

長寿命超ウラン元素を燃焼可能な軽水炉 RBWR の開発

(13) RBWR 使用済燃料からの MA 回収向け抽出剤の性能評価

Development of RBWR for Long-lived Transuranium Elements Burner

(13) Performance of Extractant for MA Recovery from Spent RBWR Fuel

*渡邊 大輔¹, 可児 祐子¹, 笹平 朗¹, 鴨志田 守¹

¹日立研開

資源再利用型 BWR (Resource-renewable BWR: RBWR) の使用済燃料から溶媒抽出法でマイナーアクチニド (MA) を回収するプロセスでは、軽水炉使用済燃料の場合に比べて MA 濃度が約 30 倍高いため、MA の抽出容量を高める必要がある。抽出容量を高めた 2 種の窒素ドナー抽出剤を用い、アクチニド (An) とランタニド (Ln) について溶媒抽出時の分配比の硝酸濃度依存性を評価した。また、各抽出剤に適した MA 回収プロセスの構成を検討した。

キーワード: RBWR, 再処理, 溶媒抽出, MA, 窒素ドナー抽出剤

1. 緒言

日立では、長寿命超ウラン元素 (TRU) を燃焼可能な沸騰水型軽水炉 RBWR を開発している。RBWR 使用済燃料中の TRU をリサイクルする方法として、PUREX 法等により U と Pu を回収した後、溶媒抽出法により残液 (ラフィネート) からマイナーアクチニド (MA) を回収するプロセスを検討している。前報^[1]では、本プロセスにおける高濃度 MA (40mM) と抽出剤との錯形成反応 (抽出剤: MA = 2: 1) を考慮し、溶媒への溶解度を高めた抽出剤を選択、抽出剤濃度 80mM で Am の抽出試験を行った結果を報告した。本研究では、MA とランタニド (Ln) の分離性能を検討するため、Am と Eu について、有機相と水相の各相への分配比の硝酸濃度依存性を評価し、各抽出剤に適したプロセスの構成を検討した。

2. 実験

二種の窒素ドナー抽出剤 (CyMe4-BTBP (6,6'-bis(5,5,8,8-tetramethyl-5,6,7,8-tetrahydro-benzo-1,2,4-triazin-3-yl)-2,2'-bipyridine) および CyMe4-BTPhen (2,9-bis(5,5,8,8-tetramethyl-5,6,7,8-tetrahydrobenzo-1,2,4-triazin-3-yl)-1,10-phenanthroline)) にそれぞれ有機溶媒への親和性を向上する置換基 (t-butyl) を付与した抽出剤を試験に用いた。図 1 に t-butyl 基を付与した CyMe4-BTPhen (t-butyl-CyMe4-BTPhen) の構造図を示す。有機溶媒にはオクタノールを用いた。抽出剤濃度は前報^[1]と同じ 80mM とした。トレーサー量の Am ($6.0 \times 10^{-8} \text{M}$) と Eu ($6.6 \times 10^{-7} \text{M}$) を用いて硝酸濃度をパラメータとして抽出試験を行い、抽出後の有機相と水相の放射能の比から分配比 D を評価した。

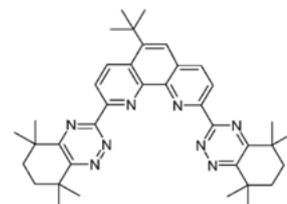


図1 t-butyl-CyMe4-BTPhen

3. 結果・考察

Am の分配比 (D_{Am}) と Eu の分配比 (D_{Eu}) の硝酸濃度依存性の評価結果を図 2 に示す。t-butyl-CyMe4-BTBP を用いた場合 (図 2 (a))、硝酸濃度の上昇と共に D_{Am} と D_{Eu} は増加した。ラフィネートの硝酸濃度 (4M) では、 D_{Am} は 100 以上となり十分に高いが、 D_{Eu} が 1 以上であるため、MA 抽出時に Ln も抽出される。そのため、MA と Ln の分離には、抽出工程の後工程に低い硝酸濃度 (D_{Eu} が 1 以下) の水相を有機相と接触させる洗浄工程を設けるプロセス構成が適する。一方、t-butyl-CyMe4-BTPhen を用いた場合 (図 2 (b))、硝酸濃度 0.1M 以上では硝酸濃度の上昇と共に D_{Am} と D_{Eu} が低下した。抽出剤との錯形成反応において硝酸と元素が競争^[2]し、硝酸濃度の上昇により硝酸と錯形成する抽出剤の割合が高まり、元素と錯形成する抽出剤が減少したと考える。硝酸濃度 4M では D_{Eu} が 2 程度であった。しかし、本実験は Am 濃度が希薄なため Eu に対して抽出剤が過剰に存在する条件となっており、実際に RBWR 使用済燃料を処理する場合では飽和量に近い MA が抽出されることで錯形成していない抽出剤が減少する。その場合、Eu の錯形成割合が減少して D_{Eu} が 1 以下に低下すると予測される。したがって、MA と Ln の分離には、t-butyl-CyMe4-BTBP の場合と同様に、 D_{Eu} が 1 以下となる硝酸濃度 (1M 以上を想定) での洗浄工程を抽出工程の後段に設けるプロセス構成が適すると考える。

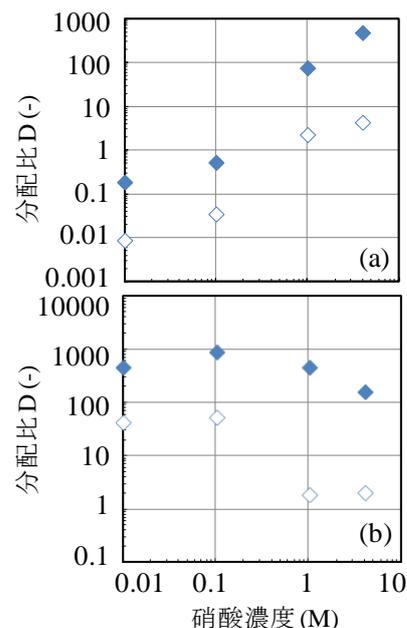


図2 分配比の硝酸濃度依存性
(a)抽出剤: t-butyl-CyMe4-BTBP
(b)抽出剤: t-butyl-CyMe4-BTPhen
◆ Amの分配比、◇ Euの分配比

参考文献

[1] 渡邊ら, 2015 年原子力学会秋の大会, J33(2015).

[2] FW. Lewis et al., J. Am. Chem. Soc., 133, 13093-13102 (2011).

*Daisuke Watanabe¹, Yuko Kani¹, Akira Sasahira¹ and Mamoru Kamoshida¹

¹Hitachi, Ltd., Research & Development Group