

高度 MA 分離を目指した抽出クロマトグラフィ法の最適化

Optimization of extraction chromatography for the purpose of highly separation MA from HLLW

*堀内 勇輔¹, 安倍諒治¹, 新井 剛², 渡部創³, 佐野雄一³, 竹内正行³¹ 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: 本研究では抽出クロマトグラフィ法による高レベル放射性廃液からの MA(III)の高度分離を目指し、本法の最適化を行った。本研究の成果から、HDEHP 吸着材を用いて Mo(VI)及び Zr(IV)を除去した後、CMPO 吸着材を用いて軽 Ln(III)を除去できる事が示された。

キーワード: 高レベル放射性廃液、マイナーアクチノイド、希土類元素、抽出クロマトグラフィ法

1. 緒言

高速炉の使用済核燃料の再処理工程で生じる高レベル放射性廃液(HLLW)には、マイナーアクチノイド(MA)が含まれている。MA(III)の一部には、発熱性核種や長半減期核種を含むため、放射性廃棄物の減容・有害度低減の観点から HLLW からの MA 分離技術の確立は必須である。そこで我が国では、MA(III)の分離法として抽出剤含浸吸着材を用いた抽出クロマトグラフィ法を候補技術として選定し、種々の検討を重ねてきた。これらの研究成果から、HLLW に含まれる Mo(VI)及び Zr(IV)は MA(III)の吸着を阻害することが明らかとなっている。さらに、HLLW 中に含まれる希土類元素(Ln(III))は MA(III)と化学的性質が類似しているため分離を困難にしている。これらのことから、実効性のある MA(III)分離技術の開発には、予め HLLW から Mo(VI)及び Zr(IV)を除去した後、Ln(III)の分離工程を組み込む必要がある。そこで Bis(2-ethylhexyl)hydrogen phosphate(HDEHP)抽出剤と octyl(phenyl)-N、N-diisobutyl carbamoylmethyl-phosphine(CMPO)抽出剤を組み合わせ、①Mo(VI)、Zr(IV)除染工程、②軽 Ln(III)除染工程、③重 Ln(III)除染工程から成る 3 段階の工程を用いた MA(III)分離・回収技術を提案し、上流の 2 段工程について詳細に検討したので報告する[1]。

2. 実験方法

HDEHP 及び CMPO 吸着材は、平均粒径 50 μm 、平均細孔径 50 nm の多孔性 SiO₂ 粒子に対して架橋度が 15 % となるように調整したスチレンジビニルベンゼン共重合体を被覆した担体に、HDEHP を 20 wt%、CMPO を 33.3 wt%となるように含浸することで各々作製した。カラム試験は、 $\phi 100 \text{ mm} \times h 150 \text{ mm}$ のガラスカラムに HDEHP 吸着材、 $\phi 100 \text{ mm} \times h 300 \text{ mm}$ のガラスカラムに CMPO 吸着材をそれぞれ圧密充填することで各充填相を形成した。温度は HDEHP 吸着材カラムでは 298 K、CMPO 吸着材カラムでは 323 K にそれぞれ保持し、所定の通液速度で模擬 HLLW 溶液、洗浄液、溶離液を順次通液した。カラム下端からの流出液を 3 cm³ 毎に分画採取し各フラクションの金属イオン濃度を ICP-OES で分析することで分離クロマトグラムを得た。また、本試験では Eu(III)を MA(III)の模擬元素として用いた。

3. 結果

Fig. 1 に HDEHP 吸着材カラムを用いた模擬 HLLW の分離クロマトグラムを示す。Fig. 1 よりアルカリ金属、アルカリ土類金属、白金族元素及び Ln(III)は模擬 HLLW 溶液通液直後に漏出が確認された。一方、Mo(VI)、Zr(IV)と合わせて Fe(III)も良好に吸着し、溶離液として 0.5 M C₂H₂O₄ を通液することで Mo(VI)、Zr(IV)及び Fe(III)の溶離が確認された。これらのことから、HDEHP 吸着材カラムにより Mo(VI)、Zr(IV)を除去できることが示された。次いで、CMPO 吸着材カラムによる軽 Ln(III)と MA(III)の分離挙動の検討を行った。Fig. 2 に溶離液として pH 1.5 DTPA を用いた際の溶離曲線を示す。ここで Nd(III)は軽 Ln(III)の代表として選定した。Fig. 2 より、pH 1.5 DTPA の通液により Eu(III)が先に溶離し、次いで Nd(III)が溶離し、いずれの元素においてもほぼ全量回収が確認された。これらのことから、MA(III)と軽 Ln(III)を分離できることが示唆された。

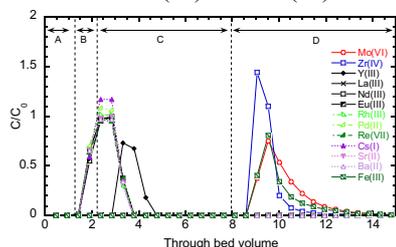


Fig. 1 Separation chromatogram of simulated HLLW with HDEHP adsorbent packed column

Column; $\phi 10 \times h 150 \text{ mm}$, Adsorbent; 7.85 cm³, Flow rate; 5 cm³·min⁻¹, Temp.; 298 K
A: Dead volume, B: Feed, C: Wash solution(3 M HNO₃), D: Eluent(0.5 M C₂H₂O₄)

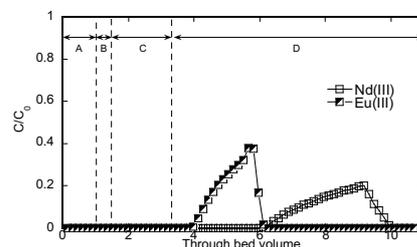


Fig. 2 Separation chromatogram Nd(III) and Eu(III) with CMPO adsorbent packed column

Column; $\phi 10 \times h 300 \text{ mm}$, Adsorbent; 19.6 cm³, Flow rate; 1 cm³·min⁻¹, Temp.; 323 K
A: Dead volume, B: Feed, C: Wash solution(3 M HNO₃), D: Eluent(pH 1.5 DTPA)

参考文献

[1] T. Mori : Doctoral thesis of Shizuoka University, (2007)

*Yusuke Horiuchi¹, Ryoji Abe¹, Tsuyoshi arai², Sou Watanabe³, Yuichi Sano³, Masayuki Takeuchi³

¹ Shibaura Institute of Technology Graduate school, ² Shibaura Institute of Technology, ³ Japan Atomic Energy Agency