

雪氷技術による放射性物質を含んだ汚染水の処理方法の検討

上石 勲 (防災技術研究所雪氷防災研究センター)、
対馬 勝年 (富山大学理学部)、松山 政夫 (富山大学水素同位体科学研究センター)

東日本大震災では想像を絶する巨大津波により原子炉冷却機能の喪失にいたった福島第一原子力発電所では原子燃料棒が熔融状態に達し、水素爆発の他に原子炉格納容器内の冷却水が放射性物質によって汚染された。熔融した燃料の核分裂による放射性物質（放射性物質に汚染された水）の発生は燃料取り出しまで続くと予想され、先の見えない重大問題となっている。さらに、原子炉建屋に湧き出す大量の地下水が放射性物質に汚染された。汚染水は汲み上げられ地上タンクに保管（図1）されている。一部はALPS（アルプス、多核種処理装置）という装置で放射性物質（水の同位体トリチウムを除く）を除染処理された水である。保管量は43万^トという莫大な量に達し、いまなお一定の割合で増え続け、減容化への見通しは示されていない。増え続ける汚染水に対する有効な処理方法が示されないことから、先の見えない閉塞感が国民を覆っている。本研究ではまず第一にジュースの濃縮、アルコール飲料等の濃縮（減容化）に古くから利用されてきた氷結晶法に着目した。セシウムを含む汚染水の一部を凍らせ、氷に残存するセシウム濃度を調べたところ、二回の凍結処理によりセシウム濃度が1万分の1程度に除染されたことから、氷結晶法等の雪氷技術を放射性汚染水の処理に適用できる可能性がないか検討した。第二には保管量が減らない主な原因となっている放射性トリチウムの分離を検討する。



図1 福島第一原子力発電所では炉心冷却水や建屋地下に流入し放射性汚染された水が43万^ト保管されている。一部の汚染水はALPS（アルプス）という除染装置で処理されているが、放射性トリチウムだけは除染できていない。

第三に、汚染水を凍らせる製氷を冷凍機で実施する場合には多額の運転経費が必要になると予想されることから、自然の冷熱エネルギーの利用、特に放射冷却の利用について検討した。

本研究では水と氷の特異な性質に着目している。つまり、「水はあらゆる異物を溶かし込む包容力をもつ（汚染水の形成）」が、その水が凍るときには「あらゆる異物を排除して純粋の氷となる」性質を除染に結びつけようとする点が本研究の着眼点である。氷が異物を取り込まない理由は氷が水素結合だけから構成されることに原因がある。水素結合の中に異物が入り込めないため純粋の水分子（水の同位体を含む）から構成された氷となる。たとえば、泥水から無色透明の綺麗な氷ができたり、インクを含んだ青色の水から無色透明の氷ができることは氷の排他性を示す例としてよく知られている。放射性物質については一つ一つの核種（元素）について氷結晶法の有効性を確認すべきであるが、本研究では放射性物質の中で最も濃度の高いセシウムについて検討した。本研究の特長をもう一つ追加すれば、従来の放射性汚染水処理の考え方が厄介物をつかまえて除去する方法（吸着法）であったのとは異なり、危険な厄介物はそのままタンクに残し安全なもの、つまり水だけを

氷の形で分離し、汚染水の総量(保管量)を減らそうという視点である。吸着法では吸着体が放射性を帯びた二次汚染物(固形物)となって発生し新たな処理と保管(永久保管)という問題を伴うが、氷結晶法の長所は二次汚染物を出さずに汚染水の減容化を目指す点にある。

1. 放射性汚染水の発生と検出法

ウラン 235(質量数 235 つまりウラン 1 モルの質量が 235g)の核分裂により様々な元素が発生する。ウランが半分程度に二分割すると質量数 137 の放射性セシウム、質量数 90 のストロンチウム、ヨウ素その他がいろいろな組み合わせで生まれる。3 元素に分裂する場合には水素の同位体であるトリチウム(質量数 3)が含まれる場合がある。ヨウ素のように半減期の短い元素は保管中あるいは保管前に放射性を失って安定な元素に変わるから問題ないが、半減期が 30 年と長いセシウム 137 やストロンチウム 90、半減期 12 年のトリチウムなどの放射性元素の処理が問題となる。透過の強い γ 線を放射するセシウムやストロンチウムは低濃度でも危険であるが、水素の同位体トリチウムは弱い β 線を放出する放射性物質であり、放射線は紙一枚、調理用のラップ一枚で防止される。ただし、トリチウム T は水 H_2O に溶けトリチウム水 HTO の形で汚染水中に存在しているから、水と区別されず呼吸や飲料として体内に取り込まれる場合、人体は内部被爆にさらされるから透過力が弱くても軽視はできない。

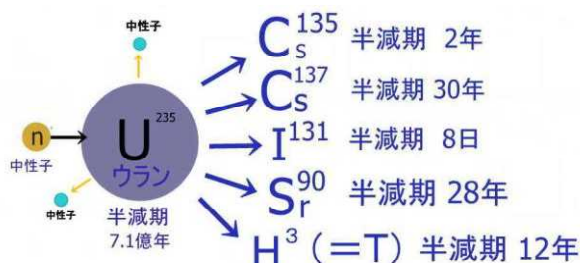


図2 ウラン U^{235} の核分裂と放射性元素 (Cs、Sr、T 等) の生成

ウランの核分裂で発生した放射性物質は最大でも 1kg 以下であろう。たとえ 1kg が汚染水に溶けたとしても、汚染水は 43 万トン (= 4.3 億 kg) の水に薄められているのだから、最低でも 4.3 億分の 1 に薄められていることになる。汚染水が氷結晶法によりどの程度除染されるかを測定するのはそう簡単ではない。実験段階で試料水の汚染度をはかる簡便な測定法がそう多くはないからである。濃度が高い場合には導電率計 (EC メーター)、イオンクロマトグラフ、原子吸光法などが用いられるが、これらの機器で放射性汚染水中の汚染物の濃度を検出することはできない。放射性汚染水のような超低濃度の汚染を検出するにはガイガーカウンターのような放射線を一個一個検出する放射線検出器が必要になる。この放射線検出器で放射性セシウムから 1 Bq(ベクレル= 1 秒間に 1 個の割合で崩壊)の放射線が検出されたとしても、放射性セシウム 137 の半減期は 30 年 ($30 \times 365 \times 24 \times 3600 = 9 \times 10^8$ 秒)であるから母液中には約 10 億個の放射性セシウムが含まれていることになる。

2. 氷結晶法による除染効果

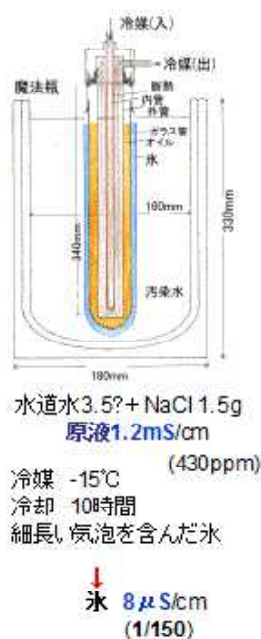
不純物を含んだ水を部分的に凍らせる (たとえば半分程度を凍らせる) と不純物が 2 倍に濃縮された水と純粋な水の成分から構成された氷になることが知られている。この方法による水分の分離は氷結晶法としてよく知られており、ジュースの濃縮など産業界で広く使われてきた。微量のアンモニアを含んだ水から作った氷に残存するアンモニアをネスラー試薬で検出を試みたところ全く検出されなかったという逸話は氷はあらゆる異物を排除し純粋の水分子の集合体である氷になるとして伝えられてきた。この氷結晶法を放射性汚染水の処理に使えないか検討した。

研究では放射性物質は使えないので、まず薄い硫酸水溶液と少量の NaCl(塩)を溶かした水、水道水、少量のセシウムを含んだ水から作った氷に含まれる汚染物の濃度(および除染度)を調べた。4mS/cm(ミリジーメンズ/cm と読み、 $S=1/\Omega$ 、 Ω は電気抵抗のオーム)の導電率(EC)に調整した硫酸汚染水から作った氷は図3(左)のように無色透明の氷が得られた。水 5kg に 5g の NaCl



図 3 左：微量の硫酸を含む水（汚染水、導電率 3.6mS/cm）の凍結によりできた透明な氷
右：0.1%の NaCl を含む水（汚染水、導電率 10mS/cm）の凍結によりできた白っぽい氷

を溶かした水を凍らせた場合には図 3（右）のような全体が白っぽい氷となった。硫酸汚染水から得られた氷は導電率が $9\mu\text{S}/\text{cm}$ （ μ はマイクロで 0.001m （ミリ）に対応）へ 400 分の 1 という高い割合で除染された。NaCl を含む水の場合 $10\text{mS}/\text{cm}$ から $1\text{mS}/\text{cm}$ へ 10 分の 1 の除染率に留まった。硫酸汚染水から得られた氷でも気泡を含んだ氷の部分を見ると、除染度は数十分の 1 程度の低い値となり、氷内部の気泡部に汚染物が濃縮して混入すると推測された。また硫酸水溶液から出来た氷の器壁部は $110\mu\text{S}/\text{cm}$ で除染度が $1/33$ と低かった。使用した導電率計の測定限度が $1\mu\text{S}/\text{cm}$ だったのでこの方法では比較的高濃度の汚染水しか調べることができない。セシウム ($10\text{ppm}=1$ 万分の 1) を含む汚染水についても製氷したが、この場合は 100g の少量の汚染水を 2 回凍らせ、一回目と二回目の氷に残存するセシウムを原子吸光法で測定し、除染率 $1/100$ 、 $1/10000$ を得た。以上の結果から氷結晶法の有効性が確かめられたので、除染率を高めるには透明な氷を作る必要がある。透明な状態の氷を成長させる方法として、冷媒液を製氷管に通し、管の周りの汚染水を凍らせて氷を作る方法の試験（図 4）に進んだ。



冷却管の周りに製氷



図 4 は予備試験に用いたもので冷却方法が図中に図解されている。図には示されていないが冷却機で作られた冷媒液が中央の管の冷媒（入）から注入され管を冷やして冷媒（出）から出て冷却機に戻り、再冷却された冷媒液が循環する。

水道水 ($80\mu\text{S}/\text{cm}$) から製氷したところ筒状の完全に透明な氷が発生し、導電率は $2\sim 4\mu\text{S}/\text{cm}$ へ $1/20\sim 1/40$ に除染された。NaCl を含む汚染水 (430ppm) は原液 $1.2\text{mS}/\text{cm}$ から製氷 $8\mu\text{S}/\text{cm}$ へ高い割合 ($1/150$) で除染され、冷却管方式の有効性が示された。

図 4 冷却管の周りに氷を発生させる氷結晶法（予備試験）



図5 セシウムおよび放射性セシウムを含む汚染水から製氷

図4の試験から冷却管の周りに製氷し除染を行う氷結晶法の有効性が確認されたので、貯蔵量を10L程度の大きい製氷缶を用いた試験を行った。装置が若干大型化した点以外の製氷原理は図3と同じである。濃度10ppmに調整されたセシウム（放射性はない）汚染水10kgを製氷缶に入れ、冷却管の周りに3~5kgの水を発生させた。氷に含まれたセシウム残存濃度は0.1~0.05ppm（除染率1/100~1/200）で使用した原子吸光装置の検出限界（下限）に近い値であった。参考までに記述すると同装置と同じ規格で作られた製氷缶で放射性セシウムを汚染水とした試験（（株）化研）では原液10kg（放射線強度1400Bq/kg、セシウム濃度0.4ppt）から得られた氷4.3kgの放射能の平均は19Bq/kg、除染率1/74が得られている。

氷結晶法の結果

電解質汚染水 微量の硫酸を含む汚染水での氷結晶法試験
 $4\text{mS/cm} \rightarrow 4\mu\text{S/cm}$ (透明氷) **1/1000**
 NaCl $1\text{mS/cm} \rightarrow 20\mu\text{S/cm}$ 透明氷部分 **1/50**
 $\rightarrow 100\mu\text{S/cm}$ 気泡を含む部分 **1/10**
 水道水 $80\mu\text{S/cm} \rightarrow 4\mu\text{S/cm}$ (透明氷) **1/20**
 Cs $10\text{ppm} \rightarrow 0.1\text{ppm}$ (透明氷) **1/100**
 放射性Cs $1400\text{Bq/L} \rightarrow 19\sim 4.5\text{Bq/L}$ **1/140**
 ($1400\text{Bq/L} = 4 \times 10^{-13} = 0.4\text{ppt}$ 超低濃度)

図6 氷結晶法の結果
 各行右端の分数で表した数値は除染率を示す。

3. 放射性トリチウムTの問題

トリチウムTは質量数3、水素の同位体であり、半減期12年、 β 崩壊をして安定なヘリウムに変わる。トリチウムの崩壊で発生する β 線のエネルギーは小さく、紙一枚、ラップ一枚で防がれる弱い放射線である。しかし、トリチウムは水分子の水素Hと入れ替わって、水分子 H_2O の同位体HTOという水分子となって汚染水を構成する。 H_2O と水の同位体であるHTOは化学的性質が同じであり化学的には区別されず、全く同じ挙動をする。それゆえ、汚染水から H_2O とHTOを化

学的手法で分離するのは難しい問題となる。重水 HDO も水の同位体であるが重水素 D は安定で放射能を持たない。 H_2O と HDO を分離するのも HTO 分離と同じように難しい。

重水素は水の電気分解過程で発見された。水を電気分解して水素と酸素の気体を作る実験は水が分割できない元素ではなく酸素と水素という二つの元素から構成されていることを示すものであり、学校教育の中で全ての国民が学んできたことである。ところで、電気分解を続けると水の量が減っていく、ユーレイは最後まで残った水の中に重い水があるのに気づき、これが重水素の発見となった。第二次大戦中にはノルウエーの大規模な水の電気分解施設で重水の抽出が試みられていた。重水は原子爆弾開発に必要だった。ドイツ軍はノルウエーに侵攻し重水生産施設の奪取を目指したという。トリチウムもまた電気分解により濃縮して分離することができる。水の電気分解はありふれた方法であり、技術上の問題もなく汚染水から H と T を分離あるいは HTO 水を分離する技術は確立しているといえる。しかし、この技術を福島第一原子力発電所汚染処理に適用しようという動きはないようである。電気分解法が適用されない最大の理由は 43 万トンの大量の汚染水を処理するためには処理施設が大がかりになりすぎることのほか費用の問題が障害になっているのだと推測される。つまりは放射性汚染水中のトリチウム処理にはもっと安価で大量処理可能な分離技術の開発が求められているということであろう。

H_2O と HTO 、 HDO の物性の違いを調べると氷点、融解熱、蒸発熱などに違いがあるのが認められる。特に氷点の違いが著しい。いうまでもなく H_2O 水の氷点は大気圧下で 0.00°C である。一方 HDO の氷点は 1.91°C 、 HTO の氷点は 2.25°C であり、水の同位体間の氷点に顕著な違いがある。1 モル（あるいは 1 分子）当たりの融解熱、蒸発熱も H_2O より HDO や HTO の方が大きい。つまり、重水素 D やトリチウム T は水素 H より水素結合が強い。最初 HDO を含んだ汚染水を HDO の氷点 1.91°C より低く、 H_2O の氷点よりわずかに高い温度に保てば、汚染水中の H_2O 分子は氷に変われるが、 H_2O 分子は凍ることができないから液体側に取り残され、 HDO が液体側から除去されていくだろうと予想していた。実験の結果は分離を認めたが予想は間違いであったことを気づかせた。積雪地域では 0.00°C は容易に作れる利点があり、本研究では H_2O と HDO や HTO の氷点の違いを利用してこれらを分離できないか検討することにした。

4. トリチウム水の分離可能性の検討

当初、 HTO 分子の氷点が 2.25°C だから、たとえば汚染水を $+1.0^\circ\text{C}$ に保てば、通常の水分子 H_2O は凍ることはできないから水側に残るが、水素結合がより強く氷点の高い HTO 分子は氷に変わることができるから汚染水中の HTO 分子だけが氷に組み込まれ、汚染水中の HTO 濃度が減少していくものと予想した。純水を $+1^\circ\text{C}$ に保ち、純氷 (H_2O の氷) と HDO 100% の各氷片を浮かべ、経過日数と氷片の状況を観察した。純氷は氷点より高い水に浮いているのだから少しずつとけて消失してしまうのは当然として、 HDO 氷にとっては氷点より水温が低いことから溶けることなく、何日でも氷のまま存続すると予想した。確かに H_2O の氷片は溶けて消失したが、予想に反してさらに数日後には HDO 氷片も溶けて消失していた。このことから推測されたことは、水と氷の境界面では氷の分子が水中に飛び出し、水中の水分子が氷表面に凍り付くという分子の出入りが頻繁に行われていて、氷表面から飛び出た HDO 水分子は事実上氷表面には戻れない。結局のところ氷表面から HDO 分子が水側に失われることになり、 HDO (100%) 氷片が HDO の氷点より低い温度の水に浮かべられたにもかかわらず純水に溶解して消失したと解釈される。

それでは氷点の違いを利用した H_2O と HDO あるいは HTO 分離の可能性はないのだろうか。たとえば HDO 濃度 5 % の薄い重水水溶液に同じ濃度の重水氷を細かい雪状にして混合させる場合を考えると、濃度 5 % の重水水溶液と濃度 5 % の重水氷が共存することになる。重水水溶液は雪粒の隙間を埋めている。雪粒の表面では水分子、重水分子の出入りが行われる、雪を構成する HDO 分子は水素結合が強いから氷から離れにくく、 H_2O の水分子が優先して水側に飛び出すだろう。水側からは H_2O や HDO の水分子が雪粒表面に衝突し、一部が雪粒に組み込まれる。組み込まれる割合は H_2O と HDO で違いはないかも知れないが、雪粒から飛び出す H_2O 分子と HDO 分子には違いがあり、雪粒側に HDO 分子が濃縮されていくと期待される。濃縮が進むためには水中の HDO 分子がまわりの H_2O 分子をかきわけて雪粒表面に到達する必要がある。水中の HDO 分子が氷の表面に衝突し氷に捕捉されない限り水中の HDO の分離は行われない。しかし、 HDO 分子を雪粒表面に移動させる力が存在しないから水の中での分子のランダムな運動を通して偶然雪粒表面

に衝突するのを待つしか方法がない。何日も何週間もかけて気長に待つしかないのであろう。汚染水（ここでは重水水溶液）を凍らせた氷をカンナの刃で薄く削って細かい雪状に変えてもとの母液と混合させると水中の HDO 分子は短い距離の移動で氷表面に到達でき、加えて氷の表面積も増大するから分離に好都合であると考えた。

4.1 粗大化法

3L の魔法瓶に重水汚染水を凍らせた氷を削って雪状にしたものを投入し、元の重水汚染水と混合し蓋をして数日間放置した(図 7)。保存期間中に雪粒間に挟まれた水の中の分子の入れ替わりの過程で HDO 分子が雪粒表面に到達したものが雪粒に組み込まれ、水中の HDO 分子濃度が減少していくと期待した。魔法瓶の中で水と雪が共存すると雪は殆ど融けないのに雪粒は日を追って粒径が大きくなることが知られている。これは水に浸った大小の雪の平衡温度(氷点)が雪粒の半径に反比例して変わるからである。小さい雪粒の氷点は低く、大きい雪粒の氷点は高い。氷点の変化は1万分の1℃程度と予想され、温度計で計測できる領域にはない。しかし、このわずかな温度の違いが隣接する雪粒間に存在することのため大きい雪粒は成長し、小さい雪粒は溶けて消失して、雪粒の総個数は経過時間と共に減少し、雪粒の平均粒径は増大するという粗大化を生ずる。粗大化の過程で雪粒表面に凍り付いた HDO 分子は雪粒の内部に埋まるから雪粒表面の HDO 濃度をあまり変えずに HDO を雪粒に取り込んでいくと期待される。ただし、融解していく雪粒は HDO を水に供給するから分離効果を弱める効果をもつ。計測の結果から分離効果を確認できた。しかし、保存期間を10日程度に延ばしても、分離率は大変小さく水側の HDO 濃度減少は数分の1に留まった。

1cm 角の氷を削って直径 0.6mm の雪粒に変えると雪粒の個数は約 1 万倍に増大する。したがって、表面積も桁違いに増大するものと予想した。しかし、測定された分離率が小さいことから、なぜ小さな分離率に留まったのかその理由を考察する中で表面積の増大を過大に評価していたことに気づいた。実際、計算してみると、雪粒の半径を $r(=0.3\text{mm})$ として表面積は $1/(2r) = 17$ 倍に留まり、面積の増大が予想外に小さかったことに気づいた。

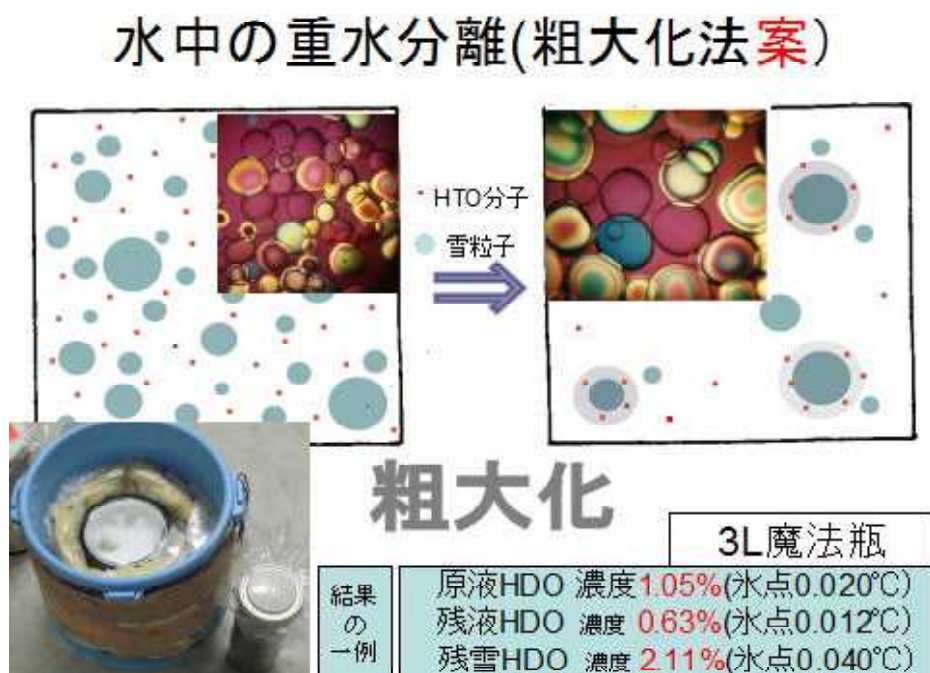


図7 トリチウム水分離を試みる粗大化法

図7の場合汚染水原液(HDO 濃度 1.05%) が雪の詰まった魔法瓶の中で HDO 濃度 0.63%まで除染され、投入した雪の方は HDO を余分に吸収して濃度が 2.11%に増大した。これらの濃度はベックマン温度計で計測された氷点から見積もった値である。ベックマン温度計は 1/100℃の目盛があり、目分量で 2/1000℃程度まで読み取ることができる。

4.2 カラム法

粗大化法は簡便であり大量処理に適した方法と思われたが、重水汚染水を用いた試験では重水の分離率は 1/2~1/3 程度の低い割合に留まった(このことはトリウム汚染水の場合も分離率が 1/2~1/3 程度に留まると推測させる)。その原因の一つに水の中では重水分子 HDO の拡散が小さいことが考えられた。HDO 分子は氷表面に到達しない限り氷に組み込まれ汚染水から除去されることはな



水中の重水分離 (カラム法)



筒断面積 4.45cm^2

氷点

①原液 0.158°C

通過液 0.062°C

重水濃度が $1/3$

程度に減少

②原液 0.168°C

処理液 0.018°C

濃度が $1/9$ に減少

いのだから、いかに短い移動距離で氷表面に到達できるようにするかが分離効率に関係を持つと思われる。積雪の分野では融雪期の積雪内水移動の研究から表面で融けた水が積雪の底に流出していく過程に二種類あることを明らかにしている。一つは水路流下と呼ばれ降雨などを伴ったり激しい融雪や積雪内の水の流れの特に多いところに見られる流れで、雪粒間の隙間を埋めるように流れる水路流下と呼ばれるものである。もう一つの流れは融雪の少ないときの積雪内の流れで、雪粒表面を薄く覆って流れる被膜流

図8 トリチウム水分離を試みるカラム法

下と呼ばれる。被膜流下の速度は毎分 cm といわれている。たとえば、半径 $r=0.3\text{mm}$ の雪粒からなる積雪内を含水率 5% で水が流下している場合、水膜の平均厚さは 0.01mm 程度と推測される。この場合 HDO 分子は最大でも 0.01mm 水膜の厚さ方向に移動すれば氷表面に到達できるから、HDO 分子が氷表面に組み込まれる割合は粗大化法の場合(隙間 1mm 程度)に比べ著しく改善されると期待される。そのような見通しのもとに長さ 1m のアクリル製筒に汚染水を凍らせた氷を細かく削って粒状にした雪をつめ、筒の外側を筒断熱用の厚さ 40mm のグラスウールを被せて断熱した。雪は上端から落として詰め、下端から雪が抜け落ちないように筒下端に栓をし、その下に受水容器を置いた。ただし、流下してきた水が栓を通過できるように栓には太さ 1.5mm の穴を約 10mm 間隔に空けた。当初、処理量を多くするため上端から霧吹きで散水したり、 50cc の注射器から滴下したりした。数時間で受水容器に $400\sim 500\text{cc}$ の通過水が溜まった。その水の氷点を測定したところ原液とほとんど変わらず、除染効果が認められなかった。その実験は失敗であった。この場合、水路流下であったと思われる、水の大部分は氷に触れることなく下端から流出した。カラム法の効果を上げるには被膜流下状態を作ることが肝要と思われたので、以前氷管育成に使用した点滴装置の利用を考えた。この点滴装置は 15 秒に 1 滴くらいの割合で水滴を雪の筒上端に滴下するから、水は雪の表面を膜状に覆って流下すると期待される。氷点測定に必要な $300\sim 500\text{cc}$ の処理水を得るには $1\sim 2$ 日程度を要する。室温 3°C の低温室で試験しているが、 $1\sim 2$ 日の間には筒状の雪の側面が融けて隙間が出来たり、押し詰めながら充填した雪の場合には筒雪内の密度の不均一が自然積雪の止水面と同じ止水面を形成することも考えられたが、 $1/3$ の濃度まで除染できた。もっと確実に被膜流下を実現するために、汚染水の通る筒の断面積を 4.45cm^2 と狭くし、この筒の外側に太さ 60mm の筒を追加し、内筒と外筒の間にも同じ雪を詰めた。このようにすると内筒内の雪が側面で融けて空洞が形成されるのが妨げられ、長い時間に渡って汚染水の滴下を続けることができる。ただ滴下部の雪が汚染水の熱でとけてたて長空洞が形成されていって筒の効果が有効に働かない。上端に氷の小片をのせてテストしたが滴下が進行すると氷に穴が開いてやはり氷の効果が失われた。小さな円板状に切った濾紙を重ねて雪の上に載せた場合も、滴下が進むと濾紙が傾いて流れが不均一になり、滴下に伴う欠点を克服できなかった。

図8の例は①が原液の氷点 0.158°C であった HDO 汚染水が筒を通過後には氷点が 0.062°C に $1/3$ に下がっている。②の例では同じく原液 0.168°C の氷点が、通過後には 0.018°C へ $1/9$ に除染されている。

5. 製氷への放射冷却冷熱の利用可能性の検討

気温が下がり夜が長くなる秋から冬には、強い放射冷却により屋外におかれた自動車のフロントガラス一面に厚い霜が発生したり、建物の屋根が霜で白くなり、水溜まりや屋外の水盤などの水面に氷が張る。雪の表面にも霜が発生し、朝日を浴びてキラキラ輝くことがある。温度計で雪の表面温度を測定すると、気温より 5°C 程度低い。これらは表面から上空に放出される放射により表面がエネルギーを失い温度が下がったのである。上空や周囲の大気や建造物等からも放射がこれらの表面にやってくるからそのエネルギーの差し引きとして表面が冷えることになる。周囲が開けた場所で上空に雲がないときには外部から入ってくる放射が少ないから表面はよく冷える。特に気温が低いときには氷点下に冷え霜や氷が形成される。



除染方法として検討した氷結晶法や粗大化法、カラム法では汚染水を凍らせて除染処理が行われる。動力を使って冷凍機を動かせば氷を作ること容易である。しかし、ここでは放射冷却という自然エネルギーによる製氷の可能性を検討する。もちろん気温が氷点下になる地域では大気を冷熱源とした製氷の方が効果的であろう。実際、スキー場の中にはスノーマシンで微水滴を氷点下の大気中に噴射して雪を積もらせているところが多くある。

図 9 放射の放出による冷却と冷却箱内に製氷された氷

試験には図 9 のような発泡スチロールの断熱箱を利用した。蓋の縁を残し内部をくり抜いて代わりにポリエチレンラップを張った。箱の中に最高最低温度計を入れたり、水の入った発泡スチロール製のカップを入れた。この場合あらかじめ氷のブロックを水面に浮かべて製氷の核にした。箱内の温度の測定の結果、最大で気温より 10°C 程度低くなることがわかった。気温が 5°C 以下に下がれば製氷の可能性があったと思われた。この試験ではポリエチレンラップが赤外線をよく透過する性質とラップによる箱内へ外気の浸入防止効果が利用された。赤外線透過だけならラップを張らない方が有効である。

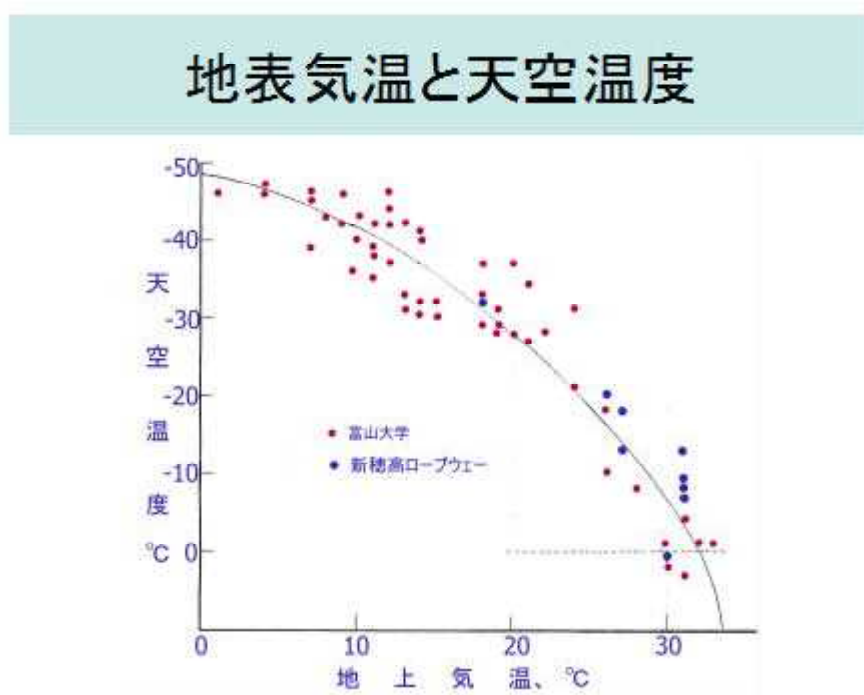


図 10 地表気温と放射温度計に記録された上空の気温

しかし、ラップがない場合は発泡スチロールの内部の温度はあまり下がらない。理由は周囲の温かい空気が箱の中に浸入し、折角放射を放出して冷えようとしても、周囲から暖かい空気が入ってきて加熱することになり放射による冷却を妨げるからである。ラップを張ることで箱内へ暖かい空気の浸入が防止され、箱内の放射冷却が有効に作用し低い温度になる。しかし、ラップは薄いから伝導による箱内の空気への熱の浸入が十分には防止されない欠点がある。それにしても、最低気温が -1°C 程度の時に箱の内部は -10°C に下がり、厚さ 7mm 程度の氷を製氷できたことは放射冷却による製氷の可能性が示されたものといえよう。図 10 に快晴時の地上気温と放射温度計に記録された上空温度の関係を示した。上空気温は上空から箱に入ってくる放射の強さである。地上気温が 20°C 程度から放射による冷却が顕著になり、地上気温 10°C 以下で特に冷却が大きくなる。

ポリエチレンラップに変わる高い赤外線透過と高い断熱性を兼ね備えた窓が使用されるならば、放射冷却のエネルギーをより有効に利用できるようになるものと考えられる。その見地から NaCl (塩) が 10mm 程度の厚い板でも抜群の赤外線透過率を示す(理科年表(丸善))ことが注目される。NaCl はイオン結晶だから自由電子を持たず、したがって熱伝導率も小さく、十分な断熱性を期待できる。仮に厚さ 10mm の窓が開発されるなら外気の遮断性能も高く理想的な窓になると期待される。ただ、NaCl は潮解性があるから、表面にポリエチレン薄膜などの防水膜を施す必要がある。

6. まとめ

はじめに雪氷分野でよく知られている氷結晶法を福島第一原子力発電所放射性汚染水の減容化への適用可能性を検討し、氷結晶法が広い濃度範囲で除染効果を持つ結果を得た。一回当たりの凍結操作により 1/100~1/1000 に除染される。 H_2O の水と HTO の水の氷点の違いに着目し凍結・融解過程における HTO の分離を試み 1/2 から最高で 1/9 に除染される結果を得た。この場合液体側のトリチウムが氷に捕捉され、低濃度のトリチウム水が得られた。冬季の太平洋側は偏西風の風下に当たるため雲のない晴れた日が多いであろうから、放射冷却を利用した製氷の可能性はある。

1. 汚染水から氷結晶法で作られた氷は一回の凍結で 1/10~1/1000 に除染された。
2. Cs の場合、氷結晶法による除染は 400ppm~0.4ppt の原液(汚染水)に適用できるので、1回で 1/100 に除染された氷を融かして再凍結させれば原液の 1/10000 に除染されると期待される。
3. トリチウム水の除染に関して試みた粗大化法は大量処理に適しているが、除染率は 1/2~1/3 程度の低い段階に留まった。
4. 同じくトリチウム水の除染として試みたカラム法により最高で 1/9 に除染されたが、処理速度が遅いため、処理速度を上げながら除染度も高める工夫がさらに必要である。
5. 断熱箱の上面をくり抜きそこにポリエチレンラップを張った箱を屋外におくとにより、最低気温が 0°C 付近で快晴の夜間には断熱箱内が -10°C 程度に冷え、厚さ 7mm 程度の氷を製氷できた。つまり、放射冷却を利用すれば気温が 0°C 付近でも製氷可能なことが示された。

以上の結果から放射性汚染水処理に対し雪氷技術の適用を検討する価値があるといえる。ALPS で除染処理された汚染水を凍らせ、その氷を削って細かな雪状の粒子にして貯蔵タンクに戻す。タンクの側面と下面をあらかじめ断熱しておくとも雪は上面から融け、融け水が雪の層に浸透してやがて下端から流出する。流下が被膜流下になるように上面の融解を調整すると、著しくトリチウム濃度の減少(トリチウムを除染)した水が流出するように調整できるであろう。ALPS 未処理の汚染水を通せばやはりトリチウムだけが除染された処理水が得られると期待される。