

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損失抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発

(5) 凍結乾燥法による吸着材担体シリカ粒子の造粒

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography for a Reasonable MA Recovery

(5) Granulation of Porous Silica Particle for Extraction Chromatography Adsorbent by Freeze Drying

*長谷川 健太¹, 宮崎 康典¹, 安倍 弘¹, 佐野 雄一¹, 岡村 信生¹, 渡部 雅之¹

¹JAEA

原料液組成、運転条件等をパラメータとした凍結乾燥法による多孔質シリカ粒子の造粒試験を行い、ゾルゲル法により造粒した従来粒子に対し、機械的強度や比表面積の低下を抑えつつ圧損をほぼゼロとしたシリカ粒子が得られることを確認した。

キーワード：マイナーアクチニド，抽出クロマトグラフィ，造粒，シリカ粒子

1. 緒言

従来の MA(III)分離のための抽出クロマトグラフィでは、平均粒子径約 50 μm 、平均細孔径約 0.05 μm の多孔質シリカ粒子を担体とした吸着材を利用してきた。この吸着材は十分な理論段数を有し、緻密なクロマト分離を可能とする一方で、充填層への送液は加圧によらなければならず、特別な安全対策等を必要とした。本研究では、液柱切断を用いた凍結乾燥による造粒法を採用し、従来よりも大きい粒子径、細孔径を有し、重力流によるクロマト分離が可能となる程度まで圧力損失を低下させた吸着材の造粒条件について検討した。

2. 実験

造粒に供する原料液は、粒子の骨格となるナノサイズのシリカ粒子の弱塩基性水溶液（以下、ST と略す。）及びモリブデン酸アンモニウム等の気孔形成剤（以下、PF と略す。）を混合して調製した。原料液を送液したノズルを振動させることで、液柱切断を起こし液滴を生成させ、液体窒素バスに液滴を滴下することによりシリカ粒子を造粒した。その後、最高温度 690 $^{\circ}\text{C}$ で 1 h の焼成を行い、1mol/L 硝酸を用いた洗浄により気孔形成剤を除去することで多孔質シリカ粒子とした。ノズル径、ST の種類、PF の組成・添加量、装置条件等をパラメータとして造粒を行い、得られた多孔質シリカ粒子に対して、粒度分布測定、SEM 観察、細孔分布・細孔比表面積測定、圧縮破壊強度測定及び圧力損失の測定を行い、造粒条件による影響を評価した。

3. 結果

液柱切断を用いた凍結乾燥法によってシリカ粒子を造粒することで、平均粒子径が 2500 μm 程度、平均細孔径が 1.8 μm 程度の大粒子径の多孔質シリカ粒子が得られた。一方、従来粒子に比べ大粒径化されたことで、細孔比表面積や圧縮破壊強度の低下が見られた。PF の組成を制御することで、上記の大粒子径の多孔質シリカ粒子（細孔比表面積：約 7.8 m^2/g 、圧縮破壊強度：0.63MPa）に比して、細孔比表面積は約 10 m^2/g まで向上したが、圧縮破壊強度は約 0.21MPa まで低下した。そこで、多孔質シリカ粒子の骨格となるシリカの濃度を 30wt% から 40wt% の ST に変えることで、圧縮破壊強度を向上させた。さらに、ノズル径を 0.4mm から 0.2mm へ小さくするなど、装置条件を改良することで、平均粒子径が 1000 μm 程度で、細孔比表面積が約 11 m^2/g 、圧縮破壊強度が約 2.2MPa と、細孔比表面積を確保したまま圧縮破壊強度の低下を抑えられる条件を見出した。さらに、圧力損失は平均粒子径約 50 μm の従来粒子に比べて無視できるほど小さく、カラムに粒子を充填しない場合と同等とみなせることが確認された（図 1）。

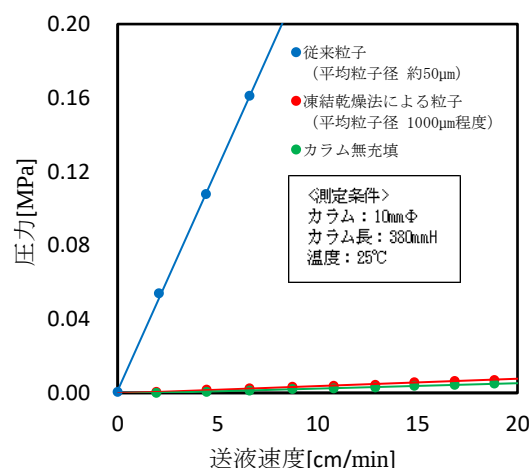


図 1 各種多孔質シリカ粒子の圧力損失

本研究成果は、平成 30 年度～令和 2 年度文科省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損失抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である。

*Kenta Hasegawa¹, Yasunori Miyazaki¹, Hiromu Ambai¹, Yuichi Sano¹, Nobuo Okamura¹, Masayuki Watanabe¹

¹JAEA