

Sorption von Np(V) an Opalinuston unter aeroben/anaeroben Bedingungen und Berücksichtigung von Huminsäure

D. Fröhlich, M. Lübke, S. Amayri, J. Drebert, T. Reich

Institut für Kernchemie, Johannes Gutenberg-Universität, D-55128 Mainz, Germany

Viele Studien haben gezeigt, dass organische Moleküle einen deutlichen Effekt auf das Sorptionsverhalten von Radionukliden haben.^[1] Bei der Sicherheitsbetrachtung und Planung eines Endlagers für hoch radioaktive Abfälle müssen daher unbedingt organische Substanzen, die beispielsweise im Boden und auch in Tonen wie dem Opalinuston (OPA), die als mögliches Wirtsgestein diskutiert werden, vorkommen berücksichtigt werden.

Als Modellschubstanz zur Untersuchung dieser Effekte diente in dieser Studie synthetische C-14-markierte Huminsäure (HS) vom Typ [¹⁴C]M42 verwendet.^[2] Die pH-Abhängigkeit der Sorption von Np(V) an OPA (15 g/l) wurde bei verschiedenen Np-Konzentrationen (8 µM und 7 pM) in An- und Abwesenheit von HS (10 mg/l) sowohl unter aeroben als auch anaeroben Bedingungen untersucht.

Die Np-Konzentration wurde durch entsprechende Zugabe von Np-237- und Np-239-Lösungen eingestellt und die HS wurde bei den entsprechenden Experimenten unmittelbar vor dem Np zugegeben.

Die aeroben Experimente wurden an Luft mit aerob aufbereitetem Opalinustonpulver (BHE-241) in Calcit-Lösung, die beim jeweiligen pH gesättigt war, durchgeführt. Die Experimente unter anaeroben Bedingungen wurden ebenfalls in mit Calcit gesättigter Lösung durchgeführt; allerdings mit anaerobem Opalinustonpulver (BDR 2) und unter erhöhtem CO₂-Partialdruck (p_{CO₂} = 10^{-2,3} atm), wie er in der Tonformation angenommen wird.^[3]

In Abb. 1 sind die Ergebnisse der Messungen an Luft aufgetragen. Die Kurven mit HS sind dabei jeweils durchgezogen, die Kurven bei niedriger Np-Konzentration (7 pM) rot dargestellt.

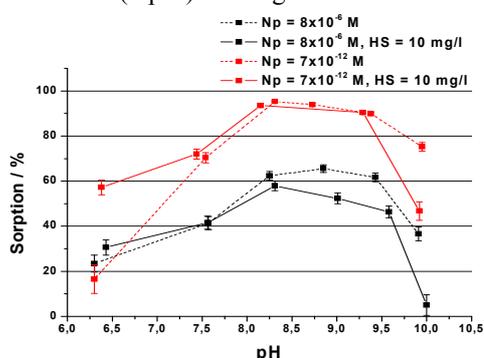


Abb. 1: Sorption von Np(V) an OPA unter aeroben Bedingungen in An- und Abwesenheit von HS

Man erkennt, dass die Huminsäure bei pH 10 einen mobilisierenden Effekt auf Np(V) hat. Dies ist wahrscheinlich auf die Bildung von Humat- oder ternären Humat-Carbonat-Komplexen

zurückzuführen.^[4] Zwischen pH 7,5 und 9,5 ist nur bei 8 µM Np ein geringfügiger Effekt sichtbar. Unter anaeroben Bedingungen (siehe Abb. 2) ergibt sich ein anderes Bild.

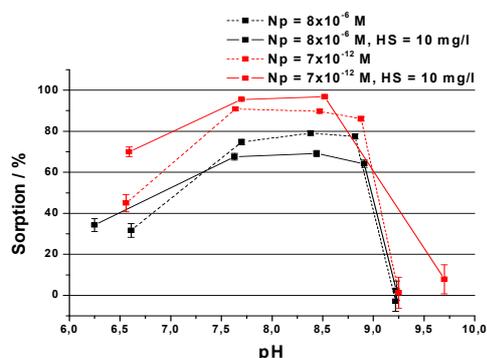


Abb. 2: Sorption von Np(V) an OPA unter anaeroben Bedingungen in An- und Abwesenheit von HS

Zwischen pH 7 und 9 wird Np deutlich stärker sorbiert als an Luft, was durch die mittels Flüssig-Extraktion nachgewiesene Reduktion von Np(V) zu Np(IV) und die stärkere Sorption von Np(IV) erklärt werden kann.

Aufgrund des höheren CO₂-Partialdruckes und der daraus resultierenden höheren Carbonat-Konzentration dominiert die Komplexbildung von Np mit Carbonat und die Wechselwirkung mit Huminsäure ist entsprechend schwächer ausgeprägt. Die höhere Carbonat-Konzentration ist auch Grund für die starke Abnahme der Sorption bei pH > 9.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass Huminsäure nur im alkalischen pH-Bereich einen mobilisierenden Effekt auf Np(V) hat, der mit steigender Np-Konzentration stärker ausgeprägt ist. Unter anaeroben Bedingungen wird Np(V) zu Np(IV) reduziert, wodurch Np zwischen pH 7 und 9 stärker sorbiert. Durch Erhöhung des CO₂-Partialdruckes verliert Huminsäure an Einfluß auf die Sorption und es dominiert die Carbonat-Komplexierung.

Literatur:

- [1] Y. Niitsu et al., *J. Nucl. Mater.*, **1997**, 248, 328-332.
- [2] S. Pompe et al., *Wiss.-Techn. Bericht, FZD-290*, Forschungszentrum Dresden-Rossendorf, **2000**.
- [3] M.J. Turrero et al., *J. Iberian Geol.*, **2006**, 32, 233-258
- [4] S. Sachs et al., *Wiss.-Techn. Bericht FZD-460*, Forschungszentrum Dresden-Rossendorf, **2007**.

Diese Arbeit wurde finanziert durch das Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie (Förderkennzeichen 02E10166).