文章编号：0253-9950(2010)03-0160-07

黄铁矿与某些放射性核素的反应路径模拟

康明亮[1,2]，陈繁荣[3]，杨永强[1]，吴世军[1,2]，窦顺梅[1,2]

1. 中国科学院 广州地球化学研究所，广东 广州　510640；
2. 中国科学院 研究生院，北京　100049；3. 南京大学 地球科学系，江苏 南京　210093

摘要：黄铁矿是地质介质中普遍且稳定存在的矿物，由于S_2^{2-}的还原性强于Fe^{2+}，可望作为强还原剂将高价核素还原为低价态，但黄铁矿的有氧氧化会产生酸，这对放射性核素的迁移阻滞不利。本工作使用PHREEQC软件，以中国甘肃北山五一井地下水为实例，模拟了黄铁矿还原U、Se、Tc等的反应路径。结果表明，在无氧的地下处置库氛围中，黄铁矿的存在能有效地还原高价态的U、Se、Tc，将其浓度降低至极低水平而阻滞其迁移，且反应后的溶液pH值有升高趋势。

关键词：变价放射性核素；黄铁矿；反应路径；地球化学模拟；高放废物地质处置

中图分类号：TL942　　**文献标志码：**A

Modelling the Reactive-Path Between Pyrite and Radioactive Nuclides

KANG Ming-liang[1,2], CHEN Fan-rong[3], YANG Yong-qiang[1], WU Shi-jun[1,2], DOU Shun-mei[1,2]

1. Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China;
2. Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;
3. Department of Earth Sciences, Nanjing University, Nanjing 210093, China

Abstract: The mobility of redox sensitive nuclides is largely dependent on their valence state. The radionuclides that make the dominant contributions to final dose calculations are redox sensitive. Almost all the radionuclides (except ^{129}I) have higher mobility at high valence state, and correspond to immobilization at low valence state due to the much lower solubility. Pyrite is an ubiquitous and stable mineral in geological environment, and would be used as a low-cost long time reductant for the immobilization of radionuclides. However, pyrite oxidation is supposed to generate acid, which will enhance the mobility of nuclides. In this paper, the reaction path between U, Se, Tc and pyrite in the groundwater from Wuyi well in Beishan area of China has been simulated using geochemical modeling software. According to the results, pyrite can reduce high valent nuclides to a dinky-level effectively, with the pH slightly increasing under anaerobic condition that is common in deep nuclear waste repositories.

Key words: redox-sensitive radionuclides; pyrite; reaction path; geochemical simulation; high level waste disposal

收稿日期：2008-11-17；**修订日期：**2009-03-23

基金项目：国家自然科学基金资助项目(No. 40573058)

作者简介：康明亮(1982—)，男，江西泰和人，博士研究生，地球化学专业，从事高放废物地质处置工作

核工业的发展带来了巨大的经济效益，但同时也会产生危害性的核废物，如何安全处置这些核废物尤其是高放废物(HLW)已成为人类面临的严峻问题。目前深地质处置在国际上被公认为是处置高放废物最有效且可行的方法。但是，高放废物地质处置要求将放射性核素与人类环境隔离一万年以上，在长期的储存中，一旦包装破损，放射性核素将随地下水渗透扩散到围岩介质中[1]。具有系列化合价的 U、Se、Tc、Np 等对氧化还原条件比较敏感，高价态时迁移性强，低价态时易沉淀或被吸附而固定下来。黄铁矿是各种地质介质中普遍且稳定存在的矿物，由于 S_2^{2-} 的还原性强于 Fe^{2+}，黄铁矿能作为强还原剂将高价核素还原为低价态，因此已引起人们的广泛关注。Eglizaud 等[2]研究了 U(Ⅵ)与黄铁矿的作用，认为黄铁矿既能吸附也能还原 U(Ⅵ)，Naveau[3]和 Bruggeman[4-5]的研究得出 Se(Ⅳ)或 Se(Ⅵ)能被黄铁矿还原，反应过程受动力学控制，Maes[6]的研究证实了 Tc(Ⅶ)也能被黄铁矿还原为 $TcO_2\cdot xH_2O$，类似的研究报道还有许多[7-9]。这些研究都从实验上证实了黄铁矿可以还原高价核素，但由于时间尺度以及实际操作中的局限性，未能具体量化反应的限度(例如黄铁矿加入量对核素还原程度的影响等)。本工作拟借助于水文地球化学软件 PHREEQC，以中国甘肃北山五一井地下水为实例，模拟黄铁矿还原放射性核素的反应路径，从理论上对黄铁矿还原核素的有效性进行探讨。

PHREEQC 是由美国地调局(USGS)开发的一款功能强大的水文地球化学模拟软件，拥有庞大的数据库，可进行水的混合、温度变化的影响、液相中的溶解和沉淀反应平衡、离子交换平衡、表面络合平衡、定压或定容的气相平衡、固溶体平衡、动力学控制反应以及基于弥散和扩散的一维反应迁移等的模拟。PHREEQC 具有用户友好性、数值稳定性、兼容性、数据格式的直观性和灵活性等特点，因此在国际上广泛使用。

1　反应路径模拟原理

反应路径表示的是一组经历不可逆反应的系统，逐渐达到局域热力学平衡状态的过程。反应路径模拟是在化学种态计算的基础上发展起来的，主要依据体系的平衡，目前它已成为研究水-岩作用的强有力工具。它主要基于如下几种方程：质量平衡方程、质量作用定律和电荷平衡方程。

PHREEQC 对反应路径的模拟有 3 种方式：(1) 通过计算反应过程与相图边界的单个交点来获取反应路径，该法并不需要知道反应的量，但必须通过一系列的模拟去找出相平衡边界点，找出这些单独的点后，在相图中就能有效地描画出反应路径；(2) 通过迭代计算的方式得到反应路径，该法只需要做一次模拟计算，但事前必须知道合适的反应量，这可以通过迭代方式得到，在 PHREEQC 中通过 Reaction 命令，逐步增加反应量，可以找出反应路径中相平衡边界点，由此能快速得到反应路径；(3) 通过反应动力学过程来获得反应路径，该法必须知道反应的动力学表达式，通过调节计算输出步骤找出相变转折点。

本工作使用 PHREEQC(Version 2.15.02)的 LLNL.DATA 数据库，采用第二种反应路径模拟法，以甘肃北山五一井地下水化学成分为实例，模拟了以黄铁矿为填料的屏障对氧化还原敏感的 U、Se、Tc 的还原阻滞作用。为更好地反映处置库的还原环境，反应体系选定为封闭体系，使用的核素浓度为 1.0×10^{-4} mol/L，液相中所加入的黄铁矿量采用 mmol/L 计算。地下水化学组分[1]列于表 1，其中 pH＝7.24，E_h＝0.345 V，处于中性环境，由于地下处置库中的 Fe 多以 Fe^{2+} 形式存在，因此在无氧的地下环境中，黄铁矿将能稳定存在于其中。

表 1　北山五一井地下水的化学组分

Table 1　Ground water chemical compositions of Wuyi well in Beishan area

离子(Ions)	$\rho/(mg\cdot L^{-1})$	离子(Ions)	$\rho/(mg\cdot L^{-1})$
Na^+	47.83	Li^+	0.011 2
SiO_2(aq)	12.91	Sr^{2+}	0.715
Ca^{2+}	73.88	Al^{3+}	0.06
K^+	8.88	SO_4^{2-}	161.8
Mg^{2+}	8.98	F^-	0.26
$Fe^{2+}+Fe^{3+}$	0.86	Br^-	0.000 1
Cu^{2+}	0.000 1	NO_3^-	10.42
NH_4^+	0.12	Cl^-	61.35
Mn^{2+}	0.022	HCO_3^-	103.7

2　结果和讨论

2.1　黄铁矿与 U(Ⅵ)的作用

铀是乏燃料的主要组成部分，是重要的放射性核素之一。在高放废物地质处置中，铀的迁移

行为受氧化形态影响，U(Ⅵ)具有较强的迁移性，U(Ⅳ)由于溶解度较低而易沉淀固定[10]。张东等[11]研究了铀在特定场址下的存在与迁移形态，得出易迁移的碳酸铀酰占绝对优势。热力学上U(Ⅵ)能被黄铁矿还原，生成稳定的沥青铀矿UO_2，其溶解度很低，易沉淀[2]。初步模拟得出的沥青铀矿饱和指数(a)随黄铁矿浓度(c_P)的变化列入表 2。由表 2 可知，当加入的黄铁矿浓度为 0.26～0.28 mmol/L 时，沥青铀矿将达到饱和。

表 2 沥青铀矿饱和指数随黄铁矿浓度(c_P)的变化

Table 2 Saturation index evolution of uraninite as a function of pyrite concentration(c_P)

c_P/(mmol·L^{-1})	a	c_P/(mmol·L^{-1})	a
0	−7.47	0.24	−18.79
0.1	−19.35	0.26	−1.23
0.2	−19.13	0.28	5.37
0.22	−19.03	0.3	5.37

进一步细化分步间隔，并给定附加条件即过饱和的UO_2沉淀析出，对黄铁矿浓度从 0.000～0.284 mmol/L 进行模拟，结果示于图 1。从图 1 可以看出，反应过程中，溶液 pH 值基本呈上升趋势，由初始溶液的 7.24 上升至 8.05，推测 U(Ⅵ)与黄铁矿的反应消耗了H^+。当c_P>0.260 mmol/L 时，沥青铀矿开始沉淀，当c_P=0.280 mmol/L 时，溶液中的总 U 浓度已由1.0×10^{-4} mol/L 降至4.24×10^{-10} mol/L，并且在此过程中所加入的

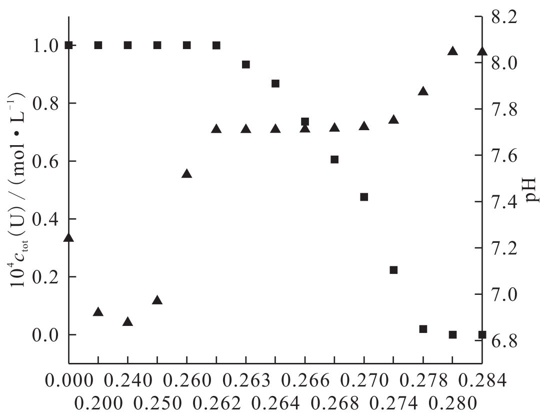

图 1 溶液中总 U 浓度及 pH 的变化图

Fig. 1 Total U concentration and pH as a function of reaction progress

■——总(Total)U，▲——pH

黄铁矿未达饱和。

由模拟结果知初始溶液中的 U 主要以+6 价形式存在，接近 100%，其中的$UO_2(CO_3)_2^{2-}$、$UO_2(CO_3)_3^{4-}$、$(UO_2)_2CO_3(OH)_3^-$占总 U(Ⅵ)的 62.34%，微量的+5 价铀和+4 铀分别以UO_2^+和$U(OH)_4$形式存在。图 2 列出了$UO_2(CO_3)_2^{2-}$、$UO_2(CO_3)_3^{4-}$、$(UO_2)_2CO_3(OH)_3^-$以及总 U(Ⅵ)浓度的走势图。从图 2 可以看出，当c_P>0.260 mmol/L 后，随着黄铁矿量的增加，U(Ⅵ)浓度开始下降；当c_P=0.280 mmol/L 时，U(Ⅵ)浓度下降至2.47×10^{-15} mol/L，另一方面 U(Ⅳ)的浓度却由初始溶液的1.44×10^{-17} mol/L 上升至4.24×10^{-10} mol/L，这个值也基本是液相中剩余的总 U 浓度。由模拟结果来看，黄铁矿可以通过还原 U(Ⅵ)，将 U 在地下水中的浓度降低到很低水平，有效阻滞其迁移。

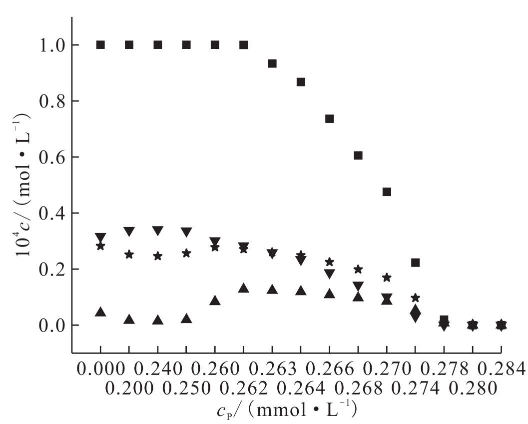

图 2 主要溶解态铀的浓度随黄铁矿浓度的变化

Fig. 2 Concentration of uranium species as a function of pyrite concentration

■——总 U(Ⅵ)，★——$UO_2(CO_3)_2^{2-}$，▲——$UO_2(CO_3)_3^{4-}$，▼——$(UO_2)_2CO_3(OH)_3^-$

UO_2^{2+}被还原，与此同时黄铁矿被氧化，生成氧化产物SO_4^{2-}和Fe^{2+}，溶液中SO_4^{2-}、Fe^{2+}和Fe^{3+}的浓度变化示于图 3。由图 3 可以看出，溶液中SO_4^{2-}和Fe^{2+}浓度一直呈上升趋势，SO_4^{2-}浓度由初始溶液的1.46×10^{-3} mol/L 升至1.95×10^{-3} mol/L，Fe^{2+}由5.84×10^{-8} mol/L 升至1.55×10^{-4} mol/L。由于Fe^{3+}能被黄铁矿还原，因而在黄铁矿存在时Fe^{3+}不能稳定存在[12]，从图 3也可以看出溶液中Fe^{3+}含量极微且变化较小。前人的研究结果表明[13-15]，含Fe^{2+}矿物能将 U(Ⅵ)还原至UO_2，相应地Fe^{2+}则被氧化成

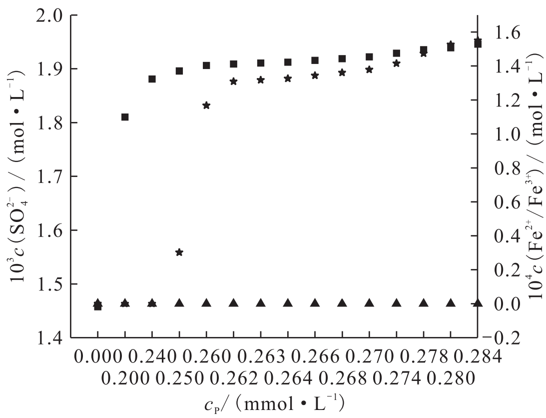

图 3　溶液中 SO_4^{2-} 和 Fe^{2+} 以及 Fe^{3+} 的变化图

Fig. 3　Concentration of SO_4^{2-}, Fe^{2+} and Fe^{3+} as a function of reaction progress

■——SO_4^{2-},★——Fe^{2+},▲——Fe^{3+}

Fe^{3+},由模拟过程中 Fe^{3+} 含量极微且变化较小可推知,黄铁矿与核素的反应主要是其中的 S_2^{2-} 在起作用。

2.2　黄铁矿与硒的反应

^{79}Se 是一种长寿命裂变产物核素,能表现五个价态:－Ⅱ、－Ⅰ、0、Ⅳ、Ⅵ,其迁移能力随价态升高而增大[16]。从热力学上来看,Se(－Ⅱ)是 Se 的最稳定态,Fe(Ⅱ)能将 Se(Ⅳ)和 Se(Ⅵ)还原为 Se(－Ⅱ)[17]。Bruggeman[4-5]的研究结果表明,黄铁矿能还原亚硒酸盐,降低其在液相中的浓度。Breynaert[18]进一步证实了亚硒酸盐与黄铁矿反应的还原产物为 Se(0)。本工作使用 PHREEQC 初步模拟得出,当黄铁矿浓度大于 0.262 mmol/L 时,反应生成的产物 Se(0)和 $FeSe_2$ 都将达到饱和,进一步细化分步区间,发现 Se(0)先于 $FeSe_2$ 达到饱和,这从理论上印证了 Breynaert 的实验结果,即亚硒酸与黄铁矿反应的还原产物为 Se(0)。若假定只有 Se(0)或 $FeSe_2$ 沉淀,结果显示溶液中的总 Se 浓度都能降至低水平,若只有 Se(0)沉淀,则在黄铁矿浓度达 0.295 mmol/L 后,$FeSe_2$ 也达饱和。因此给定附加条件,即两种产物只要达到饱和就可以沉淀,在黄铁矿浓度为 0.0～0.3 mmol/L 区间,对反应路径进行了模拟,整个模拟过程,所加入的黄铁矿未达饱和。

溶液中总 Se 浓度及 pH 的变化示于图 4。由图 4 知,黄铁矿浓度为 0.260～0.295 mmol/L 时,溶液中的总硒浓度迅速下降,当加入的黄铁矿浓度为 0.295 mmol/L 时,溶液中的总硒已由初始溶液的 1.0×10^{-4} mol/L 降至 9.36×10^{-14} mol/L,pH 值在硒浓度降低区间有上升趋势,由最初的 7.24 升至 8.22,推测黄铁矿还原硒的反应过程消耗 H^+,Bruggeman[4-5]实验结果也证实,反应过程中溶液的 pH 值有上升趋势。从溶液中硒浓度的走势来看,黄铁矿能有效降低液相中 Se 的浓度。

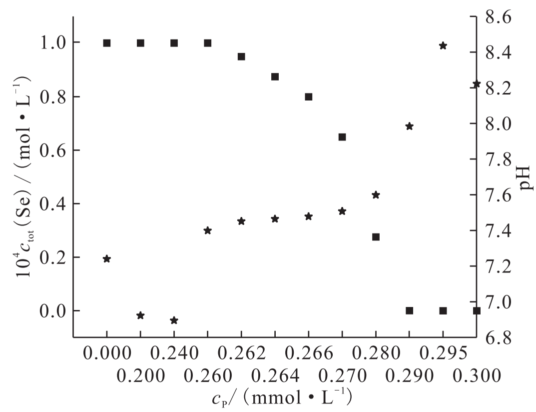

图 4　溶液中总 Se 浓度及 pH 的变化图

Fig. 4　Total Se concentration and pH as a function of reaction progress

■——总(Total)Se,★——pH

图 5 是溶液中各种形态硒以及硫酸根浓度的变化曲线。由图 5 可知,从黄铁矿浓度为 0.2 mmol/L开始,溶液中 Se(Ⅵ)的浓度一直呈下降趋势,Se(Ⅳ)的变化是先上升后下降,这可能是由于 Se(Ⅳ)是 Se(Ⅵ)还原为 Se(0)或 $FeSe_2$ 中间态的缘故。当黄铁矿浓度为 0.295 mmol/L 时,Se(Ⅵ)已下降至极低的 3.42×10^{-31} mol/L,Se(Ⅳ)则降至 5.97×10^{-16} mol/L。另一方面,

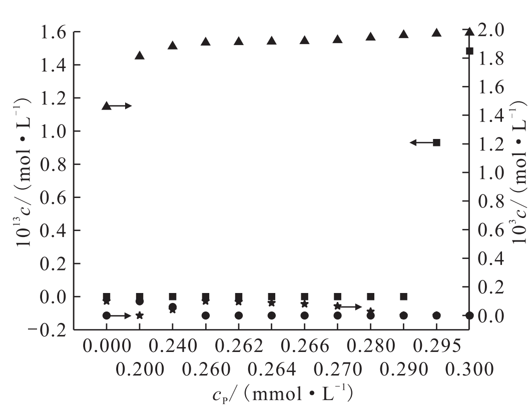

图 5　溶液中各种形态 Se 及 SO_4^{2-} 的浓度变化图

Fig. 5　Concentration of various Se and SO_4^{2-} as a function of reaction progress

■——Se(－Ⅱ),★——Se(Ⅳ),●——Se(Ⅵ),▲——SO_4^{2-}

Se(—Ⅱ)的浓度由 1.3×10^{-38} mol/L 升至 9.3×10^{-14} mol/L，SO_4^{2-} 浓度由 1.46×10^{-3} mol/L 上升至 1.97×10^{-3} mol/L，这反映了黄铁矿能作为强还原剂将 Se(Ⅳ)和 Se(Ⅵ)还原同时自身被氧化。从上述分析结果来看，黄铁矿能极大的降低 Se 在水溶液中的浓度，对放射性核素的安全处置来说，能有效地阻滞^{79}Se 的迁移。

2.3 黄铁矿与锝的反应

核裂变产物^{99}Tc 半衰期长($T_{1/2}=2.13\times10^5$ a)，在放射性废物中产率高，研究锝的行为和归宿对核废料地质处置的性能评价具有重要意义。刘德军等[19]研究了 Fe、Fe_2O_3 和 Fe_3O_4 对^{99}Tc的吸附作用，表明了 TcO_4^- 在铁的锈蚀产物上的吸附机制各不相同，Cui[20]报道 Fe(Ⅱ)矿物 $Fe(OH)_2$(s) 和 $FeCO_3$(s)能将 Tc(Ⅶ)还原为低溶解度的 $TcO_2\cdot nH_2O$，Maes[6]的研究结果证实黄铁矿能将 Tc(Ⅶ)还原为易沉淀的 Tc(Ⅳ)。本工作利用甘肃北山五一井地下水为溶液，初步模拟结果表明，当加入的黄铁矿浓度为 0.25～0.28 mmol/L 时，反应生成的 Tc、$Tc(OH)_2$、$Tc(OH)_3$、Tc_2S_7、Tc_3O_4、Tc_4O_7、$TcO_2\cdot2H_2O$、TcOH、TcS_2、TcS_3等均将达到过饱和。如果假定只有某一种矿物达饱和沉淀，则除 Tc_2S_7、TcS_2、TcS_3外，其它矿物都能满足在黄铁矿浓度为 0.31 mmol/L时，将溶液中的 Tc 降至极低水平。若将黄铁矿浓度加大至 0.5 mmol/L，则 Tc_2S_7、TcS_2、TcS_3中的任一种矿物沉淀也能将总 Tc 降低至 1.0×10^{-36} mol/L 的极低水平，此时加入的黄铁矿均未达饱和。现假定以上矿物只要达到饱和就沉淀，对反应路径进行了模拟，得到溶液中总 Tc 浓度及 pH 的变化示于图 6。由图 6 可知，当黄铁矿的浓度为 0.31 mmol/L 时，液相中的总 Tc 浓度由初始溶液的 1.0×10^{-4} mol/L 降至 3.63×10^{-16} mol/L，同时在 Tc 浓度降低区间，pH 值呈渐增趋势。

图 7 表示的是溶液中 Tc(Ⅶ)和 SO_4^{2-} 浓度的变化曲线。由于低价态的 Tc 具有较低的溶解度，液相中总 Tc 浓度在降至 3.63×10^{-16} mol/L 之前，几乎 100%以 Tc(Ⅶ)存在，结合图 6 也可以看出总 Tc 和 Tc(Ⅶ)浓度的变化轨迹接近一致。Tc 被还原至低价态而沉淀，黄铁矿则被氧化，生成氧化产物 SO_4^{2-}，从图 7 可以看出，SO_4^{2-} 浓度呈递增趋势。由模拟结果来看，黄铁矿能非常有效地将 Tc 在地下水中的浓度降至极低水平，这对核素的迁移阻滞来说具有重要意义。

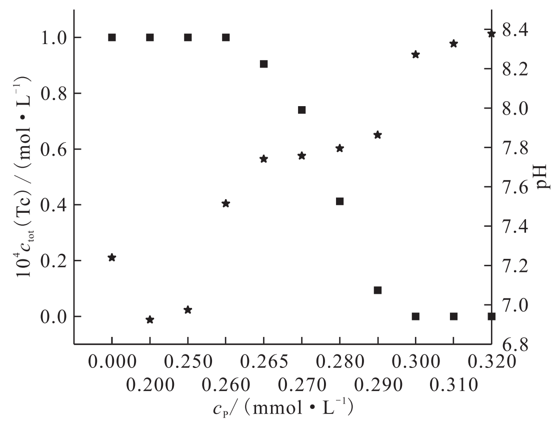

图 6 溶液中总 Tc 浓度及 pH 的变化图

Fig. 6 Total Tc concentration and pH as a function of reaction progress

■——总(Total)Tc，★——pH

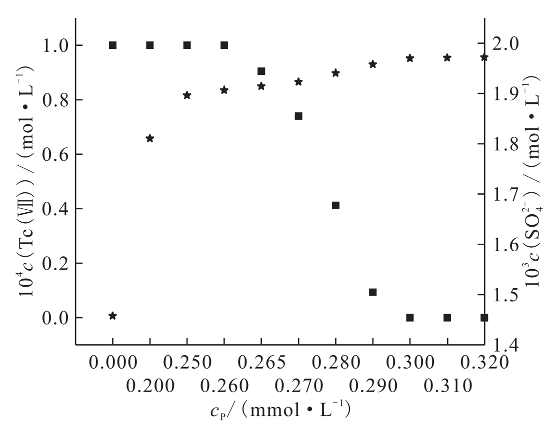

图 7 溶液中 Tc(Ⅶ)及 SO_4^{2-} 浓度的变化图

Fig. 7 Concentration of total Tc(Ⅶ) and SO_4^{2-} as a function of reaction progress

■——Tc(Ⅶ)，★——SO_4^{2-}

2.4 还原次序的比较

以北山五一井地下水为溶液，假设其中同时含有 U、Se 和 Tc，其浓度均为 1.0×10^{-4} mol/L，溶液中 Se、Tc 和 U 的浓度变化示于图 8。由图 8 可知，从黄铁矿浓度为0.260 mmol/L开始，随着黄铁矿浓度的增加，溶液中 Se 的浓度急剧下降，在黄铁矿浓度 $c_P=0.34$ mmol/L时，液相中的 Se 浓度降至 5.92×10^{-14} mol/L，U 的浓度在黄铁矿浓度 $c_P=0.290$ mmol/L 才开始下降，$c_P=0.34$ mmol/L时降至 3.02×10^{-9} mol/L，而 Tc 的浓度则需要 $c_P=0.296$ mmol/L 才减少，$c_P=0.34$ mmol/L 时降至 2.04×10^{-13} mol/L。与单独模拟结果相比可知，混合溶液中 U 和 Tc 浓度需要在黄铁矿浓度更高

情况下才开始降低，而 Se 浓度基本不受影响，因此共存的核素间存在相互影响，从分析结果来看，Se 相比 U 和 Tc 更易被还原。从热力学上来看，$UO_2^{2+}/UO_2(s)$ 的标准电极电位 $E^{\ominus}=0.41$ V，$TcO_4^-/TcO_2(s)$ 和 $TcO_4^-/Tc(s)$ 的标准电极电位分别为 0.736、0.472 V[21]，而 $H_2SeO_3/Se(0)$、$HSeO_3^-/Se(0)$ 和 $SeO_3^{2-}/Se(0)$ 的标准电极电位则分别为 0.740、0.780 和 0.903 V，均大于 UO_2^{2+} 和 TcO_4^- 的标准还原电极电位，因此 Se 优先被还原并消耗部分黄铁矿，使得加入的黄铁矿量需在更多的情况下 U 和 Tc 浓度才开始下降。

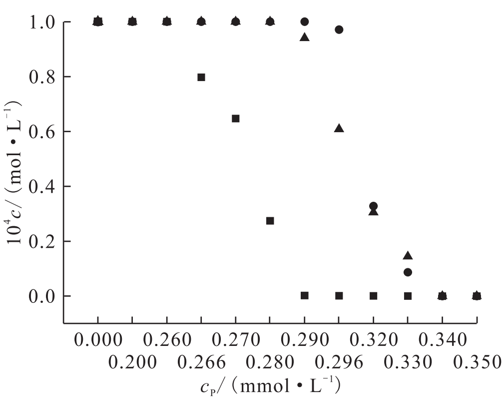

图 8　溶液中 Se、Tc 和 U 的浓度变化图

Fig. 8　Concentration of total Se, Tc and U as a function of reaction progress

■——Se，●——Tc，▲——U

3　结　论

反应路径模拟能较好地反映化学反应过程中各种物质组分的变化情况。本工作使用具有庞大热力学数据库的 PHREEQC 软件，以中国甘肃北山五一井地下水为实例，对黄铁矿还原 U、Se、Tc 的反应路径进行了模拟，并对核素共存状态下的还原次序进行了探讨。对单一核素的模拟结果表明，由于黄铁矿具有较强的还原性，在其加入量达到一定程度后（未饱和），均能将氧化还原敏感的 U、Se、Tc 的浓度降低至极低水平，并且在此过程中，pH 呈现出不同程度的升高，从而能更加有效地阻滞放射性核素的迁移。对核素还原次序的模拟结果表明，共存的核素之间存在相互影响，Se 优先被黄铁矿还原，U、Tc 则因 Se 的存在还原相对滞后。模拟结果不仅在理论上证实了黄铁矿还原放射性核素的可行性，而且量化了其反应深度，对今后进一步开展这方面的实验工作以推进黄铁矿在高放废物地质处置库中的应用具有重要的现实意义。

参考文献：

[1] 王　驹，范显华，徐国庆. 中国高放废物地质处置研究十年进展[M]. 北京：原子能出版社，2004.

[2] Eglizaud N, Miserque F, Simoni E, et al. Uranium(Ⅵ) Interaction With Pyrite (FeS_2): Chemical and Spectroscopic Studies[J]. Radiochim Acta, 2006, 94(9-11): 651-656.

[3] Naveau A, Monteil-Rivera F, Guillon E, et al. Interactions of Aqueous Selenium (－Ⅱ) and (Ⅳ) With Metallic Sulfide Surfaces[J]. Environ Sci Technol, 2007, 41(15): 5 376-5 382.

[4] Bruggeman C, Maes A, Vancluysen J, et al. Selenite Reduction in Boom Clay: Effect of FeS_2, Clay Minerals and Dissolved Organic Matter[J]. Environ Pollut, 2005, 137(2): 209-221.

[5] Bruggeman C, Vancluysen J, Maes A. New Selenium Solution Speciation Method by Ion Chromatography Plus Gamma Counting and Its Application to FeS_2-Controlled Reducing Conditions[J]. Radiochim Acta, 2002, 90(9-11): 629-635.

[6] Maes A, Geraedts K, Bruggeman C, et al. Evidence for the Interaction of Technetium Colloids With Humic Substances by X-Ray Absorption Spectroscopy[J]. Environ Sci Technol, 2004, 38(7): 2 044-2 051.

[7] De Windt L, Schneider H, Ferry C, et al. Modeling Spent Nuclear Fuel Alteration and Radionuclide Migration in Disposal Conditions[J]. Radiochim Acta, 2006, 94(9-11): 787-794.

[8] Aubriet H, Humbert B, Perdicakis M. Interaction of U(Ⅵ) With Pyrite, Galena and Their Mixtures: A Theoretical and Multitechnique Approach[J]. Radiochim Acta, 2006, 94(9-11): 657-663.

[9] Bruggeman C, Maes A, Vancluysen J. The Identification of FeS_2 as a Sorption Sink for Tc(Ⅳ)[J]. Phys Chem Earth, 2007, 32(8-14): 573-580.

[10] Li W J, Zhao J J, Li C S, et al. Speciation Measurements of Uranium in Alkaline Waters Using Diffusive Gradients in Thin Films Technique[J]. Anal Chim Acta, 2006, 575(2): 274-280.

[11] 张　东，李宽良，康厚军. 铀在特定场址地下水中存在和迁移形态研究及其沉积热力学分析[J]. 核化学与放射化学，2004，26(1)：43-47.

[12] Rimstidt J D, Vaughan D J. Pyrite Oxidation: A State-of-the-Art Assessment of the Reaction Mecha-

nism[J]. Geochim Et Cosmochim Acta, 2003, 67(5): 873-880.

[13] Liger E, Charlet L, Van Cappellen P. Surface Catalysis of Uranium(Ⅵ) Reduction by Iron(Ⅱ)[J]. Geochim Cosmochim Acta, 1999, 63(19-20): 2 939-2 955.

[14] O'Loughlin E J, Kelly S D, Cook R E, et al. Reduction of Uranium(Ⅵ) by Mixed Iron(Ⅱ)/Iron(Ⅲ) Hydroxide(Green Rust): Formation of UO_2 Manoparticies[J]. Environ Sci Technol, 2003, 37(4): 721-727.

[15] Jeon B H, Dempsey B A, Burgos W D, et al. Chemical Reduction of U(Ⅵ) by Fe(Ⅱ) at the Solid-Water Interface Using Natural and Synthetic Fe(Ⅲ) Oxides[J]. Environ Sci Technol, 2005, 39(15): 5 642-5 649.

[16] Chen F R, Burns P C, Ewing R C. Se-79: Geochemical and Crystallo-Chemical Retardation Mechanisms[J]. J Nucl Mater, 1999, 275(1): 81-94.

[17] Myneni S C B, Tokunaga T K, Brown G E. Abiotic Selenium Redox Transformations in the Presence of Fe(Ⅱ, Ⅲ) Oxides[J]. Science, 1997, 278(5 340): 1 106-1 109.

[18] Breynaert E, Bruggeman C, Maes A. XANES-EXAFS Analysis of Se Solid-Phase Reaction Products Formed Upon Contacting Se(Ⅳ) With FeS_2 and FeS[J]. Environ Sci Technol, 2008, 42(10): 3 595-3 601.

[19] 刘德军,范显华,章英杰,等. ^{99}Tc 在 Fe,Fe_2O_3 和 Fe_3O_4 上的吸附行为研究[J]. 核化学和放射化学,2004,26(1):23-28.

[20] Cui D Q, Eriksen T E. Reduction of Pertechnetate by Ferrous Iron in Solution: Influence of Sorbed and Precipitated Fe(Ⅱ)[J]. Environ Sci Technol, 1996, 30(7): 2 259-2 262.

[21] 刘德军,范显华,章英杰,等. ^{99}Tc 在模拟地质条件下的迁移行为研究概况[J]. 核科学与工程,2004,24(1):6-11.

会议通知

第九届全国核化学与放射化学学术研讨会第一轮通知

为促进我国核化学与放射化学的发展,经中国核学会核化学与放射化学分会第七届委员会第五次常务委员会研究决定,拟于 2010 年 8 月下旬在内蒙古自治区赤峰市召开"第九届全国核化学与放射化学学术研讨会"。

本次会议拟邀请国内著名学者作涉及学科前沿和交叉学科的大会特邀报告,并按专业组分组进行学术研讨与交流。会议期间将召开第七届六次常务委员会及《核化学与放射化学》编委会,拟对委员进行适当增补,并进行编委换届,敬请各位委员、期刊编委以及学者踊跃参加。

本次会议涉及范围主要包括以下几个方面:1) 核燃料化学;2) 核化学;3) 放射分析化学及仪器分析;4) 分离技术及示踪原子应用;5) 核药物化学与标记化合物;6) 环境放射化学;7) 放射性三废处理与处置技术;8) 其他相关核基础研究。

会务组联系人:丁有钱(13701019250);孙宏清(13641036782)

邮政地址:北京 275 信箱 126 分箱,邮编:102413

电话/传真:010-69357410

E-mail:cncr@ciae. ac. cn

中国核学会核化学与放射化学分会