

課題番号 :2022A-E07
利用課題名 (日本語) :放射光 EXAFS による新規フッ素溶媒中の抽出金属イオン錯体の構造解析と、分離元素の酸化物・リン酸塩固化体中の電子状態の解明-2
Program Title (English) :Structural analysis of metal-extractant complexes in novel fluorinated solvent by EXAFS measurement and electronic state analysis of oxide and phosphate solidification bodies containing separated elements-2
利用者名(日本語) :中瀬正彦¹⁾, 針貝美樹¹⁾, 渡邊真太¹⁾, 山村朝雄²⁾, 田端千紘³⁾, 小林徹³⁾, 牧涼介⁴⁾ 菅野直樹¹⁾
Username (English) :M. Nakase¹⁾, M. Harigai¹⁾, S. Watanabe¹⁾, T. Yamamura²⁾, C. Tabata³⁾, T. Kobayashi³⁾, R. Maki⁴⁾, N. Kanno³⁾
所属名(日本語) :1)東京工業大学, 2) 京都大学, 3)原子力機構, 4) 岡山理科大

キーワード : 放射光 XAFS、アクチノイド、ランタノイド、白金族元素、フッ素系溶媒、リン酸塩固化体

1. 概要 (Summary)

使用済み核燃料再処理で発生する高レベル廃液には少量でも高発熱性、高放射毒性のマイナーアクチノイド(MA, アメリシウム(Am)、キュリウム(Cm)等)核分裂生成物(FP)のランタノイド(Ln)、白金族元素(PGM)等が含まれる。高放射毒性、高発熱性のMAを分離により処分場への負荷低減が可能となる。化学的性質の類似した3価のAm, CmをLnから分離するには錯体構造の理解が重要であり、特定f元素への選択性を有する抽出剤と各元素との錯体のXAFS測定を行っている。溶媒抽出に用いる有機溶媒の工夫により第三相形成を抑え、イオン認識性や分配挙動を改善させる検討を、マテリアルズインフォマティクス(MI)を援用して実施している。また、核燃料サイクルにおいて分離したMAの暫定保管体開発、またMA、Cs、Srといった福島原子力発電所(1F)汚染水処理で発生する放射性同位元素のリン酸塩固化の検討を進めている。固化体内の元素の状態の理解と、水への浸出挙動、長期安定性との相関の理解を進めるため、放射光XAFS実験を行っている。

2. 実験 (目的, 方法) (Experimental)

タンデムに配置したイオンチャンバー間にプラ製キュベット、ないしはポリ袋に試料を封入して設置し、各元素のKやL₃吸収端を用いて透過法で計測した。同時に90°の位置から蛍光法によりデータを取得した。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

多様な溶媒での希土類元素の抽出錯体のXAFS測定を行ったところ、吸収端エネルギーは変化しなかったことから価数は溶媒により変化しないことが確認された。一方で、同様に電子状態を反映するホワイトラインの高さは溶媒によって微妙に変化したため電子状態は若干変化することが示唆される。溶媒により各元素の抽出率が変化する“溶媒効果”の検証を進めているが、抽出率とホワイトライン高さの間に相関があることが見出された。ただし、単回帰ではなく幾つかの因子を組み合わせた重回帰が必要であり、引き続き別途測定した溶媒の化工物性や溶媒の分子構造の特徴量などを組みあわせることが重要である。固化体側の検討については、1F汚染水処理で発生する各種の汚染水処理沈殿系廃棄物リン酸塩固化体中の希土類元素を中心に分析を行った。前回課題に引き続きドープしたEu、Ce、Cs、Sr、Uなどの元素の電子状態と、安定化処理条件との相関を取得した。難固定核種として知られるヨウ素の固化体については、例えば前回のAgIに引き続き、ヨウ素アパタイトをZrやSUSと混ぜて熱間等方圧加熱(HIP)処理した試料のXAFS測定を行ったところ、I、Zrともに吸収端構造が変化し、複雑な構造変化が起こることが確かめられた。試料断面は不均一にAgIが分布しており、分布具合とXAFSスペクトル変化の間に相関がみられた。従って、顕微XAFSが効果的であると考えられた。そこで、ステージ位置を変化しながら短い時間でのスキャンを実施したところ、AgI粒子近傍での元素分布変化に加えて、XANESスペクトルが変

化することが確認された。そこで、次期のマシンタイムでは、据え付けられている KB ミラーを用いた顕微 XAFS を実施することとした。マクロスコピックな観点からの固化体の観察結果と、放射光による局所的な元素の電子状態、構造の変化との相関を、核種浸出試験結果を合わせ

て解釈し、最適な 1F 廃棄物に関する提案を引き続き行っていく計画である。

4. その他・特記事項 (Others)

なし。