



XAFS によるマイナーアクチノイド回収用抽出剤の希土類錯体構造解析

筒井菜緒¹、渡部 創¹、中原将海¹、中瀬正彦²
¹日本原子力研究開発機構、²東京工業大学

キーワード：フェナントロリンジアミド，MA/RE 分離，錯体構造，EXAFS，ランタノイド

1. 背景と研究目的

再処理工程で発生する高レベル放射性廃棄物(HAW)の有害度低減、減容化は、放射性廃棄物処理・処分
 の負荷軽減の観点より必要不可欠な技術である。HAW に含まれるマイナーアクチノイド (MA; Am
 及び Cm) は長寿命かつ発熱性であるため、MA の分離・核変換の実用化が急がれる。日本原子力研究
 開発機構では、MA の分離技術として溶媒抽出法や抽出クロマトグラフィを用いたプロセスの開発を実
 施してきたが[1, 2]、経済性等に優れた実用的なプロセスを構築するためには、両技術で使用する抽出剤
 開発にブレークスルーが必要である。近年、比較的安価で、MA 回収プロセスの構築に適用可能と期待
 される抽出剤の開発に成功し、上記技術への適用性を検討している。MA 回収プロセスのうち MA/RE
 分離工程用の抽出剤として 1,10-フェナントロリン-2,9-ジアミド(PTDA)の性能評価が行われている。本
 研究では、EXAFS 測定による溶液中の配位子 - ランタノイド錯体構造解明を目的としている。

2. 実験内容

La(NO₃)₃・6H₂O 及び Eu(NO₃)₃・6H₂O ならびに PTDA を量論比が 1:0~1:4 となるように調整した
 メタノール溶液、ランタノイドと PTDA の等量比を 1:1 で固定して硝酸濃度を 0.01mM から 5M まで
 変化させたメタノール溶液、ならびに有機相に抽出させた錯体の試料を用意した。これらの溶液を 1 ml
 分取し、70×50×0.08 mm のチャック付きポリ袋にいれ、プラスチック版に挟んで固定した。La-L3
 及び Eu-L3 吸収端で BL11S2 にて透過法及び蛍光法を用いて EXAFS 計測を行った。

3. 結果および考察

まず、配位子 PTDA とランタノイドについて配位子の割合を増やしていくとある量論比で動径構造関
 数の変化が止まり、錯体の量論比が一種類に定まった [3]。大きな第一ピークは Eu³⁺に配位している
 PTDA 抽出剤中のフェナントロリン骨格の N 原子、アミドの O 原子、及び抽出に関与する硝酸イオン
 の O 原子と帰属される。過剰量の配位子の存在により動径構造関数の変化が止まり一種類の錯体が存在
 すると考えられる Eu: PTDA = 1:4 のメタノール溶液について feff による理論フィッティングで Eu :
 PTDA = 1:2 の錯体でフィッティングされた。結果を Table. 1 ならびに Figure. 1 に示す。溶液中の錯
 体の動径構造関数であるため遠距離のピークのフィッティングは不十分だが、錯体構造を把握するこ
 とが出来た。今後、他のランタノイド元素錯体についても詳細な錯体構造の解明を進める予定である。

Table. 1 動径構造関数のフィッティング結果

Shell	C.N.	R/Å	δ^2	ΔE^0
Eu-O(PTDA, NO ₃ ⁻ , H ₂ O)	8	2.42	0.0029	12.2227
Eu-N(PTDA)	4	2.63	0.0001	
Eu-C(PTDA)	12	3.93	0.0001	

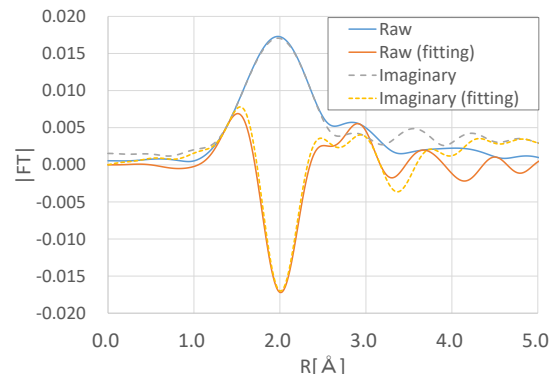


Figure. 1 Eu 周りの動径構造関数の実験値と理論フィッティングの結果

4. 参考文献

1. S. Watanabe, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. (2018) 1113-1117.
2. S. Watanabe, et al., Procedia Chemistry 21 (2016) 101-108.
3. M. Nakase et al., Solvent Ext Ion Exch, (2019), published online. DOI: 10.1080/07366299.2018.1532137