

原子力水化学のための高エネルギー照射場の非均質現象の研究
Studies on inhomogeneous phenomena in high-energy irradiation fields
for nuclear water chemistry

永石 隆二¹⁾ 井上 将男¹⁾ 桑野 涼¹⁾ 松本 義伸²⁾ 伊藤 辰也³⁾

Ryuji NAGAISHI Masao INOUE Ryo KUWANO Yoshinobu MATSUMOTO Tatsuya ITO

¹⁾原子力機構 ²⁾長岡技科大 ³⁾東北大

(概要)

福島第1原発(1F)廃止措置に関連して、海水成分が含有または吸着材、燃料デブリ等の酸化物が共存した水溶液系での放射線誘起反応の基礎過程の研究等を進めるとともに、現場で起きた事象の原因究明を要請の都度行っている。平成29年度、本課題では主にガンマ線を用いた定常照射実験として、海水系等での水の放射線分解の実験的評価(線質影響)、ジルカロイ酸化生成物共存の水の放射線分解の研究、1F・DOE関連のスラリー廃棄物や固相吸着材の放射線誘起劣化・機能化の研究等を進めて、1F対策に必須な成果等を会議発表や論文として上げた。

キーワード：海水、ゼオライト、高温酸化・熔融生成物、固相吸着材、放射線分解、収量(G値)

1. 目的

放射線照射下で海水成分等の溶質が溶解あるいは吸着材等の酸化物が共存した水溶液では、溶質または酸化物の直接作用並びに水の分解生成物との相互作用によって水溶液中の反応が変動するが、これらの基礎的な過程は化学量論的かつ速度論的に解明されていない。これを明らかにするためには、定常とパルスの照射実験で最終生成物・過渡吸収データを取得して、線質を含めた各種条件下の収量と反応を評価する必要がある。そこで本課題では、溶質や酸化物を含んだ水溶液に電子線やガンマ線を照射して、金属イオンの酸化還元や水素の発生を最終生成物として測定する。

2. 実施方法

水溶液は純水、海水、塩化物や臭化物を溶解した水等とした。固体材料はゼオライト等の吸着材やジルカロイ高温酸化生成物等のジルコニウム(Zr)酸化物とした。試料には水溶液のみ、及び水溶液と酸化物の混合物を用いた。これらをガラスバイアル(高さ5-25 cm)に封入し、コバルト60ガンマ線照射施設(第2照射棟)の照射室に設置後、ガンマ線(線量率0.5-10 kGy/h, 積算線量<20 kGy)で照射した。照射後に最終生成物として、バイアルのヘッドスペース中の水素分子(H₂)、水溶液中の過酸化水素(H₂O₂)、酸素分子(O₂)等を分析した。線量測定は重クロム酸溶液線量計等を用いて照射毎に行い、線量計の測定値との比較から試料の吸収線量を評価した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

海水塩効果の収量と反応 [1-2]: 定常照射による最終生成物データ及びパルス照射(パルスラジオリシス)によるラジカルの過渡吸収データをもとに、海水系で主要な反応のハロゲン化物イオンによる水酸化ラジカル捕捉の塩濃度依存性の評価を試みた。また、海水系での分解収量の線質効果の評価に着手するため、エックス線(CLADS 富岡)やアルファ線(米国研究機関との共同)による照射実験の検討を進め、各種の溶液線量計を用いたガンマ線による照射実験データを取得した。

固体材料の照射・経年変化 [3-4]: 放射性物質を内包した固体材料として1Fで重要な、燃料デブリの周囲の放射線環境(複合照射場)を燃焼計算等で長期間にわたって評価して、デブリ関連の照射実験課題について検討した。また、デブリ経年変化(健全性・保持能力の劣化)のキー反応として、水の分解生成物であり酸化剤のH₂O₂の熱(自己)分解等を固体材料共存下で調べた。

4. 引用(参照)文献等

- [1] 永石, 近藤ら, 原子力学会 2016 年秋の大会 3C04 (2016); 2017 年春の年会 2I07 (2017)他.
- [2] R. Nagaishi, "26 Evolution of Water Radiolysis Studies for Measures against Post-severe Accidents", RADIOISOTOPE, 66(11), 601-610 (2017).
- [3] 永石, 松村, 奥村ら, 原子力学会 2017 年秋の大会 シリーズ 1F06-07, 企画 1PL-04 (2017)他.
- [4] 永石, 桑野ら, 原子力学会 2016 年春の年会 2I21 (2016); 2018 年春の年会 2M02 (2018)他.