



分析廃液処理のための触媒反応 XAFS 評価

^{1,2} 粟飯原はるか、¹ 渡部創、² 神谷裕一

¹ 日本原子力研究開発機構、² 北海道大学

キーワード : 均一系触媒、Co、NH₄⁺分解

1. 背景と研究目的

ウランやプルトニウムといったアクチノイド元素の分析には、妨害元素のマスキングやイオン価数の調整のためにアンモニウム塩をはじめとした窒素化合物が添加される。分析廃液に含まれるこれらの窒素化合物は硝酸アンモニウム等の不安定な化合物を生成する可能性があるため、安定化処理が必要である。我々のグループでは、比較的温和な条件で進行する Co₃O₄ を用いた NH₄⁺分解反応¹に着目し、より反応効率を向上させることを目的として、Co²⁺イオンを均一系触媒とした反応系の構築を目指している。これまでに Co²⁺が触媒として作用し、NH₄⁺分解を促進させること、水溶液の初期 pH によって反応が異なることを明らかにしてきた²。本研究では、オゾン酸化による NH₄⁺分解過程における均一系触媒の寄与を評価し、反応メカニズムの解明に資することを目的として、分解操作中における Co の XANES その場観察を試みた。

2. 実験内容

アンモニウム溶液を調製し、これをポリ瓶に 100 mL 入れ、100 mL/min の流量で O₂/O₃ 混合ガス(O₃ 濃度約 5%)を吹込みながら、Co-K 吸収端 XANES スペクトルを蛍光法にて取得した。溶液組成(NH₄⁺, Cl⁻, Co²⁺濃度)をパラメータとした。

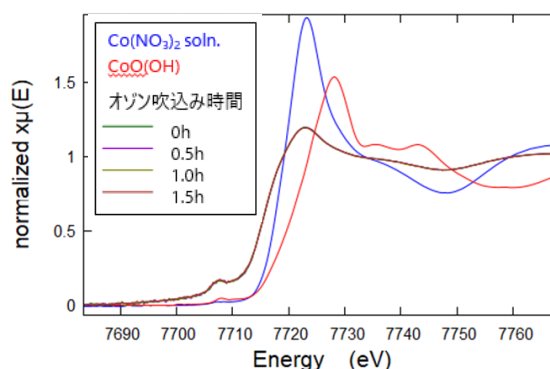


図 1 オゾン吹込み時における Co-K 吸収端 XANES

3. 結果および考察

Cl⁻を含む溶液 ((NH₄)₂SO₄ 50mM, NaCl 250mM, Co²⁺ 50mM, 初期 pH 4) のオゾン吹込み時における Co-K 吸収端 XANES の経時変化を図 1 に示す。オゾン吹込みによる Co の酸化状態の変化は見られず、Co²⁺であった。また、図 2 に示した EXAFS スペクトルより、Cl⁻が含まれる溶液中でも CoCl₂とは異なる状態で Co が存在することが示唆された。今後、反応中に生成する沈殿の分析も行うことにより、より詳細なメカニズムの解明を目指す。

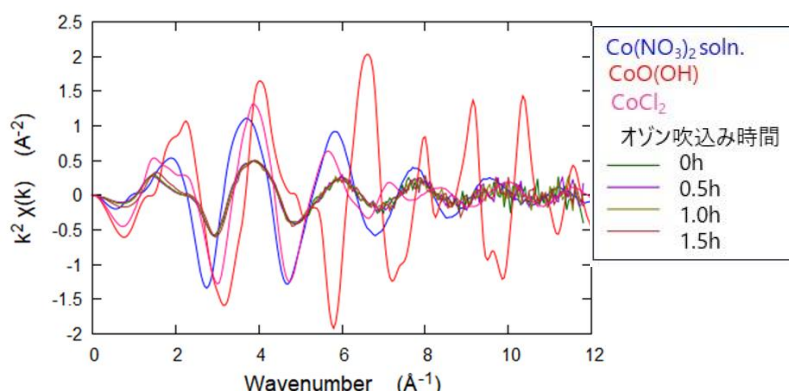


図 2 オゾン吹込み時における EXAFS

4. 参考文献

1. L. Mahardiani and Y. Kamiya, Journal of the Japan Petroleum Institute, 59 (1), 31-34 (2016).
2. H. Aihara et al., Proc. DEM2018, 22-24, Oct, Avignon France (2018).