

高性能多核種除去設備 整備実証事業の進捗について

2014年7月22日

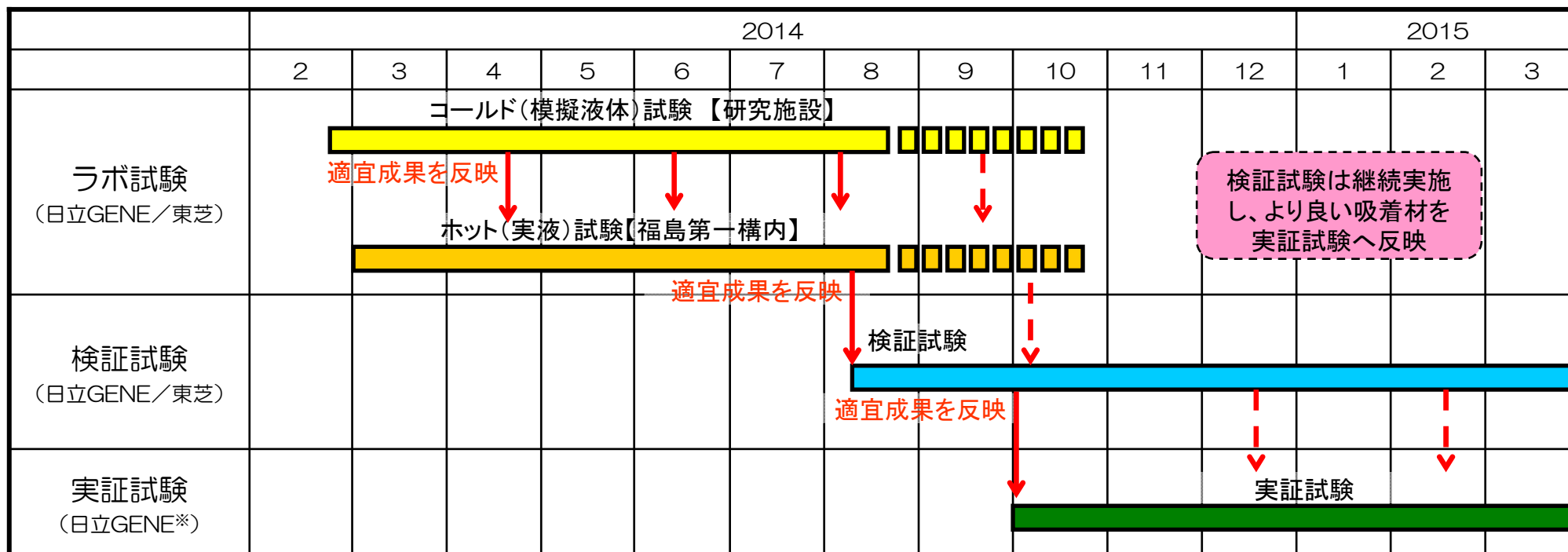
東京電力株式会社

日立GEニュークリア・エナジー株式会社

株式会社東芝

1.1 実証事業での実施事項

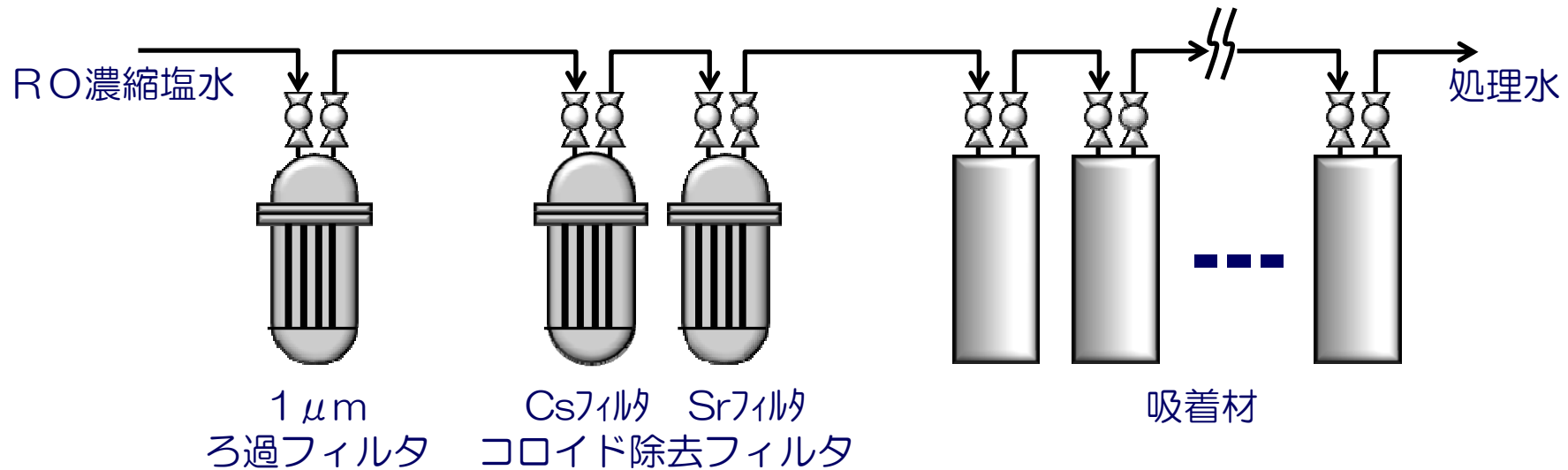
- ラボ試験：カラムにて模擬液体およびRO濃縮塩水を用いて吸着材の除去性能を評価
- 検証試験：1/10スケールの装置を使い除去性能、性能保証期間、廃棄物の発生量を評価
- 実証試験：実機を用いて総合性能を評価



検証試験は継続実施し、より良い吸着材を実証試験へ反映

※装置の設計は日立GENE。検証試験結果で得られた知見（よりよい吸着材）を実証試験に反映していく。

1.2 ラボ試験装置の概要（日立GENEの例）



フィルタ性能確認試験装置

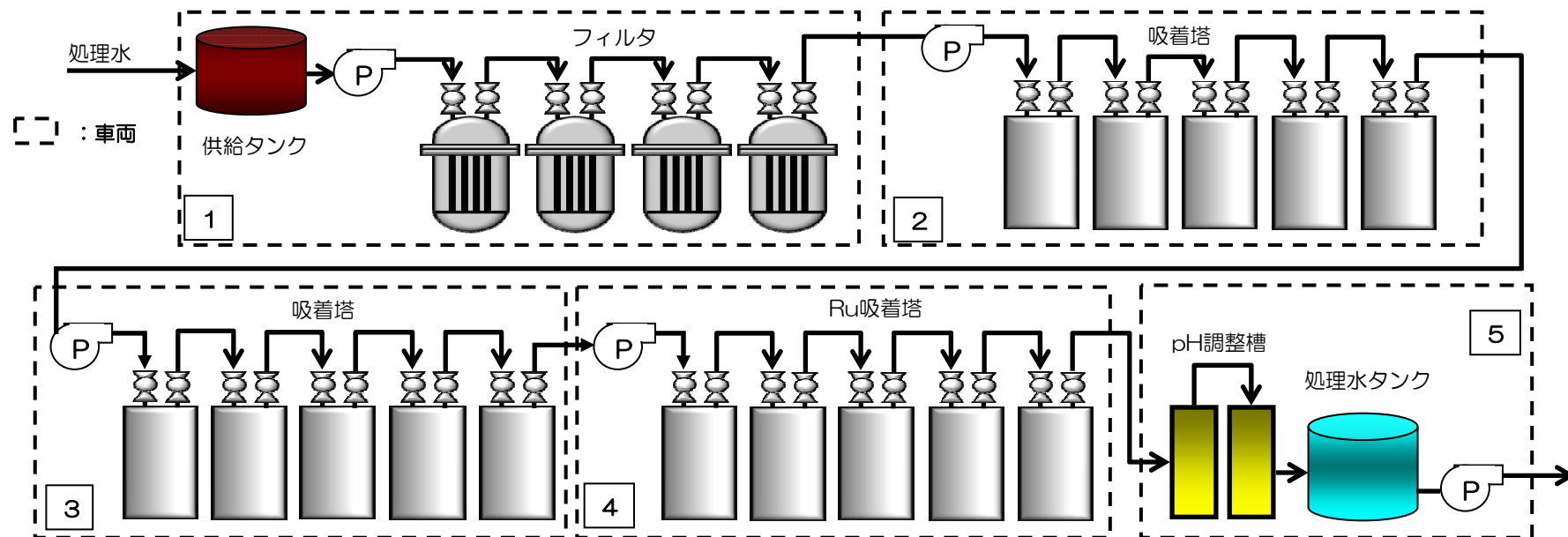


吸着除去性能確認試験装置

試験実施場所：福島第一構内

1.3 検証試験設備の概要（日立GENEの例）

- 検証試験装置は、フィルタ4塔+吸着塔15塔の塔構成

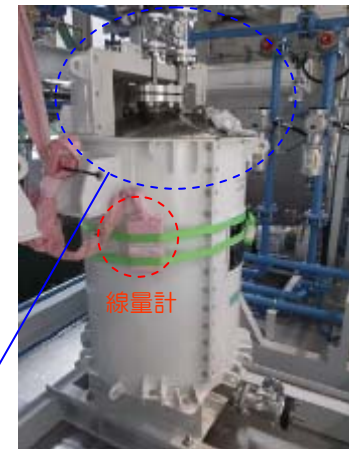


車輿全景



前処理フィルタ

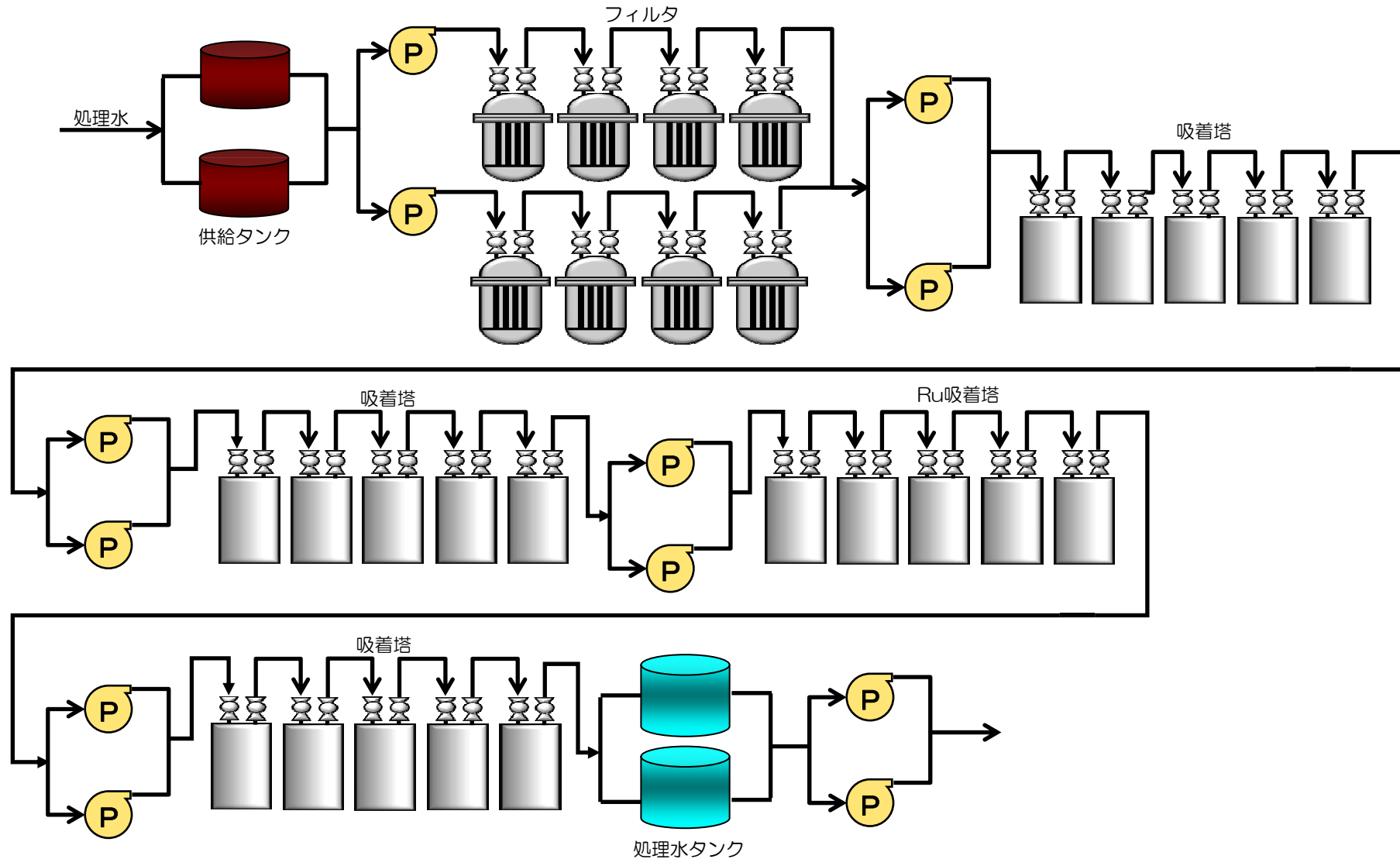
遮へい体を外した状態



吸着塔

1.4 実証試験設備の概要（日立GENEの例）

- 実証試験装置は、フィルタ4塔×2+吸着塔15塔+5塔（予備）の塔構成



ラボ試験の進捗について

2. ラボ試験の目的と試験計画概要

【目的】

- 候補となるフィルタおよび吸着材の構成により、処理対象とする汚染水からトリチウムを除く対象の62核種を除去できることを確認する。
- 上記の結果、候補構成で目標値まで除去ができない核種がある場合には、吸着材の種類、通水条件の変更等により、性能を満足する条件を確認する。

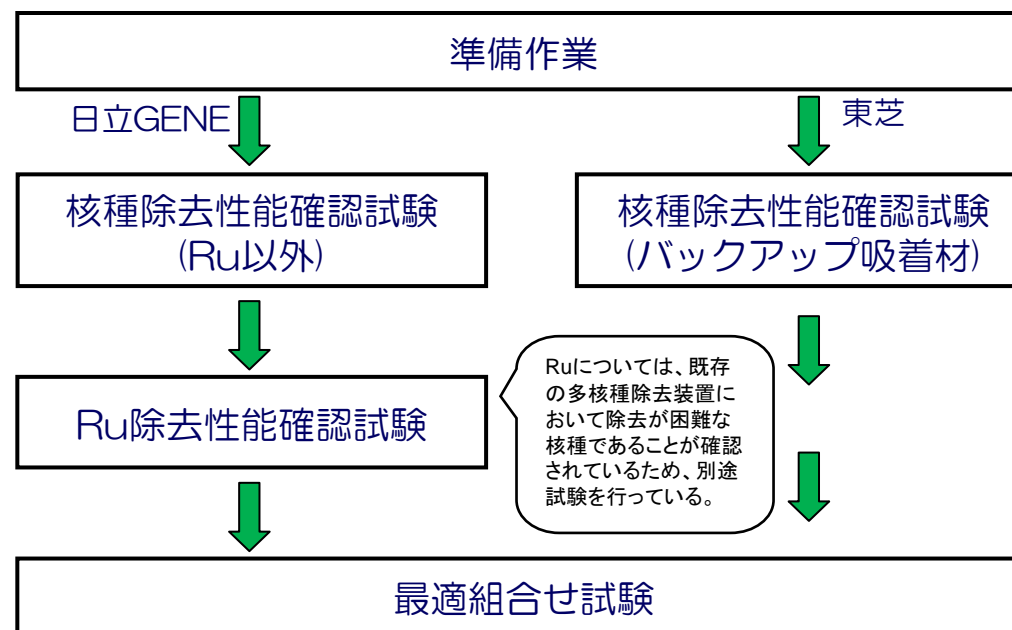
【ラボ試験（実液）計画概要】

- ・ 作業現場確認
- ・ 器材搬入/作業エリア養生
- ・ 試験対象水の受け取り

- ・ 核種除去性能の確認(通水順序の検討)
- ・ Ru除去性能確認試験の試験水作成
- ・ バックアップ吸着材の確認

- ・ Ru吸着材、pHの選定
- ・ Ruフィルタ性能確認試験
- ・ Ru吸着材最適化試験

- ・ 選定した構成で複数のRO濃縮水で性能確認



3. 試験対象水の選定と液性状

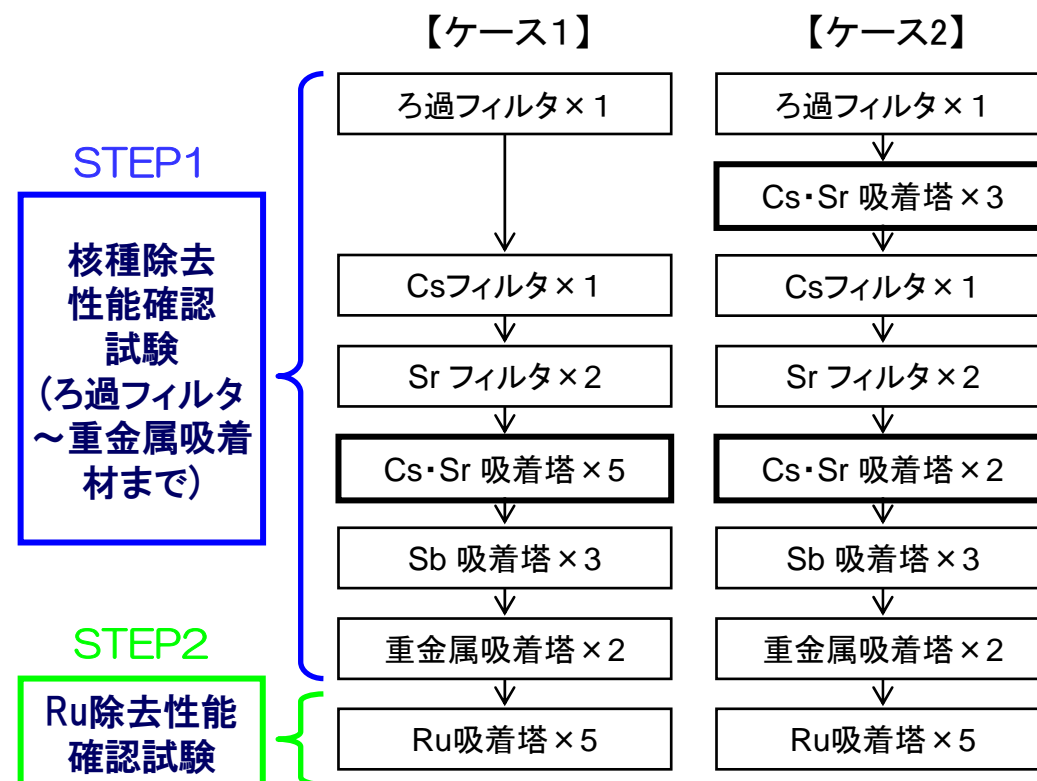
液性状	公募要領記載値	H6北Cグループ	H5Aグループ	RO濃縮塩水
Cl濃度 (ppm)	6000	7000	4050	550
Ca濃度	300	332	201	—
Mg濃度	400	473	181	—
pH	7.5	7.4	—	7.0 (代表値)
Cs-137 (Bq/cc)	1E+02	1.76E+01	1.47E+01	2E+01 (代表値)
Sb-125 (Bq/cc)	5E+02	7.70E+01	1.20E+02	2E+01 (代表値)
Ru-106 (Bq/cc)	2E+02	5.09E+01	1.28E+02	—
Sr-90 (Bq/cc)	1E+06	1.27E+05	4.09E+05	4E+04 (推定値)
非放射性Sr (ppm)	—	1.6	—	—
試験対象水の選定理由	—	化学液性が公募要領に最も近い ため、本試験水にて構成の検討 を実施する。(核種除去性能は 非放射性的化学種 (Ca, Mg) による影響が大きい)	放射能濃度が最も高いため、 選定した構成で核種除去が 可能であることを確認する。	今後発生するRO濃縮水の液性 に近いため、選定した構成で核 種除去性能を確認する。

ラボ試験の状況 (日立GENE)

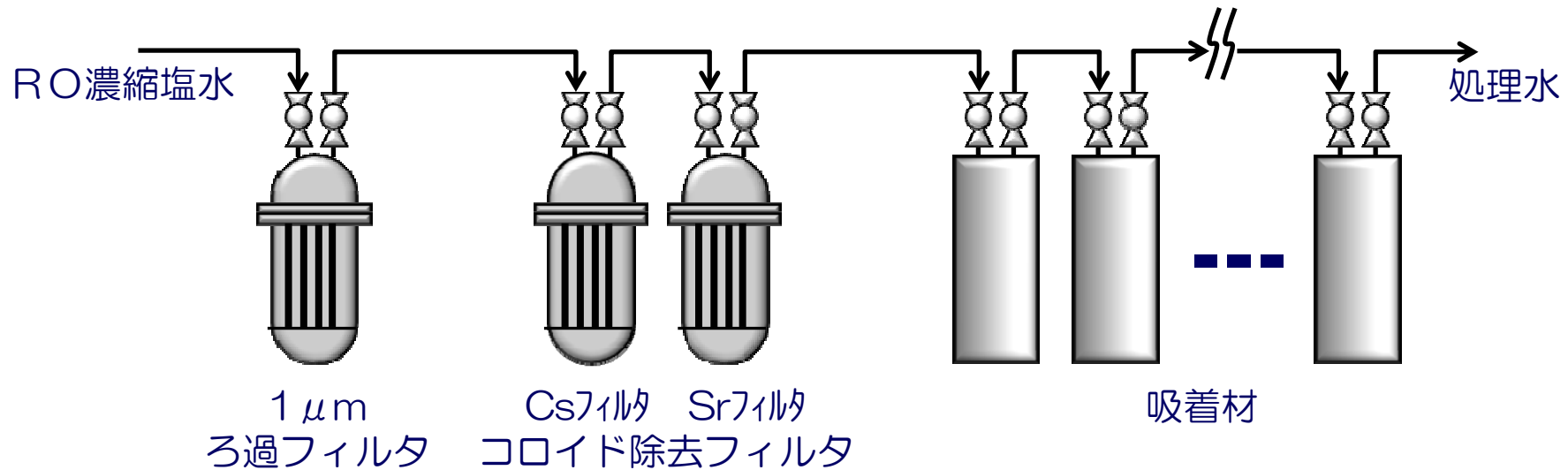
4.1 ラボ試験計画概要

- 既設多核種除去設備において除去が難しいRuに着目したRu除去確認試験と、Ru以外の核種の除去性能を確認する核種除去性能確認試験を実施する。
- 核種除去性能確認試験においては、Srフィルタは使用後の保管時に吸着したSr-90の崩壊熱による温度上昇が懸念されるため、『Csフィルタ ⇒ Srフィルタ ⇒ Cs/Sr吸着塔（5塔）』と『Cs/Sr吸着塔（3塔） ⇒ Csフィルタ ⇒ Srフィルタ ⇒ Cs/Sr吸着塔（2塔）』の2ケースで試験を実施し、吸着材の性能を確認する。

- Ru除去性能確認試験においては、吸着材の種類やpH等をパラメータとした試験を行い、性能を確認する。
- 試験ステップとしては、核種除去性能確認試験を実施し、その試験後の水にてRu除去性能確認試験を行う。
- ラボ試験における総合的な処理性能は、STEP 2 終了後の処理水の分析結果で判断を行う。



4.2 ラボ試験装置の概要



フィルタ性能確認試験装置



吸着除去性能確認試験装置

試験実施場所：福島第一構内

4.3 核種除去性能確認試験結果 (1)

ケース1	核種 (半減期)	原水 H6北C) [Bq/cm ³]	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度比	告示濃度限度 [Bq/cm ³]	目標値との比	補助事業 目標値
	Sr-90 (約29年)	1.19E+05	2.02E-02	6.73E-01	3E-02	135.0	1.50E-04
	Sb-125 (約3年)	4.95E+01	< 1.05E-03 ^{*1}	1.31E-03	8E-01	< 2.7	3.80E-04 ^{*2}
	I-129 (約1600万年)	1.33E-01	3.28E-02	3.64E+00	9E-03	47.5	6.90E-04
	Cs-134 (約2年)	4.37E+00	< 3.23E-04 ^{*1}	5.38E-03	6E-02	< 1.2	2.80E-04 ^{*2}
	Cs-137 (約30年)	1.13E+01	< 3.79E-04 ^{*1}	4.21E-03	9E-02	< 1.4	2.80E-04 ^{*2}
	Mn-54 (約310日)	1.79E+00	3.27E-04	3.27E-04	1E+00	3.0	1.10E-04 ^{*2}
	Co-60 (約5年)	2.35E+00	5.39E-04	2.70E-03	2E-01	4.9	1.10E-04 ^{*2}

⇒Sr-90とI-129が比較的高く検出

ケース2	核種 (半減期)	原水 H6北C) [Bq/cm ³]	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度比	告示濃度限度 [Bq/cm ³]	目標値との比	補助事業 目標値
	Sr-90 (約29年)	1.19E+05	8.28E-04	2.76E-02	3E-02	5.5	1.50E-04
	Sb-125 (約3年)	4.95E+01	< 1.15E-03 ^{*1}	1.44E-03	8E-01	< 3.0	3.80E-04 ^{*2}
	I-129 (約1600万年)	1.33E-01	2.08E-02	2.31E+00	9E-03	30.0	6.90E-04
	Cs-134 (約2年)	4.37E+00	< 3.41E-04 ^{*1}	5.68E-03	6E-02	< 1.2	2.80E-04 ^{*2}
	Cs-137 (約30年)	1.13E+01	4.35E-04	4.83E-03	9E-02	1.6	2.80E-04 ^{*2}
	Mn-54 (約310日)	1.79E+00	< 2.21E-04 ^{*1}	2.21E-04	1E+00	< 2.0	1.10E-04 ^{*2}
	Co-60 (約5年)	2.35E+00	3.25E-04	1.63E-03	2E-01	3.0	1.10E-04 ^{*2}

⇒I-129が比較的高く検出

※1 Ge半導体検出器による試料量2L、測定時間10000秒での検出限界値
測定時間を40000秒とすることで検出限界値は約1/2程度となる

※2 Ge半導体検出器による試料量2L、測定時間40000秒での検出限界値と同レベル

⇒Sr-90以外の核種については、後述するRu吸着塔処理後(現時点でもっとも有力なもの)の分析結果において、補助事業目標値を満足できることが確認されている。

4.3 核種除去性能確認試験結果 (2)

■各フィルタ・吸着材における除去性能は下図の通り

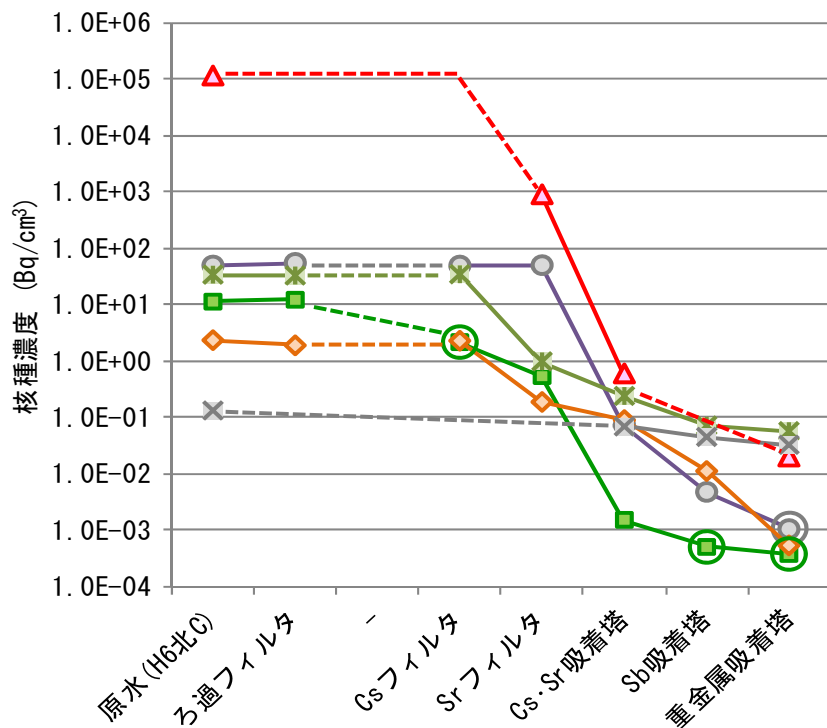


図1 ケース1の核種濃度変化

※丸囲いは検出下限値を示す

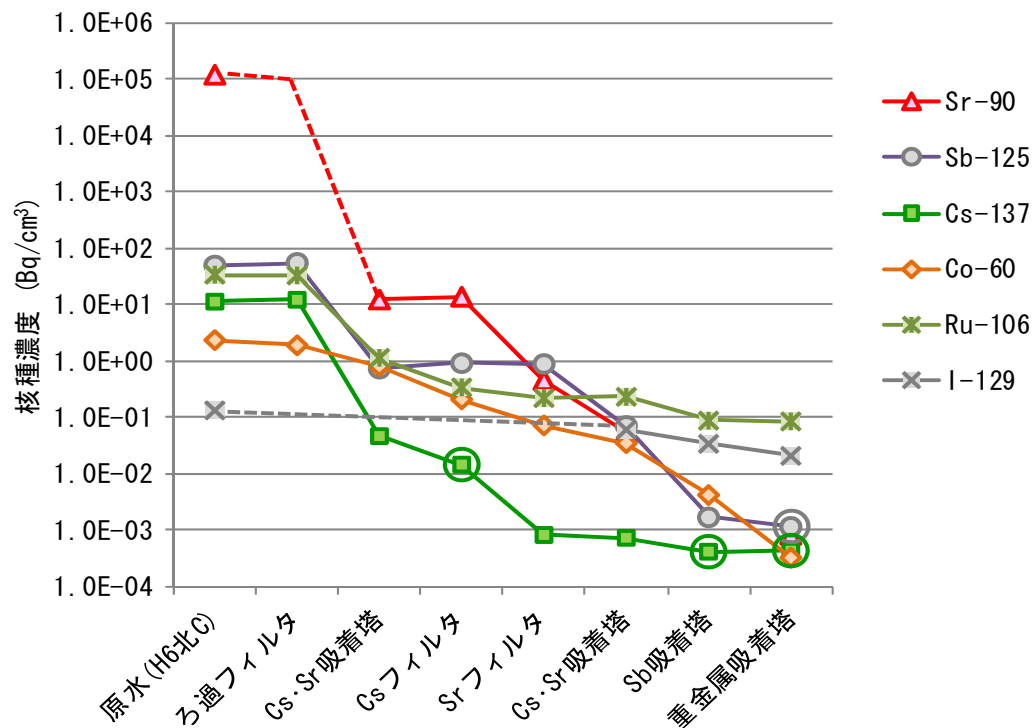


図2 ケース2の核種濃度変化

※丸囲いは検出下限値を示す

■ Sr-90はケース2の除去性能が高いことを確認

4.3 核種除去性能確認試験結果の考察

- ① Ru吸着材を除く、吸着塔10塔への通水後の水を測定した結果、Co-60、Mn-54、Sb-125、Cs-134、Cs-137については、告示濃度限度に対して1/1000~1/10000オーダーまでの除去性能が確認されており十分な除去性能が得られている。
- ② I-129に対しては、告示濃度限度と同レベルのオーダーで検出されている。I-129は、既設多核種除去設備の知見から、ヨウ素イオンが除去しきれていないことが想定されたため、これを吸着する銀ゼオライトを追加した構成をRu除去性能確認試験に併せて除去性能を確認する（次頁以降）。
- ③ Sr-90については、ケース1と比べケース2の塔構成が除去性が高いことを確認。
⇒ケース2の塔構成を基本とする。

通水順序	原水(H6北C) Sr90濃度 [Bq/cm3]	通水後のSr90濃度 [Bq/cm3]	告示濃度比	告示濃度限度 [Bq/cm3]	目標値との比	補助事業 目標値 [Bq/cm3]
ケース1	1.19E+05	2.02E-02	0.67	3E-02	135	1.5E-04
ケース2	1.19E+05	8.28E-04	0.028		5.5	

ケース2の塔構成による処理後のSr濃度は、告示濃度限度に対して1/100のオーダーであることから、告示濃度限度に対する影響は軽微。なお、Sr-90に対するさらなる除去性能向上のため、追加のラボ試験を行いSrの形態（イオン形態orコロイド形態）を特定し、存在形態に合わせた吸着材の選定を行う。

また、ケース1については、将来的に水質が改善した場合（Sr濃度が低くなった場合）、廃棄物の発生量低減に寄与する可能性があるため、継続してSr濃度低減のためのラボ試験を行う。

4.4 Ru除去性能確認試験結果

処理前水 (ケース1の重金属吸着塔通水後)	Ru-106 (半減期：約1年)		
	ケース1 通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 (1.00E-1) との比	目標値 (1.2E-3) との比
	5.70E-02	5.70E-01	47.5

※：Ru-106濃度の高いケース1の処理水にて試験を実施

試験 No.	使用吸着材	塔数	pH調整	Ru-106 (半減期：約1年)		
				通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 (1.00E-1) との比	目標値 (1.2E-3) との比
1	キレート樹脂+水酸化セリウム+陰イオン交換樹脂	3	なし	1.09E-02	1.09E-01	9.08
2	水酸化セリウム+キレート樹脂	3	3.5	1.76E-02	1.76E-01	14.7
3	水酸化セリウム系2種類	5	3.5	5.14E-02	5.14E-01	42.8
4	キレート樹脂+陰イオン交換樹脂	2	なし	1.78E-02	1.78E-01	14.8
5	樹脂5種類(混床+陽・陰イオン交換樹脂+キレート樹脂)	5	2	7.05E-03	7.05E-02	5.9
6	同上+活性炭	6	2	9.07E-03	9.07E-02	7.6
7	同上+銀ゼオライト	7	2	8.79E-03	8.79E-02	7.3
8	珪酸系+樹脂5種類	8	2	8.85E-03	8.85E-02	7.4
14	キレート樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+水酸化鉄系+活性炭系	10	3.5	< 9.83E-04	9.83E-03	0.8
15	混床樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+水酸化鉄系+活性炭系	10	2	< 1.24E-03	< 1.24E-02	< 1.0
16	水酸化鉄系+キレート樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+活性炭系	10	3.5	4.00E-03	4.00E-02	3.3
17	キレート樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+水酸化鉄系+活性炭系	5	3.5	2.54E-03	2.54E-02	2.1

⇒Ruについて、目標値を満足する試験結果を得た。ただし、吸着塔の塔数が10塔と多いことが課題。
また、少ない塔数でも告示濃度限度を十分満足する吸着材の組み合わせも確認。

4.4 Ru除去性能確認試験結果の考察

- Ru-106については、目標値を達成できる塔構成は確認できたものの、必要とするRu吸着塔の塔数が10塔と多い。
- 一方、目標値は達成できないものの、少ない塔数で告示濃度限度比0.02～0.2程度までRuを除去する塔構成がある（試験No.4、No.17等）。
- 現行の多核種除去設備における告示濃度限界比は0.3程度であり、性能が大幅に向上する見込みを確認。
- 実運用上においては、Ru-106の告示濃度限度比が0.2程度であれば、除去対象とする62核種の告示濃度限度比の総和は0.8程度となると想定され、本格運転の要件である濃度限度比の総和1未満も満足する。

Ru除去のための塔数を少なくすることで、Sr90等他核種の除去性能向上に吸着塔を用いることができることから、目標値は達成できないものの、Ru除去のための吸着塔数は5塔以下の塔構成+ α （RuやSr等の対応）とすることとしたい。

検証試験装置にて得られた知見を実証試験の塔構成に反映する。

4.5 I-129除去性能確認試験結果

処理前水 (ケース1の重金属吸着塔通水後)	I-129 (半減期: 約1600万年)		
	ケース1 通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 (9E-03) との比	目標値 (6.90E-04) との比
	3.28E-02	3.64E+00	47.5

※: I-129濃度の高いケース1の処理水にて試験を実施

試験 No.	使用吸着材	塔数	pH調 整	I-129 (半減期: 約1600万年)		
				通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 (9E-03) との比	目標値 (6.90E-04) との比
14	キレート樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+水酸化鉄系+活性炭系	10	3.5	1.35E-04	1.50E-02	0.19
15	混床樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+水酸化鉄系+活性炭系	10	2	< 6.60E-05	7.33E-03	0.10
16	水酸化鉄系+キレート樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+活性炭系	10	3.5	4.19E-04	4.66E-02	0.60
17	キレート樹脂+陰イオン交換樹脂+Agゼオライト+水酸化鉄系+活性炭系	5	3.5	1.24E-04	1.38E-02	0.18

⇒ヨウ素イオンを吸着するAgゼオライトを追加した吸着材の構成でI-129が目標値を満足できることを確認した。

4.6 ラボ試験（最終塔構成案）結果の考察

- 核種除去性能/Ru除去性能確認試験に基づいた、現状の最終塔構成案（試験No.17）の試験結果は下表の通り。
- Sr90は、ラボ試験で確認された性能は告示濃度に対して、1/100と低いもののさらなる除去性能の向上を検討する。一方、Sb-125、I-129、C-60については、ラボ試験で目標濃度を達成する高い除去性能を確認した。
- 既設の多核種除去設備よりも概ね除去性能が高いことを確認した。

	告示濃度限度 [Bq/cm ³]	補助事業 目標値 [Bq/cm ³]	高性能多核種ラボ試験(ケース1+No17)			多核種除去設備		
			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	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 [*]	1.5E+05	< 1.0E-04	3.33E-03
Ru-106 (約370日)	1E-01	1.2E-03	3.41E+01	< 2.54E-03	2.54E-02	9.1E+01	3.0E-02	3.00E-01
Sb-125 (約3年)	8E-01	3.8E-04	4.95E+01	< 2.78E-04	3.47E-04	7.4E+01	8.9E-04	1.11E-03
I-129 (約16000000年)	9E-03	6.9E-04	1.33E-01	1.24E-04	1.37E-02	1.3E-01	4.6E-02	5.11E+00
Cs-134 (約2年)	6E-02	2.8E-04	4.37E+00	< 7.76E-05	1.29E-03	< 1.7E+01	< 2.6E-04	4.33E-03
Cs-137 (約30年)	9E-02	2.8E-04	1.13E+01	< 9.16E-05	1.02E-03	1.7E+01	< 2.9E-04	3.22E-03
Mn-54 (約310日)	1E+00	1.1E-04	1.79E+00	< 6.09E-05	6.09E-05	< 8.5E+00	< 1.2E-04	1.20E-04
Co-60 (約5年)	2E-01	1.1E-04	2.35E+00	< 8.40E-05	4.20E-04	< 1.3E+01	3.7E-04	1.85E-03

※処理後のSr90濃度が低いケース2通水後の水の濃度を記載

4.7 ラボ試験結果のまとめと今後の予定

【ラボ試験まとめ】

- Sr-90の除去性能より、塔構成は、ケース2を基本とする。
- I-129については、Agゼオライト吸着材にて除去できることを確認。
- Ru-106については、目標値を達成できる塔構成は確認できたものの、必要とするRu吸着塔の塔数（10塔）に比べ得られる効果が小さいことから、検証試験、実証試験においては、5塔を基本とする。
- 既設の多核種除去設備よりも概ね除去性能が高いことを確認した。

【今後のラボ試験の予定】

- 選定した通水順序、吸着材構成により通水し最終確認試験を実施(原水3種)。
- 検証試験等において、Ru吸着材が短寿命の場合に備えて代替材の探索を継続。
⇒代替材は設備稼働後の塔交換時に適用することを想定。
- ケース1、2のSr-90除去性能が異なることを含め、Sr-90に着目した追加試験を実施する。

(参考) Ru・ヨウ素除去性能確認試験結果 (1)

日立GENEの
ラボ試験状況

処理前水 (ケース1の重金属吸着塔通水後)	Ru-106			I-129		
	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	目標値(1.2E-3) との比	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	目標値(6.90E-4) との比
	5.70E-02	5.70E-01	47.5	3.28E-02	3.64E+00	47.5

試験 No.	使用吸着材	塔 数	pH調 整	Ru-106			I-129		
				通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 (1.00E-1) との比	目標値 (1.2E-3) との比	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 (9E-03) との比	目標値 (6.90E-04) との比
1	キレート樹脂+水酸化セリウム+陰イオン交換樹脂	3	なし	1.09E-02	1.09E-01	9.08E+00	9.54E-04	1.06E-01	1.38E+00
2	水酸化セリウム+キレート樹脂	3	3.5	1.76E-02	1.76E-01	1.47E+01	1.40E-02	1.56E+00	2.03E+01
3	水酸化セリウム系2種類	5	3.5	5.14E-02	5.14E-01	4.28E+01	3.10E-02	3.44E+00	4.49E+01
4	キレート樹脂+陰イオン交換樹脂	2	なし	1.78E-02	1.78E-01	1.48E+01	6.75E-04	7.50E-02	9.78E-01
5	樹脂5種類(混床+陽・陰イオン交換樹脂+キレート樹脂)	5	2	7.05E-03	7.05E-02	5.88E+00	2.22E-04	2.47E-02	3.22E-01
6	同上+活性炭	6	2	9.07E-03	9.07E-02	7.56E+00	1.87E-03	2.08E-01	2.71E+00
7	同上+銀ゼオライト	7	2	8.79E-03	8.79E-02	7.33E+00	2.12E-04	2.36E-02	3.07E-01
8	珞酸系+樹脂5種類	8	2	8.85E-03	8.85E-02	7.38E+00	1.32E-02	1.47E+00	1.91E+01
9	水酸化セリウム(pH調整時に非放Ru添加)	3	3.5	6.24E-02	6.24E-01	5.20E+01	2.64E-02	2.93E+00	3.83E+01
10	Sb吸着材+重金属吸着材+キレート樹脂の混床	2	なし	2.66E-02	2.66E-01	2.22E+01	1.28E-02	1.42E+00	1.86E+01

- キレート樹脂と陰イオン交換樹脂がRu除去に有効、水酸化セリウムは効果なし (試験No.1~4)
- 上記の樹脂をベースにpH調整、塔数UP、キャリア添加などするも目標未達 (試験No.5~13)

(参考) Ru・ヨウ素除去性能確認試験結果 (2)

日立GENEの
ラボ試験状況

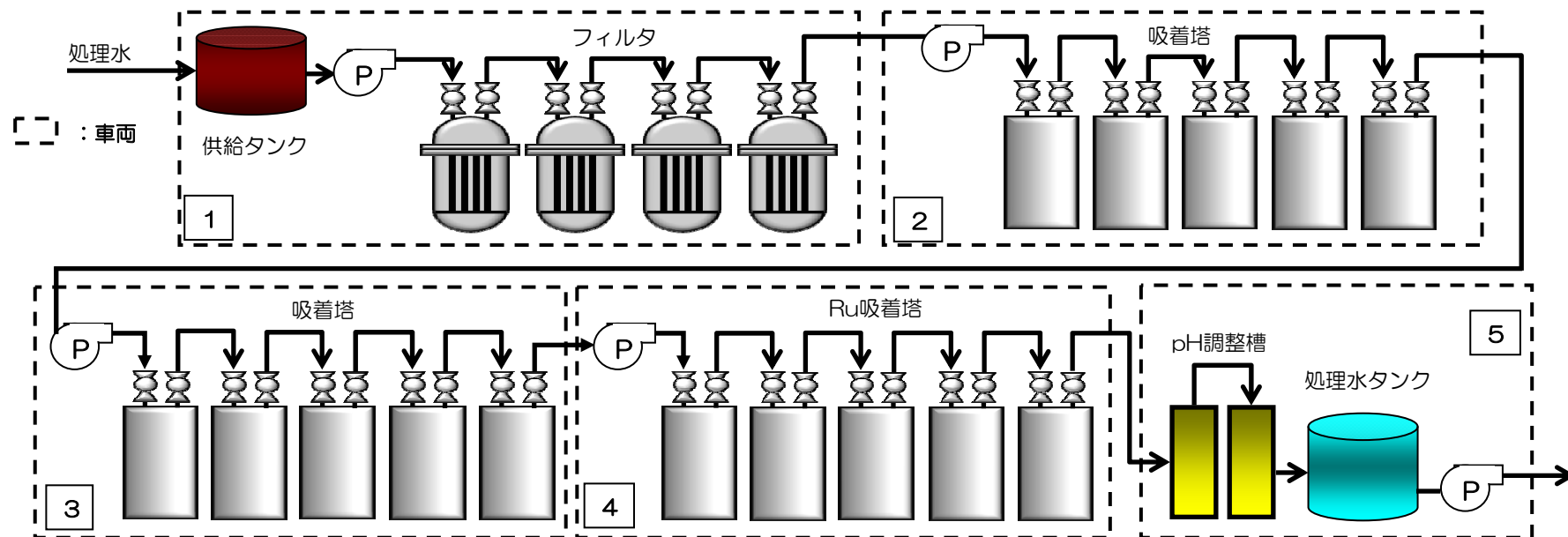
処理前水 (ケース1の重金属吸着塔通水後)	Ru-106			I-129		
	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	目標値 との比	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	目標値 との比
	5.70E-02	5.70E-01	4.75E+01	3.28E-02	3.64E+00	3.64E+00

試験 No.	使用吸着材	塔数	pH調 整	Ru-106			I-129		
				通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	目標値 との比	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	目標値 との比
11	Sb吸着材+重金属吸着材+キート樹脂の混床	2	3.5	2.13E-02	2.13E-01	1.78E+01	2.31E-02	2.57E+00	3.35E+01
12	珪酸系+活性炭系+Sb吸着材+重金属吸着材	4	なし	3.57E-02	3.57E-01	2.98E+01	3.52E-02	3.91E+00	5.10E+01
13	活性炭系(塔数増加)	3	なし	3.37E-02	3.37E-01	2.81E+01	7.93E-03	8.81E-01	1.15E+01
14	キート樹脂+陰イオン交換樹脂+Ag ⁺ イオン+水酸化鉄系+活性炭系	10	3.5	< 9.83E-04	9.83E-03	8.19E-01	1.35E-04	1.50E-02	1.96E-01
15	混床樹脂+陰イオン交換樹脂+Ag ⁺ イオン+水酸化鉄系+活性炭系	10	2	< 1.24E-03	1.24E-02	1.03E+00	< 6.60E-05	7.33E-03	9.57E-02
16	水酸化鉄系+キート樹脂+陰イオン交換樹脂+Ag ⁺ イオン+活性炭系	10	3.5	4.00E-03	4.00E-02	3.33E+00	4.19E-04	4.66E-02	6.07E-01
17	キート樹脂+陰イオン交換樹脂+Ag ⁺ イオン+水酸化鉄系+活性炭系	5	3.5	2.54E-03	2.54E-02	2.12E+00	1.24E-04	1.38E-02	1.80E-01

- 樹脂に水酸化鉄と活性炭を加えることでRuを目標値まで除去可能 (試験No.14, 15)
- No14、16の比較から吸着材の通水順序がRu除去、ヨウ素除去の性能に影響することを確認。
- No17の結果から5塔相当の吸着材でもRu除去性能は高いことを確認 (告示濃度限度との比が十分に小さい)

4.8 検証試験設備の概要と製作状況

■ 検証試験装置は、フィルタ4塔+吸着塔15塔の塔構成

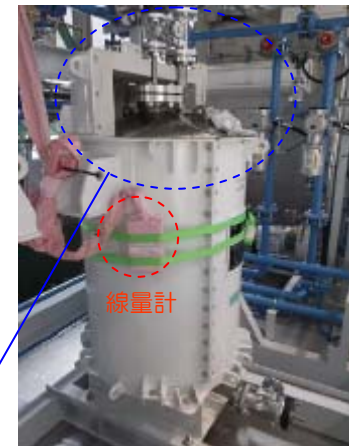


車両全景



前処理フィルタ

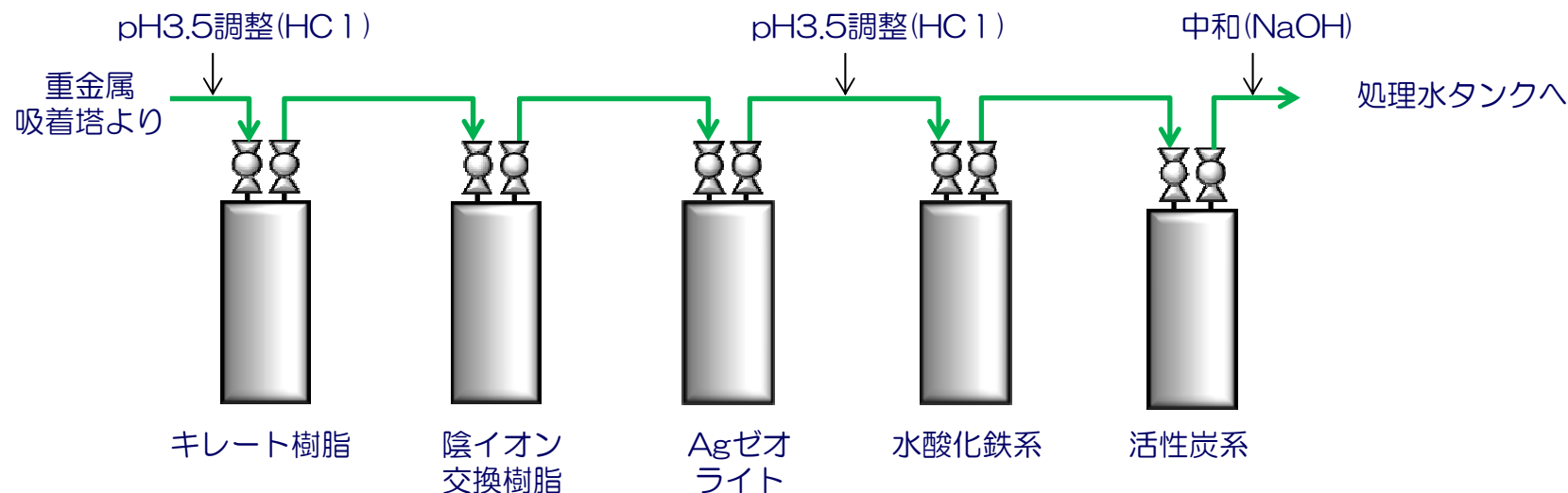
遮へい体を外した状態



吸着塔

4.8 検証試験設備のRu除去の塔構成と試験内容

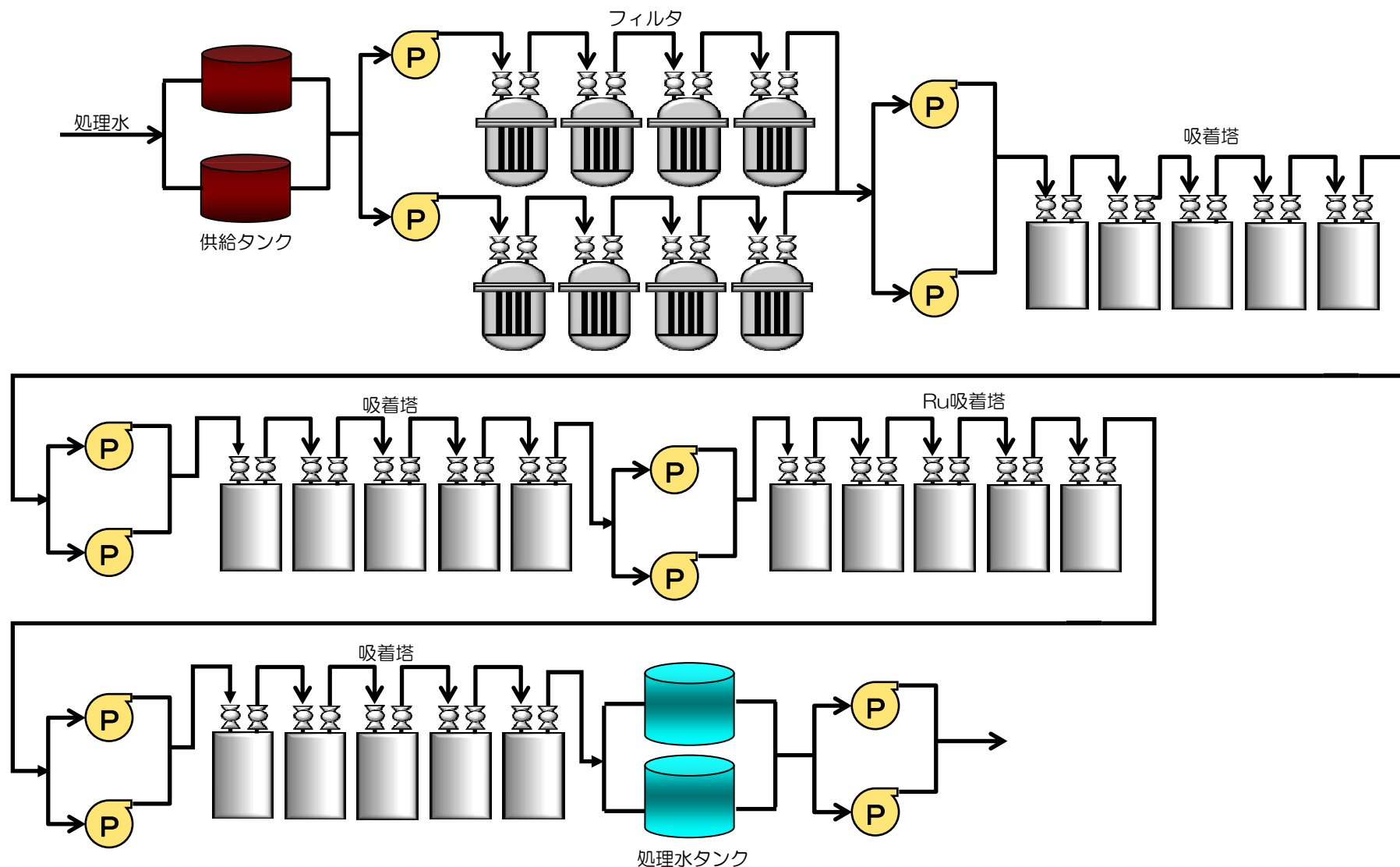
■ 検証試験装置のRu除去の塔構成



- 検証試験装置の吸着塔15塔のうちRu除去は上記5塔構成とする。
- ラボ試験の結果から、仕様処理量（50m³/日）においては、Ru-106は目標値をわずかに上回る見込み。
- 仕様処理量での運転を行い、各吸着材の性能保証期間(交換周期)、廃棄物発生量評価を実施する。
- 代替材の検証（Sr吸着材とRu吸着材の組合せ）は必要に応じ、吸着材の調達を考慮して9月以降に実施する。

4.9 実証試験設備の概要

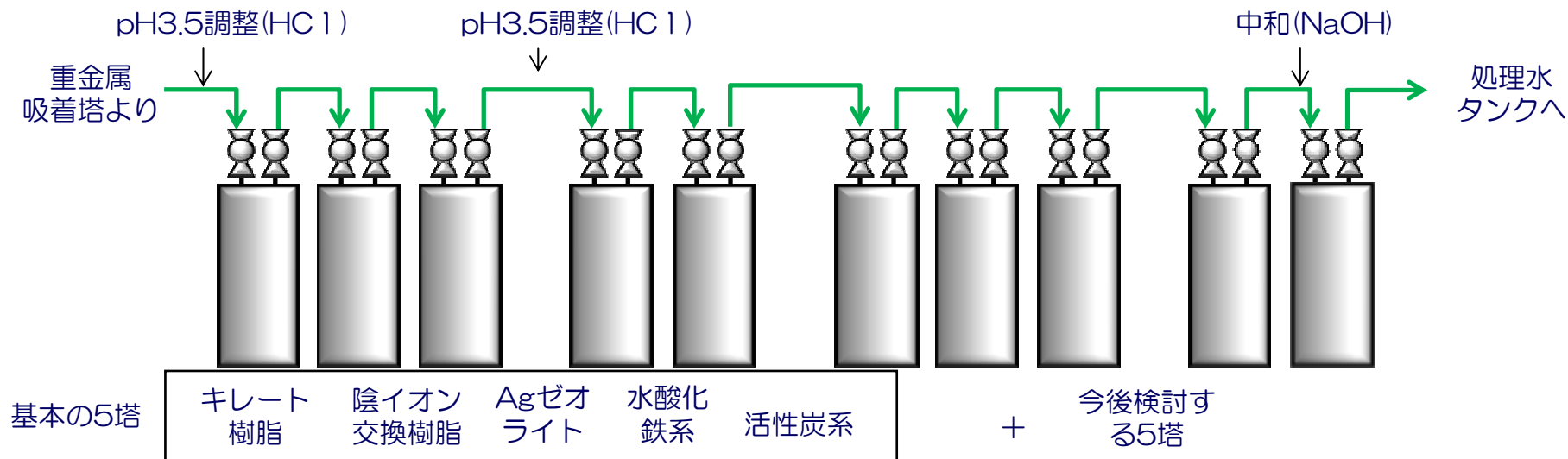
- 実証試験装置は、フィルタ4塔×2+吸着塔15塔+5塔（予備）の塔構成



4.9 実証試験設備のRu除去の塔構成と試験内容

日立GENEの
ラボ試験状況

■ 実証試験装置のRu除去の塔構成



- 実証試験装置の吸着塔20塔のうちRu除去は上記5塔を確定し、残り5塔は今後のラボ試験や検証試験の吸着材寿命結果から選定する。

ラボ試験の状況 (東芝)

5.1 ラボ試験計画概要

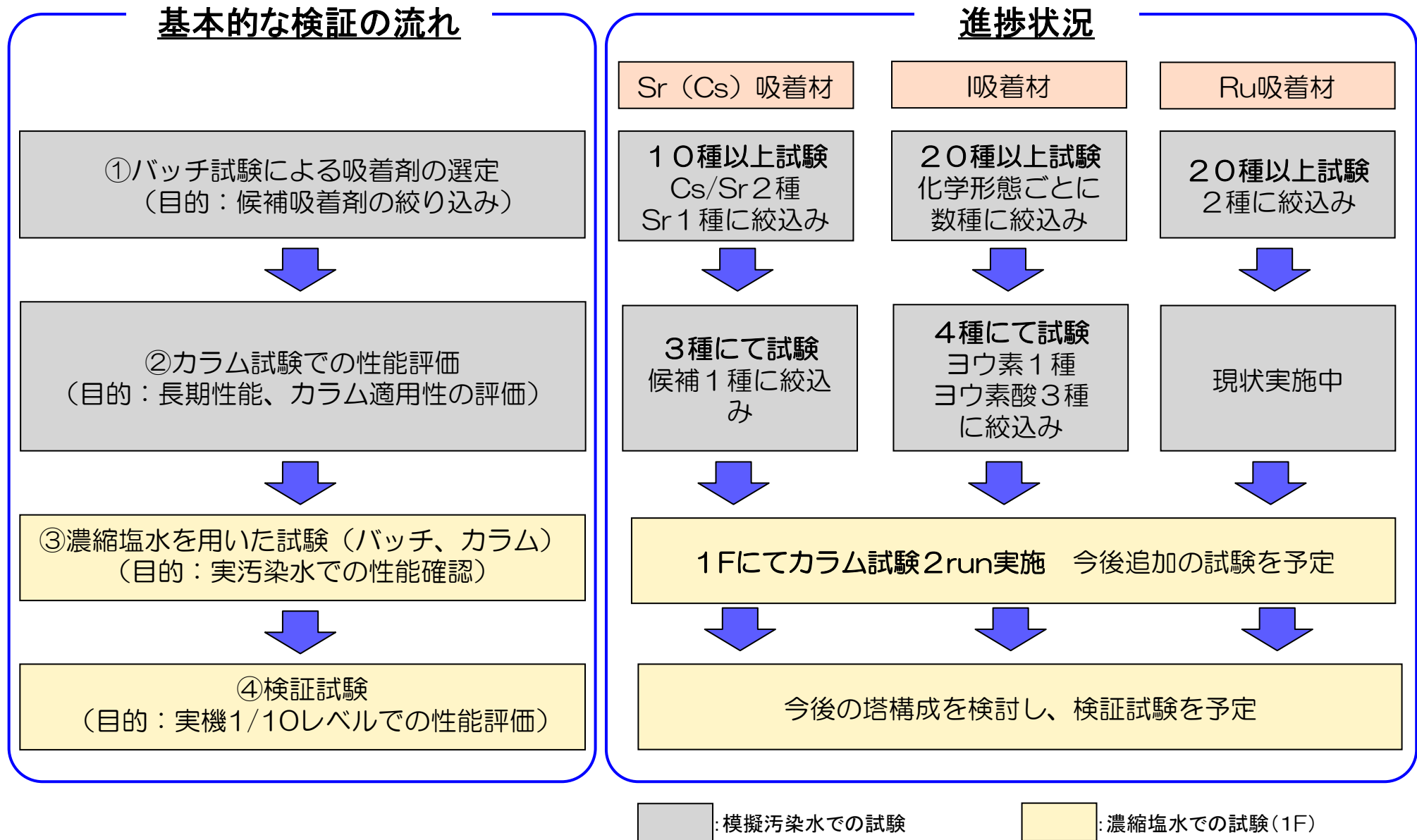
■ 吸着材の開発背景

- 現行多核種除去設備は前処理設備にてSrの除去を阻害するCa、Mgを除去すると共にSrを荒取りしている。高性能多核種除去設備では廃棄物低減の観点から前処理設備がないため、より良い吸着材が必要となる可能性がある。
- 現行多核種除去設備では、Ruが特に取りにくい核種として存在していることから、より良い吸着材が必要である。

したがって、以下項目を実施する。

- 前処理設備を用いない状態での濃縮塩水の主要核種であるSr (Cs) 吸着材開発
- 現行多核種除去装置において、除去しづらいヨウ素 (I) の吸着材開発
- 現行多核種除去装置において、除去しづらいルテニウム (Ru) の吸着材開発

5.2 バックアップ吸着材の性能評価プロセス

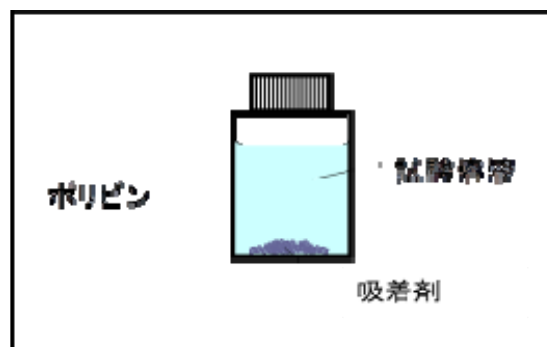


5.3 試験条件と評価手順

試験液条件：模擬海水を約3倍希釈した液に、対象元素を添加（海水濃度：34%）

評価手順：バッチ試験では分配係数（ K_d ）で評価、カラム試験では
ベッドボリューム（BV）に対するカラム通水前後の濃度比（ C/C_0 ）で評価する

【バッチ試験のイメージ】



分配係数の算出

$$K_d = \frac{C_0 - C}{C} \cdot \frac{V}{M}$$

K_d : 分配係数値 (ml/g)

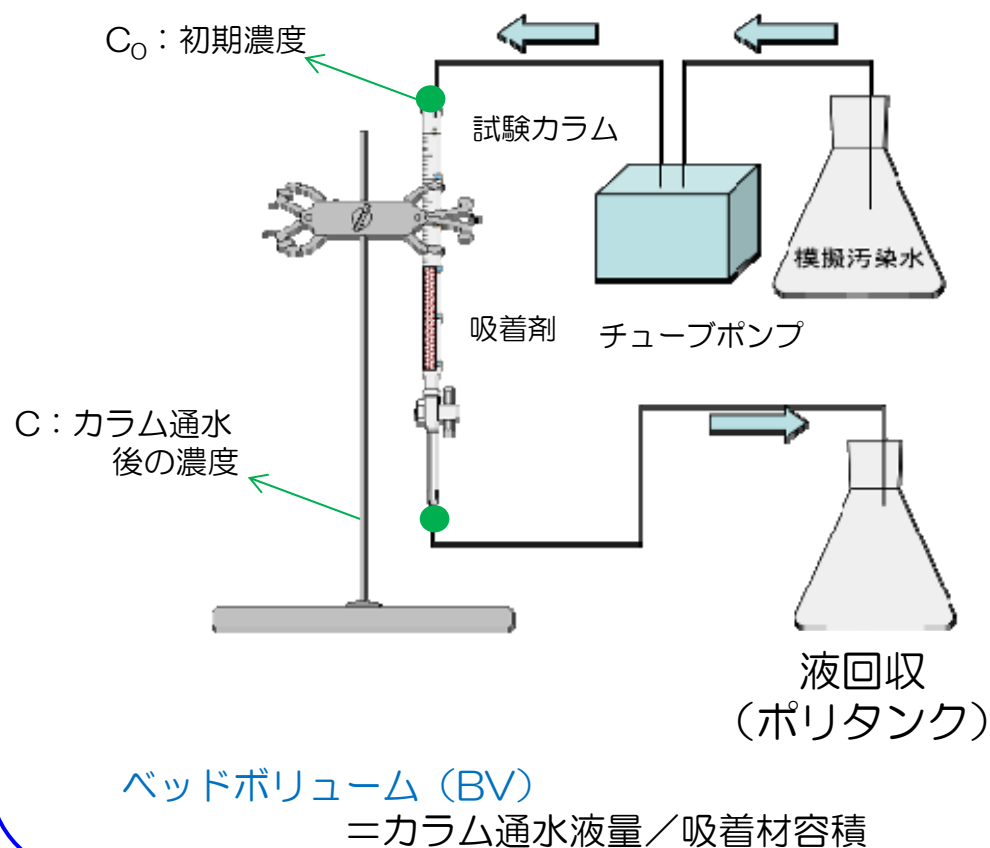
C_0 : 初期濃度 (ppb)

C : 試験後濃度 (ppb)

V : 液相体積 (ml)

M : 固相重量 (g)

【カラム試験のイメージ】



5.4 バッチ試験結果 (Sr/Cs吸着材)

Sr	Sr吸着	Cs吸着	通水試験の実施	海水濃度	備考
チタン酸系-1	◎	◎	有	34%、100%	複数条件 試験実施中
チタン酸系-2	○	◎		34%	
チタン酸系-3	◎	◎	有	34%	
チタン酸系-4	—	—	有	100%	分析中
チタン酸系-5	◎	—		34%	
シリカ系1	×	—	有	34%	高濃度海水用吸着剤
シリカ系2	×	—	有	34%	高濃度海水用吸着剤
無機系-1	◎	—		34%	充填方法:要検討
無機系-2	◎	—		34%	充填方法:要検討
無機系-3	—	◎	有(Csのみ)	34%	既設多核種除去設備にて使用

◎:Kd \geq 10,000
○:Kd 10,000~1,000
△:Kd 1,000~100
×:Kd \leq 100

バッチ試験で得られた性能の他、実機条件を考慮しカラム試験候補として以下を選定

- Sr/Cs同時吸着剤のカラム試験候補にチタン酸-1、チタン酸-3の2種でSr、Csのカラム試験実施
- Kd試験の結果は良くないが、Caを多く含む海水においてもSr吸着の選択性能を有することから、シリカ系1でSrカラム試験実施。SrとCsを個々に吸着する組み合わせとして、多核種除去設備で使用しているCs吸着材である無機系-3でCsカラム試験実施
- チタン酸系-4はチタン酸系-1より高性能が期待されるため追加実施（現在分析中）
- 有力な吸着材は34%海水（公募条件：6000ppm相当）に加え、参考として100%海水でのデータを取得

5.5 バッチ試験結果（ヨウ素用吸着材）

	ヨウ素	ヨウ素酸	コロイド	通水試験の 実施	備考
無機系-1	◎	×	—	有	ヨウ素化物イオン用
無機系-2	×	○	—	有	
無機系-3	△	×	—	有	
無機系-4	—	○	—	有	既設多核種除去設備にて使用 ヨウ素酸・アンチモン用
無機系-5	◎	×	—	有	
無機系-6	◎	×	—	有	
無機系-7	◎	—	—	有	
無機系-8	×	×	—	有	
無機系-9	×	—	—	有	
無機系-10	×	×	—	有	
無機系-11	×	—	—	有	
無機系-12	×	—	—	有	
無機系-13	◎	×～△	—	有	充填方法：要検討
無機系-14	—	△	—	有	
無機系-15	—	○	—	有	ヨウ素酸・アンチモン用
無機系-16	—	○	—	有	ヨウ素酸・アンチモン用
無機系-17	—	×	—	有	
キレート-1	×	—	—	有	
キレート-2	×	—	—	有	
天然成分-1	×	—	—	有	
銀活性炭-1	×	—	—	有	
銀活性炭-2	△	×	実施	有	既設多核種除去設備にて使用
機能活性炭-1	×	—	—	有	
機能活性炭-2	△	—	—	有	
機能活性炭-3	—	×	—	有	
活性炭-1	×	×	実施		コロイド用
活性炭-2	×	×	実施		既設多核種除去設備にて使用

海水中でのヨウ素の主要形態は
ヨウ化物イオン、ヨウ素酸イオン、コロイドと推定。
この3種類をターゲットに吸着材の絞り込みを実施

吸着材の絞り込み

ヨウ化物イオン: NaI で試験評価
ヨウ素酸イオン: NaIO₃ で試験評価
コロイドは模擬汚染水での評価は困難
⇒これまでの経験から活性炭を選定



ヨウ化物イオン用: 無機系-1
ヨウ素酸用: 無機系-2,15,16
コロイド用: 活性炭1,2
をそれぞれ選定。1Fラボ実液試験で評価。

◎: Kd ≥ 10,000
○: Kd 10,000 ~ 1,000
△: Kd 1,000 ~ 100
×: Kd ≤ 100

5.6 バッチ試験結果 (Ru)

	海水濃度 (倍)	Kd値	備考
	-		
イオン交換樹脂-1	1/2	◎	
イオン交換樹脂-1	1/2	◎	14日のデータ
イオン交換樹脂-1	1/6	◎	
イオン交換樹脂-1	1/6	◎	14日のデータ
Ru無機系-1	1/2	◎	
Ru無機系-1	1/6	◎	
イオン交換樹脂-2	1/2	△	
イオン交換樹脂-2	1/6	△	
イオン交換樹脂-3	1/2	△	
イオン交換樹脂-3	1/6	△	
イオン交換樹脂-4	1/2	◎	
イオン交換樹脂-4	1/6	△	
イオン交換樹脂-5	1/2	◎	
イオン交換樹脂-5	1/6	◎	
イオン交換樹脂-6	1/2	△	
イオン交換樹脂-6	1/6	△	
Ru機能活性炭-1	1/2	△	
Ru機能活性炭-1	1/6	○	
イオン交換樹脂-7	1/2	△	72時間のKd
イオン交換樹脂-7	1/6	△	
Ru無機系-2	1/2	△	
Ru無機系-2	1/6	○	
Ru無機系-3	1/2	△	48時間のKd
Ru無機系-3	1/6	△	
Ru無機系-4	1/2	○	
Ru無機系-4	1/6	○	
Ru無機系-5	1/2	△	
Ru無機系-5	1/6	×	

試験条件:

海水濃度:1/2、1/6

(Ruは海水濃度により、性状が変化するため、海水濃度1/3前後で評価実施し両方良いものを採用)

ルテニウム:Ru-106 液固比:100

試験日数:7日

- イオン交換樹脂-1、イオン交換樹脂-5が高い性能を有することを確認
- イオン交換樹脂-1、イオン交換樹脂-5を1Fカラム試験に採用するが、実液中には異なる形態のRuが多数存在するため、幅広く実液での試験を行い、評価する
- ラボでのカラム試験はイオン交換樹脂-1、イオン交換樹脂-5について現在実施中

◎:Kd \geq 10,000

○:Kd 10,000~1,000

△:Kd 1,000~100

×:Kd \leq 100

5.6 Ruの形態に関する参考文献

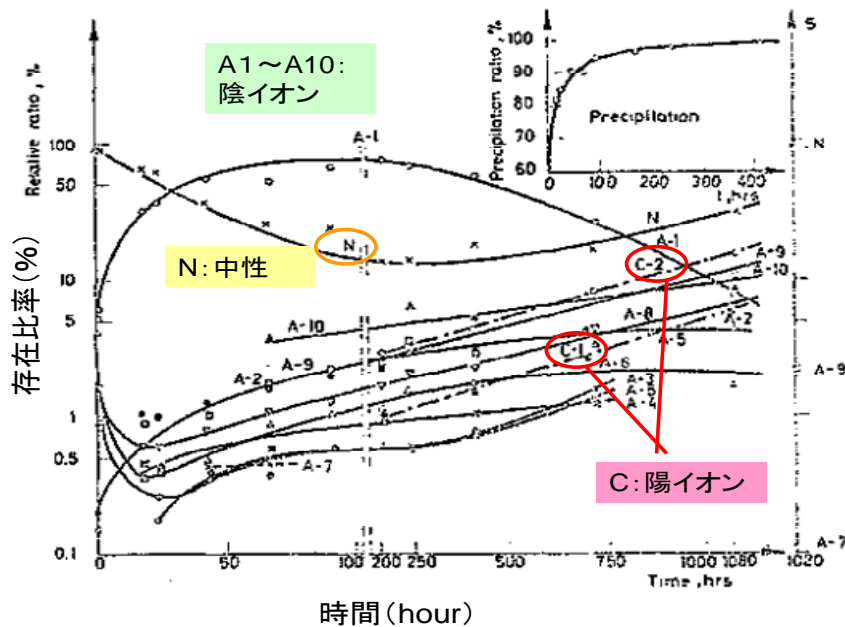


Fig. 46. Percentage radioactivity distribution among the electrophoretically separated soluble ^{106}Ru chloro complex species in sea water at pH 8 as a function of the aging of the system up to 1080 hrs. The 1080-S mark denotes the radioactivity distribution as a percentage after the 1080-hr old system has been stirred. The small diagram gives the precipitation ratio as a percentage up to 400 hrs of aging of the system.

出典:HIGH-VOLTAGE ELECTROPHORESIS
OF ^{106}Ru -SEA WATER SYSTEMS

想定されるRuの化学形態

- Ruイオンとして存在 : RuCl , RuCl_2 , RuCl_3 , RuCl_4
- ルテニウム酸イオン : Na_2RuO_4 , Na_3RuO_4
- クロロ錯体 : $\text{Na}_2(\text{RuCl}_6)$
- ニトロ錯体 : RuNO_3Cl

これらの成分が、時間とともに変化するため、調整後2日程度以上経過させた液を試験水として使用した。

海水中にルテニウムを添加したときの形態変化の調査報告がある。
陽イオン、陰イオン、中性の複数の成分が数日単位で変化することが報告されている



1Fでの実液中には異なる形態のRuも存在すると推測される。他の種類の吸着剤も含めて実液でのバッチ試験を行い、比較評価する必要がある

5.7 濃縮塩水を用いた試験実施状況（1）

■ 濃縮塩水を用いた試験実施状況

- 2014年4月～1F構内にラボ設備を設置し、濃縮塩水を用いて試験を実施
- バッチ試験：濃縮塩水中での存在形態が不明な核種について、濃縮塩水で吸着性能を評価
- カラム試験：各吸着材の濃縮塩水での性能、最適構成の検討（次頁以降）



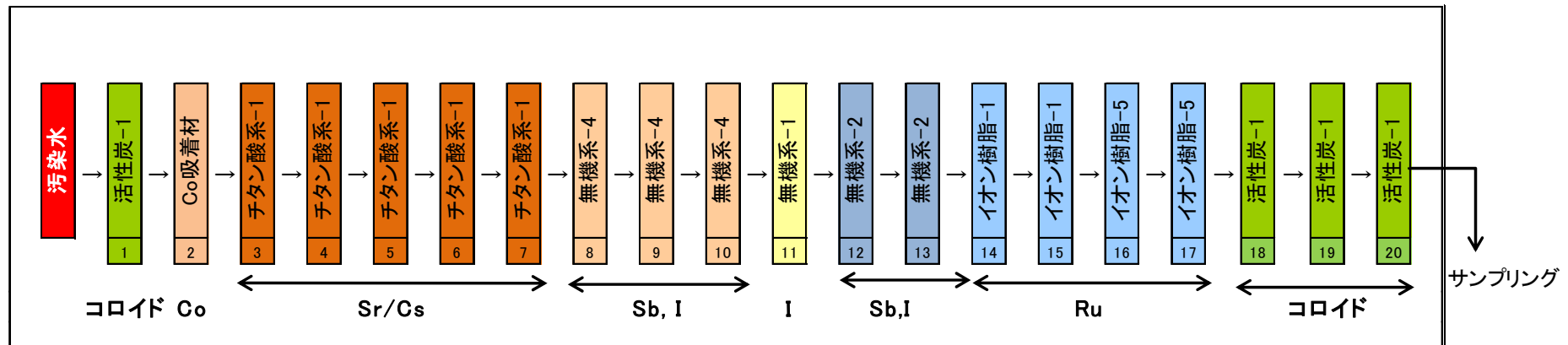
5.7 濃縮塩水を用いた試験実施状況 (2)

■ カラム試験『Run-1』 (500BVを連続通水)

Sr/Cs : チタン酸系-1の性能確認 ⇒性能良好

Sb/I : 無機系-4(既設で使用)と無機系-1の組合せでの性能確認 ⇒性能良好

Ru : イオン樹脂-1/5の性能確認 ⇒性能良好



	原水(H6北C) [Bq/cm ³]	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	通水後の濃度と 告示濃度限度との比	告示濃度限度 [Bq/cm ³]	通水後の濃度と 補助事業 目標値との比	補助事業 目標値 [Bq/cm ³]
Sr-90(約29年)	測定中	< 1.56E-04	< 5.21E-03	3E-02	< 1	1.50E-04
Ru-106(約370日)	3.41E+01	1.09E-03	1.09E-02	1E-01	0.9	1.20E-03
Sb-125(約3年)	4.95E+01	< 1.80E-04	< 2.24E-04	8E-01	< 0.47	3.80E-04
I-129(約16000000年)	1.33E-01	8.76E-04	9.73E-02	9E-03	1.3	6.90E-04
Cs-134(約2年)	4.37E+00	< 1.20E-04	< 2.00E-03	6E-02	< 0.43	2.80E-04
Cs-137(約30年)	1.13E+01	< 5.95E-05	< 6.61E-04	9E-02	< 0.21	2.80E-04
Co-60(約5年)	2.35E+00	< 5.26E-05	< 2.63E-04	2E-01	< 0.48	1.10E-04

5.7 濃縮塩水を用いた試験実施状況 (3)

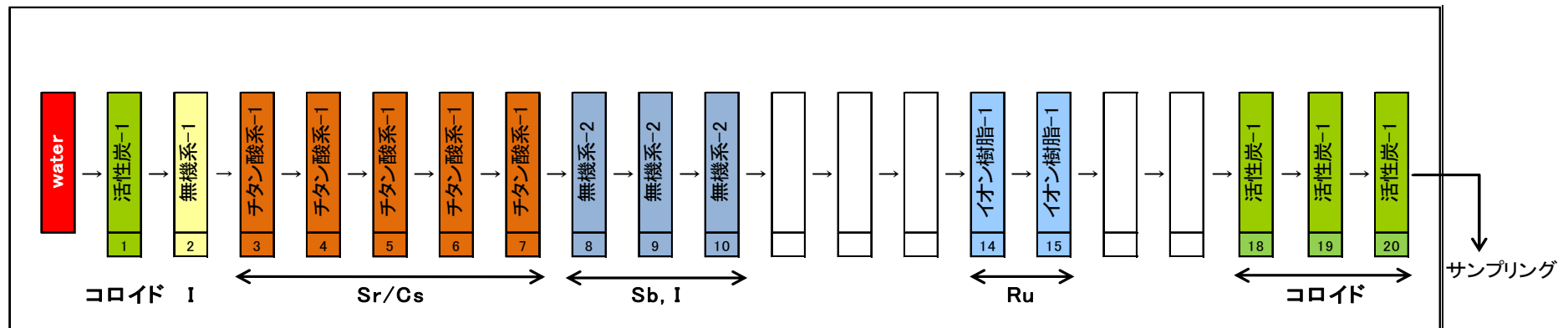
■ カラム試験『Run-2』 (500BVを連続通水)

Sr/Cs : チタン酸系-1の性能確認 ⇒性能良好

Sb/I : 無機系-2の性能確認、無機系-1の配置順の影響確認 ⇒性能良好、配置順の影響無し

Ru : イオン樹脂-1の性能確認 ⇒イオン樹脂-1/5の組合せが有効

Co : Co吸着材の要否確認 ⇒ 活性炭で除去可能であり、Co吸着材は不要



	原水(H6北C) [Bq/cm ³]	通水後の濃度 [Bq/cm ³]	通水後の濃度と 告示濃度限度との比	告示濃度限度 [Bq/cm ³]	通水後の濃度と 補助事業 目標値との比	補助事業 目標値 [Bq/cm ³]
Sr-90(約29年)	測定中	< 1.45E-04	< 4.82E-03	3E-02	< 0.96	1.50E-04
Ru-106(約370日)	3.41E+01	1.13E-02	1.13E-01	1E-01	9.4	1.20E-03
Sb-125(約3年)	4.95E+01	< 2.28E-04	< 2.85E-04	8E-01	< 0.6	3.80E-04
I-129(約16000000年)	1.33E-01	5.47E-04	6.07E-02	9E-03	0.79	6.90E-04
Cs-134(約2年)	4.37E+00	< 1.08E-04	< 1.80E-03	6E-02	< 0.39	2.80E-04
Cs-137(約30年)	1.13E+01	< 6.25E-05	< 6.94E-04	9E-02	< 0.22	2.80E-04
Co-60(約5年)	2.35E+00	< 5.16E-05	< 2.58E-04	2E-01	< 0.47	1.10E-04

5.7 濃縮塩水を用いた試験実施状況（4）

■ 試験結果まとめ

- S r (C s) : **チタン酸系-1の性能良好**（5塔構成で検出限度（ $10^{-4}\text{Bq}/\text{cm}^3$ ）以下達成）
→今後、塔数と寿命の評価実施
- S b : **無機系-2、無機系-4の性能良好**（Run-1、Run-2、いずれの構成でも検出限度以下を達成）
→今後、塔数と寿命の評価実施
- I : **無機系-1と無機系-2/4の組合せ性能良好**（目標濃度以下（ $9.0 \times 10^{-4}\text{Bq}/\text{cm}^3$ ）を達成）。
無機系-1の配置順は影響ないことを確認
→更なる余裕を持つために、ヨウ素酸用吸着塔の増加、もしくは無機系-16を採用
- R u : **イオン交換樹脂-1及びイオン交換樹脂-5**（Run-1）で高い除去性能を確認
→イオン交換樹脂-1及びイオン交換樹脂-5の組合せが性能が有効
- C o : **活性炭で除去可能**であることを確認（Run-2で高い除去性能を確認）
→Co吸着材は不要と判断

今後、新たな吸着材の検討継続、試験データを取得すると共に、検証試験にて連続通水の長期カラムデータを取得し交換頻度を算出する。

5.7 濃縮塩水を用いた試験実施状況（5）

- カラム試験の結果において、既設の多核種除去設備よりも概ね除去性能が高いことを確認した。

カラム試験『Run-1』

	告示濃度限度 [Bq/cm ³]	高性能多核種ラボ試験(Run-1)			多核種除去設備		
		処理前 [Bq/cm ³]	処理後 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	処理前 [Bq/cm ³]	処理後 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比
Sr-90(約29年)	3E-02	1.19E+05	< 1.56E-04	< 5.20E-03	1.5E+05	< 1.0E-04	< 3.33E-03
Ru-106(約370日)	1E-01	3.41E+01	1.09E-03	1.09E-02	9.1E+01	3.0E-02	3.00E-01
Sb-125(約3年)	8E-01	4.95E+01	< 1.80E-04	< 2.25E-04	7.4E+01	8.9E-04	1.11E-03
I-129(約16000000年)	9E-03	1.33E-01	8.76E-04	9.73E-02	1.3E-01	4.6E-02	5.11E+00
Cs-134(約2年)	6E-02	4.37E+00	< 1.20E-04	< 2.00E-03	< 1.7E+01	< 2.6E-04	< 4.33E-03
Cs-137(約30年)	9E-02	1.13E+01	< 5.95E-05	6.61E-04	1.7E+01	< 2.9E-04	< 3.22E-03
Co-60(約5年)	2E-01	2.35E+00	< 5.26E-05	< 2.63E-04	< 1.3E+01	3.7E-04	1.85E-03

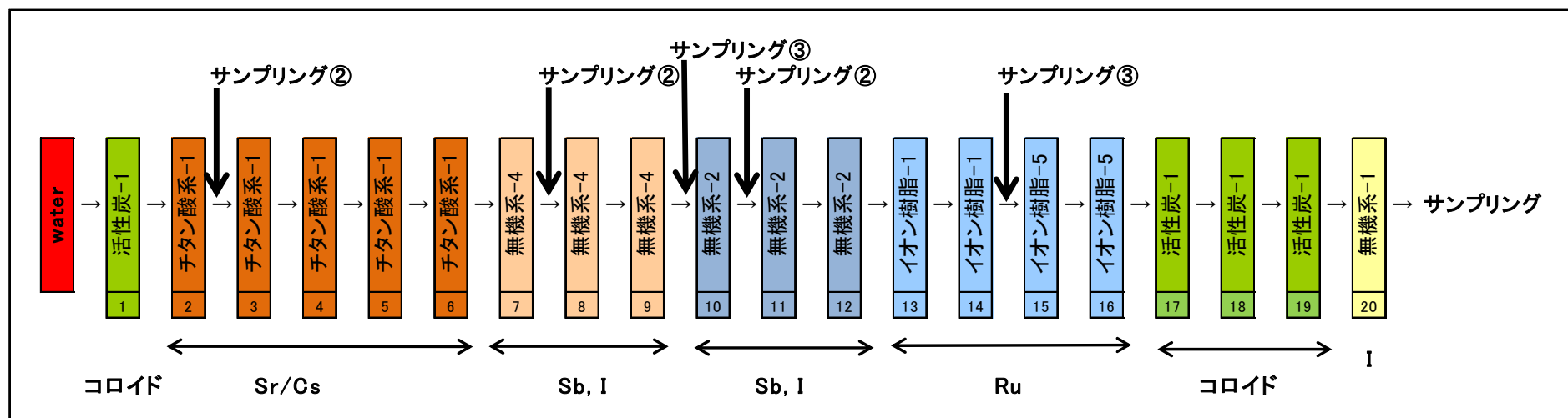
カラム試験『Run-2』

	告示濃度限度 [Bq/cm ³]	高性能多核種ラボ試験(Run-2)			多核種除去設備		
		処理前 [Bq/cm ³]	処理後 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比	処理前 [Bq/cm ³]	処理後 [Bq/cm ³]	告示濃度限度 との比
Sr-90(約29年)	3E-02	1.19E+05	< 1.45E-04	< 4.83E-03	1.5E+05	< 1.0E-04	< 3.33E-03
Ru-106(約370日)	1E-01	3.41E+01	1.13E-02	1.13E-01	9.1E+01	3.0E-02	3.00E-01
Sb-125(約3年)	8E-01	4.95E+01	< 2.28E-04	< 2.85E-04	7.4E+01	8.9E-04	1.11E-03
I-129(約16000000年)	9E-03	1.33E-01	5.47E-04	6.08E-02	1.3E-01	4.6E-02	5.11E+00
Cs-134(約2年)	6E-02	4.37E+00	< 1.08E-04	< 1.80E-03	< 1.7E+01	< 2.6E-04	< 4.33E-03
Cs-137(約30年)	9E-02	1.13E+01	< 6.25E-05	< 6.94E-04	1.7E+01	< 2.9E-04	< 3.22E-03
Co-60(約5年)	2E-01	2.35E+00	< 5.16E-05	< 2.58E-04	< 1.3E+01	3.7E-04	1.85E-03

5.7 濃縮塩水を用いた試験の今後の予定

■ カラム試験『Run-3』

- ①現段階での最適塔構成による長期間(700BV)試験を実施)
- ②第一塔出口分析による塔寿命の評価(Cs/Sr、I)
- ③2種類以上の吸着材を使用している核種の各吸着材での除去性能確認(I/Sb、Ru)



- カラム試験『Run-4』以降についても、適切な組合せにて試験を実施していく。

検証試験及び実証試験の状況

6. 検証試験、実証試験の状況

■検証試験の目的

- 検証試験装置は、実証試験装置の1/10スケールの装置であり、日立GENE、東芝がそれぞれ設備を設置し、吸着材の性能確認、材料の腐食試験を行い実証試験装置に結果を反映することを目的とする。
- 実証試験装置の初期吸着材構成は、日立GENEの設計に基づくものとし、実証試験と平行して実施する日立GENE、東芝の検証試験から有益な知見が得られた場合は、実証試験に適宜反映するものとする。

■検証試験、実証試験の状況

- 検証試験装置については、日立GENE及び東芝共に機器製作を進めている
- 実証試験装置についても、機器製作及び現地据付を行っている状況

6. 検証試験装置（日立GENE）の製作状況



検証試験装置用吸着塔ユニット



検証試験装置用フィルタ

6. 実証試験装置の設置状況 (H26.7.17時点)

- 現在、主に基礎を設置中
- 7/14より機器据付開始



装置設置エリア全景



機器据付状況