



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 105731899 A

(43)申请公布日 2016.07.06

(21)申请号 201610081478.0

(22)申请日 2016.02.04

(71)申请人 哈尔滨工业大学

地址 150001 黑龙江省哈尔滨市南岗区西
大直街92号

(72)发明人 何培刚 贾德昌 苑景坤 闫姝
杨治华 段小明 王胜金 周玉

(74)专利代理机构 北京天奇智新知识产权代理
有限公司 11340

代理人 范光晔

(51)Int.Cl.

C04B 28/00(2006.01)

C04B 22/08(2006.01)

C04B 14/10(2006.01)

权利要求书1页 说明书2页

(54)发明名称

一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法

(57)摘要

本发明提供了一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法。将氢氧化铯和氢氧化钠溶解于质量浓度为25%~45%的硅溶胶中,经机械搅拌后获得硅酸铯和硅酸钠的混合碱激发溶液;将高岭土置于氧化铝坩埚中,置于马弗炉中,设置温度为500℃~900℃,保温时间为1.5h~2.5h,得到偏高岭土粉体;将混合碱激发溶液置于温度为0℃~5℃的冰水浴中,再加入偏高岭土粉体,超声并机械搅拌25min~45min,得到铝硅酸盐聚合物料浆,然后加入去离子水,调节至料浆在剪切速率 $60\text{S}^{-1}\sim 80\text{S}^{-1}$ 时粘度为 $150\text{mPa}\cdot\text{s}\sim 500\text{mPa}\cdot\text{s}$,得到铝硅酸盐聚合物浆料;将得到的铝硅酸盐聚合物浆料倒入模具中,并置于温度为40℃~80℃的干燥箱内养护3h~24h,即得到铯榴石。

1. 一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,

步骤一、混合碱激发溶液的制备:将氢氧化铯和氢氧化钠溶解于质量浓度为25%~45%的硅溶胶中,经机械搅拌后获得硅酸铯和硅酸钠的混合碱激发溶液,混合碱激发溶液中硅酸铯和硅酸钠的摩尔比为9:1~3:2,碱金属离子和硅元素的摩尔比为1:1;

步骤二、偏高岭土的制备:将高岭土置于氧化铝坩埚中,置于马弗炉中,设置温度为500℃~900℃,升温速度为1℃~10℃/min,保温时间为1.5h~2.5h,实现高岭土的脱羟基化和偏高岭土转变,得到偏高岭土粉体;

步骤三、铝硅酸盐聚合物的制备:将步骤一得到的混合碱激发溶液置于温度为0℃~5℃的冰水浴中,再加入偏高岭土粉体,超声并机械搅拌25min~45min,得到铝硅酸盐聚合物料浆,然后加入去离子水,调节至料浆在剪切速率 60S^{-1} ~ 80S^{-1} 时粘度为 $150\text{mPa}\cdot\text{s}$ ~ $500\text{mPa}\cdot\text{s}$,得到铝硅酸盐聚合物浆料;所述铝硅酸盐聚合物浆料中硅与铝的摩尔比为2:1;

步骤四、固化成型:将步骤三得到的铝硅酸盐聚合物浆料倒入模具中,并置于温度为40℃~80℃的干燥箱内养护3h~24h,即得到铯榴石;铯榴石中硅元素与铝元素的摩尔比为2:1。

2. 根据权利要求1所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤一中,将氢氧化铯和氢氧化钠溶解于质量浓度为30%的硅溶胶中。

3. 根据权利要求2所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤一中,混合碱激发溶液中硅酸铯和硅酸钠的摩尔比为3:1。

4. 根据权利要求3所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤二中,设置温度为600℃。

5. 根据权利要求4所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤二中,升温速度为5℃/min。

6. 根据权利要求5所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤二中,保温时间为2h。

7. 根据权利要求6所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤三中,超声并机械搅拌35min。

8. 根据权利要求7所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤三中,调节至料浆在剪切速率 60S^{-1} ~ 80S^{-1} 时粘度为 $300\text{mPa}\cdot\text{s}$ 。

9. 根据权利要求8所述的利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,其特征在于,所述步骤四中,置于温度为50℃的干燥箱内养护10h。

10. 权利要求1~9任一权利要求所述方法合成的铯榴石。

一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法

技术领域

[0001] 本发明涉及一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,属于简单、高效合成铯榴石的方法技术领域。

背景技术

[0002] 核能的飞速发展有效解决了世界能源日趋匮乏的现状。在多数发达国家,核电在电力总容量的比重较高,而在我国核电仅占电力总容量的2%,因此核电将是我国能源未来发展的一个重要方向。然而随着各种核设施的快速建设,必将产生大量的核废料。核废料处理中,含有铯、锶、钨等高放射性元素和钚、镅、镎等超铀元素的高放射性核废料的处理是最关键的问题。据估算,到2015年,我国核电发展所产生的高放射性核废料约为2000吨,而2020年后,将以每年近千吨的速度增长。铯榴石由于其固有的空间孔隙结构被认为是放射性铯离子、锶离子的永久固封最佳载体。然而传统铯榴石的合成方法是在1200℃的空气中煅烧而成,带来成本昂贵和铯离子在此温度下挥发的问题,对环境有较大的危害。

发明内容

[0003] 本发明的目的是为了解决上述现有技术存在的问题,即现有方法合成铯榴石污染大、合成温度高、制备条件苛刻的问题。进而提供一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法。

[0004] 本发明的目的是通过以下技术方案实现的:

[0005] 一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石材料的方法,其步骤为:

[0006] 步骤一、混合碱激发溶液的制备:将氢氧化铯和氢氧化钠溶解于质量浓度为25%~45%的硅溶胶中,经机械搅拌后获得硅酸铯和硅酸钠的混合碱激发溶液,混合碱激发溶液中硅酸铯和硅酸钠的摩尔比为9:1~3:2,碱金属离子和硅元素的摩尔比为1:1;

[0007] 步骤二、偏高岭土的制备:将高岭土置于氧化铝坩埚中,置于马弗炉中,设置温度为500℃~900℃,升温速度为1℃~10℃/min,保温时间为1.5h~2.5h,实现高岭土的脱羟基化和偏高岭土转变,得到偏高岭土粉体;

[0008] 步骤三、铝硅酸盐聚合物的制备:将步骤一得到的混合碱激发溶液置于温度为0℃~5℃的冰水浴中,再加入偏高岭土粉体,超声并机械搅拌25min~45min,得到铝硅酸盐聚合物料浆,然后加入去离子水,调节至料浆在剪切速率 60S^{-1} ~ 80S^{-1} 时粘度为 $150\text{mPa}\cdot\text{s}$ ~ $500\text{mPa}\cdot\text{s}$,得到铝硅酸盐聚合物浆料;所述铝硅酸盐聚合物浆料中硅与铝的摩尔比为2:1;

[0009] 步骤四、固化成型:将步骤三得到的铝硅酸盐聚合物浆料倒入模具中,并置于温度为40℃~80℃的干燥箱内养护3h~24h,即得到铯榴石;铯榴石中硅元素与铝元素的摩尔比为2:1。

[0010] 本发明采用一种新型的铝硅酸盐聚合物合成方法,在40℃~80℃的低温条件下合成了铯榴石陶瓷材料,与现有技术相比具有方法简单、成本低、无铯离子挥发、环境友好、可大规模制备,适用性广泛的优点,可用于核废料固封等领域,造福人类。

具体实施方式

[0011] 下面将对本发明做进一步的详细说明:本实施例在以本发明技术方案为前提下进行实施,给出了详细的实施方式,但本发明的保护范围不限于下述实施例。

[0012] 本实施例所涉及的一种利用铝硅酸盐聚合物合成铯榴石的方法,由以下步骤实现:

[0013] 步骤一、混合碱激发溶液的制备:将氢氧化铯和氢氧化钠溶解于质量浓度为25%~45%的硅溶胶中,经机械搅拌后获得硅酸铯和硅酸钠的混合碱激发溶液,混合碱激发溶液中硅酸铯和硅酸钠的摩尔比为9:1~3:2,碱金属离子和硅元素的摩尔比为1:1;

[0014] 步骤二、偏高岭土的制备:将高岭土置于氧化铝坩埚中,置于马弗炉中,设置温度为500℃~900℃,升温速度为1℃~10℃/min,保温时间为1.5h~2.5h,实现高岭土的脱羟基化和偏高岭土转变,得到偏高岭土粉体;

[0015] 步骤三、铝硅酸盐聚合物的制备:将步骤一得到的混合碱激发溶液置于温度为0℃~5℃的冰水浴中,再加入偏高岭土粉体,超声并机械搅拌25min~45min,得到铝硅酸盐聚合物料浆,然后加入去离子水,调节至料浆在剪切速率 60S^{-1} ~ 80S^{-1} 时粘度为 $150\text{mPa}\cdot\text{s}$ ~ $500\text{mPa}\cdot\text{s}$,得到铝硅酸盐聚合物浆料;所述铝硅酸盐聚合物浆料中硅与铝的摩尔比为2:1;

[0016] 步骤四、固化成型:将步骤三得到的铝硅酸盐聚合物浆料倒入模具中,并置于温度为40℃~80℃的干燥箱内养护3h~24h,即得到铯榴石;铯榴石中硅元素与铝元素的摩尔比为2:1。

[0017] 上述方法得到的铯榴石经XRD检测,确认是铯榴石。

[0018] 所述步骤一中,将氢氧化铯和氢氧化钠溶解于质量浓度为30%的硅溶胶中。

[0019] 所述步骤一中,混合碱激发溶液中硅酸铯和硅酸钠的摩尔比为3:1。

[0020] 所述步骤二中,设置温度为600℃。

[0021] 所述步骤二中,升温速度为5℃/min。

[0022] 所述步骤二中,保温时间为2h。

[0023] 所述步骤三中,超声并机械搅拌35min。

[0024] 所述步骤三中,调节至料浆在剪切速率 60S^{-1} ~ 80S^{-1} 时粘度为 $300\text{mPa}\cdot\text{s}$ 。

[0025] 所述步骤四中,置于温度为50℃的干燥箱内养护10h。

[0026] 上述方法合成的铯榴石。

[0027] 以上所述,仅为本发明较佳的具体实施方式,这些具体实施方式都是基于本发明整体构思下的不同实现方式,而且本发明的保护范围并不局限于此,任何熟悉本技术领域的技术人员在本发明揭露的技术范围内,可轻易想到的变化或替换,都应涵盖在本发明的保护范围之内。因此,本发明的保护范围应该以权利要求书的保护范围为准。