



Zr-Eu 共存した場合における HONTA 吸着材中 Zr の構造解析

山元 公真¹、箕輪 一希¹、松浦 治明¹、渡部 創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、Zr、Eu

1. 背景と研究目的

ヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド(以下 HONTA) 吸着材を用いたマイナーアクチニドと希土類の相互分離工程にて、前工程の溶媒抽出で回収しきれない核分裂生成物が希土類と共存する可能性がある。近年の研究ではそのうちのひとつである Zr が溶離工程を経ても吸着材中に残留することが示唆されている。そこで、本研究では EXAFS を用いて溶離前後における Zr の局所構造を解析し、Zr が HONTA へ残留する要因を検討した。

2. 実験

ゾルゲル法で調製した多孔質シリカ粒子を担体として、スチレンジビニルベンゼンポリマーを架橋度 15 % の条件にて被覆しヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド抽出剤を 33 wt% となるように含浸させたものを吸着材とし、以下の観点から試験を実施した。

硝酸濃度 0.1 M として金属濃度を Zr:8.4 mM、Eu:12.7 mM(以下 case1)で混合したもの、Zr:2.7 mM、Eu:5.3 mM(以下 case2)および Zr:9.6 mM、Eu:7.3 mM(以下 case3)の溶液をそれぞれ作製した。それらの溶液と吸着材を固液比 1 : 10 の割合になるよう遠沈管に入れ、振とう時間 180 min 振とうした後固液分離し乾燥させ、さらにその一部を分取し吸着試験と同様の固液比で 0.1M の硝酸と 180 min 振とうし、溶離試験を行った。以上の試験で回収した固相について XAFS 測定を行った。

3. 結果および考察

図 1 に case1、図 2 に case2、図 3 に case3 における Zr の溶離前後変化をそれぞれ示した。case1 においては Zr の溶離前後では Zr の原子間距離及び第一近傍のピーク強度に変化はなかった。しかし case2 における Zr の溶離前後では溶離前より溶離後の方が第一近傍の原子間距離が短縮し、ピーク強度も小さくなった。図 3 の case3 でも Zr の溶離前後に、原子間距離およびピーク強度に変化が生じた。このことから Zr が Eu より濃度が高い場合ピーク強度及び第一近傍の原子間距離に変化が生じるが Zr が Eu よりも濃度が低い場合は影響が少ないことが解った。

以上の結果と比較のため、Eu 近傍についても同じ試料を同様の評価をしたが、Zr と Eu の濃度比に関わらず、Eu 近傍は溶離前後の変化がほとんど見られなかった。これらのことから Eu の吸着形態は Zr によって影響を受けないが、Zr の吸着形態は Eu の共存により影響を受けることが分かり、今後吸着率変化との構造の相関性について明らかにしていく予定である。

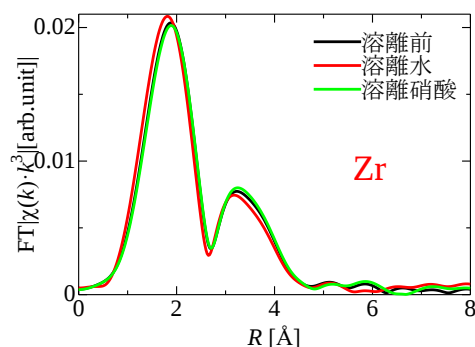


図 1 Zr9.6Eu7.3 における Zr の溶離前後変化

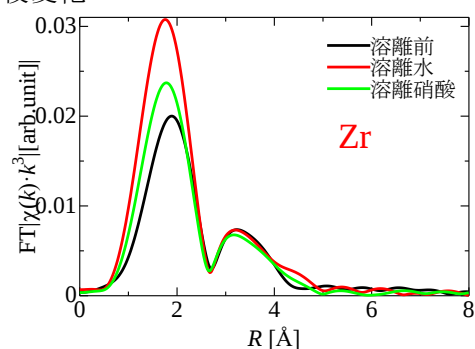


図 2 Zr8.4Eu12.7 における Zr の溶離前後変化

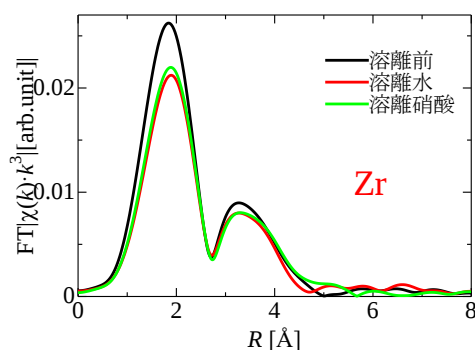


図 3 Zr2.7Eu5.3 における Zr の溶離前後変化