

ČESKOSLOVENSKÁ
SOCIALISTICKÁ
REPUBLIKA
(19)



ÚŘAD PRO VYNÁLEZY
A OBJEVY

POPIS VYNÁLEZU

K AUTORSKÉMU OSVĚDČENÍ

225 464

(11) (B 1)

(61)

(23) Výstavní priorita
(22) Přihlášeno 28 04 82
(21) PV 3051 - 82

(51) Int. Cl.³ C 01 G 43/00
B 01 J 39/04

(40) Zveřejněno 24 06 83
(45) Vydáno 15 04 85

(75)
Autor vynálezu

ŠTAMBERG JIŘÍ ing. CSc.,
CABICAR JOSEF prof. dr. CSc.,
ŠTAMBERG KAREL ing. CSc., PRAHA

(54)

Způsob separace isotopů uranu metodou řízené distribuce

Vynález se týká způsobu separace isotopů uranu metodou řízené distribuce.

Separace isotopů uranu metodou řízené distribuce, využívající kinetický a rovnovážný koncentrační efekt, je založena na rozdělení isotopů ve dvoufázových systémech různého typu, zahrnujících například extrakční a sorpční binární systémy. Základním předpokladem úspěšné separace podle této metody je rozdílná koncentrace isotopů ve výchozí surovině. K oddělení pak dochází vzhledem k nerovné rychlosti transportu isotopových složek při přechodu z jedné fáze do druhé a za podmínek, kdy isotopová výměna je retardována. Metoda řízené distribuce je podstatně účinnější, než dosud známé metody chemické separace uranových isotopů a je chráněna čs.a.o. 214 904 a čs.a.o. 214 905.

Ve zmíněných autorských osvědčeních byl nový princip separace prokázán na příkladu dělení isotopů uranu na měničích kationtů. Popisované systémy zahrnují uranylové sloučeniny a měniče kationtů na bázi sulfonovaného styrendivinybenzenového kopolymeru, případně chelatující měniče kationtů, jmenovitě katexy se skupinami iminodioctovými. Ukázalo se, že separační efekt je do značné míry závislý na struktuře sorbentu a bylo shledáno, že použité sorbenty mají značné nevýhody vzhledem k optimálnímu využití nového separačního principu.

Silně kyselé styrenové katexy typu Amberlite IR 120 vykazují v podmínkách separačního procesu vysokou rychlost výměny, takže koncentrační isotopový efekt, který je kinetické povahy, je omezen na velmi krátkou dobu s ohledem na technické využití. Chelatující měniče se skupinami iminodioctovými se připravují komplikovanými několikanásobnými polymeranalogickými přeměnami, například se vy-

cháží ze styrendivinylnbenzenového kopolymeru, který se chlormethyluje, aminuje amoniakem a karboxymethyluje kyselinou chloroctovou. Příprava je nákladná a cena konečného produktu vysoká. Kromě toho vícestupňové přeměny způsobují, že produkt polymeranalogické reakce má nejednotnou strukturu. Sorbenty připravené takovým způsobem vykazují obecně horší separační účinnosti než sorbenty s dobře definovanou a jednotnou strukturou.

Zmíněné nevýhody odstraňuje předložený vynález. Popisuje způsob separace isotopů uranu metodou řízené distribuce s využitím zejména koncentračního isotopového jevu ve dvoufázových systémech, přičemž jedna z fází je vodným nebo nevodným roztokem isotopů uranu obsahujícím uranylové kationty a druhá fáze je měničem kationtů, vyznačený tím, že jako druhá fáze se použije karboxylový měnič kationtů na akrylové bázi.

Uvedené karboxylové měniče kationtů vyměňují v podmínkách separace uranylové kationty pomaleji, než měniče se sulfonovými skupinami, což se projeví v prodloužení účinného intervalu při separaci isotopů metodou řízené distribuce. Ve srovnatelných pokusech bylo například zjištěno, že zatímco styrenový sulfonový katex Amberlite IR 120 (viz příklad 3) vykazoval extrém separačního faktoru 2 minuty, karboxylový katex na akrylové bázi Amberlite IRC 84 30 až 60 minut.

Příprava karboxylových katexů je jednoduchá a nezavádí se při ní do struktury cizí skupiny. V tom se příznivě liší od chelatujících katexů s iminodioctovými skupinami. Karboxylové katexy se připravují suspensní kopolymerací kyseliny methakrylové nebo akrylové se síťujícím činidlem (například s divinylnbenzenem nebo ethylendi-methakrylátem) nebo polymeranalogickým zmýdelněním perlového zesíťtého polymethakrylového esteru (například kopolymeru methylakrylátu s divinylnbenzenem). Karboxylové katexy na akrylové bázi jsou výhodnější než chelatující katexy s iminodioctovými skupinami, neboť jejich struktura je dobře definovaná a jednotná, vyznačuje se vysokou koncentrací sorpčně aktivních center, neboť každá vinylická strukturní jednotka obsahuje karboxylovou skupinu. Za těchto podmínek je vysoká pravděpodobnost, že dojde k vysycení komplexační schopnosti uranylových kationtů, jak to vyžaduje nový způsob separace isotopů metodou řízené distribuce.

Výhodou karboxylových katexů proti katexům se sulfonovými skupinami je snazší eluce uranylových kationtů kyselinami, která je dána relativně nízkou hodnotou disociační konstanty karboxylových skupin. Snadná regenerovatelnost těchto katexů se významně projeví zvláště při provozním využívání nové separační metody.

Příklad 1

0,5 g nabotnalého, odstředěného karboxylového katexu na akrylové bázi Amberlite IRC 84 v H^+ - formě bylo kontaktováno za míchání při teplotě 298K s 25 ml roztoku o složení 0,01M síran uranylu (UO_2SO_4). Po dané době bylo míchání přerušeno, kapalná a ionexová fáze byly od sebe odděleny a v kapalné fázi byla stanovena celková koncentrace uranu (fotometrickou metodou pomocí činidla AZO I) a atomární poměr izotopů ^{235}U uranu(U) : ^{238}U uranu(U) (na hmotovém spektrometru zn. MICROMASS 30B). Izotopové složení výchozího roztoku odpovídalo složení přírodního uranu, tj. ^{235}U uranu(U) : ^{238}U uranu(U) = $0,725 \cdot 10^{-2}$. Z výsledků byla počítána hodnota separačního faktoru (separační faktor je definován jako poměr izotopických poměrů ^{235}U uranu(U) : ^{238}U uranu(U) ve fázi ionexu k témuž izotopickému poměru ve fázi roztoku). Výsledky, tj. hodnoty celkové koncentrace uranu a separačních faktorů jako funkce času jsou shrnuty v následující tabulce:

Čas(min)	0	5	10	30	60	120
Celková koncentrace uranu (M)	0,01	0,0085	0,0077	0,0074	0,0067	0,0061
Separační faktor	1,000	0,993	1,000	1,018	1,020	1,002

Příklad 2

0,25 g nabotnalého, odstředěného karboxylového katexu na akrylové bázi Amberlite IRC 84 v H^+ - formě bylo kontaktováno za míchání při teplotě 298K s 25 ml roztoku o složení 0,01M dusičnanu uranylu $[UO_2(NO_3)_2]$. Další postup byl stejný jako v příkladě 1. Výsledky, tj. hodnoty celkové koncentrace uranu a separačních faktorů jako funkce času, jsou shrnuty v následující tabulce:

Čas(min)	0	5	10	30	60	120
Celková koncentrace uranu(M)	0,01	0,0093	0,0091	0,0082	0,0081	0,0079
Separační faktor	1,000	0,958	0,945	0,976	0,972	0,995

Příklad 3

0,4 g nabotnalého, odstředěného silně kyselého katexu Amberlite IR 120 v H^+ - formě bylo kontaktováno za míchání při teplotě 298K s 30 ml roztoku o složení 0,01M síran uranylu (UO_2SO_4). Další postup byl stejný jako v příkladě 1. Výsledky, tj. hodnoty celkové koncentrace uranu a separačních faktorů jako funkce času, jsou shrnuty v následující tabulce:

Čas(min)	0	2	5	10	15	45
Celková koncentrace uranu(M)	0,01	0,0066	0,0037	0,0018	0,0008	0,0005
Separační faktor	1,000	1,021	1,009	1,006	1,004	1,001

P Ř E D M Ě T V Y N Á L E Z U

Způsob separace isotopů uranu metodou řízené distribuce s využitím zejména koncentračního isotopového jevu ve dvoufázových systémech, přičemž jedna z fází je vodným nebo nevodným roztokem isotopů uranu obsahujícím uranylové kationty a druhá fáze je měničem kationtů, vyznačený tím, že jako druhá fáze se použije karboxylový měnič kationtů na akrylové bázi.