

# Sr の抽出クロマトグラフィー分離に関する試験

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

2003 年 3 月

財団法人 産業創造研究所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

電話:029-282-1122(代表)  
ファックス :029-282-7980  
電子メール:jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構  
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2003

## Srの抽出クロマトグラフィー分離に関する試験

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

倉岡 悦周\*、張 安運\*

### 要 旨

本試験では、抽出クロマトグラフィー法による高放射性廃液からのSr分離法としての可能性を検討するために、シリカ担持型Sr吸着材を調製し、また硝酸溶液中におけるSr(II)等のFP元素の吸着及び分離試験を行った。

DtBuCH18C6抽出剤を粒径約50 $\mu$ mのSiO<sub>2</sub>-P担体に含浸担持してSr吸着材を調製した。Sr吸着材は硝酸溶液中でSr(II)に対し極めて高い吸着性を示し、2M硝酸溶液で分配係数が約1000 mL/gに達した。これに対しCs(I)、K(I)、La(III)、Y(III)は殆ど吸着されず、Ba(II)はある程度の吸着性(分配係数約120 mL/g)を示した。一方、Sr(II)の吸着速度は比較的遅く、固体内での錯形成反応が遅いためと推定される。模擬高レベル廃液を用いたクロマトグラフィー試験では、吸着したSr(II)は純水によって迅速に溶離され、Ba(II)以外の各金属イオンと良好に分離された。Sr吸着材から水相溶液へ溶出したDtBuCH18C6濃度は700~800ppmであり(漏出率は4.3~5.5%)、硝酸濃度の増加に伴って漏出率が幾分増加し、水相溶液へのDtBuCH18C6溶解度によるものと考えられる。

---

本報告書は、財団法人産業創造研究所が核燃料サイクル開発機構との契約により実施した業務成果に関するものである。

機構担当課室：東海事業所 環境保全・研究開発センター 先進リサイクル研究開発部  
先進再処理技術開発グループ

\* (財) 産業創造研究所

## Experimental Study on Sr Separation by Extraction Chromatography

(Document Prepared by Other Organization, Based on the Contract)

Etsushu Kuraoka\*, Anyun Zhang\*

### ABSTRACT

In order to study the applicability of extraction chromatographic technology to the separation of Sr from High Level Liquid Waste (HLLW), a novel silica-supported Sr-adsorbent was prepared. In addition, adsorption and separation experiments for Sr and other FP elements in nitric acid solution were carried out.

The Sr-adsorbent was prepared by impregnating DtBuCH18C6 extractant into the SiO<sub>2</sub>-P support with a diameter of 50 μm. The Sr-adsorbent showed a significantly strong adsorption for Sr(II) and the distribution coefficient ( $K_d$ ) at 2M HNO<sub>3</sub> was about 1000 mL/g. However, the ions of Cs(I), K(I), La(III) and Y(III) presented almost no adsorption, while Ba(II) showed a moderate adsorbability with  $K_d$  values around 120. On the other hand, the adsorption of Sr(II) was quite slow and this is presumed to result from a slow complex formation reaction between Sr(II) and the adsorbent. In the chromatographic experiment for a simulated HLLW, the adsorbed Sr(II) could be effectively eluted from the adsorbent with water and completely separated from other FPs except a portion of Ba(II). The concentration of DtBuCH18C6 in aqueous solution dissolved from the adsorbent was about 700-800 ppm (dissolution rate was 4.3-5.5%) and the dissolution rate showed a slight increase with increasing HNO<sub>3</sub> concentration. The dissolution is considered to result from the solubility of DtBuCH18C6 in aqueous solution.

---

This work was performed by Institute of Research and Innovation (IRI) under the contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC).

JNC Liaison: Recycle Process Technology Group, Advanced Fuel Recycle Technology  
Division, Tokai Works.

\* Institute of Research and Innovation (IRI).

目 次

1. はじめに-----	1
2. 実施内容-----	1
3. 試験方法および結果-----	2
3. 1 吸着材の合成-----	2
(1) SiO <sub>2</sub> -P 担体の合成-----	2
(2) Sr 吸着材の調製-----	2
3. 2 分配係数の測定-----	6
(1) 分配係数-----	6
(2) 水相溶液への抽出剤の漏出挙動-----	7
3. 3 模擬廃液を用いた溶離試験-----	15
4. おわりに-----	18
参考文献-----	19

## 表 目 次

表 3.1	バッチ振蕩中に水相溶液中への Sr 抽出剤漏出挙動の時間依存性-----	11
表 3.2	バッチ振蕩中に水相溶液中への Sr 抽出剤漏出挙動の硝酸濃度依存性-----	13

## 図 目 次

図 3.1	ポリマー／シリカ複合担体 (SiO <sub>2</sub> -P) の調製工程のフローシート-----	4
図 3.2	含浸担持法によるシリカ担持型 Sr 吸着材の調製工程のフローシート-----	5
図 3.3	Sr 吸着材による 2M 硝酸溶液からの数種金属イオンの吸着分配係数の時間依存性-----	9
図 3.4	Sr 吸着材による数種金属イオンの吸着分配係数の硝酸濃度依存性-----	10
図 3.5	バッチ振蕩中に水相溶液への Sr 抽出剤漏出挙動と時間との関係-----	12
図 3.6	バッチ振蕩中に水相溶液への Sr 抽出剤漏出挙動と硝酸濃度との関係-----	14
図 3.7	Sr 吸着材を充填したガラスカラムの写真-----	16
図 3.8	Sr 吸着材を用いる模擬高放射性廃液のカラム試験で得られた各金属イオン の溶離曲線-----	17

## 1. はじめに

実用化戦略調査研究において、環境負荷を抑制するための研究項目としてストロンチウム(Sr)の分離回収技術について検討している。Srはアルカリ土類金属であり一般的に錯体を形成しにくい。米国アルゴンヌ国立研究所(ANL)で開発された SREX 法<sup>1)</sup>は環状化合物を用いた溶媒抽出法によりこれらを回収する技術である。

抽出クロマトグラフィー法は、希薄な溶液を対象とする場合、溶媒抽出法に比べて設備や廃液の最小化の観点で有利であると考えられる。本試験では、液液抽出法である SREX 法で用いられる抽出剤について抽出クロマトグラフィー法への適用性を調べることを目的としている。

## 2. 実施内容

### 2. 1 吸着材の合成

試験に用いるポリマー/シリカ複合担体 ( $\text{SiO}_2\text{-P}$  担体) および Sr 吸着材を合成する。Sr 吸着材は Sr 抽出剤である di-t-butylcyclohexano-18-crown-6 を  $\text{SiO}_2\text{-P}$  担体に含浸担持させたものである。

### 2. 2 分配係数の測定

Sr(II)の吸着について、バッチ法により分配係数の時間依存性及び硝酸濃度依存性についてのデータを求める。また、典型的な吸着条件における抽出剤の水溶液への漏出割合を求める。

### 2. 3 模擬廃液を用いた溶離試験

再処理工場からの高放射性廃液を模擬した溶液を用い、Sr 吸着材を充填したカラムによる吸着・溶離試験を行い、主要な元素の溶離曲線を求める。

### 3. 試験方法および結果

#### 3. 1 吸着材の合成

##### (1) SiO<sub>2</sub>-P 担体の合成

図 3.1 にポリマー/シリカ複合担体 (SiO<sub>2</sub>-P) の調製工程のフローシートを示す。合成は既報の方法に従って行った<sup>2)</sup>。シリカ担体は旭化成工業 (株) より提供された多孔性 SiO<sub>2</sub> 試験品であり、硝酸および水により洗浄した後、洗浄篩い分けにより粒径 40~60 μm 程度のもので使用した。この SiO<sub>2</sub> 試料の平均細孔径は 600nm、細孔容積は 1.1cm<sup>3</sup>/g、細孔率は 0.69 である。モノマーとして m/p ホルミルスチレンおよび m/p ジビニルベンゼン (架橋剤、架橋度 15wt%) を用い、重合溶媒 (希釈剤) には 1,2,3-トリクロロプロパンと m-キシレンを使用した。重合開始剤として α, α'-アゾビスイソブチルニトリル (AIBN) および 1,1'-アゾビスシクロヘキサン-1-カルボニトリル (V-40) を用いた。

まず所定量のシリカ粒子をナス型フラスコに入れ、ロータリーエバポレータにセットし転させながら真空を引いた。ナス型フラスコに所定割合で調合した上記試薬をシリコーンゴムチューブにより徐々に吸い取り、回転しながらシリカ粒子の孔内に吸い込ませた。続いてナス型フラスコをオイルバス重合槽に移し、攪拌しながら温度を徐々に上げ、最終的には 90℃にて 18~20 時間加熱して重合させた。重合反応終了後、濾過により固・液分離を行い、固体粒子をアセトンと水により数回繰り返して洗浄した後、ポリマー/シリカ複合担体 (SiO<sub>2</sub>-P) として得られた。

##### (2) Sr 吸着材の調製

Sr 抽出剤として、米国 Eichrom 社の市販品 DtBuCH18C6 (4,4', (5')-di-(tert-butylcyclohexano)-18-crown-6, 商品名 SR-SX-B01) を購入してそのまま使用した。抽出剤/希釈剤と SiO<sub>2</sub>-P 担体のスラリーをロータリーエバポレータにより混合した後、希釈剤を加熱除去する方法により含浸吸着材を調製した。そのフローシートを図 3.2 に示す。

まず次の手順により上記合成した SiO<sub>2</sub>-P 担体をメタノールにより洗浄して前処理



を行った。SiO<sub>2</sub>-P 担体約 11g を容量 100mL の共栓付き三角フラスコに入れ、メタノールを 50mL 加えて約 1 時間機械的に振蕩させた後、焼結ガラスフィルターによりメタノールを濾過して除去した。このメタノールによる洗浄操作を 3 回繰り返して行った。この洗浄工程により、SiO<sub>2</sub>-P 担体に付着している不純物および未反応モノマーが除去される。その後 60°C で一晩真空乾燥を行った。

次に、精秤した 5.0g の Sr 抽出剤を容量 200mL のナス型フラスコに入れ、これに溶剤として 50mL のジクロロメタンを添加した後、ナス型フラスコを約 30min 回転させて Sr 抽出剤を完全に溶解させた。続いて溶解した溶液に上記洗浄乾燥後の SiO<sub>2</sub>-P 担体を 10g 入れ、ナス型フラスコをロータリーエバポレータに設置し、室温にて約 1 時間回転させた。なお、SiO<sub>2</sub>-P 担体の比重が比較的大きいため、完全混合をはかるため高速回転させた。次いで、ナス型フラスコを 45~50°C に調整した恒温オイルバスにセットし、回転させながらジクロロメタンを蒸発除去した。ジクロロメタン（沸点 39.9°C）は容易に蒸発し、無色透明の液体として水冷トラップに回収される。約 1~2 時間程度でジクロロメタンの蒸発がほぼ完了し、続いてナス型フラスコを真空乾燥機に入れて 50~55°C で一晩真空乾燥を行った。ナス型フラスコから取り出した乾燥後の吸着材粒子は、ほとんど凝集せずに良好に分散しており、これを瑪瑙乳鉢で軽く解体混合し、DtBuCH18C6/SiO<sub>2</sub>-P (Sr 吸着材) を得た。なお、上述した含浸担持過程で抽出剤のロスがないため、得られた吸着材の含有量は初期の仕込量と同様であり、即ち 1g の SiO<sub>2</sub>-P に対して 0.5g の DtBuCH18C6 抽出剤が担持されることになる。

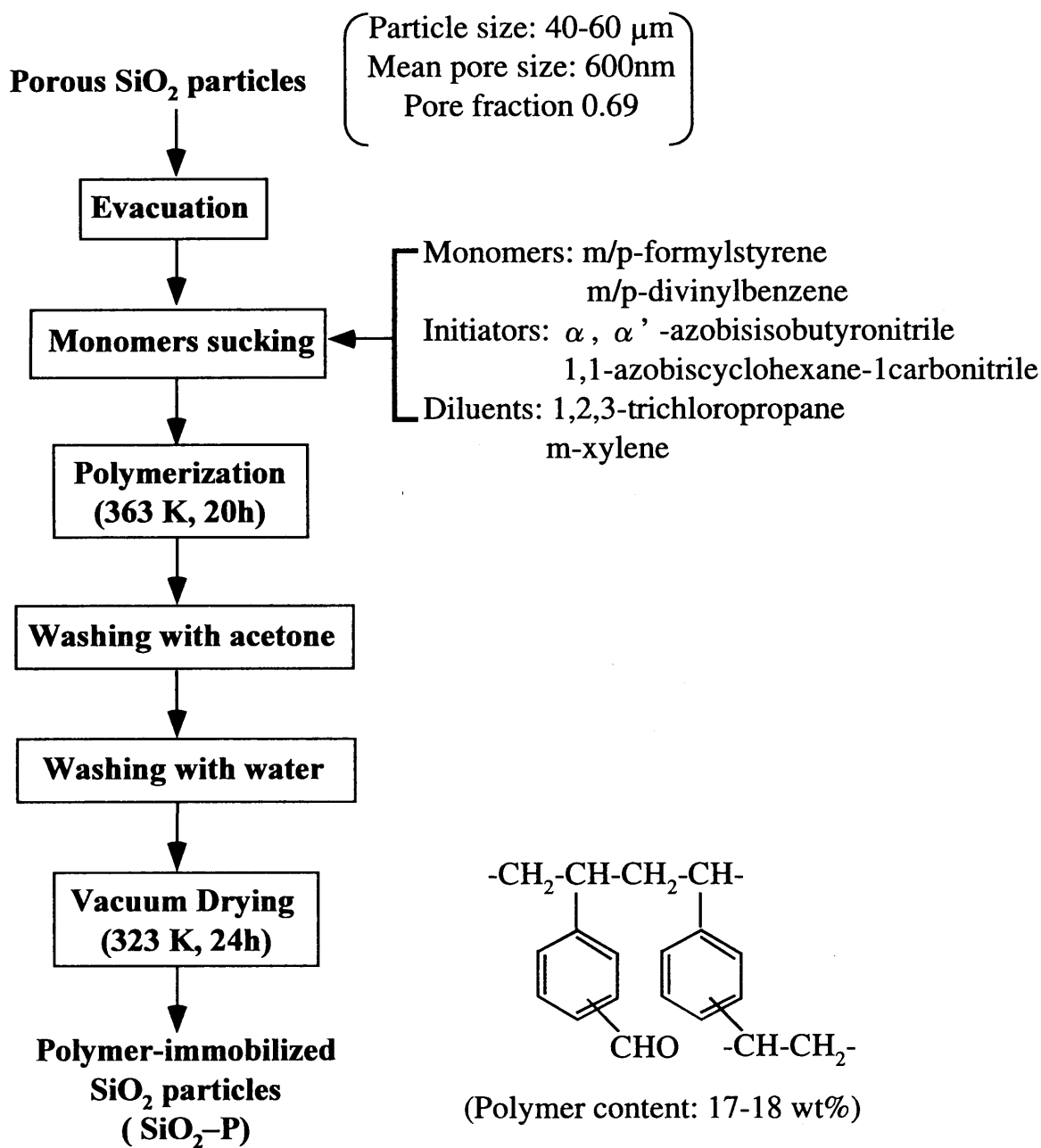


図3.1 ポリマー／シリカ複合担体 (SiO<sub>2</sub>-P) の調製工程のフローシート

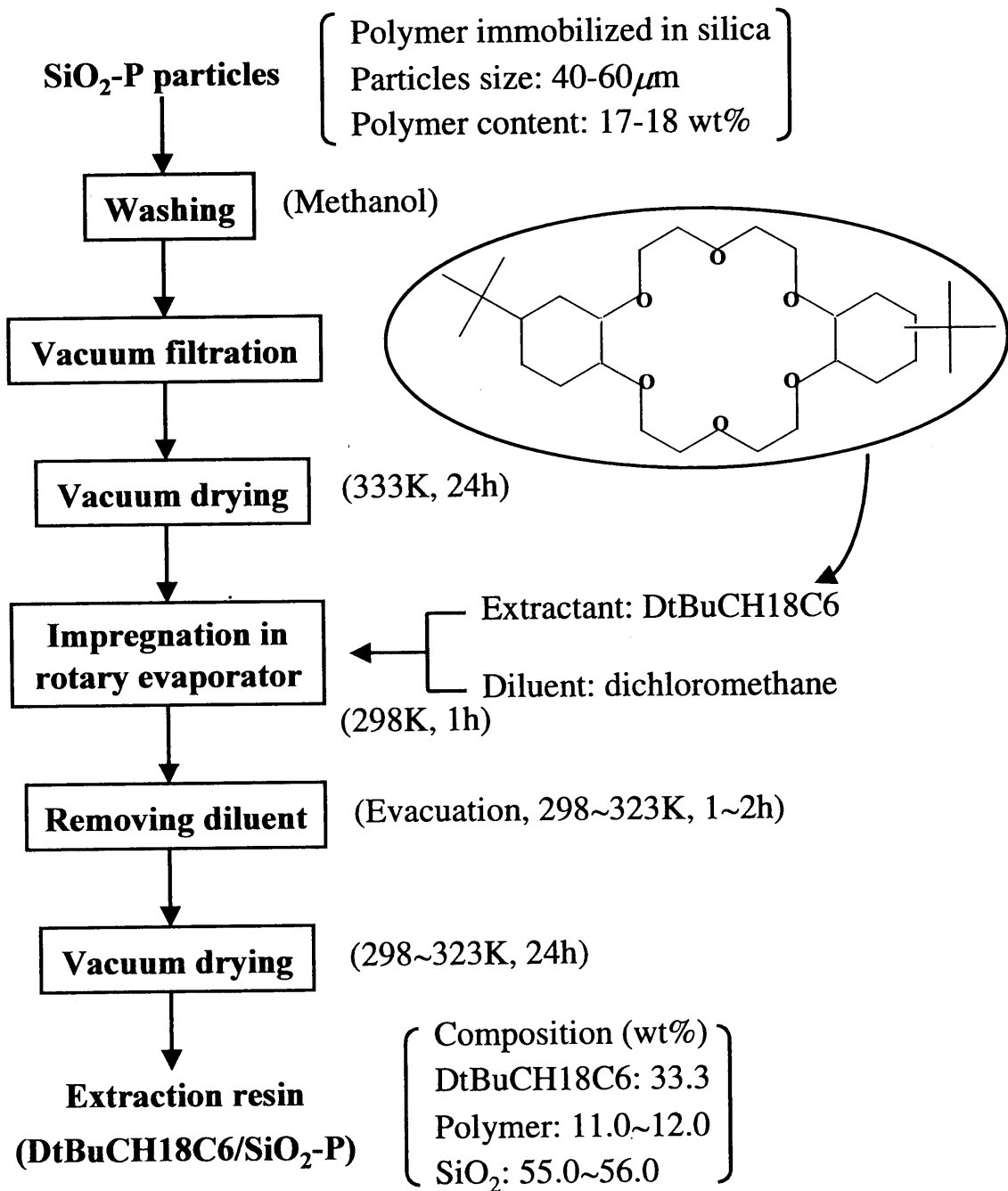


図3.2 含浸担持法によるシリカ担持型Sr吸着材の調製工程のフローシート

### 3. 2 分配係数の測定

#### (1) 分配係数

上記調製した Sr 吸着材約 0.25g をガラスバイアル瓶に移し、その中にそれぞれ約 10mM ( $M=\text{mol}/\text{dm}^3$ ) の金属 (K(I), Cs(I), Sr(II), Ba(II), La(III), Y(III)) 硝酸塩を含む所定濃度の  $\text{HNO}_3$  溶液を 5 mL 注入した。バイアル瓶を風袋で密封し、25°C に調整された恒温振蕩水槽に設置し、120 spm の速度で振蕩させた。所定時間における振蕩後、試料溶液を焼結ガラスフィルターにより吸引濾過して固液分離した。振蕩前後の水相溶液中セシウムイオン濃度を原子吸光分光法 (島津 AA-6650 Spectrophotometer) により、その他の金属イオン濃度を ICP 発光分光法 (セイコーインスツルメンツ製 SPS-5000) により測定し、式(1)を用いて吸着分配係数 ( $K_d$ ) を算出した。

$$K_d = \frac{C_0 - C_s}{C_s} \times \frac{V_s}{W_r} \quad (\text{cm}^3/\text{g}) \quad (1)$$

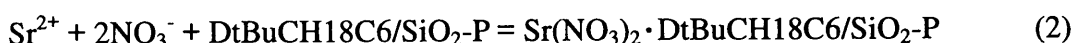
ここで、 $C_0$  は吸着前溶液中の金属イオン濃度、 $C_s$  は吸着後溶液中の金属イオン濃度、 $V_s$  は溶液体積、 $W_r$  は Sr 吸着材の乾燥重量を表す。

図 3.3 に Sr 吸着材による 2M 硝酸溶液における数種の金属イオンの吸着分配係数の時間依存性を示す。同図より、K(I), Cs(I), La(III), Y(III) の各金属イオンは Sr 吸着材に全く吸着性を示さず、 $K_d$  値はほとんどゼロである。これに対し、Sr(II) は極めて強い吸着性を示し、 $K_d$  値は吸着時間とともに顕著に増大し、6 時間経過で  $K_d$  値は約 1000 に達している。なお、Sr(II) と同族元素 (アルカリ土類) の Ba(II) も Sr 吸着材に対し定量的な吸着性を示し、6 時間経過でその  $K_d$  値は約 120 になっている。

一方、同図より Sr 吸着材は Sr(II) や Ba(II) に対する吸着速度は比較的遅く、6 時間経過しても吸着平衡が見られなかった。なお、同様な  $\text{SiO}_2\text{-P}$  担体にほぼ同等の抽出剤量を含浸担持した他の吸着材 (CMPO、HDEHP、R-BTP 吸着材) による Am(III) や三価希土類イオンの吸着は、約 0.5~3 時間以内に吸着平衡到達が認められている<sup>2)4)</sup>。この Sr 吸着材による特異的な遅い吸着速度は、多孔性固体内における複雑な環状構造を持つ DtBuCH18C6 分子と Sr(II) イオンとの配位結合による錯形成反応が遅く、吸

着の律速段階になっているためと推測される。

図 3.4 に Sr 吸着材による上記各金属イオンに対する吸着分配係数の硝酸濃度依存性を示す (6 時間吸着後の結果)。同図より、Sr(II)吸着は硝酸濃度の増加に伴って著しく増大し、約 2M 硝酸濃度で  $K_d$  値が最大となっている吸着ピークを示し、その後硝酸濃度の上昇により吸着分配係数が徐々に低下してくる。これは典型的な中性配位子による吸着パターンであり、吸着反応は DtBuCH18C6 抽出剤による液液抽出の場合の抽出反応<sup>5,6)</sup>と同様であると考えられる。



また、同図より Sr(II)および Ba(II)以外の金属イオンは全く吸着せず、Sr 吸着材は Sr(II)に対し極めて優れた吸着選択性を有することが確認された。なお、場合によって Na は高レベル廃液中に比較的少量に含まれる金属イオンであり、本実験では Na(I)の吸着挙動を調べていないが、DtBuCH18C6 による液液抽出や市販 DtBuCH18C6 吸着材 (Sr-Resin) による Na(I)の吸着性は K(I)よりも低いことが報告されている<sup>1,7,8)</sup>。

## (2) 水相溶液への抽出剤の漏出挙動

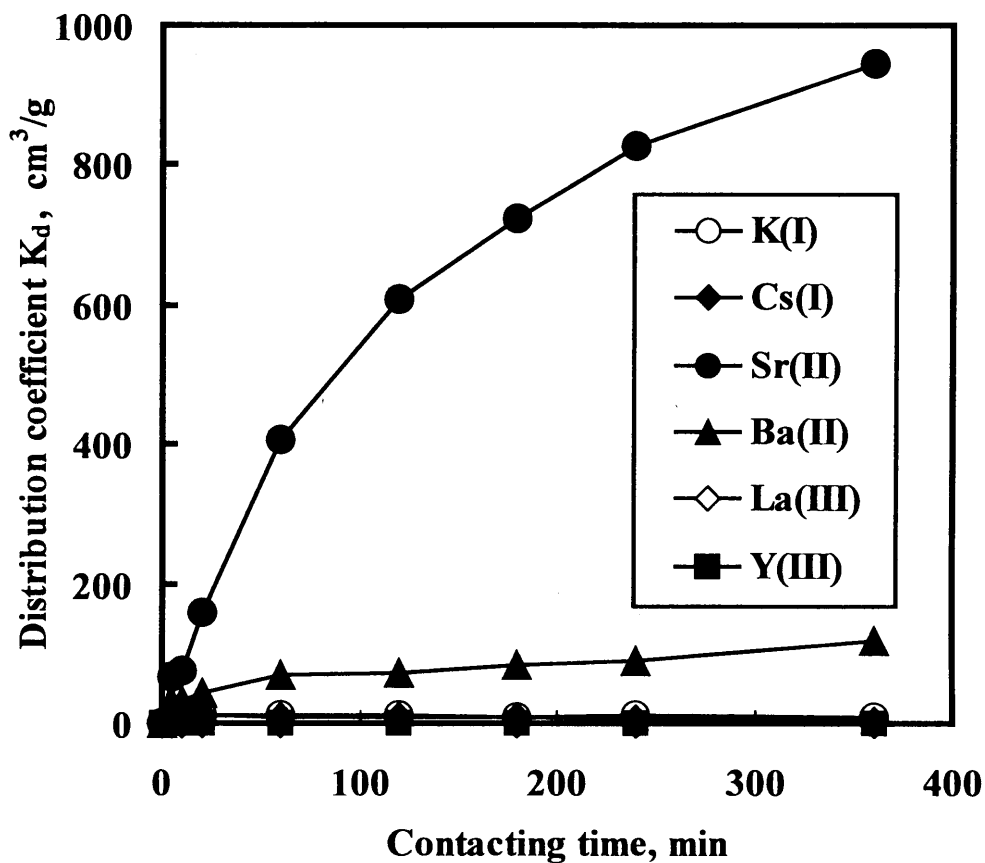
水相溶液との接触による  $\text{SiO}_2\text{-P}$  担体に含浸担持された Sr 抽出剤分子 (DtBuCH18C6) の漏出挙動を把握するために、上記 3.2(1)に述べたバッチ振蕩法による吸着試験において、水相溶液に溶出した DtBuCH18C6 の量を求めた。本実験では、水相溶液中の全有機炭素濃度(TOC)を TOC-アナライザー (Shimadzu TOC-Vcpn) を用いて測定し、DtBuCH18C6 分子構成から Sr 抽出剤の漏出割合を算出した。

DtBuCH18C6 の分子式は  $\text{C}_{28}\text{H}_{52}\text{O}_6$ 、分子量 487.72、その理論組成 (wt%、以下同) は、C 含有量 69.38%、O 含有量 19.81%、H 含有量 10.81%である。なお、市販品の純度は 99%である。

バッチ振蕩中に水相溶液への Sr 抽出剤漏出挙動と時間との関係について調べた結果を表 3.1 および図 3.5 に示す (図 3.3 の吸着試験に対応)。なお、各時間での測定データはそれぞれ異なる試料についての結果である。これらの結果により、水相溶液へ溶出した DtBuCH18C6 濃度は 650~1000ppm 程度で、対応する漏出率 (担持した抽出

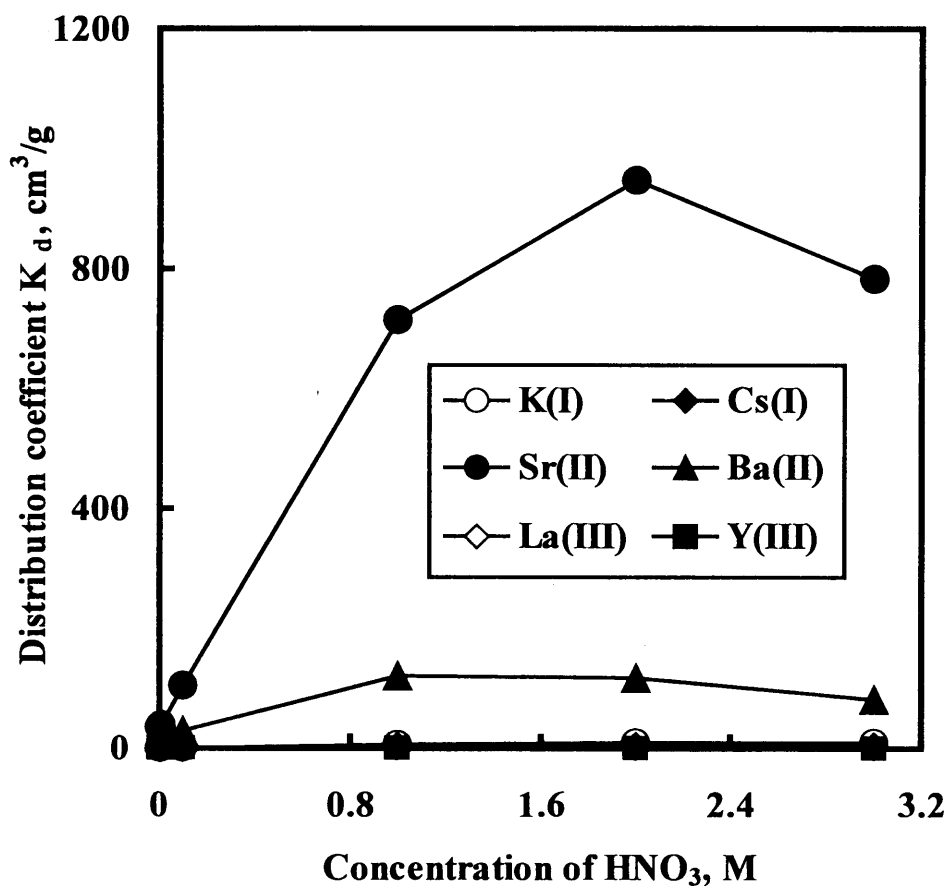
剤に対する漏出した抽出剤の重量比率)は4~6%程度であった。なお、時間に伴う漏出率の有意変化は認められず、漏出はDtBuCH18C6の水相溶液への溶解度によるものと考えられる。一方、同様な含浸担持型のCMPO吸着材に比べ、Sr吸着材より水相に溶出した抽出剤の濃度が約10~20倍ほど高くなっており<sup>9)</sup>、水相溶液へのDtBuCH18C6溶解度が比較的高いものと推定される。

表3.2および図3.6にSr吸着材から水相溶液への抽出剤の漏出挙動と水相溶液中の硝酸濃度との関係について調べた結果を示す(図3.4の吸着試験に対応)。水相に溶出したDtBuCH18C6濃度は710~820ppm程度で、対応する漏出率は4.3~5.5%である。なお、硝酸濃度の増加に伴って、漏出率が幾分増える傾向を示し、CMPO吸着材の場合と類似な挙動を示している<sup>9)</sup>。



**HNO<sub>3</sub> conc.: 2.0 mol/dm<sup>3</sup>**  
**Phase ratio: 0.25g/5ml**  
**Metal conc.: 1.0×10<sup>-2</sup> mol/dm<sup>3</sup>**  
**Shaking speed: 120 spm**  
**Temp.: 298K**

図3.3 Sr吸着材による2M硝酸溶液からの数種金属イオンの吸着分配係数の時間依存性



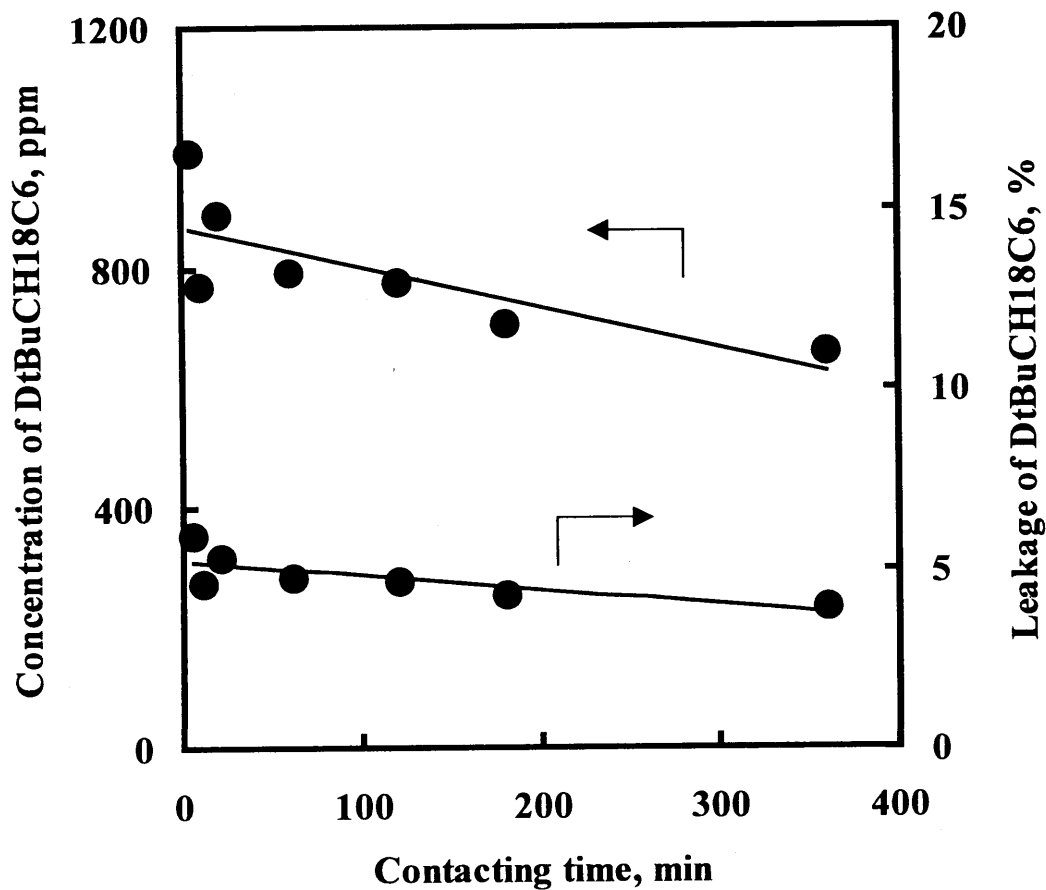
**Contacting time : 6 hours**  
**Phase ratio: 0.25g/5ml**  
**Metal conc.:  $1.0 \times 10^{-2} \text{ mol/dm}^3$**   
**Shaking speed: 120 spm**  
**Temp.: 298K**

図3.4 Sr吸着材による数種金属イオンの吸着分配係数の硝酸濃度依存性



表 3.1 バッチ振蕩中に水相溶液中への Sr 抽出剤漏出挙動の時間依存性  
(HNO<sub>3</sub> conc.: 2.0 mol/dm<sup>3</sup>, Phase ratio: 0.25g/5mL, Metal conc.: 1.0×10<sup>-2</sup> mol/dm<sup>3</sup>,  
Shaking speed: 120 spm, Temp.: 298 K)

Time/min	TOC/ppm	DtBuCH18C6/ppm	DtBuCH18C6/%
5	686.8	989.9	5.9
10	533.2	768.5	4.6
20	616.4	888.4	5.3
60	550.2	793.0	4.8
120	539.2	777.1	4.7
180	489.8	705.9	4.2
360	456.8	658.4	4.0

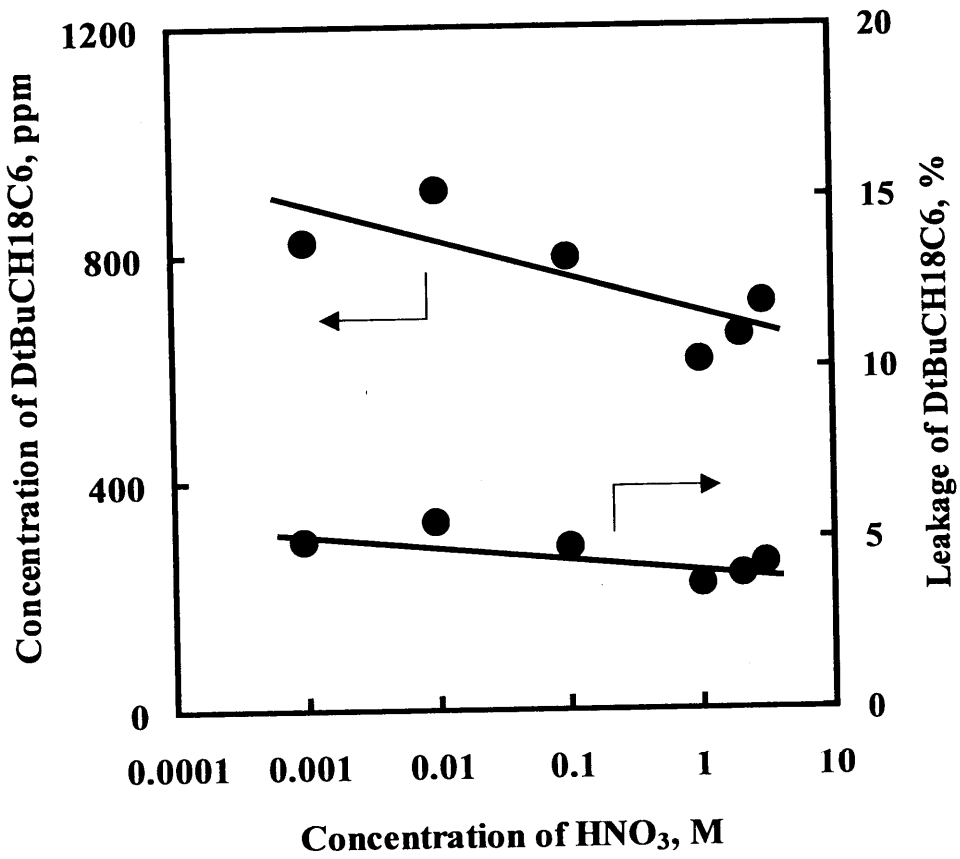


**HNO<sub>3</sub> conc.: 2.0 mol/dm<sup>3</sup>**  
**Phase ratio: 0.25g/5ml**  
**Metal conc.: 1.0×10<sup>-2</sup> mol/dm<sup>3</sup>**  
**Shaking speed: 120 spm**  
**Temp.: 298K**

図3.5 バッチ振蕩中に水相溶液へのSr抽出剤漏出挙動と時間との関係

表 3.2 バッチ振蕩中に水相溶液中への Sr 抽出剤漏出挙動の硝酸濃度依存性  
(Contacting time: 6 h, Phase ratio: 0.25g/5mL, Metal conc.:  $1.0 \times 10^{-2}$  mol/dm<sup>3</sup>,  
Shaking speed: 120 spm, Temp.: 298 K)

[HNO <sub>3</sub> ]/mol·dm <sup>-3</sup>	TOC/ppm	DtBuCH18C6/ppm	DtBuCH18C6/%
3	495.2	713.7	4.3
2	456.8	658.4	4.0
1	424.8	612.3	3.7
0.1	552.6	796.5	4.8
0.01	634.6	914.6	5.5
0.001	569.6	821.0	4.9



**HNO<sub>3</sub> conc.: 2.0 mol/dm<sup>3</sup>**  
**Phase ratio: 0.25g/5ml**  
**Metal conc.: 1.0×10<sup>-2</sup> mol/dm<sup>3</sup>**  
**Shaking speed: 120 spm**  
**Temp.: 298K**

図3.6 バッチ振蕩中に水相溶液へのSr抽出剤漏出挙動と硝酸濃度との関係

### 3. 3 模擬廃液を用いた溶離試験

再処理工程からの模擬高放射性廃液として、K(I), Cs(I), Sr(II), Ba(II), La(III), Y(III)をそれぞれ約 5mM 含む 3M 硝酸溶液を試料溶液として調製した。本実験に用いたカラム試験装置は  $\phi 10\text{mm}$  (内径)  $\times h 200\text{mm}$  (高さ) のパイレックスガラス製カラム (耐圧値  $30\text{kg/cm}^2$ )、恒温水循環系、定量送液ポンプ、圧力リミッター、オートフラクションコレクター等により構成されている。カラムへの Sr 吸着材充填は、スラリー状の吸着材をカラムの上方から徐々に注入し、 $\text{N}_2$  ガスにより約  $2\sim 3\text{kg/cm}^2$  の圧力にて加圧充填した。充填床の高さは約 18mm で、充填体積 (bed volume) は約  $14.1\text{cm}^3$  であった。図 3.7 に Sr 吸着材を充填したカラムの写真を示す。

Sr 吸着材カラムによる吸着・溶離試験は次の手順により行った。30mL の試料溶液を流速  $1\text{mL/min}$  でカラムの上方より供給し、続いて 30mL の 3M 硝酸溶液を洗浄液として同様な流速で流し、吸着材の隙間やカラム内壁に付着した試料溶液の洗浄を行った。次いで、充填床での硝酸イオン濃度を下げるために、純水 (120mL) を Sr(II) や Ba(II) の溶離剤として同様な流速で通液した。カラムからの流出液をオートフラクションコレクターを用いて 10mL 毎に捕集し、各フラクション溶液中の金属イオン濃度を原子吸光分析法 (Cs 分析) および ICP 発光分析法 (その他の金属) により定量分析した。

図 3.8 に上述カラム試験で得られた各金属イオンの溶離曲線を示す。同図より、Cs(I)、K(I)、La(III)、Y(III) はほとんど吸着されず、試料溶液および 3M 硝酸洗浄液とともに先に流出した。一方、Sr(II) は全量吸着され、純水の通液によって完全に溶離され、上記非吸着性金属イオンから良好に分離された。また、Sr(II) 溶離曲線はシャープなピークを示し、テーリング現象が殆どないことから、溶離速度が非常に速いことがわかる。なお、試料溶液中の約 70% 量の Ba(II) は吸着されず、上記非吸着性金属イオンより若干遅れて流出した。残り 30% 程度の Ba(II) が Sr 吸着材に吸着され、Sr(II) と共に純水により溶離された。本試験における各元素の回収率 (カラムに供給した試料溶液中の元素量に対するカラムからの捕集液中の元素全量の比率) はそれぞれ K 98.6%, Cs 101.1%, Sr 99.01%, Ba 100.6%, La 99.9, Y 100.5% であった。

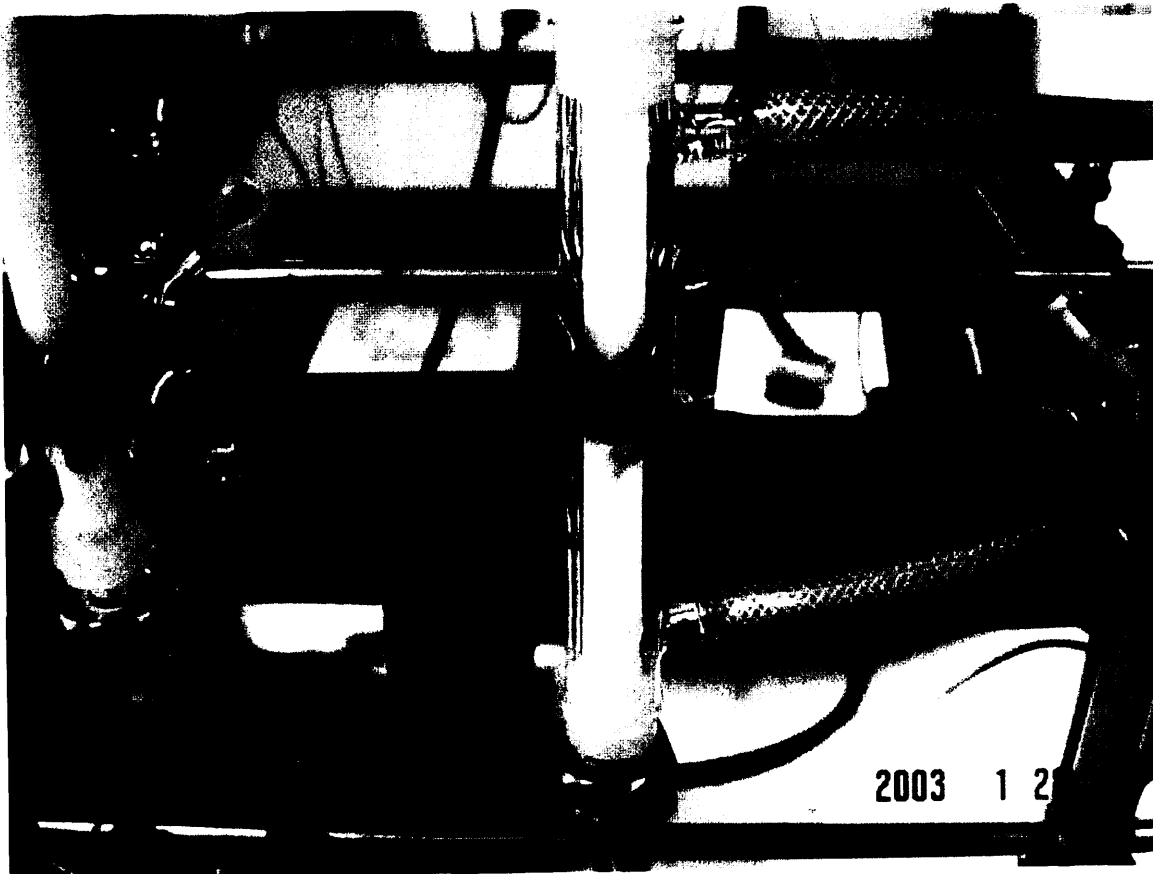
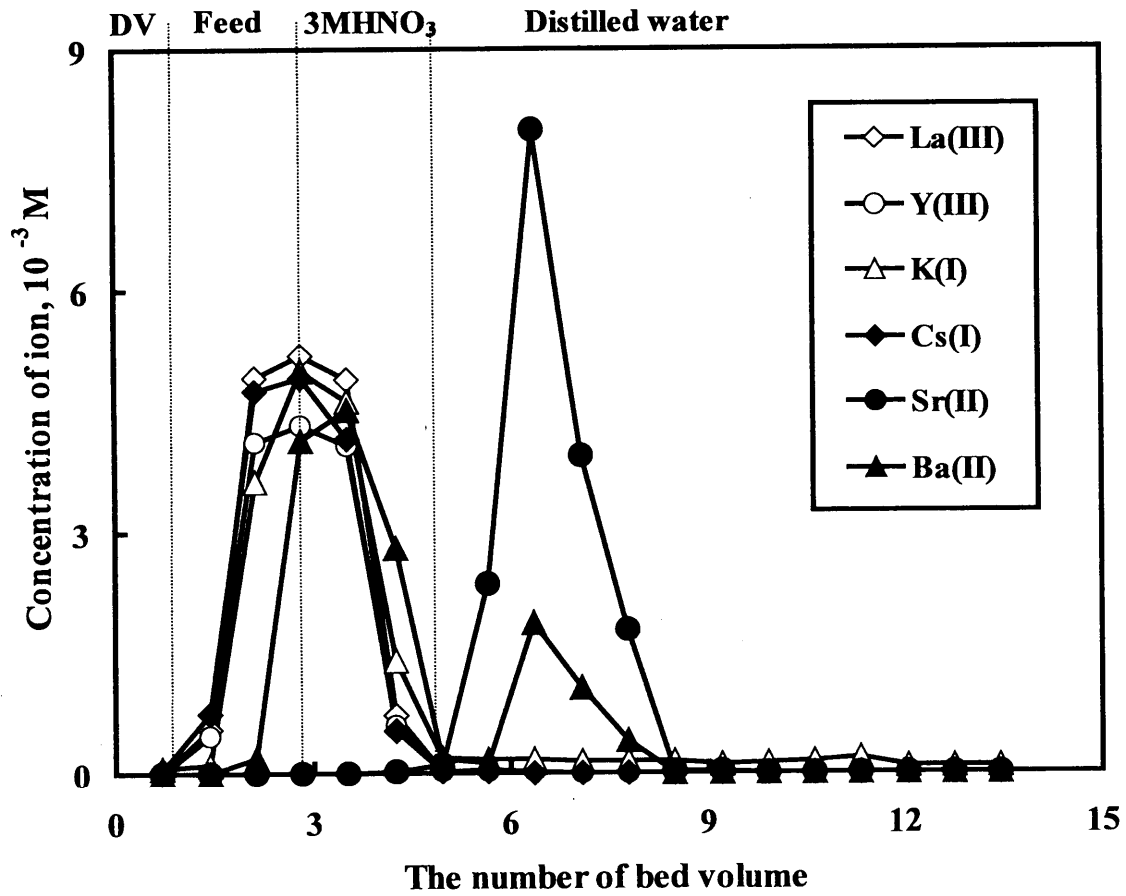


図3.7 Sr吸着材を充填したガラスカラムの写真



**Column:  $\phi 10\text{mm} \times h 200\text{mm}$**   
**Flow rate:  $1.0 \text{ cm}^3/\text{min}$**   
 **$\text{HNO}_3$  conc. in feed:  $3 \text{ M}$**   
**Metal conc. in feed :  $5 \text{ mM}$**   
**Height of resin:  $18 \text{ cm}$**   
**Bed volume:  $14.1 \text{ cm}^3$**   
**Temp:  $298\text{K}$**

図3.8 Sr吸着材を用いる模擬高放射性廃液のカラム試験で得られた各金属イオンの溶離曲線

#### 4. おわりに

本試験では、抽出クロマトグラフィー法による高放射性廃液からの Sr 分離法としての可能性を検討するために、シリカ担持型 Sr 吸着材を調製し、また硝酸溶液における Sr(II)等の数種金属イオンの吸着・溶離試験を行い、次のような結果が得られた。

(1) SREX 法で使用されている DtBuCH18C6 抽出剤を粒径約  $50\mu\text{m}$  の  $\text{SiO}_2\text{-P}$  担体に含浸担持することにより、抽出クロマトグラフィーに適する DtBuCH18C6/ $\text{SiO}_2\text{-P}$  吸着材 (Sr 吸着材) を調製することができた。

(2) Sr 吸着材は硝酸溶液において Sr(II)に対し極めて高い吸着性を示し、2 M 硝酸溶液で吸着分配係数が約 1000 に達した。これに対し Cs(I)、K(I)、La(III)、Y(III)の各金属イオンは殆ど吸着性を示さず、Ba(II)はある程度の吸着性 (分配係数約 120) を示した。一方、Sr(II)の吸着速度は比較的遅く、固体内での錯形成反応が遅いためと推定される。

(3) Cs(I)、K(I)、Sr(II)、Ba(II)、La(III)、Y(III)を含む 3M 硝酸の模擬高放射性廃液を用い、Sr 吸着材を充填したカラムによるクロマトグラフィー試験では、吸着した Sr(II)は純水によって迅速に溶離され、Ba(II)以外の各金属イオンと極めて良好に分離された。

(4) バッチ振蕩試験により、Sr 吸着材から水相溶液へ溶出した DtBuCH18C6 濃度は 700~800ppm であり (漏出率は 4.3~5.5%)、硝酸濃度の増加に伴って漏出率が幾分増える傾向を示し、水相溶液への DtBuCH18C6 溶解度によるものと考えられる。



参考文献

- 1) E. P. Horwitz, L. D. Mark, D. E. Fisher : “SREX: A New Process for the Extraction and Recovery of Strontium from Nuclear Waste Streams”, *Solvent Extr. Ion Exch.*, Vol. 9, No. 1, p. 1-25 (1991)
- 2) Y.-Z. Wei, M. Kumagai, Y. Takashima, G. Modolo and R. Odoj : “Studies on the Separation of Minor Actinides from High-Level Wastes by Extraction Chromatography Using Novel Silica-Based Extraction Resins”, *Nucl. Technol.*, Vol. 132, p. 413-423 (2000)
- 3) Y.-Z. Wei, H. Hoshi, M. Kumagai, T. Asakura and G. Uchiyama : “Preparation of Novel Silica-based R-BTP Extraction-resins and Their Application to Trivalent Actinides and Lanthanides Separation”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, Suppl. 3, p. 761-764 (2002)
- 4) 財団法人産業創造研究所 : “(文部科学省委託事業) 平成 12 年度新湿式再処理システム技術開発 成果報告書”, 平成 13 年 3 月 (2001)
- 5) L. D. Mark, E. P. Horwitz, R. Chiarizia and H. Diamond : “Novel Extraction Chromatographic Materials for The Separation and Preconcentration of Radionuclides”, Proc. of ISEC '93, International Solvent Extraction Conference, York, England, September 9-15, 1993
- 6) A. Kumar, P. K. Mohapatra and V. K. Manchanda : “Extraction of Radiostrontium from Nitric Acid Medium Using Di-t-butyl Cyclohexano 18-crown-6 in an Aliphatic Alcohol Mixture Diluent”, *Radiochim. Acta*, Vol. 85, p. 113-117 (1999)
- 7) J. D. Law, D. J. Wood and R. S. Herbst: “Development and testing of SREX flowsheets for treatment of Idaho Chemical Processing Plant sodium-bearing waste using centrifugal contactors”, *Sep. Sci. Technol.*, Vol. 32, p. 223-240 (1997)
- 8) E. P. Horwitz, R. Chiarizia and M. L. Dietz: “A Novel Strontium-Selective Extraction Chromatographic Resin”, *Solvent Extr. Ion Exch.*, **10**, 313-336 (1992)
- 9) 韋悦周, 駒義和, 新井剛, 張安運, 星陽崇, 渡部雅之 : “シリカ担持型 CMPO 吸着材の基礎特性に関する試験研究”, 日本原子力学会和文論文誌, Vol. 132, No. 4,

JNC TJ8400 2003-073

p. 432-438 (2002)