



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、TOD2EHNTA、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)分離に際し、抽出クロマトグラフィー技術が開発されているが、これまで開発された吸着材では希土類元素の吸着能力が低いのが課題であった。吸着材の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テトラオクチルジエチルヘキシルニトリロトリアセトアミド (TOD2EHNTA (旧称 TAMIA と同一)) 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独での吸着結果に加え、より実際のプロセスに近い条件として希土類を共存させた場合の測定も実施した。

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。吸着材の粒径は 1mm、2 mm、50 μm の 3 種であり、前から Ver3、Ver2、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、TOD2EHNTA 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 L_3 吸収端で測定した。

3. 結果および考察

図 1 に得られた成果の一部である HONTA と TOD2EHNTA 吸着材について得られた測定結果を示す。この結果は希土類を Nd, Sm, Eu, を単独で含む溶液を硝酸濃度を 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 Ver2 とし側鎖による影響に着目して評価したものである。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が、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、TOD2EHNTA の方が HONTA より、全希土類で配位数が大きくなるという結果が得られた。NTA アミドが 1 分子配位の場合のエネルギー状態計算結果から、酸素配位数が 8 配位より 9 配位に近づくると安定化するという結果も勘案して、今後は吸着率との相関性を明らかにしていく予定である。

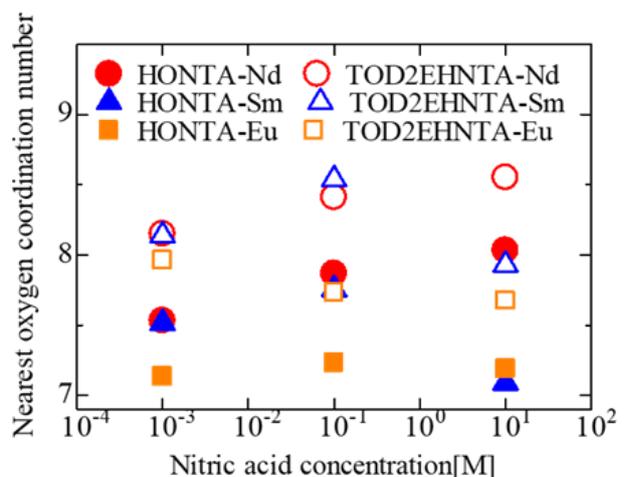


図 1 側鎖の異なる吸着材の配位数比較