

# ガラス固化体の高品質化・発生量低減のための白金族元素回収プロセスの開発

## (19) UV-Vis/XAFS 分光および第一原理計算による硝酸水溶液中におけるルテニウムイオンの化学形態

Development of Recovery Process of Platinum-group Metals from HLLW for Stable Production and Volume Reduction of Homogeneous Vitrified Object

(13) UV-Vis/XAFS spectroscopic and first-principles calculation analyses of chemical forms of Ruthenium ion in nitric acid solution

\*佐藤 俊和<sup>1</sup>, 澤田 裕貴<sup>1</sup>, 渡邊 真太<sup>1</sup>, 中谷 真人<sup>1</sup>, 吉野 正人<sup>1</sup>

稲葉 優介<sup>2</sup>, 高橋 秀治<sup>2</sup>, 竹下 健二<sup>2</sup>, 吉田 朋子<sup>3</sup>, 尾上 順<sup>1</sup>

<sup>1</sup>名古屋大学, <sup>2</sup>東京工業大学, <sup>3</sup>大阪市立大学

高レベル放射性廃液ガラス固化プロセスにおける白金族元素 PGMs (Ru, Rh, Pd) 及びモリブデン (Mo) 一括回収のためのフェロシアン化物ナノ粒子の吸着特性に関する研究を行っている。本発表では、UV-Vis/XAFS 分光実験および第一原理計算解析により、硝酸水溶液中における Ru の化学形態を調べたので報告する。

**キーワード**：白金族元素，第一原理計算，紫外可視分光，XAFS

**1. 緒言**：フェロシアン化物ナノ粒子 (HCF) を用いて、高レベル放射性廃液 (HLLW) から効率的に PGMs および Mo を一括回収するためには、HCF への吸着特性を調べる必要がある。また、HLLW 中における PGMs, Mo の化学形態は吸着率に影響する可能性が高い。本発表では、紫外-可視(UV-Vis)吸収分光、X線吸収微細構造(XAFS)および第一原理計算を用いて、HLLW と同じ硝酸水溶液中における Ru イオンの化学形態を調べたので報告する。

**2. 実験・計算**：Ru を硝酸水溶液に溶解させたサンプルの UV-Vis 吸収スペクトルを測定した。また、理論計算では Gaussian09 コードを用いて、DFT 計算により安定構造を、TDDFT 計算により理論吸収スペクトルをそれぞれ算出し、実験スペクトルと比較することで、硝酸水溶液中における Ru イオンの化学形態を解析した。さらに、Ru を硝酸水溶液に溶解させたサンプルの XAFS 測定 (KEK-PF AR NW10A) を行い、Ru 錯体の原子間距離や配位数の解析を行った。

**3. 結果**：硝酸濃度 1.0 – 6.0 M の硝酸水溶液に Ru を溶解させたサンプルの吸収スペクトルを図 1 に示す。490 nm における吸収帯 (図中点線) は硝酸濃度によらずスペクトル形状が一定であることより、1.0 – 6.0 M の硝酸水溶液中で Ru イオンの化学形態が一定であることがわかる。

また、2.0 M の硝酸水溶液中における Ru の K-edge XANES スペクトルの吸収端位置が RuO<sub>2</sub> 粉末 (Ru: 4 価) の吸収端位置と一致したことから、Ru は硝酸水溶液中において硝酸濃度によらず 4 価で存在していることが分かった。理論計算結果を含めた詳細な解析は当日報告する。

**4. 謝辞**：本研究は、文部科学省「原子力システム研究開発事業」の助成により行われた。

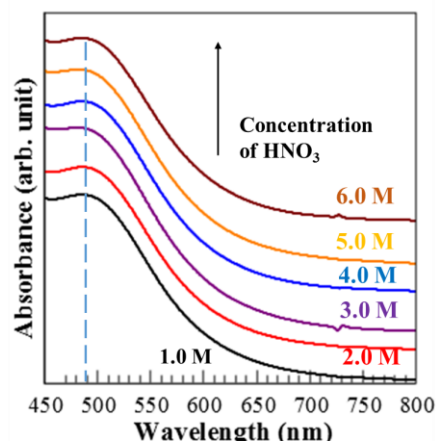


図1 1.0-6.0 Mの硝酸水溶液中における Ruサンプルの吸収スペクトル

\*Toshikazu Sato<sup>1</sup>, Yuki Sawada<sup>1</sup>, Shinta Watanabe<sup>1</sup>, Masato Nakaya<sup>1</sup>, Masahito Yoshino<sup>1</sup>, Yusuke Inaba<sup>2</sup>, Hideharu Takahashi<sup>2</sup>, Kenji Takeshita<sup>2</sup>, Tomoko Yoshida<sup>3</sup> and Jun Onoe<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Nagoya university, <sup>2</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>3</sup>Osaka city university