

Ш-383

3/v-71

ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

1432/2-71

5-5589



З.Шегловски , К.А.Гаврилов , Ким Юн Бон ,  
Ом Сам Ик , Я.Микульски

**ЭКСТРАКЦИЯ АКТИНИДНЫХ  
И ЛАНТАНИДНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ  
ЧЕТВЕРТИЧНЫМИ АМИНАМИ**

II. Экстракция урана, нептуния и плутония  
растворами цетилпиридинбромида и нитрата  
в хлороформе из азотнокислых  
и солянокислых сред

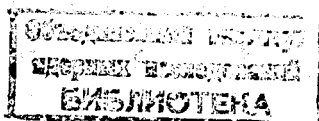
5-5589

З.Шегловски \*, К.А.Гаврилов, Ким Юн Бон,  
Ом Сам Ик, Я.Микульски \*

**ЭКСТРАКЦИЯ АКТИНИДНЫХ  
И ЛАНТАНИДНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ  
ЧЕТВЕРТИЧНЫМИ АМИНАМИ**

II. Экстракция урана, нептуния и плутония  
растворами цетилпиридинбромиды и нитрата  
в хлороформе из азотнокислых  
и солянокислых сред

Направлено в журнал "Nucleonica"



\* Институт ядерной физики, Краков.

Шегловски З., Гаврилов К.А., Ким Юн-Бон, Ом Сам Ик,  
Микульски Я.

5-5589

Экстракция актинидных и лантанидных элементов четвертичными аминами. II. Экстракция урана, нептуния и плутония растворами цетилпиридинбромиды и нитрата в хлороформе из азотнокислых и солянокислых сред

Отработаны условия для экстракции урана, нептуния и плутония при помощи растворов СРВ в хлороформе в присутствии изоамилового спирта. Определены сольватные числа для четырех- и шестивалентного плутония.

**Препринт Объединенного института ядерных исследований.  
Дубна, 1971**

Szeglowski Z., Gavrilov K.A., Kim Yun-Bon,  
San-Ik, Mikulski J.

5-5589

Solvent Extraction of Actinides and Lanthanides Elements by Quaternary Ammonium Salts. II. Extraction of U, Np and Pu by Cetylpyridiniumbromide and Cetylpyridiniumnitrate, from Solutions of Nitric and Hydrochloric Acids

The conditions for extraction of U, Np and Pu by means of solutions of cetylpyridiniumbromide in chloroform containing isoamyl alcohol were elaborated.

The solvation number for Pu<sup>IV</sup> and Pu<sup>VI</sup> in solutions of nitric and hydrochloric acids was determined.

**Preprint. Joint Institute for Nuclear Research.  
Dubna, 1971**

## В в е д е н и е

В работе <sup>/1/</sup>, связанной с исследованием экстракционных свойств цетилтриметиламмониевого бромида (СТМАВ), нами было установлено, что этот четвертичный амин может быть успешно применен для экстракции при условии полного устранения образующейся при этом эмульсии, что, в свою очередь, достигается прибавлением к экстракционной системе, состоящей из раствора цетилтриметиламмониевого бромида, нитрата в хлороформе или дихлорэтано, небольших количеств изоамилового спирта.

В настоящей работе исследовались экстракционные свойства шестивалентных форм урана, нептуния, плутония, а также четырехвалентного плутония при помощи растворов цетилпиридинбромида в хлороформе. Поскольку этот амин в условиях экстракции также образует устойчивые эмульсии <sup>/2/</sup>, которые не позволяют произвести разделение фаз, то нами, как и в предыдущей работе, был использован изоаминовый спирт.

### Экспериментальная часть

Цетилпиридинбромид (СРВ) чехословацкого производства "СHEMAPOL" был дополнительно очищен путем перекристаллизации в безводном этиловом спирте и отмыт безводным этиловым эфиром. Для проведения экстракции были приготовлены растворы СРВ в 1М изоамиловом спирте

в хлороформе. Радиоактивные растворы шестивалентных форм урана, нептуния, плутония и плутония-IV готовились аналогичным методом, как в работе <sup>/1/</sup>.

На рис. 1 представлена зависимость коэффициентов распределения шестивалентных форм  $U$ ,  $Np$  и  $Pu$ , а также четырехвалентного плутония от концентрации азотной кислоты. Экстракция проводилась 1M раствором CPB в 1M растворе изоамилового спирта в хлороформе.

Следует отметить, что коэффициенты распределения для  $U$ ,  $Np$  и  $Pu$  обычно возрастают в исследуемой области концентрации азотной кислоты с ростом  $z$  <sup>/1,3/</sup>. Однако, как видно из рис. 1, коэффициенты распределения для нептуния (VI) при низких концентрациях азотной кислоты заметно ниже, чем для шестивалентного урана, что кажется несколько странным. Обращает на себя внимание поведение шестивалентного плутония, который при концентрации азотной кислоты выше 6M ведет себя аналогичным образом, как это указано в работе <sup>/1/</sup>. Вероятно, этот факт также связан с восстановлением шестивалентной формы плутония до четырехвалентного состояния за счёт выделения элементарного брома из экстрагента. Одним из доводов в пользу этого предположения являются данные кривой, полученные через пять часов после экстракции. Другим подтверждением этого являются данные, полученные для шестивалентного плутония при экстракции из 0,1M раствора цетилпирдиннитрата, что находится в хорошем согласии с выводами, приведенными в работе <sup>/1/</sup>.

На этом же рисунке представлена зависимость коэффициентов распределения четырехвалентного плутония от концентрации азотной кислоты при экстракции 0,1M растворами CPB и CPN. Как видно, значения коэффициентов распределения для плутония (IV) здесь практически полностью совпадают. Из этого следует, что солевая форма используемого четвертичного амина не влияет на величину коэффициентов распределения для четырехвалентного плутония.

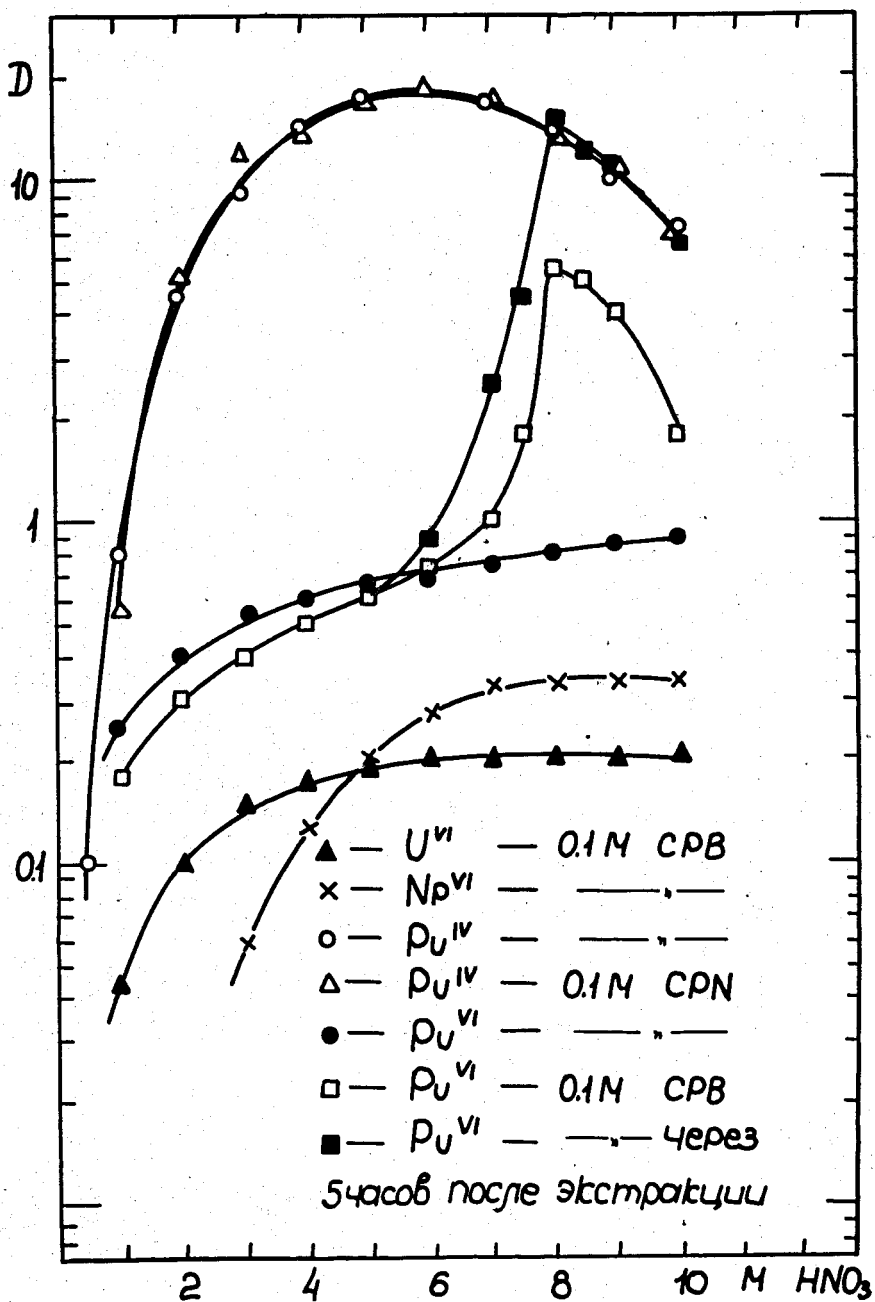


Рис. 1.

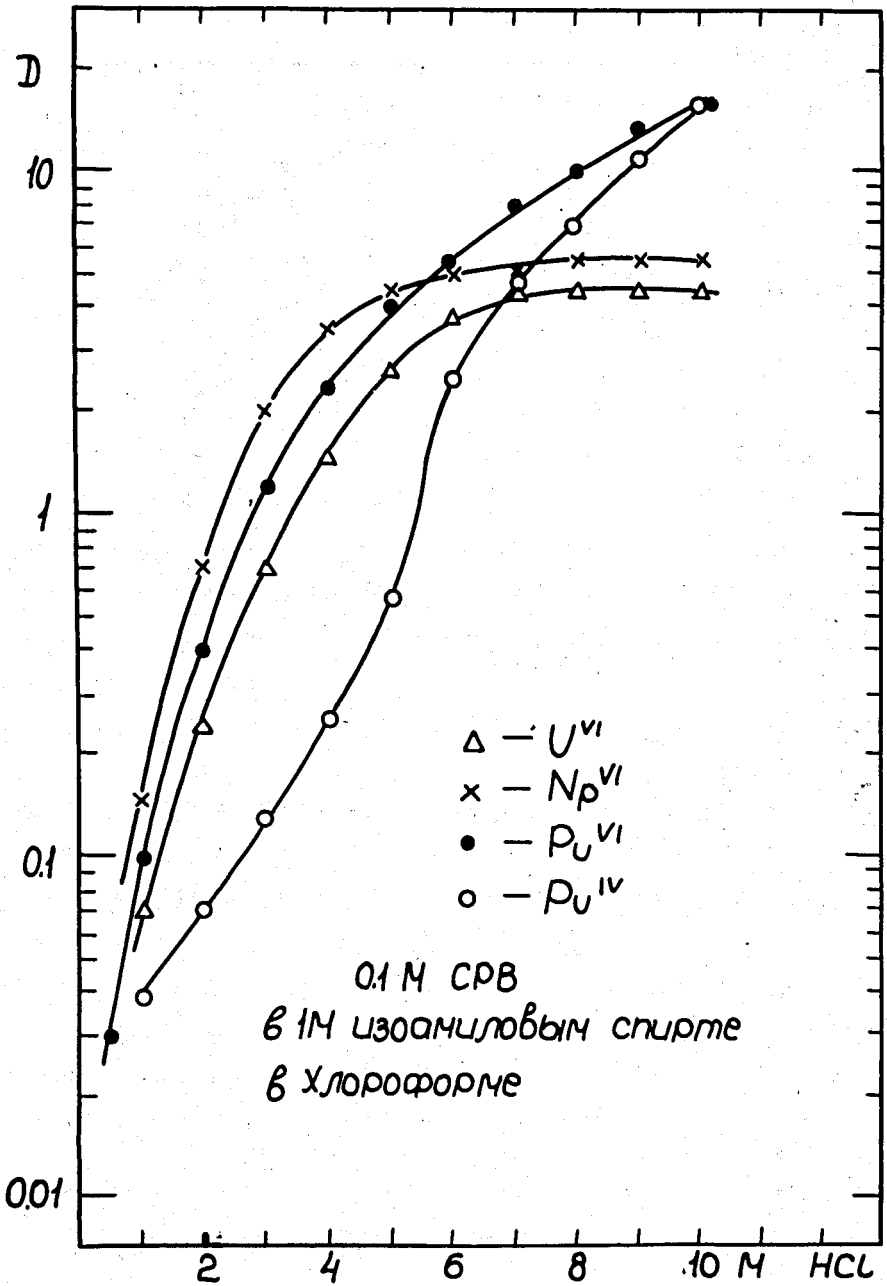


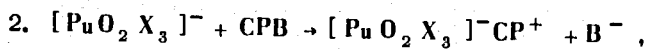
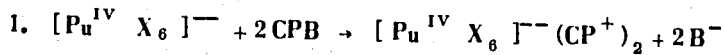
Рис. 2.

На рис. 2 представлена аналогичная зависимость коэффициентов распределения для U, Np и Pu от концентрации соляной кислоты. Здесь видно, что значения коэффициентов распределения для шестивалентных форм урана, нептуния и плутония значительно выше, чем в азотнокислой среде. При низких значениях концентрации соляной кислоты коэффициенты распределения для шестивалентного плутония немного ниже, чем для шестивалентного нептуния. Подобного явления мы не наблюдали в работах /1,3/. Возможно, оно связано с природой используемого экстрагента, так как его химическая структура отлична от ТДБАБ и СТМАВ /1,3/.

Четырехвалентный плутоний до концентрации 7М соляной кислоты имеет значительно меньшие коэффициенты распределения, чем шестивалентные формы урана, нептуния, плутония, что совпадает с результатами, полученными в работах /1,3/.

На рис. 3 представлена зависимость логарифмов коэффициентов распределения четырех- и шестивалентного плутония в азотной и соляной кислотах от логарифма концентрации СРВ.

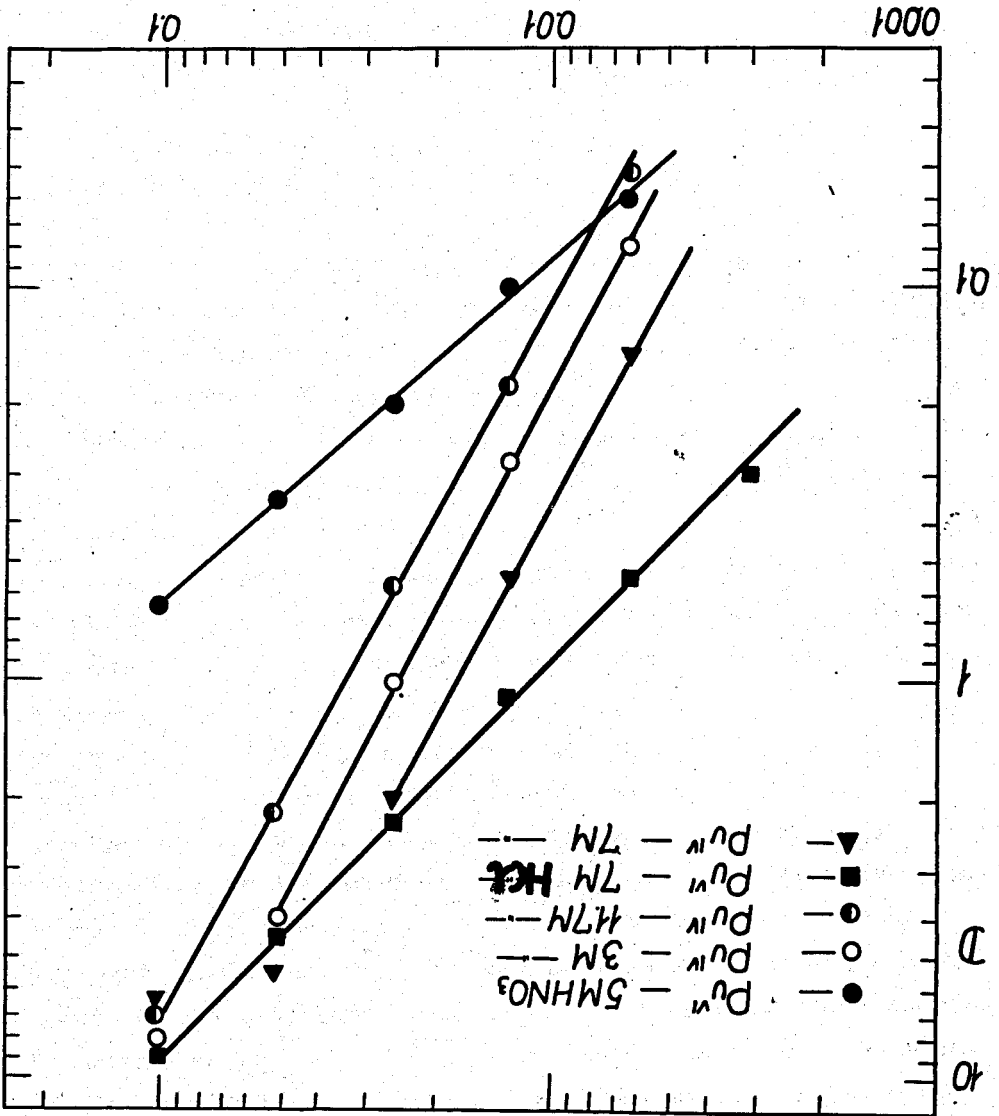
Шестивалентный плутоний в 5М азотной и 7М соляной кислотах имеет наклон, равный единице. Четырехвалентный плутоний в 3М и 11М азотной кислоте, а также в 7М соляной кислоте имеет наклон, равный 2. Таким образом, экстракция четырех- и шестивалентного плутония протекает по следующим реакциям, соответственно:



где x - ион хлора или нитрата.



М СРБ в 1M усреднённой чистоте в хлороформе



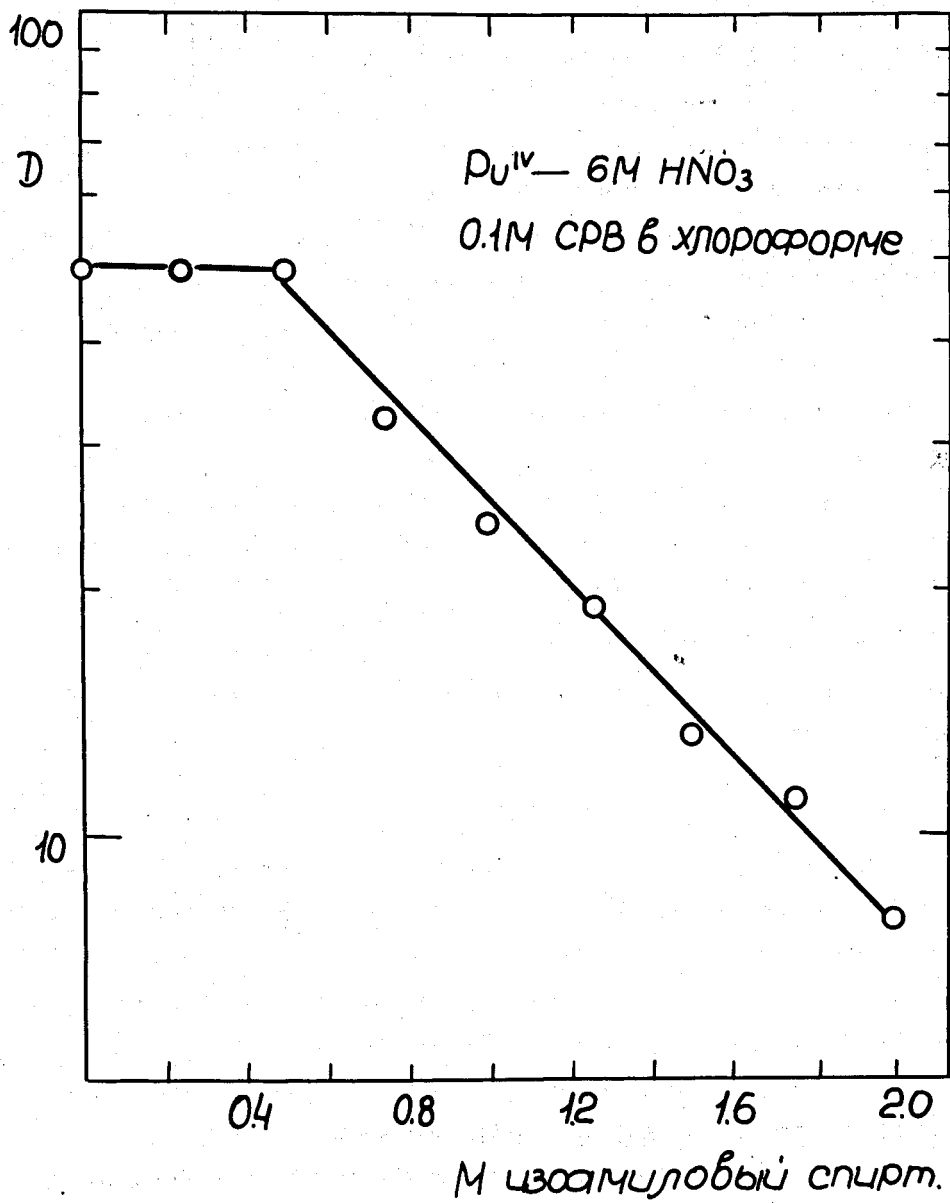


Рис. 4.

На рис. 4 представлена зависимость коэффициентов распределения для четырехвалентного плутония при экстракции из 6М азотной кислоты 0,1М раствором CPB в хлороформе от концентрации изоамилового спирта. При небольших концентрациях изоамилового спирта (вплоть до 0,5 М) коэффициенты распределения четырехвалентного плутония остаются постоянными. С увеличением концентрации изоамилового спирта коэффициенты распределения линейно падают. Оптимальные условия для ускорения образования эмульсии были найдены при концентрации изоамилового спирта в органической фазе экстракционной системы, равной 1М.

Резюмируя настоящую работу, можно сказать, что некоторые соли четвертичных аминов, такие, как, например, СТМАВ, CPB, образующие устойчивые эмульсии в экстракционной системе, могут быть успешно использованы. При этом определяющим фактором в данном случае является полное устранение эмульсии.

В заключение авторы выражают глубокую благодарность академику Г.Н. Флерову за предоставленную возможность выполнения настоящей работы.

#### В ы в о д ы:

1. Показана возможность использования растворов цетилпиридин-бромид в хлороформе для экстракции четырех- и шестивалентных актинидов в присутствии изоамилового спирта.
2. Установлено, что с увеличением концентрации изоамилового спирта коэффициенты распределения линейно падают.
3. Установлено определенное влияние солевой формы CPB на экстракцию неустойчивых валентных состояний плутония.
4. Определены сольватные числа для четырех и шестивалентных форм плутония.

## Л и т е р а т у р а

1. З. Шегловски, К.А. Гаврилов, Ким Юн-Бон, Ом-Сам-Ик, Я. Микульски. Препринт ОИЯИ 5-5396, Дубна, 1970.
2. M. Vrchlansky, L. Sommer. Talanta, 15, 887 (1968).
3. Я. Чапкевич, К.А. Гаврилов, Я. Микульски, Ом Сан-Ик, З. Шегловски. Препринт ОИЯИ 12-4493, Дубна 1969.

Рукопись поступила в издательский отдел

29 января 1971 года.