

界面における有機分子の放射線誘起反応の研究

Study on radiation-induced reactions of organic molecules at interfaces

樋川 智洋¹⁾ 鈴木 英哉¹⁾ 伴 康俊¹⁾ 石井 翔¹⁾ 松村 達郎¹⁾
 Tomohiro TOIGAWA Hideya SUZUKI Yasutoshi BAN Sho ISHII Tatsuro MATSUMURA

¹⁾ 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター

（概要）

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)について、その放射線作用下での実用性を確かめるため、ドデカン溶媒中での γ 線分解挙動を調べた。HONTAの放射線分解量および分解生成物の定性・定量分析の結果、放射線によるHONTA中の切断部位を特定し、またその切断メカニズムが線量によって異なることを示唆した。

キーワード：マイナーアクチノイド分離プロセス、溶媒抽出、HONTA、放射線分解

1. 目的

高レベル放射性廃液からMAを分離するプロセスの構築は、原子力産業における最重要課題のひとつである。分離法として、溶媒抽出法や抽出クロマトグラフィー法などが候補として検討されている¹⁾。いずれのプロセスにおいてもMAに対する選択能を持つ抽出剤が必要であるが、同時に抽出剤には耐放射線性能も要求される。抽出剤の耐放射線性能を評価するには、液液(溶媒抽出法)あるいは固液(抽出クロマトグラフィー法)混合中での放射線効果を明らかにする必要がある。そこで本研究では、抽出法として溶媒抽出法、および抽出剤として原子力機構でMAとレアアース(RE)の分離用に開発された、HONTA²⁾を対象とし、溶媒抽出プロセスを模擬した条件での放射線効果の解明を目的とした。本年度は、その基礎データ取得のため、有機単相中でのHONTAの γ 線分解実験を実施した。

2. 実施方法

100 mM HONTA-ドデカン溶液に対し、 γ 線照射を行った。試料は異なる4つの線量率で16時間照射された。線量はアラニン線量計を用いて評価し、水への吸収線量換算で、13.9、29.7、76.7、159 kGyと求めた。照射された試料中のHONTAの濃度変化および分解生成物の定性はGC-MS(QP2010、島津製作所)で行った。

3. 結果及び考察、今後の展開等

図1に水換算吸収線量に対するHONTAの濃度を示す。得られた濃度変化から、指数関数によるフィッティングにより線量定数³⁾を $2.75 \times 10^{-6} \text{ Gy}^{-1}$ と求めた。またHONTAは、照射初期の段階で著しく減少することがわかった。フィッティング結果の外挿から、その減少比を24%と見積った。一方、質量スペクトルの解析から、HONTAの主な分解生成物はジオクチルアミン(DOA)、ジオクチルホルムアミド(DOFA)およびジオクチルアセトアミド(DOAA)であることがわかった。DOA、DOFAおよびDOAAの濃度の線量依存性を図2に示す。DOFAについては、HONTAの濃度変化で見られた傾向と同じく、初期濃度が解析による外挿値と実験値で異なった。さらにDOFAはDOAやDOAAと異なり、13.9 kGy以降での増加は観測されなかった。これらの結果は、DOFAの生成過程とHONTAの低線量域での分解過程との関連を示すものであり、HONTAには放射線分解メカニズムが2通り存在することを示唆する。

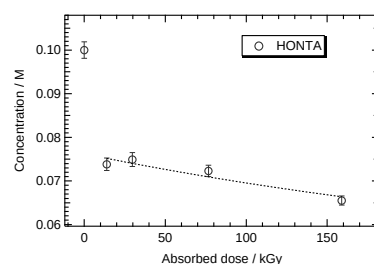


図1 HONTAの分解量の γ 線量依存性

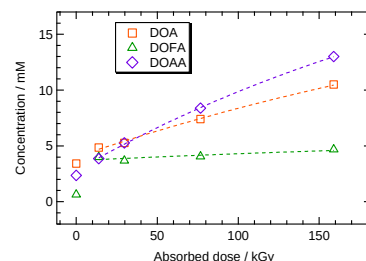


図2 DOA、DOFA、およびDOAA生成量の γ 線量依存性

4. 引用(参照)文献等

- 1) International Atomic Energy Agency, *IAEA-TECDOC-1648* (2010)
- 2) Y. Sasaki et al., *Chem. Lett.*, **42**, 9192 (2013)
- 3) B. J. Mincher and R. D. Curry, *Appl. Radiat. Isot.*, **52**, 189 (2003)