

海水中铀的富集研究 II. 氢氧化铝-二氧化锰复合富集剂制备条件与富集铀的关系*

周仲怀 徐丽君 刘兴俊

(中国科学院海洋研究所)

在以前工作的基础上^[1], 我们又研究了氢氧化铝-二氧化锰复合富集剂(以下简称铝-锰复合富集剂)。实验表明, 这种复合富集剂从海水中富集铀的回收率比过去研究的几种有所改进, 每克铝-锰复合富集剂富集铀量在200微克左右。本文旨在报道氢氧化铝-二氧化锰复合富集剂的制备条件对富集铀的影响。

一、实验方法

1. 氢氧化铝-二氧化锰复合富集剂的制备

用 $H_2O_2 + KMnO_4$ 溶液先制备二氧化锰, 再将二氧化锰转移入0.5摩尔的硫酸铝溶液中, 然后边搅拌边加入1:4的氨水至pH=8.0为止, 沉淀过滤、烘干、粉碎, 取40—60目的复合富集剂备用。

2. 铀的分析和通海水装置及方式

见文献〔1—2〕。

二、实验结果与讨论

1. 铝-锰复合富集剂制备条件对富集铀的影响

(1) 沉淀终点溶液的pH影响: 在铝-溴及铝-钒-氟复合富集剂制备条件实验中, 沉淀时终点溶液的最佳pH为7.0, 而铝-锰复合富集剂则不同, 其沉淀终点的最佳pH为8.0。由图1可知, 当pH为7.0时铀富集量也较高; pH在8.0以后铀富集量则开始降低; 在pH为9.0以后降低较快。这是由于氢氧化铝的两性性质所决定的, 在pH较高时, 部分氢氧化铝溶解, 铝-锰复合富集剂中铝含量减少, 从海水中富集的铀也随之降低。

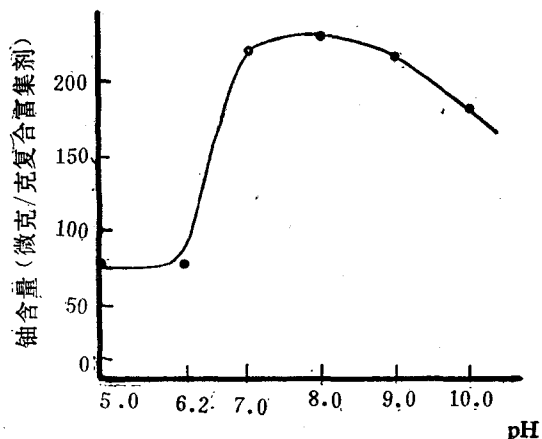


图1 沉淀终点溶液pH的影响

(2) 沉淀时溶液温度的影响: 实验表明, 溶液温度较高时制备的铝-锰复合富集剂有利于从海水中富集铀。由图2可知, 当温度

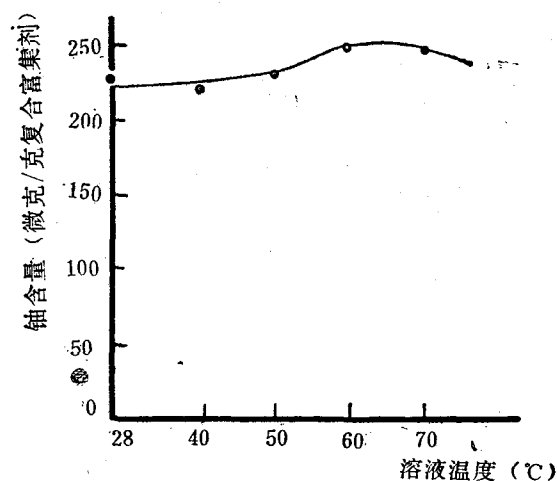


图2 沉淀时溶液温度的影响

* 中国科学院海洋研究所调查研究报告第892号。

在28—50℃之间时，所制备的铝-锰复合富集剂的富集量变化不大；50℃后富集铀量增加较快；60℃出现最高值；60℃以后又逐渐降低，从X衍射试验来看，影响一般是由于无定形成分增加所引起的。无定形成分增加有利于富集铀量。管坡和彦、加藤俊作等（1976）^[3]还认为，温度升高，平均孔径增大，到某一温度时达到最大值，然后又减小。我们的试验结果也很可能是这种情况。

（3）沉淀放置（陈化）时间的影响：放置时间对富集铀有一定影响。由图3可知，随着沉淀放置时间的增加，富集铀量呈下降趋势。因此沉淀后的铝-锰复合富集剂以立即过滤为宜。其影响较大的原因，可能是由于沉淀

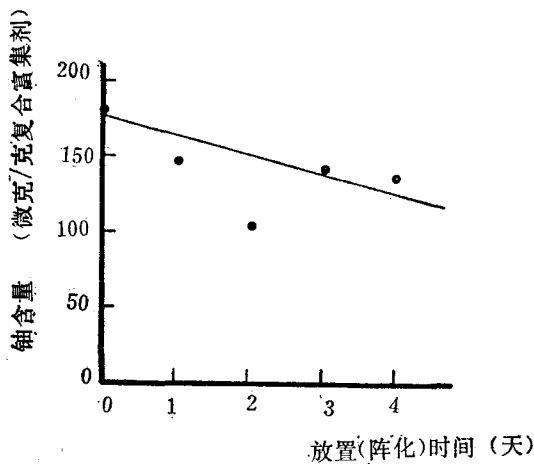


图3 沉淀放置时间的影响

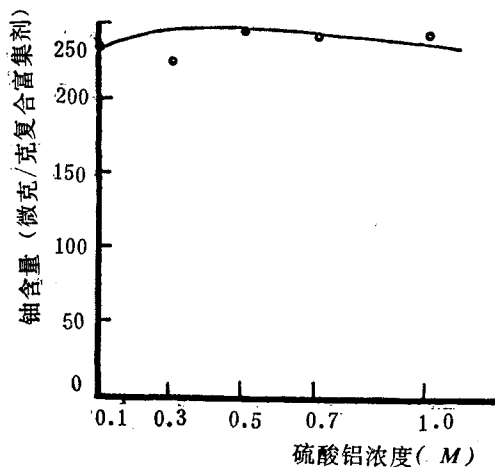


图4 硫酸铝浓度的影响

结构和表面性质的变化所致。这一问题值得进一步研究。

（4）硫酸铝浓度的影响：由图4可知，硫酸铝浓度在制备铝-锰复合富集剂时也有一个合适的浓度。实验证明，硫酸铝为0.5摩尔时铀富集量较高；大于0.5摩尔时铀的富集量变化不大，所以在实验时均采用0.5摩尔硫酸铝。

（5）氨水浓度的影响：氨水浓度对复合富集剂富集铀也有一定的影响，由图5可知氨水浓度为1:4时富集铀量最高。我们即采用此浓度。

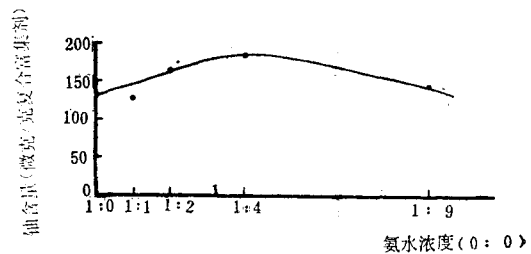


图5 氨水浓度的影响

（6）加入高锰酸钾溶液体积的影响：在制备铝-锰复合富集剂时，加入二氧化锰的多少是由制备二氧化锰时加入高锰酸钾溶液的体积数决定的。由图6可知，富集铀量较高的在64—100毫克之间。二氧化锰作为载体加入到铝-锰复合富集剂中，其量的多少是有一定影响的。这可能是二氧化锰对分散氢氧化铝起很重要作用，当二氧化锰加入到硫酸铝溶液中时，使 Al^{3+} 均匀地附着在二氧化锰颗粒上，使生成沉淀的有效比表面和有效孔径较大，因而有利于提高富集铀量。

（7）烘干温度的影响：烘干温度对富集

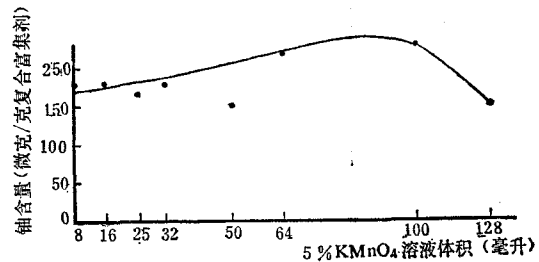


图6 高锰酸钾溶液体积的影响

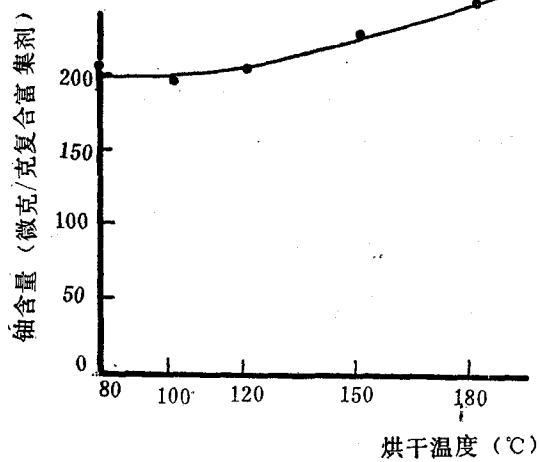


图7 烘干温度的影响

铀的影响也是较大的。氢氧化铝系复合富集剂的特点是，要有充分的干燥条件才有较高的富集量。由图7可知，随着烘干温度的升高铀富集量不断增加，以180°C为最好（我们试验的最高温度仅做到180°C）。

2. 通海水富集铀时各种条件的影响

(1) 海水流速的影响：我们做了5个不同流速的实验，由于条件所限，我们简单地以毫升/分计算，不同流速的影响见表1。从实验结果来看，它们之间的差别虽不太大，但仍

表1 海水流速的影响

柱号	流速 (毫升/分)	铀含量 (微克/克复合富集剂)	备注
74	10—18	196.5	富集剂的粒度大小均为40—60目；左栏中的数据均为连云港通水结果
50	15—25	189.0	
56	25—35	166.5	
37	37—45	188.5	
59	45—56	186.5	

然可以看出流速慢的富集铀量高些。流速慢之所以有利于富集铀，可能是由于海水流经富集剂的时间较长，增加了铝-锰复合富集剂与海水接触的时间，有利于海水中铀向富集剂表面扩散。至于是何种扩散，还有待于进一步研究。

在实际试验中，由于海水水质不同，特别是在海水较混的海区通水，流速慢了海洋生物会附着在富集剂上，从而影响富集效果。这种现象也可以称之为“中毒现象”，在夏季最为明显。为防止这种现象发生，通海水时要选择合适的流速及缩短通水时间〔见2-(3)〕。

表2 富集剂粒度大小的影响

柱号	粒度 (目)	铀含量 (微克/克复合富集剂)	备注
65	20—28	144.0	左栏中的数据均为连云港通水之结果
40	28—34	152.5	
73	34—40	179.0	
2	40—50	188.5	
75	50—60	186.5	
39	60—65	205.5	
61	65—75	186.5	

(2) 粒度大小的影响：粒度大小直接影响到铝-锰复合富集剂的比表面和孔径。粒度小的一般比表面大而孔径不一定大，但只要比表面较大，而且有一定的孔径，富集铀量一般都较高，见表2。在实际实验中，只取合适的粒度（40—60目），因粒度太小容易流失。

(3) 通海水时间的影响：在进行海水富集铀实验时，通海水时间的影响还是较大的。从表3可知，在青岛通水的样品在20—25天后基本达到饱和；在连云港通水的样品是15天后富集铀量最高，20天后富集铀量降低。这可能是由于两地的水质不同引起的，连云港海水较混，青岛海水虽未过滤，但仍比前者好。在通

表3 通海水时间的影响

柱号	通水时间 (天)	铀含量 (微克/克复合富集剂)		备注
		(1)	(2)	
58	5	176.5	130.8	富集剂粒度大小均为40—60目
30	10	183.5	177.0	
72	15	194.0	203.0	
54	20	164.0	211.5	
8	25	179.0	210.0	

(1) 为连云港通水富集的结果；
(2) 为青岛通水富集的结果。

天然海水时, 同样存在海洋生物附着而降低富集能力的问题, 因此在我们的试验中一般取15天。如果铝系复合富集剂富集的速度较快, 则可适当缩短复合富集剂的通水时间¹⁾。

三、结 论

从上述实验结果可看出, 铝-锰复合富集剂的制备最佳条件为: 沉淀终点溶液的 pH 为 8.0; 沉淀溶液温度为 60°C; 沉淀不易放置, 以立即过滤为好; 氨水浓度为 1:4; 硫酸铝溶液浓度为 0.5 摩尔浓度; 高锰酸钾溶液体积数为 64—100 毫升; 烘干温度为 180°C。从海水中富集铀的条件为: 海水流速较慢为好; 颗粒大小

以 40—60 目的为好 (以有一定的比表面和孔径为准); 通水时间以不超过 15 天为宜。

参 考 文 献

- [1] 海水提铀汇编编辑组, 1980。海水提铀汇编。原子能出版社, 209—211。
- [2] 周仲怀、徐丽君、刘兴俊, 1982。海洋科学 5:17—20。
- [3] 管城和彦、加藤俊作等, 1976。日本海水学会志 30(1):43—49。

1) 此试验是在室外天然条件下进行的, 水温随气候稍有变化。

THE ENRICHMENT OF URANIUM FROM SEAWATER II. THE RELATIONSHIP BETWEEN THE PREPARATION OF HYDROXIDE ALUMINIUM-MANGANESE DIOXIDE ENRICHED COMPOSITE AGENT AND THE ENRICHMENT OF URANIUM

Zhou Zhonghuai, Xu Lijun, Liu Xingjun

(*Institute of Oceanology, Academia Sinica*)

Abstract

This paper is to report the study of the relationship between the preparation conditions of hydroxide aluminium-manganese dioxide enriched composite agent and the enrichment of Uranium.

Test results showed that the enrichment of Uranium was closely related to the preparation conditions of the said composite agent.

This paper also suggests the optimum preparation of hydroxide aluminium-manganese dioxide enriched composite agent.