

放射線影響研究の将来 –福島原発事故を超えて

勝村庸介
日本アイソトープ協会

はじめに

原子力エネルギーは常に放射線を伴う。むしろ原子力エネルギーは放射線エネルギーと言えるかもしれない。核分裂エネルギーは核分裂片のエネルギーであり、高エネルギーの重粒子線であるし、崩壊熱は核分裂片からの放射線エネルギーである。原子力分野では放射線を伴うことから、様々な放射線照射効果がもたらされる。放射線効果の多くは原子力施設や装置に悪影響を与え、効率の低下、機器の損傷に至ることもある。従って、このような悪影響を回避、抑制するためには放射線効果の理解が必要であり、これは放射線化学研究の大きな存在意義の一つとなる。

本稿では、水溶液に関わる研究について述べるため、放射光研究と直接結びつかないことをご容赦いただきたい。

最近の放射線化学研究の動向

水に対する放射線効果については放射線の発見以来長い歴史がある。これまでにバルク状態の水についての放射線照射効果については相当の知見が蓄積し、最近の研究動向は、極端条件下の放射線化学(under extreme conditions)と特徴付けられるように思う。

(1) レーザー技術と加速器技術の進展に伴い、ps 時間領域の超高速反応実験^[1]が容易に実施できるようになり、基礎過程の詳細な検討が可能となった。中でも大きな課題の一つは、電子の溶媒和や溶媒和電子の先駆体の反応である。(2) 高温・高圧下の放射線反応^[2]は原子炉冷却水の放射線分解研究との密接な関係があり、現行炉の 300°Cを超えて、将来炉として期待

される超臨界水冷却炉(SCWR)開発から、より高温の超臨界水(>24.1 MPa, >374°C)まで対象は広がっている。ここでは温度のみならず圧力(密度)が重要なパラメーターとなる。(3) ナノ空間の放射線反応^[3]も興味を持たれている。狭隘な空間にある水の分解についてはどう考えるべきなのか。これまでのバルクの考えが当てはまらないことは明確である。制御された空隙サイズを持つガラス材料に水を含浸させのモデルの実験がフランス CEA で行われている。(4) 表面・界面の放射線反応^[4]として、微粒子や酸化物表面に吸着した水の放射線分解の検討である。原子力でもおなじみの酸化物(UO₂, ZrO₂...)も検討されている。(5) 高 LET 放射線反応^[5]は様々な重粒子が使用できるようになり、急速に展開している。実験とともにシミュレーションでの再現が可能になってきている。放射線生物学の初期過程とも深い関わりがある。(6) 濃厚酸水溶液の放射線反応が積極的に検討されてきた。これまでの水の放射線分解研究では初期過程に影響の小さい希薄溶液が対象であった。溶質濃度を上げて行く場合の溶質のスパ一過程への影響、水和電子の先駆体との反応、水中では H₂O⁺はイオン分子反応 (H₂O⁺ + H₂O → OH + H₃O⁺) をして、H₂O⁺そのものの反応性については議論できなかったが、濃厚酸を対象にした実験から、H₂O⁺の反応について明らかになってきた^[6]。

福島事故のもたらした新課題

東電の福島第一原子力発電所の原子炉事故の直後より、事故後の発電所システムの健全性維持、廃炉の準備、汚染水処理に関わる多くの放射線効果の課題が検討されてきた。

(1) ロボット構成機器の耐放射線性評価: 福島事故で大きな損壊を受けた原子炉格納容器内は数-数 10 Gy/h の非常に高い線量場となっており、人の立ち入りは困難であることから CCD カメラや LEDなどを搭載したロボットにより、内部観測や写真撮影を行う必要がある。ケーブルやモーターなどの機械部品の放射線耐性は高いのに対して、CCD 素子は最も放射線に対する感受性が高く、100Gy 以上の照射で撮像能力の劣化が進むことが明らかになった。しかしながら、未だなお放射線耐性を大きく向上させることには成功していないようである。一方、LED も旧来品では放射線耐性が 500kGy で急激な発光低下が認められ、耐性向上の試みがなされ、5 MGy でも劣化が進まない新しい素子の開発が実現している^[7]。

(2) 汚染水除去後のゼオライトからの H₂ 発生: 福島第一原子力発電所では冷温停止に伴う汚染水からの Cs 除去にゼオライトを充填したカラムが利用されており、使用済みのゼオライト廃棄物の安全な保管の確認が必要である。使用済ゼオライト中の多量の吸着 Cs は温度上昇、水の放射線分解による H₂ 発生が生じ、安全な保管のためにはこれらの評価が不可欠であり、直ちに実験検討が進み、G(H₂)測定、保管体系での温度上昇などの検討を進め、安全な保管方法を確立した^[8]。それに先立ち、ゼオライト - 水混合系からの放射線による水素発生 G 値が測定され、水とゼオライトからの水素発生との和で表示されることが実験的に確認された^[9]。

(3) 海水注入の放射線効果: 福島事故では電源喪失により原子炉や燃料保管プールの冷却に海水注入が行われた。当然、海水の放射線分解が問題になるが、必ずしも十分に塩水の放射線分解機構は確立していない。シミュレーションによる評価で海水の放射線分解の特徴が明確にされてはきたが、その基礎過程は非常に複雑で、現在精度の高い評価が進行している^[10]。海水中では金属材料の腐食が加速されることが判っているが、実用的には使用済燃料保管プール(SFP)、格納容器(PCV)や原子炉圧力容器(RPV)材料の放射線による健全性劣化の加速が懸念され、そのための実験が進められた^[11]。現在の線量率の環境では加速は観察されるものの実用的には問題のないことが確認されている。さらに、ヒドラジン添加が腐食抑制に効果的であることも見出されている。工学的なデータは得られたものの、これらについての基礎的で系統的な検討が望まれている。

(4) 沸騰水からの H₂ 発生^[12]: 沸騰状態の水の水素発生については十分な知見が得られていなかった。福島事故の解析での沸騰水の水素発生量評価の必要性から実験的検討が進められた。

(5) UO₂/debris の放射線誘起溶出についても注目されている。これは改めて後に述べる。

(6) 放射線グラフト重合を活用した新 FP 除去材料開発^[13]: グラフト重合法で材料開発が進んでおり、Cs や Sr を対象とした FP 除去のための汚染水処理材料が開発されている。

UO₂ 燃料 debris の放射線誘起溶出^[14]

UO₂ 燃料はそのままでは水に溶解しないが、放射線場では溶解することが知られており、ワンスルー型の地層処分の放射線効果として重要課題の一つである。H₂O₂ と UO₂ 表面との反応が重要な役割を果たすことが明らかにされてきている。福島事故での溶融燃料体の冷温

停止のための冷却水の注入で生ずる汚染水の Cs や H₃ が定常濃度を示すことから、デブリの溶解が示唆され、放射線誘起反応と考えられている。実際のデブリの構造は U や Zr 以外の構成材料も絡み複雑で、しかも不均一な系であることから局所的に反応が進行することも想定される。モデル実験が開始されているが、実際のマイクロな反応を検討するためには放射光のマイクロビームによる分析の手助けがなければ困難ではないかと想像している。

まとめ

福島第一の原子力事故は原子力に対する国民の信頼を大きく揺らした。一方で、放射線に関わる様々な放射線効果の課題をもたらした。これらは実用的な応用問題であり、基礎的研究と系統的な検討が望まれる。これらの課題解決が放射線影響研究の存在意義なのであろう。

参考文献

- [1] Y. Muroya et al., *J. Phys. Chem. Lett.*, **1**, 331-335 (2010).
- [2] M. Lin et al., pp. 401-424 in *Charged Particle and Photon Interactions with Matter -Recent Advances, Applications, and Interfaces-*, eds., Y. Hatano, Y. Katsumura, and A. Mozumder, Taylor & Francis, Boca Raton (2010).
- [3] S. Moreau et al. *Corr. Sci.* **83** 255-260 (2014), S. L. Caër, et al., *ChemPhysChem.*, **6**, 2585 (2005).
- [4] J. A. LaVerne, pp. 425-444 in *Charged Particle and Photon Interactions with Matter -Recent Advances, Applications, and Interfaces-*, eds., Y. Hatano, Y. Katsumura, and A. Mozumder, Taylor & Francis, Boca Raton, (2010).
- [5] S. Yamashita et al., pp. 325-354 in *Charged Particle and Photon Interactions with Matter -Recent Advances, Applications, and Interfaces-*, eds., Y. Hatano, Y. Katsumura, and A. Mozumder, Taylor & Francis, Boca Raton, (2010).
- [6] J. Ma, et al., *J. Phys. Chem. Lett.*, **5**, 258-261 (2014).
- [7] 上川将章他、放射線と産業 **140**, 36-41 (2016).
- [8] I. Yamagishi et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **51**, 1044-1053 (2014).
- [9] Y. Kumagai, et al., *J. Nucl. Sci. Technol.*, **50**, 130-138 (2013), Y. Kumagai, *Radiat. Phys. Chem.*, **97**, 223-232 (2014).
- [10] K. Hata, pp. 60-63 in the Proceedings of RADEM '14, October 2014, Sapporo.
- [11] T. Tsukada, 10213 in the Proceedings of NPC 2014, October 2014, Sapporo.
- [12] S. Yang, et al., *Radiat. Phys. Chem.*, **123**, 14-19 (2016).
- [13] 後藤聖太他、**65**, 1-14 (2016)、後藤俊一他 **65**, 15-22 (2016).
- [14] Y. Kumagai, et al., W8, in the Proceedings of NPC 2016, October 2016, Brighton, UK.