

MA回収用吸着ガラス断面のマイクロ PIXE 分析

Micro-PIXE analysis of sliced adsorbent for minor actinide recovery

宮崎 康典¹⁾ 渡部 創¹⁾ 佐野 雄一¹⁾ 竹内 正行¹⁾ 江夏 昌志²⁾

Yasunori MIYAZAKI, Sou WATANABE, Yuichi SANO, Masayuki TAKEUCHI,
Masashi KOKA

¹⁾原子力機構 ²⁾ビームオペレーション株式会社

(概要)

日本原子力研究開発機構では、放射性廃棄物の減容及び有害度低減の観点から、使用済燃料再処理で発生する高レベル放射性廃液からマイナーアクチノイドを回収する抽出クロマトグラフィの技術開発を行っている。模擬高レベル放射性廃液を用いて、液柱振動切断法で製造・調製した粒子径 2 mm の HDEHP/SiO₂-P 吸着材を対象としたバッチ式吸着試験を行い、元素吸着前後の粒子断面を PIXE 分析に供した。主成分である Mo と Zr は粒子内部に均一に分布している一方で、副成分である Gd 等が粒子中央部に局在することを明らかにした。これは、粒子内部のシリカ密度が影響し、中心部に多く含浸されている HDEHP 抽出剤の希土類元素への特異的抽出性能によるものと考えられる。

キーワード：マイナーアクチノイド、吸着材、抽出クロマトグラフィ、マイクロ PIXE 分析

1. 目的

現行再処理計画において、使用済燃料再処理で発生する高レベル放射性廃液（HLLW）等は、ガラス固化処理後、300 m 以深に地層処分することとしている。しかし、HLLW には核分裂生成物だけではなく、長寿命かつ発熱性のマイナーアクチノイド（MA；Am, Cm）が含まれており、処分場面積等に係る環境負荷が懸念されている。日本原子力研究開発機構（以降、原子力機構という）は、放射性廃棄物の減容及び有害度低減の観点から、MA を HLLW から選択的に分離回収し、高速炉や加速器駆動システムによって安定核種に変換する「分離変換」研究を行っている。他国の研究機関では溶媒抽出を中心に活発に技術開発が行われているが、我々は、希釈溶媒を必要とせず、使用済吸着材のガラス固化原料への利用等によって廃棄物減容化が期待できる抽出クロマトグラフィを提案している[1-3]。

これまでは、ゾルゲル法で製造・調製したφ50 μm の HDEHP/SiO₂-P 吸着材を充填相としたカラム分離技術の開発を行ってきた。しかし、ポンプで積極的に圧をかけて分離操作を行うため、圧力損失に起因する安全性の課題が残っていた。そこで、粒度分布を狭くでき、粒子径や細孔径を制御可能な液柱振動切断法に着目し、粒子径 2 mm の多孔質シリカ粒子の製造によって、圧力損失の大幅な低減を確認した。本研究では、液柱振動切断法で製造・調製した HDEHP/SiO₂-P 吸着材の性能評価試験の一環として、模擬高レベル放射性廃液（以降、模擬高レ廃液という）を用いたバッチ式吸着試験を行い、粒子断面の PIXE 分析によって、吸着元素の存在分布を評価した。

2. 実施方法

液柱振動切断法で製造・調製した HDEHP/SiO₂-P 吸着材 1.0g と模擬高レ廃液 20 mL をガラスバイアル瓶(30 mL)に添加し、室温で 3 時間の振とうを行った。振とう前後の模擬高レ廃液を ICP-AES で定量分析し、元

素濃度を比較することで、吸着材 1g 当りの吸着量を評価した。

紙やすりで削った後、切断面を研磨して得られた吸着材 1 粒を 5 μm ポリカーボネート膜上に固定し、電磁石で集束させた H^+ マイクロビームを照射した。図 1 に大気マイクロ PIXE 分析の概要を示す。半導体検出器で検出した粒子の特性 X 線を電気信号に変換し、エネルギーに対する信号強度としてスペクトルに出力した。800 μm $\times$ 800 μm の測定領域で得られたスペクトルをもとに、粒子骨格の Si、HDEHP 抽出剤に含まれる P 及び模擬高レ廃液からの吸着元素である Mo, Zr, Nd, Gd と Fe をそれぞれマッピングし、1 粒子当りの存在分布図を作成した。

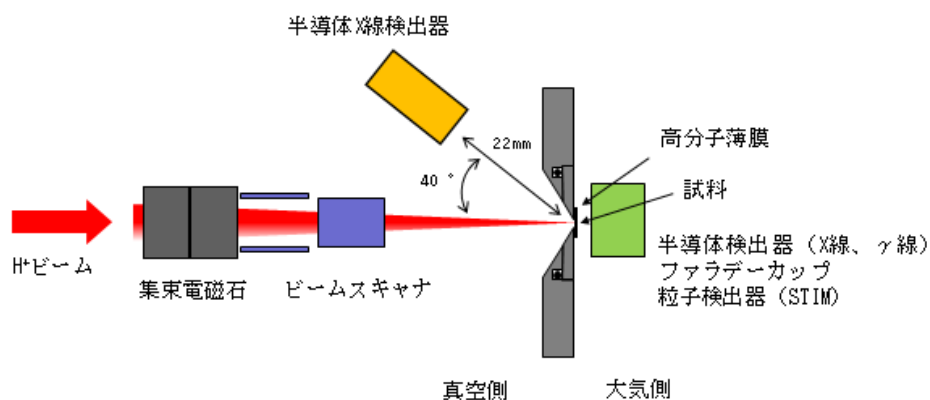


図 1 大気マイクロ PIXE 分析装置の概要図

3. 結果及び考察、今後の展開等

図 2 (a) に HDEHP/SiO₂-P 吸着材断面の顕微鏡画像を、(b) に PIXE 分析による元素マッピング（赤=Si、青=P）をそれぞれ示す。顕微鏡画像では粒子の中心部がやや透明になっているが、PIXE 分析による元素マッピングによって、HDEHP 抽出剤がその中心部に局在していることがわかった。液柱振動切断で製造した粒子は外周部と中心部でシリカ密度が異なり、空間的に余裕のある内部で HDEHP 抽出剤が多く含浸されていることを明らかにした。

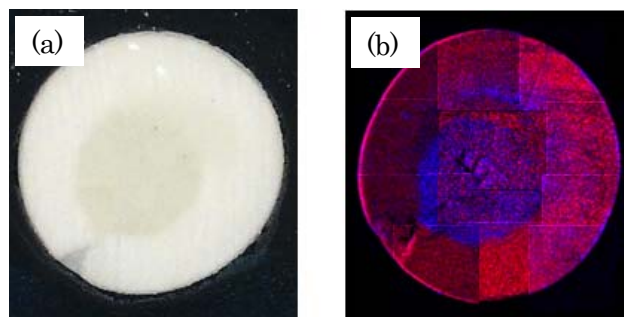
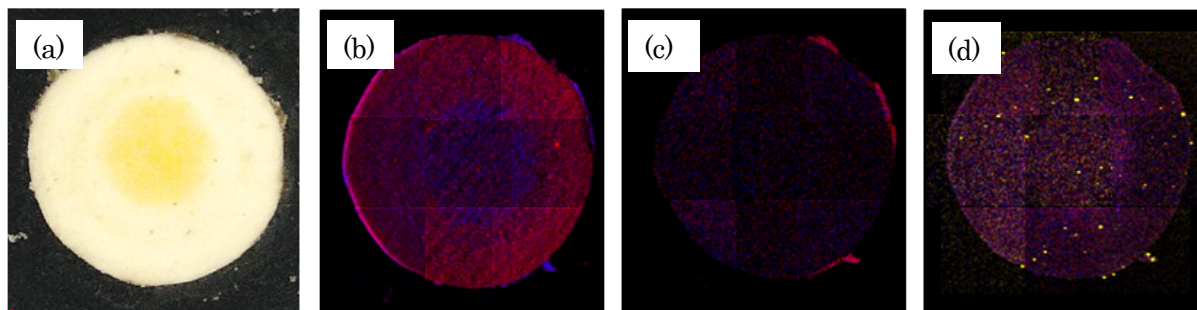


図 2(a) HDEHP/SiO₂-P 吸着材断面の顕微鏡写真、(b) PIXE 分析による元素マッピング
元素マッピング(b)では、赤が Si、青が P をそれぞれ示す。

図 3(a) に模擬高レ廃液を用いたバッチ式吸着試験後の吸着材断面の顕微鏡写真を示す。顕著な中心部分を含め、全体的に黄色くなっている。これは、後述するように、吸着した希土類元素による着色と考えら

れる。図 4(b) - (d) に大気マイクロ PIXE で作成した元素マッピングを示す。(b) は、赤が Si、青が P をそれぞれ示しており、図 2 の HDEHP/SiO₂-P 吸着材と同様に、中心部分に HDEHP 抽出剤が多く含浸されている。(c) は、赤が Mo、青が Zr をそれぞれ示しており、バッチ吸着試験後において、Mo と Zr は粒子全体に均等に分布していることがわかる。(d) は、赤が Gd、青が Nd、黄色が Fe をそれぞれ示しているが、Gd 等の希土



類元素が中心部に局在（顕微鏡画像の黄色部分）している。これは、高密度で存在する HDEHP 抽出剤による希土類元素への特異的抽出性能が影響していると考えられる[4]。

図 3(a) バッチ吸着後の HDEHP/SiO₂-P 吸着材断面の顕微鏡写真、(b)-(d) PIXE 分析による元素マッピング (b) は、赤が Si、青が P をそれぞれ示す。(c) は、赤が Mo、青が Zr をそれぞれ示す。(d) は、赤が Gd、青が Nd、黄色が Fe をそれぞれ示す。

今後、シリカ密度の等しい粒子製造を目的に液柱振動切断法を改良し、HDEHP/SiO₂-P 吸着材の吸着後断面に元素分布に偏りが無いものとする。

4. 引用(参照)文献等

- [1] Y. Wei et al., Studies on the separation of minor actinides from high-level wastes by extraction chromatography using novel silica-based extraction resins, *Nucl. Technol.*, **2000**, 132, 413 - 423.
- [2] S. Watanabe et al., Flow-sheet study of MA recovery by extraction chromatography for SmART cycle project, *Procedia Chem.*, **2016**, 21, 101 - 108.
- [3] S. Watanabe et al., Am, Cm recovery from genuine HLLW by extraction chromatography, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **2018**, 316, 1113 - 1117.
- [4] Y. Morita et al., Development of a new extractant and a new extraction process for minor actinide separation, *Mater. Sci. Eng.*, **2010**, 9, 1 - 11.