

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の分析

平成28年1月28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

日本原子力研究開発機構

本資料には、平成26年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発)」成果の一部が含まれている。

概要

- 事故後に発生した固体廃棄物は、従来の原子力発電所で発生した廃棄物と性状が異なるため、廃棄物の処理・処分の安全性の見通しを得る上で試料の分析が不可欠である。
- 多核種除去設備からの二次廃棄物は発生量と放射能の観点で重要である。放射能と性状の把握を、スラリー、吸着材毎に順次進める計画である。
- 多核種除去設備（既設及び増設）にて発生した炭酸塩沈殿スラリーの試料を採取して分析し、結果が得られたことから報告する。

廃棄物試料の分析状況

23-26	汚染水	<ul style="list-style-type: none"> 1～4号機タービン建屋滞留水等 集中RW地下高汚染水 濃縮廃水(RO) 高温焼却炉建屋地下滞留水 処理後水(セシウム吸着装置、第二セシウム吸着装置) 	25	http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_110522_04-j.pdf http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/120924/120924_01jj.pdf http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/130627/130627_02kk.pdf http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/131128/131128_01ss.pdf
	建屋内瓦礫 ボーリングコア	<ul style="list-style-type: none"> 1号機・3号機原子炉建屋1階瓦礫 2号機原子炉建屋5階(床)ボーリングコア 1号機原子炉建屋1階(床、壁)ボーリングコア 2号機原子炉建屋1階(床)ボーリングコア 	13	http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/130828/130828_01nn.pdf http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/150326/150326_01_3_7_04.pdf http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2015/pdf/1001_3_4d.pdf
	瓦礫 伐採木	<ul style="list-style-type: none"> 1、3、4号機周辺瓦礫 伐採木(枝、葉)、3号機周辺 生木(枝) 	24	http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/140130/140130_01tt.pdf
	立木 落葉、土壌	<ul style="list-style-type: none"> 構内各所の立木(枝葉)及びそれに対応する落葉、土壌 	121	http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/140227/140227_02ww.pdf http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/150326/150326_01_3_7_04.pdf
27	汚染水	<ul style="list-style-type: none"> 集中RW地下高汚染水、高温焼却炉建屋地下滞留水 処理後水(セシウム吸着装置、第二セシウム吸着装置) 	9	http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2015/pdf/0730_3_4c.pdf
	スラリー	<ul style="list-style-type: none"> 多核種除去設備スラリー(既設) 	2	http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2015/pdf/0827_3_4c.pdf
	汚染水	<ul style="list-style-type: none"> 集中RW地下高汚染水、高温焼却炉建屋地下滞留水 処理後水(セシウム吸着装置、第二セシウム吸着装置、除染装置、多核種除去設備) 	17	分析中
	瓦礫	<ul style="list-style-type: none"> 1、2、3号機原子炉建屋1階瓦礫 覆土式一時保管施設で採取した瓦礫 1号機タービン建屋砂 	50	分析中
	スラリー	<ul style="list-style-type: none"> 多核種除去設備スラリー(既設、増設) 	5	今回2試料分報告

分析試料の情報及び分析内容

試料名			採取日	採取者	線量率※ (mSv/h)
1	既設ALPS炭酸塩スラリー	EAL-S2-2	H27.2.19	JAEA	18
2	増設ALPS炭酸塩スラリー	AAL-S1-1	H27.5.13	JAEA	22
参考	報告済 既設ALPS炭酸塩スラリー	AL-S2-1	H26.6.11	JAEA	

※ 5mlを10mlバイアル瓶に収納したときの表面線量率。測定日はH27年5月27日。

- 高性能容器（HIC）にスラリーを充填し終えた時に試料を採取し、放射能・元素濃度を分析した。
- 以下の核種を対象として分析している。
 - γ線放出核種： ^{54}Mn , ^{60}Co , ^{94}Nb , ^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{154}Eu
 - β線放出核種： ^{90}Sr
 - α線放出核種： ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm
- 固液比、上澄液のpH、粒度分布の測定も実施した。

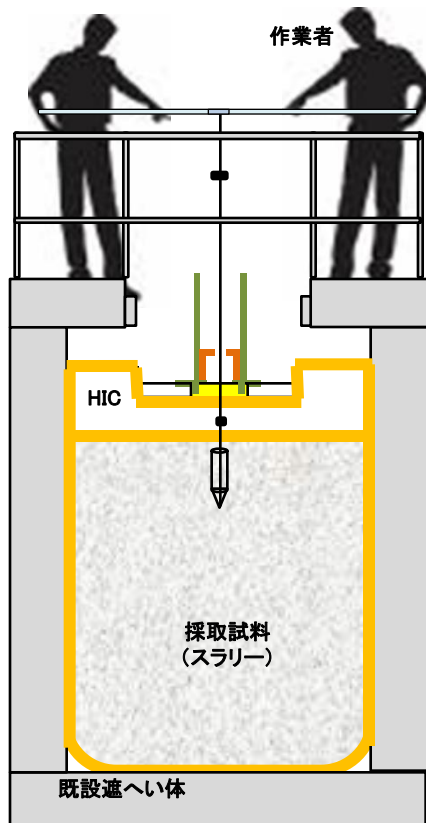
試料の採取

- 多核種除去設備(既設)にて発生したスラリーを2試料採取した。高性能容器(HIC)にスラリーが充填され交換する時に、専用治具を用いて採取した。

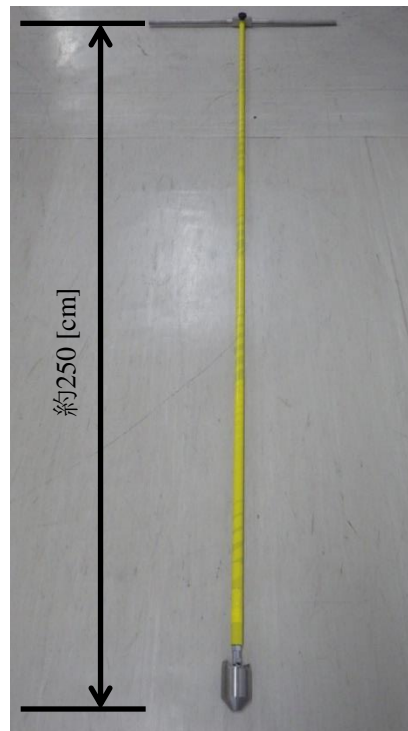
試料採取時の作業員被ばく線量

作業員 (3~4名)	実効線量(mSv)		等価線量* (手部)(mSv)
	既設 EAL-S2-2	増設 AAL-S1-1	
平均	0.14	0.12	4.5
最大	0.17	0.15	13.5

* 等価線量は、試料調製作業を含む当該月全体での値。



HICからの採取作業

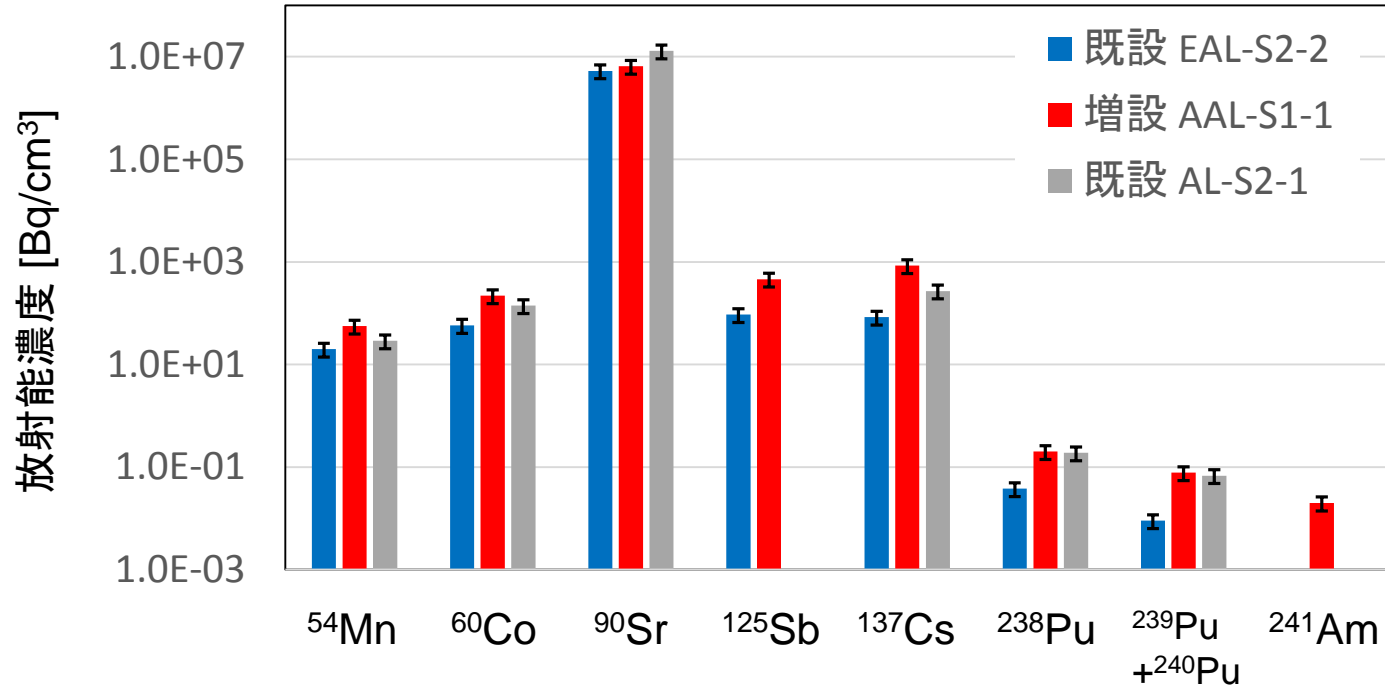


採取のための治具



現地での採取の様子

放射性核種分析結果



※エラーバーは計数值誤差

- いずれの試料についても ^{90}Sr が支配的であり、 ^{137}Cs 等の他の核種に比べて3桁以上も高い。
- ^{94}Nb , ^{152}Eu , ^{154}Eu : 全ての試料で不検出。
- 試料により値に差異がみられる。

固液比及び上澄液のpH

●固液比

スラリー試料を攪拌後、一定量分取し、蒸発乾固前後の重量から固液比を求めた。

No.	試料名	重量比(%)		【参考】容量比(%) *	
		固体	液体	固体	液体
1	既設 EAL-S2-2	8.1	91.9	3.3	96.7
2	増設 AAL-S1-1	12.1	87.9	5.1	94.9
参考	既設 AL-S2-1	13.7	86.3	5.9	94.1

* 主な仮定物質の構成比より比重を設定し算出

●上澄液のpH

スラリー試料を一定量分取し、ろ過法により上澄液を回収し、pHを測定した。

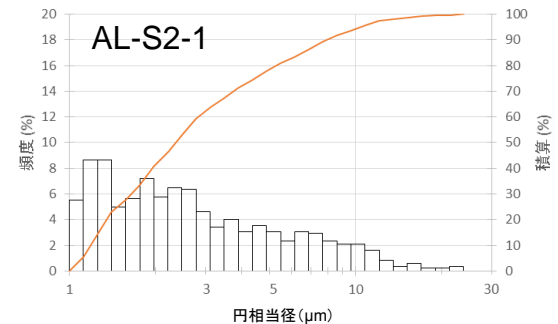
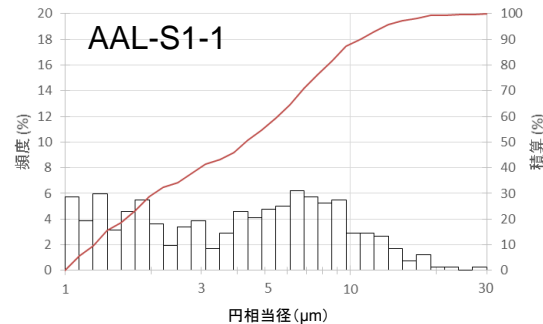
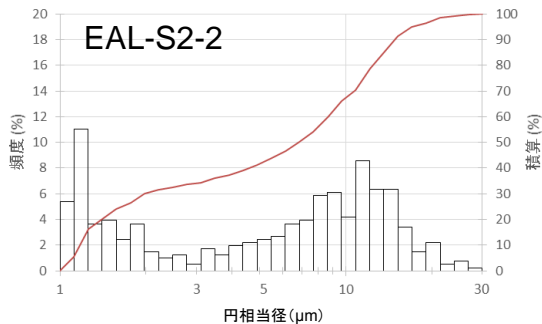
No.	試料名	pH
1	既設 EAL-S2-2	11.2
2	増設 AAL-S1-1	9.2 ※

※通常より若干低い値であることから、東電にて運転履歴等を確認中。

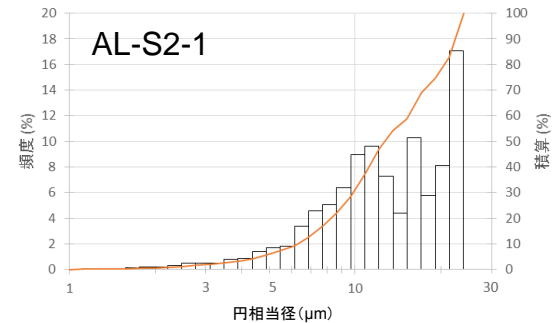
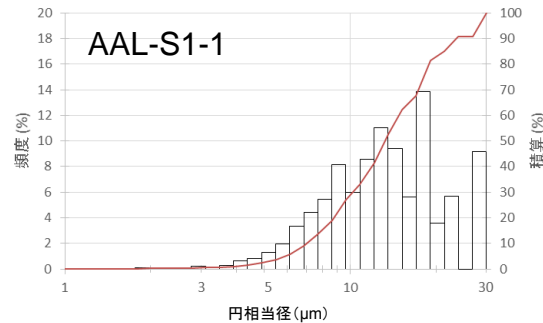
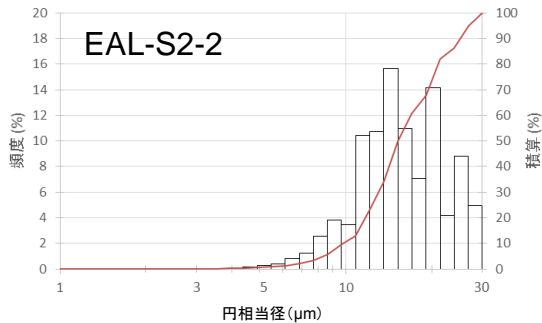
粒度分布

No.	試料名	粒子径測定結果(μm)		
		平均径 (個数基準)	メジアン径 (個数基準)	最大粒子径
1	既設 EAL-S2-2	7.40	6.85	29.4
2	増設 AAL-S1-1	5.27	4.30	26.9
参考	既設 AL-S2-1	3.62	2.36	23.2

個数基準

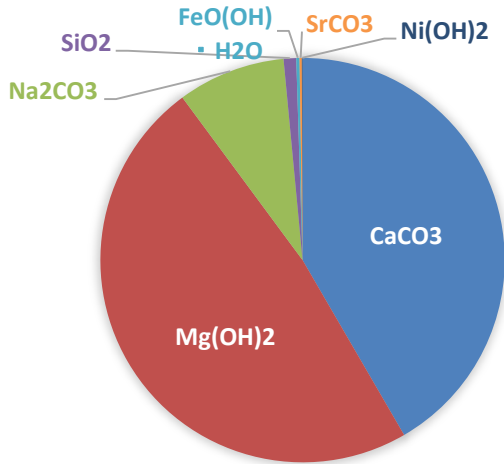


体積基準

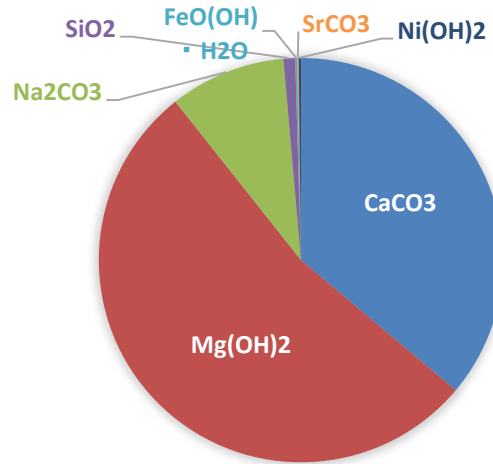


- 今回測定した試料には、2つのピークがあるように見える。
- 既設AL-S2-1に比べ、平均径、最大粒径ともに大きい。

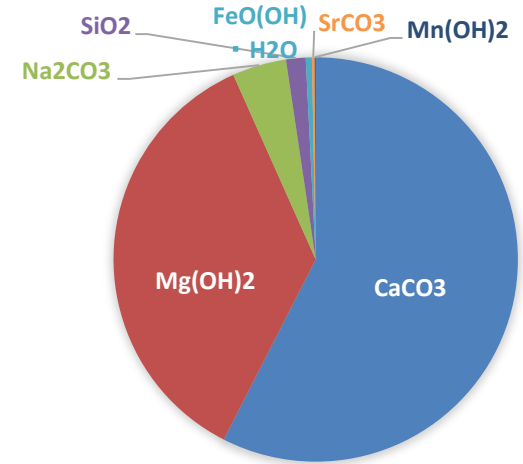
元素分析結果(スラリーの推定物質構成、重量比)



既設 EAL-S2-2



増設 AAL-S1-1



参考
既設 AL-S2-1

※代表的な物質を想定。

- いずれもCaCO₃とMg(OH)₂で約9割を占める。
- CaCO₃とMg(OH)₂の比率に差がみられる。供給水中の組成の影響と推定される。

まとめ

■ 検出された核種

^{54}Mn , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am

- 供給液中のCa及びMg濃度に依存するプロセスであるため、放射性核種濃度や粒度分布も供給液(RO濃縮塩水)組成の影響を受けて変動している可能性がある。

■ 今後の計画

- 試料によって、放射性核種濃度や粒度分布に違いが確認されたことから、新たなスラリー試料及び供給液(RO濃縮塩水)の分析・評価を順次進めていく。
- 水処理二次廃棄物の簡易的なインベントリ評価手法の確立に資するため、評価したインベントリの妥当性検証に分析結果を活用する。

参考資料

多核種除去設備スラリー試料の 放射能分析・元素分析

参考 γ 線放出核種分析結果

試料名		放射能濃度[Bq/cm ³]				
		⁵⁴ Mn (約312日)	⁶⁰ Co (約5.3年)	⁹⁴ Nb (約2.0 × 10 ⁴ 年)	¹²⁵ Sb (約2.8年)	¹³⁷ Cs (約30年)
1	既設 EAL-S2-2	(2.0 ± 0.4) × 10 ¹	(5.8 ± 0.3) × 10 ¹	< 1 × 10 ¹	(9.4 ± 0.2) × 10 ¹	(8.4 ± 0.1) × 10 ¹
2	増設 AAL-S1-1	(5.6 ± 0.4) × 10 ¹	(2.2 ± 0.1) × 10 ²	< 2 × 10 ¹	(4.6 ± 0.2) × 10 ²	(8.5 ± 0.1) × 10 ²
再掲	既設 AL-S2-1	(2.9 ± 0.6) × 10 ¹	(1.4 ± 0.1) × 10 ²	< 2 × 10 ¹	< 2 × 10 ²	(2.7 ± 0.1) × 10 ²

試料名		放射能濃度[Bq/cm ³]	
		¹⁵² Eu (約14年)	¹⁵⁴ Eu (約8.6年)
1	既設 EAL-S2-2	< 3 × 10 ¹	< 2 × 10 ¹
2	増設 AAL-S1-1	< 3 × 10 ¹	< 2 × 10 ¹
再掲	既設 AL-S2-1	< 4 × 10 ¹	< 3 × 10 ¹

- ⁵⁴Mn, ⁶⁰Co, ¹²⁵Sb, ¹³⁷Cs : 全ての試料で検出。
- ⁹⁴Nb, ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu: 全ての試料で不検出。
- 試料により値が異なる傾向がみられる。

試料の輸送日において補正。(EAL-S2-2とAAL-S1-1は2015.7.28の値、AL-S2-1は2014.9.25の値。)
分析値の±の後の数値は、計数値誤差である。

参考 α 線及び β 線放出核種分析結果

試料名		放射能濃度 [Bq/cm ³]				
		²³⁸ Pu (約88年)	²³⁹ Pu+ ²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am (約4.3 × 10 ² 年)	²⁴⁴ Cm (約18年)	⁹⁰ Sr (約29年)
1	既設 EAL-S2-2	$(3.8 \pm 0.5) \times 10^{-2}$	$(9.0 \pm 2.5) \times 10^{-3}$	$< 9 \times 10^{-3}$	$< 5 \times 10^{-3}$	$(5.3 \pm 0.1) \times 10^6$
2	増設 AAL-S1-1	$(2.0 \pm 0.1) \times 10^{-1}$	$(7.8 \pm 0.6) \times 10^{-2}$	$(2.0 \pm 0.4) \times 10^{-2}$	$< 6 \times 10^{-3}$	$(6.5 \pm 0.1) \times 10^6$
再掲	既設 AL-S2-1	$(1.9 \pm 0.2) \times 10^{-1}$	$(6.8 \pm 0.9) \times 10^{-2}$	$< 2 \times 10^{-2}$	$< 1 \times 10^{-2}$	$(1.3 \pm 0.1) \times 10^7$

α 線放出核種に関して

- 増設炭酸塩の濃度は報告済既設炭酸塩と同程度。
- 既設炭酸塩の濃度は報告済既設炭酸塩の1/5程度。

⁹⁰Srに関して

- 報告済既設炭酸塩の1/2程度。

試料の輸送日において補正。(EAL-S2-2とAAL-S1-1は2015.7.28の値、AL-S2-1は2014.9.25の値。)
分析値の±の後の数値は、計数値誤差である。

参考 元素分析結果

試料名		元素組成比〔wt%〕							
		Na	Mg	Si	Ca	Mn	Fe	Ni	Sr
1	既設 EAL-S2-2	3.7	20.0	0.47	16.6	ND	0.14	0.04	0.11
2	増設 AAL-S1-1	4.0	22.2	0.43	14.5	ND	0.08	0.11	0.07
再掲	既設 AL-S2-1	2.0	16.2	0.81	25.0	0.05	0.28	ND	0.14

試料名		物質構成比〔wt%〕（代表的な物質を想定）				
		Na ₂ CO ₃	Mg(OH) ₂	SiO ₂	CaCO ₃	Mn(OH) ₂
1	既設 EAL-S2-2	8.6	48.1	1.0	41.5	0
2	増設 AAL-S1-1	9.3	53.3	0.93	36.2	0
再掲	既設 AL-S2-1	4.7	38.9	1.7	62.5	0.09
		FeO(OH)・H ₂ O	Ni(OH) ₂	SrCO ₃	合計	
1	既設 EAL-S2-2	0.26	0.06	0.18	99.8	
2	増設 AAL-S1-1	0.16	0.18	0.12	100.2	
再掲	既設 AL-S2-1	0.53	0	0.24	108.7	

参考 分析方法

■ 方法

- 炭酸塩沈殿スラリーを硝酸で溶解した後、対象核種に応じて分離操作を適宜行い分析した。
- 濃度はスラリーの体積あたりとして求めた。

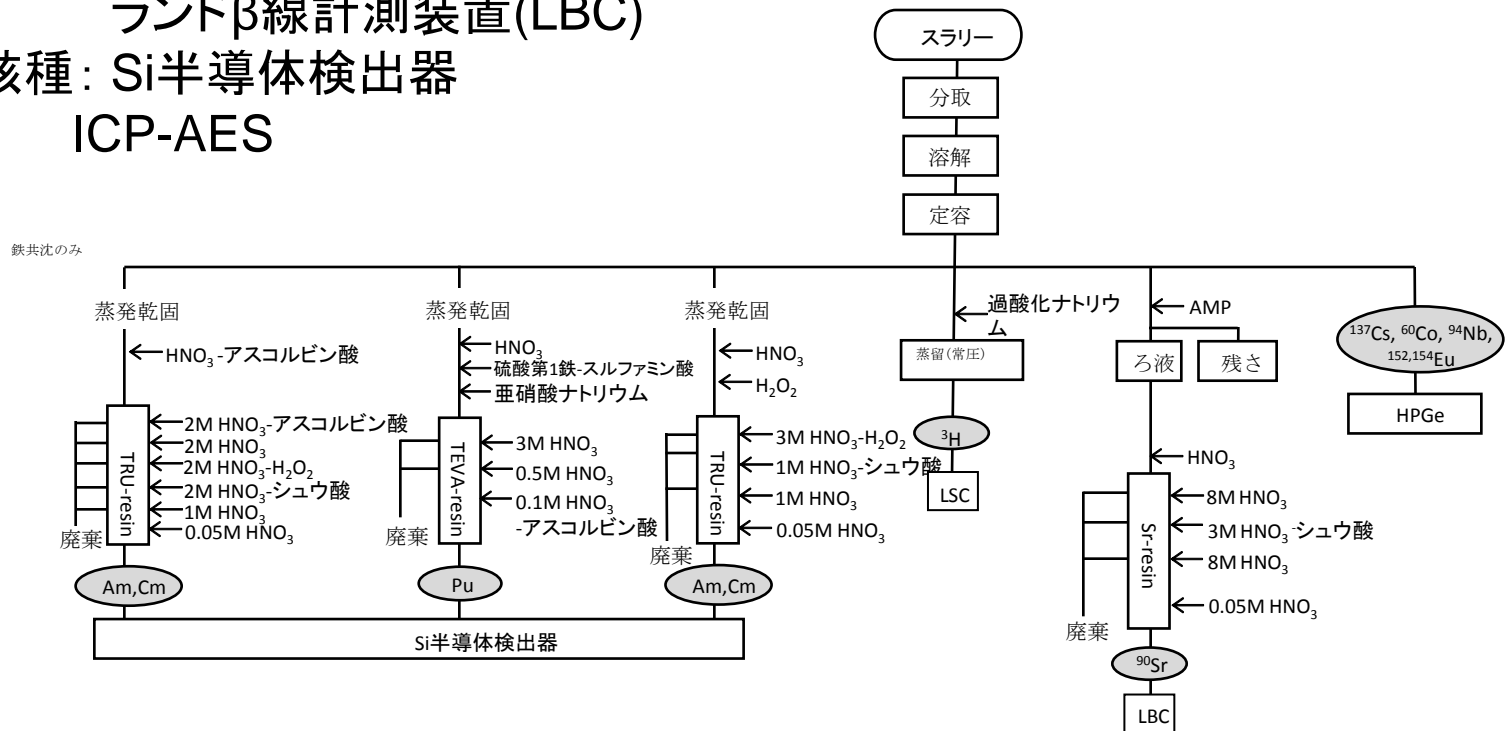
■ 分析装置

γ線放出核種：高純度Ge検出器(HPGe)

β線放出核種：液体シンチレーションカウンタ(LSC)又はガスフロー式低バックグラウンドβ線計測装置(LBC)

α線放出核種：Si半導体検出器

元素分析： ICP-AES



参考 粒度分布測定方法

■ 方法

- 炭酸塩沈殿スラリーを純水中に希釈・分散させ、これを分取しフィルター上で乾燥後、マイラー膜で密封し、顕微鏡で画像を撮影した。
- 得られた画像を、画像解析ソフトにより、バックグラウンド除去、モノクロ画像化、2値化、モフォロジー、穴埋め等の処理を行った。
- 重なり合った粒子及び粒子同士が接している粒子は削除・棄却した。

■ 装置、解析ソフト

- デジタル顕微鏡KH-1300(ハイロックス社製)
 - ・ 同軸落射ズームレンズ:MX-10C
 - ・ 対物レンズ:OL-70II(70-700倍)、OL-700II(700-7000倍)
 - ・ リング照明:NR-405-OL(拡散アダプタ:R-OL-D)
- 画像解析・計測ソフトウェアWinROOF2013(三谷商事社製)



左図 フィルタをマイラー膜ホルダに密閉した様子

右図 撮影した画像(例)

