

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2009-8688

(P2009-8688A)

(43) 公開日 平成21年1月15日(2009.1.15)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>G 2 1 F</b> 9/06 (2006.01)	G 2 1 F 9/06 5 8 1 H	4 D 0 5 6
<b>B 0 1 D</b> 11/04 (2006.01)	B 0 1 D 11/04 Z	
<b>G 2 1 C</b> 19/46 (2006.01)	G 2 1 C 19/46 M	

審査請求 有 請求項の数 1 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願2008-200874 (P2008-200874)	(71) 出願人	505374783
(22) 出願日	平成20年8月4日 (2008.8.4)		独立行政法人 日本原子力研究開発機構
(62) 分割の表示	特願2004-324949 (P2004-324949) の分割	(74) 代理人	100096862
原出願日	平成16年11月9日 (2004.11.9)		弁理士 清水 千春
(31) 優先権主張番号	2004124918	(72) 発明者	小澤 正基
(32) 優先日	平成16年8月13日 (2004.8.13)		茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立 行政法人日本原子力研究開発機構 東海研 究開発センター核燃料サイクル工学研究所 内
(33) 優先権主張国	ロシア (RU)	(72) 発明者	ババイン ワシーリー アレクサンドロビ ッチ ロシア連邦、194021、サンクトペテ ルブルグ、フタロイ、プロスペクト ムリ ンスキー 34、クバルチーラ 155 最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 酸性溶液中のアクチニド元素を回収するための混合抽出剤

(57) 【要約】

【課題】 使用済核燃料の再処理に際して、放射性液体廃棄物から U、Pu および超プル  
トニウム元素等のアクチニド元素を抽出することができる混合抽出剤を提供する。

【解決手段】 極性希釈剤中に二座配位の有機リン抽出剤であるオクチルフェニル-N, N  
-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシドを含む溶液からなる混合抽出剤であっ  
て、上記極性希釈剤としてメタニトロベンゾトリフルオライド (MNBTF) と TBP の  
混合物を使用し、かつ上記オクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフ  
インオキシドを 0.1 ~ 1.2 M/L とするとともに、上記 TBP を 0.3 ~ 1.1 M/L  
とした酸性溶液中のアクチニド元素を回収するための混合抽出剤である。

【選択図】 なし

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

極性希釈剤中に二座配位の有機リン抽出剤であるオクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシドを含む溶液からなる混合抽出剤であって、

上記極性希釈剤としてメタニトロベンゾトリフルオライド(MNBTF)とTBPの混合物を使用し、かつ

上記オクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシドを0.1~1.2M/Lとするとともに、上記TBPを0.3~1.1M/Lとしたことを特徴とする酸性溶液中のアクチニド元素を回収するための混合抽出剤。

## 【発明の詳細な説明】

10

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、放射化学的技術に関し、さらに詳しくは、使用済核燃料(SNF)の処理から発生する放射性廃棄物の再処理に関し、非鉄金属の抽出回収に使用し得るものである。

## 【背景技術】

## 【0002】

生態系の安全性を維持するためには、使用済核燃料再処理で生成する長寿命放射性核種を、貯蔵期間中に環境への漏洩及び拡散が生じないような形態へ転換する必要がある。したがって、それとともに、ウラン、プルトニウムおよび超プルトニウム元素(TPE)、特にアメリカシウムおよびキュリウムの回収を行う必要がある。

20

## 【0003】

液液抽出法は、最も広く行われている液体高レベル廃棄物(HLW)の再処理方法である。酸性溶液からウランとプルトニウムをTBPにより抽出する標準的なPUREX法が知られている(非特許文献1参照)。PUREX法においては、飽和炭化水素中に1.1MTBPを含む混合抽出剤が使用され、ウランとプルトニウムをよく抽出するが、その他の元素は非常に僅かしか回収しない。

## 【0004】

酸性溶液から希土類元素(REE)とともに、アメリカシウムおよびキュリウムを回収するTRUEX法も知られている(非特許文献2参照)。TRUEX法では、飽和炭化水素中に0.15~0.25Mオクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシドと1.1~1.5MTBPを含む混合抽出剤が使用され、酸性溶液から3価の元素と少量のウランおよびプルトニウムが回収される。

30

## 【0005】

フッ素化希釈剤中にジフェニルカルバモイルフォスフィンを含む混合抽出剤によりREE、TPE、UおよびPuを抽出する方法に使用される混合抽出剤は、特許文献1中で用いられた混合抽出剤に最も類似している。この方法は、メタニトロベンゾトリフルオライドまたはオルト-ニトロフェニルテトラフルオロエチルエーテル中に0.05~0.3Mジフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシド溶液を含むプロトタイプの混合抽出剤に基づくものである。

## 【0006】

このプロトタイプの欠点は、かなりのウラン量(ウラン濃度5g/L超)が水相中に存在すると、カルバモイルフォスフィンオキシドとウランの溶媒和物の沈殿が有機相中に生成されることであり、このような場合には、抽出プロセスは動的条件下で行うことができない。

40

## 【0007】

【非特許文献1】Reactor Handbook, Sec. Edition, Ed. S.M.Stoller, R.B.Richards, v.2, Fuel reprocessing, p.101 (1961)

【非特許文献2】E.P.Horwitz, et al, Solv. Extr. Ion Exch., v.3(1&2), p.75, 1985

【特許文献1】B.F.Myasoedov, M.K.Chmutova, V.A.Babain, A.Yu.Shadrin, V.P.Popik, G.A.Pribulova, E.G.Dzekun, 「希土類およびアクチニド元素の抽出回収方法」ロシア発

50

明者証 No.1524519 (ロシア特許への変更：1997年4月27日)

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明の目的は、TPEおよびREEだけでなくウランおよびプルトニウムも同時に抽出することができる混合抽出剤を開発することである。

【課題を解決するための手段】

【0009】

上記した問題は、ジエチレングリコールのビス-テトラフルオロプロピルエーテル(フルオロポール-1083)中に二座配位の有機リン抽出剤(ジヘキシル-N, N-ジエチルカルバモイルフォスフォネート( $\text{HexO})_2/\text{Et}_2$ )を含む混合抽出剤を使用することにより解決される。

10

【0010】

同様な結果、すなわち、沈殿や第三相を生ずることなく高濃度のウラン、およびプルトニウム、REE、TPEの抽出が、希釈剤としてのメタニトロベンゾトリフルオライド中にオクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシド( $\text{PhOct-iBu}_2$ )と0.3~1.1M/LのTBPを含む混合抽出剤を使用することにより可能である。

【0011】

すなわち、請求項1に記載の本発明に係る酸性溶液中のアクチニド元素を回収するための混合抽出剤は、極性希釈剤中に二座配位の有機リン抽出剤であるオクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシドを含む溶液からなる混合抽出剤であって、上記極性希釈剤としてメタニトロベンゾトリフルオライド(MNBTf)とTBPの混合物を使用し、かつ上記オクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシドを0.1~1.2M/Lとするとともに、上記TBPを0.3~1.1M/Lとしたことを特徴とするものである。

20

【発明の効果】

【0012】

本発明の混合抽出剤をプロトタイプと比較すると、本発明の混合抽出剤は、プロトタイプと同様に、種々の組成の酸性水溶液からウラン、REEおよびTRUの抽出ができる点が注目される。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

以下、実施例を挙げて本発明を説明する。

【0014】

実施例1

極性希釈剤フルオロポール-1083中に30%( $\text{HexO})_2/\text{Et}_2$ を含む混合抽出剤を、金属(U, TRU, Eu)の硝酸塩を含む $\text{HNO}_3$ 溶液と、20で3分間接触させた。分配係数を図1と表1に示す。

40

【0015】

(表1)

極性希釈剤フルオロポール-1083中に30%( $\text{HexO})_2/\text{Et}_2$ を含む混合抽出剤による、硝酸ウラニル(水相中のウランの初期濃度-100g/L)を含む2M  $\text{HNO}_3$ からのU, TRUおよびEuの抽出

元素	U	Pu	Np	Am	Eu
分配係数	17	45	7	2.1	1.4

【0016】

実施例2

極性希釈剤フルオロポール-1083中に30%( $\text{HexO})_2/\text{Et}_2$ を含む混合抽出剤

50

を、種々の濃度の硝酸ウラニルを含む  $\text{HNO}_3$  溶液と、20 で3分間接触させた。分配係数を図2に示す。

## 【0017】

実施例3 (プロトタイプ)

ドデカン中に0.2M オクチルフェニル-N, N-ジイソブチルカルバモイルフォスフィンオキシドと1.1M TBPを含む混合抽出剤を、種々の濃度の硝酸ウラニルを含む  $\text{HNO}_3$  溶液と、20 で3分間接触させた。10g/Lを超えるウラン濃度では、抽出中に第三相が生成し、30g/Lを超えるウラン濃度では、沈殿が認められた(表2参照)。

## 【0018】

実施例4 (プロトタイプ)

極性希釈剤メタニトロベンゾトリフルオライド(MNBTF)中に0.1M ジフェニル-N, N-ジブチルカルバモイルフォスフィンオキシドを含む混合抽出剤を、種々の濃度の硝酸ウラニルを含む  $\text{HNO}_3$  溶液と、20 で3分間接触させた。初期水溶液中のウラン濃度が5g/Lを超えると、抽出プロセス中に沈殿が認められた。本発明の混合抽出剤とプロトタイプとの比較も表2に示す。

## 【0019】

## 【表2】

初期有機溶液	初期水相中の金属濃度、g/L		第三相又は沈殿の有無
	U	Eu	
0.2M PhOct- <i>i</i> Bu <sub>2</sub> の 30%TBP+ドデカン溶液		300	第三相
	5	-	無
	20		第三相
	50		沈殿
	100		沈殿
	276		沈殿
0.2M PhOct- <i>i</i> Bu <sub>2</sub> の フルオロポール-1083溶液	50	2	沈殿
	276		沈殿
	-	300	無
0.2M PhOct- <i>i</i> Bu <sub>2</sub> の 10%TBP+ フルオロポール-1083溶液	50	2	沈殿
	276		沈殿
	-	300	無
30%(HexO) <sub>2</sub> /Et <sub>2</sub> の フルオロポール-1083溶液	50		無
	100		無
	200		無
0.2M PhOct- <i>i</i> Bu <sub>2</sub> の 30%TBP+MNBTF溶液	50	2	無
	276		無
	-	300	無
		2	無

## 【0020】

上記の実施例に示したように、本発明の混合抽出剤は、高含量のウランとともにTPEおよびREEを含む酸性溶液から、ウランおよびプルトニウムの存在下でTPEおよびREEを回収できることがわかる。プロトタイプおよび類似方法で使用される混合抽出剤は沈

殿を生成するため、かような抽出を行うことはできない。

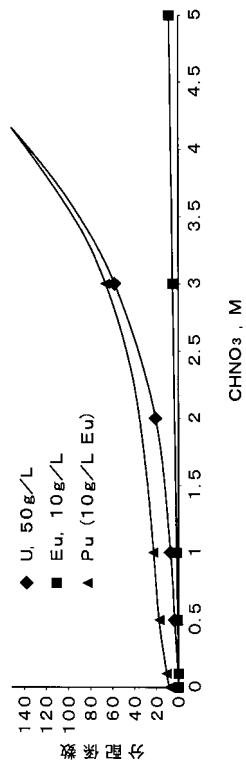
【図面の簡単な説明】

【0021】

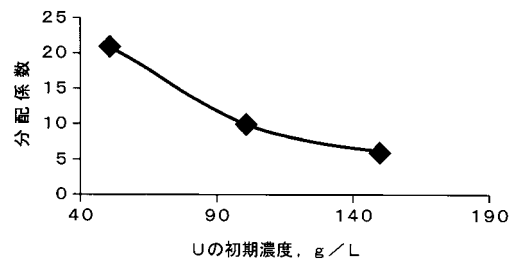
【図1】極性希釈剤フルオロポール-1083中に30% (HexO)<sub>2</sub>/Et<sub>2</sub>を含む混合抽出剤によるU、Pu、Euの抽出結果を示すグラフである。

【図2】極性希釈剤フルオロポール-1083中に30% (HexO)<sub>2</sub>/Et<sub>2</sub>を含む混合抽出剤を用いてU抽出を行う際の、初期U濃度の影響を示すグラフである。

【図1】



【図2】



## フロントページの続き

- (72)発明者 フョードロフ ユーリー ステパノビッチ  
ロシア連邦、194223、サンクトペテルブルグ、プロスペクト エム・トレザ 43、クバル  
チーラ 111
- (72)発明者 シャドリン アンドレイ ユーリエビッチ  
ロシア連邦、194358、サンクトペテルブルグ、ウーリツァ カルブイシェワ 6、コール  
プス 1、クバルチーラ 155
- (72)発明者 ロマノフスキー ワレリー ニコラエビッチ  
ロシア連邦、197183、サンクトペテルブルグ、ウーリツァ ジブノフスカヤ 37、クバ  
ルチーラ 327
- (72)発明者 スミルノフ イーゴリ ワレンチノビッチ  
ロシア連邦、193187、サンクトペテルブルグ、ウーリツァ サブシキナ 13、クバルチ  
ーラ 34
- (72)発明者 ジリベルマン ボリス ヤコブレビッチ  
ロシア連邦、197183、サンクトペテルブルグ、プロスペクト リモルスキー 15、クバル  
チーラ 10

Fターム(参考) 4D056 AB10 AC15