

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)
2019年度及び2020年度事業成果概要

IHI

2021年 12月

株式会社 **IHI**

目次

1. 研究の背景・目的
2. 本研究の実施項目
3. 実施スケジュール
4. 実施体制
5. **CCIM**の運転概要
6. 実施内容
 - 6-1. 実用規模試験およびガラス組成検討・連続運転確認(廃棄物単体)
(対象:炭酸塩スラリー, 鉄共沈スラリー, フェロシアン化物スラッジ, ケイチタン酸塩, 樹脂系廃棄物, 活性炭)
 - 6-2. 実用規模試験およびガラス組成検討・連続運転確認(廃棄物混合)
(対象:ゼオライト+炭酸塩スラリー混合, ゼオライト+フェロシアン化物スラッジ混合)
 - 6-3. ガラス組成検討 添加材(ガラス原料)の共通化
 - 6-4. 廃棄物性状を踏まえた廃棄物供給系及び廃ガス処理系の検討
 - 6-5. 廃棄体化条件の検討
7. まとめ

1. 研究の背景・目的

◆ 事業目的

- ガラス固化技術(溶融ガラス化技術)を福島第一原子力発電所の固体廃棄物の処理方法に適用することを目的とする。
- 同時に、溶融ガラス化を行う溶融炉として、多種多様な廃棄物への適用性が高く、減容性及び安定性が高い廃棄体を作製可能なコールドクルーシブル誘導加熱炉(Cold Crucible Induction Melter: 以下 **CCIM**)を用いることとする
- 本技術が固体廃棄物の処理に適用できる見通しを得るため、工学的規模のCCIM試験装置等を用いて、適用性評価に必要なデータの取得及びその評価を合理的に行うとともに、廃ガス処理等のプロセスの成立性も併せて検討する



- 本事業により、汚染水処理等により発生する固体廃棄物を安全かつ合理的に保管・管理できる廃棄体とすることで、福島第一原子力発電所の廃炉・汚染水対策を円滑に進める
- 国内外の研究機関の英知を結集し当該廃棄物処理に取り組むことにより、我が国の科学技術の水準の向上に資する

本事業は、以下を開発のポイントとして、検討を実施

I. ガラス組成開発:

- ・廃棄物成分の未溶融物がなく、CCIMの運転に必要な基準値を満たすガラス組成を設定
- ・その上で、安定性(低い浸出率)、減容性(高い廃棄物充填率)を満足するガラス組成を選定

II. Cs揮発対策:

- ・ガラス組成(溶融温度の低温化)及びCCIM運転方法(バブリング条件等)検討によるCsの揮発抑制対策
- ・廃ガス処理設備における回収処理による建屋からの放出抑制について検討

III. CCIM適用性確認:

- ・炉内温度、核種移行:Cs等の廃ガスへの移行率、ガラス固化体の品質、運転制御性を評価

1. 研究の背景・目的

原子力発電所における低レベル廃棄物

【要求事項】

- ① 廃棄物処理の目的は、減容化と固定化であり、廃棄体自身のバリア機能は期待しないこと
- ② (廃棄物組成変動が大きい)組成変動に対する柔軟性が高いこと
※セメント固化が一般的、焼却灰等には技術課題あり
- ③ (処分コストに見合う)処理コストであること
※焼却、圧縮、セメント固化が一般的な処理

福島第一原子力発電所の固体廃棄物

【要求事項】

- ④ ゼオライトなど、ガラス形成成分を含有する廃棄物があり、溶融ガラス化の適用が可能であること
- ⑤ Cs含有廃棄物が多い(揮発抑制対策が必要)
- ⑥ 多種多様な廃棄物が存在し、高線量の廃棄物も含まれる

【将来考慮される可能性のある要求事項】

- ⑦ インベントリ評価(均一性, 代表サンプリング)
- ⑧ 廃棄体のバリア機能(化学的安定性, 均一性)

提案技術

ガラス固化(溶融ガラス化)の採用

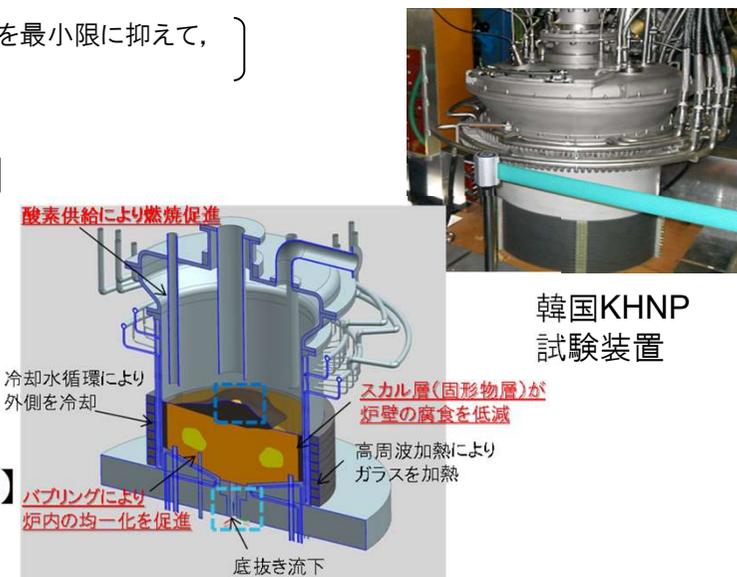
〔 廃棄物自体に含まれる成分(例えば, SiO_2)などをガラス形成成分とすることで, 添加物を最小限に抑えて, ガラス固化する方法 〕

- ・廃棄物同士を組合せる等による減容性を期待【①, ④】
- ・ガラス物性(粘性, 電気伝導度等)の制御で, 操業性を確保【②】
- ・溶融温度を下げることで, Cs揮発を抑制【⑤】
- ・廃棄体の化学的安定性も調整可能【⑥, ⑧】

CCIM炉の採用

〔 コールドクルーシブル誘導加熱炉(CCIM: Cold Crucible Induction melter) 本事業では韓国KHNP社*1が保有する技術を採用 〕

- ・スカル層の耐腐食性により, 広範囲なガラス組成に対応可能【④】
- ・バブリングにより, ガラスの均一性を向上【⑥, ⑦, ⑧】
- ・流下方式の採用により, 高充填可能, また高い処理速度
また, 安価な容器を使用可能【③】
- ・流下サンプルの採取により, 将来インベントリ評価が可能【⑦】



韓国KHNP
試験装置

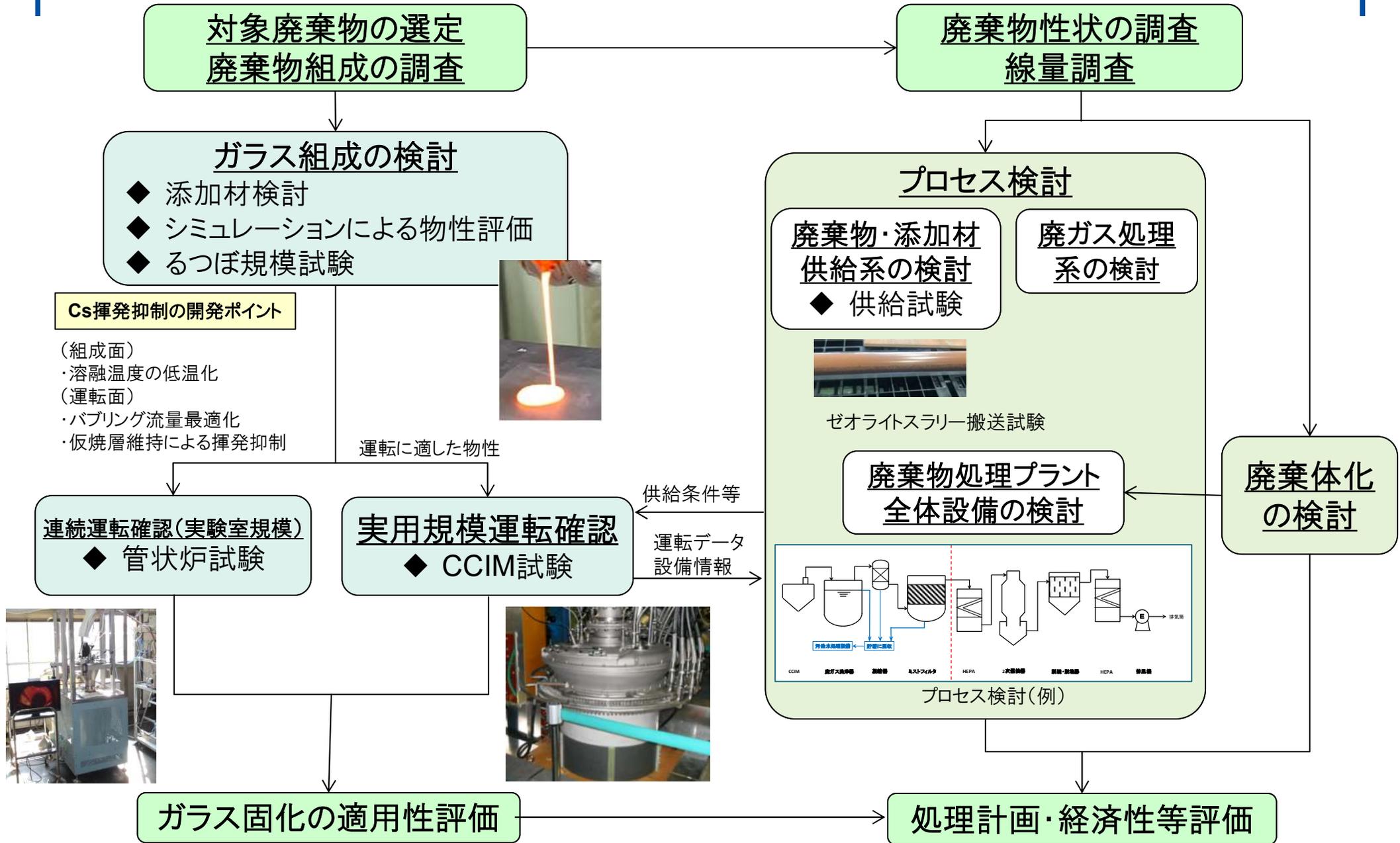
CCIM炉の概念図と外観写真

1. 研究の背景・目的

◆ IHIの福島第一原子力発電所の廃棄物処理に向けたこれまでの取り組み

- 2011年の震災から、福島事故廃棄物処理に関する調査を開始 **【社内研究】**
 - ⇒福島事故廃棄物に対する溶融ガラス化の適用を検討
 - 2012年度より、低レベル廃棄物の処理実績を有する韓国KHNPと協定を結び、福島事故廃棄物のCCIM適用性検討を開始 **【社内研究】**
 - ⇒2013～2017年までに実規模CCIMを用いたコールド実証試験を実施し、CCIMの適用性が高いことを確認
 - ・2013年度：ゼオライト＋焼却灰の実証試験
 - ・2014年度：AREVA社スラッジ(鉄リン酸ガラスをガラスマトリクスとして使用)の実証試験
 - ・2015年度：ALPSスラリー(炭酸塩スラリー)の実証試験
 - ・2016～2017年度：Na含有量が高い液体廃棄物の実証試験
 - 2014～2018年度に、日本原燃殿/JAEA殿/電中研殿と共同で次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業を受託 **【資源エネルギー庁委託事業】**
 - ⇒原子力発電所・再処理工場で発生する低レベル廃棄物に対するガラス組成開発等を実施
 - 2018年度に、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))の事業に参画し、適用性データ取得を実施。
 - ・2018年度：ALPSスラリー(炭酸塩スラリー)の実証試験※1
 - ※1:最新の分析結果を踏まえ、2015年度に比べより実廃棄物組成に近い模擬廃棄物を使用)
- 低レベル廃棄物処理において、実績※2を有する韓国のCCIMを導入することで、開発に関わるコスト及び期間の合理化を図る
 - ※2:1994年から本格的に研究開発し、1996年パイロットプラント試験開始、2002年ハヌル発電所ガラス固化施設建設開始、2009年商用運転開始
 - 実用規模炉による試験結果を基にしたガラス組成開発及びCCIM運転性確認、さらに、ガラス固化システム構築(廃棄物特有の廃ガス処理等の周辺機器の設計、実用化に向けた国内規制への対応等)に注力する計画。

2. 本研究の実施項目：開発全体の流れ



2. 本研究の実施項目：対象廃棄物(1)

項目	多核種除去設備(ALPS)由来		第二セシウム吸着装置(SARRY)由来	
	炭酸塩スラリー	鉄共沈スラリー	ゼオライト	ケイチタン酸塩
廃棄物の特徴	<ul style="list-style-type: none"> ・<u>廃棄物組成の変動幅が大きい</u> ・保管量が多い 		<ul style="list-style-type: none"> ・Csが高濃度吸着のため、<u>Cs揮発抑制の考慮</u>が必要 ・ガラス成分である<u>Siが主成分</u> ・他に比べて特に放射能濃度が高い 	<ul style="list-style-type: none"> ・Csが高濃度吸着のため、<u>Cs揮発抑制の考慮</u>が必要 ・ガラス成分である<u>Tiが主成分</u>
主要構成元素	CaCO ₃ Mg(OH) ₂ NaCO ₃ SiO ₂ Ti(OH) ₂	FeO(OH)・ H ₂ O SiO ₂ Al ₂ O ₃ Co(OH) ₂ Ti(OH) ₂ Zn(OH) ₂	SiO ₂ Al ₂ O ₃ Na ₂ O, K ₂ O, CaO混合	TiO ₂ NbO ZrO, SiO ₂ , Na ₂ O混合
主要核種	Sr	Sr／Cs	Cs	Cs／Sr

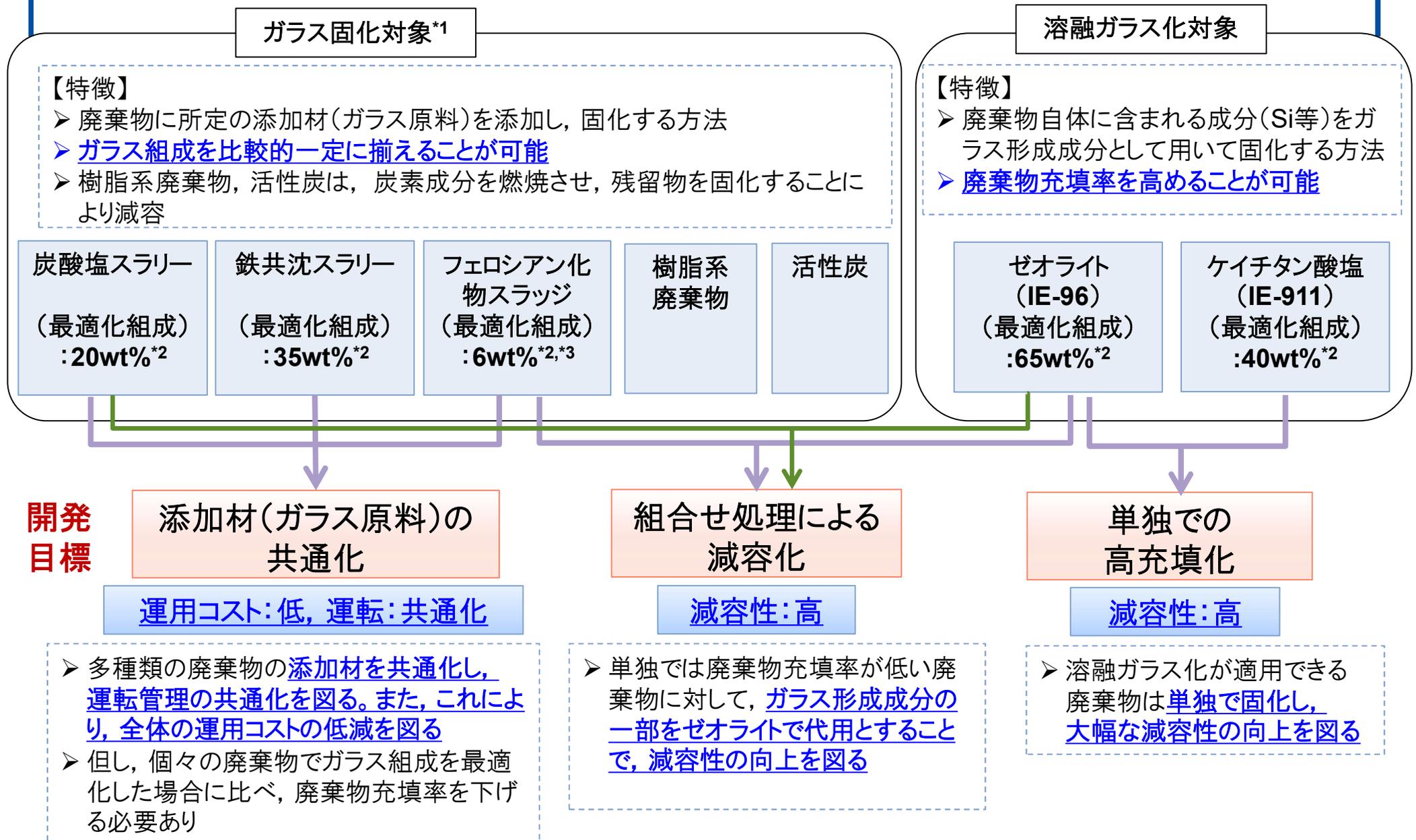
*1：青字元素：主成分となる元素

2. 本研究の実施項目：対象廃棄物(2)

項目	除染装置由来	多核種除去設備(ALPS)由来	
	フェロシアン化物スラッジ	樹脂系廃棄物	活性炭
廃棄物の特徴	<ul style="list-style-type: none"> ・<u>シアン化物の分解</u>が必要 ・ホウケイ酸ガラスによるガラス化が困難な<u>硫黄</u>を高濃度含有 	<ul style="list-style-type: none"> ・有機物の高分子であり,<u>難燃性</u> ・Csに加え, Ruの揮発抑制が必要 	<ul style="list-style-type: none"> ・炭素にAg(I)を添着しており, <u>難燃性</u> ・AgIの分解と低い溶解度に対する分相抑制考慮が必要
主要構成元素	<p>BaSO₄ K₂NiZnFe(CN)₆ FeO(OH)・H₂O SiO₂</p>	有機物に酸化鉄等が吸着	C, Ag
主要核種	Sr / Cs	Ru等	I / コロイド*

*1: 青字元素: 主成分となる元素

2. 本研究の実施項目：ガラス組成の検討



*1: 廃棄物自体の成分をガラス形成成分として一部用いるものも含まれるが, 添加材の寄与が大きい廃棄物を「ガラス固化対象」として分類

*2: 個々の廃棄物でガラス組成を設定した場合の廃棄物充填率を示す。炭酸塩スラリー, 鉄共沈スラリーについては本充填率より更なる高充填化の検討も実施

*3: ホウケイ酸ガラスへの単独充填の場合

2. 本研究の実施項目：溶融ガラス化(ガラス固化) 適用性検討

項目		炭酸塩スラリー	鉄共沈スラリー	フェロシアン化物スラッジ	樹脂系廃棄物	活性炭	ゼオライト	ケイチタン酸塩	ゼオライト + 炭酸塩スラリー	ゼオライト + フェロシアン化物スラッジ	炭酸塩スラリー + 鉄共沈スラリー + フェロシアン化物スラッジ
		単独での高充填化							組合せ処理		添加材共通化
ガラス組成検討 (るつぼ規模 数十～数百g 規模)		充填率 20wt% (変動確認)	充填率 35wt% (変動確認)	充填率 6wt% (ホウケイ酸) 38wt% (鉄リン酸)			充填率 65wt%	物性が課題 充填率, 高温粘度の 改良確認	充填率 72wt%	充填率 67wt%	
		高充填化 (組成変動)	高充填化 (組成変動)	物性評価	組成検討	組成検討	物性評価	物性評価	組成検討		
連続運転確認 (実験室規模 数十kg規模)		—	—	—			運転適用 (Cs揮発)	運転適用 (Cs揮発)	—	運転適用 (Cs揮発)	—
※Cs吸着の多い廃棄物は特に揮発抑制に主眼											
CCIM 運転性確認 実用規模試験 (実用規模 数百kg規模) ※		間欠運転 連続運転 (保持無)	間欠運転								
		連続運転 (最適化)	連続運転 (保持有)	—	☆	☆	—	—	—	—	連続運転 (保持無)
※フェロシアン化物スラッジは充填率が見込める組合せで試験											

※運転の定義はp17に記載

 : ~2019年度実施内容
 : 2020年度実施内容
 ☆ : 2021年度以降実施(必要に応じて)

2. 本研究の実施項目：実施項目(プロセス検討)

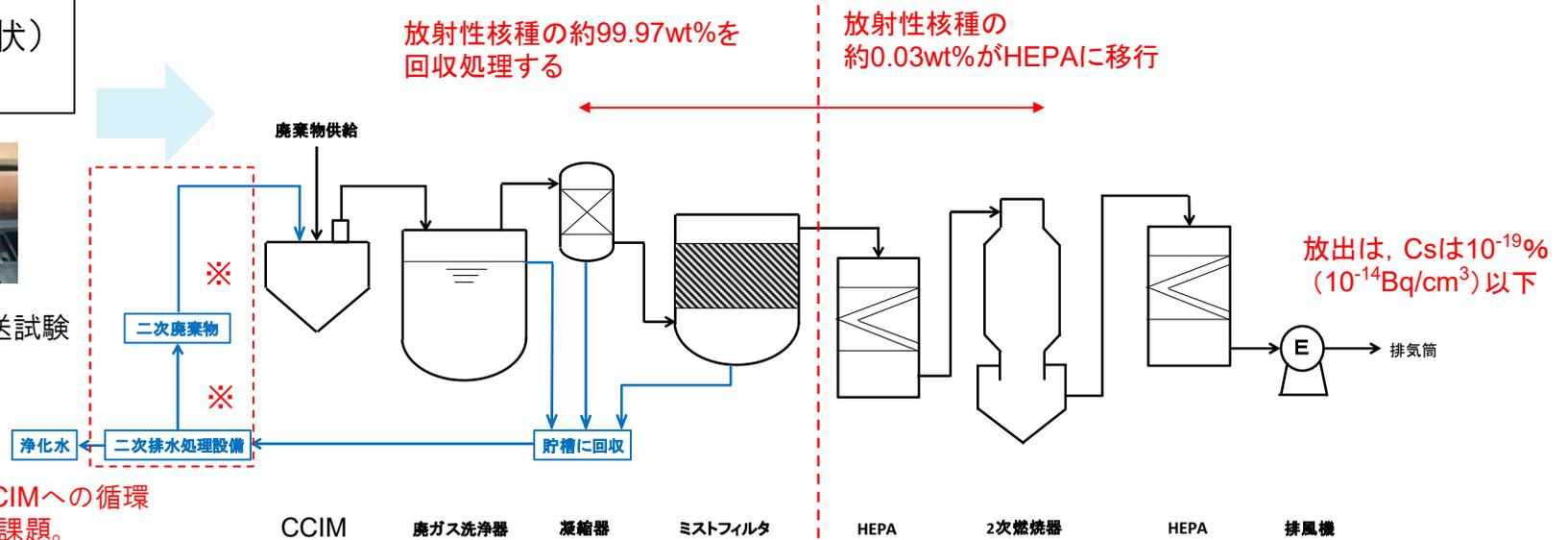
廃棄物の性状

- ① 固体状
- ② スラリー(液状)



2019年度ゼオライト/スラリー搬送試験

排ガス処理フロー



供給試験項目		炭酸塩スラリー	ゼオライト(IE-96)
固体搬送 利点: 二次排水無し, 熱負荷低	空気輸送, コンベア	☆	○搬送性試験 プロセス検討
スラリー搬送 利点: 汚染拡散防止性, 均質性	ポンプ	○搬送性試験 プロセス検討	↑ 停止後再起動性の改善 搬送性試験: 流量大で搬送可 プロセス検討

 : ~2019年度実施内容
 : 2020年度実施内容
 ☆ : 2021年度以降実施(必要に応じて)

- 供給系の搬送試験を行い，全体プロセスを検討し，配置および物量評価を実施
- 廃棄物を溶融したガラスを流下する廃棄体容器について線量計算結果を基に検討

3. 実施スケジュール：2020年度

大分類	小分類	手段	担当	2019	2020年度															
					4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3				
① ガラス組成の検討及びCCIMの運転性確認	①-1 廃棄物組成変動を考慮したガラス組成の検討	基礎試験	IHI/千葉大/ 愛媛大																	
	①-2 多種類の廃棄物に対する溶融ガラス化技術の適用性検討	基礎試験	IHI																	
		実験室規模試験	IHI																	
	①-3 核種の揮発抑制及び廃棄物組合せによる減容効果の検討	揮発抑制に向けた検討	基礎試験	IHI/東北大																
			実験室規模試験	IHI																
		廃棄物組合せによる検討	基礎試験	IHI/九州大																
			実用規模試験	IHI/KHNP																
	①-4 CCIMによる溶融ガラス化条件の最適化検討	基礎試験	IHI/KHNP																	
		実用規模試験	IHI/KHNP																	
② 供給系及び廃ガス処理系の検討、日本の規制への適合性検討	②-1 廃棄物性状を踏まえた供給系及び廃ガス処理系の検討	要素試験	IHI																	
		プロセス検討	IHI																	
	②-2 廃棄体化条件の検討	廃棄体化の検討	IHI																	
		経済性評価データ取得	IHI																	
③ 評価・まとめ	評価・成果まとめ	—	IHI																	
④ 委員会 (事業者主催)	有識者による協議, 評価	—	IHI																	
⑤ 成果報告 (事務局主催)	進捗, 成果報告	—	IHI																	

4. 実施体制

委託先の体制及び内容

株式会社IHI

溶融炉の運転や供給系及び廃ガス処理系における高レベル廃液の処理等での知見を活用

韓国水力・原子力発電(KHNP)中央研究所: 実用規模試験の実施及びデータ取得

韓国の原子力発電所の運転時に発生する低レベル放射性廃棄物の処理等の経験を有し、[CCIM技術及びCCIMの実用規模試験装置を保有](#)。対象廃棄物に対する実用規模のCCIM試験装置での試験の実施が可能

東北大学: ガラス組成の検討・評価

ガラス等の高温融体の界面反応、物性、構造等の研究実績を有し、[放射性廃棄物に対するガラスマトリックスの検討、ガラス構造の観点からの評価等の研究実績](#)を有する。本事業では、ガラス組成の検討、高温物性の評価等を実施。

千葉大学: ガラス固化体の評価

ガラスやセラミックス等の材料に対する構造評価等に関する研究実績を多く有し、[放射性廃棄物のガラス固化体の処分時のガラス挙動の評価等の研究実績](#)を有する。本事業では、ガラス組成の検討、ガラス構造等の観点からガラス固化体の状態評価等を実施。

愛媛大学: ガラス組成の検討・評価

放射性廃棄物固化ガラスに関するガラスマトリックス及びガラスの構造評価等の実績を有し、[福島第一原子力発電所の固体廃棄物の内、汚染水処理で発生する放射性スラッジの固化方法の研究実績](#)を有する。本事業では、対象廃棄物への混入成分の影響も踏まえたガラス組成の検討・評価を実施。

九州大学: ガラス組成の検討・評価

[ガラス固化体の組成とセシウムの揮発、ガラス固化体の処分に関連する研究実績、知見](#)を有する。本事業では、ゼオライト等を対象として、ガラス固化を行う場合のセシウムの揮発抑制方法、ガラス固化体の処分に関わる特性等を検討。

5. CCIMの運転概要：CCIM運転のポイント

ポイント①(炉内状態の安定維持)

- 目標のガラス温度維持
 熔融ガラス温度(試験目標): 1100°C
 ゼオライト系廃棄物は1050°C
- ガラス液位増減の影響
 ガラス液位: 液位増減において
運転継続可能

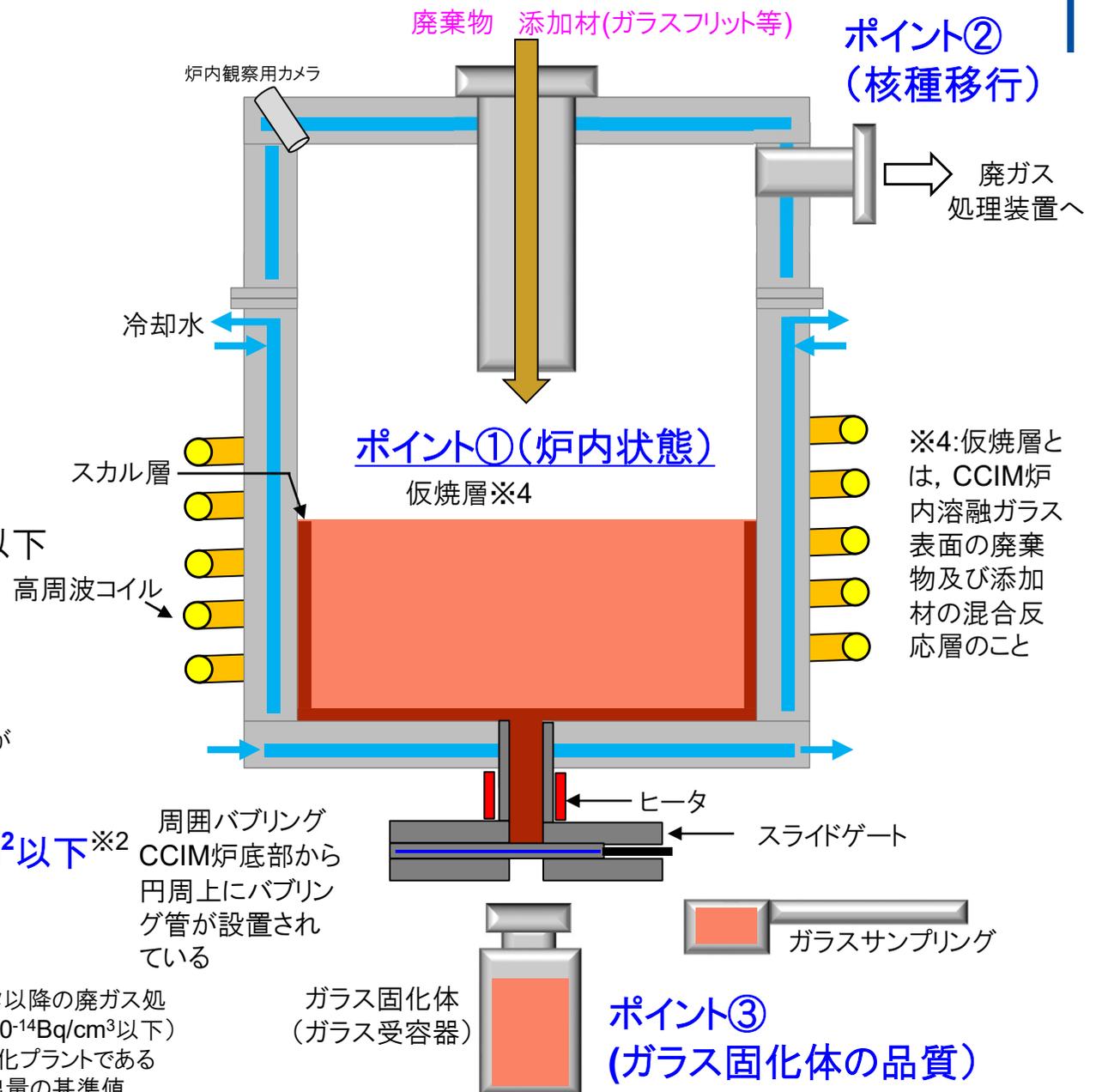
ポイント②(核種移行の抑制)

- Cs等の廃ガスへの移行率
 (目標)Cs:10wt%以下^{※1}, Sr:1wt%以下

ポイント③(ガラス固化体の品質の確保)

- 均質性
ガラス化[※], 未熔融物無し
 ※廃棄物そのままガラスに残らず, ガラス中に一部結晶が存在する程度であれば問題ない
- 化学的安定性
 浸出試験(PCT-A試験): 浸出量**2g/m²以下**^{※2}
- 圧縮強度
1.5MPa以上^{※3}

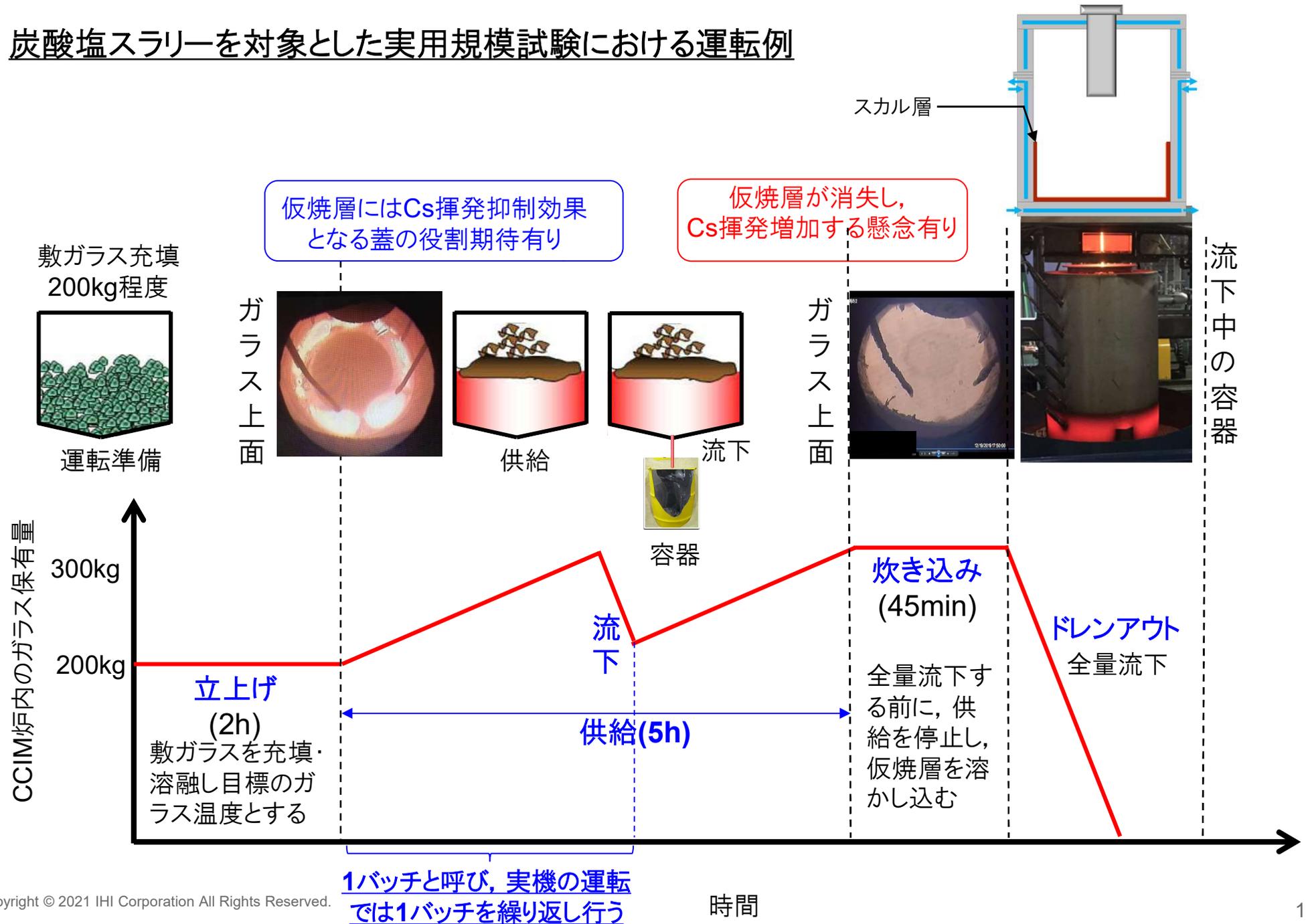
※1: 99.97wt%以上は回収処理されるため, HEPAフィルタ以降の廃ガス処理設備への移行は0.03wt%以下となる(Csの放出は 10^{-14} Bq/cm³以下)
 ※2: 韓国のKHNPや米国のハンフォード廃棄物処理・固定化プラントであるWTPIにおける低レベル廃棄物を固化するガラスの浸出量の基準値
 ※3: 均質・均一固化体の廃棄体の埋設基準値



CCIM炉内イメージ

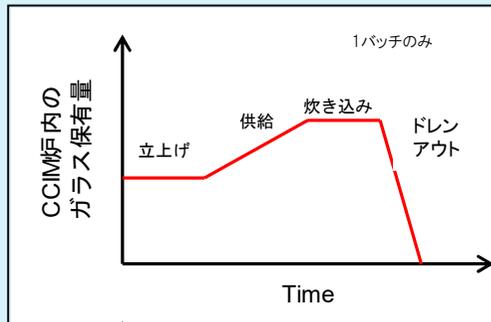
5. CCIMの運転概要：実用規模試験の運転

炭酸塩スラリーを対象とした実用規模試験における運転例



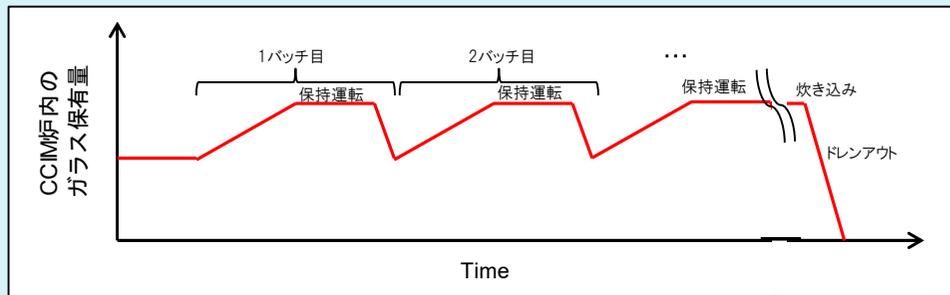
5. CCIMの運転概要：CCIMを用いた運転パターン

パターンⅠ 間欠運転



- 短時間(1日など)運転で、運転毎に立上げ操作が必要
- 立上げの度に敷ガラスが必要であり、廃棄体量が大
- 本開発においては、廃棄物毎に運転時に、電力設定・バブリング流量設定確認向けに短時間試験として計画的に実施

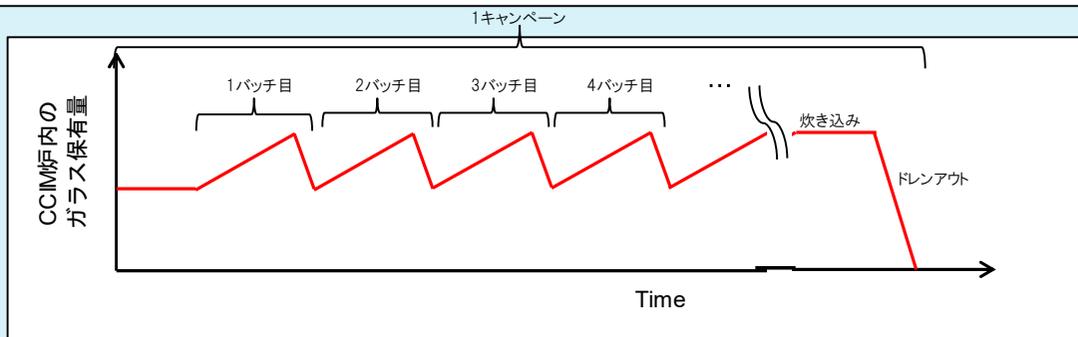
パターンⅡ 連続運転 (保持運転有)



- 流下の際に、炉内に溶融ガラスを残留させた連続運転
- 保持運転を設定し、廃棄物の溶融時間を十分確保

運転目標

パターンⅢ 連続運転 (保持運転無)



- 本事業で目標とする運転
- 保持運転を無くし、最低限の時間で処理し、処理速度を増加
- 保持運転を無くすことで、Cs等の核種の揮発を抑制する

課題

- 保持運転を無くした(供給を継続した)運転方法の確立
- ガラス固化体品質に問題ないことの確認

5. CCIMの運転概要：実運転における廃棄物処理年数

【実運転における処理年数】※二次廃棄物(容器解体廃棄物, 廃ガス処理設備発生廃棄物など)の処理は含まない

- 2020年7月2日までに発生した廃棄物の処理年数を算出した。
- 運用はCCIMを2機とし, 年間300日間稼働することとした。実用規模試験結果を基にガラス製造速度を設定した。実用規模試験で実績のある廃棄物充填率(Case1)では, **処理年数は16.9年**であり, 本事業の成果を基に, **スラリー系廃棄物を高充填した場合(Case2)では13.9年**となった。廃棄物量は2020年7月2日時点(東京電力HD, 水処理二次廃棄物の管理状況)を基に概算した値

対象廃棄物		炭酸塩スラリー	鉄共沈スラリー	フェロシアン化物スラッジ	ゼオライト	ケイチタン酸塩
廃棄物量		7212m ³	1206m ³	597m ³	995m ³	511m ³
密度		1.1kg/L	1.2kg/L	1.2kg/L	1.0kg/L	1.0kg/L
含水率		80wt%	80wt%	80wt%	0wt%	0wt%
廃棄物充填率	Case1(本事業の実用規模試験でガラス固化可能であることを確認した廃棄物充填率)※	20wt%	35wt%	5wt%	62wt%	40wt%
	Case2(本事業のガラス組成開発でCCIMに適用できる見通しを確認した廃棄物充填率)	30wt%	40wt%	5wt%	62wt%	40wt%

※ケイチタン酸塩については実用規模試験を実施していないため, ガラス組成開発でCCIMに適用できる見通しを確認した廃棄物充填率



5. CCIMの運転概要：実運転における減容率

【実運転における減容率】※二次廃棄物(容器解体廃棄物, 廃ガス処理設備発生廃棄物など)の処理は含まない

➤ 2020年7月2日までに発生した廃棄物をガラス固化体にした場合の減容率を算出した。

ガラス固化体	炭酸塩スラリー	鉄共沈スラリー	フェロシアン化物スラッジ +ゼオライト	ケイチタン酸塩
Case1(本事業の実用規模試験でガラス固化可能であることを確認した廃棄物充填率)	約1/7	約1/9	約1/3	約1/2
Case2(本事業のガラス組成開発でCCIMに適用できる見通しを確認した廃棄物充填率)	約1/11	約1/10		

減容率＝ガラス固化体体積／廃棄物体積
(スラリー系, スラッジ廃棄物は含水率80wt%で計算)

算定条件

廃棄物量は2020年7月2日時点(東京電力HD, 水処理二次廃棄物の管理状況)を基に概算した値

対象廃棄物		炭酸塩スラリー	鉄共沈スラリー	フェロシアン化物スラッジ	ゼオライト	ケイチタン酸塩※2
廃棄物量		7212m ³	1206m ³	597m ³	995m ³	511m ³
密度※1		1.1kg/L	1.2kg/L	1.2kg/L	1.0kg/L	1.0kg/L
含水率		80wt%	80wt%	80wt%	0wt%	0wt%
廃棄物充填率	Case1	20wt%	35wt%	5wt%	62wt%	40wt%
	Case2	30wt%	40wt%	5wt%	62wt%	40wt%
ガラス固化体量※3	Case1	975m ³	128m ³	530m ³ ※4		255m ³
	Case2	654m ³	117m ³	530m ³ ※4		255m ³

※1: 調査結果に基づく仮定値を用いた, ※2: ケイチタン酸塩は実用規模試験を実施していないため, 保守的に仮定した値

※3: 敷ガラスを200kgと想定し, 敷ガラス分も含むガラス固化体量, ※4: フェロシアン化物スラッジのみを処理したガラス固化体も含む

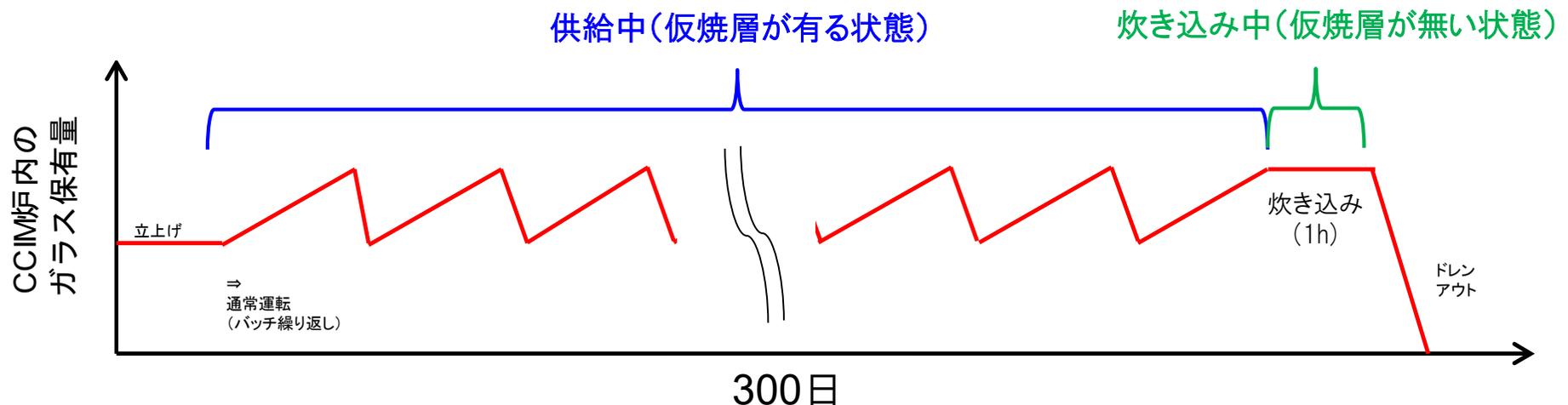
5. CCIMの運転概要：実運転におけるCsの廃ガスへの移行率

【実運転におけるCsの廃ガスへの移行率の概算】

- スラリー系廃棄物を対象とした実用規模試験における廃ガス測定の結果から、実運転におけるCs移行率を概算した。

Csの廃ガスへの移行率

$$= \frac{\text{単位時間あたりに廃ガスへ移行したCs量}}{\text{単位時間あたりに供給したCs量}}$$



- 実用規模試験結果からスラリー系廃棄物の300日運転全体におけるCsの廃ガスへの移行率は約5wt%と推算。炊き込み中は仮焼層が無いため、供給中に比べCsの廃ガスへの移行率が高くなるが、運転全体における移行率にはほとんど影響しない。

※ゼオライトの処理は、p43に記載の通り、更にCsの廃ガスへの移行率が低くなることを確認。

- 過去自社研究結果を基に、目標を10wt%以下と設定し、目標を達成。

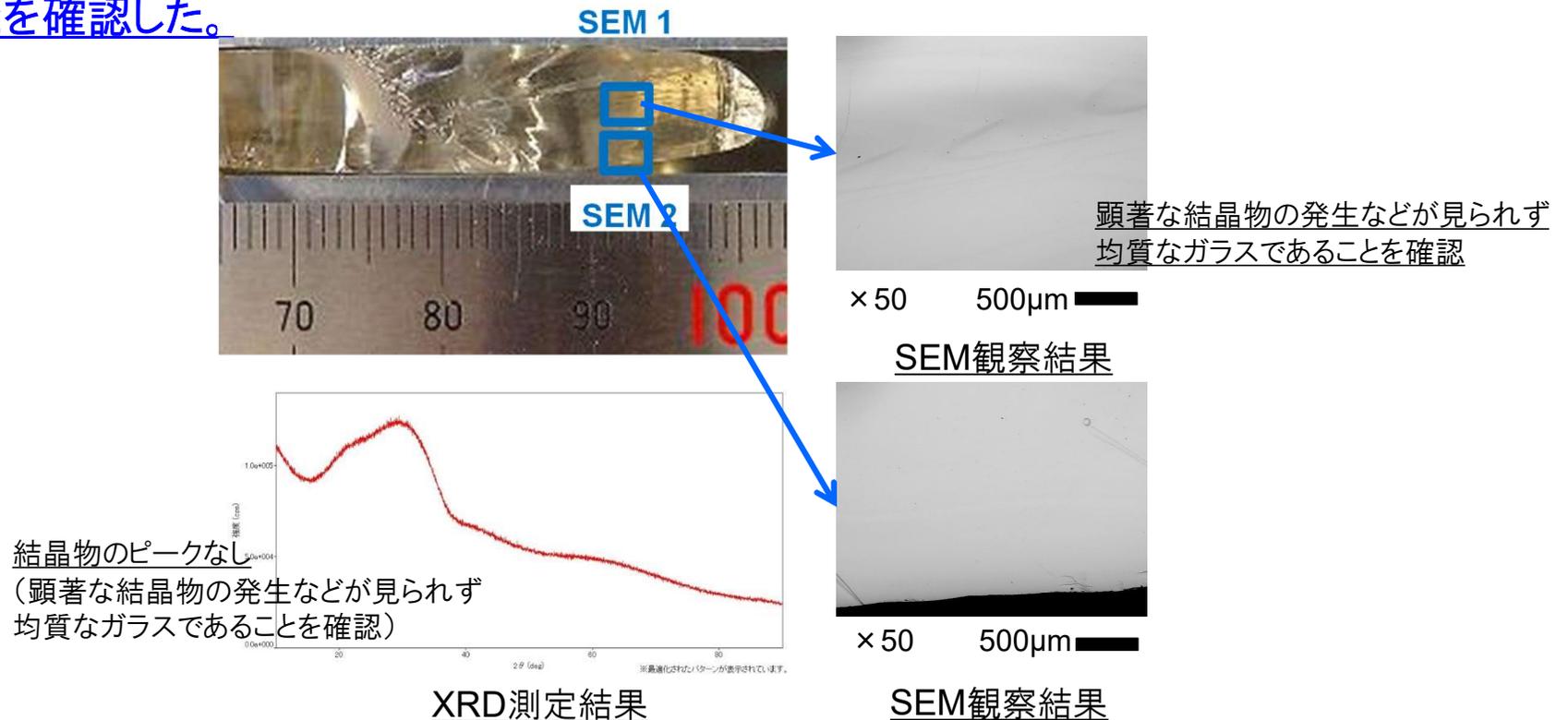
→ 廃ガスへ移行した5wt%のCsは、p11に記載の通り、99.97wt%以上がミストフィルタまでで回収処理され、HEPAフィルタ以降の廃ガス処理設備への移行は0.03wt%以下。建屋外へはほぼ放出されない(建屋からのCsの放出は 10^{-14} Bq/cm³以下(関係法令で定められている周辺管理区域外への放出放射能の制限値より十分低い))

ガラス組成検討: ガラス組成開発(炭酸塩スラリー)

計画 ▶ 2018年度の課題として、低温領域(900°C程度)での粘度が高く、実用規模炉の立上げが困難になる事象が発生したことから、低温領域での粘度低減に着目して組成改良を行う。

成果 ▶ 廃棄物充填率20wt%にて、低温領域の粘度低減を目的として、ガラスの粘度低下に寄与すると考えられる成分比率を高めること等により組成改良を実施し、候補組成を設定。

- ▶ るつぼ試験で、模擬廃棄物と添加材を1100°Cで熔融したサンプルを目視、XRD, SEM-EDSで観察し、未溶融物が無く、ガラス化状態が良好であることを確認した。
- ▶ 900°C以上の高温粘度・電気伝導度を測定し、CCIMへの適用性を評価し、低温領域での粘度低減を達成するとともに、何れの物性もCCIMへ適用するための判断基準を満足することを確認した。



試験後のガラス状態(るつぼ試験)

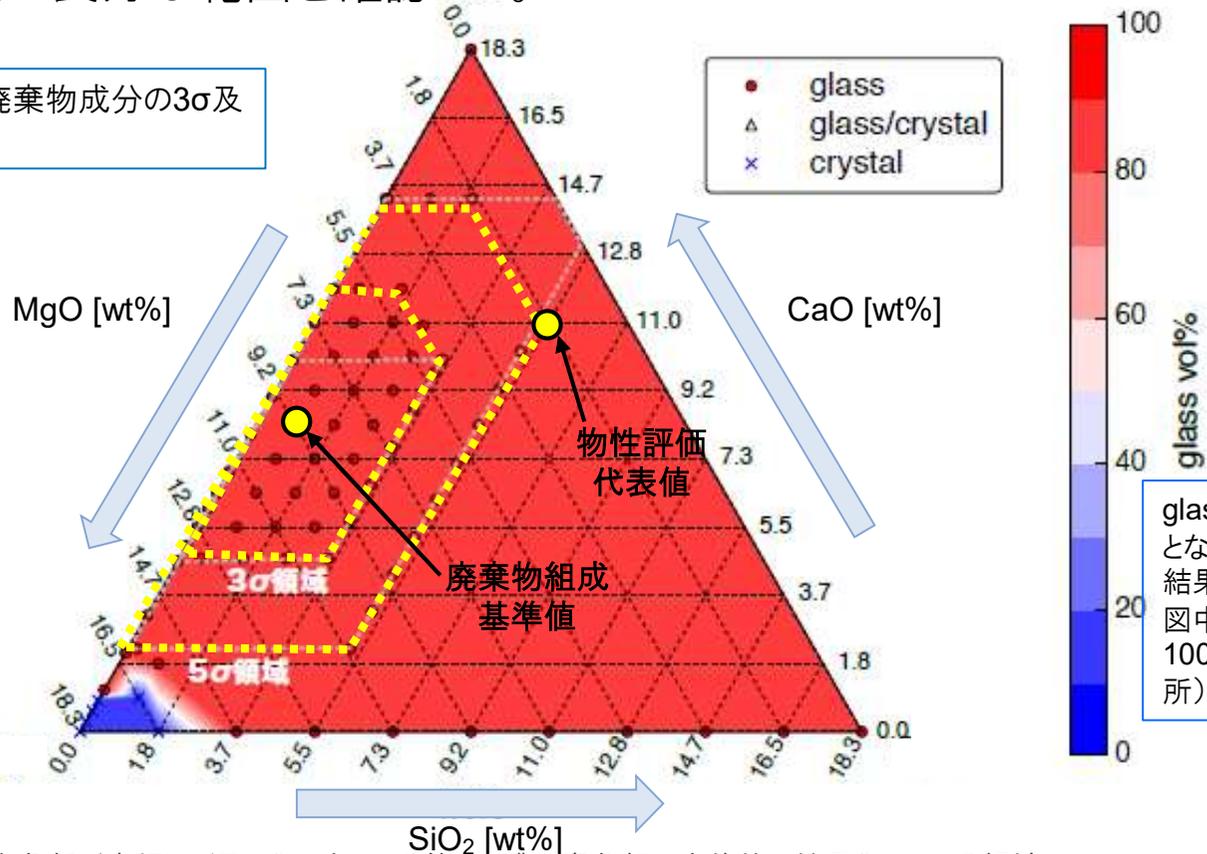
6-1. 実用規模試験およびガラス組成検討・連続運転確認(廃棄物単体)

ガラス組成検討: 廃棄物組成変動の影響(炭酸塩スラリー)

計画 改良したガラス組成に対して、廃棄物充填率を**20wt%としたとき**の廃棄物組成変動影響を検討する。(溶融温度1100°Cでのガラス化状態を確認)

- 成果**
- 外観の目視観察から、廃棄物組成が3σ および 5σで廃棄物組成が変動した場合でも、未溶融物及び結晶が無く、ガラス化状態が良好であることを確認した。
 - さらに、5σを超える範囲(5σ領域より、MgO, CaO, SiO₂濃度が高い範囲)においても、ガラス化が良好な範囲を確認した。

図中の黄色点線内が廃棄物成分の3σ及び5σ変動範囲を示す。



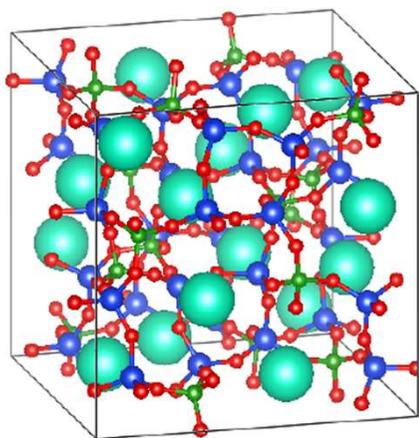
glass vol%は、作製した試料中のガラスとなった体積の割合を、目視で評価した結果を示す。
図中赤色部(○で示した箇所)は、100vol%、濃い青色部(×で示した箇所)は0vol%で示している。

※図中赤色部が良好にガラス化できている範囲、濃い青色部は全体的に結晶化している領域、一部結晶化している部分を白～薄い青で示す。

ガラス組成検討: 高充填化(炭酸塩スラリー)

ガラス組成の改良(高充填化の検討)

- 計画** ➤ 2019年度までに炭酸塩スラリーを20wt%含有できるガラス組成を開発したため、2020年度は廃棄物充填率向上を目的として、廃棄物充填率20~42wt%とするガラス組成の検討を実施する。
- 成果** ➤ 1100°Cで溶融したサンプルを目視, XRD, SEM-EDSで観察し、**30wt%までガラス化状態が良好となり、物性が判定基準を満たすことを確認**した。
- 42wt%は、結晶は含むが、未溶融物が無いことを確認。
- Cs固定化率と溶融ガラス構造の関係を**構造解析**により実施した(**ポテンシャル場組込み手法開発**を実施)。Cs固定化率は**Csが溶融ガラス内で配位する構造と関係づけられることを確認**した。



● Cs ● Si ● O ● B

**Csを含むホウケイ酸
結晶化合物の解析結果**

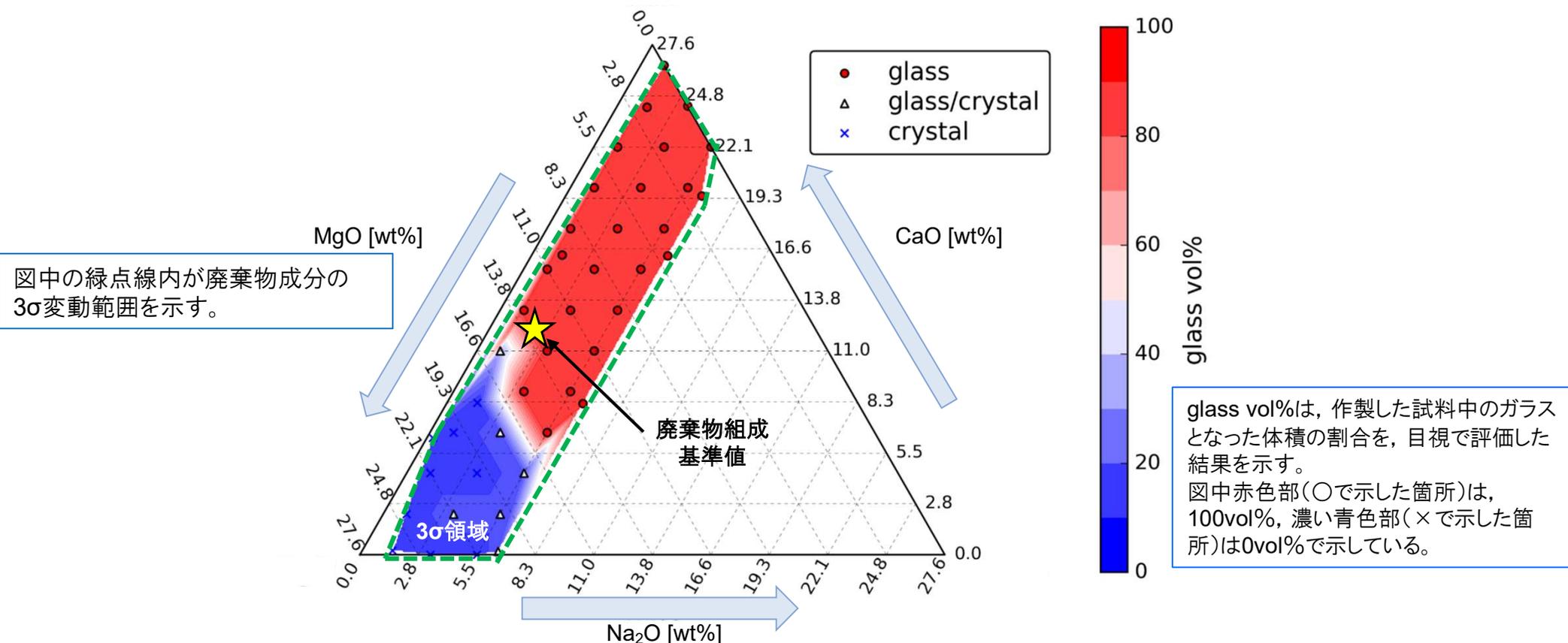
充填率 [wt%]	ガラス化状態	析出物	評価
20	ガラス化良好 (未溶融物なし)	なし	○
22			○
24			○
26			○
28			○
30			○
32			微量 (1割程度)
34		多く析出 (9~10割程度)	△(※)
36			△(※)
38			△(※)
40			△(※)
42			△(※)

6-1. 実用規模試験およびガラス組成検討・連続運転確認(廃棄物単体)

ガラス組成検討: 廃棄物組成変動の影響の確認(炭酸塩スラリー)

- 計画
- 廃棄物充填率を30wt%に高充填化した場合の廃棄物組成変動影響を検討する。
 - 廃棄物組成変動範囲は以下のとおり
 - 変動範囲: 実廃棄物の分析結果(9試料分)に基づいた標準偏差3σ
 - 変動成分: CaO, MgO及びNa₂O ※廃棄物の主要成分

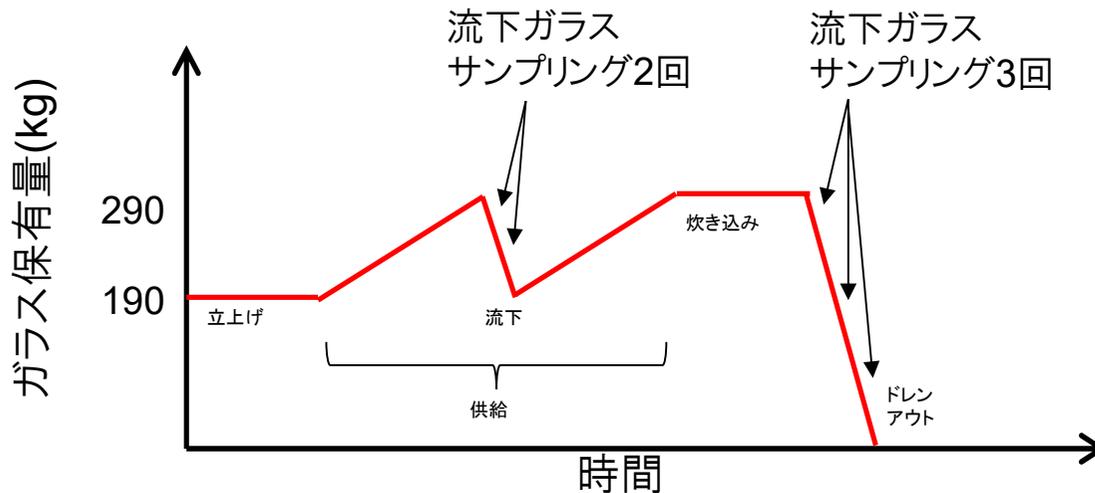
- 成果
- 廃棄物主要元素の組成変動範囲を3σとし, ガラス化試験を実施。
 - ガラス中にMgOが15.5wt%以上で結晶化を確認。



※図中赤色部が良好にガラス化できている範囲, 濃い青色部は全体的に結晶化している領域, 一部結晶化している部分を白~薄い青で示す。

連続運転確認: 試験条件(炭酸塩スラリー)

計画 ➤ 開発したガラス組成(廃棄物充填率20wt%)にて, CCIM実用規模試験を実施。



炭酸塩スラリー(含水率80wt%)

試験フロー概要: 炭酸塩スラリー(含水率80wt%)

成果 【ポイント①(炉内状態)】

- 溶融ガラス温度を1100°Cに維持し運転できることを確認した。
- 流下後に炉内ガラス温度が一時的に低下するが, ガラス液位が下がることによる温度低下は想定内であり, また, 供給中に1100°C程度まで回復できているため, 次の流下へも影響は無く, 実機で想定する繰り返し流下が可能であることを確認した。

成果 【ポイント②(核種移行)】

- 試験後に、ガラス固化体、サンプリングガラス、スカル層、冷却配管+高温フィルタで回収したダスト中のCs, Sr濃度を測定し、各々の存在比率を確認した。
- Cs及びSrの存在比率は、溶融炉出口の冷却配管+高温フィルタで2wt%以下と低い結果となった。

冷却配管+高温フィルタ
冷却配管(左図)及び高温フィルタ(右図)に付着したダスト
Cs及びSrの存在比率 Cs:1.8wt%, Sr:0.9wt%

スカル層※1
スカル層部から採取したガラス外観

ガラス固化体
流下直後のガラス受容器の外観

サンプリングガラス※2
流下中にサンプリングする様子

※1:本試験では、オフガス移行率の最大値を評価するため、初期に装荷した敷ガラス自身にもCs, Srを含有させ試験を実施した。そのため、敷ガラスで形成されるスカル層中にもCs, Srが存在したが、それらは廃棄物由来のCs, Srではない。

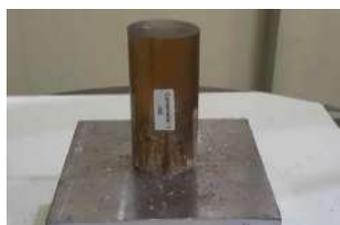
※2ガラスを排出流下するタイミングに、定期的にサンプリングガラスとしてサンプルを採取することで、ガラス固化体を解体・切断等せず、各サンプルを分析評価することでガラス固化体の内部状態を把握することができる。

成果 【ポイント③(ガラス固化体品質)均質性, 化学的安定性, 圧縮強度】

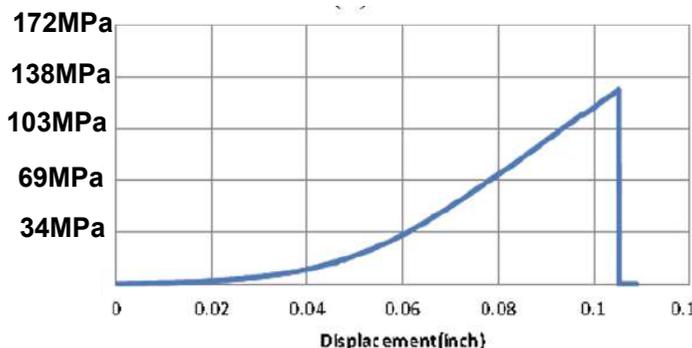
- 流下中のサンプリングガラス及びガラス受容器から回収したガラスに対し, XRD及びSEM観察を行い, 結晶や未溶融物が無く均質であることを確認した。
- 浸出試験(PCT-A試験)から, 浸出量は制限値より十分低く, CsやSrも他のガラス構成元素と同様に浸出量が低いことを確認した。
- 圧縮強度は, 2回測定し, 1回目が112MPa, 2回目が129MPaであり, 1.5MPa*を十分に上回ることを確認した。
- 作製したガラス固化体は高品質であることを確認した。



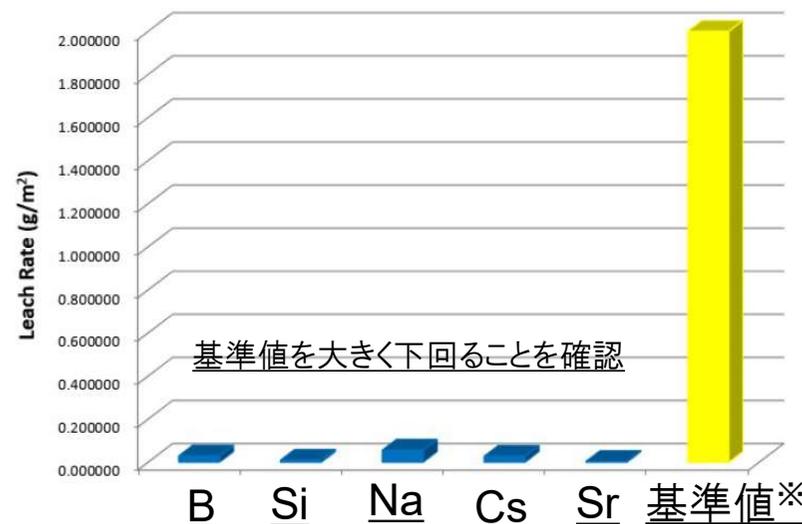
ガラス固化体から分取したガラス



サンプルイメージ
(Φ50mm×t100mm)



圧縮強度測定結果



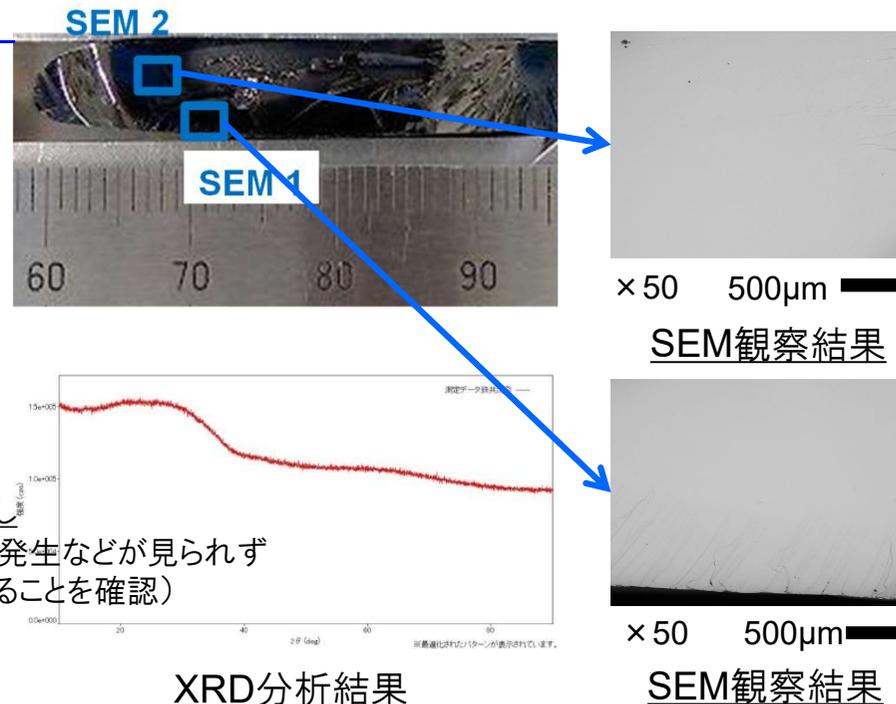
基準値を大きく下回ることを確認

浸出試験(PCT-A試験)
(ガラス粉末, 90°C, 7day, 純水)

※p15に記載の基準値

計画 ➤ 2018年度の課題として、炭酸塩スラリーを用いた場合、低温領域(900°C程度)での粘度が高く、実用規模炉の立上げが困難になる事象が発生したことから、鉄共沈スラリーに関しても、低温領域での粘度低減に着目して組成改良を行う。

成果 ➤ 廃棄物充填率35wt%にて、低温領域の粘度低減を目的として、ガラスの粘度低下に寄与すると考えられる成分比率を高めること等により組成改良を実施し、候補組成を設定。
➤ るつぼ試験で、模擬廃棄物と添加材を1100°Cで溶融したサンプルを目視、XRD、SEM-EDSで観察し、未溶融物が無く、ガラス化状態が良好であることを確認した。
➤ 900°C以上の高温粘度・電気伝導度を測定し、CCIMへの適用性を評価し、低温領域での粘度低減を達成するとともに、何れの物性もCCIMへ適用するための判断基準を満足することを確認した。



未溶融物などが見られず
均質なガラスであることを確認

結晶物のピークなし
(顕著な結晶物の発生などが見られず
均質なガラスであることを確認)

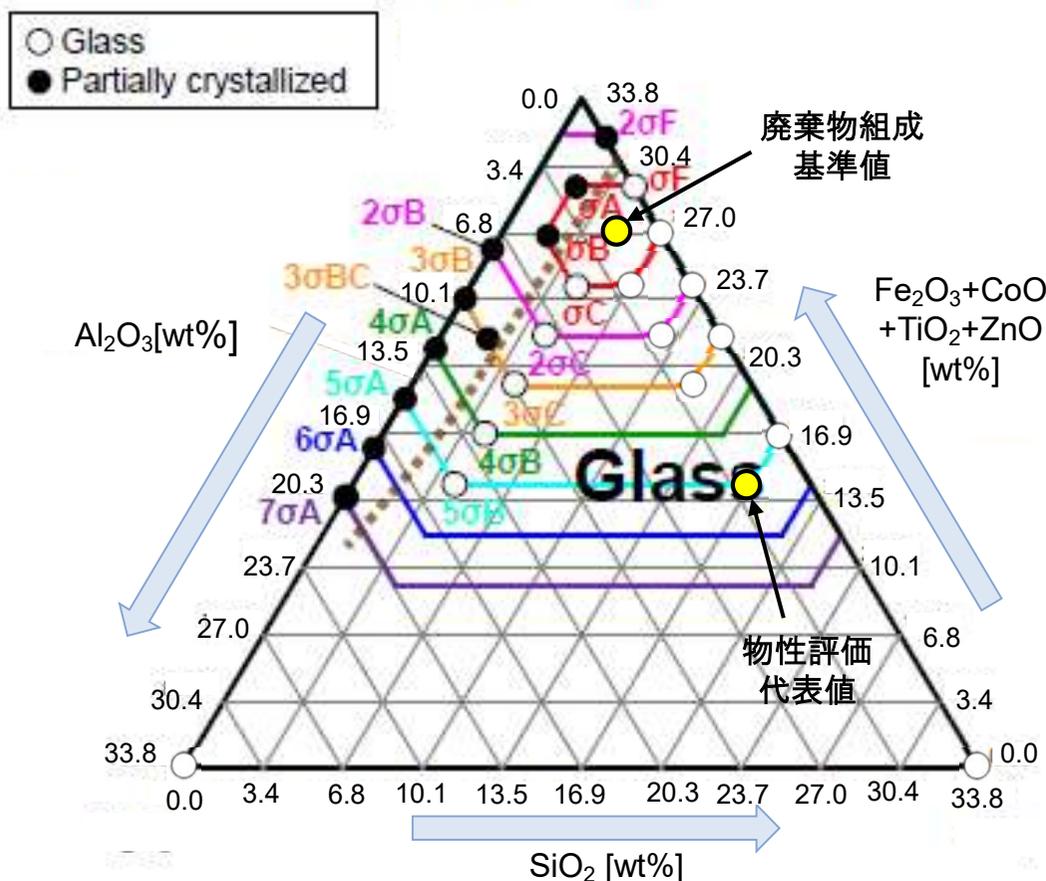
XRD分析結果

SEM観察結果

6-1. 実用規模試験およびガラス組成検討・連続運転確認(廃棄物単体)

ガラス組成検討: 廃棄物組成変動の影響の確認(鉄共沈スラリー)

- 計画** ➤ 改良したガラス組成に対して、廃棄物充填率を**35wt%**としたときの廃棄物組成変動影響を検討する。(溶融温度1100°Cでのガラス化状態を確認)
- 成果** ➤ 外観の目視観察から、廃棄物組成が**3σ** および **5σ** で変動した場合、**SiO₂濃度が低くなる場合に結晶化する傾向**を確認したが、**概ね未溶融物及び結晶が無く、ガラス化状態が良好**であることを確認した。

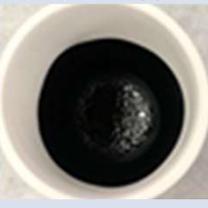


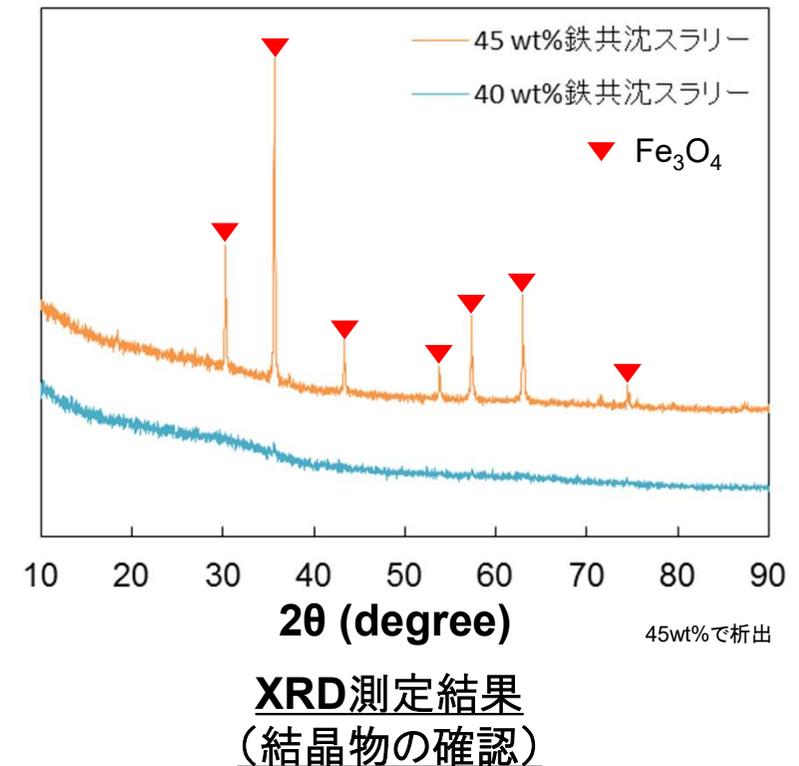
鉄共沈スラリーの廃棄物組成変動における
ガラス化結果



※左図中の1σ～7σの点におけるるつぼ試験での確認結果を示す。
σA～7σAは、試験名称を示す。なお、るつぼ試験は、事前の少量の試料を用いた溶融試験にてガラス化状態が良好であった代表点を選定して実施。るつぼ上面からの外観観察, SEM-EDS観察, XRDによりガラス化状態(ガラス化or結晶化)を確認

- 計画** ➤ 2019年度までに鉄共沈スラリーを35wt%含有できるガラス組成を開発したため、2020年度は廃棄物充填率向上を目的として、廃棄物充填率35~45wt%とするガラスの検討を実施する。
- 成果** ➤ るつぼを用いて、模擬廃棄物と添加材を1100°Cで溶融したサンプルを目視、XRD、SEM-EDSで観察し、40wt%においてガラス化状態が良好となり、物性についてもCCIMに適用するための判定基準を満たすことを確認した。

充填率 [wt%]	ガラス化状態	析出物	評価
35	ガラス化良好 (未溶融物 なし)	なし	○
40		 40wt%	○
45		あり (表面全体)  45wt%	△(※1)

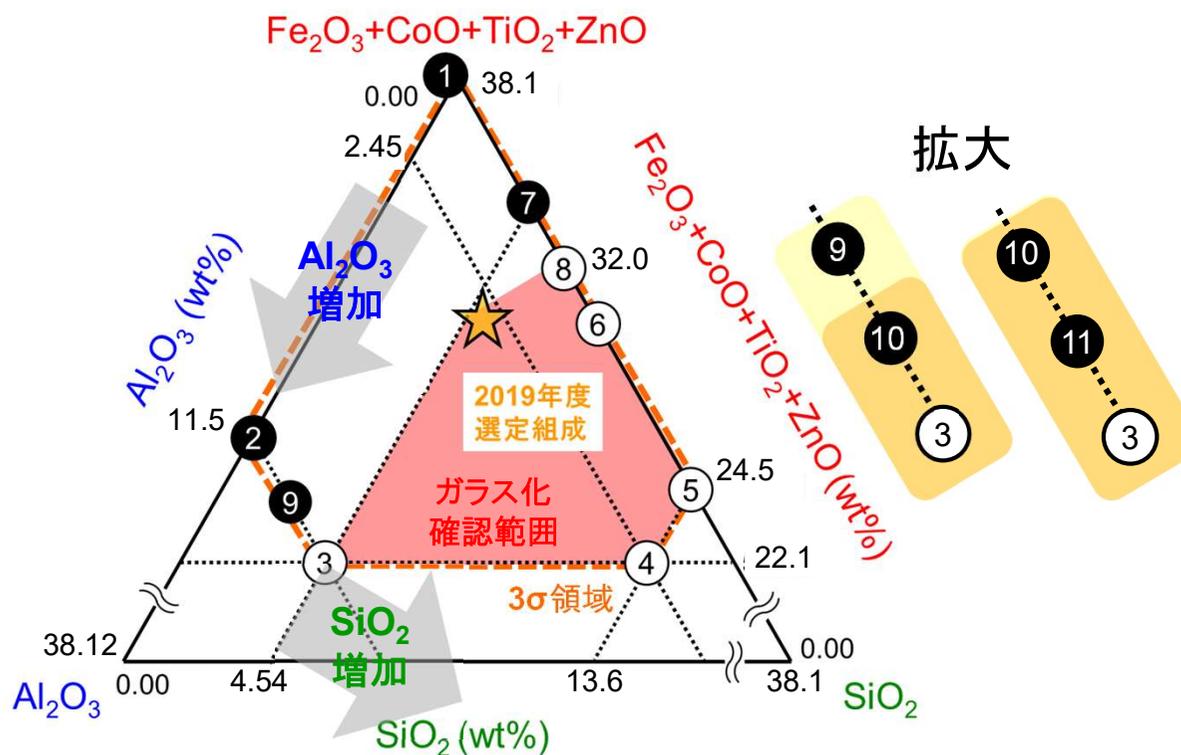


6-1. 実用規模試験およびガラス組成検討・連続運転確認(廃棄物単体)

ガラス組成検討: 高充填化及び廃棄物組成変動検討(鉄共沈スラリー) **IHI**

計画 ➤ 廃棄物充填率を40wt%に向上させた場合の廃棄物組成変動影響を検討する。

成果 ➤ 廃棄物主要元素の組成変動範囲を3σとし、ガラス化試験を実施した。
 ➤ ガラス化する組成範囲を確認した。



● 1100°Cで一部析出あり ○ 1100°Cでガラス化

ガラス中の廃棄物成分の変動範囲(wt%)及びガラス化範囲

※その他成分として、CaO+SrO+Cs₂Oを約2wt%添加

鉄リン酸ガラス ※ホウケイ酸ガラスでは6wt%程度であり、鉄リン酸ガラスにて単独処理を開発

計画

- 廃棄物充填率および溶融温度を調整し、CCIMへ適用するための基準(高温粘度、電気伝導度)を満足するガラス組成の検討を実施する。

成果

- 1100℃以下で溶融したサンプルを目視, XRD, SEM-EDSで観察し、廃棄物充填率 38wt%程度までは1100℃で析出物なくガラス化可能であることを確認, 物性は 1100℃で電気伝導度の判定基準を満たし, 高温粘度は1100℃では判定基準を僅かに下回ることを確認(約1000℃で満たす)した。

充填率 [wt%]	ガラス化状態	析出物	評価
36.5	ガラス化良好 (未溶融物なし)	1100℃で析出物なし (1000℃で表面のみ 一部析出物あり)	○
38.4		 38.4wt%(1100℃)	○
41.5		1100℃以下で 表面に析出物あり	△(※)
46.4		1100℃以下で 表面に析出物あり	△(※)

※高温物性に影響が生じる可能性があるため、今後物性計測による確認が必要

ガラス組成の検討

計画

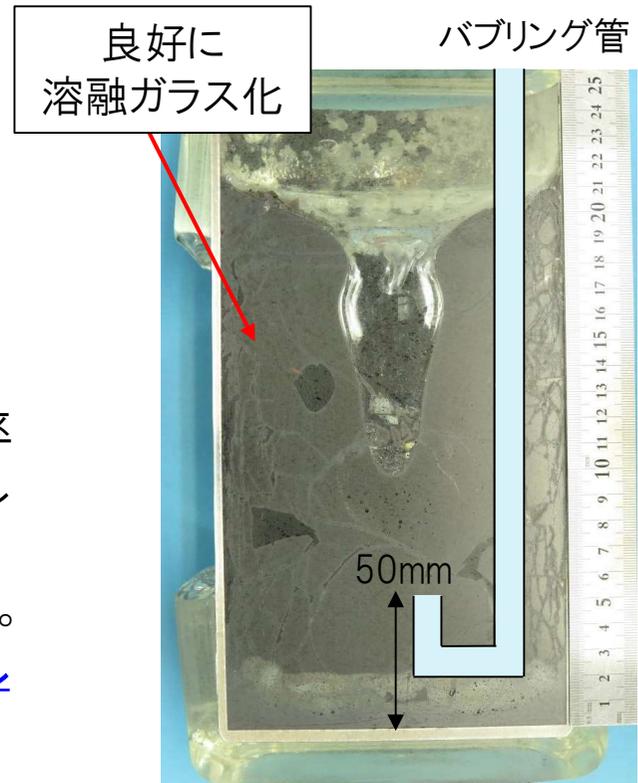
- 2018年度までに開発した候補組成に対して、廃棄物充填率を向上させるとともに、高温物性(高温粘度、電気伝導度)がCCIMへ適用するための判定基準を満たす組成を検討する。
- 廃棄物充填率は40~50wt%にて組成検討を実施。

成果

- るつぼ試験にて、模擬廃棄物と添加材を1050°Cで熔融したサンプルを目視で観察し、40wt%においてガラス化状態が良好となり、高温物性(高温粘度、電気伝導度)がCCIMへ適用するための判定基準を満たすことを確認した。
- 判定基準を満たす選定組成において、実験室規模試験(管状炉試験)を実施し、ケイチタン酸塩は廃棄物充填率40wt%の条件にて、連続的にガラス化できることを確認した。
- 試験後のガラス中のCs固定化率は約98.7wt%であった。
- 連続供給運転下にて、良好に熔融ガラス化できる見通しを得た。



ガラス化状態(るつぼ試験)



試験後ガラス断面
(実験室規模試験)

計画

樹脂系廃棄物(高分子有機物以外の主成分: FeOOH, 捕集核種: Ru)のCCIMへの適用性を検討するため、以下を実施

1. ガラス組成の検討と物性評価

- シミュレーション等を用いて、物性基準を満足する可能性を有するガラス組成の候補を検討
- るつぼ試験にて、ガラス化状態(未熔融物の有無)を評価
- ガラス化状態が良好となる候補組成にて物性評価(高温粘度, 電気伝導度)を実施

2. 樹脂系廃棄物のFe飽和吸着量把握

- 実際の樹脂系廃棄物(吸着材)のFe吸着量が不明のため吸着材のFe飽和吸着量を把握し、吸着材処理時のガラス添加量を算出

3. 樹脂系廃棄物の処理速度評価

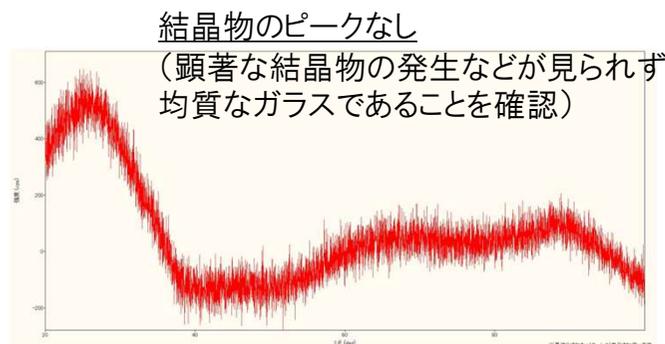
- 実験室規模試験(管状炉試験)により、樹脂系廃棄物の連続供給時の処理速度の把握

成果

- FeOOHは20~50wt%, RuO₂は1~9wt%の充填率(実際の廃棄物で想定されるRuO₂の充填率より高い範囲まで試験実施)でガラス固化を検討し、るつぼを用いたガラス化試験(1100°C熔融)で以下を確認
 - FeOOH: 廃棄物充填率20wt%で良好にガラス化
 - RuO₂: 廃棄物充填率1~9wt%でRuの結晶生成
- 一方で、樹脂系廃棄物のRu-106吸着量は非常に少ないため、ガラス固化体にした際に含まれるRu濃度は極低濃度となると想定されるため、実験室規模でのガラス固化試験ではRuを含めずに実施することとした。

成果

- るつぼ試験により, CCIMへ適用するための物性基準(高温粘度, 電気伝導度)を満足し, ガラス化状態が良好な **Fe₂O₃充填率20wt%となるガラス組成を選定**した。
- 樹脂系廃棄物に飽和量のFeが吸着した場合の廃棄物に対して, ガラス中のFe₂O₃充填率を20wt%とした場合, **ガラス1kg当たり約1.60kg以上の樹脂系廃棄物を処理可能**である(約1/4^(※)以下に減容)。
- 実験室規模試験(管状炉試験)の結果, 安定に溶融でき, ガラス中に析出物もなく, 連続的にガラス化可能であることを確認した。また, 供給した樹脂系廃棄物中のCのほぼ全量が分解処理された。
- **上記より, 樹脂系廃棄物はCCIMに適用可能であることを確認**した。なお, 試験後の**ガラス中のC濃度は0.011wt%(平均)**であり, 有機物の残留はほぼ無い状態であることを確認した。



試験後のガラス状態およびXRD結果
(るつぼ試験)



ガラスの溶融状態(炉上面からの観察)
(実験室規模試験)

(※)減容率は以下にて算出

$$\frac{\text{(ガラス固化体体積)}}{\text{(廃棄物体積)}} = 1/4 \text{以下}$$

計画

活性炭(主成分: C(Ag添着), 捕集核種: ヨウ素)のCCIMへの適用性を検討するため、以下を実施、活性炭の保管場所削減を考慮した減容化を目的として、検討を実施した。

1. 固化体中のAg許容濃度の把握

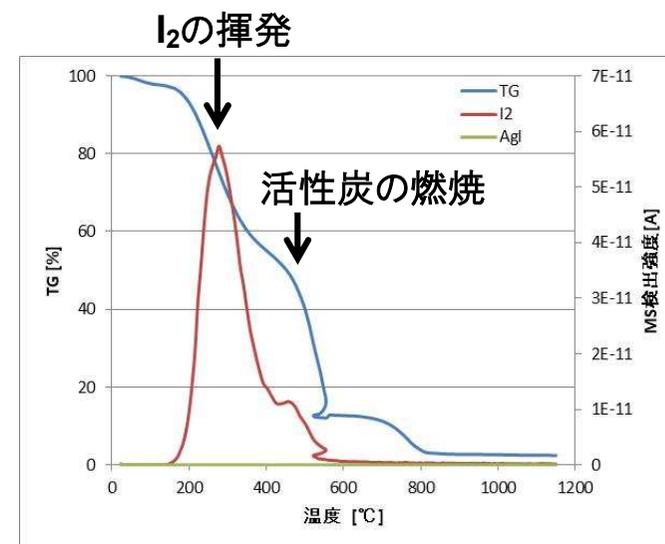
- るつぼ試験により固化体中に充填可能なAgの許容濃度を把握
- Ag許容濃度から、活性炭処理時のガラス添加量を算出

2. 活性炭の処理速度評価

- 実験室規模試験(管状炉試験)により、活性炭を連続供給した際のガラス化の可否および活性炭の処理速度の確認

成果

- 活性炭(Ag添着)に吸着したヨウ素の存在形態として以下を想定し、熱分解挙動を確認
 - ① I₂(物理吸着) : 300°C程度で揮発するためガラスへの取り込みは困難
 - ② AgI(化学吸着) : 1200°Cまで揮発しないことを確認
- AgIを1~10wt%の充填率とし、るつぼにて模擬廃棄物と添加材を1100°Cで熔融
 - 充填率5wt%: AgIが分相, 結晶化。
 - 充填率1wt%: 均質なガラスを得るも, ガラス中のヨウ素は0.01wt%未満
- ホウケイ酸ガラスによるヨウ素の取り込みは困難な見込み(IIはガラス化せず, AgIで分散)であるが、ガラス固化による活性炭の減容化へのニーズは存在するため、CCIMによるガラス化の適用可能性について実験室規模試験にて、検討を実施した。



成果

- るつぼ試験の結果, 活性炭処理向けのガラスに炭酸塩スラリー(処理物量が多い)の敷ガラスを採用し, ガラス中に充填可能なAg濃度は約0.3wt%であった。
- ガラス1kg当たり処理可能なAg添着活性炭の量は約3kgとなる(約1/15以下に減容(*))。
- るつぼ試験により, CCIMへ適用するための物性基準(高温粘度, 電気伝導度)を満足し, ガラス化状態が良好なガラス組成を選定した。
- 実験室規模試験(管状炉試験)の結果, 安定に溶融でき, ガラス中に析出物もなく, 連続的にガラス化可能であることを確認した。供給したCのほぼ全量が分解処理された。
- 上記より, 活性炭はCCIMに適用可能であることを確認した。なお, ガラス中のC濃度は0.013wt%(平均)であった。

試験後のガラス状態(るつぼ試験)

Ag濃度(wt%)		
0.1	0.3	0.5
1.0	1.5	2.0



試験後のガラス状態
(実験室規模試験)

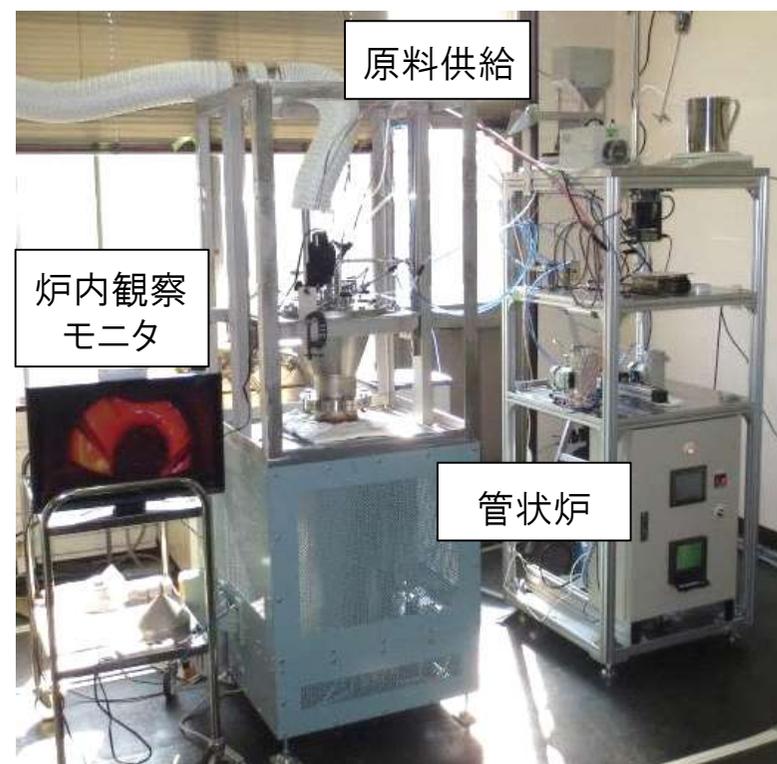
(※)減容率は以下にて算出

$$\frac{\text{(ガラス固化体体積)}}{\text{(廃棄物体積)}} = 1/15 \text{以下}$$

- 計画 ▶ 2018年度にるつぼ試験にて開発したガラス組成(廃棄物充填率65wt%, 溶融温度1050°Cでガラス化状態・ガラス物性評価ともに良好)を用いて 実験室規模(数10kg規模)の連続運転試験を行い, Cs揮発やガラス化への影響を確認する。
- ▶ また、廃棄物供給形態の違い(①乾燥体供給, ②スラリー供給(含水率80wt%))による影響も併せて確認する。

評価項目

評価項目	評価方法
ガラス中の結晶物の有無	外観観察, SEM-EDS観察
Cs固定化率*1	ガラス中のCs濃度分析

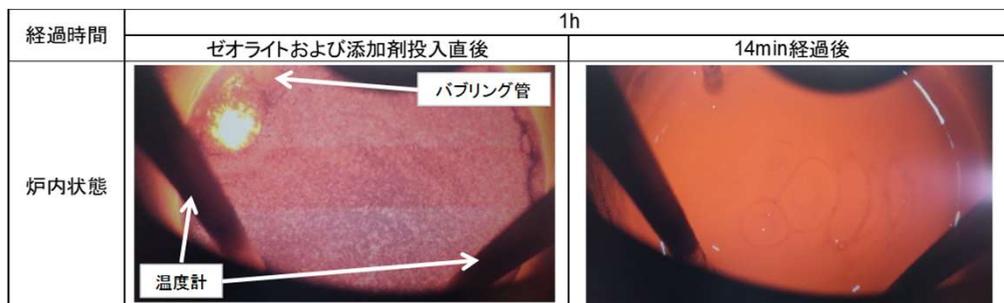


実験室規模試験装置(管状炉)

$$*1: \text{Cs固定化率}(\%) = \frac{\text{試験後ガラス試料の上部・中部・下部Cs濃度平均値}(\text{wt}\%)}{\text{敷ガラスと全製造ガラス分のCs濃度}(\text{wt}\%)} \times 100$$

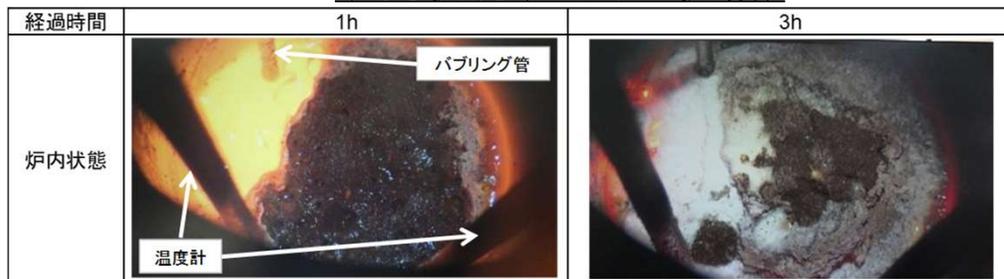
- 成果**
- ゼオライトの供給形態(乾燥供給、スラリー供給)に関わらず、ガラス化状態は良好，かつガラスに結晶物は認められなかった。
 - Cs固定化率*1は、乾燥体供給で95%、スラリー供給で91%と、いずれも良好な結果となった。
 - Cs固定化率，ガラス化状態の観点から，乾燥体供給，スラリー供給ともに，廃棄物充填率65wt%の条件で，Cs吸着ゼオライトの処理にCCIMを適用できる見通しを得た。

炉内状況(乾燥体供給)



Cs固定化率95%

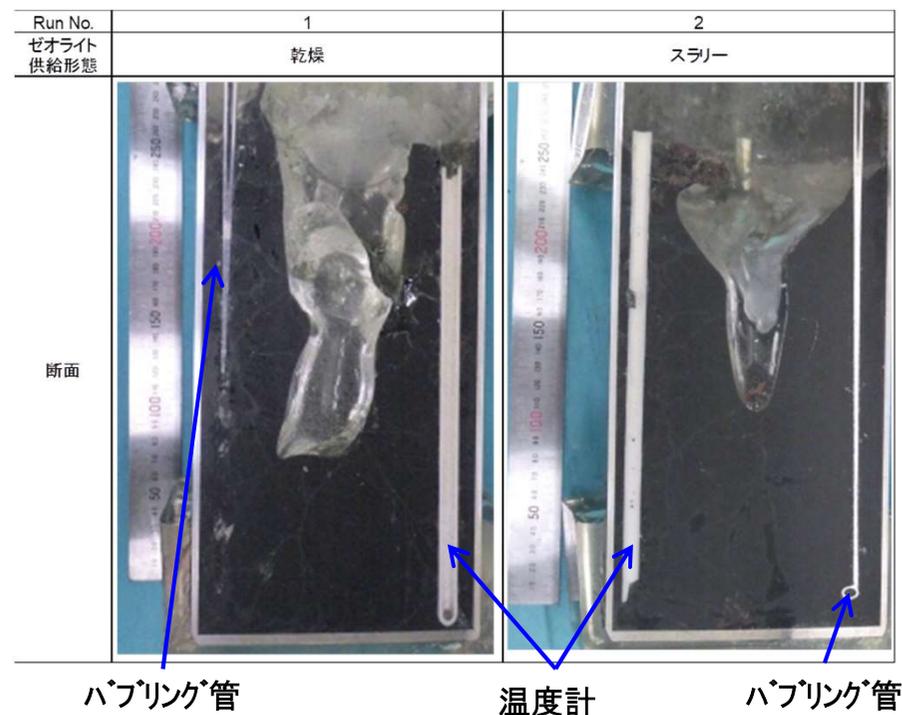
炉内状況(スラリー供給)



Cs固定化率91%

*1: Cs固定化率(%) =
$$\frac{\text{試験後ガラス試料の上部・中部・下部Cs濃度平均値(wt\%)}}{\text{敷ガラスと全製造ガラス分のCs濃度(wt\%)}} \times 100$$

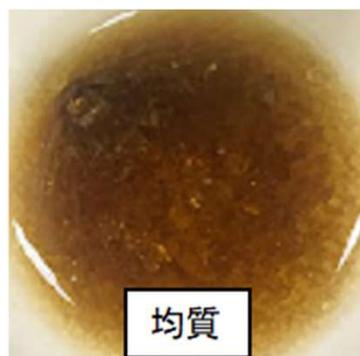
管状炉用SUS容器ガラス断面



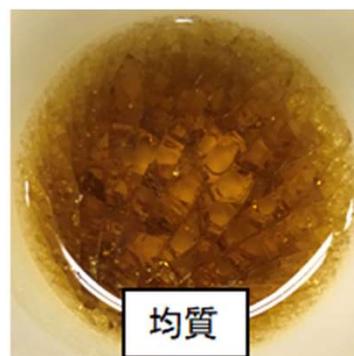
【ゼオライト+炭酸塩スラリー】

- 計画** ➤ 高温物性(高温粘度、電気伝導度)がCCIMへ適用するための判定基準を満足し、Cs固定化率*1を高くできる組成を検討する。
- 成果** ➤ るつぼによるガラス化試験を実施し、**950°C**および1000°Cで溶融したサンプルを目視で観察し、**ガラス化状態が良好**となることを確認。炭酸塩スラリーを**ゼオライトと組み合わせることで廃棄物充填率は合計72wt%となり、高い減容効果が期待できた。**
- **高いCs固定化率**(溶融温度950°Cで約100%，1000°Cで約90%)となることを確認した。さらに1000°Cでは、**高温物性(高温粘度、電気伝導度)がCCIMへ適用するための判定基準を満たすことを確認した。**

※1: (作製したガラス中のCs含有量) / (ガラス作製時に投入したCs量)

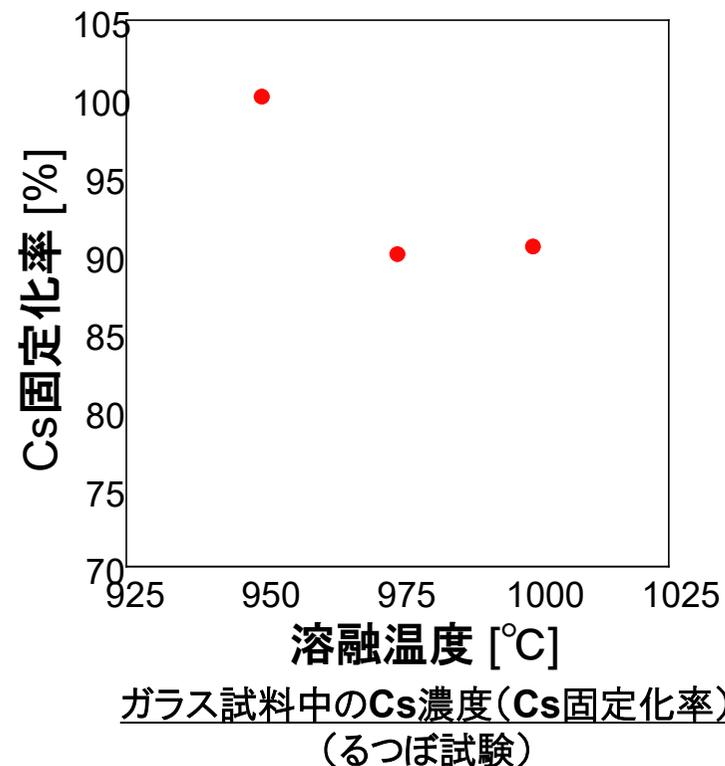


均質
溶融温度**950°C**



均質
溶融温度**1000°C**

試験後のガラス状態(るつぼ試験)



6-2. 実用規模試験およびガラス組成検討・連続運転確認(廃棄物混合) ガラス組成検討(ゼオライト+フェロシアン化物スラッジ混合)

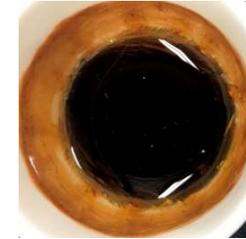
【ゼオライト+フェロシアン化物スラッジ】

計画 ▶ ゼオライトとフェロシアン化物スラッジの混合割合及び溶融温度をパラメータとしガラス化試験を実施する。

成果 ▶ 以下条件にて、良好にガラス化かつCs固定化率95%以上
となることを確認できた。

- 溶融温度:1025-1050°C
- フェロシアン化物スラッジ混合割合:5-6wt%
(フェロシアン化物スラッジ単独処理と同等)

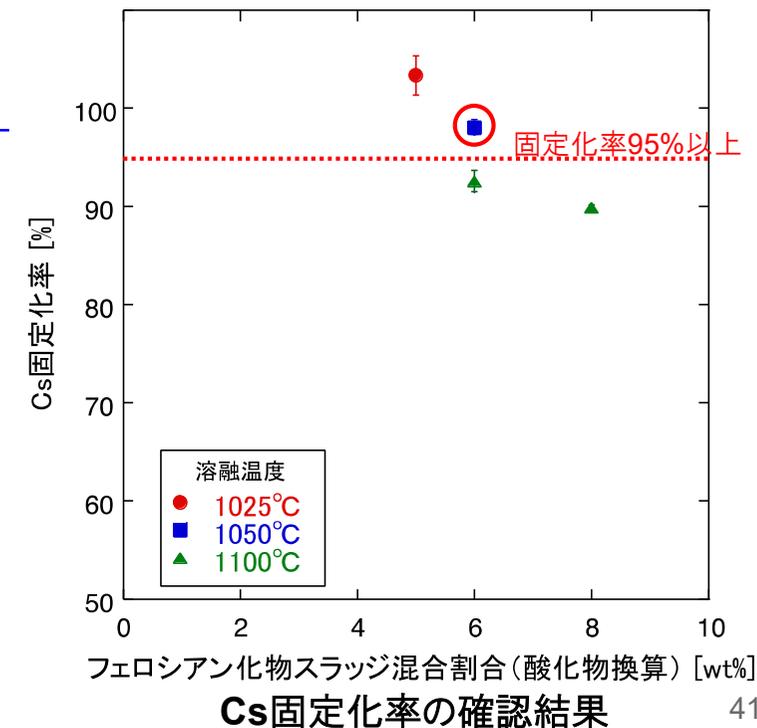
- ▶ フェロシアン化物スラッジ混合割合5wt%のとき、高温粘度、電気伝導度)が判定基準を満たすことを確認した。
- ▶ ゼオライトと組み合わせることで廃棄物充填率は合計約67wt%となり、高い減容効果が期待できる。



フェロシアン化物スラッジ 6.1wt%
溶融温度 1050°C
ガラス外観

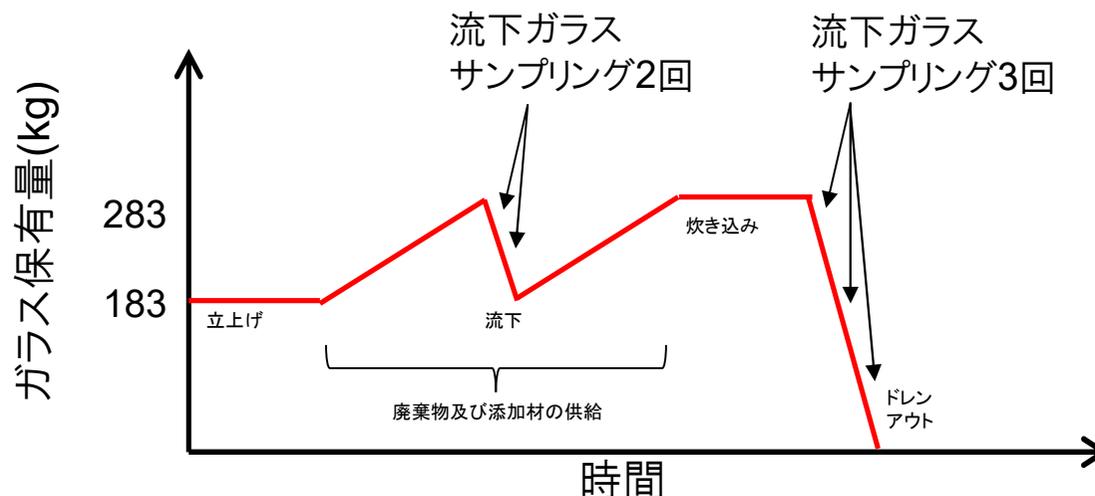
ゼオライト+フェロシアン化物スラッジ混合のガラス化試験結果

添加材 (wt%)	廃棄物混合割合(wt%)			溶融温度(°C)		
	ゼオライト	フェロシアン化物スラッジ	合計	1025	1050	1100
33.3	61.7	5.0	66.7	○	—	—
32.9	61.0	6.1*1	67.1*1	×	○	○
32.2	59.7	8.1	67.8	×	×	○
31.6	58.5	9.9	68.4	×	×	×



計画

- 開発したガラス組成(廃棄物充填率67wt%)にて, CCIM実用規模試験を実施。



試験フロー概要: ゼオライト+フェロシアン化物スラッジ

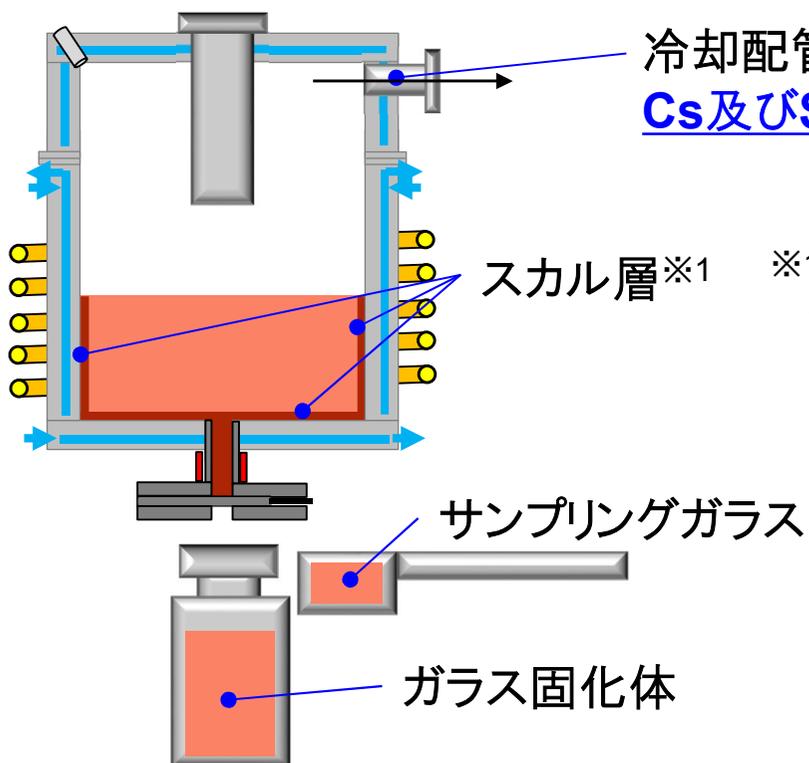
成果

【ポイント①(炉内状態)】

- 溶融ガラス温度を1050°Cに維持し運転できることを確認した。
- 流下後に溶融ガラス温度が一時的に低下したが, 供給中に1050°C程度まで回復できており, 繰り返し流下を行うような実運転が可能である見通しを得た。
- バブリング流量を低く調整することにより, 廃棄物及び添加材の供給中(流下中も含む)に仮焼層を維持した運転ができた。

成果 【ポイント②(核種移行)】

- 試験後に、ガラス固化体、サンプリングガラス、スカル層、冷却配管+高温フィルタで回収したダスト中のCs, Sr濃度を測定し、各々の存在比率を確認した。
- Cs及びSrの存在比率は、ガラス固化体、スカル層、サンプリングガラスで99wt%以上となり、冷却配管+高温フィルタでは非常に低い値となった。
- 等速吸引廃ガスサンプリング結果からCs及びSrの廃ガスへの移行率を算出した。供給中にCsは0.7wt%程度であり、Srは0.01wt%であり、廃ガスへはほとんど移行しないことを確認した。
- 運転中に仮焼層を維持し、更にガラス温度を1100°C以下にすることで、Csの廃ガス移行を抑制できたと考える。



冷却配管+高温フィルタ

Cs及びSrの存在比率: Cs:0.2wt% Sr:0.03wt%

スカル層※1

※1:今回は、揮発評価のため、初期に装荷した敷ガラス自身にCs, Srを含めており、スカル層に残存したものは敷ガラス由来であり、廃棄物由来のCs, Srではない。

サンプリングガラス

ガラス固化体

Cs及びSrのサンプリング分析箇所

	供給中 (仮焼層が有る場合)	炊き込み (仮焼層が無い場合)
Cs	0.71wt%	0.32wt%
Sr	0.01wt%	0.10wt%

等速吸引廃ガスサンプリングにより移行率結果

ガラス温度が1100°C以下となっており、炊き込み運転中も供給中と変わらず、廃ガスへの移行率は低い

成果 【ポイント③(ガラス固化体の品質)均質性, 化学的安定性, 圧縮強度】

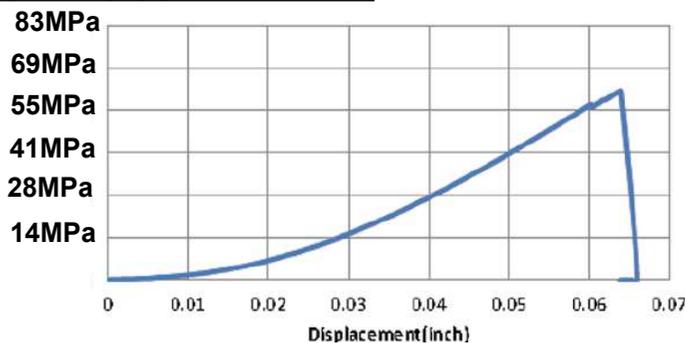
- 流下中のサンプリングガラス及びガラス受容器から回収したガラスに対し, XRD及びSEM観察を行い, 結晶や未溶融物が無く均質であることを確認した。
- 浸出試験(PCT-A試験)から, 炭酸塩スラリーのガラス固化体と同様に, CsやSrの浸出量が低いことを確認した。
- 圧縮強度は, 2回測定し, 1回目が62MPa, 2回目が131MPaであり, 1.5MPaを十分に上回ることを確認した。
- 上記のとおり, 作製したガラス固化体は高品質であった。



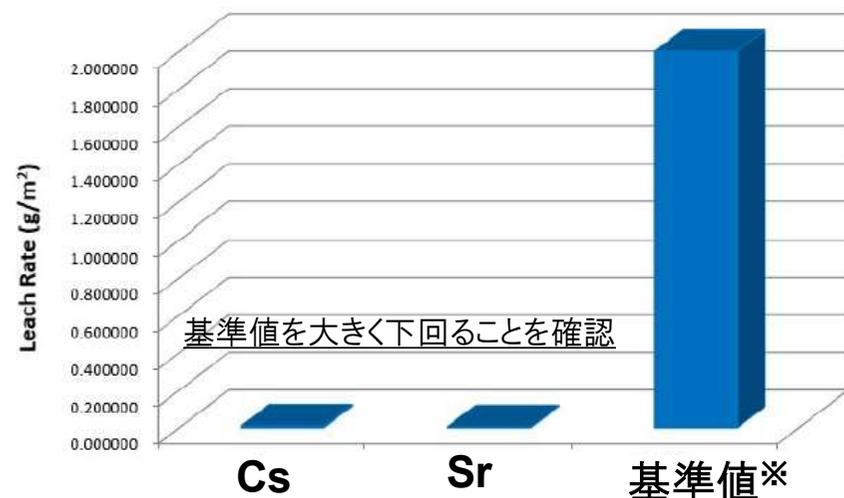
ガラス固化体から回収したガラス



サンプルイメージ
(Φ50mm×t100mm)



圧縮強度測定結果



浸出試験(PCT-A試験)(90°C,7day,純水)

※p15に記載の基準値

成果

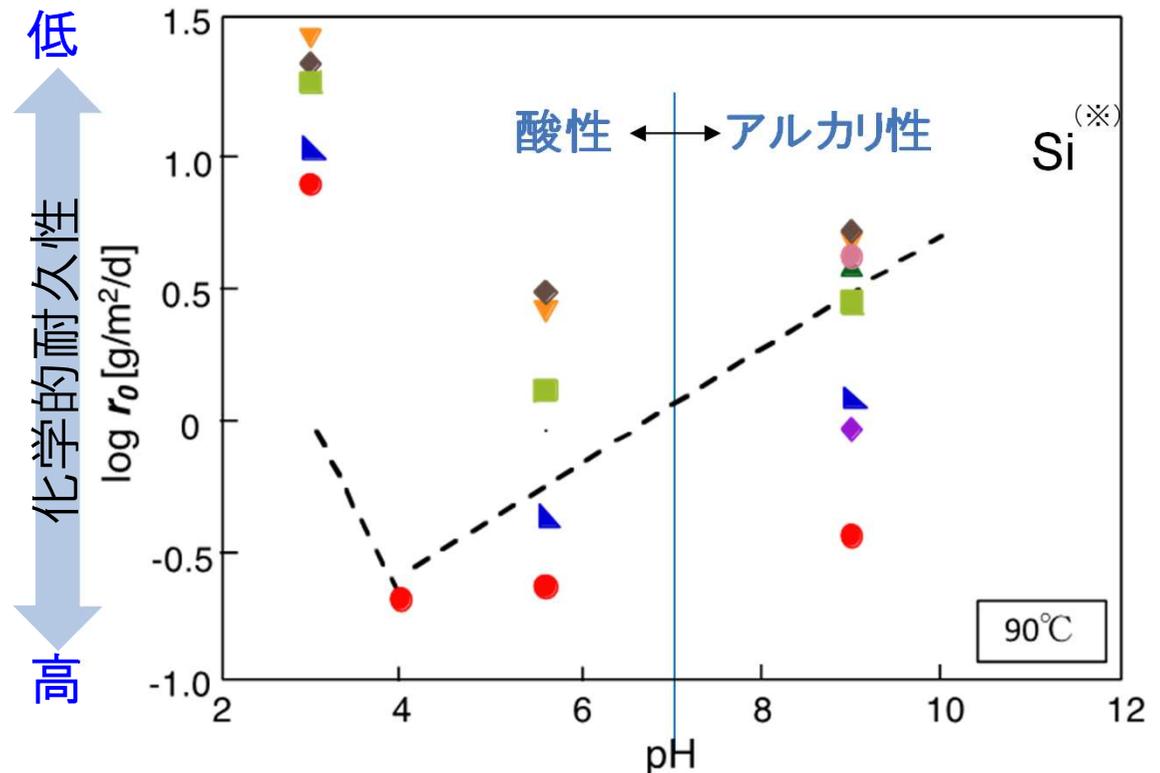
- 各廃棄物に対する選定組成において、マイクロチャンネル流水溶解試験法によって、化学的耐久性(初期溶解速度*1)を評価した。
- ガラスマトリクス主要構成元素であるSiの規格化溶解速度 NR_{Si} の値から評価した。
- 初期溶解速度の結果より、特にアルカリ側pHにおいて、化学的耐久性が国際標準ガラス(ISG)と同等以上となることを確認した。

試験条件	
pH	3, 5.5, 9
温度	90°C
試験期間	5days

※1: ガラス固化体処分時の溶解段階の1つであり、ガラス固化体と地下水が接触し、線形的に溶解する初期段階のガラスの溶解速度とした。

過去データより化学的安定性の高いホウケイ酸系ガラス固化体の浸出量は、初期5~10日程度までが高い減重率の傾向があり、時間と共に低下し一定量に漸近する。そのため、減重量のほとんどが初期変化に依存する点を利用した評価法である。

- ▲ 炭酸塩スラリー(2020年度実規模試験)
- 炭酸塩スラリー(2019年度成果)
- ▼ ゼオライト+炭酸塩スラリー(2019年度成果)
- ケイチタン酸塩
- ◆ フェロシアン化物スラッジ(鉄リン酸ガラス)
- ▲ ゼオライト+フェロシアン化物スラッジ
- ◆ ゼオライト+炭酸塩スラリー(2020年度成果)
- ゼオライト
- Ref. ISG(国際標準ガラス: International Simple Glass)



(※) フェロシアン化物スラッジ(鉄リン酸ガラス)のみSiに代わり主要構成成分であるPを評価した

化学的耐久性(初期溶解速度)評価結果

6-3. ガラス組成検討 添加材(ガラス原料)の共通化

計画

ガラス処理プロセスの運用コスト低減を目的として、3種類の廃棄物(炭酸塩スラリー、鉄共沈スラリー、フェロシアン化物スラッジ)のガラス化処理において、共用可能なガラス原料の組成を検討する。

- 3種類の廃棄物の単独処理を想定し、別途選定した固化体組成をもとに、各廃棄物の添加材組成の共通範囲から、原料組成候補を設定
- シミュレーションにより、物性基準を満足する可能性を有する固化体組成候補を探索
- るつぼ試験にて、ガラス化状態(未熔融物の有無)を評価
- ガラス化状態が良好となる候補組成にて物性評価(高温粘度、電気伝導度)を実施

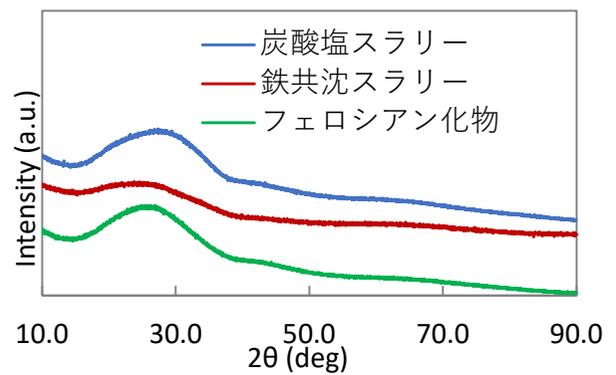
各廃棄物の単独処理を想定して別途選定された廃棄物充填率にて、固化体の健全性および物性基準を満足する共通の原料組成を設定できなかった場合、廃棄物充填率を下げることを検討する。

6-3. ガラス組成検討 添加材(ガラス原料)の共通化

成果

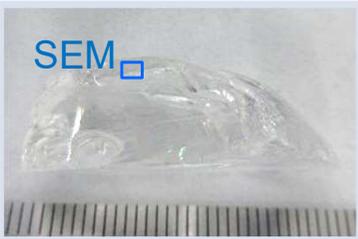
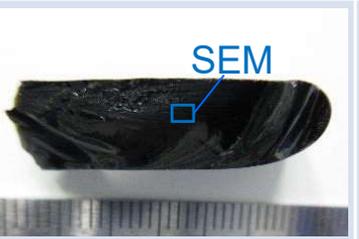
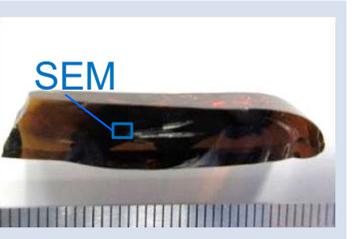
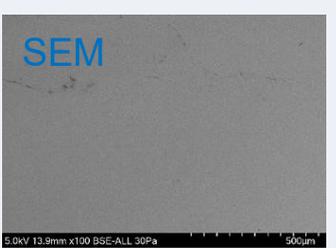
- るつぼを用いて、模擬廃棄物と添加材とを1100°Cで溶融した。
- 廃棄物充填率は、炭酸塩スラリーで**20wt%**、鉄共沈スラリーで**25wt%**、フェロシアン化物スラッジで**6wt%**となった。
- ガラス表面の目視観察、XRD分析、SEM-EDS分析により、**未溶融物がほとんど無く、ガラス化状態が良好**であることを確認した。
- 3種の廃棄物のガラスについて、粘度測定および電気伝導度測定を実施し、ともに**CCIMに適用するための判定基準を満足**することを確認した。

結晶物のピークなし
(顕著な結晶物の発生などが見られず均質なガラスであることを確認)



XRD測定結果
(結晶物の確認)

(※)個別の廃棄物ごとに異なる添加材を使用して処理

	炭酸塩スラリー	鉄共沈スラリー	フェロシアン化物スラッジ
充填率 (単独処理※)	20wt%	35wt%	6wt%
充填率 (添加材共通化)	20wt%	25wt%	6wt%
ガラス写真			
SEM像			

6-4. 廃棄物性状を踏まえた廃棄物供給系及び廃ガス処理系の検討

計画

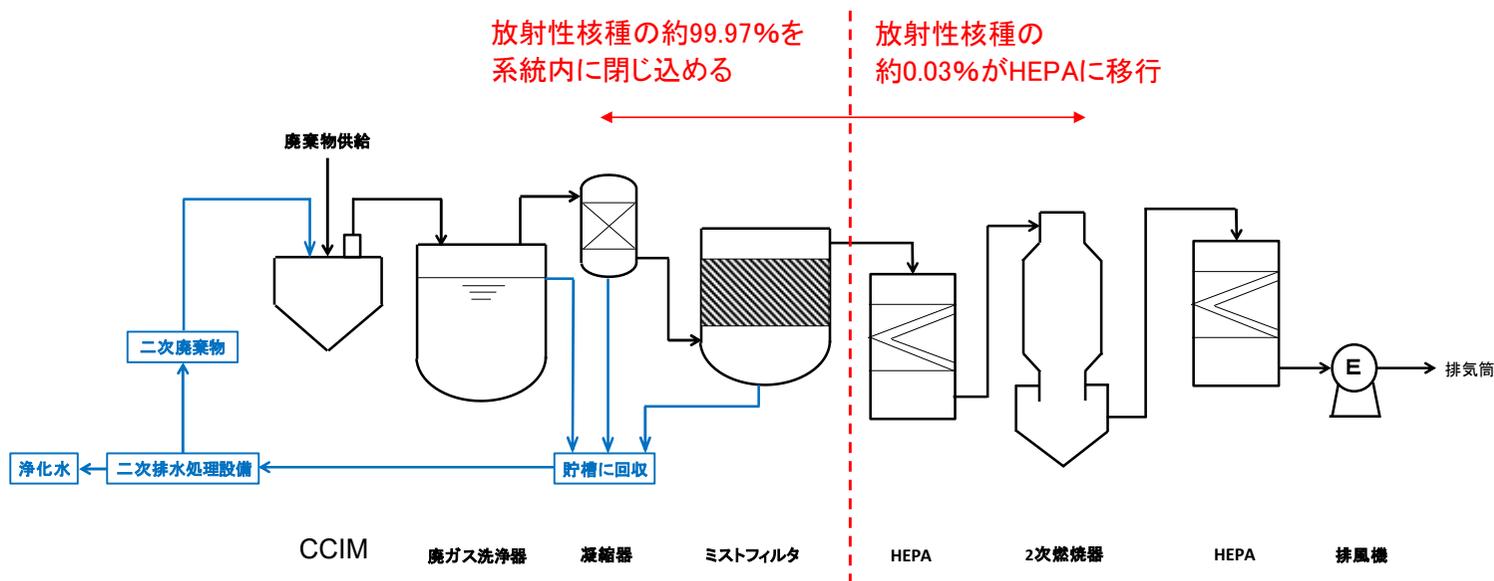
- 2018年度の検討結果を基に、代表的な固体廃棄物に対する供給系及び廃ガス処理系の成立性を検討した。

【供給系】

- 既存の技術、対象廃棄物の移送性に影響すると考えられる性状を調査し、移送方法を選定。
- 供給系で想定する構成機器を用いた移送機器単体の要素試験を行い、供給系における課題抽出を行うとともに、得られた課題(搬送性等)に対する対策を検討した。
- 要素試験での試験結果を基に、前処理装置の必要性の可否を評価し、供給系の基本プロセスを検討した。

【廃ガス処理系】

- 廃棄物の想定組成から、発生する廃ガス成分を検討した。
- 廃ガス成分に合わせて、既存の焼却設備や再処理設備の技術を元にして、安全に放出できるように系統構成(プロセスフロー)を選定した。
- 設備機器の概念検討を実施した。



計画

スラリー化脱水処理体(炭酸塩スラリー)の供給要素試験

- 使用した模擬炭酸塩スラリー組成は、CCIM実規模試験で使用した模擬炭酸塩スラリーと同組成
- 含水率が50wt%, 60wt%, 70wt%, 80wt% になるようにスラリー化し, 試験を実施

成果

- 定量供給性確認: 所定流量で吐出されるスラリーの重量計測により定量供給可否を確認した。
- 配管内堆積状況確認: 1時間の循環運転における配管内の流動・堆積状況を確認した。
- 1時間静置後, 再起動性を確認。再度循環運転を行い, 配管内の流動・堆積状況及び定量供給性を確認した。



タンク内で模擬物を水と混合しスラリー化

6-4. 廃棄物性状を踏まえた廃棄物供給系及び廃ガス処理系の検討

成果

- 含水率50～80wt%スラリーの定量供給性は、目標移送速度に対して誤差-1.5%～+3.5%程度であり、安定的にスラリーを移送・供給できることを確認した。
- 全ての含水率において配管内は水分の多い相と固形分の多い相に分離したが、定量供給性に影響を与えることはなく、固形分相の堆積物が増加することも無かった。
- 循環運転を停止し1時間静置させた後、再循環しても配管内の流動性、移送性は良好であった。

含水率50wt%における定量供給性確認結果

10分間の平均供給速 [kg/min]	1時間あたりの供給速度 [kg/h]	目標移送速度との誤差
0.680～0.689	40.80～41.34 (約2.5cm/s)	+2.0～+3.4%

含水率50wt%の1時間静置・再循環運転後の定量供給性確認結果

10分間の平均供給速 [kg/min]	1時間あたりの供給速度 [kg/h]	目標移送速度との誤差
0.658	39.48 (約2.4cm/s)	-1.3%



水分の多い層

固形物の多い層

スラリー移送中

スラリー移送時の配管内観察(含水率50wt%)

本要素試験の成果と課題は以下のとおり。

【成果】 含水率50～80wt%の模擬炭酸塩スラリーを安定的に移送・供給できることを確認

【課題】 移送中や再起動後においても水平配管部に堆積物が確認されたことから、供給系の設備検討にあたっては、配管勾配や堆積物の洗浄等を考慮する必要あり

6-4. 廃棄物性状を踏まえた廃棄物供給系及び廃ガス処理系の検討

計画

- 砂状固形物(ゼオライト, ケイチタン酸塩)の固体状での移送, 供給にあたって, 既存技術の調査を行った。固体状での移送, 供給では以下のような要求事項*1があり, それに対して採用可能な技術を選定した。(放射性廃棄物を取り扱うことから, 「汚染拡大防止」「機器への残留」「設置性」「メンテナンス性」などを考慮して, 採用可能な技術を選定した。)

*1 IHIにて廃棄物を受け入れた容器からCCIMまで移送, 供給する場合の要求事項を設定

	要求事項	採用可能技術
廃棄物の移送	<u>大量輸送</u> (保管容器からの抜き出時やタンク間の移送においては定量性は必要ないが, 数百kg/h程度の大量輸送が必要となる。)	<u>空気輸送技術</u> (<u>減圧式</u>)
CCIMへの供給	<u>少量定量供給</u> (CCIMへの廃棄物供給において, 30~50kg/h程度での定量供給性が必要となる。)	<u>スクリーフィーダ</u>

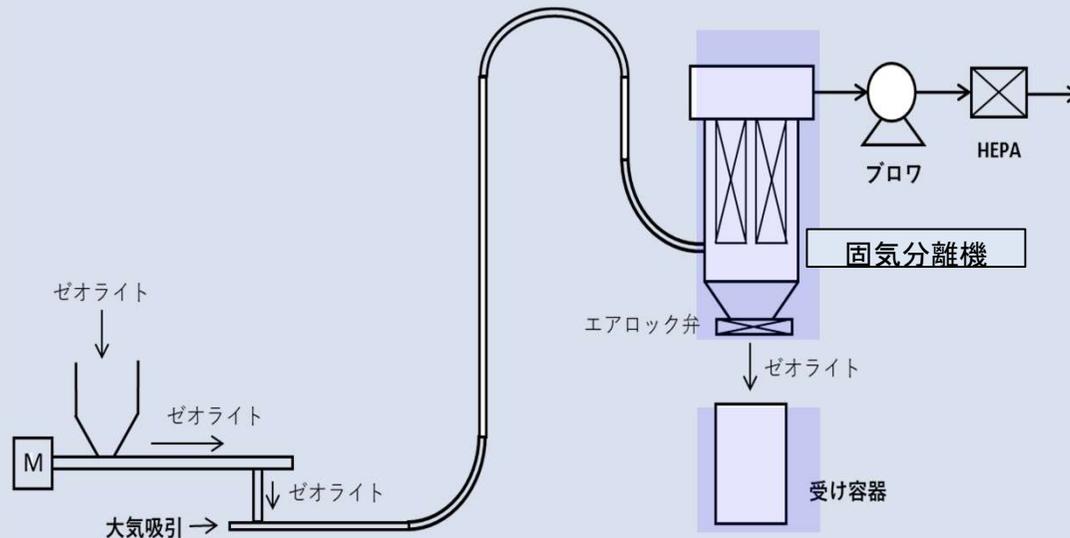
⇒ ゼオライトを用いて, 空気輸送技術, スクリーフィーダでの移送試験を実施した。

計画

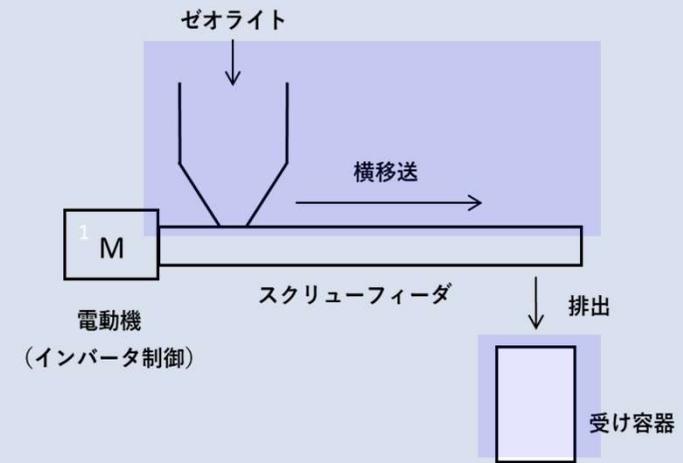
固体状 砂状固形物(ゼオライト)の供給要素試験

- 「空気輸送(減圧式)」, 「無軸スクリーフィーダ」によるゼオライト移送試験を実施した。
 - ・空気輸送(減圧式): 目標移送速度で所定時間移送するゼオライト(乾燥体)の重量を計測し, ゼオライトの移送の可否を確認
 - ・無軸スクリーフィーダ: 目標移送速度で所定時間移送するゼオライト*(乾燥体)の重量を計測し, 定量供給性を確認
- 含水率40~50wt%のゼオライト(含水体)でも移送試験を実施

空気輸送(減圧式)



無軸スクリーフィーダ



成果

空気輸送(減圧式)試験

- 空気輸送の結果, 輸送圧力は安定し, 目標移送速度120kg/hに対して最大誤差は5%程度であった。また, フランジからのリーク, 配管の閉塞, バグフィルタの目詰まりは無かった。ただし, ゼオライトは輸送時に配管内面に衝突するなどして破砕し粉状となった。
- 含水率40~50wt%の含水ゼオライトについては, 空気輸送することは可能であったが, バグフィルタで目詰まりが発生しやすくなるため, ゼオライトの移送の安定性に欠けることが分かった。

	ゼオライト(乾燥体) 移送量計測結果				ゼオライト(含水体) 移送量計測結果		
	1回目	2回目	3回目		1回目	2回目	3回目
移送量 (kg/h)	119.01	122.29	114.11	移送量 (kg/h)	210.3	303.3	380.6
吸引圧力 (kPa)	-26~-27	-25~-27	-27~-28	吸引圧力 (kPa)	-40~-44	-43~-44	-30~-40

本要素試験の成果と課題は以下のとおり。

- 【成果】 固体状(乾燥状態)のゼオライトを安定して移送可能
含水ゼオライトの移送は固気分離機のフィルタ負荷も大きく, 供給安定性に欠ける
- 【課題】 含水ゼオライトを移送する場合は, 乾燥処理し含水率を下げる等の前処理が必要

成果

無軸スクリーフィーダ試験

- 無軸スクリーフィーダによる移送の結果、目標移送速度40kg/hに対して誤差は3～4%程度であり、フィーダ内に付着や閉塞を生じることなく安定的にゼオライトを移送することができた。
- 含水率40～50wt%の含水ゼオライトについては、移送可能であることは確認できたが、スクリー羽との剪断力によりゼオライトが泥状となり移送量の誤差がでやすくなることがわかった。

ゼオライト(乾燥体) 移送量計測結果			
	1回目	2回目	3回目
移送量(kg/h)	36.69	38.36	38.81

ゼオライト(含水体) 移送量計測結果		
	1回目	2回目
移送量(kg/h)	88.92	94.20

本要素試験の成果と課題は以下のとおり。

【成果】 乾燥状態の固体状のゼオライトについては安定して移送可能

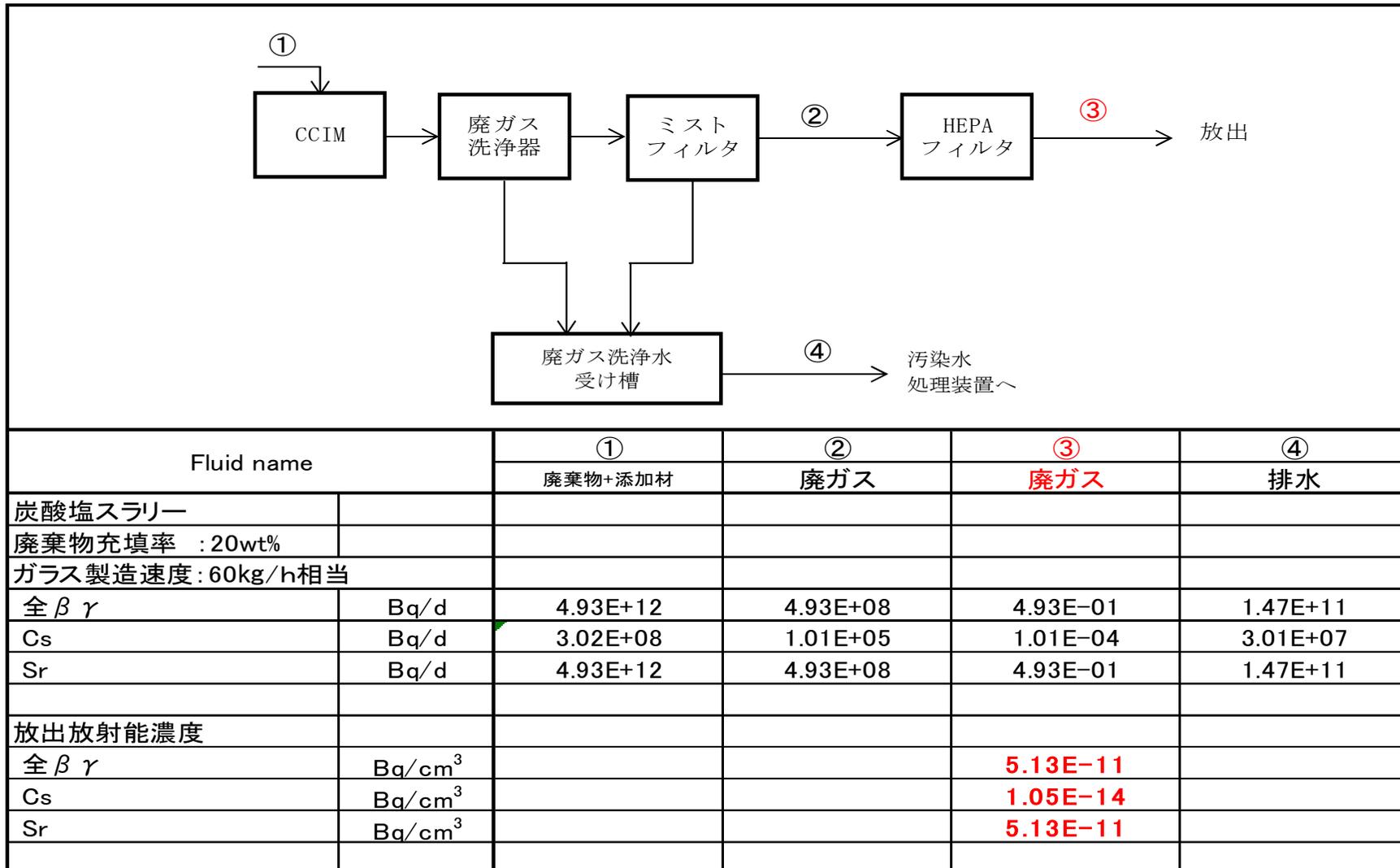
【課題】 含水状態の場合は移送量の誤差がでやすくなる。また、ホッパーにゼオライトを充填したまま移送すると、移送開始直後にホッパー内でブリッジを形成し、自然供給が不可となることから、スクリーフィーダホッパー部に原料供給装置が必要になる

6-4. 廃棄物性状を踏まえた廃棄物供給系及び廃ガス処理系の検討

成果

➤ CCIMでガラス固化処理を行った際の、廃ガス処理設備の系統構成と放出放射量の検討を行った。

廃ガス処理設備 概略フロー&放射能収支 (湿式処理)(炭酸塩スラリー)



6-5.廃棄体化条件の検討

計画

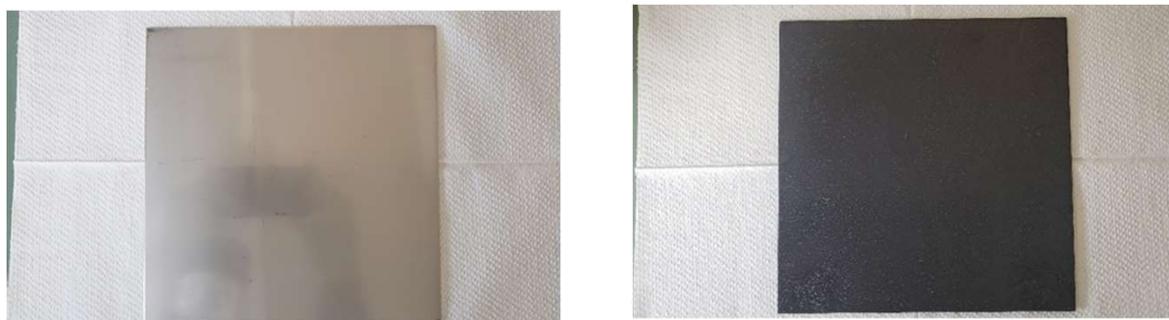
- CCIMを含む処理設備を日本国内に導入する場合に、容器を含む廃棄体(ガラス固化体)条件、設備規模を提示することを目的として、廃棄体やシステム全体の概要の検討を行う。

成果

【廃棄体化の検討】

- 廃棄物のガラス固化を考慮した代表機器(CCIM本体、廃ガス洗浄機等)に対する線量評価を実施した。
- 線量評価結果に基づく廃棄体の線量、実用規模試験や要素試験で取得した廃棄体の容器の温度データ等を基に、廃棄体化を考慮した廃棄体の容器及び運用方法を検討した。(放射能濃度に応じて肉厚等の異なる2種類の容器を使用する計画)
- SUS304の板を900°C*1まで加熱するサイクルを1~2回繰り返し、その後、板の引張強度を確認。加熱後の引張強度はガラス重量に十分に耐えることを確認した。

*1: 実用規模試験で取得した容器温度データの上限值



加熱前

加熱後

試験前の引張試験体の状態(加熱前後)

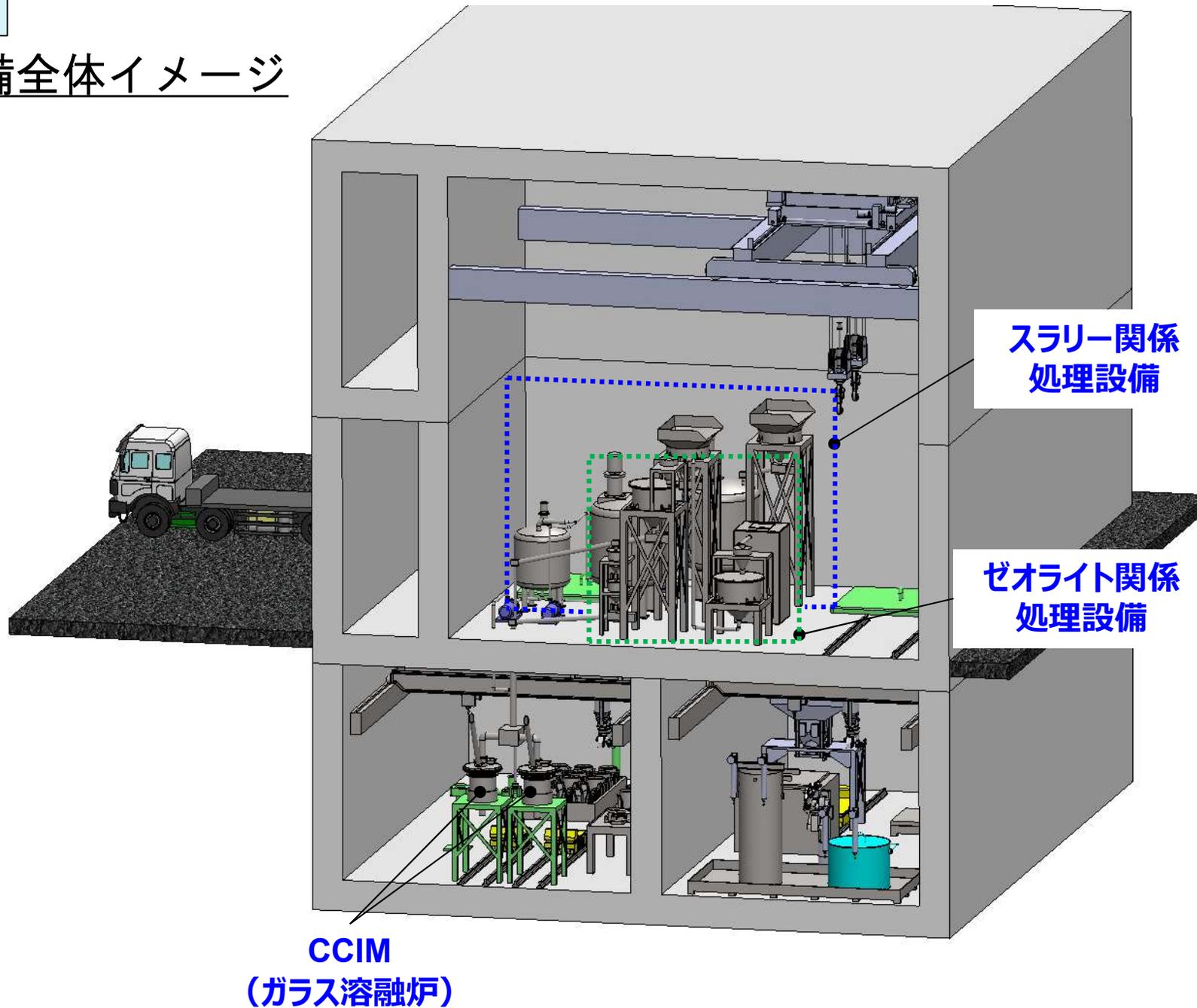
【経済性評価データの取得】

- 経済性評価に反映するための廃棄物の取り出し、供給系、溶融炉、廃ガス処理、廃棄体取扱設備等を含んだ全体プロセス、機器配置を設定した。

6-5.廃棄体化条件の検討

成果

設備全体イメージ



スラリー関係
処理設備

ゼオライト関係
処理設備

CCIM
(ガラス溶融炉)

7. まとめ

CCIMによるガラス固化技術の適用性について(各種廃棄物に対して)(1/2)

……ALPS由来廃棄物

廃棄物		これまでの成果
炭酸塩スラリー	組成	<ul style="list-style-type: none"> ○ 廃棄物充填率20wt%で良好にガラス化でき、物性の判定基準を満たすガラス組成を選定。 ○ 廃棄物組成変動した場合、広範囲(5σ)で高品質なガラスが製造できることを確認。 ○ 30wt%以上に高充填化した条件で高品質のガラスを製造できることを確認。 ○ 廃棄物充填率を向上した条件での廃棄物組成変動範囲を考慮したガラス化範囲を確認。 ○ 950℃以上で高品質のガラスが得られ、目標温度範囲での温度変動では十分ガラス化できることを確認
	運転性	<ul style="list-style-type: none"> ○ 開発したガラス組成(廃棄物充填率20wt%)にて、実用規模試験を実施。 <ul style="list-style-type: none"> ・ 炉内温度：溶融温度1100℃を維持した運転が可能。 ・ Csの廃ガスへの移行率：5wt%程度(等速吸引廃ガスサンプリング結果)。バブリング流量を低く調整し、移行率を更に抑えることが可能。 ・ ガラス固化体の品質：均質であり、化学的安定性が高く、圧縮強度も高く高品質であった。 ・ 流下性：繰り返し流下可能。供給中に仮焼層を維持する保持運転無しで運転継続可能。
鉄共沈スラリー	組成	<ul style="list-style-type: none"> ○ 廃棄物充填率35wt%で良好にガラス化でき、物性の判定基準を満たすガラス組成を選定。 ○ 廃棄物組成変動した場合、SiO₂濃度が低くなる場合に結晶化する傾向があるものの、広範囲(5σ)で高品質なガラスが製造できることを確認。 ○ 40wt%以上に高充填化した条件で高品質のガラスを製造できることを確認。 ○ 廃棄物充填率を向上した条件での廃棄物組成変動範囲を考慮したガラス化範囲を確認した。 ○ 1050℃以上で高品質のガラスが得られ、目標温度範囲での温度変動では十分ガラス化できることを確認。
	運転性	<ul style="list-style-type: none"> ○ 開発したガラス組成(廃棄物充填率35wt%)にて、実用規模試験を実施。 <ul style="list-style-type: none"> ・ 炉内温度：溶融温度1100℃を維持した運転が可能。 ・ Csの廃ガスへの移行率：5wt%程度(等速吸引廃ガスサンプリング結果)。バブリング流量を低く調整し、移行率を更に抑えることが可能。 ・ ガラス固化体の品質：均質であり、化学的安定性が高く、圧縮強度も高く高品質であった。 ・ 流下性：繰り返し流下可能。

7.まとめ

CCIMによるガラス固化技術の適用性について(各種廃棄物に対して)(2/2)

・・・SARRY/除染装置由来廃棄物

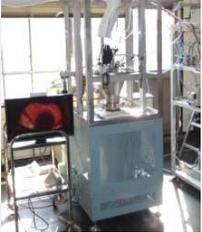
廃棄物		これまでの成果
ケイタン酸塩 (IE-911)	組成	<ul style="list-style-type: none"> ○Csの揮発抑制し、目標とするガラス物性を満足するガラス組成を開発。溶融温度を1050°Cに低下。 ○廃棄物充填率40wt%で良好にガラス化でき、物性の判定基準を満たすガラス組成を選定。
	運転性	<ul style="list-style-type: none"> ○実験室規模(ガラス作製量約10kg)試験にて、開発したガラス組成が連続処理可能であることを確認。
フェロシアン化物 スラッジ	組成	<ul style="list-style-type: none"> ○鉄リン酸ガラスおよびホウケイ酸ガラス組成によるガラス組成を開発。 ○ホウケイ酸ガラス組成に比べ、鉄リン酸ガラス組成では、大幅に廃棄物充填率を向上(38wt%)できる見通しを得た。
樹脂, 活性炭	組成	<ul style="list-style-type: none"> ○減容性が高く、高品質にガラス化できるガラス組成を設定。
	運転性	<ul style="list-style-type: none"> ○実験室規模(ガラス作製量約10kg)試験にて、開発したガラス組成が連続処理可能であることを確認。また、廃棄物を大幅に減容可能であることを確認した。
ゼオライト+炭酸塩 スラリー混合	組成	<ul style="list-style-type: none"> ○Csの揮発抑制し、目標とするガラス物性を満足するガラス組成を開発。溶融温度を1000°Cに低下 ○廃棄物充填率合計72wt%で良好にガラス化でき、物性の判定基準を満たす候補組成を選定。
ゼオライト+フェロシアン化物 スラッジ混合	組成	<ul style="list-style-type: none"> ○Csの揮発抑制し、目標とするガラス物性を満足するガラス組成を開発。溶融温度を1050°Cに低下。 ○廃棄物充填率合計67wt%で良好にガラス化でき、物性の判定基準を満たすガラス組成を選定。
	運転性	<ul style="list-style-type: none"> ○開発したガラス組成(廃棄物充填率67wt%)にて実用規模試験を実施。 <ul style="list-style-type: none"> ・炉内温度:溶融温度1050°Cを維持した運転が可能。 ・Csの廃ガスへの移行率:仮焼層を維持した運転(保持運転なし)により、Csの廃ガスへの移行率を1wt%以下に抑制することができた。 ・ガラス固化体の品質:外観上均質であり、化学的安定性が高く、圧縮強度も高く高品質であった。 ・流下性:繰り返し流下可能。供給中に仮焼層を維持する保持運転なしで運転継続可能。

7.まとめ

供給系，廃ガス処理系への適用性および廃棄体化条件の検討について

項目	これまでの成果
供給系	<ul style="list-style-type: none"> ○ <u>5種類の廃棄物(スラリー状,固体状)に対して,供給系の移送方法を検討し,それぞれの供給形態を選定。</u> ○ <u>ゼオライト, 模擬炭酸塩スラリーでスラリー状での移送・供給試験を実施</u> <ul style="list-style-type: none"> ・ <u>ゼオライトは閉塞の可能性が高く, 採用が困難なことを確認。</u> ・ <u>模擬炭酸塩スラリーについては配管内への堆積が見られるもの, 配管に勾配を持たせるなどの処置を行えば, 採用できることを確認。</u> ○ <u>ゼオライトの固体状での供給とし, 廃棄物の移送方法を調査した結果, 移送方法として空気搬送・スクルーフィーダを選定。移送・供給試験を実施した結果, 乾燥状態では良好な結果を得たが, 含水状態では機器や配管内への堆積を確認。</u> ○ <u>上記の結果を反映して, 供給系設備の概略系統図を設定。</u>
廃ガス処理系	<ul style="list-style-type: none"> ○ <u>5種類の廃棄物に対して,廃ガス処理設備(湿式処理,乾式処理)の概略フローの設定及び放出放射能収支を算出。</u> ○ <u>基本プロセスを設定し, 概略系統図を設定。</u>
廃棄体化条件	<ul style="list-style-type: none"> ○ <u>ガラス固化プロセスの代表機器(CCIM,固化体,ミストフィルタ,HEPAフィルタ)に対する線量評価を実施し, ガラス固化体の容器及び運用方法を設定。</u> ○ <u>経済性評価に反映するため, 固化体取扱い設備等の基本プロセスを設定し, 供給系, 廃ガス処理系等を含んだ全体プロセス, 主要設備の機器配置を設定。</u>

7.まとめ CCIMによるガラス固化技術の適用性について(全廃棄物)

項目	炭酸塩スラリー	鉄共沈スラリー	フェロシアン化物スラッジ	イオン交換樹脂	活性炭	ゼオライト	ケイチタン酸塩	ゼオライト + 炭酸塩スラリー	ゼオライト + フェロシアン化物スラッジ	炭酸塩スラリー + 鉄共沈スラリー + フェロシアン化物スラッジ
	単独での高充填化							組合せ処理		添加材共通化
ガラス組成検討 (るつぼ規模 数十～数百g 規模) 	充填率 20wt% (変動確認) ↓ 更なる充填率向上 30wt%以上 高充填化 (組成変動)	充填率 35wt% (変動確認) ↓ 更なる充填率向上 40wt%以上 高充填化 (組成変動)	充填率 6wt% (ホウケイ酸) 38wt% (鉄リン酸) ↓ 高温粘度の改良確認 物性評価し 運転調整可能 範囲へ改良	Fe ₂ O ₃ 充填率 20wt% 1/4以上に減容	炭酸塩スラリーとの混合処理 1/15以上に減容	充填率 65wt% ↓ 充填率, 高温粘度の改良確認 充填率 40wt%	物性に課題 充填率 72wt%	充填率 67wt%	炭酸塩スラリー: 20wt% 鉄共沈スラリー: 25wt% フェロシアン化物スラッジ: 6wt%	
連続運転確認 (実験室規模 数十kg規模) 	—	—	—	連続処理による 運転適用性を確認	連続処理による 運転適用性を確認	運転適用 (Cs揮発抑制) 連続処理による 運転適用性確認 溶融温度を 1050°C に低下	—	連続処理による 運転適用性確認 溶融温度を 1050°C に低下	—	
CCIM 運転性確認 実用規模試験 (実用規模 数百kg規模) 	間欠運転 連続運転 (保持無) ↓ 揮発抑制 流下停止機構追加 連続運転による 運転適用性を確認	間欠運転 連続運転による 運転適用性を確認	—	☆	☆	※Cs吸着の多い廃棄物は特に揮発抑制に主眼		間欠運転 連続運転 (保持無) ※フェロシアン化物スラッジは充填率が見込める組合せで試験	—	

 : ~2019年度実施内容
 : 2020年度実施内容
 ☆ : 2021年度以降実施(必要に応じて)

IHI

Realize your dreams