

MA(III)回収用吸着材内に形成される錯体構造の IBIL 分光分析

IBIL analysis on complexes formed in an adsorbent for MA(III) recovery

*渡部 創¹, 加田 渉², 片井 雄也³, 松浦 治明³, 江夏 昌志⁴, 佐藤 隆博⁵, 新井 剛⁶

¹原子力機構, ²群馬大, ³東京都市大, ⁴ビームオペレーション(株), ⁵量研機構, ⁶芝浦工大

抽出クロマトグラフィ法による MA 回収技術のために開発している、CMPO および HDEHP を含浸させた吸着材内部で形成される錯体形成メカニズムの解明のため、XAFS を用いた評価を実施してきた。本研究では、吸着材の IBIL 分光を実施し、XAFS 解析結果と組み合わせた評価を試みた。XAFS 測定より確認した HDEHP 抽出剤の錯形成への寄与の増加に起因して、IBIL スペクトルに変化が現れることを見出した。

キーワード：IBIL, EXAFS, MA 回収用吸着材, CMPO, HDEHP

1. 緒言 原子力機構では抽出クロマトグラフィ法による MA 回収技術の開発の一環として、CMPO および HDEHP を共に含浸させた吸着材を用いたプロセスの検討を実施している。当該プロセスでは高レベル放射性廃液中の MA と希土類元素を吸着材に保持させ、DTPA 溶液によって MA を溶離した後に、希土類元素を洗浄する。プロセスの構築において、希土類元素を溶離するための洗浄液の選定が課題となっており[1]、クエン酸水溶液等の適用性を現在調査している。今までに、吸着材内部形成される錯体形成メカニズムを解明し、洗浄液の選定に資することを目的として、X 線吸収微細構造(XAFS)を用いた希土類元素の錯体構造解析を実施してきた。本研究では錯体構造の変化をより詳細に調査することを目的として、イオンビーム誘起発光分光(IBIL)を実施し、XAFS 結果と組み合わせた評価を試みた。

2. 実験 CMPO と HDEHP を 1:1 のモル比で含浸させた吸着材を調製し、Eu(III)を吸着させた。これに pH をパラメータとして調製した 50 mM DTPA 溶液または 50 mM クエン酸溶液を接触させ、Eu(III)を脱着させたものを試料とした。IBIL 実験は、量研機構高崎研の TIARA にあるシングルエンド加速器の大気マイクロビーム装置を用いて実施した[2]。3 MeV に加速した H⁺を 1μm 径に集光させて吸着材粒子に照射し、発光スペクトルを UV-Vis 分光器によって測定した。

3. 結果及び考察 図 1 に得られた IBIL スペクトルを示す。比較のため各抽出剤単体系の結果も合わせて示す。HDEHP 単体での IBIL スペクトルから、HDEHP が錯体形成に寄与することで $\lambda = 610$ nm 付近に特徴的なピークが現れることを確認した。混合系において、Eu 吸着時には当該ピークが顕著ではないものの、DTPA 溶液やクエン酸溶液による溶離操作後に顕著となり、残留している Eu の錯体について HDEHP の寄与が大きくなることを明らかにした。また、XAFS で評価した最近接構造に差異が確認されない試料についても、IBIL スペクトルに顕著な違いが観察される場合があり、XAFS のみでは捉えられない構造変化を IBIL 分光分析で観察出来る可能性が示唆された。今後は、IBIL ピークの帰属など、より詳細な解析を進めていく。

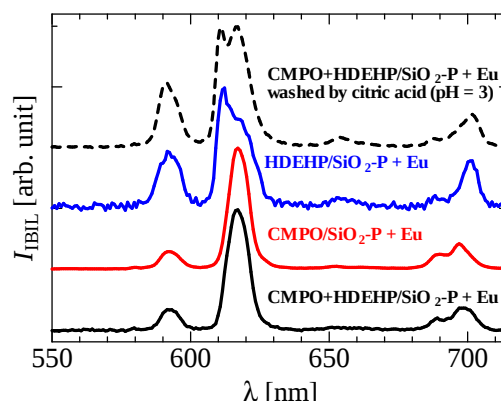


図 1 Eu を保持させた吸着材の IBIL スペクトル

参考文献

[1] S. Watanabe et al., Nucl. Instrum. Meth. B, 404, 202-206 (2017).

[2] W. Kada et al., Nucl. Instrum. Meth. B, 318, 42-46 (2014).

*Sou Watanabe¹, Wataru Kada², Yuya Katai³, Haruaki Matsuura³, Masashi Koka⁴, Takahiro Satoh⁵ and Tsuyoshi Arai⁶

¹IAEA, ²Gunma Univ., ³Tokyo City Univ., ⁴Beam Operation Co., Ltd, ⁵QST, ⁶Shibaura Institute of Tech.