

多核種除去設備から発生した炭酸塩スラリーの放射線分解による水素発生

Basic Study on Production of Hydrogen Gas by Radiolysis of the Carbonate Slurry Generated from the Multi-Radionuclide Removal System

*荒井 陽一^{1,2}, 比内 浩^{1,2}, 駒 義和^{1,2}, 池田 昭^{2,3}, 小畑 政道^{2,3}, 柴田 淳広^{1,2}, 野村 和則^{1,2}

¹ 日本原子力研究開発機構, ² IRID, ³ 株式会社東芝

多核種除去設備の炭酸塩スラリー廃棄物を収納している高性能容器の上部にたまり水が発生した原因の究明に資するため、実スラリーから発生する水素量を様々な条件で測定した。スラリーからは有意量の水素が発生し、その水素発生の G 値は水の G 値と同程度であった。

キーワード：福島第一原子力発電所，多核種除去設備，放射線分解，水素ガス発生

1. 緒言 多核種除去設備の炭酸塩スラリー廃棄物を収納する高性能容器（HIC）の上部にたまり水が発生した。炭酸塩スラリー廃棄物は主に ^{90}Sr - ^{90}Y を含むものであり、この β 線によりスラリー中の水の放射線分解により水素ガスが発生し、スラリー内に滞留することによる見かけの体積膨張が一因と推察されている。このため、実スラリーから発生する水素量を測定し、水素発生挙動について調査した。

2. 試験方法 実際に多核種除去設備で発生した炭酸塩スラリー(^{90}Sr ：約 $1.3 \times 10^7 \text{Bq/ml}$ [1])を用いた。ガラス容器（容量 30 ml）にスラリー 10 ml を入れセプタム（ブチルゴム製）にて密封した。静置したスラリー（約 22ml）の上澄み液を 1.5ml 回収することで固液比を変化させた試料を用意した。シリンジで気層部より 1 ml の気体を採取し、ガスクロマトグラフを用いて水素濃度を測定した。水素濃度の測定結果から水素分子数を算出し、その値を ^{90}Sr - ^{90}Y の放射能分析結果と平均エネルギーから算出した吸収エネルギーで除して、水素発生の G 値を算出した。

3. 結果 水素濃度の経時変化により、炭酸塩スラリーから発生する水素の総量は時間に比例して増加することを確認した(図 1)。水素発生の G 値は約 0.36 であり、水の放射線分解による G 値(約 0.45)と同程度であった。たまり水中には塩分が検出されており[2]、Cl は水酸化ラジカル($\cdot\text{OH}$)と反応するため[3]、水素の再結合が阻害された結果、理論値と同程度の水素発生の G 値を示したと考えられる。試料から発生した水素ガスはスラリーに含まれる水の放射線分解に起因すると推察される。スラリー層中の水素の滞留については 21 日後、スラリー層に保持された水素を気層に追い出すために容器を振とうして水素濃度を測定したところ、振とう前後の水素濃度は同程度であった。メスシリンダーを用いた系とは異なり[4]、スラリー層が 1.8 cm と極端に短い本体系では、水素はスラリー層から気層へと速やかに移行した。固液比の影響については、固液比が 10%程度増加した条件では水素発生量に変化は認められなかった。

以上より、水素の滞留により見かけの液位が上昇するには、一定のスラリー層の高さや密度が必要であると考えられる。

※本成果は、経済産業省／平成 26 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分にに関する研究開発）」の一部である。

参考文献

- [1]比内他，日本原子力学会「2015 年秋の大会」I11
- [2]東京電力株式会社，特定原子力施設監視・評価検討会(第 34 回)資料 2
- [3]熊谷他，日本原子力学会和文論文誌 Vol.10, No.4, p.235-239 (2011)
- [4]東京電力株式会社，特定原子力施設監視・評価検討会(第 36 回)資料 5-1

*Yoichi Arai^{1,2}, Hiroshi Hinai^{1,2}, Yoshikazu Koma^{1,2}, Akira Ikeda^{2,3}, Masamichi Obata^{2,3}, Atsuhiko Shibata^{1,2} and Kazunori Nomura^{1,2}

¹ Japan Atomic Energy Agency, ² International Research Institute for Nuclear Decommissioning, ³ Toshiba Corporation

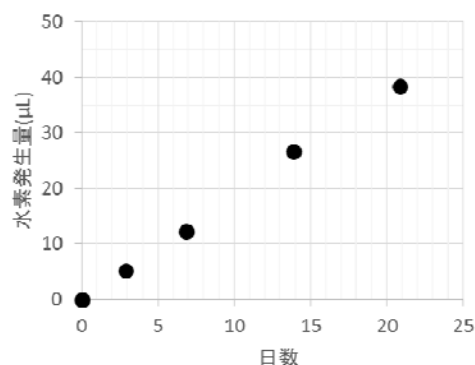


図 1 水素発生量の経時変化