

トリチウム除去で新手法

安藤 静敏*¹
Ando Shizutoshi

小松崎孝志*²
Komatsuzaki Takashi

岡田 光清*²
Okada Mitsukiyo

片岡 憲昭*³
Kataoka Noriaki

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震は甚大な被害（東日本大震災）をもたらした。特に、福島第一原子力発電所におけるメルトダウンは放射性物質の漏洩を伴う原子力事故に発展し、大量の高濃度の放射能汚染水を排出している。この放射能汚染水は、⁹⁰Sr、¹²⁹I、¹³⁴Cs・¹³⁷Cs及び³Hの核種を含み、多核種除去設備（ALPS；Advanced Liquid Processing System）にて処理されている。しかしながら、トリチウムは他の核種に比べ除去が非常に困難であり、120万tを超える浄化後の処理水（高濃度のトリチウム汚染水）は貯蔵タンク（おおよそ1000基）に保管され現在も増え続けている。

ALPSによる処理水に含まれるトリチウムはトリチウム水（HTO）として存在し、水からのトリチウムの分離（HTO/H₂O分離）技術には蒸留法、電気分解法及び同位体交換法等がある。近年、近畿大学の井原らの研究グループは、「アルミニウム粉末焼結多孔質」を格納したフィルターを用い、汚染水からトリチウム水を効率よく分離する技術を報告している¹⁾。また、大量の放射性汚染水（トリチウム水）から安全、かつ操作性に優れたトリチウムの分離方法として、スピネル型の結晶構造をもつ酸化マンガン粉末（HMn₂O₄、LiMn₂O₄）をトリチウム吸着材として用いた技術も報告されている²⁾。

本稿で紹介する分離・除去技術では、トリチウム吸着材としてトリチウム汚染水への炭化物粉末及び鉍石（粉末）の添加効果を検討した。更に、添加されたトリチウム汚染水の攪拌・循環処理及び電解処理によるHTO/H₂O分離の効率向上を目指した。

2. 処理方法

トリチウム汚染水の処理手順を図1に示す。HTO含有水を精製水に希釈してトリチウム疑似汚染水を作製した。この疑似汚染水に炭化物粉末分散水及び鉍石粉末を添加し、攪拌・循環処理を施した後、電解処理を行った。更に、2回目の攪拌・循環処理及び電解処理を行った。

2.1 トリチウム疑似汚染水の作製と添加物

American Radiolabeled Chemicals, Inc. 社製のHTO含有水を50Lの精製水に希釈し、482 Bq/mL（計算値）及び1013 Bq/mL（計算値）の低濃度及び高濃度のトリチウム疑似汚染水として作製した。再現性の実験では、40Lの高濃度のトリチウム疑似汚

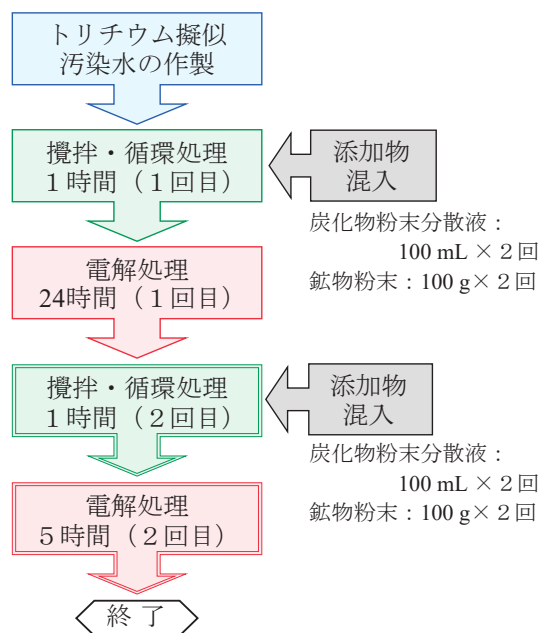


図1 トリチウム疑似汚染水の処理手順

染水を用いた。

添加物は図2に示すような炭化物粉末と鉍石粉末を用いた。炭化物粉末は粒径 $100\ \mu\text{m}$ 以下に粉碎し、その粉末 $10\ \text{g}$ を精製水 $100\ \text{mL}$ に添加した。更に、その添加溶液 $30\ \text{mL}$ を精製水 $70\ \text{mL}$ に希釈し、最終的に $100\ \text{mL}$ の炭化物粉末分散水を作製した。

鉍石は珪石を用い、炭化物粉末と同様に粉碎し微粉末状にした。

2.2 トリチウム汚染水の処理方法

(1) 攪拌・循環処理 (第1段階工程)

攪拌・循環処理の装置概略を図3に示す。トリチウム疑似汚染水 $50\ \text{L}$ 、炭化物粉末分散水 $100\ \text{mL}$ 及び鉍石粉末 $100\ \text{g}$ を水槽に投入し、ヒーターにて水槽内の汚染水を $50\ ^\circ\text{C}$ に昇温させた後、循環ポンプにて攪拌・循環させた。30分後、更に同量の炭化物粉末分散水及び鉍石粉末を水槽に投入し連続して30分間攪拌・循環処理を施した(合計1時間)。

回転ドラム内には $1\sim 2\ \text{cm}$ 程の未粉碎の鉍石(黒鉛珪石)を充填し、処理中はドラムを回転させ、水槽から循環した汚染水をシャワーより回転ドラムに散水して水槽に戻した。回転ドラム内の黒鉛珪石が衝突・摩擦によって磁場が発生し、そこに疑似汚染水を散水することによって疑似汚染水のイオン化の促進を目的としている。

(2) 電解処理 (第2段階工程)

電解処理は図4に示すような電解槽にて処理を行った。電極は陰極としてステンレス棒 ($\phi 28$)、陽極としてアルミニウム棒 ($\phi 28$) を用いた。1回目の攪拌・循環処理終了後、処理水を電解槽に投入し、電極間に直流 $100\ \text{V}$ を印加して24時間処理を施した。2回目の電解処理は、2回目の攪拌・循環処理終了後に処理汚染水を電解槽に再度投入し、電極間に直流 $100\ \text{V}$ を印加し5時間処理を施した。

3. 本処理方法によるトリチウムの分離効率

低濃度及び高濃度のトリチウム疑似汚染水の処理工程後のトリチウム放射能濃度を表1に示す。まず、低濃度の処理前の放射能濃度の測定値は $366\ \text{Bq/mL}$ であり、この測定値を初期値(基準値)とした。第1回目攪拌・循環及び電解処理後の放射能濃度は $355\ \text{Bq/mL}$ を示し、基準値より約 3.1% 減衰した。更に、2回目のそれぞれの処理を施した処理水の放

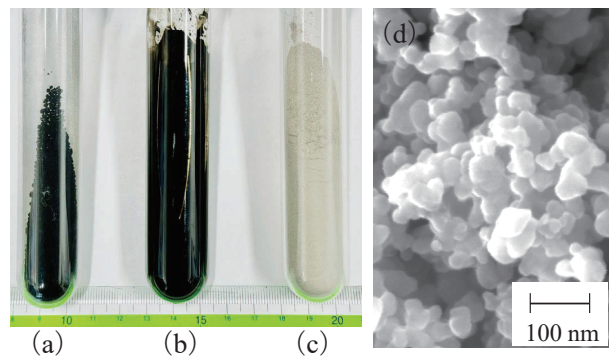


図2 添加物及び粉末の電子顕微鏡写真

(a) 炭化物(粉碎前), (b) 炭化物粉末分散水, (c) 鉍石粉末, (d) 炭化物粉末の電子顕微鏡写真

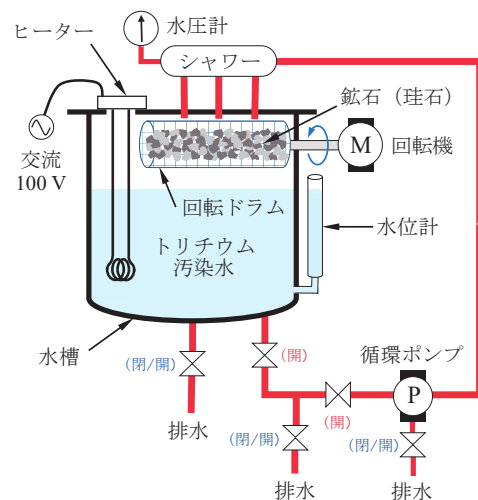


図3 攪拌・循環処理の装置概略図

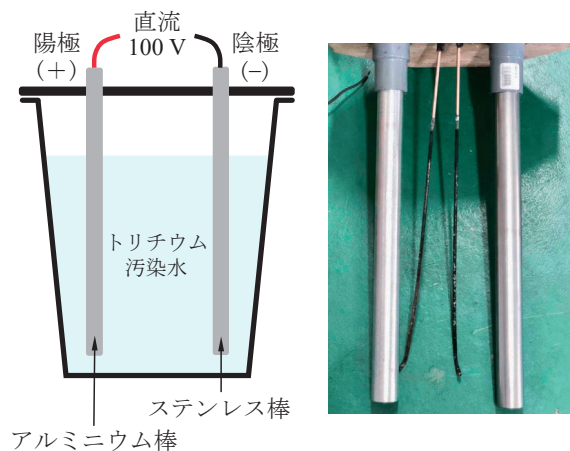


図4 電解処理の装置概略図及び電極

射能濃度は 333 Bq/mL を示し、処理前の基準値に比べて最終的に約 9.02% の高い HTO/H₂O 分離効率を得た。一方、高濃度トリチウム疑似汚染水を同様の工程にて処理を行った。処理前の放射能濃度の測定値は 1135 Bq/mL であった。処理後のトリチウム放射能濃度は 1060 Bq/mL であり、約 6.6% の減衰を示し比較的高い分離効率を得た。

次に、本処理法の再現性を目的に実験を行った。再現性の処理工程は、攪拌・循環処理を 1 時間、電解処理を 5 時間行った後、そのまま 4 時間静置した。トリチウム水は攪拌・循環処理前及び静置後の処理水をサンプリングし、それぞれの放射能濃度を測定し分離効率を算出した。実験は 4 回行い、1 実験ごとに新たに作製したトリチウム疑似汚染水を用いた。それぞれの実験回において、トリチウム疑似汚染水の処理前後の放射能濃度を表 2 に示す。すべての実験回において 5% を超える分離効率を得たと共に、再現性が認められた。したがって、本処理法はトリチウム汚染水の高い分離効率を実現し、再現性にも優れていることが分かった。

電解処理後の処理水は、添加した炭化物粉末分散水は分離・凝集し無色透明な溶液であり、炭化物粉

表 1 様々な濃度のトリチウム疑似汚染水の処理前後におけるトリチウム放射能濃度

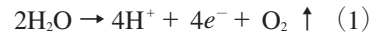
処理条件		放射能濃度 (Bq/mL)	
		低濃度	高濃度
処理前(基準値)		366	1135
Ⅲ 回 一	攪拌・循環処理後	360	-
	電解処理(24時間)後	355	-
Ⅲ 回 二	攪拌・循環処理後	339	-
	電解処理(5時間)後	333	1060

表 2 再現性実験における処理前後におけるトリチウム放射能濃度

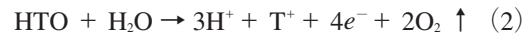
実験数	放射能濃度 (Bq/mL)		分離効率 (%) $\frac{①-②}{①} \times 100$
	処理前 ①	処理後 ②	
1	1231	1159	5.85
2	1301	1231	5.38
3	1271	1202	5.43
4	1274	1203	5.57
平均値	1269	1198	5.59

末及び鉍物粉末は電解槽の底に沈殿していた（一部分は水面に浮上）。電解処理中は（両）電極近傍の処理水より多くの気泡が発生した。また、電解処理後の両電極の表面には添加物の付着が見られた。

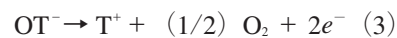
トリチウムを含む水の電気分解は、電極表面に付着した水素イオン（オキソニウムイオン：H₃O⁺）が電子を放出し、酸素分子 O₂ になることが知られ、電極上で O₂ が発生する³⁾。



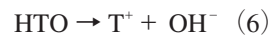
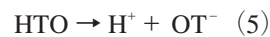
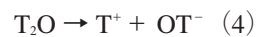
したがって、電解処理中に電極上に発生した気泡は酸素の発生が考えられる。また、トリチウム水は、トリチウムイオン (T⁺) として水中にとり残されて凝縮されている。



本処理では、トリチウムを含む水の電気分解によるトリチウムの電解濃縮に加え、第 1 段階の攪拌・循環処理によってトリチウム水（イオン）を吸着した炭化物粉末及び鉍石粉末を電界処理によって電極に付着・堆積（電着法）させて HTO/H₂O 分離を検討している。一般に、水中のトリチウムは水分子 (T₂O, HTO) として存在し、



式 (3) の反応により次のようなトリチウム分子の解離反応が起こり、トリチウム水は以下のように解離することが知られている⁴⁾。

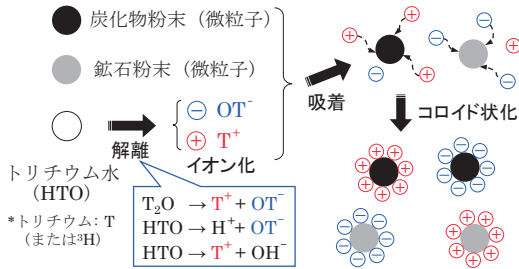


第 1 段階の「攪拌・循環処理工程」では、図 5(a) に示すように T⁺（陽イオン）及び OT⁻（陰イオン）はそれぞれ添加物である炭素微粒子及び珪素微粒子に吸着し、正 (+) 及び負 (-) にコロイド状化する。コロイド状化された微粒子は図 5(b) に示すように第 2 段階の「電解処理工程」にて両電極に付着・堆積され（一部は電解槽の底に沈殿・凝集）、トリチウム水の電気分解に加えて添加物による吸着の効果も考えられる。

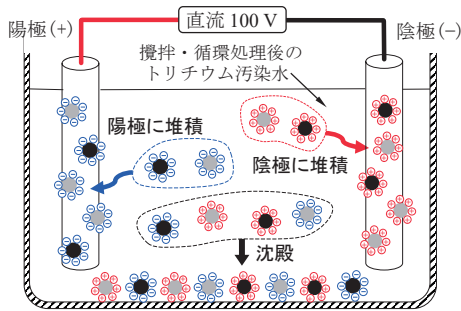
本処理方法は、

- (1) 攪拌・循環処理工程では、HTO の解離・イオン化により OT⁻ 及び T⁺ による正 (+) 及び負 (-) のコロイド粒子が生成
- (2) 電解処理工程により電極上にコロイド粒子が付着・堆積、一部は電解槽に沈殿しトリチウムを除去

(3) 添加剤（炭化物粉末や珪石粉末）は、コロイド粒子を生成するための初期核（吸着物質）として有用であり、トリチウムの分離技術として期待できる。



(a) 攪拌・循環処理工程（第1段階）



(b) 電解処理工程（第2段階）

図5 それぞれの処理工程における汚染水からのトリチウム水の分離・回収

4. まとめ

放射能汚染水からトリチウム水を分離する方法として、汚染水中に添加物を混入し攪拌・循環処理及び電解処理を施し分離・回収の向上を検討した。低濃度のトリチウム疑似汚染水では約9.02%の減衰率を示し、高濃度トリチウム疑似汚染水においても約6.6%の分離効率を得た。更に、再現性の実験では5%を超える分離効率を得た。添加物に用いた炭化物粉末及び珪石（珪石）粉末はトリチウム吸着材として有用である。

参考文献

- 1) 井原辰彦, 他, *Isotope News*, **768**, 14-17 (2020)
- 2) H. Koyanaka, et al., *Separation Science and Technology*, **50** (14), 2142-2145 (2015)
- 3) 柿内秀樹, *J. Plasma Fusion Res.*, **92** (1), 26-30 (2016)
- 4) 今泉洋, 他, *RADIOISOTOPES*, **59**, 425-427 (2001)

(*¹ 東京理科大学工学部電気工学科, *² (株) ガブリエル, *³ (独) 東京都立産業技術研究センター開発本部開発第二部環境技術センター)