CMPO-HDEHP 吸着材を用いた単サイクル MA 回収プロセスの開発 (3) 模擬廃液を用いた分離特性の評価

Single step MA recovery process using CMPO-HDEHP/SiO₂-P adsorbent

(3) Evaluation of separation characteristics by using simulated HLLW

*櫻井 智明¹, 新井 剛², 渡部 創³, 佐野 雄一³, 竹内 正行³

1芝浦工業大学大学院,2芝浦工業大学,3日本原子力研究開発機構

抄録:既往の成果により,CMPO-HDEHP 吸着材に吸着された Nd(III)は,H₃Cit を溶離液として用いることで溶離できることが確認されているが,その他の元素に対する分離特性は未だ評価がなされていない.本研究では、CMPO-HDEHP 吸着材の吸着特性を希土類元素依存性の観点から評価した.

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

1. 緒言 高レベル放射性廃液(HLLW)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を有 するため、ガラス固化体への充填率の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. HLLW からの MA(III)の選択的な分離には、抽出クロマトグラフィ法の適用が検討されている.しかし、本法 を用いて単サイクルで MA(III)を分離可能な吸着材は未だ開発途上である.そこで筆者らは、octyl(phenyl)-N,Ndiisobutylcarbamoyl 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、CMPO-HDEHP 吸着材へと吸着された Nd(III)は C₃H₅O(COOH)₃ (H₃Cit)を溶離液として用いることで溶離できることが明らかとなった[1].一方、HLLW 中に含まれる Nd(III) 以外の元素については、未だ知見が乏しいのが現状である.そこで、本研究では希土類元素混合溶液を用い て CMPO-HDEHP 吸着材による分離特性の評価を行った.

2. 実験方法 本試験で用いた吸着材は、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体を被覆した多孔性の SiO₂ 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. CMPO-HDEHP 吸着材の各金属へ の吸着特性は、カラム試験により評価した.カラム試験では ¢10×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. 試験溶液は、試験溶液は Nd(III)を 10 mM 含む 2 M HNO₃、ならびに Y(III), La(III), Nd(III), Eu(III)を各々 10 mM 含む 3 M HNO₃ を用いた.洗浄液 には 10⁻³ M HNO₃ を用い、溶離液には 3 M H₃Cit を用いた.

3. 実験結果及び考察 Fig.1 に Nd(III)単元系における CMPO-HDEHP 吸着材のカラム試験結果を示す. Fig.1 より,洗浄液に 10⁻³ M HNO₃ を用いた試験では, 2 M HNO₃ を用いた試験よりも高い溶離ピークが確認された. また, Nd(III)の回収率についても,洗浄液に 10⁻³ M HNO₃ を用いた試験では 10%程度高くほぼ全量回収できることが確認された.これは, 10⁻³ M HNO₃が 2 M HNO₃ を比較して 3 M H₃Cit と近い pH を示すことに起因すると考えられる.そのため, 3 M H₃Cit が脱水素し, Nd(III)に対するキレート作用を示しやすかったと推察される.この結果から,洗浄液には 10⁻³ M HNO₃ が適していると考えられる.次いで,Fig.2 に Y(III),La(III), Nd(III), Eu(III)多元系における CMPO-HDEHP 吸着材のカラム試験結果を示す.Fig. 2 より,La(III), Nd(III), Eu(III)をついては H₃Cit の通液による溶離ピークが確認された.また,その回収率は 50-80%であり何れの元素も全量回収には至らなかった.これは,複数の希土類元素が混在するため,溶離が妨害されたと考えられる...ー方,Y(III)は H₃Cit の通液による溶離ピークが確認されなかった.これは,Y(III)のイオン半径が他の元素と比較して小さく,イオン表面での電荷密度が高いため,CMPO-HDEHP 吸着材に強固に吸着されたことに起因すると推察される[2].



[1] 櫻井 智明ら:日本原子力学会 2017 年秋の大会予稿(2K05), (2017)
[2] 石野 俊夫:「材料」,第12巻119号, (1963), pp559-571

*Tomoaki Sakurai¹, Tsuyoshi Arai², Sou Watanabe³, Yuichi Sano³, Masayuki Takeuchi³
¹Shibaura Institute of Technology Graduate School, ²Shibaura Institute of Technology, ³Japan Atomic Energy Agency