

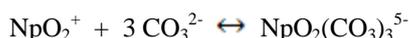
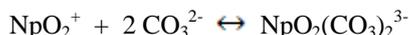
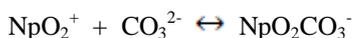
Untersuchung und Vergleich der Mobilitäten von Np(V)-Carbonat mit Hilfe der CE-ICP-MS

A. Gehl, N. Stöbener, U. Kaplan, S. Amayri, J. Drebert, T. Reich
 Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Germany

Einleitung:

Da das radiotoxische Isotop ^{237}Np eine Halbwertszeit von $2,14 \cdot 10^6$ Jahren besitzt, erfordert seine Endlagerung einen sicheren Verschluss für mehrere Millionen Jahre. Zur Zeit ist geplant, die Endlagerung radioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen durchzuführen. Hierfür ist es notwendig, das geochemische Verhalten dieses Radionuklides zu verstehen.[1] In wässriger Lösung ist Np(V) unter oxidischen Bedingungen die dominierende Spezies und besitzt als NpO_2^+ die größte Mobilität.[2] Die Speziation spielt eine wichtige Rolle, weil die mit zunehmendem pH-Wert stärker ausgeprägte Komplexbildung des Neptuniums durch Carbonationen einen starken Einfluss auf das Sorptionsverhalten besitzt.[3,4] Ziel der vorliegenden Arbeit war es, die Mobilitäten und die daraus berechenbaren Komplexbildungskonstanten von Np(V)-Carbonat in Abhängigkeit verschiedener chemischer Parameter unter Verwendung zweier unterschiedlicher Kapillarelektrophorese(CE)-Apparaturen zu ermitteln und mit Literaturwerten zu vergleichen.

Bei der Komplexbildung laufen folgende Reaktionen ab:



Experimentelles:

Die Untersuchung von $^{237}\text{Np(V)}$ -Carbonat [$4 \cdot 10^{-8}$ M] wurde in Abhängigkeit unterschiedlicher pH-Werte (s. Tab. 1) unter atmosphärischen Bedingungen bei einer Ionenstärke von 0,37 mol/kg durchgeführt.[5] Die verwendeten CE-Geräte waren zum Einen der Eigenbau einer CE nach Plänen von B. Kuczewski am Institut für Kernchemie der Universität Mainz und eine kommerzielle CE (CE 7100, Agilent Technologies, USA), Die beiden angeführten CE-Geräte wurden jeweils mit einer ICP-MS (7500ce ICP-MS, Agilent Technologies, USA) gekoppelt. Der dabei eingesetzte Zerstäuber (Burgener, Mira Mist CE, Canada) wurde ebenfalls bei beiden Kopplungen verwendet. Zur Einstellung der geforderten pH-Werte des Background-Elektrolyten 0,1 M Na_2CO_3 wurden die gleichen Puffer benutzt, die in der Vergleichsliteratur angegeben wurden.[5]

Ergebnisse:

Abbildung 1 zeigt den Verlauf der Mobilitäten in Abhängigkeit des pH-Wertes.

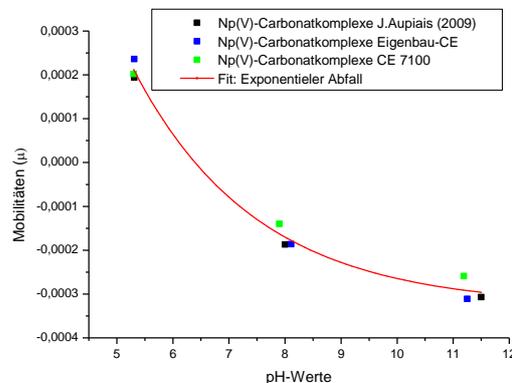


Abb. 1: Abhängigkeit der Mobilität vom pH-Wert

Tab. 1: Vergleich [5] mit den Ergebnissen der Eigenbau-CE und der CE 7100:

Parameter (Literatur [5])		Parameter (CE-Eigenbau)		Parameter (CE 7100)	
pH	μ	pH	μ	pH	μ
5,31	1,94E+04 ±5E+03	5,53	2,36E-04 ±3,7E-06	5,3	2,02E-04 ±3,9E-06
8	-1,87E+04 ±9E+03	8,11	-1,86E-04 ±6,5E-06	7,9	-1,40E-04 ±7,5E-06
11,5	-3,07E+04 ±3,9E+03	11,2	-3,11E-04 ±1,3E-06	11,2	-2,59E-04 ±2,7E-06

Die Mobilitäten für Np(V)-Carbonat zeigen eine gute Übereinstimmung mit den Literaturwerten. Dies gilt sowohl für die Bestimmungen mit Hilfe der CE 7100 als auch mit dem CE-Eigenbau bestimmter Np(V)-Mobilitäten.[5] Von wesentlichem Vorteil bei der kommerziellen CE 7100 ist die bessere Thermostatisierung der Kapillare während der Messung. Dies ist mit dem Eigenbaugerät nicht möglich.

Danksagung:

Diese Arbeit wurde durch das Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie unterstützt (Förderkennzeichen 02E10981).

Literatur:

- [1] BGR Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Endlagerung radioaktiver Abfälle, Hannover/Berlin, April 2007
- [2] K.H. Lieser, U. Mühlenweg, Radiochim. Acta, 43, **1988**, 27-35
- [3] D.R. Fröhlich, S. Amayri, J. Drebert, T. Reich, Radiochim. Acta, **2011**, 99, 71-77
- [4] S. Amayri, A. Jermolajev, T.Reich, Radiochim. Acta: 99, 6, 349-357
- [5] S. Topin, J. Aupiais, P. Moisy, Electrophoresis, 30, **2011**, 1747-1755

