

# 福島第一原子力発電所事故由来のALPS処理水を想定した トリチウム全量連続計測装置の開発

山本裕史, 齋藤雄一郎, 谷口一雄, 吉川 彰

The Continuous Measurement System of Tritium for Total Amount of  
ALPS Treated Water at Fukushima Nuclear Power Plant

Hirofumi YAMAMOTO, Yuichiro SAITO, Kazuo TANIGUCHI and Akira YOSHIKAWA



# 福島第一原子力発電所事故由来の ALPS 処理水を想定した トリチウム全量連続計測装置の開発

山本裕史<sup>a\*</sup>, 齋藤雄一郎<sup>b</sup>, 谷口一雄<sup>a</sup>, 吉川 彰<sup>c</sup>

## The Continuous Measurement System of Tritium for Total Amount of ALPS Treated Water at Fukushima Nuclear Power Plant

Hirofumi YAMAMOTO<sup>a\*</sup>, Yuichiro SAITO<sup>b</sup>, Kazuo TANIGUCHI<sup>a</sup> and  
Akira YOSHIKAWA<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Souso Laboratory, Techno Bridge Co., Ltd.

65-1 Minamihara, Hansaki, Odaka-ku, Minamisouma, Fukushima 979-2162, JAPAN

<sup>b</sup> New Fukushima Advanced Technology Agency

78 Oyama-Higashi, Otama, Adachi, Fukushima 969-1301, JAPAN

<sup>c</sup> Laboratory on Advanced Crystal Engineering, Institute for Materials Research, Tohoku University  
2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, JAPAN

(Received 16 January 2023, Revised 27 January 2023, Accepted 9 February 2023)

The Government of Japan issued the ALPS-treated water discharges into the sea. To satisfy international standards, total amount control, and domestic regulation standards for tritium discharge into the sea, it is desired to establish a technology for total and continuous measurement of tritium. The liquid scintillator method, which is a conventional measurement method, cannot measure the total amount and continuously, so it is not possible to shut off the discharge in an emergency. In this development, the use of a solid scintillator, the GAGG scintillator, enabled total and continuous measurement. In addition, we succeeded in measuring tritium in a short period of time and succeeded in developing a continuous total amount of tritium measurement device that enables emergency response when ALPS-treated water is discharged into the sea.

**[Key words]** Continuous measurement, Tritium, Low-energy Beta-ray, GAGG, Scintillator, Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

福島第一原子力発電所の事故由来の ALPS 処理水の海洋放出が決定された。トリチウム放出について国際基準、総量規制、国内規制基準を満足し海洋放出するためにはトリチウムを含む ALPS 処理水的全量かつ連続計測の技術の確立が望まれている。従来の測定法である一般的な液体シンチレータ法では全量かつ連続測定ができないため、海洋放出において緊急時の遮断等ができない。本開発では、固体シンチレータである

a 株式会社テクノブリッジ相双研究所 福島県南相馬市小高区飯崎字南原 65-1 〒979-2162

\* 連絡著者: h.yamamoto@techno-bridge.co.jp

b 一般社団法人新生福島先端技術振興機構 福島県安達郡大玉村大山字東 78 〒969-1301

c 東北大学金属材料研究所先端結晶工学部 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1 〒980-8577

GAGG シンチレータを用いることで全量かつ連続測定を可能とする結果を得た。また、短時間でのトリチウム計測に成功し、ALPS 処理水の海洋放出に際し緊急時対応を可能とするトリチウム全量連続計測装置の開発に成功した。

【キーワード】 連続計測、トリチウム、低エネルギーベータ線、GAGG、シンチレータ、福島第一原子力発電所

## 1. 序 論

2011年3月11日東北地方太平洋沖地震を起因とする津波によって、福島第一原子力発電所が電力喪失により原子炉のコントロールを失いメルトダウンに陥り、原子炉建屋が破損する過酷事故が発生した<sup>1)</sup>。事故後から、原子炉圧力容器より溶出した核燃料デブリを冷却しコントロールするために大量の水を用いており、加えて、建設当初から問題であった地下水や雨水等が流入し、放射性物質を含む高濃度汚染水が大量に発生することとなった。この高濃度汚染水を多核種除去設備(ALPS: advanced liquid processing system)を用いトリチウムを除く62核種を除去したものがALPS処理水と称され、福島第一原子力発電所構内の保管タンクに貯留されている。

ALPS処理水は、2022年12月現在で131万 $\text{m}^3$ 、タンク全体の96%を超えており2023年にも貯留の限界を超えるとされている。この処理水の処分に関して、2013年から様々な議論がなされ<sup>2,3)</sup>、2021年4月13日当時の菅首相が海洋放出を決定しその方針を発表した<sup>4)</sup>。これを受け、2021年12月21日、東京電力ホールディングス株は原子力規制委員会に対し、海洋放出の計画である、「福島第一原子力発電所 特定原子力施設に係る実施計画 変更認可申請書」を届出、2022年7月22日に正式認可された<sup>5)</sup>。この計画では、トリチウム以外の放射性物質を

ALPSで取り除き、トリチウムは事故以前の規制基準である60,000 Bq/Lを40分の1以下(1,500 Bq/L以下)に海水で希釈し、施設から1 km離れた海中に、専用の海底トンネルを用いて放出する。年間総放出量も、事故以前の基準22兆 Bq/L以下にするということである。

通常トリチウムは、 $\text{H}_2\text{O}$ 分子のH原子がT(三重水素)に置換わる状態で存在し、一般的なフィルタリングでは捕獲できない。また、濃縮や分離等の技術確立がなされていないために、トリチウムの除去は不可と考えられている。このため、通常の原子力発電所等の核施設で発生するトリチウムは、地下水等で希釈し水蒸気や水の状態で、国際的に認められた放出基準(濃度および年間総量)を遵守することで、環境への放出が認められている。

福島第一原子力発電所におけるトリチウムを含むALPS処理水は、その敷地内に1,000を超えるタンク群に貯留されている。タンクごとにトリチウム濃度が相違しているため、放出時にはこれを計測・管理し、希釈コントロールおよび希釈後のスクリーニングにトリチウム計測は必須である。併せて日本国民および全世界の人々に対して安全と安心を担保するために、全量を連続して計測することが求められる。

トリチウムは、陽子1と中性子2から構成される核種であり、半減期12.32年でベータ崩壊する、水素の放射性同位体である。このベータ崩壊の際に放出される電子は平均エネルギー

5.7 keV (最大 18.6 keV) である。低エネルギーベータ線であるトリチウムの放射線は、その飛程が 10  $\mu\text{m}$  以下かつ人体の皮膚を貫通することができないため、外部被曝の危険性は極めて少ないとされる<sup>6)</sup>。計測方法は、液体シンチレーション法<sup>7)</sup>、電解濃縮法<sup>8)</sup> および He-3 成長法<sup>9)</sup> の3手法が知られている。He-3 成長法は、トリチウムが壊変して生成される He-3 を質量分析により計測するものであり、検出下限値が非常に低い。反面、トリチウムの壊変を待たねばならないことや計測時間が非常に長い欠点がある。液体シンチレーション法および電解濃縮法は、計測自体は双方とも計測試料に液体シンチレータを直接投入し、トリチウムのベータ線により反応し発光した光を検出し計測する液体シンチレーション法である。電解濃縮法は、試料水を電気分解し同位体効果で濃縮するため検出下限値は低い。この濃縮等の前処理や計測時間が長いことが欠点である。上述の理由により、一般的なトリチウムの計測は液体シンチレーション法とされている。液体シンチレーション計測法では、試料水に液体シンチレータ(有機溶剤)を混ぜ、トリチウムから発するベータ線と反応し発光する光子を計測するものである。このとき、計測に使用する試料水は 100 mL 以下である。また、液体であるシンチレータを混ぜるので、大量の試料を計測することができない。さらには有機溶剤である液体シンチレータを混ぜたため環境へ放出することができない。試料水を採水した後、採水から結果を得るまでに数日以上時間が要する。従って、ある計測におけるトリチウム濃度が管理基準を超える値が確認されたとしても、それは数日前の結果である。いずれの手法も全量計測や連続計測に適さない。

ALPS 処理水は事故由来の放射能汚染水を人為的に処理したものであるため、放出に際しその濃度と量の管理は非常に重要である。トリチウムの放出するベータ線のエネルギーが低くその飛程も 10  $\mu\text{m}$  以下と短いため、計測試料水がシンチレータに直接触れなければその測定は難しい。

海洋放出が決定されたが、環境汚染を心配する反対の声が根強く残っている。加えて漁業関係者からは風評被害を心配する声も上がっている。安心・安全を担保するには、リアルタイムで放出水をスクリーニングし、海洋ではモニタリングを行うことにより、異常値を確認した際に直ちに遮断することが求められる。本開発では、これらの声に応えるべく、固体シンチレータを用いたトリチウムの全量かつ連続計測装置を開発した。

## 2. 固体シンチレータを用いたトリチウム連続計測装置の設計・開発

放射性物質は自ら放射線( $\alpha$ 線、 $\beta$ 線、 $\gamma$ 線など)を放出する。このために蛍光X線分析のように原子を励起する必要がない。トリチウムは低エネルギーのベータ線を放出する。ベータ線の検出にはGM管検出器やシンチレータ検出器が用いられる。しかしながらトリチウムから放出されるベータ線のエネルギーは 5.7 keV (最大 18.6 keV) と低いために、検出器の窓でベータ線が吸収され、通常のGM管検出器やシンチレーション検出器は使用できない。一般的に良く使われる検出法は、液体シンチレータ法である。toluene, xylene 等の溶質に terphenyl, 2 phenyl-5 diphenyl oxazole (PPO) などの蛍光性を示す溶質を溶解させた液体シンチレータを用いる。測定試料を溶かし込むことで放射線によりシンチ

レータが発光し、これを光電子増倍管で測定する。しかしながらこの方法では、計測後の試料には液体シンチレータが含まれており、公海である海洋には放出できない。このために計測には試料の一部(約20 mL程度)を採取してバッチで計測される。トリチウムの海洋放出には安全・安心の確保の観点から放出予定のALPS処理水の全量を計測することが求められる。本開発ではこの問題を解決するために固体シンチレータを直接試料水に触れることによりシンチレータが発光するシステムを開発した。

海洋放出を想定した計測は試料水に検出器が直接触れる必要があるため、潮解性のないGAGG(Gadolinium Aluminum Gallium Garnet)を固体シンチレータとして採用した<sup>10-12)</sup>。この利点として、シンチレータに直接試料水を触れさせることにより、全量の計測が可能となった。加えて、流水での測定ができるために連続計測

が可能となった。また、GAGGは金属酸化物である固体シンチレータであるので、不純物の付着のない限り半永久的に使用可能である。本法では前処理を必要とせず、管理基準値以下であれば連続放出が可能である。

加えて、トリチウムの計測を難しくしている点はトリチウムの検出器からの信号と検出器固有のノイズ信号とが同じ程度の出力電圧を持つために、信号とノイズを分別できないことにある。このような場合によく採用される方法は同時事象検出法である。Fig.1に同時事象検出法(2光子同時分光法)の概要を示す。本開発では従来のアナログ法に対して、信号処理のすべてをデジタルで処理した同時事象分光法を確立した。

Fig.1(a)はアナログ処理による同時事象検出法を示し、Fig.1(b)はデジタル処理による同時事象検出法の概要を示した。アナログ処理では

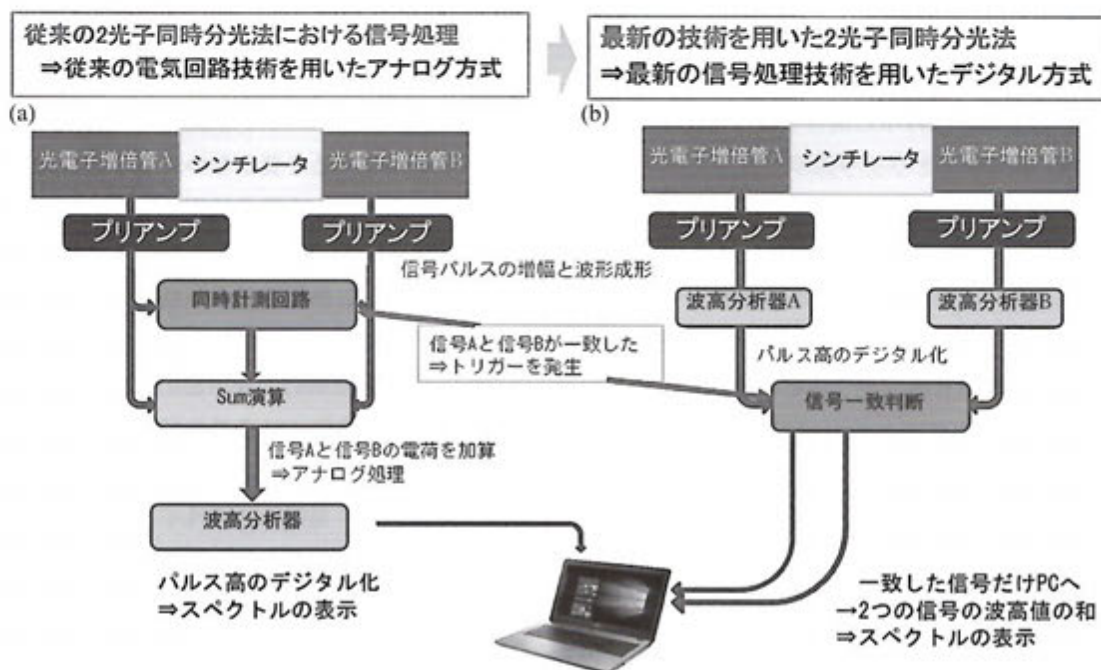


Fig.1 Coincidence counting method. (a) Analog processing. (b) Digital processing.

シンチレータのほぼ中央に入射したベータ線によるそれぞれの光電子増倍管の電気信号がほぼ同じ程度の大きさになるようにプリアンプで増幅される。それぞれのプリアンプ出力の何れもが設定閾値を超えた場合にその信号は有効として、2つの信号出力をサム回路で加算する。この加算した信号の波高値が検出したベータ線のエネルギーに比例することより、波高分析器によりパルス高のデジタル化を行いスペクトルとして表示される。この処理を同時事象検出法(2光子同時分光法)と呼んでいる。デジタル処理も基本的な考えは同じで、それぞれのプリアンプ後の信号処理をデジタル化し、そのデジタル化された信号により、閾値を超えた信号の和を直接加算し、スペクトルを得る。

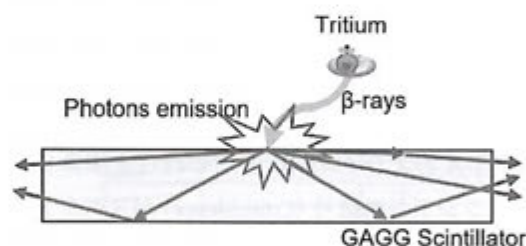


Fig.2 Schematic diagram of tritium scintillation.

Fig.2は計測の原理を模式的に表した図である。トリチウムからのベータ線がGAGGシンチレータを励起させ、これが定常状態へ戻るときに光子を放出する。この光子が棒状GAGG内部を通過し、端面から放出される。Fig.2に示す通り、トリチウムのベータ線の飛程やエネルギーが低いため、シンチレータの表面近傍しか反応しない。従来の固体シンチレータのようなバルク状ではその効率が非常に悪い。そこで、GAGGを1mm×1mm×35mmの棒状に加工したものをFig.3のように櫛状に配置しシンチレータカラムとした。Fig.3(a)は、試料水が流入する方向から見た写真であり、Fig.3(b)は光電子増倍管と接する面から見た写真である。このように櫛状に配置し、そこに試料水を通過させることで、シンチレータとトリチウムのベータ線が触れる面積を増大させた。

表面積の増大したシンチレータカラム(GAGGシンチレータC&A社製1mm×1mm×35mm、476本の両端面にFig.4のように光電子増倍管(浜松フォトニクス社製R878)を配置し光電変換を行う。2個の光電子増倍管はそれぞれアンプ(テクノエービー社製APG1500)に接続され、

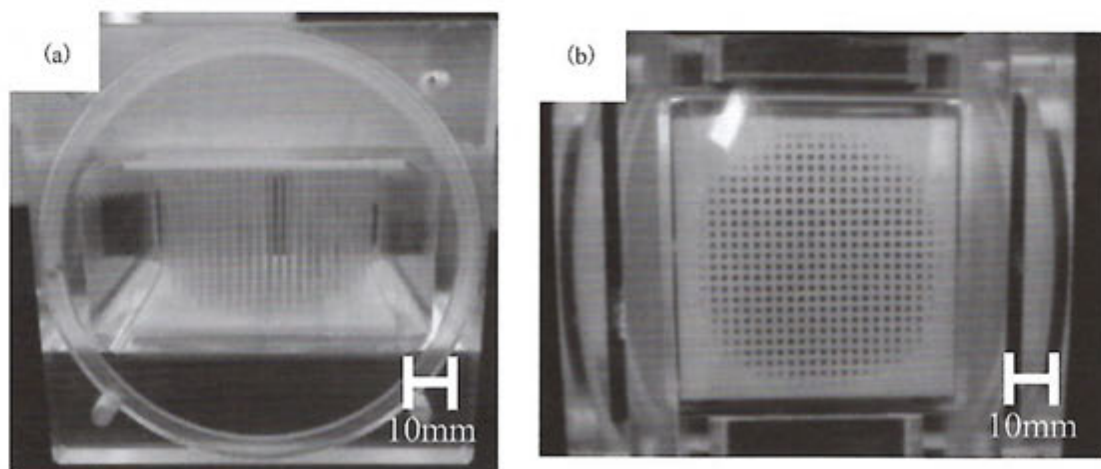


Fig.3 GAGG scintillator column. (a) Water flow side. (b) PMT contact side.

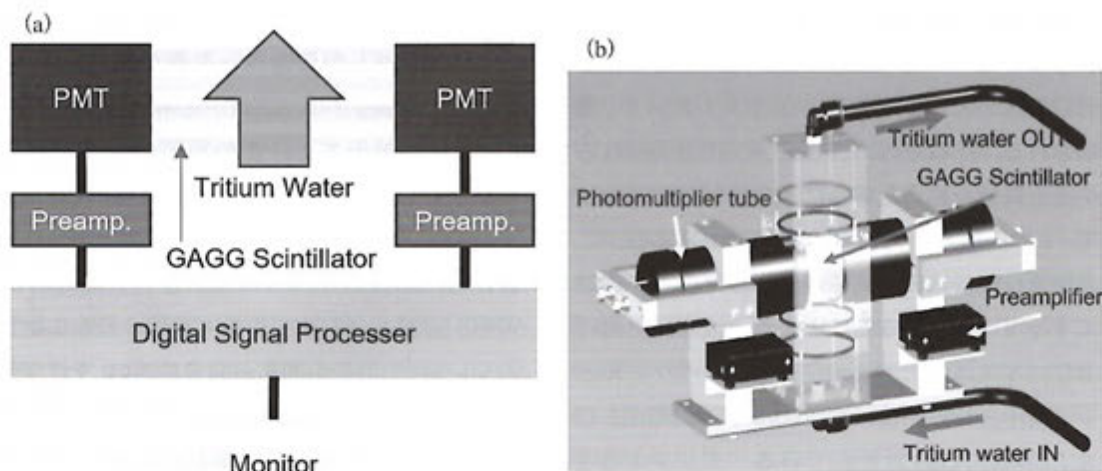


Fig.4 Detector of tritium measurement. (a) Block diagram. (b) Structure of detector.

デジタルシグナルプロセッサ(テクノエービー社製 APV8016A)により信号処理しスペクトルがモニターに表示される。デジタルシグナルプロセッサにて同時に受光した信号をトリチウム由来の信号とする。同時事象検出法を採用した。片方みの発光信号はノイズとみなし、ベータ線による信号と区別した。シンチレータ表面積を増大した構造をとることにより、トリチウム由来の信号の計数率を高め、結果として検出下限値を下げる事が可能となった。Fig.4 (b)は実際に作成した検出器の配置図を示す。計測可能な試料の流量は、検出部1系列あたり20 L/minと設計した。なお、試料水を直接シンチレータに触れさせることおよびベータ線の飛程が短いことから、不純物等の付着が計測に悪影響を及ぼす可能性が考えられるが、本開発で想定する計測水は、ALPSという多段のフィルタリングを介した計測水であるため、極めて純水に近い水である。従って、試料水の水質に関する議論は本報では省く。

### 3. トリチウム計測結果

典型的なトリチウム試料水(濃度:1 MBq/L)の計測結果を Fig.5 に示す。両端の光電子増倍管において同時事象として検出された信号(PMT-A および PMT-B)と、それらを加算したコインシデンス信号(Coincidence)がスペクトル(横軸が波高値:すなわちエネルギー、縦軸がイベント数:すなわち強度)として示されている。

トリチウムからのベータ線エネルギーは平均

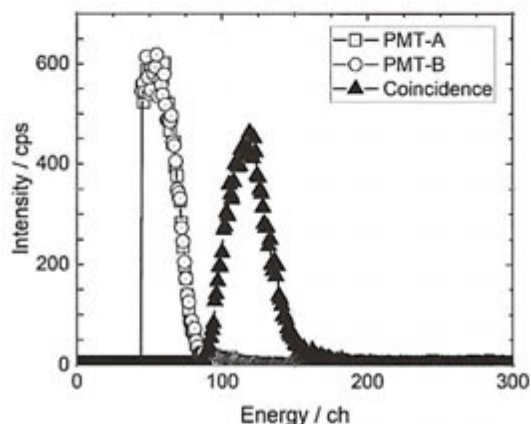


Fig.5 Typical tritium spectrum by 1 MBq/L.

5.7 keV と非常に低いため、通常であれば熱雑音等に隠れてしまう。本開発では、検出器を 0°C に冷却して熱雑音を極力排除した。また、コインシデンススペクトルを、波形分離 (Gauss Fit.) によりノイズ由来信号とトリチウム由来信号に分離した。閾値を注意深く設定することで、トリチウム由来の信号のみ取り出すことに成功した。これを Fig.6 に示した。Fig.6 において、閾値が 1 のとき、2 つに分離された信号のうち、左がノイズ成分で、右がトリチウム由来の信号である。閾値を 30, 40 と増大させるとノイズ成分とトリチウム由来の信号の計数率が逆転していくことがわかる。閾値を 60 では、ノイズ成分をほとんど含まず、トリチウム由来の信号の

みに分離抽出することができた。

トリチウム濃度および同時事象判定時間の依存性を Fig.7 に示す。Fig.7 (a) に示す通り、同時事象判定時間が 80 ns, 200 ns, 400 ns といずれも非常に良い直線性を示した。同時事象判定時間が長いほど計数率は増大し、結果として計数率は増大する傾向にある。しかしながら、Fig.7 (b) に見るように、同時事象判定時間がある値を超えると、計数率は比例関係を逸脱する。これは、400 ns までは信号と信号の同時事象の判定であったが、400 ns を超えると、信号+ノイズもしくはノイズ+ノイズの同時事象判定を行っていると考えられ、本検出器ではこれらの領域での計測は好ましくないと判断した。

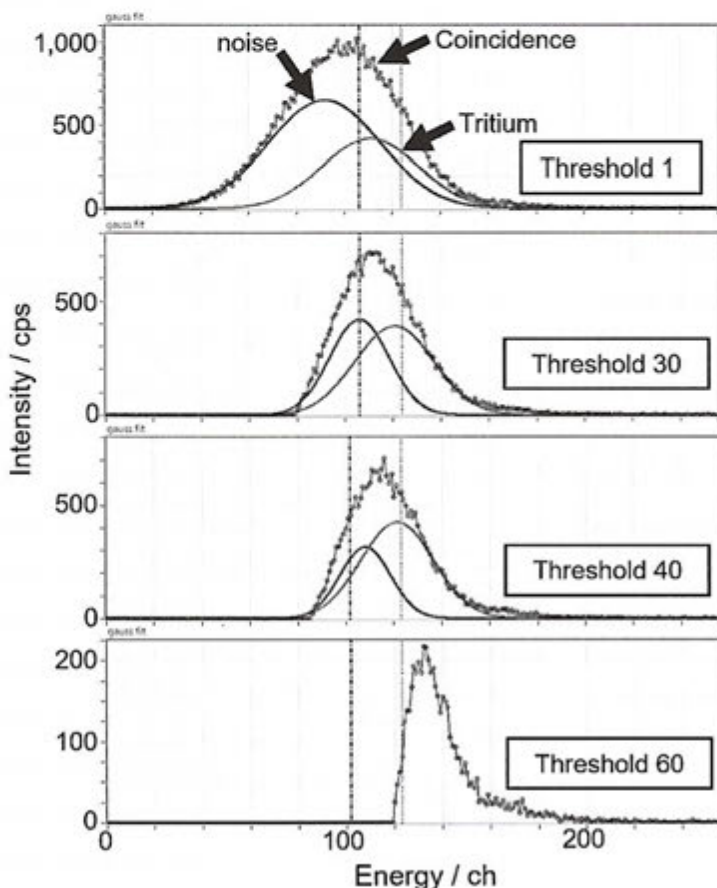


Fig.6 Coincidence spectra of tritium depend on threshold. Separated into noise and tritium signal by Gauss Fit.



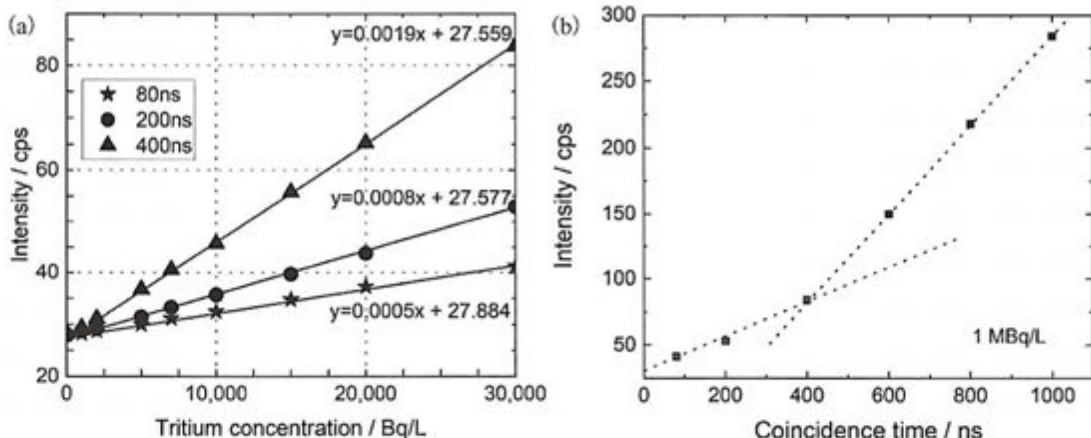


Fig.7 Calibration curves of tritium. (a) Dependence of tritium concentration and simultaneous event judgment time. (b) Dependence of judgement time and simultaneous event.

開発したALPS処理水の海洋放出を想定したトリチウム全量連続装置は、次の条件を満たすべく設計された。

処理流量 150 m<sup>3</sup>/day

(東京電力ホールディングス放出計画より)

検出下限値 1 15,000 Bq/L : 連続全量計測

(規制基準 60,000 Bq/L のスクリーニング)

検出下限値 2 1,000 Bq/L : バッチ式計測

(国と東電が約束した 1,500 Bq/L の計測)

Fig.4の検出器1系列では処理流量は20 L/minすなわち28.8 m<sup>3</sup>/dayである。150 m<sup>3</sup>/dayを満たすには、6系列並列で稼働させる必要がある。この場合、172.8 m<sup>3</sup>/dayとなり条件を満足する稼働率を下げないために、メンテナンス等(シンチレータの洗浄を含む)で個別に停止させる系列を2系列追加し、8系列の計装機器を1組の装置として構成した。Fig.8は装置の外観図である。8個の計測室がそれぞれ独立に存在し、並列に接続されている。計測室の各機能は電磁弁で自動で切り替わり、計測を止めることなく常時連続測定が可能である。それぞれの計測器はFig.8(b)のように収まっており、単独で出し

入れが可能である。

Fig.7の同時事象判定時間400 nsのデータから検出下限値を求めた。

トリチウム濃度  $H$  (Bq/L) = 30,000 Bq/L

信号強度  $N_s$  (cps) = 83.7 cps

バックグラウンド  $N_b$  (cps) = 28.3 cps

計測時間  $t$  (sec) = 10 sec

移動平均回数  $a$  (times) = 10 times

とすると、機器換算係数  $K$  と検出下限値 LLD は次式により求めることができる。

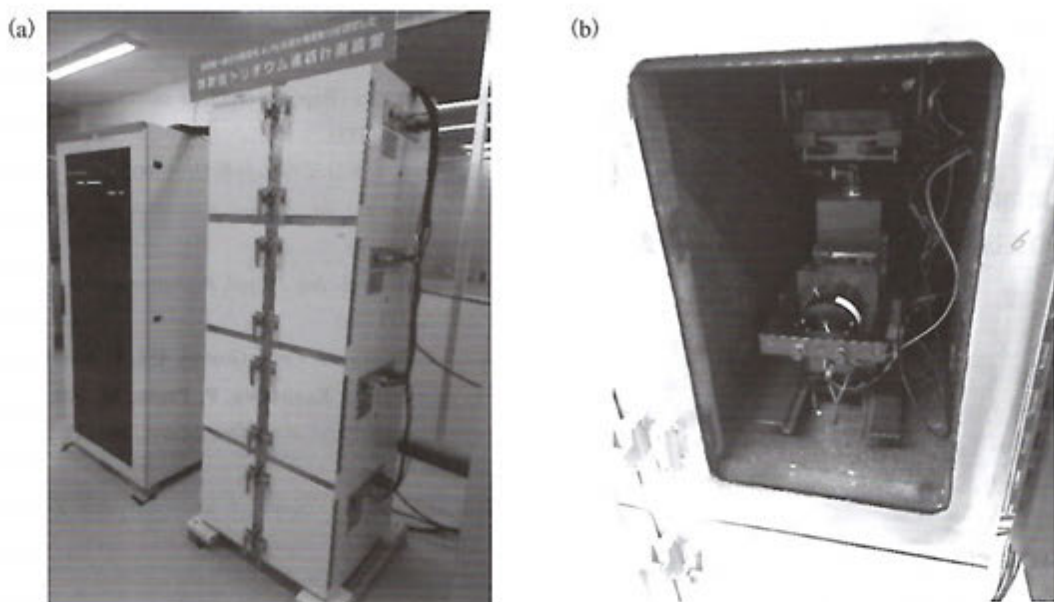
$$K = \frac{H}{N_s - N_b} = 541.5 \text{ Bq/cps}$$

$$LLD = K^3 \sqrt{\left( N_b - \frac{N_b}{at} \right)} = 455.2 \text{ Bq/L}$$

LLDの式を用いて、60,000 Bq/Lのスクリーニングの際、検出下限値15,000 Bq/Lを担保するための計測時間は2.2秒、1,500 Bq/L連続サンプリングの際、検出下限値1,000 Bq/Lを担保するための計測時間は488秒と求まった。

#### 4. 結 言

本開発ではALPS処理水の海洋放出を想定し



**Fig.8** Tritium continuous measurement equipment. (a) Appearance of 8-series measurement equipment. (b) Detector and detector room.

たトリチウム全量連続計測装置を、その要求仕様を満たし、運用に耐えうる装置を完成させることに成功した。その設定仕様と結果は次のとおりである。

計測処理流量：

東電計画流量  $150 \text{ m}^3/\text{day}$  に対し本装置  
 $172.8 \text{ m}^3/\text{day}$

規制基準  $60,000 \text{ Bq/L}$  のスクリーニング条件：

検出下限値  $15,000 \text{ Bq/L}$  を担保する計測  
時間 2.2 秒

東電・政府が約束した基準  $1,500 \text{ Bq/L}$  のサン  
プリング評価：

検出下限値  $1,000 \text{ Bq/L}$  を担保する計測時  
間 488 秒

流量に関しては充足した。検出時間に関してスクリーニングでは、ほぼ通水での計測が可能である。通常、ALPS 処理水は貯留するタンクによりトリチウム濃度が相違する。この条件

では、例えば 5 秒間隔で計測し、設定した異常値を超える値を認識した段階でアラートを発報すれば、濃度相違も 5 秒間隔で認識が可能となり、海洋放出の制御が可能となる。サンプリング評価では規制基準を十分下回っているが、より安心と安全を追求するための指標であるため、500 秒間隔の放出制御で充足するであろう。この場合は、検出器に 500 秒封止しバッチ計測を行うが、検出器が並列に備わっているため、擬似的に連続計測を行うことが可能となっている。現在は GAGG シンチレータカラムの高密度化を行い、計数率の向上を図っており、検出下限値と計測時間の低減を図っているところである。

本開発の成果は、従来はリアルタイム計測が不可能であったトリチウムのリアルタイム計測が可能となり、福島第一原子力発電所の廃炉や福島復興のみならず、トリチウムを原料とする

核融合炉の実現に向けた技術開発にも貢献するものと確信している。

## 謝 辞

本開発は、福島県地域復興実用化開発等促進事業の支援(令和2年度～令和4年度)を受けた。

## 参考文献

- 1) 東京電力福島原子力発電所における事故調査・検証委員会：最終報告。(2012)。
- 2) 東京電力ホールディングス：処理水ポータルサイト
- 3) 多核種除去設備等処理水の取り扱いに関する小委員会：報告書。(2020)。
- 4) 首相官邸：ALPS 処理水の処分等についての会見。(2021)。
- 5) 東京電力ホールディングス：福島第一原子力発電所特定原子力施設に係る実施計画変更認可申請書。(2021)。
- 6) ehso.emory.edu (Report): Nuclide safety data sheet, Hydrogen-3, (2013).
- 7) 文部科学省：トリチウム分析法 (2002)。
- 8) B. Kumar et al.: *Int. J. Appl. Radiation and Isotopes*, **118**, 80-86 (2016).
- 9) W. B. Clarke et al.: *Int. J. Appl. Radiation and Isotopes*, **27**, 515-522 (1976).
- 10) K. Kamada, et al.: *J. Cryst. Growth*, **452**, 81-84 (2016).
- 11) K. Kamada, S. Kurosawa, P. Prusa, M. Nikl, V. Kochurikhin, T. Endo, et al.: *Opt. Mater.*, **36** (12), 1942-1945 (2014).
- 12) N. J. Cherepy, J. D. Kuntz, Z. M. Seeley, S. E. Fisher, O. B. Drury, B. W. Sturm, et al.: *Proc. SPIE*, **7805**, 780501-780505 (2010).
- 13) K. Kamada, T. Endo, K. Tsutumi, T. Yanagida, Y. Fujimoto, A. Fukabori, et al.: *Cryst. Growth Des.*, **11**, 4484-4490 (2011).

