

Ultrafiltrations-Untersuchungen zur Komplexierung von Np(V) in einem Gorleben-Grundwasser / Sediment-System

A. Seibert¹, R. Artinger², H. Keller¹, J.I. Kim², J.V. Kratz¹, C. Marquardt², N. Trautmann¹

¹Institut für Kernchemie, Universität Mainz

²Institut für Nukleare Entsorgungstechnik, FZ Karlsruhe

Die Mobilität von Metall-Huminstoff-Kolloiden lässt sich in Durchlauf-Säulenversuchen bestimmen. Für die Untersuchung des Neptuniums war ein huminstoff-reicheres Grundwasser (GoHy-532) aus dem Aquifer-System, das den geplanten Endlager-Standort Gorleben überlagert, ausgewählt worden. Als Sediment wurde ein äolischer Fein- bis Mittelsand aus demselben geologischen Bereich verwendet [1,2]. Parallel zu den schon früher beschriebenen Säulenversuchen [2] wurden außerdem Ultrafiltrationsexperimente an den Aufgabe- und Elutionslösungen der Säulenversuche durchgeführt. Mit diesen ließ sich zeigen, dass Größenausschlusseffekte bei der Migration eine Rolle spielen. Abbildung 1 zeigt die Größenverteilung des Neptuniums in den eluierten Fraktionen im Vergleich zur Aufgabelösung. Man findet eine Abhängigkeit vom Elutionsvolumen: in frühen Elutionsfraktionen findet sich das Neptunium an größere Teilchen gebunden als in späteren Fraktionen. Gegenüber der Ausgangslösung zeigt sich, dass in den Eluaten kein freies Neptunium in Porengrößen zwischen 1 kD und 30 kD zu finden ist.

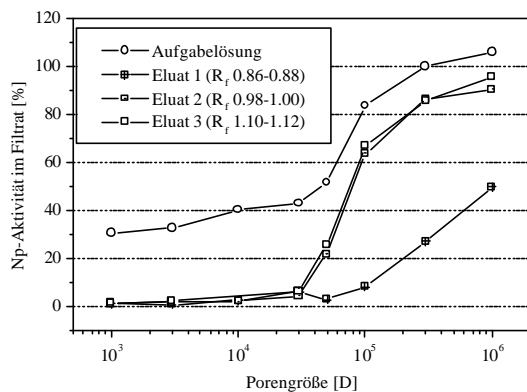


Abbildung 1: Ultrafiltration der Eluate in einem Säulenversuch; 10^{-5} mol/l Np.

Dass die migrierende Spezies tatsächlich huminstoffgebundenes Neptunium ist, legt der Vergleich der Größenverteilung der Eluate mit der Größenverteilung des gelösten organischen Kohlenstoffgehaltes (DOC) des konditionierten Grundwassers, der mittels eines TOC-Analysators bestimmt wurde, nahe. Beide Größenverteilungen ähneln sich stark. Zum Vergleich ist in Abbildung 2 auch das Ergebnis der Ultrafiltration der Aufgabelösung dargestellt, die einen deutlich höheren Anteil an freiem (nicht kolloid-gebundenem) Neptunium aufweist. Die mit Hilfe der UV/Vis-Spektroskopie und verschiedenen oxidationsstufenselektiven Extraktionsexperimenten nachgewiesene Reduktion des

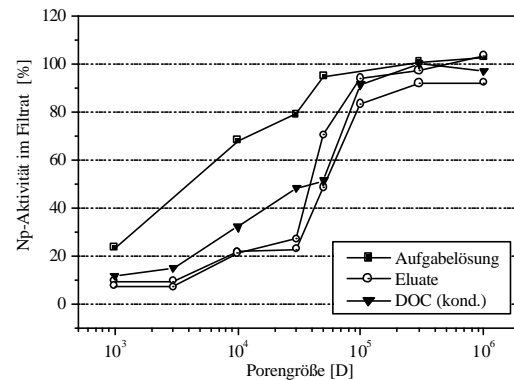


Abbildung 2: Ultrafiltration von Aufgabelösung (ausgefüllte Quadrate) und Eluaten (gepunktete Kreise) eines Säulenexperimentes (9×10^{-9} mol/l Np); die Größenverteilung des DOC ist durch die ausgefüllten Dreiecke angegeben.

fünfwertigen Neptuniums in die vierwertige Stufe, die bei längerer Reaktionszeit zwischen Neptunium und Grundwasser vor Aufgabe auf die Säule auftrat [2], spiegelt sich auch in den Ultrafiltrationsexperimenten wieder. Der Anteil an freiem Neptunium, das ungehindert durch die Filtermembran läuft, nimmt innerhalb der Beobachtungszeit von 8 Tagen von 60 % auf < 5 % ab (Abbildung 3); dies wird auf die größere Komplexierungsstärke des Np(IV) zurückgeführt.

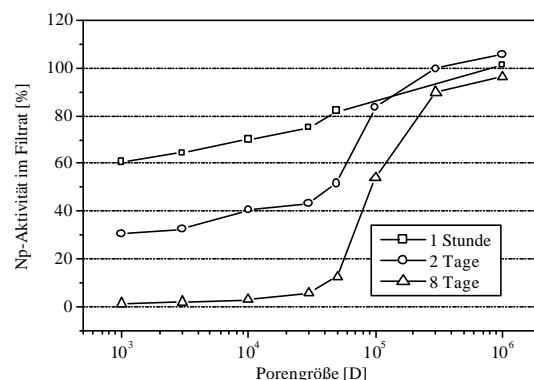


Abbildung 3: Ultrafiltrationen einer Aufgabelösung zu verschiedenen Reaktionszeiten; 10^{-5} mol/l Np.

Literatur:

- [1] R. Artinger et al., J. Contam. Hydrol. **35**, 261 (1998)
- [2] A. Seibert et al., Jahresbericht 1998, S. 55