文章编号:0253-9950(2005)03-0136-08

# Pu 在花岗岩中的吸附行为

# 章英杰,范显华,苏锡光,曾继述,王 勇,周 舵,刘德军,姚 军

中国原子能科学研究院 放射化学研究所,北京 102413

摘要:为了解 Pu 在甘肃北山地区地下深度约为 600 m 的花岗岩中的吸附行为,研究了各种水质(重蒸水、模 拟地下水、BS03 井地下水)、p H 值(3.0~10.0)、 $CO_3^{2-}$ 离子浓度(4.0×10<sup>-3</sup>~1.0×10<sup>-1</sup> mol/L)、氧浓度等因 素对吸附的影响。通过对吸附后水相物化参数(如 p H 值、Eh、电导率等)、Pu 的价态、固相表面特征参数(比 表面、孔径、总孔容等)等数据的比较以及解吸实验结果,推测可能的吸附机理:Pu 在花岗岩上以表面配合物 的形式吸附,且可用 Freundlich 吸附等温式描述。

关键词: Pu;吸附;花岗岩;解吸

**中图分类号**: TL942.21 **文献标识码**: A

高放废物是人们在核能利用过程中产生的主 要核废物,它具有放射性活度大,比活度高,半衰 期长,毒性大等特性,若处置不当将严重危害人类 生存环境,因此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。处置高放废物 的方法甚多,主要有太空处置、深海沟处置、冰盖 处置、岩石熔融处置、深地质处置等。其中被人们 普遍接受的可行方案是深地质处置,即把高放废 物埋在距离地表深约 500~1000 m 的地质体中, 使它永久与人类的生存环境隔离[1,2]。我国从 1985年开始有关高放废物深地质处置方面的科 研工作,经过近20年的发展,初步将甘肃北山地 区作为我国高放废物处置场的预选场址<sup>[3,4]</sup>。本 工作主要研究 Pu 在取自甘肃北山地区地下深度 约为 600 m 的花岗岩中的吸附行为,并对水质 (重蒸水、模拟地下水、BS03 井地下水)、pH 值、 CO<sup>2</sup> 离子浓度变化、花岗岩中含铁次生矿物对 吸附的影响进行研究,推测可能的吸附机理,为将 来预选场址的安全及环境评价提供技术参数。

## 1 实验部分

## 1.1 试剂和仪器

 1.1.1 试剂 重蒸水:石英双重蒸馏器制备;模 拟地下水:用北山1号井深度约为600~700m的 花岗岩(氧化物含量见表1)与重蒸水在特制不锈 钢容器内按照1 kg 花岗岩粉末与 50 L 重蒸水的 比例混合,浸泡时间为3a,容器内压力为2.5 MPa 高纯氩气,主要化学成分列入表 2,使用前经 截留分子量为 10 000 的膜过滤;<sup>238</sup> Pu溶液:定量 移取1 mL Pu(ClO<sub>4</sub>)<sub>4</sub> 溶液于隔膜式电解槽阳极 室中,再加入2 mL 0.1 mol/L HClO4 溶液, 搅 拌,使其混匀,往阴极室中加入0.1 mol/L HClO4 溶液,使液面与阳极室液面齐平。电解,电压为 1.5 V. 电解时间为4h. 电解结束后. 从电解槽中 移取 2 mL Pu 溶液于含有3 mL重蒸水的 15 mL 聚丙烯离心管中,轻轻振荡离心管,使其混匀,调 节溶液 pH 值为 5,给离心管加盖密封,放置过 夜,第二天,重新调节溶液 pH 值为 5,用截留分 子量为10 000的膜过滤、将滤液等体积分为两份、 分别置于两支经硅烷预处理后的 10 mL 富硼玻 **璃离心管中**,再在两支玻璃离心管中各加入 5.0 mL 0.5 mol/L TTA-二甲苯溶液,萃取 10 min, 离心分相,弃去有机相,水相中 Pu 以 Pu()存 在,备用;北山3号井(BS03)地下水(取自地下约 435 m):用特制不锈钢压力容器运输及储存,容 器内压力为 2.5 MPa 高纯氩气,主要化学成分见 表2,使用前经截留分子量为10000的膜过滤; 1,4-[双-(5-苯基噁唑-2)]苯(POPOP),闪烁纯, 上海试剂一厂产品;2,5-二苯基噁唑(PPO),闪烁 纯,美国 Sigma 公司产品;1,4-二氧六环,分析纯,

 $SO_4^2$ 

E-

NO pН

Eh

北京益里利精细化学品有限公司产品:萘.分析 纯,北京化工厂产品;闪烁液:取 30 gPPO,3 gPOPOP和 500 g 萘,用适量 1,4-二氧六环溶解 并稀释至 5.0 L.储存于不透光的塑料桶中,室温 保存,备用。除特别说明外,其它试剂均为分析 纯。

表 1 北山 1 号井花岗岩中氧化物组分

Table 1	te i Composition of the oxides in granite						
组分 (Composition)	w/ %	组分 (Composition)	w/ %				
Na <sub>2</sub> O	4.83	TiO <sub>2</sub>	0.16				
MgO	0.33	MnO	0.02				
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	15.39	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.04				
SiO <sub>2</sub>	71.41	FeO	1.26				
P2O5	0.06	CO <sub>2</sub>	0.22				
K <sub>2</sub> O	3.59	H <sub>2</sub> O <sup>+</sup>	0.4				
CaO	1.76		77 (()				
= 2 +#+							

Table 2	Composition of simulated and BS03 borehole						
	underground water	mg/ L					
离子	模拟地下水	BS03 地下水					
(Ion)	(Simulated underground water)	(BS03 water)					
Na <sup>+</sup>	3.30	1 027					
$K^+$	3.45	16.1					
Ca <sup>2+</sup>	6.72	206					
$Mg^{2+}$	0.04	51.2					
$\mathrm{N}\mathrm{H}_4^+$	< 0.04	0.20					
$Fe^{2+} + Fe^{3+}$	0.10	0.25					
HCO <sub>3</sub>	36.9	138					
Cl -	3.38	1 155					

0.26

0 38

< 0.05

9.3

- 240 mV

测 Pu 的价态。 1.2.3 数据处理 按下式计算吸附分配比、吸附 率和解吸率: 1 074

$$K_{\rm d} = \frac{(c_0 - c_t) \times V}{c_t \times m}, \qquad (1)$$

$$P_t = \frac{c_0 - c_t}{c_0} \times 100 \%, \qquad (2)$$

$$P_t = \frac{c_t \times V}{(c_0 - c_t) \times V} \times 100 \%_{\circ}$$
(3)

式中, Ka 为吸附分配比, mL/g; co, cr 为吸附前后 Pu 的浓度, mol/L; V 为水相体积, mL; m 为固相 质量,g;  $P_t$ 为 t 时刻吸附率;  $P_t$ 为 t 时刻解吸率;  $c_t$ 为 t 时刻解吸液中 Pu 的浓度, mol/L; V 为解

1.1.2	仪器 低	;氧工作箱,自行研制,箱中氧含
量 5	$\times 10^{-6}$ mol	•mol <sup>-1</sup> ;HI8424 型微电脑 p H/
mV/	计,意大利	HANNA Instruments 公司,附

HI1230B型 pH 电极, HI3130B型(或 HI3230B 型) ORP 电极; BH1216 低本底 , 测量装置, 北 京核仪器厂;QUANTULUS1220液闪谱仪,美国 PE公司产品: RS-20 型高速离心机. 日本 TO-MY Seiko 有限公司产品。ASIMP 型全自动比表 面及孔隙度分析仪,美国 Quantachrome 公司产 品(中国科学院过程工程研究所):磁选装置.北京 矿冶研究总院设备研究所制。

#### 1.2 实验方法

1.2.1 吸附实验 取 0.3 g 经预处理后的花岗 岩粉末(粒 度 0.098 mm) 干内壁经二氯二甲基 硅烷预处理的 10 mL 聚丙烯离心管中 加入 6.0 mL 模拟地下水或 BS03 井地下水或重蒸水,加 盖,放入振荡器中振荡24 h,取出离心管,并向管 中加入 20 µL 已处理的<sup>238</sup> Pu ( ) 溶液 (离心管 中<sup>238</sup> Pu 浓度为 0.25 nmol/L), 用 NaOH 或 HClO4 调 pH 至指定值,密封离心管管口,再次 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, 取离心管中上层清液 2.0 mL于液闪谱仪专用测量瓶中,加入已配好的 闪烁液 16 mL,避光保存 24 h 后放入液闪谱仪中 测量 计数。离心管中剩余溶液供测量 pH 值、 Eh、电导率、及 TTA、PMBP 萃取法测 Pu 的价态 用。

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,在剩余固相中加入 6.0 mL1.0 mol/L HClO4 溶液,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1h,取离心管中上层清液 3.0 mL 干液闪谱仪专用测量瓶中,加入已配好的闪 烁液 16 mL,避光保存 24 h 后放入液闪谱仪中测 量 计数。管中剩余水相用 TTA、PMBP 萃取法

1.89

30.2

8.1 - 204 mV 吸液体积,mL。

# 2 结果和讨论

#### 2.1 吸附时间对 Pu 在花岗岩中吸附的影响

吸附时间对花岗岩吸附分配比的影响示于图 1。从图 1 数据比较可知,花岗岩对 Pu 的吸附速度 很快,约在 400 min 左右达到吸附平衡,此时水相 中的 Pu 浓度小于 0. 25 pmol/L。实验中选择时间 为 48 h(包括花岗岩样品与水相预平衡 24 h)。





#### 2.2 水相 pH 值变化对吸附的影响

由于锕系元素在近中性水介质中,特别是四 价锕系元素,有强烈的水解倾向,这种倾向随水相 pH值的增大而增大,生成的水解产物可能会影 响其在花岗岩中的吸附。因此,考察了BS03井 地下水pH值变化对吸附的影响,结果示于图2, 3中。





Fig. 2 Variation of p H value of the aqueous phase before and after sorption of Pu in granite

#### 图 2 为吸附前后水相的 p H 值变化情况。从

图 2 看出,吸附平衡后,水相 p H 值增大,可能是 固相溶解的缘故,最终 p H 值在 8~9之间;但是 在起始 p H 9 以后,平衡水相 p H 值下降,可能 与吸附机理有关。



图 3 pH 变化对 Pu 吸附的影响



图 3 为吸附平衡后,测得的水相 p H 值与吸 附分配比的结果。从图 3 中数据比较可知,随着 水相 p H 值的升高,Pu 在花岗岩中的吸附分配比 增大,即吸附能力增强。

吸附平衡后,水相的 p H 值及对应的 Eh 示于 图 4。在图 4 相邻价态的平衡线计算过程中,假 设相邻价态的浓度相等。从图 4 可以看出,随着 p H 值的升高,Eh 值的波动范围较大,但是波动 范围都在 Pu()的稳定区。即吸附过程中,可能 是花岗岩中一些还原性矿物将水相中高价 Pu 还 原为易被吸附的四价。



图 4 吸附后 Pu 可能的价态 Fig. 4 Valence state of Pu after sorption in granite

# 2.3 水相中 CO3 浓度变化对 Pu 吸附的影响

地下水中碳酸盐(主要以 HCO<sub>3</sub> 或 CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> 或 二者共存),主要与 Pu()发生配合反应,由于生 成的配合物,如 Pu(OH)<sub>4</sub>(HCO<sub>3</sub>)<sup>2-</sup>,Pu(OH)<sub>2</sub>

7

%

 $(CO_3)^{\frac{2}{2}}$ ,Pu(OH)<sub>4</sub> $(CO_3^{\frac{2}{3}})^{\frac{2}{2}}$ 等可能影响花岗岩 的吸附。在实验中,通过改变水相中碳酸盐的浓 度(4.0×10<sup>-3</sup>~1.0×10<sup>-1</sup> mol/L),测定了吸附 平衡后 Pu 的吸附分配比,结果示于图 5。从图 5 可以看出,随着水相中总碳酸盐浓度的增大,Pu





on the sorption of Pu

在花岗岩中的吸附分配比减小。这可能是"竞争 反应 '的原因 ,即 Pu( )与碳酸盐的配合能力大 于 Pu( )形成固相表面配合物的能力<sup>[5]</sup>。

2.4 氧浓度变化对 Pu 吸附的影响

2.4.1 花岗岩样品组分的分离 为进一步对吸 附机理进行探索,以确定花岗岩样品中影响 Pu 吸附的主要矿物。实验过程中对花岗岩样品进行 磁分离技术处理,分离流程如下。其中 T 为磁通 量单位(特斯拉)。被分离出样品的氧化物成分列 入表3。

2.4.2 大气和低氧( 5.0 ×10<sup>-6</sup> mol mol<sup>-1</sup>) 条件下 Pu 在花岗岩及分离样品中的吸附 将磁 分离技术处理后的样品,以 BS03 井地下水为介 质,分别在大气和低氧条件下进行吸附实验,同时 以重蒸水、模拟水作对比实验,结果列入表 4 和 表 5。



表 3 花岗岩分离样品中氧化物成分

Table 3	Composition of	the oxides in the	seperated granite sample
---------	----------------	-------------------	--------------------------

				-				-	-	-			
样品 (Sample)	Na <sub>2</sub> O	MgO	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	K <sub>2</sub> O	CaO	TiO <sub>2</sub>	MnO	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	FeO	CO <sub>2</sub>	$H_2O^+$
1	4.83	0.33	15.39	71.41	0.06	3.59	1.76	0.16	0.02	0.04	1.26	0.22	0.4
2	2.82	2.67	13.37	53.60	0.11	4.15	1.77	2.28	0.22	5.15	11.57	0.58	1.66
3	4.71	0.32	15.75	71.85	0.15	3.53	2.09	0.17	0.02	0.23	0.63	0.14	0.28
4	3.02	3.50	15.56	58.59	0.10	5.14	1.80	1.57	0.14	0.79	8.03	0.32	1.50
5	4.87	0.33	15.75	71.80	0.06	3.50	1.83	0.16	0.02	0.10	0.75	0.32	0.38
6	4.85	0.14	15.45	72.39	0.07	3.38	1.82	0.10	0.01	0.12	0.40	0.32	0.44

	Table 4 Sorption of Pu on the granit	e and separa	ted sample un	der atmospheric co	ondition
No.	水相 (Aqueous phase)	p H	Eh/ mV	$r/(\mathrm{mS}\cdot\mathrm{m}^{-1})$	$10^{-3} K_{\rm d} / ({\rm mL} \cdot {\rm g}^{-1})$
	重蒸水(Redistilled water)	8.12	199	21.1	4.0
1	模拟地下水(Simulated underground water)	8. 09	149	25. 6	4. 8
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.31	107	498.3	11
	重蒸水(Redistilled water)	8.21	179	28.7	8.8
2	模拟地下水(Simulated underground water)	8.16	139	32. 7	29
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.33	106	494.4	20
	重蒸水(Redistilled water)	8.23	188	26.3	5.8
3	模拟地下水(Simulated underground water)	8.11	129	28. 7	4. 8
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.32	118	501.8	4.2
	重蒸水(Redistilled water)	8.25	175	29.1	7.5
4	模拟地下水(Simulated underground water)	8.08	139	30. 7	3. 7
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.21	114	498.3	4.8
	重蒸水(Redistilled water)	8.15	184	22.5	3.0
5	模拟地下水(Simulated underground water)	8.16	198	26. 9	11
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.34	118	498.4	8.1
	重蒸水(Redistilled water)	8.15	218	22.7	3.0
6	模拟地下水(Simulated underground water)	8. 03	149	27. 8	11
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.4	115	494.9	5.0

## 表 4 大气条件下 Pu 在花岗岩及分离样品中的吸附

# 表 5 低氧条件下 Pu 在花岗岩及分离样品中的吸附 Table 5 Sorption of Pu on the granite and separated sample under anoxic condition

No.	水相 (Aqueous phase)	рН	Eh/ mV	r/ (mS ⋅m <sup>-1</sup> )	$10^{-3} K_{\rm d} / (\rm mL \cdot g^{-1})$
	重蒸水(Redistilled water)	9.18	39	18.7	14
1	模拟地下水(Simulated underground water)	8.85	- 135	21. 4	21
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.41	- 164	467.9	20
	重蒸水(Redistilled water)	9.13	- 121	29.2	14
2	模拟地下水(Simulated underground water)	8.87	- 164	29. 5	29
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.62	- 205	486.5	20
	重蒸水(Redistilled water)	8.94	80	23.5	13
3	模拟地下水(Simulated underground water)	8.78	32	25. 8	4.3
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.43	89	464.4	12
	重蒸水(Redistilled water)	8.80	77	28.1	14
4	模拟地下水(Simulated underground water)	8.63	71	28. 6	4. 3
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.45	55	471.6	4.8
	重蒸水(Redistilled water)	8.78	78	22.9	5.3
5	模拟地下水(Simulated underground water)	8.83	42	23. 2	21
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.53	24	467.9	8.1
	重蒸水(Redistilled water)	8.89	78	18.9	10
6	模拟地下水(Simulated underground water)	8.77	35	24. 1	17
	BS03 地下水(BS03 Well underground water)	8.47	19	467.9	6.5

© 1994-2006 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

由表 4,表 5 的实验数据比较看出,氧浓度变 化对 Pu 在花岗岩中的吸附影响较小;花岗岩中 含铁矿物,特别是亚铁矿物的存在,使 PuO<sup>+</sup> 到还原而被吸附。

#### 2.5 吸附机理

花岗岩在不与水接触时,其表面的配位是不 充分的;花岗岩与水接触后,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,SiO<sub>2</sub>等表面 可形成诸如 SiOH, AlOH 表面羟基官能 团<sup>[5,6]</sup>,这些官能团,在偏碱性溶液中,H<sup>+</sup>可从表 面电离,中和溶液中的碱,溶液 p H 值降低。同时 花岗岩表面羟基电离出 H<sup>+</sup>后,带负电,可与水相 中存在的 Pu(),Pu(OH)<sup>4-n</sup>( $n=1 \sim 4$ )等发生 表面配合反应,中和表面电荷。如:

$$SiO H_{(s)} \xrightarrow{} Si-O^{-} + H^{+} , \qquad (1)$$

$$Si-O^{-} + Pu_{(aq)}^{4+} \xrightarrow{} Si-O-Pu_{(s)}^{4+} , \qquad (2)$$

$$SiO H_{(s)} + HO-Pu(O H)_{n-1(aq)}^{4-n} \xrightarrow{} Si-O-Pu(O H)_{n-1(s)}^{4-n} + H_2O_{\circ} \qquad (3)$$

由于 Pu()的强烈水解作用以及 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub> 等表面的亲水性(或水化作用),当水相 pH 值增大,有助于 SiOH, AlOH 官能团的形 成,并电离出 H<sup>+</sup>,使式(1)、(2)、(3)的反应向右 进行,即花岗岩对 Pu 的吸附能力增强;相反,当 水相 pH 值减小,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,SiO<sub>2</sub> 等形成 SiOH,

AlOH 官能团电离出 H<sup>+</sup>能力减弱,使式(1)、 (2)、(3)的反应向左进行,即花岗岩对 Pu 的吸附 能力减弱,甚至不吸附。

2.6 Pu 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 Pu 的初 始浓度(8.8 ×10<sup>-10</sup> ~ 3.9 ×10<sup>-13</sup> mol/L),考察了 花岗岩对 Pu 的吸附影响。图 6 为吸附平衡后, 分别测得的水相和固相中 Pu 的浓度对数图。从 图 6 中看出,二者成明显的线性关系,即符合 Freundlich 吸附等温式<sup>[7]</sup>: =  $Kc_{eq}^{a}$ ,拟合结果: $\lg K =$ 7.4047,n = 1.685 6,r = 0.998 8。

 2.7 花岗岩颗粒表面特征对 Pu 吸附的影响 将实验用的花岗岩样品用不同孔径的标准筛



#### 图 6 Pu 在花岗岩中的吸附等温线





#### 图 7 花岗岩颗粒比表面变化对吸附的影响

Fig. 7 Effect of the granite particles specific surface on the sorption of Pu



#### 图 8 花岗岩颗粒中孔径大小对吸附的影响



进行筛分,分别收集分离出的各组样品,分成两 份,一份测其表面特征参数(比表面、表面孔径、总 孔容等),另一份样品作吸附实验。水相为 BS03 井地下水,吸附平衡后,结果示于图 7 --9。从图 7 --9 中可以看出,花岗岩颗粒表面特征参数(如 比表面、表面孔径、总孔容等)对 Pu 在花岗岩中 的吸附有一定影响;随着花岗岩颗粒比表面及总 孔容的增大,Pu 在花岗岩中的吸附能力缓慢增 大;而随着花岗岩颗粒表面孔径的增大,Pu 在花 岗岩中的吸附能力缓慢减小。



#### 图 9 花岗岩颗粒中总孔容对吸附的影响

Fig. 9 Effect of the total pore volume in the granite particles on the sorption of Pu

#### 2.8 Pu 在花岗岩中的解吸行为

与图 3 比较,溶液 p H 变化是影响 Pu 在花岗 岩中吸附的关键,溶液 p H 越小,越不利于 Pu 的 吸附。因此选用 1 mol/L HClO4 作解吸剂,对吸 附后的花岗岩样品进行解吸实验,结果示于图 10 (纵座标为吸附率)。用 TTA-二甲苯和 PMBP-二甲苯萃取分离法分别对吸附后水相及解吸后水 相中 Pu 的价态进行分析,结果列入表 6。



#### 图 10 Pu 在花岗岩中的吸附与解吸曲线 Fig. 10 Sorption and desorption of Pu in granite

1 ——吸附(Sorption); 2 ——解吸(Desorption)

Table 6 Species of Pu in the aqueous phase after sorption and desorption									
t∕ min	<b>T</b> / 0/	17	w/ %			w/ %			
	P <sub>sorp</sub> /%	Pu()	Pu()	Pu( + )	P desorp/ %	Pu()	Pu()	Pu( + )	
1	82	15	2	1	66	63	2	1	
5	89	9	1	1	78	75	3	< 1	
10	93	6	< 1	< 1	89	86	2	< 1	
60	99	< 1	< 1	< 1	98	96	< 1	< 1	

表 6 Pu 在花岗岩中吸附与解吸后水相中可能的价态

由图 10 和表 6 中数据的比较可知,吸附后水 相和固相中 Pu 的价态主要以四价为主,与图 4 结果相吻合;用 1 mol/L HClO4 作解吸剂,能很 快将花岗岩中吸附的 Pu 大部分解吸下来,少部 分 Pu 可能进入花岗岩颗粒毛细管中,在与酸作 用约 1 h 后,才能完全解吸下来,这与推测的吸附 机理一致。

# 3 结 论

(1)花岗岩对 Pu 具有较强的吸附能力, Pu 在 花岗岩上以表面配合物的形式被吸附,且可用 Freundich 吸附等温式描述。

(2)吸附平衡后, Pu 在水相和固相中的价态 为四价。

(3)花岗岩中存在的含铁次生矿物,有利于 Pu的吸附。

(4)随着溶液 p H 值的升高, Pu 的吸附能力增强, 溶液中 CO<sup>2-</sup>离子的存在不利于 Pu 的吸附。

(5)花岗岩颗粒比表面、总孔容增大有利于 Pu的吸附,而表面孔径增大不利于 Pu的吸附。

**致谢**:在北山采样过程中得到了核工业北京 地质研究院环保中心同行们的大力支持和帮助, 在采集地下水样品过程中还得到东华理工学院硕 士研究生黄伟的帮助,在此表示衷心的感谢。

#### 参考文献:

- [1] 赵 欣.地质环境中锕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] 威瑟斯庞 P A. 世界放射性废物地质处置[M]. 王 驹,张铁岭,郑华铃,等译.北京:原子能出版社, 1999. 38.
- [3] 王 驹. 论中国高放废物地质处置[J]. 中国地质, 1998,(7):33-35.
- [4] 王 驹,范显华,徐国庆,等.中国高放废物地质处 置十年进展[M].北京:原子能出版社,2004,1-12.
- [5] Silva R J, Nitsche H. Actinide Environmental

142

Chemistry[J]. Radiochim Acta,1995,70/71,377 — 396.

[6] Lieser K H. Radionuclides in the Geosphere: Sources, Mobility, Reactions in Natural Waters and  [7] Stumm W, Morgan J J. Aquatic Chemistry. 2nd ed. New York: John Wiley and Sons, 1981, 599 –647.

## Sorption Behavior of Pu on Granite

ZHANG Ying-jie, FAN Xian-hua, SU Xi-guang, ZENGJi-shu, WANG Yong, ZHOU Duo, LIU De-jun, YAOJun

China Institute of Atomic Energy, P.O.Box 275(93), Beijing 102413, China

Abstract : The sorption behavior of Pu on granite is studied with batch experiment and 1 mol/L HClO<sub>4</sub> is used to dissolve the Pu sorped on granite at ambient temperature. Sorption experiments are performed under atmospheric and anaerobic conditions (in an argon glove box with an oxygen content of less than 5 ×10<sup>-6</sup> mol ·mol<sup>-1</sup>). Experimental results show that the sorption ability of Pu on granite is increased with increasing pH value (3.0 ~ 10.0) of the aqueous phase, and decreased with increasing carbonate ion concentration (4.0 ×10<sup>-3</sup> mol/L ~ 1.0 ×10<sup>-1</sup> mol/L) in the aqueous phase. The oxygen concentration of the experimental condition is less influence on the sorption of Pu on granite. The sorption behavior of Pu on granite are irreversible. The sorption isotherms of Pu on granite can be well described by the Freundlich 's equation.

Key words: plutonium; sorption; granite; desorption

Interactions With Solids[J]. Radiochim Acta ,1995 , 70/71 ,355 -375.