

文章编号 : 0253-9950(2002)04-0204-06

# 核素迁移试验现场砂源中核素的淋洗及其形态研究

史英霞, 郭亮天

中国辐射防护研究院 第四研究所, 山西 太原 030006

**摘要:**用地下水淋洗了核素迁移试验现场中使用的石英砂源,用超过滤法研究了淋洗液中核素的形态,用连续浸取法研究了淋洗后石英砂上残留核素的存在形态。结果表明,当淋洗液为 110 倍柱体积时,地下水可将砂源上 90% 以上的<sup>237</sup>Np 淋洗下来,且主要以可交换的离子态存在;淋洗后残留在石英砂上的<sup>237</sup>Np 主要以碳酸盐结合态和铁锰氧化物结合态存在,其份额分别约为 5.5% 和 1.3%;<sup>238</sup>Pu 从石英砂上的淋洗没有<sup>237</sup>Np 容易,在淋洗液中<sup>238</sup>Pu 主要以胶体存在。

**关键词:** 镎; 钚; 淋洗; 胶体; 连续浸出

**中图分类号:** O614.352; O614.353 **文献标识码:** A

放射性废物进行地质处置后,放射性核素将随地下水在地质介质中迁移,对这一问题,世界各国已作了大量研究。国外除了已进行的实验室核素迁移研究外,还进行了一些现场试验。例如:比利时在地下实验室对粘土介质进行了试验,瑞典在 Studsvik 地区在花岗岩中用<sup>85</sup>Sr 进行了试验,美国在凝灰岩中进行了现场试验<sup>[1-3]</sup>。1996~2001 年,中国辐射防护研究院与日本原子力研究所合作进行了现场及实验室模拟核素迁移试验,主要研究<sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu 等核素在包气带或含水层黄土中的迁移。当地下水渗入黄土中经过石英砂源时,砂源上大部分<sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu 等核素会进入地下水,并随地下水在黄土中迁移。为了研究核素在黄土中的迁移,需要了解石英砂源上核素被现场地下水淋洗的情况以及核素的存在形态。为此,本文选用密封存放了一年的现场试验中所用的砂源及现场采集的地下水进行试验,以了解石英砂源上核素被地下水的淋洗情况,核素从石英砂进入水相时的形态及残留在砂源上部分核素的

存在形态。

## 1 实验部分

### 1.1 仪器和材料

LG10-2.4A 型离心机,北京医用离心机厂生产;Canberra 7404 四路谱仪,美国 Canberra 公司生产;FP-150R 测量仪,本院制备;UFC3-BCC 离心过滤管,美国 Millipore 公司生产。

氯化镁铵,1-苯基-3-甲基-4-苯甲酰基-吡唑酮-[5](PMBP),醋酸,醋酸钠,盐酸羟胺,硝酸等试剂,均为分析纯。

石英砂源,取自现场埋设在包气带黄土或含水层黄土中的试验用源层。其制备方法为:将<sup>237</sup>NpO<sub>2</sub>, <sup>238</sup>PuO<sub>2</sub> 溶于浓硝酸中,砂浴蒸干后,加浓硝酸,蒸干,反复几次,使其转变成硝酸盐。再用 1 mol/L 硝酸溶解,制成贮备液。将贮备液逐滴分散加到一定量的石英砂上,滴加氢氧化钠溶液中和,并加一定量蒸馏水,使其混合均匀。

地下水:取自中国辐射防护研究院试验现场,

收稿日期:2002-03-27; 修订日期:2002-08-09

作者简介:史英霞(1962—),女,山西运城人,副研究员,核废物处理处置专业。

pH为8.21, Eh为449 mV。阳离子 $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ 的质量浓度分别为81.2, 30.9, 26.7 mg/L; 阴离子 $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ 的质量浓度分别为249.6, 56.9 mg/L。地下水取出后用氮气密封于聚乙烯瓶中备用。

## 1.2 实验方法

**1.2.1 石英砂源的淋洗** (1)装柱:用 $\phi = 10$  mm, 高约为20 mm的医用聚氯乙烯注射器管作淋洗柱。依次装入玻璃棉、5  $\mu\text{m}$  过滤膜后, 装填1.417 g 现场用石英砂源, 高7 mm。

(2)淋洗:在室温下, 开启阀门, 调节地下水的流速, 使其以0.4 mL/h的速度连续流过石英砂。地下水从淋洗柱中流出时开始计时, 分段收集淋洗液。在淋洗初始阶段, 间隔时间较短, 随着淋洗的进行, 间隔适当延长。将收集的淋洗液依次编号, 用称重法确定各段淋洗液的量。

(3)取一定体积的淋洗液, 烘干制样。用1 mol/L  $\text{HNO}_3$  洗涤各淋洗液接收管, 收集洗涤液烘干制样, 分别测量淋洗液和洗涤液的总计数, 再用谱仪测量 $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ 的计数。

(4)拆柱:封好进水口, 倾斜石英砂柱, 从柱出口缓缓将石英砂转入烧杯中, 用约3 mL地下水把粘在柱壁上的石英砂冲洗下来, 收集洗涤水; 再用5 mL 1 mol/L  $\text{HNO}_3$  洗涤淋洗柱、柱出口及软管, 将淋洗液及洗涤液分别制样。

**1.2.2 超过滤法研究水相中核素的形态** 从1~4号淋洗液中各取50%, 混合, 制备混合样1; 从5~8号淋洗液中各取25%, 混合, 制备混合样2。将上述溶液依次通过0.4  $\mu\text{m}$ 、截止分子量为5 KD的滤膜。将过滤前后的母液和滤液制样, 并分别测量总计数及 $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ 计数。计算从砂源进入地下水中的核素份额。

**1.2.3 连续浸取法研究残留在石英砂上核素的形态** 在文献[4, 5]的基础上, 确定浸取剂及浸取条件:

(1)取一定量淋洗后的石英砂于浸取管中, 加8 mL 蒸馏水, 在室温下不断上下倒置混合浸取2 h, 在5 000 r/min的转速下离心20 min(以下实验转速相同), 取出上清液, 并制样。残留固体用8 mL 蒸馏水洗涤, 洗涤液离心后, 取上清液制样。

(2)往步骤(1)的残留固体中加8 mL pH=7的1 mol/L  $\text{MgCl}_2$  溶液, 于室温下不断上下倒置

混合浸取2 h, 离心分离。取上清液5 mL, 蒸干后, 加5 mL 12 mol/L  $\text{HNO}_3$ , 5滴 $\text{H}_2\text{O}_2$ , 加热保持微沸状态数分钟, 使 $^{237}\text{Np}(\text{IV})$ 转化为 $^{237}\text{Np}(\text{V})$ , 再蒸干, 重复2次。蒸干后的残渣用5 mL 1 mol/L  $\text{HNO}_3$  溶解。溶解液用等体积的PMBP萃取, 萃取后的有机相再用等体积的10 mol/L  $\text{HNO}_3$  反萃, 取反萃后的水相制样。用8 mL 蒸馏水洗涤 $\text{MgCl}_2$  溶液浸取后的残留固体, 离心分离后, 取上清液制样。

(3)往上述残留固体中加8 mL pH=5的1 mol/L  $\text{HAc-NaAc}$  溶液, 室温下混合浸取2 h, 离心分离。其余步骤同(2)。

(4)在用 $\text{HAc-NaAc}$  溶液浸取并用蒸馏水洗涤后的残留固体中加12 mL 0.04 mol/L  $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$ -25%  $\text{HAc}$  溶液, 在80  $^\circ\text{C}$  下恒温浸取6 h, 离心分离, 取上清液制样。残留固体用8 mL 蒸馏水洗涤, 离心分离, 取上清液制样。

(5)往上述(4)中用蒸馏水洗涤后的残留固体中加12 mL 7 mol/L  $\text{HNO}_3$  溶液, 在80  $^\circ\text{C}$  下恒温浸取6 h, 离心分离, 取上清液制样。残留固体用8 mL 蒸馏水洗涤, 离心分离, 取上清液制样。在洗涤后的残留固体中再加入12 mL 7 mol/L  $\text{HNO}_3$  溶液, 在相同条件下继续浸取1 h, 离心分离, 取上清液制样。

**1.2.4  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  淋洗率的计算** 根据各淋洗液、连续浸取液的体积及 $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  在各溶液中的放射性浓度, 确定出砂源中 $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  的总量, 进而计算出用地下水淋洗时 $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  的淋洗率。

## 2 结果和讨论

### 2.1 砂源上 $^{237}\text{Np}$ , $^{238}\text{Pu}$ 的淋洗

用地下水淋洗石英砂源, 分段收集的淋洗液和各接收管的洗涤液的总计数及谱仪测量结果列入表1。从表1可见, 随着淋洗时间加长, 淋洗液中 $^{237}\text{Np} + ^{238}\text{Pu}$  的浓度明显降低, 当累计体积达约63 mL(约110倍柱体积)时, 淋洗液中 $^{237}\text{Np} + ^{238}\text{Pu}$  的浓度降至最先接收到的淋洗液中浓度的1/500(总计数法); 谱仪法与总计数法测量结果基本一致。谱法测量 $^{238}\text{Pu}$  的结果列入表2, 由表2可看出,  $^{238}\text{Pu}$  的测量值不足 $^{237}\text{Np}$  的5%, 且多数小于1%。

表 1 淋洗液和洗涤液的测量

Table 1 The measurement of the eluate and wash solution

No.	V/ mL	V <sub>cum</sub> / mL	总 计数法( <sup>237</sup> Np + <sup>238</sup> Pu) (Gross counting method)			
			c <sub>eluate</sub> / (s <sup>-1</sup> ·mL <sup>-1</sup> )	c <sub>wash</sub> / (s <sup>-1</sup> ·mL <sup>-1</sup> )	N/ s <sup>-1</sup>	N <sub>cum</sub> / s <sup>-1</sup>
1	0.50	0.50	100.0	23.6	61.8	61.8
2	0.44	0.94	48.9	1.8	22.3	84.1
3	0.71	1.65	27.8	0.8	20.3	104.4
4	1.69	3.34	24.1	0.3	41.2	145.6
5	2.21	5.55	20.6	0.1	45.7	191.3
6	1.92	7.47	18.9		36.3	227.6
7	2.67	10.14	14.4	0.1	38.7	266.3
8	2.97	13.11	12.9	0.1	38.6	304.9
9	7.82	20.93	12.0	0	93.8	398.7
10	4.06	24.99	7.3	0	29.6	428.3
11	2.15	27.14	7.0	0	15.1	443.4
12	8.03	35.17	4.2	0	33.7	477.1
13	9.60	44.77	2.7	0	25.9	503.0
14	8.65	53.42	0.5	0	4.3	507.3
15	9.59	63.01	0.2	0	1.9	509.2

  

No.	V/ mL	V <sub>cum</sub> / mL	谱法( <sup>237</sup> Np) ( spectroscopy method)			
			c <sub>eluate</sub> / (s <sup>-1</sup> ·mL <sup>-1</sup> )	c <sub>wash</sub> / (s <sup>-1</sup> ·mL <sup>-1</sup> )	N/ s <sup>-1</sup>	N <sub>cum</sub> / s <sup>-1</sup>
1	0.50	0.50	81.4	21.0	51.20	51.2
2	0.44	0.94	44.9	1.3	20.3	71.5
3	0.71	1.65	28.0	0.4	20.2	91.7
4	1.69	3.34	21.0	0.2	35.8	127.5
5	2.21	5.55	21.5	0.1	47.7	175.2
6	1.92	7.47	15.9		30.5	205.7
7	2.67	10.14	13.8	0.3	37.6	243.3
8	2.97	13.11	12.2	0.1	36.5	279.8
9	7.82	20.93	10.8	0	84.5	364.3
10	4.06	24.99	6.3	0	25.6	389.9
11	2.15	27.14	6.0	0	12.9	402.8
12	8.03	35.17	3.8	0	30.5	433.3
13	9.60	44.77	2.0	0	19.2	452.5
14	8.65	53.42	0.4	0	3.5	456.0
15	9.59	63.01	0.1	0	1.0	457.0

表 2 谱法测量<sup>238</sup>PuTable 2 The measurement of <sup>238</sup>Pu by spectroscopy method

No.	V/ mL <sup>-1</sup>	V <sub>cum</sub> / mL <sup>-1</sup>	N <sub>eluate</sub> / s <sup>-1</sup>	N/ s <sup>-1</sup>
1	0.50	0.50	0.01	0.01
2	0.44	0.94	0.04	0.05
3	0.71	1.65	0.03	0.08
4	1.69	3.34	0.04	0.12
5	2.21	5.55	0.05	0.17
6	1.92	7.47	0	0.17
7	2.67	10.14	0.05	0.22
8	2.97	13.11	0.06	0.28
9	7.82	20.93	0.15	0.43
10	4.06	24.99	0.07	0.50
11	2.15	27.14	0.04	0.54
12	8.03	35.17	0.21	0.75
13	9.60	44.77	0.35	1.10
14	8.65	53.42	0.26	1.36
15	9.59	63.01	0.34	1.70

## 2.2 水相中<sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu 的形态

石英砂源在淋洗过程中,核素所处的实验环境与在现场喷淋时所处环境基本相同。文献[6]指出,在所用的地下水中,Np 主要以下面几种形态存在: NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>, 67%; NpO<sub>2</sub>CO<sub>3</sub><sup>-</sup>, 23%; NpO<sub>2</sub>OH, 7%。Liser 等<sup>[7]</sup>根据热力学数据绘制的 Np 氧化态与 Eh, pH 关系图也表明,在 pH=8、Eh=450 mV 的条件下,Np 主要存在的形态是 NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>。

根据表 1 中的累计总计数、累计总体积和谱仪计数效率(53%)算得:混合液 1 和混合液 2 中 <sup>237</sup>Np 的浓度分别为  $1.2 \times 10^{-5}$ ,  $5 \times 10^{-6}$  mol/L。这些值都低于 NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>的溶解度  $4.4 \times 10^{-4}$  mol/L<sup>[8]</sup>。所以,<sup>237</sup>Np 应能均匀分散在液相中。

均匀分散在液相中的物质可能是离子态也可

能是胶体,用超过滤法分别研究了核素在混合液 1、2 中的形态,用总计数法与谱仪法测得的结果列入表 3。从表 3 数据可见,经过 5 KD 滤膜过滤后,<sup>237</sup>Np 的计数没有变化,说明进入地下水中的<sup>237</sup>Np 主要是离子态,未形成胶体,也没有悬浮物。这与文献[8]的结果一致。文献[9]的研究结果也表明,在现场地下水中<sup>237</sup>Np 主要以 NpO<sub>2</sub><sup>+</sup>存在。

根据表 2 中的累计总计数、累计总体积和谱仪计数效率算得,混合液 1 和混合液 2 中<sup>238</sup>Pu 的浓度分别为  $4.4 \times 10^{-12}$ ,  $1.9 \times 10^{-12}$  mol/L。这些值都低于 Pu( ) 的溶解度  $3 \times 10^{-8}$  mol/L<sup>[8]</sup>。所以,<sup>238</sup>Pu 应能均匀地分散在液相中。又从表 3 看出,经 5 KD 滤膜过滤后,<sup>238</sup>Pu 的计数下降很多。表明混合液中<sup>238</sup>Pu 主要以胶体存在。

表 3 淋洗液过滤前后的计数

Table 3 The eluate counts before and after filtration

溶液 (Solution)	谱法 ( spectroscopy method)				总 计数法 (Gross counting method)	
	原液 (Mother Liquor)		滤液 (Filter liquor)		原液	滤液
	N ( <sup>237</sup> Np)	10 <sup>3</sup> N ( <sup>238</sup> Pu)	N ( <sup>237</sup> Np)	10 <sup>3</sup> N ( <sup>238</sup> Pu)	(Mother liquor)	(Filter liquor)
混合液 1 (Mixed solution 1)	3.00	1.68	3.00	0	3.52	3.38
混合液 2 (Mixed solution 2)	1.44	1.68	1.43	0.56	1.74	1.74

### 2.3 残留在砂源上<sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu 的存在形态 不同浸取剂对 Np, Pu 的浸取结果列入表 4。

综合表 1、表 2、表 4 的数据,得到了砂源中 Np, Pu 在地下水淋洗后的形态,结果列入表 5。

表 4 不同浸取剂对核素的浸取  
Table 4 Nuclides leached by different reagents

	V/ mL	$c(^{237}\text{Np} + ^{238}\text{Pu})$ $/ (\text{s}^{-1} \cdot \text{mL}^{-1})$	谱法 ( spectroscopy method)	
			$c(^{237}\text{Np}) / (\text{s}^{-1} \cdot \text{mL}^{-1})$	$c(^{238}\text{Pu}) / (\text{s}^{-1} \cdot \text{mL}^{-1})$
蒸馏水浸取 (Distilled water leaching)	8.0	0.70	0.11	0.32
洗涤 (Wash)	8.0	0.37	0.02	0.03
MgCl <sub>2</sub> 浸取 (Leaching)	8.0	0.33	0.01	0
洗涤 (Wash)	8.0	0.23	0.01	0
HAc-HaAc 浸取 (Leaching)	8.0	1.20	0.70	-
洗涤 (Wash)	8.0	0.33	0.09	-
NH <sub>2</sub> OH·HCl 浸取 (Leaching)	10.6	0.60	0.23	-
洗涤 (Wash)	8.0	0.32	0.01	-
HNO <sub>3</sub> 浸取 (Leaching)	11.2	0.27	0.04	0
洗涤 (Wash)	8.0	0.13	0.01	0
HNO <sub>3</sub> 第二次浸取 (Second leaching)	12.0	0.30	0.01	0

注 (Notes): (1) 淋洗砂的质量为 1.417 g, 浸取砂的质量为 0.531 g (The weights of eluted and leached sand are 1.417 g, 0.531 g, respectively);

(2) “-”表示当<sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu 峰分不开时, 均将计数归于<sup>237</sup>Np (When the peaks of <sup>237</sup>Np, <sup>238</sup>Pu can't be distinguished, the counts are considered as for <sup>237</sup>Np)

表 5 核素的分布

Table 5 The distribution of the nuclides

	A ( <sup>237</sup> Np) / Bq	A ( <sup>237</sup> Np + <sup>238</sup> Pu) / Bq	Y ( <sup>237</sup> Np) / %	Y ( <sup>237</sup> Np + <sup>238</sup> Pu) / %
柱式地下水淋洗 (Elution from column by ground water)	893.6	888.1	92.2	79.5
搅拌式蒸馏水浸取 (Leaching by distilled water with stirring)	5.1	36.8	0.5	3.3
MgCl <sub>2</sub> 浸取 (Leaching) *	1.6	32.6	0.2	3.0
NaAc-HAc 浸取 (Leaching) *	53.0	89.0	5.5	8.0
NH <sub>2</sub> OH·HCl 浸取 (Leaching)	12.6	38.3	1.3	3.4
HNO <sub>3</sub> 浸取 (Leaching)	2.7	33.0	0.3	3.0

注 (Note): “\*”表示浸取液的萃取-反萃取效率为 60% (The efficiency of the extraction and back-extraction for leaching solution is 60%)

可交换态: 砂源上的 Np, Pu 在地下水淋洗液、蒸馏水的浸取和洗涤液、MgCl<sub>2</sub> 浸取液中的总和即为以交换态存在的部分, 从表 5 中谱法数据可见, <sup>237</sup>Np 的可交换态份额达 92.9%。榆次库地下水的离子强度为 0.01 mol/kg, 在淋洗过程中, 淋洗液达 110 倍柱体积时, 92.2% 的<sup>237</sup>Np 可被地下水淋洗下来。

碳酸盐结合态: 用 NaAc-HAc 可将碳酸盐结合态的 Np, Pu 从固相中浸取出来。由于试验场址的黄土是碳酸盐型, 与其平衡的地下水含 HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> 的质量浓度为 249.6 mg/L, 在地下水淋洗

过程中, Np, Pu 有可能与碳酸根离子相互作用形成碳酸盐结合态。由表 5 可见, 碳酸盐结合态份额 (5.5%) 与可交换态相比虽然不算高, 但相对于其它形态而言, 仍是比较重要的一种存在形态。

铁锰氧化物结合态: 在试验用地下水中, 以胶体存在的铁的浓度很低, 制源所用的石英砂中可能有铁的氧化物。为了了解地下水中存在的以及砂中可能存在的铁锰氧化物对 Np, Pu 的存在形态的影响, 选用 NH<sub>2</sub>OH·HCl 为浸取剂, 在 80 下进行了恒温浸取, 从表 5 中数据可见, <sup>237</sup>Np 以该形态存在的份额只有 1.3%。

残留态:经过上述浸取后,用7 mol/L HNO<sub>3</sub>浸取最后的残渣。结果发现,所剩<sup>237</sup>Np的量已相当少,它仅占总份额的0.3%。

由表2、表4发现,用地下水淋洗和用蒸馏水浸取<sup>238</sup>Pu时,只有较少的<sup>238</sup>Pu被淋洗和浸取,但在搅拌条件下,用蒸馏水浸取时,<sup>238</sup>Pu较易浸取出来。

### 3 结 论

(1)在地下水体积约为110倍柱体积时,可将砂源上90%以上的<sup>237</sup>Np淋洗下,且主要以离子态存在。

(2)在淋洗液中及淋洗后的砂源上,核素<sup>237</sup>Np主要以可交换的离子态存在,其份额约为92.9%,淋洗后的砂源上还有碳酸盐结合态和铁锰氧化物结合态的<sup>237</sup>Np,其份额分别为5.5%、1.3%左右。

(3)<sup>238</sup>Pu的淋洗没有<sup>237</sup>Np容易,淋洗液中的<sup>238</sup>Pu主要以胶体存在。

#### 参考文献:

- [1] MONSECOUR M, PUT M, FONTEYNE A. Migration Experiments in the Underground Facility at Mol to Verify Safety Assessment Model[A]. In: Nuclear Energy Agency. Safety Assessment of Radioactive Waste Repositories[C]. OECD. Paris (France), 1991. 344~351.
- [2] KARIN A, SVERKER E, YNGVE A. Diffusion of Radionuclides in Sediments in Situ Studies[J]. Radiochim Acta, 1992, 58/59:321~327.
- [3] NYHAN J, POLZER W. Joint DOE/NRC Field Study of Tracer Migration in the Unsaturated Zone [R]: LA-10575-MS. USA: Los Alamos National Lab, 1986.
- [4] TESSLER A, CAMPBELL P G C, BISSON M. Sequential Extraction Procedure for the Speciation of Particulate Trace Metals[J]. Anal Chem, 1979, 51(7):844~851.
- [5] GOMBERT D. Treatability Testing to Evaluate What Can Work[J]. Nucl Technol, 1994, 108(1):90~99.
- [6] 崔安熙,郭亮天,范智文,等. Np、Pu在地下水和工程屏障平衡水中的形态计算研究[J]. 核化学和放射化学, 2001, 23(1):23~29.
- [7] LIESER K H, MUEHLENWEG U. Neptunium in the Hydrosphere and in the Geosphere[J]. Radiochim Acta, 1988, 43(1):27~35.
- [8] NITSCHKE H. Solubilities and Speciation of Selected Transuranium Ions, A Comparison of a Non-complexing Solution With a Groundwater From the Nevada Tuff Site[J]. Radiochim Acta, 1985, 39:23~33.
- [9] 史英霞,郭亮天,李书绅. 无机胶体对超铀核素的存在形态影响研究[J]. 辐射防护, 2002, 22(3):157~162.

## STUDY ON THE RADIONUCLIDE ELUTION FROM QUARTZ SAND SOURCE AND THEIR SPECIATION

SHI Ying-xia, GUO Liang-tian

China Institute for Radiation Protection, Taiyuan 030006, China

**Abstract:** The study of the elution of the radionuclide from quartz sand source and their speciation is carried out by column method. The colloid form of nuclides in the eluted solution is studied by ultra-filtration method. The existing form of the nuclides on the sand after elution is studied with sequential extraction method. When the volume of eluted solution is up to 110 times of the column volume, the nuclide <sup>237</sup>Np of more than 90% is eluted, and in the exchangeable form. The nuclide <sup>237</sup>Np remained in the sand is mainly in the form of being coincident with the matrix of carbonate(5.5%) and the transition metals, iron and manganese(1.3%). The elution of <sup>238</sup>Pu from sand is more difficult than that of <sup>237</sup>Np. <sup>238</sup>Pu may exist in colloid form in eluted solution.

**Key words:** neptunium; plutonium; elution; colloid; sequential extraction