

文章编号:0253-9950(2009)02-0072-07

Am(Ⅲ)在 Al₂O₃ 和石英上的吸附行为

章英杰¹,冯孝贵¹,梁俊福¹,陈靖^{1,*},苏锐²,王驹²

1. 清华大学核能与新能源技术研究院,北京 102201;

2. 核工业北京地质研究院,北京 100029

摘要:研究了 Am(Ⅲ)在 Al₂O₃ 和石英上的吸附行为,探讨了水相 pH 值、总 CO₃²⁻ 和 SO₄²⁻ 浓度(1.0×10⁻³ ~ 2.0×10⁻¹ mol/L)、腐殖酸和 Am(Ⅲ)浓度等因素对吸附的影响,并对可能的吸附机理进行了分析,同时以 1.0 mol/L HCl 做为解吸剂,对吸附平衡后的固相进行了解吸实验。结果表明,随着水相 pH 值的升高,Am(Ⅲ)在 Al₂O₃ 和石英上的吸附分配比增大,水相的化学组分及其相应浓度增大对 Am(Ⅲ)在石英上的吸附影响较明显;Am(Ⅲ)在 Al₂O₃ 和石英上以界面配合物的形式吸附,且可用 Freundlich 吸附等温式描述;水相中腐殖酸浓度增大,Am(Ⅲ)在 Al₂O₃ 和石英上的吸附降低。

关键词: Am(Ⅲ); 吸附; 解吸; Al₂O₃; 石英

中图分类号: TL942.1 **文献标志码:** A

Adsorption Behavior of Am(Ⅲ) on Al₂O₃ and Quartz

ZHANG Ying-jie¹, FENG Xiao-gui¹, LIANG Jun-fu¹,
CHEN Jing^{1,*}, SU Rui², WANG Ju²

1. Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 102201, China;

2. Beijing Research Institute of Uranium Geology, Beijing 100029, China

Abstract: The adsorption behavior of Am(Ⅲ) on Al₂O₃ and quartz were studied in BS03 well groundwater(sampled from drilling well BS03 at Beishan(BS) area—a potential site for China's high level radioactive waste repository) by a batch technique at (25±1) °C. The influences of pH, sulphate ion, total carbonate ion, humic acid, and concentration of the Am(Ⅲ) on the adsorption behavior were also studied, and the possible adsorption mechanisms were discussed. After adsorption equilibrium of Am(Ⅲ) on Al₂O₃ and quartz, the desorption behavior of Am(Ⅲ) from Al₂O₃ and quartz were studied with 1.0 mol/L HCl. Experimental results show that the adsorption distribution ratio of Am(Ⅲ) on Al₂O₃ and quartz increases with pH value of the aqueous phase increasing. The chemical composition of the groundwater is the main factor to influence the species of Am(Ⅲ) and adsorption. The adsorption mechanism of Am(Ⅲ) on Al₂O₃ and quartz are surface complexation. The adsorption isotherm of Am(Ⅲ) on Al₂O₃ and quartz can be described by the Freundlich's equation.

Key words: Am(Ⅲ); adsorption; desorption; Al₂O₃; quartz

收稿日期:2007-11-30;修订日期:2008-03-04

作者简介:章英杰(1966—),男,陕西洋县人,博士后,环境化学专业

* 通讯联系人:陈靖, jingxia@tsinghua.edu.cn

高放废物是人们利用核能过程中产生的主要核废物,它含有放射性活度大、比活度高、半衰期长、毒性大的核素,如何安全处置高放废物是目前所有核国家所关注的重点问题之一。目前被人们普遍接受的可行方案是深地质处置,即把高放废物处置在距离地表深约 500~1 000 m 的地质稳定体中,使它永久与人类的生存环境隔离^[1-2]。缓冲/回填材料是置于高放废物处置库围岩与高放废物包装体之间的材料,工程上对高放废物处置库中所用的缓冲/回填材料需满足的要求为:长期稳定性、良好的力学性能和导热性能、高膨胀性、低透水性、核素迁移的迟滞性、耐辐射性和经济性。而以蒙脱石为主要成分的膨润土,因其具有低透水性、高膨胀性、且来源于天然等性质,最引人注目^[3]。为提高膨润土的力学性能、对热的导体功能以及增强对核素迁移的迟滞性,需添加部分无机材料,如石英砂、Al₂O₃ 等矿物,使以膨润土为主要组分的混合缓冲/回填材料满足处置工程上的需求。为此本工作主要以甘肃北山地区地下深部地下水为水相,拟研究 Am(III)在 Al₂O₃ 和天然石英上的吸附行为,推测可能的吸附机理,以为国家高放废物地质处置混合缓冲/回填材料的配方提供技术参数。

1 实验部分

1.1 试剂和仪器

本工作所用地下水化学组成及预处理方法和仪器,同文献^[4]。Al₂O₃,温州市东升化工试剂厂,预处理方法同文献^[4]的 Fe₂O₃,比表面积 130.64 m²/g,粒径 93.9 μm;天然石英,北京中彰国际有限公司,预处理方法同 Al₂O₃,比表面积 1.12 m²/g,粒径 22.6 μm;腐殖酸和²⁴¹Am(III)标准溶液详见文献^[4]。其它试剂均为市售分析纯。

QUANTULUS1220 液闪谱仪及专用闪烁液,美国 PE 公司;PHS-3C 型 pH 计,上海精密科学仪器公司;CR21G II 型高速离心机,日本日立公司;AHA-B 水浴恒温振荡器,江苏常州国华电器有限公司。

1.2 实验方法

1.2.1 吸附实验 称取 0.2 g Al₂O₃ 粉末于 10 mL 聚丙烯离心管中,加入 6.0 mL BS03 井地下水,然后加盖,放入振荡器中振荡 24 h,取出离心

管,并向管中加入 10 μL 已处理的²⁴¹Am 溶液(离心管中²⁴¹Am 浓度为 6.0 × 10⁻¹⁰ mol/L),用 NaOH 或 HCl 调 pH 至指定值,密封离心管管口,再次放入振荡器中振荡一定时间后取出,经 18 000 r/min 离心 1 h,取离心管中上层清液 3.0 mL 于液闪谱仪专用测量瓶中,加入闪烁液 5 mL,避光保存 24 h 后放入液闪谱仪中测量 α 计数,离心管中剩余溶液供测量 pH 值。对于 Am 在石英上的吸附实验,方法同 Al₂O₃。所不同的是,每次做 2 组样品,第 1 组样品处理方法同上。第 2 组样品做管壁吸附实验,即样品不经过高速离心分离,而是先测量 pH 值,然后摇匀,弃去,分别用与石英吸附后相同 pH 值的水相 3 mL,洗涤离心管 2 次,弃去水相,最后,往试管中加入 1.0 mol/L HCl 溶液 6.0 mL,手摇 1 min 对管壁可解吸完全,取 3.0 mL 解吸液于液闪谱仪专用测量瓶中,加入闪烁液 5 mL,避光保存 24 h 后放入液闪谱仪中测量 α 放射性。

1.2.2 解吸实验 将经过吸附实验后离心管中的液相全部移出,余固相,再在离心管中加入 1.0 mol/L HCl 溶液 6.0 mL,用玻璃棒快速将沉积在试管底部的固体搅匀,密封离心管管口,放入振荡器中振荡,振荡一定时间后取出,经 18 000 r/min 离心 1 h,取上层清液 3.0 mL 于液闪谱仪专用测量瓶中,加入闪烁液 5 mL,避光保存 24 h 后放入液闪谱仪中测量 α 放射性。

1.2.3 数据处理 按下式计算吸附分配比 K_d :

$$K_d = \frac{(c_0 - c_t) \times V}{c_t \times m} \quad (1)$$

$$P'_t = \frac{c'_t \times V'}{(c_0 - c_e) \times V} \times 100\% \quad (2)$$

式中, K_d 为吸附分配比, mL/g; c_0 , c_t 为吸附前后 Am 的浓度, mol/L; V 为水相体积, mL; m 为固相质量, g; P'_t , t 时刻解吸率, %; c_e , c'_t 为吸附平衡后水相及 t 时刻解吸液中 Am 的浓度, mol/L; V' 为解吸液体积, mL。对于 Am 在石英上的吸附分配比进行管壁吸附校正,即式(1)中 $c_t = c_{t1} + c_{t2}$, 其中 c_{t1} 为吸附后水相中 Am 的浓度, mol/L; c_{t2} 为吸附后管壁解吸液中 Am 的浓度, mol/L; 同理对于 Am 在石英上的解吸率也进行管壁吸附校正,即式(2)中 $c'_t = c'_{t1} - c_{e,2}$, $c_{e,2}$, c'_{t1} 为吸附平衡后管壁解吸液及 t 时刻解吸液中 Am 的浓度, mol/L。

2 结果与讨论

2.1 接触时间对 Am(III) 在 Al₂O₃ 和石英上吸附的影响

以 BS03 井地下水为水相,考察了吸附时间对 Am(III) 在 Al₂O₃ 和石英上的吸附分配比影响,结果示于图 1。从图 1 中数据比较可知,Al₂O₃ 和石英对 Am(III) 的吸附约在 1 000 min 达到平衡。为使吸附充分,在实验过程中,选择吸附时间为 48 h。同时,从图 1 数据可比较出 Am(III) 在 Al₂O₃ 上的吸附分配比大于 Am(III) 在石英上的吸附,即 $K_d(\text{Al}_2\text{O}_3) > K_d(\text{石英})$ 。

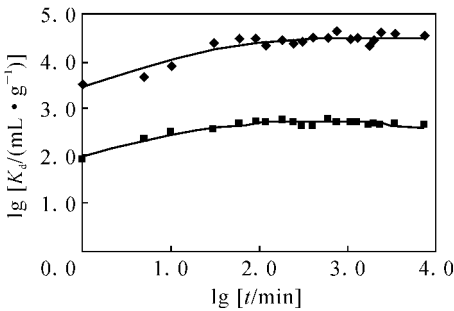


图 1 接触时间对 Am(III) 在 Al₂O₃ 和石英上的吸附影响

Fig. 1 Effect of the contact time on the adsorption of Am(III) on Al₂O₃ and quartz

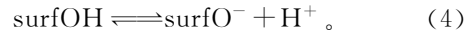
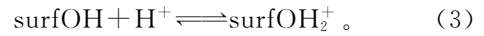
◆——Al₂O₃, pH=8.09; ■——石英(Quartz), pH=7.15

2.2 水相 pH 值变化对 Am(III) 在 Al₂O₃ 和石英上吸附的影响

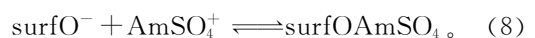
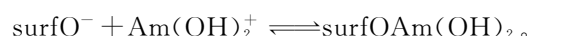
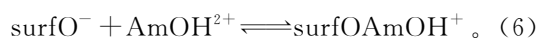
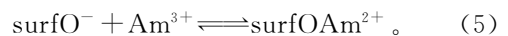
实验所用 BS03 井地下水中,与 Am(III) 具有较强配位能力的 HCO₃⁻ 和 SO₄²⁻ 浓度较高,可能对 Am(III) 在 Al₂O₃ 和石英上的吸附有一定影响,其质量浓度分别为 $\rho(\text{HCO}_3^-) = 146 \text{ mg/L}$ 和 $\rho(\text{SO}_4^{2-}) = 305 \text{ mg/L}$ ^[4]。因此,在实验中选择 0.01 mol/L NaCl 为参比,考察了水相 pH 值变化对 Am(III) 在花岗岩上吸附的影响,结果示于图 2。从图 2 中数据比较可知,随着水相 pH 值的升高,Am(III) 在 Al₂O₃ 和石英上的吸附分配比增大,即吸附能力增强;水相化学组分对 Am(III) 的吸附有明显的影 响,可能与 Am(III) 在水相中的存在形态以及 Al₂O₃ 和石英的表面性质有关。同时在实验中发现,吸附平衡后,水相 pH 值比吸附前有不同程度的增大,这种现象在 Al₂O₃ 的吸附实验中尤为明显。

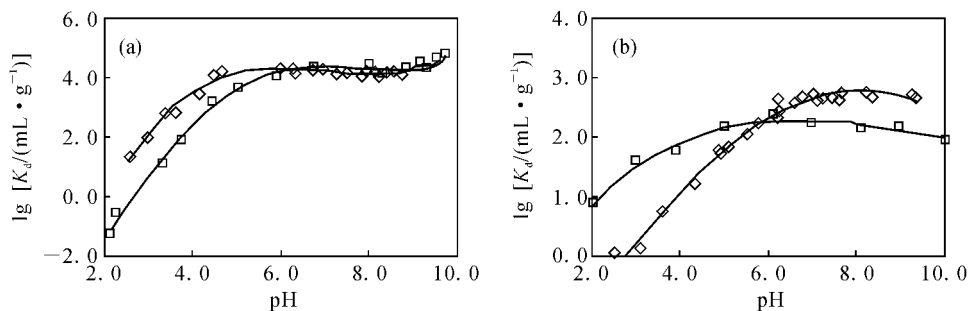
2.3 可能的吸附机理

当 Al₂O₃ 和石英与水接触后,Al₂O₃ 和石英表面可因水相中离子与其表面离子之间的化学反应而产生界面电荷。当它们不与水接触时,由于氧原子的作用,其表面的配位是不充分的;与水接触后,Al₂O₃、石英界面被水分子所包围,并与水发生反应,造成水分子的离解,进而形成界面羟基(surfOH)^[5-10]。在不同 pH 值的溶液中,H⁺ 与 surfOH 发生反应,即质子化(protonation),使固相界面 surfOH 带正电,如式(3);同时 surfOH 中 H⁺ 发生表面离解,即去质子化(deprotonation),如式(4)。

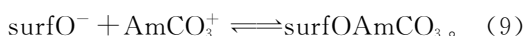


对于不同的固相,如实验中所用 Al₂O₃、石英,surfOH 的质子化或去质子化的能力是不同的,除与质子化或去质子化的稳定常数有关外,还与它们的界面零电荷点(零电荷点是指固相表面电荷为零时的溶液 pH 值,即 pH_{PZC})有关,如文献[9-10]报道石英的 pH_{PZC} = 2.8, Al₂O₃ 的 pH_{PZC} 在 8~9 之间。当水相 pH > pH_{PZC} 时,Al₂O₃ 或石英界面羟基去质子化后,带负电,可与水相中存在的金属离子等发生界面配合反应,中和表面电荷,即吸附。三价金属离子有较高的表面正电荷密度和离子势,它们可与 Al₂O₃ 或石英界面羟基去质子化后的官能团配合,生成界面配合物。如 Rabung 等^[11]通过激光荧光光谱分析表明 Eu(III) 可与 Al₂O₃ 界面羟基生成内层界面配合物;Fendorf 等^[12]研究了 Cr(III) 在二氧化硅上的吸附,EXAF 分析结果表明 Cr(III) 在二氧化硅上的吸附为内层单齿界面配合物;Kosmulski^[13], Tang 等^[14]的研究结果也表明三价金属离子分别在二氧化硅和砂子界面的吸附符合界面配合物模型,即以界面配合物被吸附;Turner^[10]通过模型计算表明 Am(III) 可与 Al₂O₃ 或石英界面羟基去质子化后的官能团配合,生成界面配合物。依据前文^[4]报道的 Am(III) 在 BS03 井地下水中存在形态,则地下水中 Am(III) 与 Al₂O₃ 或石英界面羟基去质子化后官能团的配合反应有:

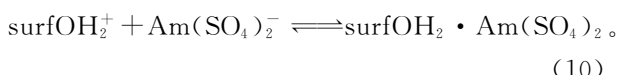


图 2 水相 pH 值对 Am(III) 在 Al₂O₃ 和石英上吸附的影响Fig. 2 Effect of the pH value of the aqueous phase on the adsorption of Am(III) on Al₂O₃ and quartz(a)——Al₂O₃, (b)——石英(Quartz)

◇——地下水(BS03 well groundwater), □——0.01 mol/L NaCl



而 Am(III) 在 BS03 井地下水中生成的配阴离子, 如 $\text{Am}(\text{CO}_3)_2^-$, $\text{Am}(\text{SO}_4)_2^-$ 等, 与 Al₂O₃ 或石英界面羟基去质子化后, 电荷性质相同, 产生了排斥作用, 不被吸附。但在低 pH 值下, 可与质子化后的界面配合, 如式(10)。



另外, 影响 Am(III) 在 Al₂O₃ 或石英上的吸附除 surfOH 官能团外, 水相中其它离子, 由于产生竞争反应, 影响 Am(III) 的吸附^[15-16]。如在较低 pH 值下, 地下水中存在的微量 Fe³⁺, Al³⁺ 等, 其离子半径小于 Am(III), 它们具有较高的表面正电荷密度和离子势, 可优先与 Al₂O₃ 或石英表面去质子化后的官能团配合。如图 2 中 Am(III) 在石英上的吸附, 当水相 pH < 6, 地下水中微量 Fe³⁺, Al³⁺ 等的存在, 使 2 种水相中 Am(III) 的吸附分配比产生了变化; 而 Al₂O₃ 与石英相比, 具有较大的比表面积, 可能是表面 surfOH 官能团浓度较高, 与 Am(III) 同价金属离子的竞争反应表现不明显。

由以上的分析, Am(III) 在 Al₂O₃ 或石英上的吸附为界面配合。关于表征其界面的配合参数有待进一步的实验测定和探索。

2.4 地下水中溶解矿物的影响

表 1 为作者应用 AquaChem^[17] 地球化学模式所计算的实验用 BS03 井地下水中可能溶解的矿物, 可以看出地下水中溶解的石膏、SiO₂、白云石及长石可能对 Am(III) 的吸附有一定影响。特别是由 Si, Al, O 组成的长石类矿物, 可在地下

水中形成硅铝酸盐胶体 (aluminosilicate colloids)。根据文献^[18-21]报道, 该种胶体对 Am(III) 等锕系元素具有强烈的吸附作用, 生成锕系假胶体。因此在实验过程中通过做空白实验, 证明该种无机胶体在地下水中的存在和对 Am(III) 的吸附; 即取系列地下水样品, 调节其 pH 值分别为 9.0, 9.5, 10.0, 10.5, 11.0, 振荡过夜后发现, 随着地下水的 pH 值升高, 特别是 pH > 9.5 以后, 样品中有不同量的白色沉淀生成, 且吸附了 70% 以上的 Am(III)。因此, 可认为 pH < 9.5, 地下水中硅铝酸盐矿物的量不足以沉淀, 而形成极小的颗粒物分散在地下水中, 生成胶体, 吸附了地下水中的 Am(III), 导致 Am(III) 在 Al₂O₃ 上的吸附分配比大于相同条件下、以 0.01 mol/L NaCl 为水相的吸附分配比; 特别是在水相 pH > 6 以后, Am(III) 在石英上的吸附最明显。由此可见, 地下水中天然胶体的存在, 有利于 Am(III) 的吸附。

表 1 实验用 BS03 井地下水中可能溶解的矿物

Table 1 Dissolved minerals in the BS03 well groundwater

溶解的矿物 (Dissolved minerals)	$\rho / (\text{mg} \cdot \text{L}^{-1})$
钾盐 (Sylvite)	24.46
岩盐 (Salite)	1 961.88
石膏 (Anhydrite)	432.47
白云石 (Dolomite)	173.34
SiO ₂	9.37
钠长石 (Albite)	40.93

2.5 地下水中 SO_4^{2-} 、 CO_3^{2-} 浓度变化对 $\text{Am}(\text{III})$ 吸附的影响

地下水中 SO_4^{2-} 和总碳酸根(主要以 HCO_3^- 或 CO_3^{2-} 或二者共存),除主要与 $\text{Am}(\text{III})$ 发生配合反应外,还可在 Al_2O_3 和石英的界面发生吸附^[15-16],影响 Al_2O_3 和石英的界面性质如零电荷点、界面羟基浓度等^[22],从而进一步影响 $\text{Am}(\text{III})$ 的吸附。在实验中,通过改变水相中总 CO_3^{2-} 和

SO_4^{2-} 浓度($1.0 \times 10^{-3} \sim 2.0 \times 10^{-1} \text{ mol/L}$),测定了吸附平衡后 $\text{Am}(\text{III})$ 的吸附分配比,结果示于图 3。从图 3 可以看出,随着水相中总 CO_3^{2-} 和 SO_4^{2-} 浓度的增大, $\text{Am}(\text{III})$ 在石英上的吸附减小;水相中 SO_4^{2-} 浓度的增大对 $\text{Am}(\text{III})$ 在 Al_2O_3 上的吸附几乎无影响,总 CO_3^{2-} 浓度的增大, $\text{Am}(\text{III})$ 在 Al_2O_3 上的吸附也慢慢增大,可能与 Al_2O_3 的零电荷点和界面羟基浓度有关。

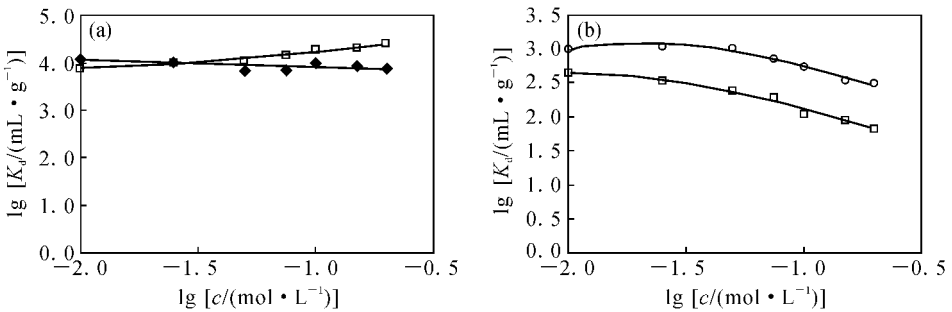


图 3 SO_4^{2-} 、总 CO_3^{2-} 浓度对 $\text{Am}(\text{III})$ 吸附的影响

Fig. 3 Effect of the sulphate and total CO_3^{2-} concentration on the sorption of $\text{Am}(\text{III})$

(a)—— Al_2O_3 , (b)——石英(Quartz)

◆—— SO_4^{2-} , pH=8.65; ○—— SO_4^{2-} , pH=8.33; □——总(Total) CO_3^{2-}

2.6 地下水中 DOC 的浓度变化对吸附的影响

地下水中可溶性有机物(DOC)的存在,影响着核素在矿物和围岩上的吸附行为^[18]。在地下水可溶性有机物中,腐殖酸就是一个突出代表。文献^[23-25]报道 $\text{Am}(\text{III})$ 与腐殖酸可生成 1:1 和 1:2 型的配合物,配合稳定常数($\lg \beta_1$, $\lg \beta_2$)与腐殖酸的电离度(α)或水溶液 pH 值有关,腐殖酸的电离度(α)或水溶液 pH 值增大, $\text{Am}(\text{III})$ 与腐殖酸的配合能力越强,同水解和碳酸根离子的作用相比,这种配合物在高 pH 值时非常重要。图 4 为水相中腐殖酸浓度变化对 $\text{Am}(\text{III})$ 在 Al_2O_3 和石英上吸附的影响情况。由图 4 可比较出,随着水相中腐殖酸浓度的增大, $\text{Am}(\text{III})$ 在 Al_2O_3 和石英上的吸附分配比减小。这主要是因为 $\text{Am}(\text{III})$ 与腐殖酸的配合,影响了 $\text{Am}(\text{III})$ 在 Al_2O_3 和石英上的吸附。

2.7 $\text{Am}(\text{III})$ 的解吸

为进一步证明 2.3 节 $\text{Am}(\text{III})$ 在 Al_2O_3 或石英上的吸附机理,实验过程中以 1.0 mol/L HCl 为解吸剂对 $\text{Am}(\text{III})$ 在 Al_2O_3 或石英上吸附平衡后的固相进行了解吸,不同解吸时间测得的解吸率示于图 5。由图 5 可知,用 1.0 mol/L HCl 做

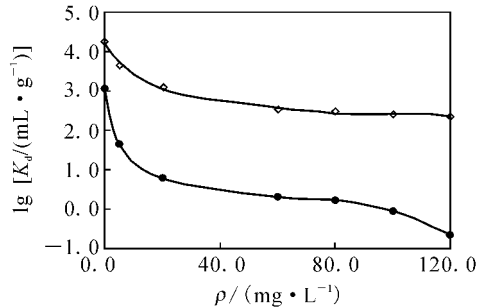


图 4 腐殖酸浓度对 $\text{Am}(\text{III})$ 吸附的影响

Fig. 4 Effect of the humic acids concentration on the sorption of $\text{Am}(\text{III})$ on Al_2O_3 and quartz

◇—— Al_2O_3 , pH=7.87; ●——石英(Quartz), pH=7.92

为解吸剂,约 24 h 后,能将石英和 Al_2O_3 上吸附的 $>95\%$ 以上的 $\text{Am}(\text{III})$ 解吸下来。由于在酸性溶液中, surfOH 接受了溶液中的 H^+ ,或羟基可脱离 Al_2O_3 或石英表面,从而导致 Al_2O_3 或石英表面整体带正电,对溶液中存在的 $\text{Am}(\text{III})$ 正离子吸附能力减弱,或不吸附。这与推测的吸附机理一致。

2.8 $\text{Am}(\text{III})$ 初始浓度变化对吸附的影响

在实验过程中,通过改变地下水中 $\text{Am}(\text{III})$

的初始浓度($4.4 \times 10^{-8} \sim 5.9 \times 10^{-12}$ mol/L),考察了 Al₂O₃ 或石英对 Am(III)的吸附影响。图 6 为吸附平衡后测得的水相和固相中 Am(III)的浓度对数图。从图 6 可看出,二者成明显的线性关系,即符合 Freundlich 吸附等温式^[26]: $\theta = kc_{eq}^n$,拟合结果列入表 2。

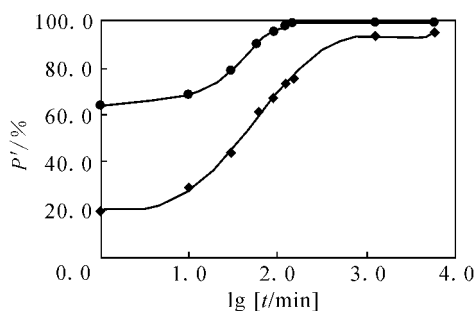


图 5 Am(III)的解吸曲线

Fig. 5 Desorption curve of Am(III) from Al₂O₃ and quartz with 1.0 mol/L HCl
●—石英(Quartz), ◆—Al₂O₃

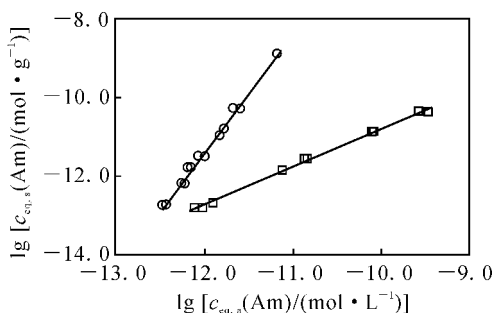


图 6 Am(III)在 Al₂O₃ 和石英上的吸附等温线

Fig. 6 Am(III) adsorption isotherms on Al₂O₃ and quartz

○—Al₂O₃, pH=7.82; □—石英(Quartz), pH=6.55
 $\theta=(25 \pm 1)^\circ\text{C}$

表 2 Am(III)在 Al₂O₃ 和石英上吸附等温线的拟合结果

Table 2 Fitting results of adsorption isotherms of Am(III) on Al₂O₃ and quartz

吸附材料 (Sorption materials)	lg k	n	r ²
Al ₂ O ₃	24.91	3.03	0.993 9
石英(Quartz)	-1.24	0.96	0.992 7

3 结 论

(1) Al₂O₃ 或石英对 Am(III)具有较强的吸

附能力,Am(III)在 Al₂O₃ 或石英上以表面配合物的形式被吸附,且可用 Freundlich 吸附等温式描述。

(2) 随着水相 pH 值的升高,Am(III)的吸附增强,水相中 SO₄²⁻ 和总 CO₃²⁻ 浓度增大不利于 Am(III)在石英上的吸附,水相中腐殖酸浓度增大,Am(III)在 Al₂O₃ 或石英上的吸附降低。

(3) Am(III)在地下水中的假胶体生成,有利于 Am(III)在 Al₂O₃ 或石英上的吸附,特别是对 Am(III)在石英上的吸附影响最明显;由于竞争反应,地下水中其它金属离子的存在,在地下水 pH<6 时对 Am(III)在石英上的吸附影响明显,而对 Am(III)在 Al₂O₃ 上的吸附几乎无影响。

(4) Am(III)在 Al₂O₃ 或石英上的吸附与固相比表面积大小,即固相表面羟基的浓度、去质子化能力及固相在水相中的零电荷点有关。

参考文献:

- [1] 赵 欣. 地质环境中铜系元素水溶液化学研究进展[J]. 核科学与工程, 1997, 17(1): 65-74.
- [2] 王 驹, 张铁岭, 郑华铃, 等. 世界放射性废物地质处置[M]. 北京: 原子能出版社, 1999: 38.
- [3] 刘月妙, 陈璋如. 内蒙古高庙子膨润土作为高放废物处置库回填材料的可行性[J]. 矿物学报, 2001, 21(3): 541-543.
- [4] 章英杰, 冯孝贵, 梁俊福, 等. Am 在铁氧化物上的吸附行为[J]. 核化学与放射化学, 2009, 31(1): 10-15.
- [5] 陈 骏, 王鹤年. 地球化学[M]. 北京: 科学出版社, 2004: 202.
- [6] Silva R J, Nitsche H. Actinide Environmental Chemistry [J]. Radiochim Acta, 1995, 70/71: 377-396.
- [7] Lieser K H. Radionuclides in the Geosphere: Sources, Mobility, Reactions in Natural Waters and Interactions With Solids [J]. Radiochim Acta, 1995, 70/71: 355-375.
- [8] Kent D B, Tripathi V S, Ball N B, et al. Surface Complexation Modeling of Radionuclide Adsorption in Subsurface Environments, NUREG-CR-4807 [R]. USA: Sandia National Lab, 1988.
- [9] Turner D R. Mechanistic Approaches to Radionuclide Sorption Modeling, CNWRA-93-019 [R]. Texas, USA: Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses, 1993.
- [10] Turner D R. A Uniform Approach to Surface Com-

- plexation Modeling of Radionuclide Sorption, CNWRA-95-001[R]. Texas, USA: Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses, 1995.
- [11] Rabung T, Geckeis T S H, Klenze R, et al. Sorption of Am(III) and Eu(III) Onto γ -Alumina: Experiment and Modelling[J]. *Radiochim Acta*, 2000, 88: 711-716.
- [12] Fendorf S E, Lambie G M, Stapleton M G, et al. Mechanisms of Chromium(III) Sorption on Silica: 1. Cr(III) Surface Structure Derived by Extended X-ray Absorption Fine Structure Spectroscopy[J]. *Environ Sci Technol*, 1994, 28: 284-289.
- [13] Kosmulski M. Adsorption of Trivalent Cations on Silica [J]. *J Colloid Interface Sci*, 1997, 195: 395-403.
- [14] Tang J, Johannesson K H. Adsorption of Rare Earth Elements Onto Carrizo Sand: Experimental Investigations and Modeling With Surface Complexation [J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 2005, 69 (22): 5 247-5 261.
- [15] Berka M, Bányai I. Surface Complexation Modeling of K^+ , NO_3^- , SO_4^{2-} , Ca^{2+} , F^- , Co^{2+} , and Cr^{3+} Ion Adsorption on Silica Gel[J]. *J Colloid Interface Sci*, 2001, 233: 131-135.
- [16] Wijnia H, Schulthess C P. Interaction of Carbonate and Organic Anions With Sulfate and Selenate Adsorption on an Aluminum Oxide[J]. *Soil Sci Soc Am J*, 2000, 64(3): 898-908.
- [17] Waterloo Hydrogeologic, Inc. AquaChem User's Manual [M]. Waterloo, Canada: Waterloo Hydrogeologic, Inc, 1998.
- [18] Degueldre C, Reed D, Kropf A J, et al. XAFS Study of Americium Sorbed Onto Groundwater Colloids [J]. *J Synchrotron Rad*, 2004, 11: 198-203.
- [19] Kim M A, Panak P J, Yun J I, et al. Interaction of Actinides (III) With Aluminosilicate Colloids in "Statu Nascendi" Part III: Colloid Formation From Monosilanol and Polysilanol[J]. *Colloids Surf A*, 2005, 254: 137-145.
- [20] Panak P J, Yun J I, Kim J I, et al. Interaction of Actinides With Aluminosilicate Colloids in Statu Nascendi Part I: Generation and Characterization of Actinide(III)-Pseudocolloids[J]. *Colloids Surf A*, 2003, 216: 97-108.
- [21] Panak P J, Kim M A, Yun J I, et al. Interaction of Actinides With Aluminosilicate Colloids in Statu Nascendi Part II: Spectroscopic Speciation of Colloid-Borne Actinides(III)[J]. *Colloids Surf A*, 2003, 227: 93-103.
- [22] Appelo C A J, van der Weiden M J J, Tournassat C, et al. Surface Complexation of Ferrous Iron and Carbonate on Ferrihydrite and the Mobilization of Arsenic[J]. *Environ Sci Technol*, 2002, 36: 3 096-3 103.
- [23] Choppin G R. Humics and Radionuclide Migration [J]. *Radiochim Acta*, 1988, 44/45: 23-28.
- [24] Choppin G, Allard B. The Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides: Complexes of Actinides With Naturally Occurring Organic Compounds[M]. Freeman A J, Keller C. Vol. 3. New York: Elsevier Science Publishers, 1985: 407-428.
- [25] 章英杰, 赵欣, 魏连生, 等. Am(III)与腐殖酸配位行为的研究[J]. *核化学与放射化学*, 1998, 20(3): 103-110.
- [26] Stumm W, Morgan J J. Aquatic Chemistry[M]. 2nd ed. New York: John Wiley and Sons, 1981: 599-647.