

福島第一原子力発電所オンサイト廃棄物の処理技術開発

黒木亮一郎^{*1, *2}

東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所では、廃炉や汚染水対策などの進捗に伴いさまざまな廃棄物が発生しており、今後も廃止措置の工程に合わせ、さらに多種多様な廃棄物の発生が予想される。これら廃棄物については、廃炉を計画通り進捗させるとともに、将来の廃棄物処理に手戻りがないように、それぞれの特性に応じた発生から処分までの適切な管理方策を策定する必要がある。この策定に向けた技術的根拠を整備するため、国際廃炉研究開発機構(IRID)では廃棄物管理技術の研究開発を進めている。本稿ではこれら取り組みの概要と、オフサイトの除去土壌等に係る取り組みと連携の可能性のあるトピックスについて紹介する。

Keywords: 福島第一原子力発電所, 水処理二次廃棄物, 廃棄物管理, 処理

At the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station of Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc., various wastes are generated due to the progress of decommissioning and contaminated water treatment. A more variety of waste will be generated with progress of the decommissioning process. In order to proceed with decommissioning as planned and to prevent rework on conditioned waste in the future, it is necessary to formulate waste management measures with considering on the characteristics of waste. International Research Institute for Nuclear Decommissioning (IRID) is proceeding with research and development of waste management technology in order to establish the technical basis. This paper will introduce the outline and topics including those related to the removed soil.

Keywords: Fukushima Daiichi NPS, secondary waste generated by water treatment, waste management, processing

1 1F オンサイト廃棄物の概要

1.1 1F オンサイト廃棄物の特徴

東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所(以下、1F)では、廃炉や汚染水対策に伴いさまざまな放射性廃棄物が発生している。ガレキや伐採木などは、主に事故時に気中拡散したCsなどの揮発性核種で汚染しており、物量が多く表面が汚染されている。

汚染水処理などに伴って発生する水処理二次廃棄物は、主に燃料デブリ等との接触により溶出したSrなどの核種で汚染している。また、さまざまな浄化処理プロセスから発生しているためその化学特性も多様であり処理実績が乏しいうえ、核種の濃集により線量が高いものが多く、試料採取が非常に困難である。

2021年内からは燃料デブリの試験的取り出しが計画されており[1]、その作業に伴い燃料デブリが付着した廃棄物の発生が予想される。この廃棄物は核燃料物質を含む使用済み燃料中に存在する多種の核種に汚染されており、高線量であることが予想される。

これら廃棄物は津波による海水、臨界防止措置で投入されたホウ素、飛散防止剤等の化学物質が混合するものも存在し、また全体の廃炉工程が未確定のため、発生時期、量、種類など全体像が不明確であるとの特徴もある。

1.2 現在の発生状況

これまでの廃棄物の発生状況と当面の処理方針をTable 1に示す。既に発生した廃棄物については、その特性に応じ遮蔽構造等を有した設備などに適切に保管されている。

これら廃棄物は廃炉工程の進捗に応じて継続的に発生するため、廃棄物管理に係る中期的な計画を定め、さまざまな取り組みが進められている。処理の観点での取り組みとしては、保護衣の焼却処理や水処理二次廃棄物のより安全な保管に向けた脱水設備の検討などが進められている[2]。

今後は更なる安全な保管と最終的な処分を念頭にした廃棄物処理対策が必要となる。

Table 1 Waste generation status and current treatment policy [2, 3]

分類	保管量	将来発生	当面の処理方針
瓦礫類	311,000m ³	有	焼却、圧縮、破碎、再利用
伐採木	124,700m ³	有	焼却
保護衣	33,000m ³	有	焼却
水処理二次廃棄物	廃Cs吸着塔	1,032本	有 (未定)
	ALPSスラリー	3,792基	有 脱水
	除染装置スラッジ	468m ³	無 脱水
	濃縮廃液	9,380m ³	無 (未定)
	その他	—	有 (未定)
デブリ取出し廃棄物	未発生	有	(未定)
解体廃棄物	未発生	有	(未定)

1.3 廃棄物のリスク認識と対応

1Fの廃炉においては、国が定める「1Fの廃止措置等に向けた中長期ロードマップ(以下、ロードマップ)」において、放射性物質に起因するリスクを、継続的かつ速やかに下げるという廃炉の基本方針が示されている。この方針に沿ってリスク源の特定と評価がなされ、Fig.1に示す「十分に安定管理されている領域」に持ち込むことを当面の目標として取り組みが進められている[4]。

具体的には東京電力ホールディングス(株)(以下、東京電力)において、高性能容器(HIC)に収納されているALPSスラリーは脱水処理後に別容器にて安定保管を、除染装置スラッジは想定津波到達高さ以上の場所への保管を、屋外に保管されている瓦礫類は建屋内保管への集約をそれぞれ進めている[2]。

Processing Technology development of 1F on-site waste by Ryoichiro KUROI (kuroki.ryoichiro@jaea.go.jp.)

*1 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構

International Research Institute for Nuclear Decommissioning

〒105-0003 東京都港区西新橋 2-23-1 3 東洋海事ビル 5 階

*2 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33

本稿は、日本原子力学会バックエンド部会第37回バックエンド夏期セミナーにおける講演内容に加筆したものである。

廃棄物管理技術に係る研究開発についてもこれら方針・目標に沿って、比較的风险が高いとされる廃棄物を中心に、更なるリスク低減に向けた検討を進めている。

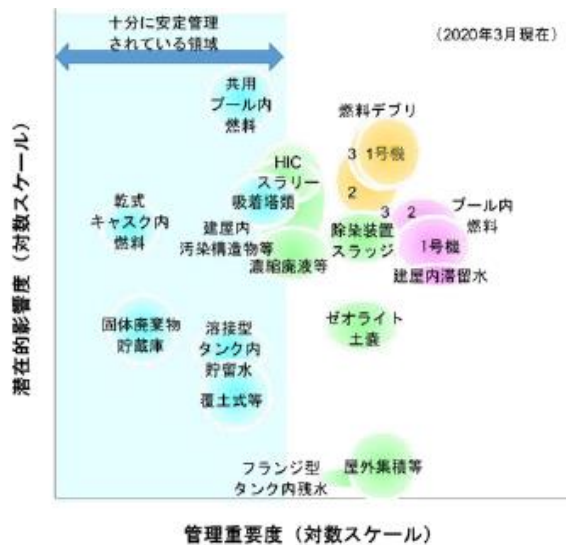


Fig.1 Example of risk levels assigned to the major risk sources at the Fukushima Daiichi NPS [4]

2 廃棄物管理技術に係る研究開発の概要

2.1 研究開発全体の目標

1F オンサイト廃棄物の研究開発については、2021 年度頃までを目処に、「処理・処分策とその安全性に関する技術的見通しを示す」との国の目標に基づき進められている[1]。技術的見通しのための具体的目標は、原子力損害賠償・廃炉等支援機構（NDF）が定める「1F の廃炉のための技術戦略プラン」で以下の事項が示されている[4]。

- 安全かつ合理的な処分概念の構築と安全評価手法の整備
- 性状把握のための分析・評価手法の明確化
- いくつかの重要な廃棄物に対する処分を念頭に置いた安定化、固定化のための処理技術の明確化
- 合理的な先行的処理方法の選定手法の構築
- 処理技術が明確となっていない廃棄物に対する処理・処分策設定の見通しの獲得
- 廃棄体化前の保管・管理に係る課題・対策の明確化
これを受けて、国内外の研究機関、大学、メーカなどが参画・分担し研究開発が進められている。

2.2 IRID の実施している研究開発

これら具体的目標の達成に向け、IRID では主要な研究開発を担当しており、処理技術に関しては保管・管理の検討と、先行的処理方法の選定手法の構築を実施している。

前者は直近の課題に対する検討として実施してきている。例えば、比較的风险が高いとされる水処理二次廃棄物のうち ALPS スラリーの脱水処理技術の検討については、乾燥、ろ過、遠心分離技術について実処理への適用性に係る比較検討を行うとともに、ALPS スラリーを保管している HIC からの取り出し手法などの検討結果を踏まえ、脱水プ

ロセスの概念を提示した (Fig.2)。現在この結果を基に、東京電力では 2022 年度の運用開始に向け設計・製作が進められている。このほか、燃料デブリの取り出し作業に伴い発生する高線量の廃棄物の安全な保管に向け、含有する水の放射線分解により発生する水素対策などを考慮した容器の検討なども進めている。

これに対して後者は比較的中長期的な課題として実施している。Fig.3 に示す通り「性状把握手法」、「処分安全評価手法」、「処理技術の適用可能性評価手法」の開発と、それぞれの手法により導出された成果を組み合わせることで評価しつつ、それぞれの成果を俯瞰的に統合することにより、成立する可能性のある処理・処分策（ストリーム）のオプション提示を可能とする手法を開発している。1F オンサイト廃棄物の全体像は現在のところ不明確であり、また処分概念自体も決まっていないことから、これら性状把握、処理、処分の検討ではそれぞれに仮定を置き並行して進めている。このため暫定的な評価結果を踏まえて、その内容をそれぞれの検討にフィードバックして精緻化を図りながら進めている。

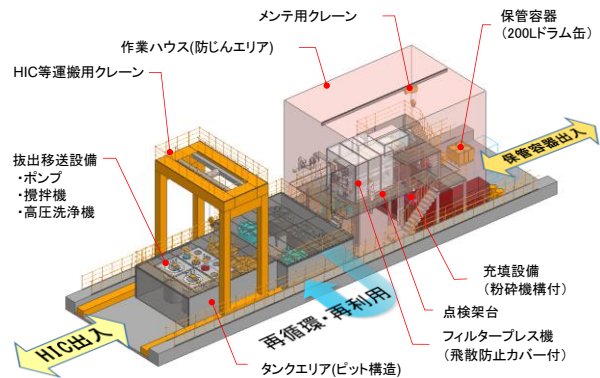


Fig.2 Conceptual diagram of dehydration process [5]

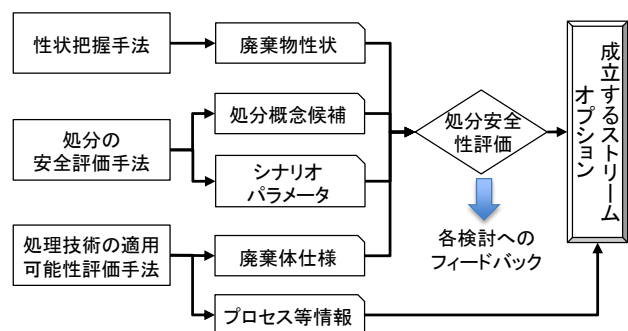


Fig.3 Schematic of selection of preceding processing method for major risk sources

2.3 廃棄物処理技術開発の概要

廃棄物の処理は極力合理的に進めることが好ましく、手を加える段階では最終的かつ安定的な形態とすることが理想である。また、処理により発生する二次廃棄物を含め廃棄物の増量や処理コストを低く抑えることも求められる。しかしながら廃棄物の性状はまちまちであり、単一の処理技術で全ての廃棄物を安定的な形態とすることは不可能で

ある。また処分概念が不確定な状況であり廃棄体に求められる要件が具体化されていない。

このため、1F オンサイト廃棄物のうち比較的风险が高いとされる水処理二次廃棄物を念頭に、国内外の原子力産業において比較的技術的成熟度の高い固化技術（Table 2）を対象として検討を進めた。検討に当たっては現行の規制動向を参考にしつつ、廃棄物特性に応じて固化可能な処理技術を抽出する方法と、抽出された処理技術により製造される固化体の基本特性、廃棄物の処理技術自体のさまざまな特徴に係る情報を収集・整理し、もって将来事業者が導入する処理技術の選定に資することが可能となるよう「処理技術の適用可能性評価手法」の構築を進めている。

Table 2 Processing technologies to be considered

分類		固化処理技術方式	
高温処理	ガラス固化	流下式	ジュール加熱(LFCM)
			誘導加熱(AVM,AVH)
			誘導加熱(CCIM)
		In-Can式	ジュール加熱(ICV)
	溶融固化	流下式	外部加熱(Dem&Melt)
			誘導加熱
低温処理	セメント固化	流下式	ブラズマ加熱
			誘導加熱
	AAM固化	In-Can式	誘導加熱
			誘導加熱

赤字：他事業者による実規模試験対象技術

処理技術の適用可能性評価手法の構築のため、主に低温固化処理技術に係る試験と、高温処理技術における充填可能範囲の検討、それぞれの処理技術に係る情報収集・整理を実施している。

低温固化処理においては、廃棄物が有する物理的、化学的特性による固化材自体の性能への影響と、作成された固化体に求められる性能との関係を考慮する必要がある、Fig.4 に示す通り求められる性能は処理の時点から埋設後までの時期によって異なる。

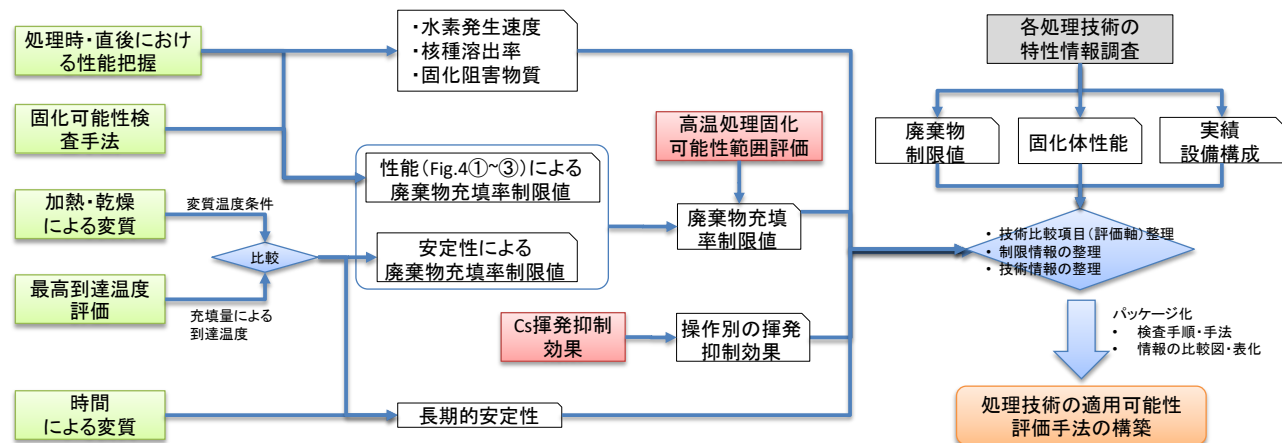


Fig.5 Relationship of items and parameters regarding investigation on processing technology

性能	処理	保管	処分
①流動性			
②硬化速度			
③圧縮強度			
④水素発生速度			
⑤核種溶出率			

Fig.4 Relationship between the parameters of performance for waste package and the steps of waste management

試験において取得できる保管や処分から求められる性能に係るデータは、固化処理操作から長くても数年後までのものであり、実際の保管や処分において求められる性能の時間スケールから比べると非常に短い。このため、低温固化処理に係る検討においては、処理から一定時間経過した後に取得した性能に係るデータが、長期にわたって変わらないことが期待される。そこで固化可能性の検査手法と廃棄物充填可能範囲の導出、固化処理後の固化体の性能データの取得と合わせて、保管環境の温湿度変化や、内包する放射能による崩壊熱などによる固化体性能の変質、埋設を想定して長期的な固化体鉱物相の変質についての検討を実施している。

高温処理に関しては、国内外で整備されているガラスデータベースの重回帰分析により導出した物性推算式と、各溶融技術のプロセス制限値から、高温処理可能な水処理二次廃棄物の充填可能範囲を導出するとともに、高温処理に伴い揮発が問題となる Cs の揮発抑制効果に係る検討を実施している。

これらと合わせて Table 2 に示す各技術の技術実績やプロセス性能、運転性・安全性、経済性、固化体特性に係る情報の収集・整理を行っている。

最終的にはこれらによって得られた情報、データなどを技術ごとに比較できるように整理するとともに、検査手法とパッケージ化することで、処理技術の適用可能性評価手法として整備した。

これら実施している検討項目と、処理技術の適用可能性評価手法の構築の関係性を Fig.5 に示す。

3 廃棄物処理技術開発のトピックス

オフサイトの除去土壌等の対策においては、対象物量が膨大なため「除去土壌等の減容・再生利用等を進めることが重要」とされている[6]。

本章では、今回のシンポジウムのテーマ「除去土壌等の県外最終処分の実現に向けた技術開発と研究の方向性」の議論の一助となるよう、1F オンサイト廃棄物の処理技術開発で実施しているもののうち、減容・再生利用等に関係すると思われる以下の事項を紹介する。

- 処理時・直後における性能把握
再生利用材の廃棄物固化原材料への利用可能性
- 時間による固化体の変質可能性
オフサイトの除去土壌等の主たる汚染源である Cs の溶出抑制
- 熔融時における Cs 揮発抑制効果
再利用処理の一環として実施されると想定される溶融操作時の Cs 揮発抑制

3.1 処理時・直後における性能把握

ALPS スラリー（炭酸塩スラリー：CS，鉄共沈スラリー：IS）を対象として、セメント（OPC）とアルカリ活性剤（AAM）による低温固化処理によって作成される固化体の性能に係るデータを取得した。

固化母材の試験水準は OPC：1 種，AAM：3 種（M：メタカオリン 100 wt%，MB20：高炉スラグ 20 wt%置換，MB40：高炉スラグ 40 wt%置換）とし、Table 3 に示す基準を満足する配合範囲を、以下の 3 軸からなる三元図で表したうえで、その範囲において安定した固化処理が可能な代表配合を Table 4 の通り設定した。

OPC：[OPC]－[廃棄物]－[水]

AAM：[固化母材＋SiO₂＋Na₂O]－[廃棄物]－[水]

Table 3 Criteria used for formulation study

項目	流動性	凝結性	圧縮強度	材料分離
試験方法	J14漏斗流下時間 (JSCE-F-514)	始発時間 (JIS R5201)	圧縮強度 (JIS R5201)	ブリーディング (JSCE-F522)
基準値		急結なし & 24 時間以内で硬化	1.47 N/mm ² 以上 (材齢28日)	原則24時間以内に消失

Table 4 Mixing ratio applied to slurry solidification

廃棄物		充填率 wt%	水/固体比		
CS		30	53.8		
IS		20	48		
廃棄物	母材	充填率 wt%	Si/Al比 mol比	Na/Si比 mol比	水/固体 wt比
CS	M	30	1.8	1.2	91.6
	MB20	30	1.8	0.7	86.0
	MB40	30	1.8	0.8	80.1
IS	M	20	1.9	1.00	100
	MB20	20	1.9	1.00	93
	MB40	20	1.9	0.95	87

本配合により作成した固化体を対象に、溶出性能と水素発生性能についてそれぞれ取得した。

まず溶出性能については、固化体マトリクス成分の溶出挙動を確認するため、平衡溶解試験を実施した。試験は各水準に CS および IS を混合した固化体を粉砕し、100 μm のふるいにかけたものを、液固比が 10～2,000 g/g となるよう純水中にそれぞれ 4 週間浸漬し、液相中に溶出した元素を ICP-AES で分析し、それぞれの液固比における固化体中の母材構成比を Fig.6 の通り算出した。ALPS スラリーの種類および母材の試験水準によらず、OPC は母材組成比を変化させながら溶解する一方で、AAM は母材組成比（Si/Al）が一定のまま溶出していることがわかった。

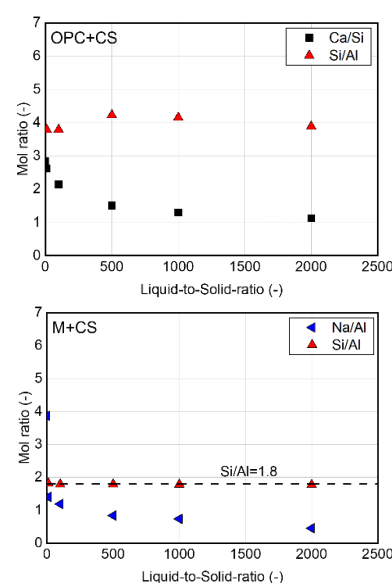


Fig.6 Relationship between ratio of substance for solid and liquid-solid ratio

続いて、固化体中に含まれる核種の溶出挙動を確認するため、ANSI/ANS16.1 に準拠した溶出試験を実施した。

添加した核種は 1F オンサイト廃棄物の処分検討において抽出された重要核種のうち、主要な核種および代替となる 4 種の安定核種 Cs，Sr，Sn，Ce を選び、その添加量は 0.1 wt%とした。核種を添加して作成した固化体の 10 倍量の純水に試料を浸漬し、液相は定められた時間間隔で交換し最大 2,184 時間まで浸漬した。交換した液相中の核種を ICP-AES で分析し、溶出率と LI (Leachability Index) を導出した。その結果を Fig.7 に示す。

ALPS スラリーの種類および母材の試験水準によらず、Cs および Sr については OPC よりも AAM で、Sn に関しては OPC の方がそれぞれ閉じ込め性能が高いことが確認された。Cs に関してはアルミノシリケート構造中に取り込まれている Na イオンと置換し、安定的に存在している可能性が考えられる。一方で Ce について OPC，AAM いずれでも閉じ込め性能が高い。廃棄物中に含まれる核種や、処分方法によって閉じ込めを期待する核種によって、優位性のある固化処理方法が異なることがわかった。

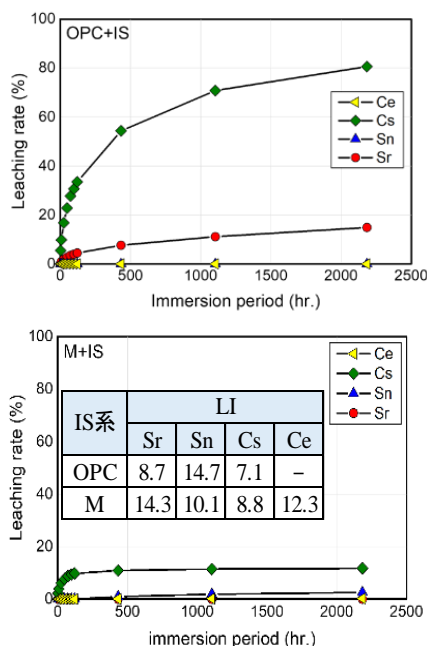
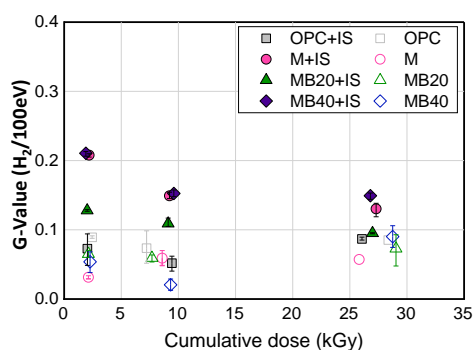


Fig.7 Leaching rate and LI of several elements[7]

次に、廃棄物中の放射性物質による水などの分解に伴う水素発生特性を確認するため、 γ 線照射試験を実施した。

作成した各固化体を照射セルに密封し、積算線量が 3, 10, 30 kGy となるように、 γ 線 (Co-60 線源) を照射した。積算線量はセルに設置した線量計で計測した。所定線量照射後にセル内のガス中の水素をガスクロマトグラフにて定量し、水素ガスの G 値を求めた。算出された鉄共沈スラリー混合固化体とスラリー非混合の固化体の G 値を Fig.8 に示す。

固化体の G 値は概ね 0.05~0.2 $\text{H}_2/100 \text{ eV}$ をとりスラリーの混合系では G 値が AAM > OPC の傾向を示した。別途測定したデータによると、空隙率・径と固化体中の自由水量の関係性が示唆された。


 Fig.8 Relationship between G-value ($\text{H}_2/100\text{eV}$) of several items and cumulative dose

3.2 時間による固化体の変質可能性

廃棄物の処分の観点からは、固化体からの核種の溶出特性が一定であれば、処分施設への負荷軽減が可能となる。核種が収着している固化体中の特定のサイト（構成相）が変化しなければ、3.1 で取得した溶出挙動が長期的に安定であると考えられる。そのため、3.1 で示した平衡溶解試験と γ 線照射試験に加え、非平衡溶解試験を実施し、構成相の

変化や固相中の物質移動、空隙の変化などを確認するため、浸漬および照射後の試料を対象に、XRD、TG/DTA、SEM/EDS、EPMA、NMR、MIP の各分析を実施した。炭酸塩スラリーを混合した OPC および AAM 固化体の浸漬前後における XRD 分析結果を Fig.9 に示す。

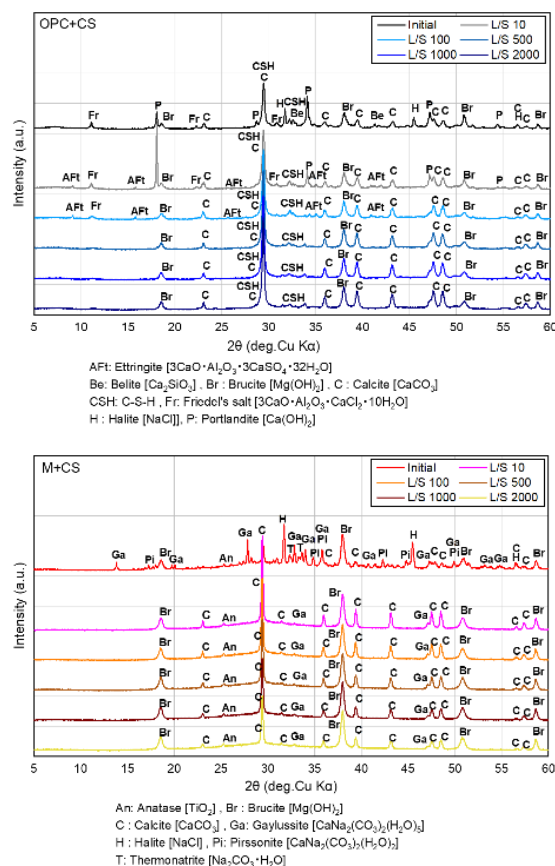


Fig.9 XRD analysis results before and after immersion test

OPC 固化体については、浸漬に伴いスラリー成分の可溶性塩 (Halite) の消失と合わせて、Portlandite などのセメント鉱物の成分に変化が見られた。一方で AAM 固化体については、スラリー及び AAM 鉱物成分中の可溶性塩 (Halite, Gaylussite など) の消失は確認されたものの、浸漬後ではスラリー由来成分のピーク以外は確認されなかった。この傾向については、固相の元素分布、配位、空隙などの結果とも整合した。また、照射による構成相の変化は確認されなかった。これら結果より、AAM 固化体については長期的な構成相変化の可能性は低く、3.1 の結果と合わせて、初期の段階で溶出しにくい核種に対しては、長期的に固化体母材の溶解速度で核種の浸出が制限される可能性が示唆された。

なお、一部の MB40 系の試料では、ゼオライト鉱物のピークが確認されたため、今後これらについての検証が必要である。

3.3 溶融時における Cs 揮発抑制効果

1F オンサイト廃棄物についてはこれまで述べてきた低温固化処理のほか、溶融、ガラス固化などの高温処理についての検討が進められている。1F オンサイト廃棄物では Cs リッチなものが多く、高温処理した場合には再揮発が生

じる恐れがある。このため、既存の知見から高温処理時にCs揮発抑制効果を有する可能性のある以下の3つの手法に着目して、その揮発抑制効果を確認した。

- コールドキャップ：溶融表面に廃棄物の低温層を常時形成させることで、揮発界面の温度を低下させ揮発量を抑制する方法
- トップオフフリット：溶融の最終段階で、比較的低温の熔融性材料を供給し、表面にCsを含まない層を形成させてCsの揮発量を抑制する方法
- ホウ素事前添加：ホウ素が混合した場合、Csの主たる揮発形態がホウ素との化合物であることに着目し、ガラス化剤へのホウ素の添加量・形態操作により揮発を抑制する方法

このうち、コールドキャップとトップオフフリットについて、Fig.10に示す試験体系を用いてオフガス系へのCsの揮発量を測定した。その結果をTable 5に示す。いずれの手法についても揮発抑制効果があることが確認されるとともに、コールドキャップについてはオフガス系への再揮発は確認されなかった。

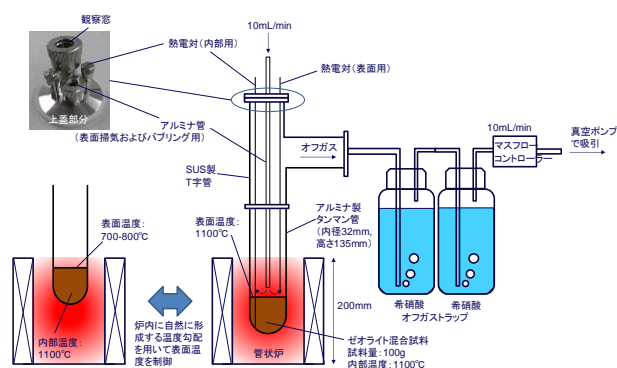


Fig.10 Conceptual diagram of the test equipment

Table 5 Cs volatile rate in each method

	対策なし	コールドキャップ	トップオフフリット
揮発率	0.043%	0.000%	0.033%

4 今後の展望

今回は詳細に報告できなかったが、1F オンサイト廃棄物のうち、主にリスクと物量の観点から一部の水処理二次廃棄物を中心に、3章で述べた試験結果などとともに、実際の廃棄物を用いた簡易検査により低温固化処理の適用性と、作成される固化体の性能を簡便に判定する手法(Fig.5の固化可能性検査手法)を構築してきた。今後の長期にわたる廃炉工程を勘案して、幅広い廃棄物に対しても適用できるような一般化を目指すとともに、更なる簡易化を図る予定である。

謝辞

本稿には、経済産業省「廃炉・汚染水対策事業費補助金(固体廃棄物の処理・処分に係る研究開発)」で得られた成果の一部を含む。

参考文献

- [1] 廃炉・汚染水・処理水対策関係閣僚等会議(第4回), 資料2, 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ(案), 令和元年12月27日(2019).
https://www.kantei.go.jp/jp/singi/hairo_osensui/dai4/siryou2.pdf (accessed 2021-9-17).
- [2] 東京電力ホールディングス株式会社: 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の固体廃棄物の保管管理計画 2020年7月版, 2021年7月29日(2021).
https://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/roadmap_progress/pdf/2021/d210729_10-j.pdf#page=5 (accessed 2021-9-17).
- [3] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第91回), 資料3-4, 瓦礫類, 伐採木, 保護衣類の保管状況, 令和3年6月24日(2021).
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2021/06/91-3-4-3.pdf> (accessed 2021-9-17).
- [4] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構: 東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン 2020, 2020年10月6日(2020).
https://www.dd.ndf.go.jp/files/user/pdf/strategic-plan/book/20201006_SP2020FT.pdf (accessed 2021-9-17).
- [5] 国際廃炉研究開発機構: パンフレット(叢智を結集した未知の領域への挑戦)
https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2021/09/IRID_2021_01.pdf (accessed 2021-9-17).
- [6] 福島復興再生基本方針, 令和3年3月26日閣議決定(2021).
https://www.reconstruction.go.jp/topics/sozai/210326_honbun.pdf (accessed 2021-9-17).
- [7] 金子由久 他: 福島第一廃炉汚染水処理で発生する廃棄物の先行的処理に係る研究開発(18)低温処理材料の核種浸出特性. 日本原子力学会 2021秋の年会, オンライン, 令和3年9月8~10日, 3A03(2021).