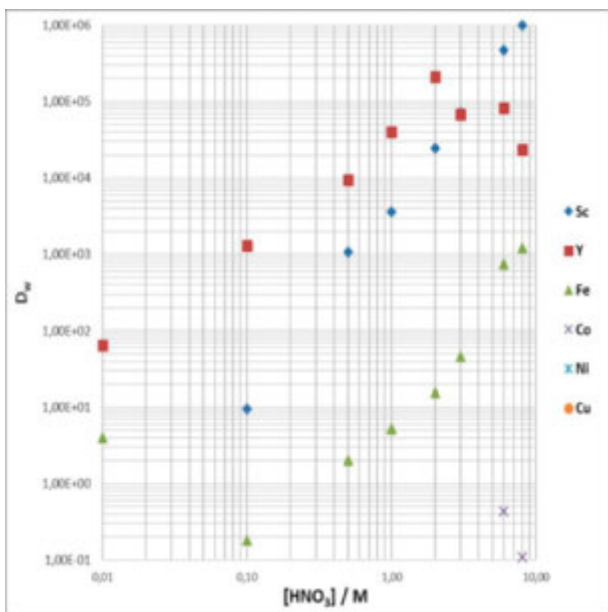


TK221 レジン

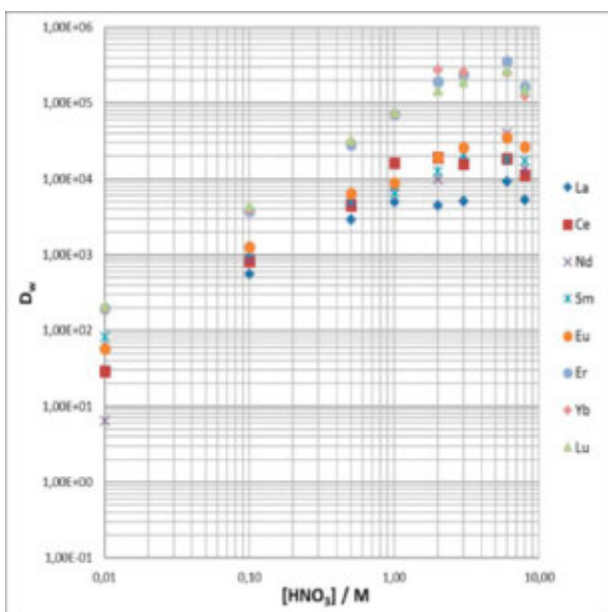
TK221 レジンは、ジグリコールアミドとホスフィンオキシドの混合物をベースにしています。少量の長鎖アルコールを含み、また、放射線分解に対する安定性を高めるために、芳香族基を含む不活性支持体に有機相を含浸させています。

下のグラフは硝酸と塩酸における様々な元素に対するTK221 レジンの選択性を示しています。試験した元素のうち、硝酸中でCaのみわずかに保持されます。その他のアルカリ元素、アルカリ土類元素、Alは保持されません。



硝酸においてTK221 レジンに選択された元素のDw値

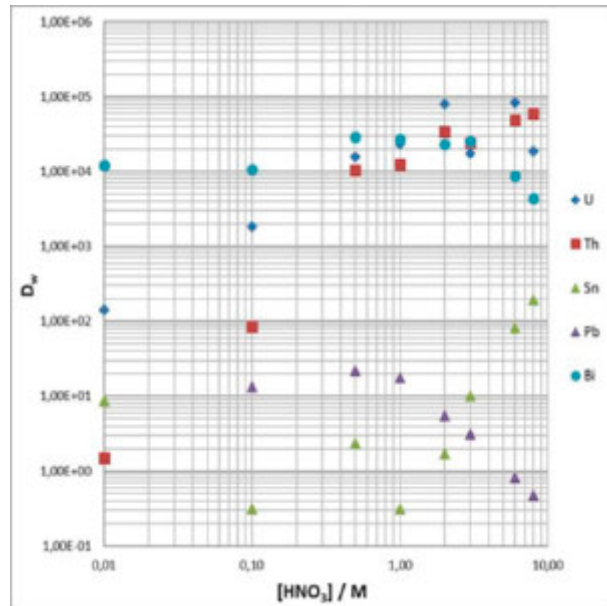
YとScは、高濃度の硝酸で非常にしっかりと保持されます。Fe(III)も3M以上の硝酸濃度でよく保持されます。



硝酸においてTK221 レジンに選択された元素のDw値

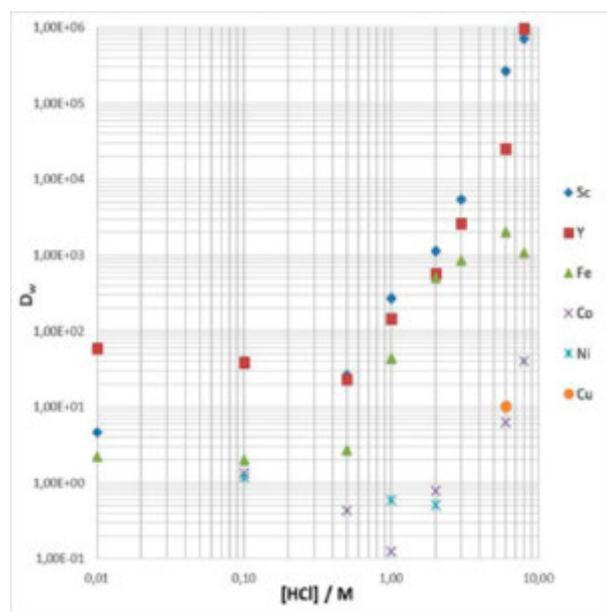
Zn, Ga, Co, Ni, Cu等の遷移金属は硝酸において保持されません。TK221 レジンは一般的に、高濃度硝酸でZrやHf等の第4族元素を保持します。

0.1M以上の硝酸において、ランタニドに対して非常に高い保持率を示しています。重ランタニドは、より希薄な硝酸(0.01M以上)で保持されます。ランタニドに関しては、TRU レジンより保持率が高くなります。



硝酸においてTK221 レジンに選択された元素のDw値

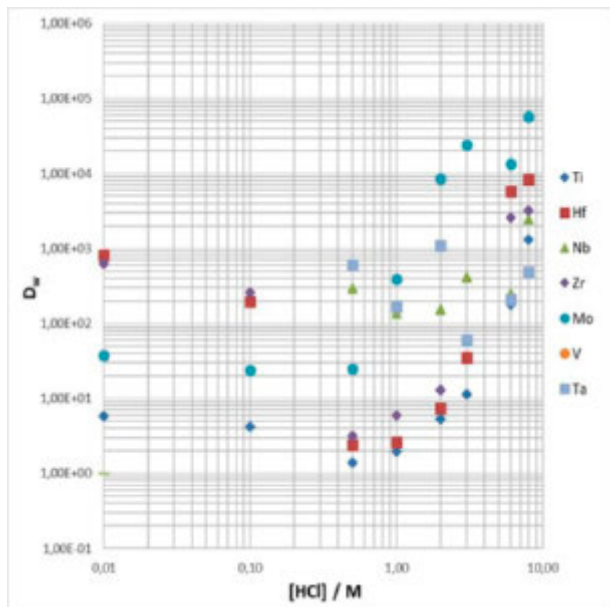
Uや特にBiは、すべての硝酸濃度にわたってよく保持されますが、Thは0.1M以上の硝酸でよく保持されます。Uの保持率については、DGA レジンのような他のジグリコールアミドベースのレジンよりも大幅に高くなっています。PbとSnは弱く保持されます。



塩酸においてTK221 レジンに選択された元素のDw値

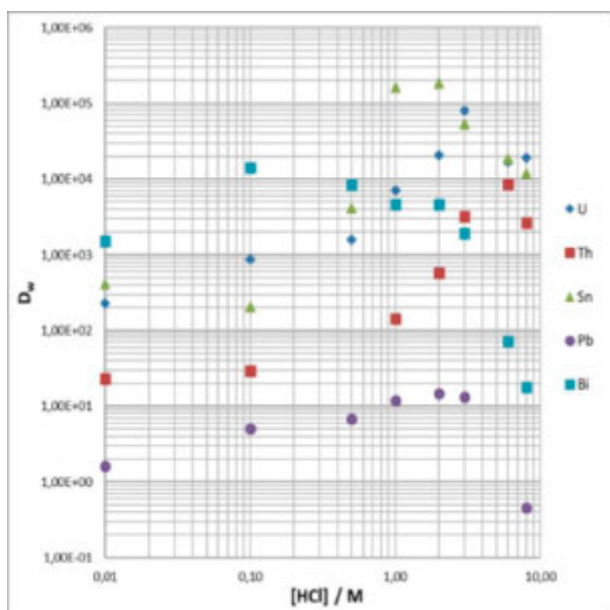
塩酸においては、試験したアルカリ元素とアルカリ土類元素のいずれも TK221 レジンに保持されませんでした。同じことが Al にも当てはまります。

Y および Sc は、高濃度塩酸（2M 以上）においてしっかりと保持されます。Fe (III) も、3M 以上の塩酸濃度でよく保持されます。



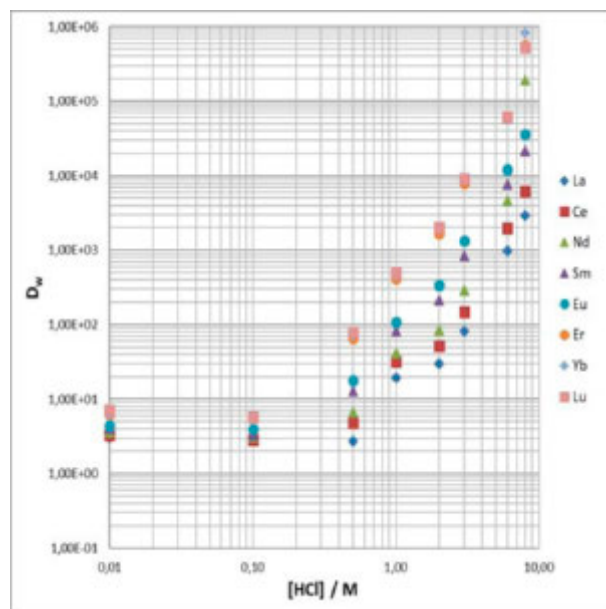
塩酸において TK221 レジンに選択された元素の Dw 値

原子価が + IV 以上の元素 (Nb, Zr, Hf, Mo 等) は、高濃度の塩酸でよく保持されます。他の多数の遷移金属を除いて、Zn と Ga は 2M 以上の塩酸でよく保持されます。どちらも希塩酸で簡単に溶出します。



塩酸において TK221 レジンに選択された元素の Dw 値

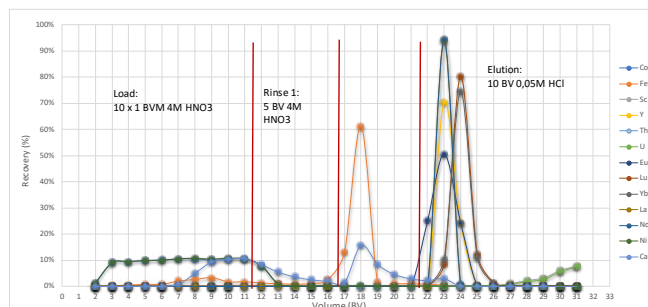
U, Sn, Bi は塩酸濃度範囲の全体にわたってよく保持されますが、Th は 3M 以上の塩酸でのみ保持されます。Pb は唯一あまり保持されていません。



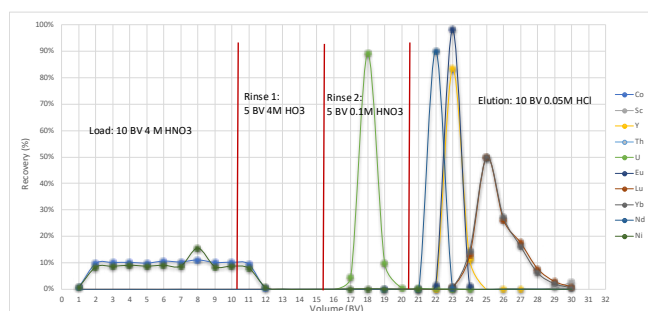
塩酸において TK221 レジンに選択された元素の Dw 値

ランタニドは一般的に、3M 以上の塩酸で非常によく保持され、重ランタニドは 1M 以上の塩酸濃度でよく保持されます。これらのランタニドは希塩酸で溶出します。

TK221 レジンの主なアプリケーションの 1 つは、高酸性溶液から希塩酸（通常 0.05M までの塩酸）条件で、Lu のような重ランタニドを濃縮、精製、置き換えることです。例えば、DGA ノーマルレジンよりも少ない溶液量で Lu を溶出するため、Lu-177 の製造に使用されます。



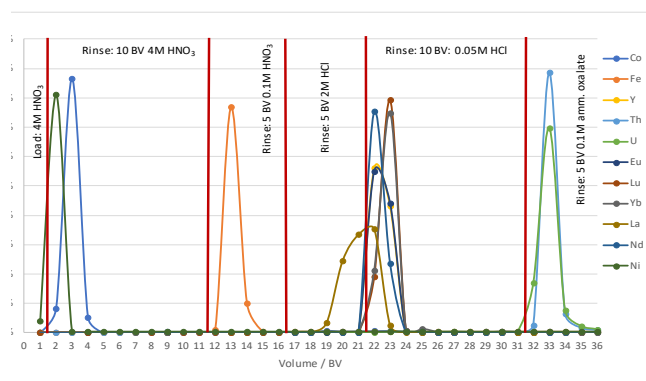
溶出試験：TK221 レジンを使用



溶出試験：DGA ノーマルレジンを使用

TK221 レジンについては、特に ca および nca Lu-177 の精製や、最大 500mg の Yb-176 からの nca Lu-177 分離の一部として使用するために、現在も多数の技法が開発されています。微量の硝酸塩除去のために、TK221 レジンによって得られる最終生成物を 1mL の A8 カートリッジ (陰イオン交換レジン) にさらに通します。このような分離技法は Ac-225 の精製にも適用できます。

TK221 レジンは DGA ノーマルレジンと比べて U の保持に優れているため、アクチニドの連続分離のための 2 カラム分離方式に使用できます。次の図は、U を含む様々な元素の溶出試験について示しています。

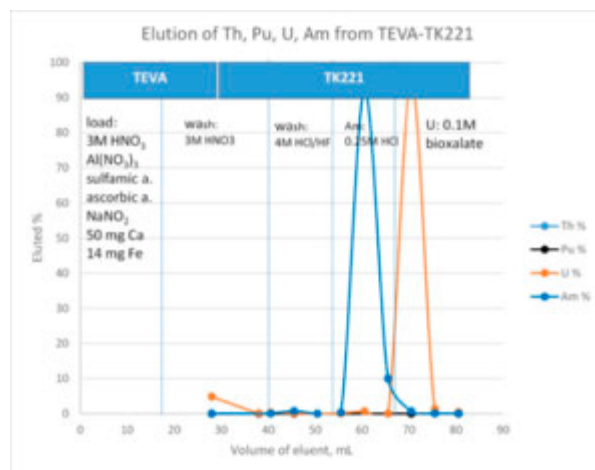


溶出試験：TK221 レジンに選択された元素

U は、使用したすべての硝酸および塩酸濃度でよく保持され、最終的に 0.1M シュウ酸によって溶出する場合があります。Am は、U より先に希塩酸で溶出すると予想されます。

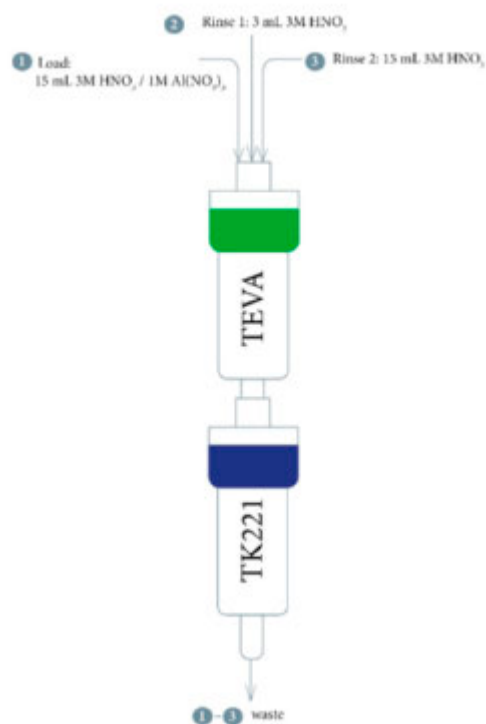
TK221 の選択性の点で、U、Th、Pu、Am/Cm、Np の分離には、TEVA レジンと TK221 レジンを連結して使用する方法が有効であると考えられます。この場合、Np (IV)、Pu (IV)、Th (IV) は TEVA レジンによって保持、分離されますが、U および Am は TEVA を通過して TK221 で両方が保持されます。その後、まず希塩酸で Am を溶出し、最終的に希シュウ酸で U を溶出できるはずですが。

N. Vajda 氏らは TEVA と TK221 レジンを連結して、水サンプルから Th、Pu、Am、U を分離する技法を開発しました。開発した技法はリン酸カルシウムの予備濃縮に基づくもので、酸化状態の調節に由来する Fe (III) の存在の可能性を考慮しました。Am 溶出量を徹底的に最適化することにより、TK221 レジンで Am と U のきれいな分離が実現しました。



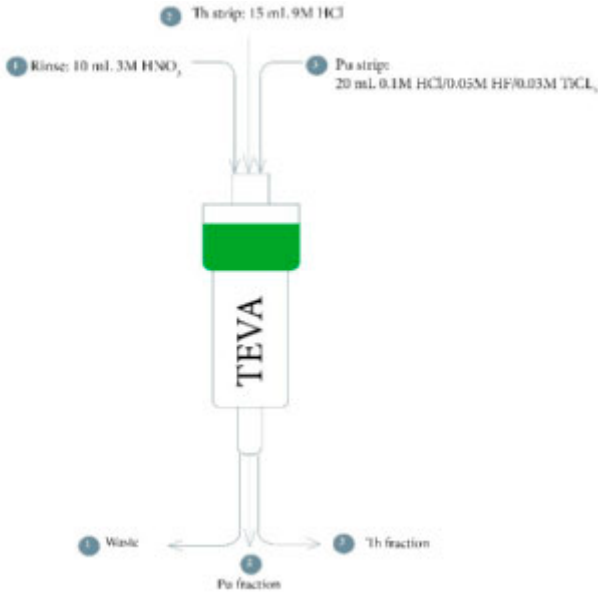
2mL TK221 カートリッジによる Th、Pu、Am、U の分離 (データ提供：N. Vajda 氏ら)

著者らは一定条件下で 92 ~ 106% の高い化学収率と、得られたアクチニドフラクションの良好な分離 (クロスコンタミネーション < 1%) について報告しました。開発した分離プロトコルは下記の通りです。

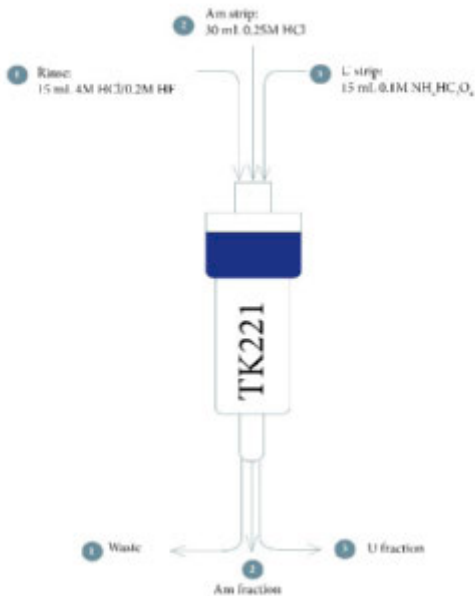


TEVA/TK221 の連結カートリッジによる Th、Pu、Am、U の分離 (N. Vajda 氏らによる)

まず、TEVA と TK221 の連結カートリッジに、溶解したリン酸カルシウム沈殿物を充填します。マトリックス除去のためにカートリッジを 3 M 硝酸で洗浄し、U と Am を TK221 カートリッジに定量的に移動させます。その後、両方のカートリッジを切り離します。TEVA カートリッジが Pu と Th を分離し、TK221 カートリッジが U と Am を分離します。



切り離した後の TEVA カートリッジによる分離ステップ (N. Vajda 氏らによる)

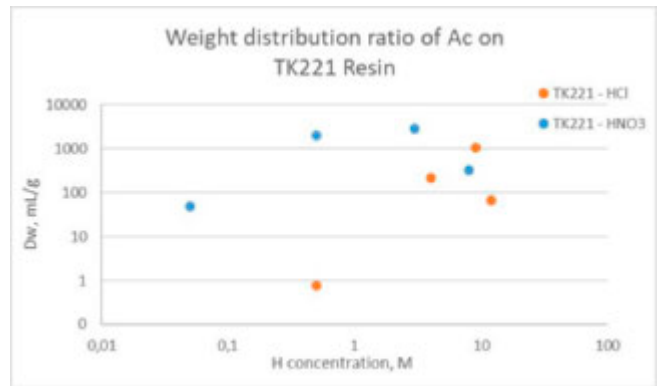


切り離した後の TK221 カートリッジによる分離ステップ (N. Vajda 氏らによる)

この開発技法を Th-230、Pu-239、Am-241、U-233 を添加した水道水や海水サンプルのアルファ線スペクトル測定に適用したところ、アクチニドがきれいに分離できること、また高い化学収率が得られる可能性があることがわかりました。

海水サンプルのような高電荷マトリックスの場合で、化学収率は U、Pu、Am で ~90%、Th で ~70% と、水道水 (90 ~ 108%) よりも 10 ~ 20% 程低いだけでした。つまり、TEVA/TRU レジンを使用した従来の技法に取って代わることができる上、Am 保持はより強固なものになります。

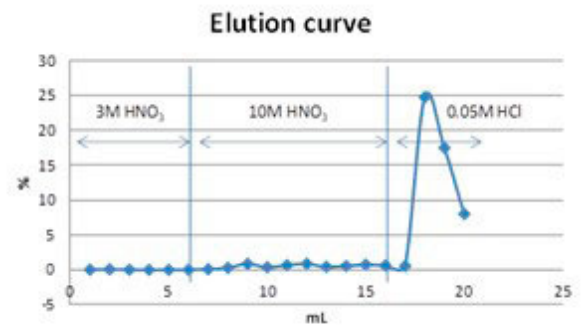
N. Vajda 氏らは、Ac の保持に関してさらに調査しました。



TK221 レジンに保持された Ac の重量分布比 (Dw) (データ提供: N. Vajda 氏 (RadAnal))

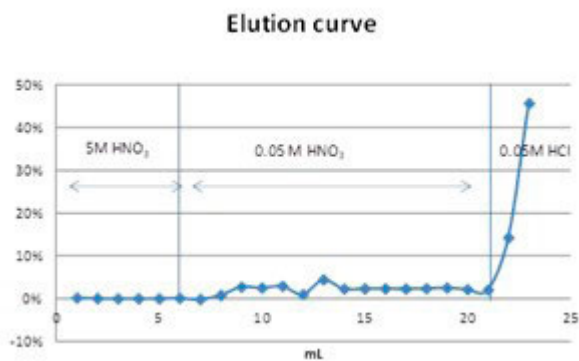
Ac に対する Dw 値は、非常に高濃度 (8 ~ 10 M) または低濃度 (0.05 M) の硝酸でさえ大きくなっています。9 M 塩酸では Ac 保持率は高くなっていますが、高・低濃度の酸においては著しく減少します。特に低濃度の塩酸では Ac の Dw 値は極めて小さく、適切な溶出条件と言えます。

様々な硝酸濃度にわたる Ac 保持率の高さが溶出試験に表れています。



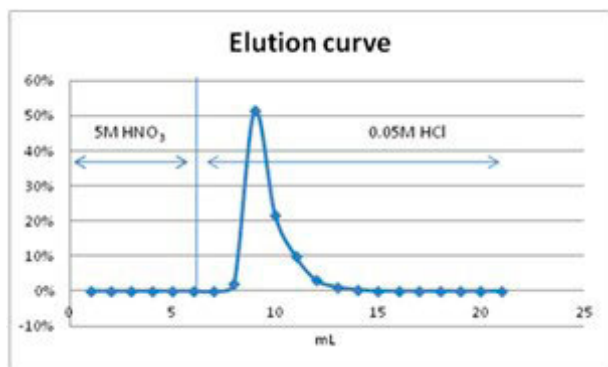
Ac 溶出試験: 1 mL TK221 カートリッジ (100 ~ 200 μm)、10M 硝酸で洗浄 (データ提供: N. Vajda 氏ら)

Ac/ランタニド分離に頻繁に用いられる 10M 硝酸では Ac が溶出しなため、TK221 レジンではより高濃度 (12M) の硝酸が必要になります。



Ac 溶出試験：1 mL TK221 カートリッジ (100 ~ 200 μ m)、0.05M 硝酸 (データ提供：N. Vajda 氏ら)

TK221 レジンは DGA レジンと異なって、Ac が希硝酸で溶出しません。



Ac 溶出試験：1 mL TK221 カートリッジ (100 ~ 200 μ m)、0.05M 塩酸 (データ提供：N. Vajda 氏ら)

希硝酸で Ac を保持し、希塩酸で溶出するという事実によると、TK221 レジンを用いることで Ac 溶液を希硝酸から希塩酸に置き換えできる可能性が出てきます。

TK221 レジンは、より狭い溶出に対応できる粒形 50 ~ 100 μ m も入手可能です。

全体的に、Lu-177 精製と似たような分離技法が使用できる可能性があります。まず、高濃度硝酸 (または塩酸) において Ac を保持し、不純物除去のため希硝酸で洗浄、レジンの硝酸濃度を下げて、その後塩酸で溶出するという手順です。さらに、小さい陰イオン交換レジンカートリッジ (1mL A8 カートリッジ) を使用して、最終生成物から微量の硝酸塩を除去するのが理想的です。

TK221 レジンを使用した Ac 分離の追加研究は現在進行中です。

主なアプリケーション

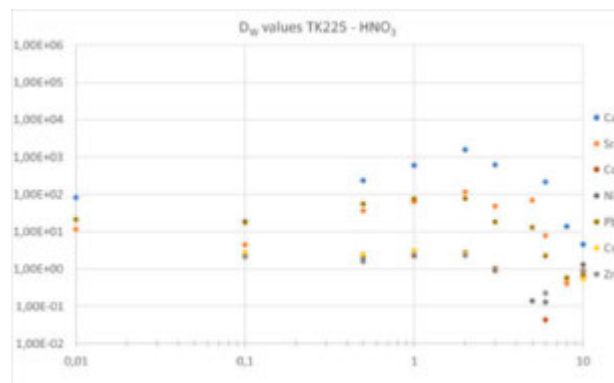
- ランタニドの分離と濃縮に… (例：ca および nca Lu-177)
- アクチニドの分離に…
- アクチニウムの分離に…

TK225 レジン

TK225 レジンは、ジグリコールアミドとイオン液体の混合物をベースにした製品です。放射線分解に対する安定性を高めるために、芳香族基を含む不活性支持体に有機相を含侵させています。

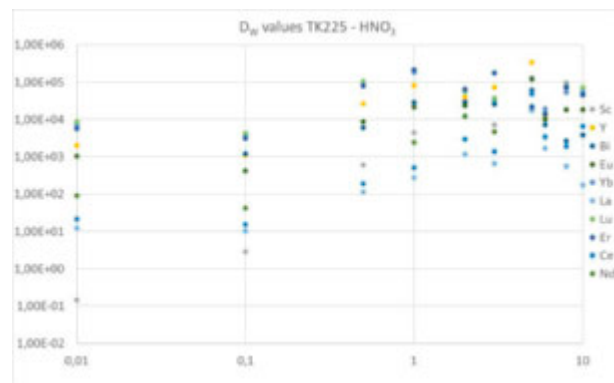
除染を目的に、酸性溶液、特に高濃度の硝酸溶液から放射性ランタニドを除去するために主に用いられます。

次のグラフは、硝酸および塩酸中での様々な元素に対する選択性を示しています。これらのグラフで示された D_w 値はすべて、ICP-MS による測定によって得られたものです。



硝酸において TK225 レジンに選択された元素の D_w 値

試験した元素の中、Ca のみが高濃度の硝酸でしっかりと保持されます。Sr と Pb も、程度は低いものの、このような条件下で保持されます。



硝酸において TK225 レジンに選択された元素の D_w 値