

用 HDEHP 萃淋树脂回收纯化 ^{252}Cf *

黄少平 居崇华 魏连生

(中国原子能科学研究院, 北京)

关键词 Cf, Cm, TTHA, HDEHP-萃淋树脂。

一、前 言

^{252}Cf 是目前应用较广泛的超铀元素之一。 ^{252}Cf 通常可以从堆照镅、钆或钆靶中提取^[1], 也可以从过期 ^{252}Cf 自发裂变中子源中用离子交换法^[2], HDEHP 溶剂萃取法^[3], 或萃取色层法^[4,5] 回收。自 1974 年关于 HDEHP 萃淋树脂的研究报告发表以来^[6], 已经开展的研究表明^[7], HDEHP 萃淋树脂具有荷载量大, 固定相流失少, 辐照稳定性好和使用方便等优点。我们曾详细研究了 HDEHP 萃淋树脂对超铀元素 (TPE) 和稀土元素 (REE) 的分离, 同时还比较了二乙三胺五乙酸 (DTPA) 与三乙四胺六乙酸 (TTHA) 体系对 TPE 与 REE 的分离效果^[8]。鉴于 HDEHP 萃淋树脂所具有的特点, 本工作进一步研究了在硝酸及 TTHA 体系中, HDEHP 萃淋树脂对 Cf (III) 的萃取性能, 以提出一种更为简便和有效的方法, 用于从含有钆、铁和稀土等元素的溶液中回收纯化 ^{252}Cf , 最终得到 ^{252}Cf (III) 的硝酸盐产品。

二、实 验 部 分

HDEHP 萃淋树脂, CL-P₂₀₄-m 型, 75—120 目, 含 HDEHP 1.32 mol/kg, 北京铀矿冶研究所合成。以 Gd^{3+} 代替 Cf^{3+} , 用穿透曲线法测得 0.0255 mol/l $\text{Gd}(\text{NO}_3)_3$ -0.10 mol/l HNO_3 中 $D_{\text{Gd}}=14.9$ l/kg, 0.0255 mol/l $\text{Gd}(\text{NO}_3)_3$ -0.010 mol/l HNO_3 中, $D_{\text{Gd}}=16.9$ l/kg, 代入下式^[9]求得树脂的萃取容量 $C^0(\text{HA})_n=1.31$ mol/kg。

$$C^0_{(\text{HA})_n} = 3 \times \frac{[\text{M}^{3+}]_2 D_2 - \frac{[\text{H}^+]_2}{[\text{H}^+]_1} \left(\frac{D_2}{D_1}\right)^{\frac{1}{3}} [\text{M}^{3+}]_1 D_1}{1 - \frac{[\text{H}^+]_2}{[\text{H}^+]_1} \left(\frac{D_2}{D_1}\right)^{\frac{1}{3}}}$$

^{252}Cf 指示剂和待处理的 ^{252}Cf 料液 (含微克量的 ^{252}Cf) 由本院提供。其它试剂、实验以及分析方法与[8]相同。

三、实验结果及讨论

1. Cf (III)、Cm (III) 和 Eu (III) 的分配系数

硝酸、TTHA 溶液与 HDEHP 萃淋树脂间, Cf (III), Cm (III) 以及代表 REE (III) 的

* 该文为获中国原子能科学研究院 1987 年首届“五四”青年学术报告会一等奖论文一部分。

Eu(III)的分配系数实验结果示于表1。由表中可见, HDEHP 萃淋树脂能够从 0.10 mol/l HNO₃ 溶液中以比较高的分配系数萃取 TPE(III) 和 REE(III); 在 0.50 mol/l HNO₃ 溶液中, Cf(III)与 Cm(III) 的分离因子达 21; TPE(III) 能从 0.05 mol/l TTHA-1.0 mol/l HLac-pH 1.5 的溶液中被定量萃取; 在 0.05 mol/l TTHA-1.0 mol/l HLac-pH 3.8 溶液中, Eu(III)与 Cf(III)的分离因子达 50。

表 1 HDEHP 萃淋树脂与 HNO₃, TTHA 溶液间 Cf(III), Cm(III)和 Eu(III)的分配系数

| 溶液组成 | Cf(III) | Cm(III) | Ef(III) |
|---|-------------------|-------------------|-------------------|
| 0.10 mol/l HNO ₃ | 2.7×10^2 | 2.6×10^2 | 7.0×10^2 |
| 0.50 mol/l HNO ₃ | 43 | 2.0 | |
| 0.05 mol/l TTHA -1.0 mol/l HLac -pH 1.5 | 2.6×10^2 | 5.7×10^2 | |
| 0.05 mol/l TTHA -1.0 mol/l HLac -pH 3.8 | 3.1 | 0.80 | 1.5×10^2 |

2. 方法概述

根据表 1 的实验结果, 可以用图 1 所示的方法回收、纯化²⁵²Cf。含 Cf(III) 料液调节为 0.10 mol/l HNO₃ 溶液, 在 HDEHP 萃淋树脂色层柱上进料, Cf(III) 和 Cm(III) 以及 REE(III) 等被吸附在柱上, 用 0.05 mol/l TTHA-1.0 mol/l HLac-pH 1.5 溶液洗涤 5 个柱体积, 除去部分 Fe(III) 和低价态的 F.P. 等杂质^[9]; 用 0.05 mol/l TTHA-1.0 mol/l HLac-pH 3.8 溶液洗涤 10 个柱体积, Cf(III) 和 Cm(III) 被洗脱下来; 再用 2.0 mol/l HNO₃ 溶液洗涤 15 个柱体积除去柱上的 REE(III) 后, 柱子再用 0.06 mol/l HNO₃ 溶液洗涤 5 个柱体积备用。

含 Cf(III) 和 Cm(III) 的 TTHA 溶液用浓硝酸溶液调节 pH 值为 1.5, 将溶液在 HDEHP 萃淋树脂色层柱上进料, 残存的 Fe(III) 等杂质随进料流出液流出, Cf(III) 和 Cm(III) 被吸附在柱上; 用 0.06 mol/l HNO₃ 溶液洗涤 5 个柱体积, 将柱上的络合剂淋洗下来; 用 0.50 mol/l HNO₃ 溶液洗脱 5 个柱体积, Cm(III) 被淋洗下来; 最后, 用 5 个柱体积的 2.0 mol/l HNO₃ 溶液洗脱 Cf(III), 从而得到²⁵²Cf 的硝酸盐溶液。

3. 实验结果

先用²⁵²Cf(III), ²⁴⁸Cm(III) 和¹⁵²⁺¹⁵⁴Eu(III) 指示剂进行条件实验, 淋洗曲线示于图 2。此时, 在没有 Fe(III) 等杂质的条件下, Cf 的总收率大于 99%。在 Cf(III) 的洗脱液中没有检测到 Eu(III) 穿透。

示踪实验结果证明, 所选用的工艺条件能分离 Cm, Cf 等核素。然后用此工艺条件处理含有约 2 g/l Fe(III) 以及 Cm(III) 和 Tb(III) 的微克量²⁵²Cf, 其料液体积为 15 ml, 用 $\phi 4 \times 80$ 的 HDEHP 萃淋树脂色层柱进行分离, 两个步骤中²⁵²Cf 的收率均大于 97%。纯化的²⁵²Cf 产品制源后经 α 和 γ 能谱检验, 纯度符合要求。

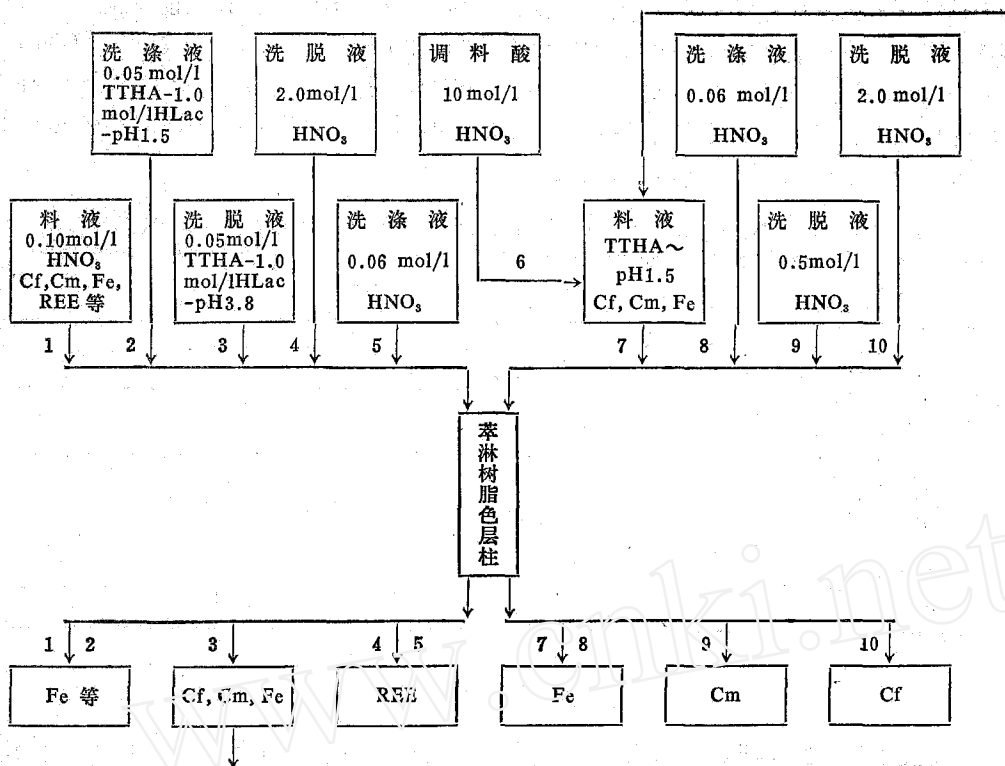


图 1 萃淋树脂色层法回收纯化 Cf-252

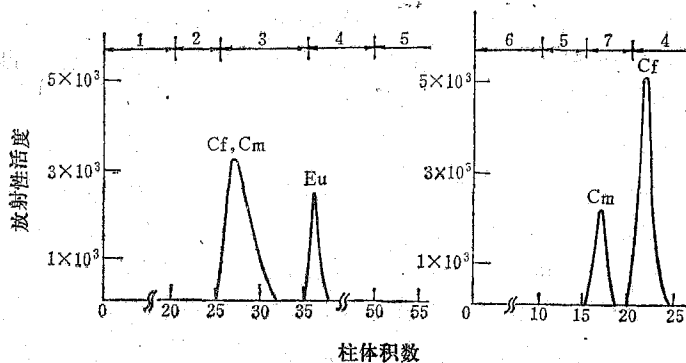


图 2 HDEHP 萃淋树脂色层法纯化 ²⁵²Cf 的淋洗曲线

柱尺寸: $\phi 4 \times 80$, 流速 $1.0 \text{ ml/min} \cdot \text{cm}^2$; 1—Cf-Cm-En- 0.10 mol/l HNO_3 ; 2— $0.05 \text{ mol/l TTHA}-1.0 \text{ mol/l HLac-pH}1.5$; 3— $0.05 \text{ mol/l TTHA}-1.0 \text{ mol/l HLac-pH}3.8$; 4— 2.0 mol/l HNO_3 ; 5— 0.06 mol/l HNO_3 ; 6— $0.05 \text{ mol/l TTHA}-1.0 \text{ mol/l HLac-pH}1.5\text{-Cf-Cm}$; 7— 0.50 mol/l HNO_3 。

四、结 论

HDEHP 萃取色层法可用于从含有 Fe(III)、Cm(III) 和 REE(III) 等杂质的溶液中回收、纯化 ²⁵²Cf, 方法简便可靠, 对 ²⁵²Cf 的收率较高, 对 Cm(III) 的净化及对杂质的去污效果较好。在从含有 2 g/l Fe(III) 的料液中回收微量量的 ²⁵²Cf 时收率达 95%, 产品符合使用要求。

参 考 文 献

- [1] 滕征森编, 铀-252 的制备及应用, 原子能出版社, 北京, 1983, 42—91页。
 [2] Mosley, W. C. et al., CONF-720902, 57(1972).
 [3] Zamagatmin, Yu. S. et al., CONF-760436, Vol II, II-25(1976).
 [4] Baybarz, R. D. et al., *Radiochimica Acta*, 19(1), 30(1973).
 [5] 庄人杰等, 核化学与放射化学, 4(1), 28(1982).
 [6] Krosbel, R. et al. *Proc. of the Intern. Solvent Extrac. Conf. (Lyrrn) 1974*, 3, 2095-2107.
 [7] Jemli Bechir, FRNC-JH-921(1980).
 [8] 黄少平, 吴克明, 林漳基, 核化学与放射化学, 9(2), 93(1987).
 [9] 黄少平, 吴克明, 林漳基, 核化学与放射化学(待发表)。

(编辑部收到日期: 1987年6月20日)

RECOVERY AND PURIFICATION OF ^{252}Cf BY HDEHP-LEVEXTREL CHROMATOGRAPHY

HUANG SHAOPING WEI LIANSHENG JU CHONGHUA

(Institute of atomic energy, P. O. Box 275, Beijing)

ABSTRACT

The distribution coefficients of Cf (III), Cm (III) and Eu(III) in different kinds of nitric acid and TTHA solutions are determined. A HDEHP-Levextrel chromatography method is proposed for the recovery and purification of Cf from Cm, Fe, Tb etc. Cf(III) is separated from Tb (III) with the TTHA eluate (pH3.8). The pH value of the eluate containing Cf and Cm is adjusted to 1.5. Then Cf as well as Cm is absorbed quantitatively from this solution. Finally, Cm and Cf are eluted with 0.50 and 2.0 mol/l HNO_3 respectively. Fe can be decontaminated well by this method. The microgram amount of ^{252}Cf is recovered and purified. The recovery of Cf reaches 95%.

Key words Cf, Cm, TTHA, HDEHP-Levextrel.