



DGA 系吸着材に吸着された希土類の存在状態解明

岡田 諒¹、松浦 治明¹、渡部 創²

¹ 東京都市大学、² 日本原子力研究開発機構

キーワード：含浸吸着材、錯体構造、EXAFS、ランタン、ユウロピウム、ネオジム

1. 背景と研究目的

現在、高レベル放射性廃液からの MA(マイナーアクチノイド)回収技術として、抽出クロマトグラフィ法の開発が進められている。本技術では、群分離に DGA(ジグリコールアミド)抽出剤、相互分離に HONTA(ヘキサオクチルニトロトリアセトアミド)抽出剤を用いるプロセスが考えられている。本研究では DGA 系抽出剤である TODGA(テトラオクチルジグリコールアミド)、TEHDGA(テトラ・2-エチルヘキシルジグリコールアミド)をそれぞれ含浸させた吸着材に保持させた希土類元素周りの構造解析を進めている。今回の実験では各吸着材内部に形成される La, Eu, Nd 各元素周りの局所構造の酸濃度依存性を La, Nd、Eu-L3 吸収端 EXAFS により系統的に調査することで TODGA 吸着材、TEHDGA 吸着材における La, Eu, Nd の分離メカニズムを明らかにすることを目的として実験を行った。

2. 実験内容

TODGA 抽出剤を 33 wt%となるよう、多孔質シリカ粒子にスチレンジビニルベンゼン共重合体を被覆した粒子(SiO₂-P と呼称)に含浸させたもの、同様に TEHDGA 抽出剤を含浸させたものを吸着材とした。これに 10 mM の Eu を含む 0.05 M、0.1 M、HNO₃ 溶液を、固液重量比 1:20 で接触させて 3 時間振とうし、Eu を保持させたものを測定対象とした。La, Nd についても同様の条件で保持させたものも測定対象とした。これらの粉末を厚み 1 mm となるよう金属製の容器に入れて、カプトン膜にてシールしたものを試料とした。La, Nd, Eu-L3 吸収端 EXAFS 測定は、AichiSR の BL5S1 ビームラインを用いた透過法または蛍光法による 7 素子 SDD 検出器を用いて実施した。得られたスペクトルは、XAFS 解析プログラム WinXAS2.3 により解析し、フィッティングには非経験論的多重散乱計算コード FEFF8.0 で算出した後方散乱パラメータを用いた。

3. 結果および考察

実験によって得られたスペクトルを解析し、第一配位元素を酸素としてフィッティングを行い、求めた構造関数の硝酸濃度依存性を Fig. 1 に示す。Eu、Nd どちらの元素に関しても 0.05 M、0.1 M では TEHDGA 吸着材に比べて TODGA 吸着材は配位数はわずかに多く、1 M、3 M ではほぼ同じ配位数になることが分かった。エッジジャンプを比較した場合も同様に、低硝酸濃度では TEHDGA 抽出剤は TODGA 抽出剤に比べて低いことが確認できた。これは ICP-OES 分析による吸着率の結果も同様であった。したがって、抽出剤の寄与が関係していると考えられる。また最近接 Eu-O 距離はどちらの吸着材も $R = 2.45 \pm 0.01 \text{ \AA}$ 、Nd-O 距離に関しても $2.50 \pm 0.02 \text{ \AA}$ と顕著な差は見られなかった。La に関しては Eu、Nd とは異なり、どの硝酸濃度条件でも吸着量が小さく S/N 比が良くなかったため、フィッティング解析を行うことが困難であった。La のような軽希土は中重希土類と比較して配位構造が異なることが示唆されるため、今後更なる調査を進めていく必要がある。

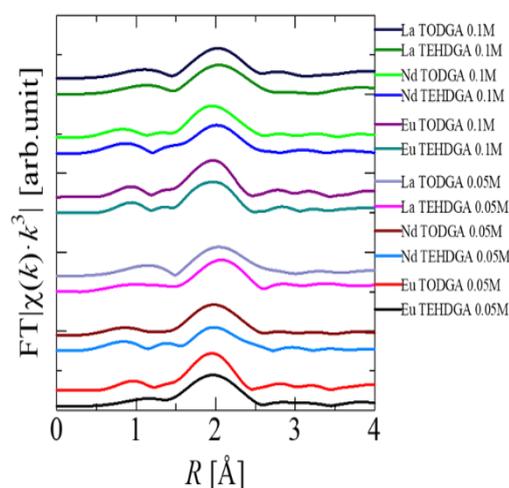


Fig1 構造関数の硝酸濃度依存性