

NTA アミド系吸着材に吸着された希土類の存在状態解明

竹内 将隆¹、岡田 諒¹、松浦 治明¹、渡部 創²¹東京都市大学、²日本原子力研究開発機構

キーワード: 錯体構造, EXAFS, イットリウム, 吸着材

1. 背景と研究目的

原子力機構では、高レベル放射性廃液からの Minor Actinides (MA)回収技術として、抽出クロマトグラフィー法の開発を進めている。本技術で有望な Hexa Octyl Nitrilo Triacetic Amide (HONTA)抽出剤を含浸させた吸着材は、MA 分離回収のみならず、希土類元素の相互分離にも適用可能である。特に希少金属である Y の他の希土類元素からの分離が可能であることが明らかとなり、現在 Y 単離プロセスの開発を進めている。今までに本吸着材に保持された希土類元素周りの構造解析を進めてきているが、Y に関する測定は実施していない。本研究では、吸着材内部に形成される Y 周りの局所構造の酸濃度依存性を、Y-K 吸収端 EXAFS により調査し、Y と他の希土類元素との分離メカニズムを明らかにすることを目的とした。

2. 実験内容

H2EHNTA 抽出剤を 20 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)に含浸させたものを吸着材とした。これに 25 mM の Y を含む 0.001, 0.01, 0.1, 1, 10 M HNO₃ 溶液を、固液重量比 1:10 で接触させて 3 時間振とうし、Y を保持させたものを測定対象とした。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。Y-K 吸収 EXAFS 測定は、AichiSR の BL11S2 ビームラインを用いた透過法による 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 WinXAS ver.2.3 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、求めた Y の構造関数の硝酸濃度依存性を Fig.1 に示す。Y に関して硝酸濃度 0.001,0.01 M ではほぼ同様の構造関数が得られたが、高硝酸濃度である 1,10 M という条件のときは、低硝酸濃度である 0.01 ~0.1 M と比べて少し異なる構造関数が得られた。よって、硝酸濃度により吸着形態が変化していると考え、フィッテイング解析を行った結果 Eu や Nd などと比較して Y 周りの酸素配位数が高くなった。Y 一酸素間距離については硝酸濃度依存性がほとんどみられなかった。Eu や Nd の場合だと硝酸濃度の増加に伴い吸着量は減少していったが、Y は 0.1 M が一番吸着量の極小を持っていた点から、他の希土類とは異なり、高硝酸側と低硝酸側で大きな構造変化の起きている可能性があり、今後さらなる解析を進める予定である。

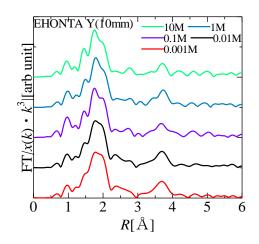


Fig. 1 構造関数の硝酸濃度依存性