

JAERI-Research
97-037



流動層と酸化銅触媒を組み合わせた使用済イオン
交換樹脂の焼却処理技術

1997年5月

木原伸二・矢幡胤昭・南條篤史・高橋孝三
尾曾智重・根本俊行・安藤 昇*・大久保秀文**

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 原子力資料サービス

流動層と酸化銅触媒を組み合わせた使用済イオン交換樹脂の焼却処理技術

日本原子力研究所大洗研究所管理部

木原 伸二・矢幡 深昭・南條 篤史・高橋 孝三
尾曾 智重・根本 俊行・安藤 昇*・大久保秀文**

(1997年4月25日受理)

流動層による1次燃焼と酸化銅触媒による2次燃焼とを組み合わせた使用済イオン交換樹脂(廃樹脂)の焼却処理技術に係る開発の一環として、本技術の焼却効果及び酸化銅の触媒能力に関する観察・評価を主目的としたコールド燃焼試験と、廃樹脂焼却時における放射性核種の分布状況の観察を主目的としたホット燃焼試験を行った。

コールド燃焼試験においては、樹脂を焼却した場合の減重比(焼却炉に供給した樹脂の重量／排ガス中に含まれる未燃物の重量)は約10,000であり、未燃物のうち、スス等の黒色の熱分解生成物だけを対象にすると、100,000以上であった。

酸化銅の触媒能力については、樹脂の1次燃焼によって生じるスス等の黒色の部分解生成物及びCOは、ほぼ完全に2次燃焼できることを確認した。また、未燃物のうち、他の熱分解生成物の2次燃焼についても、酸化銅触媒は有効であった。

ホット燃焼試験のうち、放射性同位元素(R I)を吸着させた模擬廃樹脂を焼却した場合、焼却炉に投入されたR Iの約10%が焼却炉内の流動媒体に、50%～70%が酸化銅触媒にそれぞれ付着するとともに、20～40%が排ガス浄化系に移行した。

J M T Rの実廃樹脂を用いた場合の放射性物質の分布状況も、模擬廃樹脂を燃焼した場合と同様であった。

Incineration Technology in Combination with Fluidized Bed and Copper Oxide
Catalyst for Spent Ion Exchange Resins

Shinji KIHARA, Taneaki YAHATA, Atsushi NANJO
Kozo TAKAHASHI, Tomoshige OSO, Toshiyuki NEMOTO
Noboru ANDO* and Hidehumi OKUBO**

Department of Administrative Services
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received April 25, 1997)

As development of incineration technology for spent ion exchange resins in combination with primary combustion by fluidized bed and secondary combustion by copper oxide catalyst, incineration experiments with non-radioactive resins and with radioactive resins were carried out, in order to examine the incineration efficiency of this technology and the catalytic capacity of copper oxide, and in order to observe distribution of radionuclides during incineration, respectively.

In incinerating non-radioactive resins, 10,000 was obtained as a weight reduction factor (weight of resins bed into the furnace/weight of remaining combustibles in the off-gas) and more than 100,000 for only weight of black pyrolysis products in the remaining combustibles.

It was also confirmed that black pyrolysis products and carbon oxide gas were burned completely in contact with the catalyst, and that the catalyst had sufficient effect on the secondary combustion of the other unburnt pyrolysis products.

In the experiment with resins adsorbing radioisotopes, approximately 10% of radioactivities fed into the furnace remained in the fluidized bed materials, between 50% and 70% was held in the catalyst and between 20% and 40% was carried off by the gas flow to the off-gas cleaning system.

* Kankyo Sekkei Co. Ltd.
** Chiyoda Maintenance Co. Ltd.

In incinerating JMTR spent resins, the distribution of radionuclide was the same as the result of incinerating resins adsorbing radioisotopes.

Keywords : Incineration Technology, Spent Ion Exchange Resins, Fluidized Bed, Copper Oxide Catalyst, Incineration Experiments, Weight Reduction Factor, Pyrolysis Products, Remaining Combustibles

Contents

1. Introduction	1
2. Incineration Experiment with Non-radioactive Resins	1
2.1 Summary of Experiment	1
2.2 Catalyst	1
2.3 Apparatus	2
2.4 Experimental Procedure	3
2.5 Experimental Results and Discussion	5
3. Incineration Experiment with Radioactive Resins	7
3.1 Summary of Experiment	7
3.2 Catalyst	7
3.3 Apparatus	8
3.4 Experimental Procedure	9
3.5 Experimental Results and Discussion	11
4. Conclusion	12
Acknowledgement	13
References	13
Appendix	42

目 次

1. 序 論	1
2. コールド燃焼試験	1
2.1 試験の概要	1
2.2 酸化銅触媒	1
2.3 試験装置	2
2.4 試験方法	3
2.5 試験結果及び考察	5
3. ホット燃焼試験	7
3.1 試験の概要	7
3.2 酸化銅触媒	7
3.3 試験装置	8
3.4 試験方法	9
3.5 試験結果及び考察	11
4. 結 論	12
謝 辞	13
参考文献	13
付 錄	42

1. 序 論

原子力発電所等から生じる使用済イオン交換樹脂（廃樹脂）は、その効果的な処理方法がまだ十分に確立していないため、放射性廃棄物として大部分がサイト内に貯蔵されたままになっているとともに、今後もさらにその発生が見込まれていることから、廃樹脂の効果的な処理技術の確立は緊急の課題となっている。

このような状況を考慮し、これまで流動層による1次燃焼と酸化銅触媒による2次燃焼とを組み合わせた廃樹脂焼却処理技術（本焼却処理技術）を確立するため、これに関する基礎試験^{1), 2)}を行ってきた。今回、これまでに得られた基礎試験の結果等に基づき、本焼却処理技術の実用性に係る確証を得ることを主目的に、さらに研究・開発を進めた。

この一環として、まず、本焼却処理技術による樹脂の焼却効果及び酸化銅の触媒能力に関する観察・評価を主目的として、約200g-樹脂/h の焼却能力を有する試験装置（コールド燃焼試験装置）を作成し、放射性物質を含まない樹脂を用いてコールド燃焼試験を行った。

次に、廃樹脂焼却時における放射性核種の分布状況の観察を主目的として、2kg-樹脂/h の焼却能力を有するパイロットスケールの試験装置（ホット燃焼試験装置）を作成し、既知量の放射性同位元素（RI）を吸着させた模擬廃樹脂及び大洗研究所材料試験炉（JMTR）の実廃樹脂を用いてホット燃焼試験^{3), 4)}を行った。

本報告書は、コールド燃焼試験及びホット燃焼試験の結果、並びにその考察について述べるものである。

2. コールド燃焼試験

2.1 試験の概要

コールド燃焼試験装置において、放射性物質を含まない樹脂を連続的に焼却し、発生した未燃物の重量、酸化銅触媒と接触反応した後の未燃物の重量、樹脂燃焼中における排ガスの組成比等を比較して、本焼却処理技術による樹脂の焼却効果及び酸化銅の触媒能力を観察・評価した。

2.2 酸化銅角虫媒

酸化銅触媒は、優れた耐熱性、有効な接触面積及び標準化された形状を有することを考慮し、ディスク状の多孔質セラミック（セラミックディスク）に酸化銅を担持させたもの⁵⁾（触媒ディスク）を使用した。また、酸化銅の有無を比較評価するため、セラミックディスク単体による燃焼試験も実施した。セラミックディスクの主成分を以下に示す。また、Fig. 1にセラミックディスクと触媒ディスクの外観写真を示す。

Al_2O_3 : 70wt%、 ZrO_2 : 20wt%、 SiO_2 : 10wt%

1. 序 論

原子力発電所等から生じる使用済イオン交換樹脂（廃樹脂）は、その効果的な処理方法がまだ十分に確立していないため、放射性廃棄物として大部分がサイト内に貯蔵されたままになっているとともに、今後もさらにその発生が見込まれていることから、廃樹脂の効果的な処理技術の確立は緊急の課題となっている。

このような状況を考慮し、これまで流動層による1次燃焼と酸化銅触媒による2次燃焼とを組み合わせた廃樹脂焼却処理技術（本焼却処理技術）を確立するため、これに関する基礎試験^{1), 2)}を行ってきた。今回、これまでに得られた基礎試験の結果等に基づき、本焼却処理技術の実用性に係る確認を得ることを主目的に、さらに研究・開発を進めた。

この一環として、まず、本焼却処理技術による樹脂の焼却効果及び酸化銅の触媒能力に関する観察・評価を主目的として、約200g-樹脂/h の焼却能力を有する試験装置（コールド燃焼試験装置）を作成し、放射性物質を含まない樹脂を用いてコールド燃焼試験を行った。

次に、廃樹脂焼却時における放射性核種の分布状況の観察を主目的として、2kg-樹脂/h の焼却能力を有するパイロットスケールの試験装置（ホット燃焼試験装置）を作成し、既知量の放射性同位元素（RI）を吸着させた模擬廃樹脂及び大洗研究所材料試験炉（JMTR）の実廃樹脂を用いてホット燃焼試験^{3), 4)}を行った。

本報告書は、コールド燃焼試験及びホット燃焼試験の結果、並びにその考察について述べるものである。

2. コールド燃焼試験

2.1 試験の概要

コールド燃焼試験装置において、放射性物質を含まない樹脂を連続的に焼却し、発生した未燃物の重量、酸化銅触媒と接触反応した後の未燃物の重量、樹脂燃焼中における排ガスの組成比等を比較して、本焼却処理技術による樹脂の焼却効果及び酸化銅の触媒能力を観察・評価した。

2.2 酸化銅触媒

酸化銅触媒は、優れた耐熱性、有効な接触面積及び標準化された形状を有することを考慮し、ディスク状の多孔質セラミック（セラミックディスク）に酸化銅を担持させたもの⁵⁾（触媒ディスク）を使用した。また、酸化銅の有無を比較評価するため、セラミックディスク単体による燃焼試験も実施した。セラミックディスクの主成分を以下に示す。また、Fig. 1にセラミックディスクと触媒ディスクの外観写真を示す。

Al_2O_3 : 70wt%、 ZrO_2 : 20wt%、 SiO_2 : 10wt%

触媒ディスクの空孔率は基礎試験¹⁾で用いたステンレス-銅金網製の触媒と同様に80%とし、担持させる酸化銅の量は、セラミックディスクの重量の8~10%とした。これは、酸化銅がセラミックディスクの素材に均一に担持されていると仮定した場合、流体との接触面における単位面積当たりの重量は $1.2 \times 10^{-2} \sim 2.2 \times 10^{-2} \text{ kg/m}^2$ に相当する。また、触媒ディスク1枚当たりの寸法は、触媒を装着するコールド試験装置内のフリーボード部の寸法を考慮するとともに、装着する触媒ディスクの枚数を変化させて流体との接触表面積を容易に変えることができるよう、外径約82mm、厚さ約22mmとした。

コールド燃焼試験においては、孔径の異なる3種類の触媒ディスク（#13、#20、#30）及びセラミックディスク（#30）を最大10枚まで使用した。Table 1に使用した触媒ディスク及びセラミックディスクの孔径及び流体との接触表面積を、またFig. 2に触媒ディスク表面の立体顕微鏡写真を示す。

なお、触媒ディスクの顕微鏡写真やEPMAによる観察の結果、担持された酸化銅のほとんどはセラミックディスクの素材表面に付着しているものの、一部は素材の内部まで浸透していることがわかった。Fig. 3に触媒ディスク断面の顕微鏡写真を示す。

2.3 試験装置

2.3.1. 全体構成

コールド燃焼試験装置は、触媒ディスク及びセラミックディスクを装着する樹脂燃焼系を中心に、樹脂供給系及び未燃物捕集系から構成している。装置の系統図をFig. 4に示す。

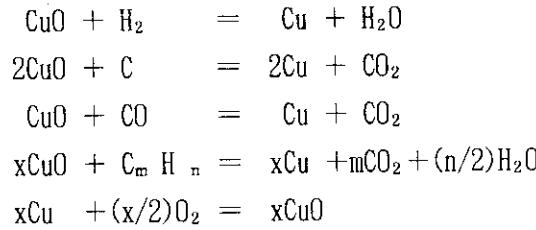
2.3.2. 樹脂燃焼系

樹脂燃焼系は、主に流動層焼却炉及び酸化銅触媒から構成している。

流動層焼却炉は全長が1,800 mmの寸法を有するSUS316製の円筒炉で、内径は、流動層を形成する下部が81.1mm、酸化銅触媒を装着する上部フリーボード部が106.3 mmである。基礎試験¹⁾と同様に、形成される流動層の下部に設置する流動化空気の供給用分散板には、SUS316製で70 μm のろ過粒度を有する焼結金属を使用するとともに、平均粒径 0.5mmの酸化アルミニウムを流動媒体として、充填高さが内径と同じになるように約 420ml充填した。また、炉本体の加熱及び燃焼用空気の予備加熱にはフレキシブルタイプの電気加熱方式を採用した。燃焼用空気は、予め流動化条件及び燃焼条件を確認し、理論燃焼空気量の約 1.2倍となる21N l/minを炉底から供給した。

触媒ディスク及びセラミックディスクは、10枚まで収納可能なSUS316製のホルダに入れ、触媒ディスク及びセラミックディスクとホルダの隙間にカオリンを主成分とする充填材（イソライト工業社製 カオウール・セラミックファイバ）を密に詰めた後、炉内フリーボード部に装着した。ホルダの概略構造図をFig. 5に示す。

樹脂の1次燃焼時に発生する未燃物及び分解ガスが触媒ディスクの酸化銅と接触する時、下記のような化学反応が生じると考えられる¹⁾。



焼却炉に供給された樹脂は流動層形成部で1次燃焼し、その時発生する未燃物及び分解ガスは炉内のフリーボード部に装着した触媒ディスクを通過する際、触媒との酸化反応により H_2O と CO_2 に転換する。

2.3.3. 樹脂供給系

樹脂供給系は、主にスクリューフィーダ及び樹脂ブロー管から構成している。

コールド燃焼試験においては、樹脂を一定速度で連続的に供給するため、乾燥樹脂をスクリューフィーダにより樹脂ブロー管内に落下させ、それをアルゴンガスで焼却炉内に吹き込む方式とした。乾燥樹脂の含水率は約25wt%であった。

ここで、乾燥樹脂を使用したのは、含水率の高い樹脂はスクリューフィーダに付着し、一定速度での連続供給が行えない可能性があったためである。また、アルゴンガスを使用したのは、燃焼条件を設定するために行った予備試験時に空気を使用して樹脂を吹き込んだところ、樹脂ブロー管を接続した焼却炉入口で樹脂が燃焼し、これがブロー管の温度を上昇させて管内の樹脂の炭化をまねき、ブロー管の閉塞をもたらす現象が見られたためである。

2.3.4. 未燃物捕集系

未燃物捕集系は、主にフィルタユニットから構成している。

フィルタユニットは、樹脂燃焼時に発生した未燃物あるいは触媒ディスク及びセラミックディスクを通過した未燃物を全量捕集することを目的として、フリーボード部出口の排ガス用配管系に設置した。未燃物を連続的に捕集できるように、当該部分の配管を3系統に分岐し、バルブ操作で未燃物を捕集する系統を順次切り替えていくこととした。また、内部に装着するフィルタの交換が容易に行えるように、フィルタユニットの開閉器具にはカップラを採用した。フィルタユニットの概要をFig. 6に示す。フィルタユニットに装着するフィルタは、未燃物の重量測定に係る前処理時の温度が最高 900°Cであること等を考慮し、シリカ繊維ろ紙（アドバンテック東洋社製 QR-200、110 mmφ × 0.9 mm）を使用した。また、このフィルタユニットの下流に、排ガスサンプリング用ノズルを設置した。

2.4 試験方法

2.4.1 試験手順

試験は、以下の手順で実施した。

- ① 触媒ディスク及びセラミックディスクを装着しないで樹脂を焼却し、その時発生する未燃物の全量を捕集して、その重量を秤量する。
- ② 樹脂の燃焼条件を①とほぼ同様に設定し、装着する触媒ディスクの孔径及び枚数あるいはセラミックディスクの枚数を変え、触媒ディスク又はセラミックディスクを通過した未燃物の全量を捕集して、その重量を秤量する。

試験は上記各条件で3回以上行い、捕集した未燃物重量の平均値を、排ガス中の未燃物の重量とした。

2.4.2 イオン交換樹脂

通常、原子力発電所では、アニオンとカチオンを混合して使用している。今回は、未燃物の発生量が多く、かつスクラバ等による排ガス処理を必要としないアニオン樹脂を使用することとし、入手の容易さから粒状のアニオン樹脂（三菱化学：ダイヤイオンSAN-1）を用いた。これは、現在多くの原子力発電所及びJMTRにおいて冷却水の浄化等に使用されているアニオン樹脂と同じである。

樹脂の乾燥は、樹脂を薄く敷いたバットを70°Cの空気雰囲気中に6時間保持し、その間適宜攪拌した。また、樹脂の供給速度は、未燃物の発生状況、炉内温度等から150 g/hを目安とした。

2.4.3 試験装置の運転条件及びサンプリング状況

ヒータにより加熱された流動層形成部が600°Cになった時点で樹脂の供給・焼却を開始した。排ガスのサンプリングは樹脂の供給・焼却と同時に、また、未燃物の捕集は流動層形成部の温度が750～800 °Cで十分安定した時点で、それぞれ開始した。未燃物の捕集時間は、フィルタの圧損等を考慮して1時間とした。

未燃物捕集中における試験装置の運転条件を以下に示す。

- | | |
|------------------|---|
| ① 流動層部温度 | : 750～800 °C |
| ② 触媒部温度 | : 約700 °C (最下段の触媒ディスク入口付近。なお、触媒ディスクを10枚使用した場合の最上段ディスクの温度は約400 °C) |
| ③ 焼却炉内圧力 | : 約-30mmH ₂ O |
| ④ 焼却炉への空気供給量 | : 21 Nℓ/min (理論燃焼空気量の約1.2倍) |
| ⑤ 焼却炉へのアルゴン吹き込み量 | : 10 Nℓ/min |

2.4.4 未燃物重量の秤量方法

未燃物重量の秤量は次の要領で行った。

- ① 未燃物捕集用フィルタの前処理として、フィルタに含まれる微量の有機物を分解するた

め、フィルタを 900°Cの空気雰囲気中に 4 時間保持した後、デシケータ内で室温まで自然冷却する。

- ② 未燃物捕集用フィルタをフィルタユニットに装着し、未燃物の捕集を行う。
- ③ 未燃物捕集用フィルタをフィルタユニットから取り外し、るっぽに入れる。
- ④ 未燃物捕集用フィルタに付着した水分を取り除くため、るっぽを 110°Cの空気雰囲気中に 1.5 時間保持し、デシケータ内で室温まで自然冷却した後、その重量 (W_1) を秤量する。
- ⑤ 未燃物捕集用フィルタに付着した未燃物を分解・燃焼して取り除くため、るっぽを 800 °Cの空気雰囲気中に 1.5 時間保持し、デシケータ内で室温まで自然冷却した後、その重量 (W_2) を秤量する。
- ⑥ W_1 と W_2 の差を未燃物の重量とする。

ここで、各温度における保持時間は、事前に重量減少と保持時間に係る試験を行い、その結果に基づき設定した。なお、秤量計は読み取り可能な最小重量が 0.001g であるメトラー・トレド社製 DG 503 を使用した。

2.4.5 排ガスの測定

フィルタユニットの下流において、樹脂燃焼時の排ガスを 1.5N l/min の速度で連続的に測定器に吸引し、排ガス中における O₂、CO 及び CO₂ の組成比に係る経時変化を観察した。使用した測定機器を以下に示す。

- ① CO 及び CO₂ : 赤外線式ガス分析計 URA -107 (島津製作所)
- ② O₂ : 磁気式酸素計 POT -101 (島津製作所)

2.5 試験結果及び考察

#13、#20、#30の触媒ディスク又は#30のセラミックディスクをそれぞれ 0、1、3、5、10枚装着した場合に捕集した未燃物の重量を、乾燥樹脂 100g当たりに換算した値を Fig. 7 に示す。

触媒ディスク及びセラミックディスクを装着しない場合（触媒ディスク及びセラミックディスクの枚数は 0）、発生する未燃物は燃焼樹脂 100g当たり約 0.03g で、捕集された未燃物の重量に対する供給した樹脂の重量の比（減重比）は約 3,300 であった。触媒ディスクを装着すると未燃物の発生量は約 0.01g に減少し、減重比は約 10,000 となった。また、セラミックディスクを装着した場合にも、同様の減重比が得られた。しかし、これら触媒ディスク及びセラミックディスクによる 2 次燃焼に関しては、枚数及び孔径の影響は見られなかった。

触媒ディスク (#30) 及びセラミックディスク (#30) の枚数別における未燃物の捕集状況を Fig. 8-1 及び Fig. 8-2 に示す。

触媒ディスク (#30) の枚数の増加に伴って、フィルタに捕集された未燃物による黒色の度合

は減少した。特に、10枚装着した場合には、黒色の未燃物は目視によってはほとんど観察されなかつた。また、セラミックディスク (#30) についても同様の結果が得られた。

触媒ディスク (#30) 及びセラミックディスク (#30) の枚数別における排ガス中のCO組成比をFig. 9に示す。触媒ディスクの場合は、使用枚数の増加に伴つて排ガス中のCO組成比も減少していくが、セラミックディスクの場合は、10枚装着した場合でも排ガス中のCO組成比はほとんど減少しなかつた。

以上のことから、触媒ディスク (#30) においては、枚数の増加に伴つてフィルタの黒色化の程度及び排ガス中のCO組成比は減少したが、未燃物の重量はほとんど変化しないことが確認された。

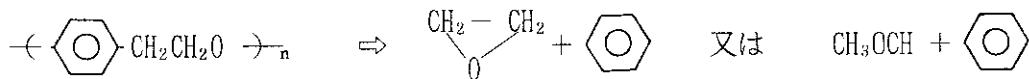
一般的に、高分子有機物が燃焼するとき、熱分解によって不飽和化合物とそのラジカルが生成し、これらが付加したり重合したりしてススになることが知られている⁶⁾。そこで、触媒ディスク及びセラミックディスクを装着しなかつた場合に未燃物を捕集したフィルタを 500°Cの空気雰囲気中に1.5 時間保持し、重量の変化を観察したところ、スス等の黒色の熱分解生成物はフィルタに残存したままで、その重量は0.001g以下になつた。

これらのことから、Fig. 7に記載した未燃物の重量は、スス等の黒色の熱分解生成物の重量と他の熱分解生成物の重量との和であり、スス等の黒色の熱分解生成物の重量は0.001g以下であると考えられる。

黒色以外の熱分解生成物は、無色透明又は白色でかつ沸点が110 °C以上であること、及び樹脂を構成する鎖状のポリエチレンとベンゼン環との結合状態を考慮すると、ポリエチレンが反応して生成した高分子化合物であることが想定された。樹脂の構造をFig. 10に示す。

そこで、触媒ディスク及びセラミックディスクを装着しない場合に未燃物を捕集したフィルタ、並びに触媒ディスク (#30) を10枚装着した場合に未燃物を捕集したフィルタを、それぞれFig. 11に示す装置を用いて、150°Cで1時間脱気した後、550 °Cに加熱すると白色の蒸気が発生し始めた。この状態を20分間保持した後、蒸気をサンプリング容器に吸引し、成分を質量分析計(VARIAN-MAT CH 7型)で分析した。

分析の結果、ガスの主成分は質量数44及び78の物質であり、これはエチレンオキシド又はアセトアルデヒド、及びベンゼンに相当する。エチレンオキシド又はアセトアルデヒドは、樹脂の燃焼時にポリエチレンが酸化されて生じたポリエチレンオキシドが、質量分析計内で分解⁷⁾したものと考えられる。



触媒ディスク (#30) を10枚装着した場合の当該物質の量は、セラミックディスク及び触媒ディスクを使用しない場合の半分以下であった。樹脂の燃焼時に生成する高分子化合物が、触媒との化学反応によりH₂O と CO₂に転換(2次燃焼)したためであると考えられる。しかし、Fig. 7より、触媒ディスクによる高分子化合物の2次燃焼に関しては、枚数及び孔径の影響は見られなかつた。

一方セラミックディスク (#30) の場合は、Fig. 8-1、Fig. 8-2及びFig. 9が示すように、枚

数の増加に伴ってスス等の減少が見られたが、排ガス中におけるCO組成比はほとんど減少しなかった。一般的に、同一条件下においては固相-固相反応より気相-固相反応のほうが反応速度が著しく大きいことから、酸化銅による酸化反応はスス等よりCOとの反応のほうが顕著となる。このことから、スス等は、セラミックディスクの空孔内に物理的に保持されることにより炉内滞留時間が延び、その間高温雰囲気下に置かれることにより燃焼していたと考えられる。イオン交換樹脂の熱分解に係る試験結果⁸⁾から、樹脂の主成分は炭化水素であるので、十分な空気雰囲気下で600°C以上に維持されていればH₂OとCO₂に転換することが分かっており、空孔に保持されることによりスス等がこの条件に近い状態に固定されていたと考えられる。

触媒ディスク(#30)においても、スス等は空孔内に保持される。空孔に保持されたスス等は高温雰囲気下に置かれることにより2次燃焼するが、排ガス中のCO組成比の減少等から、この2次燃焼に酸化銅による酸化反応が大きく寄与していることがわかった。しかし、捕集したスス等の重量が0.001g以下と少量であったため、定量的な比較はこの試験では確認できなかった。

前述したように、酸化銅とスス等の固相-固相反応は反応速度が小さく、さらに本試験装置においては、触媒を通過する排ガス速度(触媒の入り口で、約40cm/s)が大きくて、酸化銅とスス等の接触時間が十分取れなかった。一般的に、樹脂の焼却処理には十分な燃焼空気の供給が必要であることから、排ガス速度は大きくなる。従って、スス等を2次燃焼させるためには、スス等を一時的に保持することにより炉内滞留時間を延ばし、その間に周囲の熱源、酸化反応等により燃焼させる方法が有効である。この観点からこの試験で使用した多孔質の触媒ディスクは本焼却処理技術において望ましい性能を有している。

3. ホット燃焼試験

3.1 試験の概要

ホット燃焼試験装置において既知量のRIを吸着させた模擬廃樹脂を焼却し、燃焼中及び燃焼後に各部位から採取した試料の放射能を測定すること等により、樹脂焼却時のRIの分布状況及びこれに与える触媒ディスクの孔径等の影響を観察した。

さらに、ホット試験装置を用いてJMTRで発生した実廃樹脂を焼却し、実廃樹脂燃焼時における放射性物質の分布状況を比較・観察した。

3.2 酸化銅角虫媒

酸化銅触媒は、コールド燃焼試験で使用した触媒ディスクを大型化したもので、外径約195mm、厚さ約50mmの寸法を有している。製作上の制約で、セラミックディスクに担持させる酸化銅の量は、セラミックディスク重量の9~17%とした。これは、酸化銅がセラミックディスクの素材に均一に担持されていると仮定した場合、流体との接触面における単位面積当たりの重量は $1.1 \times 10^{-2} \sim 1.9 \times 10^{-2}$ kg/m²に相当する。

数の増加に伴ってスス等の減少が見られたが、排ガス中におけるCO組成比はほとんど減少しなかった。一般的に、同一条件下においては固相-固相反応より気相-固相反応のほうが反応速度が著しく大きいことから、酸化銅による酸化反応はスス等よりCOとの反応のほうが顕著となる。このことから、スス等は、セラミックディスクの空孔内に物理的に保持されることにより炉内滞留時間が延び、その間高温雰囲気下に置かれることにより燃焼していたと考えられる。イオン交換樹脂の熱分解に係る試験結果⁸⁾から、樹脂の主成分は炭化水素であるので、十分な空気雰囲気下で600°C以上に維持されていればH₂OとCO₂に転換することが分かっており、空孔に保持されることによりスス等がこの条件に近い状態に固定されていたと考えられる。

触媒ディスク(#30)においても、スス等は空孔内に保持される。空孔に保持されたスス等は高温雰囲気下に置かれることにより2次燃焼するが、排ガス中のCO組成比の減少等から、この2次燃焼に酸化銅による酸化反応が大きく寄与していることがわかった。しかし、捕集したスス等の重量が0.001g以下と少量であったため、定量的な比較はこの試験では確認できなかった。

前述したように、酸化銅とスス等の固相-固相反応は反応速度が小さく、さらに本試験装置においては、触媒を通過する排ガス速度(触媒の入り口で、約40cm/s)が大きくて、酸化銅とスス等の接触時間が十分取れなかった。一般的に、樹脂の焼却処理には十分な燃焼空気の供給が必要であることから、排ガス速度は大きくなる。従って、スス等を2次燃焼させるためには、スス等を一時的に保持することにより炉内滞留時間を延ばし、その間に周囲の熱源、酸化反応等により燃焼させる方法が有効である。この観点からこの試験で使用した多孔質の触媒ディスクは本焼却処理技術において望ましい性能を有している。

3. ホット燃焼試験

3.1 試験の概要

ホット燃焼試験装置において既知量のRIを吸着させた模擬廃樹脂を焼却し、燃焼中及び燃焼後に各部位から採取した試料の放射能を測定すること等により、樹脂焼却時のRIの分布状況及びこれに与える触媒ディスクの孔径等の影響を観察した。

さらに、ホット試験装置を用いてJMTRで発生した実廃樹脂を焼却し、実廃樹脂燃焼時における放射性物質の分布状況を比較・観察した。

3.2 酸化銅角虫媒

酸化銅触媒は、コールド燃焼試験で使用した触媒ディスクを大型化したもので、外径約195mm、厚さ約50mmの寸法を有している。製作上の制約で、セラミックディスクに担持させる酸化銅の量は、セラミックディスク重量の9~17%とした。これは、酸化銅がセラミックディスクの素材に均一に担持されていると仮定した場合、流体との接触面における単位面積当たりの重量は $1.1 \times 10^{-2} \sim 1.9 \times 10^{-2}$ kg/m²に相当する。

今回のホット燃焼試験においては、孔径の異なる4種類の触媒ディスク（#13、#20、#30、#40）を使用した。Table 2に使用した触媒ディスクの孔径及び流体との接触表面積を示す。

3. 3 試験装置

3.3.1 全体構成

燃焼試験装置は、触媒ディスクを装着する樹脂燃焼系を中心に、樹脂供給系及び排ガス浄化系から構成している。装置の系統図をFig. 12に示す。（詳細な仕様は付録参照）

3.3.2 樹脂燃焼系

樹脂燃焼系は、主に流動層焼却炉、酸化銅触媒及び燃焼バーナから構成している。

流動層焼却炉は、外径267.4mm×高さ2,543mmの寸法を有するSUS310製の円筒炉で、下方の流動層形成部は厚さ50mmの耐火レンガで内張している。炉底には、流動媒体として、コールド燃焼試験で用いたものと同じ平均粒径0.5mmの酸化アルミニウムを、充填高さが内径と等しくなるように約2ℓ充填した。炉上部のライニングを施工していないフリーボード部は酸化銅触媒を装着する構造になっている。燃焼用空気は、予め流動化条件及び燃焼条件を確認し、理論燃焼空気量の約1.2倍となる25~26Nm³/hを炉底及び樹脂供給系の圧縮空気ブロー装置から供給した。

酸化銅触媒は、コールド燃焼試験で使用したものと同じ形状で内径203mm×高さ501mmの寸法を有するSUS316製のホルダに触媒ディスク10枚を入れ、コールド燃焼試験で使用した充填材と同じ材質のものを触媒ディスクとホルダの隙間に密に詰めた後、炉内フリーボード部に装着した。燃焼バーナは、流動層と酸化銅触媒をそれぞれ加熱するために、流動層形成部の下部の風箱と触媒ホルダの最下部から約10cm離れた位置に、それぞれ1台づつ設置してある。

3.3.3 樹脂供給系

樹脂供給系は、主に樹脂タンク、スクリューフィーダ及び圧縮空気ブロー装置から構成している。

樹脂供給系は、貯蔵施設に貯蔵されたままの状態（水に浸された状態）の樹脂を、乾燥工程を経ないで連続的に焼却炉に供給することを意図している。

樹脂タンクに充填した樹脂を、スクリューフィーダによりタンク底部からかきあげる。スクリューフィーダ上端に達した樹脂は、ほぼ連続的に圧縮空気ブロー装置に落下することとなる。落下した樹脂は、圧縮空気によって流動層形成部に吹き込まれる。

なお、スクリューフィーダが傾斜を有し、かきあげ時に水切り作用が働くことから、焼却炉内に投入される樹脂の含水率は45~50wt%であった。

3.3.4 排ガス浄化系

排ガス浄化系は、主にサイクロン、ベンチュリースクラバ、凝縮器、再加熱器及びHEPAフィルタから構成している。

焼却炉から出た排ガスは、サイクロンで塵埃を、水酸化ナトリウム水を循環させているベンチュリースクラバでSO_xと塵埃を、また、凝縮器で水分をそれぞれ除去し、さらに、再加熱器で相対湿度を下げた後、HEPAフィルタを経て、建屋の排気設備を通じ大気中に放出する。

なお、Fig. 12に示す触媒塔については、触媒ディスクを装着できる構造になっているが、今回のホット燃焼試験の主目的が流動層焼却炉内における酸化銅触媒の特性を観察することであったため、触媒ディスクは装着しなかった。

3. 4 試験方法

3.4.1 試験手順

試験は、2段階からなっている。第1段階では、模擬廃樹脂を用いるとともに、触媒ディスクの表面積及び孔径を変化させ、樹脂の燃焼時におけるRIの分布状況に与える触媒ディスクの表面積、孔径等の影響を観察した。また、第2段階では、JMTRの実廃樹脂を用いて燃焼試験を行い、実廃樹脂の燃焼時における放射性物質の分布状況を観察した。

3.4.2 イオン交換樹脂及びRI

(1) 第1段階

アニオン及びカチオンのうち、本試験においてはまずカチオン樹脂のみで試験することとし、入手の容易さから粒状のカチオン樹脂（三菱化学：ダイヤイオンSKN-1）を用いた。これは、現在多くの原子力発電所及びJMTRにおいて、使用冷却水の浄化等に使用されているカチオン樹脂と同じである。

樹脂に吸着させるRIは、原子力発電所等の実廃樹脂中の主要核種を考慮して、⁵⁴Mn、⁶⁰Co及び¹³⁴Csを用いた。

また、樹脂に吸着させる放射能及び放射能濃度は、放射線測定器の検出限界値、燃焼試験時における作業者の被ばく量等を考慮し、1回の燃焼試験で核種毎に $4.5 \times 10^5 \sim 1.1 \times 10^6$ Bq及び $8.1 \times 10^4 \sim 1.4 \times 10^5$ Bq/kgとなるように調整した。

RIの樹脂への吸着及び吸着量の決定は、以下の手順で行った。

- ① 4ℓポリエチレンビーカに計量した樹脂(1.8 ~ 2.6 kg)を入れ、水面が樹脂面より約2cm上になるよう予め計量した蒸留水(900 ~ 1300mℓ)を注いだ。
 - ② ホールピペットを用いて、3種類のRIを混合した水溶液を①のポリエチレンビーカに滴下した後、攪拌器を用いて約90分攪拌した。
 - ③ 攪拌器を止め、ポリエチレンビーカ内の上澄み液10mℓをホールピペットを用いて、100 mℓポリエチレン容器に採取・希釈し、これをGe検出器と波高分析器で測定した。
- なお、今回塩酸によって活性化した樹脂を用いたため、この時点での上澄み液のpHは1.0 ~ 2.0であった。

④ ②の滴下したRIの放射能から、③の結果から算出した上澄み液中の放射能を引いた値を樹脂への吸着量とした。この結果、②の滴下したRIの放射能の99.9%以上が吸着された。

使用した測定器は、以下の通りである。

検出器 : 高純度Ge半導体 GMX-25200-P
538mm ϕ × 655mmL (ORTEC 社製)

波高分析器 : MCA-7800-8A2 (SEIKO BG&G 社製)

触媒ディスク #13、#20、#30及び#40を用いた各燃焼試験において、焼却炉に投入した樹脂の重量及び放射能をTable 3 に示す。

(2) 第2段階

燃焼試験に用いたJMTRの実廃樹脂の性状、焼却炉に投入した樹脂の重量及び放射能をTable 4 に示す。今回使用した実廃樹脂に付着していた放射性核種としては、 ^{60}Co が検出されたのみであった。

3.4.3 試験装置の運転条件

樹脂の供給は、燃焼バーナにより流動層と酸化銅触媒の温度を650 °C以上に予熱した後行った。また、排ガス中の放射性塵埃のサンプリングは樹脂の供給とともに開始し、バーナを停止して30分後に終了した。

燃焼試験中の試験装置の運転条件を以下に述べる。

- ① 流動層部及び触媒温度 : 650 ~ 750 °C
- ② 焼却炉内圧力 : 約 -10mmH₂O
- ③ 焼却炉への空気供給量 : 25~26 Nm³/h (理論燃焼空気量の約1.2倍)

燃焼試験中の運転記録の一例をFig. 13に示す。

3.4.4 サンプリング方法

ホット燃焼試験における各種サンプリングは、概略以下の要領で行った。

- ① 燃焼中、炉出口付近の煙道から排ガス中の放射性塵埃の一部を「JIS Z 8808 排ガスのダスト濃度の測定方法」に準じた等速吸引法により連続的に採取し、その放射能を評価することにより、煙道を通過した全放射能を算出した。サンプリングには、石橋科学工業製ダストユニコン KF-8808-II を使用した。
- ② 燃焼中、煙道から排ガスを連続的に採取し、採取した排ガス中のCO、CO₂、O₂ 濃度を測定することにより、樹脂の燃焼状態及び酸化銅触媒の反応状況等を観察した。
- ③ 試験装置停止後、炉内の流動媒体、触媒ディスク及び排ガス浄化系各機器の放射性塵埃、廃液等から試料を採取し、その放射能濃度等を評価することにより、装置の各部位に移行した放射能を算出した。

3. 5 試験結果及び考察

模擬廃樹脂を用いた燃焼試験における装置内のRI分布状況をFig. 14に示す。焼却炉に投入されたRIの約10%が焼却炉内の流動媒体に、40~70%が酸化銅触媒にそれぞれ付着するとともに、2~40%が排ガス浄化系に移行した。使用した3種類の核種に移行状況の差異は見られなかつた。

流動層内での1次燃焼時に生じる排ガスによって酸化銅触媒内に同伴されたRI*に対する各段の触媒ディスクに付着したRIの割合をFig. 15に示す。各燃焼試験とも、第1段目から第3段目までの触媒ディスクに40~80%が付着した。

燃焼試験における装置内のRI分布状況のうち、排ガス浄化系の各機器における分布を含めたものの一例（#13）をFig. 16に示す。排ガス浄化系に移行したRIの多くは系内のサンプリング時に採取されなかった。これは、ホット試験中に、排ガス浄化系煙道の表面の線量当量率の上昇が測定されていることから、サンプリングで採取されなかったRIの多くは系内の煙道に付着したためであることがわかった。

排ガス浄化系へ移行するRIの割合は、触媒ディスクの孔径により大きく異なり、孔径が小さくなるにつれて、排ガス浄化系に移行するRIの割合が減少した。また、同時に孔径が小さい触媒ディスク（#30、#40）を用いた場合には、炉内に投入されたRIの約23%及び約50%が採取できなかつた。

孔径が小さい触媒ディスク（#40）を使用した燃焼試験の直後、流動媒体を交換するとともに、酸化銅触媒を孔径のより大きい触媒ディスク（#20）に交換し、RIの吸着していない樹脂を焼却して同様のサンプリングを行った結果、最初のサンプリングで採取されなかったRIの一部を採取することができた。これにより、最初のサンプリングで採取されなかったRIの多くは、燃焼試験時に触媒を通過せず炉内壁に付着していたことが確認された。

燃焼試験後の第1段目付近の触媒ディスクの表面及び内部に白い粉末が付着していることが観察され、孔径が小さい触媒ディスク（#30、#40）ではこれが顕著であった。分析の結果、この粉末は炉内耐火物及び流動媒体の磨耗物であることが確認された。

一般に、炉内耐火物及び流動媒体の摩擦により磨耗物が生じるが、樹脂とともに炉内に供給した多量の水分により急激な温度変化が生じ、炉内耐火物及び流動媒体の劣化を促進させ、多量の磨耗物を生成したものと考えられる。試験後、炉内の耐火物表面を観察した結果、多数の亀裂等が確認された。

ホット燃焼試験とコールド燃焼試験の結果から、孔径の小さい触媒ディスク（#30、#40）を使用した場合、炉内耐火物及び流動媒体の磨耗により生じた粉末が、時間の経過とともに触媒ディスクに蓄積して触媒ディスクの空孔を塞ぎ、RIを同伴したスス等の未燃物が触媒ディスクに保持もされず通過もせずに炉内で燃焼し、RIが炉内耐火物の亀裂等に沈着したものと考えられる。

* 酸化銅触媒に付着したRIと排ガス浄化系に移行したRIの合計

本焼却処理技術において酸化銅触媒の果たす主要な役割は、未燃物の2次燃焼であり、放射性物質の除染は意図していない。従って、焼却炉に投入された放射性物質は、炉内に止まらず、可能な限り排ガス浄化系に移行することが望ましい。今回のホット燃焼試験の結果においては、孔径が大きい触媒ディスク（#13、#20）が本焼却処理技術に適していることとなる。

空孔の閉塞を生じなかった触媒ディスク（#13、#20）を使用した場合、焼却炉に投入されたRIの約10%が焼却炉内の流動媒体に、50~70%が酸化銅触媒にそれぞれ付着するとともに、20~40%が排ガス浄化系に移行した。

また、流動層内での1次燃焼時に生じる排ガスによって酸化銅触媒内に同伴されたRIの40~60%が、第1段目から第3段目までの触媒ディスクに付着した。

JMTRの実廃樹脂を用いた燃焼試験における⁶⁰Coの分布状況をFig. 17に示す。分布状態は、模擬廃樹脂を用いた場合と同様の結果を示した。

4. 結論

コールド燃焼試験の結果は次のように要約される。

- (1) 流動層による1次燃焼と酸化銅触媒による2次燃焼とを組み合わせた焼却処理技術においては、減重比は約10,000であり、未燃物のうち、スス等の黒色の熱分解生成物だけを対象にすると、100,000以上であった。
- (2) 酸化銅の触媒能力については、樹脂の1次燃焼によって生じるスス等の黒色の熱分解生成物及びCOは、ほぼ完全に2次燃焼できることを確認した。また、未燃物のうち、他の熱分解生成物の2次燃焼についても、酸化銅触媒は有効であった。
- (3) 流動層と酸化銅触媒とを組み合わせた焼却処理技術においては、酸化銅とスス等の反応速度は小さくかつ接触時間も短い。従って、スス等を一時的に保持して炉内滞留時間を延ばし、その間に周囲の熱源及び酸化反応により燃焼させる方法が有効である。この観点から、本試験で使用した多孔質の触媒ディスクは望ましい性能を有している。

ホット燃焼試験の結果は次のように要約される。

- (1) 試験装置でRIを吸着させた模擬廃樹脂を焼却した場合、焼却炉に投入されたRIの約10%が焼却炉内の流動媒体に、50~70%が酸化銅触媒にそれぞれ付着するとともに、20~40%が排ガス浄化系に移行した。
- (2) 流動層内での1次燃焼時に生じる排ガスによって酸化銅触媒内に同伴されたRIの40~60%が、第1段目から第3段目までの触媒ディスクに付着した。
- (3) JMTRの実廃樹脂の燃焼時における⁶⁰Coの分布状況も、模擬廃樹脂を燃焼した場合と同様であった。

これらの結果等を踏まえ、提言及び今後の課題として次のことが考えられる。

本焼却処理技術において酸化銅触媒の果たす主要な役割は、未燃物の2次燃焼であり、放射性物質の除染は意図していない。従って、焼却炉に投入された放射性物質は、炉内に止まらず、可能な限り排ガス浄化系に移行することが望ましい。今回のホット燃焼試験の結果においては、孔径が大きい触媒ディスク（#13、#20）が本焼却処理技術に適していることとなる。

空孔の閉塞を生じなかった触媒ディスク（#13、#20）を使用した場合、焼却炉に投入されたRIの約10%が焼却炉内の流動媒体に、50~70%が酸化銅触媒にそれぞれ付着するとともに、20~40%が排ガス浄化系に移行した。

また、流動層内での1次燃焼時に生じる排ガスによって酸化銅触媒内に同伴されたRIの40~60%が、第1段目から第3段目までの触媒ディスクに付着した。

JMTRの実廃樹脂を用いた燃焼試験における⁶⁰Coの分布状況をFig. 17に示す。分布状態は、模擬廃樹脂を用いた場合と同様の結果を示した。

4. 結論

コールド燃焼試験の結果は次のように要約される。

- (1) 流動層による1次燃焼と酸化銅触媒による2次燃焼とを組み合わせた焼却処理技術においては、減重比は約10,000であり、未燃物のうち、スス等の黒色の熱分解生成物だけを対象にすると、100,000以上であった。
- (2) 酸化銅の触媒能力については、樹脂の1次燃焼によって生じるスス等の黒色の熱分解生成物及びCOは、ほぼ完全に2次燃焼できることを確認した。また、未燃物のうち、他の熱分解生成物の2次燃焼についても、酸化銅触媒は有効であった。
- (3) 流動層と酸化銅触媒とを組み合わせた焼却処理技術においては、酸化銅とスス等の反応速度は小さくかつ接触時間も短い。従って、スス等を一時的に保持して炉内滞留時間を延ばし、その間に周囲の熱源及び酸化反応により燃焼させる方法が有効である。この観点から、本試験で使用した多孔質の触媒ディスクは望ましい性能を有している。

ホット燃焼試験の結果は次のように要約される。

- (1) 試験装置でRIを吸着させた模擬廃樹脂を焼却した場合、焼却炉に投入されたRIの約10%が焼却炉内の流動媒体に、50~70%が酸化銅触媒にそれぞれ付着するとともに、20~40%が排ガス浄化系に移行した。
- (2) 流動層内での1次燃焼時に生じる排ガスによって酸化銅触媒内に同伴されたRIの40~60%が、第1段目から第3段目までの触媒ディスクに付着した。
- (3) JMTRの実廃樹脂の燃焼時における⁶⁰Coの分布状況も、模擬廃樹脂を燃焼した場合と同様であった。

これらの結果等を踏まえ、提言及び今後の課題として次のことが考えられる。

- (1) 原子力発電所の1次冷却水の浄化等に使用された廃樹脂は放射能濃度が高く、かつ⁵⁴Mn、⁶⁰Co及び¹³⁷Csが主要核種であることから、これを本焼却処理技術で処理する場合には触媒部の線量当量率が高くなる。従って、作業員の被ばくを低減するために、遮へい、遠隔操作等を検討しておく必要がある。
- (2) 樹脂の安定な燃焼及び炉内耐火物等の健全性を維持するためには、焼却炉への供給は乾燥樹脂が望ましい。

謝

辛

本試験を行うに当たり、東海研究所バックエンド技術部次長阿部昌義氏には貴重な討論を頂きました。深く感謝を申し上げます。また、本試験においては、東海研究所燃料研究部分析センターの室長代理大内操氏及び小原和弘氏に多大な援助を頂きました。厚くお礼申し上げます。

参考文献

- 1) 矢幡 崑昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第2報 ベンチスケール試験）、JAERI-M・88-233 (1988)
- 2) 矢幡 崑昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第3報 総括反応速度の把握）、JAERI-M・90-075 (1990)
- 3) T.Yahata. et al. Incineration of Spent Ion Exchange Resins in Combination with Fluidized Bed and Catalyst, Proceeding of the 1992 Incineration Conference, Albuquerque, New Mexico, pp311-315
- 4) S.Kihara. et al. Incineration of Spent Ion Exchange Resins in Combination with Fluidized Bed and Catalyst(II), Proceeding of the 1993 Incineration Conference, Knoxville, Tennessee, pp457-460
- 5) 矢幡 崑昭ほか. 放射性汚染物質減容処理用セラミック多孔体触媒（公開特許広報平6-126176）
- 6) 福本 勤. 廃棄物処理技術、pp311-317、共立出版
- 7) 土屋利一. 質量分析、pp45-47、共立出版
- 8) 矢幡 崑昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第1報 基礎試験）、JAERI-M・88-008 (1988)

- (1) 原子力発電所の1次冷却水の浄化等に使用された廃樹脂は放射能濃度が高く、かつ⁵⁴Mn、⁶⁰Co及び¹³⁷Csが主要核種であることから、これを本焼却処理技術で処理する場合には触媒部の線量当量率が高くなる。従って、作業員の被ばくを低減するために、遮へい、遠隔操作等を検討しておく必要がある。
- (2) 樹脂の安定な燃焼及び炉内耐火物等の健全性を維持するためには、焼却炉への供給は乾燥樹脂が望ましい。

謝

辛

本試験を行うに当たり、東海研究所バックエンド技術部次長阿部昌義氏には貴重な討論を頂きました。深く感謝を申し上げます。また、本試験においては、東海研究所燃料研究部分析センターの室長代理大内操氏及び小原和弘氏に多大な援助を頂きました。厚くお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 矢幡 喬昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第2報 ベンチスケール試験）、JAERI-M・88-233 (1988)
- 2) 矢幡 喬昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第3報 総括反応速度の把握）、JAERI-M・90-075 (1990)
- 3) T. Yahata. et al. Incineration of Spent Ion Exchange Resins in Combination with Fluidized Bed and Catalyst, Proceeding of the 1992 Incineration Conference, Albuquerque, New Mexico, pp311-315
- 4) S. Kihara. et al. Incineration of Spent Ion Exchange Resins in Combination with Fluidized Bed and Catalyst(Ⅱ), Proceeding of the 1993 Incineration Conference, Knoxville, Tennessee, pp457-460
- 5) 矢幡 喬昭ほか. 放射性汚染物質減容処理用セラミック多孔体触媒（公開特許広報平6-126176）
- 6) 福本 勤. 廃棄物処理技術、pp311-317、共立出版
- 7) 土屋利一. 質量分析、pp45-47、共立出版
- 8) 矢幡 喬昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第1報 基礎試験）、JAERI-M・88-008 (1988)

- (1) 原子力発電所の1次冷却水の浄化等に使用された廃樹脂は放射能濃度が高く、かつ⁵⁴Mn、⁶⁰Co及び¹³⁷Csが主要核種であることから、これを本焼却処理技術で処理する場合には触媒部の線量当量率が高くなる。従って、作業員の被ばくを低減するために、遮へい、遠隔操作等を検討しておく必要がある。
- (2) 樹脂の安定な燃焼及び炉内耐火物等の健全性を維持するためには、焼却炉への供給は乾燥樹脂が望ましい。

謝

辛

本試験を行うに当たり、東海研究所バックエンド技術部次長阿部昌義氏には貴重な討論を頂きました。深く感謝を申し上げます。また、本試験においては、東海研究所燃料研究部分析センターの室長代理大内操氏及び小原和弘氏に多大な援助を頂きました。厚くお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 矢幡 崑昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第2報 ベンチスケール試験）、JAERI-M・88-233 (1988)
- 2) 矢幡 崑昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第3報 総括反応速度の把握）、JAERI-M・90-075 (1990)
- 3) T.Yahata. et al. Incineration of Spent Ion Exchange Resins in Combination with Fluidized Bed and Catalyst, Proceeding of the 1992 Incineration Conference, Albuquerque, New Mexico, pp311-315
- 4) S.Kihara. et al. Incineration of Spent Ion Exchange Resins in Combination with Fluidized Bed and Catalyst(Ⅱ), Proceeding of the 1993 Incineration Conference, Knoxville, Tennessee, pp457-460
- 5) 矢幡 崑昭ほか. 放射性汚染物質減容処理用セラミック多孔体触媒（公開特許広報平6-126176）
- 6) 福本 勤. 廃棄物処理技術、pp311-317、共立出版
- 7) 土屋利一. 質量分析、pp45-47、共立出版
- 8) 矢幡 崑昭ほか. 触媒燃焼によるイオン交換樹脂の減容処理（第1報 基礎試験）、JAERI-M・88-008 (1988)

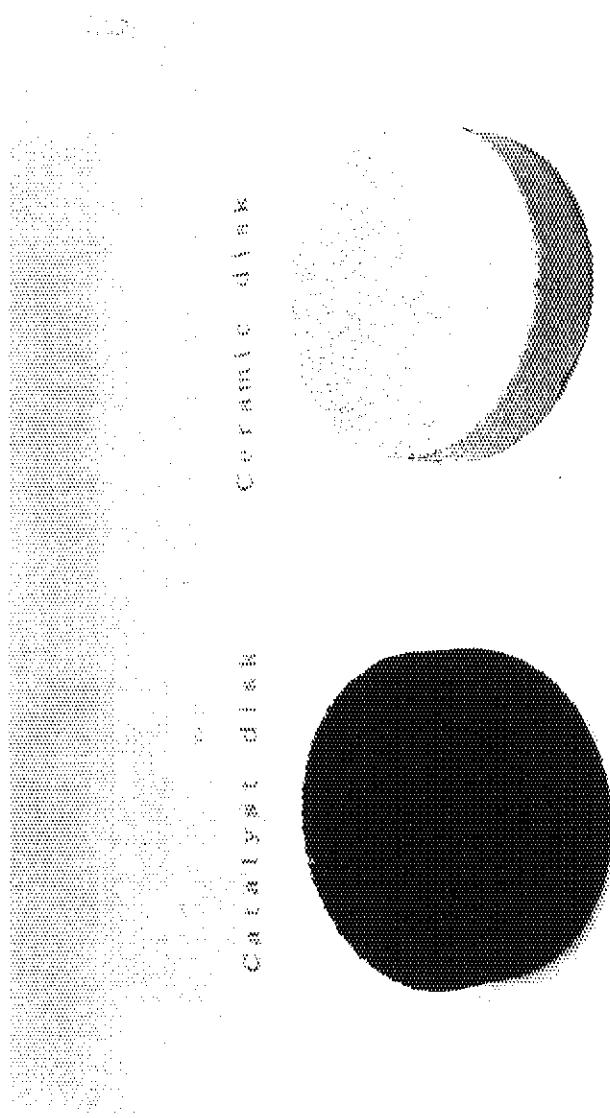
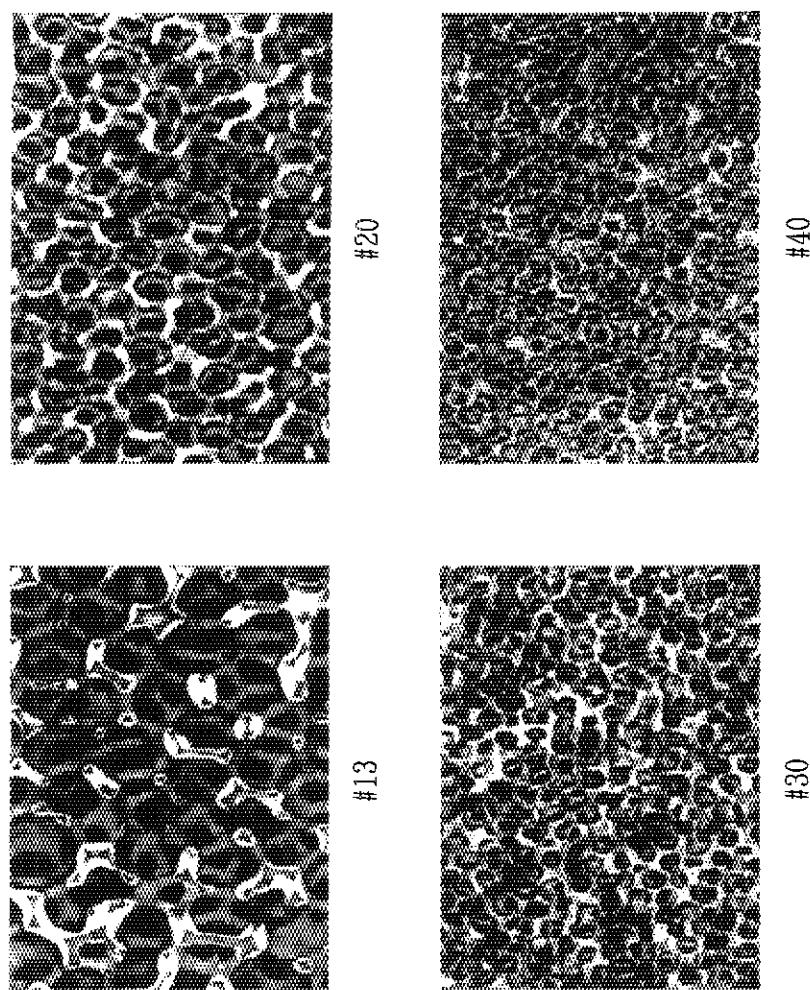


Fig. 1 Catalyst Disk and Ceramic Disk



#40 is used in only Incineration Experiment with Radioactive Resins

Fig. 2 Magnified Surface of Catalyst Disks

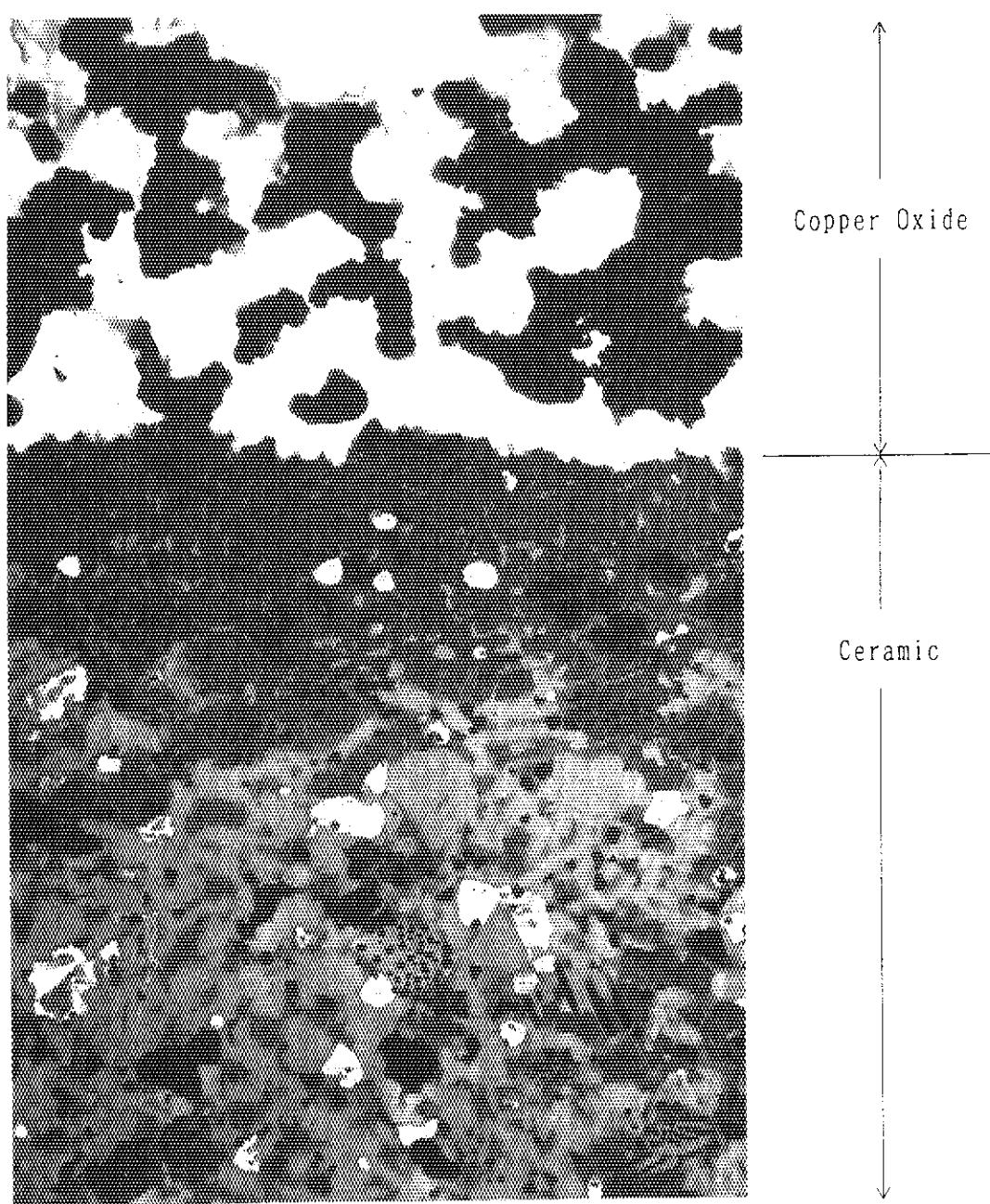


Fig. 3 Magnified Section of Catalyst Disk

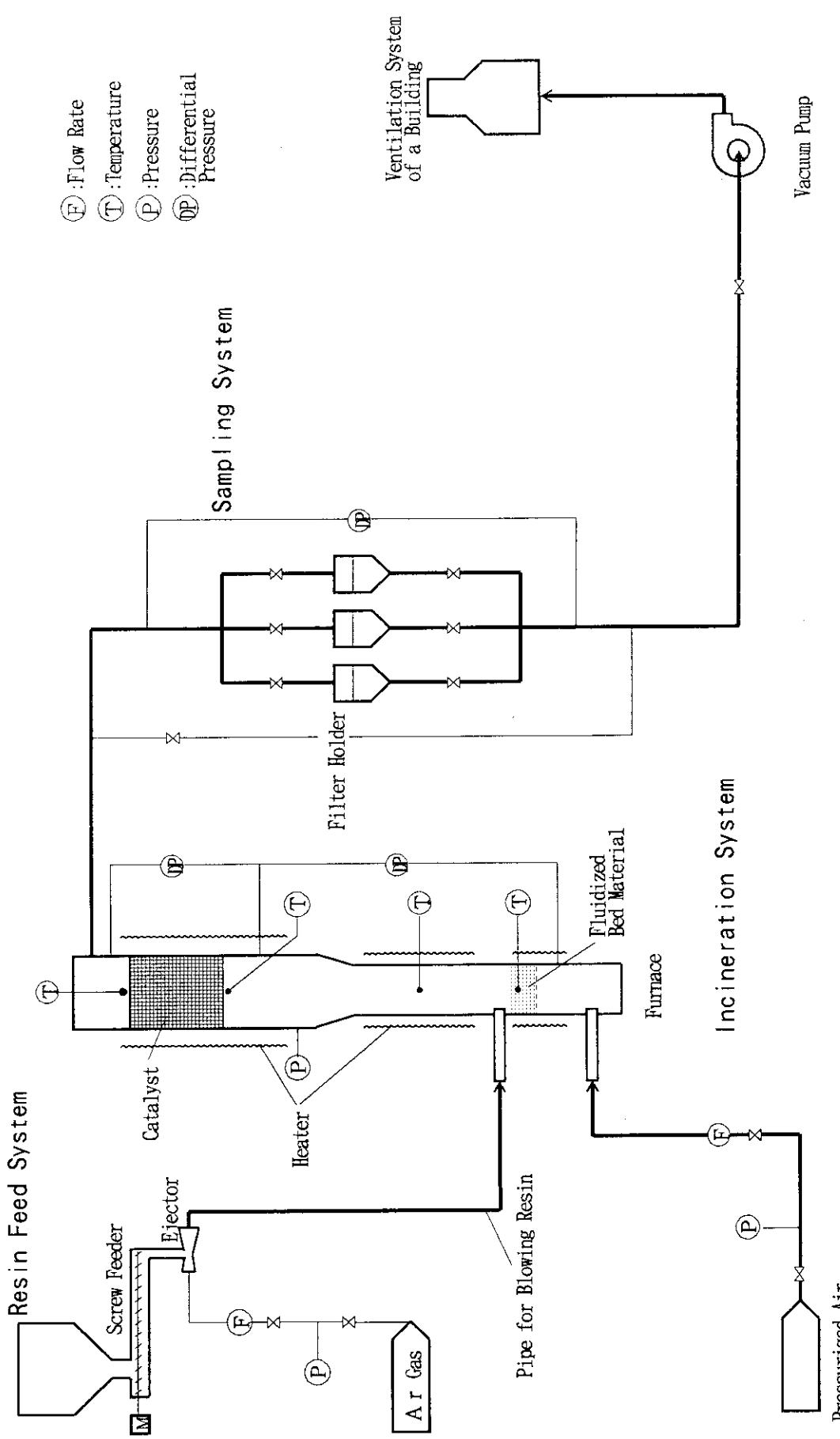


Fig. 4 Schematic Illustration of Apparatus with Non-radioactive Resins

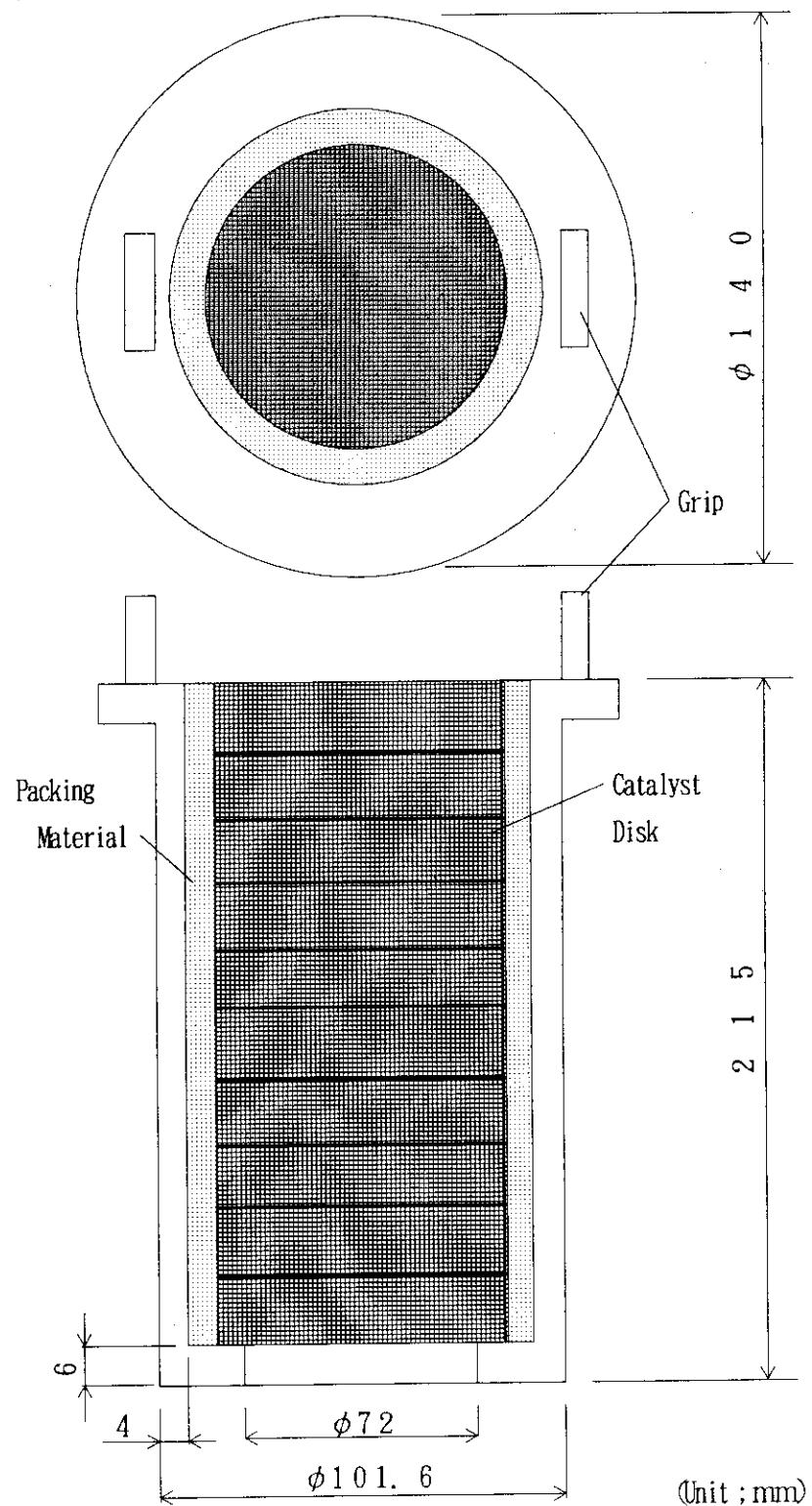
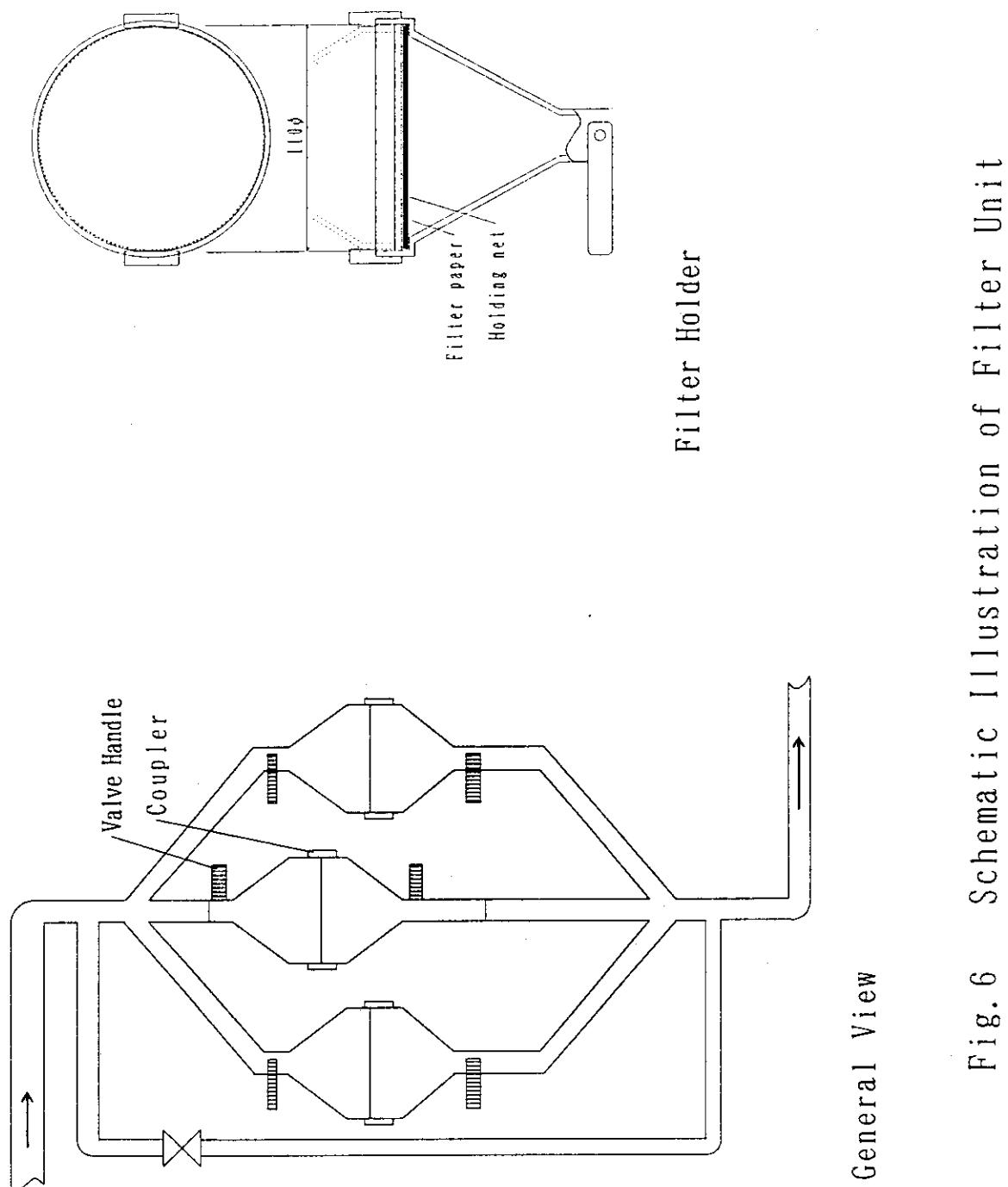


Fig. 5 Schematic Illustration of Catalyst Disk Holder



General View

Fig. 6 Schematic Illustration of Filter Unit

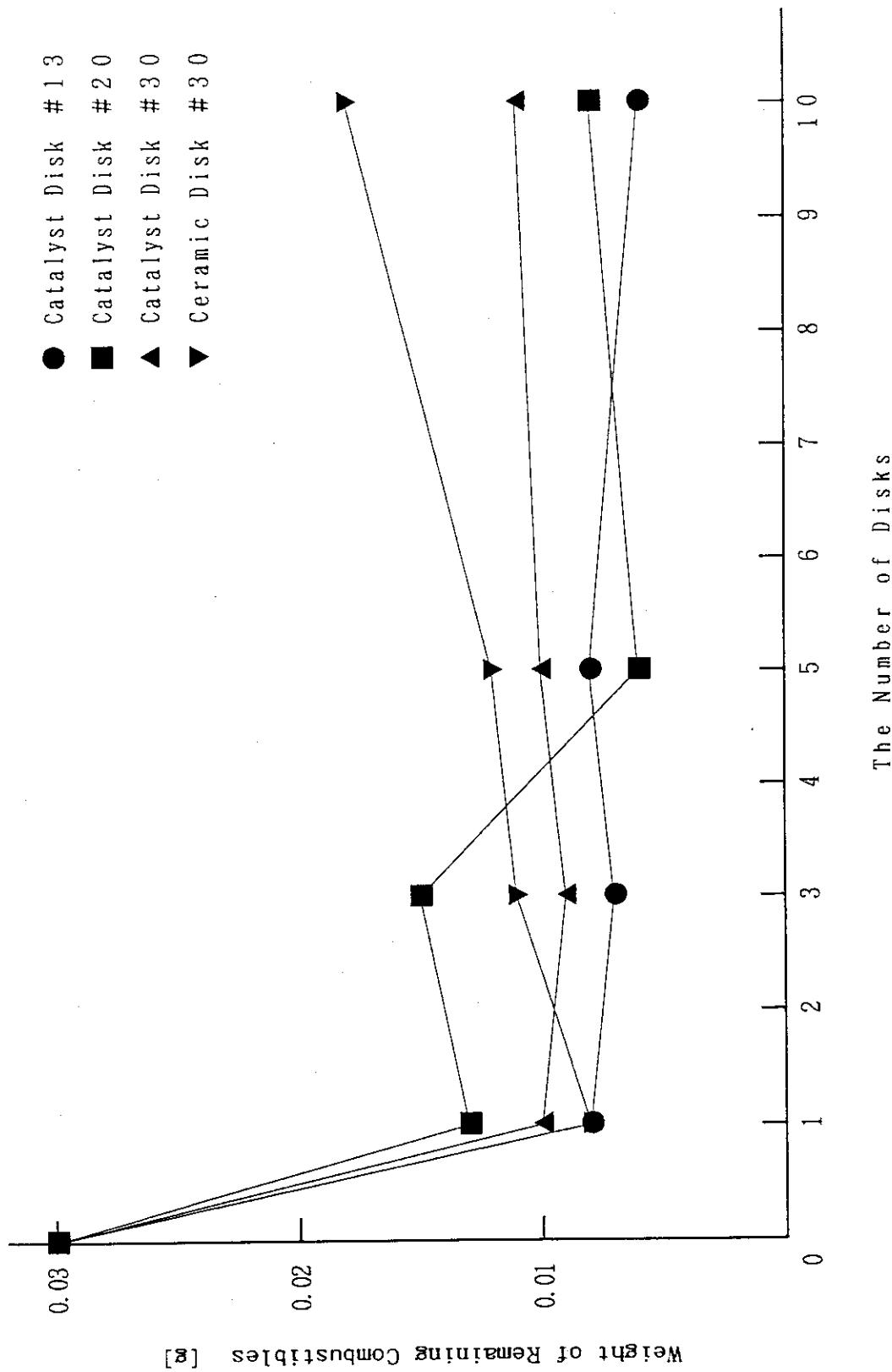


Fig. 7 Variation of Remaining Combustibles Weight per 100g Dry Resins Fed into the Furnace

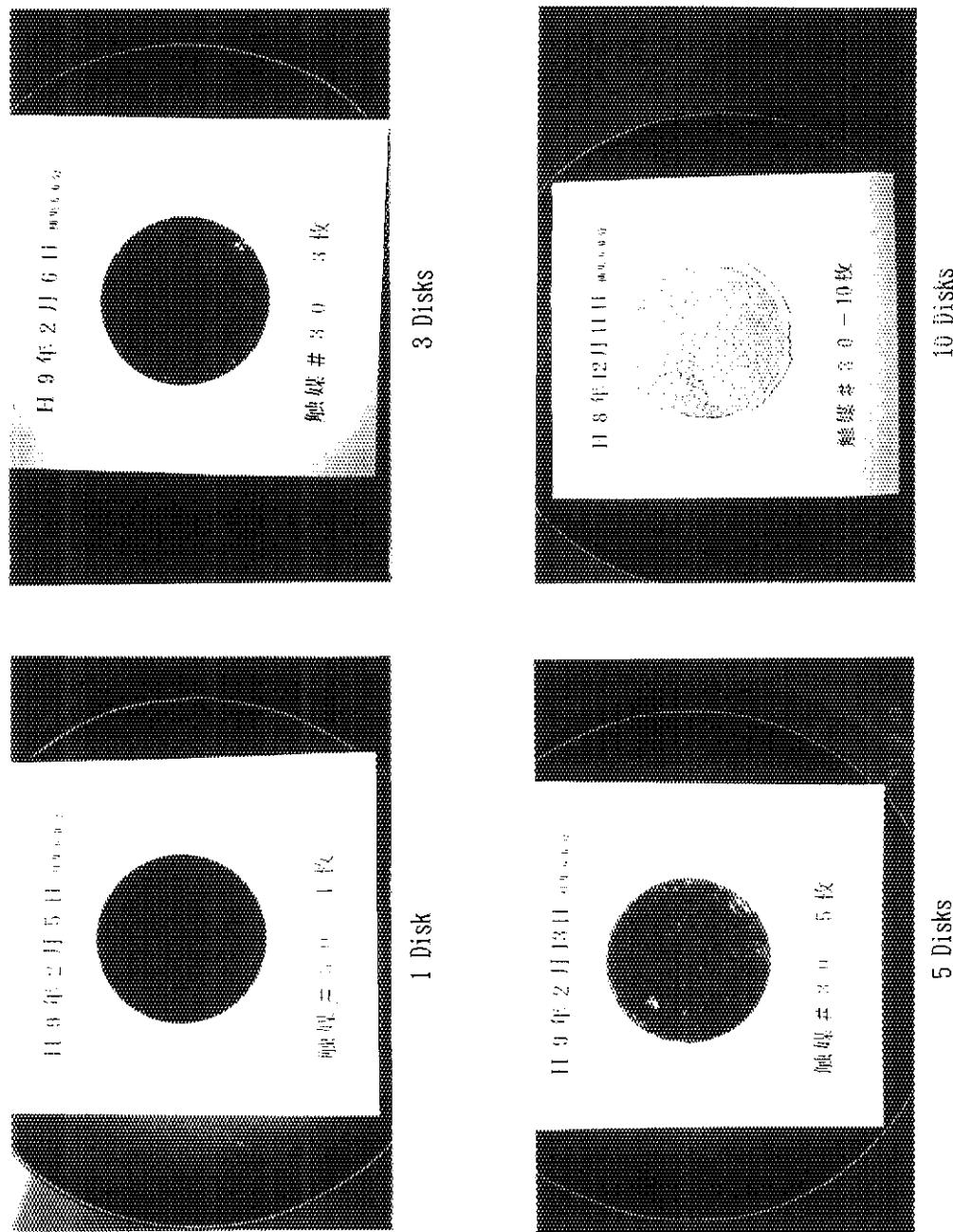


Fig. 8-1 View of Remaining Combustibles on Filter (Catalyst Disk #30)

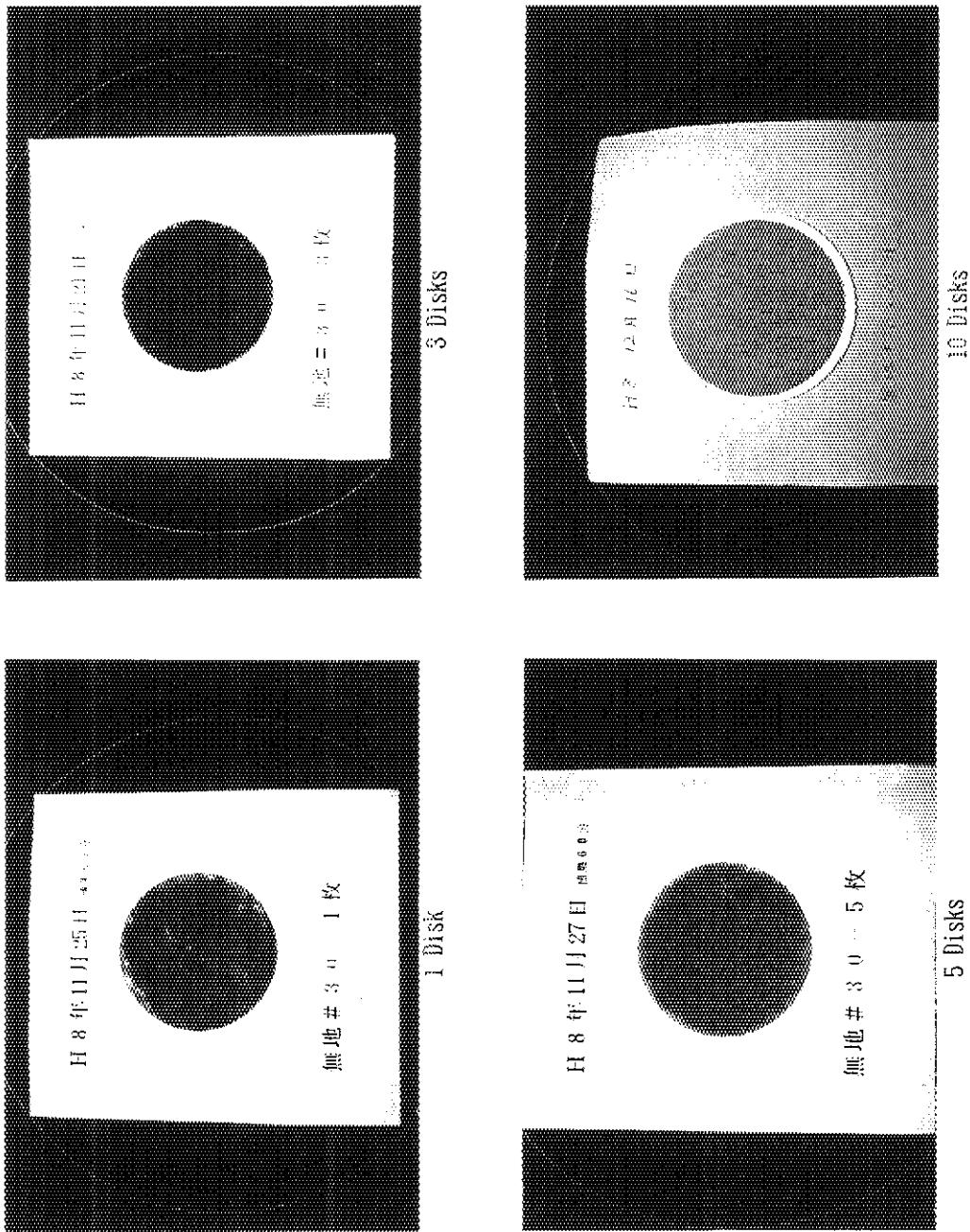


Fig. 8-2 View of Remaining Combustibles on Filter (Ceramic Disk #30)

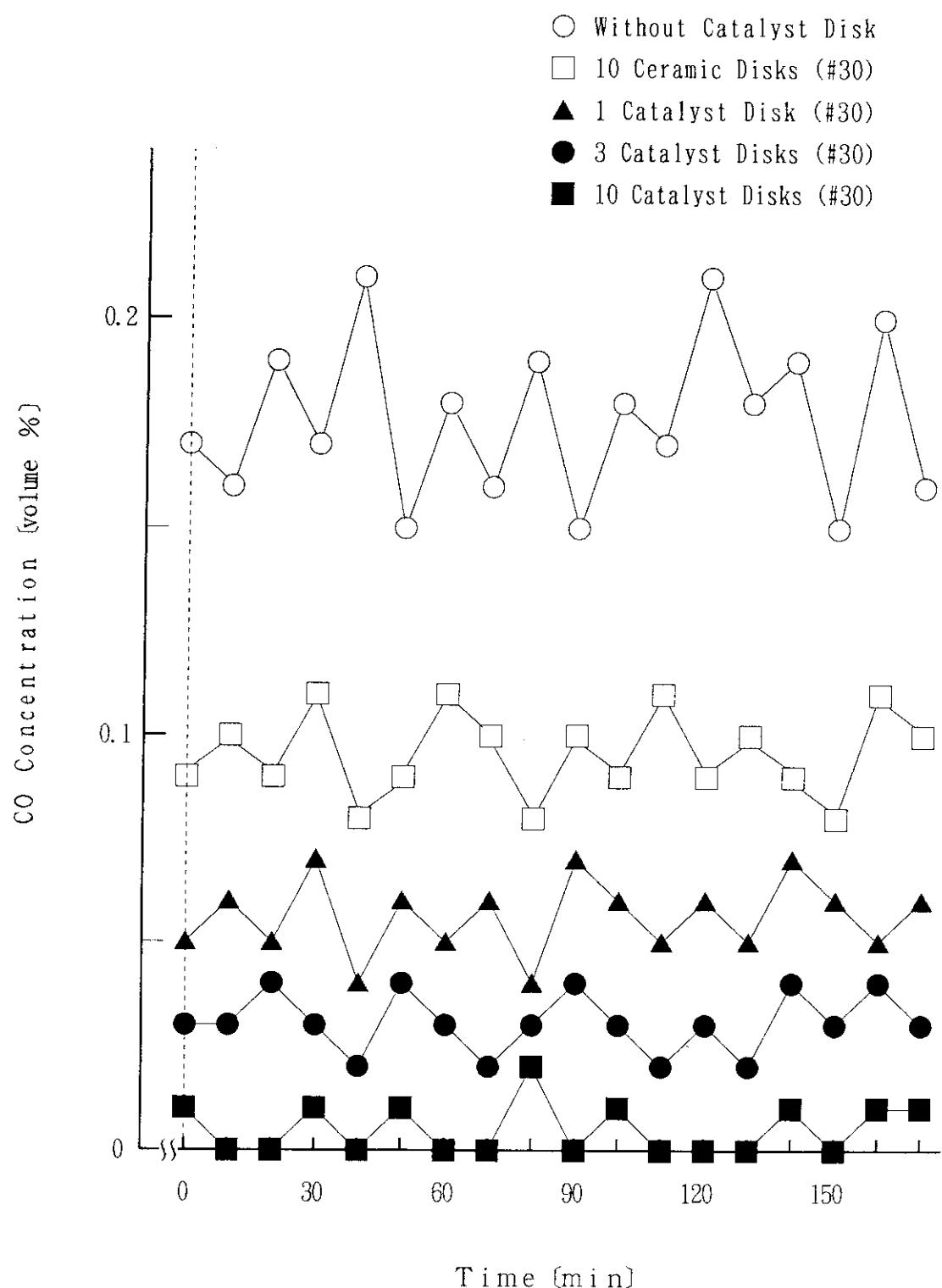


Fig. 9 Variation of CO Concentration in Off-gas

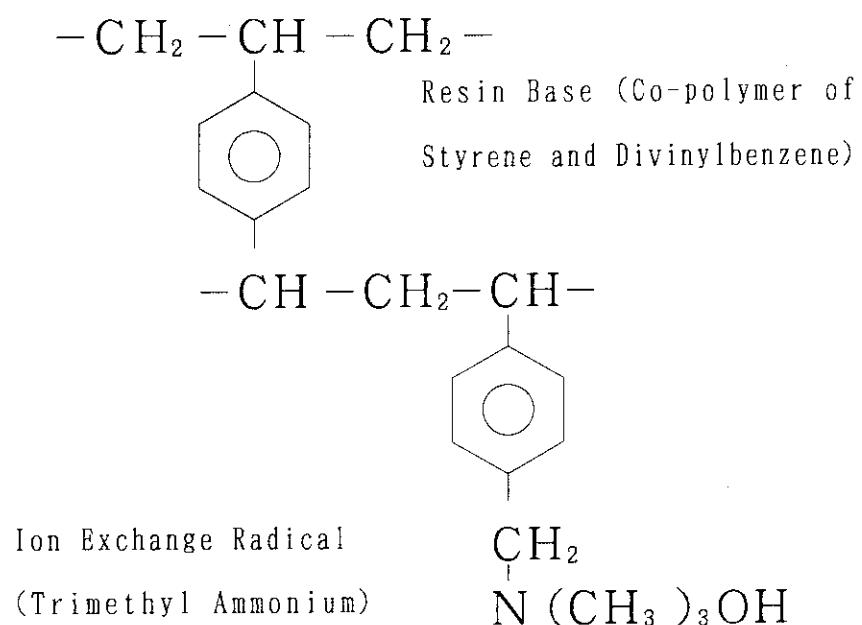


Fig. 10 Structure of Anion Exchange Resin

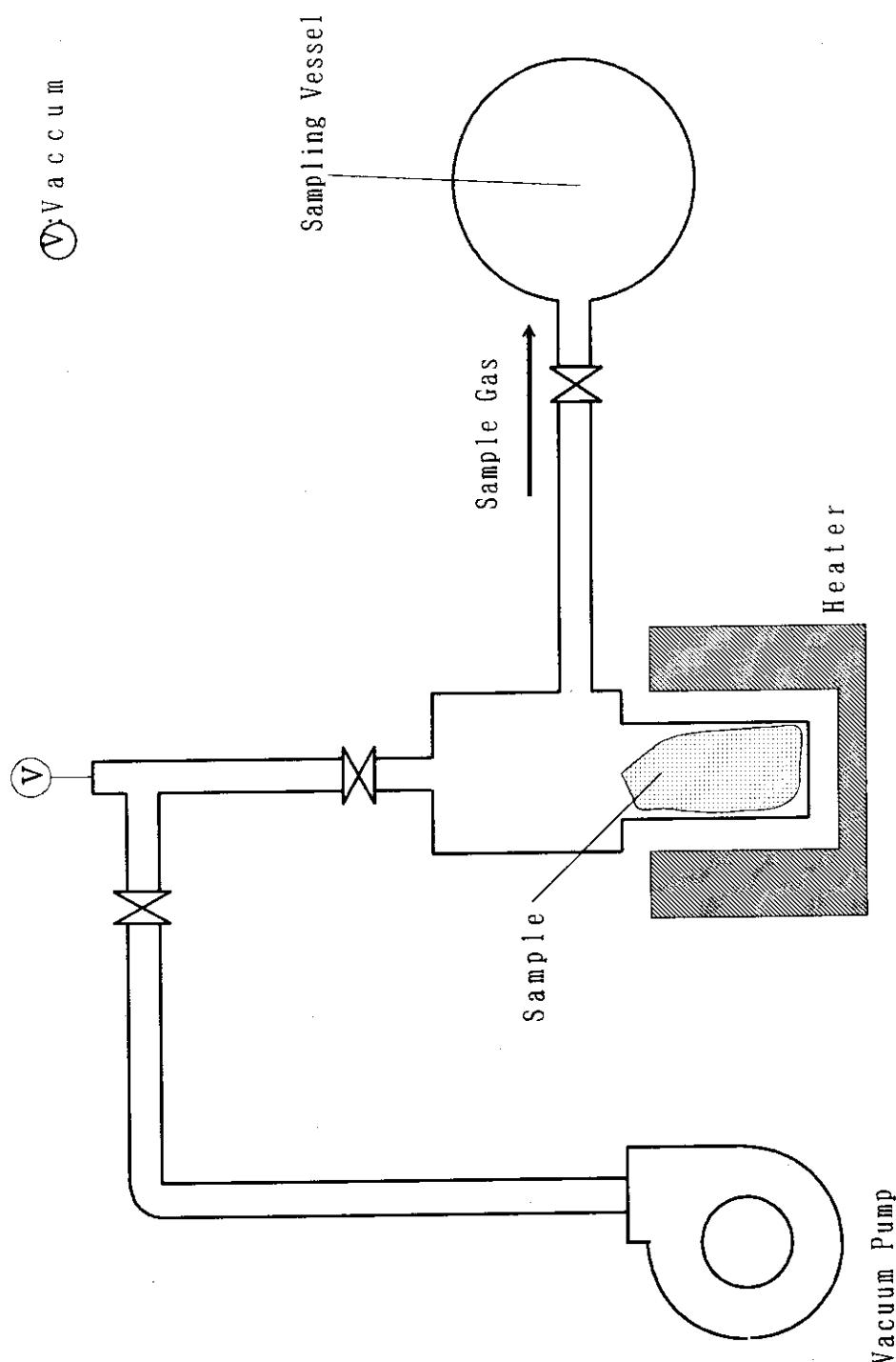


Fig. 11 Schematic Illustration of Gas Sample Apparatus for Mass Spectrometer

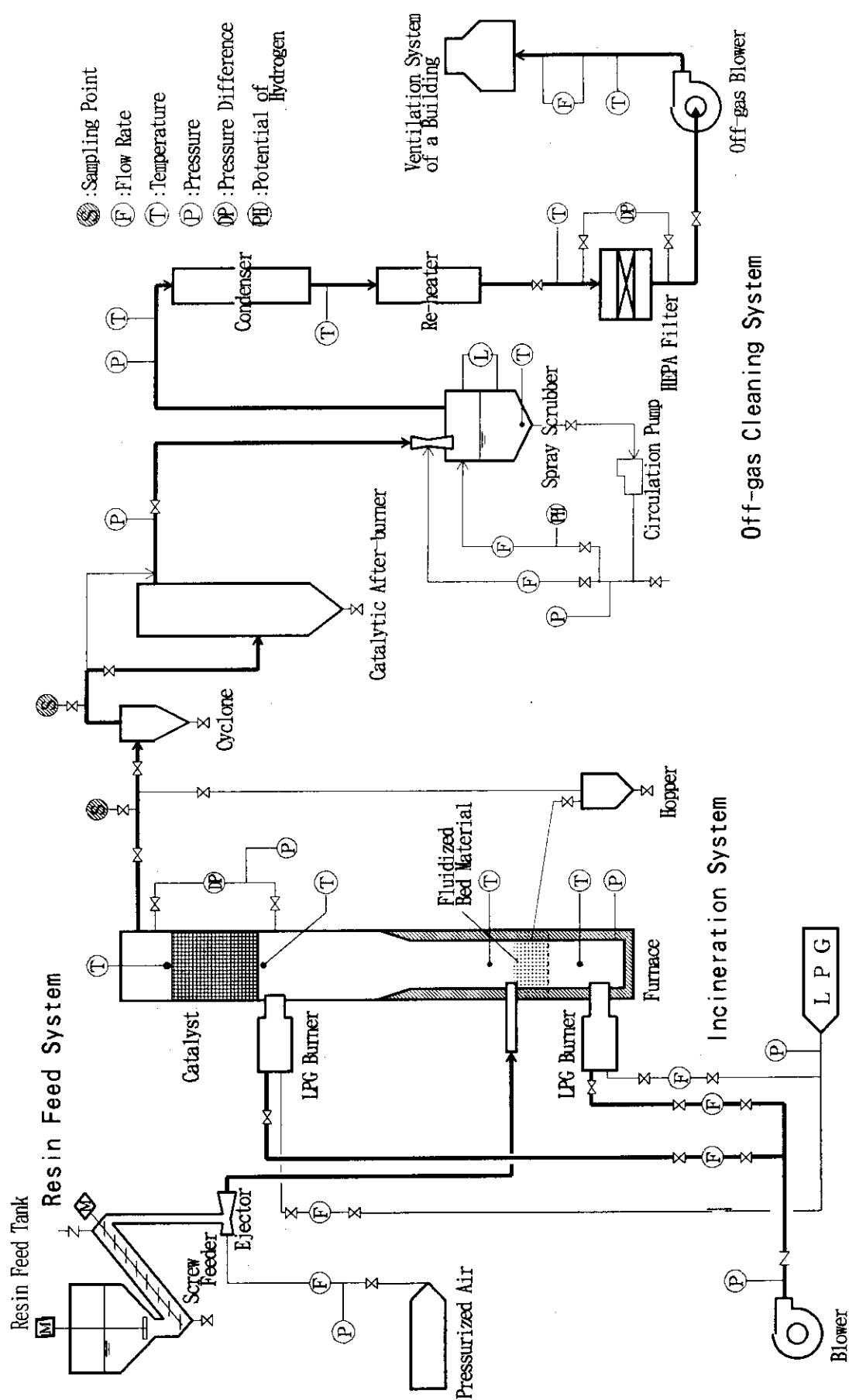


Fig. 12 Schematic Illustration of Apparatus with Radioactive Resins

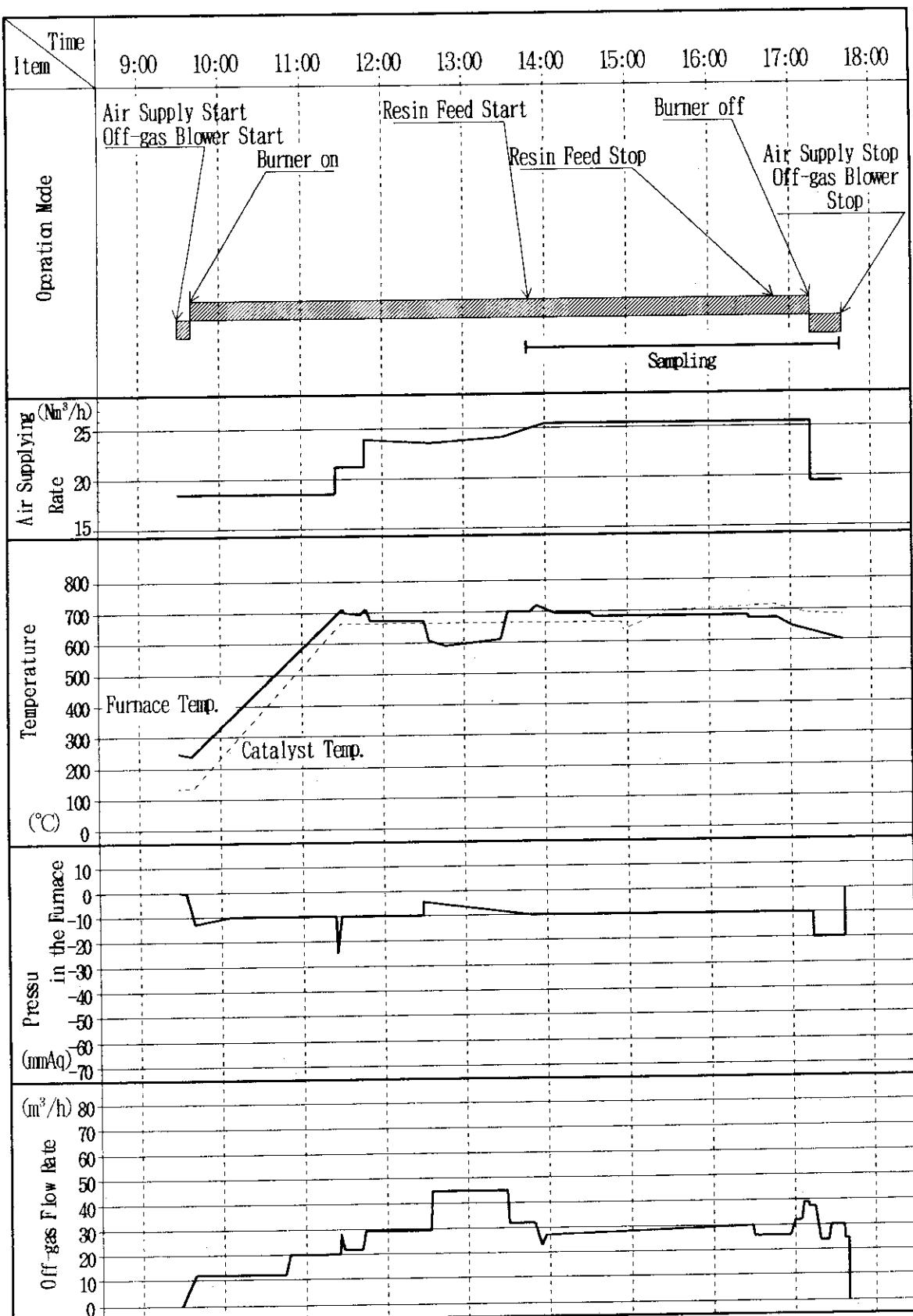


Fig. 13 Operating Record during the Incineration

(Incineration Experiment with Catalyst Disk #13)

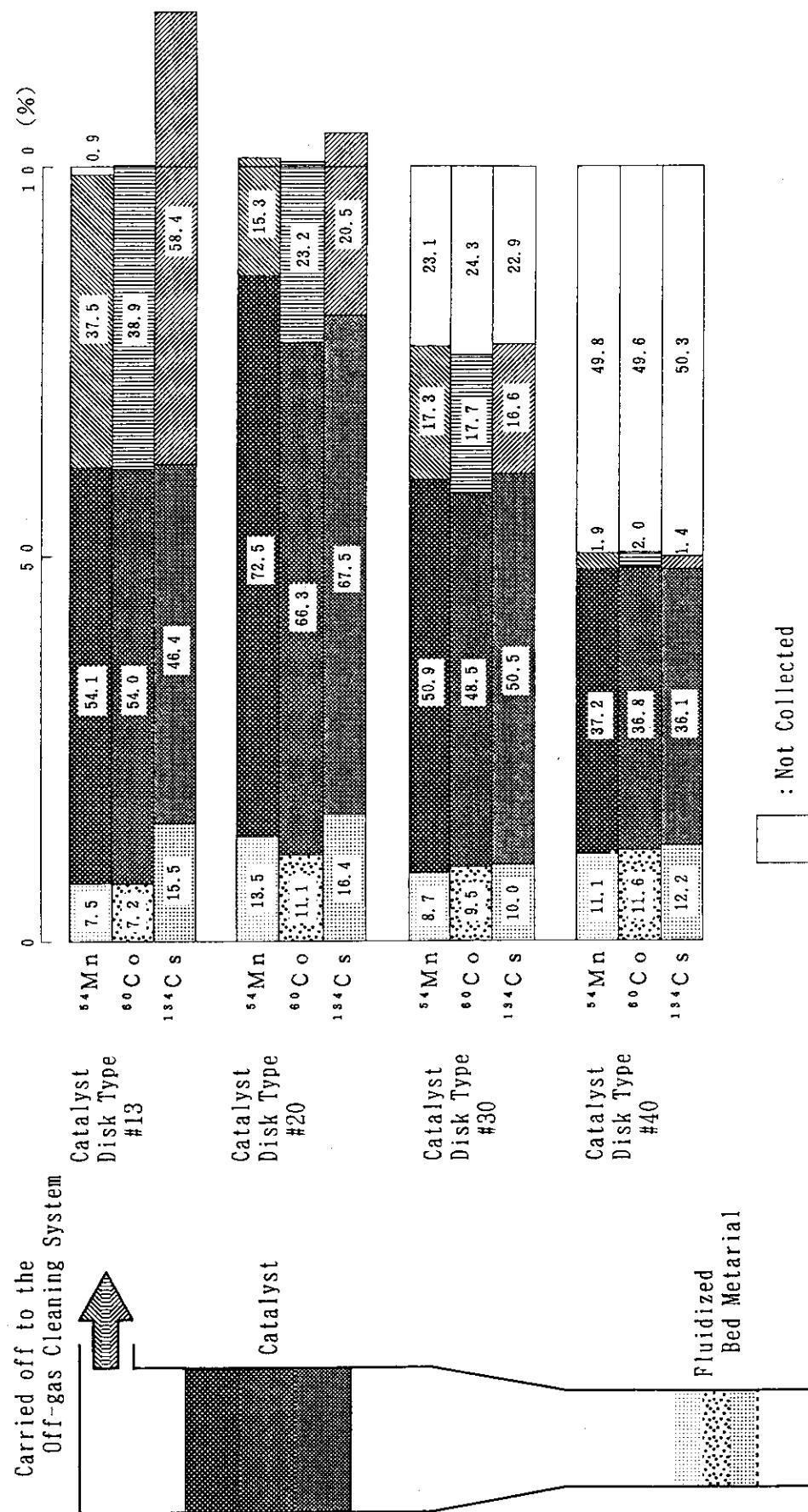
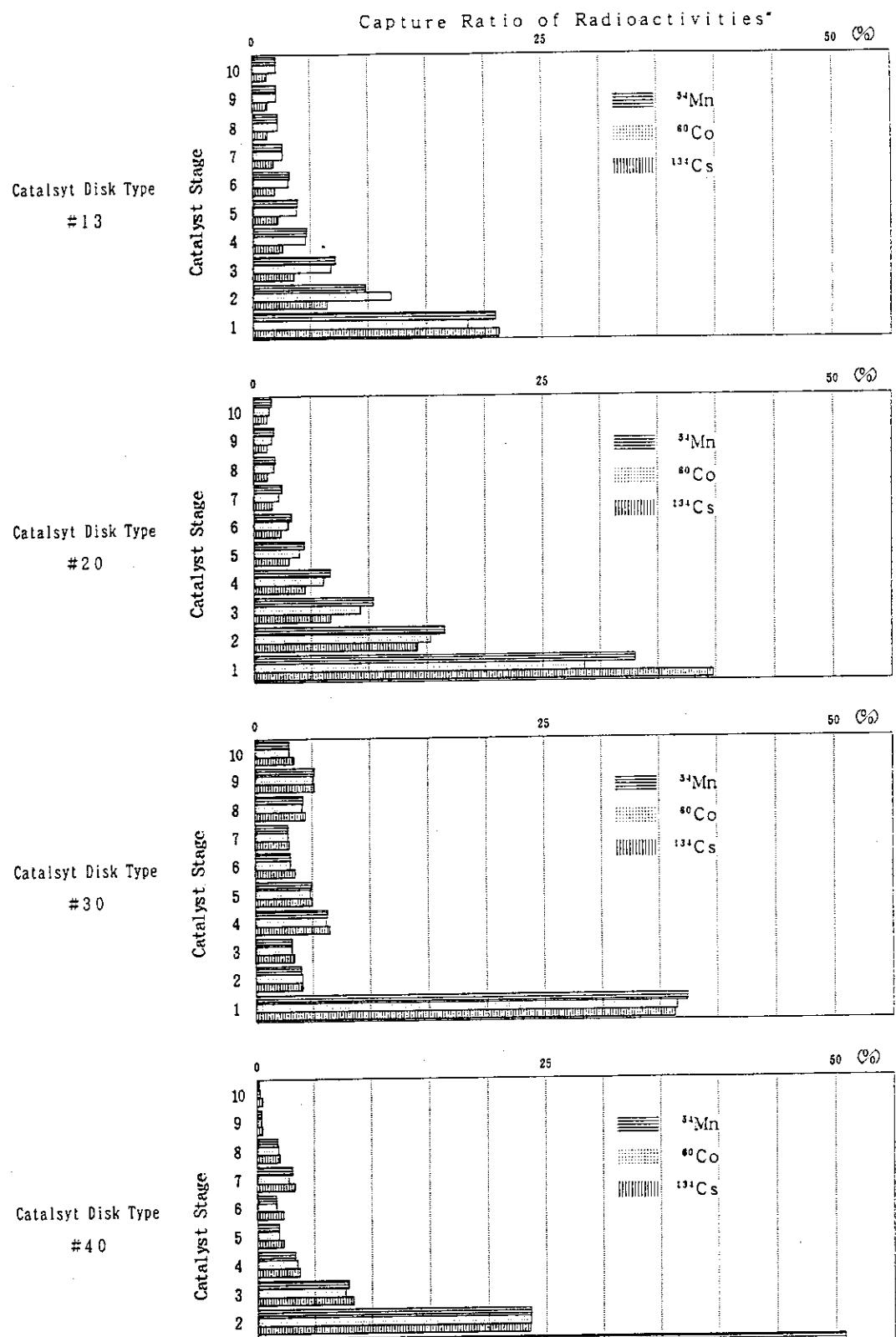
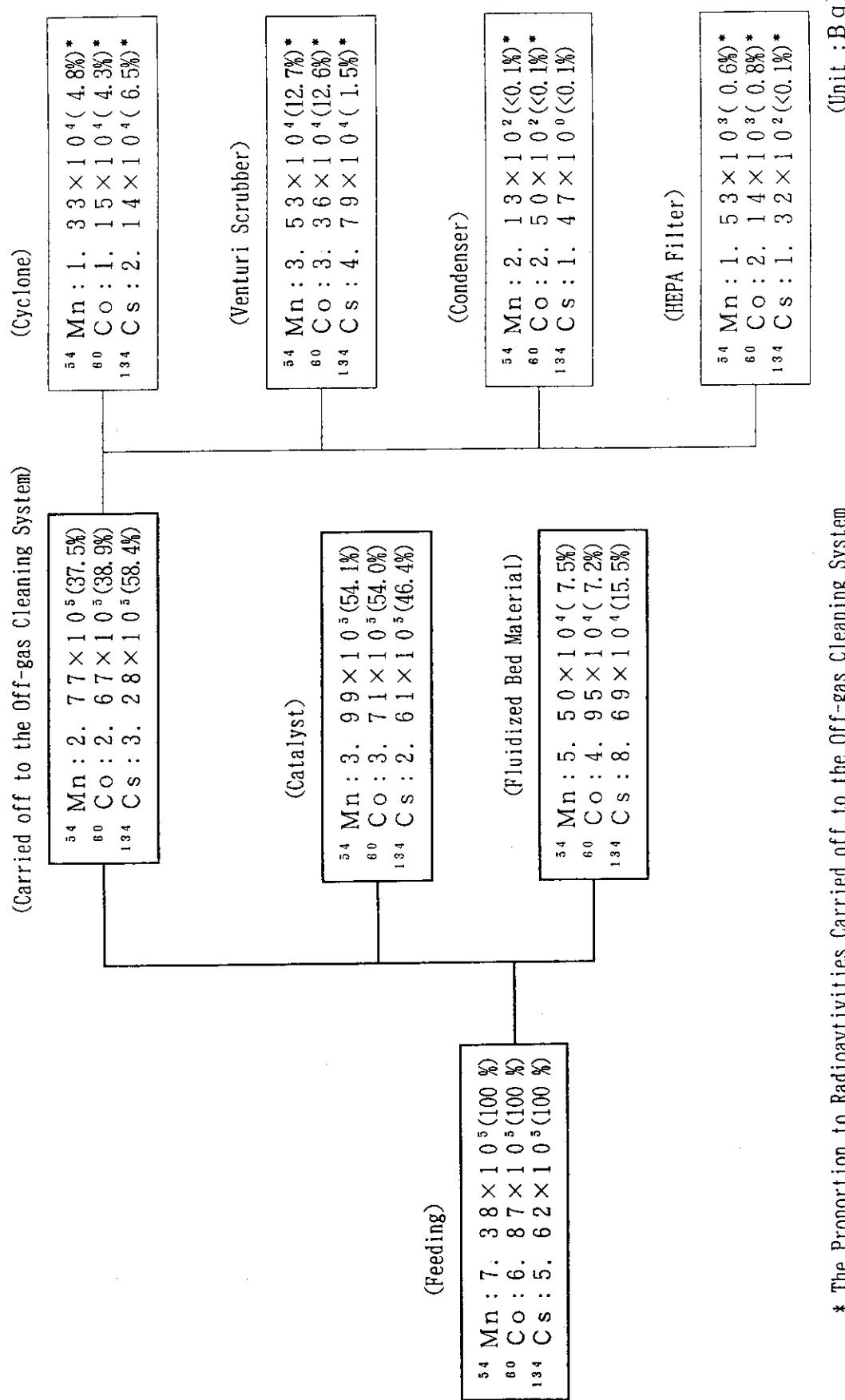


Fig. 14 Distribution of Radioisotopes after the Incineration



*Ratio to Radioactivities Carried off by the Gas Flow
into the Catalyst

Fig. 15 Distribution of Radioisotopes in the Catalyst



* The Proportion to Radioactivities Carried off to the Off-gas Cleaning System

Fig. 16 Distribution of Radioisotopes after the Incineration with Catalyst Disk #13

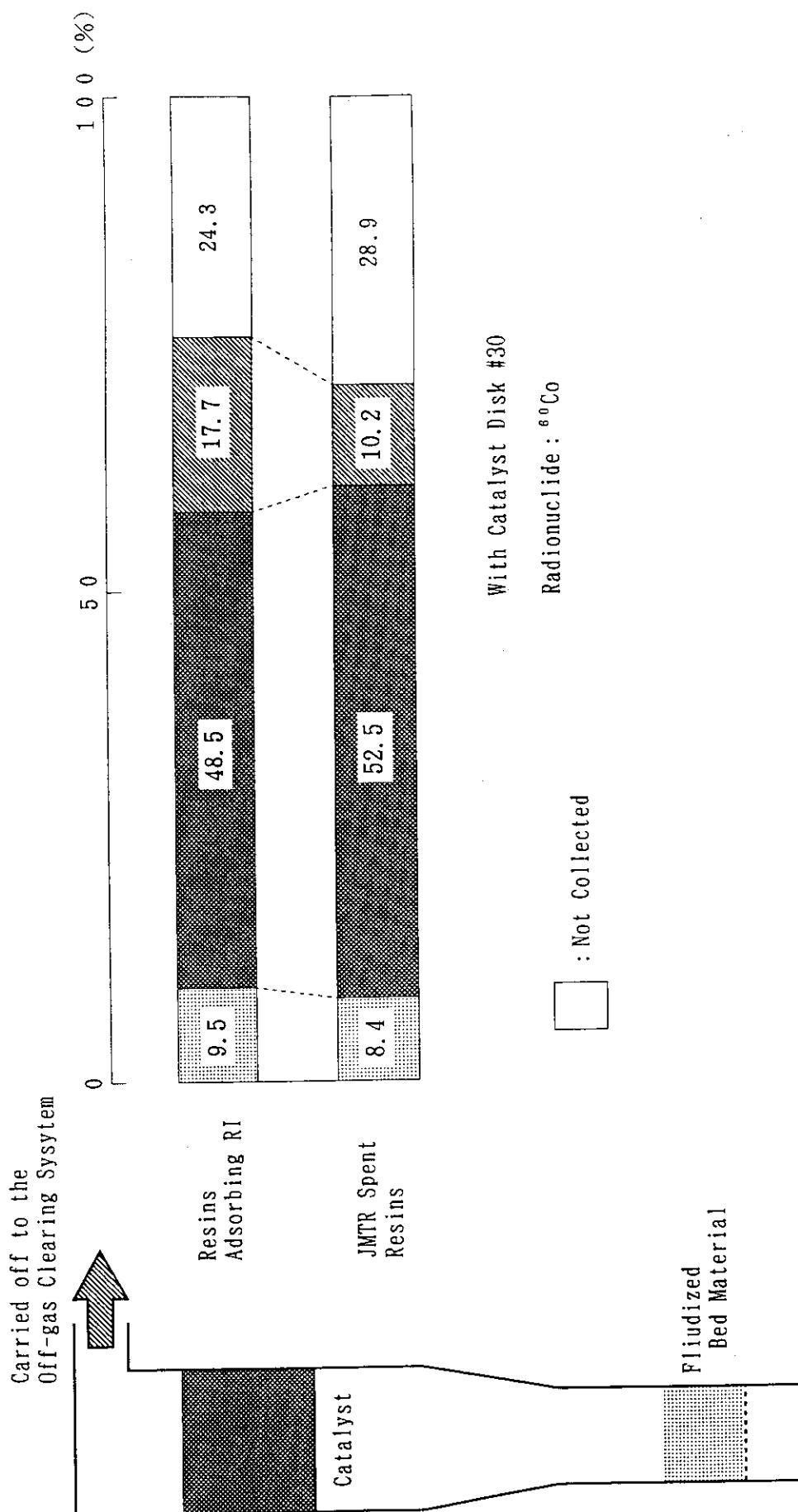


Fig. 17 Distribution of Radionuclide after the Incineration with JWTR Spent Resins

Table 1 Hole Size and Surface Area of Catalyst Disk and Ceramic Disk

Catalyst Disk Type	Diameter of Hole (mm)	Surface Area (m ² /1 Disk)
#13	0. 8 ~ 1. 2	2. 92 × 1 0 ⁻¹
#20	0. 4 ~ 0. 6	4. 49 × 1 0 ⁻¹
#30*	0. 2 ~ 0. 3	6. 73 × 1 0 ⁻¹

* Containing Ceramic Disk

Table 2 Hole Size and Surface Area of Catalyst Disk

Catalyst Disk Type	Diameter of Hole (mm)	Surface Area (m ² /1 Disk)
#13	0. 8 ~ 1. 2	3 . 7 5
#20	0. 4 ~ 0. 6	5 . 7 6
#30	0. 2 ~ 0. 3	8 . 6 5
#40	0. 1 ~ 0. 2	1 1 . 5 3

Table 3 Weight of Ion Exchange Resins and Radioactivities
Fed into the Furnace during Incineration (The First Phase)

Catalyst Disk Type	Weight of Ion Exchange Resins (kg)	Radioactivities (Bq)				Total
		Mn - 5 4	Co - 6 0	Cs - 1 3 4		
#13	6 . 9	7. 4 × 1 0 ⁵	6. 9 × 1 0 ⁵	5. 6 × 1 0 ⁵	2. 0 × 1 0 ⁶	
#20	7 . 9	8. 5 × 1 0 ⁵	1. 1 × 1 0 ⁶	8. 3 × 1 0 ⁵	2. 8 × 1 0 ⁶	
#30	4 . 6	6. 2 × 1 0 ⁵	6. 2 × 1 0 ⁵	5. 0 × 1 0 ⁵	1. 7 × 1 0 ⁶	
#40	4 . 3	4. 5 × 1 0 ⁵	5. 6 × 1 0 ⁵	4. 2 × 1 0 ⁵	1. 4 × 1 0 ⁶	

Table 4 Weight of Spent Ion Exchange Resins and Radioactivities
Fed into the Furnace during Incineration (The Second Phase)

Catalyst Disk Type	Weight of Ion Exchange Resins (kg)	Radioactivities (Bq)
		Co - 60
#30	4 . 6	6 . 2 × 1 0 ⁵

付 錄

ホット燃焼試験装置の仕様

I. 樹脂燃焼系

(1) 流動層式焼却炉

- ① 焼却能力 : 10kg-樹脂/day
 - ② 主要材質 : SUS310
 - ③ 外形寸法 : $\phi 267.3\text{mm} \times 2,543\text{mmH}$
 - ④ 主要部位 : 風箱部、流動層形成部及びフリーボード部
 - ⑤ ライニング : 部位; 風箱部及び流動層形成部
厚さ及び材質; 50mmの耐火レンガ
 - ⑥ 付属機器 : 燃焼空気給気プロア 1基; $10\sim20\text{m}^3/\text{h} \times 1,500\text{mmH}_2\text{O}$
流動媒体取り出しホッパ 1基; 容量 2ℓ
 - ⑦ 運転時炉内温度 : $550\sim750\text{ }^\circ\text{C}$ (流動層部)
 - ⑧ 運転時炉内負圧 : 0~100 mmHg
 - ⑨ 流動媒体 : 酸化アルミニウム 2ℓ (平均粒径: 0.5 mm)
- (2) 酸化銅触媒
 - ① 装着場所 : 流動層式焼却炉のフリーボード部
 - ② ホルダ材質 : SUS316
 - ③ ホルダ内寸 : $\phi 203.3\text{mm} \times 501\text{mmH}$
 - (3) 燃焼バーナ
 - ① 基数 : 2基 ; 熱風発生用(流動層)、触媒加熱用

II. 樹脂供給系

- (1) スクリューフィーダ
- ① 主要材質 : SUS304
- ② 供給速度 : 0~5 kg/h
- (2) 圧縮装置プローラ装置
- ① 圧縮空気圧力 : 0.5~0.7 kg/cm²G
- (3) 樹脂タンク
- ① 主要材質 : SUS304
- ② 容量 : 20 ℓ
- ③ 付属機器 : 攪拌器

III. 排ガス浄化系

(1) サイクロン

- ① 形式 : 接線流入式縦置円筒形
- ② 外形寸法 : $\phi 80\text{mm} \times 222\text{ mmH}$
- ③ 主要材質 : SUS304

(2) スクラバ

- ① 形式 : ベンチュリー式縦置円筒形
- ② 外形寸法 : $\phi 355.6\text{ mm} \times 1,473\text{ mmH}$
- ③ 有効容量 : 25ℓ
- ④ 主要材質 : SUS304
- ⑤ 付属機器 : NaOH貯留タンク 1基 ; 容量 2ℓ
循環ポンプ 1基

(3) 排ガス凝縮器

- ① 形式 : 二重管型
- ② 外形寸法 : 内側(排ガス) $\phi 48.6\text{ mm} \times 1,600\text{ mmH}$
外側(冷媒) $\phi 76.3\text{ mm} \times 1,350\text{ mmH}$
- ③ 冷媒 : エチレングリコール
- ④ 主要材質 : 内側 SUS304
外側 塩化ビニール
- ⑤ 付属機器 : 冷媒冷却器(循環ポンプ内蔵) 1基
気液分離器 1基

(4) 排ガス再加熱器

- ① 形式 : 内部電気ヒータ式横置円筒形
- ② 主要材質 : SUS304
- ③ ヒータ容量 : 0.4 Kw (外部補強: $+0.5\text{ Kw}$)

(5) フィルタユニット

- ① 形式 : 横置角形
- ② ケーシング
外形寸法 : $330\text{mm} \times 330\text{mm} \times 290\text{ mmH}$
- ③ 主要材質 : SUS304
- ④ フィルタ : HEPAフィルタ 1個 ($203\text{ mm} \times 203\text{ mm} \times 150\text{ mmH}$)

(6) 排ガスプロワ

- ① 形式 : 容量可変形ルーツプロワ
- ② 能力 : $30 \sim 60\text{ m}^3/\text{h} \times 2,000\text{ mmH}_2\text{O}$