

福島第一原発の燃料デブリ取出しにおける再臨界防止剤の γ 線照射試験

γ -irradiation test of the recriticality inhibitor for the purpose of removing fuel debris from the Fukushima-Daiichi Nuclear Power Plants.

牛尾 典明¹⁾

Noriaki USHIO

1) 花王株式会社

（概要）

福島第一原発において安全、かつ迅速に燃料デブリを取り出すことを目的として、非溶解性中性子吸収剤を用いた再臨界防止剤の開発を行っている。我々は界面活性剤自己集合体である紐状ミセルを形成するビスコトップ（アルキルアリルスルホネートとアルキルアンモニウム塩とのコンプレックス）を用いることで多くの炭化ホウ素粒子を安定に担持できる水に不溶な高粘度流体を得られることを見出している。これまで、このビスコトップをリード化合物として耐放射線性と高温における溶出耐性の向上検討に取り組み、改善の方向性を見出してきた。本年度は改良ビスコトップのガンマ線照射による分解物の特定検討を行った。

キーワード：福島第一原発、燃料デブリ、非溶解性中性子吸収剤、再臨界防止、ビスコトップ

1. 目的

燃料デブリを取り出す際に、燃料デブリが再臨界となる危険性が懸念されている。再臨界を防止するためには水中において中性子吸収剤を燃料デブリに展着させる必要があることから、水中不分離性を有する高粘度流体である紐状ミセルを形成するビスコトップの応用を考えている。しかし、ビスコトップは有機低分子である界面活性剤を主体とするため、高強度の放射線に対する耐性が弱いことが明らかとなった。そこで、放射線に対して耐性のある界面活性剤を探索すると同時に、放射線に対する安定化剤を探索することによって高い放射線強度の環境下においても高粘度流体を保つことの出来る界面活性剤自己集合体（紐状ミセル）を探索することを目的とした。また、ある程度の分解は抑制が難しいことから、安全性を担保するための情報として、放射線照射によって生成する分解物の特定を行うことについても目的とした。

2. 実施方法

改良ビスコトップを用いて炭化ホウ素を担持した高粘度流体（スラリー）を調製し、得られたスラリーをコバルト 60 ガンマ線照射施設において一定時間ガンマ線を照射した。ガンマ線照射後の重量変化、界面活性剤の分解率と高粘度流体の粘度を測定することによって評価を行った。また、分解物の特定を LC-UV、GC-MS 等を用いて実施した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

昨年度までの検討から、現行製品であるビスコトップはガンマ線照射によりほぼ 100%分解することから、安定性の向上を目指して検討を進めた結果、改良ビスコトップを見出すとともに、ある種の構造を有する安定化剤を用いることにより、改良ビスコトップの残存率を更に向上出来、高粘度の状態を保つことが出来る可能性を得た。また、ガンマ線による基剤の分解にともない、ギ酸、酢酸、シュウ酸が主に生成することにより pH が低下していることが分かり、pH 緩衝剤を配合するとともに安定化剤を最適化することで照射強度 10kGy/h、720 時間のガンマ線照射に対して、pH

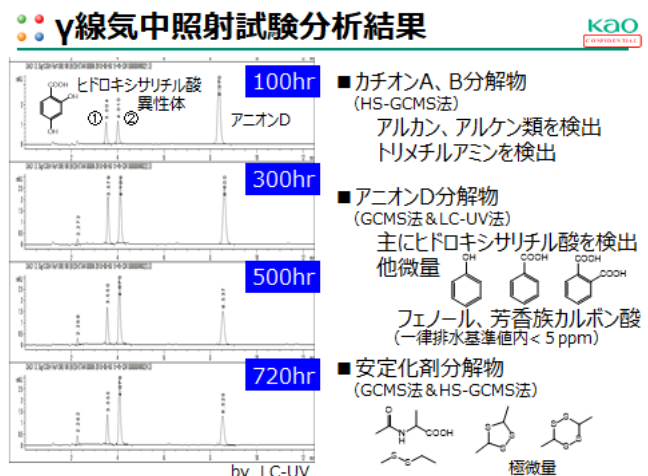


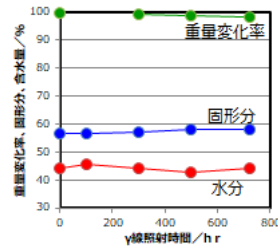
図. 1 γ 線気中照射試験分析結果
(様式 H29. 5 改)

と高粘度の状態を維持できる処方を見出している。今年度は改良ビスコトップスラリーのガンマ線照射による分解物の特定を LC-UV、GC-MS を用いて行った。その結果、図. 1 に示すように、100～720 時間のガンマ線照射において、アルカン、アルケン、トリメチルアミン、フェノール、芳香族カルボン酸、アセチルシステイン各種分解物等を特定するに至った。また、図. 2 に示すように、改良ビスコトップスラリーはガンマ線照射時間に依存して重量変化が見られたが、GC による分析によりエタノールが揮発していることに起因していることが予測され、ガス発生による重量変化はわずかと考えられた。今後、ガンマ線照射による分解物の定量を行い、開発してきた改良ビスコトップを用いた非溶解性中性子吸収剤を、安全に燃料デブリ取出し作業を遂行することが出来るよう検討を進めて行く。

γ線気中照射試験結果



＜γ線照射後のスラリーの重量変化と固形分と含水量＞



- 照射によって処方中のエタノールが揮発（GC法）
- ガス発生による重量変化はわずかと考えられる

図. 2 γ線気中照射試験重量変化結果

4. 引用(参照)文献等

- [1] N.Ushio, K.Koyanagi, H.Terazaki, "Development of the insoluble neutron absorbers using self-assembled surfactant aggregates", 第2回福島第一廃炉国際フォーラム, Jul. 2-3
- [2] 牛尾典明、小柳幸司、寺崎博幸, "界面活性剤自己集合体を用いた非溶解性中性子吸収材の開発", 日本原子力学会 2017 年秋の大会, 3G05