

「トリチウム水」をめぐる 科学的社会的問題

- 自己紹介
- タスクフォースの流れ
- 事例紹介

柿内秀樹

(公財)環境科学技術研究所
環境影響研究部

環境計測とモデル評価による環境放射能研究

総合的環境移行・線量評価モデルの構築

- ◆ 大気拡散モデル
- ◆ 気象モデル
- ◆ 陸域移行モデル
- ◆ 陸水・集水域
移行モデル
- ◆ 沿岸海域モデル

実際の環境中分布の測定

^3H ・ ^{14}C ・ ^{129}I 等排出放射性核種
気圏環境 陸圏環境 水圏環境



比較・検証
中長期被ばく線量予測

環境計測

- ・濃度レベルと空間分布の把握
- ・物理化学形態
- ・蓄積と移行
- ・モデルパラメーターの取得
- ・計測手法の開発（時空間分解能）

福島第一原子力発電所における汚染水対策

※汚染水対策に係る公表情報はこちら

汚染水処理対策委員会

汚染水処理について、これまでの対策を検討し、問題を根本的に解決する方策や、漏えい事故への対処を検討

陸側遮水壁 タスクフォース

陸側遮水壁の概念設計、施工計画の策定等の評価、進捗管理等

高性能多核種除去設備 タスクフォース

高性能多核種除去設備の整備実証の進捗管理等

トリチウム水 タスクフォース

トリチウム水の取扱いの選択肢の抽出各選択肢の評価項目の整理及び総合的評価〔報告書取りまとめ(平成28年6月3日)〕

平成25年12月25日
- 平成28年6月3日

多核種除去設備等処理水の 取扱いに関する小委員会

多核種除去設備等で処理した水の取扱いについて、風評被害など社会的な観点等も含めて、総合的に検討

平成28年11月11日
-

トリチウム水タスクフォース 名簿

委員：	柿内 秀樹	(公財)環境科学技術研究所研究員
	高倉 吉久	東北放射線科学センター理事
	立崎 英夫	(独)放射線医学総合研究所 REMAT 医療室長
	田内 広	茨城大学理学部教授 (生物科学領域)
	野中 俊吉	生活協同組合コープふくしま専務理事
	森田 貴己	(独)水産総合研究センター研究開発コーディネーター
	山西 敏彦	(独)日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門 ブランケット研究開発ユニット ユニット長
	山本 一良	名古屋大学理事(教育・情報関係担当)・副総長 (汚染水処理対策委員会委員)
	山本 徳洋	(独)日本原子力研究開発機構(JAEA)再処理技術開発センター副センター長

(汚染水処理対策委員会委員)

トリチウム水タスクフォース(第2回)

現時点で考えられる複数の選択肢と評価項目

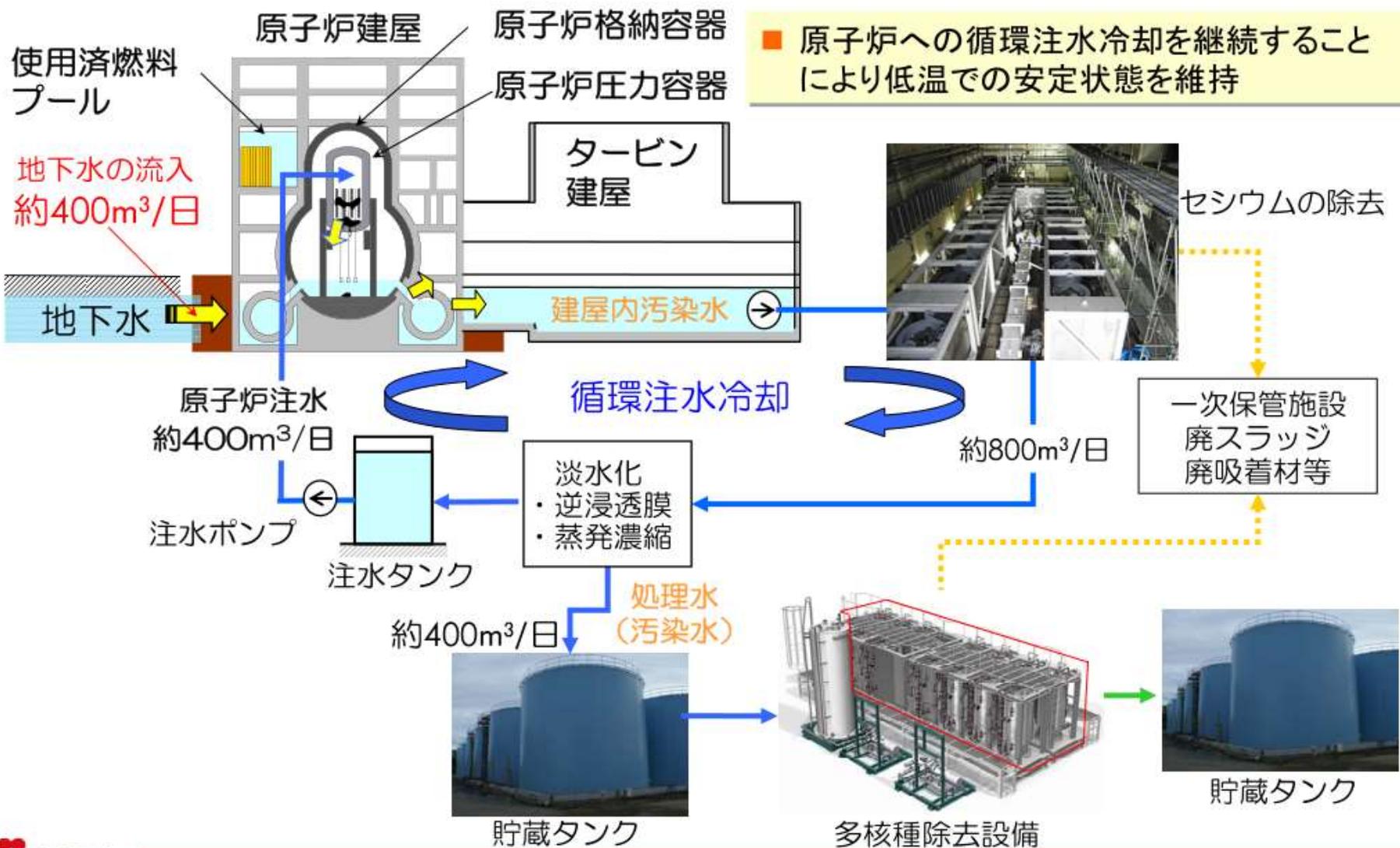
【選択肢】

- 分離
 - CECE法、その他
- 長期保管
 - タンク貯蔵、洋上貯蔵、地下貯蔵
- サイト内での廃棄
 - 地下注入、固化体埋設
- 環境放出
 - 自然蒸発、強制蒸発、海洋放出

【評価項目】

- 環境への影響・リスク
- 水産物への影響・リスク
- 人体への影響・リスク
- 処理期間（開始から完了までの時期）
- 対策実施に係るコスト
- 技術的可能性（技術成熟度、海外での実績）
- 法規制上の困難さ
- その他考えられる課題

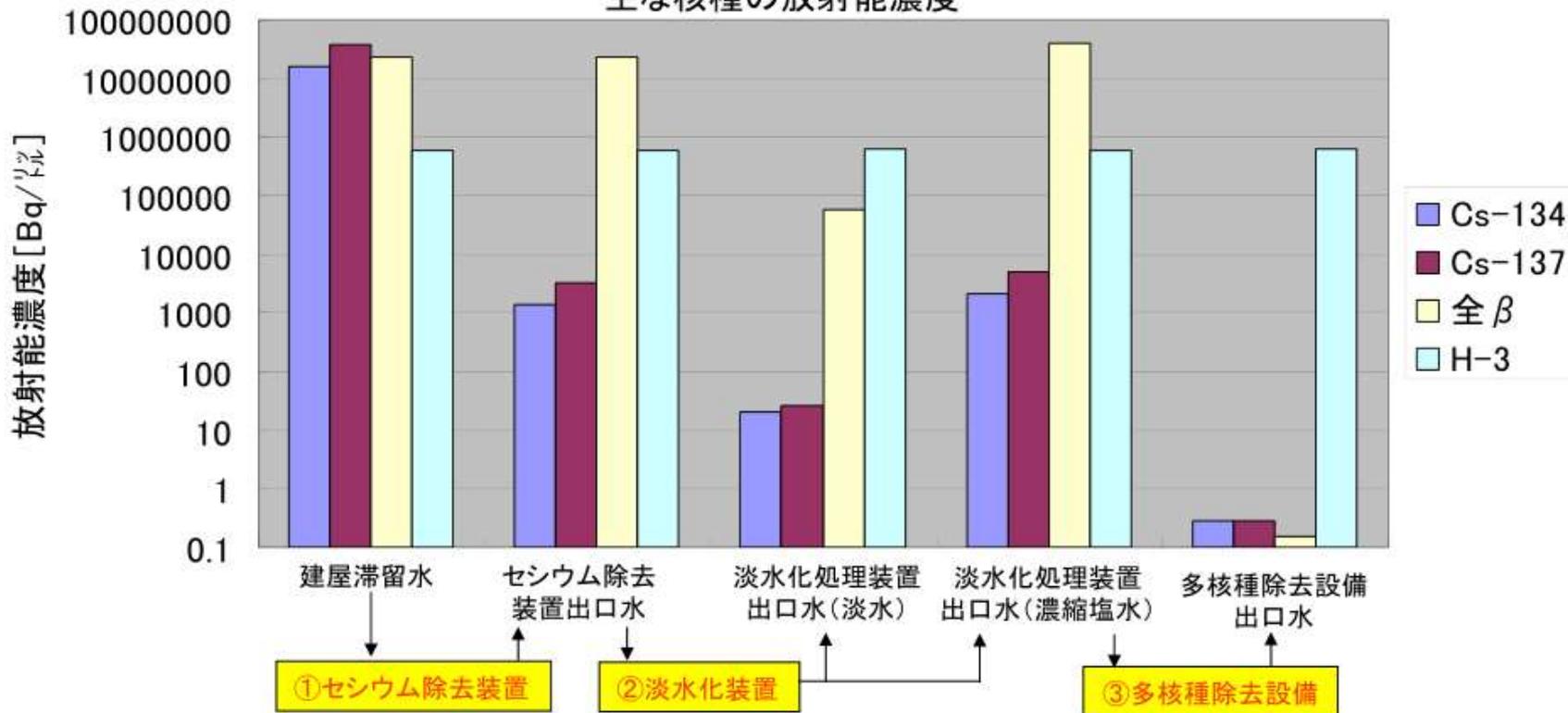
原子炉の冷却状況 循環注水冷却



汚染水の状況 汚染水処理の概要

- ① 主要な放射線(ガンマ線)源であるセシウムを、セシウム除去装置により低減
- ② 原子炉冷却水として使用する為、淡水化装置により塩分を除去
- ③ タンク貯留水の放射性物質濃度(トリチウムを除く)を、多核種除去設備により低減

主な核種の放射能濃度



※採取日 H25.11.5 (多核種除去設備出口水はH25.4.9~12)
 ※建屋滞留水における全β、H-3の濃度はセシウム除去装置出口水のデータを用いた
 ※多核種除去設備出口水の全βはSr-90の値を用いた
 ※検出限界値以下の場合、検出限界値を用いた

汚染水の状況 汚染水の貯蔵

- 総貯蔵容量*は約49万 m^3
- 総貯蔵量*は約46万 m^3
- 80万 m^3 までの増設計画(H26年度末迄の目標)



【各タンクの貯蔵容量*】

鋼製角型タンク	: 約 0.3万 m^3
鋼製円筒型タンク(フランジ)	: 約 30万 m^3
鋼製円筒型タンク(溶接)	: 約 14万 m^3
鋼製横置きタンク	: 約 4万 m^3

* H25.4.22現在

トリチウムの状況 トリチウムの総量について

■福島第一原子力発電所(1～4号機)における、トリチウムの量は以下と推測される。

2014.3.25時点

推定箇所		トリチウムの量		備考
		[Bq]	[g]※1	
総量		約 3.4×10^{15}	T:約9.5	※2
[内訳]	・タンク貯留水	約 8.3×10^{14}	T:約2.3 (THO:約15.5)	※3
	・建屋滞留水	約 5.0×10^{13}	T:約0.14 (THO:約0.9)	※4
	・海水配管トレンチ内水	約 4.6×10^{13}	T:約0.14 (THO:約0.9)	※5
	・その他	約 2.5×10^{15}	T:約6.9	※6

※1:トリチウム原子の重量(括弧内は「THO」の形態に相当する量を示す)

※2:事故時の炉内トリチウムインベントリーをORIGEN2を使用し評価(10～12頁参照)

※3:淡水化装置出口濃度データとタンク貯留水量より推測(13～14頁参照)

※4:淡水化装置出口濃度データ(2014.3)と建屋滞留水量(約92000m³)より推測

※5:淡水化装置出口濃度データ(2011.9)とトレンチ内滞留水量(約11000m³)より推測

※6:総量からタンク貯留水・建屋滞留水・トレンチ内水のトリチウム量を差し引いて算出
(タンク・建屋・トレンチ以外のトリチウムは主に燃料デブリ内などに存在するものと想定される)

事故時の炉内インベントリーと貯水に含まれるトリチウム

炉内トリチウムインベントリーは三体核分裂によるものが主なものであることから、ORIGEN2(原子燃料燃焼計算コード)を使用し、事故時の詳細な評価を行うと次のようになる。

(Bq)

	1号機	2号機	3号機	合計
TEPCO	1.0E+15	1.2E+15	1.2E+15	3.4E+15
<参考>JAEA*	9.4E+14	1.2E+15	1.2E+15	3.3E+15

* 日本原子力学会和文論文誌「福島第一原子力発電所の滞留水への放射性核種放出」(西原賢司 他)

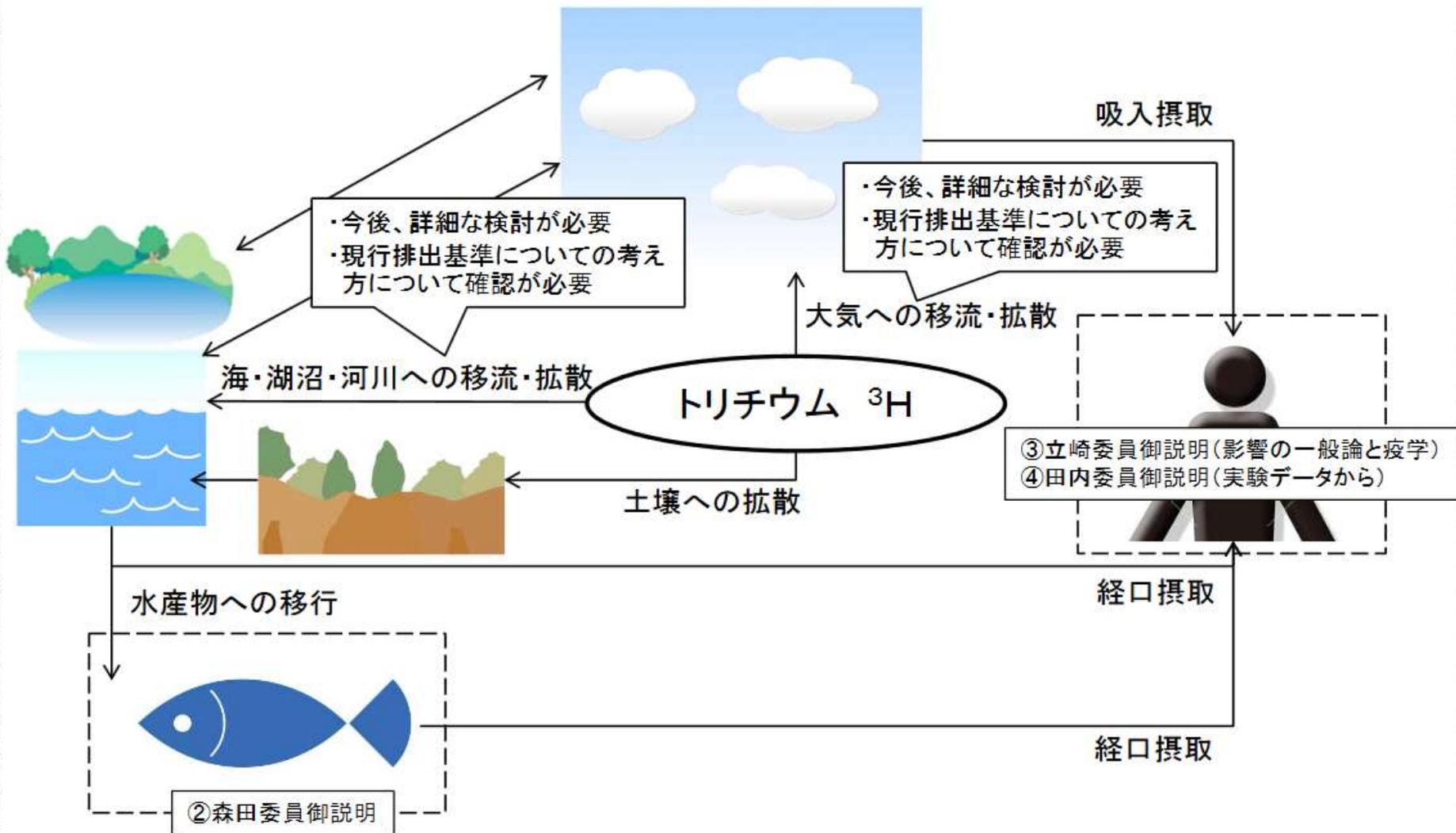
- 事故前は評価結果のトリチウムのうち、約60%程度が燃料棒の被覆管に吸蔵※していたと考えられる。
- 現在(2014年3月末)、タンクに貯水される水に含まれるトリチウムの総量は 8.34×10^{14} Bqと推定され、2016年2月末では約 9×10^{14} Bqになると推定される。
- この時(2016年2月末)の新たに処理される水に含まれるトリチウムの濃度は 6.7×10^4 Bq/l程度であると推定される。
- 表中の1~3号機のトリチウムを合計した 3.4×10^{15} Bqはトリチウム原子の重量9.5gに相当する量。(トリチウムが「THO」の形態で存在した場合、63.3gに相当する)

※ ㈱東芝「実ハル圧縮試験」(JAEA(旧動力炉・核燃料開発事業団)契約業務報告書) 1996年9月

トリチウムの環境動態・影響について

平成26年2月7日
トリチウム水タスクフォース事務局

① 柿内委員御説明(全体論)



■ トリチウム(^3H)の環境動態

- 環境 ^3H の分類
- ^3H の分析法
- 一般環境の ^3H
- 事故由来の ^3H

トリチウム(^3H , T)とは

水素の放射性同位体

■天然のトリチウム

宇宙線との相互作用により生成

■人為起源のトリチウム

トリチウムの環境中挙動

(1) 地球規模での挙動

(2) 局所的に放出された場合の挙動

^3H は低エネルギー β 線放出核種であるため、ヒトへの影響を考える場合は体内摂取、すなわち内部被ばくを考慮する。

国際放射線防護委員会(ICRP)が提示している ^3H の線量換算係数(Sv/Bq)は、吸入および経口摂取のいずれの場合も、その化学形により大きく異なっているので、環境中の ^3H の存在形態を知ることは、その挙動を知るためだけでなく、ヒトへの影響を考える上でも重要である。

内部被ばくの場合、放射性核種1 Bqを急性摂取(1回摂取)したときの預託実効線量(mSv)との比を実効線量係数(単位mSv/Bq)といい、預託実効線量の計算に用いる。

年間の核種摂取量(Bq)

$$= \text{環境試料中の年間平均核種濃度} \\ \times \text{その飲食物等の年間摂取量}$$

預託実効線量(mSv)

$$= \text{実効線量係数(mSv/Bq)} \\ \times \text{年間の核種摂取量(Bq)}$$

(\times 市場希釈係数 \times 調理等による減少補正)

預託実効線量は、摂取した年の1年間に受けたものと見なして、その年の外部被ばくの実効線量と合計し、その合計値が線量限度を超えないように核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律等において、個人の被ばくを管理する

トリチウムに関する我が国の規制

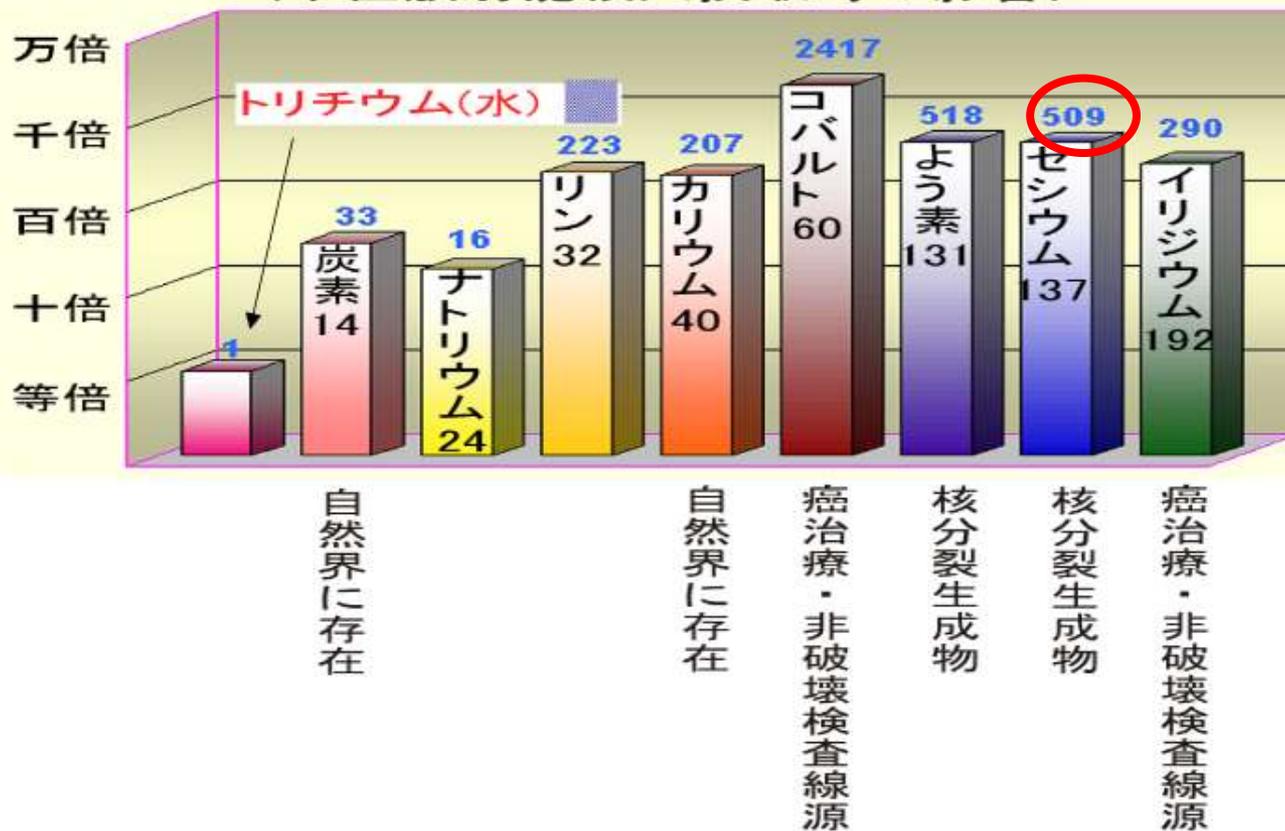
放射線障害防止法関連法令で定められた値

トリチウムの化学形	実効線量係数 (mSv/Bq)		濃度限度 (Bq/cm ³)		
	吸入	経口	作業環境の 空气中 (1週間の平均値)	排気中 (3ヶ月の平均値)	排液又は 排水中 (3ヶ月の平均値)
元素状水素	1.8×10^{-12}	1/10000倍	1×10^4	7×10^1	
メタン	1.8×10^{-10}		1×10^2	7×10^{-1}	
水	1.8×10^{-8}	1.8×10^{-8}	8×10^{-1}	5×10^{-3}	6×10^1
有機物(メタン以外)	4.1×10^{-8}	1.7×10^{-8} 約2.3倍	5×10^{-1}	3×10^{-3}	2×10^1
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

60,000 Bq/L

トリチウムの生物影響

トリチウムとよく知られた放射性核種との生物影響の比較
(単位放射能吸入摂取時の影響)



体重65kgの人は
カリウム40
4000 Bq
炭素14
3700 Bq
トリチウム水
100 Bq

新陳代謝
水素の仲間は**水の形で10日**、**有機物の場合で平均40日**で入ってきた量の半分が体外に排出されます。

^3H 約50000 Bq/kg

^{137}Cs 100 Bq/kg

環境³Hの試料分類と測定法

大気水蒸気(HTO)
分子状水素 (HT)
炭化水素 (CH₃T)

降水、水道水、河川水、
海水

有機物 (FWT)

有機物 (OBT)

土壌水分

水試料

LSCによる
³H測定

乾燥試料

質量分析法に
よる³H由来の
³He測定

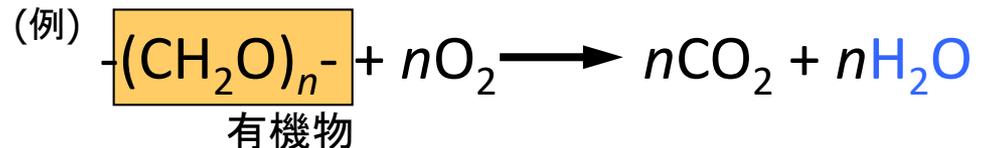
環境試料中³H濃度の表し方

水

- 1Lあたりに1 Bq存在 → 1 Bq L⁻¹ (1 Bq/L)
- 水素原子10¹⁸個あたり³H原子が1個存在
→ 1 TU (= 0.118 Bq L⁻¹)

有機物

- 有機物試料1kgあたりに1 Bq存在 → 1 Bq kg⁻¹-湿
- 乾燥試料1kgあたりに1 Bq存在 → 1 Bq kg⁻¹-乾
- 燃焼水1Lあたりに1 Bq存在 → 1 Bq L⁻¹-燃焼水



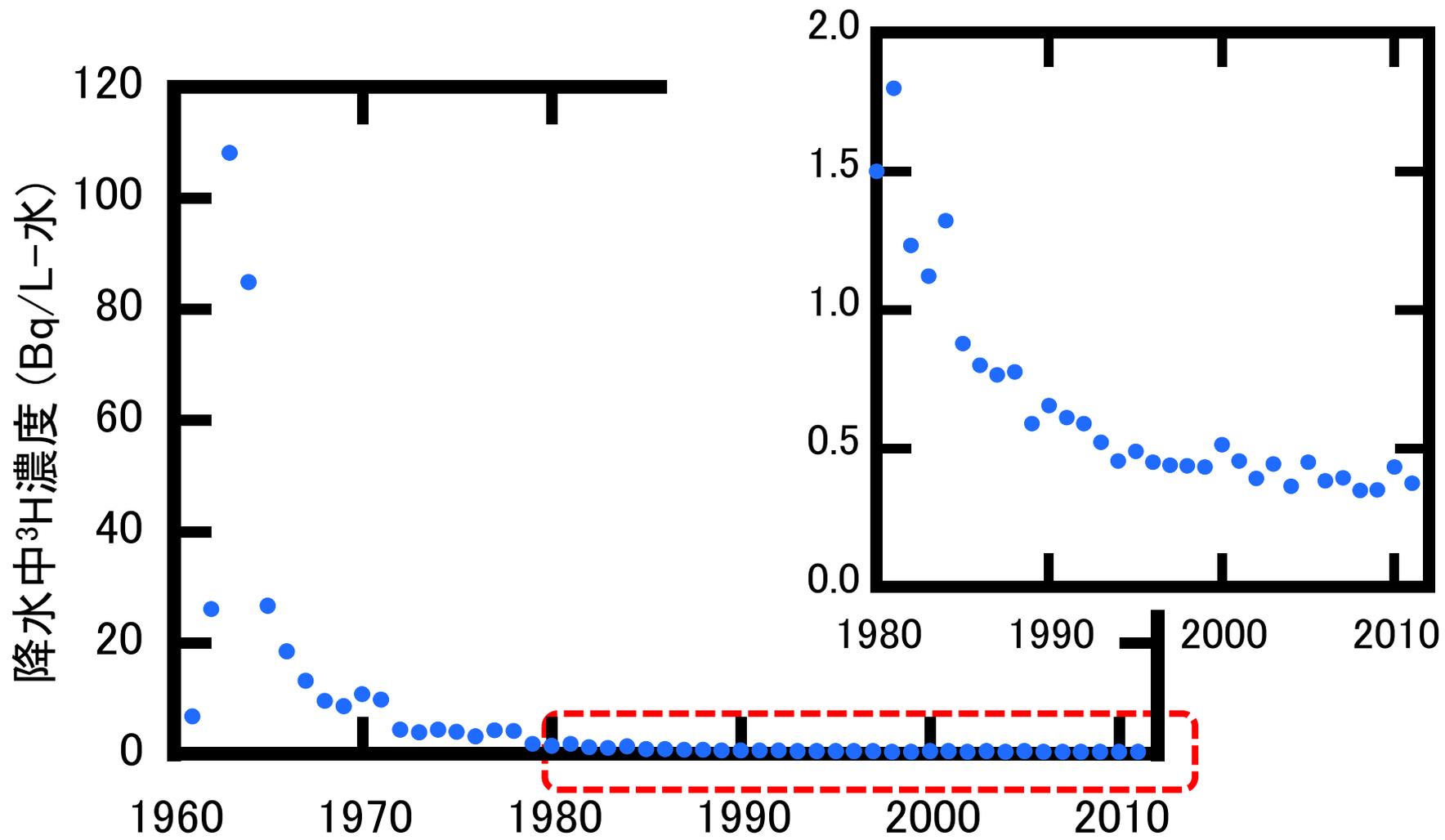
大気

- 大気1m³あたりに1 Bq存在 → 1 Bq m⁻³ (1 Bq/m³)

(HTO)

- 水蒸気1 Lあたりに1 Bq存在 → 1 Bq L⁻¹ (1 Bq/L)

降水中³H濃度の推移(東京、千葉)



<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html#>
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/>

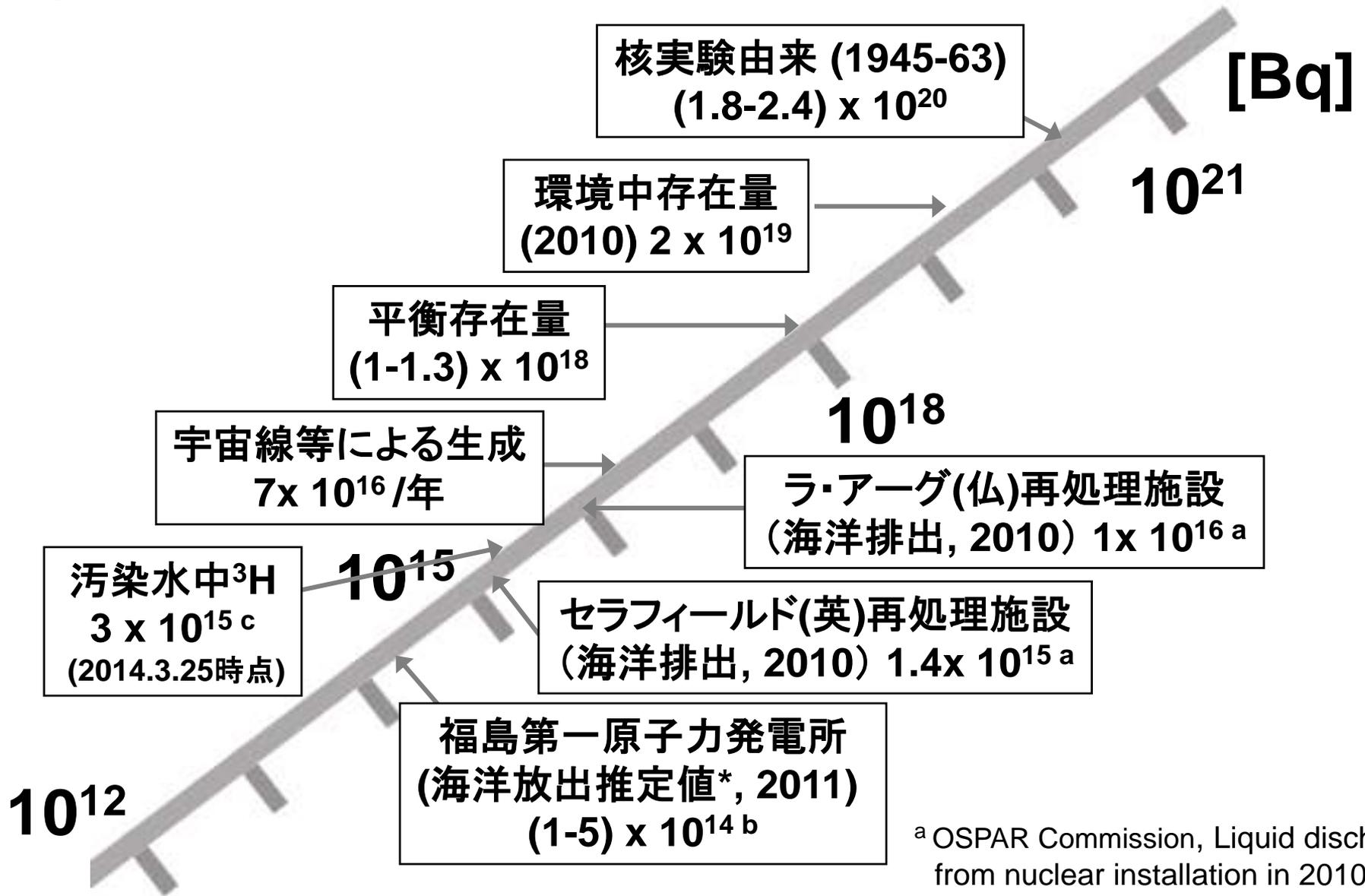
・ 最近の降水中トリチウム濃度は 0.5 Bq/Lを下回っている

大氣中³H濃度

Location	Period	HTO (mBq m ⁻³)	HT (mBq m ⁻³)	CH ₃ T (mBq m ⁻³)
Kumamoto	2003–2005	6.7 ± 5.4	12.5 ± 6.9	9.0 ± 8.2
Toki	2003–2006	9.0 ± 6.5	9.0 ± 1.6	2.0 ± 1.2
Rokkasho	2005–2006	3.6 ± 2.3	8.5 ± 2.6	1.9 ± 0.8

	(TU)	(TU)	(TU)
	7	4 x 10 ⁵	2 x 10 ⁴

環境中³Hインベントリー



^a OSPAR Commission, Liquid discharges from nuclear installation in 2010. No. 569, 2012

^b Biogeosciences 10 (2013) 5481-96.

^c 東京電力

福島沖海水中³H濃度 (2011年6月)

福島沖表層海水(200-300 mまで)中³H濃度^a
バックグラウンド 0.07 Bq L⁻¹
事故後 0.15 Bq L⁻¹

水圏環境において、生物中FWT 濃度 [FWT]と水中³H濃度[HTO]は速やかに平衡に達する。

$$[FWT] \doteq [HTO]$$

水から生物へ³Hの生体濃縮は起こらないので、水棲生物中OBT濃度 [OBT]と[HTO]の比は1を超えない。^b

$$\frac{[OBT]}{[HTO]} \leq 1$$

事故後上昇した海水中³H濃度から線量の推定

- (仮定) ・魚を年間60kg摂取^c
- ・[OBT]=[HTO]
- ・魚中³H がすべてOBTとして存在

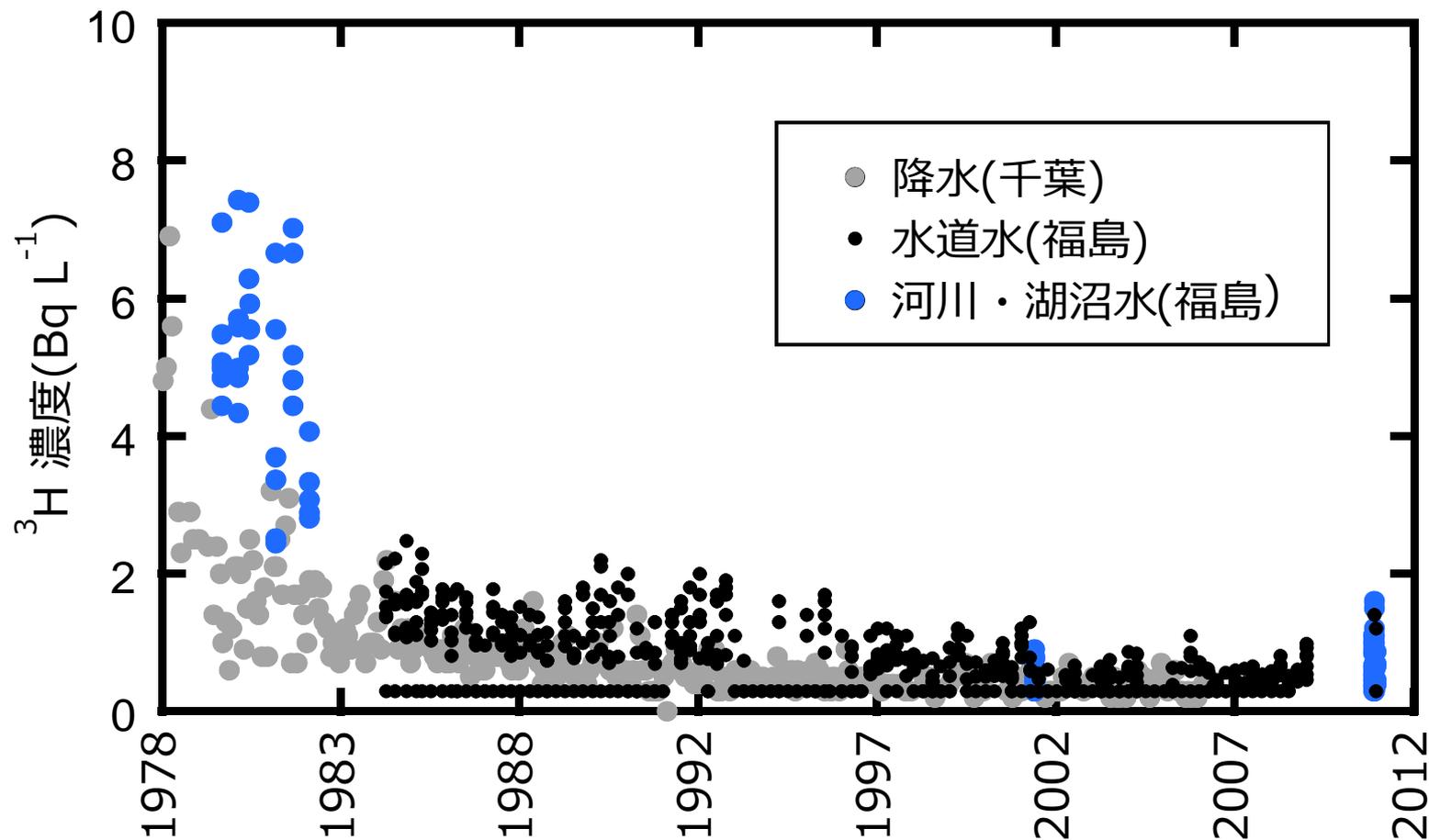
$$60 \text{ (kg/y)} \times 0.08 \text{ (Bq/kg)} \times 4.2 \times 10^{-11} \text{ (Sv/Bq)} = 2 \times 10^{-10} \text{ (Sv/y)}$$

^a Povinec, P. P. et al. Cesium, iodine and tritium in NW Pacific waters - a comparison of the Fukushima impact with global fallout, Biogeosciences 10 (2013) 5481-96.

^b Jean-Baptiste, P., et. al. Environmental OBT/TFWT ratios revisited, Fusion Science and Technology, 60, (2011) 1248-1251.

^chttp://www.jfa.maff.go.jp/j/kikaku/wpaper/h22_h/trend/1/t1_2_1_1.html

福島県河川水及び水道水中³H濃度 (1978 -2011) 及び千葉県の前降水中³H濃度 (1978 -2007)



<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html#>.

<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/>

<http://wwwcms.pref.fukushima.jp/download/1/tritium111115-111215.pdf>

^3H の環境移行と線量評価

ヒトへの被ばく経路(トリチウムは内部被ばくが重要)

1. 植物によるOBTの形成(光合成)
2. 食物連鎖での動物・ヒトへの移行
3. 摂取したOBTによる被ばく、組織への蓄積
4. 呼吸による取り込み

- ・モデル解析による被ばく線量評価
- ・環境データによる安全確認が必要

放射性セシウムとトリチウムの比較

濃縮係数(生物中濃度/水中濃度)

	 海産魚類	 淡水魚類	  軟体類	 海藻類
Cs-137	5 ~ 100	400~2000*1	10 ~ 60	10 ~ 50
H-3 *2	1	—	1	1

*1 見かけの濃縮係数、*2 自由水、—は、データ無し。参考文献(1,2)

- 直接、有機結合型H-3を取り込んだ場合は、**見かけの濃縮係数**が非常に高くなる場合がある。例として、Nycomed-Amersham plant (UK) からの放出で、海産魚類(約3700)、貝類(約3100)、海藻類(約56) 参考文献(3)

生物学的半減期

	 海産魚類	 淡水魚類	 軟体類	 海藻類
Cs-137	19 ~ 84 日	50 ~ 340 日	75 日	54 日
自由水 H-3	—	12 ~ 54 分	11~190日	0.2 ~75 分
有機結合型 H-3	—	5 ~ 8 日	11~190日	2.3 ~50日(増殖期) 150日(飽和期)

—は、データ無し。参考文献(4,5,6,7,8)

- 飲水をほとんど行わない淡水魚に対して、海産魚は1日最大体重の20%の飲水をするので、H-3(特に自由水)の交換は早いと思われる。

トリチウムの海洋生物への影響評価

例：底魚において、トリチウムが対象生物体内に均一に分布、海水濃度が放出基準値の60000 Bq/L、濃縮係数1と仮定すると、被ばく線量率は、 $0.48 \times 10^{-2} \text{ mGy/day}$ と計算される。

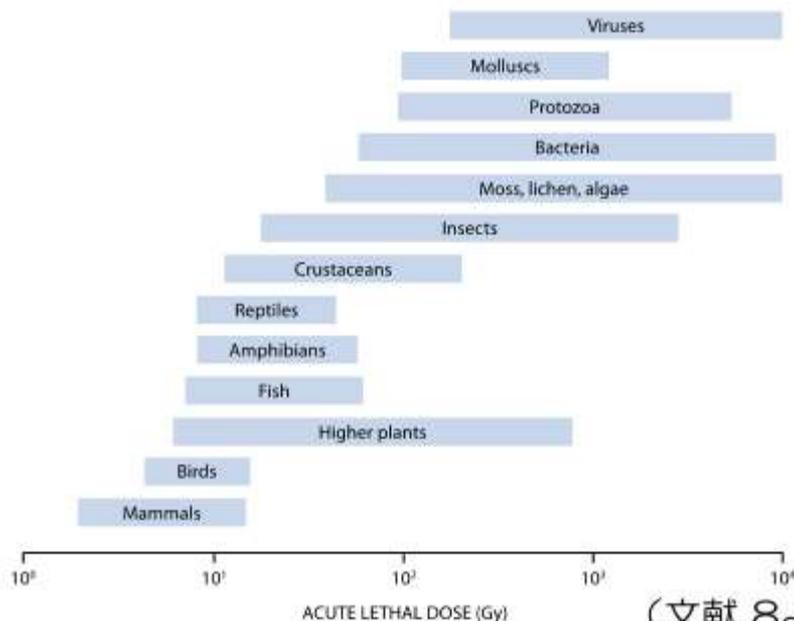
評価基準の例：

NCRP: 「ある水生生物集団において、最大の被ばくを受ける個体が10 mGy/day程度の慢性的な線量率であるなら集団の防護に十分であると考えられる」 (文献 9)

IAEA: 「水圏環境において、生物集団の最大の被ばくを受ける個体が10 mGy/dayあるいはそれ以下に慢性的な線量率を制限すれば集団を適切に防護できると考えられる」 (文献 10)

UNSCEAR: それ以下の線量では影響でないと予想される「標準線量率」に、植物プランクトン、動物プランクトン、底生生物、魚類にそれぞれ、8.2, 6.8, 2.5, 1.6 mGy/day を与えている (文献 8)

Approximate acute lethal dose ranges for various taxonomic groups



(文献 8より)

○福島第一原発2号基の前面で採取されたアイナメから放射性セシウムが74万Bq/kg生検出された例があり、この魚の被ばく線量率は、3.2 mGy/day と計算されるが、

多産及び初期生残率が極端に低い水生生物においては、局所的な高濃度の汚染は集団に与える影響は低いと考えられる。

告示濃度 (60000 Bq L⁻¹) から線量の推定

水圏環境において、生物中FWT 濃度 [FWT]と水中³H濃度[HTO]は速やかに平衡に達する。

$$[\text{FWT}] \doteq [\text{HTO}]$$

水から生物へ³Hの生体濃縮は起こらないので、水棲生物中OBT濃度 [OBT]と[HTO]の比は1を超えない。

$$\frac{[\text{OBT}]}{[\text{HTO}]} \leq 1$$

- (仮定)
- ・魚を年間60kg摂取
 - ・[OBT]=[HTO]
 - ・魚中³H がすべてOBTとして存在

$$\begin{aligned} 60 \text{ (kg/y)} \times 60000 \text{ (Bq/kg)} \times 4.2 \times 10^{-11} \text{ (Sv/Bq)} &= 1.5 \times 10^{-4} \text{ (Sv/y)} \\ &= 0.15 \text{ (mSv/y)} \end{aligned}$$

漁業者の不安

- トリチウムを含んだ汚染水の海洋放出は、水産物の**新たな風評被害**を生じさせる。
- 風評被害を払拭するには、放射性セシウム同様、測定データを公表していく必要がある。
- 生物の測定は非常に難しい。仮に濃縮係数1として海水の測定値で代用しても、**基準値がないので安全の判断ができない**。
- **被ばく量の問題を無視して、危険性が高いことのみを強調する言説が流布していることから、専門家から正しい情報を提供していただくことが必要**。

トリチウムに関しては以下の理由により、基準値に含まれていない。

- トリチウムの食品中濃度が問題となるのは、環境中に大量かつ継続的に放出され、光合成によって植物に取り込まれ、有機物として蓄積する場合である。今回の事故においては、これらの核種は放出されて拡散している可能性があるが、放射性ブルームは比較的短期間で通過しており、既に、環境中において拡散希釈されていると考えられる。よって、考慮しなければならないほどの線量となることは考えかたい
(厚生労働省 薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会 放射性物質対策部会報告書より)。
- トリチウムは、食品中において考慮しなければならないほどの線量となるとは考えられないことから、基準値には含まれていません(厚生労働省HPより)。

トリチウムによる人に対する事故

- 1960年代のヨーロッパで、トリチウムを含む夜光剤を使用する工場では研究者あるいは作業員に被ばく事故が発生している。
- 2例の死亡が報告
- 被ばく線量は極めて不確定：尿中のトリチウム量などから3～20 Svと推定
- 死因は骨髄障害による汎血球減少症
- このうち1例の助手に貧血発生

疫学研究 — レビュー

- トリチウムの被ばくに関連する疫学研究の系統的レビュー
- Little MP, Wakeford R., "Systematic review of epidemiological studies of exposure to tritium.", J Radiol Prot. 2008 Mar;28(1):9-32.
- 対象:
 - 作業員(英国、米国、カナダ)
 - 環境放出による胎内被ばくと作業員子孫(カナダ、ドイツ、米国)
- 結論: 作業員や公衆についてののがんやその他の健康影響に対する利用可能な研究は、トリチウムに特化した線量の欠如、低線量、少数の対象人数によって有用性が損なわれている。英国作業員のコホート研究で個人のトリチウム線量を得られる可能性はあるが、多くの労力(資金)を要する。英国以外でも、カナダや米国での作業員の研究も同じく可能性がある。

トリチウム生体影響の特徴(これまでの文献データの概要)

- ・ トリチウム被ばくは通常**内部被ばく**である
- ・ 生体内では、水(HTO)および有機物結合型(OBT)として存在する
- ・ 生体内での半減期は、7日～18日(HTO)および40日程度(OBT)
- ・ 生物学的効果比(RBE)は1.0～2.0程度
(これより高い、あるいは低いという報告もある)
- ・ 半致死線量は8Gy程度
(マウス腹腔内投与で0.56～0.93 GBq/g体重)

表3 マウスを使った研究から得られたトリチウムβ線のRBE.

評価の方法	RBE	吸収線量 (Gy)	研究者
LD _{50/30}	1.7	4～8	J.E. Furchner (1957)
脾臓と胸腺の萎縮	1.3～1.5	1～10	J.B. Storer <i>et al.</i> (1957)
造血細胞の染色体異常	1.0～2.0	0.6	R. Kozkowski <i>et al.</i> (2001)
小腸クリプト細胞のアポトーシス	1.4～2.1	0.13～0.28	K. Ijiri (1989)
卵母細胞の生存率	1.6～3.0	0.055	R.L. Dobson <i>et al.</i> (1976)

出典:馬田ほか プラズマ核融合学会誌 2012

* RBE: ガンマ線やX線を1としたときの放射線の生体影響の大きさをあらわす

トリチウム分離に係る工業技術

平成26年1月15日

日本原子力研究開発機構

山西敏彦

山本徳洋

目次

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。

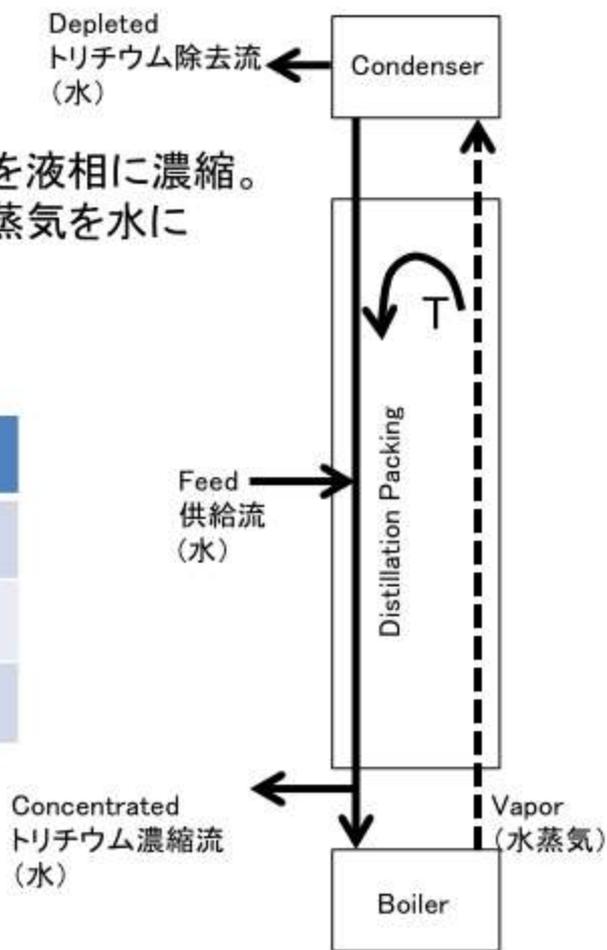
水の平衡蒸気圧 (torr)

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 ($\doteq P(\text{H}_2\text{O})/P(\text{HTO})$) 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。



蒸留法の概念

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。

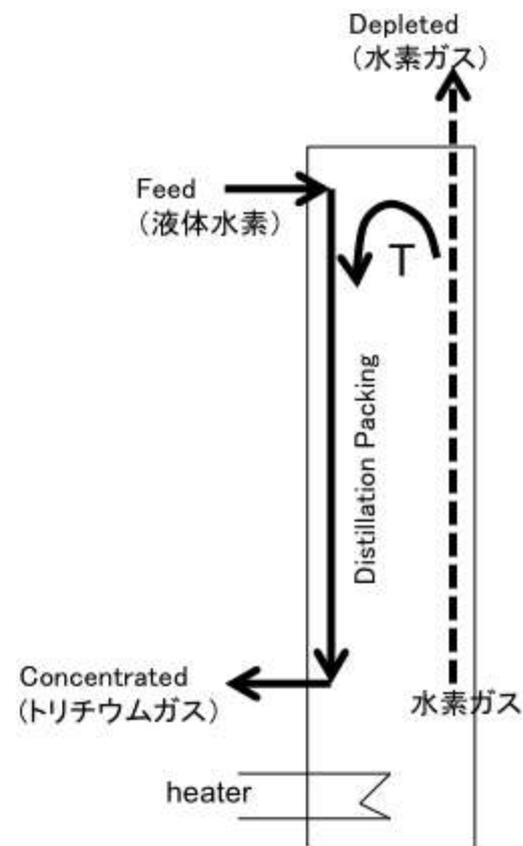
液体水素の平衡蒸気圧 (torr)

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 ($\cong P(\text{H}_2)/P(\text{HT})$)。

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

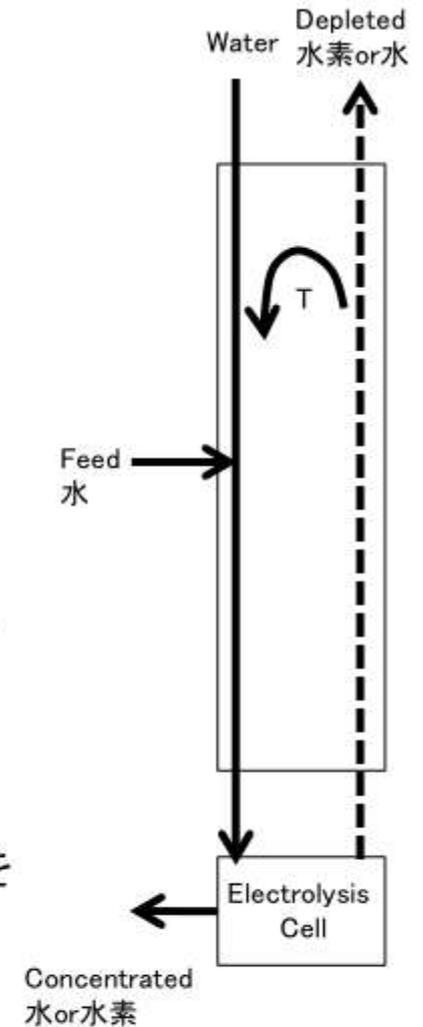
1-2 同位体交換法—水/水素同位体交換(1)

原理:

- ・水 \leftrightarrow 水蒸気 \leftrightarrow 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 $\alpha_V: H_2O(L) \leftrightarrow H_2O(V)$ と蒸気-水素間の分離係数 $\alpha_G: H_2O(V) \leftrightarrow H_2(G)$ 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

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

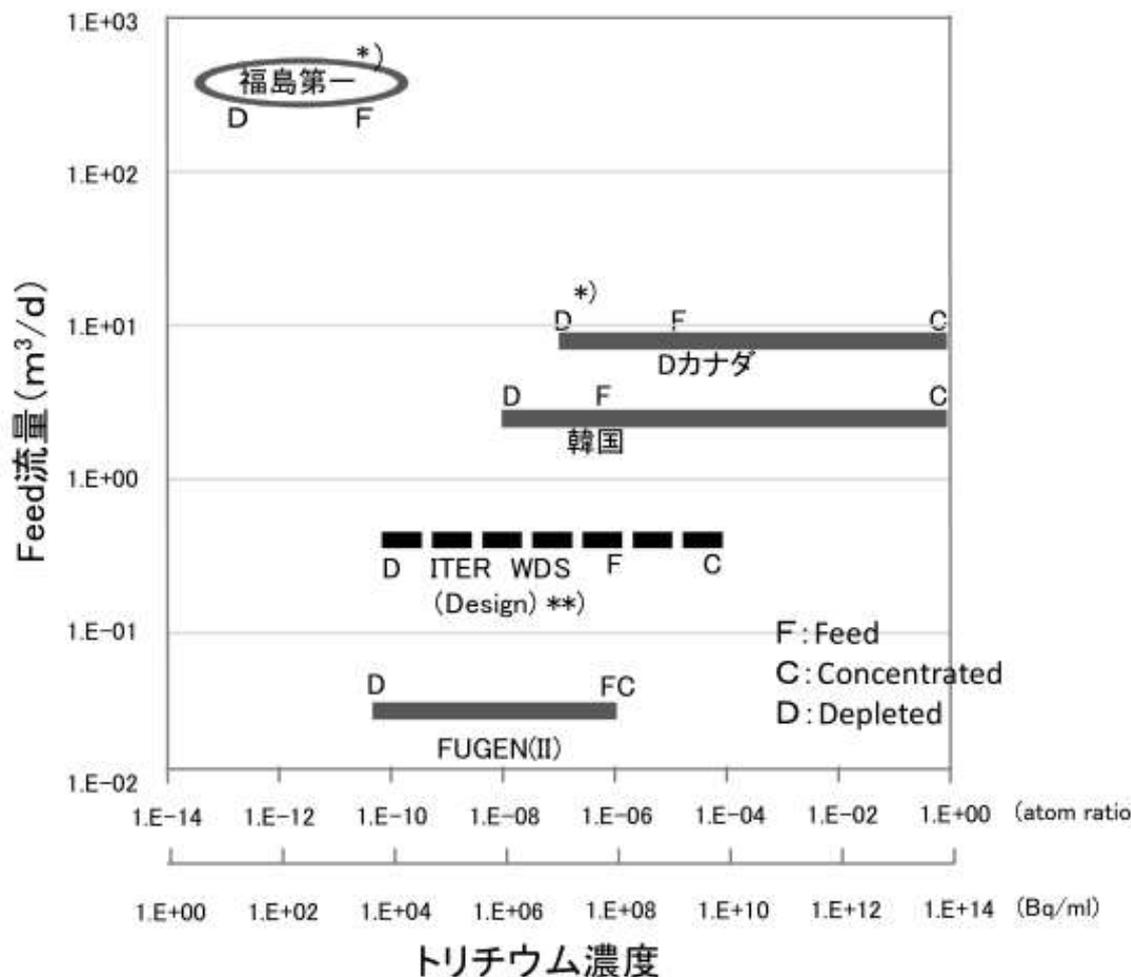
短所：繰り返し操作の為に、分解した水素ガスと酸素ガスを再結合し、再度電気分解を行う必要→エネルギー消費量大。
最近は単独での利用はほとんどない。

<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。

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。

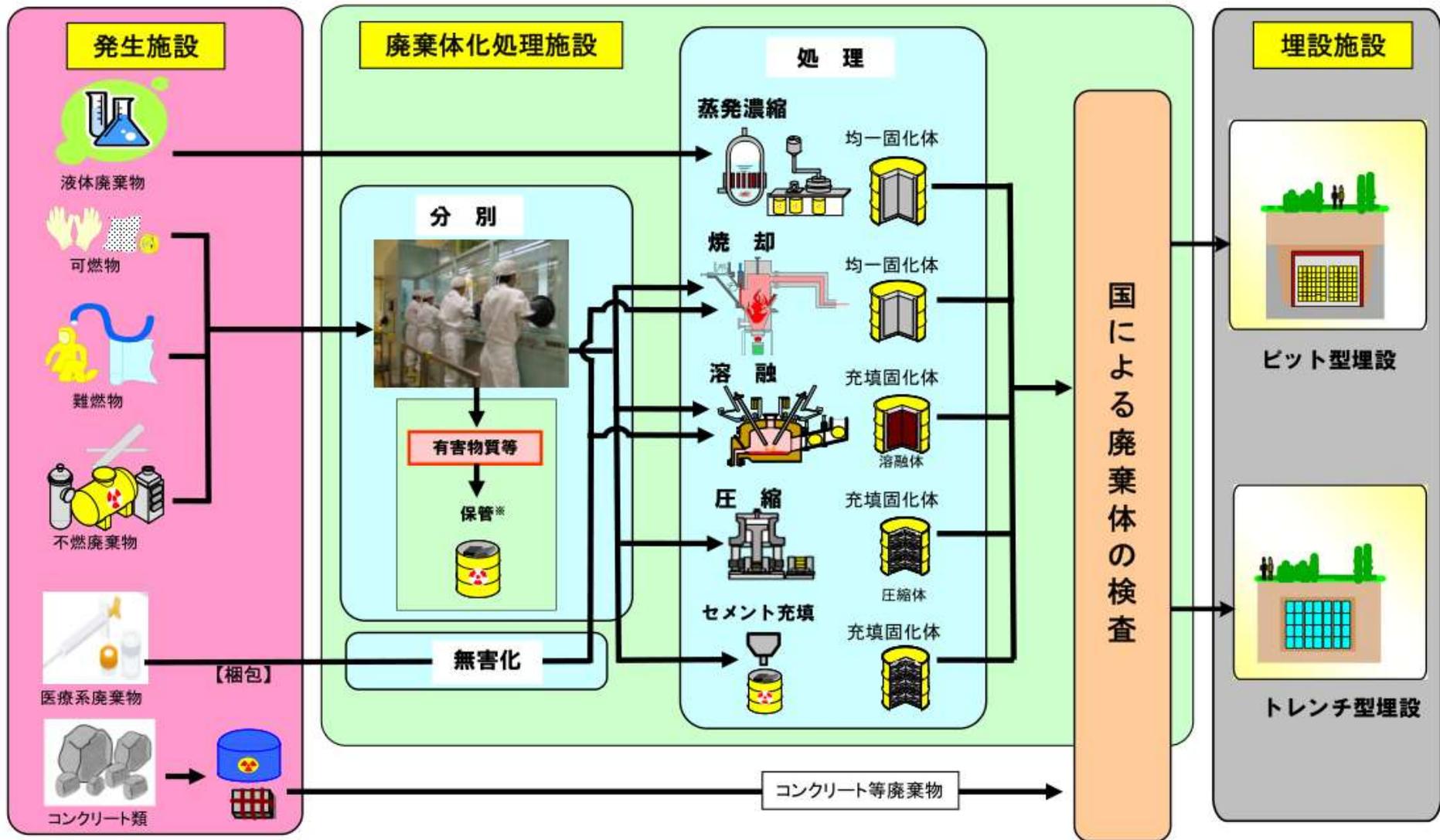
***) 建設中のITERのトリチウム水処理設備の設計

浅地中埋設処分施設の基本概念と 安全評価の考え方について

平成26年2月27日(木)

原子力機構 埋設事業推進センター
設計技術課

① 放射性廃棄物の処理・処分



② 放射性廃棄物の処分方法

処分深度(目安)

地表

50m

100m

200m

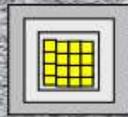
300m



トレンチ型埋設処分



ピット型埋設処分



余裕深度処分

低レベル放射性廃棄物

低

放射能濃度

高

高レベル放射性廃棄物

(低レベル放射性廃棄物の一部)

(ガラス固化体)



地層処分

④ 浅地中処分施設の安全評価

初期建設

作業
(約50年)

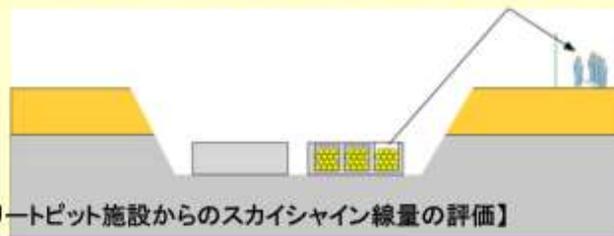
最終覆土

閉鎖後管理※
(ピット : 約300年)
(トレンチ : 約50年)

管理期間終了
(事業廃止)

作業・管理期間中の評価

処分施設の管理(作業)期間中において、事業所(周辺監視区域)境界上の最大となる地点で、一般公衆が受ける線量を評価し、線量目標値以下であることを確認



【例:コンクリートピット施設からのスカイシャイン線量の評価】

線量基準 : 1mSv/y ※
線量目標値: 50 μSv/y ※

管理期間終了後の評価

管理期間終了後、埋設地及び周辺において、一般公衆が受けると想定される線量を評価し、管理期間終了後の線量のめやす値以下であることを確認



線量めやす値
基本シナリオ(確からしい想定に基づくシナリオ)
: 10 μSv/y ※
変動シナリオ(周辺環境や埋設施設の変動を
想定したシナリオ)
: 300 μSv/y ※
等

放射性物質が処分施設から地下水へ浸出し、その放射性物質による周辺環境における線量評価、埋設地を利用することにより埋設地に残存する放射性物質からの線量評価を実施する。

※ 第二種廃棄物埋設施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則の解釈(制定平成25年11月27日原管廃発第1311277号原子力規制委員会決定)

各選択肢に係る概念設計の検討

汚染水処理対策委員会事務局
平成27年12月4日

2. 評価ケース

- 評価ケースは、本タスクフォースで検討を実施している11個の選択肢（※1）を基本とする。すなわち、
 - 地層注入（前処理なし／希釈／分離）
 - 海洋放出（希釈／分離）
 - 水蒸気放出（前処理なし／希釈／分離）
 - 水素放出（前処理なし／分離）
 - 地下埋設（前処理なし）
- ただし、水蒸気放出は、放出率（Bq/s）に影響を受け、濃度（Bq/L）には影響を受けない（後述）ため、濃度を低下させることを念頭に置いている「水蒸気放出（希釈）」は「水蒸気放出（前処理なし）」と統合した。
- また、水素放出はトリチウム水を電解等によって水素にすることを念頭に置くが、「水素放出（分離）」の場合、分離技術の種類によっては減損側が既に水素の状態のものがおり、その場合、減損側をそのまま水素放出することが可能であるため、当該ケースを新たな評価ケースとして加えることとした。
- 処分対象とするトリチウム水の原水濃度は、最も高い420万Bq/Lの場合と、最も低い50万Bq/Lの場合（※1）の2つのケースを設定することとした。
- 分離ケースについては、別途実施してる汚染水処理対策技術検証事業（トリチウム分離技術検証試験事業）にて、分離係数100（減損側の放射エネルギーが100分の1となること）を前提とした検討を実施しているため、本評価においても分離係数100を前提とした。

トリチウムの取扱いに関する選択肢

記号	処分方法	前処理
A1	地層注入	なし
B1		希釈
C1		分離
B2	海洋放出	希釈
C2		分離
A3	水蒸気放出	なし
B3		希釈
C3		分離
A4	水素放出	なし
C4		分離
A5	地下埋設	なし

□ 各選択肢を横並び比較するための統一条件として、以下の3つを設定した。

※これらの条件は、比較検討のため便宜的に設定。処分量、処分速度、処分濃度は実施時期や具体的な手法の検討により変動しうるものであり、下記条件は処分条件を意図するものではない。

1. 処分量 : 80万 m^3

- 現状の1～4号機タンク総水量（約74万 m^3 ：平成27年11月19日時点）を元に設定。

2. 処分速度 : 400 m^3 /日

- 別途実施してる汚染水処理対策技術検証事業（トリチウム分離技術検証試験事業）にて、前提としている処理速度。
※「汚染水増加量（当時の評価値） \leq 処分速度」となるよう設定

3. 処分濃度 : 告示濃度以下

- 被ばく影響を統一させるために、各選択肢に適用される告示濃度上限で処分するものとする。（告示濃度に達しない場合は、あえて濃縮等はせず、そのまま処分することとする）。

選択肢の略称と成立性

前処理	処分方法	略称	記号	成立性	成立性について特に留意すべき事項
なし	地層中に注入廃棄	地層注入	A1		適用する基準がなく、取扱いを要検討
	海洋放出	海洋放出	A2	×	濃度限度(60Bq/cm ³)を考慮すると、実現困難
	水蒸気として大気放出	水蒸気放出	A3		
	水素に還元し、水素ガスとして大気放出	水素放出	A4		
	固化orゲル化し、地下に埋設廃棄	地下埋設	A5		
	トリチウム水を貯蔵	貯蔵	A6		最終形にはならず、あくまで一時的な措置
希釈	地層中に注入廃棄	希釈後、地層注入	B1		適用する基準がなく、取扱いを要検討
	海洋放出	希釈後、海洋放出	B2		効率的な希釈方法等についても要検討
	水蒸気として大気放出	希釈後、水蒸気放出	B3		
	水素に還元し、水素ガスとして大気放出	希釈後、水素放出	B4	×	希釈により取扱い水量が増大するため、処理が困難化
	固化orゲル化し、地下に埋設廃棄	希釈後、地下埋設	B5	×	希釈により取扱い水量が増大するため、処理・管理が困難化
	トリチウム水を貯蔵	希釈後、貯蔵	B6	×	希釈により取扱い水量が増大するため、処理・管理が困難化

同位体分離	減損	地層中に注入廃棄	分離後、地層注入	C1		適用する基準がなく、取扱いを要検討
		海洋放出	分離後、海洋放出	C2		
		水蒸気として大気放出	分離後、水蒸気放出	C3		
		水素に還元し、水素ガスとして大気放出	分離後、水素放出	C4		
		固化orゲル化し、地下に埋設廃棄	分離後、地下埋設	C5	×	分離後にも長期管理が必要となり、分離のメリットなし
		トリチウム水を貯蔵	分離後、貯蔵	C6	×	分離後にも長期管理が必要となり、分離のメリットなし
	濃縮	高濃度・少量のトリチウム水を廃棄	濃縮廃棄	C'a		廃棄方法を要検討
		高濃度・少量のトリチウム水を貯蔵	濃縮貯蔵	C'b		最終形にはならず、あくまで一時的な措置(最終的な処理・活用方法についても要検討)

Tritium Activity, Biological Effects, and Regulations

Specific/Locus Mutations

27,750,000,000 Bq L⁻¹

LD_{50/30} in Mice

37,000,000,000 Bq L⁻¹

100 GBq

10 GBq

Chromosome Aberrations, Mutations, and Cell Killing

110,000,000 Bq L⁻¹

1 GBq

No Detectable Cancer or life shortening

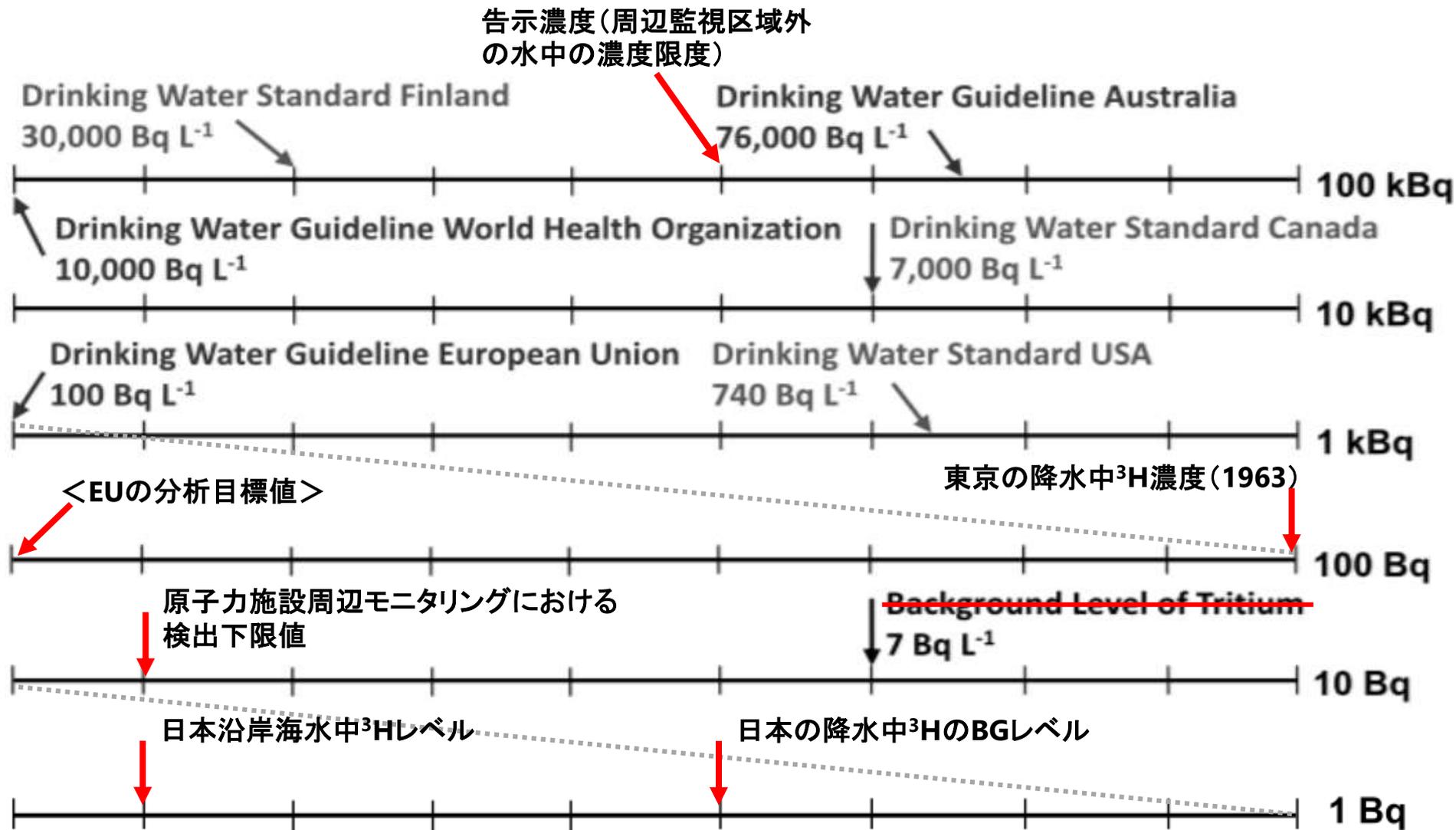
37,000,000 Bq L⁻¹

100 MBq

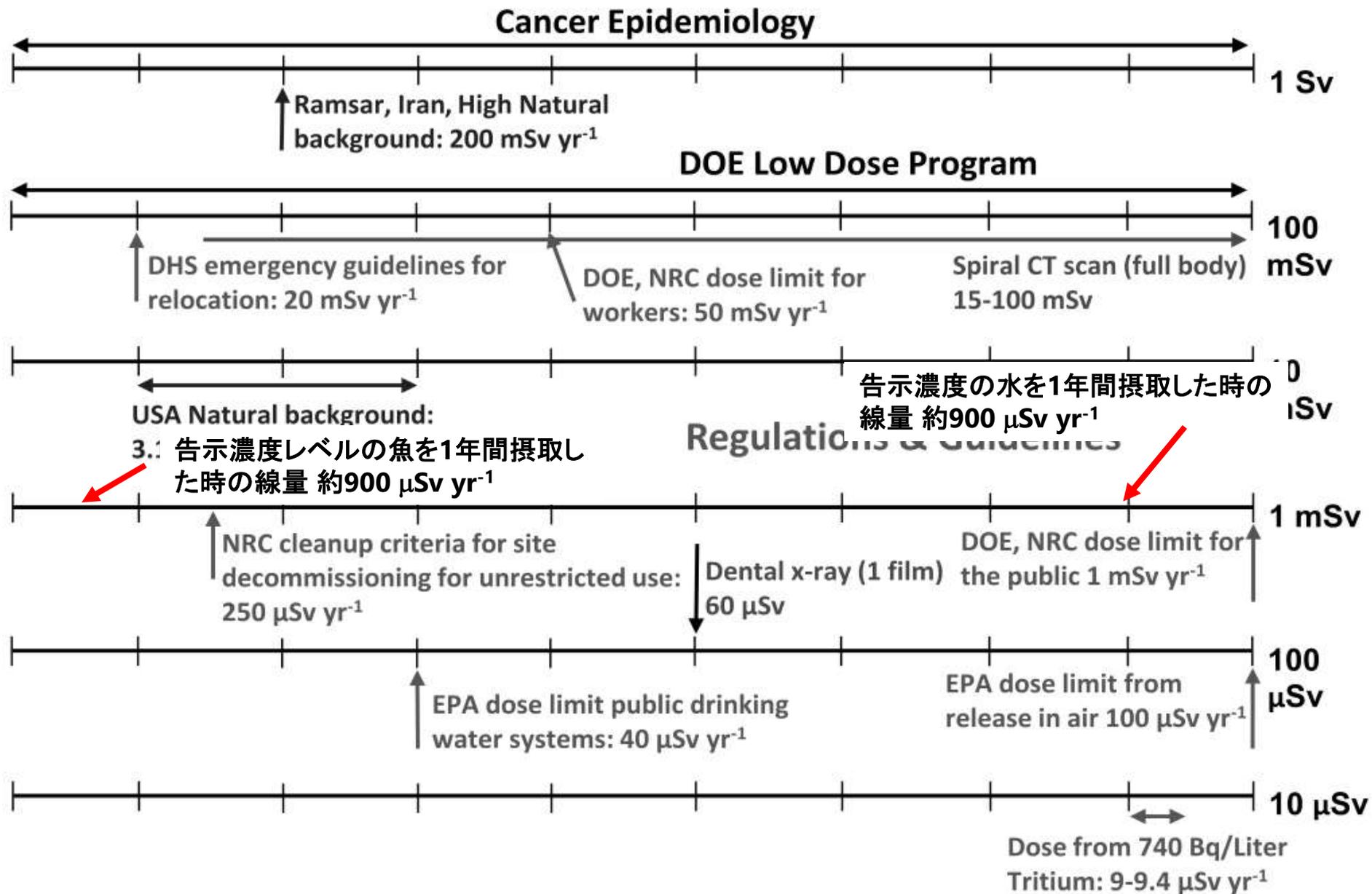
10 MBq

1 MBq

Tritium Activity, Biological Effects, and Regulations

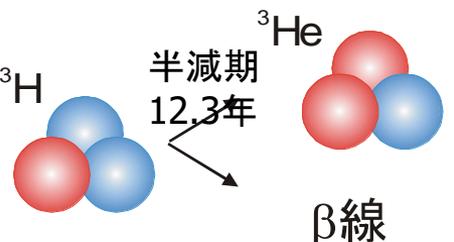


Ionizing Radiation Dose Ranges Chart (Sievert)

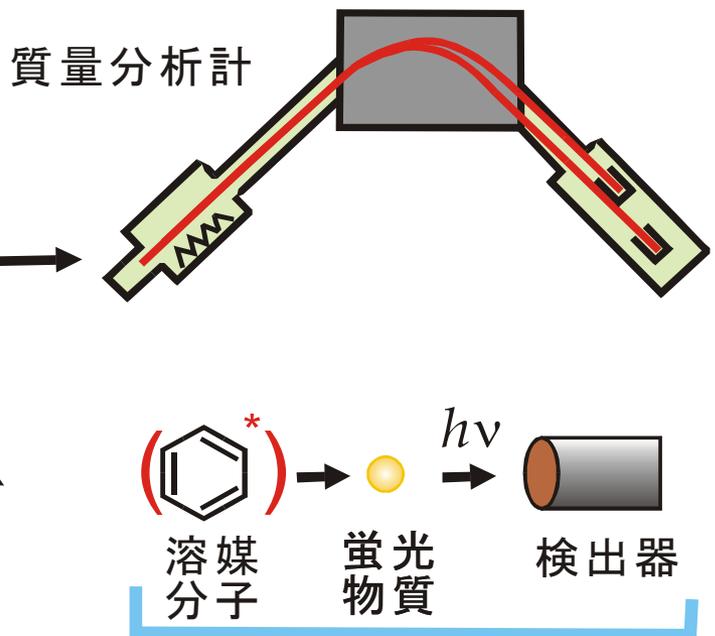


Brooks AL, Couch LA, Chad SA. 2013. Commentary: What is the Health Risk of 740 Bq L⁻¹ of Tritium? A Perspective. *Health Phys* 104, 108-114.

環境³Hの計測



- 陽子
- 中性子



液体シンチレーション
カウンティング (LSC)



VG-5400
Micromass

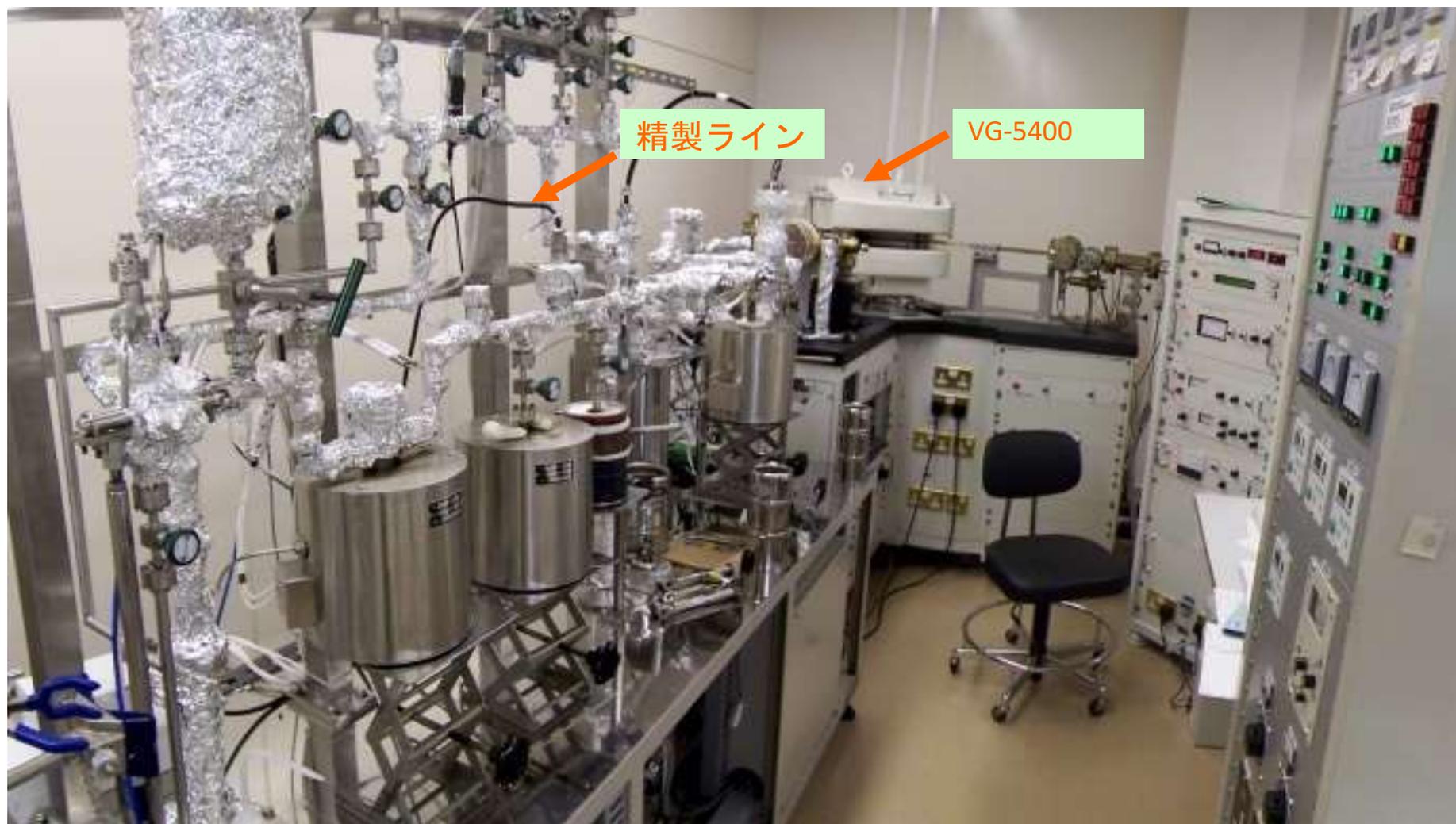


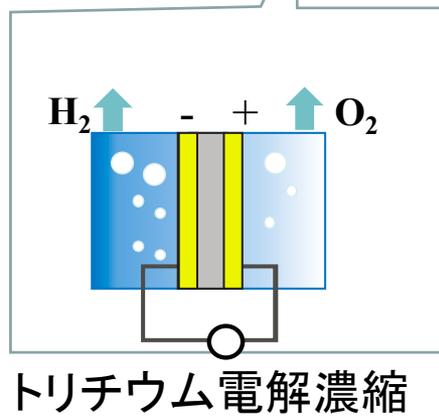
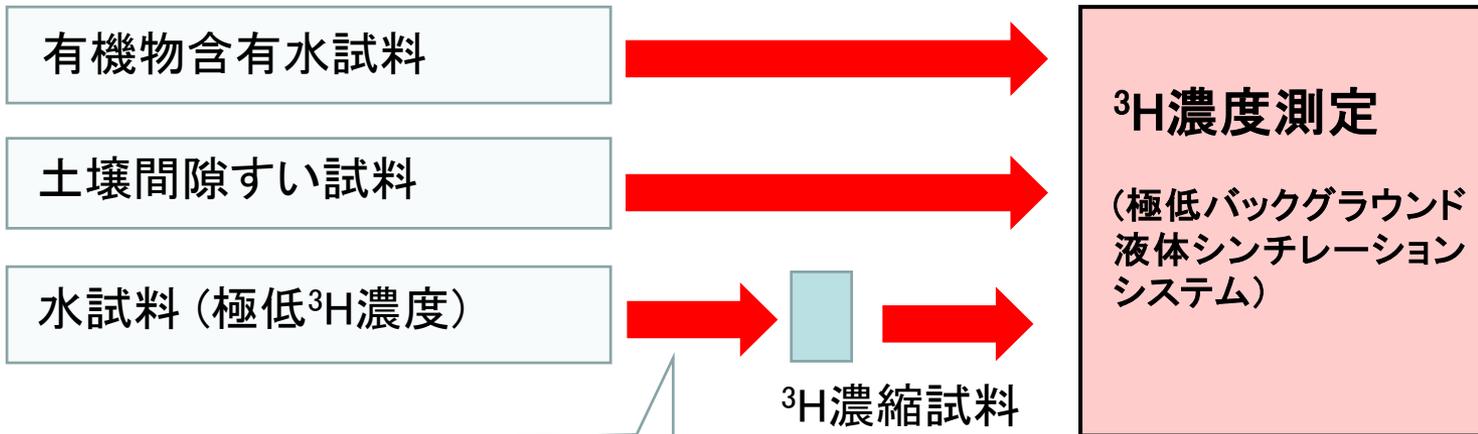
Quantulus 1220
PerkinElmer



Hitachi-Aloka
LSC-LB7

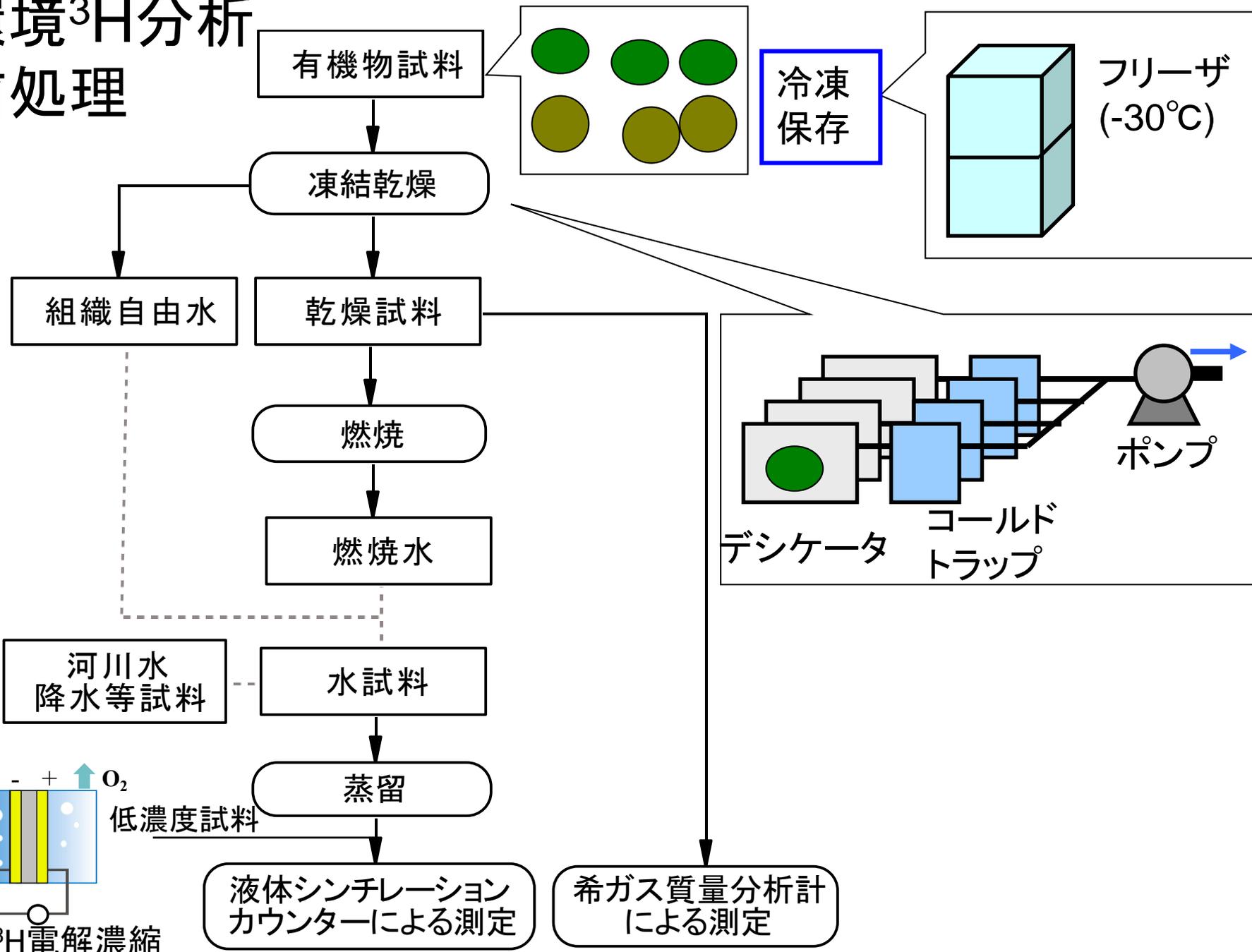
試料ガス精製ラインと質量分析計(VG-5400)



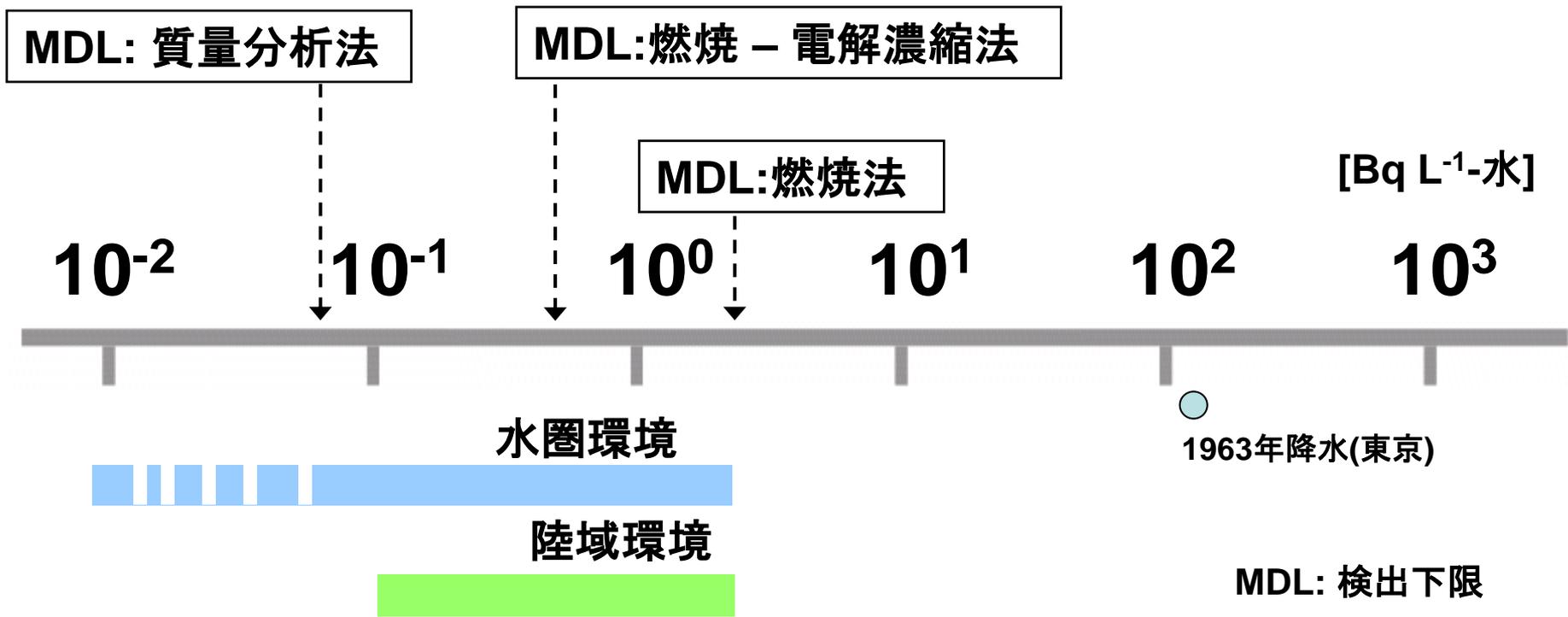


放出トリチウム環境分布調査

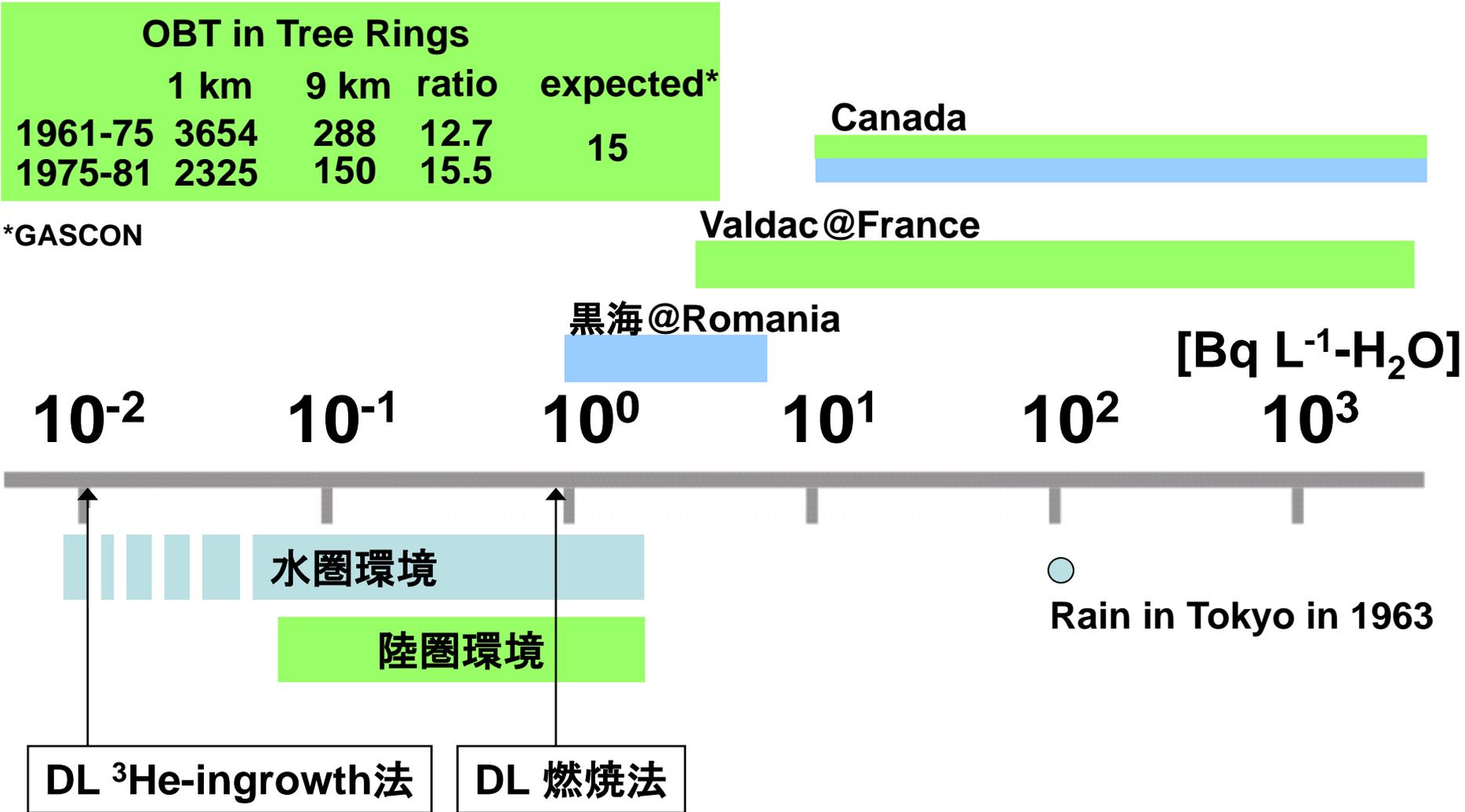
環境³H分析 前処理



一般環境中の³H濃度レベル



Tritium levels in various Environment

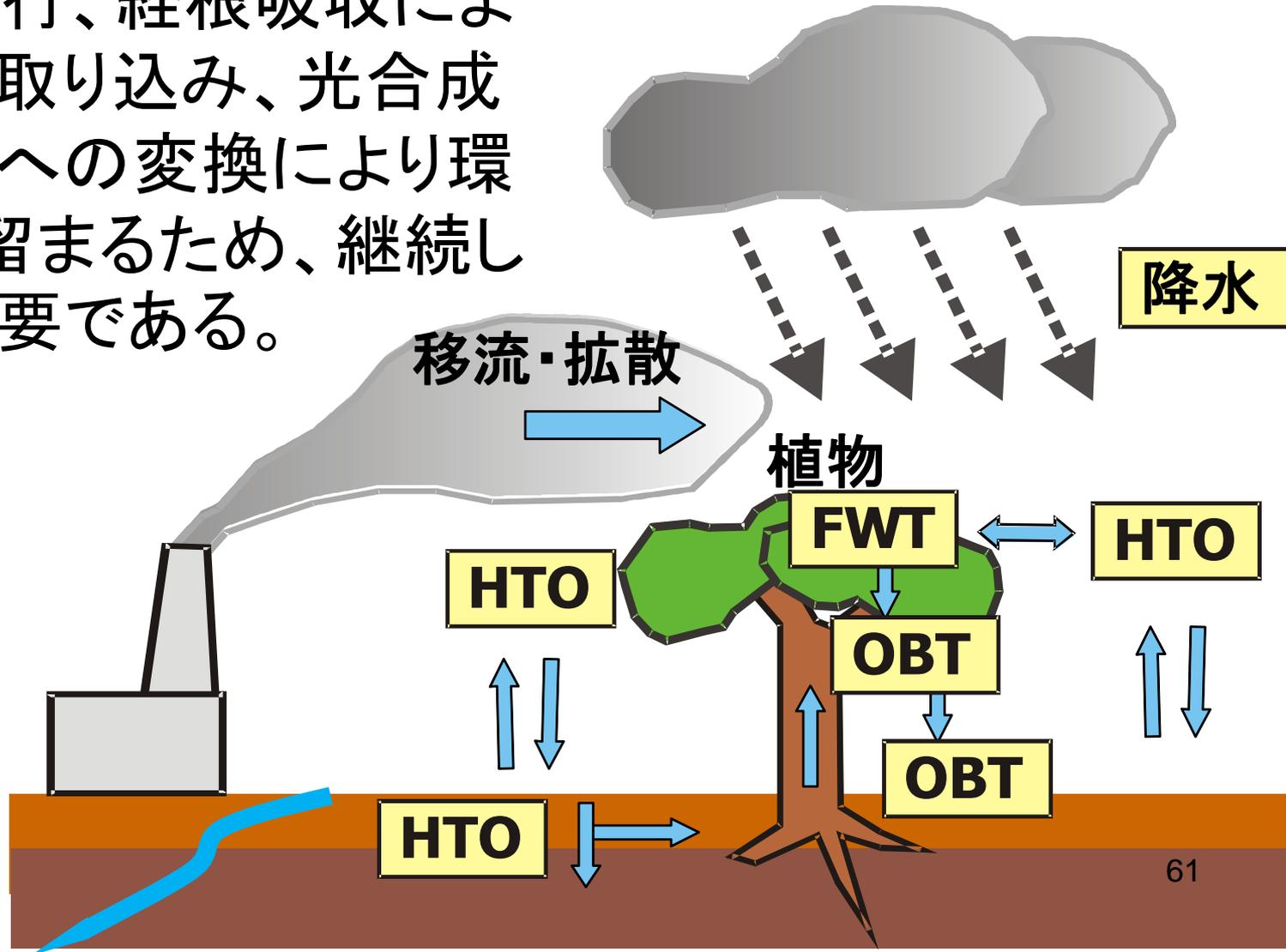


環境試料中OBT濃度定量法の比較

測定法	燃焼法	燃焼-電解濃縮法	質量分析法
試料 乾燥重量 (g)	30	500	30
検出下限 (Bq L ⁻¹)	2	0.2	0.02
前処理時間 (1試料当たり)	7 d	40 d	3 d
貯蔵期間	-	-	2 month

✓ 事故時における環境中トリチウム挙動

土壤表面に沈着した ^3H は、
深部への移行、経根吸収による
植物への取り込み、光合成
での有機物への変換により環
境中に長く留まるため、継続し
た測定が必要である。



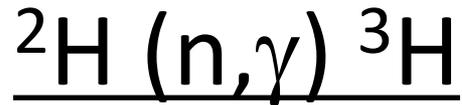
原子炉(BWR)由来トリチウム

トリチウム(^3H)生成反応

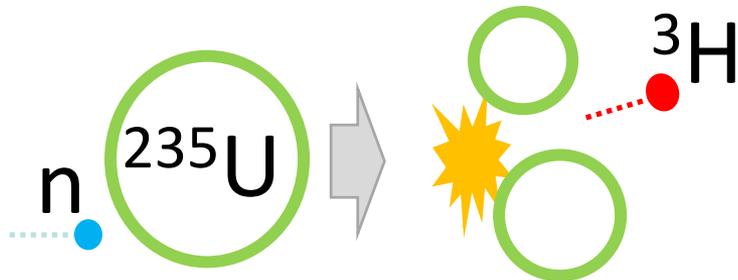
- ・ 制御棒中ボロン(B)と中性子(n)との反応



- ・ 重水と中性子との反応



- ・ 三体核分裂



東京電力福島原子力発電所近傍の 植物中トリチウム濃度レベル調査

平成23年3月に採取した降水中³H濃度

採取日	採取地	³ H濃度 (Bq L ⁻¹)
平成23年3月17日	福島市	292.2 ±0.9
平成23年3月18日	会津若松市	26.4 ±0.3

目的

福島第一原子力発電所事故に伴い放出された
トリチウムによる被ばく線量を評価

福島原子力発電所事故に伴い放出された ^3H について、事故の環境への影響を評価するには植物に取り込まれた ^3H の空間分布を把握する必要がある。そこで福島原子力発電所周辺植物の有機物中 ^3H 濃度の測定を行う。

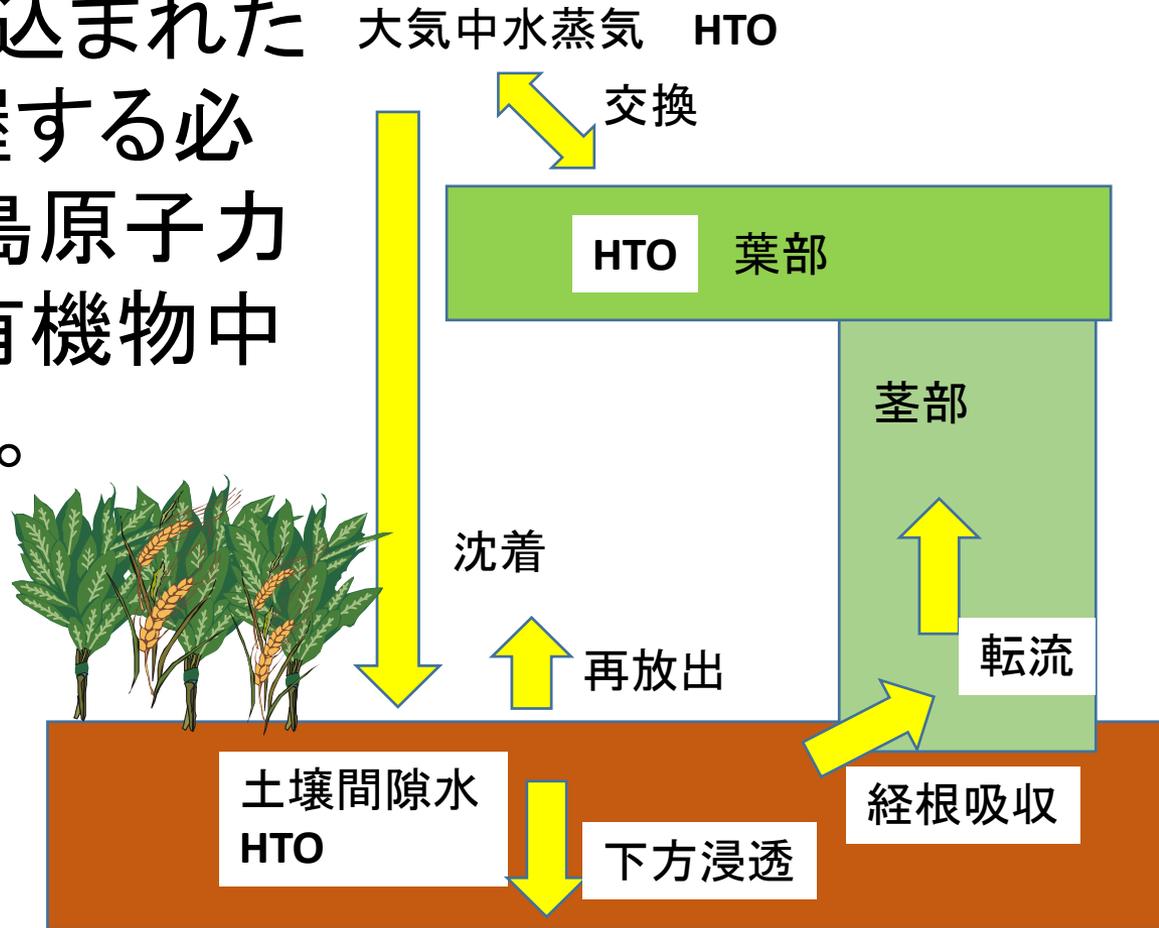
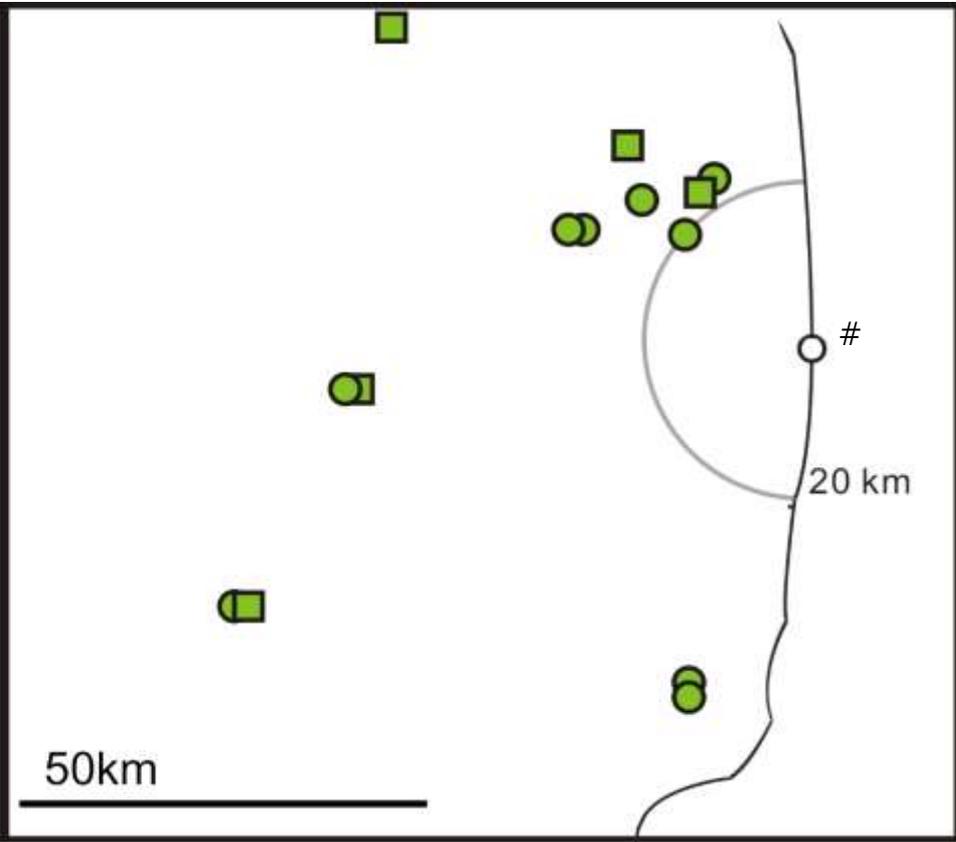
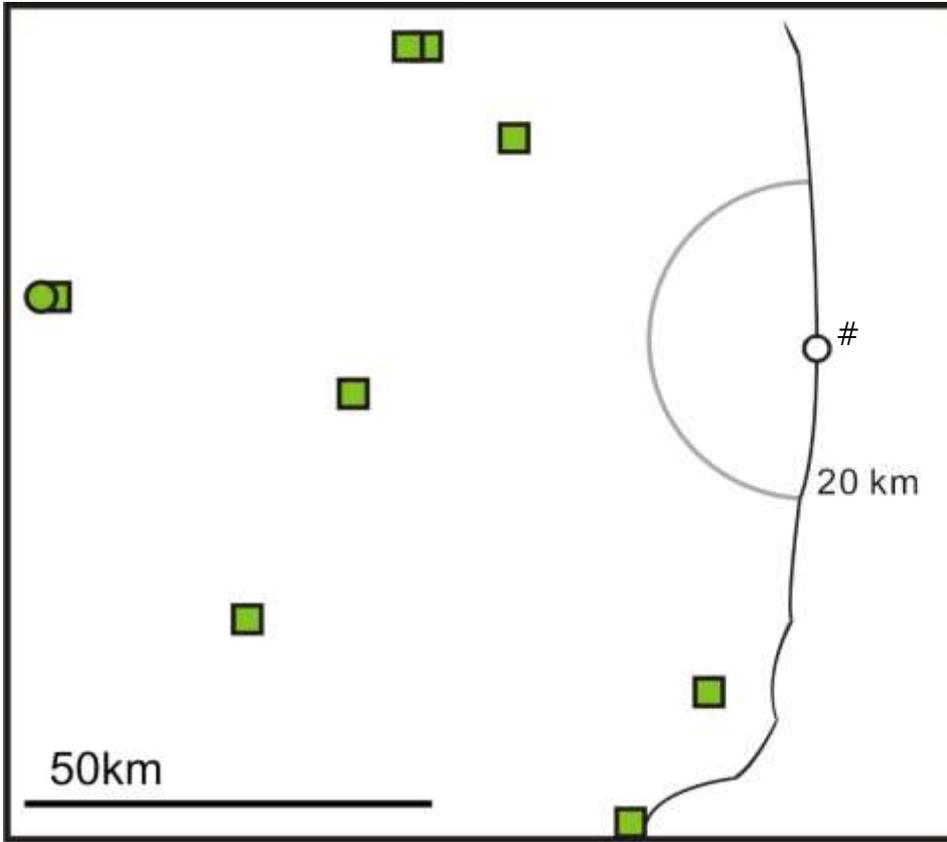


図 環境中での ^3H 移行挙動

植物試料の採取地点

2011年3月

4月



- 草本植物
- 常緑樹

#福島第一原子力発電所

植物の水分に含まれるトリチウム濃度の推定

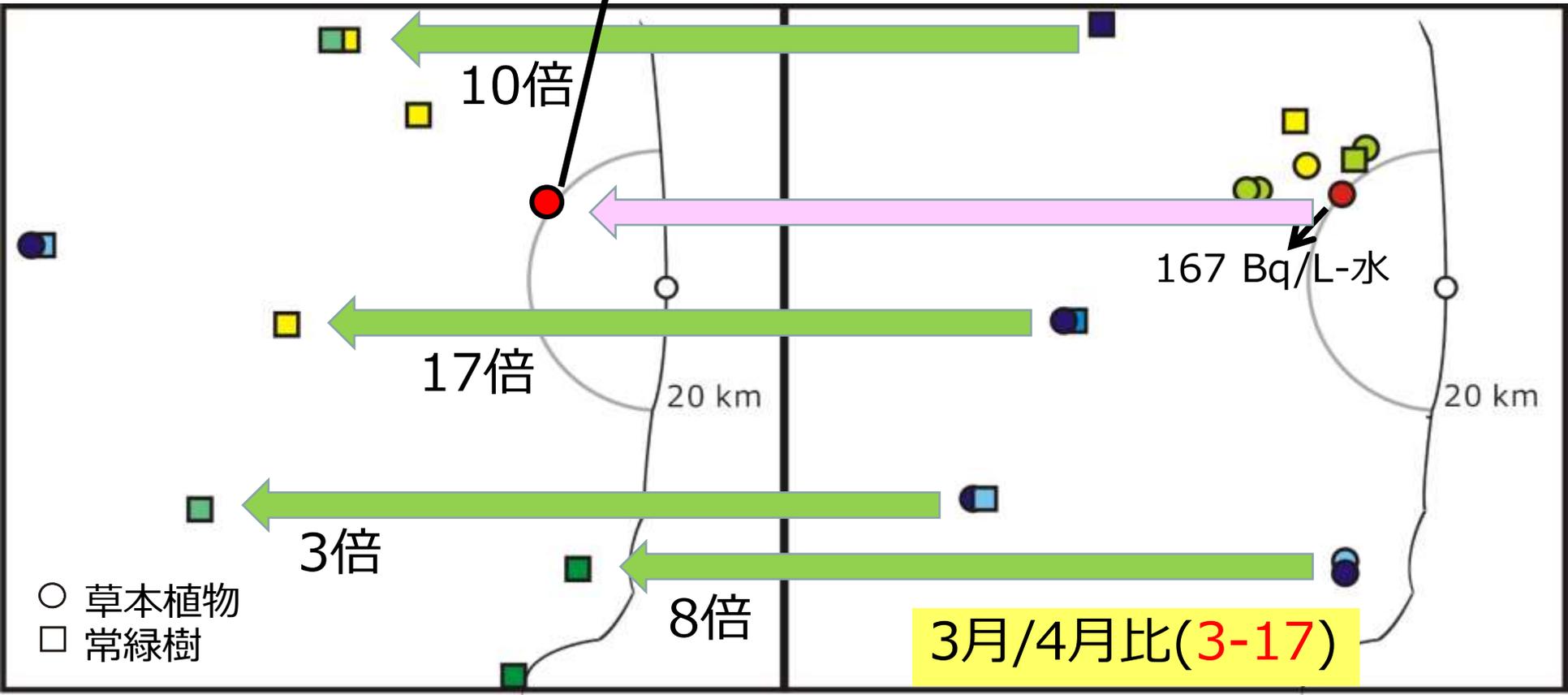
2011年3月、4月



2011年3月時点の推定値
2700 Bq/L-水

2011年3月

4月



$$C_L = (1/\gamma) \times \{RH \times C_a + (1-RH) \times C_s\} \quad (1)$$

C_L : 植物自由水中トリチウム (FWT) 濃度

C_a : 大気湿分中トリチウム濃度

C_s : 土壌湿分中トリチウム濃度

RH : 相対湿度

γ : トリチウム水と軽水の蒸気圧比 (= 1.1)

2011年3月土壌に沈着したトリチウムが植物の根圏に達していないと見なす $C_s \rightarrow 0$

$$C_L = (1/\gamma) \times RH \times C_a \quad (2)$$

内部被ばく線量の推定

トリチウムを含む大気を呼吸によって体内で被ばくする放射線の量を推定

