

パルスラジオリシス法及びガンマラジオリシス法による有機物フリーな白金水溶液中におけるナノ粒子形成過程研究

Study on formation process of nanoparticles in organics-free platinum aqueous solution
by pulse radiolysis and gamma radiolysis methods

*仮屋 深央¹, 室屋 裕佐¹, 石田 一成², 和田 陽一², 伊藤 剛², 太田 信之³, 古澤 孝弘¹
(1.阪大産研, 2.日立・研開, 3.日立 GENE)

パルスラジオリシス法及びガンマラジオリシス法を用いて、ヘキサヒドロキソ白金酸懸濁液から生成するナノ粒子の生成過程を調べた。ナノ粒子が生成する条件では水和電子との反応による生成物ラジカルと OH ラジカルとの反応による生成物ラジカルが相互作用して長寿命のラジカルペアを形成することが分かった。

キーワード：放射線化学反応、ヘキサヒドロキソ白金酸、ナノ粒子形成過程、パルスラジオリシス、ガンマラジオリシス

1. 緒言

BWR の再循環系配管や炉内構造物等の応力腐食割れ抑制技術として貴金属注入の技術開発が進められている^[1]。近年、ヘキサヒドロキソ白金酸の懸濁液 ($\text{H}_2[\text{Pt}(\text{OH})_6]$) へのガンマ線照射から有機物等不純物を含まない白金ナノ粒子を形成できることが報告され^[2]、実機への適用が期待されている。しかしその生成過程については明らかではない。そこでガンマラジオリシス法及びパルスラジオリシス法を用いてナノ粒子生成過程に関わる活性種の特定や、生成物ラジカルの挙動からナノ粒子生成過程について検討を行った。

2. 実験

水和電子(e_{aq}^-)、OH ラジカル(OH)、及び両活性種存在の3条件において $\text{H}_2[\text{Pt}(\text{OH})_6]$ 懸濁液にガンマ線照射を行い(線量: 2~15 kGy)、ナノ粒子生成に関わる活性種を特定した。さらに、同様の系においてナノ秒電子線パルスラジオリシスを行い、生成物ラジカルの長時間挙動を直接追跡した。

3. 結果・考察

ナノ粒子が形成する条件 ($\text{pH} > 8.3$) では、最初期過程 (<マイクロ秒) において e_{aq}^- と OH が共に懸濁粒子と速やかに反応する^[3]。そこで、いずれの活性種がナノ粒子生成に寄与するか、ガンマ線照射実験より調べた。その結果、 e_{aq}^- と OH の両種が存在する系において目的のナノ粒子が最も良く生成したことから、 e_{aq}^- との反応による生成物ラジカルのみならず、OH との反応による生成物ラジカルもナノ粒子生成に関わる事が分かった。次に e_{aq}^- のみ、OH のみ、両種共存の3つの系における生成物ラジカルの長時間挙動をパルスラジオリシスにより追跡した(図1)。線量率によっても変化するが、 e_{aq}^- との反応による生成物ラジカル又は OH との反応による生成物ラジカルが単独で存在する場合、生成物ラジカルの寿命は 1ms 以下であった。一方、両生成物ラジカルが共存する系では生成物ラジカルが長寿命化した。この結果より、両生成物ラジカルは相互作用によりラジカルペアを形成していると考えた。ナノ粒子の生成収率は線量率に依存しにしないことから^[2]、この長寿命のラジカルペアの生成がナノ粒子生成反応を律速していると推定した。

参考文献

- [1] Y.J. Kim, NPC2010, Oct 3-7, Quebec City, CNS (2010).
[2] K. Ishida, *J. Nucl. Sci. Tech.*, **54**, 356-364, (2017).
[3] M. Kariya, 原子力学会 2018 春の年会, 2M05 (2018).

*Miou Kariya¹, Yusa Muroya¹, Kazushige Ishida², Yoichi Wada², Tsuyoshi Ito², Nobuyuki Ota³, Takahiro Kozawa¹

¹ISIR, Osaka Univ., ²Res. Develop. Gr, Hitachi, Ltd., ³Hitachi-GE Nucl. Energy, Ltd.

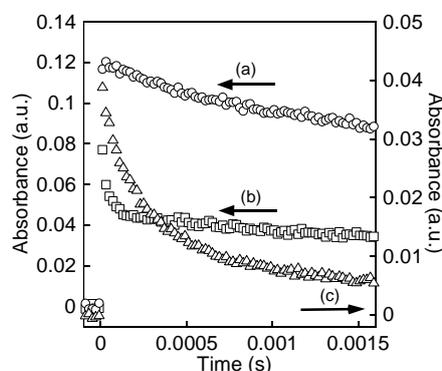


図1. パルスラジオリシスによる生成物ラジカルの長時間挙動測定
(a)両種存在、(b) e_{aq}^- のみ、(c) OH のみの系 ($\text{pH} 8.9$, $[\text{Pt}] = 3 \text{ mM}$)