



MA/Ln 分離用吸着材中における吸着種の構造解析

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ー、HONTA、TAMIA、EXAFS、Nd

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ー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/Ln 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2つのオクチル基がエチルヘキシル基に置換されている TAMIA 吸着材で形成される希土類周りの錯体構造から、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 1mm、2mm、50 μm の3種であり、前から新大粒径、大粒径、小粒径である。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、固液分離した後に、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周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 を K 吸収端、Nd、Eu、Sm を L₃ 吸収端で測定した。

3. 結果および考察

図1に HONTA 抽出剤を用いた吸着材について得られた測定結果の一部を示す。本測定では希土類 Nd、Sm、Eu、Y を単独で含む溶液の硝酸濃度を 0.001 M、0.01 M、0.1 M、1 M、10 M の5種類、HONTA 吸着材の粒径を新大粒径とし硝酸濃度依存性に着目して評価した。図1より動径構造関数からは硝酸濃度を変化させても、局所構造の大きな違いは観測されなかった。しかし元素ごとの比較により明確なランタノイド収縮が見られた。フィッティングを行うことにより配位数を数値化し比較したところ、硝酸濃度による影響は特に確認はできなかった。今後他の吸着材による結果も含めて検討することとする。

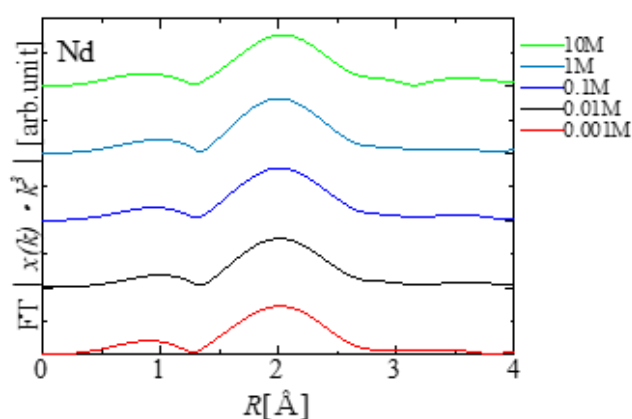


図1 HONTA 吸着材中 Nd の EXAFS 構造関数