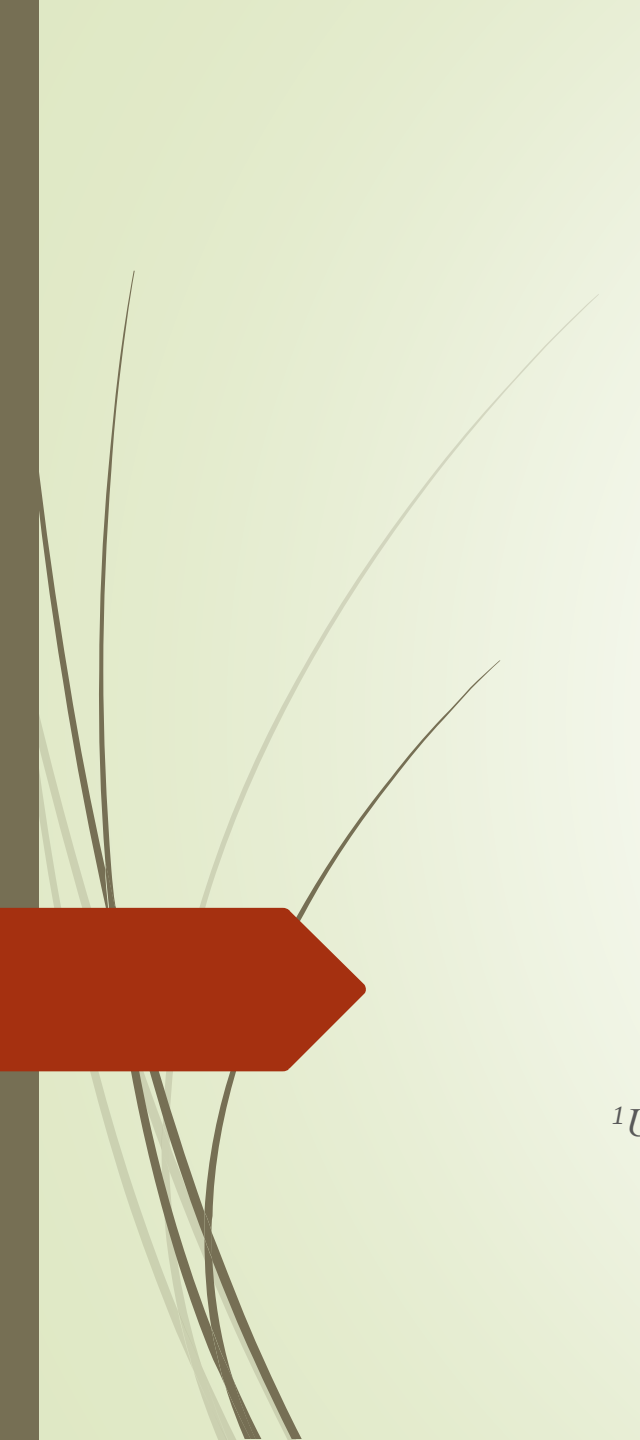




# **ELMÉLETI MEGFONTOLÁSOK A RADIOAKTÍVHULLADÉK-TÁROLÓK HOSSZÚ TÁVÚ HATÁSAINAK ÉRTÉKELÉSÉHEZ**

## **PARAMETRIZÁLÁS -MÓDSZERTAN**

**Eged Katalin<sup>1</sup>, Bóthi Zoltán<sup>2</sup>, Budai Péter**

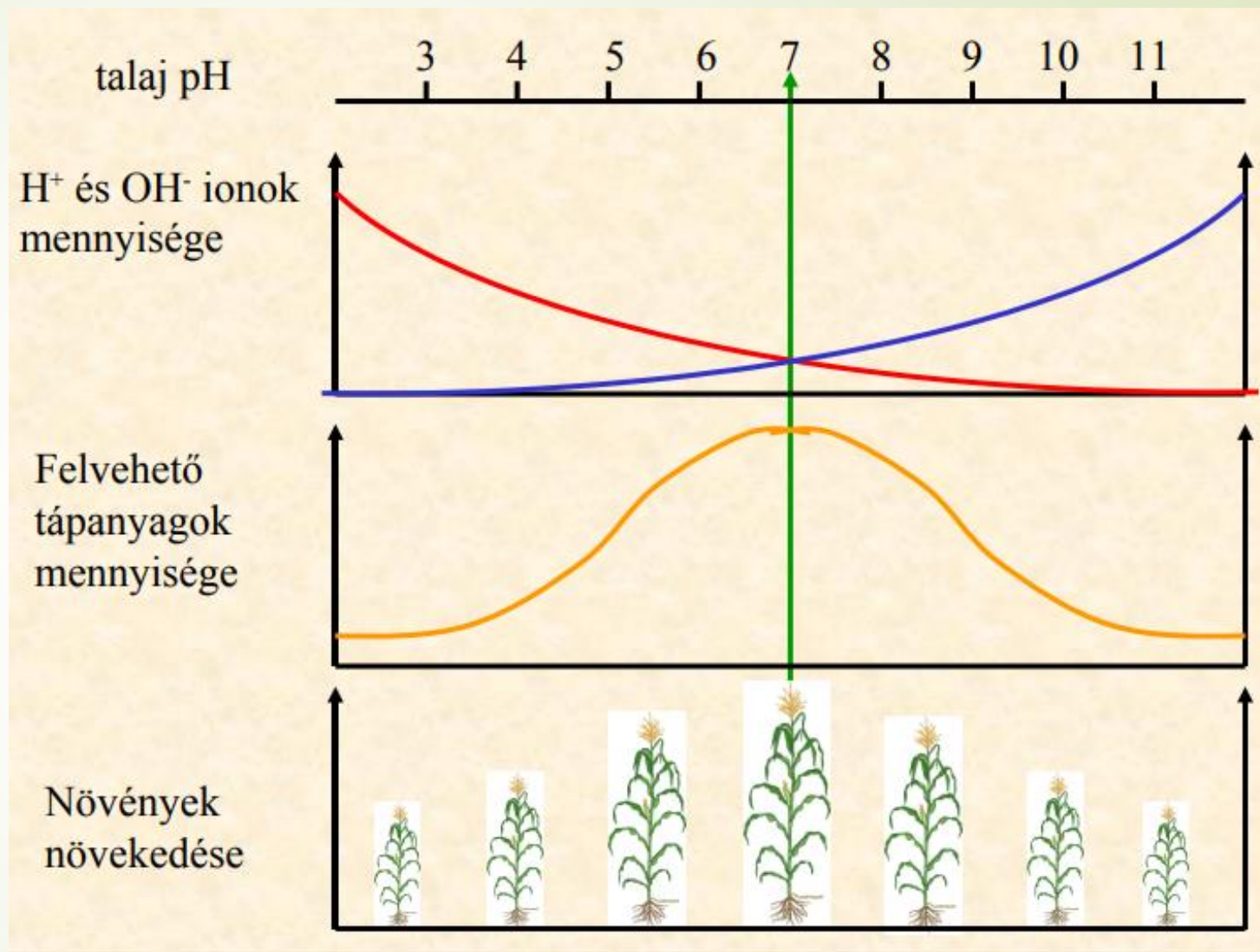
*<sup>1</sup>UniRad Kft, 8200 Veszprém, Kádár u 8., <sup>2</sup>WSP Hungary Consulting Zrt., 1021 Budapest, Hűvösvölgy út 54.*

# Modellezés - paramatrizálás

| Modellnév/fejlesztők                        | Módszer                 | Környezet                                                 | Adatbázis                                                                                                                                                             | Egyéb megjegyzés                                                                                       |
|---------------------------------------------|-------------------------|-----------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <b>ERICA TOOL</b>                           | Dinamikus és egyensúlyi | Bioszféra: víz, szárazföld, levegő                        | FRIDERIKA<br><br>(térítés ellenében hozzáférhető<br><a href="https://wiki.ceh.ac.uk/display/rpemain/Databases">https://wiki.ceh.ac.uk/display/rpemain/Databases</a> ) | Tekintetbe veszi a tudományos, „stakeholder” és szociális tényezőket is. Kockázatanalízist számol.     |
| <b>RESRAD/ESRAD6KALRAD<br/>RESRAD BIOTA</b> | Dinamikus és egyensúlyi | Bioszféra: víz, szárazföld, levegő                        | <a href="http://web.ead.anl.gov/resrad.documents/data">http://web.ead.anl.gov/resrad.documents/data</a>                                                               | Stakeholder segítése költség-haszon elemzés Radon leányelem inhalációt is számol.                      |
| <b>SADA<br/>Tennessee Universty</b>         | Dinamikus és egyensúlyi | Bioszféra: víz, szárazföld, levegő                        | <a href="http://www.sadaproject.net/index.htm">http://www.sadaproject.net/index.htm</a>                                                                               | Radioaktív és általános környezeti kockázati modell. Költség-hatékonyságot számol a döntéstámogatásra. |
| <b>ModelMaker</b>                           | Dinamikus és egyensúlyi | Matematikai formában leírható, jelenség, környezet        | Nincs                                                                                                                                                                 | Nagyon flexibilis. Jellemzően rövid távú elemzésekre használatos.                                      |
| <b>GoldSim</b>                              | Dinamikus és egyensúlyi | Geoszféra, Vízföldtan, Bioszféra: víz, szárazföld, levegő | GoldSim adatbázis, mely nemzetközi szakirodalomra épül, képes tekintetbe venni saját mérési adatokat, és analógiákat                                                  | Valószínűségi változók, Monte Carlo szimuláció, bizonytalanságok kezelése, kockázatszámítás            |

# Talaj pH - kémhatás

- A talajok pH értéke függ a talajban zajló kémiai, biológiai folyamatoktól, a talajok összetételétől, és a mélységgel is változik. A legtöbb növény legszívesebben semleges, vagy enyhén savas talajban él (5-7,5).
- A savanyodás növekedésével ( $\text{pH} < 5,5$ ) nagy mennyiségben  $\text{Al}^{3+}$  és  $\text{Mn}^{2+}$  ionok kerülnek a talajoldatba a kolloidok felületéről



# Elemanalitikus analógia

## ► Mengyelejev féle periódusos rendszer

Mengyelejev periódusos rendszerében az elemek protonszámuk és elektronszerkezetük szerint vannak elrendezve. Ez az elrendezés jól szemlélteti az elemek periodikusan változó tulajdonságait, hiszen a kémiaailag hasonlóan viselkedő elemek azonos oszlopba kerülnek. Az izotópokat a periódusos rendszer nem különíti el, nem jelöli.

A természetben, így a geoszférában és a bioszférában az izotópok nem elemi állapotban, hanem ionos formában, vagy komplexekhez kötötten jelennek meg. Véleményünk szerint a Mengyelejev-féle periódusos rendszer nem használható megokolható módszerként a nem vagy kevésbé ismert izotópokra vonatkozó adatok becslésére.

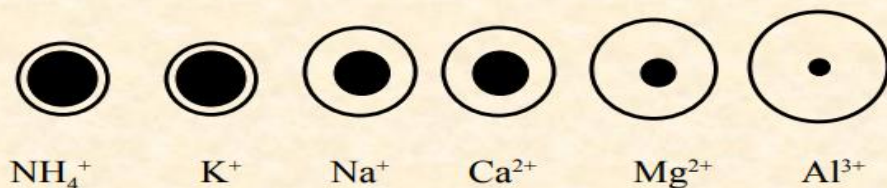


# Ionméret

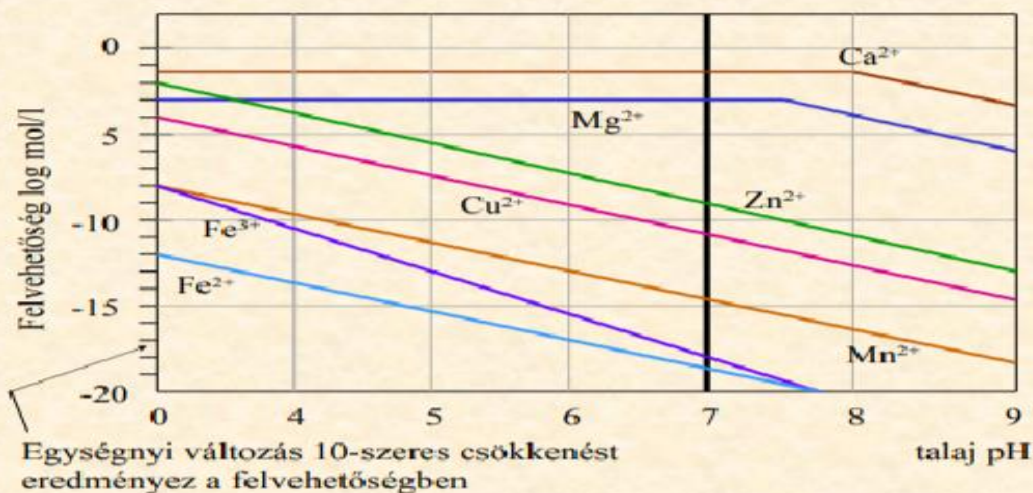
- Egy perióduson belül a rendszám növekedésével csökken az atomátmérő, az újonnan belépő s-elektronok behatoló pályára kerülnek, valamint a megnövekedett magtöltés a külső elektronhéj koncentrációját okozza.
- Az oszlopokban a méret a rendszámmal nő, a legkülső orbitálok azonos típusúak (pl.:alkálifémek:  $ns^1$ ), és a rendszám növekedésével egyre több elektronhéj tartozik az atomhoz, a periódusok végén lévő nemesgázatomok mérete a legkisebb, a náluk eggyel nagyobb rendszámú alkálifémek utolsó elektronja a következő jóval nagyobb méretű héjra kerül így ezek atomsugara jelentősen nagyobbá válik.
- ERGO az ionméret befolyásolja az ion viselkedését.

# Kationok

A talajban gyakori kationok méretének összehasonlítás

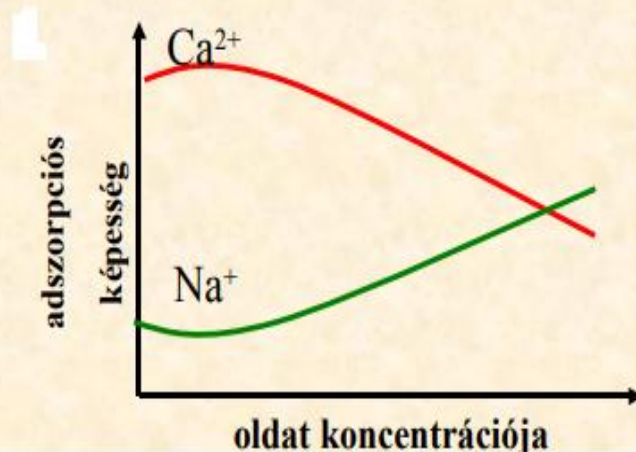
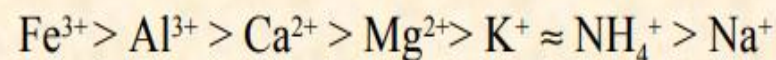


● nem hidratált ion      ⊙ hidratált ion



## A kation megkötés és a kationcsere fontosabb törvényszerűségei

- Dinamikus egyensúly
- A nagyobb vegyértékű adszorpciós képessége nagyobb
- Egyforma vegyérték esetén a kevésbé hidratált kötődik jobban
- Liotróp sor

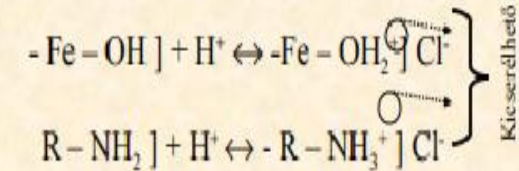


# Anionok

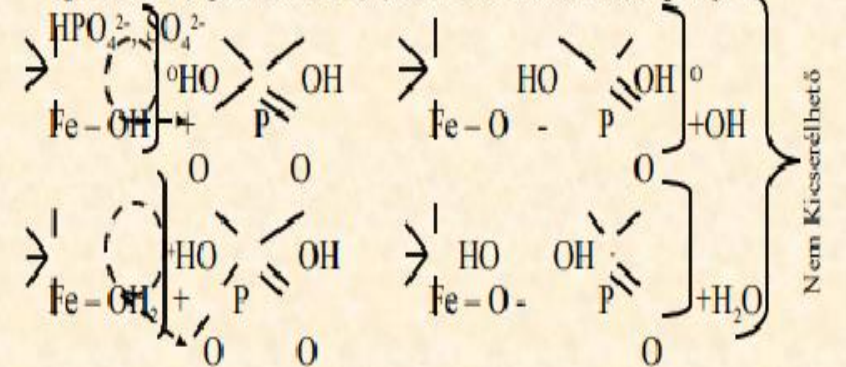
- Nem specifikus és specifikus kötődés lehetséges.
- A talajok a belekerülő anyagok hatását közömbösíteni és tompítani képesek, ezt nevezzük pufferképességnek. A sav/bázis pufferképesség függ a talaj kolloidtartalmától, a kolloidok minőségétől és a talaj kémhatásától. Az agyagban és humuszban gazdag talajok pufferképessége nagyobb, a gyengén humuszos homoktalajok pufferképessége a legkisebb

## Anionadszorpció

- Nem specifikus (Columb erő)  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$



- Specifikus (ligandumcsere) (szervetlen kolloidok)  $\text{H}_2\text{PO}_4^-$

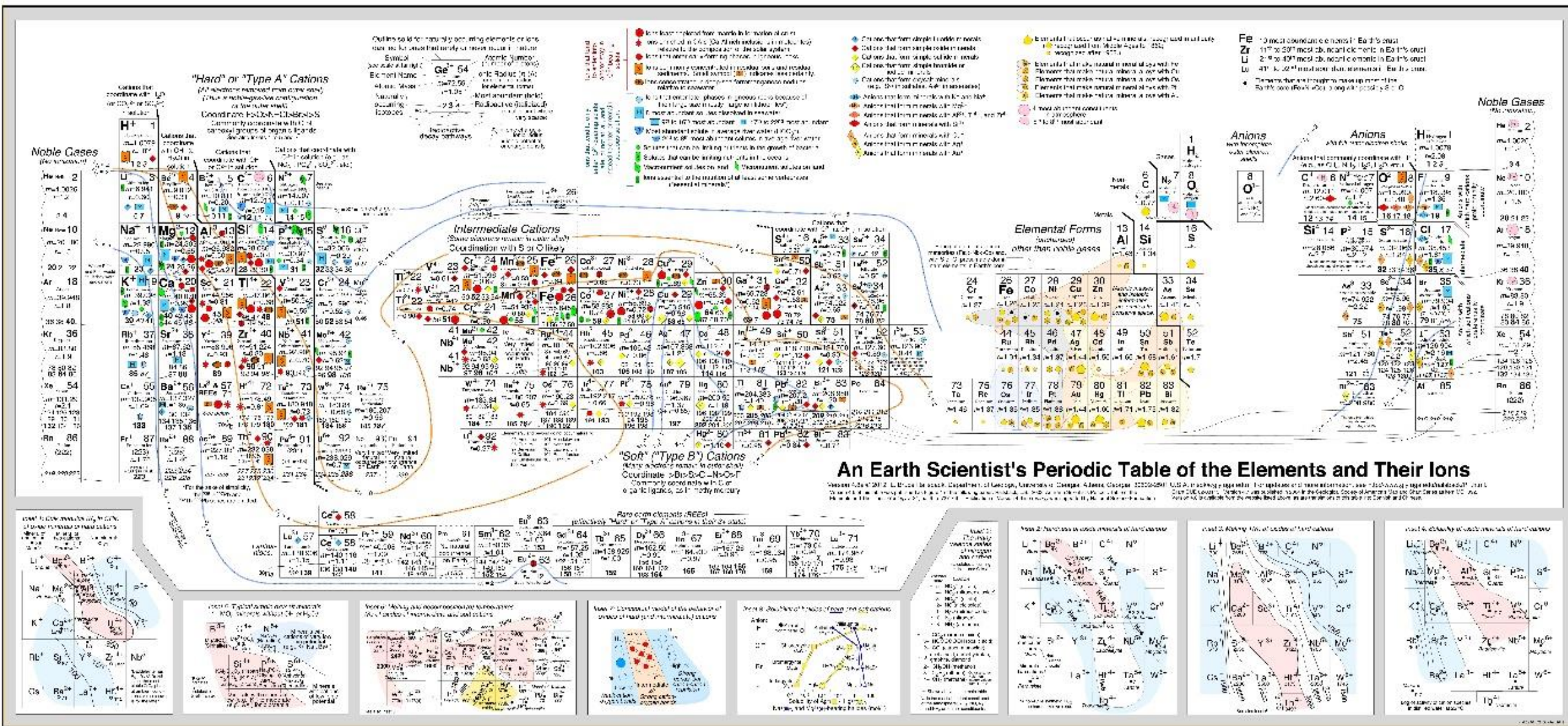


Nem Kicsérhető

# Hidrogeokémiai analógia (HPT)

- Ezen megközelítés alapján először is meg kell határozni a jellemző geokémiai környezet, azon belül is az izotópok ionos formáját. Alapvetően az izotópok kationos vagy anionos formában jelenhetnek meg. Tehát az analógia alapja nem az elemek periódikusan változó tulajdonsága, hanem a különböző ionokhoz hasonló viselkedések összehasonlítása. A tárolón belül biztosan erősen redukzív, magas pH-jú (erősen lúgos) környezet lesz, viszont onnan a kijutó szennyezők a geoszférán keresztül valószínűleg egy gyengén redukatív és lúgos (mindkét vonatkozásban közel semleges) környezetben terjednek (mindezt elsősorban a velük együtt a tárolóból kibocsátott, cementes anyagok degradációjából származó kioldott anyagok okozzák). A felszín közelében (a mállott gránitban és a talajban) viszont minden bizonnyal oxidatív és semleges (sőt, esetleg a szerves és erdei talajok környezetében gyengén savas) környezet várható.
- A kategorizálás alapja az ionpotenciál számolása, vagyis a  $Z \times r^{-1}$ , ahol a  $Z$  az ion töltéssűrűsége,  $r$  az ion mérete. Két példát említve látható a számolás egyszerűségére:
- $\text{Ca}^{2+}$ ,  $Z=2$  és  $r=1$ ,  $Z \times r^{-1} = 2$
- $\text{N}^{5+}$ ,  $Z=5$  és  $r=0,11$ ,  $Z \times r^{-1} = 45$
- Az ionpotenciálok alapján a geológiai periódusos rendszer hasonlóságot vagy különbözőséget állapít meg az egyes izotópok között, nagyobb hasonlóságú kationok közelebb a kisebb hasonlóságúak távolabb vannak egymáshoz képest a táblázatban.

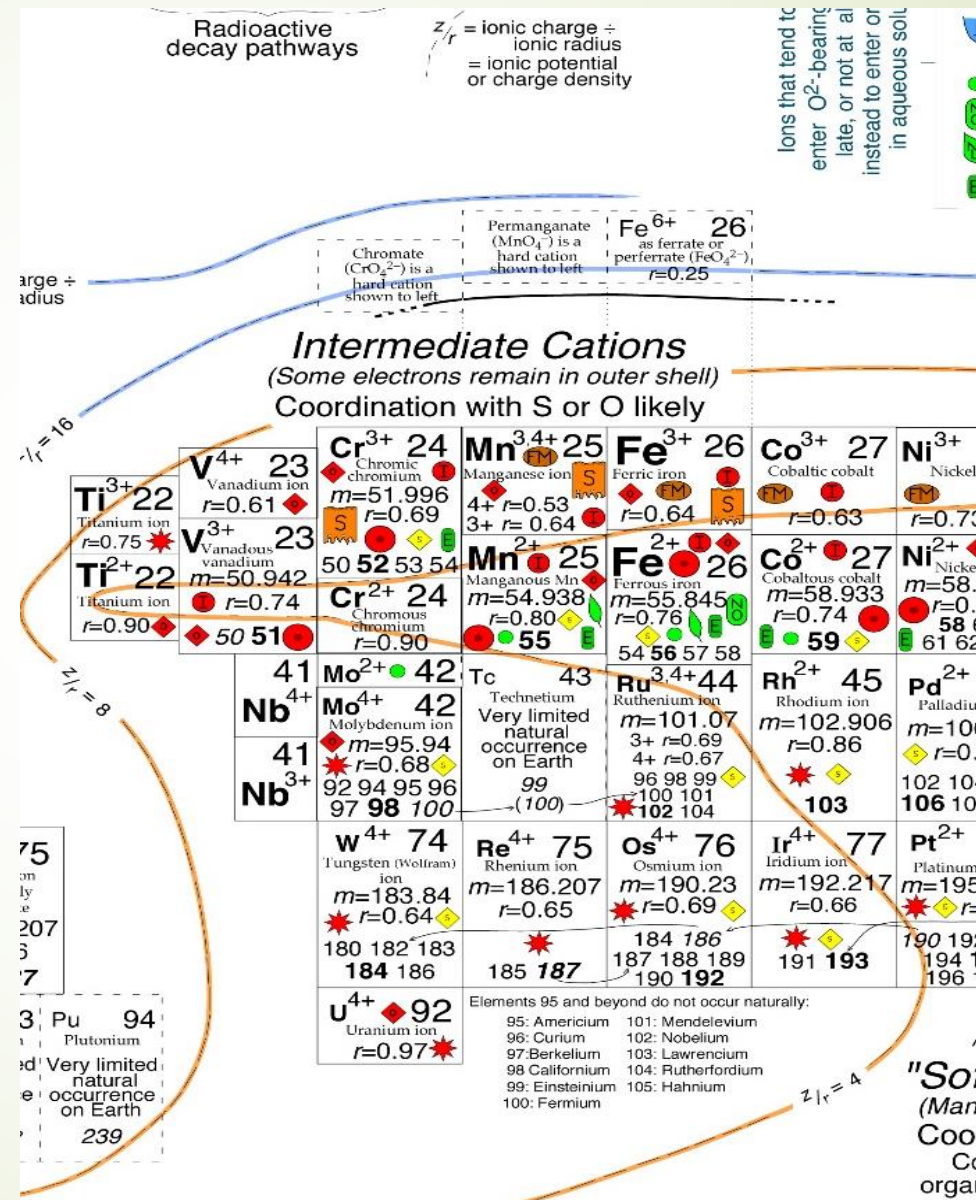
# HPT



See also insets 1 to 5 and 7.

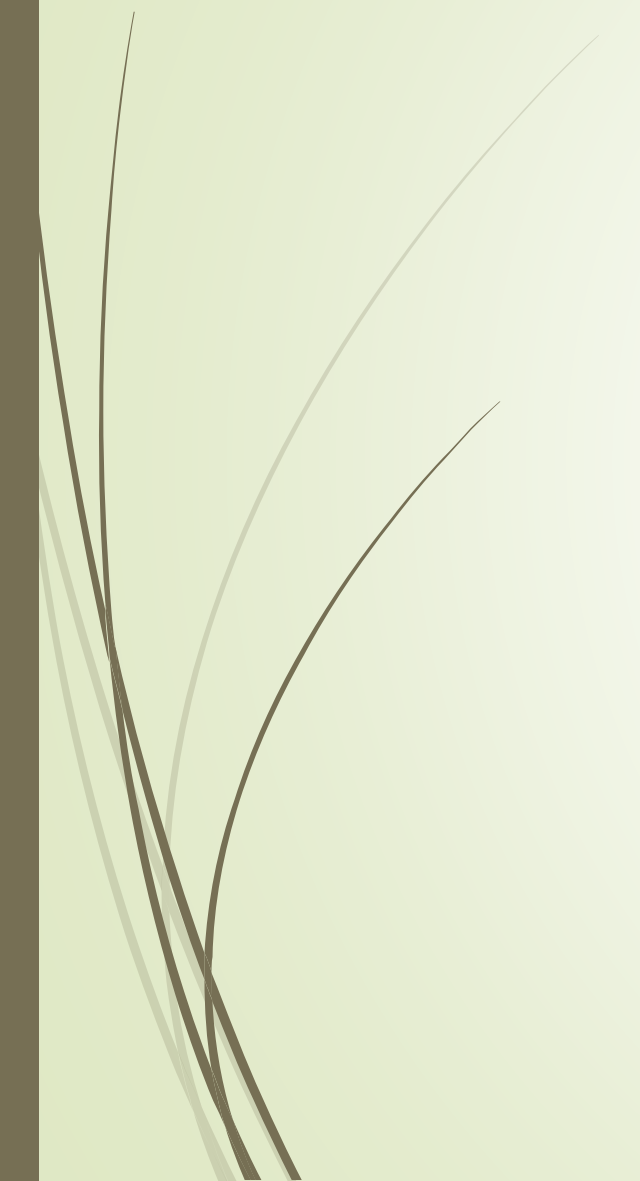
| Coordinate with OH <sup>-</sup> (or H <sub>2</sub> O) in solution                             |                                                                                                     | Cations that coordinate with OH <sup>-</sup> or O <sup>2-</sup> in solution                                                        |                                                                                                                                                                                     | Cations that coordinate with O <sup>2-</sup> in solution (e.g., as NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , etc.) |                                                                                                                                                                        |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| <b>S</b><br>m=1.0079<br>r=10 <sup>-5</sup><br>1 2 3                                           |                                                                                                     |                                                                                                                                    |                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                                                                         |                                                                                                                                                                        |
| <b>Li<sup>+</sup></b> 3<br>Lithium ion<br>m=6.941<br>r=0.60<br>6 7                            | <b>Be<sup>2+</sup></b> 4<br>Beryllium ion<br>m=9.012<br>r=0.31<br>9 10                              | <b>B<sup>3+</sup></b> 5<br>Boron as borate (B(OH) <sub>3</sub> or B(OH) <sub>4</sub> <sup>-</sup> )<br>m=10.811<br>r=0.20<br>10 11 | <b>C<sup>4+</sup></b> 6<br>Carbon, as CO <sub>2</sub> , bicarbonate (HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ) & carbonate (CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> )<br>m=12.011<br>r=0.15<br>12 13 14 | <b>N<sup>5+</sup></b> 7<br>Nitrogen as nitrate (NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> )<br>m=14.007<br>r=0.11<br>14 15                                                           | See also inset 9.                                                                                                                                                      |
| <b>Na<sup>+</sup></b> 11<br>Sodium ion<br>m=22.990<br>r=0.95<br>23                            | <b>Mg<sup>2+</sup></b> 12<br>Magnesium ion<br>m=24.305<br>r=0.65<br>24 25 26                        | <b>Al<sup>3+</sup></b> 13<br>Aluminum ion as Al <sup>3+</sup> or Al(OH) <sub>3</sub> <sup>-</sup><br>m=26.982<br>r=0.50<br>26 27   | <b>Si<sup>4+</sup></b> 14<br>as silicate (SiO <sub>4</sub> <sup>4-</sup> ) or Si(OH) <sub>4</sub><br>m=28.086<br>r=0.41<br>28 29 30                                                 | <b>P<sup>5+</sup></b> 15<br>Phosphorus as phosphate (PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> ) and HPO <sub>4</sub> <sup>2-</sup><br>m=30.974<br>r=0.34<br>31                     | <b>S<sup>6+</sup></b> 16<br>Sulfur as sulfate (SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> ) or as perchlorate (ClO <sub>4</sub> <sup>-</sup> )<br>m=32.066<br>r=0.29<br>32 33 34 36 |
| <b>K<sup>+</sup></b> 19<br>Potassium ion<br>m=39.098<br>r=1.33<br>39 40 41                    | <b>Ca<sup>2+</sup></b> 20<br>Calcium ion<br>m=40.078<br>r=0.99<br>40 42 43<br>44 46 48              | <b>Sc<sup>3+</sup></b> 21<br>Scandium ion<br>m=44.956<br>r=0.81<br>45                                                              | <b>Ti<sup>4+</sup></b> 22<br>Titanic titanium<br>m=47.867<br>r=0.68<br>46 47 48<br>49 50                                                                                            | <b>V<sup>5+</sup></b> 23<br>Vanadium ion e.g., as vanadate (VO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> )<br>m=50.942<br>r=0.59<br>50 51                                              | <b>Cr<sup>6+</sup></b> 24<br>Chromium as chromate (CrO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> )<br>m=51.996<br>r=0.52<br>50 52 53 54                                               |
| <b>Rb<sup>+</sup></b> 37<br>Rubidium ion<br>m=85.468<br>r=1.48<br>85 87                       | <b>Sr<sup>2+</sup></b> 38<br>Strontium ion<br>m=87.62<br>r=1.13<br>84 86<br>87 88                   | <b>Y<sup>3+</sup></b> 39<br>Yttrium ion<br>m=88.906<br>r=0.93<br>89                                                                | <b>Zr<sup>4+</sup></b> 40<br>Zirconium ion<br>m=91.224<br>r=0.80<br>90 91<br>92 94 96                                                                                               | <b>Nb<sup>5+</sup></b> 41<br>Niobium (or Columbium) ion<br>m=92.906<br>r=0.70<br>92 94 96                                                                               | <b>Mo<sup>6+</sup></b> 42<br>Molybdenum as molybdate<br>m=95.94<br>r=0.62<br>92 94 95 97<br>96 98 100                                                                  |
| <b>Cs<sup>+</sup></b> 55<br>Cesium ion<br>m=132.905<br>r=1.69<br>133                          | <b>Ba<sup>2+</sup></b> 56<br>Barium ion<br>m=137.327<br>r=1.35<br>130 132<br>134 135 136<br>137 138 | <b>La<sup>3+</sup> &amp; 57-REEs</b> 71<br>See below<br>170 Yb                                                                     | <b>Hf<sup>4+</sup></b> 72<br>Hafnium ion<br>m=178.49<br>r=0.81<br>174 176 177<br>178 179 180                                                                                        | <b>Ta<sup>5+</sup></b> 73<br>Tantalum ion as tantalate<br>m=180.948<br>r=0.73<br>180 181                                                                                | <b>W<sup>6+</sup></b> 74<br>Tungsten (Wolfram) as tungstate<br>m=183.84<br>r=0.68<br>180 182 183<br>184 186                                                            |
| <b>Fr<sup>+</sup></b> 87<br>Francium ion (223)<br>r=1.76<br>very rare (<30 g in crust)<br>223 | <b>Ra<sup>2+</sup></b> 88<br>Radium ion (226)<br>r=1.40<br>223 224<br>226 228                       | <b>Ac<sup>3+</sup></b> 89<br>Actinium ion<br>m=227.037<br>r=1.18<br>227 228                                                        | <b>Th<sup>4+</sup></b> 90<br>Thorium ion<br>m=232.038<br>r=0.95<br>(+3 r=1.14)<br>227 228 230<br>231 232 234                                                                        | <b>Pa<sup>5+</sup></b> 91<br>Protactinium ion (231)<br>(+4 r=0.98)<br>231 234                                                                                           | <b>U<sup>6+</sup></b> 92<br>Uranium as uranyl (UO <sub>2</sub> <sup>2+</sup> )<br>m=238.029<br>r=0.7<br>234 235 238                                                    |
|                                                                                               |                                                                                                     |                                                                                                                                    |                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                                                                         | <b>Np</b> 94<br>Neptunium<br>Very limited natural occurrence on Earth<br>237                                                                                           |

\*For the sake of simplicity, the <sup>235</sup>U-<sup>207</sup>Pb and <sup>232</sup>Th-<sup>208</sup>Pb series are omitted.



# Összegzés

- A természetben nem semleges elemek, hanem – az adott geokémiai környezetnek megfelelő – különböző oxidációs fokú ionok, komplexek jelennek meg. Azok viselkedését pedig elsősorban az ionpotenciáljuk (az oxidációs fokuk és ionrádiuszuk hányadosa) határozza meg.
- A tárolón belül minden bizonnyal erősen redukzív, magas pH-jú (erősen lúgos) környezet lesz, de az onnan származó szennyezett víz valószínűleg gyengén redukzív és lúgos (mindkét szempontból szinte semleges) környezetben migrál át a geoszférán. A felszín közelében (mállott gránitban és talajban) minden bizonnyal oxidatív és semleges (és talán gyengén savas) környezet várható.
- olyan, a kémiai elemek periódusos rendszerében egymástól aránylag távol lévő elemek radionuklidjaira tudtunk paramétereket meghatározni, mint pl. a  $\text{Ti}^{4+}$  –  $\text{Zr}^{4+}$  –  $\text{Th}^{4+}$  –  $\text{Pa}^{5+}$  –  $\text{U}^{4+}$  –  $\text{Nb}^{3+}$  –  $\text{Nb}^{4+}$  –  $\text{Mo}^{4+}$  és Tc, amelyek mindegyike a átmeneti kationok közé tartozik, ionpotenciáljuk pedig 4 és 8 között változik.
- A módszer újszerű, ezen a tudományterületen még nem publikált, megokolhatóbb megközelítés, mint a világban eddig használt MPR.



➡ Köszönöm a figyelmet