

炭酸塩スラリーの親水性変化に伴う水素保持に関する放射線分解研究

(3) スラリーによる H₂ (ガス) 保持特性のガンマ線分解評価Radiolysis Studies on H₂ Retention with Changing Hydrophilicity of Carbonate Slurry(3) Gamma Radiolysis Estimation of H₂ (Gas) Retention Properties

*伊藤 辰也, 永石 隆二, 桑野 涼

日本原子力研究開発機構

スラリー中の間隙水の放射線分解で溶存種として生成し、後に気体となって粒径成長した水素 (H₂) はスラリーによって保持されるが、その保持はスラリーの粘度 (特性) や高さで異なる。今回、H₂ 保持抑制の観点から、1F ALPS 凝集沈殿系での炭酸塩スラリー廃棄物の親水性 (吸水性) 低下処理を検討したが、この処理に伴う H₂ 保持特性の変化を確認することは、その処理の有効性を評価する上で重要である。そこで本報告では、シリーズ発表の3番目として、ガンマ線分解実験でスラリー試料外に放出された H₂ 発生収量 (G 値) の試料高さ依存性を測定し、現行スラリーと、親水性低下処理を施したスラリーでの H₂ 保持特性をそれぞれ評価して、これらを比較した。

キーワード: 炭酸塩スラリー, 水素保持, ガンマ線分解, 水素発生, 試料高さ依存性

1. 緒言

スラリーによる水素 (H₂) の保持は、スラリーに生じるせん断応力が気泡 H₂ に生じる浮力 (粒径成長に依存) を上回ることで達成されるため、スラリーの粘度 (特性) に依存する。この粘度はスラリーを構成する懸濁物 (SS: suspended solid) 粒子と間隙水 (pore water) の両者から形成されるが、スラリーの親水性 (吸水性) 低下処理による間隙水の局所・部分的な (構造) 粘性の低下に伴い、スラリー全体の粘度が低下することで、スラリーの H₂ 保持力は低下する。これを実験的に明らかにすることは、この処理によるスラリーの H₂ 保持力低下の有効性を定量的に評価するだけでなく、スラリーによる H₂ の保持・放出メカニズムを詳細に解明する上でも重要である。

そこで本報告では、炭酸塩スラリーの H₂ 保持に関する放射線分解研究の第3報として、ガンマ線分解での H₂ 発生収量 (G 値) の試料高さ依存性から、現行と親水性低下処理を施したスラリーの H₂ 保持特性を評価した。

2. 実験

炭酸塩スラリーには、栗田工業 (株) が調製したもの (SS 濃度 C_{SS}=150-301 g/L 等) を用いて、これらから上澄み除去して照射試料とした^[1]。ここで、現行 (式) と親水性低下処理 (返送式) のスラリー調製法の概略は第1報に記載の通りである。また、スラリー調製時に用いた処理水、純水、海水等を比較 (水) 試料とした。

試料をガラスバイアル (高さ 5-20 cm) に入れ、セプタム付きキャップで封入し、ガンマ線照射施設 (QST 高崎研) の照射室に設置して、ガンマ線 (Co-60 線源, 線量率 2-5 kGy/h) を照射した。照射後、試料バイアルのヘッドスペースから気体を一定量サンプリングし、これを GC に注入して H₂ 濃度を分析した。線量測定は試料と同じ高さをもつ重クロム酸溶液線量計を用いて照射毎に行い、線量計との比較から試料の吸収線量を評価した。

3. 結果・考察

図1に H₂ 発生の相対 G 値のスラリー高さ依存性を示す (両対数)^[1-3]。ここで、縦軸は照射後のスラリーを攪拌せずに H₂ 分析して求めた発生 G 値 G_{stat} ①と攪拌して求めた全発生 G 値 G_{total} ② (スラリーによって異なる値) の相対比 (①/②) で示した。どの結果もスラリー高さとともに直線的に減少していることがわかる。現行式に比べて返送式の直線の傾きが小さいのは、親水性低下処理を施した返送式が H₂ を放出しやすいことを示す (現行式の10倍)。このスラリーの間隙水がその処理水と同じ粘度をもつこと (第2報) から、返送式スラリーの H₂ 保持はゼオライト充填層^[3]や飽和土 (粘土層除く) と同様に、SS 粒子の集団によって形成される立体障害のみで起きていることを示している。

本報告は、R2 年度東電 HD 委託事業「1F 汚泥返送式スラリー等の水素保持特性に関する検討委託」の成果の一部である。

参考文献

- [1] 山岸功, 永石隆二, 本岡隆二ら, 「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, 2119-21 (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] I. Yamagishi, R. Nagaiishi *et al.*, "Characterization and storage of radioactive zeolite waste", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**(7-8), 1044 (2013)。

*Tatsuya Ito, Ryuji Nagaishi, Ryo Kuwano
 Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

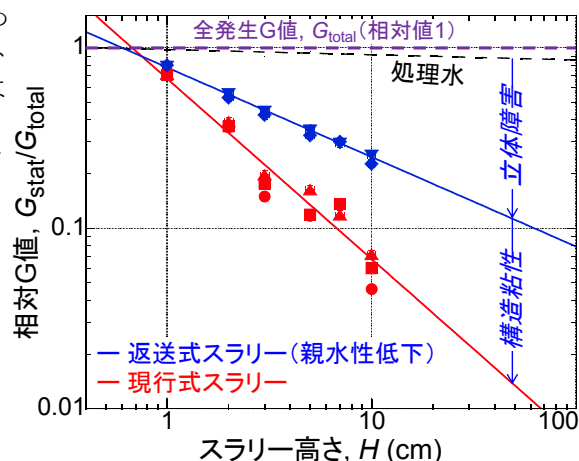


図1 水素発生の相対 G 値のスラリー高さ依存性 (線量率 <5 kGy/h, 積算線量 <20 kGy, 空気飽和)