

УДК 621.039.54

## ТЕХНОЛОГИЯ ПЕРЕРАБОТКИ МАТОЧНО-ПРОМЫВНОГО РАСТВОРА ОТ КРИСТАЛЛИЗАЦИОННОЙ ОЧИСТКИ ОЯТ ВТГР

© 2024 г. Л. И. Ткаченко<sup>а</sup>, В. Л. Виданов<sup>б, \*</sup>, Е. В. Кенф<sup>а</sup>, Н. Ю. Володина<sup>а</sup>, Я. О. Плешаков<sup>а</sup>, А. Ю. Шадрин<sup>б</sup>

<sup>а</sup>Радиовый институт им. В.Г. Хлопина, 194021, Санкт-Петербург, 2-й Мушинский пр., д. 28

<sup>б</sup>Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. академика А.А. Бочвара, 123098, Москва, ул. Рогова, д. 5а

<sup>а</sup>Частное учреждение «Наука и инновации», 119017, ул. Большая Ордынка, д. 44, стр. 4

\*e-mail: vlvidanov@bochvar.ru

Получена 22.11.2023, после доработки 18.03.2024, принята к публикации 18.03.2024

Проведена проверка экстрагентов дифенил-*N,N*-диоктилкарбамоилметилфосфиноксида и дифенил-*N,N*-диизобутилкарбамоилметилфосфиноксида для переработки ОЯТ ВТГР. Определены условия извлечения и дальнейшего разделения фракций урана и ТПЭ–РЗЭ. Предложена технологическая схема переработки ОЯТ ВТГР. В ходе динамических испытаний было достигнуто извлечение урана и плутония не менее 99.9%, америция и РЗЭ – не менее 99.5%. Выделены фракции ТПЭ + РЗЭ и U + Pu. Фракция U+Pu содержала около 5% Am, фракция ТПЭ + РЗЭ содержала менее 0.1% U и Pu.

**Ключевые слова:** жидкостная экстракция, ОЯТ ВТГР, фракционирование, актиниды, редкоземельные элементы, карбамоилметилфосфиноксид, мета-нитробензотрифторид, трибутилфосфат.

DOI: 10.31857/S0033831124020067

### ВВЕДЕНИЕ

Высокотемпературные газовые реакторы (ВТГР) известны еще с 1950-х гг., однако разработки в данном направлении не были доведены до широкого промышленного применения. Особенностью таких реакторов является получение на выходе теплоносителя (гелия) с температурой до 1000°C. В настоящее время в ряде стран реализуются программы по производству водорода – перспективного топлива будущего, при этом ВТГР хорошо подходят для снабжения энергией данного производства.

При использовании ВТГР для наработки водорода необходима разработка производственных процессов, составляющих его топливный цикл. Среди этих процессов одно из главных мест занимает переработка ОЯТ с возможностью рециклирования актинидов. Одной из кандидатных технологий переработки ОЯТ ВТГР является кристаллизационная очистка [1], подразумевающая совместное выделение смеси U–Pu–Np–Am. В процессе кристаллизационной переработки образуется маточно-промывной раствор (МПР), содержащий значительные количества актинидов, которые подлежат возврату в ядерный топливный цикл (ЯТЦ). Расчетный состав МПР представлен в табл. 1.

Извлечение актинидов из МПР предлагается проводить на экстракционном переделе. Для экстракционного извлечения были выбраны системы на

основе карбамоилфосфиноксидов (КМФО). В качестве экстрагентов актинидов эти соединения известны уже несколько десятилетий, с их использованием разработан ряд технологий в таких странах, как Япония, США, Россия [2–6]. Наиболее подробно были изучены фенолоктил-*N,N*-диизобутилкарбамоилметилфосфиноксид [7, 8] и дифенил-*N,N*-дибутилкарбамоилметилфосфиноксид [9].

С использованием карбамоилфосфиноксидов в США, Японии и России были разработаны различные варианты TRUEX-процесса, позволяющего извлекать актиниды и лантаниды из азотнокислых растворов, а на основе TRUEX-процесса был разработан SETFICS-процесс, позволяющий отделять актиниды(III) от большей части лантанидов [3–6]. Позднее в США был разработан TRUSPEAK-процесс для выделения трансплутониевых элементов из жидких высокоактивных отходов смесью экстрагентов, состоящей из фенолоктил-*N,N*-диизобутилкарбамоилметилфосфиноксида и ди-2-этилгексилфосфорной кислоты [10–12]. Работы последних лет в основном сосредоточены на поиске новых растворителей для КМФО в качестве альтернативы традиционным углеводородам, которые не обеспечивают достаточно высокую емкость экстракционных систем по извлекаемому металлу. Был предложен ряд различных полярных фторированных растворителей [13, 14]. Большое число работ за последние десять лет посвящено исследованию ионных

Таблица 1. Химический состав МПР

Элемент	Концентрация, г/л	Элемент	Концентрация, г/л
U	100	Gd	0.003
Pu	40	Zr	0.085
Np	3	Cs	0.097
Am	3	Sr	0.041
Cm	0.02	Ba	0.07
La	0.05	Tc	0.031
Ce	0.09	Mo	0.01
Pr	0.04	Pd	0.06
Nd	0.16	Ru	0.01
Sm	0.05	HNO <sub>3</sub>	3.5–4.0 моль/л
Eu	0.005		

жидкостей в качестве растворителей для фенолоктил-N,N-диизобутилкарбамоилметилфосфиноксида [15–20]. Эти работы представляют большой научный интерес, однако о практическом применении ионных жидкостей говорить рано.

В рамках данной работы были рассмотрены два растворителя для КМФО – традиционный углеводородный растворитель (Isopar-M) с добавлением трибутилфосфата (ТБФ) в качестве модификатора и полярный фторированный растворитель метанитробензотрифторид (Ф-3) с тем же модификатором. Предлагаемые ранее экстракционные процессы с применением КМФО были направлены на извлечение фракции ТПЭ из ВАО, которые не содержали уран и плутоний. В рамках данной работы стояла задача создания технологии переработки ОЯТ с получением фракции уран–плутоний и ТПЭ с использованием единой экстракционной системы.

Наиболее популярный и широко используемый карбамоилфосфиноксид – фенолоктил-N,N-диизобутилкарбамоилметилфосфиноксид – в России не производится, а приобретение его за рубежом оказалось затруднено, поэтому в процессе выполнения работы возникла необходимость поиска коммерчески доступных аналогов отечественного производства.

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

### Используемые реактивы

Структурные формулы карбамоилфосфиноксидов, которые использовались в данной работе, представлены на рис. 1. Дифенил-N,N-диоктилкарбамоилметилфосфиноксид (КМФО-1) и дифенил-N,N-диизобутилкарбамоилметилфосфиноксид (КМФО-2) были приобретены в ООО «Сорбент-Технологии» (Москва). Растворитель Ф-3 был приобретен в ООО «Реактор» (Москва). Остальные реактивы, используемые в работе, были категории не ниже ч.д.а. Радиоактивные изотопы были производства В/О «Изотоп».

### Методика экстракционных экспериментов

Экстракционные эксперименты проводили в полипропиленовых пробирках. В пробирку помещали равные объемы органической и водной фаз требуемого состава. Органическую фазу предварительно уравнивали с водной фазой, содержащей азотную кислоту соответствующей концентрации. Фазы интенсивно перемешивали в течение 10 мин при комнатной температуре ( $21 \pm 1^\circ\text{C}$ ). После этого фазы разделяли центрифугированием и отбирались аликвоты органической и водной фаз на анализ.

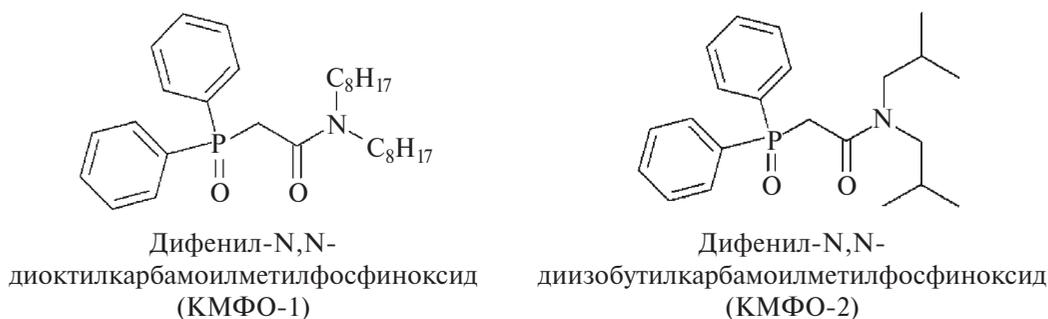


Рис. 1. Структурные формулы карбамоилметилфосфиноксидов.

*Аналитическое обеспечение экспериментов*

Концентрации стабильных металлов, а также урана и тория в экстракционных экспериментах определяли методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой на масс-спектрометре Agilent 7900. Анализировали только водные растворы, т.е. исходную и равновесную водные фазы. Концентрацию металлов в органической фазе вычисляли по разности между ними. Когда концентрация металла в равновесной водной фазе была близка к исходной (т.е. металл экстрагировался слабо), вычисление концентрации в органической фазе по разности было проводить некорректно из-за высокой погрешности. В этом случае проводили реэкстракцию металлов из равновесной органической фазы раствором, содержащим 20 г/л ДТПА + 2 моль/л  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$  при соотношении О/В = 3/1, и концентрацию металлов определяли в реэкстрактах.

Активность проб, содержащих радиоактивные изотопы  $^{241}\text{Am}$  и  $^{152}\text{Eu}$ , определяли при помощи сцинтилляционного гамма-спектрометра МКГБ-1 РАДЭК с блоком детектирования БДЭГ-80 № DU-LC7-RI.

Активность мишеней, содержащих  $^{239}\text{Pu}$ , определяли на  $\alpha$ -спектрометре ORTEC Alpha Ensemble-2.

Погрешности определения концентраций металлов методом масс-спектрометрии и активности радионуклидов методом гамма-спектроскопии не превышала 10%. Погрешность измерения активности  $^{239}\text{Pu}$  не превышала 15%.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

*Проверка в статических условиях*

Согласно данным табл. 1, основным компонентом МПР является уран. Поэтому была проверена экстракция урана системой 0.2 моль/л КМФО-1 + 30 об%. ТБФ в легком углеводородном растворителе Isorag-M. В ходе экстракции из растворов, содержащих 7.3, 15, 36.5 и 73 г/л урана и 3 моль/л  $\text{HNO}_3$ , во всех образцах произошло образование третьей фазы – осадка. Таким образом, неполярный легкий растворитель Isorag-M не обеспечивает достаточную емкость экстракционной системы. Для дальнейших экспериментов использовали полярный тяжелый фторированный растворитель Ф-3.

Были получены изотермы экстракции урана из 3 моль/л  $\text{HNO}_3$  экстракционной системой 0.2 моль/л КМФО-1 + 30 об% ТБФ в Ф-3 (рис. 2). При переходе в органическую фазу около 60 г/л урана происходит мгновенное образование осадка. При концентрации урана в органической фазе около 30 г/л осадок также образуется, но через 1.5–2 ч.

Было проверено влияние урана на экстракцию америция и европия из раствора азотной кислоты (табл. 2). Как видно из табл. 2, при концентрации урана от 29 г/л (0.12 моль/л) во всех пробах со временем

происходит образование осадков. Желательно, чтобы концентрация урана не превышала 0.09–0.1 моль/л.

Поскольку экстракционная система на основе КМФО-1 имеет низкую емкость, были проведены аналогичные эксперименты с КМФО-2 (табл. 3).

Как видно из табл. 3, КМФО-2 не имеет никаких преимуществ по сравнению с КМФО-1. Увеличение концентрации ТБФ в органической фазе до 40% не оказало влияния на емкость экстракционной смеси на основе КМФО-1 и КМФО-2 по урану – образование осадков происходило при концентрации урана 29 г/л. Поскольку увеличение концентрации ТБФ не повлияло на емкость по урану, была проверена экстракция урана, америция и европия КМФО-1 без ТБФ (табл. 4).

Как видно из табл. 4, без ТБФ пороговая концентрация урана, при которой происходит образование осадков, снижается, а экстракция ТПЭ и РЗЭ подавляется сильнее, чем в присутствии ТБФ. Для проведения динамических испытаний была выбрана экстракционная система состава: 0.25 моль/л КМФО-1 + 30 об% ТБФ в Ф-3.

Для определения условий реэкстракции U, Pu, ТПЭ и РЗЭ были определены значения коэффициентов распределения этих элементов при различном содержании  $\text{HNO}_3$  (рис. 3).

Америций и европий будут достаточно легко реэкстрагироваться в слабокислых средах, в то время как коэффициенты распределения урана и плутония имеют высокие значения даже в 0.01 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Таким образом, ТПЭ и РЗЭ возможно реэкстрагировать слабокислым раствором отдельно от урана и плутония. Уран и плутоний можно извлечь на следующей стадии содовой реэкстракции.

Поскольку и ТБФ, и КМФО соэкстрагируют азотную кислоту, была проверена ее экстракция (табл. 5). При концентрации азотной кислоты в исходном растворе 3.5–4.0 моль/л содержание ее в экстракте может достигать 1 моль/л, поэтому после экстракции необходима промывка экстракта от азотной кислоты.

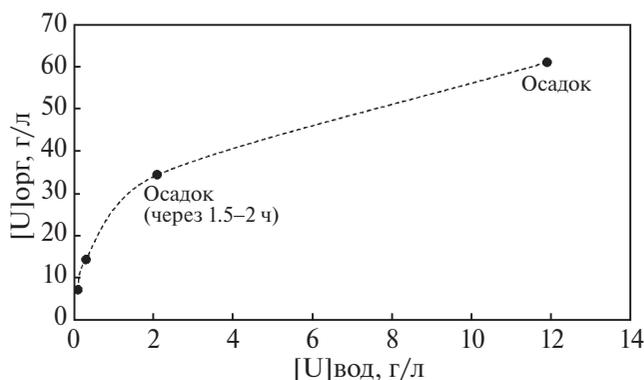


Рис. 2. Изотерма экстракции урана из 3 моль/л  $\text{HNO}_3$  экстракционной системой 0.2 моль/л КМФО-1 + 30 об% ТБФ в Ф-3.

**Таблица 2.** Коэффициенты распределения америция и европия при экстракции из 3 моль/л  $\text{HNO}_3$  в присутствии урана экстракционной системой КМФО-1 + 30 об% ТБФ в Ф-3

Концентрация U, г/л (моль/л)	Концентрация КМФО-1, моль/л	$D_{\text{Am}}$	$D_{\text{Eu}}$
7.3 (0.03)	0.1	2.1	0.07
	0.2	17.7	9.5
	0.3	80	74
14.6 (0.06)	0.1	0.3	0.2
	0.2	3.2	1.9
	0.3	15.9	9.9
21.9 (0.09)	0.1	—	—
	0.2	0.7	0.5
	0.3	3.6	1.3
29.2 (1.2)	Образование осадков при контакте фаз		

**Таблица 3.** Коэффициенты распределения америция и европия при экстракции из 3 моль/л  $\text{HNO}_3$  в присутствии урана экстракционной системой 0.2 моль/л КМФО + 30 об% ТБФ в Ф-3

Концентрация U, г/л	КМФО-1		КМФО-2	
	$D_{\text{Am}}$	$D_{\text{Eu}}$	$D_{\text{Am}}$	$D_{\text{Eu}}$
7.3	17.7	9.5	10.5	6.5
14.6	3.2	1.9	2.3	1.6
21.9	0.7	0.5	0.6	0.4
29.2	—	—	0.2*	0.2*
36.5	—	—	0.1*	0.1*

\* Образование осадка в органической фазе после экстракции.

**Таблица 4.** Экстракция U, Am, Eu из 3 моль/л  $\text{HNO}_3$  экстракционной системой 0.2 моль/л КМФО-1 в Ф-3

Концентрация U в исходном растворе, г/л	$D_{\text{U}}$	$D_{\text{Am}}$	$D_{\text{Eu}}$
0	—	230	115
14.6	>100	0.3	0.2
21.9 и более	Образование осадков		

## ДИНАМИЧЕСКИЕ ИСПЫТАНИЯ

### Описание эксперимента

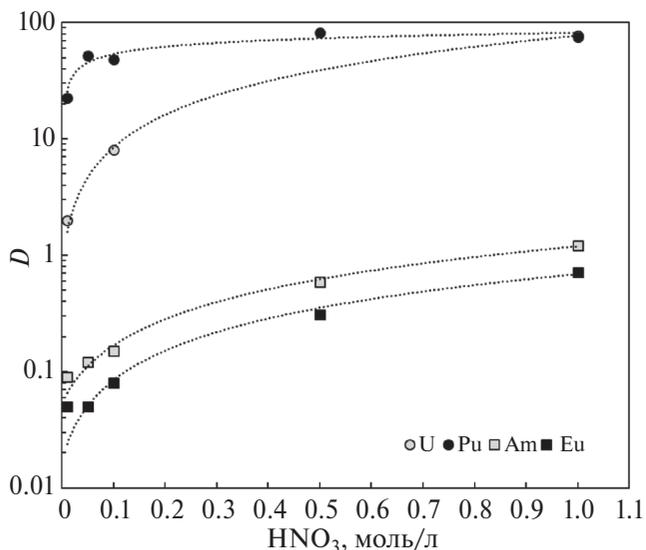
Испытания проводили на экстракционном стенде СЦЭК-342, расположенном в лаборатории технологий обращения с отработавшим ядерным топливом Радиового института им. В.Г. Хлопина. Принципиальная схема экстракционного стенда представлена на рис. 4, состав раствора, используемого в качестве исходного — в табл. 6. Составы и расходы технологических потоков, заданные в начале испытаний и установленные в ходе эксперимента, при которых обеспечивались оптимальные параметры процесса

(выходы целевых продуктов и гидродинамические параметры), представлены в табл. 7.

Схема включает следующие операции:

- экстракция актинидов и РЗЭ (6 ступеней);
- промывка экстракта (2 ступени);
- реэкстракция ТПЭ + РЗЭ и азотной кислоты (10 ступеней);
- реэкстракция U и Pu, регенерация экстрагента (6 ступеней).

Экстракция U, Pu, ТПЭ и РЗЭ проводится на 6 ступенях, в 8-ю ступень вводится промывной раствор 0.5 моль/л  $\text{HNO}_3$ . В первую ступень вводится



**Рис. 3.** Значения коэффициентов распределения при экстракции из растворов  $\text{HNO}_3$  в присутствии 25 г/л U экстракционной системой 0.25 моль/л КМФО-1 + 30 об% ТБФ в Ф-3.

поток оборотного экстрагента. Выходящими потоками являются рафинат, выходящий с первой ступени 1-го блока, и экстракт актинидов и РЗЭ, выходящий с 8-й ступени.

На втором блоке проводится реэкстракция ТПЭ и РЗЭ и одновременная отмывка от азотной кислоты. Экстракт первого блока поступает в ступень 1, в ступень 10 поступает реэкстрагент (0.01 моль/л  $\text{HNO}_3$ ).

**Таблица 5.** Экстракция  $\text{HNO}_3$  экстракционной системой 0.25 моль/л КМФО-1 + 30 об% ТБФ в Ф-3

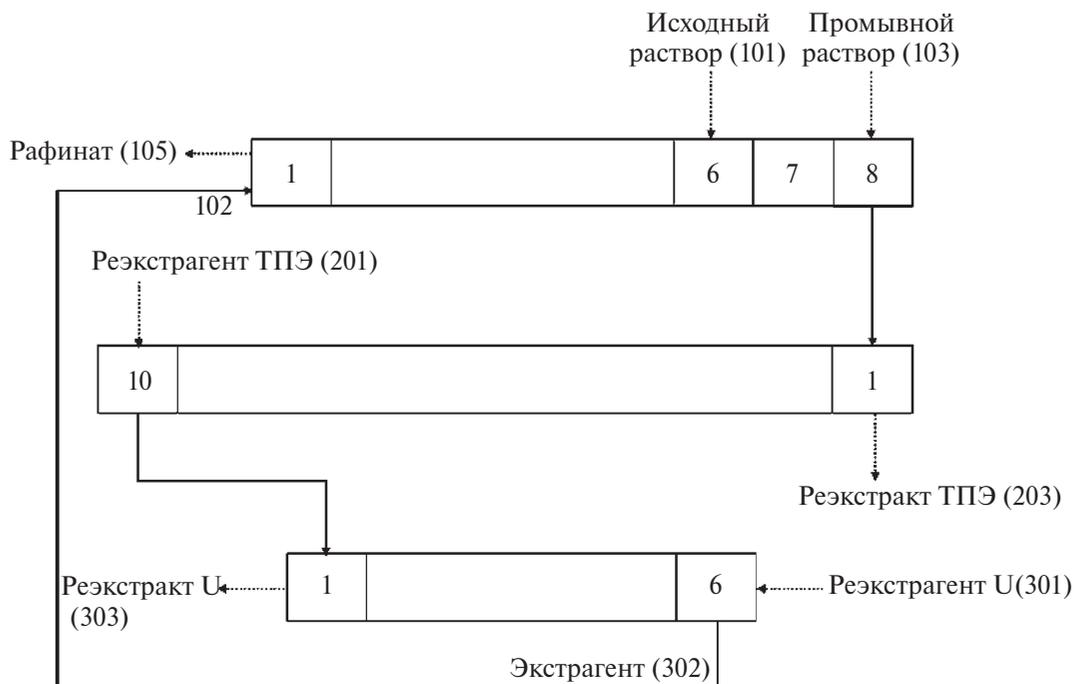
Исходная концентрация $\text{HNO}_3$ , моль/л	$[\text{HNO}_3]_{\text{вод}}$ , моль/л	$[\text{HNO}_3]_{\text{орг}}$ , моль/л
0.51	0.45	0.06
1.06	0.84	0.22
3.12	2.57	0.55
4.25	3.20	1.05

Выходящими потоками являются реэкстракт ТПЭ и РЗЭ и экстракт U и Pu.

На третьем блоке проводится реэкстракция U и Pu. Экстракт 2-го блока поступает в ступень 1 3-го блока. В ступень 6 вводится реэкстрагент 30 г/л  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ . Выходящими потоками являются реэкстракт U и Pu и оборотный экстрагент.

*Результаты динамического эксперимента*

В ходе испытаний были обнаружены осадки в блоке реэкстракции U. Предположительно произошло выпадение карбонатов уранила из-за недостаточного количества соды в реэкстрагенте. Из-за образования осадков расход реэкстрагента U в ходе испытаний повышался и в итоге составил 200 мл/ч. Также реэкстракция ТПЭ и РЗЭ не была достаточно



**Рис. 4.** Принципиальная схема переработки МПР ВГТР экстракционной системой 0.25 моль/л КМФО-1 + 30 об% ТБФ + Ф-3.

Таблица 6. Состав исходного раствора

Элемент	Концентрация, г/л	Элемент	Концентрация, г/л
U	46.8	Eu	0.36
<sup>239</sup> Pu	2000 Бк/мл	Gd	0.37
<sup>241</sup> Am	586 Бк/мл	Zr	0.27
<sup>152</sup> Eu	964 Бк/мл	Cs	0.1
La	0.025	Sr	0.1
Ce	0.42	Ba	0.1
Pr	0.46	Mo	0.01
Nd	0.41	HNO <sub>3</sub>	3.5 моль/л
Sm	0.38		

Таблица 7. Составы и расходы технологических потоков в начале испытаний и после корректировок

Код	Поток	Состав	Расход в начале испытаний, мл/ч	Расход, мл/ч
101	Исходный раствор	См. табл. 6	100	100
102, 302	Экстрагент	0.25 моль/л КМФО-1 + 30 об% ТБФ + Ф-3	200	200
103	Промывной раствор	0.5 моль/л HNO <sub>3</sub>	30	50
105	Рафинат	Продукты деления, HNO <sub>3</sub>	130	150
201	Реэкстрагент ТПЭ	0.01 моль/л HNO <sub>3</sub>	80	200
203	Реэкстракт ТПЭ	ТПЭ, HNO <sub>3</sub>	80	200
301	Реэкстрагент U	30 г/л Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> + 10 г/л ДТПА	50	200
303	Реэкстракт U	U, Pu, Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> , ДТПА	50	200

Время проведения испытаний составило 30 ч.

эффективной, и происходил унос этих элементов на стадию реэкстракции U (табл. 8).

Для предотвращения осадкообразования и улучшения реэкстракции металлов были приняты следующие меры:

- увеличен расход промывного раствора до 50 мл/ч и снижена концентрация азотной кислоты в нем до 0.1 моль/л;
- увеличен расход реэкстрагента ТПЭ до 200 мл/ч;
- увеличен расход реэкстрагента U до 200 мл/ч.

Содержание металлов в продуктах в конце испытаний (28 ч от начала) представлено в табл. 9.

В результате испытаний было достигнуто извлечение урана и плутония не менее 99.9%, америция и РЗЭ – не менее 99.5%. Выделены фракции ТПЭ + РЗЭ и U + Pu. Фракция U + Pu содержит около 5% Am, фракция ТПЭ + РЗЭ содержит менее 0.1% U и Pu.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведена проверка экстрагентов дифенил-N,N-диоктилкарбамоилметилфосфиноксида

и дифенил-N,N-диизобутилкарбамоилметилфосфиноксида для переработки МПР кристаллизационной переработки ОЯТ ВТГР. Установлено, что неполярные легкие растворители не обеспечивают удовлетворительную емкость растворов экстрагента по урану, поэтому в работе использовали полярный тяжелый растворитель Ф-3. Также для обеспечения приемлемых емкостных характеристик применяли ТБФ. Концентрация урана в органической фазе при экстракции не должна превышать 0.1 моль/л из-за риска образования осадка. Поэтому для экстракционной переработки МПР, содержащего 100 г/л (0.42 моль/л) урана, требуется либо его разбавление, либо значительное увеличение потока органической фазы, по сравнению с водной.

При проведении динамических испытаний было достигнуто извлечение урана и плутония не менее 99.9%, америция и РЗЭ – не менее 99.5%. Выделены фракции ТПЭ + РЗЭ и U + Pu. Фракция U + Pu содержит около 5% Am, фракция ТПЭ + РЗЭ содержит менее 0.1% U и Pu. Применяемая система показала достаточно высокую эффективность, однако следует отметить, что разбавление исходного раствора либо повышение расхода органической фазы по

**Таблица 8.** Распределение металлов по продуктам через 6 ч после начала эксперимента

Поток	<sup>239</sup> Pu, Бк/мл	<sup>241</sup> Am, Бк/мл	<sup>152</sup> Eu, Бк/мл	U, г/л
101 исходный	2000	586	964	43.9
105 рафинат	<1	4.8	<6.6	1 × 10 <sup>-4</sup>
203 реэкстракт ТПЭ	<1	15,3	35	0.05
303 реэкстракт U	1.6 × 10 <sup>3</sup>	313	260	30
Баланс, %	80	58	32	68

**Таблица 9.** Результаты эксперимента

Поток	<sup>239</sup> Pu, Бк/мл	<sup>241</sup> Am, Бк/мл	<sup>152</sup> Eu, Бк/мл	U, г/л	La, г/л	Ce, г/л	Pr, г/л	Nd, г/л	Sm, г/л	Eu, г/л	Gd, г/л	Zr, г/л
101 исходный	2 × 10 <sup>3</sup>	586	964	43.9	0.025	0.42	0.46	0.41	0.38	0.36	0.37	0.27
105 рафинат	<1	3.5	<6.6	2 × 10 <sup>-4</sup>	4 × 10 <sup>-5</sup>	5 × 10 <sup>-5</sup>	10 <sup>-5</sup>	3.2 × 10 <sup>-4</sup>	10 <sup>-5</sup>	2 × 10 <sup>-5</sup>	3 × 10 <sup>-5</sup>	4 × 10 <sup>-4</sup>
203 реэкстракт ТПЭ	<1	301.4	471.8	0.1	8.6 × 10 <sup>-3</sup>	0.21	0.26	0.21	0.17	0.11	0.11	0.072
303 реэкстракт U	1,1 × 10 <sup>3</sup>	27.2	<5.8	24.2	8 × 10 <sup>-4</sup>	9 × 10 <sup>-4</sup>	9 × 10 <sup>-4</sup>	2.6 × 10 <sup>-3</sup>	5 × 10 <sup>-4</sup>	3 × 10 <sup>-4</sup>	3 × 10 <sup>-4</sup>	0.021
Баланс, %	110	113	100	111	75	100	113	104	90	61	60	69

отношению к исходному раствору приводит к образованию достаточно большого количества вторичных отходов.

### ФОНДОВАЯ ПОДДЕРЖКА

Работа выполнена при финансовой поддержке Государственной корпорации по атомной энергии «Росатом».

### КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Volk V.I., Boytsova T.A., Dvoeglazov K.N., Shadrin A. Yu., Cheshuyakov S.A., Chikov A.V., Shlyazhko D.S. // Nucl. Eng. Des. 2021. Vol. 385. Article 111493. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111493>
2. Horwitz E.P., Kalina D.G., Diamond H., Vandegrift G.F. // Solvent Extr. Ion Exch. 1985. Vol. 3. N 1–2. P. 75.
3. Ozawa M., Koma Y., Nomura K. Tanaka Y. // J. Alloys Compd. 1998. Vol. 271–273. P. 538.
4. Koma Y., Watanabe M., Nemoto S., Tanaka Y., Counter A. // Solvent Extr. Ion Exch. 1998. Vol. 16. N 6. P. 1357.
5. Shadrin A., Kamachev V., Kvasnitsky I. et al. // GLOBAL Conf. Proc. Tsukuba, Oct. 9, 2005. Paper N 129.
6. Koma Y., Watanabe M., Nemoto S., Tanaka Y. // Nucl. Sci. Technol. 1998. Vol. 35. N 2. P. 130.
7. Розен А.М., Волк В.И., Бахрушин А.Ю., Захаркин Б.С., Карташева Н.А., Крупнов Б.В., Никологова З.И. // Радиохимия. 1999. Т. 41. № 3. С. 205–212.
8. Sasaki Y., Umetani S.J. // J. Nucl. Sci. Technol. 2006. Vol. 43. P. 794–797.
9. Kulyako Y.M., Malikov D.A., Chmutova M.K., Litvina M.N., Myasoedov B.F. // J. Alloys Compd. 1998. Vol. 271–273. P. 760–764.
10. Lumetta G.J., Carter J.C., Gelis A.V., Vandegrift G.F. // Nuclear Energy and the Environment. 2010. Ch. 9. P. 107.
11. Lumetta G.J., Gelis A.V., Braley J.C., Carter J.C., Pittman J.W., Warner M.G. // Solvent Extr. Ion Exch. 2013. Vol. 31. P. 223.
12. Uhnak N.E.F., Nash K.L. // Solvent Extr. Ion Exch. 2021. Vol. 39. P. 18.
13. Distler P., Mindova M., John J., Babain V.A., Alyapyshev M.Y., Tkachenko L.I. et al. // Solvent Extr. Ion Exch. 2020. Vol. 38. N 2. P. 180.

14. *Tabata C., Nakase M., Harigai M., Shirasaki K., Sunaga A., Yamamura T.* // Sep. Sci. Technol. 2022. Vol. 57. P. 1097.
15. *Visser A.E., Rogers R.D.* // J. Solid State Chem. 2003. Vol. 171. P. 109.
16. *Mohapatra P.K., Kandwal P., Iqbal M., Huskens J., Murali M.S., Verboom W.* // Dalton Trans. 2013. Vol. 42. P. 4343.
17. *Rout A., Venkatesan K.A., Srinivasan T.G., Vasudeva Rao P.R.* // Radiochim. Acta. 2009. Vol. 97. P. 719.
18. *Sun T., Zhang Y., Wu Q., Chen J., Xia L., Xu C.* // Solvent Extr. Ion Exch. 2017. Vol. 35. P. 408.
19. *Wu W., Sun T., Pu N., Meng D., Li Y., Dang J. et al.* // New J. Chem. 2018. Vol. 42. P. 9098.
20. *Gujar R.B., Ansari S.A., Goswami D., Mohapatra P.K.* // Sep. Sci. Technol. 2019. Vol. 54. P. 1443.

## TECHNOLOGY FOR REPROCESSING MOTHER LIQUOR AND WASHING SOLUTION FROM CRYSTALLIZATION PURIFICATION OF HTGR SNF

L. I. Tkachenko<sup>a</sup>, V. L. Vidanov<sup>b, \*</sup>, E. V. Kenf<sup>a</sup>, N. Yu. Volodina<sup>a</sup>,  
Ya. O. Pleshakov<sup>a</sup>, A. Yu. Shadrin<sup>c</sup>

<sup>a</sup>*Khlopin Radium Institute, 2-i Murinskii pr. 28,  
St. Petersburg, 194021 Russia*

<sup>b</sup>*Bochvar High-Technology Research Institute of Inorganic Materials,  
ul. Rogova 5a, Moscow, 123098 Russia*

<sup>c</sup>*Science and Innovations Private Enterprise for Nuclear Industry Scientific Development, ul. Bol'shaya Ordynka 44,  
str. 3, Moscow, 119017 Russia*

\*e-mail: vlvidanov@bochvar.ru

Received November 22, 2023; revised March 18, 2024; accepted March 18, 2024

The extractants diphenyl-N,N-dioctylcarbamoylmethylphosphine oxide and diphenyl-N,N-diisobutylcarbamoylmethylphosphine oxide for the processing of spent fuel were tested. The conditions for extraction and separation of uranium and TPE–REE were determined. A technological scheme was proposed for processing spent nuclear fuel from high-temperature gas-cooled reactors. During dynamic testing, at least 99.9% of uranium and plutonium and at least 99.5% of americium and rare earth elements were extracted. The TPE + REE and U+Pu fractions were isolated. The U+Pu fraction contained approximately 5% Am, while the TPE + REE fraction had less than 0.1% U and Pu.

**Keywords:** liquid extraction, HTGR SNF, fractionation, actinides, rare earth elements, carbamoylmethylphosphine oxide, *m*-nitrobenzotrifluoride, tributyl phosphate.