

文章编号 :0253-9950(2000)01-0037-08

高放泥浆研究

· 模拟高放泥浆的配制及性能研究

梁俊福¹, 宋崇立¹, 潘翠玲², 丁戈龙², 杨文杰²

(1. 清华大学 核能技术设计研究院,北京 102201; 2. 兰州核燃料厂,甘肃 兰州 732850)

摘要:依据高放废液化学组分分析结果,配制了模拟高放废液。采用甲酸脱硝模拟高放废液浓缩方法,研究了高放废液及泥浆的物理性质和化学组成,探讨了高放泥浆的形成机理及溶解方法,为高放泥浆的处理处置提供了基础数据。

关键词:模拟高放泥浆;高放废液;干沉淀

中图分类号: O615.3 **文献标识码:** A

核燃料后处理过程中产生的高放废液(HLLW)集中了乏燃料中 95% 以上的放射性,毒性很大,世界各国将这种高放废液大都存放在不锈钢或碳钢贮罐内。一旦发生泄漏,会造成土壤、水及大气污染,危及人类及各种生物的安全,必须及早进行处理处置。高放废液长期放置,会出现不溶固体物^[1~6],美、法等国的酸性高放废液和我国生产堆酸性高放废液的某些贮罐底部均已发现泥浆层^[7,8]。目前,我国尚无处理和处置高放废液中泥浆的方法,而泥浆的处理是生产堆后处理厂退役和高放废液处理处置时必须考虑和解决的问题。

本文依据高放废液化学组分分析结果,配置模拟高放废液,采用甲酸脱硝模拟废液浓缩过程制得模拟高放泥浆,并研究模拟高放泥浆的物理性质和化学组成,进行泥浆的溶解实验,探讨高放泥浆的组成及形成机理,为高放泥浆的处理提供基础数据。

1 实验部分

1.1 试剂和仪器

1.1.1 实验试剂 实验中所使用的试剂除注明者外,皆为分析纯。

1.1.2 储备溶液的配制 (1) K_3NbO_4 溶液(5 g/L Nb):准确称取 1.43 g Nb_2O_5 和 8.0 g KOH,在铁坩埚中均匀混合后加热熔融 2 h,其间不断搅拌,冷却后用 1 mol/L KOH 转至 100 mL 容量瓶中定容。(2) $RuNO(NO_3)_3$ 溶液(40 g/L Ru):在 50 mm(ϕ)镍坩埚中加入 0.9985 g

收稿日期:1999-06-13; 修订日期:1999-10-15

基金项目:国家“九五”科技攻关项目(96A18-02-03)

作者简介:梁俊福(1945-),男,陕西乾县人,副研究员,放射化学专业

金属钨粉 ($w = 99.9\%$)、7.9612 g KOH 和 0.6624 g KNO_3 , 混合均匀后在 $400 \sim 500$ 下共熔 2 h, 冷却后加水溶解, 转入烧杯中, 过滤后溶液呈红褐色。加入 95% 乙醇约 3 mL 于溶液中, 出现黑色沉淀 RuO_2 。沉淀分离后在 95% 水浴中加热除去乙醇, 然后用 8 mol/L HNO_3 溶解沉淀, $60 \sim 70$ 下加入 NaNO_2 至溶液呈桔黄色, 加热回流 1.5 h, 冷却后用 3 mol/L HNO_3 定容至 25 mL。(3) $\text{TiO}(\text{NO}_3)_2$ 溶液 (70 g/L Ti): 取 50 mL 化学纯 TiCl_4 溶液 (约 8.8 mol/L) 搅拌下缓慢加水至 100 mL, 取此溶液 3.4 mL 于离心试管中, 加入 8 mL 12 mol/L NaOH 溶液, 沉淀完全后, 离心分相, 沉淀用水洗涤 2~3 次后, 用 3 mol/L HNO_3 溶解并稀释至 10 mL。(4) $\text{Pd}(\text{NO}_3)_4$ 溶液 (5 g/L Pd): 称取 Pd 粉 ($w = 99.9\%$) 0.5014 g, 用 3 mol/L HNO_3 加热溶解, 冷却后用 3 mol/L HNO_3 稀至 100 mL。(5) $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4$ 溶液 (80 g/L): 称取 $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 96 g, 用水溶解定容至 1000 mL, 用 10 g/L 草酸溶液调酸度至 $\text{pH} = 7.50$ 。

1.1.3 主要仪器 Jarrel Ash 1160 型等离子光谱仪, 美国产品; 810Q 电子探针, SA-CP3 型粒度仪, 日本岛津产品; X 射线能谱仪, Limk 英国产品; 78-1 型磁力加热搅拌器, 上海南汇电讯器材厂产品; PHS-10A 型数字酸度/离子计, 萧山市科学仪器厂产品。

1.2 分析测量方法

用 $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4$ 掩蔽-pH 滴定法测定模拟料液中的游离酸^[9]。在 50 mL 烧杯中, 放入 30 mL pH 为 7.50 的 80 g/L $\text{K}_2\text{C}_2\text{O}_4$ 溶液, 加入 0.1 mL 料液, 在搅拌下滴加标准 NaOH 溶液, 直至 pH 值准确回到 7.50, 计算料液中酸的浓度。化学成分分析由等离子光谱和原子吸收光谱完成, 物相分析的结果由红外光谱、电子探针和 X 射线能谱仪给出。

1.3 模拟高放泥浆的配制

依据高放废液及其泥浆的化学组分分析结果和其体积及质量^[8], 计算得到了泥浆沉淀前浓缩后的高放废液 (简称高放废液) 组成。经过多次实验, 通过以下步骤配制了模拟高放泥浆。铜系元素 U、Np、Pu、Am、Cm 以及 Tc 由于是放射性元素, 在模拟泥浆中没有加入; Y、La、Ce、Nd、Sm 等稀土元素由于性质相似, 用 Nd 代表其总量; Rh 由于含量很低没有加入。

1.3.1 初始料液的配制 称取 188.4 g $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, 用 3 mol/L HNO_3 加热溶解于烧杯中, 待溶解完全后, 再加入 52.9 g $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, 完全溶解后, 再依次加入 118.2 g NaNO_3 、44.87 g $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、0.88 g KNO_3 至混合液中直至溶解完全。其后准确称取 0.88 g $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ 、9.58 g $\text{Cr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ 、3.04 g Nd_2O_3 、0.47 g $\text{Mn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 分别用 3 mol/L HNO_3 加热溶解后, 依次加入混合液中, 另称取 2.12 g $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, 用热水溶解后, 加入混合液。再准确移取 0.5 mL $\text{TiO}(\text{NO}_3)_2$ 溶液和 32 mL 30 g/L $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 溶液于混合液中。最后用 3 mol/L HNO_3 稀释到 500 mL。此溶液在 68 下长期放置不出现沉淀。

1.3.2 模拟料液的配制 从 500 mL 初始料液中取出 100 mL 于烧杯中, 加热浓缩至约 85 mL 后转入 100 mL 容量瓶。移取 1.24 mL $\text{Zr}(\text{NO}_3)_4$ 溶液 (10 g/L Zr)、0.8 mL $\text{Pd}(\text{NO}_3)_4$ 溶液、0.8 mL K_3NbO_4 溶液、2.0 mL $\text{RuNO}(\text{NO}_3)_3$ 溶液、0.69 mL 9 mol/L H_2SO_4 溶液, 依次加到初始料液中。准确称取 0.2650 g K_2HPO_4 加到料液中。最后用 3 mol/L HNO_3 稀释到 100 mL。配制的模拟料液化学组分列入表 1。

表 1 模拟料液的化学组分

Table 1 Chemical content of simulated HLLW

元素 (elements)	化合物 (added compounds)	/ (g L ⁻¹)	元素 (elements)	化合物 (added compounds)	/ (g L ⁻¹)
Al	Al(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O	27.1	Mo	(NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄ · 4H ₂ O	2.30
Fe	Fe(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O	14.6	Nd	Nd ₂ O ₃	5.20
Na	NaNO ₃	64.0	Ti	TiO(NO ₃) ₂	0.07
Ni	Ni(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	18.1	Ru	RuNO(NO ₃) ₃	0.80
Ba	Ba(NO ₃) ₂	1.92	Zr	Zr(NO ₃) ₄	0.12
K [*]	KNO ₃	0.68 [*]	Pd	Pd(NO ₃) ₄	0.07
Sr	Sr(NO ₃) ₂	0.72	Nb	K ₃ NbO ₄	0.04
Cr	Cr(NO ₃) ₃ · 9H ₂ O	2.50	SO ₄ ²⁻	H ₂ SO ₄	6.10
Mn	Mn(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	0.18	PO ₄ ³⁻	K ₂ HPO ₄	1.00

注 (note): “*” 未包括 K₃NbO₄ 及 K₂HPO₄ 中的 K (K in K₃NbO₄ and K₂HPO₄ is not considered)

1.3.3 模拟料液的脱硝 真实高放废液在贮存前都要进行脱硝浓缩,为了模拟这一过程,本文用 PUREX 流程生产堆 1AW 模拟废液进行了浓缩脱硝实验,实验装置同文献[10]。实验发现除了在沉淀量上稍有差别外,稀溶液的浓缩脱硝与浓溶液的脱硝在沉淀物相上完全相同。为此,以后的实验采用甲酸进行浓溶液的脱硝^[11,12],脱硝过程:将配制的 100 mL 模拟料液转至 250 mL 三颈瓶中,测量料液初始酸度。在通风橱中安装脱硝装置如图 1 所示。控制水浴温度 90~95℃,每隔 20 min 向料液中加入约 0.3 mL 88%甲酸,脱硝快要完成时,每加一次甲酸前,取样测定酸度,直到酸度降至 1.05 mol/L 左右,保持水浴温度 90~95℃,1 h 后将料液及沉淀一起转至 100 mL 锥形瓶中,用 1 mol/L HNO₃ 定容至 100 mL,在 68℃ 烘箱中陈化放置 14 d 以上。然后乘热抽滤,抽滤后的沉淀即为湿沉淀,滤液即为模拟高放废液。

1.4 模拟高放泥浆的溶解实验

用文献[3,8]中所列的多种溶解方法对湿沉淀进行溶解实验,实验结果列入表 2。由表 2 可见,沉淀可用浓硫酸加热溶解。由于 Ba²⁺ 在稀的硫酸溶解液里肯定会沉淀出来,实验采用酸转型的方法,即用浓 H₂SO₄ 溶解后再加入等体积的高氯酸,加热赶去硫酸,转型 3 次较为完全,最后用高氯酸定容,即为沉淀溶解样。

1.5 高放废液及干沉淀的性能测定

实验研究了模拟高放废液的物理性质和化学组分。用密度计测定了在 25℃、68℃ 下模拟高放废液的密度,用玻璃管粘度计测定了 21℃、42℃、68℃ 下模拟高放废液的粘度,用等离子光谱和原子吸收光谱仪分析了模拟高放废液的化学组分。对于干沉淀,用比重瓶测定了它的视密度和真密度,用旋转粒度仪测定了它的粒径分布,分析了干沉淀的化学组分,用红外光谱、电子探针和 X 射线能谱仪分析了干沉淀的物相组分。

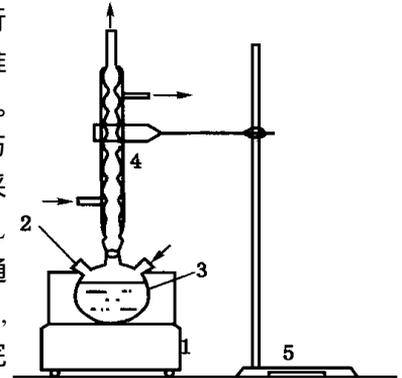


图 1 脱硝实验装置

Fig. 1 Denitration equipment of simulated HLLW

- 1——控温浴槽(thermostat);
- 2——温度计(thermometer);
- 3——三颈瓶(three-necked bottle);
- 4——冷凝回流管(cooling tube);
- 5——铁架台(iron stand)

表 2 沉淀溶解实验结果
Table 2 Dissolubility of simulated sludge

试剂 (reagents)	溶解方式 (dissolving method)	溶解结果 (result)
HNO ₃	加热 (heating)	部分溶解 (part of dissolution)
HCl	加热 (heating)	部分溶解 (part of dissolution)
V (HCl) V (HF) = 1 1	加热 (heating)	部分溶解 (part of dissolution)
王水 (aqua-regia)	加热 (heating)	大部分溶解 (most of dissolution)
V (HCl) V (HNO ₃) = 1 3	加热 (heating)	大部分溶解 (most of dissolution)
V (HCl) V (HNO ₃) V (HF) V (HClO ₄) = 1 3 3 3	加热 (heating)	大部分溶解 (most of dissolution)
V (HCl) V (HF) V (HClO ₄) = 1 3 3	加热 (heating)	部分溶解 (part of dissolution)
HClO ₄	加热 (heating)	部分溶解 (part of dissolution)
2 mol/L NaOH + 1 mol/L HNO ₃	交替溶解 (alternately dissolving)	部分溶解 (part of dissolution)
KOH + KNO ₃ (solid)	混合熔融 (melting)	不溶 (insolubility)
H ₂ SO ₄	加热 (heating)	溶解 (dissolution)

2 结果和讨论

2.1 模拟高放废液及泥浆的物性分析

配制好的模拟高放废液为蓝绿色,与真实高放废液颜色相同。这主要是由于 Ni²⁺、Cr³⁺ 等离子的影响所致。浓缩模拟高放废液在室温 (22 ± 1) 下放置,会有很多大颗粒结晶出现,这些结晶物取样分析主要为 NaNO₃,此外有约 2% ~ 3% 的 Al(NO₃)₃,此溶液加热到大于 35 或加入 20% 的水后,NaNO₃ 结晶会完全溶解。

用密度计和玻璃管粘度计测定了模拟高放废液 (酸度为 1.13 mol/L HNO₃) 的密度和粘度。其密度为:1.430 g/cm³ (25)、1.415 g/cm³ (68);其粘度为:5.72 cPa (25)、3.17 cPa (41.5)、2.16 cPa (65)。

配制好的模拟高放废液在 68 下放置,容器底部会出现少量沉淀,在脱硝以后,沉淀量增加较多,脱硝后放置,沉淀也进一步增加,由于真实高放废液一般都存放了很多年,由此推断真实泥浆的含量要比模拟结果高。国外的类似实验真实泥浆的含量约是模拟的 3 倍^[3]。模拟泥浆的产生量为每升高放废液约 20 g 湿沉淀。湿沉淀在 103 ~ 105 烘干恒重后,测定其含水率约为 50%。所以每升高放废液的干渣量为 10 g。1 升高放废液的湿沉淀用 1 mol/L HNO₃ 洗涤 3 ~ 5 次后再在 103 ~ 105 烘干恒重,得到不溶性干沉淀 (简称干沉淀) 约为 5 g。本实验得到的模拟高放泥浆的干沉淀量比法国阿格厂所得结果小得多 (它们模拟高放泥浆共沉淀为 16 ~ 24 g/L^[3])。其原因是动力堆高放废液的组成和生产堆不同,如动力堆中含钍量为生产堆的 7 ~ 8 倍,而钍又是主要的沉淀元素之一,所以沉淀量也要多。

干沉淀肉眼观察,看到它由三种颜色的颗粒组分:白色、黄色和灰色。测定了干沉淀的视密度和真密度,其值为:视密度 1.665 g/cm³,真密度 2.651 g/cm³。用旋转粒度仪测定了干沉淀的粒径,多次实验得到的干沉淀粒径基本一致,粒径范围为 0 ~ 40 μm,平均值为 4.41 μm。

2.2 料液脱硝讨论

高放废液脱硝过程中,甲酸与硝酸的反应是一个有诱导期的放热反应。温度影响诱导期的长短、反应速率和甲酸的利用率。所以应在 90 ~ 100 范围内加入甲酸,加入速率应严格控

制,防止反应过于激烈。

甲酸与硝酸的反应主要有以下两种^[12]:



在整个脱硝过程中,以上两个反应同时存在,不同阶段两者比例不同。据实际配置料液计算,平均甲硝比为 1.27 左右。粗略计算可知,反应(1)约占总反应的 77%。影响甲酸脱硝的因素很多,硝酸浓度较高时,与同量硝酸反应所需的甲酸量较少,不同酸度的料液脱硝至同一酸度时的甲硝比不同。起始酸度较高时,甲硝比较低。在脱硝过程中,可以依据反应模型预测甲酸的大概消耗量。

2.3 高放废液及干沉淀的化学组分分析

取混匀后的部分干沉淀用浓硫酸溶解、高氯酸转型后,用 1 mol/L HClO₄ 稀释至 10 mL。抽滤后的高放废液用 1 mol/L HClO₄ 稀释至 10 mL。用等离子光谱仪和原子吸收光谱仪分析了干沉淀溶解液和热抽滤后的高放废液化学组分,多次分析的结果基本一致。表 3 给出了典型的分析结果。

表 3 高放废液和干沉淀的化学组分分析结果

Table 3 Composition of the HLLW and sludge

元素 (elements)	干沉淀(sludge)			高放废液(HLLW)			物料衡算/ (material balance) %
	m/ mg	R ₁ / %	/ (mg L ⁻¹)	m/ mg	R ₂ / %	/ (mg L ⁻¹)	
Al	2.1	0.1	20	2.8 ×10 ³	100	2.8 ×10 ²	100
Fe	9.5	0.6	90	1.5 ×10 ³	100	1.5 ×10 ²	100
Ni	<0.1	0	<0.4	1.89 ×10 ³	100	1.8 ×10 ²	100
Mn	<0.10	0.1	0.19	18.7	100	1.87	100
Mo	134.4	60.0	1280	90.0	40.0	9.0	98
Cr	<0.1	0.016	<0.4	255	100	25.5	100
Sr	0.35	2.2	3	71	97	7.1	99
Ba	153	83	292	32	17	3.2	96
Nd	1.7	0.3	16	513	99	51.3	100
P	12.8	39.6	123	19.5	60.4	1.95	99
Ti	3	42.8	28	4.6	66	0.46	109

注(notes): R₁ 和 R₂ 分别为干沉淀和高放废液中各元素沉淀量占总量的百分数(R₁ and R₂ are the percentage of precipitation or HLLW in total amount, respectively)

由于高放废液中 Zr、Nb、Ru、Pd 等的含量较低,分析结果误差较大,为此配制了加大其含量的模拟高放废液,其中 Zr、Nb、Ru、Pd 等的含量分别是正常值的 10~20 倍。分析结果表明:大于 95% 的 Zr 和 Nb 被沉淀,Ru 和 Pd 的沉淀量则小于 5%。S 的沉淀量没有分析,但根据物相分析结果,从 Ba 的沉淀量可推测 S 的沉淀量约为 30%。

多次模拟实验给出了各个元素沉淀的大致百分数为:Ba, 80%; Mo, 55%~63%; Zr, 95%; SO₄²⁻, 30%; P, 40%; Ti, 43%; Nb, 95%。

2.4 高放泥浆的物相分析

用红外光谱、电子探针和 X 射线能谱仪分析了干沉淀的物相组成。结果表明,干沉淀主要由三种不同的晶相组成,基本看不到无定形沉淀。干沉淀及三个物相的 X 射线能谱扫描图

示于图 2。物相分析的结果表明：

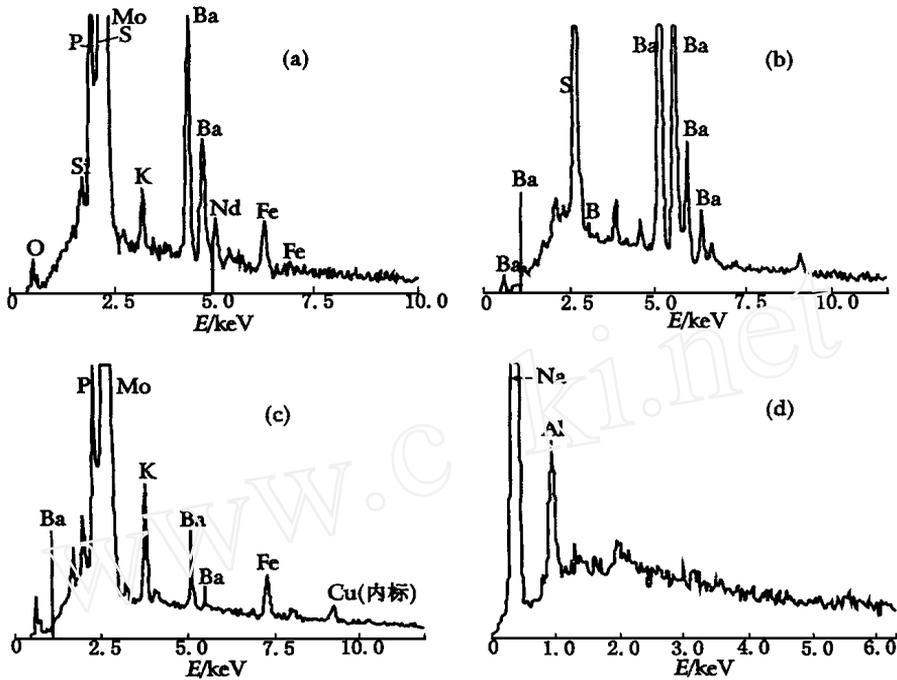


图 2 模拟高放泥浆的 X 射线能谱图

Fig. 2 X-ray energy spectrum of simulated high-level radioactive sludge

(a) ——干沉淀(sludge), (b) ——硫酸钡相(the phase of BaSO_4),

(c) ——磷钼杂多酸相(the phase of heteropole phosphomolybdate), (d) ——硝酸盐相(the phase of nitrate)

(1) 模拟高放废液在生成泥浆时,主要的沉淀元素为 S、P、Ba、Mo、K 等,这与化学分析结果基本一致。试样中还含有 1% ~ 3% 的 Si 和 Cl,这可能是由于试剂和操作过程造成的。除此之外, Ru、Zr、Pd、Al、Mn、Ni、Nd、Ti、Nb 在沉淀中的含量皆小于 0.5%。

(2) 高放废液泥浆为晶型沉淀,晶型完整,这为高放泥浆的过滤奠定了良好的基础。

(3) 白色晶型沉淀为硫酸钡相。该相含 BaO , 64%; SO_3 , 36%。基本沉淀形态为 BaSO_4 。该相约占沉淀总量的 30%。Ba 是高裂变产物元素, SO_4^{2-} 则来自于后处理过程中的还原剂 $\text{Fe}(\text{NH}_2\text{SO}_3)_2$ 。

(4) 黄色沉淀为磷钼杂多酸相。该相含 MoO_3 约 55%, P_2O_5 约 7%。计算得到此杂多酸相中, PO_4^{3-} 与 MoO_3 的摩尔比为 1:6, 与其配位的阳离子主要为 K, 此外有少量 Ba 和 Fe, 该物相的沉淀形态为 $\text{K}_3(\text{Ba})\text{PO}_4 \cdot 6\text{MoO}_3$, 为典型的磷钼杂多酸结构。该相约占沉淀总量的 55%。Mo 同样是高裂变产物元素, PO_4^{3-} 则是 TBP 的辐照分解造成的。

(5) 灰色沉淀为硝酸盐相。该物相的沉淀形态为 $\text{Na}(\text{Fe})\text{NO}_3$, 可能还有少量的 Al、K 和 Mo 等。该相约占沉淀总量的 10%。

(6) 约 5% 的沉淀为其它物相。初步估计为某些重金属的氧化物及少量其它盐沉淀。需要说明的是由于没有硅的分析数据, 在配制模拟高放废液时没有加入硅, 而后处理工艺流程和高放废液在长期的存放过程中有可能引入硅。硅的存在会形成硅钼杂多酸盐沉淀, 应引起注

意。

(7) 动力堆高放废液由于其组分与生产堆有较大区别,因此泥浆的组分也不同。例如,由于 Zr 含量高,会形成磷酸锆^[13]或钼酸锆沉淀^[3,10],本实验中没有观察到这两种物相。

2.5 高放废液泥浆形成的机理分析

PUREX 流程处理生产堆核燃料的高放废液,在脱硝浓缩的同时,硫酸钡和磷钼杂多酸就因超过其溶解度生成了沉淀。由于开始阶段废液的温度比较高,这些沉淀只有少数大的晶粒沉于罐底,大部分仍悬浮于溶液中。高倍浓缩的高放废液中,会有少量硝酸盐沉淀生成。高放废液在存放过程中,在高剂量的 α 和 γ 辐射作用下,一方面使高放废液中夹带的 TBP 沿着 TBP DBP MBP H_3PO_4 方向辐解,产生越来越多的 H_3PO_4 ,更有利于磷钼杂多酸沉淀。另一方面使高放废液的酸度逐渐降低。本文曾分析过某高放废液的酸度,发现经过近 10 年之后,其酸度由 2.6 mol/L HNO_3 降为 2.1 mol/L HNO_3 。此外,放射性的衰变也使废液的温度逐渐降低,所有这些都利于晶粒的生成和长大。这样,高放废液在放置过程中,沉淀会逐渐增多。为了证实这一点,本文从某高放废液罐底部取泥浆样品,测量得到其干沉淀量约为模拟实验值的 3 倍,这和法国阿格厂类似实验^[3]的结果(真实值 45 g/L 干沉淀,为模拟值的 2~3 倍)相似。

2.6 放射性核素沉淀状况的初步分析

在长期放置的生产堆高放废液中,主要放射性核素有:¹³⁷Cs、⁹⁰Sr、⁹⁹Tc、²³⁹Pu、²⁴¹Am 等。根据它们的化学性质,在高放废液泥浆中这些放射性核素的存在状态,除以夹带、吸附和包藏存在外,在共沉淀时, Sr^{2+} 和 Pu^{4+} 很可能和硫酸钡相共晶沉淀, TcO_4^- 、 Cs^+ 则和磷钼杂多酸相共沉淀, Pu^{3+} 和 Am^{3+} 则基本不形成共晶沉淀,这对高放泥浆非 化探索性研究有一定的指导作用。

3 结 论

本文依据高放废液化学组分分析结果,配置了模拟高放废液。采用甲酸脱硝模拟高放废液的浓缩过程制得了模拟高放泥浆并分析了模拟高放泥浆的物理性质和化学组分。研究结果表明,高放泥浆主要由硫酸钡、磷钼杂多酸和硝酸盐三种晶型沉淀组成,并给出了它们的沉淀分子组成和大致含量,初步探讨了高放泥浆的形成机理,为高放泥浆的处理提供了基础数据。

参考文献:

- [1] Barbero P, Cecille L, Mannone F, et al. Schemas de Separation des Effluents Nucleaires a Haute Activites (HAW) Faisant Appel a l'Extraction Par Solvent-Procédés HDEHP et TBP [R]: 6292 EN/FR. Italy: ISPRA, 1981. 211~224.
- [2] Philip A Anderson. Laboratory Simulation of High-Level Liquid Waste Evaporation and Storage [J]. Nucl Tech, 1980, 47(1): 173~180.
- [3] Patigny P, Pageron D, Salom J. 阿格工厂处理 LWR 乏燃料的工艺化学经验. 乏燃料后处理新进展 [M]. 蒋云清译. 北京:原子能出版社,1990. 98~107.
- [4] Bartlett JW. Feasibility Evaluation and R & D Program Plan for Transuranic Partitioning of High-Level Fuel Reprocessing Waste [R]: BNWL-1776. USA: Battelle Pacific Northwest Laboratories, 1973.
- [5] Burns RE, Hartley JN, Lester DH, et al. Technical and Economic Feasibility of Partitioning Hanford Purex Process Acid Waste [R]: BNWL-1907. USA: Battelle Pacific Northwest Laboratories, 1975.

- [6] Campbell DO, Buxton SR. Hot Cell Studies of Light-Water Reactor Fuel Reprocessing [J]. Trans Amer Nucl Soc, 1976, 25:232.
- [7] Donald C Stewart. Data for Radioactive Waste Management and Nuclear Applications [M]. [s.l.]: John Wiley & Sons. Inc. 1985.
- [8] 金立云,张怀礼,陈连仲. 高放废液化学成分分析 [J]. 原子能科学技术,1992,26(5):1~5.
- [9] 李集福,段世蓉,吴西,等. 定 pH 法测定高放废液 1AW 中的游离酸[J]. 原子能科学技术,1991,25(1):68~71.
- [10] Tatsuo Izumida, Fumio Kawamura. Precipitation Formation Behavior in Simulated High Level Liquid Waste of Fuel Reprocessing[J]. J Nucl Sci, 1990, 27(3):267~274.
- [11] 姜圣阶,任凤仪,马瑞华,等. 核燃料后处理工学 [M]. 北京:原子能出版社,1995. 303~304.
- [12] Heaty TY. The Reaction of Nitric Acid With Formaldehyde and With Formic Acid and Its Application to the Removal of Nitric Acid From Mixtures[J]. J Appl Chem, 1958, 8:553.
- [13] Kondo Y, Kubota Y. Precipitation in Simulated High Level Liquid Waste Containing Phosphoric Acid[J]. 日本原子力学会志, 1993,35(4):317~320.

**THE PRELIMINARY STUDY OF
HIGH LEVEL RADIOACTIVE SLUDGE
. PREPARATION AND PROPERTY STUDY OF
SIMULATED HIGH LEVEL RADIOACTIVE SLUDGE**

LIANG Jun-fu¹, SONG Chong-li¹, PAN Cui-lin²,
DING Ge-long², YANG Wen-jie²

(1. Institute of Nuclear Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 102201, China;
2. Lanzhou Nuclear Fuel Factory, Lanzhou 732850, China)

Abstract: A typical simulated high-level radioactive sludge is prepared according to the analysis data of high-level liquid waste (HLLW) and sludge. The sludge is got after a concentration and denitration process of the HLLW by formic acid. The physical and chemical properties of the sludge are studied. It mainly consists of BaSO₄, K₃(Ba)PO₄·6MoO₃ and Na(Fe)NO₃ crystals. The mechanism of the sludge formation is discussed.

Key words: simulated high-level radioactive sludge; HLLW; sludge