

# 射线对萃取剂 OMPPD 萃取铀(VI)的影响

向群<sup>1</sup> 包伯荣<sup>1</sup> 曹卫国<sup>1</sup> 杨兴存<sup>2</sup>

<sup>1</sup>(上海大学理学院化学系 上海 200436)

<sup>2</sup>(中国科学院上海原子核研究所核分析室 上海 201800)

**摘要** 研究了新型酰胺萃取剂 N-辛酰-2-甲基哌啶烷 (OMPPD) 在硝酸介质中萃取铀(VI)的辐照性能,考察了射线剂量以及在不同的酸度和稀释剂中 射线对萃取铀(VI)分配比的影响,发现 OMPPD 比磷酸三丁酯 (TBP) 具有较好的耐辐照性能。

**关键词** 辐照, N-辛酰-2-甲基哌啶烷, OMPPD, 铀(VI)萃取

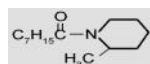
**中图分类号** 645.16

在核燃料的后处理过程中, TBP 是广泛应用的萃取剂之一,但由于其易受 射线辐照而降解<sup>[1]</sup>,其辐照稳定性较差。因此,研究开发具有良好的耐辐照性能的新型萃取剂是非常必要的。大量的科学实验发现,酰胺具有良好的耐辐照稳定性,在提取放射性元素方面,是一类很有前途的萃取剂<sup>[2-7]</sup>。本工作初步研究了新型酰胺萃取剂 N-辛酰基哌啶 (OMPPD) 在 射线作用下对铀(VI)的萃取性能。

## 1 实验材料和方法

### 1.1 试剂

OMPPD 由本实验室合成<sup>[8]</sup>,其结构式为



经 IR 谱、NMR 谱及元素分析等手段检验:磷酸三丁酯(TBP),分析纯;硝酸铀酰[UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O],纯度>99%;其余试剂均为分析纯。

### 1.2 仪器

7230 型分光光度计,(上海分析仪器厂);振荡器(带有自制恒温箱);<sup>60</sup>Co 源(上海原子核研究所)。

### 1.3 萃取实验

铀(VI)的萃取在 10mL 带磨口的刻度离心管中进行,有机相和水相的体积比为 2mL:2mL,振荡时间 30min,离心分层后,以偶氮胂 III 作显色剂,用分光光度法测定水相铀(VI)的浓度,差减法求出有机相中铀(VI)的浓度,并计算其萃取分配比。所有实验均在(298±1)K 进行。

### 1.4 辐照实验

将纯 TBP、OMPPD 及相应的一定浓度的溶液

用 <sup>60</sup>Co 源按所需剂量照射,纯的萃取剂辐照后用相应稀释剂配成溶液,进行萃取实验。

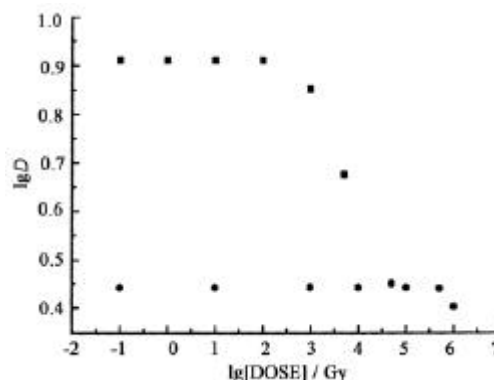
## 2 结果和讨论

### 2.1 萃取剂经辐射后表现性能的变化

OMPPD 在常温下为淡黄色透明液体,和甲苯具有良好互溶性,高剂量辐照后,其外观变化不大,但配成 0.3mol/L 的甲苯溶液后,颜色加深,萃取时,不发生乳化现象,有机相与水相分层较快。用稀释剂甲苯、氯仿、1,2 二氯乙烷、磺化煤油配成的 0.3mol/L OMPPD 溶液,在不同的剂量照射下,外观有较大变化,(辐照前均为无色透明液)见表 1。

### 2.2 不同的吸收剂量对 OMPPD 萃取铀(VI)的影响

考察了不同的吸收剂量下,OMPPD 萃取铀(VI)的分配比变化,实验结果如图 1 所示。



**Fig.1** Effect of different dose of <sup>60</sup>Co -ray on the distribution ratio.  $c_{TBP}^0 = c_{OMPPD}^0 = 0.3 \text{ mol/L}$ ,  $c_U^0 = 4.98 \times 10^{-3} \text{ mol/L}$ ,  $c_{HNO_3}^0 = 3.0 \text{ mol/L}$ ,  $T = (298 \pm 1) \text{ K}$ . TBP, OMPPD.

第一作者:向群,女,1963 年 1 月出生,2001 年 12 月硕士研究生毕业于上海大学,物理化学专业,助研

收稿日期:初稿 2002-04-27,修回 2002-06-10

图 1 表示了纯萃取剂 TBP、OMPPD 经不同剂量辐照后配成 0.3 mol/L 的甲苯溶液后对铀(VI)的萃取情况。从图 1 中可以看出, OMPPD 的辐照稳

定性要比 TBP 的高, TBP 的辐解剂量约为  $10^3$  Gy, 而 OMPPD 的辐解剂量约为  $10^6$  Gy。

Tab.1 Effect of  $\alpha$ -ray radiation on the appearances of the 0.3mol/L OMPPD with different diluents

| Diluents            | Quantity                       |                              |                                |                                    |
|---------------------|--------------------------------|------------------------------|--------------------------------|------------------------------------|
|                     | $5 \times 10^4$ /Gy            | $10^5$ /Gy                   | $5 \times 10^5$ /Gy            | $10^6$ /Gy                         |
| Toluene             | Colorless transparent liquid   | Colorless transparent liquid | Colorless transparent liquid   | Yellowish transparent liquid       |
| Chloroform          | Light green transparent liquid | Green transparent liquid     | yellow transparent liquid      | Yellowish brown transparent liquid |
| 1,2-Dichloroethene  | Light green transparent liquid | Yellow transparent liquid    | Dark yellow transparent liquid | Yellowish brown transparent liquid |
| Sulfonated Kerosene | Colorless                      | Opalescence                  | Opalescence                    | Light yellow opalescence           |

### 2.3 辐照后不同酸度对萃取剂萃取铀(VI)的影响

称取一定量 OMPPD 经  $\alpha$  射线照射后, 用甲苯稀释至 0.3 mol/L, 分配比与水相硝酸浓度的关系如图 2 所示。

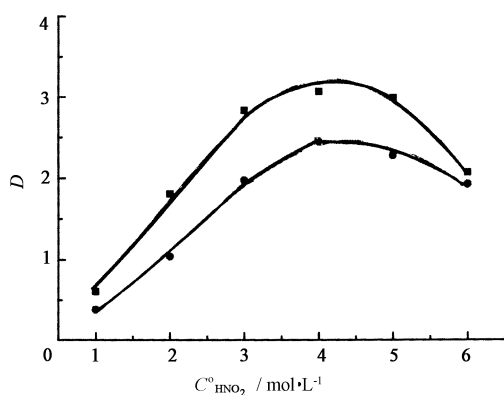


Fig.2 Effect  $\alpha$ -ray radiation on the distribution ratio at various concentration of acidity  $c_{\text{OMPPD}}^0 = 0.3 \text{ mol/L}$ ,  $c_{\text{U}}^0 = 4.98 \times 10^{-3} \text{ mol/L}$ ,  $T = (298 \pm 1) \text{ K}$ . Before radiation, After radiation.

从图 2 中可以看出, 分配比  $D$  随硝酸浓度的变化趋势在  $\alpha$  射线照射前后并未发生变化, 只是相应的  $D$  值有所降低, 而且  $D$  随硝酸浓度的变化而变化, 在硝酸浓度为  $4 \text{ mol/L}$  时达到最大值, 说明辐解产物萃取铀(VI)的性能也和 OMPPD 一样, 其分配比在低酸度下随酸度的增加而增加, 在高酸度下随酸度的增加而降低。

### 2.4 稀释剂的影响

选择了甲苯、磺化煤油、氯仿、1, 2 二氯乙烷

作为稀释剂, 配成 0.3 mol/L 的 OMPPD 溶液, 经不同的辐射剂量照射后, 外观变化已列在表 1 中, 除磺化煤油外, 其萃取分配比如图 3 所示。

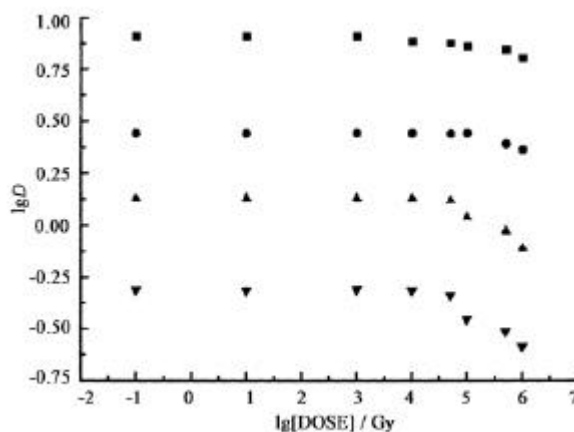


Fig.3 Effect of  $\alpha$ -ray radiation on the distribution ratio in various extractant-diluents.  $c_{\text{OMPPD}}^0 = c_{\text{TBP}}^0 = 0.3 \text{ mol/L}$ ,  $c_{\text{U}}^0 = 4.98 \times 10^{-3} \text{ mol/L}$ ,  $T = (298 \pm 1) \text{ K}$ . TBP-toluene, OMPPD-toluene, OMPPD-1,2-Dichloroethane, OMPPD-chloroform.

从图 3 中可见, 用芳烃甲苯作稀释剂时, 能抑制 TBP 的辐解, 提高 TBP 的耐辐射性, 这与文献[9]相符, 从图 3 中可知, 0.3 mol/L TBP-甲苯的辐解剂量约为  $10^4$  Gy, 而且随辐照剂量的增加, 分配比的下降趋势比原来的缓慢的多。但是 0.3 mol/L OMPPD-甲苯的辐解情况和原来的相似, 变化不多, 而 0.3 mol/L OMPPD-1, 2-二氯乙烷、0.3 mol/L OMPPD-氯仿的辐解剂量降到约  $5 \times 10^4$  Gy, OMPPD 的辐射稳定性明显下降。另外, 用煤油作稀释剂时, 当吸收剂量达  $5 \times 10^4$  Gy 时, 萃取时开始出现第三相,

且剂量越高,三相情况越严重。稀释剂对萃取剂萃取性能的影响较为复杂,其详细作用机理有待于进一步的研究。

## 2.5 结论

(1) 研究表明酰胺的辐照稳定性相当好, OMPPD 的辐解剂量在  $10^6$ Gy 左右。

(2) 辐照后的 OMPPD 在不同硝酸浓度介质中萃取铀酰离子时,其萃取分配比的变化趋势与未经辐照的相似,说明硝酸对 OMPPD 的辐解产物萃取铀(VI)的影响与对 OMPPD 的影响机理相同。

(3) 稀释剂甲苯对 TBP 的稳定作用很大,而对 OMPPD 的稳定作用不明显,卤代烃使 OMPPD 的辐照稳定性明显降低,而最稳定的稀释剂烷烃如磺化煤油<sup>[9]</sup>,却极易出现三相。

## 参考文献

- 1 Gasparini G M, Grossi G M. Sol Extr Ion Exch, 1986, 4(6): 1233-1271
- 2 BAO B R, SHEN C H, BAO Y Z. J Radio Nucl Chem, 1994, 178(1): 99-107
- 3 Gasparini G M, Grossi G.M. Sep Sci Technol, 1980, 15(4): 825-844
- 4 Thiolllet C. Musikas Sol Extr Ion Exch, 1989, 7(5): 813-819
- 5 Pathak P N, Veeraraghava N P, Prabhu D R. Sep Sci Technol, 1999, 34(13): 2601-2614
- 6 John S Preston, Anna C du Preez. Sol Ion Exch, 1995, 13(3): 391-413
- 7 扬兴存, 包伯荣, 曹卫国. 辐射研究与辐射工艺学报, 2001, 19(4): 299-301  
YANG X C, BAO B R, CAO W G. J Radiat Res Radiat Process, 2001.19(4): 299-301
- 8 向群, 包伯荣, 曹卫国. 核技术, 2002, 25(1): 57-60  
XIANG Q, BAO B Y, CAO W G. Nucl Tech, 2002, 25(1): 57-60
- 9 徐光宪, 王文清, 吴瑾光等. 萃取化学原理, 上海: 上海科学技术出版社, 1984. 267-268  
XU G X, WANG W Q, WU J G *et al.* The Principle of Extraction Chemistry, Shanghai Science Technology Publish House, Shanghai, 1984. 267-268

## THE EFFECT OF $\gamma$ -RAY ON EXTRACTION OF U (VI) BY OMPPD

XIANG Qun<sup>1</sup> BAO Borong<sup>1</sup> CAO Weiguo<sup>1</sup> YANG Xingcun<sup>2</sup>

<sup>1</sup> (Department of Chemistry, Shanghai University, Shanghai 200436)

<sup>2</sup> (Shanghai Institute of Nuclear Research, the Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800)

**ABSTRACT** N-octanoyl—2-methylpiperidine (OMPPD) a novel amide type extractant for the extraction of U (VI) from aqueous nitric acid medium, was studied for  $\gamma$ -ray irradiation effect. The effects of radiation dose, concentration of nitric acid and diluent on the distribution ratio for the extraction of U (VI) were studied. It is found that OMPPD has better radiation stability compared with Tributyl phosphate (TBP).

**KEYWORDS** Radiation, N-octanoyl-piperidine, OMPPD, U (VI) extraction

**CLC** O645.16