

文章编号: 0253-9950(2005)04-0239-03

用碳纳米管从硝酸溶液中回收镭

王兴海, 李辰砂, 陈 靖

清华大学 核能与新能源技术研究院, 北京 102201

摘要:研究了用碳纳米管从放射性废硝酸溶液中进行镭的回收。在浓硝酸溶液中,碳纳米管对镭的吸附率小于 1%;随着硝酸浓度的降低,镭的吸附率迅速升高,当溶液的 pH 值大于 5 时,碳纳米管对镭的吸附率达到 99.95% 以上。用 1.5 mol/L 硝酸进行解吸,一次解吸能够从碳纳米管回收 99% 以上的镭。

关键词: 碳纳米管; 镭; 吸附

中图分类号: O614.354 **文献标识码:** A

镭主要来源于高燃耗铀的长期存放、后处理工厂和实验室的废液,以及烟雾报警器中镭源的溶解液。通常提取镭的方法是溶剂萃取法,但是对于含量少的环境样品和生物样品就需要一种简单、有效的镭的浓集方法。碳纳米管(Carbon nanotubes,简称 CNTs)是碳的新的特殊形态,具有良好的机械性能^[1]、独特的电性能^[2]、高化学稳定性和很大的表面积,从它被发现起就引起研究人员的极大关注^[3]。它们中空、分层的纳米结构使其成为吸附二噁英和铅的材料^[4,5]。正是基于 CNTs 的优异性能,本文企图用 CNTs 吸附并回收放射性实验室废液中的镭,为提取镭建立一种新方法。

1 实验部分

1.1 试剂和仪器

CNTs 由本院提供,用化学气相沉积法(Chemical Vapor Deposition,简称 CVD 法)制备。硝酸镭由中国原子能科学研究院提供,本院提纯。其它试剂均为分析纯。

Tri-carb-2200 CA 型液体闪烁计数器,美国 Packard 公司产品。JSM-6301 F/JSM-2010F 型扫描-透射电镜(SEM/TEM),日本 JEOL 电子产品。

1.2 实验方法

把硝酸镭溶解在去离子水中得到镭溶液,在使用前把镭溶液稀释到需要的浓度。吸附实验在

25 的恒温水浴中进行。首先称 0.1 g CNTs 放入试管中,加入含镭的硝酸溶液,搅拌一定时间,然后离心分相,用液闪仪测量溶液中镭的计数率,并计算吸附率。

2 结果和讨论

2.1 CNTs 的形貌

用扫描和透射电镜(SEM、TEM)观察 CNTs 的形貌特征并示于图 1。从图 1 中可以看到,CNTs 的平均直径在 30~50 nm,长度从几百纳米到数微米不等。这些管弯曲交叉在一起,管的两端都是开口的,CNTs 优异的吸附性能就是因为它们有很高的表面积和中空结构。

2.2 接触时间对镭吸附率的影响

将含镭硝酸溶液与 CNTs 在玻璃试管中于 25 恒温水浴中搅拌一定时间后,测量溶液中的镭浓度。接触时间对 CNTs 吸附镭的影响示于图 2。从图 2 看出,溶液中的镭随着时间的延长而减少。这说明经过 1~2 h 后,溶液中的镭大部分被 CNTs 吸附,镭的吸附率不再有明显变化。因此,实验中选择接触时间大于 2 h,以保证实验达到平衡。

2.3 溶液酸度对 CNTs 吸附镭的影响

含镭硝酸溶液与 CNTs 接触 2 h,不同 pH 值对吸附率的影响示于图 3。从图 3 看出,镭的吸附率随着硝酸溶液 pH 值的增加而增加。在高浓度的硝酸溶液中,CNTs 只吸附很少量的镭。但

收稿日期:2004-11-24; 修订日期:2005-04-11

作者简介:王兴海(1971—),男,山东武城人,博士,助理研究员,化学工程专业。

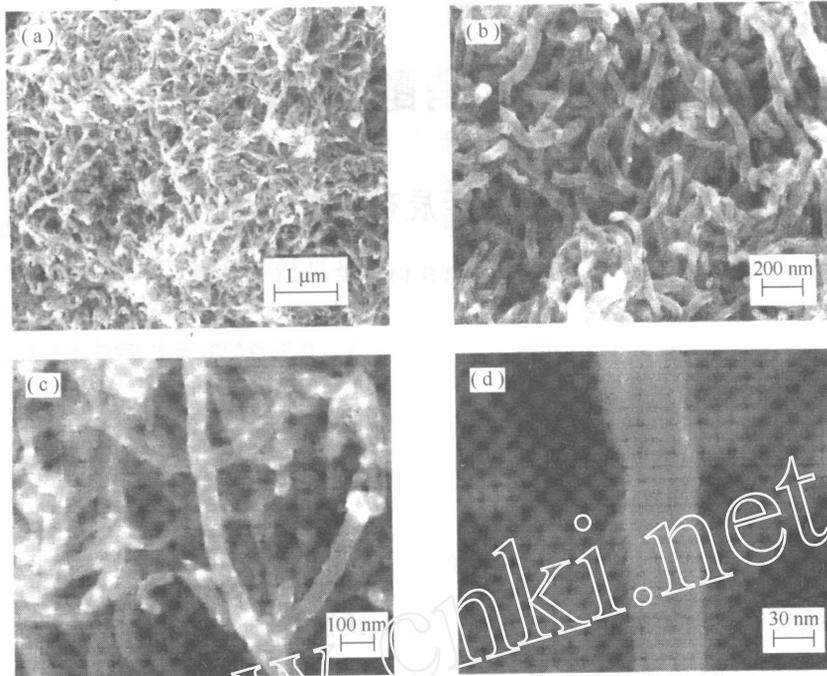


图 1 碳纳米管的表面形貌图

Fig. 1 SEM and TEM micrograph of CNTs

是当溶液的 pH 升高到 5 以上时,镅的吸附率变得很大。当溶液的 pH 值达到 7 左右时,99.95% 以上的镅被 CNTs 吸附。

虽然镅在 pH 3 时会发生水解,生成胶体。为了与图 3 中的结果进行对比,实验作了在没有 CNTs 时,pH 值对镅浓度的影响。发现在没有 CNTs 时,溶液中镅浓度随着溶液 pH 值的升高稍稍有点下降。虽然在高 pH 值时镅会水解,但由于溶液中镅的浓度比较低,不能够生成沉淀,因此溶液中的镅在无 CNTs 时基本不损失,仍然保留总量的 98% 以上。

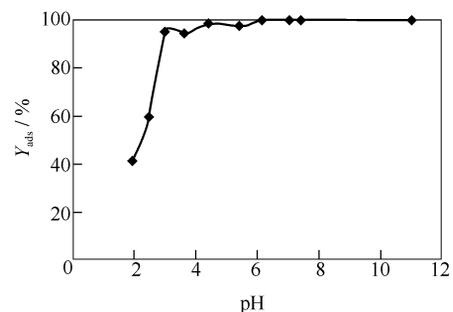


图 3 不同 pH 时 CNTs 吸附镅的百分比

Fig. 3 Percent of Am adsorbed by CNTs with pH

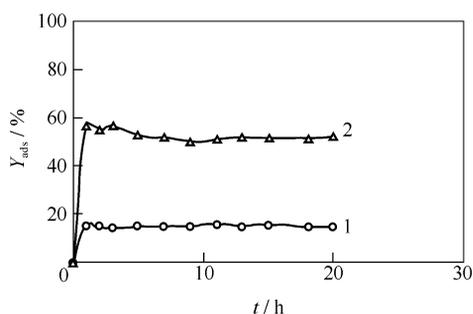


图 2 接触时间对 CNTs 吸附镅的影响

Fig. 2 Effect of time on Am adsorption

1—0.1 mol/L HNO₃, 2—0.01 mol/L HNO₃

不同镅的质量浓度对镅吸附率的影响示于图 4。当镅的质量浓度低于 0.7 mg/L 时,CNTs 对镅的吸附率没有明显变化,当镅的质量浓度高于 0.7 mg/L 时,随着镅的质量浓度的增加,CNTs 对镅的吸附率有所增大,这说明 CNTs 对高浓度的镅更容易吸附。

2.4 用 CNTs 从硝酸溶液中回收镅

根据上述实验结果,拟定了用 CNTs 从稀硝酸溶液中回收镅的实验程序。将含镅的 1.0 mol/L 硝酸溶液和 CNTs 置于玻璃试管中。用 1.0 mol/L NaOH 溶液调节溶液的 pH 值,直到 pH > 5。搅拌 2 h 后,离心分相,弃去水相,吸附

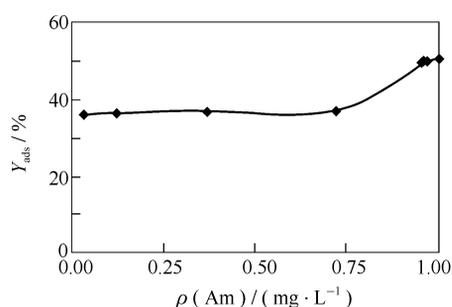


图4 不同镅浓度对镅的吸附率

Fig.4 Percent of Am adsorbed by CNTs with Am concentration

了镅的CNTs与1 mL 1.5 mol/L硝酸接触搅拌2 h,测量溶液中的镅浓度。实验结果表明,用1.5 mol/L的硝酸能够回收99%以上的镅。用CNTs多次反复吸附镅,结果都一样。

3 结论

本实验采用CNTs的平均直径为30~50 nm,长度从几百纳米到数微米。在硝酸浓度

高时,CNTs吸附很少的镅;随着硝酸浓度的降低,CNTs吸附的镅增加很快,当pH大于5时,镅吸附率大于99.95%。用1.5 mol/L的硝酸能够回收99%的镅。

参考文献:

- [1] Treacy M M, Ebbesen T W, Gibson J M. Exceptionally High Young's Modulus Observed of Individual Carbon Nanotubes [J]. Nature, 1996, 381 (6584): 678—680.
- [2] Ebbesen T W, Lezee H J, Hiura H, et al. Electrical Conductivity of Individual Carbon Nanotubes [J]. Nature, 1996, 382 (6586): 54—56.
- [3] Iijima S. Helical Microtubes of Graphitic Carbon [J]. Nature, 1991, 354 (6348): 56—58.
- [4] Long R Q, Yang R T. Carbon Nanotubes as Superior Sorbent for Dioxin Removal [J]. J Am Chem Soc, 2001, 123 (9): 2 058—2 059.
- [5] Li Y H, Wang S G, Cao A Y, et al. Adsorption of Fluoride From Water by Amorphous Alumina Supported on Carbon Nanotubes [J]. Chem Phys Lett, 2001, 350 (5): 412—416.

Removal of Am From HNO₃ Solution With Carbon Nanotubes

WANG Xing-hai, LI Chen-sha, CHEN Jing

Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University,
P. O. Box 1021, Beijing 102201, China

Abstract: The removal and recovery of Am in HNO₃ solution with carbon nanotubes (CNTs) are studied. At high HNO₃ concentration, CNTs adsorb little Am, but the adsorption ratio of Am increases greatly with pH value of HNO₃ solution. When pH > 5, more than 99.95% of Am can be adsorbed by CNTs. With 1.5 mol/L HNO₃, more than 99% Am can be recovered from CNTs.

Key words: carbon nanotubes; Am; adsorption