



NTA アミド系吸着材に吸着された希土類元素の構造解析

土屋 巽¹、岡田 諒¹、松浦 治明¹、渡部 創²、佐野 雄一²

¹ 東京都市大学、² 日本原子力研究開発機構

キーワード：高レベル放射性廃液、抽出クロマトグラフィ、HONTA、TAMIA、EXAFS、Y

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)分離のため、抽出クロマトグラフィ技術が開発されている。これまで開発された吸着材では希土類元素の吸着が低いのが課題であった。粒径の大きさ及び抽出剤の側鎖構造が吸着性能に影響を及ぼすと考えられ、詳細な反応機構を把握する必要がある。本研究では、MA/RE 相互分離プロセスに有効な、ヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド(HONTA)吸着材及び TAMIA 吸着材に形成される錯体構造から、粒径及び側鎖構造による影響を調査した。また、先行研究による希土類単体系に加え、より実際のプロセスに近い条件として希土類共存系での測定も実施した。

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 5 wt%となるように含浸させたものを吸着材とした。抽出剤の構造は HONTA が全て直鎖のオクチル基を持つのに対し、TAMIA は 4 つオクチル基、残り 2 つはエチルヘキシル基をもつ。吸着材の粒径は 2 mm、50 μm の 2 種であり、前者が大粒径である。硝酸濃度をパラメータとして、吸着材と Eu、Nd、Sm、Y をそれぞれ含む硝酸溶液を、固液比 1 : 10 の割合で 3 時間振とうし、固液分離した後、乾燥させた吸着材を EXAFS 測定した。吸着試験後、固液分離した HONTA、TAMIA 抽出剤を含浸させた吸着材中の錯体構造を EXAFS 測定により得られた動径構造関数を解析し、フィッティングにより目的希土類元素回りの最近接酸素配位数、最近接酸素距離を導いた。あいちシンクロトロン光センター BL5S1 では Y の K 吸収端で行った。

3. 結果および考察

図 1 に得られた結果の一部である TAMIA 抽出剤を用いた吸着材について得られた測定結果を示す。本測定では希土類を Nd, Sm, Eu, Y を混合させた場合と Y 単独で含む溶液、そして硝酸濃度を 0.001 M、0.1 M の 2 種類、HONTA、TAMIA 吸着材の粒径をそれぞれ大粒径と小粒径の 2 種類とし Y のみに着目して評価した。動径構造関数からは希土類混合含有の場合と単独で含まれる場合に局所構造の大きな違いは見られなかった。また硝酸濃度による局所構造の相違も小粒径では見られなかった。当初最も期待していた抽出剤の側鎖構造による希土類の配位構造についても、さほど大きな相違は見いだせなかった一方、フィッティングを行うことにより大粒径と小粒径の比較では第一近傍

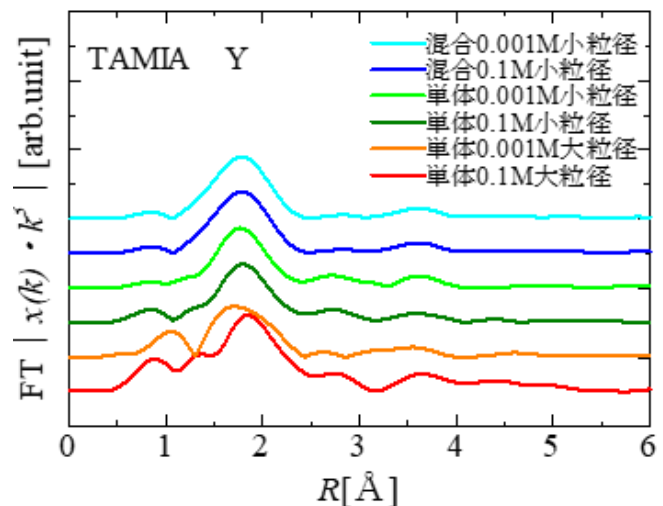


図 1 TAMIA 吸着材中イットリウムの EXAFS 構造関数

ピークの距離に違いのあらわれた場合があり、今後他の希土類による結果も含めて検討することとした。