難燃性低気化熱希釈剤と CHON 抽出剤を用いたプロセスによる MA 分別保管技術の開発

(3) 新規難燃性低気化熱希釈剤と DGA 抽出剤によるランタノイド元素 14 種の抽出挙動

Development of Minor Actinides separation and storage technology by process using flame-retardant and low heat of vaporization diluent and CHON extractant

(3) Extraction behaviors of 14 lanthanide ions by DGA with novel flame-retardant low-vaporizing diluent

*針貝美樹[1]，中瀬正彦[1]，山村朝雄[2]，田端千紘[2]，小中真理子[2]
柿木浩一[3]，小川尚樹[3]，濵口涼吉[3]，塚本泰介[3]，島田隆[3]
[1]東工大，[2]京大，[3]MHI

新規難燃性低気化熱希釈剤を用いた高レベル廃液からの MA 分離回収、安定固化プロセス構築を目指している。抽出分離パートにおける一連のランタノイド(Ln)の DGA による抽出分離挙動と新溶媒の化工物性(抽出剤の溶解性、分散・相分離性、第三相形成挙動等)に関して調査し、適応可能である見通しを得た。

キーワード：溶媒抽出、ジグリコールアミド抽出剤、ランタノイド、難燃性低気化熱希釈剤

1. 緒言　先進湿式再処理における MA 分離研究では高い回収率と Ln 等との分離性の両立が指向されてきたが、本開発では回収した MA を高速炉実用化まで数十年保管するため MA と Ln 等との分離は保管後の利用時に行うことを前提とし、Ln 等の同伴はある程度許容している。また、低気化熱の新希釈剤を採用することでプロセス構成を大幅に簡素化することを目指している。そこで、MA への同伴が想定される一連の Ln(Nd,Eu は Am や Cm の模擬ともなる)について、新希釈剤を用いた抽出挙動や溶媒の化工物性の観点から調査した。

2. 実験条件　抽出剤は実績あるジグリコールアミド(DGA)を選定した。溶媒は幾つかのフッ素系の難燃性低気化熱希釈剤の中からバートレル XF(以後 XF)、比較のためドデカン(以後 DD)を用いた(Fig 1)。まず硝酸で予備抽出平衡を取り、併せて分散性・相分離性を調べた。Table 1 に示す条件での抽出後は、遠心分離の後に水相を希釈して ICP-MS で濃度を計測し、分配比を導出した。

Table 1 抽出実験条件

有機相	T2EH-DGA (10 – 100 mM)	*n*-ドデカン、Vertrel XF	A/O = 1 1 時間振とう
水相	Ln 14 種(0.1 mM ずつ)	硝酸(1 – 6 M)	

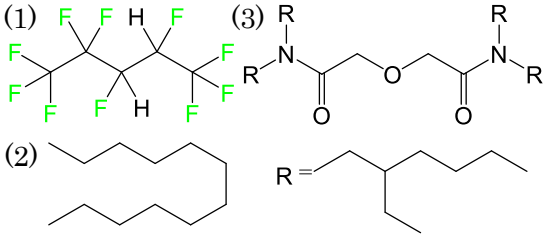

Fig. 1 溶媒の構造式
(1)Vertrel XF, (2)n-ドデカン, (3)T2EH-DGA

z3. 結果と考察　Fig.2 に XF での相状態の一例示した。第三相形成がされにくく、DGA の溶解性、攪拌後の相分離具合も良好だった。ただしミキサセトラ試験例が豊富な DD は水相より軽いが、XF は有機相の方が重いため、攪拌翼形状や運転条件に注意を払う必要がある。次に典型的な抽出結果を Fig3 に示した。Ln の原子番号が大きく酸濃度が高いほど抽出が促進されたことから、DD 時と同様に一般的な DGA による抽出平衡が成り立つことが確認された。DD よりも XF の方が高い分配比が得られたのは溶媒の比誘電率、フッ素同士の相互作用が影響している可能性もある。化学計算や XAFS 等による検証も進めていく。

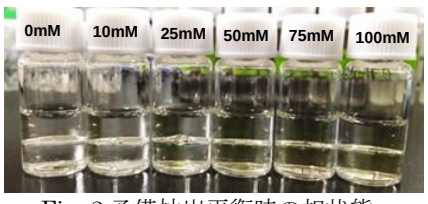

Fig. 2 予備抽出平衡時の相状態
(XF, HNO_3 = 3M)

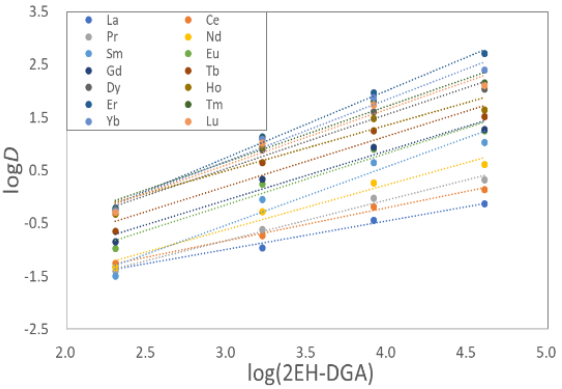

Fig. 3 分配比に及ぼす DGA 濃度依存性
(XF, HNO_3 = 3 M, 25℃, 1 時間振とう)

*Miki Harigai[1], Masahiko Nakase[1], Tomoo Yamamura[2], Chihiro Tabata[2], Mariko Konaka[2], Koichi Kakinoki[3], Naoki Ogawa[3], Ryokichi Hamaguchi[3], Taisuke Tsukamoto[3], Takashi Shimada[3], [1]Tokyo Tech, [2]Kyoto Univ, [3]Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.