



粒状 HONTA 吸着材に吸着された希土類の局所構造解析

竹内 将隆¹、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, EXAFS, 希土類, HONTA

1. 背景と研究目的

高レベル放射性廃液からのマイナーアクチノイド(MA)分離回収のため、抽出クロマトグラフィ技術が開発されている。その工程では高レベル放射性廃液から希土類と MA を群分離した後に MA と希土類の相互分離に用いる抽出剤としてヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド(HONTA)抽出剤を候補の一つとしている。これまで開発された吸着材では希土類元素の吸着、溶離速度が低いことが課題であり、より高い吸着性能が期待される大粒径の吸着材に含浸させた HONTA に吸着された希土類元素の錯体構造の硝酸濃度依存性を、本課題で EXAFS により調査した。

2. 実験内容

ゾルゲル法で調製した多孔質シリカ粒子に架橋度 15% のスチレンジビニルベンゼンポリマーを被覆し、抽出剤を 33 wt% となるように含浸させたものを吸着材とした。硝酸濃度をパラメータとして、吸着材と Eu、Nd をそれぞれ 10 mM 含む硝酸溶液 (0.001 M, 0.01 M, 0.1 M, 1 M, 10 M) を固液比 1 : 10 の割合で 3 時間または 24 時間振とうし、固液分離した後に、乾燥させた吸着材を試料とした。それらの粉末を金属性のワッシャーの丸孔に充填しカプトンで両面を閉じたものを EXAFS 測定した。Eu、Nd の L_{III} 吸収端を用いステップスキャン透過法により測定した。得られたスペクトルは、XAFS 解析プログラム WinXAS2.3、Athena により解析した。

3. 結果および考察

先行研究で使用した富士シリシア製の吸着材 HONTA を高エネルギー加速器研究機構で測定した結果と、新しく提供された大粒径の吸着材 HONTA を使用した試料を本課題により測定し得られた結果の吸収端の立ち上がりの大きさを比較したものを図 1 に示す。一般的な傾向として高硝酸濃度では低硝酸濃度と比べて吸収端の立ち上がりの大きさが小さくなった。しかし、富士シリシア製のときにみられた Nd と Eu の吸着量の差は今回ほとんど観測されなくなった。フィッティング解析により得られた希土類周りの酸素配位数を比較した図 2 によれば、大粒径の Eu と小粒径の Eu で比較したところ、酸素配位数に硝酸濃度依存性に差が生まれたことから、吸着率は粒径の大きさにより影響を受け、特に高硝酸濃度領域で粒径が大きいとその差が顕著になる傾向にあることが分かった。

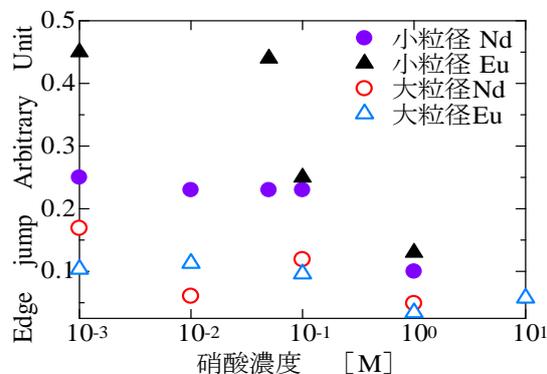


図 1 吸着材の粒径による吸収端の立ち上がり大きさの硝酸濃度依存性

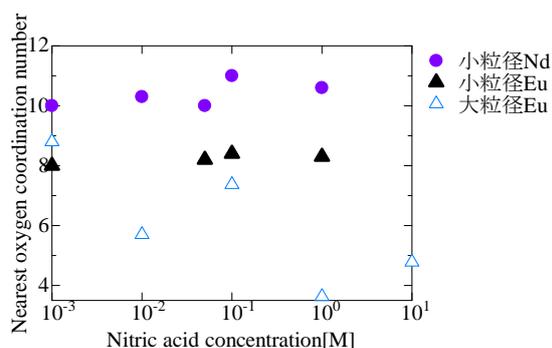


図 2 フィッティング解析によって得られた希土類周りの酸素配位数の硝酸濃度依存性