

H₂O₂ 活化蒙脱石对溶液中 U(VI) 的吸附

魏青峰¹, 石艳明², 李同同², 王彦惠¹, 卫纯纯¹, 庚先国^{3,*}

1. 西南科技大学 国防科技学院, 四川 绵阳 621010;

2. 中广核工程有限公司, 广东 深圳 518000; 3. 四川轻化工大学, 四川 自贡 643000

摘要: 利用 H₂O₂ 对蒙脱石进行活化, 获得了活化蒙脱石吸附材料(A_x-MMT), 采用 X 射线衍射(XRD)、傅里叶红外谱图(FTIR)、透射电镜(TEM)、扫描电镜(SEM)、比表面分析(BET)、表面 Zeta 电位分析等手段对活化样品进行了表征; 采用静态批量实验法, 考察了 H₂O₂ 浓度、pH 值、接触时间和共存阴阳离子对 U(VI) 在 A_x-MMT 上吸附率的影响。结果表明: 活化保留了蒙脱石基础结构, 其阳离子交换容量(CEC)有所减少, 但层间距、比表面积、孔隙体积、表面酸位点和表面 Zeta 电位均有明显提升, 对溶液中 U(VI) 的吸附性能显著增强; 在最佳活性和吸附条件下(H₂O₂ 质量分数、pH 值和接触时间分别为 10%、6 和 24 h), 蒙脱石对 U(VI) 的吸附性能提升了 8.5 倍, 吸附行为符合准二级吸附动力学模型; 在共存阴阳离子的干扰下, H₂O₂ 活化蒙脱石能对 U(VI) 展现良好的吸附性能。

关键词: H₂O₂; 活化; 蒙脱石; U(VI); 吸附

中图分类号: TL941.1 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2019)06-0578-07

doi: 10.7538/hhx.2019.YX.2019008

Adsorption of U(VI) From Aqueous Solution by Hydrogen Peroxide Activated Montmorillonite

WEI Qing-feng¹, SHI Yan-ming², LI Tong-tong², WANG Yan-hui¹,
WEI Chun-chun¹, TUO Xian-guo^{3,*}

1. School of National Defense Science and Technology,
Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China;

2. China Nuclear Power Engineering, Shenzhen 518000, China;

3. Sichuan Polytechnic University, Zigong 643000, China

Abstract: Active montmorillonite adsorption material(A_x-MMT) was obtained by activating montmorillonite with hydrogen peroxide. The activated samples were characterized by X-ray diffraction(XRD), Fourier transform infrared spectroscopy(FTIR), transmission electron microscopy(TEM), scanning electron microscopy(SEM), specific surface analysis(BET) and surface Zeta potential analysis. The effects of concentration of hydrogen peroxide, pH value, contact time and coexisting anions and cations on U(VI) adsorption on A_x-MMT were

收稿日期: 2019-01-18; 修订日期: 2019-05-11

基金项目: 国家自然科学基金重点项目(41630646); 国家自然科学青年基金项目(41603124)

作者简介: 魏青峰(1994—), 男, 四川绵阳人, 硕士研究生, 从事含铀废液吸附介质改性研究, E-mail: 837241019@qq.com

* 通信联系人: 庚先国(1965—), 男, 湖南澧县人, 教授, 从事核技术应用研究, E-mail: tuoxianguo@suse.edu.cn

网络出版时间: 2019-11-07; 网络出版地址: <http://kns.cnki.net/kcms/detail/11.2045.TL.20191107.1018.004.html>

investigated by static batch experiment. Under the optimum conditions (concentration of hydrogen peroxide, pH value and contact time are 10%, 6 and 24 h, respectively), the adsorption percentage of U(VI) on montmorillonite increases by 8.5 times, which accords with the quasi-second-order adsorption kinetics model. Under the interference of both anions and cations, H₂O₂-activated montmorillonite can also exhibit good adsorption properties for U(VI).

Key words: hydrogen peroxide; activation; montmorillonite; U(VI); adsorption

铀矿物开采冶炼、乏燃料后处理以及核电设施退役过程中均会导致铀侵入环境,形成大量的含铀废液^[1-2]。吸附法处理含铀废液近年来得到了特别的关注,而蒙脱石因其稳定的性能和廉价易得的特点在众多材料中脱颖而出。利用基于蒙脱石的新型材料,通过吸附来降低溶液中铀含量,是现在较普遍的处理方式^[3]。

未经处理的蒙脱石(MMT)的活性位点较少,因此天然蒙脱石具有较大的开发潜力。不同活化方式均可提高蒙脱石的吸附能力。例如,蒙脱石在600℃下预处理后,对U(VI)的吸附能力显著增强^[4],但热处理能耗太高,大量制备成本高。无机柱撑或负载能够极大地提升蒙脱石的吸附性能^[5-6],但制备流程要求高,操作复杂。据报道,酸活化后的蒙脱石具有更多的比表面积和更多的表面活性位点,在有机物、重金属、放射性废物的吸附处理方面具有广泛的运用。但其活化程度与所使用的酸溶液的种类密切相关。研究发现,使用HF、HCl或H₂SO₄这类强酸时^[7-9],活化过程将会极大地破坏蒙脱石基础结构,导致活化蒙脱石作为吸附介质的性能不够稳定。而且强酸活化过程在酸浓度、固液比、温度等条件上均较为苛刻,同时清洗过程容易产生大量活化酸废液。针对这些不足,本研究拟利用H₂O₂这种清洁低廉的化学试剂对蒙脱石进行活化,对活化蒙脱石进行详细表征,探究活化机理,并利用批量静态吸附实验研究其对U(VI)的吸附性能,以为含铀废液吸附介质的研究提供参考。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

过氧化氢(H₂O₂,质量分数30%)、盐酸(HCl,质量分数37%)和硝酸(HNO₃,质量分数68%),成都市科龙化工试剂厂;偶氮胂Ⅲ,上海阿拉丁生物化工技术有限公司;U(VI)标准溶液(pH=5,质量浓度为200 mg/L硝酸铀酰),核工

业北京化工冶金研究院;钠基蒙脱石(Na-MMT),浙江砂矿有限责任公司;其他化学品均为分析纯,成都市科龙化工试剂厂;实验全程使用去离子水。

DMAX1400型X射线衍射仪(XRD),日本理学公司;傅立叶变换红外光谱仪(FTIR),美国PE公司;Zeta PALS分析仪,美国Brookhaven公司;Zeiss-Libra-200FE透射电子显微镜(TEM),德国Carl Zeiss Irts公司;UItra55型扫描电镜(SEM),德国Carl Zeiss NTS GmbH公司。

1.2 实验方法

1.2.1 蒙脱石的活化 在烧杯中加入50 mL H₂O₂(质量分数0~14%)后缓慢加入5 g Na-MMT,在室温下缓慢搅拌5 h。然后将浆液离心,分离出沉淀物。使其在70℃烘箱内干燥8 h,将干燥后的土样粉碎,筛分到粒径为0.074 mm,得到活化的蒙脱石吸附剂。将不同条件下得到的吸附剂称为A_X-MMT(X代表加入H₂O₂的质量分数的值)。

1.2.2 材料表征 对吸附剂材料分别进行XRD($2\theta=3^\circ \sim 80^\circ$,采用Cu K α 辐射($\lambda=1.540\text{ }56$))、FTIR、表面Zeta电位、TEM、SEM表征分析。

1.2.3 阳离子交换容量(CEC)测量 使用铜乙二胺络合物方法测定蒙脱石的CEC^[10],并由式(1)计算:

$$\text{CEC} = \frac{M \cdot c(S) \cdot V(I) \cdot (V_0(\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3) - V(\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3))}{10m} \quad (1)$$

式中:CEC,阳离子交换容量,meq/g(阳离子的毫克当量/每克干燥蒙脱石);M,[Cu(en)₂]²⁺的摩尔质量,g/mol;c(S),硫的浓度,mol/mL;V(I),碘滴定体积,mL;m,吸附剂的质量,g;V₀(Na₂S₂O₃),空白滴定Na₂S₂O₃的体积,mL;V(Na₂S₂O₃),滴定Na₂S₂O₃的体积,mL。

1.2.4 批量静态吸附实验 将0.05 g A_X-MMT

置于离心管中,加入7 mL去离子水,恒温振荡24 h,待固液扩散平衡后加入2 mL U(VI)溶液,调节pH到设定值之后定容,继续振荡一定时间。吸附完成后再离心1 h。最后,取1 mL的上清液采用分光光度法对U(VI)进行测定^[11]。通过式(2)、式(3)计算U(VI)在A_x-MMT上的吸附率(η ,%)和吸附分配系数(K_d ,mL/g)^[12]:

$$\eta = \frac{(\rho_0 - \rho_e)}{\rho_0} \cdot 100\% \quad (2)$$

$$K_d = \frac{(\rho_0 - \rho_e)}{\rho_0} \cdot \frac{V}{m} \quad (3)$$

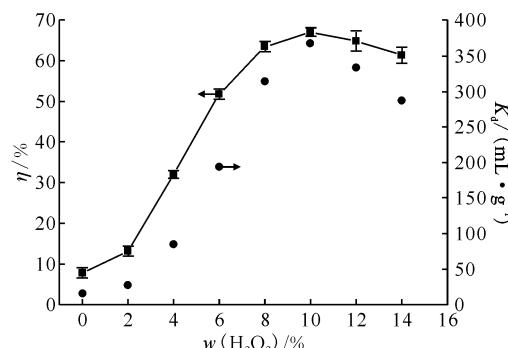
式中:V,溶液的体积,L;m,吸附剂的质量,g; ρ_e ,U(VI)平衡质量浓度,mg/L; ρ_0 ,U(VI)的初始质量浓度,mg/L。

2 结果与讨论

2.1 H₂O₂浓度影响

H₂O₂清洁低廉,采用其对蒙脱石进行活化,活化过程简单易行,活化后的蒙脱石直接进行烘干处理,无清洗废液产生。

图1为H₂O₂质量分数对U(VI)的吸附率和 K_d 的影响。图1结果表明,U(VI)的吸附率和 K_d 随H₂O₂质量分数的增加而增加,在w(H₂O₂)=10%时吸附率(67.14%)和 K_d 达到最大值,之后开始下降。这是因为过高的H₂O₂浓度会引起片层结构的局部塌陷反而导致吸附空间减少^[13],会对活化过程产生抑制作用,因此最佳H₂O₂质量分数为10%。



T=298 K, ρ_0 =20 mg/L, pH=6, t=24 h, m/V=5 g/L

图1 H₂O₂浓度对U(VI)吸附率与吸附分配系数的影响

Fig. 1 Effect of H₂O₂ concentration on adsorption percentage and distribution coefficient

2.2 XRD表征与分析

Na-MMT和A_x-MMT的XRD表征结果示于图2。由图2可知,Na-MMT的001衍射出现

在 $2\theta=7.14^\circ$ ($d_{001}=1.237$ nm),根据布拉格方程,层间距最大扩大了0.515 nm(A₁₄-MMT)。随着H₂O₂浓度的增加,001衍射峰逐渐宽化,强度变弱,这是因为H₂O₂侵蚀蒙脱石片层八面体所造成的^[14]。但当H₂O₂浓度过高时会导致局部片层结构塌陷,使得规范的晶层结构发生部分混乱^[15]。当H₂O₂质量分数为10%时,其001衍射峰($2\theta=5.43^\circ$)的锐度依旧清晰,层间距增加到1.626 nm;且 $2\theta=62^\circ$ 的衍射峰并未出现明显弱化,这说明A₁₀-MMT在性能得到提升的同时基础晶体结构得以保留。可以注意到方解石($2\theta=28.42^\circ$)的衍射峰强度变弱,说明活化过程中,H₂O₂溶解掉部分方解石(-CO₃²⁻),为吸附提供更多的孔隙^[16]。

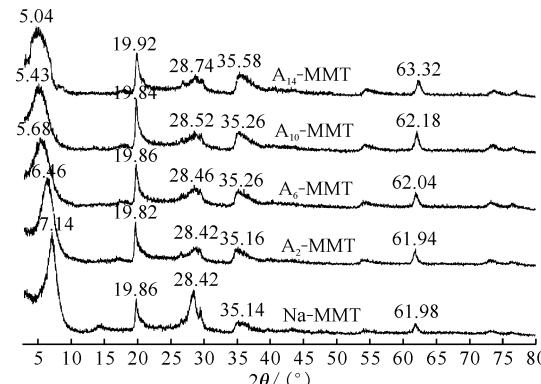


图2 Na-MMT 和 A_x-MMT 的 XRD 图谱

Fig. 2 XRD patterns of Na-MMT and A_x-MMT

2.3 FTIR表征与分析

Na-MMT与A_x-MMT的FTIR表征结果示于图3。由图3可知,改性前后蒙脱石的基本骨架没有发生变化。随着H₂O₂质量分数的上升,

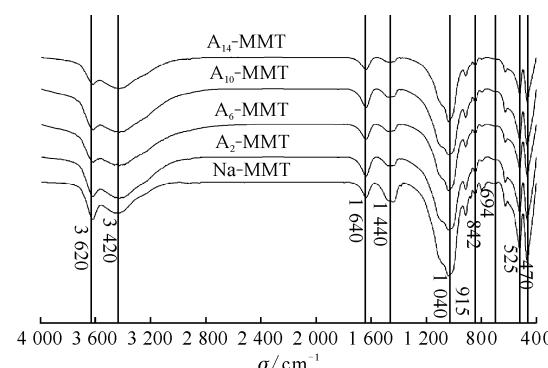


图3 Na-MMT 和 A_x-MMT 的红外光谱

Fig. 3 FTIR spectra of Na-MMT and A_x-MMT

3 620、915、842、694、525 cm⁻¹的谱带的强度逐渐减弱,但锐度并未下降。这是因为在活化过程中H₂O₂缓慢侵蚀蒙脱石,这时H⁺首先取代可交换的阳离子,之后腐蚀蒙脱石片层^[17];但H⁺与阳离子交换位点的结合形式是不稳定的,内部金属离子(Al³⁺、Mg²⁺、Fe³⁺)通过自转化取代部分交换位点的H⁺^[18],导致更多金属阳离子暴露在蒙脱石外部表面,形成更多的路易斯酸位点^[19]。另外1 040 cm⁻¹的Si-O-Si伸缩振动峰减弱,是因为H₂O₂活化过程中产生的H⁺与片层结构中Si-O的氧结合形成Si-OH₂⁺,使得Si-O伸缩振动受到的束缚较大。以上均证明H₂O₂活化过程制造了更多利于吸附的表面路易斯酸位点。

吸附实验、XRD与FTIR结果有力地证明了 $\omega=10\%$ H₂O₂活化能够较大程度地提高蒙脱石对U(VI)的吸附能力。因此,选择A₁₀-MMT和Na-MMT进行更详细的表征和比较。

2.4 CEC和比表面积(SSA)表征与分析

表1列出了Na-MMT和A₁₀-MMT的比表面积(SSA)、孔隙体积(TPV)和阳离子交换容量(CEC)对比结果。由表1可知,比表面积由53.78 m²/g变为108.24 m²/g,增加了101.26%,孔隙体积由0.059 cm³/g增加为0.114 cm³/g。这意味着活化过程为蒙脱石提供更大的吸附表面与更多的吸附孔隙。Na-MMT的CEC为0.92 meq/g,A₁₀-MMT的CEC为0.76 meq/g,对比活化前后CEC下降了17.4%,说明大部分金属阳离子在H₂O₂活化过程中被保留,蒙脱石性能得到提升且晶体结构基本完整。

2.5 TEM表征分析

为直观地对比活化前后蒙脱石微观形貌,利

用TEM进行表征(图4)。如图4所示,在细小颗粒状态下,蒙脱石均呈片状堆叠状态,Na-MMT颗粒重叠紧密(图4(a));但经过H₂O₂的处理后,颗粒周边开始虚化(图4(b)),说明H₂O₂活化对蒙脱石的边缘片层结构造成显著影响,边缘的堆叠不再紧密,结晶程度下降,提供更多的吸附空间。

表1 Na-MMT和A₁₀-MMT的比表面积、孔隙体积和阳离子交换容量对比

Table 1 Specific surface area, pore volume and cation exchange capacity of Na-MMT and A₁₀-MMT

吸附材料	SSA/(m ² ·g ⁻¹)	TPV/(cm ³ ·g ⁻¹)	CEC/(meq·g ⁻¹)
Na-MMT	53.78	0.059	0.92
A ₁₀ -MMT	108.24	0.114	0.76

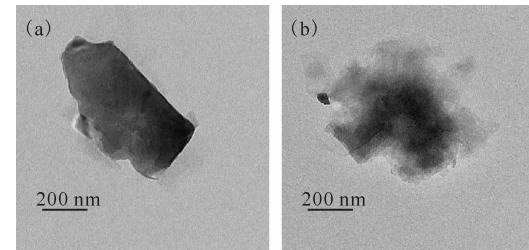
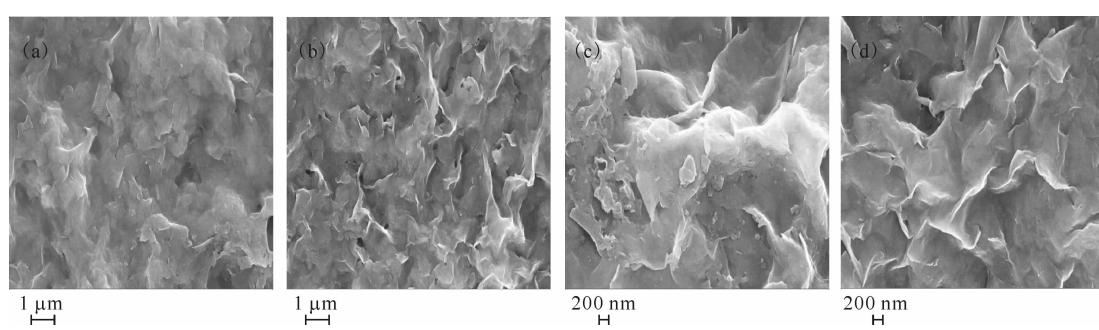


图4 Na-MMT(a)和A₁₀-MMT(b)的TEM图

Fig. 4 TEM of Na-MMT(a) and A₁₀-MMT(b)

2.6 SEM表征与分析

图5为Na-MMT和A₁₀-MMT的SEM表征结果。对比图5(a)和(b),Na-MMT的表面层叠平滑,而A₁₀-MMT的表面更粗糙,孔隙分布明显;对比图5(c)和(d),Na-MMT片材分布紧密,



(a)——Na-MMT(放大倍数10 000),(b)——A₁₀-MMT(放大倍数10 000),
(c)——Na-MMT(放大倍数20 000),(d)——A₁₀-MMT(放大倍数20 000)

图5 Na-MMT(a,c)和A₁₀-MMT(b,d)的SEM图

Fig. 5 SEM of Na-MMT(a, c) and A₁₀-MMT(b, d)

但 A_{10} -MMT 的边缘大多突出。结果表明, H_2O_2 改性的 MMT 片层的边缘不再堆叠紧密并且呈现“凹凸不平”的形状。这再次证明活化蒙脱石暴露出更多的接触面积, 从而具有更大的吸附能力。

2.7 pH 及 Zeta(ζ)电位分析

溶液 pH 值对 U(VI) 吸附率的影响示于图 6(a)。Na-MMT 本身吸附量较小, pH 对其吸附影响不明显。随着 pH 的增加, U(VI) 在 A_{10} -MMT 上的吸附率逐渐增加, 达到最大值(pH=6)之后吸附率急剧下降。这是因为 pH 会影响蒙脱石表面吸附位点电位及 U(VI) 在水溶液中的物种分布。

由图 6(b) 可知, Na-MMT 与 A_{10} -MMT 的 Zeta 电位值在测量范围内均为负值, 这表明在溶液中分散的蒙脱石颗粒表面有大量的负电荷络合位点, 这些负电荷吸附位点能够吸引周围的带正电荷 U(VI) 粒子。两种粘土的 $|\zeta|$ (电位的绝对值) 均随着 pH 的增大而上升, 因此偏碱性环境

下, 蒙脱石表面具有更多负电荷量, 对吸附行为更加有利。当 pH 较低时, 表面位点产生的库仑力将先拉动溶液中荷质比较高的 H^+ 与表面位点结合, 削弱吸附介质吸附带正电荷的 U(VI) 的能力。

据报道^[20], U(VI) 在不同的酸碱度条件下能形成不同的阳离子(图 6(c))。当 $pH < 4.5$ 时, UO_2^{2+} 为优势物种; 当 $4.5 < pH < 7$ 时, U(VI) 处于多核粒子的混合状态。这一阶段($4.5 < pH < 7$)吸附能力强的原因是在表面吸附位点数量和所携带的负电荷相同的情况下, 多核物种(如 $(UO_2)_4(OH)_7^+$)在某个位点所形成的 U(VI) 吸附效率高于单核物种(如 UO_2OH^+)。因此, 吸附 pH 为 6 时, 能形成更有效的吸附行为。

2.8 接触时间的影响

通过改变蒙脱石与 U(VI) 离子溶液的接触时间, 研究了 Na-MMT 和 A_{10} -MMT 的吸附性能, 结果示于图 7。图 7 表明, 在相同条件下, Na-MMT 和 A_{10} -MMT 分别需要 12 h 和 24 h 达到

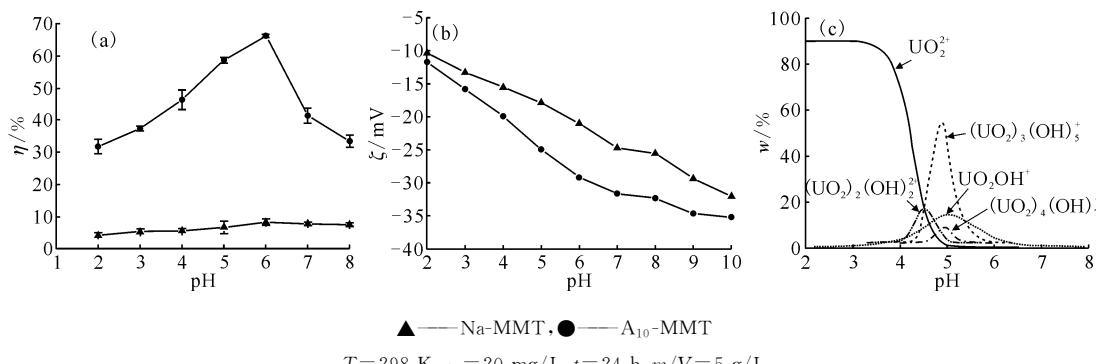


图 6 pH 值对 U(VI) 吸附率的影响(a)、MMT 表面 Zeta 电位图(b)及 U(VI) 离子种态分布图(c)^[20]

Fig. 6 Effect of pH value on U(VI) adsorption percentages(a), Zeta potential of MMT surface(b), and relative species distribution of U(VI) ions(c)^[20]

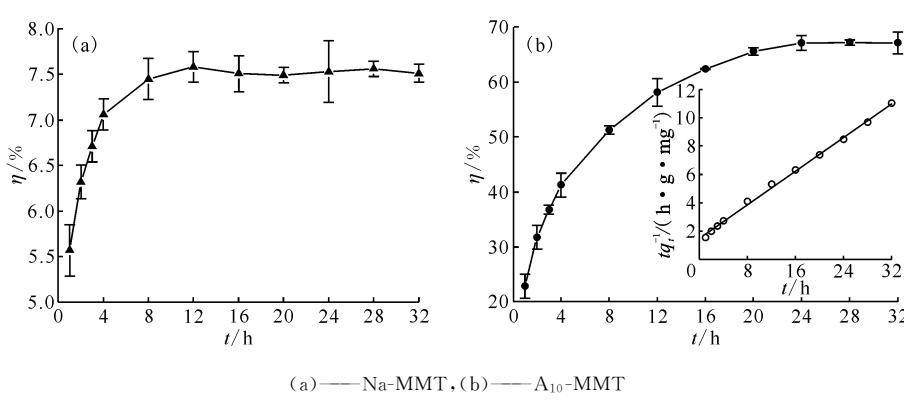


图 7 接触时间对 U(VI) 吸附率的影响

Fig. 7 Effect of extract time on U(VI) adsorption percentages

吸附平衡,对U(VI)的吸附率从7.82%提高到67.12%(提升8.5倍)。这是因为在吸附初期,A₁₀-MMT表面存在大量络合位点,与A₁₀-MMT表面接触的U(VI)能够被及时吸附;然而活化使得层间距、孔隙率增加和通道数增加,这样游离的U(VI)可以自由进入A₁₀-MMT片层,形成更多的吸附反应,所以吸附率与平衡吸附时间均大于Na-MMT。

为了更清晰地阐明吸附行为,利用实验数据拟合了动力学线性模型,发现吸附符合准二级吸附模型(表2):

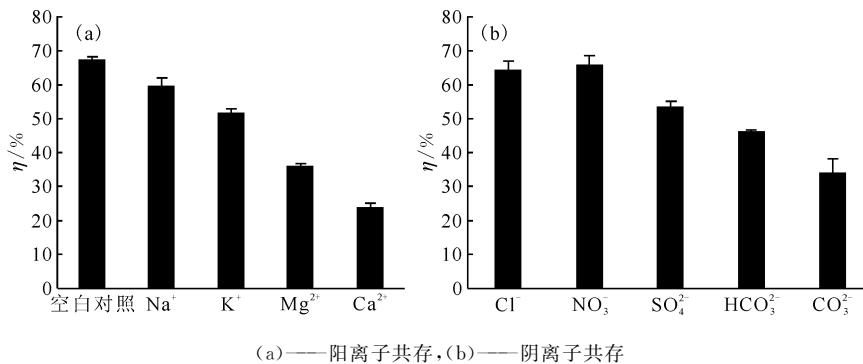
$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (4)$$

式中q_e和q_t分别为平衡吸附量和时间t时的吸附量,μg/g;k₂为准二级吸附速率常数,g/(mg·h);t,时间,h。

表2 准二级动力学拟合参数

Table 2 Pseudo-second-order kinetic fitting parameters

拟合模型	$q_e/(\text{mg} \cdot \text{g}^{-1})$	$k_2/(\text{g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{h}^{-1})$	r^2
Pseudo-second-order	2.76 ± 0.12	0.12 ± 0.005	0.998 6



每种离子浓度均为 8.5×10^{-5} mol/L, $T=298$ K, $\rho_0=20$ mg/L, $t=24$ h, $m/V=5$ g/L, pH=6

图8 离子种类对U(VI)在A₁₀-MMT上吸附的影响

Fig. 8 Effect of cations and anions on adsorption of U(VI) on A₁₀-MMT

3 结 论

H₂O₂活化过程可增强蒙脱石对溶液中U(VI)离子的吸附能力。通过实验可得到如下结论:

(1) 最佳H₂O₂质量分数为10%,H₂O₂浓度过高会对蒙脱石结构造成破坏,引起局部塌陷,会对U(VI)吸附性能产生抑制作用;

(2) 活化后的蒙脱石片层呈现“凹凸不平”、

2.9 离子种类的影响

由于天然水中存在多种金属离子,研究了不同离子对A₁₀-MMT吸附U(VI)的影响。每一种离子的浓度均保持在 8.5×10^{-5} mol/L,与之前实验中的U(VI)浓度相同。结果示于图8。如图8(a)所示,在阳离子共存条件下,Na⁺、K⁺、Mg²⁺和Ca²⁺均能抑制吸附,抑制强度为Ca²⁺>Mg²⁺>K⁺>Na⁺。这是因为与低价阳离子相比,高价阳离子与A₁₀-MMT表面带负电荷的位置之间的库仑相互作用更强,因此对U(VI)的吸附抑制作用较强,更容易占据吸附位点。另外,在相同的价态条件下,Ca²⁺的水化半径小于Mg²⁺,K⁺的水化半径小于Na⁺。根据竞争吸附规律,水合离子半径越小,吸附竞争力越强。

如图8(b)所示,在阴离子共存条件下,Cl⁻和NO₃⁻对U(VI)的吸附影响不大。其它阴离子对U(VI)的吸附有抑制作用,抑制强度为CO₃²⁻>HCO₃²⁻>SO₄²⁻。研究表明,在水溶液中,CO₃²⁻、HCO₃²⁻和SO₄²⁻与UO₂²⁺易于结合形成多核配合物,增加了A₁₀-MMT吸附U(VI)的难度。

虽然共存阴阳离子会对吸附产生一定的抑制作用,但A₁₀-MMT已经展现了优良的吸附性能。

堆叠不再紧密的形状;活化过程侵蚀了蒙脱石片层的边缘结构,增加了片层间距和比表面积,增加了蒙脱石表面负电荷量、酸性位点,这些变化导致蒙脱石吸附位点与吸附性能的增加,是对U(VI)吸附性能提升的本质原因;

(3) 在pH=6、接触时间为24 h下,A₁₀-MMT对U(VI)的吸附率从7.82%提高到67.12%(提升8.5倍),吸附动力学符合准二级动力学方

程; Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 CO_3^{2-} 、 HCO_3^- 和 SO_4^{2-} 会干扰吸附, 但 A_{10} -MMT 对 U(VI) 依旧具有良好的吸附性能。

参考文献:

- [1] Catalano J G, Jr G E B. Uranyl adsorption onto montmorillonite: evaluation of binding sites and carbonate complexation[J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 2006, 69(12): 2995-3005.
- [2] Bucher F, Müller-Vonmoos M. Bentonite as a containment barrier for the disposal of highly radioactive wastes[J]. *Appl Clay Sci*, 1989, 4(2): 157-177.
- [3] 于静, 王建龙. 无机吸附材料处理放射性废水中铀的研究进展[J]. 核化学与放射化学, 2018, 40(2): 81-88.
- [4] Zuo Q, Gao X, Yang J, et al. Investigation on the thermal activation of montmorillonite and its application for the removal of U(VI) in aqueous solution[J]. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 2017, 80: 754-760.
- [5] 徐佳丽. 蒙脱石负载纳米零价铁对水溶液中铀的去除研究[D]. 北京: 中国地质大学, 2014.
- [6] Ma H R, Hei Y N, Li H, et al. Fabrication of zirconium-pillared montmorillonite porous ceramic as adsorbents for Cr^{3+} removal and recycling[J]. *Ceramics International*, 2016, 42(13): 14903-14909.
- [7] Shen B X, Liu Z, Xu H, et al. Enhancing the absorption of elemental mercury using hydrogen peroxide modified bamboo carbons[J]. *Fuel*, 2019, 235: 878-885.
- [8] Marcos C, Rodríguez I. Exfoliation of vermiculites with chemical treatment using hydrogen peroxide and thermal treatment using microwaves[J]. *Appl Clay Sci*, 2014, 87(4): 219-227.
- [9] Zhou Y, Lei Y, Chen W, et al. Enhance low temperature oxidization of shale gas recovery using hydrogen peroxide[J]. *J Pet Sci Eng*, 2018, 164: 523-530.
- [10] Bergaya F, Vayer M. CEC of clays: measurement by adsorption of a copper ethylenediamine complex[J]. *Appl Clay Sci*, 1997, 12(3): 275-280.
- [11] Gao X, Bi M, Shi K, et al. Sorption characteristic of uranium(VI) ion onto k-feldspar[J]. *Appl Radiat Isotop*, 2017, 128: 311-317.
- [12] 李博林, 朱璐, 王路生, 等. U(VI) 在偕胺肟基功能化介孔二氧化硅上的吸附[J]. 核化学与放射化学, 2018, 40(3): 166-174.
- [13] Babaki H, Salem A, Jafarizad A. Kinetic model for the isothermal activation of bentonite by sulfuric acid[J]. *Mater Chem Phys*, 2008, 108(2-3): 263-268.
- [14] Temuujin J, Jadambaa T, Burmaa G, et al. Characterisation of acid activated montmorillonite clay from Tuulant (Mongolia)[J]. *Ceramics International*, 2004, 30(2): 251-255.
- [15] Wang T H, Liu T Y, Wu D C, et al. Performance of phosphoric acid activated montmorillonite as buffer materials for radioactive waste repository[J]. *J Hazard Mater*, 2010, 173(1-3): 335-342.
- [16] Akpomie K G, Dawodu F A. Acid-modified montmorillonite for sorption of heavy metals from automobile effluent[J]. *Beni-Suef University Journal of Basic and Applied Sciences*, 2016, 5(1): 1-12.
- [17] Vicente-Rodríguez M A, Suárez M, Bañares-Muñoz M A, et al. Comparative FT-IR study of the removal of octahedral cations and structural modifications during acid treatment of several silicates[J]. *Spectrochim Acta, A*, 1996, 52(13): 1685-1694.
- [18] Madejová J, Bujdák J, Janek M, et al. Comparative FT-IR study of structural modifications during acid treatment of dioctahedral smectites and hectorite[J]. *Spectrochim Acta, A*, 1998, 54(10): 1397-1406.
- [19] Yadav M K, Chudasama C D, Jasra R V. Isomerisation of α -pinene using modified montmorillonite clays[J]. *J Mol Catal A: Chem*, 2004, 216(1): 51-59.
- [20] Zhang R, Chen C L, Li J, et al. Preparation of montmorillonite@carbon composite and its application for U(VI) removal from aqueous solution[J]. *Appl Surf Sci*, 2015, 349: 129-137.