1N12 2024年秋の大会

JAEA で開発した抽出剤やマスキング剤のプロセス利用性の比較 Comparison of utility in chemical process for extractants and masking agents developed in JAEA

*佐々木祐二¹、伴康俊¹¹原子力機構

原子力機構(JAEA)は元素分離プロセスに有用な抽出剤やマスキング剤を開発してきた。一方、同じ目的で複数の化合物が検討されており、どの試薬が望ましいかが不透明である。ここでは分離工程を3つ (Ln+An 一括抽出、Ln/An 分離、Am/Cm 分離) に分け、それぞれの工程で条件の比較検討を行った。キーワード:DGA、NTAアミド、DTBA、ADAAM、元素分離プロセス

1. **緒言** PUREX プロセスで発生する高レベル廃液中の MA(マイナーアクチノイド)の回収は、放射性廃棄物の有害度低減や核変換用 MA 燃料の製造に必要な技術であり、早期の開発が望まれている。JAEAは Ln(ランタノイド)+An(アクチノイド)一括抽出剤の DGA(ジグリコールアミド)化合物、DTPA(ジエチレントリアミン 5 酢酸)を改良した DTBA や Am/Cm 分離用の ADAAM 等、世界的に見ても優れた抽出剤やマスキング剤を開発してきた。しかし、関連する分離工程で多くの試薬が検討され、どれが適正かを判断しにくい。そこで、Ln+An 一括抽出工程で各種 DGA と DOODA、Ln/An 分離工程で NTA アミドと DTBA、Am/Cm 分離工程で ADAAM と DGA/DOODA 等と、3 つの抽出分離工程で条件を比較する。図 1 に比較対象の化合物を記す。なお、Am/Cm 分離について、JAEA で世界のトップレベルの性能

を持つ抽出剤を開発しており、それを利用 した工程を検討すべきと考える。

- **2. 検討方法** 3 つの抽出分離工程を連動させた際の条件や簡便性について考慮する。分離対象の Ln 濃度は文献に従い[1]、およそ 100 mM (M= mol/dm³) とする。
- 3.結果Ln+An 一括抽出工程:TEHDGAは第三相を生成しやすく、DOODA は低いAn 分配比を持つことが課題となる。

TODGA、TDDGA、TDdDGAいずれも

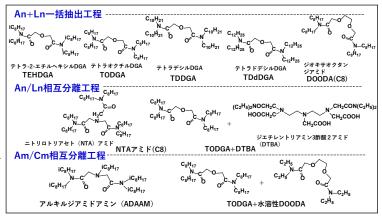


図1 3つの抽出分離工程で比較した抽出剤とマスキング剤

100 mM Nd を一度に抽出できる。TODGA、TDDGA は条件によって第三相を生成するが、TDdDGA の第三相生成は目視確認できなかった。一方、高濃度の TDdDGA の溶液調製に課題を持つ。 $\underline{Ln/An}$ 相互分離工程: NTA アミドと TODGA-DTBA 系で $\underline{Ln/An}$ 分離係数($\underline{SF} = D(Nd)/D(Am)$)を比較すると、前者は $\underline{4.6}$ (= $\underline{Am/Nd}$)、後者は $\underline{7.3}$ (= $\underline{Nd/Am}$)である。なお、NTA アミドは酸溶液下でのプロトン化、DTBA は運転時の詳細な pH コントロールが課題となる。また、DTBA を用いて逆抽出による相互分離ができれば、工程を簡略化できる。 $\underline{Am/Cm}$ 相互分離工程: $\underline{DGA/DOODA}$ による $\underline{Am/Cm}$ 分離比はおよそ $\underline{4}$ で、かつ $\underline{3}$ ~5 M のような高い硝酸濃度が必要となる。一方、 \underline{ADAAM} は中央の第 $\underline{3}$ 級アミン窒素がプロトン化して高い $\underline{Am/Cm}$ 分離係数(6)を示す。その時の水相、有機相条件はそれぞれ $\underline{1.5}$ M \underline{HNO}_3 、 $\underline{0.25}$ M \underline{ADAAM} \underline{m} ドデカンと、好ましい条件で工程を設計できる。

[1] JAEA-Review 2015-002, pp. 105-116

*Yuji Sasaki¹, Yasutoshi Ban¹,

¹Japan Atomic Energy Agency