

PWR における C-14 の存在形態についての検討 (3)実機プラントから採取した難溶性 C-14 の化学形態に関する検討

Investigation of the existence form of C-14 in PWR

(3)Study on the chemical form of Insoluble C-14 in particle samples of actual plant coolant

*木野 健一郎¹, 坂下 章², 中田 弘太郎³, 辻 慎太郎⁴, 脇 寿一⁴

¹ニュークリア・デベロップメント(株), ²三菱重工業(株), ³電力中央研究所, ⁴関西電力(株)

放射性廃棄物埋設施設の安全評価においては、埋設環境における長半減期放射性核種の移行挙動評価は極めて重要である。とくに C-14 は、その生成過程において様々な化学形態を形成しうる炭素の放射性同位体であり、その化学形態により埋設環境での移行挙動が大きく異なる。そのため、ここでは PWR で生成する難溶性 C-14 の化学形態の解明を目的として、熱重量・質量同時分析装置 (TG/MS) を用いて粒子状 C-14 の分解挙動と放出成分の関係性を評価した。

キーワード：難溶性 C-14, 熱重量・質量分析装置, フーリエ変換赤外分光光度計

1. 緒言：PWR プラントで使用された冷却材混床式脱塩塔入口フィルタ（以下「入口 F」という）に捕集された粒子を回収し FT-IR, SEM/EDX を用い C-14 を含む粒子の性状を観察した。更に TG/MS 分析を行い放出ガスと残渣に含まれる C-14 の分析を実施することで熱分解物と C-14 の関係性を求めた。

2. 実施内容

2-1. 試験対象試料：PWR の入口フィルタから超音波洗浄により純水中に分散させた粒子を 0.45 μm フィルタ (HA) に回収したものの試験対象試料とした。(図 1)

2-2. 粒子状成分の分析

(1) FT-IR スペクトル分析

KBr 錠剤法 FT-IR 分析では、炉外試験でイオン交換樹脂を熱処理後に照射した試料の成分と類似した透過スペクトルが得られた。(図 2)

(2) TG/MS-C-14 分析

TG 分析は雰囲気ガスをヘリウムと空気それぞれで実施し双方ともに 400℃～500℃の範囲で顕著な質量減少が観察されるが(図 3)、空気気流中の反応は発熱反応(図 4)であり、試料中の炭素成分が 400℃近傍で燃焼していると考えられる。ヘリウム気流中では 400℃～500℃の範囲に芳香環構造を持つ分子質量 ($m/z=77, 105, 122$) を含む成分の放出量の上昇が観察された。(図 4) 空気気流中では 900℃迄の加熱で C-14 が TG オープンから放出されるガス成分にほぼ 100%移行するが、ヘリウム気流中では加熱後残渣に C-14 が残留することを C-14 の分析により確認した。(表 1)

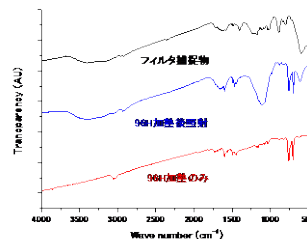


図 2 FT-IR スペクトル

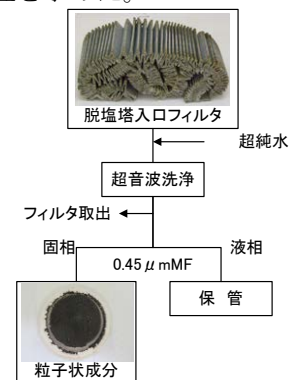


図 1 試験対象試料の調整

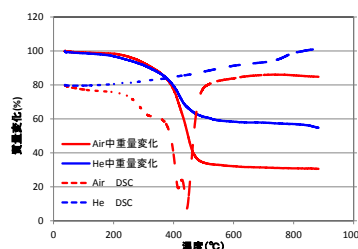


図 3 TG チャート(Air/He)

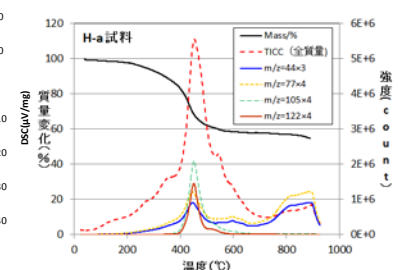


図 4 HeTG/MS 分析結果

2-3. 考察：PWR の入口フィルタから採取した粒子状成分には、芳香環構造を持つ有機成分とヘリウム気流中で 900℃まで加熱しても分解しない不定形の炭素が共存している。C-14 は安定な不定形炭素成分に多く含まれているが、酸素存在下の加熱では低温で分解する成分が燃焼し、次いでその延焼により不定形炭素に着火することで、C-14 が気相に放出されるものと考えられる。

3. 結論

PWR で発生する粒子に含まれる炭素は様々な化学構造を有する混合物であり、その中にはイオン交換樹脂を起源とすると考えられる芳香環を有する有機成分が含まれる。しかし、C-14 は比較的低い温度で分解するイオン交換樹脂構造を持つ物質ではなく、不活性ガス環境下の加熱では容易に分解・気化しない安定な不定形炭素に多く含まれることを示す実験結果が得られた。

今後はこの C-14 を含む粒子の埋設環境における安定性を確認し、これらの知見を埋設環境における C-14 の移行挙動評価に適切に反映していく予定である。

表 1 TG 分析時の C-14 収支 単位: Bq

キャリアーガス	ヘリウム	空気
オフガス回収C-14	< 0.317	7.87E+4
残留分	1.55E+5	6.96
インベントリ	1.55E+5	7.87E+4
C-14放出率	2.05E-4%	99.99%

* Kenichiro Kino¹, Akira Sakashita², Kotaro Nakata³ Shintaro Tsuji⁴ and Toshikazu Waki⁴

¹Nuclear Development Corporation, ²Mitsubishi Heavy Industries, Ltd., ³Central Research Institute of Electric Power Industry, ⁴Kansai Electric Power Co, INC