

УДК 542.61

## Прогнозирование влияния природы разбавителей на экстракционные равновесия

ШМИДТ В. С., РЫБАКОВ К. А.

Ранее [1] рассмотрены технические требования и критерии, определяющие выбор разбавителей для экстракционной переработки отработавшего топлива АЭС. Эти критерии обсуждались применительно к относительно узкому классу соединений — алканов с прямой цепью, которые могут рассматриваться как оптимальные разбавители для три-*n*-бутилфосфата (ТБФ) и других фосфорорганических соединений.

Как известно, природа разбавителя может оказывать существенное влияние на способность растворенных в нем экстрагентов извлекать соли металлов. Даже алканы, считающиеся инертными разбавителями, оказывают некоторое влияние на свойства растворенных в них экстрагентов и особенно на их растворимость в равновесной водной фазе и склонность к образованию третьей фазы при насыщении экстрагируемой солью. Для таких разбавителей выбор оптимальной длины углеводородной цепочки имеет существенное значение [1—4]. Заметное влияние могут оказывать некоторые компоненты разбавителя, присутствующие в виде примесей, что вызывает необходимость строгой регламентации состава разбавителей, в частности, применяемых при экстракционной переработке топлива АЭС [1].

Более существенное влияние на экстракционное равновесие оказывают менее инертные, чем алканы, разбавители, часто используемые в сочетании с кислыми экстрагентами (типа ди-2-этилгексилфосфорной кислоты — Д2ЭГФК) или аминами. Многие разбавители не только не являются инертными, но и способны осуществлять общую или специфическую сольватацию молекул экстрагента [3]. В связи с этим при использовании любого нового разбавителя обычно проводят обширную экспериментальную работу для исследования его свойств. Однако анализ опубликованных данных показывает возможность без проведения эксперимента качественно, а во многих случаях и количественно прогнозировать влияние природы разбавителя на положение равновесия экстракции [5], а также на физическое распределение самого экстрагента между фазами. Такая возможность основана на использовании уравнений, выводимых [6] из принципа линейных соотношений свободных энергий (ЛСЭ). Уравнения вида

$$\lg K = A + aX, \quad (1)$$

где  $K$  — константа скорости или равновесия некоторой реакции в среде данного растворителя;

$A$  и  $a$  — коэффициенты, постоянные для каждой серии подобных систем, различающихся только природой разбавителя;  $X$  — независимые от вида системы табличные параметры, характеризующие природу растворителя, в течение многих лет используются в органической химии.

Целью настоящей статьи являются демонстрация возможности прогнозирования влияния природы разбавителя на равновесие экстракции с помощью основанных на ЛСЭ линейных уравнений, включающих параметры разбавителей, а также оценка областей применения различных параметров.

Наблюдаются три типа экстракционных систем. Для систем первого типа реакции экстракции не приводят к значительному изменению полярности соединений в органической фазе, а экстрагенты и образуемые ими сольваты отличаются настолько высокой гидрофобностью и совместимостью с разбавителем, что константы их физического распределения между органической и водной фазами намного выше, чем константы устойчивости сольватов, и соответственно равновесие экстракции определяется практически только равновесием реакций образования сольвата экстрагируемого соединения.

Для второго типа систем характерно существенное изменение полярности соединений в органической фазе в результате реакции экстракции.

В системах третьего типа реакции экстракции не приводят к значительному изменению полярности соединений в органической фазе (как и в типе 1), но экстрагенты и сольваты относительно гидрофильны, константы их физического распределения сравнимы с константами образования сольватов (или ниже их), так что равновесие экстракции является сложной функцией как физического распределения, так и равновесия реакции образования экстрагируемого сольвата. Закономерности экстракции для этих типов систем рассмотрены ниже.

1. Реакции экстракции высокогидрофобными экстрагентами, не связанные со значительными изменениями полярности соединений в органической фазе. Впервые линейная корреляция между логарифмами констант экстракции и параметрами, характеризующими природу разбавителя, показана в 1967 г. [7] на примере систем такого типа. Однако большинство разбавителей, для которых к этому времени в органической химии были определены соответствующие параметры, раство-

Параметры ВР разбавителей \* [6], об. %

Разбавитель	ВР	Разбавитель	ВР
1. Циклогексан	0,50	22. 85% н-С <sub>10</sub> H <sub>22</sub> + 15% СНСl <sub>3</sub>	-1,12
2. Циклогексан + С <sub>6</sub> H <sub>6</sub> (1 : 1)	0,20	23. 80% н-С <sub>10</sub> H <sub>22</sub> + 20% СНСl <sub>3</sub>	-1,47
3. п-(СН <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> С <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	0,10	24. 90% н-С <sub>14</sub> H <sub>30</sub> + 10% СНСl <sub>3</sub>	-0,75
4. п-(С <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub> С <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	0,12	25. 85% н-С <sub>14</sub> H <sub>30</sub> + 15% СНСl <sub>3</sub>	-1,07
5. (С <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub> С <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	(-0,26)	26. 80% н-С <sub>10</sub> H <sub>22</sub> + 20% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(-2,20)
6. о-(изо-С <sub>3</sub> H <sub>7</sub> ) <sub>2</sub> С <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	0,25	27. Циклогексан + 1% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(0,53)
7. о-Ксилол	0,12	28. Циклогексан + 2% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(0,57)
8. Толуол	0,03	29. Циклогексан + 3% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(0,43)
9. Бензол	0,00	30. Циклогексан + 4% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(0,38)
10. Хлорбензол	-0,15	31. Циклогексан + 6% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(0,30)
11. Бромбензол	-0,30	32. Циклогексан + 10% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(0,23)
12. Бромбензол + ССl <sub>4</sub> (1 : 1)	-0,50	33. Циклогексанон	(0,30)
13. Хлороформ	-1,52	34. н-Гексан + 4% С <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ОН	(0,12)
14. 95% С <sub>6</sub> H <sub>6</sub> + 5% СНСl <sub>3</sub>	-0,40	35. Анизол	(0,18)
15. 90% С <sub>6</sub> H <sub>6</sub> + 10% СНСl <sub>3</sub>	-0,65	36. Бромциклогексан	(-0,45)
16. 85% С <sub>6</sub> H <sub>6</sub> + 15% СНСl <sub>3</sub>	-0,80	37. 1, 2-Дихлорэтан	-0,16
17. 80% С <sub>6</sub> H <sub>6</sub> + 20% СНСl <sub>3</sub>	-1,20	38. Нитробензол	(-0,03)
18. 90% С <sub>8</sub> H <sub>18</sub> + 10% СНСl <sub>3</sub>	-0,77	39. н-Октан	(0,20)
19. 85% С <sub>8</sub> H <sub>18</sub> + 15% СНСl <sub>3</sub>	-1,23	40. Четыреххлористый углерод	-0,60
20. 80% н-С <sub>8</sub> H <sub>18</sub> + 20% СНСl <sub>3</sub>	-1,40	41. Бутилбензол	(-0,22)
21. 90% н-С <sub>10</sub> H <sub>22</sub> + 10% СНСl <sub>3</sub>	-0,80	42. 95% С <sub>6</sub> H <sub>6</sub> + 5% С <sub>10</sub> H <sub>21</sub>	(-0,20)

\* Здесь и в табл. 2 в скобках даны значения, проверенные на ограниченном числе систем.

римы в воде. Поэтому авторы работы [7] разработали новую шкалу параметров, прилагая ее к разбавителям, наиболее часто используемым при экстракции; соответствующие параметры были названы ВР — «влияние разбавителей» (табл. 1).

Вначале применимость уравнения вида

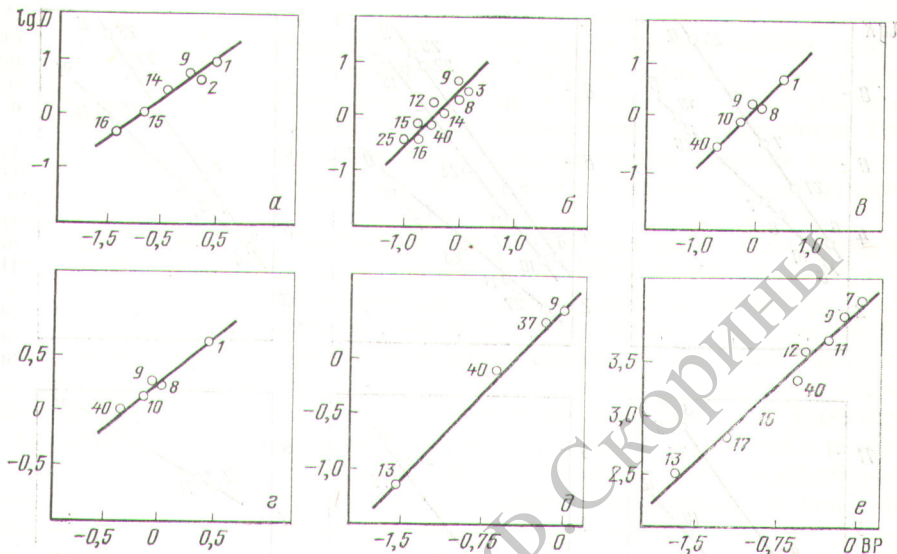
$$\lg K = A + a \text{ ВР} \quad (2)$$

была показана в работе [7] для 16 серий экстракционных систем (большинство серий включало по 10—20 разбавителей). В дальнейшем применимость этого уравнения и ВР к прогнозированию влияния разбавителей установили еще для 60 серий (всего свыше 400 экстракционных систем) [6—8]. Корреляции логарифмов констант экстракции (или логарифмов коэффициентов распределения  $D$ , когда эти величины пропорциональны  $\lg K$ ) от ВР (рис. 1) соблюдаются, например, для экстракции хлоридов уранила, цинка и кобальта растворами триалкилфосфатов, три-*n*-октиламмонийхлорида и ди-*n*-октиламмонийхлорида, длинноцепочечных диалкилсульфоксидов в различных разбавителях; для экстракции нитратов Pu(IV), Th(IV), Bi(III), трехвалентных актиноидов и лантаноидов из нитратных водных растворов нейтральными фосфорорганическими соединениями, длинноцепочечными диалкилсульфоксидами, амидами карбоновых кислот, нитратами длинноцепочечных триалкиламинов и т. д. Значения

$\lg K$  повышаются с ростом ВР и, следовательно, изменяются при изменении разбавителя во всех подобных системах в следующей последовательности: алканы  $\geq$  циклогексан  $>$  толуол  $\geq$  бензол  $>$  нитробензол  $>$  1, 2-дихлорэтан  $>$  хлорбензол  $>$  бромбензол  $>$  четыреххлористый углерод  $>$  хлороформ  $>$  *n*-октанол. Для этих систем характерно образование симметричных (т. е. относительно малополярных) сольватов; длина алкильных цепочек рассмотренных экстрагентов обычно превышает C<sub>6</sub> — C<sub>8</sub>, т. е. для них и образующих ими сольватов характерно очень высокое физическое распределение между водной и органической фазами.

Подробная сводка найденных корреляций относительно ВР приведена в работе [6]. Сравнение количественных корреляций  $\lg K$  от ВР позволило выявить [5] закономерности, определяющие влияние природы разбавителя на избирательность экстракции, и сформулировать [6] следующее правило: для систем, в которых влияние разбавителя может быть выражено зависимостью от ВР, при одинаковых сольватных числах двух извлекаемых элементов избирательность экстракции данным нуклеофильным экстрагентом растет при уменьшении ВР разбавителя. Соблюдение этого правила подтверждено на большом числе экстракционных систем, в том числе включающих пары нитратов Pu(IV) — Th(IV), Pu(IV) — Bi(III), Nd(III) — Dy(III); роданидов Am(III) — Ce(III);

Р и с. 1. Зависимость коэффициентов распределения некоторых элементов ( $D$ ) от  $BP$  разбавителей (обозначены цифрами в соответствии с табл. 1) при экстракции из хлоридных и нитратных растворов [7, 9, 10]. Экстракционные системы:  $a$  — 0,1 моль/л (изо- $C_5H_{11}O$ ) $_2PO$  — разбавитель —  $H_2O$  — 3,9  $M$   $CaCl_2$  —  $FeCl_3$ ;  $b$  — 0,1 моль/л  $(C_8H_{17})_3PO$  — разбавитель —  $H_2O$  — 0,5  $M$   $HCl$  —  $ZnCl_2$ ;  $c$  — 0,1 моль/л  $(C_8H_{17})_3NHCl$  — разбавитель —  $H_2O$  — 4,0  $M$   $HCl$  —  $UO_2Cl_2$ ;  $d$  — 0,1 моль/л  $(C_8H_{17})_2NHNHCl$  — разбавитель —  $H_2O$  — 6,0  $M$   $HCl$  —  $UO_2Cl_2$ ;  $e$  — 0,2 моль/л  $(C_4H_9O)_3PO$  — разбавитель —  $H_2O$  —  $HgCl_2$ ;  $e$  — 0,7 моль/л  $(C_4H_9O)_3PO$  — разбавитель —  $H_2O$  —  $HNO_3$  —  $Pu(NO_3)_4$



хлоридов  $Zn(II) - Co(II)$ ,  $U(VI) - Mo(VI)$ ,  $Zn(II) - Mo(VI)$  и др. [6].

2. Реакции экстракции, связанные со значительным изменением полярности соединений в органической фазе. В тех случаях, когда в результате образования сольвата значительно изменяется полярность соединений в органической фазе, например при экстракции кислот триалкиламинами по реакциям нейтрализации (в органической фазе практически неполярный амин превращается в высокополярную соль) или при извлечении двух- или многовалентных катионов диалкилфосфорными кислотами (несимметричная молекула кислоты в органической фазе превращается в симметричную молекулу соответствующей соли), для количественного описания экспериментальных данных необходимо ввести другую шкалу параметров разбавителей —  $BP^*$  [11] (табл. 2). Использование этой шкалы также позволило найти большое число корреляций (рис. 2) вида

$$\lg K = A + aBP^* \quad (3)$$

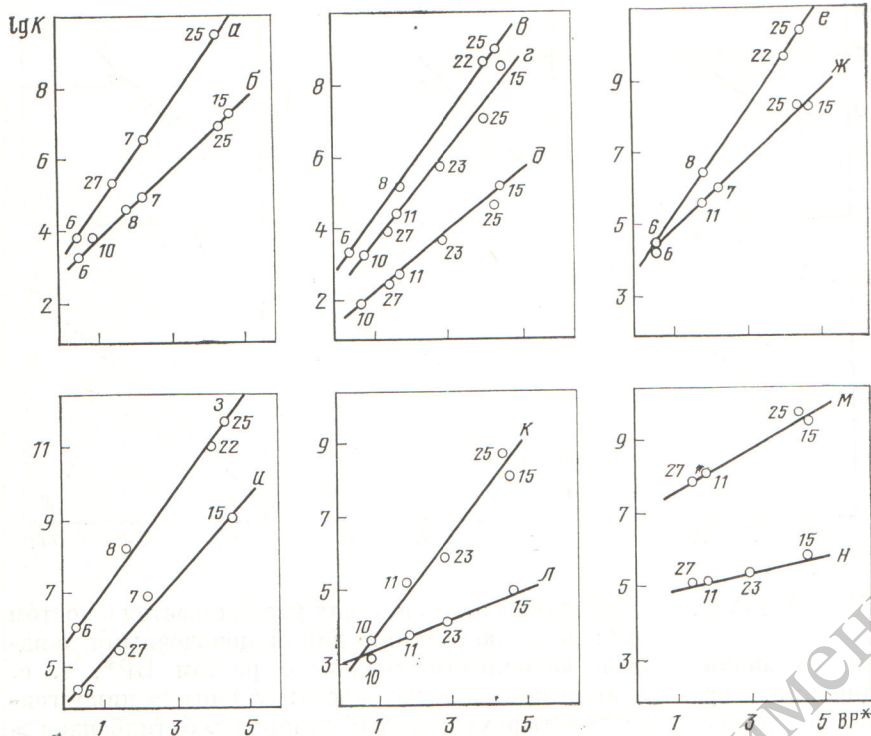
Шкала  $BP^*$  использована для количественного описания более 60 серий, включающих в общей сложности около 600 экстракционных систем [6]. Она оказалась применимой для описания экстракционных равновесий, основанных на реакциях нейтрализации аминов, анионном или катионном обмене в жидкой фазе. Линейные корреляции  $\lg K$  или  $\lg D$  от  $BP^*$  найдены, например, для экстракции аминами соляной, бромистоводородной, иодистоводородной, роданистоводородной, хлорной, азотной, рениевой и других кислот; для экстракции длинноцепочечными алкилфосфорными кислотами катионов трехвалентных лантаноидов и актиноидов,  $U(VI)$ ,  $Cd(II)$ ,  $Co(II)$ ,  $Zn(II)$  и др. Для экстракции кислот аминами

извлечение в этих системах увеличивается с ростом  $BP^*$ ; при экстракции длинноцепочечными жидкими катионитами падает с ростом  $BP^*$ , т. е. в такой последовательности: алканы > циклогексан > четыреххлористый углерод > бутилбензол >

Таблица 2

Параметры  $BP^*$  разбавителей [6, 12], об. %

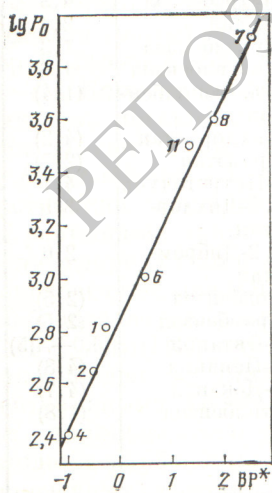
Разбавитель	$BP^*$	Разбавитель	$BP^*$
1. н-Гексан	-0,4	21. 2-Этилгексанол	(9,5)
2. н-Гептан	-0,6	22. 2-Нитропропан	4,3
3. н-Октан	-0,9	23. н-Октан + 10% октанола	(2,9)
4. н-Декал	-1,0	24. н-Декал + 6% октанола	(2,9)
5. 2, 2, 4-Триметилпентан	-0,8	25. Нитробензол	4,3
6. Циклогексан	0,5	26. о-Ксилол	2,1
7. Бензол	2,3	27. Бутилбензол	1,3
8. Толуол	1,9	28. Диэтилбензол	1,6
9. Триметилбензол	1,4	29. Изопропилбензол	(1,4)
10. Триэтилбензол	0,9	30. Дихлорметан	(4,2)
11. Четыреххлористый углерод	1,6	31. Бромэтан	(2,7)
12. Тетрахлорэтилен	1,1	32. 2-Нитротолуол	4,1
13. Хлорбензол	2,4	33. 1, 2-Дихлорэтан	3,5
14. о-Дихлорбензол	2,7	34. 1, 2-Дибромэтан	2,6
15. Хлороформ	4,5	35. Иодбензол	(2,5)
16. Бромформ	4,0	36. Бромбензол	(2,5)
17. Анизол	(2,9)	37. н-Октанол	(6,0—4,5)
18. Хлористый метилен	(4,0)	38. н-Нонанол	(4,8)
19. Бутиловый эфир	(0,8)	39. н-Деканол	(4,7)
20. Метилизобутилкетон	(2,5)	40. Этилбензол	(1,8)



Р и с. 2. Зависимость логарифмов констант экстракции кислот по реакциям нейтрализации от  $BR^*$  разбавителей [3] (обозначены цифрами в соответствии с табл. 2). Экстракционные системы: а — трилауриламид —  $HCl$ ; б — трилауриламид —  $HCl$ ; в — триоктиламин —  $HCl$ ; г — бензилдинониламид —  $HCl$ ; д — триоктиламин —  $HBr$ ; е — трилауриламид —  $HBr$ ; ж — трилауриламид —  $HBr$ ; з — триоктиламин —  $HCl$ ; и — трилауриламид —  $HSCN$ ; к — бензилдинониламид —  $HNO_3$ ; л — бензилдинониламид —  $HNO_3$ ; м — бензилдинониламид —  $HClO_4$ ; н — бензилдинониламид —  $HClO_4$ .

> бензол > хлорбензол > трихлорбензол > 1,2-дихлорэтан > 2-нитротолуол > нитробензол > хлороформ > октанол. Как видно из сравнения табл. 1 и 2, качественно последовательность шкалы  $BR^*$  отличается во многом от последовательности шкалы  $BR$ .

Рассмотрение корреляций  $lg K - BR^*$  позволило выявить [13] закономерности, определяющие влияние и этого параметра на избирательность экстракции, и сформулировать [6] следующее правило для систем, в которых влияние разбавителя может быть выражено зависимостью от  $BR^*$ :



Р и с. 3. Зависимость логарифма константы распределения ТБФ ( $P_0$ ) между органическими разбавителями и водой от  $BR^*$  разбавителей [12] (обозначены цифрами в соответствии с табл. 2)

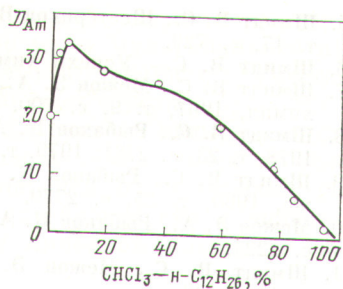
при реакциях анионообменной экстракции увеличение  $BR^*$  в большей степени благоприятствует протеканию реакций, приводящих к образованию более полярных соединений в органической фазе, т. е. рост  $BR^*$  способствует избирательности экстракции более сильных одноосновных кислот из среды более слабых и извлечению однозарядных анионов из среды двух- и многозарядных;

при реакциях катионного обмена увеличение  $BR^*$  препятствует протеканию реакций превращения кислот в соли металлов и снижает избирательность экстракции последних.

Интересно, что шкала  $BR^*$  применима для описания также физического распределения экстрагентов между разбавителем и водной фазой [12], что важно для оценки растворимости экстрагентов в равновесной с экстрактом водной фазе. Оказалось, что логарифм константы физического распределения экстрагента (и сольвата) между водной и органической фазами зависит линейно от  $BR^*$  разбавителя и растет при увеличении этого параметра (рис. 3).

3. Реакции экстракции, связанные с образованием относительно гидрофильных или плохо совместимых с разбавителем соединений. В настоящее время вопросы, связанные с использованием  $BR$  и  $BR^*$ , достигли такой степени проработки, что определились границы применимости этих шкал. Это, по нашему мнению, свидетельствует об определенной зрелости концепции. Как отмечено

Рис. 4. Зависимость коэффициентов распределения америция между водным раствором 0,247 моль/л  $H_2SO_4$  и 0,1%-ным раствором амина АНП-15 в разбавителе (н-додекан — хлороформ) от относительной концентрации н-додекана в разбавителе [14]



выше, шкала ВР применима для тех экстрагентов и сольватов, которые (по крайней мере при малой концентрации) хорошо совместимы с органической фазой и отличаются высокой гидрофобностью: например, для сольватов, образуемых с нитратами и хлоридами актиноидов солями триалкиламинов (при длине углеводородных цепочек  $\geq 6-8$ ) и триалкилфосфатами (при длине цепочки  $\geq 4$ ). Если же число углеродных атомов в цепочках радикалов молекул экстрагента ниже или соль металла содержит гидрофильные анионы, например  $SO_4^{2-}$ , то на экстракцию влияют факторы, определяющие не только равновесие образования экстрагируемого сольвата (связанные с ВР), но и физическое распределение, а также совместимость экстрагента и сольвата с разбавителем (связанные с ВР\*). В результате совместного влияния ВР и ВР\* (которые, как отмечено выше, в общем случае изменяются не симбатно) зависимости коэффициентов распределения от природы разбавителей в таких системах могут принимать сложную форму.

Примером может служить влияние природы разбавителя на экстракцию америция из сернокислых растворов сульфатом первичного алкиламина (рис. 4) в виде сольвата состава (Амин Н)Am ( $SO_4$ )<sub>2</sub> [14]. Этот сольват, имея несимметричное строение, является веществом полярным, включает гидрофильные группы  $SO_4^{2-}$ , гидрофобность катиона алкиламмония также относительно невелика, поскольку он содержит только один алкильный радикал. Это обуславливает относительно плохую совместимость сольвата с разбавителем и ограниченную константу его физического распределения между органической и водной фазами. С другой стороны, константа устойчивости этого сольвата очень велика. Поэтому при некоторых условиях определяющее влияние на экстракцию может оказывать физическое распределение сольвата и его совместимость с разбавителем, что находит отражение в росте  $D_{Am}$  с увеличением содержания хлороформа в разбавителе (н-додекан-хлороформ) до 80—90 % в соответствии с ростом ВР\* этого смешанного разбавителя. Когда содержание хлороформа доходит до 90 %, по-видимому, достигается такая высокая совместимость сольвата и экстрагента

с разбавителем, что при дальнейшем повышении концентрации хлороформа определяющее значение приобретают факторы, влияющие на равновесие образования сольвата, и  $D_{Am}$  начинает уменьшаться в соответствии со снижением ВР. Вероятно, для подобных систем влияние природы разбавителя может быть описано в виде функции  $lg K = f(ВР, ВР^*)$ .

Поскольку для рассматриваемого типа экстракционных систем рост ВР\* и ВР способствует повышению экстракции, очевидно, наиболее удобными разбавителями для таких систем могли бы быть те, у которых совпадают высокие значения ВР и ВР\*. Из рис. 5 видно, что к числу таких немногих разбавителей относятся 1, 2-дихлорэтан и нитробензол, которые можно рассматривать как оптимальные разбавители для относительно гидрофильных и плохо совместимых с разбавителями экстрагентов и сольватов.

В дальнейшем для этого типа систем целесообразно найти количественную форму функции  $lg K = f(ВР, ВР^*)$ , а также расширить число разбавителей, охваченных шкалами ВР и ВР\*, для увеличения возможности выбора наиболее подходящих к различным типам экстрагентов разбавителей. Однако большое число практически важных систем, в которых экстракция осуществляется гидрофобными экстрагентами, например ТБФ, триоктилфосфиноксидом, диоктилсульфокси-

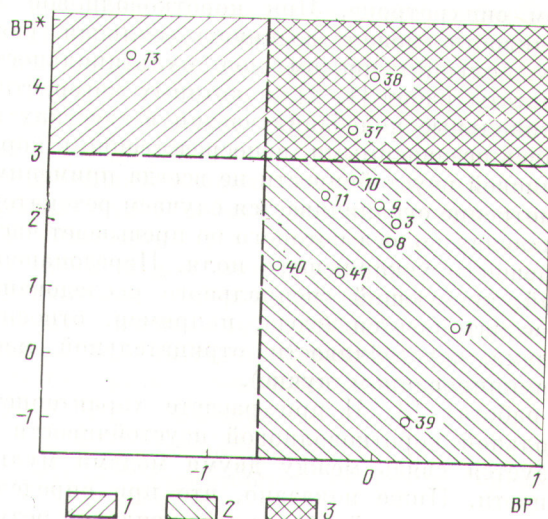


Рис. 5. Сопоставление ВР и ВР\* для различных разбавителей (обозначены цифрами в соответствии с табл. 1): 1 — область, благоприятствующая протеканию реакций экстракции, связанных со значительным увеличением полярности соединений в органической фазе; 2 — область, благоприятствующая протеканию реакций экстракции, связанных с образованием гидрофобных сольватов и не приводящих к резкому изменению полярности соединений в органической фазе; 3 — область, благоприятствующая протеканию реакций образования относительно гидрофильных и плохо совместимых с органической фазой сольватов

дом, Д2ЭГФК, или длинноцепочечными триалкилами из азотнокислых или солянокислых растворов, относится к типам 1 и 2, описываемым простыми линейными уравнениями (2) или (3). Поэтому для таких систем шкалы ВР и ВР\* уже в настоящее время могут успешно использоваться для прогнозирования влияния природы разбавителя на экстракционные равновесия.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Егоров Г. Ф. и др.— Атомная энергия, 1979, т. 47, вып. 2, с. 75.
2. Розен А. М. и др.— В кн.: Химия процессов экстракции. М., Наука, 1972, с. 88.
3. Шмидт В. С. Экстракция аминами. Изд. 2-е. М., Атомиздат, 1980.
4. Шмидт В. С., Шестериков В. Н., Межов Э. А.— Успехи химии, 1967, т. 36, с. 2167.

5. Шмидт В. С., Шестериков В. Н.— Радиохимия, 1975, т. 17, с. 729.
6. Шмидт В. С.— Успехи химии, 1978, т. 47, с. 1730.
7. Шмидт В. С., Межов Э. А., Новикова С. С.— Радиохимия, 1967, т. 9, с. 700.
8. Шмидт В. С., Рыбаков К. А.— Журн. неорг. химии, 1978, т. 23, с. 2761; 1979, т. 24, с. 750.
9. Шмидт В. С., Рыбаков К. А., Рубисов В. Н.— Там же, 1980, т. 25, с. 2779.
10. Межов Э. А., Рыбаков К. А., Шмидт В. С.— Там же, с. 2224.
11. Шмидт В. С., Межов Э. А.— Радиохимия, 1970, т. 12, с. 38.
12. Шмидт В. С., Рыбаков К. А., Шеменков С. А.— Там же, 1981, т. 23, № 3.
13. Шмидт В. С., Смелов В. С. и др.— Там же, 1970, т. 12, с. 748.
14. Шмидт В. С., Веселов С. Н.— Там же, 1979, т. 21, с. 555.

Поступила в Редакцию 09.06.80

УДК 621.384.634

## Продольная коротковолновая неустойчивость сгустков протонов, взаимодействующих с резонатором

ПАШКОВ П. Т., СМЕРНОВ А. В.

С помощью методики, разработанной ранее [1] при изучении продольных мультипольных неустойчивостей сгустков, проведено теоретическое исследование продольной коротковолновой неустойчивости сгруппированного пучка в протонном синхротроне. При коротковолновой неустойчивости может возникать сильная связь между большим числом мод мультипольности. Результаты работ [1, 2], в которых когерентные мультипольные колебания частиц в сгустках полагались независимыми, непосредственно к коротковолновой неустойчивости не всегда применимы. Рассмотрение ограничивается случаем резонатора, резонансная полоса которого не превышает частоту внешнего ускоряющего поля. Нерезонансный случай, требующий специального исследования, не рассматривается (сюда, например, относится проблема неустойчивости отрицательной массы в сгруппированном пучке).

В работах [3, 4] при расчете характеристик продольной коротковолновой неустойчивости используется связь между двумя модами мультипольности. Ниже показано, что при определенных условиях такой подход дает неплохой результат. Однако, вообще говоря, подобный метод может приводить к значительным погрешностям, в особенности при возмущениях с очень короткими длинами волн. В настоящей работе получен общий вид дисперсионного уравнения с учетом связи между модами мультипольности и проведен анализ его решений. Приведены инкременты продольной коротковолновой неустойчивости сгустков и получен критерий развязки, при выполнении которого моды мультипольности оказываются

независимыми. Показано также, что при очень сильной связи между большим числом мод формула инкремента имеет тот же вид, что и для продольной неустойчивости однородного пучка, взаимодействующего с резонатором. В заключительной части исследуется порог продольной коротковолновой неустойчивости. Численные примеры даны применительно к ускорителю ИФВЭ.

**Дисперсионное уравнение.** Устойчивость когерентных продольных колебаний частиц в сгустках будем исследовать, учитывая линеаризованное кинетическое уравнение

$$\left( \frac{\partial}{\partial t} + \Omega \frac{\partial}{\partial \psi} \right) f(\epsilon, \psi, t) = - \frac{2\pi R^2 \Omega_0^2 \Delta p}{V \sin \varphi_s} f_0'(\epsilon) \mathcal{E}(\varphi, t), \quad (1)$$

где  $\epsilon$  и  $\psi$  — энергия и фаза синхротронных колебаний;  $f_0(\epsilon)$  — исходное самосогласованное распределение частиц в сгустках;  $f$  — малое возмущение исходного распределения;  $\mathcal{E}$  — продольное электрическое поле, обусловленное возмущением  $f(\epsilon, \psi, t)$ ;  $\varphi$  — фаза частицы относительно внешнего ускоряющего поля;  $\varphi_s$  — синхронная фаза;  $\Delta p$  — отклонение импульса частицы от синхронного значения;  $R$  — средний радиус ускорителя;  $\Omega(\epsilon)$  — синхротронная частота;  $\Omega_0$  — частота малых синхротронных колебаний;  $V$  — амплитуда ускоряющего напряжения.

Представим поле  $\mathcal{E}(\varphi, t)$  в виде бегущих волн  $\sim \exp(-i\omega t + i\frac{k}{q}\varphi)$ , где  $\omega$  — комплексная частота, подлежащая определению (неустойчивость имеет место, если  $\text{Im } \omega > 0$ );  $k$  — номер гармоничи частоты обращения  $\omega_s$ , и разложим  $f$  и  $\Delta p \mathcal{E}$ ,