次世代再処理ガラス固化技術基盤研究
(32)高レベル廃棄物吸着ガラスの吸着性能向上に向けた検討

Basic research programs for the next generation vitrification technology
(32) Improvement in the adsorption capacity for MA

*渡部　創，小藤博英，竹内正行
原子力機構

CMPO 吸着材における MA の吸着容量を増大させることを目的とし、CMPO 吸着材に優先的に吸着される Mo 及び Zr を予め高レベル放射性廃液（HLLW）から除染するため、HDEHP 吸着材を用いた Mo, Zr の除染試験を実施した。HDEHP 吸着材を用いることで、高酸濃度の HLLW から選択的に Mo, Zr を吸着除染出来ることが明らかになった。カラムの繰り返し利用のためには Mo, Zr の溶離が必要になるが、Zr の溶離が困難であることが明らかになった。今後、Zr の溶離率を向上させるためのフロー等の改良が課題である。

キーワード：再処理，マイナーアクチニド，吸着材，HDEHP

1. 緒言　次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業では、将来に向けたガラス固化技術の高度化並びに放射性廃棄物の減容化・有害度低減に貢献するため、吸着ガラスの開発に取り組んでいる。その技術候補の一つとして、抽出クロマトグラフィ技術で用いる含浸吸着材の適用性について検討を進めている。本吸着材は多孔質シリカ粒子にポリマーを被覆し、抽出剤を含浸させたものであり、吸着材構成物質であるシリカを直接、ガラス材料として利用することが特徴である。これまでの研究で、CMPO を含浸させた吸着材を吸着ガラスとして利用する場合、MA 吸着において HLLW 中の Mo, Zr が優先的に吸着するため、予め Mo, Zr を除染することにより吸着ガラスの MA 保持容量向上が期待できることを明らかとした[1]。本研究では、高酸濃度の硝酸溶液から選択的に Mo, Zr を抽出することが可能である HDEHP 抽出剤に着目し[2]、HDEHP 含浸吸着材の Mo, Zr 除染工程への適用性について検討するため、模擬 HLLW を対象とした吸着・溶離試験を実施した。合わせて、貯槽等の腐食生成物として混入が予想される Fe の挙動も調査した。

2. 実験　多孔質シリカ粒子にポリマーを被覆した SiO_2-P に、HDEHP を含浸させた HDEHP/SiO_2-P 吸着材を調製した。吸着バッチ試験として、吸着材 1 g と模擬 HLLW（[HNO_3] = 2 M, Mo, Zr, 希土類、白金族等を含む）20 mL とを混合し、3 時間振とうした。吸着材を回収した後、H_2O_2 溶液またはシュウ酸溶液と接触させて溶離を試みた。溶液中における金属イオン濃度から、各イオンの吸着・溶離挙動を調査した。さらに、上記模擬 HLLW を対象としたカラム分離試験を実施し、本吸着材のカラム処理への適用性について評価した。

3. 結果および考察　吸着バッチ試験の結果、模擬 HLLW 中に含まれる金属イオンの内、Zr、Mo、Fe の分配係数 K_d はそれぞれ 6×10^3, 12, 8 であったが、それ以外の元素についてはほぼ 0 であったことから、Zr、Mo、Fe 以外の元素は高酸濃度の硝酸溶液から HDEHP/SiO_2-P にほとんど吸着されないことがわかった。溶離試験では、Zr 及び Fe は H_2O_2 によっては溶離されなかったが、H_2O_2 濃度及び振とう時間の増加に伴って Mo の溶離率が向上した。シュウ酸を用いた場合、Zr, Mo, Fe の全てについて吸着量の約 80-90%が溶離されることが明らかになった。いずれもシュウ酸濃度の増加と共に溶離率が向上したため、シュウ酸との錯形成による逆抽出反応によるものと推察される。

ここで得られた結果を基に、カラム試験条件を設定し、HDEHP/SiO_2-P を充填したカラムに模擬 HLLW、H_2O_2 溶液、シュウ酸溶液の順で通液した(図 1 参照)。吸着バッチ試験において HDEHP/SiO_2-P への吸着が認められなかった Mo、Zr、Fe 以外の元素は、カラムへの吸着、蓄積はなかった。Mo 等はフィード液の通液と共にカラムに吸着し、吸着容量を超えた分が破過した。吸着したものは H_2O_2 およびシュウ酸溶液の通液によってほぼ全量が溶離した。Fe も Mo とほぼ同様の傾向を示した。Zr は吸着した量の 80 %が溶離したが、一部がカラム中に残留した。カラムの繰り返し利用を考慮すると、今後 Zr の溶離率を向上させるための溶離液や通液条件等の改良が必要である。

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「平成 27 年度次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業」の成果を含む。

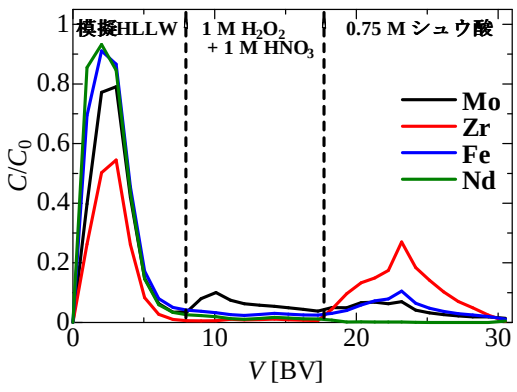


図 1　カラム溶離曲線

参考文献

[1] 渡部　他、日本原子力学会「2015 年秋の大会」
[2] 森田　他、JAEA-Research 2012-031 (2012).

*Sou Watanabe, Hirohide Kofuji and Masayuki Takeuchi
Japan Atomic Energy Agency