

プラズマ加熱による雑固体廃棄物溶融処理時のセシウム蒸発挙動[†]安井晋示^{††} 天川正士^{††}

低レベル放射性雑固体廃棄物の処理にプラズマ溶融法を適用するためには、廃棄体の放射能測定において重要な核種であるCsの溶融固化体中の残存率に与える溶融処理条件の影響を解明する必要がある。これまで、Cs残存率に与える廃棄物組成の影響については、加熱条件が一定の場合は塩基度を用いて評価できることを明らかにした。廃棄物の重量や加熱出力などの溶融処理条件がCs残存率に与える影響を評価するために、加熱時間に対する溶湯形状の変化と溶融スラグ中のCs濃度を調べ、溶融時のCs蒸発挙動を検討した。試料が全量溶融した後の溶融スラグからのCs蒸発挙動は1次の反応速度式で表すことができた。この時のCsの蒸発速度定数と溶湯形状の経時変化の結果を用いて、試料が全量溶融するまでの過渡的な状態における溶融スラグ中のCs濃度を溶湯形状の経時変化を考慮した式から推定した結果、実測値と一致した。この結果から、溶融処理後のCs残存率は、スラグ形成成分である無機物の溶融速度と蒸発速度定数に大きく依存することを明らかにし、廃棄物の重量や加熱出力などの溶融処理条件がCs残存率に与える影響を無機物の溶融速度から評価できる見通しを得た。

Keywords: 低レベル放射性廃棄物, プラズマ加熱, セシウム, 蒸発挙動, スラグ

In order to apply thermal plasma melting method to treatment of low level miscellaneous solid wastes, it is essential to understand effects of treatment conditions on the migration rate of Cs to the molten slag because Cs is an important nuclide for evaluating radioactivity in the waste before disposal. It was found in our previous studies that the effect of the waste composition on the migration rate of Cs could be evaluated by using basicity under the same heating condition. To establish a method for evaluating the effect of the melting conditions such as waste mass and heating power on the migration rate of Cs, the vaporization behavior of Cs is discussed by measuring the temporal change of molten bath form and concentration of Cs in the molten slag. The temporal change of concentration of Cs in the molten slag was expressed by a first-order type reaction rate formula when the samples were melted completely. The concentration of Cs in the molten slag were calculated from the rate constant and the result of temporal change of the molten slag form using the rate formula established from the molten bath formation model in a batch melting process. The calculated values were in good agreement with the experimental results. We found that the migration rate of Cs to the slag layers depends on the vaporization rate constant of Cs and the melting rate of the waste components forming slag. This result suggests that the effect of the melting conditions such as amount of inorganic waste materials and heating power on the migration rate of Cs to the slag layer can be evaluated by using the melting rate of the waste components forming slag.

Keywords: low-level radioactive waste, plasma heating, cesium, vaporization behavior, slag

1 緒言

原子力発電所から発生する低レベル放射性雑固体廃棄物は、低レベル放射性廃棄物埋設センターにおいて、浅地中処分される計画である。このため、現在、埋設処分するための「廃棄体」に係わる技術基準の整備と廃棄体の作製技術の開発研究が進められている。「廃棄体」は埋設処分の前に固形化することが義務づけられており[1]、このための処理技術として、圧縮・切断等の処理の後にモルタル等で充填固化する方法と溶融処理した後に固形化する方法の検討が進められている[2]。この内、溶融処理方法は、減容比が大きく、核種の閉じ込め性に優れた廃棄体が作製しやすい利点がある。

溶融処理方法の一つであるプラズマ溶融法は、廃棄物の物理的・化学的性状によらず高温の熱を定常的に供給できることから、雑多な廃棄物を一括溶融処理でき、分別等の前処理を簡略化できる利点がある。このプラズマ溶融法を雑固体廃棄物処理へ適用するためには、溶融処理後の溶融固化体が埋設処分に適する物性を有することを確認するとともに、埋設処分の廃棄体の放射能量を

評価するために溶融固化体中への放射性核種の残存率を把握すること等が重要である。

筆者らは、これまでに、雑固体廃棄物処理へのプラズマ溶融法の適用性評価をコールド基礎試験により実施し、溶融処理して得た溶融固化体は埋設処分に適する物性を有することなどを明らかにした[3,4]。しかし、溶融時の核種挙動については、揮発性元素であるCsが溶融時に一部排ガス中にダストとして移行した[3,4]。放射性のCsは、第一次埋設処分において廃棄体の放射能評価手法であるスケーリングファクタ法(SF法)のキー核種の一つとして用いられている[5]。雑固体廃棄物を溶融処理して作製した廃棄体の放射能評価手法としてこのSF法を採用する場合には、Csを溶融固化体中に安定して捕捉することが必要である。

プラズマ溶融処理時のCs移行挙動については、Csのスラグ層への移行率と加熱時間、塩化物含有量、スラグの粘性などとの関係について一部報告されている[6-10]が、Cs残存率に与える溶融処理条件の影響は十分解明されていない。筆者らは、これまでに、Cs残存率に与える廃棄物の組成の影響を調べ、加熱出力などの溶融条件が一定であれば塩基度の値から定量的に評価でき、Cs残存率も50%以上確保できることなどを明らかにした[11-14]。しかし、金属と無機物の重量比や加熱出力などの処理条件がCs残存率に与える影響を評価するためには、溶融時

[†] Vaporization behavior of Cs in plasma melting of low level radioactive solid wastes, by Shinji Yasui (shinji@criepi.denken.or.jp) and Tadashi Amakawa

^{††} 電力中央研究所 横須賀研究所電力部 Electrical Engineering Department, Yokosuka Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry 〒240-0196 横須賀市長坂 2-6-1

の溶湯形状の変化を考慮した Cs の蒸発挙動解析を行う必要がある。このため、Cs 残存率に与える溶融処理条件の影響評価手法の基本概念を構築することを目的として、加熱時間に対する溶湯形状の変化と Cs 残存率の関係を調べ[15]、溶融処理時の Cs 蒸発挙動について検討した。ここでは、プラズマ炉に廃棄物を全量セットしてからアークプラズマを着火し、溶融するバッチ処理を検討対象とした。

2 試験方法

2.1 試験装置

試験では、100 kW プラズマ溶融処理試験装置[3,16]を用いた。本装置は、プラズマトーチ、溶融するつぼ、鋳型を水冷チャンバー内部に設置することにより溶融処理時の炉内雰囲気と圧力を制御できる構造を有する。プラズマトーチは、電極に酸化ランタン入りタングステンを用いたロッドタイプであり、プラズマガスとしてアルゴン (10 l/min) を用い、直流移行モードで運転した。溶融するつぼは、水冷のステンレス製コンテナの内側に内径 230 mm、深さ 220 mm のアルミナ製のるつぼを粒状の耐火材で固定する構造になっており、このアルミナ製のるつぼを試験ごとに交換した。

2.2 溶融試料

金属廃棄物の模擬試料として炭素鋼を、無機廃棄物の模擬試料として、これまでに行ってきた Cs 残存率に与える廃棄物組成の影響評価試験[11-14]と同様に、粒状の酸化物 (Fe_2O_3 , Al_2O_3 , SiO_2 , CaO) を混合して用いた。各酸化物は、雑固体廃棄物の塩基度の範囲 ($\text{CaO}/\text{SiO}_2:0.3-1.0$) を参考にして塩基度を ($\text{CaO}/\text{SiO}_2=0.7$, $(\text{CaO}+\text{Fe}_2\text{O}_3)/(\text{SiO}_2+\text{Al}_2\text{O}_3)=1.0$ と設定し、その重量比を $\text{Fe}_2\text{O}_3:\text{Al}_2\text{O}_3:\text{SiO}_2:\text{CaO}=3:2:3:2$ とした。雑固体廃棄物の種類別発生割合[17]を参考にすると金属と無機物の重量比が約 10:3 であるので、溶融試料量は、炭素鋼 (SS400) 10 kg、混合酸化物試料 3kg とした。放射性核種の Cs と Sr を模擬した非放射性的の Cs と Sr は硝酸塩の状態 で用いた。なお、Sr は、溶融時にほぼ全量スラグ層に移行することから[3,4]、試験ごとに異なるスラグの回収率などの誤差を評価するために用いた。Cs および Sr の量はそれぞれ 26 g とした。

2.3 溶融条件

溶融試験は、Cs の蒸発に対して溶湯表面での化学反応が関与しない条件とするために、あらかじめ窒素で置換した雰囲気中で行った。5 cm 角のブロック状の炭素鋼と粒状の酸化物試料さらに粉状の Cs と Sr の硝酸塩とを混合した試料をアルミナ製のるつぼ内に入れ、水冷チャン

バー内を窒素ガスで置換した後、バッチ方式で溶融処理した。溶融時は、チャンバー内圧力を -2 kPa の負圧に維持した。溶融は、プラズマ電流を調整して加熱出力を 20 kW (200 A, 100 V)、36 kW (300 A, 120 V)、53 kW (500 A, 106 V) の 3 段階に増加させて行った。溶融試料は、20 kW (20 分)、36 kW (30 分)、53 kW (23 分) の加熱シーケンスにより全量溶融することを確認した。そこで、溶融固化体とダストの性状分析を行った加熱シーケンスを Fig.1 に示す。それぞれの加熱試験は、Fig.1 に示した 1~6 の加熱停止時間に到達した時にアークプラズマを消弧して終了した。溶融固化体は、試料が全量溶融するまでの間においては溶湯をるつぼ内で固化して作製し、試料が全量溶融した後は、るつぼを傾動することで溶湯を全量鋳型の中に出湯し、鋳型内で自然冷却により作製した。以上の方法により作製した試料を用いて、試料が全量溶融する前後の溶融固化体とダストについて、重量や化学組成などの性状を分析し、加熱時間に対する Cs 残存率を調べた。

2.4 溶融固化体およびダストの分析

溶融固化体は、比重の差から上部にスラグ、下部に金属の 2 層構造となる。各試験で得た溶融固化体の金属層とスラグ層およびダストについて、それぞれ重量計測と化学組成分析を行った。出湯して得た溶融固化体については、はじめに全体の重量を計測し、その後、スラグの分析試料を採取した後、溶融固化体からスラグを除去して金属層の重量を計測した。スラグの重量は、溶融固化体の重量から金属層の重量を差し引いて求めた。また、るつぼ内で固化して得た溶融固化体については、るつぼから溶融固化体を取り出し、スラグと金属を分離した後、それぞれ溶融部と未溶融部の重量を計測した。ここで、スラグについては、溶融部と未溶融部の分離が困難な部分を半溶融部として重量計測した。溶融中に発生したダストは、水冷チャンバーに堆積するものと排ガスとともに吸引されるものがある。水冷チャンバー内に堆

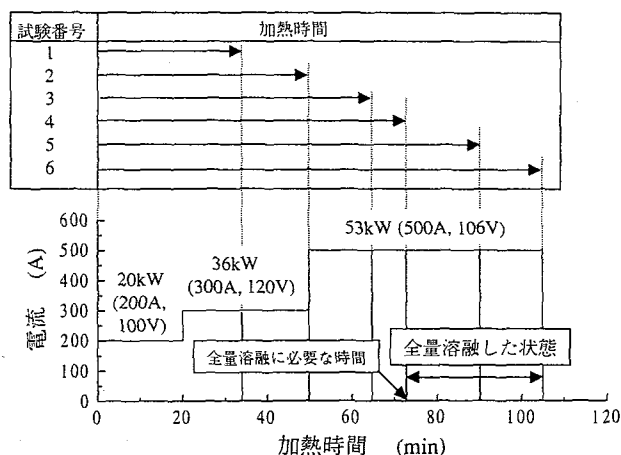


Fig.1 Heating conditions of the respective melting tests.

積したダストの重量は、チャンパー内に設置した円形濾紙で回収したダストの重量、円形濾紙の面積、水冷チャンパーの内面積から推定した。排ガスとともに吸引されたダストは、水冷チャンパーの排ガス出口部に設置した円筒濾紙で全量回収し、重量を求めた。

溶融固化体およびダストの化学組成分析は、Csについては原子吸光分析により、その他の元素についてはICP発光分析により元素濃度を定量した。

3 試験結果と考察

3.1 溶融試験結果

溶融試験の条件をTable 1に、得られた溶融固化体およびダストの分析結果をTable 2に示す。SrとCsは、これまでの試験結果[3,4]と同様に、すべての試験でスラグとダストから検出され、金属層からは検出されなかった。また、Srは、ダスト中濃度が非常に小さく、ダストへの移行率は0.1%未満と評価できることから、99%以上がスラグ層に移行したものと考えられる。一番長く加熱した溶融試験(試験番号6)でのプラズマの電流と電圧、プラズマからの放射光の影響を受けない溶湯周辺部での表面温度を2色式放射温度計を用いて計測した結果をFig.2に示す。溶湯表面温度は、加熱時間によらず約1,650℃の値を示した。溶湯の上部はスラグで覆われていることから、上記の値は溶融スラグ表面温度を示したと考えられる。

Table 1 Experimental conditions

試験番号	溶融試料				加熱時間 (min)	投入 エネルギー (MJ)
	炭素鋼 (kg)	酸化物合計 (kg)	CsNO ₃ (g)	Sr(NO ₃) ₂ (g)		
1	9.81	3.15	38.1	62.7	35	58
2	9.81	3.15	38.1	62.7	50	90
3	9.81	3.15	38.1	62.7	65	135
4	9.81	3.16	38.2	62.6	73	194
5	9.81	3.15	38.1	62.7	90	221
6	9.81	3.15	38.2	62.7	105	276

また、放射温度計を用いた温度計測では計測している溶湯の表面状態に大きく依存すると考えられるが、プラズマ消弧直後の溶融スラグ温度をR型熱電対を直接溶融スラグ層に挿入して計測した結果、約1,600℃であった。

CsとSrはスラグ層内において均一に分布していると仮定して、スラグ層の溶融部、半溶融部、未溶融部のそれぞれの重量とそこに含まれる両元素の濃度から、スラグ層中の両元素の残存率を算出した。ここで、Csの残存率は、試験ごとに異なるスラグの回収率などの誤差を含むと考えられる。そこで、Cs残存率に含まれるこの誤差の影響を軽減するために、Cs残存率を、ほとんどがスラグ層へ移行したSrの残存率で除して補正した。加熱時間に対するスラグ層溶融部のCs濃度とろつば内でのCs残存率の結果をFig.3に示す。ここに、半溶融部のCs濃度は分析試料によりばらついたため、半溶融部のCs濃度を溶融部の濃度および酸化物試料中の濃度(0.83 mass%)とした時のCs残存率の値も求め、エラーバーとして示した。Cs残存率は加熱時間とともにほぼ減少する結果を得たが、スラグ層溶融部のCs濃度は、全量溶融するまでの間に一度減少してから増加する傾向を示した。

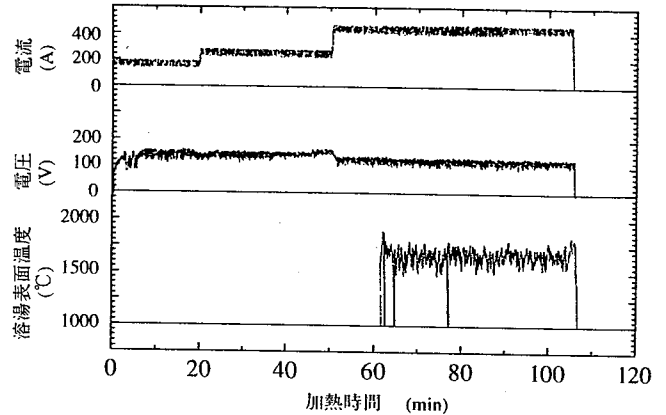


Fig.2 Heating condition and the result of the molten bath temperature in the melting test of No. 6.

Table 2 Analysis results of the treated waste forms and dusts.

試験番号	メタルの分析結果			スラグの分析結果								ダスト		
	溶融重量 (kg)	未溶融重量 (kg)	合計重量 (kg)	溶融重量 (kg)	Cs (mass%)	Sr (mass%)	半溶融重量 (kg)	Cs (mass%)	Sr (mass%)	未溶融重量 (kg)	合計重量 (kg)	重量 (g)	Cs (mass%)	Sr (mass%)
1	2.94	6.87	9.81	0.94	0.36	0.73	0.49	0.46	0.59	1.75	3.18	34	16.7	0.06
2	4.20	5.61	9.81	1.28	0.25	0.69	0.72	0.36	0.52	1.19	3.19	38	23.9	0.05
3	8.07	1.74	9.81	2.68	0.28	0.67	0.29	0.39	0.58	0.28	3.25	47	31.8	0.03
4	10.30	-	10.30	3.27	0.33	0.62	-	-	-	-	3.27	50	34.3	<0.01
5	9.89	-	9.89	3.23	0.25	0.67	-	-	-	-	3.23	44	40.3	<0.01
6	10.29	-	10.29	3.44	0.18	0.61	-	-	-	-	3.44	29	41.9	<0.01

3.2 溶融時のCs蒸発挙動

スラグ層中の Cs 残存率に対する廃棄物組成および Cs 初期濃度の影響を調べたこれまでの研究結果から, Cs 残存率はスラグの物理的性状である粘性よりも化学的性状である塩基度に強く依存するため, プラズマ溶融処理時の Cs は溶融スラグの Cs 捕捉力すなわち溶融スラグ中の Cs 活量にもとづいた速度で蒸発することが分かっている [13-15]. この場合, Cs の蒸発速度は溶融スラグ表面からの蒸発律速となり, 次の 1 次の反応速度式で表すことができる.

$$dN/dt = -k \cdot (A_s/V_s) \cdot N \quad (1)$$

ここに, N : 溶融スラグ中の Cs 濃度 (mass%), t : 加熱時間 (s), k : 蒸発速度定数 (m/s), A_s : 気相と接する溶融スラグ表面積 (m^2), V_s : 溶融スラグの体積 (m^3). 全量溶融した後のスラグ層中の Cs 濃度変化は, Fig.4 に示すように 1 次の反応速度式で表すことができ, これまでの推定を裏付ける結果を得た. 全量溶融した後の状態では, 気相と接する溶融スラグの表面積と溶融スラグの体積は一定であることから, (1)式の A_s をるつぼの断面積 A_0 (m^2) とし, V_s を試験後に得たスラグ層の体積 (スラグ層の重量 W_s と比重 ρ_s から算出した) として, Fig.4 のデータを 1 次回帰した直線の傾き, すなわち, 以下の(2)式から Cs の蒸発速度定数を求め, 7.5×10^{-6} m/s の値を得た.

$$k = -\Delta \ln(N)/[A_0/V_s] \Delta t \quad (2)$$

全量溶融するまでの間では, 気相と接する溶融スラグの表面積と体積は加熱時間とともに変化する. また, 溶融スラグ中の Cs は, 溶融スラグ表面からの蒸発により減少するとともに, 未溶融部からの流入により増加する.

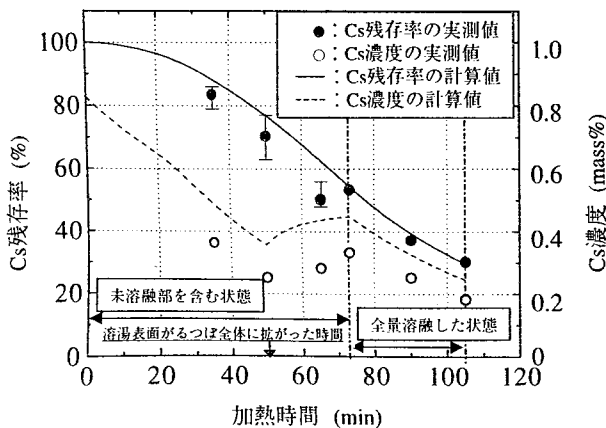


Fig.3 Concentration of Cs in the slag layers and the migration rates of Cs plotted against the melting time.

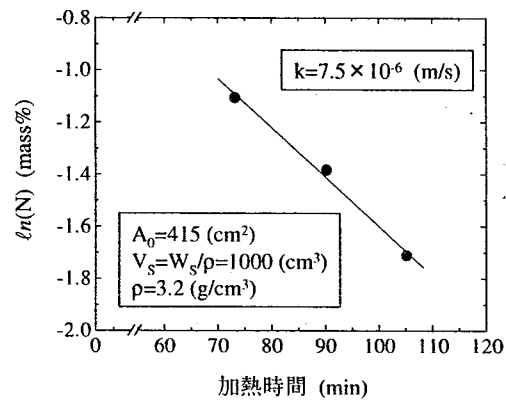


Fig.4 Relationship between $\ln(N)$ values and the melting times when the feeding samples were melted completely.

Fig.5 に全量溶融するまでの溶湯の概念図を示す. ここで, 未溶融部から流入する Cs はプラズマによる攪拌により溶融スラグ内で速やかに均一に分布するとして, 全量溶融するまでの溶融スラグ中の Cs 濃度の時間変化を溶融スラグからの Cs 蒸発速度と溶湯形状の経時変化を考慮した下式で得る.

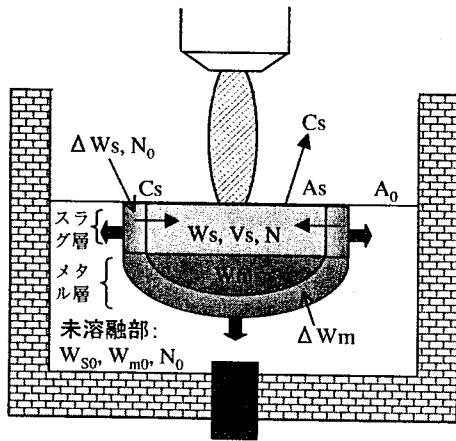
$$\frac{dN}{dt} = -k \cdot \frac{A_s}{V_s} \cdot N + \frac{\Delta W_s}{W_s} \cdot (N_0 - N) \quad (3)$$

ここに, W_s : 溶融スラグの重量, ΔW_s : 単位時間当たりの酸化物試料の溶融重量, N_0 : 酸化物試料中の Cs 濃度. 右辺第 1 項は 1 次の反応速度での蒸発による Cs 濃度の減少分であり, 第 2 項は Cs 濃度が N_0 である酸化物試料が溶融することによる Cs 濃度の増加分である.

溶融時の溶湯表面温度が加熱時間により大きく変化しなかったことから, 全量溶融するまでの間の溶融スラグからの Cs 蒸発速度を全量溶融した後のそれと等しいとした. 溶融スラグの表面積 A_s の経時変化を溶融時の溶湯のビデオ観察結果から求め, 溶融スラグ量 W_s の経時変化を試験後に得たスラグ層溶融部の重量から推定した. 溶融スラグの体積 V_s は試験後に得たスラグ層溶融部の重量と比重から求めた. 溶湯表面積と溶融スラグ量の経時変化の結果を Fig.6 に示す. Fig.6 の実線で示した溶湯表面積と溶融スラグ量の経時変化の結果と Fig.4 で得た蒸発速度定数の値を用いて, (3)式から Cs 濃度の経時変化を計算した. また, 計算した Cs 濃度から以下の(4)式によりるつぼ内における Cs の残存率 (未溶融部中の Cs を含む) を算出した.

$$Cs\text{残存率} = \frac{N_0 \cdot (W_{S0} - W_s) + N \cdot W_s}{N_0 \cdot W_{S0}} \cdot 100(\%) \quad (4)$$

ここに, W_{s0} : 酸化物試料の重量.



- N: 熔融スラグ中のCs濃度
- N₀: 酸化物試料中のCs濃度
- V_s: 熔融スラグ層体積
- A_s: 熔融スラグ層表面積
- A₀: るつば断面積
- W_s: 熔融スラグ層重量
- W_m: 熔融メタル層重量
- W_{s0}: 酸化物試料量
- W_{m0}: 金属試料量
- ΔW_s: 単位時間当たりに熔融する酸化物試料量
- ΔW_m: 単位時間当たりに熔融する金属試料量

Fig.5 Schematic diagram of the molten bath and the migration behavior of Cs during melting.

Fig.3 に加熱時間に対する Cs 濃度と Cs 残存率の計算値を示す。計算では、スラグ層の半熔融の状態は考慮していないが、Cs 残存率の計算値と実測値は良く一致した。また、Cs 濃度の計算値も、一度減少した後に増加するなど加熱時間に対する実測値の傾向を良く表した。この結果から、溶湯形状の経時変化を推定し、Cs の蒸発速度定数を用いて、熔融処理後の Cs 残存率を(3)式から予測できると考えられる。さらに、Cs 残存率の結果が気相と接する溶湯表面積の経時変化の影響を受けたことから、熔融スラグからの Cs の蒸発に対し、溶湯表面上で局所的に高温となるプラズマの電極点近傍での蒸発よりも溶湯表面全体からの蒸発が大きく寄与したものと考えられる。

3.3 Cs残存率の向上方策

前節で得た加熱時間と熔融スラグ中のCs濃度との関係式から、Cs残存率を高めるための熔融処理方法について検討した。熔融スラグ中のCs濃度は、溶湯表面がるつば全体に広がるまでに減少し、その後増加した。単位時間当たりのCs濃度の増加分と減少分の経時変化の計算結果をFig.7に示す。溶湯表面がるつば全体に広がるまではCs濃度の減少分が増加分より約2倍大きい。この理由は、Csの蒸発量に対して酸化物試料の熔融に起因するCsの流入

量が少ないためである。しかし、溶湯表面がるつば全体に広がってからは、加熱出力を増加させたことにより酸化物試料の熔融速度が大きくなるとともにCsが蒸発する溶融スラグ表面がるつば断面積の一定値となったことから、Cs濃度の増加分が減少分を大きく上回った。その後、蒸発によるCs濃度の減少分と酸化物試料の熔融によるCs濃度の増加分は、どちらも溶融スラグ体積の急激な増加の影響を大きく受けて徐々に減少し、それぞれの値が等しくなるように変化する結果を得た。

ここで、溶湯表面がるつば全体に広がった後のCsの濃度変化に着目する。この時のCs濃度の経時変化は、(3)式のA_sをA₀とした(5)式で表すことができる。

$$\frac{dN}{dt} = -k \cdot \frac{A_0}{V_s} \cdot N + \frac{\Delta w_s}{W_s} \cdot (N_0 - N) \quad (5)$$

ここに、熔融スラグの比重をρ_sとし、ΔW_s = ρ_s · ΔV_s、W_s = ρ_s · ΔV_sの関係から下式を得る。

$$\frac{dN}{dt} = \frac{-k \cdot A_0 \cdot N + \Delta V_s \cdot (N_0 - N)}{V_s} \quad (6)$$

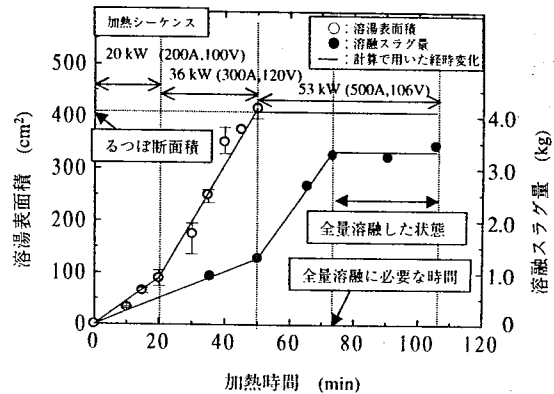


Fig. 6 Change in the surface area of the molten bath and the weight of the molten slag with the melting.

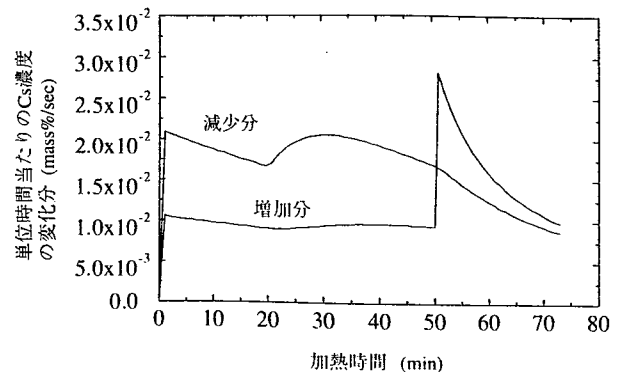


Fig.7 Variation value of the concentration of Cs in the molten slag during melting.

(6)式の右辺の分母である V_s は、加熱時間とともに増加し、 V_s が大きくなるに従い C_s 濃度の変化の割合が小さくなる。しかし、 C_s 濃度の減少と増加に対してはそれぞれ等しく寄与する。また、右辺の分子については、加熱出力を一定とした場合は単位時間あたりに溶融する酸化物試料量 W_s は一定とみなせることから ΔV_s も一定となり、 N 以外はすべて定数となる。したがって、(6)式を N について整理すると下式を得る。

$$\frac{dN}{dt} = -\frac{\Delta V_s}{V_s} \cdot \left(1 + \frac{k \cdot A_0}{\Delta V_s}\right) \cdot [N - 1 / \left(1 + \frac{k \cdot A_0}{\Delta V_s}\right) \cdot N_0] \quad (7)$$

上式における N は以下の(8)式で得られる値に漸近するように変化し、その漸近値は、 C_s の蒸発速度定数と酸化物試料の溶融速度 ΔV_s に大きく依存する。

$$N = [1 / \left(1 + \frac{k \cdot A_0}{\Delta V_s}\right)] \cdot N_0 \quad (8)$$

この結果から、溶湯表面が溶つば全体に拡がった後の溶融スラグ中の C_s 濃度は、 C_s の蒸発速度定数とスラグ形成成分である酸化物試料の溶融速度に大きく依存するものと考えられる。すなわち、 C_s 残存率を高めるためには、溶湯表面が溶つば全体に拡がってから溶融し終えるまでの加熱時間をプラズマ出力を増加させて短くすることが有効である。

3.4 C_s 残存率の推定手法

溶湯形状の経時変化と C_s の蒸発速度定数の値から、溶融処理後の C_s 残存率を推定できることを3.2節で示した。しかし、金属と無機物の重量比や加熱シーケンス等の溶融処理条件に対して溶湯形状の経時変化をすべて把握し、評価することは非常に困難と考えられる。そこで、以下では、溶融条件を限定して、これらの溶融処理条件から C_s 残存率を簡易に推定する手法を検討した。

溶融条件として、廃棄物が完全に溶融する前に溶湯表面が溶つば全体に拡がり、溶湯表面が溶つば全体に拡がってからは一定出力のもとで加熱することを想定する。表面加熱であるプラズマを用いて廃棄物を溶融処理する場合、一般的にはこの溶融条件になるものと考えられる。本研究においても溶湯は 36 kW での加熱終了時 (溶融試料全体の約 40% を溶融した段階) において、その表面がほぼ溶つば全体に拡がった。この条件では、溶湯表面が溶つば全体に拡がった後の溶融スラグ中の C_s 濃度は(8)式で得られる値に漸近するように変化することから、溶湯表面が溶つば全体に拡がった後の酸化物試料の溶融速度を ΔV_{se} (cm^3/s) とすると、溶融処理後の C_s 残存率は以下の(9)

$$C_s \text{ 残存率} = N / N_0 \cdot 100 = 1 / \left(1 + \frac{k \cdot A_0}{\Delta V_{se}}\right) \cdot 100(\%) \quad (9)$$

式で得られる値に漸近するように変化する。

溶融処理条件から酸化物試料の溶融速度 ΔV_{se} を求めると、この(9)式から溶融処理後の C_s 残存率を推定した。

酸化物試料の溶融速度 ΔV_{se} は以下のように求めた。溶湯表面が溶つば全体に拡がってから試料を完全に溶融するまでの加熱出力を P_e (kW) 一定とし、その時の電力原単位 SRC (kWh/kg) の値から、この時の単位時間あたりに溶融する試料量 ΔW_e (kg/s) を下式から得る。

$$\Delta W_e = P_e / (SPC \cdot 3600) \quad (10)$$

つぎに、単位時間あたりに溶融する試料中の酸化物試料の重量割合を全溶融試料に含まれる酸化物試料の重量割合と等しいと仮定し、 ΔV_{se} の値を下式から算出した。

$$\Delta W_{se} = (W_{s0} / W_0) \cdot \Delta W_e, \quad \Delta V_{se} = \Delta W_e / \rho_s \quad (11)$$

ここに、 W_0 : 全試料重量、 ΔW_{se} : 加熱出力 P_e 時における単位時間あたりに溶融する酸化物試料量。加熱時間に対する溶融量の結果を Fig.8 に示す。50分から73分までの酸化物試料の溶融量は 2 kg、全体の溶融量は 8 kg であった。したがって、酸化物試料の溶融速度は全体の溶融速度の 0.25 倍であった。これは、溶融試料中の酸化物試料の重量比率 0.23 とほぼ等しい値となり、(11)式を用いて ΔV_{se} を推定できるものと考えられる。また、加熱出力 53 kW (500 A) における電力原単位の値として 2.53 kWh/kg を得た。

溶融時の加熱シーケンスを変化させた溶融試験を行い、上記に示した手法により C_s 残存率を推定し、実測値と比較した。また、これまでに行った酸化物試料の重量および C_s 初期濃度を変えた溶融試験[12-14]についても、同様な手法で C_s 残存率を推定し、実測値と比較した。加熱シーケンスを変化させた試験では、試料を 200 A で 80 分加熱した後、500 A にプラズマ電流を上げて全量溶融した。他の試験では、200 A で 20 分、300 A で 30 分加熱した後、プラズマ電流を 500 A に上げて試料が全量溶融するまで加熱した。試料が全量溶融するまでの 500 A での加熱時間は溶つば外壁温度や炉底電極の冷却水の温度上昇率などを監視することで決定した。

各試験において溶融試料の組成は一定としているので、 C_s 残存率を推定する(10)式では C_s の蒸発速度定数 k を 7.5×10^{-6} m/s とし、溶つば断面積 A_0 を 4.15×10^{-2} m² とした。また、すべての試験で溶湯が溶つば全体に拡がった状態から全量溶融するまでの加熱出力を 53 kW (500 A) 一定としているので、 ΔW_e を推定する(11)式では SPC の値を 2.53 kWh/kg とした。 P_e (kW) の値はそれぞれの試験条件の値を用いた。 ΔV_{se} を推定する(11)式では、スラグの比重 ρ_s は各試験後に得たスラグの比重の平均値 3.2 g/cm³ を用

いた。Table 3 に試験パラメータと試験条件および Cs 残存率の推定値と実測値の結果を示す。ここに、Cs 初期濃度 N_0 の値は酸化物試料中の濃度を示す。Fig.9 に Cs 残存率の推定値と実測値の結果を示す。Cs 残存率の推定値は、実測値の±10%の誤差範囲内で一致する結果を得た。

ここで、(9)式を用いて Cs 残存率を推定する場合の誤差に与える溶融処理条件の影響を検討する。溶湯表面がらつば全体に拡がってから完全に溶融するまでのるつば内における Cs 残存率は(9)式から得られる推定値に漸近するが、漸近する度合いは溶湯表面がらつば全体に拡がった時の未溶融酸化物試料量の溶融スラグ量に対する割合とその時の溶融スラグ中の Cs 残存率に依存する。溶融処理後の Cs 残存率の推定誤差(実測値(%)と推定値(%)の差)が最大となるのは、Cs 残存率の推定値が 50%以上となる条件では溶湯表面がらつば全体に拡がった時の溶融スラグ中の Cs 残存率を 0%とした場合であり、推定値が 50%以下となる条件ではその時の Cs 残存率を 100%とした場合である。今回の試験条件(金属と無機物の重量比が 10:3、溶湯表面がらつば全体に拡がってからの加熱出力 53

kW) では、Cs 残存率の推定値は(9)式から 57%となり、溶湯表面がらつば全体に拡がった時の溶融スラグ中の Cs 残存率を 0%とした場合に推定誤差が最大となる。この最大推定誤差を未溶融酸化物試料量の溶融スラグ量に対する割合に対して算出した結果を Fig.10 に示す。Cs 残存率の推定誤差は、溶湯表面がらつば全体に拡がった時の未溶融酸化物試料量の溶融スラグ量に対する割合が大きいほど、またその時の溶融スラグ中の Cs 残存率が高いほど小さくなる。一例として今回の結果(Fig.3)を同図にプロットした。全量溶融した時の Cs 残存率の実測値(試験番号 4 の結果)は 54%であり、Cs 残存率の推定誤差は 3%以内である。また、溶湯表面がらつば全体に拡がった時の未溶融酸化物試料量の溶融スラグ量に対する割合は試験番号 2 の結果から約 1.5 と推定できる。ここで、半溶融部の重量は未溶融部の重量として算出した。Cs 残存率の推定誤差が小さくなった理由は、溶湯表面がらつば全体に拡がった時の溶融スラグ中の Cs 残存率が 40%以上であるからである。

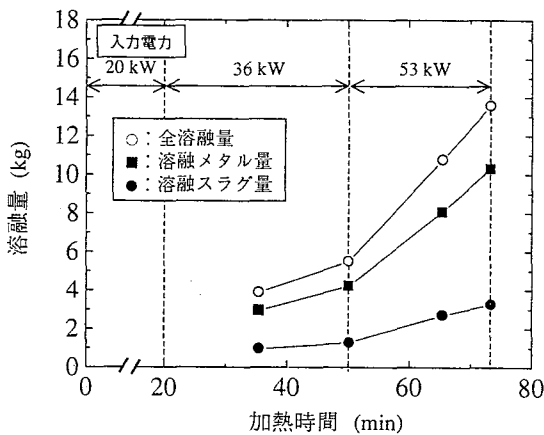


Fig. 8 Change in the weight of the molten metals and slags with the melting times.

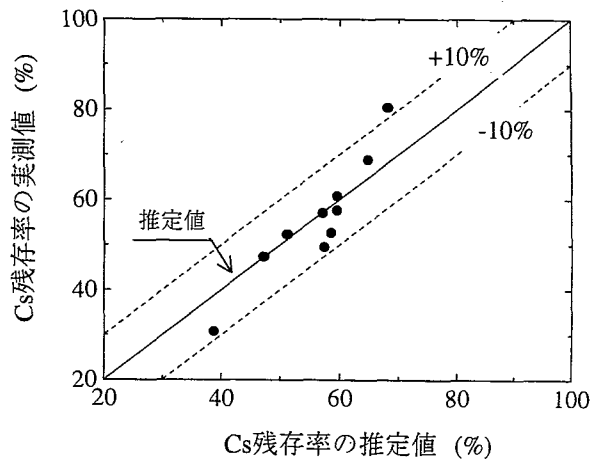


Fig.9 Comparison between measured and estimated values of the migration rate of Cs to the slag layers.

Table 3 Melting conditions and results of estimation values of the migration rate of Cs to the slag layer

試験 パラメータ	試験条件				推定結果			Cs残存率(%)	
	W_{m0} (kg)	W_{s0} (kg)	N_0^{*1} (mass%)	Pe^{*2} (kW)	ΔW_e (g/s)	ΔW_{se} (g/s)	ΔV_{se} (cm ³ /s)	推定値	実測値
加熱シーケンス	10.38	3.15	0.83	52	5.8	1.3	0.42	57	57
酸化物試料 の重量	8.90	5.09	0.85	54	5.9	2.2	0.67	68	80
	9.68	3.99	0.87	58	6.4	1.9	0.58	65	69
	9.81	3.16	0.83	53	5.9	1.4	0.45	59	53
	10.35	2.55	1.02	49	5.3	1.1	0.33	51	52
	9.82	1.63	0.80	57	6.3	0.9	0.28	47	47
Cs初期濃度	9.80	1.10	0.95	57	6.3	0.6	0.20	39	31
	9.82	3.15	0.21	56	6.1	1.5	0.46	60	57
	10.09	2.80	0.36	57	6.3	1.4	0.42	58	49
	9.92	3.16	0.62	56	6.1	1.5	0.46	60	61

*1: 酸化物試料中のCs濃度を示す
*2: プラズマ電流500A時の加熱出力

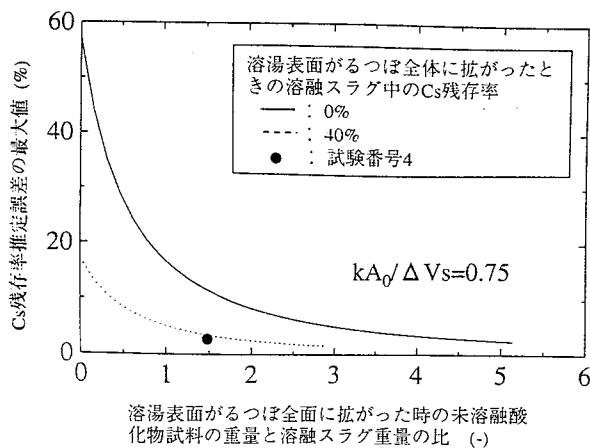


Fig.10 Variation of the estimation error of the migration rate of Cs to the slag layer.

本手法による Cs 残存率の推定精度は、溶湯表面がらつば全体に拡がった時の未溶融酸化試料量の溶融スラグ量に対する割合とその時の溶融スラグ中の Cs 残存率に依存するが、加熱出力に対する電力原単位等のプラズマ炉の特性を事前に把握しておくことでこれらの値を精度良く推定できるので、本手法は Cs 残存率の推定手法として有効な手段になると考えられる。

4 まとめ

低レベル放射性雑固体廃棄物をプラズマ溶融処理するときの Cs 残存率に与える加熱出力や金属と無機物の重量比などの溶融処理条件の影響を評価する手法を構築するために、加熱時間に対する溶湯形状の変化と Cs 残存率の関係調べ、溶融時の Cs 蒸発挙動を検討した。

炭素鋼 10 kg と粒状の混合酸化試料 3 kg に非放射性的 Cs を添加した試料を、20~50 kW の加熱出力により不活性雰囲気中で溶融し、試料が全量溶融する前後の溶融固化体の重量とその中の Cs 残存率を調べた。得られた知見を以下に示す。

- (1) 試料が全量溶融した後のスラグ層中における Cs 濃度の加熱時間に対する変化は、1 次の反応速度式で表わすことができ、その蒸発速度定数として 7.54×10^{-6} m/s を得た。
- (2) この蒸発速度定数を用いて、試料が全量溶融するまでの過渡的な状態において、溶融スラグ中の Cs 濃度変化を溶湯形状の変化を考慮して提案した式から推定した結果、実測値と良く一致した。
- (3) 溶湯表面がらつば全体に拡がった後の溶融スラグ中の Cs 濃度は、Cs の蒸発速度定数とスラグ形成成分である酸化試料の溶融速度に大きく依存することを明らかにした。したがって、Cs 残存率を高めるためには、この間の加熱時間をプラズマ出力を増加させ

て短くすることが有効であると考えられる。また、金属と無機物の混在比や加熱出力などの溶融処理条件が Cs 残存率に与える影響を廃棄物の溶融速度から評価できる見通しを得た。

参考文献

- [1] 火力原子力発電協会：やさしい原子力Ⅳ。放射性廃棄物の処理・処分。火力原子力発電 40, 107-123 (1989)。
- [2] 生田目康二：低レベル放射性廃棄物の減容処理技術開発。原子力工業 30, 26-39 (1984)。
- [3] 安井晋示, 天川正士, 足立和郎：低レベル放射性雑固体廃棄物へのプラズマ溶融法の適用性評価—溶融体の物性と溶融時の核種挙動に与える加熱雰囲気条件の影響—。日本原子力学会誌, 41, 39-47 (1999)。
- [4] 天川正士, 足立和郎, 安井晋示：低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融技術の基礎検討 (その 2) 溶融固化体の物性と溶融時の核種挙動に与える廃棄物組成の影響。電気学会論文誌 A 119, 357-364 (1999)。
- [5] 鈴木祐, 赤川吉寛, 大野弘雄：低レベル放射性廃棄物の輸送および廃棄確認技術。火力原子力発電 44, 57-66 (1993)。
- [6] 宮川稔, 大野弘雄, 小林邦英, 村上三郎, 北田俊信, 山下準二, 滝口英樹, 熊田賦, 田村守孝：プラズマ溶融炉による不燃性雑固体廃棄物の溶融処理技術。火力原子力発電 36, 27-47 (1984)。
- [7] Girold, C., Cartier, R., Taupiac, J. P., Vandensteendam, C., Baronnet, J. M., Flament, T.: Arc plasma incineration of surrogate radioactive wastes. Proc. Int. Symp. Environmental Technologies, Atlanta, (Georgia Tech Research Corporation, Atlanta, 1995) 471-480 (1995)。
- [8] Dmitriyev, S. A., Stefanovsky, S. V., Knyazev, I. A., Lifanov, F. A.: Characterization of slag product from plasma furnace for unsorted solid radioactive waste treatment. Proc. Mat. Res. Soc. Symp., (Materials Research Society, 1995) 353, pp.1323-1332 (1995)。
- [9] Nakayama, Y., Obara, K., Tsuji, Y., Haun, R., Eschenbach, R.: Cobalt and cesium volatility test in plasma arc centrifugal treatment. Proc. Int. Incineration Conf., Bellevue, Washington, 427-429 (1995)。
- [10] Massit, H., Naud, G., Atabek, D., Hoffelner, W.: Evaluation of the plasma arc centrifugal process for radioactive waste treatment. Proc. Int. Incineration Conf., Bellevue, Washington, 509-515 (1995)。
- [11] 安井晋示, 天川正士, 足立和郎：低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融基礎試験—Cs 残存率に与える廃棄物組成の影響—。日本原子力学会 1998 年春の年会, 大阪, 3 月 26-28 日, K36 (1998)。
- [12] Yasui, S., Adachi, K., Amakawa, T.: Effect of waste

- compositions on vaporization behavior of Cs in plasma melting process of simulated low level radioactive wastes. *Proc. of Int. Conf. on Incineration & Thermal Treatment Technologies*, Salt Lake City, Utah, U.S.A., 703-708 (1998).
- [13] Yasui, S., Adachi, K., Amakawa, T.: Vaporization behavior of Cs in plasma melting of simulated low level miscellaneous solid wastes. *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, 5741-5746 (1997).
- [14] 天川正士, 足立和郎, 安井晋示: プラズマ加熱を用いた低レベル放射性雑固体廃棄物の一括溶融処理技術. 電中研総合報告 W12 (1998).
- [15] 安井晋示, 天川正士, 足立和郎: 低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融基礎試験—Cs 残存率に与える溶融時間の影響—. 日本原子力学会 1999 年春の年会, 広島, 3 月 22-24 日, M20 (1999).
- [16] 足立和郎, 天川正士, 安井晋示: 低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 5) —鉄と木片の溶融体の均質性—. 電中研研究報告 W94041 (1995).
- [17] 松村勝秀, 平井輝幸, 北島英明, 林勝, 金川裕, 谷口俊夫, 岡本道明: 原子力発電所雑固体廃棄物の廃棄体製作技術と課題. *放射性廃棄物研究* **2**, 153-181 (1996).