



HDEHP 吸着材内における Zr の吸着メカニズムの解析

新井 剛¹ 渡部 創² 安倍 諒治¹
 1 芝浦工業大学 2 日本原子力研究開発機構

キーワード：抽出クロマトグラフィ法、HDEHP 吸着材、ジルコニウム

1. 背景と研究目的

高レベル放射性廃液 (High-Level radioactive Liquid Waste、以下 HLLW) からのマイナーアクチニド (MA) 回収技術として、抽出クロマトグラフィ法の開発を進めている。本法に用いられる吸着材への金属イオンの吸着・溶離メカニズムについては不明な点が多い。さらに、既往の研究成果より HLLW に含有される Mo(VI) や Zr(IV) は、本法における MA 分離を阻害することが確認されている。特に、Bis (2-ethylhexyl) hydrogen phosphate (HDEHP) 吸着材は Zr(IV) を吸着すると Zr-HDEHP 錯体形成に伴い凝集体を生成し、通液阻害が生じることが報告されている¹⁾。そこで本研究では、Zr の吸着機構を X 線吸収微細構造 (XAFS) 等を用いて明らかにすることを目的とする。

2. 実験内容

HDEHP 抽出剤と Zr(IV) の会合により生成された Zr-HDEHP 錯体の構造調査を行うため、溶媒抽出試験で得られた Zr-HDEHP 錯体を XAFS により内部構造解析を行った。また、破過試験により得られた HDEHP 吸着材に各元素を飽和吸着させた試料についても同様に試験した。簡便のため、溶媒抽出法により得られた第 3 相を No.1、HDEHP 抽出剤を無機・有機担体に含浸した HDEHP 吸着材に Zr(IV) 単体を飽和吸着させた試料を No.2、No.2 溶離後の試料を No.3、HDEHP 吸着材に Mo(VI)、Zr(IV)、Fe(III) 三元系を飽和吸着させた試料を No.4、No.4 の溶離後の試料を No.5、HDEHP と似た構造を持つ PC-88A を含浸させた吸着材に Zr(IV) を飽和吸着させた試料を No.6 とした。

3. 結果および考察

Fig. 1 に EXAFS 測定により得られた EXAFS 振動を示す。また、Fig. 2 に動径分布関数を示す。No.3 および No.5 の試料には Zr が含まれなかったため解析を行わなかった。Fig. 1 及び Fig. 2 より、吸着種の異なる No. 2 と No. 4 の試料では、動径分布に大きな違いは確認されなかった。しかし、No. 1 と No. 2 の試料では、EXAFS 振動及び動径分布関数に差異があることが確認された。FEFF データによるフィッティング結果より最近接 Zr-O 距離はそれぞれ 2.14, 2.09 Å、配位数は 5.80, 5.00 であった。最隣接 Zr-O 距離、配位数ともに異なるため、溶媒抽出系と抽出剤を含浸した吸着材では吸着機構が異なると推察される。また、No.6 の試料においては No. 2 と比べて配位数が 0.5 程度異なるが、最隣接 Zr-O 距離にほとんど差異が確認されなかったことから、吸着に関与している官能基は同様のものと推察される。

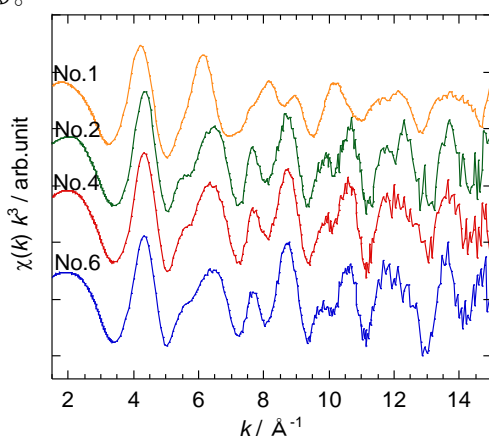


Fig. 1 EXAFS spectra of Zr obtained

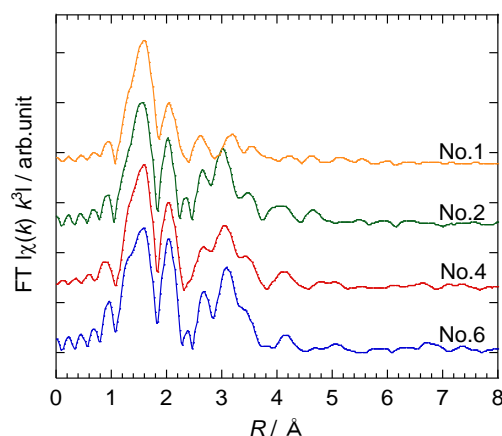


Fig. 2 Radial distribution function around Zr obtained by EXAFS

4. 参考文献

1.R.Abe, *et al* : NIMB, Vol. 404, (2017), pp173-178