



ADAAM 吸着材中の窒素の存在状態解明

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：錯体構造, XANES, 窒素, 吸着材

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ー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リロトリアセトアミド)抽出剤、Am/Cm 相互分離に ADAAM(アルキルジアミドアミン)抽出剤を用いるプロセスが現在検討されており、現在は ADAAM 抽出剤に保持させた希土類元素周りの構造解析を進めている。今回の実験では希土類元素を保持させる前と保持させた後の 4 種類の SiO₂-P 吸着材を対象とした窒素の K-edge XANES により系統的に調査し、ADAAM 吸着材中における窒素の化学的存在状態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

ADAAM 抽出剤 (Ⓐ ADAAM(EH,N-(EH))、Ⓑ ADAAM(EH,N(nOct))、Ⓒ ADAAM(Oct,N(Oct))、Ⓓ ADAAM(EH,N(n-bu))) を 33.3 wt% となるようにそれぞれ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 La を含む 0.1、1、3 M の HNO₃ 溶液を、固液重量比 1:20 で接触させて 3 時間振とうし、La を保持させたものを測定対象とした。固液分離し、乾燥させた後にこれらの粉末を試料とした。軟エックス線領域である N-K-edge 測定は、保持させる前の吸着材 4 種と最も吸着が大きい条件である硝酸濃度 1 M のときのⒶで作製した試料を AichiSR の BL1N2 ビームラインを用いた蛍光法により実施した。

3. 結果および考察

実験によって得られた各 ADAAM 吸着材中の窒素のスペクトルを Fig. 1 に示す。Fig. 1 から希土類元素を保持させる前の段階から抽出剤の分子構造よりスペクトルの形状がわずかに異なることが分かる。また、Ⓐの吸着材での La を保持させる前と硝酸濃度 1M で La を保持させた後の窒素のスペクトルを比較すると、吸着後の方がピークが大きくなる部分の存在が確認できた。ここから、希土類の吸着機構として、硝酸イオンが関与していることが示唆される。金属イオン近傍に着目した硬 X 線 EXAFS の結果からも抽出剤の構造による依存性は確認できたため、抽出剤により吸着メカニズムは異なり、吸着性能は異なることが示唆される。今回の実験で吸着前後での違いや抽出剤によるスペクトルの違いを確認できたため、今後、硬 X 線 EXAFS 測定による結果と比較して抽出剤による変化と硝酸濃度による変化から構造モデルの検討をしていく。

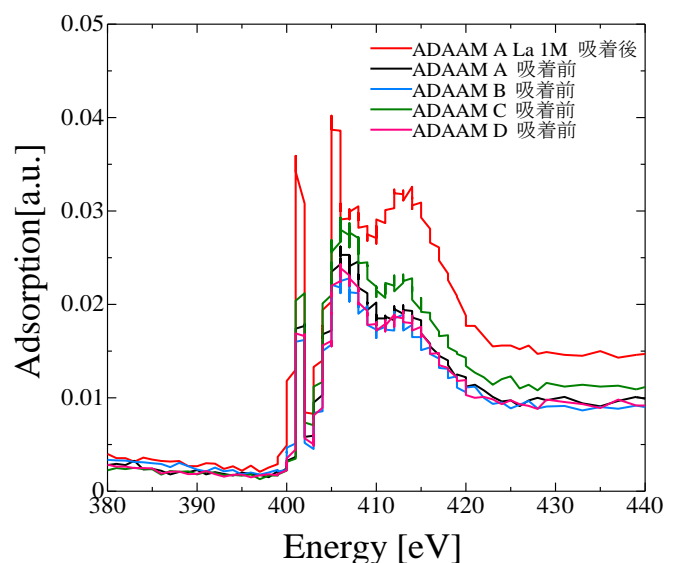


Fig.1 各種 ADAAM 吸着材の窒素の XANES