

卤化银添加剂对 ^{125}I 在北山花岗岩岩粉中的吸附作用研究

陈 涛 田文宇 孙 茂 黎 春 刘晓宇 王路化 王祥云 刘春立*

(北京分子科学国家实验室, 北京大学化学与分子工程学院应用化学系, 北京 100871)

摘要: 利用柱法实验和批次实验研究了卤化银(AgCl 、 AgBr 、 AgI)对 ^{125}I 在甘肃北山花岗岩中的吸附现象。结果表明在无载体的情况下, 卤化银添加剂有利于 ^{125}I 在北山花岗岩岩粉中的吸附, 有效分配系数(K_{de})均大于 $1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ 。在有载体的情况下, 氯化银和溴化银仍然对 ^{125}I 在北山花岗岩岩粉中有良好的吸附作用, K_{de} 大于 $1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ 。其中, 溴化银的吸附效果最好, 这可能与晶体结构和光解性质有关。

关键词: 卤化银; 添加剂; 北山花岗岩; ^{125}I ; 高放废物地质处置

中图分类号: O613.44; O615.11

文献标识码: A

文章编号: 1001-4861(2009)05-0761-06

Influence of Silver Halide Additives on the Sorption of Iodine-125 on Beishan Granite Powder

CHEN Tao TIAN Wen-Yu SUN Mao LI Chun LIU Xiao-Yu

WANG Lu-Hua WANG Xiang-Yun LIU Chun-Li*

(Beijing National Laboratory for Molecular Sciences, Department of Applied Chemistry,
College of Chemistry and Molecular Engineering, Peking University, Beijing 100871)

Abstract: The influence of silver halide additives (AgCl , AgBr , AgI) on the sorption of ^{125}I on Beishan Granite powder was studied by column and batch sorption methods. The results indicate that silver halide additives could enhance the sorption of ^{125}I on Beishan Granite powder with effective distribution coefficients (K_{de}) greater than $1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$. When isotopic carrier of ^{125}I is added, silver chloride and silver bromide still enhance the sorption of ^{125}I on Beishan Granite Powder with K_{de} values greater than $1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$. Among the three, silver bromide has the highest power in enhancing the sorption of ^{125}I on the granite powder, which may due to its crystal structure and photolysis ability.

Key words: silver halides; additives; Beishan Granite; ^{125}I ; high-level radioactive wastes

高放废物地质处置的基本概念是将包装好的高放废物放置在距地表 500~1 000 m 的稳定的岩体中, 使之与生物圈长期有效隔离。在高放废物处置库安全评价中, 关键核素在处置库围岩中的迁移扩散是关键基础参数之一^[1]。半衰期长达 1.57×10^7 年的裂片核素 ^{129}I 被认为是关键核素之一, 其在处置

库环境条件下常以阴离子的形式存在, 有很强的迁移扩散能力且能在生物体的特定器官中富集^[2], 对环境和人群构成潜在危险。探究 ^{129}I 在环境中的迁移扩散行为, 尤其是探究阻滞或延迟其在环境中迁移扩散的因素, 是国内外研究人员普遍关注的问题, 并对此开展了大量的研究工作。研究过的有吸

收稿日期: 2009-02-23。收修改稿日期: 2009-04-07。

国家自然科学基金(No.20471005, 10775008)、教育部博士点基金(No.20060001032)、国防科工委军工遗留专项基金(No.科工计[2007]840)资助项目。

*通讯联系人。E-mail: liuel@pku.edu.cn

第一作者: 陈 涛, 男, 27 岁, 博士研究生; 研究方向: 核环境化学, 环境放射化学。

附阻滞能力的材料包括黄铁矿、粘土矿、高铝水泥、活性炭、水滑石、银及含银的简单化合物等^[3-11]。韩国的 Kim 等人研究了废物罐腐蚀产物和一些添加剂对碘在膨润土中的吸附阻滞能力。结果表明棕桐活性炭、Ag(s)和 Ag₂O 对碘离子有明显的吸附^[9]。法国的 Bazer-Bachi 等人研究了 Callovo-Oxfordian 粘土对碘的吸附阻滞能力,发现在碘浓度较低的情况下,Callovo-Oxfordian 粘土对碘离子有轻微的吸附能力^[11]。中国原子能科学研究院的曾继述和夏德迎曾挑选了 15 种国产材料,包括矿物和工业产品,采用批次实验法筛选吸附碘的材料。结果表明灰硒汞矿和杏壳活性炭对放射性比活度为 $1.2 \times 10^5 \text{ Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$ 的 ^{125}I 有显著的吸附,分配比 (K_d) 大于 $1 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ ^[12]。复旦大学的唐静娟等人研制和筛选了一种对碘吸附性能良好的含银硅胶吸附剂,其吸附能力最大可达 $200 \text{ mgI} \cdot \text{g}^{-1}$ ^[13]。这些工作大多采用批次吸附实验法研究各种材料的性能,很少涉及动态问题。与批次实验相比,柱法实验更能体现核素在深地质处置库环境中的迁移扩散行为,获得的结果更具参考意义^[14]。在本工作中,我们选取卤化银(AgX)作为吸附碘的候选添加剂, ^{125}I 作为 ^{129}I 的替代核素,同时采用柱法实验和批次吸附实验,研究了 AgX 对 ^{125}I 的吸附性能。考虑到核素在花岗岩中的迁移可能主要发生在花岗岩裂隙中,我们将 AgX 与甘肃北山花岗岩岩粉按质量配比均匀混合,期望研究结果为评价碘-129 在北山花岗岩裂隙中的迁移提供基础参数。

1 实验部分

1.1 样品、试剂和实验装置

1.1.1 样品和试剂

实验所用的花岗岩样品采自甘肃北山地区,采样深度约 600 m,由核工业北京地质研究院提供,其理化性质已有报导^[15]。用玛瑙研钵将岩块加工成粉末,选取粒径在 $58 \sim 74 \mu\text{m}$ ($200 \sim 300$ 目)之间的岩粉备用。

放射性核素 ^{125}I 为碘化钠溶液(Na^{125}I 溶液,无载体, $1.2 \times 10^9 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$),购自成都中核高通同位素股份有限公司。添加剂氯化银(AgCl,国药集团化学试剂有限公司,分析纯)、溴化银(AgBr,北京化工厂,化学纯)和碘化银(AgI,北京化工厂,化学纯)均为固体粉末。为使实验过程中液相的离子强度保持恒定,柱法实验中的淋洗液和批次吸附实验中的电解质底液均使用 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的高氯酸钠(NaClO_4 ,北京化学

试剂公司,分析纯)溶液,并用 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的氢氧化钠(NaOH ,北京化工厂,分析纯)溶液调节其 pH 值为 9.0。在静态吸附实验中,用 $0.001 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的碘化钠(NaI ,北京化学试剂公司,分析纯)溶液作为 Na^{125}I 的载体溶液,其 pH 值同样用 NaOH 溶液调节为 9.0。采用去离子水配制所用的溶液。

1.1.2 实验装置

柱法实验在高压液相色谱(HPLC, Waters)上进行。实验装置由 1 个 HPLC 泵(Waters 1525)、1 个双波长紫外检测器(Waters 2487)和 1 个放射性活度流动检测器(Packard 500TR)组成,可对 ^{125}I 进行在线测量,并观测其流出曲线。图 1 为实验装置示意图。用自动 γ 计数器(Packard, E5002)测量静态吸附实验中 ^{125}I (测量能量范围为 $10 \sim 75 \text{ keV}$) 溶液的放射性活度。

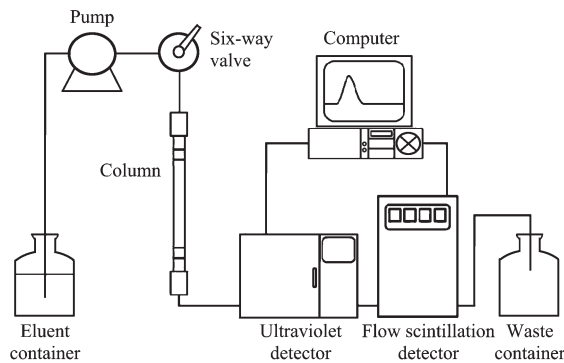


图 1 柱法实验装置示意图

Fig.1 Sketch of column experiment system

1.2 实验方法

1.2.1 柱法实验

将一定量的北山花岗岩岩粉与 AgX 固体粉末混合,用碾磨法使其混合均匀。用干法将岩粉或岩粉与 AgX 的均匀混合物填入不锈钢色谱柱 ($\phi 4.6 \times 150 \text{ mm}$) 中。填料的粒径在 $58 \sim 74 \mu\text{m}$ 之间,其组成和装填密度数据列入表 1。柱的两端均装有孔径为 $0.2 \mu\text{m}$ 的筛板,以保证填料不被淋洗液带出。淋洗液的流速恒定为 $0.1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ 。待淋洗液与色谱柱内的填料达到固液平衡后(平衡时间 15 h),用 HPLC 进样针向柱中加入 $10 \mu\text{L}$ 的 Na^{125}I 溶液 (约 $1.2 \times 10^4 \text{ Bq}$),检测器自动记录 ^{125}I 的流出曲线。

1.2.2 静态吸附实验

按事先确定的质量配比将岩粉与 AgX 均匀混合,具体的质量配比数据列入表 2。取 0.2 g 岩粉或岩粉与 AgX 的混合物加入带盖的塑质离心管中,每个实验点 2 个平行样品。在无载体的静态吸附实验

表1 色谱柱的装填参数及实验结果

Table 1 Loading parameters of the columns and the fitted experimental results

Columne packing	Density / (g·cm ⁻³)	Eluting time / min	Peak area / counts	Adsorption / %
Pure granite powder (GR)	1.76	13.5	7.44×10 ⁴	0
$m_{\text{AgCl}}:m_{\text{GR}}=1:10$	1.87	14.7	3.61×10 ³	95.2
$m_{\text{AgCl}}:m_{\text{GR}}=1:20$	1.86	13.4	3.96×10 ³	94.7
$m_{\text{AgBr}}:m_{\text{GR}}=1:10$	1.94	13.4	4.96×10 ³	93.3
$m_{\text{AgBr}}:m_{\text{GR}}=1:20$	1.86	13.4	4.39×10 ³	94.1
$m_{\text{AgI}}:m_{\text{GR}}=1:10$	1.94	13.3	6.16×10 ³	91.7
$m_{\text{AgI}}:m_{\text{GR}}=1:20$	1.91	13.3	4.56×10 ³	93.9

表2 静态吸附实验结果

Table 2 Results of batch sorption experiments

Solid composition	Mass added / g	Without carrier		With carrier	
		Sorption / %	$K_{\text{de}} / (\text{mol} \cdot \text{L}^{-1})$	Sorption / %	$K_{\text{de}} / (\text{mol} \cdot \text{L}^{-1})$
GR	0	6.3	9.00	1.1	1.3
$m_{\text{AgCl}}/m_{\text{GR}}=1:40$	4.82×10 ⁻³	84.1	2.74×10 ⁴	44.1	4.09×10 ³
$m_{\text{AgCl}}/m_{\text{GR}}=1:20$	9.57×10 ⁻³	83.9	1.36×10 ⁴	40.7	1.81×10 ³
$m_{\text{AgCl}}/m_{\text{GR}}=1:10$	1.84×10 ⁻²	84.8	7.59×10 ³	66.6	2.72×10 ³
$m_{\text{AgBr}}/m_{\text{GR}}=1:40$	4.99×10 ⁻³	83.4	2.52×10 ⁴	76.2	1.61×10 ⁴
$m_{\text{AgBr}}/m_{\text{GR}}=1:20$	9.83×10 ⁻³	84.0	1.33×10 ⁴	86.6	1.64×10 ⁴
$m_{\text{AgBr}}/m_{\text{GR}}=1:10$	1.87×10 ⁻²	84.0	7.02×10 ³	89.3	1.12×10 ⁴
$m_{\text{AgI}}/m_{\text{GR}}=1:40$	4.99×10 ⁻³	60.1	7.60×10 ³	2.0	1.02×10 ²
$m_{\text{AgI}}/m_{\text{GR}}=1:20$	9.88×10 ⁻³	70.1	5.94×10 ³	3.3	85.1
$m_{\text{AgI}}/m_{\text{GR}}=1:10$	1.83×10 ⁻²	59.2	1.99×10 ³	5.8	84.2

中,向离心管中加入 25.0 mL 的 NaClO₄ 溶液,25 °C 恒温振荡 7 d,使溶液与岩粉达到平衡,然后加入 20 μL 的 Na¹²⁵I 溶液,继续振荡 1 d。前期的动力学实验证明,5 d 的振荡时间和 1 d 的反应时间足使体系达到吸附平衡。加入 Na¹²⁵I 溶液所引起的体积变化小于 0.1%,忽略不计。在添加载体的静态吸附实验中,向离心管中加入 20.0 mL NaClO₄ 溶液,25 °C 恒温振荡 7 d,再加入 5.0 mL 有载体的 Na¹²⁵I 溶液,其中所含 ¹²⁵I 的量与不加载体的吸附实验相同,继续振荡 1 d。将平衡后的悬浊液离心分离,取 1.0 mL 上清液测量其放射性浓度(C_L)。同时测量原液的放射性浓度(C_0)。利用 ¹²⁵I 在固液两相间的有效分配系数(K_{de})来表征混合物中的添加剂对 ¹²⁵I 的吸附作用,按其定义可用下式计算 K_{de} 的值。

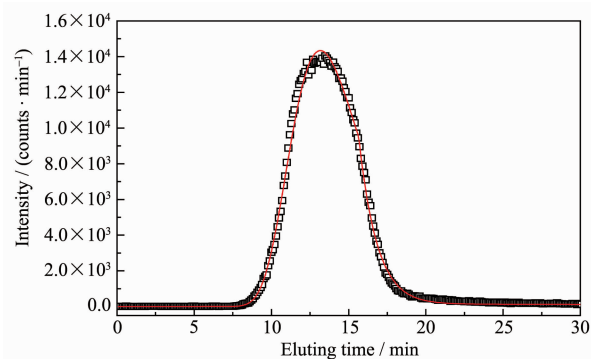
$$K_{\text{de}} = \frac{C_0 - C_L}{C_L} \times \frac{V}{m} \quad (1)$$

其中: C_0 为原液中 ¹²⁵I 的浓度 (counts·min⁻¹·mL⁻¹), C_L 为吸附平衡后上清液中 ¹²⁵I 的浓度(counts·min⁻¹·mL⁻¹), V 为溶液的总体积 (mL), m 为添加剂的质量(g), K_{de} 为有效吸附分配比参数(mL·g⁻¹)。

2 结果与讨论

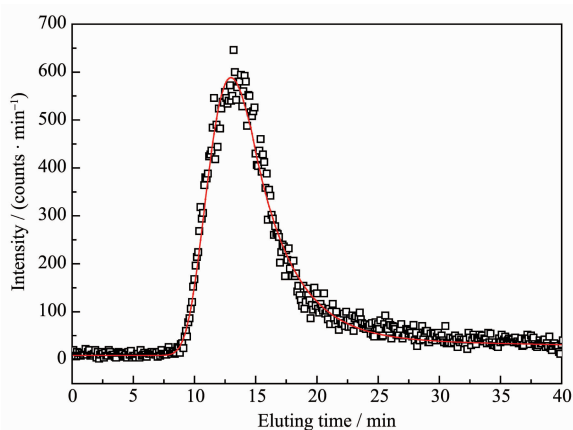
2.1 柱法实验

图 2 为 ¹²⁵I 通过纯花岗岩岩粉柱的流出曲线,图 3 为 ¹²⁵I 通过添加 10% AgCl 添加剂的花岗岩岩粉柱的流出曲线。从图 2 和图 3 可以看出,除了峰高有差别外,流出曲线的形状基本相同,其他条件



Open square points are the experimental data, while the smooth line is the fitted result with a combination of an extreme peak function, a Gaussian peak function and a linear background

图2 ¹²⁵I 在纯花岗岩岩粉柱上的流出曲线Fig.2 Elution curves of ¹²⁵I in pure granite powder column



Open square points are the experimental data, while the smooth line is the fitted result with a combination of an extreme value peak function and a Gaussian peak function and a linear background

图 3 ^{125}I 在添加了 10% AgCl 的花岗岩岩粉柱上的流出曲线

Fig.3 Elution curves of ^{125}I in granite powder+10% AgCl column

下得到的曲线均与此类似。因花岗岩岩粉表面通常带负电荷,一般认为,花岗岩岩粉对 ^{125}I 的吸附极弱^[6],即 ^{125}I 在纯花岗岩岩粉上的吸附量可以忽略,因此通过纯岩粉柱的流出曲线的峰面积可近似考虑为加入的 ^{125}I 的量。

流出峰为非对称峰,采用极值峰(extreme value peak)曲线、高斯曲线和线性基线联合方法对流出曲线进行拟合,用数值积分法求出峰面积(扣除基线下的面积)。将峰面积的重心作为 ^{125}I 的流出时间。用该方法处理得到的峰面积和流出时间结果列入表 1。从表 1 可以看出, ^{125}I 通过不同柱子的流出时间基本一致。在约 15 min 的流出时间内,已有大于 90% 的 ^{125}I 被吸附,说明 AgCl、AgBr 和 AgI 对无载体的 ^{125}I 均有良好的吸附作用。表 1 中的数据还表明,增加添加剂用量并不能明显增加 ^{125}I 的吸附率,说明 Na^{125}I 溶液中可能存在不易被吸附的碘的种态。因加入岩粉柱中的是少量无载体 Na^{125}I 溶液 (^{125}I 的量约为 2.0×10^{-13} mol),其浓度约在 $10^{-11} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 数量级。柱中添加剂 AgX 的物质的量(约为 10^{-3} mol 数量级),远远大于 ^{125}I 的物质的量,因此以 ^{125}I 种态存在的 ^{125}I 可被吸附,而未被 AgX 吸附的种态其迁移不受影响,因此 ^{125}I 的流出时间基本不变。在实验中我们曾用 $0.1 \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 的 NaCl 溶液作为淋洗液,对吸附了 ^{125}I 的柱子进行淋洗(用去约 45 个柱体积淋洗液),发现被吸附的 ^{125}I 没有被洗脱下来,说明这种

吸附是很稳定的。

2.2 静态吸附实验

表 2 为静态吸附实验结果。从表 2 中的数据可以看出,纯花岗岩岩粉对 ^{125}I 的吸附很弱,其吸附量与 AgX 的吸附量相比可忽略不计,据此可以认为滞留在柱子中的 ^{125}I 均被 AgX 所吸附。无载体时,AgCl 和 AgBr 对 ^{125}I 的吸附率(吸附量/加入量)约为 84%,AgI 则为 63%。这说明 AgCl 和 AgBr 吸附 ^{125}I 的机理可能与 AgI 不一致。当加入载体 NaI 后,AgI 对 ^{125}I 的吸附率急剧下降,而 AgCl 和 AgBr 的吸附率基本不变,这进一步说明了彼此在吸附机理上的差异。无论有无载体,总是有部分 ^{125}I 没有被 AgX 吸附,这说明 Na^{125}I 溶液中确实存在一些不易被 AgX 吸附的种态。在无载体的吸附实验中, ^{125}I 在 AgX 上的 K_{de} 均大于 $1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$; 加入载体后, ^{125}I 在 AgCl 和 AgBr 上的 K_{de} 仍然大于 $1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$,说明 AgCl 和 AgBr 对 ^{125}I 有强烈的吸附作用。尤其是 AgBr, 无论是否加入载体, ^{125}I 在其上的 K_{de} 都达到了 $1.0 \times 10^4 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ 的水平。AgBr 对 ^{125}I 的吸附能力比杏壳活性炭更强^[12],远大于粘土矿、水滑石等材料的吸附能力^[6,11],可以考虑作为添加剂来阻滞高放废物中的 ^{125}I 的迁移扩散。

2.3 非吸附碘的种态分析

无论是在静态吸附实验或是在柱法实验中,都存在约 10% 的 ^{125}I 没有被 AgX 吸附,考虑到我们的仪器测量误差和实验误差对吸附率的贡献不过 5%,因此可以预见在我们使用的 Na^{125}I 溶液中,除有 ^{125}I 外,也可能有 $^{125}\text{IO}_3^-$ 或 $^{125}\text{I}_2$ 等其他种态。其他种态的 ^{125}I 可能是在 ^{125}I 的生产、分装过程中被引入,或者是在我们的实验过程中被空气中的氧气氧

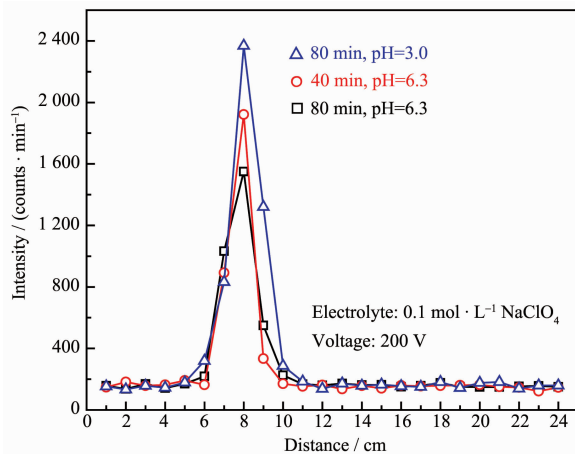


图 4 电泳实验结果

Fig.4 Results of electrophoresis experiments

化或与空气中的其他成分作用所致。为确定 ^{125}I 的不同种态,我们进行了电泳实验。图4为电泳实验的结果。在电泳电压为200 V的情况下, ^{125}I 在纸带上的迁移不随电泳时间和电解液pH值的改变而改变,表明溶液中 ^{125}I 或可能只有1个种态,或本实验条件不能将I与其他种态分开。

为了解空气中的 O_2 是否可能将溶液中的 $^{125}\text{I}^-$ 氧化成 I_2 ,我们用自己编写的化学形态分析软件CHEMSPEC 2.0进行了计算^[17]。计算条件为: $T=25^\circ\text{C}$, $P=0.1\text{ MPa}$, 离子强度 $\mu=0.1\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$, 氧分压 p_{O_2}

分别为 $2.1\times 10^{-2}\text{ MPa}$ 和 $1\times 10^{-7}\text{ MPa}$, 计算结果如图5所示。

图5说明,当碘在低浓度($<1.0\times 10^{-6}\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$)的状态下,100%的碘以 I^- 离子的形式存在,随着碘浓度的增加,有一部分 I^- 被氧化到 I_2 ,且与 I^- 反应生成 I_3^- 。氧分压愈高,被氧化的程度越大。根据前述实验条件,不加NaI载体时,绝大部分的 ^{125}I 应以 $^{125}\text{I}^-$ 的形式存在。加入载体后,预计有少量 I_3^- 生成,但我们的电泳实验尚不能将 I^- 与 I_3^- 分离开。

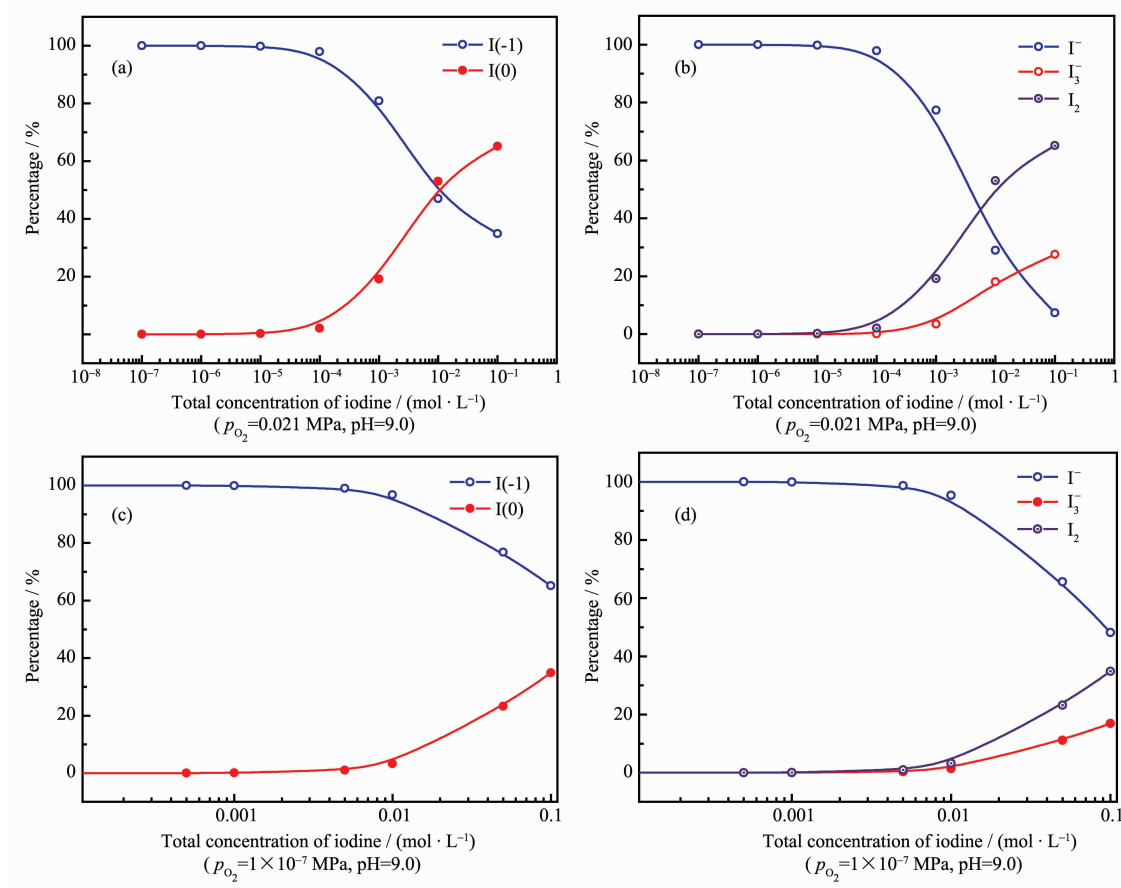


图5 正常氧分压和低氧条件下碘的化学形态分析

Fig.5 Speciation analysis of I^- under normal oxygen partial pressure and low oxygen conditions

2.4 吸附机理初探

静态实验和柱法实验的结果均表明, AgX 可有效地吸附液相中的 ^{125}I 。高放废物地质处置库一般位于地下500~1 000 m的深度,通常属于还原性环境(美国的尤卡山处置库位于包气带,属于氧化性环境)。在还原性环境条件下,碘主要以 I^- 种态形式存在。 AgCl 和 AgBr 晶体的晶型属于 NaCl 型面心立方,键型属于以离子键为主的过渡键型。在这类晶体中, Cl^- 和 Br^- 按面心立方堆积,晶体表面分布着

Ag^+ 和 Cl^- 或 Br^- 离子, $^{125}\text{I}^-$ 可以通过离子交换机制进入晶格,取代 Cl^- 或 Br^- 离子。离子交换的容量取决于晶体表面 Cl^- 或 Br^- 离子的数量。同时因为 AgI 比 AgCl 和 AgBr 溶解度更小,按照法扬斯-潘瑟特共沉淀吸附规则^[18], $^{125}\text{I}^-$ 可按一级吸附机理吸附在这些晶体的表面,经与双电层内层同荷离子交换后形成双电层的内层。因此, AgCl 和 AgBr 对 ^{125}I 均有较强的吸附作用。相对而言, Br^- 的Pauling半径为195 pm,而 Cl^- 的Pauling半径为181 pm,与 AgCl 相比, AgBr

晶体中 Ag^+ 周围的空隙更大, 因此在 AgI 形成之前 AgBr 能吸附更多的 $^{125}\text{I}^-$, 其吸附率相对较大。此外, AgCl 和 AgBr 在光照条件下会发生一定程度的光解, 生成 Ag(s) 。这些 Ag(s) 对 I^- 也有一定的吸附能力^[9]。所以加入载体后, AgCl 和 AgBr 对 I^- 仍然有较强的吸附。而 AgI 属于 ZnS 型面心立方, 键型以共价键为主。 $^{125}\text{I}^-$ 很难以离子交换机制进入 AgI 晶体表面的晶格中, 但仍可按一级吸附机制交换双电层内层的同荷离子。因此在无载体的情况下, AgI 对 $^{125}\text{I}^-$ 有吸附, 但吸附能力弱于 AgCl 和 AgBr 。当加入载体后, 双电层内层主要被稳定的碘离子占据, 因此对 $^{125}\text{I}^-$ 的吸附率降低, 这与实验中观察到的现象吻合。若在高放废物处置库的缓冲回填材料中加入少量的 AgBr 固体, 当高放废物处置库发生破损时, AgBr 可吸附易迁移的 $^{129}\text{I}^-$ 离子, 对高放废物处置库的安全性可能是有利的。

3 结 论

柱法实验和批次吸附实验的研究结果表明, 在无载体的情况下, AgX 对 $^{125}\text{I}^-$ 有良好的吸附性, K_{dc} 均大于 $1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ 。添加载体后, AgCl 和 AgBr 仍然对 $^{125}\text{I}^-$ 有良好的吸附性, $K_{\text{dc}} > 1.0 \times 10^3 \text{ mL} \cdot \text{g}^{-1}$ 。在所研究的 3 种 AgX 中, AgBr 的吸附效果最好且遵守法扬斯-潘聂特共沉淀吸附规则。因此, 可以考虑将 AgBr 作为高放废物地质处置库中缓冲回填材料的添加剂, 用于吸附迁移性强的 $^{129}\text{I}^-$ 离子。

参考文献:

- [1] WANG Ju(王 驹), ZHENG Hua-Ling(郑华铃), XU Guo-Qin(徐国庆), et al. *China's High Level Radioactive Waste Disposal Years Progress*(中国高放废物地质处置十年进展). Beijing: Atomic Energy Press, **2004**.1~37
- [2] Liu Y F, Gunten H R von. *Migration Chemistry and Behaviour of Iodine Relevant to Geological Disposal of Radioactive Wastes-A Literature Review with a Compilation of Sorption Data*. Switzerland: PSI, **1988**.183
- [3] Fuhrmann M, Bajt S, Schoonen M A A. *Appl. Geochem.*, **1998**,**13**(2):127~141
- [4] Wellman D M, Parker K E, Powers L, et al. *Appl. Geochem.*, **2008**,**23**(8):2256~2271
- [5] Toyohara M, Kaneko M, Ueda H, et al. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **2000**,**37**(11):970~978
- [6] Paredes S P, Fetter G, Bosch P, et al. *J. Nucl. Mater.*, **2006**, **359**(3):155~161
- [7] McKinney D S, Hesterberg D L. *J. Radioana. Nucl. Chem.*, **2007**,**273**(2):289~297
- [8] Mineo H, Cotoh M, Iizuka M, et al. *J. Nucl. Sci. Technol.*, **2002**,**39**(3):241~247
- [9] Kim S S, Chun K S, Choi J W, et al. *J. Environ. Sci. Health, Part A*, **2007**,**42**(1):39~43
- [10] Tournassat C, Gaucher E C, Fattahi M, et al. *Phys. Chem. Earth*, **2007**,**32**(8~14):539~551
- [11] Bazer-Bachi F, Tevissen E, Descostes M, et al. *10th International Conference on Chemistry and Migration of Actinides and Fission Products*. Avignon: Pergamon-Elsevier Science, **2005**.517~522
- [12] ZENG Ji-Shu(曾继述), XIA De-Ying(夏德迎). *China's High Level Radioactive Waste Disposal Years Progress*(中国高放废物地质处置十年进展). Beijing: Atomic Energy Press, **2004**.139~144
- [13] TANG Jing-Juan(唐静娟), YE Ming-Lü(叶明吕), MAO Yun(茅 云), et al. *Chin. J. Nucl. Sci. Eng. (He Kexue Yu Gongcheng)*, **1987**,**7**(2):144~148
- [14] Jackson D R, Garrett B C, Bishop T A. *Environ. Sci. Technol.*, **1984**,**18**(9):668~673
- [15] Lu C J, Liu C L, Chen T, et al. *Radiochim. Acta*, **2008**,**96**(2):111~117
- [16] WEN Rui-Yuan(温瑞媛), WANG Xiang-Yun(王祥云), GAO Hong-Cheng(高宏成). *J. Nucl. Radiochem. (He Huaxue Yu Fangshe Huaxue)*, **1994**,**16**(3):129~134
- [17] CHEN Tao(陈 涛), WANG Xiang-Yun(王祥云), TIAN Wen-Yu(田文宇), et al. *Chinese J. Inorg. Chem. (Wuji Huaxue Xuebao)*, **2009**,**25**(3):386~390
- [18] Mullin A H, et al. Translated by TAO Zhu-Yi(陶祖贻), ZHAO Ai-Min(赵爱民). *Radiochemistry and Nuclear Process Chemistry*(放射化学与核过程化学). Beijing: Peoples Education Press, **1981**.420