

使用済み燃料再処理プロセスから発生する廃溶媒処理技術の開発

(4) マイクロ PIXE 及び EXAFS を用いたイミノ二酢酸吸着材に吸着した Zr の分析

Development of treatment technology of spent solvent generated from fuel reprocessing process

(4) Analyses on Zr adsorbed IDA adsorbents by Micro PIXE and EXAFS

*荒井 陽一^{1,2}, 渡部 創¹, 大野 真平¹, 野村 和則¹, 中村 文也³, 新井 剛³, 瀬古 典明⁴,
保科 宏行⁴, 久保田 俊夫²

¹ 日本原子力開発機構, ² 茨城大学, ³ 芝浦工業大学, ⁴ 量子科学技術研究開発機構

STRAD プロジェクトの一環として、燃料再処理プロセス R&D で発生した廃溶媒からの金属物質の回収方法に、固体吸着材の適用を検討している。吸着材に吸着した Zr についてマイクロ PIXE による微量 Zr の定量分析が可能であり、また EXAFS により水溶液、溶媒からの Zr の吸着メカニズムは異なるとの結果を得た。

キーワード：STRAD プロジェクト, 廃溶媒処理, 吸着材, イミノ二酢酸, Zr

1. 緒言

STRAD(Systematic Treatments of RAdioactive liquid wastes for Decommissioning)プロジェクトの一環として、PUREX 法などの試験研究で発生した廃溶媒の処理技術開発を実施している。PUREX 溶媒に含まれるリン酸トリブチル(TBP)は放射線劣化等によりリン酸ジブチル(DBP)等の劣化物を生じる。既報[1]では、廃溶媒に残留する核燃料物質の回収方法として、固体吸着材の適用性を調査し、イミノ二酢酸(IDA)の官能基を有する吸着材が優れた吸着性能を示すことを報告した。本報では、Pu と類似の DBP 錯体構造となる Zr を模擬物質とし、吸着材に吸着した微量 Zr 量を測定するために粒子単位で Particle Induced X-ray Emission (PIXE)を分析し、また、Extended X-ray Absorption Fine Structure(EXAFS)による吸着材の分析から Zr 吸着状態の評価を行った。

2. 試験

1 M 硝酸溶液に 10 mM となるよう Zr を溶解した Zr 水溶液と、10 mM 相当の Zr を装荷した模擬廃溶媒 (1 M-TBP+150 mM-DBP in n-ドデカン) を調製した。三菱ケミカル製イミノ二酢酸型イオン交換樹脂 (CR11) または多孔質シリカ表面に被覆したポリマーにグラフト重合によりイミノ二酢酸を合成した吸着材 (グラフト重合吸着材) を用いて、Zr 水溶液や模擬廃溶媒から Zr を吸着した。模擬廃溶媒に対する各吸着材の吸着反応の時間依存性を確認するため、模擬廃溶媒との振とう時間をパラメータとした。得られた吸着材試料について、マイクロ PIXE を用いて単位照射量当たりの Zr カウント数を、Zr-K 吸収端 EXAFS では吸着した Zr に配位する元素を測定した。

3. 結果

単位線量当たり(C⁻¹)の Zr のカウント数と Zr 吸着量から検量線を作成した(図 1)。相関性の高い検量線が得られたことから、粒子の PIXE 分析から吸着材全体の吸着量を評価可能であるとの成果を得た。この検量線を利用し、模擬廃溶媒からの Zr 吸着に対する時間依存試験における Zr 吸着量を求めた(図 2)。今回の測定範囲では、グラフト重合吸着材は処理時間に比例して Zr 吸着量は増加する傾向にあることを確認した。EXAFS 測定の結果からは、いずれの吸着材も Zr 水溶液から吸着した場合は硝酸が Zr に配位し、模擬廃溶媒から吸着した Zr ではイミノ二酢酸の酸素と配位していることがわかった。この結果より、イミノ二酢酸系吸着剤による水溶液からの Zr 吸着と溶媒からの Zr 吸着では、吸着反応メカニズムが異なることが示唆された。

参考文献 [1] 中村文也, 他 日本原子力学会 2018 年秋の大会予稿集 3G06, (2018)

*Yoichi Arai^{1,2}, Sou Watanabe¹, Simpei Ohno¹, Kazunori Nomura¹, Fumiya Nakamura³, Tsuyoshi Arai³, Noriaki Seko⁴, Hiroyuki Hoshina⁴ and Toshio Kubota

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Ibaraki Univ., ³Shibaura Institute of Technology, ⁴National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology

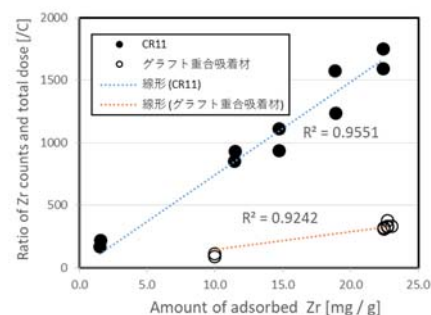


図 1 Zr 吸着量の検量線

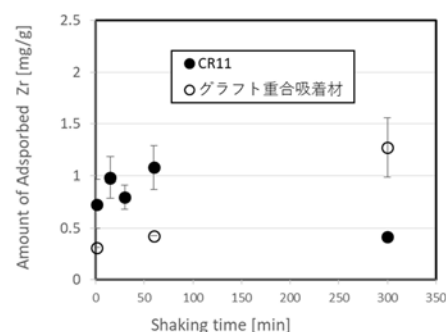


図 2 模擬廃溶媒から回収した Zr 量の推定量

*測定数 CR11 n=3

グラフト重合吸着材 n=1 or 2