



NTA系吸着材に吸着された希土類、パラジウムの存在状態解明

岡田 諒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：錯体構造、EXAFS、セリウム、ユウロピウム

1. 背景と研究目的

現在、高レベル放射性廃液からの MA(マイナーアクチノイド)回収技術として、抽出クロマトグラフィ法の開発が進められている。本技術では、群分離に DGA(ジグリコールアミド)系抽出剤、相互分離 NTA(ニトリロトリアセトアミド)系抽出剤を用いるプロセスが考えられている。本研究では TODGA 抽出剤、TEHDGA 抽出剤、HONTA 抽出剤に保持させた希土類元素周りの構造解析を進めている。今回の実験では HONTA 溶媒中に形成される Ce、Eu 周りの局所構造の酸濃度依存性を Ce、Eu-L3 吸収端 EXAFS により系統的に調査することで HONTA を溶媒抽出として用いた場合の Ce、Eu の分離メカニズムを明らかにすることを目的として実験を行った。

2. 実験内容

10 mM の Ce を含む 0.01M、0.05 M、0.1 M、1M、3M の HNO₃ 溶液を溶媒抽出法により HONTA 溶媒に Ce を保持させたものを測定対象とした。Eu についても硝酸濃度 0.01M、0.1M、3M の場合で保持させたものを測定対象とした。これらの溶媒をチャックシールに入れ測定に供した。Ce、Eu-L3 吸収端 EXAFS 測定は、蛍光法による 7 素子 SDD 検出器を用いて実施した。得られたスペクトルは、XAFS 解析プログラム WinXAS2.3 により解析し、フィッティングには非経験論的多重散乱計算コード FEFF8.0 で算出した後方散乱パラメータを用いた。

3. 結果および考察

実験によって得られたスペクトルを解析し、求めた Ce の構造関数の硝酸濃度依存性を Fig. 1 に示す。Ce に関して硝酸濃度 0.01M、0.05 M、0.1 M では同様の構造関数が得られたが、高硝酸濃度である 1M、3M という条件のときは、低硝酸濃度である 0.01M~0.1M と比べて異なる構造関数が得られた。よって、硝酸濃度により配位形態が変化しているといえる。最近接酸素配位数、最近接希土類-酸素距離が大きく変化していることが予想されるため、フィッティング解析を行い、より詳細な構造の変化を調査していく必要がある。また Eu に関して、吸着材系の場合と同様に硝酸濃度の増加に伴い吸着量は減少していくことが確認できた。さらに吸着材系での構造関数と溶媒系での構造関数を比較したとき、顕著な変化は見られず、同様の結果であることが分かった。よって、フィッティング解析を行い、より詳細な構造の変化を調査することで、吸着材系との比較を進め、溶媒抽出法と抽出クロマトグラフィ法による吸着形態の違いを今後は精査していく必要がある。

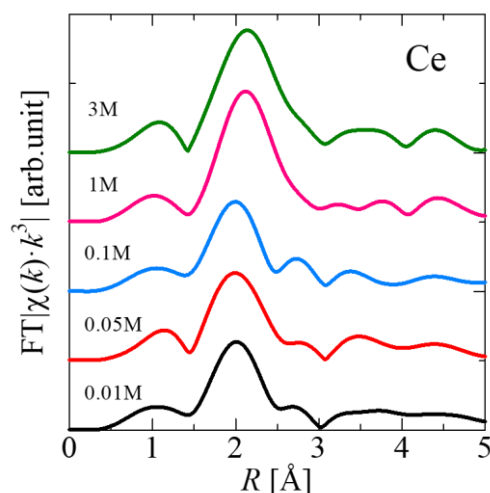


Fig1 構造関数の硝酸濃度依存性