



# トリチウムの物性等について

---

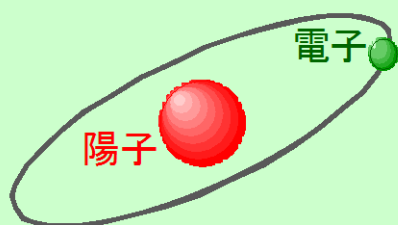
平成25年12月25日

(独)日本原子力研究開発機構

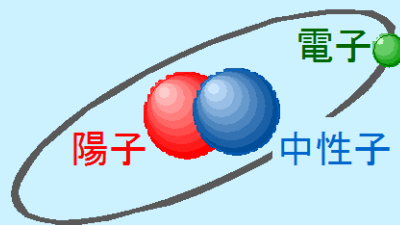
山西 敏彦

# トリチウムとは

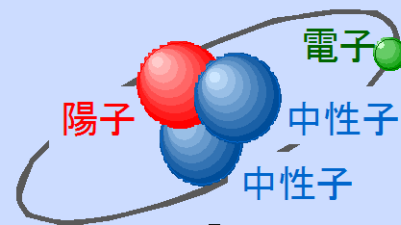
プロチウム(軽水素)  
いわゆる「水素」



デュートリウム(重水素)  
自然界に水素の  
約0.015% 存在

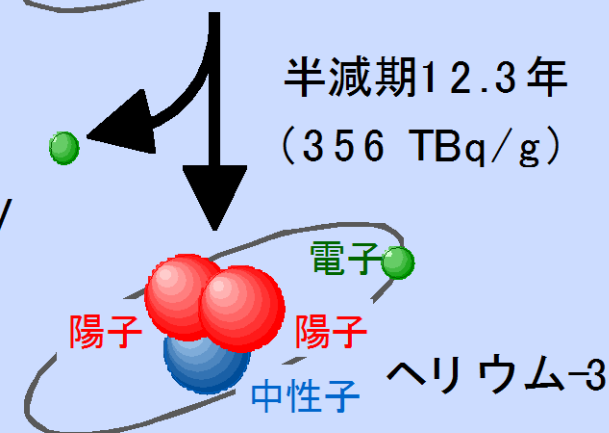


トリチウム(三重水素)  
自然界に水素の  
( $0.1 \sim 10$ )  $\times 10^{-18}$  程度存在

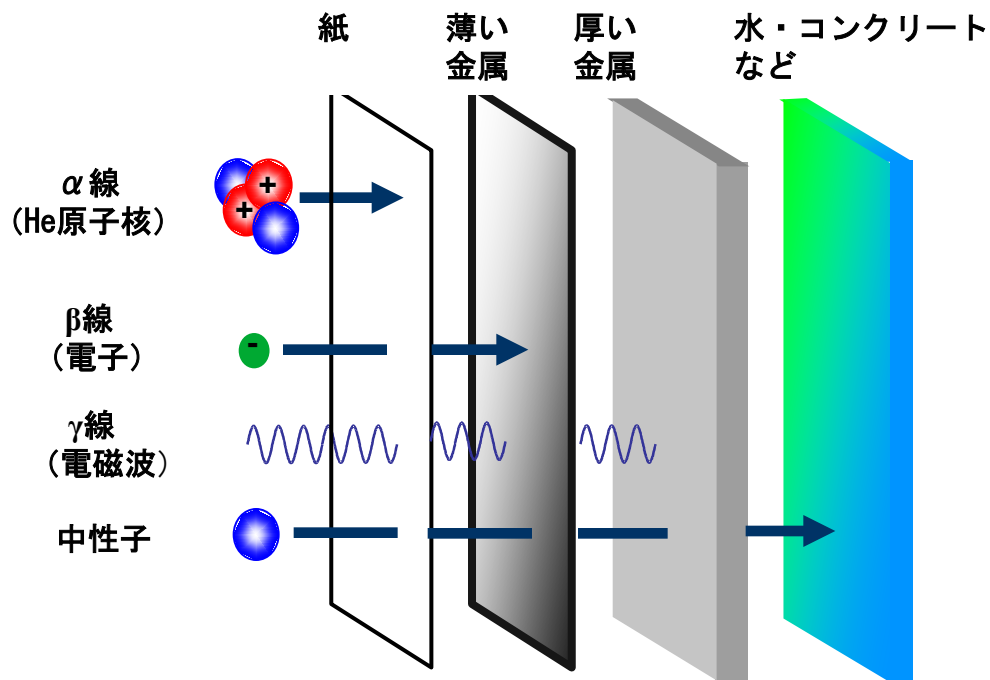


天然水中のトリチウム  
… 1 Bq/l 程度  
人体中のトリチウム  
… 数十 Bq/人

トリチウムの出す  $\beta$  線:  
最大エネルギー 18.6 keV  
最大飛程 5 mm 空气中  
6  $\mu$ m 水中



# 放射線の種類と遮へい



## 放射線の特徴

- $\alpha$  線 : 電気を帯びて重いので紙一枚ですぐに止まる。
- $\beta$  線 : 電気を帯びているので薄い金属ですぐに止まる。
- $\gamma$  線 : 電磁波の一種なので、金属は透過しにくい。
- 中性子 : 電気を帯びていない。重い物質では止まりにくく、軽い物質に衝突して止まる。

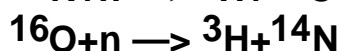
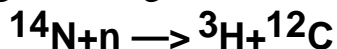
ちなみに、**トリチウムの $\beta$ 線**はエネルギーが小さいため（最大18keV、テレビの電子銃の電子線エネルギーより小さい）、**紙1枚で遮へいが可能。**

# 環境中のトリチウム

## 宇宙線による生成

窒素や酸素から生成している。

約200 g/年 3 kg 程度常に存在



## 核実験による放出

240 EBq (185-240)

E:エクサ,  $10^{18}$

## 全世界のトリチウム存在量

1-1.3 EBq (1) + ~10 EBq (現在)

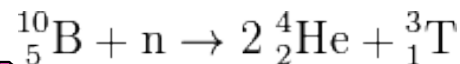
海: 1Bq/lの濃度

(1 lに数億個のトリチウム。ベータ線が1秒間に1個ずつ発生)

原子炉でのトリチウム生成

ウラン等の中性子との三体核分裂  
一万回に1回程度

制御棒中のホウ素の中性子捕獲



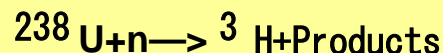
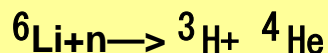
消費製品

0.4 Ebq/年 (0.3-0.4)

原子力発電所

0.02 Ebq/年  
(0.01-0.02)

地殻での生成



特に、カナダ、韓国等の重水炉の重水減速材からの生成が多い。

・カナダ; トリチウム生産量約 2 kg/年、保有量10数kg

・韓国; 2007年よりトリチウム生産プラント稼働、

数百 g/年の処理能力、kgオーダーで回収との情報

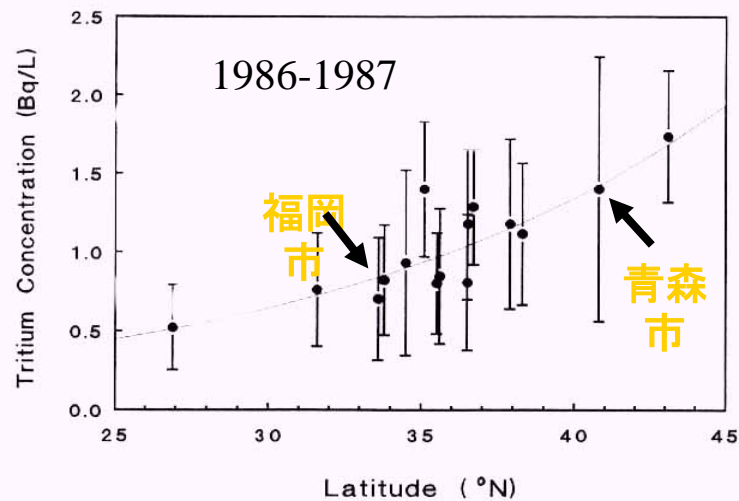
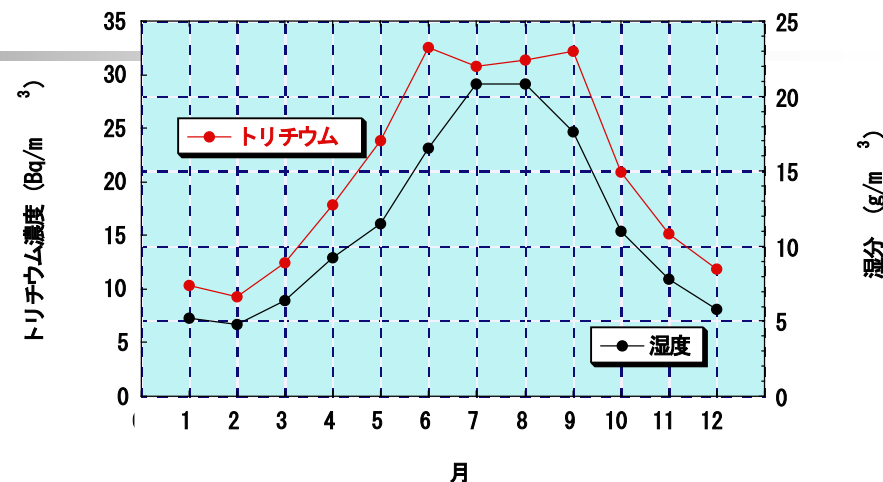
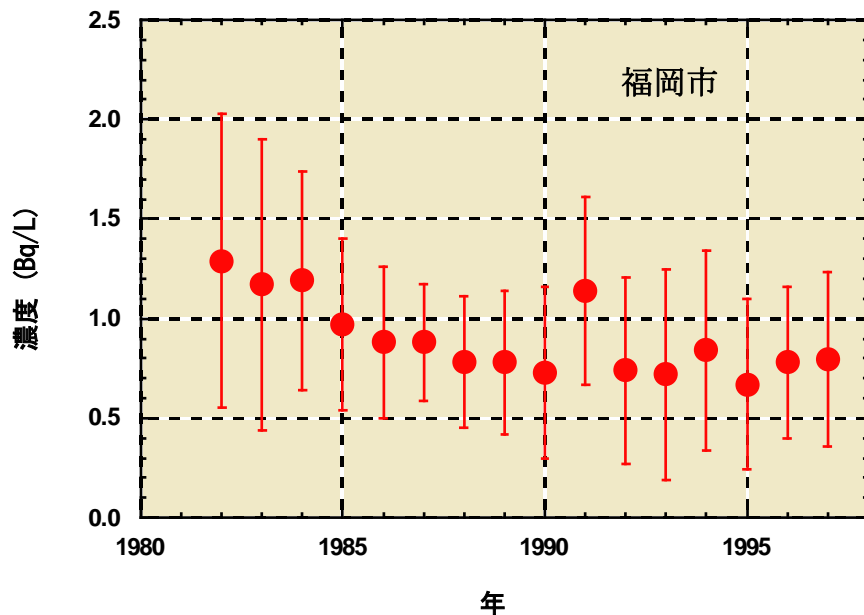


# 環境中のトリチウム2

雨のトリチウム濃度（年平均）

大気中のトリチウム濃度は  
湿分に連動して変化する

雨のトリチウム濃度は緯度依  
存性を示す



シンポジウム「核融合炉の安全性及びトリチウム」より

主催：日本原子力学会核融合炉ブランケット工学特別専門委員会 2003年3月20日 青森国際ホテル

# トリチウムに関する我が国の規制

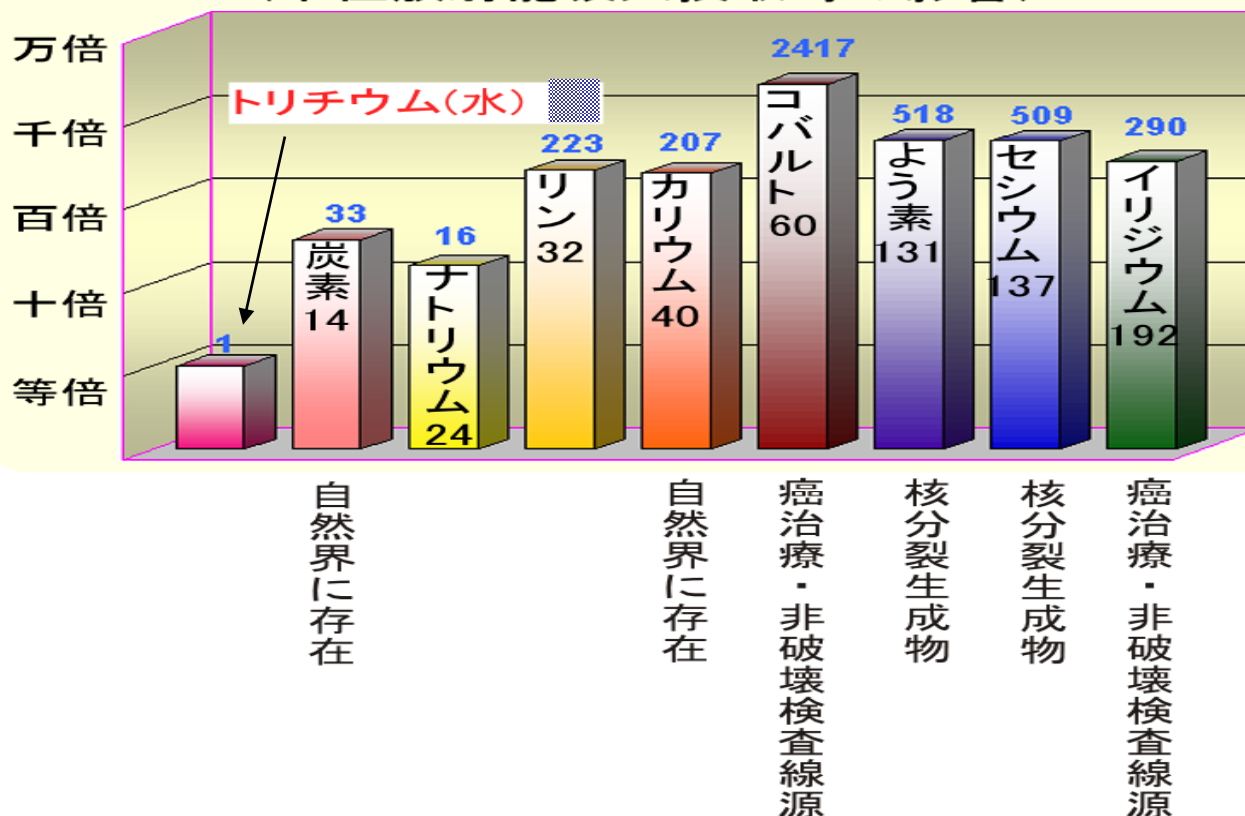
放射線障害防止法関連法令で定められた値

トリチウムの化学形	実効線量係数 (mSv/Bq)		濃度限度 (Bq/cm <sup>3</sup> )		
	吸入	経口	作業環境の 空气中 (1週間の平均値)	排気中 (3ヶ月の平均値)	排液又は 排水中 (3ヶ月の平均値)
元素状水素	$1.8 \times 10^{-12}$		$1 \times 10^4$	$7 \times 10^1$	
メタン	$1.8 \times 10^{-10}$		$1 \times 10^2$	$7 \times 10^{-1}$	
水	$1.8 \times 10^{-8}$	$1.8 \times 10^{-8}$	$8 \times 10^{-1}$	$5 \times 10^{-3}$	$6 \times 10^1$
有機物(メタン以外)	$4.1 \times 10^{-8}$	$4.2 \times 10^{-8}$	$5 \times 10^{-1}$	$3 \times 10^{-3}$	$2 \times 10^1$
上記を除く化合物	$2.8 \times 10^{-8}$	$1.9 \times 10^{-8}$	$7 \times 10^{-1}$	$3 \times 10^{-3}$	$4 \times 10^1$

(福島第一原発) 汚染水量: 約30万m<sup>3</sup>、濃度: ~5000 Bq/cm<sup>3</sup>、トリチウム量: 数g

# トリチウムの生物影響

トリチウムと  
よく知られた放射性核種との生物影響の比較  
(単位放射能吸入摂取時の影響)



体重65kgの人は  
カリウム40  
4000 Bq  
炭素14  
3700 Bq  
トリチウム水  
100 Bq

新陳代謝  
水素の仲間は**水の形で10日**、**有機物の場合で平均40日**で入ってきた量の半分が体外に排出されます。

# 福島第一原子力発電所における 汚染水処理とトリチウムの状況

東京電力株式会社



東京電力

---

1. 原子炉の冷却状況
2. 汚染水の状況
3. トリチウムの状況

# 福島第一原子力発電所 構内配置図

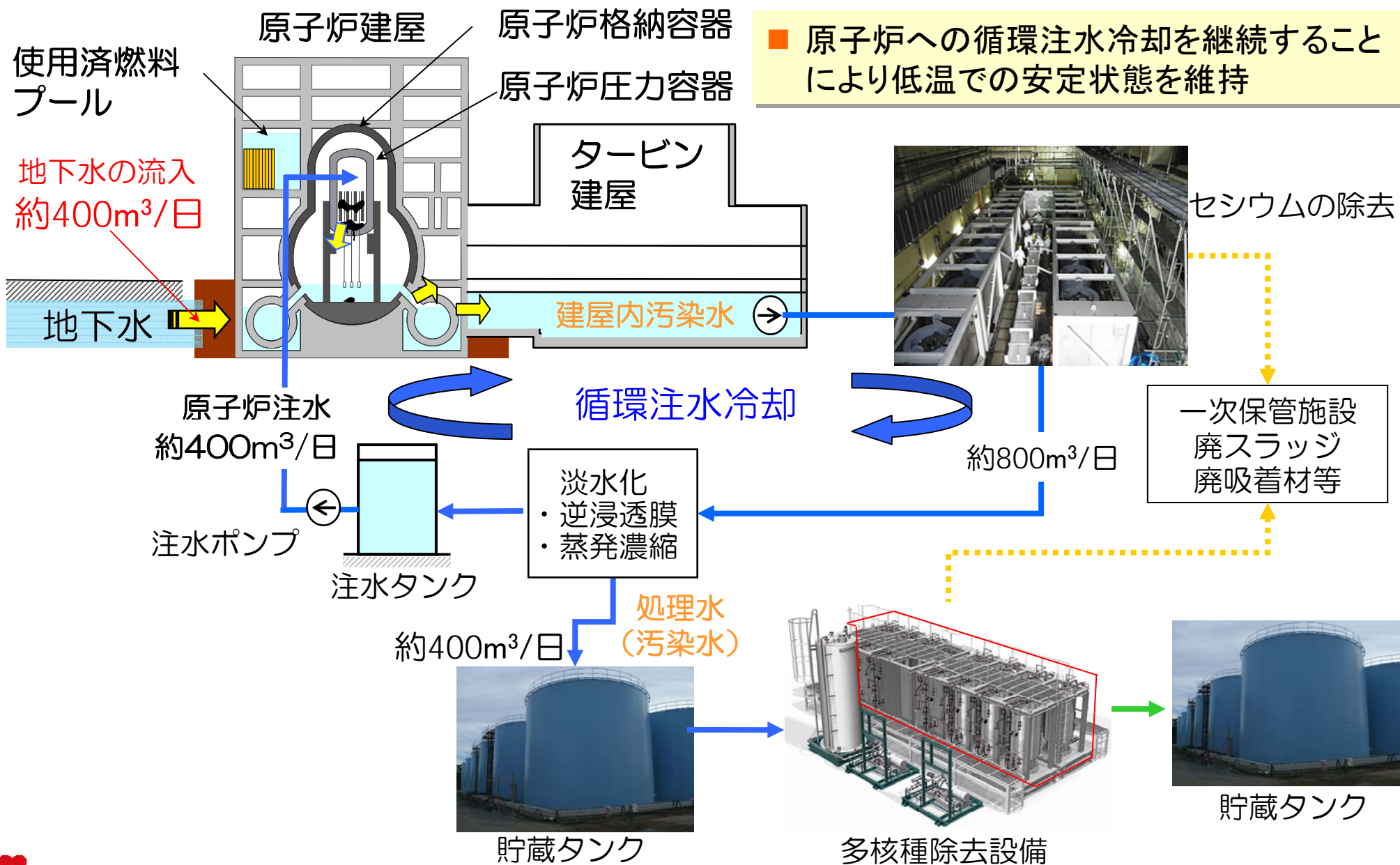
2





# 1. 原子炉の冷却状況 循環注水冷却

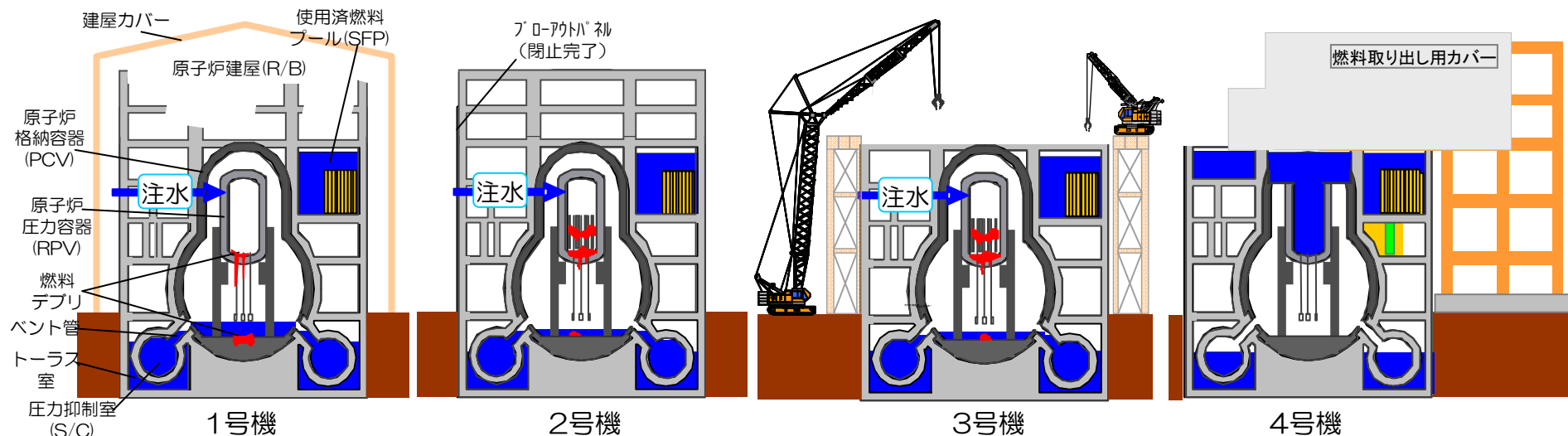
3



# 1. 原子炉の冷却状況 各号機の状態

4

## ■ 各号機ともに冷温停止状態を継続



圧力容器底部温度	
1号機	約16℃
2号機	約25℃
3号機	約22℃
4号機	—

格納容器内温度	
1号機	約16℃
2号機	約25℃
3号機	約20℃
4号機	—

燃料プール温度	
1号機	約20℃
2号機	約15℃
3号機	約15℃
4号機	約19℃

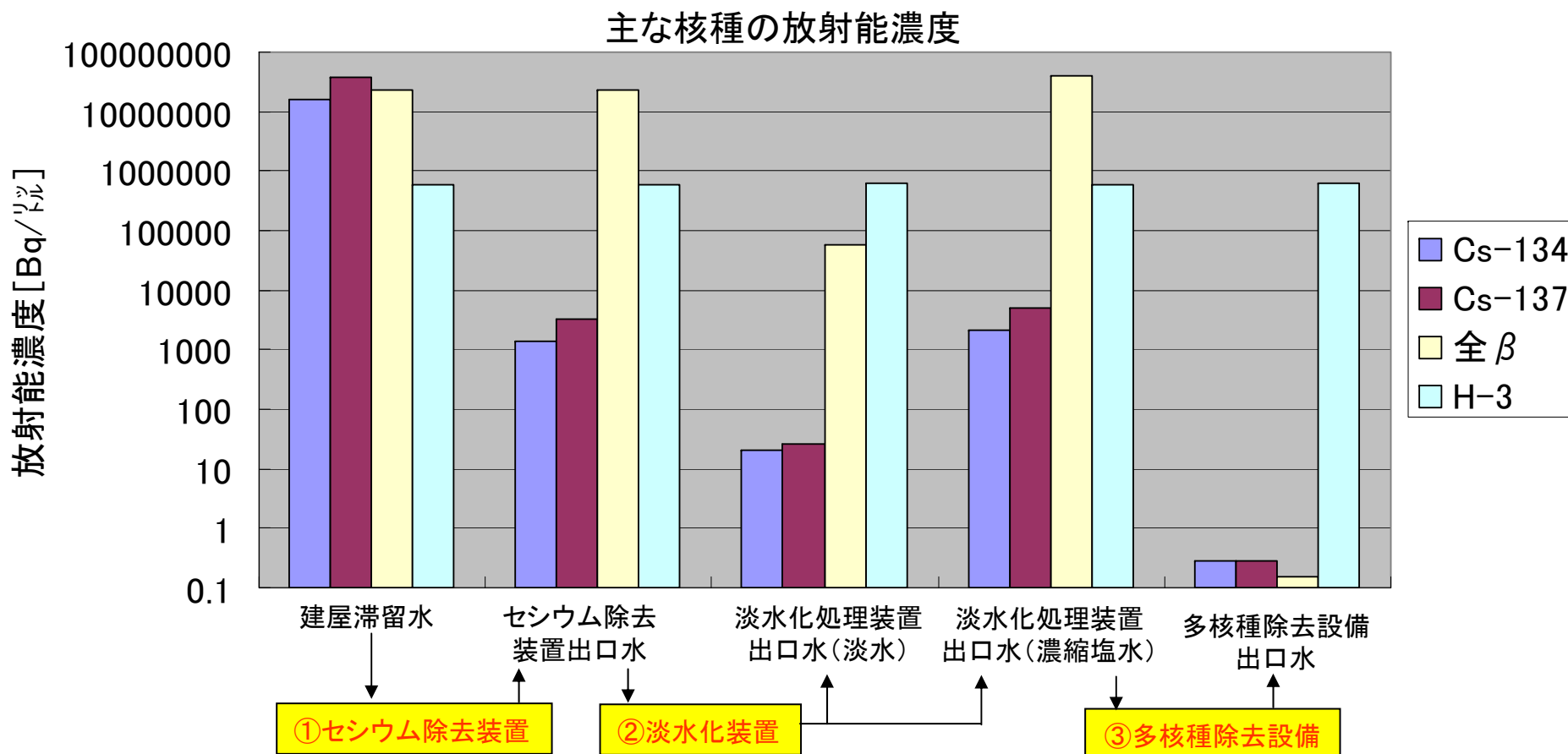
原子炉注水量	
1号機	給水系: 2.3m <sup>3</sup> /h コアスプレイ系: 2.0m <sup>3</sup> /h
2号機	給水系: 2.0m <sup>3</sup> /h コアスプレイ系: 2.5m <sup>3</sup> /h
3号機	給水系: 2.0m <sup>3</sup> /h コアスプレイ系: 2.5m <sup>3</sup> /h
4号機	—



## 2. 汚染水の状況 汚染水処理の概要

5

- ① 主要な放射線(ガンマ線)源であるセシウムを、セシウム除去装置により低減
- ② 原子炉冷却水として使用する為、淡水化装置により塩分を除去
- ③ タンク貯留水の放射性物質濃度(トリチウムを除く)を、多核種除去設備により低減

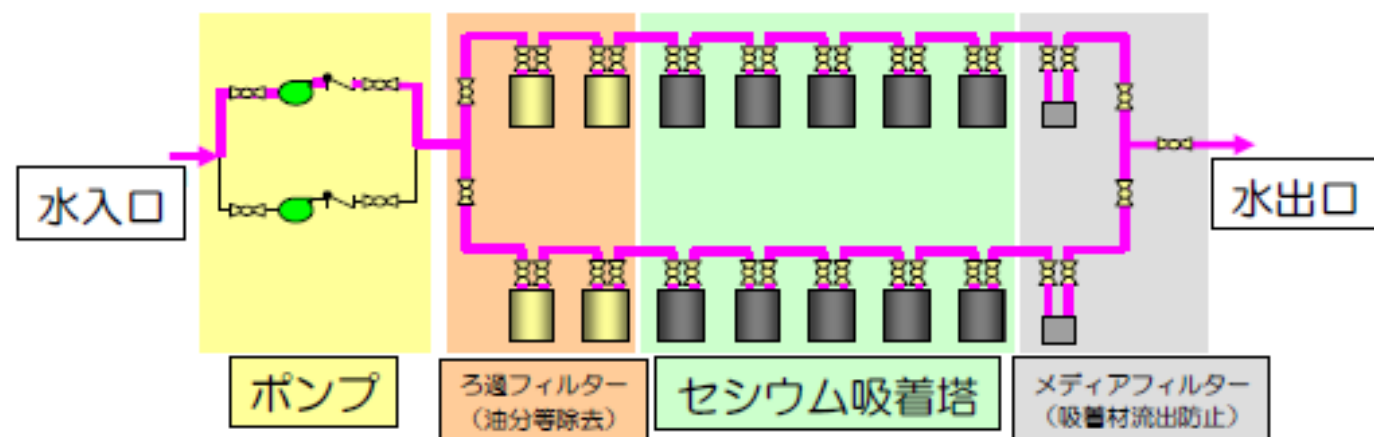


※採取日 H25.11.5 (多核種除去設備出口水はH25.4.9~12)  
※建屋滞留水における全β、H-3の濃度はセシウム除去装置出口水のデータを用いた  
※多核種除去設備出口水の全βはSr-90の値を用いた  
※検出限界値以下の場合は、検出限界値を用いた

## 2. 汚染水の状況 セシウム除去装置

6

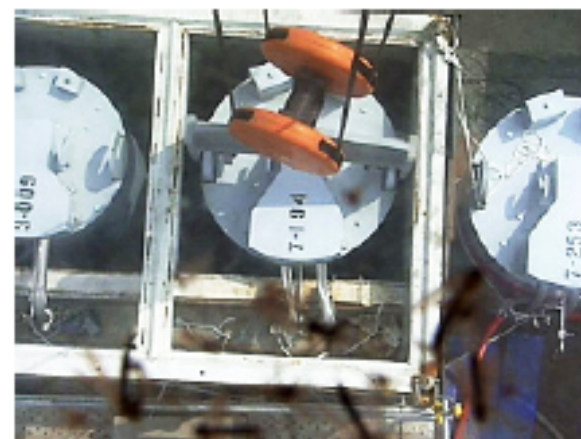
- 使用開始時期：2011年6月17日（キュリオン）、8月19日（サリー）
- 処理量：1,200m<sup>3</sup>/日 <各々の定格処理量（ポンプ1台運転時）>



吸着塔（ベッセル）



ベッセル搬入状況



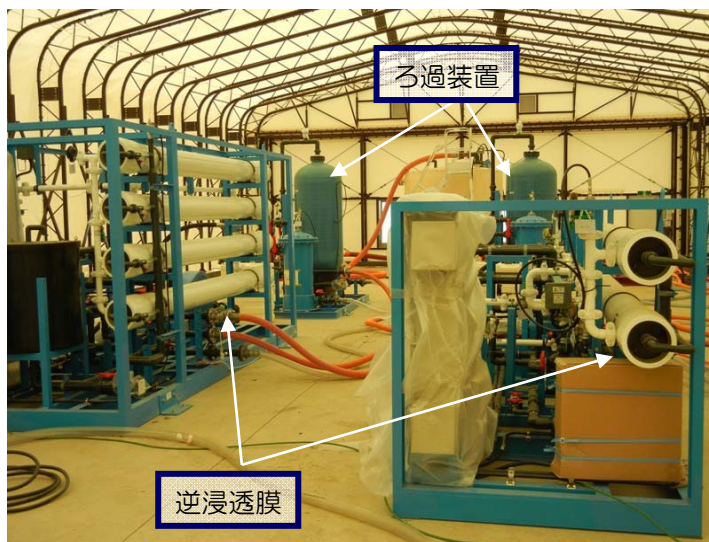
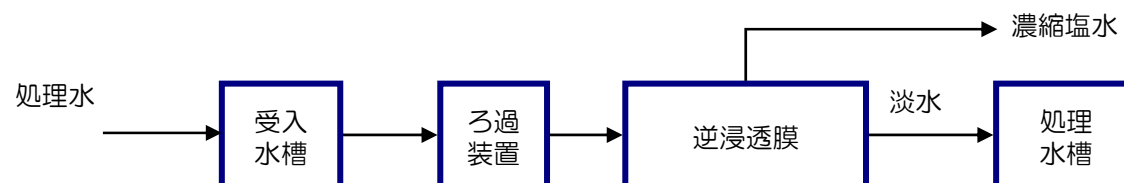
ベッセル交換

【サリーの例】

## 2. 汚染水の状況 淡水化装置（逆浸透膜（RO）方式）

7

- イオンや塩類など、水以外の不純物を通さない逆浸透膜の性質を利用して塩分を除去し、水にする。
- 受入水槽、ろ過装置、逆浸透膜、処理水槽などから構成される



< 淡水化装置（ROモジュール） >

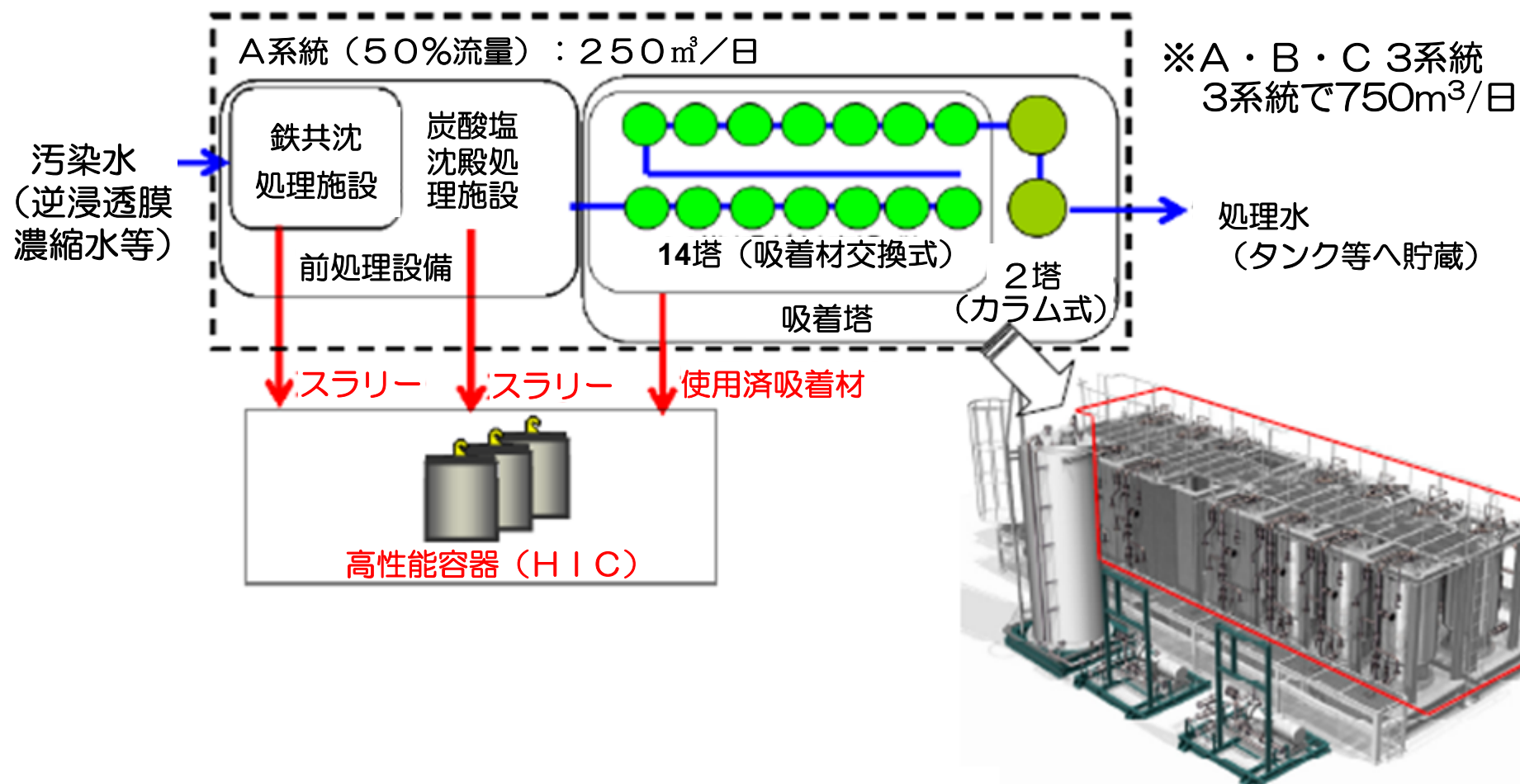


< 淡水化装置（ろ過装置） >

## 2. 汚染水の状況 多核種除去装置

8

- 汚染水中の放射性物質(トリチウム除く)を除去
- 放射性物質を含む水を用いた試験を実施中





## 2. 汚染水の状況 ホット試験における除去性能評価

### ■ホット試験における除去性能評価

多核種除去設備で汚染水（RO濃縮塩水）を用いたホット試験を行い、除去対象とする62核種※について、除去性能を評価。A、B、C系のホット試験における処理済水の分析の結果、これまで以下の事項を確認。

➤ 主要な核種であるSr-90の放射能濃度は、1/1億～1/10億程度に低減

➤ Co-60、Ru-106(Rh-106)、Sb-125(Te-125m)、I-129が比較的高く検出

（ ）内は放射平衡となる核種

#### ※除去対象核種の選定(実施計画記載事項抜粋)

##### 【検討対象核種】

- ・1～3号機原子炉内の燃料に由来する放射性物質(FP核種)。
- ・プラント運転時の保有水に含まれていた腐食生成物に由来する放射性物質(CP核種)。

##### 【濃度の推定】

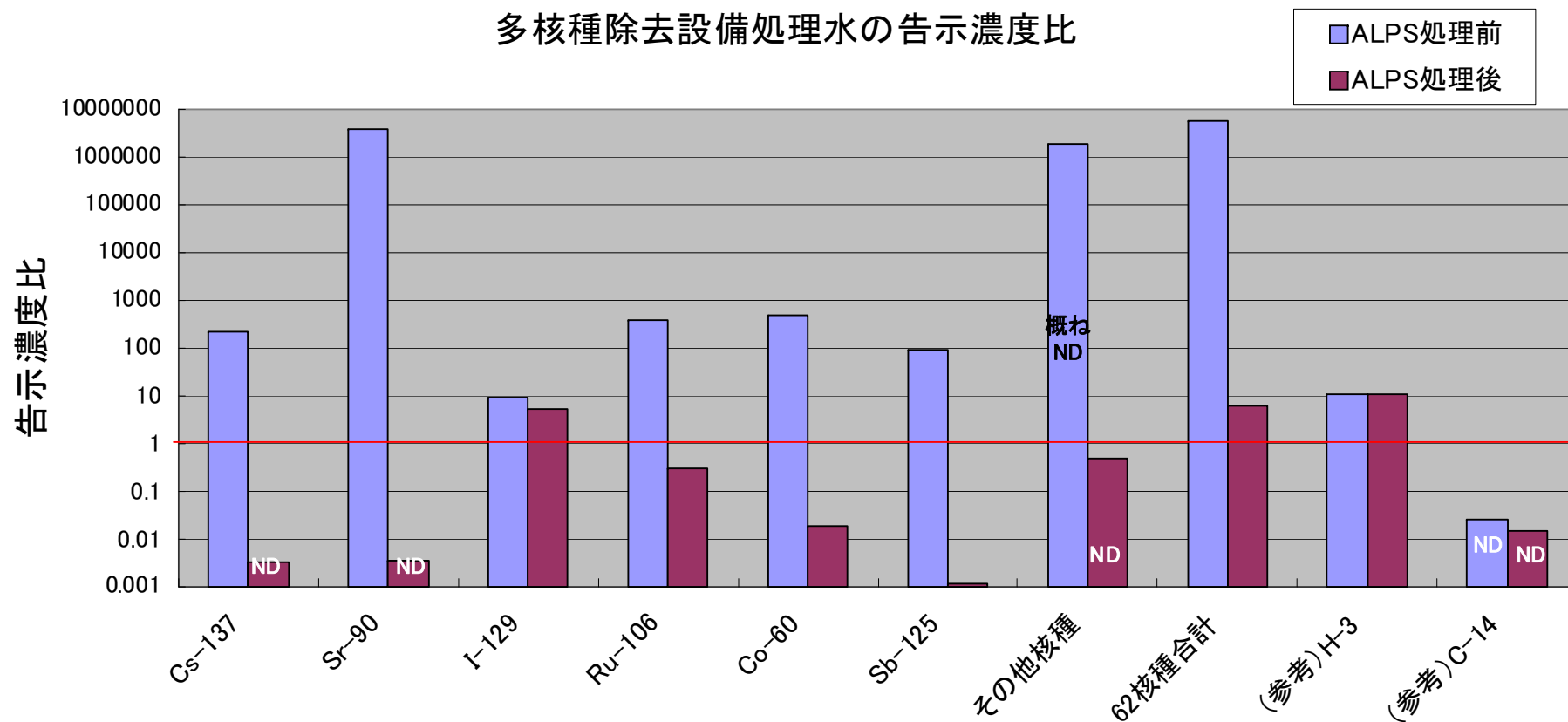
- ・FP核種: 炉心インベントリの評価結果から有意な濃度で存在すると想定される核種を選定し、滞留水の測定結果(2011/3)及び炉心インベントリ評価結果から濃度を推定。
- ・CP核種: プラント運転時の原子炉保有水に含まれていた核種、および高温焼却炉建屋に滞留水を移送した際に混入した濃縮廃液タンクの保有水中核種を選定し、これら保有水の測定結果を用いて滞留水に含まれる濃度を推定。

##### 【除去対象核種の選定】

- ・事故発生から多核種除去設備稼働までの期間(約1年)の減衰を評価し濃度推定。
- ・推定濃度が告示濃度限度に対し1/100を超える核種を滞留水中に有意な濃度で存在する除去対象核種として選定。
- ・但し、トリチウムについては除去することが困難であるため除去対象核種から除外した。

## 2. 汚染水の状況 ホット試験における除去性能評価

10



※採取日 H25.9.30～10.4 (C系HOT試験時)

但し、H-3は処理前後とも採取日H25.11.15の淡水化装置出口水の値を用いた

C-14の処理前は採取日H25.2.14のセシウム除去装置出口水の値を

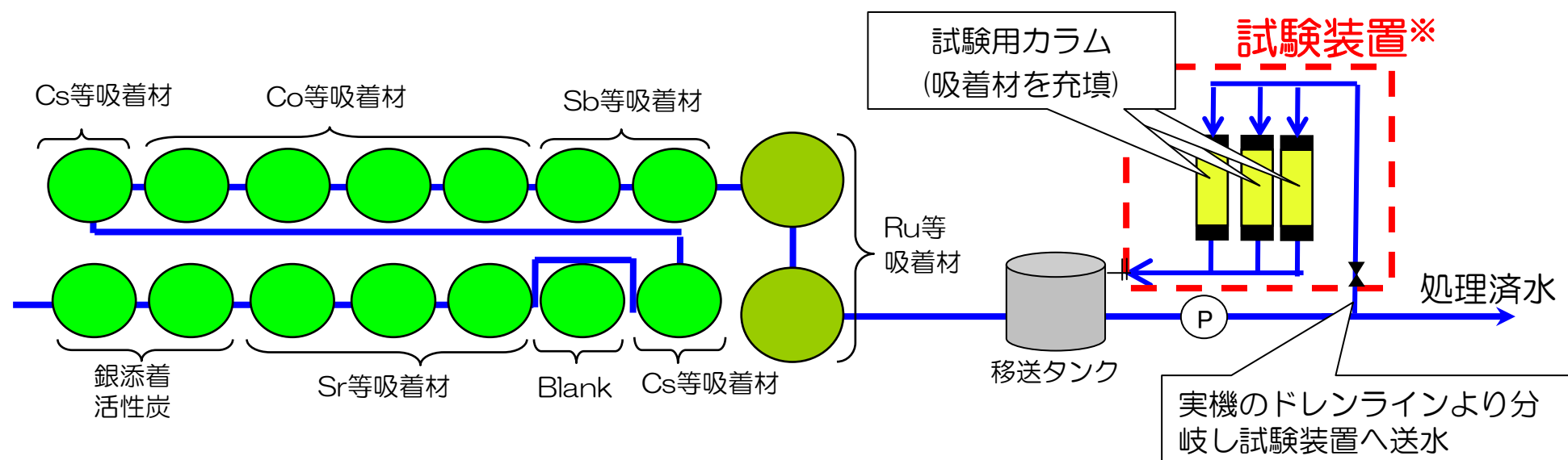
処理後は採取日H26.1.15のC系処理済み水の値を用いた

※検出限界値以下の場合は、検出限界値を用いた

告示: 実用発電用原子炉の設置、運転等に関する規則の規定に基づく線量限度を定める告示

### ■除去性能向上策の検討

- 比較的放射能濃度が高い核種を活性炭系吸着材へ通水し除去性能向上する見込み有り
- ラボ試験では、大量の通水による長期間の除去性能維持を確認出来ない
- そのため、**活性炭系吸着材等を充填した試験装置を実機に接続し、通水試験（インプラント通水試験）を実施し、除去性能の維持を確認していく**
- インプラント通水試験では、活性炭系吸着材の他に除去性能向上が見込める吸着材の検証も併せて実施



※試験装置は、A系統に設置。1/24～3/18通水試験実施。

試験結果を踏まえ、吸着塔を2塔増設するとともに、塔構成を下図の通り変更することで、除去性能の向上（告示濃度比の和で、現状約6→改善後0.5～0.6）が得られる見込み

### Co-60

- 活性炭で除去される見込み有り（コロイド形態の放射性物質が存在することを確認）
- 活性炭を2塔増設すれば高い除去性能が得られる見込み

### Sb-125

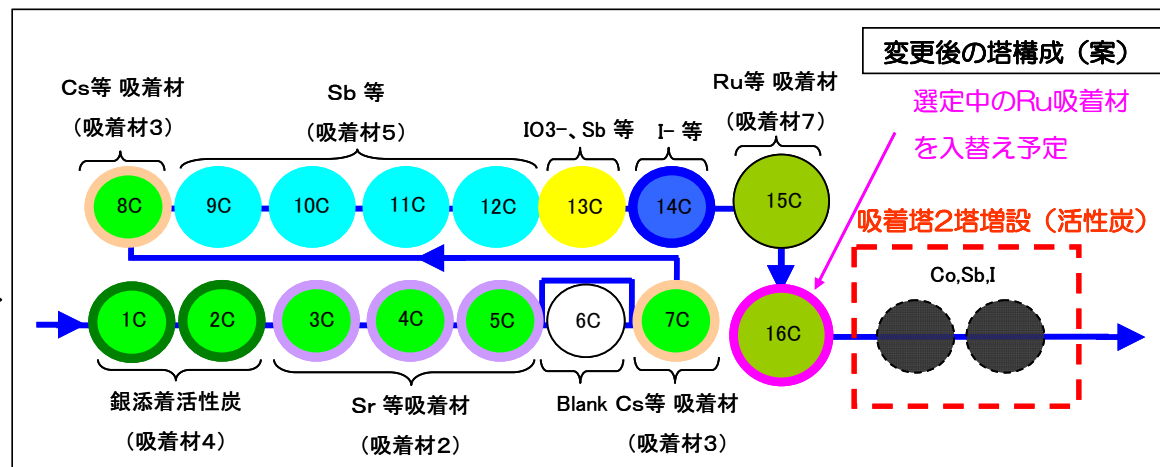
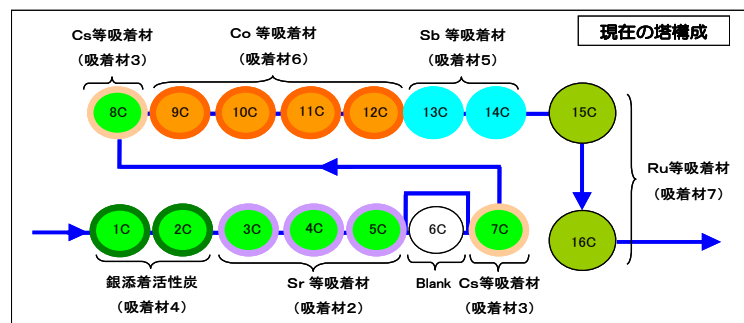
- 現状の「活性炭2塔」および「Sb等吸着材2塔」では吸着容量不足と推定
- 「活性炭4塔」および「Sb等吸着材4塔」に増塔すれば、高い除去性能が得られる見込み

### I-129

- ヨウ素イオン、コロイドの形態の他にヨウ素酸イオンが存在すると推定
- 「ヨウ素酸イオン吸着材」＋「銀添着吸着材」＋「活性炭」を模擬した試験の結果、約10日通水時点で高い除去性能を確認
- インプラント試験を継続し寿命確認予定

### Ru-106

- コールド試験により、Ru除去可能なメディアを選定済み（インプラント試験にて確認予定）





## 2. 汚染水の状況 汚染水の貯蔵

13

- 総貯蔵容量\*は約49万 $\text{m}^3$
- 総貯蔵量\*は約46万 $\text{m}^3$
- 80万 $\text{m}^3$ までの増設計画(H26年度末迄の目標)



### 【各タンクの貯蔵容量\*】

鋼製角型タンク : 約 0.3万 $\text{m}^3$

鋼製円筒型タンク(フランジ): 約 30万 $\text{m}^3$

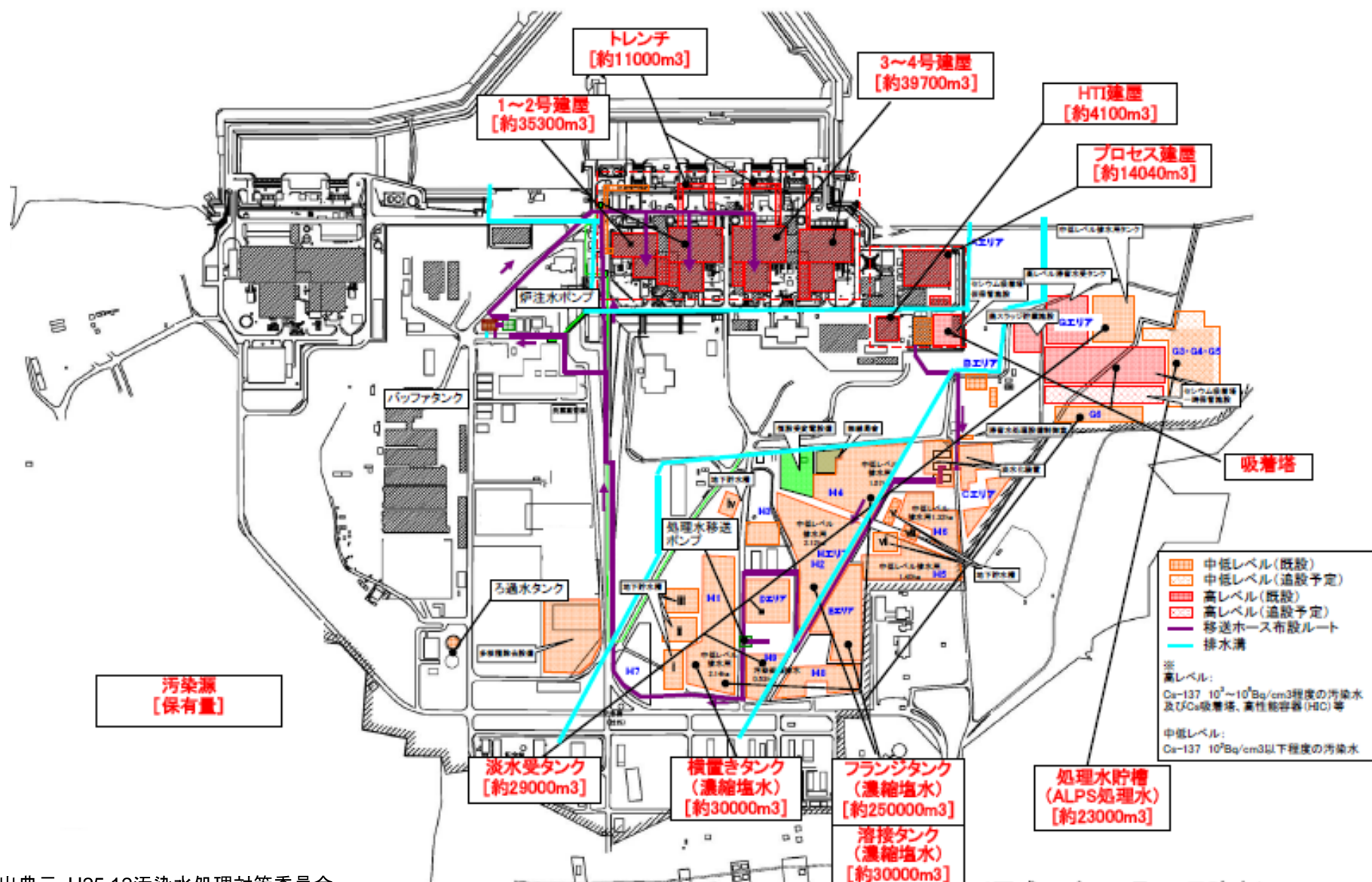
鋼製円筒型タンク(溶接) : 約 14万 $\text{m}^3$

鋼製横置きタンク : 約 4万 $\text{m}^3$

\* H25.4.22現在

## 2. 汚染水の状況 汚染水マップ

14



＜平成25年10月15日時点＞

※出典元: H25.12汚染水処理対策委員会  
「東京電力(株)福島第一原子力発電所における予防的・重層的な  
汚染水処理対策」



東京電力

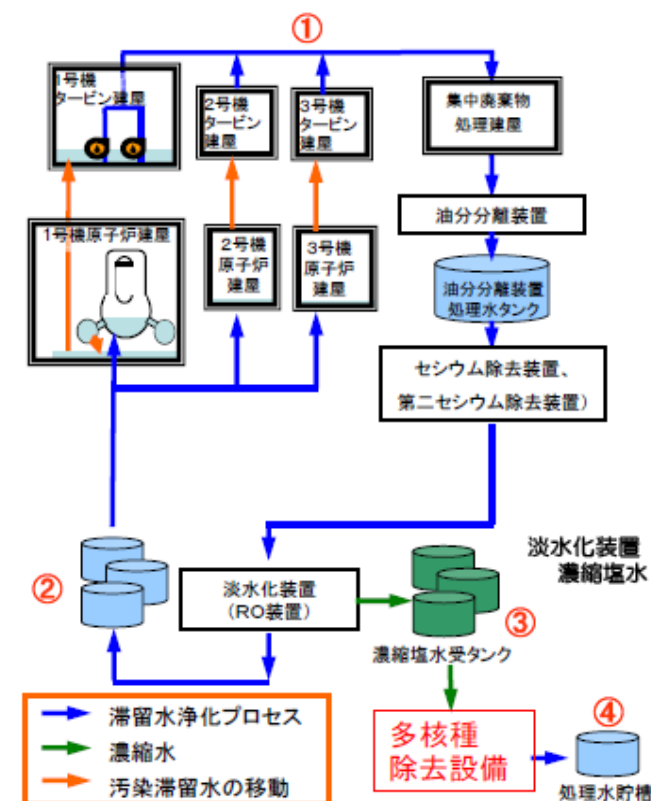
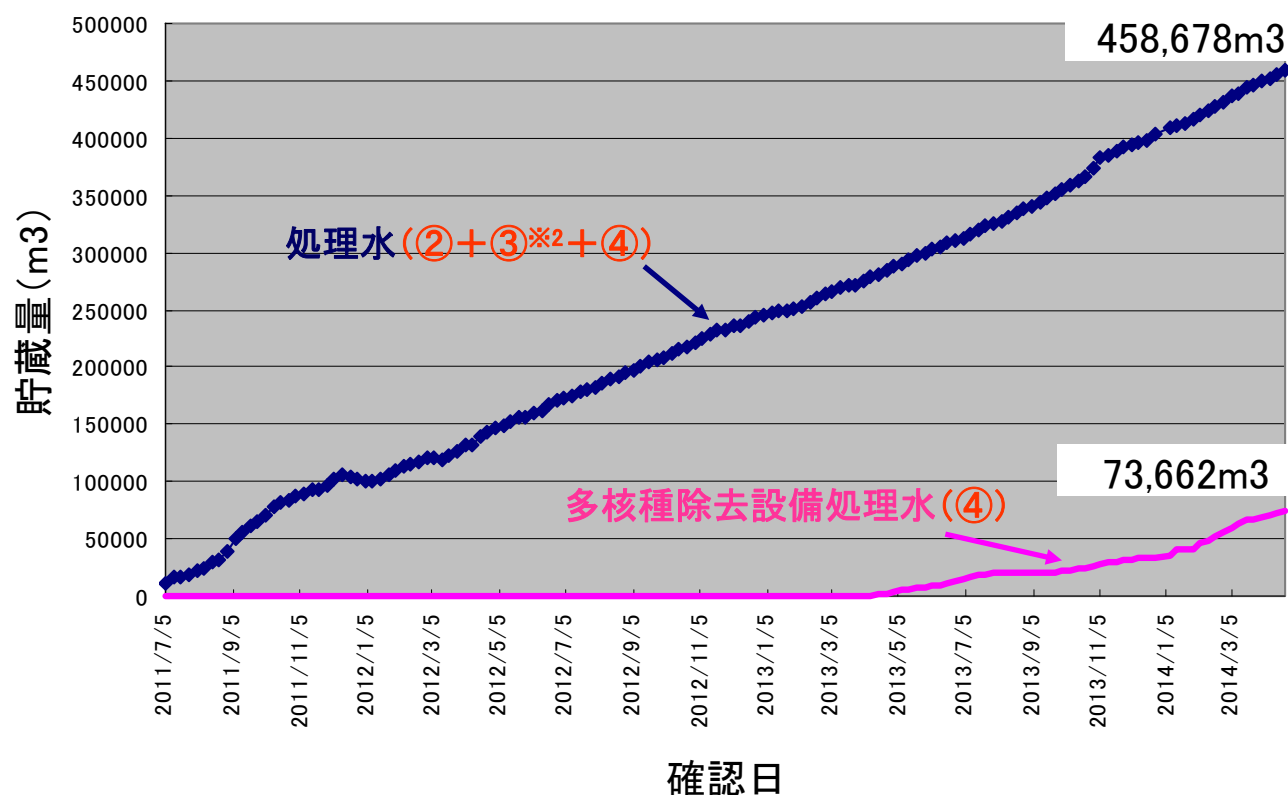
無断複写・転載禁止 東京電力株式会社

## 2. 汚染水の状況 処理水（タンク貯留水）量

15

- 処理水（濃縮塩水、濃縮廃液、多核種除去設備処理水、淡水）の総量は約46万m<sup>3</sup>。
- うち、多核種除去設備処理水の総量は約7.3万m<sup>3</sup>。 ※2014年4月22日時点  
（平成26年度末までに全てのタンク内の水の多核種除去処理を完了させる予定）

処理水貯蔵量※1



出典: 廃炉対策推進会議資料(滞留水の処理状況)

※1: ①建屋滞留水の貯蔵量: 約94,640m<sup>3</sup>

※2: ③は濃縮塩水と濃縮廃液の合計

### 3. トリチウムの状況 トリチウムの総量について

16

■福島第一原子力発電所(1～4号機)における、トリチウムの量は以下と推測される。

2014.3.25時点

推定箇所		トリチウムの量		備考
		[Bq]	[g]※1	
総量		約 $3.4 \times 10^{15}$	T: 約9.5	※2
[内訳]	・タンク貯留水	約 $8.3 \times 10^{14}$	T: 約2.3 (THO: 約15.5)	※3
	・建屋滞留水	約 $5.0 \times 10^{13}$	T: 約0.14 (THO: 約0.9)	※4
	・海水配管トレンチ内水	約 $4.6 \times 10^{13}$	T: 約0.14 (THO: 約0.9)	※5
	・その他	約 $2.5 \times 10^{15}$	T: 約6.9	※6

※1: トリチウム原子の重量(括弧内は「THO」の形態に相当する量を示す)

※2: 事故時の炉内トリチウムインベントリをORIGEN2を使用し評価(10～12頁参照)

※3: 淡水化装置出口濃度データとタンク貯留水量より推測(13～14頁参照)

※4: 淡水化装置出口濃度データ(2014.3)と建屋滞留水量(約92000m<sup>3</sup>)より推測

※5: 淡水化装置出口濃度データ(2011.9)とトレンチ内滞留水量(約11000m<sup>3</sup>)より推測

※6: 総量からタンク貯留水・建屋滞留水・トレンチ内水のトリチウム量を差し引いて算出

(タンク・建屋・トレンチ以外のトリチウムは主に燃料デブリ内などに存在するものと想定される)



### 3. トリチウムの状況 多核種除去設備処理水の化学的性質

17

			多核種除去設備処理水		【参考】※ 一般排水路 排水基準
	採取日時		平成25年4月16日 10:30	平成25年4月18日 11:30	
一般的性質	導電率（μ S/cm）		6220	6200	
	塩素（ppm）		2100	1900	
環境に影響する可能性のある項目	pH		7.6	7.4	水域：5.8～8.6 海域：5.0～9.0
	浮遊物質（mg/L）		<1	<1	最大70以下 平均50以下
	化学的酸素要求量（COD）（mg/L）		<1	1	最大40以下 平均30以下
トリチウム分離等に影響する可能性のある項目	イオン種濃度（ppm）	Na <sup>+</sup>	1480	1590	
		NH4 <sup>+</sup>	30	0	
		NO2 <sup>-</sup>	0	0	
		NO3 <sup>-</sup>	0	0	
		SO4 <sup>2-</sup>	760	610	

※福島県生活環境の保全等に関する条例施行規則第24条別表第5に定める排水指定事業所排水管理基準による。

## 原子力発電所でのトリチウム生成源

- ① 燃料の三体核分裂（ウランが核分裂により3つの破片に割れる反応）による生成
- ② ボロンカーバイド（炭化ホウ素）制御棒に含まれるホウ素-10の中性子照射による生成
- ③ 炉水の放射化（重水や不純物としてのリチウム等への中性子照射による生成）

上記①が主要な発生源だが、現在の福島第一では未臨界であることから追加生成はない

### ① 燃料の三体核分裂による生成

- 燃焼中の $^{235}\text{U}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ の核分裂生成物としてトリチウムが生成される。この量は $^{235}\text{U}$ で0.013%、 $^{239}\text{Pu}$ で0.023%程度で、燃焼が進んだ燃料では $^{239}\text{Pu}$ の燃料が支配的になるが、平均的に0.018%とすると1MWあたりで生成されるトリチウムは次のようになる。

$$N_F \times 1.8 \times 10^{-4} \times \lambda = 1.01 \times 10^4 \text{ Bq/s} \cdot \text{MWt}$$

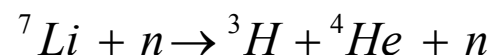
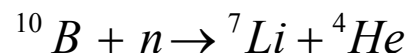
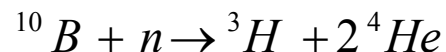
$$\text{NF} : 1\text{秒間における } 1\text{MWt あたりの 核分裂数} = 3.15 \times 10^{16} / \text{s} \cdot \text{MWt}$$

- 炉内で生成されるトリチウム量はおおよそ次のとおりだが、燃料棒が破損しなければほとんど放出されない。（被覆管を透過する割合は $\sim 10^{-4}$ 程度）

トリチウム生成量	50万kWe	80万kWe	110万kWe
Bq/月	4.07E+13	6.29E+13	8.51E+13

## ② ボロンカーバイド(炭化ホウ素)制御棒に含まれるホウ素の中性子照射による生成

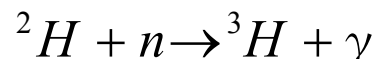
- $B_4C$ (ボロンカーバイド)を中性子吸収に用いた制御棒のポイズンチューブ内では次の反応によりトリチウムが生成する。



- $^{10}B$ が約50%減少するまで照射された $B_4C$ 1g中には保守的に評価して $1.48 \times 10^9 \text{Bq/gB}_4\text{C}$ 程度のトリチウムが生成するが、制御棒が破損しても一度に放出されることはない。

## ③ 炉水の放射化(重水等への中性子照射による生成)

- 炉水中の重水への中性子照射によりトリチウムが生成する。重水によるトリチウム生成は次式で算出される。



$$N^3H = \Sigma(D_2O) \times \phi \times V \times \rho \times (D/H) \times t$$

$N^3H$ :トリチウム 生成量  $V$ :炉水体積

$\Sigma D_2O$ :重水の反応断面積  $\rho$ :水の密度補正

$\phi$ :熱中性子束  $D/H$ :重水存在比

- 炉内で生成されるトリチウム量はおおよそ次のとおり

トリチウム生成量	50万kWe	80万kWe	110万kWe
Bq/月	4.44E+09	6.29E+09	1.07E+10

- 炉内トリチウムインベントリーは三体核分裂によるものが主なものであることから、ORIGEN2(原子燃料燃焼計算コード)を使用し、事故時の詳細な評価を行うと次のようになる。

(Bq)

	1号機	2号機	3号機	合計
TEPCO	1.0E+15	1.2E+15	1.2E+15	3.4E+15
<参考> JAEA*	9.4E+14	1.2E+15	1.2E+15	3.3E+15

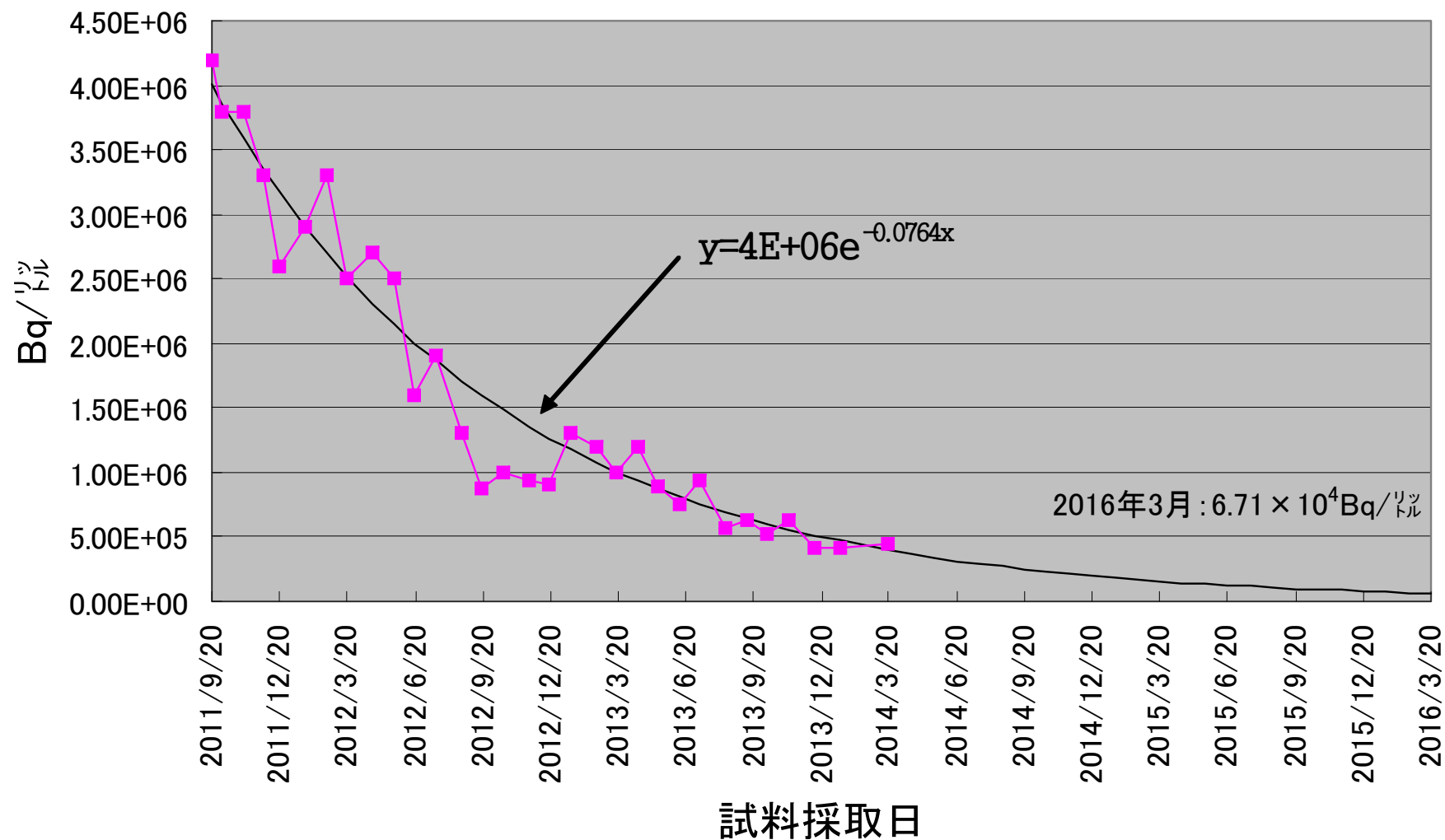
\* 日本原子力学会和文論文誌「福島第一原子力発電所の滞留水への放射性核種放出」(西原賢司 他)

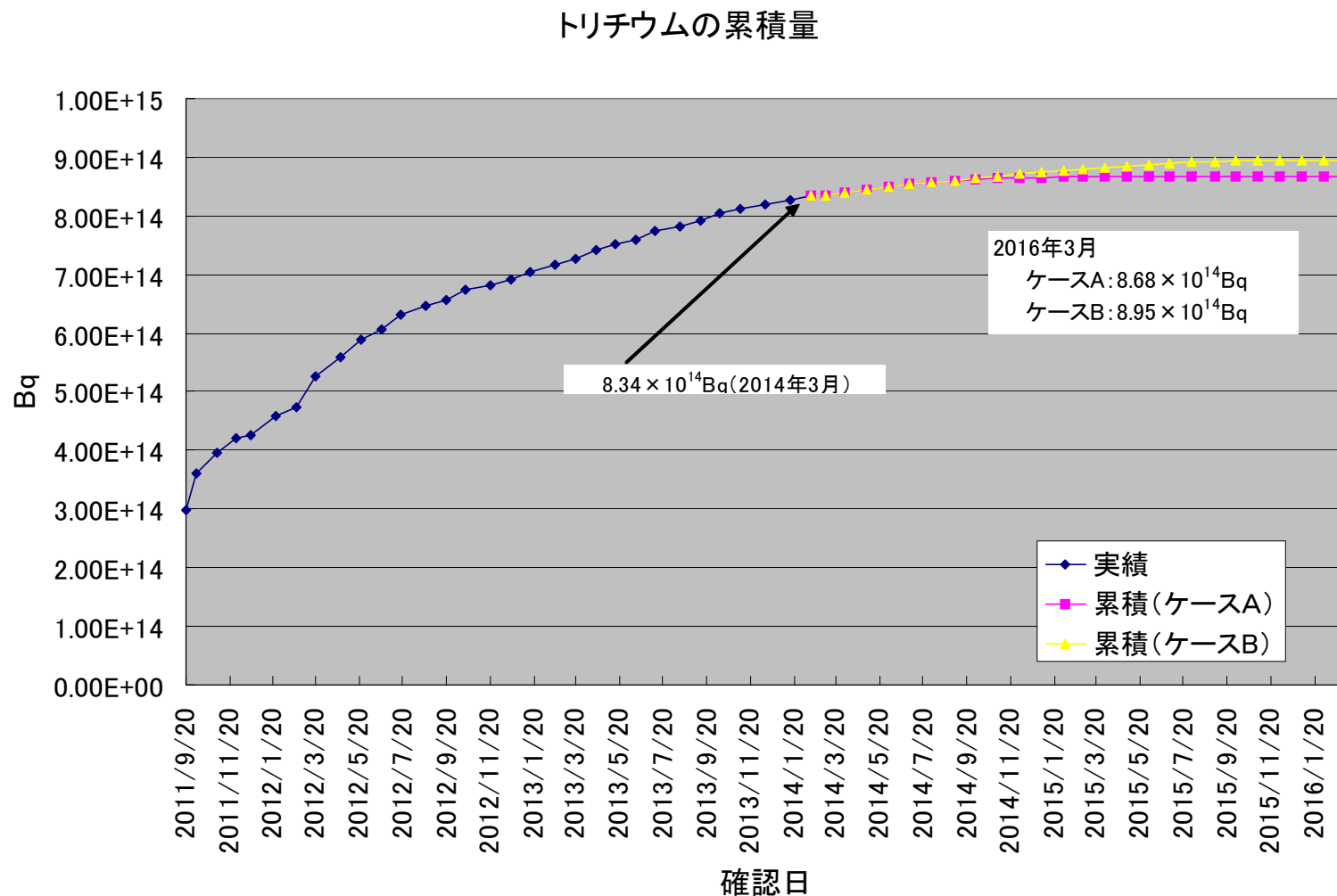
- 事故前は評価結果のトリチウムのうち、約60%程度が燃料棒の被覆管に吸蔵※していたと考えられる。
- 現在(2014年3月末)、タンクに貯水される水に含まれるトリチウムの総量は $8.34 \times 10^{14}$ Bqと推定され、2016年2月末では約 $9 \times 10^{14}$ Bqになると推定される。
- この時(2016年2月末)の新たに処理される水に含まれるトリチウムの濃度は $6.7 \times 10^4$ Bq/l程度であると推定される。
- 表中の1～3号機のトリチウムを合計した $3.4 \times 10^{15}$ Bqはトリチウム原子の重量9.5gに相当する量。(トリチウムが「THO」の形態で存在した場合、63.3gに相当する)

※ (株)東芝「実ハル圧縮試験」(JAEA(旧動力炉・核燃料開発事業団)契約業務報告書) 1996年9月



新たにRO処理される水に含まれるトリチウム濃度

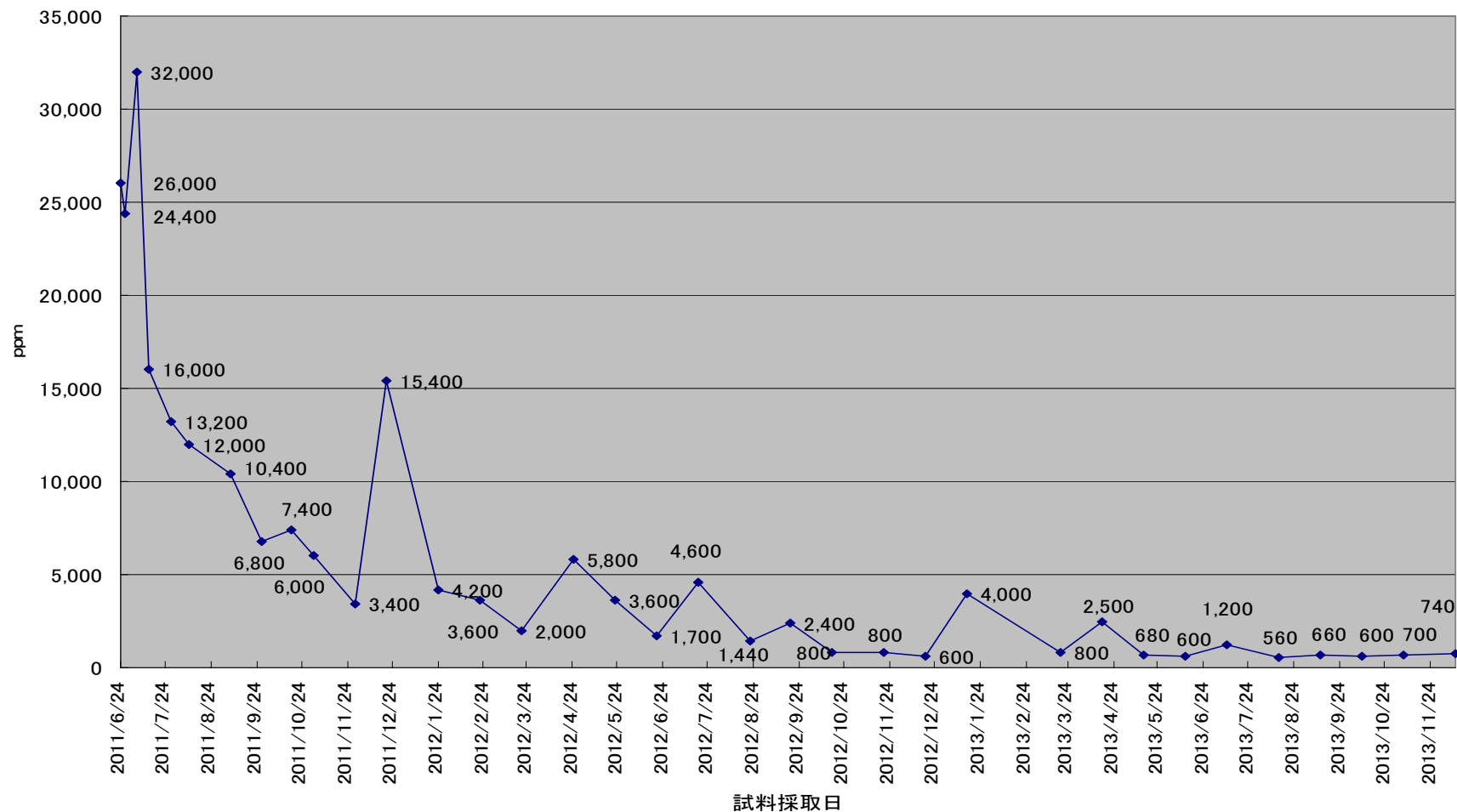




- ケースA: 地下水バイパス実施、サブドレン汲み上げ、雨水排水、地下水ドレン排水
- ケースB: 地下水バイパス実施せず、サブドレン実施せず、雨水排水、地下水ドレン貯水

✓この他に2016年3月にはR/B、T/B、集中RW、HIT建屋に $6.08 \times 10^{12}$  Bqがあると推定される。

逆浸透膜処理後の水に含まれる塩分の濃度



出典: 廃炉対策推進会議資料(滞留水の処理状況)……RO処理後の濃縮塩水は処理前の2倍程度の塩分となることから、資料に記載された値を2倍してプロットした

## ■ トリチウム( $^3\text{H}$ )の環境動態

- ・環境 $^3\text{H}$ の分類
- ・ $^3\text{H}$ の分析法
- ・一般環境の $^3\text{H}$
- ・事故由来の $^3\text{H}$

(公財)環境科学技術研究所  
柿内秀樹

# はじめに

トリチウム( $^3\text{H}$ ,  $\text{T}$ )とは  
水素の放射性同位体

## ■天然のトリチウム

宇宙線との相互作用により生成

## ■人為起源のトリチウム

---

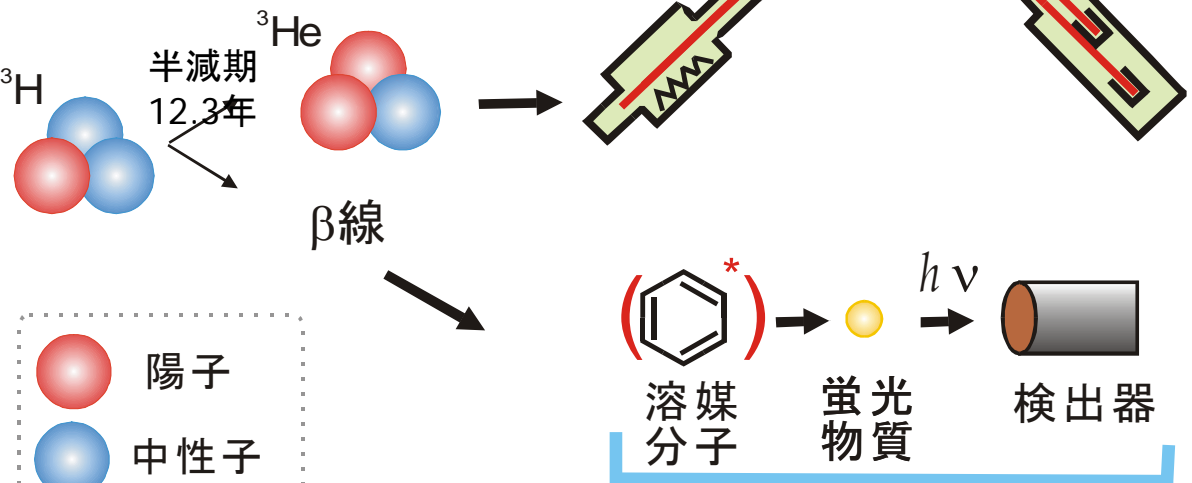
トリチウムの環境中挙動

- (1) 地球規模での挙動
- (2) 局所的に放出された場合の挙動

$^3\text{H}$ は低エネルギー $\beta$ 線放出核種であるため、ヒトへの影響を考える場合は体内摂取、すなわち内部被ばくを考慮する。

国際放射線防護委員会(ICRP)が提示している $^3\text{H}$ の線量換算係数(Sv/Bq)は、吸入および経口摂取のいずれの場合も、その化学形により大きく異なっているので、環境中の $^3\text{H}$ の存在形態を知ることは、その挙動を知るためだけでなく、ヒトへの影響を考える上でも重要である。

# 環境<sup>3</sup>Hの計測



VG-5400  
Micromass

液体シンチレーション  
カウンティング (LSC)



Quantulus 1220  
PerkinElmer



Hitachi-Aloka  
LSC-LB7

# 環境<sup>3</sup>Hの試料分類と測定法

大気水蒸気(HTO)  
分子状水素 (HT)  
炭化水素 (CH<sub>3</sub>T)

降水、水道水、河川水、  
海水

有機物 (FWT)

有機物 (OBT)

土壤水分

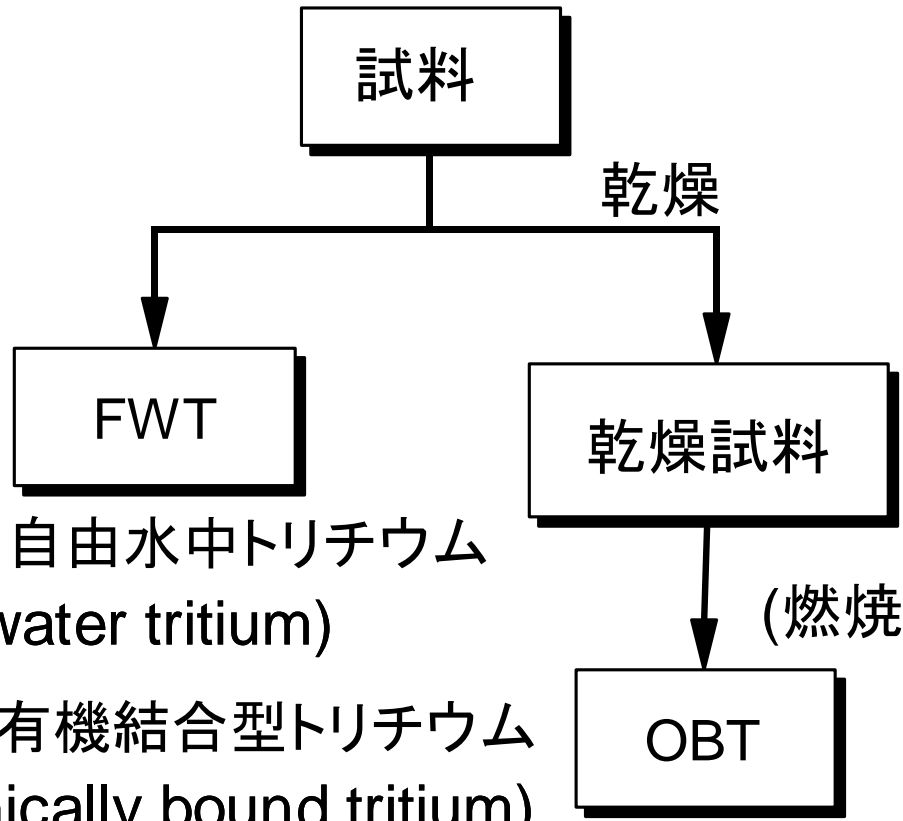
水試料

LSCによる  
<sup>3</sup>H測定

乾燥試料

質量分析法に  
よる<sup>3</sup>H 由来の  
<sup>3</sup>He 測定

# 有機物中トリチウム

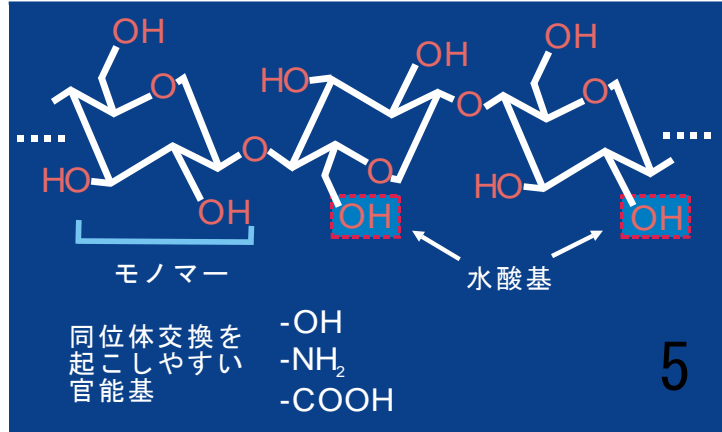
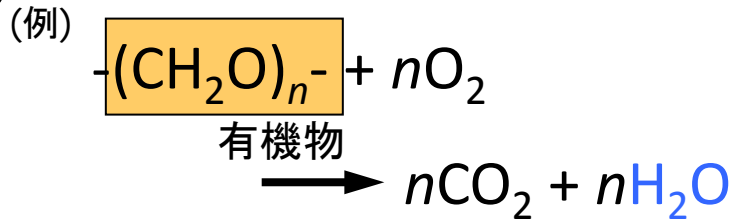


**FWT** 自由水中トリチウム  
(Free water tritium)

**OBT** 有機結合型トリチウム  
(Organically bound tritium)

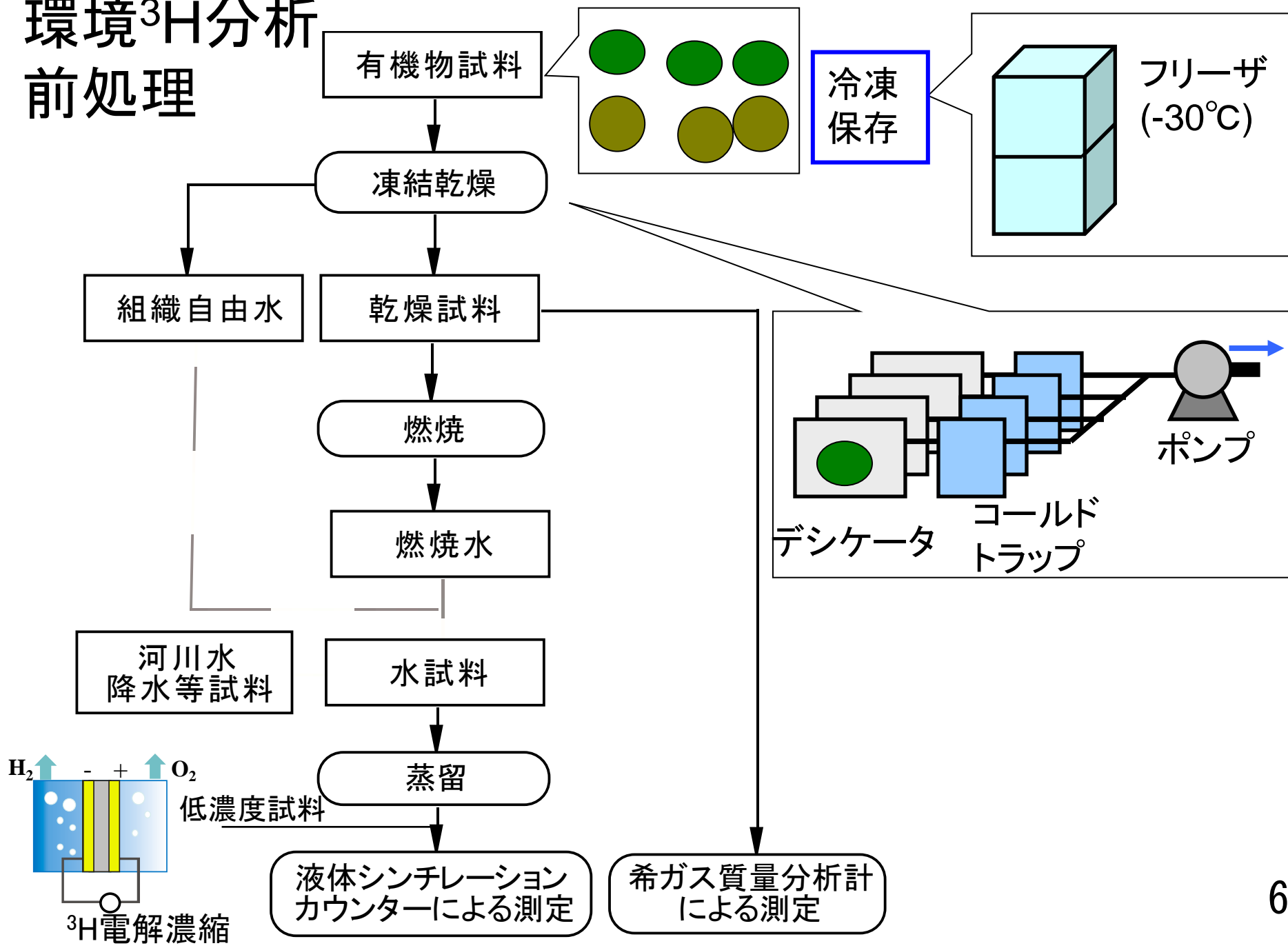
{ 交換型 OBT  
非交換型 OBT      同位体交換の有無

OBTは生体に吸収されやすく、  
生物学的半減期が長いため  
線量評価上重要





# 環境 $^3\text{H}$ 分析 前処理



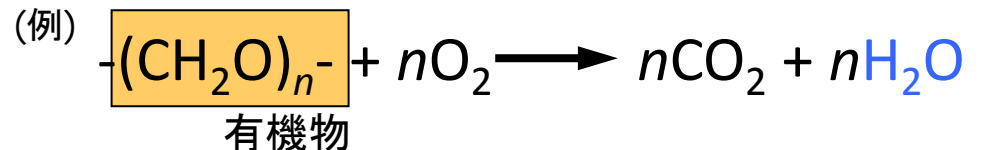
# 環境試料中 $^3\text{H}$ 濃度の表し方

水

- 1Lあたりに1 Bq存在  $\rightarrow$  1 Bq L $^{-1}$  (1 Bq/L)
- 水素原子 $10^{18}$ 個あたり $^3\text{H}$ 原子が1個存在  
 $\rightarrow$  1 TU (= 0.118 Bq L $^{-1}$ )

有機物

- 有機物試料1kgあたりに1 Bq存在  $\rightarrow$  1 Bq kg $^{-1}$ -湿
- 乾燥試料1kgあたりに1 Bq存在  $\rightarrow$  1 Bq kg $^{-1}$ -乾
- 燃焼水1Lあたりに1 Bq存在  $\rightarrow$  1 Bq L $^{-1}$ -燃焼水



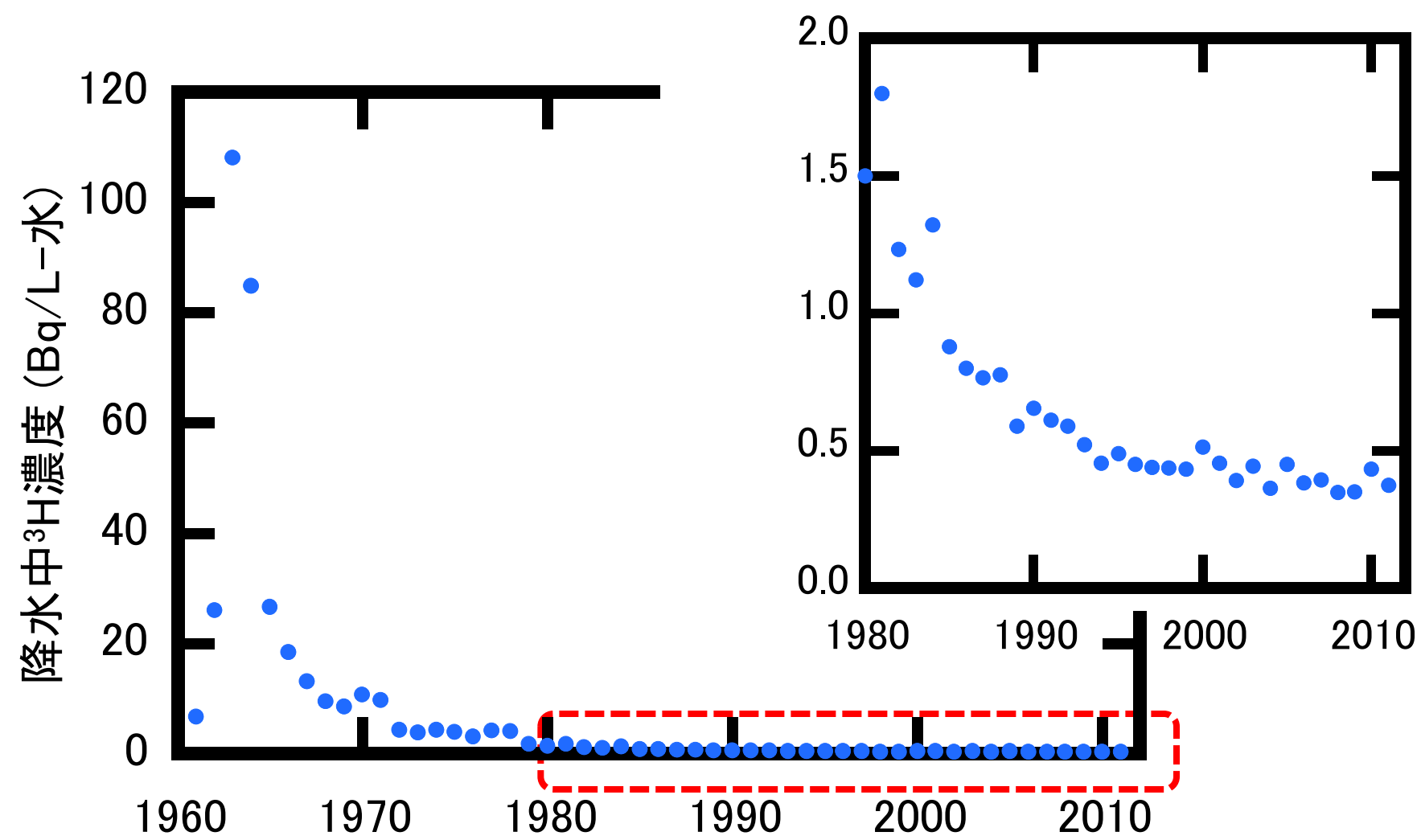
大気

- 大気1m $^3$ あたりに1 Bq存在  $\rightarrow$  1 Bq m $^{-3}$  (1 Bq/m $^3$ )

(HTO)

- 水蒸気1 Lあたりに1 Bq存在  $\rightarrow$  1 Bq L $^{-1}$  (1 Bq/L)

# 降水中<sup>3</sup>H濃度の推移(東京、千葉)



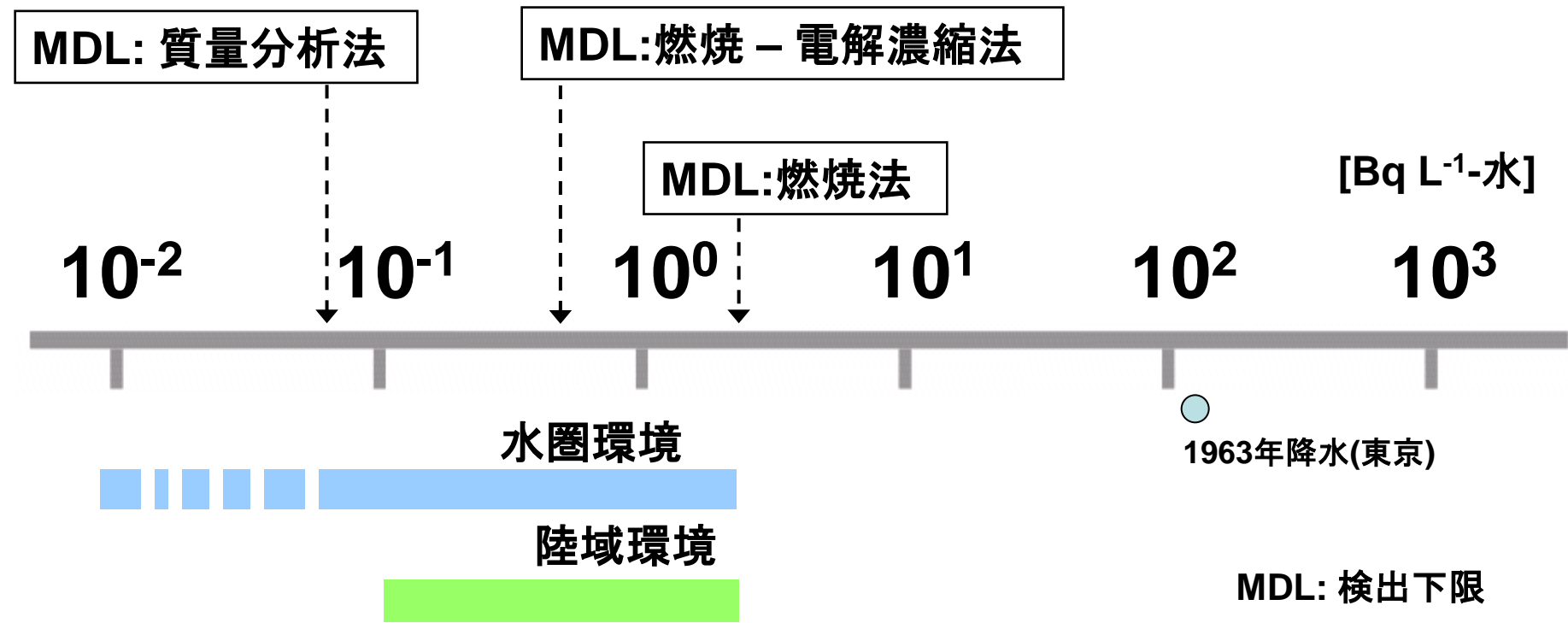
<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html#>.  
<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/>

・ 最近の降水中トリチウム濃度は 0.5 Bq/Lを下回っている8

## 環境試料中OBT濃度定量法の比較

測定法	燃焼法	燃焼-電解濃縮法	質量分析法
試料 乾燥重量 (g)	30	500	30
検出下限 (Bq L <sup>-1</sup> )	2	0.2	0.02
前処理時間 (1試料当たり)	7 d	40 d	3 d
貯蔵期間	-	-	2 month

# 一般環境中の<sup>3</sup>H濃度レベル

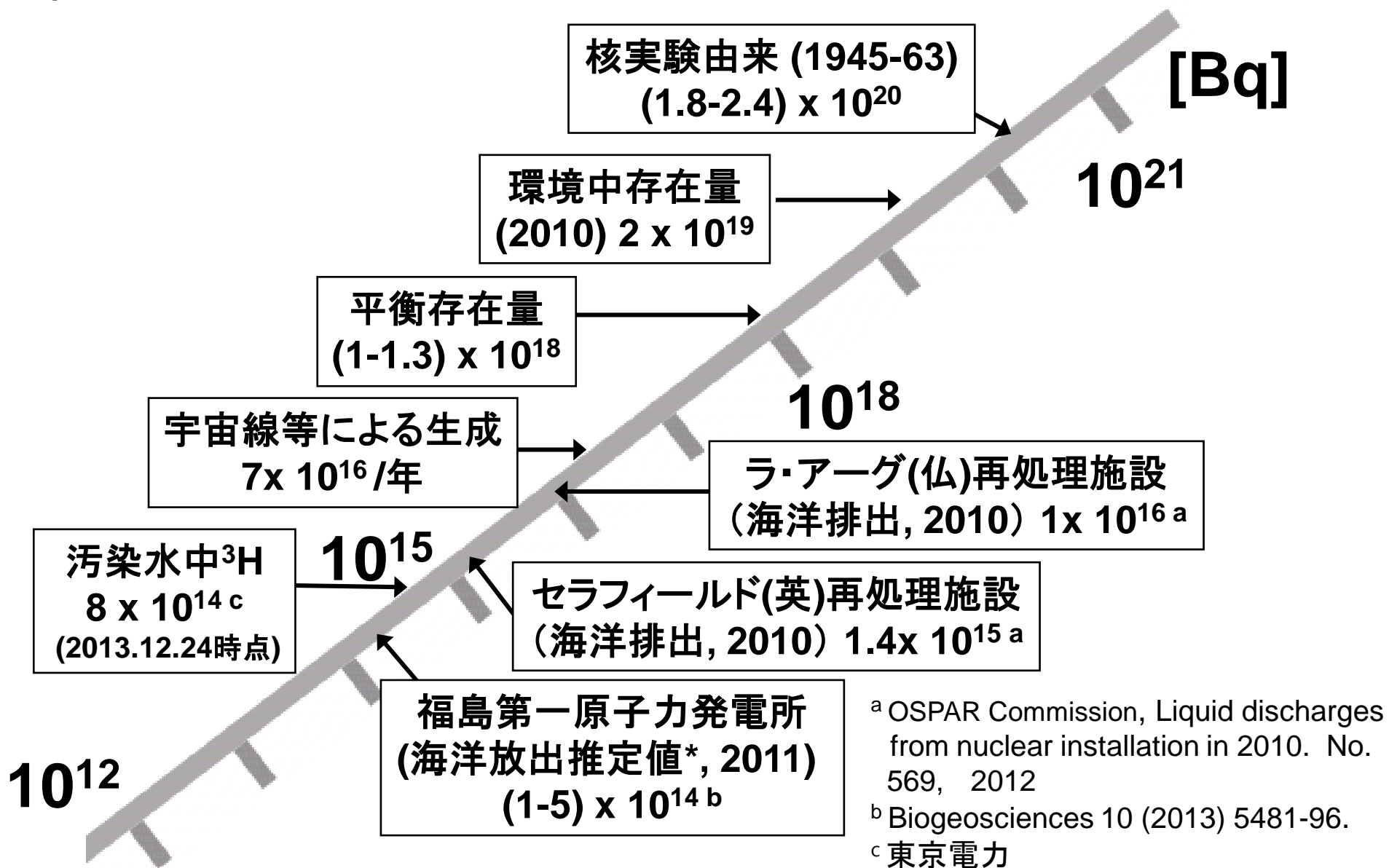


# 大氣中<sup>3</sup>H濃度

Location	Period	HTO (mBq m <sup>-3</sup> )	HT (mBq m <sup>-3</sup> )	CH <sub>3</sub> T (mBq m <sup>-3</sup> )
Kumamoto	2003–2005	6.7 ± 5.4	12.5 ± 6.9	9.0 ± 8.2
Toki	2003–2006	9.0 ± 6.5	9.0 ± 1.6	2.0 ± 1.2
Rokkasho	2005–2006	3.6 ± 2.3	8.5 ± 2.6	1.9 ± 0.8
		(TU) 7	(TU) 4 x 10 <sup>5</sup>	(TU) 2 x 10 <sup>4</sup>



# 環境中<sup>3</sup>Hインベントリー



# 福島沖海水中<sup>3</sup>H濃度 (2011年6月)

福島沖表層海水(200-300 mまで)中<sup>3</sup>H濃度<sup>a</sup>

バックグラウンド 0.07 Bq L<sup>-1</sup>

事故後 0.15 Bq L<sup>-1</sup>

水圏環境において、生物中FWT 濃度 **[FWT]**と  
水中<sup>3</sup>H濃度**[HTO]**は速やかに平衡に達する。

$$[\text{FWT}] \doteq [\text{HTO}]$$

水から生物へ<sup>3</sup>Hの生体濃縮は起こらないので、  
水棲生物中OBT濃度 **[OBT]**と**[HTO]**の比は1を  
超えない。<sup>b</sup>

$$\frac{[\text{OBT}]}{[\text{HTO}]} \leq 1$$

事故後上昇した海水中<sup>3</sup>H濃度から線量の推定

- (仮定) ・魚を年間60kg摂取<sup>c</sup>
- ・**[OBT]=[HTO]**
- ・魚中<sup>3</sup>H がすべてOBTとして存在

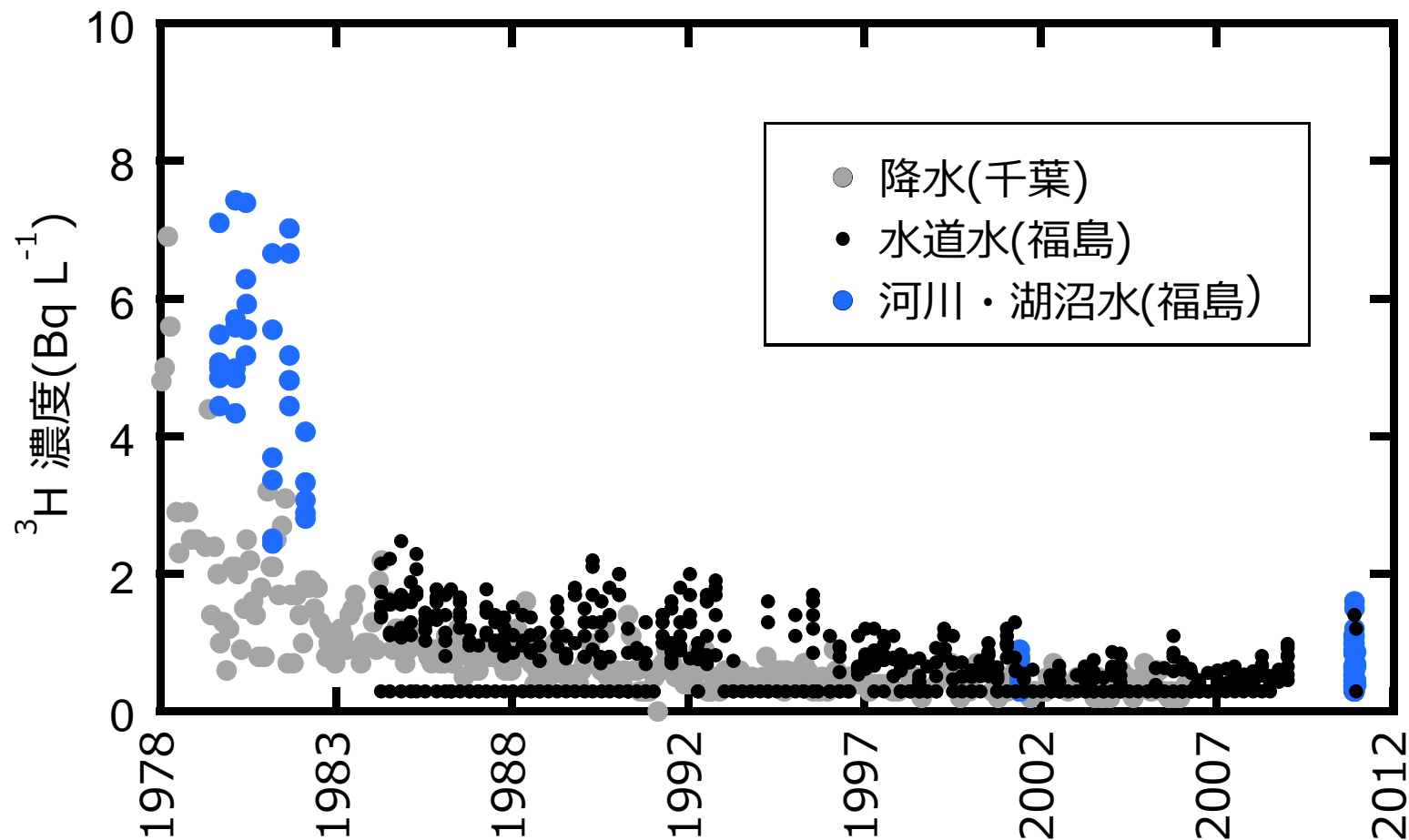
$$60 \text{ (kg/y)} \times 0.08 \text{ (Bq/kg)} \times 4.2 \times 10^{-11} \text{ (Sv/Bq)} = 2 \times 10^{-10} \text{ (Sv/y)}$$

<sup>a</sup> Povinec, P. P. et al. Cesium, iodine and tritium in NW Pacific waters - a comparison of the Fukushima impact with global fallout, Biogeosciences 10 (2013) 5481-96.

<sup>b</sup> Jean-Baptiste, P., et. al. Environmental OBT/TFWT ratios revisited, Fusion Science and Technology, 60, (2011) 1248-1251.

<sup>c</sup> [http://www.jfa.maff.go.jp/j/kikaku/wpaper/h22\\_h/trend/1/t1\\_2\\_1\\_1.html](http://www.jfa.maff.go.jp/j/kikaku/wpaper/h22_h/trend/1/t1_2_1_1.html)

# 福島県河川水及び水道水中 $^3\text{H}$ 濃度 (1978 -2011) 及び千葉県の前降水中 $^3\text{H}$ 濃度 (1978 -2007)

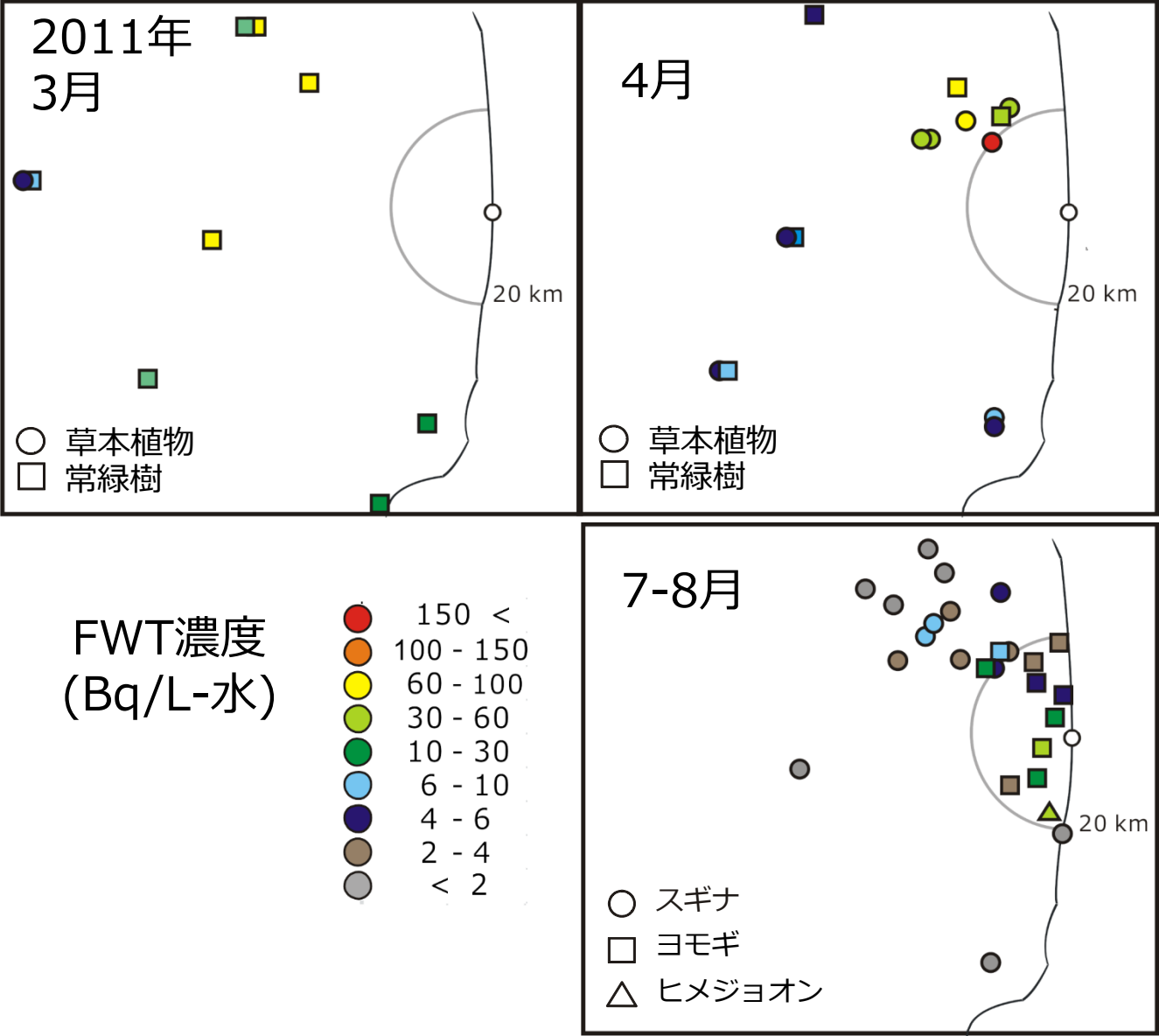


<http://www.nirs.go.jp/db/anzendb/NetsDB.html#>.

<http://search.kankyo-hoshano.go.jp/servlet/>

<http://wwwcms.pref.fukushima.jp/download/1/tritium111115-111215.pdf>

# 2011年福島県で採取した植物中FWT濃度



# $^3\text{H}$ の環境移行と線量評価

ヒトへの被ばく経路(トリチウムは内部被ばくが重要)

## 1. 経口摂取(OBT、FWT)

- ・光合成によるOBTの形成

- 食物連鎖によるヒトへの移行

- 摂取したOBTによる被ばく、組織への蓄積

- ・飲み水

## 2. 吸入摂取

- ・呼吸

- ・モデル解析による被ばく線量評価

- ・環境データによる安全確認が必要

# トリチウムの水産物への影響評価について

森田貴己

(独) 水産総合研究センター



# 放射性セシウムとトリチウムの比較





## 濃縮係数(生物中濃度/水中濃度)

	 海産魚類	 淡水魚類	  軟体類	 海藻類
Cs-137	5 ~ 100	400~2000*1	10 ~ 60	10 ~ 50
H-3 *2	1	—	1	1

\*1 見かけの濃縮係数、\*2 自由水、—は、データ無し。参考文献(1, 2)

- 直接、有機結合型H-3を取り込んだ場合は、**見かけの濃縮係数**が非常に高くなる場合がある。例として、Nycomed-Amersham plant (UK) からの放出で、海産魚類（約3700）、貝類（約3100）、海藻類（約56）参考文献(3)

## 生物学的半減期

	 海産魚類	 淡水魚類	 軟体類	 海藻類
Cs-137	19 ~ 84 日	50 ~ 340 日	75 日	54 日
自由水 H-3	—	12 ~ 54 分	11~190日	0.2 ~75 分
有機結合型 H-3	—	5 ~ 8 日	11~190日	2.3 ~50日（増殖期） 150日（飽和期）

—は、データ無し。参考文献(4, 5, 6, 7, 8)

- 飲水をほとんど行わない淡水魚に対して、海産魚は1日最大体重の20%の飲水をするので、H-3（特に自由水）の交換は早いと思われる。

# トリチウムの海洋生物への影響評価

- 海洋生物に対する線量評価は、「標準生物」を対象に行う。
- 「標準生物」は、分類学的な種ではなく、形態や大きさ、生息環境等で分類されたものである（例えば、ヒラメ、マス、カニといった形が違う海洋生物）。
- 一般的には、こうした形態等を考慮して作成された換算係数（文献8）を用いて、放射能濃度（Bq/kg）から計算する。

外部被ばく（海水より）の換算係数（ $\mu\text{Gy/h per Bq/kg}$ ）

	浮魚	底魚	褐藻	カニ
H-3	$7.9 \times 10^{-12}$	$7.8 \times 10^{-12}$	$8.2 \times 10^{-11}$	$1.0 \times 10^{-11}$
Cs-137	$2.7 \times 10^{-4}$	$2.9 \times 10^{-4}$	$3.4 \times 10^{-4}$	$2.8 \times 10^{-4}$

内部被ばくの換算係数（ $\mu\text{Gy/h per Bq/kg}$ ）

	浮魚	底魚	褐藻	カニ
H-3	$3.3 \times 10^{-6}$	$3.3 \times 10^{-6}$	$3.3 \times 10^{-6}$	$3.3 \times 10^{-6}$
Cs-137	$1.9 \times 10^{-4}$	$1.8 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-4}$	$1.9 \times 10^{-4}$

# トリチウムの海洋生物への影響評価

例：底魚において、トリチウムが対象生物体内に均一に分布、海水濃度が放出基準値の60000 Bq/L、濃縮係数1と仮定すると、被ばく線量率は、 $0.48 \times 10^{-2} \text{ mGy/day}$  と計算される。

評価基準の例：

NCRP: 「ある水生生物集団において、最大の被ばくを受ける個体が10 mGy/day程度の慢性的な線量率であるなら集団の防護に十分であると考えられる」 (文献 9)

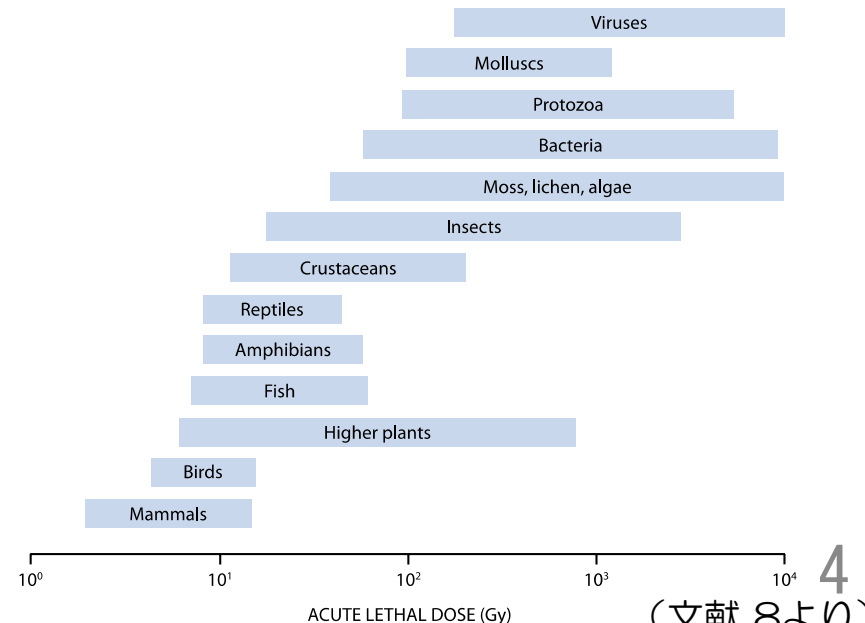
IAEA: 「水圏環境において、生物集団の最大の被ばくを受ける個体が10 mGy/dayあるいはそれ以下に慢性的な線量率を制限すれば集団を適切に防護できると考えられる」 (文献 10)

UNSCEAR: それ以下の線量では影響でないと予想される「標準線量率」に、植物プランクトン、動物プランクトン、底生生物、魚類にそれぞれ、8.2, 6.8, 2.5, 1.6 mGy/day を与えている (文献 8)

Approximate acute lethal dose ranges for various taxonomic groups

○福島第一原発2号基の前面で採取されたアイナメから放射性セシウムが74万Bq/kg生検出された例があり、この魚の被ばく線量率は、3.2 mGy/day と計算されるが、

多産及び初期生残率が極端に低い水生生物においては、局所的な高濃度の汚染は集団に与える影響は低いと考えられる。



# 漁業者の不安

- トリチウムを含んだ汚染水の海洋放出は、水産物の**新たな風評被害**を生じさせる。
- 風評被害を払拭するには、放射性セシウム同様、測定データを公表していく必要がある。
- 生物の測定は非常に難しい。仮に濃縮係数1として海水の測定値で代用しても、**基準値がないので安全の判断ができない**。
- **被ばく量の問題を無視して、危険性が高いことのみを強調する言説が流布していることから、専門家から正しい情報を提供していただくことが必要。**

## トリチウムに関しては以下の理由により、基準値に含まれていない。

- トリチウムの食品中濃度が問題となるのは、環境中に大量かつ継続的に放出され、光合成によって植物に取り込まれ、有機物として蓄積する場合である。今回の事故においては、これらの核種は放出されて拡散している可能性があるが、放射性ブルームは比較的短期間で通過しており、既に、環境中において拡散希釈されていると考えられる。よって、考慮しなければならないほどの線量 となることは考えかたい  
(厚生労働省 薬事・食品衛生審議会食品衛生分科会 放射性物質対策部会報告書より)。
- トリチウムは、食品中において考慮しなければならないほどの線量となるとは考えられないことから、基準値には含まれていません (厚生労働省HPより)。

## 参考：食品の基準値

- 食品中の放射性物質に関する現行基準値は、放射性セシウム以外の放射性物質（ストロンチウム90、プルトニウム、ルテニウム106）からの影響も考慮したもの（参考：厚生労働省HP）。

水産物の場合：(Sr-90 + Pu + Ru-106)が(Cs-134 + Cs-137)と同線量存在と仮定

食品全体にすると（海産物は、19歳以上男子で、1日111.1g摂取と仮定）



※食品によって仮定線量比は異なる。

1 ミリシーベルト（基準値のもととなる1人当たりの年間線量の上限値）

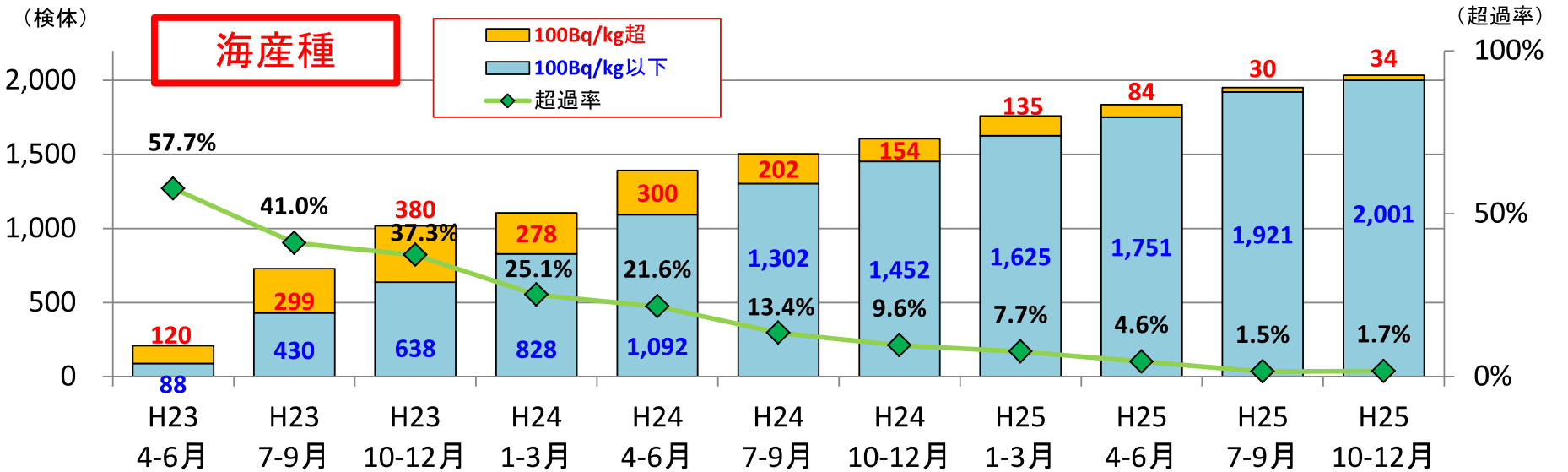
飲料水  
約0.1mSv

食品 約0.9mSv

放射性セシウム以外が約12%

# 福島県の水産物の汚染状況（水産庁HPより）

平成25年12月末日

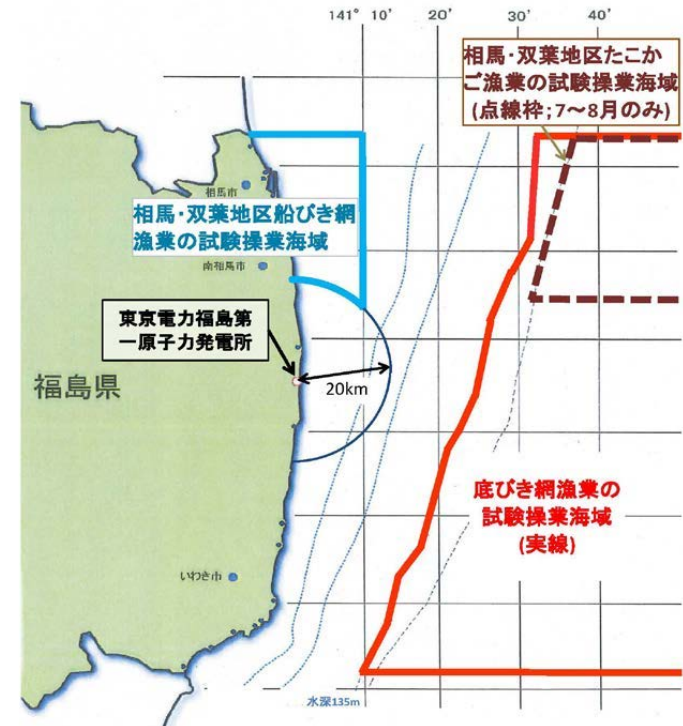


# 福島県の試験操業の状況（水産庁HPより）

## これまでの取組み・予定

- 平成24年6月～
- ・ミズダコ等3種を対象に開始(相馬双葉地区の沖合底びき網及びたこかご)
- 平成24年9月～
- ・順次、沖合底びき網の対象種の追加及び試験操業海域の拡大を実施
- 平成25年3月
- ・コウナゴ(イカナゴの稚魚)の試験操業を開始(相馬双葉地区の船びき網)
- 平成25年9月
- ・汚染水漏洩報道を受け、9月1日からの試験操業の実施を一時見合わせ
  - ・その後の海域及び対象種のモニタリング結果を確認し、25日から相馬双葉地区で底びき網による試験操業を実施
- 平成25年10月
- ・シラス(イワシの稚魚)の試験操業を開始(相馬双葉地区の船びき網)
  - ・いわき地区で底びき網による試験操業を開始

## 試験操業海域



平成26年1月7日現在



# 参 考 文 献

1. International Atomic Energy Agency (2004) Sediments Distribution Coefficients and Concentration Factors for Biota in Marine Environment, IAEA Technical Reports Series No.422.
2. 市川龍資 (1978) 濃縮係数, 生物濃縮、山縣登編
3. McCubbin D, Leonard KS, Bailey TA, Williams J, Tossell P (2001) Incorporation of organic tritium ( $^3\text{H}$ ) by marine organisms and sediment in the severn estuary/Bristol channel (UK), Marine Pollution Bulletin, 42, 852-863.
4. 笠松不二男 (1999) 海産生物と放射能-特に海産魚中の  $^{137}\text{Cs}$  濃度に影響を与える要因について-, Radioisotopes, 48, 266-282.
5. Vives i Batlle J, Wilson RC, McDonald P (2007) Allometric methodology for the calculation of biokinetic parameters for marine biota. Science and Total Environment, 388, 256-269.
6. Nakahara M, Nakamura R, Suzuki Y, Ueda T (1989) Accumulation and excretion of radionuclides by scallop. Final Report on the Project Research “Assessment of Human Exposure to Environmental Radiation” ; National Institute of Radiological Sciences: Chiba, Japan, NIRS- R-17, pp 78-82.
7. Blaylock BG., Hoffmann FO., Frank ML.(1986) Tritium in the Aquatic Environment, Radiation Protection Dosimetry, 16, 65-71.
8. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (2008) Source and Effect of Ionizing Radiation.
9. National Council on Radiation Protection and Measurement (1991) Effects of Ionizing Radiation on Aquatic Organisms, NCRP report No. 109.
10. International Atomic Energy Agency (1992) Effects of Ionizing Radiation on Plants and Animals at levels Implied by Current Radiation Protection Standards, IAEA Technical Reports Series No.322.

汚染水処理対策委員会  
トリチウム水タスクフォース  
2014年2月7日

# 健康影響の一般論と疫学

立崎英夫

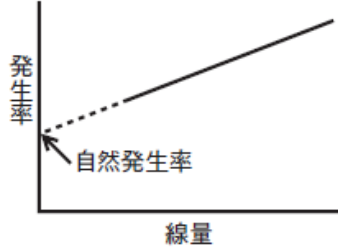
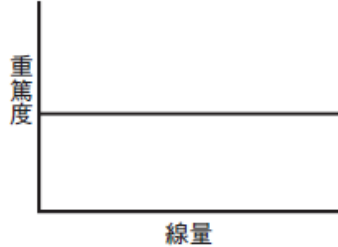
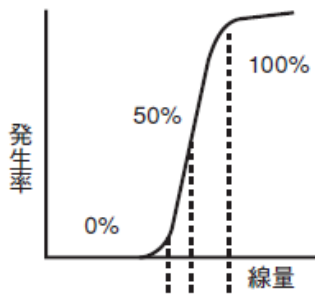
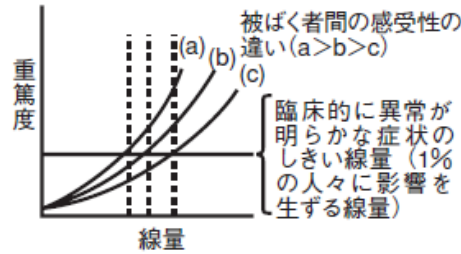
((独)放射線医学総合研究所 REMAT 医療室)

# 内容

- 低線量影響の基礎＜一般論＞
- 内部被ばくの基礎＜一般論＞
- トリチウムの人への健康影響

# 低線量影響の基礎＜一般論＞

表1 放射線の人体影響 – 確率的影響と確定的影響–

分子	細胞		組織・臓器			個体	
損傷	障害	種類	臨床症状	分類	発症機構 (原因)	線量効果関係	線量影響関係
DNA 損傷	突然異変	生殖細胞	遺伝性影響	確率的 影響	単一細胞 の突然 変異	 <p>しきい値なしと仮定*</p>	
		体細胞	がん				
	細胞死 あるいは 細胞変性	生殖細胞	不妊	確定的 影響	多細胞の 細胞死	 <p>しきい値あり</p>	 <p>被ばく者間の感受性の 違い(a&gt;b&gt;c) 臨床的に異常が 明らかな症状の しきい線量(1% の人々に影響を 生ずる線量)</p>
		体細胞	機能損失 (脱毛、皮膚障害、 急性放射線症 など)				

((独)放射線医学総合研究所:医学教育における被ばく医療関係の  
教育・学習のための参考資料(2012.6.6改訂)より)

# 組織反応のしきい値

全身ガンマ線被ばく後の成人の臓器及び組織に関わる罹病の1%発生率と死亡率に対する、急性吸収線量のしきい値の予測推定値

影響	臓器／組織	影響の発現時間	吸収線量 (Gy)
罹病:			1%発生率
一時的不妊	睾丸	3-9 週間	~0.1 (約)
永久不妊	睾丸	3週間	~6
永久不妊	卵巣	< 1週間	~3
造血系の能低下	骨髓	3-7 日	~0.5
皮膚発赤の主要期	皮膚(広い区域)	1-4 週間	<3-6
皮膚火傷	皮膚(広い区域)	2-3週間	5-10
一時的脱毛	皮膚	2-3週間	~4
白内障(視力障害)	眼	数年	~1.5* (*その後改定あり)

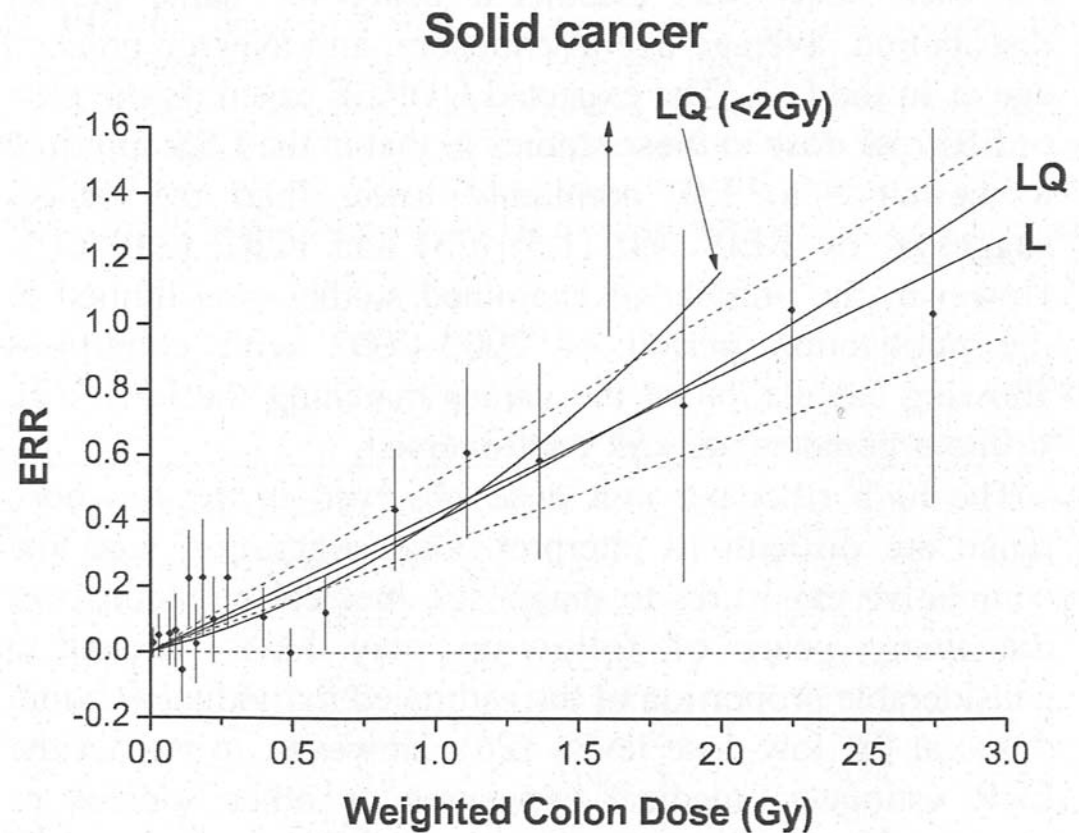
(出典:ICRP[国際放射線防護委員会の2007年勧告](Tab A.3.4)日本アイソトープ協会 2009 より改変)



# 固形癌過剰相対リスク

## Excess Relative Risk for Solid Cancer

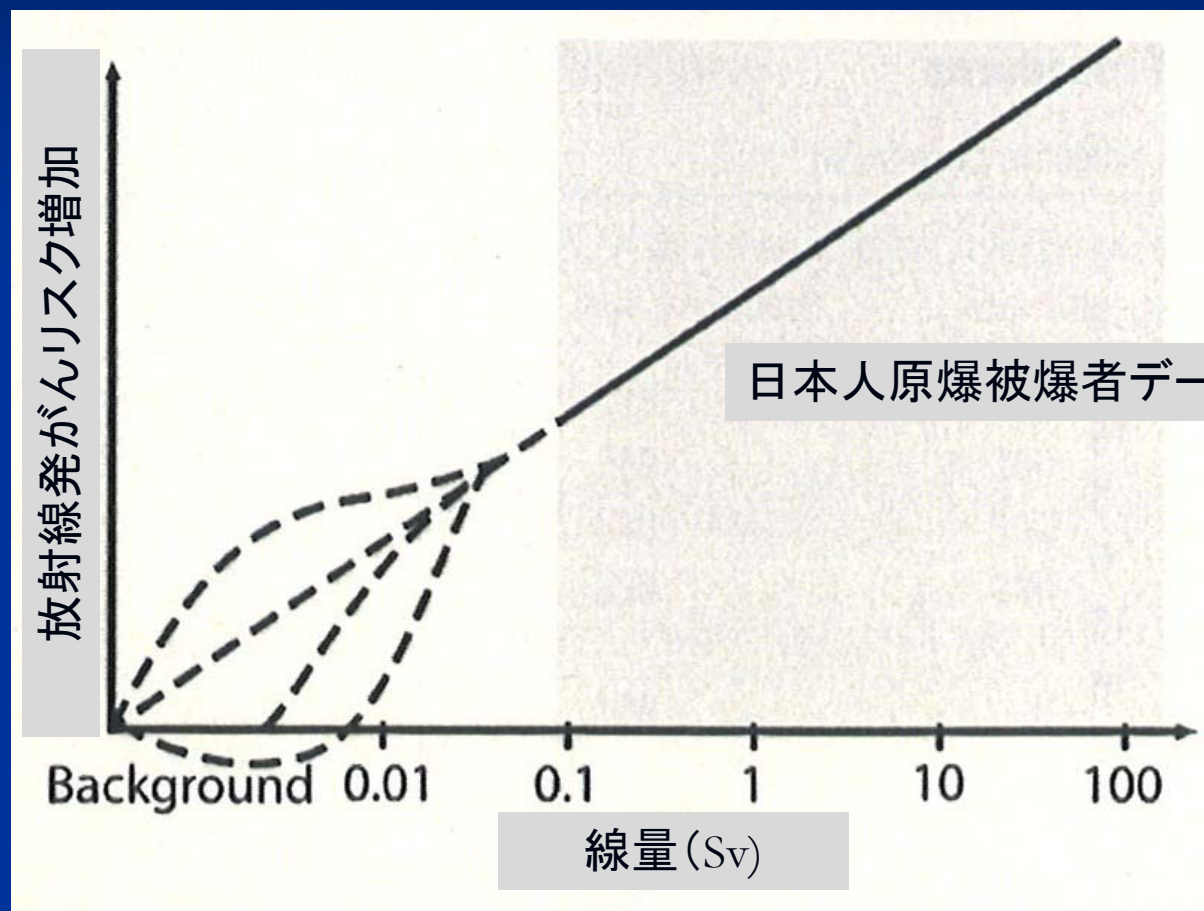
原爆被爆者の疫学研究より



**FIG. 4.** Excess relative risk (ERR) for all solid cancer in relation to radiation exposure. The black circles represent ERR and 95% CI for the dose categories, together with trend estimates based on linear (L) with 95% CI (dotted lines) and linear-quadratic (LQ) models using the full dose range, and LQ model for the data restricted to dose <2 Gy.

(LSS A-bomb Report 14)  
(from Ozasa k et al.; Radiat Res  
177:229-243, 2012)

# 低線量影響を外挿するモデル



直線で外挿したのが直線しきい値無しモデル(LNTモデル)

(Hendee WR & O'Connor MK, Radiology 264(2):312-321より改変)

## 2.2.2. 人体への影響に着目した線量(放射線防護量)と単位

### 放射線の人体に与える影響

実効線量： $E$  (シーベルト： $Sv$ )

$$E = \sum_T \left( W_T \times \sum_R \left( W_R \times D_{T-R} \right) \right)$$

$D_T$  : 組織ごとの吸収線量

$W_R$  : 放射線加重係数

$W_T$  : 組織加重係数



((独)放射線医学総合研究所:診療に役立つ放射線の基礎知識,  
被ばく医療に関する e-learning (2013.3)2.2.2.項より)

# 内部被ばくの基礎＜一般論＞

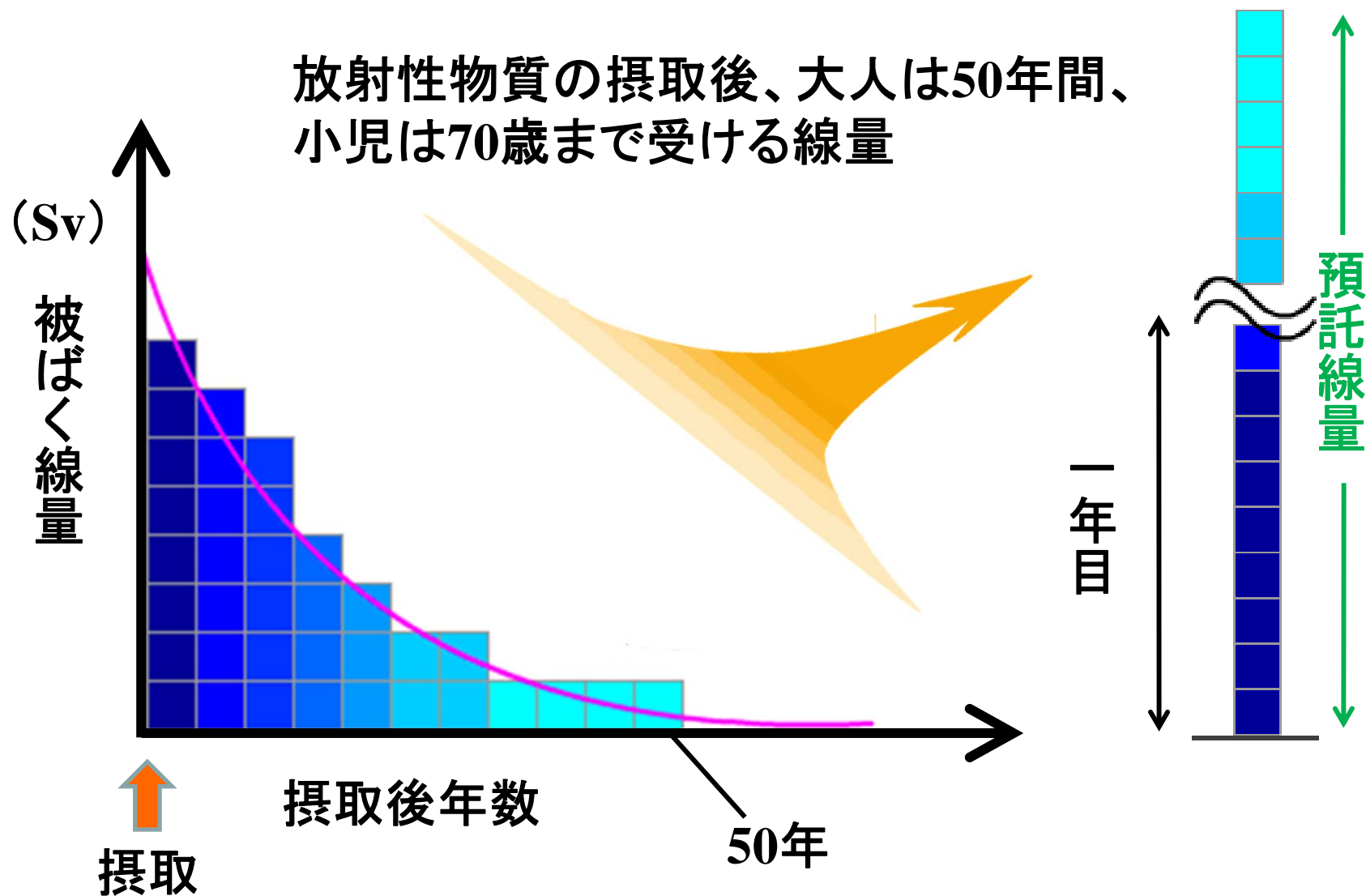
# 内部被ばく



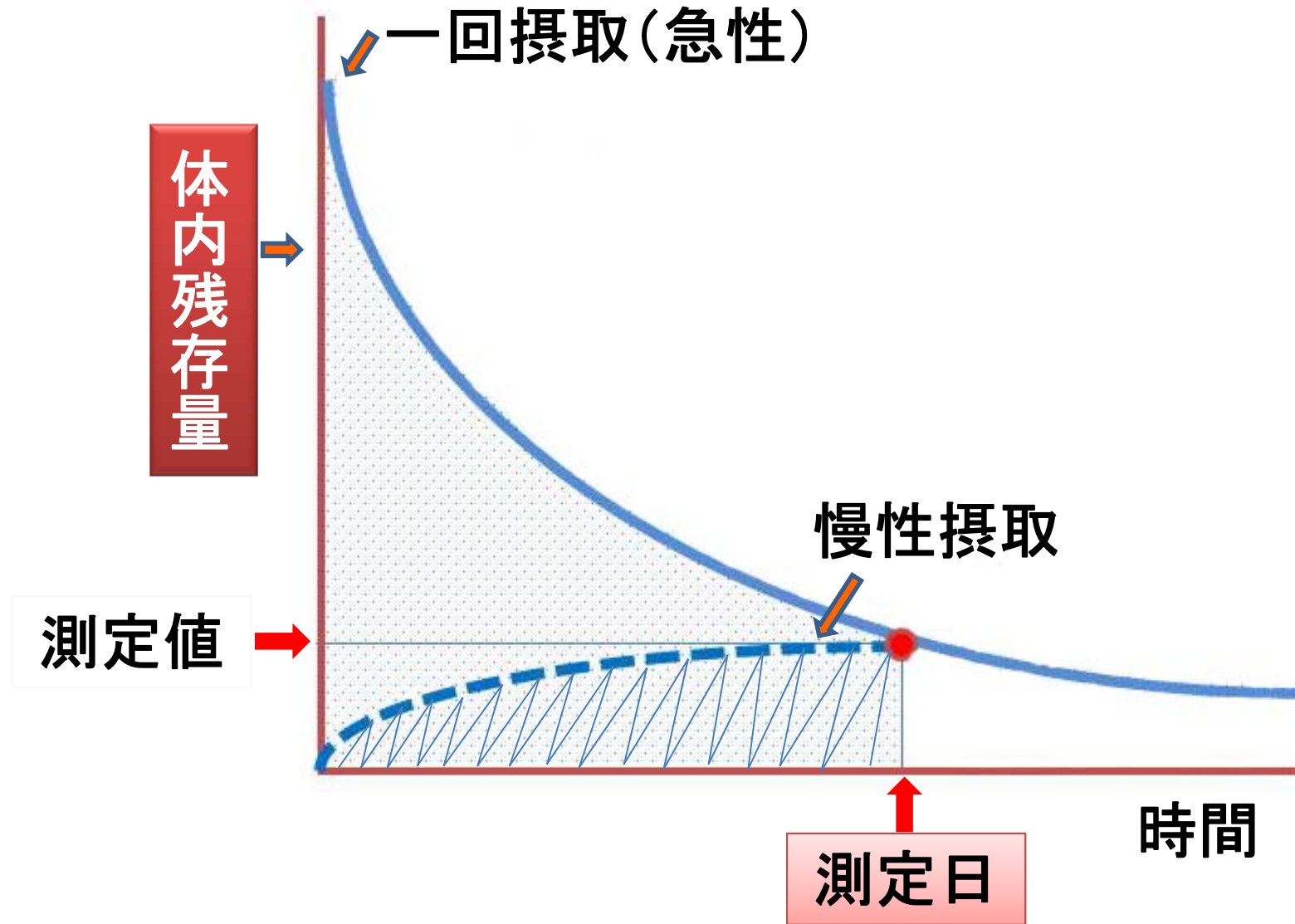
# 内部被ばくの線量

## - 預託線量 -

放射性物質の摂取後、大人は50年間、  
小児は70歳まで受ける線量



# 1時点の計測値





# 線量係数

## Dose coefficient

- 放射性物質の単位摂取量あたりの線量の同義語として用いられる。

(ICRP[国際放射線防護委員会の2007年勧告], 用語解説, 日本アイソトープ協会 2009 より)

- 預託実効線量 = 摂取量 x 実効線量係数
- 単位: Sv/Bq
- 摂取経路により異なる
- 核種、化学的形態、年令により異なる



# トリチウムの人への健康影響

# 放射線加重係数( $W_R$ )関連事項

勧告	年	放射線のタイプ	係数名	$W_R$
ICRP 26	1977	(X線, $\gamma$ 線および) 電子 ( $L_\infty$ 不明の場合)	線質係数 Q	1
ICRU 40 (Joint Task Group of ICRP/ICRU)	1986	トリチウムの $\beta$ 線	Acceptable approximation value Q(bar)	2
ICRP 60	1990	電子(及びミュー粒子), 全てのエネルギー	放射線(荷)重係数 $w_R$	1
ICRP 103	2007	電子(とミュー粒子)	放射線加重係数 $w_R$	1

トリチウム水被ばくで観察されたすべての影響(実験的データ)を考えると, RBE値は1~3.5の範囲にあった。ガンマ線と比較すると, 大部分の値は1~3の間にあり, またX線に対しては大部分は1~2で, その多くは1~1.5の値であった。

トリチウム水としてのトリチウムからのベータ線放射について得られたRBE値は, 低LET放射線に対して一般に観察される値の範囲内であり, 単一の放射線加重係数値として1を使用するという単純化されたアプローチはトリチウムに適応できる。(ICRP 103, 2007, B94項, B96項, より)

# トリチウムによる人に対する事故

- 1960年代のヨーロッパで、トリチウムを含む夜光剤を使用する工場で研究者あるいは作業員に被ばく事故が発生している。
- 2例の死亡が報告
- 被ばく線量は極めて不確定：尿中のトリチウム量などから3～20 Svと推定
- 死因は骨髄障害による汎血球減少症
- このうち1例の助手に貧血発生

# 疫学研究 — レビュー

- トリチウムの被ばくに関連する疫学研究の系統的レビュー
- Little MP, Wakeford R., “Systematic review of epidemiological studies of exposure to tritium.”, J Radiol Prot. 2008 Mar;28(1):9-32.
- 対象：
  - 作業員（英国、米国、カナダ）
  - 環境放出による胎内被ばくと作業員子孫（カナダ、ドイツ、米国）
- 結論：作業員や公衆についてのがんやその他の健康影響に対する利用可能な研究は、トリチウムに特化した線量の欠如、低線量、少数の対象人数によって有用性が損なわれている。英国作業員のコホート研究で個人のトリチウム線量を得られる可能性はあるが、多くの労力（資金）を要する。英国以外でも、カナダや米国での作業員の研究も同じく可能性がある。

## トリチウム水の生体影響について(基礎実験データから)

茨城大学理学部 田内 広

<http://tauchilab.sci.ibaraki.ac.jp>

### 放射線の線質と生体影響の大きさについて

ガンマ線、X線(光子)

基本的にエネルギーが変わっても生体影響の度合いはほとんど変化しない。

ICRPによる線質(荷重)係数は 1

粒子線( $\alpha$ 線や中性子、重粒子線)

エネルギーに依存して影響は(指標によって)数倍から10倍程度まで変化する。

(ただし、一般的に荷電粒子では粒子ごとに影響が最大になるエネルギー

範囲がある) → 線エネルギー付与(LET)が100keV/ $\mu$ m付近でピークとなる

ICRPによる線質(荷重)係数は粒子エネルギーに応じて 5、10、20

電子線(ここでは $\beta$ 線)

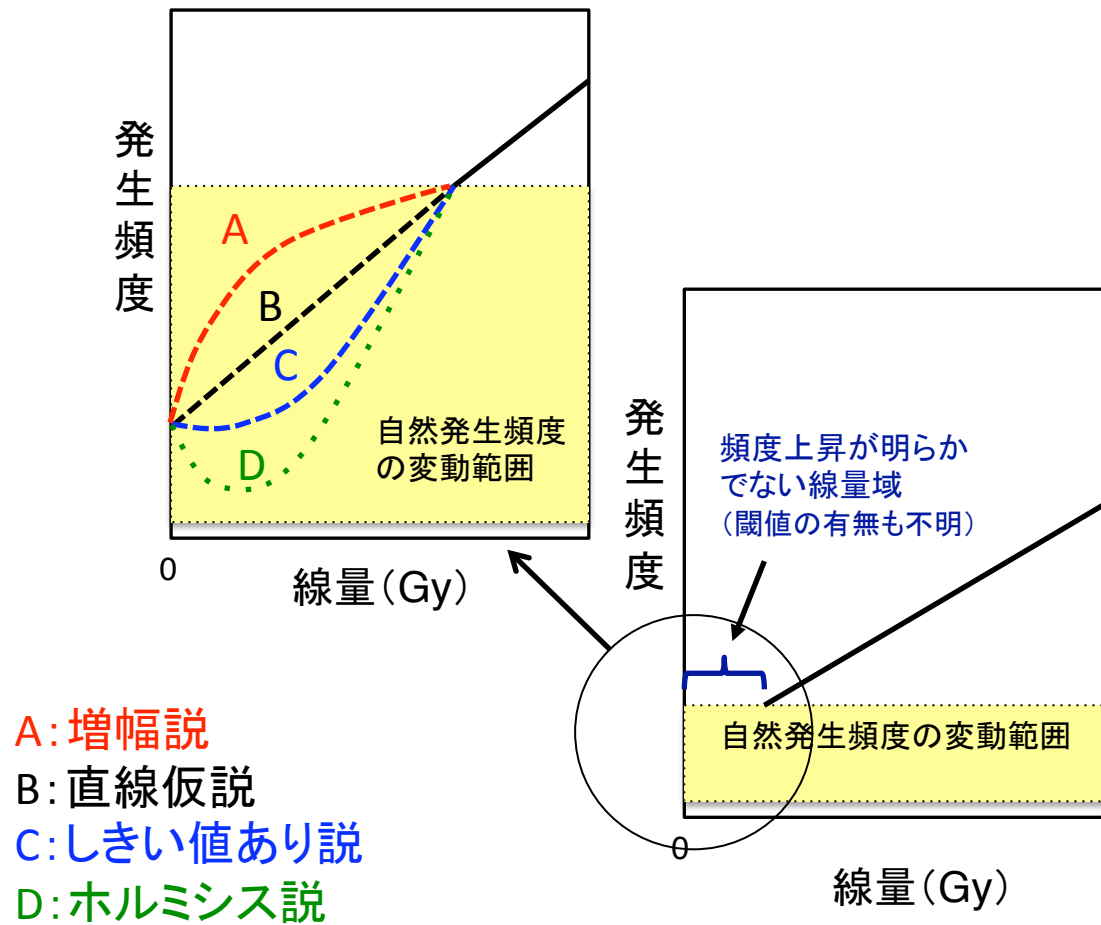
エネルギーが高い方が影響がやや大きい傾向はあるが、大幅には変化しない。

急性の被ばくの場合、トリチウム $\beta$ 線はガンマ線の1.0~2.0倍程度の影響とされる。

ただし、ICRPは電子線の線質(荷重)係数を全て1としている

\* なお $\beta$ 線のエネルギーは生体への吸収エネルギー(被ばく線量)に影響する

## 確率的影響(がん)と低線量被ばく



## トリチウム生体影響の特徴(これまでの文献データの概要)

- ・ トリチウム被ばくは通常**内部被ばく**である
- ・ 生体内では、水(HTO)および有機物結合型(OBT)として存在する
- ・ 生体内での半減期は、7日～18日(HTO)および40日程度(OBT)
- ・ 生物学的効果比(RBE)は1.0～2.0程度  
(これより高い、あるいは低いという報告もある)
- ・ 半致死線量は8Gy程度  
(マウス腹腔内投与で0.56～0.93 GBq/g体重)

表3 マウスを使った研究から得られたトリチウムβ線のRBE.

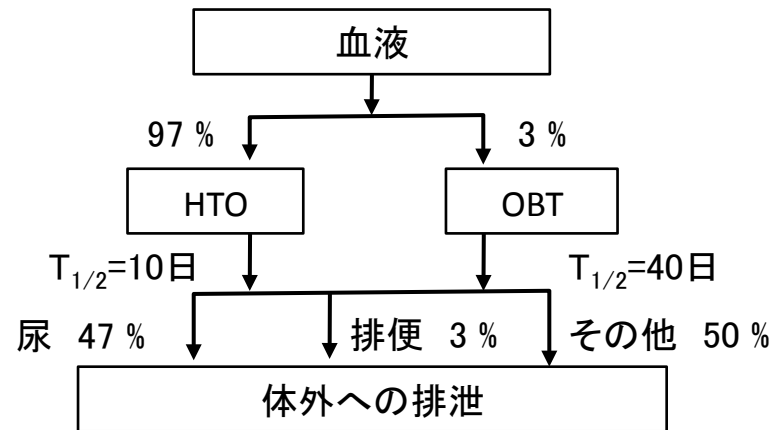
評価の方法	RBE	吸収線量 (Gy)	研究者
LD <sub>50/30</sub>	1.7	4～8	J.E. Furchner (1957)
脾臓と胸腺の萎縮	1.3～1.5	1～10	J.B. Storer <i>et al.</i> (1957)
造血細胞の染色体異常	1.0～2.0	0.6	R. Kozkowski <i>et al.</i> (2001)
小腸クリプト細胞のアポトーシス	1.4～2.1	0.13～0.28	K. Ijiri (1989)
卵母細胞の生存率	1.6～3.0	0.055	R.L. Dobson <i>et al.</i> (1976)

出典:馬田ほか プラズマ核融合学会誌 2012

\* RBE: ガンマ線やX線を1としたときの放射線の生体影響の大きさをあらわす

## 体内に取り込まれたトリチウム水の挙動

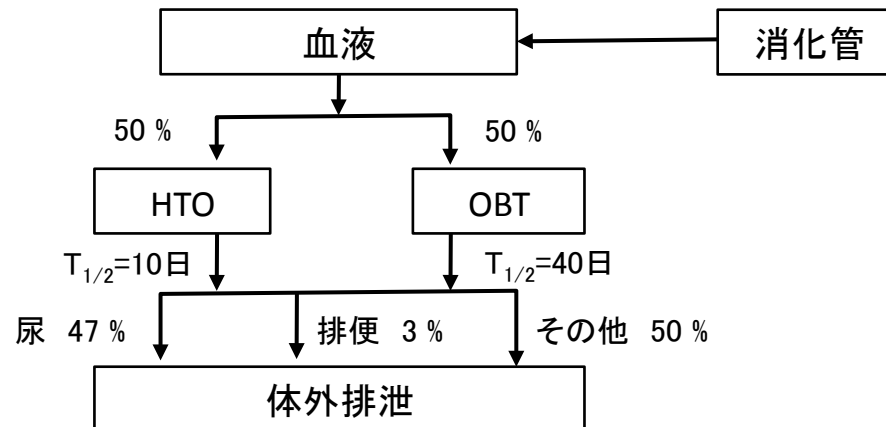
摂取したHTOに関するICRP代謝モデル (ICRP Publ.71, 1995ほか)



HTO: トリチウム水

OBT: 有機結合型トリチウム

【参考】 OBT摂取に関するICRP代謝モデル



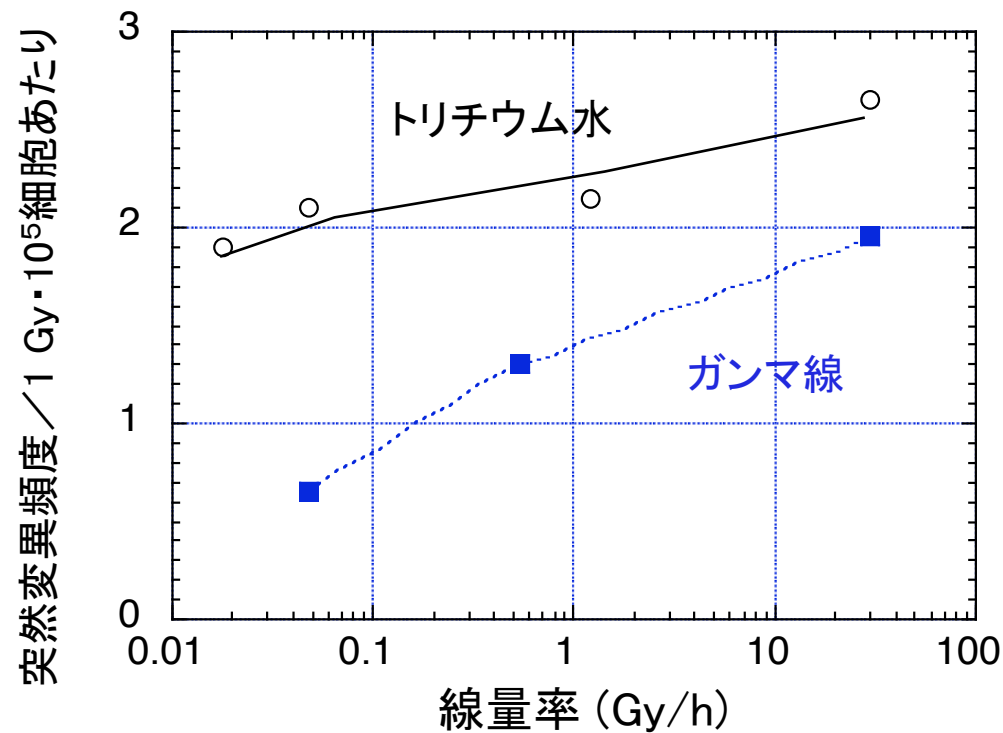


## 放射線影響は線量率に依存して変化する

被ばく線量が同じでも、時間あたりの被ばく量（線量率）が小さければ放射線の影響は小さくなります。

ICRPの見積：慢性（低線量率）長期被ばくの影響は、急性（高線量率）被ばくの影響の半分

## トリチウム水被ばくの線量率効果：ガンマ線やX線ほど変化しない



マウス細胞の遺伝子突然変異の線量率依存性 (Okada *et al.* 1986より改変)

## マウスにトリチウム水を生涯にわたって飲水投与し続けた実験例

Yamamoto, O.ほか *International Journal of Radiation Biology* 68: 47- 54 (1995)

“Oral administration of tritiated water (HTO) in mouse. II: Tumour development”

Yamamoto, O. ほか *International Journal of Radiation Biology* 73: 535-541 (1998)

“Oral administration of tritiated water (HTO) in mouse. III: Low dose-rate irradiation and threshold dose-rate for radiation risk”

線量率 (mGy/day)		非投与	0.2	0.9	3.6	10	24	48	96	240
実験したマウスの個体数		120	55	58	120	53	60	60	38	45
平均寿命 (日)		811	790	758	804	622	481	414	259	165
±標準偏差		±134				±121	±112	±68	±92	±38
発がんしたマウス: 個体数 (%)		59 (48)	27 (49)	45 (78)	26 (46)	4 (83)	42 (70)	42 (70)	32 (84)	34 (76)
がんの内訳 (全個体に占める 割合: %)	胸腺リンパ腫	0	0	0	0	6	7	25	58	64
	非胸腺リンパ腫	25	25	29	20	21	15	20	11	11
	線維肉腫	8	9	22	9	11	7	3		
	卵巣がん	5	5	3	9	6	21	13	7	5
	肝がん	8	8	17	2	4				
	肺がん	4		7	2	15	5	2		
	その他	5	7	5	4	8	26	25	13	5

### 【参考】

飲水のHTO濃度: 3.6 mGy/day →  $1.39 \times 10^8$  Bq/L

0.2 mGy/day →  $8.69 \times 10^6$  Bq/L

線量率は、50, 100, 200日後の組織中(主に脳、肝臓、筋肉)のトリチウム濃度を元に算定

## 排水中濃度限度(体内での分布がトリチウムと類似する放射性セシウムと比較する)

トリチウム水 60 Bq/ml (有機化合物は20)  
Cs-137 0.09 Bq/ml

排水中濃度限度は1mSv／年を担保する値  
→ 違いの理由はBqあたりの実効線量

### Dose coefficient(実効線量係数)

核種の体内動態のシミュレーションモデルに基づいて組織等価線量を算出し、組織荷重係数をかけて実効線量をBqあたりに換算している。もちろん、モデル計算なので不確かさは残るが、違ったとしても、大幅に違うことはない。

成人の場合 (経口摂取、単位は $\mu$  Sv/Bq)

トリチウム(水) 0.000018(有機化合物は0.000042)  
セシウム-137 0.013  
セシウム-134 0.019  
カリウム-40 0.0062

出典:ICRP Publ.119 (2007)

### 実効線量係数が違う理由は？

	セシウム 137	セシウム 134	トリチウム(HTO)
物理的半減期	30 年	2.1 年	12.3 年
生物学的半減期	70～100 日	70～100 日	7～18 日*
放出する $\beta$ 線最大エネルギー	主に 514keV	主に 658keV	18keV
主なガンマ線	662keV	605、796keV	なし

\* 有機結合型トリチウムは生物学的半減期が40日程度

放射性セシウムは体内滞留期間が長い(約10倍)、 $\beta$ 線エネルギーが大きい(壊変あたりの被ばくが多い)、ガンマ線も放出される(被ばく範囲の広がり、被ばく量の増加)。結果として、トリチウムの場合は放射性セシウムの300分の1以下になる

## 【参考】

トリチウム水の内部被ばくで

体内濃度が平衡状態の時に生体組織(の細胞)が受ける線量率の算出式

NCRP 1979, Yamaguchi 1987

$$D \text{ (mGy/h)} = C \text{ (MBq/ml)} \times 3.29 \times W \text{ (ml/g)}$$

3.29は定数

$$1 \times 10^6 \text{ 壊変/s} \cdot \text{MBq} \times 3600 \text{ s/h} \times \underline{5.7 \times 10^3 \text{ eV壊変}} \times 1.602 \times 10^{-19} \text{ J/eV} \times 10^6 \text{ mGy} \cdot \text{g/J}$$

Wは含水率:細胞や組織、生物種により0.7~0.9(平均0.8程度)

注:Gyは吸収線量(物理量)。放射線防護ではこの値を元にSvを算出する。

同様の式を他の核種にも適用し、放射線エネルギーの大半が生体で吸収されるとすれば(特に $\beta$ 線は体内でほぼ吸収される)、アンダーラインを引いた平均(付与)エネルギーの違いが線量の違いになる。

H-3:  $\beta$ 線平均エネルギー  $5.7 \times 10^3 \text{ eV}$ 、ガンマ線 なし

Cs-137:  $\beta$ 線平均エネルギー  $1.9 \times 10^5 \text{ eV}$ 、ガンマ線  $6.6 \times 10^5 \text{ eV}$

Cs-134:  $\beta$ 線平均エネルギー  $1.6 \times 10^5 \text{ eV}$ 、ガンマ線  $(6.0+7.9) \times 10^5 \text{ eV}$

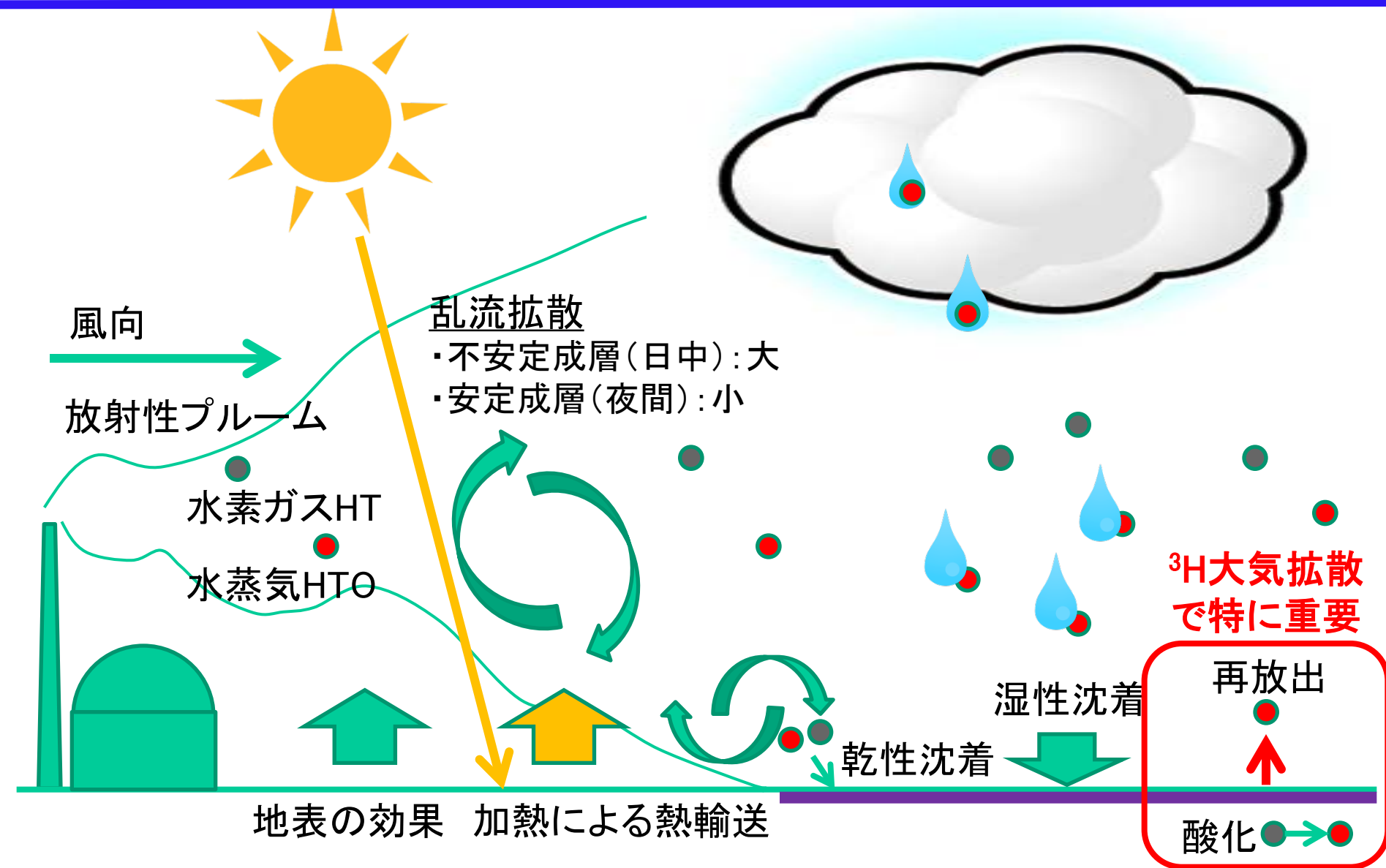
注:ガンマ線は身体を透過する成分があるため、全てが吸収されるわけではない

## 放射性セシウム、放射性カリウム、トリチウムの比較

	半減期	β線の最大エネルギー	ガンマ線
放射性セシウム			
Cs-137	30 年	0.514 MeV (1.176 MeVが6%)	662 keVほか
Cs-134	2.1年	0.658 MeV ほか	605 keV、796keV ほか
放射性カリウム			
K-40	12億5千万年	1.311 MeV ほか (軌道電子捕獲11%)	1,481 keV (11%)
トリチウム			
H-3	12.33年	0.0186 MeV	なし

# トリチウムの環境中における拡散現象 ー評価モデルの考え方ー

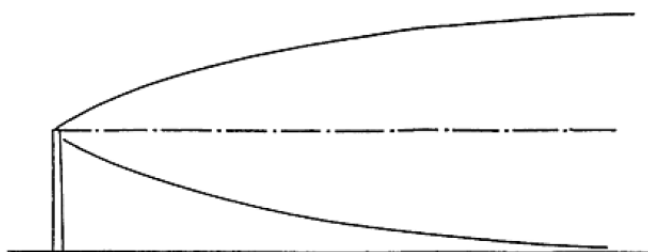
日本原子力研究開発機構  
原子力基礎工学研究部門  
環境動態研究グループ



放出時の気象条件で拡散状況は大きく異なり、単純な評価はできない

ガウス・プルームモデル

例：米国MACCS2



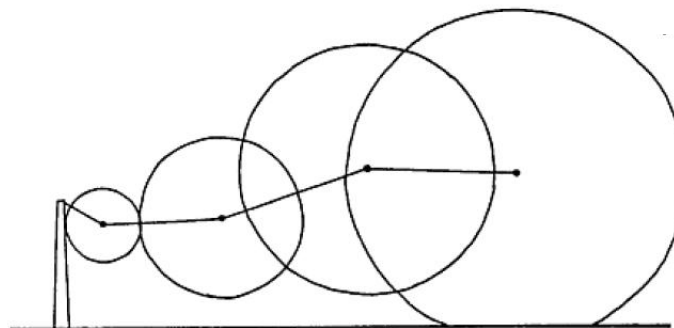
- 定常放出
- 平地・近距離(数km以内)
- 時間空間的に一様な風速場
- 移流・拡散方程式の解析解



近距離における簡易的な評価

流跡線パフモデル

例：米国RASCAL

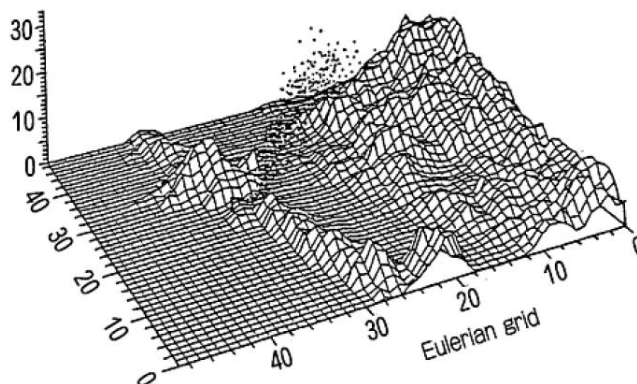


- 変動放出
- 移流計算：風速変動に伴う流跡線解析
- 拡散計算：ガウス分布パフの広がりの変化

数値計算モデル  
(粒子拡散モデル)

例：米国NARAC

日本(W) SPEEDI



- 変動放出
- 複雑地形、局地から広域まで
- 時間空間的に変動する風速場
- 移流・拡散方程式を数値的に計算



地形・気象を考慮した厳密評価

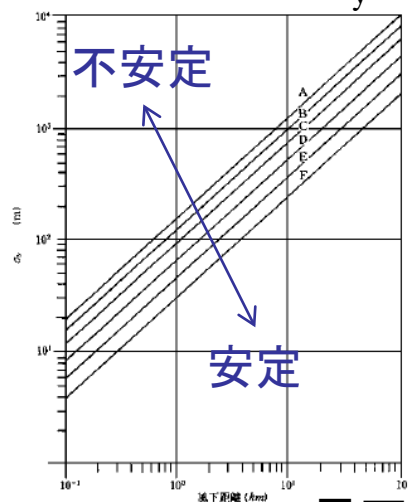


## 基本拡散式

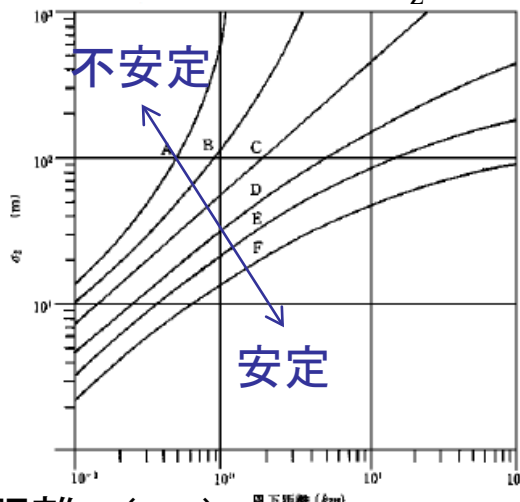
$$\chi(x, y, 0) = \frac{Q}{\pi \sigma_y \sigma_z U} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \exp\left(-\frac{H^2}{2\sigma_z^2}\right)$$

$\chi(x, y, 0)$  : 地上濃度 (Bq/m<sup>3</sup>)  
 $Q$  : 放出率 (Bq/s)  
 $U$  : 風速 (m/s)  
 $\sigma_y$  : 水平方向の拡散幅 (m)  
 $\sigma_z$  : 鉛直方向の拡散幅 (m)  
 $H$  : 放出源の高さ (m)

水平拡散幅  $\sigma_y$

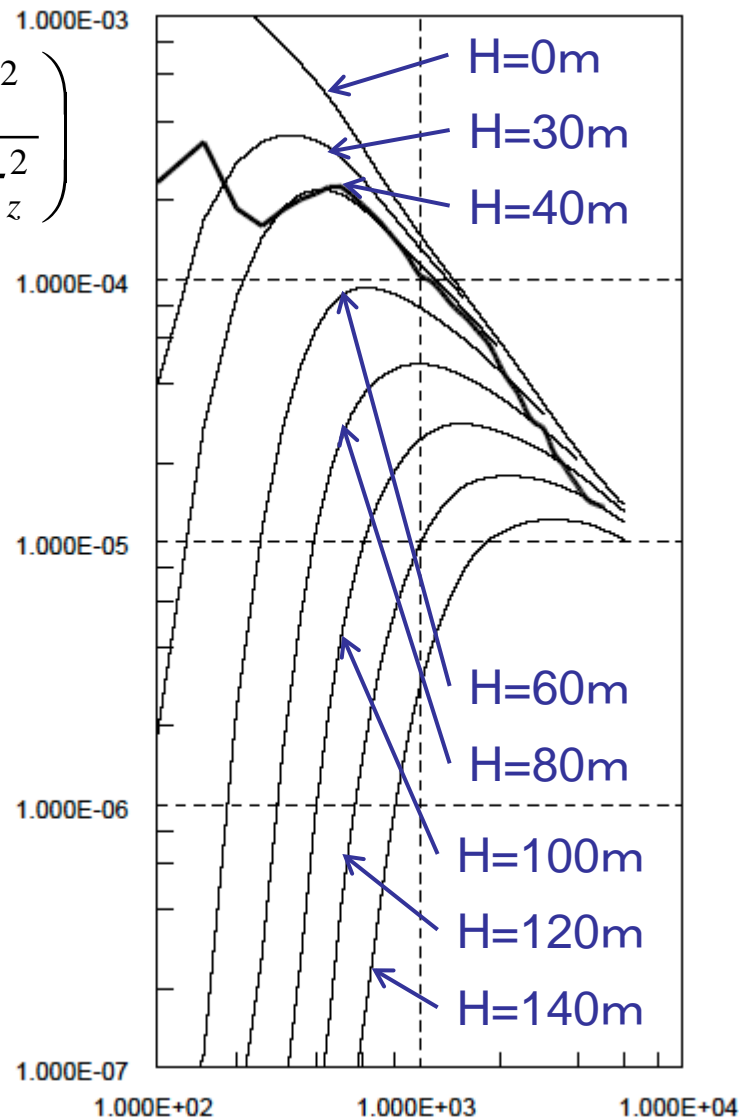


鉛直拡散幅  $\sigma_z$



風下距離  $x$  (km)

正規化地上濃度  $U \cdot (\chi/Q)$  (m<sup>-2</sup>)



風下距離  $x$  (m)

濃度の目安：風下距離10倍で2桁近く低下、大気安定度の違いで2桁程度の差

## MM5(PSU/NCAR開発)

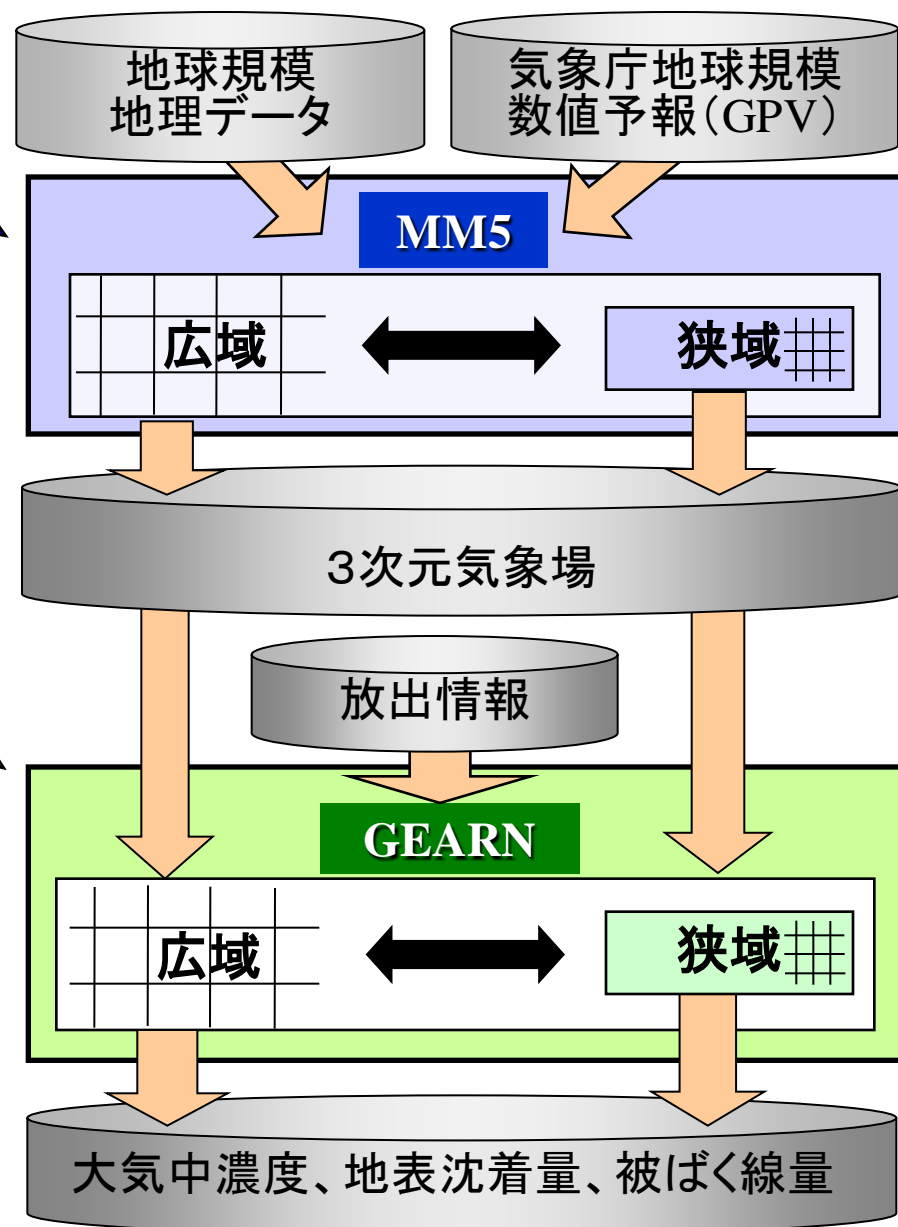
### 領域気象力学モデル

- 雲・降水、大気放射等の各種物理過程を考慮
- 気流、乱れ、降雨、雲量等の気象変数の予測

## GEARN(原子力機構開発)

### ラグランジュ型粒子拡散モデル

- 放射性核種の移流・拡散・沈着・崩壊を考慮
- 大気中濃度、地表沈着量、被ばく線量の予測



参考文献：寺田、他：緊急時環境線量情報予測システム(世界版)WSPEEDI第2版の開発,日本原子力学会和文論文誌, 7[3], 257-267 (2008).



海陸風

陸風（夜間）  
海風（日中）



## 座標系

水平：地図投影面上での距離直交座標( $x, y$ )、鉛直：地形準拠座標( $z^*$ )

## 移流拡散方程式（＋座標系、沈着、放射性崩壊を考慮）

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -u \frac{\partial C}{\partial x} - v \frac{\partial C}{\partial y} - w^* \frac{\partial C}{\partial z^*} + \frac{\partial}{\partial x} \left( K_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z^*} \left( K_{z^*} \frac{\partial C}{\partial z^*} \right)$$

## 数値解法：ラグランジュ型輸送計算（多数の仮想粒子の位置を追跡）

$$\begin{aligned} x_{t+\Delta t} &= x_t + u\Delta t + R_x, \\ y_{t+\Delta t} &= y_t + v\Delta t + R_y, \\ z_{t+\Delta t}^* &= z_t^* + w^*\Delta t + R_{z^*} \end{aligned}$$

$x, y, z^*$  : 粒子位置[m]

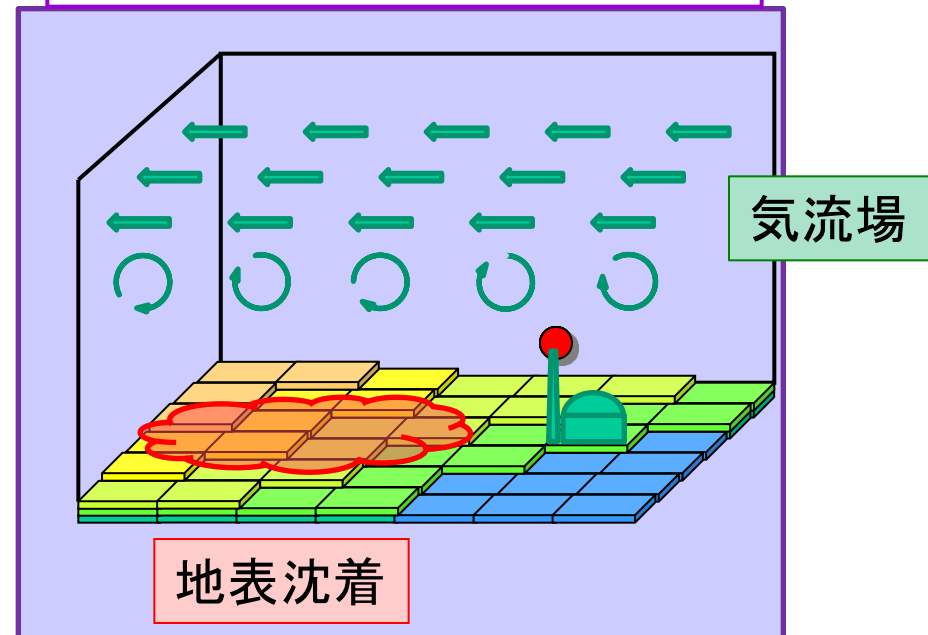
$u, v, w^*$  : 風速[m/s]

$\Delta t$  : 時間増分[s]

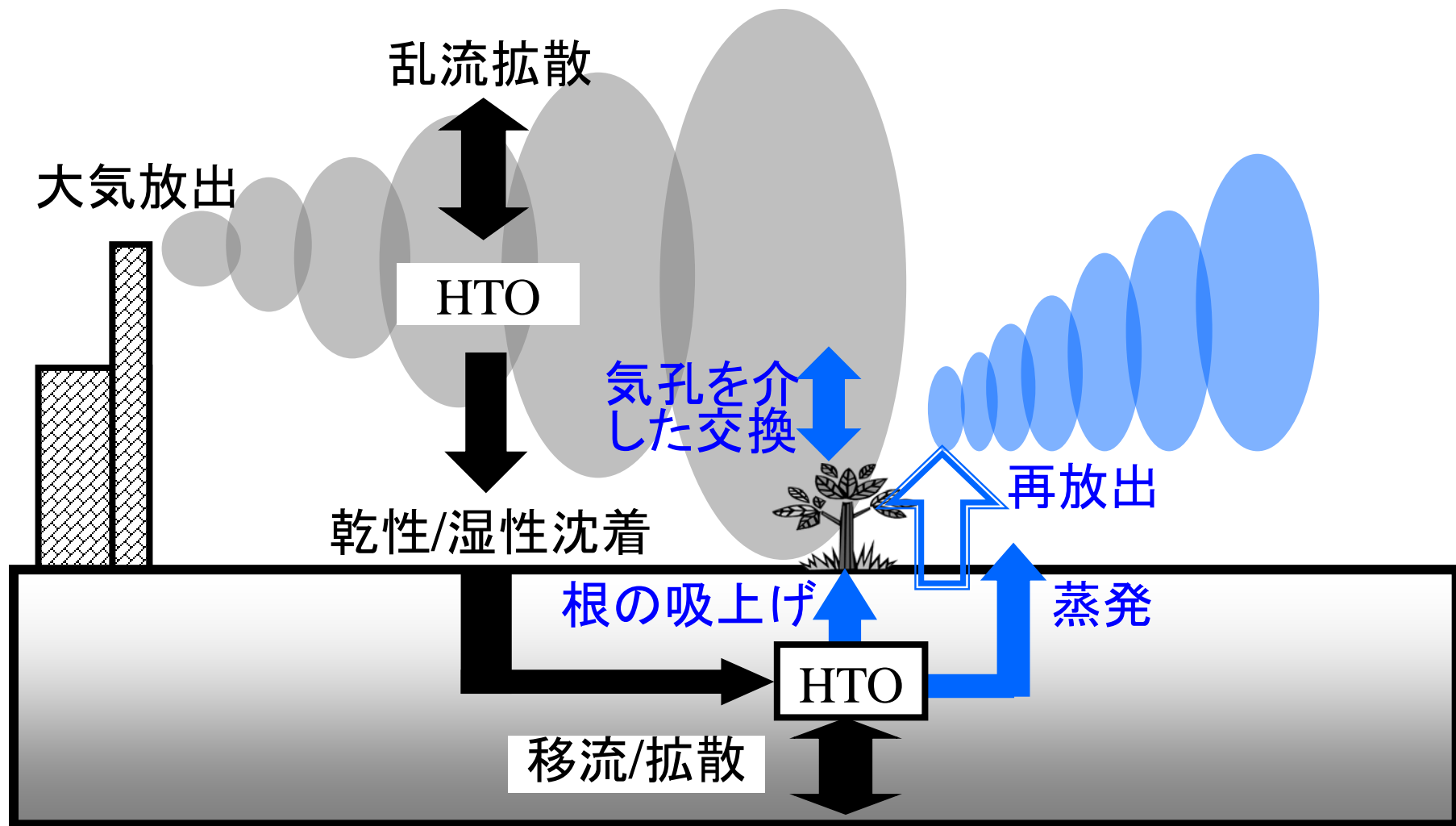
$R_{x,y,z^*}$  : 拡散項[m]

## 拡散項：ランダムウォーク法で計算

## 粒子拡散計算のイメージ







HTO乾性沈着

HTO湿性沈着

HTO再放出

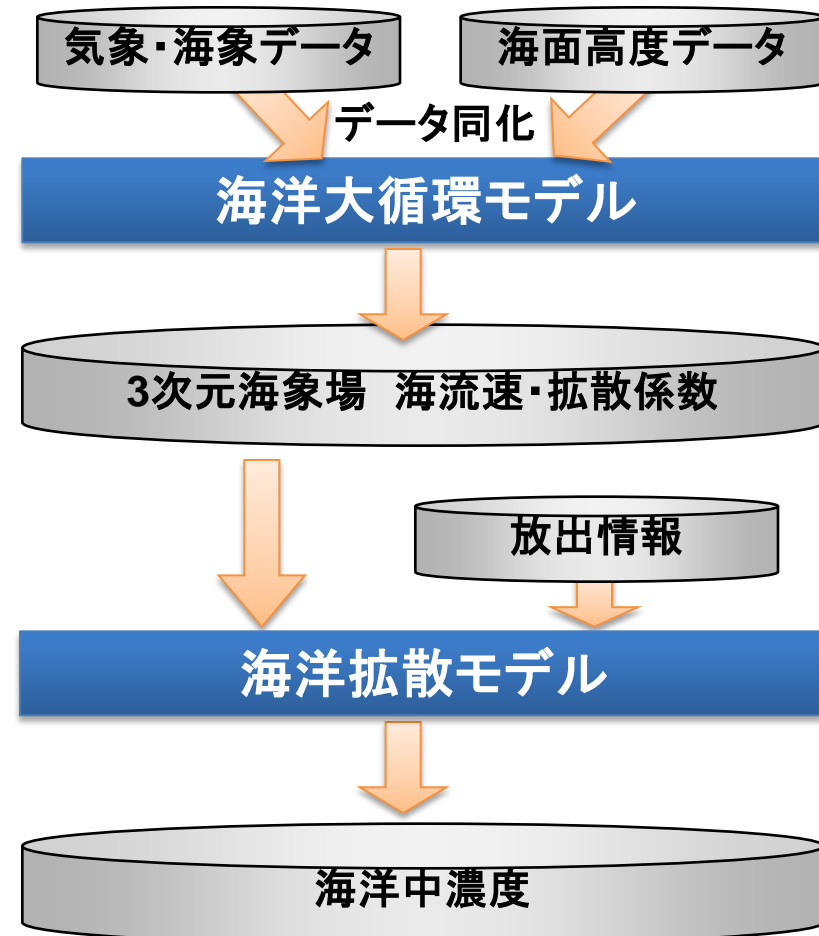
沈着速度:  $4 \sim 8 \times 10^{-3} \text{ m s}^{-1}$

沈着率は降水状況により変化

初期48時間:  $0.9 \sim 8.7\% \text{ h}^{-1}$ 、48時間以降:  $0.25 \sim 1.5\% \text{ h}^{-1}$

## 海水循環モデル

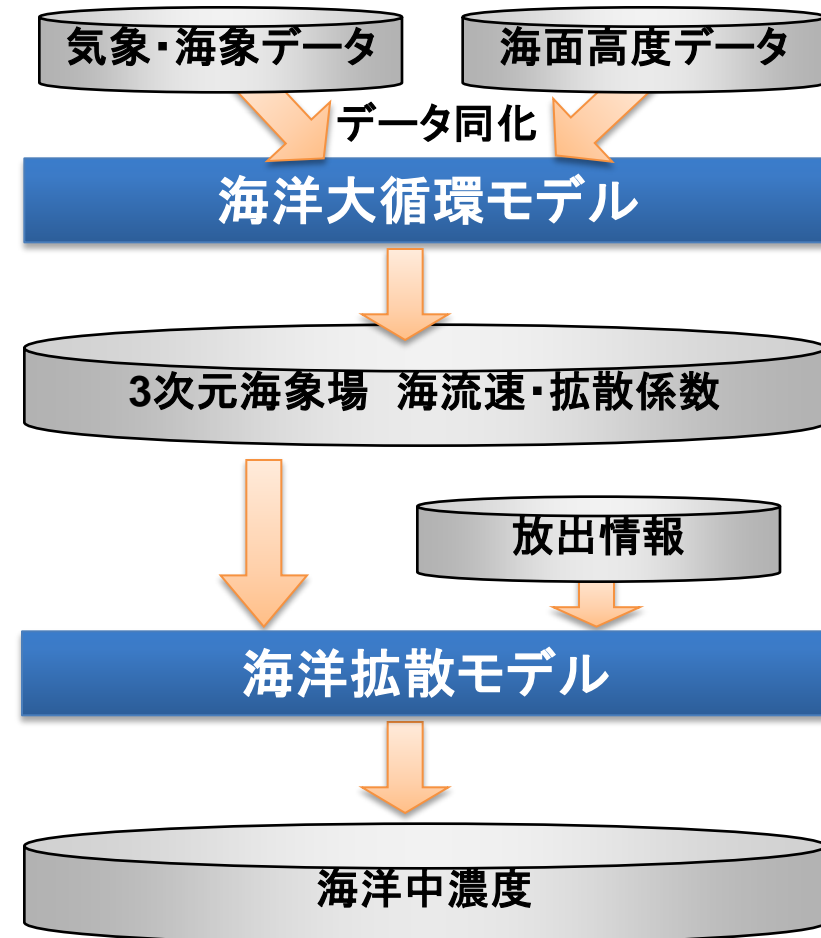
- 海洋中の流速、水温、塩分などの物理量の3次元構造とその変動を物理法則に基づいて求める
- 海洋を格子状に分割し、海面では大気との運動量、熱・淡水の交換を与え、各格子点間では運動方程式や熱・塩分の保存則を満たすように、流速変動、熱、塩分の移動や拡散を計算する
- 人工衛星や船舶から得られた海洋の観測データにモデル結果がより近くなるように、海洋の状態や大気との交換を修正する「データ同化」とよばれる手法を用いて、より現実的な海洋変動を再現する
- 目的に応じて解像度を変化
  - 沿岸付近では高分解能モデル(～2km格子)、原子力機構では、京都大学、海洋研究開発機構、日本海洋科学振興財団が共同開発したモデルの結果を利用する
  - 広域海洋では低分解能モデル(10～100km格子)、原子力機構では、気象庁気象研究所が開発したモデルの結果を利用する



海洋拡散評価モデルの計算の流れ

## 海洋拡散モデル

- 海洋中の放射性物質濃度の3次元構造とその変動を物理・化学法則に基づいて求める
- 一般的なモデルは、海水中の放射性物質の存在形態を、溶存相、粒子相、海底堆積物相と定義し、それぞれの相間を吸着・脱着、沈降・再浮遊により濃度の移行を考慮する
- トリチウムに関しては海水（溶存相）として動き、他の相との交換過程は無視する
- 原子力機構では自主開発したモデルを使用
  - 放射性核種を多数の粒子で模擬しランダムウォークモデルで追跡することで放射性核種の移流・拡散を計算



海洋拡散評価モデルの計算の流れ

(一般的な事例をもとに)

## 典型的な太平洋側の沿岸からの放出計算結果 (海流による移流拡散のみを考慮)

- 放出位置の計算格子の濃度に対して、約10km下流では約1桁低下、約50km下流では約2桁低下、約100km下流では約3桁低下
- 季節が変わっても同様の傾向を示す



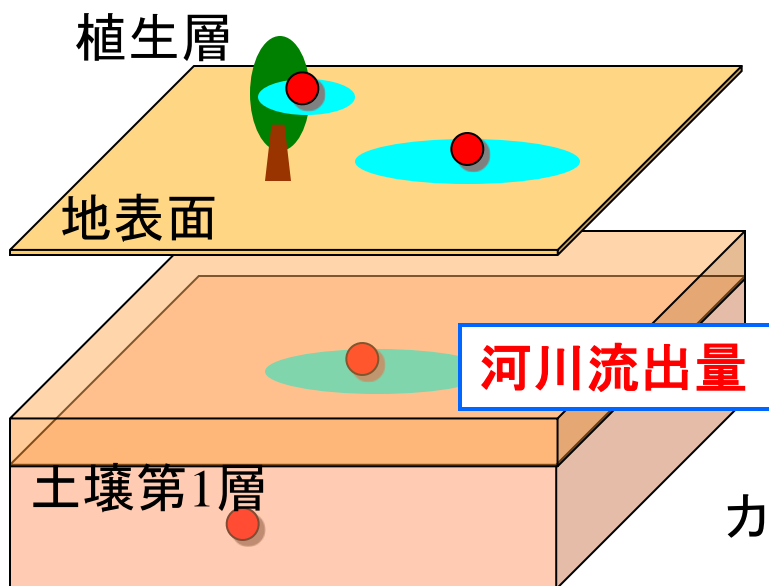
## 陸域移行モデル

### 粒子生成：

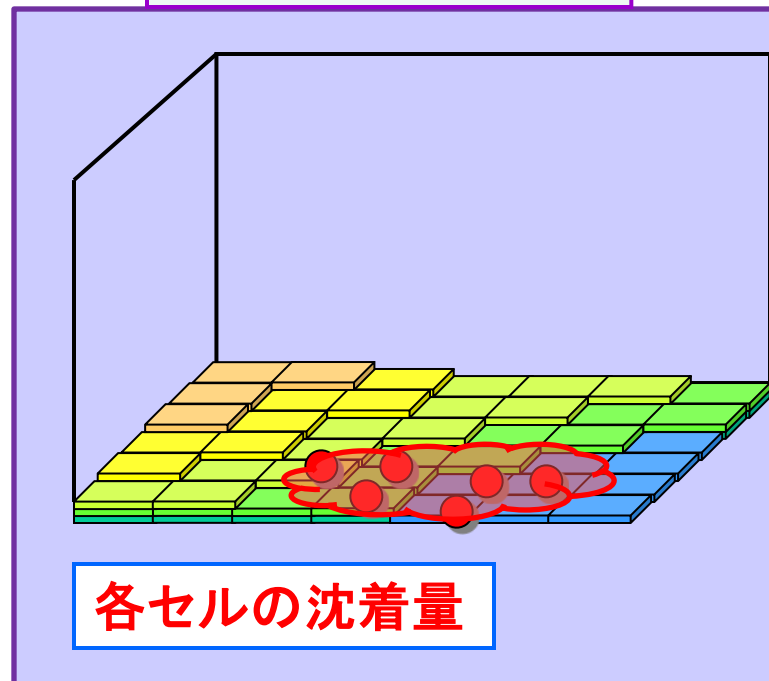
- ・各セル内地表面に粒子配置
- ・沈着量により放射エネルギー付加

### 粒子移動計算：

- ・水流出により移動（溶存物質）
- ・地表、土壌、河川の3次元移動
- ・崩壊・放出で放射エネルギー減衰



## 大気拡散モデル



Coupler

海洋拡散モデル

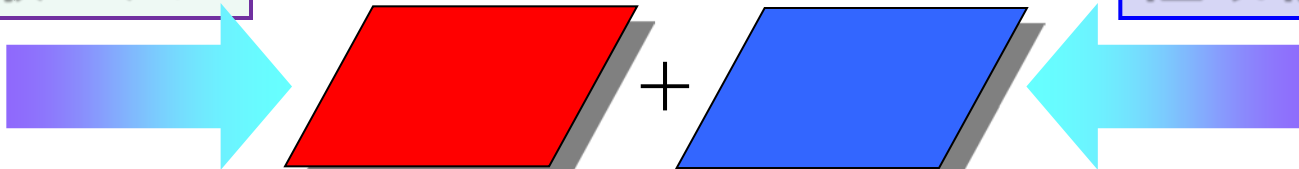
カップラー：時間・空間補間

大気拡散モデル

海表面沈着量

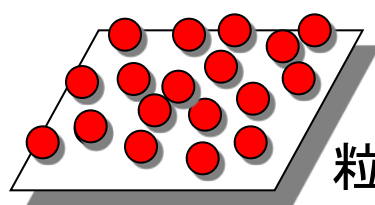
河川流出量

陸域移行モデル



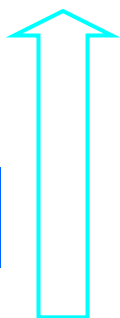
河口域

河川流出量と海表面沈着量の和



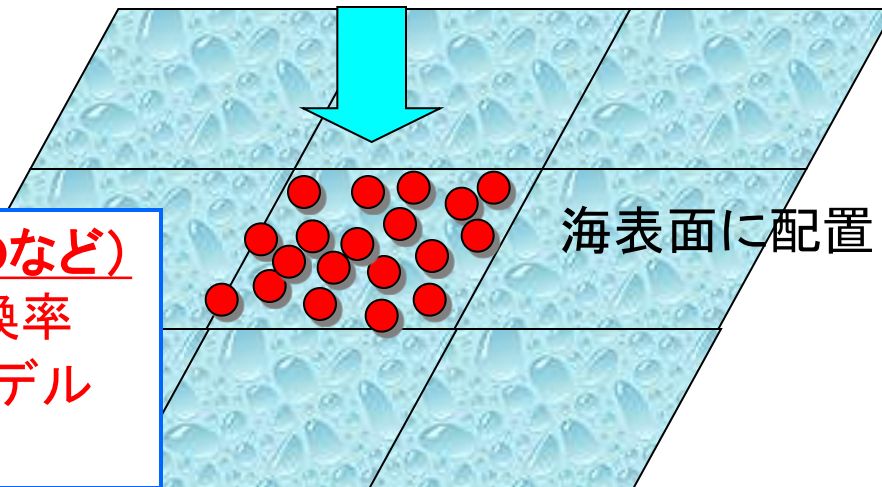
粒子に分配

Coupler



海面放出量(HTOなど)

海表濃度 × 水交換率  
水交換率：大気モデル  
で計算



海表面に配置

海洋拡散モデル

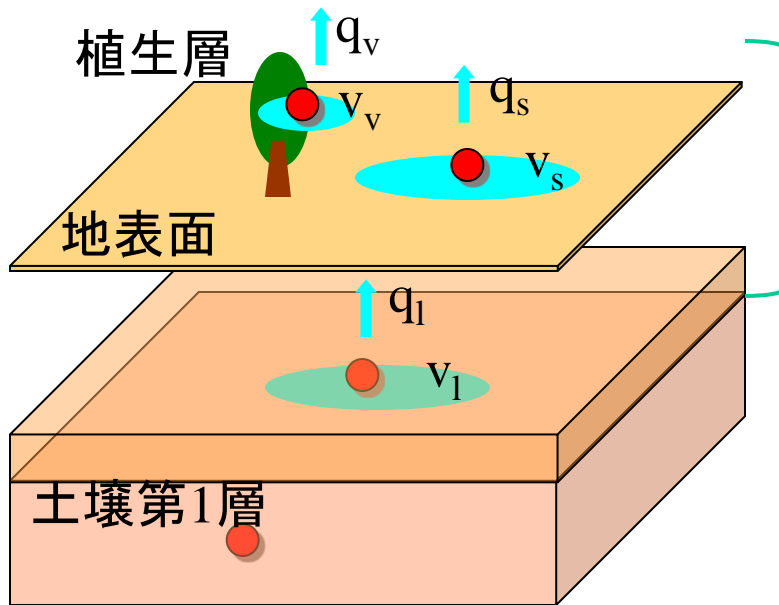
## 陸域移行モデル

各セル時間ステップ放出量：

$$FQ = \sum_i Q(i) \times r(i)$$

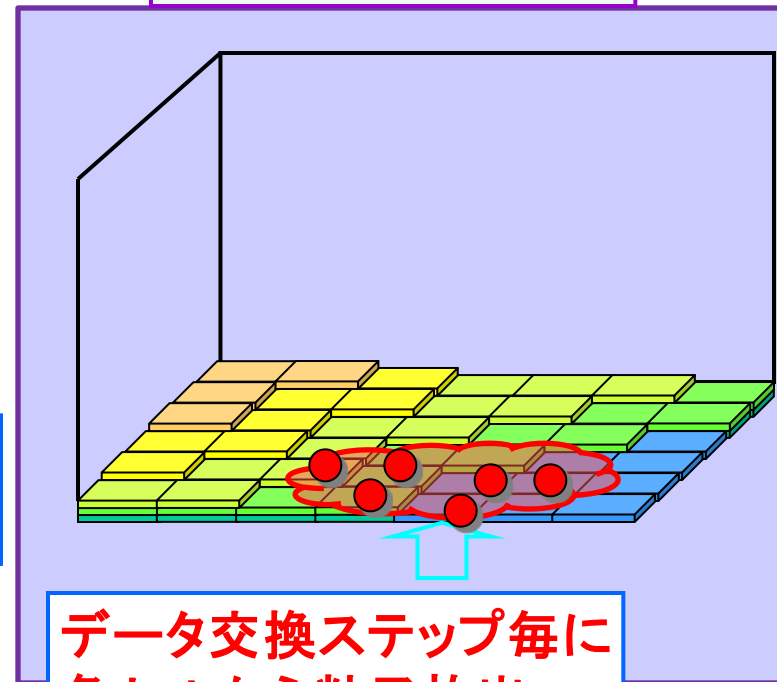
$Q(i)$ ：各粒子の放射エネルギー

$r(i) = q/v$ ：放出率（粒子位置毎）



放出エリア  
土壌表層

## 大気拡散モデル



データ交換ステップ毎に  
各セルから粒子放出

**Coupler**

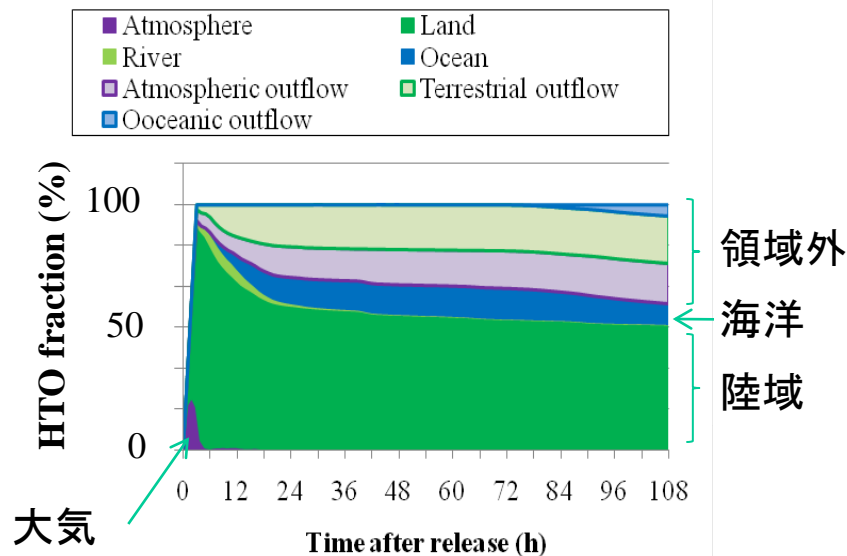
データ交換ステップ  
で積算

各セルの放出量  
海陸分布の融合

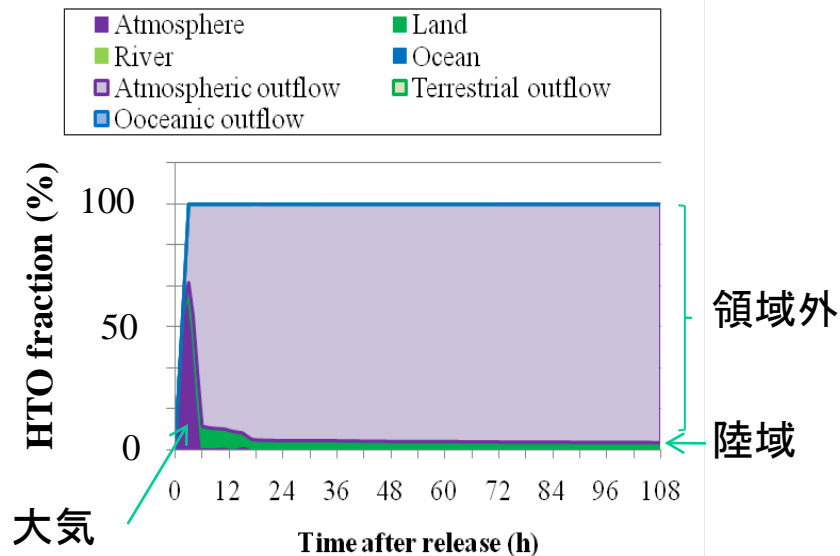
海洋拡散モデル

HTO大気放出時の環境中存在割合(130km四方領域内)の降水依存性  
(JAEA結合モデルによる感度解析、放出条件:地上50mからの3時間定常放出)

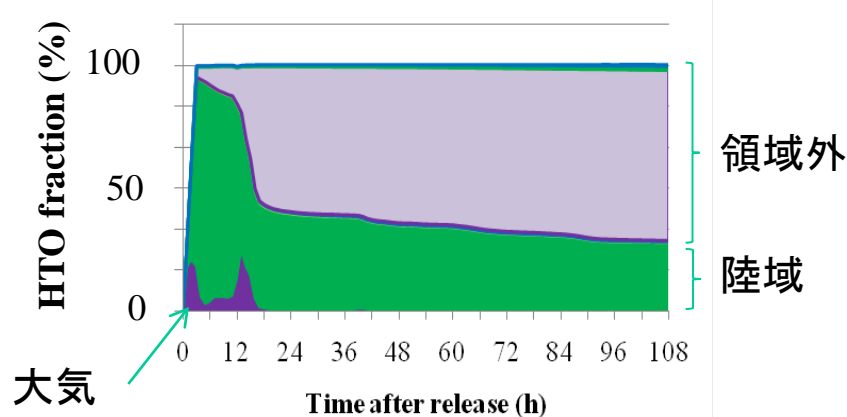
(a) 豪雨ケース



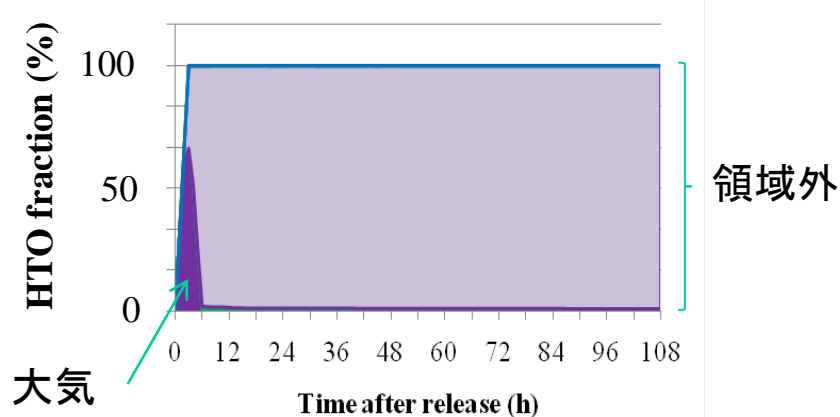
(c) 弱雨ケース



(b) 通常降雨ケース



(d) 雨なしケース



# トリチウム分離に係る工業技術

平成26年1月15日

日本原子力研究開発機構

山西敏彦

山本徳洋

# 目次

## 1. 主な水素同位体の分離技術と特徴

### 1-1 蒸留法

#### 1-1-1 水蒸留

#### 1-1-2 水素蒸留(深冷分離)

### 1-2 同位体交換法

### 1-3 電気分解法

### 1-4 その他

## 2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

### 2-1 加: Darlington Tritium Removal Facility

### 2-2 韓: Wolsong Tritium Removal Facility

### 2-3 日: ふげん重水精製装置(I)、(II)

### 2-4 EU: ITERトリチウム水処理装置(設計段階)

## 3. 重水精製・トリチウム分離に係るプラント実績の纏め

# 1. 水素同位体の分離技術と特徴

## 1-1 蒸留法

### 1-1-1 水蒸留

原理:

- ・水の平衡蒸気圧 = 軽水 > 重水 > トリチウム水
- ・蒸発・凝縮の繰り返し(蒸留)により、沸点の高いトリチウム水を液相に濃縮。  
塔底にボイラーをおいて蒸気発生、塔頂に凝縮器をおいて、蒸気を水に戻すことで、還流を作り、繰り返しを起こさせる。

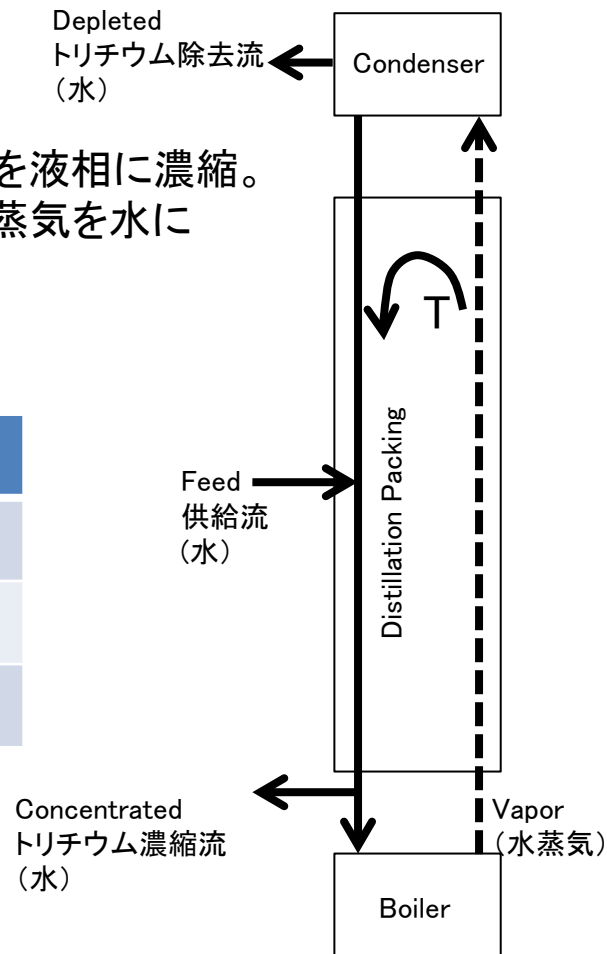
水の平衡蒸気圧 (torr)

T(°C)	25	60	80	100
P(H <sub>2</sub> O)	23.756	149.38	355.1	760
P(HTO)	21.7	141.5	341.3	738.8
P(H <sub>2</sub> O)/P(HTO)	1.095	1.056	1.040	1.029

長所: 蒸留法として、石油プラント等で多くの工業実績有。

短所: 分離係数 ( $\doteq P(\text{H}_2\text{O})/P(\text{HTO})$ ) が非常に小さい。

→ 蒸発・凝縮の繰り返し回数が多く、塔が高くなる。  
分離係数を大きくするために、減圧で運転。



蒸留法の概念

# 1. 水素同位体の分離技術と特徴

## 1-1-2 水素蒸留

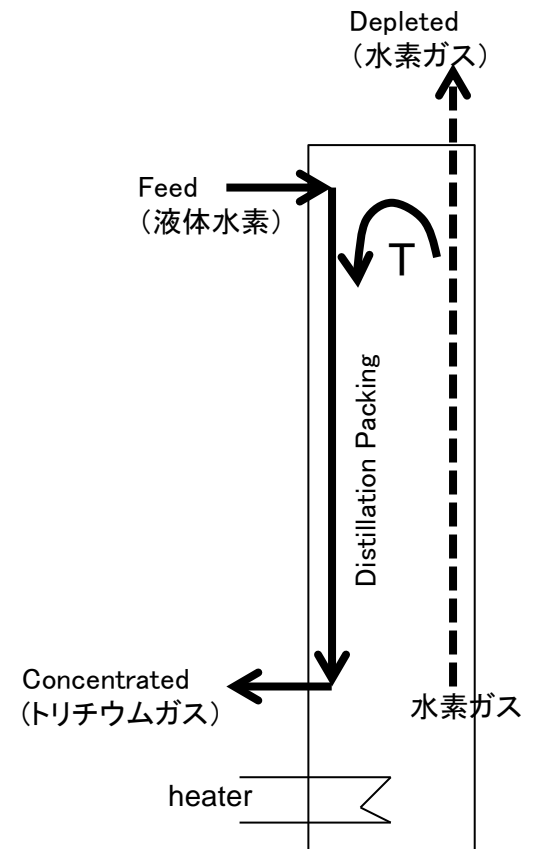
- 原理:
- 液体水素の平衡蒸気圧 = 軽水素 > 重水素 > トリチウム
  - 液体水素の蒸留により、沸点の高いトリチウムを液相中に濃縮。

液体水素の平衡蒸気圧 (torr)

T(K)	20	25
P(H <sub>2</sub> )	677.4	2374.7
P(HT)	288.8	1332.6
P(T <sub>2</sub> )		750.3
P(H <sub>2</sub> )/P(HT)	2.346	1.782

長所: 大きな分離係数 ( $\doteq P(\text{H}_2)/P(\text{HT})$ )。

短所: 液体水素温度 (約20K) での運転 → コスト高  
水素ガスの気化に対する安全対策、水素防爆。



液体水素蒸留法の概念



# 1. 水素同位体の分離技術と特徴

## 1-2 同位体交換法一水/水素同位体交換(1)

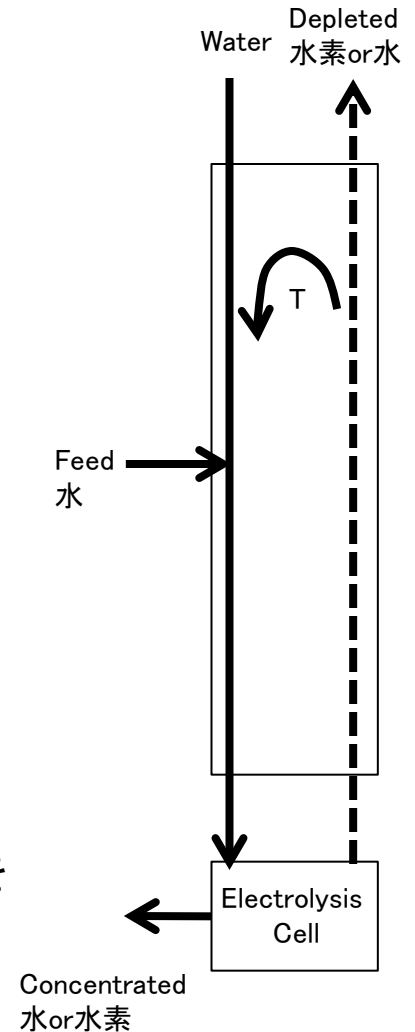
原理:

- ・水 $\rightleftharpoons$ 水蒸気 $\rightleftharpoons$ 水素間の同位体反応  
重水素及びトリチウムの濃度＝水中>水蒸気中>水素
- ・水、水蒸気、水素ガスを、向流で接触。  
水素ガス中の重水素やトリチウムを水蒸気を経由して水相中に濃縮。

開発経緯

- ・同位体反応に、触媒が必要、水に濡れると活性を失う。  
蒸気相と水素相のみのVPCE (Vapor Phase Catalytic Exchange)  
がまず開発。共にガスなので並流接触。凝縮器と＋蒸発器で多段に  
(カナダ、後述)。
- ・疎水性触媒が開発。  
上記、液相を含む、向流の方法を開発LPCE (Liquid Phase Catalytic  
Exchange)
- ・塔底に電解セルを設置して水から水素を発生、塔内に還流を作ること  
を考案(蒸留と同じ構造にする)。CECE (Combined Electrolysis Catalytic  
Exchange)。日、韓国、後述。

同位体交換の分離係数 蒸気-液間分離係数 $\alpha_V: \text{H}_2\text{O}(\text{L}) \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}(\text{V})$ と  
蒸気-水素間の分離係数 $\alpha_G: \text{H}_2\text{O}(\text{V}) \rightleftharpoons \text{H}_2(\text{G})$ よりなるが、 $\alpha_G$ が支配的



T(°C)	16	20	25	56	80	111	158	217	303
$\alpha_G(T)$	6.73	6.47	6.25	5.05	4.37	3.76	3.10	2.64	2.17

# 1. 水素同位体の分離技術と特徴

## 1-2 同位体交換法一水/水素同位体交換(1)

長所:

日本(ふげん)、カナダ、韓国において、重水精製、トリチウム水濃縮に用いられた実績有。

短所:

同位体反応に触媒が必要、水に濡れると活性を失うので、高性能疎水性触媒が必要。  
最も効率の良いCECE法では、電解セルのエネルギー消費が大きい、大容量化が困難。

備考:

重水製造の場合、重水の回収効率は要求されない。

電解セルを使わない、コスト的に有利な水一硫化水素(触媒不要)、水素一アンモニア(分離係数大)、  
同位体交換反応も用いられている。

トリチウムがある場合、適用は困難。

トリチウムを含む硫化水素、アンモニア等劇物が発生。

トリチウム除去系の触媒被毒の問題。

## 1-3 電気分解法

## 1-4 その他

### <電気分解>

- ・水の電気分解速度＝軽水＞重水＞トリチウム水  
液相にトリチウム、重水素が濃縮。

長所：1段の分離係数は高い

短所：繰り返し操作の為に、分解した水素ガスと酸素ガスを再結合し、再度電気分解を行う必要→エネルギー消費量大。  
最近は単独での利用はほとんどない。

### <その他>

- ・熱拡散法、ガスクロマトグラフ法、レーザー法等があるが、実用規模での処理に不向き。

## 2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

### 2-1 加: Darlington Tritium Removal Facility

## 1. プラント目的

20基のCANDU炉を対象に、重水中のトリチウムを除去・回収する(24MCi/y=8.9E+17Bq/y)。

炉作業員の被曝低減が目的で重水中のトリチウム濃度はある程度下げれば良い。再度炉に戻すため。

## 2.採用技術:

同位体交換(VPCE)+水素蒸留

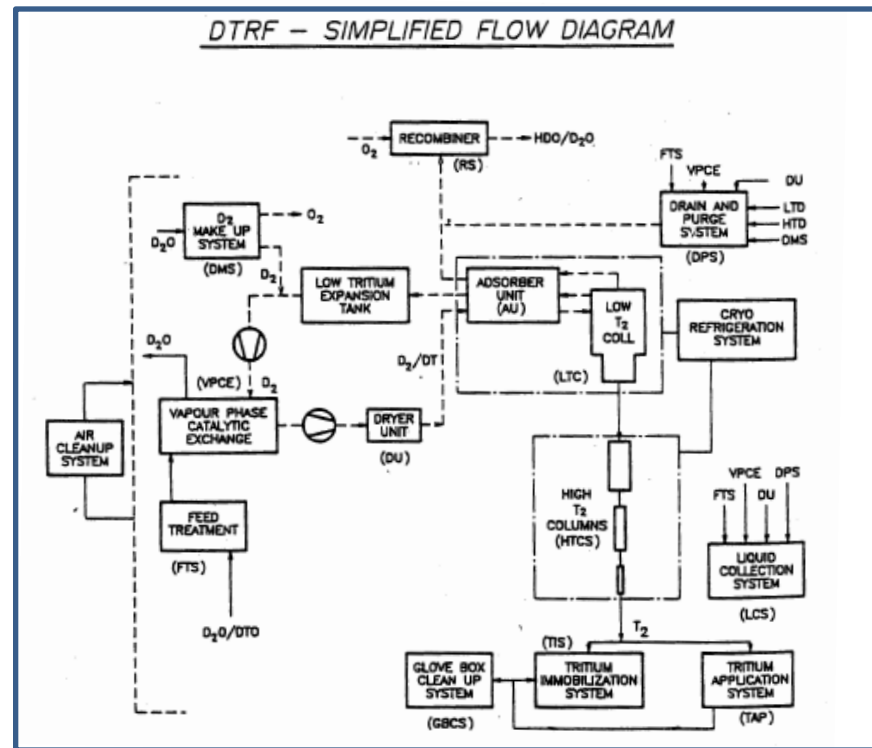
3. 処理能力：約8.6 m<sup>3</sup>/day (360 kg/hr)

#### 4.トリチウム濃度の取扱領域

- Feed : 0.4E+9~1.3E+9 Bq/ml
- concentrated : 99%-T<sub>2</sub> gas
- depleted : 1E+7~3.5E+7 Bq/ml

## 5.装置概要等

- ・建屋(35mL×24mW×12mH(蒸留部は38mH))
- ・同位体交換で重水中のトリチウムをD<sub>2</sub>ガス中に移行させ、水素蒸留で濃縮。回収した99%-T<sub>2</sub>ガスは金属Tiに吸収させ貯蔵。
- ・トリチウムのリーク対策として、グローブボックスや空気浄化系等の付帯設備を設置



## 6.建設経緯等

- ・1981.8:設計契約
- ・1983夏:建設開始
- ・1987.2:竣工
- ・1988.10:操業開始

出典：S.K. SOOD, J. QUELCH and R.B. DAVIDSON Ontario Hydro, Toronto, Canada, "FUSION TECHNOLOGY EXPERIENCE AT ONTARIO HYDRO 'S DARLINGTON TRITIUM REMOVAL FACILITY AND HEAVY WATER UPGRADEERS". (1989)

# 2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

## 2-2 韓: Wolsong Tritium Removal Facility

### 1. プラント目的

- ・4基のCANDU炉を対象に重水中のトリチウムを除去・回収 ( $7\text{M Ci/y}=2.6\text{E}+17/\text{y}$ ) する。

カナダの技術を導入。

### 2. 採用技術: 同位体交換(LPCE)+水素蒸留

### 3. 処理能力: 約 $2.1 \text{ m}^3/\text{day}$ ( $100 \text{ kg/hr}$ )

### 4. トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed :  $0.04\text{E}+9 \sim 2\text{E}+9 \text{ Bq/ml}$
- ・ concentrated :  $99\%-\text{T}_2 \text{ gas}$
- ・ depleted :  $1/35 \text{ of feed}$   
( $0.1\text{E}+7 \sim 7\text{E}+7$ )  $\text{Bq/ml}$

### 5. 装置概要等

- ・ 同位体交換(電解セル付き)で重水中のトリチウムを前濃縮し、水素蒸留で更に濃縮。回収した $\text{T}_2$ ガスはチタンに吸わせて貯蔵。



### 6. 建設経緯等

- ・2000.11: 設計契約
- ・2003.01: 建設開始
- ・2005.06: 竣工
- ・2006.10: 性能試験
- ・2007.07: 操業開始

## 2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

### 2-3 日：ふげん重水精製装置(I)ー

#### 1.プラント目的

- ・約80～90%重水を99.8%重水に精製

#### 2.採用技術：電解法

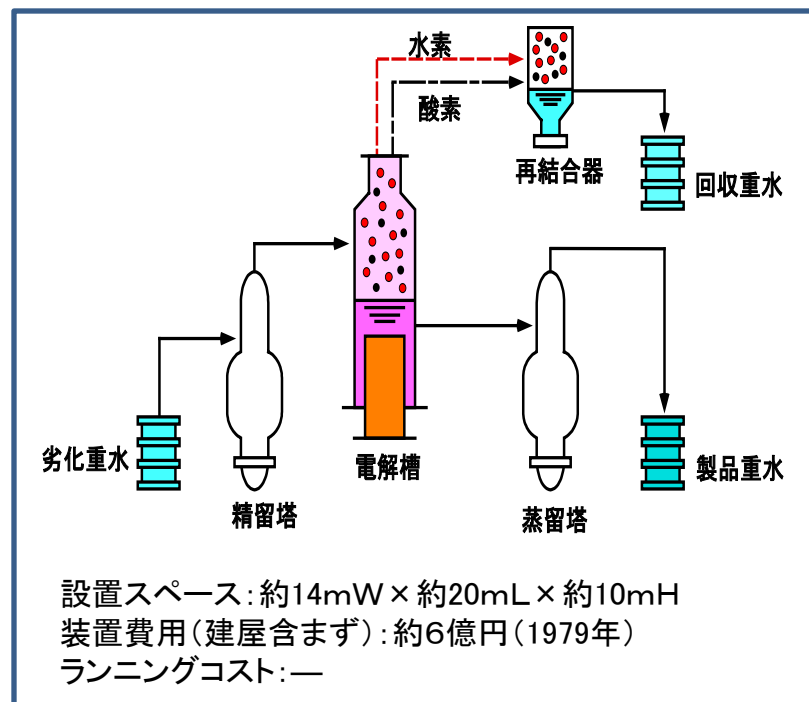
3.処理能力：0.015m<sup>3</sup>/day（約131tの劣化重水から、約54tの99.8%重水を得た）

#### 4.トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約4E+8 Bq/ml
- ・ concentrated : 約4E+8 Bq/ml（製品重水）
- ・ depleted : 約1E+8 Bq/ml（回収重水）

#### 5.装置概要等

- ・電解液が所定重水濃度になるまでバッチ運転
- ・電解ガスは水に酸化して回収。再度電解処理(回収重水中の重水濃度が60～80%になるまで繰返し処理)
- ・電解助剤を使用(K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>/KOH)
- ・運転開始後約1年で分離係数が徐々に低下（Cr溶出が原因→電解槽の電気防食）



#### 6.建設経緯等

- ・運転期間：1979～1999

## 2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

### 2-3 日：ふげん重水精製装置(II)

#### 1. プラント目的

- ・約10～95%重水を99.8%重水に精製(我が国最大のトリチウム水取扱施設)

#### 2. 採用技術: CECE

#### 3. 処理能力: 0.03 m<sup>3</sup>/day

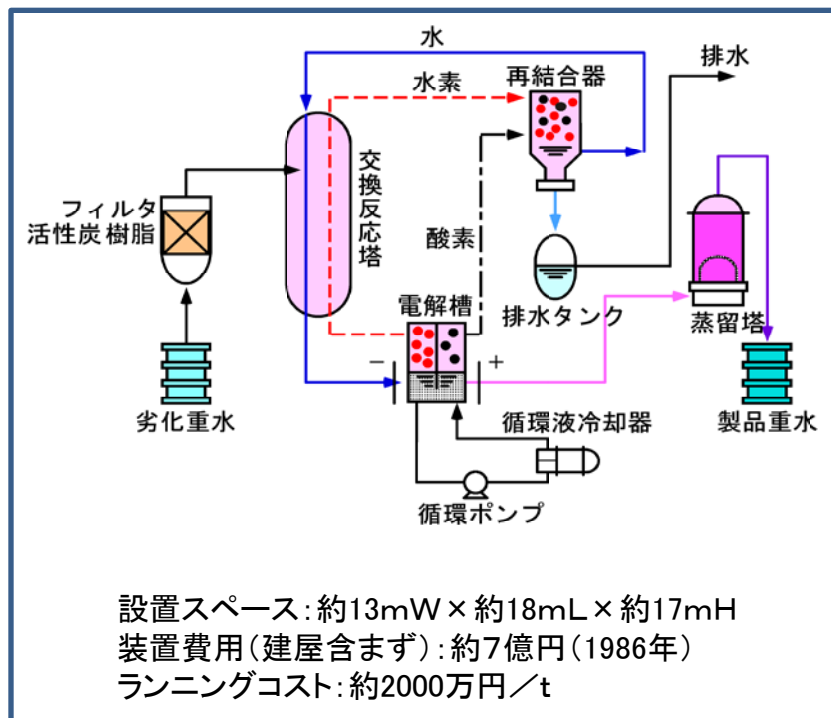
(約87tの劣化重水から約52tの99.8%重水を得た)

#### 4. トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約1E+8 Bq/ml
- ・ concentrated : 約1E+8 Bq/ml
- ・ depleted : 約4E+3 Bq/ml (排水には更に100倍希釈)

#### 5. 装置概要等

- ・連続運転
- ・電解ガスの水素を交換反応塔に通し、重水素(トリチウム含む)除去後、電解ガスの酸素と再結合。
- ・再結水の一部は交換反応塔に還流、残りは希釈排水。
- ・電解助剤を使用(KOH)
- ・電解により水素ガス製造、疎水性白金触媒利用(90段)



#### 6. 建設経緯等

- ・1984～1985 装置設計
- ・1985～1986 装置据付
- ・1986～1987 試運転、調整運転
- ・1987～2003 運転

出典: JAEAホームページ, “重水装置の開発”, [http://www.jaea.go.jp/04/fugen/jdbase/juusui\\_1.html](http://www.jaea.go.jp/04/fugen/jdbase/juusui_1.html)

松蔭 聡 羽田 孝博 林 省一 清田 史功(敦賀本部ふげん発電所)“重水取扱技術及び重水サイクル技術の確立と実証”, サイクル機構技法No20別冊(2003.9)

松蔭 聡 北端 琢也 川越 慎司 北村 高一(敦賀本部ふげん発電所)“ふげんにおけるトリチウム管理”, サイクル機構技法No11(2001.6)

清田 史功 中村由夫 北端 琢也 羽田 孝博(ふげん発電所)“新型転換炉「ふげん」における重水精製”, 動燃技法No70(1989.6)

## 2. 重水精製・トリチウム分離に係る主なプラント実績

### 2-4 EU:ITERトリチウム水処理装置(設計段階)

#### 1.プラント目的

- ・ ITERは、世界7極(EU、日、米、露、韓、中、印)で仏に建設を進める核融合実験炉(トリチウムを燃料として使用)。

気密ホットセル(炉内機器の補修)の雰囲気トリチウムを、水に変えて除去。このトリチウム水を処理し、トリチウムをガスとして回収・再利用。トリチウム水の処理は同位体交換(電解セル付き)。燃料トリチウム中の軽水素を除く水素蒸留装置に送り、燃料として最終的に回収。同位体交換部分について以下に整理。

#### 2.処理能力:0.48 m<sup>3</sup>/day

#### 3.トリチウム濃度の取扱領域

- ・ Feed : 約4E+8 Bq/ml
- ・ concentrated : 約1E+10 Bq/ml
- ・ depleted : 約4E+3 Bq/ml (水素ガスの防爆のため、100倍希釈排出)

#### 4特徴

- ・ 固体高分子電解膜の使用(アルカリ等電解助剤は不要)、疎水性触媒の開発

#### 5.建設予定等

- ・ 2027～ 段階的処理運転

文献:M. Glugla et al., Fusion Eng. Des., 82, 472-487 (2007).

Y. Iwai et al., Fusion Sci. Technol., 41, 1126-1130 (2002).



### 3. 重水精製・トリチウム分離に係るプラント実績の纏め

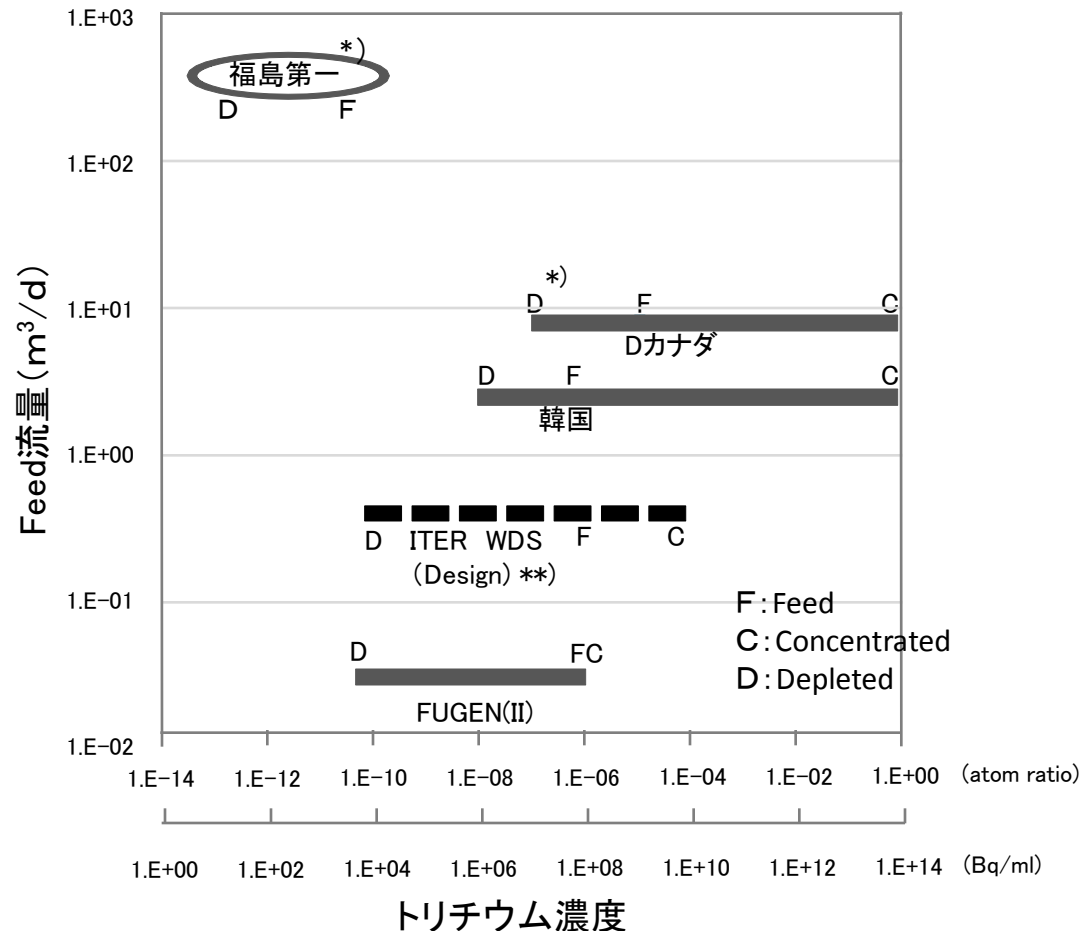
- カナダ、韓国の装置は、重水からのトリチウム除去・回収プラント
- FUGEN(II)は重水精製が目的、結果としてトリチウム分離が行われる。
- 重水精製・トリチウム分離に係る既存プラントとの比較において、福島第一の領域は、大きく離れて、低濃度・大処理容量に位置、チャレンジングな領域。
- カナダ、韓国のプラントは、設計開始から操業開始までに約7年を要している。
- 福島第一のトリチウム分離プラントを検討するに当たっては、以下の項目を事前に検討しておく事が重要。
  - ・プラントの処理能力
  - ・どこまでトリチウムを除去するか
  - ・濃縮されたトリチウムの扱い
  - ・分離後の薄まったトリチウム水の扱い
  - ・プラントを稼働させるまでの許容期間
  - ・キャピタル&ランニングコストの制約等

\*) 福島第一の楕円は以下に対応

- ・処理能力 : 500m<sup>3</sup>/day
- ・Feed : 5E+3 Bq/ml
- ・Depleted : 6E+1 Bq/ml

・Concentrated: 考慮せず。例えば、供給流を1/10に減容すれば、供給トリチウム濃度の10倍になる。

\*\*) 建設中のITERのトリチウム水処理設備の設計



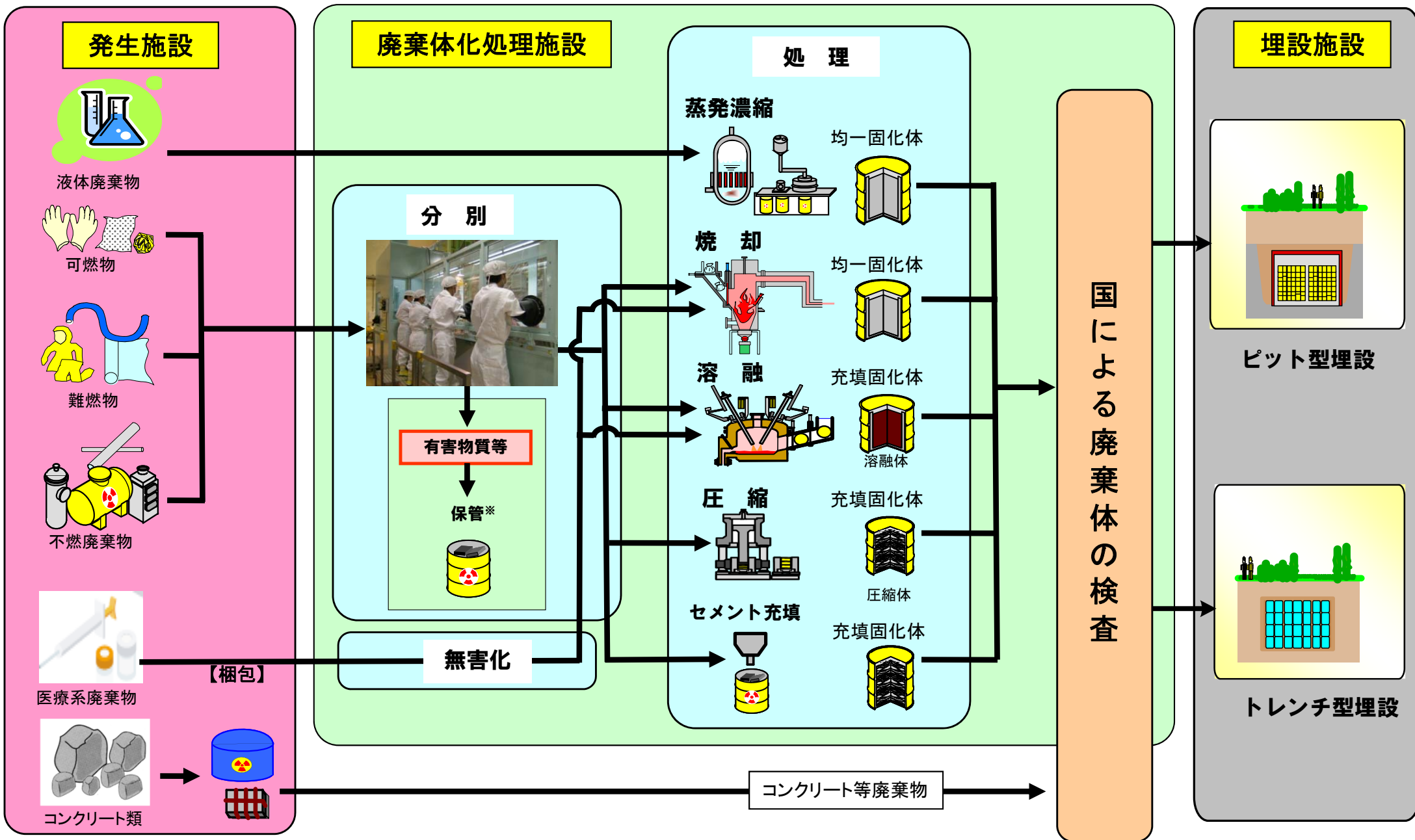
# 浅地中埋設処分施設の基本概念と 安全評価の考え方について

平成26 年 2月27日(木)

原子力機構 埋設事業推進センター  
設計技術課



# ① 放射性廃棄物の処理・処分



## ② 放射性廃棄物の処分方法

処分深度(目安)

地表

50m

100m

200m

300m

トレンチ型埋設処分

ピット型埋設処分

余裕深度処分

低レベル放射性廃棄物

低

放射能濃度

高

高レベル放射性廃棄物

(低レベル放射性廃棄物の一部)

(ガラス固化体)



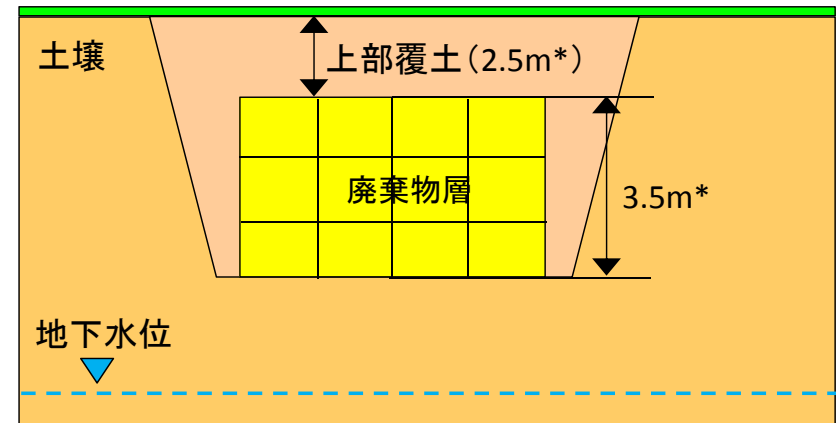
地層処分



# ③-1 浅地中処分施設概念 -トレンチ処分施設-

- 放射能濃度の極めて低い廃棄物を対象とし、コンクリートピット等の人工バリアを設置しない処分施設。
- 地下水に放射性廃棄物が直接接触しないように地下水位より上部に施設を設置し、廃棄物の周囲に土砂等を充填し、上部に覆土を敷設。
- 原子力機構の原子力科学研究所において、動力試験炉JPDRの解体により発生したコンクリート等廃棄物のトレンチ処分を実施。現在埋設作業を終了し、埋設地の管理を実施(保全段階)。

トレンチ処分施設のイメージ図



\* 原子力機構の埋設施設の例



廃棄物埋設用トレンチ外観及び雨水浸入防止用テント(定置開始前)



フレキシブルコンテナ封入廃棄物の定置作業状況



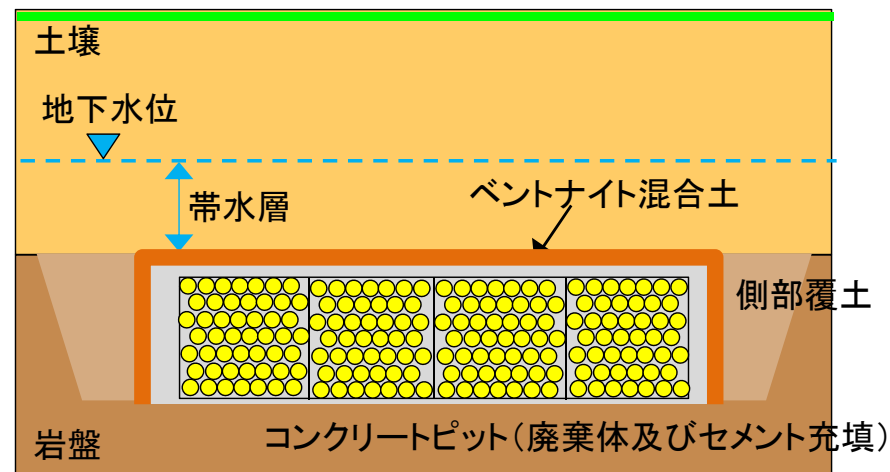
廃棄物埋設地(保全段階)



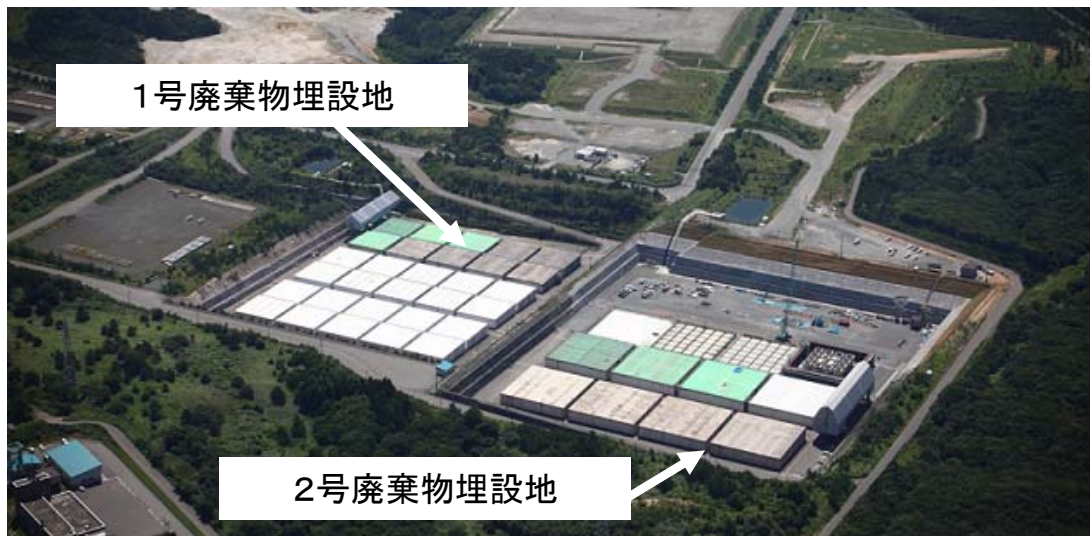
# ③-2 浅地中処分施設概念 -コンクリートピット処分施設-

- 低レベル放射性廃棄物を容器に固型化して廃棄体とし、コンクリートピットに処分する方法。
- 放射性物質の移行を抑制するため、ピット全体が透水性の低い岩盤内となるように設置。
- コンクリートピット内はセメント系材料で充填され、側部と上面に透水性の小さいベントナイト混合土層を設置。
- 発電所廃棄物のうち、ピット処分対象の廃棄物については、日本原燃(株)の低レベル放射性廃棄物埋設センターにて、処分が実施されている。

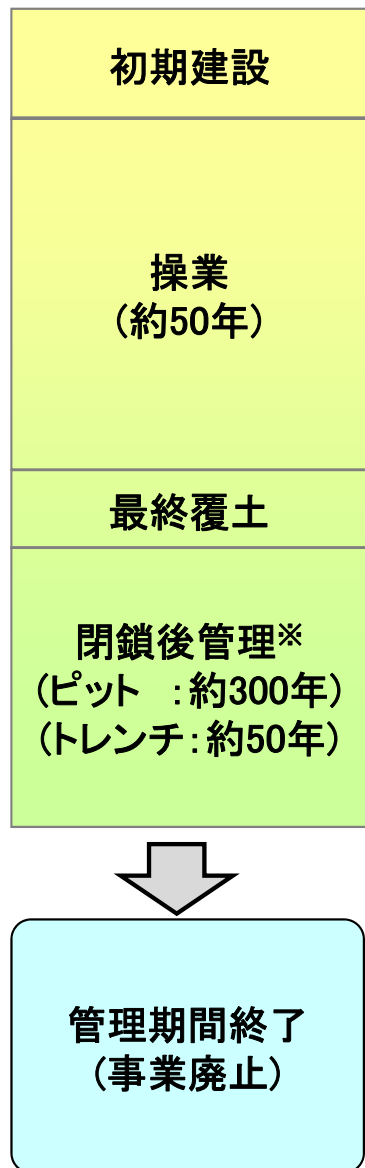
コンクリートピット処分施設のイメージ



日本原燃(株)低レベル放射性廃棄物埋設センターのコンクリートピット処分施設

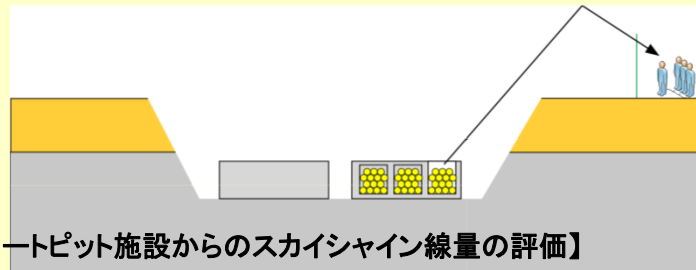


## ④ 浅地中処分施設の安全評価



### 作業・管理期間中の評価

処分施設の管理(作業)期間中において、事業所(周辺監視区域)境界上の最大となる地点で、一般公衆が受ける線量を評価し、線量目標値以下であることを確認

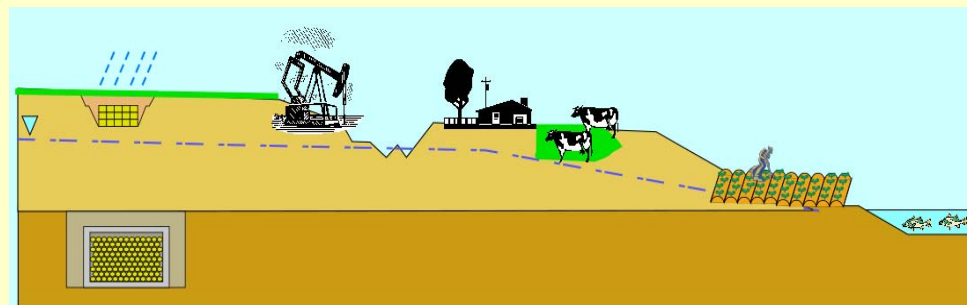


【例:コンクリートピット施設からのスカイシャイン線量の評価】

線量基準 :  $1\text{mSv/y}$  ※  
線量目標値:  $50\mu\text{Sv/y}$  ※

### 管理期間終了後の評価

管理期間終了後、埋設地及び周辺において、一般公衆が受けると想定される線量を評価し、管理期間終了後の線量のめやす値以下であることを確認



線量めやす値  
基本シナリオ (確からしい想定に基づくシナリオ)  
:  $10\mu\text{Sv/y}$  ※  
変動シナリオ (周辺環境や埋設施設の変動を想定したシナリオ)  
:  $300\mu\text{Sv/y}$  ※  
等

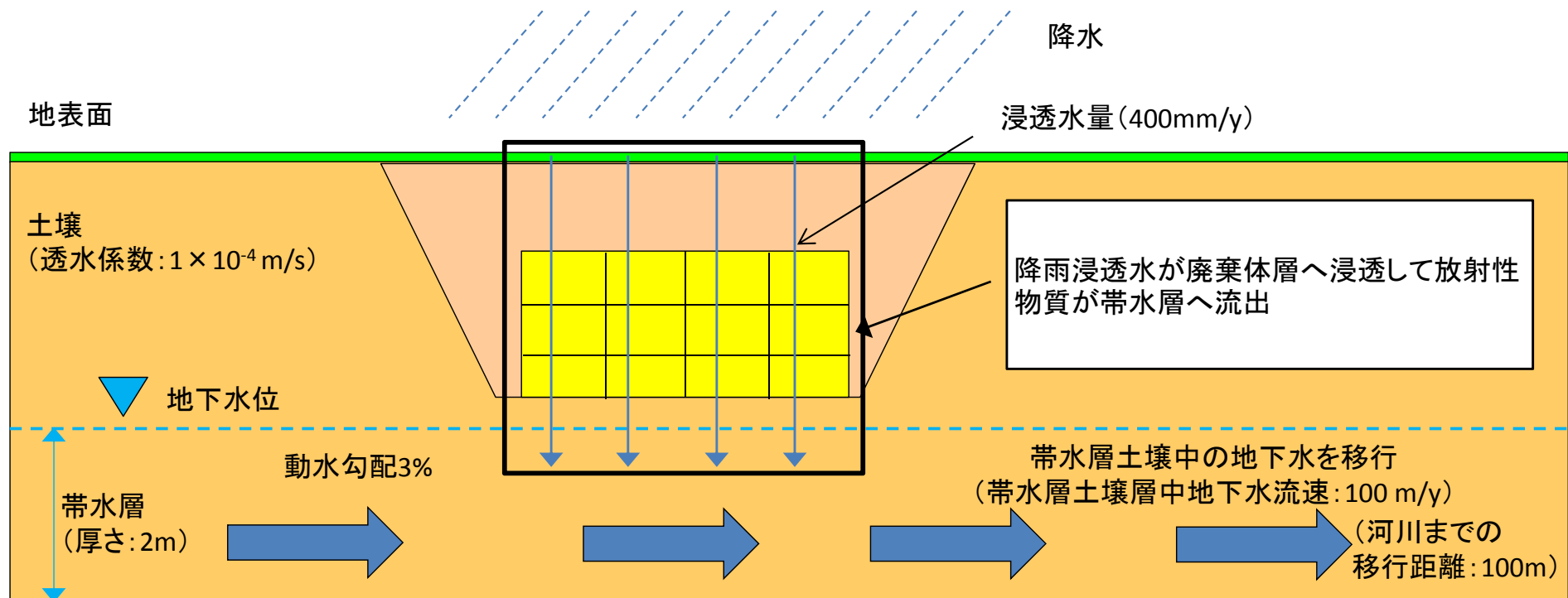
放射性物質が処分施設から地下水へ浸出し、その放射性物質による周辺環境における線量評価、埋設地を利用することにより埋設地に残存する放射性物質からの線量評価を実施する。

※ 第二種廃棄物埋設施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則の解釈(制定平成25年11月27日原管廃発第1311277号原子力規制委員会決定)



# ⑤-1 トレンチ処分施設からの流出・移行モデル概念

## コンクリート施設の安全評価モデル

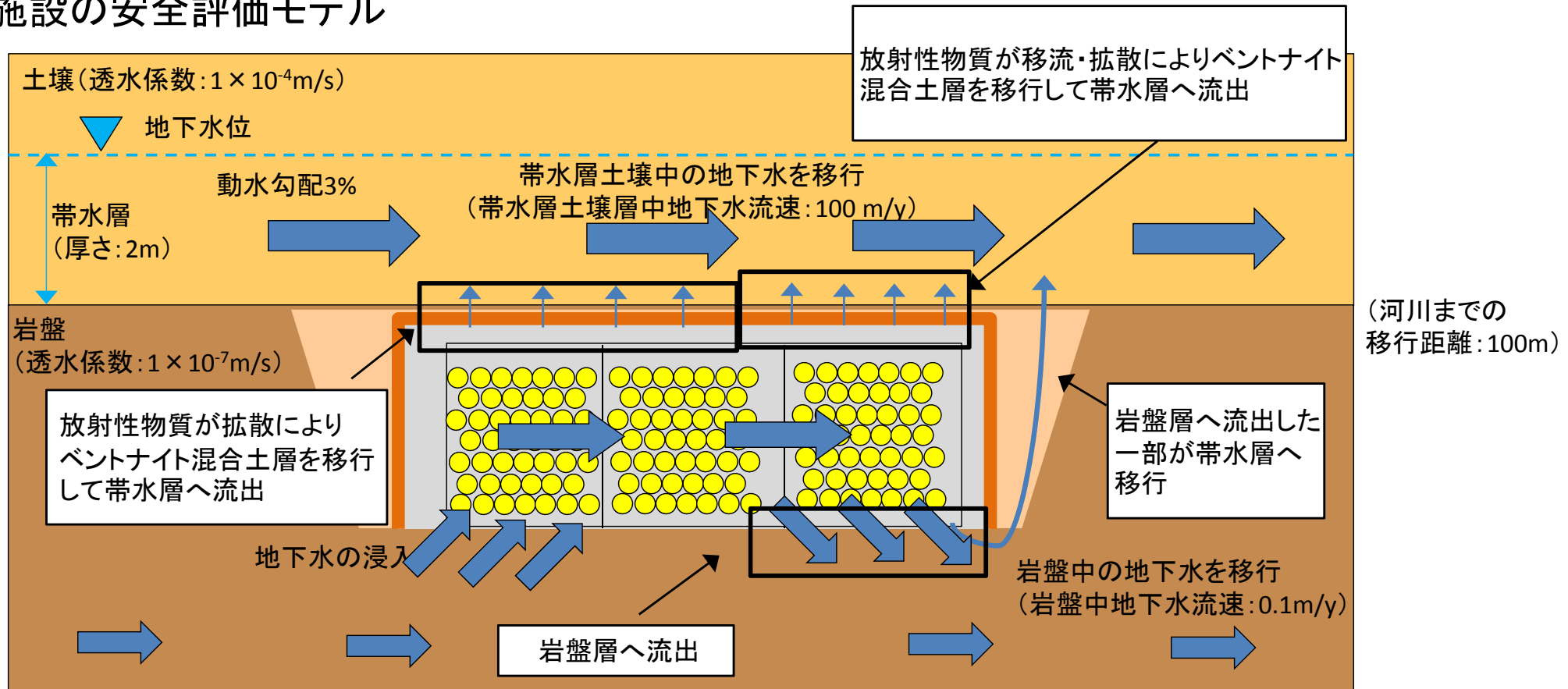


- 降雨浸透水がトレンチ施設に浸入し、放射性物質は、トレンチ施設内の土壌と浸透水の分配平衡により浸透水中を移行し、トレンチ施設下方の帯水層に流出するモデル
- 帯水層土壌中の放射性物質の移行計算は、既設の埋設施設の安全評価で用いられている一次元の移流による評価式を用いて評価

※ 図中の透水係数等のパラメータは、天澤ら「研究施設等廃棄物浅地中処分施設の概念設計」JAEA-Technology 2012-031(2012)で設定した我が国の一般的な環境条件より引用

# ⑤-2 コンクリートピット処分施設からの流出・移行モデル概念

## ピット施設の安全評価モデル

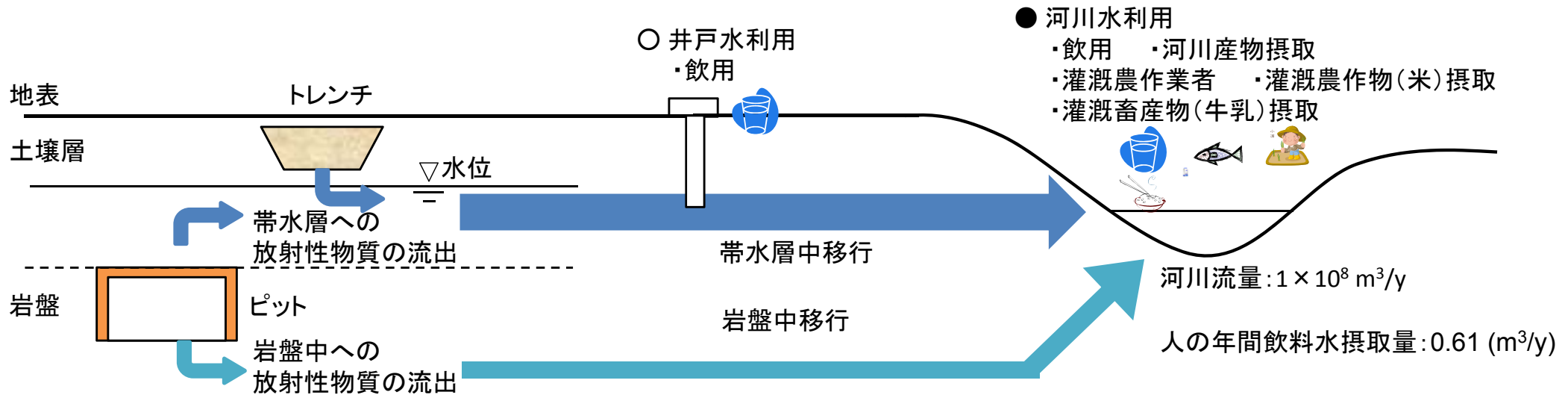


- ピット内に地下水が浸入し、放射性物質が地下水とセメント系材料の分配平衡により、浸入水へ移行
- 放射性物質はピット内から移流により岩盤へ流出、またはピット内から地下水流の下流側のベントナイト混合土層内を移流及び拡散により通過して帯水層へ流出
- 地下水流の上流側のベントナイト混合土層では、地下水流の移流量が非常に小さいと考えられ、放射性物質は拡散により帯水層へ流出
- ピット施設内から岩盤層へ流出した放射性物質の一部が、地下水流の移行に伴い帯水層へ移行することを考慮
- 帯水層土壌中・岩盤中の放射性物質の移行計算は、既設の埋設施設の安全評価で用いられている一次元の移流による評価式を用いて評価

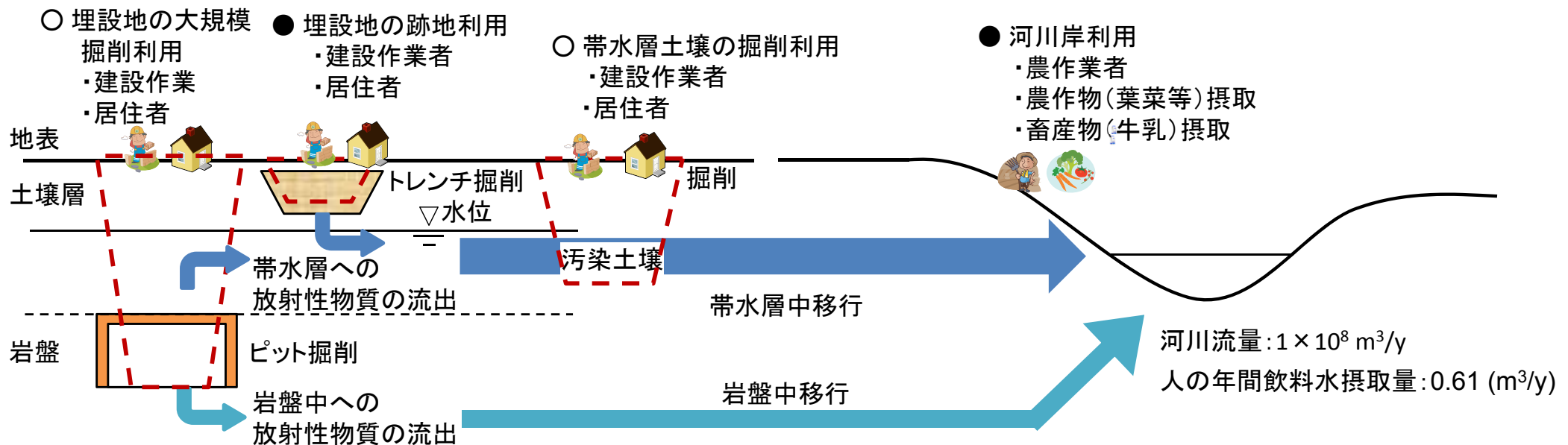
※ 図中の透水係数等のパラメータは、天澤ら「研究施設等廃棄物浅地中処分施設の概念設計」JAEA-Technology 2012-031(2012)で設定した我が国の一般的な環境条件より引用

# ⑥ 線量評価シナリオの概念図

## 地下水移行シナリオ ●基本シナリオ ○変動シナリオ



## 土地利用シナリオ ●基本シナリオ ○変動シナリオ



※ 図中の透水係数等のパラメータは、天澤ら「研究施設等廃棄物浅地中処分施設の概念設計」JAEA-Technology 2012-031(2012)で設定した我が国の一般的な環境条件より引用

# ⑦-1 H-3の線量評価結果(研究施設等廃棄物浅地中処分施設の事例)

## 計算条件

		トレンチ施設	ピット施設	備考
放射能濃度(Bq/g)		100	10,000	設定値。
放射能(Bq)		1.4E+13	7.2E+14	放射能の算出方法を参照。
廃棄体総量	本数(本)	3.8E+05	2.2E+05	JAEA-Technology 2012-031より引用。200Lドラム缶の本数。
	体積(m <sup>3</sup> )	7.6E+04	4.4E+04	JAEA-Technology 2012-031より引用。
	重量(ton)	1.5E+05	1.2E+05	JAEA-Technology 2012-031より引用。
分配係数	土壌(m <sup>3</sup> /kg)	0	0	JAEA-Technology 2012-031より引用。
	岩盤(m <sup>3</sup> /kg)	0	0	JAEA-Technology 2012-031より引用。

## 放射能の算出方法

	①放射能濃度(Bq/g)	②施設:密度(kg/m <sup>3</sup> )	③廃棄体:体積(m <sup>3</sup> )	④施設:空隙率(-)	⑤放射能(Bq)
トレンチ施設	100	2,600	7.6E+04	0.30	1.4E+13
ピット施設	10,000	2,500	4.4E+04	0.35	7.2E+14

$$\text{算出式: } ① \times ② \times ③ \times (1-④) = ⑤$$

## 基本シナリオ(めやす線量:10 μSv/y)

シナリオ	評価経路		被ばく形態	被ばく線量(μ Sv/y)	
				トレンチ	ピット
地下水シナリオ	河川水利用	飲用	経口摂取	8.2E-01	1.3E-01
		河川産物摂取	経口摂取	8.1E-04	1.3E-04
		灌漑農作者	外部・吸入	2.2E-07	3.5E-08
		灌漑農作物(米)摂取	経口摂取	6.7E-02	1.1E-02
		灌漑畜産物(牛乳)摂取	経口摂取	4.5E-01	7.0E-02
土地利用シナリオ	河川岸利用	農作者	外部・吸入	2.6E-07	4.1E-08
		農作物(葉菜等)摂取	経口摂取	8.8E-03	1.4E-03
		畜産物(牛乳)摂取	経口摂取	1.2E-02	1.9E-03
	埋設地の掘削利用	建設作業	外部・吸入	6.1E-06	
		居住者(農作物(葉菜等)摂取を含む)	外部・吸入・経口摂取	4.1E-02	

※ 河川水利用と河川岸利用の評価経路では、放射性物質が施設閉鎖後から地下水中に移行を開始することを想定し、施設閉鎖後からの最大線量、埋設地の利用の評価経路は、管理期間終了後(トレンチ50年、ピット300年)からの最大線量として評価。

## 変動シナリオ(めやす線量:300 μSv/y)

シナリオ	評価経路		被ばく形態	被ばく線量(μ Sv/y)	
				トレンチ	ピット
地下水シナリオ	井戸水飲用	飲用	経口摂取	1.4E-05	3.9E-07
土地利用 シナリオ	埋設地の 大規模掘削利用	建設作業	外部・吸入	2.2E-05	1.7E-09
		居住者(農作物(葉菜等)摂取を含む)	外部・吸入・経口摂取	1.5E-01	1.1E-05
	帯水層土壌の 掘削利用	建設作業	外部・吸入	—	—
		居住者(農作物(葉菜等)摂取を含む)	外部・吸入・経口摂取	1.4E-08	—

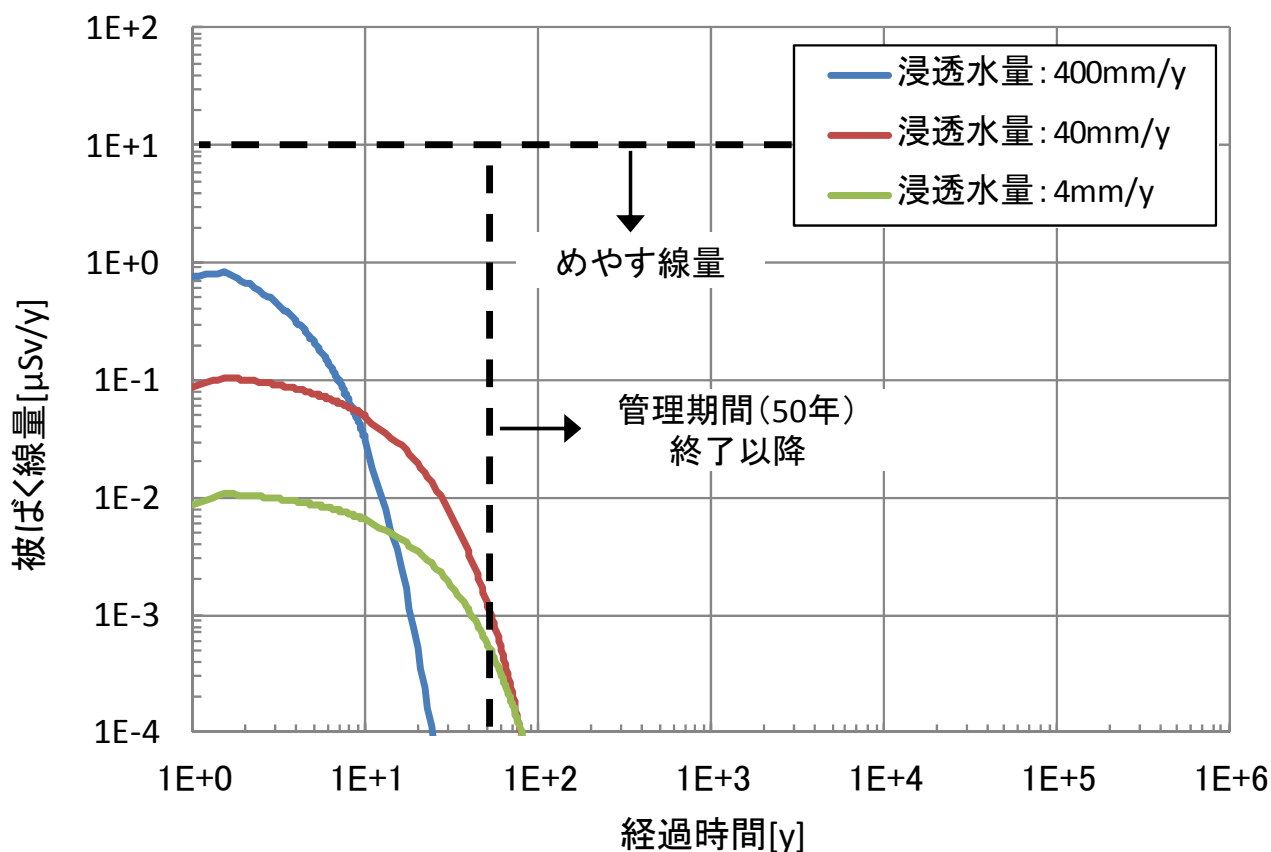
※ 上記の移行経路は、埋設地及び近傍の地下水を利用する経路であることから、管理期間終了後(トレンチ50年、ピット300年)からの最大線量として評価。  
「—」は $1 \times 10^{-10} \mu\text{Sv/y}$ 以下であることを示す。

※ 上記の計算条件の一部は、天澤ら「研究施設等廃棄物浅地中処分施設の概念設計」JAEA-Technology 2012-031(2012)に基づいて設定

## ⑦-2 H-3の検討(1):トレンチ処分施設

### トレンチ処分施設から河川に流出したH-3を人が飲用した場合の線量

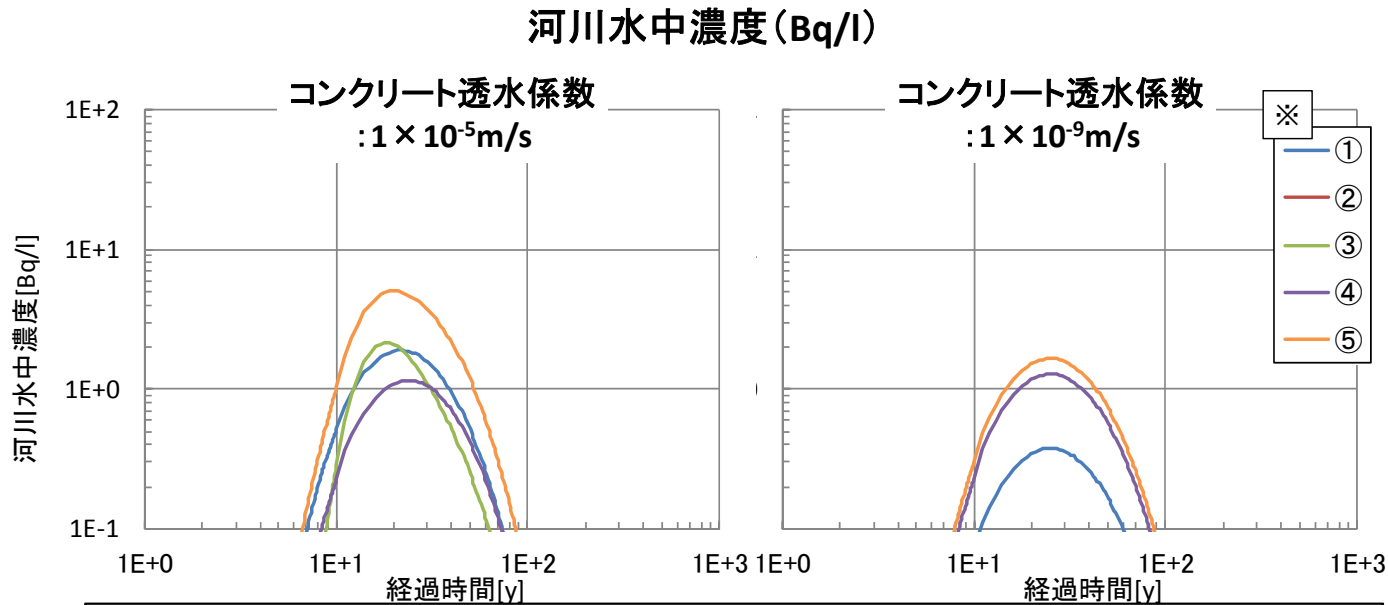
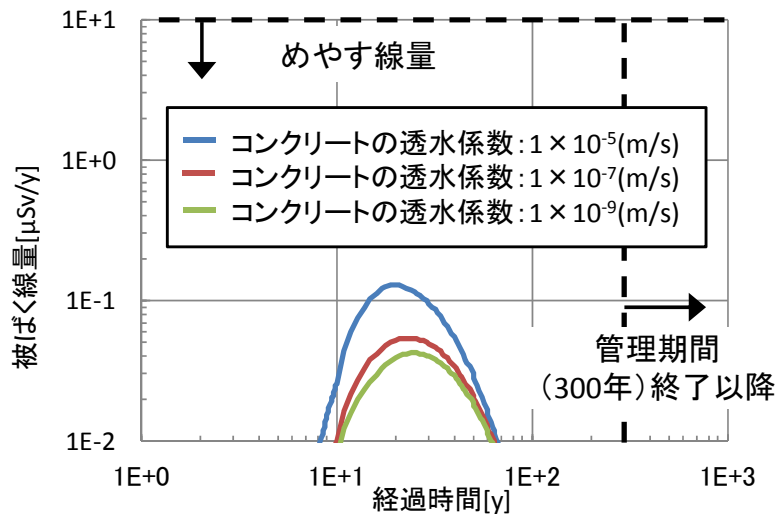
- 廃棄体層への浸透水量(降水量から蒸発散量差し引いた量)を一般的な値400mm/y に設定
- 上部に遮水シートや粘土層を設置した場合として、浸透水量を1/10、1/100に想定したケースも試算



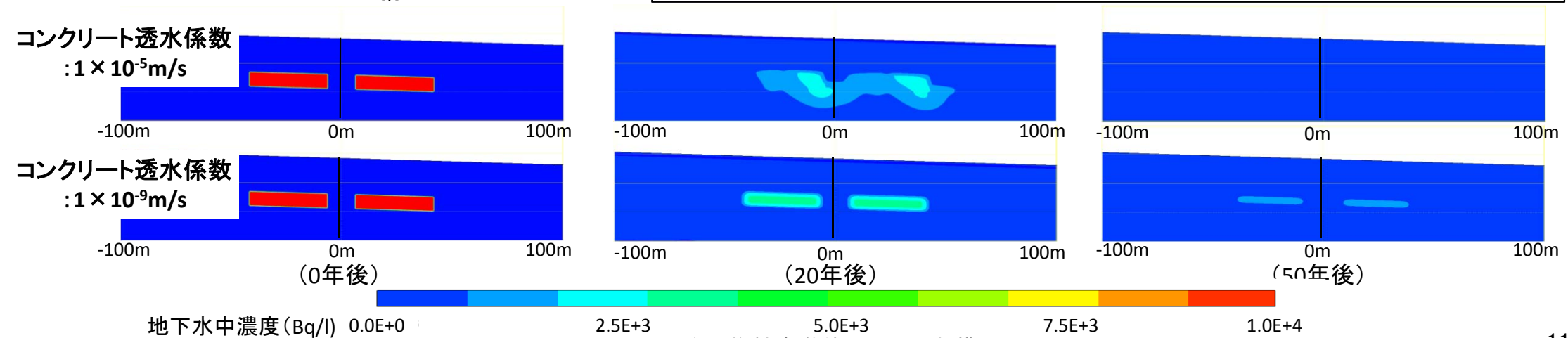
# ⑦-3 H-3の検討(2):ピット施設

ピット施設のコンクリートの劣化状態を考慮して、透水係数を  $1 \times 10^{-5}$ 、 $1 \times 10^{-7}$  及び  $1 \times 10^{-9} \text{ m/s}$  を設定した場合における地下水移行シナリオ(河川水飲用経路)の被ばく線量を試算

	最大線量 ( $\mu \text{ Sv/y}$ )
コンクリート透水係数: $1 \times 10^{-5} \text{ m/s}$	1.3E-01
コンクリート透水係数: $1 \times 10^{-7} \text{ m/s}$	5.4E-02
コンクリート透水係数: $1 \times 10^{-9} \text{ m/s}$	4.2E-02



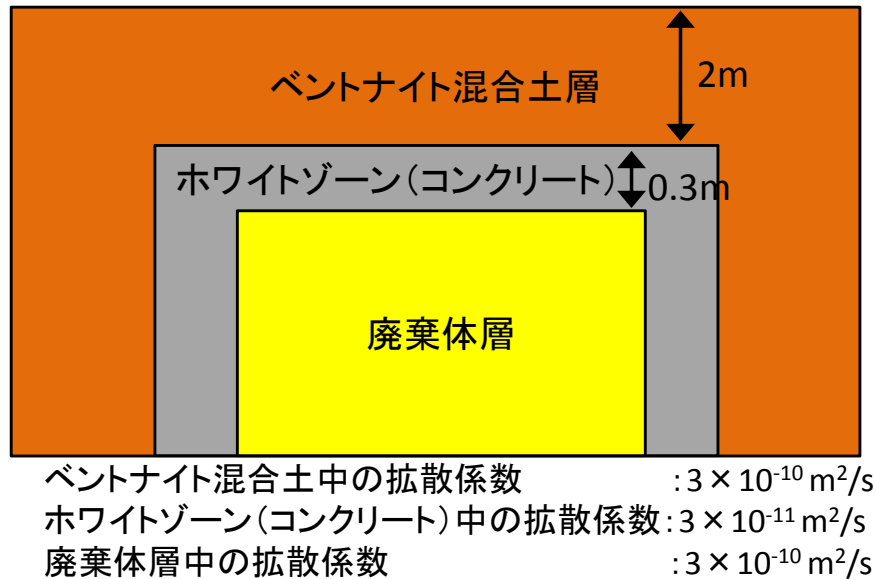
※ ①ベントナイト混合土層から土壌層へ移行(移流+拡散) ②岩盤層へ移行(移流)  
 ③岩盤層から土壌層へ移行(移流) ④ベントナイト混合土層から土壌層へ移行(拡散)  
 ⑤ ①から④の合計



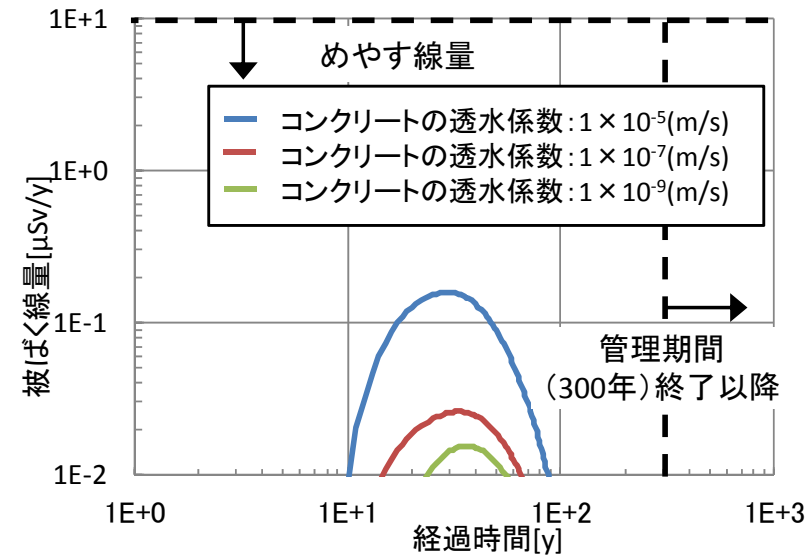


# ⑦-3 H-3の検討(3):ピット施設

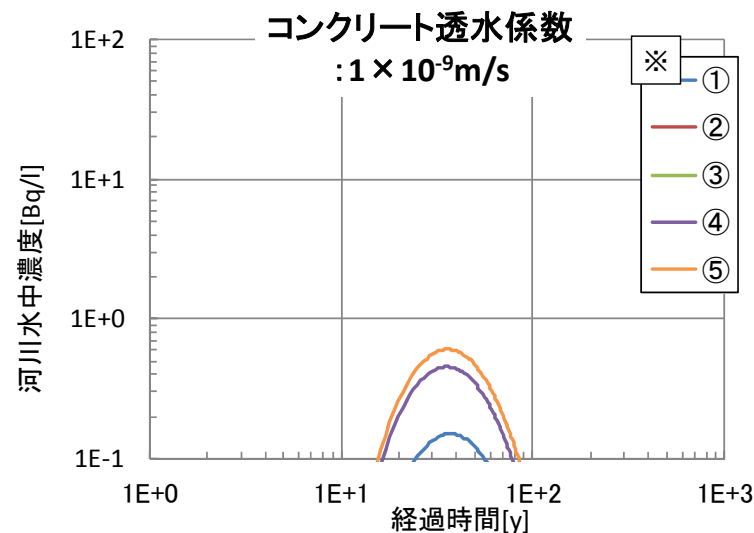
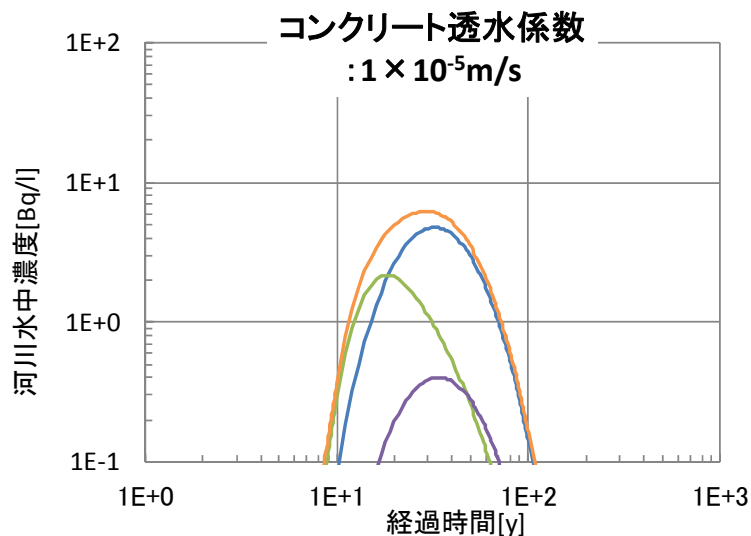
ピット施設内にホワイトゾーンを設置した場合の地下水移行シナリオ  
(河川水飲用経路)の被ばく線量を試算



ホワイトゾーン(コンクリート)の設置した場合の被ばく線量



河川水中濃度 (Bq/l)



- ※
- ① ベントナイト混合土層から土壌層へ移行 (移流+拡散)
  - ② 岩盤層へ移行 (移流)
  - ③ 岩盤層から土壌層へ移行 (移流)
  - ④ ベントナイト混合土層から土壌層へ移行 (拡散)
  - ⑤ ①から④の合計

## 社会的視点からの評価項目や留意点

### 福島県民目線で感じること

1月15日、第2回トリチウム水タスクフォース会合での報告資料

コープふくしま 野中俊吉

## I、社会的な視点からの評価項目や留意点

(1) 2013年12月20日閣議決定「原子力災害からの福島復興の加速に向けて」の通り一連の取り組みは福島復興の加速のためにあるべきと理解しています。

だからこそ、個別課題ごとの選択肢は福島県民の目線に十分配慮された切り口であることが大切であり、福島県民が復興の加速を実感できる内実が求められると思います。

### 被災者(県民)の現状(いくつかの事例・・・3年過ぎてこの状態)

- ①不慣れな避難生活や度重なる避難先の変更などにより、関連死者数は被災3県中最多で、津波被害による死者数をすでに上回っています。
- ②強制避難住民の家はネズミや他の野生動物に荒らされ、そのまま住める状態ではない。(震災当日、近所の人と外の小屋で焚き火をして一夜を過ごし、朝になるとすぐに防災無線で避難指示が出され、地震で倒れた家具等の片付けもできずに着の身着のまま避難して、避難先を何箇所もさまよい、間もなく3年が過ぎようとしている。その間、我が家はネズミ等に荒らされ、ネズミの食べたカスやネズミの糞で覆われている) \*ある仮設住宅・・・双葉町の仮設住宅だけでも県内何箇所にも点在している・・・の自治会長は『仮設住宅では息が詰まるので時々双葉町の我が家に帰る。しかし家の中を見ると落込むので、家には入らず外の物置周辺に腰をかけてタバコをすいながら数時間滞在して気分を紛らせてまた仮設住宅に帰っていく』と話していました。
- ③富岡町の夜ノ森公園近くの民家の庭先にイノブタが9頭もたむろしていました。視察に訪れたわれわれのバスが停車して覗き込んでも、恐れることも無く平然としていました。
- ④すぐにでも帰還を考えている田村市の都路地区を通ると、民家の敷地や道路横に除染したものが詰まったフレコンバッグが無造作に置かれていました。
- ⑤住民帰還を進めようとしている南相馬市小高区(旧小高町)は住民が瓦礫撤去に取り組んでいますが、夏の間は生い茂ったセイタカアワダチソウに隠れて見えなかった瓦礫(ひっくり返った車等)が、草が枯れた今(冬)は姿を現し、小高地区でさえも帰還の準備が遅々として進んでいないという印象を受けます。
- ⑥浪江町は昨年末ころインフラ復旧に着手したようですが、瓦礫撤去などはほぼ手付かずという印象を持ちます。打ち上げられた漁船はそのままですし、津波遭難者捜索の際に積上げられた瓦礫の山はそのまま放置されています。



## **(2) 福島第一原発に関する住民(県民)の気持ち**

- ① 住民(県民)にとって、トリチウムはセシウムと比べて知識(「なじみ」)が薄いと思います。
- ② 住民(県民)にとって、トリチウムは新たな(謎の)放射能(放射性物質)として映っています。
- ③ 住民(県民)にとって、事故後2年以上経過してトリチウムが取りざたされることは、“またしても隠されていた”“二年間いったい何をしてきたんだ”という不信感を大きくしていると思います。
- ④ 住民(県民)にとって、トリチウム汚染水問題が今になって持ち出されることは、一号機から三号機への不安(不信感)を増大させていると思います。
- ⑤ 漁協組合長の声(漁業関係者としては、苦肉の策で、復興のため地下水バイパスにも協力しようとしている)
- ⑥ 住民(県民)は、第一原発からはすべての核種の放射性物質が海に流れていると思っていますが、口に出せない人も大勢いると感じています。辛くて話題にしたくない人も大勢いると思います。
- ⑦ トリチウム汚染水を海に放出するということは、東京電力も国も放射能をコントロールする能力が無いという評価になってしまうと思います。
- ⑧ 住民(県民)は、『もうこれ以上福島県民に原発事故の犠牲を押し付けしないで欲しい』と考えています。

## **(3) トリチウムを海岸から放出したらどんなことが起るか(考えられるか)**

- ① 住民(県民)の政府に対する信頼は地に落ちると思います。
- ② 避難指示解除されても住民の帰還意欲は萎えると思います。
- ③ 漁民の怒りは爆発すると思います。
- ④ この間努力してきてようやく回復基調にある農産物の風評被害は拡大すると思います。
- ⑤ 国際的な風評も拡大すると思います。

## **Ⅱ、トリチウム汚染水処理の選択肢と評価項目に関して**

- ① トリチウムの影響が小さいとの話を聴きましたが、そうであれば今後設置されるであろう仮置き場に保管させてもらって、保管施設のメンテナンスを続けたほうが良いと思います。万が一漏れても影響が小さいならそれを修理していけばよい気がしますので、そういう選択肢も評価して欲しいと思います。
- ② タンクが満杯になる(80万トン)との説明がありましたが、何が要因か?、土地の問題か?。もっと増やせばタンク貯蔵できると思います。設置場所は東電敷地内に限定しなくても良いと思います。

## 東京電力福島第一原子力発電所敷地境界における実効線量の制限の 達成に向けた規制要求について

平成26年2月26日

原子力規制委員会

### 1. 経緯

- (1) 原子力規制委員会は、原子炉等規制法に基づき東京電力福島第一原子力発電所を特定原子力施設に指定し、「特定原子力施設への指定に際し東京電力株式会社福島第一原子力発電所に対して求める措置を講ずべき事項について」（平成24年11月7日原子力規制委員会決定。以下「措置を講ずべき事項」という。）を示し、実施計画の提出を求めた。措置を講ずべき事項では、「施設内に保管されている発災以降発生した瓦礫や汚染水等による敷地境界における実効線量（施設全体からの放射性物質の追加的放出を含む実効線量の評価値）について、平成25年3月までに1mSv/年未満とすること」としている。
- (2) 措置を講ずべき事項で求めている実効線量の制限である1mSv/年未満は、平成25年3月時点の評価では達成されていた。しかしながら、同年4月に発生した地下貯水槽からの漏えいに対応するため、地下貯水槽に貯蔵されていた汚染水が敷地境界近くのタンクに移送されたことに伴い、これを超過し、同年12月の実施計画の変更認可申請によれば、当該タンク付近の敷地境界における実効線量の評価値は約8mSv/年となっている（参考1～4）。
- (3) 原子力規制委員会は、施設全体からの放射性物質等の追加的放出による実効線量の評価値が措置を講ずべき事項で求めている制限を大幅に超過している状況と汚染水対策の緊急性とを総合的に検討し、当該実効線量の評価値を線量低減対策等により、早急に1mSv/年未満に復帰させる必要があるとの留意事項を示した上で、平成25年8月14日に、東京電力から提出された実施計画を認可した。

### 2. 現状に係る課題

施設全体からの放射性物質等の追加的放出による実効線量の評価値が、措置を講ずべき事項で求めている制限から大幅に超過している原因は、汚染水の地下貯水槽からタンクへの移送、汚染水貯蔵量の増大、瓦礫の撤去に伴う固体廃棄物貯蔵量の増加である。また、今後の汚染水貯蔵量の増大や固体廃棄物の貯蔵状況により、当該実効線量の評価値は更に増大するおそれがある。

このため、以下の課題について対応する必要がある。

- (1) 措置を講ずべき事項で求めている実効線量の制限について、いつまでに達成できるかが明確になっていないこと。

- (2) 措置を講ずべき事項で求めている実効線量の制限を満足していないため、達成時期までの間において、状況が改善されていくことを確認できるアプローチが存在しないこと。

### 3. 今後の対応

東京電力に対し、以下を内容とする実施計画の変更を指示する。

#### (1) 措置を講ずべき事項で求めている実効線量の制限を達成する時期の明確化

措置を講ずべき事項で求めている実効線量の制限である敷地境界で1 mSv/年未満を達成する時期は、遅くとも平成28年3月末とする。

#### (2) 上記(1)の達成時期までの実効線量の制限

上記(1)の達成時期まで、毎年状況が改善されていくことを確認できるアプローチとして以下の措置を講じる。

- ① 上記(1)の達成時期(遅くとも平成28年3月末)まで、敷地境界における実効線量(評価値)の低減目標は、平成27年3月末には2 mSv/年未満、平成28年3月末には1 mSv/年未満とする。
- ② タンクに貯蔵された汚染水以外に起因する敷地境界における実効線量(評価値)の低減目標は、遅くとも平成27年3月末までに1 mSv/年未満とする。ただし、以下の3つを起源とする敷地境界における実効線量(評価値)の低減目標は、実施計画の認可日から継続して1 mSv/年未満とする。
  - a) 実施計画(変更認可申請中のものも含む)に記載されているものであって、敷地の外に排出する水
  - b) 原子炉建屋から放出される気体廃棄物
  - c) タンクに貯蔵された汚染水以外に起因する直接線・スカイシャイン線

#### (3) 制限の対象とする排水の範囲の明確化

排水路の水を含め濃度及び量を把握でき、排出を制御できる水全般について、上記実効線量の規制対象である液体廃棄物と同様に扱う。また、それによる敷地境界における実効線量の評価に当たっての考慮事項は別紙のとおりとする。

#### (4) 敷地内における空間線量低減に係る計画の明確化

作業員の被ばく線量を可能な限り低減するため、発電所内の除染について、少なくとも「緊急安全対策」(平成25年11月8日)に示された発電所内の除染などに関する計画を明確化する。

## 液体廃棄物等の実効線量の評価に当たっての考慮事項

### 1. 特定原子力施設の敷地境界における実効線量の評価方法

敷地境界の実効線量を評価するにあたっては、従来から、ガレキ等の表面線量率やモニタリング等の実測値に基づく、施設の実態に即した評価を可としている。

### 2. 排出される水の実効線量の評価方法

(1) 排出する排水口ごとに濃度の評価を行うことが原則ではあるが、複数の地点から排出される水のうち、混合する効果が見込める場合に限り、それぞれの水の濃度を放出量に応じて加重平均したものをもって評価することができることとする。

(2) 上記により得られた濃度のうち最大のものを、排出される水全体の濃度とする。

### 3. 液体廃棄物の実効線量の評価方法

液体廃棄物関連の評価方法については、以下で示す方法も可とする。

#### (1) 計測対象とする核種の選定

評価にあたっては、原則、管理対象となる水（液体廃棄物等）に含まれるすべての核種を対象とする。ただし、各核種の生成過程や半減期を考慮し、計測対象を被ばく評価上有意なものに限定することができるものとする。

#### (2) 3ヶ月平均の濃度算出方法

管理対象とする核種の濃度の計測は、定期的なサンプリングによって行うことができるものとする。

3ヶ月平均濃度の算出にあたっては、定期的なサンプリングによる測定結果から算出される管理対象核種の総量と排出する水の総量から求められる3ヶ月の平均値を用いることができるものとする。

なお、台風・豪雨等の際のモニタリングについては、労働災害防止の観点からサンプリングに伴う危険性を回避して推計を行うことができるものとする。

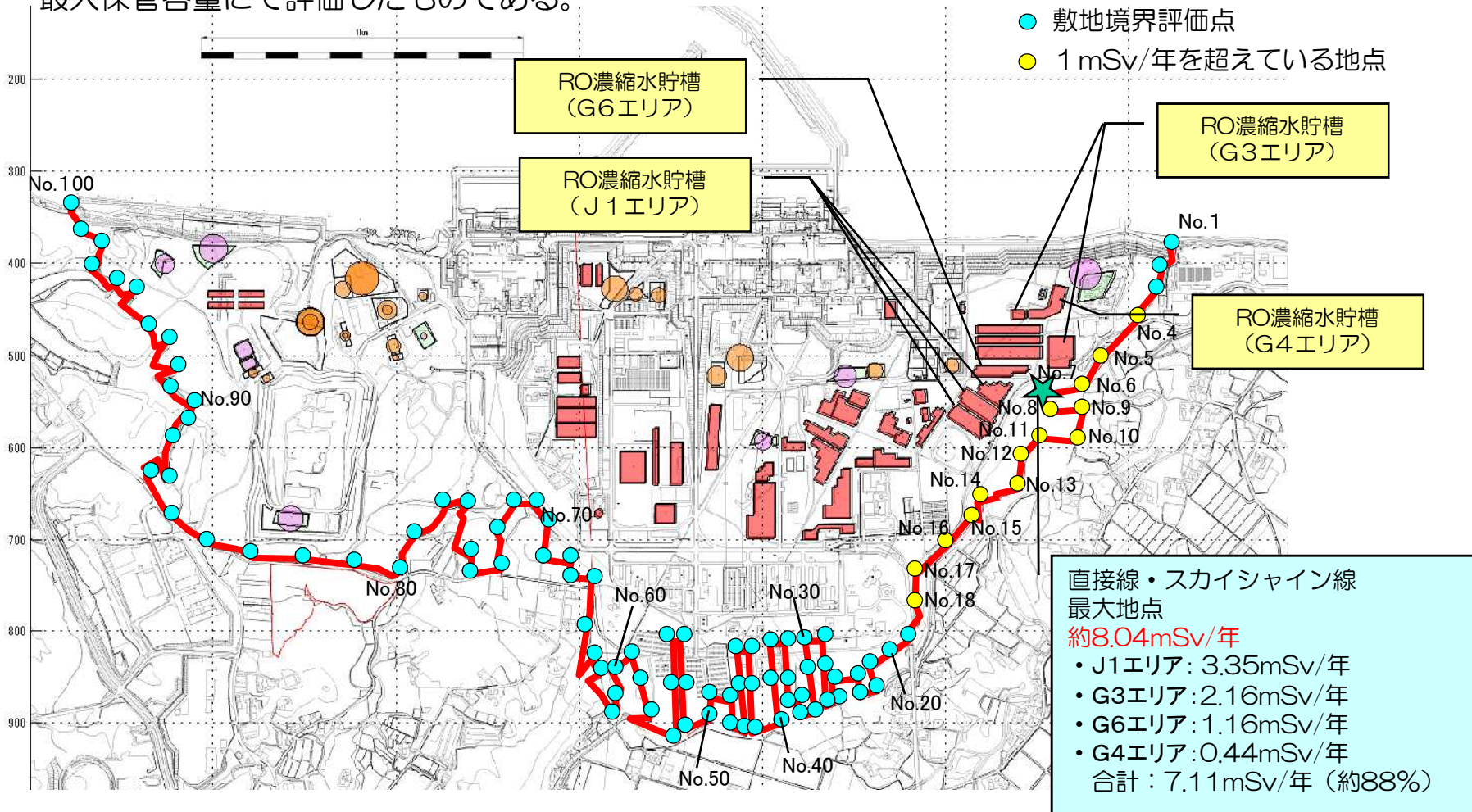
#### (3) 排水口でのサンプリング

排水口での放射能濃度に代えて、その上流に設ける集水ますなどのサンプリング地点の放射能濃度を用いることができるものとする。ただし、その妥当性については、実測によって定期的に確認するものとする。

# 1. 現状（直接線・スカイシャイン線の最大評価地点）

敷地境界における直接線・スカイシャイン線は、敷地南側にて最大約8.04mSv/年と評価。

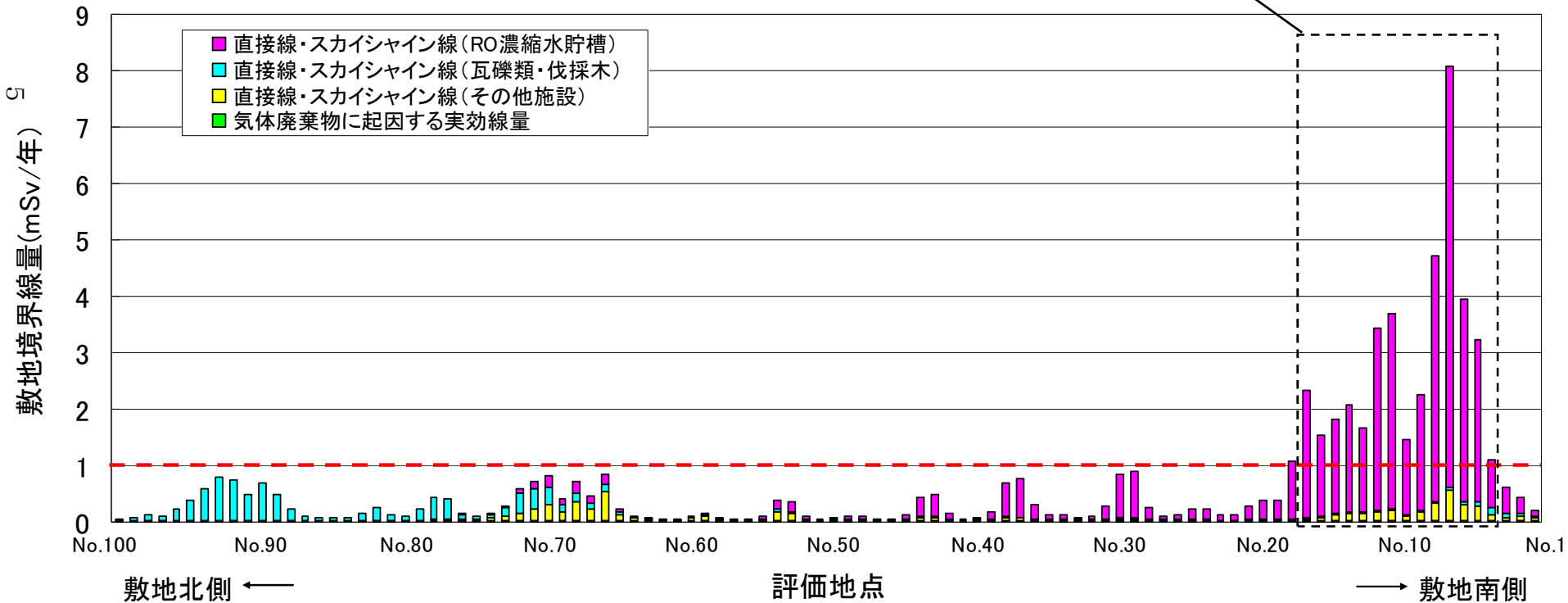
なお、現在の評価値は実際に保有している逆浸透膜濃縮水（RO濃縮水）や瓦礫等によるものではなく、最大保管容量にて評価したものである。



# 1. 現状（評価点における敷地境界線量）

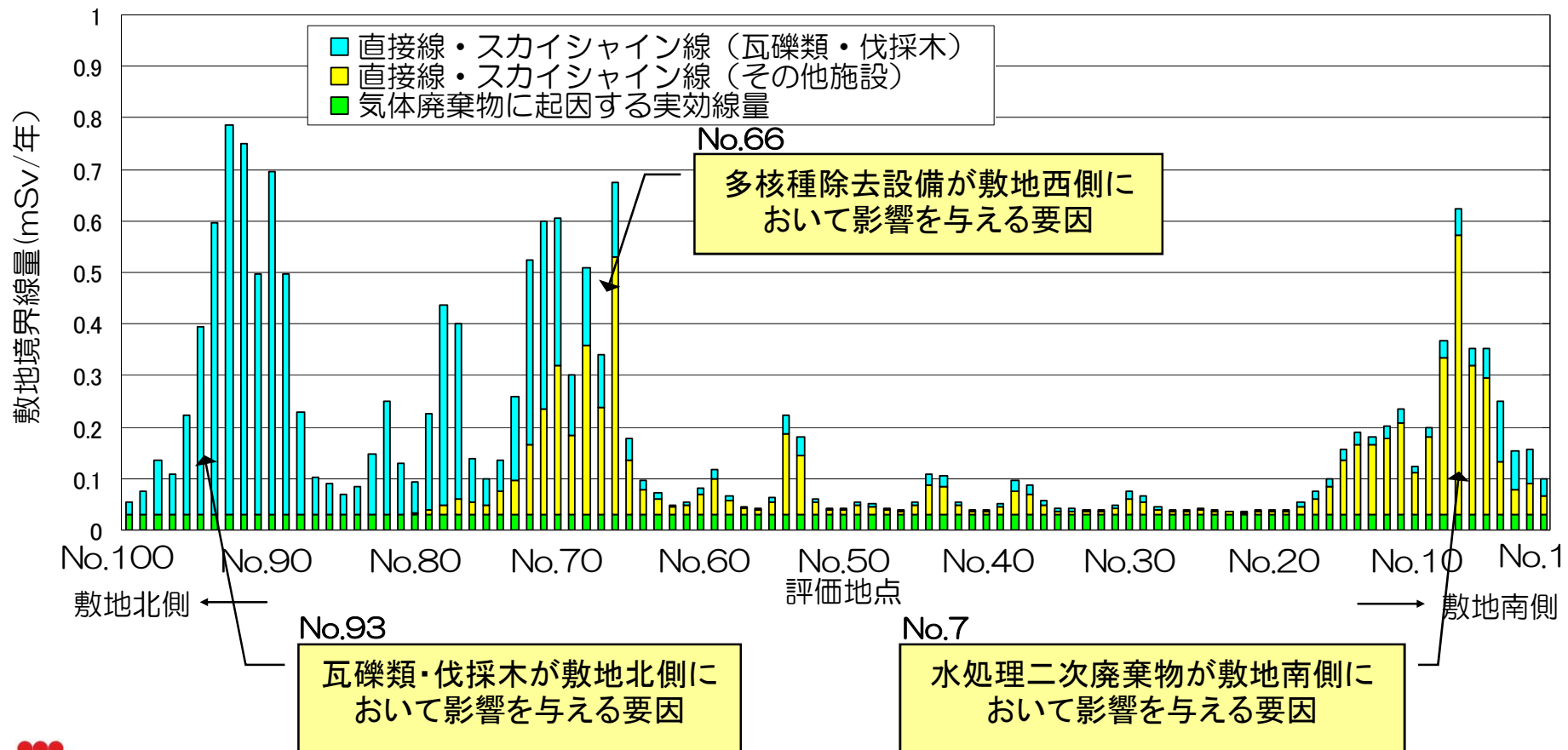
敷地境界の評価点（100地点）における敷地境界線量を以下に示す。  
敷地南側は主にRO濃縮水貯槽の影響があり、敷地北側は主に瓦礫類・伐採木の影響がある。

1mSv/年を超える評価点（No.4～No.18）について次ページに示す。



# 1. 現状（RO濃縮水貯槽以外の実効線量）

- RO濃縮水貯槽の影響を除いた場合には、敷地境界における実効線量は1 mSv/年末満となる。ただし、排水等の評価は含まれていない。





# 排水路の現況について

(参考4)

採取日	14/2/7
Cs-134 (Bq/L)	8.3
Cs-137 (Bq/L)	20
全β (Bq/L)	40
H-3 (Bq/L)	—※
告示濃度比	0.58

【清掃後、降雨なし】

採取日	14/2/7
Cs-134 (Bq/L)	5.8
Cs-137 (Bq/L)	19
全β (Bq/L)	34
H-3 (Bq/L)	—※
告示濃度比	0.48

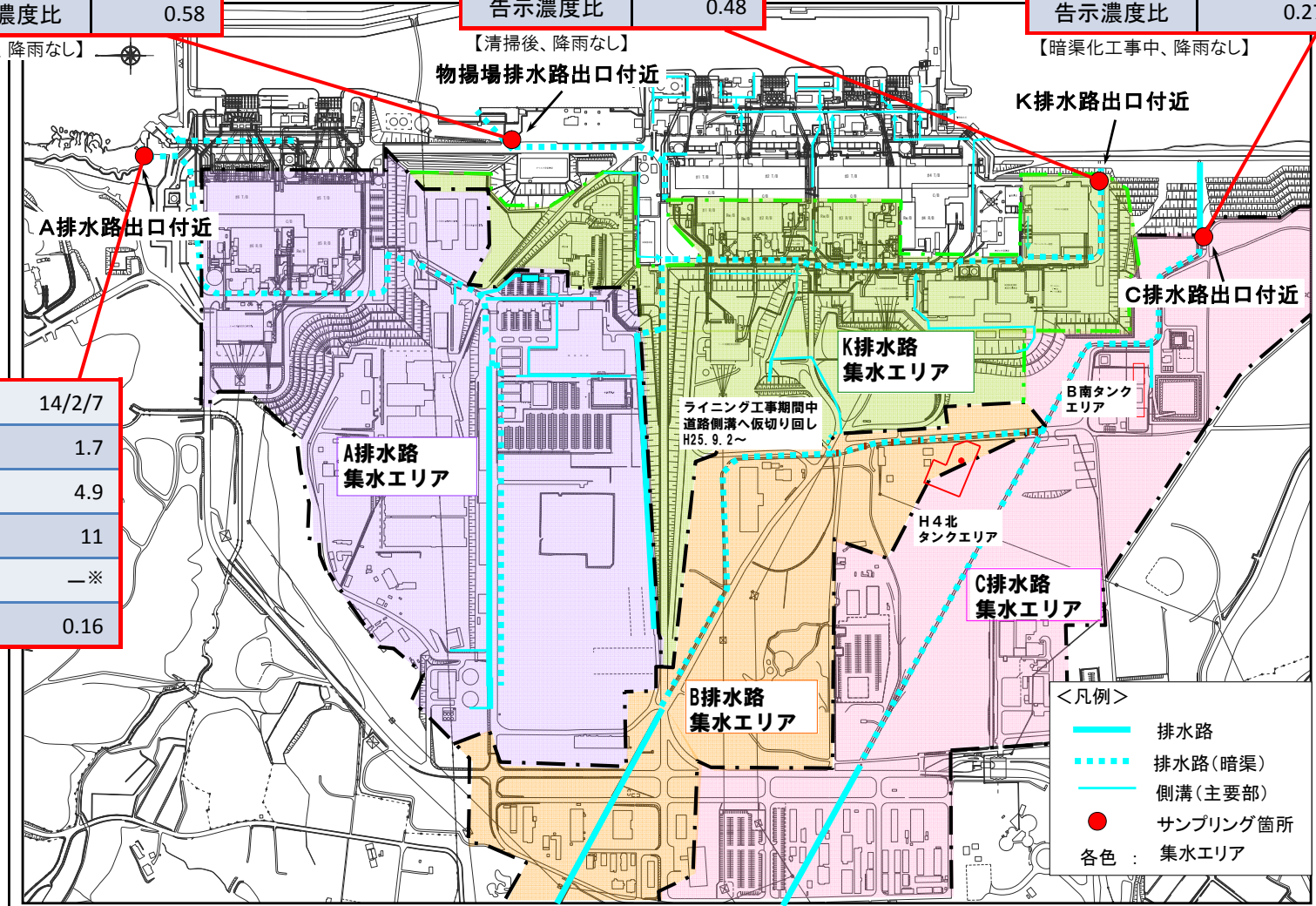
【清掃後、降雨なし】

採取日	14/1/29
Cs-134 (Bq/L)	0.78
Cs-137 (Bq/L)	2.5
全β (Bq/L)	16
H-3 (Bq/L)	19
告示濃度比	0.27

【暗渠化工事中、降雨なし】

採取日	14/2/7
Cs-134 (Bq/L)	1.7
Cs-137 (Bq/L)	4.9
全β (Bq/L)	11
H-3 (Bq/L)	—※
告示濃度比	0.16

【清掃後、降雨なし】



<凡例>

- 排水路
- 排水路(暗渠)
- 側溝(主要部)
- サンプリング箇所
- 各色 : 集水エリア

※ H-3は過去の分析の結果、告示濃度に比べ十分低いため、測定していない。

(東京電力の資料を基に作成)





INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

*Faire avancer la sûreté nucléaire*

# Environmental behaviour of tritium released by nuclear facilities in marine and terrestrial ecosystems: *State-of-the-art and examples*



Denis Maro

(IRSN, Laboratoire de Radioécologie de  
Cherbourg-Octeville  
Mail: [denis.maro@irsn.fr](mailto:denis.maro@irsn.fr))

Task force tritium

METI, Tokyo  
March 13, 2014

- ***Context***
- ***Objectives***
- ***Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems***
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystems
- ***Conclusions***

- **Context**
- *Objectives*
- *Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems*
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystems
- *Conclusions*

### ***Why is it important to study the transfer of tritium in the environment?***

- Except for rare gases, the amounts (Bq) of tritium from controlled release are higher than for other radionuclides (10-100 times)***

### ***Increase of tritium releases in France***

- Tritium is released by Nuclear Power Plants (NPP), Nuclear Reprocessing Plants (NRP, e.g. AREVA NC La Hague), research centers and defense facilities;
- In the future, the releases will increase with the commissioning of new built nuclear facilities like the Laser Megajoule (LMJ), the European Pressurized Reactor (EPR) and the International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER).

### ***Uncertainties on transfers in marine and terrestrial ecosystems***

- existing uncertainties on transfer knowledge in marine and terrestrial ecosystems, e.g. transfer kinetics of tritiated water (HTO), tritiated hydrogen (HT) and Organically Bound Tritium (OBT) in the different compartments of ecosystems.

### ***Anticipate concerns from the public***

**Main document in France, white paper on tritium (2010), coordinated by ASN (French Nuclear Safety Authority): see lecture on tritium “the French situation” by J. L. Lachaume (ASN, Deputy Director General) at METI.**

The screenshot shows the ASN Tritium website. The header features the ASN logo (Autorité de Sûreté Nucléaire) and the word "Tritium" in large white letters on a blue background. To the right is a map of France labeled "Carte des rejets tritium". Below the header is a navigation menu with links: "Position et plan d'action de l'ASN", "Les groupes de réflexions", "Synthèses et recommandations", "État des connaissances", "Téléchargements et liens", and "Carte des rejets tritium". The main content area is titled "English version" and "Context". It contains a list of links: 1. [ASN's position and action plan](#), 2. [What is Tritium ?](#), 3. [Tritium working groups: objectives and approach](#), and 4. [Summary of work and recommendations](#). Below the links, there is a paragraph of text about tritium releases in the environment around civilian nuclear facilities, followed by a paragraph about the UK RIFE 11 report and the HPA's Advisory Group on Ionising Radiation (AGIR). The text continues with a paragraph about the ASN's decision to establish two working groups in early 2008, and a final paragraph about the ASN's action plan based on the recommendations made by the two working groups.

*Written by a group of experts with various backgrounds (governmental experts, operators, experts from non-governmental laboratories): The white paper encompasses the state of the art and recommendations from IRSN dedicated to the environmental impact of tritium*

<http://www.asn.fr/sites/tritium/plus/english-version.html>

- *Context*
- ***Objectives***
- *Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems*
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystems
- *Conclusions*

- ***Increase knowledge on the quantification (e.g. fluxes) of tritium transfers in marine and terrestrial ecosystems with a focus on speciation and kinetic of OBT build up:***
  - Estimation of tritium turnover in aquatic biota: e.g. marine seaweed, marine invertebrates such as shellfish, fish ;
  - Quantification of tritium in grassland ecosystem: kinetic of OBT biosynthesis throughout the human food chain; dry and wet deposition;
- ***Improve tritium transfer models between the source of release and the different components of the ecosystems (seawater: MARS, atmosphere: TOCATTA);***
  - ***... to have a more realistic human dose assessment.***

- *Context*
- *Objectives*
- ***Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems***
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystems
- *Conclusions*



### ***Tritium is present into biota mainly in two forms:***

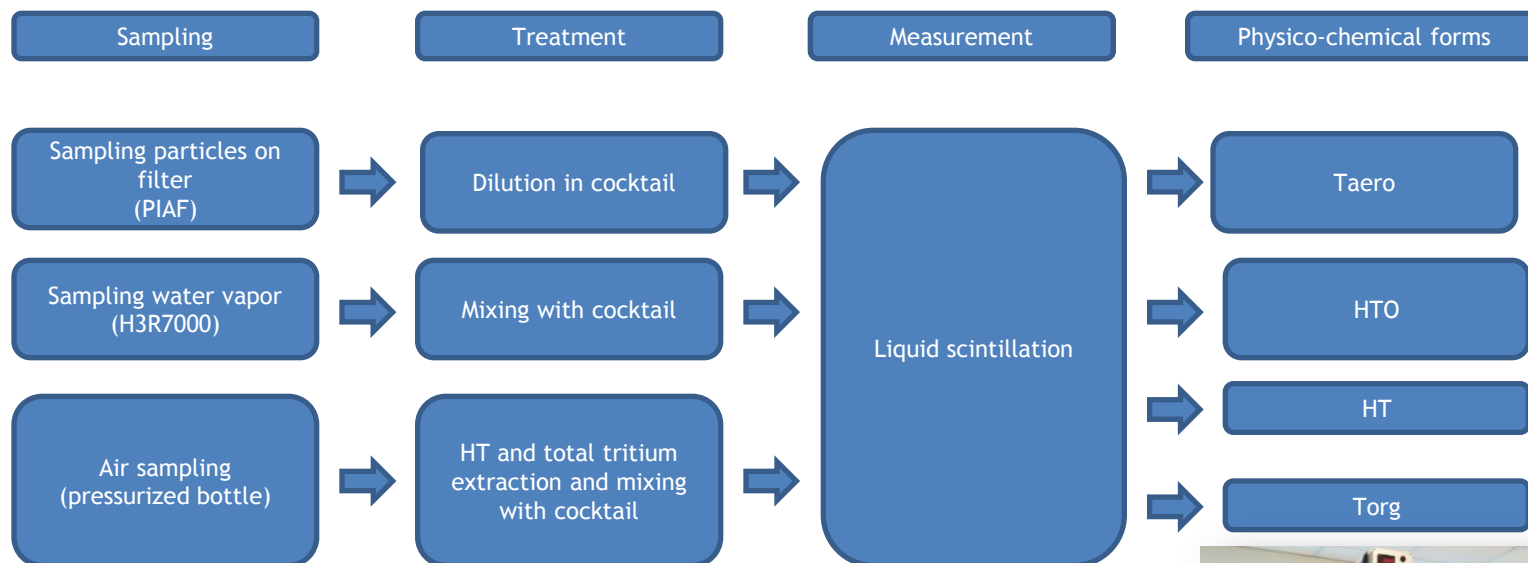
- TFWT (Tissue Free Water Tritium): tritium is incorporated with water exchanges;
  - ❑ Quick exchange with the environment (~hour);
- OBT (Organically Bound Tritium): tritium is incorporated with biochemical processes;
  - ❑ Relatively slow exchange with the environment (~month).

### ***Tritium speciation of atmospheric or aquatic releases and bioavailability:***

- HTO (tritiated water): bioavailable for species with high exchange velocity (few hours) with TFWT;
- Organic molecules: bioavailability depends on the molecule;
- HT (tritiated hydrogen in the atmospheric releases): not bioavailable for species but can be oxidized by biogeochemical reactions and become bioavailable.

# Importance of knowledge of the speciation

**Example of speciation in AREVA NC La Hague NRP atmospheric plume in the environment: how can we study the speciation?**



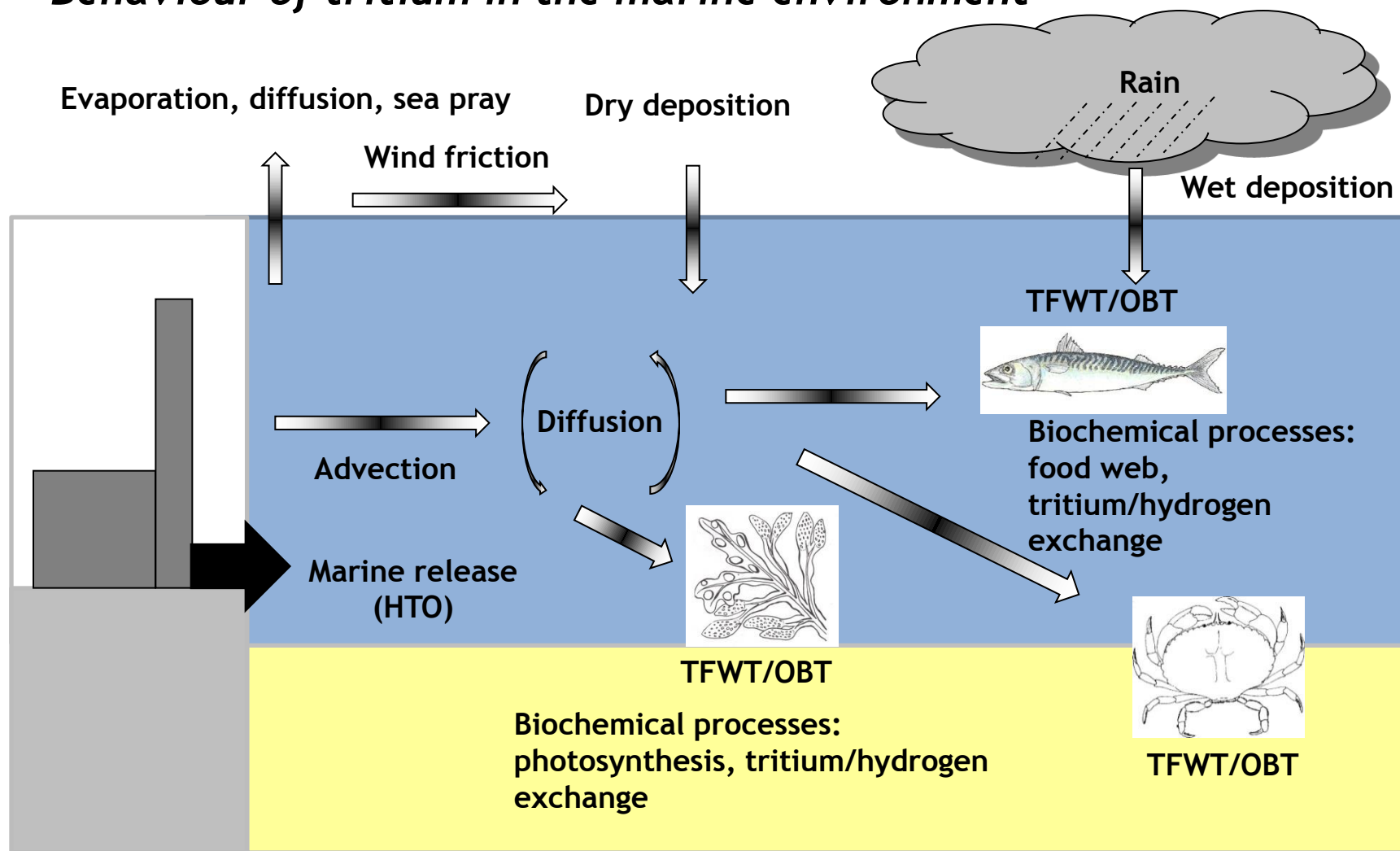
### ■ *Example of speciation in AREVA NC La Hague NRP atmospheric plume (in 2013 ~ $6.0 \cdot 10^{13}$ Bq year<sup>-1</sup>)*

Number	Sampling date	Aerosol (Bq m <sup>-3</sup> )	HTO (Bq m <sup>-3</sup> )	HT (Bq m <sup>-3</sup> )	Torg (Bq m <sup>-3</sup> )
1	2013/02/22 10:20	<0.02	0.46 ± 0,01	1.2 ± 0,3	<0.4
2	2013/02/22 11:50	<0.02	0.37 ± 0,01	2.8 ± 0,5	<0.5
3	2013/06/13 10:15	<0.02	0.46 ± 0,02	2.0 ± 0,4	<0.4
4	2013/06/13 12:30	<0.02	0.48 ± 0,02	2.5 ± 0,5	<0.6
5	2013/06/27 14:27	<0.02	0.72 ± 0,02	4.1 ± 0,6	<0.9
6	2013/12/10 11:50	<0.02	0.40 ± 0,01	2.1 ± 0,4	<0.6
Mean		<0.02	0.50 (17%)	2.5 (83%)	<0.6

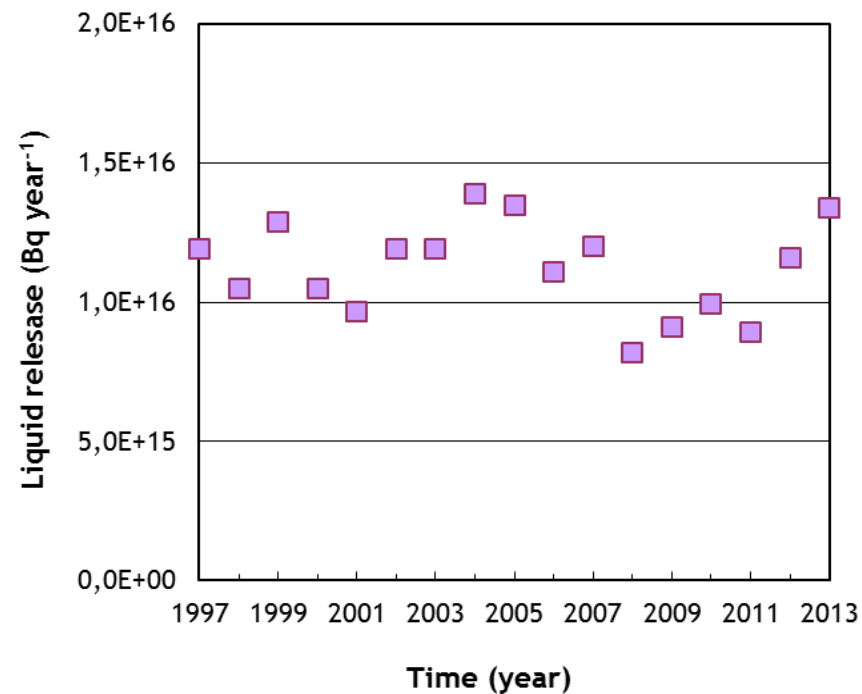
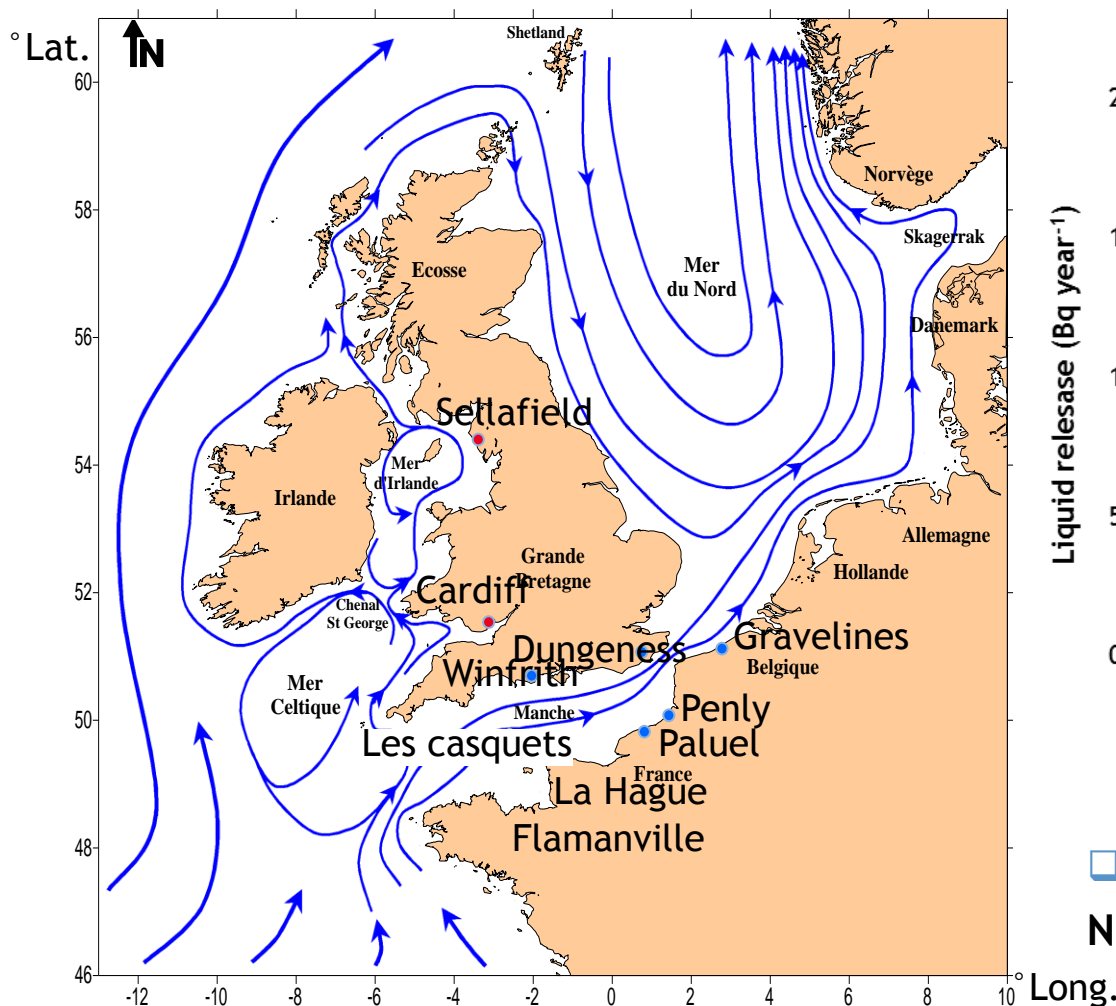
■ 83 % of T released by the NRP is in the form of HT

- *Context*
- *Objectives*
- ***Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems***
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystem
- *Conclusions*

## Behaviour of tritium in the marine environment



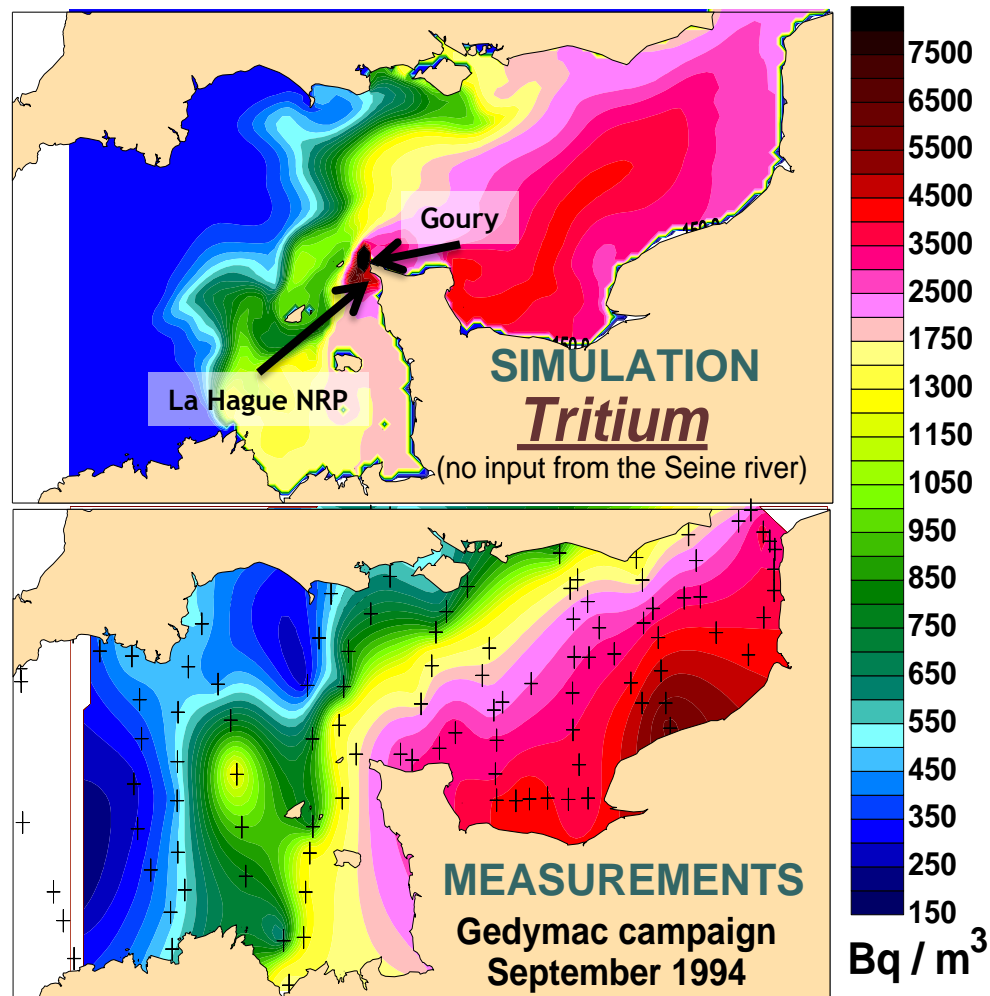
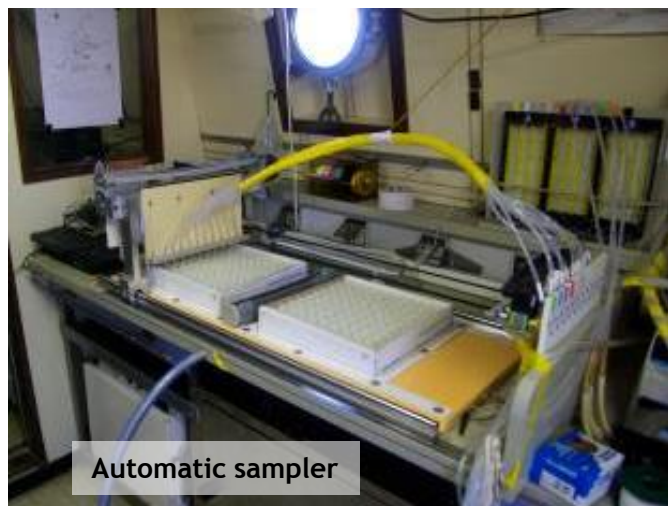
## Liquid releases in the English Channel by AREVA NC: HTO



□ One PWR NPP: 1/100 of La Hague NRP release

□ Annual releases are quite stable ~  $1.2 \cdot 10^{16}$  Bq year<sup>-1</sup>

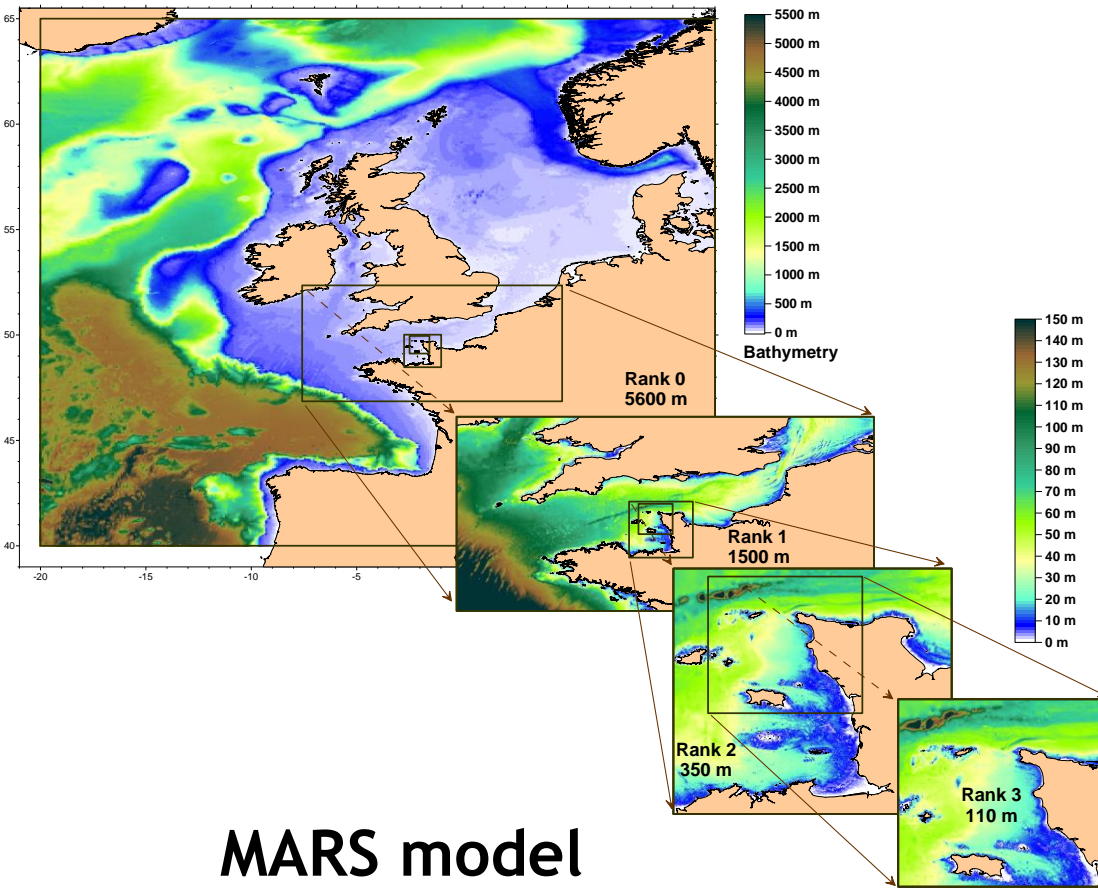
## Model validation of hydrodynamic dispersion (numerous in-situ measurements vs. modeling)



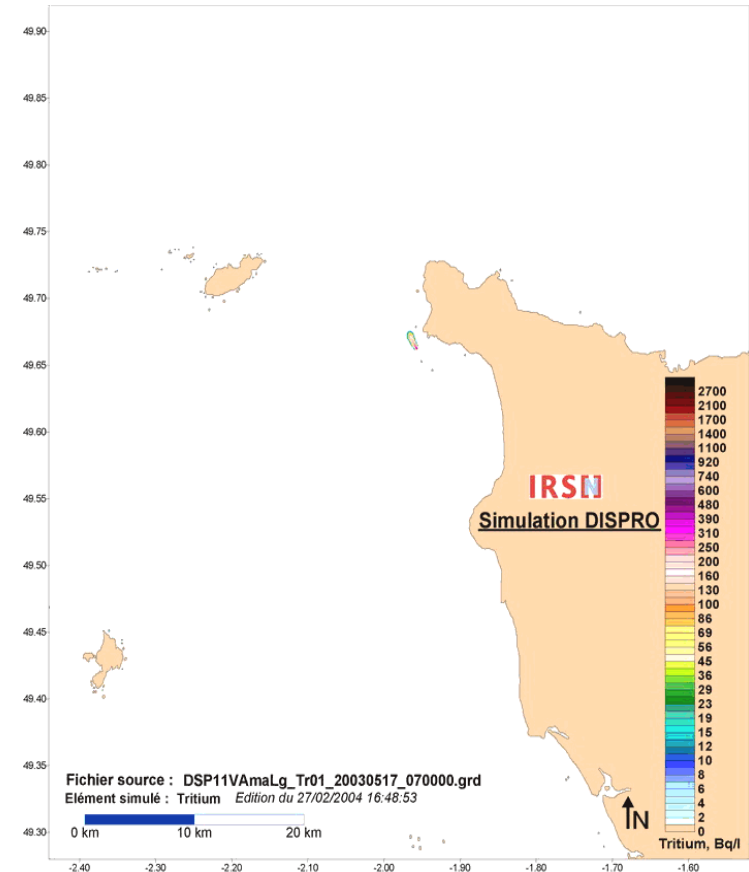
- Average dilution coefficient close to the outfall of La Hague (Goury) - NRP is well known  
~ 0,76 Bq m<sup>-3</sup> per TBq year<sup>-1</sup>



## Concentration in water: hydrodynamic modeling



**MARS model**  
frames and mesh sizes



Real discharges and meteorology,  
one frame every 15 min

- After model validation, the uncertainties for individual measurements are around 50% (the model is highly reliable)

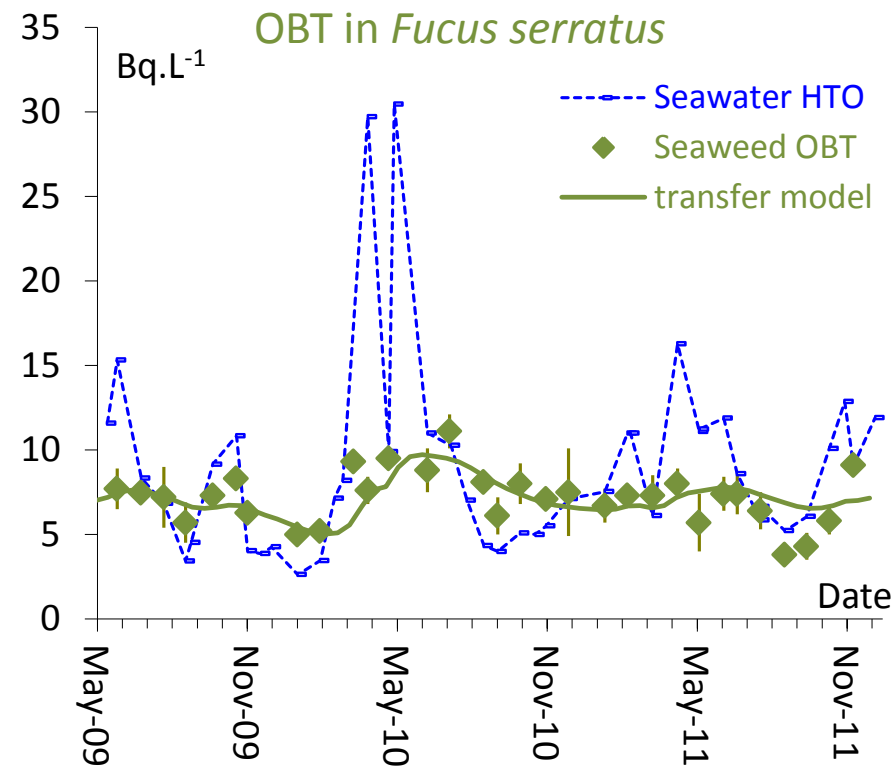
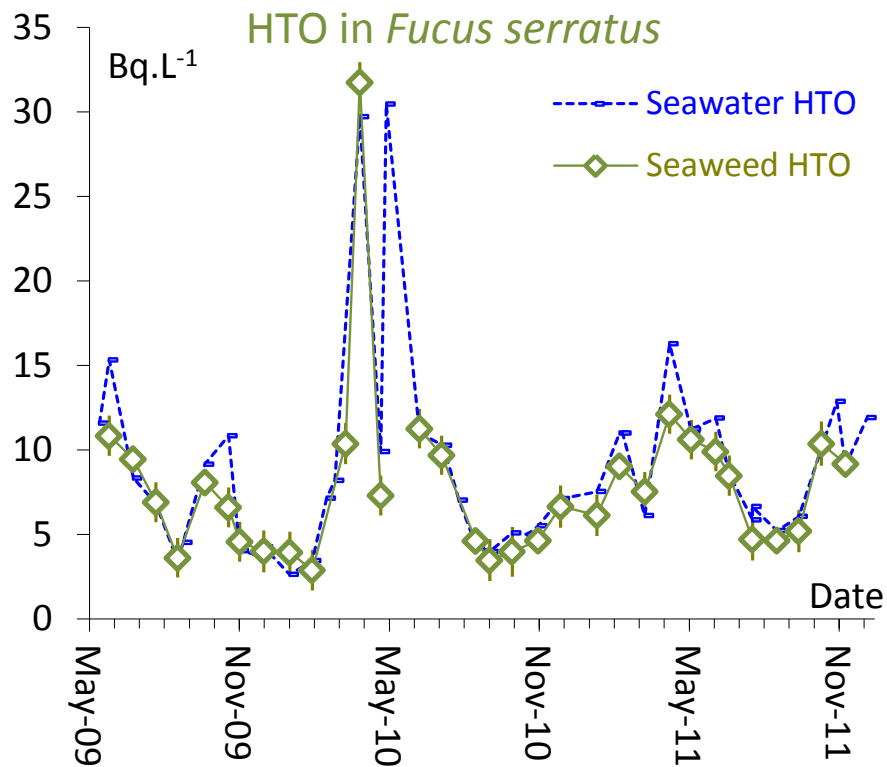
## Concentration in marine biota near the point of release

Nature	Species	Location	Sample date	Bq.Kg <sup>-1</sup> fresh ± 10%	TFWT, Bq.l <sup>-1</sup> ± 10%	OBT, Bq.l <sup>-1</sup> ± 10%	Ratio OBT/HTO
Mollusc	earshell	Omonville La Rogue	21/07/1997	14.7	14.9	10.6	0.7
Crustacean	edible crab	Omonville La Rogue	21/07/1997	11.7	11.7	11.6	1.0
Mollusc	periwinkle	St Germain des Vaux	21/07/1997	12.5	12.7	9.3	0.7
Mollusc	periwinkle	Herquemoulin	21/07/1997	19.0	19.3	13.1	0.7
Crustacean	edible crab	Jobourg	21/07/1997	12.7	12.5	16.0	1.3
Fish	mackerel	Omonville La Rogue	21/07/1997	11.8	11.8	11.8	1.0
Mollusc	earshell	Herqueville	21/07/1997	15.6	15.9	10.8	0.7
Seaweed	<i>Fucus serratus</i>	Carteret	16/03/2006	4.0	3.9	5.0	1.3
Seaweed	<i>Fucus vesiculosus</i>	Dielette	15/03/2006	11.0	11.0	11.2	1.0
Seaweed	<i>Fucus serratus</i>	Dielette	15/03/2006	9.7	9.5	12.5	1.3
Seaweed	<i>Fucus vesiculosus</i>	Goury	14/03/2006	10.8	10.7	12.4	1.1
Seaweed	<i>Fucus serratus</i>	Goury	14/03/2006	11.4	11.3	12.3	1.2
Seaweed	<i>Fucus serratus</i>	Sciotot	15/03/2006	8.0	8.1	6.6	0.8
Crustacean	lobster	Carteret	23/05/2006	10.7	10.8	8.3	0.8
Crustacean	lobster	Flamanville	26/04/2006	10.1	10.1	9.1	0.9
Mollusc	limpet	Carteret	30/03/2006	4.0	4.0	4.2	1.1
Mollusc	limpet	Dielette	28/03/2006	17.2	17.4	14.2	0.8
Mollusc	whelk	Flamanville	26/04/2006	5.3	5.1	9.5	1.9
Mollusc	limpet	Goury	27/03/2006	16.0	16.1	13.1	0.8
Fish	plaice	Carteret	19/06/2006	5.9	5.8	8.6	1.5
Fish	sea wrasse	Carteret	19/06/2006	7.0	6.9	9.7	1.4
Fish	sole	Flamanville	26/04/2006	13.5	13.5	13.8	1.0
Fish	sea wrasse	Flamanville	26/04/2006	14.0	14.0	13.3	1.0

Mean      11.1      11.2      10.7      1.0

□ Around 10 Bq L<sup>-1</sup> (TFWT, OBT) for 1.2 10<sup>16</sup> Bq year<sup>-1</sup>

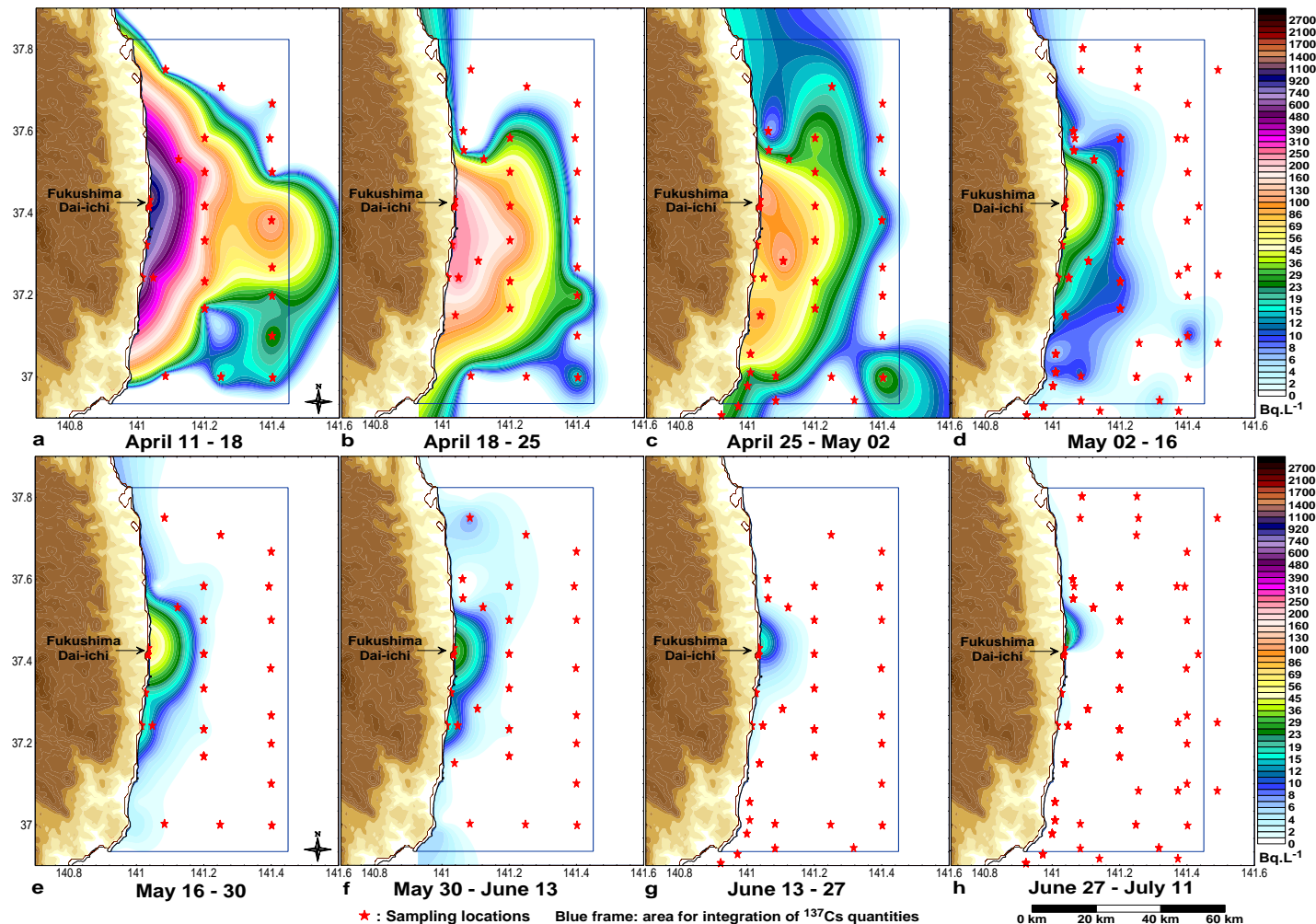
## Concentration in seaweed as function of water concentration



□ Steady state between seawater and seaweed TFWT is rapidly achieved while transfer between HTO and OBT is much slower: need to take this into account when modeling

Transfer parameters	OBT/HTO(steady state), expecting 1	$t_{1/2}$ bio (day) half-life
<i>Fucus serratus</i>	0.78 [0.76-0.82]	128 [99-175]

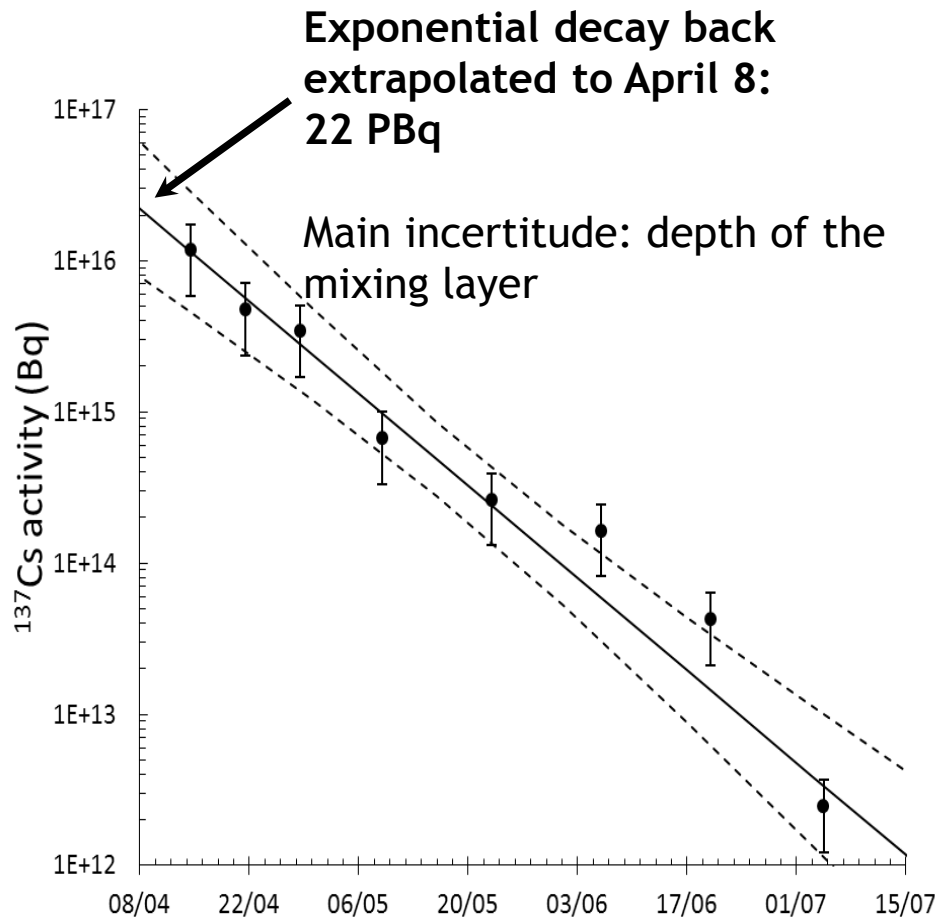
## Estimation of $^{137}\text{Cs}$ quantities from measurements



Interpolated  
 $^{137}\text{Cs}$   
concentrations  
from April 11  
to July 11

☐  $^{137}\text{Cs}$  quantities were estimated on the basis of individual measurements in a 50 x 100 km (100-1000 measurements for each period) area around the plant (issues: depth, mixing layer, atmospheric fallout, rain water washout, ...)

## Estimation of the rate of seawater renewal



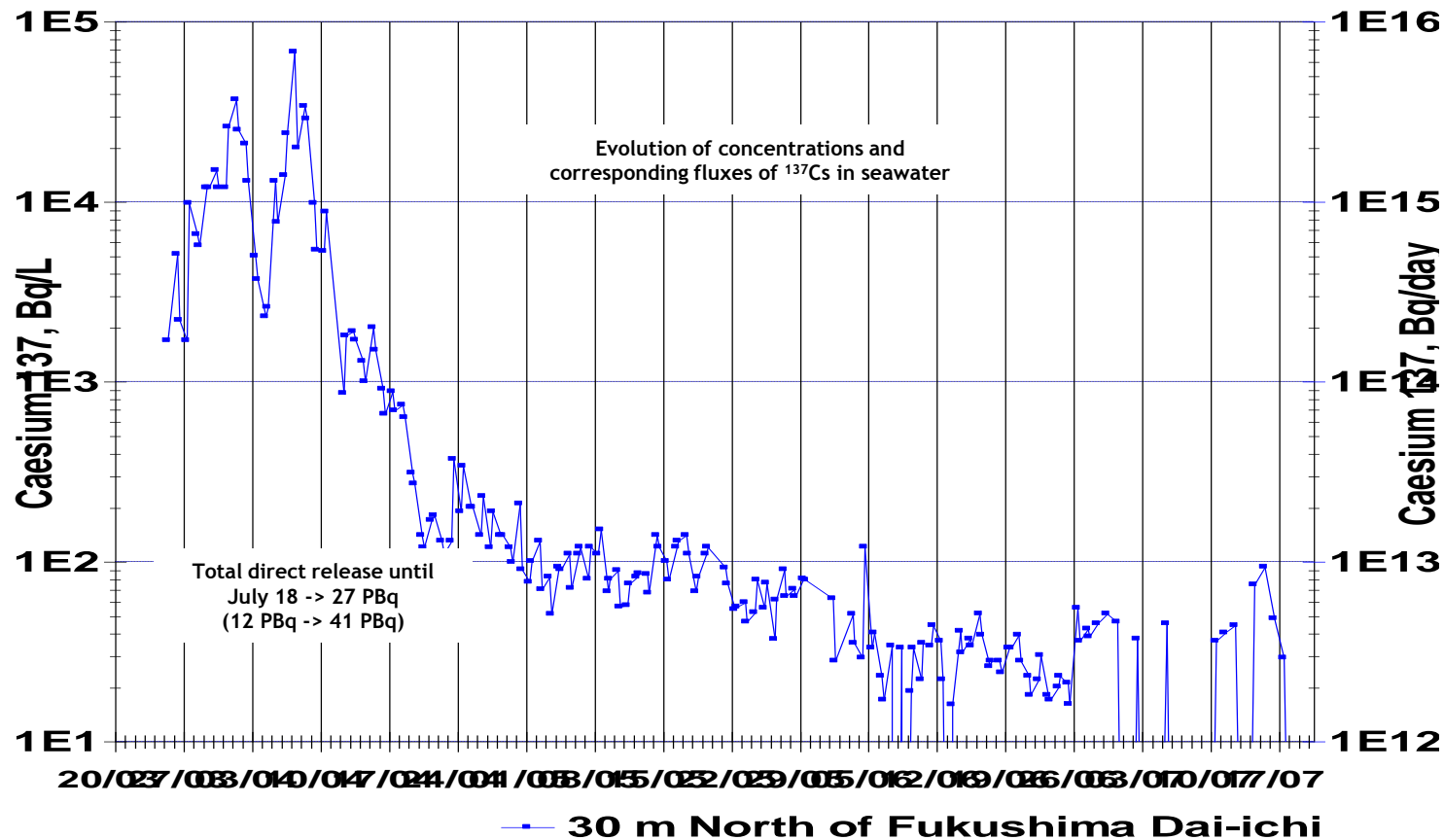
Constant dilution by clean water through marine currents due to convergence of Kuroshio and Oyashio currents:

- Seasonal changes in the ocean circulation ?
- Return of contaminated water back in the area ?

Evolution of  $^{137}\text{Cs}$  quantities measured in seawater

- Environmental half-time exponential decay  $t_{1/2} = 6.9$  days
- This source-term could be used in numerical dispersion models

## Flux estimation of $^{137}\text{Cs}$ from direct releases and the dilution coefficient



### Assumptions:

- Measurements close to the plant are representative of the released flux;
- Amount of 22 PBq corresponds to the quantity of  $^{137}\text{Cs}$  released from March 26 to April 8; (average concentration: 15 716 Bq.L<sup>-1</sup>, number of values = 28, duration = 13.2 days);
- Right Y axis in figure shows this conversion.

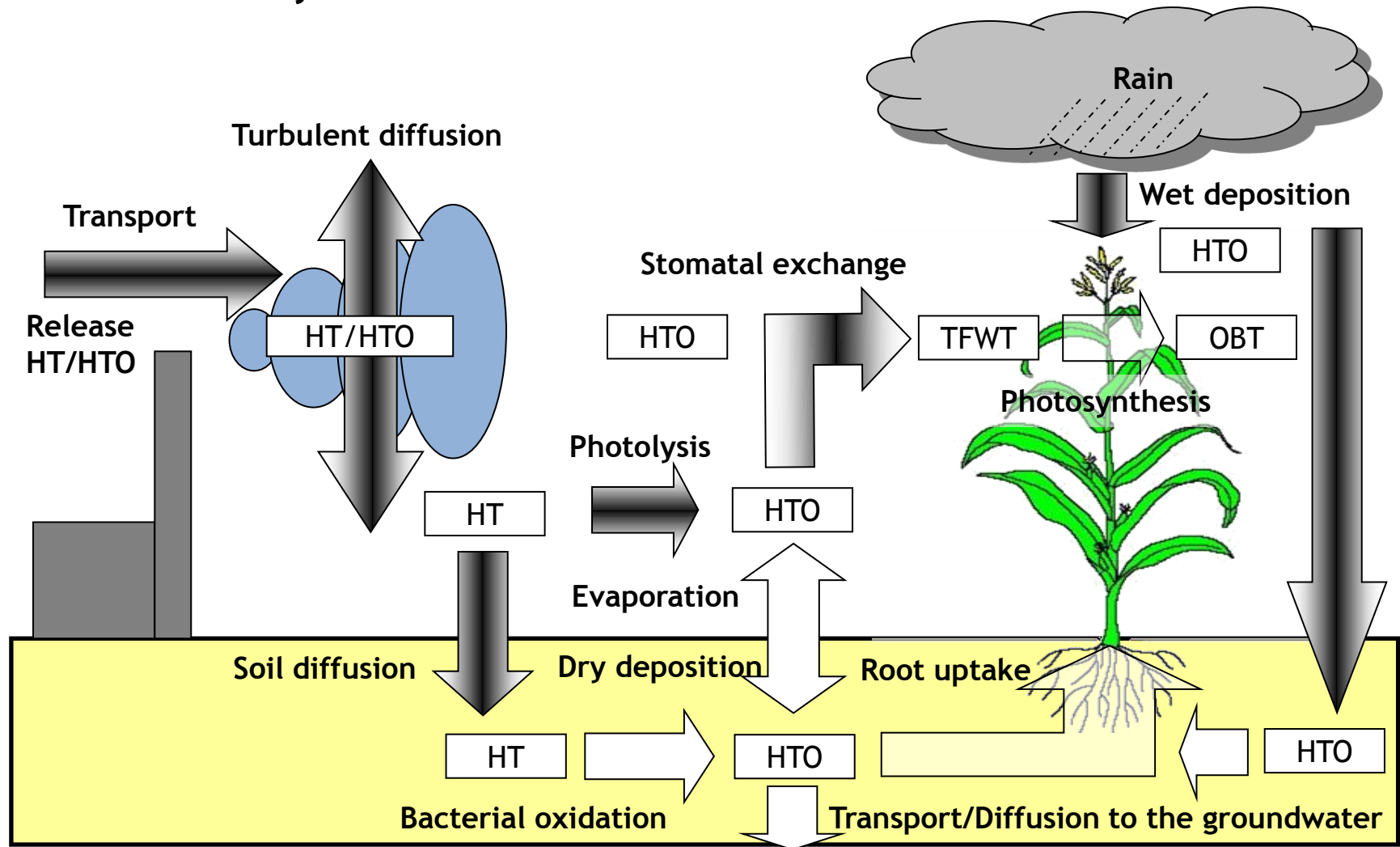
Fluxes of  $^{137}\text{Cs}$  could be deduced from concentrations by applying the factor:  $1.06 \cdot 10^{11}$  Bq released per Bq L<sup>-1</sup> measured

Conversely, concentrations could be estimated from fluxes

- *Context*
- *Objectives*
- ***Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems***
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystems
- *Conclusions*

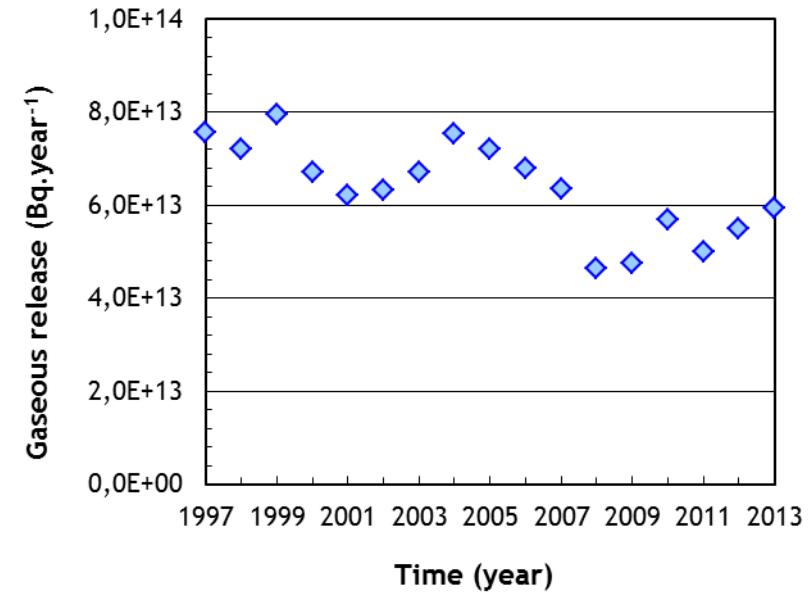
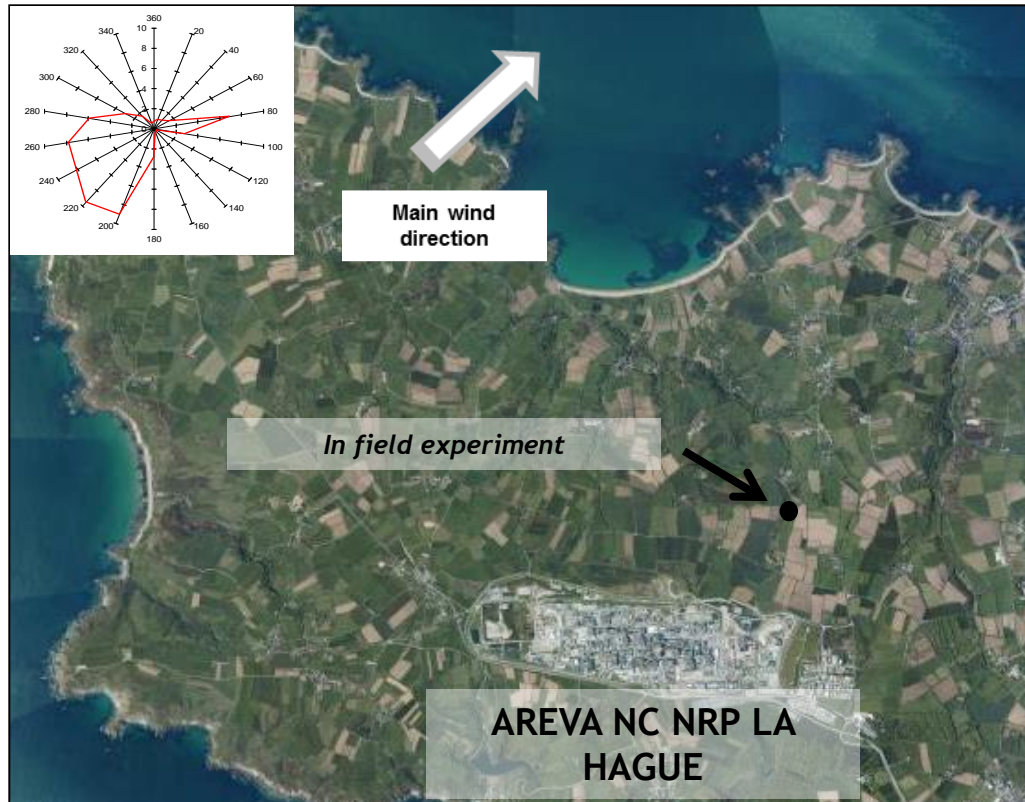


## Behaviour of tritium in the terrestrial environment



□ Background level in North hemisphere < 1 Bq L<sup>-1</sup> water vapor (10<sup>-2</sup> Bq m<sup>-3</sup> air)

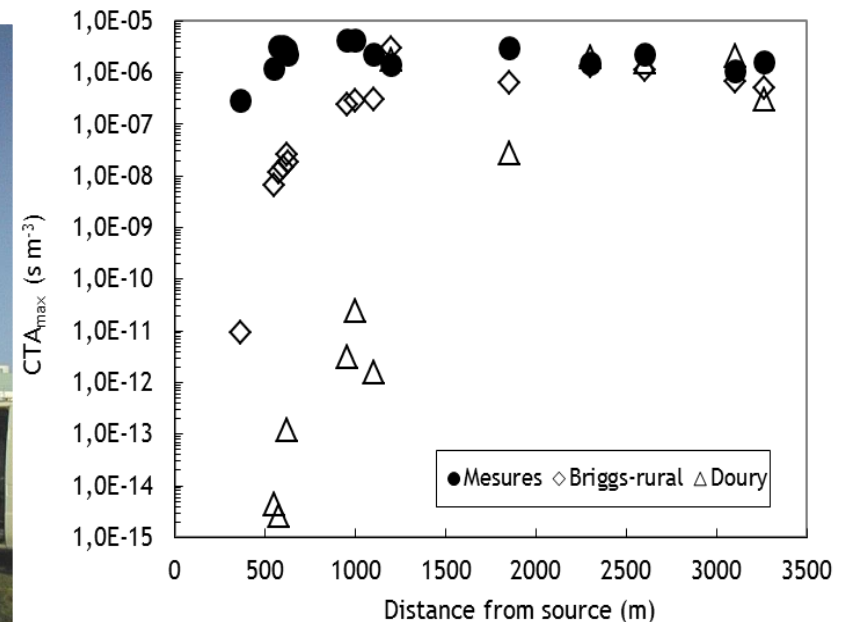
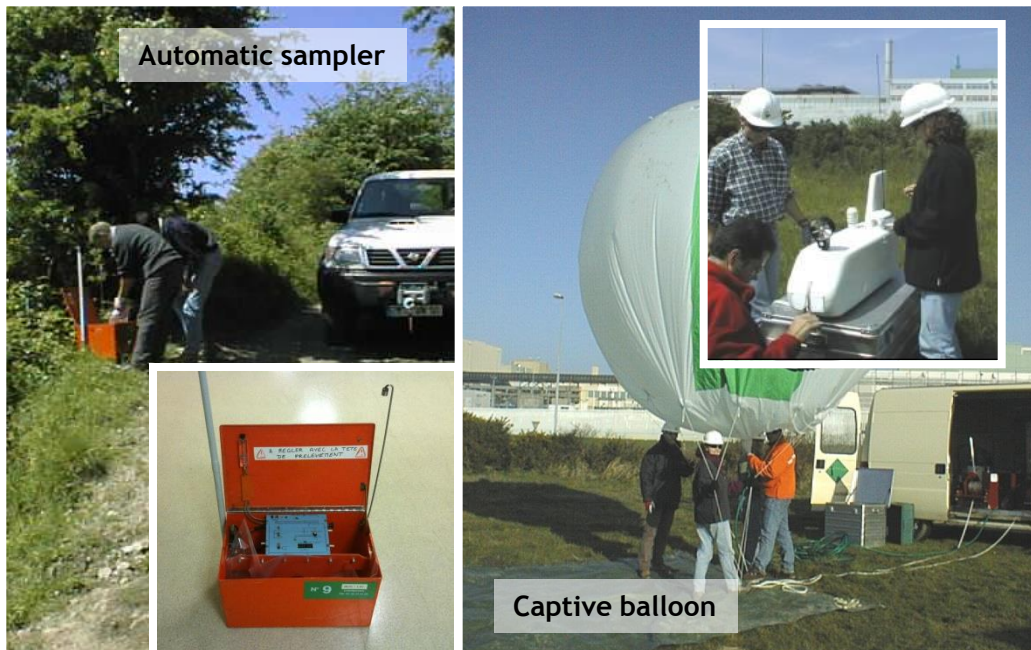
## Gaseous release in the atmosphere by AREVA NC: HTO/HT



□ One PWR NPP: 1/50 of La Hague NRP release

□ Gaseous release decrease: in 2013 ~  $6.0 \cdot 10^{13}$  Bq year<sup>-1</sup>

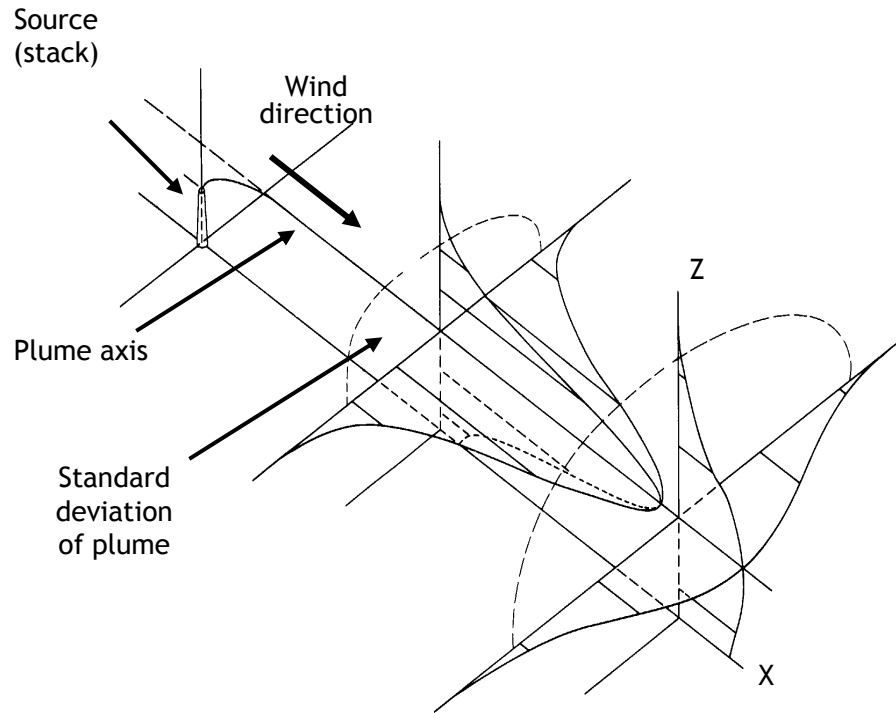
## Model validation: krypton 85 as a tool to validate atmospheric dispersion modeling



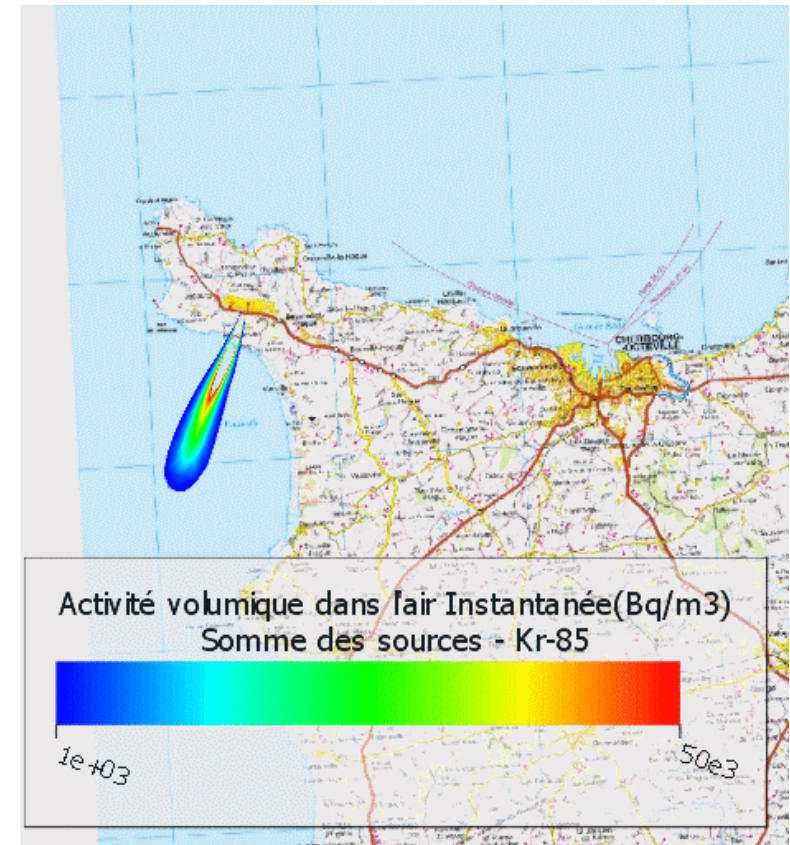
❑ Strong discrepancy between models and measurements

❑ Atmospheric Transfer Coefficient (ACT)  $\sim 3 \cdot 10^{-6} \text{ s m}^{-3}$

## Concentration in the atmosphere: Gaussian modeling



### Gaussian modeling

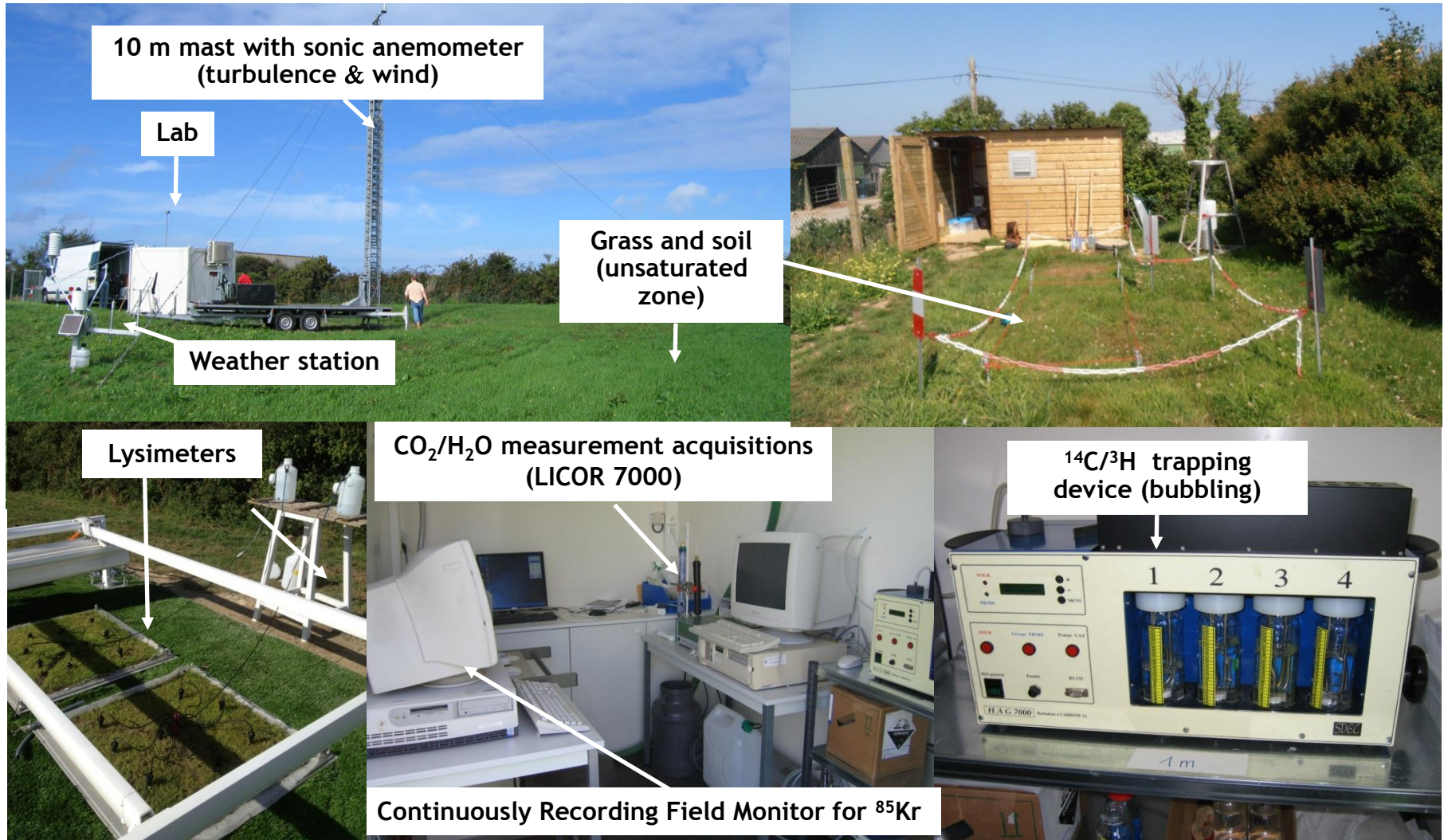


- ☐ After model validation the uncertainties are below a factor of 3 for in all meteorological conditions

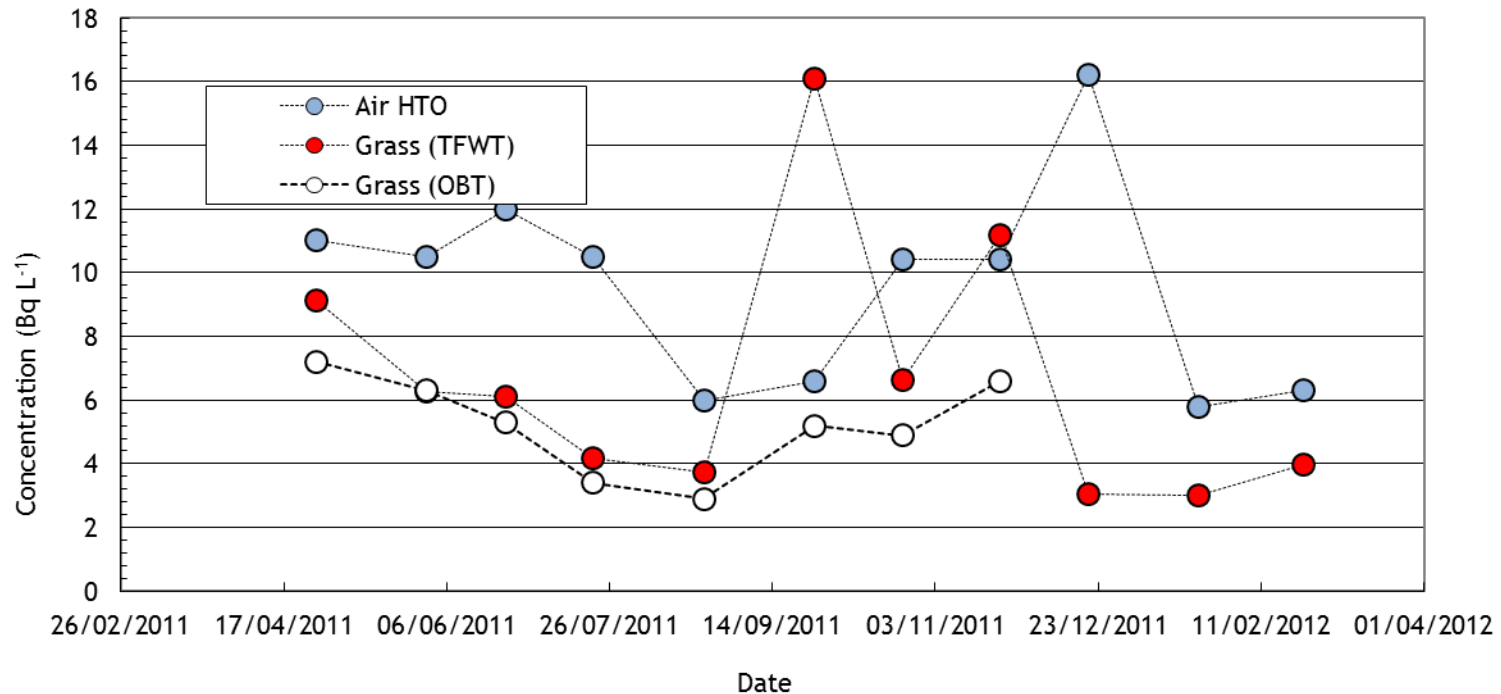


# Terrestrial ecosystem: transfer to biota

**“In field experiment” technical platform (2 km downwind distance) to study tritium transfer (kinetics of OBT, dry and wet deposition, microbial oxidation of HT in soil)**



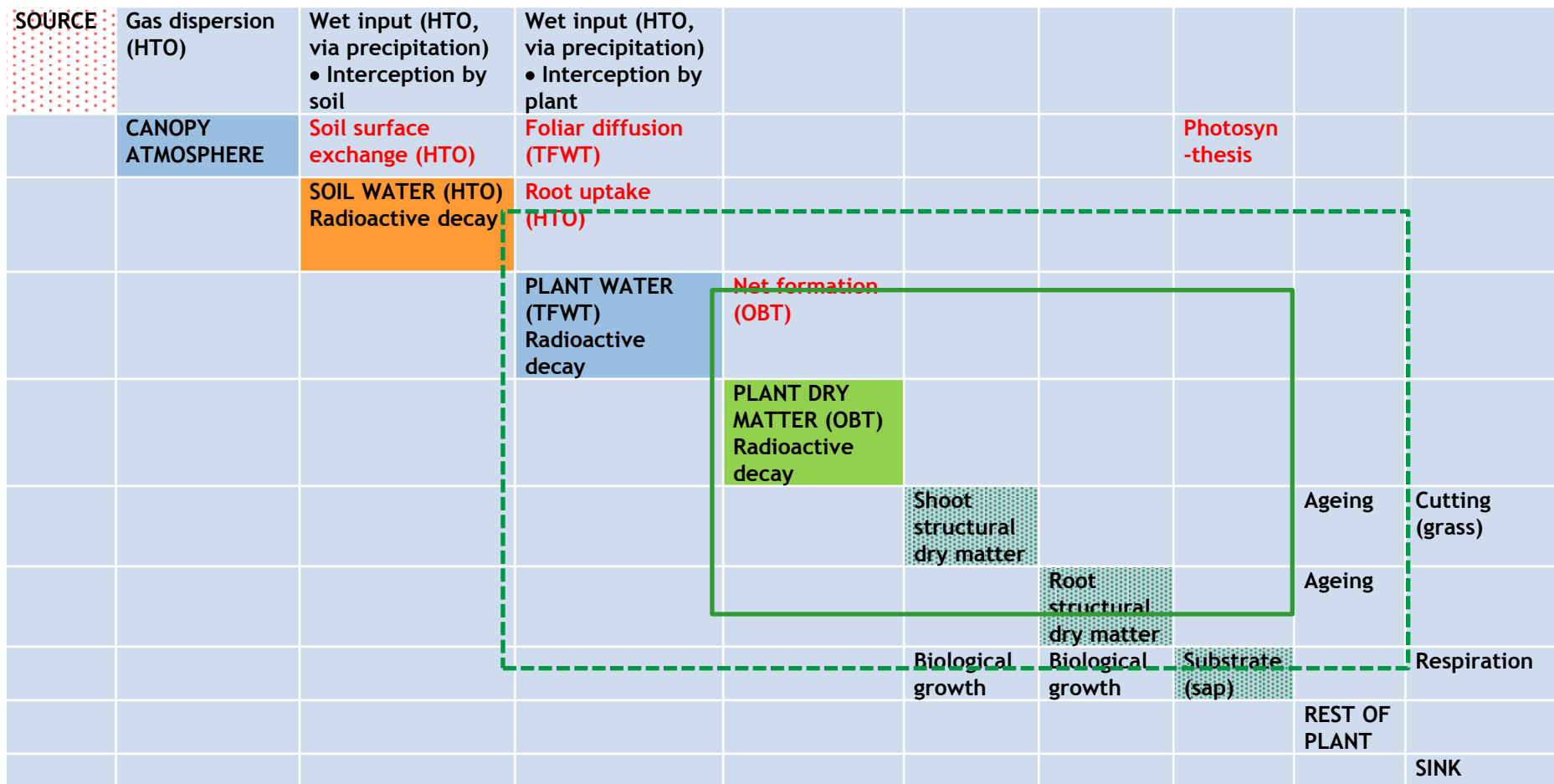
## Concentration in grass around the NRP: “In field experiment” technical platform (2 km downwind distance)



□ around 10 Bq L<sup>-1</sup> for 6.0 10<sup>13</sup> Bq year<sup>-1</sup>

*In La Hague area, concentrations in vegetable are in the same order of magnitude*

## Modeling of tritium transfer in terrestrial ecosystem (TOCATTA), a part of the SYMBIOSE Platform

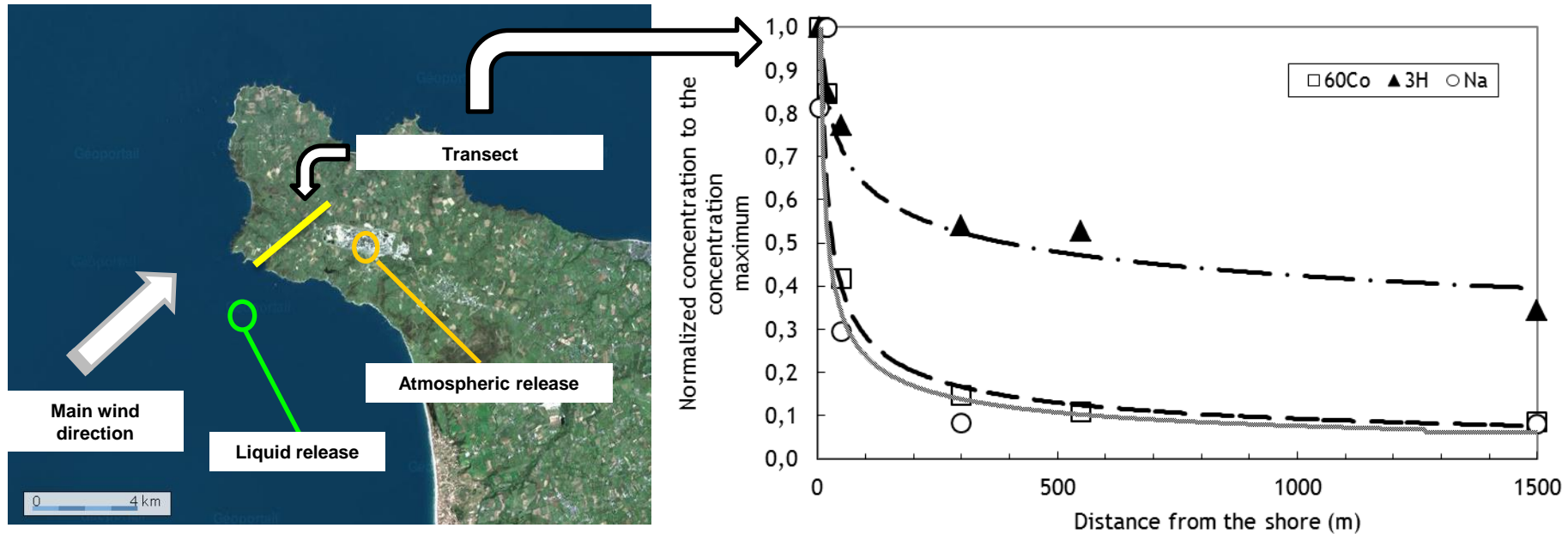


- TOCATTA is a hourly time-step model, implemented within the SYMBIOSE modeling platform



- | *Context*
- | *Objectives*
- | ***Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems***
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystems
- | *Conclusions*

*Tritium evaporation and partial pressure equilibrium induce transfer between water and the atmosphere*



□ Near the shore the atmospheric tritium concentration due to seawater is around 5 Bq L<sup>-1</sup> of water vapor

- *Context*
- *Objectives*
- *Transfer of tritium in marine and terrestrial ecosystems*
  - Importance of the knowledge of speciation (HT, HTO, OBT)
  - Marine ecosystem
  - Terrestrial ecosystem
  - Interface between marine and terrestrial ecosystems
- *Conclusions*

### ■ *What do we need to estimate the human dosimetric impact of tritium releases into the environment?*

- Speciation of releases (HTO/HT/organic molecule): Tritium released in the environment as HTO behaves like H from H<sub>2</sub>O. The transfer to the biota, is very quick (hours) for TFWT and slower (months) for OBT;
- Dispersion: validation of dilution coefficients or dilution models are prerequisites to estimate the transfer to biota (e.g. Fukushima, 1.06 10<sup>11</sup> Bq released per Bq L<sup>-1</sup> measured);
- Transfer to biota: a constant ratio <sup>3</sup>H/H is kept in all compartments of the environment (e.g. water/air and TFWT/OBT);
- Water to atmosphere: this pathway could be taken into account for population close to seawater.

### ■ ***Monitoring the tritium concentrations in the environment:***

- Water: direct sampling;
- Air: HTO by cold trap (e.g. H3R7000) and speciation by bubbling device (e.g. MARC 7000);
- Biota and specifically food web: freeze drying to separate TFWT and OBT (combustion water extraction from dry matter).

### ■ ***Measurement by counting scintillation ( $DL \sim 1 \text{ Bq L}^{-1}$ ). For lower levels: $^3\text{He}$ ingrown (Mass Spec);***

### ■ ***For example, in the vicinity of La Hague NRP, average tritium concentrations are $10 \text{ Bq L}^{-1}$ in the marine and the terrestrial ecosystems.***

### ***This methodology was used by North-Cotentin Radioecology Group:***

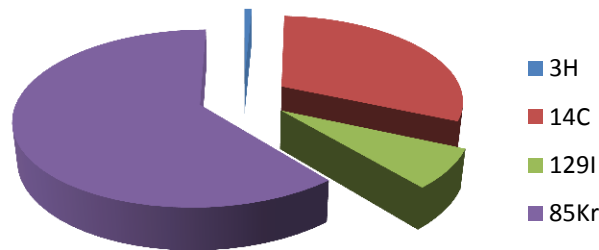
- Indeed, epidemiological studies have shown in 1997 a trend towards an excess number of leukaemia cases in the region of Nord-Cotentin (France) and it was suggested that the risk of leukaemia was associated with some aspects of lifestyle;
- To respond to public concern, the French Ministries of the Environment and Health decided to commission complementary epidemiological studies and a detailed radioecological analysis;
- The radioecological study was entrusted to a group of experts with various backgrounds (inspectors, governmental experts, operators, experts from non-governmental laboratories and foreign experts)-the North-Cotentin Radioecology Group;
- Its principal objective was to estimate the exposure levels to ionizing radiation and associated risk of leukemia for populations in the Nord-Cotentin.

## Conclusions: application

**Example, the gaseous/liquid releases contribution to the dose to the public in 2010:  $8.7 \mu\text{Sv y}^{-1}$  for the farmer and  $4.7 \mu\text{Sv y}^{-1}$  for the fisherman**

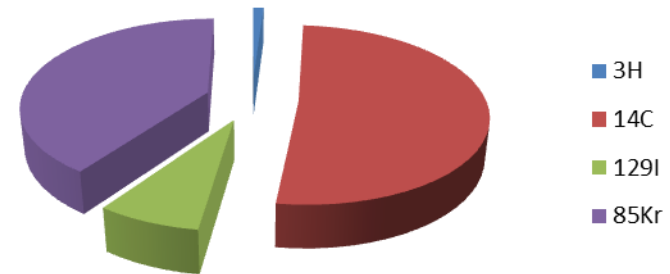
- Gaseous releases:  $^3\text{H}$  contribution  $\sim 1\%$  for  $57 \text{ TBq y}^{-1}$

**Farmer (Digulleville)**



$^3\text{H}$  dose:  $6.3 \cdot 10^{-2} \mu\text{Sv y}^{-1}$

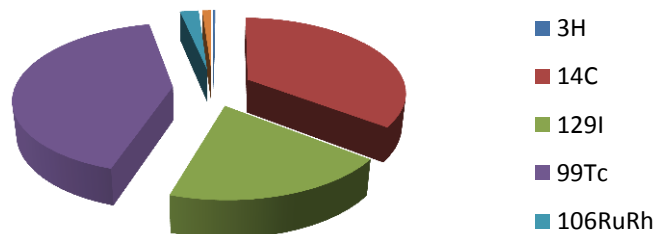
**Fisherman (Goury)**



$^3\text{H}$  dose:  $2.4 \cdot 10^{-2} \mu\text{Sv y}^{-1}$

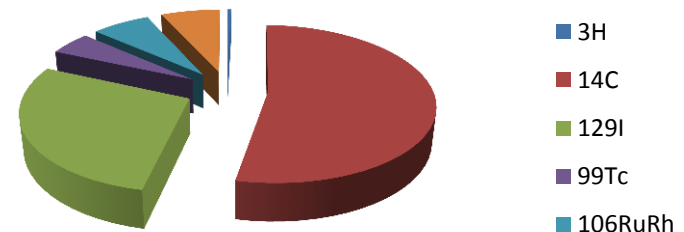
- Liquid releases:  $^3\text{H}$  contribution  $\sim 1\%$  for  $10\,000 \text{ TBq y}^{-1}$

**Farmer (Digulleville)**



$^3\text{H}$  dose:  $2.6 \cdot 10^{-3} \mu\text{Sv y}^{-1}$

**Fisherman (Goury)**



$^3\text{H}$  dose:  $9.6 \cdot 10^{-3} \mu\text{Sv y}^{-1}$



- *In France tritium releases will increase in the future with new built nuclear facilities.*
- *ASN has coordinated a work on tritium (White book, 2010) and recommended to improve knowledge on tritium transfers in the ecosystems: see lecture on tritium “the French situation” by J. L. Lachaume (ASN, Deputy Director General) at METI.*
- *IRSN studies tritium behaviour to have more realistic dose assessment for human and biota.*
- *Uncertainties remain in the marine and terrestrial ecosystems (kinetic of OBT formation, wet deposition...).*
- *IRSN will carry on developing specific programs on these topics (e.g. VATO project).*

- ***How can IRSN help for calculating dosimetric impact of controlled release of tritium?***
  - IRSN has developed up-to-date parameterized models of tritium transfers in marine & terrestrial ecosystems where various scenarios can be tested and compared in terms of resulting human dosimetric impact, including sensitivity and uncertainty analyses;
  - IRSN has developed sampling methodologies for environmental monitoring of tritium in various compartments and ecosystems;
  - IRSN has developed low-level tritium metrology adapted to environmental monitoring.

Future IAEA tritium meeting group  
MODARIA  
will be organized by IRSN in Cherbourg  
June 10-13, 2014



*Last tritium workshop CNSC - IRSN 2011*



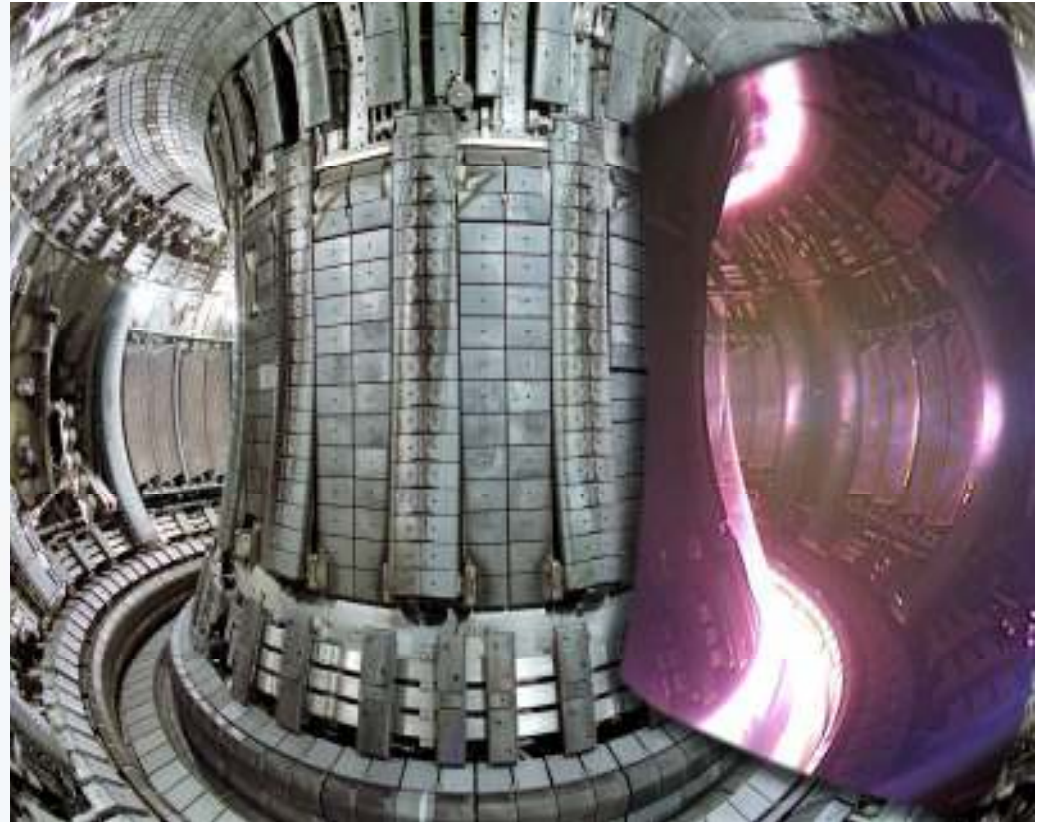
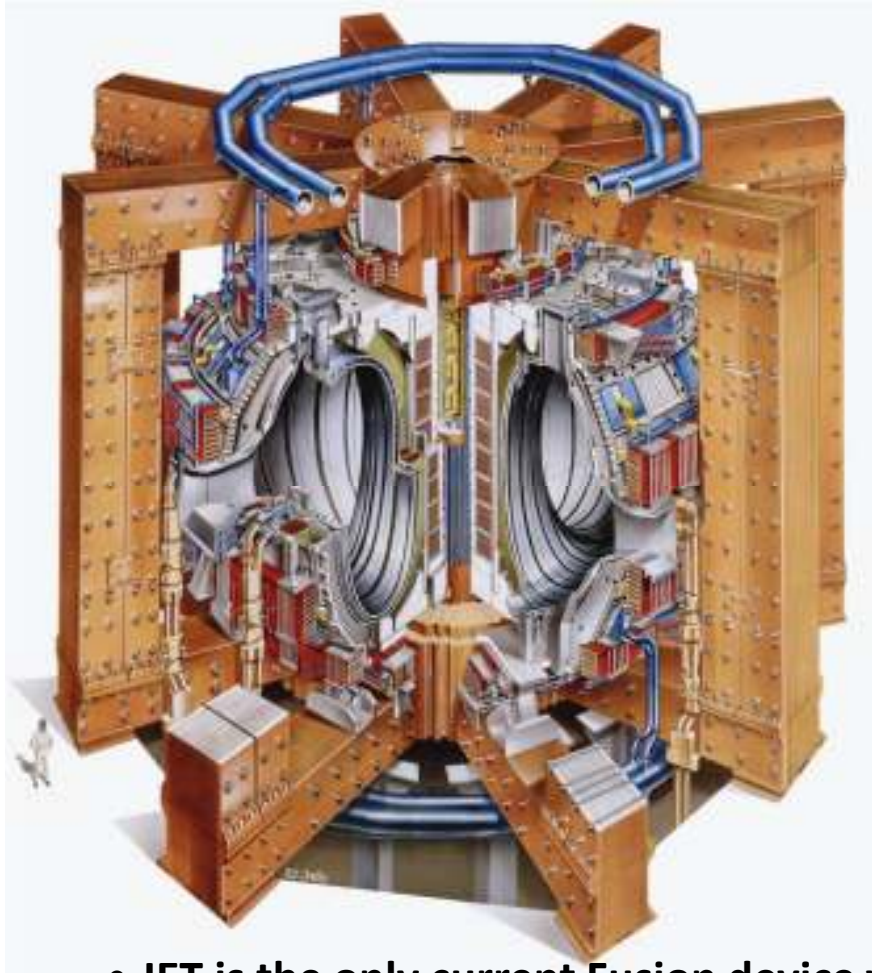
# Introduction to the Culham Centre for Fusion Energy (CCFE) By Stuart Knipe (Head of Tritium & Vacuum Unit)

# Culham Centre For Fusion Energy

- Operates JET (Joint European Torus) on behalf of the European Commission.
- Operates MAST (Mega Amp Spherical Tokamak) as part of the UK domestic program.
- Theory and Modelling research.
- Technology and Materials programme.
- International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) contracts
- DEMO (Demonstration Fusion Reactor) work under European consortium.
- **Tritium Science and Engineering**



# CCFE Operates JET



- JET is the only current Fusion device with a Tritium Fuelling capability

# CCFE Expertise

- A dedicated Tritium Science and Engineering Group with over 20 Scientists and Engineers
- Over 20 years of Operational, Research & Development expertise with tritium systems
- Founding member of UK Tritium Users Group
  - Established to 'encourage and maintain effective information exchange on tritium issues and studies'
  - leading to the sharing and exploitation of "best practice" methodologies in tritium operations and waste treatment.

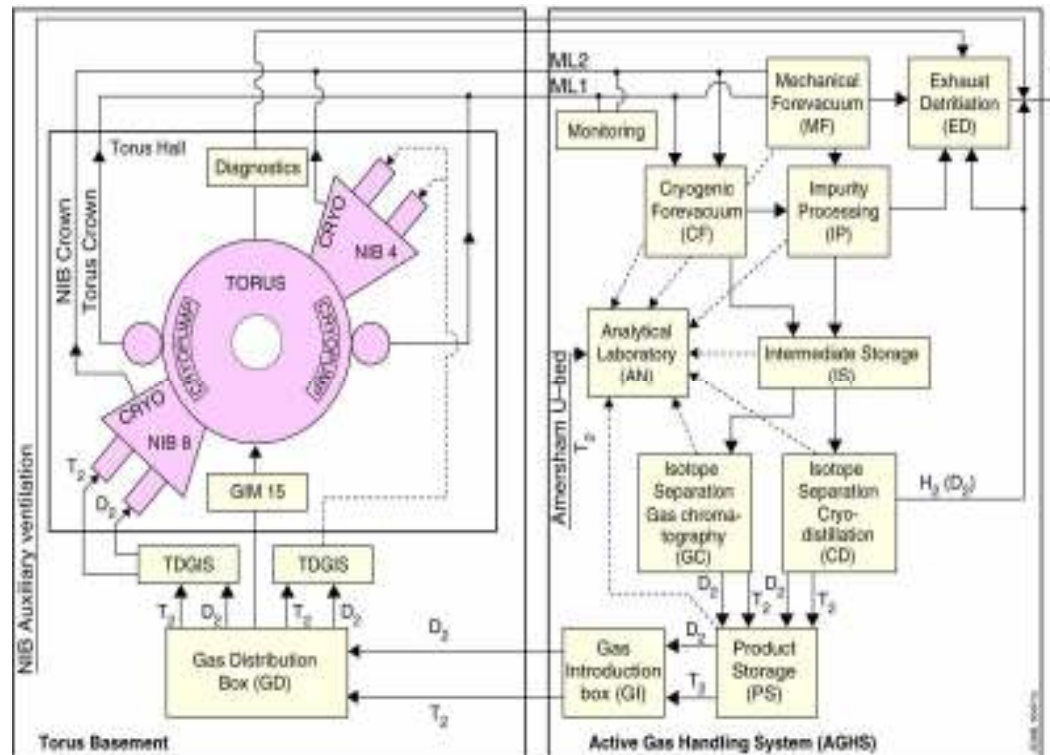


# Tritium Sources and Users

- Atmospheric via cosmic rays
  - Natural inventory = 3.5kg, 200g produced every year <sup>[1]</sup>
  - Small amounts additionally produced within the Earth
- Nuclear weapons tests
  - Residual atmospheric tritium levels amount to  $1.26 \cdot 10^7$  TBq (35kg) <sup>[1]</sup>
- Nuclear fission power plants
  - Fission products and nuclear fuel reprocessing
  - Activation of deuterium in CANDU/heavy water reactors
- **Fusion facilities**
- Nuclear weapons research/production
- Radio-nuclide labelling
  - Particularly significant due to the production of tritiated organic molecules
- Luminescent devices

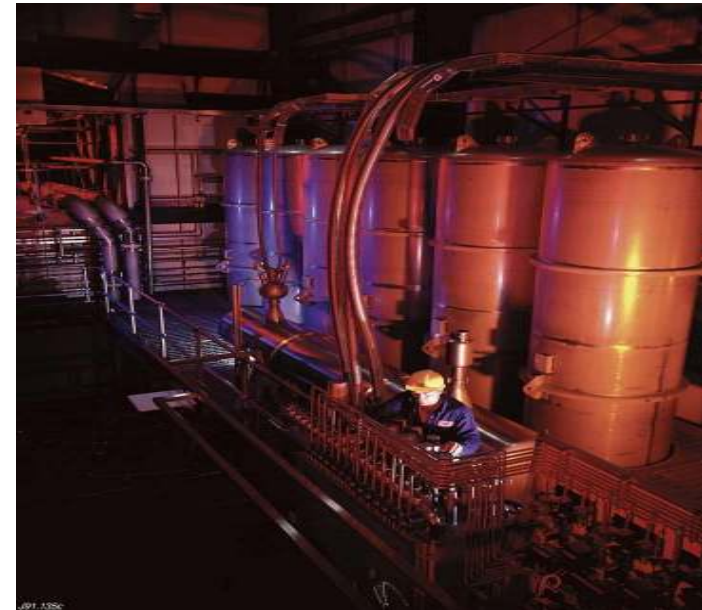
1 - Livre Blanc (White Book) du Tritium, l'Autorité de sûreté nucléaire, 2010

# Tritium Operations

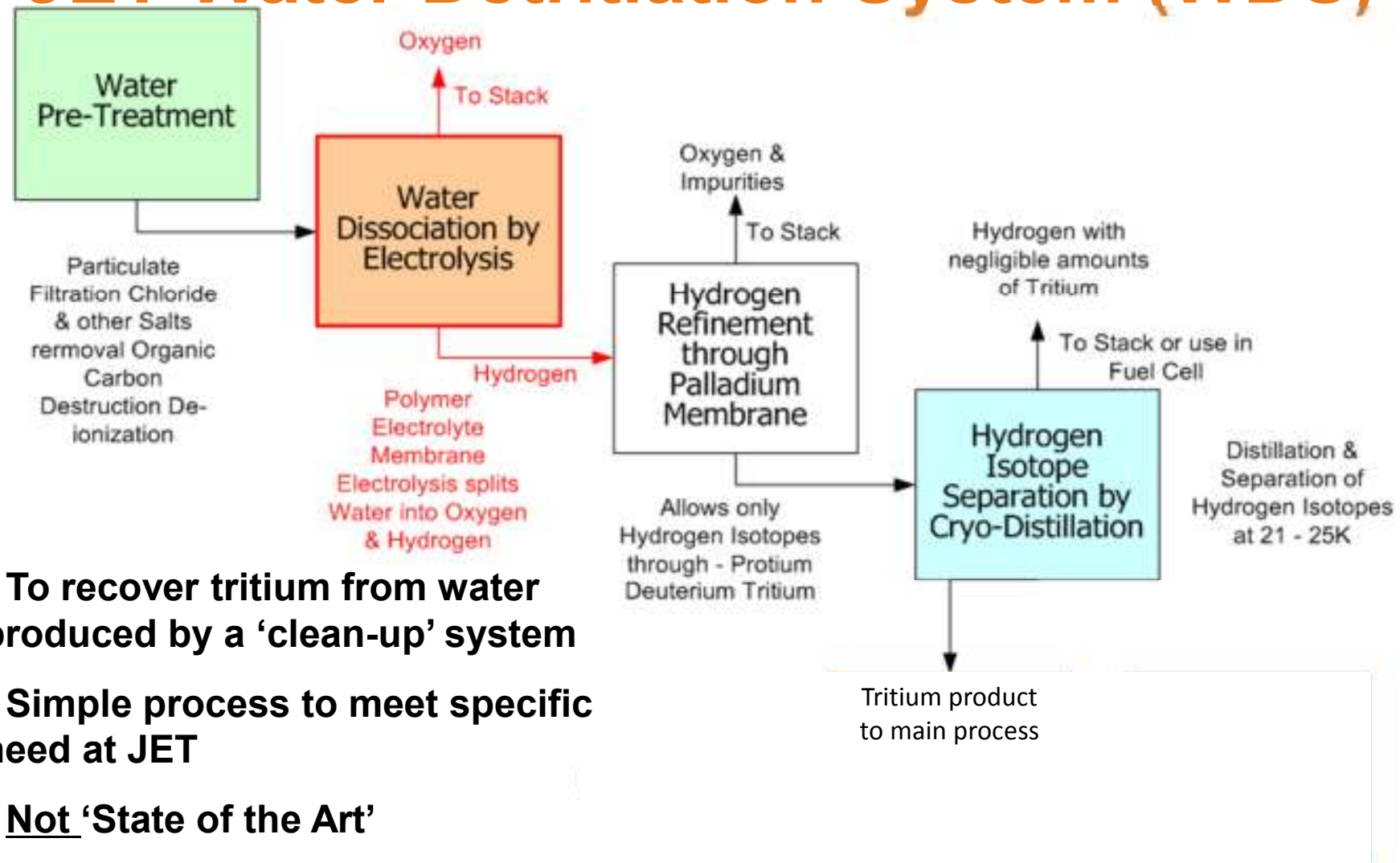


## Active Gas Handling System (Tritium Plant)

- Closed loop tritium fuel cycle
- Authorisation for 90g Tritium (32,000 TBq)
- Water Detritiation System Commissioning in 2014



# JET Water Detritiation System (WDS)



# Water Detritiation System (WDS)

- Reprocessing plant (Canada) unable to accept water due to chemical impurities
- Simple system employing water purification, electrolysis, hydrogen purification and hydrogen distillation
- Non 'State of the Art' design from considering options available
- Not optimum efficiency
- Capital cost of ~ £1.5M
- Process up to 135 kg of water per day (34m<sup>3</sup> per year based on 250 operating days per year)
- Activity up to 0.18TBq/l (6,000TBq per year)
- No residual water. Full conversion to molecular hydrogen
- Power consumption ~ 130kW (Electrolysers 40kW)

# Water Treatment Options

- 4 individual options involving 5 locations were considered in combination to produce 30 options.
  - Purify
  - Concentrate (water)
  - Detritiate
  - Discharge (via an external organisation)
- 10 passed 'pre-screening' which included being technically viable to achieve disposal and being able to address existing inventory and future arisings.
- Each option assessed against 16 criteria under 5 headings
- Sensitivity analysis performed against each of the 5 headings. Each normalised before applying a weighting factor of 2.

# Criteria and Scoring (1)

Heading	Criteria	Notes	Scoring (1 to 5)
<b>Availability/ Practicality</b>	Lead time	Time required for full availability	1 – Greater than 3 years 3 – 1-3 years 5 – Currently available
	Continued availability	Likelihood of continued availability	1 – Route closed in 2-3 yrs 3 – Route available 5-10 yrs 5 – Available for foreseeable future
	Proven technology	Technology proven for use	1 – Theoretical 3 – Proven for samples 5 – Proven at required scale



# Criteria and Scoring (2)

Heading	Criteria	Notes	Scoring (1 to 5)
<b>Financial</b>	Start-up cost	Initial cost to set up route	1 – High 3 – Medium 5 – Low
	Operational cost	Running cost: utilities, raw materials, training etc.	1 – High 3 – Medium 5 – Low
	Decommissioning	Decommissioning cost	1 – High 3 – Medium 5 – Low
	Commercial Benefit	Potential for commercial opportunities	1 – Low 3 – Medium 5 – High



# Criteria and Scoring (3)

Heading	Criteria	Notes	Scoring (1 to 5)
<b>Environmental</b>	Transport emissions	Emissions/carbon associated with transporting HTO	3 – As current route
	Process energy use	Energy used (excluding transport) for entire route – including off-site	3 – As current route
	Tritium recovery	Does method allow tritium to be recovered for re-use	1 – None recovered 3 – Some recovered 5 – All recovered
	Volume reduction	Overall volume of waste reduction (including secondary waste)	3 – As current route

# Criteria and Scoring (4)

Heading	Criteria	Notes	Scoring (1 to 5)
Health and Safety	Proximity Principle	Dispose/manage close to point of production	3 – As current route
	HTO Handling	Risk of exposure during handling	3 – As current route
	Number of processes	Increased opportunity for accidents	3 – As current route

# Criteria and Scoring (5)

Heading	Criteria	Notes	Scoring (1 to 5)
<b>Regulatory/ Public Relations</b>	Change to Environmental Permit	Would option require change to Permit	1 – Major or immediate change required 3 – Minor change or change in 2+ years 5 – No change required
	Legislation	Feasible under current/future legislation	1 – Potential for legal breach 3 – Legal breach unlikely 5 – No potential for legal breach
	Public Image	Perceived harm/potential for damage to image	

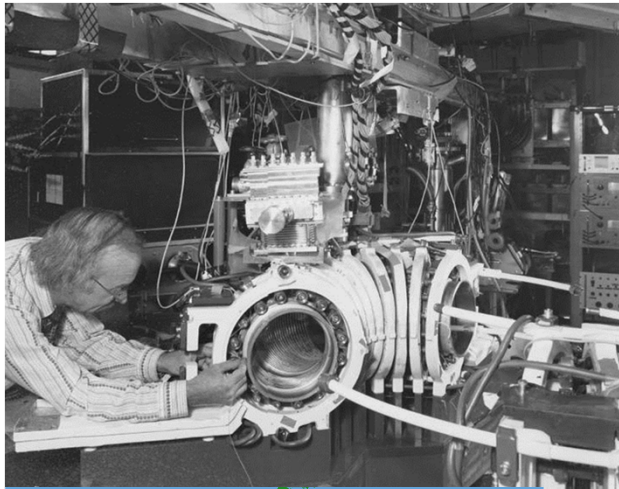
# Local Stakeholder Engagement

- Twice yearly Culham Local Liaison Committee (LLC)
  - Discussion with local politicians, tenants, local inhabitants (schools and villages) and regulators. Present progress and future plans. Chaired by CCFE Chief Executive
- Close links with local councils – especially economic development teams and planning
- Close links with local MPs (UK Parliament) and MEPs (European Parliament).
- Open evenings/days – one per month, 100 people attending each. Many of them local residents; some dedicated to local villages and towns. Free to attend.

# Local Stakeholder Engagement

- ‘Best Available Techniques’ (BAT) Study performed by independent organization to develop Culham Integrated Waste Strategy considering all waste streams not just radioactive.
- Local stakeholders and regulator are an integral part of the BAT study team. Independent technical experts present to provide balanced view.
- Considers all aspects of strategy including traffic, noise, energy, discharges, employment and timescales etc.

# History of Culham



Dedicated fusion laboratory since 1965

Selected to host The Joint European Torus (JET) in mid 1970s – JET completed in 1983.

Run by the UK Atomic Energy Authority

# The UK Atomic Energy Authority Mission

**The Authority's principal mission is to position the UK as a leader in a future, sustainable energy economy by advancing fusion science & technology and related technologies to the point of commercialisation.**



# Thank you for your attention



U.S. DEPARTMENT OF  
**ENERGY**

参考資料14



## *TMI-2 Tritiated Water Experience*

Presented to the  
Tritiated Water Task Force of the Committee on  
Contaminated Water Countermeasures  
26 March 2014

By: Chuck Negin

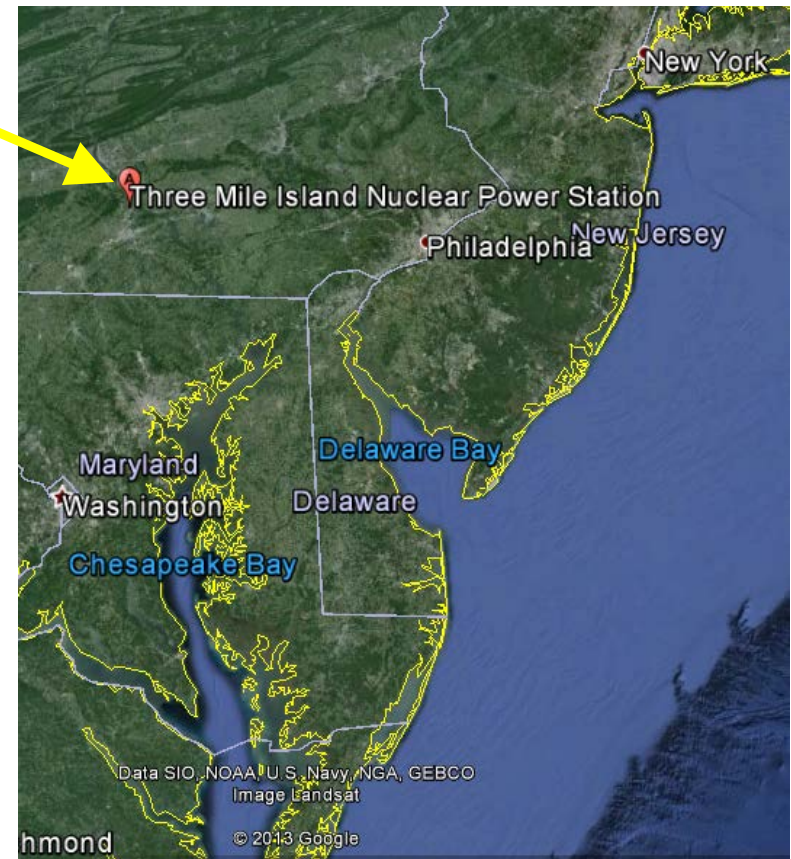
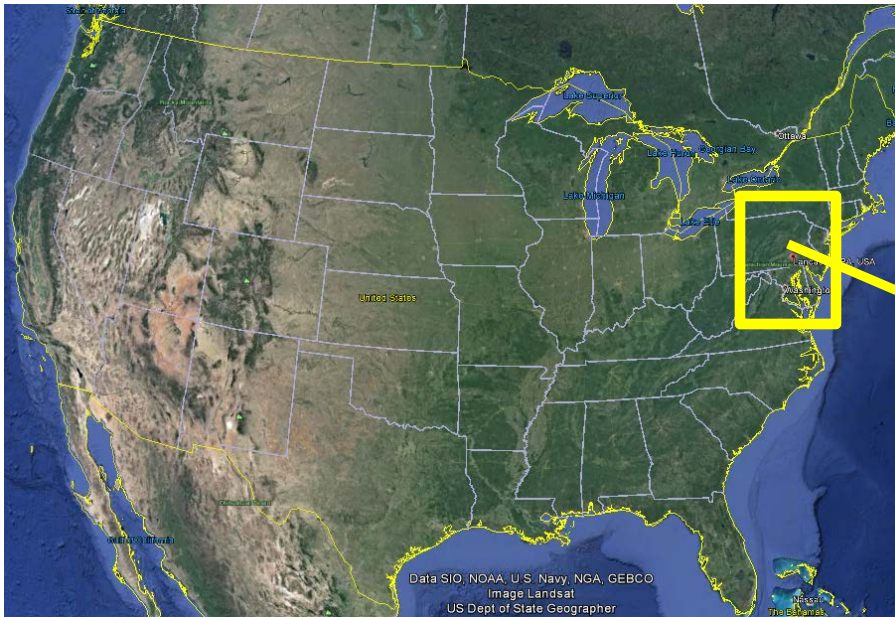


**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Location in the USA



## ❑ By Road

- 200 km north of Washington DC
- 160 km from the Delaware Bay
- 40 km to city of Lancaster, PA

## ❑ By River

- 26 km to the city of Lancaster, PA water intake



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# Overhead Aerial



**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# Relative to the City of Lancaster



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# How much Tritium?

- ❑ Initial tritium: somewhat less than 3000 curies (111 tBq)
- ❑ Final tritium: 658\* curies (24.3 tBq)
- ❑ Final Water: 2.3 million gallons (8706 metric tons)
- ❑ Final Concentration:  $2.8 \times 10^6$  Bq/liter
- ❑ US EPA Drinking water standard: 740 Bq/liter
- ❑ Where did the tritium go? It was reduced by:
  - radioactive decay (12 year half life),
  - used for decontamination; loss via evaporation; removed by ventilation systems
  - via the air ejectors\*\*

---

\* Final PEIS estimate was 1020 Ci (37.7 tBq) in 1987

\* \* The air ejectors were used to maintain cooling in the reactor via the steam generators and the steam system; they were under internal vacuum relative to the reactor containment where they were located.



**EM Environmental Management**

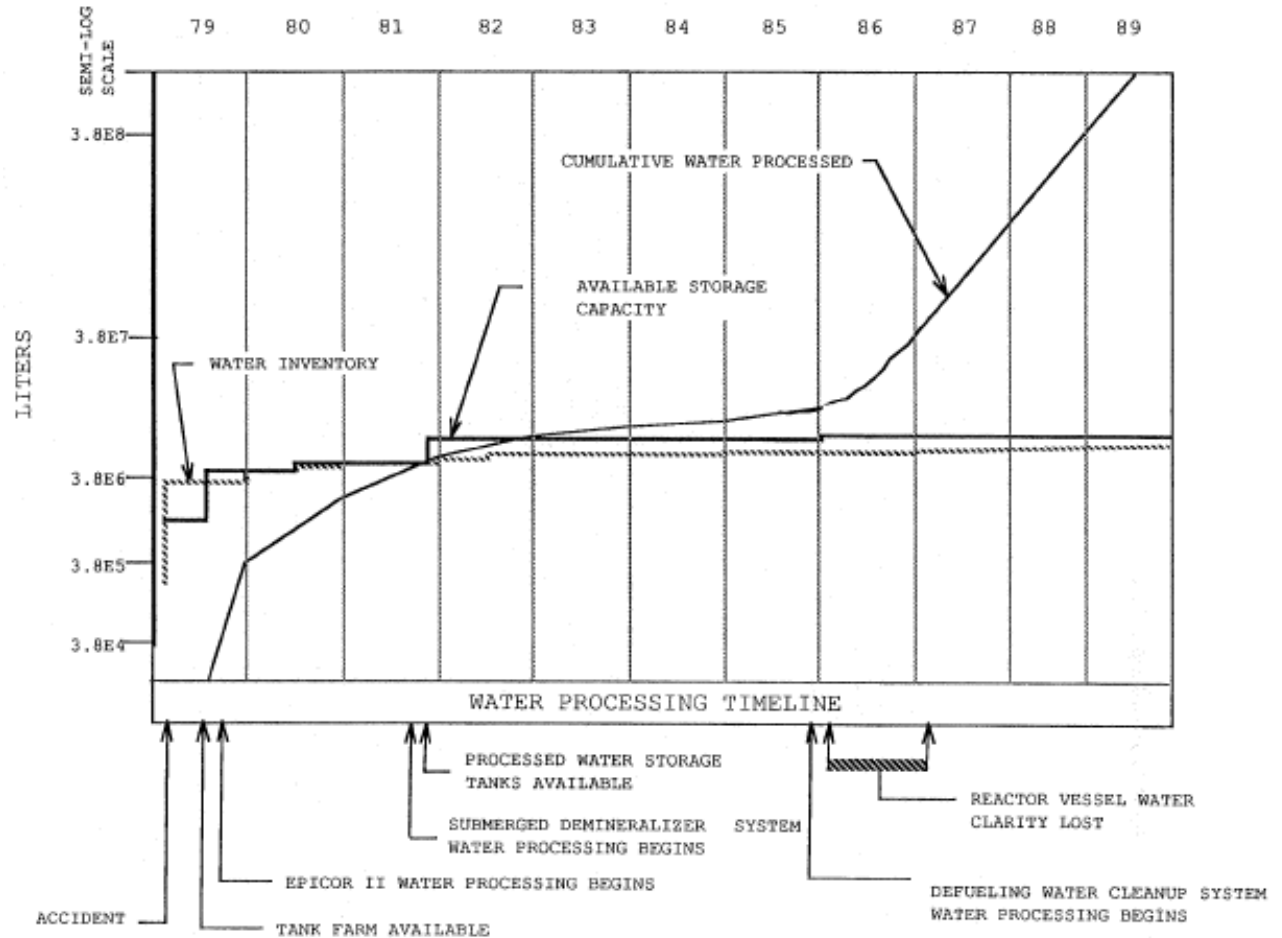
safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# Why Disposal Waited 10 Years

- The addition of water was not at a high rate
- There was some evaporation and discharge via ventilation
- Several storage locations within the plant
- The containment basement acted as a “surge tank”
- Eventually built 2 half million gallon tanks (5,000 metric tons) for processed water storage



March 1981 NRC:

"a decision could be deferred until after the water has been processed. Then the concentration of radionuclides remaining in the water will be low enough for the water to be stored safely onsite until the disposal decision is made ."



**EM Environmental Management**

safety ♦ performance ♦ cleanup ♦ closure

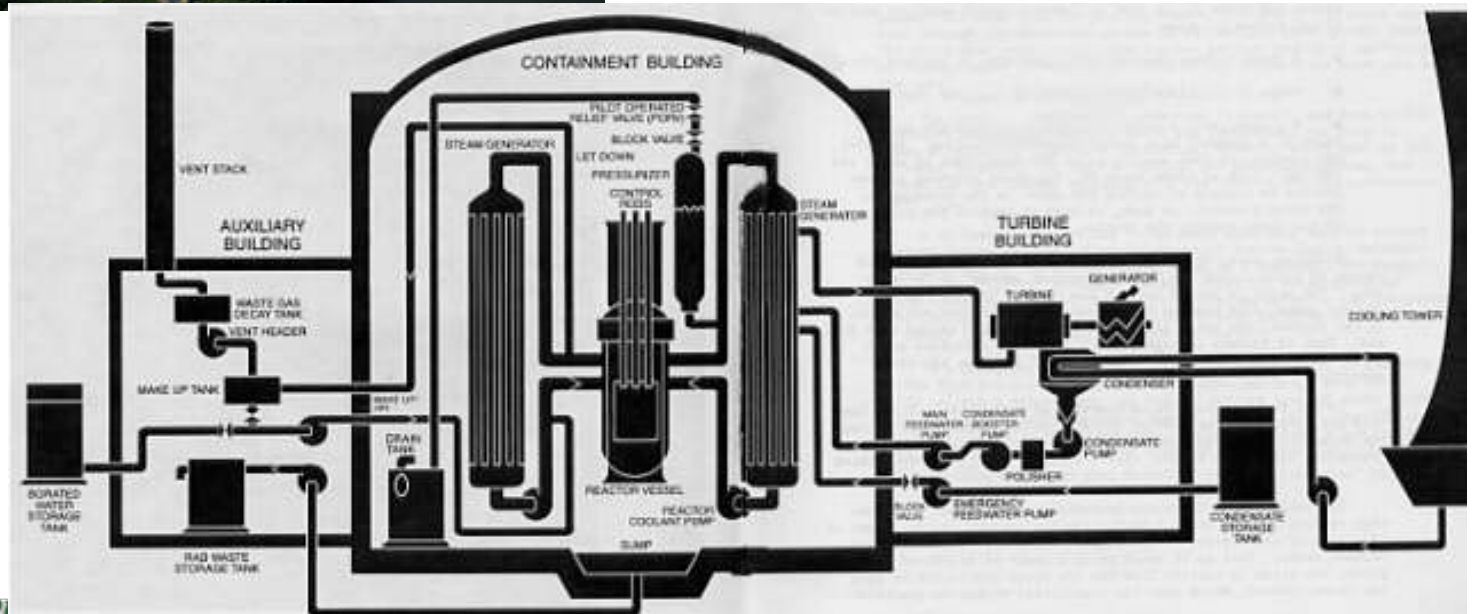
[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# TMI-2 Containment



Unit 2  
Containment

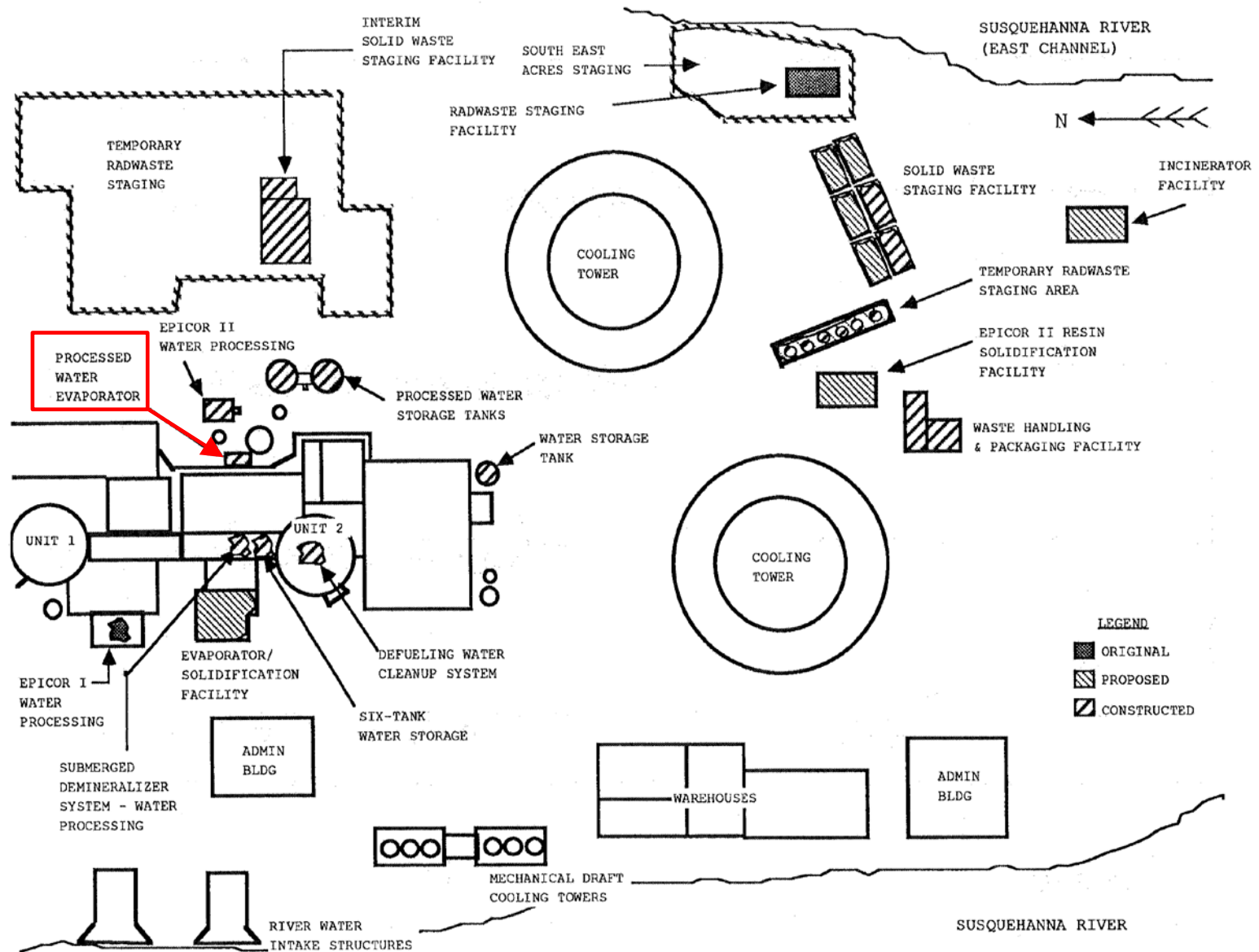


EM Enviro

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# TMI-2 Waste Management Facilities



EM I

safety ♦ performance ♦ cleanup ♦ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Why Evaporation was Preferred at TMI-2

## ❑ From the on-site and owner's viewpoint:

- Know technology, system design was not complex
- Could be designed, procured, installed, and operated without outside specialists
- Reasonable cost
- No offsite dependencies
- Could begin in reasonable time

## ❑ Why not grouting the tritiated water and transport for disposal?

- Technically feasible
- On-site processing systems and buildings
- Very large number of shipments
- Very high cost for solidification, transport, and disposal.



**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Evaluation Method Background

- ❑ The National Environmental Protection Act (NEPA) requires evaluation for government actions affecting the environment
- ❑ Three levels of evaluation; increasing order of complexity:
  - Categorical Exclusion
  - Environmental Assessment
  - Environmental Impact Statement
- ❑ Environmental Impact Statement Topics (General)
  - Environmental Resource Impacts (subject table below)
  - Cumulative Impacts
  - Irreversible and Irretrievable Commitment Of Resources
  - Unavoidable Adverse Impacts

1. Land Use	6. Socioeconomic	11. Transportation Safety
2. Geology and Soils	7. Water Resources	12. Traffic
3. Noise	8. Historic Archeological and Native American Resources	13. Environmental Justice
4. Greenhouse Gas Impacts and Climate Change	9. Biological Resources	
5. Air Quality	10. Human Health and Safety	



**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# TMI-2 Evaluation Method

- ❑ Programmatic Environmental Impact Statement (PEIS)
  - License approval for discharge is at TMI-2 is a government action, therefore a PEIS was conducted
  - PEIS conducted by the NRC (using specialists from national laboratories, such as SRNL, PNNL)
- ❑ TMI-2 Impacts see later viewgraph....
- ❑ Note: Separate safety analysis and operating specifications for the evaporator; Similar to NRA approval of Implementation Plans for Fukushima Daiichi operations.

# Nine Options Evaluated by the NRC

Option	Disposition of Tritium	Disposition of Borate*
Evaporation, solidification of bottoms**, and disposal at a licensed burial ground	Atmosphere at TMI	Commercial LLW burial ground
Evaporation, solidification of bottoms, and retention onsite	Atmosphere at TMI	TMI Site
Distillation (closed cycle evaporation), solidification of bottoms, and disposal at a licensed burial ground followed by river disposal of the distillate.	Susquehanna River	Commercial LLW burial ground
Offsite Evaporation at the DOE Nevada Test Station (NTS)	Atmosphere at NTS	Shallow land burial at NTS
Solidification and permanent onsite storage of solidified waste	Atmosphere at TMI	Ground at TMI Site
Solidification and disposal at a commercial low-level waste site	Atmosphere at TMI	Commercial LLW burial ground
Long term (years) discharge to the Susquehanna River	Susquehanna River	Susquehanna River
Short term (days) discharge to the Susquehanna River	Susquehanna River	Susquehanna River
Liquids storage in tanks (the no-action alternative)	TMI	TMI Site

\* In every case there would be some cesium-137 and strontium-90 associated with the borate; however, in those options employing re-treatment of the water, the quantity is approximately 1/10 of what it is without retreatment

\*\* "bottoms" refers to the concentrated solids mixed with water in the evaporator.



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# Impacts and Range

Impacts	Range of Impacts
Bone dose to the offsite population	0 to 14 person-rem total population (0 to 0.14 person-Sv) 0 to 0.4 mrem to the maximally exposed offsite individual (0 to 4 uSv)
Total body dose to the offsite population	0 to 3 person-rem total population (0 to 0.03 person-Sv) 0 to 5 mrem to the maximally exposed offsite individual (0 to 50 uSv)
Thyroid dose to the offsite population	Up to 6 person-rem total population (0 to 0.06 person-Sv) Up to 4 mrem to the maximally exposed offsite individual (0 to 40 uSv)
Estimated number of radiation-caused cancer fatalities to the offsite population	0 to 0.0004
Estimated number of radiation-caused genetic disorders to the offsite population	0 to 0.002
Occupational dose	0 to 25 person-rem (0 to 0.25 Sv)
Estimated number of radiation-caused cancer fatalities to the worker population	0 to 0.003
Land commitment	0 to 49,000 square feet (0 to 4552 square meters)
Radioactive waste burial ground volume	0 to 460,000 cubic feet (0 to 13,026 cubic meters)
Cost to the Licensee	\$100 thousand to \$41 million
Time to complete	0 to 36 months
Number of traffic accidents	0 to 12
Estimate number of traffic fatalities	0 to 0.8
Maximum individual dose from accidents	0 to 60 mrem total body (0 to 600 uSv) 0 to 3000 mrem bone (0 to 30 mSv)
Population dose from accidents	0 to 0.7 person-rem bone (0 to 70mSv) 0 to 0.02 person-rem total body (0 to 0.2 mSv)



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# NRC Conclusions (partial)

**No alternative was found to be clearly preferable to the licensee's proposed action.** The total estimated impact to persons living near TMI and to the work force from any alternative is very small. While the quantitative estimates for some potential impacts (i.e., cost, long-term commitment of space, and time required) were found to vary for some of the alternatives, **these differences were not judged sufficiently large to allow for either identification of a clearly preferable alternative or rejection of any of the nine evaluated alternatives.**

The NRC staff has concluded, based on this evaluation and after considering comments on the draft supplement, that the licensee's proposal to evaporate accident-generated water is an acceptable disposal plan. As identified in this report, evaporation of the water at the TMI site, followed by the solidification and disposal of the remaining low-level radioactive solids **will not significantly affect the quality of the human environment.**



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Fifteen Options Rejected\*

Ocean Disposal	Disposal at the Oak Ridge National Laboratory Hydrofracturing Facility
Pond evaporation onsite	Reuse
Distillation and solidification of the distillate	Land spraying at the Nevada Test Site (NTS)
Distillation followed by open cycle evaporation	Combined catalytic exchange treatment
Onsite cooling tower evaporation and concentrates disposal to the river	Water distillation treatment
Deep-well injection at Three Mile Island	High-altitude disposal
Deep well injection at the Nevada Test Site	Open cycle evaporation at Maxey Flats, Kentucky
Crib disposal at Hanford	

\* Discussion of reasons are provided on a separate handout

## C. Negin Personal Observations

- ❑ Several evaluations of isotopic separation for waste water were negative; leads me to conclude the same will result for Fukushima Daiichi
- ❑ The NRC's health and safety summary of acceptable options leads me to infer the same will result for Fukushima Daiichi
- ❑ If not allowed to discharge to the ocean at the site, barging to a selected location reasonably offshore should be an option.
- ❑ Regarding Evaporation
  - Operation at the site must consider weather conditions for condensation on the site as well as rain and snow
  - Evaporation could also be done offshore, but would be costly to install and operate on a ship or barge



**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Stakeholder Involvement at TMI-2

- ☐ Press Briefings; immediately after the accident
- ☐ Information meeting with residents in the beginning
- ☐ Advisory Panel formed November 1980, 20 months after the accident
- ☐ Public invited to submit comments on the Programmatic Environmental Impact Statement (PEIS)
- ☐ Eight State agencies were invited to comment on the PEIS



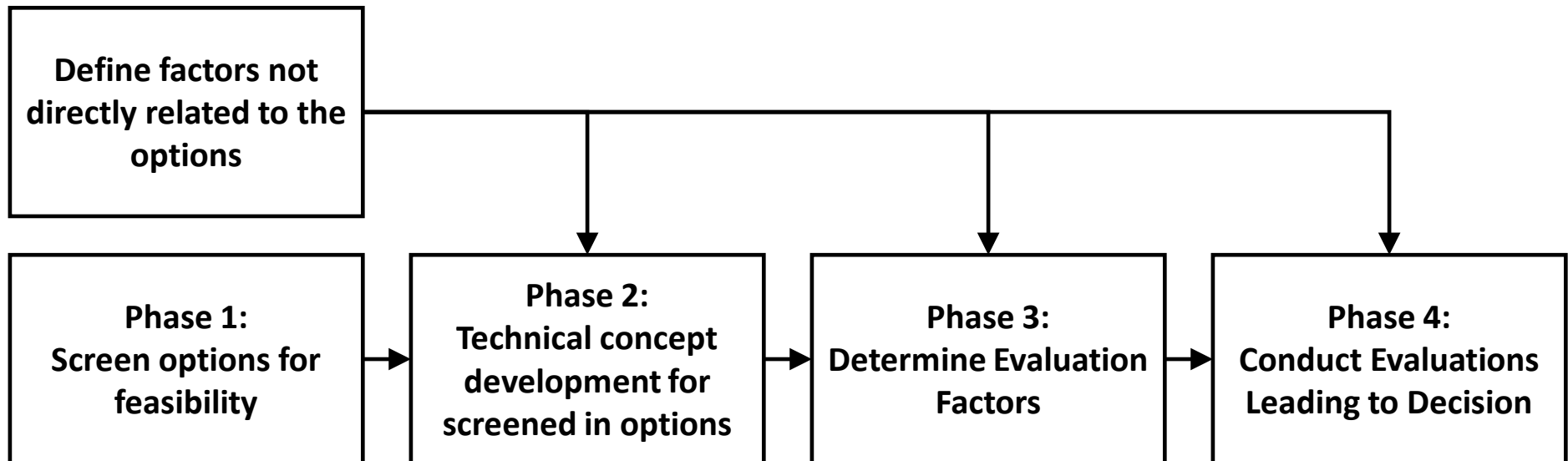
**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Considerations for the Path Forward

- ❑ Factors that can affect evaluations
- ❑ Technical sequence for evaluating options:
  - “Screening” to reduce the number options to be evaluated
  - Develop sufficient details for those remaining to support the evaluation
  - Conduct evaluation of the impacts to support decisions



**EM** Environmental Management

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Examples of Factors not Directly Related to the Options

- ☐ Criteria for what is acceptable with regard to dose impact, population dose, maximum exposed individual, and worker
- ☐ Pathways analysis; describe steps, analytical methods to be used, form of results, etc. for dose to humans via all exposure paths for tritium
- ☐ Organization and Stakeholders:
  - Who has prime responsibility for conducting evaluations? NRA? METI? TEPCO?
  - Who will do an independent review of the analysis, what are required qualifications, the review approach, etc.
  - Is a qualified stakeholder group to be involved in following the analyses (like the NRC's advisory panel)?
  - Prefectures' review and public comment submittal and response
- ☐ Interpretation of the London convention; is this "dumping waste" if concentrations are similar to standard discharges from operating plants?
- ☐ Impacts of "no action" (continued storage) for the long term
- ☐ Elements of a monitoring program once an option is selected for implementation



# Phase 1: Screen Options for Feasibility (1)

1. Identify all options to be screened identifying the combination of the following phases as applicable to each
  - Processing/conditioning
  - Packaging/containerizing
  - Transportation
  - Disposal of tritium, other radionuclides (Cs, Sr, etc), and other constituents (e.g., borate)
2. Decide on technical screening factors, such as:
  - Past experience with the method
  - Technology maturity, degree of R&D needed
  - Technical data needed (example, geological conditions for deep well disposal)
  - Will a demonstration pilot plant be needed?
  - Processing rate



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Phase 1: Screen Options for Feasibility (2)

3. Decide on project implementation screening factors, such as:
  - Order of magnitude cost
  - Timeline
  - Effect on other operations
4. Conduct screening (Example: Judgment; maybe Kepner-Tregoe method)
  - Decide if any can be eliminated outright as not feasible
  - Conduct screening to select those for detailed evaluation

# Screening Evaluation Approach

- ☐ What is the Kepner-Tregoe Method?
- ☐ Partially shown in the Criteria and Scoring viewgraphs #10 through #14 in the March 13 presentation by Stuart Knipe
- ☐ Scoring and ranking is done by a knowledgeable group of individuals
- ☐ When ranking is completed, the final step is to adjust using judgment to consider less tangible factors

## Phase 2: Technical Concept Development

1. Describe functions and steps
2. Concept description identifying facilities, systems, and equipment.
3. Overview description of the operations (for example, with high level process flow diagram, etc.).
4. Environmental and public exposure pathways for the release of water considering tritium, other residual radionuclides, total quantity, periods over which the disposal would occur, and other parameters that may be unique to each option.
5. Order of magnitude cost estimate for capital investment, overall project management, operations, and other important cost elements.



**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Phase 3: Determine Evaluation Factors

## 1. Environmental Resource

### Impact factors

- Land use
- Geology and soils
- Noise
- Greenhouse gas
- Air Quality
- Socioeconomic
- Water resources
- Historical preservation
- Biological resources
- Transportation safety
- Traffic impact

## 2. Human Health and Safety Factors

- Bone dose to the offsite population
- Total body dose to the offsite population
- Thyroid dose to the offsite population
- Estimated number of radiation-caused cancer fatalities to the offsite population
- Estimated number of radiation-caused genetic disorders to the offsite population
- Occupational dose
- Estimated number of radiation-caused cancer fatalities to the worker population
- Maximum individual dose from accidents
- Population dose from accidents

## 3. Implementation factors

- Laws, treaties, regulations, and standards that could be a barrier
- Radioactive waste burial ground volume
- Cost
- Time to complete



**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Phase 4: Conduct Evaluations & Decide

1. Evaluate screened options for the selected factors and draft the results
2. Submit for prefecture review and public comment
3. Resolve prefecture and public comments (could require including an option that was screened out)
4. Recommend one or more options for implementation
5. Decide

# At the Hanford Site

- ❑ Disposal of low tritium concentration, high volume tritiated water at Hanford
- ❑ Overall conclusion was that tritium removal technologies are not economically viable for the large volumes of water with low concentrations.
- ❑ Deep well injection selected
- ❑ From December 1995, through August 2010, approximately 416 (15.4 tBq) curies of tritium were discharged in  $10^9$  liters of water; the concentrations were very low compared with TMI-2.
- ❑ Pacific Northwest National Laboratory is the best source for further details.

Technology	Year Report Prepared						
	1994	1995	1997	1999	2001	2004	2009
Distillation	D, h		D, h	D, h	D, h	D, h	D, h
Gaseous diffusion	D, h						
Laser isotope separation	T, h	T, h	T, h				
Electrolysis	D, h	D, h	D, h				
Combined electrolysis and catalytic exchange (CECE)	D, h	D, h T, l	D, h T, l	D, h T, l	D, h T, l	D, h T, l	D, h T, l
Combined electrolysis catalytic exchange with vapor phase catalytic exchange					D, h		
Membrane separation process	T, l	T, l	T, l				
Cryogenic distillation	D, h	D, h	D, h	D, h	D, h		
Bithermal catalytic exchange		D, h T, l		D, h T, l	D, h T, l	D, h T, l	D, h T, l
Isotopic exchange, air sparge		T, l					
Finely divided nickel catalyst		O					
Separation by Metanetix Inc.		O					
Substituted naphthalene		O					
Crown Ether Complexes		O					
Girdler-sulfide Process			D, h	D, h	D, h	D, h	D, h
Palladium Membrane Reactor							D, h
GE Integrated Systems							D, h
Liquid phase catalytic exchange with solid oxide electrolyte			D, h	D, h T, l	D, h T, l		
Liquid phase catalytic exchange with high-temperature steam electrolysis (Hot Elly)			D, h				
Sulfur resin ion exchange			O				
Metal hydride exchange			T, h				
Soil column discharge	D, l, h		D, l, h	D, l, h	D, l, h	D, l, h	D, l, h
Barrier formation			O	D, l, h	D, l, h	D, l, h	D, l, h
Air sparging			T, l				
Dual-temperature liquid-phase catalytic exchange				D, h			
Tritium resin separation process				T, l	T, l	T, l	T, l
Kinetic-isotope effect for concentrating tritium				T, l	T, l		
Pumping and recharging				D, l	D, l	D, l	D, l
Phytoremediation					D, l	D, l	D, l
Evaporation						D, l	D, l

#### Maturity:

D = Demonstrated or developed technology that has been successfully applied in the field  
 T = Testing or theoretical stage of development  
 O = Observation indicates a potential process needing funding to continue

#### Applicability:

l = Technology is applicable to larger wastewater volumes having lower levels of tritium (less than  $1.0\text{E-}05$  Ci/L)  
 h = Technology is applicable to smaller wastewater volumes having higher levels of tritium (greater than  $1.0\text{E-}05$  Ci/L)



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# At the Savannah River Site

- ❑ From Task Force Meeting 1 presentation
  - Overview of the Savannah River Site
  - Status and Practicality of Detritiation WSRC-RP-96-0075 is related to environmental remediation
- ❑ P Reactor Disassembly Basin Evaporation during In Situ Decommissioning (Entombment) in 2010
- ❑ Tritium Separation Processes
- ❑ Savannah River National Laboratories is the best source for further details

# TMI-2 Evaporation Operations

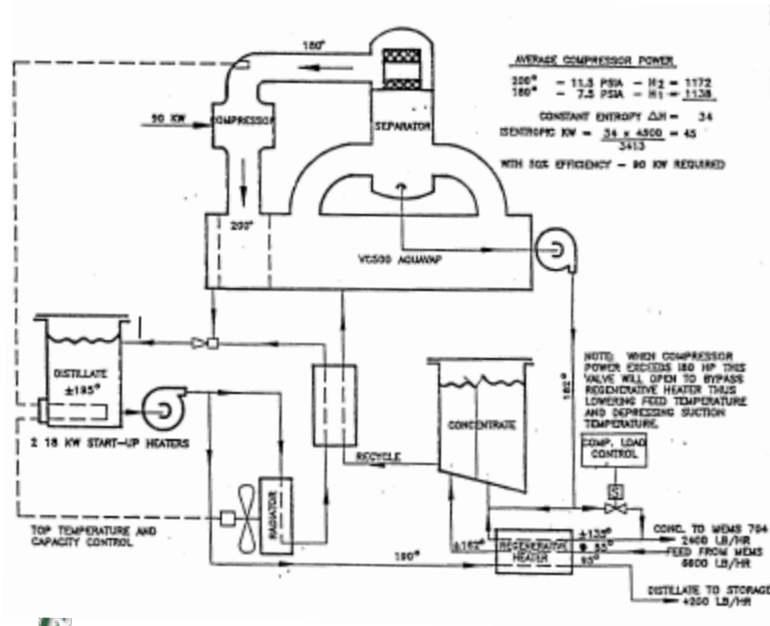
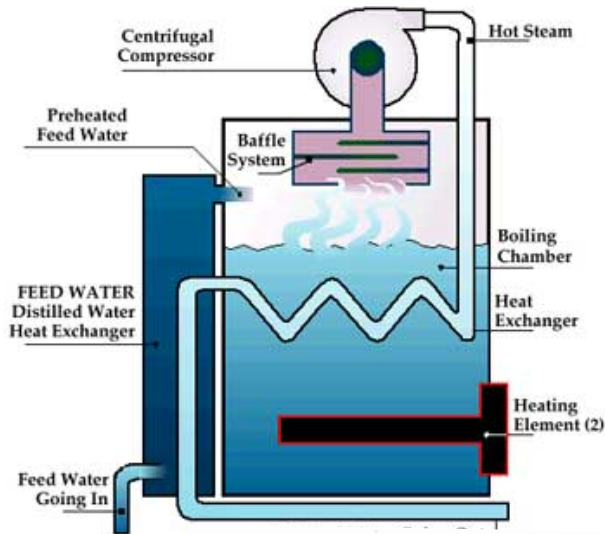


**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Vapor Compression Distillation

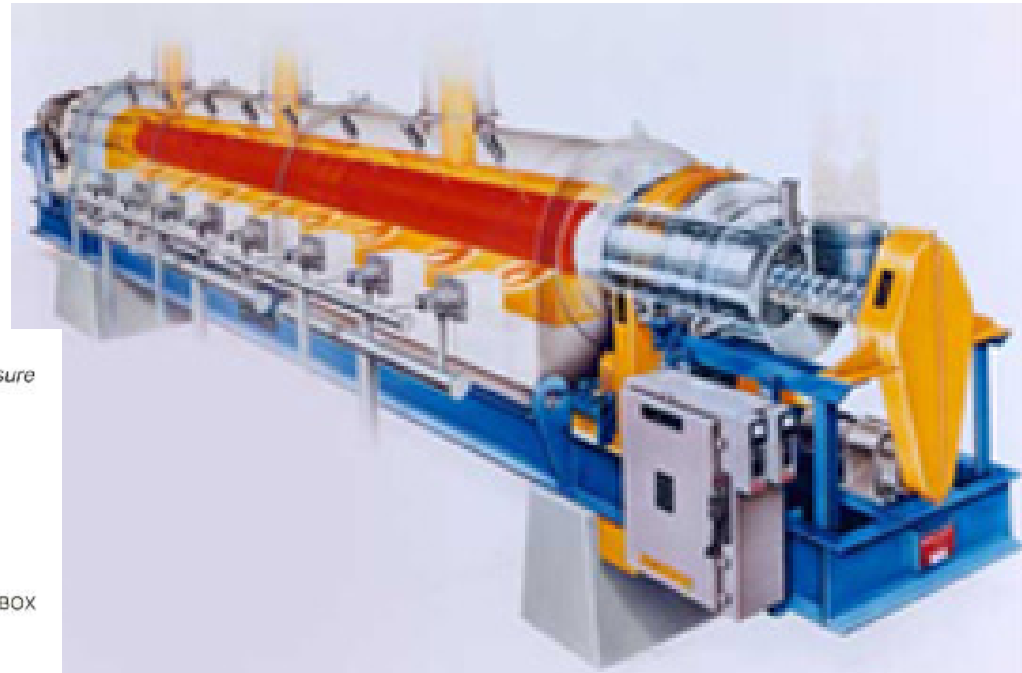
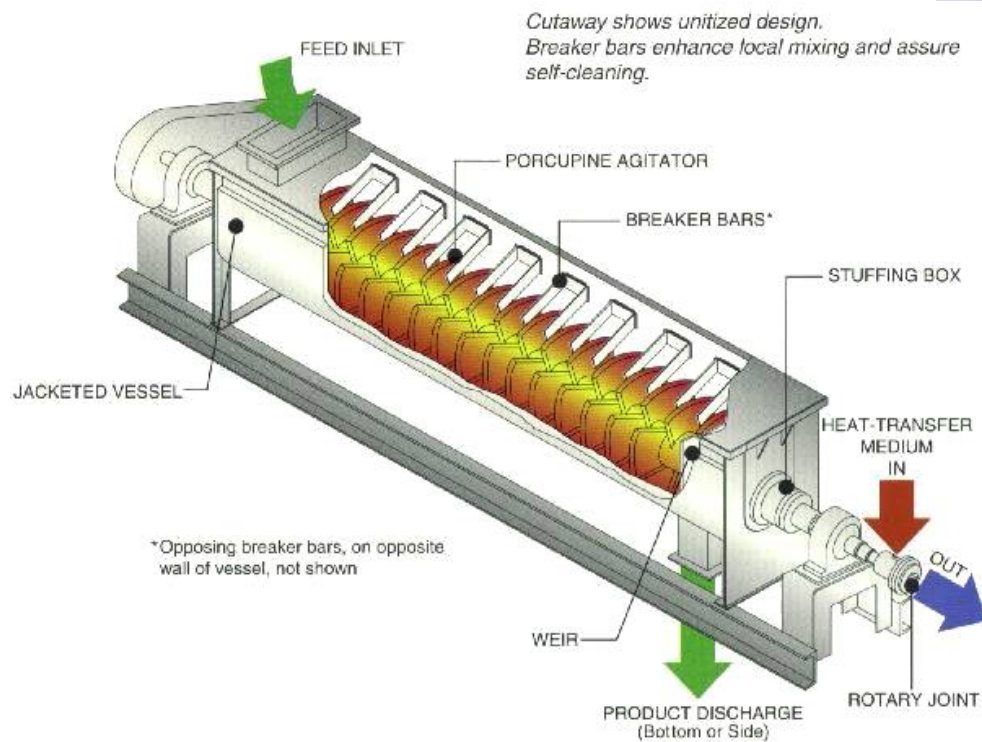


**EM Environmental Management**

safety ♦ performance ♦ cleanup ♦ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Calciner

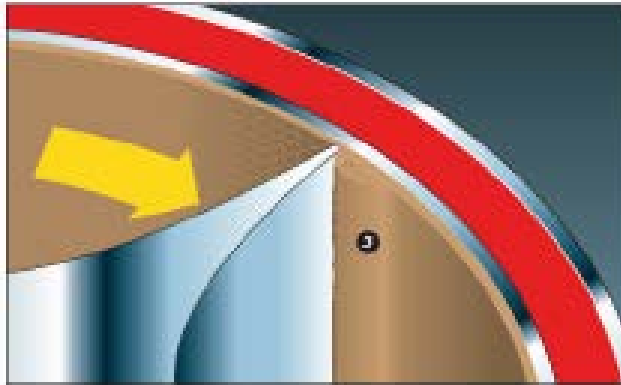


**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Wiped Film Evaporator



An inherently simple device, the LCI agitated thin-film processor consists of two major assemblies: a heated body and a rotor. Product enters ❶ above the heated zone and is evenly distributed over the unit's inner surface by the rotor. As the product spins ❷ down the wall, bow waves ❸ developed by the rotor blades generate highly turbulent flow, resulting in optimum heat flux and mass transfer.

Volatile components are rapidly evaporated. Vapors flow either countercurrently ❹ or co-currently ❺ through the unit, depending on the application. In both cases, vapors are ready for condensing or subsequent processing.

Nonvolatile components are discharged at the outlet ❻. Continuous washing by the bow waves minimizes fouling of the thermal wall where product or residue is concentrated most.

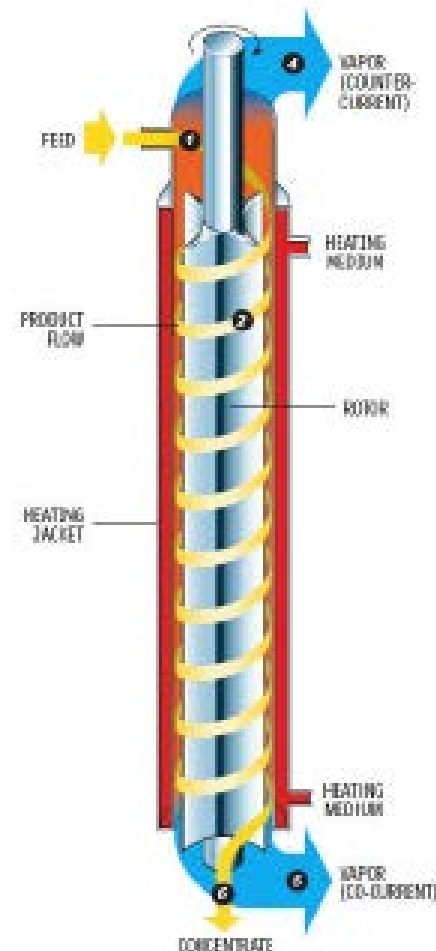
The combination of  extremely short residence time  high turbulence  narrow residence time distribution  rapid surface renewal

permits the LCI thin-film evaporator to successfully handle heat-sensitive, viscous, and fouling-type fluids.

## HEAT TRANSFER RATES VS. PROCESS PARAMETERS

System design must consider many variables such as feed rate, temperature, rotor speed, blade clearance, wall thickness, construction materials, and the physical and thermodynamic properties of processed materials.

These variables are interrelated in how they affect performance. Selecting the optimum combination to best solve your processing problems is just one of LCI's valuable services.



CONCEPTUAL REPRESENTATION OF A VERTICAL AGITATED THIN-FILM PROCESSOR

Source: <http://www.lciexp.com/en/products.html>

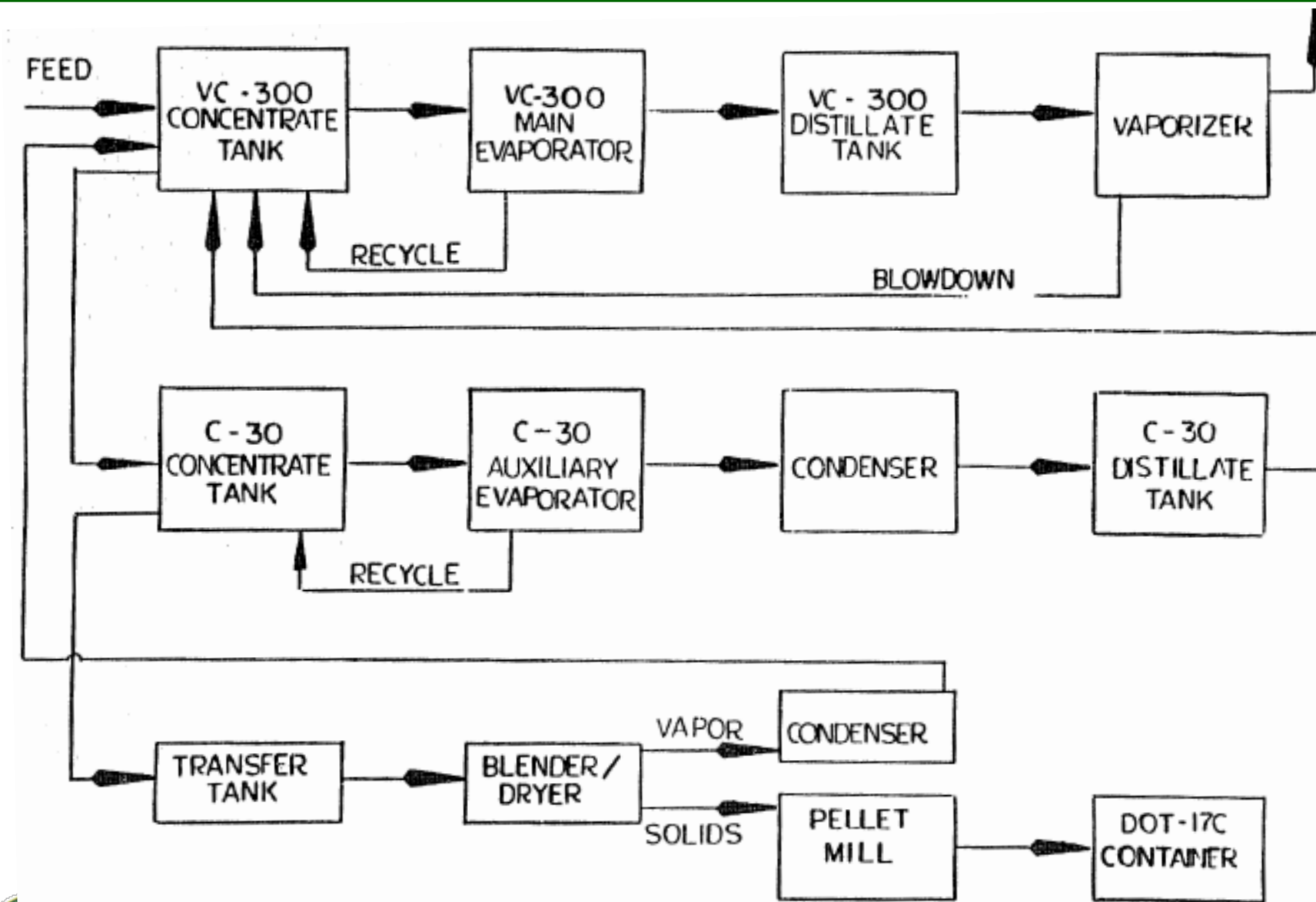


**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)

# Process Water Disposal System Block Diagram





# Block Diagram Description

The PWDS disposed of the AGW via a two-stage evaporation process.

The PWDS consists of:

1. a vapor recompression distillation unit (main evaporator) that distilled the processed water in a closed cycle and recycled the purified distillate for subsequent release by vaporization;
2. an auxiliary evaporator that further concentrated the bottoms from the main evaporator;
3. a flash vaporizer unit that heated and vaporized the purified distillate from the main evaporator and released the vapor to the atmosphere in a controlled and monitored manner;
4. a waste dryer that further evaporated water from the concentrated waste, and produced a dry solid: and
5. a packaging system that prepared the dry solid waste in containers acceptable for shipment and burial in a commercial low level radioactive waste disposal site.



**EM** *Environmental Management*

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



# Evaporation Timeline

1980	The Susquehanna Valley Alliance, based in Lancaster, successfully prevented GPU/Met Ed from dumping 700,000 gallons (2650 metric ton) of radioactive water into the Susquehanna River.
December 1990	GPU began evaporating 2.3 million gallons (8706 metric tons) of accident generated radioactive water (AGW). The evaporator was shut down two days after operations commenced due to mechanical problems.
January 1991	The evaporator was shut down four times due to electrical and mechanical "difficulties."
February 1991	An operator "inadvertently flooded the vaporizer" and several days later an operator was discovered "apparently sleeping."
March, 1991	A "small quantity of accident generated water was vaporized" without being processed.
April-May 1991	The evaporator was shut down for most of this period so GPU could "rewrite the main operating procedure." The Nuclear Regulatory Commission (NRC) issued a Notice of Violation related to evaporator operations
February 1992	The evaporator was shut down again due to the failure of the blender dryer. Replacement of the blender was delayed until August.
May 1992	GPU decided to use a "temporary" blender-dryer until a permanent replacement was installed in August..
August-Sept. 1992	Some of the water in the evaporator's borated water storage tank was "processed" twice due to "slightly higher activity levels."
Nov. 1992	Approximately 600,000 gallons (2271 metric tons) of AGW was processed twice due to "slightly higher activity levels."
August, 1993	Evaporation of 2.3 million gallon (8706 metric tons) of AGW was completed over six months behind schedule. The evaporator will be disassembled and removed from the site by October, 1993.
October 28, 1993	According to the Pennsylvania Department of Environmental Resources, the total activity during evaporation was 658 curies (24.3 teraBq)of tritium or 1 to 1.3 mR (.01 to .013 mSv) dose to the public.



**EM Environmental Management**

safety ❖ performance ❖ cleanup ❖ closure

[www.em.doe.gov](http://www.em.doe.gov)



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions

# Overview of Stakeholder Dialogue

Steve Robinson

Managing Director

SJR Strategic Consulting Ltd

# Steve Robinson & Stakeholder Dialogue



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions



WORLD INSTITUTE FOR  
NUCLEAR SECURITY

# Disagreement & Conflict



STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions



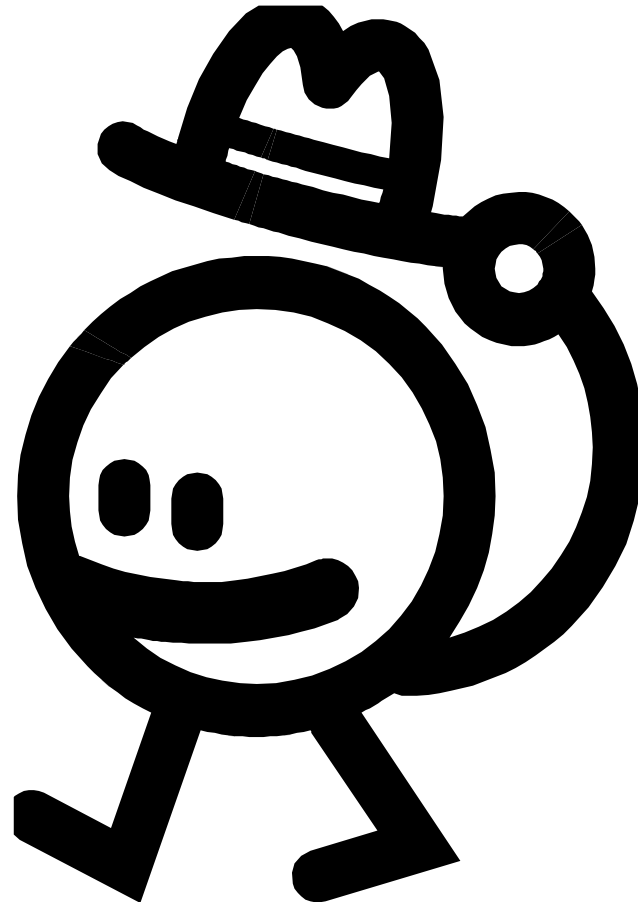
# Building Trust



STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions

**RESPECT**



# Stakeholder Dialogue shows Respect



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions

Fielding competent & committed senior team

Empathising with and actively listening to Participants

Developing and using consensual statements

Showing confidence and allowing budget

Jointly agreeing Aims & Agendas and being flexible

Giving feedback on dialogue-informed decisions

# Relevance to Nuclear



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions

Situations complex & Trust may be low

Choices are difficult

Many Parties could be affected

Many Parties have a 'Stake'

Stated 'Positions' will differ



# Two approaches to difficult decisions



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions

## 1. Telling People



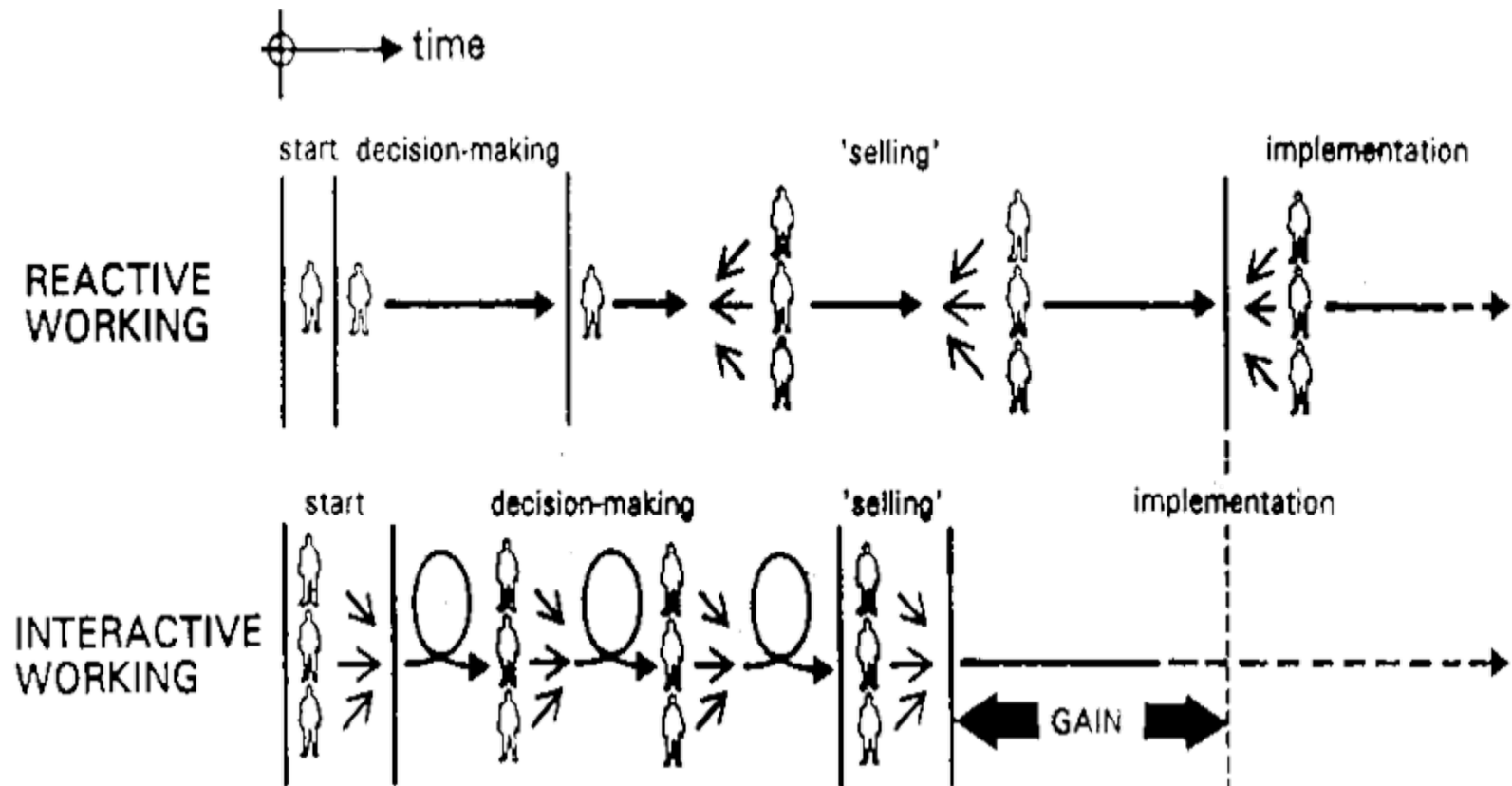
## 2. Involving People



# Involving has Benefits



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions



Source: Allen Hickling

# Benefits



STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions

Confront the Issues not each other

Wider Understanding & TRUST

Retained Disagreements

Wider Ownership

More Informed Decisions

Reduced legal & other costs of conflict

Less stress on key staff

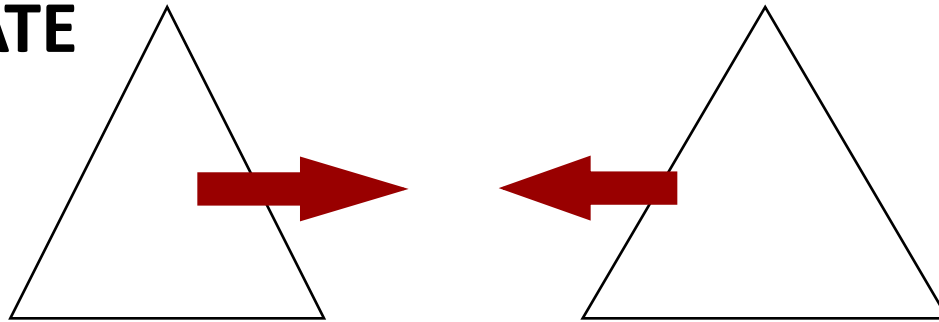
# Dialogue Vs Debate



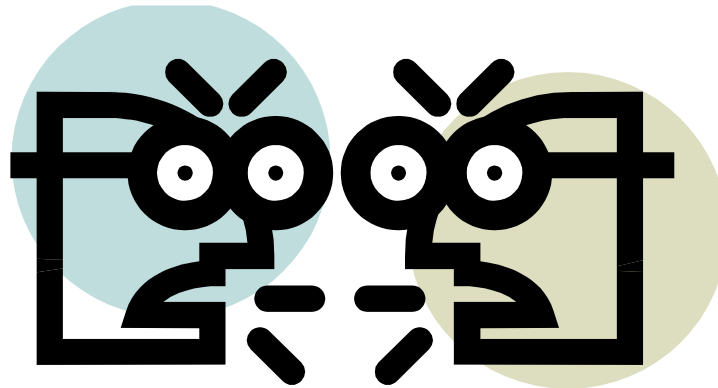
STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions

**DEBATE**



Positions

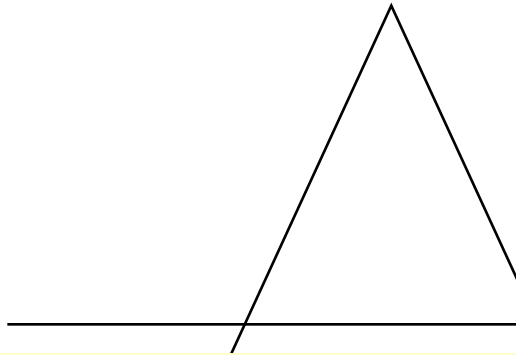


# Dialogue Vs Debate



STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions

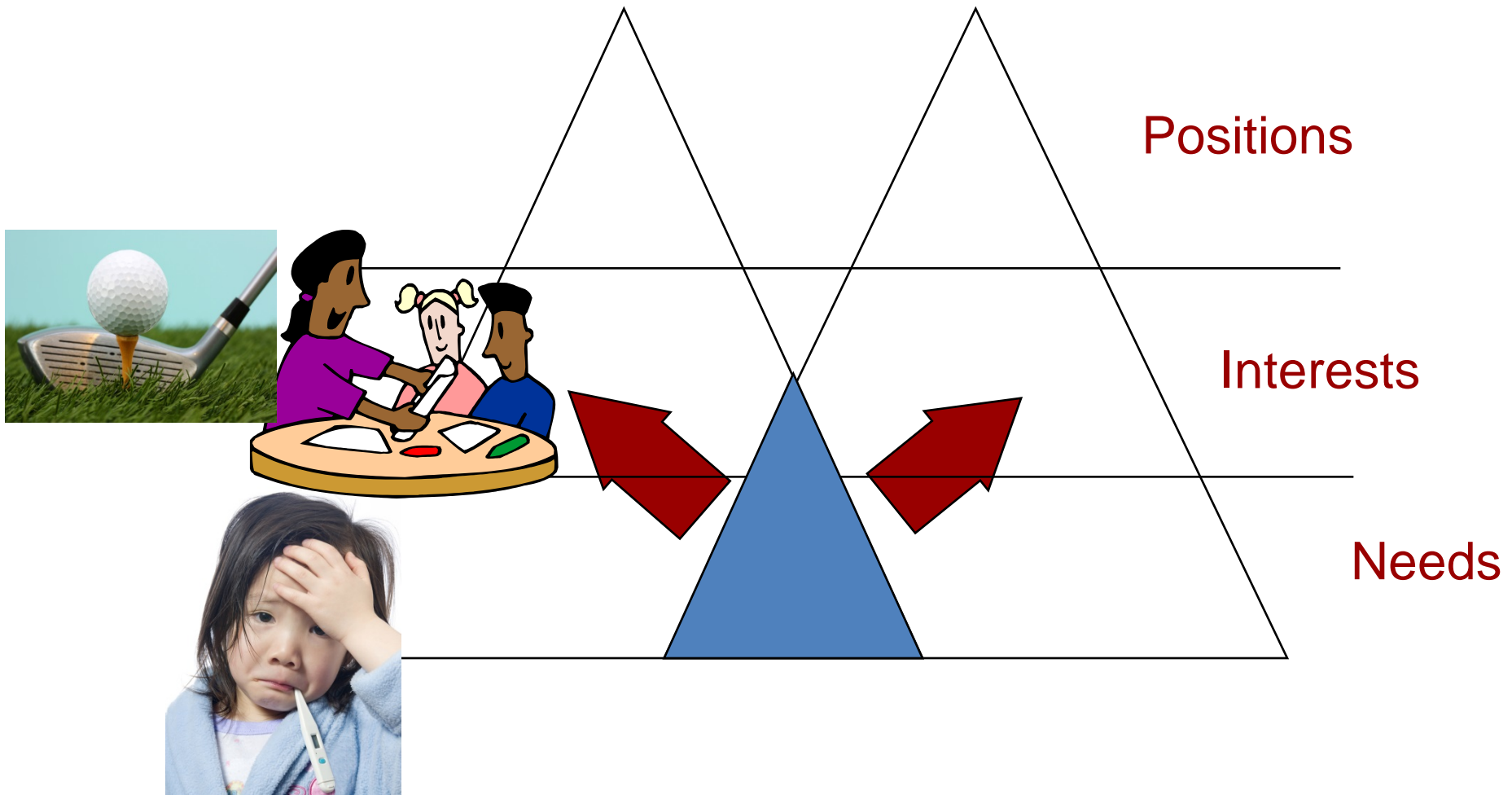


# Build on Common Ground



STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions





# Working together



STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions





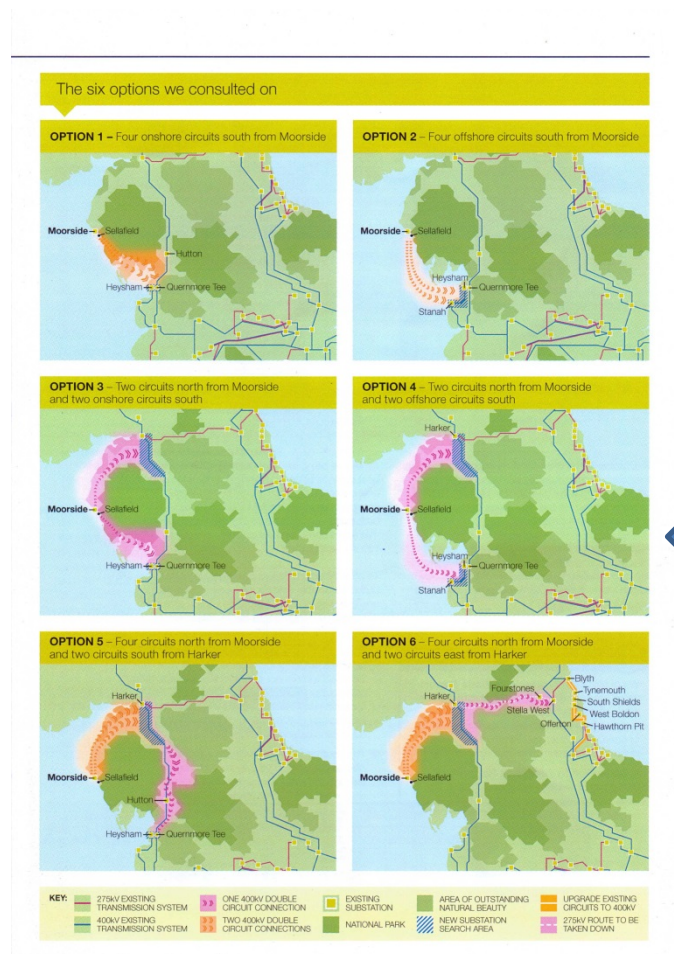
# Early Dialogue – Strategic Options



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions

## 6 Strategic Connection Options

↔  
c85Km



**Options  
3 & 4  
Preferred**

# Sellafield Discharges

- Discussed at great length in our stakeholder dialogues & learning is:
  1. There are many Marine Stakeholders including nearby countries
  2. Regulators can participate in discussions
  3. Short term higher discharges were tolerable if from the 'balancing benefit' of speeding up decommissioning or reducing hazard

# NDA & Bellona



STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions

- I know this discussion is about tritium, but if we take radioactive discharges in general the example of the 'InfoArena' dialogue involving NDA, Sellafield Ltd from UK & Bellona and others from Norway is interesting

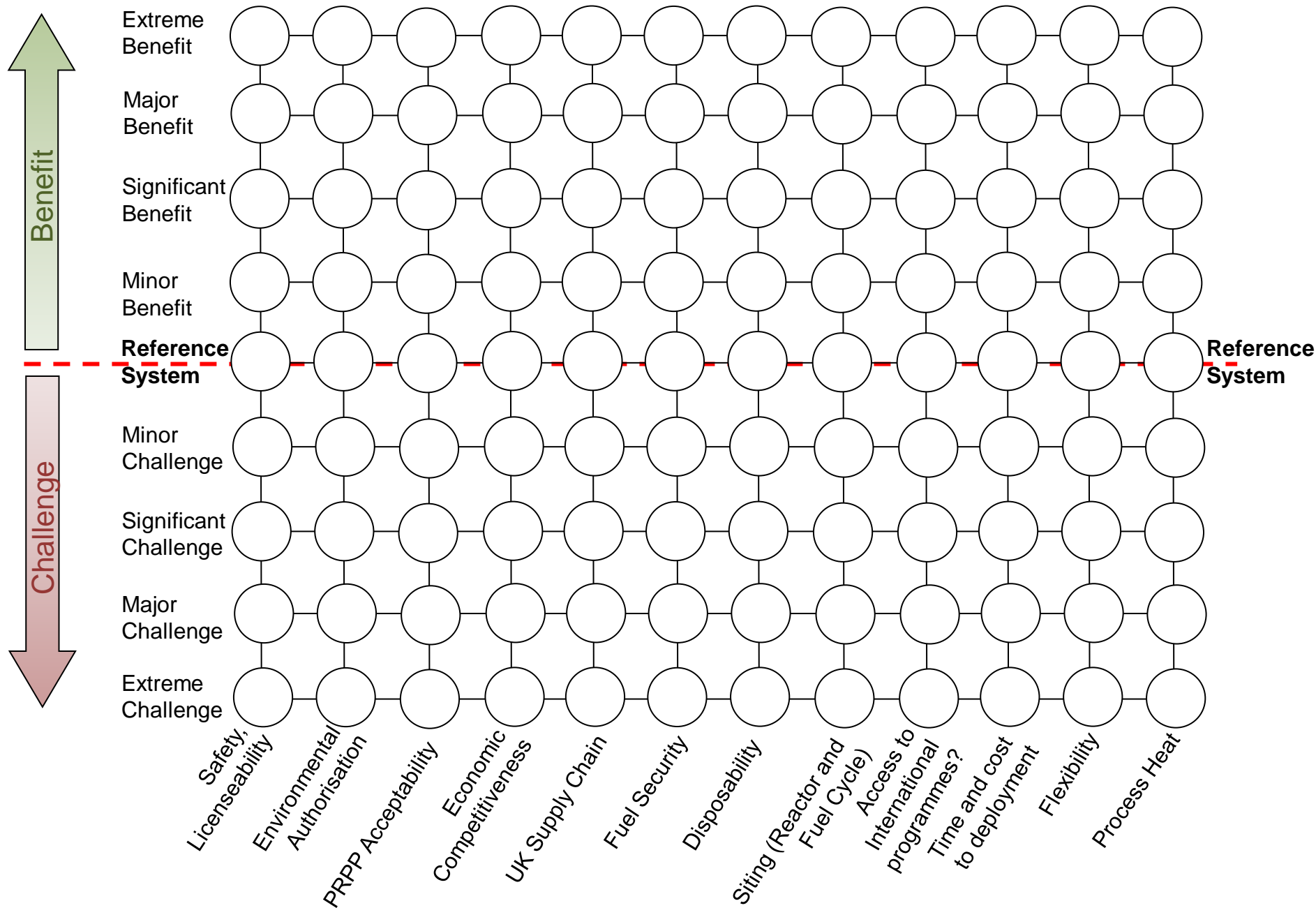
# Tritium



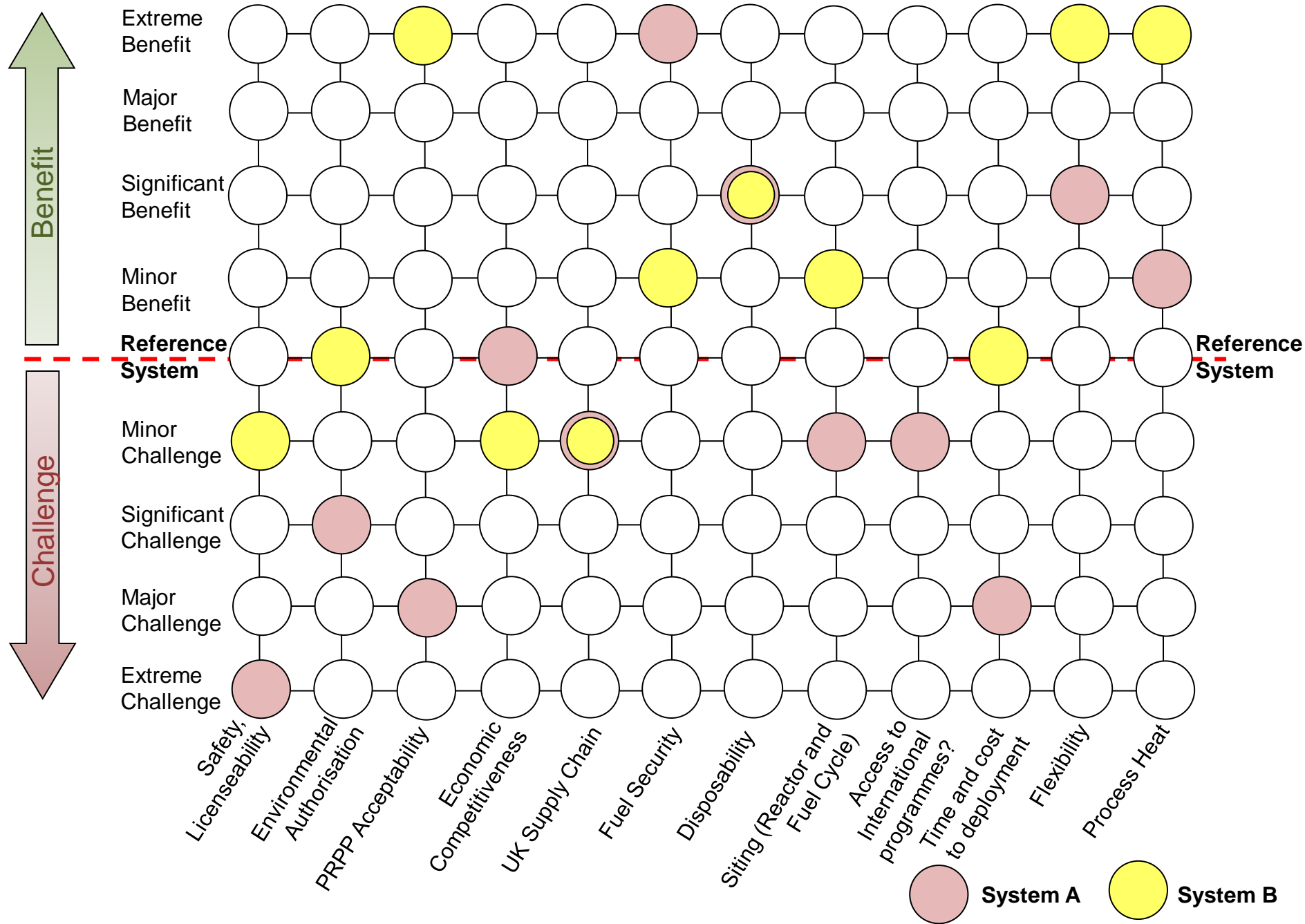
STRATEGIC CONSULTING LTD  
Responsible decisions • Sustainable actions

- There are obviously many different options for dealing with this issue, and one of the challenges is to work out a suitable process to come to a conclusion.
- You may be interested in this system, which we have used in the UK to distinguish between reactor systems

## Strategic Attributes Versus Reference System



# Strategic Attributes Versus Once-through LWR Reference System

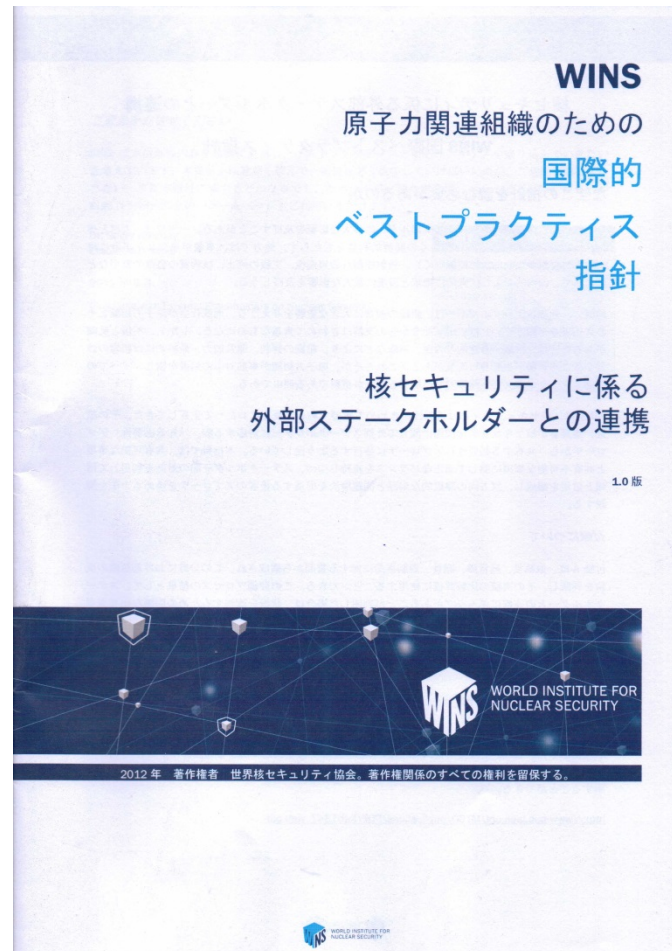


# WINS

## Best Practice Guide



**STRATEGIC CONSULTING LTD**  
Responsible decisions • Sustainable actions



Available to  
Members from  
[www.WINS.org](http://www.WINS.org)  
Membership is free



# Contact



STRATEGIC CONSULTING LTD

Responsible decisions • Sustainable actions

Steve Robinson

SJR Strategic Consulting Ltd

[steve@sjrscLtd.com](mailto:steve@sjrscLtd.com)

t. +44 20 8878 9362

m +44 79 63 948 761

# Tritium

## The French situation

Jean-Luc LACHAUME  
Deputy Director General  
ASN

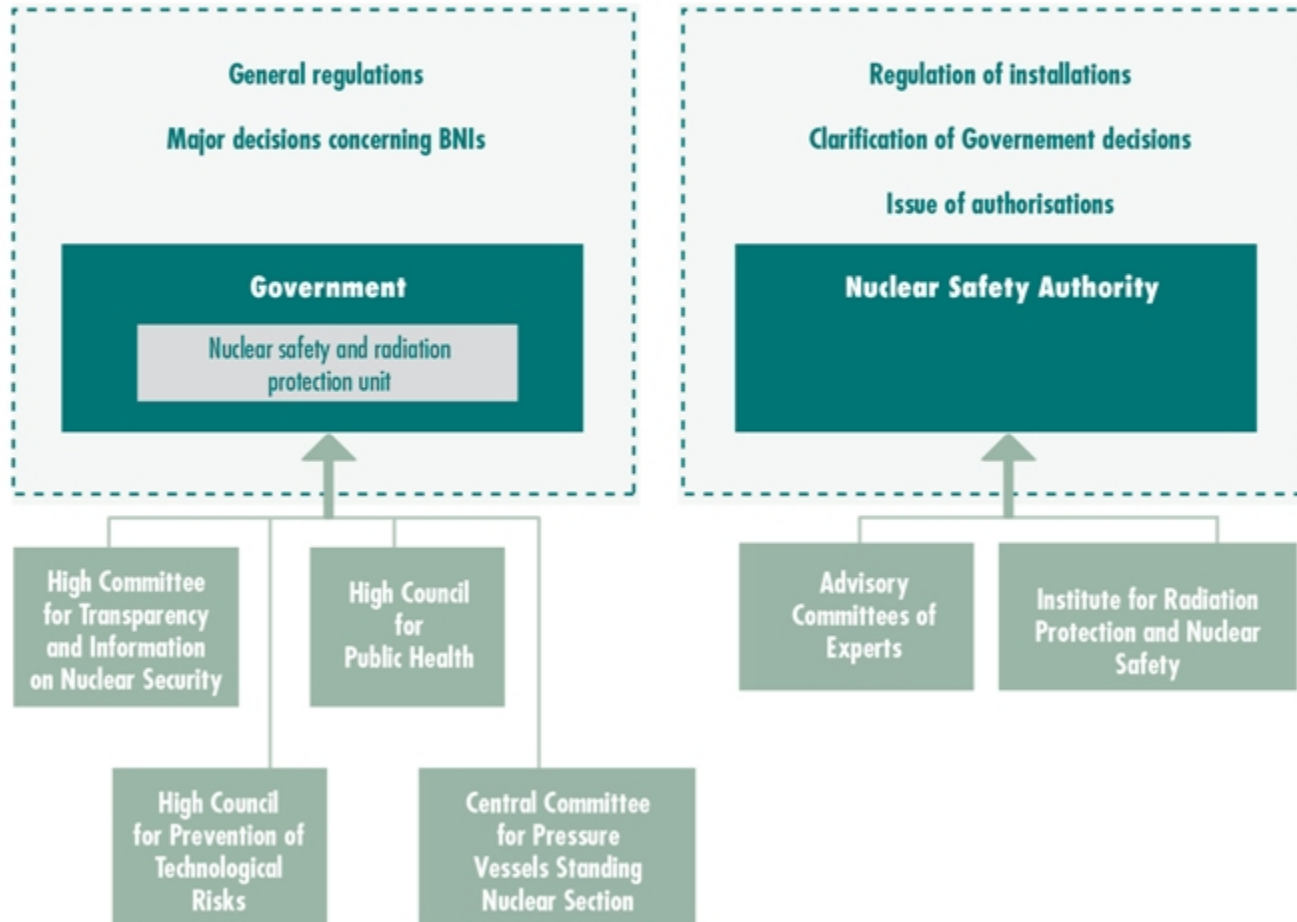
- The regulation of the discharges of tritium from nuclear facilities in France
- The tritium controversy in France  
=> « The Tritium white book »

# The regulation of the discharges of tritium from nuclear facilities in France

# Regulation of the discharges of tritium from nuclear facilities

Regulation of nuclear safety and radiation protection in France

Parliament  
Parliamentary Office  
for the Assessment of Scientific and Technological Options





- **A board of 5 commissioners**

- A full-time job
- A non-renewable 6 year mandate

ASN Chairman:

Pierre-Franck Chevet (appointed in 2012 for 6 years)

Commissioners:

Michel Bourguignon (appointed in 2008 for 6 years)

Jean-Jacques Dumont (appointed in 2010 for 6 years)

Philippe Jamet (appointed in 2010 for 6 years)

Margot Tirmarche (appointed in 2012 for 6 years)



Designated by



President of the Republic

President of the Senate

President of the National Assembly

- **ASN Commission Tasks:**

- Defines ASN general policy
- Takes the major decisions
- Adopts public statements on key issues within ASN competence

# Regulation of the discharges of tritium from nuclear facilities

## ASN duties

**Regulates**

**Authorizes**

**Controls: inspections and enforcement actions**

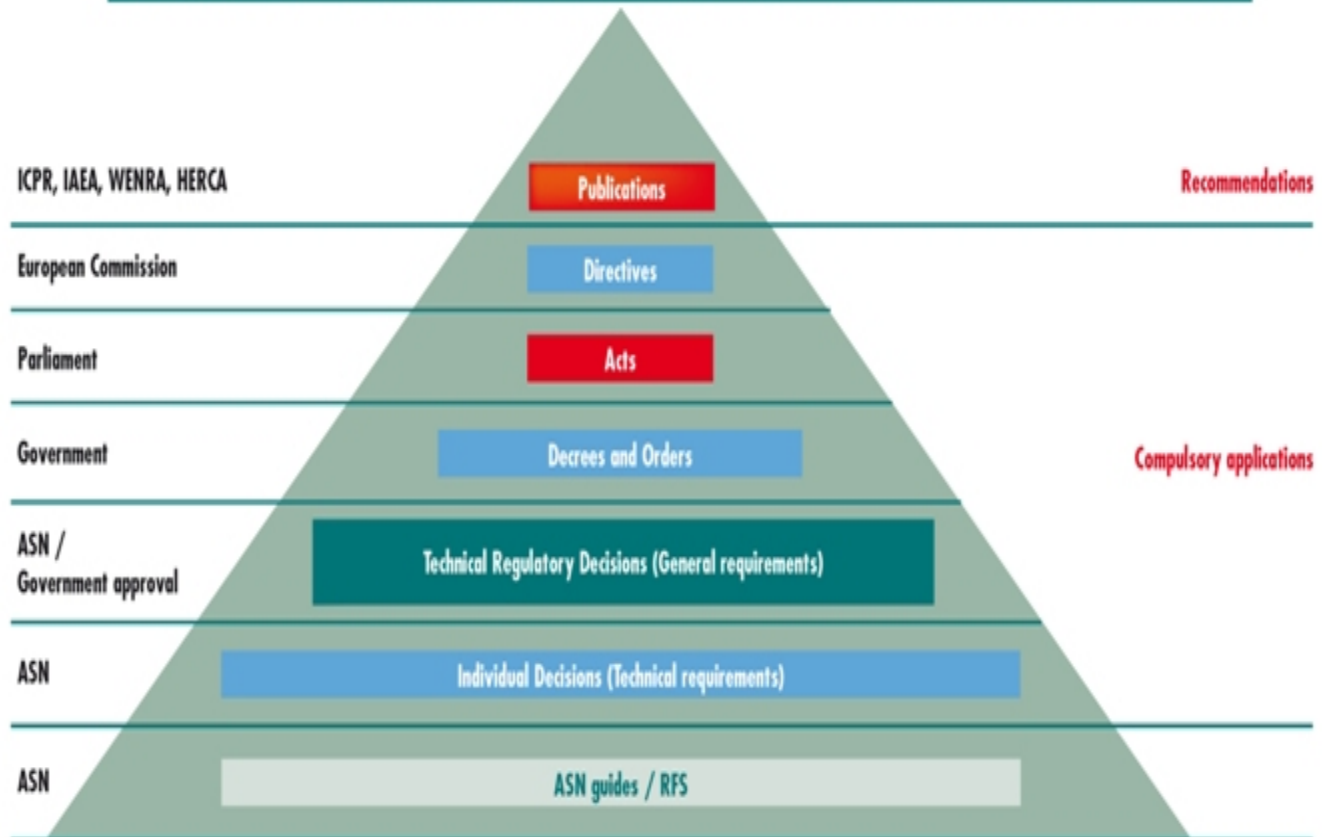
**Contributes to the emergency situations response**

**Informs the public**

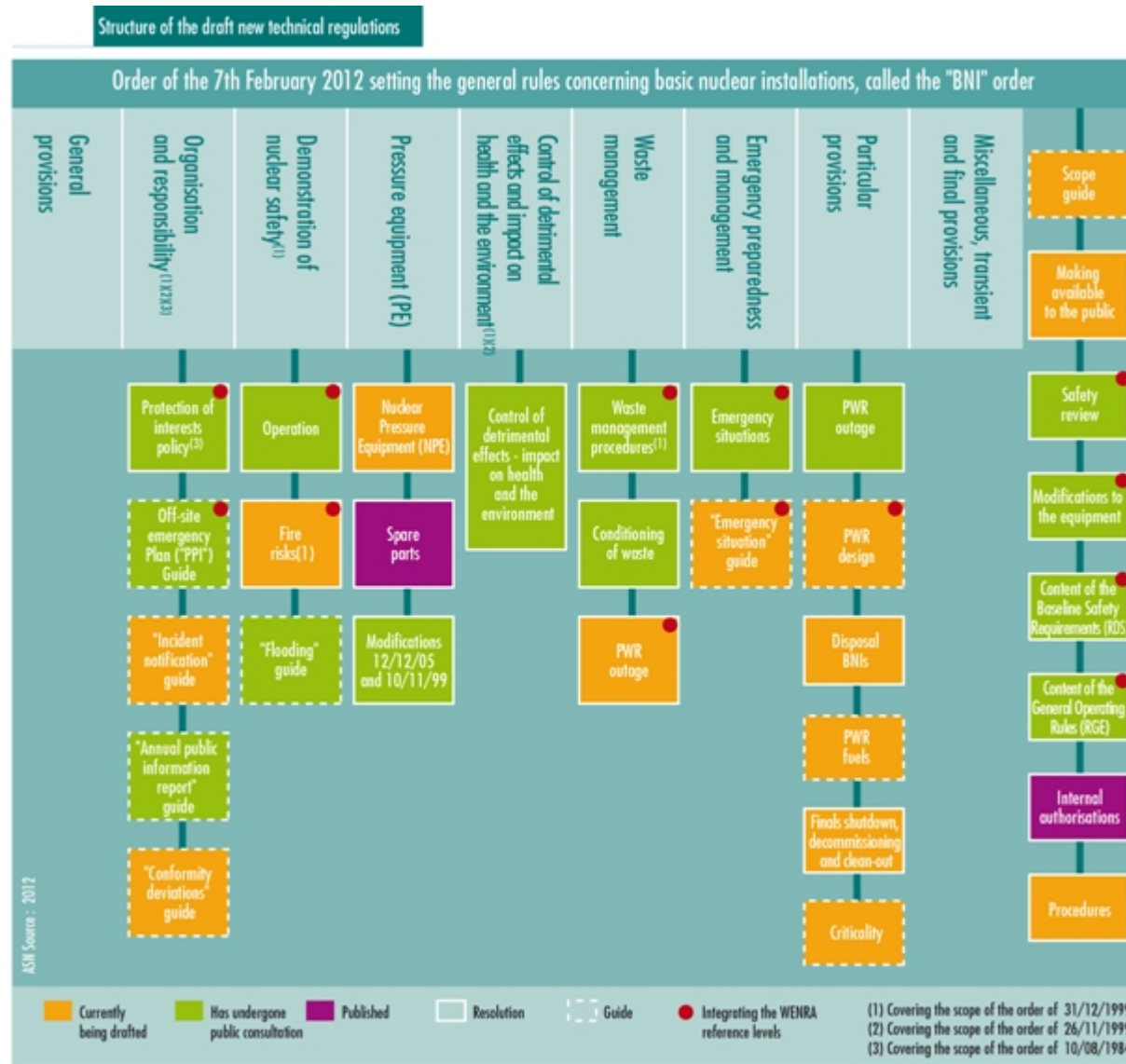


# Regulation of the releases of tritium from nuclear facilities

Various levels of regulation in the field of small-scale nuclear activities in France (orientations, recommendations): legally binding or non-binding nature



# Regulation of the discharges of tritium from nuclear facilities



## Regulation of the discharges of tritium from nuclear facilities

- For each nuclear installation in France, there are two ASN's resolutions
  - water intake and discharges limits (gaseous, liquid)
  - general requirements (water intake, discharges operations, environmental and discharges monitoring...)
- The limit values for emissions, water intakes, and effluent discharges from the installation are set on the basis of the best available techniques under technically and economically acceptable conditions, considering the characteristics of the installation, its geographical location and the local environmental conditions

- Gaseous discharges:
  - Usual limits (NPP) :
    - Yearly total discharged activity: 5 TBq (2 reactors), 8 TBq (4 reactors)
    - Weekly added volume activity, estimated after dispersion at ground level: 50 Bq/m<sup>3</sup>
  - Control:
    - Sampling at the stack with bubbling systems (2 jars), measurements for each period (7 to 10 days), DL = 40 Bq/m<sup>3</sup>

- Liquid discharges (NPP) :
  - Usual limits:
    - 40/45 TBq (2 reactors)
    - discharged activity in the river (mixing area) : Volume activity in the river shall not be above: 280 Bq/l
- Control:
  - Measurement of each tank before discharge:  $DL=200 \text{ Bq/l}$
  - Sampling at discharge location and measurement in laboratory
  - Sampling in the river at the “well mixed” location and measurement in laboratory:  $DT \approx 10 \text{ Bq/L}$

## Environment

- Atmosphere:
  - HTO in Air:  $DT \approx 10$  Bq/L
  - HTO in precipitation:  $DT \approx 10$  Bq/L
- Water body:
  - If the water is to be used for human consumption: a tritium activity equal or above 100 Bq/L implies an analysis to verify the absence of artificial radionuclides
  - For other uses:  $DT \approx 10$  Bq/L
  - Piezometer:  $DT \approx 10$  Bq/L

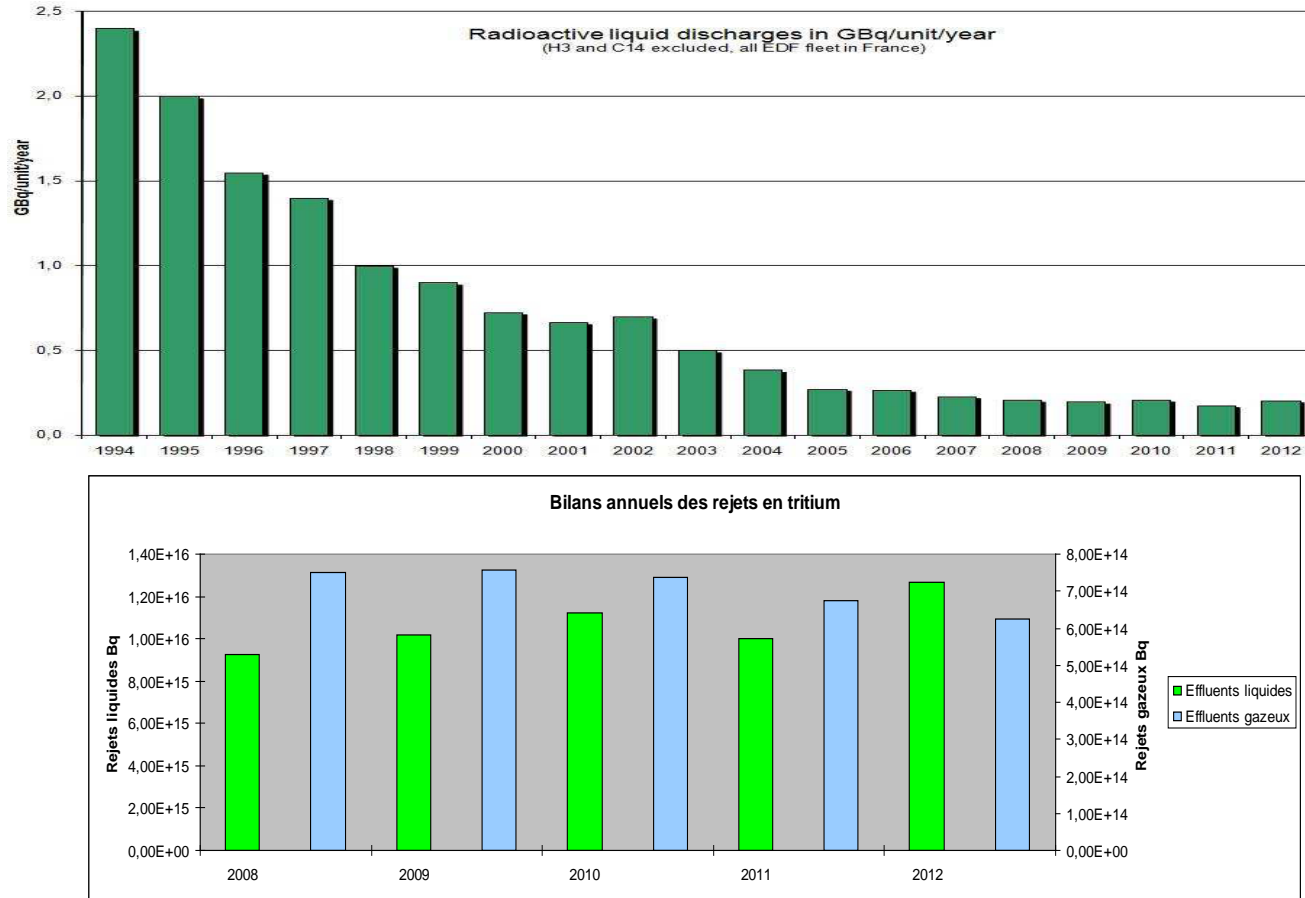
# Regulation of the discharges of tritium from nuclear facilities

## Tritium discharges in France

	Annual average releases	
	Liquid releases (TBq/year)	Air releases (TBq/year)
La Hague	12 000	70
Parc EDF (58 reactors)	1 000	30
Research (CEA)	20 (99% Marcoule)	700 (85% Marcoule and Valduc)



# Conclusion



Radioactive discharges have very much decreased during the last 20 years in France.  
However, Tritium discharges are stable and are an issue for the stakeholders  
=> The tritium white book



# The Tritium white book

## The Tritium “white book”

Context in 2007:

- Global agreement about the low toxicity of tritium and no technical possibilities for treating tritium in the industry; agreement about the low health impact of tritium
- France consider that the way of dealing with tritium should be periodically reviewed
- End of 2007: ASN decided to create two independent working groups with the stakeholders
  - The "tritium impact" group: inventory of the scientific knowledge concerning tritium's impact on health;
  - The "defense in depth" group: state of the art about technical possibilities for treating tritium.

Results:

- A « state-of-art » white book is published the 8th of July 2010
  - <http://www.asn.fr/sites/tritium/>



# The Tritium “white book”

## Tritium Working Groups Recommendations

<http://www.asn.fr/sites/tritium/fichiers/summary-of-work-and-recommendations-tritium-impact.pdf>

**The issue of bioaccumulation**

**Measurements**

**Health effects of tritium**

<http://www.asn.fr/sites/tritium/fichiers/summary-of-work-and-recommendations-defence.pdf>

**Recommendations from the “Tritium Impact” working group**

**All these recommendations are taken into account in the ASN position**

<http://www.asn.fr/sites/tritium/fichiers/position-and-action-plan.pdf>

# The Tritium “white book”

## ASN position

### 1 ASN action plan

#### 1.1 Measurements

There is currently no standardised measurement protocol for the various physico-chemical forms of tritium, in particular the various organic forms of tritium (exchangeable and non-exchangeable). The fact that there is no standardised method makes it difficult to interpret existing studies and data. The CEA's CETAMA (commission for the establishment of analysis methods) has started work to define shared and recognised measurement protocols.

In the ASN's view, this work:

- must lead to the production of a guide to the measurement of organically bound tritium;
- is a vital first step prior to launching further studies.

## ASN position

### 1 ASN action plan

#### 1.2 Control of discharges

It is currently felt to be unrealistic to detritiate discharges from nuclear reactors and the La Hague fuel reprocessing plant at an acceptable cost using the best technologies currently available. In addition, detritiation would only have a limited effect on the radiological impact from these facilities. Given the increase observed in tritium discharges from civilian nuclear facilities and the absence of a detritiation method, the ASN, as part of the development of defence in depth, considers that:

- publishing the quantities discharged for each facility on an annual basis will ensure a long-term, reliable inventory of sources of tritium production. The public should be regularly and specifically informed of this inventory of tritium discharges by nuclear operators;
- accounting for discharges from all facilities should continue to be managed in all circumstances, as is the case today;
- a “technology watch” should be set up with respect to detritiation technologies.

# The Tritium “white book”

## ASN position

### 1 ASN action plan

#### 1.3 Environmental monitoring

Tritium monitoring in the environment and throughout the food chain must be supplemented as follows:

- measurements performed must take into account the physico-chemical forms present. The ASN will consequently ask operators to characterise the physico-chemical forms of tritium in the discharges, particularly with regard to any possible organic precursors (small tritiated organic molecules);
- sampling plans in the different compartments of the environment must be undisputed and shared. In particular, the choice of animal and plant species to be measured must be reviewed in order to remove any species bias.



# The Tritium “white book”

## ASN position

### 1 ASN action plan

#### 1.4 Impact assessment

Some studies mention the potential for underestimating the relative biological effectiveness (RBE) of tritium radiation. The ASN will ask the ICRP to review the value of the tritium weighting factor ( $w_R$ ) used in calculating effective doses. Even before the ICRP's response is known, the ASN will ask operators to supplement the radiological impact studies for their projects with a critical study in which a variant using a tritium weighting factor ( $w_R$ ) of two is included.

# The Tritium “white book”

## ASN position

### 2 Research themes

Current knowledge about the biological effects of tritium is in some areas rather fragmentary. The following topics should be investigated further by research bodies in order to answer all the questions:

- Harmonisation of dose assessment methods according to the physico-chemical form of the tritium, contamination pathway and length of exposure;
- Studies into the effects of tritium exposure on embryos and fetuses;
- Investigation of new approaches to the potential induction of hereditary effects.

In most cases, this research will require international cooperation.

# The Tritium “white book”

## Tritium Monitoring Committee

Finally, the ASN believes that all stakeholders must continue to think about and discuss these issues and to this end suggests the establishment of a supervisory committee to oversee the actions undertaken following the recommendations of the working groups.

- A monitoring committee was created
  - to follow action plan progress with all stakeholders
  - to oversee the actions undertaken following the recommendations of the working groups
- A meeting once a year (2011, 2012, 2013)
  - Progress on research and ideas ;
  - Action plan



# The Tritium “white book”

## ASN action plan : measurements

French interlaboratory test (ILT) was organized in 2010 in biological sample for the measurement of OBT : ASN delivered specific approvals for OBT

Standard for OBT measurement (AFNOR/BNEN) : ASN ask french standardisation organisation to provide a standard for OBT measurement. A draft has been established

# The Tritium “white book”

## ASN action plan : environmental and discharges monitoring

ASN publishes on a web site the quantities discharged for each facility on an annual basis : <http://www.asn.fr/sites/tritium/>

- annual liquid and gaseous discharges ;
- estimation of the doses received by the public based on the actual discharges
- dose share of tritium



# The Tritium “white book”

## ASN action plan : environmental and discharges monitoring

ASN asked operators to demonstrate that they release only HTO

Measurement of OBT is required by regulation in environmental monitoring (ASN Resolution 2013-DC-0360 of 16th July 2013 relative to control of nuisance effects and the impact of basic nuclear installations on health and the environment) :

- sampling of aquatic flora and fauna (yearly) ;
- sampling of the main agricultural produces, particularly in areas situated downwind of the prevailing winds (yearly)



# The Tritium “white book”

## ASN action plan :

### Impact assessment

**ASN** asked the ICRP to review the value of the tritium weighting factor ( $w_R$ ) used in calculating effective doses.

#### ICRP response

ASN asked operators to supplement the radiological impact studies for their projects with a critical study in which a variant using a tritium weighting factor ( $w_R$ ) of two is included.



## General Conclusion

- Important decrease of the radioactive discharges in France during the last 20 years; however, the tritium discharges remain stable
- The Tritium whitebook: a fruitful experience still going on