高性能多核種除去設備の検討状況について

2014年11月7日

東京電力株式会社 日立GEニュークリア・エナジー株式会社 株式会社東芝

1. 本事業の概要

1.1 実証事業での実施内容

■ラボ試験:カラムにて模擬液体およびRO濃縮塩水を用いて吸着材の除去性能を評価。現在、日立GENE、

東芝で適宜実施。

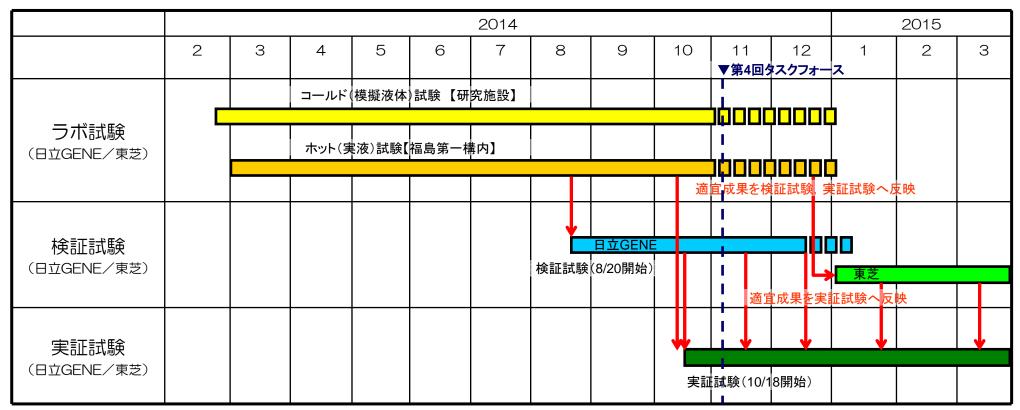
■検証試験:実証試験装置の1/10スケールの試験装置を製作し、除去性能、性能持続期間、廃棄物の

発生量を評価。<u>現在,日立GENEが選定した吸着材を用いた試験を実施中</u>。1月頃から東芝

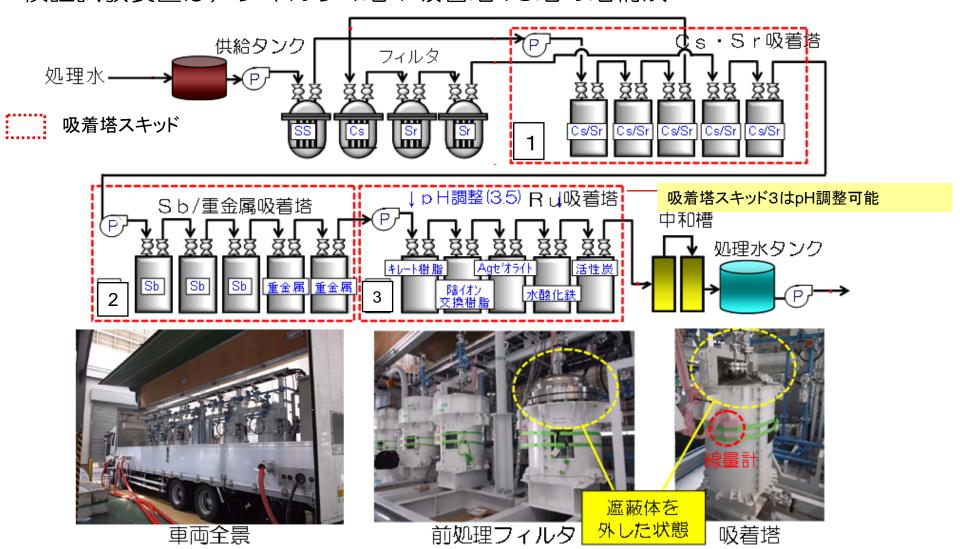
が選定した吸着材を用いた試験を計画。

■実証試験:実機を製作し、総合性能を評価。現在、日立GENEが選定した吸着材を用いた試験を実施中。

東芝の検証試験結果を踏まえて、今後、実証試験へ反映していく。



■ 検証試験装置は、フィルタ4塔+吸着塔15塔の塔構成



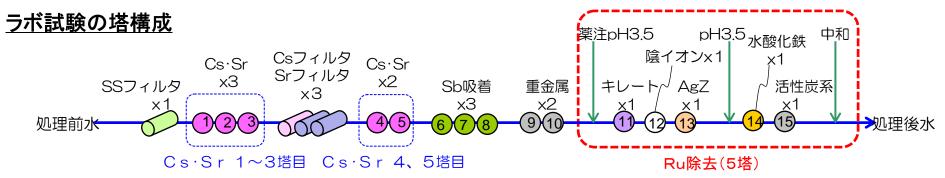
■ 実証試験装置は、フィルタ4塔×2+吸着塔20塔の塔構成 フィルタ3塔バイパス _Cs/Sr吸着塔 処理水 供給タンク ポンプ<u>バイ</u>パス Cs/Sr Cs/Sr Cs/Sr Cs/Sr Cs/Sr Cs Sr Sr 吸着塔スキッド Ru吸着塔 Sb/重金属吸着塔 pH調整(3.5) Agセオライ **▶**(P **>**(P 吸着塔スキッド3,4はpH調整可能 pH調整(3.5) 水酸化鉄 高性能多核種除去 処理水タンク 設備吸着塔

2. 前回タスクフォースでの報告事項 (日立GENEラボ試験結果)

2.1 第3回タスクフォース報告事項(ラボ試験)

日立GENE

■ 第3回タスクフォースにて報告したラボ試験状況(ラボ試験) 下図の15塔構成においてRO濃縮塩水を用いてのカラム試験を実施



ラボ試験の結果

	告示	 補助事業	ラボ試験			
	濃度限度 (Bq/cm ³)	目標値 (Bq/cm ³)	処理前濃度 (Bq/cm ³)	処理後濃度 (Bq/cm ³)	処理後濃度と 告示濃度限度との比	
Sr-90 (約29年)	3E-02	1.5E-04	1.19E+05	8.28E-04	2.76E-02	
Ru-106 (約370日)	1E-01	1.2E-03	3.41E+01	<2.54E-03	2.54E-02	
Sb-125 (約3年)	8E-01	3.8E-04	4.95E+01	<2.78E-04	3.47E-04	
I-129(約1600万年)	9E-03	6.9E-04	1.33E-01	1.24E-04	1.37E-02	
Cs-134 (約2年)	6E-02	2.8E-04	4.37E+00	<7.76E-05	1.29E-03	
Cs-137 (約30年)	9E-02	2.8E-04	1.13E+01	<9.16E-05	1.02E-03	
Mn-54 (約310日)	1E+00	1.1E-04	1.79E+00	<6.09E-05	6.09E-05	
Co-60 (約5年)	2E-01	1.1E-04	2.35E+00	<8.40E-05	4.20E-04	

■ Sr-90、Ru-106は告示濃度限度の1/100レベルまで除去できているものの,目標に は達しておらず,Sr-90,Ru-106の除去性能の向上が必要と判断

2.2 第3回タスクフォース報告事項(ラボ試験のまとめ)

日立GENE

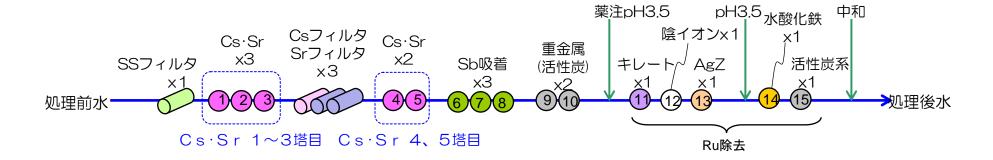
- ▶Sr-90, Ru-106以外は,補助事業目標値を満足
- >Sr-90, Ru-106については, 除去性能の向上が必要と判断
 - 実証試験装置は20塔構成のため、Ru除去のための吸着塔5塔+残り5塔(後段の10塔)を使用して、Sr-90,Ru-106の除去性能の向上に活用
 - Sr-90, Ru-106の除去性能向上策は, 追加のラボ試験で 決定
- ▶また、検証試験は、ラボ試験と同じ塔構成で実施

3. 検証試験の結果

検証試験の目的

実証試験装置の1/10スケールの検証試験装置を用い、ラボ試験の結果を踏まえた塔 構成にて、除去性能及び除去性能持続時間の確認を行う。

検証試験の塔構成



3.2 初期性能の確認 (1/2)

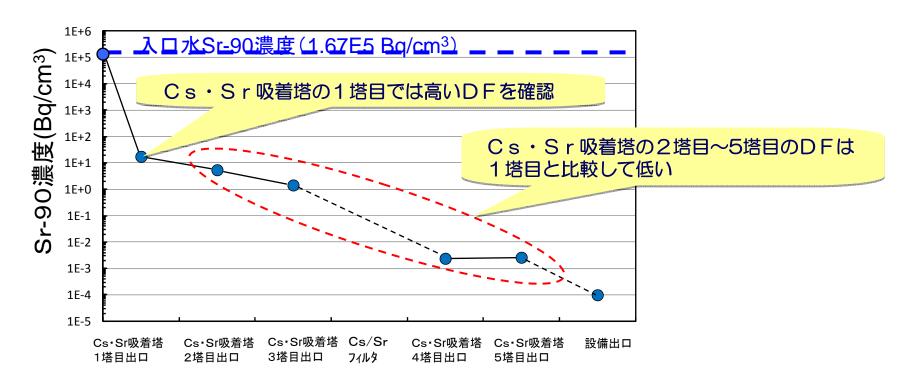
日立GENE

検証試験の結果(初期性能の確認)

	告示	補助事業	検証試験結果			(参考)ラボ試験の結果		
	濃度限度 (Bq/cm ³)	濃度限度 目標値	処理前濃度 (Ba/cm ³)	処理後濃度 (Bq/cm ³)	処理後濃度と告示 濃度限度との比	処理前濃度 (Ba/cm ³)	処理後濃度 (Ba/cm ³)	処理後濃度と告示 濃度限度との比
Sr-90 (約29年)	3E-02	1.5E-04	1.67E+05	<9.93E-05	3.31E-03	1.19E+05	8.28E-04	2.76E-02
Ru-106 (約370日)	1E-01	1.2E-03	<1.13E+01	1.59E-03	1.59E-02	3.41E+01	<2.54E-03	2.54E-02
Sb-125 (約3年)	8E-01	3.8E-04	5.34E+01	<2.60E-04	3.25E-04	4.95E+01	<2.78E-04	3.47E-04
I-129(約1600万年)	9E-03	6.9E-04	分析中	<3.41E-04	3.79E-02	1.33E-01	1.24E-04	1.37E-02
Cs-134(約2年)	6E-02	2.8E-04	3.17E+00	<8.33E-05	1.39E-03	4.37E+00	<7.76E-05	1.29E-03
Cs-137 (約30年)	9E-02	2.8E-04	1.01E+01	<8.91E-05	9.90E-04	1.13E+01	<9.16E-05	1.02E-03
Mn-54 (約310日)	1E+00	1.1E-04	1.46E+00	<8.56E-05	8.56E-05	1.79E+00	<6.09E-05	6.09E-05
Co-60 (約5年)	2E-01	1.1E-04	2.35E+00	<1.01E-04	5.05E-04	2.35E+00	<8.40E-05	4.20E-04

- Sr-90は、処理後の濃度が補助事業目標値を満足。ただし、Cs・Sr吸着塔5塔目出口では 目標値に達していないことが判明(次頁)
- Ru-106は, 処理後の濃度が目標値を僅かに上回る値
- その他の核種は、目標値を満足する良好な除去性能であることを確認

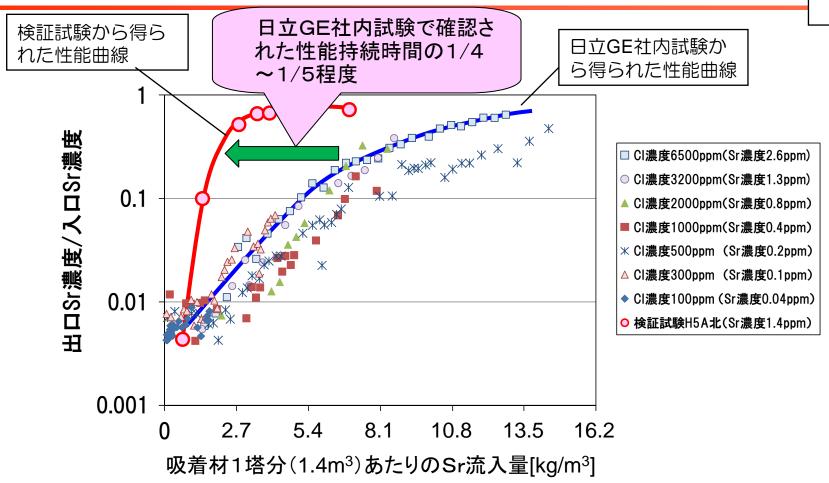
■ 各Cs・Sr吸着塔のSr9O除去性能



- 各Cs·Sr吸着塔出口のSr-90濃度を分析した結果、1塔目は高いDFが得られているが、Cs・Sr吸着塔2塔目から5塔目は期待したDFが得られていないことを確認
- このため、要因分析を行い、課題解決の対策を行う必要があると判断

3.3 性能持続時間の確認





- Cs・Sr吸着塔のSr除去の性能持続時間が想定(これまでの吸着材開発で得られた知見)より短く、廃棄物発生量が多くなる懸念が課題として確認された。
- このため、要因分析を行い、課題解決の対策を行う必要があると判断した。

- ■検証試験の結果、Srに対する「Cs・Sr吸着材の性能持続時間が短い」、 「Cs・Sr吸着材(2塔目以降)のDFが低い」という課題が確認された。
- ■上記の課題に対する、要因分析の結果以下の要因を抽出。

課題	検証試験の結果から抽出した要因			
Cs·Sr吸着塔の性	吸着材からのアルカリ成分溶出(Caなどの沈殿により吸 着材表面が被覆される)			
能持続時間が短い	通水条件(偏流の影響)			
	処理水に含まれる吸着妨害成分の影響(吸着妨害成分の 吸着材への付着)			
	吸着材からのアルカリ成分溶出(Srがコロイド化)			
C s · S r 吸着塔 2 塔 目~5 塔目の	DFのSr濃度依存性			
DFが小さい	処理水に含まれる吸着妨害成分の影響(Srと反応し吸着 されにくい形態に変化)			

抽出した要因の絞り込みを実証試験にて実施

4. 追加ラボ試験の結果

■ ラボ試験、検証試験で抽出された課題に対し、以下の目的で追加ラボ試験を実施

≪ラボ試験で抽出された課題に対する追加ラボ試験①≫

- > 実証試験装置は20塔構成のため、Ru除去のための吸着塔5塔+残り5塔(後段の10塔)を使用して、Sr-90,Ru-106の除去性能の向上に活用
- 後段10塔の塔構成を決定するため、追加のラボ試験を実施

≪検証試験で抽出された課題に対する追加ラボ試験②≫

- ▶ 検証試験において、15塔構成ではSr-90に対する性能持続時間が短く、処理後水の濃度が早期に告示濃度限度を上回ることを確認
- ▶ また、Ru-106,Cs-137についても早期に補助事業目標値を上回ることを確認
- ▶ そのため、追加ラボ試験①で決定された実証試験装置20塔構成のうち後段5塔をカラムで模擬し、検証試験装置出口水をカラムに通水することで、20塔構成での性能持続時間を把握

4.2 追加ラボ試験①の結果

日立GENE

ラボ試験カラム10塔目の出口水を、No.1~3の塔構成のカラムに通水することで、Sr-90及び Ru-106の除去性能を評価

処理対象水	試験水のSr-90濃度[Bq/cm³]	試験水のRu-106濃度[Bq/cm³]
(ラボ試験カラム10塔目出口水)	2.95E-02	5.70E-02

No.	塔構成(使用する吸着材)	核種	通水後濃度 [Bq/cm³]	告示濃度 との比	目標値 との比
1	 キレート樹脂(x3)+陰イオン交換樹脂(x1)+Agセ*オライト(x1)+ <mark>Cs・S</mark> r	Sr-90	<3.39E-04*	<1.1E-02	<2.3
1	吸着材(x3)+活性炭系吸着材(x2)	Ru-106	4.01E-03	4.0E-02	3.3
2	 キレート樹脂(x3)+陰イオン交換樹脂(x1)+Agセ*オライト(x1)+ <mark>Cs・S</mark> r	Sr-90	<4.28E-04*	<1.4E-02	<2.9
2	吸着材(x3)+水酸化鉄系吸着材(x2)	Ru-106	1.53E-03	1.5E-02	1.3
3	 キレート樹脂(x3)+陰イオン交換樹脂(x1)+Agゼオライト(x1)+水酸	Sr-90	<9.68E-05	<3.2E-03	<0.6
3	化鉄系吸着材(x3)+Cs-Sr吸着材(x2)	Ru-106	1.17E-03	1.2E-02	1.0

試験の結果, No.3の塔構成を実証試験後段10塔の塔構成として選定

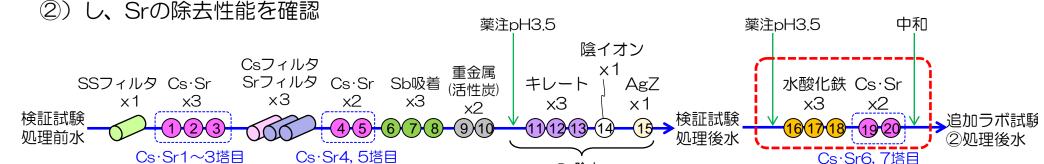


処理水

4.3 追加ラボ試験②の結果

日立GENE

■ 検証試験の処理済水を実証試験装置の16~20塔目を模擬したカラム5塔に通水(追加ラボ試験)



Ru除去

Ru除去(3塔)+Sr除去(2塔)を 模擬したカラム

採水日	9/25	10/3	10/7	10/8	10/9		10,	/10	
通水量(BV)	25	75	370	730	1090	1450	1810	2170	2890
入口Sr濃度 (Bq/cc)	1.4E+00	1.4E+O1	5.9E+01	2.8E+02	9.5E+02		2.8E	E+03	
出口Sr濃度 (Bq/cc)	<2.1E-04	<4.0E-04	1.4E+00	7.0E-03	3.4E-02	3.5E-01	2.3E+00	2.6E+01	5.7E+01
除染係数DF	6.9E+03	3.6E+04	4.2E+01**	4.0E+04	2.8E+04	8.2E+03	1.2E+03	1.1E+02	5.7E+01

- 実証試験装置の20塔構成(Cs/Sr吸着塔7塔)では、検証試験(Cs/Sr吸着塔5塔)と比較し、システム全体としては長期の性能維持が可能となる見込み
- ただし、Srで約1800BV(500m3通水で5日程度)の持続時間となることから、実証試験では性能を確認しつつ慎重な運転が必要と判断

※他の試料が混入した可能性があり検討から除外

5. 実証試験の結果

5.1 実証試験の進め方

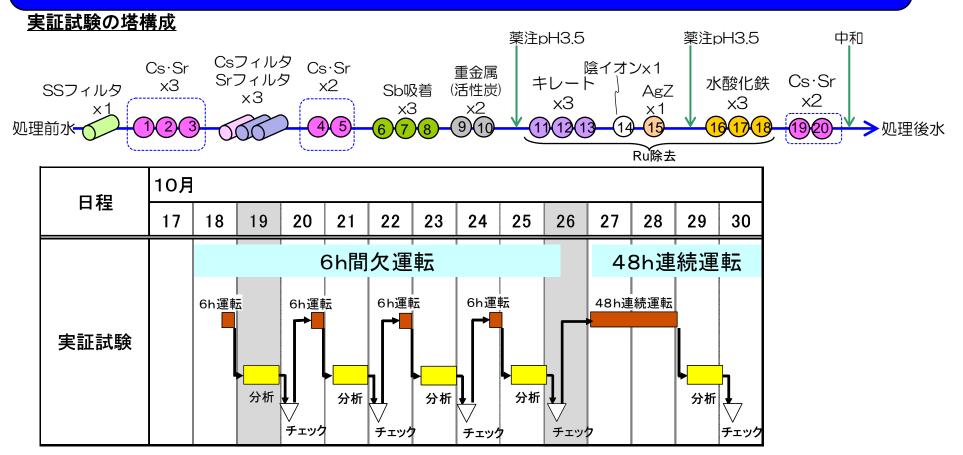
日立GENE

● 初期性能の確認 : 検証試験の結果を踏まえ、Srの除去性能が

持続されていることを確認するため6hおきに

性能を確認しながら運転を実施

● 性能持続時間の確認 : 初期性能を確認した後に48h連続運転を実施



5.2 実証試験の結果(1) 初期性能の確認

日立GENE

	濃度限度	华示	補助事業	間欠6h×3回後			間欠6h×4回+連続48h運転後		
		目標値 (Ba/cm ³⁾	処理前濃度 (Bg/cm ³)	処理後濃度 (Bq/cm ³)	処理後濃度と 告示濃度限度 との比	処理前濃度 (Bq/cm ³)	処理後濃度 (Bq/cm ³)	処理後濃度と 告示濃度限度 との比	
Sr-90 (約29年)	3E-02	1.5E-04	1.12E+05	<5.29E-04*	1.76E-02	1.12E+05	<7.22E-04*	2.41E-02	
Ru-106(約370日)	1E-01	1.2E-03	2.82E+01	<1.26E-03	1.26E-02	2.82E+01	9.93E-03	9.93E-02	
Sb-125 (約3年)	8E-01	3.8E-04	2.92E+01	<4.86E-04	6.08E-04	2.92E+01	6.38E-04	7.98E-04	
I-129(約1600万年)	9E-03	6.9E-04	分析中	<1.32E-04	1.47E-02	分析中	分析中	_	
Cs-134(約2年)	6E-02	2.8E-04	<3.10E+00	<1.42E-04	2.37E-03	<3.10E+00	<1.78E-04	2.97E-03	
Cs-137 (約30年)	9E-02	2.8E-04	6.69E+00	<1.23E-04	1.37E-03	6.69E+00	<1.21E-04	1.34E-03	
Mn-54 (約310日)	1E+00	1.1E-04	<1.78E+00	<1.12E-04	1.12E-04	<1.78E+00	<1.14E-04	1.14E-04	
Co-60 (約5年)	2E-01	1.1E-04	<1.06E+00	<1.58E-04	7.90E-04	<1.06E+00	<1.37E-04	6.85E-04	

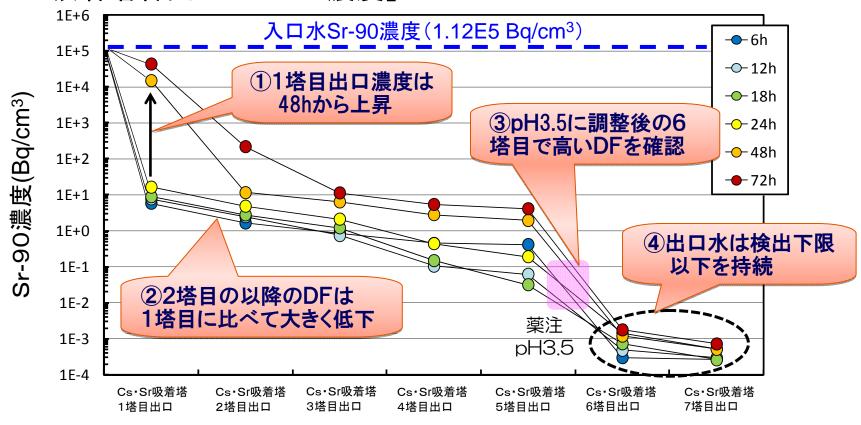
^{*} 簡易分析法のため検出限界値が高い

■ Sr-90は、追加ラボ試験①と同様に検出限界未満となることを確認した。

5.3 実証試験の結果(2) 性能持続時間の確認

日立GENE

【Cs・Sr吸着塔各出口のSr-90濃度】



- 通水48h後にCs・Sr吸着材1塔目の除去性能が大きく低下。また、Cs・Sr吸着材2~5塔目のDFが1塔目に比べ低下することを確認。
- pH調整後のCs・Sr吸着材6塔目で高いDFを確認。
- 追加ラボ試験①を踏まえ設置した吸着塔6,7塔目により、期待するDFを確保できることを確認。

6.今後の試験計画

課題	検証試験の結果から 抽出した要因	実証試験結果を踏まえた要因の絞り込み			
	吸着材からのアルカ リ成分溶出	△:可能性あり 実証試験において、吸着材からのアルカリ成分溶出を確認。pHがアルカリに振 れることにより、処理水中のCa成分などが沈殿を形成し、吸着材の表面が被覆 されることで吸着材の吸着面積が低下する可能性あり。			
│ C s·S r 吸着塔の │性能持続時間が短い	通水条件(偏流の影響)	△:可能性あり 実証試験においても同様の課題を確認。偏流が発生している可能性あり。			
	妨害成分の存在	△:可能性あり 実証試験においても同様の課題を確認。 吸着妨害成分(SS(浮遊物質)、 物、錯体)が吸着材に付着し、吸着面積が低下している可能性あり。			
	吸着材からのアルカ リ成分溶出	△:可能性あり 実証試験において、吸着材からのアルカリ成分溶出を確認。pHがアルカリに振 れることにより、処理中のSrの一部がコロイドとなり、吸着材に吸着されずに透 過している可能性あり。			
Cs·Sr吸着塔 2塔目〜5塔目の DFが小さい	DFのSr濃度依存性	×:可能性なし 実証試験にてpH調整した後のCs・Sr吸着塔6塔目出口でDFが改善。Sr濃度が低いCs・Sr吸着塔6塔目でDFが得られたことから、Sr濃度依存性の影響は軽微と判断。			
	処理水に含まれる成 分の影響	△:可能性あり 実証試験においても同様の課題を確認。 吸着妨害成分(SS(浮遊物質)、有機 物、錯体)がSrと反応し吸着されにくい形態(錯体、コロイド)に変化し、吸着 されずに透過している可能性あり。			

6.2 絞り込まれた要因の確認方法(1/2)

日立GENE

			Ţ.
課題	実証試験の結果から 絞りこまれた要因	実証試験の結果より 絞り込まれた要因の確認方法	実証試験の結果より 絞り込まれた要因の具体的な確認方法
Cs·Sr吸着塔の性能持続時間が短い	吸着材からのアルカ	pH調整(酸性)によりCa沈殿物 生成を抑制	【確認A】pH調整(酸性)によりCa沈殿物生成を抑制 ・Cs·Sr吸着塔の上流側でpH調整を行い、Sr-90の性能持 続時間を評価(検証試験で確認(詳細は計画中))
	リ成分溶出	アルカリ領域でも吸着性能が得られる吸着材を用い、DFを評価。	【確認B】代替吸着材のDF評価 ・代替吸着材のSr-90の性能持続時間,除去性能を評価 (検証試験で確認(詳細は計画中))
	通水条件(偏流の影響)	流れの可視化試験を実施	【確認C】流れの可視化試験を実施(日立GE社内試験)
	妨害成分の存在	妨害物質の影響を除去したうえで、	【確認D】SSフィルタの変更(孔径10μm→1μm) ・SS(浮遊物質)除去のためSSフィルタの孔径を 10μm→1μmに変更。 ・変更前後でのCs·Sr吸着塔1塔目,2塔目のSr-90の性能持続時間、除去性能を比較(実証試験で確認) ・併せてSSフィルタの表面線量上昇、差圧上昇からSSフィルタの連続使用可能な日数を評価(目標10日以上)
		性能持続時間を評価。	【確認E】活性炭により有機物の除去 ・Cs·Sr吸着塔4塔目・5塔目の前段に活性炭が配置されるよう吸着塔の配置を変更。Sr-90の性能持続時間,除去性能を比較(実証試験で確認)
			【確認A】pH調整(酸性)により錯体の溶解 ・Cs·Sr吸着塔の上流側でpH調整を行い、Sr-90の性能持 続時間を評価(検証試験で確認(詳細は計画中))

6.2 絞り込まれた要因の確認方法 (2/2)

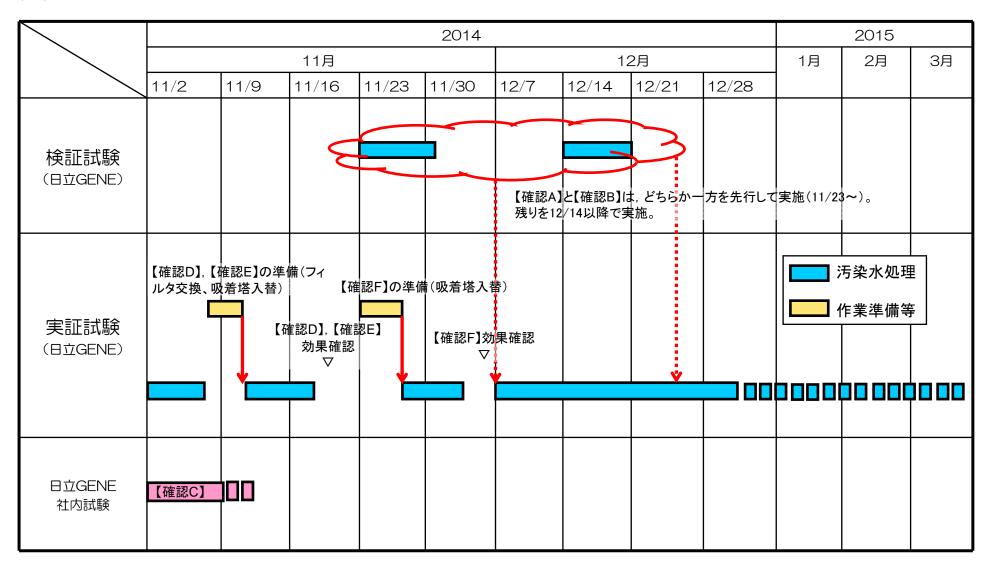
日立GENE

課題	実証試験の結果から 絞りこまれた要因	実証試験の結果より 絞り込まれた要因の確認方法	具体的な確認方法
Cs·Sr吸着塔 2塔目~5塔目の DFが小さい	吸着材からのアルカ	pH調整(酸性)によりコロイド を溶解	【確認F】pH調整(酸性)によりコロイドを溶解 ・吸着材からのアルカリ溶出の影響が低いと想定される吸 着塔No.15をCs·Sr吸着塔に変更し、当該吸着塔でのSr- 90の除去性能を評価(実証試験で確認)
	リ成分溶出 	アルカリ領域でも吸着性能が得られる吸着材を用い、DFを評価。	【確認B】代替吸着材のDF評価 ・代替吸着材のSr-90の性能持続時間,除去性能を評価 (検証試験で確認(詳細は計画中))
	処理水に含まれる吸着妨害成分の影響		【確認D】SSフィルタの変更(孔径10μm→1μm) ・SS(浮遊物質)除去のためSSフィルタの孔径を10μm から1μmに変更 ・変更前後でのCs·Sr吸着塔1塔目,2塔目のSr-90の性能 持続時間,除去性能を比較上記に同じ(実証試験で確認) ・併せてSSフィルタの表面線量上昇,差圧上昇からSS フィルタの連続使用可能な日数を評価
		妨害物質の影響を除去したうえで、 性能持続時間を評価。 	【確認E】活性炭により有機物を除去 ・有機物を除去するため、Cs·Sr吸着塔4塔目、5塔目の前 段に活性炭が配置されるよう吸着塔の配置を変更。Sr-90 の性能持続時間、除去性能を比較(実証試験で確認)
			【確認F】pH調整(酸性)により錯体を溶解 ・錯体を溶解させるため、吸着材からのアルカリ溶出の影響が低いと想定される吸着塔No15をCs·Sr吸着塔に変更。 当該吸着塔でのSr-90の除去性能を評価(実証試験で確認)

6.3 今後の予定

日立GENE

■ 今後の予定



(参考) 各試験で処理する水の性状

液性状	公募要領 記載値	実証試験 H8北Aグループ	検証試験 H5北Bグループ	ラボ試験 H6北Cグループ
CI濃度 (ppm)	6000	1700	3530	7000
Ca濃度	300	160	160	332
Mg濃度	400	160	204	473
рН	7.5	7.4	7.7	7.4
Cs-137 (Bq/cc)	1E+02	6.69E+00	1.01E+01	1.13E+01
Sb-125 (Bq/cc)	5E+02	2.92E+01	5.34E+01	4.95E+01
Ru-106 (Bq/cc)	2E+02	2.82E+01	<1.13E+01	3.41E+01
Sr-90 (Bq/cc)	1E+06	1.12E+05	1.67E+05	1.16E+05
非放射性Sr (ppm)	_	(0.7) *	1.4	1.6

*CI濃度から海水希釈物として求めたSr濃度