

環境水中トリチウム濃度測定のための電解濃縮前処理 に関する研究

島 長 義

要 旨

トリチウムは、半減期 12.34 年で β 線を放出し、ヘリウム 3 に崩壊する放射性核種である。トリチウムは天然起源の他に原子力発電所から放出され、水素ガスあるいは水分子として環境中に存在し、生物圏の中に取り込まれ有機化合物を形成する。人がトリチウム濃度の高い水や食物を摂取した場合、体内で絶えず発する β 線によって内部被爆を受ける。したがって、生活圏内に人工的なトリチウム生成源があるならば、環境中トリチウムを監視する必要がある。

青森県六ヶ所村の核燃料再処理施設において使用済み核燃料を使用したアクティブ試験が行われおり、トリチウム汚染された排水が環境中に放出される。そのためこの地域における入念なトリチウム濃度調査が必要とされる。環境水中のトリチウム濃度は、1 Bq/L 以下と非常に低く、濃度測定前に固体高分子電解質膜 (SPE 膜) を用いた電解濃縮処理を施すことが一般的である。

水試料中のトリチウムを迅速に濃縮するため SPE 膜を用いた電解装置は齋藤正明氏等により開発され市販されている。しかし、我々はメモリ効果を避けるため電解後に使用済み SPE 膜を新しい膜に交換する別の電解素子を設計して使用している。

本研究では、標準水槽と試料水槽を 2 槽直列に接続する電解濃縮法を開発した。電解電圧を低減するために新しい電解素子を設計し、その特性を報告する。また、試料水を最初に市販の装置を用いて 50 A という大電流で濃縮し、その後引き続きメモリ効果を避けるために設計した電解槽で濃縮するという実用的な方法を提案した。青森県の太平洋沿岸や湖の 7 地点から試料水を採水し、提案した方法によって濃縮した。得られたトリチウム濃度は 0.2 から 0.9 Bq/L の範囲である。

第 1 章は本研究の緒論で、研究の背景と研究目的を述べる。第 2 章ではトリチウムに関する基礎事項について述べる。2.1 節はトリチウムの生成と崩壊について、2.2 節は SPE 膜を用いた電解濃縮について、そしてメモリ効果を説明する。 β 崩壊を観測する低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置を 2.3 節で、水素安定同位体比を測定する装置については 2.4 節にそれぞれ述べる。2.5 節ではトリチウム回収率 R を説明し、2.6 節では装置定数 k を定義する。トリチウム分離係数 βa および重水素分離係数 αa を 2.7 節に示す。2.8 節は第 2 章のまとめである。

第 3 章ではトリチウム濃度を正確に決定するために試料水中のトリチウムを濃縮する方法が提案される。提案した試料水トリチウム濃縮法について述べる。標準水槽と試料水槽を直列接続し、標準水槽から得られた装置定数 k を試料水中のトリチウム濃度算出に適用する。3.1 節ではトリチウムを濃縮するために我々の研究室で使用してきた電解素子を示す。3.2 節では電解素子を直列接続したトリチウム濃度濃縮実験操作について示す。得られたデータからこの方法が環境水試料のトリチ

学位記番号と学位：博第 36 号，博士（工学）

授与年月日：平成 19 年 3 月 20 日

授与時の所属：大学院工学研究科機械システム工学専攻博士後期課程

ウム濃度測定に有効である事が確認された。使用している電解素子の電解電圧を3.3節に示す。3.4節は第3章のまとめである。

第4章は電解電圧低減についての研究と、新たな電解素子の設計とその特性を含む。4.1節では電解電圧低減のため、いくつかの素材について調べた。4.2節では陽極電極とSPE膜の間にPt金網を挿入することによって陽極電極上の不溶膜剥落が減少することを述べる。トリチウム濃縮のための電解素子設計の詳細は、4.3節に記述した。そして、設計した素子の特性については4.4節で説明する。4.5節はこの章のまとめである。

第5章はトリチウム濃縮のための実用的な電解法の提案である。5.1節では電気分解によってトリチウムを濃縮する市販の装置を扱う。5.2節では設計した電解素子の装置定数および他の特性を市販の装置と比較している。環境水中トリチウムの濃縮のための2段階濃縮法を5.3節で提案した。最初に市販の電解装置を通して大電流で迅速にトリチウムを濃縮し、次にメモリ効果を防ぐ新たに設計した電解素子で濃縮する。本章のまとめを5.4節で述べる。

第6章では2006年に青森県の太平洋沿岸地域と湖で採水した環境水中トリチウム濃度について述べる。6.1節には採水地点と採水法を示す。6.2節においてこれら試料水は、第5章で提案した2段階電解濃縮法によって濃縮される。6.3節に示されている全てのデータは、1.0 Bq/Lを下回っており、特に沿岸海水のトリチウム濃度は0.2から0.3 Bq/Lの範囲であり、非常に低い濃度を示している。このことは、トリチウム濃縮が欠くことの出来ない工程であることを示している。

第7章はこの研究の結論である。本研究の主な結論は次の通りである。(1) トリチウム濃縮によるメモリ効果の無い2槽直列電解濃縮法の提案。(2) 電解電圧低減のための新しい電解素子の設計。(3) トリチウムを実用的に濃縮するための2段階電解濃縮法を提案した。(4) 提案した2段階電解濃縮を用い試料水を濃縮し、六ヶ所地域を含む自然レベルの環境水中トリチウム濃度測定を行った。

主指導教員 村中 健

A Study on the Electrolytic enrichment prior to measure tritium concentration in environmental water

Nagayoshi SHIMA

Abstract

Tritium is a radioactive isotope, decays into helium-3 by emitting beta radiation and has a 12.3 year half-life. Tritium can be generated from nuclear plant beside of the natural source, exists as hydrogen gas or water molecule in environment and is taken into biosphere to form biogenic compound. If a person takes a large enough dose of tritium as water or food, he will be harmed continuously by beta-ray emitting in his body. Then environmental tritium must be monitored, if artificial generating source exists within the life area.

The successive reaction test currently carried out in the nuclear fuel reprocessing plant at Rokkasho in Aomori prefecture, releases tritium-contaminated waste water into the environment. Therefore it is required to survey tritium concentration in this region carefully. As tritium is naturally found in very low concentration in environmental water (mostly less than 1 Bq/L), an electrolytic enrichment procedure, using solid polymer electrolytic (SPE) film, is generally applied to water samples before the tritium concentration is measured.

An electrolytic apparatus to enrich tritium rapidly in water samples was firstly developed by Saito, M. et al. and the apparatus is now commercially available. But we have used another electrolytic device designed by ourselves to avoid the memory effect by replacing the used SPE film with a new one after each operation.

In this study the enrichment method by electrolysis is developed connecting two electrolytic cells of standard water cell and sample water cell in series. An electrolyser is newly designed to reduce electrolytic voltage and its characteristics are reported. And a practical electrolyzing procedure is presented, that is, sample water is enriched firstly by using the commercially available apparatus with a large electrolytic current of 50 A and after that it is enriched sequentially by the designed electrolytic cells to avoid the memory effect. Water samples collected from seven sites situated along Pacific Ocean coast and in lakes of Aomori prefecture are enriched by the presented method. The tritium concentrations are obtained in the range from 0.2 to 0.9 Bq/L for the collected samples.

The chapter 1 is the introduction of this study. The background of this study and the purpose of this research are described. In the chapter 2 the fundamentals concerning to tritium are described. The section 2.1 is on the generation and disintegration of tritium. The section 2.2 is on the electrolytic enrichment by using SPE film and the memory effect is explained. Low background liquid scintillation counting system to observe β decay and another apparatus

to measure hydrogen stable isotope ratio are described in section 2.3 and section 2.4, respectively. In section 2.5 tritium recovery factor R is explained and apparatus constant k is defined in section 2.6. Tritium separation factor $\beta\alpha$ and deuterium separation factor $\alpha\alpha$ are specified in Section 2.7. The section 2.8 is the summary in chapter 2.

In chapter 3 a method to enrich tritium in sample water is presented to determine tritium concentration accurately. Standard water cell and sample water cell are connected in series and apparatus constant k derived from standard water cell is applied to calculate tritium concentration in sample water. An electrolytic device used in our laboratory to enrich tritium concentration is showed in section 3.1. The experimental operations to enrich tritium concentrations with the two electrolytic devices connected in series are showed in section 3.2. From the obtained data it is confirmed that this method is valid to estimate tritium concentrations of environmental water samples. Electrolytic voltage in the used electrolytic device is showed in section 3.3. The section 3.4 is the summary in chapter 3.

The chapter 4 contains some studies to reduce the electrolytic voltage in the enriched device and the design and the characteristics of a new electrolytic device. In the section 4.1 several materials are surveyed to reduce electrolytic voltage. In section 4.2 it is described that the insoluble film on the anodic electrode decreased to flake off by inserting platinum mesh between the electrode and SPE film. The designs of the electrolytic device to enrich tritium concentration are described in detail section 4.3 and the characteristics of the device are explained in section 4.4. The 4.5 is the summary of this chapter.

The chapter 5 is the proposal of a practical electrolytic method to enrich tritium concentration. The commercially available apparatus to enrich tritium concentration by electrolysis is treated in section 5.1. Apparatus constant and other characters of the designed electrolytic cell are compared with those of the commercially available device in section 5.2. A two-stage electrolyzing procedure to enrich tritium in environmental water is presented in section 5.3. Tritium is first enriched rapidly by a commercially available electrolyser with a large current, and then by using a newly-designed electrolyser that avoids the memory effect. A summary of this chapter is described in section 5.4.

The chapter 6 represents tritium concentrations in environmental waters collected in 2006 along the Pacific Ocean coast and in lakes of Aomori prefecture. Sampling points and the sampling method are showed in section 6.1. In section 6.2 these samples are enriched by the two-stage electrolysis presented in chapter 5. All the obtained data represented in section 6.3 were below 1.0 Bq/L and especially tritium concentrations in coastal sea waters showed in the range from 0.2 to 0.3 Bq/L, very low concentrations. It means that the tritium enrichment is indispensable process.

The chapter 7 is the conclusion of this study. The main conclusions of this study are as follows. (1) A method of using two electrolytic cell connected in series are presented to enrich tritium concentration without the memory effect. (2) An electrolyser is newly designed to reduce electrolytic voltage. (3) A practical process of two-stage electrolysis is presented to enrich tritium in environmental water. (4) Natural level of tritium concentrations in environ-

環境水中とリチウム濃度測定のための電解濃縮前処理に関する研究 (島)

mental water including Rokkasho area were measured after the collected water samples were enriched by using the presented two-stage electrolysis.

Professor (Chairperson) Takeshi MURANAKA