

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

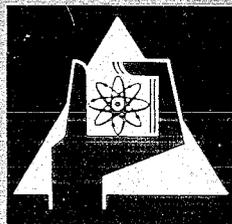
Juli 1970

KFK 1128
EUR 4320 d

Institut für Radiochemie
Europäisches Institut für Transurane

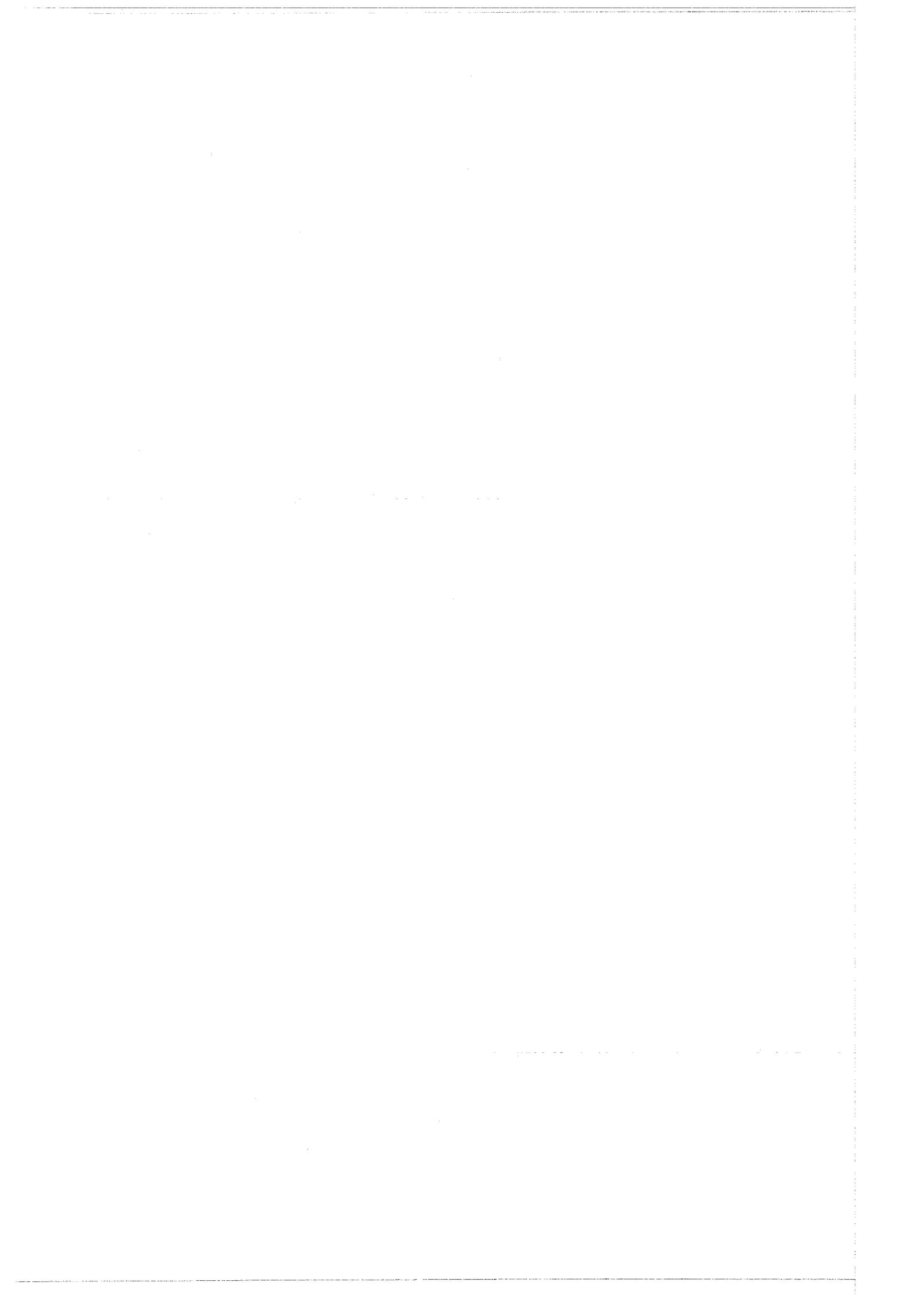
Bestimmung von Uran-232 und Plutonium-236
in bestrahlten Kernbrennstoffen

H. Braun, T. Moy



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Juli 1970

KFK 1128

EUR 4320 d

Institut für Radiochemie
Europäisches Institut für Transurane

Bestimmung von Uran-232 und Plutonium-236
in bestrahlten Kernbrennstoffen

H. Braun

T. Moy

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Inhaltsverzeichnis	Seite
1. Einleitung	1
2. Bildung von U-232 und Pu-236 im Reaktor	2
3. Analyse des Brennstoffes	4
4. Ergebnisse und Diskussion	6
5. Literatur	8
Anhang	
Experimentelles	17

Eingegangen am 16. Juli 1970

Zusammenfassung

Es wird die alphaspektrometrische Bestimmung der Spurenisotope Uran-232 und Plutonium-236 in bestrahlten Kernbrennstoffen beschrieben. Störende Plutonium- bzw. Americium- und Curium-Isotope mit ähnlichen α -Energien werden durch mehrfachen Anionenaustausch ihrer Nitrate- und Chlorokomplexe entfernt. Für Brennelementproben von zwei Siedewasserreaktoren, einem Schwerwasserreaktor, zwei Materialtestreaktoren und einem Schnellen Reaktor werden U-232/U-238- und Pu-236/Pu-238-Isotopenverhältnisse von 0,4 bis $42 \cdot 10^{-10}$ bzw. 0,2 bis $1,6 \cdot 10^{-5}$ erhalten. Die von der USAEC vorgeschlagene obere Grenze für den U-232-Gehalt in Brennstoffen (0,11 ppm, bezogen auf U-235) wird vom Schwerwasserreaktor überschritten. Die in Nuklidbatterien für Raumforschung höchstzulässige Menge Pu-236 (2 ppm, bezogen auf Pu-238) wird nur vom Schwerwasserreaktor nicht erreicht.

Summary

The alpha-spectrometric determination of the trace isotopes Uranium-232 and Plutonium-236 in irradiated nuclear fuels is described. Interfering Plutonium or Americium and Curium isotopes with similar α -energies will be separated by multiple anion exchange of their nitrate and chloro complexes. Isotopic ratios for U-232/U-238 and Pu-236/Pu-238, with values from 0,4 to $42 \cdot 10^{-10}$ and from 0,2 to $1,6 \cdot 10^{-5}$ respectively, have been obtained for two boiling water reactor, one heavy water reactor, two material testing reactor and one fast reactor fuel samples. The USAEC suggested upper limit for the U-232 content in fuels (0,11 ppm relative to U-235) will be overpassed by the heavy water reactor. The maximal permissible amount of Pu-236 in nuclear power sources for space applications (2 ppm relative to Pu-238) will not be reached only by the heavy water reactor.

Résumé

Il est décrit une détermination alpha spectrométrique des isotopes rares uranium-232 et plutonium-236 dans des combustibles irradiés. Les isotopes du plutonium, américium et curium, gênants les mesures par leurs énergies α , sont éliminés sous forme de complexes nitrate et chlorure par passage répétés sur échangeurs d'ions. Pour des échantillons de combustible de deux réacteurs à eau bouillante, un réacteur à eau lourde, deux réacteurs d'essais de matériaux et un réacteur rapide, les rapports isotopiques sont respectivement de $0,4-42 \cdot 10^{-10}$ pour U-232/U-238 et de $0,2-1,6 \cdot 10^{-5}$ pour Pu-236/Pu-238. La limite supérieure admissible proposée par l'USAEC pour la teneur en U-232 dans un matériel combustible (0,11 ppm en se rapportant à U-235) n'est dépassée que par le réacteur à eau lourde. Dans les batteries nucléaires pour la recherche spatiale, la quantité maximale admissible en Pu-236 (2 ppm en se rapportant à Pu-238) est dépassée par tous les réacteurs sauf par le réacteur à eau lourde.

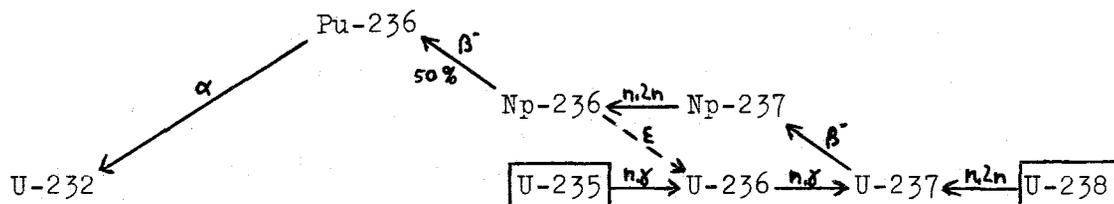
1. Einleitung

In Kernreaktoren werden während der Bestrahlung im Kernbrennstoff in geringer Menge die Isotope U-232 und Pu-236 gebildet. Die Bestimmung solcher sehr seltener Isotope hat zum Ziel, Unterschiede in ihrem Vorkommen im Brennmaterial von Reaktoren festzustellen. Ihre Isotopenkonzentrationen könnten für bestimmte Brennstoffarten oder Reaktortypen charakteristisch sein. Durch chemische Analyse wären dann z.B. Aussagen über die Herkunft und Vorgeschichte des Brennstoffes möglich. Es wurden deshalb Brennelemente von zwei Siedewasserreaktoren, einem Schwerwasserreaktor, zwei Materialtestreaktoren und einem schnellen Reaktor auf ihren Gehalt an U-232 und Pu-236 untersucht.

Die Kenntnis der gebildeten Menge U-232 und Pu-236 kann darüberhinaus wichtig sein, weil U-232 Folgeprodukte mit harter Gammastrahlung hat. Die dadurch bedingte erhöhte Strahlenbelastung führt zu Schwierigkeiten bei der Wiederverwendung von aufgearbeitetem Brennstoff. Da U-232 durch Zerfall von Pu-236 entsteht, stört Pu-236 aus dem gleichen Grund bei der Verwendung von Pu-238 in Nuklidbatterien, falls das Plutonium durch Bestrahlen von Neptunium erhalten wurde.

2. Bildung von U-232 und Pu-236 im Reaktor

Pu-236 und sein Zerfallsprodukt U-232 entstehen bei der Bestrahlung durch n,2n-Reaktion aus dem im Reaktor gebildeten Np-237:



Berechnungen in der Literatur lassen in abgebrannten Brennelementen für die Isotopenverhältnisse U-232/U-238 bzw. Pu-236/U-238 Werte von $1 \cdot 10^{-11}$ erwarten: z.B. errechneten RIDER et al. (1) die Zahl der gebildeten Atome in einem Siedewasserreaktor (Dresden-1, 1,5 % U-235⁰) bei einem integralen Fluß von $1 \cdot 10^{21}$ n·cm⁻² und einem Abbrand von 8000 MWd/t zu $8 \cdot 10^{-12}$ U-232 und $2 \cdot 10^{-11}$ Pu-236 je anfangs vorhandenes U-238-Atom. Experimentell fand RIDER einen Wert von $5 \cdot 10^{-11}$ für das Pu-236/U-238-Verhältnis.

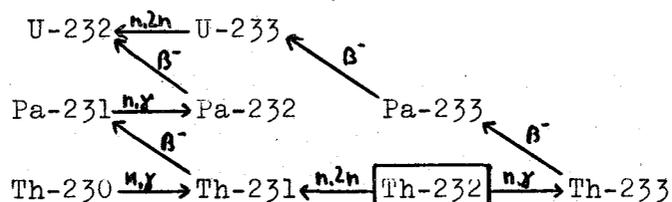
Diese berechneten Werte gelten aber nur, wenn der Anfangsgehalt an U-236 Null ist. Für rezyklierte Brennstoffe, die stets U-236 enthalten, gewinnt die Bildung durch Neutroneneinfang des U-236 an Bedeutung. ARNOLD (2) erhielt bei einem U-236/U-235-Verhältnis von 0,2 rechnerisch die dreifache Menge an U-232 und Pu-236 gegenüber den RIDERschen Werten.

In einem Druckwasserreaktor (Yankee, 3,4 % U-235⁰) fanden GALM et al. (3) bei einem integralen Fluß von $1 \cdot 10^{21}$ n·cm⁻² und einem Abbrand von 20000 MWd/t die Bildung von $3,3 \cdot 10^{-10}$ Atomen Pu-236 je ursprünglich vorhandenes U-238-Atom. Wegen des härteren Neutronenspektrums gegenüber einem Siedewasserreaktor nimmt hier die Bildung über die Reaktion U-238(n,2n) zu. In Brennelementproben des gleichen Reaktors wurden von NODVIK et al. (4) zahlreiche U-232- und Pu-236-Bestimmungen durchgeführt, deren

Werte sich bei Abbränden von 10000 bis 30000 MWd/t zwischen 10^{-10} und 10^{-9} bewegen, bezogen auf U-238. Allerdings fand NODVIK im Brennstoff des Yankee-I-Cores bereits vor der Bestrahlung $3,8 \cdot 10^{-11}$ Atome U-232 je U-238-Atom, so daß es sich ganz oder zum Teil um aufgearbeiteten Brennstoff handeln muß. Das beweist auch das Anfangsverhältnis für U-236/U-238 von $2,1 \cdot 10^{-4}$.

TOPP (5) berechnete für einen Leichtwasserreaktor (Savannah River, 2,7 % U-235⁰) die Pu-236-Kontamination, bezogen auf Pu-238, und erhielt unabhängig vom Abbrand im Bereich 10000 bis 60000 MWd/t stets 19 ppm Pu-236. Für ein Na-gekühltes Schnellbrüter-Modell berechnete er einen bedeutend höheren Gehalt an Pu-236, der sich außerdem mit zunehmendem Abbrand verringert, z.B. zwischen 30000 und 120000 MWd/t von 440 auf 356 ppm.

Außer über den Zerfall des Pu-236 kann ein zweiter Weg für die Bildung von U-232 von einer Thorium-Verunreinigung im Brennstoff ausgehen:



RIDER (1) berechnete für das Beispiel des Dresden-Reaktors das Atomverhältnis U-232/U-238 zu $3 \cdot 10^{-12}$ je ppm Th-232 im Brennstoff. NODVIK (5) fand im Brennstoff des Yankee-I-Cores vor der Bestrahlung Verunreinigungen von U-233: $9,5 \cdot 10^{-7}$, Pa-231: $5,9 \cdot 10^{-11}$ und Th-232: $4,2 \cdot 10^{-7}$, jeweils bezogen auf U-238.

3. Analyse des Brennstoffes

Der Nachweis von U-232 und Pu-236 ist wegen des 10^{10} -fachen Massenüberschusses der anderen Uran- bzw. Plutonium-Isotope nicht ohne weiteres mit dem Massenspektrometer möglich. Die Bestimmung kann alphaspektrometrisch erfolgen, wobei die hohe spezifische Aktivität von U-232 und Pu-236 günstig ist (Tab. 1). Bei der Analyse von in Handschuhkästen noch zulässigen Brennstoffmengen sind jedoch beim gereinigten Produkt Zählzeiten von mindestens zwei Tagen nötig, um auswertbare Impulszahlen zu erhalten; die Zählpräparate müssen elektrolytisch hergestellt und es muß ein α -Detektor hoher Energieauflösung verwendet werden. Außerdem sind Überlagerungen der α -Energien durch andere Nuklide zu beachten (Abb. 1), so daß chemische Trennungen nötig sind. (In Abb. 2 ist der benutzte Trennungsgang schematisch dargestellt.)

Bei der Analyse von U-232 stört das im Brennstoff enthaltene Am-243 wegen gleicher α -Energie. Dieses muß mit einem Dekontaminationsfaktor (D.F.) von $5 \cdot 10^4$ entfernt werden, wenn seine Zählrate höchstens 1 % der des U-232 sein soll. Die α -Energie von U-232 liegt außerdem zwischen den Energien von Pu-239+240 und Pu-238+Am-241. Um das Spektrum bei Gegenwart dieser Isotope noch aufzulösen, müssen Plutonium und Americium sauber abgetrennt werden (D.F. $> 10^5$). Dazu wird Uran zunächst von Plutonium durch Anionenaustausch an Dowex 1X8 in 8 M HNO_3 getrennt, wobei Plutonium sorbiert bleibt. Die Uran-Fraktion, die noch Americium, Curium und Spaltprodukte enthält, wird an einem Anionenaustauscher fixiert und durch aufeinanderfolgendes Waschen mit 12 M und 6 M HCl gereinigt und Uran mit 0,5 M HCl eluiert. Nach einer nochmaligen Anionenaustauschertrennung in 8 M HNO_3 wurden Dekontaminationsfaktoren von $3 \cdot 10^5$ erreicht. Die Bestimmung des U-232/U-238-Verhältnisses erfolgt aus dem α -Spektrum. Abb. 3 zeigt als Beispiel das α -Spektrum einer Uran-Fraktion.

Bei der Analyse von Pu-236 stört das im Brennstoff enthaltene Cm-244 wegen gleicher α -Energie. Dieses muß mit einem Dekontaminationsfaktor von 10^4 entfernt werden, wenn seine Zählrate höchstens 1 % der des Pu-236 sein soll. Zur chemischen Trennung wird die Plutonium-Fraktion aus der Uran/Plutonium-Trennung an einem Anionenaustauscher fixiert und durch Waschen mit 8 M HNO_3 gereinigt und Plutonium mit 0,35 M HNO_3 eluiert. Nach Wiederholung der Trennung an einer zweiten Säule wurden Dekontaminationsfaktoren von 10^4 erreicht. Die Bestimmung des Pu-236/Pu-238-Verhältnisses erfolgt aus dem α -Spektrum. Abb. 4 zeigt als Beispiel das α -Spektrum einer Plutonium-Fraktion.

4. Ergebnisse und Diskussion

Es wurden bestrahlte Testelemente und abgebrannte Brennelemente untersucht. In Tab. 2 sind die gefundenen Werte für die U-232-Häufigkeit, bezogen auf U-235 und U-238, und für die Pu-236-Häufigkeit, bezogen auf Pu-238, Pu-239 und U-238, dargestellt (U-235, U-238 und Pu-239 wurden durch massenspektrometrische Isotopenverdünnungsanalyse erhalten (6), der Abbrand wurde nach der Nd-148-Methode bestimmt (7)). Zum Vergleich sind die Analysenwerte für Np-237, ebenfalls auf U-238 bezogen, mit angegeben (8). Die Fehler infolge der Zählstatistik wirken sich bei der Auswertung der α -Spektren stark aus und sind in Tab. 3 für jede Messung zusammengestellt.

Das Isotopenverhältnis Pu-236/Pu-238 entspricht dem Verzweungsverhältnis der Np-237(n,2n)- und Np-237(n, γ)-Reaktion in den einzelnen Reaktoren, d.h. dem Verhältnis der effektiven Wirkungsquerschnitte $\sigma_{n,2n}$ und $\sigma_{n,\gamma}$, wenn man voraussetzt, daß

1. bis zum Erreichen der Sättigungsaktivität der Zwischenprodukte Np-236 und Np-238 bestrahlt wurde (Halbwertszeiten 22 bzw. 50,8 h) und diese Zwischenprodukte bis zur Messung vollständig zerfallen sind;
2. für den Zerfall des Pu-236 (Halbwertszeit 2,85 a) während der Bestrahlung korrigiert wird;
3. der Neutroneneinfang in Pu-236 und Pu-238 während der Bestrahlung gleich groß ist oder korrigiert wird;
4. die Bildung von Pu-238 aus Pu-239 sowie durch Zerfall von Cm-242 bei der Berechnung berücksichtigt wird.

Die Ergebnisse zeigen, daß je nach Reaktortyp die Pu-236/Pu-238-Isotopenverhältnisse sich bis um den Faktor 8 unterscheiden können. Reaktoren mit größerem Wert für Pu-236/Pu-238 (wie hier FR, MTR 2, BWR 3), in denen die n,2n-Reaktion des Np-237 verstärkt auftritt, haben demnach ein härteres Neutronenspektrum als Reaktoren mit kleinerem Wert (wie hier HWR, BWR 1, BWR 2). Allein aus den U-232- und Pu-236-Konzentrationen lassen sich die einzelnen Reaktortypen jedoch nicht charakterisieren.

Bezogen auf eine Tonne enthält der Brennstoff bei der Entnahme aus dem Reaktor, wie sich aus Tab. 2 ableiten läßt, einige Zehntel Milligramm U-232, was einer Aktivität von einigen Millicurie entspricht. Bei Rezyklierungen häuft sich die U-232-Menge im Brennstoff an, was zu Strahlenbelastungen in Anreicherungs- und Fabrikationsanlagen führen kann. Die von der USAEC (Fed. Reg., Dec. 1966) vorgeschlagene obere Grenze für den U-232-Gehalt von 0,11 ppm, bezogen auf U-235, wird in den analysierten Proben mit einer Ausnahme (HWR) noch nicht erreicht. Daß teilweise mehr U-232 als Pu-236 nachgewiesen wurde, läßt vermuten, daß im Brennstoff schon vor der Bestrahlung geringste Mengen an U-232 oder Verunreinigungen von U-233, Pa-231 oder Th-232 vorhanden waren, wie das NODVIK für den Yankee-Reaktor gefunden hat (s. Kapitel 2). Analysenwerte für das Ausgangsmaterial der von uns untersuchten Reaktoren liegen nicht vor.

Die gefundenen Werte von 2 bis 16 ppm Pu-236, bezogen auf Pu-238, übertreffen mit einer Ausnahme (HWR) die in Nuklidbatterien für Raumforschung höchstzulässige Menge (2 ppm; für biomedizinische Zwecke: 0,2 ppm). Für eine Gewinnung von Pu-238 durch Bestrahlen von Neptunium wäre also nach unseren Ergebnissen der HWR am besten geeignet.

5. Literatur

- (1) B.F. Rider, C.P. Ruiz, J.P. Peterson, F.R. Smith:
GEAP-4893 und 5060 (1965)
- (2) E.D. Arnold: Transact.ANS 9, 294 (1966)
- (3) D.T. Galm, J.A. Corbett: WCAP-6085 (1967)
- (4) R.J. Nodvik et al.: WCAP-6086 (1969)
- (5) S.V. Topp: Nucl.Appl.Technol. 7, 139 (1969)
- (6) L. Koch: Radiochim.Acta 12, 160 (1969)
- (7) L. Koch, G. Cottone, M.W. Geerlings:
Radiochim.Acta 10, 122 (1968)
- (8) H. Braun, B. Brandalise, L. Koch:
KFK-1115 / EUR-4319.d (1969)

Tab. 1

Spezifische Aktivitäten langlebiger Aktiniden-Isotope

Isotop	Halbwertszeit [Jahre] [†]	spezif. Aktivität [Zerfälle/min·µg]
U-232	71,7	$4,771 \cdot 10^7$
233	$1,62 \cdot 10^5$	$2,103 \cdot 10^4$
234	$2,47 \cdot 10^5$	$1,373 \cdot 10^4$
235	$7,1 \cdot 10^8$	4,757
236	$2,39 \cdot 10^7$	$1,407 \cdot 10^2$
238	$4,51 \cdot 10^9$	0,739
Np-237	$2,14 \cdot 10^6$	$1,565 \cdot 10^3$
Pu-236	2,85	$1,180 \cdot 10^9$
238	86,4	$3,860 \cdot 10^7$
239	$2,44 \cdot 10^4$	$1,361 \cdot 10^5$
240	$6,60 \cdot 10^3$	$5,011 \cdot 10^5$
242	$3,8 \cdot 10^5$	$8,631 \cdot 10^3$
244	$8,2 \cdot 10^7$	39,669
Am-241	$4,33 \cdot 10^2$	$7,606 \cdot 10^6$
243	$7,95 \cdot 10^3$	$4,108 \cdot 10^5$
Cm-242	0,447	$7,349 \cdot 10^9$
243	32	$1,021 \cdot 10^8$
244	18,11	$1,796 \cdot 10^8$
245	$9,32 \cdot 10^3$	$3,476 \cdot 10^5$
246	$5,48 \cdot 10^3$	$5,888 \cdot 10^5$
247	$1,64 \cdot 10^7$	$1,959 \cdot 10^2$
248	$4,7 \cdot 10^5$	$6,809 \cdot 10^3$
Bk-249	0,860	$3,708 \cdot 10^9$
Cf-250	13,2	$2,405 \cdot 10^8$
251	$8,92 \cdot 10^2$	$3,545 \cdot 10^6$
252	2,65	$1,189 \cdot 10^9$

† Nuklidkarte (3. Auflage 1968)

Tab. 2 Häufigkeit von U-232 und Pu-236 in verschiedenen Reaktoren

Reaktor	Brennstoff		Abbrand		$\frac{U-232}{U-235}$	$\frac{U-232}{U-238}$	$\frac{Pu-236}{Pu-238}$	$\frac{Pu-236}{Pu-239}$	$\frac{Pu-236}{U-238}$	$\frac{Np-237}{U-238}$
	U-235°	Pu°	F_T (%)	(MWd/t)	$\cdot 10^8$	$\cdot 10^{10}$	$\cdot 10^5$	$\cdot 10^8$	$\cdot 10^{10}$	$\cdot 10^4$
BWR 1	2,3		1,155	10600	1,1	1,5	0,4	2,0	0,8	1,89
			1,466	13500	2,0	2,3	0,3	2,4	1,0	1,03
BWR 2	2,1		1,099	10100	1,1	1,4	0,6	2,9	1,2	2,24
			1,324	12200	0,38	0,4	1,0	5,8	2,3	
			1,104	10200			0,4	2,0	0,8	1,16
BWR 3	39		6,931	58600	0,31	15	1,6	10,3	4,0	6,00
			7,394	62500			1,2	9,8	4,5	7,98
HWR	1,5		0,838	7700	28	5,7	0,2	1,1	0,3	0,87
MTR 1	7,0	16	10,977	101000			0,5	0,3	1,8	3,44
			11,157	102600	0,84	3,9	1,6	1,3	6,2	4,28
MTR 2	0,5	16	1,273	11700	1,4	0,3	1,6	0,16	2,6	0,65
FR	44,4	26	1,146	10500	0,28	42	1,6	0,40	31	10,35
			1,196	11000			1,0	0,25	19	5,52

BWR Siedewasserreaktor
HWR Schwerwasserreaktor
MTR Materialtestreaktor
FR Schneller Reaktor

Die Werte sind auf Bestrahlungsende korrigiert

Tab. 3 Zusammenstellung der statistischen Fehler

Reaktor	Probe	U-232			U-238			$\frac{\sigma_{J_1/J_2}}{J_1/J_2} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{J_1}}{J_1}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{J_2}}{J_2}\right)^2}$
		J_1	σ_{J_1}	$\frac{\sigma_{J_1} \cdot 100}{J_1} [\%]$	J_2	σ_{J_2}	$\frac{\sigma_{J_2} \cdot 100}{J_2} [\%]$	
BWR 1	15.2	55	7	13	4540	67	1,5	13 [%]
	6.6	25	5	20	1367	37	2,7	20
BWR 2	G.7	38	6	16	3034	55	1,8	16
	H.8	16	4	25	1737	42	2,4	25
BWR 3	C.09	32	6	18	318	18	5,6	19
HWR	5.4	28	5	19	745	27	3,7	19
MTR 1	H.2	15	4	26	329	18	5,5	27
MTR 2	6.2	12	3	29	1320	36	2,7	29
FR	4	52	7	14	150	12	8,2	16
	8	32	6	18	713	27	3,7	18

Reaktor	Probe	Pu-236			Pu-238			$\frac{\sigma_{J_1/J_2}}{J_1/J_2} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{J_1}}{J_1}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{J_2}}{J_2}\right)^2}$
		J_1	σ_{J_1}	$\frac{\sigma_{J_1} \cdot 100}{J_1} [\%]$	J_2	σ_{J_2}	$\frac{\sigma_{J_2} \cdot 100}{J_2} [\%]$	
BWR 1	15.2	145	12	8	2276490	1510	0,1	8 [%]
	6.6	126	11	9	2419160	1560	0,1	9
BWR 2	G.7	38	6	16	377980	615	0,2	16
	H.8	122	11	9	747433	864	0,1	9
	A.1	280	17	6	4521530	2120	0,1	6
BWR 3	C.06	3912	62	2	12619210	3550	0,1	2
	C.09	3570	60	2	9239570	3040	0,1	2
HWR	5.4	35	6	17	805480	897	0,1	17
MTR 1	H.2	148	12	8	2202800	1480	0,1	8
	A.2	10	3	32	270525	520	0,2	32
MTR 2	6.2	27	5	19	537040	732	0,1	19
FR	4	64	8	12	208000	456	0,2	12
	8	85	9	11	995470	996	0,1	11

J = gemessene Impulszahl

σ_J = Standardabweichung

BWR Siedewasserreaktor

HWR Schwerwasserreaktor

MTR Materialtestreaktor

FR Schneller Reaktor

Abb. 1 Alpha-Energien verschiedener Aktiniden-Isotope

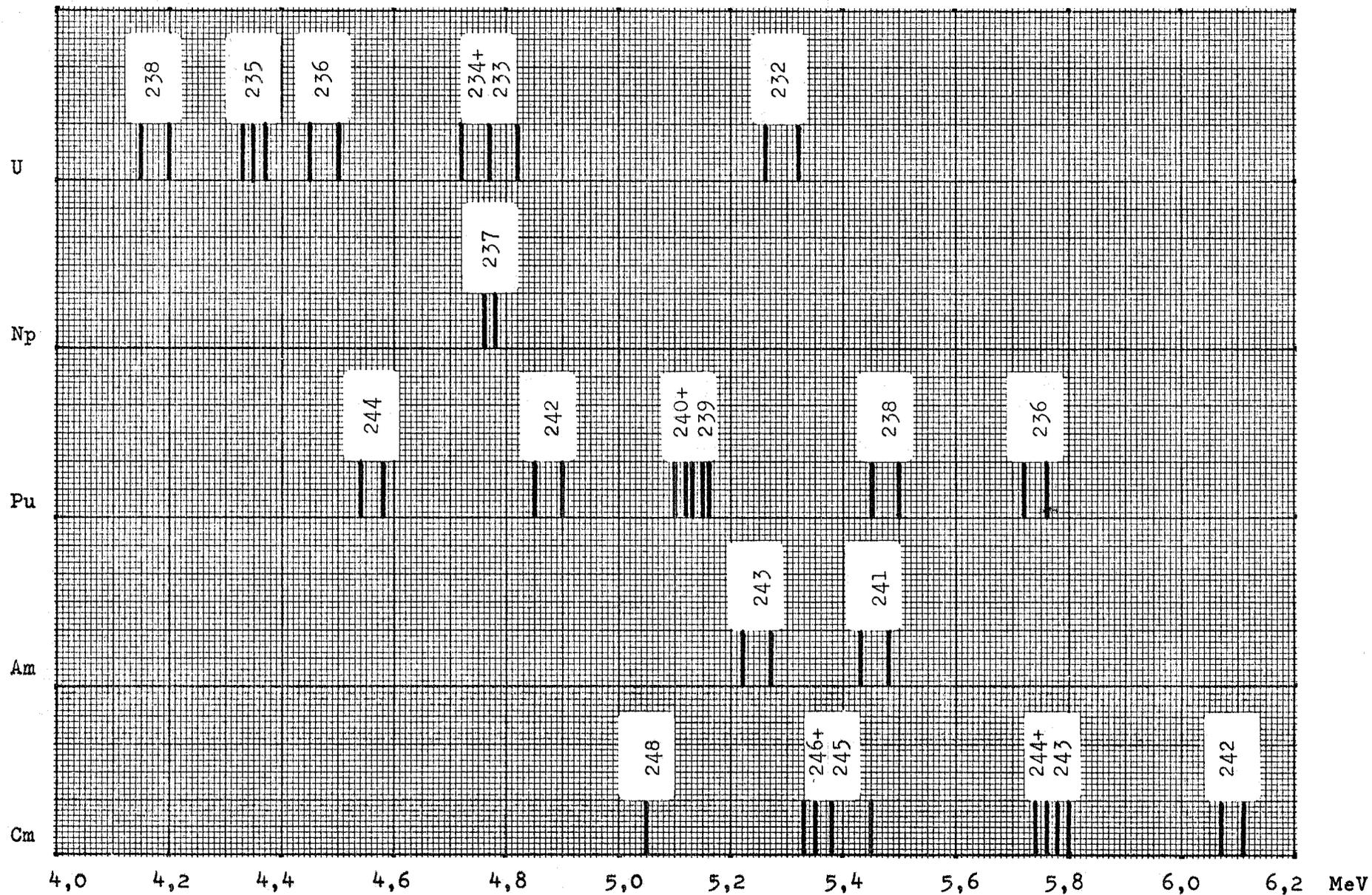
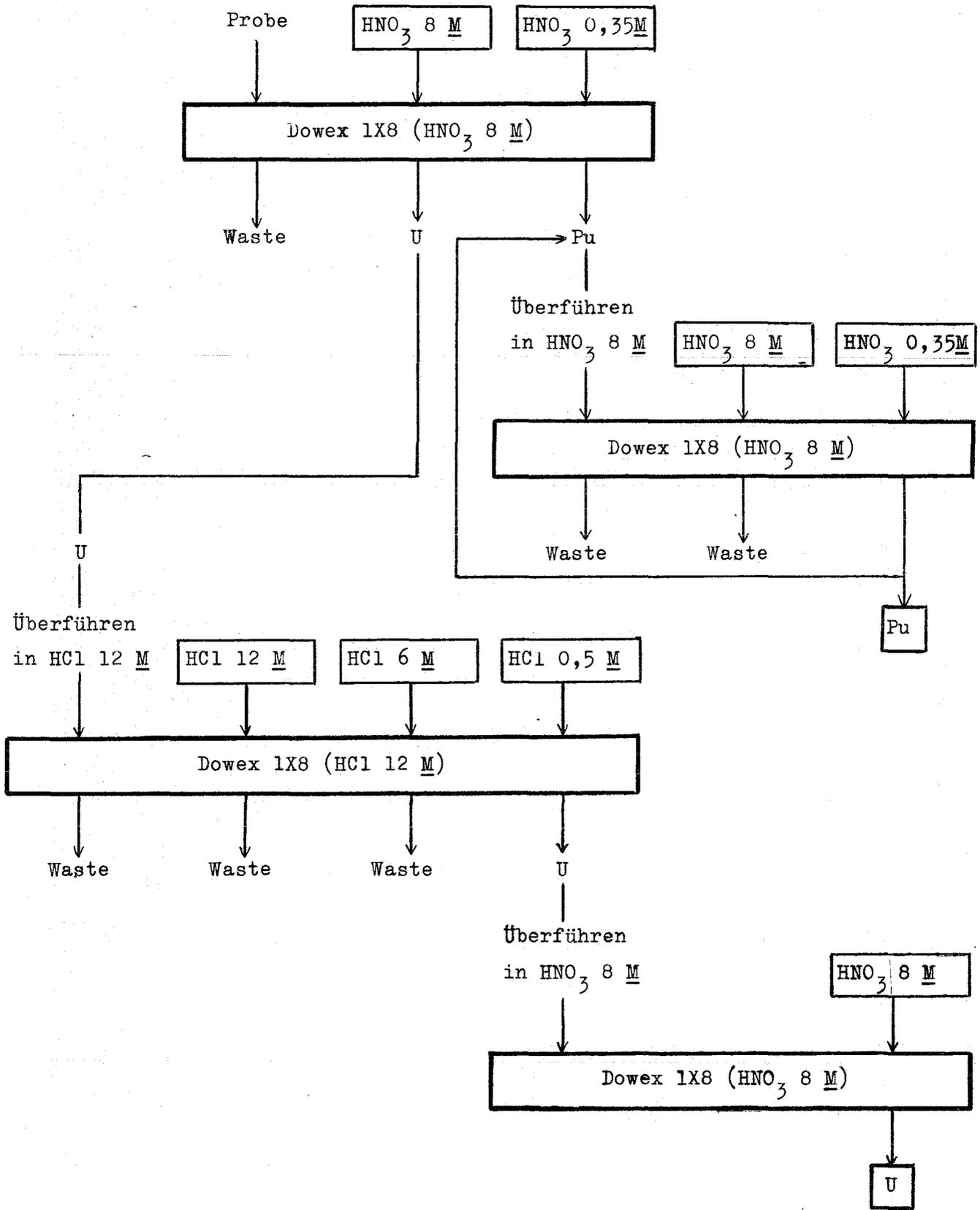


Abb. 2 Analysenschema
für die Bestimmung von U-232 und Pu-236



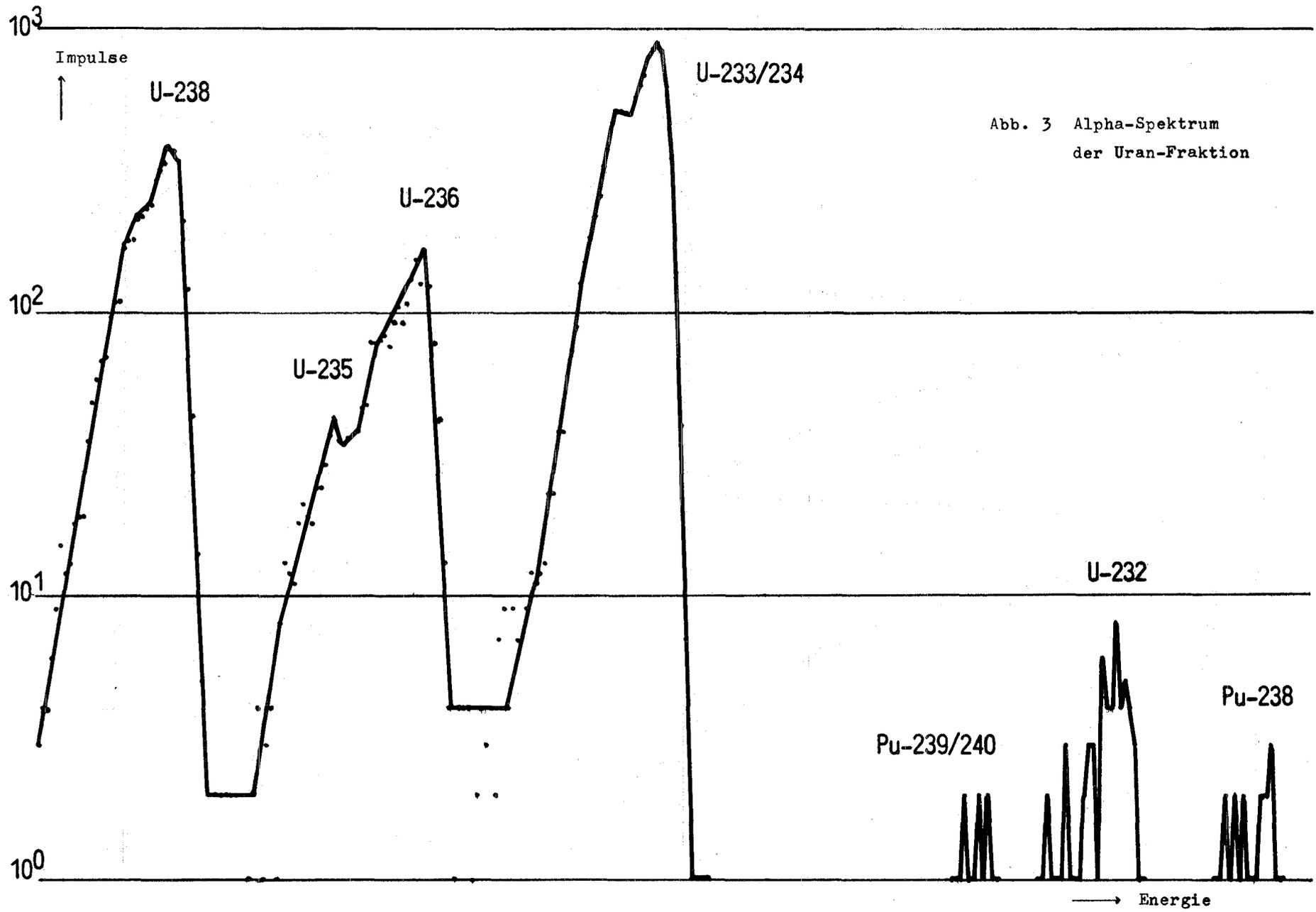


Abb. 3 Alpha-Spektrum
der Uran-Fraktion

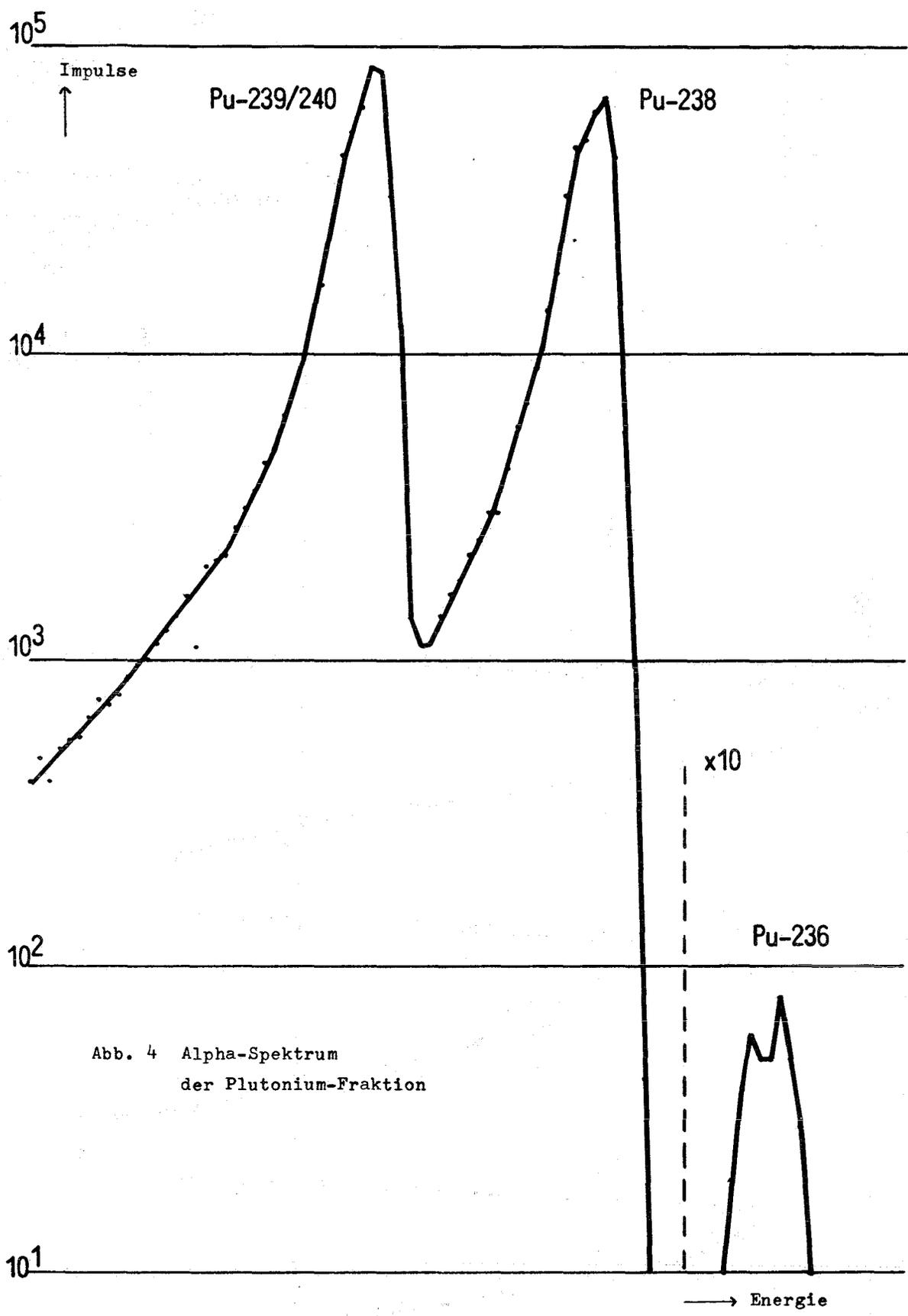
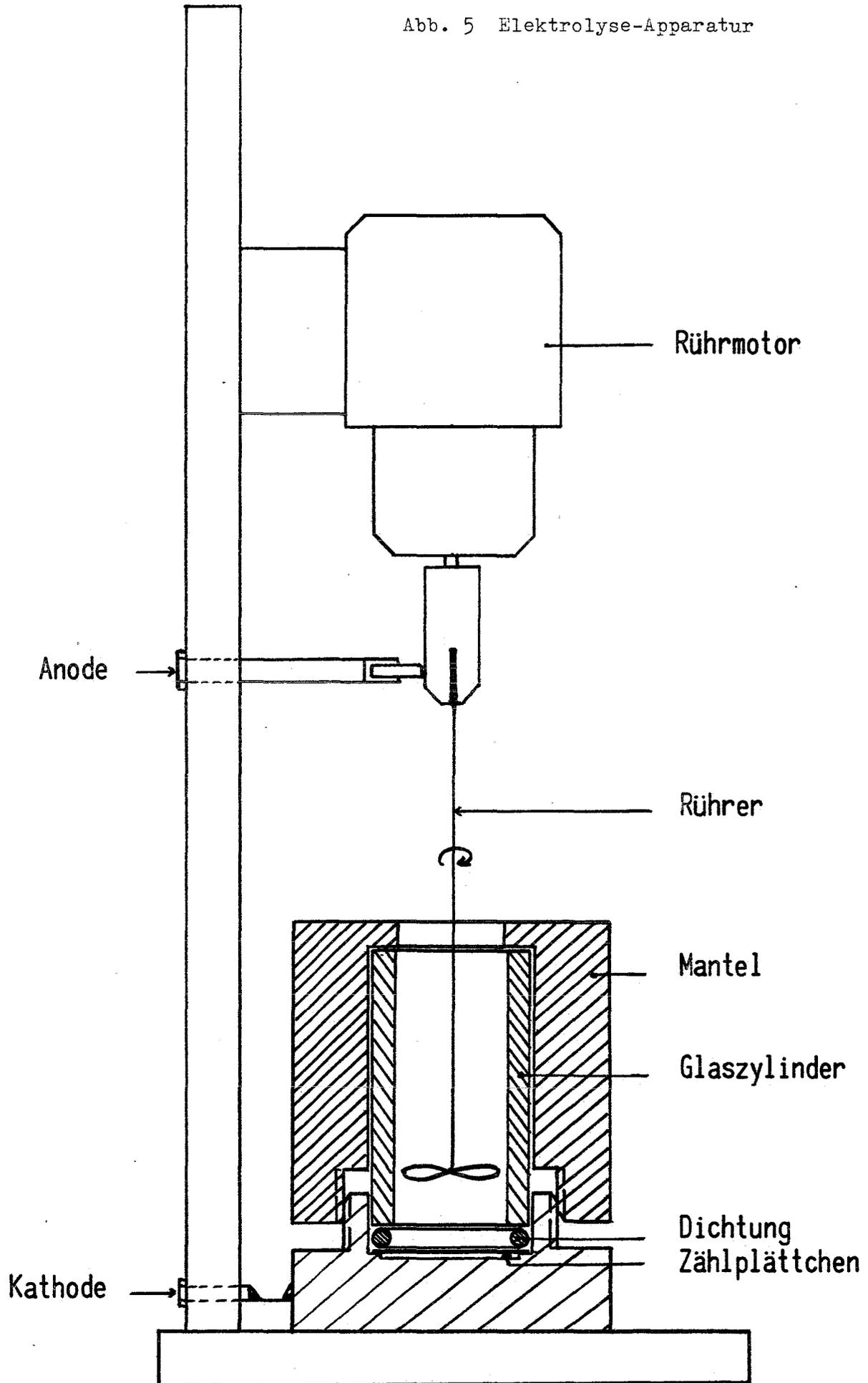


Abb. 4 Alpha-Spektrum
der Plutonium-Fraktion

Abb. 5 Elektrolyse-Apparatur



Anhang

Experimentelles

1. Chemikalien und Geräte

Trennung:

4 Glassäulen (ca. 0,5 cm ϕ , 10 cm Höhe) mit Vorratsbehälter
oben, gefüllt mit je 0,5 g Dowex 1X8, 200-400 mesh,
vorbehandelt mit 8 M HNO_3

1 Glassäule wie oben, vorbehandelt mit 12 M HCl

HNO_3 : 8 M, 0,35 M und 0,001 M

HCl: 12 M, 6 M und 0,5 M

NaNO_2 -Lsg.: 1 M; $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ -Lsg.: 1 M

übliche Handschuhkasten-Ausstattung

Elektrodeposition:

Elektrolyseapparatur (Schnittzeichnung Abb. 5) mit für jede
Messung einem neuen Rührer (Anode) und Zählplättchen (Kathode)
aus V2A-Stahl, Glaszylinder und Dichtring

Messung:

Oberflächensperrschichtdetektor (ORTEC 050-100, Auflösung
18 keV FWHM für 5,5 MeV) in Verbindung mit 400-Kanalanalysator
(INTERTECHNIQUE SA 41) für α -Spektrometrie

2. Arbeitsvorschrift

Trennung:

- 1) 1-2 g der in 8 M HNO_3 vorliegenden Brennstoff-
lösung, entsprechend 0,25-0,5 mg Brennstoff,
werden zur Wertigkeitseinstellung mit 0,2 ml

1 M $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ -Lsg. versetzt und auf 80°C erwärmt. Nach Abkühlung setzt man 0,5 ml 1 M NaNO_2 -Lsg. zu und läßt 15 min stehen.

- 2) Die Lösung wird nach Abkühlung auf eine Glassäule mit Dowex LX8 gegeben. Eine dem zugesetzten Volumen und dem Säulenvolumen entsprechende durchgelaufene Menge wird verworfen.
- 3) Es wird mit 6 ml 8 M HNO_3 gewaschen (Uran I) und anschließend mit 6 ml 0,35 M HNO_3 eluiert (Plutonium I).
- 4) Uran I wird zweimal mit 12 M HCl zur Trockne eingedampft, mit 1 ml 12 M HCl aufgenommen und auf die Glassäule mit Dowex LX8 in 12 M HCl gegeben.
- 5) Es wird mit 1 ml 12 M HCl und dann mit 6 ml 6 M HCl gewaschen und anschließend mit 3 ml 0,5 M HCl eluiert (Uran II).
- 6) Uran II wird zweimal mit 8 M HNO_3 zur Trockne eingedampft, mit 1 ml 8 M HNO_3 aufgenommen und auf eine Glassäule mit Dowex LX8 gegeben.
- 7) Es wird mit 6 ml 8 M HNO_3 eluiert (Uran III).
- 8) Plutonium I (s. 3) wird zur Trockne eingedampft, mit 1 ml 8 M HNO_3 aufgenommen und auf eine Glassäule mit Dowex LX8 gegeben.
- 9) Es wird mit 5 ml 8 M HNO_3 gewaschen und anschließend mit 5 ml 0,35 M HNO_3 eluiert (Plutonium II).

- 10) Schritte 8) und 9) werden wiederholt (Plutonium III).
- 11) Uran III und Plutonium III werden jeweils zur Trockne eingedampft und mit je 10 ml 0,001 M HNO_3 aufgenommen.

Elektrodeposition:

- 12) Die Elektrolyseapparatur wird mit dem Zählplättchen zusammengeschraubt. 10 ml der Problelösung in HNO_3 (pH = 3) werden in das Gefäß gegeben. Der Rührer (Anode) wird im Abstand von ca. 0,5 cm vom Zählplättchen (Kathode) befestigt.
- 13) Der Rührmotor der Anode wird eingeschaltet (ca. 600 U/min) und der Elektrolysestrom auf 200 mA eingestellt. Nach einer Stunde ist die Abscheidung beendet.
- 14) Die Elektrolyselösung wird abgehebert, bis die Anode nicht mehr eintaucht. Dann wird der Elektrolysestrom abgeschaltet. Das Zählplättchen in der Apparatur wird mit destilliertem Wasser und mit Alkohol gewaschen. Danach wird die Apparatur auseinandergeschraubt. Rührer, Glaszylinder und Dichtung gibt man in den Abfall, das Zählplättchen wird nochmals mit destilliertem Wasser und mit Alkohol gewaschen, an der Luft getrocknet und schwach gegläht.

Messung:

- 15) Jedes Target wird ca. zwei Tage lang gemessen, bis man von den Spurenisotopen auswertbare Impulszahlen erhält.

Handwritten text, likely bleed-through from the reverse side of the page. The text is extremely faint and illegible due to the quality of the scan and the nature of the bleed-through. It appears to be several paragraphs of text, possibly containing names, dates, and descriptive information, but no specific content can be discerned.