

Stanovení nejdůležitějších transportních parametrů sorpce $^{125}\text{I}^-$, $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ v některých horninách a půdách

Palágyi Štefan¹, Štamberg Karel²

¹Oddělení ukládání odpadů, Divize chemie palivového cyklu a nakládání s odpady, Ústav jaderného výzkumu Řež a. s., 250 68 Husinec-Řež (e-mail: pas@ujv.cz)

²Katedra jaderné chemie, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, České vysoké učení technické v Praze, 115 19 Praha

Ukládání vysoce aktivního odpadu do geologických formací vyžaduje studium migrace nebo transportu radionuklidů v poli vzdálených interakcí kde kapalnou fází jsou podzemní vody. Kriteriem schopnosti přírodních bariér (hostitelského prostředí), tj. hornin nebo půd, event. sedimentů, brzdit transport kontaminantů jsou retardační koeficienty; ty jsou nejčastěji získávány z hodnot rozdělovacích koeficientů pocházejících ze statických experimentů.^{1,2} Dynamické kolonové metody umožňují nejen přímé stanovení těchto koeficientů, ale navíc i dalších významných transportních parametrů sorpce jakými jsou rozdělovací koeficient a hydrodynamický disperzní koeficient. Výhoda dynamických kolonových postupů v tzv. otevřeném systému oproti statickým postupům v tzv. uzavřeném systému spočívá, kromě jiného v mnohem reálnějším přístupu ke skutečným podmínkám studovaného, reálného systému. Pro laboratorní migrační (nebo transportní) studie sorpce radionuklidů, kolonové metody jsou užitečné zejména tam, kde advektivní transport dominuje nad difuzí^{3,4}. Literární rešerše prokázala, že dynamické kolonové metody jsou hojně využívány při vyšetřování transportu radionuklidů v porézních materiálech⁴⁻⁷. Při transportu radionuklidů přes krystalické horniny, půdy a písky s vysokým obsahem křemene, které patří také mezi porézní substráty, dochází k interakci radionuklidů v systému pevná fáze – podzemní voda různými mechanismy (sorpce, iontová výměna, povrchová komplexace, difúze v matici, disperze, zředění a pod)⁵⁻⁷, které různou mírou přispívají k retardaci radionuklidů.

V této práci byly studovány dvě metody stanovení nejdůležitějších transportních parametrů, a sice rovnovážných parametrů a hydrodynamického disperzního koeficientu, pro sorpci $^{125}\text{I}^-$, $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$. Pevná fáze byla tvořena podrcenými granitoidními horninami typu dioritu a tonalitu, nebo jílovitou hlinitopísčitou půdou, kapalná pak syntetickou podzemní vodou. První metoda se zakládá na předpokladu reverzibilní lineární sorpce radionuklidů na pevnou fázi, tj. s konstantní hodnotou rozdělovacího koeficientu (K_d), kdežto druhá metoda předpokládá reverzibilní nelineární sorpci, charakterizovanou nelineární sorpční izotermou. Obě metody využívají experimentální průnikové křivky⁸⁻¹¹, které se fitují pomocí integrované formy výše zmíněné 1-D advektivně-disperzní rovnice (ADE), vyjádřené explicitně pro pulzní způsob zavádění radionuklidů do proudu syntetické podzemní vody bezprostředně před jejím vstupem do kolony. Integrovaná forma ADE rovnice byla modifikována tzv. koeficienty polohy a výšky maxima příslušné průnikové křivky. Druhá metoda je složitější, protože vyžaduje výpočet nejen retardačního koeficientu měnícího se během transportu, ale i dvou parametrů Freundlichovy rovnice nelineární izotermy. V obou případech byla k výpočtu zmíněných parametrů používána metoda nelineární regrese. Navržené metody byly vzájemně porovnávány při fitování experimentálních průnikových křivek a při stanovení transportních parametrů uvede-ných radionuklidů.

Experimentální část

Podmínky laboratorních experimentů byly podrobně popsány v našich pracích, které byly uveřejněny ve sbornících seminářů Radioanalytické metody IAA'07, IAA'08 a IAA'09¹²⁻¹⁴.

Vodné roztoky beznosičových preparátů ^{125}I , $^{137}\text{Cs}^+$ and $^{85}\text{Sr}^{2+}$, o vysoké radiochemické čistotě (min. 99%), byly dávkovány ve formě pulsu do dané kolony (o daném objemu a počáteční aktivitě A_0). Aktivita kapalných vzorků odebíraných na výstupu z kolony byla měřena danou dobu za použití automatického NaI/Tl gamma počítače.

Transportní modely

Obě výše zmíněné metody jsou založeny na analyticky integrované formě jednoduché advektivně-disperzní rovnice (ADE), která byla použita pro fitování experimentálních dat a sestavení průnikové křivky (PK) více či méně nesymetrického zvonkového tvaru.

Lineární (i nelineární) model je založen na rovnici (1)¹¹:

$$A_{rel} = (1/k_h) \cdot k_p \cdot R_{exp} \cdot \exp[-(k_p \cdot R_{exp} - n_{PV})^2 / (4k_p \cdot R_{exp} \cdot n_{PV} / Pe)] / (4\pi \cdot k_p \cdot R_{exp} \cdot n_{PV} / Pe)^{0.5}, \quad (1)$$

která v podstatě vyjadřuje závislost relativní aktivity (A_{rel}) na počtu pórových objemů (n_{PV}) vodní fáze vytékající z kolony. Přičemž, $A_{rel} = A_{n_{PV}} / A_{n_{PV,max}}$, kde $A_{n_{PV}}$ je aktivita daného n_{PV} a $A_{n_{PV,max}}$ je maximální aktivita dosažená při $n_{PV,A_{rel,max}}$, který odpovídá $A_{rel,max} = 1$. Jak je patrné, rovnice 1 obsahuje dva korekční koeficienty, jmenovitě koeficient na korekci polohy píku (k_p) a koeficient na korekci výšky píku (k_h). Dále platí následující vztahy:

$$R_{exp} = n_{PV,A_{rel,max}} \quad (2)$$

$$R_{theor} = k_p \cdot R_{exp} \quad (3)$$

$$R_{theor} = 1 + (\rho \cdot K_d / \theta) \quad (4)$$

$$k_h = 0.5 \cdot (k_p \cdot Pe / \pi)^{0.5} \cdot \exp[-0.25 \cdot Pe(k_p - 1)^2 / k_p] = A_{n_{PV,max}} / A_0 \quad (5)$$

Když k_p konverguje k 1, potom:

$$k_h = 0.5 \cdot (Pe / \pi)^{0.5} \quad (6)$$

V uvedených rovnicích R_{exp} a R_{theor} označují experimentální a teoretické retardační koeficienty, ρ je sypaná hmotnost, θ je porosita náplně, $Pe = u \cdot L / D_d$ je Pecletovo číslo, u je průsaková rychlost SPV ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$), L je délka náplně kolony (cm) a D_d je hydrodynamický disperzní koeficient; A_0 je výchozí aktivita roztoku na vstupu do kolony.

Vyhodnocení experimentálních dat pomocí rovnice 1 pozůstává z jejich fitování použitím Newtonovy-Raphsonovy vícedimensionální metody nelineární regrese (schéma algoritmu výpočtu je v naší publikaci¹⁷), v rámci které jsou hledány hodnoty parametrů k_p a Pe ¹⁵. Jako fitovací kritérium se používá hodnota $WSOS/DF$ (Weighted Sum Of Squares divided by the Degrees of Freedom)¹⁶; shoda (jakost fitování) je přijatelná, když platí: $0.1 \leq WSOS/DF \leq 20$.

Nelineární model

Tento model je více sofistikovaný, protože kromě výpočtu retardačních koeficientů, které během transportu obecně se mění (a také k_p a k_h), vyžaduje výpočet parametrů rovnice Freundlichovy izotermy, jakož i Pe čísla. Podrobné zdůvodnění idee použití nelineárního modelu, založeném na klasické ADE rovnici, je možné nalézt v naší publikaci¹⁷. Podstata nelineárního modelu spočívá v definici R_{theor} (rovnice (7)), kde namísto K_d je dosazena první derivace rovnovážné izotermy v bodě C – viz. rovnice (7-9):

$$R_{theor} = 1 + (\rho / \theta) \cdot f'(C) \quad (7)$$

$$q = kF \cdot C^{nF} \quad (\text{rovnice Freundlichovy izotermy}) \quad (8)$$

$$dq/dC = f'(C) = (nF \cdot kF \cdot (A_{rel} \cdot C_0)^{(nF-1)}) \quad (9)$$

Zde značí: $f'(C)$ první derivaci Freundlichovy rovnice, q rovnovážnou koncentraci dané komponenty v pevné fázi, C rovnovážnou koncentraci dané komponenty v roztoku, kF sorpční kapacitní koeficient, nF koeficient charakterizující tvar izotermy, a C_0 koncentraci dané komponenty ve vstupní kapalně fázi.

Pro hodnocení experimentálních dat je použita opět výše zmíněná vícedimensionální metoda nelineární regrese¹⁵, pomocí které data jsou fitována za použití regresní funkce, pozůstávající ze třech následujících rovnic (10-12):

$$A_{rel} = (1/k_h) \cdot R_{theor} \cdot \exp[-(R_{theor} - n_{PV})^2 / (4R_{theor} \cdot n_{PV} / Pe)] / (4\pi \cdot R_{theor} \cdot n_{PV} / Pe)^{0.5} \quad (10)$$

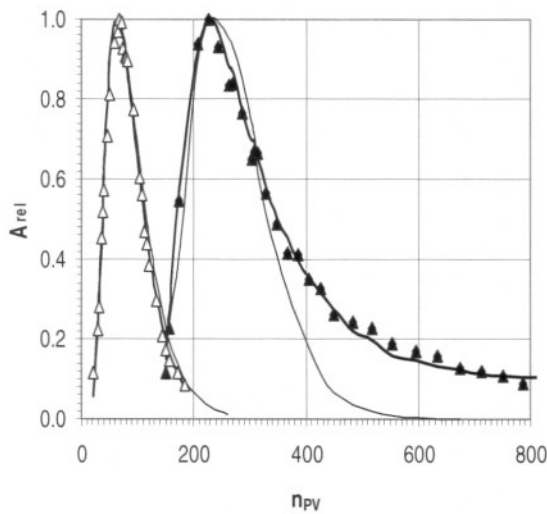
$$k_h = 0.5 \cdot ((R_{theor} / R_{exp}) \cdot Pe / \pi)^{0.5} \cdot \exp[-0.25 \cdot Pe \cdot ((R_{theor} / R_{exp}) - 1)^2 / (R_{theor} / R_{exp})] \quad (11)$$

$$R_{theor} = 1 + (\rho / \theta) \cdot (nF \cdot kF \cdot (A_{rel} \cdot k_h \cdot C_0))^{(nF-1)}. \quad (12)$$

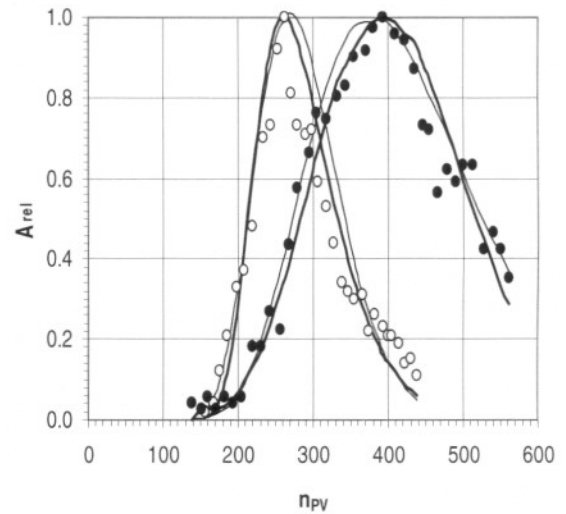
Jako primární výsledky regrese jsou získány tři parametry: kF , nF a Pe , současně se počítají i hodnoty R_{theor} , k_p a k_h . I v tomto případě kritériem fitování je hodnota $WSOS/DF$ ¹⁶.

Výsledky a diskuse

Jako příklad jsou uvedeny PK transportu $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ získané při průtoku syntetické podzemní vody, SPV, kolonkou s podrceným dioritem-I (průsaková rychlost: $u = 0.2$ cm/min). PK byly vypočítány použitím lineárního i nelineárního sorpčního modelu (Obr. 1). Naměřené a vypočítané hodnoty významných transportních parametrů pro všechny radionuklidy a vzorky hornin jsou uvedeny v Tab. 1 a 2.



Obr. 1 Experimentální hodnoty transportu ^{137}Cs (\blacktriangle) a ^{85}Sr (\triangle) v dioritu-I a jejich fitování teoretickou PK: lineární sorpční model (tenká čára) a nelineární model (tučná čára)



Obr. 2 Experimentální hodnoty transportu ^{137}Cs (\bullet) a ^{85}Sr (\circ) v povrchové půdě a jejich fitování teoretickou PK: lineární sorpční model (tenká čára) a nelineární model (tučná čára)

Podobně pro experimentální hodnoty transportu $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ v půdních vzorcích byly sestrojeny příslušné PK (Obr. 2). Hodnota průsakové rychlosti SPV, zde byla 0.06 cm/min. Významnější transportní parametry jsou uvedeny v Tab. 3 a 4. Z výsledků je evidentní, že kationy $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ jsou efektivněji zachycovány (sorbovány) půdami než horninami, takže námi studované půdy vykazují vyšší sorpční kapacitu a tím i vyšší hodnoty retardačních koeficientů (resp. i vyšší distribuční koeficienty, K_d).

Podle hodnot $WSOS/DF$ pro ^{137}Cs a ^{85}Sr v Tab. 1-4, nelineární model pravidla poskytuje lepší shodu s experimentálními daty než model lineární, a to jak pro horniny tak i pro půdy. Platí to zejména v případech, když parametry nF se liší od 1 ($nF \neq 1$). Jestliže $nF = 1$, potom $kF = K_d$. Nelineární model ukazuje na to, že hodnota retardačního koeficientu, jakož i korekčních koeficientů se mění během transportu a pomocí příslušných rovnic dá se vypočítat, že se R_{theor} dosahuje minimální hodnoty v maximu PK, resp., když $R_{theor} \approx R_{exp}$. Rozdíly mezi maximálními a minimálními hodnotami retardačních koeficientů jsou přímým důsledkem odklonu

izotermny od linearity¹⁷. Velmi nízkou sorbci anionu ¹²⁵I potvrzuje i nízká hodnota parametru *kF*.

Tab. 1. Nejdůležitější transportní parametry ¹²⁵I⁻, ¹³⁷Cs⁺ a ⁸⁵Sr²⁺ v drcených horninách (zrnitost: 0.25 - 0.8 mm, délka kolony: *L* = 7.3 cm) – lineární sorpční model

| Drcené horniny | Retardační koeficient (-) <i>R_{exp}</i> | Koeficient pozice píku <i>k_p</i> | Koeficient výšky píku <i>k_h</i> | Peclet číslo (-) <i>Pe</i> | Disperzní koeficient (cm ² /min) <i>D_d</i> | Parametr přijatelnosti (-) <i>WSOS/DF</i> |
|--------------------------------|---|--|---|-------------------------------|---|--|
| ¹²⁵ I ⁻ | | | | | | |
| Diorit-I | 1.6 | 0.841 | 1.20 | 38.2 | 0.04 | 32.3 |
| Diorit-II | 1.4 | 0.838 | 1.24 | 53.1 | 0.03 | 15.2 |
| Tonalit | 1.4 | 0.803 | 0.95 | 60.2 | 0.02 | 15.0 |
| ¹³⁷ Cs ⁺ | | | | | | |
| Diorit-I | 227 | 1.20 | 1.220 | 22.4 | 0.06 | 25.3 |
| Diorit-II | 90 | 1.41 | 0.719 | 7.0 | 0.19 | 27.7 |
| Tonalit | 36 | 1.26 | 1.120 | 25.1 | 0.06 | 63.7 |
| ⁸⁵ Sr ²⁺ | | | | | | |
| Diorit-I | 69 | 1.04 | 0.858 | 8.9 | 0.16 | 4.4 |
| Diorit-II | 53 | 1.23 | 0.797 | 7.7 | 0.17 | 16.6 |
| Tonalit | 36 | 1.04 | 0.897 | 9.7 | 0.15 | 9.7 |

Tab. 2. Nejdůležitější transportní parametry ¹²⁵I⁻, ¹³⁷Cs⁺ a ⁸⁵Sr²⁺ v drcených horninách (zrnitost: 0.25 - 0.8 mm, délka kolony: *L* = 7.3 cm) – nelineární sorpční model

| Drcené horniny | Retardační koeficient (-) <i>R_{exp}</i> | Koeficient pozice píku <i>k_p</i> | Koeficient výšky píku <i>k_h</i> | Pe číslo (-) <i>Pe</i> | Parametry Freund. izot. kF m ³ /kg nF - | | Parametr přijatelnosti (-) <i>WSOS/DF</i> |
|--------------------------------|---|--|---|---------------------------|--|-------|--|
| ¹²⁵ I ⁻ | | | | | | | |
| Diorit-I | 1.6 | 0.81-2.00 | 0.41-1.57 | 32 | 0.0069 | 0.971 | 11.4 |
| Diorit-II | 1.4 | 0.84-1.41 | 0.56-1.67 | 35 | 0.000014 | 0.606 | 46.6 |
| Tonalit | 1.4 | 0.75-1.06 | 0.61-1.99 | 50 | 0.0065 | 0.912 | 17.5 |
| ¹³⁷ Cs ⁺ | | | | | | | |
| Diorit-I | 227 | 1.00-1.76 | 0.27-1.37 | 23.0 | 16.2 | 0.860 | 2.81 |
| Diorit-II | 90 | 1.00-2.13 | 0.17-1.08 | 14.7 | 8.99 | 0.881 | 22.3 |
| Tonalit | 36 | 1.00-2.10 | 0.24-1.01 | 12.3 | 2.83 | 0.878 | 35.5 |
| ⁸⁵ Sr ²⁺ | | | | | | | |
| Diorit-I | 69 | 1.00-1.06 | 0.84-0.86 | 8.9 | 24.70 | 0.991 | 3.3 |
| Diorit-II | 53 | 1.00-1.48 | 0.59-0.92 | 7.7 | 8.98 | 0.930 | 16.6 |
| Tonalit | 36 | 1.00-1.74 | 0.54-0.89 | 9.7 | 8.73 | 0.927 | 9.7 |

Tab. 3. Nejdůležitější transportní parametry $^{125}\text{I}^-$, $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ v homogenizovaných půdách (povrchový vzorek: 5-25 cm, hlubinný: 75-100 cm, $L = 17.7$ cm) – lineární sorpční model

| Vzorek půdy | Retardační koeficient (-) R_{exp} | Koeficient pozice píku k_p | Koeficient výšky píku k_h | Pe číslo (-) Pe | Disperzní koeficient (cm^2/min) D_d | Parametr přijatelnosti (-) $WSOS/DF$ |
|-----------------------|--|---------------------------------|--------------------------------|----------------------|--|---|
| $^{125}\text{I}^-$ | | | | | | |
| Povrchový | 0.6 | 1.14 | 1.08 | 14.7 | 0.05 | > 50 (?) |
| Hlubinný | 0.8 | 1.19 | 1.53 | 68.3 | 0.02 | > 50 (?) |
| $^{137}\text{Cs}^+$ | | | | | | |
| Povrchový | 370 | 1.06 | 1.44 | 25.6 | 0.04 | 24.0 |
| Hlubinný | 283 | 1.15 | 1.67 | 50.2 | 0.02 | 40.4 |
| $^{85}\text{Sr}^{2+}$ | | | | | | |
| Povrchový | 262 | 1.5 | 1.98 | 49.6 | 0.02 | 22.2 |
| Hlubinný | 295 | 0.98 | 0.80 | 11.4 | 0.08 | 45.7 |

Tab. 4. Nejdůležitější transportní parametry $^{125}\text{I}^-$, $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ v homogenizovaných půdách (povrchový vzorek: 5-25 cm, hlubinný: 75-100 cm, $L = 17.7$ cm) – nelineární sorpční model

| Vzorek půdy | Retardační koeficient (-) R_{exp} | Koeficient pozice píku k_p | Koeficient výšky píku k_h | Pe číslo (-) Pe | Parametry Freund. izot. kF m^3/kg nF | | Parametr přijatelnosti (-) $WSOS/DF$ |
|-----------------------|--|---------------------------------|--------------------------------|----------------------|---|-------|---|
| $^{125}\text{I}^-$ | | | | | | | |
| Povrchový | 0.6 | 1.67 | 0.60 | 8.34 | 0.00094 | 2.10 | > 50 (?) |
| Hlubinný | 0.8 | 1.25 | 1.17 | 56.7 | 0.00044 | 2.34 | > 50 (?) |
| $^{137}\text{Cs}^+$ | | | | | | | |
| Povrchový | 370 | 0.84-1.09 | 1.16-1.60 | 31.9 | 274 | 1.03 | 18.1 |
| Hlubinný | 283 | 1.00-1.24 | 1.23-1.86 | 43.7 | 6.33 | 0.971 | 20.1 |
| $^{85}\text{Sr}^{2+}$ | | | | | | | |
| Povrchový | 262 | 1.00-1.08 | 1.97-2.05 | 52.4 | 91.20 | 0.977 | 22.2 |
| Hlubinný | 295 | 1.00-1.15 | 1.09-1.11 | 15.0 | 19.20 | 0.881 | 24.9 |

Výstupem nelineární regrese jsou i hodnoty Pe , ze kterých lze vypočítat D_d . Jak jsme ukázali v naší předcházející práci¹⁷, hodnoty Pe v Tab. 1-4 indikují, že charakter toku se vyznačuje poměrně vysokou disperzí rozpuštěných látek, což může být způsobeno nízkou hodnotou L a u , avšak i nehomogenním uložením vrstvy vzorků, případně i tzv. stěnovým efektem.

Závěr

Klasická 1-D advekčně-disperzní rovnice v integrované analytické formě, modifikovaná korekčními koeficienty pozice a výšky píku, upravená pro popis systému (horniny, půdy – podzemní voda) charakterizovaném lineární (= model 1) i nelineární (= model 2) sorpční izotermou, byla úspěšně použita pro fitování experimentálních průnikových křivek pomocí vícedimensionální Newtonovy-Raphsonovy nelineárně-regresní metody. Bylo zjištěno, že model 2 poskytuje správnější a spolehlivější hodnoty nejvýznamnějších parametrů transportu ^{125}I , ^{137}Cs a ^{85}Sr . Navíc se potvrdilo, že ^{125}I na použitých substrátech se prakticky nesorbují, a že retardace $^{137}\text{Cs}^+$ je vyšší než $^{85}\text{Sr}^{2+}$ u homogenizovaných půd než u drcených hornin.

Tato práce byla finančně podpořena GAČR (čís. 104/06/1583) a MŠMT (čís. ME 927 a MSM 6840770020).

1. Witherspoon P.A., Bodvarson G.S., Eds, Geological Challenges in Radioactive Waste Isolation, Third Worldwide Review, University of California, Berkeley, December, LBNL- 49767, 2001 pp. 335.
2. Alexander W.R., Smith P.A., McKinley I.G., Modelling radionuclide transport in the geological environment, In: Scott EM (Ed.) Modelling Radioactivity in the Environment, Elsevier, Amsterdam, 2003, p. 109-145.
3. IAEA TECDOC-413 Scientific and Technical Basis for Geological Disposal of Radioactive Wastes. Vienna, 2003.
4. IAEA TECDOC-1563, Spent Fuel and High Level Waste: Chemical Durability and Performance under Simulated Repository Conditions. Vienna, 2007, pp. 29.
5. Sims D.J., Andrews W.S., Creber K.A.M., Wang X., *J. Radioanal. Nucl. Chem* **263** (2005) 619.
6. Szenknect S., Ardois C., Gaudet J.P., Barthes V., *J. Contam Hydrol*, **76** (2005) 139.
7. Vanderborght J., Vereecken H., *Vadose Zone J.*, **6** (2007) 140.
8. Barnett M.O., Jardine P.M., Brooks S.C., Selim H.M., *Soil Sci. Soc. Amer. J.*, **64** (2000) 9088.
9. Palágyi Š., Vodičková H., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **280** (2009) 3.
10. Palágyi Š., Vodičková H., Landa J., Palágyiová J., Laciok A., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **279** (2009) 431.
11. Palágyi Š., Štamberg K., Vodičková H., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **283** (2010) 629.
12. Palágyi Š., Sorpce a desorpce ^{137}Cs na kolonách podrcených krystalických hornin za dynamických podmínek. Souhrny přednášek semináře Radioanalytické metody IAA'07, Praha, 2007. Ed.: M. Vobecký, Spektroskopická společnost J. M. Marci a Česká společnost chemická, str. 50-54.
13. Palágyi Š., Vodičková H., Palágyiová J., Landa J., Sorpce a desorpce ^{85}Sr , ^{125}I a $^{152,154}\text{Eu}$ na kolonách podrcených hornin za dynamických podmínek. Souhrny přednášek semináře Radioanalytické metody IAA'08, Praha, 2008. Ed.: M. Vobecký, Spektroskopická společnost J. M. Marci a Česká společnost chemická, str. 50-55.
14. Palágyi Š., Vodičková H., Sorpce a desorpce ^{125}I , $^{137}\text{Cs}^+$, $^{85}\text{Sr}^{2+}$ a $^{152,154}\text{Eu}^{3+}$ na půdách za dynamických průtokových a statických vsádkových podmínek. Souhrny přednášek semináře Radioanalytické metody IAA'09, Praha, 2009. Ed.: M. Vobecký, Spektroskopická společnost J. M. Marci a Česká společnost chemická, str. 48-54.
15. Ebert K, Ederer H, *Komputeranwendungen in der Chemie*. VCH Verlags-GesellschaftmbH, Weinheim, 1985, p. 321.
16. Herbelin AL, Westal AC, FITEQL – A computer program for determination of chemical equilibrium constants from experimental data, version 3.2. Report 96-01, Department of Chemistry, Oregon State University, Corvallis, 1996.
17. Palágyi Š., Štamberg K., *Radiochim. Acta*, **98** (2010) 359-365.
18. Palágyi Š., Štamberg K., Transport of ^{125}I , $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ in granitoidic rocks and soil. Booklet of abstract of the 16th Radiochemical Conference, Mariánské Lázně, 18-23 April 2010, p. s182.

Determination of the most important transport parameters for $^{125}\text{I}^-$, $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ in some granitoidic rocks and soils

Palágyi Štefan¹, Štamberg Karel²

¹Waste Disposal Department, Chemistry of Fuel Cycle and Waste Management Division, Nuclear Research Institute Řež plc, 250 68 Husinec-Řež, Czech Republic

²Department of Nuclear Chemistry, Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering, Czech Technical University, 115 19 Prague, Czech Republic

Two methods for determination of the most important parameters: retardation and hydrodynamic dispersion coefficients of $^{125}\text{I}^-$, $^{137}\text{Cs}^+$ a $^{85}\text{Sr}^{2+}$ in crushed diorite and tonalite rocks, as well as in a homogenized soil of loamy sand type have been described. The sorption behavior of these radionuclides, injected into the stream of synthetic groundwater in a single pulse, was investigated in a dynamic flow column arrangement, which experimental details were given previously. Both methods apply breakthrough curves derived from the integral form of 1-D advection-dispersion equation using correction coefficients on the peak position and peak height. The first method uses a linear isotherm approach, when the radionuclide distribution coefficient (K_d) is supposed constant (linear sorption model) the other model applies a non-linear isotherm approach, when K_d is changing during the transport (Freundlich sorption model). In both models a method of non-linear regression has been used. From the comparison of these different models it followed that the non-linear approach gives more accurate and reliable results.