

透過性の低い放射線による水の放射線分解での水素発生等の測定

Measurement of Hydrogen Generation in Water Radiolysis by Low-Penetrating Radiations

*永石 隆二¹, 桑野 涼¹, 松村 太伊知¹

¹日本原子力研究開発機構

福島第1原発(1F)事故対策・廃止措置における水の放射線分解に関する研究では、これまで外部放射線として主に透過性の高い γ 線(Co-60)が照射実験に用いられてきた一方で、Sr-90等からの β 線を模擬した電子線やその制動放射を模擬するX線といった放射線を用いた実験も重要であると考えられているが、それらの透過性は低いため、Co-60 γ 線と同様に実験することが困難である。そこで本研究では、それらの放射線の透過性に優れたフィルムによって密封した試料容器を用いて、電子線及びX線による照射実験を行い、水溶液の線量評価とともに、水の分解で発生した水素分子(ガス) H_2 並びにその対生成物の過酸化水素 H_2O_2 を測定した。

キーワード：電子線, エックス線, 水の放射線分解, 水素分子(ガス), 過酸化水素

1. 緒言

これまでの水素発生や材料腐食に関わる照射実験では、対象となる放射線がCs-137からの γ 線やSr-90, Y-90からの β 線であっても、ほとんどCo-60の γ 線が用いられてきた。これは、放射線化学的に「エネルギー範囲0.1–20 MeVの光子と電子線に対する水の分解生成物のプライマリ収量(G値)は同じ値を採用できる」^[1]ことから妥当性があるが、一方でこれら γ 線や β 線、制動放射等で低エネルギー化した二次放射線^[2-3]といった現実に近い放射線を用いた実験も期待されている。しかし、対象核種からの放射線による内部照射でなく、これらを模擬した電子線やX線による外部照射の場合、それらの透過性が低いことに起因して、入射(一次)放射線からの光子数低下やエネルギー変化が起きるため、Co-60の γ 線と同様の試料容器等を用いて実験することが困難である。

そこで本研究では、それらの放射線の透過性に優れたカプトンフィルムを照射(透過)面とした試料容器(照射面以外Ti製)を作製して、電子線及びX線の照射実験を行い、線量評価とともに水の分解生成物を測定した。

2. 実験

電子線照射には、QST高崎量子応用研究所の静電加速器(1号加速器)を用いた。電子線ビーム(EB)の加速電圧は500–2,000 kVの範囲で、吸収線量率は最大で1.0 kGy/s(水換算、電流値1 mA未満)とした。空冷と水循環(照射台)で試料の温度変化はほとんどない。線量計には、フィルム線量計(FUJI FILM CTA-125)を用いた。

X線照射には、CLADS国際共同研究棟(富岡)に設置のX線装置(日立パワーソリューションズ)を用いた。管電圧は35–150 kVの範囲で変更して、吸収線量率は最大で3.0 kGy/h(水換算、電流値20 mA未満)であった。線量計には、化学線量計(フリッケ, セリウム)並びにフィルム線量計(ラジオクロミックFWT-60)を用いた。

3. 結果・考察

EB, X線どちらの実験でも、フィルムの密封によって漏れなく H_2 ガスの測定が可能であることを確かめられた。また、線量評価のデータとともに求めた分子生成物の H_2 と H_2O_2 の観測G値は、上述のエネルギー範囲にあるEBの実験ではほとんど変わらない結果を得たものの、その範囲を下回るX線の実験では幾分増加の傾向を示した。ここで、EBでは水試料中にほぼ全てのエネルギーを与えることができる(飛程2.5–10 mm)ため、その線量評価は容易であったが、X線では高エネルギーの場合に水中に一部のエネルギーしか与えられない(平均自由行程最大67 mm)ことや、X線がCo-60 γ 線(単色)と違って連続エネルギーをもつため、その線量評価は複雑である。

図1にX線照射の模式図を示す(管電圧150 kV)。X線のスペクトルは試料中を透過するとその形状が変わって、5 cmの水試料では平均エネルギー E_{av} が10 keV程度高エネルギー側にシフトしている。従って、水試料が吸収したX線のスペクトルは入射①と透過②のスペクトルの差($E_{av}=60.6$ keV)であり、このX線が水の放射線分解を引き起こすことになる。

参考文献

- [1] R. Nagaishi, "Evolution of water radiolysis studies for measures against post-severe accidents", RADIOISOTOPES, 66(11), 601-610 (2017).
 [2] 永石隆二, 松村太伊知ら, 「燃料デブリ周囲へのエネルギー付与に関する評価」, 原子力学会2017年秋の大会, 1F06-07 (2017) 他.
 [3] 松村太伊知, 永石隆二ら, 「放射線環境での構造材近傍のエネルギースペクトル評価」, 原子力学会2018年春の年会, 2M03 (2018).

* Ryuji Nagaishi¹, Ryo Kuwano¹, Taichi Matsumura¹

¹ Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

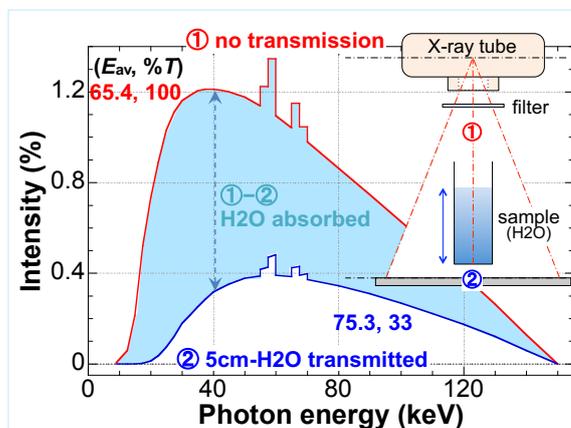


図1 X線照射実験とエネルギースペクトルの模式図(管電圧150 kV, Wターゲット, フィルターなし)