



Avskiljning av uran från dricksvatten med reaktiva filter

Ellinor Dässman

Handledare: Jon Petter Gustafsson (Mark- och vattenteknik, KTH), Dan Berggren Kleja
Examinator: S. Ingvar Nilsson

EXAMENSARBETE I MARKVETENSKAP, 30 hp, D-nivå

Sveriges lantbruksuniversitet
Institutionen för markvetenskap
Avdelningen för markkemi och jordmånslära
Examens- och seminariearbeten Nr 89

Uppsala 2008
ISSN 1102-1381
ISRN SLU-MLE-EXS--89--SE

Sammanfattning

Vatten är vårt viktigaste livsmedel och dess kvalitet är framförallt beroende av de geologiska förutsättningarna där det utvinns. På grund av geologiska omständigheter finns det i vissa områden en förhöjd risk för höga koncentrationer av uran i grundvattnet, vilket i sin tur utgör en risk för människors hälsa. Att dricka uranhaltigt vatten kan vara en hälsorisk på grund av uranets kemiska egenskaper. Livsmedelsverket och Socialstyrelsen rekommenderar därför att åtgärder vidtas när dricksvattnet innehåller en högre koncentration av uran än 15 mikrogram per liter. Kartläggningar gjorda av SSI och SGU visar att det är framförallt bergbore brunnar i områden med en uranrik berggrund som kan innebära skadliga koncentrationer uran i dricksvatten. I samhället Ärla, utanför Eskilstuna, ligger Ärla vattenverk där man i en av vattenverkets brunnar har koncentrationer av löst uran som överstiger riktvärdet.

En intressant teknik att utveckla för uranavskiljning i brunnar är adsorption till reaktiva filtermaterial. Ett syfte med reaktiva filter är att kunna avskilja ämnen genom att använda ett minimum av energi och kemikalier. Reaktiva filter måste ha specifika fysikalisk-kemiska egenskaper för att kunna avskilja oönskade ämnen i vatten. Examensarbetets övergripande syfte var att undersöka två reaktiva filters potential för uranavskiljning; en järnoxidtäckt olivinsand samt en anjonbytarmassa.

Examensarbetet innefattade skakförsök med konstgjorda vatten, vatten från Ärla vattenverk i Eskilstuna och vatten från en bäck nära Stripa Gruva, samtliga med lösta urankoncentrationer högre än 15 µg/l. Resultaten från skakförsöken med järnoxidtäckt olivinsand som filtermaterial tolkades med hjälp av det kemiska jämviktsprogrammet Visual MINTEQ 2.52. Modellen optimerades därefter för uranavskiljning. Studien innefattade även kolonnförsök med de två reaktiva filtermaterialen för vattnet i Ärla, detta för att få en mer verklig bild av hur effektiva filtren är gällande uranavskiljning.

Resultat från skak- och kolonnförsöken visade att den järnoxidtäckta olivinsanden avskiljde uran effektivt. Kolonnerna innehållande järnoxidtäckt olivinsand skiljde sig åt men båda förmådde reducera urankoncentrationerna till mindre än 11 µg/l, vilket är klart lägre än gränsvärdet på 15 µg/l. Jonbytarmassan fungerade inte som önskat då avskiljningseffektiviteten gradvis försämrades under den senare delen av försöket. Förmodligen var problemet mer tekniskt än kemiskt då det med stor sannolikhet hade bildats kanalgångar som förorsakade en sämre avskiljning.

Sammanfattningsvis kan det konstateras att de resultat som erhållits i min studie visar att järnoxidtäckt olivinsand är potentiellt intressant som filtermaterial för avskiljning av uran i dricksvatten men att ytterligare forskning och utveckling krävs.

Nyckelord: uran, reaktiva filter, järnoxid, bergsbore brunnar, jämviktsmodellering, Visual Minteq

Abstract

Water is our most important provision and its quality is above all dependent on the geological conditions in the area from where it is extracted. Due to geological properties there are certain areas with an elevated risk of high uranium levels in the ground water, which in turn constitutes a risk for human health. Consumption of water that contains a high concentration of uranium implies a health risk due to the chemical characteristics of uranium. Livsmedelsverket (The National Food Administration) and Socialstyrelsen (The National Board of Health and Welfare) therefore recommend that precautionary measures should be taken when the uranium concentration in ground water exceeds 15 micrograms per litre. In particular, drinking water collected from wells in areas with uranium-rich bedrock may have a harmfully high level of uranium. One of the wells of the Ärla water purification plant, located near Eskilstuna, Sweden, contains water that exceeds the guideline of 15 micrograms per litre.

One interesting technique for removing uranium from drinking water is adsorption to reactive filter materials. Reactive filters represent a kind of low-cost technology that is intended to utilise a minimum of energy and chemicals. The filters may have specific physical and chemical properties that make them suitable for removing unwanted substances from the water. The aim of this thesis was to investigate the potential of two different reactive filters for uranium removal, i.e. iron-oxide-coated olivine (IOCO) and an anion exchange resin (Purolite).

The study included batch experiments with artificial water, from the Ärla water purification plant, and water from a stream near the Stripa mine, both sites having uranium levels higher than 15 micrograms per litre. The results that were obtained by using iron oxide coated olivine filters were further analysed using the chemical equilibrium model Visual Minteq 2.52. The model used was then optimised for uranium removal. The study also included a column experiment with the two filter materials, using water from the Ärla water purification plant. The goal was to provide a more realistic picture of how efficient the filters really were concerning uranium removal.

Results from the batch and column experiments showed that the iron oxide coated olivine filter efficiently removed uranium. The two filter columns showed different results, but both of them were able to reduce the uranium concentration to less than 11 micrograms per litre, i.e. significantly lower than the guideline mentioned above. The ion exchange did not work as planned as the filtering efficiency gradually declined during the latter part of the experiment. Presumably this was due more to technical problems than to chemical ones. It seems likely that channels may have formed in the filter material, causing a lower uranium removal efficiency.

In conclusion, it can be established that iron oxide coated olivine is a potentially interesting filter material for the removal of uranium from drinking water, but further research and development is needed.

Key words: Uranium; filter materials; iron oxide; surface complexation; modeling.; Visual Minteq

1. INLEDNING	7
1.1 BAKGRUND	7
1.2 SYFTE.....	7
2. BAKGRUND OCH TEORI	8
2.1 URAN OCH GRUNDVATTEN	8
2.2 URAN(VI)-KOMPLEX.....	9
2.2.1 Uran(VI)-hydroxo- och karbonatkomplex	9
2.2.2 Uran(VI)-fluorid-, fosfat- och sulfatkomplex.....	10
2.3 HÄLSOEFFEKTER/MEDICINSKA ASPEKTER.....	10
2.4 RIKTVÄRDEN FÖR URAN I DRICKSVATTEN	11
2.5 AVSKILJNING AV URAN.....	11
2.5.1 Filterrening	12
2.5.2 Filtermaterial.....	12
2.6 JONBYTTE SOM TEKNIK FÖR ATT AVSKILJA URAN	13
2.7 ADSORPTION AV URAN TILL JÄRNOXID.....	14
2.7.1 Järnoxidens variabla laddning.....	14
2.8 YTKOMPLEXMODELLER.....	16
3. MATERIAL OCH METODER	16
3.1 VATTEN	16
3.2 FILTERMATERIAL	16
3.3 SKAKFÖRSÖK	17
3.3.1 Material.....	17
3.3.2 Utförande	17
3.3.3 Skakning.....	18
3.3.4 Analyser	18
3.4 KOLONNFÖRSÖK	19
3.5 KEMISK JÄMVIKTSMODELLERING.....	20
4. RESULTAT OCH DISKUSSION	20
4.1 KARAKTERISERING AV VATTEN	20
4.2 SKAKFÖRSÖK	21
4.2.1 Uran(VI)-avskiljning med vatten från Ärla.....	21
4.2.2 Uran(VI)-avskiljning med vatten från Stripa.....	23
4.2.3 Uran(VI)-avskiljning till ferrihydrit.....	24
4.2.4 Uran(VI)-avskiljning till ferrihydrit i närvaro av karbonat.....	25
4.2.5 Uran(VI)-avskiljning till ferrihydrit i närvaro av sulfat	27
4.2.6 Kemisk jämviktsmodellering i Visual MINTEQ	27
4.4 KOLONNFÖRSÖK.....	30
4.4.1 Allmänt.....	30
4.4.2 Uranavskiljning till IOCO	30
4.4.4 DOC-avskiljning till IOCO	32
4.4.5 Sulfatavskiljning till IOCO	32
4.4.5 Uranavskiljning till Purolite	33
4.4.6 Jonbytarmassans kapacitet	34
4.4.7 DOC-avskiljning till Purolite.....	35
4.4.8 Sulfatavskiljning till Purolite	36

4.4.9 Kemisk jämviktsmodellering i Visual MINTEQ	36
6. SLUTSATSER	38
6. KÄLLFÖRTECKNING.....	41

1. Inledning

1.1 Bakgrund

Sverige har förhållandevis höga urankoncentrationer i grundvattnet på grund av en uranrik mineralogi. Av Sveriges befolkning får omkring fyra miljoner sitt dricksvatten antingen direkt från grundvatten eller från infiltrerat vatten. I ytvatten och i grävda brunnar är koncentrationerna löst uran lägre än i bergborrade brunnar (SGU, 2004). I Sverige rekommenderar Livsmedelsverket, enligt WHO:s rekommendation en högsta nivå av uran i dricksvatten på 15 mikrogram per liter. Under senare år har ett ökat intresse visats den naturliga förekomsten av uran i dricksvatten. En kartläggning gjord av Statens strålskyddsinstitut, SSI visar att nio grundvattenverk av 256 hade en löst urankoncentration som översteg 15 mikrogram per liter (SSI, 2004). Enligt en försiktig bedömning, delvis baserad på norska och finska erfarenheter, kan 15-20 % av alla bergborrade brunnar i Sverige ha urankoncentrationer som överstiger riktvärdet. Lokalt kan andelen vara högre. Fröberg (2005) rapporterade till exempel att 26 % av alla bergborrade brunnar i Dalarna hade för höga urankoncentrationer. Vidare visar en studie genomförd av SGU och SSI, där man undersökt brunnsvatten i områden med hög uranhalt i berggrunden, att en tredjedel av 103 undersökta bergborrade brunnar hade urankoncentrationer över 15 mikrogram per liter. (SGU, 2004).

1.2 Syfte

Detta examensarbete syftar till att undersöka två olika reaktiva filtermaterials potential att avskilja uran från vatten. Materialen är järnoxidtäckt olivinsand (benämns IOCO efter engelskans *Iron-Oxide-Coated Olivine*) och en anjonbytarmassa (Purolite® A500). Filtermaterialens förmåga att adsorbera uran undersöktes genom skakförsök, där vikten lagts på hur adsorptionen påverkas av pH samt närvaro av karbonat och sulfat. Resultaten från skakförsöken tolkades med hjälp av en ytkomplexmodell i jämviktsprogrammet Visual Minteq 2.52. Ytterligare en målsättning med studien var att undersöka kapaciteten hos filtermaterialen genom kolonnförsök. Studiens övergripande mål var att ge rekommendationer beträffande vilken typ av filter som avskiljer uran effektivast vid olika vattenmiljöer (till exempel beträffande grundvattnets kemiska beskaffenhet) samt optimera ytkomplexmodellen för uranavskiljning.

2. Bakgrund och teori

2.1 Uran och grundvatten

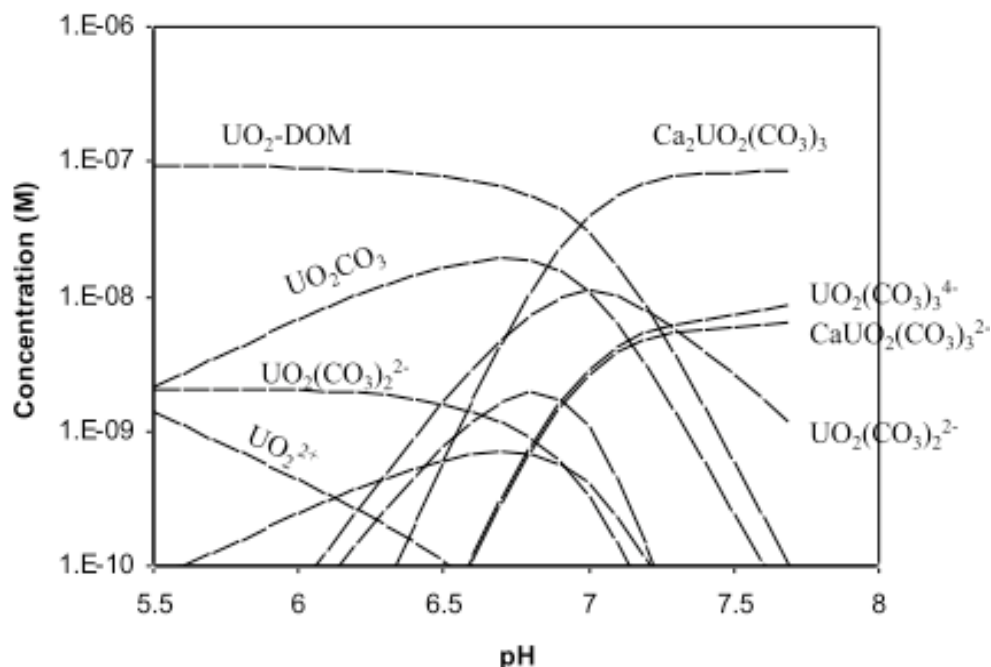
Uran förekommer som tre naturliga isotoper, ^{234}U , ^{235}U och ^{238}U , vilka samtliga är radioaktiva. Den tyngsta isotopen ^{238}U dominerar och utgör 99 % av det naturligt förekommande uranet. Dock är detta även den minst radioaktiva uranisotopen med en halveringstid på 4,5 miljarder år. Uran bidrar alltså med en viss radioaktivitet, men i praktiken är andra källor till radioaktivitet (t.ex. radon) betydligt viktigare för stråldosen (SSI, 2007). Uran vittrar och sprids i naturen från ett antal källor, bland annat kristallina bergarter, från sediment samt utsläpp från kärnkraftsverk och avfallsanläggningar (WHO, 2004). Den svenska berggrunden har en genomsnittlig halt på 3 mg/kg men halten kan vara hundra gånger högre i en del bergarter som till exempel alunskiffer. Problemet med uran i dricksvattnet förekommer i Europa i stort sett bara i Norge, Finland och Sverige, vilket till stor del beror på att berggrunden i stor utsträckning består av graniter och pegmatiter, som innehåller höga koncentrationer av uran. (SGU, 2004). Det är under oxiderande förhållanden uran kan lösas ut från berggrunden till grundvatten genom vittring av närliggande primära uranmineral som uraninit och coffinit, och på så sätt nå vårt dricksvatten (Langmuir, 1997). Det är framför allt i dricksvatten från djupborrade brunnar och grundvattentäkter som det förekommer uran men urankoncentrationen kan även vara hög i vatten från sand och grusavlagringar. (SGU, 2004). Givetvis påverkas löst uran i dricksvatten av hur omfattande vittringen är, vilken i sin tur styrs av bland annat mineral- och grundvattensammansättning, kornstorleksfördelning och uppehållstid. Vidare påverkas koncentrationen av advektion, dispersion, kemiska och biologiska processer och radioaktiv nedbrytning (Cherry, 1984). Advektion är transporten av ett ämne med strömmande vatten och dispersion är spridningen av partiklar genom molekylrörelser till följd av koncentrationsskillnader (Cherry et al, 1979) Sammanfattningsvis är de mest betydelsefulla faktorerna, enligt Langmuir (1978) de följande:

- Förrådet av vatten
- Syre- och koldioxidförekomsten i vattnet samt pH
- Uraninnehållet i berggrunden och dess vittrings/löslighetsbenägenhet
- Förekomsten av ligander
- Förekomsten av adsorptiva material

Uran förekommer i fem olika oxidationstillstånd: U(II), U(III), U(IV), U(V) och U(VI). De två oxidationsformerna som dominerar i naturen är U(IV) och U(VI). För att det ska vara möjligt att på ett effektivt sätt avskilja uran från vatten är det viktigt att ha kunskap om vilka kemiska förekomstformer av uran som finns i grundvatten och på vilket sätt dessa påverkar avskiljningen. Förekomsten av lösligt eller svårsligt uran bestäms av de hydrogeokemiska förhållandena som utgörs av pH, redoxpotentialen jonstyrkan, mineralogin, den fasta substansens totala yta och den komplexbildande kapaciteten (Cherry, 1984). Vid aeroba förhållanden oxideras U(IV) till U(VI) och bildar uranyljonen, katjonen, UO_2^{2+} . Det brukar vanligen antas att det är uran (VI) som dominerar i grundvatten då U(IV) och dess komplex dominerar i vatten med låg redoxpotential (Langmuir, 1997).

2.2 Uran(VI)-komplex

Uranyljonen UO_2^{2+} , som förekommer vid lågt pH, bildar komplex med en rad olika ligander som fluorid, nitrat, sulfat, karbonat samt organiskt löst material (Langmuir, 1997).



Figur 1. Speciering med Visual MINTEQ då: $[\text{Ca}]_{\text{tot}} = 1 \text{ mM}$, $[\text{Cl}]_{\text{tot}} = 2 \text{ mM}$, $[\text{UO}_2]_{\text{tot}} = 0.1 \text{ }\mu\text{M}$, $\text{PCO}_2 = 0.0038 \text{ atm}$, $\text{DOC} = 5 \text{ mg/L}$ (varav 70 % antas vara fulvosyra)

Figur 1 visar en simulerad speciering för uran(VI) som funktion av pH för ett fiktivt grundvatten. Vi har använt de mest uppdaterade jämviktskonstanter som vi har kunnat hitta (Guillaumont et al., 2003; Milne et al., 2003; Fox et al., 2005). Enligt figuren tycks uran förekomma främst som organiska komplex ($\text{UO}_2\text{-DOM}$) vid $\text{pH} < 7$, och som karbonatkomplex tillsammans med Ca^{2+} vid $\text{pH} > 7$. Komplexbildningen för organiskt material vid $\text{pH} > 5$ är dock osäker eftersom modellen främst baseras på publicerade data för $\text{pH} 4$ och 5 (Milne et al., 2003). Även konstanterna för Ca-U-CO_3 -komplexen är osäkra (Fox et al., 2005). Därför kan man inte utgå från att modellering ger en korrekt bild av uranets förekomstformer.

2.2.1 Uran(VI)-hydroxo- och karbonatkomplex

I oxiderande vatten transporteras uran i form av den lättlösliga uranyljonen UO_2^{2+} och dess komplex och hydrolyseras vid stigande pH till $\text{UO}_2(\text{OH})_2^0$. I rena lösningar utan karbonat dominerar UO_2^{2+} , UO_2OH^+ och $\text{UO}_2(\text{OH})_2^0$ vid alla pH-värden. De flesta vatten med $\text{pH} > 6$ innehåller dock höga koncentrationer karbonat och det är sedan länge känt att UO_2^{2+} bildar en rad mycket starka komplex med karbonat vid höga pH-värden (Guillaumont et al., 2003; Zachara, 2005). Karbonatkomplexen är mycket viktiga då komplexen begränsar adsorptionen och ökar lösligheten av uranmineral (Langmuir 1997). I pH intervallet 6-8 dominerar komplexen UO_2CO_3^0 , $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ och $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$, där de olika formerna bestäms av karbonat- och urankoncentrationen i vattnet. Figur 1 visar vilka komplex som dominerar vid olika

pH-värden i närvaro av karbonat i lösningen. Vidare visar Fox et al (2006) i sin studie att det är viktigt att ta med förekomsten av löst Ca^{2+} i vattnet i beräkningen när man talar om vilka former uran tycks förekomma i. När uran(VI) och Ca^{2+} finns i vattnet kan komplexen $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^0$ och $\text{CaUO}_2(\text{CO}_3)_3^{2-}$ formas.

2.2.2 Uran(VI)-fluorid-, fosfat- och sulfatkomplex

I naturliga vatten bildas även urankomplex med fluorid, fosfat och sulfat. Uranylfluoridkomplexen är viktiga vid låga pH. Fosfat- och sulfatkomplex är särskilt vanliga i områden där gruvsdrift pågår eller pågår (Naturvårdverket, 1998) där komplexen påträffas i laklösningar (SKI, 2006)

2.2.3 Uran(VI)-organiska komplex

Senare års forskning har visat att UO_2^{2+} bildar starka komplex med löst organiskt material (Saito et al., 2003). Komplexbildningen mellan UO_2^{2+} och humusämnen uppstår huvudsakligen i vatten med pH upp till 6-7, till skillnad från urankarbonatkomplexen som formas vid högre pH. Studier visar att mellan pH 4 och 5 binds uranyljonen starkt till både humussyror och fulvosyror (Lenhart et al, 2000). Undersökningar utförda av Saito et al (2003) visar att komplexbindningen mellan uranyljonen och humussyror är mycket beroende av pH.

2.3 Hälsoeffekter/medicinska aspekter

Uran isotopen ^{238}U ger i motsats till ^{235}U , som anrikas för användning inom kärnkraft och atomvapen, inte någon nämnvärd radioaktiv strålning vid de koncentrationer som förekommer i dricksvatten (SGU, 2004). Naturligt uran är dock en hälsofara genom sina kemiska egenskaper som tungmetall. Både epidemiologiska studier och djurförsök visar att uran i dricksvattnet kan påverka njurfunktionen. Njurarna påverkas av uranets kemiska egenskaper och inte av dess strålning.(Svensson et al 2005; Kurttio 2002)

Av det uran som tas in i kroppen via föda och dricksvatten absorberas ca 1-2 % i mag-tarmkanalen. Hur stor mängd som absorberas kan dock variera beroende på omständigheterna. Fastande mage eller att personen i fråga lider av järnbrist kan öka upptaget (Svensson et al 2005). En stor del av det adsorberade uranet, (ca två tredjedelar) utsöndras snabbt i urinen. Därefter sker utsöndringen långsammare eftersom uranet lagras in i skelett och njurar. I skelettet byter uranet plats med kalcium i benvävnaden och i njurbarken binds uranet till proteiner. Dessa proteiner är viktiga för återresorptionen av salter, näringsämnen och vatten (Campbell 1999). Om uranet binds till proteinet kan det senare förlora sin funktion vilket kan medföra att kroppen förlorar ämnen som den annars skulle återanvända. Exponering för uran kan alltså medföra ett läckage från njurarna. Lättare effekter på njurarna betraktas vara reversibla om exponeringen minskar, medan studier visar att långvarig exponering för uran ger ökad risk för permanenta skador (Zamora et al 1998). Exponeringen kan ge reducerad marginal vid njurskador eller njursjukdomar (Svensson et al, 2005). Enligt en studie genomförd i Finland av Kurttio et al (2002) kan exponering för uran genom sin påverkan av kalciumbalansen även vara en bidragande orsak till benskörhet.

Njurarna har dock en stor kapacitet och de effekter som uppkommer vid förtäring av uranhaltigt dricksvatten anses milda.

Det har gjorts tre epidemiologiska studier, med människor som konsumerat uranhaltigt dricksvatten (Falk et al, 2004). Studien som utfördes av Kurtzio et al (2002) är den mest omfattande och välgjorda. Alla utförda studier talar för att exponering av uran på något sätt ger effekter på njurarna och njurfunktionen. Resultaten stämmer överens med experiment gjorda på råttor (Gilman et al, 1998). I dagsläget saknas emellertid detaljerad kunskap om hur långvarig exponering av uran via dricksvatten påverkar människan.

Uran i dricksvatten ger en relativt låg stråldos jämfört med andra alfastrålande ämnen i dricksvatten (SSI, 2007). Strålningen kan dock i tillräcklig höga doser, ge upphov till mutationer, vävnadsskador och i värsta fall cancer.

2.4 Riktvärden för uran i dricksvatten

I Sverige antog livsmedelsverket tillsammans med socialstyrelsen i september 2005 ett riktvärde på 15 µg uran per liter dricksvatten. Det betyder att man rekommenderar att åtgärder vidtas om dricksvattnets urankoncentration överstiger detta värde (Svensson, 2005). Sveriges riktvärde, vilket är det samma som världshälsoorganisationens (WHO), är baserat på uranets kemiska egenskaper. Särskilt värde har satts på ett försök på råttor utfört av Gilman et al (1998). I studien bestämdes LOAEL (lägsta observerade skadliga effekt) till 60 µg uran/kg kroppsvikt och dag. Om en människa i genomsnitt väger 60 kg och man tar hänsyn till skillnader inom och mellan arter genom att dela med en säkerhetsfaktor (100) får man ett maximalt dagligt intag av 36 µg uran. Om hela det dagliga intaget av uran är allokerat till dricksvattnet och en människa i medeltal dricker två liter vatten per dag ger det ett riktvärde på 18 µg uran per liter dricksvatten. Det aktuella riktvärdet tillämpar 80 % allokering till dricksvattnet och därför blir riktvärdet 15 i stället för 18 µg/l. De återstående 20 procenten utgörs av uran från andra källor. De flesta länder som har ett riktvärde baserat på uranets kemiska egenskaper använder Gilmans (1998) djurförsök som grund, men storleken på säkerhetsfaktorn och allokeringen kan variera vilket medför att olika länder har olika riktvärden. Kanada respektive USA har exempelvis riktvärdena 30 µg/l respektive 20 µg/l. (Svensson et al 2005) Andra länder har ett riktvärde baserat på uranets strålningsegenskaper. Enligt EGs dricksvattendirektiv 98/83/EG får dricksvatten inte ge en högre stråldos än 0,1 millisievert (mSv) per år. Det motsvarar en normal årskonsumtion av dricksvatten med urankoncentrationen 100 µg/l. (Falk et al, 2004)

2.5 Avskiljning av uran

I Socialstyrelsens sammanställning utgiven 2006 över tänkbara metoder för avskiljning av uran beskrivs ett flertal olika metoder. I rapporten understryks, att det inte går att bara välja ett sätt att rena dricksvatten från uran utan att behandlingen måste anpassas till råvattnets sammansättning. En metod som beskrivs är *kemisk fällning* där en förorening överförs från löst till olöslig form genom en tillsats av järn- eller aluminiumsalter. Därefter kan utfällningen skiljas från vattnet genom sedimentering eller filtrering. För en effektiv avskiljning är det viktigt att både dosen

av fällningskemikalien och pH-värdet är optimerade för ändamålet (Persson & Nilsson, 2005). Vidare beskrivs *avhärdning genom pH-höjning* som en metod att avskilja uran. Sorg (1988) visar i laboratorieförsök att avhärdning genom kemisk fällning förutom hårdhet kan avlägsna 85-90 % av uranet. För att uppnå bra resultat med denna metod krävs ett vatten med extrem hårdhet (pH > 10). I kapitel 3.2 beskrivs mer utförligt jonbyte respektive adsorption som metoder för rening av uranhaltigt dricksvatten.

2.5.1 Filterrening

Kortfattat bygger filterrening på att det vatten som ska renas på något sätt samlas upp och leds genom ett filter. Via mekaniska, kemiska eller biologiska processer fångas föroreningarna upp innan vattnet leds vidare. Filtermaterial brukar delas upp i partikelfilter och reaktiva filter utifrån deras fysikaliska, kemiska eller biologiska reningsegenskaper. Processen i ett partikelfilter är i huvudsak fysikalisk, där partiklarna fastnar i filtret beroende på filtrets täthet. Reaktiva filter eller sorptionsfilter är filter med material som har specifika fysikaliska-kemiska egenskaper lämpade för avskiljning av oönskade ämnen i vatten. Ingenjörsmässigt är detta en form av lågteknologi där syftet är att använda ett minimum av energi och undvika framställda kemikalier. Valet av filtermaterial är viktigt för att uppnå en effektiv rening. Filtret bör ha följande egenskaper (Bengtsson 2003):

- Hög sorptionskapacitet
- Lämplig hydraulisk konduktivitet
- Stor specifik yta

Filtermaterialets uthållighet bestäms vanligen i termer av kemisk mättnad det vill säga den mängd föroreningar som materialet har potential att ta upp. Exempel på material som används som filter för att avskilja tungmetaller effektivt är opoka (kalciumsilikat) och masugnsslagg (Bengtsson 2003, Lindquist 2005).

2.5.2 Filtermaterial

I denna studie undersöktes två filtermaterial, IOCO (Iron-Oxide-Coated Olivine) och Purolite A500. IOCO tillhandahölls av Eskilstuna Energi och Miljö AB. Purolite® A 500 beställdes från Purolite International Limited, Wales.

Järnoxidtäckt olivinsand, IOCO

IOCO är en järnoxidbelagd olivinsand med en mängd reaktiva FeOH-grupper där uran kan bindas. När olivin täcks med järnoxid minskar pH vid den isoelektriska punkten från 12 till 8,3 och därför kan sanden användas för adsorption av katjoner vid höga pH värden (Chang & Benjamin, 1997; Berggren et al, 2004). I en tidigare studie har man undersökt hur väl IOCO avskiljer naturligt organiskt material (NOM) i dricksvatten och kommit fram till att IOCO avskiljer NOM mycket bättre än konventionell filtersand (Berggren et al 2004). Skrymdensiteten för IOCO är 1,6 g/cm³ (Jonsson, 2003).

Purolite

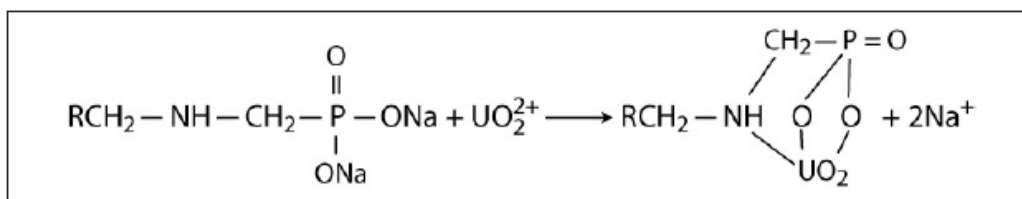
Den jonbytarmassa som testats är Purolite® A 500 och är av typen stark basisk anjonbytare som regenereras med saltlösning (NaCl). Uranet i råvattnet utbytes mot kloridjoner (Cl⁻). Massan består av små fiskromsliknande kulor av materialen styren och divinylbensen och har en kapacitet av 1,15 mol laddningar per liter (Purolite,

2007). Flera studier (Huikuiri et al, 2000; Baohua et al, 2005; Vaaramaa, 2003) visar att avskiljning av uran med anjonbytarmassor är effektivt.

2.6 Jonbyte som teknik för att avskilja uran

Jonbytestekniken innebär att ett ämne i jonform i en vätska byts ut genom att den oönskade jonen ersätts av en annan jon med samma typ av laddning. Jonbytet utförs oftast genom att vätskan får passera genom en eller flera kolonner fyllda med jonbytarmassa av antingen katjonbytande eller anjonbytande karaktär. Den generella strukturen hos jonbytarmassa består av ett nätverk av små kulor klädda med mobila joner för utbyte av de joner man vill rena från vattnet (Socialstyrelsen, 2006). Vid vattenrening byter en katjonbytande jonbytarmassa ut positivt laddade joner i vattnet mot Na^+ eller H^+ medan en anjonbytande jonbytarmassa byter ut negativt laddade joner mot SO_4^{2-} , OH^- eller Cl^- . Figur 2 visar hur uranyljonen UO_2^{2+} , byts ut mot 2Na^+ i en syntetisk jonbytarmassa. Den teoretiskt maximala mängden av ett ämne som en jonbytare kan ta upp beror på hur många ekvivalenter/ dm^3 som jonbytarmassan kan adsorbiera och vilken molmassa (g/mol) som det uppfångade ämnet har, se ekvation 1. Tvåvärda joner fyller jonbytaren dubbelt så snabbt som envärda. Upp till det tillfälle då en bestämd bäddvolym har passerat är jonbytare väldigt effektiva. Därefter är massan mättad och behöver regenereras (Harland, 1994).

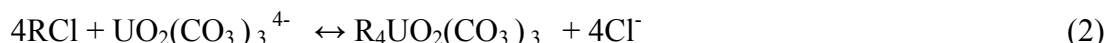
$$\text{Kapacitet (g/ dm}^3) = X \text{ ekvivalenter/ dm}^3 * \text{molmassa (g/mol)} \quad (1)$$



Figur 2. Syntetisk jonbytarmassa och uranavskiljning (Socialstyrelsen, 2005)

Det finns fyra huvudgrupper av jonbytarmassor. Utöver vad som tidigare påpekats med avseende på vilken typ av joner som jonbytarmassan ersätter (anjoner eller katjoner) brukar jonbytarmassorna delas in i starka respektive svaga jonbytarmassor (Clifford, 1999). Det som skiljer en stark jonbytarmassa från en svag är att den förstnämnda fungerar vid alla pH-värden medan en svag jonbytarmassa endast fungerar inom vissa pH-intervall. Då uran kan förekomma både som positiv och negativ jon beroende på pH-värdet kan i teorin både anjonbytare och katjonbytare användas för att rena uran från dricksvatten. Anjonbytarmassa sägs avskilja uran väl särskilt vid höga pH-värden, eftersom uran då till stor del förekommer som negativt laddade urankarbonatkomplex såsom $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ eller $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{4-}$ (Vaaramaa, 2003). Ekvation 2 visar hur uranyltrikarbonatkomplexet ersätter kloridjoner i jonbytarmassan. Undersökningar av olika jonbytarmassor utförda i Finland, visade att uranylkarbonatkomplex avlägsnades effektivt av en starkt basisk anjonbytarmassa. Det maximala upptaget var över 95 % ur ett sulfatfritt vatten med 120 $\mu\text{g/l}$ uran vid pH 8. Även Gu et al (2005) har resultat som talar för att uran adsorberas starkt till basiska anjonbytarmassor och har kunnat visa att närvaron av sulfatjoner inte påverkar adsorptionen nämnvärt. Vad som dock kan påverka adsorptionen är förekomsten av kalciumjoner (Dong & Brooks, 2006). Det finns då möjlighet att det tertiära

komplexet $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^0$ bildas vilket hämmar uranadsorptionen till anjonbytarmassan.



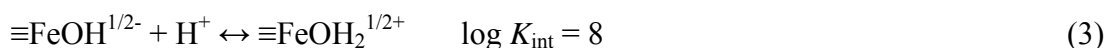
I ett annat examensarbete (Öhlund, 2007) har man studerat uranadsorptionen till två starkt basiska anjonbytarmassor (Dowex 21 K och Amberlite IRA 900Cl). Båda massorna är kända som goda uranavskiljare och regenereras med mättad saltlösning. Under drygt ett år flödade vatten med en urankoncentration på 18 $\mu\text{g/L}$ respektive 48,4 $\mu\text{g/L}$ genom kolonner med jonbytarmassorna. Resultaten visar att båda jonbytarmassorna är effektiva när det gäller att avskilja uran från dricksvatten. Vid försökets start och direkt efter regenerering är reningsgraden hög, omkring 99 %.

I socialstyrelsens ”Dricksvattenrening med avseende på uran” (2005) anses jonbyte vara en bra metod för att avskilja uran från vattnet. Detta gäller dock främst enskilda hushåll. Anledningen till denna begränsning är att risken för strålning ökar när stora mängder uran koncentreras i en och samma behållare och därmed ökar också risken för att farliga stråldoser uppstår. Enligt Öhlund (2007) har jonbytestekniken, som alla andra tekniker, både för- och nackdelar. Jonbytarmassor har en lång livslängd, en hög avskiljningsgrad och kan återvändas genom regenerering med saltlösning. Även Öhlund (2007) nämner emellertid som en nackdel uppkomsten av farliga stråldoser om man väntar alltför länge mellan regenereringarna. Idag finns inte heller någon plan eller kunskap om hur man ska ta hand om de förbrukade jonbytarmassorna.

2.7 Adsorption av uran till järnoxid

2.7.1 Järnoxiders variabla laddning

Mineralpartiklarnas yta kan vara laddad av två olika anledningar. Dels förekommer icke pH-beroende permanenta laddningar som orsakats av isomorf substitution. Laddningen kan uppstå när katjoner med lägre laddning tränger in som centraljoner och ett laddningsunderskott uppkommer som måste kompenseras med katjoner.(Eriksson et al, 2005). Isomorf substitution är mycket vanlig i lermineral. På oxidernas ytor utvecklas den andra typen av laddning. Denna laddning är beroende av pH och kallas därför variabel laddning. Eftersom oxider kan ta upp eller avge H^+ vid olika pH-värden förändras ytans laddning. Vid lågt pH tas en extra vätejon upp och en positiv laddning uppstår och vid högt pH avges en vätejon och ger ytan en negativ laddning. I ekvation 3, nedan, beskrivs hur en järnoxidyta ($\equiv\text{FeOH}$) protoneras vid lågt pH (Gustafsson et al, 2006). Vid ett visst pH är laddningen av ytan i genomsnitt noll och detta kallas ”Point of Zero Charge”, PZC. När $\text{pH} > \text{PZC}$ är ytan övervägande negativt laddad. Detta innebär i detta fall att järnoxidytan är negativt laddad då pH överstiger pH 8. Då är koncentrationen av $\equiv\text{FeOH}^{1/2-}$ större än koncentrationen av $\text{FeOH}_2^{1/2+}$. När PZC understiger ca pH 8 kommer positiva laddningar att dominera. Detta innebär att järnoxider kan adsorbera anjoner vid låga pH-värden.



Adsorption är en process som innebär att molekyler avskiljs från en vätska, i det här fallet uran från dricksvatten, genom att molekylerna fästs på ytan av ett fast material, adsorptionsmedlet, och därmed avlägsnas från vattnet. Gemensamt för alla effektiva adsorbenter är att de har en stor specifik yta.

I den här studien används järnoxiden ferrihydrit som adsorbent. Ferrihydrit är en orangefärgad järnoxid med en stökiometri nära $\text{Fe}_5\text{O}_8\text{H} \cdot \text{H}_2\text{O}$ (Cornell & Schwertmann, 2003) och en molvikt på 89g/mol (?). Den är mycket vanlig i naturen och förekommer till exempel i B-horisonten i podsoler (Karlton et al., 2000). I regel är ferrihydrit den ursprungliga fällningen när lösta Fe (III)-joner hydrolyseras (Cornell & Schwertmann, 2003). Så kallad 2-linjeferrihydrit är den minst kristallina formen av ferrihydrit. Denna form visar upp två toppar när den belyses med röntgenstrålar vilket visar på en föga strukturell ordning och att 2-linjeferrihydrit inte består av några stora kristaller utan återfinns som extremt små partiklar. Därför är ferrihydritens specifika yta mycket stor (200-900 m^2/g), vilket innebär att den har en stor förmåga att binda ämnen som är lösta i vatten. Efter en tid omvandlas ferrihydrit ofta till någon av järnoxiderna goethit eller hematit (Schwertmann & Cornell, 2000).

Det är väl känt att uran (VI) adsorberas starkt till järnoxider mellan pH 4 och ca 7-9 (Davis et al., 2004). Vid höga pH-värden motverkas uranets adsorption av koncentrationen bikarbonatjoner i vattnet, eftersom dessa underlättar bildning av urankarbonatkomplex (Langmuir, 1985) vilka inte binds lika bra till järnoxid. Vid höga CO_2 -tryck kan man därför bara räkna med att uran (VI) binds starkt upp till pH 7-7,5. Detta tyder på att uranavskljning med järnoxidmaterial kan vara effektiv då $\text{pH} < 7$. Adsorptionen av UO_2^{2+} till en järnoxidyta ($\equiv\text{FeOH}$) i en lösning utan karbonat kan beskrivas enligt ekvation 4. Adsorptionen av uranyljonen till järnoxider resulterar troligtvis i innersfärskomplex av bidentattyp (Langmuir, 1985). Ekvation 5 illustrerar adsorptionen av uranylkarbonatkomplex till järnoxidytan.



Flera faktorer kan komma att påverka adsorptionen till järnoxidytan och en av dessa är tillgången på fosfatjoner. Fosfatjoner adsorberas starkt till järnoxider och kan därför interagera med uran beträffande positionerna på järnoxidytan (Cheng et al, 2004). Tillsammans med karbonatjoner och organiskt material tillhör fosfat de ligander som starkt påverkar uranadsorptionen och transporten av uran. Enligt Cheng et al (2004) påverkar fosfat i allra högsta grad uranadsorptionen till järnoxider. Vid lågt pH ökar adsorptionen om fosfatjoner är förekommande: desto högre koncentration fosfat desto mer adsorption. Tertiära ytkomplex innehållande både fosfater och uran bildas vid lågt pH, vilka binder starkt till järnoxidytan. Högre upp på pH-skalan bildas istället lösliga uranyl-fosfatkomplex vilket innebär att adsorptionen av uran minskar när fosfat är närvarande. Vidare visar studier att om Ca^{2+} förekommer i vattnet minskar adsorptionen av uran till ferrihydrit om det dominerande komplexet i vattnet är $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^0$ (Fox et al 2006).

2.8 Ytkomplexmodeller

För att kunna beskriva adsorptionen behöver man kunna modellera de elektrostatiska interaktionerna mellan jonen och oxidytan och mellan hydroxylgrupperna på oxidytan. Detta kan uppnås med ytkomplexmodeller. I ytkomplexmodeller antas oxidytan bestå av specifika ytgrupper som kan reagera med lösta joner och bilda komplex. Modellen bygger på antagandet att adsorptionens fria energi kan delas upp i två komponenter en kemisk och en elektrostatisk det vill säga strävan efter att bilda komplex respektive attraktionen mellan jonen och ytans laddning. I dag finns det flera olika ytkomplexmodeller som just används för att simulera adsorption av joner till oxider (Gustafsson et al., 2006) och de flesta utgår från Langmuirekvationen (eller – isotermer). Denna ekvation utvecklades för att redogöra för adsorptionen av gaser på partiklar och har efter detta utvidgats till att även innefatta fast fas-vätskefas system. I ytkomplexmodeller tas adsorptionen, jonstyrkan, pH-beroendet samt ytladdningens förändring med i beräkningen. Den främsta skillnaden mellan de olika modellerna är vilken elektrostatisk modell som används för att beskriva sambandet mellan ytladdning och ytpotential. I detta examensarbete har 1-pK-modellen *Three Plane Model (TPM)* används. I en så kallad 1-pK-modell behövs en syrabasreaktion, två jonparsreaktioner och tre ytkomplexreaktioner. Vidare tar man i TPM-modellen hänsyn till att Stern-skiktet kan delas upp i ett yttre och ett inre skikt. Ytkomplexen kan då binda i tre olika plan, *o*-, *b*- och *d*-planen. För mer komplicerade system med konkurrerande joner är TPM ett bra val för simulering av adsorption. Modellerna innehåller dock parametrar som kan vara svåra att uppskatta som till exempel det totala antalet adsorberande ytgrupper på oxider. Vidare är modellerna i dag inte särskilt användarvänliga och används därför mest inom forskningen.

3. Material och metoder

3.1 Vatten

Ärlavattnet hämtades direkt vid Ärla vattenverk från brunnen med höga koncentrationer av uran. Stripavattnet provtogs från en lite djupare ansamling av vatten i bäcken där det var möjligt att sänka ner hela polyetenburken (500-1000 ml). Vattnet förvarades efter provtagning i kylrum i polyetenburkar. Innan vattnet användes i skakförsöken filtrerades det genom Acrodisc® PF Syringe Filter med 0,8/0,2 µm Supor® Membrane filter för att avskilja ej lösta partiklar som till exempel organiskt material. Både råvatten och filtrerat vatten analyserades med avseende på uran, baskatjoner (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}), anjonen SO_4^{2-} och DOC (Dissolved Organic Carbon). Från det ofiltrerade såväl som det filtrerade vattnet togs två delprov som överfördes i scintillationsburkar. Det ena provet, 8 ml, surgjordes med 15 % HNO_3 och skickades därefter iväg för uran- och baskatjonanalys. Från det andra delprovet analyserades DOC och SO_4 och därefter mättes pH och alkalinitet.

3.2 Filtermaterial

I studien undersöktes som tidigare nämnts de två filtermaterialen, IOCO (Iron-Oxide-Coated Olivine) och Purolite A500. (se 2.5.2).

3.3 Skakförsök

Skakförsöken utfördes för att studera urans adsorption till olika material och hur adsorptionen påverkades av pH-värdet. Dessutom studerades vilken inverkan de ämnen som naturligt finns i vattnet från Ärla respektive Stripa hade på adsorptionen. Resultaten från skakförsöken användes senare vid den kemiska jämviktsmodelleringen. Recept för samtliga serier finns i appendix 1. Innan skakförsöken utfördes undersöktes om systemet höll tätt eller om det fanns risk för avgång eller tillförsel av koldioxid från/till provrören. En provserie blandades till efter recept för serie C (Tabell 1 nedan) och efter skakning i 24 timmar och centrifugering mättes pH och alkalinitet. Därefter jämfördes den mätta alkaliniteten efter skakning med den beräknade alkaliniteten för att se om koldioxid avgick eller tillfördes provrören.

3.3.1 Material

Beredning av uranlösning

En standard med en känd koncentration, 30 mM uran(VI), bereddades genom att lösa upp uranyl nitrat i avjoniserat vatten. 1,52 g uranyl nitrat vägdes upp och beredningen gjordes i 0,5 l vatten. Därefter spädades lösningen 100 gånger så att koncentrationen uran i standardlösningen slutligen blev 0,3 mM. Varje centrifugrör fylldes med 1 ml av standarden vilket ger en urankoncentration av 10 μM i rören.

Beredning av ferrihydrit-suspension

Ferrihydriten bereddades enligt Gustafsson (2003). Ferrihydriten tillverkades genom att blanda 36 mM $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ med en lösning innehållande 12 mM NaNO_3 . Därefter höjdes blandningens pH till 8.0 genom droppvis inblandning av 4 M NaOH . Suspensionen fick sedan stå över natten i rumstemperatur. Innan ferrihydriten kunde användas till skakförsöken så sänktes suspensionens pH till 4.0 med hjälp av 0,1 M HNO_3 och blandningen omrördes ordentligt i 15 min.

Sköljning av IOCO

För att rena IOCO-sanden från salter som tillsatts vid tillverkningen sköljdes sanden innan den användes i skakförsöken. Fyra burkar fylldes med 30 gram IOCO och 500 ml avjoniserat vatten. Burkarna skakades i 20 minuter och centrifugerades därefter i 20 minuter. Supernatanten pipetterades försiktigt upp med spruta och pipett. Hela proceduren upprepades en gång till och efter detta skrapades IOCO:n ur burken och torkades i rumstemperatur.

3.3.2 Utförande

Allt materiel som användes syradiskades i 1 % HNO_3 innan det användes i försöket. Fem olika serier med skakförsök utfördes. I serie A och serie B tillsattes filtrerat vatten från Ärla och Stripa till de två filtermaterialen för att få en uppfattning om hur väl uran absorberades till IOCO och Purolite vid olika pH. I serie C och serie D undersöktes hur uran(VI) adsorberas till ferrihydrit vid olika pH med och utan tillsats av karbonat. I den sista serien, serie E, undersöktes hur adsorptionen påverkas av sulfat (SO_4). Dessutom gjordes kompletterande försök till serie C och D.

I serie A blandades filtrerat Ärlavatten med 1 g IOCO i 16 centrifugrör och i 16 andra rör tillsattes 0, 50 g Purolite till vattnet. Därefter tillsattes syra eller bas i varierande mängd för att erhålla ett önskvärt pH-intervall. I serie B blandades filtrerat

Stripavatten med samma mängder IOCO och Purolite som i serie A och även här tillsattes varierande mängd syra eller bas (Tabell 1). För både Serie A och B gjordes replikat.

I serie C och D tillsattes ferrihydrit och ev. bakgrundssaltlösning NaNO₃ för att uppnå en jonstyrka på 0,01 M, samt uran(VI) och vatten. Koncentrationen av ferrihydrit som användes var antingen 0,3 eller 3 mM. I serie D tillsattes även bikarbonat som NaHCO₃. Varierande mängd syra, HNO₃ och bas, NaOH tillsattes för att få ett önskvärt pH-intervall (se Tabell 1).

Tabell 1. Tabellen visar vad som tillsattes i varje rör i serie A till F i skakförsöket.

Serie A	Serie B	Serie C	Serie D	Serie F
31,2 g/l IOCO + Ärlavatten	31,2 g/l IOCO + Stripavatten	0.3 mM TotFe, 10 µM U(VI)	0.3 mM TotFe, 10 µM U(VI), 2 mM CO ₃	3 mM TotFe, 10µM U(VI), 2mM SO ₄
15,6 g/l Purolite + Ärlavatten	15,6 g/l Purolite + Stripavatten	3 mM TotFe, 10 µM U(VI)	3 mM TotFe, 10 µM U(VI), 2 mM CO ₃	

3.3.3 Skakning

Centrifugrören skakades under 24 timmar i rumstemperatur. Efter skakningen centrifugerades rören i 20 min vid 2000 rpm (Sorvallcentrifug). Därefter pipetterades först prov upp för mätning av pH och sedan försiktigt ca 20 ml prov (för att inte få med något bottensediment) ner i en scintillationsburk. Från scintillationsburken togs ca 20 ml prov ut med en spruta och ca 10 ml sprutades genom Acrodisc-filter, de två första milliliterna sprutades ut i vasken och resten ner i en ny scintillationsburk. Till denna burk tillsattes 0,533 ml 15 % HNO₃. Innehållet i burken med syratillsats skickades för analys med avseende på uran och baskatjoner. Återstående 10 ml i den första scintillationsburken filtrerades ner i ytterligare en burk. Innehållet i denna burk analyserades med avseende på alkalinitet samt DOC och SO₄-S.

3.3.4 Analyser

Alkalinitet och pH

Alkaliniteten mättes på proven från skakförsöken genom att proven titrerades ner till pH 5,4 med 0,02 M HCl under kväveatmosfär för att eliminera påverkan från koldioxid. pH mättes med en PHM82 Standard pH Meter (Radiometer A/S, Brønshøj, Danmark) och kalibrering gjordes i rumstemperatur för två punkter, pH 4 och pH 7.

Löst organiskt kol, DOC

Analys av löst organiskt kol (DOC) utfördes på institutionen för markvetenskap, SLU med hjälp av en Shimadzu TOC 5000 Analyzer.

An- och katjoner

Löst sulfat mättes med jonkromatograf Dionex ICS-90 (Dionex, Sunnyvale, USA) på institutionen för markvetenskap, SLU. Magnesium-, kalcium-, kalium-, och natriumkoncentrationerna mättes med plasma-masspektrometri, ICP-MS (Agilent 4500) på Örebro Universitet.

Uran

Löst uran mättes med plasma-masspektrometri, ICP-MS (Agilent 4500) på Örebro Universitet.

3.4 Kolonnförsök

Kolonnförsöket genomfördes vid Eskilstuna Energi och Miljö AB:s anläggning på Ärla vattenverk. I försöket användes filtermaterialen IOCO och Purolite samt råvatten. Det var totalt 2 behandlingar om vardera två kolonner:

IOCO 1: Råvatten + 20 cm IOCO

IOCO 2: Råvatten + 20 cm IOCO.

Purolite 1: Råvatten + 20 cm Purolite

Purolite 2: Råvatten + 20 cm Purolite

Kolonnernas volym var 96 dm³. Alla kolonner bereddades med ett lager grus i botten samt ett överlagrande lager grus, detta för att hålla filtermaterialet på plats. Råvattnet pumpades direkt från den aktuella brunnen och tillfördes kolonnerna genom ett rör i kolonnens botten. Vattnet kom ur röret genom hål på rörets ovansida samt ur dess mynning. Figur 3 visar bilder från försöksuppställningen. Vattenflödet uppmättes till 0,01 L/s. Råvatten och vatten från de olika kolonnerna analyserades med avseende på pH, alkalinitet, DOC, SO₄²⁻, uran, Na⁺, K⁺, Mg²⁺ och Ca²⁺. Provtagning av kolonnerna skedde mellan 2006-11-27 och 2007-02-14. Under de två första veckorna analyserades parametrarna tre gånger per vecka och därefter två gånger per vecka under ytterligare två veckor. Slutligen skedde analyser 1 gång per vecka under sex veckor. Alkalinitet och pH uppmättes direkt efter provtagning vid Hyndevads vattenverks laboratorium. Alkaliniteten mättes med färgomslagstitering med 20 mM HCl och pH mättes med pH-meter (Labor pH-meter). DOC och SO₄²⁻ analyserades på SLU enligt ovan. Uran och baskatjonerna Na⁺, K⁺, Mg²⁺ och Ca²⁺ analyserades med ICP-MS på Örebro Universitet.



Figur 3. Kolonnförsökets uppställning. A) den gula massan är Purolite-filtret och den röd/bruna massan är IOCO innan vattnet tillfördes. B) den nedre slangen är inloppet för råvattnet och den övre utgör utloppet för det behandlade vattnet. C) i kolonnerna rådde mättade förhållanden

3.5 Kemisk jämviktsmodellering

För att studera vilka processer och mekanismer som styr avskiljningen i skakförsöken gjordes kemisk jämviktsmodellering. Den variant av TPM-modellen som användes i arbetet var den s.k. CD-MUSIC-modellen. I modellen fördelas laddningarna för varje ytkomplex över två plan, vanligen *o*- och *b*-planen. Modellen beskrivs i detalj av Hiemstra & van Riemsdijk (1996). Waite et al (1994) skriver att adsorptionen kan beskrivas med en "two-site model" där man antar att en yta består av få platser, slumpmässigt placerade, med hög affinitet, och en större mängd av platser med låg affinitet. I Tabell 2 redovisas de uranylkomplex och jämviktskonstanter som till att börja med användes i modelleringen. De kalibrerades med utgångspunkt från data framtagna av Waite et al (1994). Simuleringar genomfördes i jämviktsprogrammet Visual MINTEQ 2.52 som är en ombearbetning av DOS-programmet MINTEQA2 4.0, skapat av Gustafsson (2007). Analyserade data för uran, baskatjoner, pH, alkalinitet och sulfat importerades från Excel till Visual MINTEQ. Temperaturen sattes till 20°C i skakförsöken eftersom alla experiment utförts vid denna temperatur. I modellen är ferrihydritens specifika yta 750 m²/g. Därefter jämfördes resultaten från modelleringen med resultaten från skakförsöket för att undersöka om jämviktskonstanterna från Waite et al. (1994) kunde användas för att simulera adsorptionen. Om inte skulle nya konstanter optimeras. Slutligen användes den optimerade ytkomplexmodellen från skakförsöket för att simulera uranavskiljningen i kolonnförsöket. Råvattnets analysdata för pH, alkalinitet, Na⁺, K⁺, Mg²⁺ och Ca²⁺ under försöksperioden användes som indata till modellen för att modellera uran(VI)-adsorptionen till IOCO. Det antogs att IOCO innehåller 810 mmol/kg ferrihydrit (baserat på oxalateextraktioner utförda av Bhakhar, 2006) och halten ferrihydrit beräknades till 0,1 g/l baserat på vattenflödet under hela försöksperioden. DOC togs inte med i modelleringen då specieringen för uran visar att komplexbildning med organiskt material endast sker vid pH < 7 (Ranville et al., 2007).

Tabell 2. Uranylkomplex som användes i modelleringen och dessas jämviktskonstanter (optimering baserad på data från Waite et al, 1994; Gustafsson, opubl.)

Komplex	log K
(≡FeOH) _{s2} UO ₂ OH	3,53
(≡FeOH) _{w2} UO ₂ OH	6,5
(≡FeOH) _{s2} UO ₂ OHCO ₃ ²⁻	13,31
(≡FeOH) _{w2} UO ₂ OHCO ₃ ²⁻	6,4

4. Resultat och diskussion

4.1 Karakterisering av vatten

Vattnet från Ärla och Stripa analyserades med avseende på pH, alkalinitet, urankoncentration, löst organiskt material (DOC), sulfat och baskatjonerna Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺. Samma parametrar analyserades efter det att vattnet filtrerats med 0,8/0,2 µm filter. Syftet med analyserna var att få en ökad förståelse av vattnets kemiska sammansättning. Resultaten visas i Tabell 2. Alkaliniteten i Ärla var hög (109,5 mg

HCO₃⁻/l), liksom pH-värdet (7,7). Urankoncentrationen uppmättes till 21,5 µg/l vilket innebär att Livsmedelsverkets och Socialstyrelsens riktvärde på 15 µg/l överskreds. Stripavattnet provtogs intill den nu nedlagda Stripa gruva där man tidigare bröt järnmalm. Urankoncentrationen uppmättes till 445,6 µg/l. Uranet härrör från uranrika graniter som är vanligt förekommande i Lindesbergs kommun där Stripa gruva är lokaliserad (Lindesbergs kommun Miljöplan för Lindesbergs kommun 2004). Även Stripavattnet har hög alkalinitet (141,52 mg HCO₃⁻/l) och högt pH (7,61).

Tabell 3. Kemisk sammansättning av de vatten som användes i skakförsöken och i kolonnförsöket.

Parametrar	Enhet	Ärla	Ärla filtrerat	Stripa	Stripa filtrerat
pH		7,89	8,24	7,61	8
Alkalinitet	Mg HCO ₃ /L	109,5	145,9	141,52	169,6
DOC	mg/L	7,76	7,78	2,19	2,08
SO ₄ -S	(µM)	122	121	0,048	0,047
U	(µM)	0,090	0,089	1,87	1,88
Na	(µM)	201	174	60	62
Ka	(µM)	48	42	95	89
Mg	(µM)	270	248	254	272
Ca	(µM)	862	786	1210	1244

4.2 Skakförsök

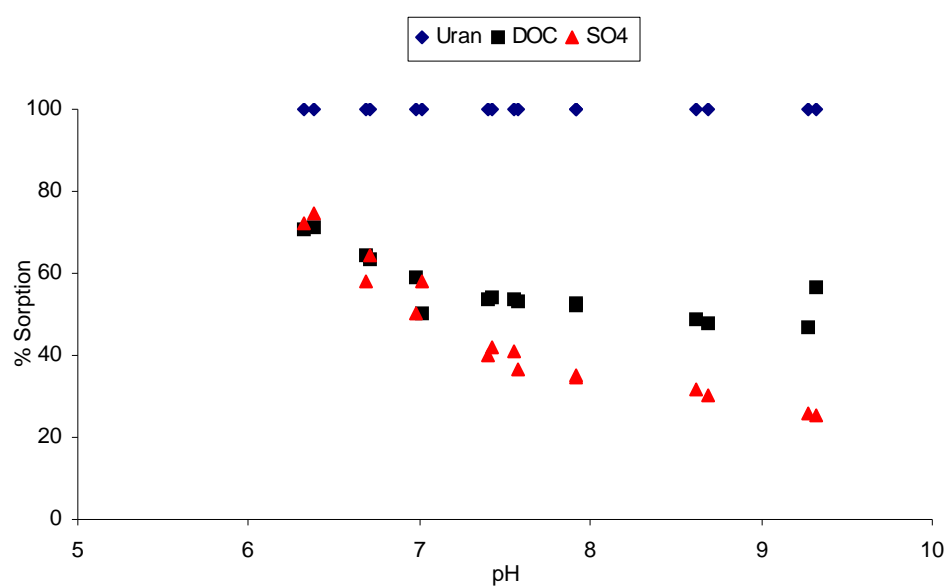
Totalt fem skakförsöksserier genomfördes i den här studien. I serie A och B undersöktes uran(VI)-adsorptionen till de två filtermaterialen med vatten från Ärla och Stripa. I serie C undersöktes adsorptionen av uran(VI) till två olika totalhalter av ferrihydrit. Vidare undersöktes hur karbonat påverkar uran(VI)-adsorptionen till ferrihydrit i serie D samt påverkan av sulfat i serie E. Parametrar som analyserades var pH, alkalinitet, DOC, SO₄, uran samt kationer. (Na⁺, K⁺, Mg²⁺ och Ca²⁺) Samtliga resultat från skakförsöken redovisas i appendix 2. Adsorptionen av uran, DOC och sulfat beräknades från skillnaden mellan koncentrationen i det filtrerade vattnet (tabell 2) och koncentrationen i supernatanten efter adsorption. Tyvärr kunde inte en DOC-adsorption beräknas för Stripavattnet då den uppmätta koncentrationen grovt understeg analysresultaten för skakförsöken (innebärande att den beräknade adsorptionen blev negativ). Koncentrationen DOC i Stripavattnet uppmättes till 2,19 mg/l medan skakförsökens DOC-koncentrationer varierade mellan 2 mg/l och 12 mg/l. Innan skakförsöken utfördes undersöktes om systemet höll tätt eller om det fanns risk för avgång eller tillförsel av koldioxid från/till provrören. Resultaten visade att systemet höll tätt och att koldioxid inte trängde in i rören under försökets gång.

4.2.1 Uran(VI)-avskiljning med vatten från Ärla

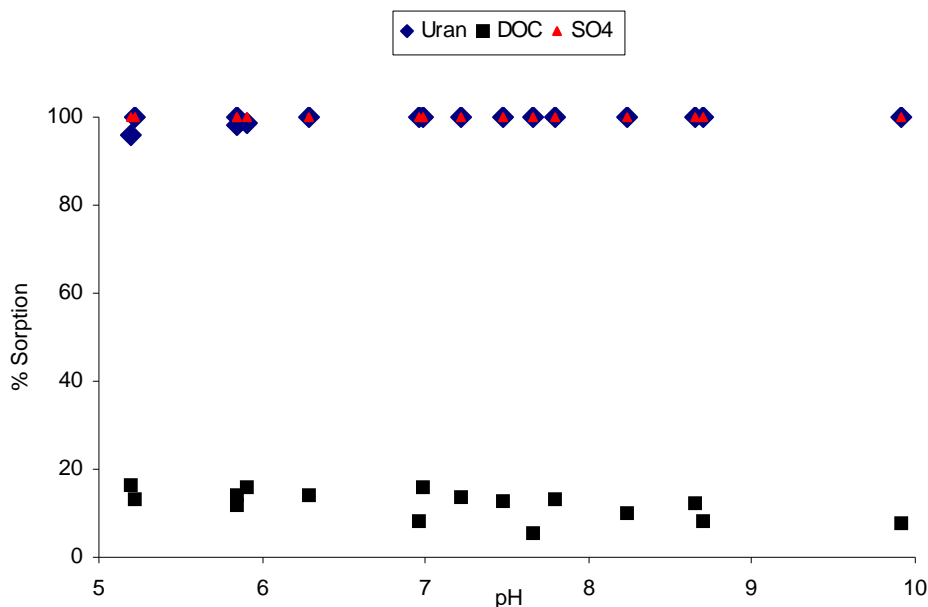
I figur 4 presenteras uran(VI)-, DOC- och sulfatadsorption hos IOCO som en funktion av pH. Avskiljningen av uran var 100 % över hela det undersökta pH-intervallet. Materialet adsorberade även sulfat och DOC. Avskiljningen av dessa anjoner var som högst vid pH 6-7 då ca 70 % adsorberades och mattades därefter av vid stigande pH.

Detta kan förklaras med att filtrets positiva ytladdning är pH-beroende och avtar med stigande pH och därmed avtar även dess förmåga att binda DOC och sulfat.

Figur 5 beskriver uran(VI)-, DOC- och sulfatadsorptionen som en funktion av pH för anjonbytarmassan, Purolite. Även här var uran(VI)-adsorptionen 100 % vilket överensstämmer med tidigare studier gjorda av Vaaramaa (2003) och Öhlund, (2007). Det är högst sannolikt att anjonkomplexen $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ och $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ förekom och att jonbytarmassan, med elektrostatiska krafter, effektivt tog upp dessa komplex. Vidare visar studier gjorda av Gu et al (2005) att förekomsten av sulfat inte påverkar adsorptionen av uran(VI) till anjonbytarmassor även om sulfat är den tvåvärda jon som starkast tävlar med andra anjoner om att binda till jonbytarmassan. Till Purolite adsorberades inte DOC i någon större utsträckning. Avskiljningen var ca 20 % vid alla pH-värden.



Figur 4. Procentuell avskiljning för vatten från Ärla av uran, DOC och sulfat till IOCO (31,2 g/l) som funktion av pH.

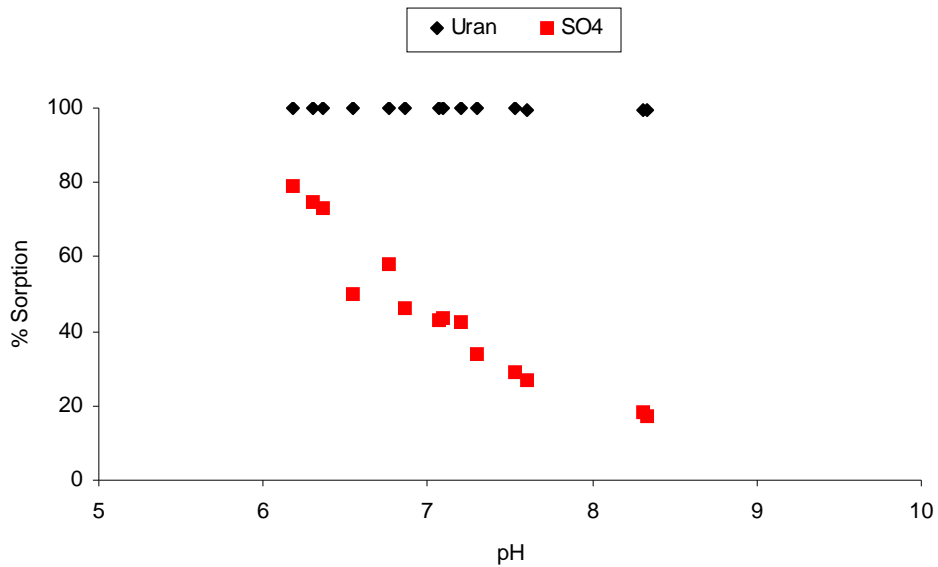


Figur 5. Procentuell avskiljning för vatten från Ärla av uran, DOC och sulfat till Purolite (15,6 g/l) som funktion av pH.

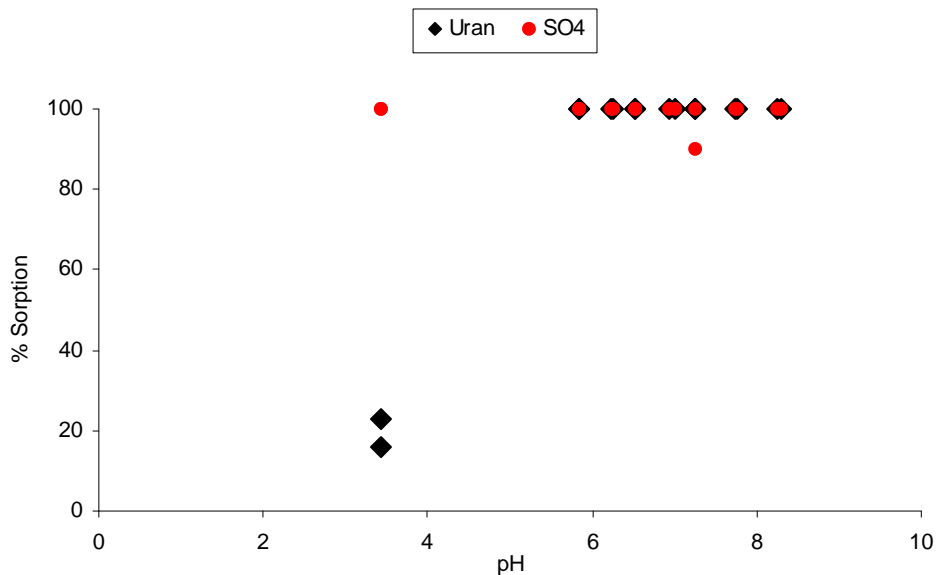
4.2.2 Uran(VI)-avskiljning med vatten från Stripa

Som tidigare nämnts hade vattnet från Stripa betydligt högre urankoncentration i jämförelse med Ärlavattnet (Tabell 2) men likväl var uranadsorptionen 100 % för IOCO. Figur 6 visar hur uran- och sulfatadsorptionen varierade med pH för IOCO. Sulfatavskiljningen för IOCO var 100 % vid de lägsta pH-värdena men därefter avtog avskiljningen i takt med ökande pH-värde för att vid pH > 8 vara under 20 %. Den höga avskiljningen av sulfatjoner vid låga pH-värden beror på järnoxiders förmåga att adsorbera anjoner vid låga pH.

Avskiljningen är inte lika hög för Purolite. Figur 7 visar avskiljningen av uran(VI) och sulfat som en funktion av pH. Vid låga pH (< 4) var uran(VI)-adsorptionen låg men uppnådde 100 % vid pH 5,85 och uppåt. Varför inte avskiljningen var 100 % vid låga pH hos anjonbytarmassan berodde antagligen på att den form av uran som dominerade vid detta pH var den positivt laddade uranyljonen. Sulfatadsorptionen var 100 % för alla pH-värden.



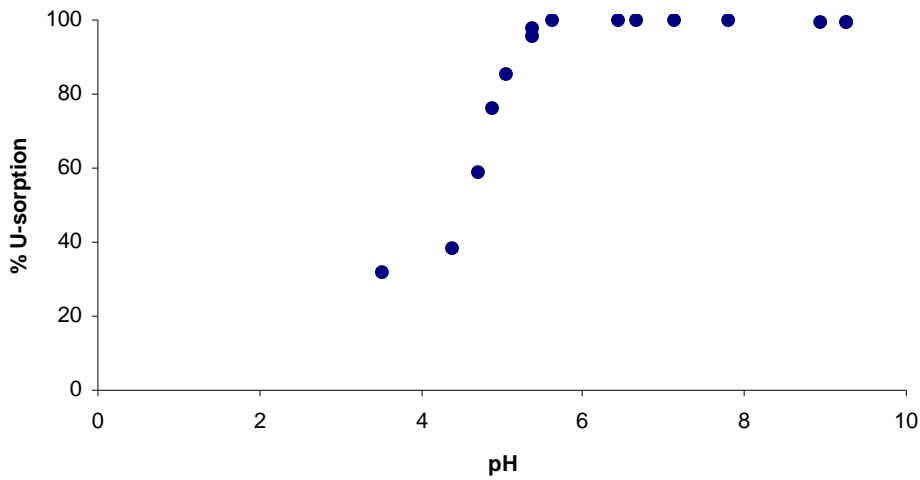
Figur 6. Procentuell avskiljning för vatten från Stripa av uran och sulfat till IOCO (31,2 g/l) som funktion av pH.



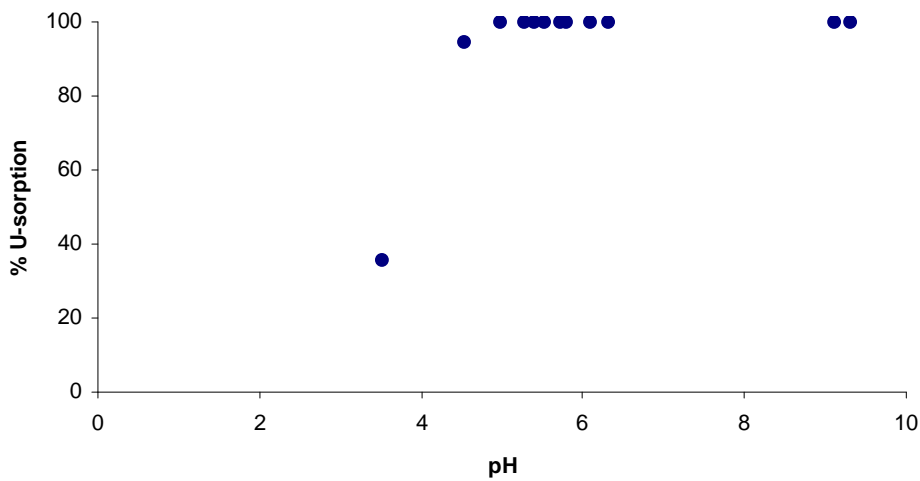
Figur 7. Procentuell avskiljning för vatten från Stripa av uran och sulfat till Purolite (15,6 g/l) som funktion av pH.

4.2.3 Uran(VI)-avskiljning till ferrihydrit

Uran(VI)-adsorption till ferrihydrit som en funktion av pH visas i figur 8 och 9. I båda systemen var adsorptionen låg vid låga pH-värden och därefter ökade adsorptionen med ökande pH. Vid pH 5,73 nådde avskiljningen 100 % i proven med en ferrihydritkoncentration på 0,3 mM. I proven med 3 mM ferrihydrit uppnåddes 100 % avskiljning vid pH 4,97.



Figur 8. Uran(VI)-adsorption till ferrihydrit (0,3 mM) som en funktion av pH. Bakgrundslösning 0,01 M NaNO₃, tillsatt uran = 10 µM.

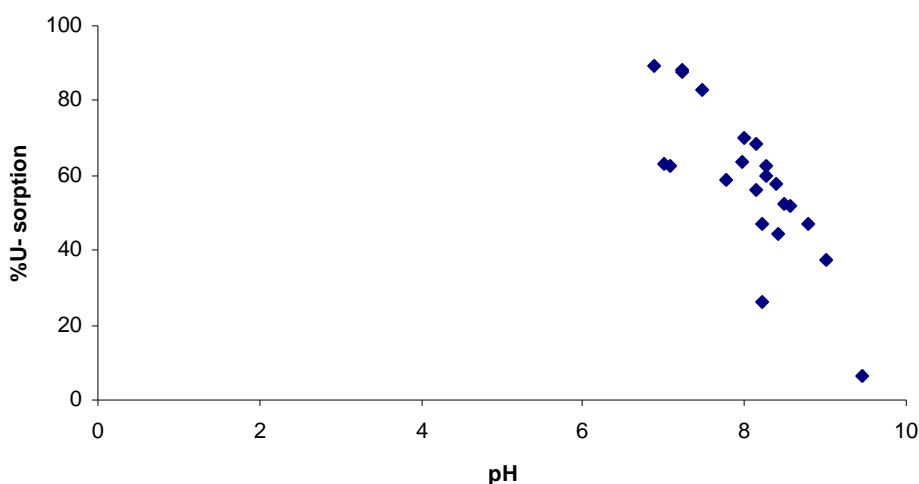


Figur 9. Uran(VI)-adsorption till ferrihydrit (3 mM) som en funktion av pH. Bakgrundslösning 0,01 M NaNO₃, tillsatt uran = 10 µM.

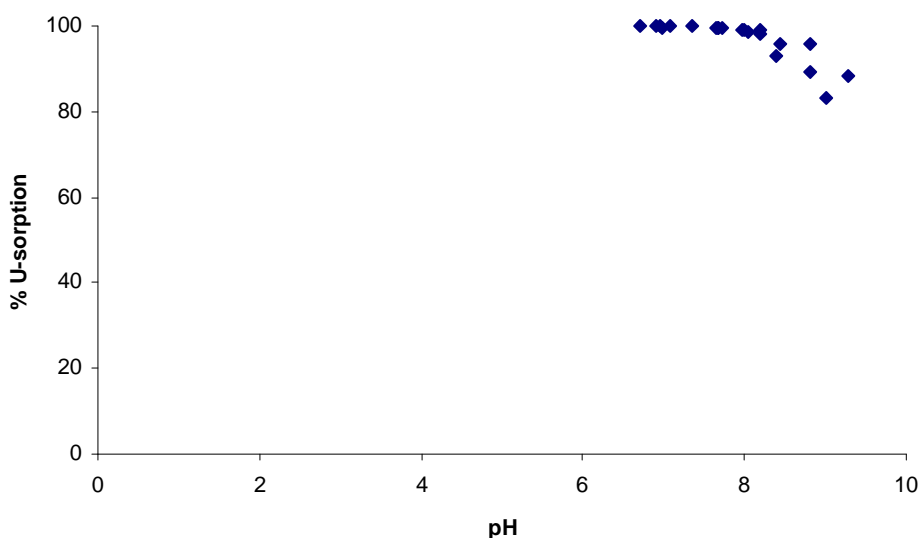
4.2.4 Uran(VI)-avskiljning till ferrihydrit i närvaro av karbonat

För att få reda på hur adsorptionen påverkas av karbonat gjordes försök enligt serie D, där karbonat tillsattes i provrören. I jämförelse med serie C, där adsorptionen var 100 % även vid höga pH, så minskade adsorptionen avsevärt vid pH högre än 7-8 (figur 10). I försöken med den lägre halten ferrihydrit, 0,3 mM, var adsorptionen som högst runt pH 7. Vid högre pH sjönk mängden uran(VI) som adsorberades till ferrihydrit till nära noll vid pH 10. Figur 11 visar adsorptionen av uran till 3 mM ferrihydrit och

även här ser vi samma fenomen med en lägre adsorption vid stigande pH. Adsorptionen var över 99 % mellan pH 6,7 och 8,19 och därefter minskade adsorptionen till 80-85 % vid pH 9,5. Liknande observationer har gjorts av Waite et al (1994) och resultaten antyder att uran(VI)-sorptionen minskar vid alkalina pH-värden på grund av att uran(VI)-karbonatkomplex skapas som inte binder till ferrihydritens yta lika starkt. Man kan i viss utsträckning se fenomenet som en konkurrens mellan den negativt laddade ferrihydriten och de lösta karbonatjonerna om komplexbildning till uranyl, där karbonatjonerna ”vinner” vid höga pH-värden. Mönstret är detsamma i båda serierna men i den senare minskade inte adsorptionen i samma utsträckning vid $\text{pH} > 8$. Detta kan förklaras med att en högre koncentration av ferrihydrit medför fler aktiva ytgrupper där uran(VI) kan binda och resulterar i en högre adsorption av uran.



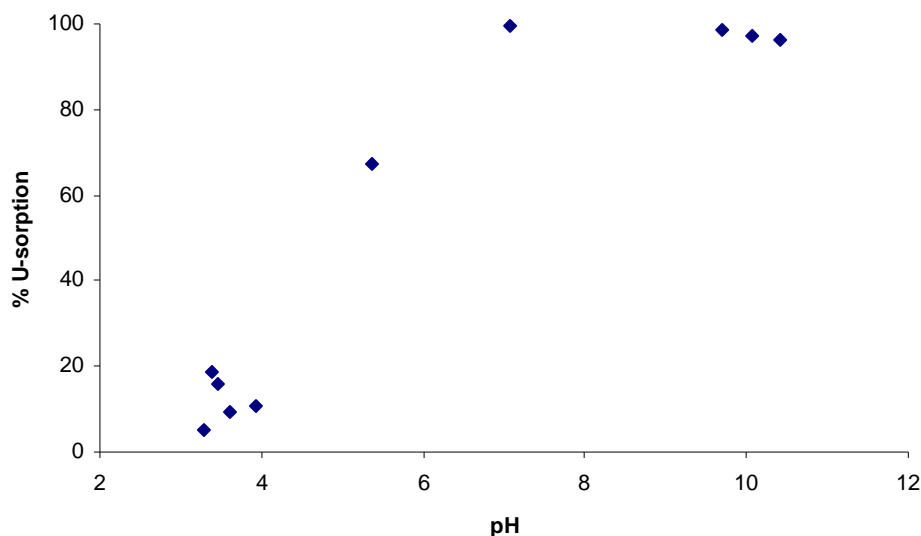
Figur 10. Uran(VI)-adsorption till ferrihydrit (0,3 mM) som funktion av pH i närvaro av 2 mM karbonat. Bakgrundslösning 0,01 M NaNO_3 , tillsatt uran = 10 μM .



Figur 11. Uran(VI)-adsorption till ferrihydrit (3 mM) som funktion av pH i närvaro av 2 mM karbonat. Bakgrundslösning 0,01 M NaNO_3 , tillsatt uran = 10 μM .

4.2.5 Uran(VI)-avskiljning till ferrihydrit i närvaro av sulfat

Figur 12, nedan, visar uran(VI)-adsorptionen till ferrihydrit som en funktion av pH med sulfat närvarande. Mönstret liknar resultatet från serie C, där inget karbonat var tillsatt. Adsorptionen av uran var lägre än 20 % i pH intervallet 3-4, mellan pH 5 och pH 7 ökade adsorptionen för att nå nära 100 % vid pH 7. I det stora hela tyder resultaten på att sulfat inte nämnvärt påverkar uran(VI)-adsorptionen till ferrihydrit. Resultatet är dock relativt svårtolkat på grund av få analyserade datapunkter.



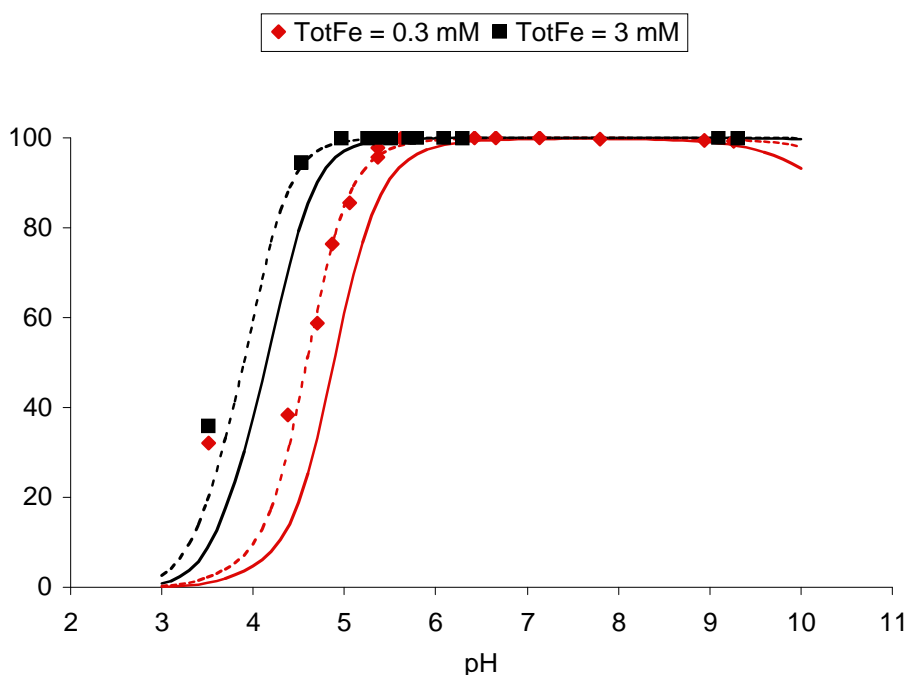
Figur 12. Uran(VI)-adsorption till ferrihydrit (3 mM) som en funktion av pH i närvaro av 2 mM sulfat. Bakgrundslösning 0,01 M NaNO₃, tillsatt uran = 10 µM.

4.2.6 Kemisk jämviktsmodellering i Visual MINTEQ

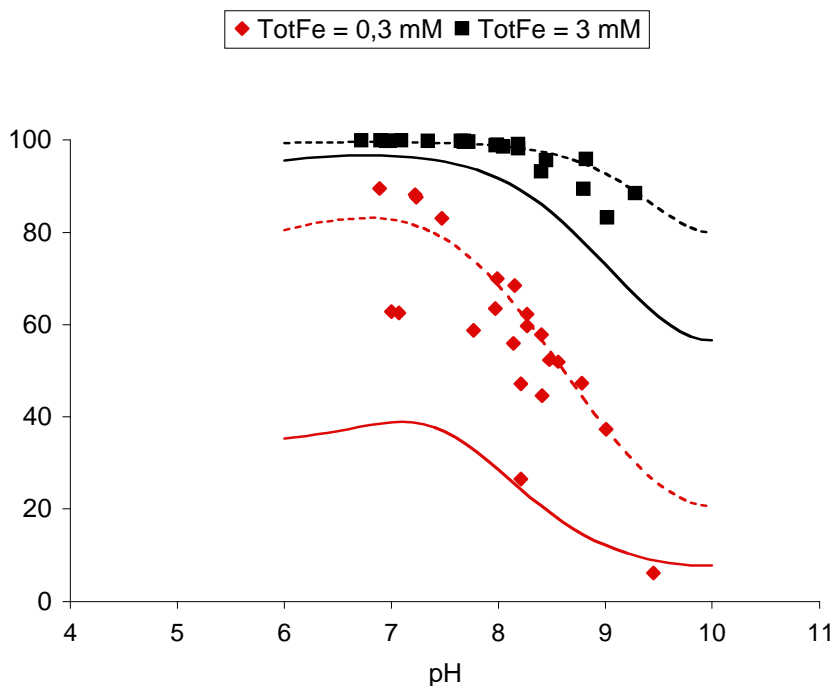
Resultaten från skakförsöken visade på en högre adsorption av uran jämfört med simuleringarna i TPM-modellen. I figur 13 och 14 redovisas resultatet från skakförsöket som fyrkanter och resultatet från modelleringen som en streckad linje. För att uppnå en större överensstämmelse optimerades modellen genom att jämviktskonstanterna för de olika urankomplexen justerades. Modellanpassningar med optimerade konstanter visas i figur 13 och 14 som streckade linjer. Genom att öka jämviktskonstanterna för de olika urankomplexen åstadkoms en starkare bindning mellan de lösta uranyljonerna och ferrihydritytan i enlighet med resultaten. Figur 13 och 14 visar hur den optimerade modellen är i bättre överensstämmelse med resultatet från skakförsöket. Samtliga resultat från simuleringarna finns i appendix 4.

I serie C korrigerades jämviktskonstanten för urankomplexet $(\equiv\text{FeOH})_{s2}\text{UO}_2\text{OH}$ respektive $(\equiv\text{FeOH})_{w2}\text{UO}_2\text{OH}$ och i serie D reviderades jämviktskonstanten för urankomplexet $(\equiv\text{FeOH})_{s2}\text{UO}_2\text{OHCO}_3^{2-}$ respektive $(\equiv\text{FeOH})_{w2}\text{UO}_2\text{OHCO}_3^{2-}$. $(\equiv\text{FeOH}_s)$ symboliserar de starkaste bindningställena, vilka är viktiga när urankoncentrationen är låg och järnoxidhalten hög och $(\equiv\text{FeOH}_w)$ de svaga bindningställena.

För att optimera modellen statistiskt användes Brents metod vilken är en kvadratisk konvergerande metod för att uppnå en god approximation. För serie C där endast $(\equiv\text{FeOH})_{s_2}\text{UO}_2\text{OH}$ och $(\equiv\text{FeOH})_{w_2}\text{UO}_2\text{OH}$ användes blev rmsqe-värdet, (root mean square error/ kvadratisk medelfel, felet mellan modellen och skakförsöket) 5,6 % . För serie D, där komplexkonstanterna för $(\equiv\text{FeOH})_{s_2}\text{UO}_2\text{OH}$ och $(\equiv\text{FeOH})_{w_2}\text{UO}_2\text{OH}$ sattes lika med de värden som erhöles i serie C, medan konstanterna för $(\equiv\text{FeOH})_{s_2}\text{UO}_2\text{OHCO}_3^{2-}$ respektive $(\equiv\text{FeOH})_{w_2}\text{UO}_2\text{OHCO}_3^{2-}$ optimerades, blev rmse-värdet 9.9%. I Tabell 3 redovisas jämviktskonstanterna samt rmse-värdet.



Figur 13. Uranadsorption till ferrihydrit, totalhalt Fe 0,3 mM och 3 mM, i serie C. Punkterna (fyrkanter/rutertecken) visar resultaten från skakförsöket, de heldragna linjerna är modellsimuleringar med konstanter baserade på data från Waite et al. (1994) och de prickade linjerna är modellsimuleringar med de optimerade konstanterna för denna studie.



Figur 14. Uranadsorption till ferrihydrit i närvaro av 0,2 mM karbonat, totalhalt Fe 0,3 mM och 3 mM, serie D. Punkterna (fyrkanter/rutertecken) är resultaten från skakförsöket, de heldragna linjerna är modellsimuleringar med konstanter baserade på data från Waite et al. (1994) och de prickade linjerna är modellsimuleringar med de optimerade konstanterna för denna studie.

Tabell 4. Jämviktskonstanter för uranylkomplexen dels för data från Waite et al. (1994), och dels optimerade för den här studien. Rmse-värdet ("Root mean-square error", kvadratisk medelfel) efter optimering av modellen för skakförsöksresultaten anges också.

Komplex	log K		Rmse
	Data från Waite et al. (1994)	Denna studie	
$(\equiv\text{FeOH})_2\text{UO}_2\text{OH}$	6,5	7,89	5,6 %
$(\equiv\text{FeOH})_2\text{UO}_2\text{OH}$	3,53	4,14	
$(\equiv\text{FeOH})_2\text{UO}_2\text{OHCO}_3^{2-}$	13,31	10,56	9,9 %
$(\equiv\text{FeOH})_2\text{UO}_2\text{OHCO}_3^{2-}$	6,4	10,56	

4.4 Kolonnförsök

4.4.1 Allmänt

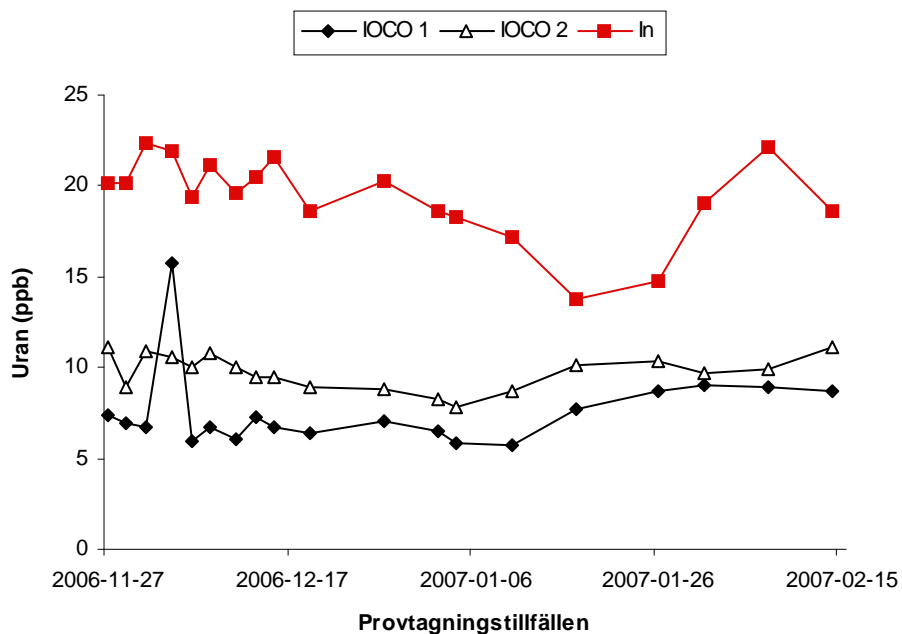
Kolonnförsöket startades den 27 november 2006 och sista provtagningstillfället var den 14 februari 2007. För varje material kördes två kolonner parallellt och benämndes IOCO 1, IOCO 2, Purolite 1 samt Purolite 2 (se även kap. 3.4). Resultat från alla provtagningar kan ses i appendix 3. Flödet i kolonnerna uppmättes till 0.01 L/s. Vattnets kemiska sammansättning var relativt konstant. Tabell 4 visar ett medelvärde från försöksperioden av pH, alkalinitet, DOC, sulfat, Na⁺, K⁺, Mg²⁺ och Ca²⁺ för det vatten som gick in i kolonnerna det vill säga råvattnet. Urankoncentrationerna i råvattnet varierade under försöksperioden mellan 14 och 23 µg/l.

Tabell 5. Råvattnets kemiska sammansättning som ett beräknat medelvärde för de olika variablerna under försöksperioden.

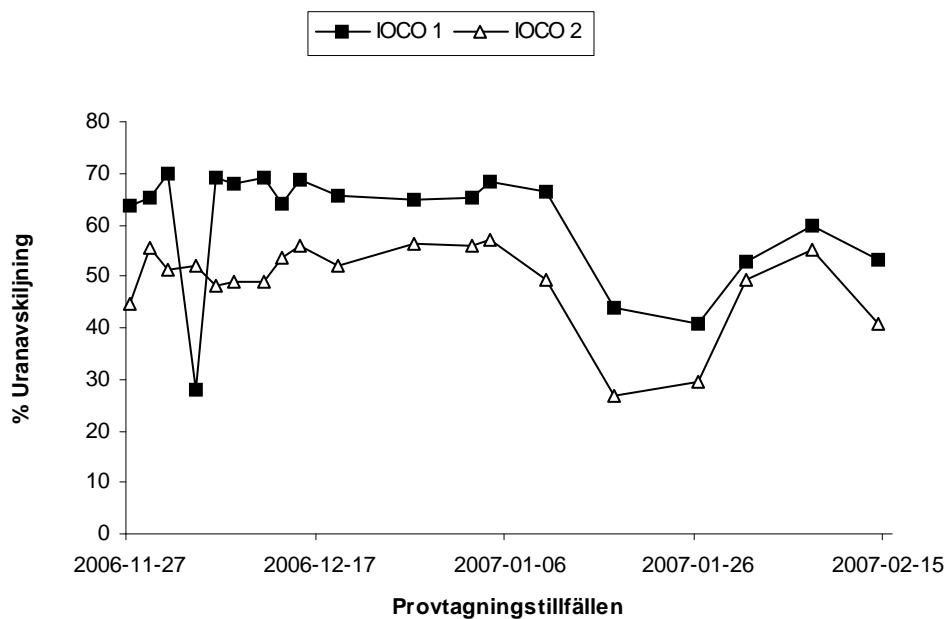
Variabel	Enhet	Råvatten
pH		8,06
Alkalinitet	mg HCO ₃ /l	109
U	Ppb	19
DOC	mg/l	1,92
SO ₄	mg/l	8,86
Na	Ppb	4980
K	Ppb	1743
Mg	Ppb	5555
Ca	Ppb	31631

4.4.2 Uranavskiljning till IOCO

Resultaten för de båda IOCO-kolonnerna skiljer sig åt men båda förmådde reducera U-koncentrationerna till < 11 µg/l, vilket är klart lägre än gränsvärdet på 15 µg/l (figur 15). IOCO-kolonnerna avskilde normalt mellan 50 och 70 % av uranet under de första 50 dagarna (figur 16). Utvecklingen under den senare delen av försöket är något mer svårtolkad beroende på stora fluktuationer i råvattnets urankoncentration.



Figur 15. Löst uran i utflödet från kolonnerna ”IOCO 1” och ”IOCO 2”, samt i råvattnet (”In”). Försöket pågick från 2006-11-27 till 2007-02-14.

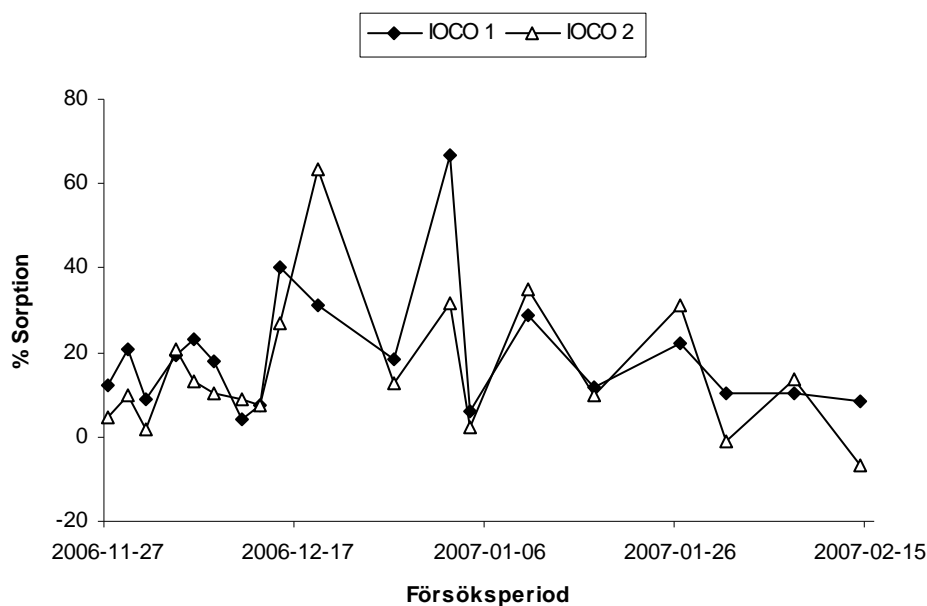


Figur 16. Uranavskiljning i procent över tiden i kolonnerna ”IOCO 1” och ”IOCO 2”.

4.4.4 DOC-avskiljning till IOCO

DOC-koncentrationen varierade mellan 1,24 mg/l och 3,20 mg/l under försöksperioden. Figur 17, nedan, visar den procentuella avskiljningen av DOC för IOCO 1- och IOCO 2-kolonnerna under provtagningsperioden.

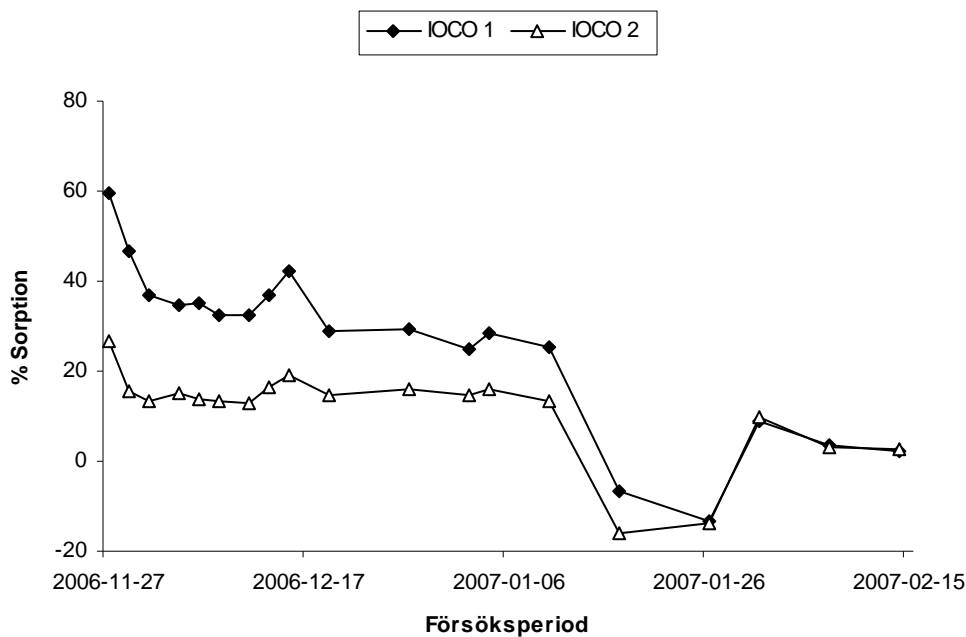
Som tidigare nämnts är IOCO:s postiva ytladdning pH-beroende och minskar med stigande pH och därmed minskar också ytans förmåga att binda DOC. Då vattnet i Ärla har ett relativt högt pH (7,8) torde inte avskiljningen vara så hög. En jämförelse mellan resultaten från kolonnförsöket och skakförsöken visar att man kunde ha förväntat sig en högre avskiljning än vad som observerades.



Figur 17. DOC-avskiljning i procent över tiden i kolonnerna "IOCO 1" och "IOCO 2". Försöket pågick från 2006-11-27 till 2007-02-14.

4.4.5 Sulfatavskiljning till IOCO

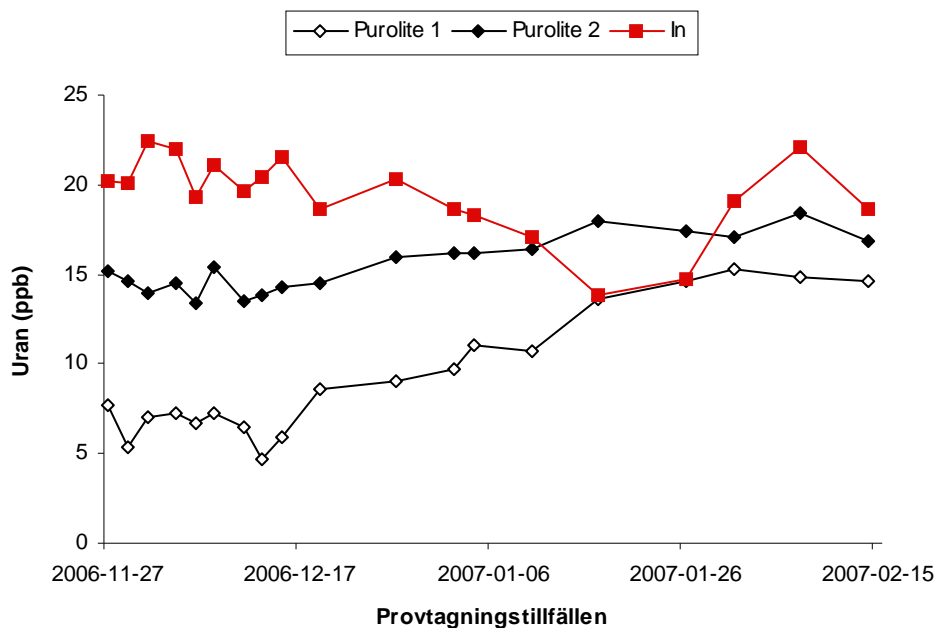
Koncentrationen löst sulfat har under försökstiden varierat mellan 9,56 mg/l och 7,04 mg/l. Enligt resultaten från skakförsöket minskade sulfatavskiljningen med ökande pH. I figur 18 presenteras adsorptionen av sulfat för IOCO 1- och IOCO 2-kolonnerna vid varje provtagningsstillfälle. Vid starten av försöket var sulfatavskiljningen i IOCO 1-kolonnen 60 % och för IOCO 2-kolonnen 30 % vilket var den högsta avskiljningen som uppnåddes för de båda kolonnerna. Detta är i nivå med skakförsökens resultat där avskiljningen var kring 40 % vid motsvarande pH. Under den resterande försöksperioden minskade adsorptionen för att pendla runt noll vid slutet av försöket.



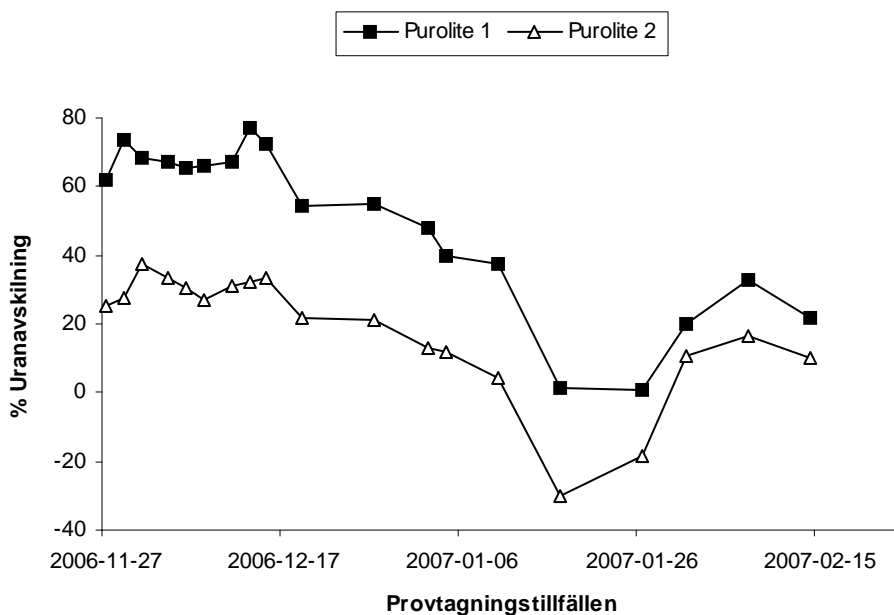
Figur 18. Sulfatavskiljning i procent över tiden i kolonnerna ”IOCO 1” och ”IOCO 2”. Försöket pågick från 2006-11-27 till 2007-02-14

4.4.5 Uranavskiljning till Purolite

Purolite-kolonnerna skiljde sig åt ännu mer. Kolonnen ”Purolite 2” fungerade inte som förväntat av oklara skäl. ”Purolite 1” fungerade åtskilligt bättre. I figur 19 redovisas hur mycket uran materialet förmådde avskilja. Purolite 1-kolonnen reducerade koncentrationen uran till under 10 ppb i början av försöket medan Purolite 2-kolonnen endast fick ner löst uran till ca 15 ppb. Figur 21 visar uranadsorptionen i procent och man kan se att ”Purolite 1” är väl i klass med IOCO-kolonnerna under början av försöksperioden, men att adsorptionen sedan sjönk ned mot noll. Även här ser man påverkan av råvattnets fluktuationer.



Figur 19. Avskiljning av uran över tiden i kolonnerna ”Purolite 1”och ”Purolite 2”. Försöket pågick från 2006-11-27 till 2007-02-14. Råvattnet benämns som ”In”.



Figur 20. Uranavskiljning i procent över tiden i kolonnerna ”Purolite 1”och ”Purolite 2”. Försöket pågick från 2006-11-27 till 2007-02-14

4.4.6 Jonbytarmassans kapacitet

För att få en bättre förståelse av varför inte Purolite-kolonnerna fungerat som önskat beräknades jonbytarmassans kapacitet dvs. hur mycket uranyl ett (1) gram jonbytarmassa kan byta ut, enligt:

Flöde (L/h) * koncentrationen (g/L) = mängdflöde av uran per timme (g/h)

Mängdflöde uran (g/h) = 36,742 L/h * 0,01937 g/L = 0,7111 g/h

Kapacitet (g/dm³) = 1,15 (ekv/dm³)* molmassa

→ 1,15* 119 = 136,85 g/dm³

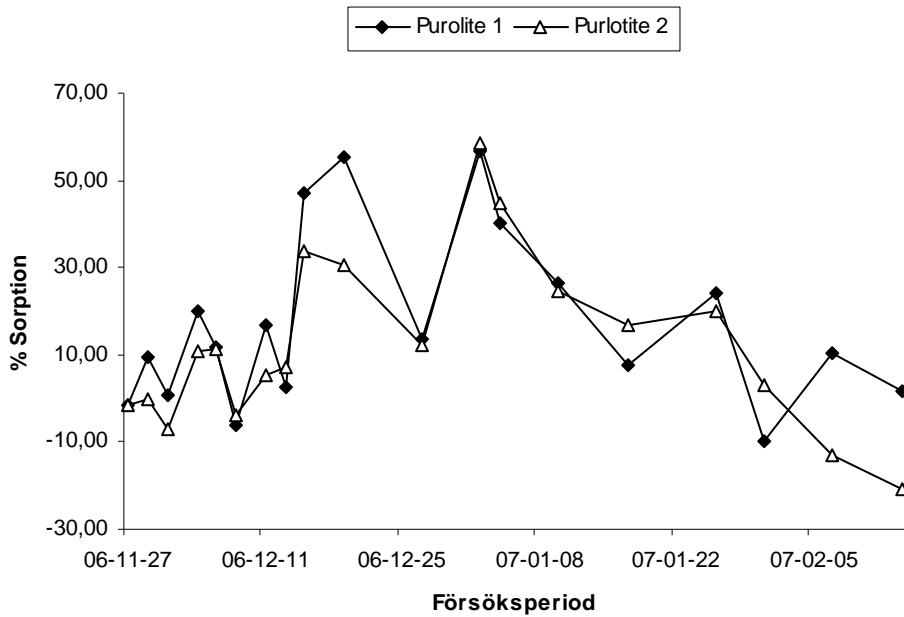
Mängd jonbytarmassa (L)*kapacitet (g/L) / mängdflöde (g/h) = drifttid före regenerering

(12,5 L * 136,85 g/dm³) / 0,7111 g/h = 2405,6 h = 100 dagar

Beräkningen visar att jonbytarmassan med gällande urankoncentration och flöde skulle fungera effektivt i 100 dagar och därefter skulle regenerering behöva göras. Detta var inte fallet då kolonnerna aldrig, inte ens i början gav en 100 %-ig rening. ”Purolite 2”-kolonnen hade i början av försöksperioden endast en adsorption på 20 % och ”Purolite 1”- kolonnen hade i början en avskiljning på 60-80 % (figur 20). Därefter ser man tydligt att avskiljningseffektiviteten gradvis har försämrats under den senare delen av försöket. En faktor som kan försämma avskiljningsförmågan är fördelningen av vattenflödet genom filtermaterialet (Bengtsson, 2003). Om flödet är ojämnt kan det bildas ”strömningskanaler” i filtermaterialet och det bildas zoner i filtret där vatten kan strömma igenom lättare. Följden av detta blir att större delen av vattenflödet endast belastar en begränsad del av filterytan vilket i sin tur gör att kontakttiden mellan vattnet och filtermaterialet blir lägre. Kontakttiden blir därmed för kort för att avskiljningen skall bli effektiv.

4.4.7 DOC-avskiljning till Purolite

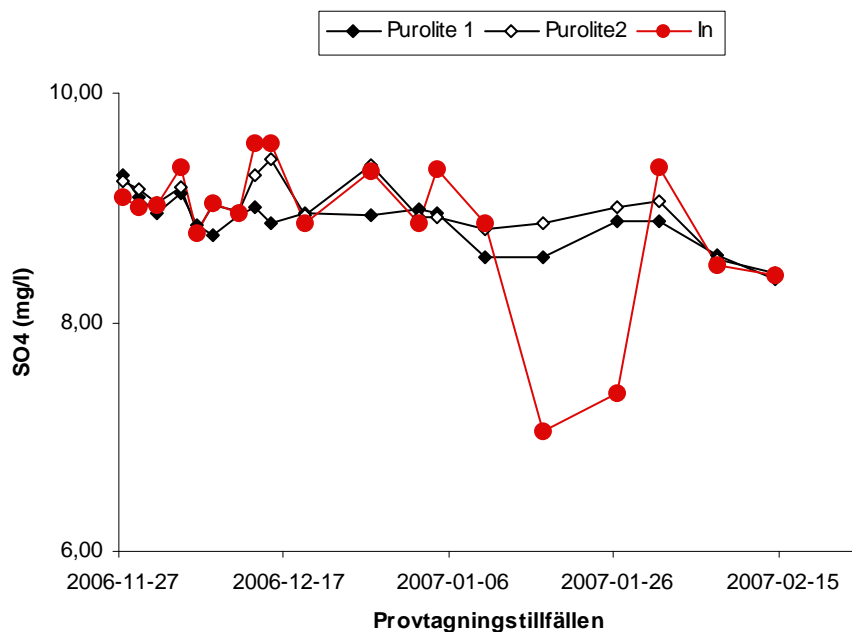
Trenden för DOC-adsorptionen hos Purolite-kolonnerna liknade den för IOCO-kolonnerna. I början av försöket var koncentrationen av DOC runt 1,3 mg/l och ungefär samma värde uppmättes i både Purolite 1 och Purolite 2 (figur 22), vilket endast gav en avskiljning på omkring 10-20 %. Därefter ökade råvattnets DOC-koncentration (> 2 mg/L) och avskiljningen för båda kolonnerna ökade till ungefär 40 %. I slutet av perioden förekom ingen avskiljning av DOC.



Figur 21. DOC-avskiljning i procent över tiden i kolonnerna "Purolite 1" och "Purolite 2". Försöket pågick från 2006-11-27 till 2007-02-14

4.4.8 Sulfatavskiljning till Purolite

I figur 22 presenteras variationen av sulfatkoncentrationerna (mg/l) hos råvattnet samt hos Purolite-kolonnerna under försöksperioden. Resultaten visar att ingen anmärkningsvärd avskiljning ägt rum. Den uteblivna sulfatadsorptionen stämmer inte överens med resultaten från skakförsöket där Purolite till 100 % avskilde sulfat mellan pH 5 och 9.



Figur 22. Sulfatkoncentration över tiden i utflödet från kolonnerna "Purolite 1" och "Purolite 2". Försöket pågick från 2006-11-27 till 2007-02-14. Råvattnet benämns som "In".

4.4.9 Kemisk jämviktsmodellering i Visual MINTEQ

Resultatet från modelleringen, med den nu optimerade modellen, visade att man kunde förvänta sig en uranadsorption på omkring 90-93%. Resultatet redovisas i Tabell 6. Som tidigare nämnt, stycke 4.4.2, varierade adsorptionen i IOCO-kolonnförsöket mellan 50-70% .

Tabell 6. Resultat från jämviktsmodellering av uran(VI)-sorption till IOCO (0,1 g/l) för kolonnförsöket i Ärla.

Datum	pH	Simulerad sorption av uran(VI) (%)
2006-11-27	8	93,02
2006-11-29	8	93,43
2006-12-01	7,9	92,49
2006-12-04	8,1	92,74
2006-12-06	8	92,01
2006-12-08	8	93,32
2006-12-11	8	92,37
2006-12-13	8	92,40
2006-12-15	8,2	89,90
2006-12-19	8	93,02
2006-12-27	8	92,95
2007-01-02	8,2	92,66
2007-01-04	8	92,75
2007-01-10	8,3	91,56
2007-01-17	8	95,06
2007-01-26	8,3	93,43
2007-01-31	8	92,27
2007-02-07	8,1	91,32
2007-02-14	8,1	91,45

6. Slutsatser

Ärla

Vattnet från brunnen i Ärla hade urankoncentrationer som överskred Livsmedelsverkets och Socialstyrelsens riktvärde på 15 mikrogram uran per liter dricksvatten och därmed borde åtgärder vidtas.

IOCO

Både skak- och kolonnförsöken visade att den järnoxidtäckta olivinsanden avskiljde uran effektivt. Resultaten från kolonnförsöket tydde på att IOCO:n jämnar ut fluktuationerna i urankoncentrationerna, samt att koncentrationen uran i utflödet från filtret inte överskrider riktvärdet. Hur uthålligt IOCO-filtret är, är svårt att avgöra men vid slutstadiet av försöksperioden var den totala avskiljningen av uran runt 60 % i båda IOCO-kolonnerna och avskiljningen visade inte några klara tecken på att minska. Det verkar alltså rimligt att IOCO-kolonnerna hade kvar en stor avskiljningspotential även efter den sista provtagningen.

Sammanfattningsvis kan det konstateras att de resultat som erhållits i min studie klart visar att järnoxidtäckt olivinsand är potentiellt intressant som filtermaterial för avskiljning av uran i dricksvatten.

Purolite

Jonbytarmassan fungerade inte som önskat då avskiljningseffektiviteten gradvis försämrades under den senare delen av försöket. Förmodligen var problemet mer tekniskt än kemiskt då det med stor sannolikhet hade bildats kanalgångar som förorsakade en sämre avskiljning. Det som talar för att problemet var mer tekniskt är tidigare resultat som visat att jonbytarmassor avskiljer uran effektivt. Jämväl visade resultat från skakförsöken i den här studien att jonbytarmassa avskiljde uran(VI) mycket väl. Något reducerade massans avskiljningsförmåga i kolonnförsöket och vi vet att den hydrauliska uppehållstiden är en avgörande faktor för hur väl filtret kommer att fungera. I mitt försök kom vattnet in i kolonnen genom fyra små ingångar och en något större, och i och med att flödet var ojämnt och eventuellt för kraftigt kan det ha ökat risken för kanalgångar. Kanalgångar eller inhomogent flöde kan motverkas med en förbättrad spridning.

Framtida studier gällande jonbytarmassan skulle kunna bestå i att undersöka och jämföra olika kolonnförsöksutformningar för att uppnå ett jämnare flöde, optimera uppehållstiden och därmed minska risken för tekniska brister. Man skulle likaså kunna tänka sig att man i den studien jämför olika jonbytarmassor och deras avskiljningsförmåga och till exempel inkluderar Dowex 21 som är känd för att adsorbera uran(VI) effektivt.

Regenerering och avfallsprodukt

Reaktiva filter blir till slut mättade oavsett om det är en jonbytarmassa eller en järnoxid och ur miljö- och kostnadssynpunkt är frågan hur filtret kan återanvändas eller regenereras. Jonbytarmassan regenereras relativt enkelt med en saltlösning medan det i dag inte finns någon metod för att regenerera IOCO:n. Berggren et al (2004) nämner som alternativ till regenerering av IOCO som använts för att avskilja naturligt organiskt material att ett IOCO-filter med organiskt material torde ha mycket

goda metallavskiljande egenskaper. Alltså kan en möjlighet vara att återanvända IOCO:n för uranavskiljning. Om man väljer IOCO bör man studera hur man skulle kunna regenerera filtret.

Vidare är frågan hur avfallsprodukten bör behandlas viktig oavsett om det är en regenereringsprodukt eller ett mättat filter. När filtret är i drift under en längre tid kan en hög urankoncentration byggas upp och ge upphov till farliga stråldoser på grund av uranets radioaktiva egenskaper. Hur stor mängd uran som kan fastläggas i filtret kan man ej veta för närvarande eftersom mättnad inte uppnåts. Fortsatta provtagningar är därför intressanta för att få reda på när filtret når mättnad eller eventuellt få indikationer på att filtret börjar bli mättat, för att få en ökad kunskap om IOCO:s livslängd och vilket radioaktivt sönderfall (Bq) filtret har vid mättnad.

Modellering och uranavskiljning

Det finns idag många frågetecken gällande uran och dess förekomstformer i vatten. Det är därför nödvändigt med kunskap om urans kemiska speciering för att kunna karakterisera uranadsorption till reaktiva filter. Resultaten från skakförsöken med ferrihydrit visar bland annat att adsorptionen av uran är pH-beroende samt att närvaron av karbonat påverkar adsorptionen negativt. Diskussioner gällande metoder för att rena uran från dricksvatten bör rimligen innefatta vattnets kemiska sammansättning.

Simulerad speciering i modeller som Visual Minteq kan hjälpa oss en bit på vägen för att försöka förstå vilka former av uran som föreligger i dricksvatten. Med mer kunskap om hur ytkomplexmodellen ska optimeras och utvecklas skulle denna modell kunna fungera som ett användbart verktyg för att ta fram mer ”skräddarsydda” metoder för avskiljning av uran i dricksvatten.

Tillkännagivande

Först och främst vill jag tacka min huvudhandledare Jon Petter Gustafsson vid KTH/SLU och handledare Dan Berggren KTH/SLU. Tack för det stöd och den handledning jag fått under examensarbetets gång.

Ett stort tack till Eskilstuna Energi & Miljö, Hyndevad Vattenverk och Gunilla Kaurin och Conny Karlsson som stod för finansiellt stöd till projektet, tillhandahöll IOCO samt utrustning till kolonnförsöket. Ett stort tack riktas även till Marie, Heikko och Jonas för tillsyn, provtagning och analyser.

Ett stort tack vill jag även ge North Cape Minerals för finansiellt stöd.

Jag vill även tacka Mattias Bäckström vid Örebro Universitet som utfört urananalyserna.

Dessutom vill jag tacka Gunilla Hallberg, som utfört viktigt laborationsarbete, Gunilla Lundberg och Joris van Schaik för att de alltid tagit sig tid att besvara mina frågor och funderingar under mitt laborationsarbete.

Slutligen vill jag tacka min familj och mina vänner för allt stöd och uppmuntran jag fått under arbetets gång. Tack för att ni alltid tror på mig.

6. Källförteckning

- Bergsbruks.se (senast uppdaterad 2007-05-22) [Elektronisk] Tillgänglig på Internet:<<http://www.bergsbruk.se/Vastmanland/stripa.htm>> [Hämtad 070330]
- Berggren, D., Jonsson, E., Johansson P-O., Gustafsson J-P., Abrahamsson., J. (2004) *Filter av olivinsand för avskljningen av naturligt organiskt material vid dricksvattenrening*. VA-Forsk rapport Nr. 2004-01. Stockholm: Svenskt Vatten
- Bhakar, N. (2006) *Antimony removal by iron-oxide-coated olivine and water treatment residual*. Examensarbete KTH Stockholm: Institutionen för mark- och vattenteknik
- Campbell, N.A., Reece, J.B., Lawrence, G. (1999) *Biology-5th ed*. Illinois: High School Binding
- Chang, Y. J., Li, C. W., Benjamin, M.M. (1997) Use of Iron Oxide-Coated Media for NOM Sorption and Particulate Filtration. *Journal AWWA*, 89, 100-113
- Cherry, J.A., Gillham, W.R., Barker J.F., (1984) *Contaminants in Groundwater: Chemical processes*. University of Waterloo, Canada
- Clifford, A., (1999). *Ion exchange and inorganic adsorption*. I Letterman, R.D (red) *Water Quality and Treatment - A Handbook of Community Water Supplies* (5th Edition). USA: McGraw-Hill Inc.
- Cornell, R. M., & Schwertmann, U. (2003) *The iron oxides : structure, properties, reactions, occurrence and uses*. Weinheim : Wiley-VCH
- Dock L., (2002) *Kemisk toxicitet av uran och utarmat uran*. Stockholm: Institutet för miljömedicin. (IMM-rapport 1/02). [Elektronisk] Tillgänglig på Internet. Hämtad 2006-12-08].
- Dong W., & Brooks S.C. (2006) Determination of the formation constants of ternary complexes of uranyl and carbonate with alkaline earth metals (Mg^{2+} , Ca^{2+} , Sr^{2+} , and Ba^{2+}) using anion exchange method. *Environmental Science & Technology*, 40, 4689-4695.
- Eriksson J., Nilsson, S.I., Simonsson, M. (2005) *Wiklanders marklära*. Lund: Studentlitteratur
- Falk, R., Mjönes, L., Appelblad, P., Erlandsson, B., Hedenberg, G. & Svensson, K. (2004). *Kartläggning av naturligt radioaktiva ämnen i dricksvatten*. SSI Rapport 14, 23s
- Gilman AP., Villeneuve, DC., Sexours, VE., Yagaminas, BLT., Quinn, JM., Vallie, VE., Willes, RJ. & Moss, MA. (1988) Uranyl nitrate: 28-day and 91-day toxicity studies in the Sprague-Dawley rat. *Toxicological Science*, 41, 117-128.
- Gu B., Ku Y-K & Brown G.B. (2005) Sorption and desorption of perchlorate and U (VI) by strong-base anion-exchange resins. *Environmental Science & Technology* 39, 901-907
- Gustafsson, J-P., Jacks, G., Simonsson, M., & Nilsson, I. (2006) *Mark- och vattentekni Teori*. Stockholm: Institutionen för mark- och vattenteknik, KTH
- Gustafsson, J-P. (2003). Modelling molybdate and tungstate adsorption to ferrihydrite. *Chemical Geology* 200, 105-115
- Gustafsson, J.P. (2007) Visual MINTEQ 2.52. [Elektronisk] Tillgänglig på Internet:<<http://www.lwr.kth.se/English/OurSoftWare/Vminteq/index.htm> > [Hämtad 061010]
- Harland. C. E., (1994) *Ion exchange: theory and practise*. 2.ed. Cambridge: The Royal Society of Chemistry, cop.

- Hiemstra, T. & van Riemsdijk, W.H. (1996) A surface structural approach to ion adsorption: the charge distribution (CD) model. *Journal of Colloid and Interface Science* 179, 488-508.
- Jonsson, E. (2003) *Removal of Aquatic Natural Organic Matter by Iron Oxide Coated Olivin*. Lic.-avh, Sveriges lantbruksuniversitet. Uppsala
- Karltun, E., Bain, D. C., Gustafsson, J-P., Mannerkoski, H., Murad, E., Wagner, U., Fraser, A. R., McHardy, W. J. & Starr, M. (2000) Surface reactivity of poorly-ordered minerals in podzol B horizons. *Geoderma* 94, 265-288
- Kurtio, P., Auvinen, A., Salonen, L., Saha, H., Pekkanen, J., Mäkeläinen, I., Väsisänen, S., Penttilä, I. & Komulainen, H. (2002) Renal effects of uranium in drinking water. *Environmental Health Perspectives*, 4, 337-342.
- Langmuir, D. (1997) *Aqueous Environmental Geochemistry*. New Jersey: Prentice Hall
- Lenhart J.J., Cabaniss S.E., MacCharty. P., Honeyman B.D.(2000) Uranium(VI) complexation with citric, humic and fulvic acids. *Radiochimica Acta*, 88, 345-353. München: Oldenbourg Wissenschaftsverlag.
- Länsstyrelsen Dalarnas län. (2005) *Metallhalter i dricksvatten från borrade brunnar i Dalarnas län*. Miljövårdsenheten rapport 2005:19. [Elektronisk] Tillgänglig på Internet:<<http://www.w.lst.se/upload/8961/metallrapport.pdf>> [Hämtad 070330]
- McBride M.B., (1994) *Environmental Chemistry of Soils*. New York: Oxford University Press
- Naturvårdsverket (1998) *Gruvavfall – Miljöeffekter och behov av åtgärder*. Rapport 4948. Stockholm: Naturvårdsverkets reprocentral 1998/12.
- Oliver,L., Peterson,J.,Wilhelmsen,K,. (2006) *Forskning. Urankonvertering*. SKI Rapport 2006:08.
- Orloff, K.G., Mistry K., Charp P., Metcalf S.,Marino R.,Shelly T., Melaro E., Donahoe A.M. & Jones R.L. (2004) Human exposure to uranium in groundwater. *Environmental Research* 94, 319-326
- Persson, PO & Nilson,L. (2005) *Vattenhantering och vattenreningsteknik*. I Persson, PO (red) Miljöskyddsteknik - Strategier & teknik för ett hållbart miljöskydd. Sjunde upplagan. Stockholm; KTH Kemiteknik
- Purolite Ion Exchange Resins (senast uppdaterad 2007) [Elektronisk] Tillgänglig på Internet:<www.purolite.com> [Hämtad 061021]
- Ranville, J.F. , Hendry, J., Reszat, T.N., Xie, Q. & Honeyman, B.D. (2007). Quantifying uranium complexation by groundwater dissolved organic carbon using asymmetrical field-flow fractionation. *Journal of Contaminant Hydrology*, 91, 233-246.
- Saito, T. ,Nagasaki,S., Tanaka, S. & Koopal, L.K. (2003). Application of the NICA-Donnan model for proton, copper and uranyl binding to humic acid. *Radiochimica Acta*, 92, 567-574
- Schwertmann, U., & Cornell, R. M. (2000) *Iron oxides in the laboratory: preparation and characterization*. Weinheim : Wiley-VCH
- SGU (Sveriges geologiska undersökning) (2004). *Grundvatten. 1-2/04*. [Elektronisk] Tillgänglig på Internet:<http://www.sgu.se/dokument/service_sgu_publ/GV_1-2_04.pdf> [Hämtad 061208]
- SGU (Sveriges geologiska undersökning) (2004). *Mineralmarknaden, Tema: Uran*. [Elektronisk] Tillgänglig på Internet:<http://www.sgu.se/dokument/service_sgu_publ/perpubl_2003-3.pdf> [Hämtad 070505]

- Socialstyrelsen (2006) *Dricksvattenrening med avseende på uran*. Socialstyrelsen 2006-123-1. 35 s. + bilagor.
- Sorg, T. (1988) Methods of removing uranium from drinking water. *Journal of American Water Works Association*, vol. July:105-111. ??
- Statens Strålskyddsinstitut (senast uppdaterad 2007) [Elektronisk] Tillgänglig på Internet: <http://www.ssi.se/fakta_om_stroelning/Stroelningsbroschyr/Enhetermm.html?Menu2=Straldoser > [Hämtad 061214]
- Svensson, K. (2005) Uran i dricksvattnet kan påverka njurarna. *Vår föda*, 5:28-30
- Svensson, K., Darnerud, P.O & Skerfving, S. (2005) *A risk assessment of uranium in drinking water*. Uppsala: Livsmedelsverket. (Rapport 10- 2005)
- Vaaramaa, K. (2003). *Physico-chemical forms of natural radionuclides in drilled well waters and their removal by ion exchange*. Diss. University of Helsinki, Finland
- Zamora, L. M., Tracy B.L., Zielinski J.M., Meyerhof D.P. & Moss M.A., (1998) Chronic ingestion of uranium in drinking water: A study of kidney bioeffects in Humans. *Toxicological Science* 43, 68-77
- WHO. (2004) *Uranium in drinking water*. Background document for development of WHO Guidelines for drinking -water quality. World Health Organization

Bilaga 1. Recept för skakförsöksserierna A-E

Serie A- 24h jämviktning av IOCO och Purolite med Ärlavatten

Lösningar: CU = 0.3 mM $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$
A = 0.03 M NaNO_3
B = 0.05 M HNO_3
E = 0.05 M NaOH
ÄV = Filtrerat vatten från Ärla.

1.00 g sköljd IOCO

1, 2: 29 ml ÄV, 2 ml B
3, 4: 31 ml ÄV, 1 ml B
5, 6: 31.4 ml ÄV, 0.6 ml B
7, 8: 31.7 ml ÄV, 0.3 ml B
9, 10: 32 ml ÄV
11, 12: 31.9 ml ÄV, 0.1 ml E
13, 14: 31.7 ml ÄV, 0.3 ml E
15, 16: 31.2 ml ÄV, 0.8 ml E

0.50 g Purolite

17, 18: 29 ml ÄV, 2 ml B
19, 20: 31 ml ÄV, 1 ml B
21, 22: 31.4 ml ÄV, 0.6 ml B
23, 24: 31.7 ml ÄV, 0.3 ml B
25, 26: 32 ml ÄV
27, 28: 31.9 ml ÄV, 0.1 ml E
29, 30: 31.7 ml ÄV, 0.3 ml E
31, 32: 31.2 ml ÄV, 0.8 ml E

Serie B- 24h jämviktning av IOCO och Purolite med Stripavatten

Lösningar: CU = 0.3 mM $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$
A = 0.03 M NaNO_3
B = 0.05 M HNO_3
E = 0.05 M NaOH
SV = Filtrerat vatten från Stripa.

1.00 g sköljd IOCO

1, 2: 29 ml SV, 2 ml B
3, 4: 31 ml SV, 1 ml B
5, 6: 31.4 ml SV, 0.6 ml B
7, 8: 31.7 ml SV, 0.3 ml B
9, 10: 32 ml SV
11, 12: 31.9 ml SV, 0.1 ml E
13, 14: 31.7 ml SV, 0.3 ml E
15, 16: 31.2 ml SV, 0.8 ml E

0.50 g Purolite

17, 18: 29 ml SV, 2 ml B
19, 20: 31 ml SV, 1 ml B
21, 22: 31.4 ml SV, 0.6 ml B
23, 24: 31.7 ml SV, 0.3 ml B
25, 26: 32 ml SV
27, 28: 31.9 ml SV, 0.1 ml E
29, 30: 31.7 ml SV, 0.3 ml E
31, 32: 31.2 ml SV, 0.8 ml E

Serie C - 24h jämviktning av ferrihydrit, I = 0.01 M

Lösningar: CU = 0.3 mM $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$
A = 0.03 M NaNO_3
BL = 0.01 M HNO_3

EL = 0.01 M NaOH
HFO = 35 mM HFO-susp i 0.012 M NaNO₃

0.3 mM TOTFe, 10 µM U tillsatt:

- 1: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1 ml BL, 18.74 ml H₂O
- 2: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.1 ml BL, 19.64 ml H₂O
- 3: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 19.74 ml H₂O
- 4: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.04 ml EL, 19.7 ml H₂O
- 5: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.07 ml EL, 19.67 ml H₂O
- 6: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.1 ml EL, 19.64 ml H₂O
- 7: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.12 ml EL, 19.62 ml H₂O
- 8: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.14 ml EL, 19.6 ml H₂O
- 9: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.17 ml EL, 19.57 ml H₂O
- 10: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.2 ml EL, 19.54 ml H₂O
- 11: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.23 ml EL, 19.51 ml H₂O
- 12: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.26 ml EL, 19.51 ml H₂O

3 mM TOTFe, 10 µM U tillsatt:

- 13: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1 ml BL, 25.44 ml H₂O
- 14: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.2 ml EL, 26.24 ml H₂O
- 15: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.4 ml EL, 26.04 ml H₂O
- 16: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.5 ml EL, 25.94 ml H₂O
- 17: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.6 ml EL, 25.84 ml H₂O
- 18: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.7 ml EL, 25.74 ml H₂O
- 19: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.8 ml EL, 25.64 ml H₂O
- 20: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.9 ml EL, 25.54 ml H₂O
- 21: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1 ml EL, 25.44 ml H₂O
- 22: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.1 ml EL, 25.34 ml H₂O
- 23: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.2 ml EL, 25.24 ml H₂O
- 24: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.3 ml EL, 25.14 ml H₂O

Serie D - 24h jämviktning av HFO, I = 0.01 M, med karbonat

Lösningar: CU = 0.3 mM $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$
A = 0.03 M NaNO_3
BL = 0.01 M HNO_3
EL = 0.01 M NaOH
CC = 0.03 M NaHCO_3
HFO = 35 mM HFO-susp i 0.012 M NaNO_3

0.3 mM TOTFe, 10 μM U tillsatt:

- 1: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1 ml BL, 2 ml CC, 16.74 ml H_2O
- 2: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.1 ml BL, 2 ml CC, 17.64 ml H_2O
- 3: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 2 ml CC, 17.74 ml H_2O
- 4: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.04 ml EL, 2 ml CC, 17.7 ml H_2O
- 5: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.07 ml EL, 2 ml CC, 17.67 ml H_2O
- 6: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.1 ml EL, 2 ml CC, 17.64 ml H_2O
- 7: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.12 ml EL, 2 ml CC, 17.62 ml H_2O
- 8: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.14 ml EL, 2 ml CC, 17.6 ml H_2O
- 9: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.17 ml EL, 2 ml CC, 17.57 ml H_2O
- 10: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.2 ml EL, 2 ml CC, 17.54 ml H_2O
- 11: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.23 ml EL, 2 ml CC, 17.51 ml H_2O
- 12: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.26 ml EL, 2 ml CC, 17.51 ml H_2O

3 mM TOTFe, 10 μM U tillsatt:

- 13: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1 ml BL, 2 ml CC, 23.44 ml H_2O
- 14: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.2 ml EL, 2 ml CC, 24.24 ml H_2O
- 15: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.4 ml EL, 2 ml CC, 24.04 ml H_2O
- 16: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.5 ml EL, 2 ml CC, 23.94 ml H_2O
- 17: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.6 ml EL, 2 ml CC, 23.84 ml H_2O
- 18: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.7 ml EL, 2 ml CC, 23.74 ml H_2O
- 19: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.8 ml EL, 2 ml CC, 23.64 ml H_2O
- 20: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.9 ml EL, 2 ml CC, 23.54 ml H_2O
- 21: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1 ml EL, 2 ml CC, 23.44 ml H_2O
- 22: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.1 ml EL, 2 ml CC, 23.34 ml H_2O
- 23: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.2 ml EL, 2 ml CC, 23.24 ml H_2O
- 24: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.3 ml EL, 2 ml CC, 23.14 ml H_2O

Serie E – Kompletterande serie samt 24h jämviktning av HFO, I = 0.01 M, med sulfat

Lösningar: CU = 0.3 mM UO₂(NO₃)₂
A = 0.03 M NaNO₃
BL = 0.01 M HNO₃
EL = 0.01 M NaOH
CC = 0.03 M NaHCO₃
HFO = 35 mM HFO-susp i 0.012 M NaNO₃
CS = 0,03 M Na₂SO₄.

0.3 mM TOTFe, 10 μM U tillsatt:

- 1: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.26ml EL, 19.38 H₂O
- 2: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.29ml , 19.35 ml H₂O
- 3: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.32 ml, 19.32 ml H₂O

0.3 mM TOTFe, 10 μM U, 2mM CO₃ tillsatt:

- 4: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 2.00 ml BL, 2 ml CC, 15.74 ml H₂O
- 5: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1.6 ml BL, 2 ml CC, 16.14 ml H₂O
- 6: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1.3 ml BL, 2 ml CC, 16.44 ml H₂O
- 7: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1 ml BL, 2 ml CC, 16.74 ml H₂O
- 8: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.5 ml BL, 2 ml CC, 17.24 ml H₂O
- 9: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 2 ml CC, 17.74 ml H₂O
- 10: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.2 ml EL, 2 ml CC, 17.54 ml H₂O
- 11: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.4 ml EL, 2 ml CC, 17.14 ml H₂O
- 12: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.6 ml EL, 2 ml CC, 17.51 ml H₂O
- 13: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1.0 ml EL, 2 ml CC, 16.74 ml H₂O

3 mM TOTFe, 10 μM U, 2mM CO₃ tillsatt:

- 14: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 2 ml BL, 2 ml CC, 22.44 ml H₂O
- 15: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.6 ml BL, 2 ml CC, 22.84 ml H₂O
- 16: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.3 ml BL, 2 ml CC, 23.14 ml H₂O
- 17: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1 ml BL, 2 ml CC, 23.44 ml H₂O
- 18: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 2 ml CC, 22.44 ml H₂O
- 19: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 0.5 ml EL, 2 ml CC, 23.94 ml H₂O
- 20: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1 ml EL, 2 ml CC, 23.44 ml H₂O
- 21: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 1.5 ml EL, 2 ml CC, 22.94 ml H₂O
- 22: 2.56 ml HFO, 1 ml CU, 2 ml EL, 2 ml CC, 22.44 ml H₂O

0.3 mM TOTFe, 10 μM U, 2mM SO₄ tillsatt:

- 23: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 2.00 ml BL, 2 ml CS, 15.74 ml H₂O
- 24: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1.6 ml BL, 2 ml CS, 16.14 ml H₂O
- 25: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1.3 ml BL, 2 ml CS, 16.44 ml H₂O
- 26: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1 ml BL, 2 ml CS, 16.74 ml H₂O
- 27: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.5 ml BL, 2 ml CS, 17.24 ml H₂O
- 28: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 2 ml CS, 17.74 ml H₂O
- 29: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.2 ml EL, 2 ml CS, 17.54 ml H₂O
- 30: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.4 ml EL, 2 ml CS, 17.34 ml H₂O
- 31: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 0.6 ml EL, 2 ml CS, 17.14 ml H₂O
- 32: 0.255 ml HFO, 9 ml A, 1 ml CU, 1.0 ml EL, 2 ml CS, 16.74 ml H₂O

Bilaga 2. Analysresultat för skakförsök Serie A-E

Serie A- 24h jämviktning av IOCO och Purolite med Ärlavatten

Prov	pH	Alkalinitet mekv/l	TOC mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
<i>1,00 g IOCO</i>									
A1	6,32	0,6	2,29	3,22	0	3430	10860	1727	23520
A2	6,38	0,6	2,24	2,97	0	3571	12330	1940	27490
A3	6,71	1,0	2,86	4,16	0	4284	12840	2140	29240
A4	6,69	1,0	2,77	4,86	0	3355	10880	2156	29390
A5	7,01	1,2	3,87	4,86	0	3581	11740	2098	26730
A6	6,98	1,2	3,17	5,76	0	6305	13250	2189	30210
A7	7,4	1,5	3,62	6,96	0	4769	11820	2278	28950
A8	7,42	1,7	3,58	6,77	0	4817	12300	2365	30130
A9	7,58	1,6	3,63	7,39	0	7615	10870	2287	27560
A10	7,55	1,2	3,59	6,89	0	8075	11800	2276	26720
A11	7,91	1,5	3,67	7,59	0	14950	10440	2041	23830
A12	7,91	1,5	3,72	7,52	0	16210	10700	2261	24310
A13	8,69	1,6	4,05	8,1	0	29080	8141	2069	17500
A14	8,62	1,7	3,98	7,95	0	29550	7787	2115	17410
A15	9,27	1,5	4,13	8,65	0	48440	4820	2095	9611
A16	9,32	1,8	3,38	8,68	0	48570	4864	2042	7870
<i>0,50 g Purolite</i>									
A17	5,22		6,75	0	0	3850	5802	1655	30510
A18	5,2		6,51	0	0,88	5175	6231	1784	32830
A19	5,84	0,3	6,86	0	0,35	3750	6032	1773	30850
A20	5,85	0,3	6,68	0	0	4880	6314	1854	33050
A21	6,29	0,4	6,68	0	0	5427	6370	1933	33820
A22	5,91	0,3	6,53	0	0,3	4400	5441	1889	32400
A23	6,98	0,5	6,53	0	0	4653	5835	1780	32030
A24	6,96	0,4	7,16	0	0	5176	6448	1994	34810
A25	7,22	0,4	6,73	0	0	8871	6325	2577	34650
A26	7,47	0,4	6,8	0	0	10110	6552	1905	33860
A27	7,66	0,4	7,36	0	0	16330	6613	2005	35390
A28	7,8	0,5	6,77	0	0	16920	6216	1927	34580
A29	8,7	0,3	7,13	0	0	32990	6507	1857	33040
A30	8,65	0,3	6,83	0	0	34200	6272	2013	36150
A31	8,23	0,3	7	0	0	24700	7197	2007	34850
A32	9,91	0,3	7,19	0	0	44650	5990	1629	30160

Serie B- 24h jämviktning av IOCO och Purolite med Stripavatten

Provnr.	pH	Alkalinitet mekv/l	TOC mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
<i>1,00 g IOCO</i>									
B1	4,4	0,0	2,12	0	1,3	5184	21470	4080	47040
B2	4,72	0,0	1,9	0	0,5	5026	17330	4306	47630
B3	6,3	0,9	2,92	1,15	0,0	4193	11470	4206	42960
B4	6,18	0,8	12,93	0,96	0,0	4817	12480	3953	45050
B5	6,36	1,0	3,74	1,22	0,0	4299	11020	3729	41950
B6	6,55	1,4	4,02	2,28	0,0	3958	10580	3998	44520
B7	6,76	1,7	4,22	1,92	0,3	6803	12540	4558	47200
B8	6,86	1,8	3,44	2,45	0,7	5554	13010	4732	47810
B9	7,09	2,1	4,54	2,58	0,6	6837	11230	4571	46330
B10	7,07	2,3	4,34	2,6	0,8	8294	11740	4582	46690
B11	7,3	2,3	4,53	3,02	0,6	10330	10790	4544	44640
B12	7,2	2,1	4,17	2,62	0,0	10460	11410	4843	45390
B13	7,6	2,4	4,51	3,33	1,2	16520	10320	4701	43090
B14	7,53	2,6	4,73	3,22	0,6	16750	10620	4709	42840
B15	8,31	2,4	5,2	3,72	2,7	33530	8618	4395	32920
B16	8,33	2,4	5,17	3,76	2,7	34870	8006	4540	33860
<i>0,50 g Purolite</i>									
B17	3,42	0,0	8,22	0	346,2	5675	7083	4059	46880
B18	3,43	0,0	7,67	0	377,0	4472	6794	3753	46150
B19	5,85	0,3	6,96	0	0,0	4728	5972	3936	46650
B20	5,85	0,3	6,83	0	0,0	4399	6830	3830	47420
B21	6,22	0,5	6,79	0	0,0	3499	5925	3688	44980
B22	6,25	0,5	6,56	0	0,0	4755	6766	3760	47070
B23	6,51	0,6	6,95	0	0,3	4568	6632	3819	47650
B24	6,53	0,6	6,74	0	0,1	4887	7390	3701	49280
B25	6,94	0,6	7,1	0	0,0	4843	6934	3831	46970
B26	7	0,8	6,81	0	0,0	4132	6336	3925	49770
B27	7,25	0,8	7,07	0	0,0	7744	6346	3789	46460
B28	7,25	1,0	6,73	0,46	0,0	8904	6737	3794	47810
B29	7,73	0,8	7,25	0	0,0	18030	6882	3841	47530
B30	7,75	0,8	6,88	0	0,0	18510	6733	3920	48670
B31	8,3	0,7	7,39	0	0,0	34070	6999	3843	48000
B32	8,24	0,7	7,7	0	0,0	23170	5463	3344	42040

Serie C- 24h jämviktning av ferrihydrit

Provn	pH	Alkalinitet mekv/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
<i>0.3 mM TotFe, 10 uM U tillsatt:</i>							
C1	3,51		1517	162200	105	174	0
C2	4,38		1376	186800	0	0	0
C3	4,7		919,5	206800	0	0	0
C4	4,87		525,1	204100	0	0	147
C5	5,06		320,3	218100	0	0	0
C6	5,37		95,6	200600	0	0	0
C7	5,37		48,4	210000	0	0	0
C8	5,62		3,2	200800	0	0	0
C9	6,43	0,1	0,5	218400	0	0	0
C10	6,66	0,1	1,4	197600	0	0	0
C11	7,13	0,1	1,3	195400	0	0	0
C12	7,8	0,0	5,0	220600	0	0	0
F1	8,94	0,5	11,0	238600	0	0	0
F2	9,26	0,1	16,6	212300	0	0	133
F3	9,26	0,1	16,4	-	0	0	0
<i>3 mM TotFe, 10 uM U tillsatt:</i>							
C13	3,51		1434	188100	0	153	0
C14	4,53		124,4	199800	0	159	0
C15	4,97		2,4	189700	0	173	0
C16	5,26		2,3	198700	0	173	0
C17	5,51		3,6	200700	0	180	0
C18	5,8		1,2	202000	0	184	166
C19	5,71		1,4	205700	0	171	0
C20	6,09	0,1	1,5	209500	0	183	0
C21	6,3	0,2	1,8	203400	0	175	0
C22	5,4	0,1	1,2	216100	0	185	0
C23	9,1	0,1	1,1	204200	0	167	0
C24	9,31		2,3	216900	0	270	439

Serie D- 24h jämviktning av ferrihydrit med karbonat

Prov	pH	Alkalinitet mekv/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
<i>0.3 mM TotFe, 10 uM, 2 mM karbonat tillsatt:</i>							
F4	6,89	1,4	233,0	276900	0	0	0
F5	7,00	1,5	828,7	285000	0	0	0
F6	7,07	1,5	835,4	288000	0	0	0
F7	7,22	1,8	264,0	240600	0	0	0
D1	7,23	1,7	275,5	187100	0	0	0
F8	7,47	1,8	377,9	288300	0	0	0
D2	7,77	4,0	918,4	196700	0	0	0
D3	7,97	2,1	813,4	214400	0	0	0
F9	7,99	2,2	669,9	303900	0	0	0
D4	8,14	2,1	983,4	216700	0	0	0
D5	8,15	2,1	703,3	-----	0	0	131
D6	8,21	2,1	1181	230900	0	0	0
D7	8,27	2,1	839,8	223800	0	0	0
D8	8,27	2,2	898,5	238600	0	0	0
D9	8,21	2,0	1641	232400	0	0	0
D10	8,41	2,1	1236	248500	0	0	0
F10	8,40	2,2	938,9	262700	0	0	0
D11	8,48	2,3	1062	242200	0	0	0
D12	8,56	2,1	1072	-----	0	0	0
F11	8,78	1,6	1177	242300	0	0	116
F12	9,01	2,6	1398	235900	0	0	0
F13	9,45	2,4	2093	-----	0	0	0
<i>3 mM TotFe, 10 uM, 2 mM karbonat tillsatt:</i>							
F14	6,72	1,0	3,8	214900	0	0	0
F15	6,95	1,5	4,6	255300	0	0	0
F16	7,09	1,5	4,2	244800	0	0	0
F17	6,90	1,2	4,2	254800	0	0	0
D13	6,99	1,3	5,33	163300	0	99	0
F18	7,34	1,6	4,7	265300	0	0	0
D14	7,65	1,8	7,2	260800	0	209	0
D15	7,68	1,8	9,51	189700	0	104	0
D16	7,72	1,8	10,43	185700	0	106	0
F19	7,68	1,7	7,3	264200	0	0	0
D17	7,98	1,8	25,97	188700	0	110	0
D18	7,99	1,9	22,62	202400	0	127	0
D19	8,05	1,9	32,77	214800	0	147	0
D20	8,19	1,9	42,08	214300	0	146	0
D21	8,4	2,1	153	215000	0	141	0
F20	8,19	2,1	22,3	277900	0	0	0
D22	8,45	2,0	98,59	257600	0	208	0
D23	8,8	2,0	236	227200	0	147	0
D24	9,02	2,1	374,7	237500	0	152	0
F21	8,82	2,1	94,4	180200	0	0	0
F22	9,28	2,3	257,4	197200	0	0	0

Serie E- 24h jämviktning av ferrihydrit med sulfat

Prov	pH	Alkalinitet mekv/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
<i>0.3 mM TotFe, 10 uM U, tillsatt 2 mM SO₄</i>								
F23	3,28	-	66,8	2121	-----	0	0	109
F24	3,39	-	64,4	1817	260500	0	0	155
F25	3,47	-	64,9	1876	221600	0	0	0
F26	3,60	-	65,6	2027	198600	0	0	0
F27	3,92	-	65,8	1990	220800	0	0	0
F28	5,37	-	65,8	734,3	284700	0	0	115
F29	7,07	0,2	66,7	12,6	287200	0	0	0
F30	9,69	0,2	66,6	35,2	283900	0	0	0
F31	10,06	0,3	66,4	67,3	207800	0	0	0
F32	10,41	0,4	66,6	87,6	255600	0	0	0

Bilaga 3. Analys resultat från kolonnförsök med jonbytarmassan och IOCO och råvattnet.

Purolite 1									
Datum	pH	Alkalini -tet	TOC mg/l	SO ₄ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
2006-11-27	7,9	110	1,33	9,28	7,68	8990	5923	1995	33040
2006-11-29	7,9	110	1,26	9,09	5,35	7729	6310	2036	32950
2006-12-01	7,9	110	1,23	8,96	7,03	5369	5702	1704	28940
2006-12-04	7,9	110	1,16	9,12	7,25	4745	5548	1674	30900
2006-12-06	8	110	1,34	8,84	6,65	4489	5181	1743	29720
2006-12-08	8	110	1,41	8,76	7,22	6129	6556	1907	33410
2006-12-11	7,9	110	1,22	8,94	6,47	5909	5797	1836	33420
2006-12-13	8,1	110	1,39	9,01	4,67	5860	5454	1853	32600
2006-12-15	8,2	110	1,30	8,86	5,92	4103	5449	1657	30380
2006-12-19	7,9	110	1,18	8,95	8,55	4037	5104	1670	31320
2006-12-27	8	110	1,21	8,93	9,09	4100	5154	1578	30050
2007-01-02	8,1	110	1,38	8,99	9,68	4533	5661	1624	31920
2007-01-04	8	110	1,44	8,96	11,06	5427	5729	1767	33490
2007-01-10	8,3	110	1,51	8,56	10,72	5106	6123	1722	31410
2007-01-17	8,2	110	2,16	8,56	13,65	6947	6466	2188	36510
2007-01-26	8,3	110	2,00	8,88	14,61	5611	5695	1953	34730
2007-01-31	8	110	2,41	8,88	15,27	6305	5757	1902	90760
2007-02-07	8,1	110	1,91	8,58	14,84	5541	6213	2112	37070
2007-02-14	8,1	110	1,79	8,37	14,59	5605	5638	1965	32800

Purolite 2									
Datum	pH	Alkalini -tet	TOC mg/l	SO ₄ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
2006-11-27	8	110	1,33	9,24	15,13	7635	6474	2036	63130
2006-11-29	8	110	1,39	9,16	14,57	5241	6252	1845	32940
2006-12-01	8	100	1,33	9,03	13,98	3968	5236	1642	30060
2006-12-04	7,9	110	1,29	9,18	14,56	3673	5444	1730	29980
2006-12-06	8,1	110	1,35	8,80	13,42	3898	4516	1559	27190
2006-12-08	8	110	1,38	9,03	15,44	8243	5880	1724	31980
2006-12-11	8	110	1,39	8,97	13,49	6098	5758	1773	32210
2006-12-13	8	110	1,33	9,28	13,81	6270	6073	1850	33280
2006-12-15	8,1	110	1,62	9,43	14,3	4364	5259	1639	30980
2006-12-19	7,9	110	1,84	8,93	14,53	5227	5473	1597	29910
2006-12-27	7,9	110	1,23	9,38	15,99	4093	5741	1678	30730
2007-01-02	8	110	1,32	8,91	16,17	3983	5781	1671	29800
2007-01-04	8	110	1,32	8,91	16,17	3983	5781	1671	29800
2007-01-10	8,1	110	1,55	8,81	16,42	3721	5278	1569	28910
2007-01-17	8	110	1,95	8,86	17,93	5591	6312	2054	35540
2007-01-26	8,2	110	2,11	9,00	17,46	5390	5879	2051	37450
2007-01-31	8,1	110	2,12	9,06	17,04	7550	6166	2069	68020
2007-02-07	8,2	110	2,41	8,56	18,47	5673	6179	2105	35610
2007-02-14	8,1	110	2,20	8,42	16,8	5119	5685	2016	33490

IOCO 1									
Datum	pH	Alkalini tet	TOC mg/l	SO ₄ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
2006-11-27	7,7	87	1,15	3,69	7,36	5014	5159	1822	0
2006-11-29	7,8	94	1,10	4,79	6,98	6148	5041	1822	31750
2006-12-01	7,8	94	1,13	5,68	6,76	4024	4491	1589	27050
2006-12-04	7,9	110	1,17	6,13	15,78	5823	6556	2032	35360

2006-12-06	7,8	99	1,17	5,71	5,98	5707	5320	1769	46050
2006-12-08	7,8	110	1,09	6,11	6,75	4754	5916	1917	34010
2006-12-11	7,8	110	1,41	6,05	6,09	4679	5815	1751	32090
2006-12-13	8	110	1,32	6,05	7,31	4701	5442	1634	30450
2006-12-15	8	120	1,47	5,52	6,73	4490	5525	1651	32460
2006-12-19	7,9	110	1,82	6,31	6,41	4620	5559	1600	29930
2006-12-27	8	120	1,14	6,58	7,1	4730	5666	1638	30180
2007-01-02	8,1	120	1,07	6,66	6,49	4591	5338	1556	29550
2007-01-04	8,1	120	2,25	6,68	5,79	4544	5487	1661	31950
2007-01-10	8,2	120	1,46	6,61	5,74	4643	5683	1699	32010
2007-01-17	8,1	120	2,07	7,50	7,75	7493	6449	2150	43410
2007-01-26	8,2	110	2,06	8,35	8,72	5335	5909	1979	34980
2007-01-31	8,1	110	1,96	8,52	9	5632	4953	1974	33810
2007-02-07	8,1	110	1,91	8,20	8,91	4602	5575	2025	34760
2007-02-14	8,1	110	1,67	8,24	8,71	4884	5390	1928	33630

IOCO 2

Datum	pH	Alkalini tet	TOC mg/l	SO ₄ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
2006-11-27	7,9	100	1,25	6,65	11,16	6857	5362	1791	33210
2006-11-29	7,8	97	1,25	7,60	8,92	5790	6129	1852	40790
2006-12-01	7,9	110	1,22	7,81	10,89	6153	6188	1824	33320
2006-12-04	8	110	1,15	7,95	10,54	4207	5412	1549	29770
2006-12-06	8	100	1,32	7,56	10,06	4071	4798	1679	30430
2006-12-08	7,9	110	1,19	7,84	10,78	4041	5049	1563	28700
2006-12-11	8	110	1,34	7,80	10,03	4062	4961	1554	29000
2006-12-13	8	110	1,32	8,00	9,52	4858	5631	1837	33820
2006-12-15	8,2	110	1,79	7,73	9,47	4939	5570	1662	31710
2006-12-19	7,9	110	0,97	7,56	8,97	4893	5622	1586	32850
2006-12-27	8	110	1,22	7,83	8,85	4228	5567	1664	31370
2007-01-02	8,2	120	2,18	7,56	8,21	3802	4596	1465	29130
2007-01-04	8	120	2,35	7,82	7,84	5435	5196	1551	30620
2007-01-10	8,1	120	1,33	7,67	8,71	4016	4996	1599	30470
2007-01-17	8,1	110	2,11	8,16	10,09	4779	4994	1942	35880
2007-01-26	8,4	110	1,82	8,40	10,37	6062	5911	2152	35600
2007-01-31	8,1	110	2,21	8,46	9,67	5196	5730	1981	39390
2007-02-07	8,1	110	1,84	8,23	9,9	5570	5674	2018	35250
2007-02-14	8,1	110	1,94	8,20	11,07	5106	5809	1793	34520

Inprov

Datum	pH	Alkalini tet	TOC mg/l	SO ₄ mg/l	U ppb	Na ppb	Mg ppb	K ppb	Ca ppb
2006-11-27	8	110	1,31	9,10	20,2	5258	5651	1719	30540
2006-11-29	8	110	1,39	9,00	20,14	4227	4749	1483	28540
2006-12-01	7,9	120	1,24	9,01	22,38	4335	4900	1535	27600
2006-12-04	8,1	110	1,45	9,36	21,94	4268	5032	1583	29650
2006-12-06	8	110	1,52	8,78	19,35	6924	6210	1970	35300
2006-12-08	8	110	1,33	9,04	21,14	3998	4865	1536	28850
2006-12-11	8	110	1,47	8,96	19,61	5154	5779	1845	33550
2006-12-13	8	110	1,43	9,56	20,46	5776	5716	1866	33280
2006-12-15	8,2	120	2,45	9,56	21,55	4885	6044	1713	31980
2006-12-19	8	110	2,65	8,87	18,63	3966	5456	1636	30790
2006-12-27	8	110	1,40	9,31	20,28	4416	5874	1677	30860
2007-01-02	8,2	110	3,20	8,86	18,6	4227	5229	1549	28980
2007-01-04	8	110	2,40	9,33	18,29	4296	5769	1736	32170
2007-01-10	8,3	110	2,05	8,86	17,13	5214	5748	1720	32020
2007-01-17	8	99	2,34	7,04	13,81	4531	4769	1735	29200

2007-01-26	8,3	100	2,64	7,38	14,74	5134	5584	1845	31960
2007-01-31	8	110	2,19	9,35	19,07	5535	5767	2001	34130
2007-02-07	8,1	110	2,13	8,49	22,09	6791	6083	1837	35750
2007-02-14	8,1	110	1,82	8,41	18,65	5689	6321	2133	35840

Bilaga 4. Resultat från modellering i Visual Minteq

Serie C- jämviktning med ferrihydrit (0,3 mM och 3 mM). Tabellen nedan visar resultatet från modellsimuleringar i Visual Minteq med konstanter baserade på Waite et al (1994)

pH	0,3 mM TOTFe		3 mM TOTFe	
	Uran(VI) sorption (mol/l)	Uran(VI) sorption (%)	Uran(VI) sorption (mol/l)	Uran(VI) sorption (%)
3	8,4505E-09	0,084505	8,4285E-08	0,84285
3,1	1,4094E-08	0,14094	1,3986E-07	1,3986
3,2	2,3256E-08	0,23256	0,00000229	2,29
3,3	3,7778E-08	0,37778	3,6776E-07	3,6776
3,4	6,0023E-08	0,60023	5,751E-07	5,751
3,5	9,2582E-08	0,92582	8,6912E-07	8,6912
3,6	1,3771E-07	1,3771	1,2618E-06	12,618
3,7	1,9683E-07	1,9683	1,7552E-06	17,552
3,8	2,7077E-07	2,7077	2,3433E-06	23,433
3,9	3,6098E-07	3,6098	3,0161E-06	30,161
4	4,7165E-07	4,7165	3,7649E-06	37,649
4,1	6,1187E-07	6,1187	4,5812E-06	45,812
4,2	7,975E-07	7,975	5,4488E-06	54,488
4,3	1,0521E-06	10,521	6,3343E-06	63,343
4,4	1,4057E-06	14,057	7,1825E-06	71,825
4,5	1,8893E-06	18,893	7,9342E-06	79,342
4,6	0,000002524	25,24	8,5472E-06	85,472
4,7	0,000003308	33,08	9,0105E-06	90,105
4,8	4,2081E-06	42,081	9,3401E-06	93,401
4,9	5,1636E-06	51,636	9,5647E-06	95,647
5	6,1017E-06	61,017	9,7137E-06	97,137
5,1	0,000006958	69,58	9,8111E-06	98,111
5,2	7,6901E-06	76,901	9,8744E-06	98,744
5,3	8,2819E-06	82,819	9,9155E-06	99,155
5,4	8,7391E-06	87,391	9,9425E-06	99,425
5,5	9,0805E-06	90,805	9,9602E-06	99,602
5,6	9,3299E-06	93,299	9,9721E-06	99,721
5,7	9,5095E-06	95,095	9,9801E-06	99,801
5,8	9,6382E-06	96,382	9,9856E-06	99,856
5,9	9,7305E-06	97,305	9,9894E-06	99,894
6	9,7969E-06	97,969	9,9921E-06	99,921
6,1	0,000009845	98,45	0,000009994	99,94
6,2	9,8801E-06	98,801	9,9954E-06	99,954
6,3	0,000009906	99,06	9,9964E-06	99,964
6,4	9,9252E-06	99,252	9,9971E-06	99,971
6,5	9,9396E-06	99,396	9,9977E-06	99,977
6,6	9,9504E-06	99,504	9,9981E-06	99,981
6,7	9,9586E-06	99,586	9,9984E-06	99,984
6,8	9,9648E-06	99,648	9,9987E-06	99,987
6,9	9,9695E-06	99,695	9,9988E-06	99,988
7	0,000009973	99,73	0,000009999	99,99
7,1	9,9757E-06	99,757	9,9991E-06	99,991
7,2	9,9777E-06	99,777	9,9992E-06	99,992
7,3	9,9791E-06	99,791	9,9992E-06	99,992
7,4	0,00000998	99,8	9,9992E-06	99,992

7,5	9,9805E-06	99,805	9,9993E-06	99,993
7,6	9,9805E-06	99,805	9,9993E-06	99,993
7,7	9,9802E-06	99,802	9,9993E-06	99,993
7,8	9,9796E-06	99,796	9,9992E-06	99,992
7,9	9,9784E-06	99,784	9,9992E-06	99,992
8	9,9768E-06	99,768	9,9991E-06	99,991
8,1	9,9747E-06	99,747	0,000009999	99,99
8,2	9,9719E-06	99,719	9,9989E-06	99,989
8,3	9,9683E-06	99,683	9,9988E-06	99,988
8,4	9,9637E-06	99,637	9,9986E-06	99,986
8,5	0,000009958	99,58	9,9984E-06	99,984
8,6	9,9509E-06	99,509	9,9981E-06	99,981
8,7	0,000009942	99,42	9,9978E-06	99,978
8,8	0,000009931	99,31	9,9974E-06	99,974
8,9	9,9173E-06	99,173	9,9968E-06	99,968
9	9,9005E-06	99,005	9,9962E-06	99,962
9,1	9,8798E-06	98,798	9,9954E-06	99,954
9,2	9,8544E-06	98,544	9,9944E-06	99,944
9,3	9,8232E-06	98,232	9,9931E-06	99,931
9,4	9,7852E-06	97,852	9,9916E-06	99,916
9,5	9,7389E-06	97,389	9,9897E-06	99,897
9,6	9,6826E-06	96,826	9,9874E-06	99,874
9,7	9,6145E-06	96,145	9,9846E-06	99,846
9,8	9,5325E-06	95,325	9,9811E-06	99,811
9,9	9,4341E-06	94,341	9,9768E-06	99,768
10	9,3167E-06	93,167	9,9715E-06	99,715

Serie C- jämviktning med ferrihydrit (0,3 mM och 3 mM). Tabellen nedan visar resultatet från modellsimuleringar i Visual Minteq med de optimerade konstanterna för denna studie.

pH	0,3 mM TOTFe		3 mM TOTFe	
		Uran(VI) sorption (%)	Uran(VI) sorption (mol/l)	Uran(VI) sorption (%)
3	2,6165E-08	0,26165	2,5714E-07	2,5714
3,1	4,2514E-08	0,42514	4,1254E-07	4,1254
3,2	6,7487E-08	0,67487	6,4346E-07	6,4346
3,3	1,039E-07	1,039	9,6864E-07	9,6864
3,4	1,5423E-07	1,5423	1,3999E-06	13,999
3,5	2,2025E-07	2,2025	1,9391E-06	19,391
3,6	3,0366E-07	3,0366	2,5807E-06	25,807
3,7	4,0772E-07	4,0772	3,3163E-06	33,163
3,8	5,3978E-07	5,3978	4,1364E-06	41,364
3,9	7,1379E-07	7,1379	5,0263E-06	50,263
4	9,5223E-07	9,5223	5,9544E-06	59,544
4,1	1,2863E-06	12,863	6,8663E-06	68,663
4,2	1,7519E-06	17,519	7,6937E-06	76,937
4,3	2,3797E-06	23,797	8,3817E-06	83,817
4,4	3,1785E-06	31,785	8,9077E-06	89,077
4,5	4,1211E-06	41,211	0,000009283	92,83
4,6	5,1426E-06	51,426	9,5373E-06	95,373
4,7	6,1562E-06	61,562	0,000009704	97,04
4,8	0,00000708	70,8	9,8109E-06	98,109
4,9	7,8587E-06	78,587	9,8788E-06	98,788

5	8,4722E-06	84,722	9,9217E-06	99,217
5,1	8,9297E-06	89,297	0,000009949	99,49
5,2	9,2573E-06	92,573	9,9663E-06	99,663
5,3	9,4856E-06	94,856	9,9775E-06	99,775
5,4	9,6422E-06	96,422	9,9847E-06	99,847
5,5	9,7491E-06	97,491	9,9894E-06	99,894
5,6	0,000009822	98,22	9,9926E-06	99,926
5,7	9,8721E-06	98,721	9,9947E-06	99,947
5,8	9,9068E-06	99,068	9,9962E-06	99,962
5,9	9,9311E-06	99,311	9,9972E-06	99,972
6	9,9484E-06	99,484	9,9979E-06	99,979
6,1	9,9607E-06	99,607	9,9984E-06	99,984
6,2	9,9696E-06	99,696	9,9988E-06	99,988
6,3	9,9762E-06	99,762	0,000009999	99,99
6,4	9,9811E-06	99,811	9,9992E-06	99,992
6,5	9,9847E-06	99,847	9,9994E-06	99,994
6,6	9,9874E-06	99,874	9,9995E-06	99,995
6,7	9,9895E-06	99,895	9,9996E-06	99,996
6,8	0,000009991	99,91	9,9996E-06	99,996
6,9	9,9922E-06	99,922	9,9997E-06	99,997
7	9,9931E-06	99,931	9,9997E-06	99,997
7,1	9,9938E-06	99,938	9,9998E-06	99,998
7,2	9,9943E-06	99,943	9,9998E-06	99,998
7,3	9,9946E-06	99,946	9,9998E-06	99,998
7,4	9,9949E-06	99,949	9,9998E-06	99,998
7,5	0,000009995	99,95	9,9998E-06	99,998
7,6	0,000009995	99,95	9,9998E-06	99,998
7,7	9,9949E-06	99,949	9,9998E-06	99,998
7,8	9,9947E-06	99,947	9,9998E-06	99,998
7,9	9,9944E-06	99,944	9,9998E-06	99,998
8	0,000009994	99,94	9,9998E-06	99,998
8,1	9,9935E-06	99,935	9,9997E-06	99,997
8,2	9,9928E-06	99,928	9,9997E-06	99,997
8,3	9,9918E-06	99,918	9,9997E-06	99,997
8,4	9,9906E-06	99,906	9,9996E-06	99,996
8,5	9,9892E-06	99,892	9,9996E-06	99,996
8,6	9,9873E-06	99,873	9,9995E-06	99,995
8,7	0,000009985	99,85	9,9994E-06	99,994
8,8	9,9821E-06	99,821	9,9993E-06	99,993
8,9	9,9785E-06	99,785	9,9992E-06	99,992
9	9,9741E-06	99,741	0,000009999	99,99
9,1	9,9687E-06	99,687	9,9988E-06	99,988
9,2	9,9619E-06	99,619	9,9985E-06	99,985
9,3	9,9536E-06	99,536	9,9982E-06	99,982
9,4	9,9434E-06	99,434	9,9978E-06	99,978
9,5	9,9308E-06	99,308	9,9973E-06	99,973
9,6	9,9153E-06	99,153	9,9967E-06	99,967
9,7	9,8964E-06	98,964	9,9959E-06	99,959
9,8	9,8731E-06	98,731	0,000009995	99,95
9,9	9,8446E-06	98,446	9,9938E-06	99,938
10	9,8098E-06	98,098	9,9924E-06	99,924

Serie D- jämviktning med ferrihydrit med karbonat (0,3 mM och 3 mM). Tabellen nedan visar resultatet från modellsimuleringar i Visual Minteq med konstanter baserade på Waite et al (1994)

pH	0,3 mM TOTFe		3 mM TOTFe	
	Uran(VI) sorption (mol/l)	Uran(VI) sorption (%)	Uran(VI) sorption (mol/l)	Uran(VI) sorption (%)
6	3,5301E-06	35,301	9,5545E-06	95,545
6,1	3,5581E-06	35,581	9,5803E-06	95,803
6,2	3,5866E-06	35,866	9,6032E-06	96,032
6,3	3,6178E-06	36,178	9,6228E-06	96,228
6,4	3,6527E-06	36,527	9,6389E-06	96,389
6,5	3,6915E-06	36,915	9,6512E-06	96,512
6,6	3,7335E-06	37,335	9,6598E-06	96,598
6,7	3,7767E-06	37,767	9,6645E-06	96,645
6,8	3,8182E-06	38,182	9,6651E-06	96,651
6,9	3,8539E-06	38,539	9,6616E-06	96,616
7	0,000003879	38,79	9,6535E-06	96,535
7,1	3,8882E-06	38,882	9,6405E-06	96,405
7,2	3,8763E-06	38,763	0,000009622	96,22
7,3	3,8389E-06	38,389	9,5973E-06	95,973
7,4	0,000003773	37,73	9,5656E-06	95,656
7,5	3,6773E-06	36,773	9,5261E-06	95,261
7,6	3,5529E-06	35,529	9,4775E-06	94,775
7,7	3,4028E-06	34,028	9,4189E-06	94,189
7,8	3,2314E-06	32,314	9,3488E-06	93,488
7,9	3,0445E-06	30,445	9,2658E-06	92,658
8	2,8479E-06	28,479	9,1687E-06	91,687
8,1	2,6472E-06	26,472	9,0559E-06	90,559
8,2	2,4474E-06	24,474	8,9261E-06	89,261
8,3	2,2527E-06	22,527	8,7793E-06	87,793
8,4	2,0665E-06	20,665	8,6139E-06	86,139
8,5	1,8911E-06	18,911	8,4305E-06	84,305
8,6	1,7285E-06	17,285	8,2299E-06	82,299
8,7	1,5797E-06	15,797	0,000008014	80,14
8,8	1,4451E-06	14,451	7,7852E-06	77,852
8,9	1,3249E-06	13,249	7,5472E-06	75,472
9	1,2186E-06	12,186	7,3041E-06	73,041
9,1	1,1257E-06	11,257	7,0604E-06	70,604
9,2	1,0453E-06	10,453	6,8203E-06	68,203
9,3	9,7656E-07	9,7656	6,5898E-06	65,898
9,4	9,1866E-07	9,1866	6,3733E-06	63,733
9,5	8,7085E-07	8,7085	6,1759E-06	61,759
9,6	8,3265E-07	8,3265	6,0027E-06	60,027
9,7	8,0385E-07	8,0385	0,000005859	58,59
9,8	7,8459E-07	7,8459	5,7504E-06	57,504
9,9	7,7546E-07	7,7546	5,6832E-06	56,832
10	7,7759E-07	7,7759	0,000005664	56,64

Serie D- jämviktning med ferrihydrit med karbonat (0,3 mM och 3 mM). Tabellen nedan visar resultatet från modellsimuleringar i Visual Minteq med de optimerade konstanterna för den här studien.

pH	0,3 mM TOTFe		3 mM TOTFe	
	Uran(VI) sorption (mol/l)	Uran(VI) sorption (%)	Uran(VI) sorption (mol/l)	Uran(VI) sorption (%)
6	8,0502E-06	80,502	9,9354E-06	99,354
6,1	8,1084E-06	81,084	9,9403E-06	99,403
6,2	0,00000816	81,6	9,9444E-06	99,444
6,3	8,2052E-06	82,052	9,9479E-06	99,479
6,4	8,2434E-06	82,434	9,9507E-06	99,507
6,5	8,2741E-06	82,741	9,9527E-06	99,527
6,6	8,2966E-06	82,966	9,9541E-06	99,541
6,7	8,3096E-06	83,096	9,9547E-06	99,547
6,8	8,3118E-06	83,118	9,9547E-06	99,547
6,9	8,3012E-06	83,012	9,9541E-06	99,541
7	8,2759E-06	82,759	9,9527E-06	99,527
7,1	8,2337E-06	82,337	9,9505E-06	99,505
7,2	8,1725E-06	81,725	9,9475E-06	99,475
7,3	8,0904E-06	80,904	9,9436E-06	99,436
7,4	7,9857E-06	79,857	9,9385E-06	99,385
7,5	7,8579E-06	78,579	9,9321E-06	99,321
7,6	7,7055E-06	77,055	9,9241E-06	99,241
7,7	7,5284E-06	75,284	9,9143E-06	99,143
7,8	7,3269E-06	73,269	9,9022E-06	99,022
7,9	7,1017E-06	71,017	9,8875E-06	98,875
8	6,8543E-06	68,543	9,8694E-06	98,694
8,1	6,5863E-06	65,863	9,8475E-06	98,475
8,2	6,3003E-06	63,003	9,8207E-06	98,207
8,3	5,9989E-06	59,989	9,7881E-06	97,881
8,4	5,6855E-06	56,855	9,7485E-06	97,485
8,5	5,3634E-06	53,634	9,7006E-06	97,006
8,6	5,0366E-06	50,366	9,6427E-06	96,427
8,7	0,000004709	47,09	9,5732E-06	95,732
8,8	4,3849E-06	43,849	9,4905E-06	94,905
8,9	4,0683E-06	40,683	9,3931E-06	93,931
9	3,7634E-06	37,634	9,2799E-06	92,799
9,1	0,000003474	34,74	9,1507E-06	91,507
9,2	3,2039E-06	32,039	9,0063E-06	90,063
9,3	2,9564E-06	29,564	8,8495E-06	88,495
9,4	2,7343E-06	27,343	8,6846E-06	86,846
9,5	2,5402E-06	25,402	8,5182E-06	85,182
9,6	2,3761E-06	23,761	8,3588E-06	83,588
9,7	2,2439E-06	22,439	8,2163E-06	82,163
9,8	2,1453E-06	21,453	8,1024E-06	81,024
9,9	2,0824E-06	20,824	8,0257E-06	80,257
10	2,0577E-06	20,577	7,9954E-06	79,954

Tabellen visar resultatet från modellsimuleringar i Visual Minteq med de optimerade konstanterna för den här studien med data från kolonnförsöket med IOCO.

pH	Totalt löst uran(VI) (mol/l)	Sorberat uran(VI) (mol/l)	Sorberat uran(VI) (%)
8	8,4874E-08	1,1308E-06	93,01835854
8	8,4622E-08	1,2036E-06	93,43110116
7,9	9,4034E-08	1,1581E-06	92,4901009
8,1	9,2185E-08	1,1771E-06	92,73724971
8	8,1303E-08	9,3644E-07	92,011441
8	8,8824E-08	0,00000124	93,31559334
8	8,2395E-08	9,9777E-07	92,37199872
8	8,5966E-08	1,0451E-06	92,39955935
8,2	9,0546E-08	8,0609E-07	89,90158771
8	7,8277E-08	1,0438E-06	93,02391904
8	8,521E-08	1,1227E-06	92,94566648
8,2	7,8151E-08	9,8725E-07	92,66463989
8	7,6849E-08	9,8272E-07	92,7471453
8,3	7,1975E-08	7,8094E-07	91,56129274
8	5,8025E-08	0,000001117	95,0618072
8,3	6,1933E-08	8,8063E-07	93,42929863
8	8,0126E-08	9,5684E-07	92,27303499
8,1	9,2815E-08	9,7601E-07	91,31616495
8,1	7,8361E-08	8,3778E-07	91,4466223