



HDEHP 吸着材中の希土類錯体構造解析

渡部 創¹, 新井 剛²

¹日本原子力研究開発機構、²芝浦工業大学

キーワード：HDEHP 吸着材, Nd, DTPA, XAFS

1. 背景と研究目的

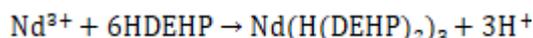
日本原子力研究開発機構では、使用済燃料再処理にて発生する高レベル放射性廃液からの3価マイナーアクチニド(MA)の回収方法として抽出クロマトグラフィ技術の開発を進めている。現在開発を進めているフローでは、2ステップのカラム操作によってMAを分離するものであり、1段目のカラムにCMPO含浸吸着材を、2段目のカラムでHDEHP含浸吸着材を用いる [1]。1段目の溶離液として錯形成剤であるDTPAを含む硝酸溶液を通液するため、2段目のカラムの供給液にMAや希土類元素と共にDTPAが共存する。本研究では、2段目のカラムの吸着工程において、DTPAが錯形成に与える影響を評価することを目的として、DTPAの有無が錯体構造に与える影響をNdのXAFSにより評価した。

2. 実験内容

HDEHPを含浸させた吸着材に、酸濃度0.3 Mの硝酸水溶液に10 mMのNdを溶解させたものを接触させ、Ndを吸着させた。ここで、DTPAの有無をパラメータとした。吸着材を自然乾燥させたものについて、Nd-L_{III}吸収端XAFS測定をAichiSR BL5S1ビームラインにて透過法を用いて実施した。比較のため、0.01 M硝酸溶液中において形成されるNd-DTPA錯体についても測定を行った。

3. 結果および考察

実験により得られた動径構造関数をFig. 1に示す。硝酸濃度0.3 Mの条件において、Ndは下記の式によってHDEHP吸着材への吸着が進行する。得られた動径構造関数の2Å付近のピークが最近接原子との相関であると考えられ、反応式通り酸素原子が6配位している構造でフィットすることが出来た。



硝酸溶液にDTPAを添加することによって、動径構造関数のピークが短距離側にシフトし、強度が大きくなった。Ndの配位にHDEHP以外の寄与があることが示唆される。フィッティングによって算出した配位数は約9とDTPAがない時と比較して大きくなり、最近接Nd-O間距離は約0.03Å短くなるのが分かった。これはNd-DTPA錯体とも異なる局所構造である。今後、得られた結果を基に構造モデルを推定し、プロセスへの影響の評価に反映させる。

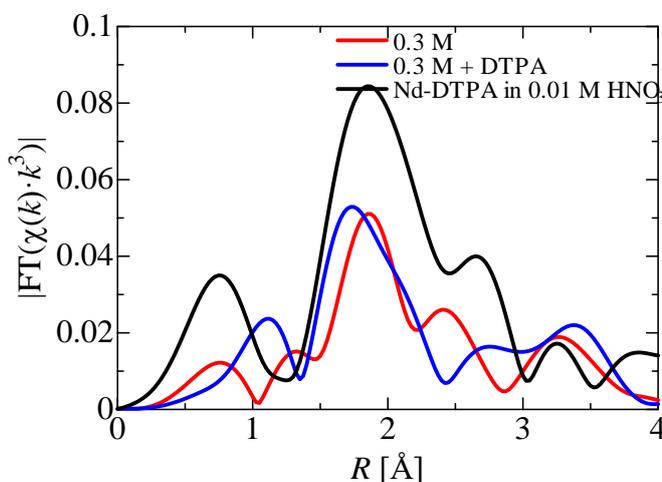


Fig. 1 Nd 錯体の動径構造関数

4. 参考文献

1. S. Watanabe et al., J. Radioanal. Nucl. Chem., 322, 1273 (2019).