

鉄イオンと塩化物イオン共存下における水の放射線分解

Radiolysis of water containing ferrous and chloride ions

*端 邦樹¹, 佐藤 智徳¹, 井上 博之²¹原子力機構, ²大阪府立大

数種類の不純物が含まれる複雑な水溶液の放射線分解メカニズムを明らかにするため、 Fe^{2+} イオンと Cl^- イオンの共存下でのラジオリシスシミュレーションを実施した。これらのイオンの相互作用により H_2O_2 等の水の放射線分解生成物の生成量が増加する可能性が示された。

キーワード：鉄イオン，塩化物イオン，放射線分解（ラジオリシス）

1. 緒言

福島第一原子力発電所（1F）の格納容器内の滞留水は高放射線場にあり、かつ材料由来の金属イオンや地下水及び海水由来の微量のアニオン等の不純物を含んでいると考えられる。1F内の構造物の腐食量の予測に当たっては、その様な複雑な水溶液の放射線分解現象を理解し、水分解由来の酸化物（ H_2O_2 や O_2 ）の発生量を予測することが重要である。著者らはこれまで海水由来の Cl^- イオンに着目し、 Cl^- イオンを含む水溶液の放射線分解について調べてきた。その結果、 Cl^- イオンは水分解によるラジカルとの高い反応性を示すが、その反応は Br^- イオン等の不純物や pH の影響を強く受けることが示された^[1]。現在 1F 滞留水の Cl^- イオン濃度は数百 ppm 以下に抑えられており^[2]、放射線分解への直接的な寄与は小さいと考えられる。しかし、 Cl^- イオンの影響を正確に理解するためには、滞留水中に含まれる他の不純物の存在もあわせて考える必要がある。本発表では、材料から溶出する Fe^{2+} イオンに着目し、 Fe^{2+} イオンと Cl^- イオンとが共存する環境でのラジオリシスシミュレーションを行い、これらのイオンの濃度変化に対する放射線分解生成物の生成量の変化を調べた。

2. シミュレーション

複合化学反応の動的モデリングソフトウェア Facsimile (MCPA software) に、水^[3]、 Cl^- ^[4]、 Fe^{2+} ^[5]の照射下での反応及び Cl^- 由来のラジカルと Fe^{2+} との反応^[6]に関するデータセットを取り込み、室温でのガンマ線照射環境を模擬した水の放射線分解反応を予測した。

3. 結果と考察

Cl^- イオン、 O_2 の初期濃度をそれぞれ 1 mmol/l、0 mol/l、pH を 7 とし、 Fe^{2+} イオンの初期濃度を 0–0.5 mmol/l で変化させ、100 Gy/h で 1,000 時間照射を行った後の H_2 、 H_2O_2 の濃度を図 1 に示す。 Fe^{2+} イオンが添加されることで水分解生成物の生成量が増加することがわかる。照射中の pH 変化を確認したところ、 Fe^{2+} イオン存在下では照射開始直後から pH が低下し、3 程度にまで達した。これは Fe^{2+} イオンが照射下で酸化されて生じた Fe^{3+} イオンの加水分解によるものである^[7]。一方、 Cl^- イオンは照射下で OH ラジカルと反応し、 H_2 や H_2O_2 の収量を増加させるが、この反応は酸性下で加速する。本シミュレーション結果は、 Cl^- イオンが低濃度であっても Fe^{2+} イオンの共存が水の放射線分解に有意に寄与し、水分解生成物の生成挙動に影響を与える可能性があることを示すものである。

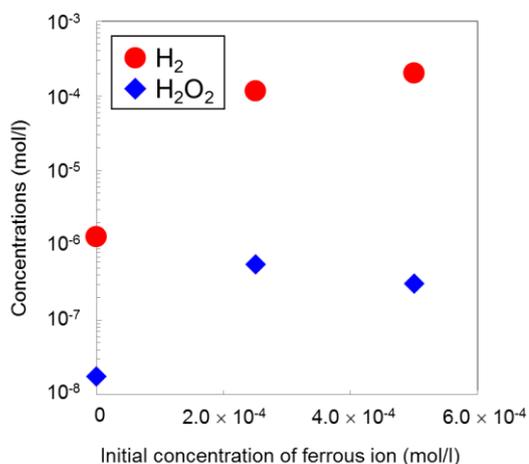


図 1 Fe^{2+} を添加した 1 mmol/l Cl^- 水溶液のラジオリシスにおける H_2 、 H_2O_2 生成

参考文献

[1] K. Hata, Nucl. Technol., 193, 434–443, 2016. [2] 東京電力ホームページ (http://www.tepco.co.jp/en/press/corp-com/release/betu18_e/images/180618e0101.pdf). [3] A.J. Elliot and D.M. Bartels, AECL No.153-127160-450-001, 2009. [4] M. Kelm and E. Bohnert, FZKA 6977 report. [5] P. Lorenzetto, et al., Fusion Engineering and Design, 17, 265–270, 1991. [6] NDRL/NIST Solution Kinetics Database on the Web. [7] T.I. Sutherland, et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 19, 695–708, 2017.

*Kuniki Hata¹, Tomonori Sato¹ and Hiroyuki Inoue²

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Osaka Prefecture Univ.