九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

コンクリート及び天然土壌におけるトリチウム移行挙動に関する研究

古市，和也

https://doi.org/10.15017/1866334

出版情報：九州大学，2017，博士（工学），課程博士
バージョン：
権利関係：

（様式３）Form 3

氏　　名　：古市　和也
Name

論 文 名　：コンクリート及び天然土壌におけるトリチウム移行挙動に関する研究
Title

区　　分　：甲
Category

論 文 内 容 の 要 旨
Thesis Summary

核融合炉の安全性を確保する上で、放射性物質である燃料トリチウムを施設内に閉じ込め、安全に取り扱う技術の確立は最重要課題である。近年、放射性物質取扱施設の安全性に関する社会の注目は高まっており、核融合炉の安全性についても改めて評価する必要がある。その際、トリチウムを安全に閉じ込める技術の確立と合わせ、万が一トリチウムが外部へ漏洩した場合の作業者や周辺環境および公衆への影響評価も求められている。そのためには、漏洩したトリチウムの挙動を正しく把握する必要が有り、まずはトリチウムの基本的な移動現象を的確にモデル化して、精度よく予測する技術の開発が課題となっている。トリチウムは、ウランの三体核分裂等により核分裂炉内で生成される放射性物質の一つであり、原子炉冷却水中にも存在する。トリチウムの挙動予測に関する新たな知見は、将来の核融合炉施設のみならず、既設の核分裂炉や使用済み核燃料取扱施設、加速器施設等でのトリチウムに対する安全性向上にも資する。

トリチウムは透過漏洩しやすい性質を有することから、既設の大量トリチウム取扱施設では、多重の障壁と独立した除去系から成る多重閉じ込めシステムが採用されており、核融合炉施設へも適用されると考えられる。その際、最外郭障壁の役割を担っているのがコンクリート壁であり、コンクリート外表面は周辺環境と接することとなる。コンクリート中のトリチウム挙動に関しては、水中でのトリチウム移行に関する研究はあるものの、分子状トリチウムや水蒸気状トリチウムなど気体として存在するトリチウムの移行に関する研究はほとんど行われていない。万が一、コンクリート壁による閉じ込め機能が失われた場合のトリチウム挙動に関しては、大気中でのトリチウム移行に関する研究は多いものの、土壌中でのトリチウム移行に関する研究はほとんどない。

本研究では、コンクリート材料および天然土壌におけるトリチウム移行に注目した基礎的実験で観測されたトリチウム移行現象を化学工学的手法で解析し、トリチウム移行モデルの構築と挙動予測計算コードの開発を行った。コンクリートと土壌の２つの研究対象に対して、次の３つのステップで研究を実施した。①トリチウム移行素過程を考慮し、一つ一つの移動現象を定量評価するために必要な物質移動速度や反応容量とその温度および圧力特性を基礎的な実験を通じて取得した。②得られた様々な実験データを解析・モデル化

してこれを数値計算コードに集約し、多くの実験データを再現できることを確認した。③開発した数値計算コードでトリチウム挙動が表現できることが実証された後、トリチウム漏洩事故が起きた場合を想定して、コンクリート壁あるいは土壌におけるトリチウム移行挙動のシミュレーションを行った。

トリチウムは同位体交換反応によって軽水素と置き換わることから、雰囲気中の水蒸気濃度や物質中に存在する軽水素量の多寡がトリチウム移行挙動に強く影響する。研究対象であるコンクリートと土壌は、水との親和性が強く、構造的にも多量の軽水素を含んでいることから、トリチウム移行のモデル化には軽水素の寄与を考慮する必要がある。しかしながら、先行研究の多くでは、総括的な拡散移行のみでトリチウム移行挙動をモデル化しており、様々な雰囲気条件には適用できない。そこで本研究では、コンクリート壁および土壌層を軽水素を多く含む多孔質相とみなし、同位体交換反応を組み込んだこれまでにない移行モデルを提案した。これにより、コンクリートおよび土壌におけるトリチウム挙動予測の信頼性を飛躍的に高めた。

本論文は全体で５章の章立てとなっており、各章の概要は以下の通りである。

第１章では、研究背景を述べた上でコンクリートおよび土壌でのトリチウム移行挙動の把握とそのモデル化の重要性を示した。

第２章では、コンクリート材料中のトリチウムの移行挙動に関しての理論、実験方法、実験結果・解析および考察を述べた。セメントペースト、モルタル、コンクリートを試料として、軽・重水素、軽・重水蒸気およびトリチウム水蒸気を用いて実験を行い、水分吸着、拡散現象、同位体交換反応を定量化した。コンクリートは非常に大きなトリチウムインベントリーを持っていることが確認され、分子状トリチウムに関しては分単位の早期の漏洩対応が必要であり、水蒸気状トリチウムに関しては年単位の長期的な漏洩対策が必要である事がわかった。また、トリチウム水蒸気漏洩事故後はコンクリート壁表面汚染のみならず、コンクリート内部に捕捉されたトリチウムの存在を認識する事が重要であることを示した。

第３章では、土壌中のトリチウム移行挙動に関しての理論、実験方法、実験結果・解析および考察を述べた。九州大学箱崎キャンパス内で採取した天然土壌を試料として、土壌充填層へのトリチウム水透水実験とその後の蒸留水透水実験を行った。さらにトリチウム捕捉土壌粒子からの加熱に伴うトリチウム放出実験も行った。実験データを解析し、透水速度や同位体交換容量、トリチウム脱離速度等を定量化した。トリチウム水との接触により土壌に残留したトリチウムの中でも、土壌粒子間を満たした自由水中のトリチウムの除去には、水置換のような分単位の早期的な対策も有効であることがわかった。しかしながら、土壌中に捕捉されたトリチウムの一部は、水置換や高温加熱でも回収が困難であることもわかった。このことは、トリチウム汚染対策として、土壌の置き換えとその後の管理など長期的な対策が必要であることを示す。

第４章では上記２章、３章で定量化された物質移動パラメータを用いて事故想定シミュレーションをコンクリート壁および土壌に対して実施した。コンクリート建屋内でのトリチウム漏洩については、トリチウム除去設備の稼働による効果を評価するなど、具体的な安全対策を検討するためのシミュレーションを実施した。土壌へのトリチウム水漏洩については、自由水中のトリチウムと、土壌粒子に構造的に含まれる軽水素と置換したトリチウムの比率など、同位体交換反応を考慮したトリチウム浸透シミュレーションを実施した。

第５章では、本論文の総括を行い、今後の課題やトリチウム漏洩対策の提言などについて述べた。