

СИНТЕЗА И ТЕРМИЧКО РАЗЛОЖУВАЊЕ НА n-ПРОПИЛАМОНИУМ УРАНИЛ АЦЕТАТ

И. Денова, В. Стефов и С. Алексовска

Институт за хемија, ПМФ-Скопје, Република Македонија

Апстракт. Во овој труд се презентирани синтезата, идентификацијата и термичкото разложување на нов член од серијата двојни уранил ацетати со супституирани амониум катјони: n-пропиламониум уранил ацетат. Соединението беше добиено при бавна кристализација на смеса од уранил ацетат и n-пропиламин, во молски однос 1:9, во раствор од оцетна киселина. Добиените кристали беа испитувани со методите на елементарна анализа, инфрацрвена спектроскопија и TG и DT- анализа. Врз основа на добиените резултати може да се заклучи дека соединението ја има следнава општа формула: $(C_3H_9NH)[UO_2(CH_3COO)_3]$. Посебен осврт е направен на начинот на термичкото разложување кое се одвива во две стапи, а конечен продукт на неговото разложување е U_3O_8 .

Клучни зборови: двојни уранил ацетати, синтеза, термичка анализа, IR-спектри

1. Вовед

Хемијата на урановите соединенија е проучувана од голем број научници во целиот свет, така што постојат голем број објавени статии за синтезата и испитувањето на различни прости и двојни соли на уранот, како што се сулфати, селенати, хромати, ацетати и др. Особено интересни се оксид солите на уранот во кои како грабена единка се јавува уранил катјонот. Така, бројот на литературните податоци за уранил соли е доста голем, но кога се работи за двојни соли, особено со неметални катјони, тој број е незначителен.

Нашите испитувања на уранил ацетатите започнаа со синтеза и термичко испитување на двојни уранил ацетати со катјоните на алкалните метали [1], а потоа ги продолживме проширувајќи ги и со неметални катјони. За таа цел, досега, беа синтетизирани двојни уранил ацетати со хидразиниум катјонот [2], хидроксиламониум [3], пиридиниум [4] и некои други катјони. При испитувањата на овие соединенија беа користени класична хемиска анализа, термичка анализа (TG и DTA), рендгенска анализа на прашкасти примероци и инфрацрвена спектроскопија.

Продолжувајќи ја работата на ова поле, во овој труд, ќе бидат презентирани синтезата, идентификацијата и испитувањата на n-пропиламониум уранил ацетатот, за чие постоење во литературата не најдовме податоци.

2. Експериментален дел

Соединението беше добиено при бавна кристализација на смеса од уранил ацетат и n-пропиламин, во молски однос 1:9, во раствор од оцетна киселина со

концентрација 2 mol/dm^3 . Добиените жолти игличести кристали беа филтрирани, миени со етанол и сушени на воздух.

Квантитативната хемиска анализа на соединението беше направена за C, H и N по методите на Liebig и Dumas, а уранот беше определен гравиметриски.

TG и DT-анализите беа направени на термоанализатор Netzsch, во атмосфера на сув воздух, во температурен интервал од 20 до 1000 °C, со брзина на загревање $10 \text{ }^\circ\text{C/min}$. Освен тоа, направена е и една изотермна анализа на 500 °C, со брзина на загревање до 500 °C, $5 \text{ }^\circ\text{C/min}$.

Инфрацрвените спектри ги снимивме на Fourier-transform инфрацрвен спектрофотометар System 2000 Perkin Elmer, во таблети од KBr.

3. Резултати и дискусија

Со цел да се определи емпириската формула на новодобиеното соединение, најпрво пристапиме кон негова елементарна анализа. Резултатите од елементарната анализа се дадени во табела бр. 1.

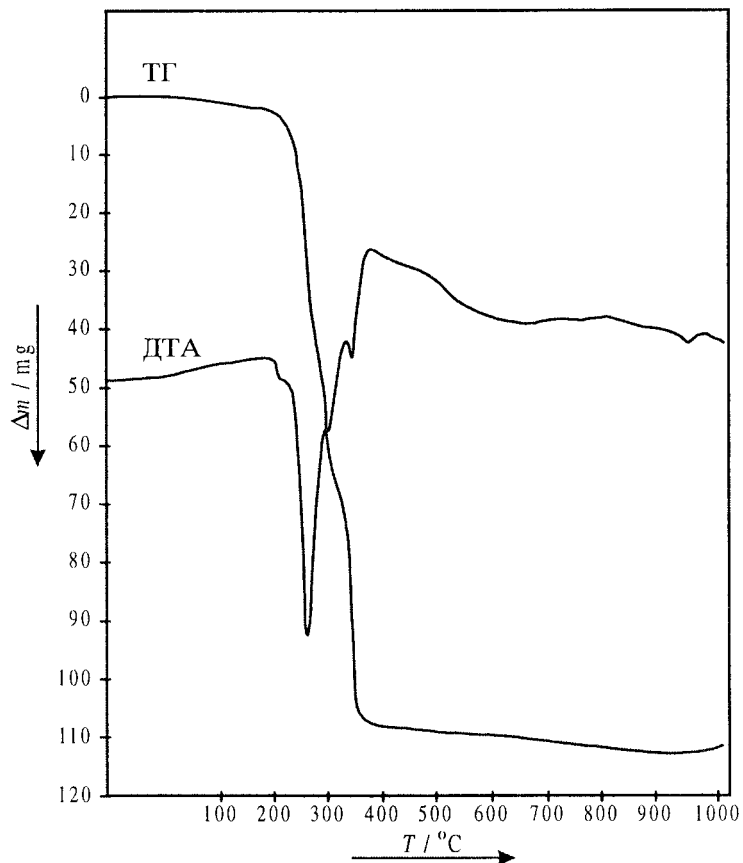
Табела 1. Резултати од хемиската анализа на n-пропиламониум уранил ацетат

	w(C)/%	w(H)/%	w(N)/%	w(U)/%
експер.	21,21	3,66	3,22	46,46
теор.	21,31	3,77	2,76	46,92

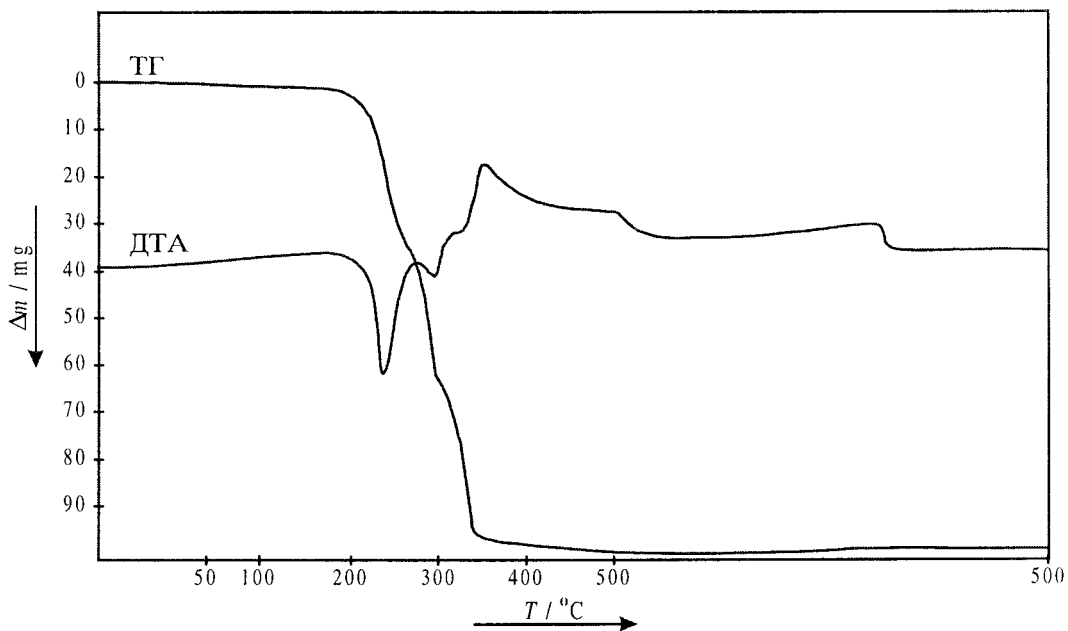
Врз основа на добиените резултати може да се заклучи дека на новодобиеното соединение може да му се припише следнава емпириска формула $(\text{C}_3\text{H}_9\text{NH})[\text{UO}_2(\text{CH}_3\text{COO})_3]$. Претпоставената хемиска формула се потврди и со анализа на снимениот инфрацрвен спектар и со негова споредба со слични соединенија. Имено, во инфрацрвениот спектар на соединението може да се забележат карактеристичните ленти за груповите вибрации на конституентите: CH_3 , CH_2 , NH , COO^- и UO_2^{2+} .

За да се добијат повеќе податоци за термичката стабилност и начинот на термичкото разложување на соединението, извршивме TG и DT- анализа. На слика 1 дадени се TG и DTA кривите снимени при динамична програма, а на слика 2 при изотермна програма.

При динамични услови (сл. 1), разложувањето на соединението се одвива, главно, во две етапи. Во првата етапа, која започнува на 200 °C, соединението се разложува до UO_2 , што е следено со ендотермни ефекти на DTA кривата, на 255 °C, 300 °C и 345 °C. Загубата на маса во оваа етапа изнесува 46,65%, додека теоретски пресметаната вредност за разложување на соединението до UO_2 , изнесува 46,77%. Над 950 °C се случува делумна оксидација на UO_2 до UO_3 , при што се јавува зголемување на масата на TG кривата и егзотермен пик на DTA кривата на околу 990 °C. Крајниот продукт на термичкото разложување на 1000 °C е U_3O_8 , кој се добива при реакција меѓу UO_2 и UO_3 , во цврста фаза. Вкупната загуба на маса изнесува 46,02%, додека теоретски пресметаната вредност изнесува 44,67%.

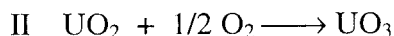


Сл. 1. ТГ и ДТА криви на *n*-пропил амониум уранил ацетат, крајна температура 1000 °C, брзина на загревање 10 °C/min, динамична програма, $m = 239,00 \text{ mg}$.



Сл. 2. ТГ и ДТА криви на *n*-пропил амониум уранил ацетат, крајна температура 500 °C, изотермна програма, брзина за загревање до 500 °C, 5 °C/min, $m = 213,50 \text{ mg}$.

Сите овие процеси може да се претстават со следниве равенки:



При изотермната програма на разложување, сите промени се јавуваат на нешто пониска температура, првенствено поради помалата брзина на загревање (5 °C/min.). Притоа, масата добива константна вредност по 54 минути, откако ќе се постигне константна температура. Крајниот продукт на разложувањето е ист како и при динамичната програма, но вкупната загуба на маса изнесува 45,21 %, што е поблиску до теоретската вредност отколку при работата во динамични услови.

4. Литература

1. И. Донова, *Магистерска работа*, Хемиски факултет, Скопје (1981).
2. И. Донова, *Глас. Хем. Техн. Македонија*, **15**, 113 (1996).
3. I. Donova, V. Stefov, *Croatica Chem. Acta* (во печат).
4. I. Donova, S. Aleksovska, V. Stefov, *Thermochim. Acta* (во печат).

Abstract. The aim of our work was synthesis and investigation of new double uranyl acetate with n-propylammonium cation. The compound was synthesized by slow evaporation of the reaction mixture of uranyl acetate and n-propylamine, in molar ratio 1:9 in acetic acid solution. The obtained yellow needle-like crystals were filtered off, washed with ethanol and dried on air. The compound was characterized and investigated by elemental analysis, IR-spectroscopy and TG and DT-analysis. According to the chemical and TG analysis the empirical formula of the obtained compound is $(\text{C}_3\text{H}_9\text{NH})[\text{UO}_2(\text{CH}_3\text{COO})_3]$. Also, the FTIR spectra show the characteristic bands due to the vibrations of the constituent groups. Special attention was paid to thermal stability and thermal decomposition of the compound.