

## 廃棄物の性状把握に関する最近の成果 - 主要なリスク源の性状把握 -

### 2022年11月24日

## 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門

未来へげんき

To the Future / JAEA

本資料は、国際廃炉研究開発機構 (IRID) が補助事業者として実施した資源エネルギー庁の補助事業「廃炉・汚染水対策 事業補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」の成果を含みます。



- これまでの成果
  - - 固体廃棄物の廃棄物管理(性状把握、 保管、処理、処分)に関する技術の 確立を目指し、各分野の研究開発に 取り組んでいる。
  - - 性状把握は、瓦礫類や汚染水処理の二次廃棄物等の分析を行い、その性状を調べるとともに、分析手法やインベントリ推定などの手法を開発してきた(図1)。
  - 性状把握の成果は保管、処理及び 処分の研究開発に提供し、それぞれ で活用している。2021年度に示され た処理・処分方策とその安全性に関 する技術的見通しの策定に貢献した。
- 課題
   種々の対策に伴い重要度が変化するため、性状把握の優先度を見直しつつ対処する必要がある。





#### 最近の研究成果 – 主要なリスク源について

- 主要なリスク源では廃棄物も重要な管理対象とされており、優先度の高いものから分析、性状把握を進めてきた(図1)。
- 最近では、建屋内滞留水、濃縮廃液スラリー、ゼオライト及び活性炭土嚢、
   ALPS スラリー及び吸着材を分析し、得られたデータの一部は東京電力により利用されている(図2)。本報では主要なリスク源に関する最近の成果を報告する。



管理重要度(対数スケール)

図2 東京電力によるデータ引用の事例 (上;滞留水\*2、下;ゼオライト土嚢\*3)

図1 主要なリスク源<sup>11</sup>と性状把握の対象

<sup>\*1</sup> 原子力損害賠償・廃炉等支援機構, "東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン 2022," 2022年10月11日. \*2 東京電 カホールディングス株式会社, "建屋滞留水処理等の進捗状況について," 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第100回), 令和4年3月31日. \*3 東京 電力ホールディングス株式会社, "HTIにおける地下階環境調査の結果について,"廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第91回), 令和3年6月24日.



#### 建屋内滞留水

- 建屋地下の滞留水やタンク汚染水の水量低減対策に伴い、汚染水と接していた部分の汚染 状態の把握が重要である。2及び3号機滞留水、タンク汚染水等に含まれる固体分(スラッジ) を分析した。
- 成果として以下の知見を得ており、α核種を含むスラッジの除去の具体化に反映されている<sup>\*1</sup>。
  - 汚染水に含まれる固体は、10 μmフィルタによりほとんどの粒子が回収され(図1)、これにα 核種が含まれている(表1)。α核種は鉄を主成分とする粒子に含まれる(図2)。



表1 3号機滞留水試料の含む固体への 核種の物質収支\*

フィルタ	粒子 (g)	U-238	Pu-238	Am-241	Cs-137
10 µm	0.036	99.83%	99.97%	99.97%	26.3%
1 µm	ND	0.014%	0.026%	0.023%	0.17%
0.1 µm	ND	0.018%	0.005%	0.004%	0.05%
0.02 μm	ND	0.11%	<0.0003%	<0.0008%	0.13%
ろ液		0.020%	<0.0009%	<0.003%	73.4%

\* 採取日 2021年7月13日に補正し、定量値の合計を 100% として計算した. 端 数が合わない場合がある.



図2 αトラック法により同定したα核種を 含む鉄粒子の例<sup>\*2</sup>

図1 3号機滞留水の分級操作

\*1 東京電力ホールディングス株式会社, "建屋滞留水処理等の進捗状況について," 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第100回), 令和4年3月31日. \*2 T. Yomogida. et al., "Analysis of particles containing alpha-emitters in stagnant water at torus room of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station's Unit 2 reactor,"

Scientific Reports, 12, 7191 (2022). https://doi.org/10.1038/s41598-022-11334-1



#### 建屋内滞留水っづき

- α核種を含む鉄粒子とともに、大きさが μm オーダーのウラン粒子が含有される(図1)。
- 貯留タンク内に発生したスラッジは、原子炉建屋滞留水に似た組成の粒子を含む(図2)。処 理水タンクスラッジも酸化鉄が主成分であり(図3)、塩化物粒子が共存する。



- \*1 T. Yomogida et al., "Analysis of particles containing alpha-emitters in stagnant water at torus room of Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station's Unit 2 reactor," Scientific Reports, 12, 7191 (2022). https://doi.org/10.1038/s41598-022-11334-1
- \*2 東京電力ホールディングス株式会社, "建屋滞留水処理等の進捗状況について," 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第100回), 令和4年3月31日. \*3 山口 祐加子 ほか, "福島第一原子力発電所の貯留タンク内スラッジの調査に係る分析,"日本原子力学会「2022年秋の大会」.



#### 濃縮廃液(スラリー)

- 汚染水を蒸発濃縮した際に発生したスラリーの安定化処理法を検討するために、保管容器(ブルータンク)から得られた試料を分析した(図1)。
- 得られた成果は、安定化に向けた脱水処理の適用検討に利用されている。
- スラリーは Mg と Ca 塩を主成分とし(図2)、数 μm の大きさの粒子を主体とする(図 3、個数基準)ことから、ALPS 炭酸塩スラリーに類似しているものと考えられる。放 射性核種は <sup>90</sup>Sr が支配的である(表1)。

10

8

9 9 4

٥

14

12

2

1

10 》 (%)

1

□ 頻度

積算

3

□ 頻度

積算

3 5 10



1Fでの小分け操作



LI-CW-S3-1

図1 濃縮廃液スラリー 試料の外観(ブルータ ンクB, 11g, 28.5 mSv/h)



図2 濃縮廃液スラリーの組成 (ブルータンクBスラリー、化合物は推 定であり、異なる化学形であり、またそ の混合物である可能性がある)



円相当径 (um)

表1濃縮廃液スラリー 試料(ブルータンクB) の放射性核種組成\*

100

80

60 🛞

」 第40

20

Λ

30 50

100

80

60 🛞

) 黄 40 蹔

20

30 50

個数基準

体積基準

10

円相当径 (μm)

5

核種	放射能濃度 (%)		
<sup>54</sup> Mn	<0.7%		
<sup>60</sup> Co	0.026%		
<sup>94</sup> Nb	<0.0004%		
<sup>137</sup> Cs	0.0006%		
<sup>152</sup> Eu	<0.003%		
<sup>125</sup> Sb	0.047%		
<sup>90</sup> Sr	99.9%		
<sup>238</sup> Pu	<0.0000007%		
<sup>239</sup> Pu+ <sup>240</sup> Pu	<0.0000008%		
<sup>241</sup> Am	<0.000003%		
<sup>244</sup> Cm	<0.000002%		

\* 2011年3月11日に補正、定量値 の合計を100%として計算した. 端数が合わない場合がある. 5



#### ゼオライト土嚢・活性炭土嚢

- 土嚢に充填し建屋地下に投入された2種類の吸着材(ゼオライト、活性炭)について、取り出しと廃棄物管理の観点から各試料を分析した(図1)。
- 得られた成果は、土嚢の回収方法の検討、安定保管の検討に利用されている<sup>\*1</sup>。
- ゼオライトは放射性 Cs のために線量率が高く、あらかじめ Cs を除去するための方法を開発し適用した(図2)。ゼオライトは<sup>137</sup>Cs、活性炭は<sup>90</sup>Sr と<sup>137</sup>Cs がそれぞれ主な核種である(表1)。ゼオライトの種類はクリノプチロライトとみられる(図3)。



ゼオライト(11粒、0.10g、 2.1 mSv/h)



活性炭(2.0g,γ:0.07 mSv/h,βγ:1.4mSv/h)

図1 試料の外観



図2 ゼオライトの 分析フロー

#### 表1 土嚢中のゼオライトと活性炭の

核種	放射能濃度 (%)					
	ゼオライト	活性炭				
<sup>54</sup> Mn	ND	<0.005%				
<sup>60</sup> Co	ND	0.087%				
<sup>94</sup> Nb	ND	<0.002%				
<sup>134</sup> Cs	5.3%	2.9%				
<sup>137</sup> Cs	87.8%	46.8%				
<sup>152</sup> Eu	ND	<0.003%				
<sup>125</sup> Sb	ND	0.068%				
<sup>90</sup> Sr	6.9%	50.2%				
<sup>238</sup> Pu	ND	0.0001%				
<sup>239</sup> Pu+ <sup>240</sup> Pu	ND	0.00005%				
<sup>241</sup> Am	0.0000015%	0.0005%				
<sup>244</sup> Cm	ND	0.0002%				
* 採取日(ゼオライトは2020年2月12日、活性炭は						

\* 採取日 (ゼオライトは2020年2月12日、活性炭は 2020年2月27日)に補正し、定量値の合計を100% として計算した.端数が合わない場合がある.



図3 ゼオライトの蛍光X線測定データ (ゼオライトとクリノプチロライトの比較、 Cs粗分離処理を模擬したもの)

\*1 東京電力ホールディングス株式会社, "HTIにおける地下階環境調査の結果について,"廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第91回), 令和3年6月24日.



ALPS スラリー

- 多核種除去設備 (ALPS) のスラリーは発生量が多く、安定化処理への検討が進められており、継続して データの蓄積等を進めてきた。
- 得られた物性データは、安定化処理(脱水)の検討に有用である。また、放射能データは、処分検討における含有放射能量の推定に利用する。
  - 流動物性(せん断応力)は、主成分(MgとCaの比)に影響を受け、その変動範囲を推定した(図1)。
  - 汚染水の流れに対するα核種挙動を示し、Np はスラリーへと移行して汚染水から除かれている(図2)。







図2 汚染水とスラリーへのアクチニド核種の輸送比(236Uを基準)

\*1 東京電力ホールディングス株式会社, "ガレキ伐採木水処理二次廃棄物の管理状況,"廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第106回), 令和4年10月27日. \*2 堀田拓摩 ほか, "溢水した高性能容器内炭酸塩スラリーの組成を模擬した炭酸塩スラリーの作製と特性評価," JAEA-Technology 2021-012, (2021).

7



#### ALPS 吸着材

- 多核種除去設備 (ALPS) の使用済み吸着材は容器に収納し、保管されている。
   使用済み吸着材 (チタン酸塩など4種類)の放射能を分析した(図1)。
- 得られた成果は、処分などの検討にお ける含有放射能量の推定に利用する。
  - あらかじめそれぞれの分析法を開発して適用した。
  - 吸着材が含む主要な核種は、チタン 酸塩が<sup>90</sup>Sr、樹脂系1と樹脂系2が <sup>106</sup>Ru、フェロシアン化合物が<sup>137</sup>Cs で あった(表1)。各吸着材が主な対象 核種を除去しており、相互に補完している。



チタン酸塩 (ADSrt-AAL1-3)

樹脂系1 (ADCh-AAL10-1)

1 樹脂系2 .0-1) (ADCh-AAL11-1)

フェロシアン化合物 (ADCst-EAL1-3)

図1 吸着材試料の外観

核種	チタン酸塩	樹脂系1	樹脂系2	合物
	(ADSrt-AAL1-3)	(ADCh-AAL10-1)	(ADCh-AAL11-1)	(ADCst-EAL1-3)
<sup>54</sup> Mn	ND	<2%	<0.3%	<6%
<sup>60</sup> Co	ND	1.1%	0.26%	0.03%
<sup>94</sup> Nb	ND	<0.003%	<0.0006%	<0.0008%
<sup>106</sup> Ru	ND	97.8%	99.4%	<58%
<sup>125</sup> Sb	0.012%	0.60%	0.06%	3.6%
<sup>134</sup> Cs	0.001%	0.27%	0.15%	48.9%
<sup>137</sup> Cs	0.001%	0.26%	0.14%	47.5%
<sup>152</sup> Eu	ND	<0.02%	<0.002%	<0.005%
<sup>154</sup> Eu	ND	<0.009%	<0.002%	<0.003%
<sup>90</sup> Sr	99.99%	<0.09%	0.006%	<0.008%
<sup>238</sup> Pu	<0.000002%	<0.002%	<0.00006%	<0.00002%
<sup>239+240</sup> Pu	<0.0000008%	<0.002%	<0.0008%	<0.00003%
<sup>241</sup> Am	<.000002%	<0.002%	<0.0001%	<0.00003%
<sup>244</sup> Cm	<.000002%	<0.002%	<0.00008%	<0.00003%
主な除去対 象核種 <sup>*1,*2</sup>	Sr (M <sup>2+</sup> )	Ru, 負電荷⊐ ロイド	Ru	Cs

\* 2011年3月11日に補正し、定量値の合計を100%として計算した. 端数が合わない場合がある.

表1 ALPS 吸着材の放射性核種組成\*

\*1 東京電力, "福島第一原子力発電所 多核種除去設備(ALPS) の概要等," 平成25年4月3日. \*2 東京電力, "福島第一原子力発電所の汚染水の状況と対策につ いて," 平成26年12月2日. フェロシアンル



# 主なリスク源とされる種々の廃棄物の分析を行い、以下のことを明らかにした。

- 建屋内滞留水等が床面で接するスラッジに含まれるα核種について、ろ 過処理の有効性、粒子の性状(酸化鉄、ウラン)を明らかにした。これは 汚染水のα核種除染設備の検討に役立てられている。

まとめ

- 汚染水の蒸発濃縮によって発生した濃縮廃液スラリーは、ALPS スラ リーの性状に類似していることを見出した。これは濃縮廃液スラリーの 安定化(脱水)処理方法の検討に役立てられている。
- ゼオライト及び活性炭土嚢の汚染核種組成を求めた。現在進められて いる取り出しの準備に利用されている。
- ALPS スラリーについて新たに基礎的な物性データ(せん断応力など)を 得、現在進められている安定化(脱水)処理の検討に活用されるものと 期待される。ALPS 吸着材(チタン酸塩など4種類)の放射性核種組成の データは、それぞれの処分技術の検討に利用される。
- 今後、放射性物質分析・研究施設第1棟を活用して分析を加速し、廃棄 物性状の不確実性を低減するよう継続して取り組むとともに技術開発を 促進する。



#### 参考汚染水や廃棄物の保管状況



\*1 東京電力ホールディングス株式会社, "福島第一原子力発電所 プラント関連パラメータ,"廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第106回), 令和4年 10月27日.



#### 参考廃棄物の分析結果に関するデータベース "FRAnDLi"

- 廃炉・汚染水対策事業において求めた分析データ等を廃棄物や廃炉のプロジェクトで利用するため、廃棄物の含有放射能量を中心に収録する分析データのデータベース "FRAnDLi" (Fukushima Daiichi Radwaste Analytical Data Library)を構築、公開している(図1)。
  - https://frandli-db.jaea.go.jp/FRAnDLi/

図1トップページ(英語版の例)

物質と分析項目を指定してデータを検索し(図2)、その結果を表示、ダウンロードできる(図3)。



図2 データ検索の画面

図3 検索結果の表示 (表とプロットの例)