

燃料デブリの臨界管理技術の開発

(48) 溶液 pH および水素発生に及ぼす非溶解性中性子吸収材の影響

Criticality control technique development for Fukushima Daiichi fuel debris

(48) Effect on Insoluble Neutron Absorbers on pH of a Sloution and Hydrogen Generation

*石橋 良^{1,2}, 石井 一弥^{1,2}, 藤田 敏之^{1,3}, 進藤 雄太^{1,3}, 森本 裕一^{1,2}

¹IRID, ²日立 GE, ³東芝エネルギーシステムズ

福島第一原子力発電所(1F)-1/2/3号機での燃料デブリ取り出し時における臨界管理技術の一つとして、非溶解性中性子吸収材を用いた臨界防止技術を開発しており、副次的影響を検討した結果を報告する。

キーワード：福島第一原子力発電所事故，燃料デブリ，中性子吸収材，臨界防止，ガンマ線照射

1. 緒言

1F-1/2/3号機の燃料デブリを安全に取り出すため、炉内作業時の臨界管理技術としてほう素(B)、ガドリニウム(Gd)等の熱中性子吸収断面積の大きな元素を含んだ非溶解性の固体、固化体または粘性体(非溶解性中性子吸収材)を用いた臨界防止技術を検討している¹⁾。燃料デブリ取り出し作業後、燃料デブリとともに回収された非溶解性中性子吸収材は数十年ほどの長期間の照射環境に晒される可能性があることから、収納・貯蔵工程における非溶解性中性子吸収材適用による副次的影響の評価が早急の課題である。本研究は、長期間の放射線照射に伴う非溶解性中性子吸収材の副次的影響を評価することを目的とする。

2. 検討方法

非溶解性中性子吸収材候補に対して長期間のガンマ線照射試験を実施し、放射線照射に伴う副次的影響として、1)溶出による構造材腐食等に及ぼす影響、2)水素発生に及ぼす影響を評価した。1)は気中ガンマ線照射材の溶出試験および水中ガンマ線照射試験での試験水水質変化から推定し、2)は水中ガンマ線照射試験によりみかけの水素発生G値から推定した。評価した候補材は、B₄C金属焼結材、B・Gd入ガラス材、Gd₂O₃粒子、水ガラス/Gd₂O₃造粒粉材、水中硬化樹脂/Gd₂O₃造粒粉材である。気中ガンマ線照射試験は、線量率10kGy/hで最大3603h実施した。溶出試験では、比液量40ml/cm²で80℃の200倍希釈人工海水中に試験片を72h浸漬した。水中ガンマ線照射試験では、比液量40ml/cm²で500mlの200倍希釈人工海水中に試験片を浸漬し、内部を窒素ガスで満たして密閉した内容積1000mlの容器を照射した。事前に測定した試験片位置での線量率は6~9kGy/hであり、最大で照射量11MGyまで照射した。

3. 結果と考察

3-1. 水質変化

気中ガンマ線照射材の溶出試験液は、水ガラス/Gd₂O₃造粒粉材では照射量にかかわらず強アルカリ性(pH12)を示し、水中硬化樹脂/Gd₂O₃造粒粉材では照射量7.2MGy以上になると中性域(pH5~9)から酸性(pH4)に移行したが、他の候補材では中性域(pH5~9)にあった。水中ガンマ線照射試験では、窒素ガスと水との反応により試験水中の硝酸イオン濃度の増加がみられた。試験片のない場合ではpHが低下し照射量6.5MGy以上で試験液は酸性(pH2~3)となった。一方、試験片が存在するとpHの変化は緩和された。収納・貯蔵工程での腐食に及ぼす影響は、対象の構造材料、水量、雰囲気などを考慮する必要があるものの、本検討により候補材それぞれの腐食に及ぼす影響を評価するための知見が得られた。

3-2. 水素発生

ガンマ線が照射されると水の放射線分解により水素分子が発生し、気相に水素ガスとして移行する²⁾。本試験では、試験時間に発生した水素ガス量を測定し、液相中の水素分子と平衡状態にあるとしてみかけの水素発生G値を算出した。密閉容器を用いた本試験では、照射量が増加するに従い、発生した水素分子が試験液および気相に蓄積することにより、みかけの水素発生G値が低下する傾向がみられた。試験片が存在すると、候補材による程度の違いはあるものの、みかけの水素発生G値が試験片のない場合と比べて上昇する傾向にあることがわかった。ただし、引き続きデータの拡充が必要ではあるものの、純水における初期水素発生G値0.45を超えることはなく、これを上限として管理できる可能性が示された。みかけの水素発生G値が上昇する要因として、試験片から溶出した成分が、水の放射線分解により発生した水素が水に戻る反応を抑制したためと推定される。

謝辞 本件は、資源エネルギー庁『平成27年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリ臨界管理技術の開発)」』の成果の一部を取りまとめたものである。さらに、量子科学技術研究開発機構の施設共用制度に基づき高崎量子応用研究所のガンマ線照射設備を利用して得られた成果の一部である。

参考文献

[1] R. Ishibashi, T. Fujita, K. Ishii, and Y. Harada, Proc. ICAPP 2017, 17279, (2017).

[2] 例えば、室屋裕佐, RADIISOTOPES, 66, 425-435 (2017).

*Ryo Ishibashi^{1,2}, Kazuya Ishii^{1,2}, Toshiyuki Fujita^{1,3}, Yuta Shindo^{1,3}, and Yuichi Morimoto^{1,2}

¹International Research Institute for Nuclear Decommissioning (IRID), ²Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd., ³Toshiba Energy Systems & Solutions, Co.