

MA/RE 分離抽出剤 HONTA の放射線分解の研究

Radiolysis of HONTA extractant for MA/RE separation

*樋川 智洋¹、鈴木 英哉¹、伴 康俊¹、石井 翔¹、松村 達郎¹

¹ 日本原子力研究開発機構

日本原子力研究開発機構では、高レベル放射性廃液(HLLW)中からマイナーアクチノイド(MA)を回収するための分離プロセスの研究開発を行っている。本研究では MA に対する優れた抽出分離能を持つ新規抽出剤 HONTA について、ドデカン溶媒中での γ 線分解量及び分解生成物を明らかにした。

キーワード : MA/RE 分離、溶媒抽出、HONTA、放射線分解

1. 緒言

MA 分離抽出剤の耐放射線性能の解明は、現在開発が進められている高レベル放射性廃液から MA を分離するプロセスの成立性を評価する上で強く求められている。特に、高放射線場となる抽出溶媒中では、放射線による抽出剤の分解、及び放射線分解生成物の蓄積が長期的なプロセスの運用における問題としてこれまで指摘されてきた。そこで本研究では、MA とレアアース(RE)の分離抽出剤として注目されているヘキサオクチルニトリロトリアセトアミド(HONTA, 図 1)を対象に、 γ 線を用いて、HONTA の放射線分解量を実験的に明らかにすると共に、HONTA の分解生成物を同定した。

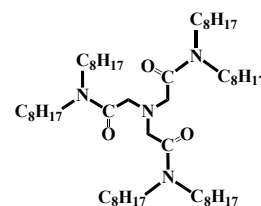


図 1 HONTA の構造

2. 実験

100 mM HONTA-ドデカン溶液に対し、 γ 線照射実験を行った。量研機構・高崎量子応用研究所にある Co-60 から放出された γ 線を用い、試料を異なる 6 つの線量率で 16 時間照射した。線量率は、水への吸収線量換算で、1.2、1.9、3.1、5.2、7.7 及び 11 kGy/h であり、これはニクロム酸カリウム線量計を用いて求めた。

3. 結果・考察

γ 線照射試料中の HONTA の濃度は GC-MS を用いて定量した。図 2 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 dose constant を $1.0 \times 10^{-6} \text{ Gy}^{-1}$ と求めた。これは HONTA を半減させるのに必要な γ 線量が 690 kGy (水換算線量)であることに相当する。また質量スペクトルの解析から、主な HONTA 分解生成物としてジオクチルアミン(DOA)、ジオクチルホルムアミド(DOFA)及びジオクチルアセトアミド(DOAA)が生成することがわかった。DOA、DOFA 及び DOAA の濃度の線量依存性を図 3 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、初期濃度が解析値と実験値で異なった。また DOFA は DOA や DOAA と異なり、16 kGy 以降での増加は観測されなかった。このことは、HONTA の低線量域での分解が DOFA の生成と関与すること、及び 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している。

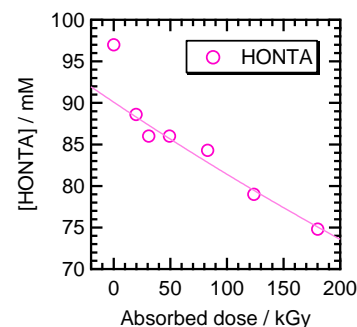


図 2 ドデカン溶液中における HONTA の濃度の γ 線量依存性

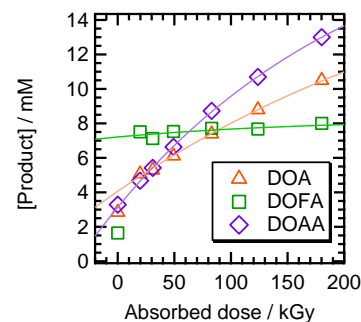


図 3 DOA、DOFA および DOAA の濃度の γ 線量依存性

* Tomohiro Toigawa¹, Hideya Suzuki¹, Yasutoshi Ban¹, Sho Ishii¹ and Tatsuro Matsumura¹,

¹Japan Atomic Energy Agency