

## 第2章

放射性廃棄物の  
減容処理への応用

---

2-1 低レベル放射性廃棄物の減容処理への応用 ……………	12
2-1-1 低レベル放射性雑固体廃棄物の発生状況	
2-1-2 アークプラズマ溶融技術の適用性評価の視点	
2-1-3 溶融固化体の物性	
2-1-4 溶融時の核種挙動	
2-1-5 Csのスラグ層への捕捉率の推定手法	
2-1-6 研究成果の電気事業への貢献	
2-2 TRU 廃棄物処理への応用 ……………	18
2-2-1 TRU 廃棄物の現状	
2-2-2 耐火系るつぼを用いた逐次溶融法の提案	
2-2-3 溶融時の核種挙動	

---

## 2-1 低レベル放射性廃棄物の減容処理への応用

アークプラズマ加熱は、廃棄物の物理・化学的性質に左右されずに超高温を容易に発生できる。当研究所は、この特長に着目し、低レベル放射性雑固体廃棄物の一括処理へのアークプラズマ溶融技術の適用できることを明らかにした<sup>(1)~(12)</sup>。さらに、最終処分前の放射エネルギーに重要なセシウム (Cs) が、溶融固化体に捕捉される割合を推定する手法を確立した<sup>(13)~(15)</sup>。また、これらの処理におけるアークの安定性に関する研究を推進した<sup>(16) (17)</sup>。

### 2-1-1 低レベル放射性雑固体廃棄物の発生状況

原子力発電所から固体状で発生する低レベル放射性廃棄物には、液体廃棄物を固型化処理したもの、発電所の運転や定期点検に伴って発生する金属、保温材などの雑固体廃棄物などがある。最近では雑固体廃棄物の溶融固化設備も順調に稼働しており、雑固体廃棄物を溶融固化した廃棄体も含まれる。低レベル放射性固体廃棄物の年間発生量は、2002年度以降は5~6万本前後で推移し、2007年度の累積保管量は約60万本に達している<sup>(18) (19)</sup>。

また、低レベル放射性雑固体廃棄物の種類別発生割合の調査結果<sup>(20) (21)</sup>によれば、1992年度末で、金属類が最も多く、体積割合で48%、重量割合では70%以上を占めている。次いで体積割合では、塩化ビニル・ゴム類の難燃物、保温材の不燃物、フィルタ類が多い。これらの種類以外に、工事などに伴うコンクリートや、可燃物を焼却処理した後の焼却灰などが発生している。

雑固体廃棄物の特徴としては、その種類が多岐に亘っていること、また、厳密な分別が難しいこと、融点の高い廃棄物も含まれていることが挙げられる。分別が難しい理由として、気体フィルタやケーブル類のように、廃棄物そのものが金属、不燃物あるいは可・難燃物の複数の種類から構成されている場合や、金属部品などが養生用のシートで包まれてドラム缶に収納されている場合があることが挙げられる。また、融点の高い廃棄物の例としては、焼却炉の除塵設備で用いられている濾材（セラミックフィルタ (C/F) エレメント）や土砂などが挙げられる。

### 2-1-2 アークプラズマ溶融技術の適用性評価の視点

本研究を開始した1990年頃では、液体廃棄物を固型化処理した廃棄体の第1次埋設処分事業が許可されたところであり、関連法規制などの整備が行われ、廃棄体の技術基準などが定められていた<sup>(22)</sup>。この技術基準を参考に、低レベル放射性雑固体廃棄物を模擬した試料を溶融する実験を通し、雑固体廃棄物の一括処理へのアークプラズマ溶融技術の適用性を評価するため、次のように適用性を評価する基準を設定した。

#### (1) 溶融固化体の物性

作製した溶融固化体が最終処分に適することを評価するために、以下の物性に対し評価基準を設定した。

##### ①機械的強度

第1次埋設処分では、200ℓドラム缶に固型化された廃棄体は、処分場で鉄筋コンクリートのピット内に積み重ねられた後、モルタルで空隙を埋め覆土される。埋設時には自重などで破損しないだけの強度が廃棄体に要求される。溶融固化体は、比重の違いから下部が金属層、上部がスラグ層の2層構造となり、このうちの脆いスラグ層について一軸圧縮強度を明らかにした。評価の基準は、第1次埋設処分に用いられているセメント均質固化体の一軸圧縮強度（20~50MPa程度）と同等以上であることとした。

##### ②均質性

廃棄物を200ℓドラム缶に直接もしくは圧縮減容して収納しモルタルを充填する固型化方法に比べ、溶融固化体を200ℓドラム缶に収納しモルタルを充填する固型化方法は、比重や核種の分布が均一になりやすいという特長を持つ。このため、廃棄体に含まれる放射エネルギーの評価が容易になる。つまり、廃棄体に含まれる放射エネルギーの確認には、計測の比較的容易なCo-60（コバルト）とCs-137の放射エネルギーを実測し、他の核種については予め定めた適切な係数を乗じて求めるスケールリングファクタ (SF) 法<sup>(23)</sup>などが適用される。この際、比重やCoとCsの濃度の分布が均一であれば、計測結果の誤差評価などが容易になる。均質性の評価基準は、高周波誘導加熱<sup>(24)</sup>や誘導加熱など<sup>(25) (26)</sup>による報告を参考にして、溶融固化体の金属層とスラグ層の各々について、比重と

模擬核種の濃度の変動係数（標準偏差を平均値で除した値）が10%より小さいこととした。

③核種閉じ込め性

最終処分場では、廃棄体はモルタルを通過した環境水に接する。廃棄体から環境水への核種の溶出率は、処分場の設計などに重要である。ここでは、熔融固化体の脱イオン水中での模擬核種の溶出率を、高レベル放射性廃液のガラス固化体の結果<sup>(27)</sup>と比較した。また、処分場の環境水を模擬した溶出液での溶出率も取得し、核種閉じ込め性を評価した。

(2) 熔融時の核種挙動

熔融処理では廃棄物を融点以上に加熱するため、飽和蒸気圧の高い元素は揮発しやすい。熔融時の核種挙動を明らかにしておくことは、処理時の放射線防護と廃棄体に含まれる放射エネルギーの確認の観点から重要である。後者の観点については、SF法が雑固体廃棄物の埋設処分においても適用される場合、飽和蒸気圧の高いCsが熔融固化体に捕捉される割合を明らかにしておくことが重要である。これは、Csの熔融固化体への捕捉率が100%に満たない場合には捕捉率を考慮してCsをキー核種とする他の難測定核種の放射エネルギーを補正する必要が生じるためである。

(3) 低レベル放射性雑固体廃棄物の模擬方法

低レベル放射性雑固体廃棄物の発生状況から、これを模擬する試料として、炭素鋼などの金属、コンクリート、保温材、飛灰、土砂などの不燃物、木材やポリエチレンなどの可燃物を選んだ。また、放射性核種を模擬する元素には、第1次埋設処分の申請書記載核種を参考に<sup>(23)</sup>、Co、ニッケル(Ni)、レニウム(Re)、ニオブ(Nb)、セリウム(Ce)、ストロンチウム(Sr)、Csの非放射性の7元素を選んだ。ReとCe以外の元素は、申請書記載核種の非放射性同位元素である。ReとCeは、それぞれ、テクネシウム(Tc)とα核種の代替として用いた。これらの模擬試料を模擬核種と共に、当研究所の100kW級プラズマ熔融処理設備を用いて熔融し、上述の熔融固化体の物性や熔融時の核種挙動から、アークプラズマ熔融技術の適用性を評価した。

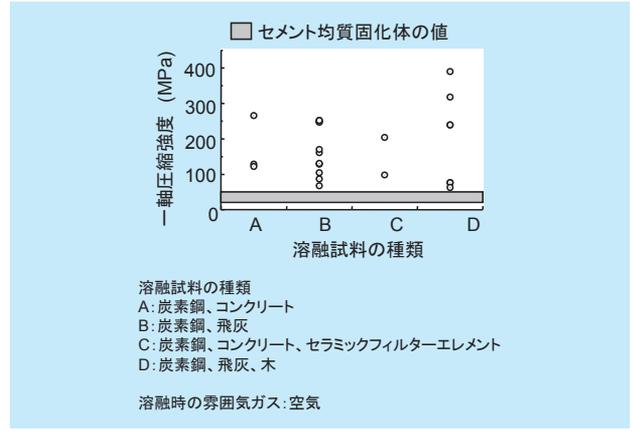


図2-1-1 スラグ層の一軸圧縮強度

2-1-3 熔融固化体の物性

(1) スラグ層の一軸圧縮強度

スラグ層の一軸圧縮強度は、JISR1608に準拠し計測した。試験片の大きさは5mm×5mm×15mm(高さ)である。図2-1-1に熔融試料の種類を変えた場合のスラグ層の一軸圧縮強度を示す。いずれの試料でも、スラグ層の圧縮強度は、ばらつきがあるものの第1次埋設処分に用いられているセメント均質固化体の圧縮強度(20~50MPa)と比較して高い値である。また、図には示していないが、第1次埋設処分に用いられているセメント均質固化体の技術基準<sup>(22)</sup>である1.5MPaと比較しても十分高い値である。なお、ばらつきは、作製した試験片の圧縮面の平行度が加工上ばらついたことなどが原因と考えられる。

(2) 均質性

炭素鋼、飛灰、木片を空気比2で一括熔融して得られた熔融固化体中のスラグ層と金属層のそれぞれについて、模擬核種の濃度と比重の分布を図2-1-2に示す。分析用の試料は、それぞれの層の中心軸上の上下2箇所と、円周方向上の2箇所から採取した。なお、空気比とは、可燃物を完全燃焼させるために必要な理論的な空気量に対し、炉内へ注入している空気量の比を表す。すなわち、空気比2の条件では、完全燃焼に必要な空気量の2倍の量の空気を炉内へ注入した条件である。図に示した結果では、金属層の比重、金属層中の模擬核種(Co)の変動係数は、それぞれ、2.8%、1.6%である。また、スラグの比重とスラグ層中の模擬核種(Cs)の変動係数は、

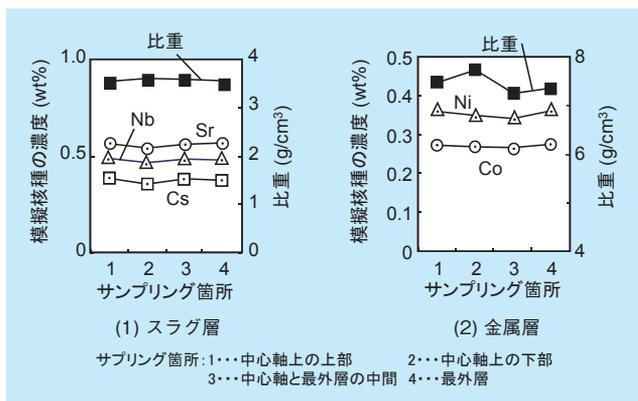


図2-1-2 溶融固化体の金属層とスラグ層の比重と各層中の模擬核種の濃度の分布

それぞれ、0.9%、3.4%である。

上述以外の溶融試料についても、SF法を適用する際に重要な比重、CoとCsの濃度変動係数は、ばらつきの指標とした10%以下であり、均質な溶融固化体が作製できると判断した。均質な溶融固化体が作製できるため、廃棄体の放射能濃度や放射能量の確認が容易になる。

### (3) 核種閉じ込め性

#### ①金属層の核種閉じ込め性

得られた溶融固化体の金属層に捕捉された模擬核種は、Co、Ni、Reであった。金属層から試験片を切り出し、MCC-IP法（静的溶出試験法）に準拠し、これらの模擬核種の溶出試験を実施した。その結果、溶出溶液に検出された模擬核種はNiとReで、Coは検出下限以下であった。また、Reの溶出率は、NiやCoの場合に比べて高く $10^4 \text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ 未満で、NiやCoの溶出率は $10^5 \text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ 未満であった。Reの溶出率が他の元素に比べて若干高い理由は、Re以外の金属は、その水酸化物が水に溶けにくいいため沈殿物を形成しやすいのに対し、Reは水中の溶存酸素に酸化され可溶性の過レニウム酸が生成されたためと推測している。Reの溶出率の溶出期間に対する変化を図2-1-3に示す。図には、空気飽和水中での定常状態での鉄の腐食速度も示した。この値は、pHが4～10の範囲ではほぼ一定で、 $(1.0 \sim 2.5) \times 10^4 \text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ である<sup>(28)</sup>。図に示したReの溶出率は、溶出期間が28日以上で、ばらつきがあるもののこの値より若干小さい値である。難溶性の水酸化物を形成するRe以外の金属の溶出率は、沈殿物の形成のために鉄の腐食速度よりさらに小さくなったと判断できる。

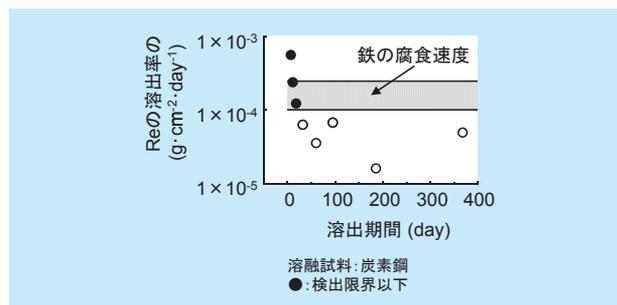


図2-1-3 脱イオン水に浸漬した金属層からのReの溶出率の経時変化

以上から、金属層からの模擬核種の溶出率は、 $10^4 \text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ 未満で、母層の主要な構成元素である鉄の腐食速度より小さいことを明らかにした。

#### ②スラグ層の核種閉じ込め性

得られた溶融固化体のスラグ層に捕捉された模擬核種は、Sr、Nb、Cs、Ceであった。スラグ層から試験片を採取し、MCC-IP法（静的溶出試験法）に準拠し、これらの模擬核種やスラグの主要構成元素に着目して溶出試験を実施した。脱イオン水中での溶出試験の結果、脱イオン水中で検出された模擬核種はSrのみで、その溶出率は $10^8 \text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ 未満であった。検出限界以下であった他の核種を含め、検出下限値を用いて求めた溶出率は $10^7 \text{g} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{day}^{-1}$ 未満であった。

#### (A) 溶出液がスラグ層の核種閉じ込め性に及ぼす影響

高レベル放射性ガラス廃棄物の溶出に関する研究において、ガラスを構成する酸化物や珪酸塩のモル分率と水和反応の自由エネルギーの積を求めその総和が小さい程、ガラスの溶出率が大きくなることが報告されている<sup>(29)</sup>。そこで、スラグ層の主要な構成成分の中で水和反応の自由エネルギーの大きな $\text{SiO}_2$ に着目し、スラグ層の $\text{SiO}_2$ （二酸化ケイ素）の含有量に対しSrの溶出率をプロットして図2-1-4に示す。溶融試料の組成の影響を受けスラグ層中の $\text{SiO}_2$ の含有量の低下とともに、Srの溶出率は増加した。また、処分場の環境水を模擬したモルタル平衡水中での溶出率は、脱イオン水中の場合と比較して小さい。これは、モルタル平衡水では、脱イオン水に比べてSiなどの元素が溶出試験の開始時点で既に溶け込んでいるため、脱イオン水に比べ短時間でSiの濃度が飽和し、母層の溶解を制限したと考えられる。この結果は、

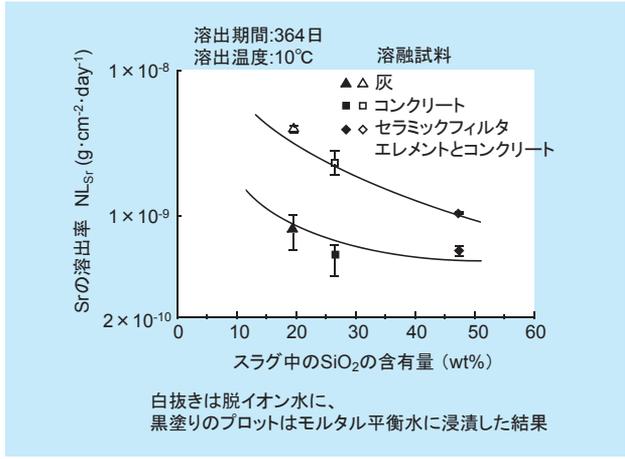


図2-1-4 スラグ層のSiO<sub>2</sub>の含有量とSrの浸出率

脱イオン水を用いた溶出試験を行えば、溶出率を過小評価しないことを示している。

(B) スラグ層の核種閉じ込め性の高レベルガラス固化体との比較

低レベル放射性雑固体廃棄物の組成が広範囲に亘っていることや、炉内の酸素濃度などの溶融処理条件により、スラグ層は、ガラス質から岩石質まで幅広い性状を呈する。このようなスラグ層に対し、溶出率を決定する変数を確定できれば、廃棄物の種類が変動した場合でも溶出率を推定でき核種閉じ込め性を評価できる。一方、スラグ層中の核種は、スラグの網目構造を構成するSiなどの原子やOなどと結合して、網目構造の中に閉じ込められている。このため、スラグ層からの核種の溶出は、スラグ層中を拡散して溶出するような機構ではなく、母層の溶解と共に溶出する機構に支配されていると考えられる。

スラグ層を構成する酸化物は、網目構造を構成する酸性酸化物と、それを切断する塩基性酸化物に分類できる。酸性・塩基性の違いは、スラグを構成する陽イオンと酸素イオンの相互作用の強さによって判断することができ、相互作用が強いほど酸性を、弱いほど塩基性を示す<sup>(30)</sup>。酸性・塩基性酸化物を含むスラグの性質（正確にはスラグ中の酸素イオンの活量）を便宜的に表す指標として、塩基度が用いられる。工業的には塩基度としてCaO/SiO<sub>2</sub>の重量比がよく用いられている。しかし、これ以外にも、それぞれの酸化物の重量比の総和の比やモル分率の総和の比、などいくつかの定義がある<sup>(31)</sup>。

スラグが水に接した場合、ガラスに含まれるアルカリ金属やアルカリ土類金属が、水に含まれる水素イオンとの電荷交換により選択的に溶け出す過程が報告されている<sup>(32)</sup>。そこで塩基性の酸化物が多いほど母層の溶解が進みやすいと考え、得られたスラグの主要な構成成分(SiO<sub>2</sub>: 15 ~ 51wt%, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 2 ~ 26wt%, CaO: 0 ~ 14wt%, FeO: 0 ~ 56wt%, MgO: 0 ~ 40wt%) から、いくつかの塩基度を定義した。スラグ層からの溶出試験結果とこれらの塩基度との相関性を評価した結果、これらの5つの酸化物のモル分率を用いた塩基度で溶出率が予測できることが明らかになった。結果を図2-1-5に示す。図ではスラグの網目構造を形成するSiの溶出率について示した。図から、塩基度が高いほど溶出率は大きくなることが分かる。これは、塩基度の高いスラグほどイオン結合性が高く、誘電率の大きな水によってその結合が切断されやすくなるためと考える。

次に、プラズマ溶融で得られたスラグ層からのSiの溶出率を高レベル放射性廃棄物のガラス固化体のそれと比較し表2-1-1に示す。表の注に示したように、溶出試

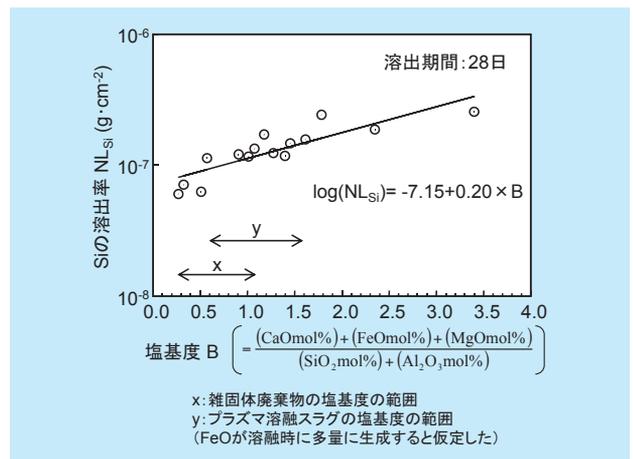


図2-1-5 Siの溶出率の塩基度への依存性

表2-1-1 プラズマ溶融スラグと高レベルガラス固化体のSiの溶出率の比較

固化体の種類	溶出率 (g·cm <sup>-2</sup> )	溶出条件		
		期間 (日)	温度 (°C)	SAV <sup>a</sup> (cm <sup>-1</sup> )
プラズマ溶融スラグ	2×10 <sup>-7</sup>	91	10	100
高レベルガラス PNL76-68 (アメリカで開発)	3×10 <sup>-6</sup>		10 <sup>b</sup>	100
高レベルガラス ABS39 (スウェーデンで開発)	1×10 <sup>-8</sup>		10 <sup>c</sup>	100 <sup>d</sup>

<sup>a</sup>: (試験片の表面積) / (溶出液の容積)  
<sup>b</sup>: 活性化エネルギーを15kcal/mol<sup>(33)</sup>として90°Cの結果<sup>(34)</sup>を外挿  
<sup>c</sup>: 活性化エネルギー<sup>(27)</sup>を用いて90°Cの結果<sup>(35)</sup>を外挿  
<sup>d</sup>: SAVと溶出量の関係<sup>(34)</sup>から推定

験条件の違いを考慮した。図 2-1-5 から、低レベル放射性性固体廃棄物の溶融時に FeO が多量に生成されることを想定すると塩基度の最大値は 1.6 と推定されるため、スラグ層からの溶出率は、91 日の溶出期間で  $2 \times 10^{-7} \text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  となる。このことからスラグは、ガラス固化体と比較して遜色の無い核種閉じ込め性を有していると判断できる。

以上から、スラグ層の溶出については、脱イオン水を用いた試験を実施すれば、過小評価しないことが分かった。また、スラグ層は、高レベルのガラス固化体と比較して遜色のない核種閉じ込め性を有していることが分かった。

### 2-1-4 溶融時の核種挙動

図 2-1-6 に、炭素鋼、飛灰と木片を一括溶融処理した場合の核種挙動の結果を示す。Co と Ni は安定に金属層へ、Sr、Nb と Ce は安定にスラグ層へ捕捉された。また、飽和蒸気圧が高い Cs と Re については、それらの一部がダストへ捕捉された。ただし、Re は、実験に用いた酸化物の形態では、その沸点が低いため揮発しやすいものの、溶融時に金属へ還元されやすく、金属の沸点は  $3,000^\circ\text{C}$  以上と高いため、比較的安定に金属層へ捕捉されやすい。

金属層へ捕捉されるか、スラグ層へ捕捉されるかを判断する目安として、図 2-1-7 に示す酸化物の標準生成自由エネルギーがある。すなわち、溶湯の主要な構成要素である鉄に比べ、酸化物の標準生成自由エネルギーの小さな元素は、酸化されやすくスラグ層へ捕捉されやすい。逆に、標準生成自由エネルギーの大きな元素は金属層へ

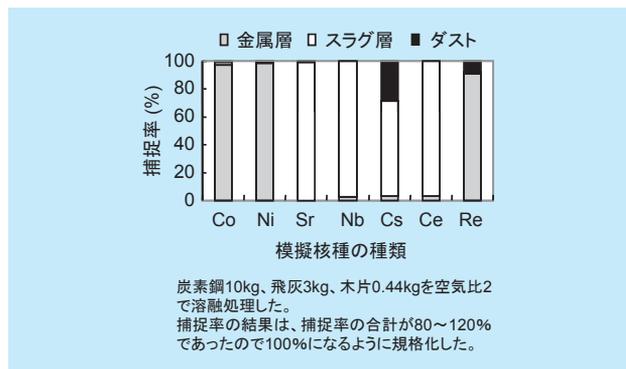


図2-1-6 模擬核種の溶融時の挙動

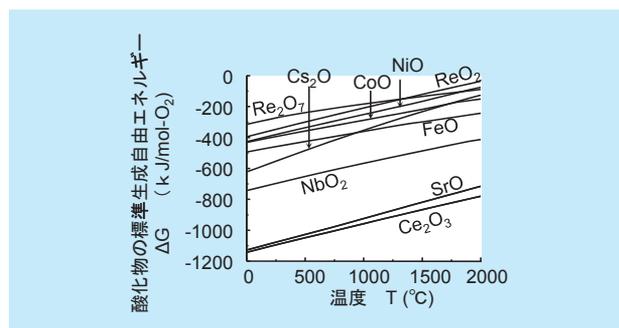


図2-1-7 酸化物の標準生成自由エネルギー

捕捉されやすい。このため、Co、Ni と Re は金属層へ、Sr、Nb と Ce はスラグ層へ捕捉されたと考える。また、Cs については、酸化物の標準生成自由エネルギーは、 $900^\circ\text{C}$  付近より高温側で鉄に比べて大きい。しかし、Cs の沸点が  $678^\circ\text{C}$  と低いために金属層では安定に存在できないと考えられる。さらに、Cs の酸化物は、 $350 \sim 400^\circ\text{C}$  で分解するため高温では不安定である。しかし、 $\text{SiO}_2\text{-Na}_2\text{O}$  ガラスにおいて、 $\text{Na}_2\text{O}$  のモル分率が低い場合に Na が  $\text{SiO}_4$  の無秩序な 3 次元の網目構造の中に捕捉されているという機構<sup>(36)</sup>と同様の機構によりスラグ層に捕捉されたと考えられる。

次に、SF 法 (p12 参照) のキー核種である Cs の捕捉率に対し、溶融試料や溶融時の炉内のガスの種類の影響を調べた。その結果、炉内が空気や不活性なガスなら不燃性廃棄物の種類を変えても、50%以上がスラグ層に捕捉された。しかし、図 2-1-8 示すように、炉内を連続的な還元性の雰囲気とすると Cs の捕捉率は低下した。な

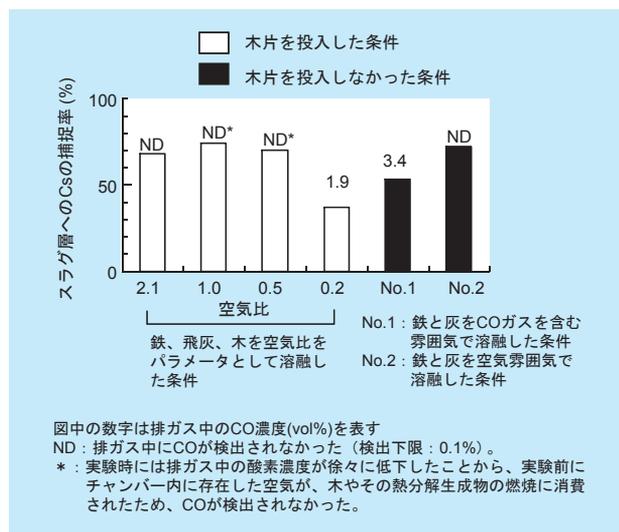


図2-1-8 Csのスラグ層への捕捉率

お、空気比が小さい場合には、酸素が不足した状態で可燃物を処理している状態になり、CO、H<sub>2</sub>、すななどが発生し還元性の雰囲気になる。逆に空気比が大きい場合には酸化性の雰囲気となる。

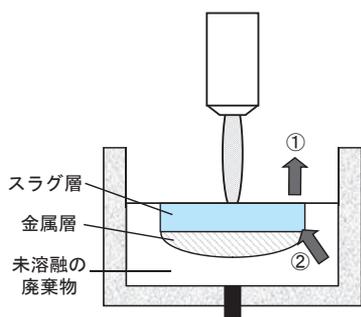
以上のようにCsの挙動の観点から、炉内が定期的に還元性の雰囲気とならない溶融条件を設定する必要があることを明らかにした。

### 2-1-5 Csのslag層への捕捉率の推定手法

#### (1) Cs捕捉率を推定するモデル

Csは、廃棄物の放射能評価に用いられるSF法(p12参照)のキー核種で、廃棄体に一定割合以上捕捉される必要がある。しかし、前節に示したように、沸点が低いためその一部が溶融処理時に揮発する。そこで、廃棄物の組成や処理時間などが変わった場合にもCsの捕捉率を適切に予測するため、Csの捕捉率を推定する手法を確立した。

Csの捕捉率を推定するために構築した溶融処理時のCsの挙動モデルを図2-1-9に示す。本モデルは、溶融時にslag表面からCsが揮発しslag中のCs濃度が減少すること(同図①)、同時に、廃棄物の溶融によって廃棄物中のCsがslagへ流入しslag中のCs濃度が増加すること(同図②)を示している。slag表面からのCsの揮発は、廃棄物が完全に溶融した後のslag中のCs濃度の経時変化を計測することによって、slagの単位体積あたりの表面積とslag中のCs濃度に比例すること、すなわち、1次の反応速度式で表せることを明らかにした。このモデルに基づき、溶融時のCs濃度の経時変化は、(2-1-1)式で表すことができる。



①溶融したslag層表面からCsが揮発する。  
②未溶融の廃棄物が溶融されCsがslag層へ流入する。

図2-1-9 溶融処理時のCsの挙動のモデル

同式の右辺の第1項がslag表面からのCsの揮発によるCs濃度の減少を、第2項が廃棄物の溶融によるCs濃度の増加を表している。

$$\frac{dN}{dt} = -k \cdot \frac{A_s}{V_s} \cdot N + \frac{\Delta w}{W_s} \cdot (N_0 - N) \quad (2-1-1)$$

Nはslag中のCs濃度、tは時刻、kはCsの蒸発速度定数、A<sub>s</sub>はCsが蒸発するslagの表面積(気中と接している面積)、V<sub>s</sub>はslagの体積、Δwは廃棄物の溶融速度、W<sub>s</sub>はslag重量、N<sub>0</sub>は廃棄物中のCs濃度である。

廃棄物の溶融が完了した時点でのCsの捕捉率Ne(%)をより簡便に求める方法として、(2-1-2)式を用いることもできる。この導出にあたっては、以下を仮定している。

- ・溶融が進み溶融したslagが溶融炉の全域を覆っている(A<sub>s</sub>が溶融炉の断面積Aと等しくなる)。
- ・廃棄物の溶融速度は一定とする(Δwが一定)。
- ・slag表面からCsが揮発する速度と廃棄物の溶融によってCsがslagに流入する速度がバランスするように、slag中のCs濃度が決定される(dN/dt=0)。

$$Ne = 1 / \left[ 1 + \frac{k \cdot A}{\frac{\Delta w}{\rho_s}} \right] \cdot 100 \quad (2-1-2)$$

ρ<sub>s</sub>はslagの密度である。

#### (2) Csの蒸発速度定数

##### ①slag組成の影響

Csの蒸発速度定数は、溶融する廃棄物の組成が変動した場合、次式で定義した塩基度Ki'で、図2-1-10に示すように一義的に表せることを明らかにした。

$$Ki' = \left( X_{CaO} + \frac{i_{MgO}}{i_{CaO}} X_{MgO} + \frac{i_{FeO}}{i_{CaO}} X_{FeO} \right) / \left( X_{SiO_2} + 2 \cdot \frac{i_{SiO_2}}{i_{Al_2O_3}} X_{Al_2O_3} + 2 \cdot \frac{i_{SiO_2}}{i_{Fe_2O_3}} X_{Fe_2O_3} \right) \quad (2-1-3)$$

X<sub>RmOn</sub>は酸化物のモル分率を表す。また、i<sub>RmOn</sub>は酸化物の結合のイオン度を表し、Ca<sup>2+</sup>、Fe<sup>2+</sup>、Fe<sup>3+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Al<sup>3+</sup>、Si<sup>2+</sup>のそれぞれに対し、78、65、57、75、63、51の値を用いた<sup>(37)</sup>。

## ②プラズマの電極点近傍の高温領域の影響

プラズマ溶融では、電極点近傍の高温領域がCsの蒸発速度定数に影響を及ぼすことが考えられる。そこで、るつぼの内径を変えて溶融スラグの表面積を変えてCsの蒸発速度定数を明らかにした。その結果、溶融スラグの表面積を大きくすると電極点近傍の高温領域の影響度は急激に小さくなり、Cs蒸発速度定数も小さくなった。実機では、るつぼ断面積がさらに大きいので、電極点近傍の高温領域の影響がさらに小さくなり、Cs蒸発速度定数は、図2-1-10に示した結果より小さい値になると考えられる。蒸発速度定数が大きいほど、Csの捕捉率は低下するので、図2-1-10の結果を用いれば、Csの捕捉率は、実機の場合でも過大に評価しないと考えられる。

## ③酸化鉄の価数の影響

炉内に酸素が存在する雰囲気中で鉄を含む廃棄物を溶融すると酸化鉄が生成される。この時、酸化鉄の価数によって、(2-1-3)式で定義したスラグの塩基度 $K_i'$ が変化する。すなわち、 $Fe^{3+}$ であれば蒸発速度定数が小さくなり、 $Fe^{2+}$ であれば蒸発速度定数が大きくなる。そこで、炭素鋼と種々の組成の不燃性廃棄物模擬試料を溶融し、スラグ中の $Fe^{3+}/Fe^{2+}$ の組成比を調べた。その結果、この値は0.2以上であり、また、スラグの塩基度が小さいほど大きくなった。この結果から、スラグ中の酸化鉄の組成として、 $Fe^{3+}/Fe^{2+}$ を0.2とすれば、Csの蒸発速度定数を小さく見積もらず、捕捉率を過大に評価しないことが明らかになった。

以上のように、(2-1-1)式、または、簡易的に(2-1-2)式を用い、実機と実験炉との相違や溶融時のスラグ組成

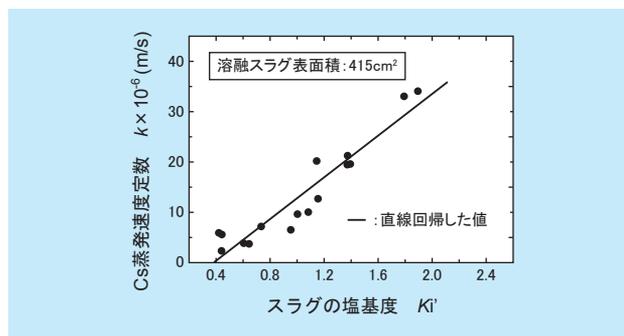


図2-1-10 スラグの塩基度 $K_i'$ とCsの蒸発速度定数

の変化などを考慮して、Cs捕捉率を推定する手法を確立した。

## 2-1-6 研究成果の電気事業への貢献

上述の研究を開始した頃は、低レベル放射性雑固体廃棄物の処理方法として高周波溶融法の研究開発が先行していた。同時に、電気事業として、技術の選択肢を増すために他の技術が模索されていた。そのような状況下で、プラズマ溶融法が低レベル放射性雑固体廃棄物の処理へ適用できる可能性を示した当研究所の研究成果は、電気事業におけるプラズマ溶融技術の実用化進展やその後の技術基準の策定などへ貢献した<sup>(38)~(40)</sup>。さらに、高周波溶融法における技術基準の策定などにも役立っている<sup>(41)</sup>。

## 2-2 TRU 廃棄物処理への応用

## 2-2-1 TRU 廃棄物の現状

原子力発電所の使用済み燃料の再処理工程では、半減期の長いTRU (transuranic) 核種を含む廃棄物が発生する。これらから高レベルの廃棄物を除いたものをTRU核種を含む放射性廃棄物 (TRU廃棄物) と呼ぶ。TRU核種とは、原子番号がウランより大きい (超ウラン) 元素を指し、特に、 $^{237}_{93}\text{Np}$ 、 $^{239}_{94}\text{Pu}$ 、 $^{241}_{95}\text{Am}$ の相対的な毒性が強い<sup>(42)</sup>。また、TRU廃棄物の特徴として、以下が指摘されている<sup>(43)~(45)</sup>。

- ①高レベルの廃棄物に比較して発生量が多いことに加え、その種類が、廃液、雑固体、金属、可燃物、不燃物、燃料棒の被覆管に相当するハル、燃料集合体の端部に相当するエンドピースなど多岐にわたっている。
- ②廃棄物に含まれる放射能濃度が、ハル・エンドピースのように比較的高いものから、核燃料サイクル機構の再処理工程から発生している雑固体廃棄物のようになり低いものまで範囲が広い。

TRU廃棄物は、核種閉じ込め性の向上と処分場の確保の両面から、圧縮、破碎や溶融などによる減容処理をして処分することが適切である。このうち溶融法は、高い減容率が達成できる。しかし、年間に約260t発生すると推定されているハル・エンドピースの主な成分であ

るジルカロイは、その融点が高く、化学的活性も強い  
ため、溶融自体が困難であること、また加熱に伴う放射  
性核種の蒸発の可能性が圧縮法に比較して高いことなど  
の課題がある。

これらの課題に対し、アークプラズマによる加熱処理  
は、高温を容易に発生でき、また高融点材料の溶融に  
対する適度なエネルギー密度を有することから、ジルカ  
ロイ廃材の有望な方法の一つであると考えられる。しか  
しハル・エンドピースを模擬したジルカロイ廃材のア  
ークプラズマによる溶融は、海外で実験的に行われた  
例<sup>(46)</sup>があるが、国内の実情と異なるため、その適用  
性を詳細に検討することは困難である。また TRU 核  
種は非放射性の同位体が存在しないため、溶融時の核  
種挙動の検討例が少ない。

当研究所は、溶融条件の最適化に関連した加熱条件  
と溶融状態の関係の解明、および、溶融時の核種挙動  
の推定を目的とした研究を実施した。その研究成果と  
して、まず、融点の高いジルカロイを、エネルギー効  
率がよくダストの発生量も抑制できるプラズマ溶融方  
法（逐次溶融法）を提案した<sup>(47)</sup>。さらに、TRU 核  
種を模擬する元素をその熱力学特性から選定し、プラ  
ズマ溶融時には TRU 核種はスラグ層へ捕捉されるこ  
とを明らかにした<sup>(48)</sup>。

2-2-2 耐火系るつぼを用いた逐次溶融法の提案

共晶材を添加したり（ジルコニウムは約 20wt% の鉄  
やニッケルと共晶し融点が 1,000 ~ 1,200℃ 程度まで  
低くなる）、長時間加熱したりすることにより、ジルカ  
ロイの溶融は促進され、溶融固化体の均質性は高まると  
考えられるが、一方でダストの発生や揮発成分の蒸発も  
促進され、るつぼ材の溶け込みも増えることから、何  
らかの形で少量ずつ短時間加熱することが溶融システム  
最適化の一手段として考えられる。

このため、図 2-2-1 に示すように、ジルカロイ廃材を  
少量投入し、新たに投入された部分だけを短時間加熱し  
、その部分の溶融が完了した時点で次の投入を行い、同  
様な加熱を繰り返す溶融法（耐火系るつぼを用いた逐次  
溶融 SMRC : Successive Melting with Refractory Cruci  
ble）を試みた。金属材料を製造するような場合は、る  
つぼ材料の溶融対象への微量な溶け込みを抑制するため  
に水冷銅るつぼを用いることが望ましい。しかし廃棄物  
の溶融固化体を作製する場合は、減容比の低下や核種  
挙動への影響がなければ、溶融対象への少量のるつぼ  
成分の混入は問題がない。非水冷の耐火物系るつぼを  
用いることには、むしろ、①万が一の水漏れの危険性を  
避ける

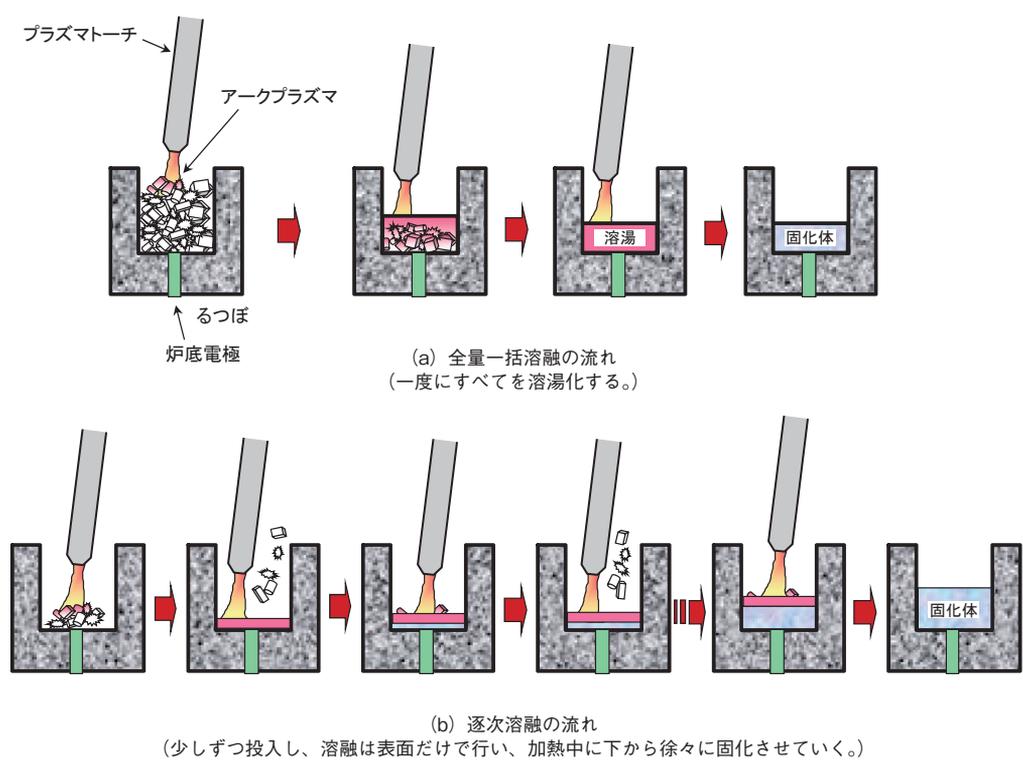


図2-2-1 溶融方法の比較

ことができる、②るつぼ温度を高く設定できるため、るつぼへの熱伝達が少なく加熱効率が上昇する、③場合によっては、るつぼごと廃棄体とすることも可能である、などのメリットがある。

また、非水冷のるつぼを用いた全量一括溶融の場合、るつぼ内に高温の溶湯を比較的長時間保持する必要があるため、損傷を避けるために、るつぼの材質や形状に制約が生じるが、SMRCを用いた場合、るつぼの損傷を低減できるため、るつぼの材質や形状の選択肢が広がり、同時にるつぼ寿命も長くなると考えられる。

図2-2-2に、SMRCにより作製した溶融固化体を示す。僅かな空隙が見られるものの、ほぼ全量一括溶融時と同様の溶融固化体が得られている。本例では、共晶材なしで、合計2kgのジルカロイ廃材を溶融している。

SMRCによって500gのジルカロイ廃材を溶融するために必要な加熱エネルギーと、その際のダスト発生量を、全量一括溶融の場合と比較して図2-2-3に示す。図に示すように加熱エネルギーを1/9に低減できた。また、少



図2-2-2 逐次溶融で作製した溶融体断面 (ジルカロイ廃材 2kg、41MJ)

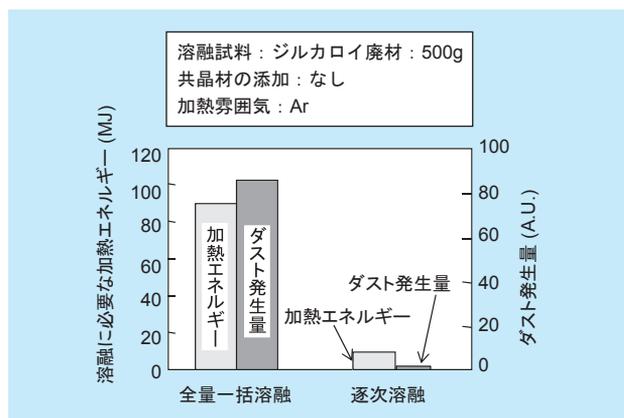


図2-2-3 全量一括溶融および逐次溶融での加熱エネルギーとダスト発生量の比較

ない電力で短時間に溶融が完了するため、ダスト発生量も1/100以下と大幅に低減することができた。特にジルカロイ廃材のみを溶融した場合、排ガス経路、チャンバー内面ともに、計測限界以下のダスト発生量となった。

### 2-2-3 溶融時の核種挙動

TRU核種には非放射性の同位元素が存在しないため、核種挙動の推定に重要な元素の熱力学的特性に着目し、非放射性の模擬核種を選定した。次に、TRU廃棄物を模擬した(1)ジルカロイ廃材とステンレス鋼、および(2)金属と不燃性の廃棄物(炭素鋼と飛灰)を、模擬核種と共に溶融し溶融時の核種挙動を解明した。以下にその概要をまとめる。

#### (1) 模擬核種を選定

溶融時の核種挙動に影響を与える熱力学的な特性として、核種の飽和蒸気圧と酸化物の標準生成自由エネルギーに着目した。これは、飽和蒸気圧の高い核種ほど溶融時に揮発しやすくダストへ捕捉されやすいこと、また、雑固体廃棄物を溶融すると金属と酸化物の溶湯が形成され、酸化物の標準生成自由エネルギーの小さい核種ほど酸化されやすくスラグ層へ捕捉されやすいこと、が理由である。さらに、化学的な性質にも着目し、TRU核種やウラン(U)と周期表で同属になるランタノイド系の元素の中から模擬核種を選定した。TRU核種(Np、Pu、Am)やUについて、飽和蒸気圧<sup>(49)</sup>と酸化物の標準生成自由エネルギー<sup>(50)</sup>を調査した結果を表2-2-1に示す。表に示すように、TRU核種やUのこれらの熱力学特性を挟むように、ユーロピウム(Eu)、ツリウム(Tm)、エルビウム(Er)、プラセオジウム(Pr)、ランタン(La)の5種類の元素を選定した。

表2-2-1 模擬核種とTRU核種の熱力学特性の比較

熱力学特性	比較結果	核種挙動への影響
飽和蒸気圧	(Eu, Tm) > Am ≧ Er > Pr > Pu > La > U	飽和蒸気圧の高い元素ほどダストへ捕捉されやすい。
酸化物の標準生成自由エネルギー	(例えばFe, Siなど) > Np > U ≧ Eu > Am ≧ (La, Pr) > Pu ≧ (Er, Tm)	金属層やスラグ層の主要な構成元素(Fe, Siなど)と比較し、酸化物の標準生成自由エネルギーの小さな元素は、スラグ層へ捕捉されやすい。

注: TRU核種とUに\_を付けた。

(2) プラズマ溶融時の核種挙動

TRU 廃棄物を模擬した試料を模擬核種と共に、20～30kW のアークプラズマ加熱により、黒鉛系のるつぼを用いて溶融した。なお、溶融には、加熱効率が高くダストの発生量が少ない逐次溶融法を採用した。

①ジルカroi廃材とステンレス鋼を溶融した時の核種挙動

ダストへの捕捉率の実験結果を、図 2-2-4 に示す。図は、ステンレス鋼や模擬核種を投入する際に用いた銅細線に由来する Ni、Mn や Cu についても結果を示した。また、U、Pu、Am の飽和蒸気圧も示した。図に示したように、ダストへの捕捉率は、元素の飽和蒸気圧で整理できる。このことから、U、Pu と Am は、ダストへは捕捉されず溶融固化体へ捕捉されやすいと判断できる。また、Np の沸点は La より高いことから、Np もダストへは捕捉されず溶融固化体へ捕捉されやすいと判断できる。

②金属と不燃性廃棄物を溶融した時の核種挙動

模擬核種の金属層、スラグ層、ダストへの捕捉率は、それぞれ 0.2% 未満、79.1～98.8%、0.7% 未満であった。金属層とダストへの移行はほとんどなく、模擬核種の大部分はスラグ層に捕捉されている。これは、模擬核種の酸化物の標準自由エネルギーが金属層やスラグ層の主要

な構成元素 (Fe や Si など) に比べて小さいためである。TRU 核種と U の酸化物の標準生成自由エネルギーも、金属層やスラグ層の主要な構成元素に比べて小さいことから、TRU 核種と U はスラグ層に安定に捕捉されると判断できる。

以上の結果から、ハル・エンドピース、または金属および不燃性の TRU 廃棄物をアークプラズマで溶融しても、Pu、Np、Am の TRU 核種および U はダストへ捕捉されにくく、溶融固化体に安定に捕捉されることが明らかになった。核種挙動の観点から、これらの廃棄物の溶融処理へアークプラズマ加熱を適用できると考えられる。特に、金属および不燃性の廃棄物を溶融処理すると、金属層を除染できる可能性がある。

参考文献

- (1) 天川正士、足立和郎、安井晋示：プラズマ加熱を用いた低レベル放射性雑固体廃棄物の一括溶融処理技術、電力中央研究所総合報告、W12 (1998)
- (2) 天川正士、足立和郎、安井晋示：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 1) - 排ガスに含まれるダストの性状と集塵装置の選定 -、電力中央研究所研究報告、W92012 (1993)
- (3) 安井晋示、天川正士、足立和郎：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 2) - 可燃物の熱分解ガス生成特性 -、電力中央研究所研究報告、W92022 (1993)
- (4) 足立和郎、天川正士、安井晋示：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 3) - 溶融固化体の諸特性 -、電力中央研究所研究報告、W92043 (1993)
- (5) 安井晋示、天川正士、足立和郎：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 4) - C/F エLEMENT、ステンレス、アルミニウムのプラズマ溶融特性 -、電力中央研究所研究報告、W94018 (1995)
- (6) 足立和郎、天川正士、安井晋示：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 5) - 鉄と木片の溶融体の均質性 -、電力中央研究所研究報告、W94041 (1995)
- (7) 安井晋示、天川正士、足立和郎：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 6) - 加熱雰囲気の影響 -、電力中央研究所研究報告、W94017 (1995)
- (8) 天川正士、足立和郎、安井晋示：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 7) - 空気雰囲気で作製した溶融固化体のモルタル平衡水中での浸出率 -、電力中央研究所研究報告、W95005 (1995)
- (9) 天川正士、足立和郎、安井晋示：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 8) - 鉄と灰と木を一括溶融処理した溶融固化体の特性 -、電力中央研究所研究報告、W95019 (1996)

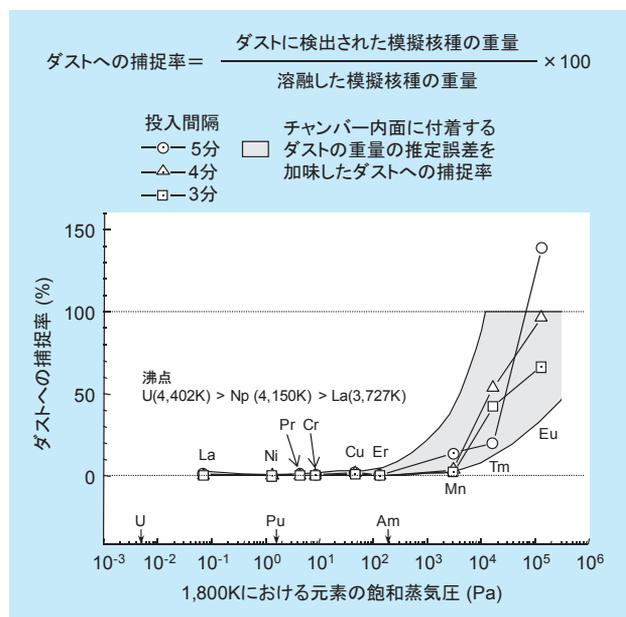


図2-2-4 逐次溶融法の投入間隔を代えた場合の元素のダストへの捕捉率

- (10) 安井晋示、天川正士、足立和郎：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発（その9）－可燃物の炉内燃焼処理方法の検討－、電力中央研究所研究報告、W95032（1996）
- (11) 安井晋示、天川正士、足立和郎：低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発（その10）－廃棄物の組成がCsの蒸発挙動に与える影響－、電力中央研究所研究報告、W96015（1997）
- (12) 天川正士、安井晋示：低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融固化体の核種閉じ込め性－スラグ組成の影響－、電力中央研究所研究報告、W00004（2000）
- (13) 安井晋示、天川正士：低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融処理におけるセシウム捕捉率推定手法、電力中央研究所総合報告、W18（2003）
- (14) 安井晋示、天川正士：低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融時のセシウム蒸発挙動、電力中央研究所研究報告、W98016（1999）
- (15) 安井晋示、天川正士：低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融時のセシウム蒸発挙動（その2）－セシウムを捕捉するための溶融条件－、電力中央研究所研究報告、W00009（2001-3）
- (16) 足立和郎、天川正士、安井晋示、古川静枝：ゴムを含む雑固体廃棄物のプラズマ溶融処理－アークプラズマの電圧に及ぼす可・難燃物の影響－、電力中央研究所研究報告、W97034（1998）
- (17) 足立和郎、天川正士：不燃性粉体の注入による安定化アルゴンアークの電圧変化とその機構、電力中央研究所研究報告、W99036（2000）
- (18) 経済産業省 原子力安全・保安院 原子力安全技術基盤課：平成19年度原子力施設における放射性廃棄物の管理状況及び放射線業務従事者の線量管理状況について、（2008年6月）
- (19) (独) 原子力安全基盤機構：原子力施設運転管理年報平成18年度版（平成17年度実績）
- (20) 松村勝秀、平井輝幸、北島英明、林勝、金川裕、谷口俊夫、岡本道明：原子力発電所雑固体廃棄物の廃棄体作成技術と課題、放射性廃棄物研究、vol. 2、p153（1996）
- (21) 菅井研自、小堆忠雄、林勝、松村勝秀、泉田龍男：型式設定方式による固体状廃棄物固化技術の研究（1）固体状廃棄物の組成と特徴、原子力学会1997年秋の大会、J46（1997）
- (22) 火力原子力発電技術協会：やさしい原子力Ⅳ.放射性廃棄物の処理・処分、火力原子力発電、vol. 40、p107（1989）
- (23) 鈴木祐、赤川吉寛、大野弘雄：低レベル放射性廃棄物の輸送および廃棄体確認技術、火力原子力発電、vol. 44、p57（1993）
- (24) 小畑政道、手嶋孝弥、倉橋隆文、金川裕、林勝、刈込敏、赤川吉寛：高周波誘導加熱方式による溶融体の核種挙動、日本原子力学会1996年秋の大会、L30（1996）
- (25) 中村寿、金沢勝雄、佐藤孝幸、山手一記、藤木和男：放射性金属の溶融基礎試験、デコミッションング技報、No.9、p41（1993）
- (26) 隅谷尚一、天野治、菊池恂、堀内進、千野耕一：放射性廃棄物のセメントガラス固化技術、火力原子力発電、vol. 40、p447（1989）
- (27) 横山速一：高レベル廃棄物固化体の浸出性（その8）－浸出性に及ぼす浸出層の影響（動的試験条件）－、電力中央研究所研究報告、T86049（1988）
- (28) H.H. ユーリック他：腐食反応とその制御（第3版）、産業図書（1994）
- (29) C. M. Jantzen and M. J. Plodinec：Non-Crystalline solids, vol. 67, p207（1984）
- (30) 大谷正康：鉄冶金熱力学、日刊工業新聞社、p142（1986）
- (31) 日本金属学会編：講座・現代の金属学 精練編1 鉄鋼精練、p33（1991）
- (32) A. Barkatt et al.：Mechanisms of defense waste glass dissolution, Nuclear Technology, vol. 73, p140（1986）
- (33) 佐々木憲明：高レベル放射性廃棄物ガラス固化体の化学的耐久性、セラミックス、vol. 18、p592（1983）
- (34) L. R. Pederson, C. Q. Buckwalter, G. L. McVay and B. L. Riddle：Glass surface area to solution volume ratio and its implications to accelerated testing, Symposium on Scientific Basis for Nuclear Waste Management（6th）Boston, 47（1983）
- (35) 塚田毅志、横山速一：高レベル廃棄物固化体の浸出性（その6）－浸出性に及ぼす固化体表面層の影響（脱塩水中の静的試験）－、電力中央研究所研究報告、285054（1986）
- (36) 作花済夫、境野照雄、高橋克明著：「ガラスハンドブック」、p905、朝倉書店（1991）
- (37) ベ・ハ・ハン他：鑄造石の製造技術、日ソ通信社（1974）
- (38) 日本原子力発電株式会社：敦賀発電所原子炉設置変更許可申請書（1号及び2号原子炉施設の変更）本文及び添付書類（1997年8月）
- (39) (財) 原子力安全技術センター：平成9年度放射性廃棄物処理処分対策調査研究 調査報告書 雑固体廃棄物の確認方法に関する調査研究（1998年）
- (40) 原子力安全基盤機構：平成15年度放射性廃棄物処分安全技術調査等報告書（2004）
- (41) 原子力安全基盤機構：日本原子力発電（株）東海発電所の充填固化体に係る廃棄体確認方法について、JNES-SS-0613（2006）
- (42) 大江俊昭、満木泰郎、田中博、河西基：高レベル放射性廃棄物地層処分時の人工バリアの予備的検討、電力中央研究所研究報告、T88002（1988）
- (43) 辻野毅：燃料リサイクルにおけるTRUに関する研究、第20回記念原子力安全性研究成果報告会要旨集（日本原子力研究所）、p6（1992）
- (44) 原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会：TRU核種を含む放射性廃棄物の処理処分について、原子力資料、vol. 249、p1（1991）
- (45) 森山昇：TRU廃棄物の処理処分、保健物理、vol. 23、p343（1988）
- (46) R. D. Peters and W. A. Ross：Plasma Melting of Non-Irradiated Fuel Assembly Hardware: Initial Testing

- and Evaluation, Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, Vol. 11 (4), pp.333-345, (1989)
- (47) 足立和郎、古川静枝、天川正士：アークプラズマによるジルカロイ廃材の溶融、電力中央研究所研究報告、W97029 (1998)
- (48) 天川正士、足立和郎：TRU 廃棄物のプラズマ溶融時における核種挙動、電力中央研究所研究報告、W98010 (1999)
- (49) J. L. Margrave ed. : The characterization of high-temperature vapors, John Wiley & Sons, Inc., p.478 (1967)
- (50) Outokumpu Research Oy : Chemical reaction and equilibrium software with extensive thermochemical database ver.3.0 (1997)