

天然土壤胶体对 U(VI) 迁移的影响

杨耘博^{1,2}, 王 威^{1,2}, 王 贇^{1,2}, 王晶晶¹, 李 平^{1,*}, 梁建军¹, 范桥辉¹

1. 中国科学院 西北生态环境资源研究院, 甘肃省油气资源研究重点实验室, 甘肃 兰州 730000;

2. 中国科学院大学, 北京 100049

摘要:以石英砂为填充介质,采用动态柱实验方法研究了某中低放处置场地表土壤胶体对U(VI)在石英砂柱中迁移行为的影响,并结合静态批式实验探究了土壤胶体对U(VI)迁移的影响机制。结果表明,当U(VI)进样质量浓度从1.0 mg/L增大至5.0 mg/L时,U(VI)在石英砂柱中的穿透速率显著增大,且达到洗脱平衡时所需淋洗液的体积从250 PVs(孔隙体积)增大至400 PVs。与U(VI)相比,土壤胶体在石英砂柱内迁移较快,这可能是由于土壤胶体与石英砂之间相互作用较弱所致。土壤胶体与U(VI)共存体系中,U(VI)的迁移速率明显增大,而土壤胶体迁移速率无显著变化,表明共存体系中U(VI)的迁移行为主要受土壤胶体所控制。静态吸附实验表明,在石英砂-U(VI)二元体系中,pH≈6.0时石英砂对U(VI)的吸附率最大,而在胶体-石英砂-U(VI)三元体系中,U(VI)主要在土壤胶体表面发生吸附。本研究所用土壤中胶体的质量分数仅约占0.04%,但可吸附20%U(VI)(初始质量浓度为5.0 mg/L);由此可见,土壤胶体可与U(VI)发生强的相互作用,进而对U(VI)在真实环境体系中的吸附、迁移和扩散等行为产生至关重要的影响。

关键词:柱实验;迁移;U(VI);土壤胶体;吸附

中图分类号:TL942.1 **文献标志码:**A **文章编号:**0253-9950(2019)04-0391-08

doi:10.7538/hhx.2019.41.04.0391

Influence of Natural Soil Colloids on Transport of U(VI)

YANG Yun-bo^{1,2}, WANG Wei^{1,2}, WANG Yun^{1,2}, WANG Jing-jing¹, LI Ping^{1,*},
LIANG Jian-jun¹, FAN Qiao-hui¹

1. Key Laboratory of Petroleum Resources of Gansu Province, Northwest Institute
of Eco-Environment and Resources, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract: The transport behavior of U(VI) in the presence of soil colloids was investigated by column experiments using quartz sand as the porous media, and batch technique was further applied to explore the mechanism of U(VI) transport in the presence of soil colloids. The results show that when the initial mass concentration of U(VI) increases from 1.0 mg/L to 5.0 mg/L, the transport rate of U(VI) significantly increases, and the required leachate volume increases from 250 PVs(pore volume) to 400 PVs, reaching the elution equilibrium. Compared with U(VI), the soil colloids transport much faster in the quartz column, mainly owing to the weak interaction between the soil colloids and the quartz sand. In the presence

收稿日期:2019-01-31;修订日期:2019-03-28

作者简介:杨耘博(1994—),男,黑龙江大庆人,硕士研究生,地球化学专业,E-mail: 1157565244@qq.com

* 通信联系人:李 平(1987—),男,江苏南京人,助理研究员,放射化学专业,E-mail: liping@lzb.ac.cn

of soil colloids, the transport rate of U(VI) is remarkably improved, while the breakthrough curve of soil colloids do not change obviously, which indicates that the transport behavior of U(VI) in the ternary system of colloid-U(VI)-quartz is mainly controlled by soil colloids. In the binary system of U(VI)-quartz, the sorption of U(VI) on quartz is maximized at $\text{pH} \approx 6.0$, while in the ternary system of colloid-U(VI)-quartz almost all U(VI) is adsorbed on the soil colloids, and the contribution of quartz can be negligible. It is noted that about 20% U(VI) (initial mass concentration is 5.0 mg/L) is adsorbed on soil colloids, which only accounts for 0.04% of the studied soil. The strong interaction between soil colloids and U(VI) suggests that soil colloids have a crucial impact on U(VI) adsorption, transport and diffusion in the environment.

Key words: column experiment; transport; U(VI); soil colloids; adsorption

从铀矿开采、核燃料加工、核能发电、乏燃料处理到核废料处置的整个过程中,铀(U)都将不可避免地进入到环境体系^[1-3]。通常,U主要以U(VI)的形式存在于环境体系中,易于随地下水和地表水迁移和扩散,最终可通过食物链进入生物圈,可对人类生命健康和生态安全造成直接危害和潜在威胁^[4-7]。通常,一旦U进入环境体系,可与环境介质发生复杂的物理、化学、生物反应,例如吸附/解吸、迁移、扩散、转化、循环和归趋等^[8-9]。国内外学者对U(VI)在真实环境介质中的吸附行为做了大量的研究,例如石英砂、黏土矿物、云母、氧化物和花岗岩等^[10-11]。然而,对于U(VI)在环境介质中迁移和扩散等行为研究仍不够深入。近年来,越来越多的野外和实验室研究数据表明,胶体可能是地下水系中放射性核素迁移和扩散的重要载体^[12-14]。然而,前期研究多集中于单一矿物胶体对U(VI)迁移行为的影响,例如膨润土胶体^[15]、高岭石胶体^[16]、伊利石胶体^[17]等。由于真实土壤胶体的组成复杂、各组分与U(VI)作用能力存在差异,土壤胶体对U(VI)在环境体系中迁移行为的调控机制研究尚存争议^[18-22]。Krawczyk-BaRsch等^[23]发现在铁绿泥石陈化过程中,会产生Fe-OH类胶粒,该类胶粒对U(VI)具有较高吸附能力,进而可显著促进U(VI)的迁移。Wang等^[24]发现酸性条件下富啡酸(FA)能增强石英砂对Yb(III)和Eu(III)的吸附,可显著阻滞Yb(III)和Eu(III)在石英砂中的迁移和扩散;而碱性条件下,FA则可显著抑制Yb(III)和Eu(III)在石英砂上的吸附,促进Yb(III)和Eu(III)的迁移。因此,开展真实土壤胶体对U(VI)迁移行为影响的研究对评估U(VI)在自然环境中迁移行为具有重要意义。

本工作采用我国某中低放处置场周边的土壤样品制备土壤胶体,通过动态柱实验探究U(VI)浓度以及天然土壤胶体等因素对U(VI)在石英砂柱中的迁移规律,并采用静态吸附实验探究天然土壤胶体对U(VI)在石英砂柱中迁移行为的影响机制。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

所用试剂均为分析纯且未经进一步处理。 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 储备液制备:使用分析天平称取0.5273 g六水合硝酸铀酰($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$),以250 mL 1.0 mmol/L HNO_3 溶解,配制成1 000 mg/L储备液,备用。

CPA225D分析天平,精度万分之一,德国Sartorius科学仪器有限公司;HITACHI S-4800场发射扫描电子显微镜(SEM),日本日立高新技术有限公司;RIGAKU D/max-2400 X射线衍射仪(XRD),日本理学公司;WS-300型恒温振荡器,德国Wiggins公司;Zeta PALS 190 Plus Zeta电位及粒度分析仪,美国布鲁克海文仪器公司;Optima 8000电感耦合等离子发射光谱(ICP-OES),美国PerkinElmer仪器有限公司;UV-1800紫外-可见分光光度计,上海尤尼柯仪器有限公司。

1.2 样品准备

实验所用土壤样品采自我国某中低放废物处置库附近地表土壤。土壤经风干、去除岩石颗粒和植物残体、研磨并过300目筛。将50 g土壤分散至5.0 L去离子水中,搅拌30 min、超声分散30 min、静置15 d,采用Stocks定律-沉降虹吸法提取土壤胶体^[25]。所提取土壤胶体经冷冻干燥、研磨后待用。剩余土壤非胶体组分以去离子水清

洗后,冷冻干燥、研磨待用。土壤胶体溶液制备:称取 60 mg 上述土壤胶体,分散至 1.0 L 去离子水中,经搅拌分散后超声处理 2 h,所得胶体溶液于 5 °C 避光保存。U(VI)-土壤胶体混合溶液制备:称取 60 mg 土壤胶体,分散至 995 mL 去离子水中,加入 5.0 mL 1 000 mg/L U(VI)溶液,经搅拌分散后超声处理 2 h,得 U(VI)质量浓度为 5.0 mg/L 的 U(VI)-土壤胶体混合溶液;使用相同方法可制备含 1.0 mg/L U(VI)的 U(VI)-土壤胶体混合溶液。

吸附 U(VI)土壤胶体样品制备:称取适量土壤胶体,置于 10 mL 离心管中,添加 5.0 mL 5.0 mg/L U(VI)溶液,混合液于 25 °C 条件下振荡 48 h 后,冷冻干燥、研磨、备用。

1.3 样品表征

利用 SEM 研究样品的形貌特征。采用 XRD 对样品的矿物成分进行分析,测试条件为:K α Cu 靶,管压 40 kV,管电流 100 mA,扫描速率为 5°/min,步长为 0.02°。使用 Zeta 电位分析仪对土壤胶体 Zeta 电势进行测定,每个样品重复测试 12 次并计算误差。

1.4 动态柱实验

本工作所采用的动态柱实验装置示于图 1,迁移实验均在开放体系中进行,实验柱的相关参数列于表 1,通过排水法测定柱内孔隙体积(PVs)。

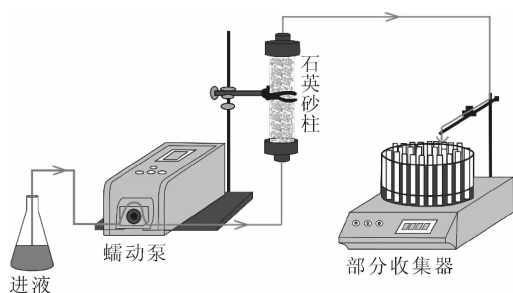


图 1 动态柱实验装置

Fig. 1 Dynamic column experimental device

表 1 柱实验条件

Table 1 Experimental conditions

| 参数 | 数值 |
|-------|-------------|
| 柱长 | 10 cm |
| 柱内径 | 2.5 cm |
| 石英砂质量 | 80 g |
| 石英砂粒径 | >69 μ m |
| 孔隙体积 | 20.6 mL |
| 进液流速 | 0.6 mL/min |

实验开始前,将去离子水 pH 值调节至 6.0,并对石英砂柱进行预平衡冲洗至流出液 pH \approx 6.0。随后,向石英砂柱中连续泵入含有 U(VI)、土壤胶体或 U(VI)-胶体的溶液;在不同孔隙体积处收集流出液,并测定流出液中 U(VI)及胶体浓度。洗脱阶段,采用去离子水或土壤胶体溶液对石英砂柱中 U(VI)进行洗脱(无特别说明时,洗脱液均为去离子水)。

采用显色法测定样品中 U(VI)浓度:向 25 mL 容量瓶中依次加入 1.0 mL 待测样品、1.0 mL $w=0.1\%$ 偶氮胂 III 和 1.0 mL 0.5 mol/L HNO $_3$ 溶液,用去离子水定容后静置 15 min,在 650 nm 处测吸光度^[26]。对于 U(VI)浓度低于 1.0 μ mol/L 的样品,采用 ICP-OES 测定其 U(VI)浓度。采用紫外-可见分光光度计测定土壤胶体浓度,测试波长为 210 nm。U(VI)和土壤胶体的穿透曲线(BTCs)用相对浓度 C/C_0 表达(C 为流出液中 U(VI)或土壤胶体的即时浓度, C_0 为注入液中 U(VI)或土壤胶体的初始浓度)。

1.5 静态吸附实验

U(VI)在石英砂上的吸附:向 10 mL 试管中加入 0.5 g 石英砂及一定量 U(VI)储备液,加入适量去离子水使吸附体系总体积为 6.0 mL。用少量 HCl 或 NaOH 溶液调节溶液 pH。在 25 °C 下振荡 48 h 后,离心分离(12 000 r/min,30 min),测定上清液中 U(VI)浓度和 pH。

土壤胶体-石英砂体系中 U(VI)的吸附:向 10 mL 试管中加入 0.5 g 石英砂、5.0 mL 60 mg/L 土壤胶体溶液及一定量的 U(VI)储备液,加入适量去离子水使总体积为 6.0 mL。用少量 HCl 或 NaOH 溶液调节溶液 pH。在 25 °C 下振荡 48 h 后,离心分离(12 000 r/min,30 min),测定上清液中 U(VI)浓度和 pH。

U(VI)在土壤上的吸附:向 25 mL 试管中加入 0.15 g 土壤、9.0 mL 去离子水和 1.0 mL 50 mg/L U(VI),分散均匀后用少量 HCl 或 NaOH 溶液调节溶液 pH。在 25 °C 下振荡 48 h 后,静置 30 d。取 2.0 mL 上层胶体溶液,测定其胶体浓度。取 2.0 mL 上层胶体溶液,离心后测量上清液中 U(VI)浓度($C_{\text{溶液}}$)。另取 2.0 mL 上层胶体溶液,加入 1.0 mL 0.5 mol/L HNO $_3$ 溶液进行解吸,离心分离(12 000 r/min,30 min),测定上清液中 U(VI)浓度($C_{\text{溶液+胶体}}$)。根据以上结果分别计算土壤中胶体和非胶体组分中 U(VI)浓度:

$$C_{\text{胶体}} = C_{\text{溶液+胶体}} - C_{\text{溶液}}, C_{\text{非胶体}} = C_{\text{总}} - C_{\text{溶液+胶体}}。$$

2 结果与讨论

2.1 样品表征

图2为原始土壤、土壤非胶体组分、土壤胶体及吸附U(VI)后土壤胶体的SEM图。由图2(a)可看出,土壤颗粒尺寸不均一,发现块状和片层状

矿物,这可能与土壤组成矿物较为复杂有关(见XRD部分)。土壤经过多次水洗后,片层状矿物消失,非胶体组分呈现块状且尺寸较大(图2(b))。胶体组分尺寸较小($\approx 2 \mu\text{m}$),且形貌特征以片层状和纤维状为主(图2(c))。土壤胶体吸附U(VI)后,形貌特征无显著变化,但土壤胶体发生了一定程度的团聚(图2(d))。

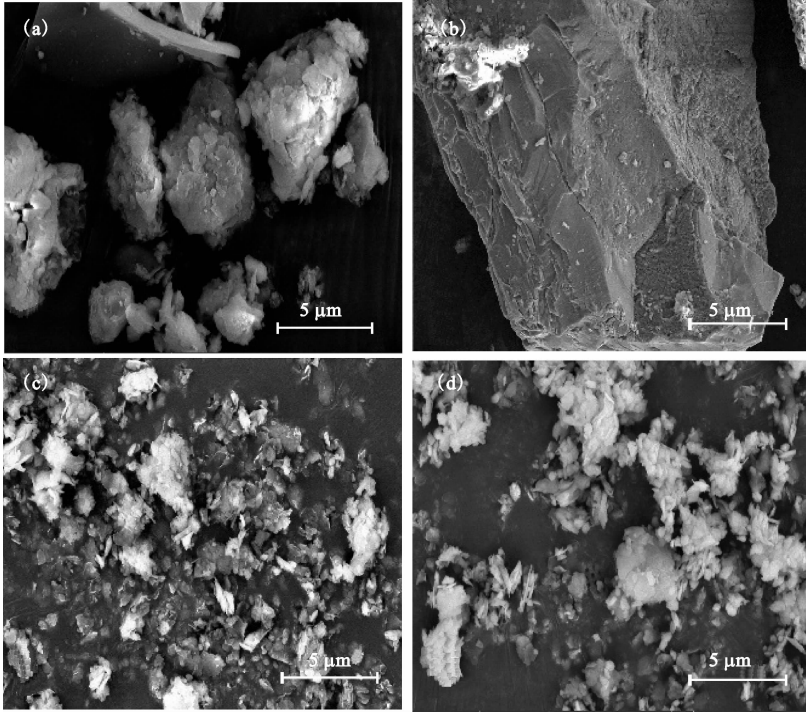


图2 原始土壤(a)、土壤非胶体组分(b)、土壤胶体(c)和吸附U(VI)后的土壤胶体(d)SEM图

Fig. 2 SEM images of raw soil(a), non-colloid component(b), soil colloids(c), and soil colloids adsorbed U(VI)(d)

图3为四种土壤样品的XRD图谱。由图3可知,原始土壤的矿物组成主要为石英(Qtz)、钠长石(Ab)、蒙脱石(Mnt)、云母(KInt)、伊利石(III)、蛭石(Vrm)、绿泥石(Chl)等。土壤胶体的组成矿物主要为黏土矿物,包括蒙脱石、伊利石、蛭石、绿泥石等,并伴有少量的石英。土壤非胶体组分的组成矿物与原始土壤相似,但是非胶体组分中的黏土矿物含量显著降低,而石英和长石含量显著升高。土壤胶体吸附U(VI)后,其矿物组成未发现显著变化。

较高的稳定性。

图4为不同pH下土壤胶体的Zeta电势。由图4可知:随着pH升高,土壤胶体的Zeta电势呈现迅速减小趋势;且在整个pH范围内(1.5~10.0),土壤胶体Zeta电势均小于零。Zeta电势特征说明在较大pH范围内,该土壤胶体可保持

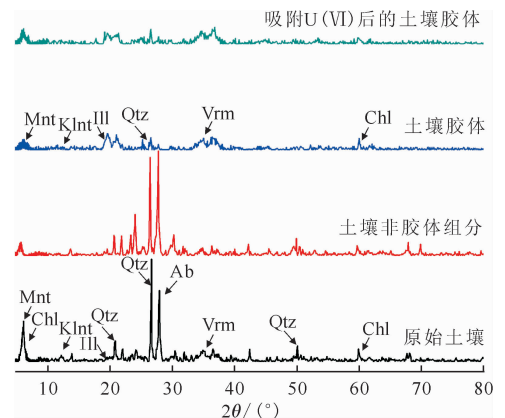


图3 四种土壤样品XRD图谱

Fig. 3 XRD of raw soil, non-colloid component, soil colloids, and soil colloids adsorbed U(VI)

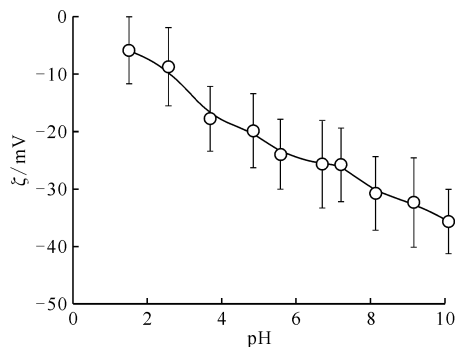


图4 不同 pH 下土壤胶体的 Zeta 电势

Fig. 4 Zeta potentials of soil colloids in different pH

2.2 天然胶体及 U(VI) 的迁移行为

天然胶体和 U(VI) 在石英砂柱中的迁移行为示于图 5。由图 5 可看出,在 50 PVs 时,土壤胶体的 $C/C_0 > 0.95$,表明土壤胶体在石英砂上吸附已经达到饱和^[27]。当 $pH \approx 6.0$ 时,石英砂表面带负电荷(石英砂零电势点的 $pH \approx 2.0$)^[28],而此时土壤胶体 Zeta 电势为 -24.9 mV。由于静电排斥作用,土壤胶体在石英砂柱中穿透速率较快且容易洗脱。与土壤胶体相比,U(VI) 在石英砂柱中的穿透速率较慢,这是由于 U(VI) 在石英砂表面发生较强的吸附作用。U(VI) 进样浓度较低时,U(VI) 更易被石英砂表面吸附而使得穿透速率较慢;而 U(VI) 浓度较高时,石英砂表面吸附位点较容易饱和,U(VI) 穿透速率更快^[9]。当 U(VI) 进样质量浓度为 1.0 mg/L 时,其达到洗脱平衡所需淋洗液体积约为 250 PVs;而 U(VI) 进样质量浓度为 5.0 mg/L 时,达到洗脱平衡则需要约

400 PVs 淋洗液,这主要与 U(VI) 与 SiO_2 表面的吸附形态有关。有研究^[29]表明, SiO_2 表面存在两种不同吸附位点(容量低的强位点和容量高的弱位点);当 U(VI) 负载量较低时主要与强位点发生吸附作用,而 U(VI) 负载量较高时,则主要与弱位点发生吸附作用,进而导致其穿透和洗脱行为的差异。

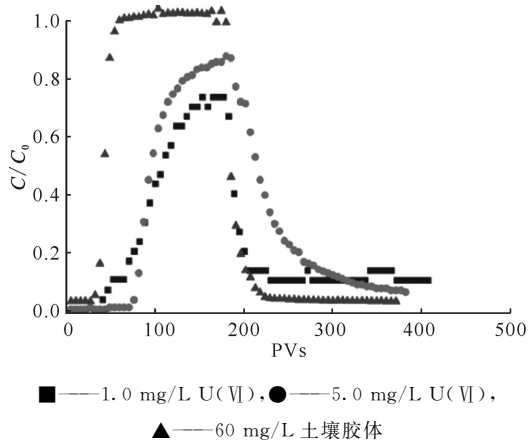
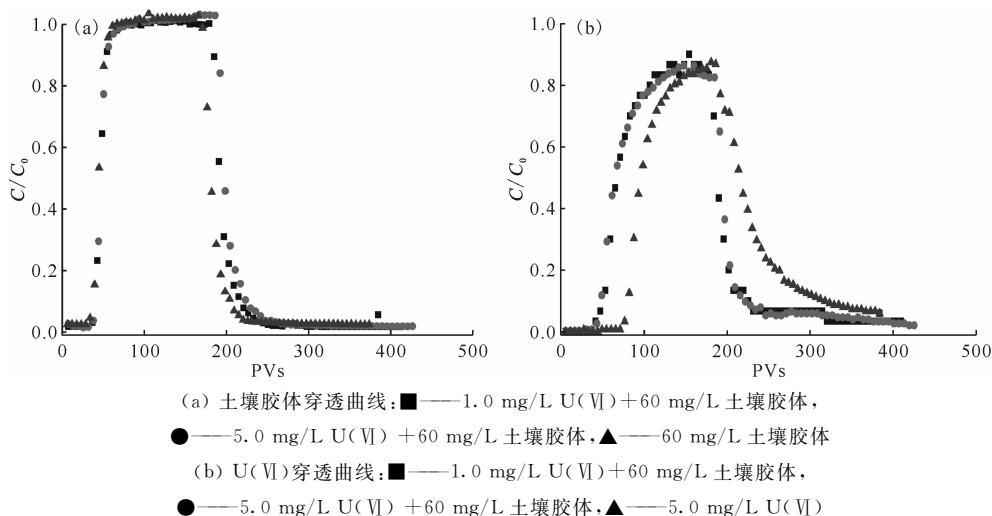


图5 U(VI) 及土壤胶体单组分穿透曲线 ($pH \approx 6.0$)

Fig. 5 BTCs of U(VI) and soil colloids ($pH \approx 6.0$)

2.3 土壤胶体-U(VI) 共迁移

图 6 为 U(VI) 和胶体协同迁移穿透曲线。有研究^[18]表明,U(VI) 会影响胶体的稳定性,进而影响胶体的迁移行为。SEM(图 2(c)和 2(d)) 分析表明,吸附 U(VI) 后土壤胶体发生了一定程度的团聚。然而,土壤胶体-U(VI) 体系中土壤胶体在石英砂柱中穿透曲线与单一土壤胶体的穿透曲线几乎重合(如图 6(a)所示),说明 U(VI) 吸附造



(a) 土壤胶体穿透曲线: ■—— 1.0 mg/L U(VI) + 60 mg/L 土壤胶体, ●—— 5.0 mg/L U(VI) + 60 mg/L 土壤胶体, ▲—— 60 mg/L 土壤胶体
(b) U(VI) 穿透曲线: ■—— 1.0 mg/L U(VI) + 60 mg/L 土壤胶体, ●—— 5.0 mg/L U(VI) + 60 mg/L 土壤胶体, ▲—— 5.0 mg/L U(VI)

图6 U(VI) 和胶体协同迁移穿透曲线 ($pH \approx 6.0$)

Fig. 6 BTCs of co-transported soil colloids and U(VI) ($pH \approx 6.0$)

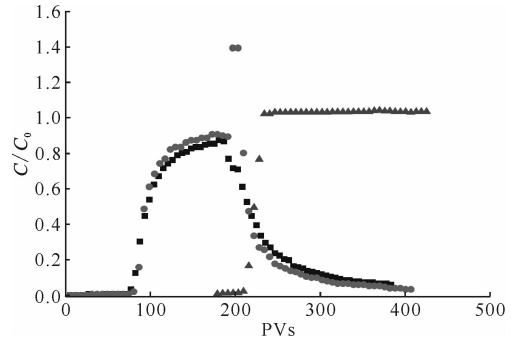
成的轻微团聚不能显著改变土壤胶体的迁移行为。相比于单一U(VI)体系,土壤胶体可显著促进U(VI)在石英砂柱中的迁移。当土壤胶体存在时,U(VI)进样浓度对U(VI)在石英砂柱中的迁移行为无显著影响(图 6(b)),进一步说明此时土壤胶体可携带U(VI)发生共迁移,这与 Du 等^[9]的研究结果相符。

为了进一步验证土壤胶体对U(VI)的携带作用,实验将土壤胶体溶液作为淋洗液对吸附U(VI)的石英砂柱进行淋洗,结果示于图 7。使用土壤胶体溶液淋洗时,随着胶体的穿透,淋出液中U(VI)的浓度急剧增加,明显高于相同条件下使用去离子水作为淋洗液时U(VI)的浓度。这一现象证实土壤胶体与U(VI)的作用明显高于石英砂与U(VI)的作用,因此,土壤胶体对U(VI)在环境介质中迁移和扩散等行为的影响至关重要。

2.4 静态吸附实验

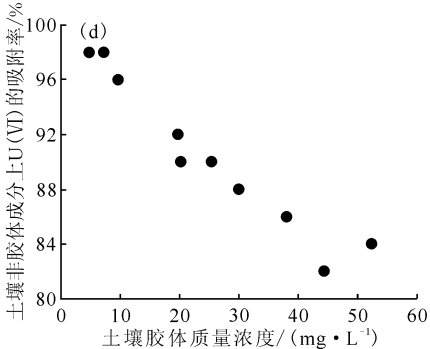
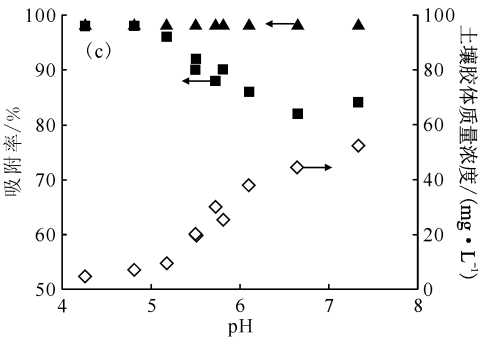
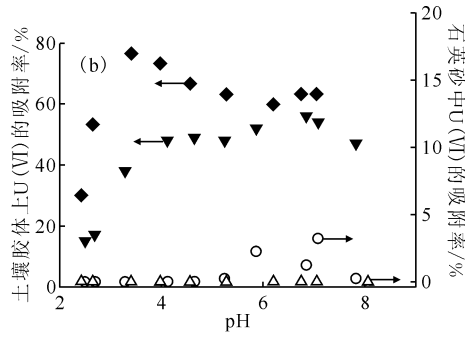
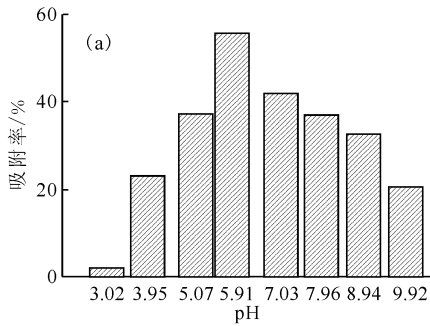
图8为不同体系中U(VI)在石英砂及土壤上

的吸附边界及吸附率。由图 8(a)可知,当 pH < 6.0 时,U(VI)在石英砂上的吸附随 pH 升高而迅速增大,而当 pH > 6.0 时U(VI)的吸附随pH升



■——使用去离子水作为淋洗液时 5.0 mg/L U(VI)的穿透曲线,●——使用土壤胶体溶液作为淋洗液时 5.0 mg/L U(VI)的穿透曲线,▲——使用 60 mg/L 土壤胶体溶液作为淋洗液时土壤胶体的穿透曲线
图 7 不同淋洗液时U(VI)穿透曲线(pH≈6.0)

Fig. 7 BTCs of U(VI) with different eluants(pH≈6.0)



(b): ◆——1.0 mg/L U(VI)在土壤胶体上的吸附,▼——5.0 mg/L U(VI)在土壤胶体上的吸附, △——1.0 mg/L U(VI)在石英砂上的吸附,○——5.0 mg/L U(VI)在石英砂上的吸附;
(c): ▲——5.0 mg/L U(VI)在土壤中(包括胶体与非胶体部分)的吸附, ■——5.0 mg/L U(VI)在土壤非胶体组分上的吸附,◇——土壤中胶体产生量

图 8 U(VI)在石英砂上的吸附边界(a)、土壤胶体-石英砂-U(VI)三元体系中U(VI)吸附边界(b)、真实土壤中U(VI)在土壤及非胶体组分上的吸附边界(c)以及真实土壤胶体浓度与土壤非胶体成分上U(VI)吸附量的关系(d)

Fig. 8 U(VI) adsorption edge on quartz sand(a), U(VI) adsorption edge in soil colloid-quartz-U(VI) ternary system(b), U(VI) adsorption on soil and non-colloid contents(c), and relationship between soil colloids concentration and U(VI) adsorption on non-colloid contents of soil(d)

高而减小,这可能是由于不同 pH 下 U(VI) 的吸附形态发生了变化^[30]。由于土壤胶体中黏土矿物和有机质含量较高,其对 U(VI) 的吸附能力远强于石英砂^[31-32]。当土壤胶体和石英砂共存时,土壤胶体可对 U(VI) 产生强的竞争吸附,进而显著抑制了 U(VI) 在石英砂上的吸附(图 8(b))。

真实环境体系中,土壤非胶体组分含量远大于胶体组分,且非胶体组分中同样含有大量黏土矿物、有机质等,可与 U(VI) 发生较强的相互作用。因此,土壤胶体组分和非胶体组分对 U(VI) 的竞争吸附能力研究对认识 U(VI) 在真实环境体系中的迁移、扩散和转化等行为至关重要。如图 8(c) 所示,在所研究 pH 范围内,U(VI) 几乎完全被吸附在土壤上。随 pH 升高,体系中土壤胶体的含量逐渐增大,由于土壤胶体组分的竞争吸附作用,U(VI) 在非胶体组分上的吸附作用减弱。土壤胶体组分含量与非胶体组分上 U(VI) 的吸附量呈负相关性(图 8(d)),进一步证实了上述土壤胶体组分的竞争吸附作用。值得注意的是,本实验用土壤中胶体组分的含量仅约占土壤总量的 0.04% (质量分数),但仍可吸附 20% U(VI) (初始质量浓度为 5.0 mg/L);由此可见,土壤胶体组分可与 U(VI) 发生强的吸附作用,进而对 U(VI) 在真实环境体系中的吸附、迁移和扩散等行为产生至关重要的影响。

3 结论

(1) U(VI) 在石英砂柱中的穿透速率随 U(VI) 进样浓度升高而增大。与 U(VI) 相比,土壤胶体在石英砂柱内迁移较快。在土壤胶体和 U(VI) 共存体系中,土壤胶体可携带 U(VI) 发生共迁移,进而可显著提高 U(VI) 在石英砂柱中的迁移速率,而 U(VI) 对土壤胶体的迁移速率无显著影响。

(2) 静态吸附实验表明,虽然石英砂对 U(VI) 有一定的吸附作用,但在胶体-石英砂-U(VI) 体系中,U(VI) 主要在土壤胶体表面发生吸附。

(3) 真实环境体系中,尽管土壤胶体的含量较非胶体组分低,但其对 U(VI) 的吸附贡献较大,进而对 U(VI) 的迁移、扩散和转化等行为产生至关重要的影响。

参考文献:

[1] Dresel P E, Wellman D M, Cantrell K J, et al.

Technical and policy challenges in deep vadose zone remediation of metals and radionuclides[J]. *Environ Sci Technol*, 2011, 45(10): 4207-4216.

[2] Jerden J L, Sinha A K. Geochemical coupling of uranium and phosphorous in soils overlying an unmined uranium deposit; Coles Hill, Virginia[J]. *J Geochem Explor*, 2006, 91(1-3): 56-70.

[3] Bachmaf S, Merkel B J. Sorption of uranium(VI) at the clay mineral-water interface[J]. *Environ Earth Sci*, 2011, 63(5): 925-934.

[4] Bekhit H M, Hassan A E. Subsurface contaminant transport in the presence of colloids; effect of non-linear and nonequilibrium interactions[J]. *Water Resour Res*, 2007, 43(8): 1050-1056.

[5] Duff M C. Uranium co-precipitation with iron oxide minerals[J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 2002, 66(20): 3533-3547.

[6] Kurttio P, Auvinen A, Salonen L, et al. Renal effects of uranium in drinking water[J]. *Environ Health Perspect*, 2002, 110(4): 337-342.

[7] Vicente-Vicente L, Quiros Y, Pérez-Barriocanal, et al. Nephrotoxicity of uranium; pathophysiological, diagnostic and therapeutic perspectives[J]. *Toxicol Sci*, 2010, 118(2): 324-347.

[8] 张伟,董发勤,杨杰,等.三种非活性微生物对铀的吸附行为及其受 γ 辐照的动力学影响[J].*核化学与放射化学*,2018,40(4):258-265.

[9] Du L, Li S, Li X, et al. Effect of humic acid on uranium(VI) retention and transport through quartz columns with varying pH and anion type[J]. *J Environ Radioact*, 2017, 177: 142-150.

[10] Kar A S, Kumar S, Tomar B S. U(VI) sorption by silica: effect of complexing anions[J]. *Colloids Surf, A*, 2012, 395: 240-247.

[11] Jin Q, Su L, Montavon G, et al. Surface complexation modeling of U(VI) adsorption on granite at ambient/elevated temperature: experimental and XPS study[J]. *Chem Geol*, 2016, 433: 81-91.

[12] CrancOn P, Pili E, Charlet L. Uranium facilitated transport by water-dispersible colloids in field and soil columns[J]. *Sci Total Environ*, 2010, 408(9): 2118-2128.

[13] Möri W R, Alexander W R, Geckeis H, et al. The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel Test Site; influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock[J]. *Colloids Surf, A*, 2003, 217(1-3): 33-47.

[14] Murphy R J, Lenhart J J, Honeyman B D. The

- sorption of thorium(IV) and uranium(VI) to hematite in the presence of natural organic matter[J]. *Colloids Surf, A*, 1999, 157(1-3): 47-62.
- [15] Tran E L, Teutsch N, Klein-Bendavid O, et al. Uranium and cesium sorption to bentonite colloids under carbonate-rich environments: implications for radionuclide transport[J]. *Sci Total Environ*, 2018, 643: 260-269.
- [16] Chen C, Zhao K, Shang J, et al. Uranium(VI) transport in saturated heterogeneous media: influence of kaolinite and humic acid[J]. *Environ Pollut*, 2018, 240: 219-226.
- [17] Wang Q, Cheng T, Wu Y. Influence of mineral colloids and humic substances on uranium(VI) transport in water-saturated geologic porous media[J]. *J Contam Hydrol*, 2014, 170: 76-85.
- [18] Ge M, Wang D, Yang J, et al. Co-transport of U(VI) and akaganéite colloids in water-saturated porous medium: role of U(VI) concentration, pH and ionic strength[J]. *Water Res*, 2018, 147: 350-361.
- [19] Degueldre C, Grauer R, Laube A, et al. Colloid properties in granitic groundwater systems II: stability and transport study[J]. *Appl Geochem*, 1996, 11(5): 697-710.
- [20] Baek I, Pitt Jr W W. Colloid-facilitated radionuclide transport in fractured porous rock[J]. *Waste Manage*, 1996, 16(4): 313-325.
- [21] Kretzschmar R, Schäfer T. Metal retention and transport on colloidal particles in the environment[J]. *Elements*, 2005, 1(4): 205-210.
- [22] Kalbitz K, Wennrich R. Mobilization of heavy metals and arsenic in polluted wetland soils and its dependence on dissolved organic matter[J]. *Sci Total Environ*, 1998, 209(1): 27-39.
- [23] Krawczyk-BaRsch E, Arnold T, Reuther H, et al. Formation of secondary Fe-oxyhydroxide phases during the dissolution of chlorite: effects on uranium sorption[J]. *Appl Geochem*, 2004, 19(9): 1403-1412.
- [24] Wang X K, Dong W M, Dai X X, et al. Sorption and desorption of Eu and Yb on alumina mechanisms and effect of fulvic acid[J]. *Appl Radiat Isot*, 2000, 52(2): 165-173.
- [25] 熊毅. 土壤胶体[M]. 第二册. 北京: 科学出版社, 1985.
- [26] Wang J J, He B H, Wei X Y, et al. Sorption of uranyl ions on TiO₂: effects of pH, contact time, ionic strength, temperature and HA[J]. *J Environ Sci*, 2019, 75: 115-123.
- [27] Khamseh A G, Ghorbanian S A. Experimental and modeling investigation of thorium biosorption by orange peel in a continuous fixed-bed column[J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2018, 317(2): 871-879.
- [28] Stumm W. Chemistry of the solid-water interface: processes at the mineral-water and particle-water interface in natural systems[M]. John Wiley & Son Inc., 1992.
- [29] Davis J A, Curti G P. Application of surface complexation modeling to describe uranium(VI) adsorption and retardation at the uranium mill tailings site at Naturita, Colorado[M]. Washington, D.C., US: Nuclear Regulatory Commission, 2003.
- [30] Sylwester E R, Hudson E A, Allen P G. The structure of uranium(VI) sorption complexes on silica, alumina, and montmorillonite[J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 2000, 64(14): 2431-2438.
- [31] Yang Y, Saiers J E, Xu N, et al. Impact of natural organic matter on uranium transport through saturated geologic materials: from molecular to column scale[J]. *Environ Sci Technol*, 2012, 46(11): 5931-5938.
- [32] Mibus J, Sachs S, Pflingsten W, et al. Migration of uranium(IV)/(VI) in the presence of humic acids in quartz sand: a laboratory column study[J]. *J Contam Hydrol*, 2007, 89(3-4): 199-217.