

DOI:10.7524/j.issn.0254-6108.2020070902

阳刚, 潘跃龙, 刘羽, 等. 3-氨基丙基三乙氧基硅烷(3-APTES)改性粘土岩的制备及其对铀 U(VI) 的吸附[J]. 环境化学, 2021, 40(11): 3590-3597.

YANG Gang, PAN Yuelong, LIU Yu, et al. Preparation of 3-APTES modified clay rock and its adsorption for U(VI)[J]. Environmental Chemistry, 2021, 40 (11): 3590-3597.

3-氨基丙基三乙氧基硅烷(3-APTES)改性粘土岩的制备及其对铀 U(VI) 的吸附*

阳刚¹ 潘跃龙² 刘羽² 冷阳春^{3**} 王彦惠¹ 李东瑞³

(1. 成都理工大学, 成都, 610059; 2. 中广核工程有限公司, 深圳, 518000; 3. 西南科技大学, 绵阳, 621010)

摘要 本文用3-氨基丙基三乙氧基硅烷(3-APTES)改性粘土岩,并通过X射线荧光光谱分析(XRF)、红外光谱仪(FT-IR)和扫描电子显微镜(SEM)对其进行了表征.结果显示,3-APTES改性粘土岩没有固定的表面结构,多为呈不规则多面型的薄片状晶体.以3-APTES改性粘土岩为吸附介质,探讨了反应时间、初始浓度、水相pH值、固液比、实验温度和离子种类等对该材料吸附U(VI)的影响.实验结果表明,pH为5、U(VI)初始浓度为 $50\ \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 、固液比为1:200时,经过120 min 3-APTES改性粘土岩对U(VI)的吸附达到平衡,吸附效果最佳.升温有助于提高其吸附性能;溶液中 Ca^{2+} 、 HCO_3^- 、 CO_3^{2-} 等3种离子极大的抑制了3-APTES改性粘土岩的吸附性能.

关键词 3-氨基丙基三乙氧基硅烷(3-APTES), 改性, 粘土岩, 吸附, U(VI).

Preparation of 3-APTES modified clay rock and its adsorption for U(VI)

YANG Gang¹ PAN Yuelong² LIU Yu² LENG Yangchun^{3**}
WANG Yanhui¹ LI Dongrui³

(1. Chengdu University of Technology, Chengdu, 610059, China; 2. China Nuclear Power Engineering Co., Ltd, Shenzhen, 518000, China; 3. Southwest University of Science and Technology, Mianyang, 621010, China)

Abstract 3-aminopropyltriethoxysilane (3-APTES) modified clay rock was characterized by X-ray fluorescence spectrometry (XRF), infrared spectrometer (FT-IR) and scanning electron microscope (SEM). The characterization results showed that 3-APTES modified clay rock had no fixed surface structure and was mostly lamellar crystal with irregular polygonal shape. Using 3-APTES modified clay rock as the adsorption medium, the effect of reaction time, initial concentration, aqueous phase pH value, solid-liquid ratio, experimental temperature and ionic species on adsorption of U(VI) were explored. The experimental results showed that when the pH was 5, the initial concentration of U(VI) was $50\ \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$, and the solid-liquid ratio was 1:200, the adsorption of U(VI) on the 3-APTES modified clay rock reached equilibrium after 120 minutes. The adsorption effect was the best. Warming helps to improve its adsorption performance; Ca^{2+} , HCO_3^- and CO_3^{2-} ions in the solution greatly inhibited the adsorption performance of 3-APTES modified clay rock.

2020年7月9日收稿(Received: July 9, 2020).

* 国家自然科学基金(41630646)资助.

Supported by the National Natural Science Foundation of China (41630646).

** 通讯联系人 Corresponding author, Tel: 0816-6089871, E-mail: leng_yc@swust.deu.cn

Keywords 3-APTES, modification, clay rock, adsorption, U(VI).

核技术的广泛应用,会产生大量含有铀、钚等核素的放射性的废物.其具有毒性大,衰变时间长等特点,如不妥善处理将会对人类和生态造成长久的危害^[1-4].放射性废物中的铀在水相环境下一般以 U(IV) 和 U(VI) 的方式存在,四价铀具有很强的还原性,易被氧化为六价铀以 UO_2^{2+} 的形式存在于水相环境中,若处于地下水环境中,还会与地下水中的杂质离子反应,形成多种铀酰化合物^[5-6].

如何安全、有效的处理这些放射性核素是目前急需解决的问题,常用的 U(VI) 处理方法有离子交换法、吸附法、化学沉淀法、电化学处理法、膜分离法等^[7-13].这些方法普遍存在投入高、消耗大等不足.材料吸附法作为一种简单易操作的方法被广泛应用于去除溶液中的 U(VI).粘土岩矿物作为一种常用的吸附材料,具有不透水,自封闭性良好、吸附能力强等优点,因此受到广泛的关注.3-氨基丙基三乙氧基硅烷(3-APTES)能够增加粘土岩表面的吸附位点,增强粘土岩的吸附性能.因此,3-APTES 已经作为一种常用的改性附载材料被应用到很多领域中.

本实验利用 3-氨基丙基三乙氧基硅烷对粘土岩进行改性,测试其吸附性能并探究其吸附 U(VI) 的反应机理,为缓冲回填材料提供更好的选择,为其在地质处置中的应用提供基础理论依据.

1 实验部分 (Experimental section)

1.1 材料与仪器

1.1.1 仪器

JJ-2 恒温磁力搅拌器、DZTW 恒温电热套、DHG-9020-2 控温红外烘箱、UPT-II-10T 纯水机、FA2004A 电子分析天平、DZS-708L 电子 pH 计、L500 高速离心机、UV-3150 紫外分光光度计、Axios X 射线荧光光谱仪、Spectrum One 红外光谱仪、Ultra 55 场发射扫描电子显微.

1.1.2 试剂

3-氨基丙基三乙氧基硅烷 (3-APTES)、无水乙醇、硝酸、盐酸、氢氧化钠、氯化钾、氯化钠、碳酸钠、氯化镁、硝酸钠、硫酸钠、碳酸氢钠、偶氮胂 III、双氧水、标准溶液 U(VI) (pH=5, 浓度为 $200 \text{ mg}\cdot\text{L}^{-1}$).

1.2 实验方法

1.2.1 改性粘土岩的制备

取 4 g 粘土岩矿物,经破碎、研磨并过 200 目筛后,放入干燥箱中 $80 \text{ }^\circ\text{C}$ 烘烤至完全干燥,向干燥后的粘土岩中加入 200 mL 的去离子水、2 mL $1 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的盐酸和 2 mL $2 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 的硝酸,在室温下使用恒温磁力搅拌器以 $1000 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的转速搅拌 6 h,对粘土岩进行酸性活化.将活化后粘土岩放入三颈烧瓶中,加入 200 mL 无水乙醇,三颈烧瓶保持氮气循环的条件下,放置在恒温电热套中恒温加热 2 h,使其充分完成水解、聚合后再逐滴加入 2 mL 的 3-APTES 并充分震荡,继续恒温加热 4 h.反应完成后的产物放入恒温真空抽滤箱中,在 $80 \text{ }^\circ\text{C}$ 的真空条件下进行恒温干燥,每 3 h 用无水乙醇进行冲洗 1 次,重复操作 6—8 次,待产物完全干燥后即可得到 3-APTES 改性粘土岩.

1.2.2 吸附实验

称取 0.04 g 3-APTES 改性粘土岩到离心管中,加入 2 mL 的 $200 \text{ }\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的 U(VI) 标液并定容至 8 mL.将离心管放置到恒温震荡箱中进行振荡,按照设定的接触时间分别取出离心管,放入高速离心机中以 $3000 \text{ r}\cdot\text{min}^{-1}$ 的转速离心 20 min.离心后 3-APTES 改性粘土岩聚集在离心管底部,移取 1 mL 上清液于 10 mL 的容量瓶,先后加入 0.5 mL 的 $0.5 \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 盐酸和 2 mL 质量浓度为 0.1% 的偶氮胂 III 显色剂,摇匀后使用紫外分光光度计测量其浓度并记录数据.本实验通过吸附分配系数(K_d 值)来表征吸附性能^[14-15]:

$$K_d = \frac{(A_0 - A_t) \times V}{A_t \times M} \quad (1)$$

式中, A_0 —U(VI) 的初始浓度, $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$; A_t —平衡后水相中 U(VI) 的浓度, $\mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$; V —反应介质的总体

积, mL; M —加入 3-APTES 改性粘土岩的质量, g.

2 结果与讨论 (Results and discussion)

2.1 粘土岩及改性粘土岩的表征

2.1.1 XRF 分析

粘土岩及 3-APTES 改性粘土岩的 XRF 分析结果如表 1 所示. 由表 1 可知, 粘土岩及 3-APTES 改性粘土岩化学组成复杂, Si、Ca、Al 元素所占比重较大, 其中 SiO_2 的含量在粘土岩及改性粘土岩中超过 50.00%, 还含有少量的 Fe、K、Mg、Na 等元素, 且都以稳定氧化物的形式存在于 3-APTES 改性粘土岩中.

表 1 粘土岩、3-APTES 改性粘土岩主要成分(%)

Table 1 Main components of claystone、3-APTES modified claystone(%)

成分 Composition	岩样1 Claystone1	岩样2 Claystone2	岩样平均值 Average value	改性岩样1 Modified claystone 1	改性岩样2 Modified claystone 2	改性岩平均值 Average value
SiO_2	52.92	49.08	51.00	49.67	52.88	51.28
CaO	21.84	18.53	20.19	21.68	17.69	19.69
Al_2O_3	14.71	15.20	14.96	14.86	15.23	15.04
Fe_2O_3	5.82	5.93	5.88	5.66	5.98	5.82
K_2O	3.09	2.56	2.83	2.70	2.88	2.79
MgO	2.75	2.88	2.82	2.82	2.68	2.75
Na_2O	0.87	0.95	0.91	0.87	0.94	0.90
TiO_2	0.63	0.68	0.66	0.63	0.67	0.65

2.1.2 红外光谱表征与分析

改性前后的粘土岩红外光谱见图 1. 由图 1 可知, 3415.31 cm^{-1} 处为 Si—OH 键伸缩振动峰, 2917.77 cm^{-1} 处为 C—H 键的伸缩振动峰(反称), 1644.98 cm^{-1} 处为 H_2O —OH 键弯曲振动峰, 改性前后土样这 3 个峰完全一样, 说明进行附载改性后, 这部分结构并未发生改变. 1454.06 cm^{-1} 处为 C—O—H 键伸缩振动峰, 改性后该峰基本消失, 说明粘土岩中的 C—O—H 键被 3-APTES 中的 $-\text{NH}_2$ 破坏. 1031.73 cm^{-1} 处为 Si—O 键面内伸缩振动峰, 改性后该峰的面积明显增大, 说明 Si—O 键数量增加, 这与 3-APTES 的化学成分相符. 873.59 cm^{-1} 处的 C—H 键弯曲振动消失. 在 470.54 cm^{-1} 处的 Si—O—Al 键弯曲振动峰面积增加, 说明该键的数量增加, 这是由于 3-APTES 中的部分 Si—O 键与粘土岩中的 Al 原子组合成新的 Si—O—Al 键. 由此可知 3-APTES 改性粘土岩的改性过程主要发生在 C—O—H 键、Si—O 键和 Si—O—Al 键处. 其主要组分未发生变化, 仍为伊利石等粘土矿物.

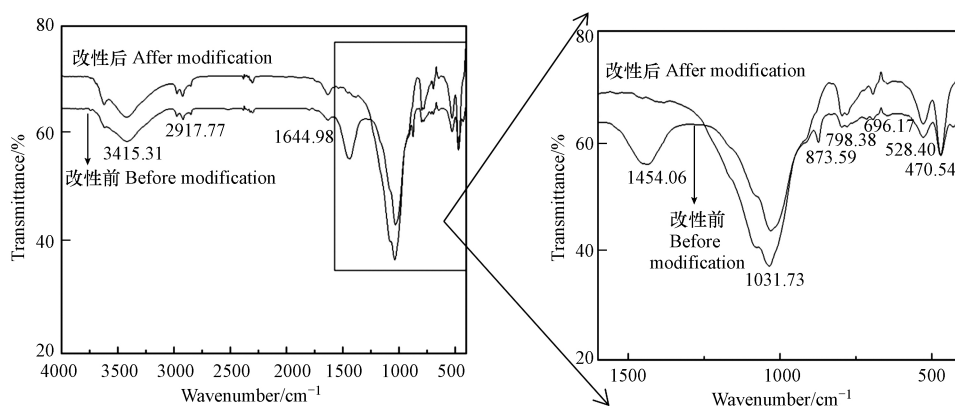


图 1 改性前后粘土岩红外光谱

Fig.1 FT-IR spectrum analysis of laystone

2.1.3 SEM 表征与分析

3-APTES 改性粘土岩的扫描电镜结果如图 2 所示. 由图 2 可以看出, 3-APTES 改性粘土岩没有固定的表面结构, 多为呈不规则多边型的薄片状晶体, 形态各异没有规律, 且空间结构分布分散, 各晶体间孔隙大, 空位多. 这样的结构使得 3-APTES 改性粘土岩拥有更大的比表面积、更多的吸附位点, 即其具有更强的表面吸附能力.

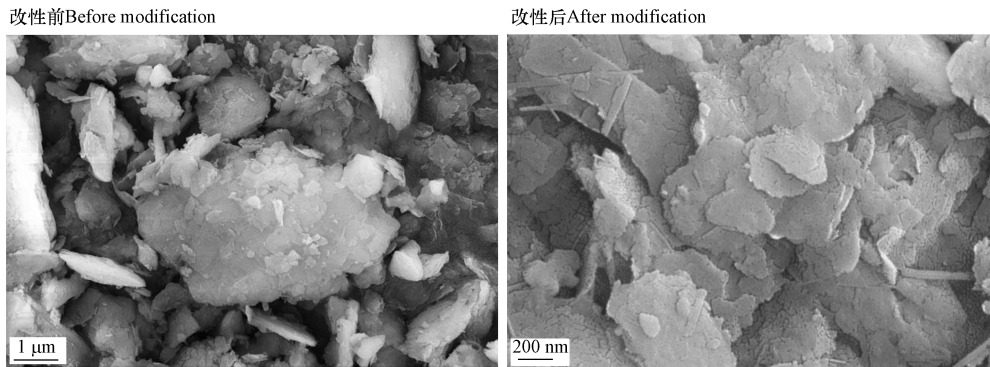


图 2 3-APTES 改性粘土岩扫描电镜图

Fig.2 SEM chart of 3-APTES Modified Claystone(a before modification,b after modification)

2.2 改性粘土岩对 U(VI) 的吸附性能研究

2.2.1 时间对吸附性能的影响

室温下, 称取 0.04 g 3-APTES 改性粘土岩到离心管中, 加入 2 mL 的 $200 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的 U(VI) 标液并定容至 8 mL. 在 pH 5 的条件下, 考察吸附时间对改性粘土岩对 U(VI) 的影响, 结果如图 3 所示. 由图 3 可知, 3-APTES 改性粘土岩对 U(VI) 的吸附量随反应时间的增加而增加, 吸附速率随时间的增加而不断减小. 120 min 时吸附量达到最大, 吸附达到平衡.

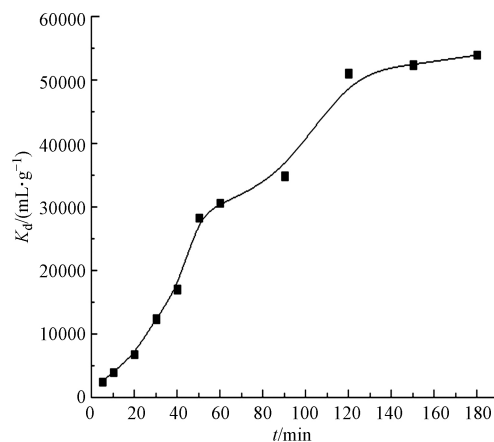


图 3 反应时间对吸附性能的影响

Fig.3 Effect of adsorption duration on U(VI) removal

2.2.2 初始浓度对吸附性能的影响

室温下, 称取 0.04 g 3-APTES 改性粘土岩到离心管中, 加入 2 mL 的不同初始浓度的 U(VI) 标液并定容至 8 mL. 在 pH 5 的条件下, 吸附 120 min, 考察不同浓度对改性粘土岩对 U(VI) 的影响, 结果如图 4 所示. 由图 4 可知, 3-APTES 改性粘土岩对 U(VI) 的吸附性能随着 U(VI) 初始浓度的增大先增强后减弱, 最后趋于稳定. 分析认为是由于 3-APTES 改性粘土岩含有大量的氨基、羟基、碳碳双键等有机活性基团, 能与溶液中的 U(VI) 以化学键的形式结合, 同时 3-APTES 改性粘土岩不规则的形状及松散多孔的表面结构, 可为对 U(VI) 的吸附提供足够的吸附位点, 使分配系数增大; 当 U(VI) 初始浓度为 $50 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 时, 3-APTES 改性粘土岩中的吸附点位已基本被 U(VI) 所占据, 没有多余的位点用于继续吸附溶液中过量的 U(VI), U(VI) 就会与溶液中的其他离子结合, 以铀酰化合物的形式游离存在, 以致溶液中的

U(VI) 浓度降低, 而被吸附的 U(VI) 的量保持一定, 导致分配系数呈下降趋势, 直至 K_d 值趋于一定. $50 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 为 3-APTES 改性粘土岩吸附 U(VI) 的最佳浓度.

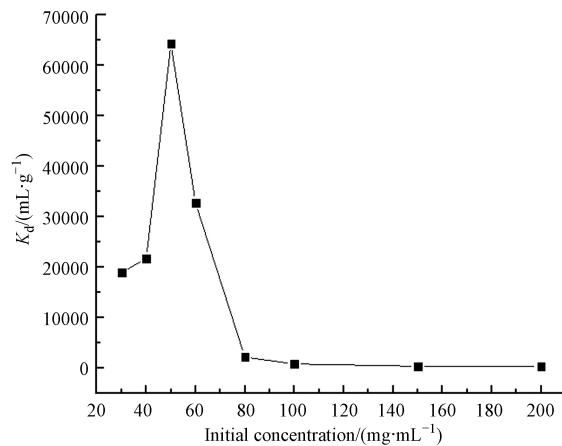


图 4 初始浓度对吸附性能的影响

Fig.4 Effect of U(VI) initial concentrations on U(VI) adsorption

2.2.3 固液比对吸附性能的影响

室温下, 称取一定量的 3-APTES 改性粘土岩到离心管中, 加入 2 mL 的 $50 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的 U(VI) 标液并定容至 8 mL. 在 pH 5 的条件下, 吸附 120 min, 考察不同固液比对改性粘土岩对 U(VI) 的影响, 结果如图 5 所示. 由图 5 可知, 随着固液比的增大分配系数 K_d 值先增大后减小. 这是因为当 3-APTES 改性粘土岩投入量较少时, 3-APTES 改性粘土岩表面的吸附位点不足以将 U(VI) 完全吸附, U(VI) 以铀酰离子的形式游离存在于溶液中; 随着投入量的增加, 吸附位点和配位点增多, 故分配系数增大; 当岩样用量达到一定值后, 吸附达到饱和, 继续增加投入量 U(VI) 将不再被吸附, 单位面积上的吸附量减少, K_d 值下降. 1 : 200 为此过程的最佳固液比. 此时, 分配系数最高, 最佳吸附量达 $9.969 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$. 同等条件下未改性粘土岩的最佳吸附量为 $2.352 \text{ mg}\cdot\text{g}^{-1}$, 改性粘土岩吸附能力显著增加.

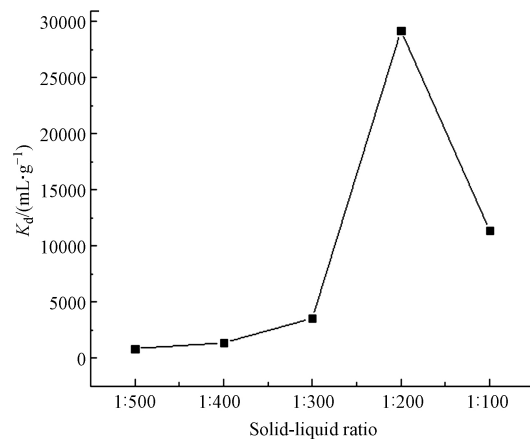


图 5 固液比对吸附性能的影响

Fig.5 Effect of solid-liquid ratio on U(VI) adsorption

2.2.4 pH 对吸附性能的影响

室温下, 称取 0.04 g 3-APTES 改性粘土岩到离心管中, 加入 2 mL 的 $50 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的 U(VI) 标液并定容至 8 mL. 吸附 120 min, 考察不同 pH 对改性粘土岩对 U(VI) 的影响, 结果如图 6 所示. 由图 6 可知, 当 pH 值小于 5 时, 3-APTES 改性粘土岩对 U(VI) 的吸附分配系数随 pH 的增大而增大; 当 pH 值等于 5 时, K_d 值达到最大, 为最佳吸附 pH 值; 当 pH 值大于 5 时, 分配系数随 pH 的增大而减小. 这是由于酸性条件下, U(VI) 在溶液中以游离的 UO_2^{2+} 形式存在, U(VI) 的吸附主要为 UO_2^{2+} 与土样表面的有机活性官能团成键结合, 而溶液中含有的量 H^+ , 会与 3-APTES 改性粘土岩上 $-\text{NH}_2$ 和 $-\text{OH}$ 结合, 与 UO_2^{2+} 竞争吸附空位, 明显抑制了对 U(VI) 的吸附作用; 随着 pH 值的增大, UO_2CO_3 与溶液中的 OH^- 络合生成

$\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$, 吸附效果下降. 随着 OH^- 的持续增加, $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ 会与过量的 OH^- 反应生成 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$, 其极难被 3-APTES 改性粘土岩吸附, 从而抑制对 U(VI) 的吸附. 同时过量的 OH^- 还会与土样中的有机活性基团配位, 占据大量的吸附配位点, U(VI) 游离存在与溶液中, 从而使分配系数 K_d 值降低.

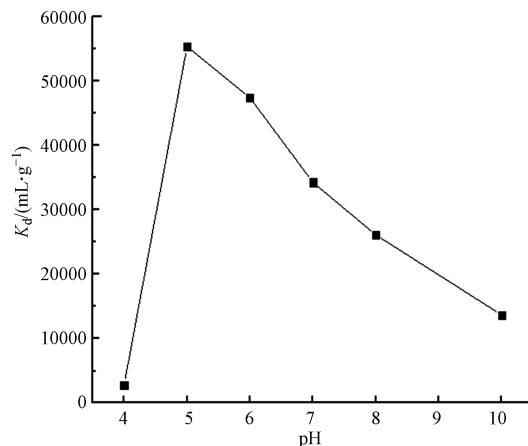


图 6 水相 pH 对吸附性能的影响

Fig.6 Effect of pH on U(VI) adsorption

2.2.5 温度对吸附性能的影响

称取 0.04 g 3-APTES 改性粘土岩到离心管中, 加入 2 mL 的 $50 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的 U(VI) 标液并定容至 8 mL. 在 pH 5 的条件下, 吸附 120 min, 考察不同温度对改性粘土岩对 U(VI) 的影响, 结果如图 7 所示. 由图 7 可知, 分配系数受温度影响较大, 随着温度的增高吸收分配系数急剧增加, 吸附反应速率加快, 说明此过程为吸热反应, 升温增大 3-APTES 改性粘土岩对 U(VI) 的吸附量. 由图 7 可知, 温度 20 °C 时分配系数较高, 已达 $15800 \text{ mL}\cdot\text{g}^{-1}$, 吸附效果良好, 考虑实验条件, 吸附可在常温下进行.

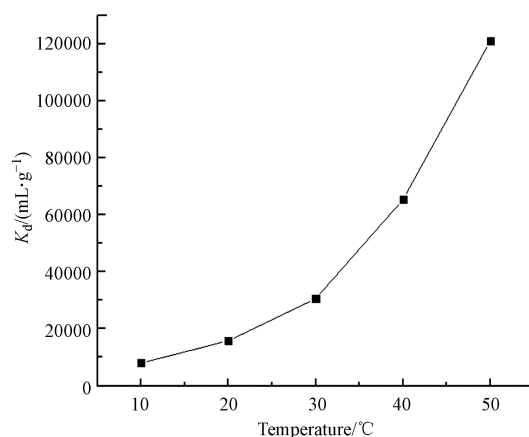


图 7 温度对吸附性能的影响

Fig.7 Effect of temperature on U(VI) adsorption

2.2.6 不同离子对吸附性能的影响

称取 0.04 g 3-APTES 改性粘土岩到离心管中, 加入 2 mL 的 $50 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$ 的 U(VI) 标液并定容至 8 mL. 在 pH 5 的条件下, 吸附 120 min, 考察不同离子对改性粘土岩对 U(VI) 的影响, 结果如图 8 所示. 由图 8 可知, Na^+ 对吸附效果基本无影响, K^+ 、 Mg^{2+} 对吸附的抑制作用较弱, Ca^{2+} 抑制效果最显著. 这是由于带正电荷的离子会在库仑力的作用下附着在 3-APTES 改性粘土岩的表面, 使其表面可用于吸附的位点减少, 从而抑制 3-APTES 改性粘土岩对 U(VI) 的吸附; 同时 Ca^{2+} 还会与溶液中的阴离子形成络合物, 堵塞 3-APTES 改性粘土岩表面的吸附孔位, 大大降低了吸附效果. 阴离子中 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 对吸附行为基本没有影响, HCO_3^- 、 CO_3^{2-} 的抑制效果明显, 这是由于 CO_3^{2-} 水解会产生 OH^- , 其能与 UO_2CO_3 配位生成 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$ 等, 同时 CO_3^{2-} 还能与 U(VI) 络合, 形成多种难以被吸附的化学物质, 从而导致 U(VI) 的吸附

量下降;而 HCO_3^- 能电离产生 CO_3^{2-} ,其抑制吸附的机理与 CO_3^{2-} 相同,但是 HCO_3^- 的水解能力较弱,产生的 OH^- 较少,所以其对吸附的抑制效果弱于 CO_3^{2-} .

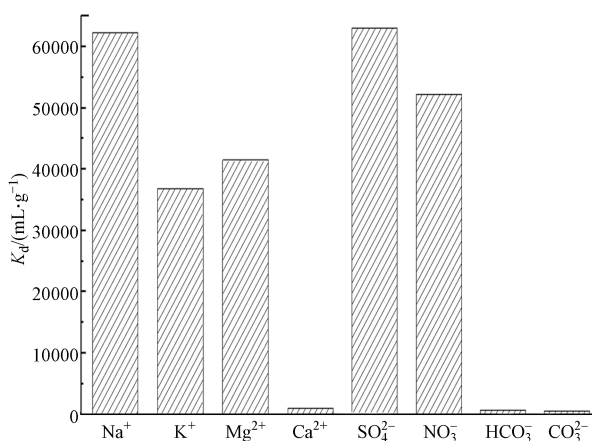


图8 不同离子对吸附性能的影响

Fig.8 Effect of different ions on U(VI) adsorption

3 结论(Conclusion)

本文以 3-APTES 改性粘土岩作为研究对象,通过 XRF、FT-IR 和 SEM 和等仪器对 3-APTES 改性粘土岩的化学成分及结构进行表征,以静态吸附的方式,探究了在不同条件下其对 U(VI) 的吸附影响规律.得出以下结论:

(1) 3-APTES 改性粘土岩化学组成复杂, Si、Ca、Al 元素所占比重较大,其中 SiO_2 含量最大;其表面空洞多,结构松散,利于吸附; 3-APTES 改性粘土岩的改性过程主要发生在 C—O—H 键、Si—O 键和 Si—O—Al 键处.

(2) 3-APTES 改性粘土岩吸附水相中 U(VI) 的平衡时间为 120 min,最佳固液比为 1:200,最佳 U(VI) 初始浓度为 $50 \mu\text{g}\cdot\text{mL}^{-1}$. 3-APTES 改性粘土岩对 U(VI) 吸附能力随 pH 的增大先增强后减弱,吸附的最佳 pH 值为 5; Ca^{2+} 、 CO_3^{2-} 和 HCO_3^- 对吸附进程的抑制作用明显; K^+ 、 Na^+ 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 对 U(VI) 的吸附作用影响较弱.

参考文献 (References)

- [1] 曹存存,吕俊文,夏良树,等.土壤胶体对渗滤液中铀(VI)迁移影响的研究进展[J].核化学与放射化学,2012,34(1):1-7.
CAO C C, LU J W, XIA L S, et al. Impact of colloids on migration of U(VI) from uranium waste rock leachate [J]. Journal of Nuclear Radiochemistry, 2012, 34(1): 1-7 (in Chinese).
- [2] 冯孝杰,祁芳芳,秦冰,等.几种阴离子对土壤中铀的浸取的影响[J].核技术,2013,36(9):42-46.
FENG X J, QI F F, QIN B, et al. Influence of several anions on uranium desorption in U-contaminated soil [J]. Nuclear Techniques, 2013, 36(9): 42-46 (in Chinese).
- [3] 朱莉,王津,刘娟,等.铀尾矿库中铀,钍及部分金属的模拟淋浸实验初探[J].环境化学,2013,32(4):678-685.
ZHU L, WANG J, LIU J, et al. Preliminary study on uranium, thorium and some other metals leached from uranium tailings under simulated natural environmental conditions [J]. Environmental Chemistry, 2013, 32(4): 678-685 (in Chinese).
- [4] 方俊,黄炜飞,解小凡,等.榕树气生根对铀吸附性能的初步研究[J].环境化学,2016,35(3):555-561.
FANG J, HUANG W F, XIE X F, et al. Sorption of uranium (VI) from aqueous solution by biomass of aerial root of Ficus microcarpa [J]. Environmental Chemistry, 2016, 35(3): 555-561 (in Chinese).
- [5] 王彦惠,成建峰,赵玉婷,等. $\text{Fe}_3\text{O}_4@/\text{SiO}_2\text{-NH}_2$ 磁性复合纳米材料对铀(VI)的吸附性能[J].环境化学,2019,38(9):2149-2158.
WANG Y H, CHENG J F, ZHAO Y T, et al. Adsorption of $\text{Fe}_3\text{O}_4@/\text{SiO}_2\text{-NH}_2$ magnetic composite nanomaterials on Uranium (VI) [J]. Environmental Chemistry, 2019, 38(9): 2149-2158 (in Chinese).
- [6] YU G, ZHANG M G, CHENG X M, et al. Carbon nanotube versus graphene in modifying the electrical and optical properties of organic nonlinear optical material [J]. Applied Nanoscience, 2020, 10(6): 1893-1901.
- [7] 黄永锋,许紫洋.放射性废物处置研究进展[J].化工设计通讯,2017,43(2):105-122.

- HUANG Y F, XU Z Y. Research progress of radioactive waste disposal [J]. *Chemical Engineering Design Communications*, 2017, 43(2): 105-122(in Chinese).
- [8] ALI AYOUB, WILFRIED PFINGSTEN, LUCA PODOFILLINI, et al. Uncertainty and sensitivity analysis of the chemistry of cesium sorption in deep geological repositories [J]. *Applied Geochemistry*, 2020, 117(104607): 1-12.
- [9] 潘多强. U(VI)、Th(IV)和Eu(III)在花岗岩组分矿物及膨润土上的吸附行为研究[D]. 兰州: 兰州大学, 2014.
PANG D Q. Sorption of U(VI), Th(IV) and Eu(III) on mineralogical components of granite and benton [D]. Lanzhou: Lanzhou University, 2014(in Chinese).
- [10] ZEYNEP M Ş, SELÇUK Ş, HALİL İ U, et al. Insight from adsorption properties of Xylidyl Blue embedded hydrogel for effective removal of uranyl: Experimental and theoretical approaches [J]. *Polymer Testing*, 2020, 88: 106566.
- [11] 罗辉, 王驹, 谢敬礼, 等. 一种高放废物地质处置深钻孔布置方法[P]. CN110322982A, 2019-10-11.
LUO H, WANG J, XIE J L, et al. A layout method of deep boreholes for geological disposal of high level radioactive waste[P]. Beijing: CN110322982A, 2019-10-11(in Chinese).
- [12] 孙东阳, 赵帅维, 李洪辉. 高放废物深地质处置缓冲材料中(239)Pu核素迁移计算 [J]. *环境工程*, 2018(36): 573-579.
SUN D Y, ZHAO S W, LI H H. Conculcation of nuclide migration model of ²³⁹ Pu in buffer material in deep geology disposal [J]. *Environmental Engineering*, 2018(36): 573-579(in Chinese).
- [13] 马立平, 韩永国. 核废物地质处置缓冲/回填材料研究综述 [J]. *四川建筑*, 2014, 34(2): 92-94.
MA L P, HAN Y G. Review of buffer / backfill materials for geological disposal of nuclear waste [J]. *Sichuan Architecture*, 2014, 34(2): 92-94(in Chinese).
- [14] 杜浪, 李玉香, 马雪, 等. 偶氮胂 III 分光光度法测定微量铀 [J]. *冶金分析*, 2015, 35(1): 68-71.
DU L, LI Y X, MA X, et al. Determination of micro uranium by arsenazo III spectrophotometry [J]. *Metallurgical Analysis*, 2015, 35(1): 68-71(in Chinese).
- [15] 杜作勇, 王彦惠, 李东瑞, 等. 膨润土对U(VI)的吸附机理研究 [J]. *核技术*, 2019, 42(2): 22-29.
DU Z Y, WANG Y H, LI D R, et al. Adsorption mechanism of U(VI) by bentonite [J]. *Nuclear Techniques*, 2019, 42(2): 22-29(in Chinese).