

日本原子力学会水化学部会
第15回研究会
平成24年3月7日

「キュリオンメディアによる汚染水 処理について」

(電中研) 小山正史、塚田毅志、土方孝敏、魚住浩一、
稲垣健太、宇留賀和義

(東京電力) 石川敬司、小野昇一、鈴木俊一

(KURION) M. Denton, J. Raymont, R. Keenan, G. Bonhomme



【背景1】 高放射性汚染水の滞留と処理



炉心への注水(海水・水)

放射性汚染水

・高放射能: $> 10^6$ Bq/ml

・不純物: 油、海水

・大量: 10万ト 25万ト

汚染水の処理システム (6/17 ~)

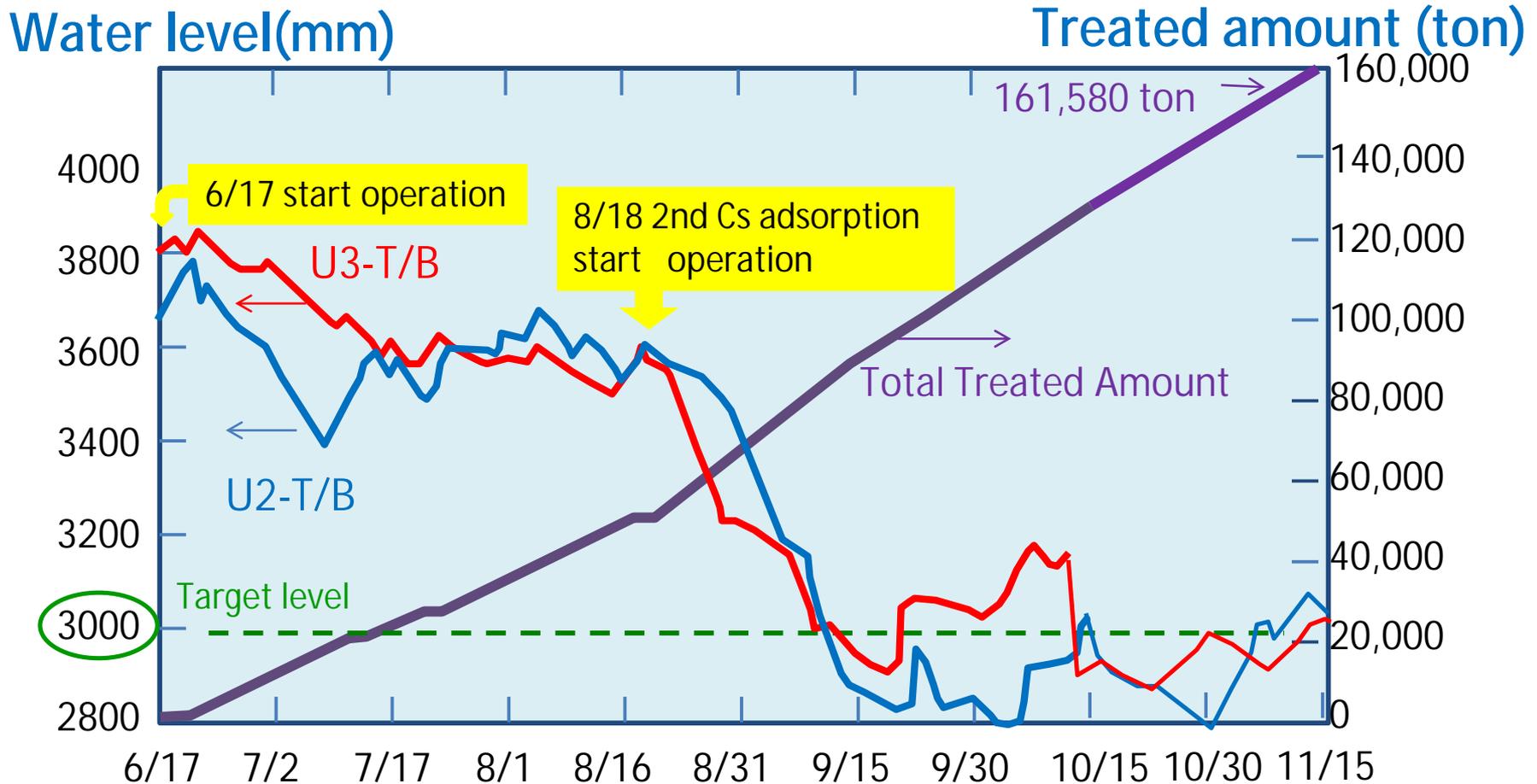


タービン建屋などのたまり水

漏洩の懸念

【背景2】 汚染水処理の現状

- u 累計約16万トンの処理(11/14時点)し、水位は目標値(3000mm)を維持し、豪雨や長期の水処理施設停止に対する漏出懸念が解消
- u Cs吸着分離システムでは、約11万トンの処理し、99.9%以上のCsを除去



2号機タービン建屋地下たまり水の分析結果

平成23年3月26日採取
3月27日分析

核種 (半減期)	濃度 (Bq/cc)
Co-56 (約77日)	検出限界未満
Co-58 (約71日)	検出限界未満
Co-60 (約5年)	検出限界未満
Mo-99 (約66時間)	検出限界未満
Tc-99m (約6時間)	4.8×10^6
Ru-106 (約370日)	検出限界未満
Ag-108m (約418年)	検出限界未満
Te-129 (約70日)	検出限界未満
Te-129m (約34日)	検出限界未満
Te-132 (約3日)	検出限界未満
I-131 (約8日)	1.3×10^7
I-132 (約2時間)	検出限界未満
I-134 (約53分)	検出限界未満
Cs-134 (約2年)	2.2×10^6
Cs-136 (約13日)	2.5×10^5
Cs-137 (約30年)	2.2×10^6
Ba-140 (約13日)	4.9×10^5
La-140 (約2日)	1.8×10^5
合計	1.9×10^7

参考資料：水処理設備運転直前の滞留水の状況

福島第一 高レベル滞留水の概算量*1

H23年5月31日現在

	原子炉建屋地下*2	タービン建屋地下*3	RW建屋地下*4	トレンチ*5	合計
	3,900 m ³ 5/31	8,400 m ³ 5/31	1,100 m ³ 5/31	2,800 m ³ 5/31	16,200 m ³
1号機	I-131 1.5E+05 Bq/cm ³ 3/28	I-131 1.5E+05 Bq/cm ³ 3/28	I-131 1.5E+05 Bq/cm ³ 3/28	I-131 5.4E+00 Bq/cm ³ 3/29	-
	Cs-134 1.2E+05 Bq/cm ³ 3/28	Cs-134 1.2E+05 Bq/cm ³ 3/28	Cs-134 1.2E+05 Bq/cm ³ 3/28	Cs-134 7.0E-01 Bq/cm ³ 3/29	-
	Cs-137 1.3E+05 Bq/cm ³ 3/28	Cs-137 1.3E+05 Bq/cm ³ 3/28	Cs-137 1.3E+05 Bq/cm ³ 3/28	Cs-137 7.9E-01 Bq/cm ³ 3/29	-
	計 4.0E+05 Bq/cm ³ 3/28	計 4.0E+05 Bq/cm ³ 3/28	計 4.0E+05 Bq/cm ³ 3/28	計 6.9E+00 Bq/cm ³ 3/29	-
	1.6E+15 Bq 3/28	3.4E+15 Bq 3/28	4.4E+14 Bq 3/28	1.9E+10 Bq 3/29	5.4E+15 Bq
	6,000 m ³ 5/31	11,400 m ³ 5/31	2,400 m ³ 5/31	4,800 m ³ 5/31	24,600 m ³
2号機	I-131 1.3E+07 Bq/cm ³ 3/27	I-131 1.3E+07 Bq/cm ³ 3/27	I-131 1.3E+07 Bq/cm ³ 3/27	I-131 6.9E+06 Bq/cm ³ 3/30	-
	Cs-134 3.1E+06 Bq/cm ³ 3/27	Cs-134 3.1E+06 Bq/cm ³ 3/27	Cs-134 3.1E+06 Bq/cm ³ 3/27	Cs-134 2.0E+06 Bq/cm ³ 3/30	-
	Cs-137 3.0E+06 Bq/cm ³ 3/27	Cs-137 3.0E+06 Bq/cm ³ 3/27	Cs-137 3.0E+06 Bq/cm ³ 3/27	Cs-137 2.0E+06 Bq/cm ³ 3/30	-
	計 1.9E+07 Bq/cm ³ 3/27	計 1.9E+07 Bq/cm ³ 3/27	計 1.9E+07 Bq/cm ³ 3/27	計 1.1E+07 Bq/cm ³ 3/30	-
	1.1E+17 Bq 3/27	2.2E+17 Bq 3/27	4.6E+16 Bq 3/27	5.2E+16 Bq 3/30	4.3E+17 Bq
	6,400 m ³ 5/31	13,800 m ³ 5/31	2,300 m ³ 5/31	5,800 m ³ 5/31	28,100 m ³
3号機	I-131 6.6E+05 Bq/cm ³ 4/22	I-131 6.6E+05 Bq/cm ³ 4/22	I-131 6.6E+05 Bq/cm ³ 4/22	I-131 2.0E+02 Bq/cm ³ 3/30	-
	Cs-134 1.5E+06 Bq/cm ³ 4/22	Cs-134 1.5E+06 Bq/cm ³ 4/22	Cs-134 1.5E+06 Bq/cm ³ 4/22	Cs-134 2.0E+01 Bq/cm ³ 3/30	-
	Cs-137 1.6E+06 Bq/cm ³ 4/22	Cs-137 1.6E+06 Bq/cm ³ 4/22	Cs-137 1.6E+06 Bq/cm ³ 4/22	Cs-137 2.1E+01 Bq/cm ³ 3/30	-
	計 3.8E+06 Bq/cm ³ 4/22	計 3.8E+06 Bq/cm ³ 4/22	計 3.8E+06 Bq/cm ³ 4/22	計 2.4E+02 Bq/cm ³ 3/30	-
	2.4E+16 Bq 4/22	5.1E+16 Bq 4/22	8.6E+15 Bq 4/22	1.4E+12 Bq 3/30	8.4E+16 Bq
	8,500 m ³ 5/31	11,800 m ³ 5/31	3,700 m ³ 5/31	900 m ³ 5/31	22,900 m ³
4号機	I-131 4.3E+03 Bq/cm ³ 4/21	-			
	Cs-134 7.8E+03 Bq/cm ³ 4/21	-			
	Cs-137 8.1E+03 Bq/cm ³ 4/21	-			
	計 2.0E+04 Bq/cm ³ 4/21	-			
	1.3E+14 Bq 4/21	2.4E+14 Bq 4/21	7.5E+13 Bq 4/21	1.8E+13 Bq 4/21	4.6E+14 Bq
		9,600 m ³ 5/31			9,600 m ³
集中RW プロセス主建屋*3		I-131 1.3E+07 Bq/cm ³ 3/27			-
		Cs-134 3.1E+06 Bq/cm ³ 3/27			-
		Cs-137 3.0E+06 Bq/cm ³ 3/27			-
		計 1.9E+07 Bq/cm ³ 3/27			-
		1.8E+17 Bq 3/27			1.8E+17 Bq
		3,700 m ³ 5/31			3,700 m ³
集中RW 高温焼却炉建屋*3		I-131 6.6E+05 Bq/cm ³ 4/22			-
		Cs-134 1.5E+06 Bq/cm ³ 4/22			-
		Cs-137 1.6E+06 Bq/cm ³ 4/22			-
		計 3.8E+06 Bq/cm ³ 4/22			-
		1.4E+16 Bq 4/22			1.4E+16 Bq
合計	22,800 m ³	58,500 m ³	9,500 m ³	14,300 m ³	105,100 m ³
	1.4E+17 Bq	4.7E+17 Bq	5.5E+16 Bq	5.2E+16 Bq	7.2E+17 Bq

注 *1: 測定した水位からのおよその推定量を示しており、今後の注水・排水のバランスや現場調査の進捗等により変わる場合がある。

*2: 2,3,4R/Bは水位がT/Bと同レベルになると推定して算出。温度はT/Bと同じと仮定。

*3: 制圧建屋地下を含み水位はT/Bと同レベル。温度はT/Bと同じと仮定。集中RWプロセス建屋の温度は2T/Bと同じ、集中RW HTIの温度は3T/Bと同じとした。

*4: 水位は1,2RWは実測、他はT/Bと同レベル。温度はT/Bと同じと仮定。

*5: 4トレンチ温度はT/Bと同じと仮定。:

添付資料-1

出展：保安院ホームページ（平成23年6月3日）

「東京電力株式会社福島第一原子力発電所における高濃度の放射性物質を含む水の保管・処理に関する計画の受領について」より

【背景3】汚染水処理システム構築の課題

TMIで行われた汚染水処理との違い

水組成： 塩、油含有 (放射能濃度・組成は類似)

処理量： 25万トン/年 (TMIは6千トン/年)

設置環境： 構内既設建屋利用のため、
・床耐荷重や使用クレーンなどに制限
・個別遮蔽 (TMIは燃料プール水遮蔽)

工期： 梅雨までの3ヶ月弱 (TMIは2年以上)

内外のメーカー

東芝

KURION

AREVA

日立

他

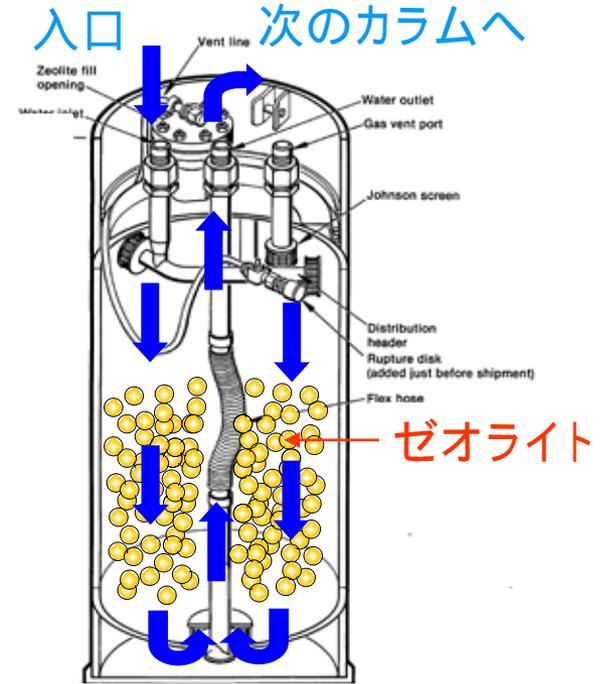
再処理・ゼオライトなどの専門家が協力

JAEA

電中研

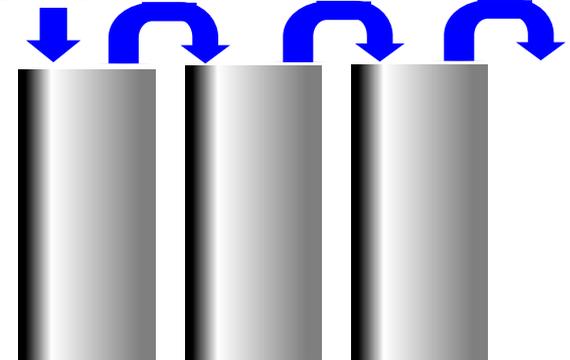
他

- ・乾式再処理でゼオライトカラムの開発実績
- ・熱流動、遮蔽計算、ガラス固化など幅広い技術基盤



TMIのゼオライト・カラム (塔)

汚染水



複数カラムによる高効率化 8

汚染水処理における電中研の役割

セシウム吸着分離工程 (KURIONゼオライトカラム) の構築・運転に向けて、以下の研究を実施

技術

適用

乾式再処理

(1) 各種ゼオライトの吸着性能(平衡データ)を測定し、実機のカラム構成選定を支援

(2) 小型ゼオライトカラムで実機流速での吸着挙動(速度論データ)を確認し、シミュレーションコードを開発

遮蔽・熱流動

(3) 実機ゼオライトカラムでの吸着挙動をシミュレートし、運転の安定化・最適化を支援

(4) 使用済ゼオライトカラム保管特性の評価(遮蔽、崩壊熱、放射線分解)

ガラス固化

(5) 吸着後ゼオライトの固化処理技術の検討(予備的評価)

設計

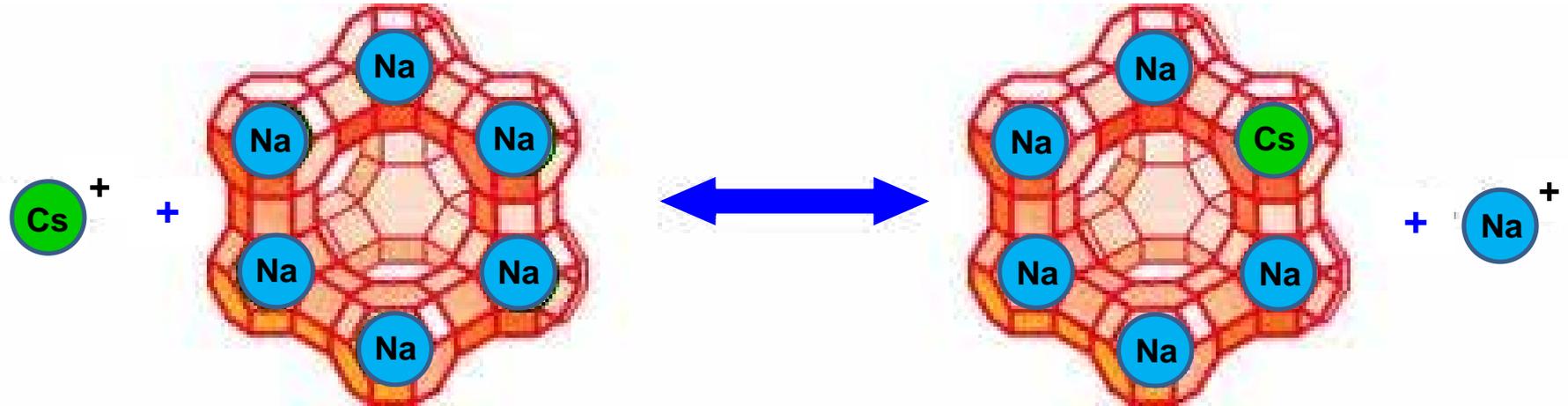
運転・運用

将来課題

1. 各種ゼオライトの吸着性能評価

ゼオライト: ナトリウム-アルミノケイ酸 (Na-Al-Si-O) など天然に豊富に存在する鉱物
選択的なガス吸着やイオン交換に一般利用 (用途に応じた合成物も)

例) モレキュラーシーブ (乾燥剤)、ネコ砂 (脱臭剤)、土壌改良剤



プロセス選定のため

多種のゼオライトの吸着性能を測定
特に、海水や油に対する影響も評価

国産天然ゼオライト	2種類
KURION社ゼオライト	7種類
TMI使用ゼオライト	2種類



国産天然

KURION

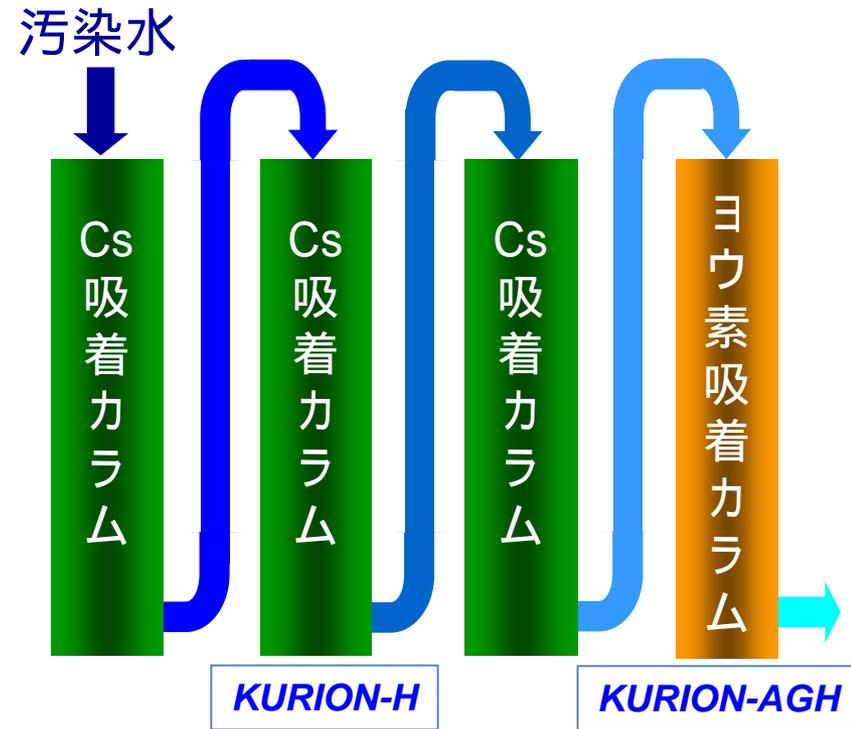
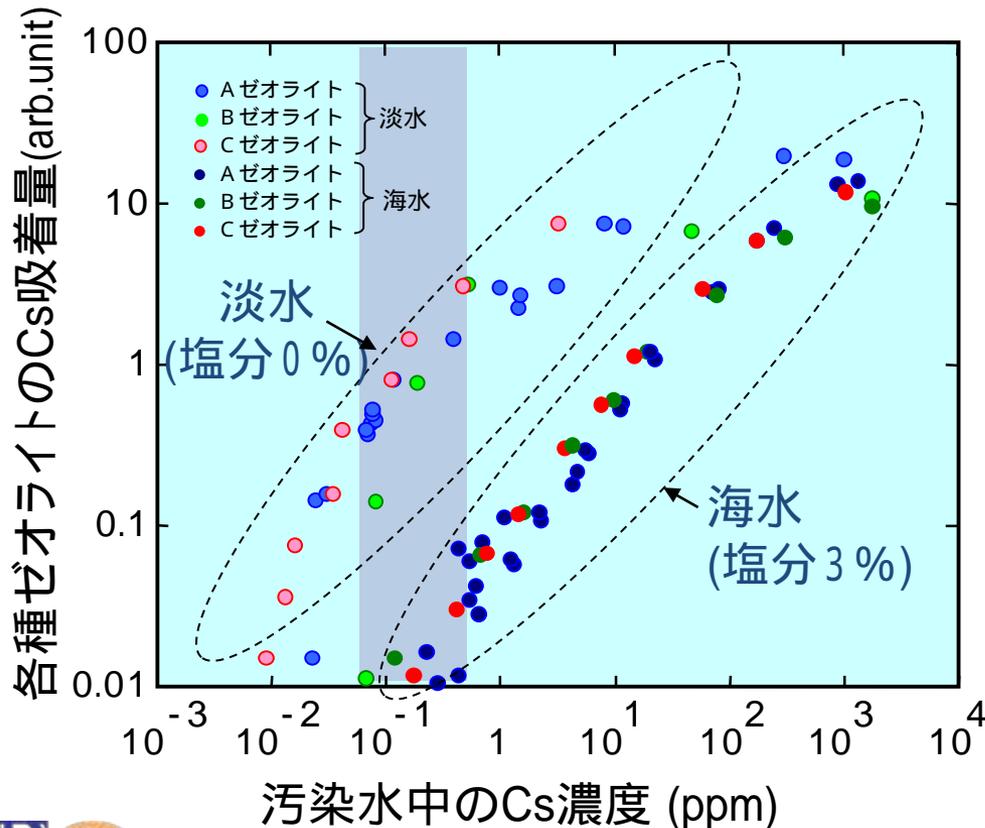
TMI

測定した吸着性能と選定されたカラム構成

u 各種ゼオライトへのセシウムやヨウ素などの吸着性能を、模擬廃液にゼオライトを浸漬して測定

いずれも十分な吸着容量を有し、油分の影響は小さい
海水塩分 (NaCl など) により吸着性能の低下が見られる

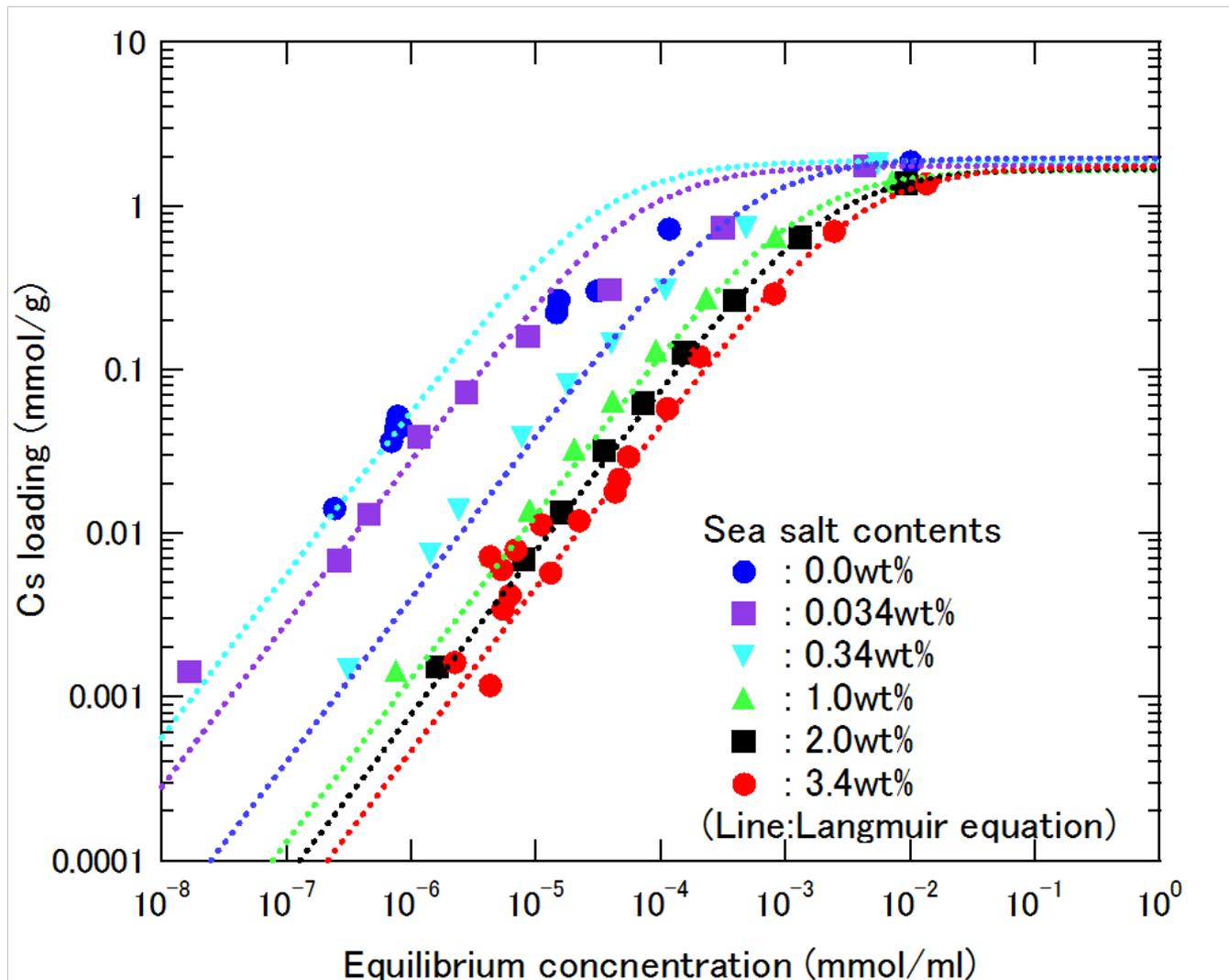
u 得られた吸着性能や表面線量評価などから、実機のカラム構成が確定し、発生する使用済ゼオライトカラム本数を評価



KURIONのカラム構成

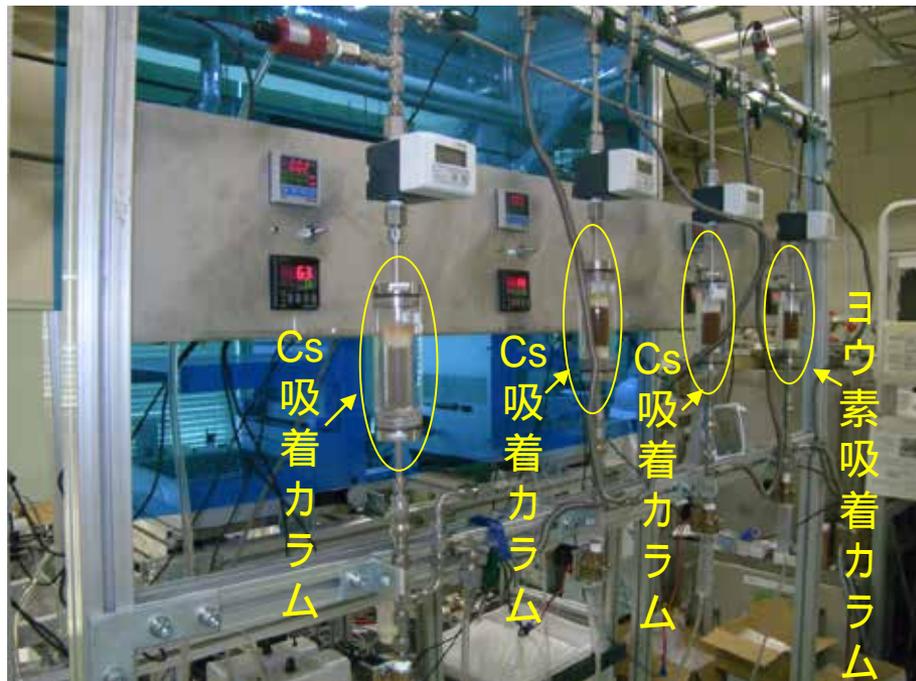
KURIONメディアH (Herschelite) の吸着等温線

KURION media for Cs absorption: H (Herschelite)

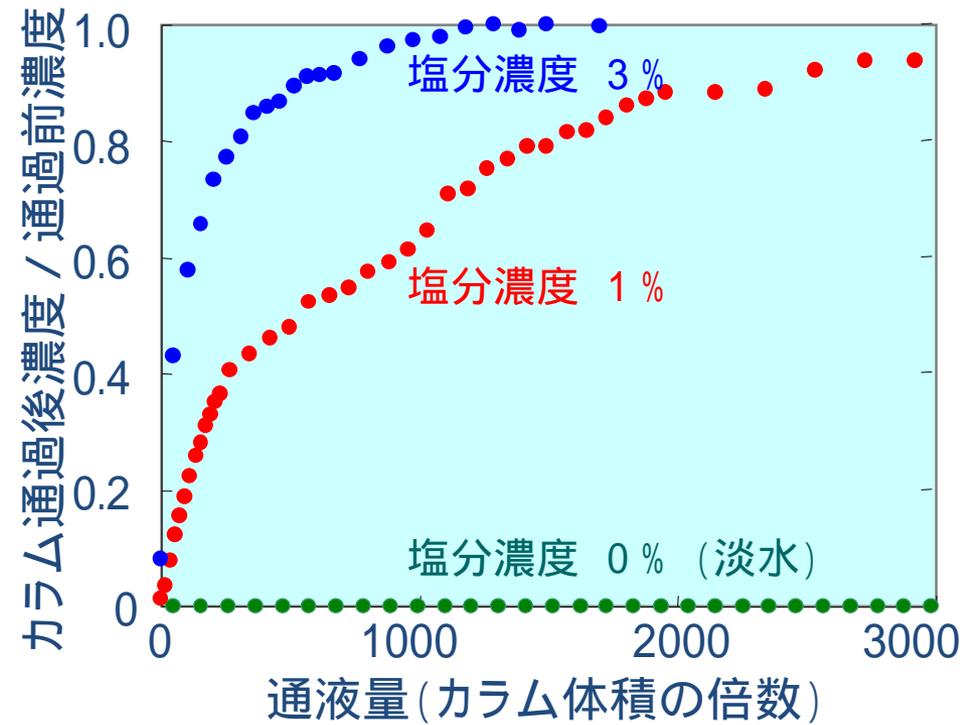


2. 小型ゼオライトカラムの実機流速での吸着挙動

- KURIONゼオライトで、実機と同様な構成を持つカラムのシステムを急遽構築し、模擬廃液を用いた連続試験を実施
- 実条件(線流速、成分等)での除染係数の評価、速度論データの取得、システム全体の特性データなどを取得



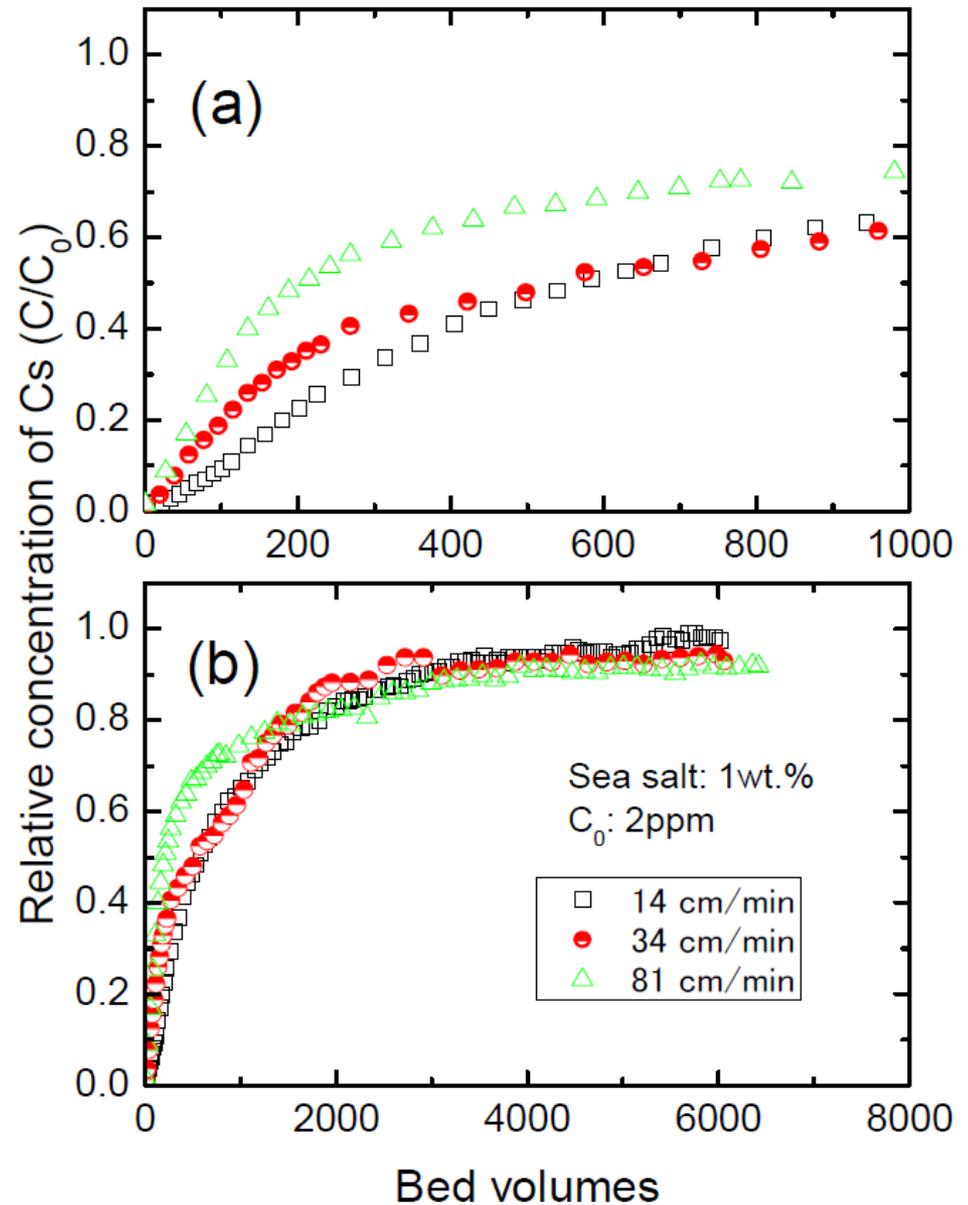
小型ゼオライトカラム試験装置
(カラム内寸 20x60mm)



塩分濃度によるCs除染挙動の差

カラム試験の流速依存性

Fig.6 Breakthrough curves of Cs for Herschelite plotted against the flow rate in 1.0 wt% sea salt. (a) Bed volumes ranging from 0 to 1000 and (b) bed volumes ranging from 0 to 8000.



Csの吸着・脱着挙動

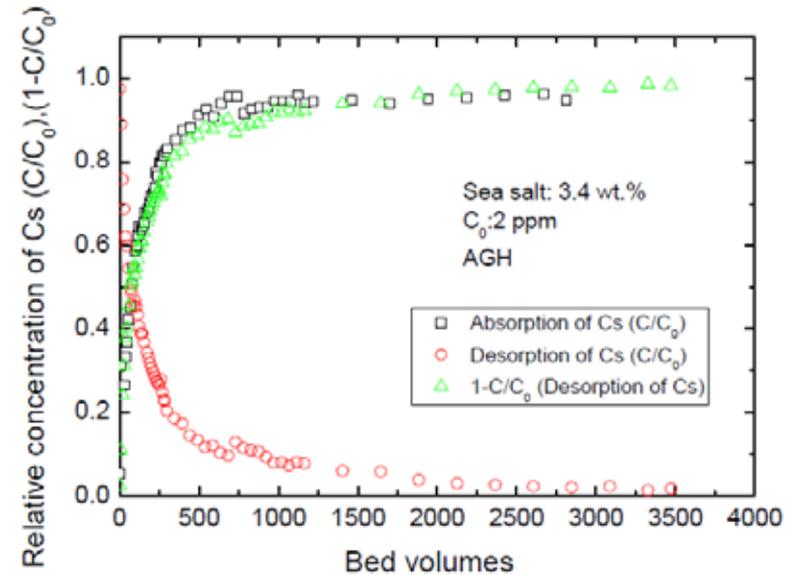
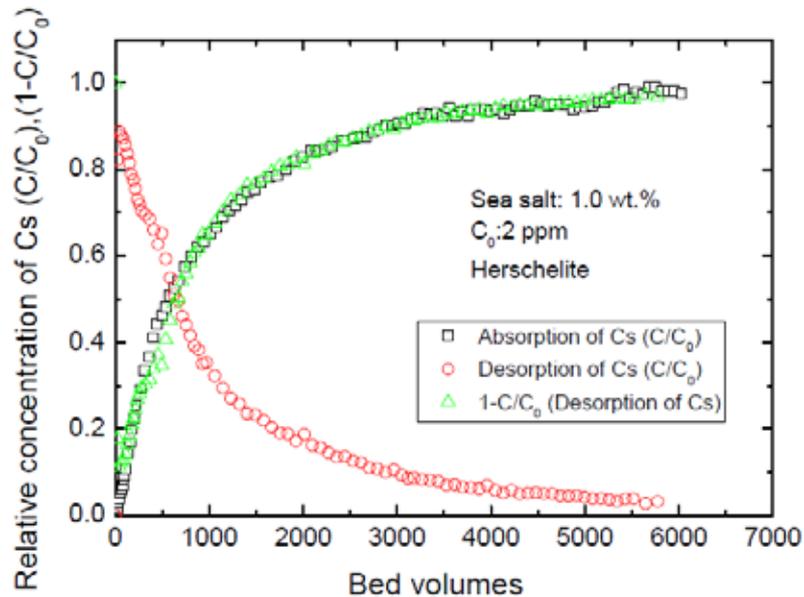
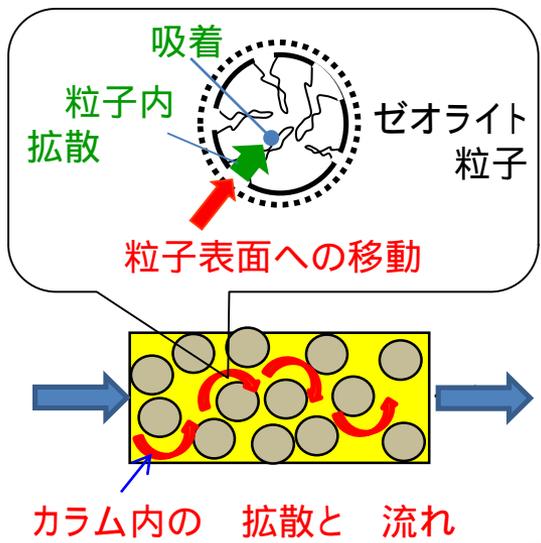


Fig.9 Change in the relative concentration of Cs (C/C_0) and $1-C/C_0$ in the H column plotted against the bed volume.

Fig.10 Change in the relative concentration of Cs (C/C_0) and $1-C/C_0$ in the AGH column plotted against the bed volume.

小型カラムでのシミュレーションコードの開発

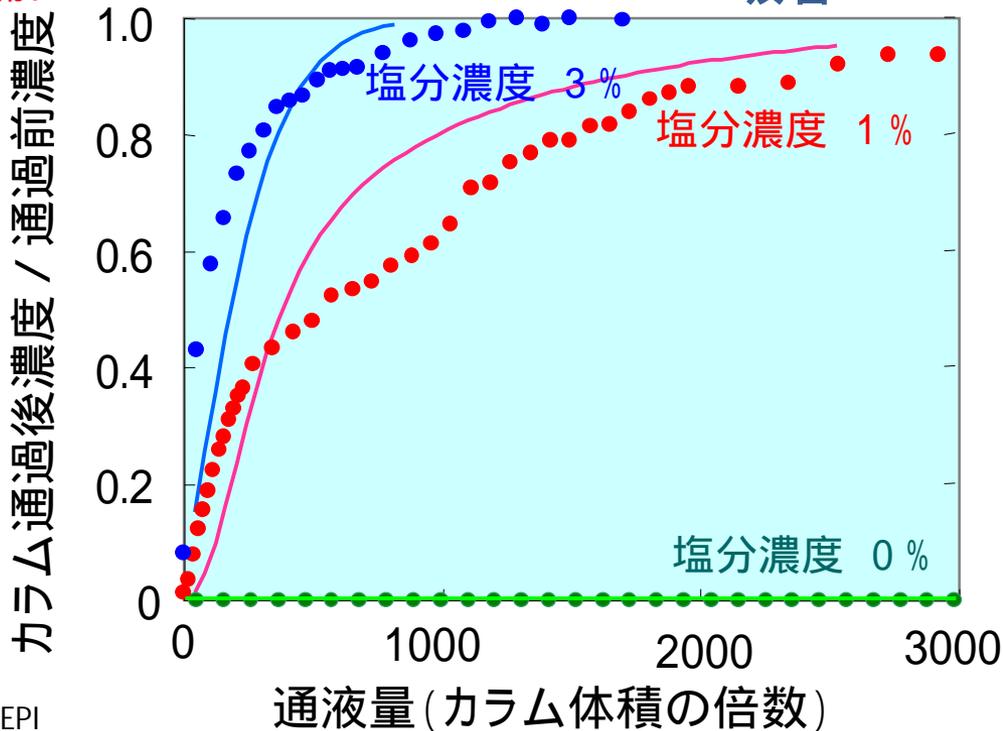


カラム内液中濃度

$$\frac{\partial c^b}{\partial t} = \underbrace{D_b \frac{\partial^2 c^b}{\partial x^2}}_{\text{拡散}} - \underbrace{u \frac{\partial c}{\partial x}}_{\text{流れ}} - \underbrace{\frac{3k_f(1-e_b)}{Re_b} (c^b - c^p)|_{r=R}}_{\text{粒子表面への移動}}$$

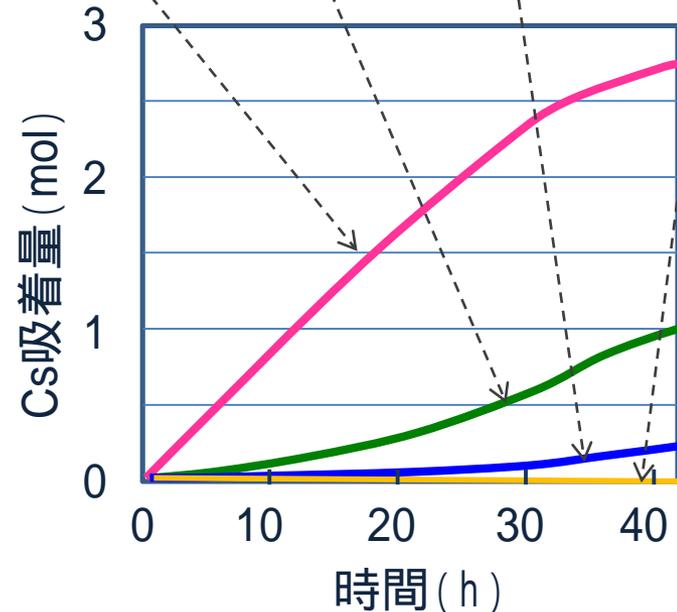
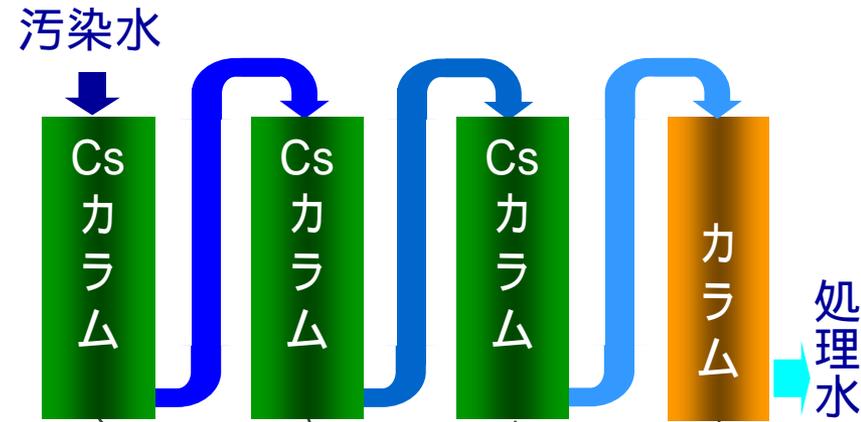
粒子内濃度

$$\frac{\partial c^p}{\partial t} = \underbrace{\frac{1}{\sum_{i=1}^n e_p + (1-e_p)r} \frac{\partial Q}{\partial c^p} \frac{\partial}{\partial t}}_{\text{吸着}} + \underbrace{e_p D_p \left(\frac{\partial^2 c^p}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c^p}{\partial r} \right)}_{\text{粒子内拡散}}$$



3. 実機のシミュレーションと運転支援

流速を揃えているため、小型カラムと同じ吸着速度モデルのカラム寸法を大きくすることで、実機のシミュレーションが可能



各カラムでのCs吸着量の経時変化



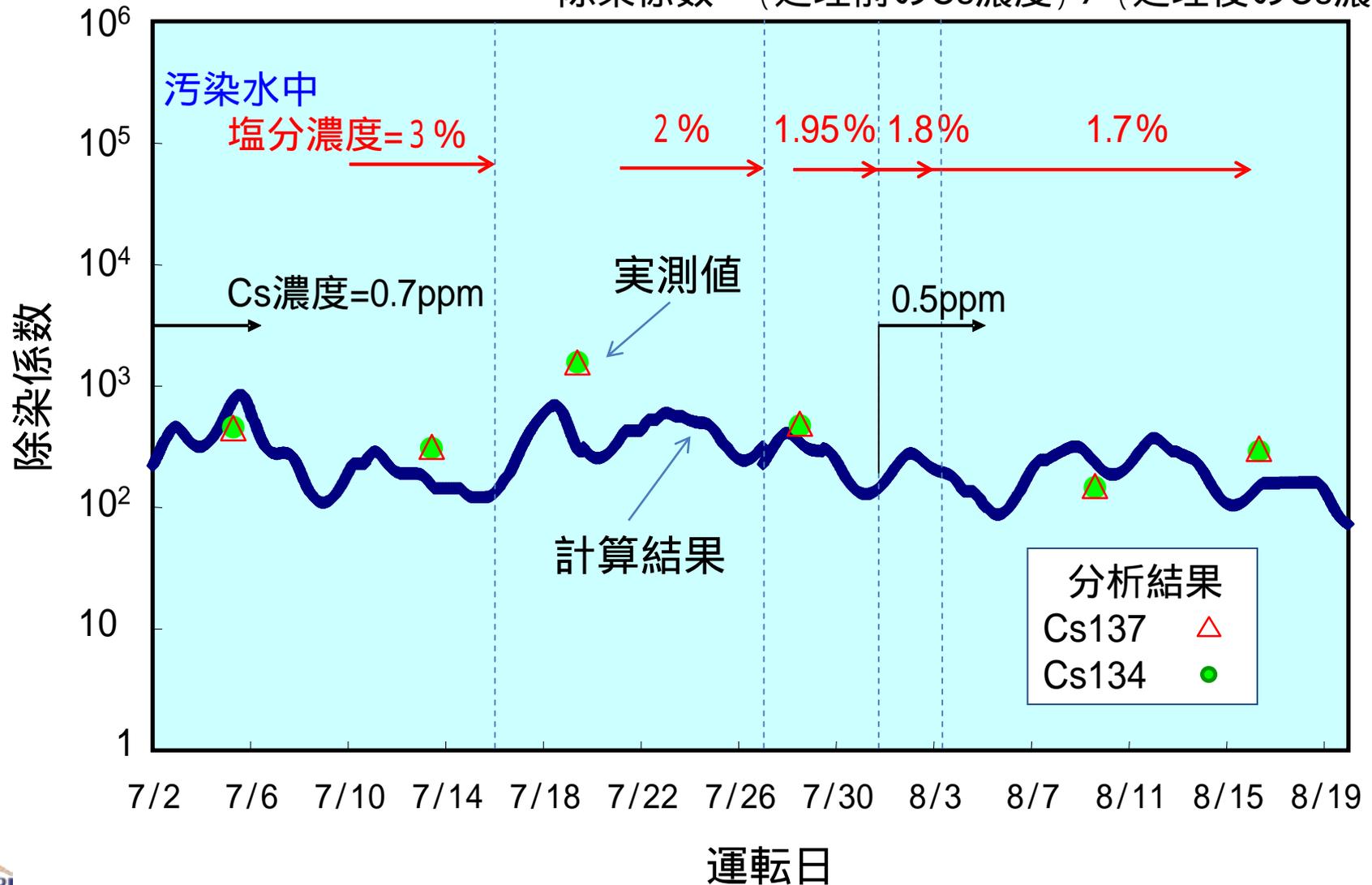
(東京電力ホームページより)

KURIONゼオライトカラムシステム

実機のシミュレーション結果

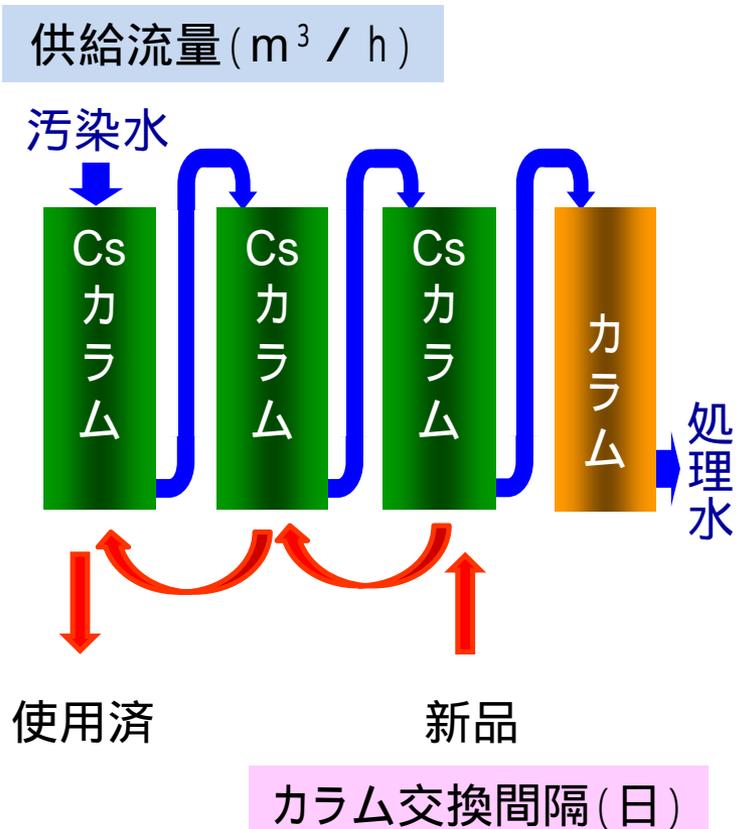
KURIONシステムの日々の除染係数*の変化を適確に再現

*除染係数 = (処理前のCs濃度) / (処理後のCs濃度)

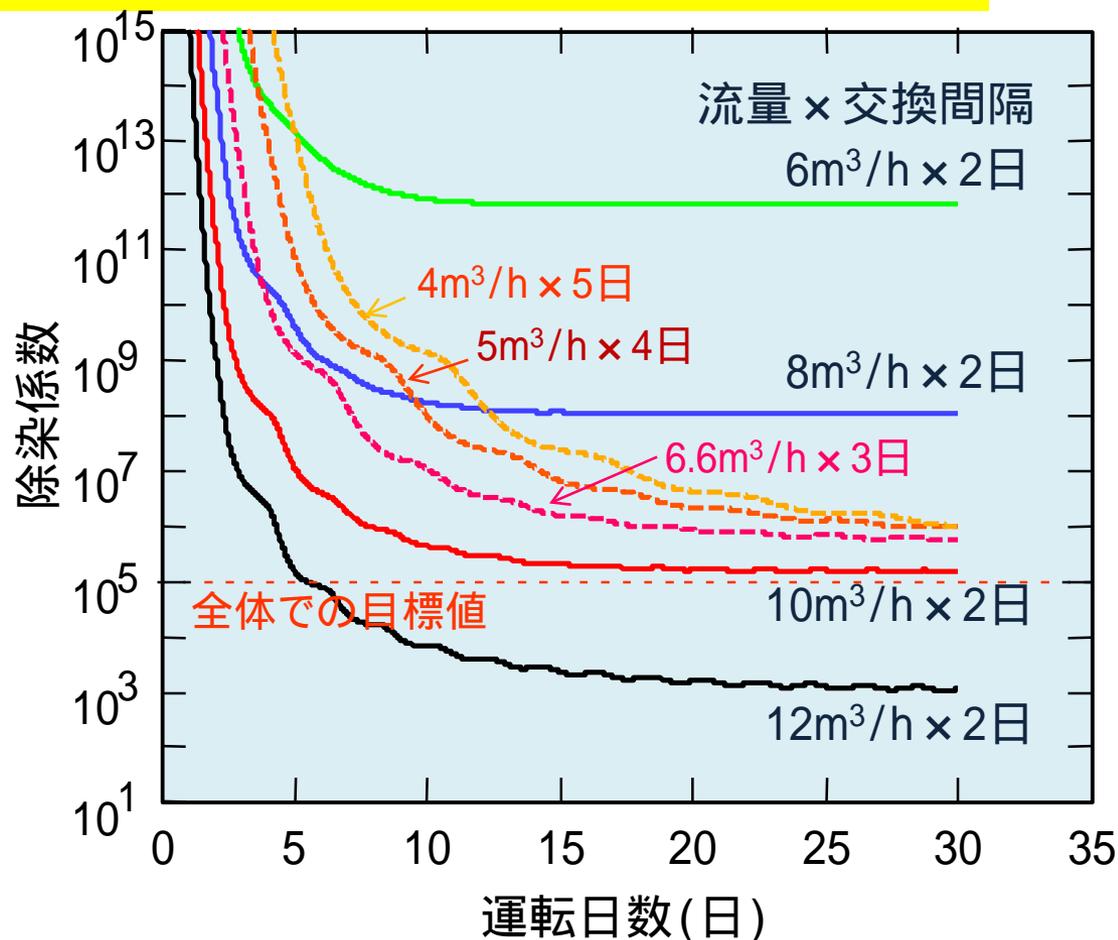


シミュレーションを用いた運用の最適化

カラムへの汚染水の供給流量、カラムの交換間隔(交換頻度)などの運転パラメータの影響を評価し、第2吸着システムとの流量バランスなど、システム運用の最適化に貢献



KURIONシステムの運転パラメータ



KURIONシステムの除染係数の予測

4. 使用済ゼオライトカラムの保管特性の評価



KURION ゼオライトベッセルを用いた
熱流動試験設備（電中研狛江地区）

使用済ゼオライトカラムを保管する際の
さまざまな特性を実験と解析により評価

- ・ 崩壊熱による使用済みゼオライトの
乾燥挙動評価
- ・ 崩壊熱による自然循環と内部換気量の
評価
- ・ 崩壊熱による温度上昇の評価
- ・ ゼオライトの耐熱性評価 ほか



使用済ゼオライトカラムが安定的に
保管できることを確認

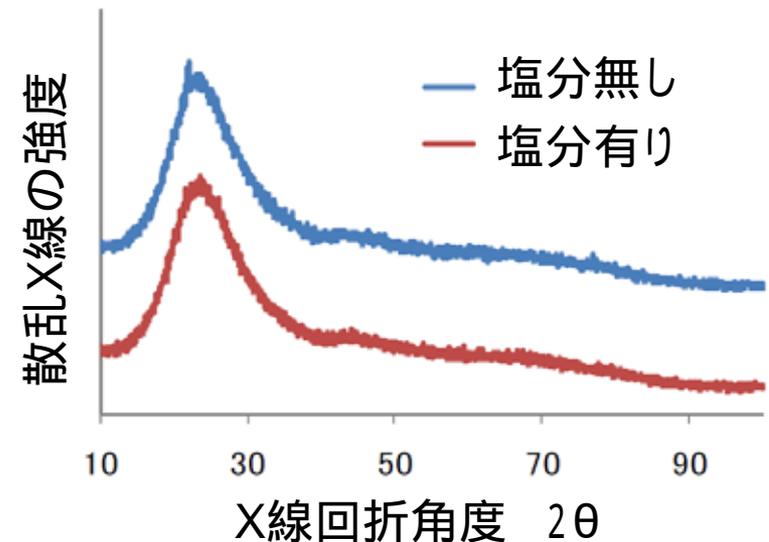
5. 吸着後ゼオライトの固化処理技術の検討

- u 高濃度のCsを含有するゼオライトは高レベル廃棄物であるが、Cs-137やCs-134は比較的半減期が短いため、さまざまな安定固化方法が可能
- u Cs吸着後ゼオライトの六ヶ所同等のガラス固化体への転換可能性を検討

SiO₂、B₂O₃などを添加し、1150 程度の高温でガラス合成に成功
ガラス固化体と同程度以上の温水に対する耐浸出特性を確認



原料ゼオライトと合成したガラス固化体

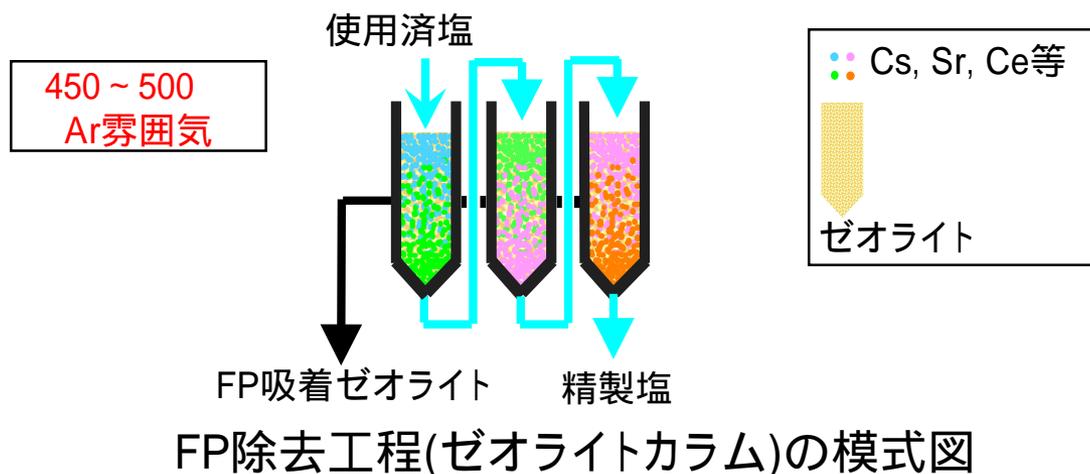


ガラスのX線回折結果
(残留塩分の有無によらず、ガラスが形成)

まとめ

- u 乾式再処理などで培った技術を活用し、KURIONゼオライトの吸着性能やカラム特性など、設計に必要なデータの測定・評価を短期間で行い、汚染水処理システムの早期構築に貢献した
- u ゼオライトカラム実機における除染挙動を解析・予測するシミュレーションコードを短期間で開発し、吸着量の把握や事象分析、運転計画の立案などに活用されて、運用の効率化に貢献した
- u 崩壊熱や放射線の影響など、使用後のゼオライトカラムの特性を評価し、保管時の安定性確認に寄与した
- u さらに、将来課題の先取りとして使用済ゼオライトのガラス化方法を検討し、技術的に可能であることを確認した

【参考】乾式再処理の工学規模ゼオライトカラム



FP: 核分裂生成物



乾式再処理用ゼオライトカラム試験装置



グローブボックス内の試験装置