

Aplicaciones medioambientales de la modelización geoquímica

Lara Duro

Amphos²¹ Environmental Consulting S.L., Passeig de Rubí 29-31, 08197 Valldoreix, Barcelona, España

Las aplicaciones medioambientales de la modelización geoquímica son muy variadas. Algunos ejemplos de su utilización nos lo proporcionan la búsqueda de las mejores opciones para remediar el efecto de explotaciones agrícolas intensivas sobre las aguas subterráneas y su contaminación por nitratos, la justificación de algunos episodios de contaminación por sobreexplotación de acuíferos, como es el caso de la contaminación por Arsénico en Bangladesh, la planificación de la remediación de acuíferos contaminados por compuestos organoclorados mediante la implementación de barreras reactivas, o la atenuación de los efectos de la contaminación metálica debida a los estériles de minas. Estos son solo algunos de los ejemplos, pero lo cierto es que cada vez más la planificación de cualquier acción medioambiental requiere una demostración de que los procesos físico-químicos se comprenden con el suficiente nivel de detalle como para dimensionar correctamente las acciones y predecir su impacto y su eficiencia. La combinación de las disciplinas que precisa la modelización geoquímica (química y geología básicamente, complementada en muchos de los casos por la hidrogeología) no es tarea fácil, y la formación de modelizadores geoquímicos precisa de su inmersión en los entornos específicos de científicos en las mencionadas disciplinas. En este artículo nos vamos a ocupar de una aplicación medioambiental muy concreta de la modelización geoquímica, que es la aplicada en algunos ámbitos de la gestión de los residuos radiactivos.

1. El caso de los residuos radiactivos de alta actividad. Breve Introducción.

La energía nuclear es actualmente responsable de un 16% de la electricidad producida en el mundo, variando desde el 78% en Francia hasta aproximadamente un 2% de la electricidad producida en China (ver Figura 1). Según un comunicado de prensa de la OIEA del pasado año -Viena, 23 de octubre de 2007- La importancia de la energía nucleoelectrónica como una de las principales fuentes de energía seguirá

aumentando durante los próximos decenios según las nuevas proyecciones efectuadas por el Organismo Internacional de Energía Atómica (OIEA), que acaba de publicar un nuevo informe titulado *Energy, Electricity and Nuclear Power Estimates for the Period up to 2030*” (IAEA Press releases, 2007/19).

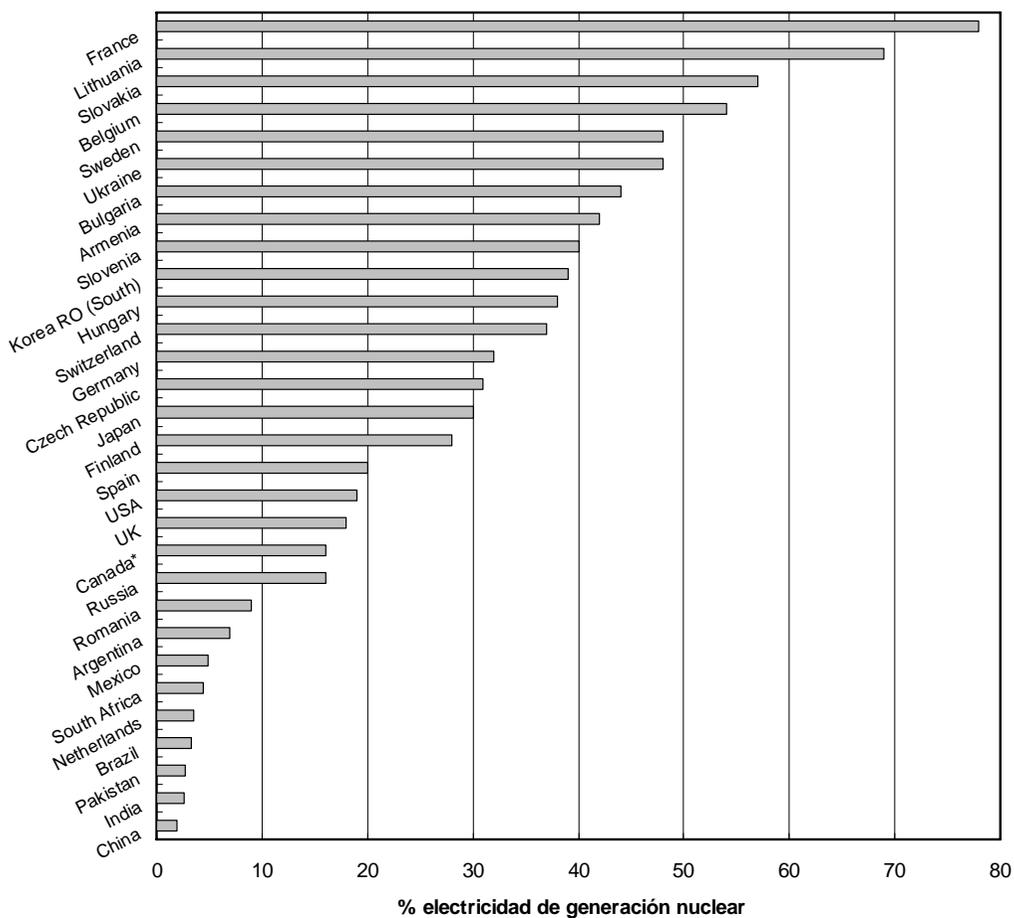


Figura 1. Porcentaje de electricidad producida mediante energía nuclear (Datos de 2007)

Independientemente de que la energía nuclear forme o no parte del mix energético en las próximas décadas, lo que es cierto es que en estos momentos se han acumulado una cierta cantidad de residuos radiactivos que precisan una gestión adecuada. Los residuos radioactivos de alta actividad (RAA) son aquéllos que provienen principalmente de las centrales nucleares, el combustible nuclear gastado. Este tipo de residuos se acumula a razón de unas 12 mil toneladas por año en todo el globo. Los RAA son altamente

radioactivos durante un largo período de tiempo, por lo cual deben aislarse de las personas y del medioambiente mientras sus niveles de radiación descienden hasta niveles naturales (unos 10^5 años). La gestión de los residuos radiactivos es responsabilidad de cada país generador de los mismos y, según el tratado internacional de la IAEA de 1997 sobre la gestión y almacenamiento del combustible gastado y otros residuos de alta actividad firmado por la mayoría de países, se exigen los más altos estándares nacionales e internacionales para el sistema de almacenamiento de este tipo de residuos.

Existe actualmente en Europa una opción preferente para el almacenamiento de RAA, compartida por gran cantidad de los actores en el problema, que consiste en su almacenamiento profundo en depósitos construidos en formaciones rocosas estables a unos 500 m de profundidad.

2. El sistema de almacenamiento geológico profundo

El sistema de almacenamiento para el combustible nuclear gastado (uno de los principales RAA) considera un sistema de contención llamado multibarrera (ver Figura 2). Según este concepto de almacenamiento, el combustible gastado se recogerá de la instalación de almacenamiento temporal donde habrá estado depositado por un periodo de 30-40 años tras haberse retirado del reactor de la central nuclear, y se dispondrá en contenedores de acero. El depósito profundo se excavará hasta unos 500 m de profundidad, donde se prepararán unos silos de almacenamiento a intervalos de 6 m aproximadamente. Los contenedores se depositarán en los silos rodeados por bloques de bentonita compactada. El acceso desde la superficie del terreno a los silos implica la construcción de un sistema de túneles subhorizontales de unos 250 m de longitud.

Una vez finalizado el almacenamiento, los túneles y pozos se rellenarán con una mezcla de roca triturada y bentonita. De esta manera, el residuo se aislará de su entorno por diversas barreras: i) la barrera intrínseca que constituye la alta estabilidad geoquímica del residuo bajo las condiciones de almacenamiento ii) las llamadas barreras de ingeniería, consistentes en el contenedor metálico, la arcilla impermeable, y el material de relleno principalmente, y iii) la barrera natural, conformada por la propia formación geológica estable que alberga el depósito. Para una muy completa descripción del sistema de almacenamiento geológico profundo de los residuos radioactivos de alta actividad, el lector puede consultar el tratado de Astudillo (2001).

Bajo estas condiciones, el aislamiento de los RAA de su entorno es altamente efectivo. Sin embargo, y refiriéndonos a la cita de la IAEA que hemos mencionado anteriormente, se exigen los más altos estándares para el almacenamiento de este tipo de

residuos, por lo cual las agencias nacionales encargadas de su gestión realizan evaluaciones del comportamiento de estos depósitos a largo plazo. Para ello se consideran cómo evolucionaría el depósito bajo diferentes eventos que pueden ocurrir en su entorno y, teniendo en cuenta las propiedades hidrológicas y físico-químicas del residuo y de las barreras, realizan predicciones del comportamiento del depósito a largo plazo.

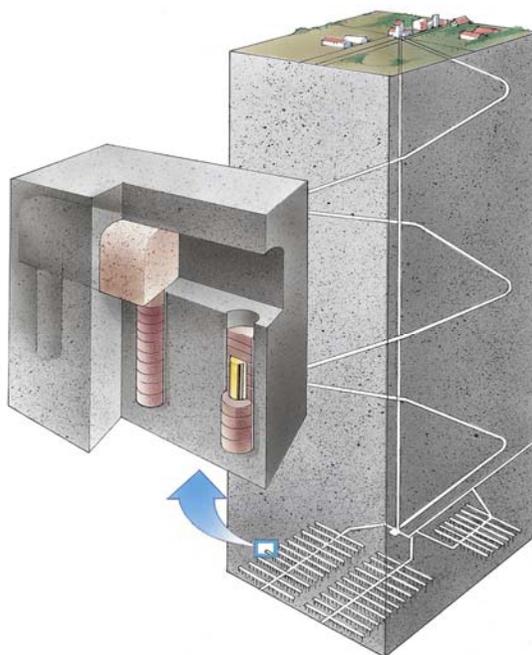


Figura 2. Esquema del concepto de almacenamiento geológico profundo para RAA.

A pesar de que el residuo queda absolutamente aislado del agua subterránea que pueda amenazar su estabilidad gracias a este sistema, la evaluación de comportamiento debe considerar casos extremos en el que el agua contacta el residuo, produce su disolución y los elementos radioactivos (radionucleidos) en él contenidos migran hacia el exterior del depósito.

La migración de los radionucleidos una vez disueltos en el agua subterránea se verá ralentizada por múltiples procesos, tales como precipitación de fases sólidas, adsorción sobre las superficies de los diversos materiales con los que el radionucleido pueda interactuar, etc. La adecuada cuantificación de los procesos de retención es importante puesto que se utiliza para evaluar el tiempo que un radionucleido eventualmente liberado desde el residuo tarda en llegar a la biosfera. Por este motivo se realizan

múltiples evaluaciones de los procesos de retención. En la sección siguiente nos centraremos en la cuantificación del proceso de adsorción, ya que se considera uno de los procesos más importantes de retención de los radionucleidos, y mostraremos un caso de modelización geoquímica aplicada.

3. El proceso de adsorción

La adsorción consiste en la retención de un elemento sobre la superficie de una fase sólida. Este proceso es capaz de controlar la concentración de un elemento en disolución en el caso en que no se exceda la solubilidad de ninguna de las fases sólidas que éste puede formar.

Si realizamos un análisis más detallado del concepto expuesto en la Figura 2, vemos que los materiales que se disponen como barreras de ingeniería son muy buenos candidatos para adsorber los elementos contenidos en el residuo lo cual constituye una de las razones para su selección como tales. La composición del combustible nuclear gastado es extremadamente variada, siendo su componente principal el dióxido de uranio (un 98% en peso) junto con sus productos de fisión y de activación.

El acero del contenedor está principalmente compuesto de hierro, el cual se corroe en presencia de agua generando óxidos e hidróxidos de hierro(II) y hierro(III) cuya superficie presenta gran afinidad por complejar a los metales en disolución (Dzombak y Morel, 1990). La bentonita, por su parte, está formada mayoritariamente por montmorillonita, arcilla con disposición TOT, es decir, capa de unidades $\text{Si}(\text{OH})_4$ tetraédricas, seguida por una capa de unidades $\text{Al}(\text{OH})_6$ o bien $\text{Mg}(\text{OH})_6$ octaédricas y seguida de otra capa $\text{Si}(\text{OH})_4$. La unión entre unidades TOT se realiza mediante los cationes entre-capas, que son, mayoritariamente Ca^{2+} y Na^+ . Dichas posiciones entre-capas son muy lábiles, por lo cual estos cationes pueden ser substituidos por otros cationes presentes en el agua que se halle en contacto con la montmorillonita, mediante el proceso llamado de intercambio catiónico. Este proceso retarda la migración de elementos de características físico-químicas parecidas al Ca^{2+} y Na^+ , es decir, principalmente elementos alcalino térreos y alcalinos, como pueden ser el Sr^{2+} y el Cs^+ , que se encuentran en el residuo que nos ocupa (ver, por ejemplo Bradbury y Baeyens, 1997).

La comprensión conceptual de los procesos de adsorción que tendrán lugar en el sistema de estudio, así como su adecuada parametrización son puntos cruciales que deberemos resolver antes de realizar el estudio de evaluación del comportamiento de un depósito de almacenamiento geológico profundo. La modelización geoquímica juega aquí un papel crucial tal y como veremos en la sección siguiente.

4. Parametrización de los procesos de sorción

El coeficiente de distribución, K_d , se define como la relación de un componente M entre dos fases distintas, es decir, viene definido para sistemas heterogéneos.

$$K_d = \frac{C_S}{C_L} \quad (1)$$

donde C_S es la concentración por unidad de masa del elemento (radionucleido) en la fase sólida y C_L la concentración por unidad de volumen del elemento (radionucleido) en la fase líquida.

Este parámetro se utiliza en los ejercicios de evaluación del comportamiento para calcular el factor de retardo (R) de un soluto, es decir, cuánto se ve retardado un soluto que experimenta reacciones de adsorción (soluto reactivo) frente al que viaja a la velocidad del agua sin sufrir ningún retardo (soluto conservativo):

$$R = \frac{t_{reactivo}}{t_{conservativo}} = 1 + \frac{\rho \cdot K_d \cdot (1 - \phi)}{\phi} \quad (2)$$

donde $t_{reactivo}$ y $t_{conservativo}$ son los tiempos de llegada a un determinado punto de un soluto reactivo y uno conservativo respectivamente; ρ es la densidad del material y ϕ es la porosidad del medio. Por tanto, vemos que la selección de un valor de K_d para utilizar en estos cálculos es un proceso importante para una correcta evaluación del retardo que sufre un soluto.

La utilización de K_d , no obstante, conlleva asociadas dificultades importantes debido a su carácter empírico. K_d no es una constante termodinámica propiamente dicha, sino que depende de todas las variables físico-químicas del sistema geoquímico considerado, ya que la magnitud C_S de la ecuación (1) engloba todo el radionucleido asociado a la fase sólida, independientemente del estado en que se encuentre, si precipitado, adsorbido, ocluido, etc. Por este motivo, es necesario describir su variación con dichas variables, lo cual permite realizar una evaluación más adecuada sobre el comportamiento de los metales en estudio.

Podemos mostrar algunos ejemplos de cómo el parámetro K_d varía con diversas características del sistema, lo cual dificulta la selección de un valor para dicha magnitud a no ser que se conceptualicen y se cuantifiquen las razones para su variación. En la Figura 3a vemos la variación del coeficiente de distribución (K_d) para la adsorción de uranio sobre esquistos con el pH. Observamos que al pasar de pH 6 a pH 8 su valor disminuye en 4 órdenes de magnitud, por lo cual si seleccionamos el valor a pH 6 y lo

utilizamos en aguas que poseen un pH alrededor de 8 estaremos sobreestimando la retención del uranio y, por lo tanto, realizando estimaciones no realistas de nuestro sistema. Un efecto parecido lo vemos en la Figura 3b, donde se muestra la disminución del valor del coeficiente de distribución del Cs sobre diferentes granitos al aumentar la concentración inicial del elemento dispuesta en contacto con el sólido. En la figura se indican las referencias originales de donde se han obtenido los datos experimentales.

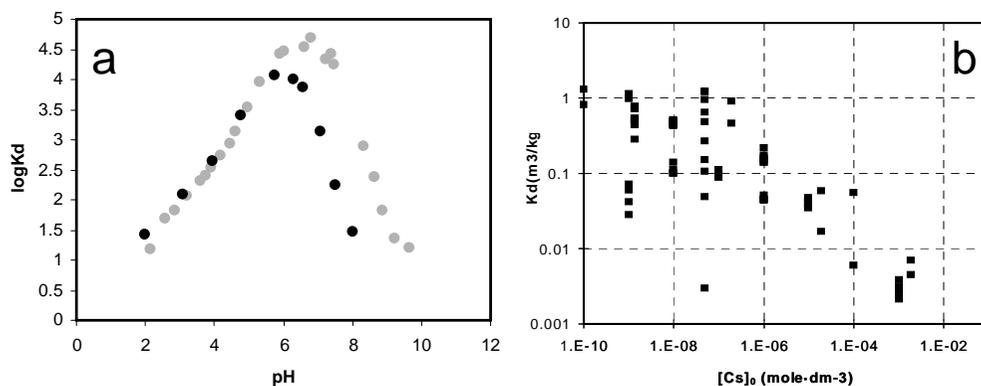


Figura 3. a) Variación del valor de K_d del Uranio sobre esquistos con el pH (datos de Payne, 1999). b) variación del valor de K_d del Cesio sobre diferentes tipos de granitos con la concentración inicial de Cs (datos de Daniels, 1980; Eriksen y Locklund, 1987; Cui, 1996; Huitti et al., 1996; Byegard et al., 1995; Aggeryd et al, 1991; Anderson et al, 1983).

La conclusión que extraemos de este breve análisis es la necesidad de parametrizar el valor del coeficiente de distribución utilizado en nuestros cálculos en función de parámetros físico-químicos de nuestro sistema que puedan determinarse, tales como pH, concentración de diversos iones que compitan con el proceso de adsorción, valor del potencial redox que pueda resultar en una variación de la especiación del radionucleido de interés, etc. Por este motivo se desarrollaron durante las dos últimas décadas del pasado siglo los modelos de coordinación superficial, los cuales consideran que la superficie de los óxidos e hidróxidos en presencia de agua se hallan hidratadas formando grupos hidroxilos terminales $>X-OH$ con propiedades ácido base que les permiten ceder y ganar protones y, por tanto, actuar como especies complejantes de elementos químicos a través de procesos de adsorción muy similares a los procesos de hidrólisis.

La presentación de los modelos de coordinación superficial no es el objetivo de este artículo, por lo que en caso de interés en el detalle, el lector puede consultar diferentes tratados, tales como el ya clásico de Stumm (1992), el tratado de Dzombak y Morel (1990) donde se recopilan los parámetros para modelizar la adsorción de múltiples

metales sobre la superficie de ferrihidrita, y textos más generales como por ejemplo Stumm y Morgan (1996).

La aplicación de estos modelos de sorción, sin embargo, ha resultado muy útil en la cuantificación de la adsorción de radionucleidos sobre diversas superficies y a continuación presentaremos un ejemplo de la adsorción de uranio sobre esquistos naturales de un depósito de uranio en el Norte de Australia (Koongarra), el cual ha sido sujeto a numerosos estudios para comprender y modelizar los mecanismos de migración de uranio en el entorno (ver, por ejemplo Payne, 1999) y, en consecuencia, para contribuir a dotar de solidez científica a la selección de valores de K_d a utilizar en las evaluaciones del comportamiento de un depósito de residuos radiactivos.

5. Modelización de la adsorción de uranio sobre esquistos del depósito de Koongarra

Los esquistos de la zona de estudio se caracterizaron exhaustivamente y se realizaron experimentos de adsorción de uranio sobre estos materiales bajo multitud de condiciones experimentales, variando parámetros tales como el pH, la relación sólido/líquido, la concentración de carbonatos en el medio, la concentración de uranio inicial, etc. La mayoría de los trabajos experimentales citados aquí los realizó Payne y los explica en su tesis doctoral (Payne, 1999). El caso de estudio resultó tan interesante que la Agencia de la Energía Nuclear lo seleccionó en el año 2002 como uno de los casos ideales para desarrollar y testar los modelos de coordinación superficial desarrollados hasta el momento en el proyecto NEA Sorption, Phase-II (Payne et al., 2006).

La adsorción de uranio sobre el material de interés aumenta mucho entre pH 2 y 7, para descender a pH más alcalinos hasta ser prácticamente nula a pH 10 (ver Figura 4). En la misma figura comparamos la isoterma de adsorción de la muestra w2 con las de la ferrihidrita y la caolinita, materiales presentes en el material sólido utilizado en los experimentos. De esta comparación vemos que los dos sólidos simples (ferrihidrita y caolinita) presentan un comportamiento similar al de la muestra natural para valores de pH por encima de 5, pero que sin embargo infravaloran la capacidad de adsorción de la muestra w2 para pH más ácido.

Debido a la falta de valores de parámetros de sorción del uranio sobre el material natural, a que tanto ferrihidrita como se hallaban presentes en la muestra y a que la curva de adsorción de la ferrihidrita es más parecida a la de la muestra natural que la de la caolinita, decidimos utilizar los parámetros de adsorción del uranio sobre la

ferrihidrita para tratar de reproducir la adsorción sobre material natural bajo un gran número de condiciones experimentales distintas.

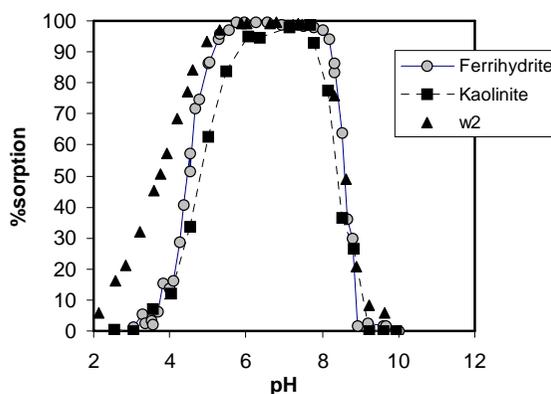


Figura 4. Comparación entre la adsorción de uranio sobre ferrihidrita, caolinita y la muestra natural "w2" de Koongarra. Variación con el pH.

Las diversas condiciones experimentales que Payne (1999) utilizó en los experimentos cuya modelización presentaremos aquí son las siguientes:

1. Condiciones base: medio iónico 0.1 M NaNO_3 , equilibrado con la atmósfera, 1 mM de Fe y $[\text{U}]_{\text{total}} = 3.7 \cdot 10^{-6}$ M.
2. Igual que las condiciones base, a una presión de CO_2 más elevada.
3. Igual que las condiciones base, variando la concentración de uranio.
4. Condiciones base, pero realizando los experimentos en muestras de diferente origen que varían en la cantidad de hierro presente.
5. Igual que las condiciones base a diferentes fuerzas iónicas.

El modelo seleccionado para simular la adsorción de uranio sobre las muestras fue el desarrollado por Waite et al. (1994) para la descripción de uranio sobre ferrihidrita, puesto que, según los datos mostrados en la Figura 4, hemos seleccionado la ferrihidrita como material modelo para las muestras de Koongarra. Los parámetros utilizados en la modelización fueron los siguientes:

- a. Área superficial específica del sólido: $600 \text{ m}^2/\text{g}$.
- b. Estequiometría: Fe_2O_3 (89g solid / mol Fe), como está indicado en Dzombak and Morel (1990).
- c. Densidad de puntos de coordinación: total densidad de sites 0.875 moles sites /mole Fe, de los cuales 1.8 mmoles corresponden a puntos de coordinación fuertes o de alta afinidad.

- d. Modelo electrostático: modelo de capa difusa (ver Dzombak y Morel, 1990).
- e. Reacciones superficiales: Las reacciones de coordinación superficiales consideradas se muestran en la Tabla 1.

Tabla 1. Reacciones de coordinación superficiales consideradas (a partir de Waite et al., 1994)

Puntos de alta afinidad (XOH)	LogK (I = 0.1)
$XOH + H^+ = XOH_2^+$	6.51
$XOH = XO^- + H^+$	-9.13
$XOH + UO_2^{2+} = (XO)_2UO_2 + 2 H^+$	-2.57
$XOH + UO_2^{2+} + CO_3^{2-} = (XO)_2UO_2CO_3^{2-} + 2 H^+$	3.67
$XOH + CO_3^{2-} + 2 H^+ = XCO_3H + H_2O$	19.5
$XOH + CO_3^{2-} + H^+ = XCO_3^- + H_2O$	11.51
Puntos de baja afinidad (YOH)	
$YOH + H^+ = YOH_2^+$	6.51
$YOH = YO^- + H^+$	-9.13
$YOH + UO_2^{2+} = (YO)_2UO_2 + 2 H^+$	-6.28
$YOH + UO_2^{2+} + CO_3^{2-} = (YO)_2UO_2CO_3^{2-} + 2 H^+$	-0.42
$YOH + CO_3^{2-} + 2 H^+ = YOCO_3H + H_2O$	19.5
$YOH + CO_3^{2-} + H^+ = YCO_3^- + H_2O$	11.51

La descripción que, con el modelo presentado, se obtuvo de los datos experimentales es la que se muestra en la Figura 5. Tal y como se observa, la descripción es muy buena excepto a pH menores de 4, tal y como esperábamos de la comparación entre el comportamiento de la muestra natural w2 y el de la ferrihidrita utilizada como material simple con propiedades de adsorción semejantes a la muestra de estudio.

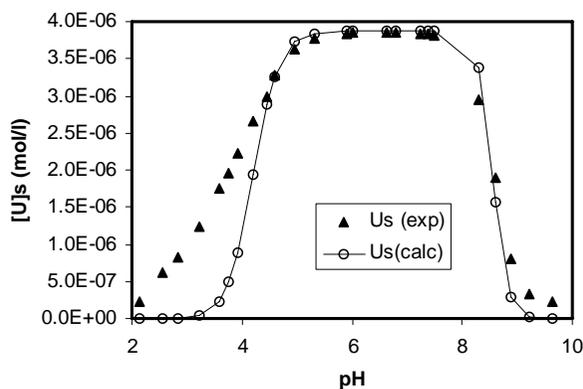


Figura 5. Descripción de los datos experimentales obtenida con el modelo descrito en el texto. Los datos son los triángulos negros, y el cálculo los círculos vacíos. Las condiciones experimentales corresponden al caso base: medio iónico 0.1 M NaNO₃, equilibrado con la atmósfera, 1 mM de Fe y [U]_{total} = 3.7·10⁻⁶ M.

El desajuste a pH ácidos se debe probablemente a la existencia de una superficie del sólido diferente, la cual puede ser resultado de la modificación por presencia de diversos adsorbatos que son capaces de ocupar la superficie del sólido y adsorber uranio con mayor afinidad. Los resultados indicaron que la modificación debida a la presencia de fosfatos podía explicar el comportamiento a pH más ácidos, por lo cual se incluyó en el modelo la formación de otras especies superficiales con sus constantes de estabilidad asociadas (Tabla 2).

Tabla 2. Estequiometría y estabilidad de las especies superficiales que contienen fosfatos utilizadas en el modelo

Puntos de alta afinidad (XOH)	LogK (I=0.1)
$XOH + PO_4^{3-} + 2 H^+ = XHPO_4^- + H_2O$	25.4
$XOH + PO_4^{3-} + UO_2^{2+} + 2 H^+ = XHPO_4UO_2^+ + H_2O$	39.8
Puntos de baja afinidad (YOH)	
$YOH + PO_4^{3-} + 2 H^+ = YHPO_4^- + H_2O$	25.39
$YOH + PO_4^{3-} + UO_2^{2+} + 2 H^+ = YHPO_4UO_2^+ + H_2O$	25.4 ^c

La comparación entre los resultados obtenidos con la simulación que no considera fosfato (Modelo A) y la que lo considera (Modelo B) se muestra en la Figura 6. Como podemos observar, la descripción mejora notablemente.

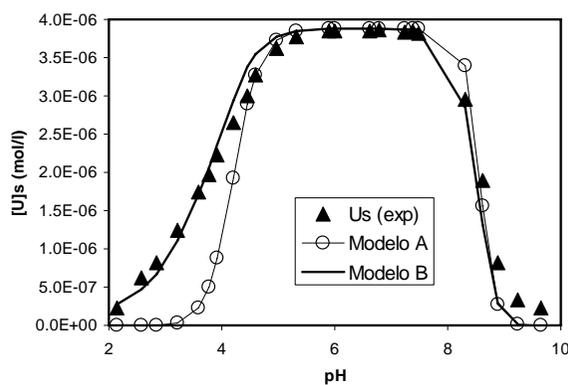


Figura 6. Descripción de los datos experimentales (triángulos negros) obtenida con el Modelo A (no especies de fosfato) y el Modelo B (fosfato incluido).

La aplicación del modelo desarrollado a las diversas variaciones de condiciones puede observarse en la Figura 7, donde vemos que el modelo es capaz de reproducir los datos experimentales de Payne (1999) en condiciones variadas de presión de CO₂ del

systema (a); para muestras de sólido tomadas en distintos puntos (b); para distintas concentraciones totales de uranio (c) y distintas fuerzas iónicas (d).

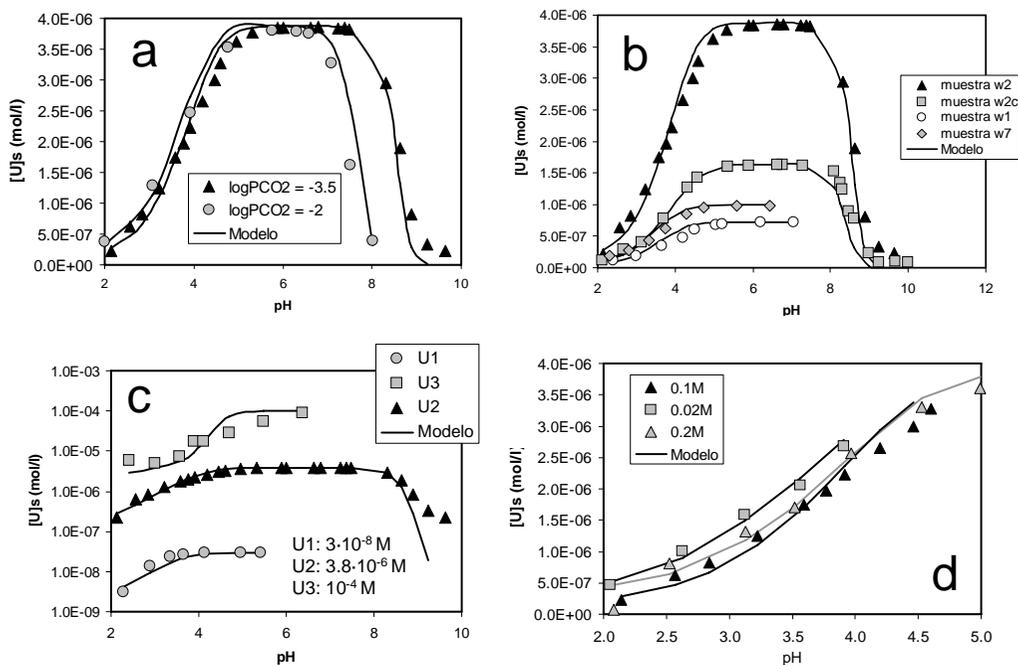


Figura 7. Aplicación del modelo de coordinación desarrollado a diferentes datos experimentales donde se ha variado la presión de CO_2 del sistema (a); o bien el origen de la muestra sólida (b); o la concentración total de uranio (c) o la fuerza iónica de la disolución acuosa en contacto con el sólido (d).

Tras observar lo adecuado que es el modelo de coordinación superficial desarrollado para interpretar los datos experimentales bajo variadas condiciones y con distintos substratos, estamos en condiciones de justificar la selección de un valor para el parámetro K_d que nos permita realizar una estimación del retardo del uranio con sólida base científica. La selección de K_d sin el desarrollo de los modelos conceptuales adecuados puede inducir a errores debido a la variación de condiciones. De este modo, vemos que el desarrollo de modelos geoquímicos permite dotar de comprensión conceptual y parametrización numérica adecuada del proceso de sorción utilizado aquí como ejemplo, y consecuentemente permite realizar predicciones sustentadas sobre hipótesis científicas que van más allá de la observación empírica.

Referencias

- Aggeryd, I., Landström, O., and Mattiasson, L. (1991) Sorption of terbium, ytterbium, hafnium and cesium on granite, gneiss and sandstone. *Studsvik report NW-91/6*, Studsvik Nuclear AB, Nyköping, Sweden.
- Andersson, K., Torstenfeld, B. and Allard, B. (1983) Sorption of radionuclides in geologic systems. *KBS Technical Report TR 83-63*.
- Astudillo, J. (2001) *El almacenamiento geológico profundo de los residuos radiactivos de alta actividad: principios básicos y tecnología*. Enresa, Madrid.
- Bradbury, M.H. and Baeyens, B. (1999) Modelling the sorption of Zn and Ni on Camontmorillonite. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **63**, 325-336.
- Byegård, J., Skarnemardk, G., and Skålberg, M. (1995) The use of some ion-exchange sorbing tracer cations in in-situ experiments in high saline groundwaters. In: *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII*. Materials Research Society Symposium Proceedings 353, 1077-1084.
- Cui, D. (1996) *Sorption processes and solubilities of radionuclides in deep granite fracture systems*. Ph. D. Thesis. Royal Institute of Technology. TRITA-KKE-9601.
- Daniels, W.R. (1980) Laboratory studies of radionuclide distributions between selected groundwaters and geologic media. *Los Alamos Report*, LA-8586-PR.
- Dzombak, D.A., Morel, F.M.M. (1990) *Surface Complexation Modeling: Hydrous Ferric Oxide*. John Wiley & Sons (1990).
- Eriksen, T.E. and Locklund, B. (1987) Radionuclide sorption on granitic drill core material. *SKB Technical Report*, TR 87-22.
- Huitti, T., Hakanen, M., and Lindberg, A. (1996) Sorption of cesium, radium, protactinium, uranium, neptunium and plutonium on rapakivi granite. *Posiva Report*, 96-23.
- Payne, T., Davis, J., Ochs, M., Olin, M., Tweed, C. (2006) NEA Sorption Project Phase II: Interpretation and Prediction of Radionuclide Sorption onto Substrates Relevant for Radioactive Waste Disposal Using Thermodynamic Sorption Models *OECD-NEA 5992*.
- Payne, T.E. (1999) *Uranium (VI) interactions with mineral surfaces: controlling factors and surface complexation modelling*. Ph.D. Thesis, University of New South Wales.
- Stumm, W. (1992) *Chemistry of the Solid-Water Interface: Processes at the Mineral-Water and Particle-Water Interface in Natural Systems*. John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Stumm, W. and Morgan, J.J. (1996) *Aquatic Chemistry, Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters, 3rd Edition*. John Wiley & Sons, Inc., New York.
- Waite, T.D., Davis, J.A., Payne, T.E., Waychunas, G.A. and Xu, N. (1994) Uranium (VI) adsorption to ferrihydrite: Application of a surface complexation model. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **58**, 5465-5478.