

## 高温水のピコ秒パルスラジオリシス：スパー拡散過程における素反応

Picosecond pulse radiolysis study on elemental spur diffusion reactions in water at high temperatures

\*室屋 裕佐<sup>1</sup>, 吉田 哲郎<sup>1</sup>, 金森 航<sup>1</sup>, 勝村 庸介<sup>2,3</sup>, 山下 真一<sup>3</sup>, 古澤 孝弘<sup>1</sup>

<sup>1</sup>阪大産研, <sup>2</sup>日本アイソトープ協会, <sup>3</sup>東大院工

高温下における放射線化学反応は極めて高速に進行するため、高温高圧状態下でもピコ秒分解能で計測可能なパルスラジオリシスを構築し、ピコ～ナノ秒領域における水和電子測定から、空間的に不均一な初期反応過程（スパー拡散反応過程）における時間依存収量（G 値）や素反応を調べた。

**キーワード：**ピコ秒パルスラジオリシス、高温水、水和電子、G 値、スパー拡散反応

### 1. 緒言

軽水炉冷却水（亜臨界・超臨界水）のラジオリシスや構造材料界面における相互作用を把握することは、現行炉水化学の高度化および次世代炉（SCWR）水化学技術開発の基盤として重要である。高温ラジオリシス研究はこれまで定常照射法やナノ秒パルスラジオリシス法等で進められてきたが、室温よりも極めて高速化（短寿命化学種は更に短寿命化）するため直接的な観測は困難であった。ピコ秒パルスラジオリシスにより主な分解生成物である水和電子を直接追跡し、スパー反応過程における G 値や素反応を調べた。

### 2. 実験

フォトカソードライナック（照射ビーム源）、フェムト秒レーザー（分析光源）を用いたパルス・プローブ法に基づくピコ秒パルスラジオリシス装置を構築した[1]。ピコ秒からナノ秒の時間領域において、可視～近赤外領域の過渡吸収測定により水和電子の時間挙動を追跡した。

### 3. 結果と考察

照射後 60 ps における水和電子スペクトルを図 1 に示す。縦軸は  $G \times \epsilon [(100\text{eV})^{-1}\text{M}^{-1}\text{cm}^{-1}]$  を示すが、吸収ピーク波長の  $G\epsilon_{\text{max}}$  は温度にあまり依存しなかった。モル吸光係数  $\epsilon_{\text{max}}$  は温度に依存しないことから[2]、G 値(60 ps)もほぼ一定であると考えられる。

異なる pH（中性、pH = 11.4）において、水和電子の時間依存収量を測定した。室温と 300 °C の結果を図 2 に示す。時間減衰は、室温では両 pH でほぼ同じであるが、300 °C ではアルカリ下で遅くなった。

OH<sup>-</sup>によりプロトンが捕捉されるため

（捕捉時間は ca.400 ps）、水和電子とプロトンのスパー反応 ( $e_{\text{aq}}^- + \text{H}_3\text{O}^+ \rightarrow \text{H} + \text{H}_2\text{O}$ ) が抑制されたと考えられる。スパー拡散モデルに基づく計算結果も合わせ、詳細を当日議論する。

#### 参考文献

[1] Y. Muroya, Y. Katsumura et al., *J. Phys. Chem. Lett.*, **1**, 331 (2010).

[2] A. J. Elliot, D. M. Bartels, Report AECL, (2009).

\*Yusa Muroya<sup>1</sup>, Tetsuro Yoshida<sup>1</sup>, Wataru Kanamori<sup>1</sup>, Yosuke Katsumura<sup>2,3</sup>, Shinichi Yamashita<sup>3</sup>, Takahiro Kozawa<sup>1</sup>

<sup>1</sup>ISIR, Osaka Univ., <sup>2</sup>Japan Radioisotope Association, <sup>3</sup>Sch. Eng., Univ. of Tokyo

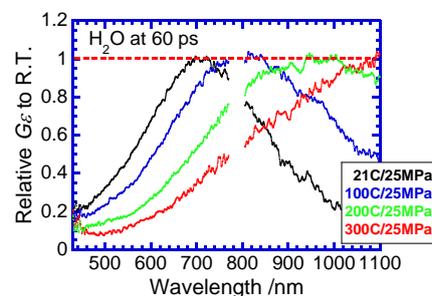


Fig. 1. Optical spectra (relative  $G\epsilon$  at 60ps) of  $e_{\text{aq}}^-$  in neutral  $\text{H}_2\text{O}$  at elevated temperature.

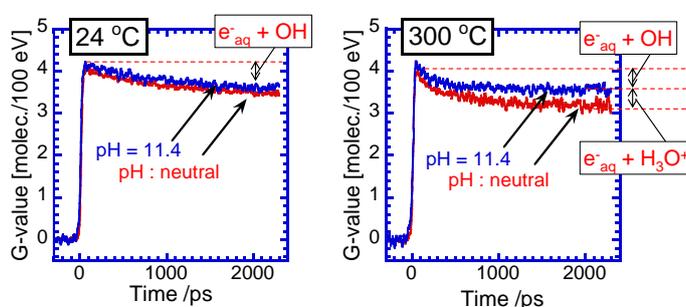


Fig. 2. Time behaviors of  $e_{\text{aq}}^-$  at different pH (neutral and basic (pH = 11.4) conditions). Left and right figure shows those at room temperature and at 300 °C, respectively.