



NTA アミド系吸着材に吸着されたパラジウム元素の構造解析

藤田 惇ノ介¹、箕輪 一希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、EXAFS、パラジウム

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)吸着材にて形成される錯体構造から、側鎖構造による影響を調査した。また、プロセスにより近い条件としてパラジウムと希土類共存系を対象とした測定も実施した。

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 HONTA 吸着材とした。抽出剤の分子構造は全て直鎖のオクチル基を持つ。硝酸濃度をパラメータとして、吸着材と Pd 単独あるいは、Pd と Nd、Sm、Nd をそれぞれ共存させた硝酸溶液を作製した。1 M では硝酸溶液に溶解しきらない場合があったため、濃硝酸を用いた 16 M と、熱を加え硝酸濃度を高めた 2 M の硝酸溶液も作製した。固液比 1 : 10 の割合で 180rpm 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 測定に供した。吸着試験後、固液分離した HONTA 抽出剤を含浸させた吸着材中のパラジウム周辺の錯体構造を EXAFS 測定により得られた構造関数を解析し、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 BL11S2 では Pd の K 吸収端で透過法にて行った。

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を示す。本測定では Pd 単独で含む溶液と Pd を Nd, Sm, Eu, の希土類を混合させた場合、そして硝酸濃度を 1M にて行い、単独で含む溶液のみ溶解させるため 2 M、16 M の合計 3 種類、HONTA 吸着材の 1 種類で Pd のみに着目して評価した。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違いがそれぞれ見受けられた。また局所構造の硝酸濃度依存性は 2M で大きく異なっており、熱を加えた影響により原液溶液中の Pd の化学形態が変化した可能性がある。希土類共存の局所構造が異なっている理由として、用いたのが Pd の試薬ではなく市販の Pd 標準液だった為、標準液に含まれる塩化物イオンが錯体構造に影響を及ぼしたと考えられるため、今後は原液の調整方法を改善しより単元系と同等に比較しやすい試料を準備して改めて臨むこととした。

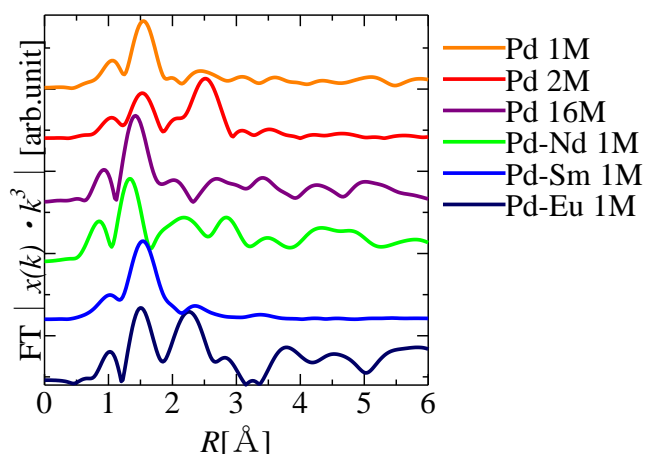


図 1 HONTA 吸着材に吸着されたパラジウム周囲の EXAFS 構造関数