

凝集沈殿系や粘土系の高粘性流体の放射線効果に関する研究

Studies on Radiation Effects on High-viscous Fluids of Co-precipitate and Clay Systems

*永石 隆二, 桑野 涼

日本原子力研究開発機構

2015年春の多核種除去設備（ALPS）の高性能容器（HIC）で起きた溢水は、凝集沈殿の炭酸塩スラリー中の水の放射線分解による水素発生に伴うスラリー容積増大や上澄み水発生が原因であるが、このような長期間（高線量）照射に伴う高粘性流体の放射線効果（放射線分解・材料劣化）は水溶液等の低粘性流体とは大きく異なる。これを科学的に理解することは、地層処分での粘土系緩衝材の懸濁水とともに、放射性廃棄物の長期保管・処分において重要である。そこで本研究では、電子線ビーム（EB）やガンマ線（ γ ）を用いて、凝集沈殿系や粘土系の高粘性流体の物性（密度、粒度等）と粘度特性を照射前後に測定して、物性と粘度特性との関係等について議論した。

キーワード：高粘性流体, 放射線分解, 材料劣化, 水素分子, 粘度（特性）

1. 緒言

炭酸塩スラリーの水素保持^[1]や粘土の透水阻害^[2]は発現機構こそ異なるものの、これらスラリーや懸濁水が高粘度であることに起因する。これらが放射線環境に晒されると、一般的に粘度とともに水素保持や透水阻害の性能は低下（材料劣化）するが、これらの低下は積算線量 D での水の分解量（ $G \cdot D$, G : 分解 G 値）だけでは必ずしも説明できない^[1]。従って、粘度低下は水の分解（直接作用）以外の作用も間接的に影響していると考えられる。さらに、低下した粘度は時間経過とともに一部または全部が復帰する場合があるため、放射線効果の全容は複雑で、現象論・巨視的な従来研究では捉えきれず、系統・微視的なアプローチによる整理・理解が解明の鍵となる。

そこで本研究では、スラリーや懸濁水の物性値を粘度特性とともに EB・ γ 線照射前後に測定して、物性値から導出した懸濁物（SS: suspended solid）の微視的な状態と巨視的な粘度特性の照射効果を定量的に議論した。

2. 実験

炭酸塩スラリーには主に栗田工業（株）が調製したもの（懸濁物濃度 $C_{SS} = 90\text{--}150$ g/L 等）を用いて、これらをそのまま/希釈して試料とした^[1]。粘土鉱物のベントナイトにはナトリウム型モンモリロナイト（層状構造）が主成分のクニミネ工業（株）製のクニピア F を用いて、これを純水と混合して懸濁水試料とした^[2]。

試料照射は量研機構（QST）高崎研の電子線加速器施設（EB: 0.5–2.0 MeV）及びコバルト照射施設（ γ 線: 平均 1.25 MeV）で行った。EB 照射では試料を耐食性で熱・電気伝導性に優れたチタン製容器に入れて、カプトンフィルムで覆った後にアルミ製ホルダーに固定して、これを SUS 製水冷却板の上に乗せて、垂直ビーム照射した^[3]。ここで、照射中の試料の温度変化は 1 K 未満であった。線量測定は化学線量計（重クロム酸）及びフィルム線量計（三酢酸セルロース CTA-125）を用いて、線量計と試料の吸収係数等の比較から試料の吸収線量を評価した。

3. 結果・考察

凝集沈殿系での粘性発現は粘土系での結晶同士の静電相互作用（card-house structure）に対して、高濃度/飽和塩水溶液と同様に「水分子（水和水）の共有」に由来して、これに懸濁物中の水酸化マグネシウム（ $Mg(OH)_2$ ）の親水性が深く関与する。148 g/L スラリー（ >50 wt% Mg, pH=12）^[1]では、Mg と等量以上の水分子が $Mg(OH)_2$ に吸着（結合）していて、懸濁物粒子中にさらにそれ以上の未吸着の水分子が疎水性の炭酸塩（Ca, Sr）とともに内包されていると評価できる。このスラリーに EB や γ 線を高線量で照射すると、その粘度の不可逆な変化とともに物性の変化が確認された。図 1 に Co-60 γ 線照射によるスラリー中の懸濁物の粒子数濃度の変化を、粘土系の懸濁水のものともあわせて示す。どちらも粒子サイズが照射前後で大きく変わっていないのに対して、スラリー中の粒子数濃度が大きく減少した。処理水によるスラリーの希釈^[1]と同様に、この粒子数濃度の減少が粘度低下の一因になっていると考えられる。

参考文献

- [1] 山岸功, 永石隆二, 本岡隆文ら, 「HIC 模擬炭酸塩スラリーの照射実験」, 原子力学会 2016 年春の年会, 2I19-2I (2016) 他。
- [2] 永石隆二ら, 「ベントナイト懸濁水の放射線分解による水素発生に関する研究」, 原子力学会 2015 年秋の大会, H01 (2015)。
- [3] 永石隆二, 森田圭介, 山岸功, 「高線量照射の及ぼす吸着材の表面構造への影響」, 原子力学会 2013 年秋の大会, N17 (2013)。

* Ryuji Nagaishi, Ryo Kuwano

Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

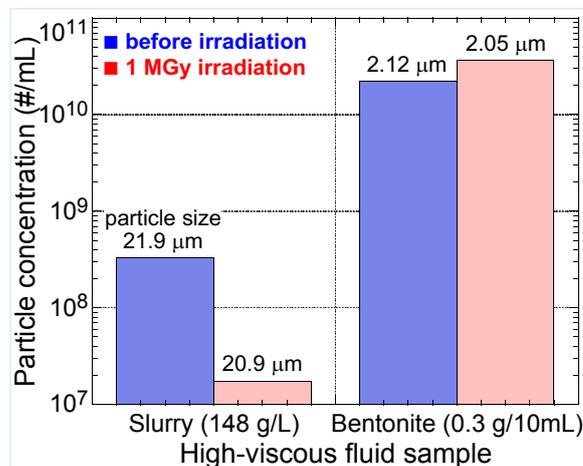


図 1 Co-60 γ 線照射による懸濁物の粒子数濃度の変化（線量率 5 kGy/h, 空気飽和）