

「汚染水処理に伴う二次廃棄物の長期保管方策の検討」 - 廃ゼオライト及び廃スラッジ保管の安全性 -

平成26年3月27日

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構
日本原子力研究開発機構

1

検討の目的と対象

- 汚染水処理に伴い二次廃棄物(セシウム吸着塔、スラッジ)が生じ、保管されている。保管の安全性は評価されているが^{*1}、保管が長期にわたる可能性があるので、長期保管の安全性を確認するため、より広い範囲を想定した検討を行った。



セシウム吸着塔一時保管施設
(ボックスカルバート)

- 検討内容

- セシウム吸着塔 (KURION) :
水素の発生、材料の腐食影響
- 除染装置スラッジ:
水素の発生、シアノ化水素の発生、スラッジの熱影響、材料の腐食影響



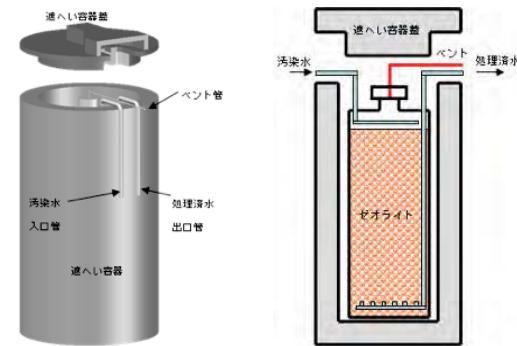
廃スラッジ一時保管施設貯槽^{*2}

*1 東京電力株式会社、福島第一原子力発電所 特定原子力施設に係る実施計画、平成24年12月。

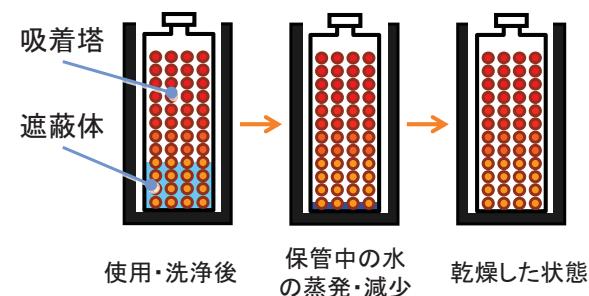
*2 三菱重工ニュース、第 5131 号、2011年11月14日。

セシウム吸着塔に関する検討の概要

- セシウム吸着塔が内包する放射性セシウムや塩化物イオン(Cl^-)の量は、使用された時期により変動する。また、塔に残る水は、蒸発により徐々に減少していく。これらの因子は、水素発生や材料の耐久性に影響を与える。
- そこで、残水が減少すること等を踏まえて水素分布の解析を行うとともに、 Cl^- が濃縮される等の効果を考慮して材料の腐食影響を評価した。



セシウム吸着塔の外観と構造

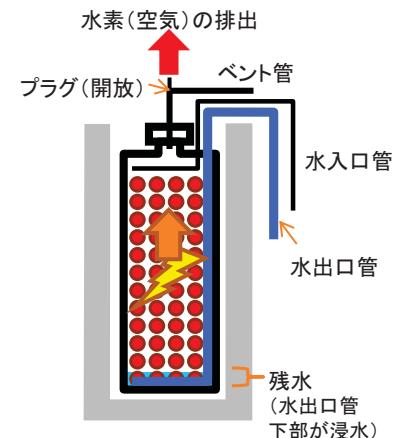
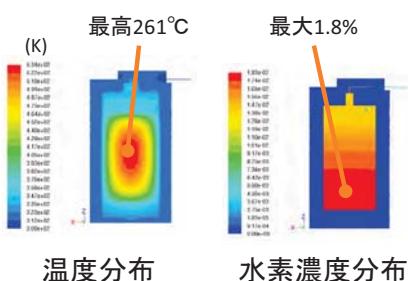


セシウム吸着塔内の水量の変化

3

吸着塔内の水素分布解析

- 右図のプラグ、ベント管、水出入口管を開放した条件で解析を実施した。
- 吸着塔に水が残り水出口管が浸水した場合、水素は上部プラグ等を通って排出される。Cs吸着量が最大のケース1の場合にも、水素(H_2)濃度は1.8%以下で爆発下限界(4%)以下に抑えられる。
- 吸着塔に水がない場合、水出口管から空気が流入し、上部のベントプラグ等から排出される体系となり、水素濃度は上記より相対的に低くなる。
- 蒸発により水が徐々に減少する中間的な状態は、上記2パターンの間にあり、水素爆発下限界に至らないものと評価された。

吸着塔の模式図
(水が残る場合)

解析結果の例(ケース1)

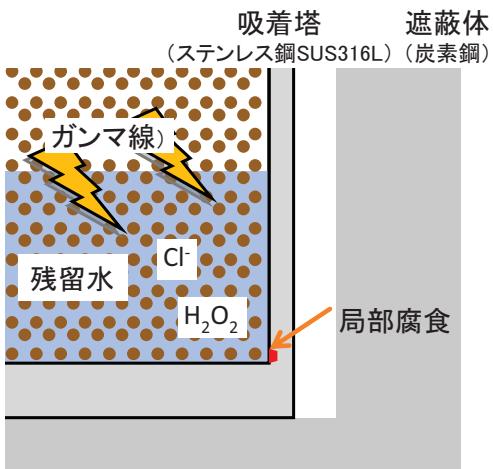
	Cs吸着	水位	最高温度	H_2 濃度
ケース1	618 W 不均一吸着	24 cm (管下部が浸水)	261°C	≤1.8%
ケース2	504 W 均一吸着	同上	211°C	≤1.6%
ケース3	同上	ゼロ	210°C	≤1.1%

ケース1: Cs吸着装置運転データを基に吸着解析コード(ZAC)によりCs吸着量の軸方向分布を解析
 ケース2, 3: 汚染水・処理水の分析結果と吸着平衡からCs吸着量を求め、均一吸着として評価

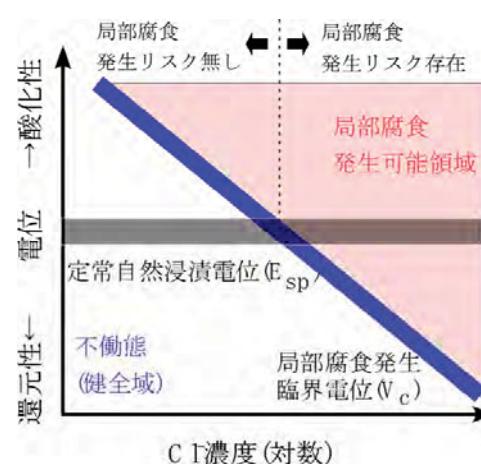
4

吸着塔材料の腐食による影響の検討

- セシウム吸着塔はステンレス鋼製であるが、滞留水中のCl⁻の影響による局部腐食(孔食・すきま腐食)の発生が懸念される。
- 局部腐食発生臨界電位(V_c)と定常自然浸漬電位(E_{sp})の関係(右下図)より、局部腐食発生リスクを評価する。
- 特に、ゼオライト(Herschelite)の共存や放射線照射の影響について着目する。



吸着塔下部構造のモデル



塩化物イオン濃度、局部腐食発生領域と電位との関係

5

吸着塔材料(ステンレス鋼)の局部腐食に関する検討

V_cの測定結果

- Cl⁻濃度に依存して低下するが、溶液中とゼオライト共存では大きくは差がない。
- ガムマ線照射の影響もほとんど受けない。

E_{sp}の測定結果

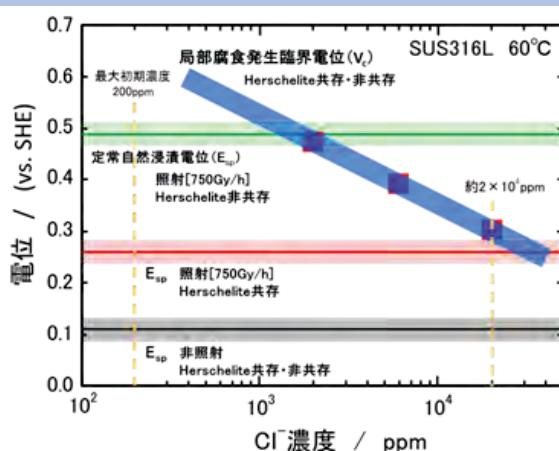
- 非照射では、ゼオライトの共存で差がない。
- γ 線照射下では高い値になるが、ゼオライトと共存した場合上昇程度が小さい(現在のところメカニズムは不明)。

吸着塔材料の局部腐食発生リスクは存在するが、ゼオライトが共存しない場合に比べて大幅にリスクが低下する。

ゼオライト共存下での詳細なリスク評価を行うため、以下の研究開発をH26年度に実施する。

- E_{sp}上昇抑制による局部腐食発生の低減作用の機構の解明
- 塔内の残水濃縮過程の検討によるCl⁻濃度の評価精度の向上
- ゼオライトの保水性能評価によるCl⁻濃度の評価精度の向上

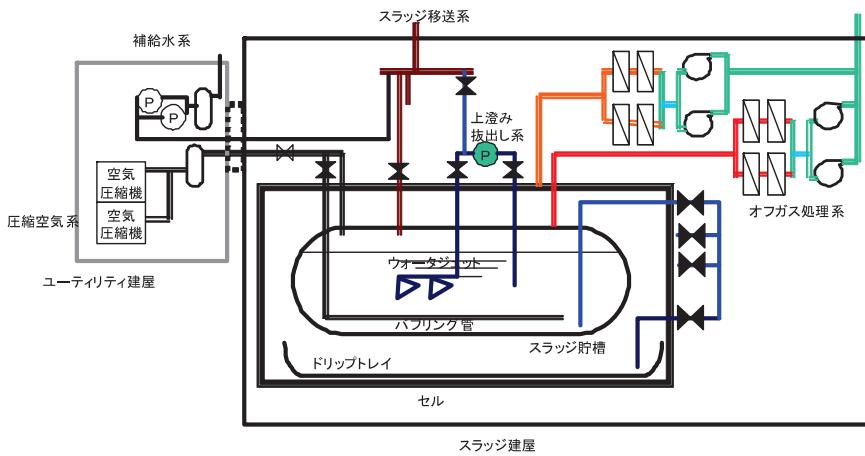
今後、局部腐食抑制対策についての検討を進めていく。

ゼオライト(Herschelite)共存下におけるV_cとE_{sp}との関係

6

スラッジに関する検討の概要

- ◆ 除染装置の運転により生じたスラッジを対象として、廃スラッジ一時保管施設が整備されており、今後運用される。
- ◆ 放射線による水素の発生に関して、スラッジが共存することによる効果を加味して評価する。また、有毒性の物質の発生に関してシアン化水素(HCN)の生成が小さいことを確かめ、攪拌が停止した場合の温度上昇、材料の腐食に関する海水やスラッジの影響についても評価した。



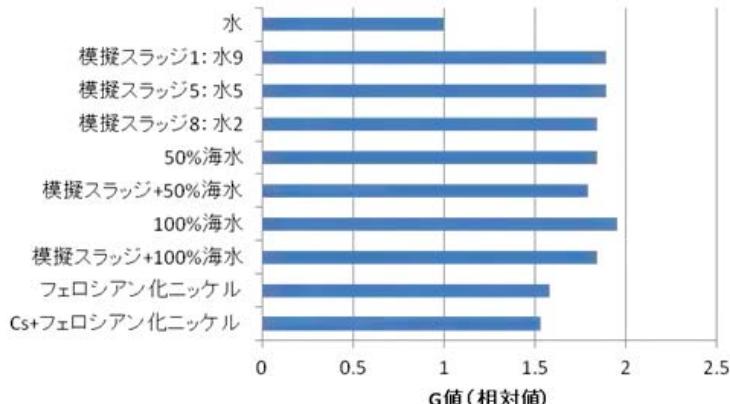
廃スラッジ・一時保管施設の概要 *1

*1 東京電力(株)、福島第一原子力発電所第1～4号機に対する「中期的安全確保の考え方」に基づく施設運営計画に係る報告書(その1)(改定2)

7

放射線分解による水素、シアン化水素の発生

- ◆ 水素の放射線化学収率(G値)
 - 海水成分やスラッジが共存する条件において実験的に求めた。
 - G値は、フェロシアン化物と海水が寄与して、純水からの場合に対して増大した。しかし、最大でも水の2倍以内にとどまった。
- ◆ シアン化水素(HCN)の生成
 - 10年間保管相当の照射(6 MGy)において、気相中のシアン化水素は検出限度未満(<5 ppm未満)であった。
 - フェロシアン化物は放射線に対して比較的安定な物質であり、また、シアン化物イオン(CN⁻)の金属錯体は安定であることが寄与しているものと考えられる。
- ◆ 現行対策(貯槽内への送排気)を踏まえると、安全の問題はないものと考えられる。



種々の条件について求めた水素生成のG値

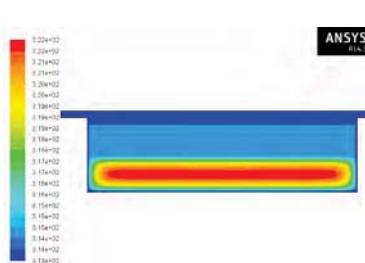
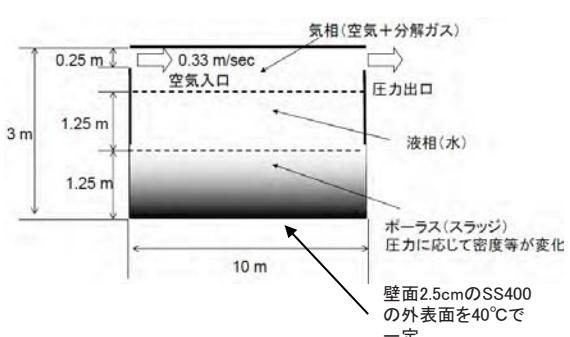


γ線照射試験(6 MGy)

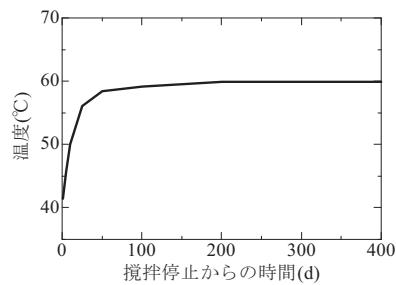
8

崩壊熱の局所的な蓄熱の評価

- 貯槽内の搅拌が停止した場合に、スラッジ固形分の密度が高まり、発熱密度が高まる可能性がある。スラッジが沈降した貯槽内をモデル化し、貯槽内の熱流動解析を実施し、スラッジ最高温度を評価した。
- スラッジの温度は、体積の中心部の温度が高く、時間とともに上昇する。
- 初期の温度上昇速度は約 $0.03^{\circ}\text{C}/\text{h}$ であり、徐々に平衡状態へ移行する。また、約 50 d 後に、外気温に対して $+20^{\circ}\text{C}$ で平衡になると評価された。
- 温度の上昇は緩やかであり、搅拌を再開するための措置を講じる時間を見込むことができる。また、外気温が 40°C で中心部が 60°C となった場合にもスラッジが变成する*ほどの影響はないと思われる。



槽内の温度分布(約 2 週間後)



最高温度の上昇

搅拌停止後の温度上昇

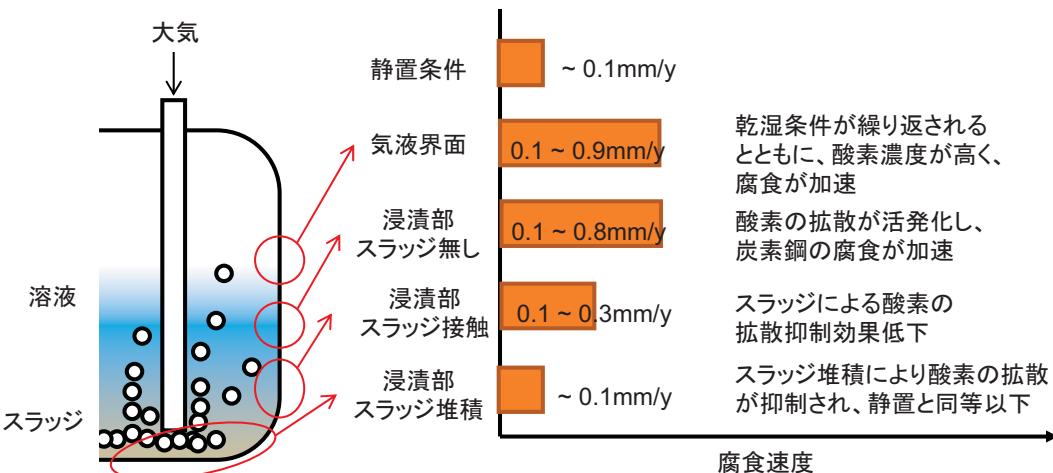
計算のモデル

* Csを保持するフェロシアン化ニッケルは $\sim 250^{\circ}\text{C}$ までは安定である。Srを保持する硫酸バリウムの融点は $1,350^{\circ}\text{C}$ である。

9

材料(SS)の腐食による影響

- 混合物であるスラッジを搅拌するため、貯槽内のスラッジと材料が接触する様態は、複数が考えられる。それぞれに対する腐食速度を実験的に求めた。
- いずれの様態についても、局部腐食の兆候、また、想定される線量率(0.1kGy/h)において放射線による影響は認められなかった。
- 一方で、スラッジの固形分が動的に接触する部分では、腐食速度が低下した。
 - 得られた腐食速度は設計上考慮されている腐食速度と同じオーダーの範囲*。
 - 容器の最大腐食速度を 1mm/y と仮定した場合、10年保管後の減肉量は全体肉厚 25mm の40%程度に相当することから、貫通による漏えいの可能性は極めて小さいものと考えられる。
- 防食策として、溶存酸素濃度や酸素の拡散の抑制(間欠的な搅拌等)が有効と考えられる。



材料とスラッジの接触様態

材料の腐食ふるまい

* 海水飛沫帶の 50°C で想定される腐食速度 0.25mm/y を考慮して容器厚さは 2.5cm と設定されている。(福島第一原子力発電所1~4号機に対する「中期的安全確保の考え方」に基づく施設運営計画に係る報告書 別紙)

10

◆ セシウム吸着塔の保管

- 吸着塔内のセシウム分布、水分量等を設定して水素の発生を評価した結果、水素濃度は爆発下限に至らないものと評価された。
- 材料(ステンレス鋼)の腐食に関しては、ゼオライト共存下では、放射線の局部腐食発生リスクが大幅に低下する。
- 詳細な腐食リスク評価を行うため、ゼオライト共存による局部腐食発生リスクの低減作用の機構の解明、塔内の残水濃縮過程の検討、ゼオライトの保水性能の評価をH26年度実施する。また、局部腐食抑制対策についての検討を進めていく。

◆ スラッジの保管

- 水素発生G値は、フェロシアン化物と海水の影響により増加するが、その割合は純水条件の2倍以内である。また、シアン化水素は気相中に検出されなかった。以上の点から、放射線分解反応による安全の問題はないものと考えられる。
- 熱解析の結果から、貯槽内の攪拌が停止した場合でも温度の上昇は緩やかであり、攪拌を再開する対応に余裕があると考えられる。
- 材料(炭素鋼)の腐食では、得られた腐食速度は設計上考慮されている腐食速度と同じオーダーの範囲であり、10年保管後の貫通による漏えいの可能性は極めて小さいものと考えられる。腐食抑制策としては、攪拌の間欠化等による溶存酸素濃度や酸素の拡散の抑制が挙げられる。