

## 8%载银丝光沸石对气态碘的吸附动力学研究

熊伟, 张劲松, 曹骥, 陈云明, 杨雨, 鲁芸芸, 杨, 汤嘉, 王海军, 刘辰龙

### Study on Adsorption Kinetics of Gaseous Iodine by 8% Silver Loaded Mordenite

Xiong Wei, Zhang Jinsong, Cao Qi, Chen Yunming, Yang Yu, Lu Yunyun, Yang Yang, Tang Jia, Wang Haijun, and Liu Chenlong

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13832/j.jnpe.2022.01.0221>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 载银丝光沸石和载银氧化铝对气态碘的吸附研究

Study on Dynamic Adsorption of Gaseous Iodine by Silver Loaded Mordenite and Alumina

核动力工程. 2019, 40(1): 131–134

#### 基于OpenFOAM的中子输运动力学求解器ntkFoam研究

Research of Neutron Transport Kinetics Solver ntkFoam Based on OpenFOAM

核动力工程. 2020, 41(4): 8–11

#### 核电厂人员闸门顶升机构动力学仿真分析

Kinetic Simulation of Lifting Mechanism of Personnel Airlock in Nuclear Power Plants

核动力工程. 2019, 40(3): 70–74

#### 高温气冷堆非纯氦气环境下高温合金碳迁移的化学动力学研究

Study on Chemical Kinetics of Carbon Migration in Superalloys in the Non-Pure Helium Environment in High Temperature Gas Cooled Reactors

核动力工程. 2021, 42(5): 226–231

#### 跨临界时二氧化碳体系微观结构特征的分子动力学模拟

Molecular Dynamics Simulation on Microscopic Characteristics of Carbon Dioxide in Trans-Critical Progress

核动力工程. 2021, 42(4): 14–20

#### 基于丝网技术的矩形通道空泡份额测量研究

Measurement of Rectangular Channel Bubble Fraction Based on Wire-Mesh Technology

核动力工程. 2019, 40(6): 203–206



关注微信公众号, 获得更多资讯信息

文章编号: 0258-0926(2022)01-0221-05; doi:10.13832/j.jnpe.2022.01.0221

# 8% 载银丝光沸石对气态碘的 吸附动力学研究

熊 伟, 张劲松, 曹 骐, 陈云明, 杨 雨, 鲁芸芸,  
杨 旻, 汤 嘉, 王海军, 刘辰龙

中国核动力研究设计院, 成都, 610213

**摘要:** 为了除去乏燃料后处理过程产生的放射性碘, 本研究采用 8% 载银量的丝光沸石作为吸附剂, 采用动态吸附法研究了在气体线速度、吸附柱高度、湿度和 NO<sub>2</sub> 体积分数等因素下其对气态碘的吸附效果的影响。实验结果表明, 气体线速度对饱和吸附容量几乎没有影响, 在较低气体线速度条件下, 吸附柱传质阻力会增大; 吸附柱高度对传质阻力几乎没有影响, 随着吸附柱高度的增加, 饱和吸附容量有一定的提高; 湿度不影响吸附效果; NO<sub>2</sub> 对吸附效果具有促进作用; Yoon-Nelson 模型能够很好地拟合碘在 8% 载银丝光沸石吸附柱上的吸附过程。

**关键词:** 载银丝光沸石; 后处理; 气态碘; 动力学

**中图分类号:** TL941 **文献标志码:** A

## Study on Adsorption Kinetics of Gaseous Iodine by 8% Silver Loaded Mordenite

Xiong Wei, Zhang Jinsong, Cao Qi, Chen Yunming, Yang Yu, Lu Yunyun,  
Yang Yang, Tang Jia, Wang Haijun, Liu Chenlong

Nuclear Power Institute of China, Chengdu, 610213, China

**Abstract:** To remove radioactive iodine from spent fuel reprocessing, in this study, 8% silver loaded mordenite was used as the adsorbent, and the dynamic adsorption method was used to study the effects of gas linear velocity, adsorption column height, humidity and NO<sub>2</sub> volume fraction on the adsorption effect of gaseous iodine. The experiment results show that the gas linear velocity has little effect on the saturated adsorption capacity, and the mass transfer resistance of the adsorption column increases at lower gas linear velocity; The height of the adsorption column has little effect on the mass transfer resistance. With the increase of the height of the adsorption column, the saturated adsorption capacity increases to a certain extent; Humidity does not affect the adsorption effect; NO<sub>2</sub> can promote the adsorption effect; Yoon-Nelson model can well fit the adsorption process of iodine on 8% silver loaded mordenite adsorption column.

**Key words:** Silver loaded mordenite, Post treatment, Gaseous iodine, Kinetics

## 0 前 言

由于反应堆燃料元件的燃耗逐渐加深, 放射性碘的裂变产额增加, 在乏燃料后处理过程中会

释放大量的碘的同位素<sup>[1-3]</sup>。碘由于挥发性强, 化学形态复杂, 迁移率高, 如果进入环境将对人体造成严重的危害<sup>[2-4]</sup>。由于乏燃料后处理过程中会

收稿日期: 2020-11-30; 修回日期: 2020-12-21

作者简介: 熊 伟 (1988—), 男, 助理研究员, 主要从事放射化学、放射性废物处理与同位素研究, E-mail: npicxw@163.com

产生较多的氮氧化物和水蒸气,因此使用普通的吸附材料效果均不是很好<sup>[5-6]</sup>,并且使用载银活性炭容易爆炸<sup>[2,7]</sup>。针对复杂的气相环境,文献[8]研究了载银丝光沸石和载银氧化铝对气态碘的吸附效果,结果发现载银丝光沸石对气态碘具有较好的吸附效果;工程应用中,8%载银量的丝光沸石具有较高的性价比,对气态碘吸附容量可以达到 102.5 mg/g<sup>[8]</sup>。因此,本文制备了 8% 载银量的丝光沸石,研究在气体线速度、吸附柱高度等因素下其对气态碘动态吸附性能的影响。

## 1 实验部分

### 1.1 实验方法

本实验采用的丝光沸石粒径为 0.6~0.8 mm,由上海申县环保新材料有限公司提供。通过浸渍法<sup>[8]</sup>得到 8% 载银量的丝光沸石,浸渍液为 0.5 mol/L 硝酸银溶液。通过配气法制备实验所需的碘蒸气。采用 0.1 mol/L 的氢氧化钠溶液对吸附柱入口、出口进行定期取样,通过紫外分光法测定碘含量。

实验装置(图 1)主要由碘蒸气发生单元、水蒸气发生单元、气体混合单元和吸附单元等组成。通过调节气体流速、吸附剂装柱高度(简称吸附柱高度)、湿度和 NO<sub>2</sub> 体积分数来控制不同的实验条件。由于放射性碘与稳定碘具有相同的理化性质,本文均采用稳定碘作为实验对象。

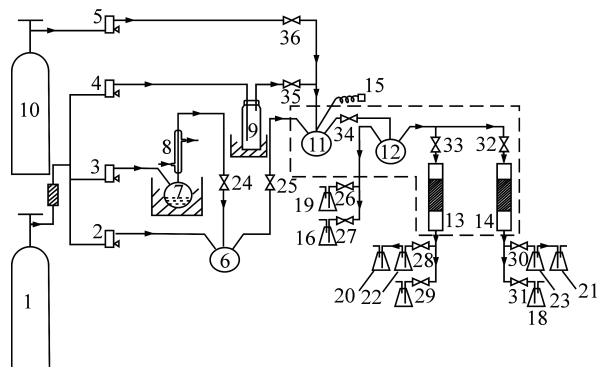


图 1 动态吸附实验流程图

Fig. 1 Flow Chart of Dynamic Adsorption Experiment

1—高纯氮气瓶; 2~5—转子流量计; 6—干湿气体混合器; 7~8—水蒸气发生器; 9—碘蒸汽发生器; 10—1% NO<sub>2</sub> 气瓶; 11—气体混合器; 12—气体缓冲器; 13~14—吸附柱; 15—温湿度计; 16~18—取样瓶; 19~21—尾气吸收瓶; 22~23—显色瓶; 24~36—阀门

### 1.2 实验原理

通过动态吸附实验可以确定不同时间吸附柱

出口的碘蒸气浓度,从而确定吸附剂对碘的穿透吸附量、饱和吸附量和穿透时间。本实验中,规定碘出口浓度为入口浓度的 10% 的时间点为穿透点,碘出口浓度为入口浓度的 90% 的时间点为耗竭点。穿透吸附量和饱和吸附量可按式(1)和式(2)计算:

$$q_B = \frac{FC_0 \times 10^{-6}}{W} \left( t_B - \int_0^{t_B} \frac{C_t}{C_0} dt \right) \quad (1)$$

$$q_E = \frac{FC_0 \times 10^{-6}}{W} \left( t_E - \int_0^{t_E} \frac{C_t}{C_0} dt \right) \quad (2)$$

式中,  $q_B$  为穿透吸附量, mg/g;  $F$  为气体体积流量, mL/min;  $t_B$  为穿透时间, min;  $C_0$ 、 $C_t$  分别为入口碘浓度、吸附时间  $t$  时出口碘浓度, mg/m<sup>3</sup>;  $W$  为吸附剂的装填量, g;  $q_E$  为饱和吸附量, mg/g;  $t_E$  为耗竭时间, mL/min;  $t$  为吸附时间, min。

为了预测其他条件下的穿透曲线,采用基于气体吸附动力学的半经验模型 Yoon-Nelson 模型进行吸附柱动态吸附拟合。Yoon-Nelson 模型的线性方程为:

$$t = \tau + \frac{1}{k'} \ln \frac{C}{C_0 - C} \quad (3)$$

式中,  $k'$  为速率常数, min<sup>-1</sup>;  $\tau$  为 50% 穿透时间,即出口浓度为入口浓度的 50% 时所需要的时间, min;  $C$  为出口碘浓度, mg/m<sup>3</sup>。

## 2 结果与讨论

### 2.1 气体线速度对吸附效果的影响

在考察气体线速度的影响实验中,8% 载银丝光沸石的吸附柱高度为 2.2 cm,恒温箱控制实验温度为 30℃,NO<sub>2</sub> 体积分数为 0.1%,碘的初始浓度为 410 mg/m<sup>3</sup>,湿度为 100%,实验结果见图 2。由图 2 可知,穿透曲线的斜率会跟随气体线速度的改变而产生一定的变化,但是这种变化程度较低;只是在气体线速度为 5.5 cm/s 时,穿透曲线斜率显著变小,传质阻力增大,吸附柱效率降低。此外,随着气体线速度的增大,穿透时间缩短,在线速度分别为 22、13、5.5 cm/s 时,气态碘通过 8% 载银丝光沸石吸附柱的穿透时间大约是 200、290、800 min,这是由于当碘浓度相同时,线速度高,单位时间气体流量增大,单位时间内就会有更多的气态碘通过吸附柱,从而使穿透时间变短。根据穿透曲线可得,线速度分

别为 22、13、5.5 cm/s 时，气态碘通过 8% 载银丝光沸石吸附柱的饱和吸附量分别为 102.5、100.8、101.5 mg/g。这说明在实验气体线速度范围内，气体线速度对饱和吸附容量影响不大。

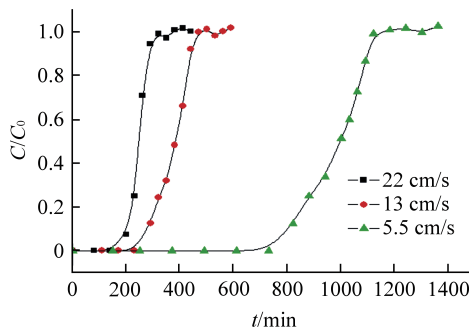


图 2 气体线速度对 8% 载银丝光沸石穿透曲线的影响  
Fig. 2 Effect of Gas Linear Velocity On Penetration Curve of 8% Silver Loaded Mordenite

## 2.2 吸附柱高度对吸附效果的影响

在考察不同吸附柱高度的影响实验中，气体线速度为 22 cm/s，恒温箱控制实验温度为 30℃，相对湿度为 100%，NO<sub>2</sub> 体积分数为 0.1%，碘的初始浓度为 400 mg/m<sup>3</sup>，实验结果见图 3。由图 3 可知，吸附柱高度对穿透曲线的形状基本上没有影响，只是改变了穿透时间，使穿透曲线左右平移。碘的初始浓度为 340 mg/m<sup>3</sup>，吸附柱高度分别为 2.2、4.4、6.6 cm 时，碘通过 8% 载银丝光沸石吸附柱的穿透时间分别为 220、600、890 min，饱和吸附容量分别为 103.5、112.1、113.8 mg/g。这是因为吸附柱变长，相当于吸附剂用量增加，传质区在吸附柱中的占比减小，更多的吸附剂被利用。此外，吸附柱的变长使碘分子的停留时间变长，碘分子有充足的时间向径向扩散而到达吸附剂的吸附位点，增强了碘分子和吸附剂

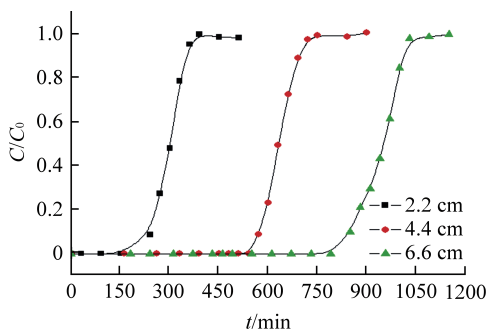


图 3 吸附柱高度对 8% 载银丝光沸石穿透曲线的影响  
Fig. 3 Effect of Adsorption Column Height on Penetration Curve of 8% Silver Loaded Mordenite

的表面吸附作用。因此改变吸附剂的填充高度不会影响穿透曲线的形状，从本质上不会影响吸附柱的传质阻力。

## 2.3 湿度和 NO<sub>2</sub> 体积分数对吸附效果的影响

在考察不同湿度（100%、50%、15%）和不同 NO<sub>2</sub> 体积分数的影响实验中，气体线速度为 22 cm/s，8% 载银丝光沸石吸附柱的吸附柱高度为 2.2 cm，碘的初始浓度为 410 mg/m<sup>3</sup>，实验结果如图 4、图 5 和表 1 所示。

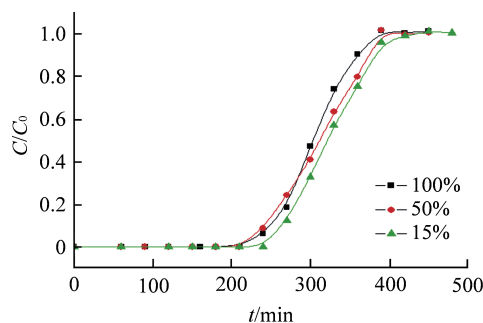


图 4 湿度对 8% 载银丝光沸石穿透曲线的影响  
Fig. 4 Effect of Humidity on Penetration Curve of 8% Silver Loaded Mordenite

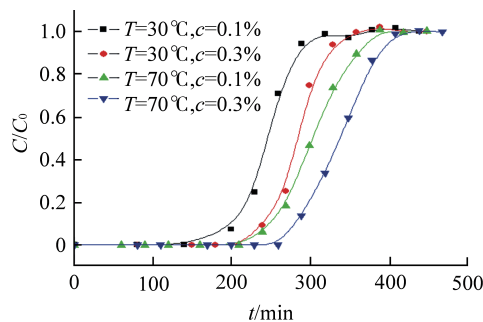


图 5 NO<sub>2</sub> 体积分数对 8% 载银丝光沸石穿透曲线的影响  
Fig. 5 Effect of NO<sub>2</sub> Volume Fraction on Penetration Curve of 8% Silver Loaded Mordenite

$c$ —NO<sub>2</sub> 体积分数； $T$ —温度

从图 5 和表 1 可以看出，随着 NO<sub>2</sub> 体积分数的增加，吸附量和穿透时间有所增加。在相对湿度为 100%、温度为 30℃、NO<sub>2</sub> 体积分数分别为 0.1% 和 0.3% 时，8% 载银丝光沸石的穿透吸附量分别为 81.6 mg/g 和 100 mg/g；在相对湿度为 100%、温度为 70℃、NO<sub>2</sub> 体积分数分别为 0.1% 和 0.3% 时，8% 载银丝光沸石的穿透吸附量为 100 mg/g 和 114.4 mg/g。在实验过程中发现 8% 载银丝光沸石表面呈淡淡的灰黑色，这是由于银离子在空气中与氧气生成氧化银所致，通入 NO<sub>2</sub>



表1 在不同温度、湿度、NO<sub>2</sub>体积分数下8%载银丝光沸石的吸附容量

Tab.1 Adsorption Capacity of 8% Silver Loaded Mordenite under Different Temperatures, Humidity and NO<sub>2</sub> Volume Fractions

温度/℃	相对湿度/%	NO <sub>2</sub> 体积分数/%	穿透时间/min	穿透吸附量/(mg·g <sup>-1</sup> )	饱和吸附量/(mg·g <sup>-1</sup> )
30	100	0.1	200	81.6	102.5
70	100	0.1	245	100	127.1
70	50	0.1	240	96.8	128.3
70	15	0.1	255	102.8	129.6
30	100	0.3	245	100	112.8
70	100	0.3	280	114.4	133.2

后, 8%载银丝光沸石迅速变为纯白色, 这可能是因为氧化银被还原为银单质, 从而增加气态碘的吸附量。

### 3 动力学模型拟合

为了模拟吸附柱内的动态吸附行为和规律, 分别对图2、图3的实验数据进行拟合, 得到的结果见图6、图7、表2和表3。可以看出, Yoon-Nelson模型对气态碘在8%载银丝光沸石吸附柱上的吸附穿透曲线线性回归结果都具有良好的相关系数, 拟合系数( $R^2$ )均在0.9以上。

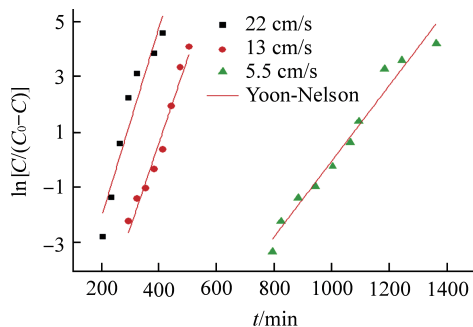


图6 8%载银丝光沸石吸附柱不同线速度下的Yoon-Nelson拟合曲线图

Fig.6 Yoon-Nelson Fitting Curve of 8% Silver Loaded Mordenite Adsorption Column at Different Linear Velocities

由表2可知, 气体线速度对吸附速率常数有很大影响, 随着气体线速度的增大, 气态碘在8%载银丝光沸石吸附柱上的吸附速率常数增加; 固定的吸附柱高度对吸附速率常数也有一定影响, 当吸附柱高度增大时, 吸附速率常数略有下降。Yoon-Nelson模型拟合的吸附穿透曲线的50%的

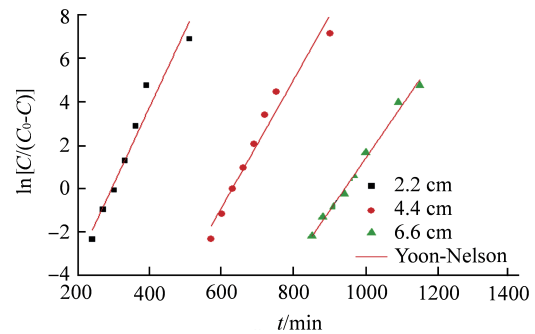


图7 8%载银丝光沸石吸附柱不同吸附柱高度下的Yoon-Nelson拟合曲线

Fig.7 Yoon-Nelson Fitting Curve of 8% Silver Loaded Mordenite Adsorption Column at Different Column Heights

表2 不同线速度下的Yoon-Nelson模型参数

Tab.2 Yoon-Nelson Model Parameters at Different Linear Velocities

线速度/(cm·s <sup>-1</sup> )	$k'/\text{min}^{-1}$	$\tau/\text{min}$	$\tau_{\text{exp}}/\text{min}$	$R^2$
22	0.034	251.2	250.6	0.916
13	0.030	376.7	406.5	0.964
5.5	0.013	1032.3	990.6	0.970

$\tau_{\text{exp}}$ —实验所得的50%的穿透时间

表3 不同吸附柱高度下的Yoon-Nelson模型参数

Tab.3 Yoon-Nelson Model Parameters at Different Adsorption Column Heights

吸附柱高度/cm	$k'/\text{min}^{-1}$	$\tau/\text{min}$	$\tau_{\text{exp}}/\text{min}$	$R^2$
2.2	0.035	300.0	300.0	0.954
4.4	0.029	641.7	630.4	0.963
6.6	0.024	950.0	954.6	0.990

穿透时间和实验所得的50%的穿透时间相接近, 说明Yoon-Nelson模型适用于模拟碘在8%载银丝光沸石吸附柱上的吸附穿透曲线。

### 4 结论

(1) 对于8%载银丝光沸石吸附柱的设计, 选择较大的气体线速度可以提高吸附柱利用率。

(2) 吸附柱高度不影响传质阻力, 为了达到规定时间内的吸附能力, 可以通过改变吸附柱高度来实现。

(3) 气相环境中的NO<sub>2</sub>体积分数不会减弱8%载银丝光沸石对气态碘的吸附能力, 还会增强其吸附效果。

(4) 水蒸气对8%载银丝光沸石吸附气态碘

没有影响。

(5) Yoon-Nelson 模型可以较好地模拟本实验吸附柱内的动态吸附行为。

**参考文献:**

- [1] 刘玉珠, 刘卉. 气态放射性碘捕集方法研究进展[J]. 辐射防护通讯, 1996, 16(6): 28-31.
- [2] 叶明吕, 茅云, 唐静娟, 等. 动力堆核燃料后处理过程废气中碘的去除的研究——吸附放射性碘用的附银硅胶的制备和筛选[J]. 核技术, 1985(2): 65-68.
- [3] 梁飞, 李永国, 张计荣, 等. 核燃料后处理厂溶解废气中放射性碘吸附材料的研究与应用[J]. 中国辐射卫生, 2015, 24(4): 423-426.
- [4] 岳龙清, 罗德礼. 捕集气体中放射性碘用固体吸附材料研究进展[J]. 材料导报, 2012, 26(S1): 285-289.
- [5] 李启东, 何燧源, 黄昌泰. 放射性废气中碘的净化和监测[M]. 北京: 中国原子能出版社, 1986.
- [6] 梁俊福, 何千舸, 刘学刚, 等. 溶液堆的应用及其核燃料处理[J]. 核化学与放射化学, 2009, 31(1): 3-9.
- [7] 董瑞林, 郭亮天. 无银13X分子筛吸附后处理厂溶解废气中放射性碘的实验研究[J]. 辐射防护, 1994, 14(2): 110-117.
- [8] 熊伟, 曹骐, 王海军, 等. 载银丝光沸石和载银氧化铝对气态碘的吸附研究[J]. 核动力工程, 2019, 40(1): 131-134.

(责任编辑: 杨灵芳)