

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⁾ 松村 太伊知¹⁾ 井上 将男¹⁾ 桑野 涼¹⁾ 松本 義伸²⁾

Ryuji NAGAISHI Taichi MATSUMURA Masao INOUE Ryo KUWANO Yoshinobu MATSUMOTO

¹⁾原子力機構 ²⁾長岡技科大

(概要)

福島第1原発の廃止措置に関連して、海水成分が含有あるいは吸着材、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に関する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28年度、本課題ではガンマ線や電子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プライマリ収量の実験的評価、ジルコニウム酸化物共存の水の放射線分解による水素発生に関する研究、並びにスラリー廃棄物(炭酸塩・ベントナイト)の放射線誘起劣化に関する研究を進め、会議や論文の発表に必須の成果を上げた。

キーワード: 海水、ゼオライト、ジルコニウム酸化物、放射線分解、水素発生、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と考えられるが、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、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、水溶液中の金属イオン還元や水素発生を生成物分析で測定する。

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。固体酸化物はゼオライト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)に封入して、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4-6 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。線量測定は試料と同じ高さの重クロム酸溶液線量計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

プライマリ収量の実験的評価 [1-2]: 分子生成物のH₂が水中の反応でほとんど減少しないと考えられる海水とその濃厚系に注目して、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)によるラジカル過渡吸収データをもとに、水の分解のプライマリ収量の評価を試みた。その結果、プライマリ収量の塩濃度依存性を水の分解生成物毎に明らかにすることができた。

Zr酸化物共存の水溶液からのH₂発生 [2-3]: 水中に酸化物が共存するとH₂発生が促進されるため、その促進に及ぼす酸化物のサイズ(粒径、比表面積等)の影響について調べた。その結果、無孔性で生成するジルカロイ-4の酸化生成物では粒径100 µm未満でH₂発生の促進が顕著に確認された。

放射線誘起劣化(radiation-induced degradation)については、スラリー廃棄物[4]だけでなく、今後取り出しが行われる燃料デブリについても物理・化学的な変化の観点から検討が必要である。

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).
- [2] 永石, 「シビアアクシデント後対策のための水の放射線分解研究の展開」, 特集「最新放射線化学」応用編, RADIOISOTOPES, 日本アイソトープ協会 (2017). (8ページ, 発行予定)
- [3] 松本, 井上, 永石, 鈴木, 小川, 原子力学会 2017年春の年会 2H20 (2017).
- [4] R. Nagaishi *et al.*, EFCOG Nuclear & Facility Safety, Workshop, ANL, USA, 9 August 2016.