

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損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

(8) MA/Ln 分離用吸着材を対象とした顕微分光測定による吸着溶離速度評価

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

(8) Evaluation of adsorption and elution rates using adsorbent for MA/Ln separation by microspectroscopy

*崩 愛昌¹, 宮川 晃尚¹, 長友 重紀¹, 中谷 清治¹, 吉田 正明², 根本 脩平², 新井 剛²,
安倍 弘³, 長谷川 健太³, 佐野 雄一³

¹筑波大, ²芝浦工大, ³JAEA

各種 NTA アミド抽出剤を担持させた吸着材を対象に実施した硝酸濃度、硝酸イオン濃度等をパラメーターとした顕微分光測定より得られた FP (Eu(III)) の吸着・溶離速度 (物質移動係数) を紹介する。凍結乾燥法により造粒したシリカ担体を使用した吸着材についてポリマー被覆条件の変更により吸着・溶離速度が改善されることや、硝酸濃度や硝酸イオン濃度が物質移動係数に及ぼす影響に関する評価・考察結果を報告する。

キーワード: マイナーアクチニド, 抽出クロマトグラフィ, NTA アミド

1. 緒言

迅速かつ安全な抽出クロマトグラフィの達成のため圧力損失を低減させた吸着材の開発が進められている。多孔質シリカにポリマー(スチレン-ジビニルベンゼン共重合体)を被覆した担体(SiO₂-P)に、抽出剤である nitrilotriacetamide (NTA アミド)を含浸させた吸着材が開発されている。顕微分光測定法は吸着材一粒子からの蛍光を取得することができるため、粒子に吸着する物質の物質移動を追跡することができる。本発表では NTA アミド含浸吸着材を用いた低圧損抽出クロマトグラフィによる MA(III)/Ln(III)分離工程開発の一環として、Eu(III)の吸着・溶離過程における物質移動係数を顕微分光測定により算出し、吸着材の調製方法や供給液組成(酸および硝酸イオン濃度)が与える影響を調査した。

2. 実験

吸着材は、SiO₂ 粒子の造粒法(ゾルゲル法、凍結乾燥法(液柱振動切断法))、ポリマー被覆率-NTA アミド含浸率 (1.5wt%-5wt%、12wt%-20wt%) を変更し比較した。吸着材に含浸した NTA アミドに N, N, N', N', N'', N''-hexaoctylnitrilotriacetamide (HONTA)または N, N, N', N', N'', N''-tetraoctyl di 2-ethylhexylnitrilotriacetamide (TAMIA-4Octr)を使用した。5wt% HONTA および 5wt% TAMIA-4Octr 含浸吸着材に関して硝酸、硝酸イオン濃度を各 1-100 mM とし濃度依存性を調べた。金属イオンは硝酸ユウロピウム (Eu(III))1 mM を用いた。

単一粒子の測定はセルに各 NTA アミド含浸吸着材と硝酸を封入し Eu(III)溶液をフローさせた。光学顕微鏡下で 532 nm 励起レーザー光を各 NTA アミド含浸吸着材に照射し 616 nm からの蛍光の経時変化を取得した。

3. 結果

吸着過程の物質移動係数 $k(\text{m s}^{-1})$ は $k = v_0(1 - \varepsilon_p)/(a_v C_w)(v_0: \text{初速度}(\text{M s}^{-1}), \varepsilon_p: \text{多孔率}, a_v: \text{比表面積}(\text{m}^{-1}), C_w: \text{水相の Eu(III)濃度}(\text{M}))$ として算出した。顕微分光測定の経時変化は平衡時の蛍光強度を粒子相の Eu(III) 平衡濃度に換算し粒子中の濃度変化とした。算出した k について従来のゾルゲル法により作製した小粒子 (20wt% HONTA、ポリマー被覆率 12wt%、粒径 50 μm) と改良型である凍結乾燥法により作製した 2 種類の大粒子 (5 および 20wt% HONTA、ポリマー被覆率 1.5wt% および 12wt%、粒径 2 mm) を比較した。硝酸 1 mM、小粒子の吸着過程では粒子相の Eu(III)濃度は、典型的には数 100 秒で増加し、2000 s 程度で平衡に達した。大粒径では 12wt% ポリマー被覆後、小粒径はポリマー被覆前の吸着材の多孔率を用いて、おおよそその k を求めると、粒子の大粒化により k は小粒子の 2 倍になり、ポリマー被覆率を 12wt% から 1.5wt% にすることで 14 倍になった。5wt% HONTA 含浸吸着材および 5wt% TAMIA-4Octr 含浸吸着材について吸着、溶離過程ともに 1-100 mM の範囲で硝酸濃度が増加すると物質移動係数が小さくなる傾向があった。また HONTA が TAMIA-4Octr に対して k は低硝酸濃度では 4 倍大きくなったが、高硝酸濃度では同程度となった。

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。

*Yoshiaki Kuzure¹, Akihisa Miyagawa¹, Shigenori Nagatomo¹, Kiyoharu Nakatani¹, Masaaki Yoshida², Shuhei Nemoto², Tsuyoshi Arai², Hiromu Ambai³, Kenta Hasegawa³ and Yuichi Sano³

¹Univ. of Tsukuba, ²Shibaura Inst. of Tech., ³JAEA