



## 福島原子力事故関連情報アーカイブ

Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	セメント硬化体構成結晶の放射線分解水素生成収率と照射温度依存性
Alternative_Title	Radiolysis H <sub>2</sub> yield of hardened cement constituent crystals and its dependence on irradiation temperature
Author(s)	熊谷 純(名古屋大学), 根岸 久美(太平洋コンサルタント), 井田 雅也(太平洋コンサルタント) Kumagai, Jun(Nagoya Univ.); Negishi, Kumi(Taiheiyo Consultant Co., Ltd.); Ida, Masaya(Taiheiyo Consultant Co., Ltd.)
Citation	第 12 回環境放射能除染研究発表会要旨集, p.37 The 12th Workshop of Remediation of Radioactive Contamination in Environment
Subject	セッション 6 : 廃棄物対策
Text Version	Publisher
URL	<a href="https://f-archive.jaea.go.jp/handle/faa/277807">https://f-archive.jaea.go.jp/handle/faa/277807</a>
Right	© 2023 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第 12 回環境放射能除染研究発表会要旨集」のデータであり、発表内容に変更がある場合があります。 学会は発表の機会を提供しているもので、内容に含まれる技術や研究の成果について保証しているものではないことをお断りいたします。



## セメント硬化体構成結晶の放射線分解水素生成収率と照射温度依存性

○熊谷 純<sup>1</sup>・根岸 久美<sup>2</sup>・井田 雅也<sup>2</sup>

1：東海国立大学機構 名古屋大学・2：太平洋コンサルタント

## 1. 背景および目的

福島県の除去土壌の減容化に伴い濃縮された放射性物質を最終処分する上で、それらを含む安定化固化体を作成することが考えられており、固化材料としてセメント・ジオポリマーなどが候補として上げられている。これらは水を原料に水和物を構成して硬化体を形成するため、水和物の放射線分解による水素発生が予想され、最終処分施設においては水素爆発を防ぐ上でもその生成収率を把握することは重要である。本研究では、セメントを構成する C-S-H, Ca(OH)<sub>2</sub>, エトリンガイト, モノサルフェート, 硫酸カルシウム  $n$  水和物 ( $n=0.5, 0.625, 2$ ) について、 $\gamma$  線照射による化学結合水からの水素生成収率を求めた。更に、安定化された放射性物質の崩壊熱による温度上昇を考慮し、温度を変えて  $\gamma$  線照射を行い、これらの結果より水素生成収率を決定する要因について考察したので報告する。

## 2. 実験手法

Ca/Si 比 0.83 と 1.4 の C-S-H, エトリンガイト, モノサルフェートは太平洋コンサルタント(株)で合成した物を用いた。Ca(OH)<sub>2</sub> と硫酸カルシウム 0.5, 2 水和物は市販物を用い、0.625 水和物は、0.5 水和物を 30°C の飽和水蒸気圧下に 1 日おいておくことにより作成した。対象物質を加えた密閉ガラス管内を Ar ガスで置換し、名大 Co60  $\gamma$  線照射室で  $\gamma$  線照射を行った (線量: 1 kGy (水換算))。照射後のガラス管内の水素濃度を microGC (Varian CP-4900) で定量し、水素生成収率 ( $G_{H_2}$ : mol $\cdot\mu$ J<sup>-1</sup> 単位; 吸収エネルギー 100eV あたりの生成数の  $G$  値の 0.1036 倍) を求めた。

## 3. 実験結果

3.1 C-S-H, Ca(OH)<sub>2</sub>, エトリンガイト, モノサルフェートの  $G_{H_2}$ 

セメント硬化体構成結晶において、Ca/Si 比 0.83 の C-S-H では室温で液体水のそれと同等の収率 ( $G_{H_2} = 0.046$ ) を示し、90°C では約 2 倍の  $G_{H_2} = 0.103$  となった。Ca/Si 比 1.4 の C-S-H では室温で  $G_{H_2} = 0.039$ , 90°C で 0.043 と緩やかな温度依存性を示した。の上昇と共に大幅に収率が上昇した。Ca(OH)<sub>2</sub> では室温で  $G_{H_2} = 0.006$  と最も小さく、照射温度依存性もわずかであった。エトリンガイト, モノサルフェートは室温で液体水の  $G_{H_2}$  と同等の 0.047 程度、90°C で 0.05~0.055 程度と緩やかな温度依存性を見せた。

3.2 硫酸カルシウム  $n$  水和物 ( $n = 0.5, 0.625, 2$ ) の  $G_{H_2}$ 

2 水和物の  $G_{H_2}$  は室温から 90°C で 0.0039~0.007 と、液体水のその 1/10~1/7 程度で、 $n$  水和物中最も収率が低かった。0.5 水和物においては照射温度が -78°C~室温までは  $G_{H_2} = 0.010$  であったが、45°C より  $G_{H_2}$  は上がり始め、75°C 以上で 0.0185 と室温の 2 倍弱となった。0.625 水和物においては、-78°C で  $G_{H_2} = 0.013$ , 室温で 0.018, 75°C 以上で 0.026 と  $n$  水和物の中で最大の  $G_{H_2}$  となった。

## 4. 考察

硫酸カルシウム  $n$  水和物の結果より、 $G_{H_2}$  は水和水数には依存しないことがわかった。2 水和物においては、水和水は Ca<sup>2+</sup> イオンへの配位し SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> イオンと水素結合を形成しているのに対し、0.5 水和物では Ca<sup>2+</sup> イオンへの配位のみであり、0.625 水和物においては 0.5 水和物の中に  $n = 0.125$  水が弱く吸着している<sup>1</sup>。液体水の放射線分解水素生成においては、主に水和水が水を還元して水素を生成する<sup>2</sup>。水和物において、水和水が強くと水素結合している場合は電子が水を還元しにくく、温度上昇によって弱くなった場合にはしやすいと考えられる。セメント硬化体構成結晶においても同様と考えられる。

## 参考文献

- 1) Tang, Y. B.; Gao, J. M.; Liu, C. B.; Chen, X. M.; Zhao, Y. S. *Acs Omega* 2019, 4, 7636–7642.
- 2) Le Caer, S. *Water* 2011, 3, 235–253.

Radiolysis H<sub>2</sub> yield of hardened cement constituent crystals and its dependence on irradiation temperature.Kumagai Jun<sup>1</sup>, Kumi Negishi<sup>2</sup>, Ida Masaya<sup>2</sup>

(1 Nagoya University, 2 Taiheiyō Consultant Co. Ltd.)