



放射性廃溶媒処理に用いる吸着材の XAFS 特性評価

荒井 陽一, 渡部 創
日本原子力研究開発機構

キーワード：放射性溶媒処理, 吸着材, EXAFS

1. 背景と研究目的

日本原子力研究開発機構では、放射性廃液の系統的な処理技術開発として STRAD (Systematic Treatment of **RA**dioactive liquid waste for **D**ecommissioning) プロジェクトを推進しており、その一環として放射性物質を含む廃溶媒の効率的な処理方法を開発している¹。本研究のターゲットとして使用済 PUREX 溶媒があり、TBP やその代表的な劣化物である DBP と錯形成した U や Pu の効率的な回収方法の確立が目的の一つである。我々は既にイミノ二酢酸基を有する吸着材が、目標とする金属イオンを溶媒から直接回収するのに有望であることを、Zr を U, Pu の模擬物質として装荷した廃溶媒からの回収試験により確かめている。一方で水溶液中からの回収とは異なる分配挙動を示すことから、詳細な吸着機構を解明する必要がある。本研究では、硝酸水溶液または模擬使用済溶媒に装荷した Zr を回収した吸着材について、Zr-K 吸収端 EXAFS 実験を行い、吸着機構の解明を試みた。

2. 実験内容

1 M 硝酸溶液または模擬廃 PUREX 溶媒(1 M TBP + 150 mM DBP/ nDD)に 10 mM の Zr を装荷し、多孔質シリカ表面にポリマーを被覆し、グラフト重合によりイミノ二酢酸基を導入した吸着材と接触させて、室温にて 1~300 分振とうした。これを乾燥させたものを試料とした。Zr-K 吸収端 EXAFS 測定は BL11S2 にて実施した。吸着材中における Zr の吸着量は、マイクロ PIXE 分析により定量した。

3. 結果および考察

水溶液中からの Zr 吸着量は振とう開始と共に速やかに上昇し、吸着量は 30 分で平衡に達した。平衡吸着量は約 20 mg/g-resin であった。一方溶媒から吸着させたものは、振とう時間と共に吸着量が上昇し、300 分の振とうでも平衡を確認出来なかった。300 分における吸着量は約 1.5 mg/g-resin であった。

水溶液系及び溶媒系から Zr を回収した吸着材の EXAFS から得られた動径構造関数を Fig. 1, 2 にそれぞれ示す。水溶液系と溶媒系とで明確に Zr 周りの最近接構造が異なり、フィッティング解析の結果、水溶液系では硝酸が Zr に配位した状態で、イミノ二酢酸に配位しているのに対し、溶媒系では Zr がイミノ二酢酸基中のカルボニル酸素に直接配位していることが示唆された。2つの系における吸着量や速度の差には、吸着機構の差が寄与している可能性がある。

4. 参考文献

1. S. Watanabe et al., Progress in Nuclear Energy, 117 (2019) 103090.

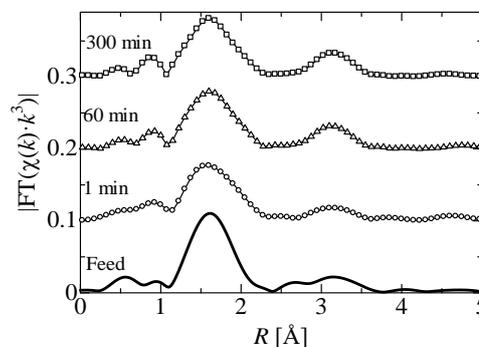


Fig. 1 水溶液系の動径構造関数

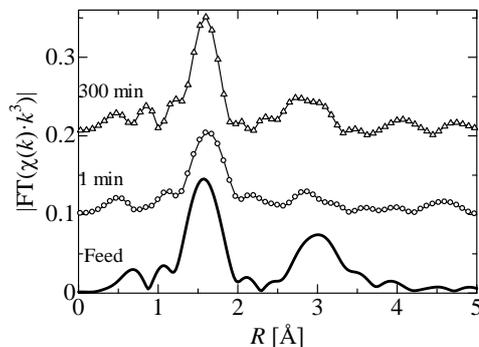


Fig. 2 溶媒系の動径構造関数