エックス線を用いた水の放射線分解実験における分子生成の高精度評価

Precise Evaluation of Molecular Formation in X-ray Radiolysis of Water

*伊藤 辰也, 桑野 涼, 永石 隆二
日本原子力研究開発機構

Co-60 ガンマ線のような単一エネルギー（単色）をもつ光子とは異なり、制動放射や X 線といった連続エネルギー（スペクトル）の光子は、水中に異なる線質（エネルギー・スペクトル）の光子を与える。この光子による水の分解は生成物の異なる収量（G 値）やパターンを与える。従って、それらの光子を用いた実験ではこの線質（LET）効果の評価が重要となるため、X 線照射装置を用いて線量と線質データや、水の分解における水層の厚さの影響等について評価してきた。本報告では、新たにガラス製照射容器を製作するなどの分子生成を高精度に評価する手法を開発（改良）し、主に分子生成に及ぼす管電圧（入射最大エネルギー）の影響について評価した。その結果をもとに LET 効果について議論した。

キーワード：エックス線，水，放射線分解，分子生成物，放射線化学収量（G 値），線質

1. 緒言

ベータ線や二次電子が金属構造材に当たって生じる制動放射は入射放射線より低いエネルギーを持つ。これに伴い線エネルギー付与（LET）が一般的に高くなるため、水の分解による水素分子（H_2）や過酸化水素（H_2O_2）といった分子生成物のプライマリ収量（G 値）は増加する（線質（LET）効果）[1]。これまで、制動放射を模擬した X 線照射実験を行うために、精密線量計とスペクトロメータを用いて水が吸収した X 線の線量率・線質に対する水層の厚さの影響等について評価し[2]、管電圧（入射最大エネルギー）の減少に伴う H_2 発生の増加を観測してきた[3]。一方で、照射容器や体系による収量や線量評価のばらつきが多く、精度の向上が課題であった。

そこで本報告では、新たにガラス製照射容器を製作するなどの分子生成を高精度に評価する手法を開発（改良）し、主に管電圧を変化させて H_2 及び H_2O_2 の観測 G 値を求め、分子生成に対する LET 効果について議論した。

2. 実験

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, X 線管装置 UI-1520R, W ターゲット）を用いた。管電圧は 35−150 kV の範囲で変更可能で、吸収線量率は最大で 3.0 kGy/h（水換算，管電流 20 mA 以下）である。照射実験には、X 線や電子線を含む放射線の透過性に優れたカプトンフィルムを上面及び底面の照射（透過）面に用いて、さらにセプタム付きキャップを枝管として備えた試料容器（硼珪酸ガラス製）を作製し、これに水溶液試料を入れて使用した。発生した分子生成物の分析として、H_2 はガスクロマトグラフィー（GL サイエンス、GC-3200）、H_2O_2 は過酸化水素カウンター（HIRANUMA, HP-300L）を用いて測定した。線量計には，化学線量計（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

H_2 発生では海水塩分濃度相当のハロゲン化物イオンを溶解した水溶液、H_2O_2 生成では電子捕捉剤の硝酸イオンを添加した水溶液と、それぞれ液深や溶存酸素の影響を受けずに、観測した G 値がプライマリ G 値を与える水溶液の条件[3,4]を選んだ。製作した照射容器（図 1）に試料高さが 2.5 cm となるように水溶液を封入し、鉛コリメータによってスポット化した X 線を照射した。H_2 及び H_2O_2 の発生量は照射時間の増加とともに線形的に増加し、吸収線量に対する発生量、すなわち G 値は管電圧の低下とともに増加する傾向を示した。

本報告では、透過性の高い Co-60 ガンマ線（平均エネルギー 1.25 MeV）や X 線と同様に透過性の低い電子線（1 MV, 1 mA, 飛程約 0.4 cm(水中)）での結果とも比較しながら LET 効果について議論する。

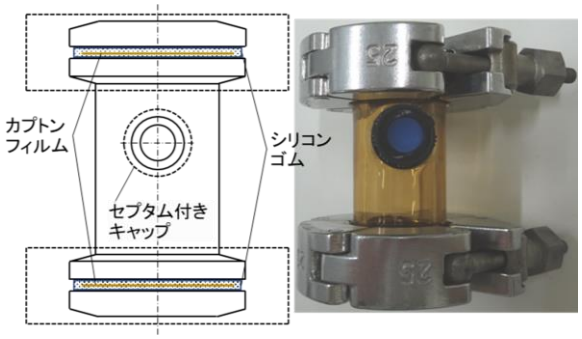

図１ X 線用照射容器（左：模式図、右：実物）

参考文献

[1] 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.
[2] 松村太伊知, 永石隆二ら, 「制動放射を模擬したエックス線照射による水の放射線分解の研究（1）吸収線量と吸収スペクトルの測定」, 原子力学会 2019 年秋の大会, 2I01 (2019).
[3] 永石隆二, 桑野涼ら, 「制動放射を模擬したエックス線照射による水の放射線分解の研究（2）分子生成の線質効果の評価」, 原子力学会 2019 年秋の大会, 2I02 (2019).
[4] R. Nagaishi, “Evolution of water radiolysis studies for measures against post-severe accidents”, RADIOISOTOPES, 66(11), 601-610 (2017)他.

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