

NaCl 水溶液の放射線分解：パルスラジオリシス実験とスパークモデル計算

Radiolysis of Aqueous Solution of NaCl: Pulse Radiolysis Experiment and Spur Model Simulation.

*山下 真一¹, 端 邦樹², 室屋 裕佐³, 勝村 庸介⁴

¹ 東京大学, ² 日本原子力研究開発機構, ³ 大阪大学, ⁴ 日本アイソトープ協会

海水主成分である塩化ナトリウム (NaCl) の水溶液の放射線分解反応を, パルスラジオリシス法により観測した. 高濃度の溶質は放射線分解反応の初期過程 (スパーク過程) を変え, 結果としてプライマリ収量や後続の安定生成物の収量にも影響を与えるため, スパークモデル計算による考察も行った.

キーワード: 放射線分解, 海水, プライマリ収量, スパーク過程, 塩素, オキシ酸, 腐食

1. はじめに

福島原発事故で発生した汚染水処理や使用済み核燃料の最終処分では, 水の放射線分解における Cl^- の影響を考慮する必要がある [1-3]. Cl^- の放射線化学反応は大まかには理解されている [4,5]. しかし, 報告されている反応セットでは ClOH^- や Cl_2^- といった中間活性種の挙動を必ずしも説明しきれていない. 特に海水相当の高濃度では Cl^- の反応が加速し, 100 ns 以内のスパーク過程も変化し, 均一に至った状態での収量 (プライマリ収量) も変わる. これは腐食を考える上で重要な塩素のオキシ酸や過酸化水素の生成量など, 長期の放射線効果予測にも大きな影響を与える. そこで, Cl^- 水溶液中で生じる中間活性種のスパーク内での挙動を観測し, モデル計算での再現を試みた.

2. 方法

中間活性種の挙動はパルスラジオリシス法で観測した. この手法は短パルスの放射線で瞬間的に放射線分解を起こして後続の反応を追跡する手法であり, 東京大学原子力専攻の共同利用研究の一環としてライナック施設で実施した. モデル計算は取扱いの容易なスパーク拡散モデルで実施した. このモデルは平均的な構造の一つの孤立球状スパークを対象とする決定論的計算手法で, スパーク過程をよく説明できる.

4. 結果と考察

中間活性種のうち観測し易い Cl_2^- は $\text{Cl}_2^- + \text{Cl}_2^-$ で消滅する. この速度定数の報告値は幅広い (5.5×10^8 から $9.0 \times 10^9 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$), まず慎重に再評価し, $(9.2 \pm 0.8) \times 10^9 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$ と決定した. 次にスパーク過程 (2 μs 以内) の過渡吸収を観測した. 酸性条件ではシミュレーションでよく説明できたのに対し, 中性条件ではシミュレーションの方が過大評価となった. これは一連の反応 $\text{OH}^\bullet + \text{Cl}^- \rightarrow \text{ClOH}^-$, $\text{ClOH}^- + \text{H}^+ \rightarrow \text{Cl}^\bullet + \text{H}_2\text{O}$, $\text{Cl}^\bullet + \text{Cl}^- \rightarrow \text{Cl}_2^-$ の二段階目が遅くなり, Cl_2^- だけでなく ClOH^- も存在するようになったためである. ClOH^- が未報告反応 ($\text{ClOH}^- + \text{ClOH}^-$, $\text{ClOH}^- + \text{Cl}_2^-$) で消費されると仮定すると実験結果をよく説明できた. しかし, ClOH^- はモル吸光係数に明確でない部分があり, さらに検討が必要となっている.

参考文献

- [1] E. Bjergbakke, et al., *Radiochim. Acta* **48**, 73-77 (1989).
- [2] M. Kelm and E. Bohnert, FZKA 6977 (2004).
- [3] J. Nakano et al., *J. Nucl. Sci. Tech.* **51**, 997-986 (2014).
- [4] G. G. Jayson, et al., *J. Am. Chem. Soc. Faraday Trans. I* **69**, 1597-1607 (1973).
- [5] X. Y. Yu, et al., *J. Phys. Chem. A* **107**, 1313-1324 (2003).

*Shinichi Yamashita¹, Kuniki Hata², Yusa Muroya³, Yosuke Katsumura⁴

¹The University of Tokyo, ²Japan Atomic Energy Agency (JAEA), ³Osaka University, ⁴Japan Radioisotope Association (JRIA)