

合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発 (15) HONTA 吸着材に吸着された希土類に対する共存元素の構造学的影響

Hybrid Process Combining Solvent Extraction and Low Pressure Loss Extraction Chromatography
for a Reasonable MA Recovery

(15) Structural effect on rare earths by coexisting elements in HONTA adsorbent

*箕輪 一希¹、藤田 惇ノ介¹、松浦 治明¹、渡部 創²、佐野 雄一²

¹ 東京都市大, ² JAEA

抄録：溶媒抽出および抽出クロマトグラフィ法を組み合わせたマイナーアクチニドを分離する方法の開発を進める一連の研究で、プロセス上流からもたらされる希土類、MA に共存する Mo, Zr, Pd の吸着に対する影響を評価するために、HONTA 吸着材に共吸着された各々の元素に着目した広域 X 線微細構造解析を行ったところ、希土類の近傍は Zr 等の元素共存により局所構造に対する影響はほとんど見られない一方、Zr 等の局所構造は共存希土類により影響を受け、より吸着材との相関距離が短縮した。

キーワード：抽出クロマトグラフィ, HONTA, 希土類, ジルコニウム, 広域 X 線吸収微細構造

1. 緒言

使用済み核燃料に含まれる MA はそれから発生する強い放射線と崩壊熱の原因となり、長期的な視野に立てば安定的な放射性廃棄物処分を考える上で大きな障害となりうる。その MA を回収する手段として従来から行われている溶媒抽出法と開発中の抽出クロマトグラフィ法を組み合わせるハイブリッド型プロセスが検討され、種々の成果を挙げてきた[1]。本研究では上流の TBP を用いた溶媒抽出群分離プロセスを経ても混在する Mo,Zr,Pd 等の核分裂生成物が下流の抽出クロマトグラフィ法による MA と希土類の相互分離に対する影響を評価するため、NTA アミド抽出剤の一つ、ヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド (HONTA) 抽出剤を担持した吸着材を用い吸着試験を実施し、それぞれの元素の視点からその吸着機構の検討を試みた。

2. 実験

ゾルゲル法で調製した多孔質シリカ粒子をそれぞれ担体として、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 HONTA 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。共存効果の比較には硝酸濃度は 0.1 M に固定し、吸着材と Ln(III) (Nd, Sm, Eu) および金属元素(Zr, Mo, Pd)のそれぞれ一種類を 1:1 のモル比で 20 mM になるように混合させた吸着溶液を、固液比 1 : 10 の割合で 3 時間振とうした後に、固液分離し乾燥させた。固相部分については SPring-8 BL22XU、KEK PF BL27B、あいち SR BL11S2 にて EXAFS 測定を行い、錯体構造の評価を、液相部分については芝浦工業大学の ICP-OES を用いて吸着率評価を行った。

3. 結果と考察

希土類も吸着する 0.1 M 硝酸濃度における吸着量を単元素の場合と比較すると、希土類、Zr, Mo, Pd 双方で吸着量が低下し、お互いが吸着サイトを潰し合っている様子が示唆される。得られた EXAFS 構造関数の第一近傍相関をフィッティングにより構造パラメータを取得し比較すると、希土類の方が単元素と比較しての第一近傍元素との距離、および第一近傍元素の配位数の変化があまりみられず、むしろ、共存元素である Zr や Pd の方が、第一近傍との距離が共存により短縮し、配位数も低下する傾向が見られた (Fig.1 参照)。溶質を含まない 0.1 M 硝酸で洗浄した後の吸着材をさらに EXAFS 測定したところ、希土類の一部が溶離し構造関数が単元素の場合に類似することより、共存元素は希土類の吸着溶離挙動にはあまり影響を及ぼさないものの、吸着材の繰り返し使用によってその元素の吸着が蓄積し効率を低下させる恐れのあることから、なるべく上流のプロセスにて除いておくことが望ましいことが分かった。講演では荷電粒子誘起発光分光による Eu 含有試料を対象とした評価結果も合わせ、共存元素による希土類の吸着溶離の妨害機構について解説する。

謝辞

本研究成果は令和 3 年度文科省 国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業「合理的な MA 回収工程の構築に向けた溶媒抽出／低圧損抽出クロマトグラフィを組み合わせたハイブリッド型プロセスの開発」による成果である

参考文献

[1] 佐野雄一他、2022 年日本原子力学会秋の大会

*Kazuki Minowa¹, Junnosuke Fujita¹, Haruaki Matsuura¹, Sou Watanabe², Yuichi Sano²

¹Tokyo City Univ., ²JAEA

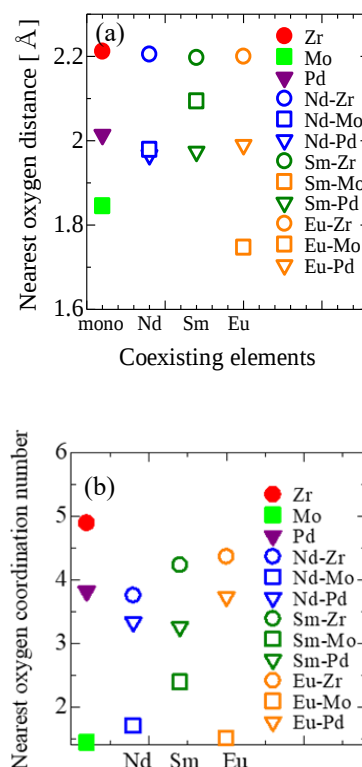


Fig.1 Zr,Mo,Pd の第一近傍元素との距離および配位数