

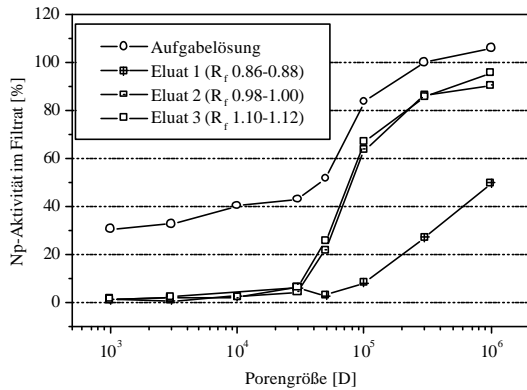
## Ultrafiltrations-Untersuchungen zur Komplexierung von Np(V) in einem Gorleben-Grundwasser / Sediment-System

A. Seibert<sup>1</sup>, R. Artinger<sup>2</sup>, H. Keller<sup>1</sup>, J.I. Kim<sup>2</sup>, J.V. Kratz<sup>1</sup>, C. Marquardt<sup>2</sup>, N. Trautmann<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institut für Kernchemie, Universität Mainz

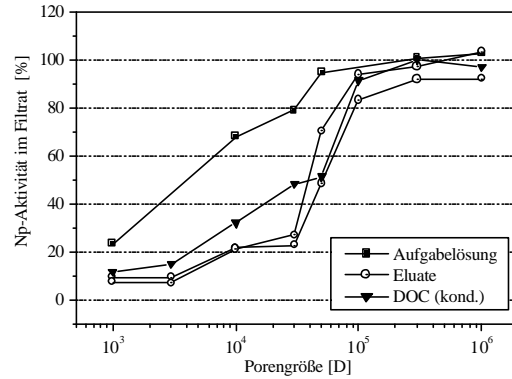
<sup>2</sup>Institut für Nukleare Entsorgungstechnik, FZ Karlsruhe

Die Mobilität von Metall-Huminstoff-Kolloiden lässt sich in Durchlauf-Säulenversuchen bestimmen. Für die Untersuchung des Neptuniums war ein huminstoffreicheres 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.



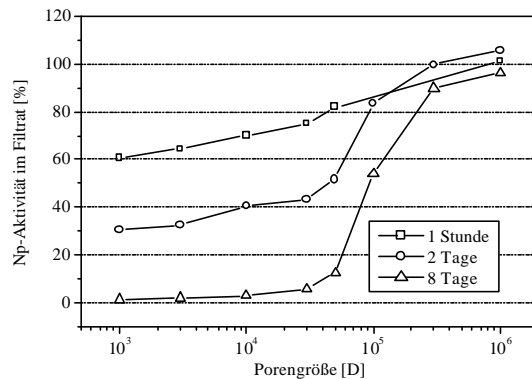
**Abbildung 1:** Ultrafiltration der Eluate in einem Säulenversuch;  $10^{-5}$  mol/l Np.

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 ( $9 \times 10^{-9}$  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