

DTPA 及び DTBA を配位子に用いたアクチノイド及びランタノイドの相互分離及びアミンの添加効果

Mutual separation of actinides from lanthanides using DTPA and DTBA as ligands and effect of adding amines

*佐々木祐二¹、金子政志¹、伴康俊¹

¹原子力機構

改良 TALSPEAK 法であるジグリコールアミド (DGA) -DTPA (DTBA) によるランタノイド、アクチノイド相互分離の研究を進めている。多段抽出により有機相に Ln、水相中に Am の分離を達成した。ここでは抽出系に塩フリーで高 pH 条件の設定と付加錯体生成を目的として有機アミン化合物の導入を検討した。

キーワード：ジグリコールアミド、溶媒抽出、ランタノイド、アクチノイド、DTBA、DTPA、アミン

1. 緒言 アクチノイド (An) とランタノイド (Ln) の相互分離法として、ジグリコールアミドで An と Ln を一括抽出した後、DTPA (ジエチレントリアミン 5 酢酸) 又は DTBA (ジエチレントリアミン 3 酢酸 2 アミド) を用いて An を選択的に逆抽出する手法の開発を進めた。多段抽出実験では DGA-DTPA 及び DGA-DTBA のいずれの抽出系でも 97%以上の Am が水相に逆抽出され、全 Ln の混入は 4%未満であることを確認した。その一方で、より効率的な地層処分を考慮すると更なる高い除染が求められる。ここでは、NaOH に代わる pH 調整と An-DTPA 錯体への付加を期待して各種有機アミンを用いて分離効果を調べた。

2. 実験方法 TODGA 抽出剤を含む有機相と、DTPA(DTBA)、硝酸、乳酸及び各種アミン化合物を溶解した水相を使って溶媒抽出を実施した。用いた有機アミンはエチレンジアミン、ジエチレントリアミン、ジアミノプロパン等で、構造を図 1 に示す。得られた分配比を元に分離に最適な条件を使って、多段抽出の条件 (金属入り水相、洗浄水相、及び有機相段数) を設定し、その結果を元にしてバッチ式多段抽出試験を行った。測定は Ln を ICP-AES で、An を液体シンチレーション計測装置で行った。

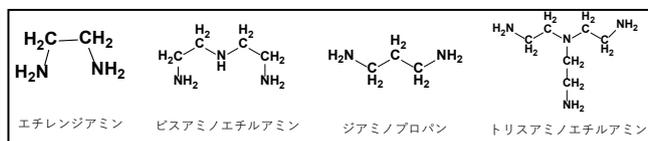


図 1 用いた有機アミン化合物(一例)

表 1 各種有機化合物と水溶液の pH

pH		pH	
0.1 M マロンアミド	4.4	0.1 M NTAアミド(C2)	7.23
0.1 M DOODA(C2)	3.38	0.1 M MIDEA	8.72
0.1 M TMDGA	4.32	0.1 M ジアミノプロパン	11.9
0.1 M アンモニア	11.3	0.1 M トリアミノエチルアミン	12.0
0.1 M エチレンジアミン	11.7	0.1 M ビス(2-アミノエチル)アミン	11.7

3. 結果 各種有機アミンは水に溶解すると窒素原子へのプロトネーションが起こり、水溶液は高い pH を示す (表 1)。これら水溶液中で Am への選択的な錯形成を期待しつつ pH 調整に用いた。結果として付加錯体生成は見られず、大きな配位子の場合 DTPA と交換することを確認した。一方、塩フリーで pH 1.7 の溶液調製が可能となり、TODGA-DTPA 系での An/Ln 分離が達成できた (図 2)。0.4 M TODGA-0.05 M DTPA, 0.5 M エチレンジアミン, pH 1.71, 有機相 12, 試料溶液 1, 洗浄水相 7 段のバッチ式多段抽出の条件で水相への回収量は La: 1.5, Ce: 1.69, Pr: 3.36, Nd: 6.54, Sm: 6.14, Eu: 4.78 %, Gd: 2.09 % で Am は 98.1 % であった。

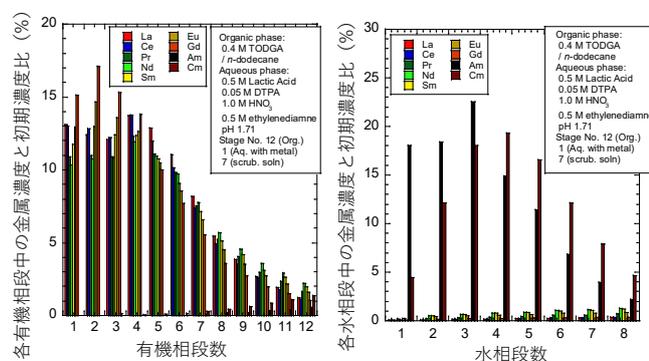


図 2 水相、有機相の濃度プロファイル

*Yuji Sasaki¹, Masashi Kaneko¹, Yasutoshi Ban¹,

¹Japan Atomic Energy Agency.