

建屋滞留水処理等の進捗状況について

2021年2月22日



東京電力ホールディングス株式会社

1. 概要

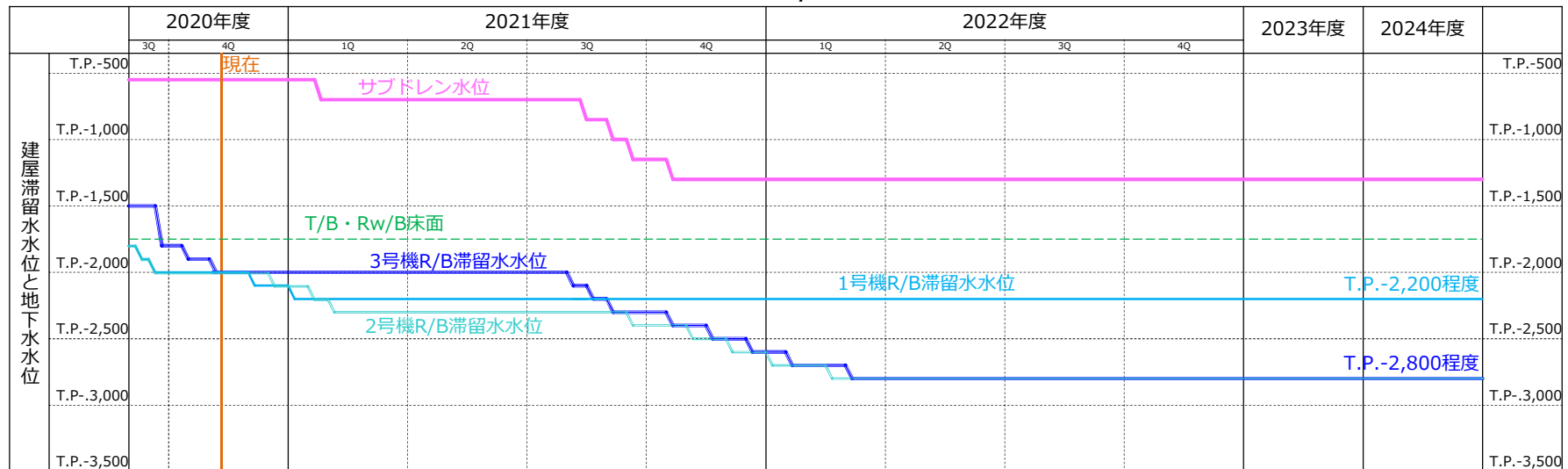
- 循環注水を行っている1～3号機原子炉建屋（R/B）については、2022～2024年度内に、R/B滞留水の貯留量を2020年末の半分程度（3,000m³以下）に低減する。
- 比較的高い全α濃度（2～5乗Bq/Lオーダー）が確認されているR/B滞留水については、性状分析等を進めている。今後、分析結果を踏まえたα核種拡大防止対策を進めていく。

2. 今後の建屋滞留水処理計画

- 循環注水を行っている1～3号機R/Bについて、2022～2024年度内に、R/B滞留水の貯留量を2020年末の半分程度（3,000m³以下）に低減する。
 - 建屋滞留水の水位低下は、ダストの影響の確認や、R/B下部に存在するα核種を含む高濃度の滞留水を処理することによる急激な濃度変化による後段設備への影響を緩和するため、建屋毎に2週間毎に10cm程度のペースを目安に水位低下を実施中。
- プロセス主建屋（PMB）、高温焼却炉建屋（HTI）については、極力低い水位を維持※¹しつつ、ゼオライト土嚢等の回収及びα核種拡大防止対策の実施後、最下階床面を露出させる計画。

※1 PMBはT.P.-1200程度、HTIはT.P.-800程度（水深1.5m程度）で水位を管理。
 なお、大雨等による一時的な水位変動の可能性あり。

今後の1～3号機R/B水位低下計画案



【参考】 滞留水貯留量と滞留水中の放射性物質について

- 建屋滞留水処理における貯留量と放射性物質量の推移を以下に示す。
- 建屋滞留水処理は計画的に進め、建屋滞留水貯留量を段階的に低減させている。
- また、高い放射能濃度が確認された2号機R/B底部の滞留水処理を進める等、放射性物質量についても効果的に低減させている※。

		2019.03(実績)		2021.02(現在)	
号機	建屋	貯留量	放射性物質量	貯留量	放射性物質量
1号機	R/B	約 1,800 m ³	1.4E14 Bq	約 700 m ³	4.5E13 Bq
	T/B	床面露出維持		床面露出維持	
	Rw/B	床面露出維持		床面露出維持	
2号機	R/B	約 3,200 m ³	1.1E14 Bq	約 1,800 m ³	8.6E13 Bq [※]
	T/B	約 3,100 m ³	5.0E13 Bq	床面露出維持	
	Rw/B	約 800 m ³	1.3E13 Bq	床面露出維持	
3号機	R/B	約 3,300 m ³	5.7E14 Bq	約 1,900 m ³	2.2E13 Bq
	T/B	約 3,300 m ³	1.6E14 Bq	床面露出維持	
	Rw/B	約 800 m ³	3.9E13 Bq	床面露出維持	
4号機	R/B	約 3,200 m ³	2.9E12 Bq	床面露出維持	
	T/B	約 3,000 m ³	2.7E12 Bq	床面露出維持	
	Rw/B	約 1,200 m ³	1.1E12 Bq	床面露出維持	
集中Rw	PMB	約 11,000 m ³	4.4E14 Bq	約 4,300 m ³	1.3E14 Bq
	HTI	約 3,100 m ³	1.7E14 Bq	約 3,400 m ³	1.8E14 Bq
合計		約 37,700 m ³	1.7E15 Bq	約 12,100 m ³	4.6E14 Bq

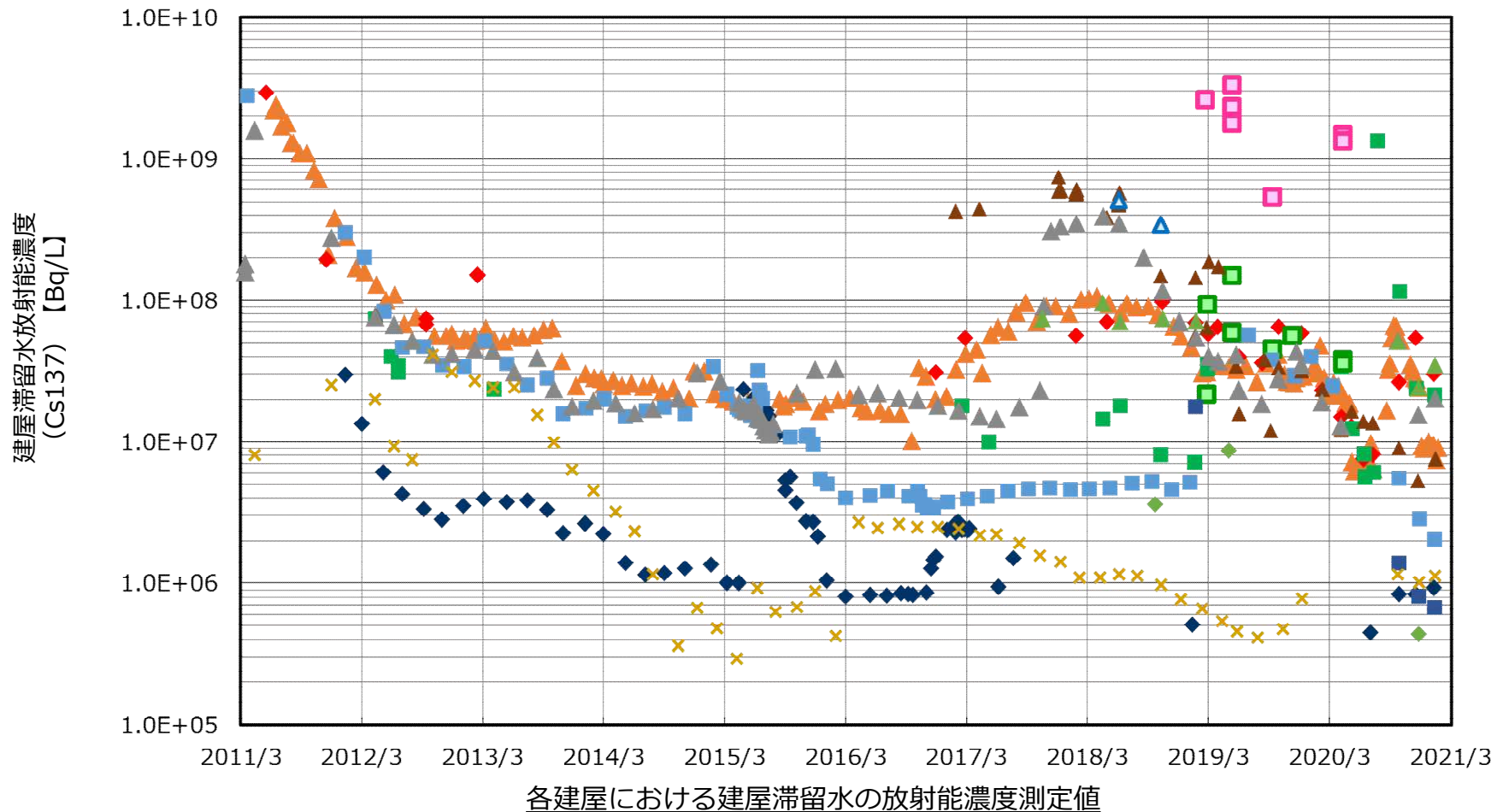
※ 2号機R/Bは底部の滞留水処理を実施する際の一時的な濃度変化の影響（攪拌の影響）を受け、評価上の放射性物質量が変動。

【参考】1~4号機における建屋滞留水中の放射能濃度推移



以下に1~4号機における建屋滞留水中の放射能濃度推移を示す。

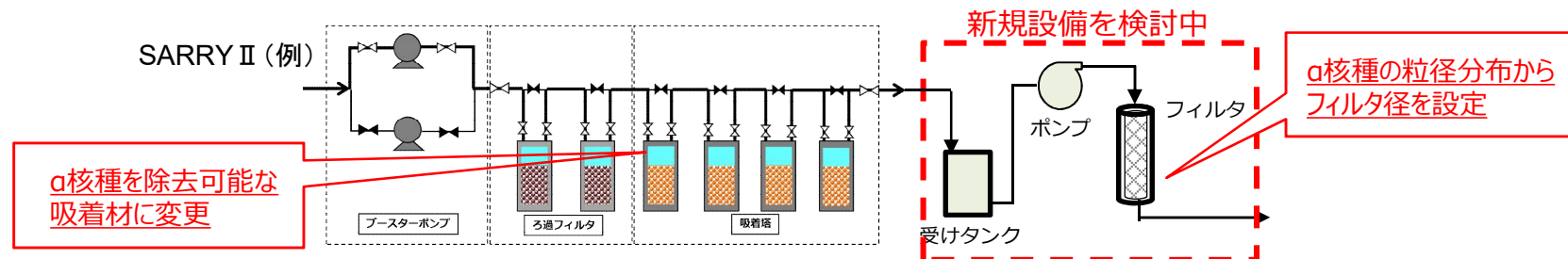
- ▲ プロセス主建屋
- 2号機R/B
- 2号機Rw/B
- ▲ 3号機Rw/B
- ◆ 1号機R/B
- 2号機R/B 深部(トレンチ上部)
- ▲ 3号機R/B
- × 4号機T/B
- ◆ 1号機T/B
- 2号機R/B 深部(トレンチ最下部)
- ▲ 3号機R/B 深部
- ◆ 1号機Rw/B
- 2号機T/B
- ▲ 3号機T/B



3. α核種の性状確認状況および今後の対策

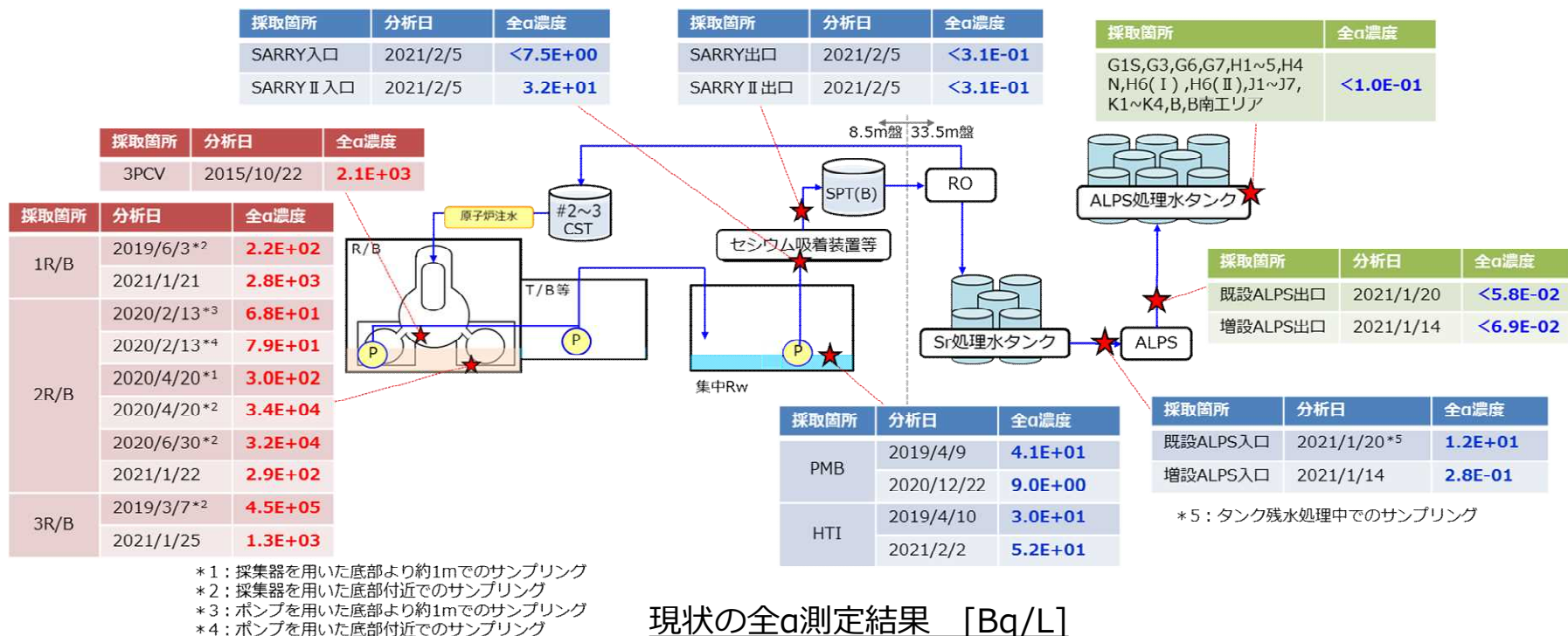
- 2,3号機R/Bで比較的高濃度のα核種が確認された滞留水について、0.1μmのフィルタでのろ過試験を実施。大部分のα核種はフィルタで除去できるが一部は滞留水中に残ることを確認。
 - 一部のα核種については0.1μm以下の粒子状、またはイオン状にて存在していると想定。
- α核種対策として現在、2号機R/Bの滞留水を用いて以下の分析・試験を実施中。
 - α核種の核種分析および粒径分布の分析 **➡ 進捗状況ご報告**
 - イオン状α核種の除去能力確認のための吸着材試験 **➡ 現在使用しているSARRY吸着材等で浸漬試験を実施し、α核種の低減を確認通水試験の準備中**
- 上記結果を踏まえ、既存水処理設備に対し、粒子・イオン双方に対する設備の改造を検討。
 - 粒子 : α核種の粒径にあったフィルタの導入
 - イオン : α核種除去能力のある吸着材の導入

	2020年度	2021年度	2022年度	2023年度以降
原子炉建屋 建屋滞留水水位低下	既存吸着塔でもα核種を除去できることを確認			α核種除去能力のある最も最適な吸着材を選定
α核種粒径分析	継続して適宜実施予定			
α核種吸着材試験 (浸漬試験)				
α核種吸着材カラム試験				
既存設備改造				α核種の粒径にあったフィルタの導入 → 今後の廃炉作業に伴う滞留水水质変化にも対応
建屋滞留水処理				PMB, HTI建屋水位低下



4. 建屋滞留水中のα核種の状況

- R/Bの滞留水からは比較的高い全α（2~5乗Bq/Lオーダー）が検出されているものの、セシウム吸着装置入口では概ね検出下限値程度（1乗Bq/Lオーダー）であることを確認。
- 全α濃度の傾向監視とともに、α核種の性状分析等を進め、α核種の低減メカニズムの解明を進める。
- 今後、R/Bの滞留水水位をより低下させていくにあたり、全α濃度が上昇する可能性もあることから、PMB, HTIの代替タンクの設置や、汚染水処理装置の改良も踏まえた、α核種拡大防止対策を検討中。



各建屋滞留水の全αの放射性物質質量評価 [Bq] ※1

1号機R/B	2号機R/B	3号機R/B	PMB	HTI	合計
1.1 E+09	2.7 E+07	6.6 E+08	7.6 E+07	-※2	1.9 E+09

- ※ 1 最新の分析データにて評価をしているが、今後の全αの分析結果によって、変動する可能性有り
- ※ 2 検出下限値

5. α核種管理の目指すべき状態

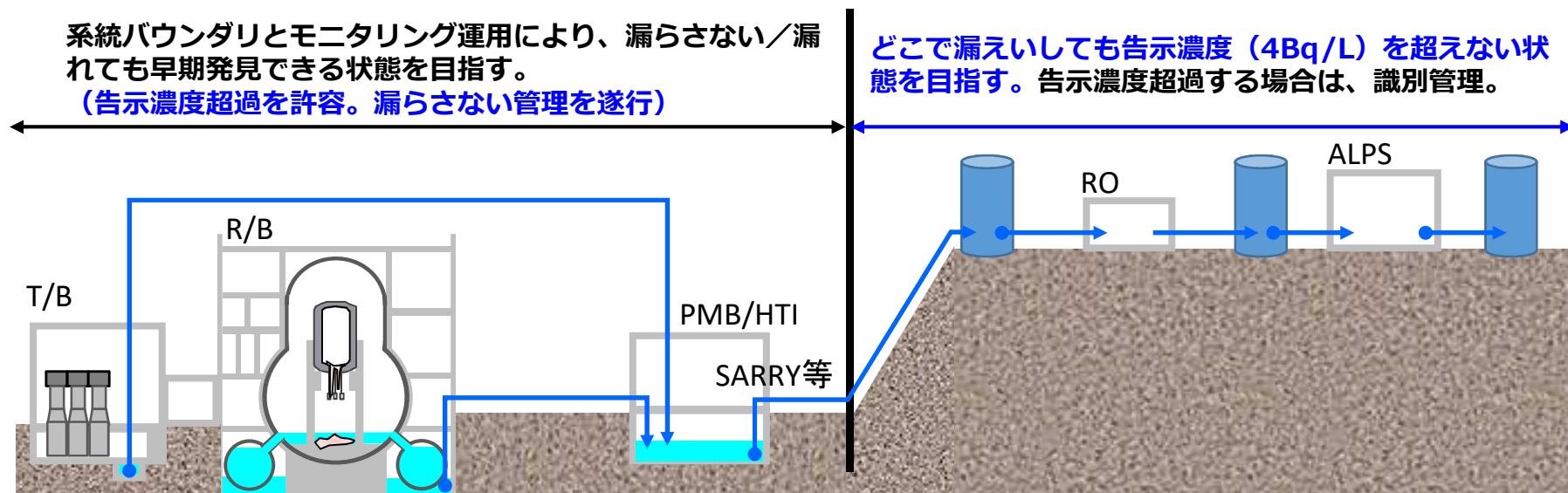
➤ ①8.5m盤：α汚染拡大リスクの最小化が図れた状態

- 漏らさない系統構成と早期発見を目指した状態監視（βγ汚染と同じ）
- 各建屋滞留水の定期モニタリングによるα放射能濃度の把握
- 8.5m盤から33.5m盤へのα汚染移行抑制措置。水処理設備の最下流(SARRY)の系統内濃度を告示濃度(4Bq/L)未満とする。

➤ ②33.5m盤：α汚染管理が要らない状態※

- 目標値を超過して保管する場合は、系統/設備を識別管理する

※放射性物質を収集する設備を除く



8.5m盤内でα核種を管理するためSARRY、SARRY IIでα核種を除去できる状態を目指す。

6. α核種性状分析の進捗状況報告

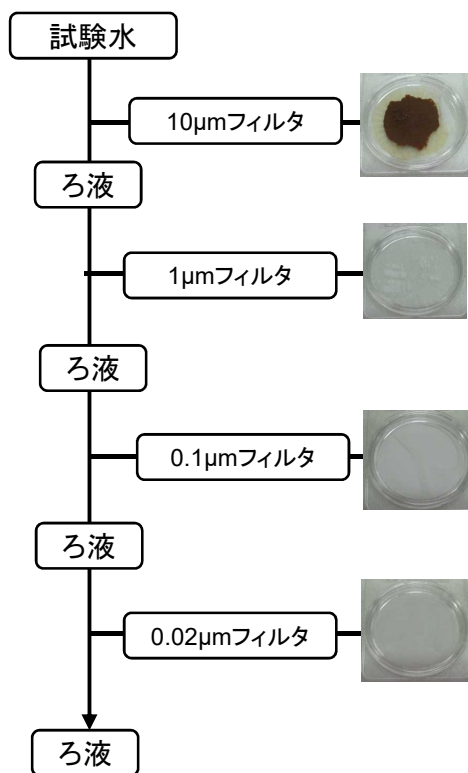
- α核種対策として現在、2号機R/Bの滞留水を用いて以下の分析・試験を実施している。今回は採取器を用いた底部付近でのサンプリングを実施し、前回よりもα核種濃度が濃い水で核種分析を実施した。（今回はポンプを用いたサンプリングを実施）

種類	全α濃度(Bq/L)	Cs-137(Bq/L)	塩化物イオン濃度(ppm)	全β(Bq/L)	採取方法
前回採取した水 (2020.2.13採取)	6.8E+01	1.3E+09	13,875ppm	1.5E+09	ポンプを用いた底部より約1mでのサンプリング
	7.9E+01	1.3E+09	13,875ppm	1.6E+09	ポンプを用いた底部付近でのサンプリング
今回採取した水 (2020.6.30採取)	3.2E+04	1.4E+09	20,200ppm	1.5E+09	採取器を用いた底部付近でのサンプリング

- 報告内容
 - ①α核種分析
 - ②α核種元素分析

6-1. α核種のフィルタによるろ過結果

- 試験水に対し、段階的なフィルタを設け、各フィルタでの回収物とろ液に対し分析を実施。
- フィルタ径の選定にあたっては、ALPSで使用しているクロスフローフィルタが0.02μmであることから本試験でも0.02μmまでを採用することとした。



粒径	Bq/L						
	U-235	U-238	Am-241	Cm-244	Cm-242	Pu-238	Pu-239+240
> 10 μm	7.2E-01	5.7E+00	1.7E+04	1.3E+04	5.6E+01	5.2E+03	1.8E+03
10~1 μm	<6.0E-04	1.3E-03	<2.0E+00	<2.0E+00	<2.0E+00	<6.0E-01	<6.0E-01
1~0.1 μm	<6.0E-04	1.7E-03	<2.0E+00	<2.0E+00	<2.0E+00	<5.0E-01	<6.0E-01
0.1~0.02 μm	3.0E-03	2.4E-02	<1.0E+00	<2.0E+00	<2.0E+00	<6.0E-01	<9.0E-01
< 0.02 μm (ろ液)	<8.2E-04	1.9E-03	7.7E-01	<5.0E-01	<6.0E-01	1.4E+00	<5.0E-01

【参考】

粒径	Bq/L					
	全α	Cs-134	Cs-137	Co-60	Sb-125	Eu-154
> 10 μm	3.7E+04	1.7E+06	3.2E+07	1.7E+06	1.3E+06	7.0E+04
10~1 μm	<2.0E+00	2.2E+04	4.4E+05	<8.0E+02	<7.0E+03	<2.0E+03
1~0.1 μm	<2.0E+00	<7.0E+02	3.2E+03	<5.0E+02	<2.0E+03	<2.0E+03
0.1~0.02 μm	<2.0E+00	5.9E+03	1.1E+05	5.6E+02	<5.0E+02	<3.0E+02
< 0.02 μm (ろ液)	2.2E+00	7.0E+07	1.4E+09	5.5E+04	<7.0E+03	<2.0E+03

Uを除くデータは
廃炉・汚染水対策
事業による成果

α核種の粒径として、概ね数μm以上のものと推測され、同程度のフィルタを設置することにより、告示濃度(4Bq/L)を満足できると考える。



フィルタ設備のメッシュ径の設計に反映

【参考】ろ液の元素組成

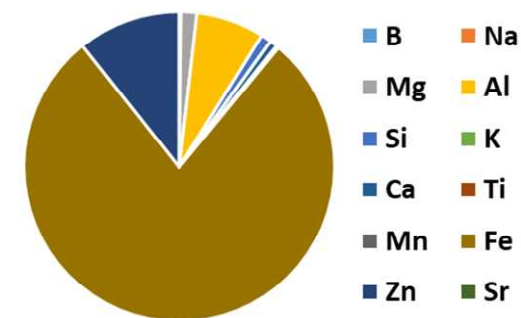
- 孔径10μmフィルター回収物の溶解液について元素濃度を分析した。
- 主に鉄成分に海水由来の元素が確認されている。

孔径10μmフィルター回収物の元素濃度 [単位：mg/mL試料]

	B	Na	Mg	Al	Si	K
今回採取した水	4.6×10^{-3}	$< 1 \times 10^{-2}$	4.2×10^{-2}	1.8×10^{-1}	2.7×10^{-2}	$< 1 \times 10^{-2}$
前回採取した水 ^{*1}	$< 1 \times 10^{-3}$	1.3×10^{-1}	1.1×10^{-2}	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$
	Ca	Ti	Mn	Fe	Zn	Sr
今回採取した水	2.0×10^{-2}	$< 1 \times 10^{-2}$	6.4×10^{-3}	2.0×10^0	2.8×10^{-1}	$< 1 \times 10^{-3}$
前回採取した水 ^{*1}	5.4×10^{-3}	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	1.3×10^{-3}	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-4}$

孔径10μmフィルター回収物の元素組成 [単位：%]

	B	Na	Mg	Al	Si	K
今回採取した水	0.18	ND	1.6	7.1	1.1	ND
前回採取した水 ^{*1}	ND	88.2	7.3	ND	ND	ND
	Ca	Ti	Mn	Fe	Zn	Sr
今回採取した水	0.79	ND	0.25	78.2	10.7	ND
前回採取した水 ^{*1}	3.6	ND	ND	0.8	ND	ND



孔径10 μm フィルター回収物
元素組成

- *1 孔径1及び10 μmフィルター回収物の合計値。ろ過後に洗浄していないため、海水成分による影響の可能性はある。
 *2 「ND」は不検出。
 *3 検出された元素の合計を100 %としている。

本データは廃炉・汚染水対策事業による成果

6-2. α核種元素分析 (1 / 2)

SEM-EDXによるU含有微粒子を検出し、α核種の形状元素分析を実施した。以下に検出された粒子の代表を示す。

(1) 粒径10μm以上の分析結果

粒子番号	粒径 / μm	U, Zr 存在量比 * / %	SEM像	U マッピング像
P1	4.4	71.9		
P2	2.8	94.2		
P3	2.6	84.4		
P4	2.4	69.4		

(2) 粒径0.2~10μmの分析結果

粒子番号	粒径 / μm	U, Zr 存在量比 * / %	SEM像	U マッピング像
P1	4.0	70.4		
P2	1.1	72.1		
P3	0.9	31.0		
P4	0.6	86.6		

*U/(U+Zr)により算出

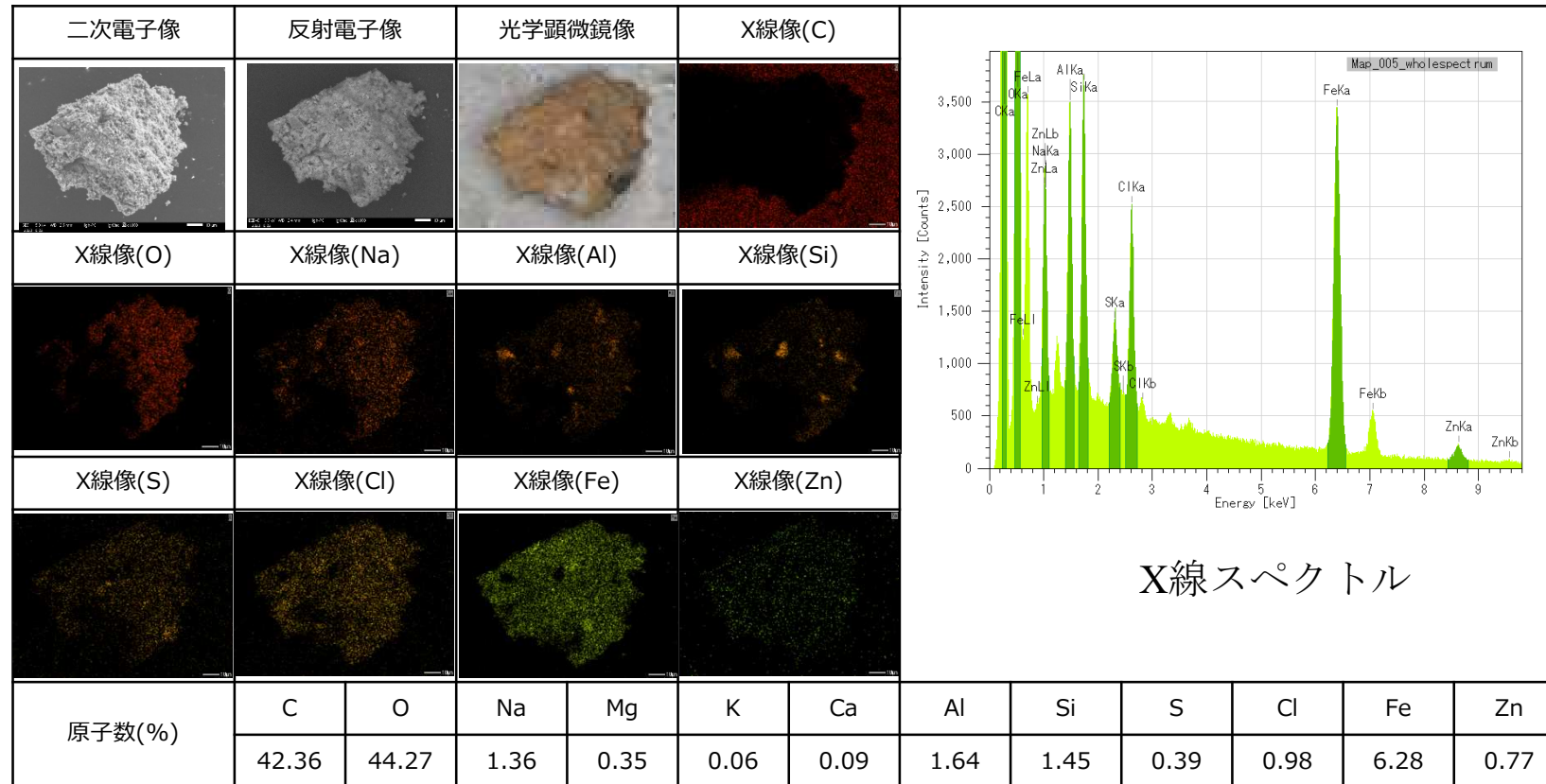
- ・大きなフィルタ孔径にかかわらず、粒径0.5~4.4μm程度のU含有粒子が検出された。
⇒大きな粒子が多いため、ケークろ過となっていると考えられる。
- ・Uの他、Zr, Zn, Ni, Fe, Mn, Cr, S, Si, Al, Mg, Naなどが共存元素として検出された。

- ・粒径0.6~4.0μm程度のU含有粒子が検出された。
- ・浅部と深部を混合した試料の場合と比較しても、粒径に大きな違いはない。
- ・Uの他、Zr, Zn, Fe, Mn, Cr, S, Si, Al, Mg, Naなどが共存元素として検出された。

6-2. α核種元素分析 (2 / 2)

SEM-EDXによりα核種を多く含有する粒子の元素組成を分析した。

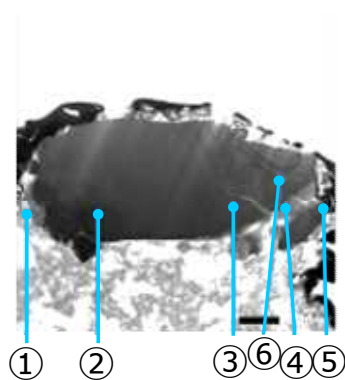
SEMの元素分析結果



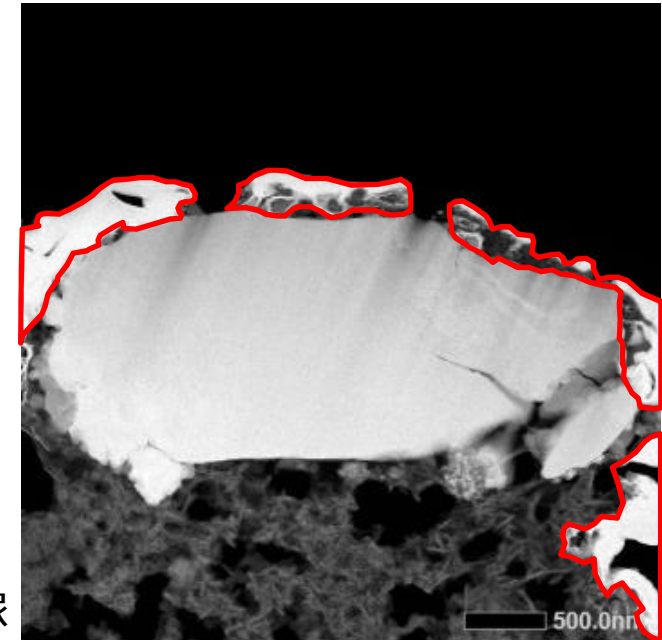
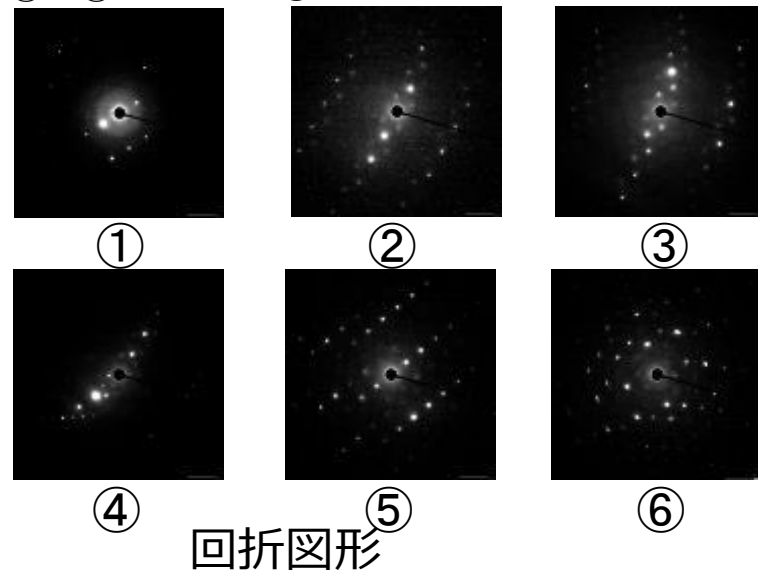
- ・ 粒子は主にFeを主成分とする粒子。
- ・ そのほか、Na, Mg, K, Ca, Al, Si, S, Cl, Znなどが共存

α核種元素分析(1)(2)の結果、U粒子を捕捉すると、他の含有元素も捕捉することになるため、これらの元素が保管時に問題ないか検討する。(少量であるがAlが存在する等)

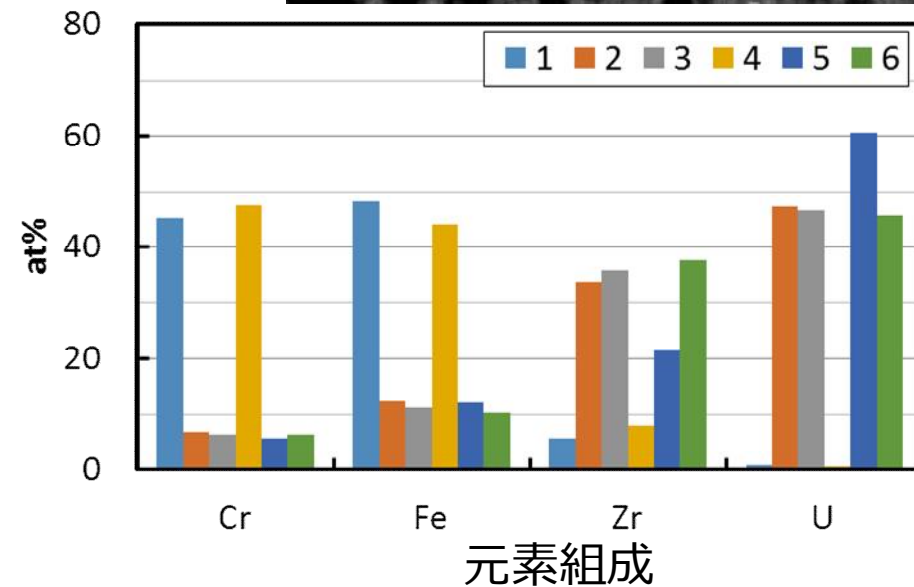
- 主相は立方晶 $(U,Zr,Fe,Cr)O_2$ 固溶体で、粒子の周囲に $(Fe,Cr)_3O_4$ と六方晶 Cr_2O_3 が周辺に存在
- 大粒子のU/(U+Zr)比は約0.6で、小粒子(⑤)は約0.7
- (Fe+Cr)濃度は約18~19at%
- 熔融凝固過程



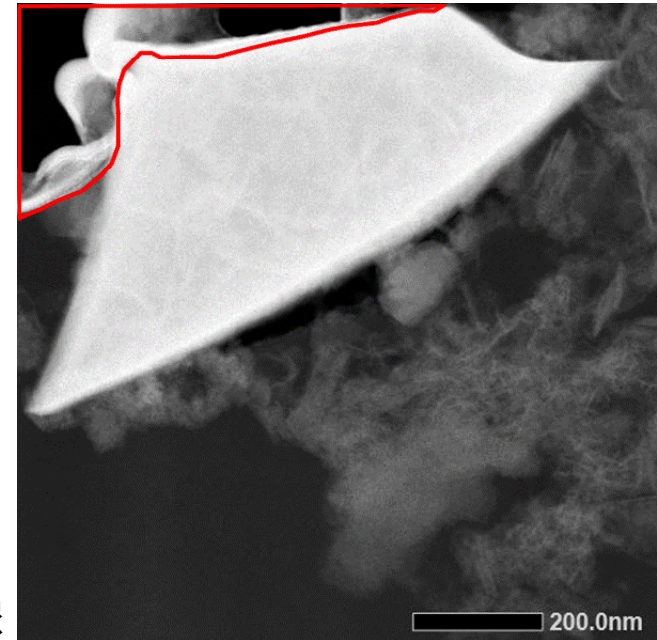
① : $Cr_2O_3+Fe_3O_4$
 ②③⑤⑥ : c- $(U,Zr,Fe,Cr)O_2$
 ④ : $(Fe,Cr)_3O_4$



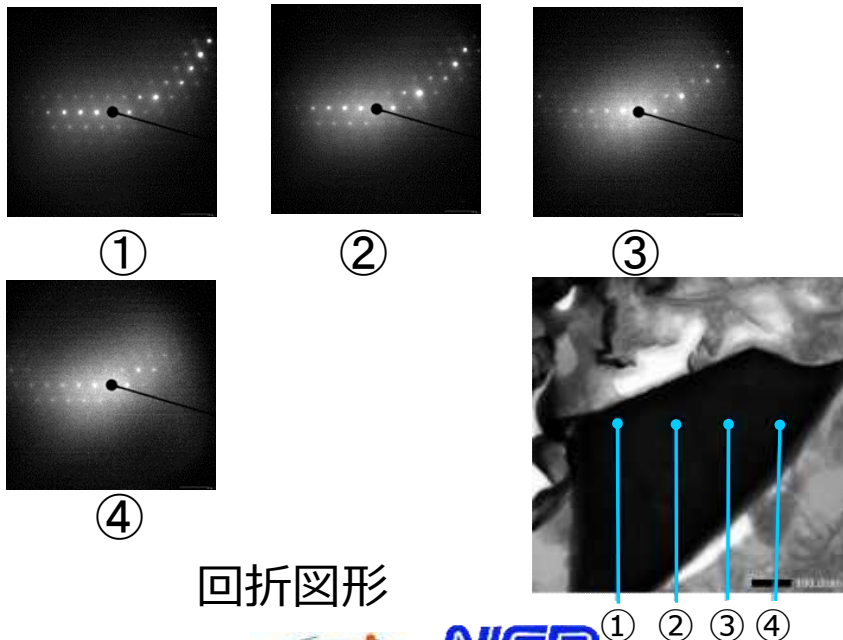
TEM像



- 主相は立方晶のUO₂固溶体
- 曲率から4μm程度の粒子からの破片と推定
- Zrの含有量は約5at%、
- Fe、Crの含有量は約2~4at%と示されている。ただし値の有意性については未確認
- 熔融凝固過程

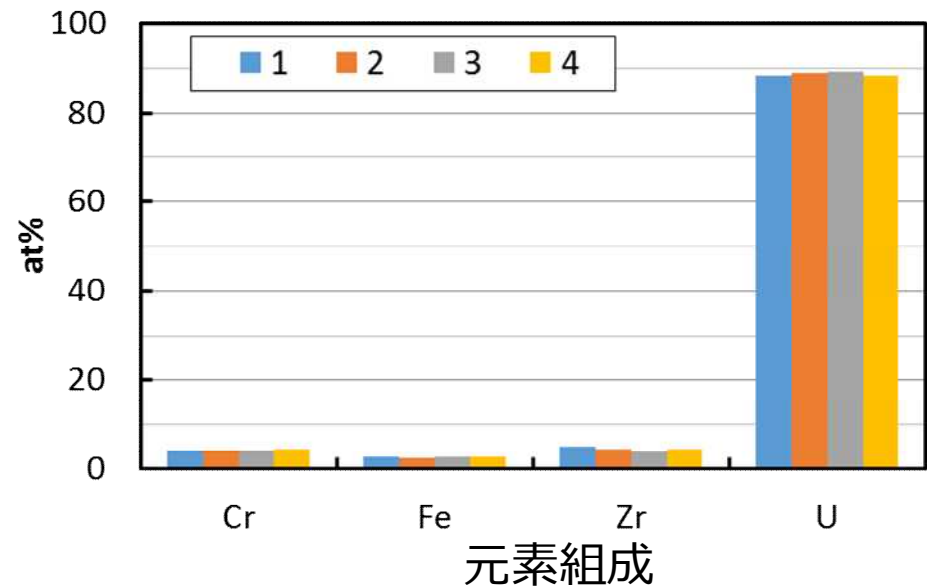


①~④ : c-(U,Zr)O₂



回折図形

TEM像



6-3. α核種性状分析を踏まえた現在の検討状況

- 今回採取した水は、U、Pu、Am、Cmともに多くは数 μm 以上の粒子として存在している。
なお、廃炉・汚染水対策事業でのTEMの結果ではZr、Fe、Crを含む UO_2 で存在しているものと推定している。
- α核種の粒径として、概ね数 μm 以上のものと推測され、同程度のフィルタを設置することにより告示濃度(4Bq/L)を満足できるものと考え。今後の水質の変化等を考慮して、ALPSクロスフィルタのメッシュ径である0.02 μm 程度のフィルタを設計上想定していく。
- 今回は2号機R/Bの滞留水を採取し、分析・試験を実施し、今後のフィルタ設計の指標を検討した。今後も3号機R/Bの滞留水の採取等を行い、知見を拡げていく。

7. イオン状α核種の除去能力確認のための吸着材試験

- α核種対策として吸着材に対する除去性能の確認を進めており、現行のCs吸着装置等にて、ある程度α核種を低減できることを確認。
- 福島第一原子力発電所で使用実績のある吸着材、または新規にα核種除去が期待される吸着材に対しα核種吸着試験（浸漬試験）を実施。
- 測定結果として、すべての吸着材でα核種の低減が確認できた。
- 今後通水試験を実施し、除去性能を詳細に確認していく予定。

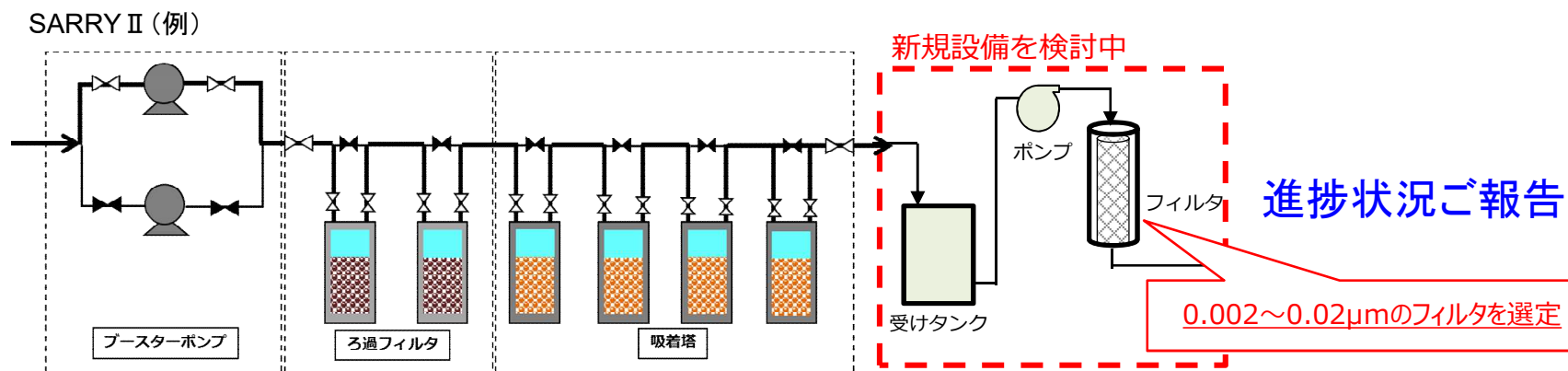
		全α(Bq/L)
吸着材	2R/B試験水（原水）	3.2E+04
	2R/B試験水（0.1μmろ過）	2.0E+02
	A（0.1μmろ過）	<3.0E+00
	B（0.1μmろ過）	<2.4E+00
	C（0.1μmろ過）	<3.8E+00
	D（0.1μmろ過）	<3.8E+00
	E（0.1μmろ過）	<2.8E+00
	F（0.1μmろ過）	<2.8E+00
	G（0.1μmろ過）	<2.8E+00
	H（0.1μmろ過）	<2.0E+00
	I（0.1μmろ過）	<3.0E+00
	J（0.1μmろ過）	<3.0E+00
	K（0.1μmろ過）	<3.0E+00
	L（0.1μmろ過）	<3.0E+00

【参考】 α 核種除去に向けた設備改造

- 本結果より、ALPSクロスフィルタのメッシュ径である $0.02\mu\text{m}$ 程度のフィルタを設計上、検討した。
- SARRY II の処理流量 $25\text{m}^3/\text{h}$ を通水するのに必要なフィルタ孔径とモジュール数の関係は以下のとおりとなる。

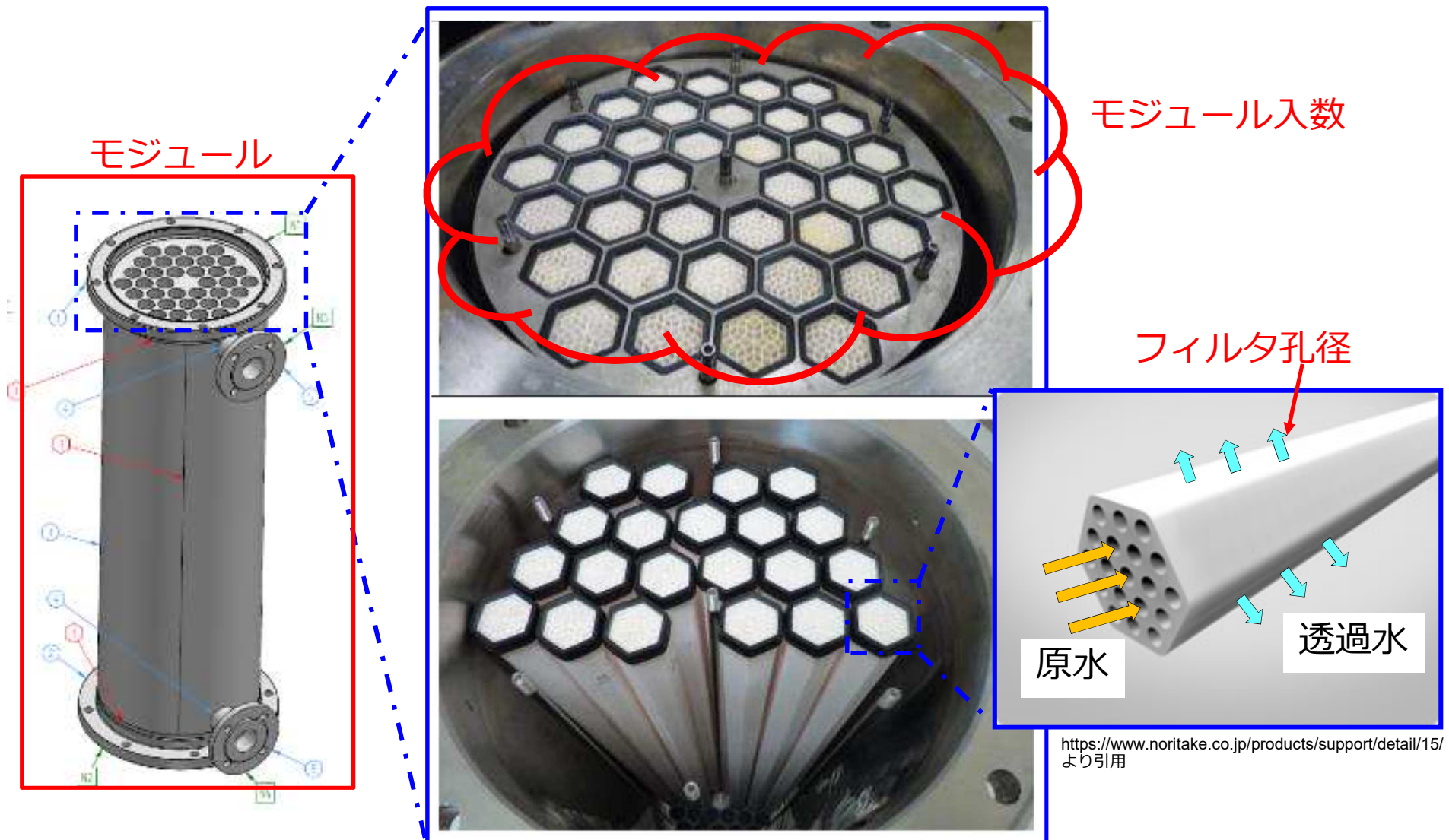
フィルタ孔径(μm)	0.002	0.01	0.1
フィルタ本数	3571	205	102
モジュール入数	37	37	37
モジュール数	97	6	3

- 限界までフィルタ孔径を小さくするとモジュール数が97となり、設備規模が膨大となり設置ができない。(ALPSの10倍以上の規模感)
フィルタの除去率と現場設置の実現性を踏まえ、 $0.002\sim 0.02\mu\text{m}$ のフィルタを選定する。



α 核種除去に向けた設備改造のイメージ図

【参考】ALPSで導入しているクロスフロー方式のセラミックフィルタ



■ALPSではフィルタ孔径0.02 μ mを採用しており、現在までALPS出口で α 核種は検出されていない。