

ガンマ線放出核種の無機イオン交換体への吸着特性に及ぼす錯形成剤添加の影響
Effects of complexing agent on adsorption behavior of gamma-ray emitting nuclides onto
inorganic ion exchangers

*大西 貴士¹, 関岡 健², 須藤 光雄², 田中 康介¹, 勝山 幸三¹
¹日本原子力研究開発機構, ²検査開発株式会社

照射済燃料溶解液中に含まれる Cs-134 および 137 以外のガンマ線放出核種をガンマ線スペクトロメトリーにて定量するために、Cs のみを除去する方法を検討した。その結果、リンモリブデン酸アンモニウムと酒石酸を用いることで、Sb および Eu を試料中に残存させたまま Cs のみを除去できることを明らかにした。

キーワード：リンモリブデン酸アンモニウム, セシウム, 酒石酸, アンチモン, ユウロピウム

1. 緒言 使用済燃料の直接処分に関する研究や、デブリからの核種溶出挙動評価研究においては、照射済燃料に由来する試料を水溶液に浸漬し、溶出した放射性核種をガンマ線スペクトロメトリー(γ -sp)等により定量する試験が実施されている[1,2]。 γ -sp 測定の前処理として、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP, $(\text{NH}_4)_3\text{PMo}_{12}\text{O}_{40}$)を用いて Cs のみを除去する方法が採用されている[1,3]。しかし、本研究において、吸着条件によっては、一部の Ce, Eu 及び Sb が、Cs とともに AMP に吸着し、分析値の不確かさが増加することを明らかにした。また、Ce, Eu 及び Sb の吸着を抑制する手法として、酒石酸添加による有効性を評価した。

2. 実験 コールド試験では、標準試料を用いて Cs, Ce, Eu, Sb の濃度が 1 ppm となるように調製した溶液を吸着試験に供した。ホット試験では、高速実験炉「常陽」で照射した MOX 燃料(22 GWd/t)を硝酸に溶解した溶液に担体を添加し、Cs, Ce, Eu, Sb, Ru の濃度が 1 ppm となるように調製した溶液を、吸着試験に供した。硝酸濃度 1 M、酒石酸濃度 0 or 0.1 M、液相 20 mL、固相(AMP) 10 mg の条件下でおよそ 20 時間静置後、0.2 μm メンブレンフィルターを用いてろ過した溶液と、吸着前の溶液に対し γ -sp を実施し、各核種の溶液中への残存率を評価した。

表 1 AMP 吸着試験後の各核種の残存率 (%)

	Cold tests		Hot tests	
	Nitric acid	Nitric acid + Tartaric acid	Nitric acid	Nitric acid + Tartaric acid
Cs	3	1	0	0
Ce	98	99<	88	99<
Eu	95	98	96	99<
Sb	74	95	94	97

3. 結果 吸着試験によって得られた各核種の溶液中への残存率を評価した結果を表 1 に示す。酒石酸の有無によらず Cs はほぼ全量が AMP に吸着した。Ce, Eu および Sb の残存率については、AMP のみの場合は、残存率が比較的低く、かつコールド試験とホット試験間での差異が大きい、酒石酸を添加し

た場合、残存率が向上し、コールド試験とホット試験間での差異も小さく、分析手法の信頼性が向上した。酒石酸を添加しない場合は、酸性溶液中で Sb(III)の一部は $\text{Sb}(\text{OH})_2^+$ となり、AMP 中の NH_4^+ とイオン交換反応を生じることで AMP 中に取り込まれるが、酒石酸添加時は、Sb が極めて安定な錯体 $[\text{Sb}_2(\text{C}_4\text{H}_2\text{O}_6)]^{2-}$ を形成するため[4]、AMP への吸着が抑制されたと考えられる。また、Ce および Eu において、酒石酸を添加しない場合は、 Y^{3+} のように AMP 中の NH_4^+ とイオン交換反応を生じる可能性がある[5]。酒石酸共存下では、Ce および Eu と同じ希土類元素の 1 つである Gd が酒石酸と H^+ で 3 元錯体を形成することが報告されていることから[6]、Ce および Eu も同様の反応が生じて AMP への吸着が抑制されることが予想される。

参考文献 [1] L. Johnson et al., J. Nucl. Mater., 420 (2012) 54. [2] 稲垣ほか、2016 年秋の大会 3B10. [3] 金沢ほか、JAERI-Tech 2004-050 (2004) [4] M. Tella and G. S. Pokrovski, Geochim. Cosmohim. Acta, 73 (2009) 268. [5] J. V. R. Smit and W. Robb, J. Inorg. Nucl. Chem., 26 (1964) 509. [6] M. Riri et al., Arab. J. Chem., 9 (2016) S1478.

*Takashi Onishi¹, Ken Sekioka², Mitsuo Suto², Kosuke Tanaka¹, Kozo Katsuyama¹

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Inspection Development Company