



Hexansyra som alternativ diluent i en GANEX process

Kandidatarbete inom högskoleingenjörsutbildningen kemiteknik

HANNA ELFVERSON

Institutionen för Kemi och Bioteknik
Avdelningen för Kärnkemi
CHALMERS TEKNISKA HÖGSKOLA
Göteborg, Sverige 2013
Kandidatarbete/rapport nr 2013:000

Tack

Jag skulle först och främst vilja tacka Elin Löfström Engdahl för all hjälp och vägledning under hela arbetsprocessen, från att planera försök och diskutera resultat till rättning av rapporten.

Sen skulle jag vilja tacka mina handledare och professorer Gunnar Skarnemark och Christian Ekberg för all hjälp under arbetets gång.

Sammanfattning

Detta kandidatarbete i kemiteknik berör en vätskevätskeextraktionsprocess som benäms gruppaktinoidextraktionsprocessen (GANEX-processen). Som extraherar aktinoider för vidare transmutation ur kärnavfall. I GANEX-processen består vattenfasen av 4 M HNO_3 , medan den organiska fasen består av tre olika delar, två extraktanter och en diluent. De två extraktanterna är TBP och CyMe₄-BTBP, och diluenten är cyklohexanon. I detta arbete undersöks hexansyra som är ett billigare substitut för cyklohexanon.

De aktinoider som studerades var uran, plutonium och curium. Resultaten visade att extraktionen av uran- och plutonium är betydligt lägre i hexansyra än i cyklohexanon.

Vidare undersöktes hur fissions/korrosions- och aktiveringsprodukter extraherades i systemet, vilket visade likvärdiga resultat som för cyklohexanon.

Förutom detta undersöktes även hur systemet reagerade vid ett tvättsteg av organfasen med natriumkarbonat. Resultaten visade en viss inlösning av hexansyra.

Abstract

This bachelor thesis in chemical engineering involves a liquid-liquid extraction process called group actinide extraction process (GANEX process) that extracting the actinides for further transmutation from nuclear waste. The GANEX process consists of an aqueous phase that contains 4 M HNO_3 , while the organic phase consists of three parts, two extractants and a diluent. The two extractants are TBP and CyMe4-BTBP, and the diluent is cyclohexanone. This work examines hexanoic acid as a less expensive substitute for cyclohexanone.

The actinides studied were uranium, plutonium and curium. The results showed that the extraction of uranium where significantly lower in hexanoic acid than in cyclohexanone.

In this thesis it was also examined how the fissions/corrosions - and activation products were extracted in the system. The results for the hexanoic acid based system were equivalent to the cyclohexanone based one.

It was also examined how the system would react to a washing step of the organic phase with sodium carbonate. The results showed a slight redemption of hexanoic acid in the sodium carbonate solution.

Innehållsförteckning

1 Inledning	1
2 Syfte	2
2.1 Tillvägagångssätt	2
2.2 Avgränsningar	2
3 Teori	3
3.1 Använt kärnbränsle	3
3.2 Bränslets uppkomst	3
3.3 Vätske-vätskeextraktion	4
3.3.1 GANEX-konceptet	5
3.3.1.1 Extraktanter	5
3.3.1.2 Cyklohexanon	5
3.3.1.3 Hexansyra	6
4 Instrument/Utrustning	7
4.1 High-Purity Germanium detector (HPGe)	7
4.1.1 Mekanismen för fasta material	7
4.2 Vätskescintillator	7
4.2.1 Mekanism	8
4.3 Alfaspektrometer	8
4.4 Induktiv kopplad plasma- Optisk emissionsspektrometri (ICP-OES)	9
5 Metod	10
5.1 Karboxylsyratest	10
5.2 Extraktion av aktinoider	10
5.2.1 Uran	10
5.2.2 Plutonium	10
5.2.3 Curium	10
5.3 Extraktion av fissions-, korrosions- samt aktiveringsprodukter	11
5.4 Hexansyra löses in i Na_2CO_3	11
6 Resultat	12
6.1 Karboxylsyraförsök	12
6.2 Extraktion av aktinoider	12
6.2.1 Plutoniumstudier	13
6.3 Fissions- korrosions- och aktiveringsprodukter	13
6.4 Hexansyras löslighet i Na_2CO_3	15
7 Diskussion	16
8 Slutsats	17
9 Källförteckning	18
APPENDIX A	
APPENDIX B	
Labjournal	

1 Inledning

Det kärnavfall som produceras inom kärnkraftsindustrin och forskning runt om i världen behöver förvaras på ett säkert sett i hundratusentals år för att inte skada vår natur och dess organismer. Det använda bränslet innehåller även en stor mängd energi som kan utvinnas och återanvändas [IAEA08]. Radioaktiva ämnen i bränslet kan även transmuteras vilket kan förkorta förvaringstiden avsevärt.

Det finns flera olika sätt att hantera kärnavfall. En plan för hantering av avfallet innebär slutförvaring, där bränslet, efter att ha använts endast under en reaktorcykel transporteras till ett slutförvar. Denna typ av hantering planeras bland annat i Sverige, USA och Tyskland [IAEA04]. I Sverige kommer avfallet, om Svensk Kärnbränslehanterings (SKB) förslag godkänns av miljödomstolen och strålsäkerhetsmyndigheten, att kapslas in i en kopparkapsel, omges av bentonitlera och sedan placeras djupt ner i urberget i Östhammar [SKB06]. På så sätt kommer det att finnas fyra-barriärer som skydd, dels bränslet själv, dels kopparkapseln, dels bentonitleran och till sist urberget. Ett alternativ eller komplement till slutförvar är återvinning av uran och plutonium från avfallet. Dessa kan då återanvändas som nytt kärnbränsle. Detta innebär en kraftig förbättring av energieffektiviteten som ökar med 25% [IAEA08]. Återvinningen kan ske genom tillverkning av nytt reaktorbränsle av aktinoiderna uran och plutonium. Men för att kunna tillverka detta bränsle behöver uran och plutonium separeras från resten av bränslet. Detta sker genom en vätskevätskeextraktions process och den vanligaste i dag är den så kallade PUREX-processen (Plutonium Uranium Redox EXtraktion). Återvinning av plutonium och uran sker idag i till exempel Frankrike, Indien och Ryssland [IAEA05].

Ett komplement till PUREX-processen är separation och transmutation, vilket idag befinner sig på forskningsstadiet. Transmutation innebär att man samtidigt som man återvinner uran och plutonium, transmuterar (förvandlar) de långlivade och radiotoxiska aktinoider americium (Am) och curium (Cm) till nuklider med kortare halveringstid. För att kunna transmutera Am och Cm måste fission/aktiverings- och korrosionsprodukterna separeras bort, vilket kan göras genom en vätske-vätskeextraktion [IAEA09].

Den vätskevätskeextraktionsprocess som detta arbete kommer att beröra är en gruppaktinoidextraktionsprocess (GANEX-process) som utvecklats på Chalmers Tekniska Högskola. Ett problem med PUREX-processen är att rena plutoniumströmmar handhas. Detta ökar risken för spridning av plutonium för till exempel icke fredliga syften. Genom att istället separera aktinoiderna som en grupp bildas ingen ren plutoniumström under separationen.

Vätske-vätskeextraktion utnyttjar det faktum att vatten och olja inte blandas när de är i kontakt med varandra. Genom att i den organiska fasen tillsätta speciella molekyler kan vissa ämnen extraheras från vattenfasen [STE07].

I GANEX-processen består vattenfasen av 4 M HNO_3 , medan den organiska fasen består av tre olika delar, två extraktanter och en diluent. De två extraktanterna är TBP och $\text{CyMe}_4\text{-BTBP}$, och diluenten är cyklohexanon [ANE10].

2 Syfte

Syftet med detta arbete är att undersöka om cyklohexanon, som idag används som diluent i GANEX-processen som utvecklats på Chalmers, kan ersättas med hexansyra. Cyklohexanon fungerar bra så till vida att lösligheten för CyMe₄-BTBP är god och extraktionskinetiken är relativt snabb. Problemet är dock att den har låg flampunkt och att den degraderar vid kontakt med syra och vatten.

Hexansyra kan antas vara ett bra alternativ som diluent då flampunkten är högre, vatteninlösningen är lägre och kemikalien är relativt billig.

2.1 Tillvägagångssätt

För att undersöka om hexansyra skulle kunna ersätta cyklohexanon utfördes olika extraktionsexperiment. De aktinoider som undersöktes genom extraktion var uran (U), plutonium (Pu) och curium (Cm). Vidare undersöktes hur fissions/korrosions- och aktiveringsprodukter extraherades i systemet, samt hur systemet reagerar vid ett eventuellt tvättsteg av organfasen med natriumvätekarbonat.

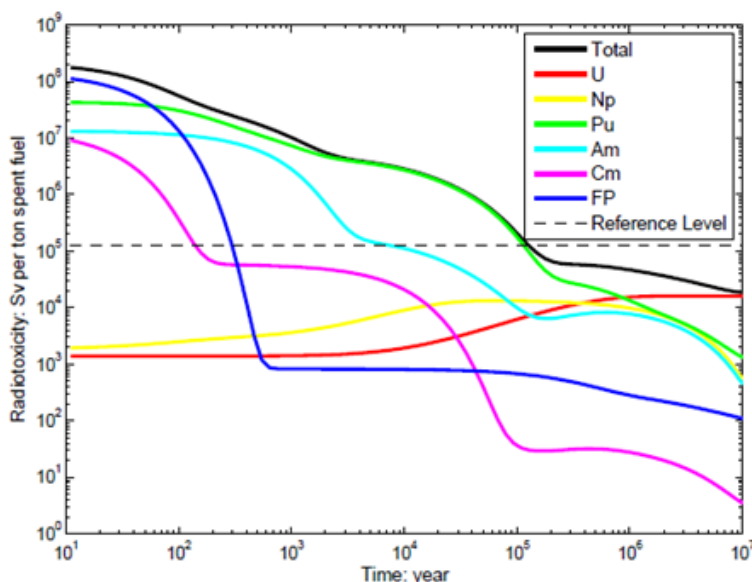
2.2 Avgränsningar

I samband med detta arbete kommer inte diluenten att testas med avseende på kinetik och löslighet av extraktanten. Extraktion av americium har undersökts i en tidigare studie [LÖF12] och kommer därför inte att undersökas här.

3 Teori

3.1 Använt kärnbränsle

Varje år producerar kärnkraftsanläggningar runt om i världen omkring 10 000 m³ högaktivt avfall som kommer från utvinning av kärnkraft från uran i kärnbränslecykeln. Denna typ av kärnbränsle består av både långlivade ämnen (aktinoider) och mer kortlivade ämnen (fissionprodukter) (Figur 1) [WNA12].



Figur 1. Radiotoxiciteten i använt kärnbränsle. Bränslet har använts i en cykel, och ²³⁵U är anrikat till 4 %. (burnup 45GWd/tHM av uran från start). Dosen är beräknad från ICRPs doskoefficienter. Referensnivån är radiotoxiciteten från den mängd naturligt uran som krävs för att göra 1 ton uran med anrikning 4% [HOL12].

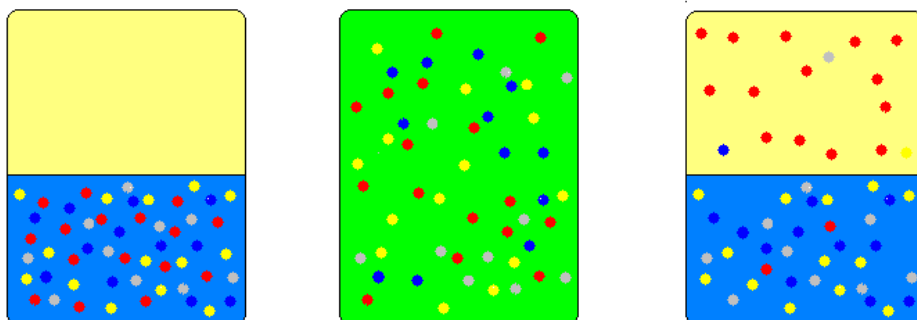
3.2 Bränslets uppkomst

I kärnreaktorer används uran i form av kulsar staplade i stavar som bränsle. Dessa omges av en moderator, i svenska reaktorer används vatten [WNA11]. Kärnreaktionen startar av att en neutronkälla fissionerar en första urankärna. Samtidigt som uranet fissionerar avges nya neutroner. Moderatoren bromsar neutronerna som skjuts ut från fissionsreaktionen. De nu långsammare neutronerna interagerar med nytt ofissionerat uran, som därmed fissionerar och det bildas fissionsprodukter, nya neutroner och energi genom en sk. kedjereaktion. Dessutom kan uranet ta upp neutroner och bilda tyngre ämnen såsom plutonium, neptunium, americum och curium [WNA11]. Innehållet i använt kärnbränsle är beskrivet i Appendix A.

3.3 Vätske-vätskeextraktion

Vätske-vätskeextraktion används både inom analytisk och industriell kemi. Syftet är att separera olika grundämnen från varandra. En vätske-vätskeextraktions process innehåller vanligen en organfas och en vattenfas [RYD04]. Organfasen är diluenten och innehåller vanligen en eller flera extraktanter.

Denna process kan utnyttjas för transmutation och separationssyfte genom att extrahera aktionider från vattenfasen till organfasen. Principen illustreras i Figur 2.



Figur 2. Principen för vätske-vätskeextraktion i bild 1 (vänster) finns alla olika element (symboliseras av olika färger) i vattenfasen. I bild 2 (mitten) blandas vatten och organfasen. I Bild 3 (höger) har faserna separerat och elementen har fördelats mellan faserna teorin kommer från [RYD04].

Det extraherade ämnets fördelning mellan de olika faserna definieras genom fördelningsfaktorn (D-värdet). D-värdet är kvoten mellan koncentrationen för ämnet som extraherats till organfasen $[C]_{org}$ och ämnets koncentration i vattenfasen $[C]_{aq}$ [RYD04].

$$D = \frac{[C]_{org}}{[C]_{aq}} \quad \text{Ekvation 1}$$

Om fler än två ämnen extraheras kan separationsfaktorn, SF, mellan de olika ämnena räknas ut genom att dividera de olika ämnenas D-värden [RYD04].

$$SF_{A/B} = \frac{D_A}{D_B} \quad \text{Ekvation 2}$$

då D_A är högre än D_B

3.3.1 GANEX-konceptet

GANEX-processen utvecklad på Chalmers Tekniska Högskola är ett ternärt system, map den organiska fasen, det vill säga, den består av tre beståndsdelar. Vattenfasen är kraftigt sur. Den sura vattenfasen har valts eftersom det använda bränslet löses upp i salpetersyra.

3.3.1.1. Extraktanter

Den första extraktanten är från en klass av extraktanter som kallas BTBP's (bis-triazin-bi-pyridine). Dessa extraherar trivalenta och pentavalenta aktinoider som neptunium, americium och curium och separerar dem från trivalenta lanthanider, trots att dessa har en liknande kemisk struktur. BTBP molekylerna skiljs åt genom dess sidgruppsmodifikationer. I GANEX-processen används CyMe₄-BTBP eftersom den är relativt stabil mot bestrålning och syrakontakt. (Emmaslic)

Den andra extraktanten är TBP (tributyl phosphate). TBP är en stark Lewis bas, som extraherar tetra- och hexavalenta aktinoider som uran och plutonium. TBP används idag i PUREX-processen [RYD04]. Båda extraktanterna kan ses i Figur 3.



Figur 3. TBP (vänster) CyMe₄-BTBP (höger)

3.3.1.2 Cyklohexanon

Cyklohexanon är en organisk förening som består av en cykliskt formad 6-kolkedja med en ketongrupp. Cyklohexanon framställs kommersiellt från cyklohexan genom oxidation i luft [FIS00]. Det kan också framställas från fenol genom en hydrering med hjälp av till exempel katalysatorerna palladium eller kol.



eller



Problemen med att använda cyclohexanon som diluent är dels den höga vatteninlösningen, dels den låga flampunkten, men även följande scenario.

När cyclohexanon reagerar med HNO₂ bildas isonitrosocyclohexanon som i sin tur reagerar med HNO₃ och sedan vatten. Detta bildar 6-hydroxyimino-6-nitro hexansyra, som även kan betecknas nitrolic syra som faller sönder till adipinsyra och koldioxid.

I denna reaktioncykel kan även cyclohexanon reagera med låga halter HNO₃ och bilda 1,2-cyclohexanedion (Dione). Dione kan sedan omvandlas till adipinsyra, glutarsyra och bärnstensyra. I GANEX-processen är detta negativt då adipinsyra kan bilda en explosiv blandning om det kommer i kontakt med luft [ASS10].

3.3.1.3 Hexansyra

Hexansyra är en karboxylsyra, även kallad fettsyra, som enbart består av en kolkedja innehållande en karboxylgrupp. Hexansyra, vars trivialnamn är kapronsyra, har sex kolatomer [MER11].

Skillnader i kemikaliska och fysikaliska egenskaper mellan hexansyra och cyklohexanon är redovisade i Tabell 1.

Tabell 1. Kemiska och fysikaliska egenskaper hos hexansyra och cyklohexanon [MSDS1] och [MSDS1].

	Hexansyra	Cyklohexanon
Linjärformel	$C_6H_{12}O_2$	$C_6H_{10}O$
Molekylvikt	116,16 g/mol	98,14 g/mol
Utseende/ form	klar, vätska	vätska
Färg	gul	färglös
Lukt	skarp	mentol
Smältpunkt	-4 °C	-47 °
Kokpunkt	202 - 203 °C	155 °C
Flampunkt	102 °C	44 °C
Löslighet i vatten	9,7 g/l (20 °C)	50 g/l
Surhet (pK _a)	4,88	11,3
Formar en tredje fas	Np+U extraktion (2 gånger/10)	Nej
Stabil vid bestrålning	Information saknas	nej
Stabil vid syra kontakt	Ja	nej
CHON	Ja	ja

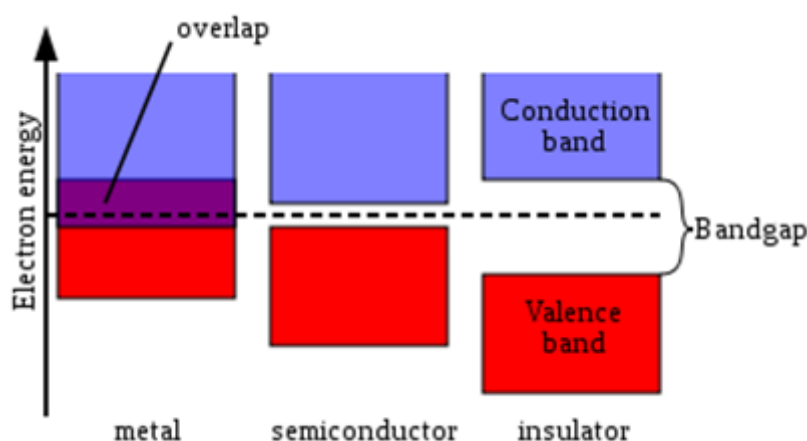
4 Instrument/Utrustning

4.1 High-Purity Germanium detector (HPGe)

HPGe är en halvledardetektor som används för att mäta gammastrålning i radioaktiva prov.

4.1.1 Mekanismen för fasta material

Fasta ämnen består av atomkärna och dess elektroner som håller sig på olika energinivåer. När flera atomer är sammankopplade med varandra kan elektronerna ses som energiband bestående av valens- och ledningsband runt atomkärnorna. I halvledare, som t ex germanium, är avståndet mellan valensband och ledningsband litet [MIZ00]. För att kunna excitera en elektron från valensbandet till ledningsbandet behövs energi. Ju mindre avståndet är mellan banden desto mer elektriskt ledande är ämnet. Den energi som behövs för att excitera elektronerna mäts ofta i elektronvolt. Detta visas i Figur 4.



Figur 4. Förenklat schema av strukturen på energiband hos metaller, halvledare och isolatorer [PIE07].

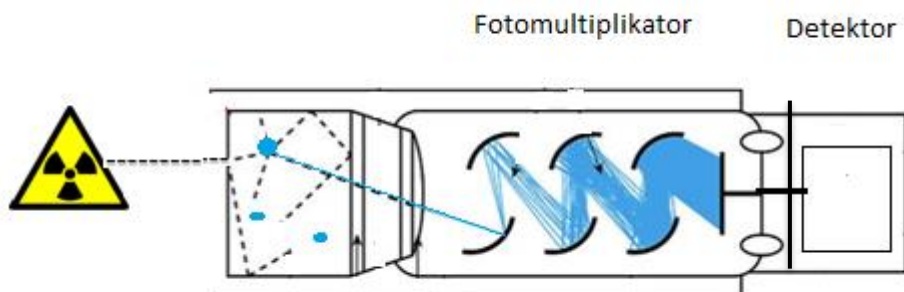
I en germaniumkristall i en HPGe krävs 0,66 eV för att excitera elektroner mellan de olika energibanden. Detta kan utnyttjas för att mäta gammastrålning genom att germaniumet kyls med flytande kväve till så låg temperatur att elektroner inte kan transporteras naturligt mellan energibanden [MIZ00]. När ett radioaktivt prov sätts i detektorn exciteras elektronerna från valensbandet till ledningsbandet av energin från provets strålning. Med hjälp av en spänning transporteras sedan elektronerna till en detektor.

4.2 Vätskescintillator

Vid kvantifiering av radioaktiva grundämnen kan också sk vätskescintillator användas. Vätskescintillatoren har en hög effektivitet, nära 100 procent för alfasönderfall. Dess höga effekt beror på att det radioaktiva provet blandas med en scintillationsvätska, vilket medför att den radioaktiva källan får direkt kontakt med scintillationsmekanismen. Denna direkta kontakt är betydelsefull för prov med lågaktiva källor av alfa-strålning och betapartiklar som annars kan vara svår analyserade [LEN99].

4.2.1 Mekanism

Provets joniserande strålning tas upp av scintillationsvätskans molekyler, vars elektroner exciteras och vid excitationen sänds ljus ut [LEN99]. Den elektriska pulsen detekteras och analyseras och ger information om det radioaktiva provet och på detta sätt kan innehållet kvantifieras. Det är även möjligt att skilja mellan alfa- och betastrålning med hjälp av denna teknik. På grund av sin dåliga energiupplösning är denna teknik dock olämplig för prov som innehåller flera nuklider med samma strålslag eller okända prov. Tekniken för en scintillation visas i figur 5.



Figur 5. Förenklad konceptbild över en scintillationsdetektor av stavtyp. Joniserad energi från ett radioaktivt prov träffar en scintillationsmolekyl som sänder ut energi i form av ljus. Ljuset absorberas av fotomultiplikatorn och detekteras i detektorn. Figur baserad på [BAS06] och [MUS11].

4.3 Alfaspektrometer

I en alfa-spektrometer mäts alfa-emitterande prov genom att detektera de alfapartiklar som bildas vid det radioaktiva sönderfallet. Energierna är ofta mellan 4-6 MeV. Alfastrålning har en hög energi, men en kort räckvidd och är lätt att stoppa, t.ex. när den bara någon cm i luft samt stoppas av ett papper eller hud [IAEA12].

Provförberedelser är en kritisk del i alfa-spektrometri, då det är viktigt för analysen att provet har en tunn och jämn yta [GAR06]. Det finns flera olika sätt att åstadkomma detta. Ett sätt är att blanda det radioaktiva provet med en lösning som sänker provets ytspänning på en metallplanschett, t.ex. saponlack, Z-100. Därefter sätts metallplanschetten under en infraröd lampa för indunstning. De organiska föreningarna från provlösningen bränns bort för att ge provet en jämn yta. Provet sätts sedan i detektorn för analys.

Eftersom alfapartiklarna inte skall absorberas av luften innan de når detektorn sker mätningen under vacuum. Detektorn, som är av kisel, innehåller ett tunt skikt som alfapartiklarna passerar genom och därigenom förlorar en del av sin energi. När partiklarna passerat skiktet detekteras dess energispridning och dess passage i det tunna skiktet av ett datorprogram som konverterar och analyserar provet [STE94].

4.4 Induktiv kopplad plasma- Optisk emissionsspektrometri (ICP-OES)

ICP-OES används för att detektera metaller i låga halter i lösningar och kan detektera upp till 70 olika ämnen med koncentrationer från ppb (part-per-billion) till viktsprocent under en körning [WRO08]. Ett typiskt utseende på ICP-OES visas i figur 6.

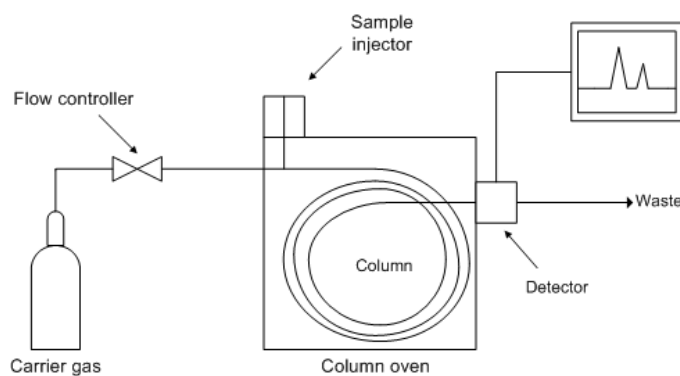
Ett ICP-OES instrument består av en kvartslampa som innehåller tre koncentriska rör (ett rör som har två andra rör i sig). När instrumentet startas börjar argongas strömma in i det yttersta röret och en gnisturladdning sker och plasma bildas. Plasmans laddade partiklar följer med argongasen som matas runt i ringformade banor genom de tre rören med hjälp av ett radiofrekvent elektromagnetiskt fält. Plasmans laddade partiklar består av joner och elektroner och reagerar med argongasens partiklar som joniseras. Den höga termiska energin som bildats genom motståndet av laddade partiklar till deras flöde gör att plasman sedan blir självunderhållande med en temperatur runt 7500K [WRO08].

Provet, som ofta är en vätska, förs in i plasman i form av en aerosol i det innersta röret. Provet kolliderar med de laddade jonerna och elektronerna i plasman och dess molekyler sönderdelas till atomer som sedan avger sina elektroner och ger ifrån sig strålning vid ämnets karaktäristiska våglängd [WRO08]. Dess specifika emissionsspektra detekteras och provets innehåll analyseras och dess kvantitet räknas ut.

4.5 Gaskromatografi (GC)

GC är en av de vanligaste analysmetoderna för att analysera organiska ämnen.

Denna analysmetod har tre huvudelement; injektor, kolonn och detektor. Analyten (provet) förångas när provet injiceras och färdas genom kolonnen med hjälp av en inert gas, även kallad mobil fas. I kolonnen finns en stationär fas som vanligtvis är en vätska där de olika ämnena i analyten separeras beroende på deras fysikaliska och kemiska egenskaper. När ämnena färdats klart genom kolonnen detekteras de och registreras med hjälp av en detektor [HAR07]. Se Figur 7.



Figur 7. Konceptbild över ett GC-instrument [RUN05].

5 Metod

5.1 Karboxylsyratest

För att undersöka vilken karboxylsyra som är bäst lämpad i en GANEX process testades tre karboxylsyror: hexansyra, oktansyra och nonansyra.

För att ta reda på vilken av syrorna fungerar bäst under ett eventuellt tvättsteg med Na_2CO_3 fick en droppe av de olika syrorna hexansyra, oktansyra och nonansyra reagera med basen Na_2CO_3 i koncentrationerna 0,1, 0,25 och 0,5 M. Då ingen reaktion skedde blandades 250 μL hexansyra med 250 μL 0,5 M Na_2CO_3 . Till en början kom lite små bubblor som sedan upphörde. Då 0,25 M Na_2CO_3 används i PUREX-processen [RYD04] valdes denna koncentration för fortsatta försök. För att studera separationen mellan de olika syrorna och den basiska vattenfasen tillsattes 500 μL 0,25 M Na_2CO_3 till 500 μL av respektive syra för att undersöka vilken som skulle vara den lämpligaste syran i fortsatta studier.

5.2 Extraktion av aktinoider

För att undersöka hur effektiv extraktionen av aktinoiderna U, Pu och Cm samt fissions-, korrosions- och aktiveringsprodukter är gjordes olika extraktioner följt av analyser med följande analysmetoder: HPGe (U), Vätskescintillation (Pu), Alfa-spektrometri (Cm) och ICP-OES (fissions-, -korrosions och aktiveringsprodukter).

Extraktionerna utfördes på samma sätt för de olika aktinoiderna med en organfas innehållande 400 μL hexansyra (Sigma Aldrich, 99,5 %) med 30 % TBP (Fluka, purum >97 %). För alla element utom U tillsattes även 12 mM CyMe₄-BTBP (syntetiserad på avdelningen) till lösningen. Vattenfasen innehöll 400 μL 4M HNO_3 (Sigma Aldrich, 69 % p.a.). Provet skakades sedan i en elektrisk skakmaskin i 60 min för att nå jämvikt.

5.2.1 Uran

Provet spikades med 10 μL från en uranstam med koncentrationen 40 mM ^{235}U (84.88 % enr.) [LÖF12]. Prov togs efter extraktion från både organfasen och vattenfasen för att kunna beräkna D-värdet, och analyserades med HPGe-detektor. Jämförelser gjordes mellan sk. förjämviktade prover, där den organiska fasen (from. nu kallad "organfas") och vattenfasen har blivit mättade med varandra före extraktion, och ej förjämviktade prover.

5.2.2 Plutonium

Plutoniumextraktionerna detekterades med vätskescintillation. Tre olika extraktioner genomfördes: en med hexansyra, en med hexansyra och 30% TBP och den sista med hexansyra 30% TBP med 12 mM CyMe₄-BTBP. De olika extraktionerna genomfördes eftersom man ville veta vilken komponent som extraherar plutonium. Proven innehöll lika stora volymer organfas som vattenfas. Proverna spikades med 10 μL från en plutoniumstam med koncentrationen 0.28 Bq/ml ^{238}Pu [LÖF12]. Prover på 10 - 50 μL togs på vatten- respektive organfasen för att sedan analyseras med vätskescintillation.

5.2.3 Curium

Curium analyserades med alfaspektrometri och proverna spikades med en curiumstam med koncentrationen 0.23 MBq/ml ^{244}Cm [LÖF12]. 10 μL prov togs från organ- respektive vattenfasen och sattes på en metallplanschett. Därefter tillsattes 50 μL Z-100 lösning på planschetten som fick stå under en UV-lampa i tio minuter. Därefter brändes proverna med en brännare för att få en jämn yta. Proverna analyserades i en alfaspektrometer och D-värdet räknades ut.

5.3 Extraktion av fissions-, korrosions- samt aktiveringsprodukter

För att undersöka hur organfasen fungerar som lösningsmedel under verkliga förhållanden där vattenfasen innehåller fissions-, korrosions- och aktiveringsprodukter såväl som aktinoider gjordes tester för att undersöka om CyMe₄-BTBP extraherar några av fission -korrosion -samt aktiveringsprodukterna. Detta gjordes genom att använda 4M HNO₃ lösning innehållande metaller i kända halter (vattenfasen). Lösningarna är från [ANE10] och beskrivs i Tabell 2. 400 µl av de olika metall-lösningarna extraherades var för sig med hexansyrabaserad GANEX-lösning. Prover togs från vattenfasen: 50-1000 µl och sattes till 10 ml 1 M HNO₃ som analyserades med ICP-OES. Dessutom togs prover på 200-900 µl enbart från metall-lösningen för att genom subtraktion (metallhalt före-metallhalt efter) kunna se hur stor halt av metallerna som extraherats.

Tabell 2. Tabell 2. Fissions-, korrosions- samt aktiveringsprodukterna och dess koncentrationer i de olika lösningarna som analyserades i ICP-OES med osäkerheter lägre än +/- 5%. Beredningen av lösningarna finns beskriven i [ANE10].

Lösning	Ämne	Konc. [mg/L]
Lösning 1 Rh	Ag	60
	Cd	30
	Sb	10
	Mn	330
	Rh	40
	Sn	-
	Rb	-
Lösning 2 Rb	Sr	240
	Yt	110
	Sm	-
	Te	1470
Lösning 3 Fe	Fe	270
	Cr	260
	Mn	330
	Co	300
Lösning 4 Cs	Cs	1200
	Ba	480
	La	480
	Ce	930
	Nd	1360
Lösning 5 Zr	Zr	1500
	Mo	650
	Pd	450

5.4 Hexansyras löslighet i Na₂CO₃

Under GANEX-processen kommer hexansyran i kontakt med en vattenlösning innehållande Na₂CO₃ vilket kan leda till förlust av lösningsmedel och volymändringar då lösligheten av organfasen till vattenfasen ökar och en del av hexansyran går över till vattenfasen. Det är därför viktigt att kontrollera hur mycket av hexansyran som förloras när den kommer i kontakt med en vattenlösning. Detta gjordes genom att 200-400 µl hexansyra blandas med en vattenlösning innehållande 200-400 µl 0,25M Na₂CO₃. Sedan togs prover på vattenfasen som blandades med en stark syra för att få hexansyran att protoneras och extraheras till en tillsatt organisk fas bestående av heptan. På så sätt genomfördes en ytterligare extraktion. Därefter togs prover på organfasen som blandades med en heptanlösning innehållande en intern standard bestående av metyl naftalin. Den mängd hexansyra som går förlorad i vattenlösningen bestämdes med hjälp av Gaskromatografi (GC). Vid analysen används både en intern standard för normalisering och en extern kalibrer kurva för haltbestämning av hexansyra i provet.

6 Resultat

6.1 Karboxylsyraförsök

Separationen mellan de tre olika karboxylsyrorerna och 0,25 M Na_2CO_3 redovisas i Tabell 3. Då hexansyra visade sig vara den lämpligaste syran eftersom faserna separerade under det försöken, samt såg klar ut gjordes fortsatta försök med den diluenten.

Table 3. Visar en vätske-vätskeseparation mellan hexansyra, oktansyra, nonansyra och Na_2CO_3 [CHE12].

	pKa	Volym	Reaktion efter 500µL 0,25 M Na_2CO_3 tillsatts
Hexansyra	4.88	500µL	bra separation
Oktansyra	4.89	500µL	separation
Nonansyra	4.96	500µL	grumlig, sen dålig separation

Ett försök gjordes för att undersöka om någon inlösning av vattenfasen i organfasen och vice versa skedde. Mycket små mängder vattenfas tillsattes till organfasen och tvärt om. Ingen inlösning sågs. Minsta detekterabara volymer var 10 µL till 1 mL.

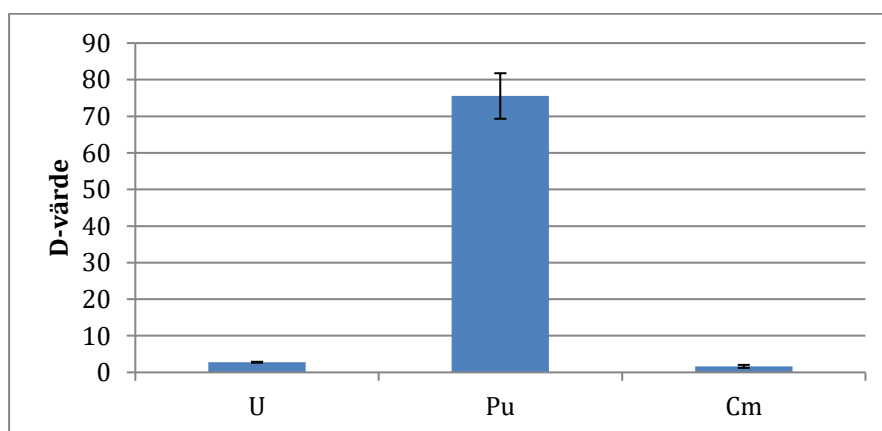
6.2 Extraktion av aktinoider

Extraktionen av uran undersöktes för att se om extraktionen påverkades om de olika faserna var mättade med den andra fasen före extraktionen eller inte. D-värdet räknades ut för de två proverna, vilket kan ses i Tabell 4. Proverna gjordes som dubletter och osäkerheterna är beräknade med mätstatistik. Då det inte var någon skillnad på extraktionen av uran beroende på om faserna var förjämviktade eller inte togs beslutet att inte förjämvikta faserna på de resterande proven.

Tabell 4 Visar D-värdet för uran, hexansyra med 30% TBP, för förjämviktade och icke förjämviktade prover

Uran	D-värde	Osäkerhet (stdav) +/-
Ej förjämviktad	2,7	0,1
Förjämviktad	2,7	0,1

Extraktionen av U gjordes med hexansyra med 30% TBP, och extraktionen av aktinoiderna Cm och Pu gjordes med hexansyra med 30% TBP och 12 mM $\text{CyMe}_4\text{-BTBP}$. Resultatet av alla tre extraktioner ses i Figur 8. Plutoniumprovet är här analyserat med vätskescintillation.



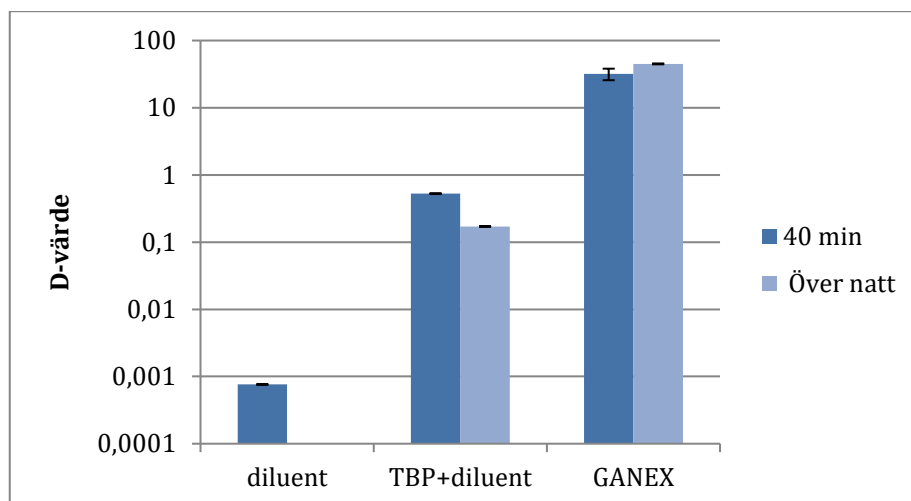
Figur 8. Extraktion av U, Pu och Cm. U extraherades med hexansyra med 30% TBP, Cm och Pu extraktionen gjordes med hexansyra 30% med TBP spikad med 12mM $\text{CeMy}_4\text{-BTBP}$.

6.2.1 Plutoniumstudier

Vidare undersöktes om diluenten hexansyra i sig extraherade plutonium genom att göra tester med enbart diluent och med diluent innehållande TBP samt hela det trenära systemet. Provet med TBP samt TBP och CeMy₄-BTBP analyserade även efter att det stått över natten för att undersöka om det hade någon påverkan på resultaten.

Resultaten visade att HA inte extraherade plutonium i sig själv och att i testet med TBP i sjönk D-värdet under natten. Pu extraheras något av TBP men resultaten från försöket visar att extraktionen blev högre när diluenten innehöll både TBP och CeMy₄-BTBP vilket innebär att CyMe₆-BTBP är den stora extraktanten av plutonium.

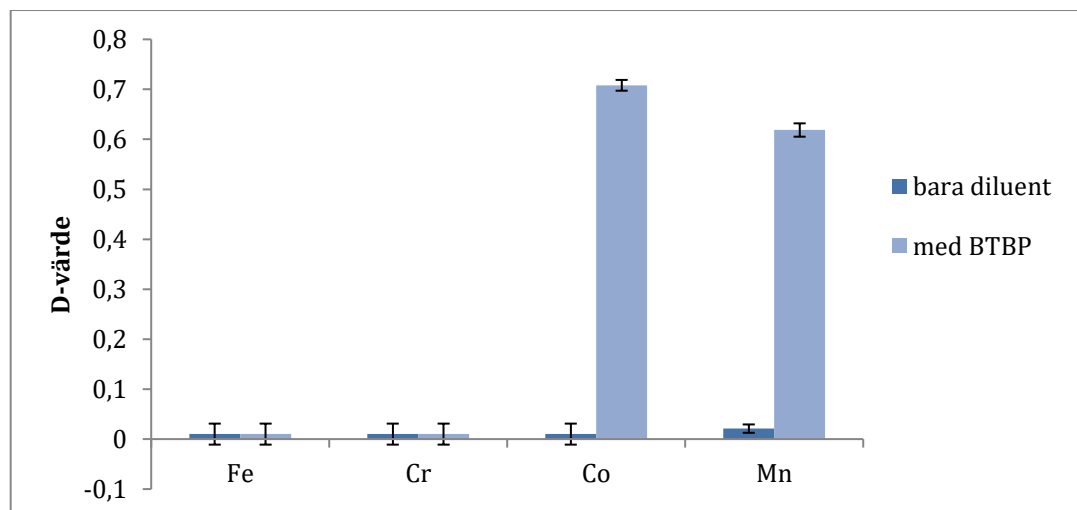
Detta kan möjligen indikera att plutonium byter oxidationstal under natten, när TBP då tappas plutonium som reducerats från IV och VI till III och V kan CeMy₄-BTBP då extrahera denna del plutonium (Figur 9). För att vara säkra på detta behövs flera analyser.



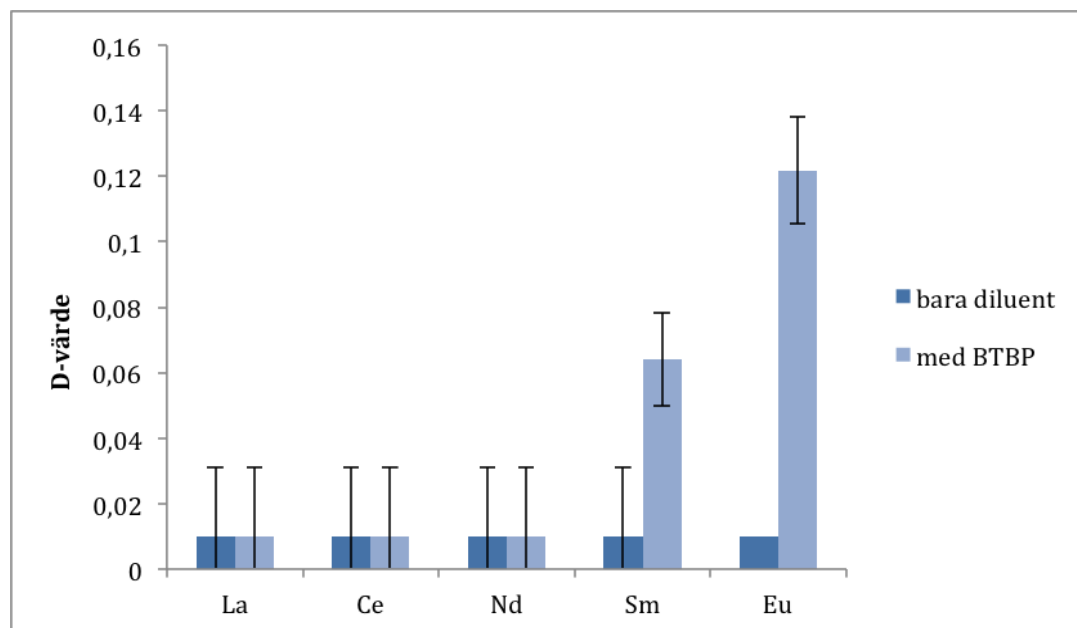
Figur 9. Extraktionen av Pu med enbart diluent, diluent med TBP och diluent med både TBP och CyMe₆-BTBP i logskala.

6.3 Fissions- korrosions- och aktiveringsprodukter

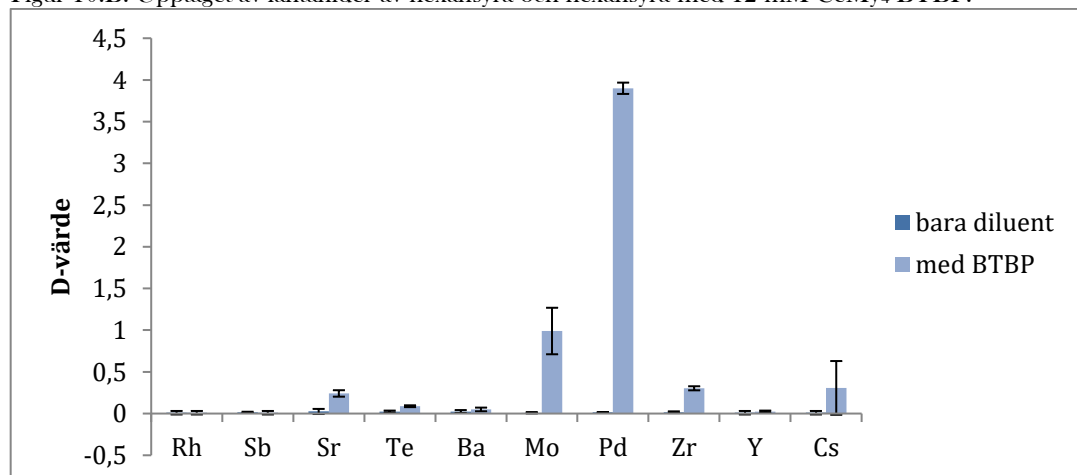
För att undersöka om någon av fissions-, korrosions- eller aktiveringsprodukterna extraheras tillsammans med aktinoiderna genomfördes försök med fission- korrosions- och aktiveringsprodukter vars koncentrationer liknade verkliga förhållandena. Resultat kan ses i Figur 10 A-D. Extraktionerna genomfördes med organfasen hexansyra och hexansyra med 12 mM CeMy₄-BTBP. Resultatet visade att hexansyra i sig inte extraherar några fissions-korrosion- samt aktiveringsprodukter, vilket är positivt, men däremot att CeMy₄-BTBP extraherar metallerna Pd, Cd, Ag, Mo och lantaniden Eu.



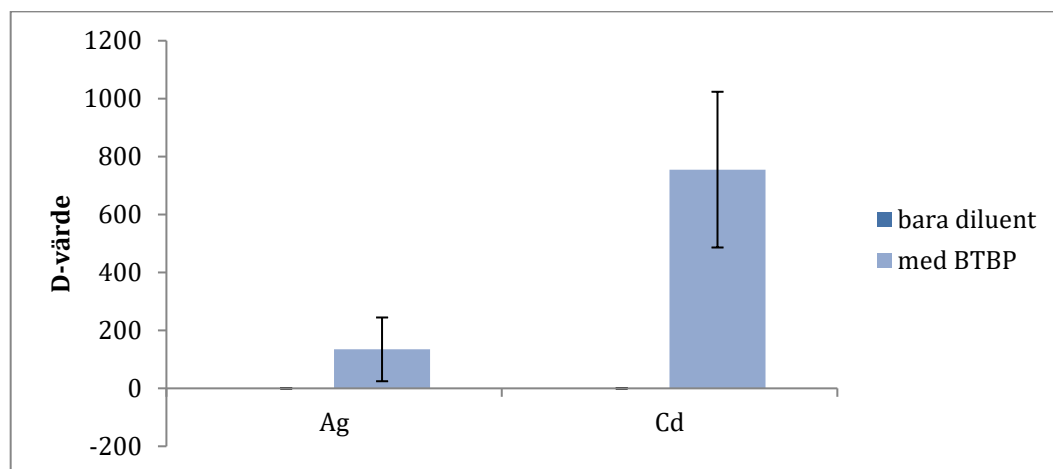
Figur 10.A. Upptaget av korrosions och aktiveringsprodukter av hexansyra och hexansyra med 12 mM CeMy₄-BTBP



Figur 10.B. Upptaget av lantanider av hexansyra och hexansyra med 12 mM CeMy₄-BTBP.



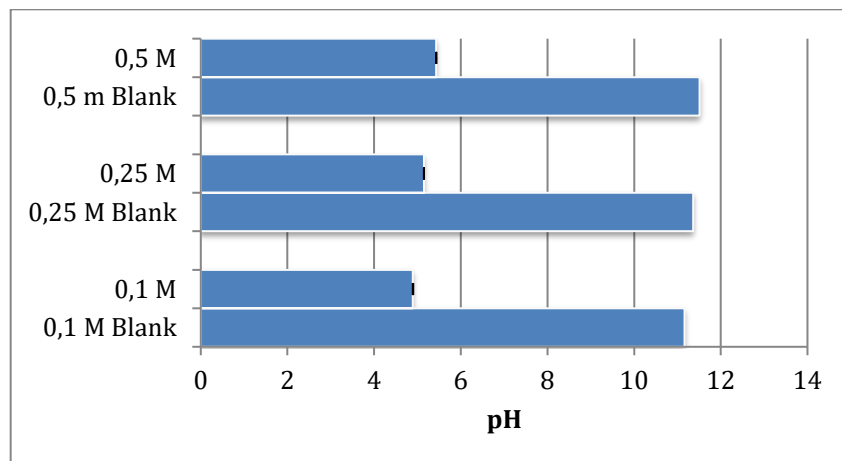
Figur 10.C. Extraktionen av fissionsprodukter av hexansyra och hexansyra med 12 mM CeMy₄-BTBP.



Figur 10.D. Upptaget av fissionsprodukter av hexansyra och hexansyra med 12 mM CeMy₄-BTBP

6.4 Hexansyras löslighet i Na_2CO_3

För att undersöka om hexansyra löses in i Na_2CO_3 mättes pH på Na_2CO_3 före och efter kontakt med hexansyra. För startvärdet användes ett teoretiskt värde på ren Na_2CO_3 vid koncentrationerna 0,1, 0,25 och 0,5 M. Sedan mättes pH på Na_2CO_3 efter det hade haft kontakt med hexansyran med en pH-meter och ett medelvärde på pH-värdet räknades ut. Resultatet kan ses i Figur 11 som visar att pH har sänkts och lösningen har blivit mindre basiskt vilket visar att hexansyra har lösts in i vattenfasen.



Figur 11. pH-värdet på Na_2CO_3 i olika koncentrationer innan och efter kontakt med hexansyra. Serien blank är pH-värdet på Na_2CO_3 -lösningen innan kontakt med hexansyra.

Hexansyrans inlösning i 0,25M Na_2CO_3 räknades sedan ut från pH-värdet och visade att hexansyra löses in med $0,23 \cdot 10^{-6}\text{M}$.

För att vidare undersöka hur mycket hexansyran som tas upp av Na_2CO_3 gjordes tester som analyserades med GC. Resultatet visade att i 0,25 M Na_2CO_3 , löses ca $0,778 \cdot 10^{-4}\text{M}$ hexansyra vilket är ett mycket högre värde än vad som erhöles genom teoretiskt räkna ut inlösningen från pH-värdet. För att få reda på den exakta inlösningen måste fler tester göras.

7 Diskussion

Detta examensarbete genomfördes för att undersöka möjligheten att byta diluent i GANEX-processen som har tagits fram på Chalmers Tekniska Högskola. Genom GANEX-processen extraheras alla aktinoider från resten av kärnbränslet i en ström för att möjliggöra en efterföljande transmutation. Cyklohexanon, som idag används i GANEX-processen, har en bra löslighet för $\text{CyMe}_4\text{-BTBP}$ och dessutom en relativt snabb extraktionskinetik. Däremot har cyklohexanon en låg flampunkt, vilket är negativt, och den degraderar vid kontakt med syra och vatten. Cyklohexanon löser också in en stor mängd vatten, samt kan på olika sätt bilda adipinsyra. Under tiden detta arbete fortgått har det sista problemet emellertid eventuellt lösts (Aneheim, unpublished work).

I examensarbetet gjordes studier för att undersöka om hexansyra kan vara ett substitut för cyklohexanon som diluent. Hexansyra valdes framför allt för att den har lägre inlösning av vatten, har högre flampunkt och för att kemikalien är relativt billig.

Den stora skillnaden mellan den cyklohexanonbaserade processen och den hexansyrabaserade med avseende på aktinoidextraktion är att uran- och plutoniumextraktionen är betydligt lägre i den senare.

Studierna visade att skillnaden i extraktion av fission/korrosionsprodukter mellan hexansyra och cyklohexanon var liten och att hexansyra med $\text{CyMe}_4\text{-BTBP}$ extraherade metallerna Cd och Ag i motsvarande höga grad som cyklohexanon. Detta bör dock inte innebära något egentligt problem då koncentrationen av Cd och Ag i använt kärnbränsle är lågt vilket kan ses i APPENDIX A. Även metallerna Pd och Mo extraherades och har ett D-värde ungefär lika högt som i den cyklohexanonbaserade processen. Detta kan leda till problem. En möjlig lösning är dock att komplexera dem i vattenfasen (Aneheim, unpublished work).

En nackdel med hexansyra är att syran löses in vid kontakt med Na_2CO_3 . I denna studie löstes 0,11 M hexansyra in vid kontakt med 0,25 M Na_2CO_3 . Hur cyklohexanon reagerar på liknande kontakt är inte känt.

8 Slutsats

Fördelar med hexansyra jämfört med cyklohexanon är den högre flampunkten samt att den var stabil mot syra kontakt. Extraktionen av aktinoiderna curium och uran visade sig i denna studie vara lägre för den hexansyrabaserade processen jämfört med cyklohexanonbaserad processen, vilket är en nackdel. Dock är inte resultatet från den, ur detta perspektiv, viktiga aktinoiden americium med i denna studie.

Det visades även att extraktionen av Eu var lägre med hexansyra än med cyklohexanon. När de tvåprocesserna jämförs med avseende på separationen mellan aktinoider och lantanoider ser man att separationen är bättre i den hexansyra-baserade processen.

Vid extraktion av fissions-, korrosions- samt aktiveringssprodukter visade den hexansyrabaserade processen och cyklohexanonbaserade processen likvärdiga resultat. Även extraktionen av de problematiska metallerna Cd och Ag och lantaniden Eu var likvärdiga. Koncentrationerna av Cd och Ag är dock låga i använt kärnbränsle, vilket innebär att detta inte bör innebära något reellt problem.

Vid ett eventuellt tvättsteg med Na_2CO_3 visade resultaten att hexansyra löses in Na_2CO_3 men för att ta reda på i vilken grad måste fler undersökningar göras.

För att kunna ta ett beslut om hexansyra skulle kunna vara en bra ersättning för cyklohexanon måste det göras vidare studier på americium och neptunium.

9 Källförteckning

- [ANE10] Emma H. K. Aneheim: Development of a Novel GANEX Extraction System for Partitioning and Transmutation Purposes, Thesis for the degree of licentiate, Chalmers Reproservice, Göteborg, 2010
- [ASS10] W. 3. Van Asselt, D. W. Van Krevelen: Preparation of Adipic acid by oxidation of Cyclohexanol and Cyclohexanone with Nitric acid: Part I. Reaction mechanism, Recueil des Travaux Chimiques des Pays-Bas, DOI: 10.1002/recl.19630820107 (2010-09-02)
- [BAS06] Cary Bass 2006: Figur: Radioactivity, Radioactive decay, Wikipedia, the free encyclopedia. (2012-08-26)
- [CHE12] Dictionary of Organic Compounds, Hexanoic acid, Octanoic acid and Nonanoic acid, CHEMnetBase. (2012-08-26)
- [FIS00] William B. Fisher, Jan F. VanPeppen: Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology: Cyclohexanol and Cyclohexanone, 3rd ed: vol. 7, ss. 410–416, Hoboken, NJ, John Wiley & Sons, Inc., 2000
- [GAR06] Eduardo Garcí a-Toran o: Current status of alpha-particle spectrometry, Applied Radiation and Isotopes nr 64, ss. 1273–1280, Madrid Spain, 2006
- [HOL12] Mikaela Holm: Thesis for the degree of masters: RadTox, A computer program for assessing radiotoxicity curves for spent nuclear fuel Chalmers University of Technology, Göteborg, Sweden 2011
- [IAEA05] IAEA (2005b): International atomic energy agency, Multilateral Approaches to the Nuclear Fuel Cycle, INFCIRC/640, IAEA, Vienna, 2005
- [IAEA08] IAEA-TECDOC-1587, Spent Fuel Reprocessing Options, Vienna, 2008
- [IAEA09] IAEA: Nuclear Energy Series No. NF-T-4.4 Use of reprocessed Uranium: Challenges and options international atomic energy agency, Vienna, 2009
- [IAEA12] IAEA 2012: Factsheets & FAQs: Radiation in Everyday Life, <http://www.iaea.org/Publications/Factsheets/English/radlife.html> (2012-05-10)
- [LEN99] Manfred Lenzen¹, George Braoudakis²: Scintillation Counters, Wiley Encyclopedia of Electrical and Electronics Engineering, DOI: 10.1002/047134608X.W3921 (1999-12-27)
- [KOC11] Günter Koch¹, Siegfried Träger²: Nuclear Technology, 3. Fuel Cycle, Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, DOI: 10.1002/14356007.o17_o06 (2011-10-15)
- [LÖF12] Elin N. Löfström Engdahl: Diluent and Solvent Effects in Liquid-Liquid Extraction Systems based on bis-triazine-bipyridine (BTBP)-class Ligands, Thesis for the degree of licentiate of engineering, Chalmers Reproservice, Göteborg, 2012
- [MSDS1] Material Safety Data Sheet: Hexanoic acid, CAS nr 142-62-1, Merck Millipore <http://www.merckmillipore.com>, (2012-06-24)
- [MSDS2] Material Safety Data Sheet: cyclohexanone Merck Millipore: Cyklohexanon, <http://www.merckmillipore.com>, (2012-06-24)

- [MIZ00] Masamichi Mizutori¹, Rokuro Yamada ^{†2}: Semiconductors, Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, DOI: 10.1002/14356007.a23_537 (2000-07-15)
- [MUS11] Harry Mustoe-Playfair 2011: Figur: Scintillation Counter Schematic, Scintillation Counter, Wikipedia, the free encyclopedia. (2012-08-26)
- [STE94] E. Steinbauer ⁺, P. Bauer ^a, M. GeretschlZger ^a, G. Bortels ^b, J.P. Biersack ^c, P. Burger ^d: Energy resolution of silicon detectors: approaching the physical limit, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, nr B 85, ss. 642-649, 1994
- [SKB06] Svensk Kärnbränslehantering AB: Ansökan om tillstånd enligt kärntekniklagen, huvudansökan, dokument id 1060420, versionsnr. 2.0, oktober 2006
- [PIE07] Pieter Kuiper 2007: Figur 1. Comparison of the electronic band structures of metals, semiconductors and insulators: Electronic band structure, Wikipedia, the free encyclopedia: http://en.wikipedia.org/wiki/Electronic_band_structure (2012-06-10)
- [RYD04] Rydberg J., Cox M., Musikas, Claude and Choppin R. Gregory, Solvent extraction principles and practice, chapter 1, Marcel Dekker, inc, New York, 2004
- [RUN05] Rune Welsh 2005: Figur: Diagram of a gas chromatograph: Gas chromatography. Wikipedia, the free encyclopedia, http://en.wikipedia.org/wiki/Gas_chromatography, (2012-06-10)
- [WNA12] World Nuclear Association april 2012: Radioactive Waste Management <http://www.world-nuclear.org/info/inf04.html>, (2012-06-10)
- [WRO08] Katarzyna Wrobel^{1,2}, Kazimierz Wrobel^{1,2}, Joseph A. Caruso^{2,3}: Metal Analysis, Encyclopedia of Inorganic Chemistry, DOI: 10.1002/0470862106.ia312, (2008-03-15)

APPENDIX A

Bränsle från en tryckvattenreaktor där moderatorn och kylvattnet består av lättvatten. ^{235}U är anrikat till 3,4 wt %. (burnup 36 GWd/tHM av uran från start) [KOC11].

Ämne	Konc (g/tHM) efter att bränslet legat kylt i 3 år inför återanvändning.
U	$9,522 \cdot 10^5$
Np	$4,927 \cdot 10^2$
Pu	$9,858 \cdot 10^3$
Am	$3,112 \cdot 10^2$
Cu	$9,629 \cdot 10^1$

H	$4.760 \cdot 10^2$
Se	$6.000 \cdot 10^1$
Br	$2.373 \cdot 10^1$
Kr	$3.934 \cdot 10^2$
Rb	$3.752 \cdot 10^2$
Sr	$9.269 \cdot 10^2$
Y	$5.010 \cdot 10^2$
Zr	$3.906 \cdot 10^3$
Nb	$3.219 \cdot 10^3$
Mo	$3.670 \cdot 10^3$
Tc	$8.283 \cdot 10^2$
Ru	$2.416 \cdot 10^3$
Rh	$4.984 \cdot 10^2$
Pd	$1.448 \cdot 10^3$
Ag	$6.862 \cdot 10^1$
Cd	$8.015 \cdot 10^1$
In	$1.473 \cdot 10^0$
Sn	$5.121 \cdot 10^1$
Sb	$1.373 \cdot 10^1$
Te	$4.942 \cdot 10^2$
I	$2.415 \cdot 10^2$
Xe	$5.819 \cdot 10^3$
Cs	$2.805 \cdot 10^3$
Ba	$1.683 \cdot 10^3$
La	$1.328 \cdot 10^3$
Ce	$2.630 \cdot 10^3$
Pr	$1.222 \cdot 10^3$
Nd	$4.406 \cdot 10^3$
Pm	$8.102 \cdot 10^1$
Sm	$8.494 \cdot 10^2$
Eu	$1.552 \cdot 10^2$
Gd	$1.310 \cdot 10^2$

APPENDIX B

Labjournal

För att kontrollera att inte diluenten löses in eller reagerar med natriumkarbonaten som är en ganska stark bas, gjordes försök med olika karboxylsyror för att se om det förekom någon reaktion mellan lösningarna och om det förekom någon fasomvandling där organfasen löses in i vattenfasen då diluenterna var svaga syror.

pKa värden	
0 - 2	stark syra
2-7	svag
7-10	Svag bas
10-14	Stark bas

Ämne	Pka
Hexansyra	4.88
Oktansyra	4.89
Nonansyra	4.96
Natriumkarbonat	10.33

För att kontrollera att inte en kraftig CO₂ utveckling skulle ske gjordes några inledande experiment. Experimenten började med att en droppe nonansyra droppades på tre olika glasunderlägg och natriumkarbonat med tre olika koncentrationer; 0.025, 0.25, och 0.5 M, droppades på syran. Då det inte blev någon reaktion blandades 250µL hexansyra med 250µL natriumkarbonat med koncentrationen 0.5M vilket inte gav någon stor reaktion utan enbart små bubblor. Då ingen större reaktion uppkom gjordes tre lösningar med 500µL av de olika syrorna och 500µL natriumkarbonat med koncentrationen 0,25M eftersom den koncentrationen används i PUREX-processen.

	pKa	Volym	Reaktion efter 500µL 0,25 M Na ₂ CO ₃ tillsatts
Hexansyra	4.88	500µL	bra separation
Oktansyra	4.89	500µL	Grumlig först, sen separation
Nonansyra	4.96	500µL	Grumlig och bildning av emulsion

Uran

För att undersöka hur mycket av U som extraherar och för att se det blir någon skillnad på extraktionen om proverna är jämviktade eller inte gjordes tester för att hitta jämvikten.

Prov	4M HNO ₃	
1ml Hexansyra 30% TBP	10 µL	
	15 µL	Lite bubblor
	25 µL	vattenbubblor
	50 µL	bubblor botten
	50 µL	vattenfas av bubblor
	50 µL	vattenfas botten
	50 µL	Bra separation mellan faser

Prov	Hexansyra 30% TBP	
1ml 4M HNO ₃	10 µL	Ingen skillnad
	15 µL	Ser 2 faser

25 µL	Bra separation mellan faser
-------	-----------------------------

Därefter gjordes tester med två jämviktade prov där vätskefasen och organfasen var mättad och två ej jämviktade prov. 400µL 4 M HNO₃ blandades med 400µL hexansyra med 30% TPB i. Sen tillsattes 10µL U235 från en uranstam. Proverna skakades sedan i 1 timme och 10 min för att de skulle hinna nå jämvikt. Därefter centrifugerades även proverna i 1 min i hastigheten 450 rpm??? för att ytterligare förbättra separationen. Dubbelprov togs på organ- respektive vattenfaserna på de olika proverna. Proverna analyserades sedan i HPGe och D-värden räknades ut.

Uran	D-värde
ej jämviktad	2,67
jämviktad	2,70

Proverna visade att de extraherade uran och att det inte var någon märkbar skillnad på om proven var jämviktade eller inte

CyMe4-BTBP

För att undersöka om diluenten CyMe4-BTBP skulle extrahera några fissionsprodukter blandas en lösning där CyMe4-BTB blandas med en lösning som har 70% HA och 30% TBP med en koncentration på 12 mM CyMe4 BTBP

För att undersöka om diluenten CyMe4-BTBP skulle extrahera några fissionsprodukter gjordes en lösning där CyMe4-BTB blandas med en lösning med 70% HA och 30% TBP till en lösning med en slutkoncentration på 12 mM CyMe4 BTBP.

Lösningen sattes i värmebad för att bli ordentligt uppvärmd. Efter detta blandas denna gjoda lösning med de olika fissionsprodukterna. Fissionsprodukterna är upplösta i 4M HNO₃ och

Prov	Metall lösningar
1. Rh	Rh
2. Rb	Rb
3. Fe	Fe
4. Cs	Cs,
5. Zr	Zr,Mo, PD

Prover togs på metall-lösningen som varit blandad med CyMe4-lösningen samt från metalllösningen innan den blandats med CyMe4 för att kunna räkna ut hur mycket av fissionsprodukterna som tagits upp av CyMe4-lösningen.

Plutonium

En plutoniumstandard gjordes från en plutoniumstam. Först bestämdes hur stark stammen var genom att 5 µl mättes på en detektor med hög effektivitet för alfastrålning, en vätskeskintillator. Aktiviteten i stammen uppskattade 23 Mq/ml. Denna späddes sedan till en standard med aktivitet 0,5 Mq/ml). CyMe4-BTB lösning innehållande HA med 30% TBP med en koncentration på 12 mM blandades med 4M HNO₃ som spikades med 10 µL av plutoniumstandard.. Därefter togs prover på (10 - 50) µL av vattenfasen och orgfasen på de olika proverna och sattes i 5 mL scintväska och analyserades i vätskeskintillatorn. Tre olika försök gjordes ett med hexansyra, hexansyra med 30% TBP och en med hexansyra 30% TBP med CyMe4-BTBP.

Curium

Provet genomgick en vätske-vätskeextraktion och 10 µl togs från organ respektive vattenfasen och sattes på en metallplanschett. Därefter tillsattes 50 µl Z-100 lösning på planschetten som fick

stå under en UV-lampa i tio minuter. Proverna brändes med en brännare för att få en jämn yta och analyseras sedan i alfaspektrometern och D-värdet räknade ut.

Hexansyra löses upp i Na_2CO_3

Under GANEX-processen kommer hexansyran i kontakt med en vattenlösning innehållande NaCO_3 vilket kan leda till förlust av lösningsmedel och volymändringar då organfasen krymper. Det är därför viktigt att kontrollera hur mycket av hexansyran som förloras när den kommer i kontakt med en vattenlösning. Detta kan göras genom att 200-400 μl hexansyra blandas med en vattenlösning innehållande 200-400 μl 0,25M NaCO_3 . Prover togs på vattenfasen som blandades med en stark syra för att få hexansyran att protoneras och gå upp i organfasen. Därefter togs prover på organfasen som blandades med en oktanlösning innehållande en internstandard. Den mängd hexansyran som går förlorad i vattenlösningen kan bestämmas med hjälp av analysmetoden Gaskromatografi (GC). Vid analysen används både en intern standard och en extern standard för att kunna identifiera och bestämma mängden av hexansyra som finns i provet.