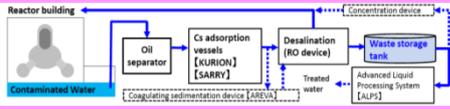


# ゼオライトからの核種の溶離特性の評価と回収技術の開発 (2) Srの溶離特性と回収

ユニオン昭和<sup>1</sup>, 東北大・多元研<sup>2</sup> 北河友也<sup>1</sup>, ○三村 均<sup>1</sup>, 松倉 実<sup>1</sup>, 黒崎文雄<sup>1</sup>, 小林高揚<sup>2</sup>

## 背景・目的

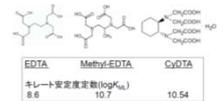


高汚染水中のCsの除染には、ゼオライト等の無機イオン交換体が使用されている。これら二次固体廃棄物の処理・処分シナリオには、現在、貯蔵時の安全性評価、安定固化技術の開発が進められている。一方、上記シナリオとは異なり、廃棄物からの核種(Sr)の溶離・回収および再利用に関する技術開発も進めおくことも重要と考えられる。  
本技術は、高レベル廃液からのSrの選択的分離・固化・有効利用にも適用可能である。

## 検討項目

- 無機塩、キレート溶液中でのSrの分配特性評価
- 溶離特性評価
- ゼオライトの種類と溶離液(無機塩、キレート)を変えてSrを溶離
- Sr溶離率(E(%))、保持体積(V<sub>R</sub>)、理論段数(N)、理論段高さ(H)、テイリング係数(S)の算出
- クロマトグラム基本式の導出
- 溶離フラクションからのSr塩の回収

**無機塩溶液(溶離液)**  
NH<sub>4</sub>Cl, NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>, KCl, KNO<sub>3</sub>, NaCl, NaNO<sub>3</sub>, HCl, HNO<sub>3</sub>  
**キレート溶液(溶離液)**  
EDTA, NH<sub>4</sub>EDTA, Methy-EDTA, CyDTA



## 無機塩溶液中でのSrの分配と溶離

- NH<sub>4</sub>塩溶液中でもA型へのSr分配係数は大きく、溶離は困難、Y型では可能と推定される。
- NH<sub>4</sub>塩溶液ではA型からのSr溶離率(E(%))は低い。E(%): < 50% (200 cm<sup>3</sup> 溶液後、V=113) βケージ内のSrの溶離は困難
- Y型からはSr溶離可能。ただし、Y型はSr吸着の選択性低い。

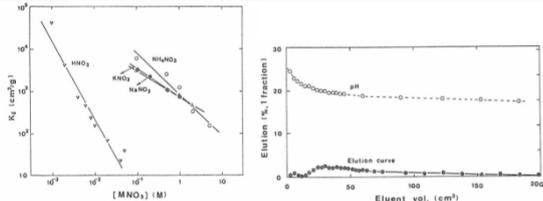
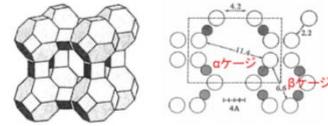


Fig. 1 Effects of concentration of nitric acid and nitrate salts on K<sub>d</sub>. Fig. 3 Elution chromatogram of Sr with 5 wt% NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> solution

無機塩溶液中でのA型ゼオライトへのSrの分配と溶離曲線

## A型ゼオライトの単位セル構造とSrの分布



Srは6員環を入りほとんど(6個のSr<sup>2+</sup>)がβケージ内に存在する。S/A比が小さく、陰電場が強いいため、固定されている状態。  
—6員環近傍のSrが一部溶離されると考えられる。

## キレート溶液(EDTA)中でのSrの分配と溶離

キレート存在下でのSrの分配係数

$$K_d = \frac{[Sr^{2+}] + [SrY] + [SrY_2] + [SrY_3]}{[Sr^{2+}] + [SrY] + [SrY_2] + [SrY_3] + [Y] + [Y_2] + [Y_3]}$$

$$K'_d = K_d \cdot 1 / K_{SrY} [Y^-]$$

Srの分配係数はキレート濃度が増加すると直線的に低下。

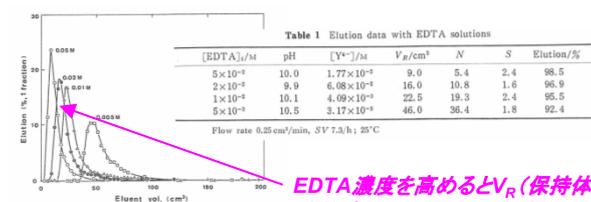


Fig. 4 Elution chromatograms obtained at different concentration of EDTA

EDTA濃度を高めるとV<sub>R</sub>(保持体積、溶離ピーク的位置)は直線的に低下

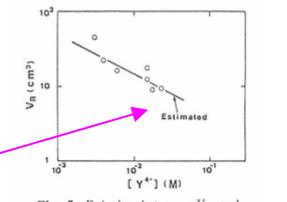


Fig. 7 Relation between V<sub>R</sub> and Y<sup>-</sup> concentration

## 溶離効率の向上

- 一流速はNとE(%)にはあまり影響しないが、温度の上昇は溶離に効果的。
- 吸着・溶離操作はV<sub>R</sub>とE(%)にほとんど影響しない。
- アンモニア緩衝剤の使用でNが向上。

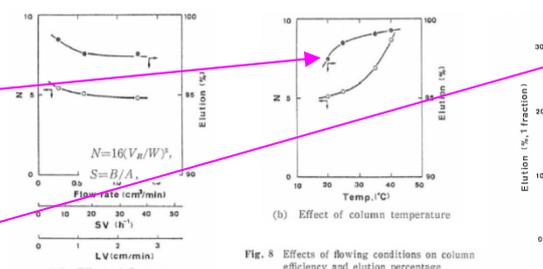


Fig. 8 Effects of flowing conditions on column efficiency and elution percentage

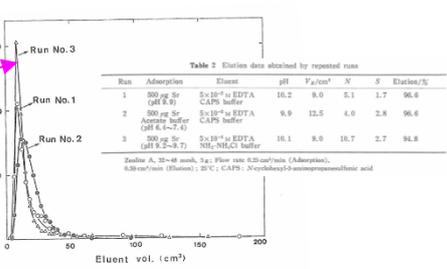
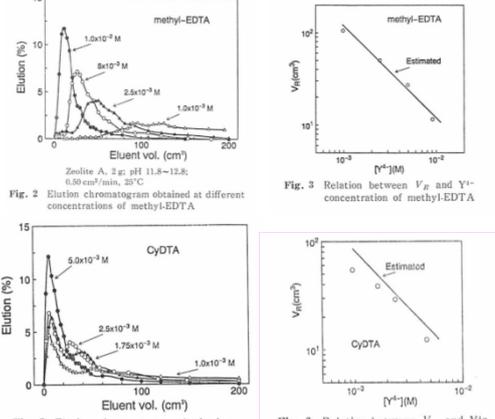


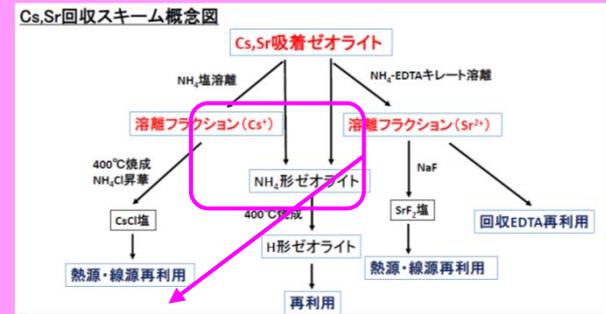
Fig. 9 Elution chromatograms obtained by repeated runs

## Methyl-EDTA, CyDTAによる溶離曲線とV<sub>R</sub>の低下



—キレートA濃度を高めるとV<sub>R</sub>は直線的に低下。  
—CyDTAでは段階で溶離:初期の溶離は結体の解離速度が小さいためと考えられ、後続の溶離はクロマトの基本式に従っている。

## 回収スキームとまとめ



### Sr溶離フラクションからのSrの回収

—Sr-EDTA溶離フラクションからのSrの回収は、焼成および沈殿法が考えられる。  
—Naの混入を抑えるには、HF添加によるSrF<sub>2</sub>沈殿回収が有効。

放射性CsとSrのクロムの分離: 東北大学の学生実験(バックエンド基礎実験、4年次)で実施