

HIC 模擬炭酸塩スラリーの照射実験

(3) 模擬炭酸塩スラリーの放射線分解挙動に関する研究

Irradiation experiments of simulated carbonate slurry in HIC

(3) Studies on radiolysis behavior of simulated carbonate slurry

*永石 隆二¹, 本岡 隆文¹, 山岸 功¹, 井上 将男¹, 松村 太伊知¹

¹ 日本原子力研究開発機構

多核種除去設備 (ALPS) の高性能容器 (HIC) 中で起きた炭酸塩スラリーの液位上昇に伴うたまり水発生は、スラリー中の Sr-90 等からのベータ線による放射線分解に起因すると考えられるが、詳細は明らかにされておらず、その原因究明を含めたスラリー廃棄物の安全管理の観点から、放射線分解挙動に関する研究を段階的に進めてきた。シリーズ発表として本報告では、処理水中の海水成分や添加物の炭酸塩が与える水の放射線分解への影響について議論するとともに、分解生成物の過酸化水素の熱分解による酸素発生等について述べる。

キーワード : 炭酸塩, 海水成分, 模擬スラリー, 放射線分解, 水素ガス

1. 緒言

ALPS での凝集沈殿で生じた炭酸塩スラリー (懸濁物濃度 $C_{SS} \approx 150$ g/L, $\text{pH} \approx 12$)^[1]に含まれる水中には、海水由来のハロゲン化物イオン ($X: \text{Cl}, \text{Br}$)^[2], 並びに添加剤の炭酸イオン (CO_3^{2-}) が残存していると考えられるが、これらは放射線分解で生成した水素 (分子) の酸化を抑制し、結果として水素発生を促進することが予想される。また、微細な懸濁物 (沈殿物 $\text{CaCO}_3, \text{Mg}(\text{OH})_2$) によってスラリー中には水の 10 倍以上の高い粘性が生じるため、放射線分解後に溶存種から気泡となったガス生成物の一部/全部はスラリー中に保持される^[3]ことが予想される。

以上のことを踏まえて、本研究では、放射線分解によるガス発生を中心としたスラリー中の微視的な現象解明を目指して、Co-60 ガンマ線照射実験をはじめとするスラリーの物性評価、過酸化水素の熱分解実験等を進めた。

2. 実験

炭酸塩スラリーには主に栗田工業 (株) が調製したもの ($C_{SS} = 95$ g/L 等) を用い、これらをそのまま/希釈して試料とした。比較試料として水溶液には純水, 海水, ハロゲン化物塩や炭酸塩を溶解した水等を用いた。試料をガラスバイアル (5-25 cm) に入れ、セプタム付きキャップで封入し、ガンマ線照射施設 (JAEA 高崎研) の照射室に設置して、ガンマ線 (線量率 4-6 kGy/h, 積算線量 < 20 kGy) を照射した。照射後、バイアルのヘッドスペースから気体を一定量サンプリングして、これを GC に注入して気体中の発生ガス濃度を分析した。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、線量計との比較から試料の吸収線量を評価した。

3. 結論

放射線分解によるガス発生の一例として、図 1 に水素発生の吸収線量依存性を示す。純水の中では OH ラジカルによる水素の酸化 ($\cdot\text{OH} + \text{H}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \cdot\text{H}$) が起きるため、発生収量 $G(\text{H}_2)$ が 1 次収量 $g(\text{H}_2) = 4.7 \times 10^{-8}$ mol/J よりも小さいが、海水中では X による OH ラジカル捕捉 ($X + \cdot\text{OH} \rightarrow \cdot X + \text{OH}$) がスパー内反応 (反応時間 $\tau = 1/k[\text{Cl}^-] > 0.5$ ns) とその後の均一反応 ($1/k[\text{Br}^-] > 90$ ns) で起きるため、 $G(\text{H}_2)$ は $g(\text{H}_2)$ よりも若干大きい^[2]。炭酸イオン水溶液では海水と同様な OH ラジカル捕捉が均一反応 ($1/k[\text{CO}_3^{2-}] > 100$ ns) のみで起きるため、 $G(\text{H}_2)$ は $g(\text{H}_2)$ とほぼ同じになった。また、炭酸塩スラリーでの $G(\text{H}_2)$ が炭酸イオン水溶液での値よりも小さいのは、主にスラリーに含まれる水へのガンマ線エネルギーの吸収割合 (電子分率) が 100% 未満であることに起因する。

本報告では、さらにスラリーによる発生ガス保持率の粘度及び試料高さ依存性^[3], 水素の対生成物である過酸化水素の熱分解速度への pH や懸濁物共存の影響等についても述べる。

参考文献

- [1] HIC 上のたまり水発生の原因と対策の検討・実施状況 (TEPCO), 第 35 回特定原子力施設監視・評価検討会 (NRA) (2015) 他。
- [2] R. Nagaishi *et al.*, "Consideration of radiolytic behavior in diluted and concentrated systems of seawater", NPC 2014, #10242 (2014) 他。
- [3] 永石, 井上ら, 原子力学会 2015 年秋の大会 H01 (2015) 他。

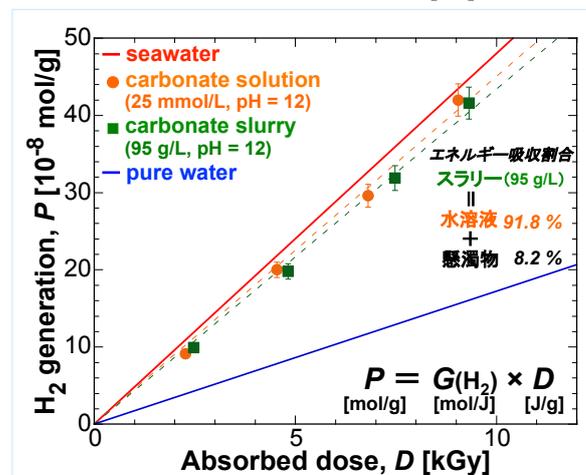


図 1 水溶液及び炭酸塩スラリーからの水素発生 (室温, 空気飽和, 試料高さ 1 cm, 試料攪拌後)

* Ryuji Nagaishi¹, Takafumi Motooka¹, Isao Yamagishi¹, Masao Inoue¹ and Taichi Matsumura¹

¹Japan Atomic Energy Agency (JAEA)