

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 26 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2016

課題番号：25709087

研究課題名(和文) 土壌中トリチウム移行モデルの構築と汚染拡大防止策の効果実証

研究課題名(英文) Development of tritium migration model in soil and demonstration of suppression measures to tritium expansion

研究代表者

片山 一成 (Katayama, Kazunari)

九州大学・総合理工学研究科(研究院)・准教授

研究者番号：90380708

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,000,000円

研究成果の概要(和文)：九州大学箱崎キャンパス内6箇所で採取した天然土壌を試料として、トリチウム移行挙動に関する基礎実験を行った。トリチウム透水実験では、土壌充填層にトリチウム水を注水し、充填層から排出される水量とそのトリチウム濃度の経時変化を測定した。水およびトリチウムのマスバランスから、注入量に対する充填層内蓄積率を求めたところ、水に比べてトリチウムの蓄積率が高いことを明らかにした。これは、土壌中に吸着水、層間水、構造水等として存在する軽水素とトリチウムが同位体置換することによる効果である。この結果は、土壌中でのトリチウム水の移行挙動予測に軽水の移行モデルをそのまま適用することは適切でないことを示す。

研究成果の概要(英文)：Fundamental experiments were carried out for understanding tritium migration behavior in a soil by using natural soil samples which were collected in six places of Hakozaki campus of Kyushu University. In tritiated water percolation experiments, a certain amount of tritiated water was poured in a soil packed bed, and effluent water and tritium concentration in the water were monitored. It was revealed from water-tritium balance that tritium retention in the soil packed bed is larger than water retention in that. This is an effect of the isotope exchange between tritium supplied and hydrogen included in soil as adsorbed water, interlayer water, structural water etc. This result indicates that it is not appropriate to simply apply water migration model to a prediction of tritiated water migration in the soil.

研究分野：化学工学

キーワード：トリチウム 土壌 同位体交換反応 透水 汚染 除染

### 1. 研究開始当初の背景

次世代のエネルギー源と期待されている核融合炉の開発は、国際共同開発プロジェクト ITER 計画を中心として、着実な進展を続けており、国内外では発電システムを備えた原型炉の概念設計も精力的に進められている。核融合炉は原理上核暴走が起こらず、高レベル放射性廃棄物を生じない点で核分裂炉よりも総合的な安全性は高いと言えるものの、燃料として水素の放射性同位元素であるトリチウムを用いるため、放射線物質による環境汚染を引き起こす潜在的な危険性を有する。核融合炉の安全上最も重要なことは、トリチウムを施設内に閉じ込める技術の確立と、万が一のトリチウム漏洩事故を想定して影響緩和策を講じておくことである。

トリチウムの環境挙動に関する研究は、古くから行われており、大気中および地表近傍でのトリチウム挙動モデルはいくつか提案されている。しかしながら、トリチウム水が土壌へ漏洩した場合に対応できるような土壌中でのトリチウム移行モデルは確立されていない。そのため、現状では、水とトリチウム水の挙動に大きな違いはないと仮定して、水移行モデルを適用することになる。

トリチウムは、核分裂炉施設や加速器施設等にも存在しており、土壌中でのトリチウム挙動の理解は、将来の核融合炉のみならず既設の放射性物質取扱施設の安全性向上に資する重要な課題である。

### 2. 研究の目的

研究代表者は、これまで金属やセラミックス表面でのトリチウム挙動に関する研究を行ってきた。各種材料表面には、吸着水や水酸基として軽水素 H が存在しており、気相中に水蒸気状のトリチウム HTO が存在すると容易に同位体交換反応を起こし、トリチウムが表面に捕捉されることが広く知られている。土壌を構成する主要な要素である粘土鉱物には、吸着水、層間水、構造水の 3 つの形態で水が保持されていると言われている。そのため、トリチウム水と土壌が接触した場合、これらの軽水素 H とトリチウム T が同位体交換反応を起こすと予想される。しかしながら、このような研究報告はほとんどなく、土壌における水素同位体交換容量や交換反応速度といった定量的な評価は行われていない。そこで、本研究では、実際にトリチウム水を土壌に接触させることによって、同位体交換反応に起因する現象を明らかにし、得られるデータを化学工学的的手法によって解析することで、速度論的な評価も目指す。

### 3. 研究の方法

#### (1) 天然土壌試料

九州大学箱崎キャンパス内 6ヶ所において、天然土壌を採取し、これを試料とした。図 1 に試料の写真を示す。土壌でのトリチウムの挙動は、その土性により異なると考えら

れるため、まずは土壌試料の土密度、含水比、BET 比表面積、粒度分布を測定した。



図 1 採取した天然土壌試料の写真

採取場所： 未舗装歩道上、 正門近くの林の中、 アイソトープセンター脇、 農学部松林の中、 文系地区林の中、 貝塚グラウンド

#### (2) トリチウム水透水実験

土壌充填層へのトリチウム水透水実験を行った。実験装置図を図 2 に示す。土壌試料約 20 ~ 50g をトリチウム保持特性の低いテフロン管に充填し、充填層上部からトリチウム濃度 0.3 ~ 1.1MBq/cc のトリチウム水を注水する。主として重力ポテンシャルにより充填層を通過した水は、水受け容器に集められ、その質量変化をモニターした。水受け容器に貯まる水は、不定期にサンプリングし、トリチウム濃度を液体シンチレーションカウンターにより測定した。本実験装置は、グローブボックス内に設置した。

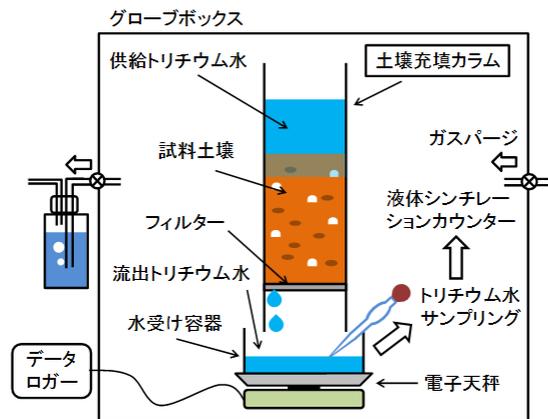


図 2 トリチウム水透水実験装置概略図

#### (3) トリチウム水浸漬実験

テフロン気密容器において、天然土壌試料をトリチウム水に浸漬させ、不定期に水をサンプリングして、トリチウム濃度を液体シンチレーションカウンターで測定した。

#### (4) トリチウム脱離実験

トリチウム水に接触させた土壌試料を石英管に充填し、アルゴン気流中で 1000 まで昇温し、トリチウム放出挙動を観測した。

(5) 同位体交換反応

トリチウム水透水実験で得られた透水挙動とそのトリチウム濃度変化のデータを解析し、透水係数および同位体交換反応に関する総括物質移動係数を求めた。

4. 研究成果

(1) 天然土壌試料の分析

恒温槽内にて 110 °C で加熱することによる質量減少から含水比を算出した。およそ 20 時間加熱すると質量減少が見られなくなった。0.4~8.8wt%まで 20 倍もの差があることがわかった。BET 比表面積を測定したところ、0.1 ~8.1m<sup>2</sup>/g まで 8 倍もの差があることがわかった。ピクノメーターを用いて、土粒子密度を測定したところ、通常の土密度である 2.6g/cm<sup>3</sup> と同程度であり、試料間の差が小さいことがわかった。粒子径は 0.1mm から 1mm の範囲に多く分布することがわかった。図 3 に 6 つの試料の分析結果を比較する。含水比と比表面積には、対応関係があることがわかる。110 °C までに放出される水分は、主として粒子表面に吸着しているものと言える。

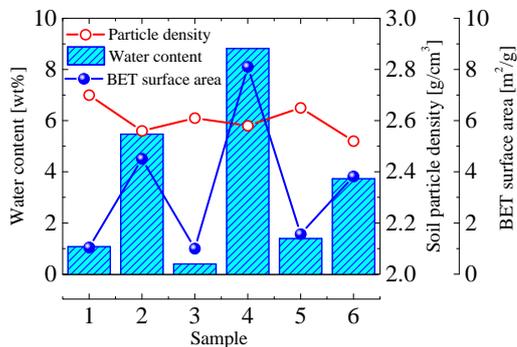


図 3 含水比、BET 比表面積および土密度

(2) トリチウム水透水実験

図 4 に充填層を通過して下部から流出した水量の経時変化を示す。同じキャンパス内での天然土壌であっても、流出開始までの時間や流出速度に大きな違いがあることが明らかとなった。Darcy 則を適用して解析し、飽和透水係数を求めたところ、得られた値は Creager による 20%平均粒径と関連付けられた推算値に近かった。このことから、土壌の粒度分布を調べることで、水の浸透速度がある程度見積もれることが確認された。

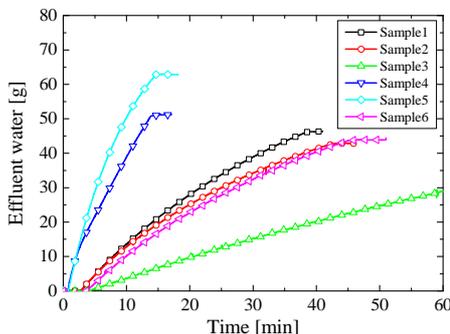


図 4 充填層からの流出水量経時変化

図 5 に入口濃度で規格化された流出水中のトリチウム濃度変化を示す。流出開始時は、入口よりも低い濃度で流出しており、土壌通過過程で充填層にトリチウムが捕捉されることを明らかにした。水及びトリチウムバランスより、土壌充填層への水保持率とトリチウム保持率を表 1 にまとめる。試料 6 を除いて、トリチウムの保持率が高いことがわかる。この結果から、トリチウム水が土壌に漏洩した場合、土壌にトリチウムが保持されてトリチウム濃度が薄まりながら水の浸透が進むと考えられる。

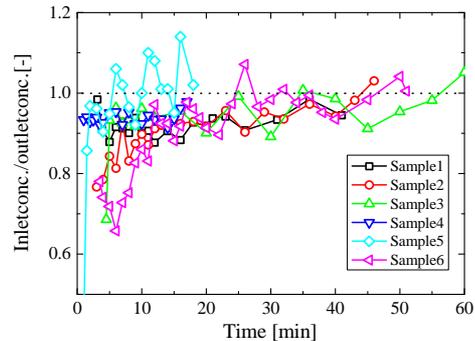


図 5 流出水中のトリチウム濃度変化

表 1 土壌の水及びトリチウム保持率[%]

| Sample  | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 6    |
|---------|------|------|------|------|------|------|
| Water   | 20.3 | 15.6 | 8.4  | 14.5 | 16.2 | 22.6 |
| Tritium | 33.5 | 17.3 | 11.9 | 18.2 | 17.3 | 22.5 |

土壌へのトリチウム浸透抑制を目的として、土壌に吸着材（モレキュラーシブ）や膨潤性粘土鉱物（モンモリロナイト）を混合した充填層へのトリチウム水透水実験も実施した。吸着材の場合は、透水速度は速くなるものの、初期流出水のトリチウム濃度が非混合実験よりも低く、吸着材へのトリチウム捕捉によりトリチウム浸透が抑制されることを実証した。また、膨潤性粘土鉱物を混合した場合、透水速度が極端に遅くなり、トリチウム水の浸透を抑制できることを実証した。

(3) トリチウム水浸漬実験

本実験では、土壌試料が長期間トリチウム水に曝された場合を想定した。本実験により、土壌を浸漬したトリチウム水のトリチウム濃度は、数 100 日後も減少し続けることがわかった。土壌を構成する粘土鉱物に構造的に取り込まれている水酸基等の軽水素と徐々に同位体交換していくためと考えられる。

(4) トリチウム脱離実験

初期濃度約 250kBq/cc のトリチウム水に 553 日間浸漬した土壌試料を乾燥アルゴン気流中で 12 時間乾燥させ、吸着トリチウム水の脱離を行った。配管に付着したトリチウムは、最後に水蒸気パーズを行い回収した。トリチウムは、流路出口に設置した 2 連の水バ

ブローで捕集した。この操作で脱離したトリチウム量は、推定吸着水量と浸漬水のトリチウム濃度から見積もられる値とほぼ一致した。つまり、付着していたトリチウム水は、室温乾燥操作によりほぼ脱離されたことを示す。次に、乾燥アルゴン気流中で 5 l/min で 1000 まで昇温し、2 時間保持した。トリチウム水の放出ピークはおよそ 70、300、450 に見られ、層間水及び構造水の放出との相関関係が見られた。ただし、別途測定した水分の放出量は、450 が最も多いのに対して、トリチウムの放出量は 70 が最も多かった。しかしながら、トリチウムバランスから、1000 加熱後も土壌粒子内にトリチウムが残留していると示唆され、おそらく構造水内に取り込まれたであろうトリチウムの全量回収は、容易ではないことが明らかになった。

#### (5) 同位体交換反応

多孔質体中での物質収支式を基に、土壤充填層内での軽水及びトリチウム水の移流および同位体交換反応を考慮した、トリチウム水透水実験体系でのトリチウム移行モデルを提案した。物質収支式を数値的に解き、トリチウム水透水実験結果を解析して、同位体交換容量及び同位体交換反応速度に関する総括物質移動係数を求めた。図 6 に試料 2 に対する結果を示す。計算結果は、水の流出挙動を上手く再現できており、その上でトリチウム挙動も上手く再現できている。6 つの試料は  $10^{-3} \sim 10^{-4} \text{ mol-T}_2/\text{g}$  の同位体交換容量を有し、過去に報告されている砂や吸着材（モレキュレシーブ）と同程度であることがわかった。なお、この容量にはトリチウム浸漬実験で観測されたような極めて遅い速度で保持されるトリチウム量は含まれていない点に留意が必要である。総括物質移動係数は、 $10^{-10} \sim 10^{-7} \text{ m/s}$  と試料によって交換反応速度に違いがあることがわかった。これは、含まれる粘土鉱物種の割合が寄与している可能性があり、更なる現象解明には、粘土鉱物を対象とした実験を行うことが有効であろう。

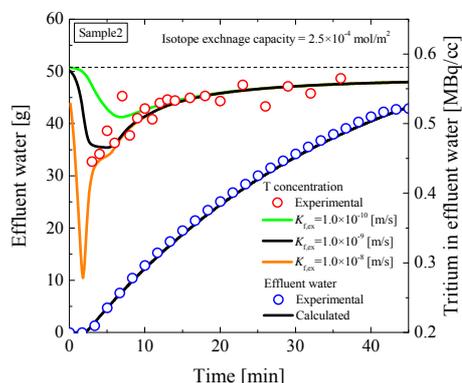


図 6 天然土壤充填層へのトリチウム水透水実験結果と計算結果の比較

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

1. K.Furuichi, K.Katayama, H.Date, T.Hyuga, S.Fukada, “Evaluation of Tritium Sorption Rate in Soil Packed Bed by Numerical Analysis”, Plasma and Fusion Res., 11 (2017) 2405050-1 2405050-4. 査読有.  
<http://doi.org/10.1585/pfr.11.2405050>
2. K.Furuichi, K.Katayama, H.Date, T.Takeishi, S.Fukada, “Tritium Sorption Behavior on the Percolation of Tritiated Water into a Soil Packed Bed”, Fusion Eng. and Des., 109-111, B, (2016) 1371-1375. 査読有.  
<https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.12.019>
3. K.Furuichi, K.Katayama, H.Date, T.Takeishi, S.Fukada, “Tritium Desorption Behavior from Soil Exposed to Tritiated Water”, Fusion Sci. and Technol., 68, 2 (2015) 458-464. 査読有.  
<http://dx.doi.org/10.13182/FST14-969>
4. T.Honda, K.Katayama, K.Uehara, T.Takeishi, S.Fukada, “Percolation behavior of tritiated water into a soil packed bed”, Fusion Sci. and Technol. 67 (2015) 382-385. 査読有.  
<http://dx.doi.org/10.13182/FST14-T34>

〔学会発表〕(計 5 件)

1. K.Katayama, Y.Someya, K.Tobita, K.Furuichi, S.Fukada “Tritium permeation to cooling water and environments for DEMO”, Fourth IAEA DEMO PROGRAMME WORKSHOP, Nov 15-18, 2016, Karlsruhe (Germany).
2. 片山一成, 伊達宏行, 日向達郎, 古市和也, 竹石敏治, 深田智, “トリチウム水へ浸漬させた土粒子へのトリチウム捕捉”, 日本原子力学会 2016 春の年会, 2016 年 3 月 26-28 日, 東北大学 (宮城県仙台市).
3. K.Furuichi, K.Katayama, H.Date, S.Fukada, “Evaluation of tritium behavior in the soil by using tritium permeation model with experimental data”, International TOKI conference, Nov. 3-6, 2015, セラトピア土岐 (岐阜県土岐市).
4. K.Furuichi, K.Katayama, H.Date, T.Takeishi, S.Fukada, “Tritium desorption behavior from soil exposed to tritiated water”, TOFE2014, Nov. 9-13, 2014, Anaheim (USA).
5. K.Katayama, “Percolation behavior of tritiated water into a soil packed bed”, Korea-Japan Tritium Joint Workshop, July 14-16, 2014, Daejeon (Korea).

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

片山 一成 (KATAYAMA KAZUNARI)

九州大学・大学院総合理工学研究院・准教授  
研究者番号：90380708