

MA 回収用吸着材に吸着されたユウロピウムの EXAFS 構造解析

EXAFS analysis of europium in various adsorbents for MA recovery

*松浦 治明¹, 根津 篤², 大野 真平³, 新井 剛³, 渡部 創⁴, 佐野 雄一⁴, 竹内 正行⁴

¹東京都市大学, ²東京工業大学, ³芝浦工業大学, ⁴日本原子力研究開発機構

抽出クロマト法で用いられている CMPO-HDEHP 混合抽出剤の協同抽出効果に関して、その機構を微視的に解明するため、EXAFS を用い吸着材に吸着された希土類の局所構造解析を行った。CMPO に HDEHP を添加すると、希土類周りに一旦多くの酸素を配位し、その後減少に転ずることがわかった。

キーワード：抽出クロマト法、協同抽出、CMPO、HDEHP、広域 X 線吸収微細構造

1. 緒言

高速炉の使用済み燃料再処理においては、環境への負荷低減のためにマイナーアクチニドを回収するプロセスが導入されることが望ましい。そのプロセスの有力な候補の一つとして、抽出クロマト法がある。その方法は、溶媒抽出のような高い分離効率とイオン交換のようなコンパクト性、連続性を兼ね備えているが、その分離機構は完全に理解されているとは言い難い。本発表では特に、CMPO-HDEHP 混合抽出剤が含浸された吸着材に注目し、ユウロピウムをマイナーアクチニドの模擬として使用し、吸着材に吸着されたユウロピウムの広域 X 線吸収微細構造法を用いた局所構造解析を行った。

2. 実験

測定に用いた試料は全て芝浦工業大学にて調製した。各種濃度比に混合された CMPO-HDEHP を、スチレンジビニルベンゼン共重合高分子により表面が覆われた多孔質シリカ SiO₂-P に担持させ吸着材とした。それを希土類の硝酸溶液と振り混ぜ、十分吸着平衡に達した試料について構造解析を行った

広域 X 線吸収微細構造実験は、そのエネルギー吸収端に応じて、高エネルギー加速器研究機構 PF または SPring-8 を使い分けた。試料を所定の容器に封入して、透過法により EXAFS スペクトルを得た。その EXAFS 振動を抽出しフーリエ変換した構造関数でフィッティングを行い構造パラメータを得た。

3. 結果と考察

Figure 1 にユウロピウムの第一近傍にある酸素との距離と酸素の配位数を示す。Eu-O 距離は吸着状態でも溶媒中でも HDEHP 濃度が増加するにつれて短くなった。CMPO は硝酸根の酸素をも動員し希土類に配位するのに対し、HDEHP は対称性の良い 6 配位であることが一つの要因である。一方酸素の配位数は HDEHP が加わると組成比 0.2 において一旦大きくなりそれより大きくなると減少に転ずる。溶媒中より吸着状態の方が配位数が小さいのは、スチレンジビニルベンゼンポリマーに抽出剤が含浸されることによる立体障害によるものと考えられる。以上の結果により吸着状態と溶媒中では HDEHP 添加による局所構造の変化の程度が異なり、それを種々の SiO₂-P に対して精査することによって、最も協同抽出効果を得る条件の検討が可能である見通しを得ることができた。なお本研究は平成 26 年度日本原子力研究開発機構との共同研究により実施された成果である。

参考文献

[1] 大野 他、2014 年日本原子力学会秋の大会、G04

*Haruaki Matsuura¹, Atsushi Nezui², Shimpei Ono³, Tsuyoshi Arai³, Sou Watanabe⁴, Yuichi Sano⁴, and Masayuki Takeuchi⁴

¹Tokyo City Univ., ²Tokyo Inst. Technol., ³Shibaura Inst. Technol., ⁴JAEA

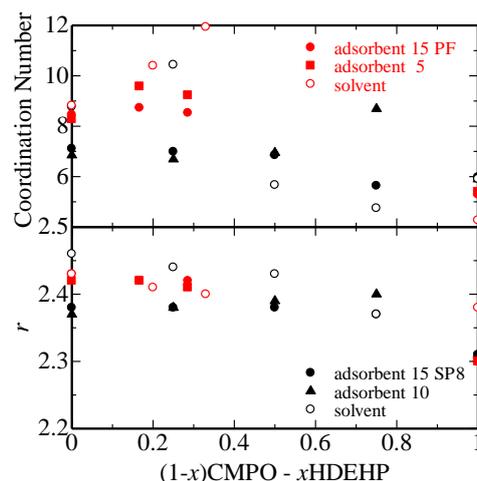


Fig. 1 Coordination number of oxygen and interionic distance between europium and oxygen in various adsorbents with mixture of (1-x) CMPO- xHDEHP.