

水素発生 G 値の温度依存性に関する調査研究

(4) 使用済燃料溶解液を用いた水素発生 G 値の温度依存性に関する考察

Investigation on the temperature dependence of G value of H₂ in Reprocessing solutions

(4) Consideration on the temperature dependence of G value of H₂ in dissolved solutions

*久保 一樹¹, 中野 正直¹, 長谷川 聡¹, 玉内 義一¹,

¹日本原燃

使用済燃料を溶解調製して得た溶解液を用いて測定した水素発生 G 値の温度依存性について、金属イオン等の効果を考慮した検証を行い、温度上昇等に伴う水素発生 G 値の変化に関して支配的な因子を考察する。

キーワード：使用済燃料溶解液、水素、水素発生 G 値

1. 緒言

使用済燃料溶解液を用いた水素発生試験を行い、試験温度が高くなるにつれて水素発生 G 値が低下する傾向となることを確認した^[1]。これは金属イオン効果が一因と推察されるため、本推察の妥当性確認として文献で報告されている水素発生 G 値を基に本試験データの条件を考慮した水素発生 G 値の計算を行い、計算値と試験値の比較を行った。本報告では、水素発生 G 値に関して支配的な因子の考察結果について報告する。

2. 計算方法

計算のベースとする水素発生 G 値は、Sheppard^[2]及び Mahlman^[3]の値を硝酸濃度及び使用済燃料溶解液の核種分析結果から得た線種の寄与割合を考慮して求めた。使用済燃料溶解液を用いた水素発生 G 値の温度依存性試験データのうち、Pd イオン濃度、溶液表面積、溶液量、試験温度等を用いて、下記の式(1)及び式(2)を用いて水素発生 G 値を理論計算で算出した。既報^[4]よりλは Pd イオン濃度に比例し、Pd イオン濃度が 45mM である場合の温度依存性が下記の式(2)で示されていることから、使用済燃料溶解液中の Pd イオン濃度により補正したλを用いている。

$$G_R = \frac{1.6 \times 10^{-17} \cdot G_{P'} \cdot \alpha \cdot A \cdot S}{\lambda \cdot V_L} \dots (1) \quad \lambda = 2.59 \times 10^8 \exp\left(-\frac{7000}{T}\right) \dots (2)$$

G_R：水素消滅を考慮した G 値[molecules/100eV]

G_{P'}：計算のベースとする G 値[moI/J]

α：液相から気相への水素移行係数[m/s]

A：アボガドロ定数[molecules/mol]

S：溶液表面積[m²]

λ：水素消滅速度定数[s⁻¹]

V_L：溶液量[m³]

T：試験温度[K]

3. 結果

計算値と試験値を比較した結果を図 1 に示す。温度影響としてはどちらも溶液温度がセル内温度(約 30°C)、70°C、90°C、と高くなるほど水素発生 G 値が低下し、傾向が合致した。攪拌及び沸騰時についても同様の傾向となった。本比較により、使用済燃料溶解液においても水素発生 G 値の温度依存性には金属イオン効果が寄与しているものと考えられた。

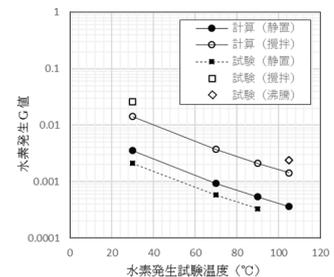


図 1 水素発生 G 値の温度依存性

参考文献

[1] 横山博紀他, 日本原子力学会 秋の大会 (2022)

[2] J.C.Sheppard, "ALPHA RADIOLYSIS OF PLUTONIUM(IV)–NITRIC ACID SOLUTIONS", BNWL-751,(1968)

[3] H.A. Mahlman, "The OH Yield in the ⁶⁰Co γ Radiolysis of HNO₃", J. Chem. Phys., 35, No.3, (1961)

[4] T.Kodama et al., "Study on the Behavior of Radiolytically produced Hydrogen in a High-Level Liquid Waste Tank of a Reprocessing Plant:Hydrogen Concentration Under Gamma-Irradiation of the Simulated Solution," Nuclear Technology,180,103(2012).

*Kazuki Kubo¹, Masanao Nakano¹, Satoshi Hasegawa¹ and Yoshikazu Tamauchi¹, ¹Japan Nuclear Fuel, Ltd.