

CN8900341

CNIC-00137

IAE-0035

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

电解还原铀钚分离过程中铀行为的研究



中國核情报中心

China Nuclear Information Centre

CNIC-00137

IAE-0035

电解还原铀钚分离过程中 镅行为的研究

**张清轩 张家骏 田保生 蒋栋梁
李兆义 何建玉**

(中国原子能科学研究院, 北京)

中国核情报中心

北京·1988.1

摘 要

本文对 HNO_3 介质中的 $\text{Np(V)}-\text{Np(VI)}$ 电极行为进行了研究。实验表明, 电解过程可逆, Np(V) 的还原有很高的超电位。在双区单级电解槽中, 阴极电位 700mV(S.C.E.) , 电解还原10分钟, 可使 Np(VI) 定量还原成 Np(V) 。在 1.50mol/L HNO_3 介质中, 电解还原 Np(VI) 的半反应时间约1.5分钟。可以预见, 在混合澄清槽中的铈将主要处于四价状态。

本文还介绍了研制阳阴极共区电解还原混合澄清槽的目的、设计、调试、轴酸冷运转的情况。并利用该槽进行了铈、铀、铈共存的运行试验, 着重了解铈在轴、铀分离过程中的行为。实验证明, 铀收率 $99.90-99.99\%$; 铀中去铈分离系数 $3900\sim 33000$; 铈、铀、酸物料衡算良好; 铈在槽中的积累和内循环严重; 铈在槽中主要以四价形态存在; 在1B槽铀铀分离条件下, 从单一产品液流 (IBU或IBP) 中定量回收铈是不太可能的。

关键词 铈 电解 混合澄清槽 超电位 极化 价态

THE INVESTIGATION ON NEPTUNIUM BEHAVIOR IN ELECTROLYTIC PARTITIONING PROCESS OF URANIUM AND PLUTONIUM

Zhang Qingxuan Zhang Jiajun Tian Baosheng
Jiang DongLing Li Zhaoyi He Jianyu

(Institute of Atomic Energy, Beijing)

ABSTRACT

The electrolytic oxidation-reduction of Np(V, VI) in HNO_3 solution was studied. Experimental results showed that the electrode process of Np(V)-Np(VI) couple is reversible, half reaction time of the process mentioned above is about 1.5 minutes under given conditions. The overpotential of reduction of Np(V) is high, which makes it difficult to reduce Np(V) into Np(IV) directly at cathode. Owing to a large quantity of U(IV) produced through electrolysis, it is presaged that neptunium will be mainly in tetravalent state in the electrolytic M-S battery.

A new type of electrolytic M-S battery was developed, in which anodes were installed in each settling chamber without any specific anode chamber in the battery. Owing to using of the mechanical stirrer driven by a wheel gear, stage efficiency is high. Demonstration campaign was carried out. It follows from the results that the yield of Pu is 99.90~99.99%. Separation factor of U from Pu is 3900~33000. Material balance of U and Pu is satisfactory. Heavy accumulation of Np in the battery was observed. Np in the battery is mainly in the tetravalent state. It is believed that it is difficult to recover Np quantitatively from single fluent (e.g. 1BP or 1BU) under normal conditions of partitioning step of the PUREX process.

前 言

铀的化学行为十分复杂。在普雷克斯过程共萃取循环中,五价铀基本不被萃取。由于所用硝酸浓度较低,在30%TBP/煤油-HNO₃体系中,六价铀的分配系数远比四价铀大。在硝酸体系中,还存在着亚硝酸催化硝酸根氧化五价铀为六价铀的反应。所以,在普雷克斯共萃取过程有机产品液流(IAP)中,铀主要处于六价状态^[1-6]。在铀钚分离过程中,尤其在使用四价铀做还原剂或用电解还原技术作铀的还原手段时,由于U(VI)/U(IV)电对电位值远比Np(VI)/Np(V),Np(VI)/Np(IV)和Np(V)/Np(IV)电对电位值要低。所以,从热力学上看,只要体系中存在一定浓度的四价铀,体系中的铀应以四价形式存在。然而,在30%TBP/煤油-HNO₃萃取体系中,四价铀的分配系数随水相硝酸浓度的降低而急剧下降。在普雷克斯铀钚分离条件下,四价铀的分配系数为1左右。这就给从单一液流(IBP或IBU)中定量回收铀造成困难。在这种情况下,硝酸浓度是影响铀走向的重要因素。提高体系硝酸浓度有利于铀进入有机液流(BU),降低体系酸度则有利于铀随钚一起进入水相(BP)液流。

西德研究了在电解还原铀钚分离过程中铀的走向。指出,在IB槽中90%的铀处于四价;在其流程条件下,约90%的铀进入水相产品(IBP)液流中^[7-10]。但至今没有见到更详细的报道也未见具体实验条件和数据。

为了弄清混合澄清槽电解还原铀钚分离过程中铀的行为,首先需了解在硝酸介质中Np的电极过程和铀在单级电解还原槽中的行为。

在电解还原铀钚分离试验中,为了避免阳极对溶剂的氧化降解和对三价钚的再氧化,西德的电解混合澄清槽曾设计成三区型。即在反萃段每级增设一阳极室^[7,9]。实际上,由于体系中存在大量肼,而且N₂H₄/N₂电对的标准电位值远比Pu(IV)/Pu(III)电位值低,四价铀的阳极氧化又具有很高的超电位,所以,对阳极再氧化三价钚或四价铀的耽心是不必要的。至于阳极上的溶剂降解,可采取其它措施来避免,且易于解决。为了简化设备,我们在槽子设计中取消了阳极室,而将阳极板装在澄清室内,浸于水相中。这样,阳极和阴极同处于澄清室中,不仅简化了电解混合澄清槽结构,且消除了溶液在阳极室中的滞留问题。为此我们开展了阳阴极共区电解还原混合澄清槽的研制和Np在铀钚分离过程中行为的研究。

实 验 部 分

1. 分 析 方 法

(1) 铀和钚的分析 对常量铀和钚的浓度测定使用饱和硫酸钾-pH滴定法,对微量铀的分析用修改过的2-(5-溴-吡啶偶氮)-5-二乙氨基苯酚比色法^[11]进行测定。水相中的四价铀在1.5mol/L的HNO₃介质中用分光光度法测定,波长648nm。

(2) 钚浓度的测定 水相样品一般经稀释后制源,用 α 计数法测定。有机相中的钚先反萃到水相,然后用同一方法测定。对有大量铀存在下含微量钚的样品,采用氯化钡沉淀钚带法制源- α 计数法测定。

(3) 铀浓度的测定 先用阴离子交换法进行铀钚分离,然后制源进行 α 测量。

(4) 铀价态分析 对高浓度铀溶液中铀的价态分析,使用控制电位库仑法^[12]进行。低浓

镍的价态分析采用TTA萃取-阴离子交换法进行。

2. 试验设备

为了使设备紧凑，保证良好的搅拌和液流传输，混合澄清槽采用齿轮传动机械搅拌。图1为搅拌器照片，图2为混合澄清槽混合室剖面图。搅拌器下端有一直径为2mm的通孔，调节搅拌器的高低或转速可以控制澄清室界面高度和两相混合程度。

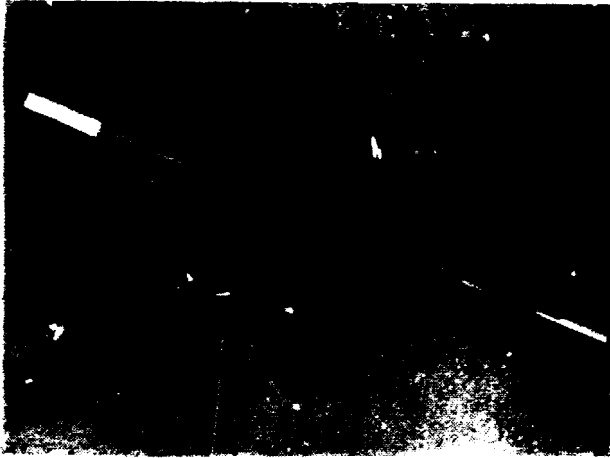


图1 混合澄清槽搅拌器

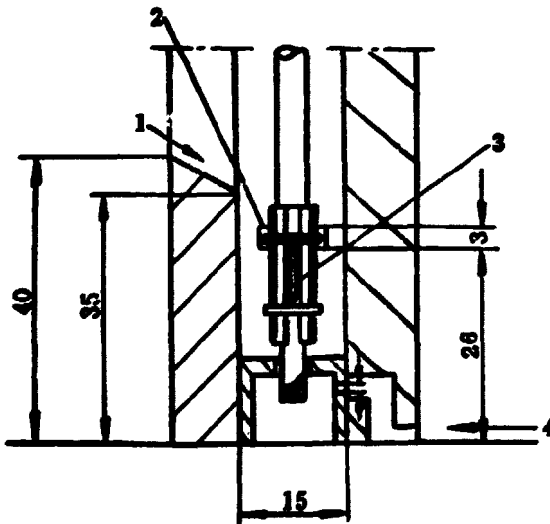


图2 机械搅拌电解混合澄清槽混合室剖面图

1—轻相进口；2—混合相口；3—搅拌叶；4—重相进口。

在混合澄清槽的调试和冷运转时我们使用了如图3所示的齿轮传动机械搅拌有机玻璃混

合澄清槽的系统。这个槽的结构、尺寸与做铀、镭、钍分离实验的电解混合澄清槽完全相同。使用此槽的目的是为了便于观察液流传输和搅拌、混合、澄清等水力学情况。实验表明，调节搅拌器位置的高低可以控制前一級澄清室水相液面高度。而搅拌器转速是影响两相混合程度和流体传输情况的重要因素。在1200~1300r/min时，可以得到良好的搅拌效果。当转速低于1200r/min时，两相混合不良，水相流通不畅；当转速高于1300r/min时，发现分相不理想，而且存在轻微的有机相返混现象。几个月的运转表明，齿轮传动机械搅拌混合澄清槽系统运行很稳定，水力学性能良好，槽子级效率也较高。

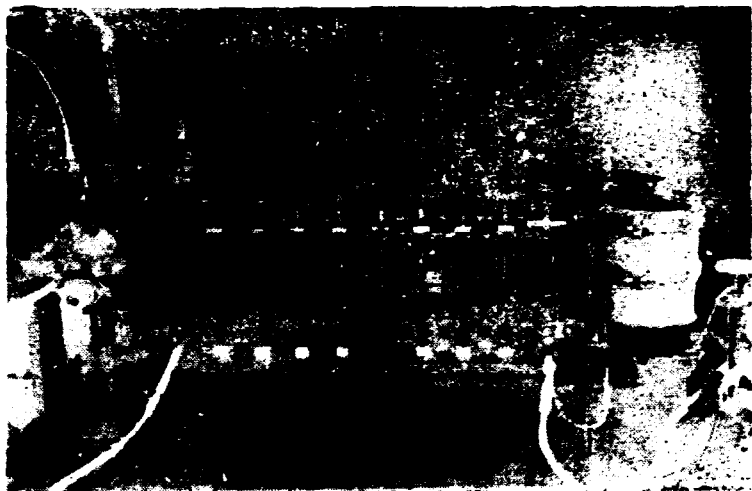


图3 机械搅拌有机玻璃混合澄清槽系统

进行铀、镭和钍分离实验的电解混合澄清槽的槽体是钛制的，级板和室板材料为聚四氟乙烯，所以，澄清室槽底起电解还原的阴极作用。阳极为镀铂钛片，面积约 $13 \times 8 \text{ mm}^2$ ，装在1至10级室板澄清室一侧，并浸在水相中。电源用恒电位电解仪操作在恒电流状态。参比电极为饱和甘汞电极，直接插在BX水相进口处，槽压约13V。

3. 电解混合澄清槽铀、镭、钍分离实验料液的配制

由于条件限制，在进行铀、镭、钍电解还原混合澄清槽分离实验时使用人工配制的料液。配制有机料液所用的30% TBP-煤油溶液，使用前均经酸洗、碱洗和水洗纯化。配制含铀的30% TBP-煤油溶液是用硝酸将硝酸铀酰溶液调到中等酸度，然后用30% TBP-煤油进行萃取，澄清后分出含铀有机相备用。配制含钍(IV)的30% TBP-煤油溶液，首先取经过阴离子交换纯化得到的四价钍硝酸溶液，用硝酸调酸度到4~5 mol/L，然后用纯化过的30% TBP-煤油溶液进行萃取，分相后分析钍的浓度备用。根据铀的行为分析和从文献中得知，模拟IBF(IAP)中铀是以六价状态配入的。首先在加热情况下用硝酸胍使铀溶液中的铀还原为四价状态，调节酸度后进行阴离子交换纯化，铀的阴离子交换解吸液为1 mol/L的 HNO_3 溶液，用过氧化钡氧化铀为六价状态，然后在酸度为4~5 mol/L下用30% TBP-煤油溶液进行萃取。用以上方法制得的铀(VI)、钍(IV)、镭(VI)的30% TBP-煤油溶液以及另外制得的 HNO_3 -30% TBP-煤油溶液，在实验前根据要求配制成一定组成的IBF模拟料液，并分析其中的铀、钍、镭、铯的含量。

实验结果和讨论

I. HNO_3 介质中 Np 的三区单级电解氧化还原实验

(1) 铈离子的电极过程研究 J.C.Hindman⁽¹³⁾和H.A.Friedman⁽¹⁴⁾分别研究了高氯酸介质中铈离子的电极过程。用电解氧化还原法制备了纯价态的铈溶液。他们的实验结果表明, $\text{Np(V)}-\text{Np(VI)}$ 之间的反应为热力学可逆过程而易于进行; 而四价铈的氧化和五价铈的还原则为热力学不可逆过程, 过程中存在很高的超电位。

我们针对硝酸介质, 对 $\text{Np(V)}-\text{Np(VI)}$ 的电极行为进行了研究。图4和图5分别为六价铈和五价铈在 0.38mol/L 的 HNO_3 介质中, 在铂电极上的电流-电位曲线。扫描时间为 30s 。曲线明确表明了六价铈的还原和五价铈的氧化是由扩散过程控制的 reversible 电极反应。由图5可以看到, 在硝酸水溶液中, 铂电极上五价铈的电解还原具有很高的超电位。实验表明, 当阴极极化到五价铈发生还原反应时阴极上已开始有氢气析出了。而六价铈在阳极上的氧化反应直到有氧气析出时也没有被观测到。

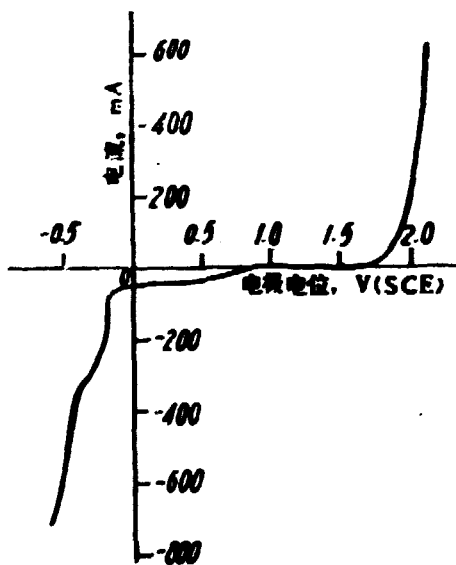


图4 Np(VI) 在铂电极上的极化曲线

介质: 0.38mol/L 的 HNO_3 ; $[\text{Np}] \approx 6\text{mg/mL}$;

工作电极: 213铂电极, 面积 0.28cm^2 , 扫描时间 30s 。

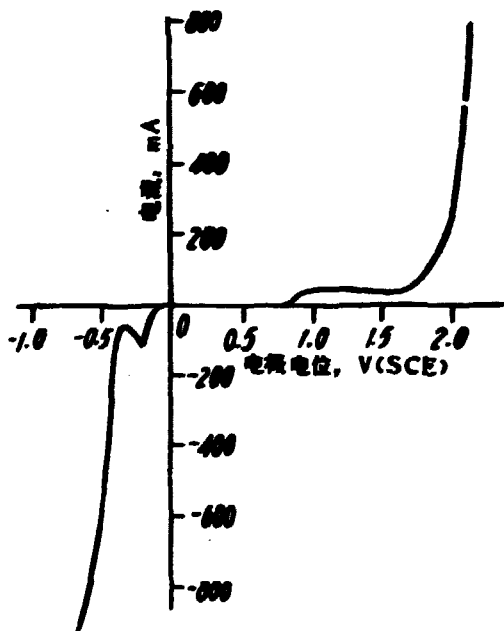


图5 Np(V) 在铂电极上的极化曲线

其他条件同图4

(2) 单级电解氧化还原实验 实验是在室温下进行的。用有机玻璃双区电解槽, 电解液体积约 12mL , 用电磁搅拌。工作电极与辅助电极之间用 G4 玻璃砂隔膜隔开。工作电极为铂网电极, 表面积为 22cm^2 。辅助电极为铂制, 呈螺旋管状, 面积约 1cm^2 。

在 0.946mol/L 的 HNO_3 介质中, 利用部分电解库仑滴定法测定了 $\text{Np(VI)}/\text{Np(V)}$ 电对的克式量电位为 0.884V (相对饱和甘汞电极)。参照这个电位值可选择电解氧化还原工作电极电位。

使用库仑滴定法分析电解液中铈的价态组成。

图6和图7为在1.50mol/L的HNO₃介质中电解还原六价铈的实验结果。阴极工作电位(E_c)分别为0.700V和0.500V(相对于饱和甘汞电极)。

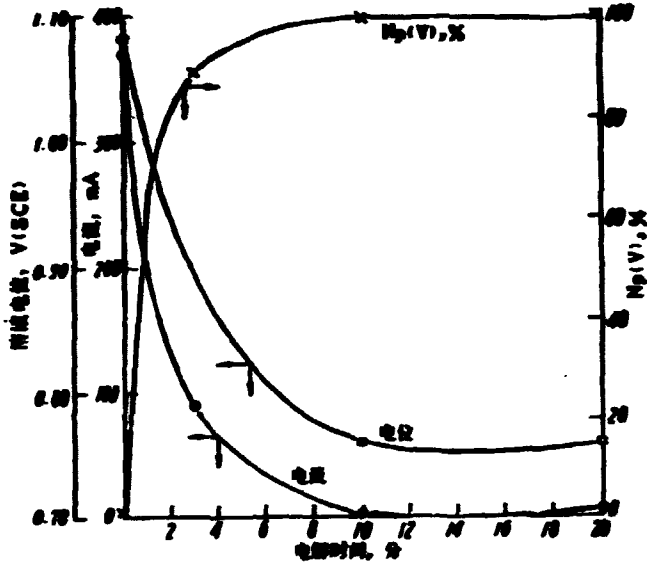


图6 Np(VI)的电解还原

电解液: 1.50mol/L的HNO₃-5.34mg/mL的Np(VI); E_c=0.700V(S.C.E.)。

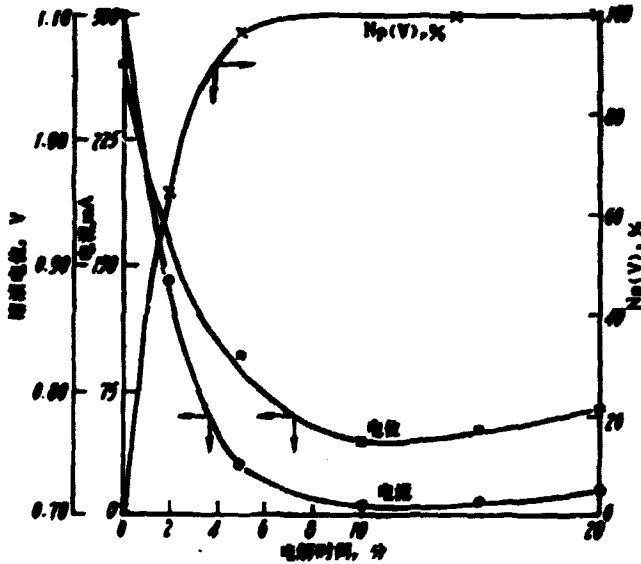


图7 Np(VI)的电解还原

电解液: 1.50mol/L的HNO₃-5.34mg/mL的Np(VI); E_c=0.500V(S.C.E.)。

实验结果表明, 在所使用的实条件下, 六价铈易于被电解还原为五价。在700mV阴极电位

下电解还原10分钟即可使六价铈定量还原为五价（即库仑滴定电解液中的六价铈量接近于6）。由图6也可进行粗略估算，电解到10分钟时电解液电位指示为约0.75V。若取在0.946 mol/L的HNO₃介质中Np(VI)/Np(V)的克式量电位值0.884V，则六价铈电解到10分钟时的还原率可达到大约99.5%。当电解继续进行到20分钟时，电解电流反而由10分钟时的3.5mA增大到4mA。

图7为0.500伏工作电极电位条件下六价铈电解还原实验结果。与图6比较可以看出，用0.500V的阴极工作电位，六价铈的还原速度略有提高，电解到10分钟后电解电流的回升也更为明显。电解到10、15和20分钟时的电流分别为7、8和15mA，这样大的电流变化用残余电流是无法解释的。

图8为在0.946mol/L的HNO₃溶液中的电解还原电流曲线。由图8可见，第一次电解还原的起始电流只有50μA。由图6和7所示的电流在10分钟之后的回升表明，存在着别的阴极反应。J.C.Hindman和D.Cohen^[13]在研究高氯酸介质中铈离子的电极过程的报告中，已指出类似现象并进行了分析讨论。他们在0.3V（相对于标准氢电极）或更低的阴极电位下，进行五价铈的电解还原时发现，电解电流随时间而增加，当铈的平均氧化数为4时电流达到最大值，然后快速下降。他们解释为，五价铈首先在阴极上缓慢还原，产生四价铈。作为一个热力学不可逆过程，这个反应的速度很慢，但还是以一个反应而存在。反应产物四价铈进一步还原为三价的过程是一个易于进行的可逆电极反应，且反应速度很快。三价铈与五价铈发生反应生成四价铈；



这个反应的速度也很快。这样，每有一个五价铈离子被还原就可产生两个四价铈离子，而后者又迅速发生还原反应。这样的链式反应可以一直持续到五价铈浓度很低时为止。

在我们的实验条件下，虽然电解电流在10分钟后的回升随阴极极化的加深而更加明显，但由于我们所用的阴极电位比较高，所以电解电流随时间回升的效应也远不如在Hindman的实验中表现得那么强烈。

五价铈的电解氧化是六价铈电解还原反应的逆过程，同为单电子转移过程。图5明确表明了这种可逆电极过程的特征。图9为硝酸介质中五价铈电解氧化的实验结果。结果表明，在所采用的实验条件下，电解约12分钟可实现五价铈的定量氧化。

在电解过程中，电解电流的大小表明了电解反应的速度。图10为1.50mol/L的HNO₃介质中五价铈电解氧化和六价铈电解还原的反应速度曲线。由图可见，五价铈和六价铈之间正逆反应的速度比较接近，半反应时间约为1.5min。这样的电解反应速度应该说是不错的。即使IAP中的铈主要处于六价状态，但当进入电解还原混合澄清槽之后，由于六价铈的直接电解还原和槽中产生的四价铈的还原作用，使铈在槽中处于四价或五价状态，在较低酸度下

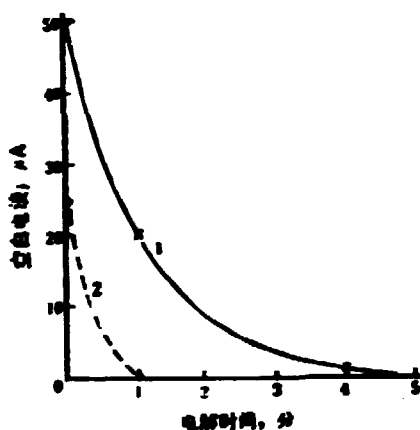


图8 无铈存在时，0.946mol/L的HNO₃电解还原的空白电流
1——第一次电解还原；2——再次电解还原。E_c = -0.700V；每次电解前均在1.02V电位下于槽液中进行阳极极化处理。

都不利于铈进入有机液流 (BU)。

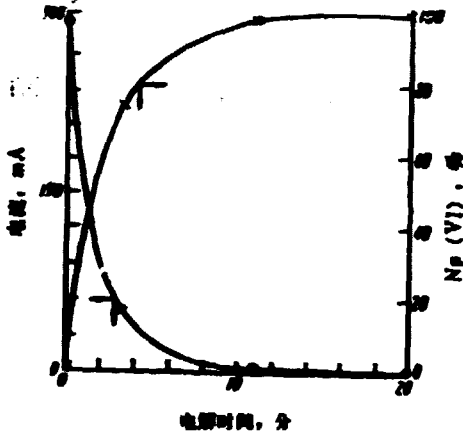


图9 五价铈的电解氧化

电解液: 1.50mol/L的 HNO_3 -5.34 mg/mL的 Np(V) ; $E_w = 1.10\text{V}$ (S.C.E.)

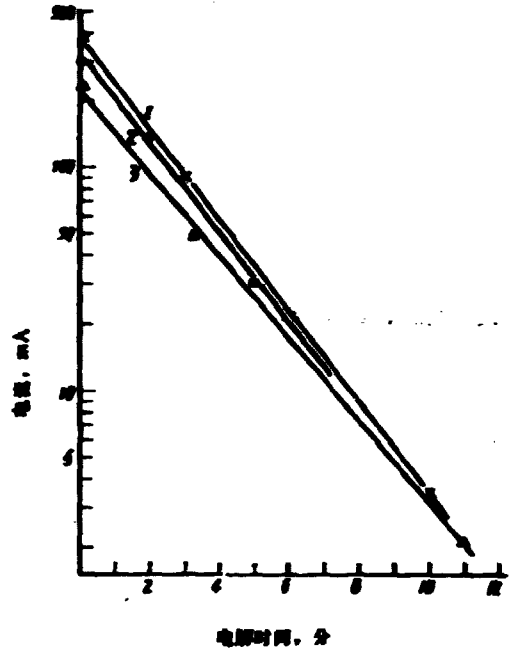


图10 铈离子的电解氧化还原曲线

介质: 1.50mol/L的 HNO_3 , 铈离子浓度5.34mg/mL.
 1— Np(VI) 的电解还原, 工作电极电位0.700V (S.C.E.);
 2— Np(VI) 的电解还原, 工作电极电位0.500V (S.C.E.);
 3— Np(V) 的电解氧化, 工作电极电位1.10V (S.C.E.).

II. 阴阴极共区电解还原混合澄清槽的研制和实验

表1给出了机械搅拌电解还原混合澄清槽铈、铈分离实验的结果。实验的基本条件是参照轻水堆燃料IB槽的条件拟定的。在第一次实验中选用电解总电流为100mA,发现槽中1~5级水相中测不出四价铈的存在,且铈在槽中也有明显积累。故在第三到第五次实验中将电解总电流提高到120mA,从而改善了实验状况,使槽中铈(IV)的浓度达到较为理想的值。如第三次实验第一级水相中铈(IV)浓度达0.65mg/mL。在第七级水相达到铈(IV)浓度的最高值(8mg/mL)。这样基本消除了铈在槽中的内循环和积累。图11~13分别为第三次实验到第五次实验停槽后各组分在槽中的浓度分布。比较图11、12和13可以看到,IBP出口酸度在1.0mol/L以下均可以得到良好的铈收率。与过去带有阳极室的电解混合澄清槽得到的实验结果^[10]比较表明,在类似的实验条件下,使用现在的无阳极室的电解还原混合澄清槽需要较高的电流强度。即就铈的还原效率而言,电流效率有较大的降低。究其原因可能有两个方面。其一,在阳极上可能存在着三价铈等低价离子的再氧化反应;其二是由于在实验中,IBP溶液中有六价铈的存在。对于前者,在前面已做过讨论,作为一种阳极反应可能存在。然而,由于体系中有大量铈存在,主要的阳极反应是铈的氧化。表2为第三次实验IBP中铈浓度随运转时间而变化的分析结果。计算表明,槽中铈的平均消耗量为18%,铈在阳极上的氧化电流效率约达96.5%,这也表明在阳极上三价铈和四价铈等的阳极再氧化反应不起主要作用。

表1 电解还原混合-亚硝酸铀、铀、铀分离实验结果
 1BF、1BS均为30g TBF-溶液，浓度为1BF:1BX:1BS=6:1:1。

实验 序号	运行时间, h	电压 强度, mA	1BF				1BX		1BS	1BU			
			U, g/L	Pu, mg/L	Np, mg/L	HNO ₃ , mol/L	HNO ₃ , mol/L	N ₂ H ₄ ⁺ , mol/L	HNO ₃ , mol/L	U, g/L	Pu, mg/L	Np, mg/L	HNO ₃ , mol/L
1	10	100	82	281	—	0.26	0.48	0.20	0.33	79	0.074	1.3	0.051
2*	12	120	73	429	17	0.26	0.20	0.20	0.20	47	0.47	4.4	—
3**	14	120	93	103	25	0.21	0.50	0.20	0.50	70	0.073	6.1	0.031
4	20	120	102	408	20	0.10	0.51	0.20	0.53	77	0.045	4.2	0.026
5	25.5	120	103	437	17	0.24	0.15	0.20	0.15	85	0.037	4.4	0.014

实验 序号	1BF				回收率, %	SF ₀	1BF中的Np量, % $\frac{Zn_{Np}}{Zn_{Pu} + Zn_{Np}} \cdot 100\%$	物料衡算, %			
	U, mg/L	Pu, g/L	Np, mg/L	HNO ₃ , mol/L				U	Np	Pu	HNO ₃
1	87	1.15	17	1.8	89.97	2000	69	115	—	82	88
2*	105	2.40	1.4	1.3	89.88	2400	95	77	32	112	—
3**	10	1.01	10	1.9	89.95	2000	21	90	37	110	112
4	42	2.70	20	1.8	89.90	14000	54	90	62	114	105
5	10	2.53	70	1.4	89.89	33000	73	100	60	116	102

*本次实验是在重中造酸条件下，槽中平衡也受到破坏。

**实验2和3中1BF配料使用了前次实验的1BU。

实验中1BF料液内配入了约20μg/mL的六价铀。这样，在阴极上可能发生的反应有：



其中(1)、(4)反应在铁阴极上超电位都较高，而反应(2)、(3)为易于进行的可逆电极过程。虽然六价铀的阴极还原较难进行，但因其浓度高，所以就还原的绝对量而言，六价铀还原为四价的反应较四价铀和六价铀的还原更具有重要意义。

在电解还原反萃铀、铀分离过程中，电极反应和各离子之间的化学反应是很复杂的。这个过程里的化学反应不能简单地用化学计量去估算。在我们的实验中曾发现，无铀铀存在的体系在同样条件下用电解混合液槽槽运行，四价铀的产量可高达几十克每升的浓度。而有铀存在时，虽然铀的加入量仅为铀量的千分之几，却使铀(IV)的浓度降到几克每升，甚至更低。铀和铀的存在会大量消耗四价铀，从而使电量的消耗也大大增加。这与铀和铀在槽内的内循环直接有关。

图11~13表明，铀在槽中的积累和内循环非常严重。表1的数据也表明，在我们进行实验的运行时间内，铀和铀的物料衡算非常满意，铀铀分离也很理想。而铀的物料衡算和分离却是比较差的。

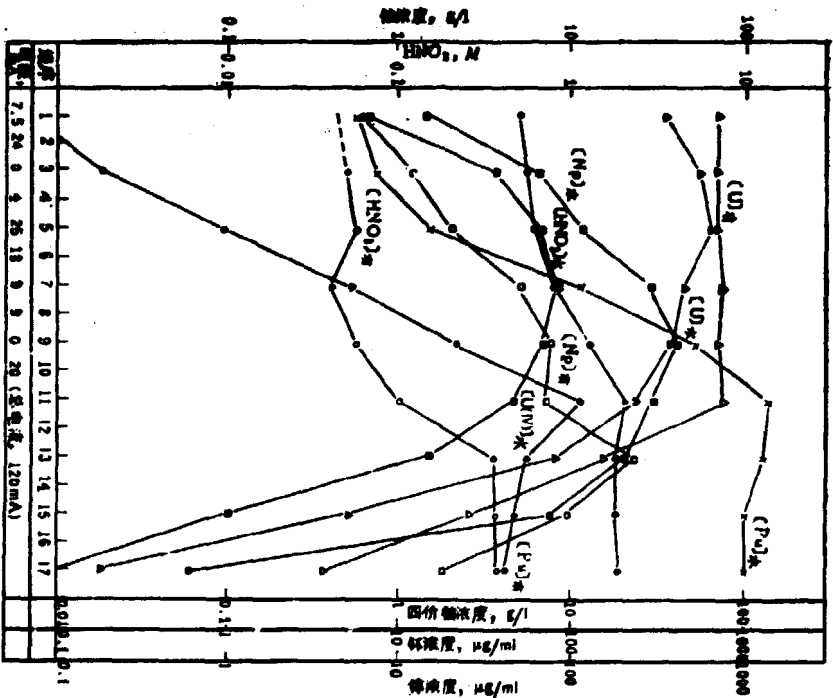


图11 铀、钚、铀、硝酸在1B槽各级的分布 (NO.3)

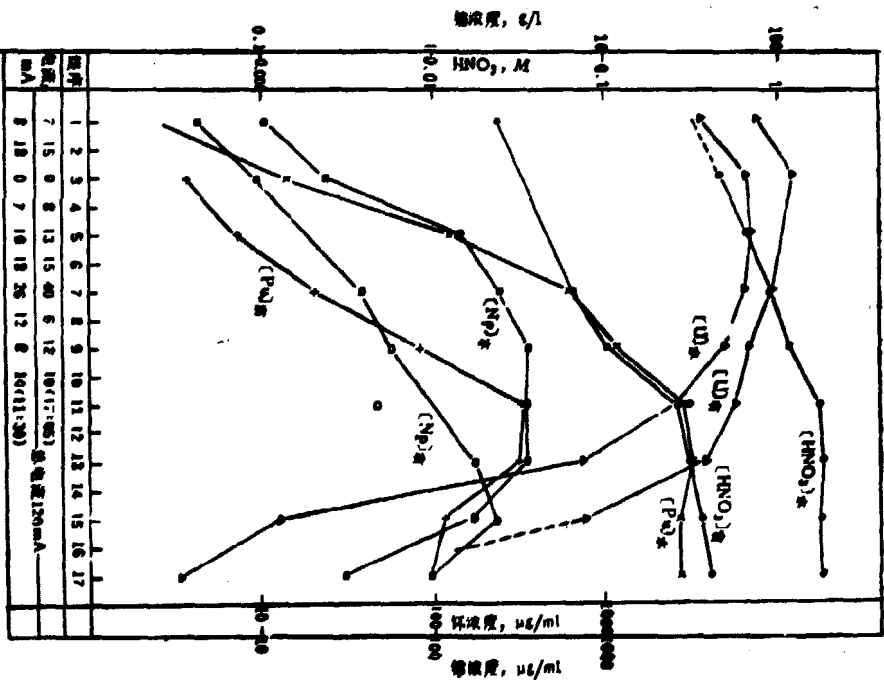


图12 铀、钚、铀、硝酸在1B槽各级的分布 (NO.4)

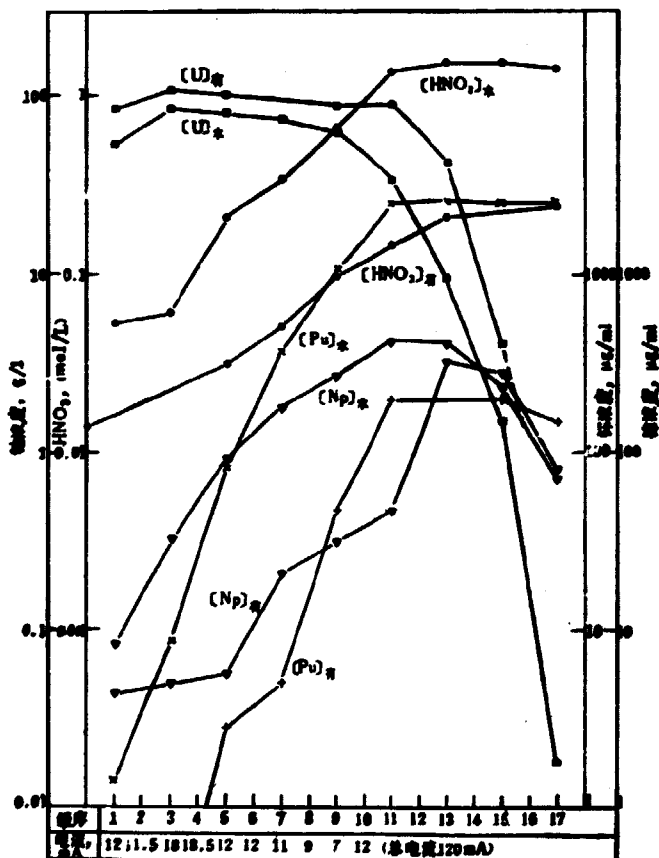


图13 铀、镅、钚、硝酸在1B槽各级的分布 (NO5)

表3表明了第四次实验中, 槽子1、11、和17级水相中五价铀的浓度和占总铀量的百分数。可见铀在槽中主要以四价形式存在。镅(IV)的分配系数随硝酸浓度的降低而下降^[1,10]。

表2 硝酸铀在槽中的消耗

运行时间, h	8.5	10.5	11.5	12.5	13.5	14.5	平均值
铀浓度 mol/L	0.163	0.165	0.158	0.166	0.168	0.112	0.164
铀消耗百分数, %	19	18	21	17	16	19	18

表3 电解混合澄清槽中铀的状态

级 数	1	11	17
$Np(V)$, $\mu\text{g/mL}$	0.26	34.2	3.6
${}^*Np(V)/\Sigma Np$, %	2.5	10.0	11.8

*槽中 $Np(VI)$ 浓度在分析方法检测限以下, 此处予以忽略。

在我们的实验中, 1BP出口酸度低于2mol/L, 料液中铀饱和度很高, 四价铀的分配系数将在1左右。由表3可见, 铀在槽中的走向主要决定于槽内的硝酸浓度。实验结果表明, 提高1BP出口硝酸浓度有利于铀随轴液流1BU排出, 而降低1BP出口酸度则有利于铀随铀环一起从1BP出口排出。实验中所观测到的铀的行为与理论分析是一致的, 在铀环分离过程中, 为了保证满意的铀环分离, 不可能使用很高或很低的硝酸浓度。所以, 在电解还原铀铀环分离过程中, 在槽中存在一定程度的铀的内循环和积累是不可避免的。合理选择实验条件则可以使铀的分离得到改善。所以, 在1B槽铀环分离条件下从单一产品液流(1BU或1EP)中定量回收铀是困难的, 甚至是不可能的。

参 考 文 献

- [1] Isacson, R.E. et al., *Ind. Eng. Chem., Process Des. Dev.*, 3, 296 (1964) .
- [2] Siddall, T.H., *J. Am. Chem. Soc.*, 81, 790 (1959) .
- [3] Benedict, G.E. et al., HW-SA-1963 (1962) .
- [4] Srinivasan, N. et al., BARC-736 (1974) ; Kumer, S.V. et al., BARC-1039 (1974) .
- [5] Thompson, M.C. et al., Dp-1396 (1976) .
- [6] Srinivasan, N. et al., *J. Radioanal. Chem.*, 8, 223 (1971) .
- [7] Schmieder et al., KFK-2062 (1974) .
- [8] Schmieder, H. et al., *Solvent Extraction*, London, p. 1997, 1974.
- [9] Baumgaertner, F. et al., German patent document 2460145/A24, June 1976.
- [10] Warnecke, E., INIS-Atomindex, 267909 (1976) .
- [11] Johnson, D.A., Lorenco, T.M., *Anal. Chem. Acta*, 55, 73 (1971) .
- [12] 张清轩等, 原子能科学技术, (2), (1984) .
- [13] Hindman, J.C., Cohen, D., *Peaceful Uses of Atomic Energy*, 7, 347 (1956) .
- [14] Fricman, R.A., *J. Inorg. Nucl. Chem.* 41, 1339 (1979) .
- [15] He Jia-yn et al., Actinide Separation, ACS Symposium Series 117, p. 317 (1980) .
- [16] Benedict, G.R. et al., HW-SA-1963 (1962) .



P.O.Box 2103

Beijing, China

China Nuclear Information Centre