

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材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中性子吸収材である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ており、ガンマ線照射による分解物の特定も行ってきた。本年度は施工における安全性の確保を目的として、改良ビスコトップのガンマ線照射によるニオイへの影響や格納容器材質に対する影響について検討を行った。

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材、再臨界防止、ビスコトップ

1. 目的

福島第一原発の廃炉を進めるにあたって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材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、ガンマ線に対して耐性のある界面活性剤を探索すると同時に、ガンマ線に対する安定化剤を探索することによって高いガンマ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、ガンマ線照射によって生成する分解物の特定を行うことで安全性を担保するための情報の参考にするとともに、デブリ取出しを安全に施工するためにニオイの発生や材質に対する腐食への影響について検討することを目的とした。

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。ガンマ線照射後のサンプルについてニオイ評価、および材質腐食試験を行った。

3. 結果及び考察、今後の展開等

昨年度までの検討より、現行製品であるビスコトップはガンマ線照射によってほぼ 100%分解することが分かったことから、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ている。また、ガンマ線照射による分解物の特定を行った結果、10kGy/h の照射強度で 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、ギ酸、酢酸、シュウ酸、及び安定化剤の分解物等を特定するに至った。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がニオイに及ぼす影響や原子炉格納容器の材質に与える影響について検討を行った。

耐放射線性を向上するために安定化剤としてある種の構造を有する剤を用いているが、これは S 化合物であるためにニオイの発生について懸念点が残る。また、分解によって発生しているトリメチルアミンもニオ

イの懸念がある。実際、ガンマ線照射後のスラリーサンプルはかなりニオイが強くなっている印象があったため、ニオイについて定性的な評価を行った。図.1 に臭気判定士が行ったニオイ評価結果を示す。評価指標は悪臭防止法が定める6段階臭気強度表示法に則ったものである。ガンマ線照射前のスラリーサンプルは臭気強度が2.5であり、「何のニオイか分かる弱いニオイ」と「楽に感知できるニオイ」の中間であり規制基準の範囲内であった。しかし、1MGy 照射することによって臭気強度は4.5まで上がり、「強いニオイ」と「強烈なニオイ」の中間であるかなり強いニオイになる事が判明した。実際の現場では放射性核種の漏出を抑制するために格納容器内は負圧に管理されており、ニオイが外部に漏れることはないと考えているが、万が一のことを考えるとニオイは弱い方が好ましいと考える。一方では少しはニオイのようなものがあつた方が放射性核種の漏出を検知するうえでも好ましいという意見もあることから、若干程度のニオイ抑制を検討することとした。防臭効果のある剤の探索として各種の活性炭やゼオライトについて添加検討を行った結果、図.1 に示すようにユニオン昭和株式会社製のある種のゼオライトを炭化ホウ素に対して一部置換することによってニオイ抑制効果があることが明らかとなった。

材質腐食試験を行った結果、図.2 に示すように格納容器材質である炭素鋼 SGV480 は200 倍希釈海水で激しく腐食すること、五ホウ酸 Na4000ppm 添加で腐食を抑制できることについて、文献データの再現を得ることが出来た。ここに我々の開発したスラリーサンプルをテストピースに接触させると、照射なしのスラリーサンプルの場合は腐食に対してほぼ影響がなかった一方で、1MGy のガンマ線照射をしたものについては腐食を促進することが明らかとなった。これはガンマ線照射によって生成した腐食性を有するギ酸によるものであると推測している。ここに炭化ホウ素に対して一部ユニオン昭和株式会社製のゼオライトを置換したものは腐食を抑制できる可能性を得た。

IRID よりゼオライトは腐食を促進するのでは、という意見もあったことから、今後、再現試験を実施する。また、今回はガンマ線照射試験を実施したスラリーサンプルを用いて非照射下で材質腐食試験を実施したが、今後はガンマ線照射下における材質腐食試験を実施する必要性があると考えている。

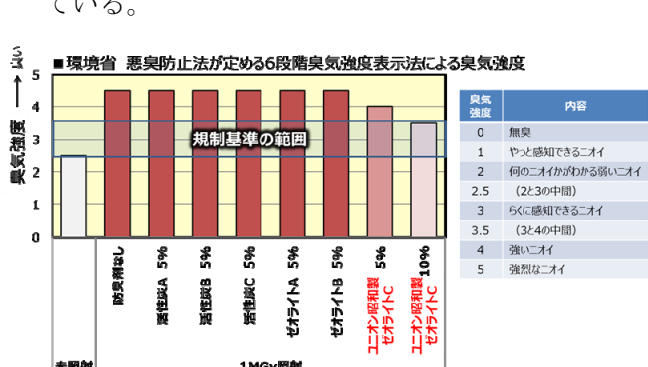


図.1 臭気判定士による臭気強度評価結果

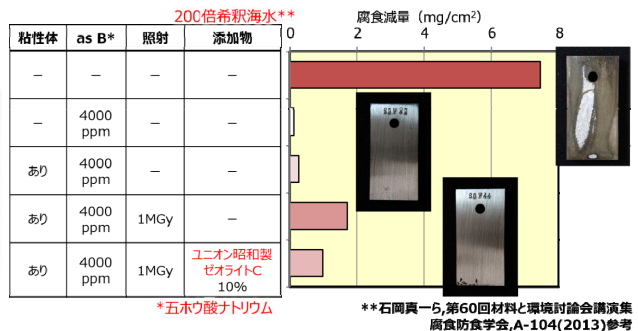


図.2 SGV480 の材質腐食試験結果

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
- [3] 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 (2)", 日本原子力学会 2018 年秋の大会, 1M19