低レベル放射性雑固体廃棄物の プラズマ溶融処理技術の基礎検討

正 員 天 川 正 士 (電力中研)

正 員 足 立 和 郎 (電力中研)

正 員 安 井 晋 示 (電力中研)

正 員 稲 葉 次 紀 (中央大)

Fundamental Research on Thermal Plasma Technology for Treatment of Low Level Radioactive Solid Waste

Tadashi Amakawa, Member, Kazuo Adachi, Member, Shinji Yasui, Member (CRIEPI), Tsuginori Inaba,
Member (Chuo University)

It is expected to establish the technology for treatment of low level radioactive solid waste generated in nuclear power plants. The main problems are volume reduction and stabilization of radionuclides acceptable for final disposal. Thermal plasma technology offers advantages for such waste treatment because of the easy supply of heat at high temperature independent on chemical and physical properties of the waste.

New, non-contaminated waste, such as metallic, inorganic and combustible materials, have been melted in a crucible furnace. Transferred type of a DC plasma torch with a solid electrode was used as heat source and rated up to 50 kW. The main results obtained are as follows:

(1) Metallic and inorganic materials can be melted and vitrified. Combustible materials can be pyrolyzed. Consequently high volume reduction rates can be attained.

(2) Compressive strength of solidified products is more than twice as great as that of cement composites used for solidification of the liquid waste. Leaching rate of main components of the slag layer is in the same order of that of the high level radioactive waste glass.

(3) In order to get guiding principle for design of off-gas treating system, compositions of the off-gas and properties of the dust entrained in the off-gas are clarified.

From these results, technical prospects so that plasma heating technology can be applied for treatment of low level radioactive solid waste have been obtained.

キーワード：低レベル放射性雑固体廃棄物，プラズマ加熱，減容，溶融

1. はじめに

原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物は、現在、各原子力発電所の敷地内に貯蔵されていて、貯蔵量が年々増加しつつある。低レベル放射性廃棄物の中で濃縮廃液をセメントなどで固化した均質固化体については、既に第1期埋設処分が進められている。残りの雑固体廃棄物（以下、雑固体廃棄物と記す）については、第2期埋設処分計画に向けて処理技術の開発が望まれており、その一つに、溶融固化する方法が考えられている。

一方、プラズマ加熱を廃棄物処理へ適用した場合、その加熱源としての特長から、以下の適用上の利点が挙げら

れる。

(1) 5,000度以上の超高温を容易に発生できる。このため、廃棄物中の有機成分は、CO、H₂、HClなどの低分子量のガスに熱分解される。また、不揮発性の無機成分は、溶融・冷却され、溶出率の小さい安定な固化体となる。

(2) エネルギー密度が高い。このため、高い処理速度が達成でき、プラントが小型化できる。

(3) 加熱エネルギーが加熱によって生じる化学反応に影響されない。このため、加熱エネルギーが廃棄物の物理的・化学的性質に左右されず安定な加熱ができる。

(4) 加熱エネルギーの制御と管理が容易である。このため、廃棄物の投入量の変化に対して、最適な運転条件を

(5) 排ガスが少ない。このため、粒径の小さいダストなどの廃棄物の処理が容易であり、また排ガス処理設備のコスト低減が可能である。

2. 実験方法

(2・2) 廃棄物模擬試料 原子力発電所で発生している雑固体廃棄物の模擬試料として、次の組成のものを選定した。金属材料は5 cm 角のブロック状のものを、その他の材料は適切な大きさに裁断して使用した。

鉄：SS 41

ステンレス鋼：SUS 304

ロックウール： SiO_2 ：35～49%， CaO ：
22～33%， Al_2O_3 ：10～20%，
 MgO ：4～10%， Fe_2O_3 ：0～7%

ポリエチレンシート：ポリエチレン（95%以上）
紙：セルロース

(2・3) 実験方法 廃棄物模擬試料のうち金属材料は、炉内に設置した後にアークプラズマを発生させ溶融した。不燃物と可燃物は、あらかじめ鉄の溶湯を作り、そこに投入し溶融した。いずれの場合でも、十分に溶融した後自然冷却により溶融固化体を作製した。

溶出率は、次式で定義される。

$$\left. \begin{aligned} NL_i &= m_i / (f_i \cdot SA) \\ NL_i &: \text{元素 } i \text{ の溶出率 (g/m}^2\text{)} \\ m_i &: \text{溶出溶液中の元素 } i \text{ の質量 (g)} \\ f_i &: \text{試験片中の元素 } i \text{ の重量分率} \\ SA &: \text{試験片の表面積 (m}^2\text{)} \end{aligned} \right\} \cdots \cdots (1)$$

(1) 可燃物の投入 紙を 10 g/15 s の速度で 13.1 kg 投入し、その後ポリエチレンを 3 g/15 s の速度で 1.3 kg 投入した。いずれの場合も空気比（投入した可燃物の完全燃焼に必要な理論空気量に対する炉内への流入空気量の比）は 0.9 とした。

また、溶融時に試料ごとに排ガスに含まれるダストの発生量と粒径分布を求めた。ダストの発生量は、JIS 8808

図1 実験装置のフロー図
Fig. 1. Experimental arrangement.

に準拠し、捕集効率(粒径 $0.3\ \mu\text{m}$ DOP, 流量 $5\ \text{l/min}$ の場合) 99.9%の円筒ろ紙を用いてダストを捕集し、ダストを捕集する前後のろ紙の重量、排ガスの流速、温度などから求めた。ダストの粒径分布は、アンダセンスタックサンプリングを用いて計測した。ダストを捕集する時間は1~2時間とし、金属類を溶融する場合、着火時、溶湯の形成時、溶湯の形成後の時間経過に沿ってろ紙を交換した。可燃物や不燃物を溶融する際に発生するダストは、それらを投入している期間内にダストを捕集した。紙の投入速度は $40\sim 80\ \text{g}/(1\sim 1.5)\text{min}$ (空気比2)、ポリエチレンの投入速度は $10\ \text{g}/(1\sim 1.5)\text{min}$ (空気比5~6)、不燃物の投入速度は $100\ \text{g}/5\text{min}$ とした。

更に、可燃物を投入する場合、空気比をパラメータとして、 N_2 , O_2 , CO_2 , CO , H_2 , CH_4 の濃度をガスクロマトグラフィーを用いて適時測定した。このうち、 O_2 濃度については連続的な計測も行い、 O_2 濃度が安定している状態を定常状態と判断し、ガスクロマトグラフィーによる分析を行った。

3. 結 果

〈3・1〉 溶融固化体の特性⁽¹⁾ 金属のみを溶融した場合、基本的には溶融固化体はほぼ均一な金属塊となる。ただし、溶融固化体の表面には酸化皮膜が形成される。ま

図2 ガラス繊維と鉄の溶融固化体の断面
Fig. 2. A fraction of solidified product of glass wool and iron.

た、鉄と不燃物や可燃物を溶融した場合、図2に示すように上層にスラグ、下層に金属の2層になる。金属層は、溶融した金属とほぼ同じ密度と組成であることを確認した。また、スラグ層について得られた結果を表1に示す。同表において、スラグ層は、20~30 wt%の鉄を含むものの、主に金属以外の投入物に由来するため、減容比をスラグ層の体積と投入した不燃物や可燃物の体積の比と定義した。スラグの体積は、スラグ層の比重と重量から求めた。模擬試料の体積は、カタログに記載されている比重と投入重量から求めた。

表1から、いずれの試料も十分に減容されていることがわかる。圧縮強さは、第1期埋設処分用いられているセメント均質固化体の2倍以上の値であることを確認した。また、ケイ素やカルシウムの溶出特性は、溶出期間の短い試験条件ではあるが、高レベル放射性廃液のガラス固化体^{(5)~(7)}と同程度の値であることがわかる。また、ガラス固化体では、鉄はいったん溶液中に溶出したものが難溶性の沈殿を形成するため見掛けの溶出率が小さくなることが知られており⁽⁶⁾、今回の実験結果も同様の傾向を示してい

図3 ダスト濃度
Fig. 3. Dust concentration.

表1 スラグの特性
Table 1. Properties of slags.

模 擬 試 料	金属/可燃物		金属/不燃物		備 考
	鉄/紙・ポリエチレン		鉄/ロックウール	鉄/ガラス繊維	
投入重量 (kg)	33.1/13.1/1.3		27.3/12.0	26.8/7.0	-
スラグ比重	3.4		3.6	3.5	-
減容比	79.2		28.3	146.8	-
圧縮強さ (N/mm²)	70.6		133.4	64.7	25.8 (セメント均質固化体)
規格化質量損失 (g/m²)	ケイ素	1.36	7.63	4.50	0.7 - 25 ^{(5) (6)} (ガラス固化体)
	カルシウム	0.44	1.33	1.29	1 ⁽⁷⁾ (ガラス固化体)
	鉄	2.3×10^{-3}	7.5×10^{-3}	4.9×10^{-2}	-

図4 ダストの粒径分布
Fig. 4. Differential mass distribution of dust.

るものと考えられる。以上の結果から、プラズマ溶融法で作製した固化体の減容比、圧縮強さ、溶出特性は、他の方法で作製した固化体に比べ、遜色のないものが作製できるといえる。

(3・2) 排ガスに含まれるダストの性状⁽²⁾

(1) 実験結果 排ガスに含まれるダストの濃度を図3に示す。同図から、排ガス中に含まれるダストの濃度は、平均値で0.1~5 g/m³Nの範囲であり、溶融材料の飽和蒸気圧に強く依存することがわかる。例えば、模擬試料の中で、飽和蒸気圧が最も高く蒸発しやすいアルミニウムを溶融した場合、ダスト濃度が最も高く、逆に、飽和蒸気圧が低く蒸発しにくいSiO₂、CaO、Al₂O₃などを構成要素とするロックウールでは、ダスト濃度が低い。同図でガラス繊維を溶融した場合、SiO₂が多量に含まれるにもかかわらず、ダスト濃度が高い理由は、蒸発しやすいアルミニウムやすずを発生する紙が含まれているためである。

次に、鉄、ロックウール、ポリエチレンを溶融したときのダストの粒径分布を図4に示す。同図で、 M はダストの積算質量濃度で、粒径は空気力学的粒子径である。いずれの試料でも5 μm前後と0.5 μm以下の粒径で濃度が高かった。これは、図5に示したSEM(走査型電子顕微鏡)の観察結果から、蒸発凝集した微粒子とそれが凝集成長した粗粒子の二種類が存在するためと考えられる。

(2) 集塵装置の適用に関する検討 原子力発電所では、排ガス処理の末端に高性能なHEPAフィルタが用いられている。また、排ガス中のダスト濃度が高い場合、HEPAフィルタの前段に集塵装置を設置し、HEPAフィルタの寿命を延ばしている。ここでは、実用化されている集塵技術を概観し、プラズマ溶融処理システムへの適用について検討する。

まず、今回の実験で得られた排ガスの状態量とダスト性状を以下にまとめる。

(1) 排ガスの状態量

- (i) 排ガス流量：20~90 m³ N/h
- (ii) 炉出口での排ガス温度：最大 1,000°C
- (iii) 水分量：最大 10% (可燃物投入時)
- (iv) 排ガス組成：CO, H₂, CH₄, CO₂, N₂, O₂

(2) ダスト性状

- (i) 粒径分布：5 μm 前後と 0.5 μm 以下の濃度が高い。
- (ii) ダスト濃度：0.03~9 g/m³N
- (iii) ダスト組成：投入材料の酸化物，すず

これらの結果に基づき実用化されている集塵技術の評価検討し表2にまとめる。同表から次のことがわかる。

(1) 前置用として使用される重力沈降室や慣性集塵器は、捕集粒径が大きいので、その効果が期待できない。

(2) サイクロンは構造が簡便であり、耐火材の内張りなどにより高温まで使用できること、3 μm 程度の粒子が捕集できることから、ダストの荒取り用の前置集塵器として使用することが考えられる。

(3) バグフィルタは捕集性能が高い。また、バグフィルタでは、乾式処理であり捕集粉の処理が容易である。これは、放射性核種を含む可能性のあるダスト処理にとって有利であると考えられる。しかし、

- (i) 排ガスの温度や露点に注意が必要である
- (ii) ろ布材が二次廃棄物となる

などの欠点がある。このうち、(i)に対しては、排ガスを希釈・冷却することで対処することが考えられ、(ii)に対しては、適切なろ布材の選定と運転管理によって対処する必要がある。

(4) 電気集塵室では、電気抵抗率が10⁵Ω・cm以下、10¹¹Ω・cm以上のダストに対し捕集効率が低下するという欠点がある。今回得られたダストの組成から判断すると、捕集効率が低下することが懸念される。

(5) 充填層集塵室では、捕集堆積したダストの除去に問題がある。

(6) 湿式処理では、排水に含まれるダストを回収するためにろ過・乾燥装置が必要である。一般に、汚泥や排水処理はやっかいな問題である。

以上の評価から、プラズマ溶融処理システムの集塵装置

図5 ダストのSEM写真(鉄)
Fig. 5. SEM photographs of dust (iron).

表2 既存の集塵技術のプラズマ溶融処理システムへの適用性
Table 2. Applicability of commercial dust collecting technology to plasma melting system.

分類	形式	評価				備考	総合評価
		排ガスの温度	ダスト捕集性能	条件入口濃度	捕集ダストの処理		
乾式	前置用						
	重力沈降室	◎	×	◎	○	捕集性能から適用できない。	×
	慣性集塵器	◎	×	◎	○	捕集性能から適用できない。	×
	サイクロン	◎	△	◎	○	前置集塵装置の第一段として、粗粒子の捕集に適用できる。	○
	バグフィルタ	○	◎	○	○	コストが高い(設備費)。入口濃度が高いと逆洗頻度が高くなる。微粒子の捕集に適用できる。	○
湿式	電気集塵器	○	△	○	○	コストが高い(設備費)。金属酸化物では電気抵抗が高いため、捕集効率が低下する。	△
	充填層	○	○	○	×	充填材とダストの分離が必要である。	×
	湿式電気集塵器	△	○	○	×	水処理が必要である。コストが高い(設備費)。	×
	スクラバ	△	△	○	×	水処理が必要である。	×
	ベンチュリスクラバ	△	○	○	×	水処理が必要である。コストが高い(運転費)。	×

記号の説明 ◎：十分適用できる。○：適用できる。△：適用の際工夫が必要である。×：適用しにくい。

図6 可燃性ガス濃度に及ぼす空気比の影響
Fig. 6. Influence of air ratio on pyrolyzed gas concentration.

の一例として、排ガスを希釈・冷却し前段にバグフィルタを用いてダストを捕集し、後段に HEPA フィルタを用いて微細なダストを捕集する基本構成が考えられる。また、バグフィルタの負荷を軽減するために、前置集塵器としてサイクロンを設置することも考えられる。

〈3・3〉 排ガス組成 空気比が、紙やポリエチレンを投入した場合の排ガスに含まれる可燃性ガスの組成に及ぼす影響を図6に示す。同図から、可燃物は、理論空気量以下の炉内雰囲気条件下でプラズマにより熱分解され、CO、H₂と少量のCH₄が発生することがわかる。逆に、可燃性ガスの濃度は、空気比により調整できると考えられる。

次に、空気比を一定にして紙の投入量を変化させた場合

図7 可燃性ガス濃度に及ぼす紙の投入速度の影響
Fig. 7. Influence of feeding rate of paper on pyrolyzed gas concentration.

の可燃性ガスの組成を図7に示す。同図から、可燃物の投入速度を2～3倍にした場合でも、空気比を一定に保つようにすれば、可燃性ガス濃度をほぼ一定に保てることがわかる。

排ガス処理の観点から、排ガス組成が著しく変化しないことが望ましく、以上の結果は、廃棄物中に含まれる可燃物の量がある程度変化しても、排ガス組成を監視し空気比を調整すれば、炉から排出される可燃性ガス濃度もほぼ一

定に調整できる可能性があることを示唆している。

4. ま と め

雑固体廃棄物の模擬試料をプラズマ加熱を用いて溶融し、大きな減容比が達成できることを明らかにした。得られた溶融固化体の特性を分析し、他の固化手法と比較して遜色のない溶融固化体が、プラズマ溶融法により作製できることを明らかにした。また、溶融時に発生するダスト性状を明らかにし、既存の集塵技術が適用できることを明らかにした。これらの結果から、プラズマ加熱技術を雑固体廃棄物の溶融処理に適用できる見通しを得た。

また、排ガス組成の基礎的なデータを収集した。このデータは、可燃物の混入した雑固体廃棄物を処理する場合の排ガス処理システムの構築、運転管理方法の最適化の検討などに活用できる。

なお、本研究の一部は、科学技術庁から放射性廃棄物処理処分技術開発促進費補助金を受けて実施した。

(平成6年1月25日受付)

天 川 正 士 (正員) 1960年1月9日生。1984年3月早稲田大学工学部電気工学科修士課程修了。同年4月(財)電力中央研究所入所。以来、アークプラズマ応用技術および大電流アーク放電に関する研究に従事。廃棄物学会、原子力学会会員。

足 立 和 郎 (正員) 1962年2月26日生。1984年3月九州工業大学工学部電気工学科卒業。61年3月九州大学大学院工学研究科電気工学専攻修了。1986年4月(財)電力中央研究所入所。以来、アークプラズマ応用技術および大電流アーク放電に関する研究に従事。

安 井 晋 示 (正員) 1965年2月16日生。1989年3月名古屋工業大学大学院工学研究課電気情報工学専攻修了。同年4月(財)電力中央研究所入所。以来、アークプラズマ応用技術および電子・イオンビーム利用技術の研究に従事。

文 献

- (1) 足立・天川・安井：「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)ー溶融固化体の諸特性ー」, 電中研報告, W 92043 (平5)
- (2) 天川・足立・安井：「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)ー排ガスに含まれるダストの性状と集塵装置の選定ー」, 同上, W 92012 (平5)
- (3) 安井・天川・足立：「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)ー可燃物の熱分解ガス生成特性ー」, 同上, W 92022 (平5)
- (4) 渋谷・天川・足立・安井・岩田・山崎・木下・飯田：「不燃性廃棄物溶融用プラズマ炉の開発ー都市廃棄物の焼却灰溶融用100kW級トーチの開発ー」, 同上, W 90038 (平3)
- (5) 横山：「高レベル廃棄物固化体の浸出性(その8)ー浸出性に及ぼす浸出層の影響(動的試験条件)ー」, 同上, T 86049 (昭63)
- (6) C. M. Jantzen & M. J. Plodinec: "Thermodynamic model of natural, medievall and nuclear waste glass durability", *J. Non-Crystalline Solids*, **67**, 207 (1984)
- (7) N. Godon, et al.: "Experimental alteration of R7T7 nuclear model glass in solutions with different salinities (90°C, 1bar): implications for the selection of geological repositories", *J. Material Science*, **23**, 128 (1988)

稲 葉 次 紀 (正員) 1941年2月18日生。1966年名古屋工業大学第二部電気工学科卒業。1968年同大学大学院修士課程修了。1971年名古屋大学大学院博士課程満了。1956年～1964年三菱電機名古屋製作所, 1965～1968年アデカ・アーガス化学三重工場勤務。1971年電力中央研究所入所。1994年3月まで、同所横須賀研究所電力部に所属。主として、直流送電における限流・遮断現象、送配電機器におけるアーク現象とその対策ならびにアークプラズマ応用技術の研究に従事。現在、中央大学理工学部電気・電子工学科教授。1978～1979年西ドイツ・ブラウンシュバイク工科大学高電圧研究所においてフンボルト客員研究員として限流遮断の研究に従事。工学博士。1976, 1988年論文賞受賞。1988～1989年、電気学会評議員。1991年基礎・材料・共通部門調査担当役員。現在、大電流エネルギー制御技術調査専門委員会委員長。低温工学会、IEEE 会員。