



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¹、高畠容子²、渡部 創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

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):Am³⁺、Cm³⁺)、特にCm³⁺は崩壊の過程でプルトニウムを生成してしまうため、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。今回の実験では振とう試験を行っていないADAAM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N K-edge測定による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に配位希土類によってN K-edge XANES スペクトルにどのような違いが生じるかを検討するために実験を行った。

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SiO₂-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HNO₃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蛍光法により実施した。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付近で確認され、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。図2のFDMNESによるシミュレーションより、以上の傾向は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であることが示唆された。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が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唆されている。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。

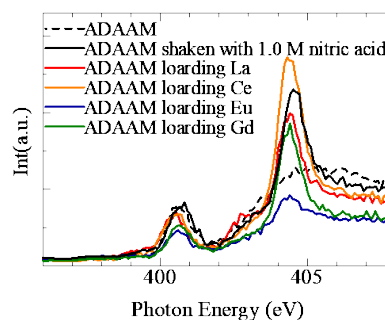


Fig1 希土類共存試料 XANES 結果

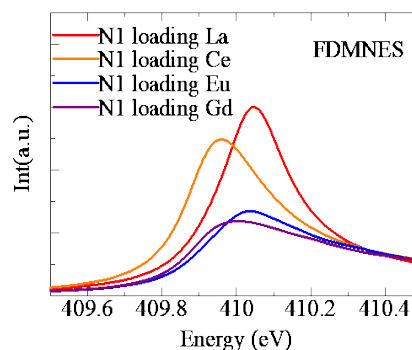


Fig2 N K-edge XANES シミュレーション結果