

氷り結晶法による放射性汚染水の減容化

Reduce of water contaminated radioactive substance by freezing method

対馬 勝年^{1*}

Katsutoshi Tusima^{1*}

¹ 富山大学理学部

¹ Faculty of science, University of Toyama

氷結晶法による放射性汚染水の減容化

Reduce of water contained radioactive substance by freezing method

対馬勝年^{1*}, 松山政夫¹

Katsutoshi Tusima^{1*}, Masao Matsuyama¹

¹ 富山大学

¹ University of Toyama

福島第一原子力発電所の炉心溶融事故では大量の放射性物質が環境中に放出された。原子炉内ではウランの核分裂により微量の放射性セシウムやヨウ素などが発生する。チェルノブイリ事故では炉心爆発により多量の放射性ヨウ素が大気中に放出され喉頭癌発生の危険性が問題となった。福島では水素ガスが建屋内にたまり水素爆発を起こし、放射性セシウムが大気中に放出された。事故を起こした原子炉では冷却水の汚染が続いていて、放射性汚染水の貯蔵タンクが増設されている。増え続ける放射性汚染水対策として氷結晶法という雪氷技術を活用することが考えられる。これは吸着剤を使って汚染源を除去する方法（濃度は減少するが処理水の保管が必要）と異なり、障害物はそのままして水だけを純粋の氷の状態に変えて取り出すものである。取り出された分だけ汚染水は減って行くから、貯蔵タンクを節約できるメリットがある。

水はあらゆる物質を溶かし込むが、その水が凍るときはあらゆる異物を排除し、純粋のH₂Oの結晶になる性質はよく知られている。たとえば、海水は飲料には使えないが、凍結した海水板のうち多年性のものは塩分濃度が低下しており、飲料水に使われる。凍結させたジュースの氷部分を除去する方法によるジュースの濃縮は古くから行われていた。汚染水中の放射性物質の濃度は大変低い。例えば、原子炉建屋内の地下に溜まった高濃度汚染水は500万ベクレル/cm³以上あるが、Csの濃度でみると1.6ppmと小さい。低濃度汚染水のうち環境基準の500倍といわれる高いものでも濃度になると0.16ppbにすぎない。通常の化学分析による検出可能限界より低い領域の計測が放射性物質では可能だという特徴がある。水が凍るときには純粋のH₂Oの集合体になるといったが、氷の中には空孔や格子間分子の存在が知られており、それらの場所に放射性原子が取り込まれることもあるであろう。さらに海水の凍結面のように短冊状の成長面が形成される場合には氷の板と氷の板の間に溶液の状態に取り込まれ、氷体中にブライン液となって閉じ込められたり、氷の成長面に発生する気泡部に取り込まれることも考えられる。凍結の初期段階で液体が過冷却する場合は樹枝状結晶表面に吸着する形で取り込まれバルクの氷に成長することもあるであろう。それゆえ減容化には発生させる氷の純度を如何にして高めるかを調べておく必要がある。本研究では放射性汚染水から純水を除去する方法として氷結晶法を使うための基礎研究を行った。

実験1 容積5ℓのポリバケツに水道水(EC:70 μ S/cm)、NaCl含有水(EC:10mS/cm, 2mS/cm, 0.9mS/cm)、硫酸含有水(EC:3.6mS/cm, 4mS/cm)を入れ、-10℃の低温室(無風)に一昼夜～二日間おいて凍らせた。1/3～半分程度凍った処で氷と液体を分離し、ブロック状に切断した氷部分を50ccのビーカー内で融かした液体の導電率を測定した。氷には球形や細長い気泡が含まれていた。NaClを溶かしたものでは濃度が濃い場合には白っぽい氷となり、中程度で半透明、低濃度で透明な氷となった。硫酸を含んだものおよび水道水では透明な氷となった。ただし、透明な場合でも球形気泡や細長い気泡が含まれていた。水道水では導電率が1/8程度、NaCl含有水では1/2～1/10程度、硫酸含有水で1/400程度の低濃度氷が得られた。冷却温度を-3℃での凍結も試みたが、バケツ内の水が過冷却し、凍結の最初にシャーベット状氷が形成され、異物を半分程度にしか低濃度化できなかった。これらの実験では樹枝状氷の間の隙間や気泡部分に不純物が取り込まれると思われた。

実験2 透明な氷を成長させ、氷の純度を高めるために汚染水に冷却管を浸して、冷却管の周りに氷を成長させる方法のテストを行った。-10℃の冷媒を通したステンレス管に氷を成長させたときは透明な氷の内部に細長い気泡が含まれた氷の純度はバケツの場合よりは向上したが満足すべき結果でなかった。そこで、ステンレス管に真空トラップ用に使っていたガラス管を被せ、ステンレス管からガラス管への熱伝導をよくするために液体を満たした。液体は蒸発による汚染を防ぐため蒸気圧の低い真空ポンプ用オイルを選んだ。ガラス管に成長した氷は完全に透明で気泡を全く含まなかった。水道水から発生させた氷の導電率は0 μ S/cmとなった。融け水を一夜おいて翌日測定したものでは2 μ S/cmとなり、1/30以上の高純度に精製できた。硫酸を含んだ水(EC:4mS/cm)からも完全に透明な氷が得られ、導電率は4 μ S/cmであった。これらの値は雨や積雪の導電率と同程度であり、満足すべき精製が行われたと評価される。