

課題番号 :2022B-E09

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<sup>1)</sup>, 針貝美樹<sup>1)</sup>, 渡邊真太<sup>1)</sup>, 山村朝雄<sup>2)</sup>, 田端千紘<sup>3)</sup>, 小林徹<sup>3)</sup>, 牧涼介<sup>4)</sup> 菅野直樹<sup>1)</sup>, 下条晃司郎<sup>3)</sup>

Username (English) :M. Nakase<sup>1)</sup>, M. Harigai<sup>1)</sup>, S. Watanabe<sup>1)</sup>, T. Yamamura<sup>2)</sup>, C. Tabata<sup>3)</sup>, T. Kobayashi<sup>4)</sup>, R. Maki<sup>5)</sup>, N. Kanno<sup>1)</sup>, K. Shimojo<sup>3)</sup>

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、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検討を進めている。ドーパント元素の電子状態と水への浸出挙動との相関の理解を目指している。

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(光路長 10 mm)、またはポリ袋に試料を封入して設置し、透過法と蛍光法によりデータを取得した。また、BL22XU に据え付けられている KB ミラーを用いた顕微 XAFS も予備的に実施した。ミクロンオーダーまで集光した光を、用いて XRF 並びに蛍光法による XAFS スペクトルを取得した。

3. 結果と考察(Results and Discussion)

抽出錯体試料については前回測定しきれなかった希土類元素での XAFS スペクトルを取得し、マテリアルズインフォマティクスデータを更に取得した。

固化体試料については、AgI を Zr マトリクスに熱間等方圧加圧法で処理した試料について、KB ミラーを用いた顕微 XAFS を行った。図 1 に測定例を示す。AgI を、Zr をマトリクスとして熱間等方圧加熱(HIP)処理を

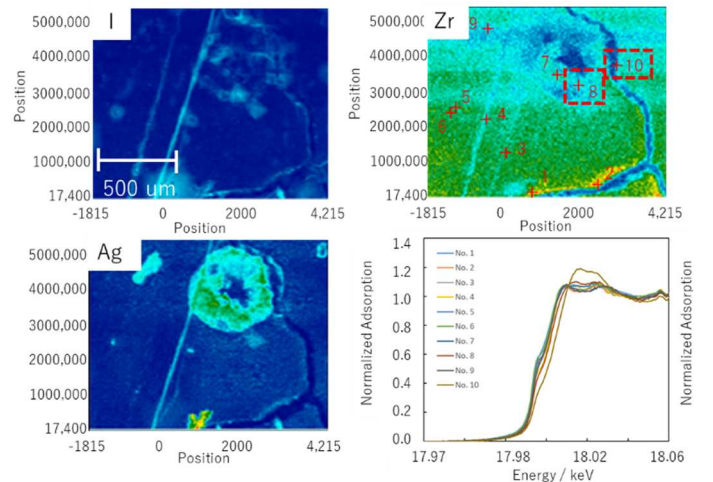


図 1 AgI を Zr で HIP した試料の XRF 並びに Zr の顕微 XAFS スペクトル

行ったものについて、I、Ag、Zr の元素マッピングを XRD により取得し、Zr の各位置における XAFS スペクトルを示した。I は化学状態の変化を伴わず拡散する傾向が見られた。一方で Ag は一カ所に集まり、一部は還元され単体金属に似た化学状態をとった。Zr は AgI の粒子との界面付近で一部が酸化され、標準物質

の測定結果との比較により、酸化物と似た状態をとることが分かった。Ag と Zr は XRD や第一原理計算でも HIP のような高温高圧条件では幾つかの金属間化合物が形成されることが分かっており、今後更に詳細なメ

カニズム、物性評価検討を行う。更に、浸出試験や耐放射線試験も併せ、廃棄物処分シナリオ検討に展開する。

#### 4. その他・特記事項 (Others)

なし。