

ウラン廃棄物処分のためのプロトアクチニウム溶液化学研究 (2) ^{233}Pa トレーサを用いた Pa の加水分解の研究

Pa Solution Chemistry Study for Uranium Waste Management

(2) A Study on Hydrolysis of Pa Using ^{233}Pa Tracer

*小森 真介¹, 桐島 陽¹, 秋山 大輔¹, 佐藤 修彰¹

¹ 東北大学 多元物質科学研究所

Pa の加水分解挙動を調べるため、 ^{237}Np からミルキングした ^{233}Pa を用いて二相分配実験を行った。有機相は溶媒をキシレン、抽出剤を TTA とし、水相は ^{233}Pa の過塩素酸溶液とした。TTA 濃度及び過塩素酸濃度を変えて実験を行い、分配比の変化から加水分解定数の決定を試みた。

キーワード：プロトアクチニウム, ウラン廃棄物, 溶媒抽出, 加水分解

1. 緒言

燃料加工施設等から排出されるウラン廃棄物を浅地中処分した場合、処分から 1000 年から 2000 年後といった時期に、 ^{231}Pa が公衆被ばくの最大要因となる可能性が指摘されている。このような評価をより精緻に行うためには、Pa の正確な熱力学データを得る基礎研究が必要である。分光手法が適用可能なマクロ量の ^{231}Pa を用いた研究に加えて、取り扱いの容易な ^{233}Pa トレーサを用いた実験により熱力学データ得ることで、今後行われるウラン廃棄物処分の安全評価に資することを目的とし、二相分配実験による Pa(V) の加水分解定数の決定を試みた。

2. 実験

2-1. 2-オクタノールを用いた ^{233}Pa のミルキング

^{233}Pa は半減期が 27 日と短く単体保存が出来ないため、親核種である ^{237}Np 溶液から溶媒抽出によるミルキングを行った。従来法[1]を参考にし、Np (V) の 6 M 塩酸溶液を調製し、2-オクタノールと接触させ抽出した。ここでは Np の一部も有機相に抽出されたため 3 M HNO_3 による洗浄を行った上で 1 M 過塩素酸溶液で水相に逆抽出した。この操作を 2 回繰り返して二相分配実験に用いる Pa 水溶液を得た。

2-2. テノイルトリフルオロアセトン (TTA) – 過塩素酸溶液系での二相分配実験

精製した ^{233}Pa 溶液を規定の過塩素酸濃度に調整し、TTA-キシレン溶液と接触させて二相分配実験を行った。有機相中の TTA 濃度を 0.001~0.1M、過塩素酸濃度を 0.001~1 M にそれぞれ変化させ、放射能測定により分配比を得てその変化から加水分解定数の決定を試みた。

3. 結果と考察

従来法よりも簡便な方法で、他溶液への転換も比較的簡単な ^{233}Pa の過塩素酸溶液を得た。 γ 線スペクトロメトリによる測定の結果、ミルキングにより、その後の Pa(V) の加水分解反応検討のための二相分配実験に影響の無い程度まで ^{237}Np の濃度を低下させることができた。精製後の Pa 濃度は約 1×10^{-11} M である。また二相分配実験の結果、Pa の分配比は TTA 濃度および過塩素酸濃度の両方に依存した。低 pH において Pa (V) は $\text{PaO}(\text{OH})^{2+}$ として存在することが予想され、これらの結果及び二相間の各平衡定数から、酸性溶液中の Pa (V) の第一加水分解反応 $\text{PaO}(\text{OH})^{2+} + \text{OH}^- \rightleftharpoons \text{PaO}(\text{OH})_2^+$ の検討を行った。

参考文献

[1] Andrew W. Knight et al., A simple-rapid method to separate uranium, thorium, and protactinium for U-series age-dating of materials, J. Environ. Radio. (2014), 134, 66-74

*Shinsuke Komori¹, Akira Kirishima¹, Daisuke Akiyama¹, Nobuaki Sato¹

¹Tohoku Univ.