

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
（先行的処理手法及び分析手法に関する研究開発））

In-Can ガラス固化技術の適用性評価 2018年度 成果報告

(株) Orano ATOX D&D SOLUTIONS
(ANADEC)

目次

1. バックグラウンド
2. 2018年度プロジェクトの目標とマイルストーン
3. プロジェクトの概要
4. スケジュール
5. 実施体制
6. 実施内容
 - STEP 1. シナリオ検討
 - STEP 2. ベンチスケール試験
 - STEP 3. パイロットスケール試験
 - STEP 4. 福島第一への適用性評価
7. 結論
8. さらに必要な研究



1. バックグラウンド(1/5)

福島第一の水処理二次廃棄物の現状

処理方法の違いによる、特性の異なる多種多様な水処理二次廃棄物が福島第一構内に保管されている。

- ゼオライト
- 珪チタン酸塩
- ALPSスラリー
- Actifloスラッジ
- 他

以下の項目を達成可能な処理が必要である

- 減容
- 放射性核種の封じ込め
- 処理後の放射線分解リスクがない
- 液体および固体の供給が可能
- スラッジ処理の温度制御が容易
- 適切な処理能力
- ...他

上記の項目を達成するためには、脱炭酸、脱水、高密度化が必要となる

→ ガラス固化は処理方法として適している



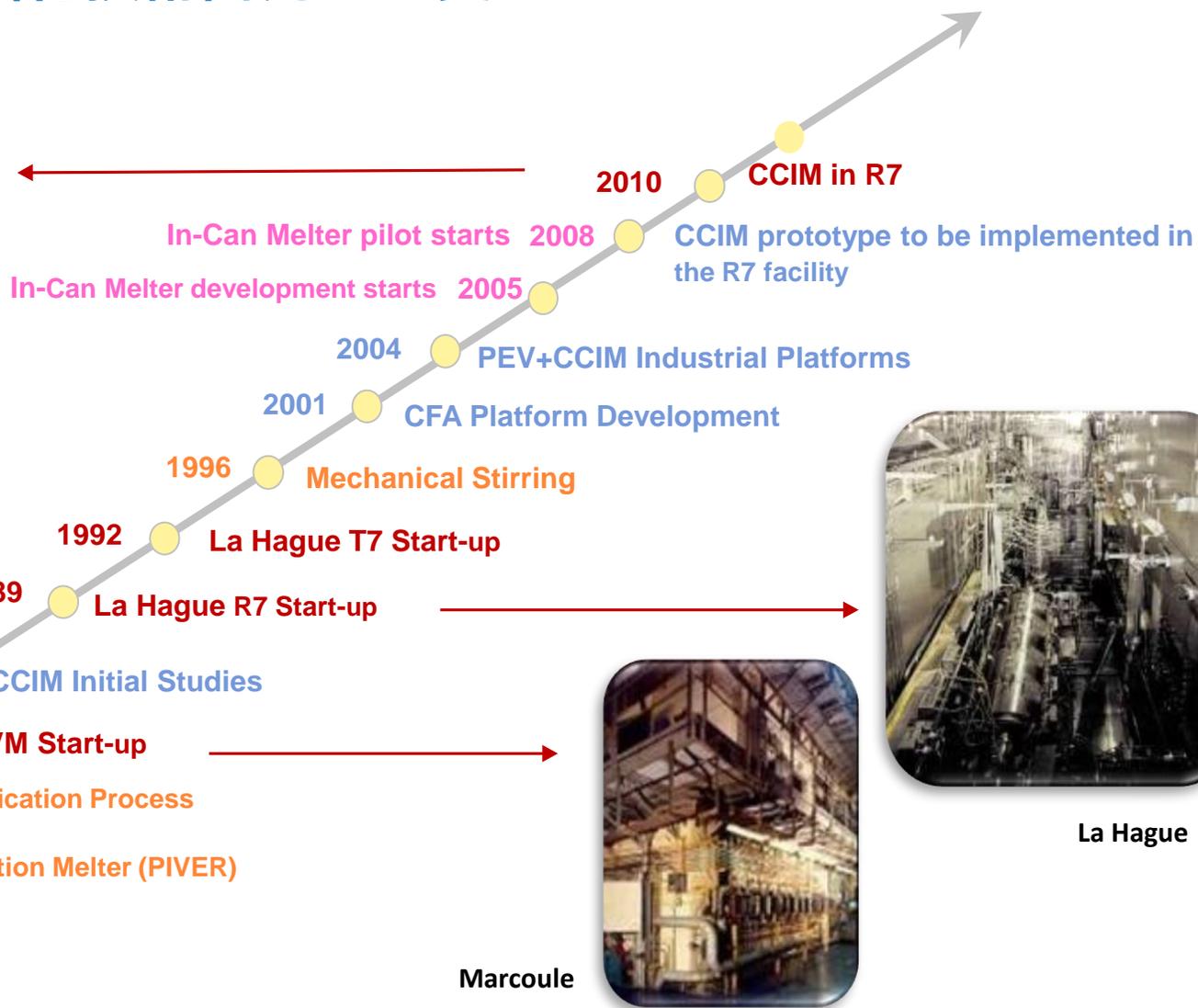
1. バックグラウンド (2/5)

フランスのガラス固化技術開発の歴史



La Hague

AVM、CCIM、In-Can Melter等、様々なタイプのガラス固化システムが試験・開発されてきた。



1. バックグラウンド (3/5)

In-Can Melter の開発と福島第一への適用性

「In-Can Melter」については、2005年からCEAにより以下の開発が実施されてきた。

① アルファ廃棄物処理

- In-Canガラス固化技術は、当初アルファ廃棄物処理のために開発された。
- その技術開発については、パイロット機（100kgガラス/CAN）を使用した20回に渡る一連の試験（通常運転、感受性試験、過渡モード、劣化モード）を実施・完了しており、非放射性模擬試料での検証は完了済みである。
- 2014：ガラス固化体の耐久性データ(ガラス固化体の浸出速度、微細構造の観察結果等)をANDRAに提供
- 2016：フランス原子力安全規制当局（ASN）に対する技術審査文書の作成完了
- 2018：工業化（産業応用、建屋建設等）に向けたプロセスデータブックの作成

② D&D廃棄物処理

- セシウム含有率の高いD&D廃棄物について、In-Canガラス固化パイロット機を用いて検証を実施
- 液体・固体、両方の廃棄物について、In-Canガラス固化試験を実証

したがって、

- In-Canガラス固化技術は、**短期間で福島第一に適用できる解決策**である。
- 基本的なIn-Canガラス固化技術のプロセス開発は終了しているが、（廃棄物組成・添加物の明確化、稼動条件の明確化、ユニットの産業化など）**福島第一特有のニーズに適合させる必要がある。**
- 本事業により、**福島第一への適用性についてパイロットスケールでの試験で確認する。**



1. バックグラウンド (4/5)

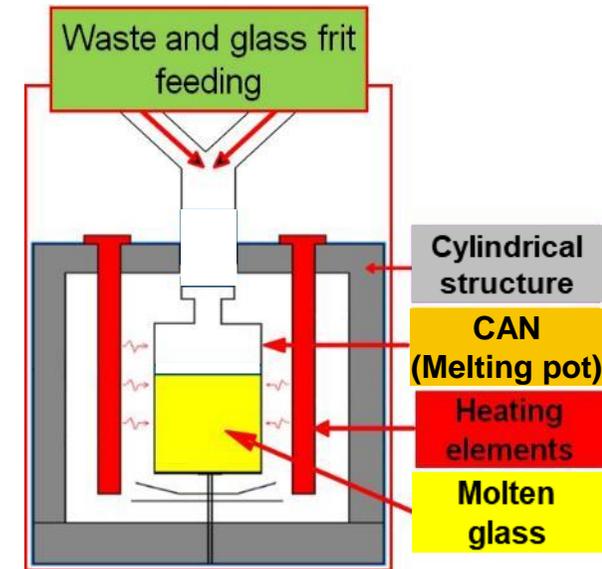
In-Can Melter の優位性 (1/2)

- 安定したガラスマトリックスを形成するために、廃棄物容器 (CAN) 自体を、廃棄物とガラス添加剤を溶融させる容器 (CAN: Melting pot) として、直接使用している。

- CANは各バッチ毎に新しいものを使用**

⇒ 放射性廃棄物に対しロバストで用途の広い解決策である。

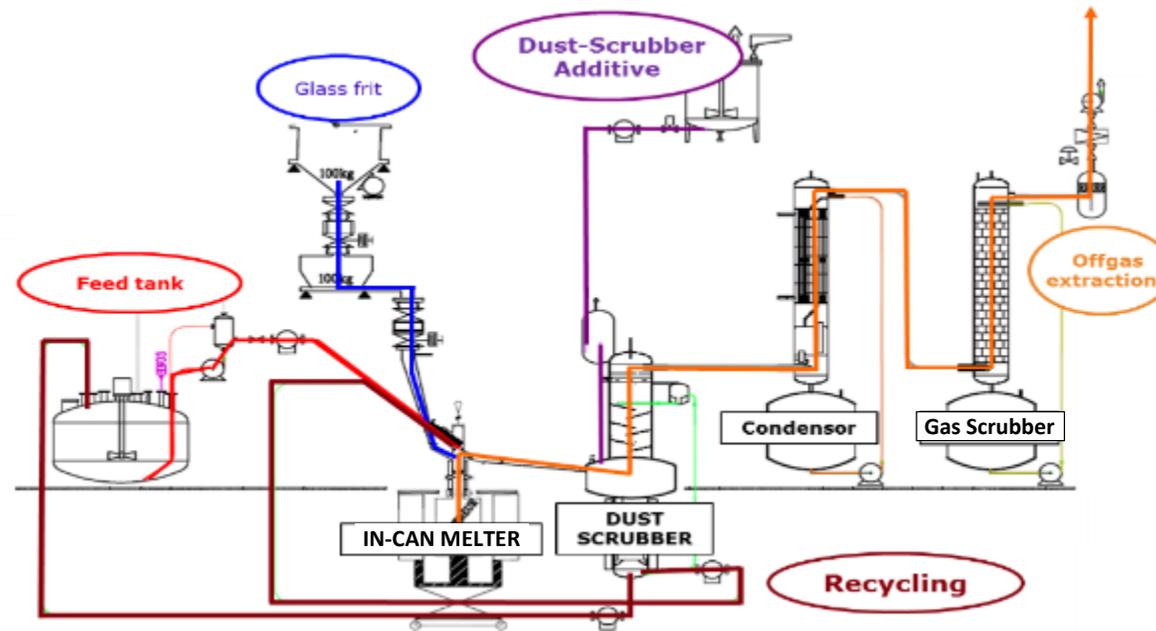
- バッチ処理であり、各バッチで新しいCANを使用
 - 設備を大幅に簡略化
 - CANの腐食の問題は限定的
- 溶融したガラスをキャニスタに流し込む必要がない
 - サイトでの制約に対しより柔軟性の高いシステム
- 溶融ガラスと直接接触する設備がない
 - アクティブ条件下の運転や保守が容易
 - 二次廃棄物が非常に少ない
- CANを抵抗加熱炉により簡単に加熱出来る
 - 加熱プロセスは独立しており、廃棄物・ガラス組成の影響を全く受けない
 - シンプルで安価な加熱システムであり、維持・運転・温度制御が容易である
- (1日での温度昇降など) 熱サイクルの制御が容易である
 - 運転プロセスはかなり大きな柔軟性を示している
- コンパクトな設備
 - 設備投資が少なく、現場での処理が可能(廃棄物の発生現場に装置を設置し処理が可能)



1. バックグラウンド (5/5)

In-Can Melter の優位性 (オフガス処理系) (2/2)

- In-Canガラス固化技術のオフガス処理系は、Oranoラ・アーク再処理工場で実用化された高レベル放射性廃棄物のガラス固化プロセスに適用されている、コンパクトな湿式のオフガス処理系と同等の処理系で構成されている。
 - ダストスクラバー、コンデンサー、ガススクラバーで構成されている。
 - ダストスクラバーの廃液は、加熱プロセス内へリサイクルされる。
 - 溶融中に揮発し、ダストスクラバーで捕集されたCsもリサイクルされる。質量バランス上、コンデンサー以降のCs量の減少につながる。



2. 2018年度プロジェクトの目標とマイルストーン(1/1)

目標: 最も関連性の高い福島第一の廃棄物へのIn-Canガラス固化技術の適用性を評価する。特に、

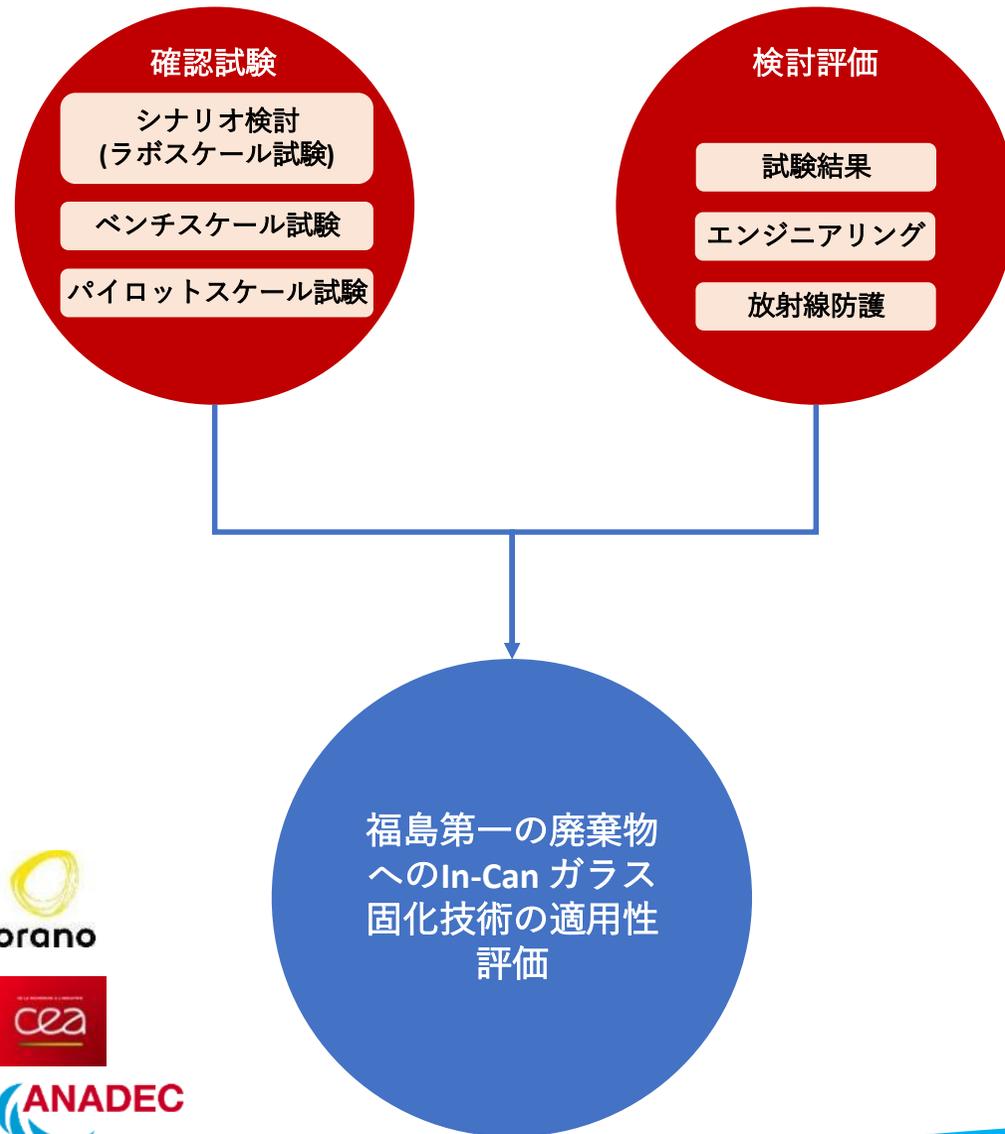
1. 最大量の廃棄物の処理
2. 最大限の廃棄物の減容
3. 主要放射性核種の長期安定化

重要なマイルストーンは：

- できるだけ多くの廃棄物を処理し、Cs、Srを固定化するための**ガラス組成の最適化**
- **工学的パラメータの最適化**（温度、時間、他）
（設備、プロセスライン数、ガス処理、メンテナンス、CANの管理など）
- 福島第一への現場適用のために必要な**設計検討の実施**
- 福島第一への現場適用に際し、必要な今後の試験内容を**提言**



3. プロジェクトの概要 (1/2)



主たる目標を達成するため、プロジェクトは以下二分野に分かれている:

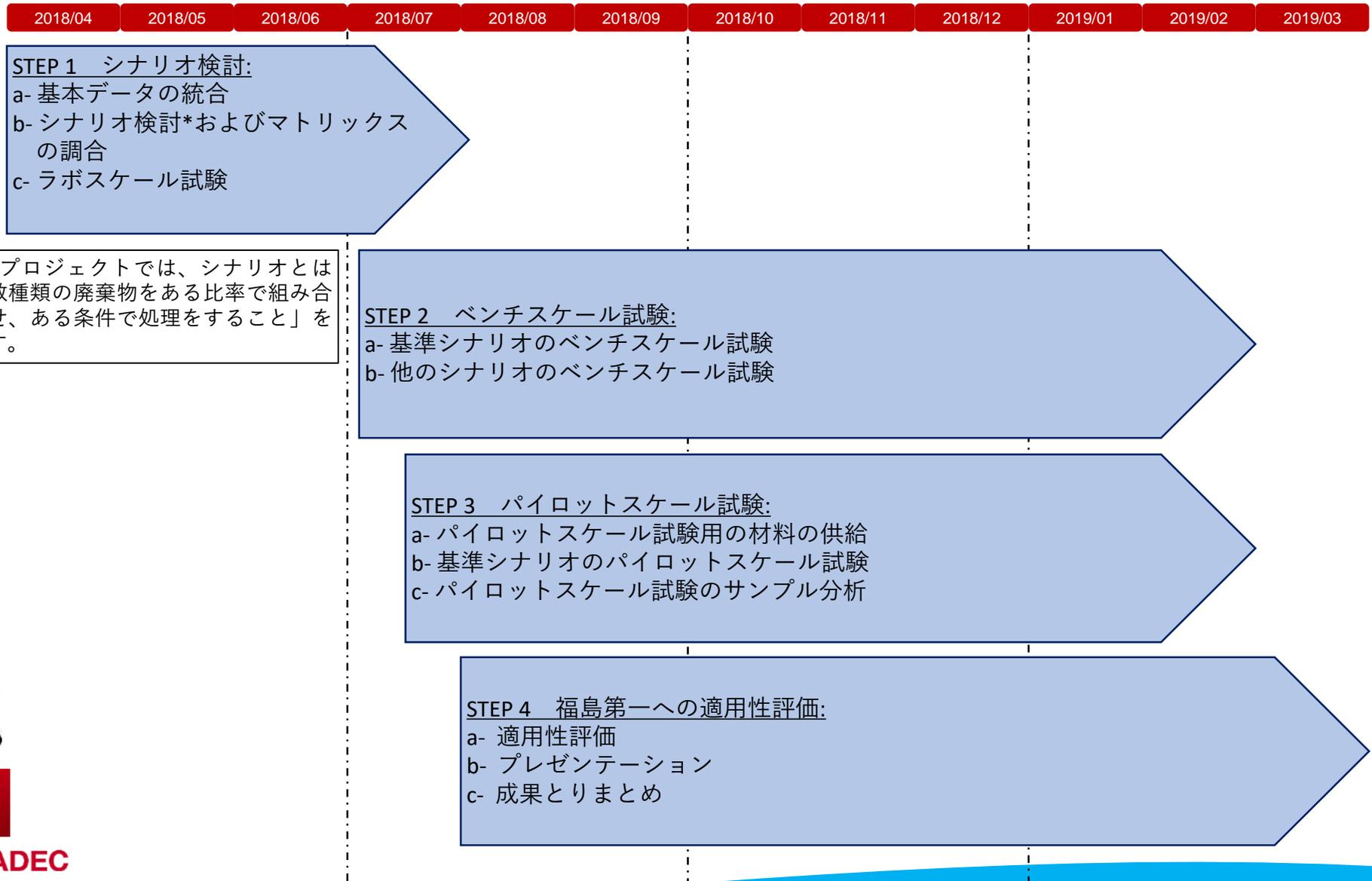
1. 確認試験
2. 検討評価

確認試験でのガラス固化試験は以下三段階のスケールアップで実施された:

1. シナリオ検討(ラボスケール試験) (ガラス約100g)
2. ベンチスケール試験 (ガラス約1kg)
3. パイロットスケール試験 (ガラス約100kg)

検討評価は、ベンチスケールとパイロットスケール試験の結果に基づき、プロジェクトの全期間を通して実施した。確認試験および検討評価の結果に基づき、福島第一の廃棄物へのIn-Canガラス固化技術の適用性を評価する。

3. プロジェクトの概要 (2/2)



4. スケジュール (1/1)

	2018年度											
	18/04	18/05	18/06	18/07	18/08	18/09	18/10	18/11	18/12	19/01	19/02	19/03
STEP 1：シナリオ検討	■											
a- 基本データの統合 ANADEC: C, CEA: C, Orano: L		■										
b- シナリオ検討およびマトリックスの調合 ANADEC: C, CEA: L, Orano: C			■									
c- ラボスケール試験 ANADEC: C, CEA: L, Orano: C			■									
STEP 2：ベンチスケール試験			■									
a- 基準シナリオのベンチスケール試験 ANADEC: C, CEA: L, Orano: C			■									
b- 他のシナリオのベンチスケール試験 ANADEC: C, CEA: L, Orano: C					■							
STEP 3：パイロットスケール試験			■									
a- パイロットスケール試験用の材料の供給 ANADEC: C, CEA: L, Orano: C				■								
b- 基準シナリオのパイロットスケール試験 ANADEC: C, CEA: L, Orano: C						■						
c- パイロットスケール試験のサンプル分析 ANADEC: C, CEA: L, Orano: C									■			
STEP 4：福島第一への適用性評価			■									
a- 適用性評価 ANADEC: C, CEA: C, Orano: L				■								
b- プレゼンテーション ANADEC: L, CEA: C, Orano: C							■					■
c- 成果とりまとめ ANADEC: L, CEA: C, Orano: C												■

L: Leader
C: Contributor



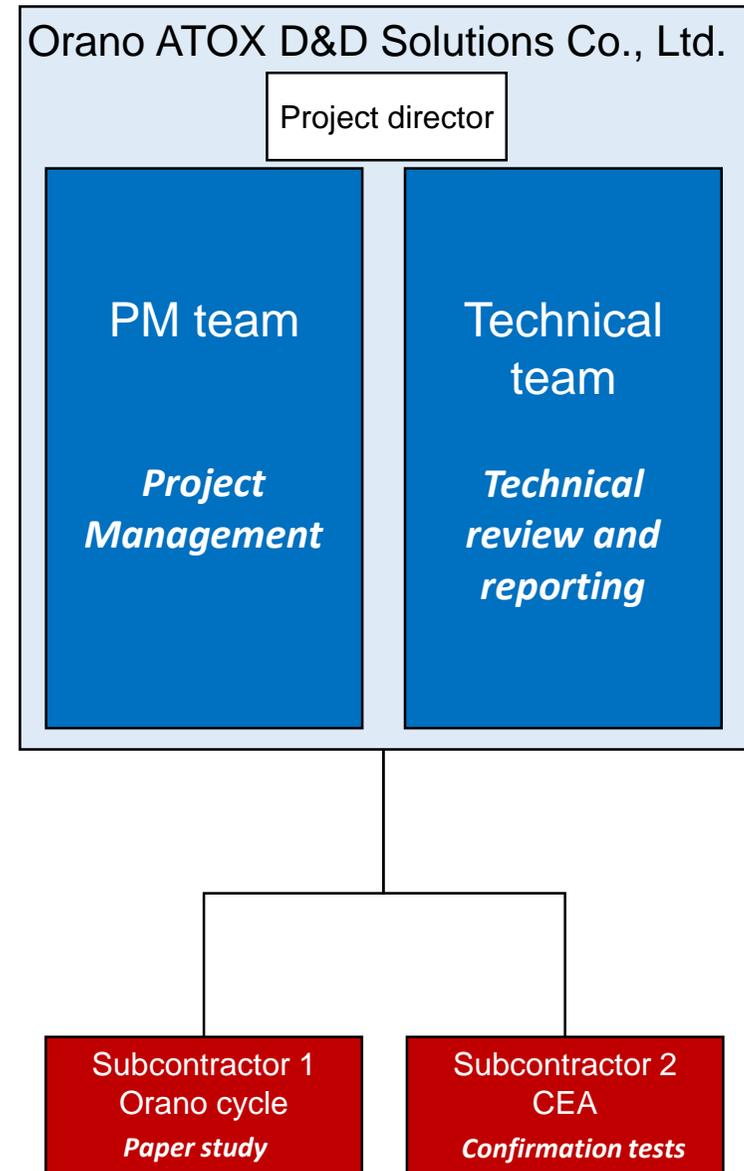
5. 実施体制 (1/1)

プロジェクトはANADECにより管理され、各外注先は主として以下の項目を実施する：

- CEA : STEP 1b, 1c, 2a, 2b, 3a, 3b, 3c
- Orano : STEP 1a, 4a

ANADEC は以下の役割を担う：

- 全ての外注先へ必要な情報を適宜提供する。
- 関係機関からの要求を適切にプロジェクトに反映する。
- 全ての文書のレビューおよび検証後、仕様に従い期限内に提出する。



6. 実施内容

STEP 1. シナリオ検討(1/6): 基本データの統合

1. 福島第一の廃棄物を幅広く本プロジェクトでカバーできるよう、STEP 1では福島第一の廃棄物について様々なデータを収集した。
 - 体積
 - 化学組成
 - 放射能
 - 含水率
 - 密度
 - 保管方法
 - 他
2. 福島第一の廃棄物データの収集後、プロジェクトのインプットデータとしてすべてのデータを統合した。
3. インプットデータの中から、本プロジェクトで検討対象とする廃棄物を選択した。



6. 実施内容

STEP 1. シナリオ検討 (2/6): シナリオ検討用に大部分の廃棄物を選択

廃棄物の選択基準:

量的に可能な限り多くの廃棄物を取り扱うことを目的に廃棄物を選択

2017年7月の時点で、8000m³程度の水処理二次廃棄物が発生している。

廃棄物の選択にあたり、体積・乾燥重量・放射能を考慮した。選択した廃棄物は以下のとおり。

- ゼオライト
- ALPS炭酸塩スラリー
- ALPS鉄共沈スラリー
- 珪チタン酸塩
- 砂

これらの廃棄物は福島第一の廃棄物の乾燥重量の80%程度、体積の90%程度、放射能の99%程度を占めていると考えられる。

選択したこれらの廃棄物から、

ラボスケール、ベンチスケール試験用に4シナリオを選定

4シナリオから、パイロットスケール試験用に1シナリオ(基準シナリオ)を選定

シナリオとは「数種類の廃棄物のある比率で組み合わせ、ある条件で処理をすること」を示す。



6. 実施内容

STEP 1. シナリオ検討 (3/6): シナリオ一覧表

	シナリオA	シナリオB 基準シナリオ	シナリオC	シナリオD
概要	選定プロセスで除外されなかった全ての固体の廃棄物とスラッジ	選定プロセスで除外されなかった全ての固体の廃棄物と乾燥スラッジ	Csを豊富に含む廃棄物	Csをほとんど含まず、Srを豊富に含む廃棄物
構成	ゼオライト、珪チタン酸塩、ALPSスラリー（炭酸塩および鉄共沈）、砂	ゼオライト、珪チタン酸塩、ALPSスラリー（炭酸塩および鉄共沈）、砂	ゼオライト、珪チタン酸塩、砂	珪チタン酸塩、ALPSスラリー（炭酸塩および鉄共沈）
供給廃棄物の種類	- 固体の吸着剤 - 液体状態のスラッジ	固体のみ	固体のみ	- 固体の吸着剤 - 液体状態のスラッジ
実運用時に必要な前処理*	前処理なしで処理可能。スラッジを事前濃縮することにより処理速度の向上が可能。	スラッジの乾燥/脱水	不要	前処理なしで処理可能。スラッジを事前濃縮することにより処理速度の向上が可能。
試験	- ラボスケール** - ベンチスケール** - CsとSrを添加	- ラボスケール** - ベンチスケール** - パイロットスケール** - CsとSrを添加	- ラボスケール** - ベンチスケール** - Csを添加	- ラボスケール** - ベンチスケール** - Srを添加
特徴	<ul style="list-style-type: none"> 選定した全廃棄物を混合する(固体・液体の両方) スラッジを濃縮する可能性あり 作製されるガラスの組成は1種類のみとなる 	<ul style="list-style-type: none"> 選定した全廃棄物を混合する(固体) スラッジの乾燥/脱水処理 作製されるガラスの組成は1種類のみとなる 	<ul style="list-style-type: none"> Csを豊富に含む廃棄物のみ シナリオDとの組合せを考慮すると、作製されるガラスの組成はシナリオCとシナリオDでそれぞれ1種類ずつ、合計2種類となる 	<ul style="list-style-type: none"> Csをほとんど、あるいは全く含まない廃棄物のみ スラッジを濃縮する可能性あり シナリオCとの組合せを考慮すると、作製されるガラスの組成はシナリオCとシナリオDでそれぞれ1種類ずつ、合計2種類となる
メリット	<ul style="list-style-type: none"> 最終的に作製されるCAN数は最小となる 	<ul style="list-style-type: none"> 固体のみを取り扱うため、より高い処理能力を有する CAN数はシナリオAと同じく最小となる 	<ul style="list-style-type: none"> 固体のみを取り扱うため、高い処理能力 シナリオCとの組合せを考慮すると、高放射線環境で扱う廃棄物が限定される（体積割合で20%程度） 	<ul style="list-style-type: none"> 低放射線環境で処理可能（体積割合で80%程度）
デメリット	<ul style="list-style-type: none"> 固体・液体の両方を扱うため、処理能力は限定される 全ての廃棄物を高放射線環境で扱う 	<ul style="list-style-type: none"> 全ての廃棄物を高放射線環境で扱う 	<ul style="list-style-type: none"> シナリオDとの組合せを考慮すると、最終的なCAN数は増加する 	<ul style="list-style-type: none"> シナリオCとの組合せを考慮すると、最終的なCAN数は増加する 固体・液体の両方を扱うため、処理能力は限定される

* 本年度の試験では前処理未実施

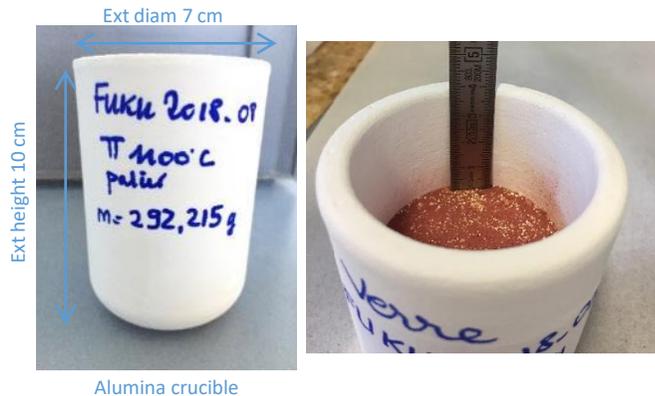
** ラボスケール：ガラス100g程度、ベンチスケール：ガラス1kg程度、パイロットスケール：ガラス100kg程度

シナリオAまたはB、シナリオCとDの組合せにより選択した1F廃棄物の全てを処理可能

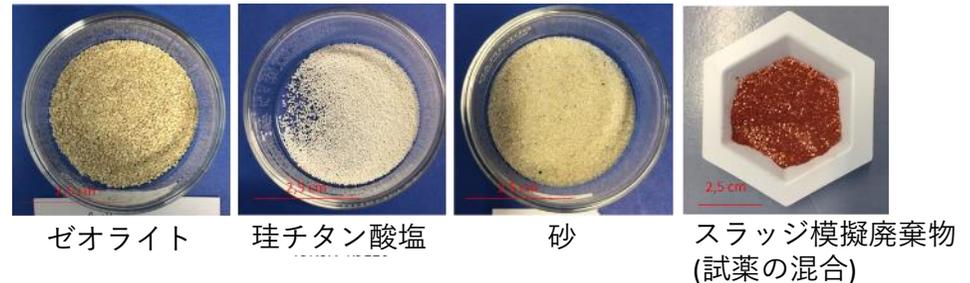
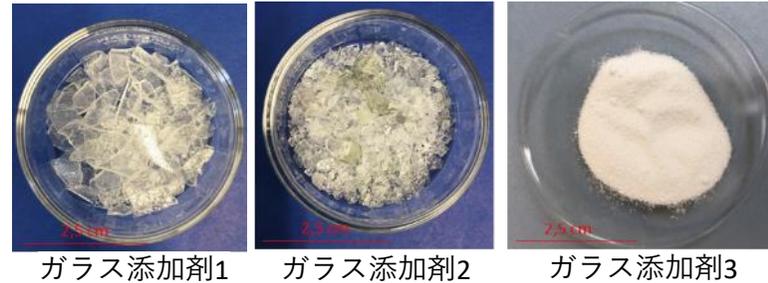
6. 実施内容

STEP 1. シナリオ検討 (4/6): ラボスケール試験

- ガラス組成計算を検証するために、ガラス固化体を、ガラス添加剤と模擬廃棄物（固形物は実際の化合物、スラッジ成分は試薬で代用）の混合物を熱処理し、ラボスケールで生成した
- 試験ごとに約100gのガラス固化体が生成される



模擬廃棄物は全て事前投入される。

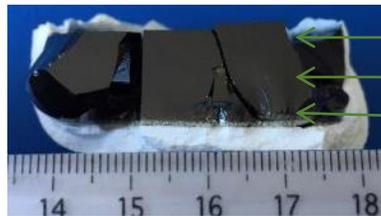


- 溶融温度: 1100 °C
- 溶融時間: 数時間程度

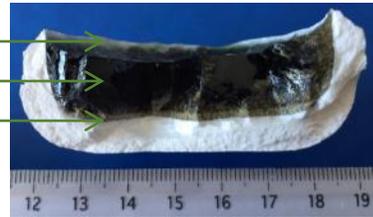
6. 実施内容

STEP 1. シナリオ検討 (5/6): ラボスケール試験の分析と比較

シナリオA/B
(全廃棄物の混合)



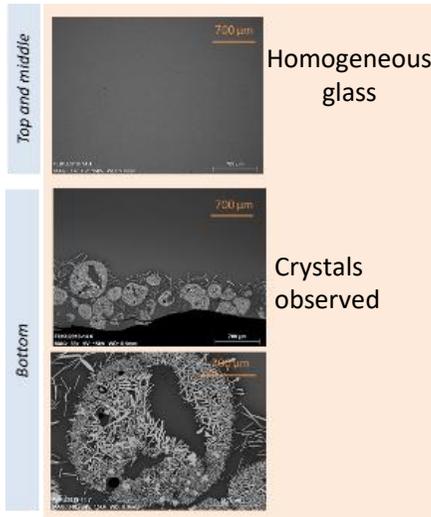
シナリオC
(Csを豊富に含む廃棄物)



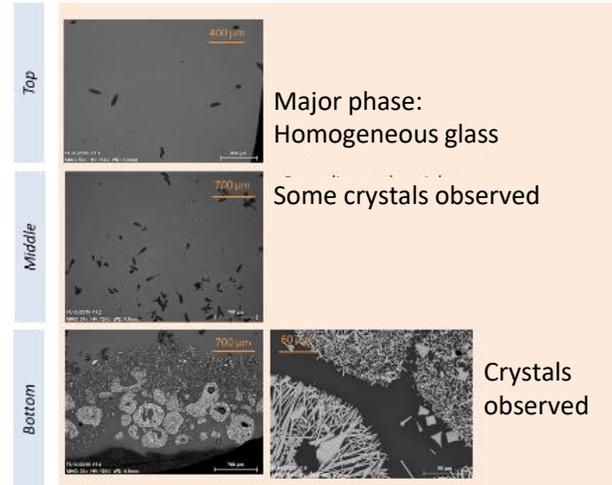
シナリオD
(Srを豊富に含む廃棄物)



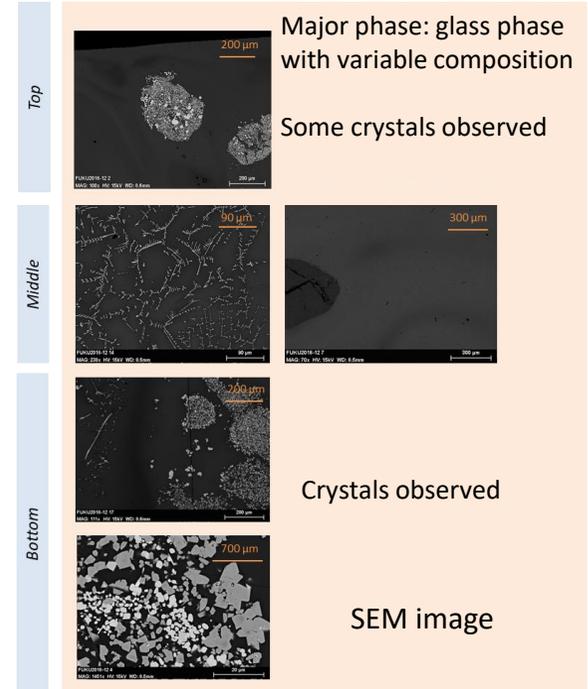
Top
Middle
Bottom



SEM image



SEM image



- 固く高密度なガラス固化体を得られた
- 廃棄物はガラス内に問題なく取り込まれ、巨視的に均質的な相が確認された。
- 結晶の生成は珪チタン酸塩中のTi, Zr, Nb (全シナリオ)およびALPSスラリー中のMg, Ca(シナリオA, B, D)による。
- シナリオAとBにおいては、Actifloスラッジを用いたラボスケール試験にて、Actifloを含めた場合でもガラス固化が可能であることも確認された。

6. 実施内容

STEP 1. シナリオ検討 (6/6): まとめと結論

- インプットデータに基づき、検討対象とする廃棄物を選択し、試験用の4シナリオを選定した。各シナリオでガラス固化の実現性の確認と廃棄物充填率の決定のためラボスケール試験を実施した。
- 全シナリオにおいて、適切なガラスが作製できることが判明した。
- シナリオAとBにおいては、Actifloスラッジを用いたラボスケール試験にて、Actifloを含めた場合でもガラス固化が可能であることも確認された。



6. 実施内容

STEP 2. ベンチスケール試験 (1/7): 目的と概要

目的:

- パイロットスケール試験の実施前に、小規模での廃棄物により、溶融時の挙動を把握する。
- 溶融ガラス上での廃棄物の溶融性を評価する
- ラボスケール試験でのガラス固化体作製結果の検証
- 運転温度を確認する
- 化学物質（特にCs）の揮発性を評価する

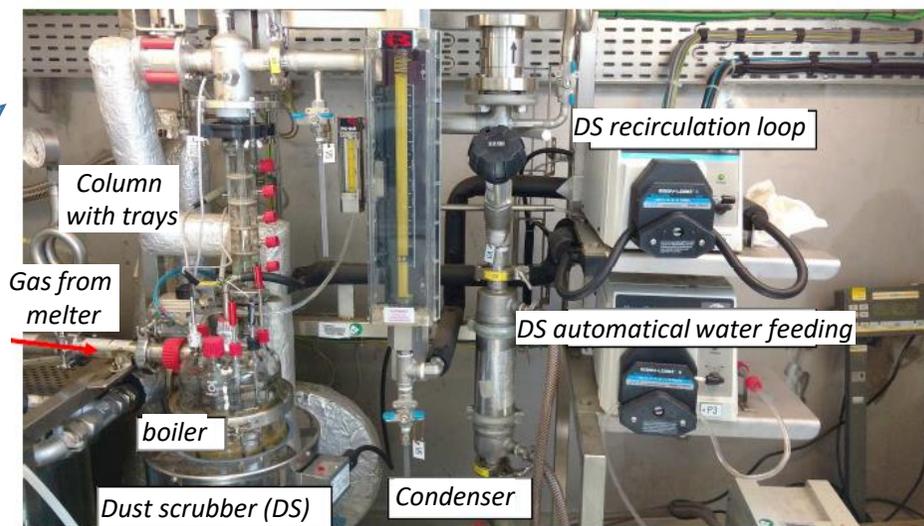
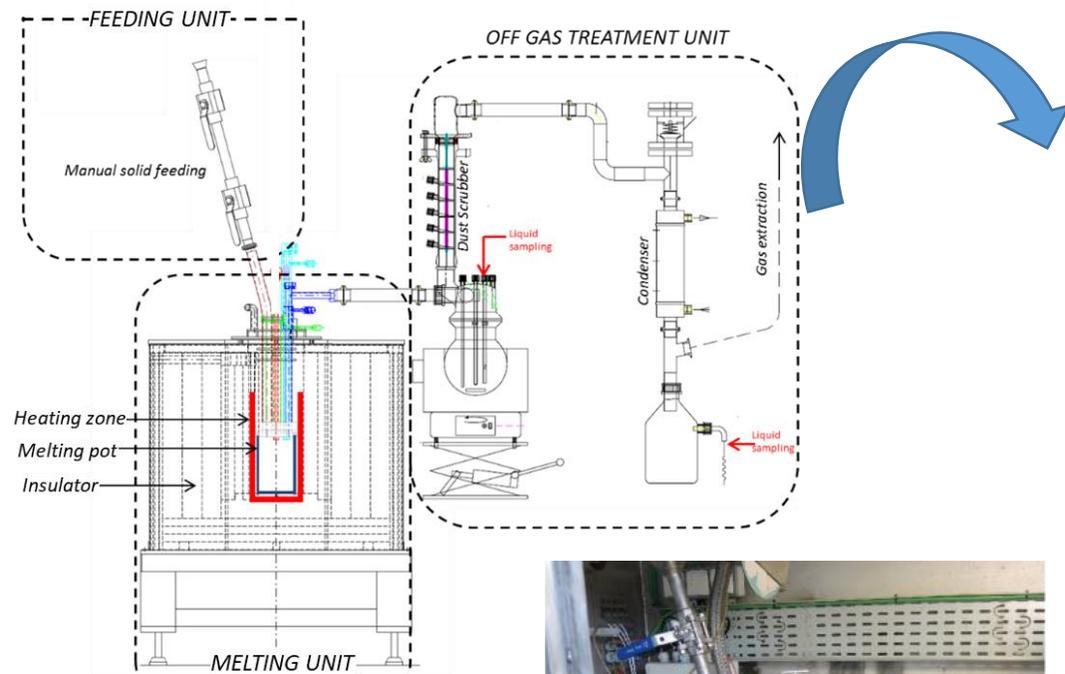
シナリオ A	シナリオ B	シナリオ C	シナリオ D
全ての固体の廃棄物とALPSスラリーの混合	全ての固体の廃棄物とALPSスラリーの混合	Csを豊富に含む廃棄物の混合	Srを豊富に含む廃棄物の混合
<ul style="list-style-type: none">固体: Cs添加ゼオライト, 珪チタン酸塩, 砂スラリー(含水率50%): ALPS炭酸塩スラリー、ALPS鉄共沈スラリーガラス添加剤	<ul style="list-style-type: none">固体: Cs添加ゼオライト, 珪チタン酸塩, 砂乾燥/脱水スラリー: ALPS炭酸塩スラリー、ALPS鉄共沈スラリーガラス添加剤	<ul style="list-style-type: none">固体: Cs添加ゼオライト, 珪チタン酸塩, 砂ガラス添加剤	<ul style="list-style-type: none">固体: 珪チタン酸塩乾燥スラリー: ALPS炭酸塩スラリー、ALPS鉄共沈スラリーガラス添加剤

溶液中でのゼオライトへのCs添加



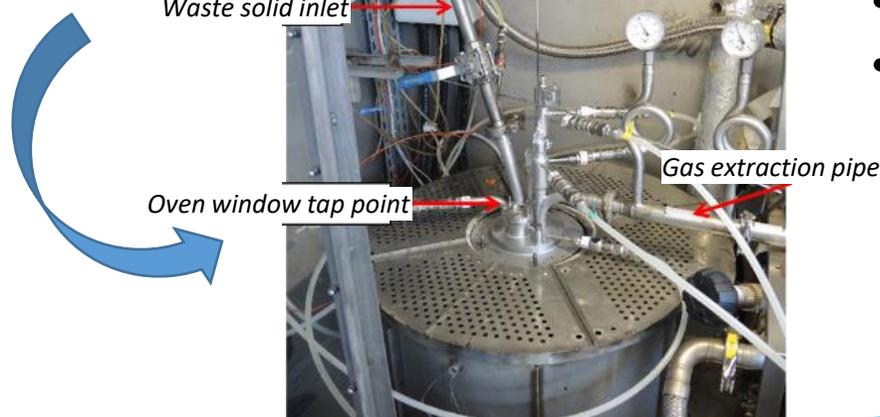
6. 実施内容

STEP 2. ベンチスケール試験 (2/7): 試験装置



ベンチスケール試験装置*

- 供給装置
- 熔融装置(抵抗加熱)
- オフガス処理装置(ダストスクラバーとコンデンサー)



* シナリオDは異なる試験装置で実施



6. 実施内容

STEP 2. ベンチスケール試験 (3/7): 廃棄物投入量と温度推移

代表的な温度と廃棄物供給の条件

- 加熱前に一定量の模擬廃棄物を事前投入する
- 設定温度まで昇温する
- 設定温度に達し、事前投入した廃棄物の溶融後、徐々に廃棄物を供給(追加投入)していく。
- 試験中、ダストスクラバーとコンデンサーから廃液をサンプリングする(シナリオDを除く。シナリオDではオフガス処理装置のない装置で試験を実施した。)
- 廃棄物の供給が終了した後は、
 - 温度を維持
 - その後、加熱停止
 - CANは炉内で自然冷却



6. 実施内容

STEP 2. ベンチスケール試験 (4/7): ガラス質量と揮発率

- シナリオA~Dにおいてベンチスケール試験を実施した
- 各シナリオにおいて、約1400g程度のモノリシックで高密度なガラス固化体を作製した。

揮発率の計算方法

$$\text{ダストスクラバー前：揮発率} = \frac{\text{ダストスクラバーとコンデンサーで回収された各重量}}{\text{溶融炉へのCsまたはSrの供給量}}$$

$$\text{ダストスクラバー後：揮発率} = \frac{\text{コンデンサーで回収された各重量}}{\text{溶融炉へのCsまたはSrの供給量}}$$

オフガス廃液から検出された元素

揮発率 (wt %)	シナリオ A		シナリオ B		シナリオ C	
	ダストスクラバー前	ダストスクラバー後	ダストスクラバー前	ダストスクラバー後	ダストスクラバー前	ダストスクラバー後
Cs	0.5~1 %	0.25~0.5 %	1~1.5 %	0.25~0.5 %	1~1.5 %	0.25~0.5 %
Sr	< 0.05%	< 0.05%	< 0.05%	< 0.05%	-	-

- オフガス廃液をダストスクラバーとコンデンサーからサンプリングし、ICP-MSにて分析。
- シナリオDではオフガス処理装置のない試験装置を用いたため、オフガス廃液のサンプリングを実施していない。

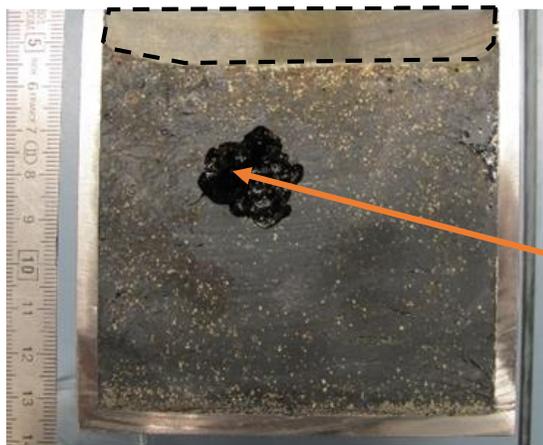


6. 実施内容

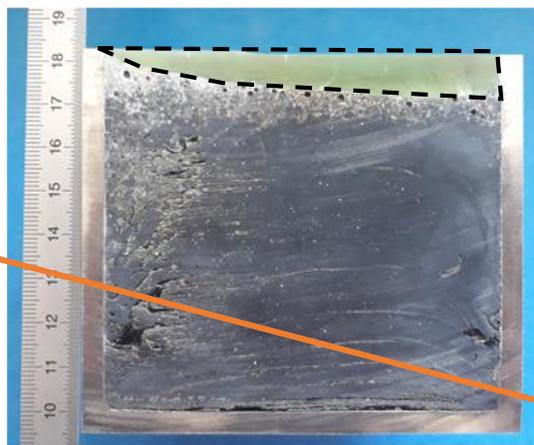
STEP 2. ベンチスケール試験 (5/7): 巨視的観察

CANを切断後、目視観察を実施

シナリオA



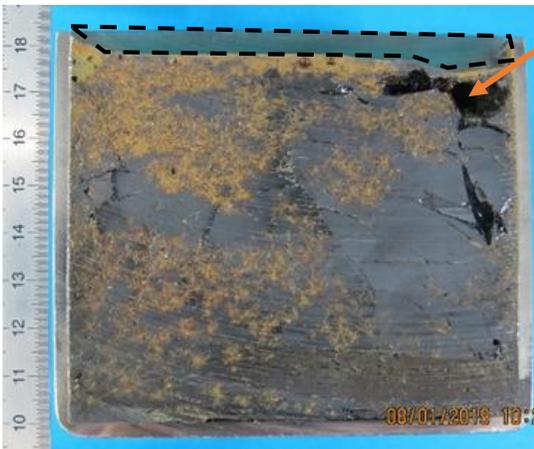
シナリオB



シナリオC



シナリオD



- 固く高密度なガラス固化体を得られた
- ガラス中に廃棄物は問題なく取り込まれた
- シナリオAとDのガラス上部にシュリンクボイド(固化体内の空隙部)が発生

※一部切断時の跡が付いてしまっているガラスあり
※ガラスを安全に切断するため、全シナリオでガラス固化プロセス後にポリマーをCAN上部に充填している(点線囲部)



6. 実施内容

STEP 2. ベンチスケール試験 (6/7): 微視的観察

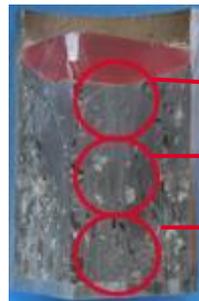
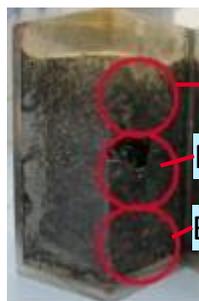
各ガラス3点ずつSEM/EDX分析を実施

シナリオA

シナリオB

シナリオC

シナリオD



Top

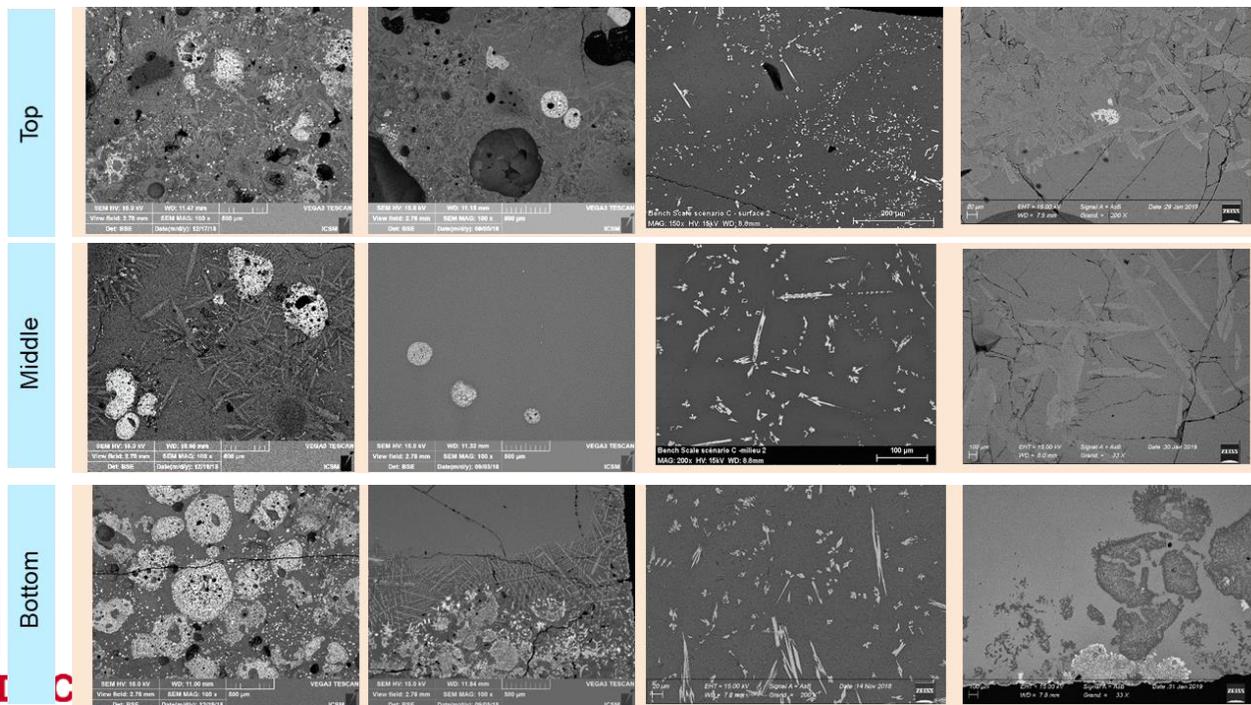
Middle

Bottom

Top

Middle

Bottom



- シナリオA,C,Dにおいて、ガラスマトリックス全体に結晶が分散。シナリオBにおいては、主にCANの上部と底部に結晶が生成。
- ラボスケール試験と同様の結晶相が生成された。
- 結晶の生成は珪チタン酸塩中のTi, Zr, Nb (全シナリオ)およびALPSスラリー中のMg, Ca(シナリオA, B, D)による。



6. 実施内容

STEP 2. ベンチスケール試験 (7/7): まとめと結論

- シナリオA~Dにおいてベンチスケール試験を実施した
- 各シナリオにおいて、1kgを超えるモノリシックで高密度なガラス固化体を作製した。
- シナリオA,B,CにおいてCsの揮発率を測定し、**0.5wt%未満**という値を得た。
- SEM/EDX分析で結晶中にCsは検出されなかった。生成された結晶は不溶性であることや、In-Canプロセスにはガラス排出プロセスがなく、加熱プロセスはCAN内物質の影響を受けないことから、In-Canプロセスでは結晶はガラスの長期的耐久性、プロセスの実施、いずれの観点でも問題とはならない。
- シュリンクボイドの生成はキャニスタ内で冷却されるガラス固化体として典型的な挙動であり、問題とはならない。



6. 実施内容

STEP 3. パイロットスケール試験 (1/6): 目的と概要

目的: - ガラス固化プロセス中での各機能/性能の確認

→CsとSrの挙動、揮発性、マスバランス、固体/液体供給、オフガス処理...

- シナリオBにおいて、100kg規模のガラス固化体を作製すること
- 主要核種の揮発率を評価し、ベンチスケール試験と比較する
- 追加材料供給は、供給した材料の溶融を観察しながら実施される
- 作製されるガラス固化体のSEM分析を行い、ラボスケール試験およびベンチスケール試験と比較する



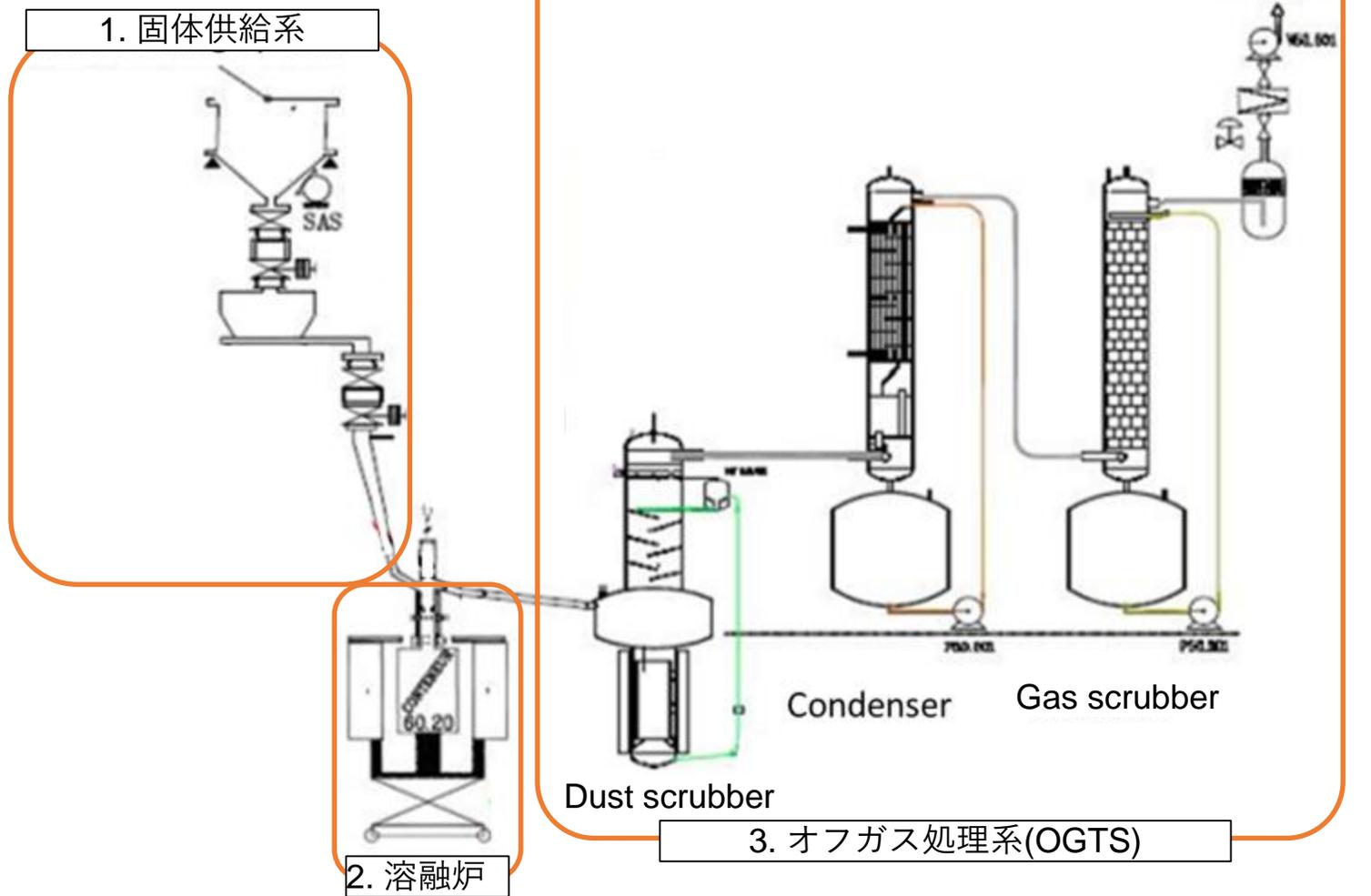
=> 実験的アプローチの有効性の確認



6. 実施内容

STEP 3. パイロットスケール試験 (2/6): 試験装置

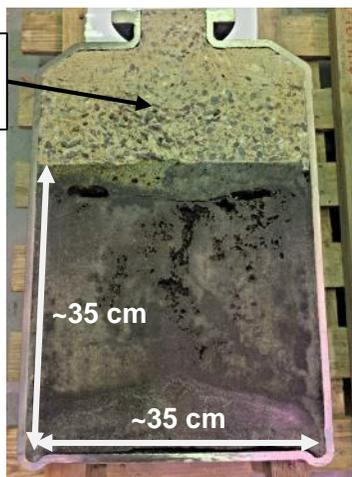
三つのパーツから構成



6. 実施内容

STEP 3. パイロットスケール試験 (3/6): ガラス質量と揮発率

切断前にコンクリートを充填



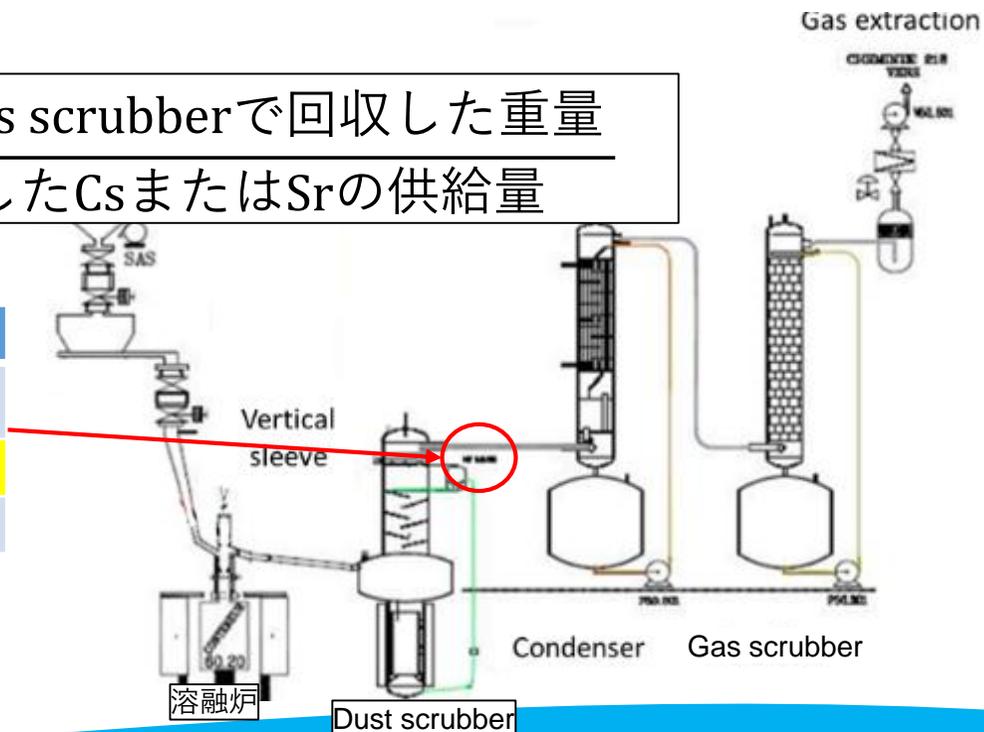
溶融温度: 1100°C

102kgのガラスの作製に成功

$$\text{揮発率} = \frac{\text{CondenserとGas scrubberで回収した重量}}{\text{CANに投入したCsまたはSrの供給量}}$$

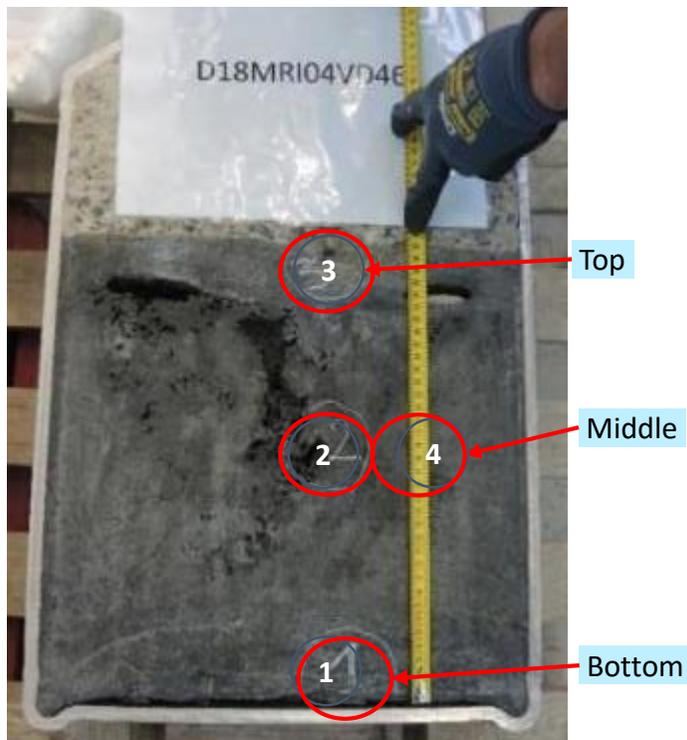
揮発率	
核種	ダストスクラバー後
Cs	0.25~0.38%
Sr	<0.1%

オフガス廃液をICP-MSにて分析



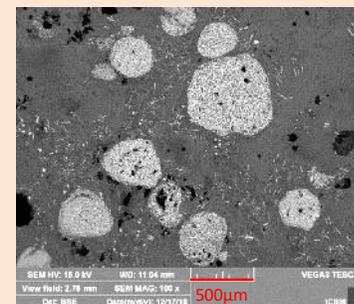
6. 実施内容

STEP 3. パイロットスケール試験 (4/6): 巨視的/微視的観察



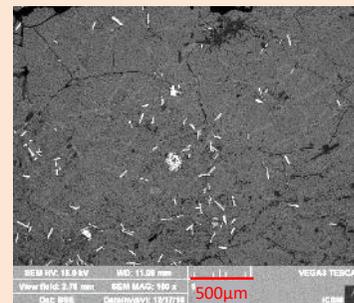
- 固く高密度なガラス固化体を得られた
- ガラス中に廃棄物は問題なく取り込まれた
- ガラス上部にシュリンクボイド(固化体内の空隙部)が発生

Top

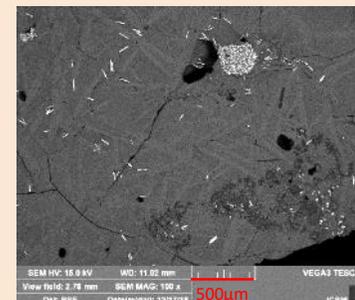


zone 3

Middle

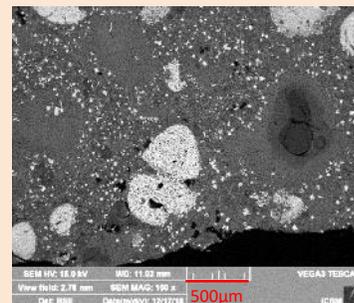


zone 2



zone 4

Bottom



zone 1

SEM image



- ガラスマトリックス全体に結晶が分散。
- ベンチスケール試験と同様の結晶相が生成された。
- 結晶の生成は珪チタン酸塩中のTi, Zr, Nb (全シナリオ)およびALPSスラリー中のMg, Ca(シナリオA, B, D)による。

6. 実施内容

STEP 3. パイロットスケール試験 (5/6): まとめと結論

- シナリオBでのパイロットスケール試験を実施した
- 100kgを超えるモノリシックで高密度なガラス固化体を作製した。
- 模擬廃棄物はガラス固化体中に問題なく取り込まれた
- Csの揮発率を測定し、最大で0.38%という値を得た。
- SEM/EDX分析で結晶中にCsは検出されなかった。生成された結晶は不溶性であることや、In-Canプロセスにはガラス排出プロセスがなく、加熱プロセスはCAN内物質の影響を受けないことから、In-Canプロセスでは結晶はガラスの長期的耐久性、プロセスの実施、いずれの観点でも問題とはならない。
- シュリンクボイドの生成はキャニスタ内で冷却されるガラス固化体として典型的な挙動であり、問題とはならない。



6. 実施内容

STEP 3. パイロットスケール試験 (6/6): 実験的手法の結論

In-Canプロセスのロバスト性を確認
する実績のあるスケールアップ手法

パイロットスケール

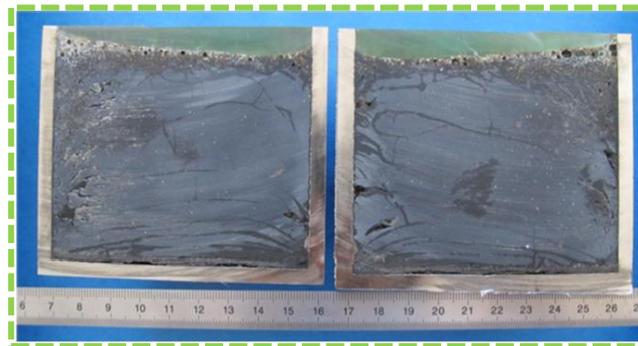
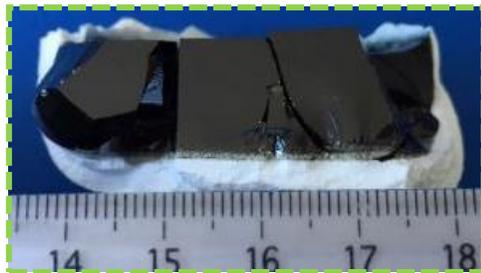
100 kg

ベンチスケール

1kg

ラボスケール

100 g



模擬廃棄物の事前投入 - オフガス処理なし

→ 作製される物質の確認

模擬廃棄物の事前投入および追加投入 - オフガス分析

→ 物質の確認 / 核種の揮発率の確認

ベンチスケールとパイロットスケールの両方で、固く高密度であり結晶相等の微視的構造も同等のガラスの作製が可能であることを確認

→ ガラス作製という点で、ベンチスケール試験は十分な代表性と有効性を有している

→ 本スケールアップ手法のIn-Canプロセスへの適用は適切である

6. 実施内容

STEP 4. 福島第一への適用性評価 (1/16): 目的と概要

In-Canガラス固化の適用性評価のため、STEP1-3に基づき様々なアプローチを開発・検討する。研究項目は以下のとおり。

- アプローチの比較
- In-Canガラス固化の福島第一への実施検討
- CANの材質の検討
- 廃棄物の最終処分の考え方
- 選択しなかった廃棄物の処理方法

適用性評価のための仮定は以下のとおり

- 110 L ガラス/CAN、共通キャニスタであるCSDキャニスタを参考に仮定



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (2/16): 考えられる2種類のアプローチ

- ALL MIX: 選択した廃棄物を全部混ぜる方法

→ MIX1: CsとSrを両方含む廃棄物

- ゼオライト, 珪チタン酸塩, 砂
- ALPS炭酸塩スラリー + ALPS鉄共沈スラリー

選択した廃棄物一覧

- ゼオライト
- ALPS炭酸塩スラリー
- ALPS鉄共沈スラリー
- 珪チタン酸塩
- 砂

- STREAM SEPARATION: 選択した廃棄物を2種類に分別して処理する方法

→ MIX 2.1: Csを豊富に含む廃棄物

- ゼオライト, 珪チタン酸塩, 砂

→ MIX 2.2: Srを豊富に含む(Csをほとんど含まない)廃棄物

- Srのみを含む珪チタン酸塩
- ALPS炭酸塩スラリー + ALPS鉄共沈スラリー

- In-Canプロセスは液体・固体両方の処理が可能なことから、ALPSスラリーについては、2種類の供給方法を検討した。

➤ OPTION 1: 脱水されたスラリーを固体で供給

➤ OPTION 2: 濃縮されたスラリーを液体で供給

6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (3/16): アプローチの比較(1/2)

各アプローチのCANの本数と放射能を評価した

CAN本数

アプローチ名	ALL MIX	STREAM SEPARATION	
処理対象廃棄物	MIX 1 CsとSrを両方含む廃棄物	MIX 2.1 Csを豊富に含む廃棄物	MIX 2.2 Srを豊富に含む廃棄物
CAN本数	5683	3664	3773
		7437	
減容率* (%)	~ 9%	~11%	

*減容率 = (処理後の廃棄物体積) / (処理前の廃棄物体積)

STREAM SEPARATIONの場合、CANの総本数がALL MIXと比べ31%増加

CANの放射能

STREAM SEPARATIONの場合、CANの半数は非常に低いCs放射能しか持たず、崩壊熱も低い。これは、最終処分までのより簡素でより経済的な管理を可能とする。



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (4/16): アプローチの比較(2/2)

選択した福島第一の廃棄物を処理するのに
必要な溶融炉数を評価した

液体供給(OPTION 2)は固体供給に比べて必要な炉数が多くなる。
(液体の蒸発に多くのエネルギーが必要であるため)

固体供給(OPTION 1)の場合は、ALL MIX、STREAM SEPARATION
の両方で必要な炉数は同じ

→ 固体供給(OPTION 1)について、設置レイアウトを検討



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (5/16): In-Canガラス固化の福島第一への実施検討 (1/5)

ALL MIX : OPTION 1

MIX1

- ガラス固化のコンセプトは1つ
- 最終的な廃棄物パッケージは1種類のみ
- 主要プロセスはホットセル内での実施
- マニピュレーターによる遠隔メンテナンスの設備をモジュールで設置

溶融炉4系統、ホットセル2基からなる施設が1つ*

STREAM SEPARATION: OPTION 1

MIX2.1, MIX2.2でそれぞれ異なるガラス固化のコンセプトおよび廃棄物パッケージ

Cs: MIX2.1

- ALL MIXと同様に主要プロセスはホットセル内での実施
- マニピュレーターによる遠隔メンテナンスの設備をモジュールで設置

溶融炉2系統、ホットセル1基からなる施設が1つ*

Sr: MIX2.2

- MIX1, MIX2.1よりシンプルな遮へい付き建屋
- 線源除去後、人手でメンテナンス

溶融炉2系統、遮へい付き作業部屋が2部屋設置されている施設が1つ*

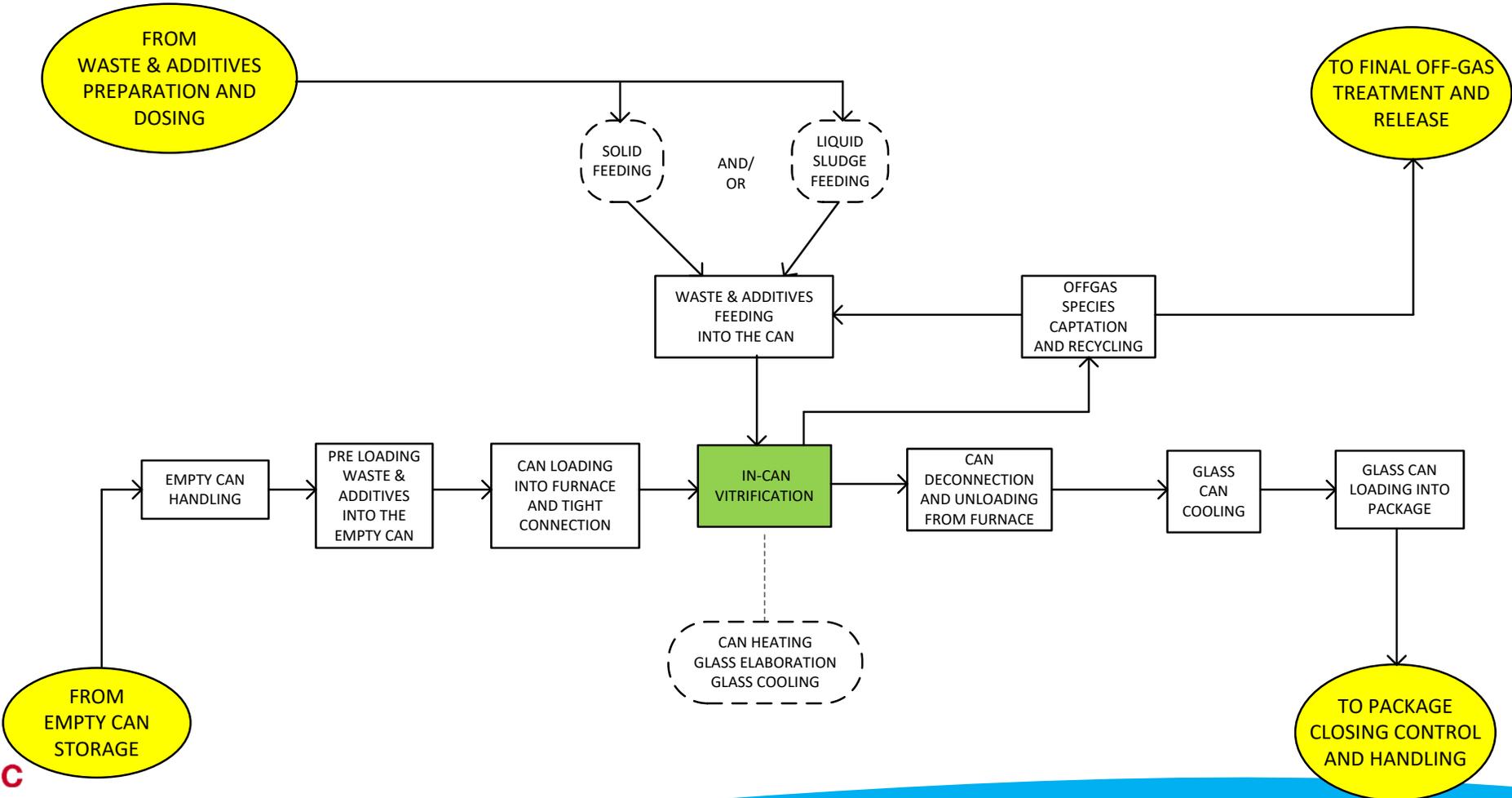
*運転期間を10年間と仮定



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (6/16): In-Canガラス固化の福島第一への実施検討 (2/5)

VITRIFICATION MODULE MAIN FUNCTIONS DIAGRAM

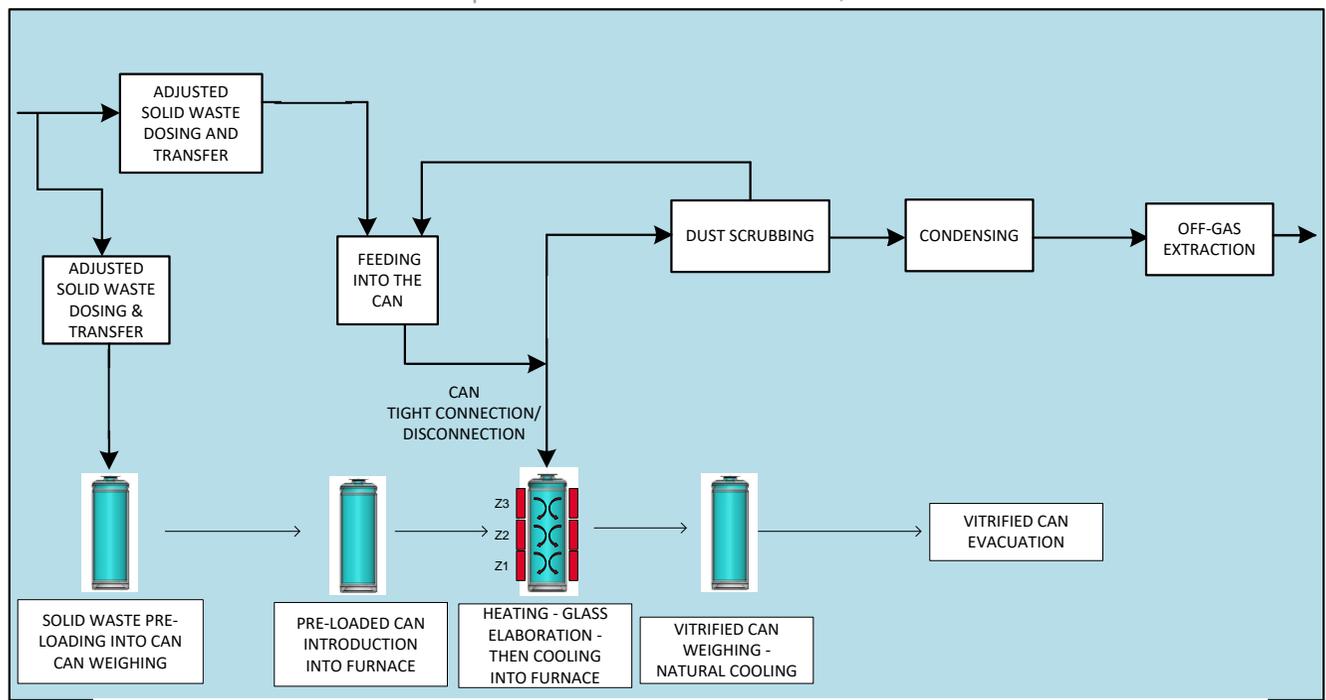
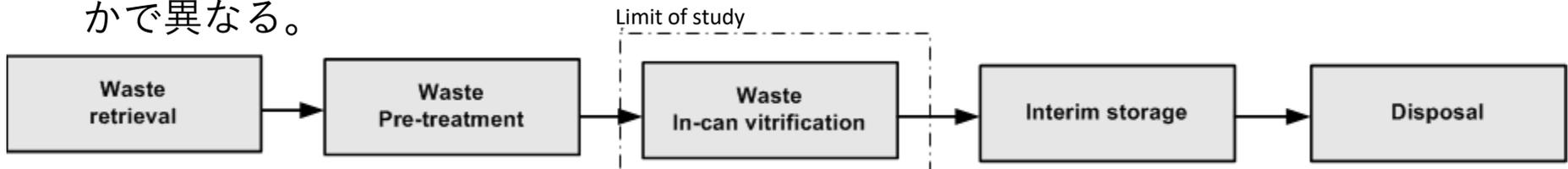


6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (7/16): In-Canガラス固化の福島第一への実施検討 (3/5)

ガラス固化設備のコアモジュールについてのレイアウト検討

- ALL MIX、STREAM SEPARATIONの両アプローチで同様の設備となる
- 放射線防護についての特徴が、Csを豊富に含む廃棄物かSrを豊富に含む廃棄物かで異なる。



予備的な設備レイアウトの研究を両アプローチで実施



6 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (8/16): CANの材質の検討(1/2)

背景:

CEAは、これまでの腐食性の高い廃棄物のガラス固化の経験から、インコネル製容器を選択した。

福島第一での必要性:

- ガラス固化体作製中および最終パッケージ化するまでの冷却中のガラス閉じ込め
- 加熱プロセスへの材料の適合性
- 最終パッケージと配置、形状等が適合すること
- 冷却後、最終パッケージ化までのCANの操作性・取り扱い

見解:

- ➔ インコネルは高価であり、福島第一の廃棄物について必ずしも必要なものではない
- ➔ 福島第一では大量のCANが必要となる
- ➔ 低コストな代替案の評価は興味深い



6 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (9/16): CANの材質の検討(2/2)

コスト軽減のため2つの見解

- ニクロム合金 (インコネル):

- In-Can ガラス固化についての実現性はすでにフランスで実証されている。
- 主な欠点はそのコストである。

- → 見解: CANの厚さを薄くし、腐食性の廃棄物のみに利用する

- 代替材料:

- 可能性のある代替材料を特定: 耐熱ステンレス鋼(253 MA, 309S, 310...)
- これらの材質の主な利点は、低コストであることである。
- クリープ耐性や高温条件下での耐熱ステンレス鋼の耐性が課題

- → 見解: 実際の材料を用いたクリープ/腐食試験にて確認

6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (10/16): 廃棄物の最終処分の考え方 (1/3)

ALL MIX

廃棄物パッケージは1種類のみ

MIX1

Cs+Sr パッケージ

- パッケージは特定のキャスクで貯蔵・移送
- 廃棄物パッケージの例：
ガラス固化体が充填されたCAN1個を内包する共通キャニスタ(CSDキャニスタ)1個
- 共通キャニスタは日本ですでに認証済み

STREAM SEPARATION

MIX2.1, MIX2.2でそれぞれ異なるガラス固化のコンセプトおよび廃棄物パッケージ

Cs: MIX2.1

Cs パッケージ

- パッケージは特定のキャスクで貯蔵・移送
- 廃棄物パッケージの例：
ガラス固化体が充填されたCAN1個を内包する共通キャニスタ(CSDキャニスタ)1個

Sr: MIX2.2

Sr パッケージ

- ガラス固化体が充填されたCANを複数個貯蔵した、遮へい付き廃棄物パッケージ
- 廃棄物パッケージの例：大型の5m³のCBF-Kタイプコンテナ



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (11/16): 廃棄物の最終処分の考え方 (2/3)

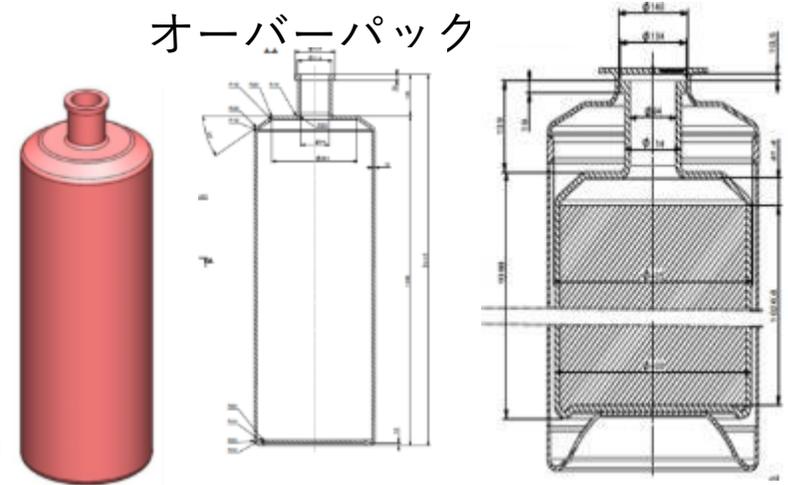
ALL MIX

廃棄物パッケージは1種類のみ

MIX1

Cs+Sr パッケージ

例: ガラス固化体が充填されたCAN1個を共通キャニスタでオーバーパック



orano



経済的な観点から、最大9本のガラス固化体が充填されたCANを収納可能なコンクリートまたは金属製の5m³の大型オーバーパック案も、両アプローチにおいて考えられる。

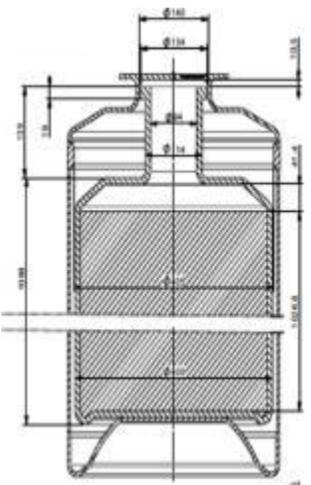
STREAM SEPARATION

MIX2.1, MIX2.2でそれぞれ異なるガラス固化のコンセプトおよび廃棄物パッケージ

Cs: MIX2.1

Cs パッケージ

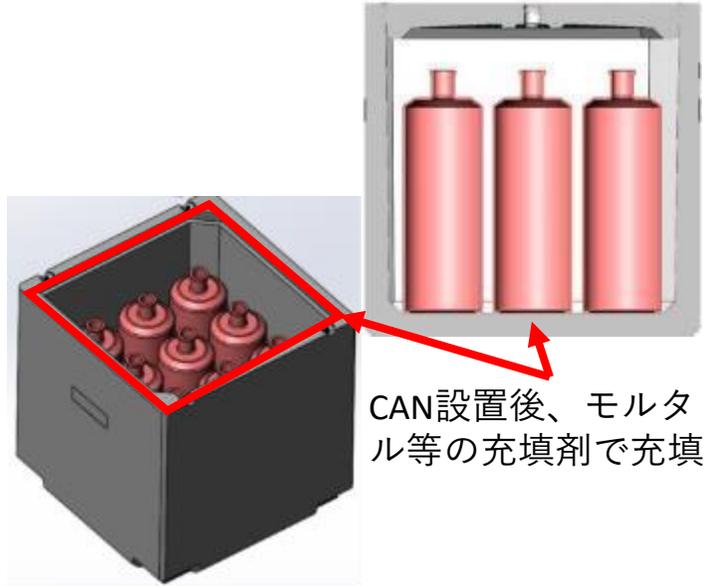
ALL MIXと同様



Sr: MIX2.2

Sr パッケージ

例: 大型の5m³ パッケージ



CAN設置後、モルタル等の充填剤で充填

6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (12/16): 廃棄物の最終処分の考え方 (3/3)

浅地中処分の可能性について

ALL MIX

Cs+Sr パッケージ

例: ガラス固化体が充填されたCAN1個を共通キャニスタでオーバーパック

100年間*の中間貯蔵を実施したとしても、浅地中処分基準に適合しない可能性がある

STREAM SEPARATION

2種類のガラスパッケージ

Cs パッケージ

ALL MIXと同様、100年間*の中間貯蔵を実施したとしても、浅地中処分基準に適合しない可能性がある

Sr パッケージ

例: 大型の5m³ パッケージ

60年程度*の中間貯蔵を実施した後、浅地中処分が可能となる可能性あり

ピット処分時の廃棄物の放射能濃度上限

核種	濃度上限(ピット処分)
C-14	100 GBq/ton
Co-60	1 PBq/ton
Ni-63	10 TBq/ton
Sr-90	10 TBq/ton
Tc-99	1 GBq/ton
Cs-137	100 TBq/ton
Alpha nuclide	10 GBq/ton

*予備的な試算



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (13/16): 選択しなかった廃棄物の処理方法 (1/3)

選択しなかった廃棄物は検討した2種類のアプローチへの影響が考えられるため、予備的な分析を実施した。

- Actifloスラッジ
- 蒸発濃縮スラリー
- 有機廃棄物(イオン交換樹脂)
- 活性炭
- 他のALPS吸着材

考えられる処理方法を予備的に研究した。



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (14/16): 選択しなかった廃棄物の処理方法 (2/3)

Actifloスラッジ

- ラボスケール試験により以下2点を確認した。
 - ALL MIXアプローチでは、Actifloスラッジはガラス内に全量取り込むことができる
 - STREAM SEPARATIONアプローチについては、さらなる研究が必要
- 乾燥やセメント固化といったガラス固化以外の処理方法も提案可能である。

蒸発濃縮スラリー

- ALPS炭酸塩スラリーと組成が類似しており、In-Canガラス固化で処理可能だと思われる。
- 海水成分由来の腐食性イオン(Cl^- , SO_4^{2-})の影響は評価する必要がある。
- 乾燥やセメント固化といったガラス固化以外の処理方法も提案可能である。



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (15/16): 選択しなかった廃棄物の処理方法 (3/3)

有機廃棄物 (イオン交換樹脂)

2種類の熱処理方法が考えられる:

- 現在のシナリオ中に少量混ぜ、ガラス溶融中に酸化させる方法
- 専用の前処理ステップをIn-Canプロセスに追加した、専用の処理システムを設計する。
- また、Oranoのこれまでのセメント固化プロセスについてのR&Dやラアーグ再処理施設でのセメント固化施設での経験等から、セメント固化等の他の処理方法も提案可能。

活性炭

さらなる研究を実施するべきである

他のALPS吸着材

他のALPS吸着材についても、詳細な組成が分かれば処理方法を提案可能。



6. 実施内容

STEP 4.福島第一への適用性評価 (16/16): まとめ

- 2種類のアプローチを検討した: ALL MIXとSTREAM SEPARATION
- 試験結果および福島第一の各種条件に基づき、2種類のアプローチについて下記の観点から福島第一への適用性評価を実施した
 - アプローチの比較
 - ✓ CANの本数、放射能、必要な溶融炉数を比較した
 - In-Canガラス固化の福島第一への実施検討
 - ✓ ガラス固化設備のレイアウトを検討した。
 - CANの材質の検討
 - ✓ インコネルと耐熱ステンレス鋼の利用可能性について調査した。
 - 廃棄物の最終処分の考え方
 - ✓ 最終処分に向けて考えられる廃棄物パッケージを検討した。
 - 選択しなかった廃棄物の処理方法
 - ✓ ガラス固化以外の技術も含め、考えられる処理方法を提案した。

STEP4にて、In-Canガラス固化の福島第一への適用性を評価した

7. 結論

目標: 最も関連性の高い福島第一の廃棄物へのIn-Canガラス固化技術の適用性を評価する。

1. 最大量の廃棄物の処理
 - ✓ 福島第一の廃棄物の乾燥質量・体積・放射能の大半を処理可能
2. 最大限の廃棄物の減容
 - ✓ 廃棄物の効果的な減容：処理前の廃棄物体積の約10%まで減容可能
3. 主要放射性核種の長期安定化
 - ✓ 全てのシナリオでモノリシックで高密度なガラス固化体が作成可能
 - ✓ 廃棄物はガラス中に問題なく取り込まれる
 - ✓ 低いCs揮発率：すべてのシナリオで0.5%未満を達成

→すべての目標はうまく達成された

本プロジェクト全体を通じ、In-Canガラス固化技術の実規模適用の見通しを得た。

8. さらに必要な研究

2018年度に実施されたR&Dの実現性を改善し統合する

- ガラス固化体の感受性にかかる試験(ラボスケール+ベンチスケール試験)
 - 廃棄物組成や運転温度を変動させる
- ガラス固化体の性能試験(浸出試験および機械的強度試験)
- CAN材質の最適化(コスト低減)
- パイロットスケール試験(100 kg/CAN)
 - ステンレス鋼を使用
 - 廃棄物組成を変動させる

最終処分までのコストとプロセスの改善、統合および最適化

- R&D結果に基づく、設備投資や運転コストの最適化
- 最終廃棄物管理の最適化

