

9-2 重大事故時に発生する汚染水の処理

1. はじめに

東京電力(株)福島第一原子力発電所（以下「1F」）では、2011年3月11日に発生した地震と津波により原子炉の冷却ができず、炉心溶融事故を起こして、高濃度の放射性物質を含む汚染水が発生した。汚染水の処理は、2011年6月からセシウム及び塩分を除去した水を用いて循環冷却を開始した¹⁾。さらに2013年4月からトリチウム以外の放射性物質62種類を取り除く多核種除去設備（ALPS）が稼働した²⁾。本稿では、米国スリーマイルアイランド原子力発電所2号機（以下「TMI-2」）と1Fの事故で発生した汚染水対策を中心に記載する。

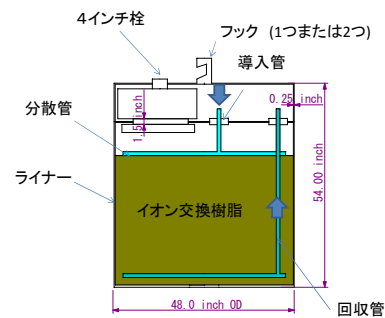
2. 米国-スリーマイルアイランド原子力発電所2号機

1979年3月に米国ペンシルベニア州のTMI-2が炉心溶融事故を起こした。事故により汚染水が発生し建屋内に貯留された。TMI-2では、汚染水の放射性物質濃度によって処理システムが異なり、イオン交換樹脂を用いたEPICOR I と EPICOR II、ゼオライトを用いた Submerged Demineralizer System（以下「SDS」）のシステムのみ組み合わせによって処理をした。1979年4月から事故発生以前から存在していた低レベル放射性廃液（ $<37 \text{ kBq/cm}^3$ ）を既設のEPICOR I により19か月間で処理し川に放出した。事故で発生した汚染水（ $37\sim 3700 \text{ kBq/cm}^3$ ）は1979年10月からEPICOR II を導入して処理を開始した。建屋滞留水や冷却水などの高放射性汚染水（ $>3700 \text{ kBq/cm}^3$ ）は、SDSを導入し1981年の9月から処理を開始した。SDSとEPICOR II によって処理されたトリチウムを含む水は、1991年1月から蒸発させて大気放出することにより最終処分を実施した³⁾。汚染水処理の中心であるEPICOR II と SDSについて以下に概要を記載する。

2.1 EPICOR II

EPICOR II は、EPICOR社で開発されたTMI-2の低レベルの放射性物質の除去装置で、多様な汚染水を処理した。EPICOR II は、1979年8月から1980年12月の期間、 2140 m^3 の比較的放射性レベルの低い汚染水から ^{137}Cs を $1.3 \times 10^{15} \text{ Bq}$ 以上、 ^{90}Sr を $7.4 \times 10^{13} \text{ Bq}$ 以上除去した³⁾。その後、1981年から1987年までは、SDSで処理した汚染水からの放射性物質の除去に用いられた。EPICOR II は、イオン交換樹脂のプロセスで、第1図に示す直径約 1.2 m ×高さ約 1.2 m の円筒容器（ベッセル）と直径約 1.8 m ×高さ約 1.8 m の2つのベッセルにイオン交換樹脂を入れて、上に導入管と分散用のパイプを配置し、下からの溶液を回収するシステムである。主に、Csイオンを除去するカチオン交換樹脂と、Csとヨウ素を除去するカチオン交換樹脂とアニオン交換樹脂の混合物が用いられた⁴⁾。放射性レベルの

低い汚染水を処理した時は、2段のカチオン交換樹脂カラム（ $1.2 \text{ m} \times 1.2 \text{ m}$ ）の後に1段のカチオン-アニオン交換樹脂カラム（ $1.8 \text{ m} \times 1.8 \text{ m}$ ）の3段のカラムで運転した⁴⁾。1979年8月から1980年12月の期間、リサイクルした汚染水を含めて約 5000 m^3 の汚染水をEPICOR II で処理をした。1981年以降は、SDSで処理した汚染水の処理用に、2段の $1.8 \text{ m} \times 1.8 \text{ m}$ カラムの後に1段の $1.2 \text{ m} \times 1.2 \text{ m}$ カラムを置く構成に変更された。1段目のカラムは、SDSで主要核種であるCsやSrを除去した後のNaや他の元素を除去し、2段目のカラムで残りの放射性物質を除去し、3段目のカラムで残った放射性核種や交換樹脂など固形物の除去を目的に設置した。1988年からは、容器をHIC(High-Integrity Container : $1.2 \text{ m} \times 1.2 \text{ m}$ カラムと同じ大きさ)に変更して、ゼオライトを入れて建屋を除染した水の処理に用いられた。その後、EPICOR II は、2号機の事故処理後に1号機の水処理に使用された⁴⁾。



第1図 EPICOR IIのベッセル³⁾

2.2 Submerged Demineralizer System

SDSは、TMI-2事故で発生した建屋滞留水や冷却水などの高放射能汚染水を処理するために、オークリッジ国立研究所で開発されたシステムである。TMI-2の汚染水の放射能を第1表に示す⁵⁾。汚染水の放射性物質は、冷却水と建屋滞留水ともに、EPICOR IIの放射能のスペックを超えており、 ^{137}Cs が一番多く、 ^{134}Cs 、 ^{90}Sr の順で、不純物としてはナトリウムやホウ素が含まれている。汚染水の総量は約 3000 m^3 で、1Fで発生した汚染水量より少量であった。1981年から1982年にかけて建屋滞留水を処理し、1982年から1987年にかけて原子炉冷却水を処理した。

SDSベッセルは、第2図のような直径約 0.6 m ×高さ約 1.3 m の円筒容器に、ゼオライト（Linde A-51, Linde IE-96）を入れて、そのベッセルを使用済燃料プール内に沈めて、汚染水を上の分散配管から下の回収管に向かって流す。SDSベッセルの交換は、使用済燃料集合体の保管と同様に水中で行われた。これは、 ^{137}Cs や ^{90}Sr などの放射性物質を多く含む高放射能の汚染水であるために、SDSベッセル交換時や運転時の被曝量を低減するためであ

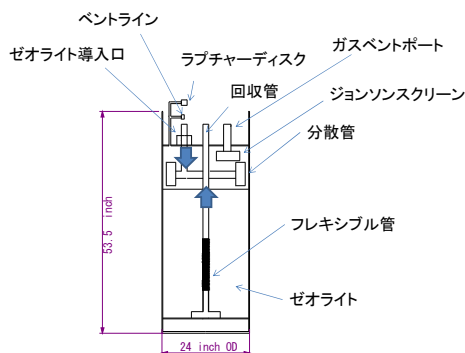
る。建屋滞留水は、フィルタを通して約75 L/minで約57 m³のタンク（4基）に輸送された後、約113 L/minの縦型パイプポンプで、2系統のゼオライトが充填されたSDSベッセルに送られるため圧力損失による流量低下により、SDSベッセルの処理流量は約19 L/minになった。さらに、カチオン交換樹脂を通して、45 m³のモニタータンクに貯留され、EPICOR IIに送られて処理される。EPICOR IIで処理された水は、約3700 m³の保管タンクに貯留された。この保管タンクの水は1991年以降蒸発処理された⁸⁾。

オリジナルの設計では、SDSの交換タイミングは200 Bed volume (45 m³) 処理し、3.2×10¹⁴ Bqの放射能を除去する。1981年から1987年までに使用済SDSの容器は19基が発生し、ワシントン州のハンフォードに輸送されて、4本はガラス化試験されているが、残りはオーバーパックに入れられて、2.7 m以上深さを確保して地中に保管されている⁶⁾。

第1表 TMI-2の原子炉冷却水と建屋滞留水の性状⁵⁾

| | 原子炉冷却水 | 建屋滞留水 | 総量 |
|-------------------|---------------------------------|--------------------------------|--|
| 容量 | 340 m ³ | 2650 m ³ | 2990 m ³ |
| pH | 8.2 | 8.6 | — |
| Na | 1350 ppm | 1200 ppm | 3600 kg |
| B | 3870 ppm | 2000 ppm | 38000 kg (H ₃ BO ₃) |
| Cs | 1.5 ppm | 0.8 ppm | 2.6 kg |
| Sr | <0.05 ppm | 0.1 ppm | 0.3 kg |
| 核種 | 原子炉冷却水 (Bq/cm ³) | 建屋滞留水 (Bq/cm ³) | 総量 (Bq) |
| ³ H | 6.3×10 ³ | 3.7×10 ⁴ | 9.3×10 ⁷ |
| ⁸⁹ Sr | 1.9×10 ⁵ * | 2.0×10 ⁴ | 1.1×10 ⁸ |
| ⁹⁰ Sr | 9.3×10 ⁵ * | 8.5×10 ⁴ | 5.2×10 ⁸ |
| ¹⁰⁶ Ru | 3.7×10 ³ | 7.4×10 ¹ | 1.5×10 ⁶ |
| ¹²⁵ Sb | 3.7×10 ² | 7.4×10 ² | 1.9×10 ⁶ |
| ¹³⁴ Cs | 3.7×10 ⁵ | 9.6×10 ⁵ | 2.5×10 ⁹ |
| ¹³⁷ Cs | 2.1×10 ⁶ | 5.9×10 ⁶ | 1.5×10 ¹⁰ |
| ¹⁴⁴ Ce | 1.1×10 ³ | 1.9×10 ¹ | 3.7×10 ⁵ |

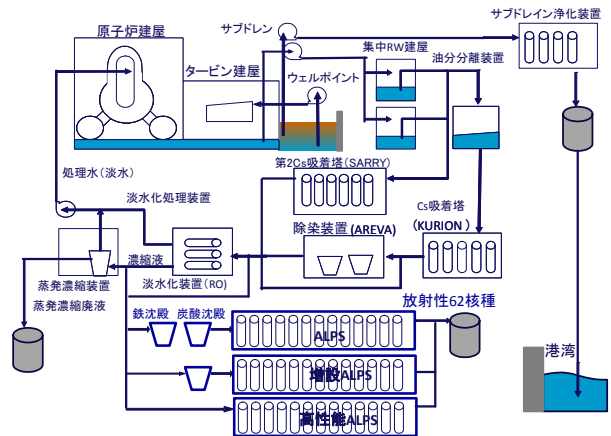
(1980年7月1日に換算) *一部沈殿のため変動



第2図 SDSベッセル³⁾

3. 福島第一原子力発電所の汚染水処理

1Fの汚染水処理は、第3図のように実施されているが、導入時期は設備により異なる。最初に導入されたのがKURIONやSARRYのようなCs除去を主眼に置いたCs除去設備(2011年6月〜)で、次に、トリチウム以外の62放射性核種の除去を目指した多核種除去設備:ALPS(2013年4月〜)で、地下水の浄化と海洋放出を行うサブドレン他浄化設備(2015年9月〜)を用途別に段階的に導入していった⁷⁾。ここでは、原子炉冷却用設備、多核種除去設備、サブドレン他浄化設備について解説する。



第3図 1Fの汚染水処理系統図

3.1 福島第一原子力発電所で発生した汚染水性状

事故直後の1Fのタービン建屋(TB)滞留水の放射性物質濃度を第2表に示す³⁸⁾。

第2表 1Fの事故直後(3/11)のタービン建屋滞留水の放射性物質濃度⁸⁾

| 核種 | 1号機TB (Bq/cm ³) | 2号機TB (Bq/cm ³) | 3号機TB (Bq/cm ³) | 4号機TB (Bq/cm ³) |
|-------------------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| ¹³¹ I | 5.5×10 ⁵ | 5.2×10 ⁷ | 2.5×10 ⁷ | 1.5×10 ⁵ |
| ¹³⁴ Cs | 1.2×10 ⁵ | 3.1×10 ⁶ | 1.6×10 ⁶ | 8.1×10 ³ |
| ¹³⁶ Cs | 2.4×10 ⁴ | 7.4×10 ⁵ | 4.1×10 ⁵ * | 2.1×10 ³ * |
| ¹³⁷ Cs | 1.3×10 ⁵ | 3.0×10 ⁶ | 1.6×10 ⁶ | 8.1×10 ³ |
| ¹⁴⁰ Ba | | 1.6×10 ⁶ | 1.2×10 ⁶ * | 6.2×10 ³ * |
| ¹⁴⁰ La | 4.4×10 ² * | 8.1×10 ⁵ | 2.0×10 ⁵ * | 1.0×10 ³ * |
| ³ H | 5.7×10 ² * | 2.6×10 ⁴ * | 3.0×10 ⁴ * | 1.5×10 ² * |
| ⁸⁹ Sr | 7.3×10 ¹ * | 1.2×10 ⁶ * | 1.4×10 ⁶ * | 6.9×10 ³ * |
| ⁹⁰ Sr | 1.7×10 ¹ * | 1.5×10 ⁵ * | 1.5×10 ⁵ * | 7.6×10 ² * |
| ^{99m} Tc | | 1.5×10 ⁶ * | 8.6×10 ⁵ * | 4.3×10 ³ * |
| ¹²⁵ Sb | | 2.3×10 ² * | | |

*¹³⁷Csをもとに推定値

タービン建屋の放射性物質濃度では1号機が少し低く、2号機や3号機が高い値になっており、2号機は、ほぼTMI-2の建屋滞留水と同じくらいの放射能になっている。1〜3

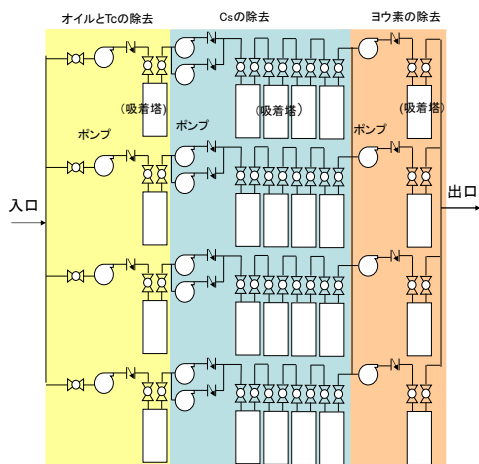
号機のタービン建屋の汚染水は、 ^{137}Cs の濃度は 1.3×10^5 Bq/cm³から 3.0×10^6 Bq/cm³で、ほぼ同程度であった。 ^3H の濃度は、 5.7×10^2 Bq/cm³から 2.6×10^6 Bq/cm³で、第1表のTMI-2の建屋滞留水の ^3H 濃度 3.7×10^4 Bq/cm³と少し異なっている。 ^{90}Sr 濃度は、 1.7×10^1 Bq/cm³から 1.5×10^5 Bq/cm³で、第1表のTMI-2の建屋滞留水の ^{90}Sr の濃度 8.5×10^4 Bq/cm³と2号機の ^{90}Sr 濃度がほぼ同じになっている。汚染水の発生量は、TMI-2では建屋滞留水と冷却水を含めて約3000 m³であるのに対して、1Fでは10万 m³を超えると推定された⁷⁾。TMI-2の汚染水は、冷却水起源だが、1Fでは、津波や海水による原子炉の冷却により、海水が多く含まれていることが特徴である⁷⁾。

3.2 原子炉冷却用設備

TMI-2の建屋滞留水処理は、事故の2年後から開始されたが、1Fでは、10万 m³以上の汚染水が存在しさらに増え続けていることから、外部被曝の影響の大きい放射性Csと放射性ヨウ素の除去を優先し⁷⁾、汚染水を浄化したのち原子炉の冷却水として利用するプロセスを導入した。最初に汚染水から油分などを取り除いた後、KURION社(以下「KURION」)のCs除去装置とAREVA社(以下「AREVA」)の除染装置により放射性Csを除去し、日立の淡水化装置で海水成分などの不純物を取り除いて原子炉の冷却水として循環させるプロセスで、2011年6月19日から運転が開始された⁸⁾。2011年の8月には、東芝のSARRYがCs除去プロセスに加わった。

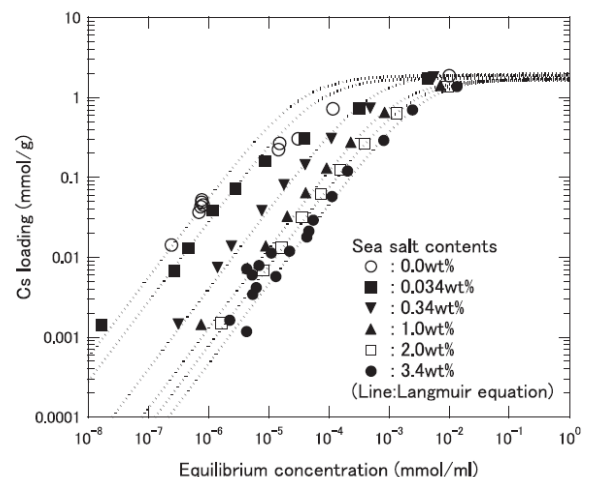
3.2.1 Cs除去装置 (KURION)

KURIONのCs除去装置は、第4図の左から油分などを除去するSMZスキッド(黄色)、中央のセシウムを吸着するHスキッド(水色)、右のヨウ素を除去するAGHスキッド(薄茶)の3つで構成され、同じ構成の4系統で同時運転が可能である¹⁾。各スキッドには、第2図のTMI-2のSDSベッセルと同じようなベッセル(カラム)に吸着剤が充填されている⁹⁾。吸着剤の種類は、SMZスキッドにはSMZ(Surfactant-modified zeolite)、HスキッドにゼオライトのHerschelite、AGHスキッドには、エンジニアングHerscheliteに銀を添着させたものが用いられた¹⁰⁾。



第4図 Cs除去装置 (KURION) の系統図¹⁾

1FのKURIONシステムの運転については、海水中の吸着剤のCsの平衡吸着性能¹¹⁾や吸着速度の評価¹⁰⁾、平衡吸着定数と吸着速度を用いたCs除去装置の運転シミュレーション¹²⁾、及びCs吸着後のカラムの放射線分解水素の挙動解析¹³⁾について詳細に報告されている。KURIONのHerscheliteが、第5図のCs平衡吸着等温図から海水成分によってCsの吸着特性が大きく変化することがわかる¹¹⁾。Cs平衡吸着等温図は、横軸にCsがゼオライトに吸着した平衡状態の溶液中のCs濃度 (mmol/cm³)、縦軸に平衡状態で吸着剤に吸着されたCsの吸着量 (mmol/g) がとってある。縦軸の値が大きくなるほどCsが効率よく吸着される。海水塩濃度0 wt%が純水に、海水塩濃度3.4 wt%が海水に対応する。図のように海水では、0 wt%のCs吸着性能に比べて1/100に低下するので、海水成分はCsの吸着に大きく影響する。1Fでは、運転直後は、津波や海水により原子炉の冷却を行われたため、2011年7月5日の滞留水の塩素濃度が16000 ppmもあり海水成分(海水塩2.8 wt%相当)が多いことわかる¹⁴⁾。このようなCsの吸着し難い条件で、KURIONのCs除去装置は運転されていた。



第5図 HerscheliteへのCsの平衡吸着等温図に及ぼす海水成分の影響¹¹⁾

平衡吸着量が低下している条件での運転には、カラムの交換が重要になる。KURIONのCs除去装置では、メリーゴーランド方式という方法でカラムを交換した。すなわち、1段目のカラムの吸着性能が低下するとこれを取り外し、それまでの2段目カラムを第1段カラムとして、同様に3、4段目のカラムをそれぞれ第2段、第3段目のカラムとして順次継続して用いる。カラムでのCs吸着量とCs除染能力を両立して最大限に引き出せる方法である¹²⁾。メリーゴーランド方式は、Cs吸着に対して効率良い運転ができるが、カラムの交換時期の見極めが大変重要になる。しかし、1Fのように汚染水の性状が変化しやすい条件でのカラム交換時期を推定するのは、大変難しく、シミュレーションによる予想が有効な手段となる。なお、KURION

のCs除去装置とAREVAの除染装置が直列で運転されていたが、2011年9月頃から、沈殿剤の投入にトラブルが生じやすく、除染後に二次処理が難しいスラッジ廃棄物が発生するAREVAの除染装置を停止し、KURIONのCs除去装置の単独運転になった¹⁾。KURIONのCs除染装置の構成を変えずにDF=10⁵以上で運転するには、交換日数と汚染水の流量が重要な運転条件になるが、シミュレーションによって、2日の交換日数で10 m³/hの流量で運転すれば、DF=10⁵以上が得られることがわかった¹²⁾。シミュレーションによる運転解析は、KURIONのCs除去装置の安定な運転には有効な方法である。

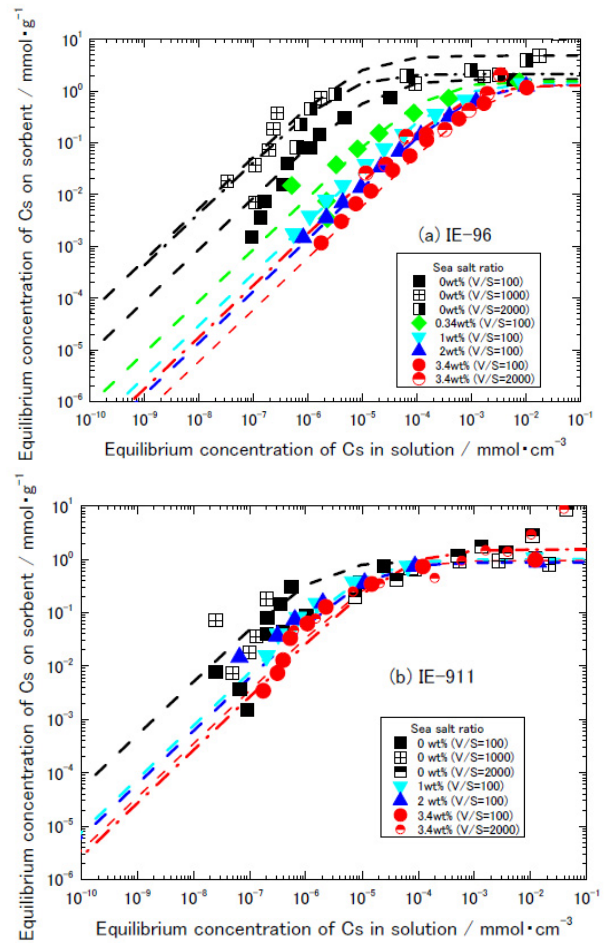
3.2.2 除染装置 (AREVA)

除染装置は、加圧浮上分離装置（油分等除去）、凝集沈殿2段（マルチフロー、アクチフロー）、ディスクフィルタ（懸濁物等の流出防止）から構成され、各工程は、バイパス運転が可能な装置である¹⁾。除染装置は、試薬を用いて放射性物質を吸着後に沈殿させる方法である。CsとBaの吸着にはフェロシアンニッケル（ppFeNI）が用いられ、SrはSr硫化物として沈殿させる¹⁵⁾。また、吸着試薬を凝集させるために砂とポリマーを使って凝集物を大きくすることが特徴的である¹⁶⁾。一般的な沈殿剤であるPAC（Poly Aluminum Chloride）に比べて沈殿する速度が速く、3秒後には沈殿が始まる。この沈殿剤の技術は、Veolia社の排水処理の経験によるものである¹⁾。最初に一次反応槽に、ppFeNIなどの薬液を注入して、Csなどの放射性物質を吸着させる。次に、高速沈殿装置（マルチフロー）の最初の槽に薬液を注入してpHなどを調整し、次の槽で砂を投入し、3番目の槽でポリマーを投入して共沈によりスラッジを沈殿させる。上澄み液は次の工程に行き、二次反応槽を経て超高速沈殿装置（アクチフロー）に行き、最終的にフィルタを通して排水される。除染装置は、2011年6月19日から9月15日まで稼働した。その処理実績は、処理した汚染水が8万 m³、DFはKURIONのCs除去装置と合わせて10⁵以上であった¹⁵⁾。この処理期間で593 m³のスラッジが発生している。このスラッジは、運転中プロセス建屋内のペレット貯留槽に保管されていたが、のちに鉄製のスラッジ保管タンクに移送された¹⁷⁾。スラッジについては、国際廃炉研究開発機構（IRID）で保管状況や安定固化などが研究されている¹⁷⁾。

3.2.3 第2Cs除去装置 (SARRY)

第2Cs除去装置（SARRY：Simplified Active water Retrieve and Recovery system）は、2011年8月17日から稼働した。KURIONのCs除去装置と同様に吸着カラムに汚染水を流すことによって除染する。米国のショー社による基本設計を基に東芝とIHIが製作した¹⁸⁾。吸着剤は、TMI-2で用いられたUOP社のIE-96とチタン酸シリカ系の吸着剤UOP-IE-911の組み合わせである¹⁸⁾。吸着塔の構成は、前段3段がIE-96のカラムで後段にIE-911のカラムがあり、最後にメディアフィルタを用いている。KURIONの

Cs除去装置と同じように、IE-96の3段のカラムについてメリーゴーランド方式で運転されている¹⁸⁾。吸着剤については、Herscheliteと同様に、第6図に示すように海水塩濃度によってIE-96とIE-911の両吸着剤ともにCs吸着性能が変化する¹⁹⁾。IE-911は、海水成分が多くても、IE-96に比べてCs吸着性能が高いという特徴がある。2系統で50 m³/hの処理ができることやKURIONのCs除去装置に比べて、廃棄カラムがあまり発生しないことから、2012年5月頃からSARRYが主にCs除去を行っている⁷⁾。



第6図 IE-96及びIE-911へのCsの平衡吸着等温図に及ぼす海水成分の影響¹⁹⁾

3.2.4 淡水化装置 (RO方式、蒸発濃縮方式)

Cs除去装置（KURIONとSARRY）でCsを除去した処理水を原子炉の冷却水に使用するためには、海水成分を除去しなければならない。そこで、逆浸透膜（RO：Reverse Osmosis）で海水成分を分離する方法を採用した²⁰⁾。逆浸透膜は水分子を通すが溶質イオンは通さない膜で、膜を介して海水と淡水を置くと淡水は海水中に“浸透現象”で移行する。そこで、海水成分側の水に圧力を加えると水は淡水側に移行するが、溶質イオンなどは通過しない。このような原理で脱イオン水を作る方法が逆浸透膜法（RO）である。ROの淡水化率は圧力などの条件により変

化するが、RO方式の淡水化装置では4:6の割合で淡水と濃縮水になる²⁰⁾。水処理エース製淡水化装置(約300 m³/日)2基と日立製淡水化装置(約1200 m³/日)2基が導入されている。この4基の運転を調整することにより、11 m³/hから75 m³/hの処理量を変動できる。淡水化装置は、受け水槽、ろ過装置、逆浸透膜、処理水槽の4つから構成されている。2011年6月17日から稼働し、原子炉の冷却水を供給している。

ROで濃縮された海水成分の濃い処理水を処理するため、AREVA製3基、東芝製5基の蒸発濃縮装置が導入された。蒸発濃縮装置は、海水成分の濃い処理水を加熱することにより水分を蒸発させて淡水化する。装置により処理量が異なり12.7 m³/日から250 m³/日で、淡水化率も30から70%である。2011年8月7日に2Aと2Bの蒸発濃縮装置(2基)、2011年8月31日に1Aから3Aまでの蒸発濃縮装置(3基)、2011年10月9日に3Aから3Cまでの蒸発濃縮装置(3基)が試運転された。2011年10月31日の時点で、約2250 m³の淡水に処理した²⁰⁾。その後、2011年12月4日に蒸発濃縮装置3Aの配管部分から濃縮水が漏洩し排水溝に入って港湾に流出した²¹⁾。RO方式淡水化装置の除染能力が十分にあることから、その後、2015年6月29日に蒸発濃縮装置は廃止された²²⁾。

3.2.5 CsとSrの同時吸着運転

2011年6月からKURIONのCs除去装置と第2Cs除去装置(SARRY)は放射性Csの除去をしていたが、吸着剤を変更することにより、2014年12月からCsとSrの同時吸着を実施している。KURIONのCs除去装置では2015年1月6日から、SARRYは2014年12月26日からCsとSr同時吸着処理を開始した²³⁾。KURIONのCs除去装置は、Cs除去では4系統運転だったが、CsとSr同時吸着ではHスキッドを直列(2系列)につなぐことにより、ストロンチウム吸着剤のカラムを通液する構成に変更されている²³⁾。そのため、処理能力は600 m³/日に低下した。SARRYの場合は、吸着カラムの前2段をCsとSrを同時吸着する吸着剤に変更して、次のカラムにはCsを吸着する吸着剤を充填する構成とした。系統を変更せずにカラムの吸着剤を変更するため処理能力は、1200 m³/日のままである。Sr除去性能は1/100~1/1000を目標としている。RO式の淡水化装置で濃縮された濃縮水は、Sr処理水として多核種除去装置(ALPS)で処理されるまでタンクに保管されている。

3.2.6 モバイル型Sr除去装置

2011年6月から2014年12月までは、KURIONのCs除去装置及び第2Cs除去装置(SARRY)は、Srを除去する機能を持たなかったために、RO方式淡水化装置で濃縮した汚染水には放射性Srが多く含まれていた。2013年4月から多核種除去装置(ALPS)で処理をしていたが、2014年7月頃には約35万 m³のSrを多く含む処理水がタンクに貯蔵されていた。このSrを多く含む処理水からSrを除去する簡易型の装置がモバイル型Sr除去装置である。モバイル除去装

置(2系統)と第2モバイルSr除去装置(4系統)があり、それぞれでSr除去を行った²³⁾。モバイル型Sr除去装置及び第2モバイルSr除去装置は、フィルタで固形物を取り除いた後に、吸着カラムを通すことによってSrを吸着する。モバイルSr除去装置の処理能力が300 m³/日、第2モバイルSr除去装置の処理能力が480 m³/日であり、Sr除去性能は1/100~1/1000を目標としている。モバイル除去装置は2014年10月2日から稼働し、14000 m³のSrを多く含むタンク水を処理し、第2モバイルSr除去装置は2015年2月20日から稼働し、2015年5月末にはSrを多く含むタンク水はなくなった。これにより放射性Srを多く含む汚染水がタンクから漏えいするリスクが低減された。

3.3 多核種除去設備(ALPS: Advanced Liquid Processing System)

多核種除去設備には、多核種除去設備(ALPS)、増設多核種除去設備(増設ALPS)、高性能多核種除去設備(高性能ALPS)の3つの設備がある⁷⁾。ALPSは、RO濃縮塩水から³H以外の放射性物質62核種を告示濃度限度以下まで除去する目的で設置された。ALPSと増設ALPSには前処理設備があり、高性能ALPSには前処理設備がない。すべてのALPSが多段の吸着カラムを備えている⁷⁾。

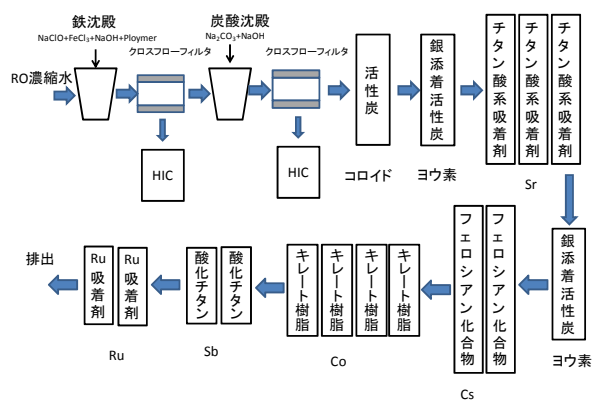
3.3.1 多核種除去装置(ALPS)

ALPSは米国エナジーソリューション社の基本設計で東芝が製作したもので、処理量250 m³/日を3系列備えている⁷⁾。前処理設備には、鉄共沈処理設備と炭酸塩沈殿設備があり、前処理の後、16塔の吸着カラムと2つの処理カラムを通して除染される。2013年4月から試運転を開始し、A系、B系、C系と段階的に運転してALPSの性能を確認していった。ALPSの処理フロー図を第7図に示す。

鉄共沈処理設備では、吸着剤による吸着の阻害要因となる除去対象核種の錯体を次亜塩素酸で分解すること、及び処理対象水中に存在するアルファ核種を水酸化鉄で共沈除去することを目的とし、次亜塩素酸ソーダと塩化第二鉄を添加した後、pH調整のために苛性ソーダを添加して水酸化鉄を生成させ、さらに凝集剤としてポリマーを投入する。炭酸塩沈殿設備では、吸着塔で放射性ストロンチウムの除去を阻害するマグネシウム、カルシウム等の2価の金属イオンを炭酸塩で沈殿除去することを目的とし、炭酸ソーダと苛性ソーダを添加し、2価の金属の炭酸塩を生成させる。沈殿したスラリー(鉄共沈と炭酸沈殿)は、クロスフローフィルタで分離されHIC(High-Integrity Container)容器に詰められ、廃棄物として搬出される。沈殿物には、炭酸カルシウムや水酸化マグネシウム中に放射性Srが多く共沈している²⁵⁾。HICの鉄共沈物と炭酸沈殿物の分析は国際廃炉研究開発機構(IRID)/日本原子力研究開発機構(JAEA)を中心に行われており²⁵⁾、さらにHICの処分方法も検討されている。

沈殿前処理の後には、吸着塔を通して放射性物質を除染する。最初にコロイドを活性炭のカラムで吸着し、チタ

ン酸の吸着剤でSrを吸着させ、フェロシアン化合物の吸着剤でCsを吸着させ、Ag添着活性炭でヨウ素を、酸化チタンでSbを、キレート樹脂でCoなど (M^{2+} , M^{3+}) 価数の変わるイオンを、樹脂系吸着剤でRuや負電荷コロイドを除去する²⁶⁾。ALPSは、試運転中に腐食²⁷⁾やクロスフローフィルタのパッキンの劣化²⁸⁾などのトラブルがあり、腐食対策として消耗電極とライナーで容器内を覆うことやパッキンの材質の改良などの対策を実施している。なお、Fortumのホームページでは、Cs吸着剤(Cs-Treat)とSr吸着剤(Sr-Treat)がALPSで用いられたと掲載されている²⁹⁾。Waste Management Symposia 2014ではALPS条件での性能試験結果も報告されている³⁰⁾。



第7図 ALPSの処理フロー図²⁶⁾

3.3.2 増設多核種除去装置（増設ALPS）

2013年4月のALPS稼働後も、2014年7月頃には約35万 m³のSrを多く含む処理水がタンクに貯蔵されており、その処理量を増やすために、増設ALPSは追加された。増設ALPSは、ALPSから鉄共沈設備を除いて、ほぼALPSと同じカラム構成で処理量250 m³/日の3系列を備えている。ALPSの経験から増設ALPSでは、ALPSで除去し難いCo、Sb、I、Ruの吸着剤カラムを増強している³¹⁾。2014年9月17日にA系列、2014年9月17日にB系列、2014年10月9日にC系列が、それぞれ試運転を開始した³¹⁾。増設ALPSは、RO濃縮廃液の処理を継続している。

3.3.3 高性能多核種除去装置（高性能ALPS）

高性能ALPSは、2013年4月のALPS稼働後もSrを多く含む処理水がタンクに貯蔵されており、その処理量を増やすために資源エネルギー庁補助事業：汚染水処理対策事業（高性能多核種除去設備実証事業）により新設された。ALPSと増設ALPSでは処理量に対する沈殿で発生するHICの発生量が多く、その低減のために高性能ALPSは前処理工程を持たず、フィルタと吸着剤のカラムだけで構成されている。ALPSや増設ALPSのような沈殿工程がないので、沈殿廃棄物のHICは発生しない特徴がある。処理対象であるRO濃縮水に含まれる微粒子をSSフィルタとCs/Srコロイドフィルタで分離し、次に、CsとSrの同時吸着カラム

を通す。次いでヨウ素や重金属イオンを吸着カラムで吸着し、キレート吸着剤や陰イオン吸着剤によりアニオン系のイオンを吸着する²⁴⁾。Ruを吸着するカラムを通して、最後にCsとSrの同時吸着カラムを通してSrを告示濃度以下にする。処理能力は、500 m³/日の1系統である。2014年10月18日から実証試験を開始した³¹⁾。2015年3月に補助事業は、検証作業を終えている³²⁾。

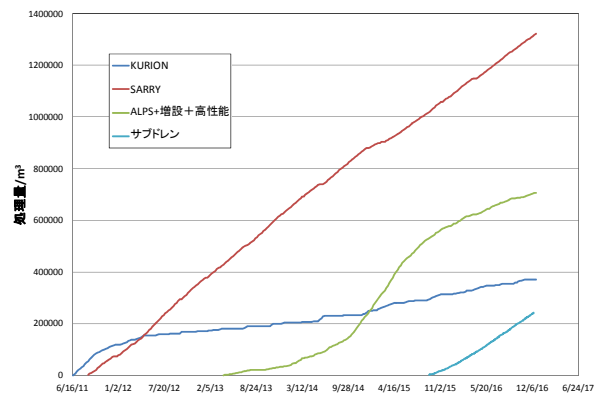
3.4 サブドレン他浄化設備

建屋滞留水への地下水の流入を抑えるために、サブドレンや地下水ドレンポンドから地下水を汲み上げて放射性物質を浄化して港湾へ放出する作業を2015年9月から開始している。これはPump & Treatと呼ばれる方法で、West valleyやHanfordなどでも同様の対策が取られている。サブドレンピットや地下水ドレンポンドのような井戸から汲み上げられた地下水は、3つの集水タンクに集められて、それを前処理フィルタで粒子などを取り除きCsやSrの粗取りフィルタを通した後、Sr吸着カラムとCs-Sr吸着カラム、Sb吸着カラム、重金属吸着カラムを通して一時貯蔵タンクに送られる³³⁾。一時貯蔵タンクの水が排出基準以下の場合には、港湾に放出される。

浄化設備の処理容量は1200 m³/日である。サブドレン他水浄化設備で処理された水の運用目標は、¹³⁴Csと¹³⁷Csが1 Bq/L以下、全βが3 Bq/L以下、³Hが1500 Bq/L以下で管理されている。

3.5 汚染水の処理実績

第8図に汚染水処理の累積処理量を示す³⁴⁾。2011年6月17日からKURIONとAREVAによる処理が始まり、2011年8月17日からのSARRYを合わせて160万トンを超えている。2014年12月からはCsとSrの同時除去を始めたが、それ以降の処理量も60万トンを超えている。ALPSが2013年4月から稼働し始め、増設ALPSと高性能ALPSが加わったことにより、2014年の9月以降に急激に処理量が増加して60万トンを超えている。



第8図 汚染水処理の累積処理量³⁴⁾

最後に、サブドレン他浄化設備が2015年9月に始まり、処理量は20万トンを超えている。このように100万トン

超える放射性物質を含む汚染水の処理は世界でも例がなく、KURIONとSARRYはほとんど停止することなく5年以上の間、Cs（2014年12月以降はCsとSr）の除去運転が継続されている。TMI-2などの事例を見るとデブリ取り出しが終了するまでの間は、浄化水の注入が継続すると考えられるので、汚染水の処理量は低下するかもしれないが、汚染水処理は長期にわたり継続するものと思われる。

4. まとめ

1Fでは、2011年の東日本大震災による原子炉の炉心溶融事故により、大量かつ高濃度の放射性物質を含む汚染水が発生した。その汚染水に様々な処理が行われ、それは今後さらに続くと思われる。TMI-2の事故は10年以内に汚染水処理が終了したが、ハンフォードやサバンナリバーなどのタンク水では処理プロセスの開発に数十年以上かかっており、現在も継続中である。このように汚染水処理は、原子炉の廃炉の段階や汚染の状況によっても要求される性能が変わるので、世界での先行事例を参考に、今後も技術開発を継続することが必要と考える。また、1Fでは、汚染水処理の二次廃棄物が発生していることから、今後、その安定化処理や処分方法などを確立することも重要な課題である。

最後に、本稿は事故後5年間の1Fの汚染水処理の概要を記したものである。1Fでの汚染水処理は、世界でも例のない汚染水処理量や稼働率が高いなどが特徴であり、ここで、得られたノウハウや経験を詳細に記録することは、重要な知見になると考える。

参考文献

- 1) 東京電力, “福島第一発電所放射性滞留水の回収・処理の取組み～水処理(放射能除去)の仕組み～”, http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_111029_02-j.pdf (2011).
- 2) 東京電力, “その他の浄化設備の構造”, http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2015/images/handouts_150115_08-j.pdf.
- 3) W. C. Holton, *et al.*, “The Cleanup of Three Mile Island Unit 2 A Technical History, 1979 to 1990”, EPRI NP-6931 (1990).
- 4) U. S. NRC, “Three Mile Island Accident of 1979 Knowledge Management Digest Recovery and Cleanup”, NUREG/KM-0001, Supplement 1, Office of Nuclear Regulatory Research (2016).
- 5) D. O. Campbell, *et al.*, “Evaluation of the submerged demineralizer system (SDS) flow sheet for decontamination of high-activity-level water at the three miles island unit 2 nuclear power station”, ORNL/TM-7448, (1980).

- 6) G. J. Quinn, *et al.*, “Submerged demineralizer system vessel shipment report”, GEND 035 Distribution Category: UC-78 TMI Supplement (1984).
- 7) 小山正史, “福島第一原子力発電所の汚染水処理について”, 科学と工業, 89 (12), 387-394 (2015).
- 8) 西原健司ら, “福島第一原子力発電所の滞留水への放射性核種放出”, 日本原子力学会和文論文誌, 11 1, 13-19 (2012).
- 9) T. Koyama, *et al.*, “R&D Back-ups for Design and Operation of Kurion Media System”, GLOBAL2011, No. 517994, Makuhari Chiba (2011).
- 10) T. Hijikata, *et al.*, “Early construction and operation of the highly contaminated water treatment system in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (II) – dynamic characteristics of KURION media for Cs removal in simulated contaminated water” J. Nucl. Sci. Technol., 51, 894-905 (2014).
- 11) T. Tsukada, *et al.*, *ibidem.* (I) – Ion exchange properties of KURION herschelite in simulating contaminated water”, *ibid.* 51, 7-8, 886-893 (2014).
- 12) K. Inagaki, *et al.*, *ibidem.* (III) – a unique simulation code to evaluate time-dependent Cs adsorption / desorption behavior in column system”, *ibid.*, 51, 906-915 (2014).
- 13) M. Kondo, *et al.*, *ibidem.* (IV) – assessment of hydrogen behavior in stored Cs adsorption vessel”, *ibid.*, 51, 916-929 (2014).
- 14) 別添: 福島第一原子力発電所における高濃度の放射性物質を含むたまり水の貯蔵及び処理の状況について (第3報) (東京電力株式会社), <http://www.dl.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/6016999> (2011).
- 15) T. Prevost, *et al.*, “Areva’s Actiflo™-Rad Water Treatment System for the Fukushima Nuclear Power Plant”, atw 57. Jg. Heft 5 Mai, 308-312 (2012).
- 16) A. Gay, *et al.*, “Multi-Phased, Post-Accident Support of the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant – 12246”, WM2012 Conference, February 26 – March 1, 2012, Phoenix, Arizona, USA (2012).
- 17) 国際廃炉研究開発機構, “放射性廃棄物の処理・処分に係る研究開発”, 平成26年度技術研究組合国際廃炉研究開発機構シンポジウム, 2015/7/18 (2015).
- 18) 有馬由紀ら, “福島第一原子力発電所の汚染水処理システムと東芝の取組み”, 東芝レビュー, 67 11

- (2012).
- 19) T. Tsukada, *et al.*, “Study on the radioactive wastewater treatment system for Fukushima Daiichi nuclear power station (I) Cs adsorption characteristics on sorbent”, NPC 2014, Sapporo Hokkaido (2014).
- 20) 東京電力, “福島第一発電所放射性滞留水の回収・処理の取組み～水処理(淡水化)の仕組み～”, http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_111105_01-j.pdf (2011).
- 21) 東京電力, “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)(改訂2)について説明資料”, 平成23年12月9日
<http://kn.ndl.go.jp/view/api/filedown/execute?persistentId=info:ndljp/>, (2011).
- 22) 東京電力, “福島第一原子力発電所 特定原子力施設に係る実施計画 変更許可申請書”, 平成27年6月29日,
<https://www.nsr.go.jp/disclosure/law/FAM/00000111.html> (2015).
- 23) 東京電力, “東京電力福島第一原子力発電所汚染水対策の対応”, 廃炉・汚染水対策現地調整会議, 2015年2月23日,
http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/1150223_12-j.pdf, (2015).
- 24) 東京電力, “福島第一原子力発電所 水処理設備について”,
http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2015/images/handouts_150115_08-j.pdf, 2015年1月15日 (2015).
- 25) 国際廃炉研究開発機構/ 日本原子力研究開発機構, “汚染水処理二次廃棄物の放射能評価の ための多核種除去設備スラリー試料分析”, 2015年8月27日, 2016年1月28日.
http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/roadmap/images/d150827_09-j.pdf.
- 26) 東京電力, “多核種除去設備(ALPS) 確証試験、設置工事の状況及び廃棄物の性状について”, http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/120625/120625_02j.pdf , 2012年6月25日(2012).
http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2016/01/20160128_2.pdf.
- 27) 東京電力, “多核種除去設備バッチ処理タンクからの漏えいを踏まえた今後の対応について”, http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/130725/130725_01n.pdf , 2013年7月25日(2013).
- 28) 東京電力, “多核種除去装置について”, <http://www.tepco.co.jp/news/2014/images/140409a.pdf>, 2014年4月9日(2014).
- 29) Fortum, “Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, accident site, Japan Cesium and strontium removal in ALPS system, since 2012-(continues)”,
<http://www.fortum.com/SiteCollectionDocuments/Products%20and%20services/References/Fukushima-cesium-removal.pdf>.
- 30) E. Tusa, “Cesium and Strontium Removal with Highly Selective Ion Exchange Media in Fukushima and Cesium Removal with Less Selective Media - 14018”, WM2014 Conference, March 2 - 6, 2014; Phoenix, Arizona, USA (2014).
- 31) 東京電力, “多核種除去設備(既設, 増設, 高性能)の稼働状況について”, 2014年11月7日.
http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/141107/141107_01e.pdf.
- 32) 東京電力, 日立GEニュークリア・エナジー, 東芝, “高性能多核種除去設備の検討状況について～事業の成果～”, 2015年3月30日
http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/osenusuitaisaku/committee/koseinou_tusk/2015/pdf/150330_01c.pdf .
- 33) 東京電力, “サブドレン他水処理施設の状況について”, 2016年8月26日.
<http://www.tepco.co.jp/news/2015/images/150826c.pdf>, (2015).
- 34) 別添: 福島第一原子力発電所における高濃度の放射性物質を含むたまり水の貯蔵及び処理の状況について(第1報から第284報)(東京電力株式会社)など.

一般財団法人電力中央研究所 土方孝敏
(2017年1月20日)