

ドデカンの放射線化学初期過程と分解過程

Radiation Induced Initial Process and Decomposition Process of *n*-Dodecane

*近藤 孝文¹、神戸 正雄¹、西井 聡志¹、樋川 智洋¹、菅 晃一¹、楊 金峰¹、吉田 陽一¹

¹大阪大学産業科学研究所

核燃料再処理で用いられるドデカンの放射線化学初期過程と、分解過程の関係を理解するために、フェムト秒パルスラジオリシス研究を行った。電子線照射により生成した電子は、溶質としてビフェニルがある場合、非常に高速に移動しビフェニルラジカルアニオンを生成することが分かった。一方、ラジカルカチオンも、アルキルラジカルもほぼ同じ生成挙動を示し同じ励起ラジカルカチオンからの生成を示唆した。

キーワード: パルスラジオリシス, アルカン, フォトカソード高周波電子銃加速器

1. 緒言

ドデカンは、核燃料再処理における抽出剤溶媒に用いられているので、放射線分解を理解する必要がある。しかし放射線分解初期過程ははまだ明らかにされていない。パルスラジオリシスは、パルス放射線を照射し、過渡吸収により活性種を観測する手法である。田川らは、シクロヘキサン中でアルキルラジカルの過渡吸収を報告した。時間分解能以内に生成し、その後生成は見られなかった[1]。本研究の目的は、ドデカン中でイオン化によって生成した電子およびラジカルカチオンの反応とそれに引き続く、溶質がある場合の電荷移動反応や、分解して生成物に至るアルキルラジカルの生成過程を解明することである。

2. 実験手法

パルスラジオリシス実験は、フォトカソード高周波電子銃加速器により 1 nC, 500 fs, 35 MeV のパルス電子線を試料に照射し、フェムト秒レーザー光を分析光に用いた。バンドパルフィルタにより分光してフォトダイオードにより検出した。試料はドデカンを石英セルに計量し、Ar により脱酸素した。

3. 結果と考察

ドデカン中の電子の性質を解明するために、ビフェニルドデカン溶液の 415 nm 近傍の過渡吸収時間挙動を測定し、ピコ秒時間分解スペクトルを求めた結果を図 1 に示す。10 ps の秒時間分解スペクトルはビフェニルラジカルアニオンを示している。ドデカン中の過剰電子は $2 \times 10^{12} \text{M}^{-1} \text{S}^{-1}$ の速度でビフェニルに付着しビフェニルラジカルアニオンを生成することがわかった。この事は非常に高速に移動する電子がドデカン中に存在することを示唆している。一方、ラジカルカチオンとアルキルラジカルはほぼ同じ生成挙動を示すことがわかった。このことは、同じ前駆体からの生成を強く示唆している。前駆体として提案している励起ラジカルカチオンは、いまだ観測されていない。そこで、ラジカルカチオンの光再励起により励起ラジカルカチオンを生成し、アルキルラジカルの挙動を調べる実験を行っている。

参考文献

[1] S. Tagawa et al., Radiat. Phys. Chem., Vol.34, No.4, pp.503-511, 1989.

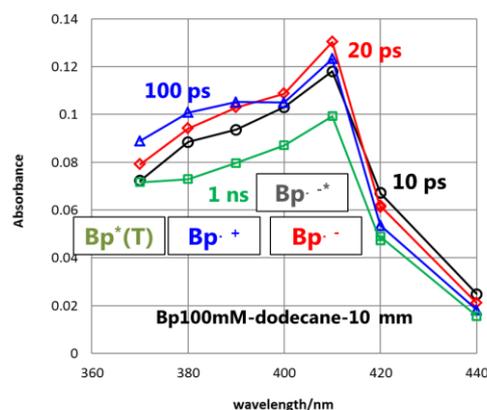


図 1 100mM ビフェニル-ドデカン溶液のピコ秒時間分解過渡吸収スペクトル

*Takafumi Kondoh¹、Masao Gohdo¹、Satoshi Nishii¹、Tomohiro Toigawa¹、Koichi Kan¹、Jinfeng Yang¹、Yoichi Yoshida¹

¹ISIR, Osaka Univ..