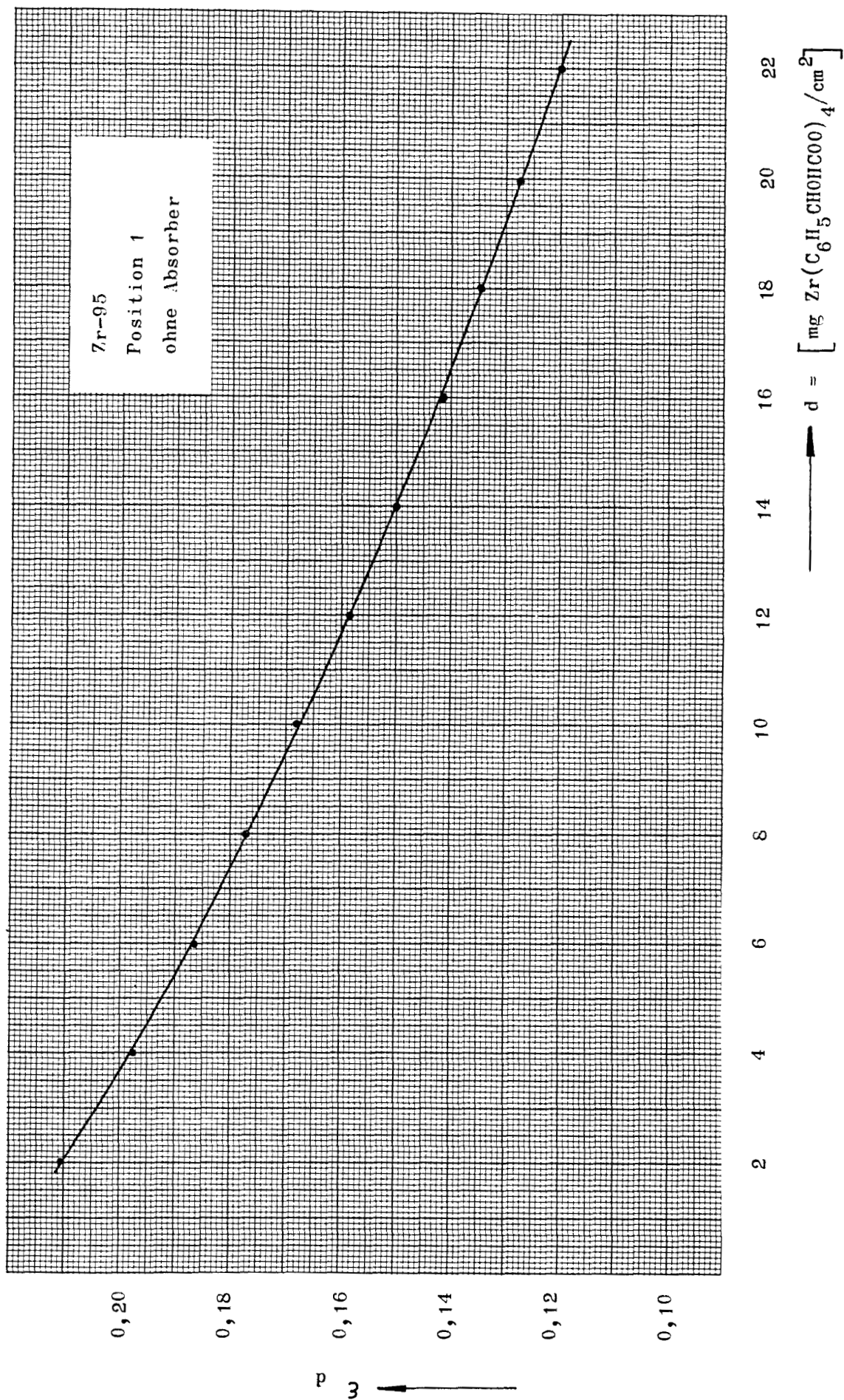


↕
ω

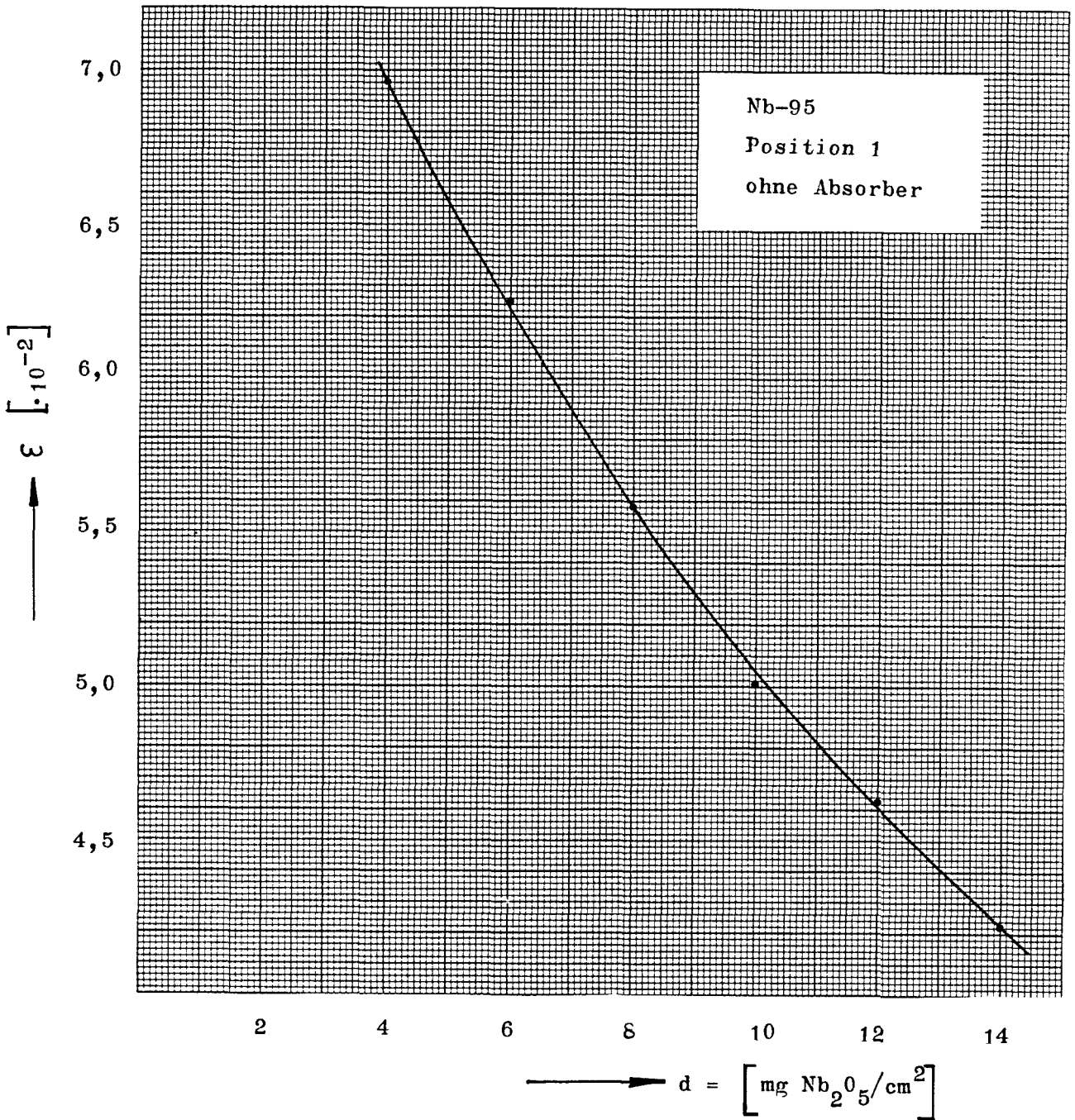
Figur 16



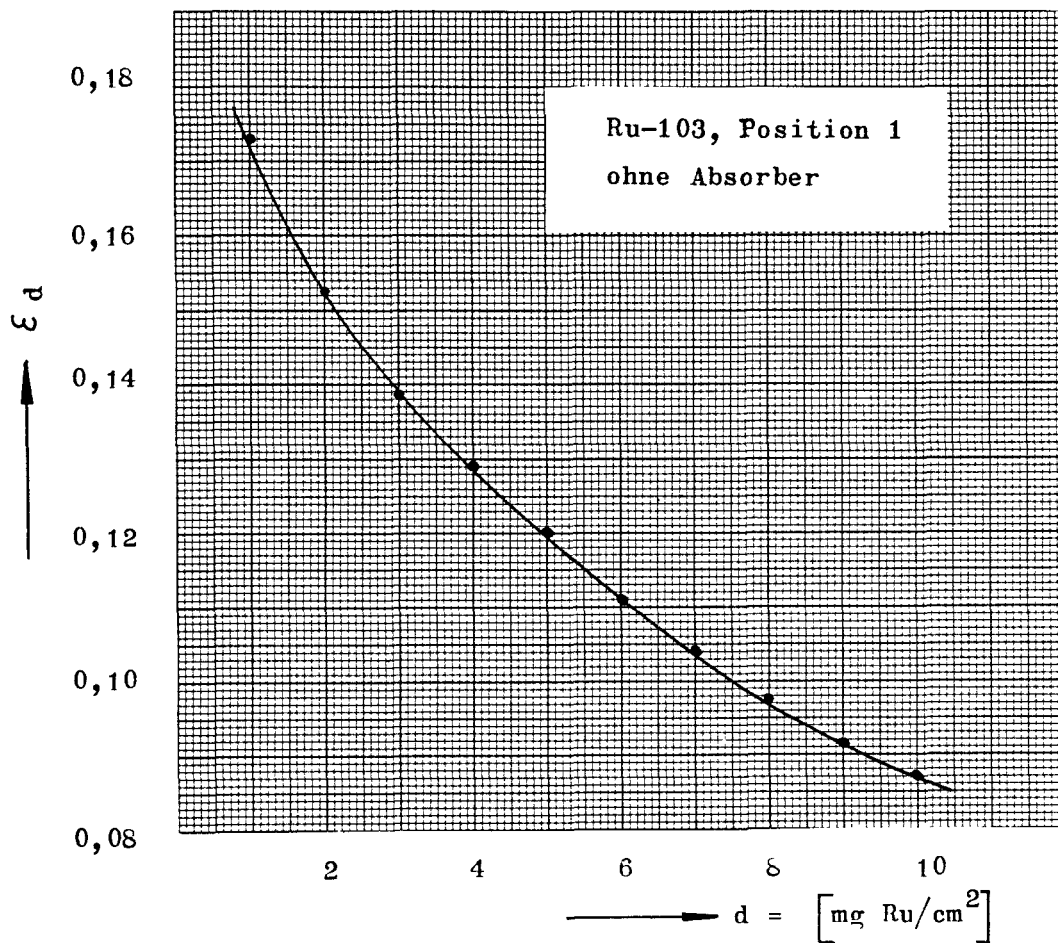
Figur 17



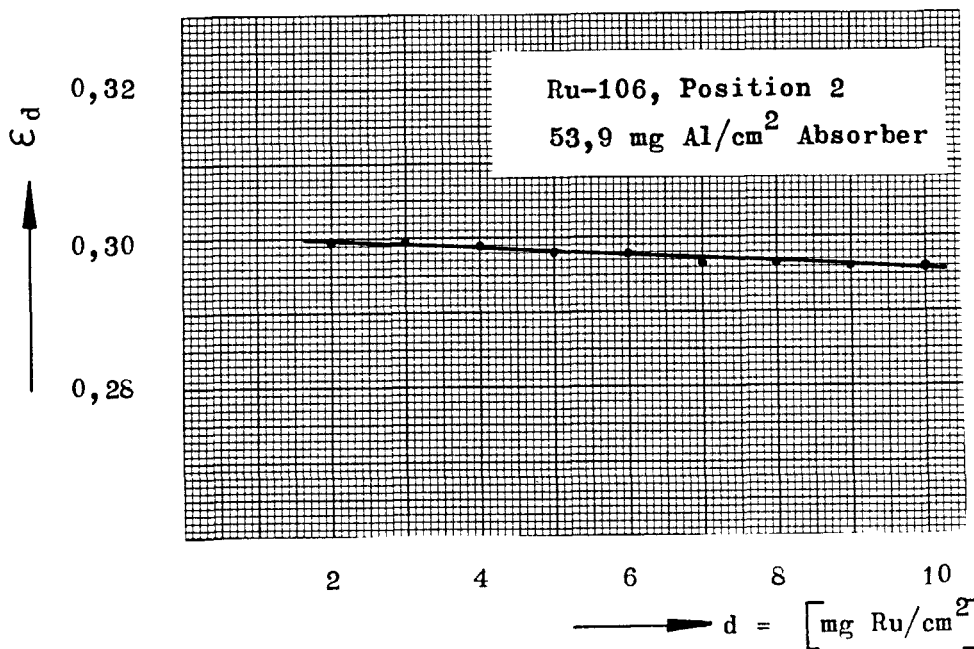
Figur 18



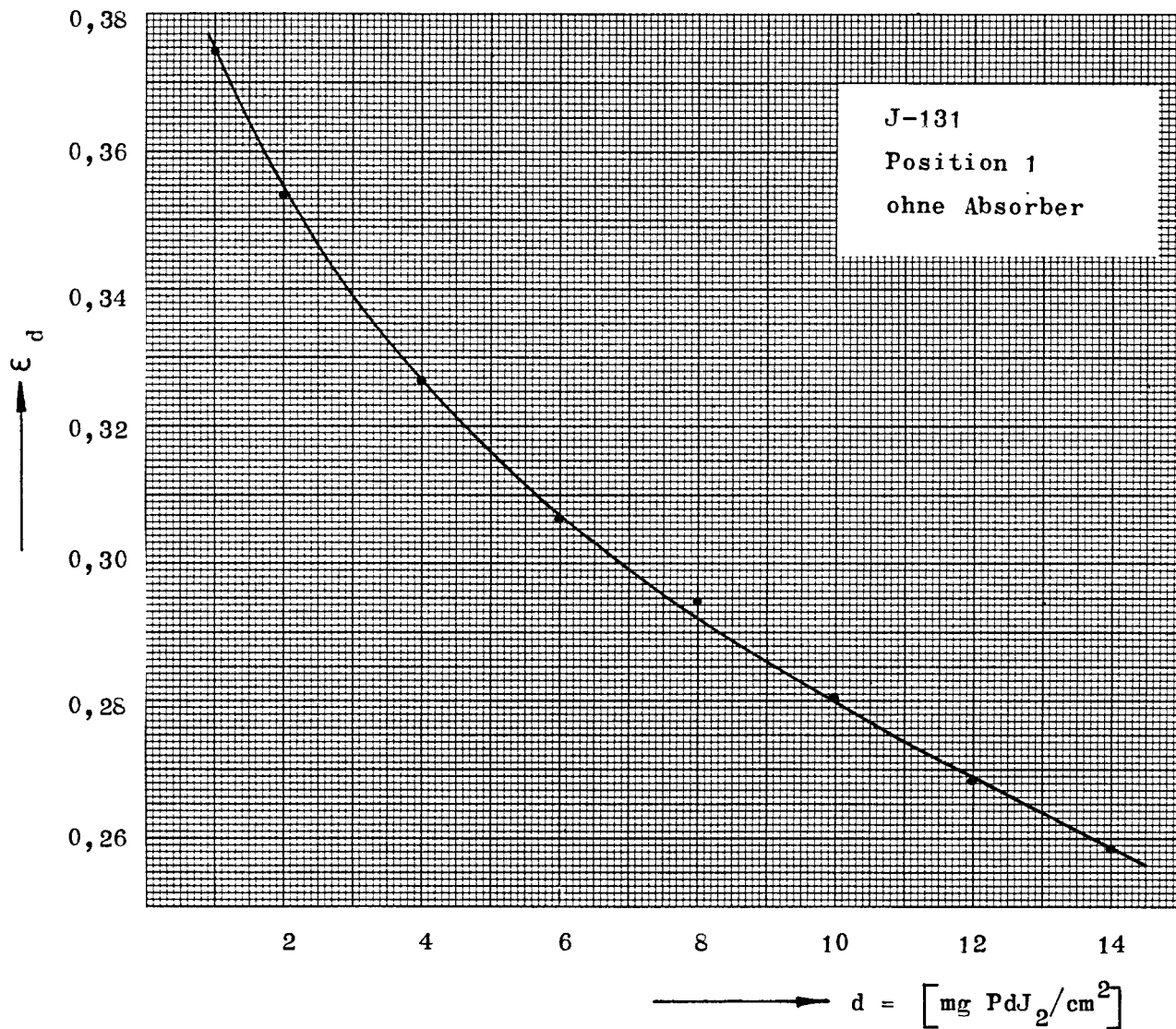
Figur 19



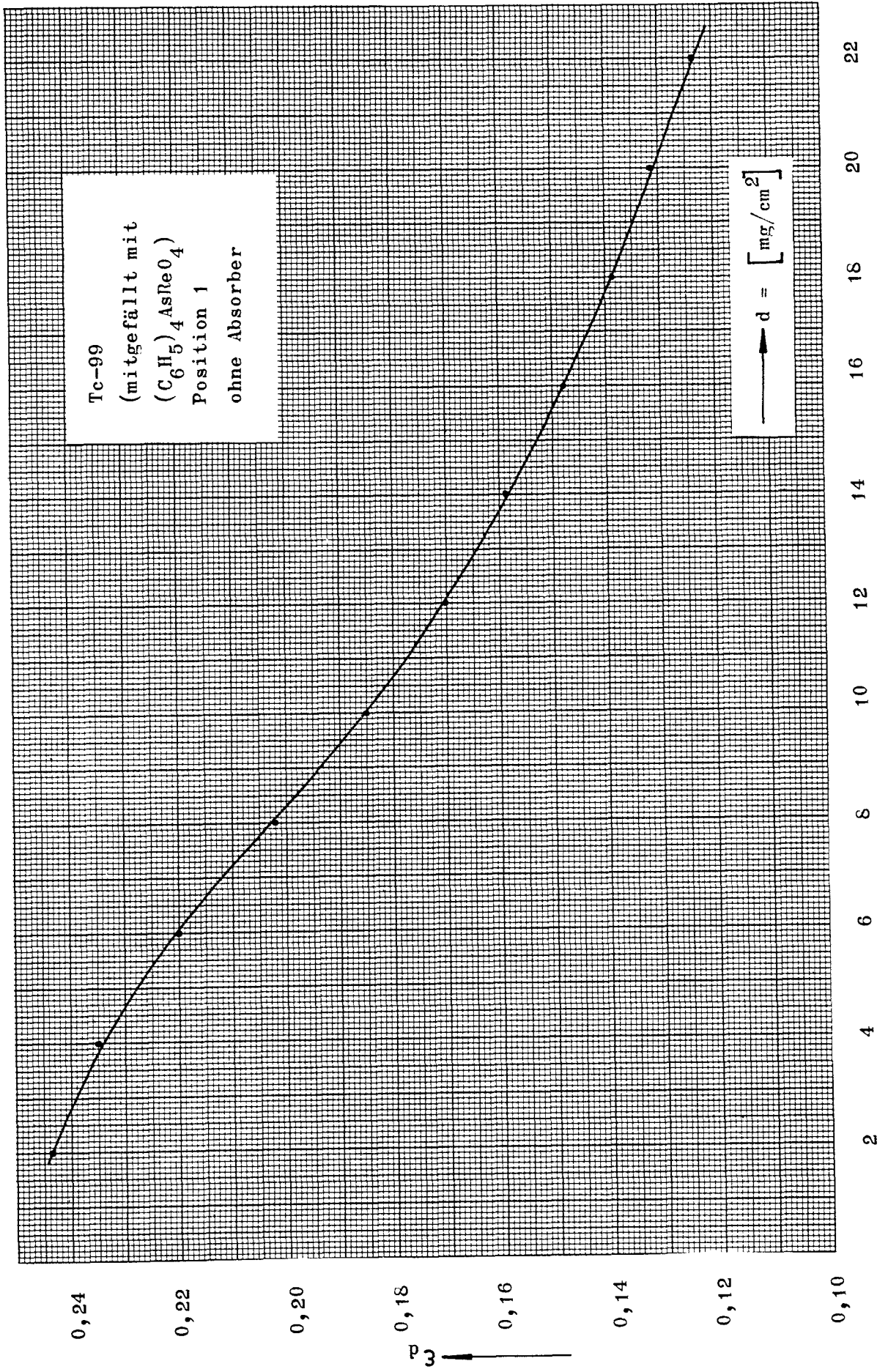
Figur 20



Figur 21



Figur 22



Figur 23

