

7-5 3価マイナーアクチノイドを回収するための抽出クロマトグラフィ分離法の改良と実証

—効率の高い MA(III)/Ln(III) 分離プロセス—

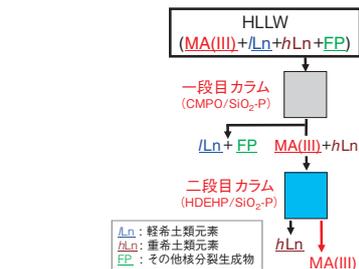


図7-11 改良した MA(III) 回収プロセスの概要

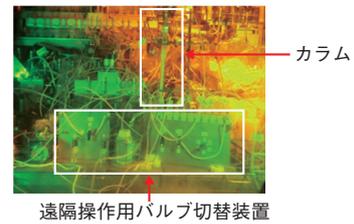


図7-12 ホットセル内に設置した試験装置

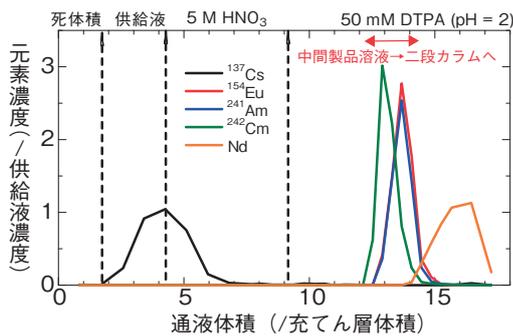


図7-13 CMPO カラムでの分離曲線
 MA(III)+hLn と Ln が DTPA 水溶液の通液により時間差で溶離することで分離を達成しました。

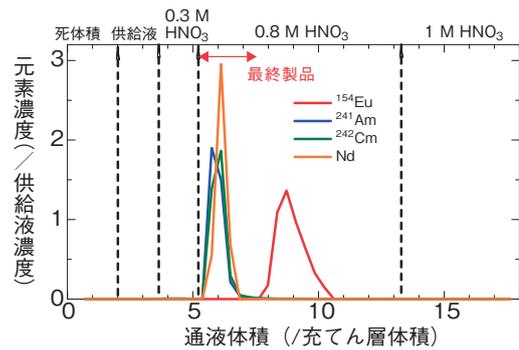


図7-14 HDEHP カラムでの分離曲線
 MA(III) と hLn が 0.8 M(mol/dm³)硝酸の通液により分離し、MA(III) の硝酸水溶液中への分離回収に成功しました。

原子力発電によって生成する使用済燃料の処理に伴い発生する放射性廃棄物の減容化・有害度低減の有望な選択肢として、長半減期で発熱性を有する Am や Cm といった3価のマイナーアクチノイド (MA(III)) を放射性廃棄物から分離し、核変換することが考えられています。これまでに日本だけでなく、アメリカやフランスを含む様々な国で、種々の金属元素を含む高レベル放射性廃液 (HLLW) から MA(III) を分離するための研究が実施されてきています。ランタノイド元素 (Ln(III)) は効率的な核変換を阻害するため MA(III) と分離する必要がありますが、水溶液中で MA(III) と同じく3価のイオンとなり類似の化学的挙動を取るため、MA(III) と Ln(III) との分離が開発の主要な課題です。

世界的には多くの利用実績のある溶媒抽出法を用いたプロセスの開発が多く見られますが、我々は溶媒抽出の原理を利用しつつ、より廃棄物発生量が少ないと期待される抽出クロマトグラフィ技術を用いた開発を進めています。本技術は多孔質シリカ粒子表面にポリマーを被覆した粒子 (SiO₂-P) に、MA(III) に親和性のある抽出剤を含浸させた粒子を吸着材として使い、カラム操作によって MA(III) の分離回収を可能とします。これまでの研究では、抽出剤である CMPO、HDEHP を含浸させた吸着材をそれぞれ、一段目、二段目のカラムとして利用した二段階の分離法の開発を行ってきました。一段目では種々の金属の中から化学的に類似の MA(III) と Ln(III) とが回収され、二段目において MA(III) が Ln(III)

から分離されます。本プロセスでは、MA(III) の回収率が70%にとどまること、最終的に得られる MA(III) 製品溶液に錯形成剤を多く含むことが課題でした。

より実用性の高い MA(III) 回収プロセスを構築することを目的として、CMPO 及び HDEHP への Ln(III) の親和性の違いに着目し、軽希土類元素 (Ln: La-Nd) と重希土類元素 (hLn: Sm-Gd) の振る舞いの違いを利用した分離法を考案しました(図7-11)。これまで二段目に利用していた錯形成剤である DTPA を一段目のカラムに用いることで、MA(III) の錯形成剤を含まない硝酸中への高収率な回収を狙いました。模擬 HLLW を用いたカラム分離試験によりプロセス条件の最適化を行い、得られたフローを用いてホットセル内での実 HLLW を対象とした実証試験を実施しました(図7-12)。その結果、一段目のカラムにおいて Ln とその他金属元素を(図7-13)、二段目のカラムにおいて MA(III) と hLn とを分離(図7-14)することに成功しました。Nd は二段目のカラムでは MA(III) とは分離されないものの、一段目のカラムで目標とする除染係数 100 を達成可能であることを示しました。本プロセスを用いることで、90%以上の MA(III) を高い純度で硝酸水溶液中に回収出来ることを実証し、実用性のある MA(III) 回収プロセスを提示できました。

本研究は、芝浦工業大学との共同研究「MA 回収用吸着材の最適化に関する研究」の成果の一部です。

(渡部 創)

●参考文献

Watanabe, S. et al., Improvement in Flow-Sheet of Extraction Chromatography for Trivalent Minor Actinides Recovery, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, vol.322, issue 3, 2019, p.1273-1277.