

プログラム名：核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化

PM名：藤田 玲子

プロジェクト名：分離回収技術開発

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平 成 2 7 年 度

研究開発課題名：

固体抽出剤を用いた高レベル放射性廃棄物からの Cs の分離

研究開発機関名：

学校法人 近畿大学

研究開発責任者

野上 雅伸

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

本課題の担当する研究開発課題は「Cs 分離技術開発」であり、当該年度の研究実施内容および達成目標は、以下の通りである。

(1) Cs 分離試験

サイズや化学形の異なる大環状化合物を含有する固体吸着剤を複数合成し、種々の金属イオンの吸着特性を塩酸および硝酸系で検討する。吸着した金属イオンについては、その溶離特性も把握する。これらを踏まえ、Cs 分離のために最適な固体吸着剤および溶液条件の候補を見出す。

(2) 大環状化合物耐放射線試験

固体吸着剤単体の γ 線照射試験を塩酸および硝酸系で行い、照射済吸着剤における金属イオンの吸着特性の変化について検討する。これらを踏まえ、固体吸着剤の寿命の大まかな見通しを、 γ 線照射試験により得られたデータから評価する。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

(1) Cs 分離試験

Cs 分離において対象となるイオンである Cs^+ に対し、大環状化合物として複数のクラウンエーテルを含有する固体吸着剤の検討を行った。その結果、 Cs^+ をより効率的に吸着するサイズのクラウンエーテルおよび溶液条件の傾向が見出されつつあり、次年度その最適条件が絞り込める見通しが得られた。

(2) 大環状化合物耐放射線試験

γ 線照射を行った固体吸着剤による金属イオンの吸着特性の変化について検討し、耐久性の高い溶液条件の絞り込みがなされた。但し、実験データの再現性が不十分であるため、寿命の大まかな見通しを得るまでには至っておらず、今後実験データを蓄積していく必要性が認められた。

2-2 成果

(1) Cs 分離試験

図 1 に示すように、 Cs^+ のイオン径に適合するクラウンエーテルは、環の構成元素数が 21 である 21-クラウン-7(21C7)である。しかし、そのサイズのクラウンエーテルの一つであるジベンゾ-21-クラウン-7(DB21C7)を有する樹脂の Cs^+ に対する吸着性能を分配係数(K_d)で評価したところ、 Cs^+ の初期濃度 $1 \text{ mmol/dm}^3 (= \text{mM})$ の場合、塩酸系および硝酸系において最大値が各々約 2 弱と 10 で、さほど大きくなかった。そこでこの点を改良した樹脂を合成し、その吸着特性について検討したところ、塩酸系での K_d の最大値が約 8 に増加した。また塩酸系で最大の K_d 値を示す塩酸濃度が、DB21C7 では約 9 M であったのに対し、改良樹脂では約 1 M にシフトした。一方、硝酸系での K_d の最大値は約 4 に低下した。このように、クラウンエーテルを改良することにより、塩酸系での Cs^+ 吸着性能の向上が可能となった。今後さらに改良を加えたクラウンエーテル樹脂を用いた検討を行う予定である。

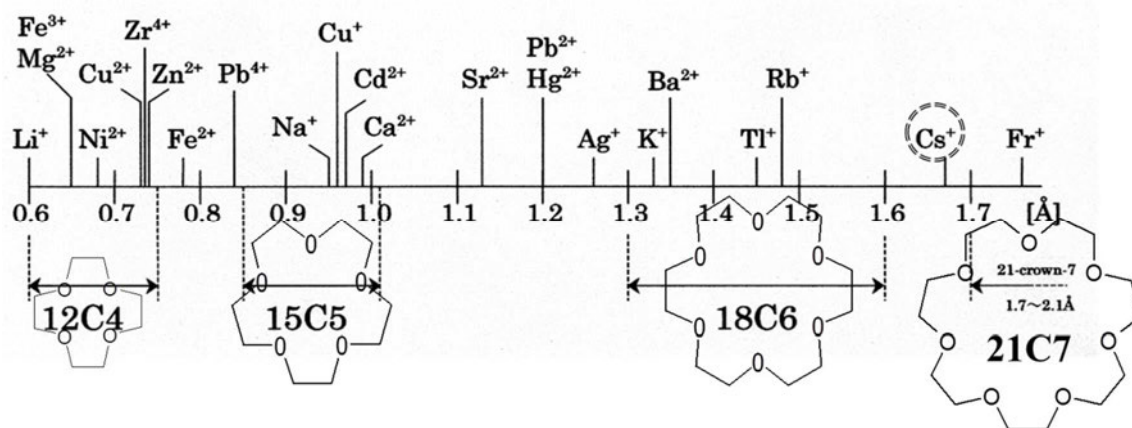


図1 クラウンエーテルの空孔径と陽イオンの直径との関係

(2) 大環状化合物耐放射線試験

γ 線照射によるクラウンエーテルの構造変化は、その空孔径により大きく異ならないと予想し、ジベンゾ-18-クラウン-6(DB18C6)樹脂を用いて γ 線照射(～約0.5 MGy)を行った。硝酸系では比較的低線量でもエーテル環が開環し、低酸濃度領域で多種類の金属イオンが新たに吸着するのに対し、塩酸系では低酸濃度(約0.1 M)領域での金属イオンの新たな吸着は認められず、他方吸着性金属イオン(Fe^{3+})の K_d 値が低下した。この傾向は、照射時の塩酸濃度の違い(3 Mと9 M)に関わらずほぼ同様であった。また塩酸系では、未照射試料では Fe^{3+} が吸着されない3 M塩酸付近で K_d 値が増加する試料もあった。しかしこれについては再現性が十分ではなく、今後データを蓄積していき、結論を得る必要がある。いずれにしても、これらの結果は、塩酸系では硝酸系と異なり、 γ 線照射に伴うエーテル環の開環は生じず、別の要因で樹脂の吸着性能が低下していることを強く示唆している。また Cs^+ 吸着の観点からは、塩酸系の方が望ましいことが明らかとなった。

2-3 新たな課題など

クラウンエーテル樹脂におけるクラウンエーテルの空孔径と Cs^+ の吸着性能との関係、およびクラウンエーテル樹脂の塩酸系での γ 線照射による構造変化については不明な点が多く、学術的にも価値があると考えられることから、次年度詳細に検討を行いたい。

3. アウトリーチ活動報告

特になし。