

Trennung der Actiniden mit Hilfe der Gegenstromelektrolyse

Separation of the Actinides by Means of Countercurrent Electrolysis

B. A. BILAL und C. REICHMUTH

Hahn-Meitner-Institut Berlin, Sektor Kernchemie
(Z. Naturforsch. 26 b, 368 [1971]; eingegangen am 28. Dezember 1970)

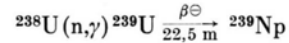
In früheren Mitteilungen^{1,2} wurde über die kontinuierliche Trennung von Pu/U- sowie Pu/Am-Gemischen durch „Elektrolytische Extraktion“ des Plutoniums in Folge seiner Komplexbildung in einem gegenstromelektrolytischen Prozeß berichtet.

Während die Pu(IV)-Ionen bei Verwendung von 2 N Essigsäure + 0,05 N Salpetersäure als Gegenstromelektrolyten neutrale Acetatokomplexe bilden und mit der Gegenstromflüssigkeit aus der Trennsäule ablaufen, werden die U(VI)- bzw. die Am(III)-Ionen als kationische Spezies in der entgegengesetzten Richtung transportiert. Die Ionen des Np(V), Np(VI) und des Cm liegen im essigsäuren System ebenfalls als Kationen vor.

Wir untersuchten nun die Trennung der vier Actiniden U, Np, Am und Cm in einem regulären gegenstromelektrolytischen Prozeß³, wobei wir dafür eine 60 cm lange, mit Nylongaze gekammerte Trennsäule nach BILAL und WAGENER³⁻⁵ benutzten. In die mit reiner 2 N Essigsäure mit einer konstanten Rate von 10 ml/h von der Kathode zur Anode durchströmten Trennsäule wurde bei einer angelegten Spannung von 2800 V eine für die Bildung einer ausreichenden Schutzelektrolytzone genügende Menge Kaliumacetat in den Kathodenraum eingegeben. Im Anschluß an diese Schutzelektrolytzone erfolgte in gleicher Weise langsam die Zugabe einer Lösung des Ionengemisches UO_2^{2+}

(60 mg U), NpO_2^\ominus (120 mg ^{237}Np), $\text{Am}^{3\oplus}$ (70 mg ^{241}Am und $\text{Cm}^{3\oplus}$ (eine Tracermenge von etwa 2,5 mCi ^{242}Cm). Die Stromstärke wurde nun auf 80 mA konstant gehalten. Unter diesen Betriebsbedingungen stellte sich im stationären Endzustand eine Salzverteilung ein, in der die Komponenten in aneinander angrenzenden, sich teilweise überlappenden Zonen befinden.

Die Prüfung der getrennten Komponenten auf Reinheit erfolgte mit Hilfe der alpha-Spektroskopie. Bei der Reinheitsprüfung des Np auf U-Verunreinigungen wurden die Proben mit Neutronen aktiviert und die Gammaenergie des sich nach der Reaktion



bildenden ^{239}Np gemessen.

Die Meßzeit wurde bei diesen Untersuchungen so variiert, daß Verunreinigungen von 1 ppm noch gut nachweisbar waren.

Abb. 1 zeigt die Verteilung der Actiniden in der Trennsäule nach einer Betriebsdauer von 20 Stunden. Die Aktivität des Curiums befand sich in einer Zone (etwa 1,5 cm) zwischen der Am- und Np-Zone, womit die Trennbarkeit des Curiums von den restlichen Actiniden (insbesondere auch vom Americium) bewiesen ist. Bei Annahme einer gleichgroßen Konzentration wie im Falle des Americiums müßte sich die in der Säule vorhandene Cm-Menge im idealen Fall (d. h. wenn keine Rückmischung gegeben wäre) in einer viel schmaleren Zone verteilen. Die Rückmischungseffekte, die in diesem Säulentyp zwar gering, jedoch prinzipiell gegeben sind, bewirken die beobachtete Zonenverbreiterung.

Außerhalb der Überlappungsbereiche, die etwa 15% der gesamten Verteilung ausmachen, liegt eine eventuelle Kontamination der Einzelkomponenten durch die restlichen Actiniden unter der Nachweisgrenze unserer Meßanordnung (< 1 ppm).

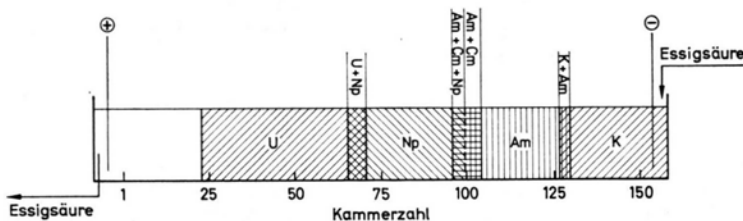


Abb. 1. Stationäre Verteilung der Actiniden in der Trennsäule nach 20 Stdn. Betriebsdauer. Das Kalium dient als Schutzelektrolyt.

Herrn Prof. Dr. K. E. ZIMEN danken wir für die Förderung dieser Arbeit.

Sonderdruckanforderungen an Dr. B. A. BILAL, Hahn-Meitner-Institut f. Kernforschung Berlin, Sektor Strahlenchemie, D-1000 Berlin-Wannsee.

¹ B. A. BILAL u. K. METSCHER, Atomwirtschaft 16, 79 [1971].

² B. A. BILAL u. K. METSCHER, Atomwirtschaft 16, 131 [1971].

³ B. A. BILAL u. K. WAGENER, Dt. Pat. Anm. P 1 642 791.1.

⁴ B. A. BILAL, Z. Naturforsch. 24 a, 1791 [1969].

⁵ B. A. BILAL, Chem. Ing. Techn. 42, 1090 [1970], weitere Literaturangaben ebenda.