



## 放射光 EXAFS による f 元素用抽出剤の錯体構造解析

中瀬正彦<sup>1</sup>, 伊藤紗弓, 渡部創<sup>2</sup>, 筒井菜緒<sup>2</sup>, 中原将海<sup>2</sup>  
 1 東京工業大学, 2 原子力機構

キーワード：ランタノイド, 先進湿式再処理, 溶媒抽出, 錯体構造

## 1. 背景と研究目的

原子力発電は発電中に CO<sub>2</sub> を発生させず、またエネルギー密度が高いため今後も重要なベースロード電源として一定量のエネルギーを供給していくと考えられる。限られたウラン資源を有効に利用するためにウランからプルトニウムを増殖させ MOX 燃料として再利用することも検討されているが、依然として使用済み核燃料の問題は未解決である。この再処理工程で発生する高レベル廃液に含まれるマイナーアクチノイド(MA)は少量でも高発熱性、高放射毒性ゆえ分離によりガラス固化体発生量、地層処分に必要な敷地の大幅削減が可能である。性質の類似したランタノイド(Ln)からの MA 分離が必要となるが、長年の研究開発にも関わらず未だ要件を十分満たす配位子は報告されていない。そこで、我々は錯体構造と金属イオン分配の相関の理解に基づく配位子設計を行っている[1]。本課題では溶液中の配位子-Ln 錯体構造の解明を目的とした。

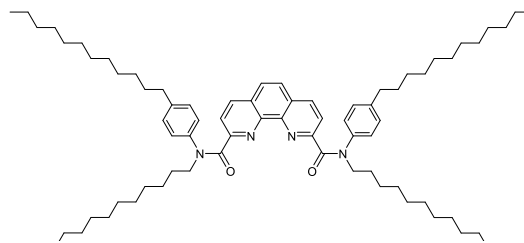


Fig. 1 Structure of Dd(DdPh)PTDA

## 2. 実験内容

Ln として、ユウロピウム(Eu)の錯体構造を調査した。Eu 硝酸塩水和物と東工大で合成した配位子(Fig.1)をエタノール溶液に 1:4 の量論比で溶かした溶液試料 1 mL (Eu : 配位子 = 1 : 1 乃至は 1:2 とするため、平衡論的に過剰の配位子が必要)をポリ袋に封入し、プラスチックスペーサーに挟み込んで溶液表面を平坦化して計測を行った。実験は BL5S1 で L3 吸収端を用いた EXAFS 計測を蛍光法で行い、データ解析は WinXAS3.1, 理論フィッティングは feff8.0 を用いた。

## 3. 結果および考察

Fig.2、Table 1 に PTDA と Eu の 1:1 錯体の動径構造関数とフィッティング結果を示す。配位数はモデルの単結晶構造に合わせて固定し、各シェルのエネルギーシフト  $\Delta E_0$  は同値束縛し、元素間距離、デバワイワラー因子、 $\Delta E_0$  を精密化した。溶液系の動径構造関数を 1:1、1:2 錯体単結晶構造でフィッティングを行った結果、1:1 の方がより精密なフィッティングが出来たが 1:1 錯体と 1:2 錯体が混在している可能性も示唆される。結晶構造と同様の錯体構造がエタノール中でも形成されることが確かめられた。

Table. 1 Result of theoretical fitting

Shell	C.N.	R / Å	$\sigma^2$	$\Delta E_0$
Eu-O(NO <sub>3</sub> , or H <sub>2</sub> O)	6	2.43	0.0049	
Eu-O(PTDA)	2	2.51	0.0001	12.7
Eu-N(PTDA)	2	3.11	0.0001	
Eu-C(PTDA)	6	3.35	0.0043	

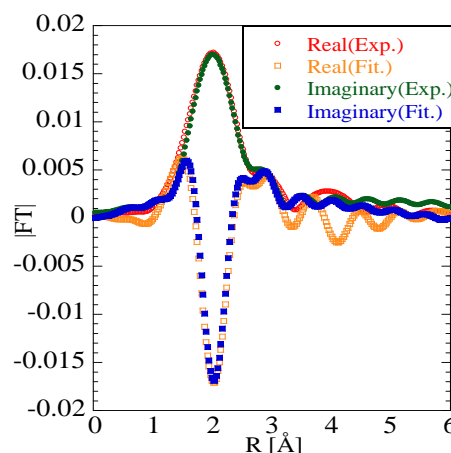


Fig. 2 Radial structural function of Dd(DdPh)PTDA-Eu complex and the result of theoretical fitting

## 4. 参考文献

- [1] M.Nakase et al., Relationship between structure and coordination strength of N and N,O-hybrid donor ligands with trivalent lanthanides, Solvent Ext. Ion Exch., Vol 36, Issue 7, pp. 1-14 (2019)