

MA 回収用 CHON 型抽出剤を含浸させた吸着材中に 形成される希土類の錯体構造解析

Structural analysis on complexes of rare earths formed in the adsorbent impregnated with
CHON type extractant for recovery of minor actinides

*岡田 諒¹, 渡部 創², 中瀬 正彦³, 伴 康俊², 塩飽 秀啓², 松浦 治明¹

¹東京都市大学, ²日本原子力研究開発機構, ³東京工業大学

MA 回収プロセスの 1 つである Am/Cm 相互分離プロセスで有効である ADAAM 抽出剤の性能評価として、抽出錯体の XAFS 解析を行った。側鎖影響、硝酸濃度影響及びポリマー相互作用を確認できた。

キーワード: MA, HLLW, 溶媒抽出, 抽出クロマトグラフィ, XAFS, ICP-OES, ADAAM

1. 背景

使用済み核燃料中の 3 価のマイナーアクチニド(MA(III):Am³⁺, Cm³⁺)は、他の核分裂生成物(FP)から分離し、それらの放射線毒性を低下させるために他の核種に変換する必要がある[1]。現在、抽出クロマトグラフィによる回収方法の開発が実施されている。溶媒抽出法に比べて、反応機構として不明な点が多いという問題点がある。本研究では Am/Cm 相互分離に有効的な側鎖の異なる 4 種のアルキルジアミドアミン(ADAAM)吸着材及び溶媒で形成される錯体構造から側鎖影響及びポリマー相互作用を調査した。

2. 実験

4 種の ADAAM 抽出剤を 33 wt%で多孔質シリカ粒子にスチレンジビニルベンゼン共重合体を被覆した粒子(SiO₂-P と呼称)に含浸させたものを吸着材とした。硝酸濃度をパラメータとして、吸着材と La,Ce,Nd をそれぞれ含む硝酸溶液を 1:20 の割合で 3 時間振とうし、固液分離後、上澄み液中の希土類元素濃度を ICP-OES にて分析し、乾燥させた吸着材及び溶媒抽出法により作製した有機相及び水相中に形成された錯体を希土類元素の K 吸収端及び L_{III} 吸収端 XAFS により解析した。XAFS 実験は SPring-8 BL22XU、高エネルギー加速器研究機構 BL27B、あいしシンクロトロン光センターBL1N2、BL5S1、BL11S2 にて実施した。

3. 結果・考察

図 1 に EXAFS 解析による最近接酸素配位数の側鎖影響及び硝酸濃度依存性をプロットしたものを示す。図 1 から、どの硝酸濃度領域でも ADAAM 吸着材 4 種で最も目的元素周りの最近接酸素配位数が多い構造は EH,N(EH)であることが分かった。また ICP-OES 分析により、最も吸着量の多かった側鎖構造は EH,N(EH)であると分かったことから、吸着量と最近接酸素配位数には相関関係があることが示唆された。また XANES 測定の結果から、最も吸着していた La を保持させた試料は、ほとんど吸着しない Nd を保持させた試料及び硝酸のみで振とうした試料に比べて窒素のスペクトルが異なり、吸光度が高いことに加えて、415 eV 付近にピークを確認することができた。これらの結果から、吸着メカニズムとして酸素と窒素の寄与が影響していることが示唆された。当日は、2 つの系による比較についても紹介する。

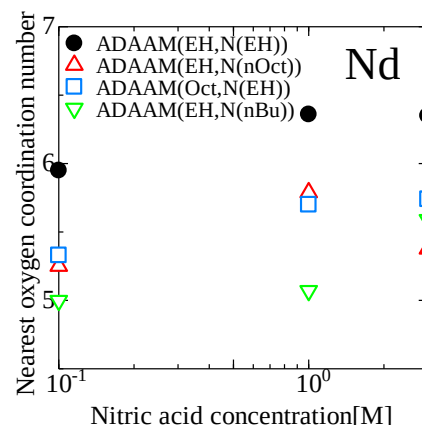


図 1 最近接酸素配位数の比較(Nd)

参考文献

[1] International Atomic Energy Agency, “Technical Reports Series No. 435; Implications of Partitioning and Transmutation in Radioactive Waste Management”, IAEA, Vienna (2004).

*Makoto Okada¹, Sou Watanabe², Masahiko Nakase³, Yasutoshi Ban², Hideaki Shiwaku² and Haruaki Matsuura¹

¹TCU, ²JAEA, ³Tokyo Tech