

福島汚染水二次廃棄物への溶融ガラス化技術の適用性

Applicability of Vitrification Technology for Secondary Wastes Generated from Contaminated Water Treatment Systems at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

鬼木俊郎	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU 除染廃炉・原燃技術部	主査
田尻康智	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU システム設計部	
味村武史	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU 除染廃炉・原燃技術部	課長
鍋本豊伸	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU 除染廃炉・原燃技術部	主査
福井寿樹	資源・エネルギー・環境事業領域原子力 SBU 除染廃炉・原燃技術部	部長

福島第一原子力発電所から発生する廃棄物には、多種多様な廃棄物が存在する。株式会社 IHI では、福島第一原子力発電所から発生する廃棄物のうち、汚染水処理で発生する二次廃棄物などを減容・安定化することを目的として、コールドクルーシブル誘導加熱炉 (CCIM) によるガラス固化プロセスの開発に取り組んでいる。本稿では、IHI の取組みに関して、開発の現状とともに紹介する。

Various types of radioactive waste have been generated in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (NPS) site. The purpose of this review is to reduce and stabilize this waste by vitrification technology using Cold Crucible Induction Melter (CCIM) — especially waste with a high level of radioactivity such as secondary waste generated from contaminated water treatment systems in which the development of vitrification process using CCIM was carried out. This paper describes approaches to completing development of treatment technology for such waste including IHI's activities.

1. 緒言

福島第一原子力発電所から発生する廃棄物（以下、福島事故廃棄物）には、瓦礫^{がれき}、伐採木、汚染水処理で発生するスラッジ、ゼオライト（汚染水処理で使用された吸着塔で用いられている）などの二次廃棄物（以下、汚染水二次廃棄物）など、多種多様な廃棄物が存在する。

IHI では、2011 年度から、福島事故廃棄物処理に関する調査を開始し、福島事故廃棄物のなかでも放射能レベルが高い汚染水二次廃棄物に対して、安定性、減容性が高い溶融ガラス化技術（高レベル廃液の安定化に用いられているガラス固化技術を応用した技術、詳細は 3.1 節参照）の適用性に関する検討を開始した。さらに、2012 年度より、韓国国内の低レベル放射性廃棄物の処理実績を有する韓国水力・原子力発電（Korea Hydro & Nuclear Power Co., Ltd., 以下、KHNP 社）と協定を結び、汚染水二次廃棄物に対するコールドクルーシブル誘導加熱炉（Cold Crucible Induction Melter：CCIM）の適用性検討を開始した⁽¹⁾。また、2017 年度より、経済産業省資源エネルギー庁の補助金事業である「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））」⁽²⁾ に採択され、汚染水二次廃棄物に対する溶融ガラス化および CCIM の適用性の評価を実施している。

本稿では、汚染水二次廃棄物に対する溶融ガラス化技術および CCIM の適用性検討にかかわる取組みについて、開発状況とともに紹介する。

2. 福島第一原子力発電所から発生する汚染水二次廃棄物の特徴

汚染水二次廃棄物は、以下のような特徴を有する。

- ・放射能レベルが高いため、廃棄物に処理を施した廃棄体に水分などが含まれると放射線分解による水素発生が懸念される。
- ・多種多様な廃棄物が存在するとともに、廃棄物の組成が変動する可能性がある。
- ・可燃物を含む廃棄物が存在し、処分に際して無機化が必要となる。
- ・ α 核種が含まれ、放射能レベルが高いものが混在するため、廃棄体に安定性が求められる場合がある。
- ・多量の廃棄物が存在することから、貯蔵や処分時に必要な面積を低減する観点から、可能な限り減容しておく必要がある。

・原子力発電所の運転時には発生しない廃棄物のため、処理技術の開発が必要ながある。

以上の特徴を踏まえると、汚染水二次廃棄物の処理には、水素発生抑制、多種多様な廃棄物への対応、廃棄体の減容性、安定性が重要だと考えられる。

3. 減容・安定化の技術選定の考え方

前述した汚染水二次廃棄物の特徴から、水素発生抑制、廃棄体の安定性、減容性の高い技術を選定する必要がある。そこで、低レベル放射性廃棄物の安定化技術として用いられているセメント固化などに比べて、これらの観点に対してより効果が高いと考えられる溶融ガラス化技術（溶融ガラス化技術の特徴については、3.1節を参照）を採用することとした。

また、汚染水二次廃棄物の溶融ガラス化に用いる溶融炉には、多種多様な廃棄物に対応できることや減容性、安定性の高い廃棄体を作製できることが求められる。そこで、汚染水二次廃棄物の処理に用いる溶融炉としては、本要件に対応できるCCIMの適用性が高いものと評価した（3.2節参照）。

3.1 溶融ガラス化技術の特徴

本開発では、国内の高レベル放射性廃液の処理に適用さ

れているガラス固化技術（廃棄物にホウケイ酸ガラスなどのガラス原料を添加し、ガラス固化する技術）を応用した技術を用いており、ここでは溶融ガラス化技術と呼んでいる。第1表に溶融ガラス化技術の特徴を示す。溶融ガラス化技術は、廃棄物自体に含まれる成分（SiO₂など）をガラス形成成分として用いることで、添加材の量を最小限に抑えてガラス固化するものである。また、固化体の要求条件、処分方法などに応じて、減容性、操作性、廃棄体安定性などの調整が可能であり、事業のニーズに応えることができる。さらに、異なる廃棄物同士を組み合わせ、安定した廃棄体とすることも可能である。




汚染水二次廃棄物には、ゼオライトなどガラス形成成分を多く含む廃棄物が存在しており、溶融ガラス化技術の適用効果が見込まれる。

3.2 CCIMの特徴

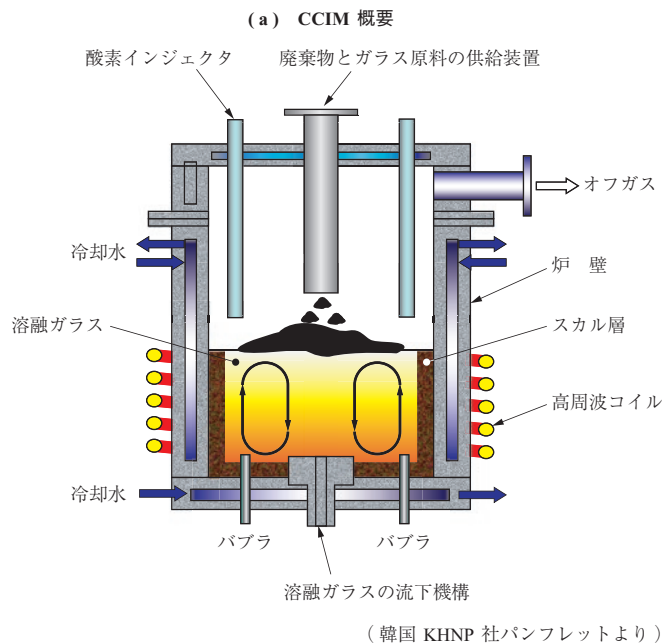
IHIはCCIM技術およびCCIM実用規模試験装置を保有し、同技術を用いて韓国国内で低レベル放射性廃棄物のガラス固化の実績を有するKHNP社と協力協定を締結し、本開発に取り組んでいる。CCIMの概要を第1図に示す。

- ・高周波加熱を熱源とし、接液部に金属を用いている。
- ・炉壁の水冷によるスカル層形成によってガラスの腐

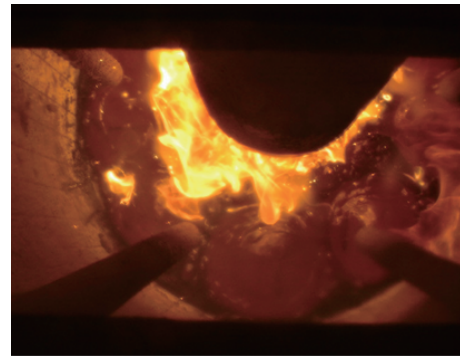
第1表 溶融ガラス化技術の特徴
Table 1 Comparison of vitrification processes

項目	ガラス固化技術		溶融ガラス化技術
	ガラス固化（従来）	溶融ガラス化	
概要	廃棄物にホウケイ酸ガラスなどの所定のガラス原料を添加し、ガラス固化する方法 	廃棄物自体に含まれる成分（たとえば、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 	廃棄物を溶融し、スラグとして固化する方法 
減容性	△ ガラス原料添加によって、廃棄物充填率を一定に保つため、減容性は低い。	○ 安定性を確保できる範囲で、添加物量を最小限に抑制するため、減容性は比較的高い。ただし、廃棄物組成によって減容性は変動する。	◎ 添加材がないため、減容性が高い。
操作性	◎ 溶融ガラスの高温物性を一定範囲に管理できるため、加熱・流下（出湯）条件は毎回一定である。ただし、高レベル廃液の場合は、白金族管理が運転に影響する。	○ 溶融ガラスの高温物性を決められた範囲内に管理できるため、加熱・流下（出湯）条件は大きく変動しない範囲で運転できる。	△ 廃棄物組成によって高温物性が異なるため、加熱・流下（出湯）条件を毎回設定する必要がある。
廃棄体安定性	◎ ガラス固化後の組成が常に一定範囲に管理されるため、安定性に優れる。	○ 安定性を確保できる範囲で、添加物量を最小限に抑制することで安定性は比較的高い。ただし、廃棄物組成によって安定性は変動する。	△ 廃棄物組成によってスラグ組成が決まるため、安定性は一定でない。

（注） 1. 低レベル廃棄物の特徴
SiO₂、Al₂O₃などのガラス形成成分を含む廃棄物が多数ある。
2. 技術の評価結果
◎：優、○：良、△：可



(b) 上面から観察した CCIM 炉内部の様子



第 1 図 コールドクルーシブル誘導加熱炉 (CCIM) の概要
Fig. 1 Appearance of a Cold Crucible Induction Melter (CCIM)

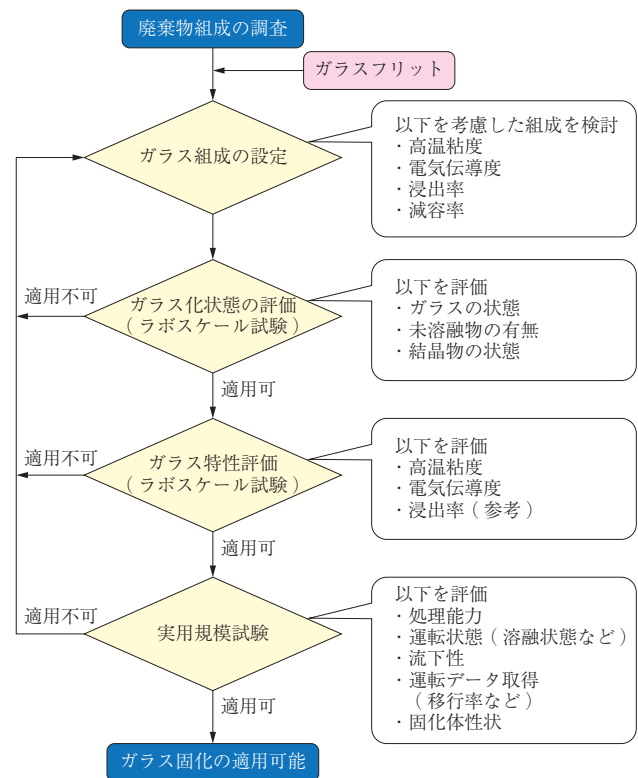
食性を低減（腐食性の高いガラスも適用可能、長寿命化）。

- ・スタートアップ、シャットダウンは各 4 時間以内（容易に処理廃棄物を変更可能）。
- ・有機物を含む廃棄物、液体廃棄物などの多様な廃棄物に対応可能。

CCIM は、第 2 表に示す特徴を有することから、汚染水二次廃棄物の処理に適しているものと判断した。

4. 汚染水二次廃棄物の溶融ガラス化の開発

本開発における適用性評価の進め方を第 2 図に示す。はじめに、汚染水二次廃棄物の化学組成、特徴に応じたガラス組成の設定を行い、るつぼなどを用いたラボスケール



第 2 図 適用性評価の進め方
Fig. 2 Procedures for applicability evaluation

項目	内容
対象廃棄物	耐腐食性が高く多様な廃棄物に適用可能。
安定性	溶融炉内での溶融混合性が良く、安定なガラス固化体を作製することが可能。
減容性	流下式であるため、廃棄体容器に高く充填可能であり減容性が高い。
処理能力	連続運転のため、処理能力が高い。バブリングなどでの対流促進による処理能力向上が可能。
経済性	廃棄体容器を安価にできる（容器を直接加熱する必要がないため、耐熱性の要求が比較的低い）。
インベントリー評価	流下ガラスをサンプリング分析することで炉内およびガラス固化体の評価が可能。
運転性	流下操作が必要であり、比較的運転操作が複雑である。スカル層管理が重要なことから、今後試験などでの技術の蓄積が必要となる。

試験でガラス特性評価を行うことで、ガラス組成の選定を行う。また、ラボスケール試験で良好であったガラス組成を用いて、実用規模の CCIM 設備を用いた実用規模試験を実施し、CCIM の適用性確認を行う。

さらに、設備イメージを明確にするため、廃棄物やガラ

ス原料の供給設備，廃ガス処理設備など，設備概念の検討を行う。以下に各実施項目の成果について紹介する。

4.1 ガラス組成の選定

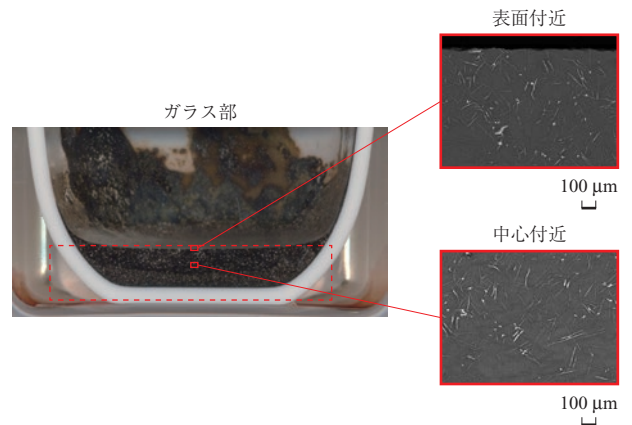
(1) ガラス組成の設定

代表的な汚染水二次廃棄物に対して，廃棄物の組成や特徴に応じて，廃棄物とともに添加する添加材の組成を検討することで，最終的に作製するガラス固化体の組成（以下，ガラス組成）を設定した。ガラス組成を設定する際には，ガラスデータベースなどを活用し，試験点数を抑え，効率的に組成を検討した。さらに，熔融炉の運転に必要な高温物性（高温粘度，電気伝導度）が目標値を満たすことを考慮して，ガラス組成を設定した。

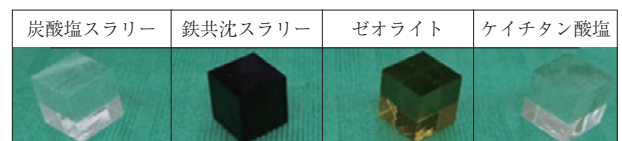
(2) ガラス化状態の評価（ラボスケール試験）

- ・ゼオライト + 焼却灰に対して，ゼオライト 75 wt%，焼却灰 25 wt%の割合で混合することによりガラス化状態，高温物性ともに良好であることを確認した。
- ・多核種除去装置（ALPS）から発生する炭酸塩スラリー，鉄共沈スラリー，ゼオライト，ケイチタン酸塩およびフェロシアン化物スラッジの5種類の汚染水二次廃棄物などの廃棄物組成に応じたガラス組成を設定した。熔融温度は1200℃以下として組成を検討したところ，各廃棄物に対して，ガラス固化体中の廃棄物充填率20～65 wt%で良好にガラス化できることを確認した。第3図にガラス組成の検討結果例を示す。このなかでゼオライトに関しては，揮発性の模擬核種（Cs）を高濃度含有するため，熔融温度を1050℃程度まで低下した条件で検討した。その場合においても，ガラス形成成分であ

(a) るつぼ規模のガラス化試験の様子（鉄共沈スラリー）



(b) ガラス化状態



第3図 ガラス組成の検討結果例
Fig. 3 Result example of glass formulation study

る SiO₂ が主成分であるため，62 wt%と高い廃棄物充填率を達成した。第3表にガラス組成の検討結果例を示す。

- ・各廃棄物をガラス化した場合の減容効果を確認するため，減容率を概算したところ，ゼオライトで0.4（廃棄物に対して，10分の4に減容）となるなど，高い減容率を得ることができ，熔融ガラス化により，減容効果が期待できた（第3表参照）。

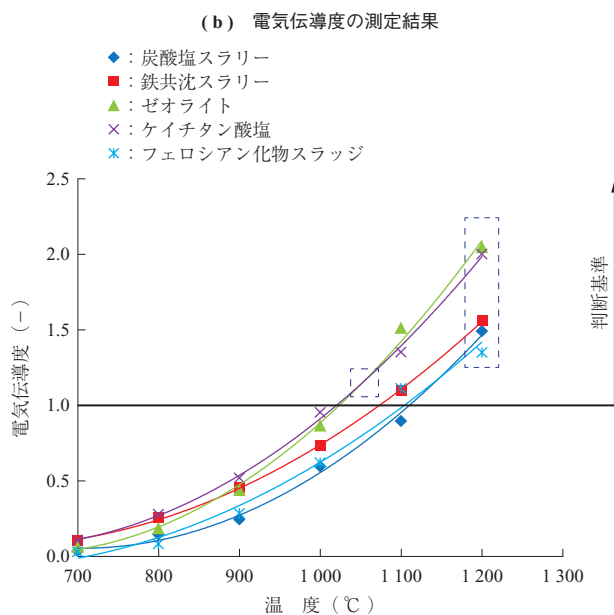
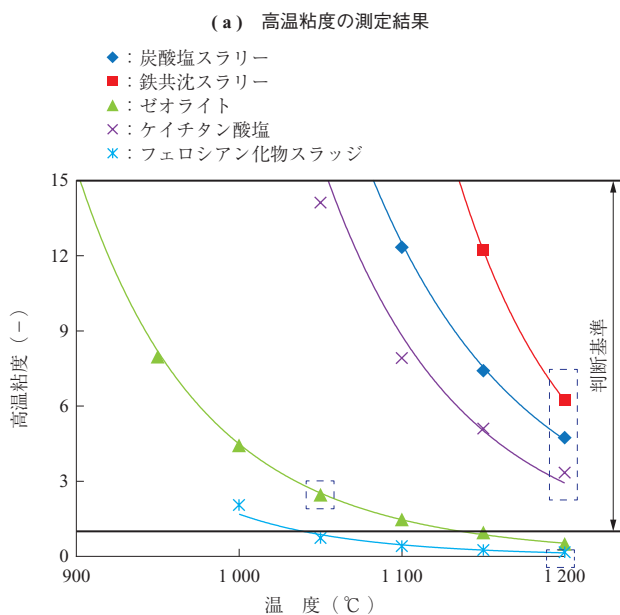
(3) ガラス特性評価

(2)の5種類の汚染水二次廃棄物に対してガラス特性を評価した。第4図に高温物性測定結果例を示す。フェロシアン化物スラッジを除く4種類の廃棄物に関しては，CCIMの運転に必要な高温物性の基

第3表 ガラス組成の検討結果例
Table 3 Result example of glass formulation study

対象廃棄物 ^{*1}	廃棄物含有率 ^{*2} (wt%)	減重率 ^{*3}	減容率 ^{*4}	ガラス化状態	高温粘度	電気伝導度
炭酸塩スラリー	20	1.6	0.8	○	○	○
鉄共沈スラリー	35	1.1	0.7	○	○	○
ゼオライト	62	0.7	0.4	○	○	○
ケイチタン酸塩	25	1.7	1.0	○	○	○
フェロシアン化物スラッジ	35	1.0	0.5	○	×	○

(注) *1: 含水率 50 wt%の場合。
*2: 廃棄物含有率は，本開発で入手した値を用いた。
*3: 減重率 = 熔融ガラス固化体重量 / 廃棄物の重量。算出において，ガラス固化体密度は本開発で入手した値，かさ密度は仮定値を用いた。
*4: 減容率 = 熔融ガラス固化体容積 / 廃棄物の容積。算出において，ガラス固化体密度は本開発で入手した値，かさ密度は仮定値を用いた。



(注) 図中の青色点線部は、高温物性を評価した温度(熔融温度)を示す。

第4図 高温物性測定結果例
Fig. 4 Result of evaluation of glass properties

準値(第4図参照)を満足するガラス特性を選定することができた。フェロシアン化物スラッジに関しては、物性調整などが必要と考えられた。

上記ガラス組成をより効率よく選定するために、ガラス特性の推定モデルの開発についても取り組んでいる。

4.2 実用規模試験

ラボスケール試験で得られたガラス組成に対して、実用規模試験を行い、スケールアップ効果、CCIMでの運転性、実用規模運転におけるデータ収集、ガラス固化体の性能を確認した。以下にこれまでの実施内容を記す。

(1) 2013～2017年度

ゼオライトと焼却灰の混合物、フェロシアン化物スラッジ、炭酸塩スラリー、Na含有量が高い液体廃棄物の模擬物に対して実施した。

(2) 2018年度

炭酸塩スラリー(最新の分析結果を踏まえ、より実廃棄物組成に近い模擬廃棄物を使用)の模擬物に対して実施した。

上記試験により得られた主な結果を、以下に示す。

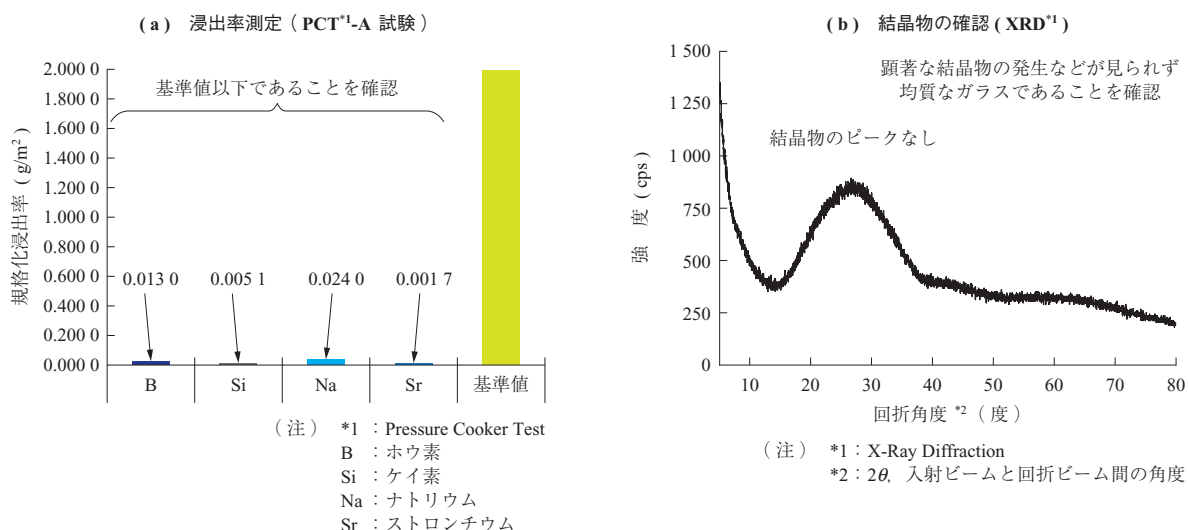
- ・検討したすべての汚染水二次廃棄物の模擬廃棄物に対して、短時間での起動/停止、バブリングによる高い処理能力を達成、ガラス組成の調整による安定的な流下・ガラスの拔出しが可能であった。
- ・炭酸塩スラリーの模擬物に関しては、数パターン(40 l/h以上)の供給速度で供給し、CCIMの安定

運転の指標としている仮焼層(熔融炉上面に形成する低温の層)、およびバブリングホール(ガラス表面におけるバブリング空気出口)を維持し、実用規模のCCIMにおいて、安定的な運転状態が継続できた。また、作製したガラス固化体は浸出率を低く抑えられており、高い化学的安定性(耐水性)を有するとともに、ガラス中に顕著な結晶物の発生なども見られず均質なガラスを作製できることを確認した。第5図に実用規模試験の結果例を示す。

- ・ゼオライトと焼却灰の混合物の模擬物に関しても、安定的な運転状態が継続できた。また、Csの移行率を取得し、バブリングを行ったにもかかわらず、酸化セシウム(Cs_2O)の揮発率が8%程度に抑えられることを確認した。 Cs_2O は廃ガス処理設備で回収するとともに、今後運転最適化により、さらなる低減を検討する予定である。
- ・フェロシアン化物スラッジの模擬物においても、安定的な運転状態を継続することができるとともに、腐食性の高い鉄リン酸ガラスを固化した際にも、炉壁の腐食がないことを確認できており、耐腐食性が高いことを確認できた。

4.3 設備概念の検討

汚染水二次廃棄物に対するCCIMを用いた処理システムの設備概念は以下のとおりである。



第 5 図 実用規模試験の結果例
 Fig. 5 Result example of demonstration test

(1) プロセス

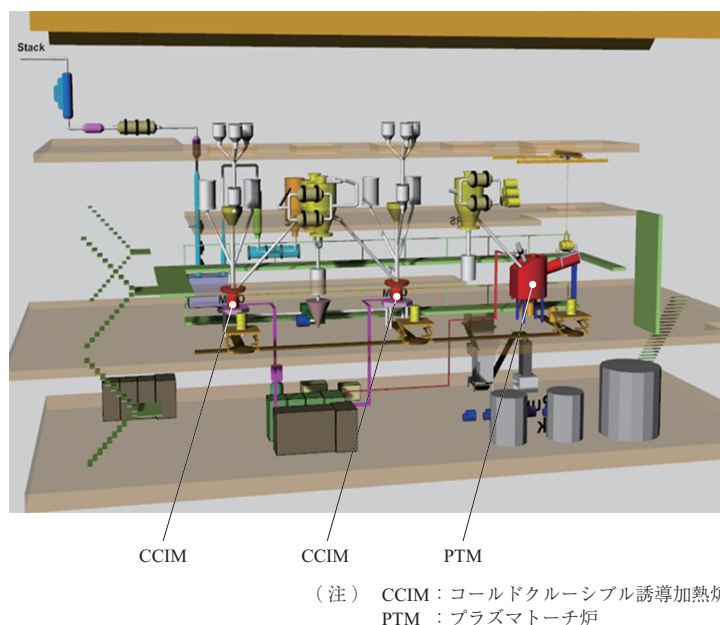
汚染水二次廃棄物に適した供給系、廃ガス処理系の基本プロセス、主要機器構成を設定した。検討した廃ガス処理系は、溶融炉から廃ガス処理系へ移行した核種を回収した廃液を循環させることにより、移行した核種の 99.97%を系統内に閉じ込めるとともに、0.03%は HEPA (High Efficiency Particulate Air) フィルタで捕集することができる。

また、過去の研究のなかで、廃棄物の処理速度、廃棄物の物量などは想定値を用いて、主要機器の配置構成案を検討しており、設備イメージについても明確化することができた。配置案を第 6 図に示す。

(2) 日本の規制への適合性

韓国で実用化されている CCIM システムを、今後、日本に導入するにあたって、関連する国内法令や、技術規定類について整理するとともに、日本の安全評価、許認可対応などの観点で、法規制や技術規定に合わせた設計検討の流れを検討した。

今後、汚染水二次廃棄物の分析結果などに基づく最新の組成、発生量などのデータを踏まえ、実際の廃棄物に対する模擬度を高めた条件において、CCIM の運転条件などの検討を実施していく計画である。また、高レベル廃液処理で培ったガラス溶融炉技術、廃ガス処理 (閉込め) 設計や遠隔技術などを活用し、CCIM を含む設備を安定的



第 6 図 ガラス固化設備の配置案 (自社研究成果)
 Fig. 6 Layout sketch of vitrification facility

に運転でき、放射性核種の閉込め、取扱いなどの観点で信頼性の高い設備を実現する。

5. 結 言

代表的な汚染水二次廃棄物などに対して、CCIMを用いた溶融ガラス化は、以下の観点から高い適用性を有するものと評価することができた。

- ・ガラス組成の検討を行い、ガラスの物性、浸出率の要求を満足しつつ、良好な状態のガラスを作製することができた。
- ・実用規模試験を実施し、実用規模のCCIMにおいてもラボスケール試験で選定したガラス組成で連続して、安定的にガラス化ができるとともに、均質で高い化学的安定性を有するガラスを得ることができた。

今後は、廃棄物の物量や保管状態などのより詳細な廃棄物の情報、今後設定される要件（中間貯蔵、処分に必要なガラス固化体の要件、廃棄物の処理期間や運用方法、処理施設の制約要件など）やさらなる運転検討などを行い、溶融ガラス化の適用性検討、CCIMの処理条件の最適化、設備の概念の詳細化を進めていく計画である。

IHIでは、今後も高レベル放射性廃液の処理で培った技術を活用し、汚染水二次廃棄物などに対して、CCIMを

用いた溶融ガラス化プロセスを含む処理設備の導入に向けて取り組んでいく。

— 謝 辞 —

本稿には、経済産業省資源エネルギー庁「廃炉・汚染水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分にに関する研究開発（先行的処理手法及び分析手法に関する研究開発）」の成果を含んでいる。実施に当たっては、多大なるご支援をいただいた関係各位のご厚誼^{こうぎ}に対し、ここに記し、深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- (1) 株式会社 IHI：放射線廃棄物のガラス固化で韓国水力原子力発電と技術協力～福島第一原子力発電所等から発生する放射線廃棄物への適用を目指す～、https://www.ihj.co.jp/ihj/all_news/2018/resources_energy_environment/2018-9-26/index.html, (参照 2019.09.11)
- (2) 株式会社 IHI：廃炉・汚染水対策事業費補助金（固体廃棄物の処理・処分にに関する研究開発（先行的処理手法及び分析手法に関する研究開発））平成30年度成果, 2019年7月