

甲醛肟在 Purex 流程铀钚分离中的应用

肖松涛, 叶国安, 罗方祥, 刘协春, 杨 贺, 兰 天, 孟照凯

中国原子能科学研究院 放射化学研究所, 北京 102413

摘要: 为了进一步优化 Purex 流程, 研究了甲醛肟(FO)的硝酸水溶液对 30% TBP/煤油中 Pu(IV)的还原反萃取行为, 考察了 FO 浓度、两相接触时间、两相相比、反萃液硝酸浓度、 NO_3^- 浓度、有机相 U 浓度和温度对 Pu(IV)的还原反萃的影响。结果表明: 延长两相接触时间能显著提高 Pu(IV)的反萃率, 增加甲醛肟的浓度、降低反萃液酸度、降低 NO_3^- 浓度、增加有机相 U 浓度和升高温度也对 Pu(IV)的反萃率有一定的提高。采用 16 级逆流反萃取实验(还原反萃段 12 级, 补充萃取段 4 级), 模拟 Purex 流程 1B 槽 U/Pu 分离工艺, 在相比(1BF : 1BX : 1BS)为 4 : 1 : 1 的条件下, U 和 Pu 的回收率均大于 99.99%; 铀中去钚的分离因子 $\text{SF}(\text{Pu}/\text{U}) = 1.0 \times 10^4$; 钚中去铀的分离因子 $\text{SF}(\text{U}/\text{Pu}) = 8.3 \times 10^4$ 。FO 作为新型络合-还原反萃取剂, 可有效实现铀钚分离。

关键词: Pu(IV); 甲醛肟; 还原反萃; 铀钚分离

中图分类号: TL241 **文献标志码:** A **文章编号:** 0253-9950(2013)02-0073-07

doi: 10.7538/hhx.2013.35.02.0073

Application of Formoxmine in Separation of Pu From U in Purex Process

XIAO Song-tao, YE Guo-an, LUO Fang-xiang, LIU Xie-chun,
YANG He, LAN Tian, MENG Zhao-kai

China Institute of Atomic Energy, P. O. Box 275(26), Beijing 102413, China

Abstract: In order to optimize the Purex process, the reduction stripping behavior of Pu(IV) from 30% TBP/OK with formoxmine (FO) was investigated. The effect of temperature, FO concentration, HNO_3 concentration, NO_3^- concentration, U concentration in organic phase, contacting-time and phase ratio was studied, respectively. The results show that the stripping percentage of Pu(IV) increases with the phase contacting-time, FO concentration, U concentration in organic phase and the temperature, and decreases with HNO_3 concentration, NO_3^- concentration. The separation of Pu from U by FO in 1B contactor was carried out using 16-stage counter current extraction (in which 4 stages for supplemental extraction, 12 stages for stripping). At phase ratio (1BF : 1BX : 1BS) = 4 : 1 : 1, the recovery percentages of both U and Pu are more than 99.99%. The separation factor of Pu over U is 1.0×10^4 , and the separation factor of U over Pu is 8.3×10^4 . The present work indicates that FO as a new organic reducing and complexing agent can effectively achieve the separation of Pu from U.

Key words: Pu(IV); formoxmine; reduction stripping; U/Pu separation

U/Pu 分离是 Purex 流程中的重要部分, 各国的科研工作者对其进行了广泛而深入的研究^[1-2]。由于有机化学试剂(包括络合剂和还原剂)具有反应速度快、选择性好、不引入盐分、易破坏等特性, 因此被大量应用于 U/Pu 分离研究中^[3]。其中, *N,N*-二甲基羟胺、*N,N*-乙基羟乙基羟胺、羟基脲、乙醛肟、乙异羟肟酸等都取得了良好的效果^[4-8]。

甲醛肟(FO)是一种新型的有机还原-络合试剂, 分子式为 $H_2C:NOH$; 其纯物质呈中性 ($pH=7.0$); 可快速还原 $Pu(IV)$ 到 $Pu(III)$, 其反应动力学方程和表观速率常数分别为: $-\frac{dc(Pu(IV))}{dt} = kc(Pu(IV))c^{1.61}(FO)c^{-0.88}(H^+)$, $18.7^\circ C$ 时 $k = (110.39 \pm 7.70)(mol \cdot L^{-1})^{0.73}/s$, 由其速率常数可知其可作为 U/Pu 分离中的还原剂^[9]; 并能非常快速地和 HNO_2 反应, 其反应动力学方程和表观速率常数分别为: $-\frac{dc(HNO_2)}{dt} = kc(HNO_2)c^{1.32}(FO)c^{0.96}(ClO_4^-)$, 在 $1^\circ C$ 时, $k = (7.55 \pm 0.5)(mol \cdot L^{-1})^{2.28}/s$, 由其速率常数可知其可同时作为 U/Pu 分离中的支持还原剂^[10], 故在此基础上对其进行了应用研究。国外未见其它研究者的相关应用报道。

本工作拟研究硝酸水溶液中 FO 对 30% TBP/煤油中 $Pu(IV)$ 的反萃行为, 并以单级反萃实验结果作为依据, 完成以 FO 为还原剂的

Purex 流程中 1B 工艺段 U/Pu 分离工艺的验证。

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

甲醛肟, 纯度大于 99%, 中国原子能科学研究院放射化学研究所合成。其它试剂为分析纯。 $Pu(IV)$ 溶液系 $Fe(II)$ 还原、 HNO_2 氧化、2606 阴离子交换树脂纯化所得, 以 K 边界法及 α 计数法测定其浓度, 其 H^+ 浓度用 pH 滴定法测定^[6]。

SL6000LL 液闪仪, 美国 Beckman 公司; DC-1020 型低温恒温水浴槽, 宁波新芝生物科技公司; PHS-3C 型酸度计, 上海雷磁仪器厂; 混合澄清槽, 中国原子能科学研究院放射化学研究所设计加工。

1.2 实验方法

单级反萃取实验在离心萃取管中进行。

单级反萃取实验: 将配制好的有机相料液和 FO 还原反萃液在恒温水浴槽中恒温 0.5 h 后, 按设计的相比加入萃取管中, 在设定温度下, 振荡至预定时间, 快速离心分相, 澄清后分别取有机相、水相样品并测定各组分含量。

多级逆流反萃取实验流程示意图及工艺参数示于图 1。用 16 级逆流反萃分离, 模拟 Purex 流程 1B 槽 U/Pu 分离工艺。还原反萃段 13 级, 补充萃取段 3 级, 混合澄清槽的混合室设计混合相的停留时间为 60 s, 流比(1BF : 1BX : 1BS)为 4 : 1 : 1。

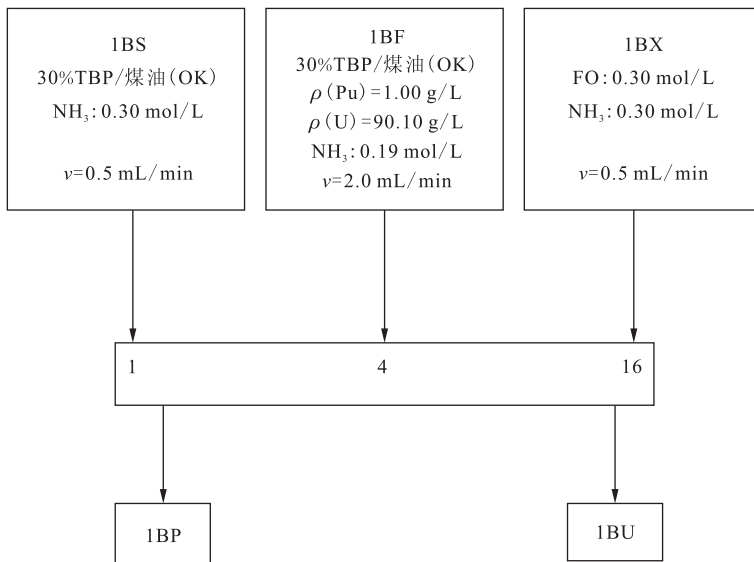


图 1 模拟 Purex 流程 1B 工艺实验流程图

Fig. 1 Flowsheet diagram of experiment for simulating 1B condition of Purex process

1.3 分析方法

铀浓度的分析:水相和有机相常量铀分析是将样品在 1.0 mol/L H_2SO_4 、1.0 mol/L HNO_3 和 0.1 mol/L NH_2SO_3H 的混合酸介质中,以过量 $TiCl_3$ 还原,用 $K_2Cr_2O_7$ 氧化还原滴定法测定;有机相中常量铀样品先用上述混合酸反萃,再用水相常量铀的分析方法测定。水相微量铀样品先用 TOPO 萃取, Br_2 PADAP 显色法测定;有机相微量铀先用等体积饱和 Na_2CO_3 反萃 2 次,合并水相并酸化后,再用 TOPO 萃取, Br_2 PADAP 显色法测定^[4]。

Pu 的测定:用液闪法测定 α 计数,效率校正后确定钚的含量^[6]。

HNO_3 浓度的分析:水相样品中 HNO_3 浓度采用饱和草酸铵络合铀钚,用标准 NaOH 进行滴定;有机相样品中 HNO_3 先用去离子水反萃入水相,再以相同方法测定。

U 中除 Pu 的去污因子 ($DF(Pu/U)$) 和 Pu 中除 U 的去污因子 ($DF(U/Pu)$) 的计算公式分别为:

$$DF(Pu/U) = (c_0(Pu)/c_0(U)) / (c_{pro}(Pu)/c_{pro}(U))$$

$$DF(U/Pu) = (c_0(U)/c_0(Pu)) / (c'_{pro}(U)/c'_{pro}(Pu))$$

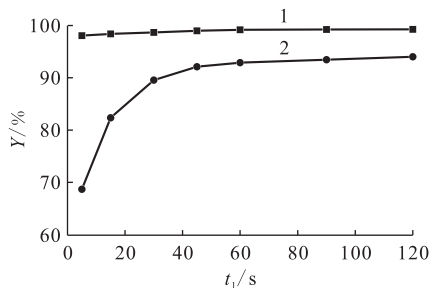
式中: $c_0(Pu)$ 、 $c_0(U)$ 分别为进料中 Pu、U 浓度; $c_{pro}(Pu)$ 、 $c_{pro}(U)$ 分别为 U 产品中 Pu、U 浓度; $c'_{pro}(U)$ 、 $c'_{pro}(Pu)$ 分别为 Pu 产品中 U、Pu 浓度。

2 结果与讨论

2.1 FO 对 Pu(IV) 单级反萃实验的影响

1) 相接触时间对 Pu(IV) 反萃率的影响

在室温为 21 $^{\circ}C$, 用 $c(FO) = 0.10$ mol/L、 $c(H^+) = 0.40$ mol/L、 $c(NO_3^-) = 0.40$ mol/L 的水相还原反萃取 $\rho_0(Pu(IV)) = 0.80$ g/L 的有机相(30% TBP/煤油), 在相比 (V_o/V_a) 为 1:1 和 4:1 条件下, 改变相接触时间 (t_i), Pu 的反萃率 (Y) 示于图 2。由图 2 可知, 当 FO 还原反萃 Pu(IV) 时, Pu(IV) 的反萃率随相接触时间的增加而提高。在相比为 1:1 及相接触时间为 5 s 时, Pu(IV) 的反萃率为 98.1%; 在相比为 4:1 及相接触时间为 5 s 时, Pu(IV) 的反萃率为 68.7%, 300 s 时为 89.6%, 60 s 时为 92.9%, 此时该条件下 Pu(IV) 还原反萃基本达到平衡。可见, 在相比较大时, 适当增加相接触时间可较大幅度地提高 Pu(IV) 的反萃率。故后续实验采用的相接触时间为 90 s。

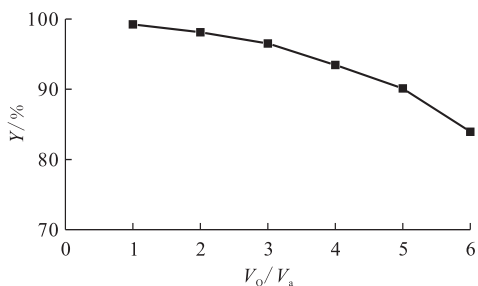


有机相(Organic phase): 30% TBP/煤油(OK),
 $\rho_0(Pu(IV)) = 0.80$ g/L
 V_o/V_a : 1——1:1, 2——4:1

图 2 相接触时间对 Pu 反萃率的影响
 Fig. 2 Variation of the stripping of Pu with the phase contact time

2) 相比对 Pu(IV) 反萃率的影响

在室温 21 $^{\circ}C$ 、相接触时间为 90 s 时, 用 $c(FO) = 0.10$ mol/L、 $c(H^+) = 0.40$ mol/L、 $c(NO_3^-) = 0$ mol/L 的水相还原反萃取 $\rho_0(Pu(IV)) = 0.80$ g/L 的有机相, 在相比为 1:1~6:1 条件下, Pu(IV) 的反萃率与相比的关系示于图 3。由图 3 可知, 随着相比增大, Pu(IV) 的反萃率降低。该过程中水相和有机相进行接触后, 有机相中的 Pu(IV) 先被反萃进入水相, 然后水相中 Pu(IV) 再与甲醛肟进行还原反应, 使水相中的 Pu(IV) 转化为 Pu(III), 该过程不断重复, 直至最终整个体系平衡。由于相比增大, 使有机相中总 Pu(IV) 量和水相中总 Pu(IV) 量的比值增加, 故反萃率降低。



有机相(Organic phase): 30% TBP/煤油(OK)

图 3 相比对 Pu 反萃率的影响

Fig. 3 Effect of the phase ratio on the stripping of Pu

3) H^+ 浓度对 Pu(IV) 反萃率的影响

在室温为 21 $^{\circ}C$, 相接触时间为 30 s, 相比为 1:1 和 4:1, $c(H^+)$ 分别为 0.30、0.40、0.50、0.60、0.80、1.00 mol/L 时, 用 $c(FO) = 0.10$ mol/L、 $c(NO_3^-) = 0.40$ mol/L 的水相还原反萃取 $\rho_0(Pu(IV)) =$

0.80 g/L 的有机相, Pu(IV) 的反萃率与 H^+ 浓度的关系示于图 4。由图 4 可知, 随着 H^+ 浓度的增大, Pu(IV) 的反萃率降低。这是由于 FO 与 Pu(IV) 的反应速率与 H^+ 浓度的 0.88 次方成反比^[9], 增加反萃液中 H^+ 浓度, 使得 Pu(IV) 在相同时间内还原为 Pu(III) 的量减少, 由于水相和有机相(30% TBP/煤油)中 Pu(IV) 存在快速的萃取/反萃平衡, 而 Pu(III) 被 30% TBP/煤油萃取很少, 使得相应的反萃入水相中的 Pu(IV) 减少, 从而使 Pu 还原反萃率降低。由图 4 表明: H^+ 浓度的增加对 Pu(IV) 的反萃率有一定的影响, 当 H^+ 浓度增加到 1.00 mol/L 时 ($V_o/V_a = 4 : 1$), Pu(IV) 的反萃率降低到 84.5%。因此较低的 H^+ 浓度有利于 FO 对 Pu(IV) 的反萃。

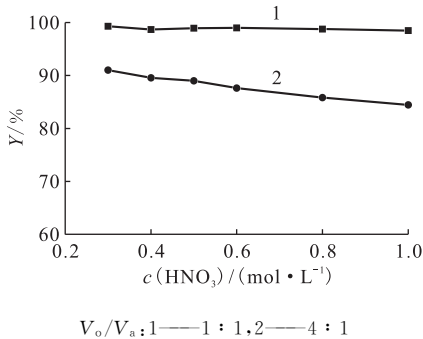


图 4 $t_1 = 30$ s 时 H^+ 浓度对 Pu 反萃率的影响

Fig. 4 Effect of the concentration of H^+ on the stripping of Pu at $t_1 = 30$ s

当其余反萃条件不变、反萃时间延长到 90 s 时, 结果示于图 5。由图 5 可知, 当工艺要求反萃酸度较高时, 可通过适当的延长还原反萃时间以提高 Pu(IV) 的反萃率。

4) NO_3^- 浓度对 Pu(IV) 反萃率的影响

在室温为 21 $^{\circ}C$, 相接触时间为 90 s, 相比为

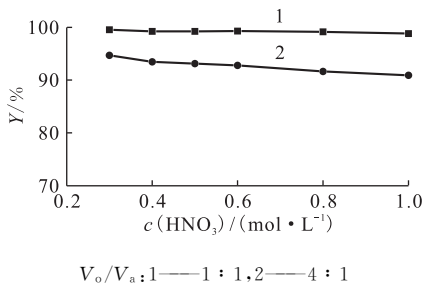


图 5 $t_1 = 90$ s 时 H^+ 浓度对 Pu 反萃率的影响

Fig. 5 Effect of the concentration of H^+ on the stripping of Pu at $t_1 = 90$ s

1 : 1 和 4 : 1, $c(NO_3^-)$ 分别为 0.40、0.60、0.80、1.00、1.20、1.40、1.60、1.80、2.0 mol/L 时, 用 $c(FO) = 0.10$ mol/L, $c(H^+) = 0.40$ mol/L 的水相还原反萃取 $\rho_0(Pu(IV)) = 0.80$ g/L 的有机相, Pu(IV) 的反萃率与 NO_3^- 浓度的关系示于图 6。

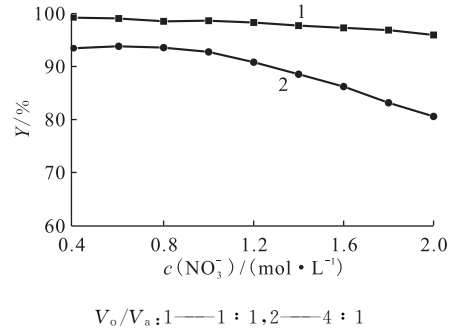


图 6 NO_3^- 浓度对 Pu 反萃率的影响

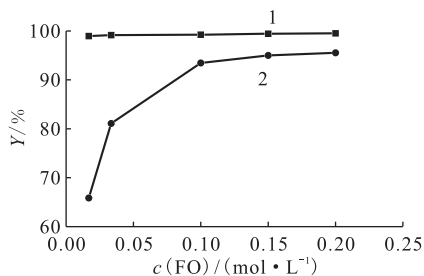
Fig. 6 Effect of the concentration of NO_3^- on the stripping of Pu

由图 6 可知, 随着 NO_3^- 浓度的增大, Pu(IV) 的反萃率降低。由于 FO 与 Pu(IV) 的反应速率不受 NO_3^- 浓度的影响^[9], 故该现象是由于 NO_3^- 对 Pu(IV) 的萃取有盐析效应和协萃效应共同作用的结果, 当 NO_3^- 浓度增加, Pu(IV) 在 30% TBP/煤油和硝酸水溶液中的分配比增大, 也使得相应的反萃入水相中的 Pu(IV) 减少, 从而使 Pu 还原反萃率降低。由图 6 表明: NO_3^- 浓度的增加对 Pu(IV) 的反萃率有一定的影响, 当总 NO_3^- 浓度增加到 2.00 mol/L ($V_o/V_a = 4 : 1$) 时, Pu(IV) 的反萃率降低到 80.5%。因此较低的 NO_3^- 浓度有利于 FO 对 Pu(IV) 的反萃。

5) FO 浓度对 Pu(IV) 反萃率的影响

在室温为 21 $^{\circ}C$, 相接触时间为 90 s, 相比为 1 : 1 和 4 : 1, $c(NO_3^-) = 0.40$ mol/L 时, 分别用 $c(FO)$ 为 0.017、0.034、0.050、0.10、0.15、0.20 mol/L, $c(H^+) = 0.40$ mol/L 的水相还原反萃取 $\rho_0(Pu(IV)) = 0.80$ g/L 的有机相, Pu(IV) 的反萃率与 FO 浓度的关系示于图 7。由图 7 可知, 随着 FO 浓度的增大, Pu(IV) 的反萃率提高。在相比为 1 : 1 时, 由于各条件下 Pu(IV) 反萃率均大于 98%, 其反萃率基本无变化; 在相比为 4 : 1 时, Pu(IV) 的反萃率随 FO 浓度的增加而增加, FO 浓度大于 0.1 mol/L 以后, 增速变缓。这是因为, FO 浓度的增大能大幅加快 FO 与 Pu(IV) 反应速度, 同时又由于水相和有机相 Pu(IV) 的平衡

是快反应,因此随着 FO 浓度的增大,Pu(IV)的反萃率显著增加;而当 FO 浓度增加到一定程度,即 FO 浓度远远大于 Pu(IV)浓度,即当 FO 浓度大于 0.10 mol/L 后,Pu(IV)的反萃率受 FO 浓度影响就会变小。



$V_0/V_a: 1$ —— $1:1$, 2 —— $4:1$

图 7 FO 浓度对 Pu 反萃率的影响

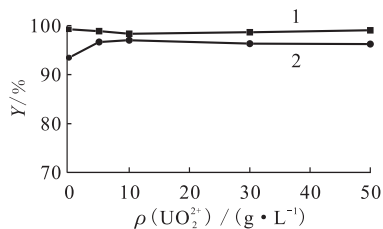
Fig. 7 Effect of the concentration of FO on the stripping of Pu

6) 铀浓度对 Pu(IV)反萃率的影响

在室温为 21 °C,相接触时间为 90 s,相比为 1:1 和 4:1, $c(\text{NO}_3^-)=0.40 \text{ mol/L}$ 时,用 $c(\text{FO})=0.10 \text{ mol/L}$ 、 $c(\text{H}^+)=0.40 \text{ mol/L}$ 的水相分别还原反萃取 $\rho(\text{U(VI)})=0, 5.0, 10.0, 30.0, 50.0 \text{ g/L}$ 、 $\rho_0(\text{Pu(IV)})=0.80 \text{ g/L}$ 的有机相,Pu(IV)的反萃率与有机相中铀浓度的关系示于图 8。由图 8 可知,随着有机相 U(VI)浓度的增大,Pu(IV)的反萃率提高。在相比为 1:1 时,由于各条件的 Pu(IV)反萃率均大于 99%,其反萃率基本无变化;在相比为 4:1 条件下,当有机相中只含有 5.0 g/L U(VI)时,Pu(IV)的反萃率提高 4%。由此可见,有机相中是否含铀对 Pu(IV)的反萃率有明显影响,有机相中含有 U(VI),有利于 Pu(IV)的反萃。原因是有机相中含有 U(VI)后,使 30% TBP/煤油中 U 饱和度增加,通过排挤效应使反萃到水相中的 Pu(IV)增加,导致最终 Pu(IV)反萃率的提高。

7) 温度对 Pu(IV)反萃率的影响

在温度为 21.0、27.5、35.5、42.5 °C,相接触时间为 90 s,相比为 1:1 和 4:1, $c(\text{NO}_3^-)=0.40 \text{ mol/L}$ 时,用 $c(\text{FO})=0.10 \text{ mol/L}$ 、 $c(\text{H}^+)=0.40 \text{ mol/L}$ 的水相还原反萃取 $\rho_0(\text{Pu(IV)})=0.80 \text{ g/L}$ 的有机相,Pu(IV)的反萃率与有机相中铀浓度的关系示于图 9。由图 9 可知,随着温度升高,Pu(IV)的反萃率增加。产生该现象有两方

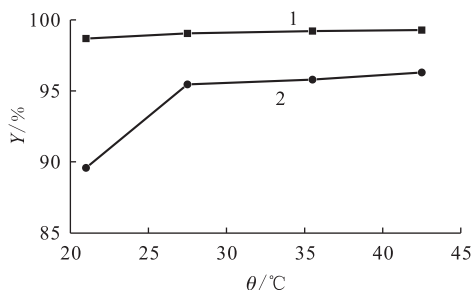


$V_0/V_a: 1$ —— $1:1$, 2 —— $4:1$

图 8 U(VI)浓度对 Pu 反萃率的影响

Fig. 8 Effect of the concentration of U(VI) on the stripping of Pu

面原因:(1) 随着温度的升高,Pu(IV)的分配系数降低^[2],导致水相中 Pu 浓度升高;(2) 随着温度的升高,FO 还原 Pu(IV)的速度明显加快,温度每升高 10 °C,氨基羟基脲还原 Pu(IV)的反应速率增加约 4 倍^[9]。由图 9 表明,在进行 U/Pu 分离时,适当提高还原反萃的温度,可提高 Pu(IV)的反萃率。



$V_0/V_a: 1$ —— $1:1$, 2 —— $4:1$

图 9 温度对 Pu 反萃率的影响

Fig. 9 Effect of temperature on the stripping of Pu

2.2 多级逆流反萃取实验

1) 多级逆流冷铀反萃实验

为了解所设定实验条件下铀和酸的各级分布情况,进行了不含 Pu(IV)料液的冷铀多级逆流反萃实验,流程示意图及工艺参数示于图 1。实验设备采用混合澄清槽,混合室体积为 3 mL,澄清室体积为 5 mL,混合澄清槽内有机相与水相比约为 2:1,料液流比(1BF:1BS:1BX)为 4:1:1,混合室停留时间为 60 s。实验时,先以不含铀料液进行充槽 2 h,然后加入含铀料液,运行 2 h 后,每隔 0.5 h 取一瞬时样,运行 6 h 后,停槽,采用负压设备抽取各级样进行分析($\theta=20 \text{ }^\circ\text{C}$)。

1BU 和 1BP 瞬时样品中铀和酸的浓度分析表明,运行 2.0 h 后,铀、酸分布已达平衡。平衡后铀、酸浓度的各级分布示于图 10。

在反萃段,铀在两相中的浓度均较高;硝酸在有机相中的浓度较低,约为 0.02 mol/L。在补萃段,由于补萃剂 1BS 中硝酸浓度为 0.30 mol/L,提高了两相的酸度,有利于铀的萃取,在混合澄清槽

第 16 级 1BP 的出口处,铀质量浓度为 4.33 mg/L,取得了满意的结果。在冷铀实验中铀的回收率大于 99.99%,对铀的物料衡算为 99.8%,对酸的物料衡算为 99.5%。

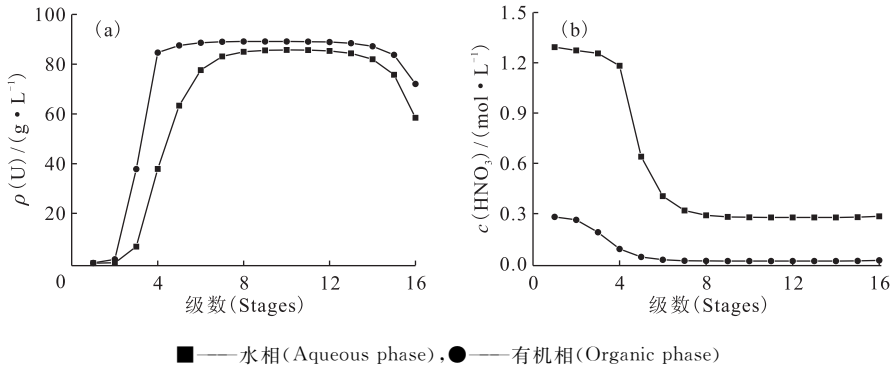


图 10 铀浓度(a)和 HNO_3 浓度(b)的各级分布

Fig. 10 Concentration profiles of U(a) and HNO_3 (b) in cascade extraction

2) 多级逆流铀钚分离反萃实验

甲醛肟与含 Pu 有机相单级反萃实验表明,甲醛肟可快速反萃有机相中的 Pu。铀钚分离反萃实验中,在含 U 有机相中加入含 Pu 有机相以配制含 Pu 料液,其它操作条件与多级逆流冷铀反萃实验相同,运行 1.0 h 后,每隔 1 h 取一瞬时样,运行 4 h 后,每 0.5 h 取 1 个瞬时样,运行 6 h,实验结束。实验结果表明,混合澄清槽运行 2 h 后达平衡。1BU 中的 Pu 质量浓度为 $77 \mu g/L$,Pu 回收率大于 99.99%,1BP 中的 Pu 质量浓度为 $3.97 g/L$,物料衡算为 99.3%。平衡后钚浓度的各级分布示于图 11。

从图 10、11 各级铀、钚、酸浓度的分布可看出:在补萃段,第 2 级水相中铀的质量浓度已下降到约 0.1 g/L,回收率已大于 99.9%;钚在 1~3

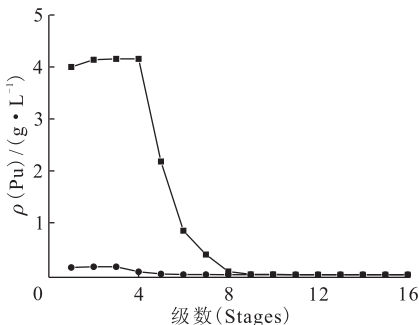
级的浓度相近,水相中钚质量浓度均在 $4.0 g/L$ 左右,有机相中钚质量浓度均在 $0.15 g/L$ 左右,各级间钚浓度差别较小;硝酸在补萃段分布情况与 Pu 分布情况相似。

在反萃取段,有机相中的铀浓度无明显变化,第 16 级有机相出口浓度较高,水相中的铀浓度第 4~8 级有明显增加,在第 9~13 级铀浓度相近;有机相中钚浓度第 4~6 级有降低,在第 10~16 级钚浓度基本无变化,浓度在 $70 \sim 150 \mu g/L$ 之间,表明延长反萃级数很难较大幅度降低 U 液流中 Pu 浓度,水相中钚浓度第 4~8 级有数量级梯度的降低,在第 10~16 级钚浓度相近;可以看出,FO 对 Pu(IV) 的还原反萃效果比较好,可以有效地从有机相中还原反萃 Pu(IV)。从酸度的分布可以看出,在补萃段水相酸度为 $1.2 mol/L$ 左右,可以保证在反萃工艺段进入水相的 U 能够在补萃段被萃取,同时在反萃段,有机相酸度为 $0.3 mol/L$ 左右,在保证 Pu 反萃的同时,能够保持铀有一定的分配比,保证 U 在有机相中,实现 U、Pu 的分离。

根据 U/Pu 分离实验数据可计算出:铀中除钚的分离因子 $SF(Pu/U) = 1.0 \times 10^4$,钚中除铀的分离因子 $SF(U/Pu) = 8.3 \times 10^4$ 。

3 结 论

(1) FO 能快速将有机相中的 Pu(IV) 反萃到水相,Pu(IV) 的反萃率随相接触时间的增加而



■——水相(Aqueous phase),●——有机相(Organic phase)

图 11 Pu 浓度的各级分布

Fig. 11 Concentration profiles of Pu in cascade extraction

提高。

(2) 延长两相接触时间、增加 FO 的浓度、降低反萃液酸度、降低 NO_3^- 浓度、增加有机相铀浓度、升高温度和降低相比可使 $\text{Pu}(\text{IV})$ 的反萃率提高。

(3) 采用 13 级反萃、3 级补萃的混合澄清槽进行 1B 工艺的 U/Pu 分离验证,在相比(1BF : 1BS : 1BX)为 4 : 1 : 1 时,取得了良好的 U/Pu 分离效果,铀中除钚的分离因子 $\text{SF}(\text{Pu}/\text{U}) = 1.0 \times 10^4$,钚中除铀的分离因子 $\text{SF}(\text{U}/\text{Pu}) = 8.3 \times 10^4$ 。

因此,FO 作为新型络合-还原反萃取剂,可有效实现铀钚分离。还需要进行 FO 对其它重要核素影响的研究,如 Np、Tc 等,进一步验证其在 Purex 流程中应用的可行性。

参考文献:

- [1] 姜圣阶,任凤仪,马瑞华,等.核燃料后处理工学[M].北京:原子能出版社,1991:99-104.
- [2] 任凤仪,周振兴,袁良本.国外核燃料后处理[M].北京:原子能出版社,2006:167-172.

- [3] 叶国安. Purex 流程中有机无盐试剂的应用分析[J].原子能科学技术,2004,38(2):152-158.
- [4] 何辉,胡景妍,张先业,等. N,N-二甲基羟胺对 $\text{Pu}(\text{IV})$ 的还原反萃和相应的计算机模型[J].核化学与放射化学,2001,23(2):65-71.
- [5] 张虎,韩清珍,张先业,等. N,N-乙基羟乙基羟胺在 Purex 流程铀钚分离中的应用[J].核化学与放射化学,2006,28(1):24-30.
- [6] 朱兆武,何建玉,章泽甫,等. 羟基肟还原 $\text{Pu}(\text{IV})$ 和在 U/Pu 分离中的应用研究[J].原子能科学技术,2004,38(4):306-311.
- [7] 韩清珍,张虎,叶国安,等. 乙醛肟还原钚的动力学及其在 Purex 流程铀钚分离中的应用[J].原子能科学技术,2007,41(1):52-55.
- [8] 郑卫芳,刘黎明,常志远. 乙异羟肟酸改善 Purex 流程铀产品中 U-Pu 的分离[J].原子能科学技术,2000,34(2):110-115.
- [9] 肖松涛,叶国安,罗方祥,等. 甲醛肟与 $\text{Pu}(\text{IV})$ 氧化还原反应研究[J].原子能科学技术,2010,44(2):166-170.
- [10] 肖松涛,刘协春,欧阳应根,等. 甲醛肟与 HNO_2 氧化还原反应动力学[J].核化学与放射化学,2010,32(1):13-16.