

MA 分離抽出剤 HONTA のガンマ線分解による抽出能変化

Influence of gamma-radiolysis of MA separation agent of HONTA on extraction performance

*樋川 智洋¹、鈴木 英哉¹、伴 康俊¹、石井 翔¹、松村 達郎¹

¹ 日本原子力研究開発機構

マイナーアクチノイド(MA)に対する優れた抽出分離能を持つ新規抽出剤、ヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド(HONTA)の耐放射線性能評価の一環として、ドデカン溶媒中でのガンマ線照射によるランタノイド元素(Ln)の抽出能変化を調べた。その結果、HONTA のガンマ線分解生成物による新たな元素抽出能の出現は認められず、また分配比の減少はガンマ線照射に伴う HONTA の分解による濃度変化に起因することがわかった。

キーワード： MA/Ln 分離、溶媒抽出、HONTA、放射線分解、ランタノイド

1. 緒言

高レベル放射性廃液中から MA を回収するための分離プロセスにおいて、抽出剤の放射線耐性を明らかにすることは成立性評価の観点から重要な課題である。これまでに MA に対して選択性を持つ抽出剤である HONTA¹ (図 1)について、ドデカン溶媒中でのガンマ線分解量及びそれに伴って生成する分解物の構造を明らかにした。そこで本研究ではそれらの抽出挙動への影響を調べるために、ガンマ線照射した HONTA-ドデカン溶液を用いて、MA に対する抽出非対象元素である Ln 元素の分配比変化を調べた。

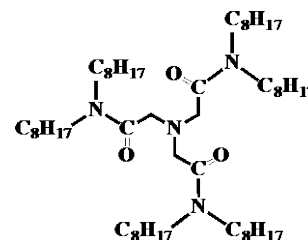


図 1 HONTA の構造

2. 実験

100 mmol/L HONTA-ドデカン溶液に対し、量研機構・高崎量子応用研究所にある ⁶⁰Co 線源を用いて、1-10 kGy/h の線量率で 16 時間、ガンマ線を照射した。照射したサンプルを、0.05 mol/L 硝酸水溶液と予備酸平衡した後に、Ln(Pm を除く 14 元素)を含む水相と混合した。4 mol/L 硝酸水溶液による逆抽出操作の後に、ICP-MS を用いて水相中の元素濃度を測定し、分配比を求めた。

3. 結果・考察

本実験において、有機相と水相のどちらにも混ざらない第三相の形成はいずれの照射サンプルを用いた場合でも認められなかった。

ガンマ線照射に伴う、Ln 元素に対する分配比の変化を図 2 に示す。それぞれの分配比は、線量の増加に伴い指数関数的に減少し、さらに Ln 元素間で減衰速度に差は見られなかった。つまりガンマ線照射に伴う分配比の減少は HONTA の放射線分解に因るものであり、また分解生成物による新たな Ln 元素抽出能は発現しないことを示唆した。指数関数フィッティングから求めた分配比に対する線量定数 d_D は $4.0\text{--}4.7 \times 10^6 \text{ Gy}^{-1}$ と、HONTA の放射線分解量に対する線量定数($d_C = 1.3 \times 10^6 \text{ Gy}^{-1}$)と比べ、およそ 3 倍以上大きい値をとることがわかった。2 つの線量定数の商($d_D/d_C = 3.1\text{--}3.6$)は Ln 元素 1 つに配位する HONTA 分子数に対応することが予想されるが、得られた値は報告値¹である 1 または 2 より大きい値を取った。

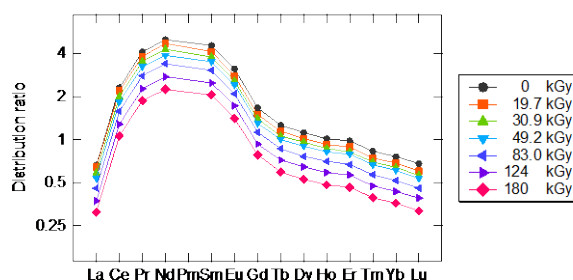


図 2 ガンマ線照射による Ln 元素分配比変化

1) Y. Sasaki et al., *Chem. Lett.*, **42**, 91-92 (2013).

* Tomohiro Toigawa¹, Hideya Suzuki¹, Yasutoshi Ban¹, Sho Ishii¹ and Tatsuro Matsumura¹,

¹Japan Atomic Energy Agency