

立方晶ジルコニアを添加した水の放射線分解水素発生

Hydrogen generation by radiolysis of water that included cubic zirconia

*松本 義伸¹, 井上 将男², 永石 隆二², 小川 徹¹

¹長岡技術科学大学, ²日本原子力研究開発機構

原子炉のシビアアクシデント(SA)により生ずる放射性廃棄物の長期保管を想定し、ジルコニウム合金の高温酸化生成物が水の放射線分解に及ぼす影響を調べている。酸化ジルコニウムの結晶型の影響を調べるため、本報告では、立方晶ジルコニアを添加した水の放射線分解実験を行い、気相に放出された水素の収量を測定した。

キーワード：立方晶ジルコニア，放射線分解，水素発生，純水，海水

1. 緒言

SAにより生ずる放射性廃棄物には、燃料被覆管に用いられるジルコニウム合金の酸化生成物が多量に存在する。廃棄物に含まれる水は放射線分解により水素等を発生するが、水素の発生量は水中に存在する固体酸化物により影響を受けることが知られている[1]。これまでにジルカロイ-4を酸化したジルコニウム酸化生成物を添加した水の放射線分解における水素発生を測定してきた。比較対象として単斜晶ジルコニアおよびイットリア安定化ジルコニア(YSZ)粉末の影響を調べ、正方晶ジルコニアを主とするYSZでは顕著な水素発生促進効果を認めた[2]。本報告では、正方晶ジルコニア含有YSZとの比較のために、立方晶ジルコニア100%のYSZ単結晶(YSZSC)を砕いた粉末を添加した水の放射線分解実験を行い、その影響を調べた。

2. 実験

Dalian Keri Optoelectronic Technology 製 YSZSC を乳鉢で粉砕し、粒子径 $340\mu\text{m}$ と $8\mu\text{m}$ の粉末を作成した。これらを 0-50 wt% の重量分率で純水に添加し、4 ml のガラスバイアルに懸濁液高さが 1 cm になるよう調製してセプタム密封した。バイアルへの照射は、原子力機構のガンマ線照射装置 (Co-60 線源) を用いた。試料の吸収線量は化学線量計を用いて評価した。照射後バイアルの気相中の水素濃度をガスクロマトグラフによって測定し、試料の吸収線量と水素発生量から水素の観測収量 $G(\text{H}_2)$ を求めた。

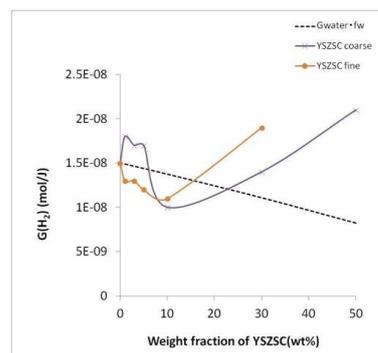


Fig. 1 YSZSC を添加した純水の $G(\text{H}_2)$

3. 結果・考察

Fig.1 に観察された水素収量 $G(\text{H}_2)$ (mol/J) の添加した酸化物の重量分率(wt%)への依存性を示した。破線はバイアル中の水に吸収された放射線のエネルギーのみが水素生成に寄与した場合の $G(\text{H}_2)$ を示している。本実験により、YSZSC 添加量が少ない領域では複雑な挙動を示したが、30wt%以上では水素発生促進効果がみられた。この促進効果は粒子径が小さい $8\mu\text{m}$ の YSZSC 粉末で、より顕著であった。

参考文献

[1] N. G. Petrik et al., J. Phys. Chem. B 2001; 105: 5935-5944.

[2] Y. Matsumoto, T.M.D. Do, M. Inoue, R. Nagaishi, T. Ogawa, J. Nuc. Sci. Tech. 2015; 52: 1303-1307

謝辞

本研究は経済産業省資源エネルギー庁委託事業「発電用原子炉等安全対策高度化技術基盤整備事業（水素安全対策高度化）」(平成 24～26 年度) の成果である。ここに謝意を表します。

*Yoshinobu Matsumoto¹, Masao Inoue², Ryuji Nagaishi² and Toru Ogawa¹

¹Nagaoka University of Technology, ²Japan Atomic Energy Agency