

## Automatisierte radiochemische Trennung von Am/Pu-Nukliden in Faeces (Stuhlproben) mittels DGA-b

Die automatisierte radiochemische Trennung von Am/Pu- Nukliden mittels DGA-b wird schon seit Jahren bei flüssigen Matrices, wie Urin, Wasser, Trinkwasser erfolgreich in der Alpha-Spektrometrie angewendet.

- **Vorteile:** Eine kosten- und zeitsparende Methode, größerer Probendurchsatz (insb. bei Multi-Trennsäulenmodule), umweltschonende (weniger Chemikalien), Minimierung von Fehler (Gegensatz zu manuellen Methoden), sehr gute Erkennungs- und Nachweisgrenzen

**Ziel:** Die automatisierte Trennung von Am/Pu- Nukliden mittels DGA-b auf feste Matrices, insbesondere auf Faecesproben zu übertragen, um Zeit/Kosten zu senken, sowie Erkennungs- und Nachweisgrenzen zu verbessern

**Problem:** schlechte Erkennungs- und Nachweisgrenzen bzw. chemische Ausbeuten vor allem beim Pu, schlechte Auflösung durch Störnuklide (Uran- und Thoriumisotope)

### Herkömmliche alphaspektrometrische Bestimmung von Faecesproben, etabliert in unserem Labor

- Probe einfrieren
- Veraschung der Probe im Mikrowellenveraschungssystem (Phoenix von CEM) bei 720°C
- Mikrowellenaufschluss (Mars 6 von CEM) der verbleibenden Asche (im Schnitt 3,5 g pro Tagesausscheidung) in 0,5 g Portionen mit HNO<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> und HF
- Abrauchen der Säuren (einleiten in ges. Borsäure)
- Mineralisierte Probe lösen und **manuelle** radiochemische Trennung über TRU (Bild 1)
- Eluate eindampfen, Elektrodeposition
- 22 h alphaspektrometrische Messung mittels Halbleiterdetektoren

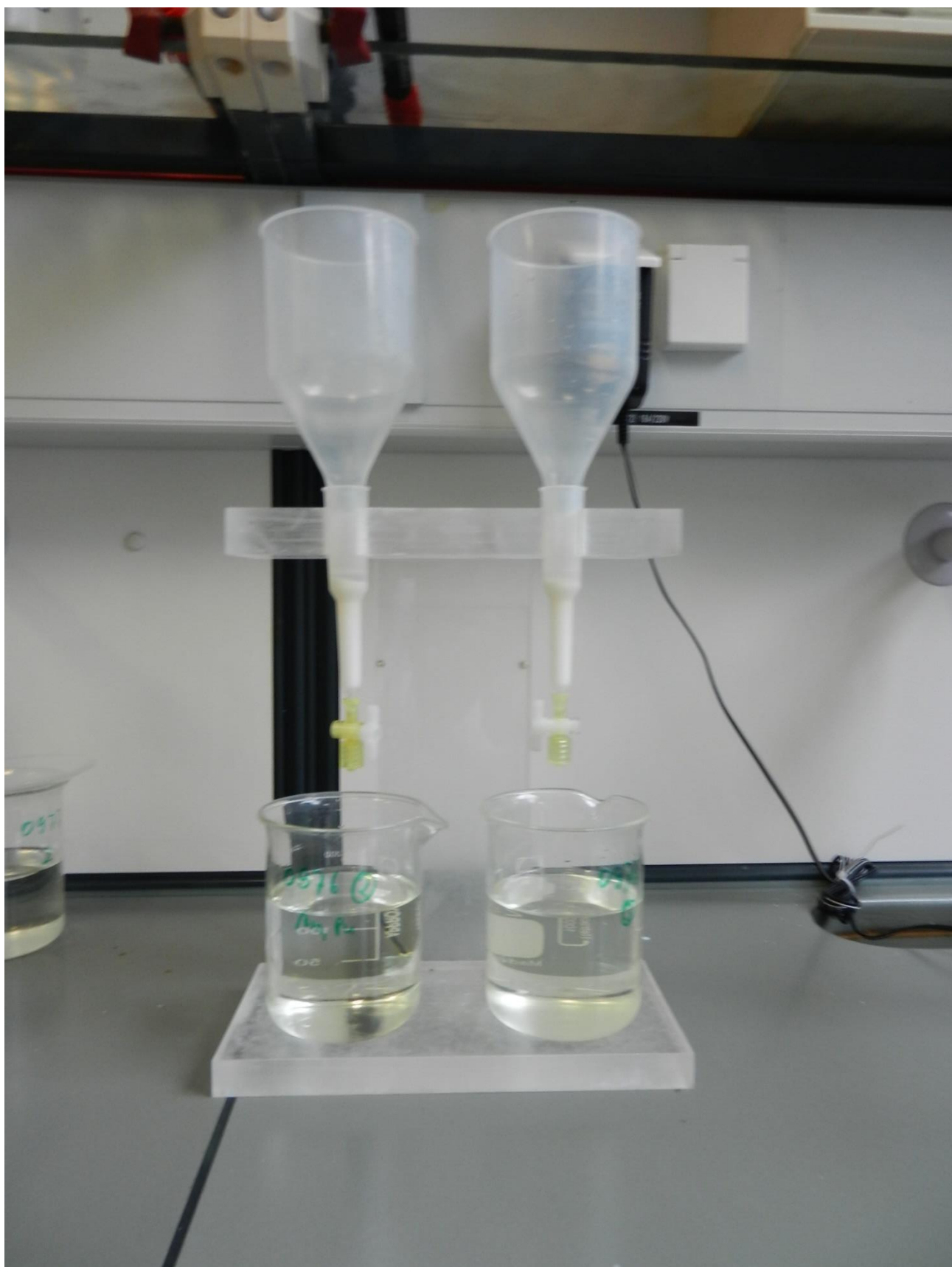


Bild 1: manuelle radiochemische Trennung über TRU

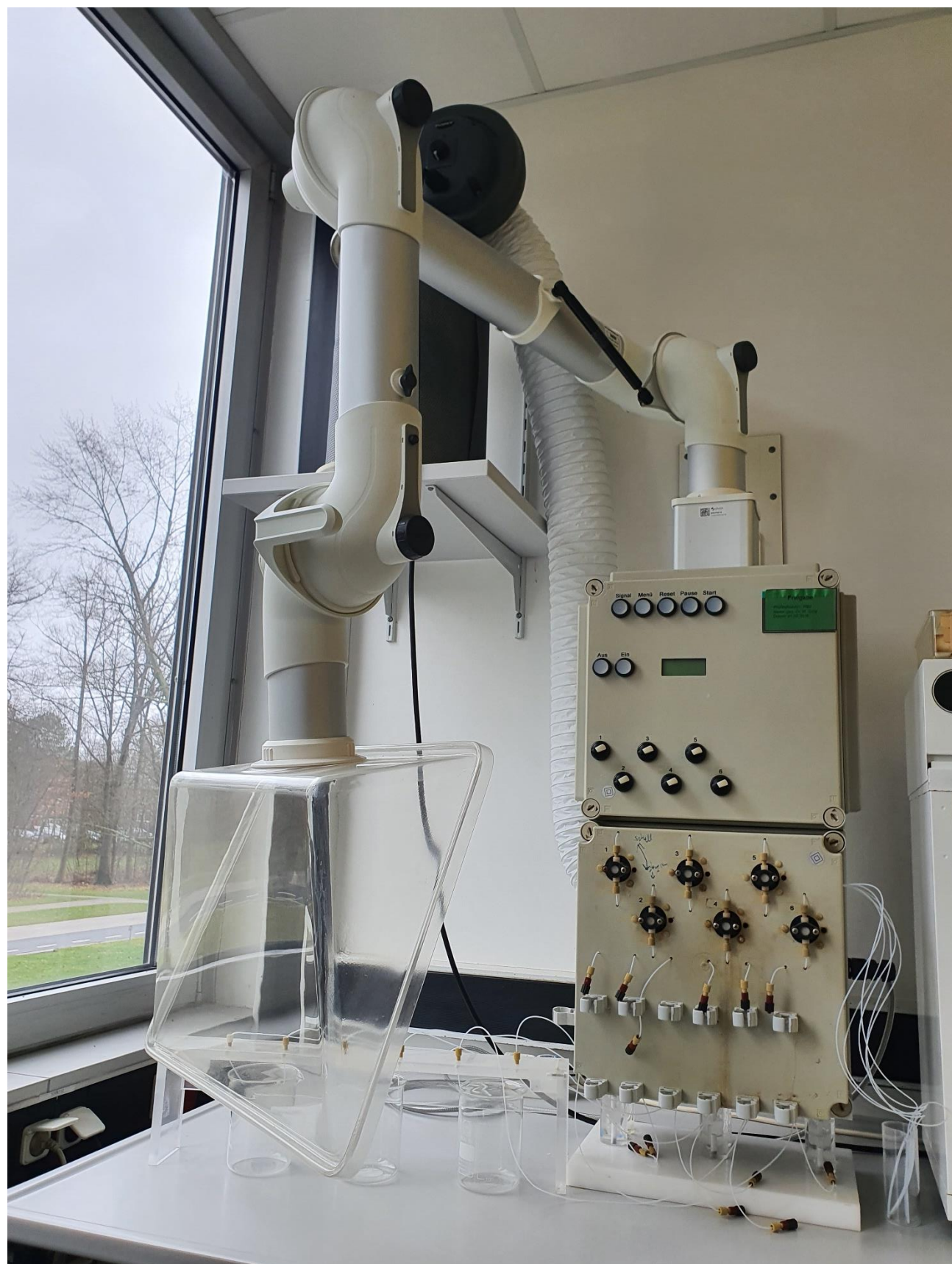


Bild 2: automatisierte radiochemische Trennung über DGA-b (Multitrennsäulenmodell)

### Optimierte alphaspektrometrische Bestimmung von Faecesproben mittels automatisierter Trennung über DGA-b

- Probenvorbereitung wie bei der herkömmlichen Bestimmung
- 3,5 g Stuhlasche (SA 2018, eigenes Referenzmaterial) pro Analyse
- **Automatisierte** radiochemische Trennung über DGA b mittels Trennsäulenmodul (Bild 2), wie es bei flüssigen Matrices angewendet wird

### Ausgangsanalyse

- **Am- Ausbeute gut, Pu-Ausbeute schlecht -> schlechte Erkennungs- und Nachweisgrenzen**

### Ursachensuche

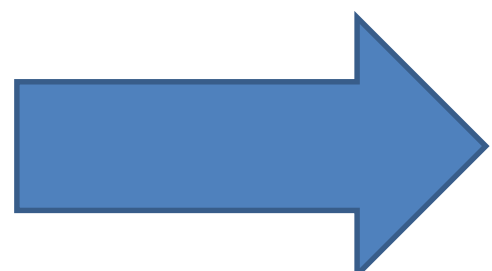
- Schwache Flusssäure ist ein guter Eluent für Pu in der radiochemischen Abtrennung mittels DGA b
- Gegenanalyse durchgeführt, die bewährte radiochemische Abtrennung von flüssigen Matrices (Urin) über DGA b, aber mit Zugabe von etwa 1 g NaF auf 1 l Urin-> letztendlich keine Pu-Ausbeute

### Problemlösung

- Nach dem Mikrowellenaufschluss und des Abrauchens der Säuren sind störende Fluoride in der mineralisierten Probe
- Nach dem Abrauchen der Säuren wurde 10 ml ges. Borsäure ins Aufschlussgefäß gegeben und erneut abgeraucht (einleiten in ges. Borsäure).
- Anschließend radiochemische Trennung über DGA b, Eindampfen der Eluate, Elektrodeposition und anschließende Messung (22 h)

### Ergebnisse

- **Deutlich verbesserte Pu-Ausbeute, sowie Erkennungs- und Nachweisgrenzen (Tab. 1)**
- **Sehr saubere Pu-Spektren**
- **Nachteil Am-Spektrum: Störende U- und Th-Isotope (in Faeces natürlich vorhanden), aber sauber zu unterscheiden und durch längere Waschzeit Absenkung der Störungen**



### Ausblick

**Radiochemische Trennungen von festen Matrices über DGA b sind somit machbar, zur Verifizierung der Anpassung mit einem Ringversuch überprüfen z.B. Faecesasche vom externen Ringversuchsanbieter (z.B. PROCORAD) -> steht noch aus**

Vor der Ursache			Nach der Ursache		
Ausbeute Am-241 (%)	EKG (Bq/Probe)	NWG (Bq/Probe)	Ausbeute Am-241 (%)	EKG (Bq/Probe)	NWG (Bq/Probe)
77	6,25E-04	1,57E-03	95	3,60E-04	8,35E-04
Ausbeute Pu-238 (%)	EKG (Bq/Probe)	NWG (Bq/Probe)	Ausbeute Pu-238 (%)	EKG (Bq/Probe)	NWG (Bq/Probe)
14	1,58E-03	4,00E-03	70	4,62E-04	1,16E-03
Ausbeute Pu-239 (%)	EKG (Bq/Probe)	NWG (Bq/Probe)	Ausbeute Pu-239 (%)	EKG (Bq/Probe)	NWG (Bq/Probe)
14	7,90E-04	2,76E-03	70	2,49E-04	8,25E-04

Tab.1: mittlere chemische Ausbeuten und Erkennungs- und Nachweisgrenzen