放射性汚染水中のトリチウム水分離の試み

○対馬勝年(富山大・理)、松山政夫(富山大・水素同位体研)、上石勲(防災科研・雪氷)

1. はじめに

昨年福島第一原子力発電所放射性汚染水の減容化法として氷結晶法の適用可能性を発表した。その後、松山らはセシウム(母液濃度 10ppm)や放射性セシウム(母液 1500Bq/L)を含む汚染水へ氷結晶法を適用して1回の凍結で1/100 ~1/1000に除染された氷を得て、氷結晶法の有効性を確認した。ところで、氷結晶法では HTO(放射性トリチウム水)を分離できず、最新鋭の放射性核種除去装置 ALPS の処理でも分離できず、汚染水の貯蔵量が増え続ける元凶になっている。同位体の分離は量が少なければ電気分解等により分離される。しかし、今求められているのは 40 万トンの大量の水を安価に処理する技術である。筆者らは純水 H₂O とトリチウム水 HTO の氷点が 0.00 °C と 2.24 °C で大きく異なる点を着目した。しかし、低温実験室では放射性物質が扱えないので、HTO の代わりに同じ水の同位体 HDO(氷点 1.9 °C)を代用した。これらの同位体の氷点が高いのは固相の水素結合が純氷より強いからである。少量の重水を含む氷をカナで削って細かい粒状に変え 3 L のマホービン中で母液と混合した。液相と雪粒の間で分子の交換が行われる過程で母液中の HDO 分子が雪側へ移動していくと期待した。ところで、HDO 濃度の検出が問題である。電気伝導度計、イオンクロマトグラフ、原子吸光などは使えない。質量分析計なら計測できるが、使える状況にない。そこで簡便な測定法として氷点に着目した。0.01 °C 目盛のベックマン温度計を使った。この場合 HDO 濃度は 0.5%以上の高濃度に限定されるが分離の可能性を調べることはできる。(トリチウムの環境基準 6 万 Bq/L は HTO 濃度 1ppt に相当するから、1%でも 10¹⁰ 倍の高濃度に当たる)。分離度を粗大化法とカラム法で調べた。

2. 実験

2.1 粗大化法 重水含有氷を削って魔法瓶内の母液と混合し、1~3 °Cの低温室に置く。しばらくおいたのち液相を採水し、凍らせ再度削って小さな魔法瓶につめ、氷点を測る。氷点が 0.03 °Cの原液が混合後 0.02 °Cに変わった。重水濃度は 1.6%から 1.1%へ 31%減少した。液相の中に濃度勾配はないから HDO 分子の拡散は極めて遅い。HDO 分子が雪粒表面に衝突しなければ雪粒に組み込まれ

ることはない、長期間保存すれば雪粒に組み込まれる HDO 分子の割合が増すと考え、1 カ月後の測定も試みたが液相濃度の減少は 1 日後のものと変わらなかった。次に、原液 650g に純水氷を削った雪 650g を混入した。母液の氷点+0.033 °Cであったものが、混合状態で 0.025 °Cに変わった。純水氷(雪粒)の方は過熱状態となったことになる。1 日後液相の氷点は 0.015 °Cになった。一方残った雪の温度も 0.015 °Cになっていた。液相の重水濃度は半減した。

2.2 カラム法 内径 60mm、長さ 1m の筒に重水汚染水を削った雪を詰め、筒の外側をグラスウールで断熱した。内筒の上端から母液を滴下したり、内筒の上部だけ断熱を外したりして筒雪内を母液が流下するようにした。被膜状に雪粒の表面を流下すれば液相中の HDO 分子が氷と接触しやすくなると期待した。下端から流出した液を採水し、氷点を測定した。流出の速い場合は殆ど分離しなかった。1 日 200mL 程度の流量の少ない場合にわずかに分離効果が認められた。

ところでビーカに冷たい水を入れ放置すると、やがて器壁に気泡が現れる。水に溶けている空気量は少ないはずだが過飽和になると容易に析出する。これをヒントに重水濃度を過飽和状態に変えることで重水分子を析出できないかと考えた。

長さ 1m の鉛直の二重筒の内側に氷点 0.03 °Cの重水氷を削った雪を詰め、外側(内径 110mm)に純水を削った雪を詰めた。筒の最外部をグラスウールで断熱した。上部から融け水(重水水溶液)が流下してくると水の一部は凍って残りが筒下端から採水器に入る仕組みである。最初の採水は原液と変わらなかった。その後、流れが少なくなり、殆ど流出が認められなくなった。この場合、流下した水が途中で凍り、不透水層が形成されたと考えられ、失敗であった。内筒に詰める重水氷の氷点をもう少し下げた試験の準備を進め、析出効果を引き出せないか調べる予定である。

3. 終わりに

HTO 水、HDO 水の氷点の違いに着目した純水と同位体の分離率はこれまでのところ最大で 50%程度の低いものに留まった。実験は失敗の連続であるが、分離率を高める条件を見出すことを当面の課題にしている。