



# 放射光 XAFS を用いた アルキルジアミドアミン吸着材の分離性能評価

箕輪 一希<sup>1</sup>、松浦 治明<sup>1</sup>、渡部 創<sup>2</sup>、高畠容子<sup>2</sup>

<sup>1</sup>東京都市大学、<sup>2</sup>日本原子力研究開発機構

キーワード：錯体構造, XANES, 窒素

## 1. 背景と研究目的

使用済み核燃料中の 3 価のマイナーアクチノイド(MA(III):Am<sup>3+</sup>、Cm<sup>3+</sup>)、特に Cm<sup>3+</sup>は崩壊の過程でプルトニウムを生成するため、核セキュリティの観点から分離し、独立した管理が求められる。アルキルジアミドアミン(ADAAM)による Am と Cm の分離プロセスを、希土類(RE)を使用して模擬し、その妥当性を X 線吸収微細構造(XAFS)測定とカラム実験によって評価している。今回の実験では未吸着の ADAAM 吸着材と La、Ce、Eu、Gd の 4 種類の希土類元素を保持させた吸着材中における窒素を、NK-edge 測定を用いた XANES により系統的に調査し、ADAAM 吸着材中における窒素の吸着は配位希土類によってスペクトルにどのような違いが生じるか検討した。

## 2. 実験内容

ADAAM 抽出剤 (ADAAM(EH,N-(EH))) を 33.3 wt%となるように、それぞれ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(以下 SiO<sub>2</sub>-P)に含浸させたものを吸着材とした。これに各 15 mM の La、Ce、Eu、Gd を含む 1.0 M の HNO<sub>3</sub> 溶液を、それぞれ固液重量比 1:20 で接触させて 3 時間振とうしたものを測定対象とした。振とうさせたものについては固液分離し、乾燥した後にこれらの粉末を試料とした。軟エックス線領域である N-K-edge 測定は、AichiSR の BL1N2 ビームラインを用いた部分蛍光収量法により実施した。得られた XANES スペクトルは FDMNES による XANES シミュレーション結果を比較し評価した。

## 3. 結果および考察

Fig.1 の XANES スペクトル測定結果より、ADAAM の N による寄与は 400 eV 付近に確認され、配位した RE が重希土類になると高エネルギー側へピークがシフトすることが分かった。Fig.2 の FDMNES によるシミュレーションより、以上の傾向は ADAAM の amine(N1)による寄与であることが示され、RE と amine との相互作用の違いが生じたためであると考えられる。ADAAM 吸着材によるカラム試験結果より、RE の選択性は La > Ce > Eu, Gd である。このことから、ADAAM 吸着材による選択性と XANES スペクトルのピークシフトには相関関係のあることが分かった。先行研究では ADAAM による MA 選択性と MA と ADAAM 中の amine の相互作用に相関関係があることが示されている。以上より、ADAAM による相互分離プロセス開発において、RE を MA 模擬とした分離プロセス開発は有用であることが示唆された。

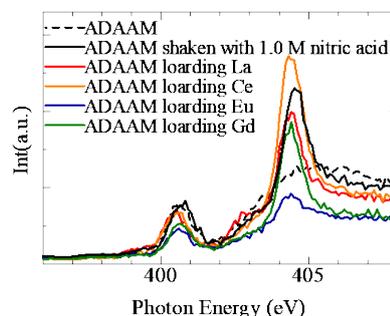


Fig. 1 希土類共存試料測定結果

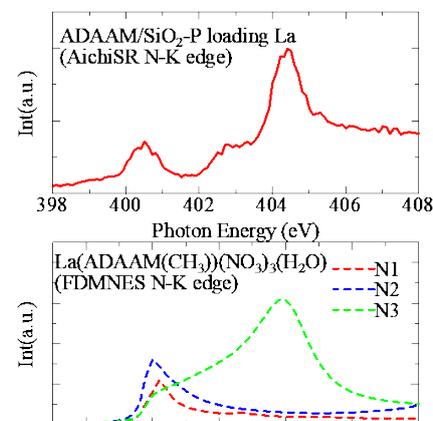


Fig. 2 測定データとシミュレーション結果の比較