

Etude de molécules extractantes pour l'extraction de l'uranium et du plutonium

C. Berger, C. Marie, E. Russello, D. Guillaumont, L. Berthon

► **To cite this version:**

C. Berger, C. Marie, E. Russello, D. Guillaumont, L. Berthon. Etude de molécules extractantes pour l'extraction de l'uranium et du plutonium. Journée scientifique ED459, Dec 2016, Montpellier, France. cea-02435071

HAL Id: cea-02435071

<https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-02435071>

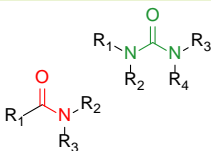
Submitted on 18 Mar 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Contexte & Objectifs

- Extraction de l'uranium et du plutonium à partir d'un milieu nitrique
- **Etude de 4 carbamides** : TBU – TBU – THU – TOU
- Comparaison **monoamide** / **carbamide**

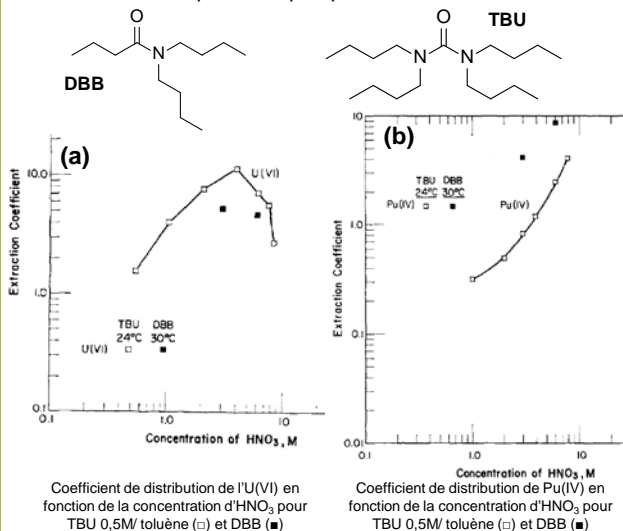


Objectif : Compréhension de l'impact de la structure (groupements alkyle choisis ...) des carbamides sur les performances d'extraction

Etat de l'art

Propriété extractantes :

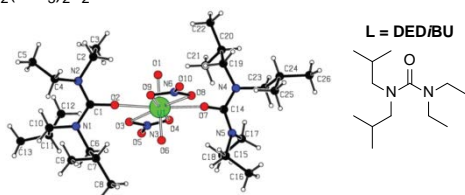
- 1 atome d'azote supplémentaire
- carbamides plus basique que les monoamides



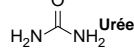
- **Meilleure extraction de l'U(VI) par TBU par rapport à DBB^[1] (a)**
- **Meilleure extraction du Pu(IV) par DBB par rapport à TBU^[1] (b)**

Caractérisation des complexes :

- Etudes structurales^[2] : DRX en phase solide de $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{L}_2$



- Caractérisation en Φ_{orga} ^[1] : méthode des pentes avec TBU
- Analyse élémentaire des complexes Pu(IV)-urée^[3]



Stœchiométrie

U-TBU 1 : 2

U-DED/BU 1 : 2 → **Similaire aux monoamides**

Pu-urée 1 : 2

- Suivi des bandes IR :

$$\nu(\text{C}=\text{O})_{\text{DED/BU}}^{[2]} = \nu(\text{C}=\text{O})_{\text{libre}} = 1646 \text{ cm}^{-1}$$

$$\nu(\text{C}=\text{O})_{\text{lié}} = 1540 \text{ cm}^{-1}$$

→ **liaison métal-ligand via la fonction carbonyle**

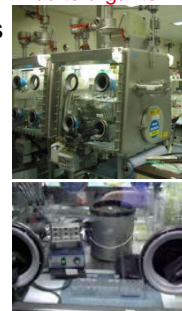
Références :

- [1] Duker E.K. et al. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 28, pp 2307-2312, 1966
 [2] Vats, B. G. et al. *Dalton Trans*, 45, pp 10319-25, 2016
 [3] Andryushin, V. G. et al. *Radiokhimiya*, 26, pp 115-118, 1984
 [4] Gentile, P.S. et al. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*, 27, pp 2291-2300, 1965

Méthodologie

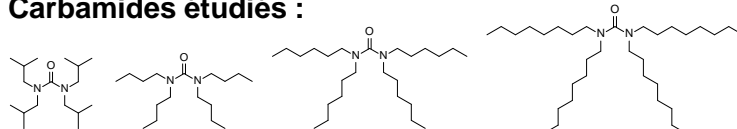
- Evaluation des propriétés extractantes
 - Extraction d' H_2O , d' HNO_3
 - Extraction de l'U et du Pu
 - Evaluation de l'efficacité d'extraction
- Evaluation des propriétés physico-chimiques
 - Capacité de charge en U
 - Viscosité de la Φ_{orga} chargée en U
- Caractérisation des complexes
 - Méthode des pentes
 - Stœchiométrie moyenne des complexes formés en Φ_{orga}
 - Caractérisation structurale
 - ESI-MS
 - RMN
 - EXAFS → Chimie de coordination
 - IR
- Modélisation des isothermes d'extraction
 - Simuler extraction U(VI)/ H_2O / HNO_3
 - Hypothèses de mécanisme à valider

→ Travail en boîte à gants



Etudes expérimentales

Carbamides étudiés :



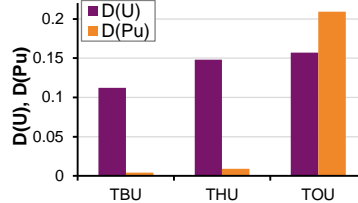
TBU

TBU

THU

TOU

- TBU : solubilité < 0,25 M / TPH
- Tests d'extraction : [Extractant] = 0,5 M / TPH, $[\text{U}]_{\text{aq-ini}} = 0,04 \text{ M}$, $[\text{Pu}]_{\text{aq-ini}} = 0,7 \text{ mM}$, $[\text{HNO}_3] = 0,5 \text{ M}$, $t_{\text{agitation}} = 30 \text{ min}$, $T = 25^\circ\text{C}$



- Augmentation des coefficients de distribution de l'U et du Pu avec l'allongement de la longueur de chaînes
- Meilleure extraction par les carbamides que les monoamides (données expérimentales CEA et littérature)

Conclusion & Perspectives

- Forte extraction U(VI) et Pu(IV) ($D > 0,1$)
- Meilleures performances de TBU par rapport aux monoamides
- Comparaison des données expérimentales des carbamides avec celles des monoamides analogues