

毫米, $\text{pH} \geq 1$ 。煤渣:流速为 3—4 毫升/分,粒度为 1 毫米, $\text{pH} \geq 3$ 是适宜的。

討 論

上述实验結果表明,处理放射性废物,焦炭比煤渣的效果好。因为焦炭比煤渣交换能力强,同时焦炭被放射性废物交换后,可经过焚烧减小废物体积、重量,便于贮存。这对于不易淋洗下来及长半衰期同位素有着特殊的好处。

我們认为焦炭是处理放射性废物較理想的材料,不仅原料来源广泛、經濟,而且去污效率高,适用于处理 Fe^{59} 。经过初步試驗証明,焦炭还适用于处理其它废物,如鈾、鈷等。

关于本法的机构不明,但根据一些資料介紹, Al_2O_3 , Fe_2O_3 对鈾有較強的吸附能力,同时也有些地方談到焦炭、煤渣中有約 30% 的 Al_2O_3 等。因而是否是由于焦炭煤渣中含有鋁、鉄、鈣等碱性氧化物,它們对 Fe^{59} 的清除主要是这些碱性氧化物使废液 pH 增高,鉄或錳氧化鉄的形式滯留在焦炭、煤渣中,也可能有部分吸附作用;同时 Fe^{59} 亦有可能与焦炭、煤渣所含金属离子发生交换作用;焦炭、煤渣对鈾同样具有很好的去污能力,这一事实即可証明这一点。

此文在整理过程中承蒙廖桂芬同志帮助,在此特表示感謝。

(編輯部收稿日期 1961 年 8 月 31 日)

含鈾放射性废液的处理 (I)

潘桂黄 楊桂荣 褐必成 陈紹金†

(四川 大学)

在一些鈾的废水中含鈾量竟达 500 毫克/升以上,一般的也是在 10—15 毫克/升的范围内,再加上鈾是 α 放射体,半衰期长 (4.51×10^9 年),子体剧毒,因此如何减小和处理鈾的废物,无论是对保証从事放射性操作的工作人员、居民的健康和安全,或对于从废水中回收鈾均是重要的問題。

关于废鈾液的处理方法已有許多介紹,比尔·帕恩 (Pierre Pagny)^[1] 曾采用磷酸鈣和磷酸鋇吸附废液中的鈾,以达到保健和回收的目的。克腊斯皮 (M. B. Crespi)^[2] 提出用离子交换从过氧化氢沉淀后的废液中提取鈾。文献上也介绍了用离子交换和萃取法从四氯化鈾沉淀后的殘留液中提取鈾。这些方法有它的优点,也有它不足的地方,如磷酸盐法要求在高温下长时间处理。离子交换和萃取法都需要昂貴的試剂。为了克服这一弱点,我們对各种材料进行比较試驗,终于找到了处理废鈾較为理想的交换吸附剂焦炭、煤渣和沉淀剂氧化鈣。

本法所消耗的試剂不仅是价格低廉且易得的焦炭、煤渣、氧化鈣,而且設備簡單,操作方便,除鈾率高。经过处理后的废液不但能达到对人体健康无害的水平,同时还能从交换后的煤渣、焦炭、氧化鈣中回收到鈾。本法还有另一优点,即在焦炭与鈾交换吸附后,可以经过焚烧进一步縮小废物的体积与重量,便于贮存。

为了找出焦炭、煤渣和氧化鈣对鈾清除規律、影响因素,分別在前后两个报告中談到了所进行的試驗并加以討論。本文仅介紹以煤渣、焦炭为去鈾剂所进行的試驗,并作了討論。

† 陈紹金参加本文的整理工作。

实 验 部 分

放射性試液： $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ 1 毫克/毫升， $\text{UO}_2(\text{Ac})_2$ 2 毫克/毫升， UO_2SO_4 1 毫克/毫升。

測量方法：采用桑色素比色法測定鈾^[3]。

实验装置：与一般离子交换試驗装置相同，交换柱內径 1.05 厘米，柱高：焦炭 10 厘米/10 克、煤渣 6 厘米/10 克。

1. 流速試驗

用 20 毫升每升含鈾 2 克的醋酸鈾酰溶液，以不同的速度通过 15 克粒度为 0.5 毫米的焦炭、煤渣，試液的 pH 值为 4.5。交换后的溶液用比色法分析鈾的含量。結果列于表 1 及图 1 上。

表 1 不同流速对除鈾率的試驗

交 換 剂	流 速 (毫升/分)	原始液的浓度 (毫克/毫升)	交换后溶液浓度 (毫克/毫升)	除鈾百分率 (%)
煤 渣	0.25	2.00	0.002	99.93
煤 渣	0.50	2.00	0.002	99.93
煤 渣	1.00	2.00	0.013	99.31
煤 渣	1.50	2.00	0.032	98.41
煤 渣	2.00	2.00	0.038	98.11
煤 渣	3.00	2.00	0.049	97.54
煤 渣	4.00	2.00	0.218	89.64
焦 炭	0.25	2.00	0.035	98.26
焦 炭	0.50	2.00	0.081	98.03
焦 炭	0.75	2.00	0.126	93.70
焦 炭	1.50	2.00	0.156	92.20
焦 炭	2.00	2.00	0.226	88.70
焦 炭	2.50	2.00	0.178	91.1
焦 炭	3.00	2.00	0.338	83.1

随着流速的增大，鈾的除去百分率也随之降低。对煤渣来说，这种变化較小，即使流速高到 3 毫升/分时，亦能达到去鈾率 97.54%，对焦炭較显著，此时去鈾率只达 83%。不过从表中可看出，选择流速 0.5—1.5 毫升/分是适宜的。而对焦炭来说，选择 0.5 毫升/分是較好的。

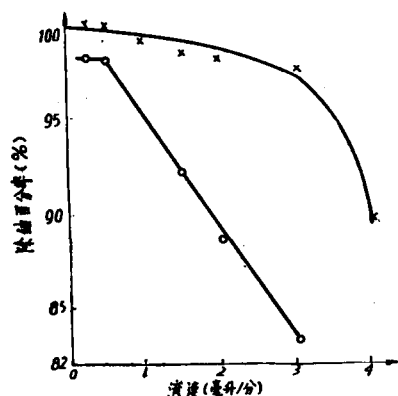


图 1 除鈾效率与流速关系曲线
×-×-× 煤渣 -o-o- 焦炭

2. 粒度試驗

試驗条件： $\text{UO}_2(\text{Ac})_2$ 40 毫升 (2 毫克/毫升)，pH=4，焦炭、煤渣用量为 30 克，流速为 0.5 毫升/分。改变交换剂顆粒大小进行試驗。結果見表 2 及图 2。

实验結果表明，交换剂顆粒大小对除鈾百分率有显著的影响。顆粒愈大，則除鈾率愈低。由图 2 可看出，交换剂顆粒大小在 0.095—0.25 毫米較好。在这个范围内，殘留在溶液中的鈾可达到最小值。

3. pH 值对交换的影响

試驗条件：煤渣、焦炭用量为 30 克，流速为 0.5 毫升/分；粒度为 0.095—0.5 毫米。

将 40 毫升 (2 毫克/毫升) $\text{UO}_2(\text{Ac})_2$ ，在不同的 pH 值

表 2 交換劑的粒度對除鈾率影響的試驗結果

交換劑	交換劑粒度 (毫米)	原始溶液濃度 (毫克/毫升)	交換後溶液濃度 (毫克/毫升)	除鈾百分率 (%)
煤渣	0.095	2.00	0.009	99.5
煤渣	0.25	2.00	0.021	98.9
煤渣	0.50	2.00	0.026	98.4
煤渣	1.00	2.00	0.104	94.7
焦炭	0.095	2.00	0.011	99.4
焦炭	0.25	2.00	0.048	97.5
焦炭	0.50	2.00	0.268	84.6
焦炭	1.00	2.00	0.726	63.7

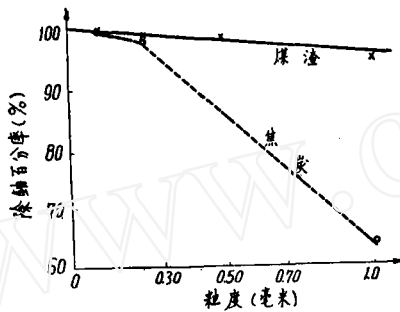


图 2 除鈾百分率與交換劑粒度的大小關係曲線

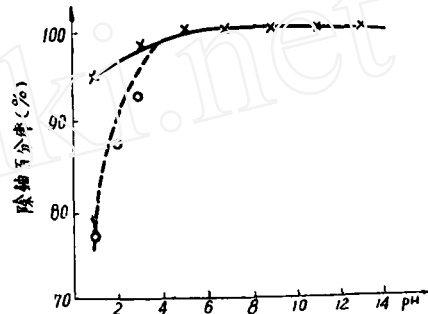


图 3 除鈾百分率與溶液 pH 關係
x-x-x-x 焦炭 -o-o-o- 煤渣

條件下通過交換柱，交換後的溶液用朴氏光度計測量鈾的含量，結果見表 3 及圖 3。

實驗結果指出，pH > 1 時焦炭的除鈾效果較好，而煤渣要求 pH > 3 以上，但當 pH > 5

表 3 . 溶液 pH 值對除鈾率的影響的試驗結果

交換劑	原始溶液		交換後溶液濃度 (毫克/毫升)	除鈾百分率 (%)
	濃度 (毫克/毫升)	pH		
焦炭	2.00	1	0.111	94.5
焦炭	2.00	3	0.037	98.3
焦炭	2.00	5	0.003	99.8
焦炭	2.00	7	0.002	99.9
焦炭	2.00	9	0.002	99.9
焦炭	2.00	11	0.002	99.9
焦炭	2.00	13	0.001	99.9
煤渣	2.00	1	0.46	77.3
煤渣	2.00	2	0.26	87.1
煤渣	2.00	3	0.16	92.5
煤渣	2.00	4	0.015	99.0
煤渣	2.00	5	0.004	99.3
煤渣	2.00	7	0.002	99.9
煤渣	2.00	9	0.002	99.9
煤渣	2.00	11	0.002	99.9
煤渣	2.00	13	0.006	99.9

时,铀开始产生沉淀,因此表中数据是沉淀和交换的双重作用的结果。

4. 原始溶液浓度对交换的影响

固定其它条件,改变原始溶液中铀的浓度,进行交换试验。发现原始浓度低,则交换后残留在溶液中的铀含量少。原始溶液中铀含量高,虽然除去率增高,而残留在溶液中的含铀量也高。但可将残液当作原始溶液,再进行交换即可达到弃去标准。

试验条件:煤渣、焦炭用量 30 克,流速 = 0.5 毫升/分,粒度 = 0.095—0.5 毫米,交换液为 40 毫升 $UO_2(Ac)_2$ 。

实验结果见表 4 及图 4。

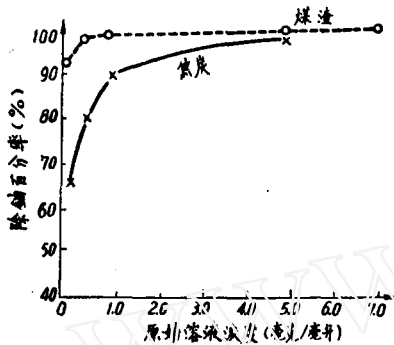


图 4 除铀百分率与原始液浓度关系

表 4 原始溶液浓度对交换的影响试验结果

交换剂	原始溶液浓度 (毫克/毫升)	交换后溶液浓度 (毫克/毫升)	除铀百分率
煤渣	0.1	0.008	92.0
煤渣	0.5	0.011	97.8
煤渣	1.0	0.013	98.2
煤渣	5.0	0.044	99.0
煤渣	7.0	0.050	99.1
焦炭	0.10	0.03	65.5
焦炭	0.5	0.0998	80.2
焦炭	1.0	0.099	90.1
焦炭	5.0	0.099	98.0

5. 交换容量试验

固定焦炭、煤渣用量为 30 克,粒度 0.25 毫米,流速 = 0.5 毫升/分, pH = 4.5。

将 $UO_2(Ac)_2$ 连续通过交换柱,然后取出一定体积交换后的溶液进行分析。结果见表 5 及图 5。

表 5 交换容量对除铀率影响试验结果

交换剂	收集交换液累加体积 (毫升)	原始溶液浓度 (毫克/毫升)	交换后溶液浓度 (毫克/毫升)	除铀百分率 (%)
煤渣	20	2.00	0.006	99.5
煤渣	60	2.00	0.006	99.5
煤渣	140	2.00	0.013	99.4
煤渣	180	2.00	0.018	99.1
煤渣	200	2.00	0.020	99.0
煤渣	220	2.00	0.858	57.1
焦炭	40	2.00	0.061	99.5
焦炭	60	2.00	0.156	91.7
焦炭	90	2.00	0.164	91.8
焦炭	110	2.00	0.183	90.8
焦炭	130	2.00	0.157	92.1
焦炭	150	2.00	0.168	91.7
焦炭	160	2.00	0.177	91.2
焦炭	180	2.00	0.284	28.8

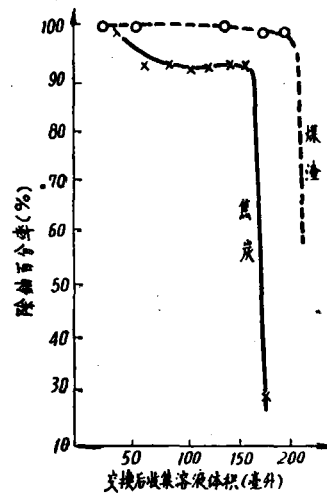


图 5 交换容量关系

从图上可看出,煤渣与焦炭对铀的交换有一个明显的转折点。超过此点后,铀的除去率显著下降,从而计算出交换容量:焦炭为 10 毫克铀/克,煤渣为 13 毫克铀/克。

在實驗中也作了 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, UO_2SO_4 与煤渣、焦炭的交換試驗。實驗証明, 仍能得到使人滿意的結果。

結 論

1. 由實驗結果表明, 煤渣与鈾交換能力比焦炭大。
2. 用焦炭、煤渣来处理鈾的放射性廢物, 不但經濟、去污能力高, 而且还具有濃集鈾的作用。濃集度达到 1% 以上, 因而处理鈾廢物后的煤渣、焦炭可作为富矿回收鈾。
3. 試驗結果說明, 焦炭、煤渣对鈾的交換条件: 流速为 0.5—1.5 毫升/分, 粒度为 0.095—0.5 毫米, 和 pH 分为大于 1 和大于 3 是适合的。
4. 当用足够的交換剂时, 經過 2—3 次交換可使廢液中鈾的量降低到允許弃去的标准。

参 考 文 献

- [1] Pagny, Recovery of Uranium from Effluents. A/conf, 15/p/1177 France (1953).
- [2] M. B. Crespi, Recovery of Uranium from Rejected Liquid by Ion Exchange. A/conf, 15/p/1566, Argentina (1958).
- [3] 矿石中鈾的比色測量, 武汉大学学报, 9 月号。

(編輯部收稿日期 1961 年 8 月 31 日)

含鈾放射性廢液的处理 (II)

潘桂黃 賴維平 曾永昌 楊必成
江洪村 刘兴永 夏学清
(四川大學)

本文仅以石灰代替前文的去污剂处理鈾溶液, 它具有上文所述特点, 因而此文是“含鈾放射性廢液的处理 (I)”的繼續。

鈾溶液經過石灰处理后, 鈾以重鈾酸鈣的形式被濃集于石灰中, 其石灰固相可当作提取鈾的原料。我們在本文中研究了各种影响因素, 并对實驗室廢液和各种循环鈾溶液进行了試驗。試驗結果表明, 本方法不仅适用于硫酸介质的溶液, 而且也适用于含碳酸盐的溶液; 氟离子存在也不影响处理的結果。

实 驗 部 分

試液的配制: 标准鈾溶液为 50 毫克/升的硝酸鈾酰。

分析方法: 沉淀分析采用偏鈳酸銨容量法測定鈾。

氫氧化鈣的用量試驗

取标准鈾溶液 250 毫升, 分別加入不同量的氫氧化鈣(0.08—0.60 之間), 在常温下攪拌 10 分鐘, 靜置过滤, 将沉淀进行分析, 結果列于表 1 中。从表中数据可看出, $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 用量在 0.4 克以上时鈾即可完全沉淀。