

ゼオライトを用いたウラン含有溶液処理プロセス開発のための基礎研究

Basic study on treatment of liquid containing uranium using zeolites

(2) ジルコニウムのゼオライトへの吸着特性

(2) Adsorption characteristics of zirconium into zeolite

麻生 大貴¹, 豊崎 綾香¹, 浅沼 徳子², 高畠 容子³,

星野 貴紀³, 渡部 創³, 渡部 雅之³, *松浦 治明¹

¹ 東京都市大学, ² 東海大学, ³ 日本原子力研究開発機構

ウランとジルコニウムの各種ゼオライトへの吸着特性および化学的構造状態の違いを系統的に調査し、ウランとジルコニウムを分離する最適な条件を調査した。ジルコニウムの分配係数の値はウランのそれと比較して 10^{-2} 以上小さいが、LZY のゼオライトの方が低 pH 下でゼオライトとしての特性を壊すことなく性能が維持され、相互分離に適することが明らかとなった。

キーワード: ゼオライト, ジルコニウム, ウラン, ICP-OES, EXAFS

1. 緒言

福島第一原子力発電所の事故より、発電所事故収束のための廃止措置に係る研究開発が進んでいる。その中で、炉内燃料デブリの処理方法の検討に向けた基礎データの蓄積のための研究開発が行われ、比較的高濃度のジルコニウムを含むウラン溶液が発生し今後処理を進める必要がある。しかし、ウランとジルコニウムの化学的挙動の類似性から、処理方法として使用済み核燃料の再処理で使用する PUREX 法をそのまま適用すると、処理溶液の希釈や抽出操作の繰り返しにより廃液量が増加する。そこでジルコニウムを含むウラン溶液を処理するための新たな方法の検討が必要である。本研究では、液体廃棄物の処理方法としてゼオライトを用いた処理を検討した。

2. 実験

50 mM の硝酸ジルコニウム溶液を蒸留水と硝酸及び水酸化ナトリウムを用いて 1 mM に希釈し、pH の異なる溶液を作製した。その後、13X (20×50) 及び LZY (20×50) のゼオライトをそれぞれ 0.15 g 秤量しバイアル瓶へ入れ、さらに 45 ml の硝酸ジルコニウム溶液を加えた。時間 (3-24 時間) と溶液の pH (pH 3.1-4.7) を変化させ、振とうを行った。その後、固液分離を行い、その溶液の pH を測定しその変化を調べた後、誘導結合プラズマ発光分光分析装置を用いてジルコニウムの定量を行った。またゼオライト中の化学的存在状態の調査に高エネルギー加速器研究機構、PF, BL27B において EXAFS を用いて吸着状態の化学形態に関する分析を行った。

3. 結果と考察

図 1 に 13X (20×50)、LZY (20×50) のゼオライトで 24 時間振とうした場合の浅沼らによるウランの結果 [1] 及びジルコニウムの分配係数 (K_d) を比較したものを示す。どちらのゼオライトも pH が大きくなると K_d が大きくなる傾向はウランと変わらなかったが、13X の場合は大幅に pH の大きい側に移動しており、これはジルコニウムが高 pH にてゼオライトの主骨格と反応している可能性を示唆する結果である。それは EXAFS によってもゼオライトの構造関数の違いに関して、ジルコニウムの方がより大きな差が生じていることから明白である。図 1 よりジルコニウムよりウランのほうが 2 オーダー吸着しやすいことが分かり、LZY のゼオライトを使用し平衡時の pH が 4~5 付近でウランとジルコニウムの選択的な分離が可能と結論づけ、本年度実液を用いた試験に同条件を適用する予定である。

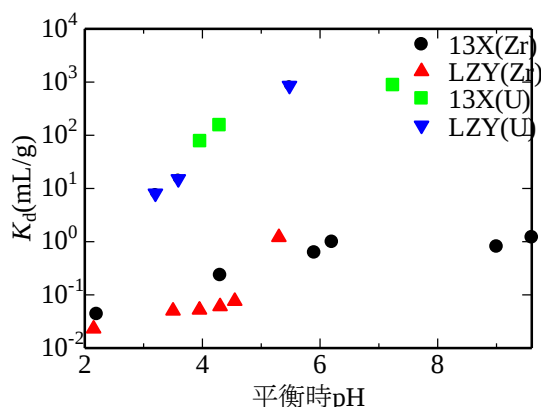


図 1 平衡時 pH と分配係数 (K_d) の関係

参考文献

[1] 浅沼徳子ほか、日本原子力学会 2019 年秋の大会。

本研究は JAEA、東海大学との共同研究「試験供試料からの U 分離プロセスの構築に関する共同研究」の成果である。

Hiroki Aso¹, Ayaka Toyosaki¹, Noriko Asanuma², Youko Takahatake³, Takanori Hoshino³, Sou Watanabe³, Masayuki Watanabe³, and *Haruaki Matsuura¹

¹Tokyo City University, ²Tokai University, ³Japan Atomic Energy Agency