

MoF₆ 在 NaF 颗粒上的吸附平衡及吸附动力学

程治强^{1,2} 李杨娟^{1,2} 张国欣^{1,2} 张焕琦^{1,2} 李洒洒³ 窦强^{1,2}
龙德武^{1,2} 吴国忠^{1,2} 李晴暖^{1,2}

1 (中国科学院上海应用物理研究所 嘉定园区 上海 201800)

2 (中国科学院核辐射与核能技术重点实验室 上海 201800)

3 (上海大学 上海 201800)

摘要 为阐明六氟化钼(Molybdenum hexafluoride, MoF₆)在氟化钠(Sodium fluoride, NaF)颗粒上的吸附机制, 在静态吸附实验装置上研究了 MoF₆ 在 NaF 颗粒上的吸附平衡及吸附动力学行为, 结果表明在 50–100 °C 内, NaF 颗粒对 MoF₆ 的吸附速率和平衡吸附量随着温度而升高, 在 100 °C 平衡吸附量达到 115 mg MoF₆·g⁻¹ NaF。当温度超过 100 °C 时, NaF 对 MoF₆ 的吸附作用减弱, 吸附量减小。Langmuir 模型能较好描述 NaF 颗粒对 MoF₆ 的吸附过程, 并推测 MoF₆ 在 NaF 颗粒上的吸附为单分子层吸附。吸附动力学模型分析表明, NaF 颗粒对 MoF₆ 的吸附符合准二级动力学方程, 同时吸附过程受到颗粒内扩散控制, 但其并不是唯一速率控制步骤。

关键词 氟化钠颗粒, 气态氟化物, 吸附等温线, 吸附动力学, 颗粒内扩散

中图分类号 TL99

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2015.hjs.38.110301

氟化挥发法可用于乏燃料中铀的分离, 是一种干法后处理技术, 其利用铀与裂变产物的氟化物的挥发性不同来实现分离^[1]。氟化挥发技术具有反应速度快、转化效率高、易连续化操作等优点, 近年来被各国所广泛研究, 其中尤其以日本、捷克和俄罗斯的研究成果最为突出^[2–4]。在对乏燃料实施氟化挥发时, 总有一部分挥发性裂变产物和结构材料的氟化物伴随 UF₆ 一起挥发进入气相, 通常采用选择性吸附-脱附技术对氟化产物进行处理, 以提高分离铀的纯度。该技术是基于挥发性氟化物在吸附剂上的吸附性能差异, 通过吸附剂选择性去除 UF₆ 中的氟化物杂质, 纯化后的 UF₆ 通过冷凝回收^[5]。

MoF₆ 是铀氟化产物中主要的挥发性杂质, 其来自于核燃料裂变和结构材料, 因沸点与 UF₆ 相近, 挥发性和在某些吸附剂上吸附性能也相似, 分离相对较为困难。选择合适的吸附剂和吸附温度是 MoF₆ 与 UF₆ 有效分离的关键。NaF 是 UF₆ 净化工艺中使用最为普遍的吸附材料, 相比于 UF₆ 而言, 在一定温度范围内 MoF₆ 在 NaF 颗粒表面具有更高的蒸汽压, 而蒸汽压高表明平衡时 NaF 对 MoF₆ 的吸附相对较少, 由此吸附或脱附温度是 MoF₆ 与 UF₆ 分离的关键工艺参数之一^[6]。NaF 颗粒对 UF₆ 的吸附行为研究报道已屡见不鲜, 包括 NaF 对 UF₆ 的吸附热力学^[7]和不同形态 NaF 吸附剂对 UF₆ 的吸附动力学研究^[8–9], 而有关 NaF 颗粒对 MoF₆ 的吸附行为研究

则尚未见具体报道。为实现 UF₆ 与 MoF₆ 的有效分离, 确定相应最佳的吸附工艺, 有必要了解和掌握 MoF₆ 在 NaF 颗粒上的吸附行为和机制。

我们以 NaF 粉末、羧甲基纤维素钠和水为原料, 通过挤出切粒法成功制备了性能稳定的 NaF 吸附剂颗粒^[10], 在此基础上我们利用自行研制的吸附实验装置, 采用静态吸附法研究了不同实验条件下 NaF 颗粒对 MoF₆ 的吸附行为, 并结合理论模型对吸附平衡和动力学过程作详细分析, 实验结果可为 UF₆ 吸附净化系统工艺设计提供借鉴和参考。

1 试剂与仪器

NaF 颗粒: 实验室自制, 尺寸约 $\phi 4\text{ mm} \times 4\text{ mm}$, 颗粒强度 50–80 N, 比表面积约 $0.33\text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$, 孔隙率 31%, 经 F₂ 在 300 °C 下氟化预处理(制备方法参见文献[10]); 氮气: 99.999%, 上海娄氧气体罐装有限公司; 氟氢混合气: 5%F₂/He, 北京华科微能特种气体有限公司; MoF₆: 99.95%, 阿法埃莎(天津)化学有限公司。

旋片真空泵: RV12, 抽速 $4\text{ L} \cdot \text{s}^{-1}$, 英国 Edward; 绝压传感器: Setra 730, 0–133 kPa, 美国西特公司; 机械压力表: -0.1–0.5 MPa, 世伟洛克(上海)流体系统科技有限公司; 伴热带: 105 Watts, 美国 BriskHeat 公司; 电子天平: AL 204, 精度 0.1 mg,

中国科学院战略性先导科技专项项目(No.XDA02030000)资助

第一作者: 程治强, 男, 1985 年出生, 2011 年于南华大学获硕士学位, 主要从事铀氟化挥发产物的吸附净化研究

通讯作者: 窦强, E-mail: douqiang@sinap.ac.cn

收稿日期: 2015-07-24, 修回日期: 2015-09-14

瑞士梅特勒-托利多; 气体净化器: 7NP100, 先普半导体技术(上海)有限公司; 手套箱: H_2O 和 O_2 含量均小于 $1 \text{ cm}^3/\text{m}^3$, 上海米开罗那机电技术有限公司非标定制; 氦检漏仪: HLT560, 德国 Pfeiffer Vacuum 有限公司; 电感耦合等离子体原子发射光谱仪 (Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry, ICP-AES): Optima 8000, 美国 Perkin Elmer 公司。

2 实验方法

2.1 实验装置

吸附实验装置采用多支路设计(如图1所示), 主要包括气体供应单元、吸附单元和尾气处理单元

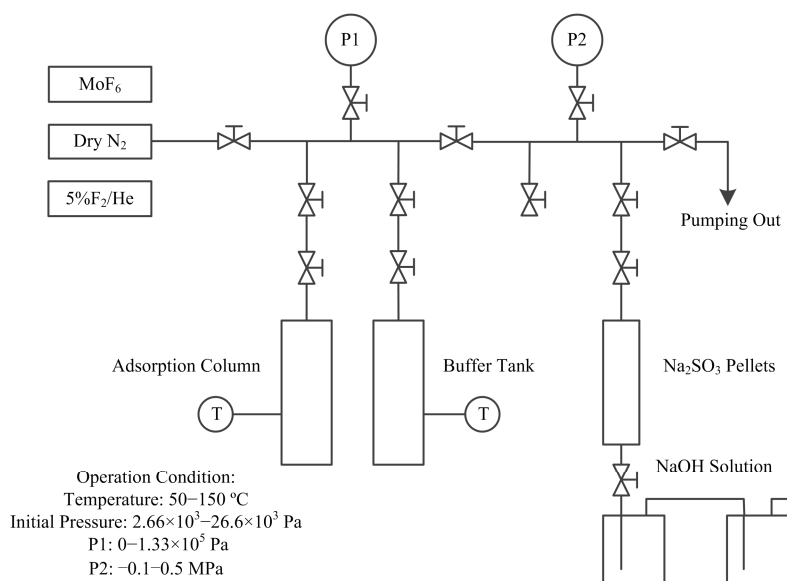


图1 静态吸附装置示意图
 Fig.1 Schematic diagram of static adsorption experiment.

2.2 吸附实验

实验过程操作具体步骤如下: (1) 在手套箱中准确称取 1 g NaF 颗粒, 置于吸附柱内后, 将吸附柱连接至吸附装置, 经反复 N_2 吹扫与抽真空处理去除吸附柱内以及吸附柱与实验装置连接处的空气; (2) 待吸附单元抽至真空稳定后充入约 101 kPa 的氟氦混合气, 然后加热至 100 °C 并保持 30 min 对吸附剂进行预处理; (3) 吸附单元进行 N_2 反复吹扫去除残留氟气, 然后抽至真空后关闭吸附柱的阀门; (4) 打开 MoF_6 气瓶阀门, 将 MoF_6 引入缓冲柱, 并调节压力至预设值, 然后将缓冲柱加热至与吸附柱相同的温度; (5) 在吸附柱和缓冲柱温度稳定后开启吸附柱阀门, 缓冲柱内的 MoF_6 迅速进入吸附柱, 吸附开始并记录吸附单元内不同时间下 MoF_6 压力

三部分, 其中吸附单元由吸附柱和缓冲柱组成, 两者均通过伴热带进行加热控温, 吸附过程中 MoF_6 的压力变化通过绝压传感器进行监测。气态氟化物所接触的管路及阀门材质均为不锈钢 316L, 绝压传感器气体接触材质为铬镍铁合金(Inconel alloy), 在实验条件下均具有较好的耐腐蚀性能。

吸附实验开始前实验装置先经氦检漏仪进行气密性测试, 装置各连接处泄漏率值均小于 $1 \times 10^{-7} \text{ mbar} \cdot \text{L} \cdot \text{s}^{-1}$, 24 h 内真空度变化小于 133 Pa。再用 5% F_2 对装置钝化处理(除去装置内表面的微量水分, 以减少管路内表面对 MoF_6 的吸附)。每次实验结束后往吸附装置中充入约 119 kPa 的 5% F_2 , 以防止实验装置内部受到空气中水分影响。

数值, 直到压力稳定为止; (6) 实验结束后, 对实验装置进行 N_2 吹扫, 将剩余 MoF_6 载带进入尾气处理单元; (7) 将吸附柱拆卸并转移至手套箱, 对吸附实验后的 NaF 颗粒进行称量, 通过差重法计算所吸附的 MoF_6 的量, 并对样品进行 ICP-AES 分析。

吸附实验研究中, 吸附开始瞬间的 MoF_6 气体吸附分子浓度(起始浓度)是一个关键参数。本实验中吸附单元体积固定, MoF_6 气体浓度由气体压力和温度决定, 为保证实验条件的一致性, MoF_6 气体的起始浓度用室温条件下初始压力 P_0 表达。为更清楚描述本实验过程, 在加温的吸附实验时, 压力传感器显示的加热后 MoF_6 压力为 P_T , 吸附达到平衡时的 MoF_6 压力为 P_e , NaF 颗粒不同时刻的吸附量为 q_t 。

3 结果与讨论

3.1 吸附平衡时间

图 2 显示吸附温度为 80 °C、 P_0 为 7.98 kPa 时, 吸附单元内压力 P_T 以及 NaF 吸附量(q_t)随时间的变化曲线, 从图 2 中可看出, 压力随吸附时间延长迅速下降, 即初始吸附速率较快。50 min 后压力下降趋缓, 300 min 达到平衡, 该体系的平衡吸附量为 54 mg MoF₆·g⁻¹ NaF。在后面吸附实验中单次实验吸附时间为 360 min。

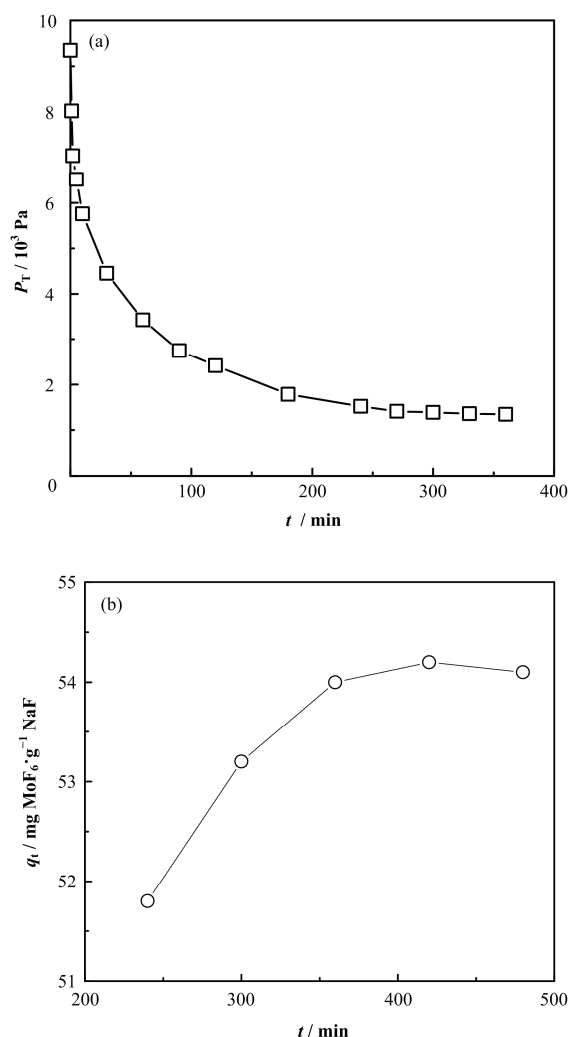


图 2 吸附单元压力(a)和 NaF 吸附量(b)随时间的变化曲线
Fig.2 Curve of pressure in adsorption unit (a) and adsorption amount of NaF (b) vs. time.

3.2 初始压力对吸附平衡的影响

系统研究了 100 °C 下 P_0 对 NaF 颗粒吸附平衡的影响(图 3), 并获得了 NaF 对 MoF₆ 的吸附等温线(图 4)。由图 3 可知, 在 100 °C 时, NaF 对 MoF₆ 的平衡吸附量随 P_0 而增加, 当 P_0 达到 15.96 kPa 时趋于饱和, 平衡吸附量为 115 mg MoF₆·g⁻¹ NaF。

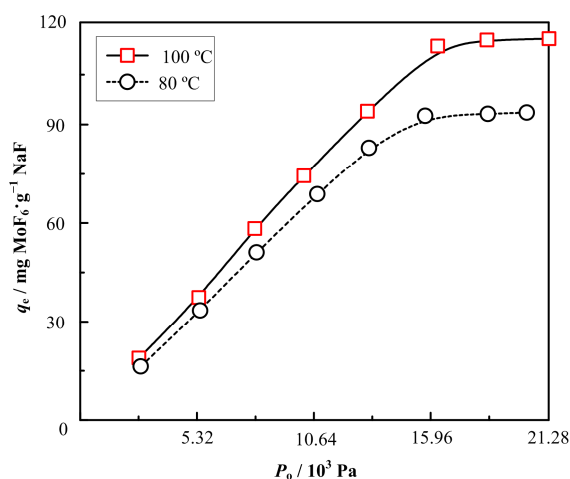


图 3 初始压力对 NaF 颗粒吸附量的影响
Fig.3 Effect of initial pressure on the adsorption amount of NaF adsorbent.

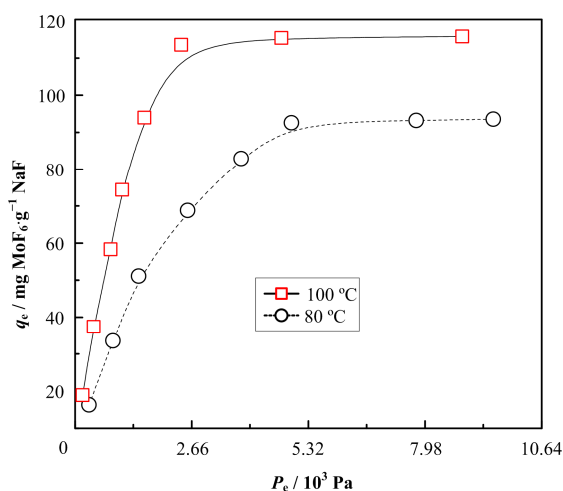


图 4 NaF 对 MoF₆ 的吸附等温线
Fig.4 Adsorption isotherm for the sorption of MoF₆ onto NaF adsorbent.

将图 4 中的相关数据分别利用 Langmuir (式 1) 和 Freundlich (式 2) 线性方程进行拟合分析^[11-12]:

$$\frac{p_e}{q_e} = \frac{1}{q_m} p_e + \frac{1}{q_m b} \quad (1)$$

式中, q_e 为平衡吸附量, mg MoF₆·g⁻¹ NaF; P_e 为吸附达到平衡时的 MoF₆ 压力, Pa; q_m 为理论最大吸附量, mg MoF₆·g⁻¹ NaF; b 为吸附作用的平衡常数, Pa⁻¹, 其值大小与吸附剂、吸附质的本性及其温度的高低有关, b 值越大, 则表示吸附能力越强。

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{1}{n} \ln p_e \quad (2)$$

式中, K_F 代表吸附剂的单位吸附能力; n 为等温吸附特征常数, 通常 $1/n$ 在 0.1–0.5, 则表示易于吸附, $1/n > 2$ 时表示难以吸附。

通过计算得到相应的回归方程及其模型参数如表 1 所示, 从表 1 中数据可以看出, Langmuir 模型能更好描述 NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附过程, 计算得到的理论最大吸附量(q_m)与实验测定值比较接近。根据 Langmuir 模型假设条件, 可推测 MoF_6 在 NaF 颗粒上的吸附为单分子层吸附。

实验中还研究了 80 °C 时 P_0 对 NaF 颗粒吸附平

衡影响(图 3、4), 由图 3、4 可知, 80 °C 下 NaF 颗粒对 MoF_6 的平衡吸附量同样随着 P_0 而增加, 变化趋势与 100 °C 时类似。不同的是任何 P_0 下, 100 °C 时 NaF 颗粒对 MoF_6 的平衡吸附量都比 80 °C 时的量值高。这结果表明温度对吸附过程有重要影响, 有关温度对吸附平衡的影响将在 §3.3 详细阐述。

表 1 不同吸附温度下等温吸附模型拟合参数
Table 1 Fitting results of adsorption isotherm model at different temperature.

等温吸附模型 Adsorption isotherm models	温度 Temperature / °C	线性回归方程 Equation of linear regression	模型参数 Model parameters		
			b	q_m	R^2
Langmuir	80	$p_e/q_e=0.0087 p_e+0.1153$	0.0754	114	0.99
	100	$p_e/q_e=0.0077 p_e+0.0465$	0.1655	129	0.99
Freundlich	80	$\ln q_e=0.5241 \ln p_e+2.5278$	K_F	n	R^2
	100	$\ln q_e=0.4762 \ln p_e+3.1147$	12.5259	1.908	0.92
			22.5266	2.099	0.84

3.3 温度对平衡吸附量和吸附速率的影响

考察了 P_0 为 13.3 kPa 下, 温度对平衡吸附量和吸附速率的影响。从图 5 可知, 在温度为 50–100 °C 范围内, NaF 颗粒对 MoF_6 的平衡吸附量随温度而升高, 100 °C 时平衡吸附量为 97 $\text{mg MoF}_6 \cdot \text{g}^{-1}$ NaF。当吸附温度升至 120 °C 时, 其平衡吸附量较 100 °C 时有所减小, 在温度继续升高至 150 °C 时, NaF 颗粒吸附量继续下降, 约为 100 °C 时的 60%。

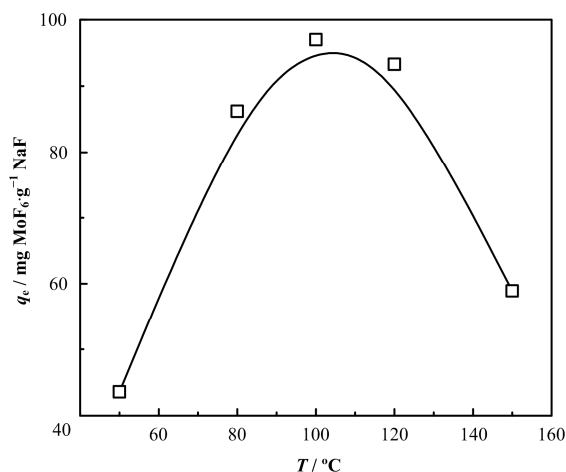


图 5 温度对 NaF 平衡吸附量的曲线
Fig.5 Curve of temperature vs. equilibrium adsorption capacity.

为阐明温度对于 NaF 吸附过程的影响, 分别采用准一级和准二级动力学模型对不同温度下的吸附

动力学数据进行分析, 详见图 6(a)–(c)。从表 2 结果可知, 准一级动力学方程的相关系数 R^2 为 0.92–0.96, 能较好描述吸附过程的初始阶段, 但随着吸附过程的进行, 实验数据逐渐偏离拟合数据。相比而言, 准二级动力学方程拟合的相关系数为 0.95–0.99, 表明准二级动力学模型能够更好描述 NaF 对 MoF_6 的整个吸附过程, 包括气体分子在吸附剂颗粒的表面扩散、颗粒内扩散以及位点吸附等。另外从表 2 中模型参数结果可知, 初始吸附速率(h_0) 在 50–120 °C 范围内随着温度而增加, 而在 150 °C 时有所下降。

因准一级和准二级动力学方程不适用于解释扩散机理, 又采用颗粒内扩散模型对吸附过程中的扩散现象进行了解释, 结果如图 6(d)所示。图 6(d)中第二段线性斜率表明的是颗粒内扩散速率^[13], 在 50–100 °C 范围内随着温度升高颗粒内扩散速率常数(K_p)增加, 而在 100 °C 以后随着温度继续升高颗粒内扩散速率常数逐渐减小, 其变化趋势与吸附量变化趋势一致, 说明 NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附过程受颗粒内扩散控制。在较低温度(50 °C)下, NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附过程主要受到颗粒内扩散阻力的影响, 进入颗粒内部的 MoF_6 分子有限, 大部分的吸附位点并未发生吸附反应, 从而导致 NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附量较低。随着吸附温度继续升高, MoF_6 分子在 NaF 颗粒内的扩散加快, 逐渐克服内扩散阻力的影响, 进入颗粒内部的 MoF_6 分子逐渐增加, 吸附速率和吸附量明显增加。需要指出的是, 当温

度为 150 °C 时, MoF₆ 分子在 NaF 颗粒内扩散变的更快, 但吸附量反而减少, 这是因为温度升高 MoF₆ 在 NaF 颗粒表面的蒸汽压增加, 导致吸附量减少。同时从图 6(d)可知, 拟合曲线为多段线性关系, 说

明颗粒内扩散控制并不是唯一的速率控制步骤, 吸附速率同时还受吸附剂颗粒的表面吸附和气膜扩散的控制, 整个吸附过程是受到多种动力学机理共同作用的结果。

表 2 不同温度下吸附动力学方程拟合参数
Table 2 Fitting results of adsorption kinetics model under different temperature.

T / °C	准一级动力学方程		准二级动力学方程			颗粒内扩散方程	
	Pseudo-first-order kinetics		Pseudo-second-order kinetics			Intra-particle diffusion kinetics	
	K_1 / min^{-1}	R^2	$K_2 / \text{g} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$	$h_o / \text{mg} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$	R^2	$K_p / \text{mg} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1/2}$	R^2
50	0.012 2	0.93	0.000 31	0.741 9	0.95	2.285	0.99
80	0.012 4	0.95	0.000 15	1.457 8	0.97	4.601	0.99
100	0.021 6	0.96	0.000 30	3.203 1	0.99	5.575	0.98
120	0.030 4	0.92	0.000 48	4.080 2	0.97	3.188	0.96
150	0.022 4	0.93	0.000 56	1.983 6	0.97	2.56	0.99

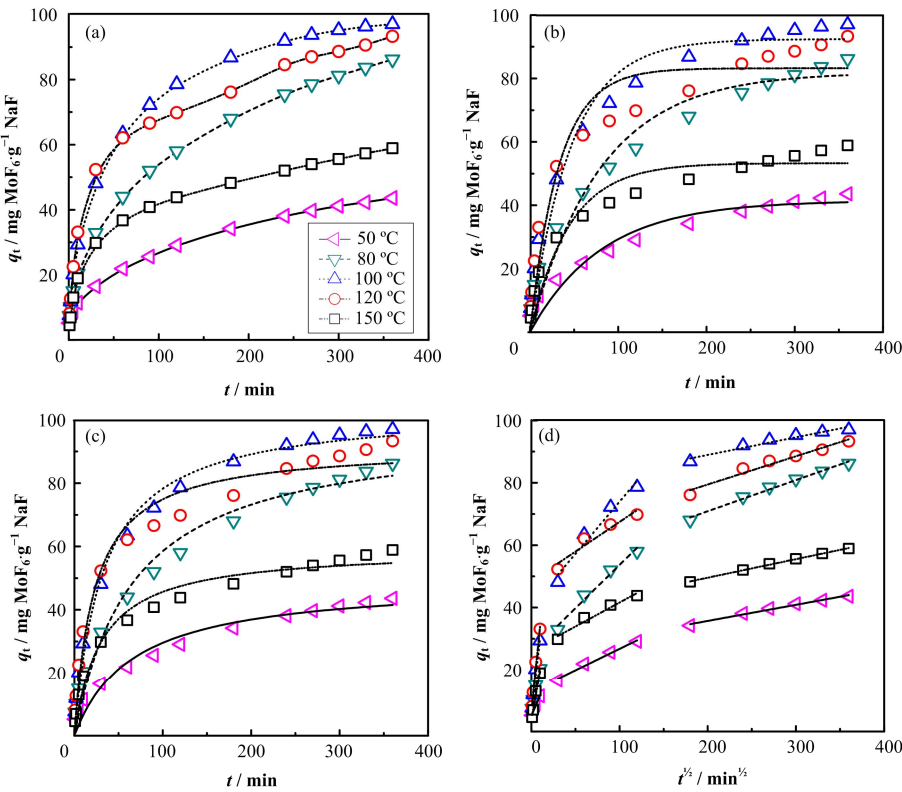


图 6 不同温度(a)、准一级(b)、准二级(c)和颗粒内扩散(d)吸附动力学曲线
Fig.6 Adsorption kinetics curves at different temperature (a), pseudo-first-order kinetics (b), pseudo-second-order kinetics (c) and intra-particle diffusion kinetics (d) for the adsorption.

UF₆ 和 MoF₆ 在 NaF 颗粒表面蒸汽压方程为 $\log P_{\text{MoF}_6} = 10.21 - 3630/T$ 和 $\log P_{\text{UF}_6} = 10.88 - 5090/T^{[6]}$, 通过计算可知, 在 100 °C 时 UF₆ 和 MoF₆ 在 NaF 颗粒表面蒸汽压分别为 0.266 和 399 Pa。与 MoF₆ 相比, 在 100 °C 时, UF₆ 在 NaF 吸附剂上有更快的吸附速率和吸附量。结合本实验结果, 表明在此温度条件

下根本无法通过特异吸附实现两者的分离。再计算 150 °C 时 UF₆ 和 MoF₆ 的蒸汽压分别为 9.31 Pa 和 5.65×10^3 Pa, 本实验结果也表明 150 °C 时 NaF 吸附剂对 MoF₆ 吸附能力减弱, 而此时 NaF 对 UF₆ 仍保持强有力的吸附能力, 因此可以通过升温使 MoF₆ 脱附, 从而实现两者的分离。

4 结语

本文采用静态吸附法研究了不同实验条件下 NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附平衡以及吸附动力学行为, 实验结果表明, 吸附温度对吸附过程的影响较大, 在 50–100 °C 范围内随着温度升高, NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附量和吸附速率逐渐增加, 当温度超过 100 °C 时, NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附作用减弱, 吸附量减小。Langmuir 等温吸附模型分析指出, MoF_6 在 NaF 颗粒上的吸附为单分子层吸附, NaF 颗粒对 MoF_6 的吸附动力学行为能够较好符合准二级动力学方程, 同时吸附过程受到颗粒内扩散控制, 但其并不是唯一速率控制步骤。本研究表明在用 NaF 吸附剂进行 UF_6 和 MoF_6 的吸附分离时, 可以采用的工艺过程为共吸附和特异脱附, 即在 100 °C 下对 UF_6 和 MoF_6 同时吸附, 然后利用高温下蒸汽压的差异, 进行 MoF_6 脱附从而实现两者的分离, 最后通过继续升高温度进行 UF_6 的脱附和冷凝收集。

致谢 感谢中国科学院上海应用物理研究所李文新研究员在实验过程中的指导。

参考文献

- 1 刘学刚. 乏燃料干法后处理技术研究进展[J]. 核化学与放射化学, 2009, **31**(增刊): 35–44
LIU Xuegang. Research on dry reprocessing technology of spent nuclear fuel[J]. Nuclear and Radiochemistry, 2009, **31**(Suppl): 35–44
- 2 Yuko K, Akira S, Kuniyoshi H, *et al.* New reprocessing system for spent nuclear reactor fuel using fluoride volatility method[J]. Journal of Fluorine Chemistry, 2009, **130**: 74–82. DOI: 10.1016/j.jfluchem.2008.07.006
- 3 Jan U, Martin M. Fluoride volatility method for reprocessing of LWR and FR fuels[J]. Journal of Fluorine Chemistry, 2009, **130**: 89–93. DOI: 10.1016/j.jfluchem.2008.07.002
- 4 Shatalov V V, Seregin M B. Gas-fluoride technology for processing spent oxide fuel[J]. Atomic Energy, 2001, **90**(3): 224–234
- 5 Brater D C, Kaufman H L, Pashley J H, *et al.* Removal of impurities from uranium hexafluoride by selective sorption techniques[R]. K-1666, Oak Ridge, Tennessee, Oak Ridge Gaseous Diffusion Plant, Union Carbide Corporation, Nuclear Division, 1966
- 6 Culler F L, Ferguson D E, Blanco R E, *et al.* Chemical technology division annual progress report[R]. ORNL-3153, 1961
- 7 Cathers G I, Bennett M R, Jolley R L. UF_6 -3NaF complex formation and decomposition[J]. Industrial and Engineering Chemistry, 1958, **50**(11): 1709–1710
- 8 Massoth F E, Hensel W E. Kinetics of the reaction between uranium hexafluoride and sodium fluoride I: sodium fluoride powder[J]. Journal of Physical Chemistry, 1958, **62**(4): 479–481
- 9 Massoth F E, Hensel W E. Kinetics of the reaction between uranium hexafluoride and sodium fluoride II: sodium fluoride pellets and crushed pellets[J]. Journal of Physical Chemistry, 1959, **63**(5): 697–702
- 10 李杨娟, 程治强, 张焕琦, 等. 一种多孔型 NaF 吸附剂的制备及其对 MoF_6 吸附的初步研究[J]. 核技术, 2014, **37**(8): 080601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2014.hjs.37.080601
LI Yangjuan, CHENG Zhiqiang, ZHANG Huanqi, *et al.* A novel technique for preparation of the porous adsorbent NaF and a preliminary study on its adsorption capacity for MoF_6 [J]. Nuclear Techniques, 2014, **37**(8): 080601. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2014.hjs.37.080601
- 11 Liu R Q, Wang X P, Ning S Y, *et al.* Adsorption behavior of $^{241}\text{Am}(\text{III})$ and $\text{Eu}(\text{III})$ by silica/polymer-based isoHex-BTP adsorbent from nitric acid solution[J]. Nuclear Science and Techniques, 2015, **26**(1): S10301. DOI: 10.13538/j.1001-8042/nst.26.S10301
- 12 Wu H, Wu Y, Chen Z, *et al.* Adsorption behaviors of iodide anion on silver loaded macroporous silicas[J]. Nuclear Science and Techniques, 2015, **26**(3): 030301. DOI: 10.13538/j.1001-8042/nst.26.030301
- 13 Hardiljeet K B, Meera J, Denis M O. Kinetics and thermodynamics of cadmium ion removal by adsorption onto nano zero valent iron particles[J]. Journal of Hazardous Materials, 2011, **186**(1): 458–465. DOI: 10.1016/j.jhazmat.2010.11.029

Adsorption equilibrium and kinetics of molybdenum hexafluoride on sodium fluoride adsorbent

CHENG Zhiqiang^{1,2} LI Yangjuan^{1,2} ZHANG Guoxin^{1,2} ZHANG Huanqi^{1,2} LI Sasa³
DOU Qiang^{1,2} LONG Dewu^{1,2} WU Guozhong^{1,2} LI Qingnuan^{1,2}

¹(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Jiading Campus, Shanghai 201800, China)

²(Key Laboratory of Nuclear Radiation and Nuclear Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

³(Shanghai University, Shanghai 201800, China)

Abstract Background: The fluoride volatility process has been developed to recover uranium from spent nuclear fuel. And the fluoride adsorption and desorption technique is usually applied to the purification of UF₆ in the fluoride volatility process. **Purpose:** This study aims to investigate the adsorption mechanism of MoF₆ on NaF adsorbent. **Methods:** The adsorption equilibrium and kinetics of MoF₆ on NaF adsorbent at different temperatures and initial MoF₆ pressure were experimentally studied by using statistic adsorption equipment. Langmuir adsorption model and adsorption kinetics model were applied to analyse experimental data. **Results:** The adsorption rate and equilibrium adsorption capacity of MoF₆ on NaF adsorbent increased with the temperature increasing from 50 °C to 100 °C, and the adsorption capacity was 115 mg MoF₆·g⁻¹ NaF at 100 °C. The experimental data were fitted by pseudo-second-order kinetics as well as Langmuir adsorption model. **Conclusion:** The adsorption of MoF₆ on NaF adsorbent was monolayer adsorption according to Langmuir adsorption model, and was controlled by diffusion of MoF₆ inside NaF adsorbent which was not the unique rate-determining step, though.

Key words NaF adsorbent, Gaseous fluoride, Adsorption isotherm, Adsorption kinetics, Intra-particle diffusion
CLC TL99