

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

(4) 新規難燃性低気化熱希釈剤と DGA 抽出剤によるウランとトリウムの抽出挙動

Development of Minor Actinides separation and storage technology by process using flame-retardant and low heat of vaporization diluent and CHON extractant (4) Extraction behavior of U and Th

*中瀬正彦¹, 針貝美樹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, 濱口涼吉³, 塚本泰介³, 島田隆³

¹東工大, ²京大, ³MHI

新規難燃性低気化熱希釈剤を用いた MA 分離プロセス構築のため、高レベル廃液中の Np の価数調整と分離を想定した 4 価 U への電解還元、DGA による 4 価 U、Th の抽出分離挙動について調査した。

キーワード：溶媒抽出、ジグリコールアミド抽出剤、アクチノイド、ウラン、難燃性低気化熱溶媒

1. 緒言 新規難燃性低気化熱希釈剤と DGA 抽出剤を用いた高レベル廃液からの MA 分離を検討している。シリーズ発表(4)では Np 分離を想定した U、Th での検討を報告する。分離パートでは高レベル廃液からの Np 分離を想定しており、 $\text{NpO}_2^+ \rightarrow \text{Np}^{4+}$ と DGA に抽出されやすい形態として分離することを検討している。これに先立ち $\text{UO}_2^{2+} \rightarrow \text{U}^{4+}$ への電解還元試験、価数安定剤の効果確認、 U^{4+} 、 Th^{4+} での抽出試験を行った。

2. 実験条件 硝酸ウラニル($\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$)をフロー法とバッチ法で 4 価に電解還元した。Np 実験を想定して汚染リスクが低いバッチ式を主とした(Fig. 1)。20mA 定電流、U 濃度は ~ 5 mM、 HNO_3 濃度は 1 $\sim$ 3 M、価数安定剤としてヒドラジン(N_2H_4)を 10 $\sim$ 400mM 用いた。U の価数は UV-Vis 分光光度計で確認した。有機相は *n*-ドデカン(以後 DD)を主に用いた。硝酸で予備抽出平衡を取り、等体積の水相と有機相を 1 時間振とうし、遠心分離後に水相を希釈して ICP-OES で定量した。



Fig.1 バッチ式電解還元
セットアップ

3. 結果と考察 フロー式では効率的に U^{4+} に調整ができたがバッチ式では時間がかかる上に顕著な亜硝酸生成による U^{4+} の酸化が確認された。そこで還元直後ないしは予め N_2H_4 を添加すると U^{4+} が効率的に還元された。次に、 N_2H_4 で亜硝酸をクエンチした U^{4+} 、クエンチせず亜硝酸で再酸化された UO_2^{2+} 、 Th^{4+} の抽出挙動を DD 系で調べた(Fig2 (1))。分配比は $\text{Th}^{4+} > \text{U}^{4+} > \text{UO}_2^{2+}$ となり、また N_2H_4 添加量が分配比に及ぼす影響は小さかった。また N_2H_4 存在下でも U^{4+} 抽出に及ぼす硝酸濃度依存性に UO_2^{2+} (N_2H_4 無添加)、 Th^{4+} と同様に直線性が見られた(Fig2 (2))。

今後は新溶媒での系統的な U^{4+} 抽出データ取得、放射線影響や錯体構造、第三相形成に及ぼす新溶媒の影響などを実験と計算化学の両方のアプローチで理解を深めていく。同様の実験を Am と併せて Np でも行い、本共研で提案するプロセスが Np にも適用できることを確認し、フローシートの構築を目指す。

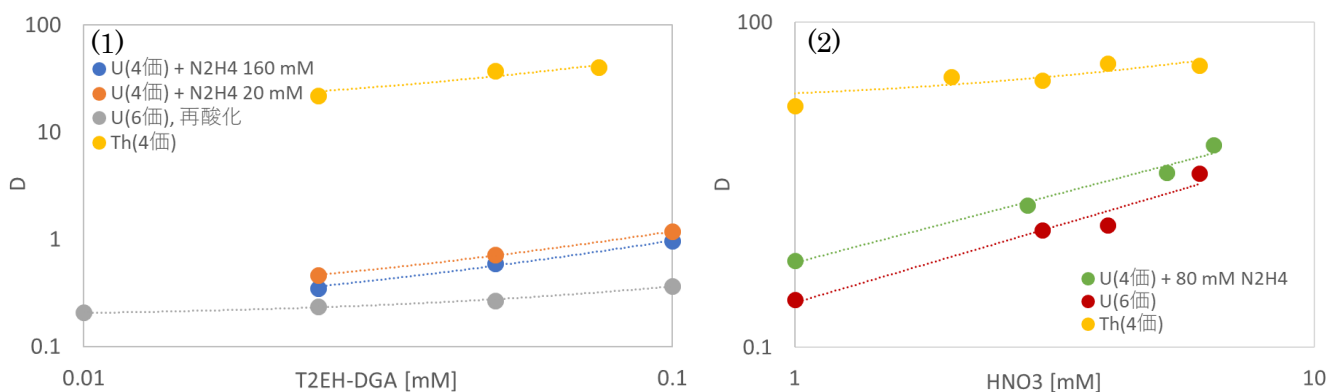


図 1 U(4 価, 6 価), Th(4 価)の抽出挙動 ; (1)DGA 濃度依存性, (2)硝酸濃度依存性

4. 謝辞 U、Th 実験は東北大学金研施設利用共同研究を利用している(17K0086、18K0108、19K0002)

*Masahiko Nakase¹, Miki Harigai¹, Tomoo Yamamura², Chihiro Tabata², Mariko Konaka², Koichi Kakinoki³, Naoki Ogawa³, Ryokichi Hamaguchi³, Taisuke Tsukamoto³, Takashi Shimada³

¹Tokyo Tech, ²Kyoto Univ, ³Mitsubishi Heavy Industries, Ltd..