

# ***pH-Abhängigkeit der Reduktion von Plutonium(VI) durch Gorleben - Grundwasser***

*B. Kuczewski<sup>1</sup>, R. Artinger<sup>2</sup>, H. Geckeis<sup>2</sup>, J. V. Kratz<sup>1</sup>,  
C. M. Marquardt<sup>2</sup>, A. Seibert<sup>2</sup>, N. Trautmann<sup>1</sup>*

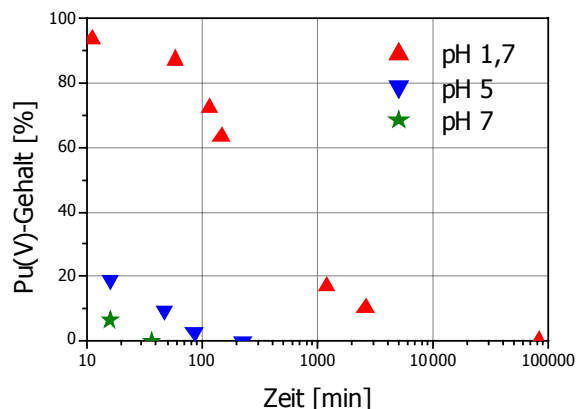
<sup>1</sup> Institut für Kernchemie, Universität Mainz

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

Für die Vorbereitung von Säulenversuchen zur Untersuchung des Wanderungsverhaltens von Plutonium unter naturnahen Bedingungen wurden weitere Batchversuche mit Plutonium und Gorleben - Grundwasser durchgeführt. Die Bestimmung der Oxidationsstufen des freien Plutoniums erfolgte dabei mit CE-ICP-MS [1]. Besonderes Interesse galt der Abhängigkeit der Reduktion vom pH-Wert. Bereits in früheren Versuchen konnte bei einem pH-Wert von 1,7 eine schnelle Reduktion von Pu(VI) über Pu(V) zu Pu(IV) und Pu(III) beobachtet werden [2].

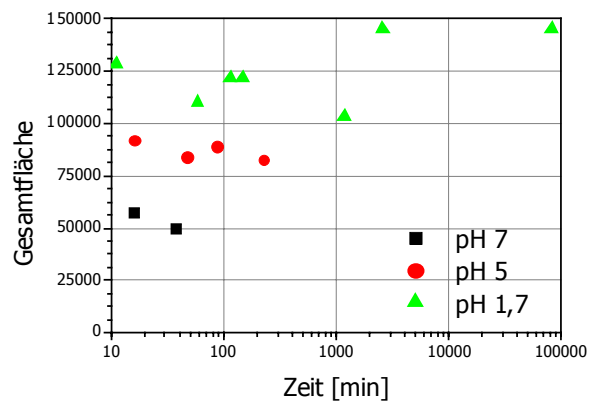
Bei weiteren Messungen mit Pu(VI) in Gorleben - Grundwasser bei pH 1,7 wurde nach mehr als 1000 Stunden Kontaktzeit nur noch Pu(IV) und Pu(III) nachgewiesen. Das Pu(V) wurde in diesem Zeitraum vollständig reduziert.

Weitere Versuche mit höheren pH-Werten lieferten folgende Ergebnisse. 1. Die Reduktionsgeschwindigkeit wird weiter erhöht. 2. Die Reduktion läuft über dieselben Stufen ab, wie bei pH 1,7. Den zeitlichen Verlauf am Beispiel des Pu(V) Gehaltes in Abhängigkeit vom pH-Wert zeigt Abbildung 1.



**Abbildung 1:** Zeitlicher Verlauf des Pu(V)-Gehaltes nach dem Kontakt von Pu(VI) mit Gorleben-Grundwasser in Abhängigkeit vom pH-Wert.

3. Es treten verstärkt Spezies auf, die unter den Trennbedingungen an der FS-Kapillare retardiert werden. Bei höheren pH-Werten der Probe (pH 5 und 7) muß die Bildung von Hydrolysespezies berücksichtigt werden. Werte für den Anteil der gesamten freien Ionen des Plutoniums zeigt die Abbildung 2.



**Abbildung 2:** Anteil des gesamten freien, nicht hydrolysierten Plutoniums nach dem Kontakt von Pu(VI) mit Gorleben-Grundwasser in Abhängigkeit von Zeit und pH-Wert

Die Hydrolysespezies können mit einem speziellen Spülschritt nach der Trennung vollständig von der CE-Kapillare eluiert werden.

Für die Säulenversuche konnte mit diesen Ergebnissen gezeigt werden, daß eine Aufgabe von Pu(VI) oder Pu(V) nur von geringem Interesse ist, da beide Oxidationsstufen bei einem pH-Wert von 7, der für Gorleben - Grundwasser typisch ist, in kürzester Zeit reduziert werden (30 - 45 min).

## Literatur:

[1] B. Kuczewski et al.; Institut für Kernchemie, Universität Mainz, Jahresbericht 2001, C4.

[2] B. Kuczewski et al.; Institut für Kernchemie, Universität Mainz, Jahresbericht 2001, C5.