CMPO-HDEHP 吸着材を用いた単サイクル MA 回収プロセスの開発
(1)希土類洗浄工程

Single step MA recovery process using CMPO-HDEHP/SiO_2-P adsorbent

(1)Ln(III) elution process

*櫻井 智明[1]，安倍 諒治[1]，片井 雄也[2]，松浦 治明[2]，新井 剛[3]，
渡部 創[4]，佐野 雄一[4]，竹内 正行[4]
[1]芝浦工業大学大学院，[2]東京都市大学，[3]芝浦工業大学，[4]日本原子力研究開発機構

抄録 ： 既往の研究成果より，抽出剤含浸吸着材である CMPO-HDEHP 吸着材は，協同抽出効果を発現することが明らかとなっている．また，CMPO-HDEHP 吸着材に抽出された金属イオンの溶離は困難であり効果的な溶離剤の選定には至っていない．そこで本研究では，効果的な溶離剤の選定のため詳細に検討を行った．

キーワード ： 抽出クロマトグラフィ，抽出剤含浸吸着材，協同効果, CMPO-HDEHP, MA

1. 緒言 高レベル放射性廃液に含まれるマイナーアクチノイド(MA)は，長期半減期且つ発熱性核種を含むため，ガラス固化体への充填率低下や環境負荷の増加等の懸念から予め分離することが望まれる．そのため，高レベル放射性廃液からの MA(III)の分離法として抽出クロマトグラフィ法の適用が検討されているが，単サイクルで MA(III)を分離可能な効果的な抽出剤含浸吸着材の開発には至っていない．そこで筆者らは，協同効果に着目し，octyl(phenyl)-N,N-diisobutylcarbamoyl methylphosphine oxide (CMPO)と bis(2-ethyl hexyl)hydrogen phosphate (HDEHP)を混合した含浸吸着材の開発に着手した．既往の成果より，含浸吸着材中での協同効果の発現が確認されているが，協同効果で抽出された金属イオンの溶離は困難となることが明らかとなっている[1]. そこで本研究では, CMPO-HDEHP 吸着材の吸着･溶離特性ならびに溶離法について詳細に検討を行った．

2. 実験方法 本試験で用いた吸着材は，スチレン-ジビニルベンゼンを被覆した多孔性の SiO_2 粒子に CMPO と HDEHP をモル比 1：1，含浸率 20 wt%となるように調製した．試験溶液は Nd(III)を 10 mM 含む 10^{-3}-3 M HNO_3 を用いた．CMPO-HDEHP 吸着材の吸着特性は，バッチ式吸着試験で評価した．バッチ式吸着試験は，スクリュー管瓶内に CMPO-HDEHP 吸着材と試験溶液を重量比 1 : 20 で注入し．298 K の振とう恒温槽で振とうした．試験前後の水相の金属イオン濃度から吸着分配係数 K_d を算出し吸着性能の評価指標とした．また，吸着試験の結果から，カラム試験により Nd(III)溶離挙動を検討した．カラム試験ではϕ10×h150 mm の耐圧性ガラスカラムに CMPO-HDEHP 含浸吸着材を充填し，試験溶液，洗浄液，溶離液の順で通液した．溶離液は 3 M HNO_3 及び 0.5 M, 1 M $Na_3(C_3H_5O(COO)_3)$を用いた．

3. 実験結果及び考察 Fig. 1 に CMPO-HDEHP 吸着材の Nd(III)に対する吸着分配係数の硝酸濃度依存性を示す. Fig.1 より, CMPO-HDEHP 吸着材は硝酸濃度 10^{-1} M 以上では吸着分配係数の低下が確認された. これは, CMPO-HDEHP による協同抽出が，H^+の放出を伴って進行するためと考えられる[2]．このことから，CMPO-HDEHP 吸着材は 10^{-1} M 以下の硝酸濃度域で用いることが最適だと考えられた．Fig.2 に CMPO-HDEHP 吸着材の Nd(III)溶離クロマトグラムを示す．Fig.2 より，3 M HNO_3 による Nd(III)の溶離は困難であることが明らかとなった．そこで，新規の溶離液として $Na_3(C_3H_5O(COO)_3)$ 溶液を選定し溶離試験を行った．$Na_3(C_3H_5O(COO)_3)$溶液の通液により Nd(III)の溶離ピークが確認された．しかし，何れの $Na_3(C_3H_5O(COO)_3)$濃度でも回収率は 80 %程度であった. これは, $Na_3(C_3H_5O(COO)_3)$の pH が 8 程度であり, Nd(III)の一部が $Nd(OH)_3$ として沈殿したためと推察される[3]．本会では，より詳密な溶離挙動について報告する．

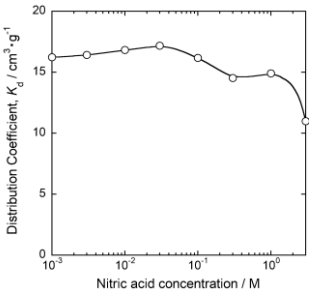

Fig.1 Distribution coefficient of Nd(III) by CMPO-HDEHP
[Nd(III)] = 10 mM, Contact time : 180 min, Temp. : 298 K

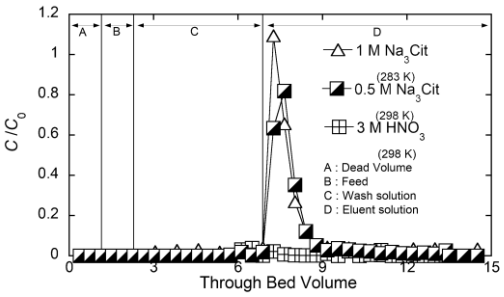

Fig.2 Elution chromatogram of Nd(III) by CMPO-HDEHP
Adsorbent : 7.85 cm^3, Flow rate : 5 cm^3･min^{-1}

参考文献

[1] 大野 真平 ： 芝浦工業大学大学院 修士論文，(2016)
[2] Peter Tkac *et al.* : *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 51, (2012), pp10433-10444
[3] 坂口 武一，小野 景平 ： 金属キレート I, 株式会社 南江堂, (1965), pp30-32

*Tomoaki Sakurai[1], Ryoji Abe[1], Yuya Katai[2], Haruaki Matsuura[2], Tsuyoshi Arai[3], Sou Watanabe[4], Yuichi Sano[4], Masayuki Takeuchi[4]
[1]Shibaura Institute of Technology Graduate School, [2]Tokyo City University, [3]Shibaura Institute of Technology, [4]Japan Atomic Energy Agency