

機関番号：82110

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2008～2010

課題番号：20760599

研究課題名（和文） α 線放出核種と錯形成する抽出剤の放射線分解機構の解明

研究課題名（英文） Radiolysis of the organic extractant for separation of minor actinides

研究代表者

須郷 由美 (SUGO YUMI)

独立行政法人 日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：90354836

研究成果の概要（和文）：使用済み核燃料からマイナーアクチノイド（MA）を分離回収するプロセスでは、 β 線や γ 線だけでなく α 粒子も抽出剤に吸収される。本研究では、MA分離用抽出剤テトラオクチルジグリコールアミド（TODGA）の放射線分解機構を解明する目的で、加速器を利用したヘリウムイオンの照射実験を行った。その結果、ヘリウムイオンの照射では、吸収線量の増加にともなうTODGAの分解率の変化が γ 線照射に比べて小さく、ドデカン中TODGAの分解が抑えられることがわかった。

研究成果の概要（英文）：In the actual partitioning process of spent nuclear fuel, an organic extractant will be exposed to α -particles emitted from minor actinides, as well as β - and γ -rays. In this study, α -radiolysis of tetraoctyldiglycolamide (TODGA) was investigated by the irradiation with helium ions provided by accelerators. It was found that the radiation chemical yield for the degradation of TODGA by helium ions was less than that by γ -rays.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：使用済み核燃料、マイナーアクチノイド、アメリカシウム、溶媒抽出、抽出剤、放射線分解、 α 線、ヘリウムイオン

1. 研究開始当初の背景

使用済み核燃料の再処理によって生じる高レベル廃液（HLW）中には、ウラン（U）やプルトニウム（Pu）の核反応によって生成するマイナーアクチノイド（MA）や核分裂生成物等様々な放射性核種が存在する。なかでも、アメリカシウム（Am）やキュリウム（Cm）に代

表される MA は、長寿命の α 線放出核種で高い放射能毒性をもつため、これらを分離回収した後に安定核種や短寿命核種へと核変換することで、放射性廃棄物処分における負担の軽減化が期待される。

HLW から MA を分離するプロセスでは、抽出剤が強い放射線場にさらされるため、抽出剤

の放射線化学的劣化を回避することは難しい。放射線劣化による分解生成物が抽出能に影響を及ぼすような場合や安全性に問題を生じさせるような場合には、その分解生成物の濃度にある限界値を定めて管理する必要性も考慮しなくてはならない。したがって、抽出剤の放射線分解挙動を把握することは、MA 分離プロセスを構築する上できわめて重要である。

研究代表者らは、MA と強力に錯形成するテトラオクチルジグリコールアミド (TODGA) をはじめとする新規な MA 分離用抽出剤をこれまでに開発し、強い放射線場における抽出剤の安定性や放射線分解初期過程を、 γ 線や電子線パルスの照射実験により明らかにしてきた。

一般に、放射線と物質との相互作用、すなわち放射線による電離と励起は放射線の線質にあまり依存しないが、分解生成物の種類や生成収量は線質に依存することが知られている。しかし、アミド化合物に限らず、抽出剤を α 線、 β 線、 γ 線で照射した場合の線質の違いによる放射線劣化に関する系統的な研究はこれまで例がない。特に、 α 線は飛程が短いため、高濃度の α 核種を内部線源として用いる方法が一般的と考えられるが、その取扱には制限も多く α 放射線分解に関する研究報告例はきわめて少ない。

2. 研究の目的

MA 分離用抽出剤は、 α 核種と特異的に錯形成するといった特性をもつため、 β 線や γ 線の照射だけでなく、線質の異なる α 線の照射による放射線分解挙動も把握する必要がある。

Am 等の α 核種を内部線源として α 線の照射実験を行う場合、Am から放出される α 線の線量率が低いため、長期にわたって経時変化を追跡しなくてはならないことから、 α 壊変によって生じる娘核種や共存する硝酸の影響なども考慮しなくてはならず、きわめて複雑な系といえる。また、長寿命の α 核種で一度汚染された抽出剤の分解生成物を分析するのは、既存の設備では汚染を拡大させる恐れがあり不可能である。

本研究では、これらの問題を解決するとともに、MA 分離用抽出剤の α 線による放射線分解の機構を解明することを目的として、主に加速器を用いたヘリウム (He) イオンの照射実験を行い、抽出剤の放射線分解における放射線の線質効果を明らかにする。さらに、抽出剤の溶媒抽出特性に与える各種放射線の影響についても検証する。

3. 研究の方法

(1) 加速器を利用した照射実験

MA 分離用抽出剤 TODGA を溶解したドデカン溶液に、AVF サイクロトロンから生じる高エネルギー (20–100 MeV) の He イオンビームまたは 3 MV タンデム加速器から生じる低エネルギー (9 MeV) の He イオンビームを、それぞれ大気圧のもと垂直または水平方向にスキャン照射した (図 1)。サンプル表面へのイオンの入射エネルギーは、それぞれ遮蔽材として用いたアルミ箔の厚さ、照射窓面から照射試料までの距離で調整した。また、各入射エネルギーに応じてサンプルの液厚がイオンの飛程よりも十分に長くなるようにサンプル量を設定した。フルエンスはファラデーカップで測定したビーム電流値と試料の照射時間から求まる計算値を固体飛跡検出器 CR-39 を用いて実測した値で補正した。

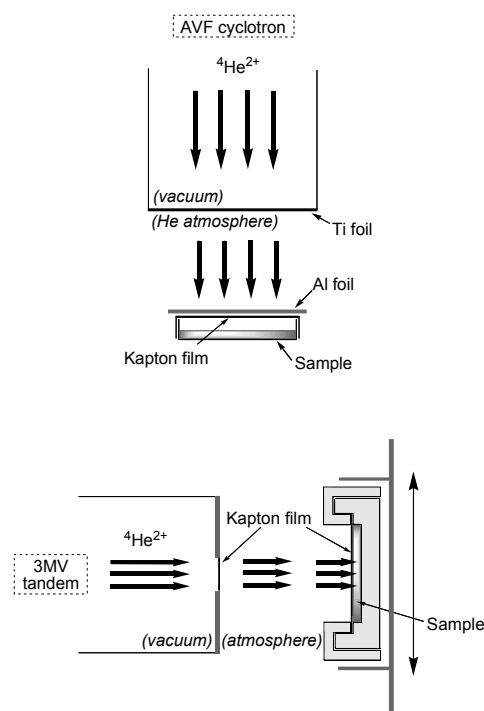


図 1 サイクロトロンおよびタンデム加速器から生じる He イオンの照射

(2) 放射線劣化溶媒を用いる抽出実験

加速器から生じる He イオンおよび Co-60 線源から生じる γ 線の照射によりそれぞれ劣化させた抽出剤の溶液と、Am-241 を含む硝酸水溶液とを、抽出平衡に達するまで十分に振とうした後、有機相、水相中の放射能濃度を液体シンチレーションカウンターにより分析し、その濃度比から分配比を求めた。

(3)内部線源による α 線照射実験

高濃度の Am-241 を含む硝酸水溶液と抽出剤を抽出平衡に達するまで振とうした後の有機相、水相間の Am イオンの分配比の経時変化を長期にわたって観測し、内部 α 線源による抽出剤の放射線劣化に伴う分配比の変化を調べ、(2)で得られた結果と比較した。

4. 研究成果

(1)加速器を利用した照射実験

Am 等 α 核種から放出される α 粒子に相当する 5 MeV のエネルギーをもつ He イオンビームを、加速器を利用して外部から抽出剤に照射するための条件を整備し、 α 放射能汚染の無い照射後試料を従来の γ 線照射実験の場合と同様に分析することができた。また、He イオンビームの電流値を大きくすることで短時間での照射が可能となり、内部線源を用いる照射実験に比べ飛躍的に照射時間を短縮することに成功した。

照射後試料をガスクロマトグラフ質量分析装置で分析し、吸収線量の増加にともなうドデカン中 TODGA 濃度の減衰を γ 線照射の場合と比較した結果を図 2 に示す。He イオンの照射では、TODGA の分解率の変化が γ 線照射に比べて小さく、ドデカン中 TODGA の分解が抑えられることがわかった。

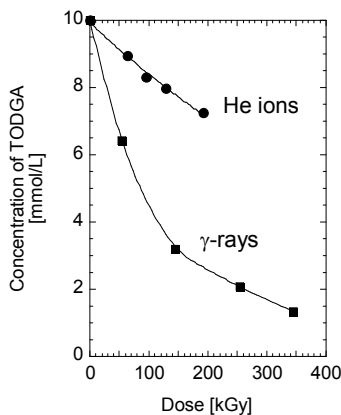


図 2 ドデカン中 TODGA 濃度の減衰曲線

本結果から、 α 線、 β 線、 γ 線が混在する実際の系での抽出剤の分解収量は、従来の γ 線照射試験のみで得られる値よりもかなり低く見積もられることが示唆された。

さらに、He イオンの入射エネルギーを変化させた場合、入射エネルギーが低くなるほど、つまり線エネルギー付与 (LET) が高くなるほど、吸収線量の増加にともなう TODGA の分解率の変化が小さくなることがわかった。これは、LET が高いほどイオンの飛跡に沿って

高密度で局所的に活性種が生成するため、活性種間での相互作用が大きくなり分解反応に寄与する活性種が減少したためである。

(2)放射線劣化溶媒を用いる抽出実験

α 粒子に相当する 5 MeV の He イオンおよび γ 線を、0.1 M TODGA のドデカン溶液に照射した。照射により劣化した抽出溶媒と、Am イオンを含む 3.0 M 硝酸水溶液とを抽出平衡に達するまで十分に振とうした後の有機相、水相中の放射能濃度の比から分配比を求めた。その結果、He イオン照射および γ 線照射ともに、吸収線量が 200 kGy を超えても分配比の劣化は認められなかった。このことから、放射線分解生成物も抽出に寄与しているものと考えられる。

(3)内部線源による α 線照射実験

0.86 MBq の放射能をもつ Am-TODGA 錯体のドデカン溶液を調製し、3.0 M 硝酸水溶液と十分に振とうした後の有機相、水相間の Am イオンの分配比の経時変化を追跡した。TODGA が受ける α 線の吸収線量率は 1 日あたり 1 kGy にも満たないため長期間の観測を要したが、200 kGy 程度の α 線を吸収しても錯形成能に有意な劣化は認められなかった。

(3)の Am を内部線源に用いた実験では、放射能毒性の高い α 核種の取扱量に制限があることから吸収線量率が低く、また長寿命の α 核種で抽出剤が汚染されるといった欠点がある。それに対して、(2)の加速器を利用した実験では、照射電流を大きくすることで短時間での照射が可能で、抽出剤の α 放射能汚染が生じないため照射後試料の分析が容易であるといった利点がある。

吸収線量に対する分配比の変化を比較すると両者で大きな違いは観測されなかったことから、実プロセスでの放射線場の環境に近い(3)の実験を模擬する手法として、(2)の加速器を利用した実験が有効であることが確かめられた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

- ① Yuji Sasaki, Yoshihiro Kitatsuji, Yasuhiro Tsubata, Yumi Sugo, and Yasuji Morita; Separation of Am, Cm and lanthanides by the solvent extraction with hydrophilic and lipophilic organic ligands, *Solvent Extr. Res. Dev., Jpn.*, 18, 69 (2011). 査読有
- ② Yumi Sugo, Mitsumasa Taguchi, Yuji

Sasaki, Koichi Hirota, and Yasuji Morita; Alpha-Radiolysis of Organic Extractants for Separation of Actinides, *JAEA-Review 2010-065*, 17 (2011). 査読無

- ③ Yasuji Morita, Yuji Sasaki, Toshihide Asakura, Yoshihiro Kitatsuji, Yumi Sugo, and Takaumi Kimura; Development of a New Extractant and a New Extraction Process for Minor Actinide Separation, *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*, 9, 012057 (2010). 査読有
- ④ Yumi Sugo, Mitsumasa Taguchi, Yuji Sasaki, Koichi Hirota, and Takaumi Kimura; Radiolysis Study of Actinide Complexing Agent by Irradiation with Helium Ion Beam, *Radiat. Phys. Chem.*, 78, 1140 (2009). 査読有

[学会発表] (計14件)

- ① Yumi Sugo, Mitsumasa Taguchi, Yuji Sasaki, Takaumi Kimura, and Yasuji Morita; Radiolysis of Amidic Extractants for the Separation of Actinides, *International Workshop on Radiation Effects in Nuclear Technology*, March 9-10, 2011, Tokyo (Tokyo Univ.), Japan.
- ② Yumi Sugo, Mitsumasa Taguchi, Yuji Sasaki, and Yasuji Morita; Influence of energy of helium ions on degradation of diglycolamide in *n*-dodecane, *3rd Asia-Pacific Symposium on Radiation Chemistry and 10th Trombay Symposium on Radiation & Photochemistry (APSRC-TSRP-2010)*, Sep. 14-17, 2010, Lonavala, India.
- ③ 須郷由美、田口光正、佐々木祐二、広田耕一、森田泰治、ヘリウムイオン照射によるMA分離用抽出剤の α 放射線分解、日本原子力学会「2010年春の年会」2010年3月26-28日、水戸（茨城大学）
- ④ Yuji Sasaki, Yumi Sugo, Morihisa Saeki, Yasuji Morita, Akira Ohashi; Extraction of technetium(VII) and rhenium(VII) by the new reagent, 2-(Imino)bis(*N,N*-di-alkylacetamide) (IDAA), *International Conference Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC-09)*, Nov. 29 - Dec. 4, 2009, Napa, California, USA.
- ⑤ Yumi Sugo, Mitsumasa Taguchi, Yuji Sasaki, and Takaumi Kimura; α -Radiolysis of Amidic Extractants by Helium Ion Beam, *10th OECD Nuclear Energy Agency (NEA) Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation (10th IEMPT)*, Oct. 6-10, 2008, Mito,

Japan.

- ⑥ Yumi Sugo, Mitsumasa Taguchi, Yuji Sasaki, Koichi Hirota, and Takaumi Kimura; Radiolysis Study of Actinide Complexing Agent by Irradiation with Helium Ion Beam, *2nd Asia-Pacific Symposium on Radiation Chemistry (APSRC-2008)*, Aug. 29 - Sep. 1, 2008, Tokyo (Waseda Univ.), Japan.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

須郷 由美 (SUGO YUMI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：90354836