

**Extraktionschromatographisches Verfahren  
zur alphaspektrometrischen Bestimmung  
der mittleren Aktivitätskonzentrationen  
von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden  
in der Fortluft kerntechnischer Anlagen**

J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-03

Bearbeiter:

A. Heckel  
I. Lohse

Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

# **Extraktionschromatographisches Verfahren zur alphaspektrometrischen Bestimmung der mittleren Aktivitätskonzentrationen von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden in der Fortluft kerntechnischer Anlagen**

## **1 Anwendbarkeit**

Das hier beschriebene Verfahren eignet sich zur Bestimmung der mittleren Aktivitätskonzentrationen von alphastrahlenden Uran-, Plutonium-, Americium- und Curiumisotopen in der Fortluft kerntechnischer Anlagen. Diese Methode ermöglicht im Vergleich mit dem Verfahren J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-02 eine schnellere radiochemische Trennung der einzelnen Radionuklide und benötigt geringere Chemikalienmengen.

## **2 Probeentnahme**

Aus der Fortluft der kerntechnischen Anlage wird mittels einer Probeentnahmeeinrichtung ein repräsentativer Teilluftstrom entnommen. Die an Schwebstoffe gebundenen alphastrahlenden Radionuklide werden kontinuierlich auf einem Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad über 0,995, z. B. Typ H12 gemäß DIN EN 1822 Teil 1, abgeschieden (1). Der Volumenstrom durch das Schwebstofffilter beträgt einige Kubikmeter pro Stunde.

Als Schwebstofffilter werden sowohl Glasfaserfilter als auch Cellulose- oder Teflonmembranfilter mit einem Porendurchmesser von 4  $\mu\text{m}$  bis 8  $\mu\text{m}$  (2, 3) verwendet. Glasfaserfilter weisen einen geringeren Strömungswiderstand auf. Die Aerosolpartikeln haften auf dem inerten Fasermaterial und lassen sich leicht lösen (3). Bei Cellulosemembranfiltern lässt sich die Filtermatrix durch Zugabe von organischen Lösemitteln wie Aceton leicht auflösen. Falls eine Plasmaveraschungsanlage zur Probenvorbereitung benutzt wird, sollten keine Cellulosenitratfilter verwendet werden, da sie leicht verpuffen.

Angaben zur Halterung des Schwebstofffilters und zum Aufbau der Probeentnahmeeinrichtung sind in der Literatur (4) und dem Verfahren J- $\gamma$ -SPEKT-ALUFT-02 zu finden.

## 3 Analyse

### 3.1 Prinzip des Verfahrens

Das Verfahren beruht auf der extraktionschromatographischen Trennung der alpha-strahlenden Radionuklide von Uran, Plutonium, Americium und Curium mit den handelsüblichen Materialien UTEVA-Spec<sup>®</sup> (Diämyl-ämyl-phosphonat an inertem Träger) und TRU-Spec<sup>®</sup> (Octyl-phenyl-N,N-diisobutyl-carbamoyl-methyl-phosphinoxid in Tri-n-butylphosphat an inertem Träger). Die Ausbeutebestimmung der radiochemischen Trennung erfolgt durch Zusatz von Uran-, Plutonium- und Americiumtracern zur Probelösung. Die Ausbeuten bei Uran, Americium und Plutonium liegen in der Regel zwischen 60 % und 90 % (5, 6, 7, 8).

Eine Vorveraschung der bestaubten Schwebstofffilter oder von Teilen davon ist im Allgemeinen nicht erforderlich, aber von Vorteil. Aus dem Schwebstofffilter oder der Filterasche werden die Radionuklide ausgelaugt. Die Trennung der Radionuklide erfolgt über eine vorkonditionierte Säulenkombination aus UTEVA- und TRU-Säule. Dabei werden die U-, Th- und Np-Ionen auf der UTEVA-Säule gebunden, während Pu-, Am- und Cm-Ionen auf der TRU-Säule zurückgehalten werden. Nach dem Auswaschen störender Kationen werden die zu bestimmenden Radionuklide mit geeigneten Lösemitteln von den jeweiligen Säulen eluiert (Abbildung 1).

Zur Herstellung der Messpräparate werden die Radionuklide elektrochemisch auf Edelstahlplättchen oder mit Cer bzw. Neodym mitgefällt und auf Membranfiltern abgeschieden (9). Die Aktivität der Radionuklide wird mit ionenimplantierten Detektoren nuklidspezifisch bestimmt.

### 3.2 Probenvorbereitung

**3.2.1** Steht eine Plasmaveraschungsanlage zur Verfügung, werden die Glasfaser- oder Membranfilter im Sauerstoffstrom in Quarzschalen etwa 5 Stunden kalt verascht (siehe Verfahren J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-01).

**3.2.2** Glasfaserfilter werden in Streifen geschnitten und in ein 400 ml-Becherglas gegeben. Membranfilter werden verascht und der nach der Veraschung verbleibende Rückstand wird in ein 400 ml-Becherglas überführt.

**3.2.3** In das Becherglas werden jeweils eine genau bekannte Aktivität von ca. 30 mBq der radioaktiven Tracer Pu-236 oder Pu-242, U-232 und Am-243 zugefügt. Da die zu erwartende Aktivität der zu messenden Nuklide etwa der des Tracers entsprechen soll, sollte bei Proben mit erwarteter hoher Aktivität die Probenmenge entsprechend reduziert werden.

**3.2.4** Die Filterstreifen bzw. Veraschrückstände werden in 150 ml bis 200 ml Königswasser etwa zwei Stunden bei 200 °C unter ständigem Rühren ausgelaugt, wobei das Becherglas mit einem Uhrglas abgedeckt ist.

**3.2.5** Die Lösung wird abgesaugt, der Filtrückstand mit Salpetersäure ( $7 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) gewaschen und dann verworfen. Das Filtrat wird, sofern Verunreinigungen erkennbar sind, durch ein Membranfilter mit einer Porenweite von  $0,2 \mu\text{m}$  filtriert und zur Trockne eingedampft. Der Rückstand wird mit 10 ml Aluminiumnitrat ( $0,5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) enthaltender Salpetersäure ( $3 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) aufgenommen.

### 3.3 Radiochemische Trennung

**3.3.1** Die Probenlösung wird mit Eisensulfamatlösung ( $0,6 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ascorbinsäure versetzt. Dabei werden Plutoniumionen höherer Oxidationsstufen zu  $\text{Pu}^{3+}$  reduziert. Pro 10 ml Probenlösung werden 100 mg Ascorbinsäure und 1 ml Eisensulfamatlösung zugegeben, um eine Mindestkonzentration von  $0,05 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$  an  $\text{Fe}^{2+}$ -Ionen zu gewährleisten.

**3.3.2** Die UTEVA- und TRU-Säule werden mit 5 ml Salpetersäure ( $3 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) konditioniert und so miteinander kombiniert, dass sich die UTEVA-Säule über der TRU-Säule befindet (siehe Abbildung 1).

**3.3.3** Die Probenlösung wird mit Hilfe eines Autovials<sup>®</sup> auf die Säulenkombination aufgegeben.

#### Anmerkung

Das Autovial<sup>®</sup> ist eine 12 ml fassende Spritze, die mit einem Filter der Porengröße von  $0,2 \mu\text{m}$  ausgestattet ist. Damit wird gewährleistet, dass aus der Probenlösung nahezu alle festen oder kolloidalen Verunreinigungen entfernt werden.

**3.3.4** Das Becherglas wird zweimal mit 5 ml Salpetersäure ( $3 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) gewaschen und das Washwasser ebenfalls über die Säulenkombination gegeben. Das Eluat wird verworfen.

**3.3.5** Die Säulen werden nun getrennt und einzeln weiterbehandelt.

**3.3.6** Die UTEVA-Säule wird nacheinander mit 4 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und 10 ml Oxalsäure ( $0,05 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) enthaltender Salzsäure ( $5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) gewaschen, wobei Thorium eluiert wird. Falls Thorium bestimmt werden soll, werden die Washwässer vereinigt. Anderenfalls werden sie verworfen.

**3.3.7** Anschließend wird das Uran mit 20 ml Salzsäure ( $0,01 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) von der UTEVA-Säule eluiert. Das Eluat wird zur Herstellung eines Uran-Messpräparates eingesetzt (siehe Abschnitt 3.4.1.1 bzw. 3.4.2.1).

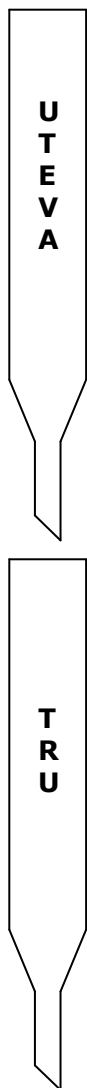
**3.3.8** Die TRU-Säule wird nacheinander mit 5 ml Natriumnitrit ( $0,05 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) enthaltender Salpetersäure ( $2 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und 10 ml Salpetersäure ( $0,05 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) gewaschen. Dabei werden mit Natriumnitrit  $\text{Pu}^{3+}$ -Ionen zu  $\text{Pu}^{4+}$ -Ionen oxidiert. Die Washlösungen werden verworfen.

**3.3.9** Americium und Curium werden mit 3 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und anschließend mit 20 ml Salzsäure ( $4 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) von der TRU-Säule eluiert. Das Eluat wird zur Herstellung von Americium- und Curium-Messpräparaten weiterverwendet (siehe Abschnitt 3.4.1.3 bzw. 3.4.2.3).

**3.3.10** Um eventuell verbliebene Thoriumionen von der TRU-Säule zu entfernen, wäscht man die Säule mit 20 ml einer Fluorwasserstoffsäure ( $0,1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) enthaltende Salzsäure ( $4 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ). Das Washwasser kann mit dem Eluat aus Abschnitt 3.3.6 vereinigt werden, wenn Thorium bestimmt werden soll.

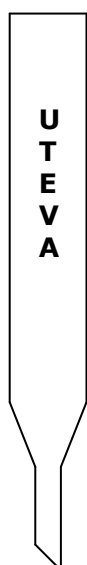
**3.3.11** Plutonium wird mit 15 ml Ammoniumhydrogenoxalatlösung ( $0,1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) von der TRU-Säule eluiert. Das Eluat wird zur Herstellung eines Plutonium-Messpräparates verwendet (siehe Abschnitt 3.4.1.2 bzw. 3.4.2.2).

## SÄULENKOMBINATION

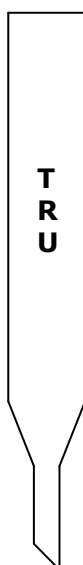


1. **Konditionierung der Säulen**  
mit 5 ml Salpetersäure ( $3 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )
2. **Aufgabe der Probenlösung**  
mit Hilfe des Autovials
3. **Waschen der Säulen**  
mit 2 x 5 ml Salpetersäure ( $3 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )

## MIT DEN SÄULEN JETZT EINZELN WEITERARBEITEN !



4. **Elution von Thorium**  
4 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )  
20 ml Oxalsäure ( $0,05 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) in  
Salzsäure ( $5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )
5. **Elution von Uran**  
15 ml Salzsäure ( $0,01 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )



4. **Waschen der Säule mit**  
5 ml Salpetersäure ( $2 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )  
5 ml Natriumnitrit ( $0,05 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) in  
Salpetersäure ( $2 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )  
10 ml Salpetersäure ( $0,05 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )
5. **Elution von Americium/Curium**  
3 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )  
20 ml Salzsäure ( $4 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )
6. **Waschen der Säule**  
20 ml Fluorwasserstoffsäure ( $0,1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )  
in Salzsäure ( $4 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )
7. **Elution von Plutonium**  
15 ml Ammoniumhydrogenoxalatlösung  
( $0,1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ )

**Abb. 1:** Schema des radiochemischen Trennungsgangs

## 3.4 Herstellung der Messpräparate

### 3.4.1 Elektrodeposition

#### 3.4.1.1 Elektrodeposition von Uran

**3.4.1.1.1** Das Eluat aus Abschnitt 3.3.7 wird mit 1 ml Natriumhydrogensulfatlösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) versetzt und bis zur Trockne eingedampft.

**3.4.1.1.2** Der erhaltene Rückstand wird mit 0,5 ml Salpetersäure ( $14 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und 0,5 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) gelöst und nochmals zur Trockne eingedampft.

**3.4.1.1.3** Der Rückstand wird mit 5 ml Ammoniumchloridlösung ( $3,2 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) gelöst und in eine vorbereitete Elektrolysezelle überführt (siehe Verfahren J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-02). Man spült das Becherglas mit 2 ml Ammoniumchloridlösung ( $3,2 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und überführt diese Lösung ebenfalls in die Elektrolysezelle. Mit Salzsäure ( $0,5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ammoniaklösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) wird ein pH-Wert von 3,0 eingestellt.

**3.4.1.1.4** Die elektrochemische Abscheidung erfolgt bei einer Stromstärke von 0,5 A über einen Zeitraum von 2 Stunden, wobei die Elektrolysezelle mit einem Deckel verschlossen wird, um ein Abdampfen der Lösung zu verhindern. Vor Ende der Abscheidung wird 1 ml Ammoniaklösung ( $13 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) in die Elektrolysezelle gegeben und etwa 1 Minute weiter abgeschieden. Die überstehende Lösung wird nun abgegossen und der Strom abgeschaltet. Das Edelstahlplättchen wird gründlich mit Ammoniaklösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ethanol gespült und anschließend auf einer mit Aluminiumfolie bedeckten Heizplatte bei etwa 80 °C getrocknet.

**3.4.1.1.5** Die Ausbeute an Uran beträgt dabei etwa 75 %.

#### 3.4.1.2 Elektrodeposition von Plutonium

**3.4.1.2.1** Das Eluat aus dem Abschnitt 3.3.11 wird mit 1 ml Natriumhydrogensulfatlösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) versetzt und bis zur Trockne eingedampft.

**3.4.1.2.2** Der erhaltene Rückstand wird mit 0,5 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und 1,5 ml Ammoniumoxalatlösung ( $0,5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) aufgenommen und in eine vorbereitete Elektrolysezelle (siehe Verfahren J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-02) überführt. Man spült das Becherglas mit 2 ml destilliertem Wasser und überführt diese Lösung ebenfalls in die Elektrolysezelle. Mit Salzsäure ( $0,5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ammoniaklösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) wird ein pH-Wert von 3,0 eingestellt.

**3.4.1.2.3** Die elektrochemische Abscheidung erfolgt bei einer Stromstärke von 0,5 A über einen Zeitraum von 2 Stunden, wobei die Elektrolysezelle mit einem Deckel verschlossen wird, um ein Abdampfen der Lösung zu verhindern. Vor Ende der Abscheidung wird 1 ml Ammoniaklösung ( $13 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) in die Elektrolysezelle gegeben und etwa 1 Minute weiter abgeschieden. Die überstehende Lösung wird nun abgegossen und der Strom abgeschaltet. Das Edelstahlplättchen wird gründlich mit Ammoniaklösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ethanol gespült und anschließend auf einer mit Aluminiumfolie bedeckten Heizplatte bei etwa 80 °C getrocknet.

**3.4.1.2.4** Die Ausbeute an Plutonium beträgt dabei etwa 70 %.

### 3.4.1.3 Elektrodeposition von Americium und Curium

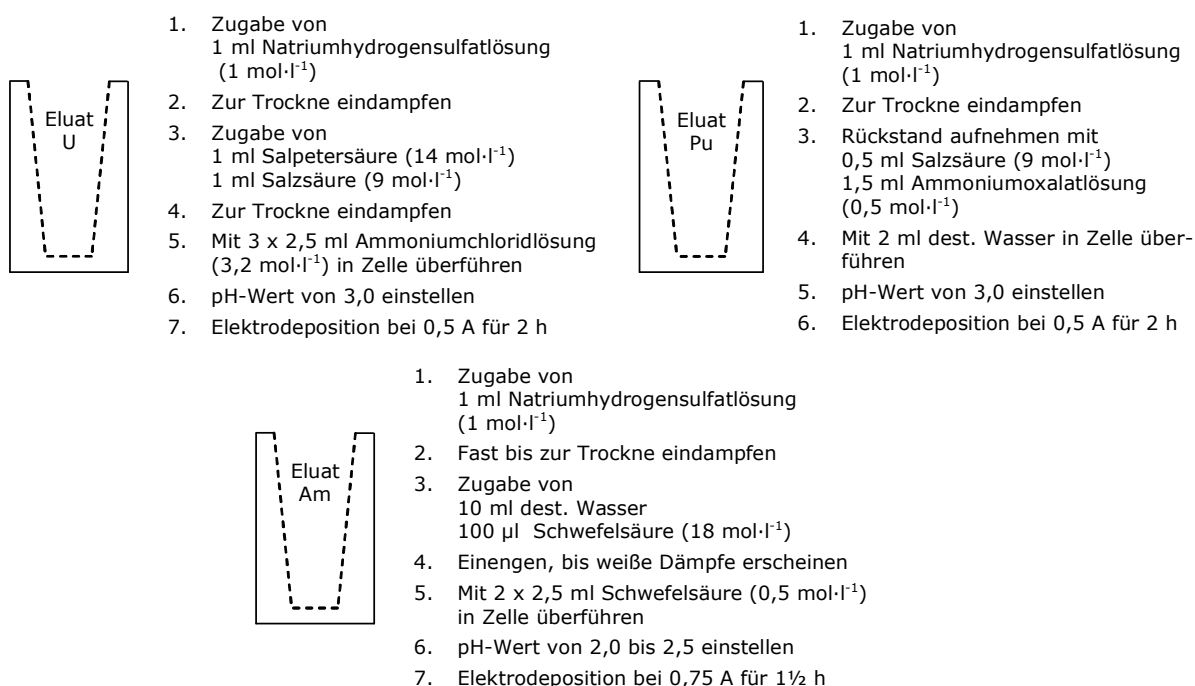
**3.4.1.3.1** Das Eluat aus dem Abschnitt 3.3.9 wird mit 1 ml Natriumhydrogensulfatlösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) versetzt und fast bis zur Trockne eingedampft. Das Natriumhydrogensulfat verhindert dabei als Komplexbildner die Bildung schwerlöslicher Hydroxide, die zu hohen Ausbeuteverlusten führen können.

**3.4.1.3.2** Der erhaltene Rückstand wird mit 100  $\mu\text{l}$  Schwefelsäure ( $18 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und 10 ml destilliertem Wasser aufgenommen und solange eingeeengt, bis weiße Dämpfe erscheinen.

**3.4.1.3.3** 2,5 ml Schwefelsäure ( $0,5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) werden zugegeben und die Lösung in eine vorbereitete Elektrolysezelle (siehe Verfahren J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-02) überführt. Man spült das Becherglas mit 2,5 ml Schwefelsäure ( $0,5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und gibt diese Lösung ebenfalls in die Elektrolysezelle. Mit Schwefelsäure ( $0,5 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ammoniaklösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) wird ein pH-Wert von 2,0 bis 2,5 eingestellt.

**3.4.1.3.4** Die elektrochemische Abscheidung erfolgt bei einer Stromstärke von 0,75 A über einen Zeitraum von 1½ Stunden, wobei die Elektrolysezelle mit einem Deckel verschlossen wird, um ein Abdampfen der Lösung zu verhindern. Vor Ende der Abscheidung wird 1 ml Ammoniaklösung ( $13 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) in die Elektrolysezelle gegeben und etwa 1 Minute weiter abgeschieden. Die überstehende Lösung wird nun abgegossen und der Strom abgeschaltet. Das Edelstahlplättchen wird gründlich mit Ammoniaklösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ethanol gespült und anschließend auf einer mit Aluminiumfolie bedeckten Heizplatte bei etwa 80 °C getrocknet.

**3.4.1.3.5** Die Ausbeute an Americium beträgt dabei etwa 75 %.



#### Weitere Vorgehensweise:

1. Am Ende der Elektrodeposition Zugabe von 1 ml Ammoniaklösung ( $13 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ );
2. Nach 1 Minute Überstand verwerfen und Strom abschalten;
3. Edelstahlplättchen mit Ammoniaklösung ( $1 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) und Ethanol spülen;
4. Edelstahlplättchen bei 80 °C auf Heizplatte trocknen.

**Abb. 2:** Schema der Messpräparateherstellung mittels Elektrodeposition

### 3.4.2 Mikromitfällung

#### 3.4.2.1 Mikromitfällung von Uran

**3.4.2.1.1** Das Eluat aus dem Abschnitt 3.3.7 wird mit 1 ml Certrägerlösung, 0,5 ml Titanchloridlösung und 1 ml Fluorwasserstoffsäure ( $23 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) versetzt und gut verrührt. Anschließend wird die Lösung für mindestens 30 Minuten stehen gelassen.

**3.4.2.1.2** Ein Membranfilter mit einem Porendurchmesser von  $0,1 \mu\text{m}$  wird in ein Filtriergerät fest eingespannt. Es werden zuerst 5 ml einer Cersubstratlösung und anschließend die Probenlösung durch den Membranfilter gegeben. Das Becherglas wird mit 5 ml destilliertem Wasser gewaschen und die Waschlösung ebenfalls filtriert.

**3.4.2.1.3** Der Filter wird unter einer Quarzlampe einige Minuten getrocknet und plan auf ein Edelstahlplättchen geklebt.

**3.4.2.1.4** Die Ausbeute an Uran beträgt dabei etwa 75 %.

#### 3.4.2.2 Mikromitfällung von Plutonium

**3.4.2.2.1** Das Eluat aus dem Abschnitt 3.3.1.1 wird mit 1 ml Neodymträgerlösung und 1 ml Fluorwasserstoffsäure ( $23 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) versetzt und gut verrührt. Anschließend wird die Lösung für mindestens 30 Minuten stehengelassen.

**3.4.2.2.2** Ein Membranfilter mit einem Porendurchmesser von  $0,1 \mu\text{m}$  wird in ein Filtriergerät fest eingespannt. Es werden zuerst 5 ml einer Neodymsubstratlösung und anschließend die Probenlösung durch den Membranfilter gegeben. Das Becherglas wird mit 5 ml destilliertem Wasser gewaschen und die Waschlösung ebenfalls filtriert.

**3.4.2.2.3** Der Filter wird unter einer Quarzlampe einige Minuten getrocknet und plan auf ein Edelstahlplättchen geklebt.

**3.4.2.2.4** Die Ausbeute an Plutonium beträgt dabei etwa 70 %.

#### 3.4.2.3 Mikromitfällung von Americium und Curium

**3.4.2.3.1** Das Eluat aus dem Abschnitt 3.3.9 wird fast bis zur Trockne eingedampft.

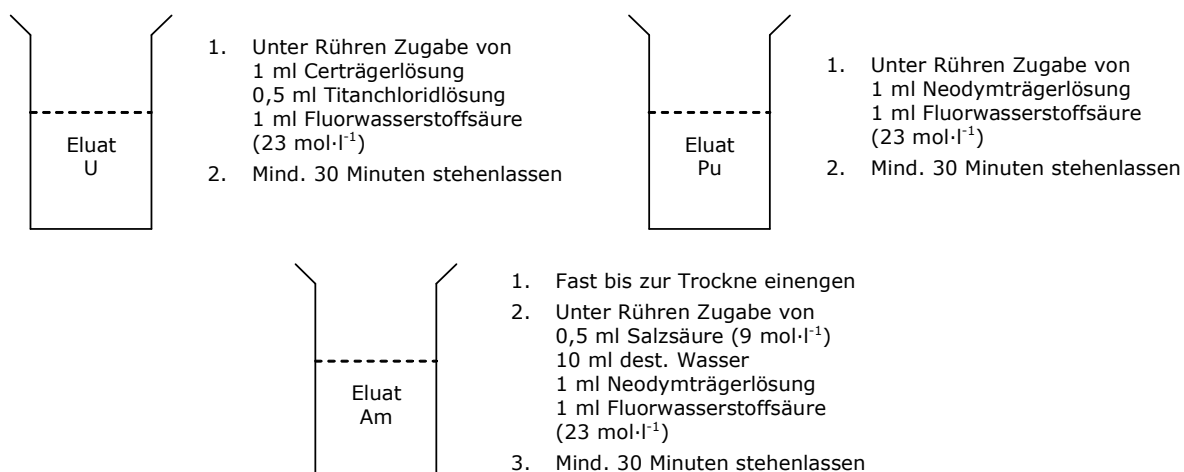
**3.4.2.3.2** Nun werden 0,5 ml Salzsäure ( $9 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ), 10 ml destilliertes Wasser, 1 ml Neodymträgerlösung und 1 ml Fluorwasserstoffsäure ( $23 \text{ mol}\cdot\text{l}^{-1}$ ) zugegeben. Die Lösung wird gut vermischt und für mindestens 30 Minuten stehengelassen.

**3.4.2.3.3** Ein Membranfilter mit einem Porendurchmesser von  $0,1 \mu\text{m}$  wird in ein Filtriergerät fest eingespannt. Es werden zuerst 5 ml einer Neodymsubstratlösung und anschließend die Probenlösung durch den Membranfilter gegeben. Das Becherglas wird mit 5 ml destilliertem Wasser gewaschen und die Waschlösung ebenfalls filtriert.

**3.4.2.3.4** Der Filter wird unter einer Quarzlampe einige Minuten getrocknet und plan auf ein Edelstahlplättchen geklebt.

**3.4.2.3.5** Die Ausbeute an Americium beträgt dabei etwa 75 %.



**Weitere Vorgehensweise:**

1. 5 ml Cer- bzw. Neodymsubstratlösung über ein Membranfilter (Porendurchmesser  $0,1 \mu\text{m}$ ) absaugen;
2. Probenlösung ebenfalls über das Filter absaugen;
3. Becherglas mit 5 ml dest. Wasser waschen und das Waschwasser über das Filter absaugen;
4. Membranfilter einige Minuten unter einer Quarzlampe trocknen und auf ein Edelstahlplättchen kleben.

**Abb. 3:** Schema der Messpräparateherstellung mittels Mikromitfällung

## 4 Messung der Aktivität

Im Kapitel IV.2 dieser Messanleitungen ist das Verfahren der Aktivitätsmessung mit einem ionenimplantierten Detektor ausführlich dargestellt. Bei den Messungen beträgt der Abstand zwischen Messpräparat und Detektor etwa 3 mm. Der Durchmesser des auf den Edelstahlplättchen abgeschiedenen Hydroxides sollte kleiner als der Durchmesser des Detektors sein. Eine typische Messdauer beträgt etwa 20 Stunden. Die Werte für die Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon$ , die zur Berechnung der Nachweisgrenze erforderlich sind, werden mittels geeigneter Kalibrierstandards gemäß Kapitel IV.2 dieser Messanleitungen ermittelt.

## 5 Berechnung der Analyseergebnisse

Die Berechnung der Analyseergebnisse erfolgt gemäß Verfahren J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-02.

## 6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Die Nachweisgrenze wird gemäß Verfahren J- $\alpha$ -SPEKT-ALUFT-02 berechnet.

## 7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

### 7.1 Chemikalien

Die verwendeten Chemikalien sollten analysenrein sein.

- Aluminiumnitrat enthaltende Salpetersäure: 0,5 mol·l<sup>-1</sup> Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> in 3 mol·l<sup>-1</sup> HNO<sub>3</sub> ;
- Ammoniaklösung, NH<sub>3</sub>: 13 mol·l<sup>-1</sup>, 1 mol·l<sup>-1</sup>;
- Ammoniumchloridlösung, NH<sub>4</sub>Cl: 3,2 mol·l<sup>-1</sup>;
- Ammoniumhydrogenoxalatlösung: 0,1 mol·l<sup>-1</sup>;  
2,52 g Oxalsäuredihydrat und 2,84 g Diammoniumoxalat-monohydrat in 180 ml dest. Wasser lösen, evtl. filtrieren und mit Wasser auf 200 ml auffüllen.
- Ammoniumoxalatlösung: 0,5 mol·l<sup>-1</sup>;
- Ascorbinsäure;
- Cersubstratlösung, CeCl<sub>3</sub>·7 H<sub>2</sub>O: 4,3 mg in 454 ml Salzsäure (1 mol·l<sup>-1</sup>) und 46 ml Fluorwasserstoffsäure (23 mol·l<sup>-1</sup>);
- Certrägerlösung, CeCl<sub>3</sub>·7 H<sub>2</sub>O: 26,6 mg in 100 ml Salzsäure (1 mol·l<sup>-1</sup>);
- Ethanol;
- Fluorwasserstoffsäure, HF: 23 mol·l<sup>-1</sup>;
- Königswasser, 1 Teil Salpetersäure zu 3 Teilen Salzsäure: 14 mol·l<sup>-1</sup> HNO<sub>3</sub>, 9 mol·l<sup>-1</sup> HCl;
- Natriumhydrogensulfatlösung, NaHSO<sub>4</sub>: 1 mol·l<sup>-1</sup>;
- Neodymsubstratlösung, Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 3,9 mg in 454 ml Salpetersäure (1 mol·l<sup>-1</sup>) und 46 ml Fluorwasserstoffsäure (23 mol·l<sup>-1</sup>);
- Neodymträgerlösung, Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 11,7 mg in 100 ml Salpetersäure (1 mol·l<sup>-1</sup>);
- Oxalsäure enthaltende Salzsäure: 0,05 mol·l<sup>-1</sup> Oxalsäure in 5 mol·l<sup>-1</sup> HCl ;
- Salpetersäure, HNO<sub>3</sub>: 14 mol·l<sup>-1</sup>, 7 mol·l<sup>-1</sup>, 3 mol·l<sup>-1</sup>, 0,05 mol·l<sup>-1</sup>;
- Salzsäure, HCl: 9 mol·l<sup>-1</sup>, 4 mol·l<sup>-1</sup>, 0,5 mol·l<sup>-1</sup>, 0,01 mol·l<sup>-1</sup>;
- Schwefelsäure, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>: 18 mol·l<sup>-1</sup>, 0,5 mol·l<sup>-1</sup>;
- Titanchloridlösung, TiCl<sub>3</sub>: 15 %ig in 10 %iger Salzsäure;
- Eisensulfamatlösung: 0,6 mol·l<sup>-1</sup>;  
5,7 g Sulfaminsäure in 15 ml dest. Wasser lösen und 700 mg Eisenspäne portionsweise bei 70 °C unter Rühren zusetzen. Lösung filtrieren und mit Wasser auf 20 ml auffüllen.  
**Wöchentlich frisch!**

- Fluorwasserstoffsäure enthaltende Salzsäure: 0,1 mol·l<sup>-1</sup> HF in 4 mol·l<sup>-1</sup> HCl;  
83  $\mu$ l Fluorwasserstoffsäure (23 mol·l<sup>-1</sup>) zu 20 ml Salzsäure (4 mol·l<sup>-1</sup>) geben.  
**Täglich frisch!**
- Natriumnitrit enthaltende Salpetersäure: 0,05 mol·l<sup>-1</sup> NaNO<sub>2</sub> in 2 mol·l<sup>-1</sup> HNO<sub>3</sub> ;  
52 mg Natriumnitrit zu 15 ml Salpetersäure (2 mol·l<sup>-1</sup>) geben. **Täglich frisch!**
- UTEVA-Resin<sup>®</sup> vorgefertigte Säule mit 2 ml Säulenbettvolumen, entsprechend 0,7 g Harz, Fa. TrisKem, Frankreich
- TRU-Resin<sup>®</sup> vorgefertigte Säule mit 2 ml Säulenbettvolumen, entsprechend 0,7 g Harz, Fa. TrisKem, Frankreich

## 7.2 Geräte

- Schwebstofffilter mit Abscheidegrad besser als 0,995, z. B. Membranfilter oder Glasfaserfilter;
- Halter für Schwebstofffilter;
- Probeentnahmesystem mit Luftfördereinrichtung und Luftdurchsatzmeter (z. B. Gasuhr in Trockenbauweise);
- Quarzschalen z. B. mit 50 mm Durchmesser;
- Edelstahlschalen z. B. mit 50 mm Durchmesser;
- Veraschungsanlage z. B. Plasmaveraschungsanlage;
- Quarzlampe
- Ausrüstung eines radiochemischen Labors;
- Edelstahlplättchen, Edelstahl 1.4301.6 poliert mit 2,54 cm Durchmesser und 0,5 mm Dicke;
- Elektrolysezelle;
- Quarzlampe;
- Alphaspektrometriemessplatz mit ionenimplantiertem Detektor, Fläche von beispielsweise 300 mm<sup>2</sup> bis 450 mm<sup>2</sup>.

## Literatur

- (1) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA): Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung. 1998-07
- (2) Norm DIN 25423 Teil 3 Probenahme bei der Radioaktivitätsüberwachung der Luft: Probenahmeverfahren. 1987-03  
*Hinweis:* Diese Norm wird voraussichtlich durch die Norm DIN ISO 2889 ersetzt.
- (3) Gesewsky, P.: Untersuchung zur Eignung von Membranfiltern für die Alpha-spektrometrie. Institut für Strahlenhygiene, 1986, ISH-Bericht 82

- (4) Vogl, K.: Rechnerische Abschätzung der Aerosolpartikelverluste in Probeentnahmesystemen bei kerntechnischen Anlagen: Physikalische Modelle, Vorgehensweise, Ergebnisse und weitere Ausblicke. Bericht der Fachbereiches Strahlenschutz des BfS, 1992, ST2-32/1992
- (5) Horwitz, E. P., Dietz, M. L., Chiarizia, R., Diamond, H., Essling, A. M., Graczyk, D.: Separation and preconcentration of uranium from acidic media by extraction chromatography. *Analytica Chimica Acta*, 1992, 266, S. 25 ff.
- (6) Horwitz, E. P., Chiarizia, R., Dietz, M. L., Diamond, H., Nelson, D. M.: Separation and preconcentration of actinides from acidic media by extraction chromatography. *Analytica Chimica Acta*, 1993, 281, S. 361 ff.
- (7) Pilviö, R., Bickel, M.: Separation of actinides using extraction chromatography. International Workshop on the Status of Measurement Techniques for the Identification of Nuclear Signatures, IRMM, Geel, 1997
- (8) Heckel, A., Lohse, I., Vogl, K.: Verfahren zur alphaspektrometrischen Bestimmung von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden mit extraktionschromatographischen Materialien. Bericht des Fachbereiches Strahlenschutz und Umwelt des BfS, in Vorbereitung
- (9) Mäurer, J., Vogl, K.: Entwicklung eines Verfahrens zur Elektrodeposition von Aktiniden aus Aerosolfilterproben von Nuklearbetrieben. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1984, ABE-160