

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

(5)イミノ二酢酸吸着材の合成と性能評価

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

(5)Synthesis and performance evaluation of iminodiacetic acid adsorbent

*中村 文也¹, 新井 剛², 荒井 陽一², 渡部 創², 野村 和則², 瀬古 典明³

¹ 芝浦工大, ² 原子力機構, ³ 量研機構

STRAD プロジェクトの一環で、廃溶媒中からの放射性物質吸着除去法としてイミノ二酢酸型吸着材の適用を検討した。本研究により、自製の多孔性シリカ粒子を担体とした有機無機複合型イミノ二酢酸樹脂(SIDAR)は、有機溶媒に装荷した Zr を迅速且つ高効率に回収可能であるとの成果を得た。

キーワード： 使用済み PUREX 溶媒, U, Pu の回収, Zr, 吸着材

1. 緒言

原子力施設で発生する放射性廃液の処理技術の確立を目的とした STRAD(Systematic Treatments of RAdioactive liquid wastes for Decommissioning)プロジェクトの一環として、PUREX 法等の試験研究で発生した廃溶媒の処理技術開発に着手している。抽出剤として利用されるリン酸トリブチル(TBP)は放射線等によりリン酸ジブチル(DBP)等に分解され Pu などの金属と強固な錯体を形成し溶媒中にとどまる[1]。イミノ二酢酸(IDA)基によるキレート形成を利用した処理法の適用性を調査し、廃溶媒に装荷した金属を吸着分離可能であることを確認した[2]。実用化に向けて吸着性能の向上を図るために大きな表面積構造を持つ多孔性 SiO₂ 粒子に着目し、その表面に添着したポリマー層に IDA 基を導入することで有機無機複合型 IDA 樹脂(SIDAR)を合成した。本報では、市販の IDA 樹脂(Murochelate)と吸着性能を比較及び評価した結果について報告する。

2. 実験方法

SIDAR は、多孔性 SiO₂ 粒子にクロロメチルスチレン-ジビニルベンゼン共重合体を被覆した担体に、1,2-ジクロロエタンを溶媒としてイミノ二酢酸ジエチルを加え 353 K で 16 時間反応させ、濃硫酸により 333 K で 6 時間加水分解することで合成した。Pu(IV)の模擬として Zr(IV)を抽出した模擬廃溶媒(DSP-10 [Dodecane : TBP : DBP = 70 : 27 : 3])を用いたカラム試験を実施し、破過曲線の取得により吸着性能を評価した。カラム試験は、φ10 mm × h 50 mm の耐圧ガラスカラムに吸着材を充填し、カラム上端から流速 0.2 cm³・min⁻¹ で模擬廃溶媒を通液した。カラム下端から流出液を 2 cm³ 毎に分画採取し、各フラクションの金属濃度から破過曲線を得た。

3. 結果及び考察

Fig.1 に SIDAR 及び Murochelate の Zr(IV)濃度の破過曲線を示す。Fig.1 より、SIDAR は 20 Bed Volume (BV) 付近で、Murochelate は 14 BV 付近で Zr(IV)の破過を確認した。SIDAR の吸着量は 4.1 mmol・cm⁻³、Murochelate は 2.4 mmol・cm⁻³ と、SIDAR の単位体積当たりの吸着量は Murochelate の約 1.7 倍となり、吸着に優れることを示した。また、Zr(IV)の漏出については、SIDAR は 15 BV に到達するまで確認されなかったが、Murochelate は通液直後から Zr(IV)の僅かな漏出を確認した。これは、各吸着材の充填密度及び吸着速度の差に起因すると推察される。SIDAR と Murochelate の平均粒径はそれぞれ 0.05 mm, 0.3- 1.25 mm である。粒径の小さい SIDAR を用いることで高充填化が達成され、カラム内部の空隙が減少した結果、溶媒と交換基の接触時間が十分に確保されたと考えられる。さらに SIDAR は多孔性 SiO₂ 粒子を基体とするため吸着材の表面積が増大し、吸着種の内部拡散速度の向上に効果的であった。これらより、SIDAR は廃溶媒中からの放射性物質吸着除去に適した吸着材であることを示した。

参考文献

[1] Takeshi TSUJINO, et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 3,4 pp144-149 (1966)

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

*Fumiya Nakamura¹, Tsuyoshi Arai¹, Yoichi Arai², So Watanabe², Kazunori Nomura², Noriaki Seko³

¹Shibaura Institute of Technology, ²JAEA, ³QST

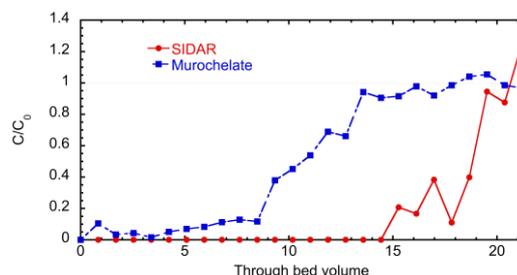


Fig. 1 Breakthrough curves of IDA resins