



# 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<sup>1</sup>、箕輪 一希<sup>1</sup>、松浦 治明<sup>1</sup>、渡部 創<sup>2</sup>、佐野 雄一<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 東京都市大学、<sup>2</sup> 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, Pd, Sm, Nd, Eu

## 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)吸着材形成される錯体構造から、プロセスに近い条件として希土類とパラジウム共存系での測定を実施した。

## 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。抽出剤の構造は全て直鎖のオクチル基を持つヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド(HONTA)である。硝酸濃度をパラメータとして、吸着材と Pd と Nd, Sm, Nd をそれぞれ共存させた硝酸溶液を作製した。硝酸濃度は 1, 0.5, 0.1 M の 3 パラメータにて作製した。固液比 1 : 10 の割合で 180 rpm 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 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 BL11S2 では Pd の K 吸収端で行った。

## 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 1, 0.5, 0.1 M の 3 種類、HONTA 吸着材の 1 種類で Pd のみに着目して評価した。図 1 に示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る。希土類共存の局所構造が異なっている理由として、イオン半径の差が考えられる。Pd のイオン半径が 0.62、希土類である Nd, Sm, Eu がそれぞれ 0.98, 0.96, 0.95 Å と希土類元素と比べ Pd のイオン半径は小さく、希土類のよりも近い位置で HONTA に配位する

ため、Pd より遠くに配位する希土類元素に吸着を阻害され配位が単元と比較し異なる構造関数になったと考えられる。今後フィッティングを行うことで得られる第一近傍ピークの距離のデータと、他の希土類共存による結果も含め、配位構造の変化を検討することとした。

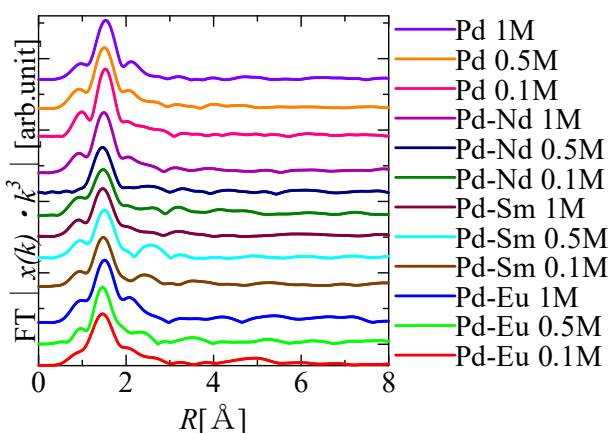


図 1 HONTA 吸着材中パラジウムの EXAFS 構造関数