

Sorptionsversuche mit Neptunium an konditioniertem Na-Montmorillonit

Sonja Dierking¹, Víctor Vicente Vilas¹, Bart Baeyens², Tobias Reich¹

¹Institut für Kernchemie, Universität Mainz, D-55099 Mainz

²Paul Scherrer Institut (PSI), CH-5232 Villigen PSI

Zur Risikoabschätzung und bei der Bewertung verschiedener Verfüllmaterialien hinsichtlich ihrer Eignung für nukleare Endlager muss das Sorptions- und Migrationsverhalten der Radionuklide darin sowie im potenziellen Wirtsgestein und im Aquifer bekannt sein. Nach ca. 1000 Jahren Lagerzeit wird die Radiotoxizität der aktiven Abfälle besonders von den Actiniden Pu, Am, Th und auch Np dominiert [1]. Als Teil der technischen Barriere wird u.a. Bentonit wegen seiner Plastizität, Quellfähigkeit, geringen Permeabilität und großen spezifischen Oberfläche in vielen europäischen Endlagerkonzepten berücksichtigt. Dessen Hauptbestandteil ist Montmorillonit, ein Phyllosilikat, das aus je einer oktaedrischen AlO_6 -Schicht besteht, die zwischen zwei tetraedrischen SiO_4 -Lagen eingebettet ist. Die effektive Sorption für die o.g. Radionuklide wird primär durch den pH-Wert der umgebenden Lösung bestimmt [2].

In Kooperation mit dem PSI wurde der STx-1 Montmorillonit gereinigt und konditioniert [3]. Nach Isolation der Fraktion $<0.5 \mu\text{m}$ wurde der STx-1 in die homoionische Na-Form überführt und mit $0,1 \text{ M NaClO}_4$ -Lösung ins Gleichgewicht gebracht. Die Kationenaustauschkapazität wurde mittels der ^{134}Cs Isotopenverdünnungsmethode bestimmt [4]. Mit dieser Messung konnte eine Veränderung der Sorptionseigenschaften des Montmorillonits durch die Reinigungsprozedur ausgeschlossen werden.

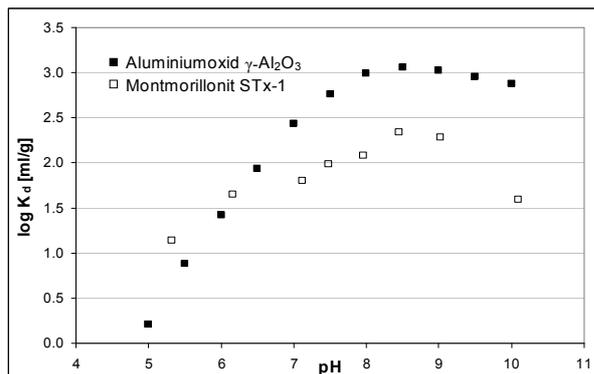


Abb. 1: Sorptionskoeffizienten an $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ($\text{Np(V)} = 9,4 \cdot 10^{-6} \text{ M}$) und Montmorillonit STx-1 ($\text{Np(V)} = 1,1 \cdot 10^{-5} \text{ M}$). Vergleich der Experimente an Luft bei Ionenstärke $0,1 \text{ M NaClO}_4$.

Erste Batchexperimente mit Np(V) im mikromolaren Konzentrationsbereich zeigten die pH-Abhängigkeit der Sorption; die ermittelten Sorptionskoeffizienten sind deutlich niedriger als beim γ -Aluminiumoxid (Abb. 1), was auf eine selektive Sorption des Neptuniums an den AlOH -Bindungsplätzen hinweist. Die Abnahme der Sorption im hohen pH-Bereich unter atmo-

sphärischem CO_2 -Partialdruck deutet auf eine Komplexierung des Neptuniums in der Lösung durch Carbonate hin, wie sie z.B. für Np(V) und U(VI) bei anderen Tonmineralen [5-7] und auch bei der Referenzsubstanz $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ beobachtet wurde [8]. Insgesamt stimmen die gemessenen Werte gut mit Literaturdaten für Montmorillonit überein [9, 10].

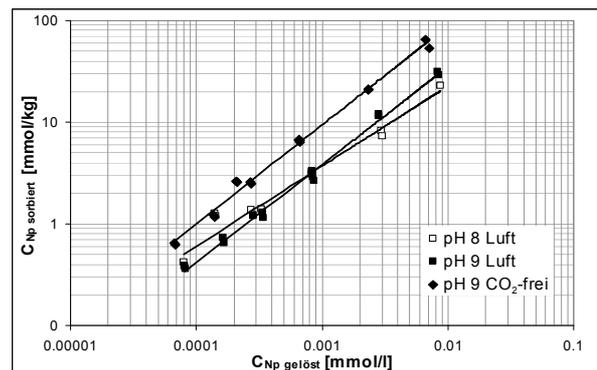


Abb. 2: Sorptionsisothermen von Np(V) am Montmorillonit STx-1 bei pH 8 und 9 an Luft sowie CO_2 -frei bei Ionenstärke $0,1 \text{ M NaClO}_4$.

Im Weiteren wurden Informationen über den Verlauf der konzentrationsabhängigen Sorption (Isothermen) bei konstantem pH-Wert gewonnen (Abb. 2). Beim Vergleich mit dem in Abwesenheit von CO_2 durchgeführten Versuchen ist eine Verschiebung der Geraden zu niedrigen Sorptionswerten hin zu beobachten, die den Einfluss der Komplexierung von Np(V) durch Carbonate in der Lösung in diesem pH-Bereich belegt.

Literatur

- [1] Nagra. Project Opalinus Clay: Safety Report. NTB 02-05, 2002.
- [2] F. Scheffer, P. Schachtschabel. Lehrbuch der Bodenkunde, 1992.
- [3] B. Baeyens, M.H. Bradbury. J. Cont. Hydr. 27: 199, 1997.
- [4] B. Baeyens, M.H. Bradbury. Clays & Clay Min. 52: 421, 2004.
- [5] G. Bernhard et al. Radiochim. Acta 89: 511, 2001.
- [6] S. Amayri et al. Jahresbericht 2003, Institut für Kernchemie: C2, 2004.
- [7] A. Jermolajev et al. Jahresbericht 2005, Institut für Kernchemie: C5, 2006.
- [8] S. Dierking et al., dieser Bericht.
- [9] D. Turner et al. Clays & Clay Min. 46(3): 256, 1998.
- [10] F.P. Bertetti et al. in: E.A. Jenne (ed.). Adsorption of Metals by Geomedia: 131, 1998.

Diese Arbeit wird finanziert durch das interdisziplinäre Graduiertenkolleg 826 der DFG sowie das Joint Research Project JRP 05-22 des Network of Excellence ACTINET.