

プラズマ溶融処理による低レベル放射性廃棄物の均一化 に関する予察試験について

The Preliminary Tests of the Plasma Melting Treatment
for Homogenization of Low-level Radioactive Wastes

中塩 信行 大杉 武史 黒澤 重信 石川 譲二
邊見 光 池谷 正太郎 横堀 智彦

Nobuyuki NAKASHIO, Takeshi OSUGI, Shigenobu KUROSAWA, Joji ISHIKAWA
Ko HEMMI, Shotaro IKETANI and Tomohiko YOKOBORI

原子力科学研究部門
原子力科学研究所
バックエンド技術部

Department of Decommissioning and Waste Management
Nuclear Science Research Institute
Sector of Nuclear Science Research

August 2022

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section,
JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

プラズマ溶融処理による低レベル放射性廃棄物の均一化 に関する予察試験について

日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門
原子力科学研究所 バックエンド技術部

中塩 信行^{*}、大杉 武史⁺¹、黒澤 重信⁺²、石川 譲二、
邊見 光⁺³、池谷 正太郎、横堀 智彦

(2022 年 5 月 9 日受理)

日本原子力研究開発機構の原子力科学研究所は、低レベル放射性固体状廃棄物の処分を視野に入れた廃棄物処理のために高減容処理施設の運用を開始した。処理対象廃棄物のうち、放射性非金属廃棄物の均一化条件を明らかにするために、焼却・溶融設備の固定炉床型プラズマ加熱式溶融炉を用いて予察試験を実施した。

これまでの文献調査や小規模溶融実験装置での試験を通じて、均一化条件を左右する溶融廃棄物の流動性は、廃棄物の化学成分と溶融温度によって一義的に決まる粘性に大きく左右されることが分かっている。予察試験では、200L ドラム缶に装荷した模擬廃棄物にコールドトレーサーを添加して溶融した。廃棄物化学成分（塩基度、酸化鉄濃度）をパラメータとして、溶融固化体の化学成分の均一性を調査し、均一化条件について考察すると共に、溶湯のトレーサーの残存率を確認した。溶融廃棄物の粘度を測定し、均一性との相関を調べた。

また、今後の実操業に向けて、予め押さえておくべき技術要件を検討した。

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4

+1 核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 環境技術開発センター
廃止措置技術部

+2 原子力施設検査室

+3 安全研究・防災支援部門 安全研究センター 燃料サイクル安全研究ディビジョン

* 株式会社アトックス（2015年3月31日まで在籍）

**The Preliminary Tests of the Plasma Melting Treatment
for Homogenization of Low-level Radioactive Wastes**

Nobuyuki NAKASHIO*, Takeshi OSUGI⁺¹, Shigenobu KUROSAWA⁺², Joji ISHIKAWA,
Ko HEMMI⁺³, Shotaro IKETANI and Tomohiko YOKOBORI

Department of Decommissioning and Waste Management
Nuclear Science Research Institute
Sector of Nuclear Science Research
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 9, 2022)

The Nuclear Science Research Institute (NSRI) of the Japan Atomic Energy Agency (JAEA) started operation of the Advanced Volume Reduction Facilities (AVWF) for production of waste packages for disposal of low-level radioactive solid wastes (LLW). To clarify the operating conditions for homogenization of non-metallic LLW, preliminary tests were carried out using the plasma melting furnace of the non-metal melting unit.

The fluidity of molten waste influences homogenization conditions of solidified products. It was clarified that the viscosity, which is determined by the chemical composition and the melting temperature, influence the fluidity of molten waste greatly through previous literature review and the small-scale melting tests. In the preliminary tests, the simulated waste with a cold tracer loaded in 200 L drums were melted. Using the waste chemical components (basicity, iron oxide concentration) as an experimental parameter, the homogeneity of the chemical components of the solidified product was investigated and the homogenization conditions of melting tests were examined. The retention ratio of the tracer in the molten bath was also confirmed. The viscosity of the molten wastes was measured and the correlation with homogeneity was examined.

In addition, the technical requirements that should be concerned in advance for future actual operation were discussed.

Keywords: Plasma Melting, Homogenization, LLW, Volume Reduction, Solidified Product, Viscosity, Cold Tracer, Basicity, Iron Oxide, Retention Ratio

+1 Decommissioning Technology Department, Nuclear Backend Technology Center, Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

+2 Nuclear Facility Inspection Office

+3 Fuel Cycle Safety Research Division, Nuclear Safety Research Center, Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness

* ATOX Co., Ltd.(Nuclear Science Research Institute until March 31st, 2015)

目 次

1. はじめに	1
2. 操業パラメータの検討	2
2.1 プラズマ溶融炉の操業における溶湯の流動性について	2
2.2 操業パラメータの決定	2
3. 試験	3
3.1 プラズマ溶融炉概要	3
3.2 試験方法	3
3.2.1 模擬廃棄物と非放射性トレーサー	3
3.2.2 試験装置運転手順	4
3.3 分析及び測定	4
3.3.1 溶湯温度直接測定	4
3.3.2 化学成分分析	4
3.3.3 スラグ粘度測定	5
4. 結果及び考察	5
4.1 溶湯温度	5
4.2 溶融固化体の均一性	6
4.3 溶融保持時間	7
4.4 スラグ粘性と均一性	7
4.5 溶湯サンプルにおけるトレーサー残存挙動について	8
4.6 高温処理におけるセシウム揮発挙動について	8
4.6.1 ホウ珪酸ガラスにおける ^{137}Cs 揮発挙動	9
4.6.2 鉄富化玄武岩の溶融における ^{137}Cs 揮発挙動	9
4.6.3 鉄富化玄武岩の焼成における ^{137}Cs 揮発挙動	9
4.6.4 粘土鉱物、ゼオライト近傍におけるセシウム高温挙動について	9
4.6.5 プラズマ溶融処理におけるセシウム挙動のモデル化について	10
5. 操業までに押さえておくべき技術要件	10
5.1 運転データの取り扱い	10
5.1.1 プラズマフレームの影響を受けない溶湯温度モニタリング	10
5.1.2 溶湯粘度のリアルタイムモニタリング	10
5.2 溶融炉耐火物の損耗状況確認	11
6. 結論	11
謝辞	12
参考文献	12
付録Ⅰ 溶融固化体（スラグ）の化学成分分析について	35
付録Ⅱ 図表	39
付録Ⅲ G38 図表	46

Contents

1. Introduction	1
2. Consideration of operating parameters	2
2.1 On the fluidity of molten material in the operation of plasma melter	2
2.2 Determination of operating parameters	2
3. Tests	3
3.1 Outline of the plasma melter	3
3.2 Test methodology	3
3.2.1 Simulated wastes and non-radioactive tracer	3
3.2.2 Operating procedure of the non-metal melting system	4
3.3 Analysis and measurement	4
3.3.1 Direct measurement of molten bath temperature	4
3.3.2 Chemical analysis	4
3.3.3 Viscosity measurement	5
4. Results and discussions	5
4.1 Molten bath temperature	5
4.2 Homogeneity of the solidified products	6
4.3 Temperature holding time	7
4.4 Viscosity of slag and homogeneity of the solidified products	7
4.5 Retention of tracer materials in molten bath samples	8
4.6 Cesium volatility in high temperature waste treatment	8
4.6.1 The volatility of ^{137}Cs in vitrification of borosilicate glass	9
4.6.2 The volatility of ^{137}Cs in melting of Iron Enrichment Basalt	9
4.6.3 The volatility of ^{137}Cs in calcination of Iron Enrichment Basalt	9
4.6.4 The volatility of cesium in the near of clay mineral and zeolite	9
4.6.5 Modeling of cesium volatility in plasma melting process	10
5. Technical items for the actual operation of plasma melter	10
5.1 Management of operational data	10
5.1.1 Molten bath temperature monitoring without influence of the plasma frame ----	10
5.1.2 Real-time monitoring of molten bath viscosity	10
5.2 Checking the corrosion status of refractories of the melting furnace	11
6. Conclusions	11
Acknowledgements	12
References	12
Appendix I	35
Appendix II Tables and Figures	39
Appendix III Tables and Figures for G38	46

Table and Figure List

Table 1 Composition of the simulated wastes. -----	17
Table 2 Weight of each solidified product. -----	17
Table 3 Average temperature of molten wastes during the pouring process. -----	17
Table 4 Analysis data of slag samples of solidified products (G33). -----	18
Table 5 Analysis data of slag samples of solidified products (G35). -----	19
Table 6 Analysis data of slag samples of solidified products (G36). -----	20
Table 7 Analysis data of slag samples of solidified products (G37). -----	21
Table 8 Average values of chemical components in solidified products (G33, G35, G36, G37). ---- -----	22
Table 9 Target values and measured values in chemical components (Basicity and Iron oxide) of solidified products (G33, G35, G36, G37). -----	23
Table 10 Chemical components in the molten bath samples (G33). -----	23
Table 11 Chemical components in the molten bath samples (G35). -----	24
Table 12 Chemical components in the molten bath samples (G36). -----	24
Table 13 Chemical components in the molten bath samples (G37). -----	25
Table 14 Type of iron oxide in slag samples (wt%). -----	25
Table 15 Tracer concentrations in the molten bath samples. -----	26
Table 16 Retention rates of tracers in the molten bath samples. -----	26
Table 17 Plasma heating time. -----	27
Table 18 Chemical components in IE-95 and Iron-enrichment Basalt (IEB) samples. -----	27
Figure 1 Relationship between basicity and viscosity of molten slag at 1300 °C (Al_2O_3 5wt%). -----	28
Figure 2 Temperature dependence of molten Al_2O_3 -CaO- Fe_2O_3 - SiO_2 slag viscosity due to differences in slag basicity. -----	28
Figure 3 Temperature dependence of molten Al_2O_3 -CaO- Fe_2O_3 - SiO_2 slag viscosity due to differences in slag iron oxide concentration. -----	29
Figure 4 Schematic diagram of the plasma melter. -----	29
Figure 5 Pattern diagram of temperature for the plasma melter (a case of 1t melting). ----	30
Figure 6 Molten bath temperature at first molten bath sampling of Test G33. -----	30
Figure 7 Molten bath temperature at just before the first pouring of Test G37. -----	31
Figure 8 Comparison of normalized Fe_2O_3 concentration of molten bath samples. -----	31
Figure 9 Outline drawing of a slag and metal sampling tube for melting furnace of OWTF. --	32
Figure 10 Temperature dependence of viscosity of slag taken from solidified products due to differences in slag basicity. -----	33
Figure 11 Temperature dependence of viscosity of slag taken from solidified products due to differences in slag iron oxide concentration. -----	33
Figure 12 Viscosity of slag and variation of coefficient of slag iron oxide concentration. -----	34

Table and Figure List (Appendix II)

Table A1 Preliminary test conditions for homogenization.	39
Table A2 Comparison of analysis methods for chemical component of slag.	39
Table A3 Standard samples made by the slag bead sampler for XRF analysis.	39
Table A4 Test conditions (G28).	40
Table A5 Solidified products (G28) data.	40
Table A6 Analysis data of slag samples of solidified products (G28).	41
Table A7 Chemical components of solidified products (G28).	42
Figure A1 Output curve image of temperature in plasma melting test (1t scale).	43
Figure A2 Schematic diagram of the plasma melter.	43
Figure A3 Cross-sectional view of the solidified product (G25) scanned by the X-ray CT Unit.	44
Figure A4 Top and cross-sectional views of the solidified product (G25) in disassemble processes.	44
Figure A5 Sampling point for chemical analysis of slag.	45
Figure A6 Making procedure of glass beads.	45

Table and Figure List (Appendix III)

Table A8 Analysis data of slag samples of solidified products (G38).	46
Table A9 Analysis data of molten bath samples (G38).	46
Figure A7 Temperature dependence of viscosity of slag taken from solidified products.	47

1. はじめに

低レベル放射性固体廃棄物の熔融処理は、大きな減容比、処理後の固化体の放射能分布の均一化及び安定化が可能である等の利点を有する。このため、熔融処理は低レベル放射性廃棄物の再利用もしくは処分のための処理方法として、ドイツ、スウェーデン、アメリカ、フランス、スイス等で採用されている¹⁴⁾。最近では、スペインのイベルドロウラ電力会社とベルギーのベルゴプロセス社の共同企業体によって、ブルガリアのコズロドゥイ原子力発電所（1-4号機）にプラズマ加熱式の熔融処理設備が建設され、廃棄物を処分に適した形に処理しつつ、廃止措置が進められている⁵⁻⁷⁾。

日本では、原子力発電所の運転で発生した低レベル放射性雑固体廃棄物を処分用の固化体とするために、複数の熔融処理設備が稼働している⁸⁻¹³⁾。日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」という。）は、放射性廃棄物の処分並びに再利用を視野に入れて、原子力科学研究所（以下、「原科研」という。）の高減容処理施設に、処理容量が4tバッチの高周波誘導加熱式金属熔融炉（以下、「金属熔融炉」という。）を備えた金属熔融処理設備と、処理容量が2tバッチの固定炉床型プラズマ加熱式熔融炉（以下、「プラズマ熔融炉」という。）を備えた焼却・熔融処理設備を導入した^{14,15)}。金属熔融炉は、原子炉以外から発生する放射性核種で汚染された金属廃棄物を熔融し、熔融金属の放射能分布を均一化した上でプラズマ熔融炉から発生する熔融廃棄物を固化する容器として再利用される受け容器又は金属塊（インゴット）に鑄造する。プラズマ熔融炉は、空気を作動ガスとしたプラズマフレーム（炎）照射による表面加熱で、ドラム缶ごと炉内に投入した雑固体廃棄物を熔融する。主にコンクリート、土砂、保温材、ガラス、焼却灰などの非金属の不燃物が主体の雑固体廃棄物に対して、非金属に対する十分な熔融能力が必要という観点から、導電性の金属廃棄物に対して有効な誘導加熱ではなく、導電性にかかわらず安定な運転が可能なプラズマ熔融方式を採用している。雑固体廃棄物を熔融して生成される熔融廃棄物は、熔融炉本体を傾動して数回に分けて受け容器に排出して固化する。なお、産業廃棄物処理分野においても、PCB等の有害物質を効率良く分解できるプラズマ加熱処理の特質を生かして、日本環境安全事業株式会社の北九州、北海道事業所において、原科研のプラズマ熔融炉と類似の設備が稼働中である¹⁶⁻¹⁹⁾。

放射性固体廃棄物を処分もしくは再利用するためには、廃棄物処理後の最終固化体の放射能インベントリーを評価しなければならない。固化体中での放射性核種の分布状態は、固化体の放射能インベントリーの迅速かつ正確な評価において重要なファクターである。熔融炉の一バッチの処理で、炉内の熔融廃棄物（溶湯）の放射能分布を十分に均一化できれば、製作された固化体中の放射能インベントリーは、完全熔融後の溶湯から採取したサンプル（以下、「溶湯サンプル」という。）の放射能分析によって評価が可能である。一バッチあたりの処理容量を大きくすることは、処理の効率化に加えて、放射能分析コストの低減にもつながる。

一般的に、液体の均一化は分子相互拡散による混合の最終段階である。液体の粘性が低ければ分子拡散速度が大きいのので、より均一化し易い。また、液体の粘性が高くても、攪拌操作等による対流運動の結果、分子の拡散距離を減少させることで、均一化に要する時間を大幅に短縮できることが知られている²⁰⁾。

高減容処理施設の金属熔融炉は、処理対象である鉄鋼主体の熔融金属の粘度が室温の水程度のかかなり低い値（約 $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ ）であることに加えて^{21,22)}、誘導加熱方式で発生する電磁攪拌力のため、熔融金属をより均一化しやすい特徴を有する。これまでの実証試験によって、実廃棄物処理のための均一化処理条件を明らかにした²³⁾。

一方、プラズマ熔融炉では、処理対象廃棄物を熔融して生成される熔融金属酸化物（スラグ）の粘度が、熔融金属のそれに比べて2-3桁程度高くなることが予想される²⁴⁾。プラズマの高熱によって高融点廃棄物の処理が可能である反面、表面加熱に留まるため金属熔融炉のような電磁力による攪拌効果は期待できな

い。また、溶融スラグの粘性が高すぎると、プラズマ溶融炉の溶湯排出工程（以下、「出湯」という。）において閉塞を引き起こす恐れもある。

本研究では、廃棄物の組合せによって、融点が低く粘性が低い（流動性が高い）溶融物を生成する条件を明らかにし、それらの条件を元に、200L ドラム缶に非放射性トレーサーと模擬廃棄物（コンクリート片他）を装荷した上で、プラズマ溶融炉の予察試験を実施した。溶融固化体の化学成分分析等を通じて、金属溶融炉と同様に実廃棄物処理のための均一化処理条件を明らかにすることを目的とした。また、今後の実操業に向けて予め押さえておくべき技術要件を検討した。

2. 操業パラメータの検討

2.1 プラズマ溶融炉の操業における溶湯の流動性について

プラズマ溶融炉は、主に非金属廃棄物を処理対象としており、廃棄物は保管容器であるドラム缶ごと溶融処理される。プラズマトーチの作動ガスに空気を用いるので、ドラム缶の鉄は、溶湯中では酸化鉄の状態が存在する。原科研で発生するプラズマ溶融炉処理対象廃棄物の化学成分を調査した結果、溶湯の主要な化学組成は、アルミナ（ Al_2O_3 ）、カルシア（ CaO ）、酸化鉄（ Fe_xO_y ）、シリカ（ SiO_2 ）の四成分であることが分かった²⁵⁾。

溶湯の粘性（流動性）は均一化を左右するだけでなく、溶湯の受け容器へのスムーズな出湯を可能にするためにも、一定のレベルを保たなければならない。溶湯の粘度は化学組成と溶融温度で決まる。溶融温度が高ければ高いほど粘度は低下（流動性は向上）する傾向を有するが、プラズマ溶融炉の最高温度が 1600°C という制限があるだけでなく、耐火物消耗を抑制する観点からも、できるだけ低い温度で運転することが望ましい。そこで、プラズマ溶融炉供用に先立って、廃棄物中の化学成分を調整することで溶融温度を抑えつつ、粘度を低下させる運転条件を検討した²⁵⁾。検討を開始した時点では、一般的なガラスや鉄鋼冶金分野で用いられるスラグの粘度データ^{26,27)}に比べて、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-Fe}_x\text{O}_y\text{-SiO}_2$ 系四成分スラグの粘度データは極めて少なかったが、体系的に実施された四成分高炉スラグの粘性に関する旧ソ連の研究結果を中心にして操業条件をまとめた^{25,28)}。文献調査結果の一例を Figure 1 に示す。横軸に塩基度と呼ばれる CaO と SiO_2 の比をとり、縦軸に粘度をとっている。いずれの溶融物も、塩基度が約 0.4 から 1.0 にかけて、酸化鉄濃度の増加と共に粘度の低下傾向が見られた。しかしながら、主要な処理対象物であるコンクリート等の低塩基度（約 0.2）に対しては、外挿により $1\sim 10\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 程度の低粘度が予想されるが、実操業においてもその程度の粘度を期待できるのかどうかを、事前に粘度測定試験を通じて確認しておく必要がある。

2.2 操業パラメータの決定

原科研の主要な廃棄物であるコンクリート等を溶融したときに発生する低塩基度スラグの粘度を測定するために、HAAKE 社の回転式高温粘度計（ME-1700）とアルミナ製のるつぼ、ローターを用いた²⁹⁾。化学試薬を用いて成分調整した模擬廃棄物（約 37g）をアルミナ製のるつぼに装荷し、 N_2 ガス雰囲気中で試験を行った。まず、スラグの温度を 1600°C まで昇温させてから 1 時間保持した後に、温度を下げながら 1500°C から 50°C ごとに粘度測定を行った。 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-Fe}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ 系四成分スラグの塩基度と酸化鉄濃度をパラメータとした粘度の温度依存性を Figure 2 と Figure 3 にそれぞれ示す。溶融廃棄物中の化学成分について、塩基度を 0.3 以上、または酸化鉄濃度を 20%以上とすることで、溶融温度を抑えながら溶融物の粘度を $10\text{ Pa}\cdot\text{s}$ （100 poise）以下にできることが分かった。なお、試験後のるつぼを観察したところ、容器肉厚が減損していたので、アルミナのスラグへの溶け込みによって粘度が変化した可能性がある。

ここで、プラズマ溶融炉の重要な操業条件である溶融廃棄物の粘度基準値を決定する上で、ガラス産業及び他の一般廃棄物の溶融炉の事例を参考にした。一般的にガラスの成形工程においては、 $10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ よりも低い粘度となる高い温度で溶融され、その後は成形作業に適した粘度 ($10^2 \text{ Pa} \cdot \text{s}$) になるまで温度調整される³⁰⁾。言い換えれば、溶融ガラスにおいては、 $10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ では成形できないほどに流動性を有していることとなる。都市ごみ焼却灰処理装置においては、溶融廃棄物の粘度が $10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ で十分に出湯可能であるとされていた³¹⁾。日本原子力発電株式会社が敦賀発電所に導入しているプラズマ溶融処理装置と同型の炉^{9, 10)}の運転において、理想的な溶融廃棄物の粘度は $2 \sim 10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ とされている³²⁾。以上のことを踏まえて、プラズマ溶融炉の操業条件として、溶融廃棄物の粘度を $10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下にすることとした。また、その操業条件をクリアするために、溶融廃棄物の塩基度と酸化鉄濃度を操業パラメータとした。

3. 試験

3.1 プラズマ溶融炉概要

本試験に用いたプラズマ溶融炉は、2本のプラズマトーチ（出力 1.3MW）を備えた溶融炉と排気ガス処理系で構成されている^{14, 15)}。Figure 4 にプラズマ溶融炉の概要を示す。

プラズマ溶融炉は、トーチ内部に正負両電極を有する非移行式のプラズマトーチを利用しているので、廃棄物の材質に関わらず溶融可能であり、一バッチあたり廃棄物 2t の処理容量を持つ。対象廃棄物は 200L ドラム缶ごと炉内に投入され、制御室において炉内の状態を ITV（Industrial television）カメラで観察しながら2本のプラズマトーチを操作し、プラズマフレームを廃棄物に当てて溶融する。廃棄物を完全に溶融し、溶湯を均一化したら、溶湯サンプル採取装置で溶湯サンプルを採取し、その後、溶融炉本体を傾動させながら複数のスラグ受け容器に注ぎ分ける。

3.2 試験方法

3.2.1 模擬廃棄物と非放射性トレーサー

主要な模擬廃棄物であるコンクリートは、原科研内の工事等で発生した産廃コンクリート片（非放射性）を用いた。大きさは握りこぶし程度とし、鉄筋が入っているものや、重コンクリートのような比重の大きいものを除いた。模擬廃棄物の組成を Table 1 に示す。Figure 1 に示される処理対象廃棄物の塩基度を踏まえ、溶融基礎試験で用いたコンクリートの組成を参考にして³³⁻³⁵⁾、溶融スラグの塩基度が 0.3、0.5 及び 0.8、酸化鉄濃度が 20wt% と 40wt% の値となるように鉄板と炭酸カルシウム（寒水石）を添加した。模擬廃棄物と添加剤を 200L ドラム缶に収納し、ドラム缶を含めた重量を 200kg とした。塩基度のパラメータとなる CaO の供給源として消石灰粉末の添加も検討したが、プラズマフレームの勢いによって粉末の飛散が激しくなるのが観察されたことから寒水石を用いた¹⁵⁾。

溶湯からの放射性核種の揮発挙動を調べるために、非放射性トレーサー（以下、「トレーサー」という。）としてコバルト（酸化コバルト）とセシウム（炭酸セシウム）を選定し、ねじ式のステンレスボトルに封入して各投入ドラムに分けて装荷した。

なお、Table 1 に記されている G38 については、試運転中の火災トラブルにより^{36, 37)}、スラグ受け容器 1 本分しか出湯できなかった。トラブル後に様々な安全強化策を施したが、G38 で溶融したスラグの残りは現在も炉内に固化されたままであり、G39 のテストは中止となった。

3.2.2 試験装置運転手順

プラズマ溶融炉において、1t の廃棄物（200L ドラム缶 5 本）を溶融した場合の炉内温度変化のイメージ図を Figure 5 に示す。排気ガス処理系の装置を立ち上げた後、LPG ガスバーナーによって溶融炉を予熱する。炉底耐火物温度が 500°C 程度に達したところで LPG 加熱を停止し、200L ドラム缶詰めの廃棄物を投入する。プラズマトーチを点火し、廃棄物の溶融状況を見ながら適宜ドラム缶を投入し、バッチ処理量に達するまで繰り返す。炉内に未溶融物が見られなくなった時点で溶融完了とし、溶湯の放射能分布が均一となるように一定時間プラズマ加熱を続ける（以下、「溶融保持時間」という）。その後、溶湯サンプルを採取してから、溶融炉本体を傾動させて出湯操作に移り、溶湯をスラグ受け容器に注ぎ分ける。出湯後の受け容器は冷却チャンバに移動し、冷却固化した後、200L ドラム缶に収納し、一時保管設備に搬出する。

溶融炉の運転において、溶湯の放射能分布を均一化するための溶融保持時間は、最適な処理時間を決定する上で最も重要なファクターの一つである。また、溶融保持時間は溶融炉の型式や処理対象廃棄物に依存するシステム固有の値である。今回の均一性確認試験では、適切な溶融保持時間を調べるために、溶融保持時間を 90 分と設定し、溶融完了確認後から 30 分おきに溶湯サンプルを採取した。

3.3 分析及び測定

3.3.1 溶湯温度直接測定

溶融試験において、溶湯温度は炉内上部に設置された放射温度計で連続測定されている。しかしながら、放射温度計はプラズマフレーム照射時にフレームの光を感知することで、実際の溶湯温度よりも 200-300°C 程度高い値を示す。一方、炉内天井に設置した温度計は、プラズマフレーム非照射時に放射温度計とほぼ同じ値を示し、プラズマフレーム照射の有無に大きく影響を受けていなかった（Figure 6 参照）。

そこで、高温測定用の B 型熱電対を用いて、プラズマフレーム照射停止直後の溶湯温度を直接測定し、放射温度計の実測値を確認すると共に、炉内天井温度計が溶湯温度のモニタリングに対応可能かどうかを調べた。また、溶湯の深さ方向の温度分布も併せて調べた。溶湯に接触させる B 型熱電対は、先端部をアルミナ被覆管で覆った上で 2m 程度の長軸ロッドで支持し、モバイル型温度レコーダ（キーエンス NR-1000）に接続したものをを用いた。

3.3.2 化学成分分析

波長分散型蛍光 X 線分析装置（島津製作所 XRF-1800）を用いて、溶湯サンプルと固化体サンプルの主要化学組成を定量した。玄武岩、閃長岩、はんれい岩、角閃石岩等の土壌試料の標準物質を利用した検量線法にて分析した。標準物質の選定や、溶融固化体のサンプリング位置の決定及び分析方法の詳細を付録 I に示す。

溶湯サンプルと各固化体の 4 または 5 箇所から 2 点ずつ採取した固化体サンプル（1 固化体あたり 8 または 10 点）をステンレス製の高速スタンプミルで粉碎し、100mesh 以下に分級した。粉末試料を約 0.5g 分取して、融剤（四ホウ酸リチウム）約 5.0g と混合させ、ビードサンブラ（東京科学 TK4100）でガラスビードを成型し、波長分散型蛍光 X 線分析装置で化学成分を分析した。

なお、本試験ではプラズマトーチの作動ガスに空気を用いるので、ドラム缶を始め、金属廃棄物は全て金属酸化物となる。しかしながら、プラズマトーチの酸化能力が十分でなく、微量の金属鉄がスラグ中に偏在した場合、小規模プラズマ溶融試験で見られたような放射性コバルト（⁶⁰Co）の微量金属鉄への濃縮現象^{32,34)}が発生する可能性があり、溶湯サンプルの代表性が大きく損なわれかねない。そこで、プラズマトーチの酸化能力の確認のためにスラグ中の金属鉄分析を JIS M 8212:2005³⁸⁾及び JIS M 8213:1995³⁹⁾に準拠して

実施した。分析の過程でスラグ中の全鉄、金属鉄、酸化第一鉄（FeO）が定量されたので、参考値として酸化第二鉄（Fe₂O₃）を以下の式に基づいて算出した。

$$\text{酸化第二鉄含有量} = \left[\text{全鉄測定値} - (\text{金属鉄測定値} + \text{酸化第一鉄中の鉄測定値}) \right] \times \text{Fe, Fe}_2\text{O}_3 \text{ 換算係数} \\ (=1.4297)$$

本研究論文ではスラグ化学成分の酸化鉄表記を便宜上 Fe₂O₃ としているが、実際には酸化第一鉄と第二鉄が混在している。一般的に、スラグの不規則網目構造モデルにおいて、網目構造を作る傾向が強い網目形成酸化物（酸性酸化物）、網目構造を破壊する網目修飾酸化物（塩基性酸化物）と、他の酸化物との組み合わせによって酸性あるいは塩基性として働く両性酸化物が存在する。酸化第一鉄は塩基性酸化物、酸化第二鉄は両性酸化物に分類される⁴⁰⁾。これらの酸化物の違いによってスラグの粘度に及ぼす影響を確認する。なお、ステンレス製の高速スタンプミルによるスラグ粉碎時の Fe コンタミの程度を確認するために、容器が全てアルミナ製のアルミナボールミルと小型のステンレス瓶にステンレス球と試料を入れて粉碎するシェイクマスターオート（バイオメディカルサイエンス BMS-A20TP）によって粉碎した試料の金属鉄成分分析も実施した。

また、溶湯からの放射性核種の揮発挙動を調べるために添加したトレーサー（コバルト、セシウム）については、スラグ中の濃度が数百～数千 ppm オーダーとなることが予想されたので、原子吸光光度計（日立製作所 Z-5010）を用いた湿式分析法によって定量した。前処理として、可能な限り乳鉢で粉碎したスラグ約 0.5g をテフロン性の高压分解容器（マイクロウェーブ分解容器）に分取し、HNO₃7mL と HF7mL を添加し、試料と酸をよく馴染ませた。マイクロウェーブ分解システムにセットし、最高出力 1000W、内部温度 210℃ にて、約 1 時間加熱分解を行った。放冷後に試料をマイクロウェーブから取り出し、超純水で 30g に定容し、上澄み液の分析を実施した。

3.3.3 スラグ粘度測定

溶融廃棄物の粘性（流動性）が溶湯の均一化条件を左右するので、予察試験に先立って溶融スラグの粘度を測定した。しかしながら、試験後のアルミナするつぼを観察したところ、容器肉厚が減損していたので、化学試薬で成分調整した模擬廃棄物の溶融スラグへのアルミナの溶け込みによって粘度が変化した可能性がある。そこで、予察試験で得られた溶融スラグの粘度の測定では、スラグ耐食性が強い Pt-20wt%Rh 製のつぼおよびロッドを備えた外筒回転式粘度測定装置⁴¹⁾を用いた。試料粉末ををつぼに入れて炉内に設置し、大気雰囲気中で 1600℃ まで昇温した。その後、融体状態の安定化のため 1600℃ で 90-120 分保持した。温度を下げながら 50℃ の間隔で各測定温度に約 30 分保持して粘度測定を行った。測定温度が融点に近づいてきた段階で、温度の間隔を 10℃ に変更した。

4. 結果及び考察

4.1 溶湯温度

溶湯温度について、B 型熱電対と放射温度計で測定した値の比較を Figure 7 に示す。溶湯表面に接触させた直後の B 型熱電対測定値は 1400℃ 程度であり、放射温度計及び炉内天井温度計の測定値とほぼ同等であった。よって、放射温度計の実測値はプラズマ非照射時には溶湯温度の正確な値を示していることを確認した。また、炉内天井温度計の実測値についても、溶湯温度のモニタリングに対応可能であることがわかった。

一般の灰溶融炉においても、溶融炉管理温度の計測箇所は炉天井部及び炉蓋が多いことから、本溶融炉のモニタリング方法も妥当であると思われる⁴²⁾。

次に、B型熱電対を溶融炉底まで挿入すると、表面温度よりも約40℃高かった。温度測定後、炉内から引き上げた熱電対先端部に付着しているスラグの長さから推定した溶湯深さは約10cmであった。溶湯温度の深さ方向分布については、溶融スラグの化学組成やプラズマ照射時間等によって異なる可能性があるため、今後実施される特性試験において調べておく必要がある。

4.2 溶融固化体の均一性

それぞれの試験で得られた溶融固化体の重量をTable 2に示す。トラブルのあったG38以外では、溶融固化体が4体及び5体(G36)であった。出湯操作において、一つの固化体重量の目安を300kgに設定したため、各試験の最後の溶融固化体重量は105～185kgと少な目になった。各固化体出湯操作時の溶湯温度の平均値をTable 3に示す。溶湯温度は4.1での温度測定結果に基づき、炉内天井温度計の実測値で代替した。各固化体出湯時の溶湯温度は1480～1565℃であった。

各試験における溶湯の均一性を明らかにするために、各試験の溶融固化体の化学成分濃度を分析した。均一化の程度を判断する指標として、サンプルの化学成分濃度の変動係数(相対標準偏差)を適用した。すなわち、変動係数が小さければ小さいほど、均一性は良好と判断される。他の溶融試験の報告を参考にして、主要化学成分(Al_2O_3 、 CaO 、 Fe_2O_3 、 SiO_2)の濃度の変動係数が10%以下の時に十分に均一な分布を持つ溶融固化体であるとした⁴³⁻⁴⁶⁾。

各試験(G33、G35、G36、G37)における化学成分濃度の分析値、平均値及び変動係数をTable 4-7に示す。分析試料のサンプリング位置については、付録I、IIの考え方に従って、一つの固化体で4～5箇所からサンプリング(付録IIのFigure A5参照)することとし、1箇所あたり2点サンプリングした試料を分析した。なお、G38については出湯回数が1回であったため、均一性の議論から除外した。溶融試験G33の Fe_2O_3 濃度やG36の Al_2O_3 濃度の変動係数が10%を超えたものの、それ以外の各溶融試験における化学成分濃度の分析値の変動係数は10%以下となっており、全体的に見ると均一性は良好であった。

それぞれの試験における各固化体の化学成分濃度の平均値と試験の全サンプルの変動係数をTable 8に示す。変動係数の大きさに関わらず、 Al_2O_3 と Fe_2O_3 の濃度は出湯順番とともに増加する傾向にある一方、 CaO と SiO_2 濃度は減少する傾向になった。溶融炉全体を傾動して溶湯を出湯するので、固化体の出湯の順番による化学成分濃度の変化は、おおよそ溶湯の深さ方向の濃度分布を示していると考えられる。溶融炉に投入されたドラム缶は溶湯に浮かぶのではなく、常に着底している様子が観察された。ドラム缶の溶湯から露出している部分はプラズマフレームの直接照射によって素早く溶融され、その次のステップとしてドラム缶内容物が直接照射によって溶融された。主にドラム缶の溶湯に漬かっていた部分は、その後に溶湯自体の熱によって溶融されたと考えられる。特にドラム缶の鉄に関して、溶融されるタイミングに時間遅れが生じるとともに、スラグ主要成分のうち比重の大きい Fe_2O_3 が溶湯底部に存在することで、溶湯の Fe_2O_3 濃度は深さ方向に分布が形成されたと思われる。また、 Al_2O_3 は炉の耐火材(アルミナ・クロム系および高アルミナ)¹⁵⁾の主要構成成分であるアルミナの溶損によって溶湯底部の濃度が上昇している可能性がある。また、 Al_2O_3 の比重も他の成分 CaO 、 SiO_2 に比べて大きかったので、 Fe_2O_3 と同様に深さ方向に濃度分布が形成されたと思われる。一方、比較的比重の小さい CaO と SiO_2 の濃度は、 Al_2O_3 及び Fe_2O_3 の濃度の増加に伴い溶融固化体の出湯順に従って相対的に減少したものである。

それぞれの試験における溶湯粘度を左右する塩基度と酸化鉄濃度の設定値と実測値をTable 9に示す。設定値と実測値の違いは、実際に使用した産廃コンクリート片の化学成分組成にバラつきがあったためと思われる。

4.3 溶融保持時間

適切な溶融保持時間を調べるために、溶融完了確認直後に1回、そこから約30分おき3回溶湯サンプルを採取して化学成分を調べた。各試験（G33、G35、G36、G37）の溶湯サンプルの採取時間、化学成分濃度の分析値をTable 10-13に示す。G33では2回目にサンプリングした試料の分析結果によって、他の試験よりもバラツキの指標である変動係数が大きくなっているが、各試験において溶融完了直後のサンプルと出湯直前のサンプルの化学成分濃度は大きくは変わらなかった。

そこで、溶湯の均一化の進捗度合いを確認するために、溶融固化体の化学成分濃度のバラツキが最も大きかった酸化鉄に着目して、溶湯サンプルの酸化鉄濃度を最後に出湯した溶融固化体の酸化鉄濃度で規格化した値の変化をFigure 8に示す。規格化酸化鉄濃度は最終溶湯サンプルでも0.73~0.91程度であった。どの試験においても、溶融保持時間の経過と共に溶融固化体の酸化鉄濃度に徐々に近づいてはいるものの、完全溶融と共に主要化学成分、トレーサの濃度分布がほぼ均一化していた金属溶融²³⁾に比べると極めて遅いことが確認できた。表面加熱に留まるプラズマ加熱方式の場合、何らかの外力による攪拌操作を施さない限り、溶融保持時間を延長することによって溶湯の均一化を図ることは現実的でない。今後実施する実機稼働前試験においては、様々な加熱条件に対する溶湯の均一化の程度を把握しておく必要があると思われる。また、溶湯深さ方向の化学成分濃度分布を調査するために、深さ方向に複数点サンプリングできるような溶湯サンプル採取治具⁴⁷⁾を用いることが望ましい（Figure 9 参照）。サンプリング口の高さに合わせて複数のB型熱電対を設置しておけば、溶融炉内温度分布も同時に計測可能となり有用であると思われる。

4.4 スラグ粘性と均一性

予察試験で得られた溶融スラグの粘度を測定した。溶融スラグの化学組成については溶湯の深さ方向にある程度の濃度分布を有するので、その試験での代表粘度の指標として2番目（G36は3番目）に出湯した固化体の同一箇所からサンプリングした試料を測定した。溶融スラグの粘度の温度依存性をFigure 10, 11に示す。

図中の赤い破線は運転基準粘度（10Pa・s）であるが、本試験条件において1400℃以上で基準粘度を満たせることが分かった。Table 3に示すように、出湯プロセス時に溶湯平均温度が1480~1565℃であることを考えると、十分に余裕のある粘度範囲で出湯できたことがわかった。酸化鉄濃度が20%程度のG33、G35、G36のスラグ粘度は、塩基度の上昇と共に低下した（Figure 10）。また、塩基度が同程度で酸化鉄濃度が違うG33とG37については、酸化鉄を増加させることで1桁程度粘度が低下したが、1400℃近辺からG37の粘度が急激に増加した（Figure 11）。ここで、粘度を測定したスラグ中の酸化第一鉄、第二鉄及び金属鉄の割合をTable 14に示す。塩基性酸化物である酸化第一鉄が酸化鉄中に占める割合が多いスラグほど粘度が低い傾向があった。しかしながら、G37における粘度の急激な増加については、単純に塩基度と酸化第一鉄及び第二鉄の値だけでは説明できない。スラグの構造モデル等も含めて議論する必要があり、粘度の急激な増加は溶融炉の出湯口付近の閉塞を引き起こす可能性があるため、十分に注意する必要がある。

1400℃におけるスラグの粘度とFe₂O₃濃度の変動係数の関係をFigure 12に示す。粘度が低いほど、均一性の目安となる酸化鉄の変動係数が小さい傾向を示し、溶湯の均一性が高いと考えられる。

金属鉄の割合は粘性測定スラグにおいてはTable 14に示すように0.1wt%程度であった。しかしながら、G37において粉碎方法を変更した試料の金属鉄成分において、シェイクマスターオートで粉碎した試料の金属鉄はアルミナボールミルで粉碎したものの50倍となっていた。ステンレス製の高速スタンプミルで粉碎したもののアルミナボールミルのそれに比べて5倍程度大きいので、粉碎過程においてスラグに鉄分

のコンタミがあった可能性がある。アルミナボールミル粉碎した試料の全鉄における金属鉄の割合が極めて小さいので、ドラム缶などの鉄はプラズマ溶融によってほぼ酸化されていたことが分かった。

また、アルミナボールミルで粉碎した試料の酸化第一鉄の割合が一番小さかったことから、鉄成分を含む工具による粉碎は酸化第一鉄と第二鉄の割合変化に寄与した可能性がある。前述のとおり、酸化第一鉄と第二鉄で粘性に与える影響が異なるので、今後の分析においては目的に応じて粉碎方法も考慮する必要がある。

今回の試験において、スラグ粘性が低いほど均一性が向上する傾向が得られたが、溶湯の深さ方向にある程度の化学成分濃度分布と温度分布を有するということが分かったので、溶湯全体で粘度にある程度の分布を有すると考えられる。今後、スラグ粘性と溶湯均一性を検討することで運転計画を立てるためにも、幅広い化学組成にわたるスラグ粘性のデータベースを得ることが重要である。

4.5 溶湯サンプルのトレーサー残存挙動について

溶湯からの放射性核種の揮発挙動を調べるために、溶湯サンプルに含まれるトレーサー濃度を分析した。各試験における溶湯サンプル中のコバルト、セシウム濃度と、初期投入されたトレーサーが全て溶湯に保持された場合のコバルト、セシウム濃度を Table 15 に示す。コバルト濃度は溶融保持時間に関わらずほぼ一定であった。しかしながら、本来は加熱方式に関わらず、ほぼ溶融固化体に残存するコバルトが^{45,46}、60%程度しか残存していないケースもあったので、コバルトが 100%残存したと仮定した残存率も算定した (Table 16 参照)。セシウム濃度については、試験によって程度の差こそあるものの、溶融保持の時間が長くなるに連れて徐々に減少しており、溶湯からの揮発が進行している傾向があった。

各試験におけるプラズマ加熱の積算時間を Table 17 に示す。コバルトの残存率が 60%程度に留まった G33 と G37 の加熱時間に着目すると、1 時間以上異なっており、残存率と加熱時間の相関は見られない。溶融固化体に残存しなかったコバルトについては、ねじ式のステンレスボトルに封入してドラム缶に装荷したトレーサー (粉末状) の一部が、直接プラズマ照射されることによって溶湯に溶け込む前に揮発したことによるものと思われる。コバルトやセシウムは、原子力発電所から発生する低レベル放射性廃棄物の固化体の核種インベントリ評価に用いられるスケーリングファクタ法のキー核種になっている⁴⁸⁾。近い将来、原子力機構における放射性核種のインベントリ評価にもスケーリングファクタ法に準じた手法が用いられる場合、溶融固化体には必ず一定量のキー核種が残存している必要がある。

今後のトレーサーを用いたプラズマ溶融試験においては、予めプラズマ照射によって揮発しにくいトレーサーの装荷方法、性状及びトレーサー投入のタイミングを検討しておく必要がある。例えば、以前の小規模プラズマ溶融試験ではトレーサー溶液を模擬廃棄物のコンクリートに滴下し^{33,34)}、プラズマの直接照射によっても一気に揮発しにくい形にした。また、今回の試験ではトレーサーは各ドラム缶に均等に装荷したが、上記のトレーサー含有コンクリートを、高減容処理施設の金属溶融炉の実証試験で実施したように²³⁾、最後に投入するドラム缶のみに装荷することで、プラズマの直接照射によるトレーサーの揮発の影響を小さくすることができるとと思われる。

4.6 高温処理におけるセシウム揮発挙動について

一般的に、セシウムを含む廃棄物を高温処理する場合、大部分のセシウムは揮発し、排気ガス処理系へ飛灰の形で移行する。しかしながら、その揮発挙動は元の廃棄物の性状や廃棄物の化学成分等によって大きく異なる。これまでに、るつば規模の試験を含めた様々な種類の溶融試験においてセシウム揮発挙動は研究されてきた。今後の均一性試験の計画立案や実廃棄物処理に資するために、セシウム揮発挙動に関する他の研究成果の知見をまとめた。

4.6.1 ホウ珪酸ガラスにおける ^{137}Cs 揮発挙動

サバンナリバーサイトの再処理プラントから発生した高レベル液体放射性廃棄物のガラス固化技術開発の過程で、廃スラッジとセシウムを吸着した廃ゼオライトをブレンドさせてガラス固化する試験が実施された⁴⁹⁾。セシウム揮発確認試験（るつぽ規模）では、 ^{137}Cs を吸着したゼオライト、模擬スラッジと添加剤を 1150-1175°C で 3 時間溶融した。ホウ珪酸ガラス（最大ホウ素濃度約 20wt%）において、セシウムの揮発率は最大で 1.35% という非常に少ない値であった。

4.6.2 鉄富化玄武岩の溶融における ^{137}Cs 揮発挙動

アイダホ国立研究所（INL）では、軍事由来の TRU 廃棄物を固定化するためのガラスマトリクスとして鉄富化玄武岩（Iron-enrichment Basalt, IEB）を開発した。IEB とは天然の玄武岩中の鉄の含有率を富化した人工石（ガラス）である⁵⁰⁾。INL では IEB に関する研究を長年に亘って続けており、多種多様な廃棄物を均一化できる IEB をスリーマイル島原子力発電所（TMI）事故で発生した廃棄物処理に応用することを考えた⁵¹⁾。対象廃棄物はゼオライト（IE-95）と TMI コアデブリであった。ここではゼオライト処理に関して述べる。IE-95 の組成が IEB に似ていることに着目し、 ^{137}Cs と ^{85}Sr を吸着させた IE-95 を TMI 模擬廃棄物として 80%、添加剤 20%（酸化鉄 13%、酸化カルシウム 6%、酸化マグネシウム 1%）の配合比で、1500°C で 1 時間加熱してガラス固化体を製作した（溶融量 125g）。IE-95 及び標準 IEB の組成を Table 18 に示す⁵¹⁾。溶融温度が高かったにも関わらず、ガラス固化体のセシウム揮発率は 10% 未満であった⁵¹⁾。また、IEB を 1500°C で溶融した時の ^{137}Cs の揮発速度は約 0.32%/h と極めて低いことが確認された⁵⁰⁾。IEB の化学組成は本研究で取り扱うスラグと似ているだけでなく、IEB の処理温度も同程度（1500°C）であるので、セシウムの挙動等については大いに参考にできると思われる。

4.6.3 鉄富化玄武岩の焼成における ^{137}Cs 揮発挙動

上記と同じ研究グループが、標準 IEB と似た組成の酸化物（A-40）を焼成した時のセシウム揮発速度を測定した⁵²⁾。A-40 の組成を Table 18 に示す。試験に用いた A-40 の 1% の重量に相当するセシウム塩化物と $3.7 \times 10^4 \text{Bq}$ の ^{137}Cs を水溶液に溶かしてから滴下して試料全体を乾燥させた。その後、セシウム揮発速度を測定したところ、400°C では 0.067%/h だったのに対して、900°C では 22.7%/h と急上昇する結果となった。類似の化学成分の試料におけるセシウム揮発挙動の違いは、試料の融解が起こることで、溶融物内のセシウムの拡散速度が著しく減速したことによる。

4.6.4 粘土鉱物、ゼオライト近傍におけるセシウム高温挙動について

福島第一原子力発電所事故に起因するセシウムに汚染された土壌等の除染の研究結果から知られているように、セシウムがいったん粘土鉱物の結晶構造に取り込まれてしまえば、結晶構造そのものが破壊されない限りは容易に放出されない。原子力機構ではセシウムを含む土壌、粘土鉱物を最高 1500°C まで加熱し、イメージング XAFS によるセシウム分布を測定した⁵³⁾。分析結果によって、900°C ではセシウム分布と化学形は変わらず、1300°C で一部溶融によって分布が若干変化したもののセシウム自体は土壌に残存することが分かった。同じ研究グループによって、植物残渣焼却時に粘土鉱物を添加させた実験が実施された⁵⁴⁾。処理対象はセシウムを付着させた麦わらで、加熱前に粘土鉱物バーミキュライトが添加された。処理温度 800°C で 30 分保持したところ、飛灰粒子の発生量と粒子中のセシウム濃度が減少することが分かった。すなわち、セシウム汚染可燃物焼却時における粘土鉱物添加によるセシウム揮発抑制効果が確認された。

高温処理において、セシウムを捕捉しやすいものが近傍にあれば、セシウム揮発を抑制できる結果が小規模プラズマ加熱試験でも得られている⁵⁵⁾。大同特殊鋼と中部電力の実験では、金属 50g (炭素鋼か SUS304)、非金属 15g (シリカボード、コンクリート、シリカボード+コンクリート、ゼオライト) に対して、プラズマ加熱による金属単独溶融、金属非金属一括溶融を行った。放射性トレーサーとして、⁵¹Cr、¹³⁷Cs、⁵⁴Mn、⁵⁹Fe、⁶⁵Zn、⁶⁰Co 水溶液を金属表面に塗布し、乾燥した後に装置に設置した。雰囲気はアルゴンで、溶融温度は 1500°C で 5 分間加熱した。

金属相には ¹³⁷Cs は残存しなかったのに対して、ゼオライト無しスラグ相には 20% 残存、ゼオライト溶融スラグ相には 95% 残存していることが分かった。原子力機構の結果と合わせて、セシウム揮発時にゼオライトや粘土鉱物のようなセシウムを捕捉しやすい物質が近傍にあれば、いったん捕捉された上で、その物質の構造が壊れない限りセシウムは放出されにくい可能性がある。

4.6.5 プラズマ溶融処理におけるセシウム挙動のモデル化について

電力中央研究所は、スケーリングファクタ法を適用するための重要な因子となるセシウムの揮発挙動を把握するために、小型のプラズマ溶融試験装置を用いて、溶融物の組成、重量、加熱雰囲気、溶融炉表面積及び溶融時間をパラメータとした溶融試験を体系的に実施し、溶融固化体のセシウム捕捉率を推定可能なモデルを開発した⁵⁶⁻⁵⁸⁾。そのモデルによって、日本原子力発電株式会社の回転炉床式小規模試験炉 (PACT-2) の実験結果を解析した上で、敦賀発電所の雑固体溶融処理設備 (PACT-8) の運転条件に対する溶融固化体のセシウム捕捉率を推定することが可能となった⁵⁹⁾。

現在取り扱っている実機の小規模試験装置は存在しないが、電力中央研究所のセシウム揮発挙動のモデル化手法等は、今後の実機運用に先立って参考にできる。

5. 操業までに押さえておくべき技術要件

5.1 運転データの取り扱い

5.1.1 プラズマフレームの影響を受けない溶湯温度モニタリング

現在、プラズマ溶融炉に設置されている放射温度計で溶湯表面温度をモニターすることになっているが、前項で述べたとおりプラズマフレーム照射の光を感知することで実際の溶湯温度よりも 200-300°C 程度高い数値が記録される。溶融炉内天井温度をモニターすることで代用は可能ではあるが、実機操業に先立って改善されることが望ましい。

高減容処理施設の金属溶融炉の運転において、溶融対象廃棄物の成分に由来する発煙現象によって、炉内の視認性が一時的に低下する現象に対して、赤外線波長領域を視認できるカメラを設置することで、炉内部の視認性を向上させることができた⁶⁰⁾。プラズマ溶融炉でもフレームの光の影響を受けないモニターを設置する必要がある。三菱重工はごみ焼却灰溶融炉内における高煤塵下でのスラグ温度を連続計測可能な温度計を開発した^{61,62)}。しかしながら、スラグ温度の経時変化における振れ幅を見る限り、プラズマフレームの影響を排除しきれしていない可能性がある^{61,62)}。実機での最適な運転を実施するためにも、プラズマフレームの影響をできるだけ受けない測定法について調査を続ける必要がある。

5.1.2 溶湯粘度のリアルタイムモニタリング

溶融炉の運転において、溶湯の粘度をリアルタイムで把握できるのであれば、溶湯の成分や温度を適切に管理することで、高粘度溶湯による溶湯出湯部閉塞の防止や極低粘度溶湯による耐火材への浸潤がもたらす耐火物損耗を低減することが可能となる。

これまでに溶湯粘度のリアルタイム測定としては、溶融耐火物の一部をトランスデューサー（振動子）に替えて超音波せん断反射率を測定しているものや⁶³⁾、導波管を用いたミリ波測定技術によって連続的に測定するものがあるが⁶⁴⁾、いずれも試験的な段階であり、実機であるプラズマ溶融炉の耐火物を改造したり、導波管を天井ポートから導入して適用するには不向きである。一方、溶湯粘度の間接的な測定法としては、予め様々な組成のスラグに対する粘度データベースを作成した上で処理予定廃棄物成分から推定するか、溶融処理中の溶湯成分の迅速分析によって特定した成分をデータベースに当てはめて粘度を推定するリアルタイムに近い方法が考えられる。溶湯成分の迅速分析については、鉄鋼産業において溶湯の運搬や注湯に使われる取鍋中の鉄鋼スラグにパルスレーザーを照射することによって生成したプラズマからの発光を分光分析するレーザー誘起プラズマ発光分析法（LIBS）で鉄鋼スラグの主成分を遠隔、非接触で測定した例がある^{65,66)}。

なお、実廃棄物を処理する前の試験においては、粘度管理に必要な化学物質を随時投入可能であるが、実操業では全ての廃棄物はドラム缶ごと投入されるので、非定常に供給する粘度管理用のドラム缶の供給方法も併せて検討しておく必要がある。

5.2 溶融炉耐火物の損耗状況確認

現状では、一定期間の運転キャンペーン終了後に、炉内メンテナンスを実施している。コールド運転期間ということもあり、頭上に注意しながら損耗状況を目視で確認している。しかしながら、実廃棄物処理を開始すれば、炉内線量の上昇等によって炉内立ち入り時間が制限され、結果的に炉内の状況を十分に把握できなくなる可能性が生じる。

これまで、再処理施設のガラス固化設備等の耐火材の損耗状況の監視において、レーザースキャニング技術を応用したガラス溶融炉内の電極及び耐火レンガの腐食寸法を計測するシステムが導入されている⁶⁷⁾。一般産業においては、製鉄プロセスやごみ処理施設の耐火物メンテナンス方法として、レーザを応用して耐火物厚さを測定する方法が用いられている^{68,69)}。近年、3Dレーザースキャナー技術の発展に伴い、一般焼却炉等の耐火レンガ残厚を測定するシステムとして、小型軽量で既存の設備に後から設置できるものも開発されている⁷⁰⁾。

このような遠隔操作で正確な耐火物状況を把握できるシステムを、実廃棄物処理を実施する前までに導入することは非常に有用である。

6. 結論

プラズマ溶融処理による低レベル放射性廃棄物の均一化条件を明らかにするために予察試験を実施した。プラズマ溶融炉の操業パラメータとして、溶融廃棄物塩基度（ CaO/SiO_2 ）と酸化鉄濃度に着目し、溶融固化体化学成分の均一性を調査した。塩基度が約 0.3、酸化鉄濃度が約 20%で、溶融温度が約 1400℃以上であれば、十分に均一な溶融固化体を得る見通しを得た。

非放射性トレーサーの残存率については、プラズマフレームによる揮発の影響もあったため、操業パラメータや溶融保持時間との関係は明らかにできなかった。今後のトレーサーを用いたプラズマ溶融試験においては、トレーサーの装荷方法、性状及びトレーサー投入のタイミングを検討しておく必要がある。

今後の実操業に向けて、溶融廃棄物の均一化条件を左右するだけでなく、出湯工程における閉塞リスクにも関係するスラグ粘性については、対象とする範囲のデータが少ないので、粘度測定試験によってデータベースの拡充を図ることが最も重要である。

謝 辞

プラズマ溶融炉による溶融試験の実施及び本報告書の作成にあたり、貴重なご助言そしてご協力をいただいた旧株式会社テクノプロセス（現原子力エンジニアリング株式会社）に所属された渡辺眞樹男氏、根本英幸氏、檜村雄二氏、平野厚郎氏、松山浩紀氏、植野浩幸氏、小貫敏克氏、蛭田嗣男氏、五十嵐甚市氏、山田明夫氏、河村茂則氏、助川好文氏、大内明広氏に感謝の意を表す。スラグの化学成分分析にあたり、試料前処理等においてご指導そして貴重なご助言をいただいた茨城県工業技術センターの吉田博和氏、小島均氏に感謝の意を表す。スラグの粘度測定に全面的にご協力いただいた九州大学の中島邦彦教授、齊藤敬高准教授及び助永壮平助教（現東北大学多元物質科学研究所准教授）に感謝の意を表す。本報告書をまとめるにあたり、貴重なご助言、そしてご協力をいただいたバックエンド技術部の各氏に感謝の意を表す。

参考文献

- 1) International Atomic Energy Agency (IAEA), “Application of thermal technologies for processing of radioactive waste”, IAEA-TECDOC-1527 (2006), https://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/te_1527_web.pdf (accessed 2022-02-14).
- 2) Quade, U., “Radiological Characterization of Steel Scrap Recycling by Melting”, Proc. of ICEM2001, Sep. 30 - Oct. 4th, 2001, Bruges (Belgium) (2001).
- 3) 中山準平, 加藤修: “原子力施設の廃止措置と金属再利用”, 神戸製鋼技報, Vol.64(1), pp.94-97, (2014), https://www.kobelco.co.jp/technology-review/pdf/64_1/094-097.pdf (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 4) Heep, W., “The Zvilag Plasma Facility -Five years of successful operation-”, Proc. of ICEM2010, Oct. 3-7, 2010, Tsukuba (Japan) (2010).
- 5) Deckers, J., “The Innovative Plasma Tilting Furnace for Industrial Treatment of Radioactive Waste”, Proc. of Waste Management 2014 Conference, March 2-6, 2014, Phoenix (USA) (2014), <https://wmsym.org/archives/2014/papers/14420.pdf> (accessed 2022-02-14).
- 6) World Nuclear News, “Plasma plant starts operations in Bulgaria”, (2018), <https://www.world-nuclear-news.org/Articles/Plasma-plant-starts-operations-in-Bulgaria> (accessed 2022-02-14).
- 7) Deckers, J., “Plasma Technology to Recondition Radioactive Waste: Tests with Simulated Bitumen and Concrete in a Plasma Test Facility”, Mat. Sci. and Eng., Vol.818, 012006 (2020), <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1757-899X/818/1/012006> (accessed 2022-02-14).
- 8) 関西電力株式会社: “美浜発電所樹脂処理装置および雑固体廃棄物処理設備設置工事完了について”, 2002 年 1 月(2002), <https://www.kepco.co.jp/corporate/pr/2002/0111-1j.html> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 9) 満田安正, 竹内祐介, 南達蔵, 他: “美浜発電所における不燃性雑固体廃棄物の溶融処理”, 日本原子力学会「2003 年秋の大会」要旨集, 静岡大学, 2003 年 9 月 24 日-26 日, I66 (2003).
- 10) 中国電力株式会社: “島根原子力発電所 雑固体廃棄物処理設備の運用開始について”, 2002 年 3 月(2002), <https://www.energia.co.jp/atom/press01/p020301-1.pdf> (参照: 2022 年 02 月 14 日).
- 11) 日本原子力産業協会: “浜岡に雑固体廃棄物処理装置を設置”, 原子力産業新聞, 2002 年 12 月 19 日 (6)(2002), https://www.jaif.or.jp/data_archives/n-paper/sinbun2002-12.pdf (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 12) 辻行人: “回転炉床式プラズマ炉を用いた低レベル放射性廃棄物の溶融処理”, プラズマ・核融合学会誌, Vol.73(9), pp.949-955 (1997).

- 13) 日本原子力発電株式会社：“敦賀発電所 雑固体熔融処理設備の運用開始について”，(2005)，
<http://www.japc.co.jp/news/press/2005/pdf/170422.pdf> (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- 14) Nakashio, N., Higuchi, H., Momma, T., et al., “Trial operation of the advanced volume reduction facilities for LLW at JAEA”, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.44(3), pp.441-447 (2007), <https://doi.org/10.1080/18811248.2007.9711306> (accessed 2022-02-14).
- 15) 樋口秀和, 大杉武史, 中塩信行, 他：“高減容処理施設の建設整備及び運転管理について”，JAEA-Technology 2007-038, 189p. (2007), <https://doi.org/10.11484/jaea-technology-2007-038> (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- 16) 村田光也, 長田守弘, 高橋正光, 他：“PCB 汚染物等のプラズマ熔融分解処理技術”，新日鉄技報, Vol.382, pp.28-32, (2005), <https://www.nipponsteel.com/tech/report/nsc/pdf/38206.pdf> (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- 17) 田頭成能, 清水由章, 高橋正光, 他：“PCB 汚染物等のプラズマ熔融分解技術の高性能化”，神鋼環境ソリューション技報, Vol.4(1), pp.2-6, (2007), https://www.kobelco-eco.co.jp/development/docs/007_02.pdf (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- 18) 竹山俊通, 田頭成能, 清水由章, 他：“北九州 PCB 廃棄物処理施設向け PCB 汚染物等処理設備”，神鋼環境ソリューション技報, Vol.6(2), pp.15-20, (2010), https://www.kobelco-eco.co.jp/development/docs/012_04.pdf (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- 19) 神鋼環境ソリューション, 施設・技術紹介, “北海道 PCB 廃棄物処理施設 増設施設(プラズマ熔融分解処理施設)”，神鋼環境ソリューション技報, Vol.8(1), pp.42-43, (2011), https://www.kobelco-eco.co.jp/development/docs/015_09.pdf (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- 20) 化学工学会：“化学工学便覧(第 5 版)”，丸善，東京，p.890 (1988)。
- 21) 日本鋳物協会：“鋳物便覧”，丸善，東京，p.498 (1986)。
- 22) 佐藤譲, 杉澤孝志, 青木大輔, 他：“ステンレス鋼の基礎系としての熔融 Fe-Cr-Ni 三元系合金の粘度”，材料とプロセス：日本鉄鋼協会講演論文集, Vol.16(4), p.1017 (2003)。
- 23) Nakashio, N., Osugi, T., Iseda, H., et al., “The verification tests of the melting conditions for homogenization of metallic LLW at the JAEA”, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.53(1), pp.139-145 (2016), <https://doi.org/10.1080/00223131.2015.1023756> (accessed 2022-02-14)。
- 24) 飯田孝道, 喜多喜史, 上田満, 他：“熔融スラグ・ガラスの粘性 -物性工学的アプローチによる多成分形複雑液体の高精度な粘度推算法-”，アグネ技術センター，東京，p.159(2003)。
- 25) 福井寿樹, 中塩信行, 磯部元康, 他：“雑固体廃棄物の熔融固化体製作条件に関する調査・検討”，JAERI-Review 2000-033, 82p. (2001). <https://doi.org/10.11484/jaeri-review-2000-033> (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- 26) Mazurin, O. V., Streltsina, M. V., and Shviko-Shvaikovskaya, T. P., “Handbook of Glass Data, Part.C Ternary silicate glasses”, Elsevier, Amsterdam, pp.779-782 (1987)。
- 27) Verein Deutscher Eisenhüttenleute, “Slag Atlas, 2nd ed.”, Verlag Stahleisen GmbH, Düsseldorf (1995)。
- 28) Gimmelfarb, A. A., “Viscosity of slags of four-componential system CaO-SiO₂-FeO-Al₂O₃”, Izv. Akad. SSSR Metally., 2, 59 (1968) [In Russian]。
- 29) 中塩信行, 涌井拓治, 大竹敦志, 他：“低レベル放射性雑固体廃棄物の熔融スラグの粘性”，日本原子力学会「2002 年春の年会」要旨集, 神戸商船大学, 2002 年 3 月 27 日-29 日, K31 (2002)。
- 30) 山根正之, 安井至, 和田正道, 他：“ガラス工学ハンドブック”，朝倉書店，東京，pp.355-357 (1999)。
- 31) 嶋村和郎, 濱中義孝：“都市ごみ焼却灰を模擬した灰の流動性に関する基礎研究”，三井造船技報, Vol.157, p.48, (1996)。
- 32) Norton, O. P., Okhuysen, W. P., Shepard, W. S., et al., “Measurement of viscosity of a melt in a plasma centrifugal furnace”, U.S. Patent No. 5,868,027, Feb. 9, 1999 (1999)。

- 33) Nakashima, M., Fukui, T., Nakashio, N., et al., “Characterization of solidified products yielded by plasma melting treatment of simulated non-metallic radioactive wastes”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol.39(6), pp.687-694 (2002), <https://doi.org/10.1080/18811248.2002.9715250> (accessed 2022-02-14).
- 34) Nakashima, M., Nakashio, N., Kameo, Y., et al., “Effects of basicity and FeO concentration on the retention of ¹³⁷Cs and ⁶⁰Co in slag made from non-metallic radioactive wastes”, *Radiochim. Acta*. Vol.91, pp.45-51 (2003).
- 35) 中塩信行, 亀尾裕, 星亜紀子, 他: “不燃性雑固体廃棄物の溶融処理技術開発 -雑固体溶融固化体特性試験-”, *JAEA-Review 2007-005* 35p. (2007), <https://doi.org/10.11484/jaea-review-2007-005> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 36) 林直美: “保安管理業務報告 -平成 18 年度下半期-”, *JAEA-Review 2007-048*, pp.14-16 (2008), <https://dx.doi.org/10.11484/jaea-review-2007-048> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 37) 池谷正太郎, 横堀智彦, 石川譲二, 他: “高減容処理施設の溶融設備における安全対策について; 溶融設備に係る意見交換会資料集”, *JAEA-Review 2018-016*, p.23 (2018), <https://doi.org/10.11484/jaea-review-2018-016> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 38) 日本工業規格, JIS M 8212:2005, 鉄鉱石-全鉄定量方法 (2005 年 3 月).
- 39) 日本工業規格, JIS M 8213:1995, 鉄鉱石-酸可溶性鉄(II)定量方法 (1995 年 9 月).
- 40) 飯田孝道, 喜多喜史, 上田満, 他: 前掲 24), pp.25-39 (2003).
- 41) 助永壮平, 永久哲也, 権田義明, 他: “酸化鉄含有多元系スラグの粘度”, *鉄と鋼*, Vol. 96, No.8, pp.469-474 (2010), <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.96.469> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 42) 日本廃棄物処理施設技術管理者協議会: “灰溶融施設の運転管理に関する実態調査報告書”, 丸善, p.7 (2007), https://jaem.or.jp/cms/wp-content/uploads/2019/08/untankanri-houkokusho_0703.pdf (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 43) Nakamura, H., and Fujiki, K., “Melting tests for recycling slightly radioactive metallic wastes arising from decommissioning”, *Nucl. Technol.*, Vol.117(2), pp.195-205 (1997).
- 44) 中塩信行, 中島幹雄, 平林孝罔: “50L 規模の雑固体廃棄物溶融固化体の性能と放射能分布の均一性評価”, *日本原子力学会和文誌*, Vol.3(3), pp.279-287 (2004), <https://doi.org/10.3327/taesj2002.3.279> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 45) 小畑政道, 手寫孝弥, 倉橋隆文他: “高周波誘導加熱方式による溶融体製作時の核種挙動”, *原子力バックエンド研究*, Vol.4(2), pp.21-30 (1998), <https://doi.org/10.3327/jnuce.4.21> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 46) 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 溶融固化体の性状に与える廃棄物組成の影響”, *電気学会論文誌 A*, Vol.119(3), pp.357-364 (1999).
- 47) 坂内仁, 佐藤勇, 堂野前寧, 他: “固体廃棄物減容処理施設のインキャン式高周波誘導加熱方式を用いた焼却溶融処理技術に対する確証試験”, *JAEA-Review 2015-059*, p.14 (2016), <https://doi.org/10.11484/jaea-technology-2015-059> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 48) 松村勝秀, 平井輝幸, 北島英明, 他: “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*, Vol.2(1-2), pp.153-181 (1996), <https://doi.org/10.3327/jnuce.2.153> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 49) Kelly, J. A., “Evaluation of glass as a matrix for solidification of Savannah River plant waste -Nonradioactive and tracer studies-” DP1382, (1975).
- 50) Welch, J. M., Schuman, R. P., Sill, C. W., et al., “Iron-enriched Basalt for Containment of Nuclear Wastes”, *Sci. Bas. Nucl. Waste Manag.*, pp.23-30 (1982).
- 51) Kelsey Jr., P. V., Schuman, R. P., Welch, J. M., et al., “Iron-enriched Basalt and Its Application to Three-mile Island Radioactive Waste Disposal”, *Sci. Bas. Nucl. Waste Manag.*, pp.533-540 (1982).

- 52) Sill, C. W., “Volatility of Cesium and Strontium from a Synthetic Basalt”, Nucl. Chem. Was. Manag., Vol.8, pp.97-105 (1988).
- 53) 岡本芳浩, 大杉武史, 塩飽秀啓, 他: “粘土鉱物からの Cs 吸脱着機構の解明と減容化のための脱離法の開発(4)熱処理粘土鉱物におけるセシウム移行挙動の解析”, 日本原子力学会「2013 年秋の大会」要旨集, 八戸工業大学, 2013 年 9 月 3 日-5 日, O43 (2013).
- 54) 大杉武史, 埴律, 伊藤圭祐, 他: “植物残渣の焼却時に粘土鉱物の添加することによる飛灰抑制効果”, 日本原子力学会「2014 年秋の大会」要旨集, 京都大学, 2014 年 9 月 8 日-10 日, G25 (2014).
- 55) Osaki, M., and Yokoi, S., “Behavior of radionuclides during the smelting of noncombustible solid wastes”, Sci. Bas. Nucl. Waste Manage., pp.595-602 (1982).
- 56) 安井晋示, 天川正士: “低レベル放射性廃棄物のプラズマ溶融技術の開発 (その 10) —廃棄物の組成が Cs の蒸発挙動に与える影響—”, 電力中央研究所 研究報告書 W96015, (1997), <https://criepi.denken.or.jp/jp/kenkikaku/report/detail/W96015.html> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 57) 安井晋示, 天川正士: “低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融時におけるセシウム蒸発挙動”, 電力中央研究所 研究報告書 W98016, (1999), <https://criepi.denken.or.jp/jp/kenkikaku/report/detail/W98016.html> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 58) 安井晋示, 天川正士: “低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融処理におけるセシウム捕捉率推定手法”, 電力中央研究所 研究報告書 W00009, (2001), <https://criepi.denken.or.jp/jp/kenkikaku/report/detail/W00009.html> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 59) 安井晋示, 天川正士: “低レベル放射性雑固体廃棄物のプラズマ溶融処理におけるセシウム捕捉率推定手法”, 電力中央研究所 研究報告書 W18, (2003), <https://criepi.denken.or.jp/jp/kenkikaku/report/detail/W18.html> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 60) 石川譲二, 中塩信行, 大杉武史, 他: “赤外波長カメラを用いた金属溶融炉内監視状況の改善”, 日本原子力学会「2011 年春の年会」要旨集, C19 (2011).
- 61) 野間彰, 原田朋弘, 山下一郎, 他: “灰溶融炉内高煤塵下でのスラグ温度の連続測定技術”, 三菱重工技報, Vol.42(1), pp.32-33 (2005), <https://www.mhi.co.jp/technology/review/pdf/421/421032.pdf> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 62) 原田朋弘, 野間彰, 藤川直樹, 他: “ごみ焼却灰溶融プラントサービスのための計測技術”, 三菱重工技報, Vol.49(4), pp.2-9 (2012), <https://www.mhi.co.jp/technology/review/pdf/494/494002.pdf> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 63) Balasubramaniam, K., Shah, V. V., Costley, R. D., et al., “High temperature ultrasonic sensor for the simultaneous measurement of viscosity and temperature of melts”, Review of Scientific Instruments, 70(12), pp.4618-4623 (1999).
- 64) Woskov, P. P., Sundaram, S. K., and Daniel, Jr., W. E., “Millimeter-Wave Measurements of High Level and Low Level Activity Glass Melts Final Report”, PSFC/RR-08-4 (2008), https://dspace.mit.edu/bitstream/handle/1721.1/93294/08rr004_full.pdf (accessed 2022-02-14).
- 65) Wang, Z., Deguchi, Y., Shiou, F., et al., “Application of Laser-Induced Breakdown Spectroscopy to Real-Time Elemental Monitoring of Iron and Steel Making Processes”, ISIJ Int., Vol. 56, pp.723-735 (2016), <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2015-542> (accessed 2022-02-14).
- 66) Sturm, V., Fleige, R., Kanter, M., et al., “Laser-Induced Breakdown Spectroscopy for 24/7 Automatic Liquid Slag Analysis at a Steel Works”, Anal. Chem., Vol. 86, pp. 9687-9692 (2014).
- 67) 中谷隆良, 新妻孝一, 藤原孝治, 他: “ガラス溶融炉の炉内計測技術の開発”, 日本原子力学会「2006 年秋の大会」要旨集, 北海道大学, 2006 年 9 月 27-29 日, A7 (2006).

- 68) 澤井重人, 橋本一菜, 塩川将人他: “製鋼用耐火物の診断技術”, 日本製鉄技報, Vol.415, pp.81-86 (2020), <https://www.nipponsteel.com/tech/report/pdf/415-15.pdf> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 69) 大内晴彦: “次世代型准連炉を目指すごみ処理施設～岩内地方清掃センターの現状～”, 環境技術会誌, Vol.183, pp. 182-183 (2021), <https://jaem.or.jp/cms/wp-content/uploads/2021/04/183-04.pdf> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- 70) 株式会社オーピーティ: “焼却炉レンガ残厚計測システム”, <https://www.opt-techno.com/product/cms2.html> (参照: 2022 年 2 月 14 日).

Table 1 Composition of the simulated wastes.

Test No.	G33	G35	G36	G37	G38 ^{*3}	G39 ^{*4}
Basicity (CaO/SiO ₂) of slag (-) ^{*1}	0.3	0.5	0.8	0.3	0.5	0.8
Iron oxide of slag (wt%) ^{*1}	20	20	20	40	40	40
Simulated wastes (kg)						
Concrete	960	810	763	799	673	541
Limestone	102	252	476	84	210	342
Carbon steel ^{*2}	138	138	161	317	317	317
Total weight	1200	1200	1400	1200	1200	1200
Tracers(kg)						
Co ₃ O ₄	2.7	2.6	2.9	2.9	2.8	2.8
Cs ₂ CO ₃	2.4	2.3	2.6	2.6	2.5	2.5
Number of 200L drum canister	6	6	7	6	6	6

*1 Target values.

*2 Total weight of 200L drum canisters and steel plates.

*3 Most of the molten slag could not be poured because of the trouble.

*4 The test was planned but not conducted because of the trouble.

Table 2 Weight of each solidified product.

Test No.	G33	G35	G36	G37	G38 ^{*1}
S1	305	305	295	305	215
S2	305	310	300	315	-
S3	310	305	300	300	-
S4	185	150	305	155	-
S5	-	-	105	-	-
Total	1105	1070	1305	1075	215

*1 Only the first pouring was done because of the trouble.

Table 3 Average temperature of molten wastes during the pouring process.

Test No.	G33	G35	G36	G37	G38 ^{*1}
S1	1511	1526	1508	1548	1513
S2	1502	1554	1516	1562	-
S3	1480	1497	1517	1565	-
S4	1506	1549	1512	1530	-
S5	-	-	1531	-	-

*1 Only the first pouring was done because of the trouble.

Table 4 Analysis data of slag samples of solidified products (G33).

Sampling points ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
S1-2	11.1	10.8	15.3	14.9	16.2	15.9	54.8	53.2
S1-6	10.9	10.9	15.0	15.0	15.9	16.0	54.3	54.3
S1-7	11.0	11.0	15.1	15.3	16.1	16.3	54.0	54.1
S1-12	11.0	10.9	15.1	15.0	16.0	16.0	53.7	53.7
S2-2	11.0	10.9	14.9	15.2	17.2	17.3	53.4	52.5
S2-6	11.1	11.0	14.9	14.9	17.2	17.2	53.5	52.8
S2-7	11.1	11.1	14.9	14.8	17.4	17.3	53.4	52.9
S2-12	11.2	11.2	15.0	15.0	17.3	17.3	53.4	53.1
S3-2	12.1	12.1	14.3	14.3	19.0	19.0	51.1	51.1
S3-6	12.2	12.1	14.3	14.3	18.9	18.9	51.1	51.0
S3-7	11.9	11.9	13.9	13.9	18.9	18.9	51.1	50.9
S3-12	12.2	11.9	14.2	14.0	18.9	18.7	51.9	50.7
S4-1	13.4	13.5	13.2	13.3	21.5	21.6	49.2	49.0
S4-2	12.7	12.7	13.6	13.8	20.2	20.4	49.2	49.0
S4-6	13.4	13.5	13.2	13.2	21.5	21.4	47.5	47.6
S4-7	13.4	13.3	13.2	13.1	21.5	21.5	47.7	47.3
Average	11.9		14.3		18.5		51.4	
Standard deviation	0.9		0.7		1.9		2.5	
Variation of coefficient (%)	8.0		5.2		10.5		4.7	

*1 S: a sample cut from a solidified product. A branch number means a sampling point of a solidified product according to Figure A5 of Appendix II.

Table 5 Analysis data of slag samples of solidified products (G35).

Sampling points ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
S1-2	10.5	10.5	19.6	19.8	19.1	19.1	45.6	45.8
S1-6	10.6	10.8	19.8	20.5	19.3	19.6	45.8	46.5
S1-7	10.6	10.7	19.8	19.9	19.2	19.3	45.8	45.8
S1-12	10.7	10.8	20.0	20.3	19.4	19.6	46.3	46.7
S2-2	11.0	11.1	19.3	19.8	19.7	20.0	44.9	45.3
S2-6	10.8	11.0	19.5	20.2	19.8	20.2	45.6	46.2
S2-7	10.8	11.0	19.4	19.9	19.8	20.2	45.4	46.5
S2-12	10.8	11.1	19.3	19.9	19.7	20.2	45.1	46.2
S3-2	11.6	12.1	19.0	19.8	20.9	21.5	44.1	45.9
S3-6	11.7	11.6	18.9	19.1	20.7	20.8	44.3	44.0
S3-7	11.7	12.1	18.8	19.9	20.7	21.4	44.1	45.7
S3-12	11.6	11.5	19.0	19.4	20.6	20.8	43.9	43.1
S4-1	13.3	13.8	17.9	18.5	23.5	24.1	41.6	42.9
S4-2	12.3	12.8	17.6	18.3	23.2	24.0	41.6	42.7
S4-3	12.4	12.7	17.8	18.3	23.4	23.7	41.5	42.2
S4-4	12.6	12.7	17.9	18.1	23.2	23.3	42.1	42.2
S4-5	12.9	13.1	17.9	18.3	23.5	23.8	42.1	42.6
Average	11.7		19.1		21.2		44.3	
Standard deviation	0.9		0.8		1.7		1.7	
Variation of coefficient (%)	8.1		4.2		8.2		3.8	

*1 S: a sample cut from a solidified product. A branch number means a sampling point of a solidified product according to Figure A5 of Appendix II.

Table 6 Analysis data of slag samples of solidified products (G36).

Sampling points ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
S1-2	9.9	9.9	24.1	24.2	25.1	25.0	36.5	36.2
S1-6	9.9	10.0	24.4	24.5	23.4	23.5	36.5	36.5
S1-7	9.8	9.9	23.7	24.5	25.4	25.9	35.3	35.6
S1-12	10.4	10.4	24.5	24.3	23.4	23.4	37.3	37.0
S2-2	10.4	10.6	24.6	25.1	23.7	24.0	37.5	38.1
S2-6	10.2	9.9	24.3	24.5	23.3	23.0	36.4	35.0
S2-7	10.5	10.7	24.7	25.2	23.1	23.4	37.2	37.6
S2-12	10.5	10.5	24.7	25.5	22.1	22.4	37.1	36.9
S3-2	10.5	10.6	23.9	24.4	24.1	24.4	36.3	36.6
S3-6	10.3	10.3	24.2	24.0	23.6	23.5	36.5	36.0
S3-7	10.5	10.6	24.6	25.1	23.2	23.5	37.1	37.3
S3-12	10.4	10.5	24.0	24.3	24.7	24.8	36.1	36.0
S4-2	11.6	11.3	24.7	24.4	22.4	21.9	37.8	36.5
S4-6	11.2	11.1	23.7	24.1	24.4	24.5	35.8	35.3
S4-7	11.1	11.6	23.4	24.6	24.0	24.9	35.3	36.6
S4-12	11.2	11.2	23.5	23.4	23.9	23.7	35.6	35.4
S5-1	14.3	13.0	21.2	22.0	25.7	26.3	33.0	32.5
S5-2	13.2	13.8	21.6	22.4	24.8	25.4	33.1	33.8
S5-3	13.3	13.5	20.8	20.9	26.4	26.5	32.2	32.2
S5-4	14.0	13.9	21.5	21.6	26.1	26.0	33.3	32.9
S5-5	14.1	13.5	20.9	21.1	25.1	25.0	32.9	31.2
Average	11.3		23.6		24.3		35.4	
Standard deviation	1.4		1.3		1.2		1.6	
Variation of coefficient (%)	12.6		5.8		5.0		4.6	

*1 S: a sample cut from a solidified product. A branch number means a sampling point of a solidified product according to Figure A5 of Appendix II.

Table 7 Analysis data of slag samples of solidified products (G37).

Sampling points ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
S1-2	10.6	10.7	14.8	15.2	30.7	31.2	40.8	40.6
S1-6	9.2	9.4	12.7	12.9	34.0	34.3	40.3	40.6
S1-7	9.7	9.6	13.3	13.4	31.2	31.2	42.4	41.9
S1-12	9.9	9.8	13.0	13.3	32.7	33.0	41.1	40.3
S2-2	10.0	10.5	13.1	13.8	31.6	32.9	41.3	42.8
S2-6	10.4	10.1	13.6	13.4	30.6	30.2	42.8	41.7
S2-7	10.1	9.9	13.1	13.0	33.1	32.8	41.3	40.3
S2-12	10.0	10.0	13.0	12.8	33.5	33.3	40.6	40.6
S3-2	10.9	11.0	13.3	13.6	31.3	31.8	41.3	41.3
S3-6	11.0	11.1	13.7	14.0	30.6	31.1	43.0	43.2
S3-7	10.6	10.4	13.0	13.3	33.4	33.8	40.6	39.7
S3-12	10.5	10.7	12.9	13.5	33.0	33.8	40.2	40.6
S4-1	12.5	12.5	13.0	13.4	31.6	32.2	38.8	38.5
S4-2	12.0	12.1	11.9	12.3	35.7	36.7	35.6	35.9
S4-3	11.8	11.8	11.7	11.9	36.9	37.3	35.1	34.9
S4-4	12.7	12.2	12.9	13.0	33.1	33.0	39.0	39.0
S4-5	11.1	11.5	11.1	11.5	39.0	40.1	33.5	34.4
Average	10.8		13.1		33.3		39.8	
Standard deviation	0.9		0.8		2.4		2.6	
Variation of coefficient (%)	8.8		6.4		7.2		6.5	

*1 S: a sample cut from a solidified product. A branch number means a sampling point of a solidified product according to Figure A5 of Appendix II.

Table 8 Average values of chemical components in solidified products
(G33, G35, G36, G37).

Test No.	Solidified products	Main components in slag (wt%)			
		Al ₂ O ₃	CaO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂
G33	S1	11.0	15.1	16.1	54.0
	S2	11.1	14.9	17.3	53.1
	S3	12.1	14.1	18.9	51.1
	S4	13.2	13.3	21.2	48.0
	Variation of coefficient (%) [*]	8.0	5.2	10.5	4.7
G35	S1	10.7	19.9	19.3	46.0
	S2	10.9	19.7	20.0	45.6
	S3	11.7	19.2	20.9	44.4
	S4	12.9	18.1	23.6	42.2
	Variation of coefficient (%) [*]	8.1	4.2	8.2	3.8
G36	S1	10.0	24.3	24.4	36.1
	S2	10.4	24.8	23.1	36.5
	S3	10.5	24.3	24.0	36.2
	S4	11.3	24.0	23.7	35.9
	S5	13.7	21.4	25.7	32.7
	Variation of coefficient (%) [*]	12.6	5.8	5.0	4.6
G37	S1	9.9	13.6	32.3	41.0
	S2	10.1	13.2	32.2	41.4
	S3	10.8	13.4	32.4	41.2
	S4	12.0	12.3	35.6	36.5
	Variation of coefficient (%) [*]	8.8	6.4	7.2	6.5

* The variation of coefficient for each test is calculated from the values at all sampling points (see Tables 4-7).

Table 9 Target values and measured values in chemical components (Basicity and Iron oxide) of solidified products (G33, G35, G36, G37).

Test No.	Basicity (CaO/SiO ₂) of slag (-)		Iron oxide of slag (wt%)	
	Target values	Measured values	Target values	Measured values
G33	0.3	0.28	20	18.5
G35	0.5	0.43	20	21.2
G36	0.8	0.66	20	24.3
G37	0.3	0.32	40	33.3

Table 10 Chemical components in the molten bath samples (G33).

Molten bath samples (min.)* ¹	Main components in slag (wt%)								
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂		
M1(2)	10.3	10.2	14.8	14.8	13.5	13.5	58.7	58.1	
M2(33)	9.7	9.8	12.0	12.0	12.0	12.0	63.8	63.5	
M3(63)	10.7	10.5	14.9	14.5	14.9	14.7	56.8	55.9	
M4(95)	10.8	10.8	14.8	14.8	15.5	15.5	56.4	56.5	
Average	10.3		14.1		13.9		58.7		
Standard deviation	0.4		1.3		1.4		3.2		
Variation of coefficient (%)	4.2		9.1		10.2		5.4		

*1 M: sample taken from the molten bath. Numbers in parenthesis are elapsed time (minutes) after complete melting.

Table 11 Chemical components in the molten bath samples (G35).

Molten bath samples (min.) ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
M1(9)	10.0	10.0	19.4	19.2	17.5	17.5	48.7	48.4
M2(39)	10.2	10.2	20.5	20.7	18.5	18.5	47.0	46.9
M3(70)	10.1	10.3	20.0	20.2	18.5	18.7	45.9	46.4
M4(100)	10.5	10.4	19.7	19.9	19.1	19.0	46.2	45.8
Average	10.2		19.9		18.4		46.9	
Standard deviation	0.2		0.5		0.6		1.1	
Variation of coefficient (%)	1.7		2.6		3.3		2.4	

*1 M:sample taken from the molten bath. Numbers in parenthesis are elapsed time (minutes) after complete melting.

Table 12 Chemical components in the molten bath samples (G36).

Molten bath samples (min.) ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
M1(4)	8.1	8.2	25.5	25.6	23.0	22.9	36.7	36.7
M2(34)	9.0	9.2	25.1	25.5	23.3	23.4	36.8	37.2
M3(63)	9.6	9.5	24.8	24.9	23.5	23.6	36.7	36.9
M4(95)	9.8	9.6	24.5	24.2	23.5	23.1	36.2	35.5
Average	9.1		25.0		23.3		36.6	
Standard deviation	0.6		0.5		0.2		0.5	
Variation of coefficient (%)	7.1		2.0		1.1		1.4	

*1 M:sample taken from the molten bath. Numbers in parenthesis are elapsed time (minutes) after complete melting.

Table 13 Chemical components in the molten bath samples (G37).

Molten bath samples (min.) ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
M1(3)	8.7	9.0	13.4	13.9	28.9	29.7	46.5	47.2
M2(33)	9.2	8.9	12.7	12.8	28.9	28.8	46.7	45.4
M3(63)	9.4	9.1	13.4	13.4	31.2	30.8	42.5	41.0
M4(98)	9.9	9.7	13.3	13.1	31.7	31.3	42.4	41.5
Average	9.3		13.3		30.2		44.1	
Standard deviation	0.4		0.4		1.2		2.6	
Variation of coefficient (%)	4.4		2.8		4.1		5.8	

*1 M: sample taken from the molten bath. Numbers in parenthesis are elapsed time (minutes) after complete melting.

Table 14 Type of iron oxide in slag samples (wt%).

Samples	Total Fe	Fe oxides		Metal Fe
		FeO	Fe ₂ O ₃	
G33-2-6	11.8	1.3	15.2	0.10
G35-2-6	14.4	3.4	16.7	0.11
G36-3-6	17.8	6.4	18.1	0.13
G37-2-6	21.5	8.5	21.1	0.13
G37-2-6(BM) ^{*1}	21.8	5.6	25.0	0.02
G37-2-6(SM) ^{*1}	22.3	10.0	19.2	1.10

*1 BM: a slag sample was grinded by the Al₂O₃ ball mill. SM: a slag sample was grinded by the stainless steel ball mill.

Table 15 Tracer concentrations in the molten bath samples.

Molten bath samples ^{*1}	Tracer concentrations in slag (ppm)									
	G33		G35		G36		G37		G38	
	Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs
M1	1200	500	1300	530	1600	660	1200	550	1600	690
M2	1000	380	1400	440	1600	650	1100	570	1700	470
M3	1200	410	1400	580	1600	630	1200	520	1600	710
M4	1200	440	1400	450	1600	600	1200	430	1700	520
Molten bath ^{*2}	1783	1782	1783	1784	1642	1641	2008	2004	1876	1867

*1 M: a sample taken from the molten bath. *2 Estimated concentration when all tracers remain in the molten bath.

Table 16 Retention rates of tracers in the molten bath samples.

Molten bath samples ^{*1}	Retention rates of tracers in slag ^{*2} (%)									
	G33		G35		G36		G37		G38	
	Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs	Co	Cs
M1	67.3	28.1	72.9	29.7	97.4	40.2	59.8	27.5	85.3	37.0
	(100)	(41.8)	(100)	(40.7)	(100)	(41.3)	(100)	(46.0)	(100)	(43.4)
M2	56.1	21.3	78.5	24.7	97.4	39.6	54.8	28.5	90.6	25.2
	(100)	(38.0)	(100)	(31.5)	(100)	(40.7)	(100)	(52.0)	(100)	(27.8)
M3	67.3	23.0	78.5	32.5	97.4	38.4	59.8	26.0	85.3	38.0
	(100)	(34.2)	(100)	(41.4)	(100)	(39.4)	(100)	(43.5)	(100)	(44.5)
M4	67.3	24.7	78.5	25.2	97.4	36.6	59.8	21.5	90.6	27.8
	(100)	(36.7)	(100)	(32.1)	(100)	(37.6)	(100)	(36.0)	(100)	(30.7)

*1 M: a sample taken from the molten bath. *2 Numbers in parentheses indicate retention of cesium assuming that retention of cobalt is 100%.

Table 17 Plasma heating time.

Test No.	G33	G35	G36	G37	G38
Plasma heating time (h:min) ^{*1}	6:22	5:14	5:50	4:36	4:24
Temperature holding time (h:min) ^{*2}	1:35	1:40	1:35	1:38	1:32
Plasma flame injection time (h:min) ^{*3}	8:13	7:05	7:34	6:54	6:05

*1 Integration time from the start of plasma heating to the completion of melting.

*2 Integration time from the completion of melting to the start of pouring processes.

*3 Integration time from the start of plasma heating to the completion of pouring processes.

Table 18 Chemical components in IE-95 and Iron-enrichment Basalt (IEB) samples.

Samples	Main components (wt%)							Basicity(-) (CaO/SiO ₂)
	Al ₂ O ₃	CaO	Fe _x O _y ^{*1}	SiO ₂	Na ₂ O	MgO	K ₂ O	
IE-95	15-18	1-6	4	66-69	2-9	1-3	1-2	-
Nominal IEB	12	7	17.5	52	3	3	2	0.13
A-40	10.3	9.7	19.6	51.0	3.2	3.5	2.6	0.19

*1 Iron Oxide of IE-95 and Nominal IEB was written as “Fe₂O₃+FeO”, and that of A-40 was written as “Fe₃O₄” in the original paper.

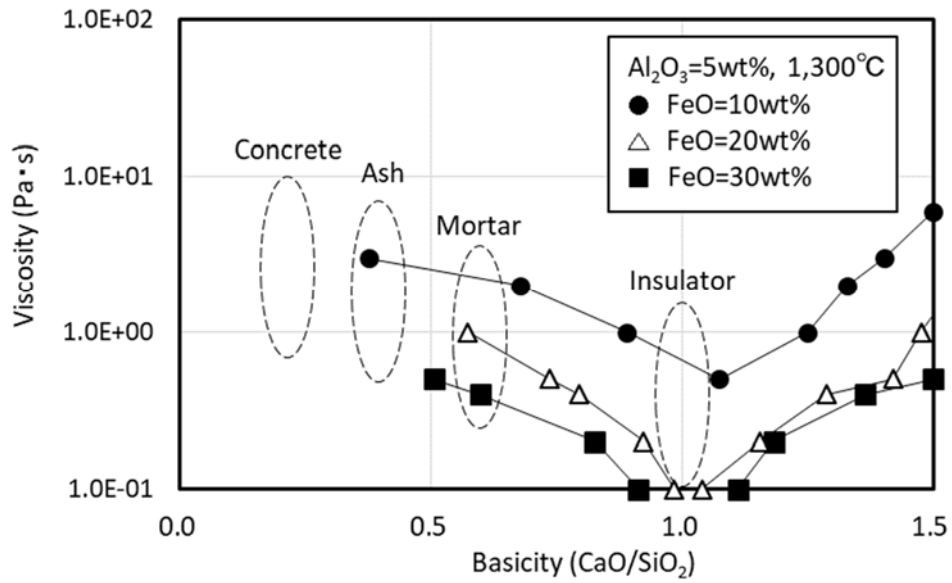


Figure 1 Relationship between basicity and viscosity of molten slag at 1300 °C (Al_2O_3 5wt%)

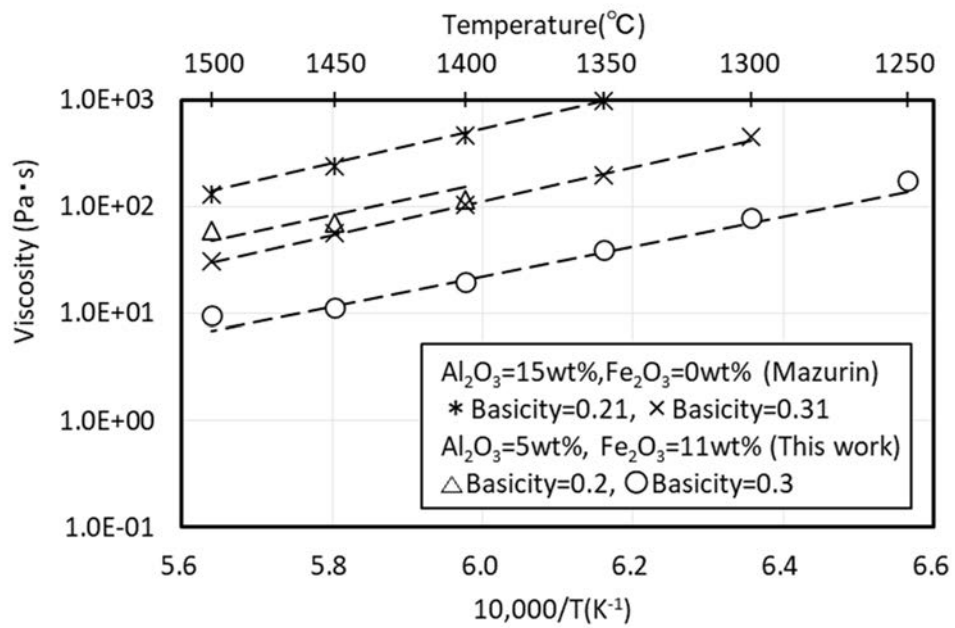


Figure 2 Temperature dependence of molten Al_2O_3 -CaO- Fe_2O_3 - SiO_2 slag viscosity due to differences in slag basicity.

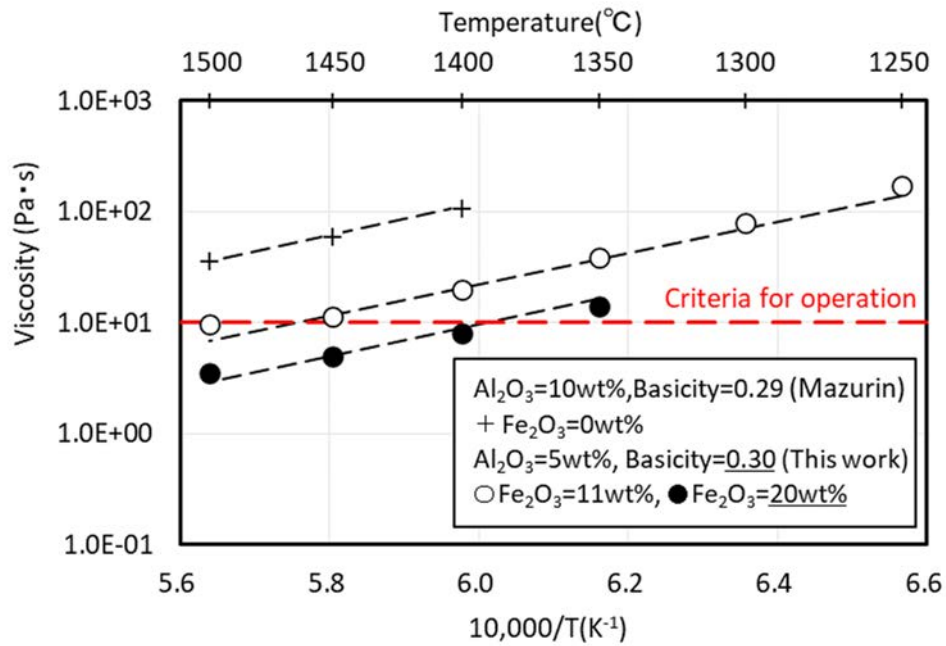


Figure 3 Temperature dependence of molten $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-CaO-Fe}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ slag viscosity due to differences in slag iron oxide concentration.

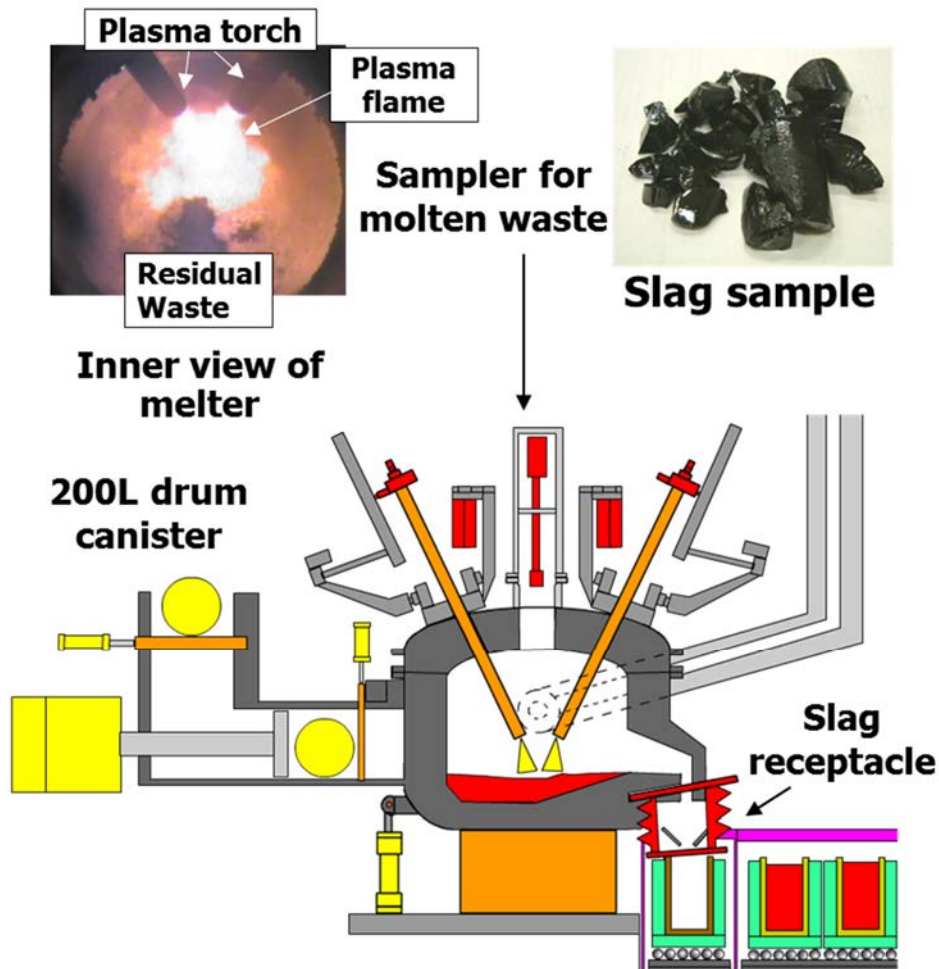


Figure 4 Schematic diagram of the plasma melter.

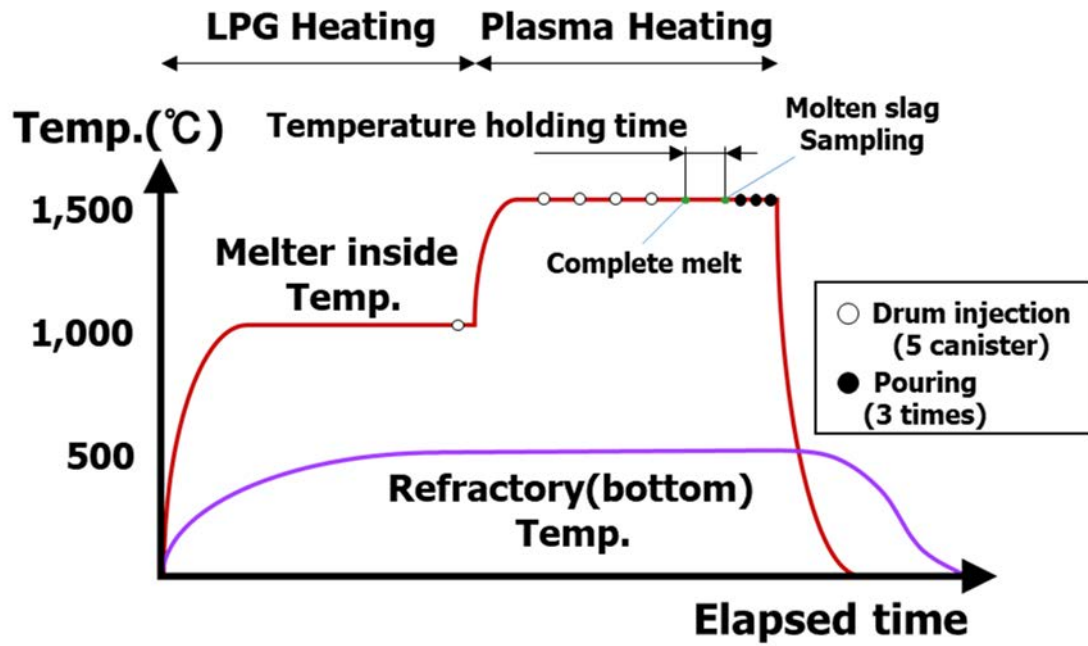


Figure 5 Pattern diagram of temperature for the plasma melter (a case of 1t melting).

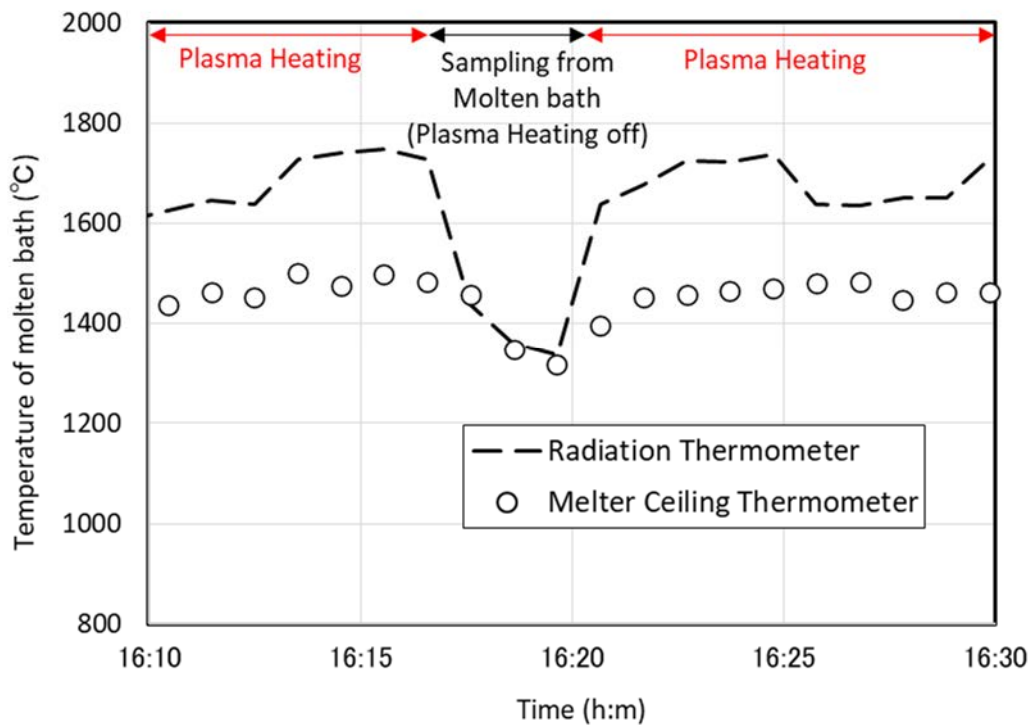


Figure 6 Molten bath temperature at first molten bath sampling of Test G33.

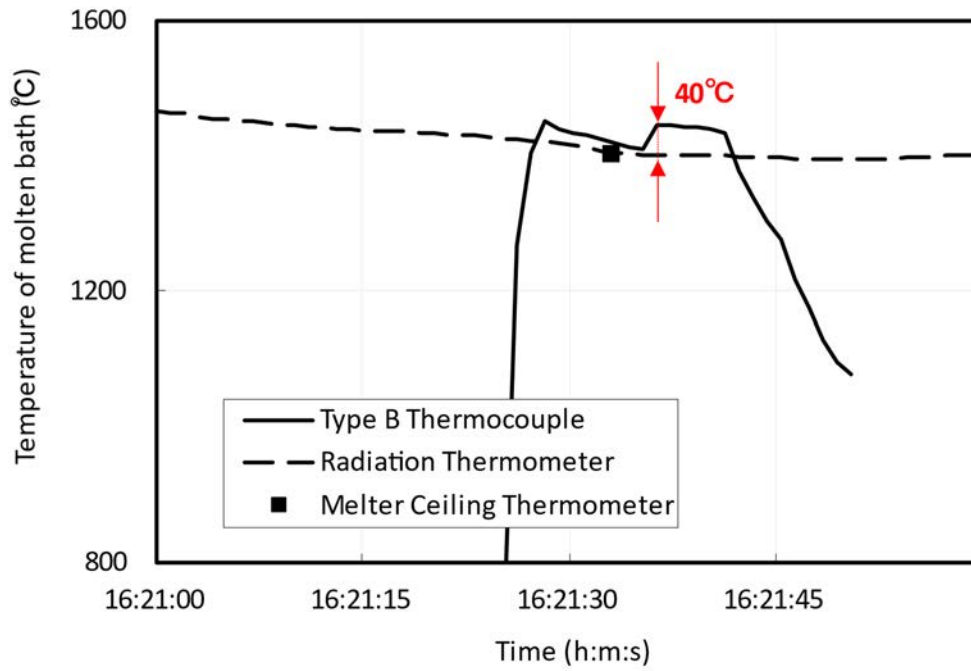


Figure 7 Molten bath temperature at just before the first pouring of Test G37.

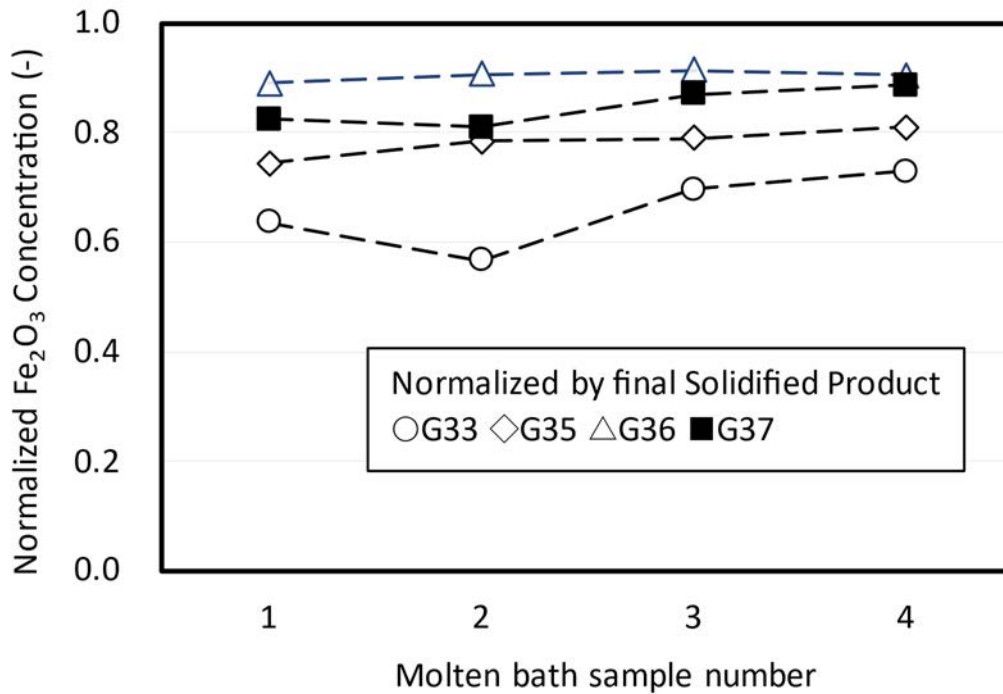


Figure 8 Comparison of normalized Fe_2O_3 concentration of molten bath samples.

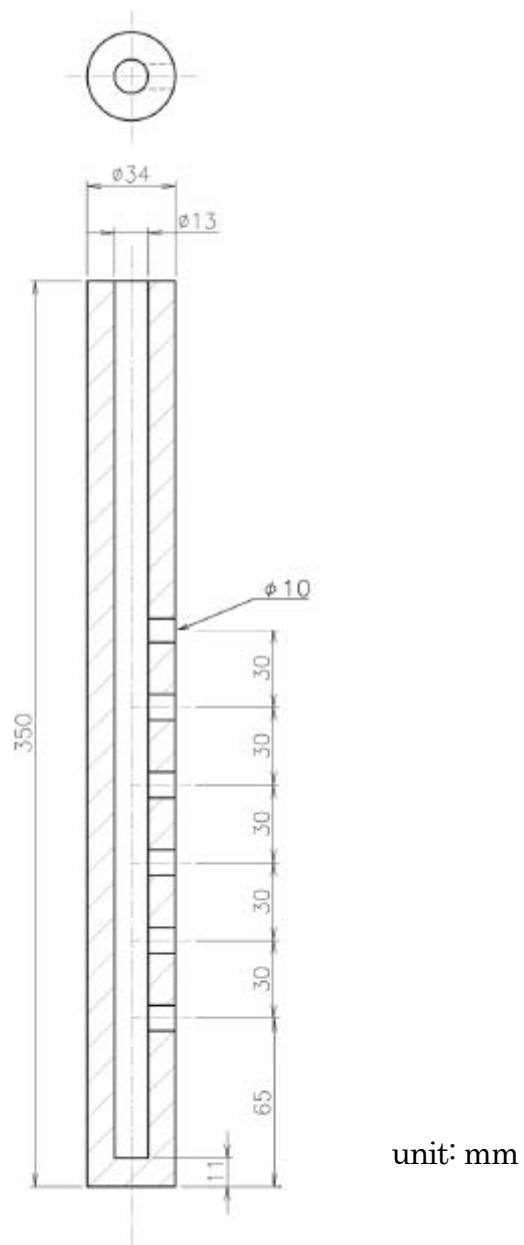


Figure 9 Outline drawing of a slag and metal sampling tube for melting furnace of OWTF.

[Cited from Ref. 47]

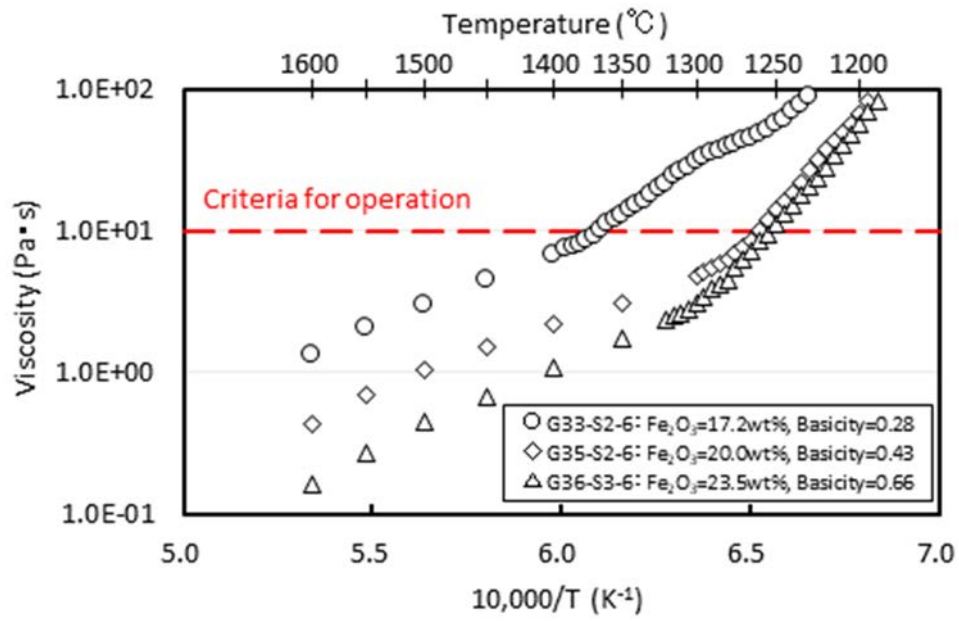


Figure 10 Temperature dependence of viscosity of slag taken from solidified products due to differences in slag basicity.

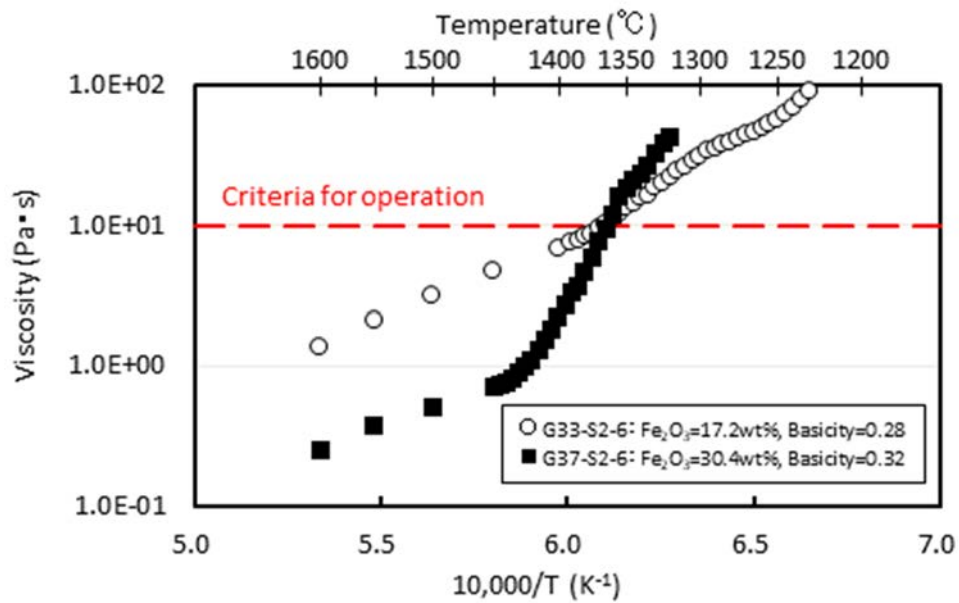


Figure 11 Temperature dependence of viscosity of slag taken from solidified products due to differences in slag iron oxide concentration.

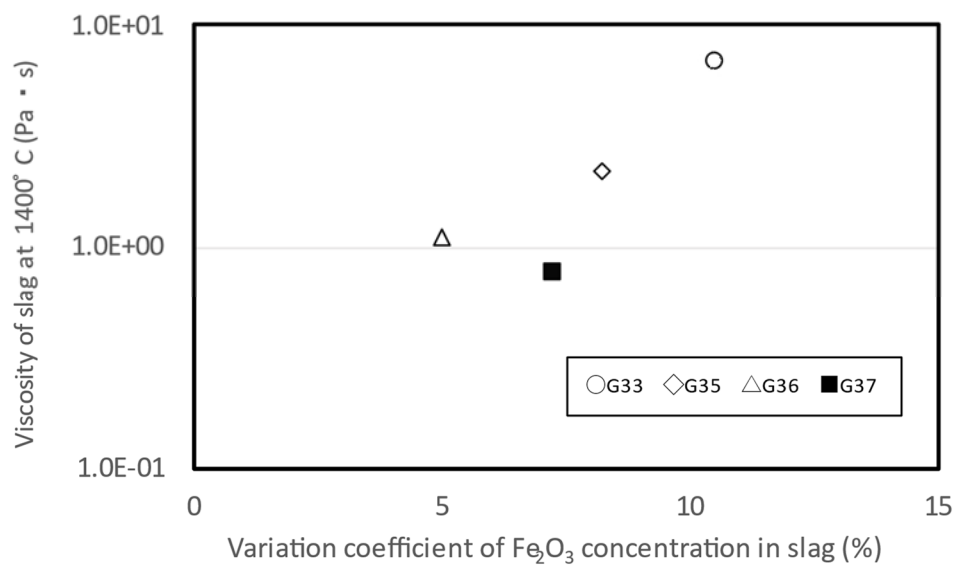


Figure 12 Viscosity of slag and variation of coefficient of slag iron oxide concentration.

付録I 溶融固化体（スラグ）の化学成分分析について ～ガラスビード作成及び蛍光 X 線分析～

A1. 目的

日本原子力研究開発機構原子力科学研究所では、固体状低レベル放射性廃棄物の減容、均一、安定化の観点から、プラズマ加熱による溶融処理を実施する予定である。現在、プラズマ溶融設備において、運転員の操業操作習熟、設備問題点の把握と対応、最適操業条件の把握を目的とした試運転を実施している。溶融処理の利点である廃棄物の減容化、安定化、均一化の中でも、溶融固化体における放射能分布の均一化は、処分のための放射能インベントリーの評価だけでなく、放射能分析費用の節約という観点からも非常に重要である。

放射性非金属廃棄物の均一化条件を明らかにするための予察試験に先立って、溶融試験で得られたスラグの分析手法、均一性の確認手法の確立を目指した。

A2. 溶融試験手順

予察試験条件を Table A1 に示す。コンクリートを中心とした非放射性の模擬廃棄物を中心に、塩基度（ CaO/SiO_2 ）と溶融固化体中の酸化鉄濃度をパラメータとした。また、加熱源のプラズマガスは空気であり、全ての模擬廃棄物は酸化されるので、溶融固化体はスラグと呼ばれる金属酸化物 1 層で形成される。試験手順は下記のとおりである。

- (1) 溶融炉内を LPG バーナーで予熱。
- (2) 廃棄物をドラム缶ごと炉内に投入し、プラズマ加熱により廃棄物を溶融。模擬廃棄物の溶融が炉内カメラ（ITV）で確認されれば、次のドラム缶を投入。
- (3) 所定の処理量の溶融完了を確認し、一定時間溶融状態を保持。出湯直前に溶湯から分析用試料をサンプリングする。
- (4) 受け容器にスラグを注ぎ分ける。
- (5) スラグ冷却固化後、固化体試料採取のため固化体を解体する。
- (6) 固化体試料の化学分析を行い一バッチにおける均一性を調べる。

ここで、溶融完了とは、最終投入のドラム缶がプラズマ加熱によって溶融され、ITV モニターでの目視により、溶湯面に固形物が確認されなくなった状態を指す。プラズマ溶融炉で無機廃棄物を処理したときの出力曲線のイメージを Figure A1 に、溶融炉の概要を Figure A2 に示す。

A3. 溶融固化体概要

試運転において、一バッチにおいて 1t を溶融した場合、300-330kg 程度の重量を持つ溶融固化体が約 3 体発生する。溶融固化体は、冷却固化後に X 線 CT 装置を用いて、固化体内の気泡等の性状を確認した。X 線 CT 装置画像の一例を Figure A3 に示す。次に、CT 画像を参考にして、スラグ受け容器をチップソーで切断し、受け容器の半分を剥がした上で（Figure A4）、固化体を縦方向に分割し、Figure A5 に示す固化体内位置から試料を採取した（最大 15 箇所）。一つの採取位置からは、およそ 1kg 程度の塊を取り出し、分析、測定法に合わせて試料の調製を行うこととした。

A4. 分析、測定法の選定

減容処理棟における化学成分分析法としては、以下の 4 つが考えられる。Table A2 にそれぞれの分析に必要な前処理、データが出るまでの日数及び分析精度等について示す。

(1) 蛍光 X 線分析装置 (FP 法)

スラグの標準固体試料が存在しないため、バッチごとに湿式分析が必要。試験的に切断したところ、1kg の塊の粗切断において 2 個程度で刃を替えねばならなかった。

(2) 蛍光 X 線分析装置 (検量線法)

土壌等の標準試料に融剤を加えてビードサンプラーで加熱することで、スラグ測定時の検量線用のガラスビード標準試料が作成可能であり、スラグ主要成分の分析 (%オーダー) であれば十分な精度を有する。

(3) 原子吸光光度計

分析精度は ppm オーダー。試料溶解、希釈等の前処理操作に習熟を要する。溶液試料は数日で変質する。

(4) ICP 発光分光分析装置

分析精度は ppb から ppm オーダー。試料溶解、希釈等の前処理操作に習熟を要する。溶液試料は数日で変質する。作動ガス等のユーティリティの消費が激しい。

以上の結果を考慮し、予察試験におけるルーチン分析においては、(2)蛍光 X 線分析装置 (検量線法) を使用することとした。

A5. 試料の調製

(1) 標準試料の作製

化学成分分析には蛍光 X 線分析法を用いるが、スラグの固体標準試料は無い。そこで、独立行政法人製品評価技術基盤機構で認証された岩石等の標準物質を用いてスラグ標準試料を作製した。Table A3 に用いた標準物質を示す^{A1)}。なお、予察試験で生成されるスラグでは、酸化鉄濃度が最大 30%程度になると予想されたので、酸化鉄を加えた標準物質も作製した。

標準物質を融剤 ($\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$) で 10 倍希釈し、ビードサンプラ (東京科学 TK4100) でガラスビードを成形した (Figure A6)。標準物質のガラスビードを用いて、スラグ分析を行う波長分散型蛍光 X 線分析装置 (島津 LAB Center XRF-1800) の検量線を作成した。

(2) スラグ試料の作製

スラグに含まれる化学成分のうち、コンクリートの主要成分である Al_2O_3 、 CaO 、 SiO_2 、 Na_2O 、 MgO 並びに廃棄物装荷ドラム缶の酸化によって生ずる Fe_2O_3 を分析対象とする。固化体を解体して採取した試料は、ステンレス製の高速スタンプミルで粉砕し、ふるいによって 100mesh 以下に分級した。ビード作製準備のために粉末試料を仮焼した。まず、試料を電気炉に設置し、 100°C /時間で昇温させ、 1025°C に到達したら 1 時間温度保持する。その後、放冷して 105°C まで温度を下降させる。 105°C になったら試料容器をデシケータに移し替えて保存する。乾燥したスラグ試料を融剤と混合させ、ビードサンプラーでガラスビードを成形した。

しかし、予備的にスラグのガラスビードを作製していくうちに、乾燥工程を経た一部のスラグにおいて、焼結によって再粉砕しなければ融剤と混合できないものがあった。そこで、加熱速度を緩和し、粉砕スラグに含まれる物理吸着水、結晶水分の脱離速度を減少させることでスラグの焼結を防ぐようにした。粉砕試料を電気炉に設置し、 480°C までは 60°C /時間、 800°C までは 100°C /時間とし、 800°C まで到達後 5 分間保持し、放冷して 105°C まで下降させてデシケータに移し替えて保存した。この結果、スラグの焼結は見受けられなくなった。

A6. 化学成分分析

予察試験に先立って行われた試験 (G28) において^{A2)}、固化体を解体し化学成分分析を実施した。試験条件を Table A4 に、作製した固化体のデータを Table A5 に示す。製作した熔融固化体の中で、サンプリング箇所の違いによる均一性の差を確認するために、2 番目と 4 番目の固化体では 15 箇所 (1-15) から、1 番目の固化体では主要 4 箇所 (2、6、7、12) からサンプリングして分析した。均一化の程度を判断する指標として、サンプルの化学成分濃度の変動係数 (相対標準偏差) を適用した。すなわち、変動係数が小さければ小さいほど、均一性は良好と判断される。他の熔融試験の報告^{A3-A6)}を参考にして、主要化学成分の濃度の変動係数が 10% より小さい時に十分に均一な分布を持つ熔融固化体であるとした。Table A6 に主要化学成分濃度の分析値と平均値及び変動係数を示す。

全ての固化体試料において、いずれの主要化学成分濃度の変動係数も 3.7% 以下であるから、それぞれが非常に均一性の高い固化体であることを確認した。また、2 番目と 4 番目の固化体でサンプリング箇所を 15 箇所と 4 箇所での変動係数を比較したところ、2 番目の固化体で若干高くなったものの、最大で 7.1% であったことから、本試験で得られる固化体の大きさにおいては、4 箇所のサンプリングで均一性の指標となり得ると判断した。

各固化体の Fe_2O_3 濃度を見てみると、出湯回数を追うごとに若干増加傾向を持っていた。熔融炉に投入されたドラム缶は溶湯に浮かぶのではなく、常に着底している様子が観察された。ドラム缶の溶湯から露出している部分はプラズマフレームの直接照射によって素早く熔融され、その次のステップとしてドラム缶内容物が直接照射によって熔融された。主にドラム缶の溶湯に漬かっていた部分は、その後に溶湯自体の熱によって熔融されたと考えられる。特にドラム缶の鉄に関して、熔融されるタイミングに時間遅れが生じるために、溶湯の Fe_2O_3 濃度は深さ方向に若干の分布が形成されていたと思われる。

固化体の主要箇所の化学成分濃度の平均値及び変動係数を Table A7 に示す。主要化学成分濃度の変動係数は 7% 以下であることから、熔融処理において十分に均一化できた試験であることを確認した。

A7. まとめ及び今後の予定

熔融試験において、固化体試料の主要成分濃度平均値はほぼ同程度の値であり、固化体代表性が確認できた。

また、今後スラグの塩基度、酸化鉄濃度、熔融温度 (保持時間) をパラメータとして熔融試験を実施し、一バッチにおける熔融処理の均一性を評価することで、熔融炉の最適操業条件を設定する。

参考文献

- A1) 国立研究開発法人産業技術総合研究所：地球化学標準物質データベース,
<https://gbank.gsj.jp/geostandards/> (参照：2022 年 2 月 14 日)。
- A2) 樋口秀和, 大杉武史, 中塩信行, 他：“高減容処理施設の建設整備及び運転管理について”, JAEA-Technology 2007-038, 189p. (2007), <https://doi.org/10.11484/jaea-technology-2007-038> (参照：2022 年 2 月 14 日)
- A3) Nakamura, H., and Fujiki, K., : “Melting tests for recycling slightly radioactive metallic wastes arising from decommissioning”, Nucl. Technol., Vol.117, pp.195-205 (1997)。
- A4) 中塩信行, 中島幹雄, 平林孝図：“50L 規模の雑固体廃棄物熔融固化体の性能と放射能分布の均一性評価”, 日本原子力学会和文誌, Vol.3(3), pp.279-287 (2004), <https://doi.org/10.3327/taesj2002.3.279> (参照：2022 年 2 月 14 日)。

- A5) 小畑政道, 手嶋孝弥, 倉橋隆文, 他:”高周波誘導加熱方式による溶融体製作時の核種挙動”, 原子力バックエンド研究, Vol.4(2), pp.21-30 (1998), <https://doi.org/10.3327/jnuce.4.21> (参照: 2022 年 2 月 14 日).
- A6) 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 溶融固化体の性状に与える廃棄物組成の影響”, 電気学会論文誌 A, Vol.119(3), pp.357-364 (1999).

付録Ⅱ 図表

Table A1 Preliminary test conditions for homogenization.

スラグ塩基度 (CaO/SiO ₂)	0.3–0.8
スラグ酸化鉄濃度 (wt%)	20–30
溶融保持時間*1 (h)	0.0–1.5
溶融温度 (°C)	1500°C 前後

*1 完全溶融を確認してから溶融温度を保持する時間

Table A2 Comparison of analysis methods for chemical component of slag.

分析法	試料調製					分析 精度	所要 日数*2	コスト
	切断*1	粉碎	分級	加熱	溶解			
蛍光 X 線 (FP)	○	—	—	—	—	可	2	高
蛍光 X 線 (検量)	—	○	○	○	—	良	2	低
原子吸光	—	○	○	—	○	優	5	高
ICP-AES	—	○	○	—	○	優	5	高

*1 平滑面が出るように精密切断すると仮定

*2 検量線作成は済んでいると仮定

Table A3 Standard samples made by the slag bead sampler for XRF analysis.

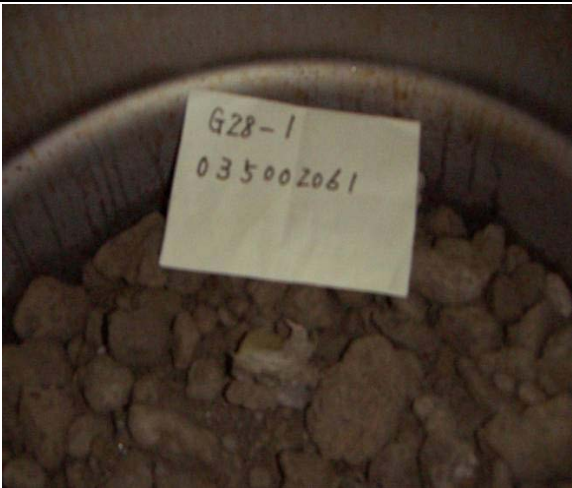
名称(型式)	塩基度 (-)	化学成分 (wt%)						
		SiO ₂	CaO	Al ₂ O ₃	T-Fe ₂ O ₃ *1	Na ₂ O	MgO	Ig.loss*2
焼成ボーキサイト-1	0.004	7.24	0.03	87.50	1.40	0.03	0.02	0.35
閃長岩 (JSy-1)	0.004	60.02	0.25	23.17	0.08	10.74	0.02	
粘土	0.036	46.10	1.66	37.00	0.65	0.84	0.29	12.60
玄武岩 (JB-2)	0.184	53.25	9.82	14.64	14.25	2.04	4.62	
はんれい岩 (JGb-2)	0.303	46.47	14.10	23.48	6.69	0.92	6.18	
角閃石岩 (JH-1)	0.312	48.18	15.02	5.66	10.27	0.71	16.73	
高炉セメント	2.195	25.66	56.33	8.94	2.08	0.24	3.05	
玄武岩+Fe ₂ O ₃ *3	0.184	26.61	4.91	7.32	57.15	1.02	2.31	
はんれい岩+Fe ₂ O ₃ *3	0.303	33.24	10.09	16.80	33.25	0.66	4.42	
角閃石岩+Fe ₂ O ₃ *3	0.312	30.10	9.38	3.54	43.94	0.44	10.45	

*1 酸化鉄は全て Fe₂O₃ として換算

*2 Ig. loss : 強熱減量

*3 標準試料と Fe₂O₃ を一定割合で混合してガラスビード化(玄武岩:Fe₂O₃=1:1、はんれい岩:Fe₂O₃=7:3、角閃石岩:Fe₂O₃=3:2)

Table A4 Test conditions (G28).

材質	コンクリート	1422kg		
	助剤 ^{*1}	140kg		
	鉄（ドラム缶）	229kg		
ドラム缶内訳重量詳細	重量 (kg)			ドラム缶本数
	コンクリート	助剤	ドラム缶 ^{*2}	
	177	—	23	8
	—	40	15	2
模擬廃棄物装荷状態 (コンクリート)	—	60	15	1
				
スラグ予想塩基度 (CaO/SiO ₂)	0.3			
スラグ予想酸化鉄濃度	20 wt%			

*1 炭酸カルシウム *2 200L と 100L を使用

Table A5 Solidified products (G28) data.

炉内雰囲気温度 (°C) ^{*1}	1450 – 1550					
出湯重量 (kg)	1650					
固化体番号 ^{*2}	1	2	3	4	5	6
固化体重量 (kg)	360	295	300	305	305	85

*1 熔融完了時から出湯までの温度幅.

*2 出湯した順番、網がけ固化体は分析対象

Table A6 Analysis data of slag samples of solidified products (G28) (1/2).

試料*1	スラグ中主要成分 (wt%)					
	Al ₂ O ₃	CaO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂	Na ₂ O	MgO
固化体 1-2	11.4	13.5	15.7	49.6	1.7	1.1
固化体 1-6	11.8	13.6	15.9	51.4	1.7	1.2
固化体 1-7	12.0	13.5	16.2	52.7	1.7	1.2
固化体 1-12	12.2	13.6	16.2	53.6	1.6	1.2
固化体 1ave	11.9	13.6	16.0	51.8	1.7	1.2
変動係数 (%)	2.5	0.7	1.3	2.9	0.0	0.0
固化体 2-1	11.8	13.8	16.2	51.6	1.7	1.1
固化体 2-2	12.4	13.9	16.6	53.8	1.6	1.2
固化体 2-3	12.0	13.9	16.4	51.7	1.7	1.2
固化体 2-4	11.5	13.5	15.9	49.1	1.6	1.1
固化体 2-5	12.1	13.7	16.3	51.5	1.7	1.2
固化体 2-6	11.7	11.9	14.5	58.4	1.6	1.1
固化体 2-7	12.3	13.8	16.4	52.1	1.7	1.2
固化体 2-8	12.5	14.0	16.5	53.4	1.7	1.2
固化体 2-9	12.3	13.7	16.3	52.3	1.7	1.2
固化体 2-10	12.5	13.9	16.7	53.0	1.7	1.2
固化体 2-11	12.3	13.6	16.2	53.2	1.7	1.2
固化体 2-12	12.4	13.6	16.3	52.5	1.7	1.2
固化体 2-13	12.6	13.8	16.6	54.0	1.7	1.2
固化体 2-14	13.0	14.1	17.0	54.9	1.7	1.2
固化体 2-15	12.2	13.4	16.2	52.0	1.6	1.2
固化体 2ave	12.2	13.6	16.3	52.9	1.7	1.2
変動係数 (%)	3.3	3.7	3.7	3.6	0.0	0.0
固化体 2ave (4)	12.2	13.3	16.0	54.2	1.7	1.2
変動係数 (4) (%)	2.8	7.1	6.1	5.3	3.5	4.3

*1 分析試料は「固化体番号－採取位置」、固化体試料平均値は「固化体番号 ave」とする。
平均値と変動係数に (4) とあるのは主要採取位置 2、6、7、12 から算出した数値。

Table A6 Analysis data of slag samples of solidified products (G28) (2/2).

試料 ^{*1}	スラグ中主要成分 (wt%)					
	Al ₂ O ₃	CaO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂	Na ₂ O	MgO
固化体 4-1	12.4	14.2	18.1	47.0	1.6	1.1
固化体 4-2	12.5	14.4	18.6	47.0	1.6	1.1
固化体 4-3	12.3	13.8	17.9	48.6	1.6	1.1
固化体 4-4	12.6	14.4	18.5	48.0	1.6	1.1
固化体 4-5	12.7	13.8	18.1	49.5	1.6	1.1
固化体 4-6	11.9	13.8	17.7	44.7	1.6	1.1
固化体 4-7	12.7	14.1	18.1	48.4	1.6	1.1
固化体 4-8	12.8	14.1	18.2	48.4	1.6	1.1
固化体 4-9	12.4	14.1	18.5	48.1	1.6	1.1
固化体 4-10	12.8	14.1	18.2	48.4	1.6	1.1
固化体 4-11	13.0	14.7	19.0	50.0	1.6	1.2
固化体 4-12	12.9	14.2	18.4	49.0	1.6	1.1
固化体 4-13	12.8	14.2	18.5	48.4	1.6	1.1
固化体 4-14	12.7	14.3	18.6	47.8	1.5	1.1
固化体 4-15	13.1	14.9	18.8	49.7	1.6	1.2
固化体 4ave	12.6	14.2	18.3	48.2	1.6	1.1
変動係数 (%)	2.4	2.1	1.6	2.7	0.0	0.0
固化体 4ave (4)	12.5	14.1	18.2	47.3	1.6	1.1
変動係数 (4) (%)	3.5	1.8	2.2	4.0	0.0	0.0

*1 分析試料は「固化体番号一採取位置」、固化体試料平均値は「固化体番号 ave」とする。
平均値と変動係数に (4) とあるのは主要採取位置 2、6、7、12 から算出した数値。

Table A7 Chemical components of solidified products (G28).

試料 ^{*1}	スラグ中主要成分 (wt%)					
	Al ₂ O ₃	CaO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂	Na ₂ O	MgO
固化体 1,2,4ave	12.2	13.7	16.7	51.1	1.6	1.1
変動係数 (%)	3.5	4.4	7.0	6.8	2.6	3.7

*1 固化体試料平均値は「固化体番号 ave」とし、各固化体の主要採取位置 (4 点) における平均値と変動係数を示したもの。

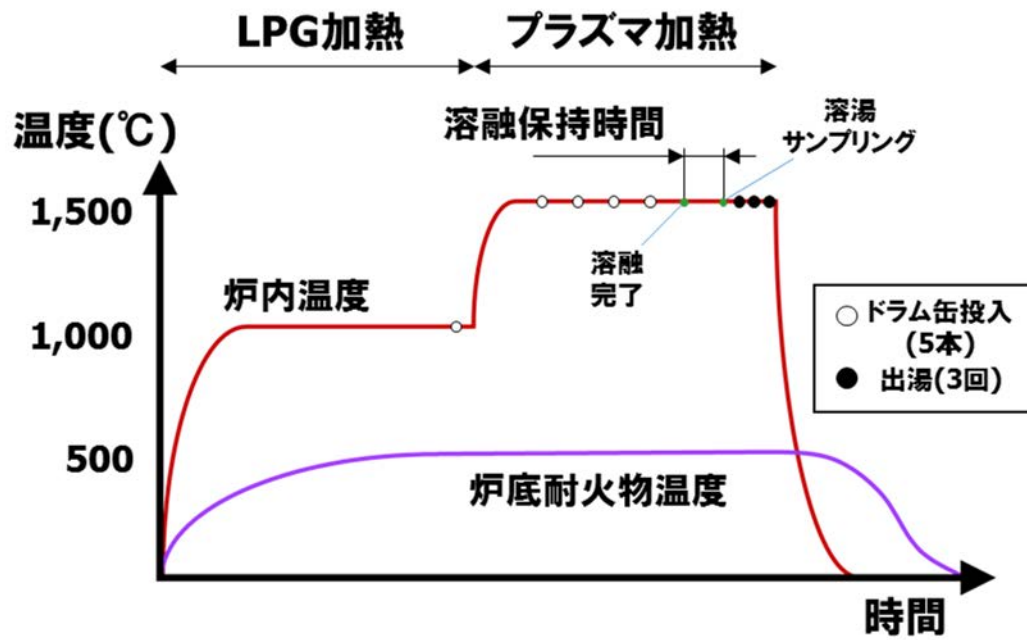


Figure A1 Output curve image of temperature in a plasma melting test (1t scale).

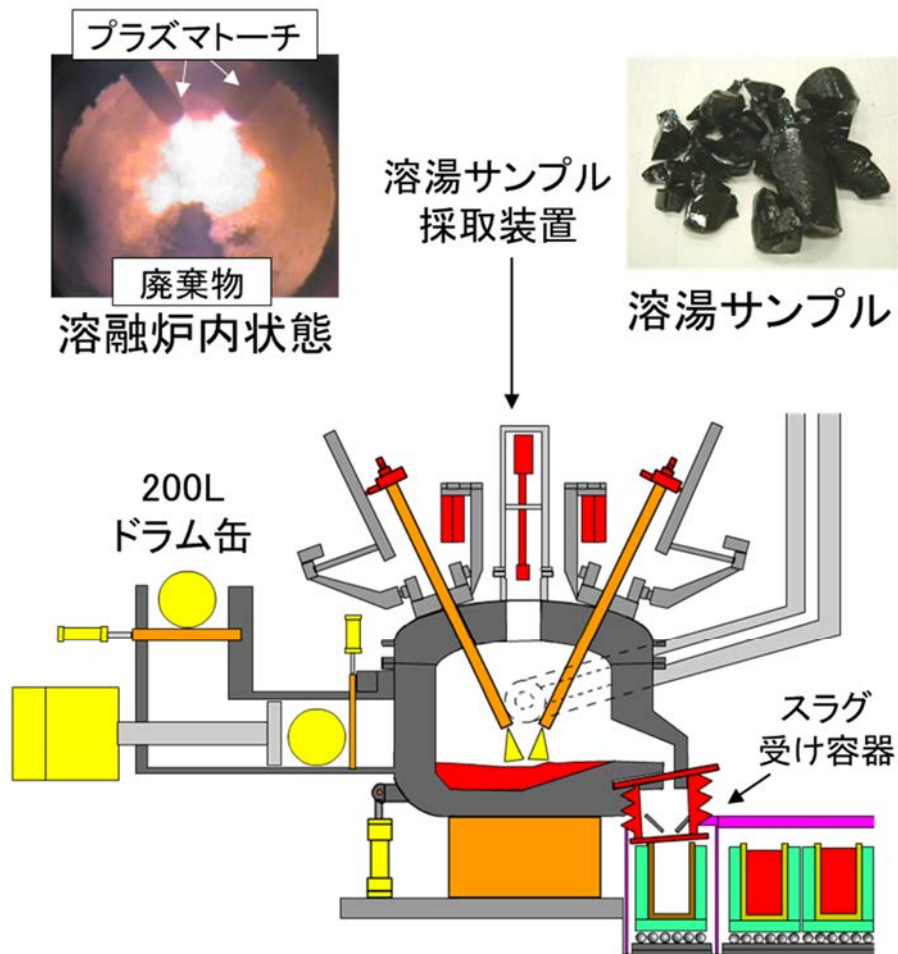


Figure A2 Schematic diagram of the plasma melter.

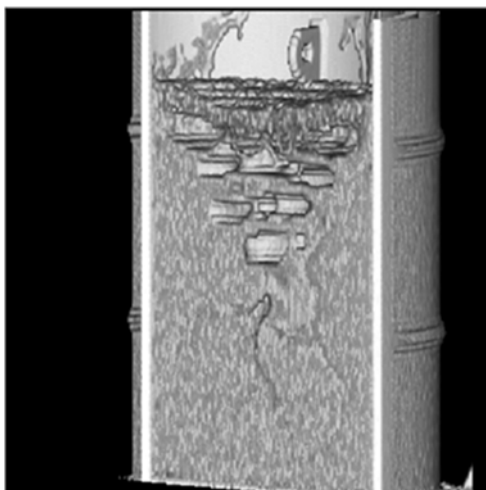


Figure A3 Cross-sectional view of the solidified product (G25) scanned by the X-ray CT Unit.



Figure A4 Top and cross-sectional views of the solidified product (G25) in disassemble processes.

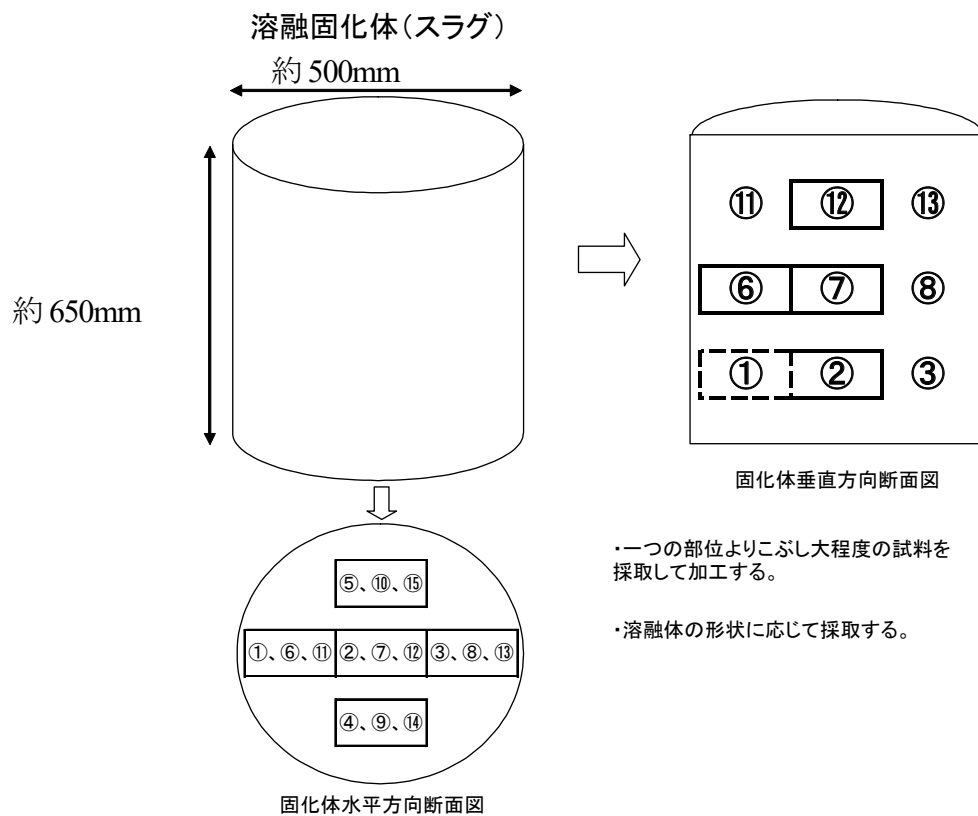


Figure A5 Sampling point for chemical analysis of slag.



Figure A6 Making procedure of glass beads.

付録Ⅲ G38 図表

Table A8 Analysis data of slag samples of solidified products (G38).

Sampling points ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
S1-1	8.9	8.9	18.1	17.0	31.9	32.2	38.8	38.7
S1-2	7.6	7.6	14.9	15.0	42.7	42.8	31.7	31.6
Average	8.2		16.2		37.4		35.2	
Standard deviation	0.7		1.6		6.2		4.1	
Variation of coefficient (%)	9.0		9.7		16.5		11.7	

*1 S: a sample cut from a solidified product. A Branch number means a sampling point of a solidified product according to Figure A5 of Appendix II.

Table A9 Analysis data of molten bath samples (G38).

Molten bath samples (min.) ^{*1}	Main components in slag (wt%)							
	Al ₂ O ₃		CaO		Fe ₂ O ₃		SiO ₂	
M1(4)	6.9	7.0	15.9	16.5	41.1	41.7	32.7	32.6
M2(33)	7.2	7.0	15.3	15.1	42.1	41.4	32.2	31.3
M3(62)	7.2	7.3	15.1	15.3	42.0	42.2	31.9	31.8
M4(92)	7.5	7.5	15.1	15.0	42.7	42.6	32.1	31.8
Average	7.2		15.4		42.0		32.0	
Standard deviation	0.2		0.5		0.5		0.4	
Variation of coefficient (%)	3.1		3.4		1.3		1.4	

*1 M: a sample taken from the molten bath. Numbers in parenthesis are elapsed time after complete melting.

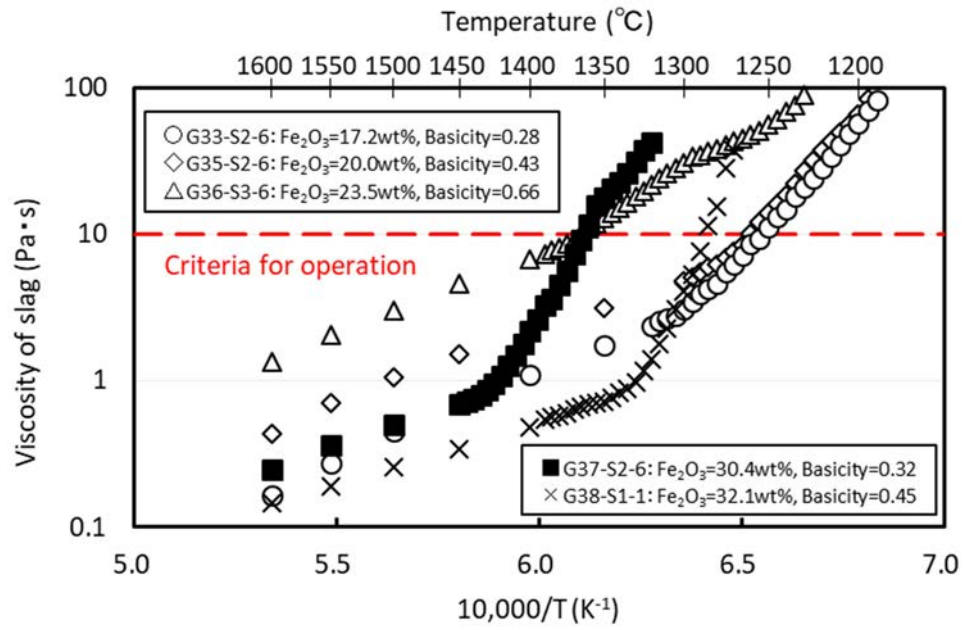


Figure A7 Temperature dependence of viscosity of slag taken from solidified products.

This is a blank page.

