

УДК 621.039.738

СРАВНЕНИЕ ДИНАМИЧЕСКИХ ИСПЫТАНИЙ СХЕМЫ МОДИФИЦИРОВАННОГО ПУРЕКС-ПРОЦЕССА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ 30- И 45%-НОГО ТБФ В ИЗОПАРАФИНАХ

© 2024 г. А. А. Наумов*, Н. Д. Голецкий, Е. А. Пузиков, М. В. Мамчич, А. С. Кудинов

Радиевый институт им. В.Г. Хлопина, 194021, Санкт-Петербург, 2-й Муринский пр., д. 28

*e-mail: naumov@khlopin.ru

Получена 18.05.2023, после доработки 25.12.2023, принята к публикации 29.12.2023.

Приведены результаты испытаний на стенде центробежных экстракторов схемы первого экстракционного цикла в защитных перчаточных боксах на модельных растворах ОЯТ с использованием экстракционной системы на основе 30- и 45%-ного ТБФ в изопарафинах. Показано, что повышение концентрации ТБФ до 45% приводит к ухудшению показателей качества продуктов, полученных по аналогичной схеме при испытаниях с использованием экстракционной системы на основе 30%-ного ТБФ в Изопаре L на модельных растворах ОЯТ. Сопоставление экспериментальных и рассчитанных по математической модели профилей распределения компонентов по ступеням показало удовлетворительное совпадение значений концентраций азотной кислоты и уранилнитрата. Вместе с тем выявлена необходимость доработки математической модели экстракции циркония, технеция и нептуния с учетом их взаимодействия с комплексообразователями.

Ключевые слова: переработка отработавшего ядерного топлива, первый экстракционный цикл, экстракция, трибутилфосфат, Изопар M/L

DOI: 10.31857/S0033831124010054

В работе [1] была предложена схема модифицированного Пурекс-процесса (рис. 1) с использованием повышенной с 30 до 45% концентрации трибутилфосфата (ТБФ) в Изопаре М. Преимуществом увеличения концентрации ТБФ в первом экстракционном цикле является повышение производительности установки, что дает снижение объема высокоактивного рафината, поступающего на операции упаривания и остекловывания. Ранее было показано [1], что верхний предел концентрации ТБФ составляет 45%, поскольку работа экстракционного оборудования возможна с разницей плотностей водной и органических фаз, образующихся в каскадах блоков, не менее 5%. Расчеты профилей экстракционных блоков по унифицированной математической модели [2, 3] показали преимущества схемы с повышенной концентрацией ТБФ по сравнению с классическим вариантом схемы с использованием 30%-ного ТБФ в предельных углеводородах по таким показателям, как извлечение Zr и Tc из высокоактивного рафината и локализация этих элементов в соответствующие резектракты. Извлечение циркония позволяет избежать осадкообразования при упаривании высокоактивного рафината, при этом технеций соэкстрагируется с цирконием.

Настоящая работа является продолжением исследований в направлении применения единого экстрагента при обращении с отработавшим ядерным топливом (ОЯТ) и высокоактивным рафинатом [4, 5].

Повышенная концентрация ТБФ позволяет сократить количество используемого высаливателя (нитрата железа) при фракционировании высокоактивного рафината на операции группового извлечения трансплутониевых и редкоземельных элементов. Целью данной работы является сопоставление результатов динамических испытаний модифицированной схемы обращения с ОЯТ с использованием 30- и 45%-ного ТБФ в изопарафинах для подтверждения принципиальной возможности перехода на повышенную концентрацию ТБФ, а также проверка адекватности математической модели путем сравнения профилей распределения компонентов по ступеням экстракционного каскада с полученными экспериментальными данными.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе для проведения исследований использовали реактивы: азотную кислоту (Реахим), бихромат калия, гидразингидрат, ванадат аммония, гидрокарбонат натрия, цирконилнитрат, уранилнитрат марки х.ч., ацетогидроксамовую кислоту (АГК) производства Радиевого института, перекись водорода квалификации ос.ч., надуксусную кислоту 36–40 мас% (Merck CAS79–21–0). Азотнокислые растворы молибдена получали растворением в 6–9 моль/л HNO_3 молибденовой проволоки при 20–50°C [6]. В качестве индикаторных меток использовали ^{239}Pu ,

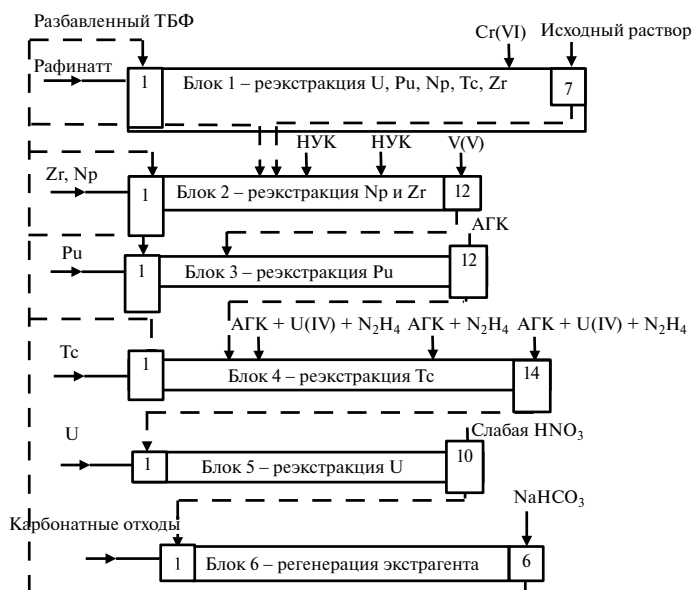


Рис. 1. Принципиальная схема испытаний переработки ОЯТ.

^{237}Np , ^{239}Np , $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и ^{99}Tc . ТБФ чистотой не менее 99.5% («Химпром», Волгоград) очищали перманганатно-щелочной обработкой [7]. Разбавители Изопар М и L (ExxonMobil Chemical) очищали по стандартной методике — промывкой с концентрированной серной кислотой, затем щелочью и водой [8]. Следует отметить, что замена углеводородного разбавителя с Изопара L на Изопар М существенно не влияет на коэффициенты распределения компонентов.

Уран(IV) получали на проточных переменноточных электролизерах.

Концентрацию азотной кислоты определяли прямым титрованием с индикатором бромкрезоловый синий, а в присутствии солей урана — объемным титрованием раствором гидроксида натрия с индикатором в среде 2% NaF [9]. Концентрацию урана определяли ванадометрическим титрованием [10]. Концентрацию Мо определяли стандартным роданидным спектрофотометрическим методом [11] на спектрофотометре UNICO 1201. Концентрацию циркония определяли спектрофотометрическим методом с ализариновым красным S [12].

Для оперативного контроля распределения ^{99}Tc использовали радиоактивную метку $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ с последующим контролем концентрации ^{99}Tc стандартным спектрофотометрическим методом с тиомочевинной [13].

Концентрацию радиоактивных элементов ^{239}Np и $^{99\text{m}}\text{Tc}$ определяли радиометрически по γ -спектру [14] на сцинтилляционном гамма-спектрометре МКГБ-1 РАДЭК с блоком детектирования БДЭГ-80 № DU-LC7-RI, сцинтиллятор NaI 63 × 63. Концентрацию ^{239}Pu определяли радиометрически по α -спектру [15] на спектрометре Canberra Model 7401.

Относительная погрешность описания экспериментальных данных визуального титрования составляет не более 5%, спектрофотометрических измерений — до 10%, радиометрических — 10%.

Динамические испытания технологической схемы проводили на автоматизированном стенде центробежных экстракторов МЦЭ-30-12, работающих в противоточном режиме и обвязанных полиэтиленовыми линиями в блоки согласно технологической схеме, представленной на рис. 1. Камера смешения экстрактора имеет объем 5 мл, а камера разделения — 15 мл. В условиях экспериментов среднее время контакта фаз в камере смешения составляло 20–40 с, а в камере разделения — от 60 до 120 с. Взаимный унос фаз составляет не более 0.02 об%. Стенд оснащен весовыми дозаторами реагентов (14 шт.), дозаторами радиоактивного исходного раствора (2 шт.), системой дозирования органической фазы с ее повторным использованием после регенерации, пробоотборными бесконтактными высокочастотными кондуктометрами «Краб» (2 шт.) и проточными гамма-абсорбциометрами (3 шт.).

В качестве объекта динамических испытаний использовали схему модифицированного Пурекс-процесса (рис. 1). Схема предусматривает извлечение U, Pu, Np, Tc и Zr созэкстракцией последнего с Cr(VI) на головном блоке. Дальнейшие операции с экстрактом предусматривают последовательные операции реэкстракции Zr и Np(V), стабилизированного надуксусной кислотой (НУК) в присутствии ванадия (V) для повышения порога осадкообразования пероксидов актинидов, реэкстракцию Pu ацетогидроксамовой кислотой, реэкстракцию Tc(IV), предварительно восстановленного с помощью U(IV), реэкстракцию урана подкисленной водой и окончательную регенерацию экстрагента гидрокарбонатом натрия.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Динамические испытания на основе 30- и 45%-ного ТБФ в Изопаре L/M

Для испытаний схемы первого экстракционного цикла в разных режимах использовали растворы 30- и 45%-ного ТБФ в Изопаре L и M соответственно. В качестве исходного модельного раствора ОЯТ для испытаний обоих режимов схемы использовали: 2 моль/л HNO_3 , 550 г/л U, 2.6 г/л Zr, 0.4 г/л Mo, 30 мг/л Pu, 50 мг/л Np, 1.74 МБк/л ^{239}Np , 660 мг/л Tc, 1.31 МБк/л $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Состав имитирует раствор ОЯТ ВВЭР-1000 с выгоранием 50 ГВт-сут/т после операции осаждения молибдата циркония на операции растворении и фильтрации ОЯТ. Продолжительность динамических экспериментов составила по 12 ч каждый, что было достаточно для выхода на стационарный режим на основании постоянства концентраций компонентов в отбираемых пробах в последние 3 ч работы установки.

Таблица 1. Показатели эффективности процесса переработки ОЯТ

Поток	Выход компонента в продукт, %											
	Схема с 30%-ным ТБФ						Схема с 45%-ным ТБФ					
	U	Pu	Np	Zr	Tc	Mo	U	Pu	Np	Zr	Tc	Mo
Исходный раствор ОЯТ	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
Рафинат	0.1	<0.01	<0.01	10	0.7	99.9	0.1	<0.01	<0.01	2.2	<0.01	94
Реэкстракт Np	<0.1	<0.1	97.5	90	8.4	<0.1	<0.1	0.1	73.1	98	48.8	6
Реэкстракт Pu	<1	99.8	2	—	0.6	—	<0.1	97.9	25.1	0.3	0.9	—
Реэкстракт Tc	<0.1	<0.5	<0.15	—	91	—	0.3	1.5	1.8	0.1	50.3	—
Реэкстракт U	99.8	—	—	—	—	—	99.7	—	—	—	—	—

Сравнение показателей режимов работы первого экстракционного цикла модельных растворов ОЯТ приведено в табл. 1. При сравнении режимов технологической схемы с использованием 30- и 45%-ного ТБФ в Изопаре L и M установлено, что распределение компонентов по продуктам технологической схемы имеет схожий характер. В обоих вариантах уран, молибден и цирконий локализуются эффективно каждый в своем продукте. Стоит отметить, что в случае 45%-ного ТБФ содержание циркония в рафинате снижается в 5 раз, что положительно скажется при дальнейшем фракционировании высокоактивного рафината, например с помощью ТОДГА в полярном разбавителе [16]. С использованием такого экстрагента цирконий обычно распределяется во всех технологических продуктах. В случае использования 30%-ного ТБФ в Изопаре L удается эффективно локализовать нептуний на 97.5% в свой продукт, что обусловлено его стабилизацией надуксусной кислотой в форме Np(V). Однако при использовании 45%-ного ТБФ результат несколько иной и только 73.1% нептуния выводится на втором блоке. По всей видимости, это обусловлено стабилизацией части нептуния в форме Np(VI), которая образуется при окислении нептуния бихроматом калия на первом блоке, а также за счет более высоких коэффициентов распределения по сравнению с 30%-ным ТБФ. Таким образом, Np(VI), вероятно, в значительной части остается в экстракте и не успевает полностью прореагировать на втором блоке с надуксусной кислотой и перейти в форму Np(V), что приводит к выведению 25.1% нептуния с реэкстрактом плутония.

В случае 30%-ного ТБФ удалось вывести до 91% Tc на блоке реэкстракции технеция и только 8.4% на блоке реэкстракции Np и Zr. С ростом концентрации ТБФ вывести из процесса технеций на втором блоке становится труднее, что было подтверждено в опыте с 45%-ным ТБФ (табл. 3).

При использовании 45%-ного ТБФ также возникают сложности с реэкстракцией плутония и нептуния на третьем блоке, что приводит к необходимости увеличения подачи реэкстрагирующего раствора АГК.

Таким образом, увеличение концентрации ТБФ негативно сказывается практически на всех продуктах, кроме урана, молибдена и циркония, что приводит к необходимости понизить концентрацию ТБФ

с 45 до 40%. Предположительно, это позволит обеспечить показатели реэкстракции компонентов на соответствующих блоках. Для этого были проведены сравнительные расчеты экспериментальных и расчетных профилей по математической модели.

Анализ результатов проведенных динамических испытаний с использованием экстракционных систем на основе 30- и 45%-ного ТБФ показал, что даже при воспроизведении кислотных профилей и сохранении свободной доли экстрагента при насыщении ураном по блокам с увеличением концентрации ТБФ до 45% несколько увеличивается содержание плутония в реэкстракте технеция, а нептуний не удается локализовать в реэкстракте Zr и Np, так как значительная его часть реэкстрагируется совместно с плутонием и около 2% переходит в реэкстракт технеция. Кроме того, было выявлено, что до половины количества технеция реэкстрагируется совместно с нептунием и цирконием. Единственным преимуществом является снижение концентрации циркония в рафинате в 5 раз, что позволяет снизить риски осадкообразования при последующем обращении с высокоактивным рафинатом. Таким образом, применение 30%-ного ТБФ в изопаре L более полно решает поставленные задачи исследуемой схемы по локализации нептуния до 98% на втором блоке и технеция до 90% на четвертом блоке.

Сравнение расчетных и экспериментальных профилей распределения компонентов

На рис. 2 приведено сопоставление расчетного и экспериментального распределения HNO_3 и уранилнитрата по ступеням 1-го блока в водной и органической фазах в опытах с 30 (а, б) и 45%-ным (в, г) ТБФ. Совпадение расчетных и экспериментальных значений концентраций азотной кислоты можно признать удовлетворительным в обоих опытах с учетом того, что в ходе опыта с 45%-ным ТБФ значения концентрации HNO_3 в рафинате варьировались от 0.1 до 0.7 моль/л, а в экстракте — от 0.3 до 0.5 моль/л. Вместе с тем концентрация уранилнитрата в экстракте U, Pu, Np на головном блоке в ходе опыта практически соответствовала рассчитанному по балансу значению 151 г/л. Расчетные профили распределения технеция по ступеням 1-го блока в водной фазе качественно отражают изменение его концентрации

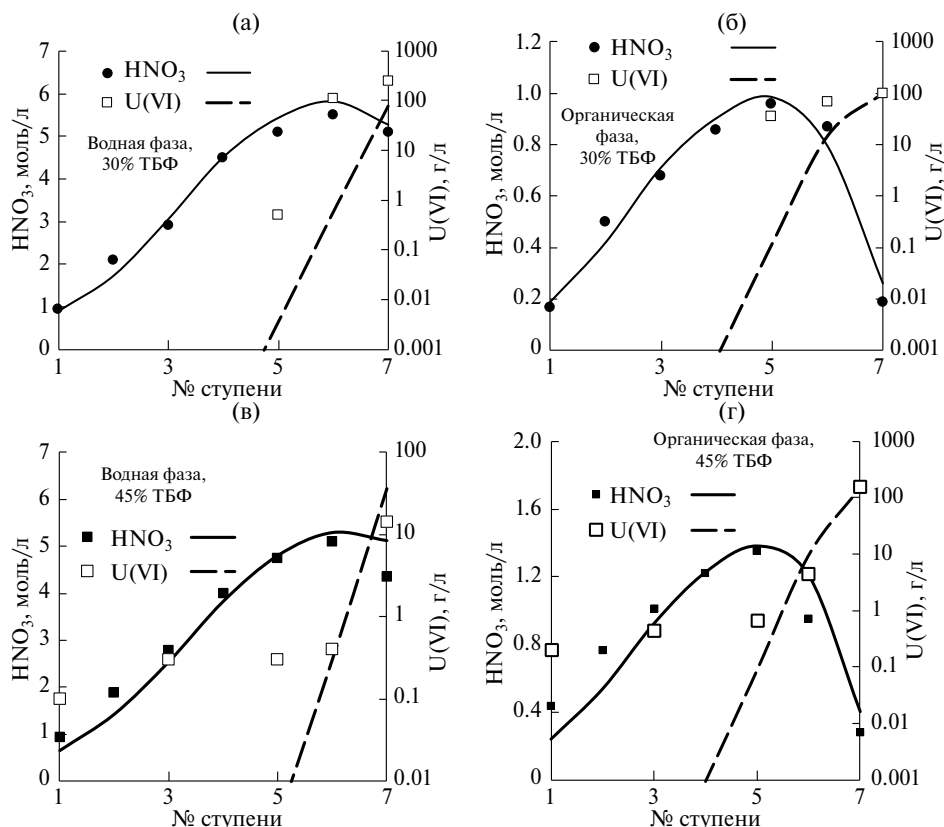


Рис. 2. Сопоставление расчетного и экспериментального распределения HNO_3 и U(VI) по ступеням 1-го блока в водной и органической фазах в опытах с 30- (а, б) и 45%-ным (в, г) ТБФ. Точки — эксперимент, линии — расчет.

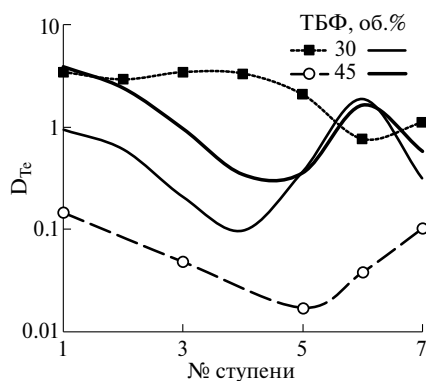


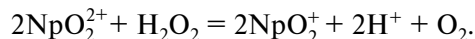
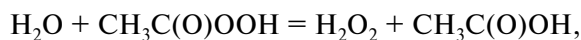
Рис. 3. Расчетные и экспериментальные значения коэффициентов распределения технеция по ступеням 1-го блока в опытах с 30- и 45%-ным ТБФ.

в обоих опытах. Однако расчетные значения коэффициентов распределения T_c для 30%-ного ТБФ существенно ниже, а для 45%-ного ТБФ — выше экспериментальных (рис. 3), что может быть вызвано различием в распределении циркония и хрома (VI), оказывающих сильное влияние на экстракцию технеция [17].

Зависимости расчетных и экспериментальных профилей распределения азотной кислоты и уранилнитрата по ступеням 2-го блока (рис. 4) демонстрируют удовлетворительную сходимость. Зависимости для

30- и 45%-ного ТБФ идут практически параллельно друг другу, причем для 45%-ного ТБФ характерно более низкое содержание азотной кислоты и уранилнитрата в водной фазе и более высокое — в органической.

Приведенные на рис. 5, а значения коэффициентов распределения Np на ступенях 2-го блока в опыте с 30%-ным ТБФ лежат существенно ниже рассчитанных по модели значений для Np(IV) и Np(VI) (без учета процессов окисления-восстановления), что свидетельствует об успешном восстановлении Np(VI) до слабоэкстрагируемой формы Np(V) с помощью надуксусной кислоты по уравнениям [18]:



Вместе с тем в опыте с 45%-ным ТБФ значения коэффициентов распределения Np оказались почти на порядок выше, чем в опыте с 30%-ным ТБФ, и достаточно близки к расчетным значениям для Np(IV) . Вероятно, это связано с тем, что на первом блоке Np экстрагируется в форме Np(IV) , не успевая переходить в Np(VI) . Об этом свидетельствуют значения коэффициентов распределения Np на первом блоке, которые в эксперименте с 30%-ным ТБФ были близки к 1.0, что характерно для Np(VI) [19], в то время как в опыте с 45%-ным ТБФ

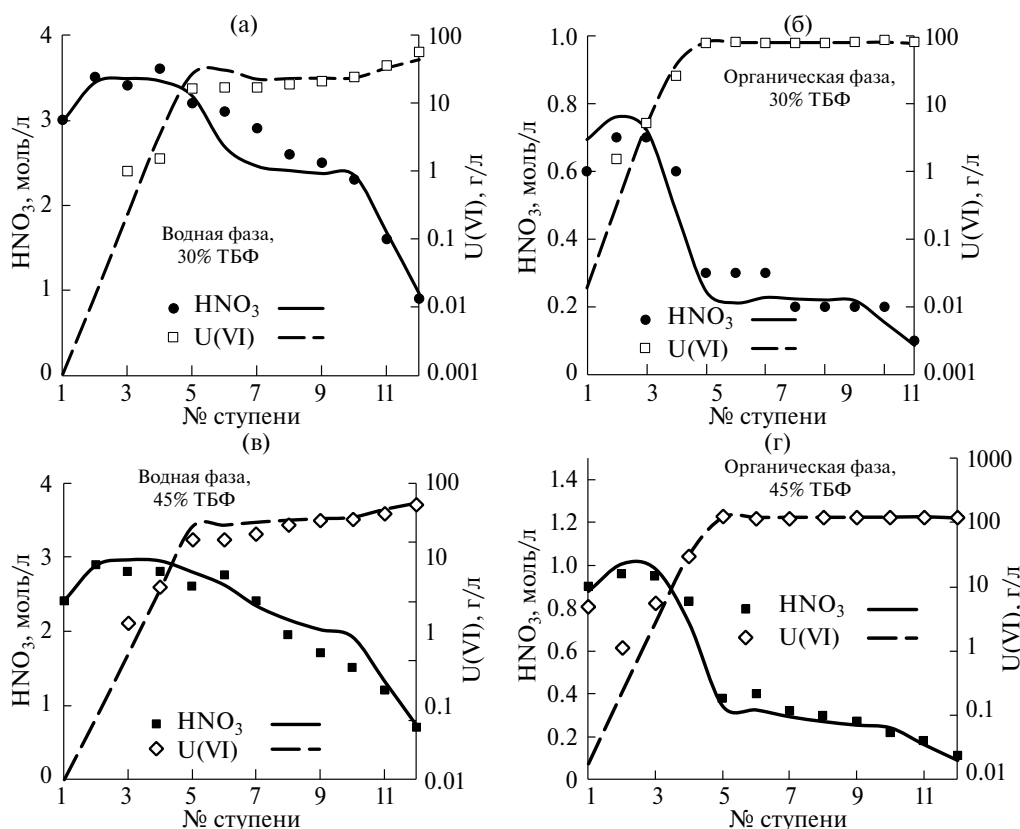


Рис. 4. Расчетное и экспериментальное распределение HNO_3 и U(VI) по ступеням 2-го блока в водной и органической фазах в опытах с 30- (а, б) и 45%-ным (в, г) ТБФ. Точки — эксперимент, линии — расчет.

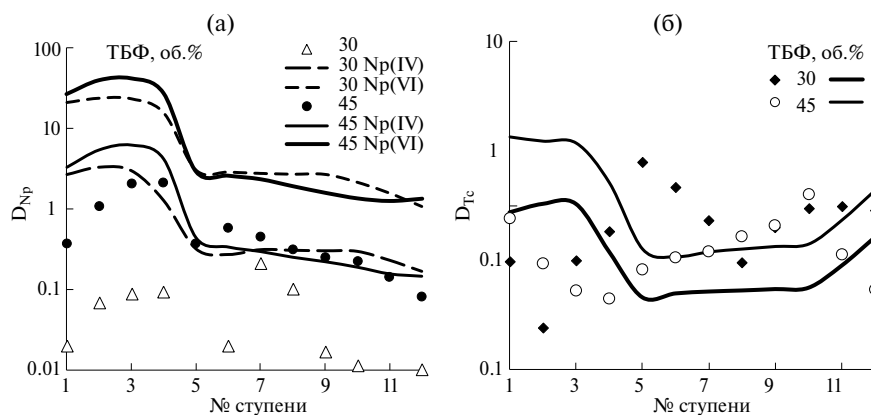


Рис. 5. Расчетные и экспериментальные значения коэффициентов распределения нептуния (а) и технеция (б) на ступенях 2-го блока в опытах с 30- и 45%-ным ТБФ.

коэффициенты распределения Np оказались ниже 0.5, что более близко к значениям коэффициентов распределения Np(IV) (рис. 5, а).

Значения коэффициентов распределения Tc на ступенях 2-го блока в среднем близки к рассчитанным по модели значениям, однако характер их зависимости от номера ступени не совпадает с расчетным (рис. 5, б), что, вероятно, связано с распределением циркония по ступеням 2-го блока. Представляется целесообразным изменить для 45%-ного ТБФ порядок выведения компонентов

из экстракта, предусмотрев на втором экстракционном блоке совместную реэкстракцию циркония и технеция за счет увеличения концентрации азотной кислоты и расхода реэкстрагирующего раствора. При этом вывод нептуния предполагается перенести в 4-й блок после блока реэкстракции плутония [18].

На рис. 6 сопоставлено экспериментальное и расчетное распределение урана, плутония и технеция по ступеням в водной фазе 3-го блока. Из него следует, что повышение концентрации ТБФ до 45% не ухудшает реэкстракцию плутония, концентрация

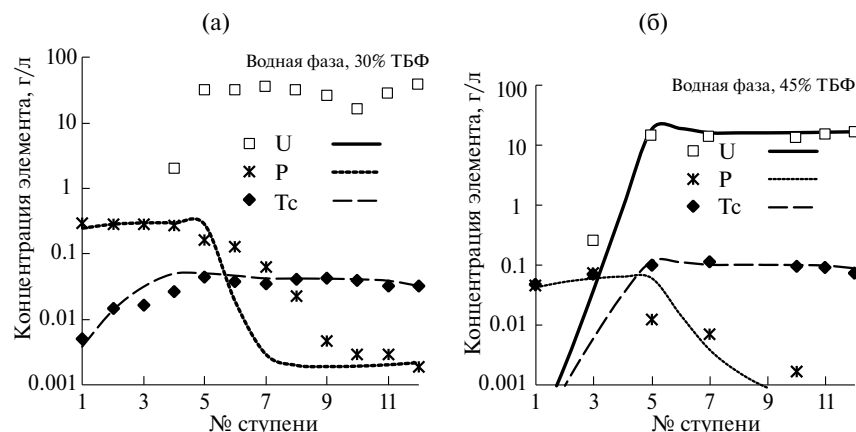


Рис. 6. Расчетное и экспериментальное распределение U, Pu и Tc по ступеням 3-го блока в водной фазе в опытах с 30- (а) и 45%-ным (б) ТБФ.

которого в водной фазе снижается до 1–2 мг/л, а в органической — до 0.1 мг/л к 10-й ступени блока.

Распределение азотной кислоты, урана и технеция по ступеням в водной фазе 4-го блока (рис. 7) показывает, что в опыте с 45%-ным ТБФ реэкстракция технеция проходила значительно хуже. Это может быть связано с более высокой по сравнению с опытом с 30%-ным ТБФ концентрацией азотной кислоты в водной фазе ступеней блока, препятствующей эффективному восстановлению Tc(VII) до Tc(IV).

Таким образом, сопоставление результатов динамических испытаний на 30- и 45%-ном ТБФ с результатами математического моделирования профилей распределения макрокомпонентов позволило выявить различия в механизмах экстракции и реэкстракции нептуния. При использовании 30%-ного ТБФ коэффициенты распределения нептуния на первом блоке в два раза выше по сравнению с 45%-ным ТБФ, что косвенно подтверждает переход нептуния в Np(VI). При этом на втором блоке Np(VI) стабилизируется НУК в форме Np(V), поскольку на ступенях второго

Таблица 2. Показатели работы второго блока

Поток	Модифицированный Пурекс-процесс, 40%-ный ТБФ, %				
	U(VI)	Pu(IV)	Np(IV)	Zr(IV)	Tc
Экстракт U, Pu, Np, Tc и Zr	100	100	100	100	100
Реэкстракт Zr и Np	<0.04	<0.3	96.8	100	12
Экстракт U, Pu и Tc	99.96	99.7	3.2	0	88

блока коэффициенты распределения нептуния на порядок ниже, чем должны быть у валентной формы Np(IV). Однако в случае 45%-ным ТБФ аналогичных валентных переходов Np(IV) в Np(VI) и затем в Np(V) не наблюдается, что, в свою очередь, подтверждается низкой эффективностью его реэкстракции на втором блоке (до 75%), а также совпадением экспериментальных и расчетных значений коэффициентов распределения Np(IV) на этом блоке. Вероятно, это обусловлено ростом коэффициентов распределения Np(IV)

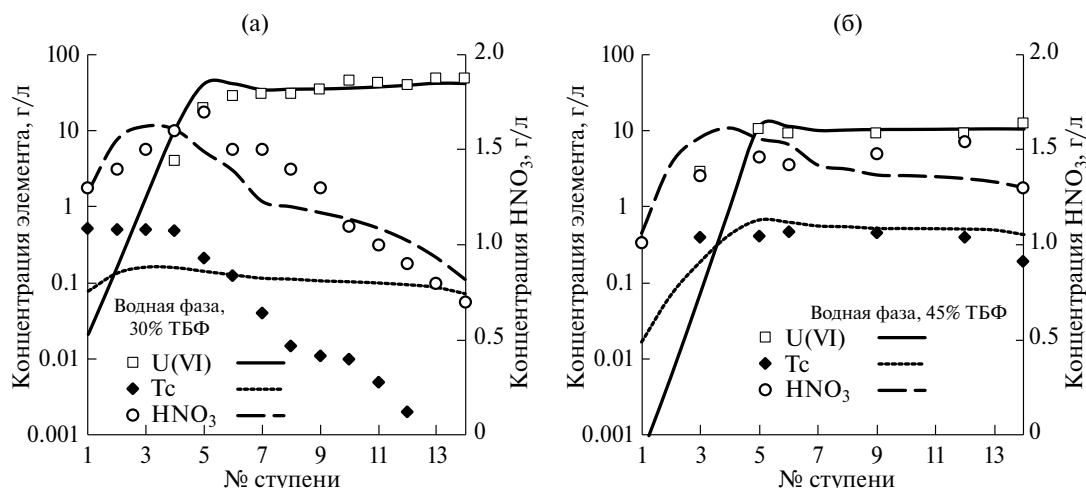


Рис. 7. Расчетное и экспериментальное распределение U, HNO и Tc по ступеням 4-го блока в водной фазе в опытах с 30- (а) и 45%-ным (б) ТБФ.

с ростом концентрации ТБФ, что приводит к тому, что в таких условиях нептуний быстрее экстрагируется, чем успевает перейти в Np(VI) .

В связи с этим были проведены оптимизационные расчеты реэкстракции нептуния на втором блоке с концентрацией ТБФ, пониженной до 40% (табл. 2).

По полученным расчетным данным (табл. 2) можно ожидать, что локализация нептуния и циркония будет проходить не хуже, чем с использованием 30%-ного ТБФ, что в дальнейшем потребует проведения дополнительных динамических испытаний такого режима.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты динамических испытаний с использованием экстракционной системы на основе 45%-ного ТБФ показали принципиальную работоспособность модифицированной схемы, однако качество получаемых продуктов не удовлетворяет требованиям, предъявляемым к первому экстракционному циклу Пурекс-процесса. Лучшие результаты по локализации в свои продукты (97.5% нептуния, 99.8% плутония, 91% технеция) достигнуты при использовании 30%-ного ТБФ в Изопаре М.

Сопоставление рассчитанных и экспериментальных профилей распределения компонентов по ступеням экстракционных блоков продемонстрировало применимость математической модели как для 30-, так и для 45%-ного ТБФ в части макрокомпонентов. Вместе с тем модель экстракции микрокомпонентов нуждается в доработке с учетом их взаимодействия с комплексообразователями.

Дальнейшие исследования в данном направлении будут посвящены динамическим испытаниям с пониженной до 40% концентрацией ТБФ, так как расчеты показывают принципиально схожие показатели по локализации нептуния, циркония и технеция с динамическими испытаниями на 30%-ном ТБФ. При этом 40%-ный ТБФ может быть использован как для переработки растворов ОЯТ, так и при обращении с высокоактивным рафинатом.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы выражают признательность доктору технических наук, профессору Б. Я. Зильберману за вклад в развитие идеи модифицированного Пурекс-процесса и помощь в работе.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Данная работа финансировалась за счет средств бюджета организаций. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным исследованием получено не было.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы данной статьи заявляют об отсутствии конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Наумов А.А., Голецкий Н.Д., Пузиков Е.А., Мамчик М.В., Кудинов А.С., Сорока П.И. // Радиохимия. 2023. Т. 65. № 2. С. 179–187.
2. Пузиков Е.А., Зильберман Б.Я., Голецкий Н.Д., Блажева И.В., Кудинов А.С. // Радиохимия. 2019. Т. 61. № 5. С. 397–403.
3. Пузиков Е.А., Зильберман Б.Я., Голецкий Н.Д., Блажева И.В., Кудинов А.С. // Радиохимия. 2020. Т. 62. № 4. С. 329–335.
4. Zilberman B.Ya., Goletskiy N.D., Puzikov E.A., Naumov A.A., Kamaeva E.A., Kudinov A.S., Petrov Yu.Yu., Aksyutin P.V., Alekseenko V.N., Skurydina E.S. // Solvent Extr. Ion Exch. 2019. Vol. 37. N 6. P. 1–11.
5. Фёдоров Ю.С., Куляко Ю.М., Блажева И.В., Голецкий Н.Д., Зильберман Б.Я., Металиди М.М., Петров Ю.Ю., Рябкова Н.В., Винокуров С.Е., Трофимов Т.И., Мясоедов Б.Ф. // Радиохимия. 2016. Т. 58. № 3. С. 229–233.
6. Esbelin E., Gareil P., Masson M., Emenc J.L. // Anal. Chim. Acta. 2001. Vol. 433. N 2. P. 299–310.
7. Blake C.A., Davis J.V., Scmitt J.M. // Nucl. Sci. Eng. 1963. Vol. 17. P. 626–637.
8. Мазуренко Е.А. Справочник по экстракции. Киев: Техника, 1972. 447 с.
9. Пономарёв В.Д., Иванова Л.И., Самокиш И.И., Зинченко Л.М., Небовидова З.П., Касьяненко С.И., Калашикова Н.А. Практикум по аналитической химии / Под ред. В. Д. Пономарева, Л. И. Ивановой. М.: Высш. шк., 1983. С. 271.
10. Марков В.К., Виноградов А.В., Елинсон С.В., Клыгин А.Е., Моисеев И.В. Уран, методы его определения. М: Атомиздат, 1960. С. 163–164.
11. Упор Э., Мохай М., Новак Д. Фотометрические методы определения следов неорганических соединений. М.: Мир, 1985. 359 с.
12. Елинсон С.В., Петров К.И. Цирконий. Химические и физические методы анализа. М.: Атомиздат, 1960. 212 с.
13. Рябчиков Д.И., Рябухин В.А. Аналитическая химия редкоземельных элементов и иттрия. М.: Наука, 1966. 166 с.
14. Маргулис У.Л., Марей А.Н., Тарасенко Н.В., Ютуккенберг Ю.М. Дозиметрические и радиометрические методики / Под ред. Н. Г. Гусева. М.: Атомиздат, 1966. 444 с.
15. Бекман И.Н. Плутоний: Учеб. пособие. М.: МГУ, 2010. 165 с.
16. Мамчик М.В., Голецкий Н.Д., Ткаченко Л.И., Визный А.Н., Наумов А.А., Белова Е.В., Пузиков Е.А., Зильберман Б.Я. // Радиохимия. 2021. Т. 63. № 4. С. 372–380.
17. Пузиков Е.А., Зильберман Б.Я., Фёдоров Ю.С., Блажева И.В., Криницын А.П., Сытник Л.В., Рябков Д.В., Голецкий Н.Д. // Радиохимия. 2015. Т. 57. № 3. С. 233–240.
18. Zielen A.J., Sullivan J.C., Cohen D., Hindman J.C. // J. Am. Chem. Soc. 1958. Vol. 80. N 21. P. 5632–5635.
19. Зильберман Б.Я., Фёдоров Ю.С., Пузиков Е.А., Блажева И.В. Создание базы данных и адаптация математической модели Пурекс-процесса для условий переработки высоковыгоревшего ОЯТ АЭС: Препринт НПО РИ. N264. СПб., 2009. 80 с.

COMPARISON OF DYNAMIC TESTS OF THE MODIFIED PUREX PROCESS FLOWSHEET USING 30 AND 45% TBP IN ISOPARAFIN

A. A. Naumov*, N. D. Goletskii, E. A. Puzikov, M. V. Mamchich, and A. S. Kudinov

Khlopin Radium Institute, 2 Murinskii pr., 28, St. Petersburg, 194021 Russia

**e-mail: naumov@khlopin.ru*

Received May 18, 2023; revised December 25, 2023; accepted December 29, 2023

Abstract—Results of centrifugal contactor rig trials of the flowsheet of the first solvent extraction cycle in protective glove boxes using simulated solutions of spent nuclear fuel and 30 and 45% TBP in isoparaffin as a solvent are compared. It was shown that an increase in the TBP concentration to 45% resulted in deterioration of the quality of the products obtained by the same flowsheets with 30% TBP in Isopar L as a solvent. Comparison of experimental and computer simulated profiles of component distribution across the stages of extraction units demonstrated satisfactory agreement in nitric acid and uranium concentrations. At the same time, it was found that simulation model of zirconium, technetium, and neptunium extraction requires improvement considering interaction of these elements with complexing agents.

Keywords: nuclear fuel reprocessing, first extraction cycle, extraction, tributyl phosphate, Isopar M/L