

# 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

日本原子力研究開発機構 (JAEA)  
廃炉環境国際共同研究センター (CLADS)

伊藤 辰也・桑野 涼・永石 隆二

1. 背景：制動放射を模擬したX線，構造材近傍の水に吸収されるエネルギー，困難な照射実験、目的
2. 照射実験：実験方法
3. 照射体系の見直し：照射容器の改良，体系の改良
4. 結果と議論： $H_2$ 発生及び $H_2O_2$ 生成の線質 (LET) 効果
5. まとめと今後の展望 (電子線照射、樹脂の影響)

# 1.1 背景: 1次放射線の制動放射を模擬したX線

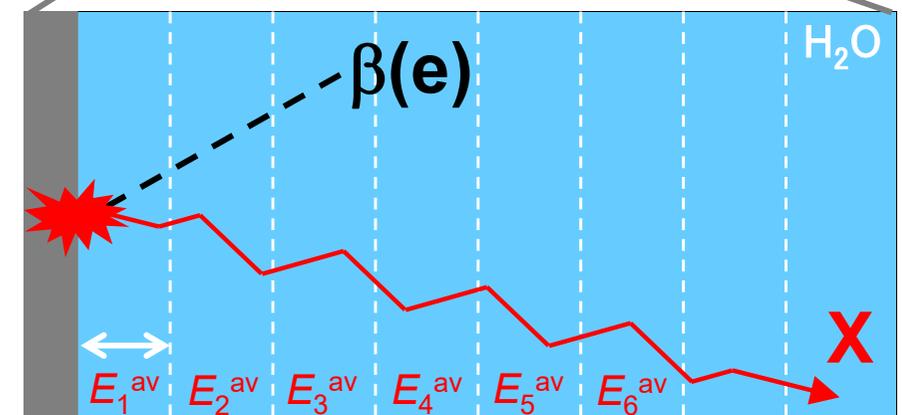
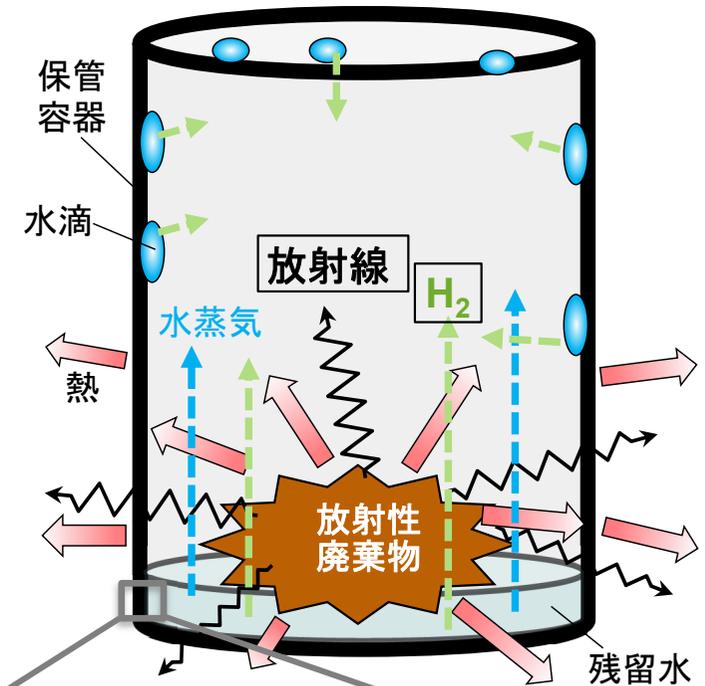
- 1F事故で発生した燃料デブリ等の放射性廃棄物の保管容器は様々な線質の放射線にさらされる。  
→  $\beta$ 線が構造材料等に入射して発生した連続エネルギーを有する制動放射(入射放射線より低エネルギー)が発生。
- ✓ 連続エネルギー(スペクトル)を有したX線の水への吸収は、水層の厚さによって異なる線質の光子を吸収する。<sup>\*1-2</sup>
- ↓
- ✓ 低エネルギー化した光子は一般に高LET(線エネルギー付与:LET)となるため、 $H_2$ や $H_2O_2$ の水の分子生成物のプライマリ収量(G値)が増加。<sup>\*2</sup>

均一なCo-60ガンマ線の照射実験では、分解生成物の発生挙動を把握しきれない可能性

↓

X線照射装置を用いて制動放射を模擬した水の放射線分解実験を行ってきた。<sup>\*3-4</sup>

- \*1 松村太伊知, 永石隆二ら, 「放射線環境における構造材近傍のエネルギースペクトル評価」, 2018年春の年会, 2M03 (2018)ほか.
- \*2 永石隆二, 桑野涼ら, 「透過性の低い放射線による水の放射線分解での水素発生等の測定」, 2019年春の年会, 1D06 (2019).
- \*3 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研究」, 2019年秋の大会, 2I01 (2019).
- \*4 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」, 2019年秋の大会, 2I02 (2019).



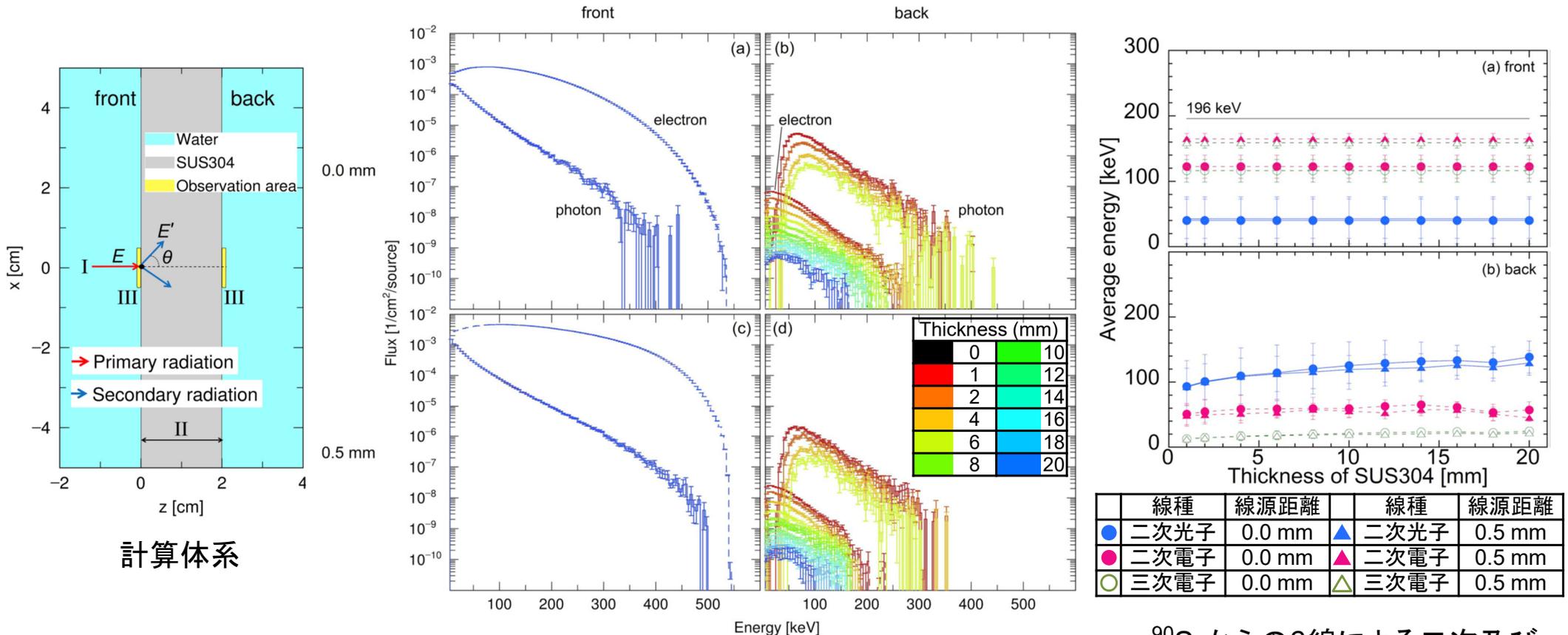
SUS304  
(high-Z)

$$E_1^{av} < E_2^{av} < E_3^{av} < \dots < E_n^{av}$$

制動放射の発生と水中へのエネルギー付与

# 1.2 構造材近傍の水に吸収される光子・電子線

■ 水中の構造材近傍における放射線 ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$ ) の平均エネルギーを評価\*1



- ✓ 構造材の厚さ、線種、線源距離によって二次放射線のスペクトルが変化
- ✓ 構造材近傍では入射放射線の平均エネルギーよりも低いエネルギーの高次電子が発生

構造材近傍での水の放射線分解はプライマリ収量(G値)が増加する可能性  
 低エネルギー光子によるプライマリ収量(G値)の評価が必要

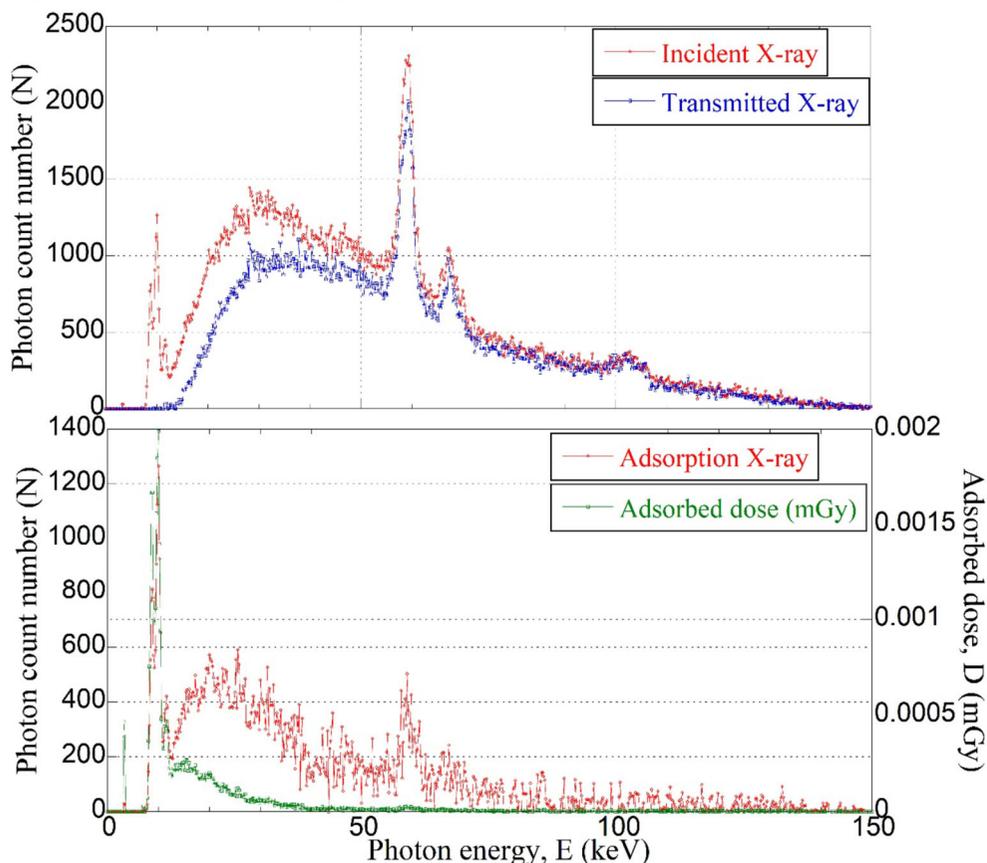
\*1 T. Matsumura, R. Nagaishi, et al., "Evaluation of energy spectrum around structural materials in radiation Environments", Rad. Phys. Chem., 166, 108493 (2019).

# 1.3 背景: Co-60 $\gamma$ 線に比べて困難な照射実験

## ■ X線を用いた照射実験は非常に困難

(例) LET評価が困難

低エネルギー側に吸収のピークがある\*1



水槽透過前後及び吸収スペクトル

**100%吸収しない場合(透過)、  
媒体の距離によってLETが変化**

\*1 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研究」, 2019年秋の大会, 2I01 (2019).

(1) 積算線量計・スペクトロメータでの測定\*1

1. 管電圧や水層の厚さを変えた線量評価
2. 平均エネルギーからの線質(LET)評価

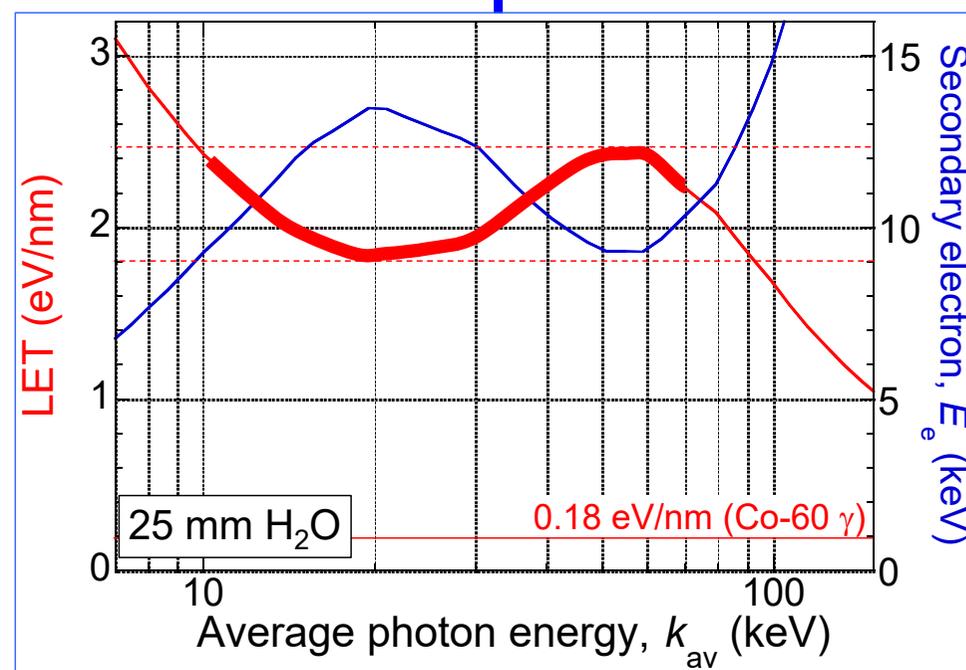


図 X線照射の線量・線質データ(例)

(2) 分子生成の線質(LET)効果の評価

1. 管電圧や水層の厚さ変えた生成物分析
2. 生成物G値の線質(LET)効果の評価

## 1.4 目的:照射体系の見直し

- 分子生成物のG値のLET効果データの蓄積(継続):管電圧の細分化,容器・体系に基づく誤差の軽減(改良)...
- ラジカル生成物のG値のLET効果のデータ取得:化学線量計(フリッケ,セリウム等)を用いた物質収支に基づく評価



- ・ 容器フランジ部の歪み → 気体、液体の漏れ
- ・ チタン製 → 耐食性はあるものの酸(線量計)が若干影響する
- ・ 完全目視での設置 → 照射スポットから容器がずれる

先行研究で用いたチタン製容器  
(上下端カプトン)

容器による誤差の要因を削減した新型容器を開発し、再現性向上かつ外乱低減を施した照射体系の構築を行い、分解生成物のG値の高精度データの蓄積を目指す

- 新型容器の開発、照射体系の見直し
- データの蓄積、Co-60ガンマ線との比較

# 2 X線による水の分解実験

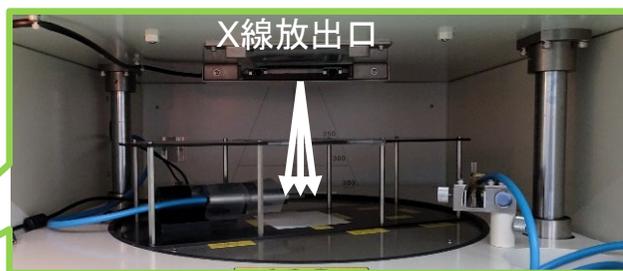
■ X線照射を行い分子生成物であるH<sub>2</sub>の発生量及びH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の生成量をそれぞれ分析



X線装置(本体)  
MBR-1520R-4

管電圧: 35-150 kV  
管電流: 5, 10, 15, 20 mA  
Max 3.0 kGy/h

廃炉環境国際共同研究棟(富岡町)に設置



照射室

・H<sub>2</sub>発生試験  
0.5 M NaCl+1 mM KBr水溶液  
(OHラジカルによるH<sub>2</sub>の酸化をCr, Brで阻害)

H<sub>2</sub>ガス分析



ガスクロマト  
グラフィー装置

精密線量計

・H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>生成試験  
30 mM NaNO<sub>3</sub>水溶液  
(水和電子によるH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>の捕捉を電子捕捉剤で阻害)

H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>濃度分析



過酸化水素カウンター

・吸収線量測定  
セリウム線量計(Ce<sup>4+</sup>→Ce<sup>3+</sup>)、FWTラジオクロミックフィルム(着色)

吸光度分析

吸光度分析



紫外-可視吸光度計



ラジオクロミックリーダー

# 3.1 照射容器の改良

■ チタン製容器の問題点を克服するため新型の硼珪酸ガラス製容器を設計・作成

先行研究



チタン板

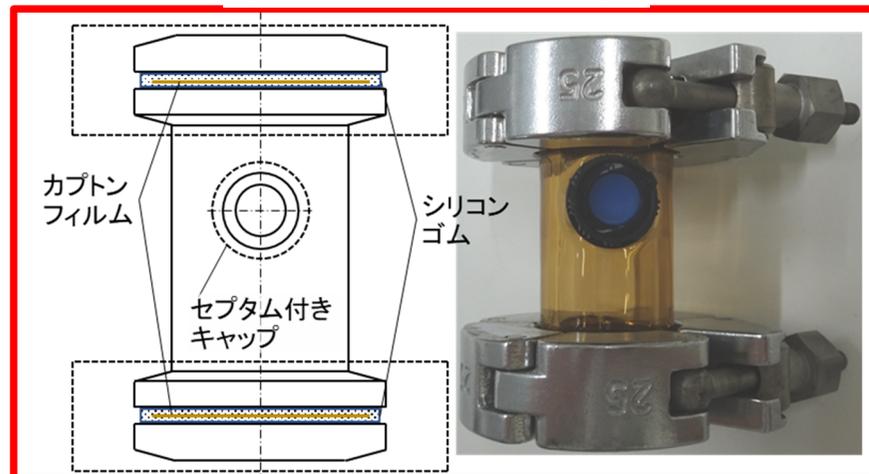
カプトン薄膜

チタン製容器  
(上下端カプトン)

コンセプトはそのまま

- ・酸の影響の低減  
→ チタン製からガラス製へ
- ・フランジ歪みの解消  
→ チタン製からガラス製へ
- 肉厚の増量
- フランジクランプの使用

本研究の新型容器



Density	1.45 g/cm <sup>3</sup>
H <sub>2</sub> transmit.	23.7x10 <sup>-17</sup> mol•m <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> Pa <sup>-1</sup> (150EN)
H <sub>2</sub> O transmit.	17 g•m <sup>-2</sup> •day <sup>-1</sup> (150EN: 37.5 um)
Radiation	>60 MGy resisted



カプトン

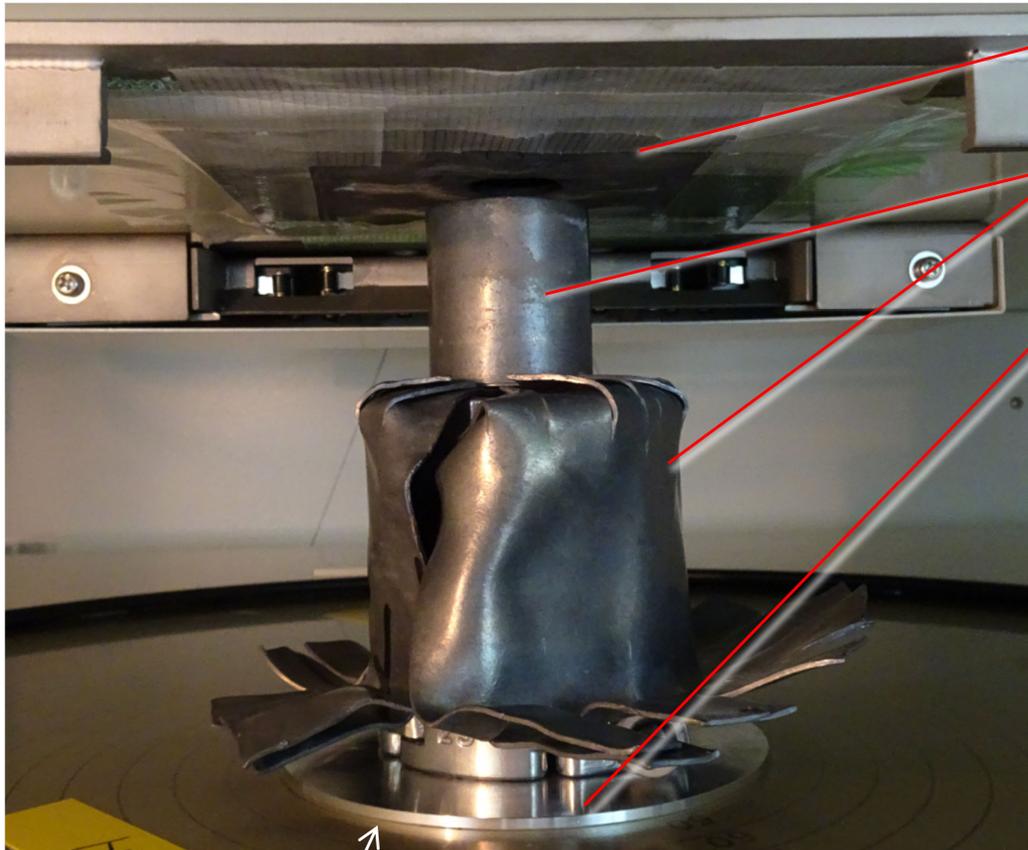
- カプトン薄膜(耐放射線・耐薬品性、  
低H<sub>2</sub>透過性、低透水性)
- ・X線を無駄に減衰させずに照射可能
  - ・サンプル通過後の線量も測定可能



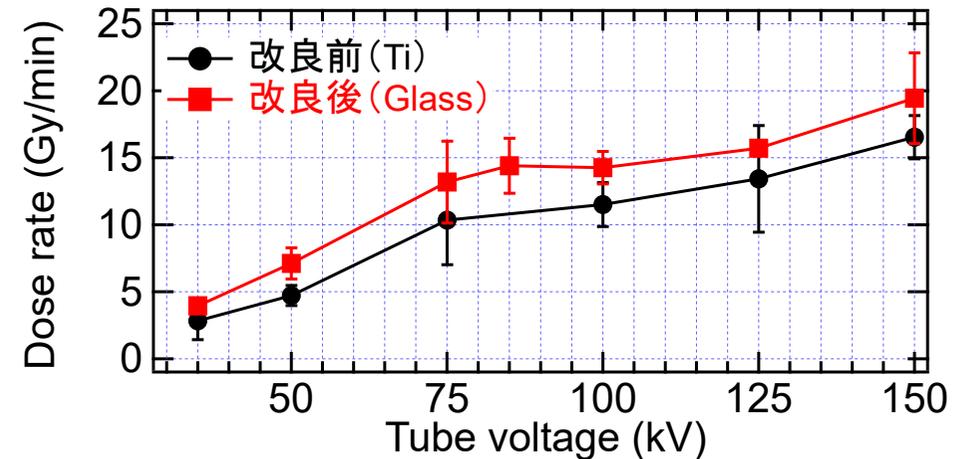
気体・液体の漏れはほぼなし  
Co-60ガンマ線、電子線でも使える

# 3.2 照射体系の改良

## ■ 照射のスポット化、間接的入射の遮蔽、台座を用いた中心合わせの導入



- **コリメータ(穴あき鉛板)**  
→ 照射領域のスポット化
- **遮蔽(鉛板)**  
→ 反射、散乱による間接的な入射を遮る
- **台座**  
→ 台座を試料台の同心円マーカールに合わせることで中心出しが可能  
→ 台座の突起部と下部フランジのザグリが噛み合う



吸収線量率(管電圧依存性)の比較

直接のX線のみをサンプルに照射  
 サンプル交換毎の位置ずれを低減  
 ⇒ 線量評価の精度向上



穴あきフランジ  
上部用

穴あきフランジ  
下部部用(ザグリあり)

台座

## 5.1 まとめ

- 1) 照射体系の改良: 新型の硼珪酸ガラス製容器を設計・製作し、位置ずれ防止、直接入射以外を遮蔽する照射体系を構築した結果線量評価の精度が向上した。
- 2) 分子生成物の評価: 観測G値(分子生成量の直線の傾き)はCo-60ガンマ線でバイアルと同等の値を与え、X線の場合はそれよりも高い管電圧によって変化する幅のあるG値(線質効果)を確認した。
- 3) 線質(LET)効果: H<sub>2</sub>発生, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>生成のどちらの場合もCo-60ガンマ線での値を超えるG値(1.5倍弱)を見いだした。

↓  
今後の課題(展開): 高精度な詳細データの蓄積



➤ 分子生成物のG値の線質(LET)効果データの蓄積(継続):  
管電圧の細分化、装置側の安定化

さらに・・・

- ・電子線照射による水の分解実験との比較
- ・樹脂(カプトン等)の影響評価