



トリチウム研究会

～トリチウムとその取り扱いを知るために～



平成26年3月4日(火)

会場／イイノホール & イイノカンファレンスセンター
4F Room B1+2

東京都千代田区内幸町2-1-1

＜主催＞日本原子力学会

＜後援＞日本原子力研究開発機構

トリチウム研究会

～トリチウムとその取り扱いを知るために～

主催 一般社団法人 日本原子力学会
後援 独立行政法人 日本原子力研究開発機構

プログラム

◎12:30 開場・受付開始

○13:00 開会

「環境中のトリチウム」	百島則幸 九州大学 教授
「環境生態系のトリチウム影響」	宮本霧子 海洋生物環境研究所 研究参与
「トリチウムの分離」	小西哲之 京都大学 教授
「規制と管理」	小野寺淳一 日本原子力研究開発機構
「原子力施設における トリチウムの取り扱い経験」	白鳥芳武 日本原子力研究開発機構
「福島第一原子力発電所の汚染水 の現状と汚染水中のトリチウム」	内田俊介 元東北大学 教授
「総合討論」	司会 田中 知 東京大学 教授

○17:00 閉会

— 以 上 —

※ 本資料の複写・転載の際は、日本原子力学会もしくは日本原子力研究開発機構福島技術本部までお問い合わせいただきますようお願いいたします。

「環境中のトリチウム」

百島 則幸
九州大学 教授

地球上に生きる動植物の生命を維持する上でなくてはならないものの一つである水は、私たちの体重の 60～70% を占め、その水にはトリチウムが含まれている。トリチウムは半減期 12.3 年で β 壊変してヘリウム-3 になる水素の放射性同位体である。大気上層において、陽子や中性子と大気を構成する窒素原子や酸素原子との核反応により、トリチウムは定常的に生成されている。トリチウムは、空気中の水蒸気、雨、海水や地表水などに広く存在し水と一緒に自然界を循環しているため、大昔から人類は、環境中のトリチウムを飲料水あるいは食物として摂取してきた。光合成を出発とするトリチウムの有機物への変換は、トリチウムの環境サイクルの重要な部分を占め、食物連鎖を介して人へトリチウムは移行する。

天然トリチウムが形成していた定常的な状態、すなわち大気上層における生成量と地球上のトリチウムの壊変量が釣り合った状態は、1950-60 年代に活発に実施された大気圏核実験により大きく乱された。大気圏核実験によって成層圏や対流圏に放出された人工的なトリチウムのために、1952 年以降は降水中のトリチウム濃度は増加し、1963～1964 年のピーク時には天然レベルの 100 倍を超える値が現れた。大気圏核実験停止に伴い、日本を含め世界中の降水中のトリチウム濃度は年々減少していき、現在は天然レベルに戻っている。核実験トリチウムは、最終的には海に移行するが、海には大量の水が存在するので濃度増加はほんのわずかである。

トリチウムは原子炉燃料棒中のウランの三体核分裂により生成し使用済みの核燃料中に蓄えられている。原子炉では水が減速材として使用されるので水に含まれている重水素 (0.015%) の中性子捕獲でトリチウムが生成する。カナダで開発されて韓国やルーマニアに導入されている CANDU 炉は重水 (D_2O) を減速材としているため、軽水炉に比べると大量のトリチウムが生成し、周辺環境のトリチウムレベルが増加している。ほとんど全ての原子力発電所や核燃料再処理工場ではトリチウムの回収を行っていないため、トリチウムはすべて環境へ放出される。海洋放出されたトリチウム大量の海水で希釈される。また、気体廃棄物として煙突から環境放出されたトリチウムの一部は、施設近傍に直接あるいは雨で降下するが、雨等により希釈をうける。

トリチウムは液体シンチレーションカウンターによる測定が広く行われている (液体シンチレーション計測法、LSC 法)。LSC 法では水としてトリチウムを測定するので、河川水、湖水、雨水、海水等には大変好都合であるが、有機物は燃やして水にする必要がある。質量分析法は LSC 法より低い濃度まで測定できるが利用できる装置は限られている。

福島原子力発電所事故によりトリチウムが環境へ放出された。原発に近い福島県内の陸水のトリチウム濃度に少し上昇が見られたが、そのレベルは 1980 年代より小さかったことから環境影響はほとんどなかったといえる。

環境中のトリチウム

百島 則幸
九州大学 教授

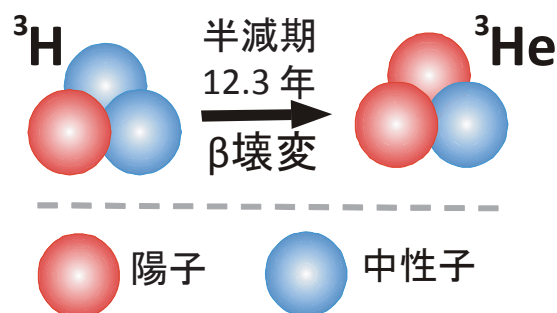


トリチウム研究会
～トリチウムとその取り扱いを知るために～
2014年3月4日
イイノホール&カンファレンスセンター

トリチウムとは(1)

トリチウム (^3H , T)

■ 水素の放射性同位体



■ β 壊変してヘリウム (^3He)

■ 壊変エネルギーは低い

最大エネルギー 18keV

平均エネルギー 5.7 keV

■ 最大飛程 空気 (5mm)

水 (0.006mm)

トリチウムとは(2)

- 環境中の主な化学形は水(HTO)
水素元素を含む多くの環境物質に移行可能
- 大気中: 水蒸気、水素、メタン...
- 植物中: 組織水、有機物
- 食品中: 水分、有機物

トリチウムは他の水素同位体と混じり合っている
環境水中のトリチウム: $H_2O \gg DHO \gg HTO$

水素(H) 重水素(D) トリチウム(T)

環境中のトリチウムの起源

(1) 天然の生成

宇宙線と大気の相互作用により
大気上層で常に生成し地表へ
降下

環境トリチウムの発見1950年

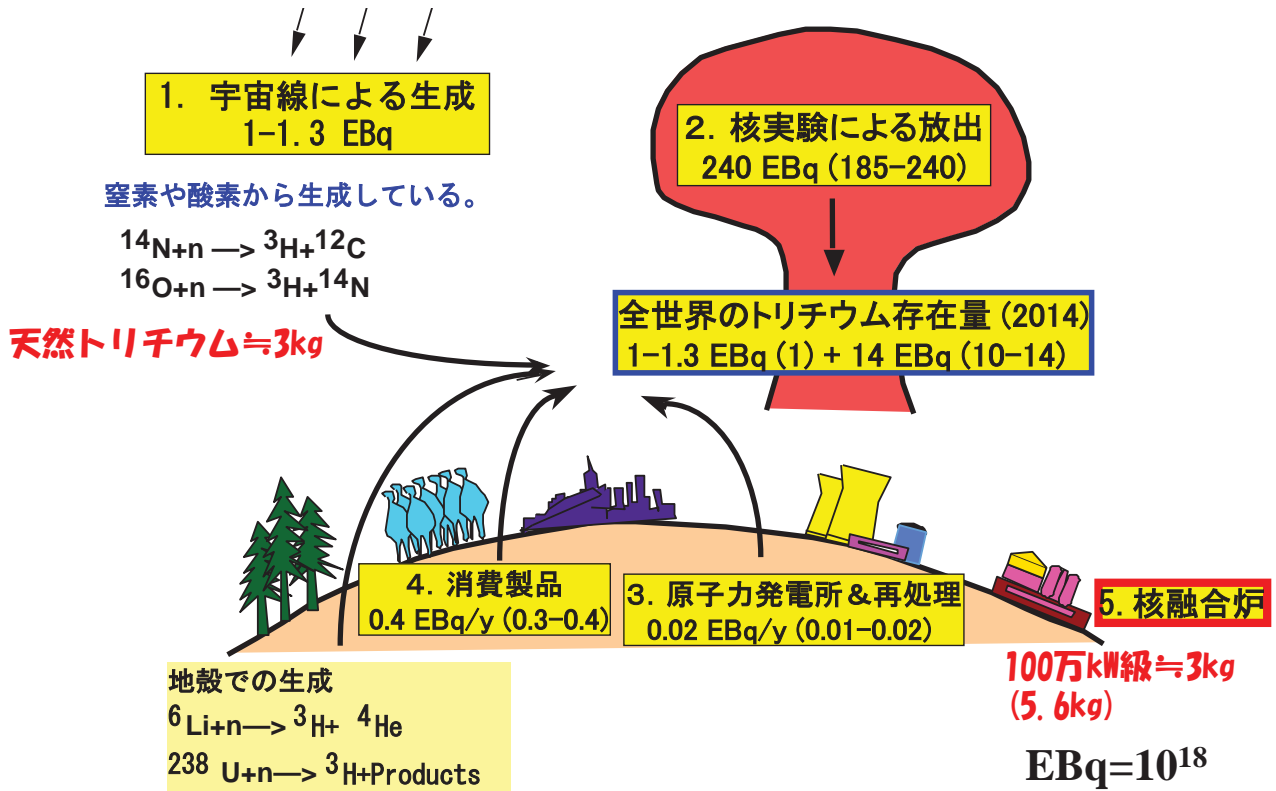
(2) 人為的な環境放出

a. 核実験(1950年-現在)

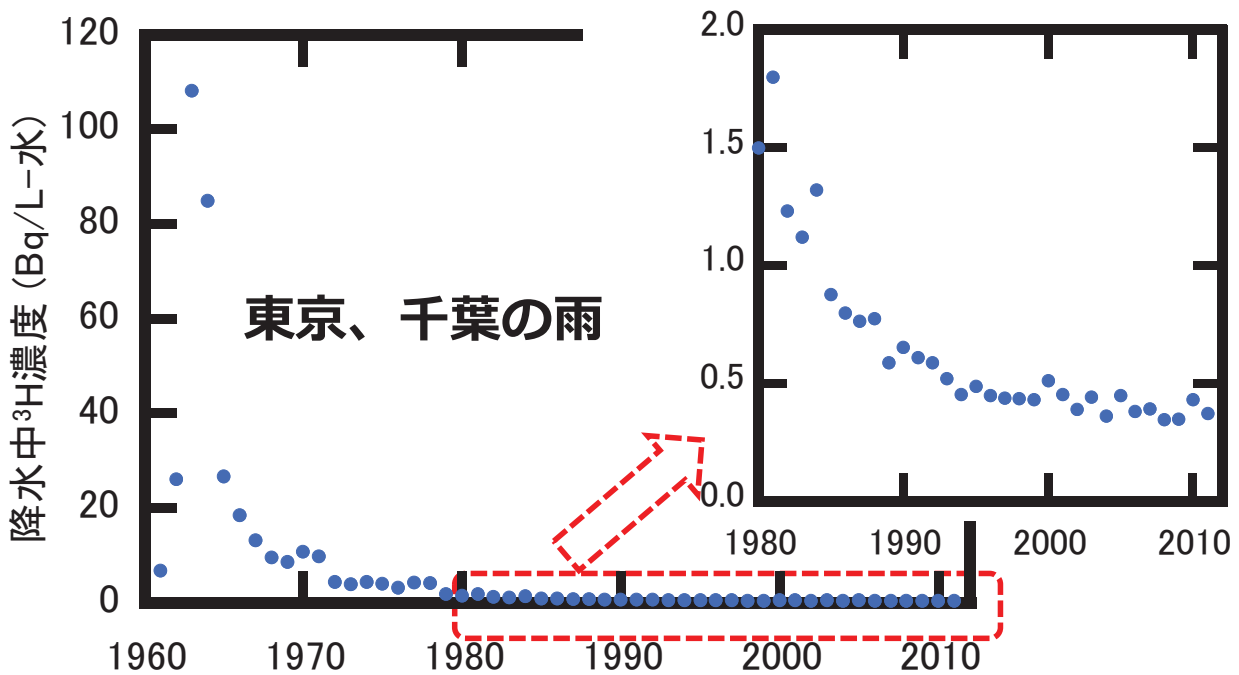
最初の核実験1945年

b. 原子炉(軍事および平和利用)

環境中のトリチウム



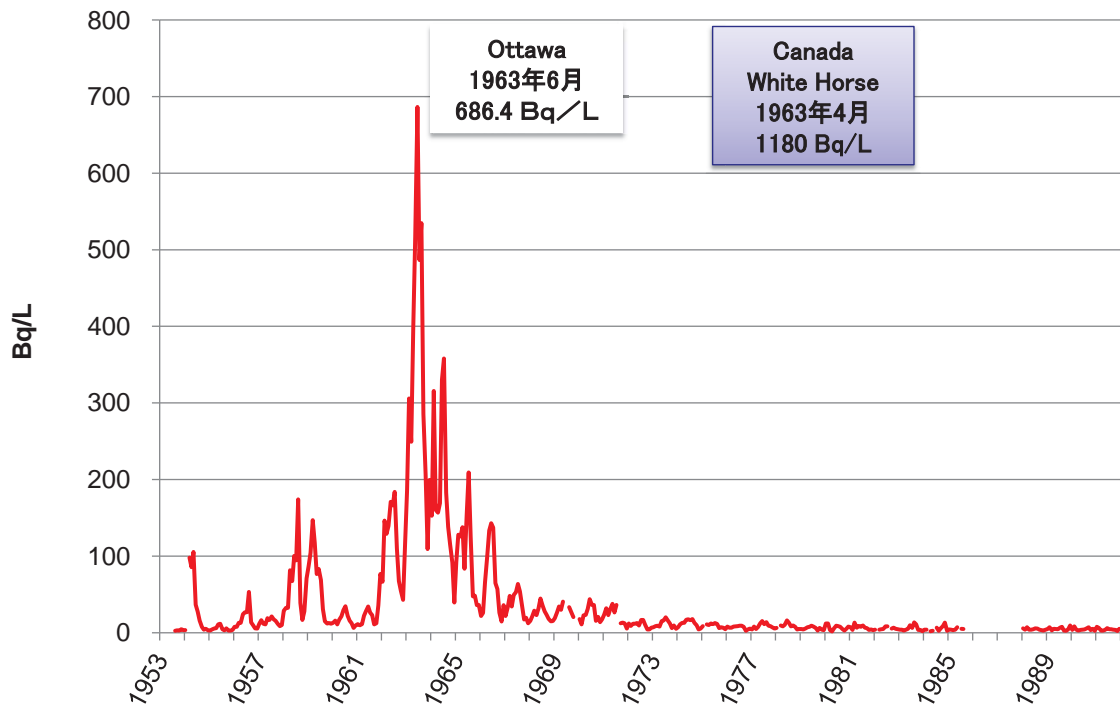
大気圏内核実験の影響 (日本の雨)



- 1963年には100 Bq/L を超えていた
- 最近の降水中トリチウム濃度は 1 Bq/L程度 (天然 T)

大気圏内核実験の影響(カナダの雨)

72 62800 OTTAWA, ONTARIO, CANADA



原子炉で生成するトリチウム

^3H 生成反応

- ・ 制御棒中ボロン (B) と中性子との反応



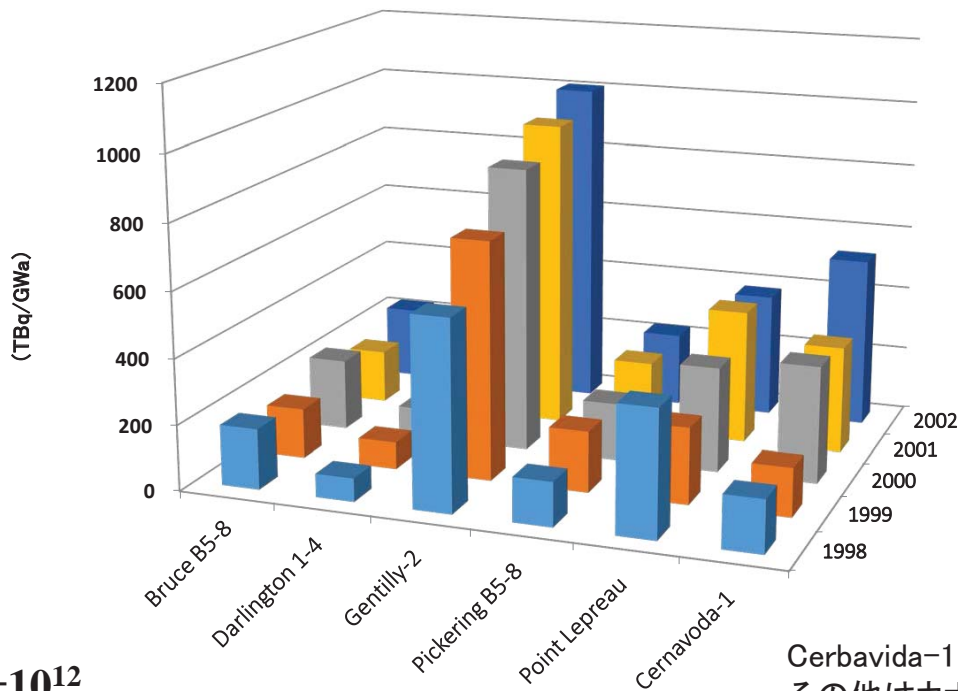
- ・ 重水素の中性子捕獲反応



- ・ ウランの三体核分裂



原子力発電所(CANDU炉)から環境へ放出されたトリチウム

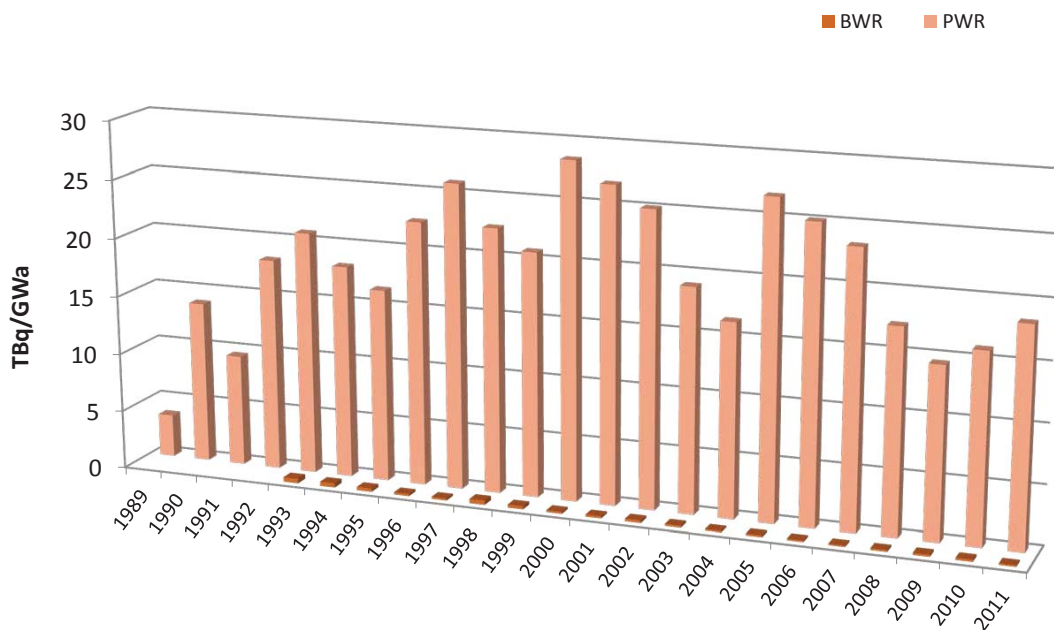


TBq=10¹²

Cerbavida-1はルーマニア
その他はカナダ

CANDU炉は重水炉のため重水素の中性子捕獲反応によるトリチウム生成が大きい。

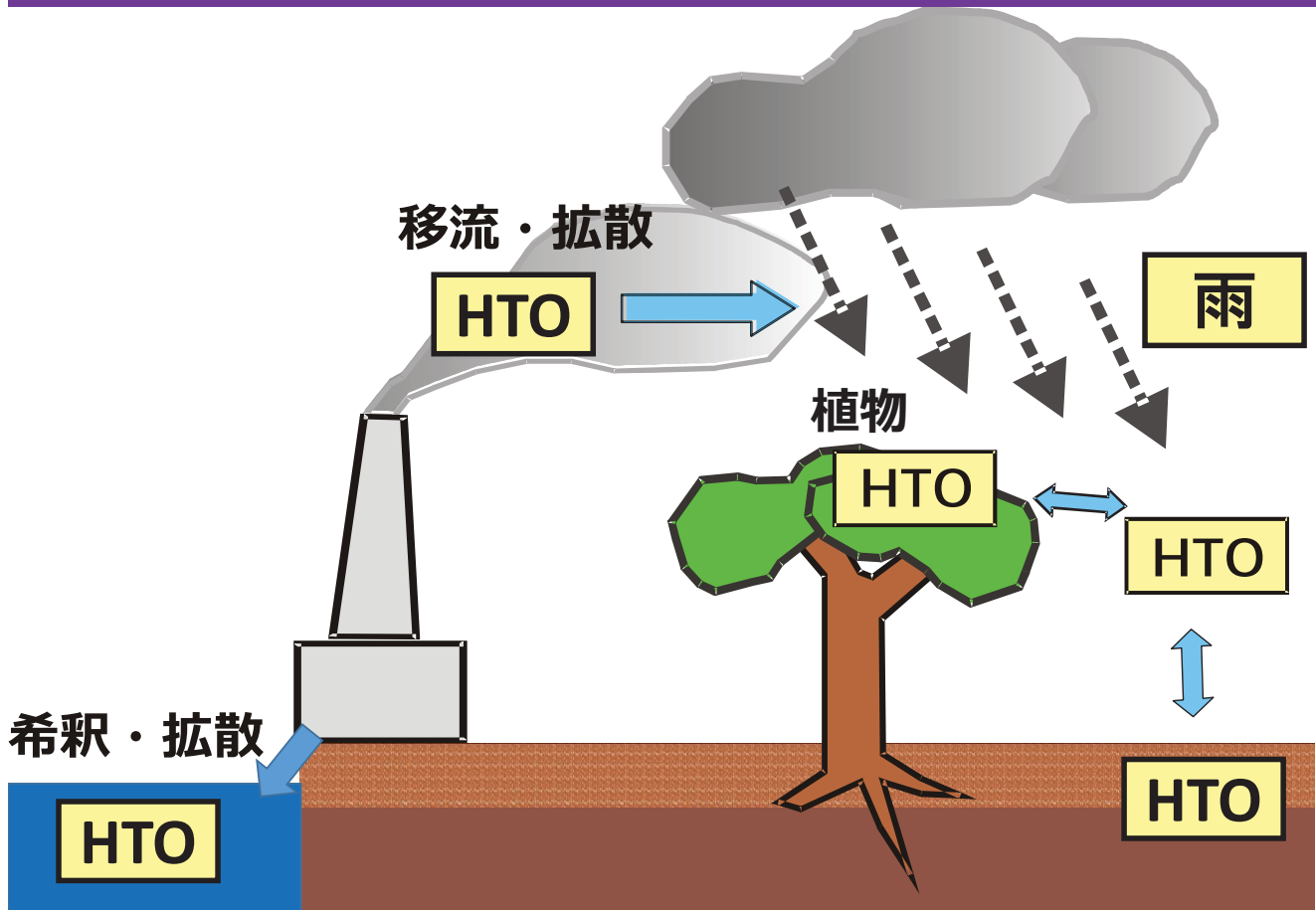
原子力発電所から環境へ放出されたトリチウム



TBq=10¹²

液体廃棄物 (TBq/Gwa) : BWR (浜岡) と PWR (泊)
PWRからの放出が多い。

環境中でのトリチウムの挙動

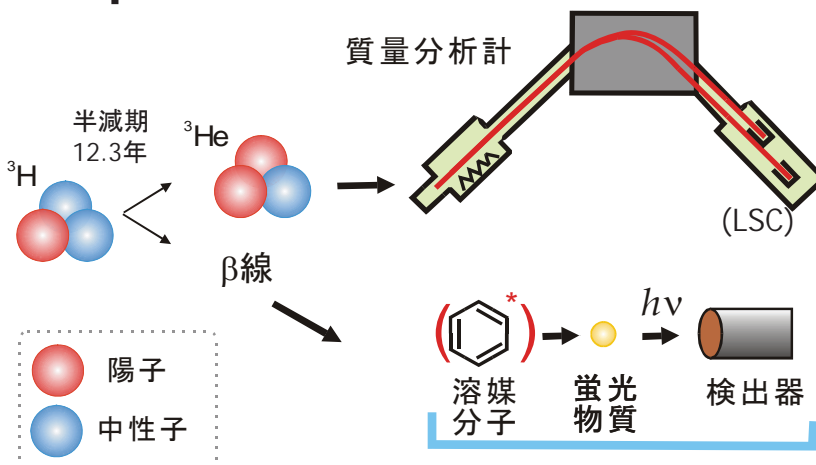


環境³Hの測定方法

1. 質量分析法
(³Heの数を計測)
2. 放射能計測法(一般的)
(β線の数を計測)



1. 質量分析装置
VG-5400 Micromass



液体シンチレーション計測法は水のトリチウム(HTO)を測定する

2. 液体シンチレーションカウンター
Hitachi-Aloka
LSC-LB7



環境試料の前処理(液体シンチレーション計測法)

**大気
試料**

大気水蒸気(HTO)
 水素 $\xrightarrow{\text{燃焼}}$ (HTO)
 メタン $\xrightarrow{\text{燃焼}}$ (HTO)

**水
試料**

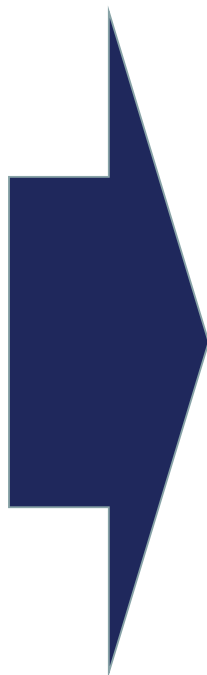
降水、水道水、
 河川水、海水

**植物
食品**

含有水(HTO)
 有機物 $\xrightarrow{\text{燃焼}}$ (HTO)

**土壌
試料**

土壌水(HTO)

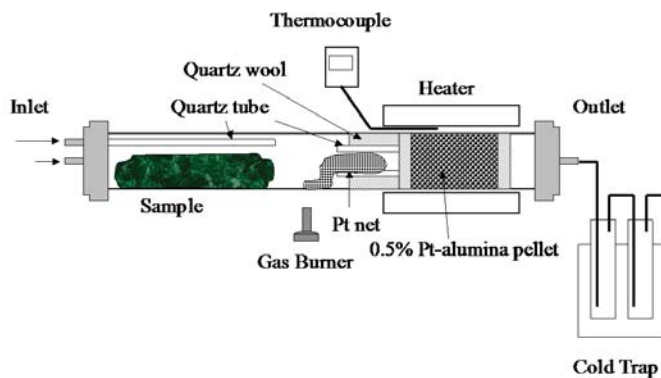


**放射能測定
 蒸留・精製**

環境試料の前処理(含有水回収・有機物燃焼・濃縮)



真空凍結乾燥による含有水回収



水の電気分解によるトリチウム濃縮



有機物燃焼による燃焼水の回収

Estimation of tritium released from core to stagnant water at FDNPP site



Table 9 Calculated core inventory on 3/11 (Bq)

Plant	1F1	1F2	1F3	Total
I131	1.4E+18	2.4E+18	2.4E+18	6.3E+18
Cs134	1.7E+17	2.7E+17	2.4E+17	6.8E+17
Cs136	4.5E+16	7.9E+16	7.5E+16	2.0E+17
Cs137	2.0E+17	2.6E+17	2.4E+17	7.0E+17
Ba140	2.5E+18	4.4E+18	4.3E+18	1.1E+19
La140	2.9E+18	5.0E+18	5.0E+18	1.3E+19
H3	9.4E+14	1.2E+15	1.2E+15	3.4E+15
Sr89	1.4E+18	2.2E+18	2.4E+18	6.0E+18
Sr90	1.5E+17	1.9E+17	1.8E+17	5.2E+17
Tc99m	2.4E+18	4.2E+18	4.2E+18	1.1E+19
Sb125	1.0E+16	1.6E+16	1.6E+16	4.2E+16

Table 10 Release ratio from core to stagnant water (tentative estimation)

	1F1	1F2	1F3	Total	TMI-2 ¹⁴⁾	TMI-2 ¹⁵⁾
I131	6.9%	52%	27%	32%	14% ^{a)}	55% ^{a)}
Cs134	6.8%	33%	17%	21%		
Cs136	7.0%	27%	14%	18%		
Cs137	6.2%	34%	17%	20%	41%	55%
Ba140		1.0%	0.7%	0.7%		
La140	1.5E-5	0.5%	0.10%	0.22%		
H3	5.9%	57%	67%	46%	57%	
Sr89	5.1E-6	1.6%	1.5%	1.2%		
Sr90	1.0E-6	0.5%	0.5%	0.5%		

1.5x10¹⁵Bq tritium would be released to stagnant water

Nishihara et al.,
Transactions of the Atomic Energy Society of Japan, Vol. 11,
No. 1, p. 13-19 (2012), doi:10.3327/taesj.J11.040

^{a)} Release of iodine was quantified by measuring ¹²⁹I for the TMI-2 case.

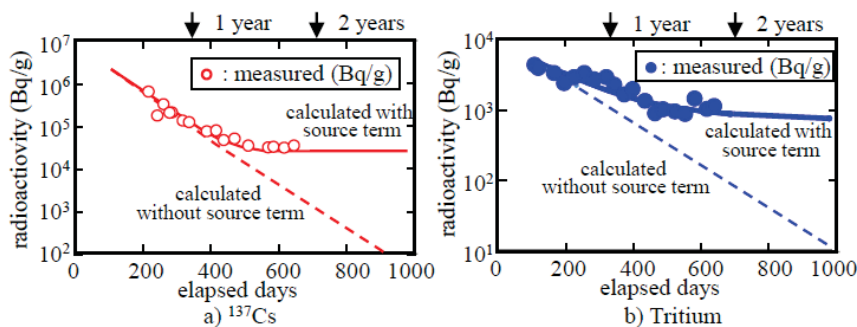
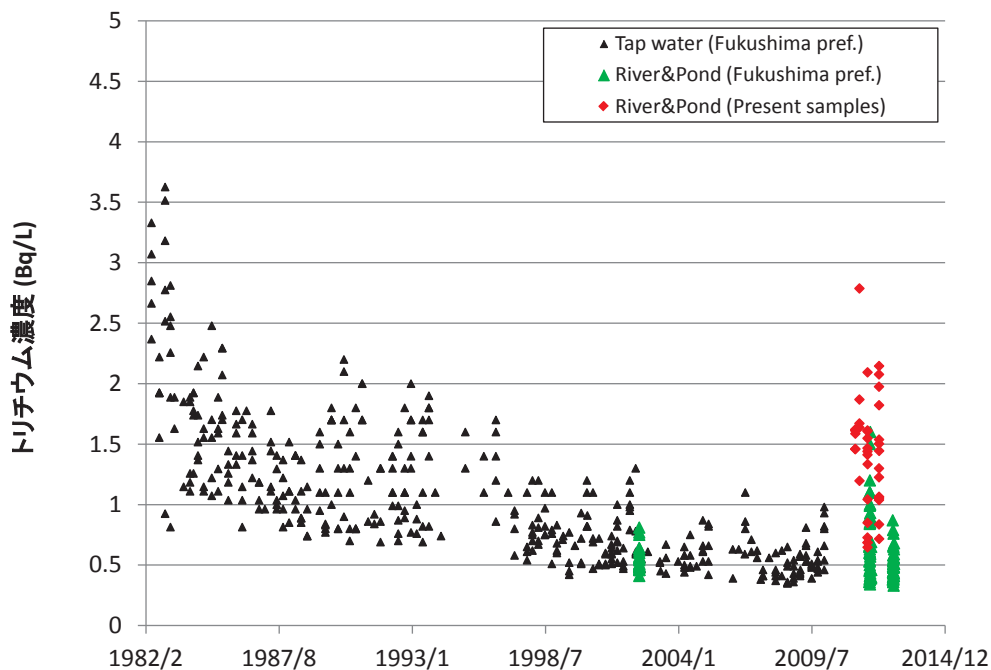


Figure 2 Cs ion and radioactivity in the storage water

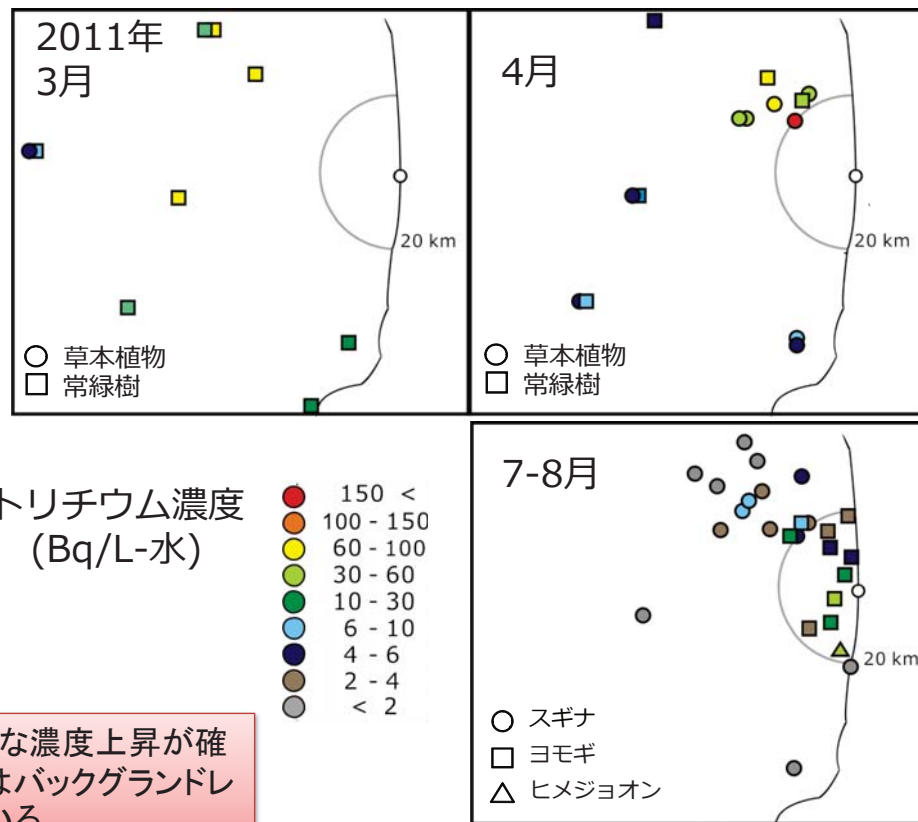
Atomic Energy Society of Japan 2013

福島県内の環境水中のトリチウム濃度変化



事故後の環境水中のトリチウム濃度は1980年代より小さい

福島県内の植物含有水中のトリチウム濃度

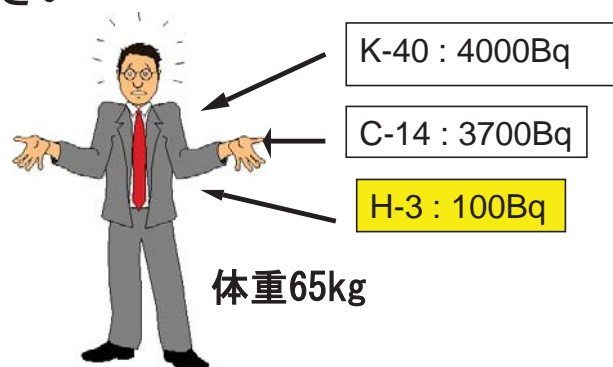


事故直後に一時的な濃度上昇が確認されたが、現在はバックグラウンドレベルまで下がっている。

Kakiuchi, H. et al., Sci. Rep. 2, 947 (2012).

まとめ

1. 大昔から環境中に存在していた
2. 核実験により大量のトリチウムが環境へ放出された。1963年の雨にピークを観測したが、現在は天然レベルに戻っている
3. 原子力利用による放出がある。原子炉のタイプで放出量は異なる
4. 福島原子力発電所事故で環境放出されたトリチウムによる環境影響は小さい



「環境生態系のトリチウム影響」

宮本 霧子
(公財) 海洋生物環境研究所 研究参与

1. 環境生態系とは

気圏・水圏・植物圏・動物圏・土壌圏・微生物圏、 無機物・有機物、 金属・非金属、
天然物・人工物、 気体・液体・固体

→ 人が利用可能な農・林・畜・水産の食品群

- ・「環境放射線モニタリング指針」に基づき原子力施設周辺住民の健康・安全を確保。
- ・食品安全関連の法体系に基づき国民の健康・安全を確保。

2. トリチウムによる放射線被ばく

最高 18keV の純 β 線を放出、半減期 12.3 年、内部被ばく影響のみ
吸入被ばく (皮膚・肺)、経口被ばく (水・食物)

3. トリチウムの線量係数

トリチウムの線量係数は小さく、Cs-137 等の 1000 分の 1。

線量係数：放射線を利用するにあたって、人体を防護するために必要な数値等（管理のための目安）を設定するため、ICRP が国際的な科学的知見を整理・評価して、放射性核種別に勧告した数値。作業員、または公衆（年齢別）が、1 Bq の放射性核種を摂取した時の実効線量 (Sv) に相当する。

ICRP (国際放射線防護委員会)：放射線科学の専門家の立場から放射線防護に関する勧告を行う国際的な学術組織。X 線の利用が盛んになる 1928 年にその母体が英国に成立。放射線防護方策の基礎となる基本原則を検討し、順次出版物によって勧告を行っている。新しい知見が得られればパラメータを改訂して勧告し直す。出版物引用を ICRP+ナンバーで表す (ICRP23 等)。

4. TFWT (組織自由水トリチウム) と OBT (有機結合型トリチウム)

- ・平衡状態の環境生態系では、
TFWT 濃度は環境中 HTO 濃度と等しい平衡状態になる。
OBT 濃度は環境中 HTO 濃度と等しいか、それ以下の分別平衡状態になる。
→ 濃縮はしない。
- ・非平衡状態の環境生態系では、取り込みと排出の動的モデルに従い、平衡状態を目指して濃度変化する。

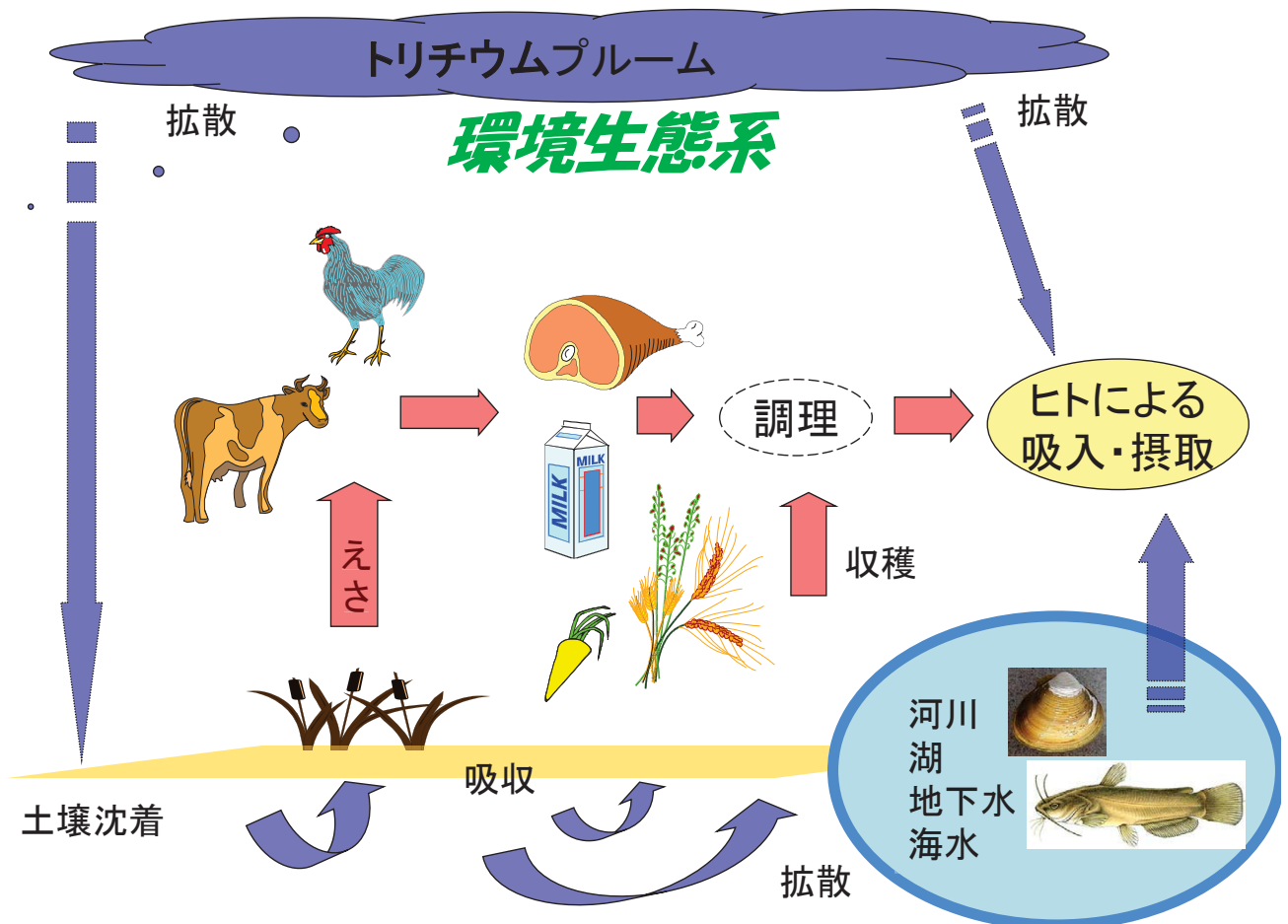
以上

環境生態系のトリチウム影響

宮本 霧子
海洋生物環境研究所



トリチウム研究会
～トリチウムとその取り扱いを知るために～
2014年3月4日
イイノホール&カンファレンスセンター

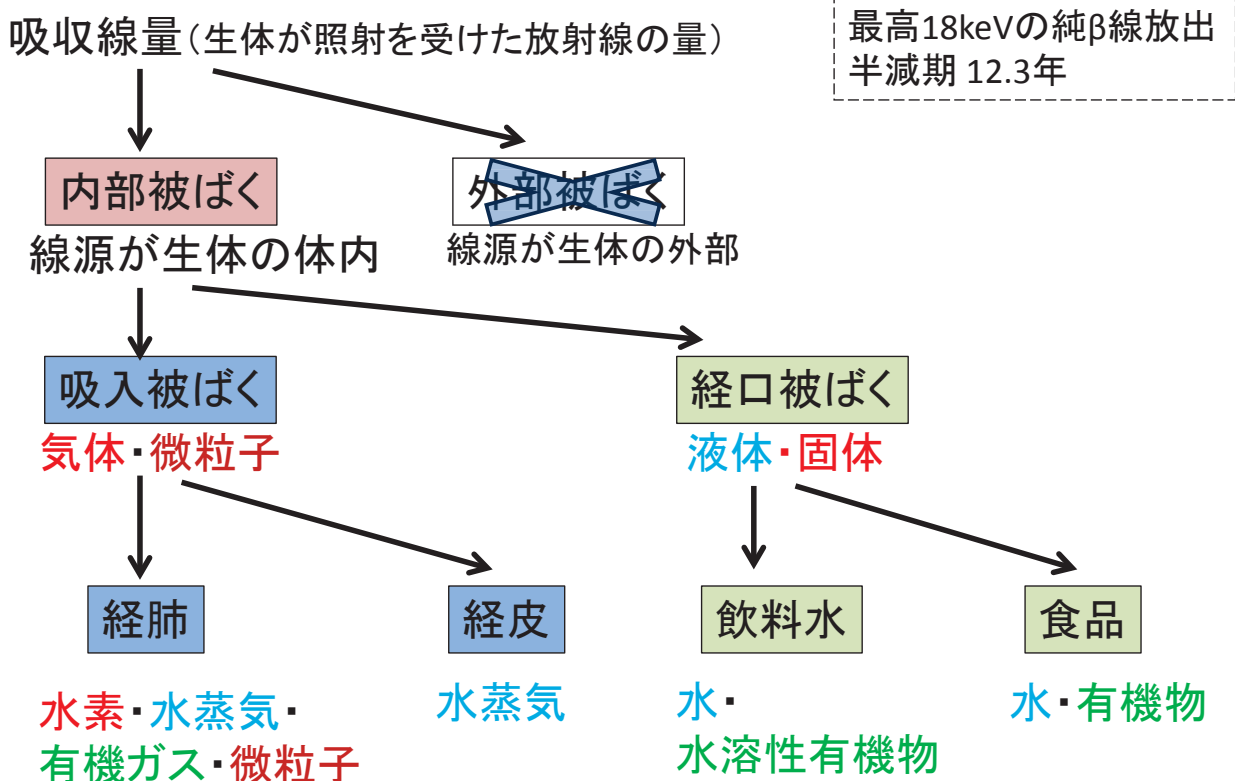


環境放射線モニタリング指針(原子力規制委員会)

原子力施設の周辺で実施される環境放射線モニタリングの技術の水準を向上させ、及び**斉一化**させるため、環境放射線モニタリングの計画、測定、結果の評価等を行うにあたっての基本的考え方を取りまとめたもの。

原子力施設の周辺住民等の健康と安全を守るため、環境における原子力施設に起因する放射性物質又は放射線による周辺住民等の線量を推定し、1年間の線量限度を十分に下回っていることを確認する。周辺住民等の健康・安全を確保することの担保としては、指針に示されている空間放射線及び環境試料中の放射能の測定法により、周辺監視区域外における**線量限度(実効線量について1mSv/年)**を十分に下回っていることが確認できればよいと考えられる。

トリチウムによる放射線被ばく



ICRP(国際放射線防護委員会)

International Committee for Radiation Protection

放射線科学の**専門家**の立場から放射線防護に関する**勧告**を行う国際的な学術組織で、X線の利用が盛んになる**1928年**にその母体が**英国**に成立した。放射線防護方策の基礎となる基本原則を検討し、順次、**出版物**によって、**勧告**を行っている。**新しい知見**が得られればパラメータを改訂して勧告し直す。出版物引用を ICRP+ナンバーで表す(ICRP23等)。

作業人と一般公衆に関する**内部・外部被ばく**による人体の吸収線量を評価するための計算式とパラメータを提供する。

日本では、放射線審議会(原子力規制委員会)がICRP勧告の取り入れについて審議決定し、それに基づき、放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律、労働安全法電離放射線障害防止規則等々が作られている。

吸入被ばく

内部被ばくした成人が被ばく後50年間、影響を受けるとみなして(預託)、算定した実効線量

預託実効線量 (Sv)

実効線量=防護目的で算定する全身の線量

= 線量係数 (Sv/Bq)

× **大気中濃度** (Bq/cm³)

× **呼吸率**(cm³/日)

× トリチウム水蒸気は
皮膚から1/3
肺から2/3

経口被ばく

食品摂取モデル (原子力規制委員会)
葉菜100g、牛乳200ml、魚200g、無脊椎動物20g、海藻40g
水分2.65リットル (ICRP23)

預託実効線量 (Sv)

= 線量係数 (Sv/Bq)

× Σ (環境試料中の年間平均核種濃度 (Bq/kg)
× 飲食物の毎日の摂取量 (kg))

× 市場希釈補正

地域住民が「モニタリング対象の
地域環境」以外の産地から
入荷したものを購入・消費する

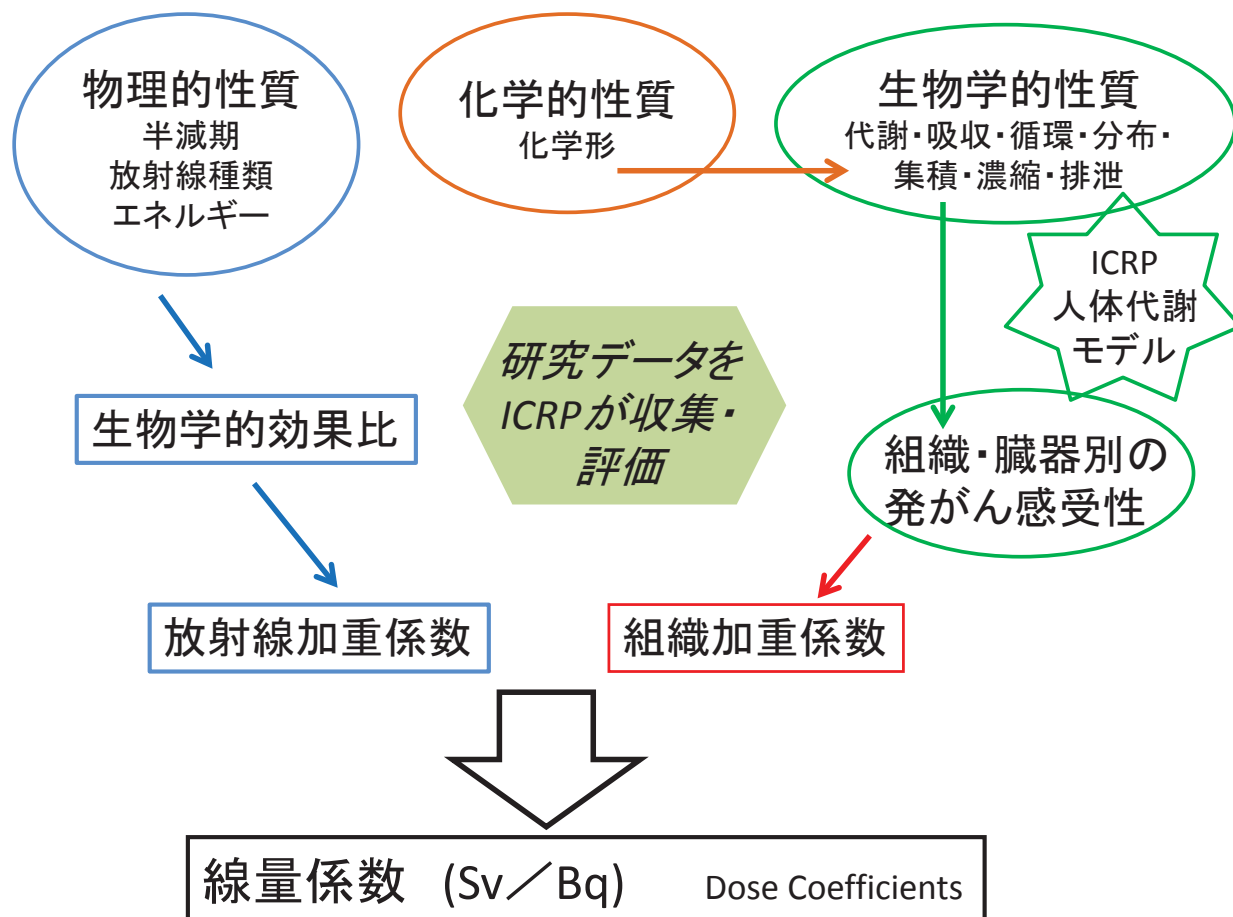
× 調理等による減少補正

洗浄・部分廃棄・加熱などの
調理によって減少する

線量係数 (Sv/Bq) Dose Coefficients

人類が放射線を利用するにあたって、
人体を防護するために必要な数値等(管理のための目安)を
設定するため、ICRPが国際的な科学的知見を整理・評価して、
放射性核種別に勧告した。

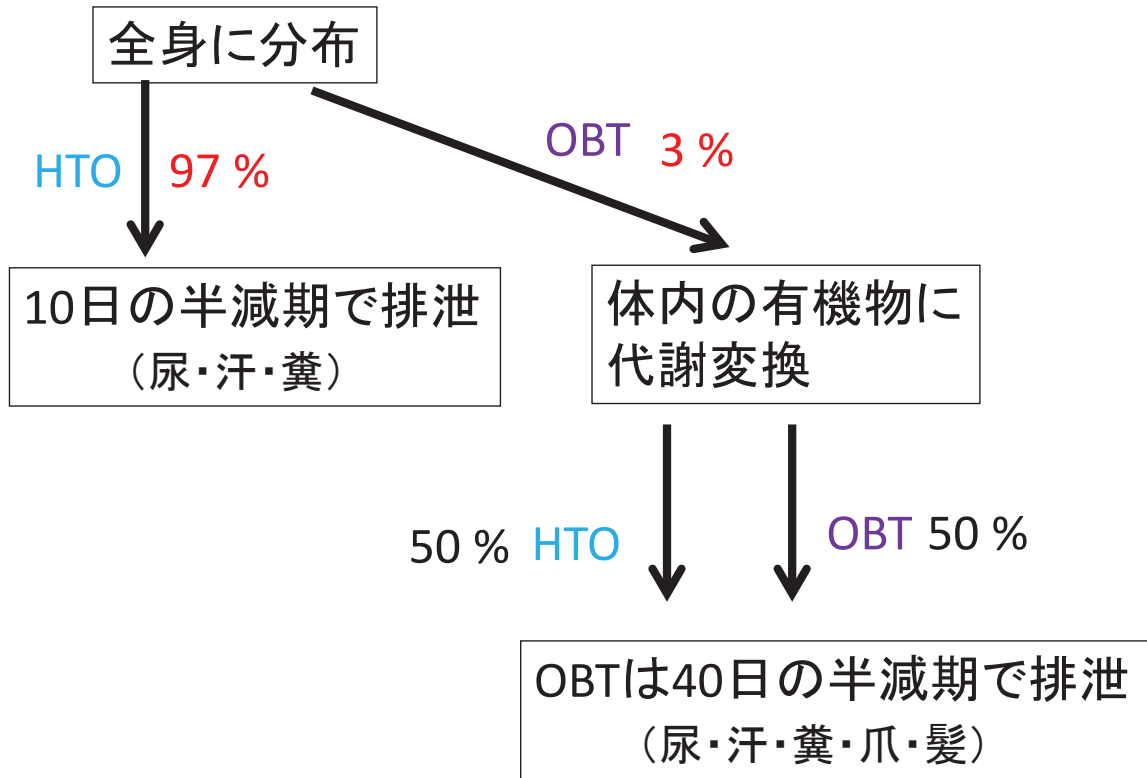
作業員、または公衆(年齢別)が、1 Bq の放射性核種を摂取した
時の実効線量 (Sv) に相当する数値。



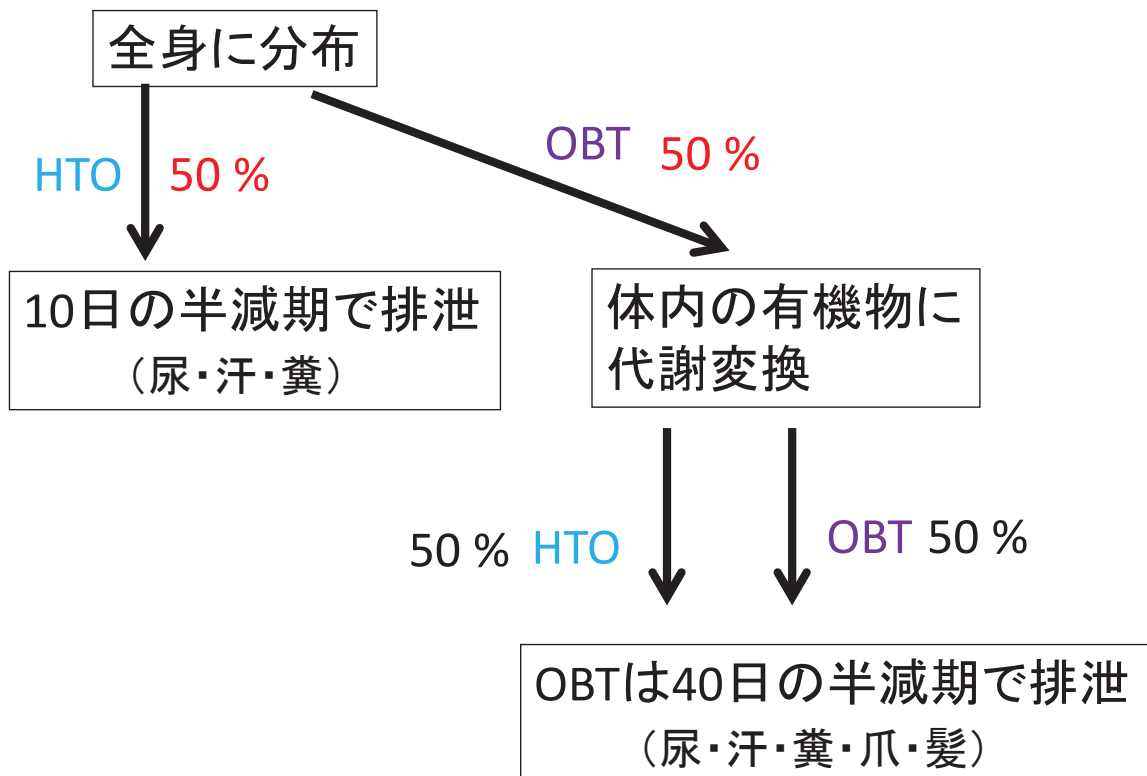
トリチウムのICRP人体代謝モデル

		吸入摂取	経口摂取
HT	水素ガス	0.01%がHTOになり 肺から血液に移行	—
CH ₃ T	メタン	1%がHTOになり 肺から血液に移行	—
微粒子 エアロゾル		数%がHTOになり 肺から血液に移行	—
HTO	水	肺から血液へ移行	消化管から血液へ 移行
Tritiated Organics 有機化合物		肺から血液へ移行	消化管から血液へ 移行
OBT	有機結合型	肺から血液へ移行	消化管から血液へ 移行

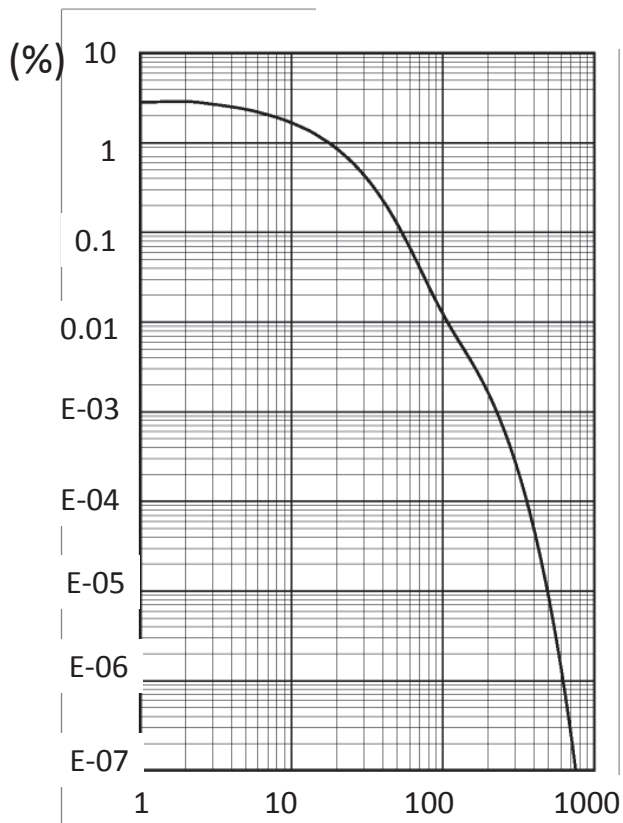
HTO 摂取



OBT 摂取



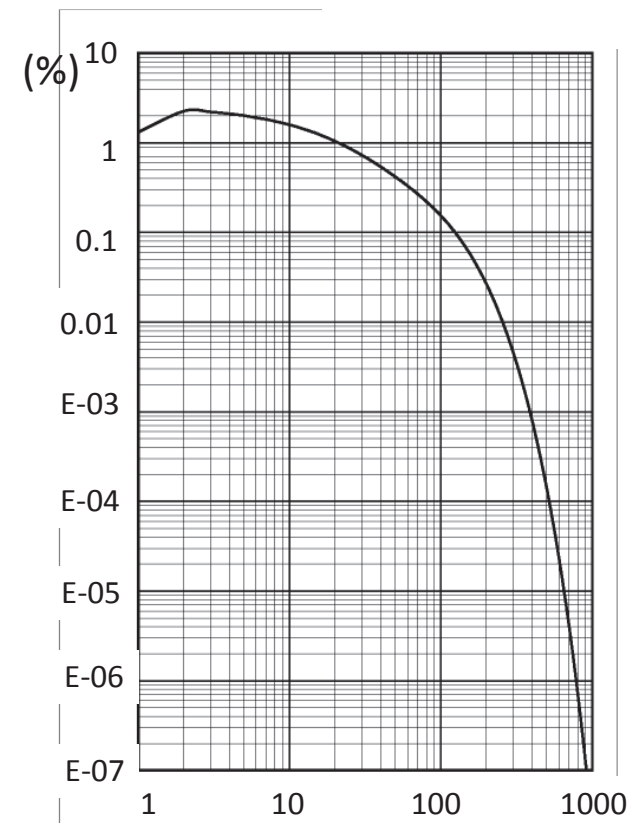
HTO 経口摂取後 1日あたり尿排泄%



摂取後日数(日)

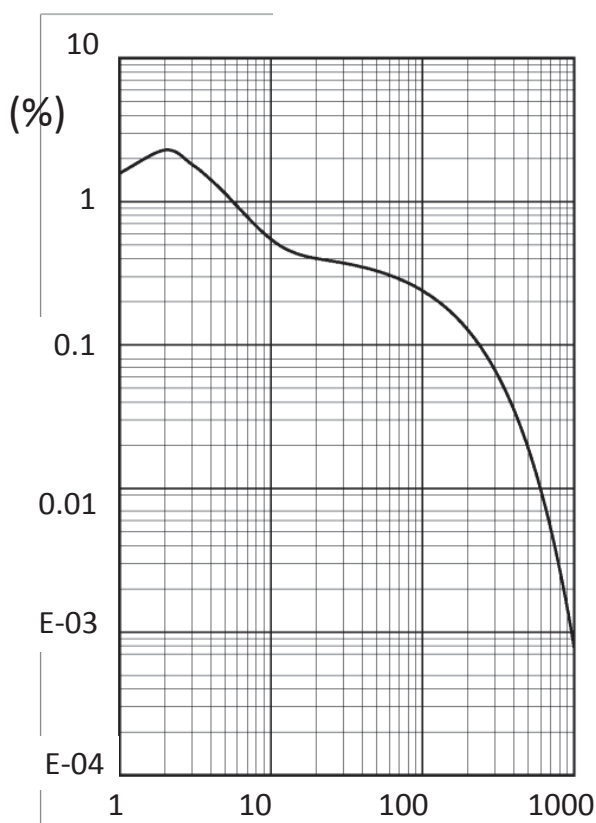
放医研内部被ばく線量算定
支援グラフデータベース

OBT 経口摂取後 1日あたり尿排泄%



摂取後日数(日)

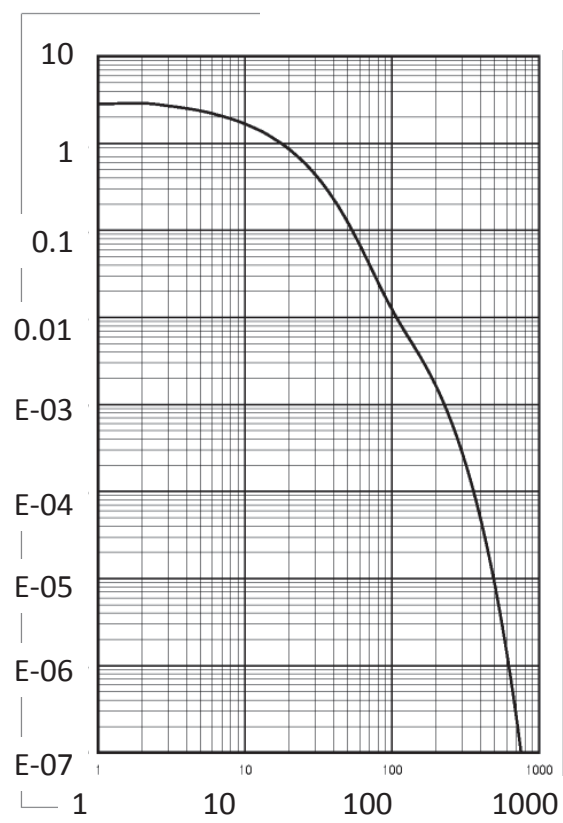
Cs 経口摂取後 1日あたり尿排泄%



摂取後日数(日)

放医研内部被ばく線量算定
支援グラフデータベース

HTO 経口摂取後 1日あたり尿排泄%



摂取後日数(日)

トリチウム核種の線量係数 (Sv/Bq) 成人の場合

		吸入摂取	経口摂取
HT	水素ガス	1.8×10^{-15}	—
CH ₃ T	メタン	1.8×10^{-13}	—
微粒子エアロゾル	Fast	6.1×10^{-12}	—
	Moderate	2.1×10^{-12}	
	Slow	2.3×10^{-13}	
HTO	水	1.8×10^{-11}	1.8×10^{-11}
Tritiated Organics 有機化合物	Fast	6.2×10^{-12}	4.2×10^{-11}
	Moderate	4.5×10^{-11}	
	Slow	2.6×10^{-10}	
OBT	有機結合型	4.1×10^{-11}	4.2×10^{-11}

作業者は ICRP68(1994)

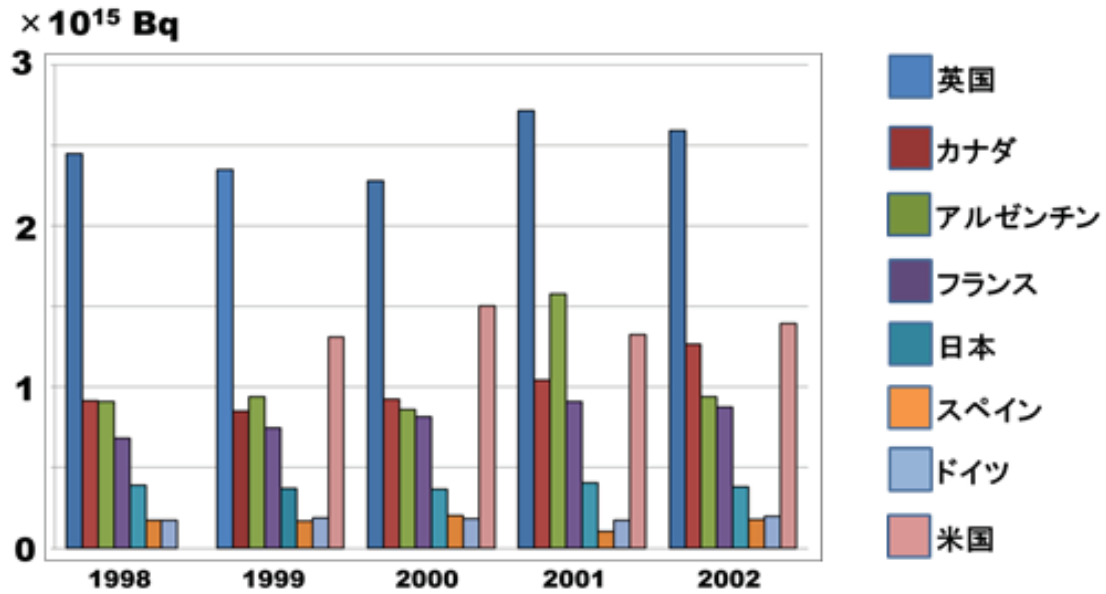
公衆は ICRP71(1995) と ICRP72(1996)

線量係数 (Sv/Bq) の比較 成人の場合

	半減期	吸入摂取	経口摂取
H-3 HTO TFWT	12.3年	1.8×10^{-11}	1.8×10^{-11}
H-3 OBT	12.3年	4.1×10^{-11}	4.2×10^{-11}
C-14	5730年	CO ₂ 6.2×10^{-12}	5.8×10^{-10}
K-40	1.28E+09年	2.1×10^{-9}	6.2×10^{-9}
Sr-90	29.1年	F 2.4×10^{-8}	2.8×10^{-8}
		M 3.6×10^{-8}	
		S 1.6×10^{-7}	
I-131	8.04日	F 7.4×10^{-9}	2.2×10^{-8}
		M 2.4×10^{-9}	
		S 1.6×10^{-9}	
Cs-137	30.0年	F 4.6×10^{-9}	1.3×10^{-8}
		M 9.7×10^{-9}	
		S 3.9×10^{-8}	
Pu-239	2.41E+04年	F 1.2×10^{-4}	2.5×10^{-7}
		M 5.0×10^{-5}	
		S 1.6×10^{-5}	

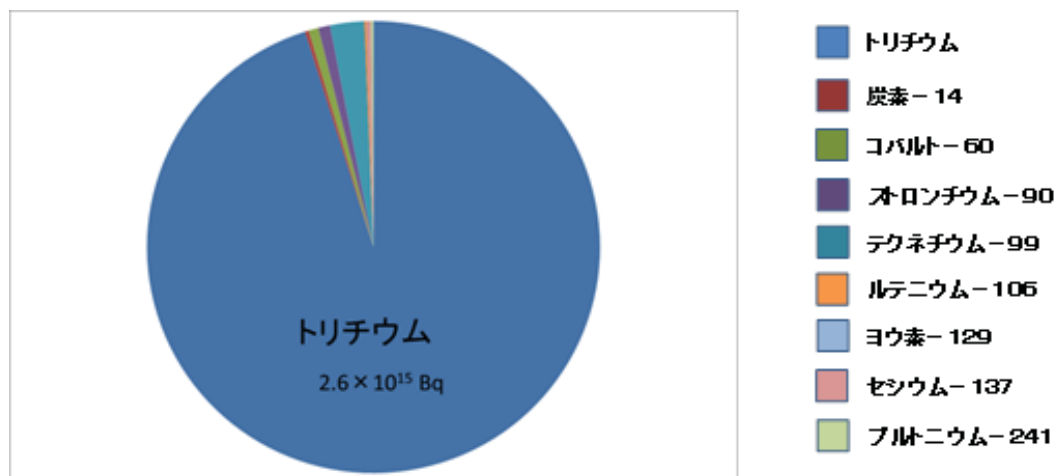
ICRP72より

世界の原子力発電所で液体廃棄物として 主に海域に放出されたトリチウム量



国連科学委員会(UNSCEAR) 2008年報告書

英国セラフィールドの核燃料サイクル施設から放出された 放射性核種の割合、5年間(1998~2002)の平均値



国連科学委員会(UNSCEAR) 2008年報告書

Tritiated Organics 有機化合物中のトリチウム

その1

- ・ CH₃T、C₂H₅Tなど自然界の有機形トリチウム (~20mBq/m³air)
- ・ 多種類の人工有機化合物中のトリチウム

標識用 (年間50万MBqをバイオ事業で国内利用)

-
-
-
- [3H]Acetic acid
- [3H]Acetic anhydride
- [3H]Acetyl-coenzyme
- [2-3H]Adenine
- [8-3H]Adenine
- [2-3H]Adenosine
- [2,8-3H]Adenosine 3', 5'-cyclic phosphate
- [5',8-3H]Adenosine 3', 5'-cyclic phosphate
- [8-3H]Adenosine 3', 5'-cyclic phosphate
- [2-3H]Adenosine 5'-monophosphate
- [2,5',8-3H]Adenosine 5'-triphosphate
- [2,8-3H]Adenosine 5'-triphosphate
- S-Adenosyl-L-[methyl-3H]methionine
- L-[2,3-3H]Alanine
- [1,2-3H]Aldosterone
- 4-Amino-n-[2,3-3H]butyric acid
- [1,2,6,7-3H]Androst-4-ene-3,17-dione
- [5,6,8,9,11,12,14,15-3H]Arachidonic acid
- L-[2,3,4,5-3H]Arginine monohydrochloride
- L-[U-14C]Arginine monohydrochloride
- L-[carboxyl-14C]Ascorbic acid
- D-[2,3-3H]Aspartic acid
- L-[2,3-3H]Aspartic acid
- [5-3H]Thymidine
- [methyl, 1',2'-3H]Thymidine
- [methyl-3H]Thymidine
- [methyl,1',2'-3H]Thymidine 5'-triphosphate
- [methyl,1',2'-3H]Thymidine 5'-triphosphate
- [methyl-3H]Thymidine 5'-triphosphate
- [methyl-3H]Thymidine 5'-triphosphate
- L-[5-3H]Tryptophan
- L-[2,3,5,6-3H]Tyrosine
- L-[3,5-3H]Tyrosine
- [3H]U-69593
- [5,6-3H]Uracil
- [5,6-3H]Uridine
- [5-3H]Uridine
- [5,6-3H]Uridine 5'-triphosphate
- [5-3H]Uridine 5'-triphosphate
- Uridine diphospho-D-[6-3H]galactose
- Uridine diphospho-D-[6-3H]glucose
- L-[3,4(n)-3H]Valine
- [G-3H]Vinblastine sulfate
- [G-3H]Vincristine sulfate
- [methoxy-3H]WAY
-
-

生物の有機物に選択的に取り込まれる

作業現場の防護管理のために、
線量係数に従い

- ↓ 摂取を制限する。
 - ↓ 計量基準を守る。
 - ↓ 管理排出基準を守る。
- (20Bq/cm³液)

~~Tritiated Organics~~ 有機化合物中のトリチウム その2



生物がHTOから合成、代謝・呼吸・異化・分解する
生態系を循環する

OBT 有機結合型トリチウム

Organically Bound Tritium



タンパク質
脂質
炭水化物
ビタミン
脂肪酸
コレステロール
食物繊維

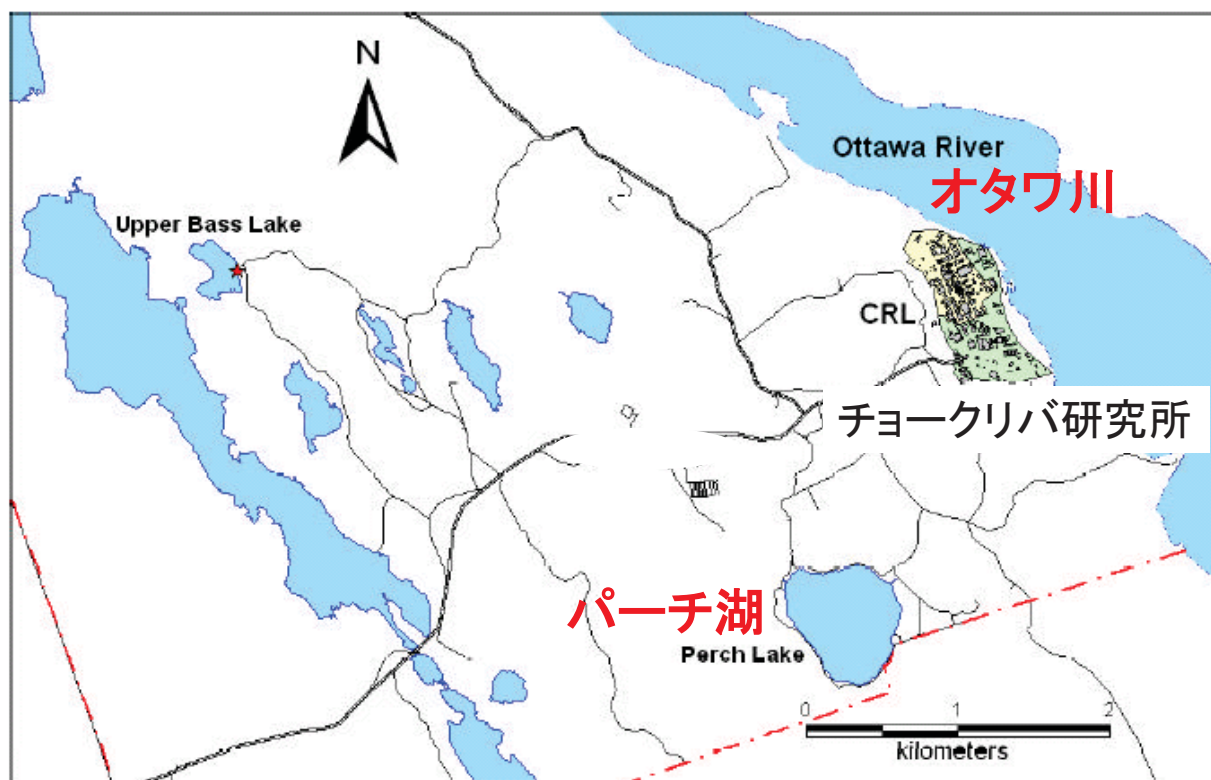
生態系で勝手に合成、循環するので、

↓ 公衆が食物として経口摂取するとき
の線量係数として利用。

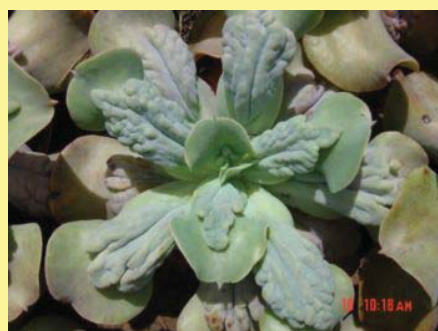
↓ 食物摂取を管理制限するために

OBTを分析する。 **モニタリング**
OBT動態を予測する。 **動態モデル**

カナダ オンタリオ州 チョークリバ研究所の研究例



淡水生の水草



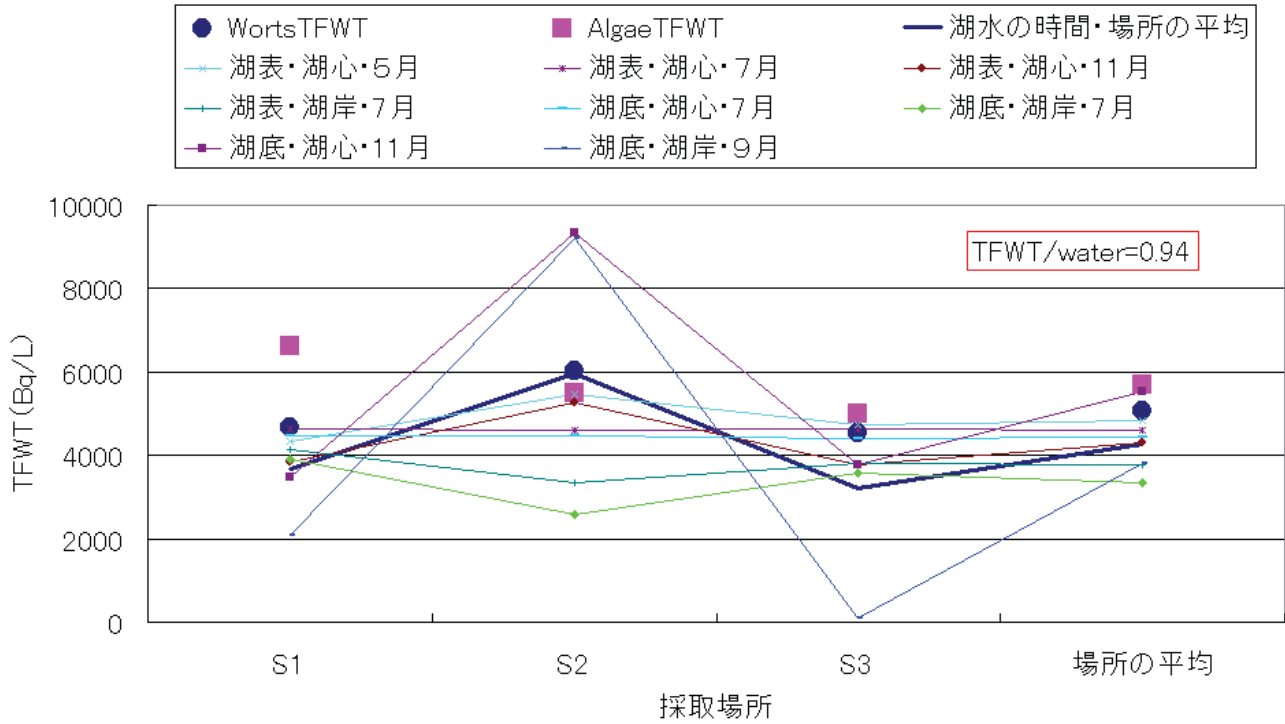
カナダ パーチ湖 実測値

水草

TFWT濃度は、湖水HTO濃度の平衡値に等しい。

TFWT (Worts & Algae)

パーチ湖シナリオ



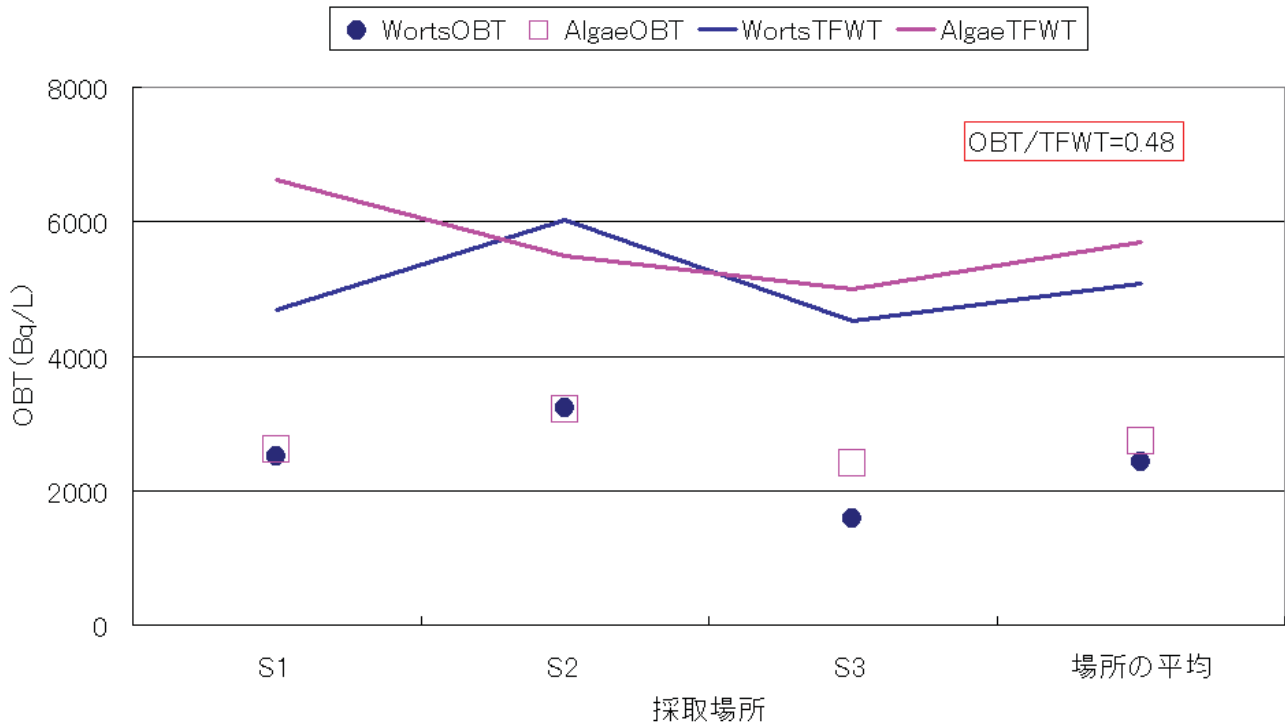
カナダ パーチ湖 実測値

水草

OBTは湖水HTO濃度の平衡値の2分の1に等しい。《分別》

OBT (Worts & Algae)

パーチ湖シナリオ



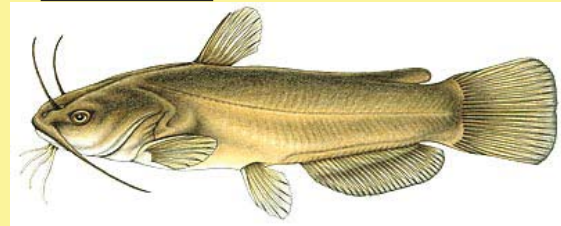
魚

無脊椎動物・二枚貝

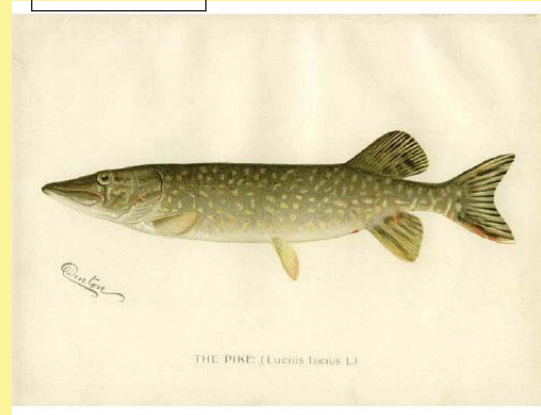
淡水アサリ



カワカジカ



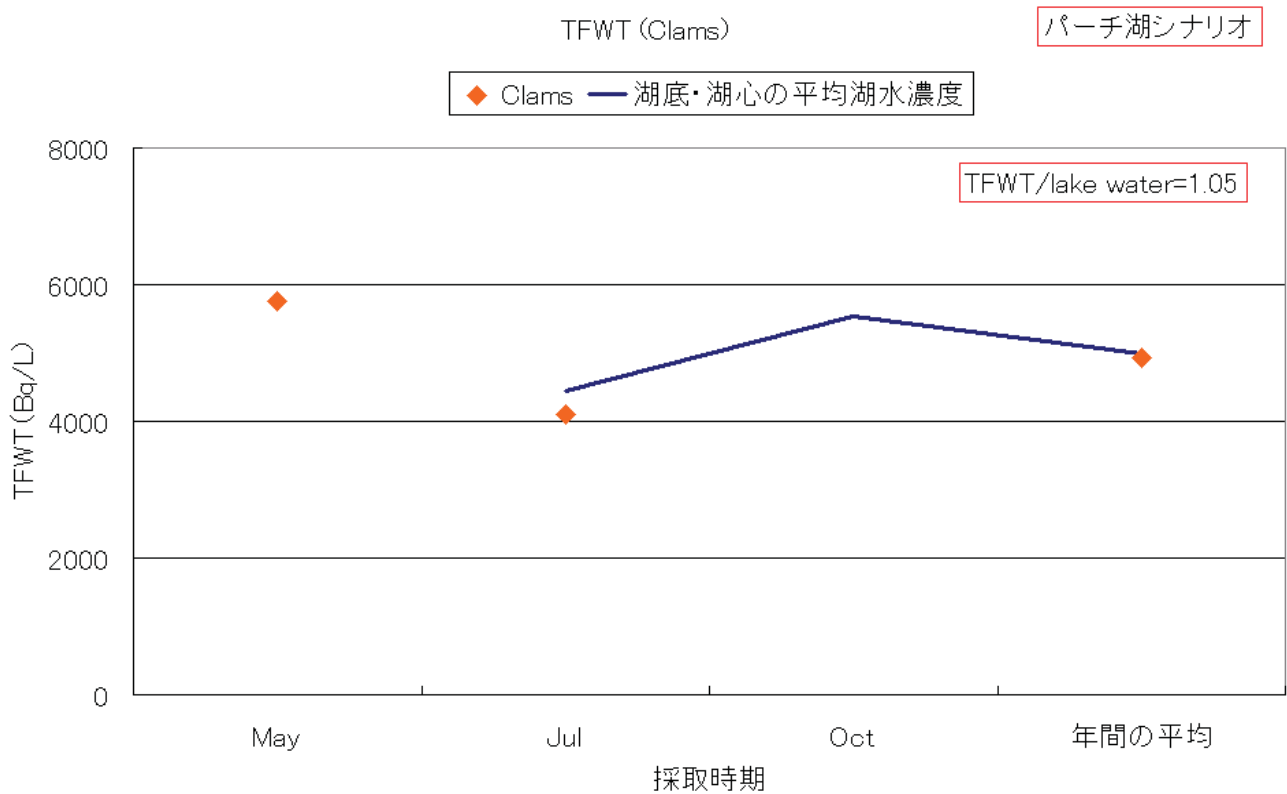
カワカマス



カナダ パーチ湖 実測値

無脊椎動物・二枚貝

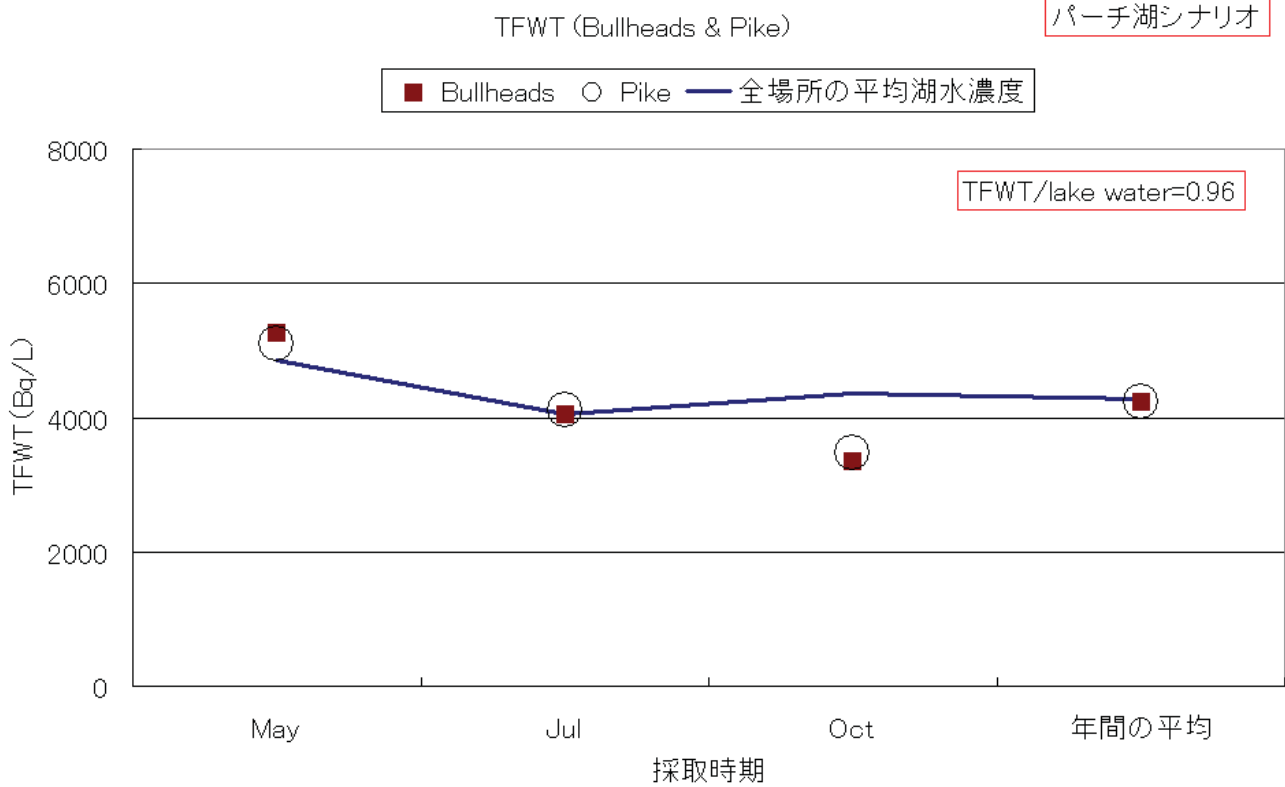
TFWTは湖水HTO濃度の平衡値に等しい。



カナダ パーチ湖 実測値

魚

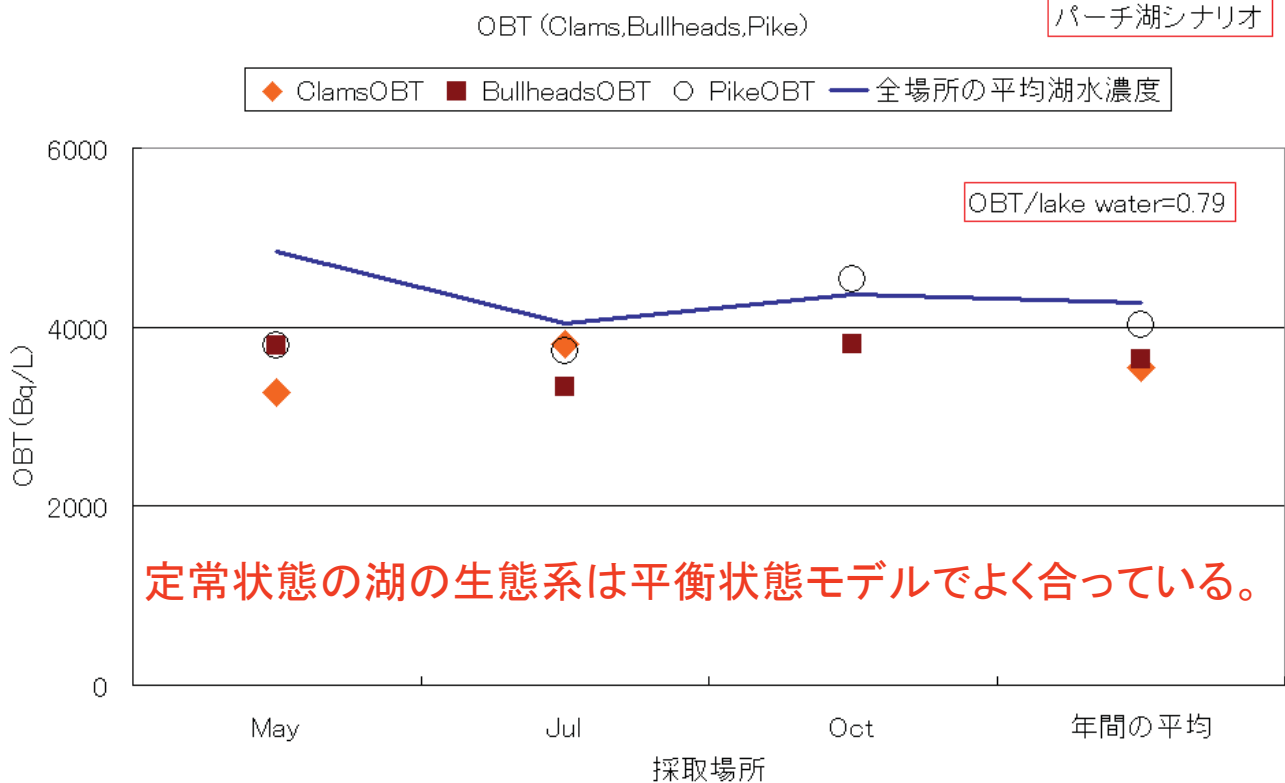
TFWTは湖水HTO濃度の平衡値に等しい。



カナダ パーチ湖 実測値

二枚貝・魚

OBTは湖水HTO濃度平衡値の0.8に等しい。《分別》



水域生態系のトリチウム汚染研究例

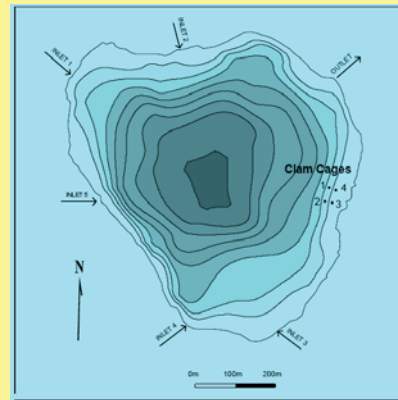
汚染していないカラスガイを移動して、TFWTとOBTが増加



汚染していないオタワ川



定常的に汚染したパーチ湖



水生植物、二枚貝、魚
TFWTとOBTが平衡濃度

Mussel Scenario

カラスガイシナリオ

生物が平衡状態になるまでの取り込みモデルの検証実験

シナリオの内容

トリチウム汚染した湖水のHTO、sediment のHTO、OBTデータ

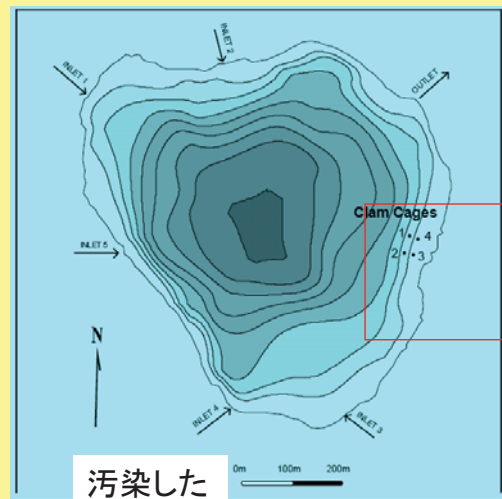
Endpointの内容

汚染していない川から移動し、生育させたMussel のTFWT、OBTの時間変化

Barnes Mussel (*Elliptio complanata*)



10 × 12cm



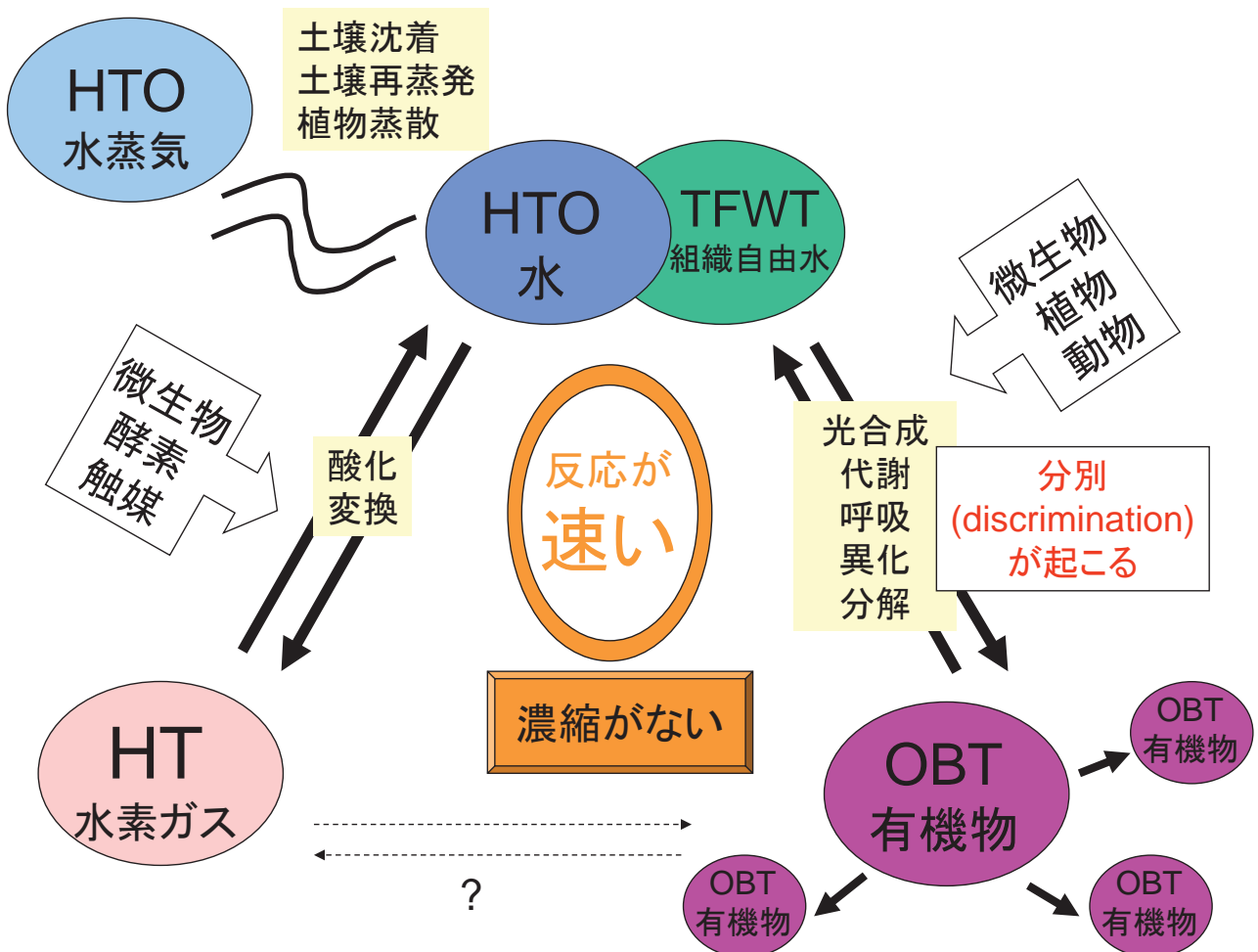
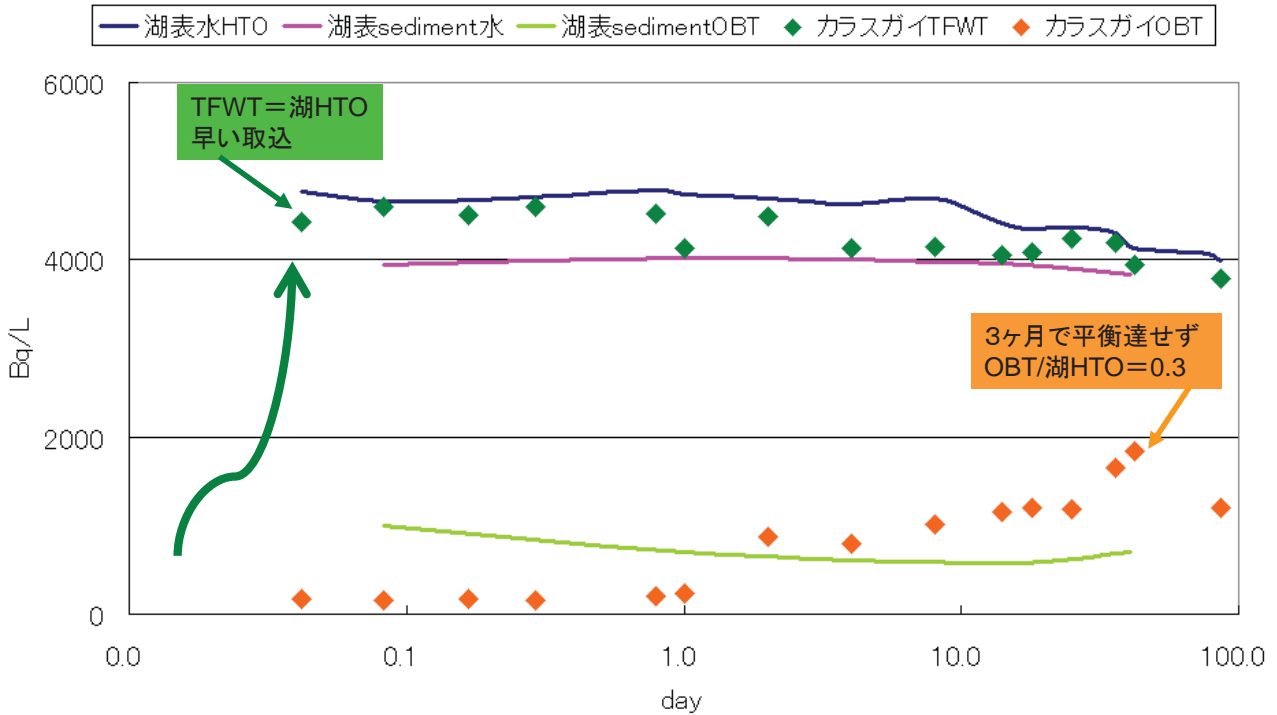
汚染した
パーチ湖

Mussel scenario

TFWTの取り込み早い。OBTは遅い。

カラスガイの取込(湖中吊り下げ)

カラスガイシナリオ



「トリチウムの分離」

小西 哲之
京都大学 教授

トリチウムは水素の同位体として、水素と概ね同じ化学的性質を示す。地球上の水素はそのほぼすべてが酸素と結合して水の状態にあり、トリチウムも容易に水の中に入る。水素の同位体はほかに重水素があり、これも水の中に存在する。これらはすべて天然に存在していて、地球上の水はふつう重水素とトリチウムを含み、重水素とトリチウムは環境や生体中の水の中で、水素と同じようにふるまっている。一方、トリチウムの質量は普通の水素の3倍あり（重水素は2倍）、すべての元素の中で水素は物理的には同位体の中で最も大きな差がある。

水素の同位体分離は、したがってすべての同位体分離技術の中で最も容易なものであり、かつ、重水（重水素と酸素の化合物）の必要性からも、最も古くから開発され、実用化されてきた。トリチウムの分離法も技術的には確立されており、技術的な要求に対して適切な分離法が存在し、利用されている。ただし、同位体分離技術の特性として、媒体中の濃度を上げる/下げることはできるが、純物質のみを直ちに取り出す、あるいはすべてを直ちに抜き出す、ということはいできない。同位体分離では、原料である水素同位体の混合物（あるいは水）に対して、重い同位体を抽出するとき、高濃度で量の少ない流れ（濃縮流）と、その残り、濃度が低く量がほとんど変わらない流れ（減損流）に別れるが、後者にあまり大きな濃度の変化はない。

東京電力福島第一原子力発電所の汚染水も、大量の水の中にトリチウムを含んでいる。他のセシウムやストロンチウムなどの、核分裂生成物に特有な核種を除いた後にもトリチウムは残り、その処理は近い将来に必要な。そこで、従来存在している、あるいは比較的短い期間に開発の可能な技術から、その処理に利用可能性を持つ技術を簡単に概観する。ここでは、この汚染水がきわめて大量であり、またこれまでの水素同位体分離例に比べ、最も対象物質（この場合トリチウム）の濃度が薄い、ということに留意する必要がある。

大量の水素同位体の分離技術として、実用化された、あるいは実用化の考えられる技術には、蒸留法、同位体交換法があり、それらが単独あるいは組み合わせで使われる。本報告では、これらの原理、技術的な特徴について概説する。電解法、熱拡散法、レーザー法など他に多数が知られているが、極めて少量の例外を除いて現在用いられていない。ほぼすべてが大量媒体の処理に適していない。

蒸留法には、水の蒸留と水素の蒸留がある。水蒸留は、大量の処理に適するが分離能力が極めて低く、大量媒体を、常温常圧に近い条件で処理し、濃度をわずかに変える目的以外にほとんど利用できない。一方水素を液化して蒸留する場合には、きわめて大きな分離能力を、比較的少量の水素に対して得られるが、極低温を要し、エネルギー消費が大きい。同位体交換法は、重水製造や、重水中のトリチウム分離に用いられている。比較的大きな分離能力を比較的大量の水に対して得られるが、福島汚染水に比較すれば、これまでの例は濃度範囲ははるかに高く、また量的には小さい。いずれも、大型設備、大量媒体処理に伴うエネルギー、期間を要する。

これらの可能な方法の選択について重要なことは、得られた濃縮側・減損側のそれぞれに処分、管理の上でリスクが伴うので、濃度と利用・処分方法に応じた適切な分離方法を選ぶことである。これまでの例では、高濃度側は再利用、金属水素化合物保管、固化など、低濃度側は再利用、大気放出、海洋放出などが行われている。特に減損側となる低濃度のトリチウム水に対しては、放出限度や自然環境、生活環境でのトリチウム濃度との関係に留意して処分法を考える必要がある。

トリチウムの分離

小西 哲之
京都大学 教授



トリチウム研究会
～トリチウムとその取り扱いを知るために～
2014年3月4日
イイノホール&カンファレンスセンター

本報告の内容は、主要部分において「汚染水対策委員会、トリチウム水タスクフォース」におけるJAEA山西委員の発表資料から許可を得て転載しています。

これは、当該分野における専門家の共有知識が世界的にもほぼ同一であるためであり、また今回の研究会においてもその知見を共有する意図に基づいています。

したがって、本報告では、その内容を改めて説明し、また不明な点について詳解しますが、その趣旨を変えるものではありません。

はじめに

1. トリチウムの分離

- ・トリチウムは水素の同位体であり、分離には「同位体分離」が必要
- ・水素の同位体は、すべての元素の中で最も差が大きく、分離がしやすい
- ・重水製造以来、最も古くから工業化されてきた技術

2. 水素同位体分離技術

- ・原料に対して、対象成分濃度を上げる/下げることで分離する
- ・したがって、何回も同じ分離処理を繰り返して所定濃度を得る。多数回を一つの装置内で繰り返すこともできる
- ・原料、濃縮側濃度、減損側濃度、処理量に応じて、適切な方法が存在する(つまり、高濃度減容媒体と、より低濃度の媒体に別れる)
- ・いずれも、単純な処理の積み重ねだが大量処理には大きな設備と動力が必要。建設と処理に期間もかかる。

1. 主な水素同位体の分離技術と特徴

1-1 蒸留法

1-1-1 水蒸留

1-1-2 水素蒸留(深冷分離)

1-2 同位体交換法

1-3 電気分解法

1-4 その他

2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

2-1 加: Darlington Tritium Removal Facility

2-2 韓: Wolsong Tritium Removal Facility

2-3 日: ふげん重水精製装置(I)、(II)

2-4 EU: ITERトリチウム水処理装置(設計段階)

3. 重水精製・トリチウム分離に係るプラント実績の纏め

1. 水素同位体の分離技術と特徴

1-1 蒸留法

1-1-1 水蒸留

原理:

- ・水の平衡蒸気圧 = 軽水 > 重水 > トリチウム水
- ・蒸発・凝縮の繰り返し(蒸留)により、沸点の高いトリチウム水を液相に濃縮。
塔底にボイラーをおいて蒸気発生、塔頂に凝縮器をおいて、蒸気を水に戻すことで、還流を作り、繰り返しを起こさせる。

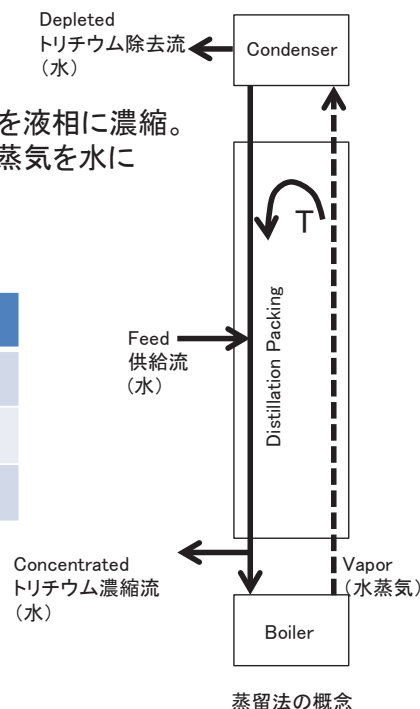
水の平衡蒸気圧 (torr)

T(°C)	25	60	80	100
P(H ₂ O)	23.756	149.38	355.1	760
P(HTO)	21.7	141.5	341.3	738.8
P(H ₂ O)/P(HTO)	1.095	1.056	1.040	1.029

長所: 蒸留法として、石油プラント等で多くの工業実績有。

短所: 分離係数 ($\equiv P(\text{H}_2\text{O})/P(\text{HTO})$) が非常に小さい。

- 蒸発・凝縮の繰り返し回数が多く、塔が高くなる。
分離係数を大きくするために、減圧で運転。



1. 水素同位体の分離技術と特徴

1-1-2 水素蒸留

原理:

- ・液体水素の平衡蒸気圧 = 軽水素 > 重水素 > トリチウム
- ・液体水素の蒸留により、沸点の高いトリチウムを液相中に濃縮。

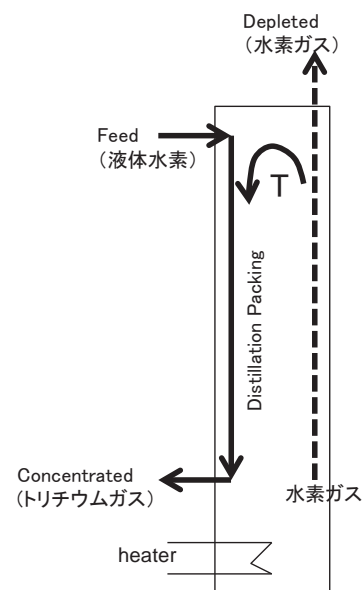
液体水素の平衡蒸気圧 (torr)

T(K)	20	25
P(H ₂)	677.4	2374.7
P(HT)	288.8	1332.6
P(T ₂)		750.3
P(H ₂)/P(HT)	2.346	1.782

長所: 大きな分離係数 ($\equiv P(\text{H}_2)/P(\text{HT})$)。

短所: 液体水素温度(約20K)での運転→コスト高

水素ガスの気化に対する安全対策、水素防爆。



液体水素蒸留法の概念

1. 水素同位体の分離技術と特徴

1-2 同位体交換法—水/水素同位体交換(1)

原理:

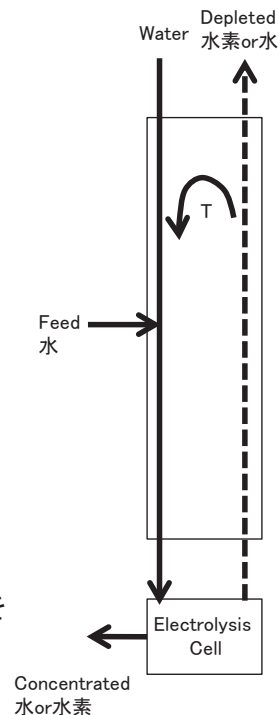
- ・水⇌水蒸気⇌水素間の同位体反応
重水素及びトリチウムの濃度＝水中＞水蒸気中＞水素
- ・水、水蒸気、水素ガスを、向流で接触。
水素ガス中の重水素やトリチウムを水蒸気を経由して水相中に濃縮。

開発経緯

- ・同位体反応に、触媒が必要、水に濡れると活性を失う。
蒸気相と水素相のみのVPCE (Vapor Phase Catalytic Exchange) がまず開発。共にガスなので並流接触。凝縮器と+蒸発器で多段に(カナダ、後述)。
- ・疎水性触媒が開発。
上記、液相を含む、向流の方法を開発LPCE (Liquid Phase Catalytic Exchange)
- ・塔底に電解セルを設置して水から水素を発生、塔内に還流を作ること考案(蒸留と同じ構造にする)。CECE(Combined Electrolysis Catalytic Exchange)。日、韓国、後述。

同位体交換の分離係数 蒸気-液間分離係数 $\alpha_V: H_2O(L) \rightleftharpoons H_2O(V)$ と蒸気-水素間の分離係数 $\alpha_G: H_2O(V) \rightleftharpoons H_2(G)$ よりなるが、 α_G が支配的

T(°C)	16	20	25	56	80	111	158	217	303
$\alpha_G(T)$	6.73	6.47	6.25	5.05	4.37	3.76	3.10	2.64	2.17



5

1. 水素同位体の分離技術と特徴

1-2 同位体交換法—水/水素同位体交換(1)

長所:

日本(ふげん)、カナダ、韓国において、重水精製、トリチウム水濃縮に用いられた実績有。

短所:

同位体反応に触媒が必要、水に濡れると活性を失うので、高性能疎水性触媒が必要。最も効率の良いCECE法では、電解セルのエネルギー消費が大きい、大容量化が困難。

備考:

重水製造の場合、重水の回収効率は要求されない。
電解セルを使わない、コスト的に有利な水-硫化水素(触媒不要)、水素-アンモニア(分離係数大)、同位体交換反応も用いられている。

トリチウムがある場合、適用は困難。

トリチウムを含む硫化水素、アンモニア等劇物が発生。

トリチウム除去系の触媒被毒の問題。

6

1-3 電気分解法

1-4 その他

<電気分解>

- ・水の電気分解速度＝軽水>重水>トリチウム水
液相にトリチウム、重水素が濃縮。

長所: 1段の分離係数は高い

短所: 繰り返し操作の為に、分解した水素ガスと酸素ガスを再結合し、再度電気分解を行う

必要→エネルギー消費量大。

最近は単独での利用はほとんどない。

<その他>

- ・熱拡散法、ガスクロマトグラフ法、レーザー法等があるが、実用規模での処理に不向き。

2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

2-1 加: Darlington Tritium Removal Facility

1.プラント目的

20基のCANDU炉を対象に、重水中のトリチウムを除去・回収する(24Mci/y=8.9E+17Bq/y)。

炉作業員の被曝低減が目的で重水中のトリチウム濃度はある程度下げれば良い。再度炉に戻すため。

2.採用技術:

同位体交換(VPCE)+水素蒸留

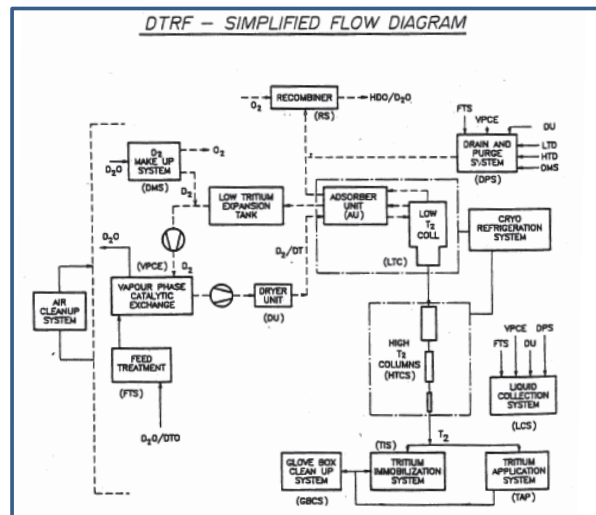
3.処理能力: 約8.6 m³/day(360 kg/hr)

4.トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 0. 4E+9~1. 3E+9 Bq/ml
- ・ concentrated : 99%-T₂ gas
- ・ depleted : 1E+7~3. 5E+7 Bq/ml

5.装置概要等

- ・ 建屋(35mL×24mW×12mH(蒸留部は38mH))
- ・ 同位体交換で重水中のトリチウムをD₂ガス中に移行させ、水素蒸留で濃縮。回収した99%-T₂ガスは金属Tiに吸収させ貯蔵。
- ・ トリチウムのリーク対策として、グローブボックスや空気浄化系等の付帯設備を設置



6.建設経緯等

- ・1981.8: 設計契約
- ・1983夏: 建設開始
- ・1987.2: 竣工
- ・1988.10: 操業開始

出典: S.K. SOOD, J. QUELCH and R.B. DAVIDSON Ontario Hydro, Toronto, Canada, "FUSION TECHNOLOGY EXPERIENCE AT ONTARIO HYDRO'S DARLINGTON TRITIUM REMOVAL FACILITY AND HEAVY WATER UPGRADERS", (1989)

2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

2-2 韓: Wolsong Tritium Removal Facility

1. プラント目的

- ・4基のCANDU炉を対象に重水中のトリチウムを除去・回収(7MCi/y=2.6E+17/y)する。
カナダの技術を導入。

2. 採用技術: 同位体交換(LPCE)+水素蒸留

3. 処理能力: 約 2.1 m³/day(100 kg/hr)

4. トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 0.04E+9~2E+9 Bq/ml
- ・ concentrated : 99%-T₂ gas
- ・ depleted : 1/35 of feed
(0.1E+7~7E+7) Bq/ml

5. 装置概要等

- ・ 同位体交換(電解セル付き)で重水中のトリチウムを前濃縮し、水素蒸留で更に濃縮。回収したT₂ガスはチタンに吸わせて貯蔵。



6. 建設経緯等

- ・2000.11: 設計契約
- ・2003.01: 建設開始
- ・2005.06: 竣工
- ・2006.10: 性能試験
- ・2007.07: 操業開始

出典: K.M. Song, S.H. Sohn, D.W. Kang, S.W. Paek, D.H. Ahn, "Installation of liquid phase catalytic exchange columns for the Wolsong tritium removal facility", (2007)
C.Jung, B.Smith, G.Tosello, J.de Grosbois (AECL), J.Ahn(KHNP), "Computer-Based Plant Display and Control System (PDCS) of Wolsong Tritium Removal Facility (WTRF)", (2012)
Kye-Kwang JEE, "Competitiveness of Korean Nuclear Power Plants" (March 30,2009)

2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

2-3 日: ふげん重水精製装置(I)ー

1. プラント目的

- ・約80~90%重水を99.8%重水に精製

2. 採用技術: 電解法

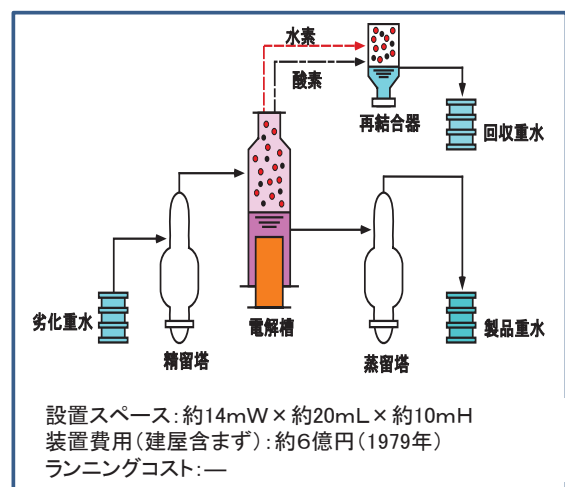
3. 処理能力: 0.015m³/day (約131tの劣化重水から、約54tの99.8%重水を得た)

4. トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約4E+8 Bq/ml
- ・ concentrated : 約4E+8 Bq/ml (製品重水)
- ・ depleted : 約1E+8 Bq/ml (回収重水)

5. 装置概要等

- ・電解液が所定重水濃度になるまでバッチ運転
- ・電解ガスは水に酸化して回収。再度電解処理(回収重水中の重水濃度が60~80%になるまで繰返し処理)
- ・電解助剤を使用(K₂CO₃/KOH)
- ・運転開始後約1年で分離係数が徐々に低下(Cr溶出が原因→電解槽の電気防食)



6. 建設経緯等

- ・運転期間: 1979~1999

2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

2-3 日:ふげん重水精製装置(II)

1.プラント目的

- ・約10～95%重水を99.8%重水に精製(我が国最大のトリチウム水取扱施設)

2.採用技術:CECE

3.処理能力:0.03 m³/day

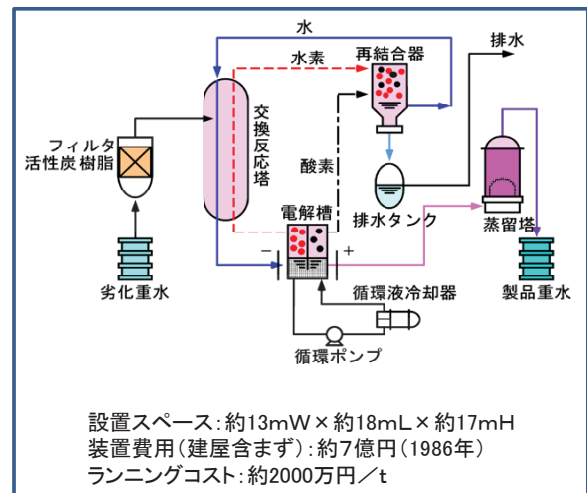
(約87tの劣化重水から約52tの99.8%重水を得た)

4.トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約1E+8 Bq/ml
- ・ concentrated : 約1E+8 Bq/ml
- ・ depleted : 約4E+3 Bq/ml (排水には更に100倍希釈)

5.装置概要等

- ・連続運転
- ・電解ガスの水素を交換反応塔に通し、重水素(トリチウム含む)除去後、電解ガスの酸素と再結合。
- ・再結合水の一部は交換反応塔に還流、残りは希釈排水。
- ・電解助剤を使用(KOH)
- ・電解により水素ガス製造、疎水性白金触媒利用(90段)



6.建設経緯等

- ・1984～1985 装置設計
- ・1985～1986 装置据付
- ・1986～1987 試運転、調整運転
- ・1987～2003 運転

出典: JAEAホームページ, “重水装置の開発”, http://www.jaea.go.jp/04/fugen/jdbase/juusui_1.html

松高 聡 羽田 孝博 林 省一 清田 史功(敦賀本部ふげん発電所)“重水取扱技術及び重水サイクル技術の確立と実証”, サイクル機構技法No20別冊(2003.9)

松高 聡 北端 琢也 川越 慎司 北村 高一(敦賀本部ふげん発電所)“ふげんにおけるトリチウム管理”, サイクル機構技法No11(2001.6)

清田 史功 中村 由夫 北端 琢也 羽田 孝博(ふげん発電所)“新型転換炉「ふげん」における重水精製”, 動燃技法No70(1989.6)

11

2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

2-4 EU:ITERトリチウム水処理装置(設計段階)

1.プラント目的

- ・ ITERは、世界7極(EU、日、米、露、韓、中、印)で仏に建設を進める核融合実験炉(トリチウムを燃料として使用)。

気密ホットセル(炉内機器の補修)の雰囲気トリチウムを、水に変えて除去。このトリチウム水を処理し、トリチウムをガスとして回収・再利用。トリチウム水の処理は同位体交換(電解セル付き)。燃料トリチウム中の軽水素を除く水素蒸留装置に送り、燃料として最終的に回収。同位体交換部分について以下に整理。

2.処理能力:0.48 m³/day

3.トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約4E+8 Bq/ml
- ・ concentrated : 約1E+10 Bq/ml
- ・ depleted : 約4E+3 Bq/ml (水素ガスの防爆のため、100倍希釈排出)

4特徴

- ・固体高分子電解膜の使用(アルカリ等電解助剤は不要)、疎水性触媒の開発

5.建設予定等

- ・2027～ 段階的処理運転

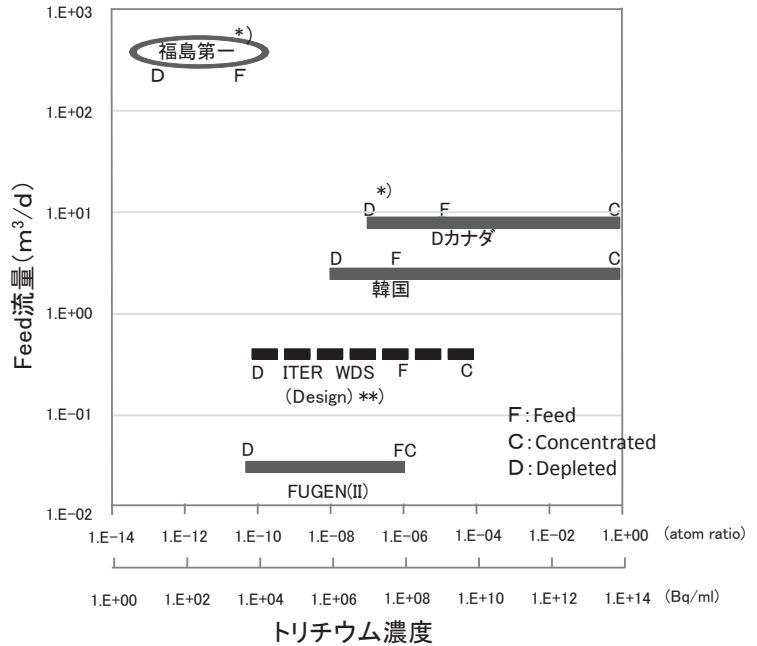
文献: M. Glugla et al., Fusion Eng. Des., 82, 472-487 (2007).

Y. Iwai et al., Fusion Sci. Technol., 41, 1126-1130 (2002).

12

3. 重水精製・トリチウム分離に係るプラント実績の纏め

- カナダ、韓国の装置は、重水からのトリチウム除去・回収プラント
- FUGEN(II)は重水精製が目的、結果としてトリチウム分離が行われる。
- 重水精製・トリチウム分離に係る既存プラントとの比較において、福島第一の領域は、大きく離れて、低濃度・大処理容量に位置、チャレンジングな領域。
- カナダ、韓国のプラントは、設計開始から操業開始までに約7年を要している。
- 福島第一のトリチウム分離プラントを検討するに当たっては、以下の項目を事前に検討しておく事が重要。
 - ・プラントの処理能力
 - ・どこまでトリチウムを除去するか
 - ・濃縮されたトリチウムの扱い
 - ・分離後の薄まったトリチウム水の扱い
 - ・プラントを稼働させるまでの許容期間
 - ・キャピタル&ランニングコストの制約等



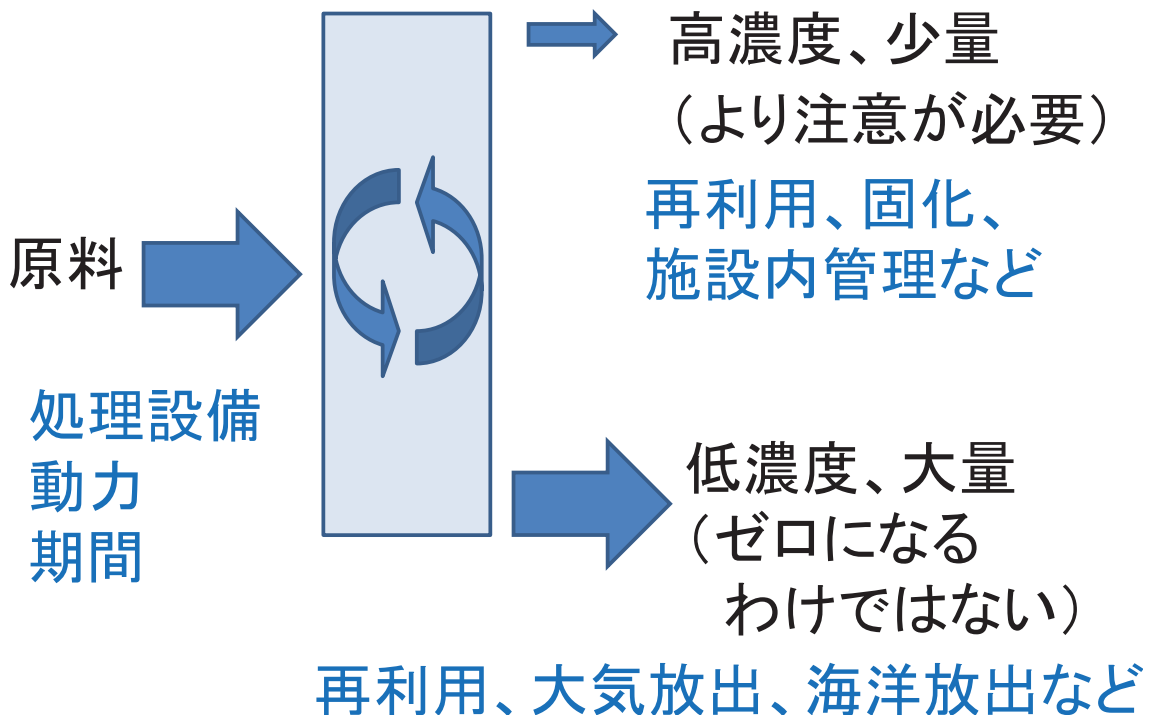
*) 福島第一の楕円は以下に対応

- ・処理能力 : 500m³/day
- ・Feed : 5E+3 Bq/ml
- ・Depleted : 6E+1 Bq/ml
- ・Concentrated: 考慮せず。例えば、供給流を1/10に減容すれば、供給トリチウム濃度の10倍になる。

**) 建設中のITERのトリチウム水処理設備の設計

水素同位体分離処理の一般的な特徴

(少量含まれる重い同位体の濃縮の場合)



まとめにかえて

- ・トリチウム・水素同位体の分離方法は、技術的には比較的良好に検討され、十分な実績がある。
 - －「処理できない」のではない。技術の特性を理解した選択が必要
- ・福島トリチウム水は、もし分離するとしたら、
 - －高濃度廃液と低濃度大量廃液ができる。濃縮側/減損側両方について、明確な目標とその先の処理法を考えておく必要がある。
 - －いずれを選択しても、これまでに実施・計画されたプラントよりも著しく濃度が低く、処理量が多い。大設備、コスト、期間が必要
- ・濃度の高い/低いトリチウム水についても、それぞれ量と濃度で適切な処分方法が既に存在していて、要求により選ぶことができる。
 - －再使用、金属貯蔵、固化埋設、大気放出、海洋放出...
- ・トリチウム研究については、国際的な研究者コミュニティが存在していて、科学的な見解はほぼ共通している。

「規制と管理」

小野寺 淳一

(独)日本原子力研究開発機構

1. はじめに

トリチウムは、 γ 線を放出せず最大 18.6keV の低エネルギーの β 線のみを放出する核種であり、外部被ばくの防護は必要なく、内部被ばくの防護のみを考慮する必要がある核種である。また環境中では、気体（水素、水蒸気、メタン等）又は液体（トリチウム水）等の様々の形態で存在する。

2. トリチウムに関する規制

原子炉等規制法では、トリチウムを単独で、あるいは特別な規制対象とすることはなく、他の核種による内部被ばく及び外部被ばくを含めて放射線業務従事者、一般公衆の線量限度を超えないように管理を行うことが要求される。

トリチウムの管理の特徴としては、化学形（元素状水素、水、有機物等）によって単位摂取量あたりの線量（実効線量係数（mSv/Bq））が大きく異なる（水の実効線量係数は、元素状水素の 10,000 倍）ことがある。ICRP の代謝モデルでは、トリチウム水を吸入又は経口摂取した場合、水の生物学的半減期を 10 日としているが、一部のトリチウムは有機物に取り込まれ、生物学的半減期が 40 日で減衰するとして線量係数の評価が行われており、我が国の法令でもこの値が使われている。なお、ICRP では年齢による代謝や体格の違いを考慮した年齢別の線量係数も評価しており、トリチウム水の 3 ヶ月の乳児に対する線量係数は、成人の約 4 倍となっている。

原子炉等規制法関係法令では、周辺監視区域外での実効線量限度を 1 年間で 1mSv と定めており、原子力施設に起因する外部被ばく及び内部被ばくの合計を 1mSv 以下とする必要があり、トリチウムによる内部被ばくもこの中に含む必要がある。一方、発電用原子炉施設では、「線量目標値に関する指針」に基づき、環境へ放出される放射性物質による施設周辺の公衆の実効線量を年間 50 マイクロシーベルト以下とする目標が設定されており、これを担保するため、トリチウムを含めて核種毎の年間の放出量が設定されており、保安規定に放出管理目標値として記載され、遵守されている。

3. トリチウムの管理

原子力施設におけるトリチウムの管理としては、施設から環境へ放出されるトリチウムの測定、施設内のトリチウムの測定、放射線業務従事者の内部被ばく管理がある。

気体廃棄物中のトリチウム濃度の測定は、連続監視が必要な場合には通気型電離箱式ガスモニタを用いるが、検出下限値を下げる場合、モレキュラーシーブス等による固体捕集法によりサンプリングし、回収した水を液体シンチレーションカウンタにより測定する。施設内の空气中濃度の測定にはガスモニタの他、コールドトラップ、バブラー等を用いたサンプリング法が用いられることもある。

トリチウムの表面密度の測定は、グリセリンを含浸させたスミアろ紙を用いた拭き取り法が用いられることが多いが、対象物の表面状態によってはトリチウム用のサーベイメータを用いることも可能である。トリチウムによる内部被ばくは、尿中トリチウム濃度あるいは、呼気中トリチウム水濃度から評価される。

規制と管理

小野寺 淳一

日本原子力研究開発機構



トリチウム研究会
～トリチウムとその取り扱いを知るために～
2014年3月4日
イイノホール&カンファレンスセンター



「規制と管理」におけるトリチウムの特徴

トリチウム：半減期 12.3年

β線の最大エネルギー 18.6keV

空気中での最大飛程 約5mm

「規制」における特徴

- ・ 実効線量係数 [mSv/Bq]が小さい

トリチウム(HTO) 1.8×10^{-8} [mSv/Bq] (吸入摂取)

セシウム137 6.7×10^{-6} [mSv/Bq] (吸入摂取)

「管理」における特徴

- ・ 内部被ばくのみを考慮
- ・ 表面密度、空気中濃度の測定が他核種に比べ困難
- ・ 空気中、水中からの除去が通常の方法では困難
- ・ HTOは、防護服のプラスチックフィルム等を透過



トリチウムに関する規制

放射線業務従事者及び公衆の被ばく

- ・ トリチウムが単独で規制対象となるのではなく、空気中、飲料水中、食品中にトリチウムが存在する場合、トリチウムによる内部被ばくが他の核種による内部被ばく及び外部被ばくの合計で線量限度を超えないように管理される
- ・ トリチウムは、化学形により摂取した場合の体内での挙動が大きく異なり、化学形を考慮した濃度限度が定められている

2



トリチウムに関する法令上の限度の例

実用炉規則に基づく線量限度等を定める告示の別表1(抜粋)

第1欄		第2欄	第3欄	第4欄	第5欄	第6欄
放射性物質の種類		吸入摂取した場合の実効線量係数 (mSv/Bq)	経口摂取した場合の実効線量係数 (mSv/Bq)	空気中濃度限度 (Bq/cm ³)	排気中又は空気中の濃度限度 (Bq/cm ³)	排液中又は排水中の濃度限度 (Bq/cm ³)
核種	化学形等					
³ H	元素状水素	1.8×10^{-12}	-	1×10^4	7×10^1	-
³ H	メタン	1.8×10^{-10}	-	1×10^2	7×10^{-1}	-
³ H	水	1.8×10^{-8}	1.8×10^{-8}	8×10^{-1}	5×10^{-3}	6×10^1
³ H	有機物	4.1×10^{-8}	4.2×10^{-8}	5×10^{-1}	3×10^{-3}	2×10^1
³ H	上記を除く化合物	2.8×10^{-8}	1.9×10^{-8}	7×10^{-1}	3×10^{-3}	4×10^1

3

- HTOを摂取した場合の全身での残留
97%がHTO、3%がOBT（Organically Bound Tritium、有機物）として存在
HTOの生物学的半減期：10日
OBTの生物学的半減期：40日
線量に対するOBTの寄与は約10%
- OBTを摂取した場合の全身の残留
50%がHTO、50%がOBTとして存在
HTOの生物学的半減期：10日
OBTの生物学的半減期：40日

4

年齢によるHTO、OBTの生物学的半減期等考慮して、年齢別の線量係数が求められている

年齢/化学形	吸入摂取した場合の線量係数 (mSv/Bq)	
	元素状水素	水
3カ月	6.4×10^{-12}	6.4×10^{-8}
1歳	4.8×10^{-12}	4.8×10^{-8}
5歳	3.1×10^{-12}	3.1×10^{-8}
10歳	2.3×10^{-12}	2.3×10^{-8}
15歳	1.8×10^{-12}	1.8×10^{-8}
成人	1.8×10^{-12}	1.8×10^{-8}

ICRP Publication 72, Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 5, Pergamon Press, (1995)

5

- ・ 実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度を定める件
六 外部放射線に被ばくするおそれがあり、かつ、空气中又は水中の放射性物質を吸入摂取又は経口摂取するおそれがある場合にあっては、外部被ばくによる一年間の実効線量の一ミリシーベルトに対する割合と空气中又は水中の放射性物質の濃度のその放射性物質についての空气中又は水中の放射性物質の前各号の濃度に対する割合との和が一となるようなそれらの放射性物質の濃度

6

- ・ 発電用軽水型原子炉施設の線量目標値に関する指針通常運転時の気体廃棄物及び液体廃棄物による公衆の線量を合理的に達成できる限り低くするため、
目標値を年間 50マイクロシーベルトとしている
標準的な計算モデルとパラメータを「発電用原子炉施設周辺の線量目標値に対する評価指針」に定めている
⇒環境での拡散、各種毎の生物濃縮等を考慮するが、トリチウムは、濃縮は考慮せず拡散による希釈を評価
- ・ 評価に用いた核種毎の放出量は、放出管理目標値として保安規定に記載され、遵守されている
液体廃棄物中のトリチウムの例：
BWR 3.7×10^{12} Bq/年
PWR 7.4×10^{13} Bq/年

7

環境へ放出されるトリチウムの測定

- ・ 気体廃棄物中のトリチウム濃度
連続測定：通気型電離箱式ガスモニタ
γ線補償型、Rn/Tn除去機能付き等
固体捕集法：モレキュラーシーブス、シリカゲル
吸着した水を加熱、浸水等で回収、液シンで測定
(酸化触媒+) コールドトラップ
元素状水素 (HT)は酸化し、水として回収、測定
- ・ 液体廃棄物中のトリチウム濃度
液体シンチレーションカウンタ

8

原子力施設内のトリチウムの測定

- ・ 作業環境の空气中トリチウム濃度
連続測定：(可搬型)通気型電離箱式ガスモニタ
コールドトラップ
- ・ 表面密度測定 (管理区域内、持出し物品)
直接測定：トリチウム用サーベイメータ
(ガスフロータイプの薄窓型検出器)
間接測定：スミア法+窓なしガスフローカウンタ
スミアろ紙：グリセリンを含浸し、トリチウムを
保持

9



可搬型ガスモニタ



ガスフローカウンタ



トリチウム用サーベイメータ

放射線業務従事者の内部被ばく管理

- 全面マスク等の粒子用フィルタではトリチウムを除去できないため、必要に応じて送風マスク、エアラインスーツ等を着用
- HTOは、呼吸の他に皮膚からの取り込み想定する必要があり、ICRP Publication 30では呼吸による取り込みの1/2の量を皮膚から取り込むとされている
- HTOは、エアラインスーツ等の防護服の素材を透過するため、防護服への送風量を十分大きくして、透過したHTOの皮膚からの取り込みを低減

JIS Z 4809:2012 放射性物質による汚染に対する防護服
付属書JC (参考) トリチウムに対する防護

12

放射線業務従事者の内部被ばく評価法

- 内部被ばく評価のためのバイオアッセイ
尿又は呼気中のトリチウム濃度を測定
呼気中のトリチウム水の回収方法
⇒水バブラー、コールドトラップ
体内量の評価：トリチウム水濃度 (Bq/cm³)に
4.2 × 10⁴cm³ (ICRP標準人の水分量) を乗じて算出
- 吸入直後は、呼気中のトリチウム濃度は平衡状態より高くなり、また、尿中トリチウム濃度は低くなるので、注意が必要

13



呼気中水分回収装置

トリチウムに関する規制

- ・トリチウムのみに対する規制はなく、線量限度、濃度限度等を遵守する際の対象のひとつ

トリチウムの管理

- ・ β 線エネルギーが低いことから、他の β 核種と比較して迅速な検出、定量が難しい

「原子力施設におけるトリチウムの取り扱い経験」

白鳥 芳武

(独)日本原子力研究開発機構

原子力発電所の長期間運転に伴い、原子炉で使用している減速材（重水）や反応度制御材（ホウ酸）等の中性子照射によりトリチウムが生成されるが、特に重水炉においては重水素の放射化によってトリチウムが重水中に生成され、高濃度に蓄積されることから、トリチウムによる被ばく管理や放出管理が重要である。

新型転換炉「ふげん」（以下、「ふげん」という）におけるトリチウム放出量は、海外の重水炉に比べ十分に低い値であるうえに国内の軽水炉と比べても概ね同等以下となっており、「ふげん」は長年にわたるトリチウムの取扱いについて十分な知見と実績を積み重ねてきた。

「ふげん」は、発電用原子炉として我が国独自の技術で開発されたものであり、福井県敦賀市に重水減速沸騰軽水冷却圧力管型の原子炉（電気出力 16 万 5 千 kW）として、昭和 54 年に建設され、軽水炉並みの稼働率である約 62%を達成した後、平成 15 年に約 25 年間にわたる運転を終了し、現在、廃止措置を行っている。この原子炉の重要な特性として、軽水炉で使用されている低濃縮ウランだけでなく、プルトニウムを混合したMOX燃料も柔軟に使用できるという点がある。

減速材として使用している重水は常に高純度に維持する必要があるが、定期検査時において、重水中の不純物を除去するためのイオン交換樹脂の交換やポンプ等の機器類の点検において純度の低下した重水が発生する。これらの重水は全量回収し、99.7%以上の濃度に再濃縮（精製）のうえ使用される。「ふげん」では、この精製のために2種類の原理の異なる精製装置（重水精製装置Ⅰ（水電解法）及び重水精製装置Ⅱ（同位体交換法））が開発され、劣化した重水の精製を行ってきた。

重水中に生成されたトリチウムは長期間の運転に従い、徐々にその濃度が上昇し、約 25 年間の運転により約 250MBq/cm³という濃度に達したものである。このため、トリチウムによる被ばく低減や放出量低減対策のために、機器類からの漏えい防止のための設備対応や作業時におけるグリーンハウス等による漏えい・拡散防止など、ハード面のみならずソフト面において様々な対策と管理を行ってきた。

回収・再利用が困難な微量の重水については希釈して海洋放出されるが、それに含まれるトリチウムについては、保安規定に定められた管理目標値等を十分下回ることを常に確認するなど、安全管理を徹底してきた。

現在、ほとんどの重水は原子炉から回収された状態にあり、トリチウムを含む重水が漏えいする恐れは、運転中に比べて大幅に低減している。今後、廃止措置を進める中で、原子炉や重水系の解体作業を行う予定であり、これらの解体にあたっては、事前にトリチウムの除染を十分に実施する他、作業員の被ばく低減のための管理を徹底するなど安全な作業管理に努めていく。

原子力施設における トリチウムの取り扱い経験

白鳥 芳武

日本原子力研究開発機構



トリチウム研究会
～トリチウムとその取り扱いを知るために～
2014年3月4日
イイノホール&カンファレンスセンター



説明内容

- ・原子炉におけるトリチウム生成と放出量の比較
- ・新型転換炉「ふげん」のプラント概要
- ・重水リサイクル運用とトリチウム濃度の推移
- ・重水精製装置Ⅰ～水電解法～
- ・重水精製装置Ⅱ～同位体交換反応法～
- ・トリチウム対策と放出実績
- ・まとめ

原子炉におけるトリチウム生成

トリチウムの生成反応		トリチウムの性質
${}^2\text{H}(n, \gamma){}^3\text{H}$	重水素の放射化	<ul style="list-style-type: none"> ■ 低エネルギーのβ線放出核種(最大エネルギー18.6keV) ■ 物理的半減期:約12年、生物学的半減期:約10日 ■ 重水炉では水・水蒸気(H₂O, D₂O, T₂O)の形態で存在 ■ トリチウムは水蒸気となって空気中に拡散しやすい(作業環境汚染、環境放出) ■ 呼吸や皮膚吸収による内部被ばくに注意を要す。(被ばく防護管理)
${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$ ${}^7\text{Li}(n, n'\alpha){}^3\text{H}$	反応度制御材であるボロンの中性子吸収に伴う反応	
${}^{10}\text{B}(n, 2\alpha){}^3\text{H}$		
${}^3\text{He}(n, p){}^3\text{H}$	トリチウム(${}^3\text{H}$)のβ崩壊で生成される ${}^3\text{He}$ の放射化	

2

国内外の原子力発電所のトリチウム放出量比較

炉型	発電所(基数)	放出量実績(10 ¹² Bq/年間)		備考		
		液体トリチウム	気体トリチウム			
国内重水炉(ふげん)	1	1.6~5.5	1.0~1.8	「ふげん」運転期間中の1990~1997年度のトリチウム放出量実績		
海外重水炉*1	カナダ	ブルース(8)	603~2280		230~1650	
		ダーリントン(4)	13~140		110~330	
		ピッカリング(8)	400~3078		170~635	
	韓国	ウオルソン(2)	42~170		231~625	
		アルゼンチン	1		500~2200	53~2600
			1		140~520	55~140
パキスタン	1	39~168	57~281			
国内軽水炉*2	BWR	全国17(51)	0.003~95	—	1997~2001年度の国内軽水炉の実績	
	PWR					

【出典】 *1 : UNSCEAR 2000 REPORT VOL.1

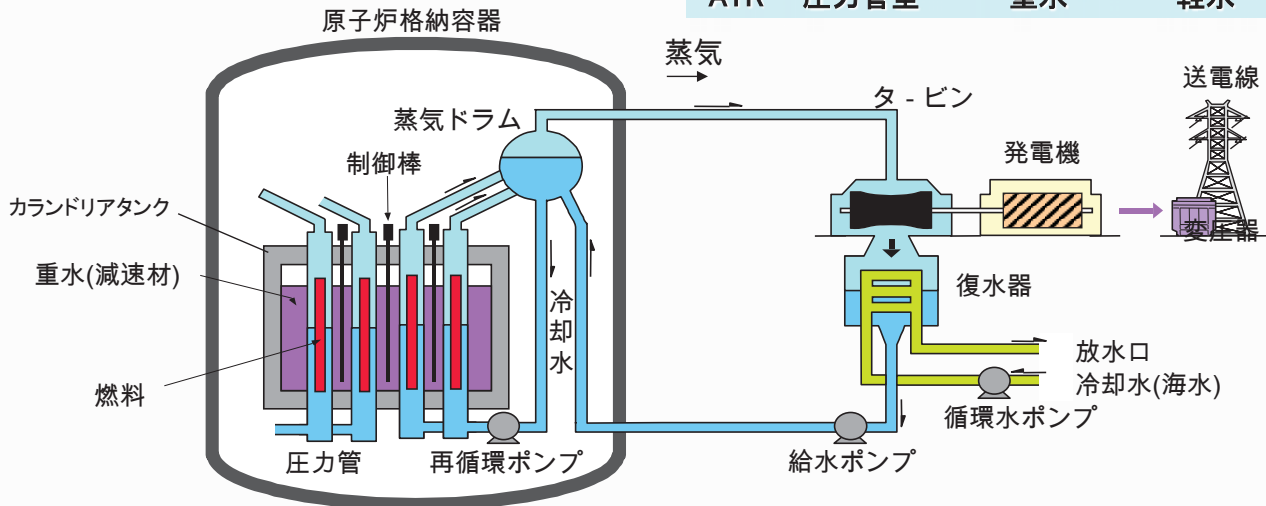
*2 : 平成17年度 原子力施設運転管理年報 ((独)原子力安全基盤機構)

3

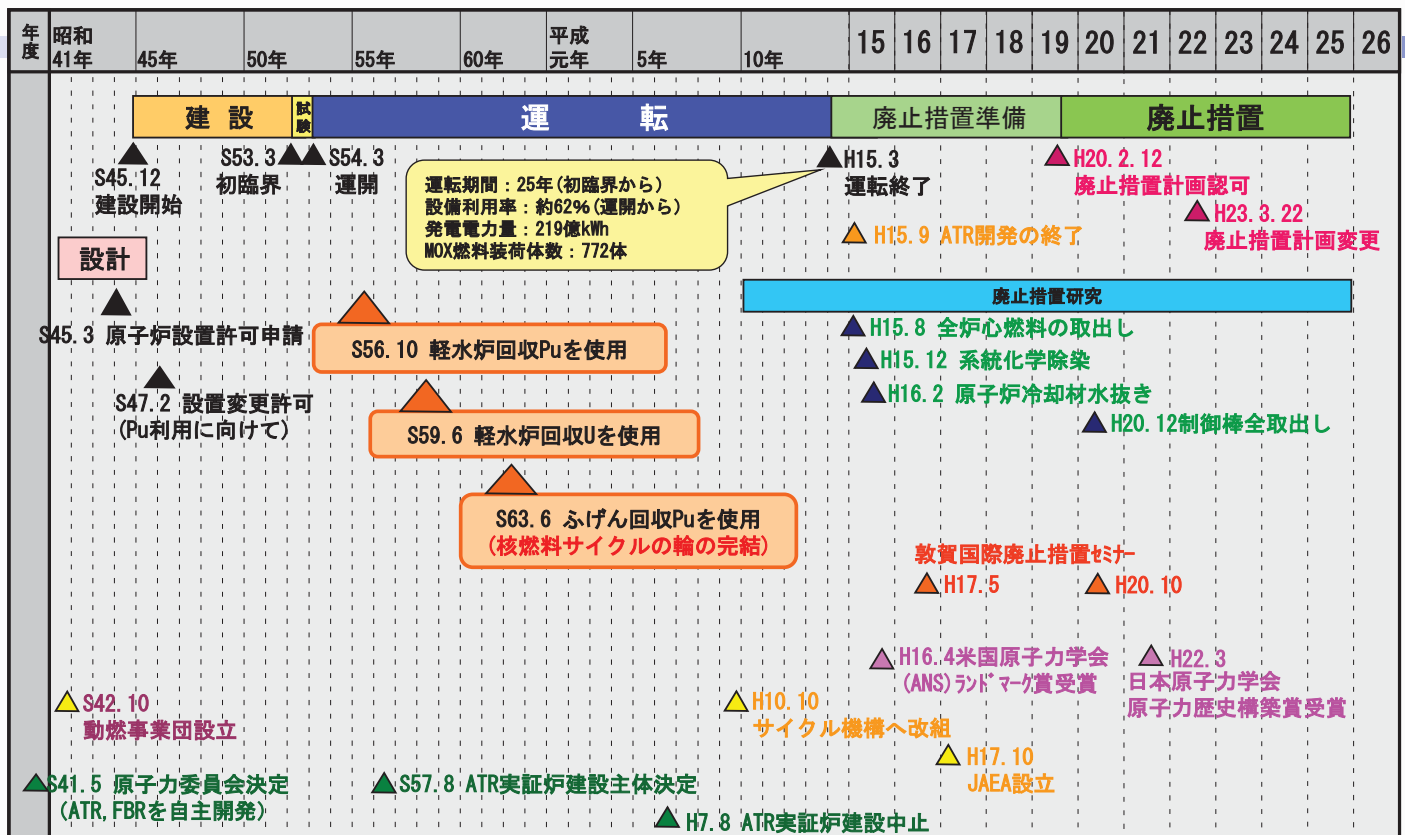
新型転換炉「ふげん」のプラント概要

- ✓ 炉型式：重水減速 沸騰軽水冷却 圧力管型炉（原型炉）
- ✓ 出力：電気出力:165 MWe, 熱出力:557 MWt
- ✓ 燃料：ウラン燃料、MOX燃料(合計772体の使用実績)
- ✓ 運転開始 1979.3 ~ 2003.3(運転終了)
- ✓ 平均設備利用率：約62%
- ✓ 廃止措置計画認可：2008.2

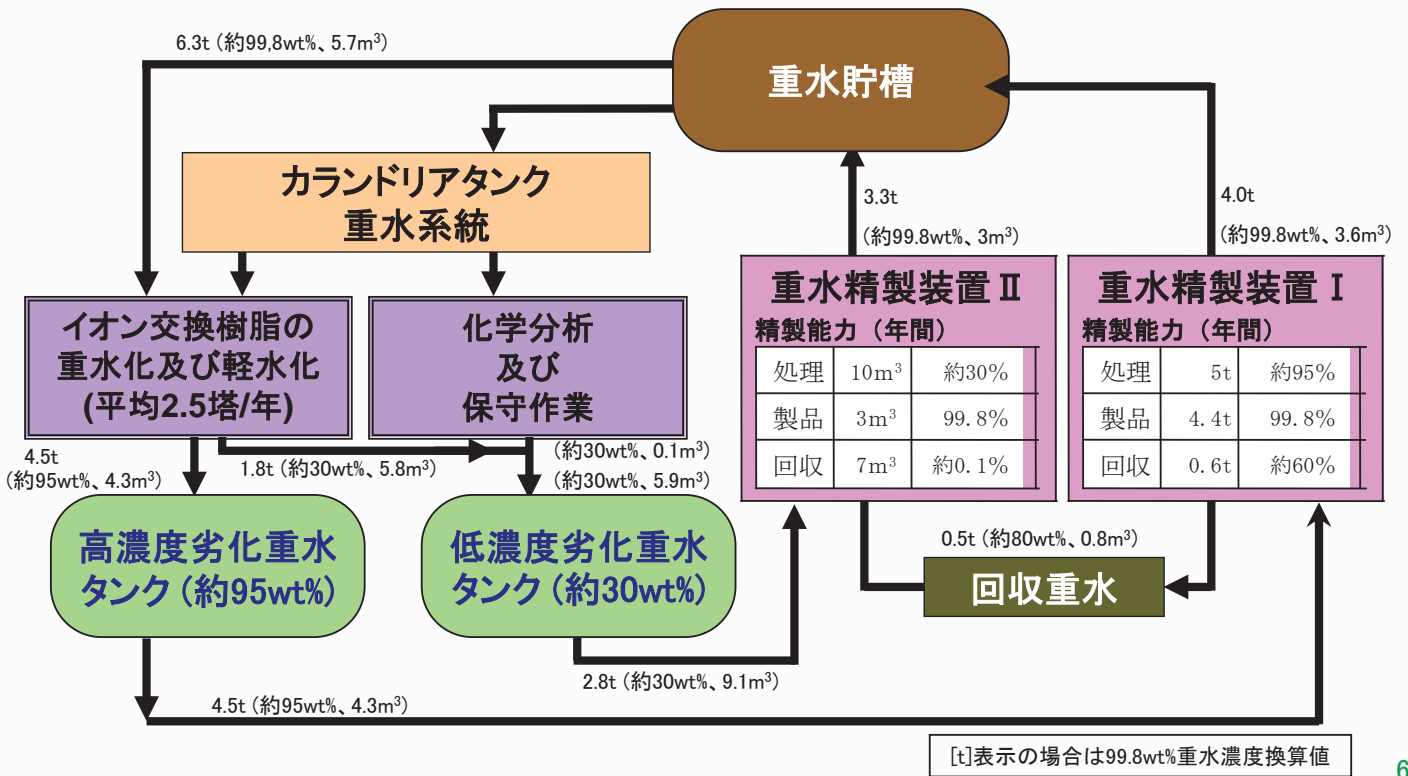
型式	炉心のタイプ	減速材	冷却材
ATR	圧力管型	重水	軽水



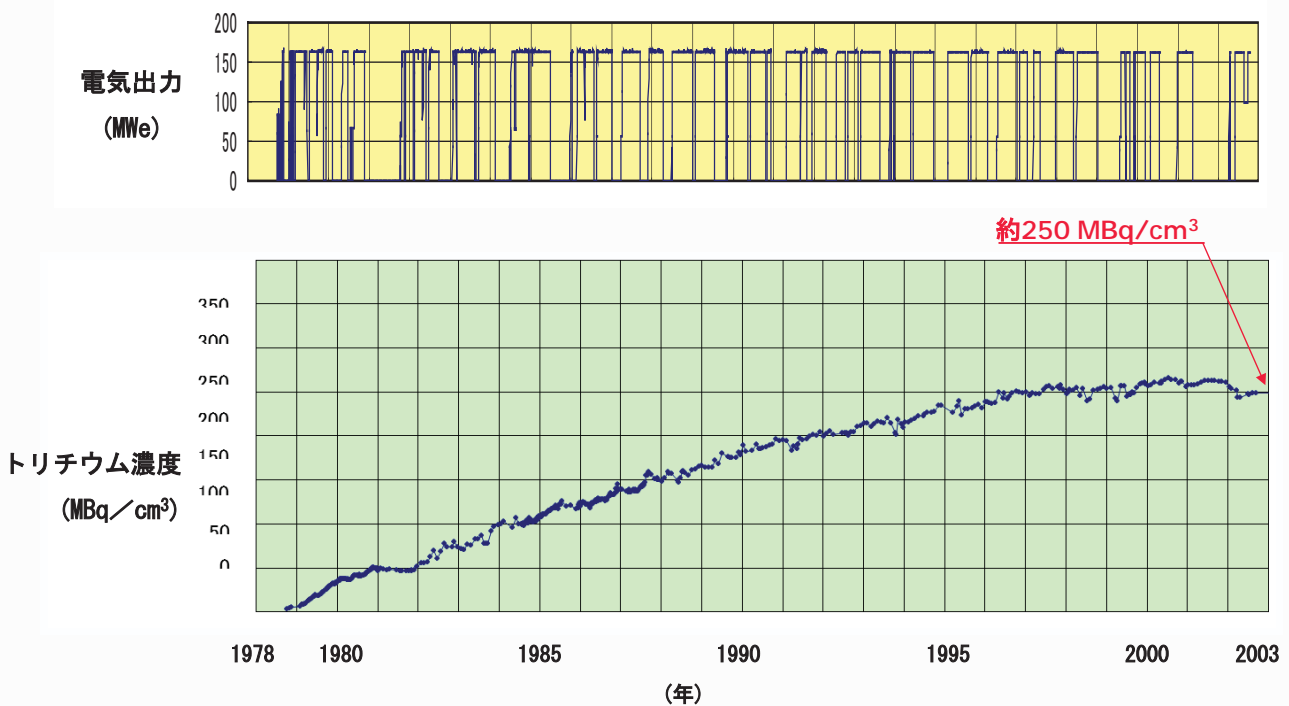
「ふげん」のあゆみ



重水リサイクル運用



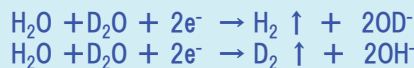
重水中のトリチウム生成と濃度推移



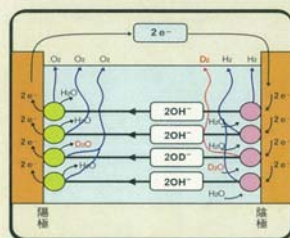
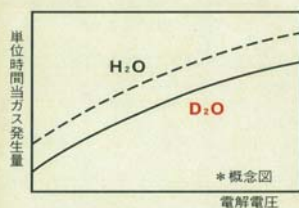
重水精製装置 I ～水電解法～

水電解法の原理

軽水と重水を含む水を電解する場合の陰極反応は、次式で表される。



この反応において水素(H)と重水素(D)の過電圧が同一条件下ではDの方が大きいため、一定量の劣化重水を電解していくとH₂Oの方が早く分解されてH₂ガスとなるため、残液側に重水が濃縮される。



重水精製装置 I (現在は解体済)

8

重水精製装置 I の概要

1.プラント目的

- ・約80～90%重水を99.8%重水に精製

2.採用技術:水電解法

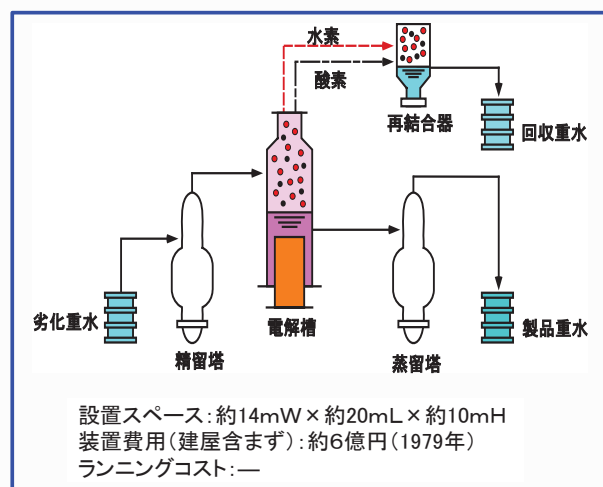
- 3.処理能力:0.015m³/day (約131tの劣化重水から、約54tの99.8%重水を得た)

4.トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約4E+8 Bq/ml
- ・ concentrate : 約4E+8 Bq/ml (製品重水)
- ・ depleted : 約1E+8 Bq/ml (回収重水)

5.装置概要等

- ・電解液が所定重水濃度になるまでバッチ運転
- ・電解ガスは水に酸化して回収。再度電解処理(回収重水中の重水濃度が60～80%になるまで繰返し処理)
- ・電解助剤を使用(K₂CO₃/KOH)
- ・運転開始後約1年で分離係数が徐々に低下(Cr溶出が原因→電解槽の電気防食)



6.運転期間:1979～1999

9

重水精製装置Ⅱ ～同位体交換反応法～

水・水素同位体交換反応法の原理

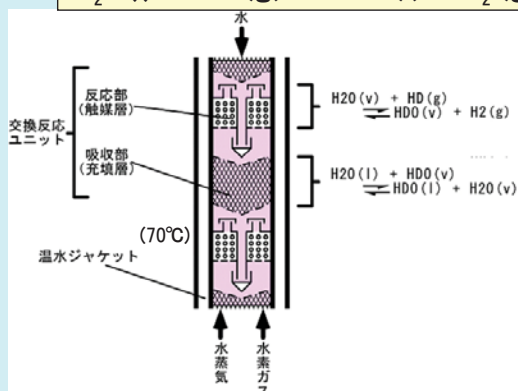
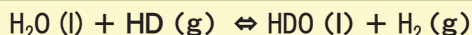
【反応部】

重水素ガス(g)と劣化重水の水蒸気(v)の間でDとHの交換反応を行わせる反応部(無触媒では進行せず、白金等の触媒の存在で促進される。)

【吸収部】

吸収部では、重水の水蒸気(v)と劣化重水(l)の間で気液平衡を行わせる。

交換反応塔は交換反応ユニットが90段組み込まれている。



交換反応塔外観

10

重水精製装置Ⅱ の概要

1.プラント目的

- ・約10～95%重水を99.8%重水に精製(我が国最大のトリチウム取扱施設)

2.採用技術:水・水素同位体交換反応法

3.処理能力:0.03m³/day

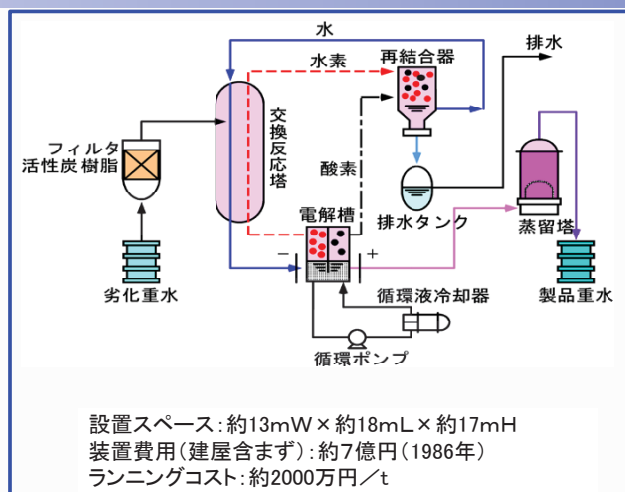
(約87tの劣化重水から約52tの99.8%重水を得た)

4.トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約1E+8 Bq/ml
- ・ concentrate : 約1E+8 Bq/ml
- ・ depleted : 約4E+3 Bq/ml (排水には更に100倍希釈)

5.装置概要等

- ・連続運転
- ・電解ガスの水素を交換反応塔に通し、重水素(トリチウム含む)除去後、電解ガスの酸素と再結合
- ・再結水の一部は交換反応塔に還流、残りは希釈排水
- ・電解助剤を使用(KOH)
- ・電解により水素ガス製造,疎水性白金触媒利用(90段)



設置スペース: 約13mW × 約18mL × 約17mH
 装置費用(建屋含まず): 約7億円(1986年)
 ランニングコスト: 約2000万円/t

6.建設経緯等

- ・1984～1985 装置設計
- ・1985～1986 装置据付
- ・1986～1987 試運転、調整運転
- ・1987～2003 運転

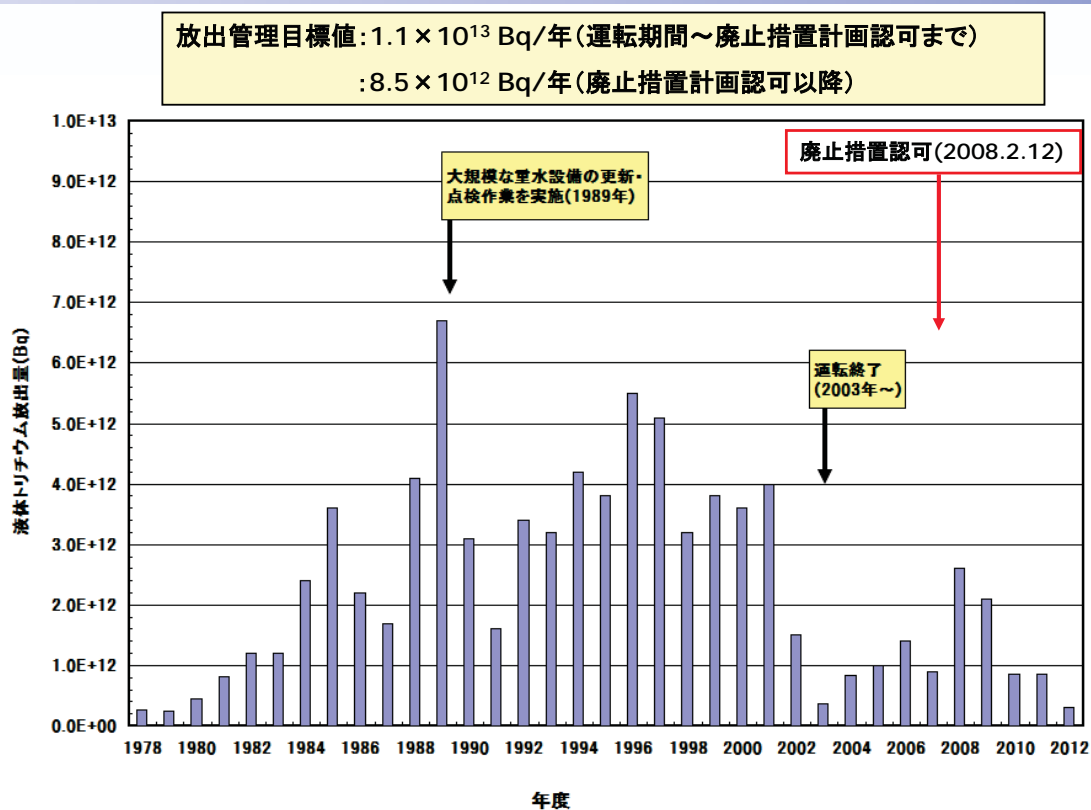
11

「ふげん」のトリチウム対策

設備	漏えい防止	キャンドロータポンプの採用 ベローシール弁の採用 溶接構造の管継手の採用	設備設計に反映
	拡散防止	脱湿器型トリチウム除去装置の設置 グローブボックス構造の計装ラックの採用	
	モニタリング	トリチウム測定技術の開発	
作業管理	作業方法 (拡散防止)	機器分解前には重水のドレン及び乾燥を実施 トリチウム除去装置による局所換気 グリーンハウス等による作業場所の隔離	
	防護具	トリチウム防護服の着用 ゴム手袋の着用と頻繁な交換	
	モニタリング	トリチウム濃度の適切な測定と監視	

12

トリチウム放出実績(液体)



13

ま と め

- ▶「ふげん」は重水炉であることから、大量のトリチウムを保管、管理する必要があり、設備設計から考慮された重水・トリチウムの徹底した漏えい防止策や作業管理による拡散防止策等により、保安規定に定められた管理目標値を逸脱することなく、環境へのトリチウム放出量を管理してきた。
- ▶トリチウムを含有する劣化重水を再濃縮する重水精製装置の開発により、プラント内で完全な重水リサイクル利用を達成した。
- ▶廃止措置を進めるに当たり、残留しているトリチウムの除染を適切に実施し、安全な作業管理に努めて行きたい。

「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム

日本原子力学会「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」報告より

内田 俊介

元東北大学 教授

1. はじめに

日本原子力学会「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」の特徴の一つは、各調査を現在学会内に18ある部会単位で受け持ち、各部会の総力を結集して、検討、評価し、委員会としての明確な結論導出を図った点にある。関連する電力、メーカーがライン業務として真摯に福島事故対応にあたっており、学会活動とはいえ、特別の予算もない状況で、軽々しく対応できるほど容易な課題ではない。汚染水の評価にあたっては、水化学技術のひとつの特徴である冷却系に係わるシステム評価技術を生かし、東電ほかのウェブサイト上に継続的に公開されている冷却水、汚染水関連データを用いて、発電所内で増え続けている汚染水の発生源、発生量の把握に努めると共に、今後の汚染水の放射能予測を行って、発電所としての総合リスク軽減のため取るべき方向を求めた。

2. 核分裂生成物の放出

燃料溶融に伴って発生する放射性核分裂生成物（以下FP, fission productsと略記する）は、事故直後約1週間に冷却水中に放出される短期FPソースタームとさらに長期にわたって放出され続ける長期FPソースタームに分類される。汚染水中のセシウム-137他のFPの放射能は、事故から約1年は、事故直後に炉水中に放出されたFP（短期FPソースターム）で決まり、セシウム除去装置などの稼働により減少の一途をたどる。1.5年ほど経過すると原子炉ほかからのFPの追加溶出（長期FPソースターム）の結果、汚染水中の放射能は減少せず、ほぼ一定値を保つ。

セシウムなどのFPとトリチウムの燃料体中での蓄積量は、原子燃料の燃焼計算コードORIGENで求められる。汚染水の放射能の経時変化データから、両者の短期と長期のソースターム比率を求めた。セシウムについては燃料体に蓄積されたものの約50%が短期ソースタームとなるのに対して、トリチウムでは約26%となる。過酷事故解析（SAMPSONコードによる解析）においては、セシウムの燃料体から冷却水への放出量は、揮発性FPの初期溶出量として燃料温度の関数として定量化され、1-3号機の平均では測定値とほぼ一致する。一方、トリチウムについてはこれまで明確な定量化は行われていないが、 UO_2 の溶融率にほぼ相当するものと考えることが出来る。

汚染水のもっとも根本的な対策は、格納容器の封水にあり、汚染水の総量の低減と閉じ込め、そして効果的な浄化が必須であるが、残念ながら漏洩箇所の特特定とその封水は今後の課題である。

多核種除去設備ALPSほかの汚染水処理に係る設備は、小さなトラブルが報告されることはあるが、着々と整備されつつあり、トリチウム以外の核種については、告知濃度限界値以下に低減することが可能であるが、トリチウムはこれらの除去設備での除去ができない。

トリチウムへの対応としては、核融合工学部会と協力して、解析、評価し、希釈、監視放出を中心とする対応策を提案した。この実施のためには、今後様々な準備が必要で、(1)希釈およびモニタリングのハード化の推進と地元自治体他への十分な事前説明が必要であり、(2)風評被害を最小限に食い止めるための準備が不可欠である。

3. まとめ

- 1) 汚染水中のトリチウムを含む放射能の現状を把握し、今後の推移を予測した。
- 2) トリチウム以外のFPについては、多核種除去設備ALPSほかを駆使して、除去を徹底することが必須である。
- 3) トリチウムについては、工学的な視点から、希釈、監視放出が現実的と考える。

福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム

日本原子力学会「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」報告より

内田 俊介
元東北大学 教授



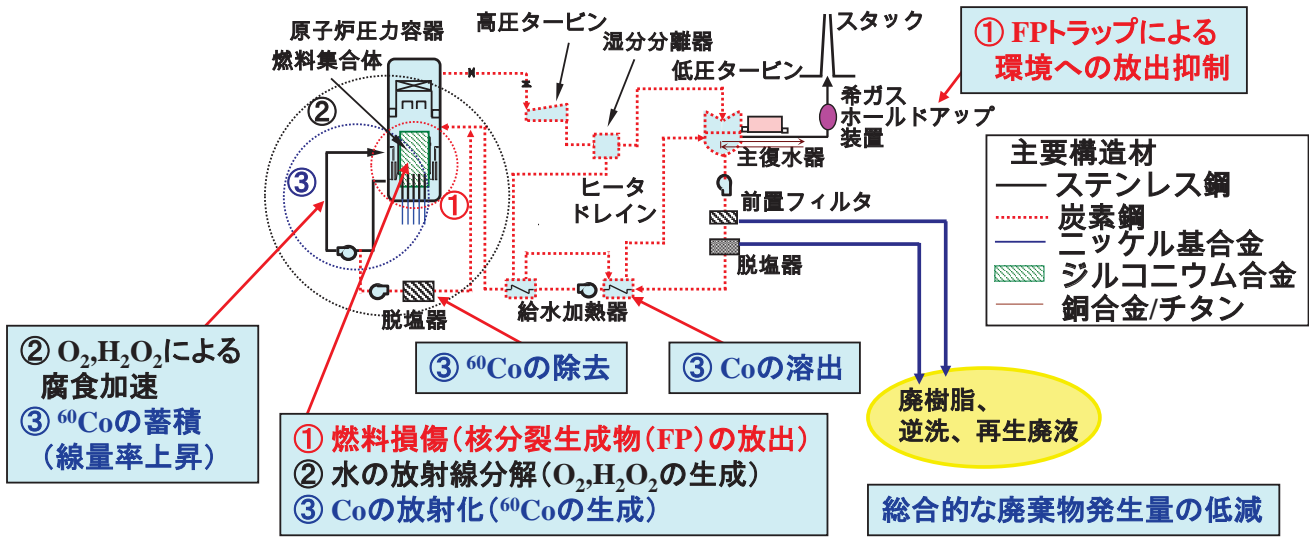
トリチウム研究会
～トリチウムとその取り扱いを知るために～
2014年3月4日
イイノホール&カンファレンスセンター

背景と発表目的

No.1

1. 日本原子力学会「福島第一原子力発電所事故に関する調査委員会」の特徴の一つは、部会単位での参画。
 - ・ 部会等での詳細な議論の結果に基づき、委員会としての明確な結論への反映を図る。
2. 福島事故対応では、関連する電力、メーカーがライン業務として真摯に対応。
 - ・ 学会とはいえ、予算もなく、軽々しく対応できるほど容易な課題ではない。
 - ・ 水化学のひとつの特徴である冷却系に係わるシステム評価技術を生かして寄与。
3. 事故の進展経緯、安全評価については、主として国の予算で、各機関が鋭意解析中。
 - ・ 守秘義務、その他の制約で、その成果のすべての公開は現状では不可能。
 - ・ ウェブサイトに継続的に公開されている冷却水、汚染水関連データを十分に活用。
4. 将来的な課題を中心に議論し、報告書作成に寄与。
 - ・ 対象プラントの今後あるべき姿をイメージし、最終目標に至るプロセスを解析、評価。的確にイメージを固め、技術論に展開
 - 今後の課題、その方向性と手段を明確化するとともに、明確な提言を発信
5. 本発表では、汚染水の量的、質的(放射能)変化、今後の予測結果を紹介する。
あわせて、発電所としての汚染水に係わる総合リスク軽減のための方策を提案する。

冷却水の役割と副次作用
 主要な役割: ・エネルギー輸送媒体
 ・中性子減速媒体
 副次作用 ①燃料被覆材の腐食損傷 燃料の健全性
 ②構造材の腐食損傷 構造材の健全性
 ③放射性腐食生成物の発生と蓄積 従事者の被ばく線量



問題の要因発生箇所と顕在化箇所が離れている: プラントシステムとしての評価要素本技術ベースにより汚染水の対応を分担

廃炉に向けた中・長期ロードマップ

ステップ1 & 2 (~6月)	フェーズ1 (~2年)	フェーズ2 (10年)	フェーズ3 (30-40年)
<安定冷却の維持>	プールからの燃料取り出しの開始	燃料デブリ除去の開始	廃炉の終了
・循環冷却	・4号機プールの燃料取出しの開始 ⑩	・全号機プールからの燃料取出し終了	・燃料デブリの完全除去 (20-25年)
・追加放出の抑制	・プラント線量率低減 PCV修復 PCV注水 ・安定冷却確保 汚染水処理の確立 ⑧ ⑨	・燃料デブリ除去の準備 (建屋除染) ・燃料デブリ除去の開始	・廃炉完了 (30-40年) ・廃棄物処理と保管 ⑬
	・燃料デブリ除去に向けたR&Dと除染の開始 ⑤*	・汚染水処理の完了	*: 番号は課題表に対応
	・廃棄物処理処分にに向けたR&Dの開始 ⑪	・原子炉設備解体に向けたR&Dの開始 ⑫	

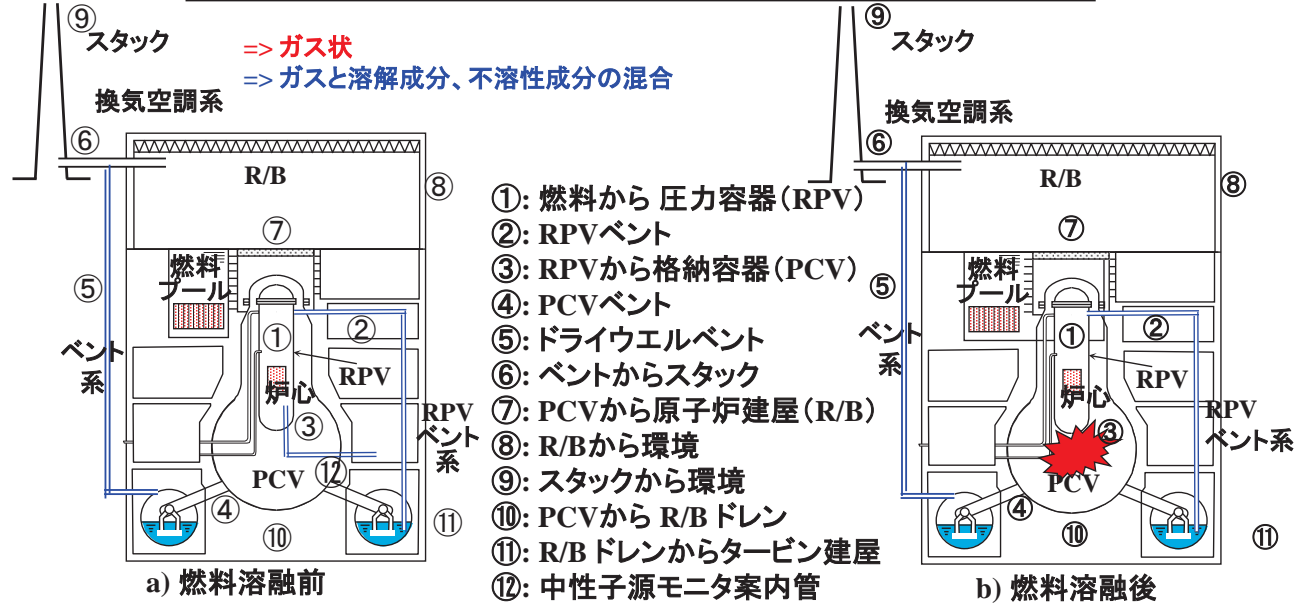
スタッフの訓練と配置、モチベーションの保持、作業の安全性の確保のための継続的かつシステムティックな対応が必要

- ⑤ 評価に基づくRPV及びPCV中の燃料デブリ分布の予測
 - ⑧ 燃料デブリの継続的冷却
 - ⑨ 汚染水のモニタリングと制御*
 - ⑩ 構造材、燃料の長期健全性*
 - ⑪ 廃棄物の管理*
 - ⑫ 遠隔監視とロボット技術
 - ⑬ 大量の廃棄物の安全な保管管理*
- *: 水化学関連課

事故時の放射性核分裂生成物の放出経路

No.4

- 短期間FPソース
- a) 燃料溶融前: ①⇒②⇒⑤⇒⑥⇒⑨
 - ①⇒③⇒④⇒⑤⇒⑥⇒⑨
 - ①⇒⑫⇒②
 - b) 燃料溶融後: ①⇒②⇒⑤⇒⑥⇒⑨
 - ①⇒③⇒④⇒⑤⇒⑥⇒⑨
 - ①⇒③⇒⑦⇒⑥⇒⑨
 - c) 水素爆発後: ①⇒③⇒⑦⇒⑧
- 長期間FPソース
- d) ドレン水: ①⇒③⇒④⇒⑩⇒⑪



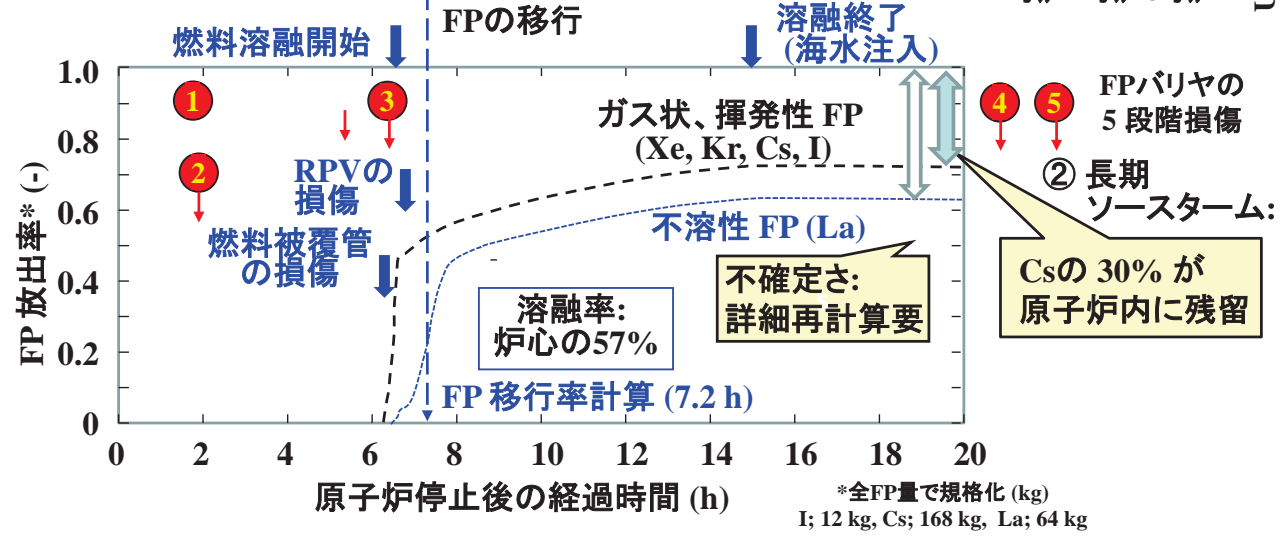
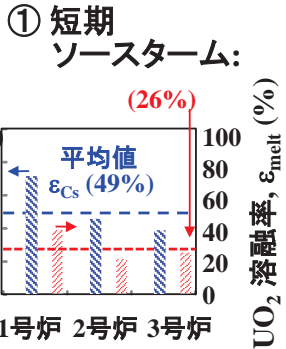
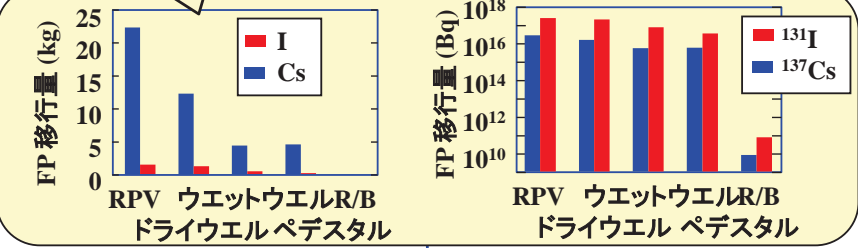
トリチウム研究会 トリチウムとその取り扱いを知るためにー 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」 内田俊介

過酷事故解析コードによる解析例

No.5

-1号炉の解析例-

I, Csについて
同じ移行率使用

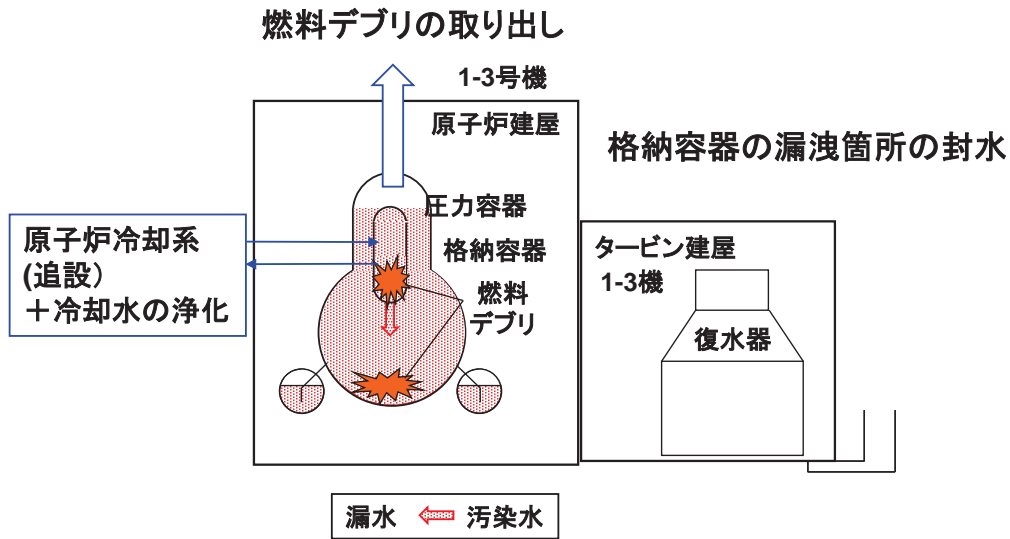


トリチウム研究会 トリチウムとその取り扱いを知るためにー 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」 内田俊介

汚染水の発生・処理 (1)

冷却水の循環の最終的な姿

No.6

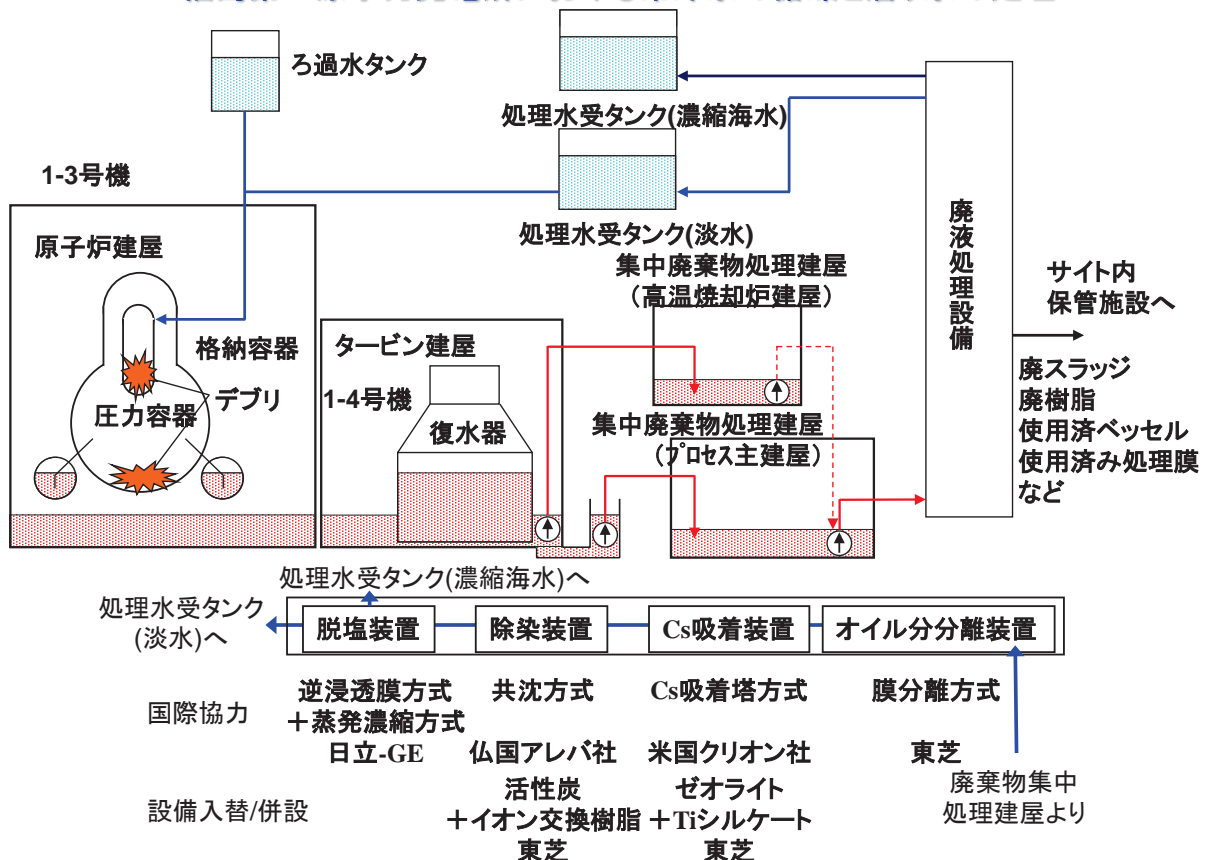


格納容器(PCV)の封水が未完で、このため様々な汚染水の問題が発生

汚染水の発生・処理 (2)

No.7

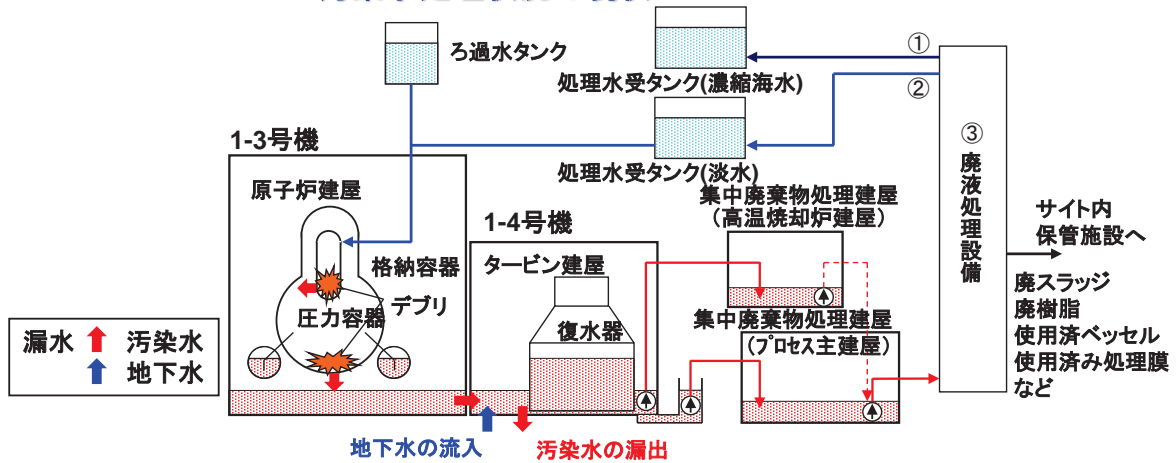
福島第一原子力発電所における冷却水の循環と溜り水の処理



汚染水の発生・処理(3)

汚染水処理状況の現状

No.8



- | | |
|---|--|
| <p>現状の課題:</p> <ul style="list-style-type: none"> ① 汚染水の増加(主として地下水流入による) <ul style="list-style-type: none"> ・地下水流のバイパス(モニタ、排水) ・地下水の遮へい[冷凍柱壁、水ガラス壁など] ② 汚染水の漏出(地下水への漏出) <ul style="list-style-type: none"> ・地下水の遮へい[冷凍柱壁、水ガラス壁] ・漏洩汚染水の汲み上げと処理 ③ 余剰水の漏出(保管タンクの健全性低下) <ul style="list-style-type: none"> ・貯槽の健全性モニタ、漏出モニタ ・トリチウム以外の核種の早期除去 ④ 汚染水処理に伴う2次放射性廃棄物量の増大 | <p>現状約50万トン保管
放射能監視の徹底
土木学会他との協力
放射能漏出抑制
放射能監視の徹底
きめ細かな監視と処理
的確なメンテナンス
放射能監視の徹底
多核種除去装置ALPS
計測、安定化、サイト保管</p> |
|---|--|

トリチウム研究会 -トリチウムとその取り扱いを知るために- 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

汚染水の発生・処理(4)

循環浄化評価の基礎式

No.9

基礎マスバランス式

$$\text{濃度時間変化: } dC/dt V = \underbrace{\zeta(1-\varepsilon) S}_{\text{原子炉での発生項}} - \underbrace{(C - C_{us})G_u}_{\text{地下水流入と余剰水}} - \underbrace{(1-1/f) CG_c}_{\text{廃液処理系での浄化}} - \underbrace{\lambda CV}_{\text{壊変による減衰}}$$

発生項: $dS/dt = -(\zeta + \lambda)S$

初期濃度: $C_0 = \varepsilon S/V$

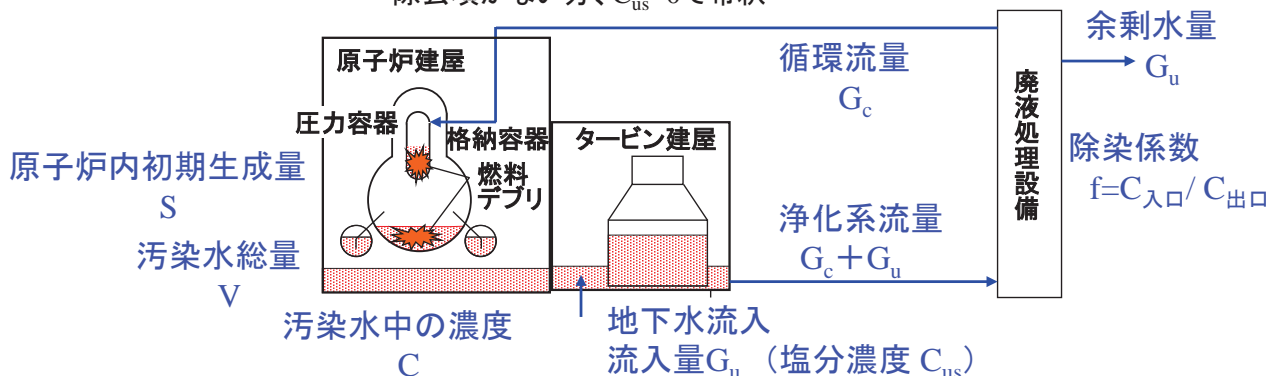
ε : 初期放出率(-), f : 除染係数(-), ζ : 溶出率(1/s), λ : 壊変定数(0.693/ $T_{1/2}$)

[Cl]: 原子炉からの $\zeta(1-\varepsilon) S_{Cl}$ と地下水からの $C_{us}^{Cl} G_u$ が発生項

[^{134}Cs], [^{137}Cs]: 原子炉からの $\zeta(1-\varepsilon) S_{^{134}\text{Cs}}$ と $\zeta(1-\varepsilon) S_{^{137}\text{Cs}}$ が発生項

[^3T]: 原子炉からの $\zeta(1-\varepsilon) S_{^3\text{T}}$ が発生項

除去項がない分、 $C_{us}=0$ で希釈



トリチウム研究会 -トリチウムとその取り扱いを知るために- 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

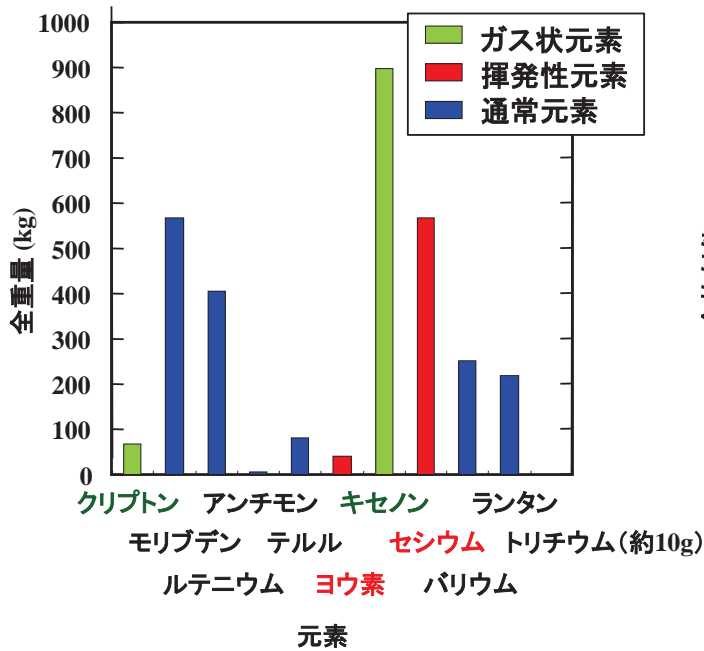
内田俊介

燃料中の放射性核分裂生成物の総量と放射能

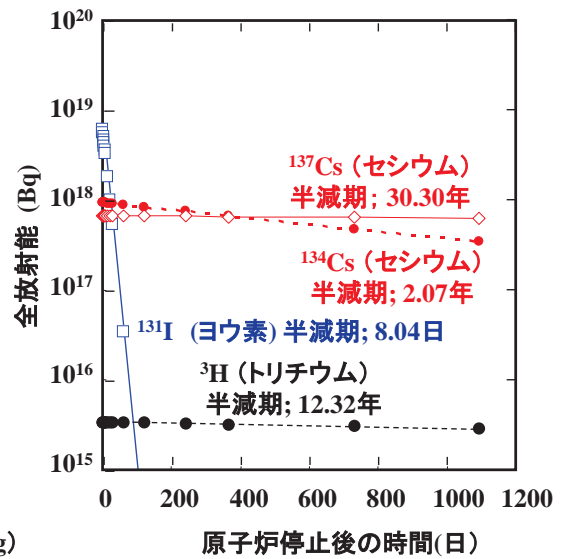
ORIGENコードによる計算値(1号炉—3号炉の合計)

No.10

各元素ごとの重量



主要核種の放射能



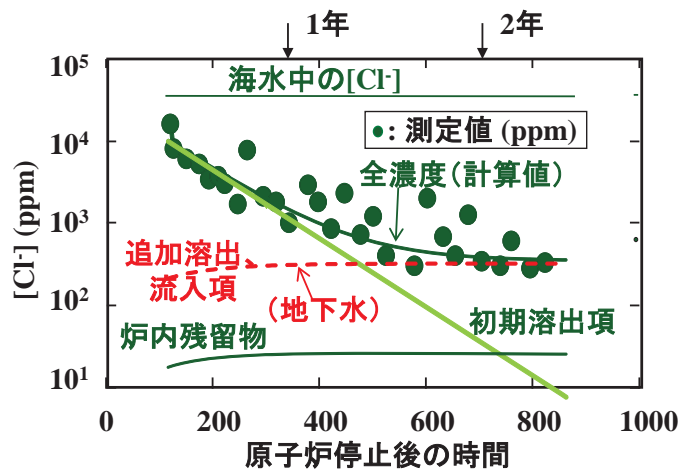
トリチウム研究会 —トリチウムとその取り扱いを知るために— 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

汚染水の発生・処理 (5)

塩化物濃度の遷移状況

No.11



海水注入量: 170トン*
 全量の50%が初期溶出
 残りの50%が追加溶出
 地下水の塩分濃度(500 ppm*)
 最終的に何%が溶出するかは不明
 溶解速度はセシウムと同じ
 * まだ仮定値

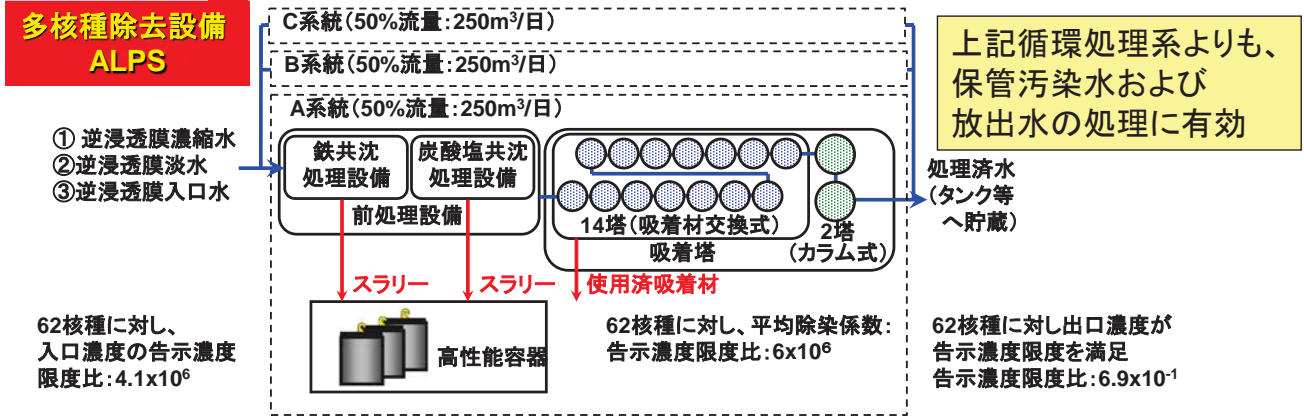
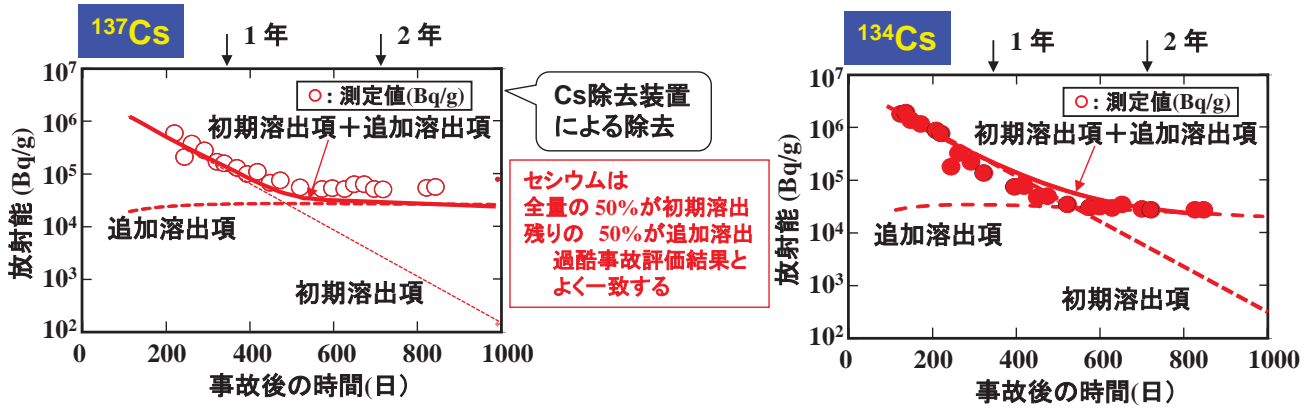
トリチウム研究会 —トリチウムとその取り扱いを知るために— 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

汚染水の発生・処理 (6)

汚染水処理設備の現状

No.12



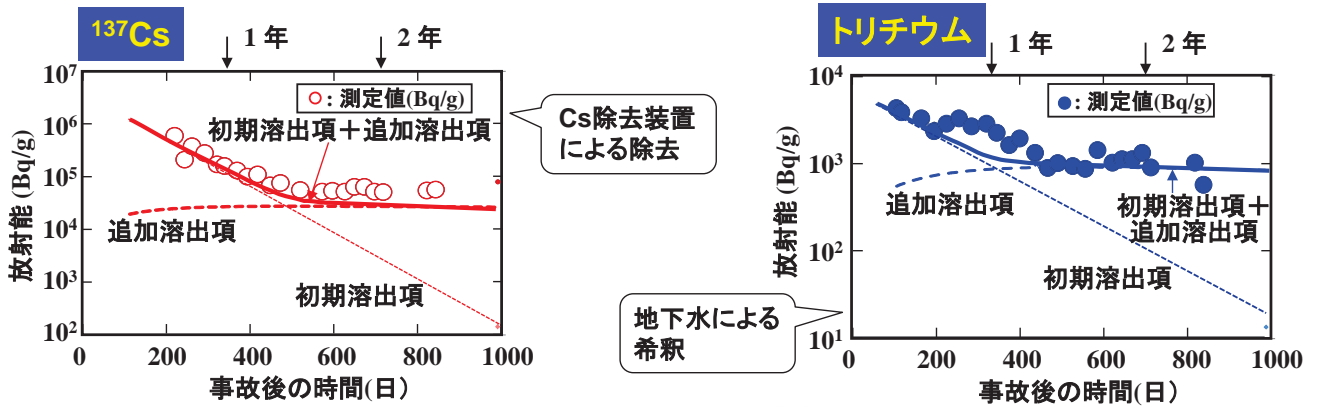
トリチウム研究会 トリチウムとその取り扱いを知るためにー 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

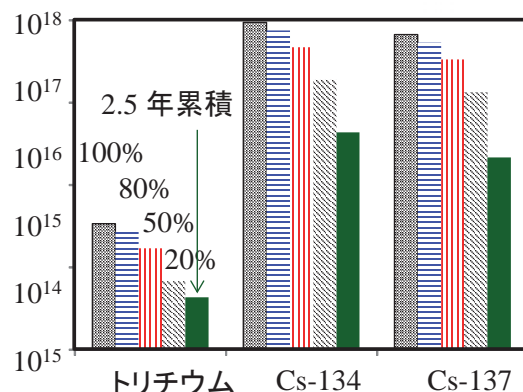
汚染水の発生・処理 (7)

汚染水処理設備の現状

No.13



FPおよびトリチウムインベントリ



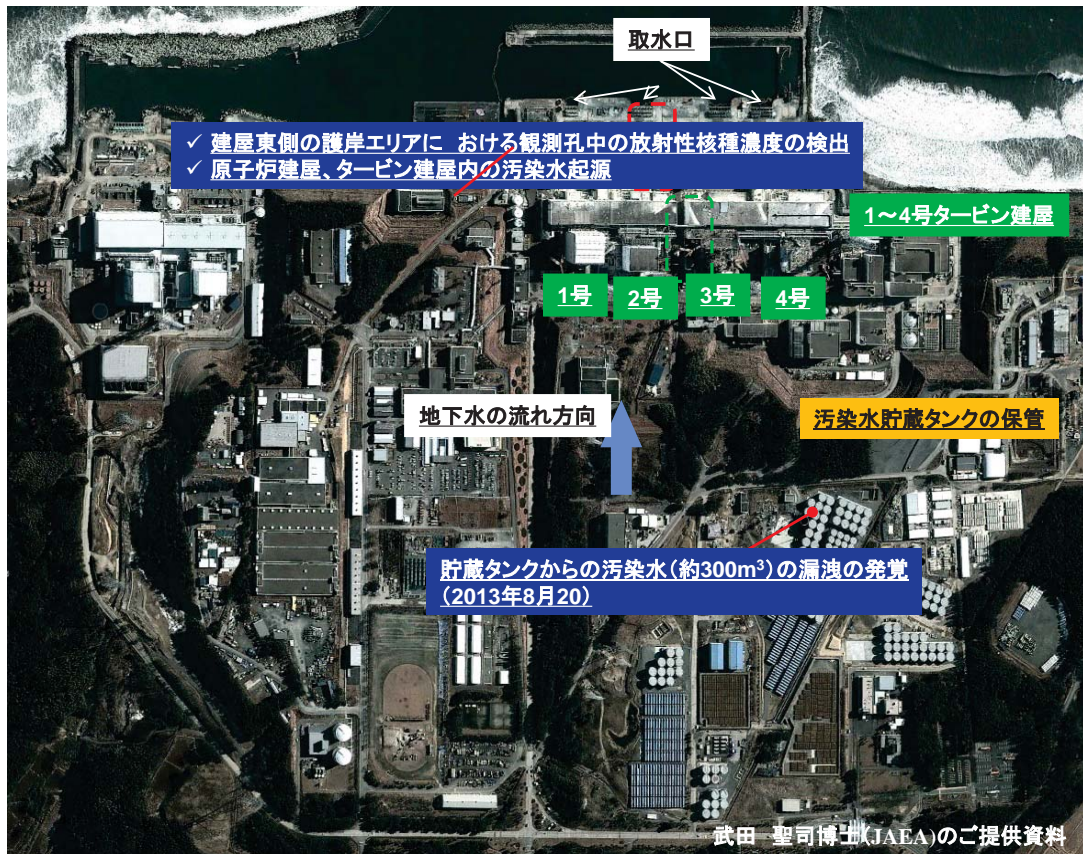
トリチウムは
全量の26%が初期溶出
溶融したUO₂からの初期放出
によるものと推察される
残りの74%が追加溶出

トリチウム研究会 トリチウムとその取り扱いを知るためにー 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

漏洩した汚染水の概況

No.14



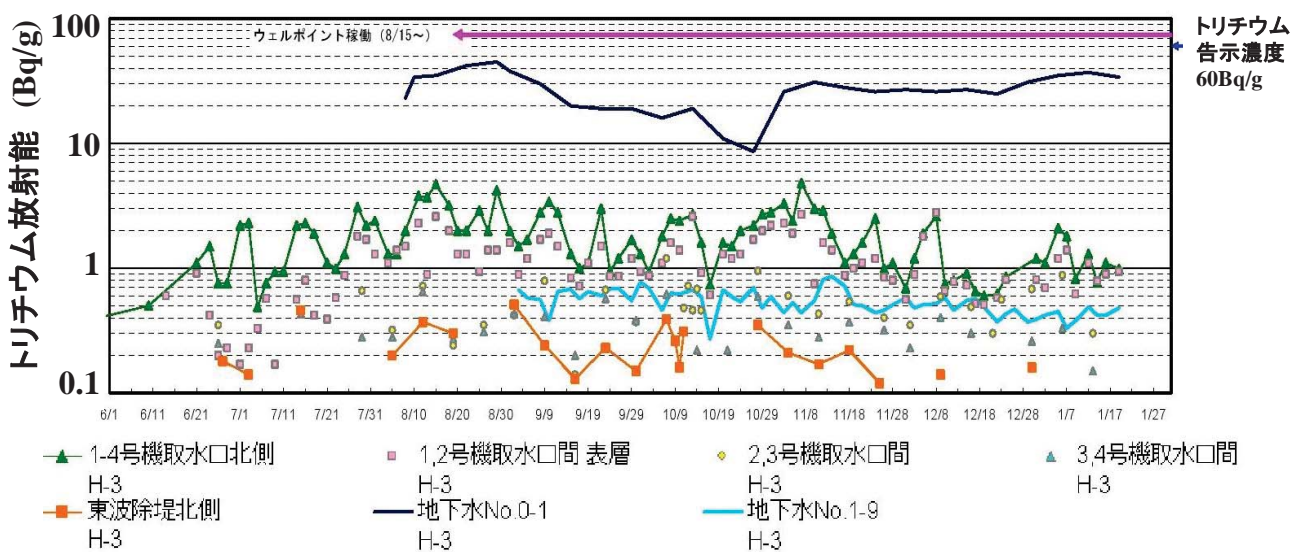
トリチウム研究会 -トリチウムとその取り扱いを知るために- 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

海水モニタリングデータ(トリチウム)

No.15

1～4号機取水路開渠内の海水の濃度推移



1～4号取水口内の海水中トリチウム濃度は約5 Bq/g以下であり、観測孔No.0-1の最大濃度(約50 Bq/g)よりも1ケタ以上小さい

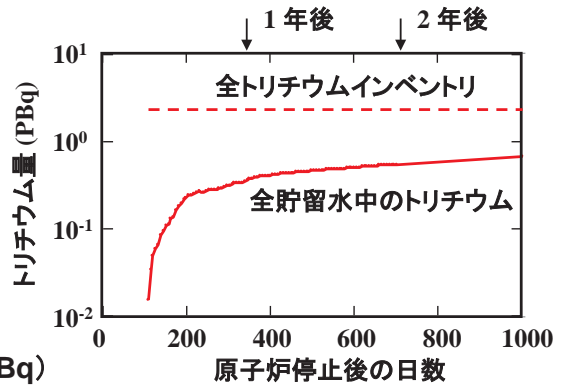
第10回特定原子力施設 監視・評価検討会汚染水対策検討WG(平成26年1月24日) 資料5

トリチウム研究会 -トリチウムとその取り扱いを知るために- 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

トリチウムの主な発生源: 三体核分裂
 核分裂のうち、約1/10,000の確率で³H生成
 全燃料体の燃焼度から全³Hを算出
³Tはまだ数年放出を続けるものと推察。
 地下水の混入量が変わらなければ、
 貯留水中の[³T]レベルは一定値を保ち、
 インベントリは増大する

現状の汚染水中への蓄積量は、約0.5 PBq(0.5x10¹⁵Bq)

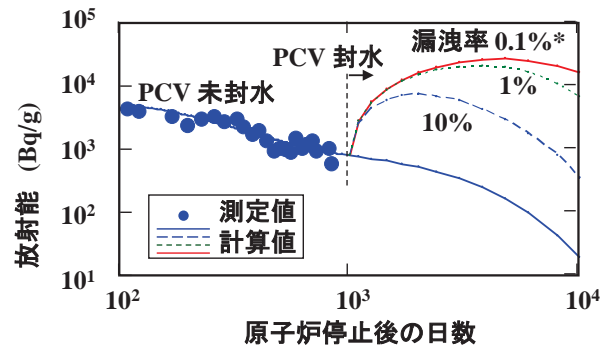


トリチウムの特性

半減期:	12.3年
生物学的半減期:	12日
	生態系での蓄積効果小
地球での代表的生成反応:	¹⁴ N(n, ³ T) ¹² C
自然界での生成量:	1 E Bq/年(10 ¹⁸ Bq/年)
環境中のBG:	約0.01 Bq/g

格納容器封水の結果、
 ・外部への漏洩のリスクは低減できるが、
 ・循環水中のトリチウム濃度が増大する
 => 十分な事前対策要

PCV封水後のトリチウム放射能の予測



トリチウムの処理処分に対する対応

トリチウム以外の核種は、多核種除去装置ALPSで除去可能であるがトリチウム除去は困難

対応策	概要	課題	技術的 確実性	環境 リスク
1. サイト内貯蔵	放出せずに保管	地下水汚染のポテンシャル大	高	大
2. トリチウム除去と濃縮	トリチウム濃縮装置の適用	工学的には困難		
2.1 除去水の放出	原理的には放出基準以下 まで低減可能	[現実的な除染係数: 10] 希釈との併用が必要	低	中
2.2 高濃縮減容保管	大半のトリチウムを濃縮・減容 残りを希釈放出	高濃縮トリチウム水保管による 環境リスク	低	大
3. 希釈放出	トリチウム以外の核種は除去			
3.1 海洋放出	トリチウムは希釈放出	継続的なモニタリング	高	小
3.2 気化放出	蒸発させ、気中放出(TMI方式)	雨水に含まれて、放出点近傍で 検出される可能	高	中

技術的確実性が高く、環境リスクの小さな対応策として、
 適切な放射能測定下での「海洋への希釈放出」を提言
 希釈放出に当たり、
 ① 連続モニタリングが不可欠
 ② 地元、関連諸国他への事前説明が不可欠
 放出したトリチウムの影響に関し、福島事故調査委員会として説明責任を果たす

1. 燃料溶融に伴って発生するFPは、短期FPソースと長期FPソースに分類される。
 - 1) 事故初期の環境へのFP放出は短期FPソースに支配されるが、汚染水の処理では、長期FPソースが重要で、長期にわたるFP溶出への対処が必要。
 - 2) 短期と長期のソース比率はセシウムでは揮発性FPの初期発生量として定量化が可能。
 - 3) トリチウムは、 UO_2 の溶融に伴って発生すると推定されるが、更なる検討が必要。
2. 汚染水のもっとも根本的な対策は、格納容器の封水にある。
汚染水の総量の縮小と閉じ込め、そして効果的な浄化が必須である。
3. 多核種除去設備他、汚染水処理に係る設備は、小さなトラブルが報告されているが、着々と整備されつつある。
4. トリチウムの建屋外への漏洩は連続的にモニタされており、現状大きな問題はない。
5. トリチウムへの対応としては、核融合工学部会と協力して、希釈、監視放出を中心とする対応策を提案
 - 1) ハード化の推進と地元自治体他への十分な事前説明が必要。
 - 2) 風評被害を最小限に食い止めるための準備が不可欠。
6. 本報告に係わる学会事故調委員会の最終報告書は、3月上旬に丸善から発行される。
汚染水処理に関しては、その他、下記の論文で発表。

S. Uchida, M. Naitoh, H. Suzuki and H. Okada, "Post-nuclear accident activities and energy policy in Japan", *Proc. Int. Conf. Properties of Water and Steam, ICPWS-16*, Sep. 1-5, 2012, London, UK, International Association of Properties of Water and Steam (2013) (in CD).

S. Uchida, M. Naitoh, H. Suzuki, H. Okada and S. Konishi, "Evaluation of Accumulated Fission Products in the Contaminated Water at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant", *Nucl. Technol.*, in press. (2014) MS#13-152

トリチウム研究会 トリチウムとその取り扱いを知るためにー 「福島第一原子力発電所の汚染水の現状と汚染水中のトリチウム」

内田俊介

ご清聴ありがとうございました

