

アミド酸型ポリアミノカルボン酸錯化剤の f 元素との錯形成と錯体構造に関する研究

Coordination and structural studies on complexes of f-block elements and amide-type-polyaminocarboxylic acid ligands

*中瀬 正彦¹, 青山友花子¹, 立岡壮太郎¹, 森田圭介², 佐々木祐二², 竹下健二¹

¹東工大先導原研, ²原子力機構

先進湿式再処理ではマイナーアクチノイド(MA)とランタノイド(Ln)の分離が求められる。錯化剤と配位子を組み合わせた多元系抽出による高度分離のための錯化剤について検討結果を報告する。

キーワード: 錯化剤, f 元素分離, 再処理

1. 緒言 高燃焼度化, 使用済み MOX 燃料によるガラス固化体の発熱量増大に対応するため, 次世代再処理では MA/Ln が必要となる。キレート剤と配位子を組み合わせた多元系抽出は有望視されているが, 抽出系が

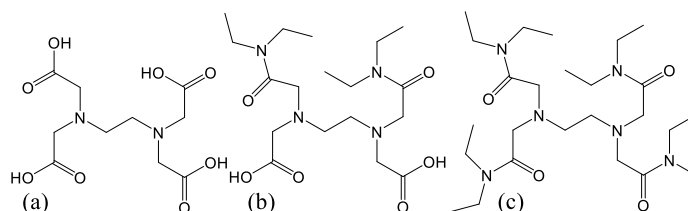


Fig.1 (1)EDTA, (2)EDTA-Bisamide, (3)EDTA-Amide

複雑であり, メカニズムや最適な条件等に関する検討は十分ではない。Fig.1 に例を示すように, 高い酸濃度で利用できるようにポリアミノカルボン酸をアミド化した錯化剤に注目している。種々の錯化剤について 14 種のランタノイドの抽出に及ぼす抽出条件の影響を調査し, 溶液中の錯体構造も併せて考察した。

2. 実験方法 溶媒抽出条件を Table.1 に示す。所定の濃度で TODGA を溶解させた有機相に対し金属イオンを含有する等体積の水相を 25°C, 20 分振盪して抽出を行った。相分離後, 水相を希釈して ICP-MS により定量分析して分配比を導出した。

Table. 1 Extraction condition

Phase	Media/Metal	Ligand	[M]
Aqueous	HNO ₃ = 0.1 – 6 M	EDTA	0 - 0.5
	14 Ln, 2 ppm each	-Amide	
Organic	<i>n</i> -dodecane	TODGA	0.01 - 1

3. 結果と議論 Fig.2 に TODGA と EDTA-Amide によるランタノイド 14 種一括抽出実験結果の例を示す。TODGA 単独では既報と同様に重希土ほど分配比が高く, 分配比の差が小さくなる傾向が確認できた。更に EDTA-Amide が水相に加わると, 重希土は分配比が大きく低下し Er, Ho 付近で極大値を持ち, 軽希土にかけて低下する傾向が得られた。更に EDTA-amide 濃度を高めると錯化剤の効果で分配比が全体的に低下するものの, 依然として特定 Ln のイオン認識性が確認された。配位子濃度, 錯化剤濃度, 硝酸濃度を変えた系統的な抽出試験により, TODGA と EDTA-Amide を用いて特定 Ln の選択性を発現させるには酸濃度を 1M 程度まで低く, 強力に Ln と錯形成する TODGA 濃度も低く抑えた上で, EDTA-Amide 濃度を全体の分配比が低くなりすぎない程度で調整すればよいことが分かった。また用いる錯化剤や条件により分配比のパターンが様々に変化しうることも分かった。発表では放射光 XAFS 実験結果等により抽出と錯体構造との相関についても考察を試みる。

4. 謝辞 日本学術振興会科研費挑戦的研究(萌芽)(18K19043)等で推進している。

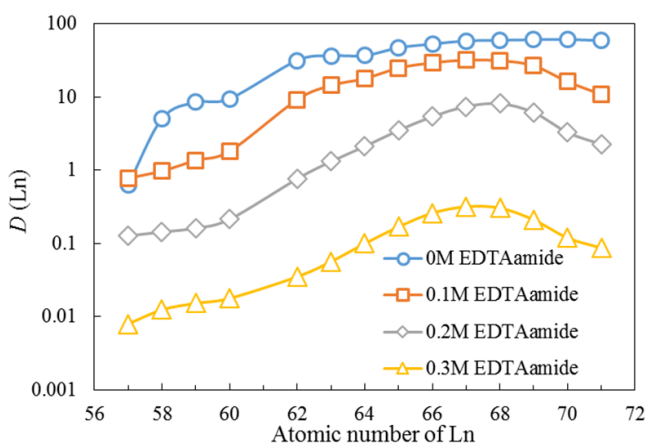


Fig. 2 Extraction trend of 14 Lns by TODGA/EDTA-Amide system (TODGA = 0.1 M, EDTA-Amide 0 – 0.3 M, HNO₃ = 3 M)

*Masahiko Nakase¹, Yukako Aoyama¹, Sotaro Tachioka¹, Keisuke

Morita², Yuji Sasaki² and Kenji Takeshita³. ¹Tokyo Institute of Technology, ²Japan Atomic Energy Agency.