

Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma (KYT2014)
Tutkimusyhteenveto 2011

Tutkimushankkeen nimi Kolmenarvoisten aktinidien kiinnittyminen savi- ja (hydr)oksidimineraalien pinnoille		
Tutkimushankkeen nimi englanniksi Sorption of trivalent actinides onto clay and (hydr)oxide minerals		
Tutkimuslaitos Helsingin yliopisto, Kemian laitos, Radiokemian laboratorio		Vastuhenkilö Nina Huittinen
Mihin KYT-painopistealueeseen hanke kuuluu? (ks. puiteohjelma, Kuva 2) Ydinjätehuollon turvallisuuden tutkimus: Turvallisuusperustelu, puskuri- ja täyteaineiden toimintakyky, sekä muut turvallisuustutkimukset		
Tutkimusjatkumo (onko hanke jatkoa aiemmalle tutkimukselle, suunnitellaanko jatkoa?) Hanke on jatkoa vuonna 2008 alkaneelle tutkimukselle. Hanketta jatketaan vuoden 2012 loppuun asti.		
Yhteistyökumppanit		
Kotimaiset organisaatiot •ASM	Ulkomaiset organisaatiot •Institut für Nukleare Entsorgung, Forschungszentrum Karlsruhe, Saksa •Université de Poitiers, Ranska •National Institute of Chemical Physics and Biophysics, Viro	Muut tutkimusohjelmat, tms.
Miten tuloksien soveltaminen konkreettisesti liittyy Suomen ydinjätehuollon toteuttamiseen? Hankkeessa saatuja tuloksia voidaan käyttää käytetyn polttoaineen ja korkea-aktiivisen jälleenkäsittelyjätteen loppusijoituksen turvallisuusanalyysin tarkentamisessa. Hydroksidi ja oksidimineraaleja sekä savimineraaleja löytyy joko primäärimineraalifaaseina tai muuntumistuotteina kallioperässä. Savimineraaleja käytetään myös puskureina ja täyteaineina loppusijoitustilassa. Aktinidien ja mineraalipintojen vuorovaikutusten tunteminen atomi- ja molekyyllitasolla vähentää suuresti turvallisuusanalyysin lähtötietojen epävarmuutta.		
Tuloskategoria (esim. kokeellinen menetelmä, tietokoneohjelma) Pääpaino kokeellisissa menetelmissä.	Julkaisujen lukumäärä 2 julkaistu 1 tekeillä	Opinnäytetöiden lukumäärä 1 kandidaatintutkielma
Tutkimuksen tavoite Projektissa pyritään saamaan yksityiskohtaista tietoa kolmenarvoisten aktinidien adsorptiomekanismeista eri savi- ja (hydr)oksidimineraalien pinnoille, sekä tutkia adsorptioon osallistuvien pintaryhmien luonnetta, määrää, sekä affiniteettia An(III) ja Ln(III) ioneja kohtaan.		
Sisällölliset tavoitteet ja tulokset osaprojekteittain Laser-indusoidulla luminesenssi spektroskopiolla on tutkittu curiumin spesiaatiota gibbsiitti- ja kaoliniittisuspensiosta. Vuoden 2011 aikana savimineraalitutkimukset pyritään saattamaan loppuun. Aikaisemmissa tutkimuksissa curiumin (Cm^{3+}) adsorptiota valitun savimineraalin kaoliniitin pinnalle on tutkittu. Nämä kokeet suoritettiin karbonaattivapaassa ympäristössä mahdollisten karbonaattikompleksien muodostumisen estämiseksi. Näissä olosuhteissa havaittiin kolme kaoliniitin pinnalle adsorboitunutta Cm-kompleksia, sekä yksi mineraaliin inkorporoitunut spesies. Alkuvuodesta 2011 tavoitteena on selvittää mikä mineraalifaasi (alumiinihydroksidi, alumiinisilikaatti, silikaatti...) saostuu liuoksesta emäksisissä olosuhteissa ja näin muodostaa saostuman kaoliniitin pinnalle joka peittää eli inkorporoi adsorboituneen curiumin. LIF-kokeita tehdään myös alhaisessa ioninvahvuudessa kaoliniitille, sekä illiitille. Illiitti on montmorilloniittia muistuttava 2:1 kerroksinen savimineraali. LIF-kokeilla selvitetään sopivat pH		

alueet suunnitetuille NMR kokeille. NMR näytteet valmistetaan pH olosuhteissa, joissa on joko pelkästään ulkokomplekseja mineraalien pinnalla tai korkeimmissa pH arvoissa pelkästään sisäkomplekseja.

Ydinmagnettisia resonanssispektroskopiatutkimuksia (NMR) suoritetaan vuoden 2011 aikana myös kaoliniitille ja illiitille. NMR tutkimukset tehdään yhteistyössä Tallinnan kemiallisen fysiikan ja biofysiikan instituutin kanssa. NMR tutkimuksissa pyritään saamaan tietoa kolmenarvoisen metallin spesifisestä kiinnittymisestä mineraalien Si-OH/Al-OH-ryhmiin. Metallionina käytetään diamagneettista yttriumia, Y^{3+} , koska aktinidien lantanidianalogit kuten Eu^{3+} on paramagneettinen. Paramagneettisuus aiheuttaa tutkittaville atomeille kemiallisen siirtymän NMR spektrissä.

Eräsorptiokokeita pyritään vuosien 2011-2012 aikana mallintamaan sopivalla pintakompleksaatiomallilla. Mallintamisella pyrimme selvittämään eri komponenttien massabalanssia, sekä vahvistamaan spektroskopialla saatuja tuloksia. Mallintamiseen tarvittavia potentiometrisiä titrauksia sekä itse mallintaminen on suunniteltu yhteistyössä FZK-INE kanssa.

Julkaisut ja opinnäytetyöt

Julkaisut

N. Huittinen, Th. Rabung, J. Lützenkirchen, S.C. Mitchell, B.R. Bickmore, J. Lehto, H. Geckeis: Sorption of Cm(III) and Gd(III) onto gibbsite, α -Al(OH)₃: A batch and TRLFS study, Journal of Colloid and Interface Science 332 (2009) 158-164

N. Huittinen, Th. Rabung, P. Andrieux, J. Lehto, H. Geckeis: A comparative batch sorption and time-resolved laser fluorescence spectroscopy study on the sorption of Eu(III) and Cm(III) on synthetic and natural kaolinite, Radiochimica Acta 98 (2010) 613-620

N. Huittinen, P. Sarv, J. Lehto: A ¹H NMR study in the specific sorption of Y(III) and Eu(III) on γ -Al₂O₃ (manuscript)

Opinnäytetyöt

Atte Saunamäki: Europiumin sorptio silikaan, Kandidaatin tutkielma, lokakuu 2010

Muu tutkimuksista tiedottaminen (esim. seminaari, tiedote, tms.)

Suulliset esitelmät

N. Huittinen, Th. Rabung, J. Lehto, H. Geckeis: A TRLFS study on curium sorption onto gibbsite and kaolinite, VIII Finnish-Russian Symposium on Radiochemistry, Turku, 3-5.9.2009

N. Huittinen, Th. Rabung, P. Andrieux, J. Lehto, H. Geckeis: A comparative batch and TRLFS study on the sorption of Eu(III) and Cm(III) on synthetic and natural kaolinite, Migration 2009, Kennewick, WA, USA 20-25.9.2009

Posteresitykset

Th. Rabung, T. Kupcik, N. Huittinen, H. Geckeis, J. Lehto: Gd(III)/Cm(III) sorption onto aluminum oxides/hydroxides, 7th international conference on nuclear and radiochemistry, Budapest, Hungary, 24-29.08.2008

N. Huittinen, Th. Rabung, J. Lützenkirchen, S. Mitchell, B. Bickmore, J. Lehto, H. Geckeis: Sorption of Cm(III) and Gd(III) onto gibbsite, α -Al(OH)₃, 4th. Annual Workshop, FUNMIG, Karlsruhe, Germany 24-27.11.2008

T. Kupcik, N. Huittinen, T. Rabung, J. Lützenkirchen, H. Geckeis, Th. Fanghänel: Trivalent metal ion interaction with aluminium oxides/hydroxides, Migration 2009, Kennewick, WA, USA 20-25.9.2009