

## 抽出クロマトグラフィ用吸着材中における錯体構造調査 Structural investigation on complexes inside adsorbent for the extraction chromatography

渡部 創<sup>1,\*</sup>, 佐野雄一, 安倍諒治<sup>2</sup>, 新井 剛<sup>2</sup>, 高木秀彰<sup>3</sup>, 清水伸隆<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 日本原子力研究開発機構, 〒319-1194 東海村村松 4-33

<sup>2</sup> 芝浦工業大学, 〒135-8548 江東区豊洲 3-7-5

<sup>3</sup> 放射光科学研究施設, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

Sou Watanabe<sup>1,\*</sup>, Yuichi Sano<sup>1</sup>, Ryoji Abe<sup>2</sup>, Tsuyoshi Arai<sup>2</sup>, Hideaki Takagi<sup>3</sup> and Nobutaka Shimizu<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Japan Atomic Energy Agency, 4-33 Muramatsu, Tokai-mura, 319-1194, Japan

<sup>2</sup> Shibaura Institute of Technology, 3-7-5 Toyosu, Koutouku, 135-8548, Japan

<sup>3</sup> Photon Factory, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

### 1 はじめに

放射性廃棄物の減容化、有害度低減のため、使用済核燃料からのマイナーアクチノイド(MA: Am, Cm)といった発熱性もしくは長半減期核種の分離・核変換技術の開発が注目されている。世界的には溶媒抽出法を中心とした MA 回収技術の開発が進められているが、我々は 2 次廃棄物量低減の観点から、抽出クロマトグラフィを用いた技術に着目し、実用化を目指した開発を行っている[1]。本技術では 2 段階のカラム処理によって高レベル放射性廃液中から MA を選択的に回収するものであり、予め高レベル放射性廃液より Mo, Zr を除去しておくことで、1 段階目のカラムの利用効率が向上することが明らかになった。そこで高い酸濃度の溶液から選択的に Mo, Zr を回収する手法として、HDEHP を含浸させた吸着材を用いた方法を考案した。本吸着材を充填したカラムは、Zr の吸着によって圧力損失が上昇した。これは第 3 相のような高次構造を持つ錯体の形成に起因して、吸着材中の細孔が閉塞したことが原因であると想定される。そこで本研究では、Zr と HDEHP が形成する錯体の構造や大きさを評価し、吸着材構造の最適化に反映させることを目的とした。

### 2 実験

多孔質シリカにスチレンジビニルベンゼンポリマーを被覆し、HDEHP を含浸させたものを吸着材として用いた。これに Zr を含む 3 mol/L の硝酸溶液を接触させ、Zr を吸着させた。Zr の濃度は 0.1 及び 0.25 mol/L とした。吸着材を固液分離し、カプトン膜で閉じたものを試料として、SAXS 実験を実施し、吸着材中における Zr の化学状態の評価を行った。実験は BL10C にて実施した。

### 3 結果および考察

図 1 に SAXS 実験によって得られた X 線散乱強度を示す。ここで、比較のため、HDEHP をドデカンで希釈した溶媒を用いて Zr を抽出した際に発生し

た懸濁相及びそれをろ過して得られたスラッジのスペクトルも合わせて示す。当初、Zr の抽出によってクラスターのようなものが溶媒抽出系及び吸着材系の両方に生成していることを想定していたが、本結果によって結晶性の錯体が形成していることが示唆された。HDEHP 吸着材を充填したカラムの差圧の上昇は、結晶性錯体の形成による流路もしくは吸着材細孔の閉塞によるものと考えられる。

現在吸着材及び溶媒抽出系の試料について EXAFS 実験等を通じた詳細な構造解析を実施しており、今後適切な溶解液を選定すると共に、吸着材の改良やプロセスの構築に反映させていく。

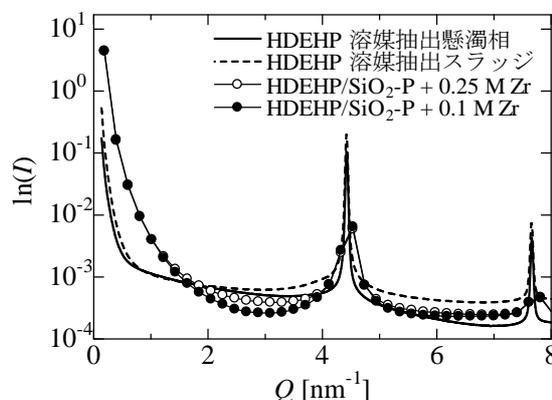


図 1 Zr を抽出した吸着材及び溶媒の X 線散乱強度

### 4 まとめ

Mo, Zr 除去のための HDEHP 吸着材の開発の一環として、吸着材内部に形成される錯体の評価を実施した。当初の想定とは異なり、結晶性の錯体の存在が明らかとなり、本結果は今後の研究開発方針の策定に反映された。

### 参考文献

[1] S. Watanabe, et al., Energy Procedia 7 (2011) 449-453.  
\* watanabe.sou@jaea.go.jp