2,9-ジアミド-1,10-フェナントロリンを骨格とした長鎖アルキル基を有する新規ハイブリッド型配位子の合成とマイナーアクチノイド及びランタノイドの抽出特性

Extraction of minor actinides and lanthanides by novel soft-hard hybrid donor ligand, 2,9-diamides-1,10-phenanthroline with long alkyl chains

*伊藤紗弓[1]、中瀬正彦[1]、筒井菜緒[1,2]、松村達郎[2]、竹下健二[1]
東京工業大学大学院 先導原子力研究所[1]、日本原子力研究開発機構[2]

長鎖アルキル基を有する 2,9-ジメチル-1,10-フェナントロリンを合成し、MA/Ln 分離に及ぼす希釈剤依存性、酸濃度依存性等を系統的に調査した。ニトロベンゼンの場合 MA/Ln の分離係数は 3.6 以上となり、MA/Ln 分離への適用の可能性が示唆された。

キーワード：溶媒抽出、マイナーアクチノイド(MA)、ランタノイド(Ln)、先進湿式再処理、フェナントロリンジアミド、ハイブリッド型配位子

1.緒言 高レベル放射性廃棄物中の MA は長半減期核種や高発熱性核種を含むため、MA 分離により高レベル放射性廃棄物の減容化や毒性の低減が可能となる。本研究では、MA/Ln 分離用抽出剤として 1,10-フェナントロリン-2,9-ジアミド(PTDA)に着目した。PTDA はソフトな N ドナーとハードな O ドナーを有するハイブリッド型配位子であり、十分な MA/Ln 分離能を示す。対称構造のため合成も容易であり、CHON で構成されるため焼却処理時の環境負担も少ない。本研究では 4 本のドデシル基を付加することで有機溶媒への溶解性を高めたフェナントロリンジアミド **5** (図 1)を合成し、MA/Ln 抽出分離挙動に及ぼす溶媒の影響と配位子の有用性について検討した。

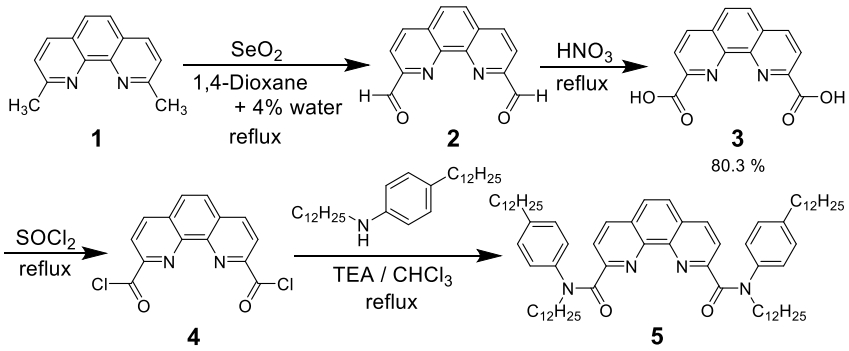

図 1 Dd(DdPh)PTDA **5** の合成手順

2. 抽出剤の合成と抽出条件

合成 図 1 のスキームで Dd(DdPh)PTDA (以下 PTDA **5**)を収率 51.4 %で合成し抽出実験に用いた。

抽出条件 3 種の希釈剤(*n*-ドデカン+10 v/v% 2-エチル-1-ヘキサノール, 3-ニトロベンゾトリフルオリド(F-3), ニトロベンゼン)に PTDA **5** を 0.02M に調整して有機相とした。水相はランタノイド 14 種 (La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu 各 1 mM) の 5M 硝酸溶液と ^{241}Am, ^{244}Cm, ^{152}Eu を 67.7 kBq を含む 5M 硝酸溶液の 2 種類を用意し、両相を接触させ 3 分間振とう後、遠心分離後した。両相に含まれる金属濃度を ICP-MS および各種放射能測定装置で測定し、分配比Dと分離係数SFを求めた。

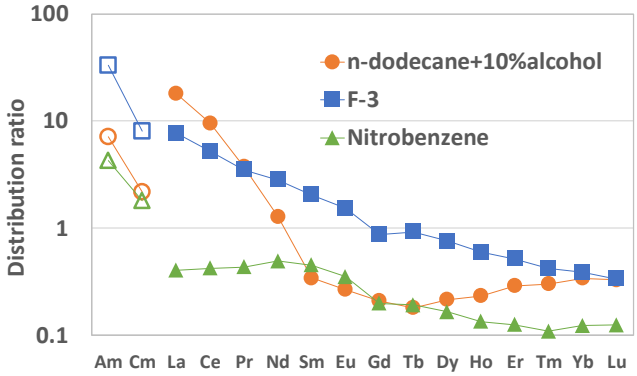

図 2 希釈剤ごとの PTDA **5** の Am, Cm, Ln 抽出結果
(抽出剤濃度：0.02 M, 硝酸濃度：5.0 M)

3. 結果と議論 D_{Ln}、D_{MA} に及ぼす希釈剤の影響を図 2 に示す。D_{Ln} は F-3 では原子番号の増加に伴い減少したが、ニトロベンゼンや *n*-ドデカンでは複雑な抽出傾向が見られた。F-3 とニトロベンゼンでは D_{MA} が D_{Ln} を上回り、特にニトロベンゼンは$D_{MA} > 1 > D_{Ln}$と良好な分離能を示したため MA/Ln 分離への適用の可能性が示唆された。発表では MA/Ln 分配に及ぼす硝酸濃度依存性等についても示し、MA/Ln 分離用配位子開発についても議論する。

4. 謝辞 本研究は日本原子力研究開発機構による支援の下実施された。

*Sayumi Ito[1], Masahiko Nakase[1], Nao Tsutsui[1,2], Tatsuro Matsumura[2], Kenji Takeshita[1]
[1]Tokyo Tech, [2]JAEA