

企画セッション | 部会・連絡会セッション：水化学部会 [バックエンド部会，核燃料部会共催]

■ 2016年9月9日(金) 13:00～14:30 | ■ C会場 久留米シティプラザ 展示室2

[PL3C] 福島第一原子力発電所廃止措置の現状と今後の取り組み

座長：高木 純一（東芝）

[PL3C01] 汚染水対策の状況

*白木 洋也¹ (1.東電HD)

[PL3C02] サブドレン水処理の状況

*三宅 俊介¹ (1.日立GE)

[PL3C03] 圧力容器／格納容器向け防錆剤の多核種除去設備への影響評価

*田嶋 直樹^{1,2} (1.IRID、2.東芝)

[PL3C04] 福島第一原発事故廃棄物の処理・処分技術開発

*宮本 泰明^{1,2} (1.IRID、2.JAEA)

[PL3C05] 燃料デブリ性状把握研究の概要

*高野 公秀^{1,2} (1.IRID、2.JAEA)

水化学部会セッション「福島第一原子力発電所廃止措置の現状と今後の取り組み」

(1) 汚染水対策の現状

(1) The situation of contaminated water measures

白木 洋也¹¹東京電力ホールディングス 福島第一廃炉推進カンパニー**福島第一原子力発電所の汚染水対策の進捗状況について**

福島第一原子力発電所の廃炉・汚染水対策のうち汚染水対策については、3つの基本方針を策定し、各々の対策（作業項目）を進めてきている。

以下に「基本方針」と「作業項目」に示す。

1. 汚染源を取り除く

- ①多核種除去装置等による汚染水浄化
- ②トレンチ内の汚染水除去

2. 汚染源に水を近づけない

- ③地下水バイパスによる地下水汲み上げ
- ④建屋近傍の井戸での地下水くみ上げ
- ⑤凍土方式の陸側遮水壁の設置
- ⑥雨水の土壌浸透を抑える敷地舗装

3. 汚染水を漏らさない

- ⑦水ガラスによる地盤改良
- ⑧海側遮水壁の設置
- ⑨タンクの増設（溶接型へのリプレイス等）

これら、作業項目の多くは作業が完了したり、運用を開始したりしており、状況について説明する。

また、汚染水対策に関連して、陸上及び海洋で行っているモニタリング結果についても説明する。

*Hiroya Shiraki¹

¹Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. Fukushima Daiichi Decontamination and Decommissioning Engineering Company

水化学部会セッション「福島第一原子力発電所廃止措置の現状と今後の取り組み」

(2) サブドレン水処理の状況

(2) Current situation of subdrain treatment process

*三宅 俊介¹¹日立 GE

1. はじめに

福島第一原子力発電所（以下福島第一）では東日本大震災以来、発生する汚染水を処理するためのさまざまな設備が設置されてきた。ここでは、日立 GE ニュークリア・エナジー株式会社（以下日立 GE）が浄化設備を設置したサブドレン水処理の状況について紹介する。

2. 地下水流入量低減の取り組み

2011 年の震災以降、福島第一では 1 号機～4 号機原子炉建屋、タービン建屋等に地下水が流入し建屋内汚染水増加の原因となっている。これまで、1 日約 400m³の地下水が流入しており、この流入量を低減することが大きな課題となっている。

地下水流入量低減のため、以下の取り組みが行われている。

① 地下水バイパス

建屋上流側で地下水をくみ上げることで、建屋周辺の地下水水位を下げる

② サブドレン処理

建屋周辺の井戸（サブドレン）から地下水をくみ上げて浄化、放流することにより建屋への地下水流入量を低減する。

③ 海側遮水壁の設置と地下水ドレン処理

海側遮水壁の設置により放射性核種を含む地下水が港湾内に流れ込むことを防止。これに伴い水位上昇した護岸に設置した井戸（地下水ドレン）から地下水をくみ上げて浄化する。

上記に加え、陸側遮水壁（凍土壁）の設置により、建屋への地下水流入を更に低減させる計画である。

サブドレン浄化設備は上記のうち、②のサブドレン及び③の地下水ドレンを浄化するための設備である。

3. サブドレン水処理の概要

サブドレン他水処理施設の全体概要を図 2 に示す。本施設は、建屋周辺に設置されたサブドレン、護岸に設置された地下水ドレンから地下水をくみ上げる集水設備、くみ上げた地下水に含まれる放射性核種（トリチウムを除く）を十分低い濃度になるまで除去する浄化設備、処理済水の水質を分析した後、排水する移送設備から構成される。



図 1 地下水流入量低減の取り組み

*Shunsuke Miyake¹¹Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.

サブドレン浄化設備の概要図を図3に示す。サブドレン浄化設備はサブドレン、地下水ドレンに含まれる放射性核種を十分に低い濃度まで浄化する設備である。本設備は処理対象水に含まれる粒子状、コロイド状の放射性核種を除去する前処理装置、イオン状の放射性核種を除去する核種吸着装置から構成されている。処理対象水に含まる主な放射性核種はCs-134, Cs-137, Sr-90であり、これらを除去するためにCs/Srに対する選択性の高い吸着材を採用している。その他の核種についても複数の吸着材を組み合わせることにより、処理済み水の放射能濃度を検出限界値レベルに浄化する能力を有している。

また、処理対象水には海水由来の塩分が含まれているため、機器、配管の材質は耐食性に優れた二相ステンレスまたは炭素鋼＋ライニングとし、耐食性を高めている。

サブドレン浄化設備の水質管理

4. サブドレン浄化設備の水質管理

サブドレン処理済水は港湾に排水されるため、水質を厳密に管理する必要がある。このため、処理済水は浄化設備下流の一時貯水タンクに受入れ、タンク毎に水質の分析を行い、運用目標値を満足していることを確認した後に排水される。運用目標値は核種毎に定められた濃度限度（告示濃度限度）を満足するよう、十分に低い値に設定されている。また、分析については東電HDに加え、第三者機関による分析を行い、双方が運用目標値を満足している場合にのみ排水する運用としている。運用目標値を上回った水は再度浄化設備で処理を行う。

上記に加え、上流側のサブドレン、地下水ドレン、集水タンク等においても定期的に分析を行い処理対象水の水質傾向を把握している。

5. 処理実績と地下水位低減効果

本設備は2015年9月より本格運用を開始した。2016年7月現在で約15万m³のサブドレン水を処理し、処理済水を港湾に排水している。これまで、処理済水の濃度が運用目標値を上回ることなく安定して運転を継続している。サブドレン浄化設備の稼動により、サブドレン水位は徐々に低下し、管理目標値近傍で安定して維持している。

6. 今後の動向

現在、陸側遮水壁（凍土遮水壁）が設置され、2016年3月より凍結が開始されている。これに伴い、サブドレン・地下水ドレンの水質やくみ上げ量に変化することが想定されるため、水質動向を注視しつつ、処理を継続していく。また、現在サブドレン浄化設備は1系列のみの構成であり、今後2系列化による更なる信頼性向上に取り組んでいく。

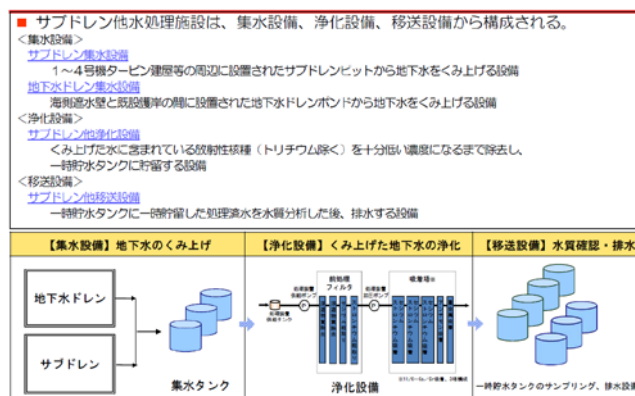


図2 サブドレン水処理施設の全体概要

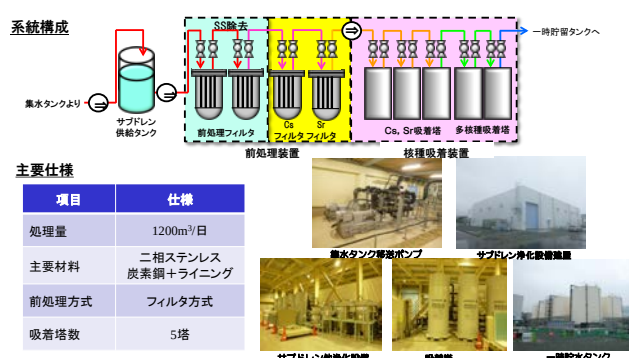


図3 サブドレン浄化設備の概要図

水化学部会セッション「福島第一原子力発電所廃止措置の現状と今後の取り組み」

(3) 圧力容器／格納容器向け防錆剤の多核種除去設備への影響評価

(3) Influence Assessment of Inhibitors in RPV/PCV for Multiple Radio-nuclides Removal System

*田嶋 直樹¹, 関 秀司¹, 須佐 俊介¹, 福松 輝城¹, 川原田 義幸¹, 田中 徳彦¹¹国際廃炉研究開発機構／株式会社東芝

1. 緒言

事故発生後、原子炉圧力容器（RPV）および原子炉格納容器（PCV）は海水に曝されたことなどの影響により腐食の進展が懸念されている。今後の廃炉作業に向け、長期に渡って RPV/PCV の構造材料の腐食の進行を防ぎ、健全性を維持するための腐食抑制策の実機適用性確認が必要である。また、現在、1F では燃料デブリの冷却のための循環注水、水素爆発防止のための PCV への窒素封入が実施されている。窒素雰囲気中では水中の溶存酸素濃度が低下することから構造材の腐食進行は抑制状態にあると推定されるが、今後、燃料デブリ取り出し時には PCV が開放されることから、周囲の大気が流入することで水中の溶存酸素濃度が上昇し、腐食が進行する可能性がある。腐食の進行は、構造材料の耐震強度、PCV・S/C のバウンダリ維持機能に影響を及ぼすことが懸念される。窒素封入に代わる腐食抑制策として、防錆剤の循環冷却水中への添加が有望であるが、PCV から防錆剤を含む汚染水が建屋滞留水側にリークすると、既存の水処理設備の処理性能に影響を及ぼす可能性がある。

2. 評価状況

表 1 評価対象の防錆剤と想定処理濃度

被膜状態	防錆剤	RPV/PCV汚染水中の想定濃度	SARRY TM での想定濃度	MRRS TM での想定濃度
酸化被膜型	タングステン酸ナトリウム	1500	1500	3000
	五ホウ酸ナトリウム	6000 (as B)	6000 (as B)	10000 (as B)
沈殿被膜型	亜鉛混合リン酸塩 + 炭酸ナトリウム	400	400	800
酸化被膜 + 沈殿被膜型	亜鉛／モリブデン酸ナトリウム 混合リン酸塩	3500	3500	7000

SARRYTM: Simplified Active Water Retrieve and Recovery System

単位: ppm

MRRSTM: Multiple Radio-nuclides Removal System

株式会社東芝が導入した第二セシウム除去装置 SARRYTM と多核種除去設備 MRRSTM を評価対象の既存水処理設備として選定した。評価対象元素はセシウム、ストロンチウム、ヨウ素、アンチモンとした。防錆剤を添加した SARRYTM、MRRSTM の模擬液を用いて評価対象元素の

濃度を防錆剤の添加有無の条件で比較して影響度进行评估した。その結果、臨界防止剤としても使用される五ホウ酸ナトリウムは MRRSTM で Sr 除去の阻害影響をもつことなどの知見が得られた。

3. 今後

防錆剤の水処理性能への影響評価は、燃料デブリ取り出しに向けた重要な検討項目の 1 つである。今後とも以下の観点での影響評価を継続する。

- ① 既存水処理への全体的な影響評価
- ② 吸着性能に対する防錆剤濃度の影響評価
- ③ 小循環水処理ループを想定した評価

4. 謝辞

本発表は資源エネルギー庁の平成 25 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（圧力容器／格納容器の健全性評価技術の開発）」において IRID が補助事業者となりその組合員である東芝が実施した成果の一部を取りまとめたものである。この場を借りて御礼申し上げます。

*Naoki Tajima¹, Shuji Seki¹, Shunsuke Susa¹, Teruki Fukumatsu¹, Yoshiyuki Kawaharada¹ and Norihiko Tanaka¹¹IRID/TOSHIBA Corporation

水化学部会セッション「福島第一原子力発電所廃止措置の現状と今後の取り組み」

(4) 福島第一原発事故廃棄物の処理・処分技術開発

(4) R&D on Treatment and Disposal of Radioactive Waste resulting from Accident at Fukushima Daiichi NPS

宮本 泰明^{1,2}¹国際廃炉研究開発機構, ²日本原子力研究開発機構

1. 諸言 福島第一原子力発電所（以下、1F）の事故により発生した廃棄物は、事故に伴い炉心溶融が起こっていることから炉心燃料に由来した放射性核種を含んでおり、高線量のものが多いなど、通常操業している原子力発電所の廃棄物とは異なった特徴がある。本研究では、特殊な廃棄物について、処分に關する安全性の見通しを確認すること、及び、現在 1F の現場で行われている廃炉・汚染水対策を円滑に進めるために必要な技術の整備、データの整備を行っていくことを目的としている。

2. 汚染水処理二次廃棄物の性状把握**2-1. セシウム吸着装置吸着塔のインベントリ推定**

汚染水処理に伴う二次廃棄物として発生する廃ゼオライト、スラッジ等は高線量であり直接放射能分析できないことから、処理設備の前後の汚染水の分析データの差分推定によりインベントリ評価した。汚染水の核種分析で装置入口水濃度が非検出となる核種については、入口水の検出下限値を入口濃度とし、これに総処理水量をかけることで総核種量を求めた。セシウム吸着装置吸着塔（KURION）の評価結果として、核種分析で検出された ¹³⁷Cs 等 8 核種に加え、非検出の ⁴¹Ca、²⁴¹Pu 等 24 核種についても保守的な核種量を推定した。推算結果は、汚染水分析により不検出であった核種が分析下限値で全量吸着するという非常に保守的な評価となっており、コンクリートピット処分の基準線量相当濃度を越えた ⁴¹Ca、¹²⁹I、⁹⁰Sr については、今後より不確定性を減らすことが必要である。

2-2. 多核種除去設備スラリーの核種分析

多核種除去設備（ALPS）から発生する鉄共沈スラリー及び炭酸塩スラリーの核種分析結果を図 1 に示す。既設 ALPS からは鉄共沈と炭酸塩のスラリーがそれぞれ発生し、増設 ALPS については炭酸塩のスラリーのみが発生する。スラリーに含まれる核種は ⁹⁰Sr が支配的であり、 $1 \times 10^6 \sim 10^7 \text{ Bq/cc}$ の放射能濃度となっている。⁹⁰Sr 以外にも、核分裂生成物（¹²⁵Sb、¹³⁷Cs）、放射化生成物（⁵⁴Mn、⁶⁰Co）、アクチニド核種（^{238,239+240}Pu、²⁴¹Am）が除染されている。アクチニド核種の除去には鉄共沈処理が効果的であり、スラリー中の Pu 濃度は $1 \times 10^1 \text{ Bq/cc}$ 程度であった。

3. 結言 1F の事故廃棄物を安全に処理・処分する見通しを得るためには、個別研究開発項目の検討に基づく廃棄物ストリーム（廃棄物の発生、保管から処理・処分までの一連の取扱い）をまとめることが重要になる。現時点では性状把握を進めることにより不確定性を減らしていくことが重要であり、集中的な検討を実施していく。

本研究は、経済産業省受託事業「平成 25 年度発電用原子炉等廃炉・安全技術基盤整備（事故廃棄物処理・処分概念構築に係る技術検討調査）」、経済産業省／平成 25 年度「廃炉・汚染水対策事業費補助金（事故廃棄物処理・処分技術の開発）」及び平成 26 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分に關する研究開発）」の成果を含んでいる。

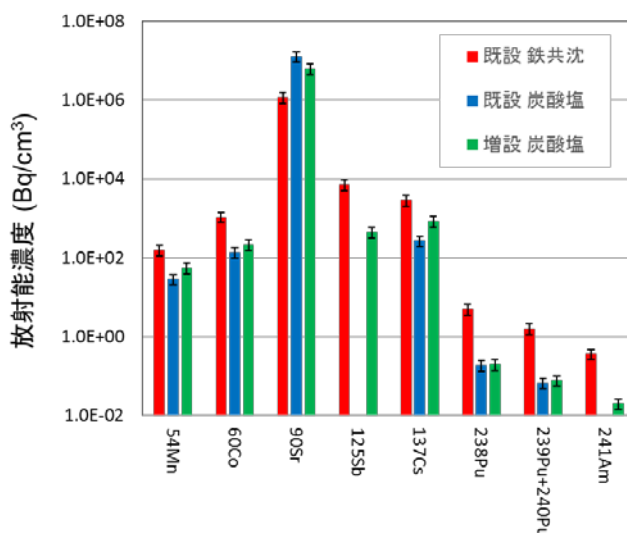


図 1 多核種除去設備スラリーの核種分析結果

Yasuaki Miyamoto^{1,2}¹IRID, ²JAEA

水化学部会セッション「福島第一原子力発電所廃止措置の現状と今後の取り組み」

(5) 燃料デブリ性状把握研究の概要

(5) Characteristics study on fuel debris

高野 公秀

IRID (原子力機構)

1. 緒言 燃料デブリ取出しに向けた性状把握のため、デブリ中に何が生成し（化合物、相）、それらがどのように入り混じり（組織）、どのくらい硬いのかを主眼に、実験室規模で種々の模擬デブリを作製して性状予測データを取得・整理した概要を報告する。

2. 模擬デブリ作製・試験内容 酸化物デブリの主要構成成分である(U,Zr)O₂を、UO₂とZrO₂から焼結法により作製するとともに、少量添加物として希土類（可燃性毒物、FP）、Fe（ステンレス鋼由来）、Ca（海水塩及びコンクリート由来）の酸化物を固溶させたものも作製した。炉心の模擬デブリとして、(U,Zr)O₂/Zr/SUS/B₄C系混合物をアーク溶解により溶融・固化して作製した。格納容器底部で炉心溶融物とコンクリートが反応した模擬MCCI生成物として、上記炉心材料にコンクリート粉を加えてアーク溶解した試料に加え、コンクリート片上で炉心材料成形体を局所集光加熱で溶融させる手法も用いた。これら模擬デブリ試料に関して、断面の組織観察、元素分析による組成評価、X線回折による相同定を行うとともに、デブリ取出しの切削系工具への負担の指標となる微小硬さを測定した。さらに、水中に浸漬した際の物理・化学的変性について基礎知見を取得した。

3. 生成相・組織・硬さの概要 (U,Zr)O₂ コリウムの性状には、冷却条件が大きく影響することが分かった。UO₂-ZrO₂二元系は、超高温では全率固溶し立方晶単相となるが、2000℃以下では急激に相互固溶度が低下するため、ゆっくりと冷えた部位ではUリッチの立方晶とZrリッチの正方晶（+単斜晶）に相分離が起こる。Feが固溶した際にはこの傾向が助長され、両相がミクロンサイズで入り混じった組織となることを模擬デブリとTMI-2デブリで確認した。急冷条件の立方晶単相組織が12～14.5 GPaの微小硬さであるのに対し、微細入り混じり組織の微小硬さは8～11 GPa程度である。元々UO₂に含まれているGdは、二相分離が起こる際にもGd/U比をほぼ保持したまま分配される。

炉心の燃料デブリは(U,Zr)O₂セラミック質部分と金属質部分からなり、酸化が進まないような条件下では、金属質部分にはFe-Cr-Ni及び(Fe,Cr,Ni)₂(Zr,U)などの金属相に加えて、ZrB₂や(Fe,Cr)₂B等の非常に硬いホウ化物が分散析出することが分かった。水蒸気中の酸素分圧を模擬した酸化雰囲気焼鈍（酸素分圧 1×10⁻³atm、1500℃）では、金属相中のUとZr及びZrB₂中のZrは酸化して(U,Zr)O₂となるが、遊離したホウ素は周辺のFe、Crと(Fe,Cr)₂Bを形成してFe-Cr-Ni合金とともに比較的安定に残存する。

MCCIによる生成相の傾向は、還元剤として作用する金属Zrと、脱水が酸化要因として作用するコンクリートの混合比に依存する。溶融物中の金属Zr比率が高い条件下では、コンクリート中のSiO₂と一部のAl₂O₃が還元され、金属相にはFe-Cr-Ni-Si-Al-Zr-U系の種々の合金が生成するとともに、酸化物相は(U,Zr,Ca)O₂とAl-Ca-Oが主要成分となる。逆に、コンクリート成分が多い場合には、金属相はFe-Ni(-Si)が主要成分となり、酸化物相は(U,Zr,Ca)O₂とケイ酸ガラス(U, Zr, Gd, Fe, Cr等が溶解)が主要成分となる。一方、炉心溶融物とコンクリートの界面付近では2000℃前後の温度勾配があるので、集光加熱の手法で到達温度と生成相の階層構造イメージを構築した。約1200℃以下のコンクリート部分は溶融しないものの、脱水による熱劣化で強度が低下するとともに取出し作業時に汚染水が浸透しやすい形態になっている。

デブリ水中浸漬時の物理・化学的変性には、水の放射線分解で生成する過酸化水素の影響が最も大きい。UO₂を過酸化水素水に浸漬すると、サブミクロンの微細な過酸化ウラン酸が生じ、コロイド的性質を示す。一方、PuO₂は過酸化水素水中でも変性しないことから、長期に渡る浸漬中にUとPuの分布に差が生じる可能性が示唆される。ただし、(U,Zr)O₂を過酸化水素水に浸漬した際の過酸化ウラン酸生成量は、UO₂からの生成に比べてかなり少なく、比較的安定であることが分かっている。

本報告は、「平成25年度発電用原子炉等廃炉・安全技術基盤整備事業（燃料デブリ性状把握・処置技術の開発）」に係る資源エネルギー庁からの受託事業、平成25年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリ性状把握・処置技術の開発）」及び平成26年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握）」に係る補助事業の成果である。

Masahide Takano

IRID (JAEA)