



MASTERARBEIT / MASTER'S THESIS

Titel der Masterarbeit / Title of the Master's Thesis

„Flüssig-Flüssig-Extraktion von Metallionen“

verfasst von / submitted by

Elham Zeynolabedini

angestrebter akademischer Grad / in partial fulfilment of the requirements for the degree of
Master of Science (MSc)

Wien, 2018 / Vienna, 2018

Studienkennzahl lt. Studienblatt /
degree programme code as it appears on
the student record sheet:

A 066 862

Studienrichtung lt. Studienblatt /
degree programme as it appears on
the student record sheet:

Masterstudium Chemie

Betreut von / Supervisor:

A.o. Univ.-Prof. Mag. Dr. Gabriele Wallner

Danksagung

Ich möchte mich vorab bei allen Leuten bedanken, die mich während meines Studiums fachlich und persönlich unterstützt haben.

Besonders bedanke ich mich bei Frau Prof. Dr. Wallner für ihre Unterstützung bei der Auswertung der Messergebnisse und Korrektur meiner Masterarbeit.

Darüber hinaus möchte ich mich bei meiner Familie bedanken, die mich während meiner Ausbildung sowie meinem Chemiestudium stets unterstützt haben. Insbesondere möchte ich meinem Vater und meiner Mutter sowie meinem Bruder und dessen Frau danken.

Ein ganz besonderer Dank gilt meinem Freund, der mich während der Zeit der Anfertigung dieser Masterarbeit stets moralisch unterstützt hat. In schwierigen Momenten ist er mit seiner Aufmerksamkeit bei mir gewesen.

Kurzfassung

Radionuklide im Trinkwasser und Abwässern können aufgrund der ausgehenden ionisierenden Strahlung für die Umwelt sowie die Gesundheit von Menschen gefährlich sein. Aus diesem Grund müssen Sie entfernt werden. Eine Methode mit hohem Extraktionspotential ist die Flüssig-Flüssig-Extraktion unter der Verwendung von ionischen Flüssigkeiten. Zur Bestimmung der Konzentration der Radionuklide in der wässrigen Phase wurde das Analyseverfahren des Flüssigszintillationszählers (LSC) angewendet.

Die ionischen Flüssigkeiten setzen sich aus einem Kation und einem Anion zusammen. Dabei kommen in dieser Masterarbeit neben den drei ionischen Flüssigkeiten [N1888][Ant], [N1888][HNBA] und [C101][Ant], die bereits in früheren Extraktionen gute Ergebnisse erzielt haben, ebenfalls die ionischen Flüssigkeiten [P1888][C6SAC] und [N1888][C6SAC] mit dem Ziel zum Einsatz, die Extraktionsfähigkeiten dieser hier eingesetzten Radionuklide aus dem Wasser zu analysieren.

Als verwendete Radionuklide, die dem Wasser beigemischt wurden, sind hauptsächlich die beiden Uransalze Uranylacetat und Uranylnitrat verwendet worden. Zusätzlich wurden die Radionuklide Polonium (^{210}Po) und Radium (^{226}Ra) untersucht, wobei für Polonium gute Extraktionsergebnisse unter der Verwendung der eingesetzten ionischen Flüssigkeit gezeigt werden konnte und für Radium nicht. Die Extraktionsgüten wurden hierbei hinsichtlich ihrer pH-Abhängigkeit der Radionuklide im Wasser sowie der Zeitabhängigkeit der ionischen Flüssigkeit im Kontakt mit der wässrigen Phase untersucht.

Um das Leachingverhalten der ionischen Flüssigkeiten in die wässrige Phase zu beschreiben, kommt das Verfahren der TOC- und TN-Messung zum Einsatz. Die Ergebnisse der beiden Verfahren wurden einander gegenübergestellt. Dabei wurden bei einigen eingesetzten ionischen Flüssigkeiten sehr hohe Auslaugungen in die wässrige Phase gemessen, wodurch ein Einsatz für die Reinigung von Wässern nicht geeignet ist.

Die letzte Analyse befasst sich mit der Rückextraktion. Es konnte nachgewiesen werden, dass der größte Teil der Radionuklide wieder aus der ionischen Flüssigkeit rückextrahiert werden konnte. Hinsichtlich der Synthese der ionischen Flüssigkeiten

stellt die Rückextraktion ein hohes Potential dar, die ionische Flüssigkeit effizient wiederzuverwenden.

Abstract

Radionuclides in drinking water and wastewater should be removed because of their effects of ionizing radiation. They will be very dangerous for the environment and human health.

Liquid liquid extraction is a method with high extraction potential to remove the radionuclides by using ionic liquids. The analytical method as like as liquid scintillation counting (LSC) is used to measure the remaining activity concentration of the radionuclides in the aqueous phase. Ionic liquid comprises of an organic cation and an inorganic or organic anion combination.

Evaluation of the extraction of uranium, radium and polonium from water by five ionic liquids [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC], [N1888][Ant], [N1888][HNBA] and [C101][Ant] under using extraction strategies like liquid liquid extraction is the purpose of this thesis.

In the extraction that used uranium mixed inside the water, mainly the two uranium salts uranyl acetate and uranyl nitrate have been applicated. In addition, the radionuclides polonium (^{210}Po) and radium (^{226}Ra) were investigated. Thereby, polonium shows good extraction results. Otherwise, radium has no good extraction results. The extraction is analyzed under a broad range of pH dependency and the time of contact between the ionic liquid and the water phase.

Another study analyzed the ionic liquid which leached into the aqueous phase during extraction. In this way, the total organic carbon (TOC) or total nitrogen (TN) of the aqueous phase is measured in these test series. By the way, high amounts of leached ionic liquid are measured in the aqueous phase for some ionic liquids. These ionic liquids are unsuitable for the extraction process.

The radionuclides are accumulated in the ionic liquids. It was obtained that the general part of the radionuclides can be back-extracted from the ionic liquid. The back extraction was experimented to gain the reusability of the ionic liquid. In this case, it is important that it will be not destroyed.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	II
Tabellenverzeichnis	III
1. Einleitung.....	1
2. Stand der Wissenschaft.....	3
2.1. Radionuklide in der Umwelt.....	3
2.1.1. Uran	4
2.1.2. Thorium.....	5
2.1.3. Radium	5
2.1.4. Blei und Polonium	5
2.2. Ionische Flüssigkeiten	7
2.3. Flüssig-Flüssig-Extraktion	10
2.4. Rückextraktion.....	10
2.5. Analyseverfahren.....	11
2.5.1. Liquid-Scintillation-Counting.....	12
2.5.2. TOC- und TN-Messung.....	14
3. Versuchsaufbau	17
3.1. Versuchsablauf für die Flüssig-Flüssig-Extraktion	19
3.1.1. Extraktionsmessung mittels LSC-Analyse	20
3.1.2. Untersuchung des Leaching mittels TOC- und TN-Analyse.....	21
3.1.3. Rückextraktion	22
3.2. pH-Messungen	22
3.3. Detaillierte Versuchsbeschreibung	23
3.3.1. Uran	23
3.3.2. Radium	24
3.3.3. Polonium und Blei	25
3.4. Analyse- und Berechnungsverfahren	26
3.4.1. Aktivitätsmessung der Lösung von Radionukliden.....	26
3.4.2. Berechnung der notwendigen Daten für die Extraktionsgüte	27
3.4.3. Berechnung der notwendigen Daten für die Beladungskurven	27
3.4.4. Berechnung des Leachings aus TN- bzw. TOC-Analyse	28
3.4.5. Berechnung des rückextrahierten Anteils	28
4. Ergebnisse	29
4.1. Extraktionsvermögen in Abhängigkeit vom pH-Wert	29
4.2. Extraktionsvermögen in Abhängigkeit von der Kontaktdauer	32
4.3. Maximale Beladung der ionischen Flüssigkeiten.....	36
5. Leaching der ionischen Flüssigkeit in die wässrige Phase	41
6. Rückextraktion.....	46
7. Zusammenfassung und Ausblick.....	48
Literaturverzeichnis	IV
Anhänge	IX

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Die Zerfallskette des ^{238}U [28].....	3
Abbildung 2: Chem. Strukturen häufig verwendeter Anionen und Kationen [10]	8
Abbildung 3: Synthese von ionischen Flüssigkeiten (Prinzipiskizze) [30].....	9
Abbildung 4: Analyseverfahren bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion	12
Abbildung 5: Der Szintillations-Prozess [45].....	13
Abbildung 6: Funktionsweise des TOC-Analysators [www.shimadzu.com]	15
Abbildung 7: Versuchsmatrix	17
Abbildung 8: Drei der verwendeten ionischen Flüssigkeiten.....	18
Abbildung 9: Schematische Darstellung des Ergebnisses der LSC-Analyse.....	21
Abbildung 10: Extraktionskurven für Uran und Thorium	30
Abbildung 11: Extraktionskurven der Radionuklide Radium und Polonium	31
Abbildung 12: Extraktionskurven von Uran.....	34
Abbildung 13: Extraktion mittels der ionischen Flüssigkeit [N1888][HNBA]	35
Abbildung 14: Beladungskurven für die Extraktion von Uran.....	38
Abbildung 15: Beladungskurve der ionischen Flüssigkeit [C101][Ant] mit Uranylнитрат	39
Abbildung 16: Auslaugung der ion. Flüssigkeit in die wäss. Phase (TN-Analyse); die angegebene Acetatkonzentration ist in mol/L angegeben	43
Abbildung 17: Auslaugung der ion. Flüssigkeit in die wäss. Phase mittels TOC; die angegebene Acetatkonzentration ist in mol/L angegeben	45
Abbildung 18: Rückextraktion von Uranylacetat aus der IL [N1888][C6SAC].....	46

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: In den Versuchsreihen verwendete ionische Flüssigkeiten.....	18
Tabelle 2: Versuchsergebnisse der Extraktion für die pH-Abhängigkeit	29
Tabelle 3: Versuchsergebnisse der Extraktion von Uran	32
Tabelle 4: Minimale Prozesszeiten für das Erreichen der vollständigen Extraktion ..	33
Tabelle 5: Versuchsergebnisse der Beladung von Uran.....	36
Tabelle 6: Maximaler Urangehalt in der ionischen Flüssigkeiten in [mol.%]	40
Tabelle 7: Versuchsergebnisse des Leachings für die TN-Messung	41
Tabelle 8: Versuchsergebnisse des Leachings für die TOC-Messung	44
Tabelle 9: Versuchsergebnisse für die Rückextraktion	47
Tabelle 10: pH-Wert abhängige Extraktion von UAC mit [N1888][C6SAC].....	IX
Tabelle 11: pH-Wert abhängige Extraktion von UN mit [P1888][C6SAC]	IX
Tabelle 12: pH-Wert abhängige Extraktion von ²³⁴ Th mit [N1888][C6SAC].....	X
Tabelle 13: Vergleich der pH-Wert abhängigen Extraktion von Uran, ²³⁴ Th und ²¹⁰ Po nur in [N1888][C6SAC]	X
Tabelle 14: pH-Wert abhängige Extraktion von ²²⁶ Ra mit [P1888][C6SAC].....	X
Tabelle 15: pH-Wert abhängige Extraktion von ²¹⁰ Po mit [N1888][C6SAC].....	XI
Tabelle 16: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [P1888][C6SAC]	XI
Tabelle 17: zeitabhängige Extraktion von UN mit [P1888][C6SAC].....	XI
Tabelle 18: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [N1888][C6SAC]	XII
Tabelle 19: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][C6SAC].....	XII
Tabelle 20: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][HNBA].....	XII
Tabelle 21: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [N1888][HNBA]	XIII
Tabelle 22: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [N1888][Ant].....	XIII
Tabelle 23: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][Ant]	XIII
Tabelle 24: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][Ant]	XIV
Tabelle 25: Beladung von [N1888][Ant] mit UN	XV
Tabelle 26: Beladung von [N1888][Ant] mit UAC	XV
Tabelle 27: Beladung von [N1888][HNBA] mit UN.....	XVI
Tabelle 28: Beladung von [N1888][HNBA] mit UAC	XVI
Tabelle 29: Beladung von [P1888][C6SAC] mit UAC	XVII
Tabelle 30: Beladung von [P1888][C6SAC] mit UN.....	XVII
Tabelle 31: Beladung von [N1888][C6SAC] mit UN.....	XVIII
Tabelle 32: Beladung von [N1888][C6SAC] mit UAC	XVIII
Tabelle 33: Beladung von [C101][Ant] mit UN	XIX
Tabelle 34: Rückextraktion [N1888][C6SAC] mit UAC	XIX
Tabelle 35: Leaching für die TOC- und TN-Messung von [N1888][Ant].....	XX
Tabelle 36: Leaching für die TOC- und TN-Messung von [N1888][HNBA]	XX
Tabelle 37: Leaching für die TOC- und TN-Messung von [C101][Ant].....	XX
Tabelle 38: Leaching für die TN-Messung von [N1888][C6SAC].....	XXI

1. Einleitung

Radionuklide kommen in stark variierender Konzentration in Trinkwässern vor. Unterschieden werden dabei einerseits natürliche Radionuklide, die durch den geologischen Untergrund in Wasser und Gewässer gelangen. Andererseits wird von anthropogenen Radionukliden gesprochen, die durch technische Anwendungen in die Umwelt gelangen.

Radionuklide können durch die von ihnen ausgehende Strahlung gefährliche Auswirkungen auf Menschen und Lebewesen haben. Die ionisierende Strahlung trifft beim Durchgang durch den Organismus auf wichtige Moleküle, wie z.B. die DNA. Die Moleküle werden verändert bzw. „zerstört“. Die veränderten Zellen können sich zu Krebszellen entwickeln. Höhere Dosen an radioaktiver Strahlung können zu Krankheit oder sogar zum Tod führen. Wird eine kritische Menge an Molekülen geschädigt, dann kann die Zelle sich nicht selbst heilen; es können Tumore entstehen oder die Zelle stirbt [1]. Durch die Strahlung kann unter Umständen auch eine Änderung der Erbinformation hervorgerufen werden. Kann dieser Genschaden nicht rückgängig gemacht werden, so können in den nächsten Generationen Schäden auftreten (z.B. Missbildungen oder Tumore) [1].

Insbesondere der lokale Brunnenbau verursacht in einigen Regionen, in denen das Grundwasser durch tiefere Gesteinsschichten fließt, einige Probleme. Fast alle Gesteinsarten enthalten in niedrigen Konzentrationen Radionuklide, wie z.B. Uran. Durch Verwitterung und Auswaschung gelangen Radionuklide in die Grundwässer. Es gibt viele nationale und internationale Verordnungen, die Grenzwerte oder Richtdosen festlegen. Bei Überschreitung sind konzentrationsmindernde Maßnahmen zu ergreifen. Unter anderem gibt es hier die Österreichische Trinkwasserverordnung [54], die gezielt Grenzwerte für die wichtigsten Metalle, Schwermetalle und Radionuklide im Trinkwasser festschreibt. [54]

Die Installation von geeigneten Filtrieranlagen ist nur eine Möglichkeit, um die gesetzten Grenzwerte für die geförderten Trinkwässer einhalten zu können [15]. In verschiedenen Publikationen konnte hierzu die Anwendung von ionischen Flüssigkeiten erfolgreich zur Entfernung von Uran aus sauren Matrices sowie

Seewasser beschrieben werden [56]. Die Optimierung und weitere Erforschung dieser Methodik steht jedoch im aktuellen Fokus vieler Untersuchungen.

Das Ziel dieser Masterarbeit war es, das Extraktionsvermögen für Radionuklide (von Uran-Isotopen, Radium-Isotopen, ^{210}Pb und ^{210}Po) aus Wässern durch die Verwendung von fünf ionischen Flüssigkeiten zu bestimmen.

In einem ersten Schritt werden dabei die wichtigsten Grundlagen für die radiochemische Analyse von Wässern beschrieben. Auf die Vorstellung der einzelnen, für diese Arbeit relevanten, Radionuklide sowie die Darstellung der Analysemethoden bis hin zur Beschreibung der ionischen Flüssigkeiten wird im Kapitel „Stand der Wissenschaft“ eingegangen. Anschließend folgt eine kurze Darstellung der experimentellen Versuchsführung sowie die Präsentation der Versuchsergebnisse. Eine kritische Diskussion der Versuchsergebnisse schließt die Arbeit ab.

2. Stand der Wissenschaft

Im ersten Schritt sollen die untersuchten Radionuklide vorgestellt werden. Anschließend wird das Verfahren der Flüssig-Flüssig-Extraktion näher erläutert sowie der Aufbau und die Funktion der verwendeten ionischen Flüssigkeiten beschrieben.

2.1. Radionuklide in der Umwelt

Die Atomkerne von Radionukliden sind instabil. Der radioaktive Zerfall führt oft erst nach einer Reihe von Zerfällen zu einem stabilen Element. Dabei wird durch den Zerfallsprozess Energie in Form von Strahlung emittiert [2]. Die untersuchten Radionuklide sind ^{234}U , ^{238}U , ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{210}Po und ^{210}Pb . Ein Überblick über die U-Ra-Zerfallsreihe ist in Abbildung 1 dargestellt.

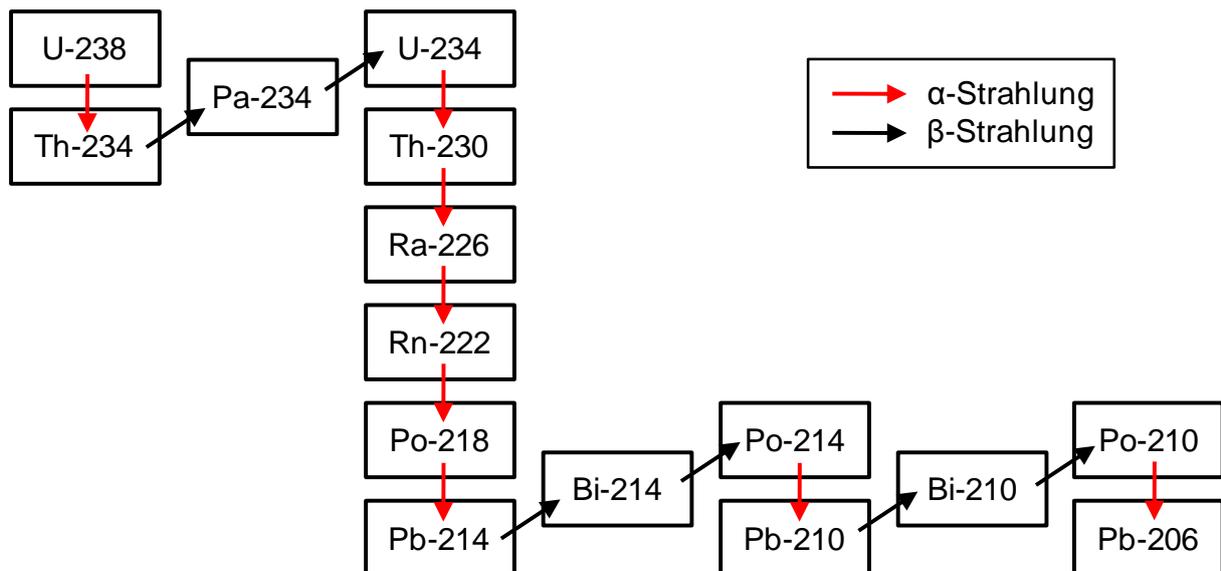


Abbildung 1: Die Zerfallskette des ^{238}U [28]

2.1.1. Uran

Das schwerste in nennenswerten Mengen vorkommende radioaktive Element ist Uran. Natürliches Uran besteht aus 99,3% ^{238}U mit einer Halbwertszeit von etwa 4,5 Milliarden Jahren und 0,7% ^{235}U . Das Isotop ^{235}U besitzt eine Halbwertszeit von 0,71 Milliarden Jahren [4]. Es existieren jedoch noch weitere Isotope, wie ^{234}U mit einer Konzentration von 0,0055% und einer Halbwertszeit von 247.000 Jahren [6] oder ^{236}U , das nur in Spuren vorkommt und eine Halbwertszeit von 23,4 Millionen Jahre aufweist [5]. ^{234}U steht meist im radioaktiven Gleichgewicht mit dem Mutternuklid ^{238}U . Uran hat die Ordnungszahl 92. In Bereichen saurer pH-Werte und unter oxidierenden Bedingungen ist Uran gut löslich. Diese Löslichkeit ist der Grund, warum Uran gut über das Grundwasser befördert werden kann. [32]

Alle diese Uran-Isotope sind α -Strahler. Beim α -Zerfall werden Helium-Atomkerne emittiert. Wegen der langen Halbwertszeit hat Uran eine geringe Radiotoxizität und ist ohne großen Schutzaufwand handhabbar [4]. Aufgrund seiner Schwermetalltoxizität ist es jedoch eine gesundheitliche Bedrohung für den menschlichen Organismus. Die WHO hat hierzu einen Grenzwert von 15 $\mu\text{g}/\text{L}$ festgelegt [16]. Solange diese natürliche Urankonzentration nicht deutlich überschritten wird, ist Uran nahezu unschädlich für den menschlichen Körper. Gelangen größere Mengen von Uran in den Körper, werden die Nieren belastet [3].

Natürliches Uran kann in verschiedenen Verbindungen vorliegen. Von diesen Verbindungen sind die Uranylverbindungen die häufigsten; mit dem Uranyl(VI)-Ion (UO_2^{2+}) und Uranyl(V)-Ion (UO_2^+). Die Hauptvorkommen dieser Uranverbindungen liegen im Erzgebirge und dem Schwarzwald (Deutschland), der Tschechischen Republik, dem Zentralmassiv (Frankreich), Kanada, Australien, Russland und Norwegen [34]. In der Natur kommen verschiedene Uran-Mineralien vor. Von den Uransalzen sind das wasserlösliche Uranylacetat und Uranylnitrat die bekanntesten, diese wurden auch in dieser Arbeit verwendet [35].

Uranylacetat (chemische Formel $\text{UO}_2(\text{O}-\text{CO}-\text{CH}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) weist eine Dichte von 2,89 g/cm^3 und eine Molmasse von 424,146 g/mol auf. Sein Siedepunkt beträgt 275°C, bei dem die thermische Zersetzung beginnt. Mit 76,94 g/L ist es nur mäßig in Wasser löslich [31].

Demgegenüber weist Uranylнитrat (chemische Formel $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$) eine Dichte von $2,81 \text{ g/cm}^3$ und eine Molmasse von $394,04 \text{ g/mol}$ auf. Seine Schmelztemperatur beträgt 60°C , während der Siedepunkt bei 118°C liegt. Mit 550 g/L ist es bei Raumtemperatur gut in Wasser löslich. [31]

2.1.2. Thorium

Das in der Erdkruste vorkommende Thorium (Ordnungszahl 90) besteht hauptsächlich (zu 99,98%) aus dem Thorium-Isotop ^{232}Th . Thorium ist nicht wasserlöslich und kommt daher in natürlichen Wässern nicht vor. In den untersuchten Uranylösungen wandelt sich ^{238}U durch Aussendung von α -Strahlung in das kurzlebige Tochterprodukt ^{234}Th um [7,8]. Die Halbwertszeit dieses β -emittierenden Isotopes beträgt 24,10 Tage. Somit konnte aus derselben Probe sowohl die Extraktion von Uran (^{238}U und ^{234}U) als auch von Thorium (^{234}Th) untersucht werden.

2.1.3. Radium

Radium kommt nur in sehr geringen Mengen in der Erdkruste vor [37]. Den größten Anteil macht dabei das Radium-Isotop ^{226}Ra aus. Dieses hat eine Halbwertszeit von 1600 Jahren [4] und ist ein α -Strahler.

In der Natur kommt ^{226}Ra als Zerfallsprodukt des ^{238}U und ^{234}U vor. Aufgrund seiner Wasserlöslichkeit kann es durch Trinkwasser in den Körper gelangen. ^{226}Ra ist ein zweiwertiges Kation, metabolisch wie Kalzium und es kann angenommen werden, dass eine mittlere α -Aktivität von $1,48 \text{ Bq}$ im Körper eines erwachsenen Menschen nachgewiesen werden kann, die größtenteils in den Knochen konzentriert ist [9,11,13,24,32].

2.1.4. Blei und Polonium

^{210}Pb ist ebenfalls ein Mitglied der Uran-Radium-Zerfallsreihe. Seine Halbwertszeit beträgt 22 Jahre. ^{210}Pb zerfällt in ^{210}Bi mit einer Zerfallsenergie von 63 keV (in 20% der Fälle) und $16,5 \text{ keV}$ (in 80% der Fälle) [38]. Der Bismut-Zerfall ist aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit und der Tatsache, dass es β -strahlend ist, nicht relevant für den Strahlenschutz.

^{210}Po ist das letzte Radionuklid in der ^{238}U -Zerfallsreihe. ^{210}Po ist ein α -Strahler, hat eine kurze Halbwertszeit von 138 Tagen und kommt als ein sehr seltenes Element in der Erdkruste vor [39]. Dieses Isotop von Polonium zerfällt in das stabile ^{206}Pb [32]. Wenn ^{210}Po durch Inhalation, z.B. durch Rauchen, aufgenommen wird, oral durch die Nahrung bzw. das Trinkwasser oder über die Haut in den Körper gelangt, können gesundheitliche Schäden entstehen [14]. Einmal im menschlichen Organismus lagert sich ^{210}Po in höheren Konzentrationen in Milz, Leber und Nieren ab [15,39]. Zugeführte Mengen können nur langsam wieder ausgeschieden werden.

2.2. Ionische Flüssigkeiten

Im Jahr 1914 wurden die ersten ionischen Flüssigkeiten¹, die nicht ganz wasserfrei waren, durch Paul Walden [27] in Form von Ethylammoniumnitrat entwickelt. Im Jahr 1948 sind wasserfreie ionische Flüssigkeiten durch Hurley und Wier synthetisiert worden. Ionische Flüssigkeiten bestehen meistens aus einem organischen Kation, das oft als quartäre, langkettige Struktur vorliegt, und einem anorganischen Polyatomanion. Sie haben die Eigenschaft, bei Temperaturen unterhalb 100°C im flüssigen Zustand vorliegen zu können. Die ionischen Flüssigkeiten werden im Vergleich zu rein anorganischen Salzen durch einen niedrigen Schmelzpunkt und einen niedrigen Dampfdruck charakterisiert. Dies liegt zum einen an dem starken asymmetrischen Aufbau der ionischen Flüssigkeiten und zum anderen an einer Ladungsverteilung, die über einen größeren Molekülbereich besteht [41]. Aufgrund des niedrigen Dampfdrucks gelten die ionischen Flüssigkeiten als umweltfreundlich [10,12,41]. Es gibt viele Möglichkeiten, die verschiedenen Kationen und Anionen miteinander zu kombinieren. Die häufigsten Kationen, sind Imidazolium, Pyrrolidinium, Pyridinium, Ammonium, Phosphonium, Sulphonium und Alkyl. Demgegenüber werden organische oder anorganische Stoffe, wie z.B. Tetrafluorborat, als Bestandteil von Anionen verwendet [26]. Die chemischen Strukturen dieser Anionen und Kationen sind in **Abbildung 2** verdeutlicht [19].

¹ englisch: RTILs room-temperature ionic liquids

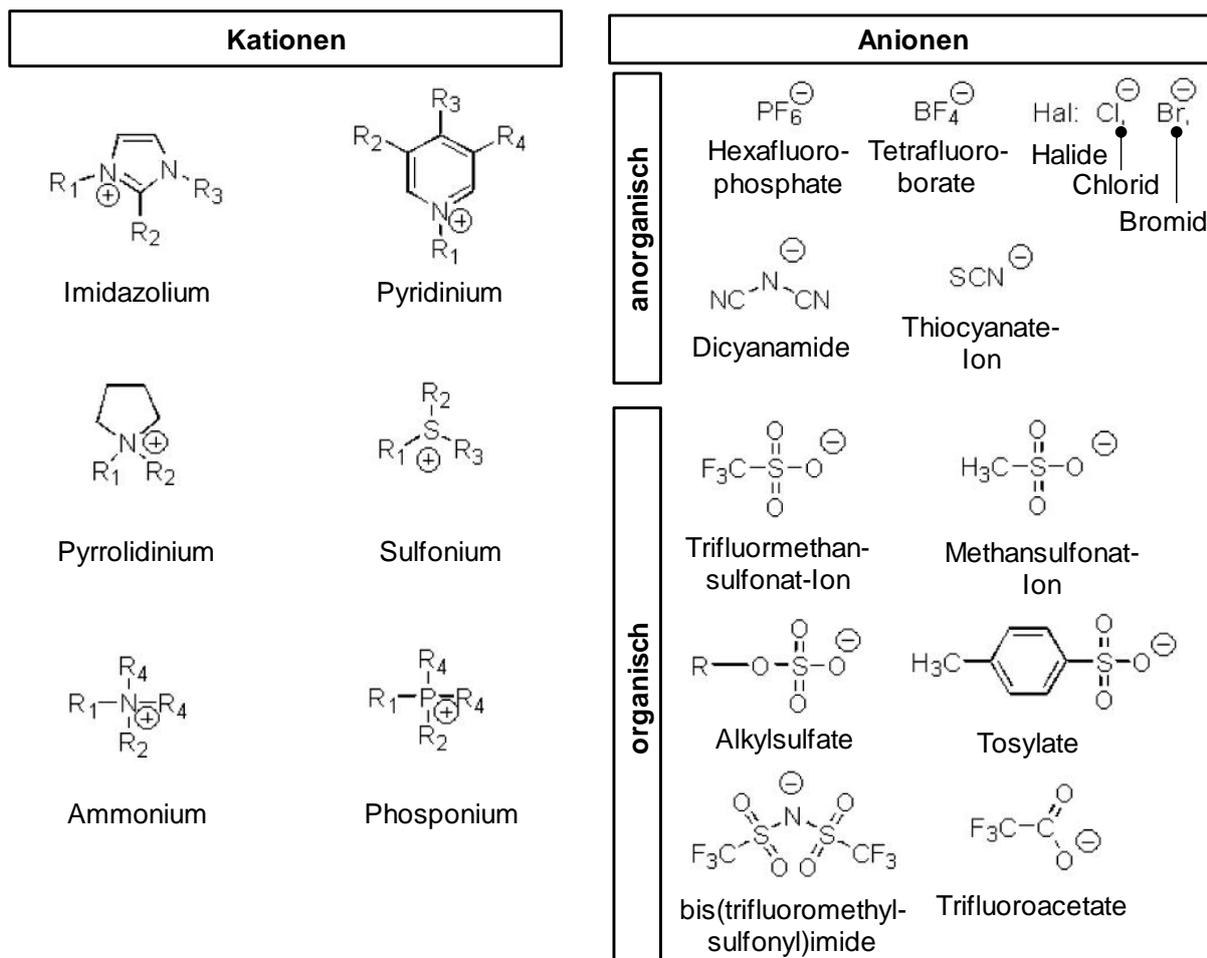


Abbildung 2: Chem. Strukturen häufig verwendeter Anionen und Kationen [10]

Bei der Herstellung der ionischen Flüssigkeiten können verschiedene Kationen und Anionen kombiniert werden; daraus ergeben sich besondere chemische und physikalische Eigenschaften. Aufgrund der Hydrophobizität haben die ionischen Flüssigkeiten die Fähigkeit, Stoffe, wie z.B. Metalle, mit hoher Effizienz aus wässriger Phase zu extrahieren [25,42]. Diese Funktionsweise wird durch den Einbau von geeigneten Donoratomen bzw. Donorgruppen erzielt [25]. Die ionischen Flüssigkeiten sind aufgrund von organischen Restmolekülen sterisch abgeschirmt [26].

Die Herstellung von ionischen Flüssigkeiten ist schematisch in **Abbildung 3** dargestellt. Einfache ionische Flüssigkeiten, die keine Funktionalisierung erfordern, können dabei in einem Schritt synthetisiert werden. Sofern eine Funktionalisierung erforderlich ist, müssen das Kation oder das Anion in einem separaten Schritt hergestellt werden. [30]

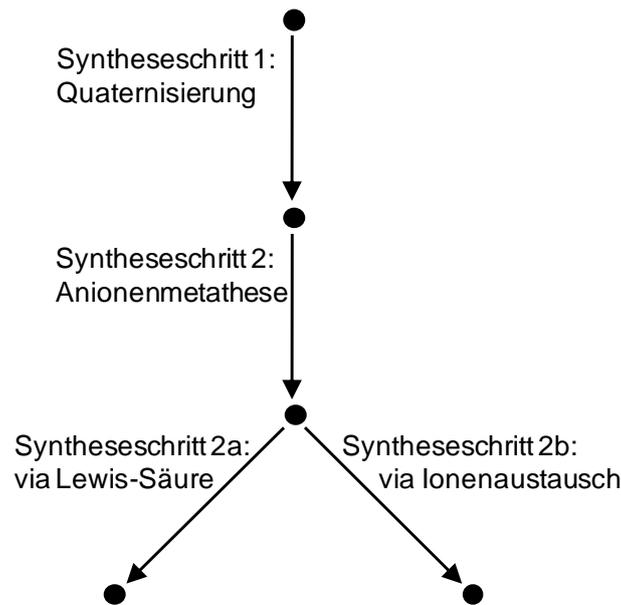


Abbildung 3: Synthese von ionischen Flüssigkeiten (Prinzipiskizze) [30]

Um die gewünschten und definierten Eigenschaften der ionischen Flüssigkeiten, wie Schmelzpunkt, Leitfähigkeit und Viskosität zu erreichen, werden die Anionen und Kationen gezielt kombiniert. [36]

Werden die ionischen Flüssigkeiten mittels der in Abbildung 2 ausschnittsweise dargestellten Kationen und Anionen für einen definierten Anwendungszweck modifiziert, entstehen hierdurch die sogenannten „Anwendungsspezifischen ionischen Flüssigkeiten“ (engl. task specific ionic liquids, kurz: TSIL). Diese erhalten zusätzliche, optimierte Eigenschaften [43]. Allgemein zählen alle ionischen Flüssigkeiten aufgrund ihrer Unbrennbarkeit und ihres niedrigen Dampfdruckes zu den umweltfreundlichen Produkten [44].

Es gibt viele Anwendungen für den Einsatz von ionischen Flüssigkeiten. Die Bandbreite dieser Anwendungen erstreckt sich [30]

- auf die Verwendung als alternatives und „grünes“ Lösungsmittel für chemische Reaktionen,
- auf die Übergangsmetall- und Biokatalyse,
- auf die Elektrochemie und
- auf pharmazeutisch aktive Applikationen

In der Radio- und Umweltchemie werden ionische Flüssigkeiten verwendet, um beispielsweise die Extraktion von Radionukliden aus Abwässern oder Trinkwässern herbeizuführen.

2.3. Flüssig-Flüssig-Extraktion

Die Flüssig-Flüssig-Extraktion (engl. liquid-liquid-extraction) ist eine Vorgehensweise in der chemischen Analytik, um zwei Stoffe, die in einer flüssigen Mischphase vorliegen (engl. feed), unter der Zugabe eines Lösungsmittels (engl. solvent) zu separieren. Mischphase und Lösungsmittel sind dabei nicht ineinander löslich. Die wässrige Phase bildet die Hauptkomponente der flüssigen Mischphase. In ihr sind als zweite Komponente die Metallionen bzw. Radionuklide gelöst. Die ionische Flüssigkeit ist hier das Lösungsmittel, welches die Metallionen aufnehmen soll. In der Raffinationsphase findet die chemische Reaktion zwischen der ionischen Flüssigkeit und den Metallionen statt. Die Metallionen verbinden sich mit der ionischen Flüssigkeit und gehen somit in das Lösungsmittel über. Diese Reaktion startet bereits durch das Zusammenschütten der Mischphase mit dem Lösungsmittel. Dieser Raffinationsprozess kann durch Rühren oder Schütteln beschleunigt werden, wodurch die Phasengrenzen zwischen dem Lösungsmittel und der Mischphase vergrößert werden. In der anschließenden Extraktionsphase werden das Lösungsmittel und die Mischphase durch Zentrifugation wieder voneinander getrennt. Das sogenannte Extrakt beinhaltet das Lösungsmittel mit den gebundenen Metallionen. Das Raffinat ist hingegen die wässrige Phase, in der jedoch, je nach Güte des Extraktionsprozesses, bestimmte Gehalte an Metallionen noch nachweisbar sein können. Aus dem Extrakt können im Anschluss die extrahierten Metallionen separiert werden. [48,49]

2.4. Rückextraktion

Ionische Flüssigkeiten sind aufwendig synthetisch herzustellen. Aus diesem Grund wäre es vorteilhaft, durch einen Recycling-Prozess die mit Metallionen (wie Schwermetalle oder Radionuklide) verunreinigte ionische Flüssigkeit wiederaufzubereiten und die Metallionen abzutrennen. Die ionische Flüssigkeit wird dabei grundsätzlich nicht zerstört, wobei eine vollständige Rückextraktion nur in den seltensten Fällen gelingt; die ionische Flüssigkeit ist jedoch soweit regeneriert, dass sie für weitere Extraktionsprozesse eingesetzt werden kann. [41]

Zu der verwendeten ionischen Flüssigkeit, die gebundenes Metall enthält, wird ein Rückextraktionsmittel hinzugegeben. Als Rückextraktionsmittel werden zumeist Säuren eingesetzt, wie (verdünnte) Salpetersäure HNO_3 , Salzsäure HCl oder Salze des Komplexbildners Ethylendiamintetraessigsäure EDTA [41].

Als geeignete Konzentrationen des Rückextraktionsmediums haben sich in der Literatur Gehalte von 0,5...1 M HNO_3 , 0,5 M EDTA und 0,5 M HCl gefunden [41]. Bei der Verwendung kleinerer Gehalte als 0,5 M HNO_3 konnte in der Arbeit von Sap [36] meistens nur eine verringerte Rückextraktionseffizienz gezeigt werden.

Um den Gehalt rückextrahierter Radionuklide bzw. Metalle zu bestimmen, werden die mit dem Rückextraktionsmittel versetzten Proben wieder geschüttelt, anschließend zentrifugiert und die organische und wässrige Phase separiert. Die separierte wässrige Phase wird danach durch das LSC-Analyseverfahren untersucht. Aus der Messung eines Aliquotes wird die rückextrahierte Menge der Radionuklide berechnet.

2.5. Analyseverfahren

Abbildung 4 verdeutlicht den experimentellen Vorgang: Erstens wird die Bestimmung der Menge des extrahierten radioaktiven Materials durch die Bestimmung der Rest-Aktivität in der wässrigen Phase beschrieben. Zweitens wird die Messung des Leachings der ionischen Flüssigkeit in die wässrige Phase mittels der TOC- (total organic carbon) oder der TN- (total nitrogen) Messung dargestellt. Außerdem zeigt diese Abbildung die Rückextraktion, bei der die rückextrahierte Aktivität wieder mittels des LSC-Analysators in der wässrigen Phase gemessen wird. Können die extrahierten Nuklide durch diese Behandlung wieder aus der ionischen Flüssigkeit abgetrennt werden, dann kann die ionische Flüssigkeit wieder für neue Extraktionen verwendet werden.

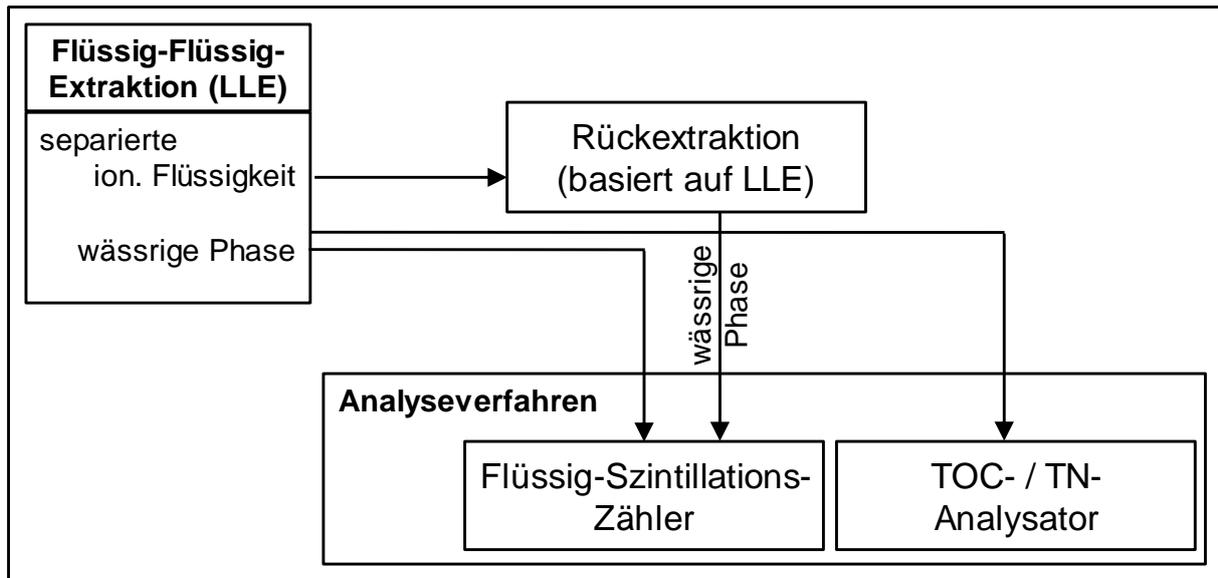


Abbildung 4: Analyseverfahren bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion

2.5.1. Liquid-Scintillation-Counting

Alpha- und Beta-strahlende Radionuklide werden im Flüssigszintillationszähler (Liquid Scintillation Counting, LSC) gemessen. Diese Methode wird aufgrund seiner Schnelligkeit und Einfachheit gewählt. Dabei ist die LSC-Technik ein universelles Instrument zur Messung der Beta-Strahlung, aber auch der Alpha-Strahlung. Dies liegt daran, dass die Radionuklide in einer homogenen Lösung innerhalb des Szintillationsmediums vorliegen und somit kein Risiko für eine Selbstabsorption in der Probe besteht, durch die die Effizienz der Zählung der α -Strahlung reduziert wird [50]. Das Szintillationsmedium wird auch Cocktail genannt und ist transparent, heute oft ungiftig und besteht aus den drei Komponenten:

- Lösungsmittel (wie DIN Diisopropyl-naphthalene, Toluol, Xylol, Benzol)
- Aktivator (p-Terphenyl)
- Wellenlängenshifter (POPOP, 1,4-bis[2-(5-phenyloxazolyl)]benzene)

Das Energiespektrum der β -Strahlung zeigt eine kontinuierliche Energieverteilung. Dabei schwankt die ausgesendete Energie zwischen dem Nullpunkt und der Maximalenergie, der entstehende Peak ist daher sehr breit. Währenddessen zeigt sich bei der α -Strahlung eine diskrete Energie und daher ein schmaler Peak. Die emittierten α - und β -Teilchen wechselwirken mit den Lösungsmittelmolekülen. Die Lösungsmittel-

moleküle werden angeregt und übertragen die angeregte Energie auf den Aktivator [17]. Durch die Anregung emittiert der Aktivator Photonen im sichtbaren Lichtbereich. Außerdem haben die durch α - bzw. β -Teilchen entstehenden Lichtimpulse eine unterschiedliche Form; aufgrund dieser unterschiedlichen Impulsformen kann die Elektronik des Messgerätes das α -Spektrum von dem β -Spektrum trennen (pulse shape analysis; PSA). [17,18,36]

Zwei gegenüberliegende Photomultiplier (PMs) können die ausgesendeten Lichtblitze registrieren. Die Photonen werden homogen abgestrahlt, so dass die Photonen an den rechten und linken PMs zeitgleich ankommen und summiert werden. Aus der Photokathode des Photomultipliers werden Elektronen freigesetzt. Mit der Hilfe eines elektrischen Feldes werden diese Photoelektronen in die Richtung der Dynode geführt. Auf den Dynoden werden die Photoelektronen um den Faktor 10^6 bis 10^8 lawinenartig vermehrt. Das so erzeugte elektrische Signal wird aufgezeichnet und ist umso stärker, je mehr Photonen emittiert werden [23]. Dabei gilt, dass mit steigender Teilchenenergie die Anzahl an emittierten Photonen ebenfalls steigt. Die Photonenzahl ist proportional zur Energie des emittierten Teilchens [23]. Dieser Szintillations-Prozess ist in der nachstehenden **Abbildung 5** schematisch dargestellt.

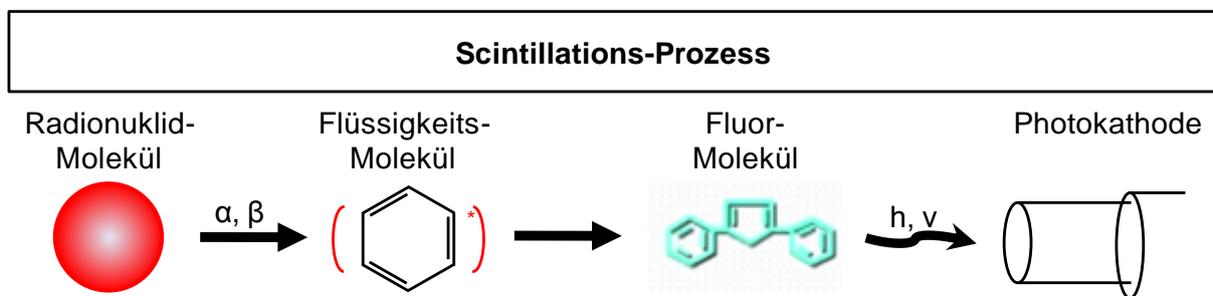


Abbildung 5: Der Szintillations-Prozess [45]

Der Flüssigszintillationszähler wird hier für die Bestimmung der Konzentration der Radionuklide in der wässrigen Phase verwendet [22]. Die Zählrate der radioaktiven Zerfälle wird je Minute oder Sekunde angegeben; dies entspricht der Messeinheit cpm und cps [23].

2.5.2. TOC- und TN-Messung

Die Auslaugung der ionischen Flüssigkeiten in die wässrige Phase wird als Leaching bezeichnet. Für die erfolgreiche Anwendung dieser ionischen Flüssigkeiten als Extraktionsmedium ist es daher erforderlich, dass es nur eine sehr geringe Löslichkeit gegenüber Wasser besitzt, um diesen Übergang in die wässrige Phase zu reduzieren [51].

Um das Leaching der ionischen Flüssigkeit in die wässrige Phase quantitativ zu bestimmen, können entweder der gelöste organische Kohlenstoff (engl. total organic carbon, TOC) oder (falls in der verwendeten ionischen Flüssigkeit vorhanden) der gesamte gelöste Stickstoff (engl. total nitrogen, TN) gemessen werden. [43]

Für die Bestimmung des gesamten organischen Kohlenstoffes wird die TOC-Analyse verwendet. **Abbildung 6** verdeutlicht diesen Prozessablauf innerhalb einer Prinzipskizze anhand des Differenzverfahrens.

Nach Abtrennung der ionischen Flüssigkeit am Ende des Extraktionsvorganges wird die wässrige Phase, nachdem sie für den TOC-Prozess aufbereitet wurde, auf zwei Proben aufgeteilt. Die Aufbereitung der Proben erfolgt durch Verdünnen mit destilliertem Wasser. Die erste Probe wird innerhalb eines Verbrennungsraumes unter der Zugabe von gereinigter Luft verbrannt. Am Ende des Verbrennungsprozesses wird das freigesetzte Kohlenstoffdioxid (CO_2) befeuchtet und heruntergekühlt und mittels eines Nichtdispersiven Infrarotsensors (NDIR-Detektor) gemessen. In diesem Prozessschritt wird die gesamte, sowohl organische als auch anorganische, Kohlenstoffmenge ermittelt [52].

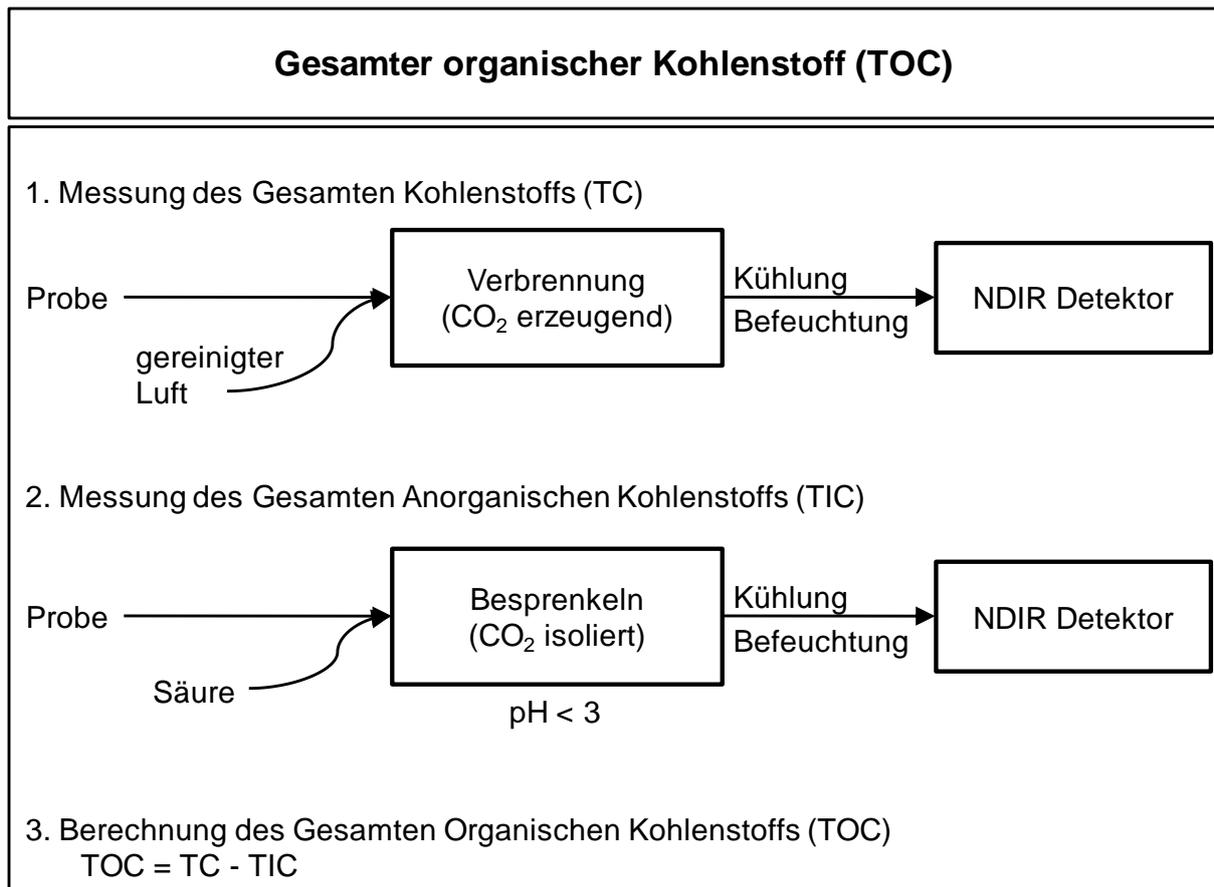


Abbildung 6: Funktionsweise des TOC-Analysators [www.shimadzu.com]

Um folglich die gesamte organische Kohlenstoffmenge zu erhalten, muss innerhalb eines zweiten Prozessschrittes die Menge anorganischen Kohlenstoffs bestimmt werden. Für diesen Prozessschritt wird die zweite separierte Probe verwendet. Durch das Besprenkeln der Probe mit einer Säure, die höchstens einen pH-Wert von 3 aufweisen darf, wird der als Karbonat gebundene Kohlenstoff in Kohlendioxid konvertiert. Durch den anschließenden Kühlungs- und Befeuchtungsprozess kann ebenfalls durch einen NDIR-Detektor die gesamte anorganische Kohlenstoffkonzentration in dieser Probe ermittelt werden. Durch Subtraktion des im ersten Schrittes ermittelten gesamten Kohlenstoffes (engl. total carbon, TC) mit dem im zweiten Schritt ermittelten anorganischen Kohlenstoff (engl. total inorganic carbon, TIC) wird der gesamte organische Kohlenstoff (engl. total organic carbon, TOC) bestimmt [52].

Während der in Abbildung 6 beschriebenen katalytischen Verbrennungsoxidation ist simultan zur TOC-Messung ebenfalls der gesamte Stickstoffgehalt innerhalb der

Probelösung bestimmbar. Dies erfolgt durch die Stickstoffmessung innerhalb eines TN-Detektors, der als Zusatzmodul im TOC-Analysator verbaut werden kann. Die stickstoffbeinhaltenden Bestandteile der Probelösung werden im Brennraum zu Stickstoffmonoxid umgewandelt (Reaktion 1 und 2). Der Stickstoff der zugeführten Luft tritt dabei nicht in Reaktion. Das Trägergas, welches das Stickstoffmonoxid beinhaltet, wird durch einen thermoelektrischen Kühler heruntergekühlt, wodurch dieses gekühlte und getrocknete Gas im Chemilumineszenz-Analysator mit Ozon zu einer Kombination von Stickoxiden (Reaktion 3) und angeregten Stickoxiden (Reaktion 4) reagiert. Wenn die angeregten Stickoxide in ihren Grundzustand zurückkehren emittieren sie Strahlung, die photoelektrisch gemessen werden können. Das Detektorsignal generiert einen Peak, das proportional zur Stickstoffkonzentration der Probe ist [57,58,61].

1. Reaktion: $4\text{NH}_3 + 5\text{O}_2 \rightarrow 4\text{NO} + 6\text{H}_2\text{O}$
2. Reaktion: $2(\text{NH}_3)_2\text{CO} + 5\text{O}_2 \rightarrow 4\text{NO} + 4\text{H}_2\text{O} + \text{CO}_2$
3. Reaktion: $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$
4. Reaktion: $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2^* + \text{O}_2$
5. Reaktion: $\text{NO}_2^* \rightarrow \text{NO}_2 + h\nu$

Die Methodik der TN-Analyse wird gegenüber der TOC-Methodik bevorzugt. Dies liegt daran, dass bei der Herstellung bzw. Reinigung der ionischen Flüssigkeit Reste des organischen Lösungsmittels noch in der ionischen Flüssigkeit verbleiben können, die dann ebenfalls in die wässrige Phase übergehen. Diese Lösungsmittel beinhalten keinen Stickstoff; bei der TN-Analyse wird also nur der Stickstoff der ionischen Flüssigkeit und daher deren Leaching detektiert.

3. Versuchsaufbau

Im Rahmen dieser Arbeit wurden fünf ionische Flüssigkeiten auf ihre Extraktionsfähigkeit analysiert. **Abbildung 7** verdeutlicht die durchgeführten Versuche. Die eingesetzten und damit zu extrahierenden Radionuklide waren Radium-226, Polonium-210 und die beiden Uransalze Uranylнитrat und Uranylacetat, sowie damit verbunden Thorium-234. Die blau markierten Versuche sind experimentell durchgeführt worden. Zusätzlich wurde noch ein weiterer Versuch für die Rückextraktion aus der ionischen Flüssigkeit [N1888][C6SAC] mit dem Uransalz Uranylacetat durchgeführt. Die weiß markierten Versuche sind nicht durchgeführt worden, weil diese in dieser Form bereits Bestandteil anderer Arbeiten [36,41,42,43] waren und somit für diese Arbeit Redundanz aufwiesen.

	LSC-Verfahren				Leaching	
	Ra	Po	UO ₂ (NO ₃) ₂	UO ₂ CH ₃ COO	mit TOC	mit TN
[N1888][Ant]	<input type="radio"/>	<input type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>
[N1888][HNBA]	<input type="radio"/>	<input type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>
[C101][Ant]	<input type="radio"/>	<input type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>
[P1888][C6SAC]	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input type="radio"/>	<input type="radio"/>
[N1888][C6SAC]	<input checked="" type="radio"/>	<input type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>	<input checked="" type="radio"/>

kein Versuch erfolgt Versuch erfolgt

Abbildung 7: Versuchsmatrix

Zur Veranschaulichung sind in **Abbildung 8** drei ionische Flüssigkeiten dargestellt. Es handelt sich dabei um die beiden Flüssigkeiten [P1888][C6SAC] (Abbildung 8, links) und [N1888][C6SAC] (Abbildung 8, Mitte) sowie die teilweise schon früher untersuchte ionische Flüssigkeit [A336][HNBA] (Abbildung 8, rechts), die eine rötliche Färbung aufweist. Die beiden erst genannten ionischen Flüssigkeiten weisen eine leicht gelbliche, transparente Färbung auf. Alle verwendeten ionischen Flüssigkeiten zeigen eine zähflüssige Konsistenz. Das Ion [N1888] ist auch unter der Bezeichnung [A336] bekannt; diese Bezeichnung kann synonym verwendet werden.

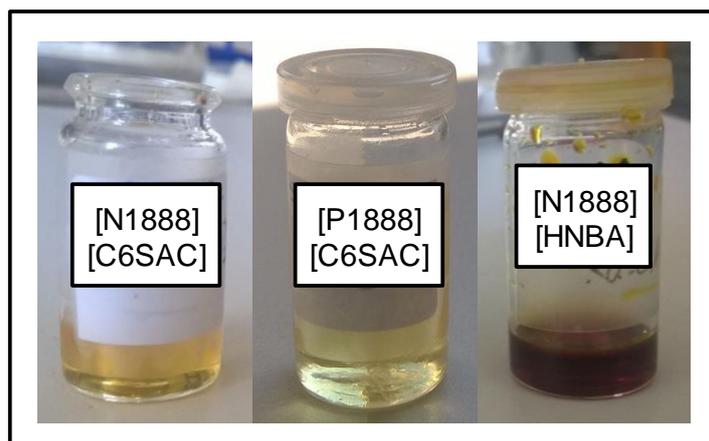
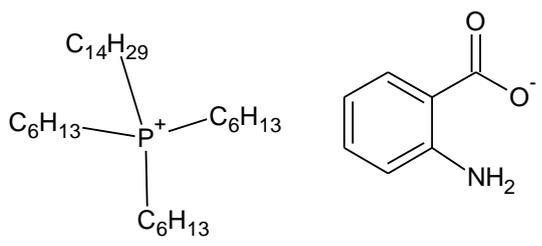
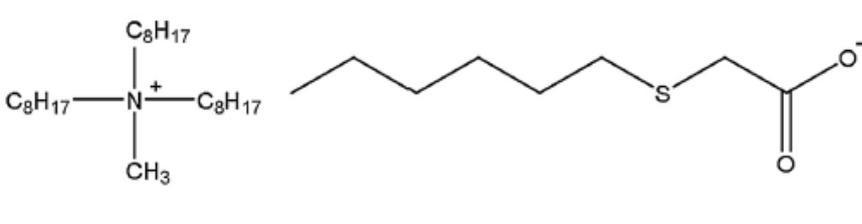
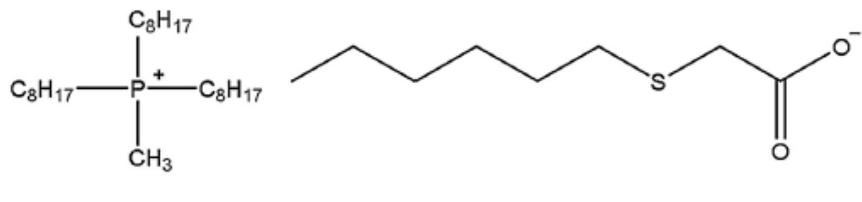


Abbildung 8: Drei der verwendeten ionischen Flüssigkeiten

Die für diese Versuchsführung verwendeten ionischen Flüssigkeiten stehen in der **Tabelle 1** mit ihrer chemischen Struktur, ihrer Summenformel sowie ihrem Molekulargewicht beschrieben. Den drei etablierten ionischen Flüssigkeiten [A336][Ant] bzw. [N1888][Ant], [A336][HNBA] bzw. [N1888][HNBA] und [C101][Ant] stehen die beiden ionischen Flüssigkeiten [P1888][C6SAC] und [N1888][C6SAC] gegenüber.

Tabelle 1: In den Versuchsreihen verwendete ionische Flüssigkeiten

Bezeichnung und chemische Struktur	Summenformel	MW [g/mol]
[N1888][Ant]: Trioctylmethyl-ammonium anthranilate 	C ₃₂ H ₆₀ N ₂ O ₂	504,84
[N1888][HNBA]: Trioctylmethyl-ammonium 2-Hydroxy-5-nitrobenzoate 	C ₃₂ H ₅₈ N ₂ O ₅	550,83

<p>[C101][Ant]: Trihexyl-tetradecyl-phosphonium anthranilate</p> 	<p>C₃₉H₇₄NPO₂</p>	<p>619,99</p>
<p>[N1888][C6SAC]: Methyltrioctyl-ammonium Hexylsulfanyl acetate [41]</p> 	<p>C₃₂H₅₇NSO₂</p>	<p>519,00</p>
<p>[P1888][C6SAC]: Methyltrioctyl-phosphonium Hexylsulfanyl acetate [41]</p> 	<p>C₃₂H₅₇PSO₂</p>	<p>536,00</p>

3.1. Versuchsaufbau für die Flüssig-Flüssig-Extraktion

Es werden vier nummerierte Plastikgefäße mit jeweils 10 ml destilliertem Wasser aufgefüllt. Zu diesen Gefäßen werden anteilmäßig eine bestimmte Menge der Radionuklidlösung (Uranylнитrat, Uranylacetat, Radium, Thorium oder Polonium) hinzugefügt. Einer Referenzprobe wird dieselbe Menge der Radionuklidlösung zugegeben. Durch die Hinzugabe von NaOH oder HNO₃ werden bestimmte Proben desweiteren auf einen vordefinierten pH-Wert eingestellt. Der Einfachheit halber wurde die Mischung der oben beschriebenen Einzelprobelösungen in einer 40 ml Gesamtprobelösung inklusive der pH-Werteinstellung hergestellt und entsprechend aufgeteilt.

Nun werden jeder wässrigen Phase 20 mg der ionischen Flüssigkeit hinzugegeben. Diese Proben werden für eine definierte Zeitspanne (zwischen 10 min und 4h oder über Nacht) bei Raumtemperatur geschüttelt. Die ionischen Flüssigkeiten konnten dabei die Radionuklide zumindest teilweise aufnehmen bzw. aus der wässrigen Phase extrahieren. Die Referenzprobe wird ohne Zugabe der ionischen Flüssigkeit geschüttelt. Diese Referenzprobe wird dafür gebraucht, um die zugegebene Aktivität zu messen und für allfällige Adsorption an der Gefäßwand korrigieren zu können. Nach dem Schütteln werden alle Proben und Referenzproben mit 3000 rpm für eine Stunde zentrifugiert. Nach der Abfiltration der ionischen Flüssigkeit, um eventuelle Reste der ionischen Flüssigkeit noch aus der wässrigen Lösung zu entfernen, wurden aus den wässrigen Einzelproben Aliquote für die LSC-Messung entnommen; es wird also der nicht-extrahierte Radionuklid-Anteil gemessen. Damit die Extraktionseffizienz bestimmt werden kann, wurden die Zählraten der einzelnen Proben auf die Zählrate der Referenzprobe bezogen.

3.1.1. Extraktionsmessung mittels LSC-Analyse

Es wurden 3 ml der abfiltrierten wässrigen Phase mit 17 ml Cocktail für die LSC-Messung versetzt. Als Cocktail wurde Optiphase HiSafe3™ (Perkin-Elmer) verwendet. Ein bis zwei Stunden werden die Proben anschließend im Kühlschrank stehen gelassen, dann erst wird gemessen. Das verwendete Gerät ist ein Quantulus 1220™ der Firma Wallac (jetzt Perkin Elmer). In **Abbildung 9** ist schematisch ein Ergebnis der LSC-Analyse abgebildet.

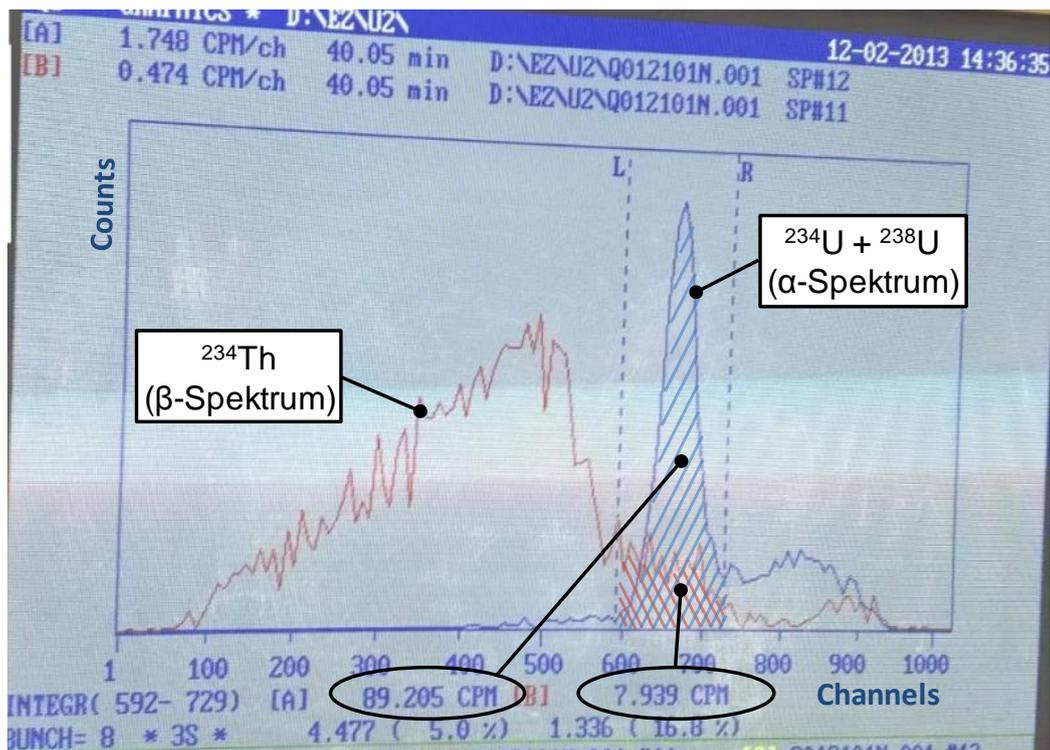


Abbildung 9: Schematische Darstellung des Ergebnisses der LSC-Analyse

Abbildung 9 zeigt die Spektren einer Uranyl-Probe. Die rote Kurve zeigt das β -Spektrum von ^{234}Th , die blaue Kurve das α -Spektrum von ^{234}U und ^{238}U . Die Fläche unterhalb der Kurve und innerhalb der beiden Eingriffsgrenzen entspricht einem integrierten Wert mit der Einheit cpm (Abk. counts per minute). Bei den α -Spektren ist die Zähleffizienz 100%, d.h die cpm entsprechen den Zerfällen pro Minute. Diese Größe kann anschließend auf die Volumenkonzentration der Probe umgerechnet werden.

3.1.2. Untersuchung des Leaching mittels TOC- und TN-Analyse

1 ml der wässrigen Probelösung wird mit 11,5 ml destilliertem Wasser verdünnt. Für dieses Aliquot wird anschließend im TOC-Analysator die Gesamtlösung des Organischen Kohlenstoffes TOC und simultan die Gesamtlösung des Stickstoffes TN bestimmt. Für die ursprüngliche Probelösung kann daraus die Konzentration des organischen Kohlenstoffes bzw. die Konzentration der ausgebluteten (geleachten) ionischen Flüssigkeit berechnet werden.

3.1.3. Rückextraktion

Für die Rückextraktion wurde nach dem Zentrifugieren die wässrige Phase entfernt. Anschließend wurde das Probengefäß, das noch die ionische Flüssigkeit inklusive der Radionuklide enthält, mit 15 ml 0,05 M HNO₃ aufgefüllt und wieder über Nacht geschüttelt. Am nächsten Tag wurde die Rückextraktionsprobe unter einer Drehzahl von 3000 rpm für 1 Stunde zentrifugiert. Nach der anschließenden Filtration wurden 3 ml der wässrigen Phase entnommen und mit 17 ml Cocktail gemischt, und mittels LSC-Analysator gemessen.

3.2. pH-Messungen

Für manche Versuchsproben wurde vor und nach dem Schütteln der pH-Wert mittels eines pH-Meters (Lab 850, SI analytics™) ermittelt. In den meisten Fällen ist der pH-Wert dabei konstant geblieben. Meist haben die Versuchsproben mit Uranylacetat einen pH-Wert von 4 und die Versuchsproben mit Uranylnitrat einen pH-Wert von 3. Nur bei den Versuchen mit ²²⁶Ra und der ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC] ist der pH-Wert nach der Filtration von pH 4 auf pH 5 angestiegen; da kein eindeutiger Trend zu beobachten war, wurde diese Messung nicht weiter diskutiert.

3.3. Detaillierte Versuchsbeschreibung

3.3.1. Uran

Extraktion in Abhängigkeit vom pH-Wert ([P1888][C6SAC] und [N1888][C6SAC])

Für die Versuchsreihen wurden je 40 ml destilliertes Wasser mit Uranylнитratlösung (in 0,05 M HNO₃) und Uranylacetatlösung (in 0,05 M CH₃COOH) versetzt. Mittels pH-Meter wurde in diesen Gesamtproben der pH-Wert gemessen. Um die Gesamtprobe auf den gewünschten pH-Wert von 2, 4, 6, 7 oder 8 einzustellen, wurde eine bestimmte Menge HNO₃ oder NaOH zugegeben. Anschließend wurden drei Versuchsproben und eine Referenzprobe mit jeweils 10 ml Probenvolumen aus der Gesamtprobe entnommen. Den drei Versuchsproben sind dann jeweils 20 mg der ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC] oder [N1888][C6SAC] hinzugefügt worden. Im Anschluss wurden mit 300 rpm die Proben über Nacht geschüttelt und für eine Stunde bei 3000 rpm zentrifugiert. Nach der Abfiltration und der pH-Wertmessung sind 3 ml wässrige Phase in ein LSC-Vial überführt worden. Danach wurde 17 ml des LSC-Cocktail HiSafe3 hinzugegeben und gemessen. Das Ergebnis ist also immer ein Mittelwert aus drei Proben. Die Referenzprobe wurde ohne die Zugabe an ionischer Flüssigkeit geschüttelt und analysiert.

Extraktion in Abhängigkeit von der Schüttelzeit ([P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC], [N1888][Ant] und [N1888][HNBA])

Bei der Untersuchung der Extraktionsfähigkeit in Abhängigkeit von der Schüttelzeit wurde ebenfalls die Gesamtprobe, wie oben beschrieben, mit 40 ml destilliertem Wasser sowie den Uranlösungen hergestellt und auf jeweils drei Versuchsproben und eine Referenzprobe von 10 ml Probenvolumen aufgeteilt. Nach der Zugabe von 20 mg der ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC], [N1888][Ant] und [N1888][HNBA] zu den Einzelproben wurden diese mit 300 rpm verschieden lang (10 min, 20 min, 60 min, 2,5 h und 4 h) geschüttelt. Nach der Schüttelzeit folgte wieder, wie oben beschrieben, die Zentrifugation, die Abfiltration sowie die Vorbereitung für die LSC-Messung.

Maximale Beladung der ionischen Flüssigkeiten (alle ionischen Flüssigkeiten: [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC], [N1888][Ant], [N1888][HNBA] und [C101][Ant])

Zur Bestimmung der Beladung der ionischen Flüssigkeiten wurden Gesamtprobevolumina mit 40 ml destilliertem Wasser und ansteigender Konzentration an Uranylнитratlösung bzw. Uranylacetatlösung hergestellt. Die Uranprobelösungen wurden dabei in einer Konzentrationsabstufung von 312 bis 1234 µg in 10 mL destilliertem Wasser variiert. In diesem Fall werden die pH-Werte der Gesamtproben nicht eingestellt. Nach der Aufteilung der Gesamtproben auf jeweils wieder drei Versuchsproben mit 20 mg der jeweiligen ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC], [N1888][Ant], [N1888][HNBA] und [C101][Ant] und eine Referenzprobe ohne ionische Flüssigkeit, wurden alle Versuchsproben über Nacht geschüttelt, zentrifugiert, abfiltriert und für die LSC-Messung vorbereitet. Diese Schritte erfolgten entsprechend der oben dargestellten Beschreibung.

3.3.2. Radium

Für ^{226}Ra wurde ausschließlich die Extraktionsfähigkeit in Abhängigkeit vom pH-Wert untersucht. Die Gesamtprobe von ^{226}Ra -Lösung (in 0,05 M HCl) wurde mit 40 ml destilliertem Wasser mit einer Aktivitätskonzentration von 600 mBq / 10 mL angesetzt. Mittels pH-Meter wurde die Probe auf seinen pH-Wert gemessen und von seinem Anfangsgehalt von pH 2,3 mit HCl und NaOH auf die verschiedenen pH-Werte von pH 2, pH 4, pH 6, pH 7 und pH 8 eingestellt. Im Anschluss wurden jeweils 20 mg der ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC] und [N1888][C6SAC] hinzugefügt. Drei Versuchsproben zu jeweils 10 ml und eine Referenzprobe mit 10 ml Probenvolumen wurden aus der Gesamtprobe entnommen. Anschließend wurden mit 300 rpm die Proben über Nacht geschüttelt und für eine Stunde bei 3000 rpm zentrifugiert. Nach der Abfiltration sind 5 ml wässrige Phase in ein LSC-Vial überführt und der pH-Wert ermittelt worden. Einzig der eingestellte pH-Wert von pH 4 ist nach der Abfiltration auf einen pH-Wert von pH 5 angewachsen. Im Anschluss wurde die Probe mit 10 ml des LSC-Cocktail HiEfficiency Mineraloil Scintillator NEF-957A (Packard Bioscience) überschichtet und für 14 Tage bei Raumtemperatur gelagert. Dieser Schritt war notwendig, damit ^{222}Rn , und seine kurzlebigen Folgeprodukte, in die Radiumprobe einwächst und in die Cocktailphase wandert. ^{226}Ra wird also indirekt über $^{222}\text{Rn}+^{218}\text{Po}+^{214}\text{Po}$ mit 300 % Messefficiency gemessen.

3.3.3. Polonium und Blei

Die ^{226}Ra -Probelösung enthält auch die beiden Radionuklide ^{210}Pb und ^{210}Po mit einer Aktivitätskonzentration von weniger als 50% der ^{226}Ra -Konzentration. Aus diesem Grund wurde innerhalb dieser Versuchsreihe die Radiumprobelösung weiterverwendet, um die Extraktion von ^{210}Po in Abhängigkeit vom pH-Wert zu untersuchen. ^{210}Pb wurde nicht gemessen, da die schlechte Extrahierbarkeit von Blei bereits von Kollegen an stabilem Blei gezeigt wurde.

Zur Bestimmung der Extraktion von ^{210}Po wurden in einem Scheidetrichter die Radiumprobelösung wieder von der organischen Phase getrennt. Diese besteht aus dem HiEfficiency Mineraloil Scintillator. Nach der Zugabe von $36,5\text{ mBq }^{209}\text{Po}$ als Spike wurde die gesamte Lösung eingedampft. Zum Rückstand wurde 4 ml konzentrierte Salzsäure hinzugegeben und der Verdampfungsprozess wiederholt. Im Anschluss wurden zu den 4 ml konzentrierte HCl noch 56 ml destilliertes Wasser zugegeben. Mit einem angeätzten Kupferplättchen ist die Probe für 2 Stunden bei 85°C erhitzt und gerührt worden. Das in der Lösung befindliche Polonium schied sich dabei am Kupferplättchen ab; das Plättchen wurde mit Wasser abgespült, getrocknet und mittels Oberflächensperrschichtdetektor gemessen.

3.4. Analyse- und Berechnungsverfahren

Die Radionuklid-Extraktion aus der wässrigen Phase durch ionische Flüssigkeiten wird mittels Liquid-Scintillation-Counting (LSC) gemessen. Dabei wird der nicht-extrahierte Anteil des Radionuklides in einem Aliquot der Probe gemessen. Anhand dieses Wertes kann rückgerechnet werden, welcher prozentuelle Anteil des Radionuklides extrahiert wurde.

Das Leaching der ionischen Flüssigkeiten in die wässrige Phase wurde durch die Bestimmung des Gesamten Organischen Kohlenstoffes (TOC) und Stickstoffes (TN), falls diese in der ionischen Flüssigkeit vorhanden war, in der wässrigen Phase quantifiziert.

Zuletzt wurde erstmals auch der rückextrahierbare Uran-Anteil aus der ionischen Flüssigkeit [N1888][C6SAC] in eine wässrige Phase (dem Rückextraktionsmittel) bestimmt.

3.4.1. Aktivitätsmessung der Lösung von Radionukliden

Die Aktivitätskonzentration der Uranylösungen (Uranylnitrat und Uranylacetat) wurde vor Beginn der Experimente mittels α -Spektrometrie ermittelt, da das Verhältnis von ^{234}U zu ^{238}U bei den verwendeten Salzen ungleich 1 war und daher die $^{234}\text{U}+^{238}\text{U}$ -Summenaktivität, die mittels der einfacheren LSC-Methode erhalten wird, nicht zur Bestimmung der Massenkonzentration verwendet werden kann. Aus der Aktivität von ^{238}U kann durch die nachstehend angegebene Formel die Uran-Masse bestimmt werden.

$$A = \lambda * N \Leftrightarrow A = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} * N \Leftrightarrow A = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} * \frac{m}{M} * N_A$$

A...Aktivität [sek^{-1}], λ ...Zerfallskonstante des Radionuklides (z.B. ^{238}U) [sek^{-1}], N...Anzahl der ^{238}U -Teilchen, m...Masse des Radionuklides (z.B. ^{238}U) [g], M.....molare Masse des Radionuklides (z.B. ^{238}U) [g/mol] und N_A ...Avogadro-Konstante ($=6,023 \times 10^{23}$ Teilchen/mol).

Für Uranylnitrat wurde eine ^{238}U -Konzentration von $116 \mu\text{g} / 10 \mu\text{l}$ gemessen (LSC-Messung: 107 cpm). Dies ergibt bei einem $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Aktivitätsverhältnis von 0,37 in

der Probelösung (bestehend aus 10 mL dest. H₂O + 10 µl Uranylinitratlösung) eine Konzentration von 11,6 mg/L.

Die Aktivität von 10µl Uranylacetat-Lösung wurde im LSC-Analysator auf 107 cpm gemessen. Dies entspricht bei einem ²³⁴U/²³⁸U-Aktivitätsverhältnis von 0.39 einer Masse an ²³⁸U von 104 µg und einer Konzentration von 10,4 mg/L. In der ²²⁶Ra-Lösung ist hingegen eine Konzentration von 60 mBq/mL und bei ²¹⁰Po ist eine Konzentration von 20 mBq/mL gemessen worden.

3.4.2. Berechnung der notwendigen Daten für die Extraktionsgüte

Als erstes muss die Ausgangskonzentration C₀, in [mg/L], des Radionuklides in der Versuchsprobe ermittelt werden. Dies erfolgt durch die Messung eines Aliquots der Referenzprobe im LSC-Analysator.

Nach dem Extraktionsprozess wird wieder die Konzentration C_e des Radionuklides in der wässrigen Phase mittels LSC-Analysator gemessen. Dieser Wert wird der Anfangskonzentration C₀ ins Verhältnis gestellt; das Verhältnis C_e/C₀ gibt den nicht-extrahierten Anteil des jeweiligen Radionuklids an.

3.4.3. Berechnung der notwendigen Daten für die Beladungskurven

Die Beladungskurve stellt die extrahierte Menge Q_e an Radionukliden in der ionischen Flüssigkeit, angegeben in mg/g, der Gleichgewichtskonzentration C_e in der wässrigen Phase, angegeben in mg/L, gegenüber. Die Beladungskurve läuft gegen einen stabilen Wert (Sättigung).

$$Q_e = \frac{(C_0 - C_e)}{m} * V$$

Q_e...extrahierte Menge Uran in mg/g ionischer Flüssigkeit, C₀ und C_e...Uran-Konzentration in der wässrigen Phase vor und nach dem Schütteln in mg/L, m...Masse der ionischen Flüssigkeit in g, V...Probenvolumen in L. Die Gleichgewichtskonzentration C_e wird aus der Anfangskonzentration sowie dem prozentualen Extraktionswert ermittelt. Die Anfangskonzentration C₀ wird durch die Aktivitätsmessung der Referenzprobe bestimmt.

3.4.4. Berechnung des Leachings aus TN- bzw. TOC-Analyse

Um die Auslaugung der ionischen Flüssigkeit zu bestimmen, die durch den Leachingprozess in die wässrige Phase übergeht, kann die mathematische Formulierung nach Platzer et al. [41] angewendet werden. Im TOC-Analysator wird der Wert des gesamten organischen Kohlenstoffes in der verdünnten wässrigen Phase gemessen. Über den Verdünnungsfaktor wird dieser Wert für die ursprüngliche Probe berechnet. Der Quotient aus dieser Kohlenstoffmasse zur Kohlenstoffmasse der gesamten eingesetzten ionischen Flüssigkeit gibt den Prozentwert der in der wässrigen Phase gelösten ionischen Flüssigkeit an. Analoges gilt für die Messung des Stickstoffs.

$$\text{Leaching} [\%] = \frac{C_{\text{wässr. Phase}} [\text{mg}]}{C_{\text{IL}} [\text{mg}]} * 100$$

3.4.5. Berechnung des rückextrahierten Anteils

Die mit einer bekannten Menge Uran, angegeben in [μg], beladene ionische Flüssigkeit $m_{\text{U,IL}}$ wird mit dem Rückextraktionsmittel ausgeschüttelt. Ein Aliquot des Rückextraktionsmittels wird gemessen und daraus die gesamte Menge des rückgewonnenen Urans $m_{\text{U,Res}}$, angegeben in [μg], berechnet. Die prozentuale Rückextraktion wird wie in der nachstehenden Formel berechnet.

$$R [\%] = \frac{m_{\text{U,Res}}}{m_{\text{U,IL}}} * 100$$

4. Ergebnisse

Bei der Untersuchung der einzelnen ionischen Flüssigkeiten wurde im ersten Schritt die Abhängigkeit der Extraktionsfähigkeit vom pH-Wert der in wässriger Lösung vorliegenden Radionuklide beurteilt. Aufgrund der guten Extraktionsergebnisse für Uranylacetat und Uranylнитrat wurde im nächsten Schritt die Extraktion im Abhängigkeit von der Schütteldauer untersucht. Anschließend erfolgte die Aufnahme von Beladungskurven und ein Versuch zur Rückextraktion.

4.1. Extraktionsvermögen in Abhängigkeit vom pH-Wert

In dieser ersten Untersuchung werden die Radionuklide ^{234}Th , ^{226}Ra und ^{210}Po sowie die Uranisotope aus den beiden Uransalzen Uranylacetat und Uranylнитrat untersucht. Die Abhängigkeit der Extraktion vom pH-Wert wird analysiert. Durch die Hinzugabe der Säuren Salpetersäure HNO_3 (oder Salzsäure HCl im Fall von ^{226}Ra und ^{210}Po) bzw. der Base Natriumhydroxid NaOH wurde der pH-Wert eingestellt. Die eingesetzten Konzentrationen waren für Uranylнитrat $116 \mu\text{g} / 10 \text{ mL}$ und für Uranylacetat $104 \mu\text{g} / 10 \text{ mL}$. Für ^{226}Ra betrug die Anfangskonzentration 600 mBq in 10 mL und für ^{210}Po 200 mBq in 10 mL .

Tabelle 2: Versuchsergebnisse der Extraktion für die pH-Abhängigkeit

Radionuklidlösung	ionische Flüssigkeit	pH-Werte	Extraktion [%]
Uranylacetat	[N1888][C6SAC]	2	45 ± 4
		4	99 ± 2
		6	99 ± 2
		7	98 ± 3
		8	92 ± 1
Uranylнитrat	[P1888][C6SAC]	2	45 ± 4
		4	97 ± 5
		6	98 ± 4
		7	86 ± 2
		8	90 ± 2

Th-234	[N1888][C6SAC]	2	56 ± 4
		4	41 ± 3
		6	99 ± 2
		7	76 ± 6
		8	29 ± 4
Po-210	[N1888][C6SAC]	2	96 ± 1
		4	93 ± 1
		6	97 ± 1
Radium	[P1888][C6SAC]	2	3 ± 9
		4	4 ± 9
		6	1 ± 9
		7	0 ± 7
		8	0 ± 7

In **Abbildung 10** und **Abbildung 11** sind die Ergebnisse grafisch dargestellt. Uranylacetat und Uranylнитrat wurden (außer bei pH 2) unabhängig vom pH-Wert der wässrigen Phase von den ionischen Flüssigkeiten [P1888][C6SAC] und [N1888][C6SAC] fast vollständig extrahiert (Extraktionsbereich von 95-100%).

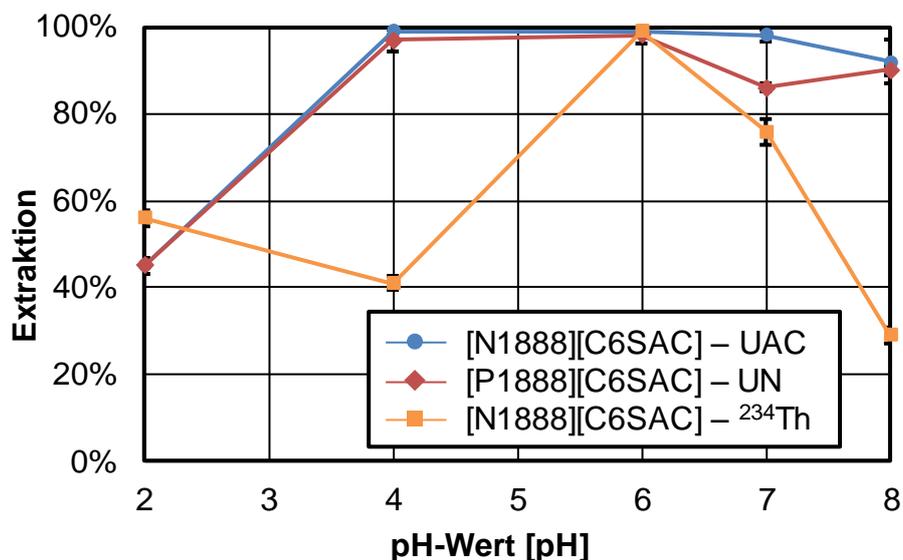


Abbildung 10: Extraktionskurven für Uran und Thorium

Interessant ist bei der Uranylнитratprobe jedoch der kleine Extraktionseinbruch beim pH-Wert 7. Während dieses Versuches, sowie während des Versuches mit einem pH-

Wert von 8, wurde ein Niederschlag in der wässrigen Phase nach der Zentrifugation festgestellt. Platzer et al. [42] beschrieb allgemein, dass in säurehaltigen Lösungen die Löslichkeit von U(VI) höher ist [42]. Aus diesem Grund könnte sich unter den neutralen bis basischen pH-Werten der Probelösung von pH 7 und pH 8 ein Niederschlag ausgebildet haben.

Bei der Extraktion von ^{234}Th ist eine starke pH-Abhängigkeit beobachtet worden. Die Extraktionskurve ist hierzu in **Abbildung 10** grafisch dargestellt. Für einen pH-Wert von 6 wurde eine nahezu vollständige Extraktion dieses Thorium-Isotopes nachgewiesen. Für die von pH 6 verschiedenen Säure- und Basengehalte sind im Gegensatz dazu geringere Extraktionen aufgetreten. Ein ähnlicher Sachverhalt wurde auch in der akademischen Abschlussarbeit von Herrn Sap [36] bei der Verwendung der ionischen Flüssigkeiten [A336][TS] und [A336][Mal] beschrieben. Es dürfte damit zu tun haben, dass Thorium aufgrund seiner 4-Wertigkeit generell sehr ausfällungsfreudig (bzw. adsorptionsfreudig) ist und eigentlich nur im stark sauren Bereich wasserlöslich ist [55]. Aus diesem Grund wurde auch in allen weiteren Versuchen auf die Auswertung des ^{234}Th verzichtet; außerdem stellt Thorium aufgrund seiner Wasserunlöslichkeit auch für den Strahlenschutz kein Problem dar.

Radium (^{226}Ra) (Abbildung 11) wird durch die ionische Flüssigkeit [P1888][C6SAC] bei keinem pH-Wert extrahiert; die Werte liegen zwischen 0 und 4%.

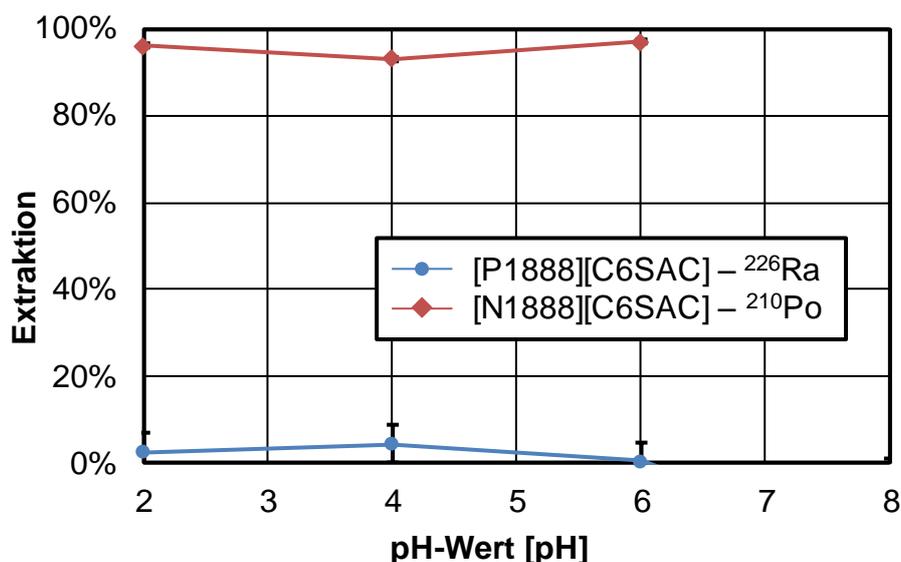


Abbildung 11: Extraktionskurven der Radionuklide Radium und Polonium

Demgegenüber konnte Polonium (^{210}Po) sehr gut in die ionische Flüssigkeit [N1888][C6SAC] extrahiert werden. Bei allen pH-Werten zwischen pH 2 und pH 6 wurden Extraktionswerte von mehr als 90% erzielt.

4.2. Extraktionsvermögen in Abhängigkeit von der Kontaktdauer

Diese Untersuchungen wurden nur für die Uransalze durchgeführt. Die eingesetzten Konzentrationen waren für Uranylнитrat $116 \mu\text{g} / 10 \text{ mL}$ und für Uranylacetat $104 \mu\text{g} / 10 \text{ mL}$. Nach variierender Prozesszeit, in der unter kontinuierlichem Schütteln die ionische Flüssigkeit in Kontakt mit der wässrigen Phase gehalten wird, wird die Menge des extrahierten Urans analysiert. **Abbildung 12** verdeutlicht hierzu die Versuchsergebnisse. In **Tabelle 3** stehen zusätzlich die Versuchsergebnisse niedergeschrieben.

Tabelle 3: Versuchsergebnisse der Extraktion von Uran

Radionuklidlösung	ionische Flüssigkeit	Schüttelzeit [min]	Extraktion [%]
Uranylacetat	[P1888][C6SAC]	10	98 ± 4
		20	98 ± 3
		60	98 ± 3
Uranylнитrat	[P1888][C6SAC]	10	98 ± 3
		20	97 ± 4
		60	99 ± 2
Uranylacetat	[N1888][C6SAC]	10	92 ± 8
		20	96 ± 6
		60	97 ± 4
Uranylнитrat	[N1888][C6SAC]	10	88 ± 1
		20	77 ± 2
		60	99 ± 2
Uranylacetat	[N1888][Ant]	10	95 ± 4
		20	98 ± 2
		60	98 ± 5
		150	97 ± 2
		240	99 ± 2

Uranyl- nitrat	[N1888][Ant]	10	95 ± 9
		20	99 ± 2
		60	98 ± 5
		150	97 ± 3
		240	99 ± 2
Uranyl- acetat	[N1888][HNBA]	20	59 ± 6
		60	42 ± 2
		150	70 ± 4
		240	77 ± 2
Uranyl- nitrat	[N1888][HNBA]	10	54 ± 3
		20	49 ± 2
		60	75 ± 2
		150	65 ± 2
		240	84 ± 2

Nach einer Schütteldauer von 10 min liegen die erzielten Extraktionswerte für Uranylacetat und Uranyl- nitrat mit der ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC] über einem Wert von 95%. Demgegenüber liegen nach einer Prozesszeit von 20 min die Extraktionswerte für Uranylacetat mit der ionischen Flüssigkeit [N1888][C6SAC] über 95%, während für Uranyl- nitrat mit dieser ionischen Flüssigkeit mindestens 1 Stunde benötigt wird, bis der Extraktionswert von 95% erreicht wird. Ein Wert größer als 95% bedeutet vollständige Extraktion.

In **Tabelle 4** sind die minimalen Prozesszeiten für das Erreichen der vollständigen Extraktion angegeben.

Tabelle 4: Minimale Prozesszeiten für das Erreichen der vollständigen Extraktion

	[P1888][C6SAC]	[N1888][C6SAC]	[N1888][Ant]	[N1888][HNBA]
Uranyl- acetat	10 min	20 min	20 min	---
Uranyl- nitrat	10 min	60 min	20 min	---

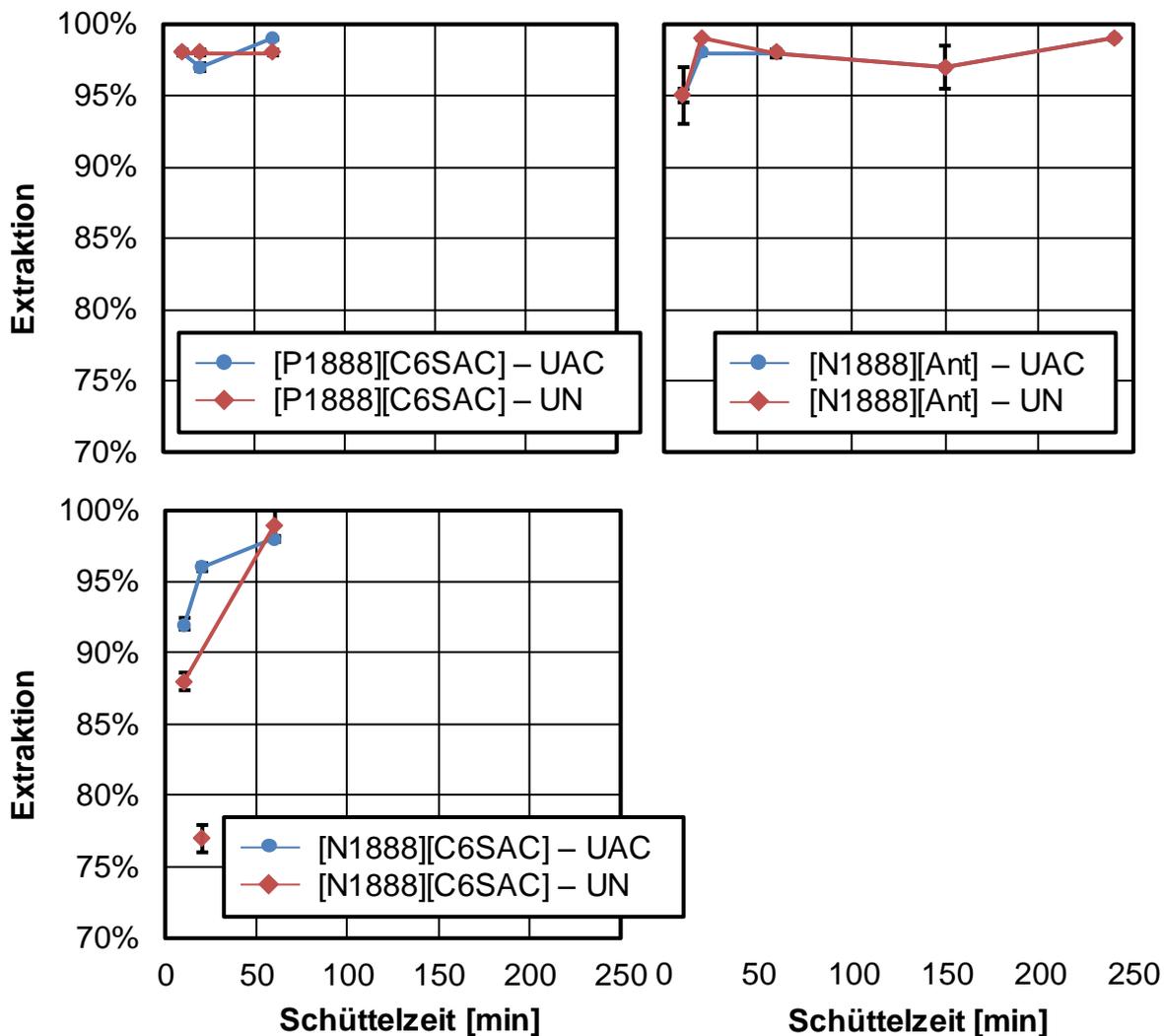


Abbildung 12: Extraktionskurven von Uran

Mit Uranylнитrat konnten für die beiden ionischen Flüssigkeiten [P1888][C6SAC] und [N1888][Ant] schnell gute Extraktionsergebnisse erzielt werden. Bereits nach kurzer Prozesszeit stellt sich der Gleichgewichtszustand ein. Die ionische Flüssigkeit [N1888][C6SAC] verlangt nach einer längeren chemischen Reaktionszeit von 60 Minuten, um auf einen guten Extraktionswert zu kommen. Der Extraktionswert von 77% bei der Reaktionszeit von 20 min könnte diesbezüglich ein Ausreißer sein, nach 60 Minuten wird hingegen wieder eine Extraktion von 99% erreicht. Mit [P1888][C6SAC] wurde eine Extraktion von 97% erzielt.

Die ionische Flüssigkeit [N1888][HNBA] zeigte nicht so gute Ergebnisse (Abbildung 13). Alle Werte liegen unterhalb einer Extraktion von 85%. Aus einer früheren Untersuchung [59] ist jedoch bekannt, dass bei einer längeren Schütteldauer als 2,5 Stunden (in diesem Fall über Nacht) die vollständige Extraktion von Uranylнитrat erreicht werden kann.

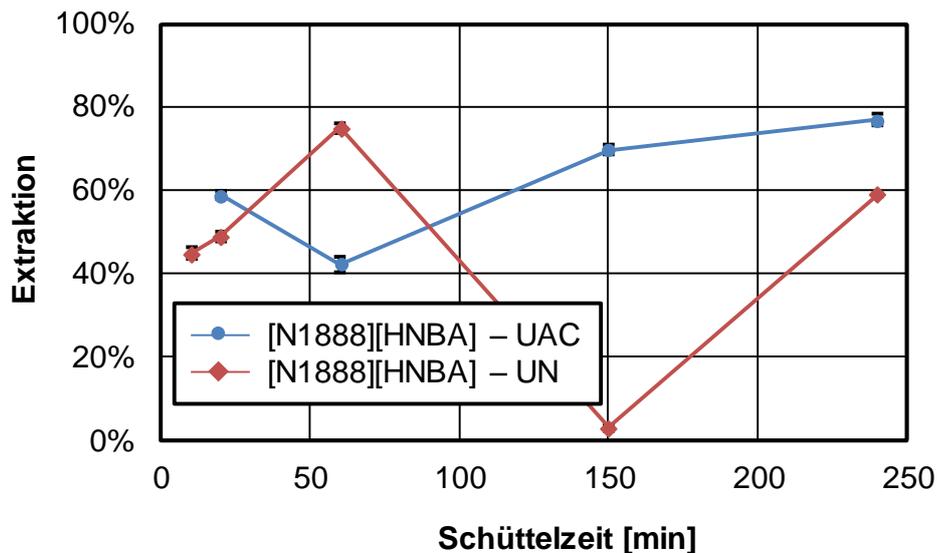


Abbildung 13: Extraktion mittels der ionischen Flüssigkeit [N1888][HNBA]

Die Extraktion von Uranylacetat durch die ionische Flüssigkeit [N1888][HNBA] zeigt den in Abbildung 13 dargestellten zeitlichen Verlauf. Es zeigt sich im Wesentlichen ein stetig steigender Kurvenverlauf. Allerdings wird bis zum Erreichen eines stationären Zustandes eine Prozesszeit von mehr als 4 Stunden benötigt und die Extraktion liegt nur bei 80%. Möglicherweise werden auch hier (wie beim Uranyl Nitrat) nach längerem Schütteln 100% Extraktion erreicht; dies konnte im Rahmen dieser Arbeit aber nicht mehr untersucht werden.

4.3. Maximale Beladung der ionischen Flüssigkeiten

Für die vier ionischen Flüssigkeiten [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC], [N1888][Ant] und [N1888][HNBA] ist die Beladungskurve für Uran, stammend aus einer Lösung von Uranylнитrat bzw. Uranylacetat, ermittelt worden. Dies bedeutet, dass die maximale Menge Uran bestimmt wurde, die in 20 mg ionischer Flüssigkeit aufgenommen werden kann. Die Tabelle 6 zeigt die numerischen Werte, während in Abbildung 15 die grafische Darstellung verdeutlicht ist.

Tabelle 5: Versuchsergebnisse der Beladung von Uran

Radionuklidlösung	ionische Flüssigkeit	C_0 [mg/l]	C_e [mg/l]	Q_e [mg/g]
Uranylacetat		312	23	126
		624	191	195
		908	411	243
		1248	637	289
Uranylнитrat	[P1888][C6SAC]	325	50	125
		650	343	138
		975	647	146
		1231	960	110
	[N1888][C6SAC]	348	90	113
		663	361	136
		1009	731	137
		1304	1037	127
Uranylacetat		312	5	135
		619	122	211
		936	331	285
		1234	536	299
Uranylacetat	[N1888][Ant]	309	4	152
		624	122	251
		867	278	282
		1233	415	391

		332	36	148
Uranylнитрат	[N1888][Ant]	658	337	160
		925	570	178
		1288	943	173
Uranylнитрат	[N1888][HNBA]	342	70	123
		684	271	182
		1026	600	190
		1368	963	136
Uranylacetat	[N1888][HNBA]	642	131	227
		963	433	181
		1284	752	177
		1605	1039	179
Uranylнитрат	[C101][Ant]	38	5	17
		58	2	28
		77	27	25
		96	55	21
		144	79	32
		192	119	37
		632	474	79
		842	573	135
		1053	590	232
		1264	910	177
		1474	1017	229
		1685	1179	253

Die Beladungskurve stellt dabei die extrahierte Menge an Radionukliden in der ionischen Flüssigkeit (angegeben in dem Kennwert Q_e in mg Uran / g IL) der Gleichgewichtskonzentration der Radionuklide in der wässrigen Phase (angegeben in dem Kennwert C_e in mg/L) gegenüber. Das Probenvolumen (wässrige Phase) wurde auch in diesem Versuch auf 10 ml konstant festgelegt. Die Masse der ionischen Flüssigkeit war 20 mg. Um ausreichend langen Kontakt zwischen den beiden Phasen zu gewährleisten, wurde es für eine längere Zeit (über Nacht, aber auch manchmal über das Wochenende) in den Schüttler gestellt.

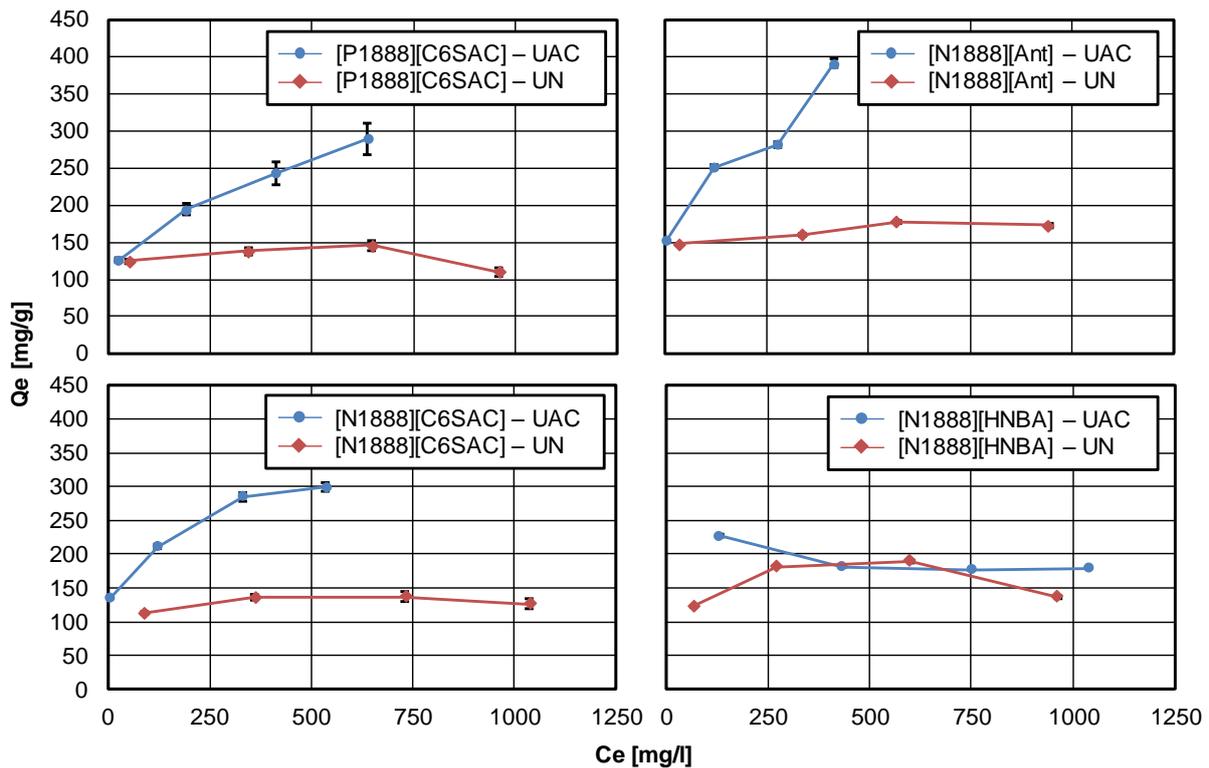


Abbildung 14: Beladungskurven für die Extraktion von Uran

Bei der Flüssig-Flüssig-Extraktion der Radionuklide aus der Uranylнитratlösung (rote Kurven in Abbildung 14) stellt sich für die beobachteten vier ionischen Flüssigkeiten ein geringeres Aufnahmevermögen im Vergleich zur Uranylacetatlösung ein. Während bei den Uranylнитratlösungen Sättigung beobachtet werden konnte, konnte mit den Acetatlösungen die maximale Aufnahme in die ionische Flüssigkeit bei [P1888][C6SAC] und [N1888][Ant] nicht erreicht werden. Hier wird deutlich, dass auch das Anion der Uranverbindung bei der Extraktion eine Rolle spielt.

Neben diesen Versuchen wurde noch eine weitere ionische Flüssigkeit eingesetzt. Es handelt sich hierbei um die ionische Flüssigkeit [C101][Ant]. Für diese ionische Flüssigkeit ist in **Abbildung 15** die Beladungskurve aufgetragen, um ebenfalls wie bei den ionischen Flüssigkeiten [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC], [N1888][Ant] und [N1888][HNBA] die Extraktionsfähigkeit zu untersuchen.

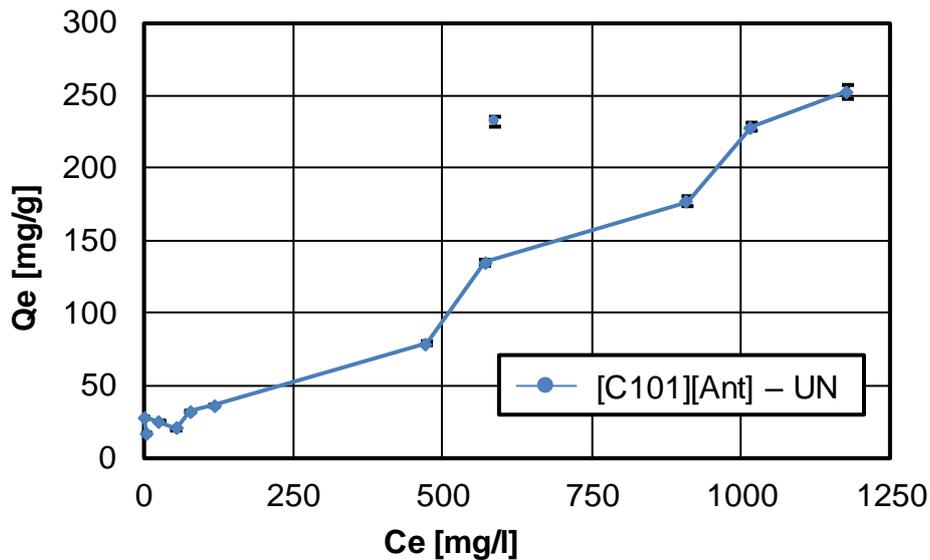


Abbildung 15: Beladungskurve der ionischen Flüssigkeit [C101][Ant] mit Uranylнитrat

Für die Untersuchung der Beladungskurve der ionischen Flüssigkeit [C101][Ant] in Uranylнитratlösung ist der in Abbildung 15 dargestellte Kurvenverlauf entstanden. Ein grundsätzlicher Verlauf in Form einer Sättigungskurve, wie er in Abbildung 14 erkennbar ist, konnte nicht gezeigt werden. Stattdessen steigt mit steigender Gleichgewichtskonzentration C_e auch die extrahierte Menge Q_e an Uran an. Bei dem starken Wertanstieg bei einer Gleichgewichtskonzentration von 529,2 mg/L handelt es sich dabei lediglich um einen Ausreißer.

Die Beladungskurven zeigen die hohe Aufnahmefähigkeit der drei ionischen Flüssigkeiten [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC] und [N1888][Ant] für das Uransalz Uranylacetat. Das in dieser Form in Lösung vorliegende Uran kann also in größerer Menge von der ionischen Flüssigkeit aufgenommen werden als Uranylнитrat. Bei Verwendung der ionischen Flüssigkeit [C101][Ant] konnte bei dem Uransalz Uranylнитrat eine signifikante Erhöhung der Extraktionsfähigkeit im Vergleich zu den anderen ionischen Flüssigkeiten erzielt werden.

Wenn die Beladungskurve in Sättigung geht kann der maximale Urangehalt bestimmt werden, der von den untersuchten ionischen Flüssigkeiten aufgenommen werden kann; bei Nicht-Sättigung kann nur ein Mindest-Wert angegeben werden. Um eine anschauliche Größe zur Verfügung zu haben, wurde die maximal von 1g der ionischen Flüssigkeit aufgenommene Uranmenge (bezeichnet als Q_e) in seine Stoffmenge

umgerechnet und mit der Stoffmenge von 1g der ionischen Flüssigkeit in Verhältnis gesetzt. Dieser Quotient wird in mol.% angegeben. In der nachstehenden **Tabelle 6** sind diese Werte für Uranylнитrat bzw. Uranylacetat in den einzelnen ionischen Flüssigkeiten angegeben.

Der maximale Q_e -Wert in der ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC] von Uranylacetat beträgt 290 mg/g. Dieses Ergebnis ergibt 0,00122 mol. ^{238}U , die pro Gramm der ionischen Flüssigkeit (das entspricht 0,00187 mol IL) aufgenommen werden. Das Verhältnis ergibt sich zu 65 mol.%. Bei Uranylнитrat beträgt der maximale Q_e -Wert 146 mg/g. Dieses Ergebnis ergibt $6,134 \times 10^{-4}$ mol. ^{238}U , die pro Gramm der ionischen Flüssigkeit aufgenommen werden. Das Verhältnis ist 33 mol.%.

Tabelle 6: Maximaler Urangehalt in der ionischen Flüssigkeiten in [mol.%]

Radionuklidlösung	ionische Flüssigkeit	maximaler Urangehalt in IL [mol.%]
Uranylacetat	[P1888][C6SAC]	min. 65
	[N1888][C6SAC]	min. 62
	[N1888][Ant]	83
	[N1888][HNBA]	42
Uranylнитrat	[P1888][C6SAC]	33
	[N1888][C6SAC]	30
	[N1888][Ant]	38
	[N1888][HNBA]	44
	[C101][Ant]	min. 66

5. Leaching der ionischen Flüssigkeit in die wässrige Phase

Leaching ist das Ausbluten der ionischen Flüssigkeit in die wässrige Phase. Das Leaching kann in diesen Versuchsreihen mit der TOC- und TN-Analyse gemessen werden. **Abbildung 16** und **Abbildung 17** verdeutlichen die Ergebnisse aus den Messungen mit den vier stickstoffhaltigen ionischen Flüssigkeiten [N1888][Ant], [N1888][HNBA], [C101][Ant] und [N1888][C6SAC]. Zusätzlich sind in der **Tabelle 7** bis **Tabelle 8** die Versuchsergebnisse angegeben. Die wässrige Phase wurde mit verschiedenen Konzentrationen von Uranylacetat bzw. Essigsäure versetzt, um einen eventuellen Einfluss der unterschiedlichen Säurekonzentrationen feststellen zu können. Auch das Uranylacetat ist in verdünnter Essigsäure (HAC) gelöst. Die Essigsäure-Lösungen dienen dazu, das Auslaugungsverhalten der ionischen Flüssigkeiten unabhängig vom Uran beschreiben zu können.

Tabelle 7: Versuchsergebnisse des Leachings für die TN-Messung

Lösungen	ionische Flüssigkeit	Acetat Konzentration [10 ⁻³ mol/L]	Leaching [%]	
HAC	[N1888][Ant]	0,05	23	
		0,5	33	
		5	41	
UAC		0,17	20	
		1,7	14	
		17	26	
HAC		[N1888][HNBA]	0,05	8
			0,5	16
			5	11
UAC	0,17		11	
	1,7		9	
	17		6	
HAC	[C101][Ant]		0,05	27
			0,5	30
			5	31

UAC	[C101][Ant]	0,17	26
		1,7	13
		17	8
HAC	[N1888][C6SAC]	0,05	19
		0,5	23
		5	36
UAC	[N1888][C6SAC]	0,17	20
		1,7	31
		17	41

Für die Berechnung der Acetatkonzentrationen wurden jeweils 0,05 M HAC und UAC in 10 µl, 100 µl und 1000 µl Mengen verwendet. Diese Mengen wurden einem Gesamtprobevolumen von 10 ml zugegeben. Als Konzentrationen für HAC wurde dabei 5×10^{-5} mol/L (für 10µl), 5×10^{-4} mol/L (für 100µl) und 5×10^{-3} mol/L (für 1000µl) bestimmt. Für UAC wurde zuvor eine Urankonzentration von 144 µg ^{238}U in 10 µl gemessen. Danach wurde über die Molaritätsformel die Molmasse von ^{238}U ermittelt. Daraus konnte die Acetatkonzentration zu 17×10^{-5} mol/L (für 10µl), 17×10^{-4} mol/L (für 100µl) und 17×10^{-3} mol/L (für 1000µl) bestimmt werden.

Bei der Analyse des Gesamten Stickstoffes ist generell zu sagen, dass die höchsten Werte bei 41% liegen. Auffällig ist, dass bei den Proben, die zusätzlich Uranylacetat enthielten, das Auslaugen geringer war als bei den Proben, die nur die Essigsäure enthielten; mit Ausnahme der ionischen Flüssigkeit [N1888][C6SAC]. Die ionische Flüssigkeit [N1888][HNBA] zeigte mit einem Wert von maximal 10% die geringste Auslaugung in die wässrige Phase mit der Uranylacetatlösung, bei den Essigsäure-Lösungen war der höchste Wert 16%. Bei Erhöhung der Essigsäurekonzentration nahm das Leaching zumindest bei [N1888][Ant] und [N1888][C6SAC] zu, ebenso im Beisein von Uran. Bei den anderen ionischen Flüssigkeiten nahm bei höheren Uranylacetat-Konzentrationen das Leaching hingegen wieder ab.

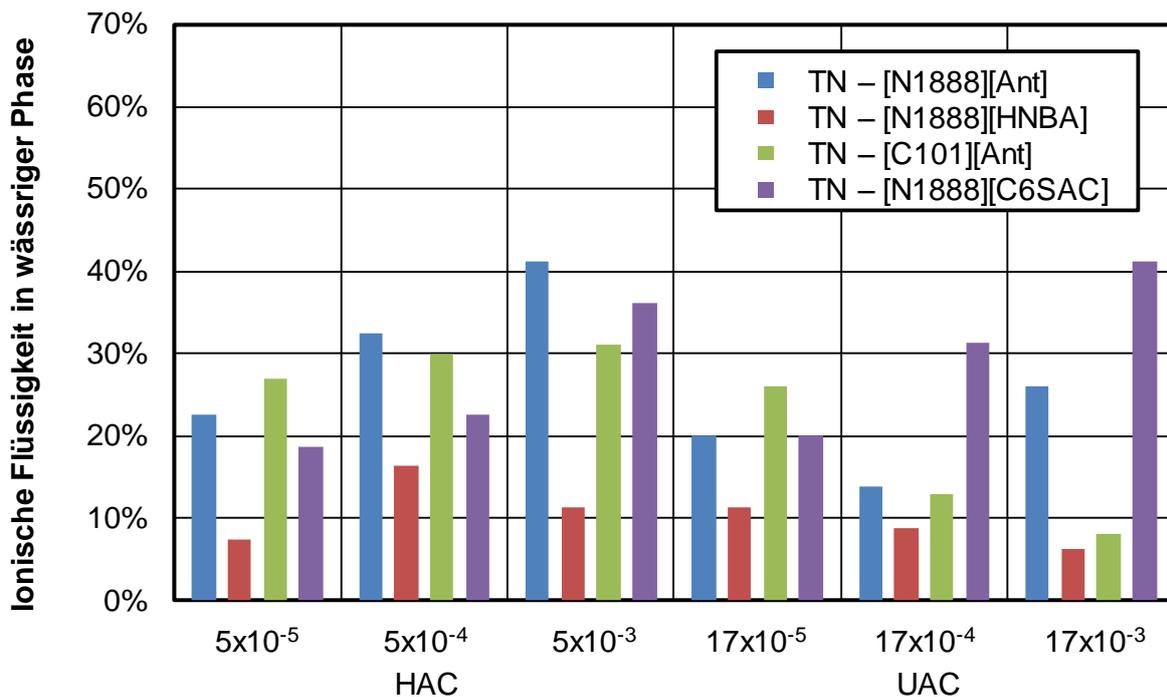


Abbildung 16: Auslaugung der ion. Flüssigkeit in die wäss. Phase (TN-Analyse); die angegebene Acetatkonzentration ist in mol/L angegeben

Die Ergebnisse der Analyse des Gesamten Organischen Kohlenstoffes durch den TOC-Analysator sind in Abbildung 17 dargestellt. Hier nimmt bei ansteigender Säurekonzentration mit und ohne Uran das Leaching in den meisten Fällen zu und es ist auch in Anwesenheit von Uran (und damit höherem Acetatgehalt) meist höher. Generell liegen die meisten Werte unter 20%, der Maximalwert liegt bei 63%, d.h. dass die TOC-Analyse einen höheren Wert für das Leaching liefert als die TN-Analyse. Das könnte einerseits daran liegen, dass der im TN-Analysator zu analysierende Stickstoff nicht so trivial bestimmbar ist, wie die Kohlenstoffanteile im TOC-Analysator. Dies liegt daran, dass die „Stickstoffverbindungen nicht bis zur höchsten Oxidationsstufe, wie es beim Kohlenstoff der Fall ist, oxidiert werden“ [60]. Ein Teil des Stickstoffes wird oxidiert, während der andere Teil reduziert wird [60]. Andererseits könnten auch Reste des organischen Lösungsmittels, das bei der Herstellung bzw. Reinigung der IL, verwendet wurde, noch in der IL sein; diese Lösungsmittel beinhalten Kohlenstoff, nicht aber Stickstoff.

Tabelle 8: Versuchsergebnisse des Leachings für die TOC-Messung

Radionuklidlösung	ionische Flüssigkeit	Acetat Konzentration [10 ⁻³ mol/L]	Leaching [%]	
HAC	[N1888][Ant]	0,05	26	
		0,5	38	
		5	63	
UAC		0,17	21	
		1,7	24	
		17	55	
HAC		[N1888][HNBA]	0,05	5
			0,5	14
			5	21
UAC	0,17		9	
	1,7		18	
	17		33	
HAC	[C101][Ant]		0,05	8
			0,5	11
			5	22
UAC		0,17	11	
		1,7	31	
		17	19	

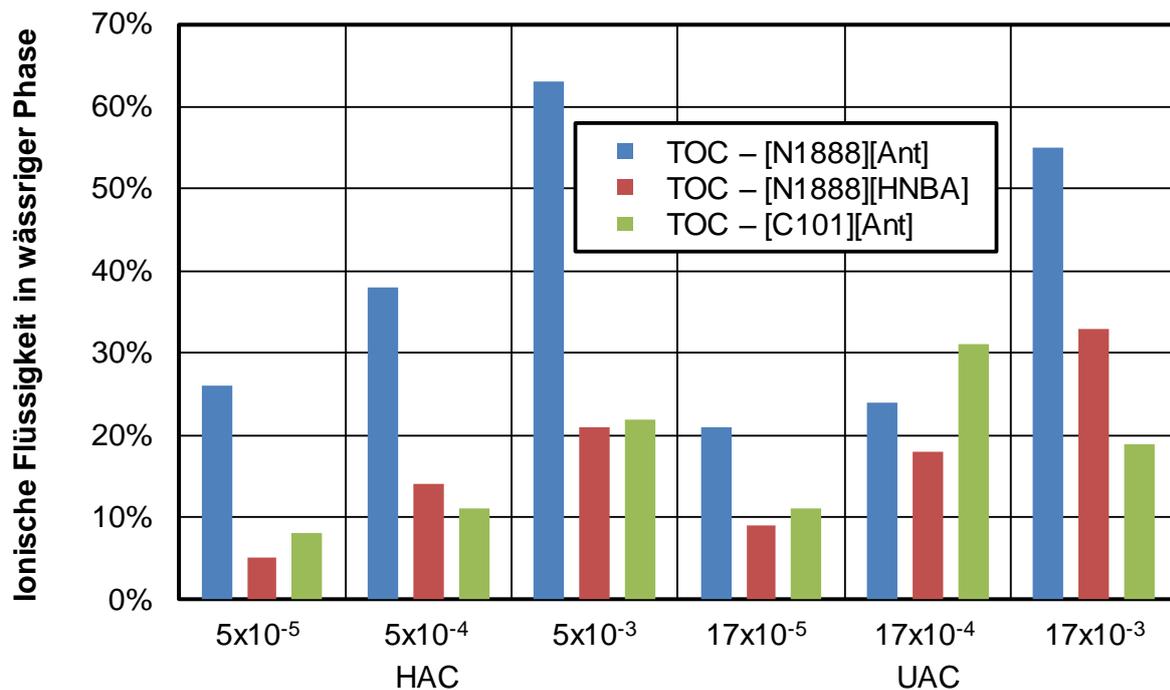


Abbildung 17: Auslaugung der ion. Flüssigkeit in die wäss. Phase mittels TOC; die angegebene Acetatkonzentration ist in mol/L angegeben

Als weiteres Verfahren soll im weiteren Schritt das Extraktionsverfahren der Rückextraktion angewendet werden. Die Ergebnisse sind innerhalb des nächsten Kapitels dargestellt.

6. Rückextraktion

Für Uranylacetat sowie die ionische Flüssigkeit [N1888][C6SAC] sollte in einer letzten Versuchsreihe die Rückextraktionsfähigkeit analysiert werden. Die ursprünglich verwendete Uranprobelösung ist für diesen Zweck in verschiedenen pH-Werten (pH 2, pH 4, pH 6, pH 7 und pH 8) eingestellt worden. Nach Abtrennung der ionischen Flüssigkeit von der wässrigen Phase und der Hinzugabe von 15 mL 0.05M verdünnter Salpetersäure als Rückextraktionsmittel wird wieder geschüttelt. Bei erfolgreicher Rückextraktion würde die ionische Flüssigkeit regeneriert werden. In **Abbildung 18** sind die Rückextraktionsergebnisse aufgetragen. (die angegebenen pH-Werte sind die der ursprünglichen Lösung, aus der das Uran extrahiert wurde; sie dienen nur zur Identifizierung der Proben).

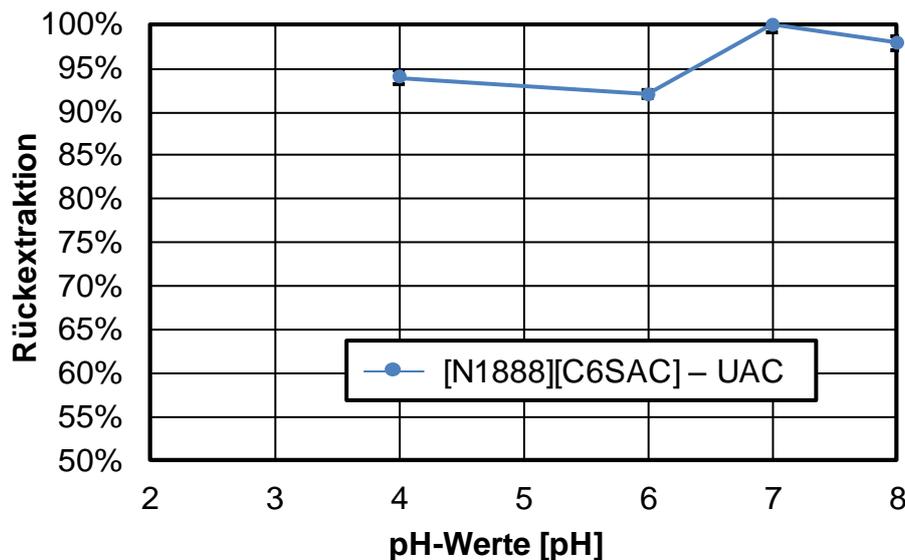


Abbildung 18: Rückextraktion von Uranylacetat aus der IL [N1888][C6SAC]

Die Rückextraktion des Urans aus der ionischen Flüssigkeit erzielt gute Ergebnisse. Für die experimentelle Messung beim ursprünglichen pH-Wert von 2 konnte leider keine Rückextraktion nachgewiesen werden. Ab einem pH-Wert von 7 der ursprünglichen Probelösung werden mit ca. 95...100 % die höchsten Extraktionswerte erzielt. Dies bedeutet, dass der größte Teil des Urans, der im Prozess der Flüssig-Flüssig-Extraktion in die ionische Flüssigkeit übergegangen ist, durch die

Rückextraktion aus dieser Flüssigkeit wieder herausgeholt werden konnte. Unter den anderen pH-Wertzuständen verblieben etwas mehr als 5% des Urans in der ionischen Flüssigkeit.

Tabelle 9: Versuchsergebnisse für die Rückextraktion

Radionuklidlösung	ionische Flüssigkeit	pH-Werte	Extraktion [%]
Uranylacetat	[N1888][C6SAC]	2	---
		4	94 ± 1
		6	92 ± 1
		7	100 ± 1
		8	98 ± 1

7. Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit war es, die Flüssig-Flüssig-Extraktion für die Radionuklide Uran, Radium und Polonium mit fünf ionischen Flüssigkeiten zu untersuchen.

Zusammenfassend konnte festgestellt werden, dass Uran von den eingesetzten ionischen Flüssigkeiten, insbesondere den beiden Flüssigkeiten [P1888][C6SAC] und [N1888][C6SAC] sowie von [N1888][Ant] im pH-Bereich von 4 bis 7 vollständig extrahiert wird. Ebenso konnte gezeigt werden, dass bereits nach kurzen Reaktionszeiten zwischen 10 Minuten und 1 Stunde die maximale Extraktion erreicht wird. Für die Auslegung eines optimal gestalteten Prozesses ist diese Kenntnis von besonderer Bedeutung, um die Prozesszeit zu minimieren.

Die Versuchsergebnisse für Uranylacetat und Uranylnitrat ergaben einen signifikanten Einfluss des Anions auf die Extraktion. Die Beladungskurven von [P1888][C6SAC], [N1888][C6SAC] und [N1888][Ant] zeigen deutlich, dass im Falle von Uranylacetat die Aufnahme in die ionische Flüssigkeit deutlich höher ist als im Falle von Uranylnitrat.

Für die Beladung der ionischen Flüssigkeiten mit Uranylnitrat bzw. Uranylacetat konnten sehr hohe Werte erzielt werden. Für die ionische Flüssigkeit [C101][Ant] und Uranylnitrat konnte ein maximaler Urangehalt von 66 mol.% nachgewiesen werden. Im Gegensatz dazu wurden bei der ionischen Flüssigkeit [P1888][C6SAC] und [N1888][C6SAC] 33 mol.% und 30 mol.% erreicht. Bei Uranylacetat wurden unter Verwendung dieser beiden ionischen Flüssigkeiten 65 mol.% und 62 mol.% erreicht.

Für die Extraktion von Polonium konnten ähnlich gute Ergebnisse erzielt werden. Die Versuche zur Extraktion von Radium ergaben hingegen nur unzufriedenstellende Ergebnisse.

Um das Leaching-Verhalten der ionischen Flüssigkeiten in die wässrige Phase analysieren zu können, wurden die TOC- und TN-Werte gemessen. Hier wurden bei den untersuchten ionischen Flüssigkeiten sehr hohe Auslaugungen bis hin zu maximal 63% festgestellt, was den Einsatz dieser ionischen Flüssigkeiten zum Reinigen von Wässern unmöglich macht. Nur die ionische Flüssigkeit [N1888][HNBA] neigt zu einer geringen Auslaugung unterhalb von 6%.

Die Rückextraktion von Uran aus [N1888][C6SAC] lag im Bereich von 90...100% der extrahierten Radionuklide. Besonders vor dem Hintergrund, dass die ionische Flüssigkeit nicht zerstört und nach entsprechender Aufbereitung wieder einsatzfähig sein soll, ist dies ein wichtiges Resultat.

Literaturverzeichnis

- [1] H. Schild, T. Dumm: Atom- und Kernphysik, Elektromagnetismus – Lerntext, Aufgaben mit kommentierten Lösungen und Kurztheorien. 1. Auflage. Zürich: compendo Bildungsmedien. 2009. S. 63
- [2] Schweizerische Zentrum für angewandte Ökotoxikologie: Radionuklide in der Umwelt. Informationsblatt (2013). URL: http://www.oekotoxzentrum.ch/media/2239/2013_radionuklide_de.pdf
- [3] Lenntech: Gesundheitliche Auswirkungen von Uran. 18.06.2017. URL: <http://www.lenntech.de/pse/elemente/u.htm>
- [4] H. Bossel: Umweltwissen: Daten, Fakten, Zusammenhänge. Berlin: Springer-Verlag. 1990
- [5] J.M. Neles, C. Pistner: Kernenergie. Berlin: Springer-Verlag. 2012
- [6] E. Riedel, H.J. Meyer: Allgemeine und Anorganische Chemie. 11.Auflage. Berlin: Walter de Gruyter. 2013. S. 17
- [7] Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie: Thorium und Isotope. 8. Auflage. Berlin: Springer-Verlag. 1955
- [8] S.H. Stoker: General Organic and Biological Chemistry. 6. Auflage. Hampshire: Cengage Learning. 2012
- [9] A.G. Herrmann: Radioaktive Abfälle: Probleme und Verantwortung. Berlin: Springer-Verlag. 1983
- [10] GIT Laborpersonal: Ionische Flüssigkeiten. Zugriff: 01.04.2017. URL: <http://www.git-labor.de/forschung/chemie-physik/ionische-fluessigkeiten>
- [11] C.L. Comar, J.H. Rust: Natural Radioactivity in the biosphere and foodstuffs. In: Toxicants occurring naturally in foods. 2. Auflage. Washington D.C.: National Academy of Sciences. 1973
- [12] Jd Holbrey, Robin D. Rogers: Solubility and Solvation in Ionic Liquids. In: Ionic Liquids in Synthesis (Peter Wasserscheid, Tom Welton). (2003) pp. 89-102
- [13] H.W. Berg, J.F. Diehl: Rückstände und Verunreinigungen in Lebensmitteln – Eine Einführung für Studierende der Medizin, Biologie, Chemie, Pharmazie und Ernährungswissenschaften. Darmstadt: Dietrich Steinkopff Verlag. 1978. S. 26
- [14] J.F. Diehl: Radioaktivität in Lebensmitteln. Weinheim: Wiley Verlag. 2003. S.45ff.
- [15] GSF – Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit in der Helmholtz-Gemeinschaft: Hintergrundinformationen zu Polonium-210. Zugriff: 17.06.2017. URL: <http://www.analytik.ethz.ch/vorlesungen/radiochemie/Polonium.pdf>

- [16] P. Schwan: Der informierte Verbraucher? – Das verbraucherpolitische Leitbild auf dem Prüfstand. Eine Untersuchung am Beispiel des Lebensmittelsektors. Wiesbaden: Verlag für Sozialwissenschaften. 2009
- [17] S. Happel: Kernchemisches Grundpraktikum b-Spektrometrie. Skript. 08.07.2002. URL: <http://www.staff.uni-marburg.de/~kernchem/grundp/beta/beta.htm>
- [18] S. Happel: Kernchemisches Grundpraktikum a-Spektrometrie. Skript. 08.07.2002. URL: <http://www.staff.uni-marburg.de/~kernchem/grundp/alpha/alpha.htm>
- [19] N.N.: Ionische Flüssigkeiten. Zugriff: 02.07.2017. URL: http://ochemist.losttribesource.org/d_gruppe/referate/Ionische%20Fl%C3%BCsigkeiten_Petyo%20Ivanov.pdf
- [20] H. Hulpke, H.A. Koch, R. Nießner: Römpp Lexikon Umwelt. 2. Auflage. Stuttgart: Georg Thieme Verlag. 2000. S. 30
- [21] PerkinElmer: LSC Applikationsnote 16 – Cocktails für die Messungen im Szintillationszähler. Zugriff: 02.04.2017. URL: https://shop.perkinelmer.com/Content/ApplicationNotes/app_de-cocktails.pdf
- [22] K.E. Geckeler, H. Eckstein: Bioanalytische und biochemische Labormethoden. Wiesbaden: Springer Fachmedien. 1998. S. 91
- [23] Kurt E. Geckeler, Heiner Eckstein: Bioanalytische und biochemische Labormethoden. Wiesbaden: Springer Verlag. 1998
- [24] International Atomic Energy Agency: Uranium Extraction Technology. Vienna: Technical Reports Series No. 359. 1993. S. 109ff.
- [25] Universität für Bodenkultur Wien: Ionische Flüssigkeiten als Extraktionsmittel für Schwermetalle. Zugriff: 19.03.2017. URL: https://forschung.boku.ac.at/fis/suchen.projekt_uebersicht?sprache_in=de&menu_id_in=300&id_in=9112
- [26] Jan C. Kuschnerow: Ionische Flüssigkeiten als rezyklierbare Katalysatoren für die Umesterung. Cuvillier Verlag: Göttingen. 2013
- [27] Paul Walden: Molecular weights and electrical conductivity of several fused salts. Bull. Russian Acad. Sci. 1914. S. 405-422
- [28] Zeev Karpas: Analytical Chemistry of Uranium. London: CRC Press. 2015. S.10
- [29] Shimadzu: Measurement of TOC and TN in effluent using Shimadzu TOC-V combined with TN Unit. Zugriff: 15.04.2017. URL: <http://www.ssi.shimadzu.com/products/literature/env/C391E069.pdf>

- [30] Christoph Schimpp: Salze mit Triarylamin-funktionalisierten Borat- und Siliconat-Anionen für den Einsatz in farbstoffsensibilisierten Solarzellen. Dissertation. Universität Ulm. 2013
- [31] I. Grenthe, J. Drozdzyński, T. Fujino, E.C. Buck, T.E. Albrecht-Schmitt, S.F. Wolf: Uranium. In: L.R. Morss, N.M. Edelstein, J. Fuger (Hrsg.), *The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements*. Dordrecht: Springer-Verlag. 2006. S. 253-698
- [32] Rudolf Berka et al.: Erläuterungen zur geologischen Themenkarte. Radionuklide in Grundwässern, Gesteinen und Bachsedimenten Österreichs. Wien: Geologische Bundesanstalt. 2014
- [33] Anke Wohlers, Bernard J. Wood: A Mercury – like component of early Earth yields uranium in the core and high mantle ^{142}Nd . *Nature*, 520 (2015), S. 337-340
- [34] F. Cap: *Physik und Technik der Atomreaktoren*. Wien: Springer-Verlag. 1957. S. 251
- [35] W. Ternes: *Biochemie der Elemente – Anorganische Chemie biologischer Prozesse*. Berlin: Springer-Verlag. 2013. S.401
- [36] Orhan Sap: *Extraktion von Radionukliden aus natürlichen Wässern mittels ionischer Flüssigkeiten*. Masterarbeit. Universität Wien. 2014
- [37] Felix Machatschki: *Vorräte und Verteilung der mineralischen Rohstoffe*. Springer Verlag. 1948. S. 97
- [38] Adam Anderson: *Phonon-Based Position Determination in SuperCDMS iZIP Detectors*. In: *Journal of Low Temperature Physics*. 2013
- [39] J. Harrison, R. Leggett, D. Lloyd, A. Phipps, B. Scott: Polonium-210 as a poison. In: *Journal of Radiological Protection*, 27 (2007) pp. 17-40
- [40] Michaela Wilke: *Basiswissen Chemie*. Stuttgart: Hirzel Verlag. 2000
- [41] Sonja Platzer et al.: Task-specific thioglycolate ionic liquids for heavy metal extraction: Synthesis, extraction efficacies and recycling properties. In: *Journal of Hazardous Materials*, 324 (2017), pp. 241-249
- [42] Sonja Platzer et al.: Extraction of natural radionuclides from aqueous solutions by novel maltolate-based task-specific ionic liquids. In: *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, 303 (2015), pp. 2483-2488
- [43] Philip Pirkwieser: *Schwermetalleextraktion mithilfe von in Hohlfasern immobilisierten auf Aliquat 336 und Cyphos IL 101 basierten ionischen Flüssigkeiten*. Masterarbeit. Universität Wien. 2015

- [44] A. Berg: Verhalten von Kupfer(II)-Ionen in ionischen Flüssigkeiten. Bachelorarbeit. Berlin: Humboldt-Universität zu Berlin. 2013. S. 5
- [45] N.N.: LSC Principles. Zugriff: 25.04.2017. URL: [https://wiki.uio.no/mn/safe/nukwik/index.php/LSC Principles](https://wiki.uio.no/mn/safe/nukwik/index.php/LSC_Principles)
- [46] Bernd Kahn: Radioanalytical Chemistry. New York: Springer Verlag. 2007, S. 69
- [47] Andrew P. Abbott et al.: Processing of metals and metal oxides using ionic liquids. In: Green Chemistry, 3 (2011), pp. 471-481
- [48] Eckhart Müller, Rosemarie Berger, Eckhart Blass, Domien Sluyts, Andreas Pfennig: Liquid-Liquid Extraction. In: Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry (2008)
- [49] Dieter O. Hummerl: Aufgaben zur physikalischen Chemie mit Rechenweg und Lösungen. Berlin: Walter de Gruyter. 1989
- [50] Yang Dazhu, Zhu Yongjun: Rapid Method For Alpha Counting With Extractive Scintillator And Pulse Decay Analysis. In: Application Note (n.y.) Packard Instrument Company.
- [51] Andrew P. Abbott, Gero Frisch, Jennifer Hartley, Karl S. Ryder: Processing of metals and metal oxides using ionic liquids. In: Green Chemistry 13 (2011). pp. 471
- [52] Shimadzu: TOC-L – TOC-Analyzers. Zugriff: 03.08.2017. URL: <http://www.shimadzu.com/an/toc/lab/toc-l4.html>
- [53] Hubertus Murrenhoff: Umweltverträgliche Tribosysteme – Die Vision einer umweltfreundlichen Werkzeugmaschine. Heidelberg: Springer-Verlag. 2010. S. 65
- [54] Rechtsinformation des Bundes RIS: Gesamte Rechtsvorschrift für Trinkwasserverordnung, Fassung vom 11.12.2015. Zugriff: 02.07.2017. URL: https://www.verbrauchergesundheit.gv.at/lebensmittel/rechtsvorschriften/oestereich/TWV_Fassung_vom_11122015.pdf?5i80gc
- [55] B. Merkel, E.G. Dudel: Untersuchungen zur radiologischen Emission des Uran-Tailings Schneckenstein. Dresden: AG - Sächsisches Staatsministerium für Umwelt und Landesentwicklung. 1998
- [56] L.R. Morss, N.M. Edelstein, J. Fuger: The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements. 4. Auflage. Dordrecht: Springer-Verlag. 2010
- [57] Shimadzu: Applikations-Sammlung TOC – Version 2. Zugriff: 28.11.2017. URL: https://www.shimadzu.eu.com/sites/default/files/TOC_Applikations-Sammlung_14A_web.pdf

- [58] Wikipedia: Gesamter gebundener Stickstoff. Zugriff: 28.11.2017. URL: [https://de.wikipedia.org/wiki/Gesamter gebundener Stickstoff](https://de.wikipedia.org/wiki/Gesamter_gebundener_Stickstoff)
- [59] M. Habibi: Radionuclide Extraction by Ionic Liquids. Masterarbeit. Universität Wien. 2014
- [60] Sascha Hupach: Bestimmung des TNb – Norm EN 12260. In: LABOonline. Artikel vom 23.12.2014, 08:16. Zugriff: 06.12.2017. URL: <https://www.labo.de/reinstwasser-wasseranalytik/norm-en-12260--bestimmung-des-tn---b-----alle----stickstoffverbindungen-mit-einem-analysensystem-erfassen.htm>
- [61] Shimadzu: Whitepaper – Analytical and Measuring Instruments. Introducing a New ASTM Method for the Determination of Total Nitrogen, and TKN by Calculation, in Water Samples. URL: https://www.ssi.shimadzu.com/products/literature/toc/Shimadzu_NewTestMethodTotalNitrogenWater_ASTMD8083-16.pdf

Anhänge

Tabelle 10: pH-Wert abhängige Extraktion von UAC mit [N1888][C6SAC]

pH-Wert	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
2	85	58	32	41	52	41	52	45
4	88	1,2	99	1,2	99	1,5	98	99
6	88	0,9	99	0,7	99	0,5	99	99
7	66	1,5	98	0,8	99	1	98	98
8	85	6,5	93	4,4	94	8,3	90	92

Tabelle 11: pH-Wert abhängige Extraktion von UN mit [P1888][C6SAC]

pH-Wert	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
2	74	43	42	41	45	38	49	45
4	81	1,5	98	2,7	97	3,8	96	97
6	81	2	98	2	98	2	98	98
7	17	2	88	2	88	3	83	86
8	20	1,8	91	2	90	2	90	90

Tabelle 12: pH-Wert abhängige Extraktion von ^{234}Th mit [N1888][C6SAC]

pH-Wert	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
2	85	37	56	47	45	27	68	56
4	31	16	48	17	45	22	30	41
6	14	0,5	97	0,2	99	0,2	99	99
7	24	9,2	62	4,4	82	4,3	82	76
8	20	14	30	14	30	15	25	29

Tabelle 13: Vergleich der pH-Wert abhängigen Extraktion von Uran, ^{234}Th und ^{210}Po nur in [N1888][C6SAC]

pH-Wert	U in UAC [%]	^{234}Th [%]	^{210}Po [%]
2	45	56	96
4	99	41	93
6	99	99	97
7	98	76	---
8	92	29	---

Tabelle 14: pH-Wert abhängige Extraktion von ^{226}Ra mit [P1888][C6SAC]

pH-Wert	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
2	113	106	7	114	0	110	3	3
4	113	104	8	112	1	108	5	4
6	109	108	1	112	0	105	3	1
7	87	96	0	95	0	96	0	0
8	93	87	1	98	0	101	0	0

Tabelle 15: pH-Wert abhängige Extraktion von ²¹⁰Po mit [N1888][C6SAC]

pH-Wert	Spike	Referenz	Messwert
2	707	590	36
4	478	590	49
6	667	590	27

Tabelle 16: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [P1888][C6SAC]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	88	0,7	99	1,7	97	1,6	99	98
20	90	2,5	99	1,1	98	5,3	97	98
60	83	0,7	97	0,6	98	0,4	98	98
150	---	---	---	---	---	---	---	---
240	---	---	---	---	---	---	---	---

Tabelle 17: zeitabhängige Extraktion von UN mit [P1888][C6SAC]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	80	0,6	99	2,4	98	1,4	98	98
20	82	0,75	97	1,3	99	2,3	94	97
60	90	2,9	99	1,6	99	1,5	100	99
150	---	---	---	---	---	---	---	---
240	---	---	---	---	---	---	---	---

Tabelle 18: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [N1888][C6SAC]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	86	9,6	89	4,9	94	5,3	94	92
20	60	1	99	4,9	92	0,9	99	96
60	80	1,2	98	1	99	2,8	96	97
150	---	---	---	---	---	---	---	---
240	----	---	---	---	---	---	---	---

Tabelle 19: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][C6SAC]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	86	18,6	78	8,7	90	4,1	96	88
20	80	14,9	81	19,8	74	20,6	74	77
60	85	0,5	100	0,5	99	0,8	99	99
150	---	---	---	---	---	---	---	---
240	---	---	---	---	---	---	---	---

Tabelle 20: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][HNBA]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	242	141	42	125	48	70	71	54
20	223	106	52	118	47	118	47	49
60	88	6,3	93	27	68	33	62	75
150	234	103	56	60	74	83	64	65
240	236	14	94	30	87	65	72	84

Tabelle 21: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [N1888][HNBA]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	---	---	---	---	---	---	---	---
20	288	80	72	106	63	170	40	59
60	82	16	80	63	23	63	23	42
150	84	22	74	36	57	18	79	70
240	84	16	81	11	87	31	63	77

Tabelle 22: zeitabhängige Extraktion von UAC mit [N1888][Ant]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	84	6,7	93	6,9	96	1,9	96	95
20	84	1,1	99	1,4	98	1,6	98	98
60	82	1,9	98	2,3	97	2,4	97	98
150	82	0,9	98	0,6	97	0,7	97	97
240	82	1,9	98	1,2	99	0,8	99	99

Tabelle 23: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][Ant]

Schüttelzeit	Referenz	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
[min]	[cpm]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[%]
10	84	3,4	96	3	96	5,4	93	95
20	84	1,2	99	1,3	99	1,4	98	99
60	84	1,5	98	1,4	98	1,4	98	98
150	84	3	96	3	96	2	97	97
240	84	1,2	99	1	99	1	99	99

Tabelle 24: zeitabhängige Extraktion von UN mit [N1888][Ant]

Schüttelzeit [min]	UAC																UN															
	[P1888] [C6SAC]				[N1888] [C6SAC]				[N1888] [Ant]				[N1888] [HNBA]				[P1888] [C6SAC]				[N1888] [C6SAC]				[N1888] [Ant]				[N1888] [HNBA]			
	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø
10	99	97	99	98	89	94	94	92	93	96	96	95	---	---	---	---	99	98	98	98	78	90	96	88	96	96	93	95	42	48	71	54
20	99	98	97	98	99	92	99	96	99	98	98	98	72	63	40	59	97	99	94	97	81	74	74	77	99	99	98	99	52	47	47	49
60	97	98	98	98	98	99	96	97	98	97	97	98	80	23	23	42	99	99	100	99	100	99	99	99	98	98	98	98	98	68	62	75
150	---	---	---	---	---	---	---	---	98	97	97	97	74	57	79	70	---	---	---	---	---	---	---	---	96	96	97	97	56	74	64	65
240	---	---	---	---	---	---	---	---	98	99	99	99	81	87	63	77	---	---	---	---	---	---	---	---	99	99	99	99	94	87	72	84

Tabelle 25: Beladung von [N1888][Ant] mit UN

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	∅	1	2	3	∅	1	2	3	∅
332	47	30	32	334	47	30	32	36	143	151	150	148	86	91	90	89
658	353	330	338	663	350	327	335	337	154	165	161	160	47	50	49	49
925	582	552	590	937	577	547	585	570	174	189	170	178	38	41	37	39
1288	932	971	950	1300	924	962	942	943	182	163	173	173	28	25	27	27

Tabelle 26: Beladung von [N1888][Ant] mit UAC

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	∅	1	2	3	∅	1	2	3	∅
312	2,4	1	1,5	324	2	1	1	2	155	156	155	155	99	100	100	99
624	137	112	125	648	133	109	121	121	245	258	251	251	79	83	81	81
889	301	305	236	912	293	296	229	273	298	296	330	308	68	67	74	69
1198	420	479	488	1238	466	474	408	449	366	362	395	374	61	60	66	62

Tabelle 27: Beladung von [N1888][HNBA] mit UN

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	∅	1	2	3	∅	1	2	3	∅
332	71	61	80	337	70	60	79	70	125	125	120	123	79	82	76	79
678	273	320	227	696	271	317	225	271	179	175	189	181	60	53	67	60
1017	596	589	632	1033	591	584	626	600	194	191	184	190	42	43	38	41
1248	966	1017	932	1256	958	1008	924	963	134	119	155	136	23	19	26	23

Tabelle 28: Beladung von [N1888][HNBA] mit UAC

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	∅	1	2	3	∅	1	2	3	∅
605	140	146	117	626	136	142	114	131	226	227	229	227	78	77	81	78
824	458	474	404	846	445	461	393	433	187	167	190	182	46	44	52	47
1123	737	768	815	1149	716	746	792	752	197	174	161	177	36	34	30	33
1420	1018	1101	1088	1470	989	1070	1057	1039	191	169	178	179	30	25	26	27

Tabelle 29: Beladung von [P1888][C6SAC] mit UAC

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	∅	1	2	3	∅	1	2	3	∅
312	85	68	37	975	30	25	14	23	140	115	125	126	90	92	96	93
624	400	534	750	2139	140	180	253	191	229	196	161	195	76	72	60	69
908	1029	1400	1222	2805	349	473	412	411	270	214	244	243	62	48	55	55
1248	1770	1988	1860	3977	597	670	645	637	287	286	296	289	52	47	48	49

Tabelle 30: Beladung von [P1888][C6SAC] mit UN

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	∅	1	2	3	∅	1	2	3	∅
325	172	122	158	1000	57	40	53	50	128	120	127	125	82	87	84	85
650	880	1150	1160	2020	293	383	353	343	161	126	128	138	55	41	46	47
975	1770	2020	2035	2995	590	673	678	647	149	146	144	146	39	31	30	34
1231	2770	2880	2990	3800	923	960	997	960	124	106	100	110	25	22	19	22

Tabelle 31: Beladung von [N1888][C6SAC] mit UN

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø
348	330	260	225	1058	109	86	74	90	119	105	115	113	69	75	79	74
661	1027	1140	1084	2067	339	380	361	361	154	126	132	136	49	43	45	45
1013	2214	2220	2200	3067	732	734	727	731	137	136	139	137	28	28	28	28
1308	3094	3200	3124	3964	1023	1058	1032	1038	124	122	133	127	22	19	22	21

Tabelle 32: Beladung von [N1888][C6SAC] mit UAC

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]				C _e [mg/L]				Q _e [mg/g]				Extraktion in die IL [%]			
	1	2	3	Ref	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø	1	2	3	Ø
312	17,5	12,2	12,4	969	6	4	4	5	130	144	131	135	98	99	99	99
624	234	640	251	1940	76	207	81	121	217	196	221	212	88	67	87	81
936	860	1100	1100	2913	279	356	356	330	290	290	288	289	70	62	62	65
1236	1630	1600	1730	3810	528	518	560	536	311	300	308	306	57	58	55	57

Tabelle 33: Beladung von [C101][Ant] mit UN

C ₀ [mg/L]	Messdaten [cpm]	C _e [mg/L]	Q _e [mg/g]	Extraktion in die IL [%]
39	12	5	17	88
58	5	2	28	97
77	70	27	25	65
96	140	55	21	43
144	203	79	32	45
192	308	119	37	38
632	1110	474	79	25
842	1464	573	135	32
1053	1509	590	232	44
1264	2329	910	177	28
1474	2600	1017	229	31
1685	3000	1179	253	30

Tabelle 34: Rückextraktion [N1888][C6SAC] mit UAC

pH-Wert	Referenz [cpm]	Extraktion Messwert 1		Extraktion Messwert 2		Extraktion Messwert 3		Extraktion Ø [%]
		[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	[cpm]	[%]	
2	290	170	43	100	65	58	80	63
4	280	56	80	60	79	50	81	80
6	293	52	82	54	81	56	81	81
7	220	47	79	53	76	54	75	77
8	290	51	82	51	82	49	83	82

Tabelle 35: Leaching für die TOC- und TN-Messung von [N1888][Ant]

Radionukidlösung MW=504,48	Konzentration [µl]	TOC [mg/L]	TN [mg/L]
HAC	10	15,9	1,00
HAC	100	23,5	1,46
HAC	1000	37,1	1,99
UAC	10	14,7	1,03
UAC	100	16,3	0,69
UAC	1000	36,7	1,28

Tabelle 36: Leaching für die TOC- und TN-Messung von [N1888][HNBA]

Radionukidlösung MW=550,83	Konzentration [µl]	TOC [mg/L]	TN [mg/L]
HAC	10	2,9	0,29
HAC	100	9,1	0,74
HAC	1000	12,1	0,46
UAC	10	5,3	0,49
UAC	100	10,1	0,40
UAC	1000	18,7	0,24

Tabelle 37: Leaching für die TOC- und TN-Messung von [C101][Ant]

Radionukidlösung MW=619,99	Konzentration [µl]	TOC [mg/L]	TN [mg/L]
HAC	10	5,3	0,53
HAC	100	7,8	0,61
HAC	1000	14,3	0,59
UAC	10	7,5	0,50
UAC	100	22,6	0,27
UAC	1000	13,3	0,16

Tabelle 38: Leaching für die TN-Messung von [N1888][C6SAC]

Radionuklidlösung MW=519,00	Konzentration [μl]	TN [mg/L]
HAC	10	3,5
HAC	100	6
HAC	1000	8,6
UAC	10	3,4
UAC	100	4,4
UAC	1000	6,6