

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM**

**KARLSRUHE**

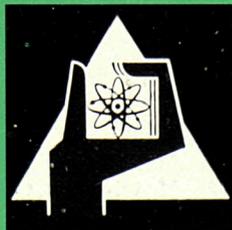
Dezember 1967

KFK 680  
EUR 3707 d

Institut für Heiße Chemie

Die Verteilung der Metallnitratre im System  
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP-Dodecan}$

G. Baumgärtel, W. Ochsenfeld, H. Schmieder



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.  
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Dezember 1967

K F K 680

Eur 3707 d

Institut für Heiße Chemie

Die Verteilung der Metallnitrate im System  
 $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP-Dodecan}$

von

G. Baumgärtel, W. Ochsenfeld, H. Schmieder

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE

+) Diese Arbeit wurde im Rahmen der Assoziation zwischen der Europäischen Atomgemeinschaft und der GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H. KARLSRUHE auf dem Gebiet der schnellen Reaktoren durchgeführt.



## Einleitung

Bekanntlich beeinflussen sich die Verteilungskoeffizienten von Pu(IV) und U(VI) im System  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan wechselseitig. Das bedeutet u.a., daß aus einem System  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan bzw.  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan bekannte Verteilungskoeffizienten für Pu(IV) bzw. U(VI) nicht auf das System  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan übertragen werden dürfen. Wie aus eigenen Untersuchungen hervorgeht, wird der Verteilungskoeffizient des Urans nur dann praktisch nicht durch das Plutonium beeinflusst, wenn die Pu-Konzentration weniger als 1 % der des Urans beträgt. Dies ist bei der extraktiven Aufbereitung konventioneller Kernbrennstoffe der Fall. Bei der Wiederaufarbeitung Schneller-Brüter-Brennstoffe liegen die Plutoniumkonzentrationen jedoch wesentlich höher. Man rechnet mit einem Plutoniumgehalt bis zu etwa 15 % bezogen auf das Uran.

Für die Abtrennung der Elemente Plutonium und Uran von den Spaltprodukten aus bestrahlten Brüter-Brennelementen soll ein modifiziertes PUREX-Verfahren angewendet werden, d.h. die in salpetersaurer Lösung vorliegenden Brennstoffe Uran und Plutonium werden durch eine Mischung aus n-TBP in Dodecan extrahiert. Für die Auslegung einer solchen Extraktionsanlage ist die Kenntnis der Verteilungskoeffizienten von besonderer Wichtigkeit. Auch aus Kritikalitätsgründen muß sich speziell die Verteilung des Plutoniums in Abhängigkeit von der Uranextraktion exakt vorausberechnen lassen.

Für kleine Plutoniumkonzentrationen im System  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan werden von Tarnero<sup>1)</sup> Verteilungsdaten mitgeteilt. Genaue Verteilungsdaten mit hohen Plutoniumkonzentrationen sind bisher nicht veröffentlicht. Die von Burton und Mills<sup>2)</sup> publizierten Daten sind offensichtlich nicht ganz genau. Methoden zur Berechnung in solch einem System liegen ebenfalls nicht vor.

Experimentell wurden daher zuerst Verteilungsdaten für U(VI) und Pu(IV) ermittelt. Aufbauend auf diesen Meßergebnissen konnte in Verbindung mit theoretischen Ableitungen ein Verfahren entwickelt werden, das die Vorausberechnung der Verteilungskoeffizienten von Pu(IV) und U(VI) im System  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan gestattet.

### Experimentelles

Die Verteilungen wurden in doppelwandigen Mischgefäßen durchgeführt, deren Temperatur auf 25 °C konstant gehalten wurde. Nach 30 minütigem Mischen war das Gleichgewicht erreicht. Nach 20 min. Absetzen wurden jeweils von beiden Phasen Proben genommen.

Die eingesetzten Reagentien waren die gleichen wie in <sup>3)</sup> beschrieben. Die Konzentrationen der Einsatzlösungen an Plutonium und Uran wurden nach einem von Ertel und Wettstein<sup>4)</sup> entwickelten Verfahren mit Hilfe der Röntgenfluoreszenzanalyse bestimmt. Nach dem gleichen Verfahren wurden die jeweiligen Konzentrationen in der wäßrigen Phase ermittelt. Der Urangehalt in der organischen Phase würde nach Rückextraktion in die wäßrige Lösung polarographisch, der Plutoniumgehalt direkt radiometrisch gemessen. Die Salpetersäure wurde nach der Jodatmethode<sup>5)</sup> analysiert. Von allen Proben wurden mehrere Bestimmungen durchgeführt, deren jeweilige Mittelwerte in den Diagrammen eingezeichnet sind.

## Experimentell ermittelte Verteilungsdaten für U(VI) und Pu(IV)

Die nach der beschriebenen Methode ermittelten Verteilungsdaten für das System  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan mit 20 % TBP sind in der Tabelle 1 aufgeführt. Aus diesen Daten ergeben sich die Abbildungen 1, 1 a und 2.

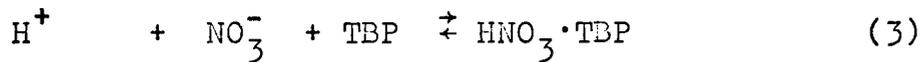
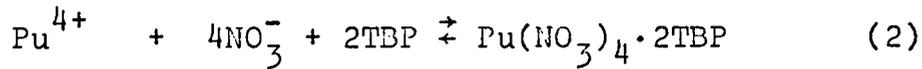
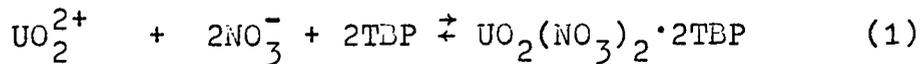
Von besonderem Interesse sind die Verteilungsisothermen für  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$  und  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  in Abhängigkeit von der Gesamtkonzentration des entsprechenden Extraktionspartners Pu(IV) bzw. U(VI). Diese Verteilungskurven zeigen für eine Gesamtkonzentration an  $\text{HNO}_3$  von 3,25 Mol/l die Abbildungen 3 und 4.

Setzt man als Parameter für den unterschiedlichen Verlauf der Verteilungsisothermen nicht die Gesamtkonzentration des entsprechenden Metallnitrates, sondern dessen Konzentration in der wässrigen bzw. organischen Phase ein, so erhält man die Abbildungen 5 bis 8. Die Abbildungen 3 bis 8 gehen aus den Abbildungen 1 und 2 hervor. Die in der Tabelle 1 aufgeführten Verteilungskoeffizienten sind mit einem Fehler von  $\pm 3$  bis 4 % behaftet. Er setzt sich zusammen aus dem Fehler bei der Probeentnahme aus dem Mischgefäß und dem Fehler bei der analytischen Bestimmung.

## Rechnerische Methode zur Bestimmung der Verteilungskoeffizienten

Bei der Aufstellung eines Gleichungssystems zur Berechnung der Verteilungskoeffizienten von Pu(IV) und U(VI) wird von der Annahme ausgegangen, daß die Konzentrationen der Reaktionsteilnehmer in der wässrigen Phase bekannt sind.

Ausgangspunkt für die theoretische Ableitung der Verteilungskoeffizienten im Extraktionssystem  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP}$ -Dodecan sind die folgenden Reaktionsgleichungen:



Diese Gleichungen sind als Summengleichungen anzusehen, da die wahren Verhältnisse der Extraktionsgleichgewichte ungleich komplizierter sind. So ist z.B. die Dissoziation des  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  in wässriger Lösung ein ziemlich komplexer, von der  $\text{H}^+$ -Ionenkonzentration stark abhängiger Vorgang<sup>6)</sup>. Außerdem konnte von Baumgärtner und Finsterwalder<sup>7)</sup> gezeigt werden, daß die Komplexbildung zwischen Metallnitrat und TBP nicht in einem Schritt, sondern in zwei Schritten erfolgt. Zunächst wird in der Grenzfläche zwischen wässriger und organischer Phase 1 Mol TBP an ein Mol Metallnitrat gebunden, während die Bindung des zweiten Mol TBP erst in der organischen Phase erfolgt. Die Berücksichtigung aller Reaktionsschritte, die zum Gleichgewicht führen, würde daher einen sehr aufwendigen und komplizierten Ansatz ergeben, der außerdem zu keinem brauchbaren Ergebnis führen würde, da die Aktivitäten der einzelnen Spezies nicht bekannt sind. Für die Praxis ist es sinnvoller, von den Summengleichungen 1) bis 3) auszugehen und durch Verwendung empirischer Funktionen für  $\tilde{K}_H$ ,  $\tilde{K}_U$  und  $\tilde{K}_{Pu}$  die gemeinsame Verteilung von Uran und Plutonium zu beschreiben. Der theoretische Gleichgewichtsansatz ergibt für die Gleichgewichtskonstanten  $K_H$ ,  $K_U$  und  $K_{Pu}$  folgende Ausdrücke:

([ ] = Aktivitäten, ( ) = Konzentrationen,  $\alpha$  = Aktivitätskoeffizienten):

$$K_H = \frac{[HNO_3 \cdot TBP]}{[H^+][NO_3^-][TBP]} = \frac{(HNO_3 \cdot TBP) \cdot \alpha_{HNO_3 \cdot TBP}}{(H^+) \alpha_{H^+} (NO_3^-) \alpha_{NO_3^-} (TBP) \alpha_{TBP}} \quad (4)$$

$$K_U = \frac{[UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP]}{[UO_2^{2+}][NO_3^-]^2[TBP]^2} = \frac{(UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP) \cdot \alpha_{UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP}}{(UO_2^{2+}) \alpha_{UO_2^{2+}} (NO_3^-)^2 \alpha_{NO_3^-}^2 (TBP)^2 \alpha_{TBP}^2} \quad (5)$$

$$K_{Pu} = \frac{[Pu(NO_3)_4 \cdot 2TBP]}{[Pu^{4+}][NO_3^-]^4[TBP]^2} = \frac{(Pu(NO_3)_4 \cdot 2TBP) \cdot \alpha_{Pu(NO_3)_4 \cdot 2TBP}}{(Pu^{4+}) \alpha_{Pu^{4+}} (NO_3^-)^4 \alpha_{NO_3^-}^4 (TBP)^2 \alpha_{TBP}^2} \quad (6)$$

Hieraus ergibt sich:

$$\tilde{K}_H = K_H \cdot \frac{\alpha_{H^+} \cdot \alpha_{NO_3^-} \cdot \alpha_{TBP}}{\alpha_{HNO_3 \cdot TBP}} = \frac{(HNO_3 \cdot TBP)}{(H^+)(NO_3^-)(TBP)} \quad (7)$$

$$\tilde{K}_U = \frac{(UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP)}{(UO_2^{2+})(NO_3^-)^2(TBP)^2} \quad (8)$$

$$\tilde{K}_{Pu} = \frac{(Pu(NO_3)_4 \cdot 2TBP)}{(Pu^{4+})(NO_3^-)^4(TBP)^2} \quad (9)$$

Aus der Definition des Verteilungskoeffizienten  $D = C_{org}/C_{aq}$  folgen aus den Gleichungen (7) bis (9)  $D_H$ ,  $D_U$  und  $D_{Pu}$ :

$$D_H = \frac{(HNO_3 \cdot TBP)}{(H^+)} = \tilde{K}_H \cdot (NO_3^-) \cdot (TBP) \quad (10)$$

$$D_U = \frac{(UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP)}{(UO_2^{2+})} = \tilde{K}_U \cdot (NO_3^-)^2 \cdot (TBP)^2 \quad (11)$$

$$D_{Pu} = \frac{(Pu(NO_3)_4 \cdot 2TBP)}{(Pu^{4+})} = \tilde{K}_{Pu} \cdot (NO_3^-)^4 \cdot (TBP)^2 \quad (12)$$

Nach der Einstellung des Extraktionsgleichgewichtes beträgt das freie, nicht komplex gebundene Tributylphosphat:

$$(TBP) = C - (HNO_3 \cdot TBP) - 2(UO_2(NO_3)_2 \cdot 2TBP) - 2(Pu(NO_3)_4 \cdot 2TBP) \quad (13)$$

C ist die Gesamtkonzentration an TBP und berechnet sich zu:

$$C = \frac{\text{Vol. \%} \cdot 0,973 \cdot 10^3}{266,3} \quad [\text{Mol/l}] \quad (14)$$

(0,973 = Dichte des TBP, 266,3 = Molgewicht des TBP)

Im Folgenden wird die Berechnung für den Verteilungskoeffizienten des Urans,  $D_u$ , als Beispiel aufgeführt.

Nach Gleichung (11) läßt sich die Konzentration an freiem TBP ausdrücken durch:

$$(TBP) = \sqrt{\frac{D_u}{\tilde{K}_u (NO_3^-)^2}} \quad (15)$$

Unter Berücksichtigung der Gleichungen (10) bis (12) und (15) ergibt sich aus (13):

$$\sqrt{\frac{D_u}{\tilde{K}_u (NO_3^-)^2}} = C - \tilde{K}_H (H^+) (NO_3^-) \sqrt{\frac{D_u}{\tilde{K}_u (NO_3^-)^2}} - 2 D_u (UO_2^{2+}) - 2 \tilde{K}_{Pu} (Pu^{4+}) (NO_3^-)^4 \left( \sqrt{\frac{D_u}{\tilde{K}_u (NO_3^-)^2}} \right)^2 \quad (16)$$

Die Gleichung läßt sich vereinfachen zu:

$$C - 2 D_u (UO_2^{2+}) = \left( \frac{1 + \tilde{K}_H (H^+) (NO_3^-)}{(NO_3^-)} \right) \cdot \sqrt{\frac{D_u}{\tilde{K}_u}} + \left( \frac{2 \tilde{K}_{Pu} (Pu^{4+}) (NO_3^-)^4}{(NO_3^-)^2} \right) \cdot \frac{D_u}{\tilde{K}_u} \quad (17)$$

Ersetzt man die Klammerausdrücke durch A bzw. B und  $\sqrt{D_u}$  durch X, so erhält man folgende quadratische Gleichung:

$$X^2 + \frac{A}{\left( 2(UO_2^{2+}) + \frac{B}{\tilde{K}_u} \right) \sqrt{\tilde{K}_u}} \cdot X - \frac{C}{2(UO_2^{2+}) + \frac{B}{\tilde{K}_u}} = 0 \quad (18)$$

Als Lösung der Gleichung (18) erhält man:

$$X_{1,2} = -\frac{A}{2\sqrt{\tilde{K}_U} \left(2(UO_2^{2+}) + \frac{B}{\tilde{K}_U}\right)} \left(1 \pm \sqrt{1 + \frac{C \cdot 4 \tilde{K}_U \left(2(UO_2^{2+}) + \frac{B}{\tilde{K}_U}\right)}{A^2}}\right) \quad (19)$$

Resubstitution der Ausdrücke für A, B und X sowie negative Wahl des Wurzelvorzeichens ergibt als gesuchte Endgleichung für den Verteilungskoeffizienten des Urans:

$$\sqrt{D_U} = -\frac{1 + \tilde{K}_H (H^+) (NO_3^-)}{4 \cdot \sqrt{\tilde{K}_U} \cdot (NO_3^-) \left( (UO_2^{2+}) + \frac{\tilde{K}_{Pu} (Pu^{4+}) (NO_3^-)^2}{\tilde{K}_U} \right)} \left(1 - \sqrt{1 + \frac{C \cdot 8 \tilde{K}_U \left( (UO_2^{2+}) + \frac{\tilde{K}_{Pu} (Pu^{4+}) (NO_3^-)^2}{\tilde{K}_U} \right)}{\left( \frac{1 + \tilde{K}_H (H^+) (NO_3^-)}{(NO_3^-)} \right)^2}}\right) \quad (20)$$

Auf sinnentsprechende Weise gelangt man zur Gleichung für den Verteilungskoeffizienten des Plutoniums:

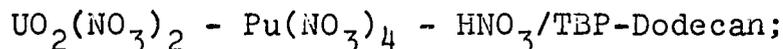
$$\sqrt{D_{Pu}} = -\frac{1 + \tilde{K}_H (H^+) (NO_3^-)}{4 \sqrt{\tilde{K}_{Pu}} \cdot (NO_3^-)^2 \left( (Pu^{4+}) + \frac{\tilde{K}_U (UO_2^{2+})}{\tilde{K}_{Pu} (NO_3^-)^2} \right)} \left(1 - \sqrt{1 + \frac{C \cdot 8 \tilde{K}_{Pu} \left( (Pu^{4+}) + \frac{\tilde{K}_U (UO_2^{2+})}{\tilde{K}_{Pu} (NO_3^-)^2} \right)}{\left( \frac{1 + \tilde{K}_H (H^+) (NO_3^-)}{(NO_3^-)^2} \right)^2}}\right) \quad (21)$$

Bei Kenntnis der Werte für  $\tilde{K}_H$ ,  $\tilde{K}_U$  und  $\tilde{K}_{Pu}$  lassen sich nunmehr die Verteilungskoeffizienten für Uran und Plutonium berechnen.

Für  $\tilde{K}_H$  wird von Jury und Whatley<sup>8)</sup> für das System  $HNO_3/TBP$ -Dodecan folgende empirische Funktion angegeben:

$$\tilde{K}_H = 0,385 - 0,155 \mu + 0,024 \mu^2 \quad (22)$$

$\mu$  ist hierbei die Ionenstärke und beträgt für das System



$$\mu = (\text{H}^+) + 3(\text{UO}_2^{2+}) + 10(\text{Pu}^{4+}) \quad (23)$$

Aus eigenen experimentellen Daten konnten für Urankonzentrationen von 0,1 - 0,6 Mol U/l, Plutoniumkonzentrationen von 0,01 - 0,2 Mol Pu/l und Salpetersäurekonzentrationen von 0,6 und 3,0 m  $\text{HNO}_3$ , d.h. für Ionenstärken von  $\mu = 0,6$  bis  $\mu = 5,5$  die Funktionen  $\tilde{K}_U = f(\mu)$  und  $\tilde{K}_{\text{Pu}} = f(\mu)$  durch Ausgleichsrechnung bestimmt werden:

$$\tilde{K}_U = 8,791 + 6,071 \mu - 6,176 \mu^2 + 1,579 \mu^3 \quad (24)$$

und

$$\tilde{K}_{\text{Pu}} = 12,163 - 9,033 \mu + 2,230 \mu^2 - 0,163 \mu^3 \quad (25)$$

Den Verlauf der beiden ermittelten Funktionen und der experimentellen Daten zeigen die Abbildungen 9 und 10.

Mit Hilfe dieser Funktionen können nun mit den Gleichungen (20) und (21) die Verteilungskoeffizienten des Urans bzw. Plutoniums berechnet werden. Die Tabelle 2 bringt eine Gegenüberstellung von berechneten und experimentell bestimmten Verteilungskoeffizienten. Linige berechnete Werte sind auch in Abb. 6 eingezeichnet.

Wie ein Vergleich der berechneten mit den gemessenen Werten zeigt, ist die Übereinstimmung gut.

Die numerischen Berechnungen selbst wurden mit der IBM 7074 durchgeführt.

Betrachtet man die Verteilungskoeffizienten des Plutoniums einmal für sich allein und zum anderen in Gegenwart von U(VI), so lassen sich beträchtliche Unterschiede feststellen. Aus der Abbildung 8 geht deutlich hervor, daß bereits durch relativ geringe Mengen an

U(VI) in der organischen Phase, der Verteilungskoeffizient des Plutoniums stark verkleinert wird. Das bedeutet, daß bei gleicher Gesamtkonzentration an Plutonium dessen Konzentration in der wäßrigen Phase zunimmt.

Der Verteilungskoeffizient des Urans nimmt dagegen langsamer mit zunehmender Plutoniumkonzentration in der organischen Phase ab (Abbildung 7).

Der Verlauf der Verteilungsisothermen des  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$  in Abbildung 3 erklärt auch, warum bei der extraktiven Wiederaufarbeitung konventioneller Kernbrennstoffe nach dem PUREX-Prozeß der Plutoniumanteil den Verteilungskoeffizienten des Urans praktisch nicht beeinflusst. Erst bei einem Plutoniumanteil 1 % bezogen auf das Uran macht sich ein Einfluß des Plutoniumgehaltes auf die Verteilung des Urans bemerkbar.

#### Zusammenfassung

Für das Extraktionssystem  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4 - \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 - \text{HNO}_3/\text{TBP-Dodecan}$  wurden für einen großen Konzentrationsbereich an Plutonium und Uran experimentell Verteilungsdaten ermittelt.

Mit Hilfe dieser Daten konnten über theoretische Ansätze Gleichungen entwickelt werden, die eine Berechnung der Verteilungskoeffizienten von U(VI) und Pu(IV) aus  $\text{HNO}_3$  in TBP-Dodecan mit guter Genauigkeit gestattet. Mit Hilfe dieser Gleichungen ist es nunmehr möglich, Stufenberechnungen für Extraktionskolonnen zur Wiederaufarbeitung Schneller-Brüter-Brennstoffe durchzuführen.

Den Herren Dr. D. Ertel und W. Wettstein danken wir für die röntgenfluoreszenzanalytische Bestimmung des Urans und Plutoniums, den Herren E. Kuhn und U. Lamek für die Ausführung der Verteilungsexperimente.

L i t e r a t u r

- 1) M. Tarnero: CEA-3206
- 2) W.R. Burton u. A.L. Mills: Nuclear Engineering (1963)  
7, 248/252
- 3) W. Ochsenfeld, H. Schmieder u. G. Baumgärtel  
KFK-671 / Eur-3703-d
- 4) D. Ertel und W. Wettstein: KFK 560
- 5) D. Thiele und W. Bähr: KFK 503
- 6) T.S. Laximinarayanan, S.K. Patil u. H.D. Sharma:  
J.Inorg.Nucl.Chem. 26 (1964) 1301/1309
- 7) F. Baumgärtner u. L. Finsterwalder: Privatmitteilung
- 8) S. H. Jury u. M.E. Whatley: CF-59-8-122

Tabelle 1: Experimentell ermittelte Verteilungsdaten (20 % TBP)

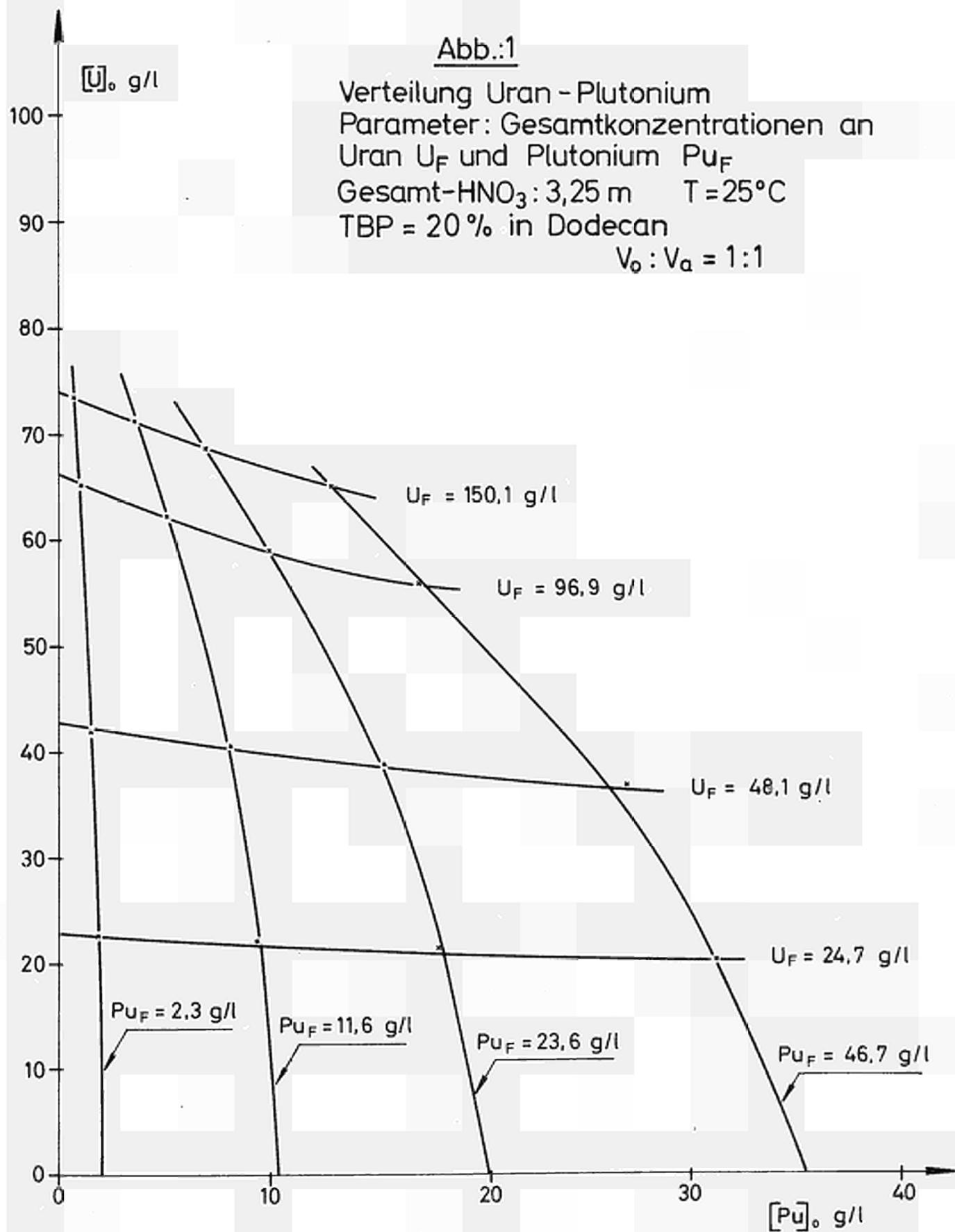
Gesamt HNO <sub>3</sub> Mol/l	U <sub>aq</sub> g/l	U <sub>org</sub> g/l	Pu <sub>aq</sub> g/l	Pu <sub>org</sub> g/l	D <sub>U</sub>	D <sub>Pu</sub>
3,25	76,6	73,5	1,6	0,7	0,96	0,44
3,25	31,4	65,5	1,3	1,1	2,08	0,85
3,25	6,3	41,8	0,7	1,6	6,63	2,28
3,25	2,1	22,6	0,5	1,8	10,76	3,60
3,25	78,9	71,2	8,0	3,6	0,90	0,45
3,25	34,9	62,0	6,5	5,1	1,78	0,78
3,25	7,6	40,5	3,5	8,2	5,33	2,34
3,25	2,5	22,2	2,1	9,4	8,88	4,41
3,25	81,5	63,6	16,6	7,0	0,84	0,42
3,25	38,1	58,8	13,6	10,0	1,54	0,73
3,25	9,4	38,7	8,3	15,4	4,12	1,86
3,25	3,0	21,3	5,7	18,0	7,10	3,16
3,25	85,1	65,0	33,9	12,8	0,76	0,38
3,25	41,2	55,7	29,6	17,1	1,35	0,58
3,25	11,3	36,8	19,7	27,0	3,25	1,37
3,25	4,5	20,2	15,5	31,2	4,49	2,01
0,62	44,91	46,32	1,67	0,59	1,03	0,35
0,62	45,73	47,76	9,19	2,85	1,04	0,31
0,62	46,22	45,24	18,86	5,06	0,98	0,27
0,62	45,91	50,11	35,71	8,47	1,09	0,24
0,62	18,70	26,82	1,64	0,73	1,43	0,45
0,62	19,33	27,44	8,65	3,68	1,42	0,43
0,62	17,70	24,07	13,30	6,69	1,36	0,50
0,62	18,65	28,12	26,09	13,62	1,51	0,52
0,62	8,64	14,64	1,56	0,74	1,69	0,47
0,62	7,96	15,85	8,05	4,16	1,99	0,52
0,62	7,44	15,19	13,89	8,21	2,04	0,59
0,62	8,21	14,63	27,25	15,23	1,78	0,56

Tabelle 2: Vergleich der gemessenen mit den berechneten Verteilungsdaten

HNO <sub>3</sub> (Gesamt) Mol/l	U (Gesamt)	Pu (Gesamt)	D <sub>Pu</sub>	D <sub>Pu</sub>	D <sub>U</sub>	D <sub>U</sub>
	g/l	g/l	gemessen	berechnet	gemessen	berechnet
3,25	150,1	2,3	0,44	0,46	0,96	0,95
3,25	96,9	2,3	0,85	0,83	2,08	1,92
3,25	48,1	2,3	2,28	2,41	6,63	5,38
3,25	24,7	2,3	3,60	3,92	10,76	8,55
3,25	150,1	11,6	0,45	0,44	0,90	0,90
3,25	96,9	11,6	0,78	0,76	1,78	1,73
3,15	48,1	11,6	2,34	1,99	5,33	4,66
3,25	24,7	11,6	4,41	3,36	8,88	7,61
3,25	150,1	23,6	0,42	0,42	0,84	0,85
3,25	96,9	23,6	0,73	0,71	1,54	1,56
3,25	48,1	23,6	1,86	1,63	4,12	3,92
3,25	24,7	23,6	3,16	2,73	7,10	6,50
3,25	150,1	46,7	0,38	0,34	0,76	0,77
3,25	96,9	46,7	0,58	0,61	1,35	1,34
3,25	48,1	46,7	1,37	1,37	3,25	3,09
3,25	24,7	44,7	2,01	1,93	4,49	4,69
0,62	95,2	2,4	0,35	0,41	1,03	0,98
0,62	95,2	12,0	0,31	0,39	1,04	0,98
0,62	95,2	23,9	0,27	0,33	0,98	0,99
0,62	95,2	47,8	0,24	0,22	1,09	1,13
0,62	47,6	2,4	0,45	0,45	1,43	1,34
0,62	47,6	12,0	0,43	0,49	1,42	1,40
0,62	47,6	23,9	0,50	0,51	1,36	1,47
0,62	47,6	47,8	0,52	0,46	1,51	1,53
0,62	23,8	2,4	0,47	0,46	1,69	1,55
0,62	23,8	12,0	0,52	0,54	1,99	1,74
0,62	23,8	23,9	0,59	0,60	2,04	1,85
0,62	23,8	47,8	0,56	0,57	1,78	1,94

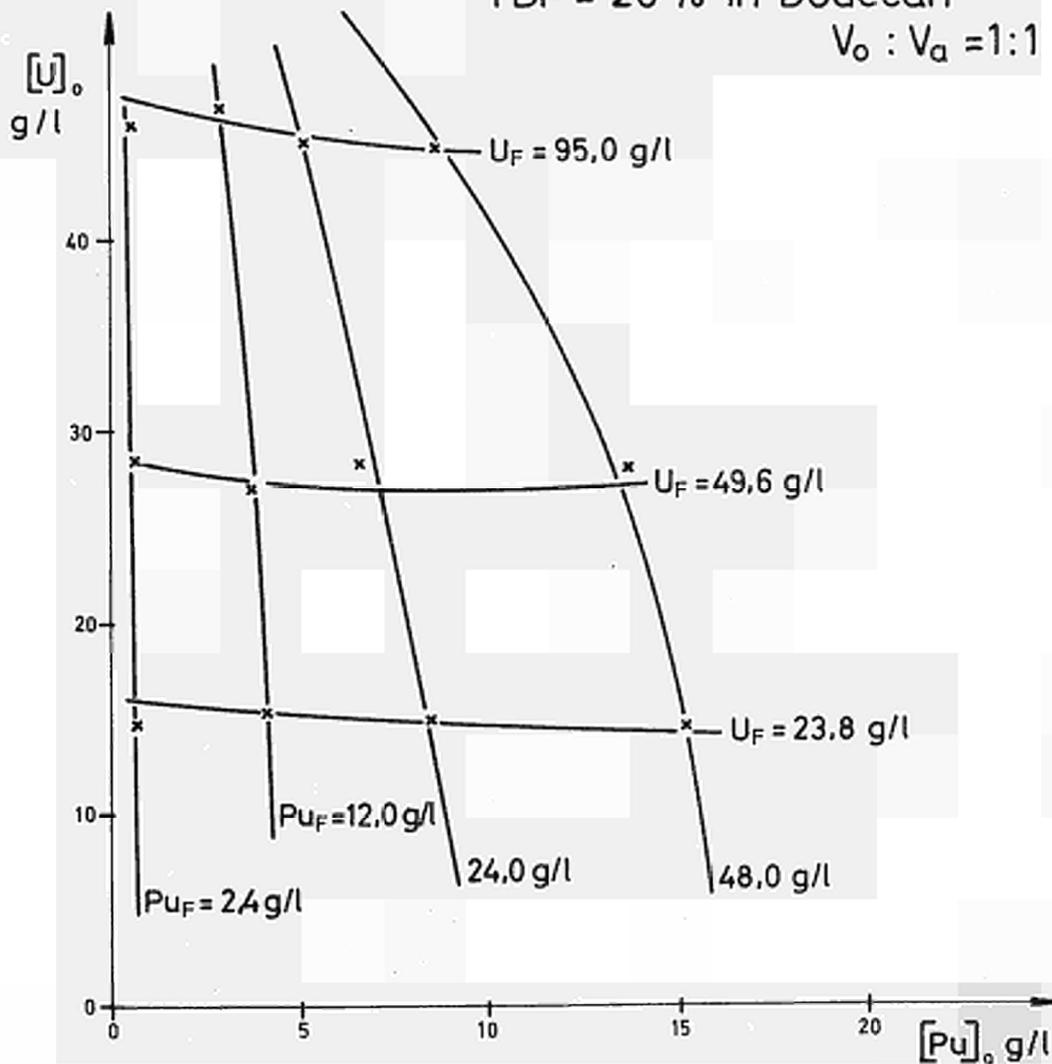
Abb.:1

Verteilung Uran - Plutonium  
Parameter: Gesamtkonzentrationen an  
Uran  $U_F$  und Plutonium  $Pu_F$   
Gesamt- $HNO_3$ : 3,25 m  $T=25^\circ C$   
TBP = 20 % in Dodecan  
 $V_o : V_a = 1:1$





**Abb.:1a** Verteilung Uran-Plutonium  
 Parameter: Gesamtkonzentrationen an  
 Uran  $U_F$  und Plutonium  $Pu_F$   
 Gesamt- $HNO_3$ : 0,62 m  $T = 25^\circ C$   
 TBP = 20% in Dodecan  
 $V_o : V_a = 1:1$



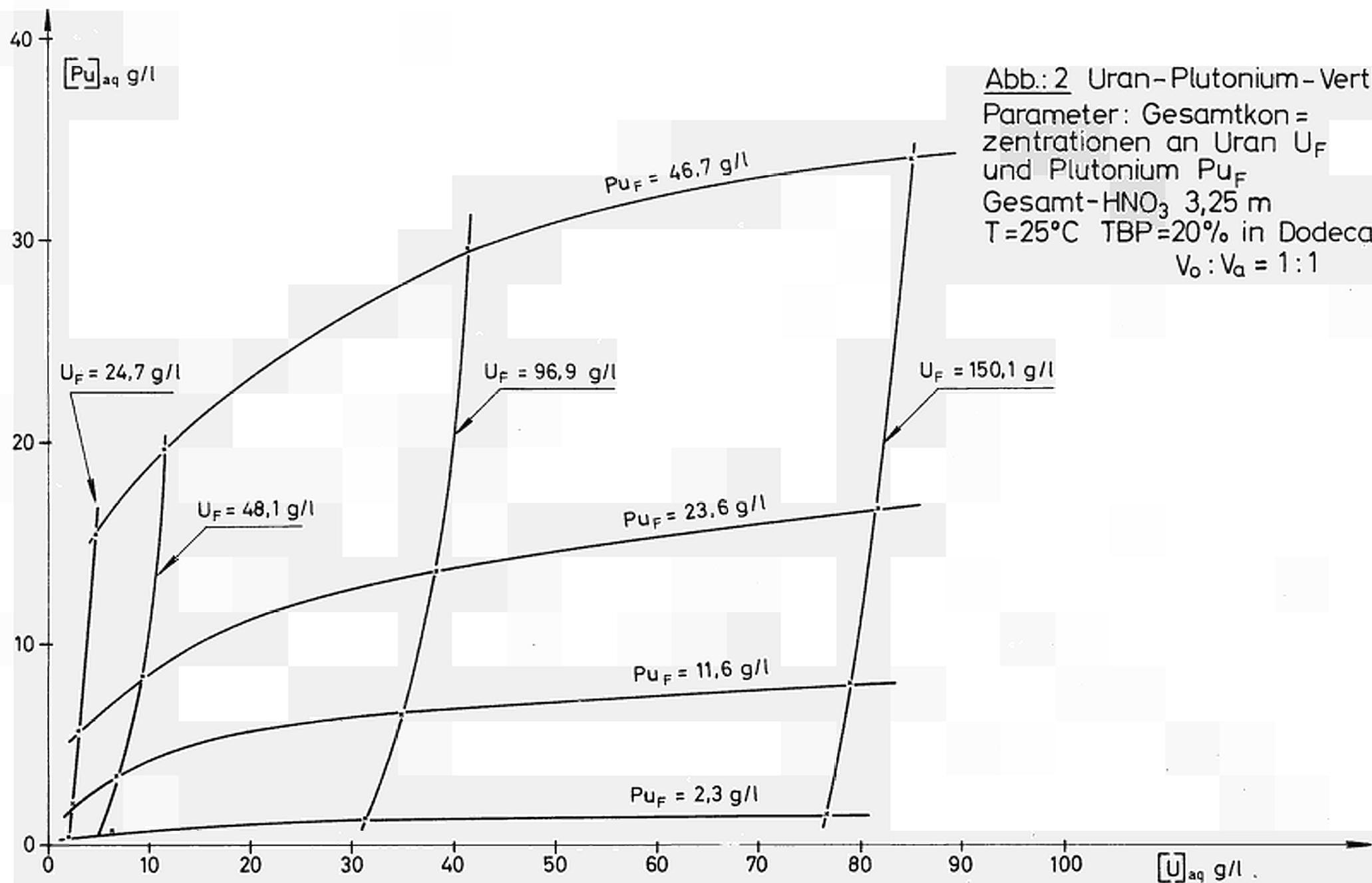


Abb.: 2 Uran-Plutonium-Vertlg.  
 Parameter: Gesamtkonzentrationen an Uran  $U_F$   
 und Plutonium  $Pu_F$   
 Gesamt- $HNO_3$  3,25 m  
 $T=25^\circ C$  TBP=20% in Dodecan  
 $V_o : V_a = 1 : 1$

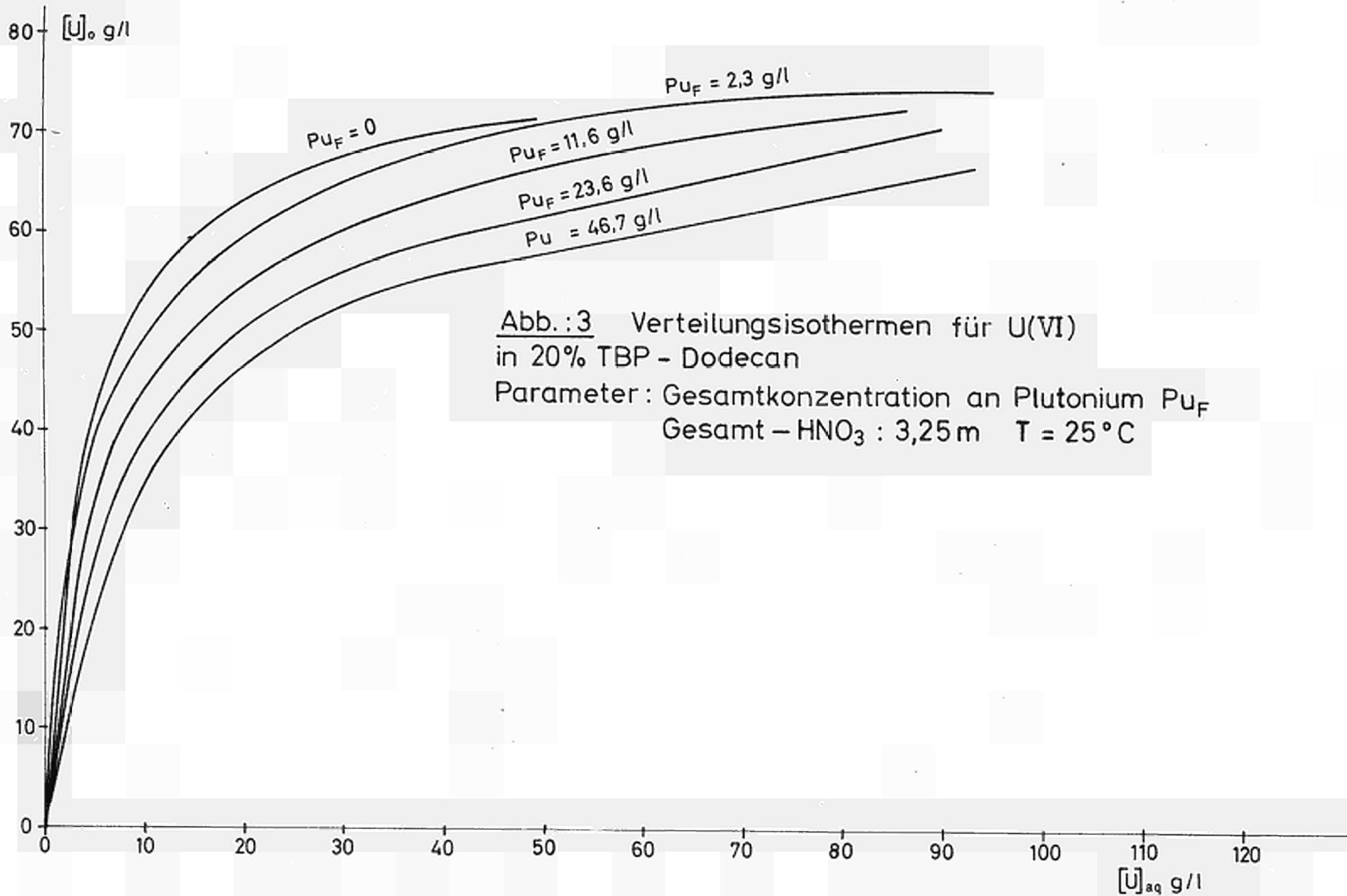
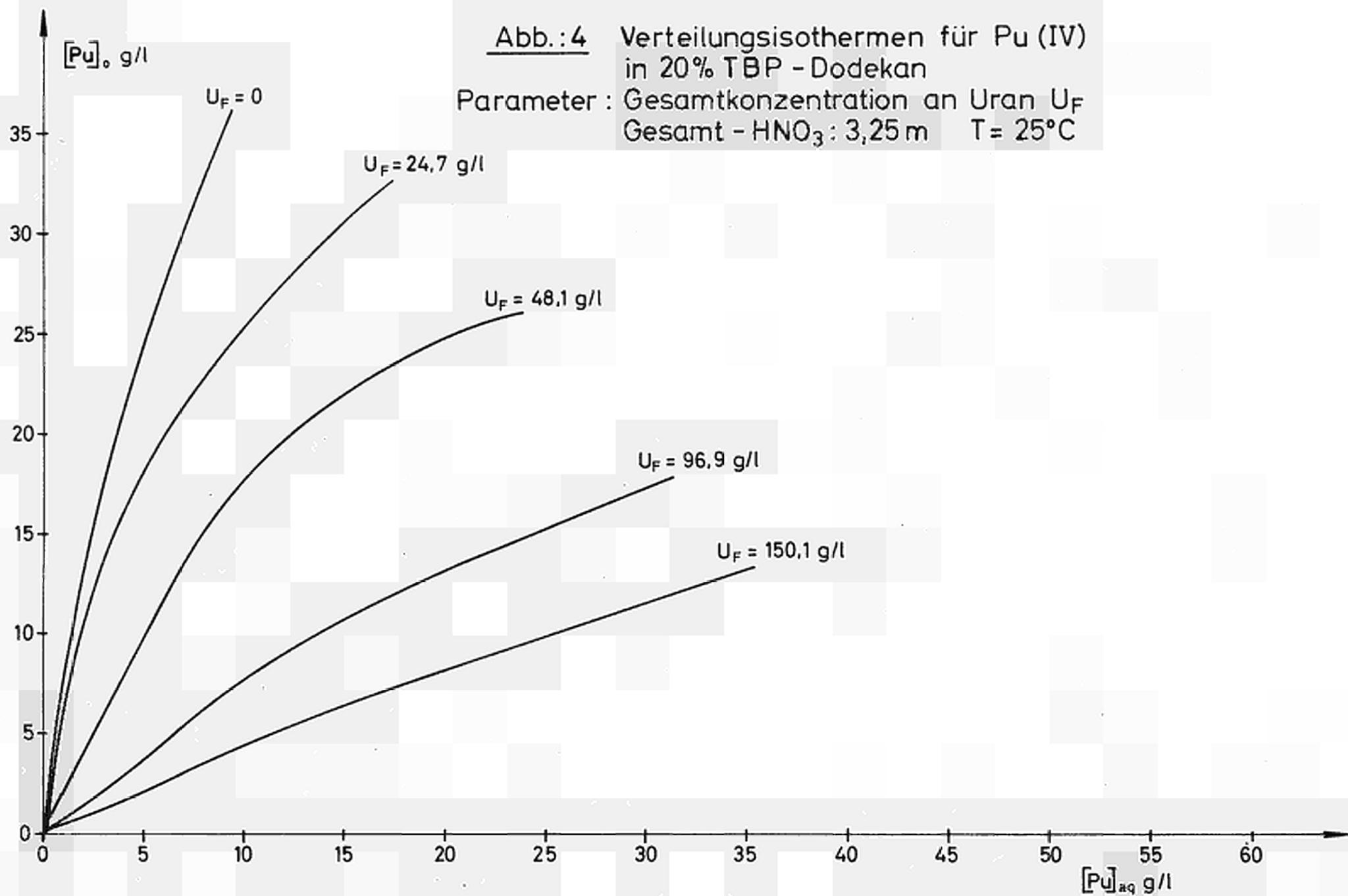
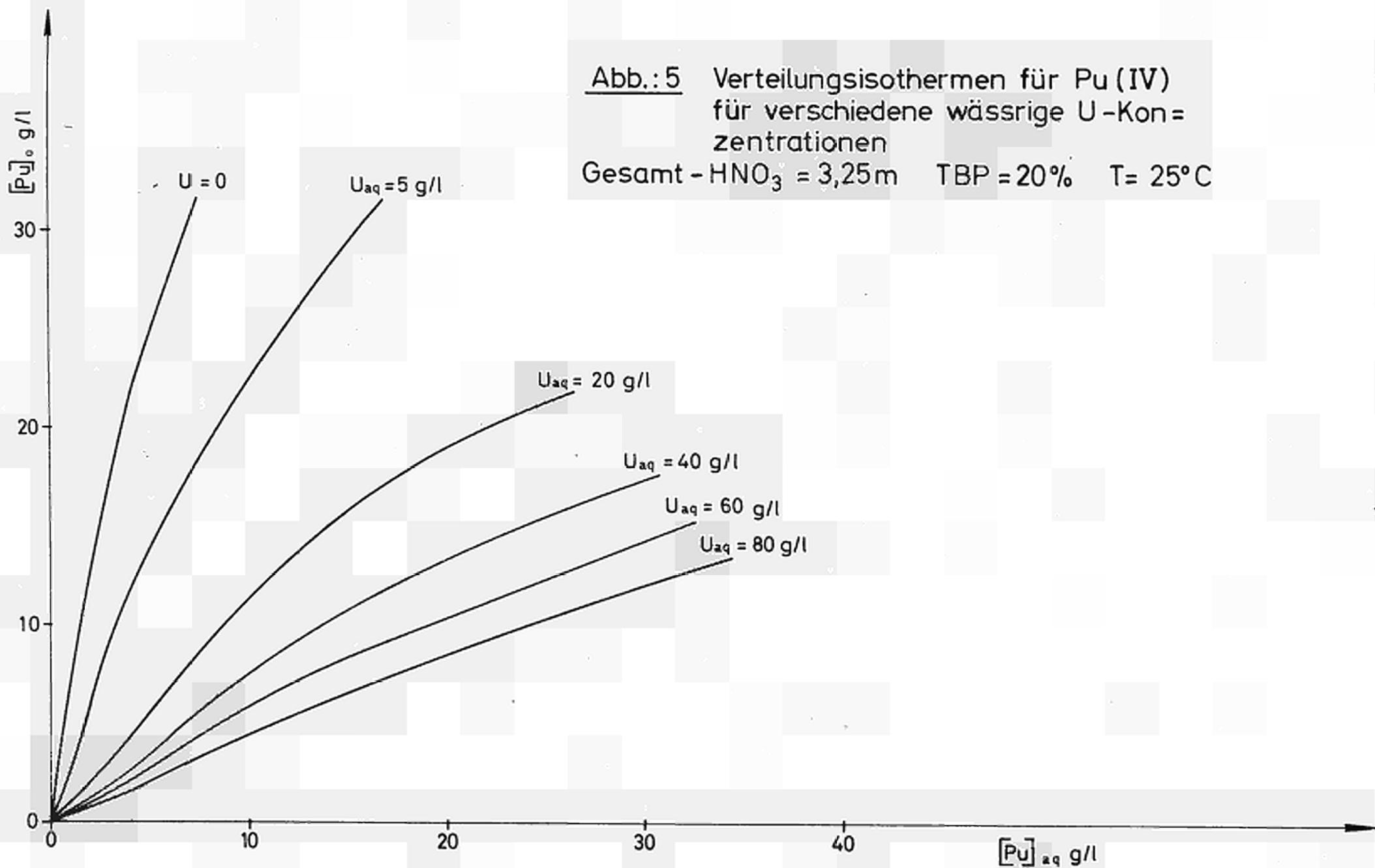
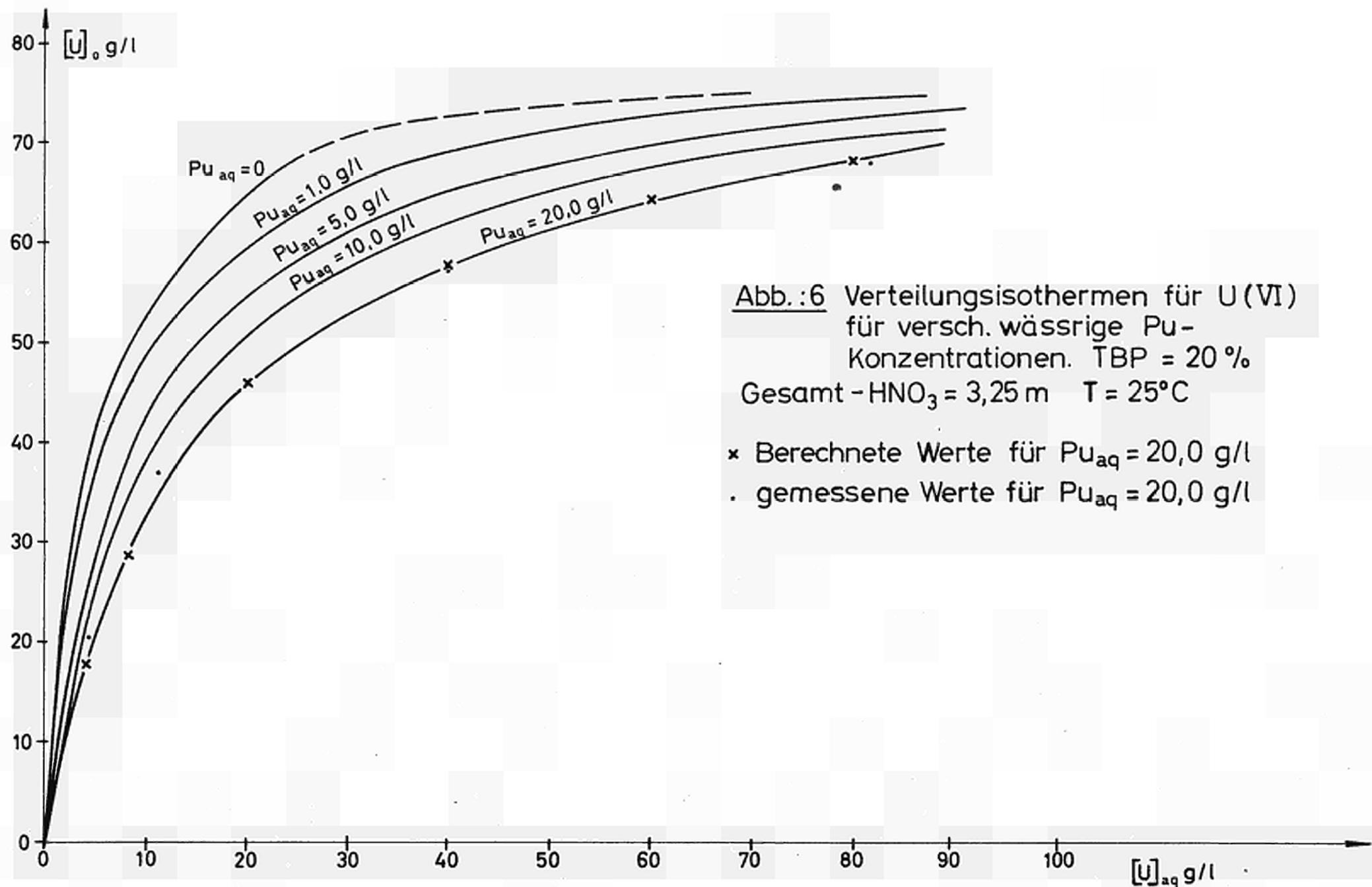


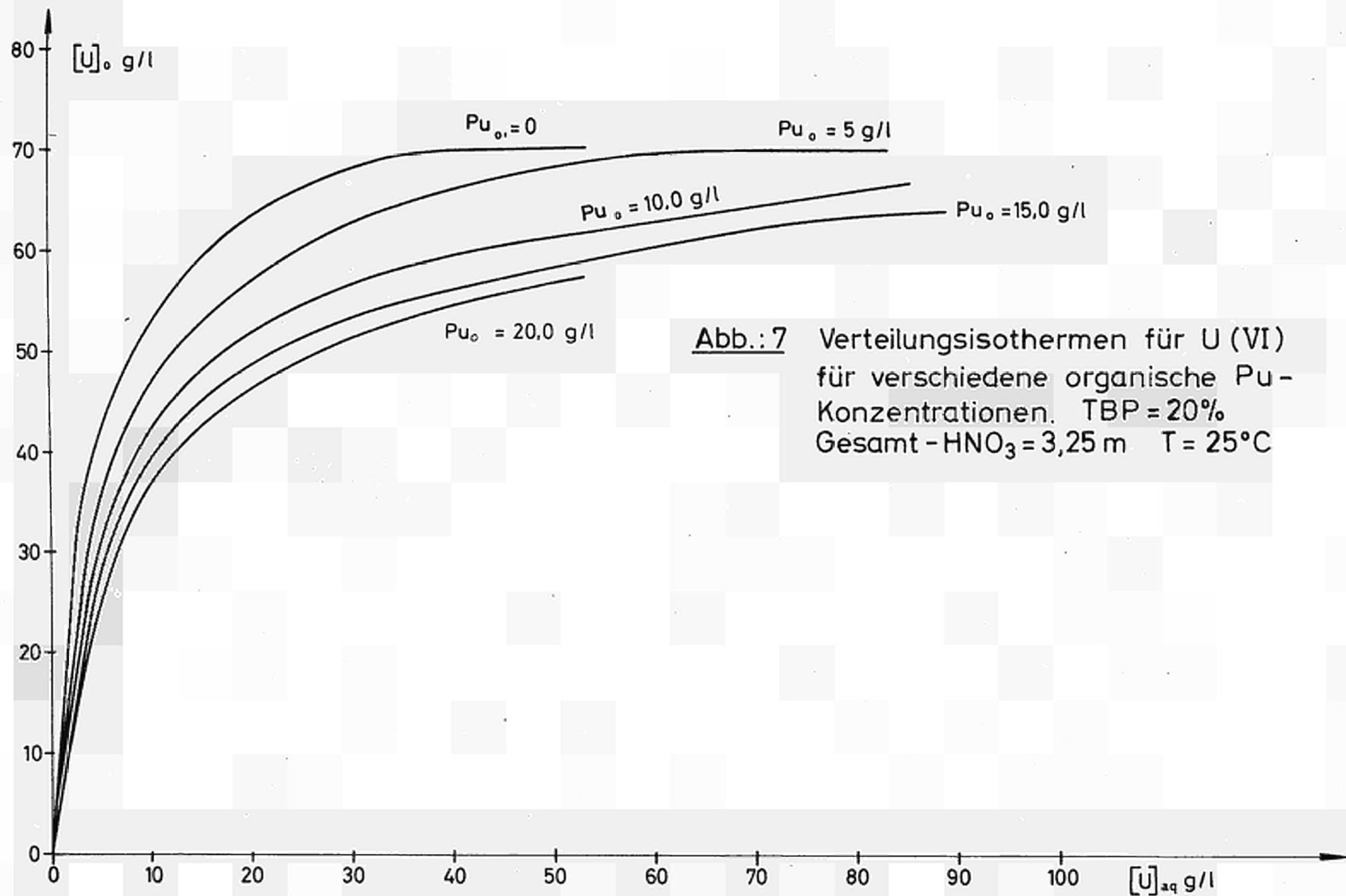
Abb.:4 Verteilungsisothermen für Pu (IV)  
in 20% TBP - Dodekan

Parameter : Gesamtkonzentration an Uran  $U_F$   
Gesamt -  $HNO_3$  : 3,25 m     $T = 25^\circ C$









**Abb.: 7** Verteilungsisothermen für U (VI) für verschiedene organische Pu-Konzentrationen. TBP = 20% Gesamt-HNO<sub>3</sub> = 3,25 m T = 25°C

**Abb.: 8** Verteilungsisothermen für Pu (IV)  
für verschiedene organische U -  
Konzentrationen TBP = 20%  
Gesamt - HNO<sub>3</sub> = 3,25m T = 25°C

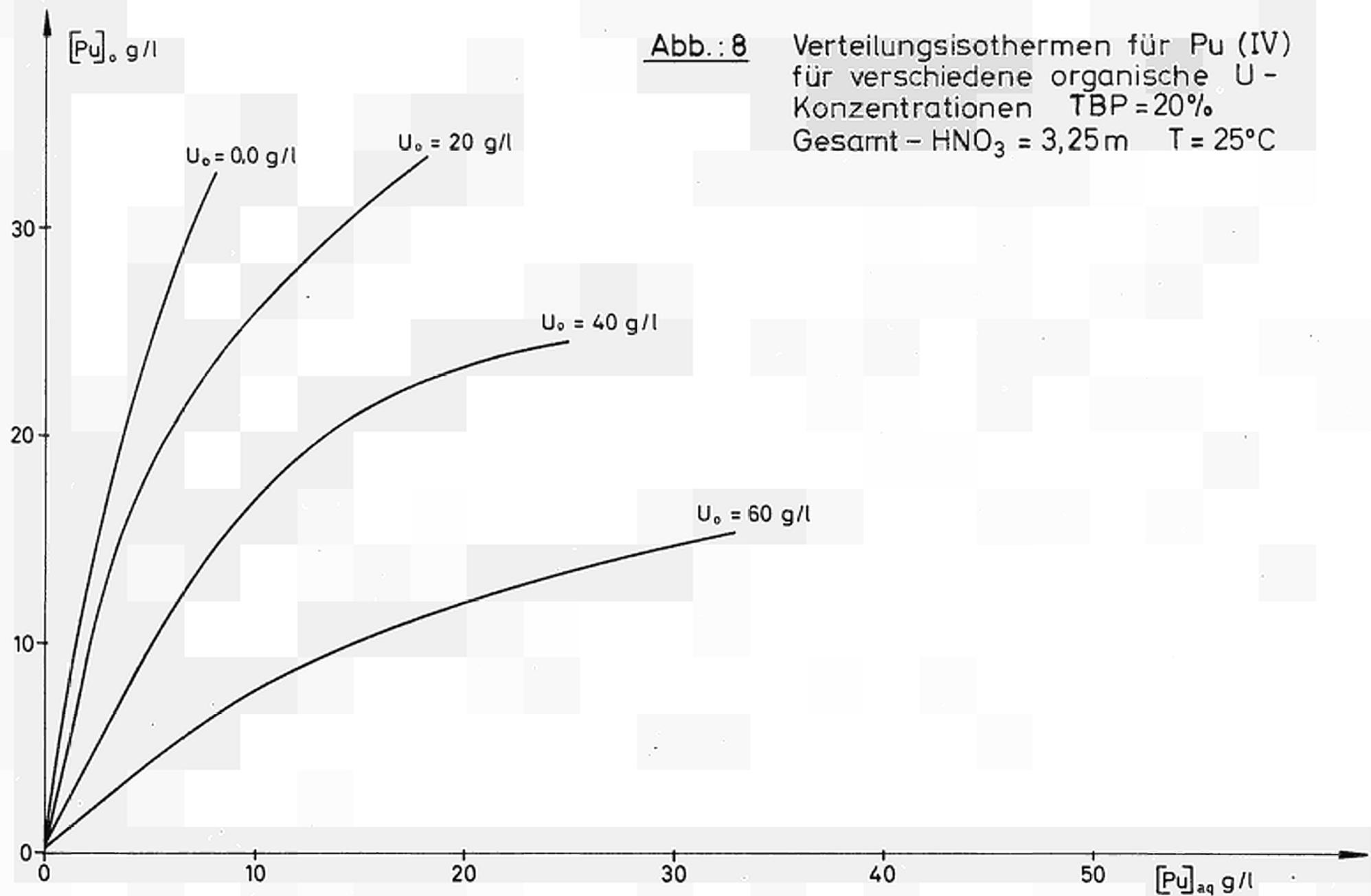


Abb.: 9

$\tilde{\kappa}_u$  als Funktion der Ionenstärke  $\mu$  bei  $T=25^\circ\text{C}$

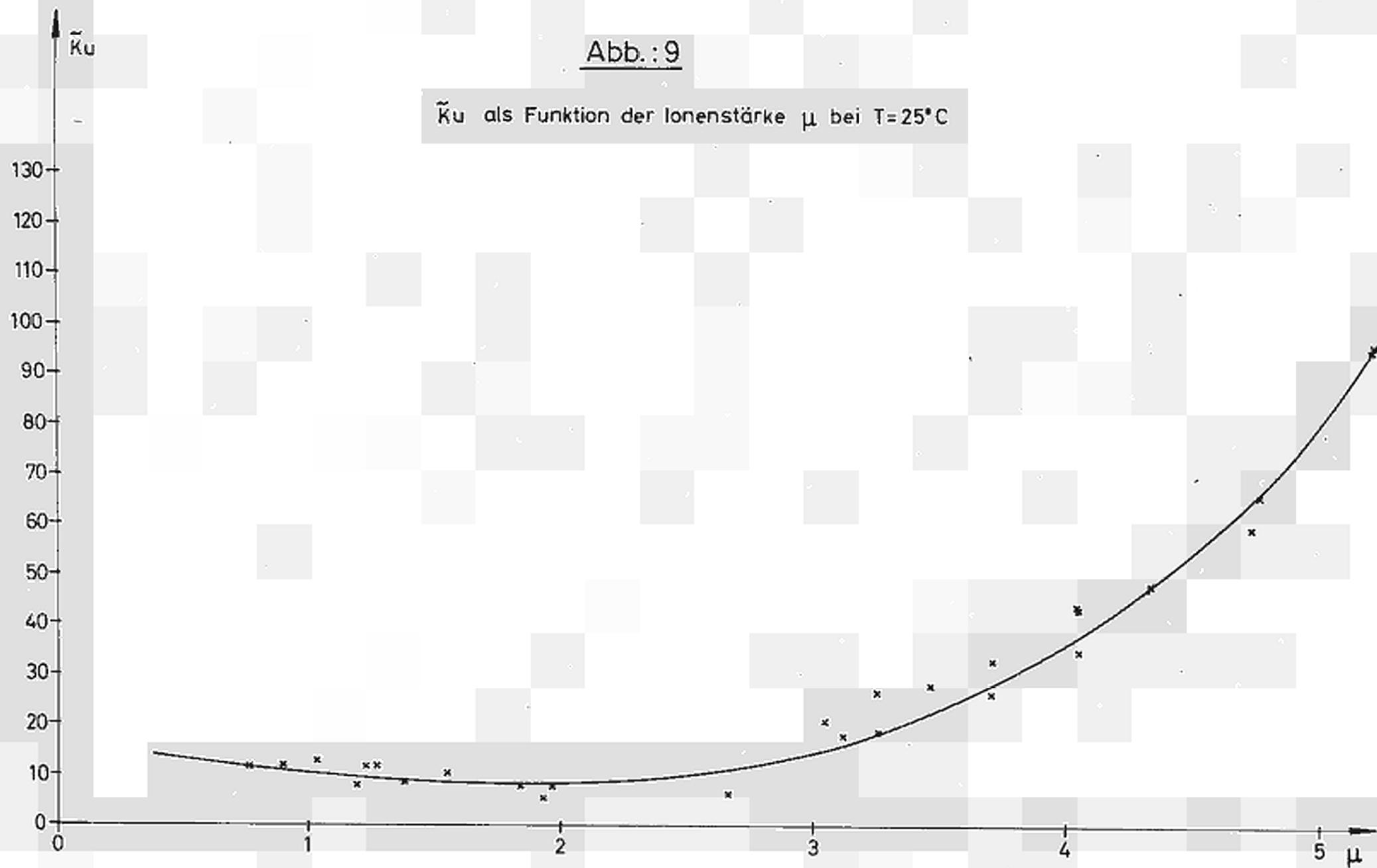
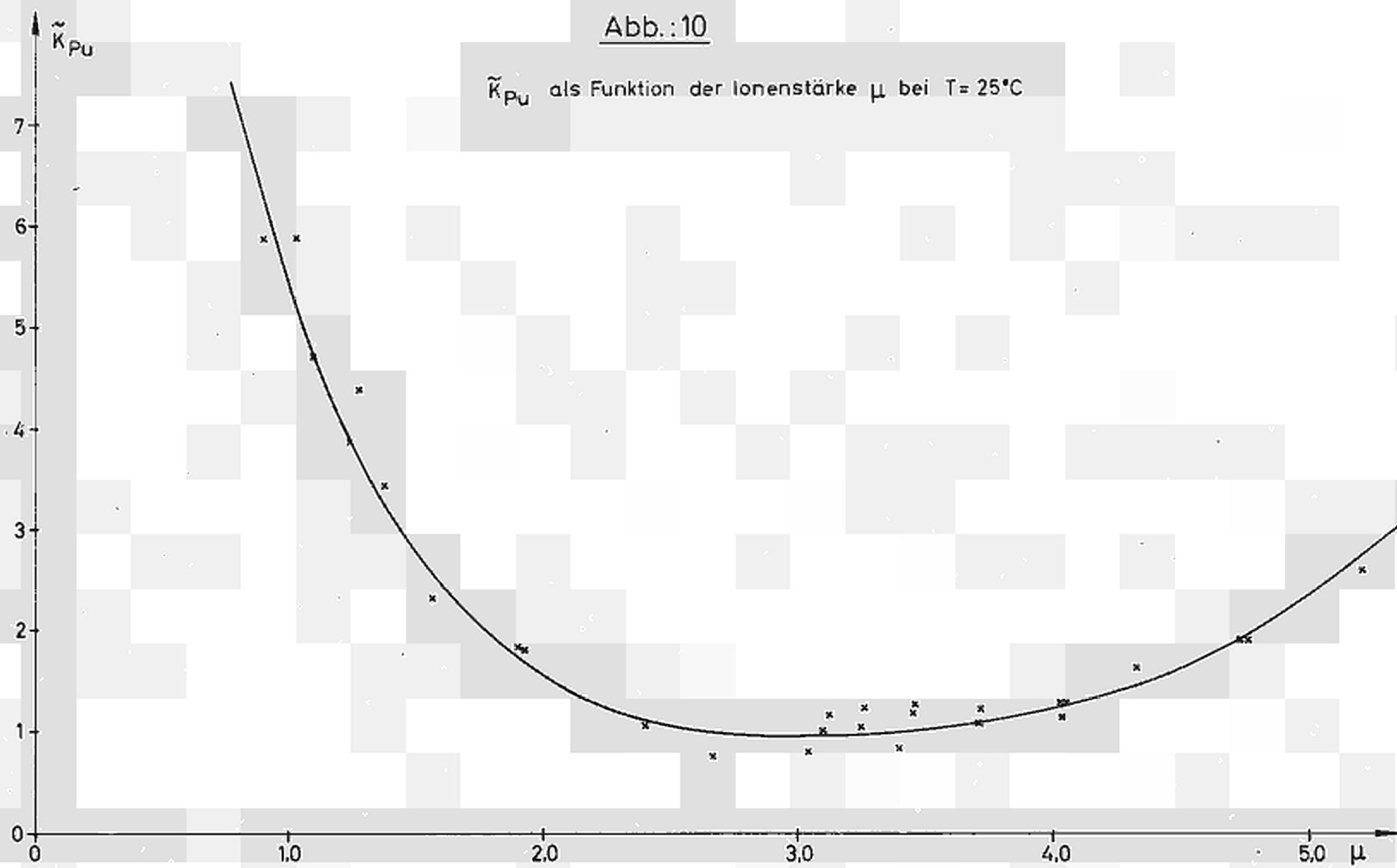


Abb.:10

$\tilde{K}_{Pu}$  als Funktion der Ionenstärke  $\mu$  bei  $T = 25^\circ\text{C}$





CDNA03707DEC