

# Untersuchung der Reduktion von Plutonium(VI) durch Aldrich- und Gorleben-Huminsäure mit CE-ICP-MS

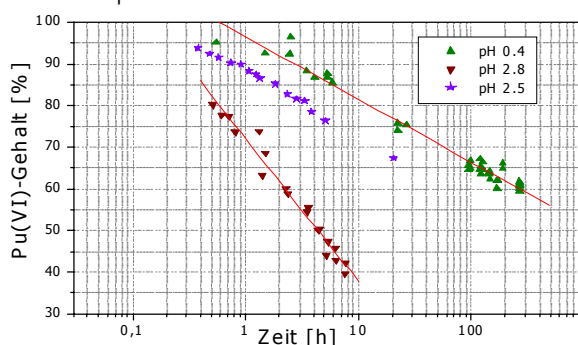
B. Kuczewski<sup>1</sup>, R. Artinger<sup>2</sup>, H. Geckes<sup>2</sup>, J. I. Kim<sup>2</sup>, J. V. Kratz<sup>1</sup>, C. Marquardt<sup>2</sup>,  
A. Seibert<sup>2</sup>, N. Trautmann<sup>1</sup>

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

<sup>2</sup> Institut für Nukleare Entsorgung, Forschungszentrum Karlsruhe

Mit der neu entwickelten Trennung der verschiedenen Oxidationsstufen des Plutoniums mit Hilfe von CE-ICP-MS [1] konnten Untersuchungen an Realproben durchgeführt werden. Anknüpfend an früheren Arbeiten zum Redoxverhalten von Pu(VI) in Gegenwart von Huminsäure [2] wurde nun der zeitliche Verlauf des Gehaltes der verschiedenen Oxidationsstufen bestimmt.

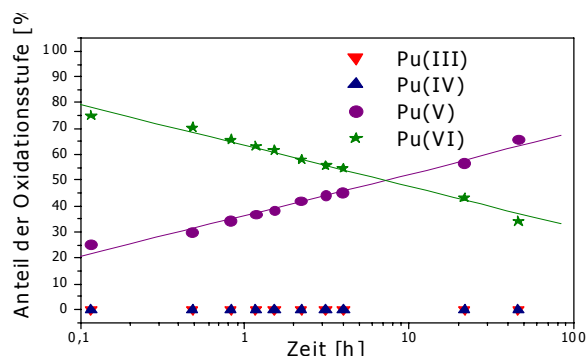
Analog zu den schon durchgeführten Versuchen wurde eine Lösung von Aldrich-Huminsäure (10 mg/l) mit einer Pu(VI)-Stammlösung versetzt und mit 1 M Natronlauge auf einen pH-Wert von 2,5 eingestellt. Die Plutoniumkonzentration betrug dabei 50 µmol/l.



**Abbildung 1:** Zeitlicher Verlauf des Pu(VI)-Gehaltes einer Aldrich-Huminsäurelösung (UV-Spektroskopie)

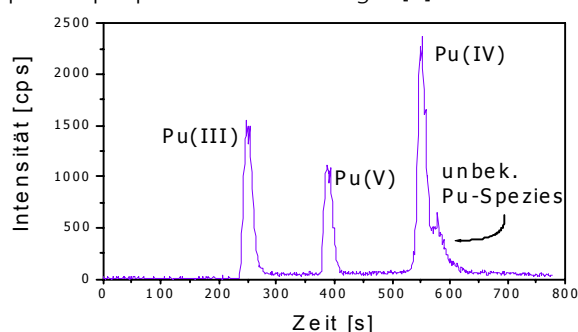
Diese Lösung wurde geteilt und zum Einen fortlaufend mit UV-Spektroskopie auf ihren Pu(VI)-Gehalt hin untersucht (830 nm Linie). Der andere Teil wurde regelmäßig mit der CE-ICP-MS untersucht, wobei der Gehalt aller Oxidationsstufen gleichzeitig bestimmt werden konnte. Die Proben für die Untersuchung wurden direkt aus der huminsäurehaltigen Lösung aufgegeben.

Abbildung 1 zeigt die Ergebnisse der UV-spektros-



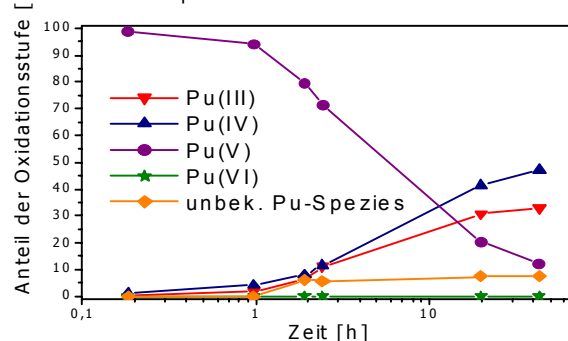
**Abbildung 2:** Zeitlicher Verlauf der verschiedenen Oxidationsstufen des Plutoniums gemessen mit der CE-ICP-MS (Pu(VI)-Lösung und Aldrich-Huminsäure)

kopischen Messungen. In Abbildung 2 ist der mit CE-ICP-MS bestimmte zeitliche Verlauf des Anteils der verschiedenen Oxidationsstufen des Plutoniums aufgetragen. Es zeigt sich, daß unter diesen Bedingungen Pu(VI) zu Pu(V) reduziert wird. Andere Spezies sind in den Elektropherogrammen nicht nachweisbar (< 0,5%). Die Übereinstimmung der Ergebnisse zwischen UV-Spektroskopie und CE ist sehr gut [1].



**Abbildung 3:** Elektropherogramm einer Gorlebensgrundwasserprobe 20,2 h nach Zugabe von Pu(VI)

In einem weiteren Versuch wurde das Pu(VI) zu Gorlebensgrundwasser (GoHy532) gegeben. Der pH-Wert wurde mit 1 M NaOH auf 1,7 eingestellt. Abbildung 3 zeigt ein Elektropherogramm einer Gorlebensgrundwasserprobe, Abbildung 4 den zeitlichen Verlauf des Anteils der verschiedenen Oxidationsstufen. Das Pu(VI) hat sich sofort nach dem Kontakt in Pu(V) umgewandelt, aus dem sich dann Pu(IV) und Pu(III) bilden. Zusätzlich beobachtet man eine weitere, bislang noch nicht näher bestimmte Pu-Spezies in den Proben.



**Abbildung 4:** Zeitlicher Verlauf der verschiedenen Oxidationsstufen des Plutoniums in Gorlebensgrundwasser nach Zugabe von Pu(VI)

Literatur:

- [1] B.Kuczewski et. al.; dieser Jahresbericht.
- [2] B.Kuczewski et. al.; Institut für Kernchemie, Universität Mainz, Jahresbericht 2000, C2.