

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

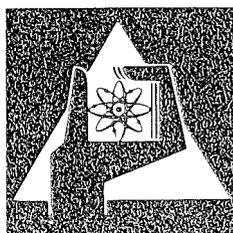
Juni 1976

KFK 2308

Institut für Radiochemie
Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

**Neutronenaktivierungsanalytische Bestimmung kleiner
Np-237-Gehalte in Uran, Plutonium und Spaltprodukte
enthaltenden Lösungsproben**

H. Ruf, M. Friedrich



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

K F K - 2308

P W A - Bericht Nr. 37-76

Institut für Radiochemie

Projekt Wiederaufarbeitung und Abfallbehandlung

Neutronenaktivierungsanalytische Bestimmung kleiner Np-237-Gehalte
in Uran, Plutonium und Spaltprodukte enthaltenden Lösungsproben

Heinz Ruf, Margarete Friedrich

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung

Submikrogramm-Mengen Np-237 in Prozeßlösungen der MILLI-Anlage werden nach chemischer Trennung von Kernbrennstoffelementen und Spaltprodukten durch Extraktion mit Thenoyl-trifluoraceton neutronenaktivierungsanalytisch bestimmt. Die chemischen Ausbeuten werden durch Zugabe und Messung des Np-239 als Spike-Aktivität kontrolliert.

Neutron activation analytical determination of small amounts of Np-237 in solutions containing Uranium, Plutonium and fission products.

Abstract

Submicrogram-amounts of Np-237 in process-solutions of the MILLI-plant are determined by neutron activation analysis after chemical separation from nuclear fuel elements and fission products by extraction with Thenoyl-trifluoro-acetone. Chemical yield controls are established by adding and measuring of Np-239 spike activity.

Inhalt

I.	Einführung	1
II.	Erläuterung des analytischen Problems	2
III.	Prüfung des Verfahrens	3
IV.	Bestimmung des Neptuniums in organischen Prozeßströmen	4
V.	Bestrahlung der Proben und Messung der Aktivitäten .	5
VI.	Experimentelles	6
	1) Gewinnung von Np-239-Spike-Aktivität	6
	2) Durchführung der Analysen	6
	3) Behandlung organischer Prozeßlösungen	7
VII.	Ergebnisse und Diskussion	8
VIII.	Literatur	9

I. Einführung

Die analytische Bestimmung kleiner Neptuniumgehalte hat nicht zuletzt im Zusammenhang mit der Kontrolle des Prozeßgeschehens in Wiederaufarbeitungsanlagen für bestrahlte Kernbrennstoffe Interesse erweckt. Zu den radio-metrischen Methoden, die zur Bestimmung des Neptuniums herangezogen werden, zählen die Alphaspektrometrie¹⁾ und die das Pa-233, die Tochteraktivität des Np-237 erfassende, weniger gebräuchliche Gammaskpektrometrie²⁾. Über den Einsatz der wesentlich empfindlicheren aktivierungsanalytischen Methode zur Neptuniumspurenbestimmung ist bisher kaum berichtet worden. Lediglich Landrum et al.³⁾ haben diese in Verbindung mit der von ihnen beschriebenen massenspektrometrischen Bestimmung des Elements erwähnt. Indes lassen sich mit Hilfe der Neutronenaktivierungsanalyse kleinste Neptuniumgehalte in Gemischen mit bestrahlten Kernbrennstoffen durch Messung des Np-238 selektiv erfassen, wenn man der Aktivierung eine nicht einmal aufwendige chemische Trennung voranstellt. Unter Ausnutzung der von Moore⁴⁾ untersuchten Extrahierbarkeit des Neptuniums mit Thenoyltrifluoraceton (TTA) sowie seiner Reextrahierbarkeit mittels Salpetersäure kann diese Trennung in einfacher Weise ausgeführt werden. Ohne nennenswerten Mehraufwand ermöglicht zudem der Zusatz von trägerfreiem Np-239, in hoher Reinheit erhältlich bei der Bestrahlung von abgereichertem Uran mit epithermischen Reaktorneutronen, eine Bestimmung der chemischen Ausbeute, welche hierbei zu empfehlen ist. Auf diesem Wege wird in unserem Laboratorium Neptunium in Lösungsproben von Prozeßströmen der MILLI-Anlage, die wechselnde Mengen Plutonium, schwach angereichertes Uran, Americium, Curium und nicht selten auch hohe Spaltproduktaktivitäten enthalten, bestimmt. Für die genannte Vorabtrennung des Neptuniums ist selbst in Proben mit hohen Urangehalten und einem 5000-fachen Plutoniumanteil ein einziger Extraktionszyklus, welcher allerdings auch zwei Waschschrirte einschließt, ausreichend. Beim Neptunium noch verbliebene, mit zur Bestrahlung gelangende Restmengen an Fremdelementen stören am Ge(Li)-Detektor vorgenommene Gamma-Messungen nicht. Auch die Anwesenheit ungewöhnlich hoher Spaltproduktaktivitäten in manchen Analysenlösungen macht einen weiteren Arbeitsschritt im Trennungsgang meist nicht erforderlich.

Im Gegensatz zu dieser relativ unkomplizierten Verfahrensweise zur Probenvorbereitung ist die Präparation zur anderwärts verwendeten alphaspektrometrischen Analyse mit größeren Umständen verbunden. Daß die von Salomon und Mitarbeitern¹⁾ - ohne Verwendung eines Ausbeutemonitors - bewerkstelligten TTA-Extraktionsschritte zu diesem Zweck mehrmals wiederholt werden müssen, ist nicht verwunderlich. Erfordert doch die Isolierung des Np-237 von anderen in Prozeßströmen der Brennelementaufbereitung vorkommenden α -strahlenden Elementen zumal im Hinblick auf seine kleine spezifische Aktivität für eine ungestörte Alpha-Zählung besondere Sorgfalt.

II. Erläuterung des analytischen Problems

Ohne eine chemische Vorabtrennung ist die aktivierungsanalytische Bestimmung des Neptuniums in den zur Diskussion stehenden Lösungen nicht möglich. Dies liegt einmal an den z.T. in großem Überschuß vorliegenden Kernbrennstoffelementen, in denen bei der Bestrahlung vor allem durch Spaltung erhebliche Mengen an Fremdaktivitäten entstehen würden. Zweitens ergibt sich diese Notwendigkeit aus der in einem Teil des Untersuchungsmaterials aufgrund seiner Herkunft (HAF- und HAW-Ströme) schon von vornherein zu verzeichnenden Anwesenheit hoher Spaltproduktaktivitäten, welche u.a. beachtliche, die Probenhandhabung erschwere Strahlendosisleistungen mit sich bringen. Von Spaltprodukt nukli- den waren in den bearbeiteten Proben, da es sich ausnahmslos um Prozeßlösungen länger gelagerter Brennelemente handelte, hauptsächlich Ce-144, Cs-134, Cs-137, Ru-106 und Zr-95 vertreten. Von all diesen störenden Beimengungen läßt sich in den 4-wertigen Zustand reduziertes Neptunium durch Extraktion mittels TTA aus etwa 1-molar-salpetersauren Lösungen trennen. Das Alkali- element Cäsium wird mit diesem Reagenz unter den herrschenden Bedingungen überhaupt nicht extrahiert. Die 3-wertigen leichten Seltenen Erden (Spalterden) und Actinide sowie Uran-VI bilden mit TTA erst oberhalb $\text{pH} = 3$ extrahierbare Komplexe. (Plutonium liegt unter den für die Neptunium-Reduktion erforderlichen Reaktionsbedingungen als Pu-III vor). Auch Ruthen bleibt unter dem Einfluß des stark sauren Milieus in der wäßrigen Phase zurück. Zirkon geht zwar mit in die TTA-Phase, verbleibt jedoch darin, wenn man diese zur Reextraktion des Neptuniums mit $8M\text{-HNO}_3$ schüttelt. Ebenso wird bei dem Extraktionsvorgang

das Eisen abgetrennt, das zur Reduktion des Neptuniums in geringen Mengen zugesetzt werden muß.

Störende Einflüsse auf die Neptunium-Extraktion haben Phosphat, Fluorid, Oxalat und größere Mengen Sulfat. Schwefelsäurekonzentrationen unter 0,1 n behindern indes die Trennung nicht⁴⁾.

III. Prüfung des Verfahrens

Obwohl in der Literatur Verteilungsdaten für das TTA/HNO₃-System vorliegen, sollten auch eigene Untersuchungen zu einer zuverlässigen Information über das Extraktionsverhalten des Neptuniums sowie der übrigen besonders zu berücksichtigenden Elemente beitragen.

Die Durchführung der Neutronenaktivierungsanalyse an variierenden, mit Np-239 gespeikten bekannten Np-237-Einsätzen bei Anwendung des genannten extraktiven Trennverfahrens ließ erkennen, daß die Np-Ausgangsmengen mit zufriedenstellender Genauigkeit wiedergefunden werden (Tab. 1). Es stellte sich ferner heraus, daß durch das gerade bei realistischen Analysenproben zur Verbesserung des Reinigungseffektes notwendige Waschen der TTA-Phase zusätzliche unterschiedliche Neptuniumverluste von zumindest einigen Prozent in Kauf genommen werden müssen. Im Interesse exakter Analyseergebnisse resultierte daraus zwangsläufig die Erfordernis einer Ausbeutekontrolle. Mit der Verwendung des leicht zugänglichen Np-239 als Tracer-Aktivität, von der man zu Beginn der Probenbearbeitung eine bekannte Menge zugibt, löste sich dieses Problem auf einfachste Weise. Gamma-spektroskopisch läßt sich das später bei der Bestrahlung entstehende Np-238 vom Np-239 aufgrund der wesentlichen Verschiedenheit der Gamma-Energien (Tab. 2) ohne Schwierigkeit unterscheiden.

Bezüglich der Trenneffekte für Plutonium und Uran sei auf das Gammaskpektrum einer bestrahlten Neptuniumprobe hingewiesen (Fig. 1), welche von Plutonium und makroskopischen Mengen Urans abgetrennt worden ist und nach geeigneter Abklingzeit keine die Np-238-Messung störende Fremdaktivitäten erkennen läßt. An Proben, in denen das Gewichtsverhältnis Pu:Np den Wert 5000 wesentlich übersteigt, muß freilich erfahrungsgemäß die Extraktion mit TTA unter erneuter Zugabe von Reduktionsmittel wiederholt werden.

An einigen wenigen, relativ viel Plutonium (7 mg/ml) enthaltenden Analysen-

proben entstanden allerdings insofern Schwierigkeiten, als trotz besonderer Bemühung um eine saubere Abtrennung des Störelements (mehrfache Wiederholung der Extraktion) das Np-238 infolge neu aufgetretener, ungewöhnlich hoher Spaltproduktaktivitäten (zur Zeit der Messung waren vor allem noch J-131, J-132 und La-140 vorhanden) nicht gemessen werden konnte. Diesen Effekt führen wir auf die Anwesenheit des in Xylol löslichen Pu-IV-Dibutylphosphats zurück, welches bei der extraktiven Trennung des Neptuniums mit in die organische Phase wandert und bei deren Schütteln mit konzentrierterer Salpetersäure teilweise ebenso wieder in den wäßrigen Reextrakt gelangt. Tatsächlich enthalten die Lösungsproben in geringen Mengen (10-20 µg/ml) das durch Hydrolyse und Radiolyse im MILLI-Aufbereitungsprozeß aus TBP entstehende Dibutylphosphat. Am wirkungsvollsten begegnet man der genannten Komplikation dadurch, daß man das DBP oxydativ zerstört, was sich durch Eindampfen der Lösungsprobe nach Zugabe weniger Tropfen Perchlorsäure sicher erreichen läßt.

Was die Abtrennung der vorliegenden Spaltprodukte betrifft, so wurden im Einklang mit dem im vorausgegangenen Abschnitt dargelegten chemischen Verhalten dieser Elemente in den meisten Fällen ebenfalls durch bloß einmaliges Extrahieren ausreichende Trennwirkungen erzielt. Extraktionsversuche an den besonders aktiven Proben zeigten, daß die mitunter sogar 1 rem/h·ml betragenden ($\gamma+\beta$)-Dosisleistungen restlos in den zu verwertenden wäßrigen Phasen verbleiben. Die im Gammasktrum des isolierten Neptuniums noch erkennbaren Aktivitäten dieser Art (Fig. 2) verursachten keinerlei Störung. Erforderlichenfalls lassen sich hier aber durch simple Wiederholungen der Extraktion ergiebige Nachreinigungen vornehmen.

IV. Bestimmung des Neptuniums in organischen Prozeßströmen

Auch für die Analyse organischer Lösungen der Aufbereitungsanlage stellt das aufgezeigte Verfahren einen gangbaren Weg dar. Allerdings setzt dies ein Überführen des Neptuniums in wäßriges Milieu voraus. Durch Schütteln der Probe, welche vornehmlich in einem inerten Kohlenwasserstoff (z.B. n-Dodecan) gelöstes Tributylphosphat (TBP) enthält, mit Ammoniumkarbaminat läßt sich diese notwendige Umwandlung leicht bewerkstelligen. Wie Experimente gezeigt haben, genügt dazu ein intensiver, nur wenige Minuten dauernder Kontakt einer 1-molaren Lösung des Reagenzes mit der TBP-Phase.

Der hierbei entstehende, mit etwas Xylol zur Entfernung unerwünschter TBP-Reste zu waschende Reextrakt kann nach Ansäuern mit Salpetersäure und Reduktion des Neptuniums der besprochenen Extraktion mit TTA zugeführt werden.

V. Bestrahlung der Proben und Messung der Aktivitäten

Die beim Zurückschütteln mit $8M-HNO_3$ anfallenden wäßrigen Reextrakte enthalten den größten Teil des Neptuniums. Mit dem Überführen und Eindunsten dieser Lösungen in Quarzampullen, die dann zugeschmolzen werden, ist die Vorbereitung für die Bestrahlung nahezu abgeschlossen. Vor der Bestrahlung wird lediglich noch das in den verschlossenen Ampullen vorhandene Np-239 zur Bestimmung der chemischen Ausbeute gemessen. Eine Messung dieser Aktivität *n a c h* der Bestrahlung, etwa zusammen mit dem Np-238, würde zu falschen Ausbeute-Werten führen, da aus mitgeschleppten, ansonsten nicht hinderlichen Uranspuren Np-239 bei der Bestrahlung neu gebildet wird. Als am sichersten erscheint die Auswertung der Gamma-Intensität bei 278 keV. Eine Störung ist infolge der Abwesenheit anderer Gammastrahler mit ähnlichen Energien hierbei nicht zu befürchten. Aus dem Verhältnis der gemessenen Intensität zu der eines vergleichbaren 100 %-Standards läßt sich die Ausbeute berechnen.

Bei den Überlegungen bezüglich der zu wählenden Bestrahlungsbedingungen sind die mit dem Neptunium gegangenen, wenn auch geringen Anteile des Extraktionsmittels wegen ihrer Zersetzlichkeit im Strahlungsfeld des Reaktor-Cores und eines damit verbundenen möglichen Druckanstiegs in den Ampullen zu berücksichtigen. Es hat sich herausgestellt, daß bei Bestrahlungen am FR2 in Positionen mit einem Neutronenfluß von etwa $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ solche Radiolyseerscheinungen bei sich in Grenzen haltenden Verweilzeiten (bis zu 2 Tagen) keine merkliche Rolle spielen. Rechnet man mit diesem Fluß, so empfiehlt sich in Anbetracht der zur Debatte stehenden kleinen Neptunium-Mengen eine Bestrahlungszeit von wenigstens 12 Stunden.

Die Messung des Np-238 wird an den unveränderten Ampullen durchgeführt, sobald die insbesondere im Quarzmaterial entstandenen Störaktivitäten abgeklungen sind (Wartezeit ca. 2 Tage). Drei prominente Gamma-Linien (s. Tab. 2), die neben verschiedenen weniger intensiven ermittelt werden, ermöglichen einen empfindlichen und spezifischen Nachweis des Neptuniums.

In der hier beschriebenen Arbeit gelangte die stärkste Linie mit 984 keV Energie zur Auswertung. Durch Vergleich der mithilfe des im hiesigen Zentrum benutzten Rechenprogrammes ISINA 4 automatisch erfaßbaren Peakflächen mit denen, die in den Gammaskpektren mitbestrahlter Standardproben gefunden werden, ergeben sich die gesuchten Neptuniumgehalte.

VI. Experimentelles

1) Gewinnung von Np-239-Spike-Aktivität

Ein möglichst kleines Lösungsvolumen (0,5 ml) von 1 mg abgereichertem Uran als Uranylнитrat pipettiert man in eine Quarzampulle geeigneten Rauminhalts und dampft unter der IR-Lampe zur Trockne ein. Nach Zerschmelzen der Ampulle wird letztere in Kadmiumfolie verpackt und 24 h lang in einem Kernreaktor bei einem möglichst hohen Neutronenfluß bestrahlt. Wenn die Aktivität im Quarzmaterial weitgehend abgeklungen ist, wird die Ampulle geöffnet und der Inhalt in einem nicht zu großen Volumen $1M-HNO_3$ (15 ml) gelöst.

2) Durchführung der Analyse

Die hauptsächliche Verfahrensweise bei der Analyse wird durch das in Fig. 3 dargestellte Fließschema veranschaulicht. Zu maximal 2 ml Probenlösung, welche 1-molar an HNO_3 sein soll, gibt man in einem kleinen Reagenzglas nacheinander Np-239-Spike-Lösung (Herstellung siehe unter VI. 1.), 0,1 ml 0,2M- $FeCl_2$ und 4 Tropfen 2,5M- $NH_2OH \cdot HCl$. Das Gesamtvolumen der Reaktionslösung soll 3 ml betragen und 1-molar an HNO_3 sein. Denselben aliquoten Teil an Np-239-Lösung legt man auch noch in einer sauberen Ampulle vor und bereitet sich somit die bei der Ausbeutebestimmung benötigte 100 %-Standardprobe. Die genannte Reaktionslösung erwärmt man im Wasserbad zur Reduktion des Neptuniums für eine Zeit von 20 Minuten auf $70^{\circ}C$. Danach läßt man die Lösung abkühlen und vermischt sie in einem mit Ablasshahn, seitlichem Tubus und Intensivührer versehenen Extraktionsgefäß (s. Abb. 1) durch kräftiges Rühren 10 Min. lang mit 3 ml TTA/Xylol (0,5-molar). Nachdem sich nach Beendigung des Rührens die beiden Phasen voneinander getrennt haben, wird die wäßrige Schicht abgelassen und zum Ab-

fall gegeben. Dann gibt man zum Waschen der organischen Lösung 3 ml 1M-HNO_3 , 0,1 ml $0,2\text{M-FeCl}_2$ und 4 Tropfen $2,5\text{M-NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ und rührt während 5 Minuten. Wenn sich die Phasen getrennt haben, läßt man auch diese zum Abfall kommende wäßrige Waschphase ab und wiederholt den Vorgang mit einer 2. Portion Waschlösung wie beschrieben.

Zur organischen Lösung gibt man nun 3 ml 8M-HNO_3 und vermischt die beiden Phasen wiederum durch energisches, 10 Min. dauerndes Rühren, wonach die wäßrige Phase in ein Glasschälchen abgelassen und die Lösung durch Verdampfen unter der IR-Lampe stark eingeeengt wird. In der Folge ist die Restlösung mittels einer sauberen Kapillarpipette in eine Quarzampulle überzuführen und in letzterer bei 120°C zur Trockne einzudampfen.

Nun schmilzt man die Ampulle zu, mißt zur Bestimmung der Ausbeute die Gamma-Aktivität bei 278 keV Energie am besten an einem Ge(Li)-Detektor und vergleicht die gemessene Intensität mit der am 100 %-Standard festgestellten.

Anschließend bestrahlt man die Probe in einem Kernreaktor zusammen mit einem Standard bekannter und vergleichbarer Np-237-Menge, die man sich durch Eindampfen einer Neptuniumlösung bekannten Gehalts und Volumens in einer Quarzampulle präpariert hat.

2 Tage nach Bestrahlungsende wird die induzierte Np-238-Aktivität bei 984 keV Gammaenergie ebenfalls am Ge(Li)-Detektor gemessen.

Unter Berücksichtigung der ermittelten chemischen Ausbeute berechnet man aus der gemessenen Aktivität durch Vergleich mit der Standard-Aktivität den gesuchten Neptuniumgehalt.

3) Behandlung organischer Prozeßlösungen

1 ml der zu analysierenden organischen Prozeßlösung (verdünntes TBP) schüttelt man in einem kleinen Extraktionstrichter mit 1 ml $1\text{M-Ammonium-karbaminatlösung}$, trennt die wäßrige Phase ab, säuert diese auf 1M-HNO_3 an und verfährt damit weiter, wie unter VI. 2. beschrieben.

VII. Ergebnisse und Diskussion

Das aufgezeigte Verfahren ermöglicht zuverlässige analytische Bestimmungen kleiner Neptuniumgehalte in Prozeßlösungen von Wiederaufarbeitungsanlagen bestrahlter Kernbrennstoffe. Hierbei erzielbare Genauigkeiten läßt Tabelle 1 erkennen. Die bei Doppelbestimmungen an echten Analysenproben mit relativ niedrigen Np-Konzentrationen beobachtete vorzügliche Reproduzierbarkeit der Ergebnisse (s. Tab. 3) unterstreicht die Tauglichkeit der Methode. Bei der statistischen Erfassung aller bei Doppelbestimmungen aufgetretenen prozentualen Unterschiede von den Mittelwerten ergab sich eine Standardabweichung von $\pm 4,5\%$.

Was die Bestimmungsgrenze des beschriebenen Analysenverfahrens betrifft, so ergab sich bei einer integralen Flußdichte von $2,6 \times 10^{18}$ n/cm² 2 Tage nach Bestrahlungsende in 10 cm Abstand vom Detektor für $E_{\gamma} = 984$ keV eine spezifische Meßrate von ca. 1000 Imp. pro 0,1 µg Neptunium. Bei Verkleinerung der Detektorentfernung und entsprechender Verlängerung der Meßzeit sollten sich demnach Neptuniumspuren der Größenordnung von 1 ng durchaus noch quantitativ bestimmen lassen. Da die bei der chemischen Vortrennung verwendeten Reagenzien als neptuniumfrei anzusehen sind, besteht von daher keine Gefahr des Einschleppens von Neptunium. Zur Vermeidung einer signifikanten Querkontamination empfiehlt sich nur bei der Bearbeitung äußerst neptuniumarmer Proben die Verwendung erstbenutzter Reaktionsgefäße.

Im Gammaskpektrum einer aktivierten Probe (Fig. 1) sind außer den charakteristischen Linien der Nuklide des Neptuniums noch solche einiger Spaltprodukte, wie z.B. des Mo-99, Tc-99m, Ce-141 und des I-131 zu erkennen. Diese sind auf die in geringfügigem Ausmaß mitgegangenen Kernbrennstoffelemente zurückzuführen. Sie fallen jedoch bei der Auswertung der Meßdaten nicht sonderlich ins Gewicht.

VIII. Literatur

- 1) Salomon, L., Lopez de Manterola, J., Luyten, P., Lopez-Menchero, E.:
ETR-273 (Août 1968)
- 2) Cofield, R.E.: Health Phys., 9, 283 (1963)
- 3) Landrum, J.H., Lindner, M., Jones, N.: Anal. Chem. 41, 840 (1969)
- 4) Moore, F.L.: Analyt. Chem. 29, 941 (1957)
- 5) Erdtmann, G., Soyka, W.: Jül-1003-Ac (1973)

Herrn Dr. E. Gantner und Herrn M. Mostafa danken wir für die freundlicher-
weise durchgeführten Aktivitätsmessungen.

Tab. 1: Vorgelegte und nach Anwendung des extraktiven Trennverfahrens aktivierungsanalytisch wiedergefundene Np-237-Mengen

Nr.	µg Neptunium		Abweichung in %	erzielte chem. Ausbeute in %
	vorgel.	gefunden.		
1	0,088	0,082 ⁴	- 6,3	89,2
2	0,089	0,088 ⁷	- 0,34	86,8
3	0,175	0,174 ⁶	- 0,23	92,5
4	0,180	0,172 ⁰	- 4,4	94,1
5	0,267	0,267 ⁸	+ 0,3	93,2
6	0,266	0,263 ⁵	- 0,94	94,3

Tab. 2: Die wichtigsten γ -Linien von Np-238 und Np-239 mit den zugehörigen Häufigkeiten^{x)}

Nuklid	T _{1/2}	E _{γ} in KeV	Häufigkeit der γ -Quanten in %
Np-238	2,2 d	984,4	24,0
		1028,5	16,1
		1026,0	9,5
		923,7	2,4
Np-239	2,35 d	106,1	21,0
		103,7	18,0
		277,6	12,1
		99,5	11,0

x) nach G. Erdtmann und W. Soyka⁵⁾

Tab. 3: Bei Doppelbestimmungen in unteren Neptuniumkonzentrationsbereichen erzielte Reproduzierbarkeiten

Probe Nr.	Gefundene Neptuniumkonzentrationen in $\mu\text{g/ml}$		Mittelwert $\mu\text{g/ml}$	Streuung in %
	1. Bestimmg.	2. Bestimmg.		
829	0,0186	0,0200	0,0193	$\pm 3,63$
1899	0,0396	0,0419	0,0407	$\pm 2,82$
476	0,587	0,604	0,595	$\pm 1,43$

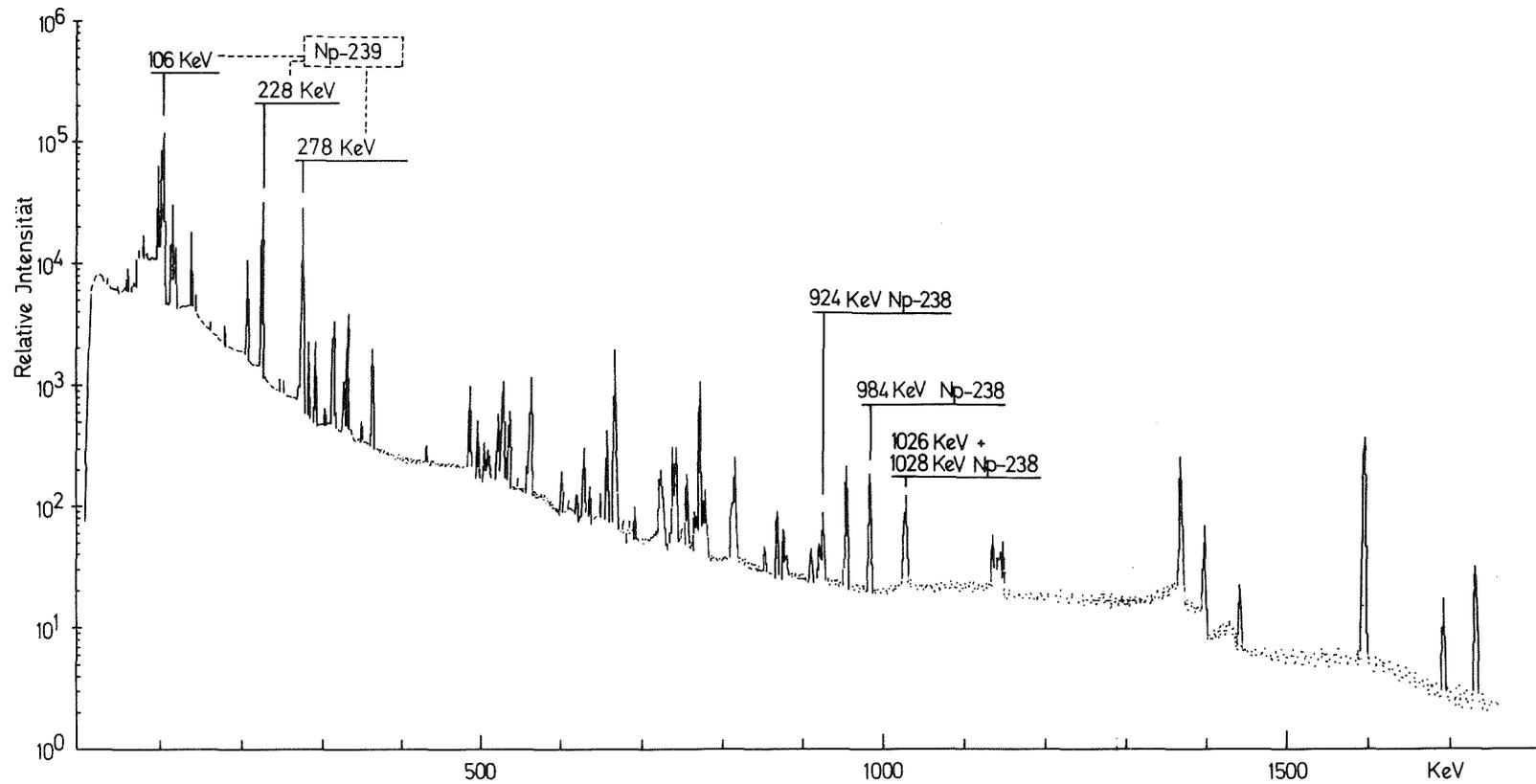


Fig.1 Gamma-Spektrum von 0,043 μg bestrahltem Np-237 nach Vorabtrennung von 110 mg angereichertem Uran und 6 μg Plutonium. Bestrahlungszeit: 13 h; $\Phi = 3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$. Meßbeginn 3,7 Tage nach Bestrahlungsende.

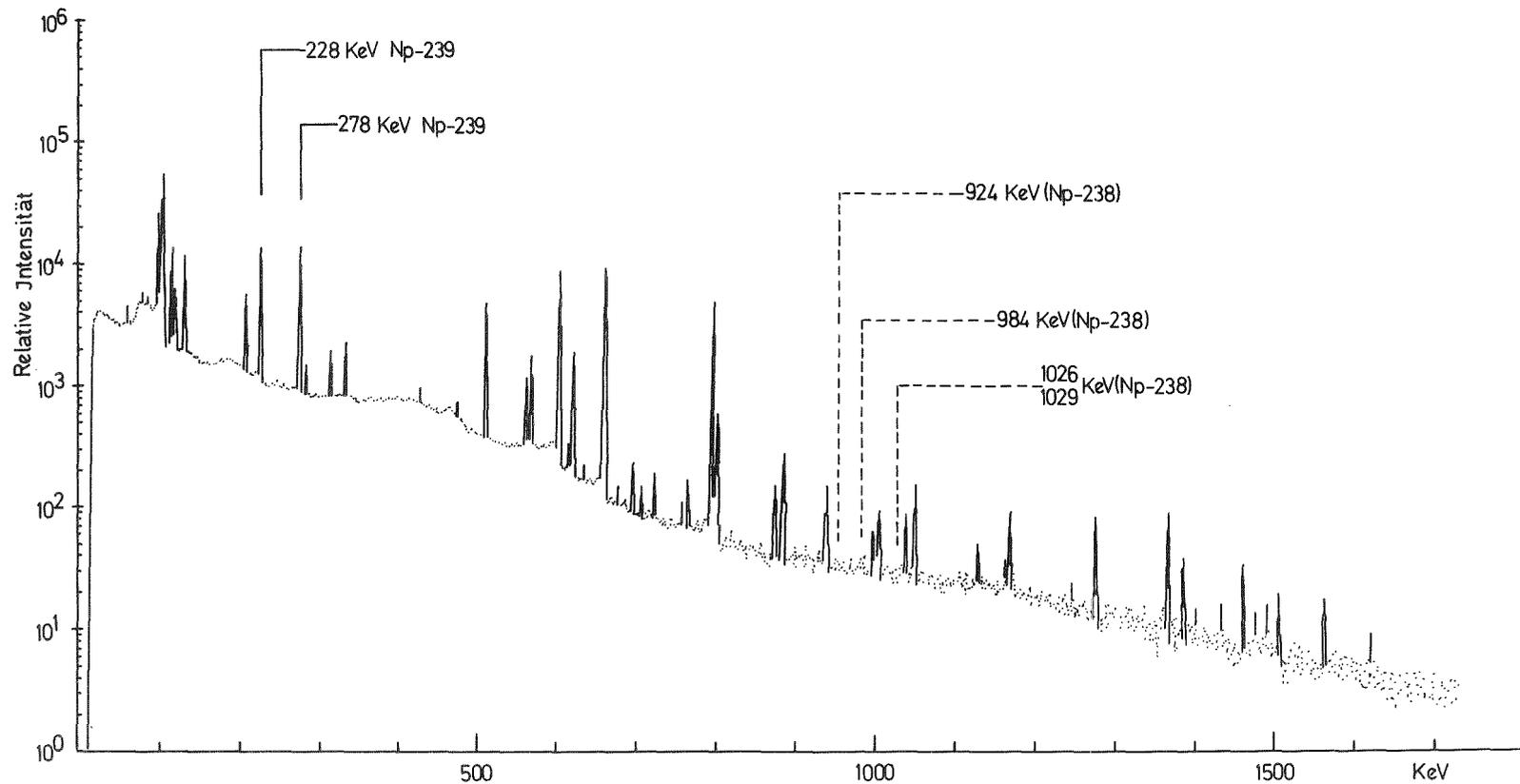


Fig. 2 Gamma-Spektrum einer mit Np-239 gespeikten, durch eine einzige Extraktion vorabgetrennten und noch nicht bestrahlten Np-237-Probe. Die zu analysierende Originallösung (Einsatz: 1 ml) hatte vor der Trennung mit TTA eine von Spaltproduktaktivitäten herrührende Gamma-Dosisleistung von 500 mrem/h·ml. An den entsprechend bezeichneten Stellen sind nach der Bestrahlung die prominenten Gamma-Linien des Np-238 zu beobachten.

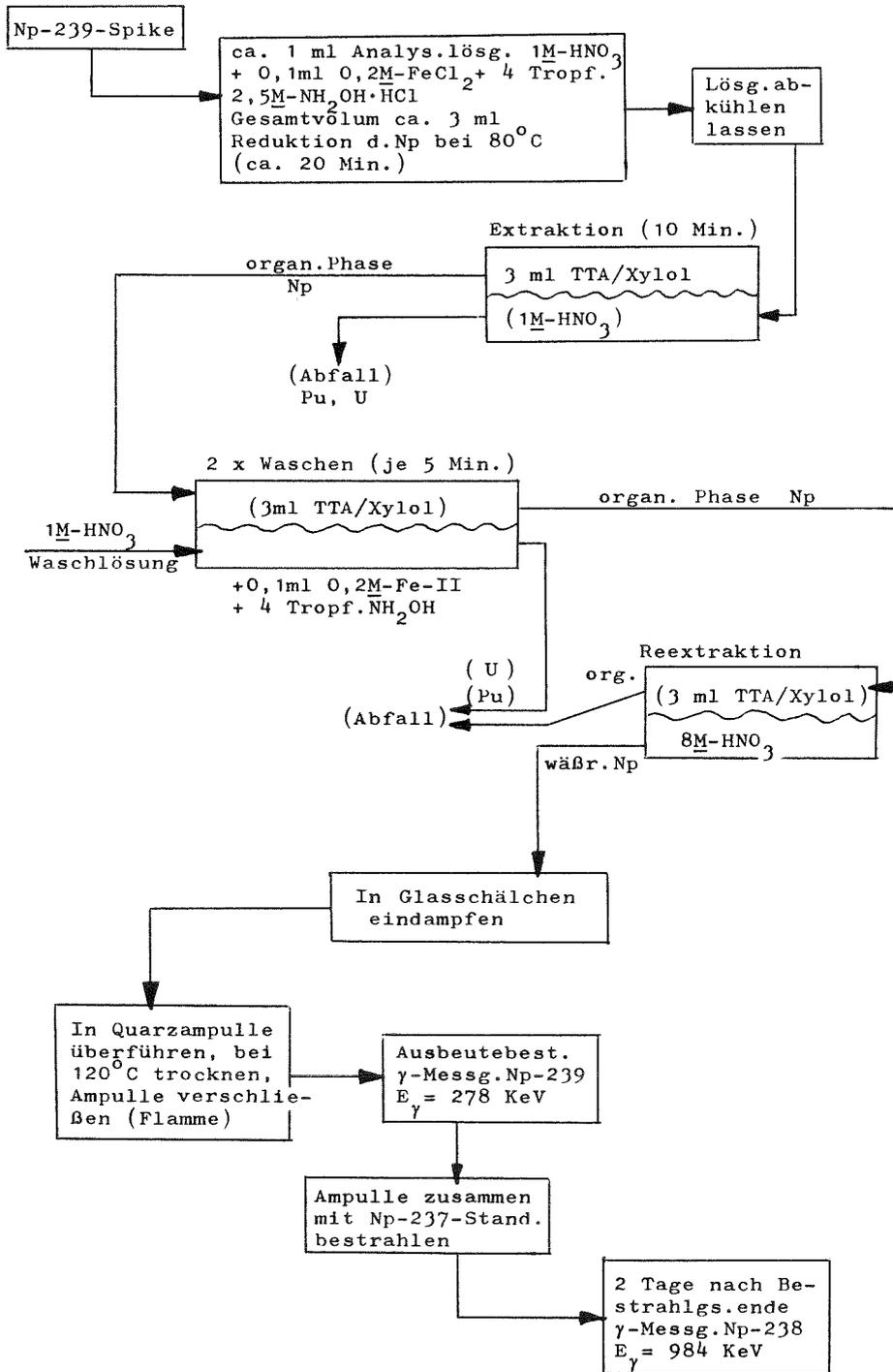


Fig.3 Fließschema zum Arbeitsgang der Neptuniumbestimmung

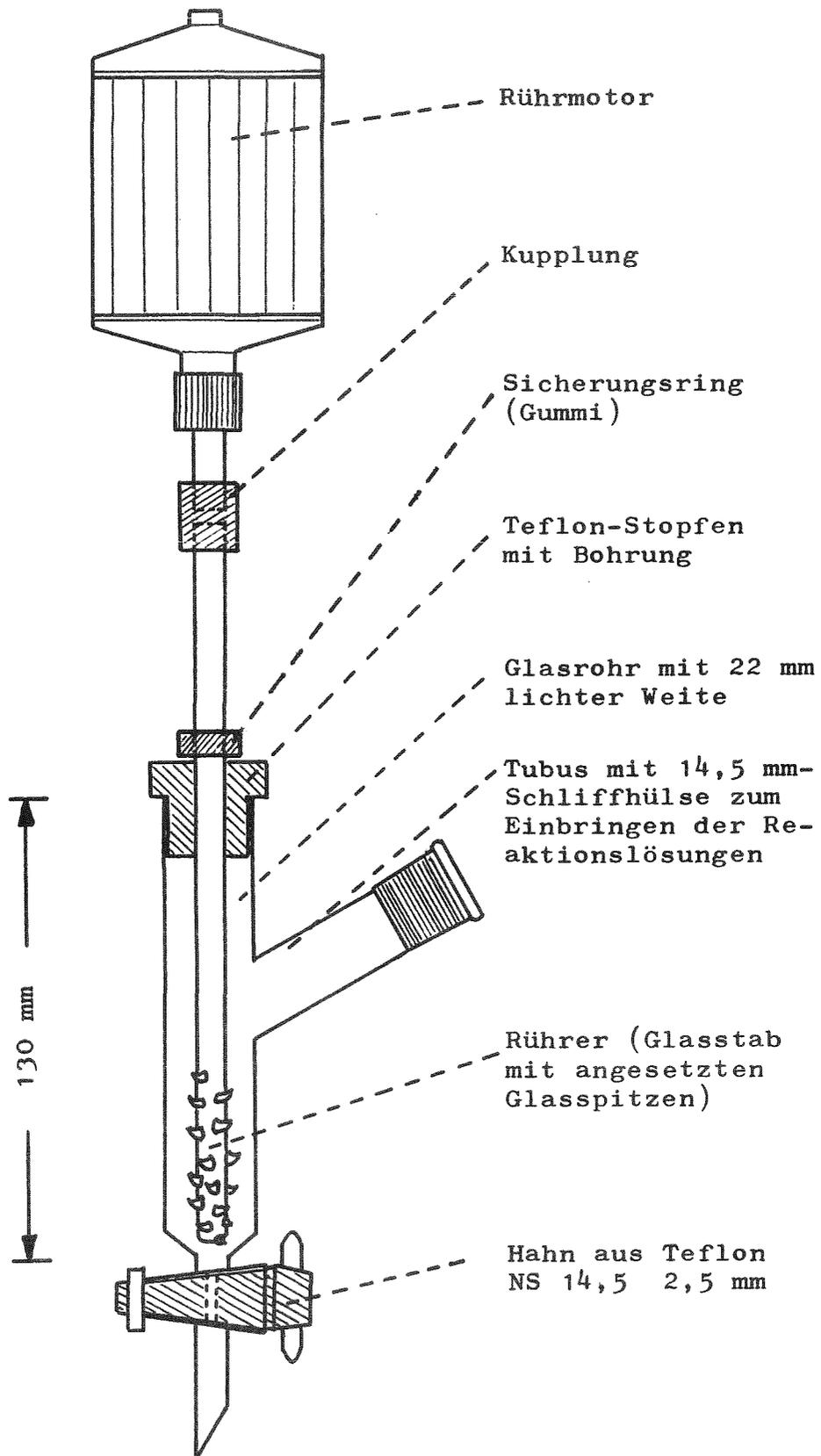


Abb. 1 Bei den Extraktionen benutztes Reaktionsgefäß mit Intensivrührer