U(VI)選択的分離用環状モノアミド抽出剤の抽出特性および相分離性に及ぼす枝分かれ側鎖の影響

Effect of branched side chains on the extraction and phase separation properties of cyclic monoamide extractants for selective separation of U(VI)

*喜多 大輝 [1]，野上 雅伸 [1]，白崎 謙次 [2]，阿部 千景 [2]
[1] 近畿大学，[2] 東北大学

現在開発中の U(VI)選択的分離用環状モノアミド抽出剤に関し、分枝状の側鎖を有するものを新たに導入し、その抽出特性と相分離性を既往の直鎖状側鎖のものと比較した。

キーワード：ウラン，抽出，モノアミド

1. 緒言

原子力のバックエンドにおいて、使用済燃料の大部分を占めている U を他の核種(Pu, Am, Cm, 核分裂生成物(FP)等)から高純度で分離できる抽出剤が世界的に求められている。当研究グループでは、候補抽出剤として耐硝酸性、耐放射線性に優れ、二次廃棄物の発生低減が可能である C, H, O, N 元素のみで構成された環状アミド化合物[1]に対称性を持たせて、直鎖脂肪族炭化水素希釈剤(*n*-ドデカン等)との相溶性、及び Pu(IV)よりも U(VI)に対する選択性向上[2]を目的とした 1,3-ジアルキル-2-ピロリドン(DRP, Fig.1 (R_1, R_2：炭化水素基))に着目している。これまで R_1, R_2 として、R_1=R_2(側鎖の炭素数：6, 8, 10)の直鎖アルキル基について検討してきたが、高濃度 U(VI)水溶液([U(VI)]:約 0.5mol/dm^3(=M))を用いた抽出実験において第三相の形成、また炭素数の多い DRP では白色固体の析出が認められた[3]。そこで本研究では、相分離性のより優れた DRP 探索の一環として、分枝状の側鎖を有する DRP である 1,3-ジ(2-エチルヘキシル)-2-ピロリドン(DEhP, R_1, R_2 = -C_8H_{17}, Fig.2)を用い、金属イオン抽出特性と高濃度 U(VI)溶液に対する相分離性について検討し、直鎖状側鎖を有する DRP と比較した。

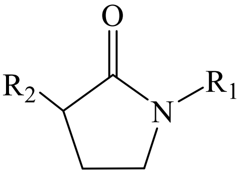

Fig.1 Chemical structures of DRP

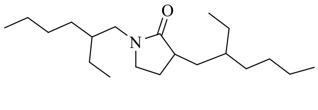

Fig.2 Chemical structure of DEhP

2. 実験

2-1. 金属イオン抽出実験

n-ドデカンで 30vol%に希釈した DRP の一種である DHP (R_1, R_2 = -C_6H_{13}), DOP (R_1, R_2 = -C_8H_{17}), DDP(R_1, R_2 =-$C_{12}H_{25}$), DEhP を有機相(O)、U(VI)および Th(IV)(Pu(IV)の模擬イオン)を各 1ppm 含む 0.1~6M HNO_3 を水相(A)とし、O/A＝1 で接触振盪させた。室温にて 10 分間静置後、両相を分液し、水相中の金属イオン濃度を ICP-MS で測定した。

2-2. 高濃度 U(VI)負荷実験

n-ドデカンで 1.1M に希釈した DHP, DOP, DDP, DEhP を有機相、U(VI)を 0.1, 0.2M 含む 6M HNO_3 を水相とし、2-1 と同様の操作を行い、目視で第三相形成の有無を確認した。

3. 結果と考察

DRP の金属イオン抽出における硝酸濃度依存性を Fig.3 に示す。どの DRP においても分配比 D は硝酸濃度と共に増加し、U(VI)の方が Th(IV)より選択的に抽出された。硝酸濃度 6M における分離係数(=U 分配比/Th 分配比)は DOP が 2.72 で DEhP が 3.97 であり、DEhP の方が U(VI)に対する選択性が高い。

高濃度 U(VI)負荷実験では、0.1M U(VI)において DHP, DDP が第三相を形成した。さらに 0.2M U(VI)において DOP は第三相を形成し、DEhP は二相を維持した。

以上のことから、枝分かれ側鎖を有する DRP は、直鎖状側鎖のものと比較して、U(VI)選択性を維持しつつ U(VI)抽出限界濃度が向上することが示唆された。

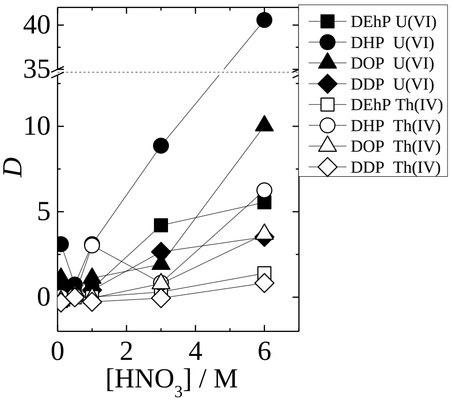

Fig.3 Dependence of nitric acid concentration on metal ion extraction by various DRPs

参考文献

[1] M. Nogami, et al. Sci. China Chem., **55**, 1739-1745 (2012)
[2] M. Nogami, et al. J.Radioanal. Nucl. Chem. , **296**, 423-427 (2013)
[3] M. Nogami, et al.,GIMRT-REMAS 2020, Oct. 2, 2020, Sendai, Japan

*Hiroki Kita[1], Masanobu Nogami[1], Kenji Shirasaki [2] and Chikage Abe[2]

[1]Kindai Univ., [2]Tohoku Univ.