

Speziesanalytik von Neptunium und Plutonium mit CE-ICP-MS

B. Kuczewski¹, H. Geckeis², J. I. Kim², J. V. Kratz¹, C. Marquardt², A. Seibert², N. Trautmann¹

¹ Institut für Kernchemie, Universität Mainz

² Institut für Nukleare Entsorgung, Forschungszentrum Karlsruhe

Mit dem weiterentwickelten CE-ICP-MS System [1] wurden Experimente zur Trennung der verschiedenen Oxidationsstufen von Neptunium und Plutonium in wässrigen Lösungen durchgeführt.

Für die Experimente wurden perchlorsaure Lösungen von Pu-242 und Np-237 eingesetzt. Die Oxidationsstufen wurden elektrolytisch hergestellt [2] und mittels UV-Spektroskopie der Gehalt der verschiedenen Oxidationsstufen bestimmt. Für die Trennungen wurden gezielte Verdünnungen der Lösungen mit den verschiedenen Oxidationsstufen hergestellt.

Für die Messungen wurde die schon beschriebene Kopplung der CE an die ICP-MS [3] verwendet. Als ICP-MS wurde eine Elan 5000 der Firma Perkin Elmer benutzt. Die Trennbedingungen für die CE waren wie folgt: +30 kV, 30 µA; CE-Elektrolyt 1 M AcOH, pH 2,47; FS-Kapillare 62,8 cm, 50 µm; Zusatzelektrolyt 2% HNO₃, 10 ppb Rh-Marker; Probenaufgabe 10 s, 100 mbar.

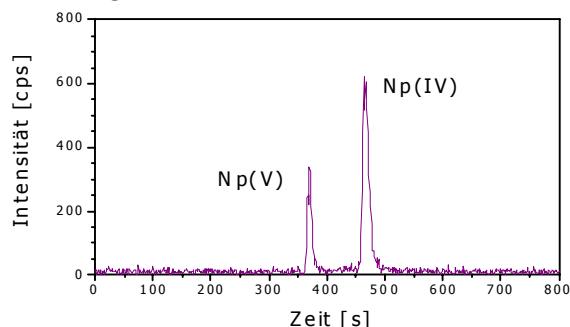


Abbildung 1: Trennung von Np(V) und Np(IV) in wässriger Lösung mit Hilfe der CE-ICP-MS

Bei den Experimenten zeigte sich, daß die Trennungen der verschiedenen Oxidationsstufen gut reproduzierbar durchgeführt werden können und die Mobilitätsunterschiede für eine Trennung der verschiedenen Oxidationsstufen von Plutonium und Neptunium ausreichen. Entsprechende Trennungen von Np(IV) und Np(V) zeigt Abbildung 1, der verschiedenen Oxidationsstufen des Plutoniums Abbildung 2.

Zur Überprüfung der Zuverlässigkeit der Methode wurde ein Reduktionsexperiment mit Huminsäure genutzt [4]. Dazu wurde eine Pu(VI)-Lösung mit Aldrich Huminsäure kontaktiert und der Gehalt der verschiedenen Oxidationsstufen mit UV-Spektroskopie und der CE-ICP-MS gemessen.

Mit der UV-Spektroskopie konnte hierbei nur der Pu(VI)-Gehalt bestimmt werden, mit der CE dagegen der Gehalt aller Oxidationsstufen. Die Fläche

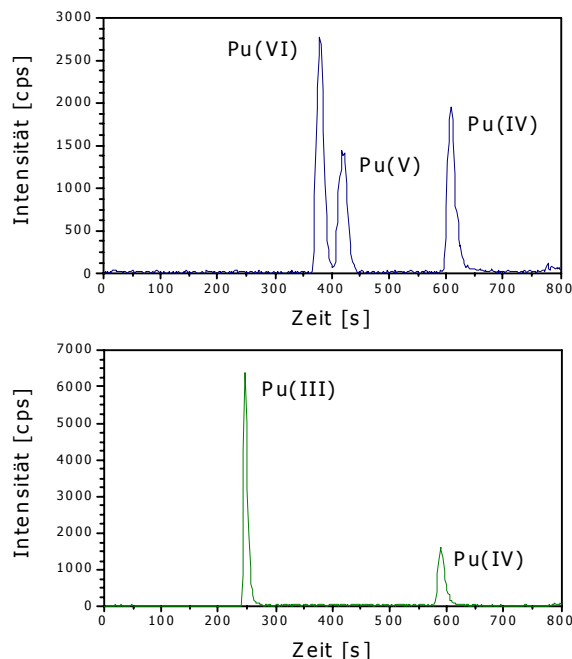


Abbildung 2: Trennung von verschiedenen Oxidationsstufen des Plutoniums in wässriger Lösung mit Hilfe der CE-ICP-MS

der Signale der verschiedenen Oxidationsstufen wurden ins Verhältnis gesetzt und gegen die relativen Flächen der Pu(VI)-Signale aus den UV-Spektren aufgetragen. Wie in Abbildung 3 zu erkennen, ist die Übereinstimmung der Methoden sehr gut. Damit konnte gezeigt werden, daß die CE-ICP-MS für die weitere Untersuchungen z.B. der Redoxchemie von Plutonium und Neptunium in wässrigen Lösungen geeignet ist.

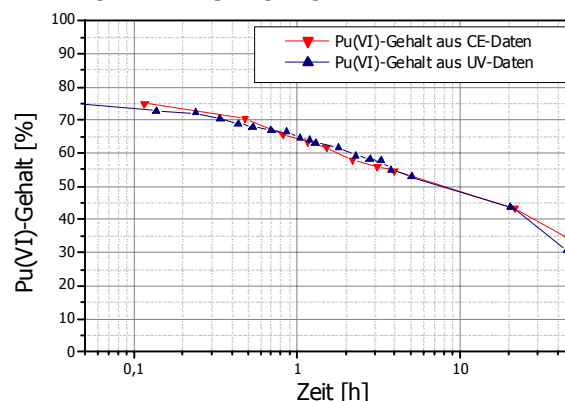


Abbildung 3: Vergleich der über CE-ICP-MS und UV-Spektroskopie ermittelten Pu(VI)-Gehalte in einer Lösung von Pu(VI) und Aldrich Huminsäure

Literatur:

- [1] M. Zeitz et. al.; dieser Jahresbericht.
- [2] C.M. Marquardt, A. Seibert; unveröffentlicht.
- [3] B. Kuczewski et. al.; Institut für Kernchemie, Universität Mainz, Jahresbericht 2000, C3.
- [4] B. Kuczewski et. al.; dieser Jahresbericht.