

Untersuchung der Sorption von Th(IV) und Pu(IV) an Opalinuston

U. Kaplan, S. Amayri, J. Drebert, T. Reich

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

Einleitung:

Tongestein ist auf Grund seiner guten Sorptionseigenschaften gegenüber Radionukliden ein potentielles Wirtgestein für ein geologisches Tiefenlager für abgebrannte Brennelemente [1]. Das Radioelement Plutonium (Pu), zusammen mit den minoren Actiniden, leistet einen Hauptbeitrag zur Radiotoxizität von abgebrannten Brennelementen nach Lagerzeiten über 1000 Jahren [2]. Für die Modellierung des Ausbreitungsverhaltens von Pu in Tongestein sind detaillierte Informationen zur Wechselwirkung mit Opalinuston (OPA) erforderlich.

Ziel der vorliegenden Arbeit war es, das Sorptionsverhalten von Pu(IV) und dem homologen, redoxstabilen Th(IV) an dem natürlichen Referenzmaterial OPA (Mont Terri, Schweiz) in Abhängigkeit verschiedener chemischer Parameter zu untersuchen.

Experimentelles:

Die Sorption von $^{239}\text{Pu(IV)}$ und $^{232}\text{Th(IV)}$ an OPA wurde in Abhängigkeit von pH-Wert, Ton- und Metallionenkonzentration unter atmosphärischem CO_2 in 0,1 M NaClO_4 untersucht. Nach 72 Stunden Vorkonditionierung der Tonsuspension erfolgte die Zugabe der Radionuklid-Lösung. Die Phasen wurden nach 72 Stunden durch Zentrifugation bei 81,769 g über 1 h getrennt. Die flüssige Phase wurde mittels LSC auf ihren Plutoniumgehalt analysiert. Die Thoriumkonzentration wurde mittels ICP-MS bestimmt.

Ergebnisse:

Abbildung 1 zeigt den Sorptionsverlauf von 0,4 μM Pu(IV) bzw. 0,4 μM Th(IV)-Lösung in Abhängigkeit des pH-Wertes. Wie erwartet, wurde ein ähnlicher Sorptionsverlauf für Pu(IV) und Th(IV) erhalten. Die Sorption nimmt mit steigendem pH-Wert zu und erreicht ein Plateau zwischen pH 3,0 und pH 8,0 mit nahezu 100% Sorption. Die Sorptionskante liegt etwa bei pH 1,5.

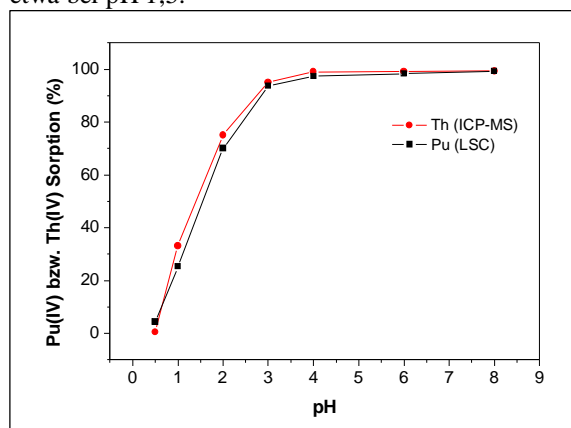


Abb. 1 pH-Abhängigkeit der Sorption von bei 0,4 μM Pu(IV) bzw. Th(IV), $[\text{OPA}] = 1 \text{ g/L}$, 0,1 M NaClO_4 , $p\text{CO}_2 = 10^{-3,5} \text{ atm}$ (Luft)

Die K_d -Werte für die Sorption von Pu(IV) bzw. Th(IV) an OPA unter aeroben Bedingungen in 0,1 M NaClO_4 ($\text{pH} = 7,6$) wurden aus Mengen- und Konzentrationsisothermen bestimmt. Dabei wurde zuerst die Tonmenge von 0,5-8,0 g/L bei konstanter Pu(IV)- bzw. Th(IV)-Konzentration von 0,4 μM variiert. Im zweiten Fall wurde die Pu(IV)- bzw. Th(IV)-Konzentration von 100 ppb bis 10 ppb bei konstanter OPA-Menge von 1 g/L variiert.

Die Abbildung 2 zeigt für die beiden Isothermen die doppelt logarithmische Auftragung des K_d -Wertes in Abhängigkeit von der Pu- bzw. Th Gleichgewichtskonzentration.

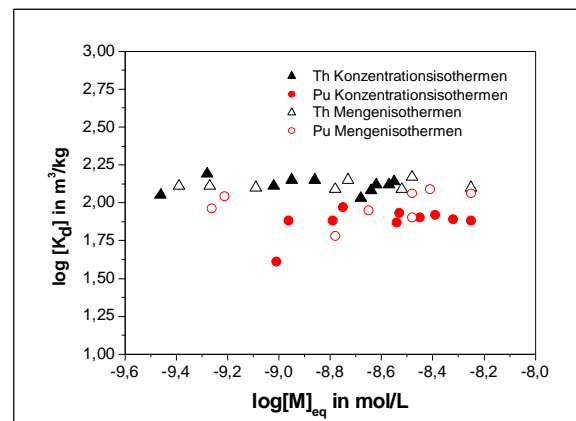


Abb. 2 Abhängigkeit des K_d -Wertes von der $[\text{Pu- bzw. Th}]_{\text{eq}}$ Konzentration, $p\text{CO}_2 = 10^{-3,5} \text{ atm}$, 0,1 M NaClO_4 ($\text{pH} 7,6$)

In den untersuchten Konzentrationsbereichen wurden für Th(IV) und Pu(IV) konstante K_d -Werte erhalten. Der anhand der Mengen- und Konzentrationsisotherme bestimmte mittlere K_d -Wert beträgt für Th(IV) $131 \pm 11 \text{ m}^3/\text{kg}$ und für Pu(IV) $86 \pm 20 \text{ m}^3/\text{kg}$. Die K_d -Werte für Pu(IV) und das homologe Th(IV) liegen in der gleichen Größenordnung und weisen auf eine starke Sorption an OPA hin. Zusätzlich stimmen die berechneten K_d -Werte innerhalb ihrer Fehler (aus den Mengen- und Konzentrationsisothermen) sehr gut überein.

Literatur:

- [1] Nagra, Project Opalinus Clay - safety report: Nagra Technical Report NTB 02-05, Nagra: Wettingen, Switzerland, 2002.
- [2] K. Gompper, Radioaktivität und Kernenergie, Karlsruher Instituts für Technologie, s. 153, 2001.

Danksagung: Diese Arbeit wurde finanziell gefördert durch das Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie (Förderkennzeichen 02E10166).