

## 放射性核種の抽出分離における放射線効果の研究

Radiation effects on extraction solvent for radionuclides separation

熊谷 友多

樋川 智洋

Yuta KUMAGAI

Tomohiro TOIGAWA

原子力機構 原子力基礎工学研究センター

### （概要）

放射性核種の抽出分離への適用が検討されている抽出剤 hexaoctyl-nitilotriacetamide (HONTA) の放射線分解について調べ、生成物の構造を推定した結果、多くの生成物は NTA 構造部の結合開裂の結果として説明できることを明らかにした。

**キーワード**：放射性核種、溶媒抽出、放射線分解、HONTA

### 1. 目的

使用済核燃料から資源として利用可能なウラン・プルトニウムを回収する燃料再処理では、原子炉中での核反応によって生成した核分裂生成物やマイナーアクチノイド MA 核種が廃棄物として発生する。このうち MA 核種は核物理的な手法により短半減期の放射性核種に変換することが可能であるため、高レベル廃液からの MA 核種分離法の開発が行われている。再処理プロセスと同様に、核種分離のために有機化合物を用いた溶媒抽出処理を適用する場合、放射線による抽出溶媒の分解について評価し、その影響を処理の成立性を損なわない程度に低減する必要がある。本研究では、この放射線分解の影響評価のため、MA 分離に利用が検討されている抽出剤 hexaoctyl-nitilotriacetamide (HONTA)<sup>1</sup> の放射線分解について調べた。抽出操作では HONTA の高濃度 *n*-dodecane 溶液が用いられることから、HONTA および HONTA/dodecane 溶液を  $\gamma$  線照射し、生成物を LC-MS/MS 分析により調べた。

### 2. 実施方法

無希釈の HONTA および 10mM HONTA /*n*-dodecane 溶液を Co-60  $\gamma$  線照射した後に、放射線分解生成物を高速液体クロマトグラフィタンデム質量分析装置 (LC-MS/MS, Shimazu LCMS-8030) を用いて分析した。分離には phenomenex 製 C-18 カラムを用いて、0.3v% 酸添加の水-propanol 混合溶媒を移動相とした。

### 3. 結果及び考察、今後の展開等

照射試料の LC-MS/MS 分析で観測された 43 種の生成物のうち、主な生成物の分析結果を Table 1 に示す。このうち、DOA、DOFA、DOAA は収量の高い生成物であり、標準試料との比較により同定した。その他の生成物のフラグメントイオン分析を見ると、ほとんどの分析結果に DOA 等と共通するフラグメントイオンが検出されている。この結果を踏まえて生成物の構造を推定すると、ほとんどの生成物は HONTA の nitilotriacetamide 構造部の結合開裂によって説明できることが分かった。これは、HONTA が放射線によって直接イオン化・励起される場合にも、分解に規則性があることを示唆する。今後は、他手法による反応中間体分析の結果とも比較し、HONTA 分解スキームの推定を進める。

### 4. 引用(参照)文献等

- Sasaki, Y., Tsubata, Y., Kitatsuji, Y., and Morita, Y. (2013) Chem. Lett., 42, 91-92.

Table 1: MS/MS spectra of the products

Species	Structure	m/z	Fragment ions
HONTA	[(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> ] <sub>2</sub> -N	861.8	592.5, 351.3, 325.3, 254.3, 156.2, 58.1
DOA	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -NH	242.5	71.3, 57.3, 43.3, 41.3, 29.3
DOFA	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CHO	270.4	158.1, 74.2, 71.2, 57.1, 46.1, 43.2
DOAA	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>3</sub>	284.4	242.4, 172.3, 130.3, 71.3, 60.3, 54.3, 43.3, 41.3
Product ID	Estimated structure	m/z	Fragment ions
Product 5	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CH <sub>2</sub> -CO-N-(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub>	523.6	254.4, 156.3, 58.3
Product 7	[(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> ] <sub>2</sub> -NH	580.6	311.4, 254.4, 242.4, 240.4
Product 10	[(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> ] <sub>2</sub> -N-CHO	608.6	311.4, 254.4, 242.4, 240.4, 156.3, 142.3, 44.3
Product 13	[(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> ] <sub>2</sub> -N-CH <sub>2</sub> -CO-NH-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	749.7	592.5, 480.5, 351.4, 325.4, 311.4, 254.4, 240.4, 211.2, 156.3
Product 24	[(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> ] <sub>2</sub> -N-OH	596.6	327.4, 268.3, 242.4, 156.2, 71.3, 57.3
Product 27	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> -O-C <sub>12</sub> H <sub>25</sub>	468.5	450.5, 242.4, 71.3, 57.3, 43.3
Product 31	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> -N-(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	327.4	242.4, 130.3, 71.3, 57.3, 44.3, 43.3, 30.3, 18.4
Product 32	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> -NCH <sub>3</sub> -CH <sub>2</sub> CHO	355.4	299.4, 242.4, 130.3, 71.3, 57.2, 30.3
Product 37	(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-C <sub>12</sub> H <sub>25</sub>	438.5	242.4, 214.3, 130.3, 85.3, 71.2, 57.3, 43.3
Product 39	[(C <sub>8</sub> H <sub>17</sub> ) <sub>2</sub> -N-CO-CH <sub>2</sub> ] <sub>2</sub> -N-CH <sub>3</sub>	594.6	325.4, 268.4, 242.4, 71.3, 57.3
Product 40	Unclear	595.6	326.3, 268.3, 142.3, 71.3, 57.3

Fragment ions in red: common with HONTA or identified products (DOA, DOFA, DOAA)  
 Fragment ions in blue: common with other products