

化学工学会シンポジウム 福島原発事故復興促進への化学工学の寄与 福島第一原子力発電所汚染水処理の概要と今後の取組

池田 昭

株式会社 東芝 原子力化学システム設計部
化学システム設計第一担当

目次

1 汚染水処理設備

2 SARRY™

3 汚染水処理の考え方と難しさ

4 多核種除去設備

5 増設多核種除去設備

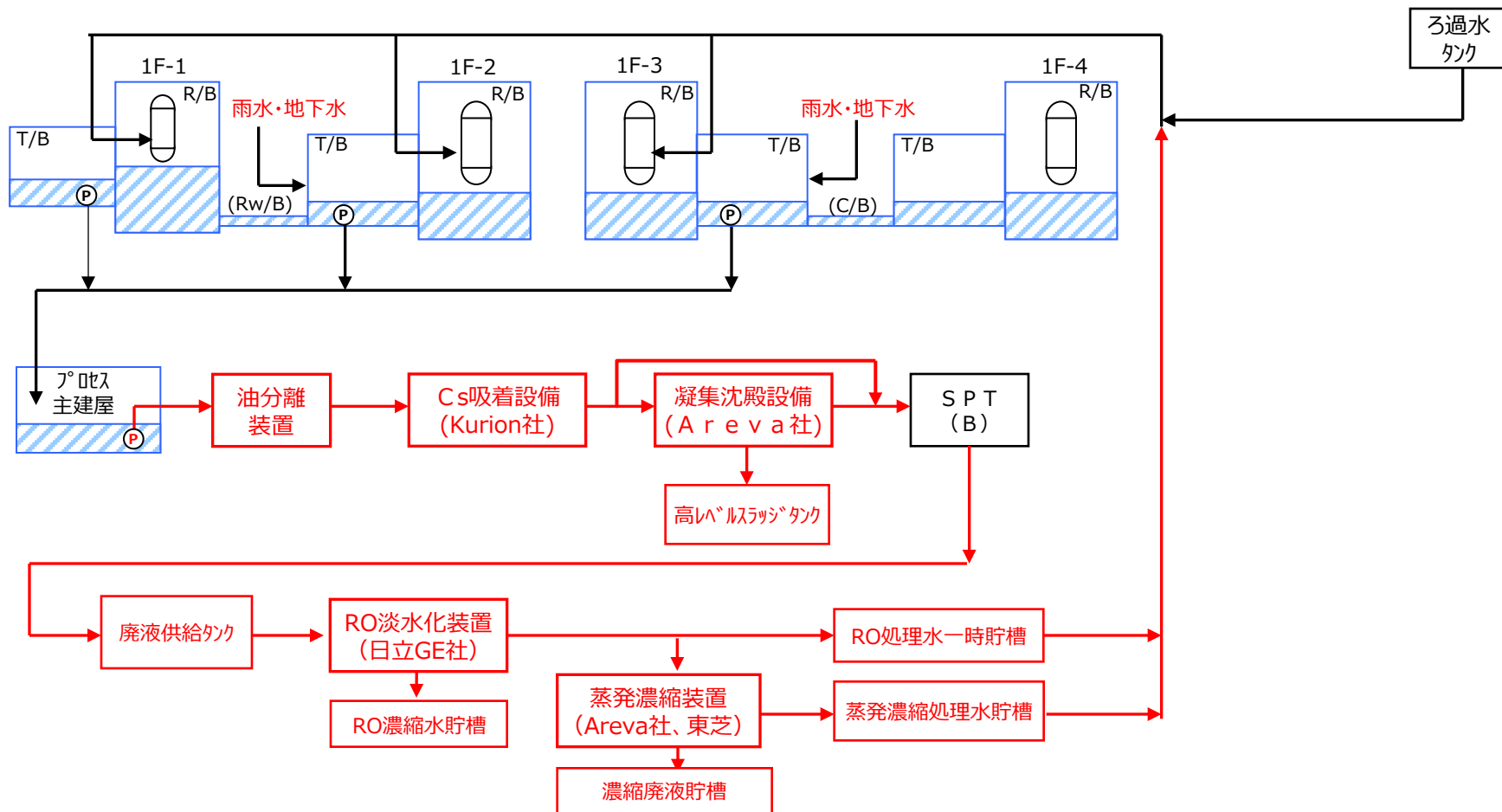
6 多核種除去設備の考え方と難しさ

参考 1F汚染水処理設備の全体状況

1 汚染水処理設備 必要性

- 滞留水の循環による原子炉冷却注水システム構築
 - ・放射性核種の除去（Cs D F * : 10^6 以上）
⇒ 海水成分存在下でもCs除去が可能な吸着材の選定。一方で除去し過ぎによる、温度上昇、しゃへい、水素発生の評価が必要
 - ・海水成分等の不純物の除去（油分等）
⇒ 油分除去装置設置
 - ・除去により発生する廃棄物の最小化
⇒ 吸着容量の多い吸着材を選定
- 滞留水の環境への漏えい防止
 - ・必要処理量の確保による水位の安定化
⇒ 高SV、LVでも性能を発揮する吸着材の選定
 - ・安定な運転性能の確保（高稼働率）
⇒ 稼働部の少ないシンプルな構造
- 短期間での設置による運用（梅雨・台風対応）
 - ⇒ 既設の建物の利用と短工期の実施
 - ⇒ スリーマイルアイランド等での実績のある海外技術の導入

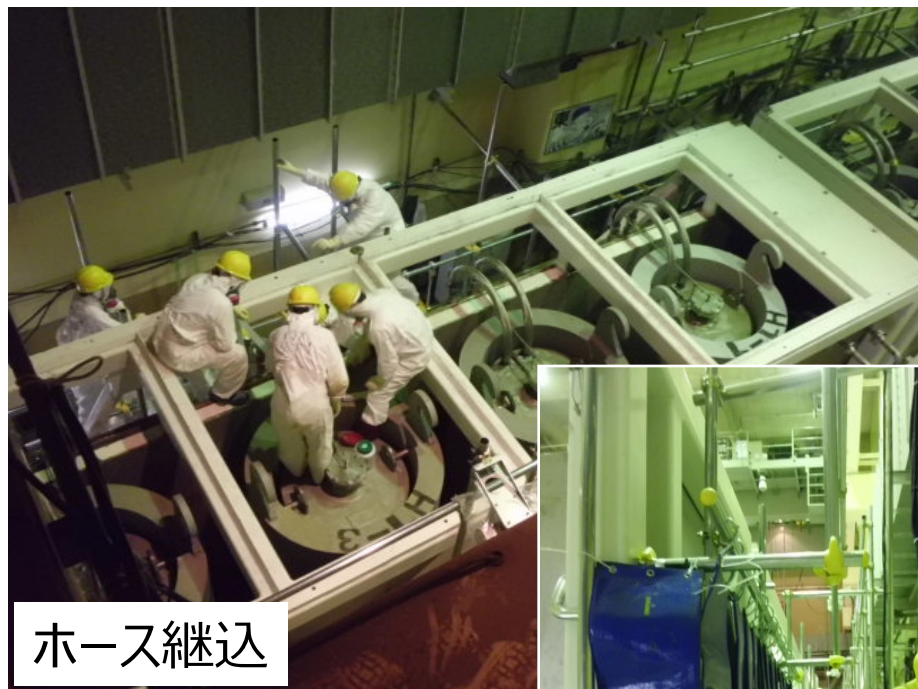
1 汚染水処理設備 初期ループ



循環注水による外部注水の停止

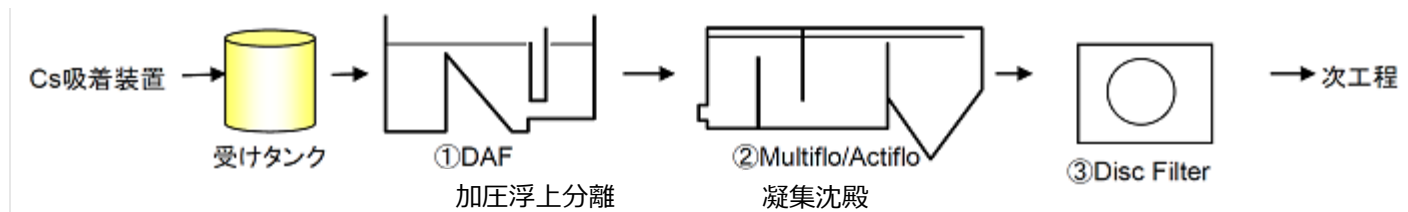
1 汚染水処理設備 セシウム除去装置

- 第一セシウム吸着設備（K u r i o n）の据付、追加溶接、追加遮蔽の施工



1 汚染水処理設備 凝集沈殿装置

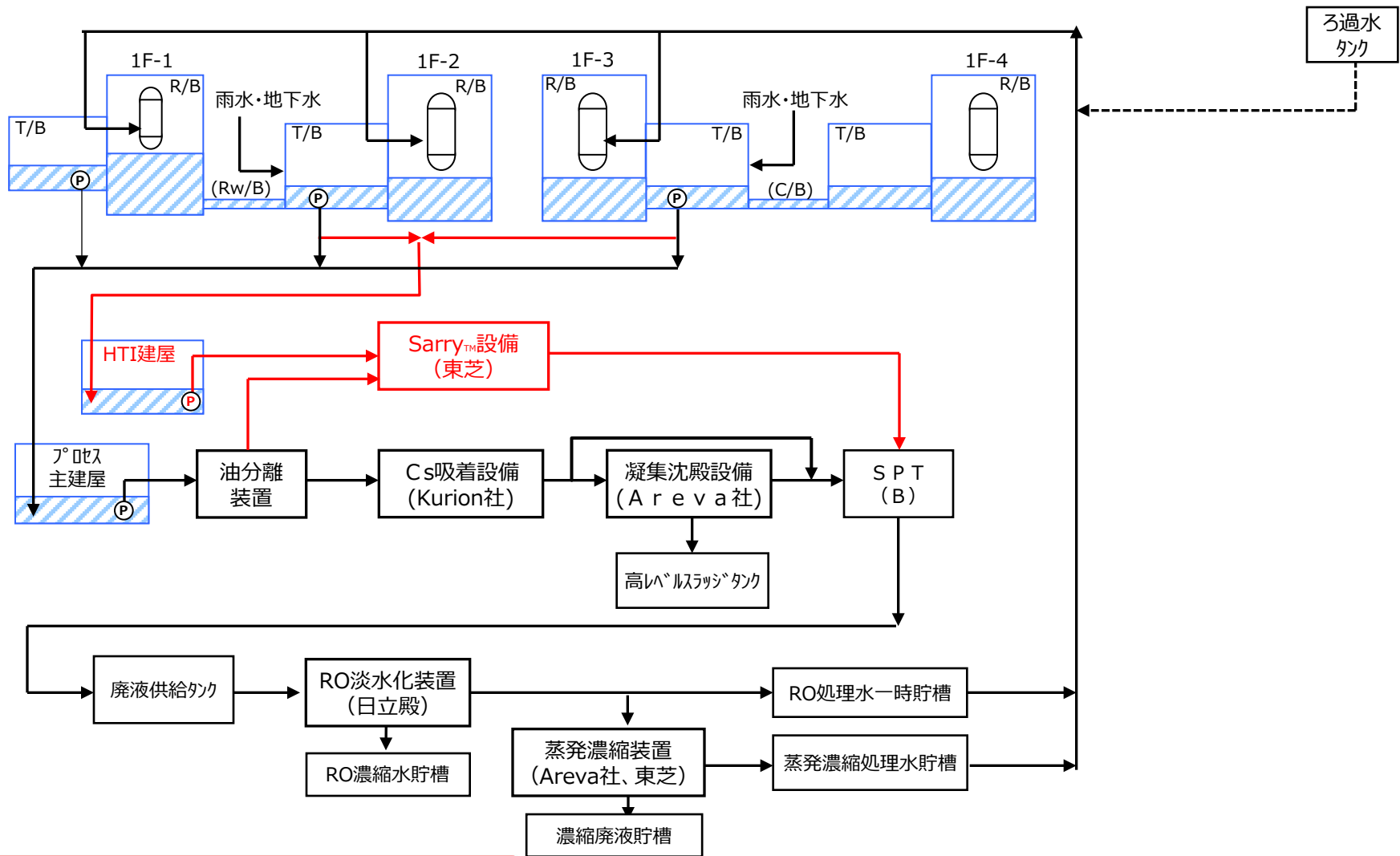
- 凝集沈殿設備（A r e v a 社）との配置、取合調整



薬剤タンク

分離装置

2. SARRY™ 改良ループ°



新設備設置による安定処理実現

2. SARRY™ 概要

第二セシウム吸着装置 (SARRY™)

Simplified Active water Retrieve and Recovery System

米国実績に基づくShawと東芝が共同して系統設計

機器製作をShaw、東芝、IHIで分担

目的

水処理設備の安定性・冗長性向上
既存処理装置より放射能レベルを低減

設計仕様

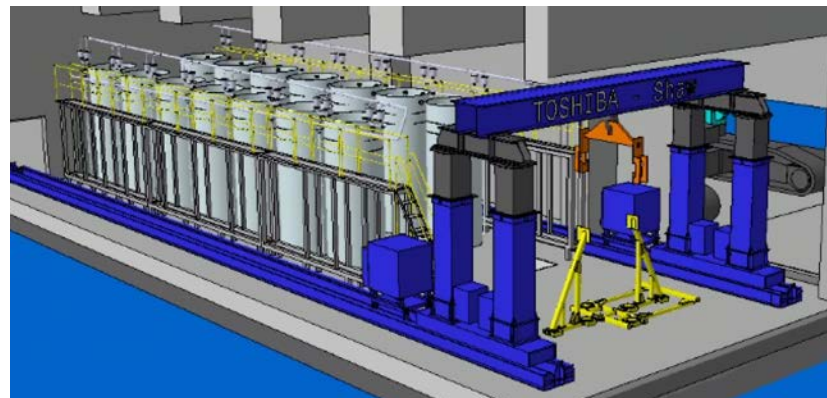
対象核種：Cs（後にSr除去）

系統容量：25m³/h×2系列

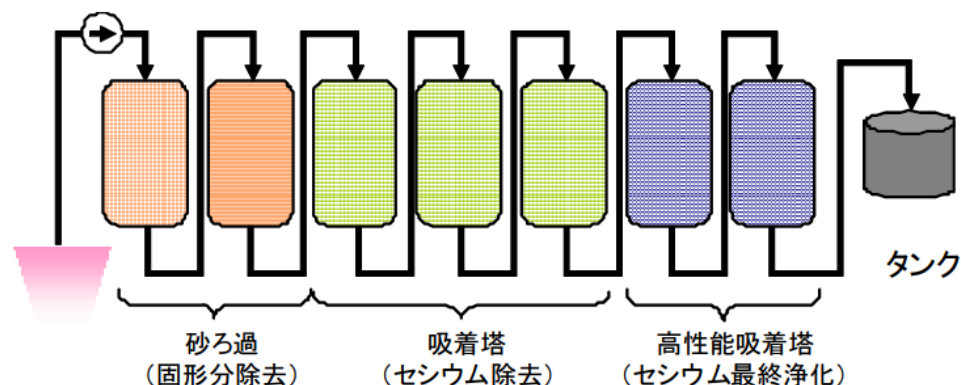
目標出口水質：10Bq/cc

砂ろ過2塔＋プライマリー3塔

＋ポリッシング2塔 計7塔構成



システム鳥瞰図



2. SARRY™ 機器製作



吸着塔製作(IHI横浜事業所)



配管ユニット製作(米Avantech工場)



チャーター便空輸



吸着塔搬入



配管ラック据付



吸着塔水切り(サイト)



基礎取付



吸着塔据付

2. SARRY™ メディア選定/基礎試験

吸着現象のモデル化とシミュレーション

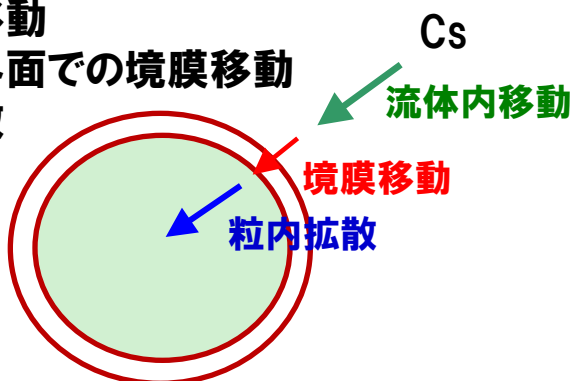
流れのある系での吸着材への放射性核種の吸着モデルを適用

参考文献: J.B. Rosen, "Kinetics of a Fixed Bed System for Solid Diffusion into Spherical Particles.", J. of Chem. Phys. vol.20-3. (1952)

【モデルの考え方】

吸着材でのCsの吸着現象を以下で整理

- ・流体内部移動
- ・吸着剤界面での境膜移動
- ・粒内拡散



【モデル式】

$$\frac{C_{out}}{C_{in}} = \frac{1}{2} \left[1 + \operatorname{erf} \left(\frac{(3Y/2X) - 1}{2\sqrt{v/X}} \right) \right]$$

$$X = \frac{3D_p \rho_p K_d (1-\phi) z}{\phi u b^2}$$

$$v = \frac{D_p \rho_p K_d}{h_f b}$$

$$Y = \frac{2D_p}{b^2} (t - z/u)$$

D_p : 吸着材の粒内拡散係数 (cm²/s)

ρ_p : 流体密度 (g/cm³)

K_d : Cs核種分配係数 (cm³/g)
(平衡吸着時)

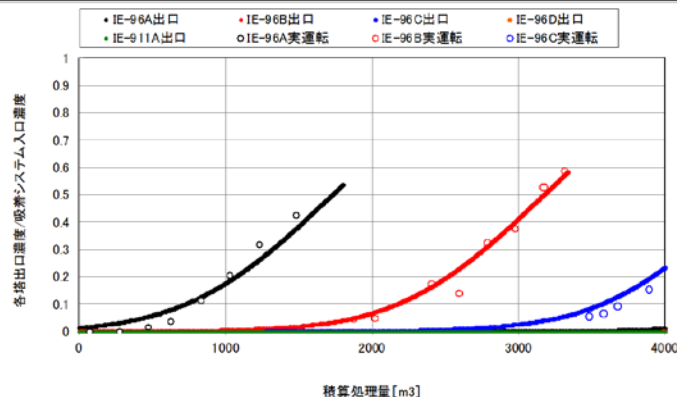
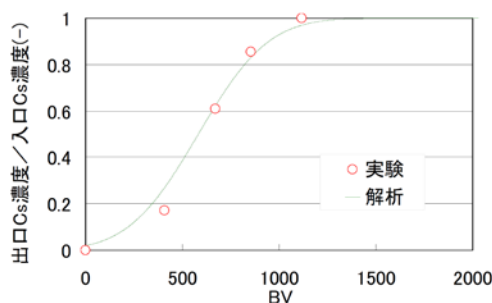
ϕ : 空隙率(—)

Z : 吸着塔長さ (cm)
(= 滞留時間と一意に相関)

u : 線流速 (cm/s)

b : 吸着剤の粒径 (cm)

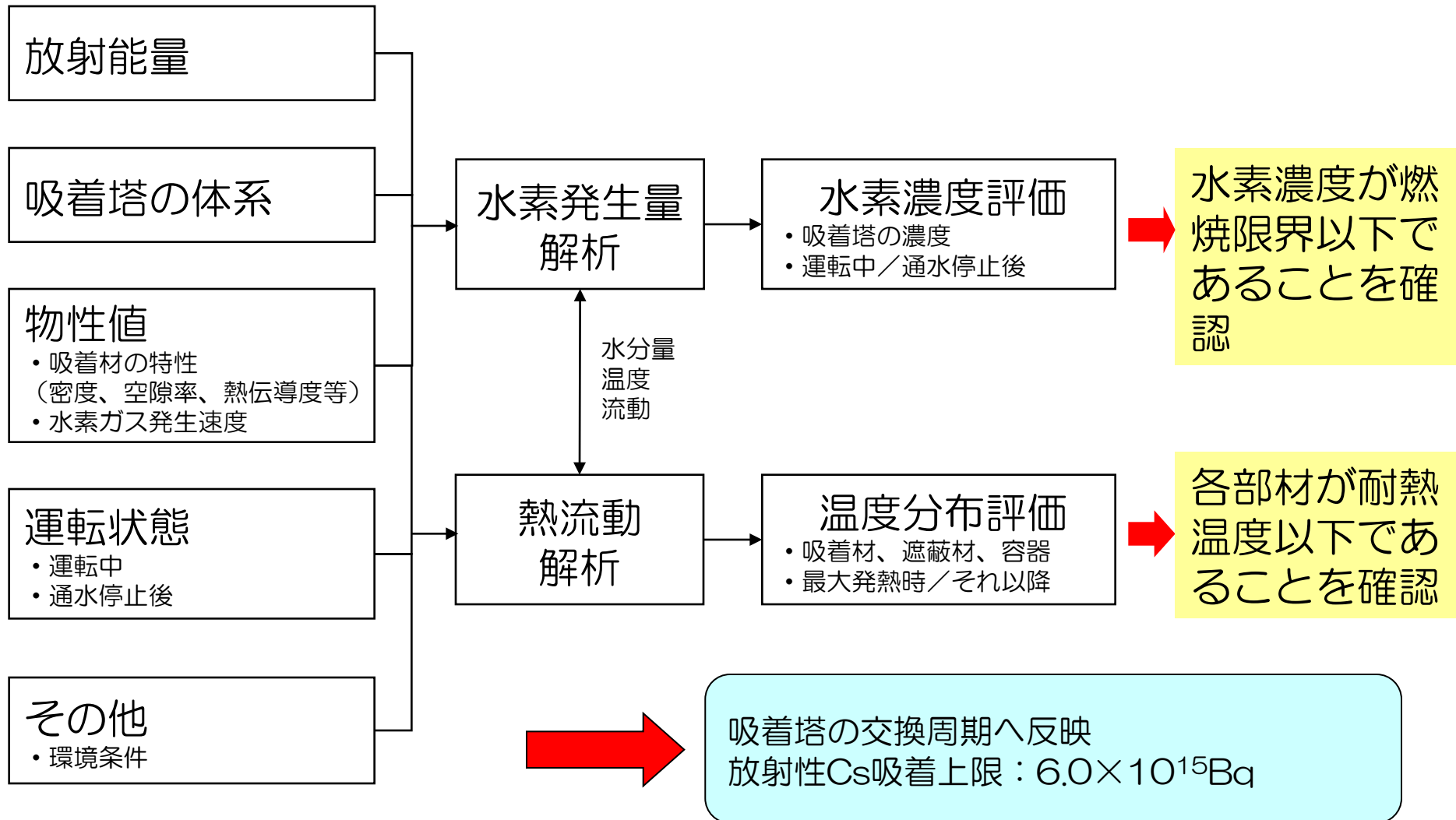
h_f : 境膜物質移動係数 (cm/s)



実機分析結果ともよく一致

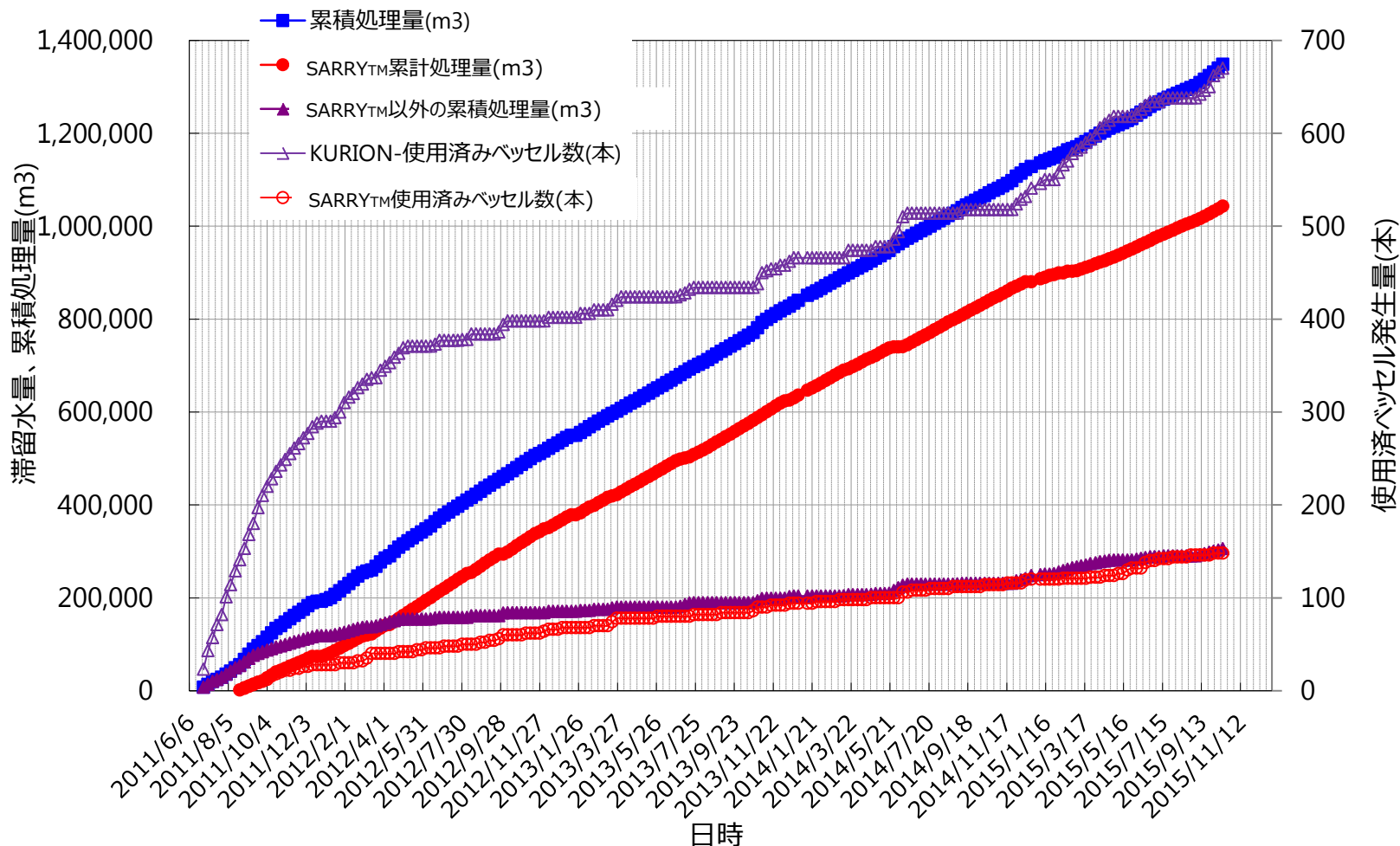
- ・吸着シミュレーションはラボ試験結果と一致
- ・SARRY™の運転を本モデルで決定
- ・安全評価の条件を選定

2. SARRY™ 安全性評価（水素、温度）

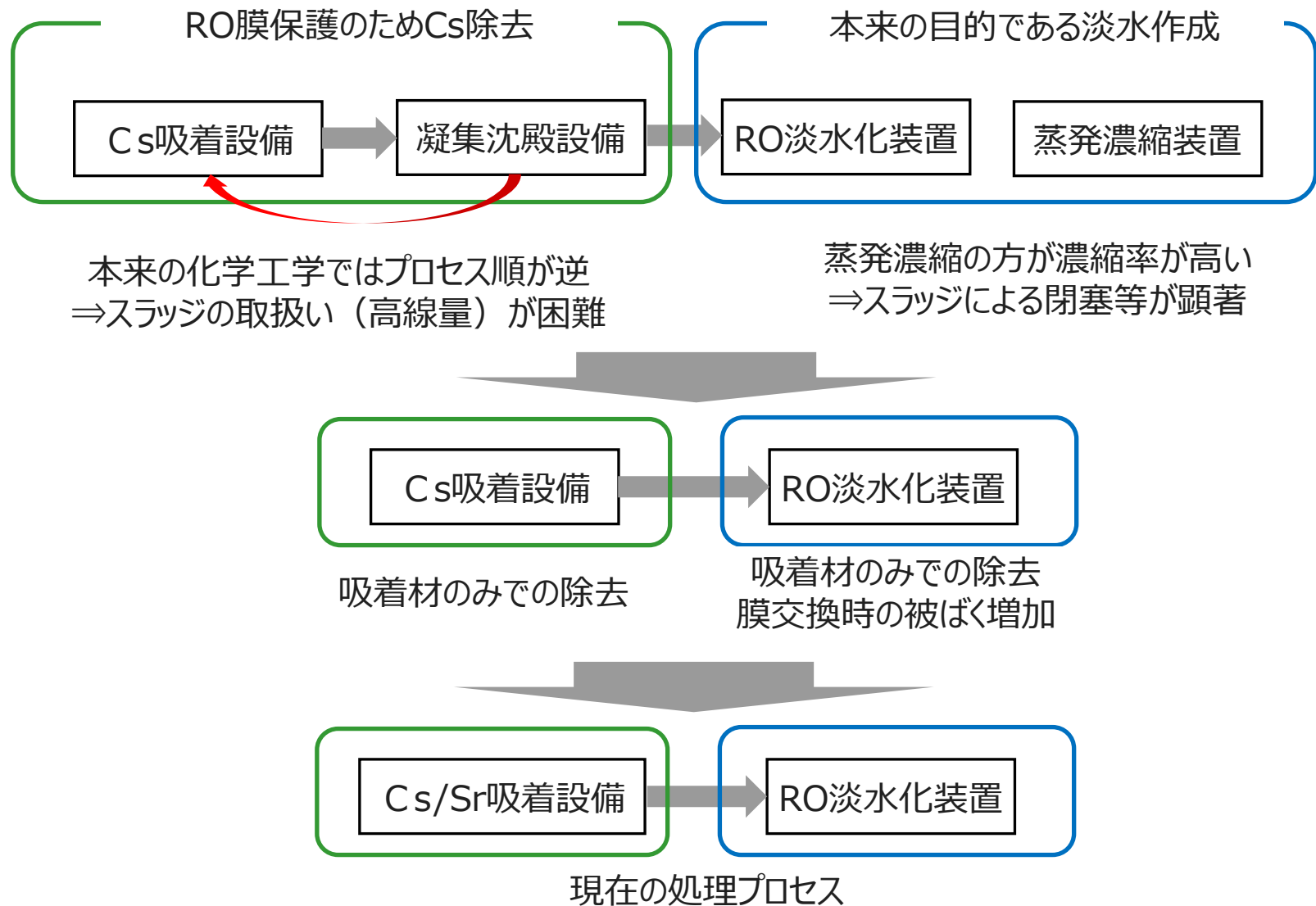


2. SARRY™ 運用実績

現在、順調に運転中（水処理の中心的役割）



3 汚染水処理の考え方と難しさ これまでの変遷



3 汚染水処理の考え方と難しさ 放射性核種

放射能と半減期

汚染水処理の線量の大半は、CsとSr

Cs134 : γ 核種 半減期 2.06年 比放射能 $4.8 \times 10^{13} \text{Bq/g}$

Cs137 : β 核種 半減期 30.1年 比放射能 $3.2 \times 10^{12} \text{Bq/g}$

Sr90 : β 核種 半減期 29.1年 比放射能 $5.1 \times 10^{12} \text{Bq/g}$

Sr89 : β 核種 半減期 50.5日 比放射能 $1.1 \times 10^{15} \text{Bq/g}$

除去核種の化学成分

Cs137 : $3 \times 10^6 \text{Bq/cc} \Rightarrow$ 約1ppm

- ・海水成分のNaと化学特性が類似
- ・Naは約6000ppm存在

Sr89、Sr90 : $1 \times 10^6 \text{Bq/cc}$ オーダ $\Rightarrow$ 0.2ppm

- ・海水成分のCaと化学特性が類似
- ・Caは約300ppm存在、コンクリートからも溶出
- ・非放射性Srは約2ppm存在

62核種について告示濃度限度での化学濃度

項目	値
主な核種の濃度	^{90}Sr : $9.6 \times 10^{-1} \text{ ppb}$ ^{106}Ru : $1.5 \times 10^{-4} \text{ ppb}$ ^{125}Sb : $8.6 \times 10^{-5} \text{ ppb}$ ^{134}Cs : $1.2 \times 10^{-3} \text{ ppb}$ ^{137}Cs : $3.0 \times 10^{-2} \text{ ppb}$
主な含有元素とその濃度	Cl^- : $7.9 \times 10^3 \text{ ppm}$ Na^+ : $5.3 \times 10^3 \text{ ppm}$ Ca^{2+} : $3.8 \times 10^2 \text{ ppm}$

3 汚染水処理の考え方と難しさ 安全評価

○温度評価

Csのみ高性能で吸着はすることは可能であったが、吸着性能が高い場合、内部温度が1000度以上になり、Csの再放出が懸念

⇒いっぱい取れば良いと言うものではない

○しゃへい評価

しゃへい材は鉛を使用

表面線量と保管時の敷地境界線量を考慮

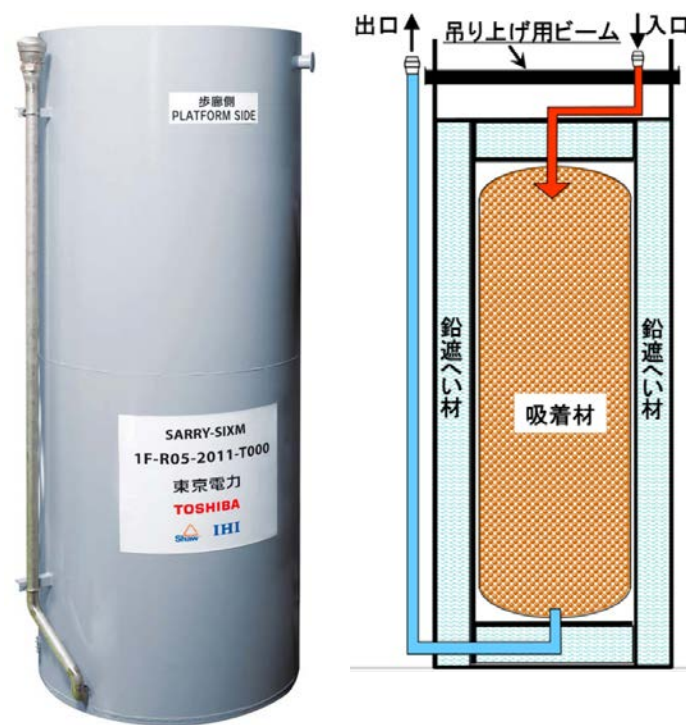
一方で重量は移動を考慮し30t未満とする

⇒吸着性能としゃへい材重量のバランス

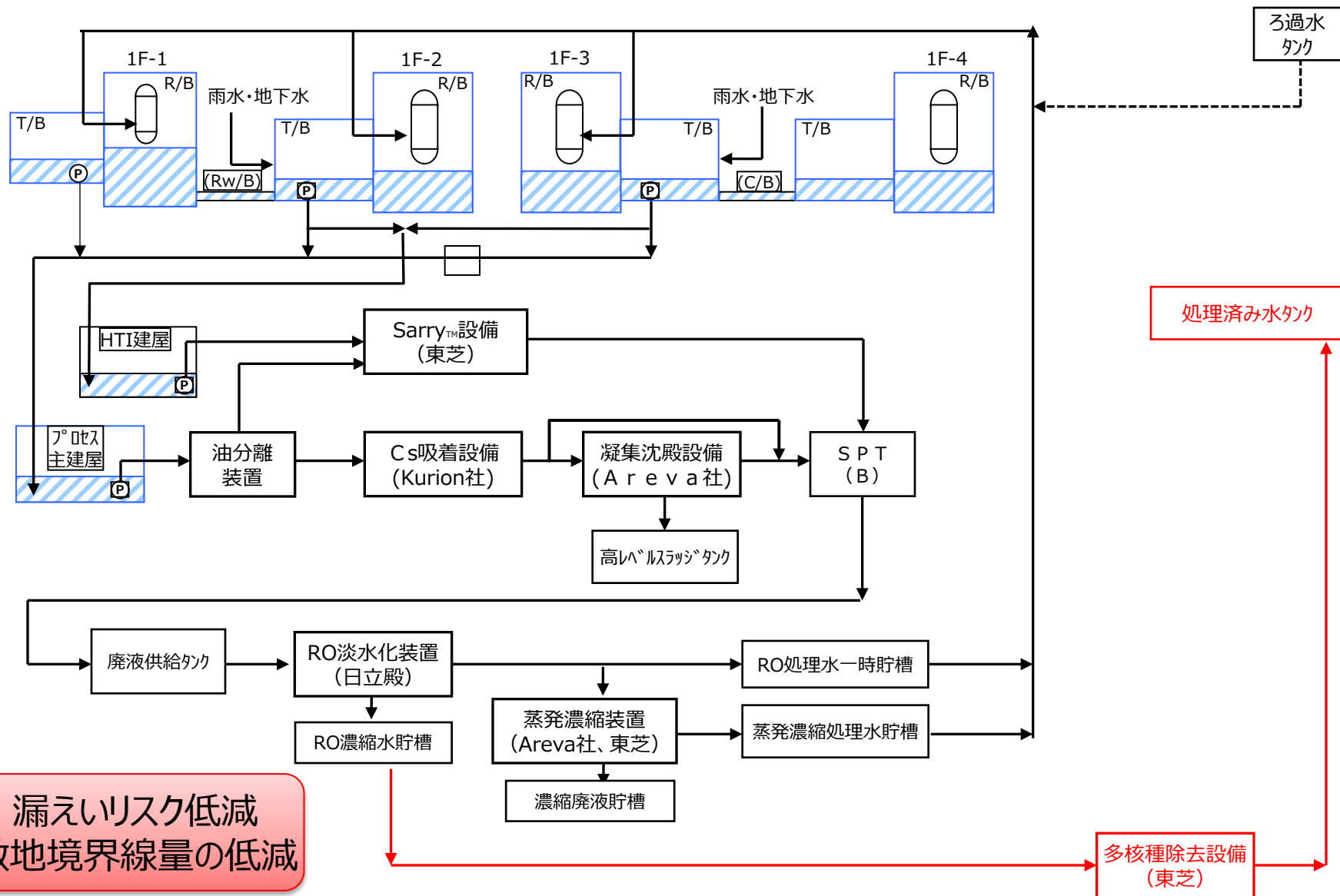
○容器サイズ

SVとLVのバランスと系統圧損の影響考慮

一方で既存建屋に収まるサイズを考慮

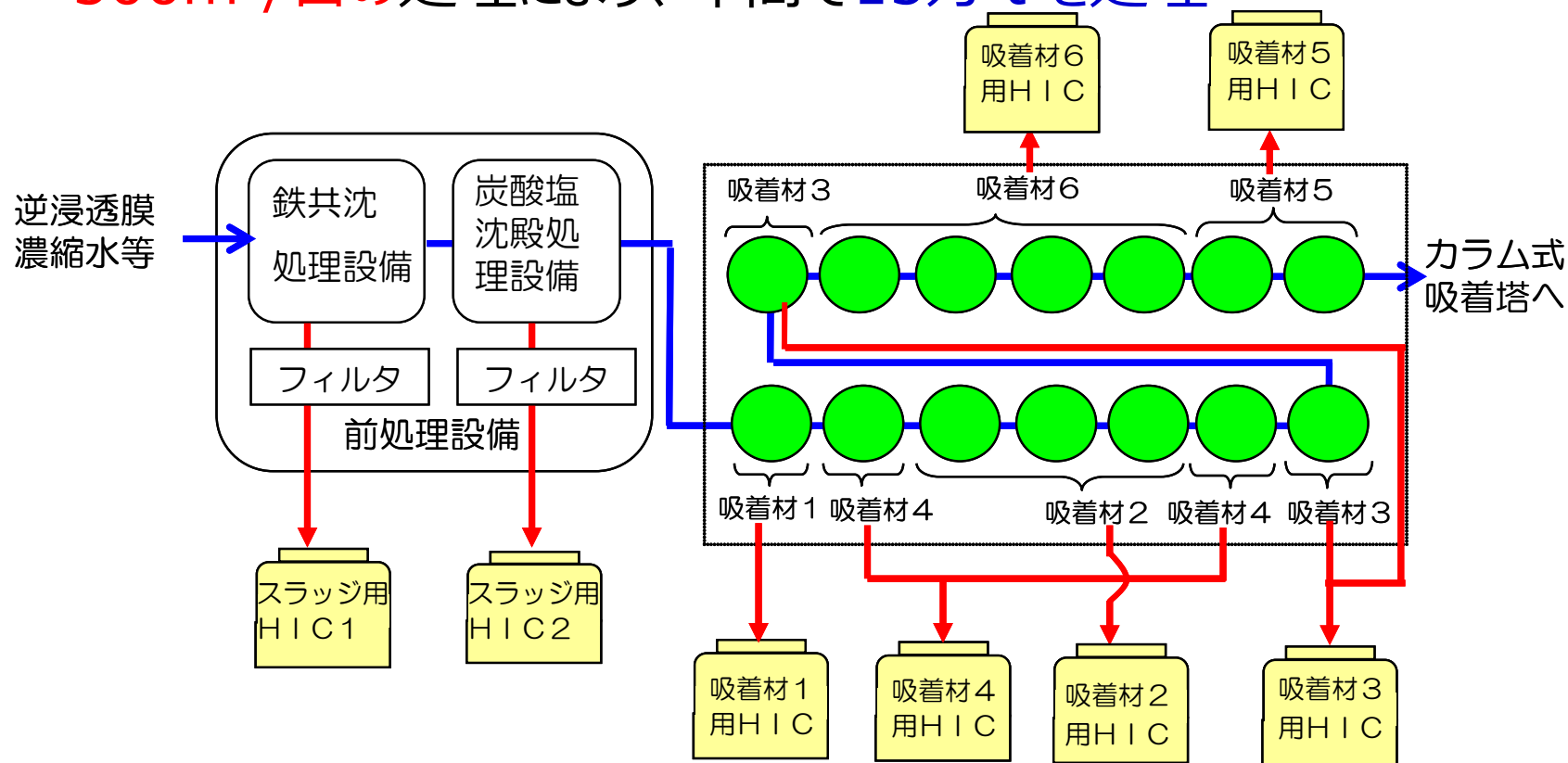


4 多核種除去設備 目的



4 多核種除去設備 システム構成

- ・1系列あたりの定格通水容量： 250 m³/24h/列
 - ・系列数： 3系列（通常運転時は2系列）
 - ・通常2系列運転（1系列保守点検時も100%通水可能）
- ⇒500m³/日の処理により、年間で15万 t を処理

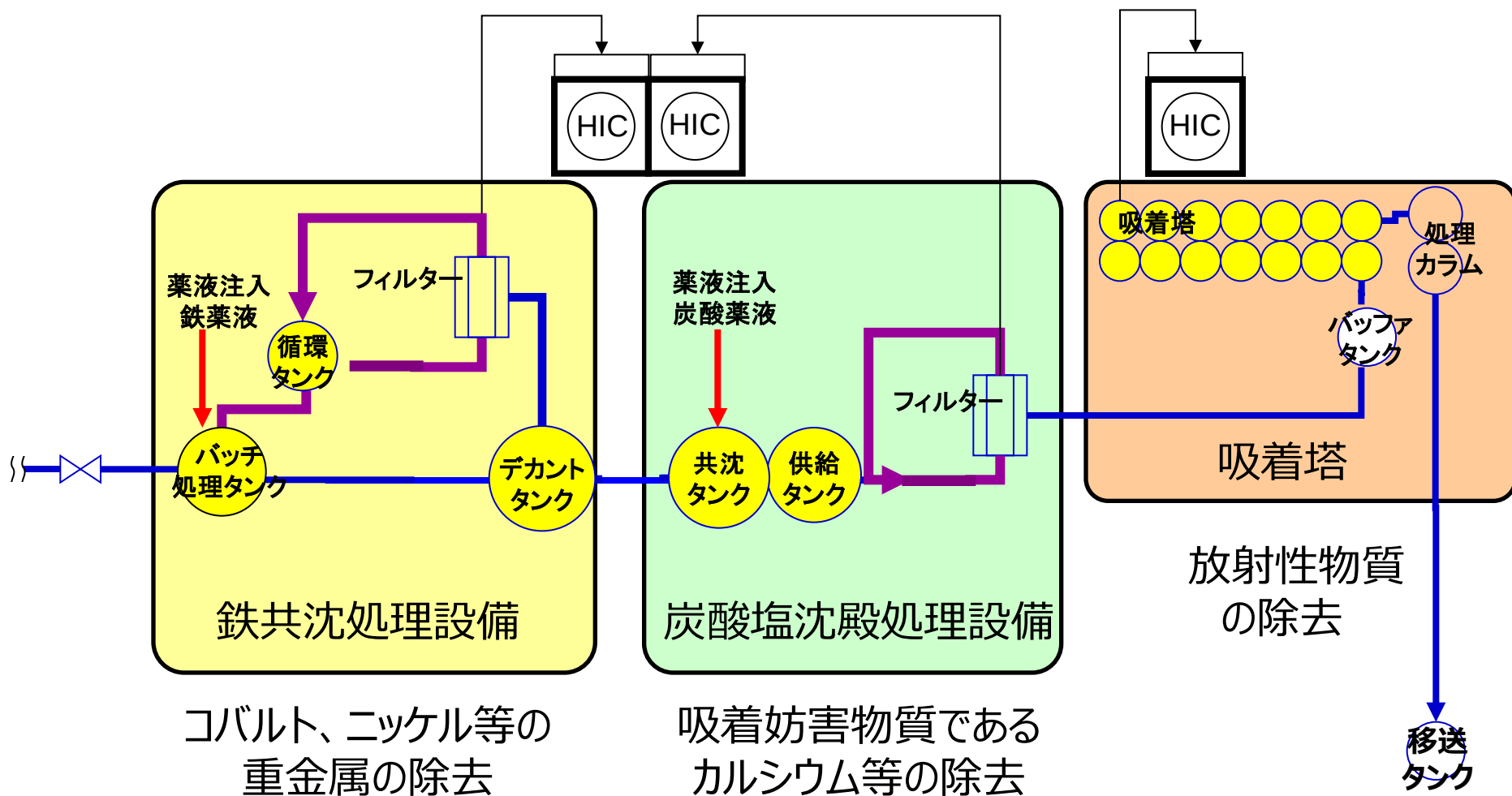


※ H I C : 廃棄物保管容器 ※ ※ 「吸着塔構成はホット試験結果を踏まえて見直し予定

図の出典：東京電力 H P 資料

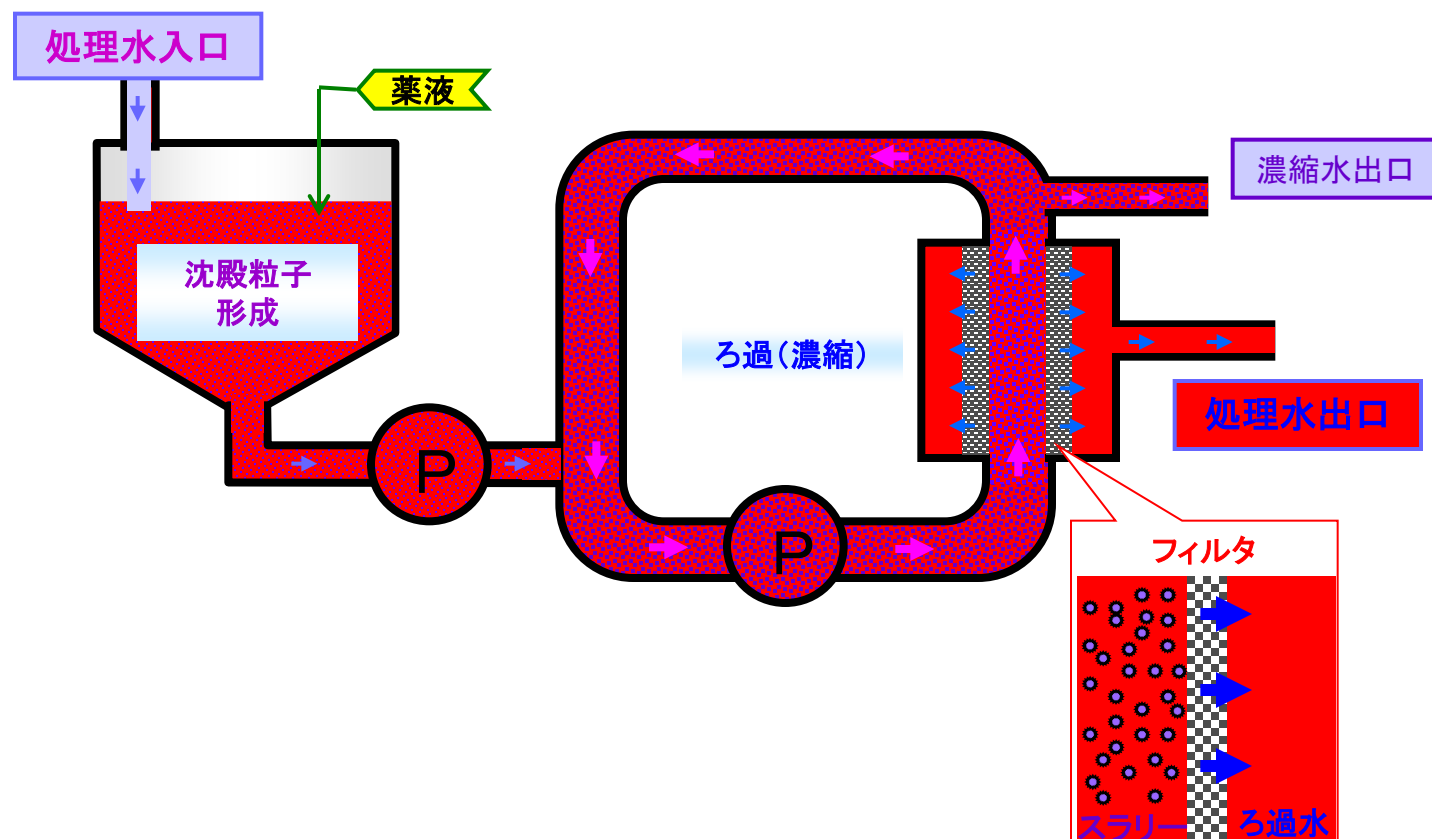
4 多核種除去設備 前処理設備

- ・ 2 種類の共沈及びろ過により重金属や吸着材妨害物質を除去

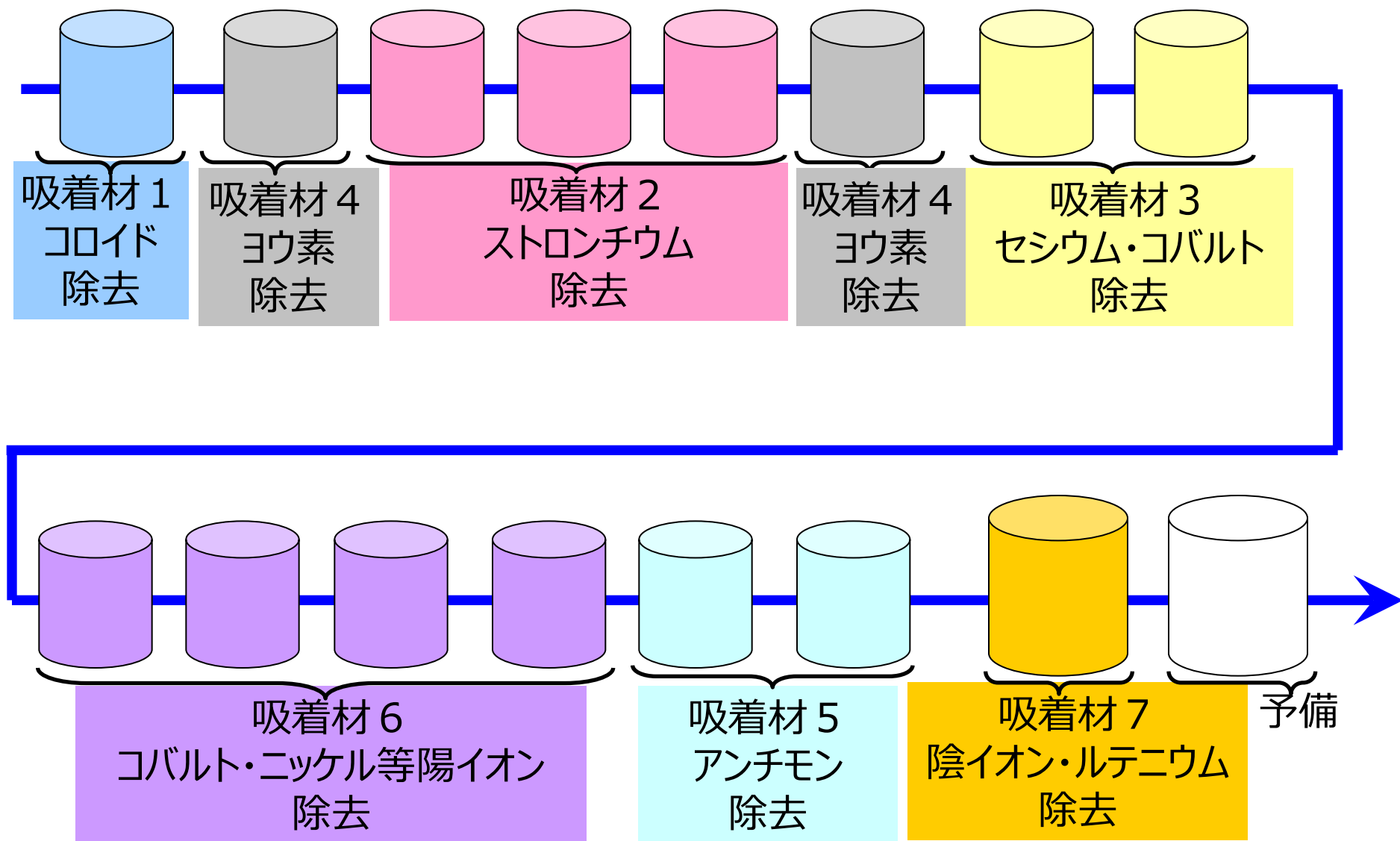


4 多核種除去設備 前処理工程

薬液注入と適切な水質制御により沈降成分を形成
上澄み液を回収後、フィルターによるろ過により固形分を除去



4 多核種除去設備 吸着塔



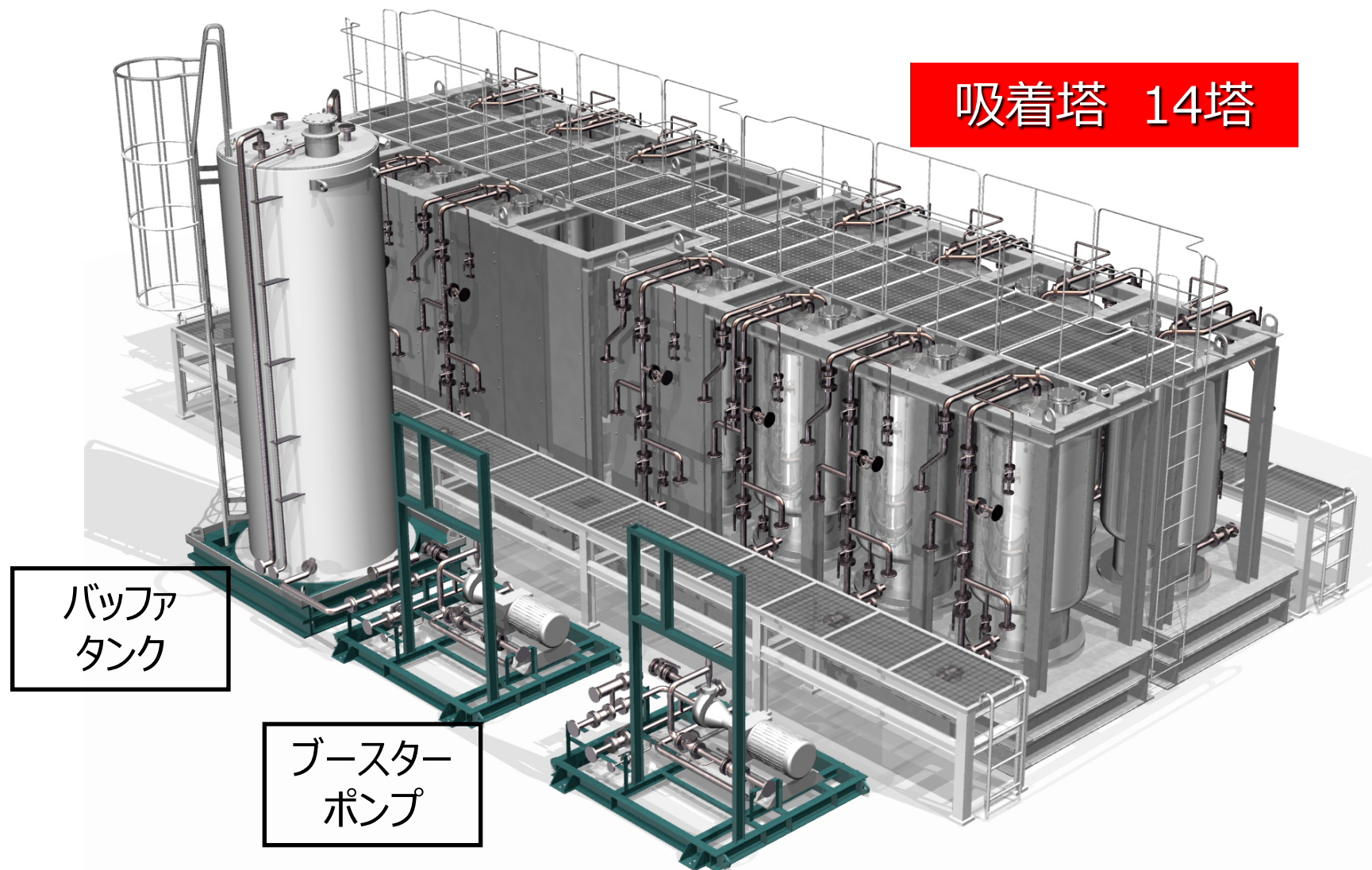
4 多核種除去設備 吸着材

吸着材	組成	除去対象元素
吸着材 1	活性炭	コロイド
吸着材 2	チタン酸塩	S r (M ²⁺)
吸着材 3	フェロシアン化合物	C s (C o、R u)
吸着材 4	A g 添着活性炭	I
吸着材 5	酸化チタン	S b
吸着材 6	キレート樹脂	C o (M ²⁺ 、M ³⁺)
吸着材 7	樹脂系吸着材	R u 等 負電荷コロイド

出典：東京電力 H P 資料

4 多核種除去設備

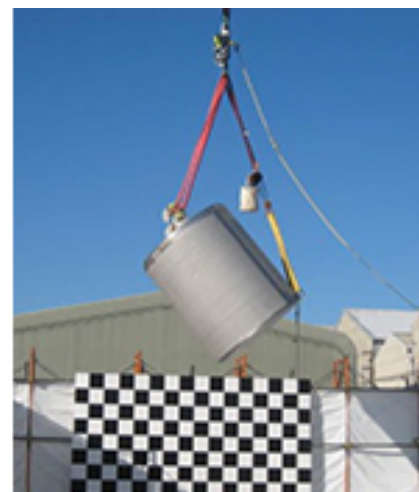
吸着塔鳥瞰図



4 多核種除去設備 現地及び工場写真



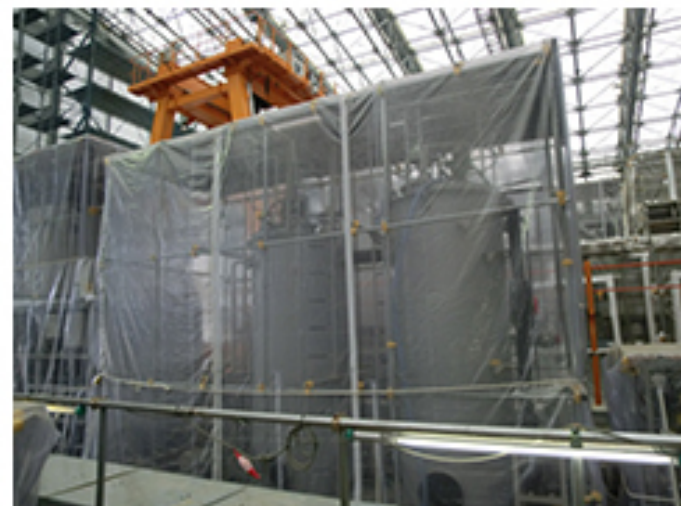
機器の設置状況



HIC(落下試験の様子)



建屋設置状況

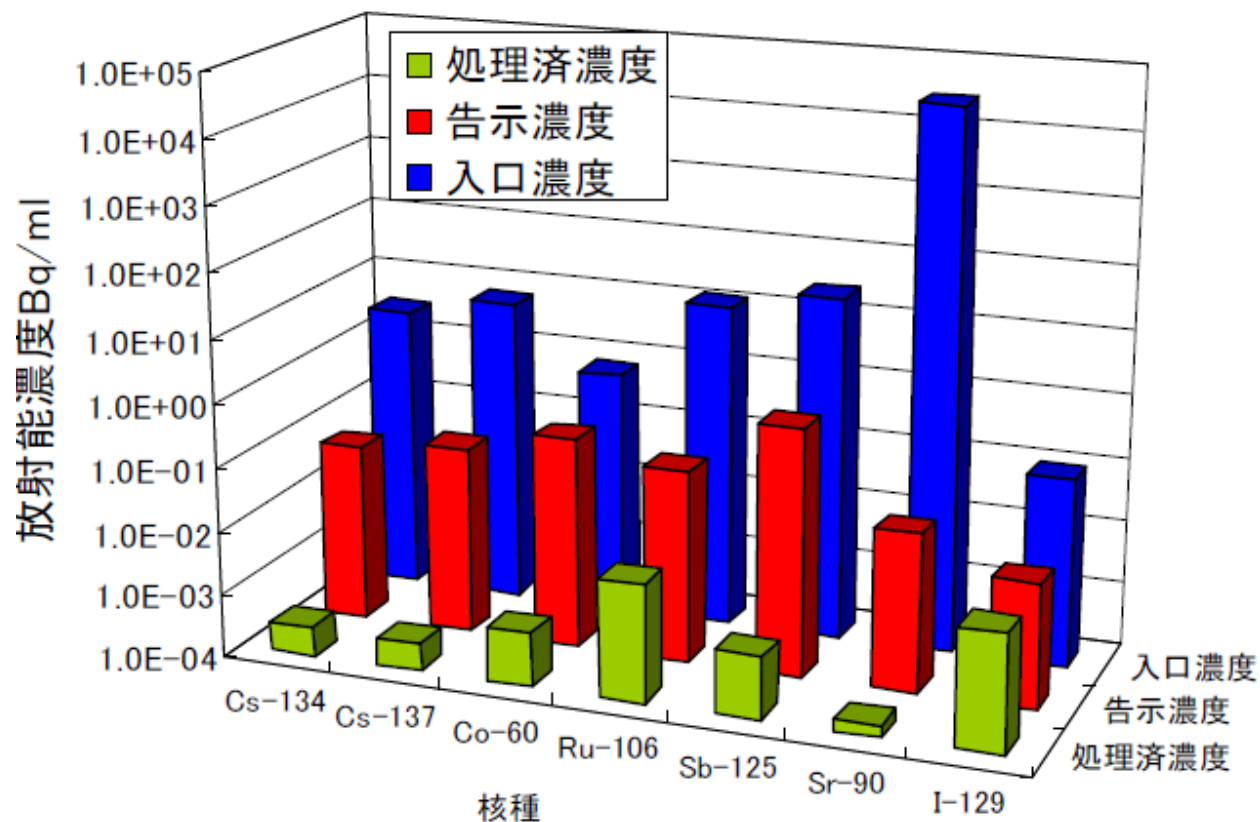


吸着塔(処理カラム)

写真の出典：東京電力HP資料

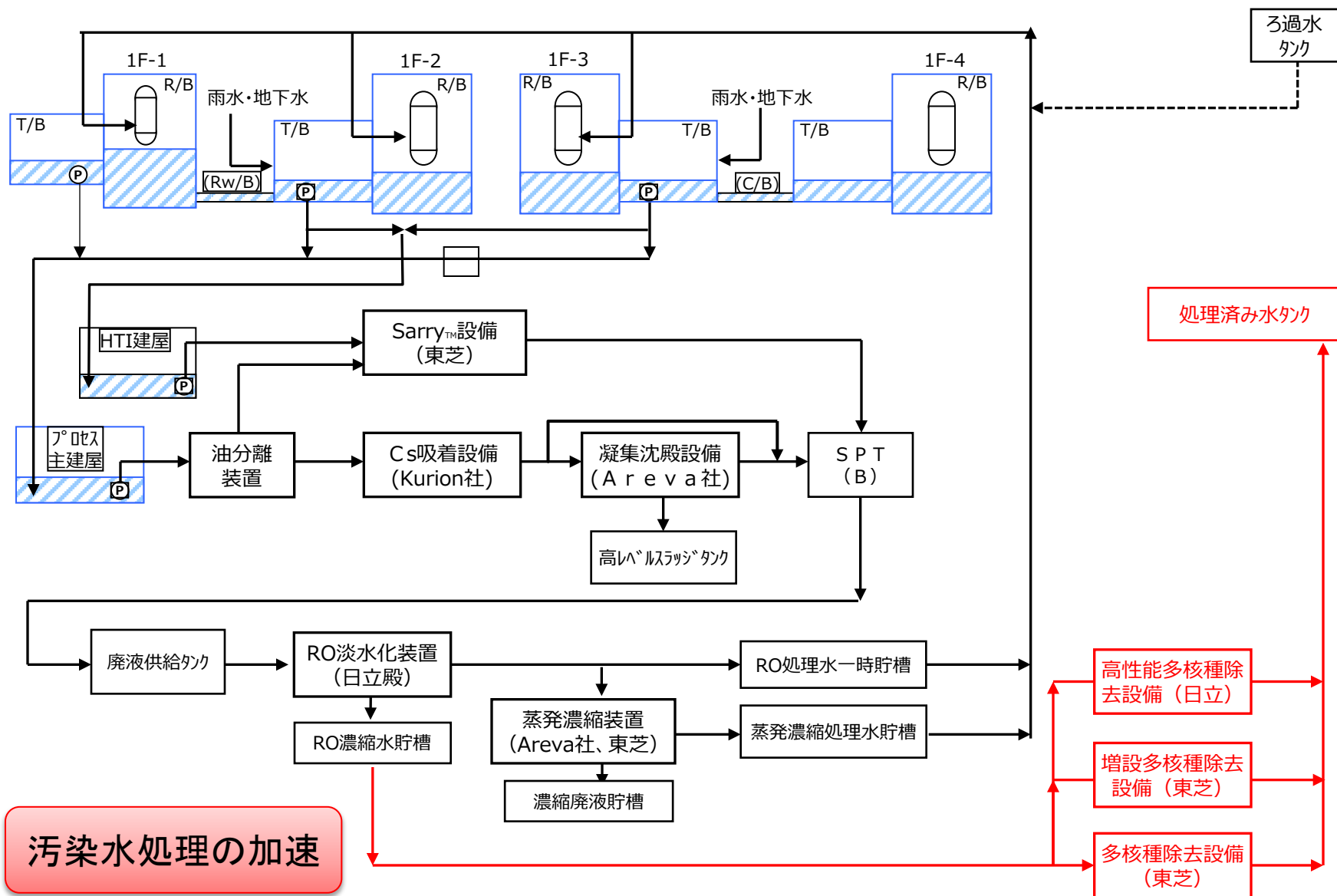
4 多核種除去設備 性能

告示濃度限度以下まで放射能濃度が低減されることを確認



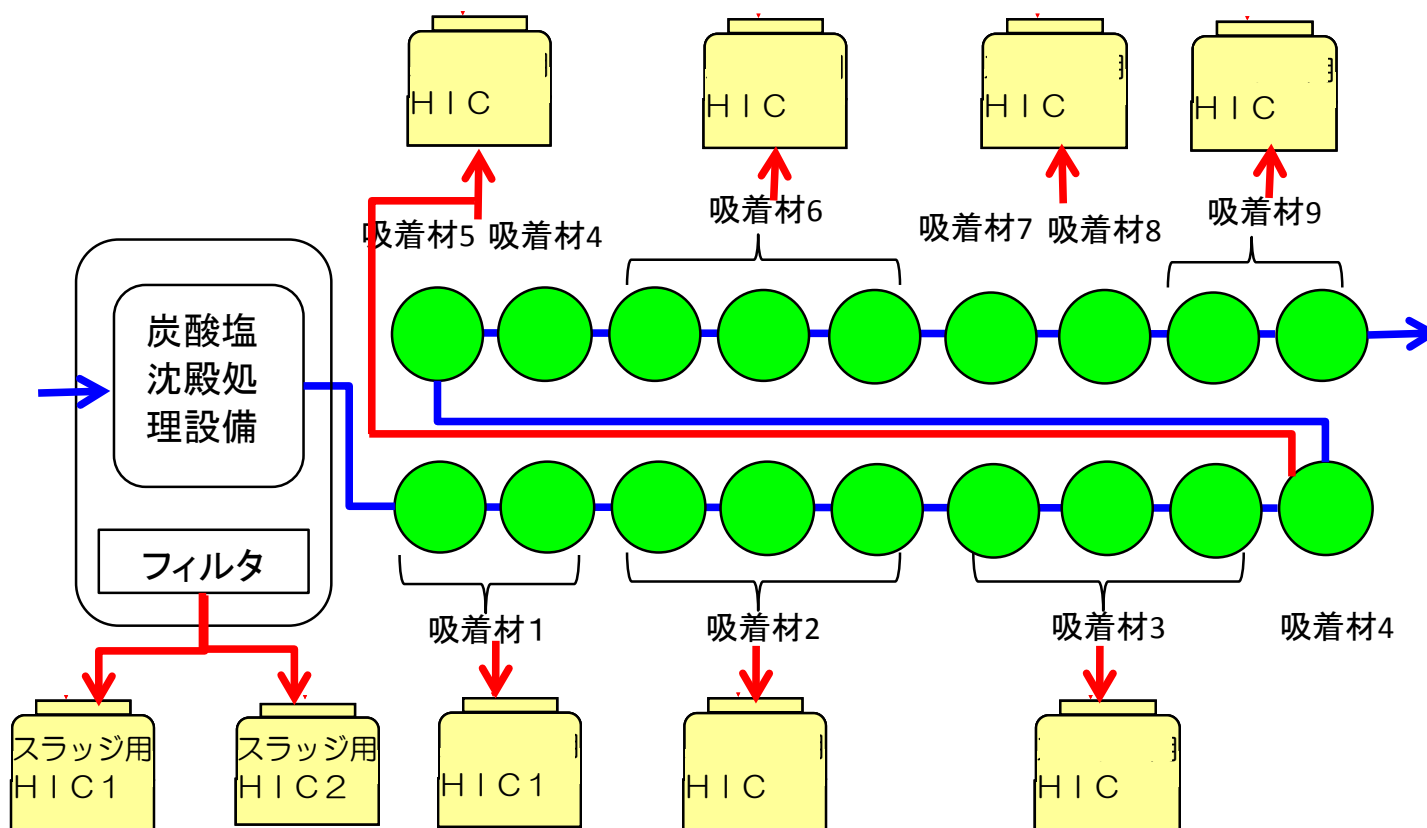
データの出典：東京電力HP資料

5 増設多核種除去設備 目的



5 増設多核種除去設備 システム構成

- ・ 1 系列あたりの定格通水容量： 250 m³/24h/列
- ・ 系列数： 3 系列（通常運転時は2系列）
- ・ 要求処理量： 650 m³/日/3系列



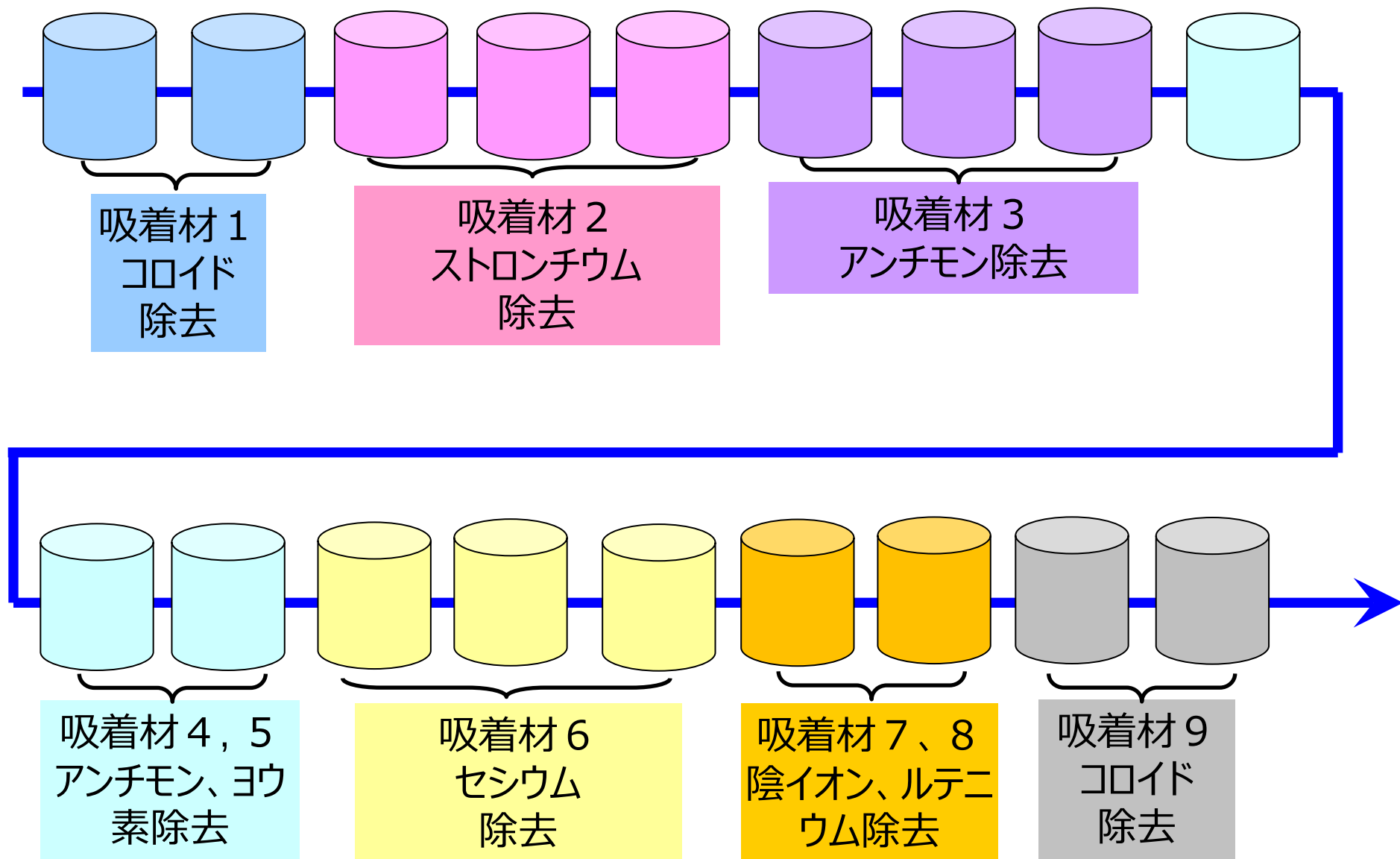
※ H I C : 廃棄物保管容器

5 増設多核種除去設備 特徴

- 前処理工程の改善
多核種除去設備の運転分析結果より、
コバルト（Co）やニッケル（Ni）を除去対象とする鉄共沈処理工程を削除→スラッジ廃棄物量を低減
- 吸着材の見直し
多核種除去設備の運転実績および処理対象とする原水の性状（コロイド等）に応じて、吸着材の種類、塔数を変更
- 材質の見直し
腐食対策として、タンク、吸着塔、配管にライニングを実施

5 増設多核種除去設備

吸着塔



5 増設多核種除去設備 吸着材

吸着材	組成	除去対象元素
吸着材 1、9	活性炭	コロイド、I
吸着材 2	チタン酸塩	Sr
吸着材 3	チタンケイ酸塩	Cs (Sr)
吸着材 4	酸化セリウム	I、Sb
吸着材 5	Ag添着ゼオライト	I
吸着材 6	酸化チタン	Cs (Co、Ru)
吸着材 7、8	樹脂系吸着材	Ru等 負電荷コロイド

出典：東京電力HP資料

5 増設多核種除去設備

現地及び工場写真



クロスフローフィルタの外観



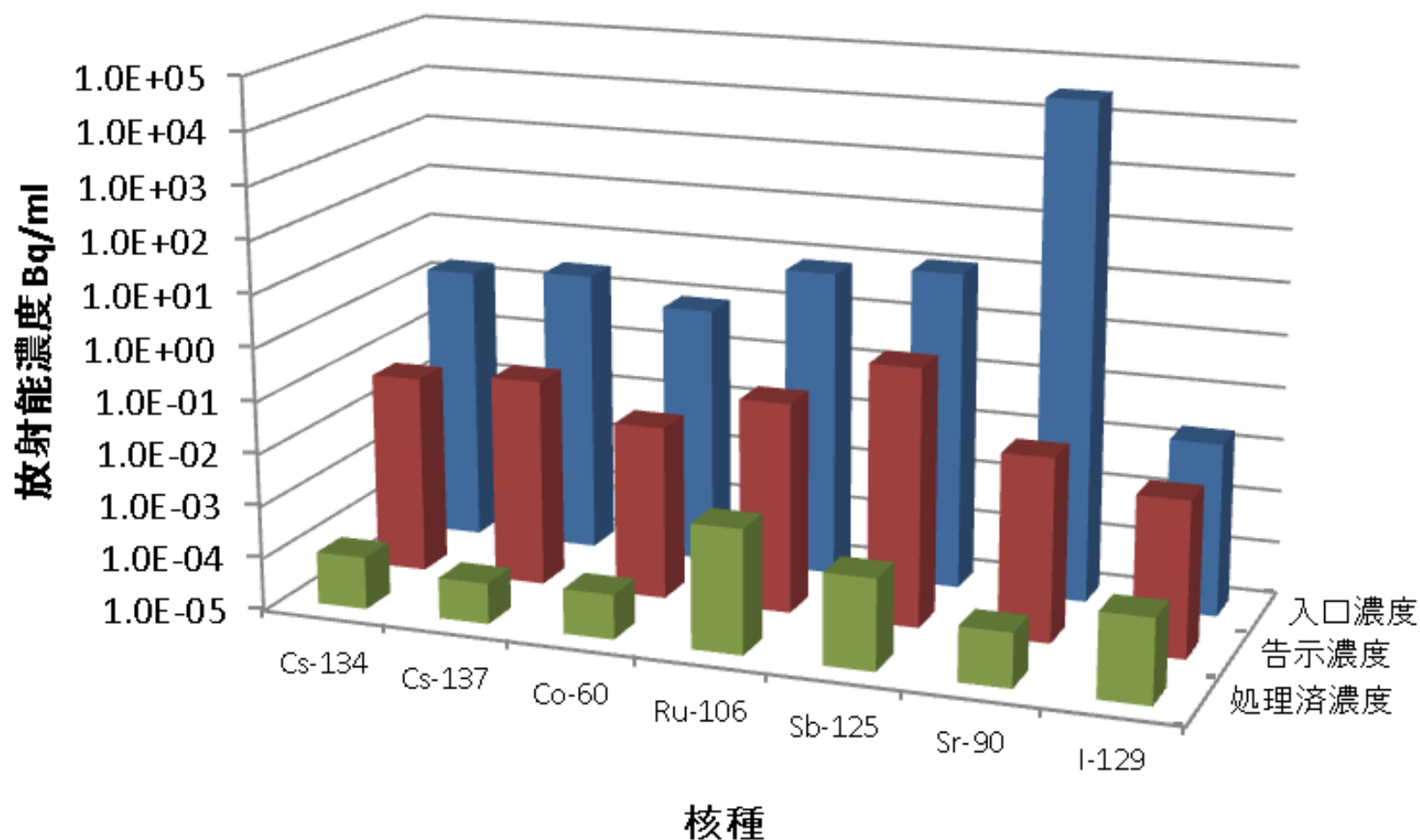
建屋外観



吸着塔の外観

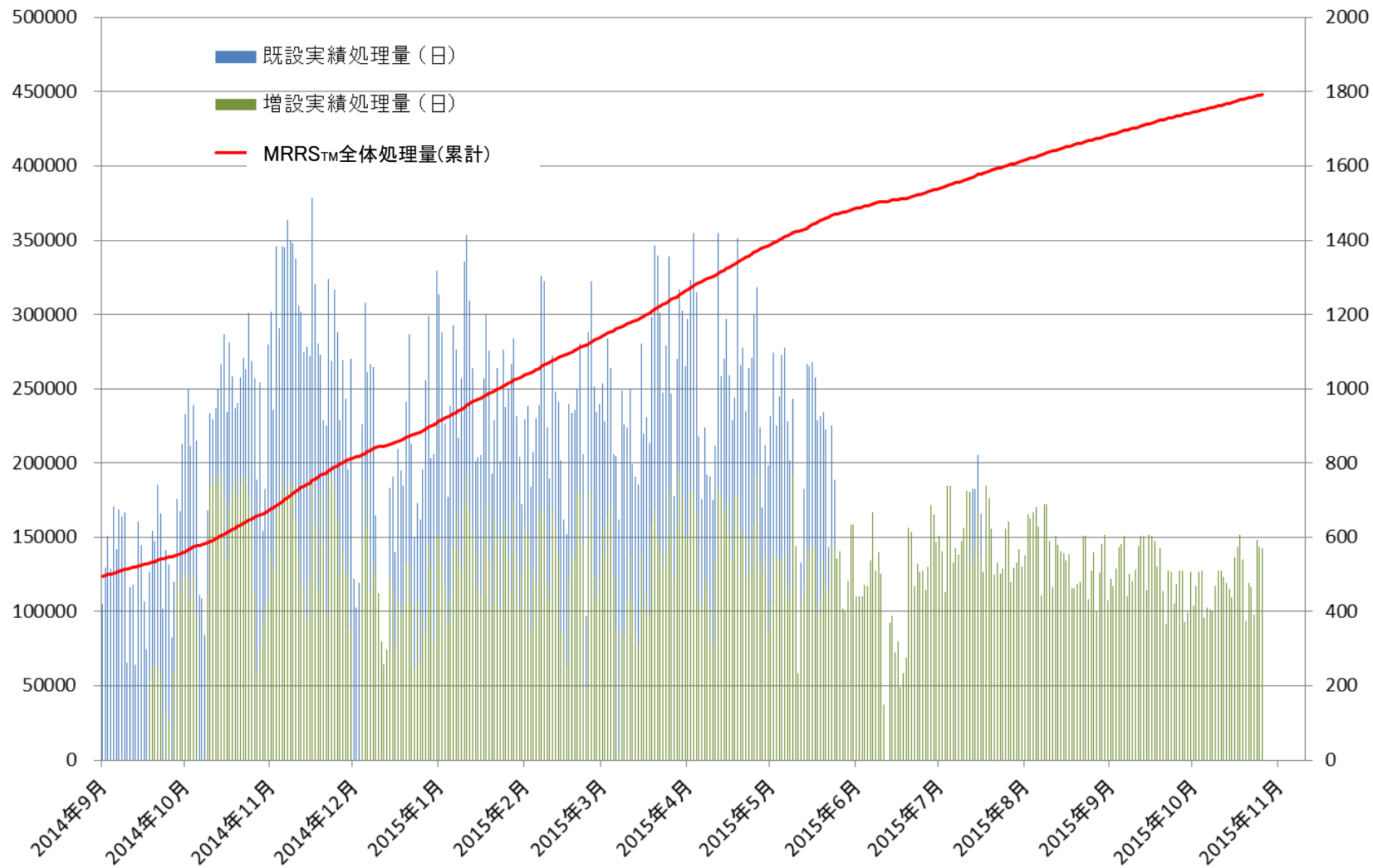
5 増設多核種除去設備 性能

告示濃度限度以下まで放射能濃度が低減されることを確認



5 多核種除去設備 運転状況

1F MRRSTM 増設既設全体処理量(入口積算)



6 多核種除去設備の考え方と難しさ

Cs134、Cs137 : $3 \times 10^6 \text{Bq/cc} \Rightarrow 1 \text{ppm}$

- ・海水成分のNaと化学特性が類似
- ・Naは約6000ppm存在

Sr89、Sr90 : $1 \times 10^6 \text{Bq/cc}$ オーダ $\Rightarrow 0.2 \text{ppm}$

- ・海水成分のCaと化学特性が類似
- ・Caは300ppm存在、コンクリートからも溶出
- ・非放射性Srは約2ppm存在

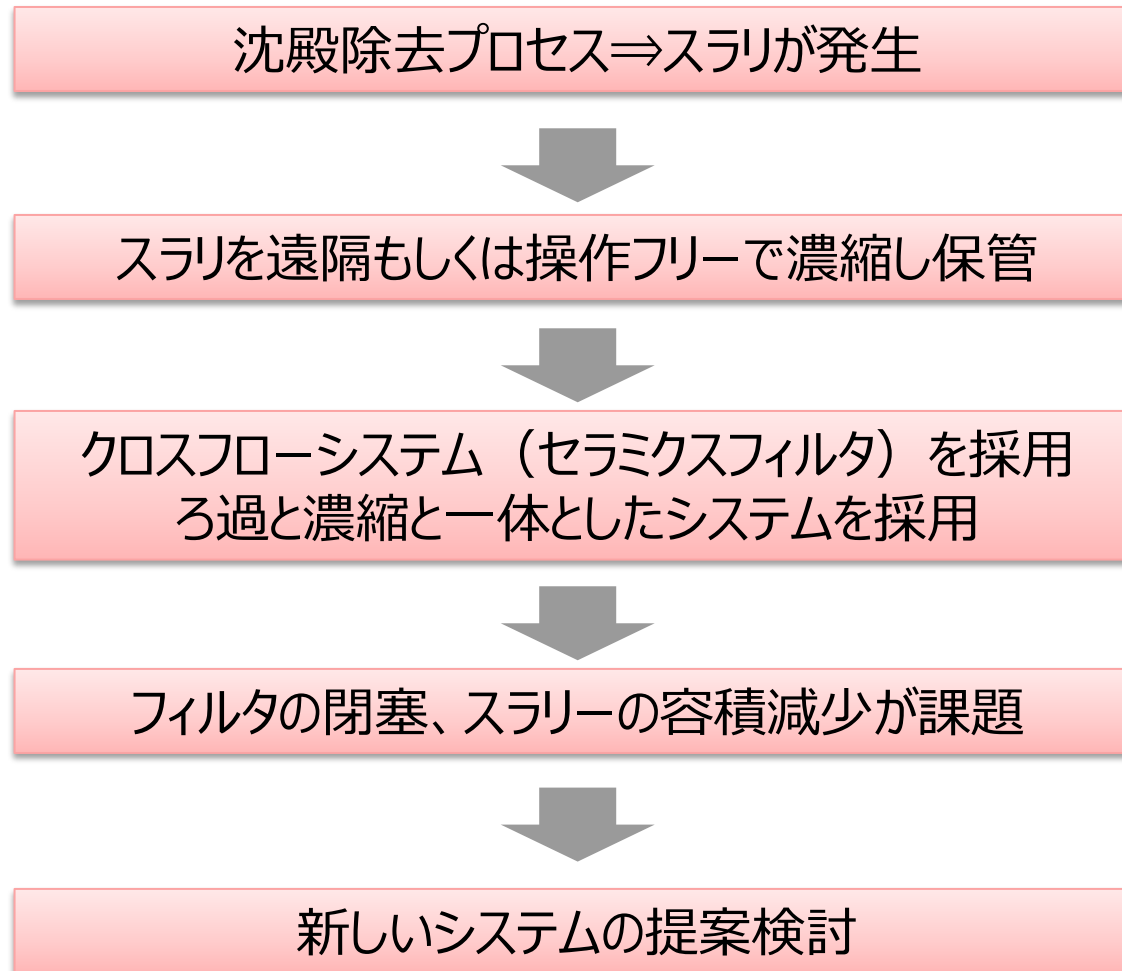


- ・CsとNaに比べ、SrとCaの化学特性が類似
 $\Rightarrow$ 単独除去が困難
- ・必要な出口濃度がSARRYに比して1/1000
 $\Rightarrow$ 他の溶存成分の影響を大きく受ける
- ・非放射性のSrの存在
 $\Rightarrow$ 化学性質は同一なので一緒に取るしかない



妨害物質除去のため沈殿除去プロセスは必須

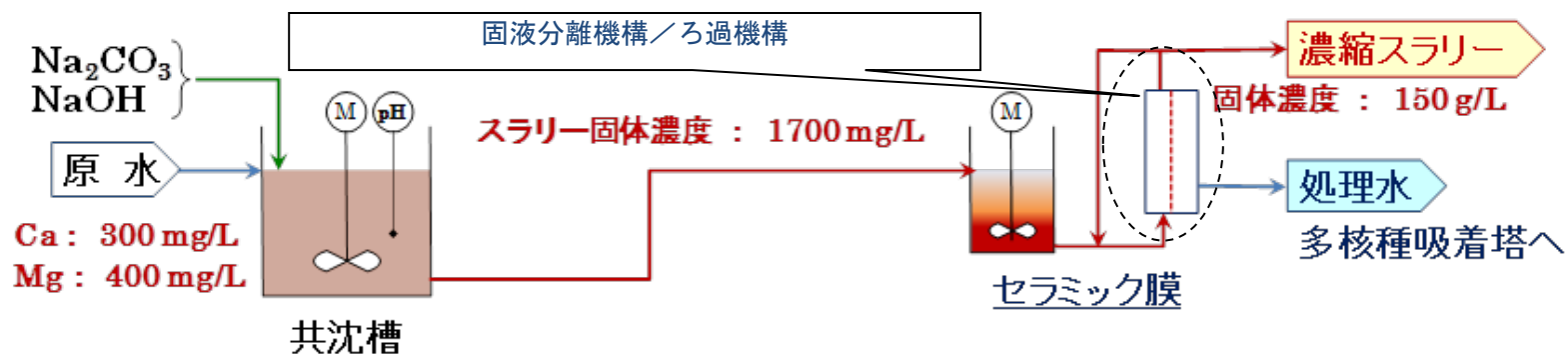
6 多核種除去設備の考え方と難しさ



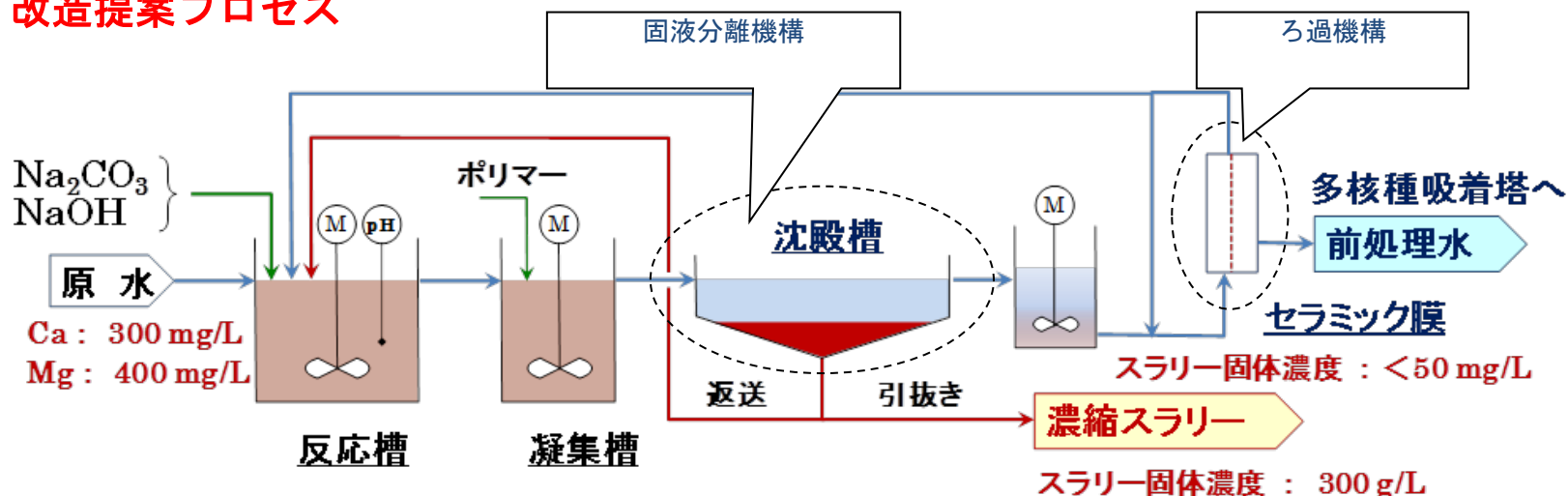
6 多核種除去設備の考えと難しさ

スラリー返送方式によるスラリー改質を提案検討中

(1) 現行プロセス



(2) 改造提案プロセス



6 多核種除去設備の考え方と難しさ

当初の設備で一部核種の除去性能が想定より低い事象発生

海水中での化学形態が様々

Ru：陰イオン（ルテニウム酸）、陽イオンで存在
I：ヨウ素イオン、ヨウ素酸イオンで存在

Iは化学形態ごとの吸着材採用
効果あり（既設に採用）

Ruは非放射性の核種を投入した試験実施したが、化学種が多様かつ、沈殿生成も不明点多く

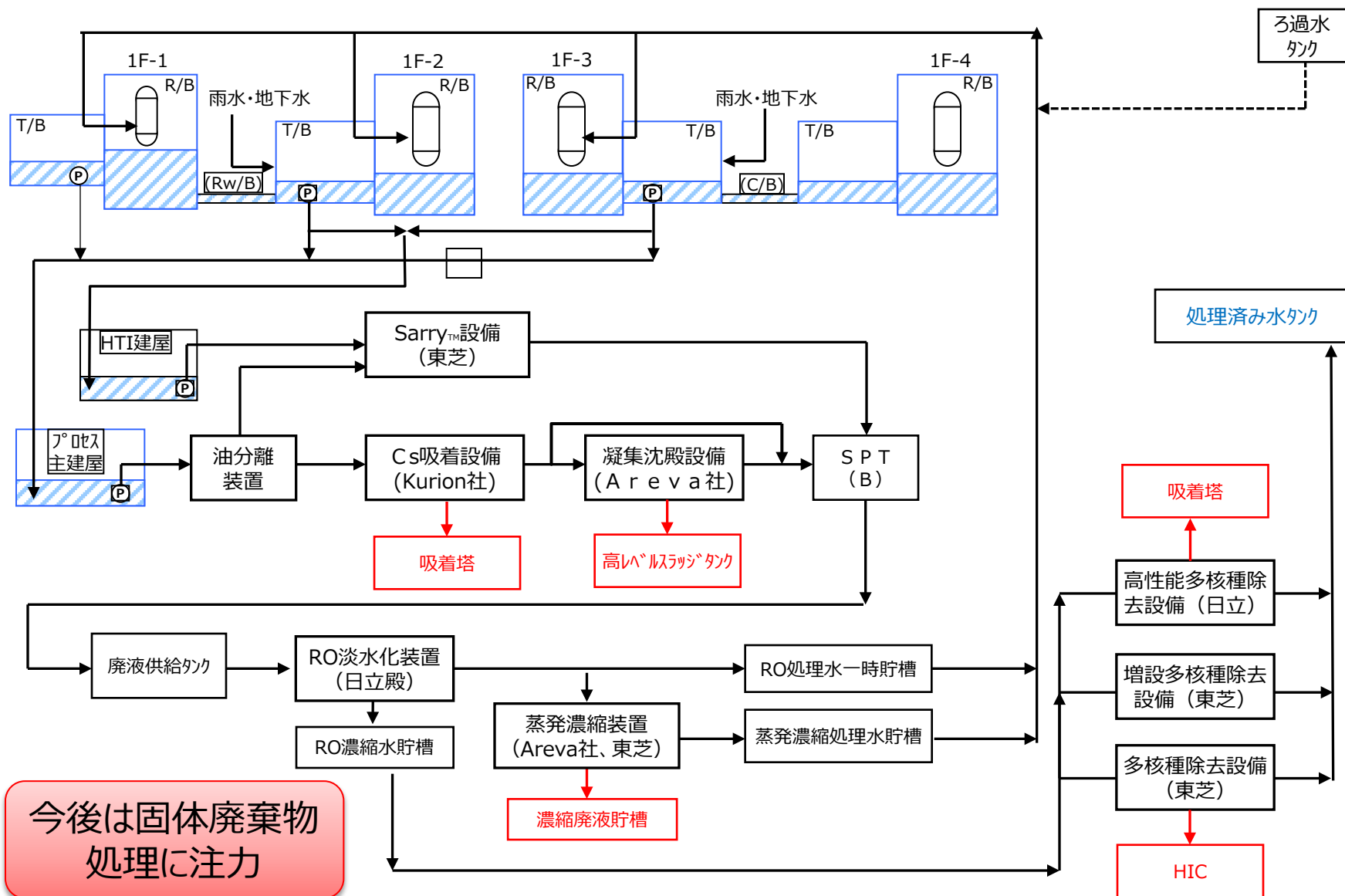
液中でイオンとして存在しない

I、Co：コロイド（微粒子への付着）として存在

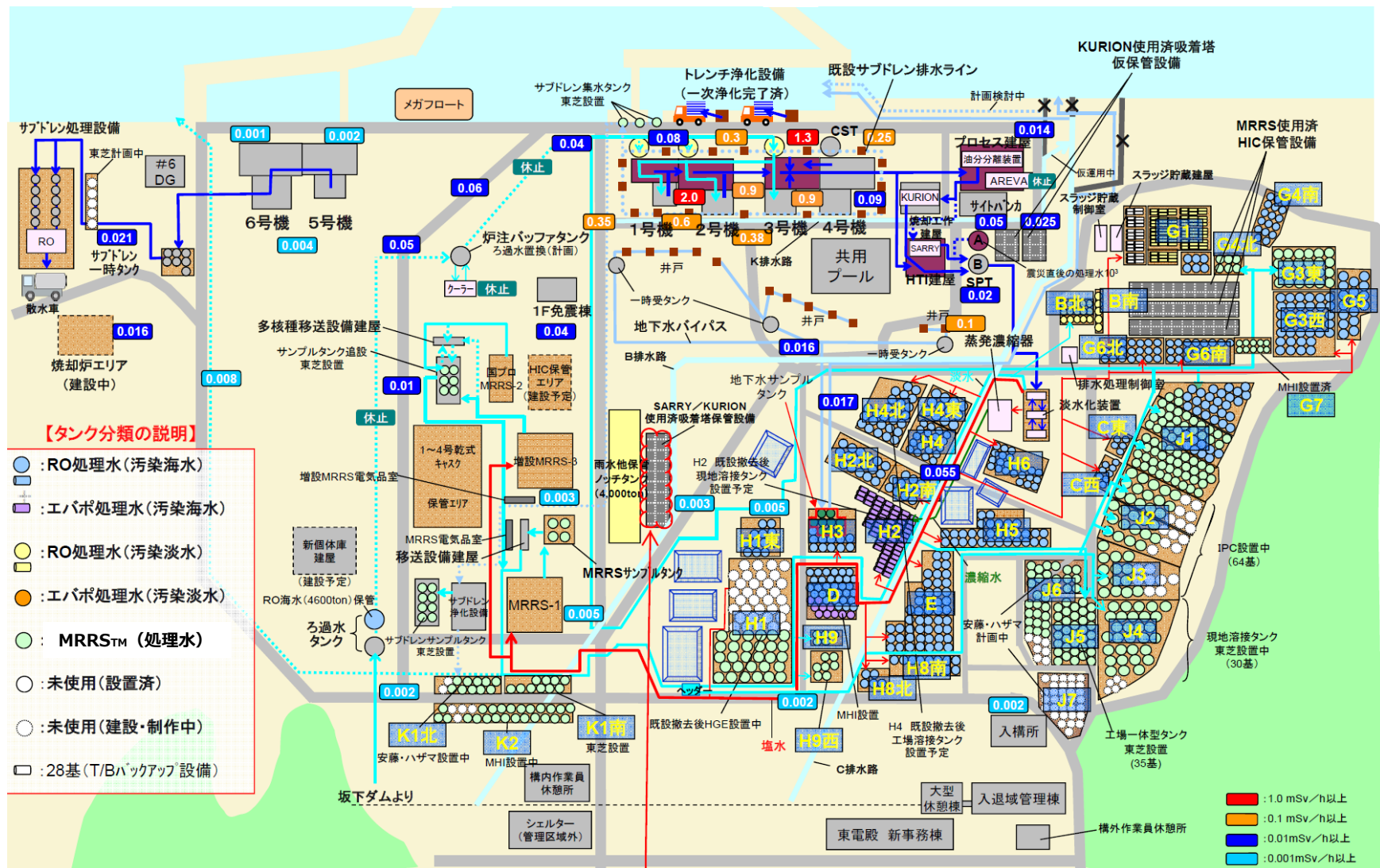
活性炭増加による
表面吸着性能向上
効果あり（既設に採用）

各化学種の分析は、妨害成分が多く困難
例）ヨウ素イオンは塩化物イオンが妨害
脱塩するとヨウ素イオンの形態も変化

参考 1F汚染水処理設備の全体状況



参考 1F汚染水処理設備の全体状況



最終的には、装置、タンクも廃棄物⇒廃炉に向けた方針を継続検討

おわりに

2011年3月11日以降、原子炉施設の汚染水処理設備を検討してきました。

当社が検討した設備は、国内外の多くの方々の直接もしくは間接的なご協力のもと、運転継続されています。

これからも廃止措置にむけて、よりシンプルで確実な設備を検討していきます。

