

## 次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業の全体概要について

三浦吉幸<sup>\*1</sup> 牧隆<sup>\*1</sup> 福井寿樹<sup>\*2</sup> 三浦信之<sup>\*3</sup> 塚田毅志<sup>\*4</sup>

次世代再処理ガラス固化技術基盤研究は、低レベル廃棄物を減容しつつより安定した廃棄体とするためのガラス固化技術の基盤整備およびその知見を反映した高レベル廃液成分をより多くガラスに取り込む技術の開発を目的として、平成26年度から平成30年度までの5年間実施する計画である。

**Keywords:** 低レベル廃棄物, 高レベル廃液, ガラス固化, ガラスマトリックス, モリブデン

The basic research programs for the next generation vitrification technology, which are commissioned project from Ministry of Economy, Trade and Industry of Japan, have been implemented from 2014 until 2018 for developing the advanced vitrification technology of low level wastes and high level liquid waste.

**Keywords:** low level wastes, high level liquid waste, vitrification, glass matrix, molybdenum

### 1 緒言

#### 1.1 目的

原子力発電所、再処理施設等で発生する放射性廃棄物は、中間貯蔵もしくは最終処分に適した形態にそれぞれ処理される。我が国において、高レベル廃液については既にガラス固化技術が実用化されているが、低レベル廃棄物については焼却、圧縮、セメント固化が一般的であり、ガラス固化の開発・導入はされていない。しかし、今後、原子力発電所や再処理施設等の廃止措置に伴い発生する比較的放射能が高い低レベル廃棄物は、セメント固化が困難であるため、当該廃棄物を減容しつつより安定した廃棄体に処理する技術が必要とされており、低レベル廃棄物に対するガラス固化技術の基盤を確立することは重要である。また、低レベル廃棄物ガラス固化技術の基盤が整備されれば、高レベル廃液のガラス固化技術の高度化にも反映可能であり、高レベル廃液中の核分裂生成物をより多く、安定的に取り込む技術やガラス溶融炉の運転制御技術などの向上が期待できる。

以上から、経済産業省資源エネルギー庁では平成26年度より委託事業として「次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業」を実施している。本事業では、ガラス固化技術の基盤整備として、①原子力発電所および再処理施設等で発生する低レベル廃棄物を対象として、減容性が高くより安定な廃棄体とするためのガラス固化技術の基盤整備を行うとともに、②国内で実用化されている高レベル廃液のガラス固化の高度化（廃棄物の高充填化および運転制御技術の向上）についても検討している。本稿では、これら基盤研究の全体概要について述べる。

Outline of basic research programs for the next generation vitrification technology by Yoshiyuki MIURA (yoshiyuki.miura@jnl.co.jp), Takashi MAKI, Toshiaki FUKUI, Nobuyuki MIURA, Takeshi TSUKADA

\*1 日本原燃株式会社

Japan Nuclear Fuel Limited  
〒309-3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駒字沖付4-104

\*2 株式会社IHI

IHI Corporation  
〒235-8501 神奈川県横浜市磯子区新中原町1 横浜エンジニアリングセンター

\*3 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency  
〒319-1194 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地33

\*4 一般財団法人電力中央研究所

Central Research Institute of Electric Power Industry  
〒201-8511 東京都狛江市岩戸北2-11-1

#### 1.2 開発目標

##### 1.2.1 低レベル廃棄物ガラス固化技術の開発

原子力発電所、再処理施設等で発生する低レベル廃棄物を対象に以下の開発を実施する。

- ◇マトリックス開発：現在検討されている処理技術で処理が困難な廃棄物や、現在検討されている処理技術よりも廃棄体発生量の低減が図れる廃棄物を対象に、これらに対するガラス組成の設定技術の確立を行う。
- ◇運転制御技術開発：さまざまな廃棄物に対して選定した各種ガラス組成に適した溶融方式の整理・検討を行う。

##### 1.2.2 高レベル廃液ガラス固化技術の高度化

再処理施設で発生する高レベル廃液を対象に以下の開発を実施する。

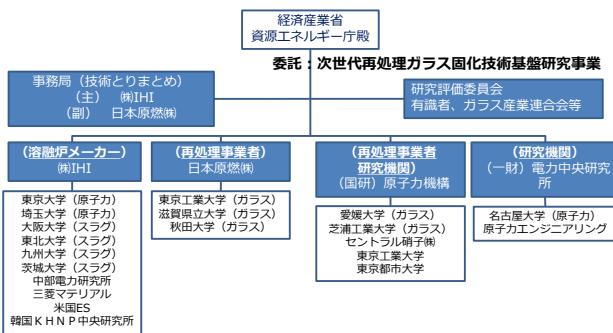
- ◇マトリックス開発：現行マトリックスに比べ、安定性を確保しつつ、廃棄物充填率が2～3割程度高い高充填マトリックスの開発を行うとともに、現在のホウケイ酸ガラスに代わる代替マトリックスの調査を行う。
- ◇運転制御技術開発：高充填化に伴い発生するガラス溶融炉の運転上の課題を抽出し、その対策を検討する。また、上記で開発した高充填マトリックスの溶融炉運転への適用性を評価する。

##### 1.2.3 マトリックスデータベースの開発

ガラスマトリックスの開発を支援することを目的として、ガラス組成・特性データおよびこれらから推定できる情報を格納したマトリックスデータベースを構築する。

#### 1.3 実施体制

平成27年度における本研究の実施体制をFig. 1に示す。本研究は、経済産業省資源エネルギー庁より、放射性廃棄物のガラス固化の研究・開発・試験に実績のある株式会社IHI、日本原燃株式会社、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構および一般財団法人電力中央研究所の4社が共同で受託しており、再委託先として国内のガラス産業・鉄鋼・原子力等を専門とする研究機関および企業、ガラス固化を専門とする国内外の研究機関が参画し、国内外の英知を取り入れた体制としている。また、有識者から構成される研究評価委員会を設置し、研究の計画、進捗状況および成果について適宜報告し、頂いた意見等を試験計画に反映している。



## 1.4 開発スケジュール

開発スケジュールを Fig. 2 に示す。開発スケジュールは、低レベル廃棄物ガラス固化技術の開発、高レベル廃液ガラス固化技術の高度化で共通である。

ガラスマトリックス開発においては、国内外の廃棄物、ガラス組成等についての事例調査結果を踏まえ、ガラス固化試験を行っている。平成 26 年度から平成 28 年度にかけて基本特性を評価することにより候補マトリックス組成を絞り込み、平成 29 年度から平成 30 年度にかけて製造、貯蔵・輸送、処分の観点からさらに絞込み、マトリックス組成を選定する。

一方、運転制御技術開発においては、溶融炉や運転制御技術についての事例調査で抽出した技術について、平成 26 年度から平成 28 年度にかけて、るつぼ試験等の基礎試験で検証、小型炉試験でスケールアップ効果を確認する。また、平成 29 年度から平成 30 年度にかけて、ガラスマトリックス開発で選定したマトリックス組成に対して、小型炉試験を実施し、運転への適用性を評価する。



## 2 低レベル廃棄物ガラス固化技術の開発

### 2.1 ガラス固化適用の考え方

本研究では、廃棄物自体に含まれる成分 ( $SiO_2$  等) をガラス形成成分として、添加剤の添加量を最小限に抑えてガラス固化する「溶融ガラス化技術」を開発している。

溶融ガラス化技術は、事業者ニーズや処分要求に対して、減容性、操業性、廃棄体安定性を調整可能であり、廃棄物

同士を組み合わせることで、安定な廃棄体とすることも可能である。(Fig. 3 参照)

例えば、焼却灰 0.3 トンを処理したときの試算では、溶融ガラス化により発生する廃棄体の容量は、セメント固化と比較して約 1/4 程度に減容できるとの結果が得られている。



### 2.2 事例調査

低レベル廃棄物ガラス固化技術の開発においては、はじめに原子力発電所、再処理施設から発生する低レベル廃棄物の組成、性状等に係る情報について事業者に対してヒアリングを行い、「溶融ガラス化技術」の適用性を調査・検討し、本研究における対象廃棄物を選定した (Table 1 参照)。また、評価項目に反映するため、処分で求められる要件等を調査した。

Table 1 Results of surveys of low level wastes

対象廃棄物 【目的】	特徴	発生先 発電所 再処理	溶融ガラス化の有用性	溶融ガラス化検討
イオン交換樹脂 ①	高線量でセメント固化困難 水分、有機物を含む	○	・高線量でセメント固化が不可能な場合でも固化可能	○
低レベル濃縮廃液除染液等 (高硝酸Na溶液) ①/②	硝酸Na濃度が高い	○	・硝酸分が含まれており、高温での脱硝反応を伴う処理が必要 ・セメントへの充填率は3割程度であり、ガラス固化による減容化が期待できる	○
低レベル濃縮廃液(ソーラン液) ②	リン酸イオンと少量の硝酸を含有	○	・セメント固化するためには中和が必要 ・セメントへの充填率は12wt%程度であり、ガラス固化による減容化が期待できる	○
水ウラン液	B, Naを含有 水分を含有	○	・ガラス形成成分の一部として、固化可能 ・高温処理で減容可能	
イオン交換樹脂の溶濁液 ②	硫酸濃度が高い 高線量	○	・鉄リノ酸ガラス等の採用により、含有率の向上が期待できる	○
焼却灰(飛灰含む) ②	組成変動が大きい 高線量	○ ○	・高線量・高塩濃度でセメント固化が不可能な場合でも処理可能	○
HEPAフィルタ ①	金属Alを含む	○ ○		○
金属Al板等 ①	金属Alを含む	○		○
スラッジ等 ②	Fe濃度が高い	○	・リン酸廃液と処理することで、鉄リノ酸ガラスのマトリックスとして利用可能	○
アスペスト ①	化学的には問題ないが、 形状的に有害	○	・溶融ガラス化によって、減容・安定化が可能	
有害金属廃棄物 ①	鉛、水銀等の有害金属含有	○	・低融点金属の揮発抑制が課題となるが、有害金属をガラスに閉じ込め安定化可能。	
サンドベーパ ②	ポリプロピレン製	○	・高温処理で減容可能	
液体フィルタ ①/②	有機物を含む	○	・高温処理で減容可能	
プラスチック ②	化成AI(主成分)、Si, Fe等	○	・ガラス形成成分の一部として、固化可能	
活性炭 ②	○を主成分とする	○	・高温処理で減容可能	

目的①: 現在検討されている処理技術で処理が困難な廃棄物を安定化する  
目的②: 現在検討されている処理技術より廃棄物発生量の低減化を図る

### 2.3 ガラスマトリックス開発

Table 1 に示した廃棄物は、それぞれ組成、性状が異なっており、廃棄物に応じたガラス組成を設定する必要があることから、既存の国際ガラスデータベース (INTERGLAD) を活用して、廃棄物組成に応じたガラス組成を事前に予測し、ガラス固化試験を実施した。結果の一例を Table 2 に示す。イオン交換樹脂、焼却灰、高硝酸 Na 廃液の模擬廃液物に対して溶融ガラス化した結果、溶融温度 1100°C で高充填可能なことを確認した[1]。また、検討したガラス組成に対して、粘度および耐水性を評価しており、米国および韓国の中準を基に設定した参考値を満足できる溶融ガラス化条件についても確認した。

Table 2 Summary of vitrification test results

	添加試薬	ガラス化		高 温 粘度	浸出率 (PCT)
		廃棄物充填率	溶融温度		
イオン交換樹脂 (主成分:Fe)	SiO <sub>2</sub> -Na <sub>2</sub> O	35wt%	1100°C	○	△
	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	40wt%	1100°C	—	○
焼却灰(主灰) (主成分:Si/Ca/Al)	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Li <sub>2</sub> O	75wt%以上	1100°C	○	○
低レベル濃縮廃液 (高硝酸Na廃液) (主成分:Na)	SiO <sub>2</sub>	40wt%	1100°C	—	×
	SiO <sub>2</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	40wt%	1000°C	△	×
	SiO <sub>2</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> - Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -CaO	45wt%	1100°C	—	△

凡例 ○:問題なし △:基準等を若干上回る ×:基準等を大きく上回る —:未実施・データなし

### 2.4 運転制御技術開発

Table 1 に示した廃棄物の溶融ガラス化において、溶融ガラス特性を踏まえて溶融方式を検討する必要がある。海外事例調査結果等も考慮して溶融方式を検討した結果、プラズマ溶融炉 (Fig. 4 参照) の適用性が高いことが示唆されたことから、模擬イオン交換樹脂を用いた小型プラズマ溶融炉試験を実施した。その結果、連続処理においてガラス化可能なことを確認するとともに、プラズマ溶融方式における課題を抽出した。

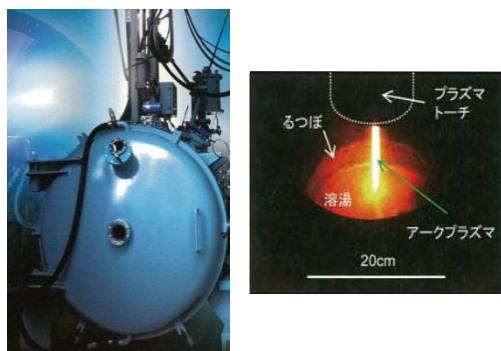


Fig. 4 Small-scale plasma melter

## 3 高レベル廃液ガラス固化の高度化

### 3.1 事例調査

高レベル廃液ガラス固化の高度化においては、低レベルと同様に、ガラスマトリックスおよび運転制御技術の開発に資するための事例調査を行った。ガラスマトリックスに関する事例調査では、過去国内で実施してきたガラスマトリックスの開発経緯を調査し、マトリックス設計に反映

した (Fig. 5 参照)。運転制御技術に関する事例調査では、廃棄物高充填時に有効と考えられる運転制御技術について調査した (Table 3 参照)。

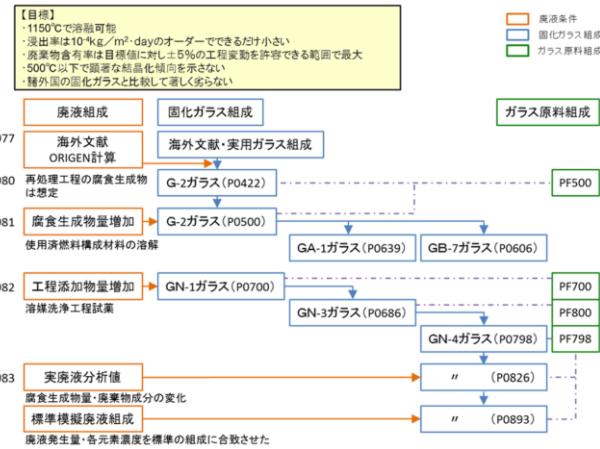


Fig. 5 Development chronology of glass matrixes for vitrification of high level liquid waste in Japan

Table 3 Results of case study of operation controlling techniques for high waste loading operation

技術	廃棄物、ガラス原料	実績
ガスバーリング	・高濃度Al, Fe, Zrを含む高レベル廃棄物(HLW) ・高濃度Al, Fe, Mn, Zrを含むHLW	米国ジュール加熱式セラミックメルタ(JHCM)
添加剤の添加	・Na, Sを含む廃棄物 ・Sを含む廃棄物 ・高濃度Al, Fe, Mnを含むHLW	米国JHCM
ガスバーリング 添加物の添加	・高濃度のSを含むHLW ・原料ガラスにSb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , 廃液にV <sub>2</sub> O <sub>5</sub> を添加	独国JHCM
機械式スターら およびガスバーリ ング	・低レベル廃棄物(LLW) ・中レベル廃棄物(MLW) ・HLW	仏国コールドク ルーシブルメルタ(CCIM)

### 3.2 ガラスマトリックス開発

現行組成に対して廃棄物充填率を 2~3 割向上させると、モリブデン酸塩を中心としたイエローフェーズと呼ばれる低粘性流体の発生、また、白金族元素の炉内保有量の上昇による白金族元素の沈降・堆積が課題となる。

ガラスマトリックス開発では、イエローフェーズの発生抑制と廃棄物充填率の向上を目的として、ホウケイ酸ガラスのほか、鉄リン酸ガラス等の代替マトリックスについても調査・開発を実施している。このうち、ホウケイ酸ガラスについては現行組成を改良した改良ホウケイ酸ガラス、V や P を添加したホウケイ酸ガラスについて検討している。一例として、改良ホウケイ酸ガラスの検討結果を Fig. 6 に示す。ガラス中の SiO<sub>2</sub>/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 比、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 濃度をパラメータとして調査した結果、耐水性を維持しつつ Mo 溶解度を向上可能なガラス組成範囲の見通しを得ることができた[2]。

### 3.3 運転制御技術開発

Table 3 に示された廃棄物高充填時に有効と考えられる運転制御技術について、その効果を確認するためにるっぽ規模の基礎試験、解析を行った。効果が確認された技術に

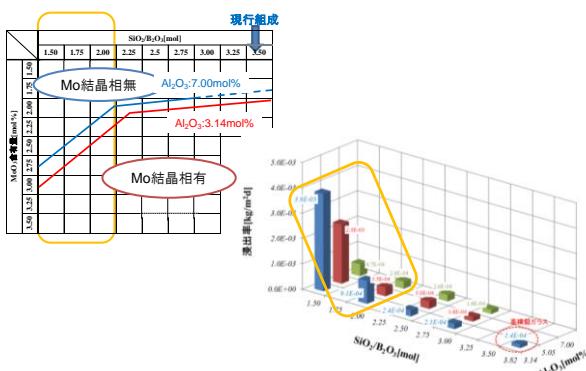


Fig. 6 MoO<sub>3</sub> solubility as a function of SiO<sub>2</sub>/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> molar ratio and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content (upper left) and chemical durability as a function of SiO<sub>2</sub>/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> molar ratio and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> content (lower right)

については、Fig. 7 に示す小型溶融炉を用いてスケールアップの影響を確認した。一例として、バブリング流量とガラス処理速度の関係を Fig. 8 に示す。この図より、バブリング流量の増加に伴い、ガラスの処理速度が上昇することが明らかとなった。また、バブリング時の揮発性成分のオフガス移行率データについても取得した。



Fig. 7 Small-scale joule heated ceramic melter

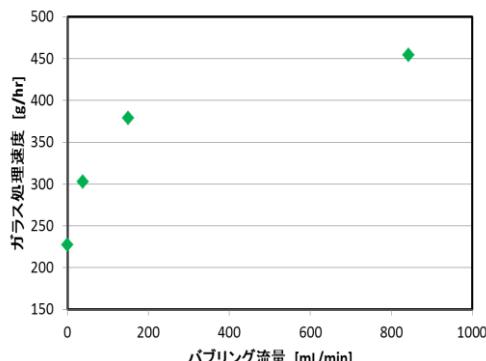


Fig. 8 Glass production rate as a function of bubbling flow rate

#### 4 マトリックスデータベースの開発

これまでに蓄積された廃棄物ガラスの組成・特性データおよび本研究において取得するガラス組成・物性データ、さらに国際ガラスデータベース INTERGLAD や熱力学解析ソフト FactSage 等の有用な既存のソフトウェア等の活用を

図り、ガラスマトリックスの開発を支援することを目的として、マトリックスデータベースを開発している。Fig. 9 にマトリックスデータベース開発のイメージ図を示す。これまでに、INTERGLAD 上で廃棄物ガラスのデータを取扱えるようにし、データベースの出力方法、データ構造等のデータベース本体の基本設計を行った。

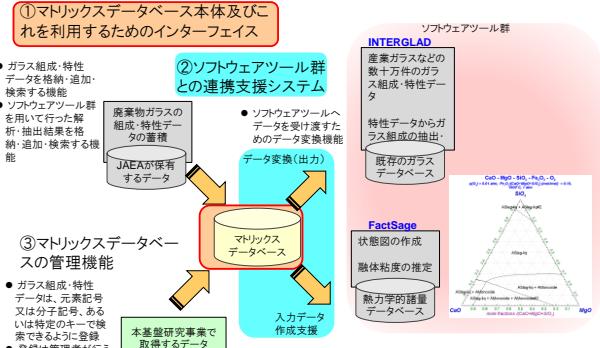


Fig. 9 Schematic image of matrix database

#### 5 まとめ

次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業では、ガラス固化技術の基盤整備として、放射能レベルの比較的高い低レベル廃棄物を減容しつつより安定した廃棄体とするために、低レベル廃棄物のガラス固化技術を開発している。これにより得られた知見は、高レベル廃液のガラス固化技術の向上にも活用できると期待される。

低レベル廃棄物の溶融ガラス化技術の開発では、対象廃棄物の選定、廃棄物に応じたガラス組成を検討しており、基礎試験で溶融ガラス化が見込めた廃棄物については、今後、ガラス組成および運転制御方法を最適化する。

高レベル廃液ガラス化の高度化では、廃棄物充填率を2~3割高めるために、モリブデン等の溶解度を向上させたマトリックスを開発している。今後、更なるガラス組成の最適化、物性・浸出率等の評価とともに運転制御方法を向上する計画である。

#### 謝辞

本報告は、経済産業省資源エネルギー庁委託事業「平成26年度および平成27年度次世代再処理ガラス固化技術基盤研究事業」の成果の一部である。

#### 参考文献

- [1] 鬼木俊郎 他: 次世代再処理ガラス固化技術基盤研究(24)低レベル廃棄物に対する溶融ガラス化の検討(その2). 日本国原子力学会 2016年春の年会, 仙台, 3月26~28日, 1G09 (2016).
- [2] 小松克茂 他: 高充填減容固化用ガラスマトリックスの検討-ガラスの B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 及び Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含有量が MoO<sub>3</sub> 溶解度と耐水性に与える影響-. 日本国原子力学会 2016年春の年会, 仙台, 3月 26~28 日, 1G16 (2016).