

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。 2001. 6. 6

[技術情報室]

# 再処理廃棄物焼却灰の固化技術開発（I）

—固化基礎試験成果と固化プロセスの総合評価—

1987年11月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

関係者だけ  
に行わない  
その旨通  
下さい。

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001



## 再処理廃棄物焼却灰の固化技術開発 ( I )

### — 固化基礎試験成果と固化プロセスの総合評価 —

筆者 今 哲郎<sup>\*</sup>

#### 要 旨

低レベル  $\beta$ ,  $\gamma$  廃棄物焼却施設に追加設置する再処理廃棄物焼却灰固化装置用固化法の選定を目的として実施した。

熔融固化法, セメントガラス固化法, 水熱固化法及びプラスチック圧縮成形固化法に関する試験成果より固化プロセスに関し総合評価し優れた固化法を選出した。

熔融固化法は減容比は優れるが, 逆に固化体中の  $\alpha$  含有量を確実に 10 nCi/g 以下に保持しえず, 固化体ハンドリング時に  $\gamma$  線遮蔽対策や輸送時にキャスクが不可欠となるため好ましくない。

又, プラスチック圧縮成形固化法は上記の難点がないものの固化体パッケージの長期健全性は他の固化法より短かく好ましくない。

一方, セメントガラス固化法は水熱固化法より安全性・操作性・保守性・実証性において優れるが, 逆に固化体の長期健全性保持や将来の再処理低レベル廃棄物の処分に関する国の基準変更等への対処の容易性では水熱固化法が優れる。

複合コンクリート容器と組み合わせたセメント固化体パッケージで約 300 年の長寿命化が計れそうのため, ややセメントガラス固化法が水熱固化法に優れるものと考えられる。

当面, 両固化法について固化体の長期健全性確認試験を実施すべきである。

---

\* 技術開発部建設室 (実施責任者 樫原英千世, 岡野 義)

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 原子力施設からの焼却灰等の減容固化技術開発の現状 .....	3
2.1 原子力発電所低レベル放射性廃棄物のプラスチック固化技術開発 .....	7
2.1.1 不飽和ポリエステル固化法 .....	7
2.1.2 ポリエチレン固化法 .....	9
2.2 再処理工場低レベル放射性廃棄物のプラスチック固化技術開発 .....	10
3. 低レベル放射性固体廃棄物の浅地中埋設処分に関する規制の現状 .....	17
3.1 日 本 .....	17
3.2 米 国 .....	20
3.3 英国, 仏国 .....	21
3.4 わが国の場合と海外の場合の比較 .....	21
3.5 無拘束限界値について .....	22
4. 再処理廃棄物焼却灰の性状 .....	23
4.1 既設焼却炉より回収した焼却灰の放射能濃度データ .....	23
4.2 生焼却灰及び合成焼却灰の性状 .....	30
4.3 再処理工場からの焼却灰, 廃 AgX, 廃シリカゲル, 廃 PVC の発生量と その性状 .....	34
4.3.1 発生量 .....	34
4.3.2 廃棄物の性状 .....	35
5. 固化体パッケージの長期健全性 .....	37
5.1 固化体収納容器の寿命 .....	42
5.1.1 ドラム缶容器の寿命 .....	42
5.1.2 複合コンクリート容器の寿命 .....	44
5.2 プラスチック固化体の長期健全性 .....	53
5.3 固化体中の含有微量 $\alpha$ 核種の固化体物性への影響 .....	55
5.3.1 固化体中の微量 $\alpha$ 核種の含有量と固化体の吸収線量 .....	55
5.3.2 $\alpha$ 核種含有による固化体からの発生ガス $\sim$ $H_2$ の G 値 .....	57
5.3.3 固化体からの $\alpha$ 核種の浸出率 .....	58
6. 固化法の概要 .....	63
6.1 溶融固化法 .....	63

6.1.1	マイクロ波誘電加熱溶融固化法	69
6.1.2	高周波誘導加熱溶融固化法	72
6.1.3	直接通電ジュール加熱溶融固化法	74
6.2	セメントガラス固化法	76
6.3	水熱固化法	81
6.4	プラスチック圧縮成形固化法	86
7.	固化基礎試験と固化体物性	89
7.1	マイクロ波誘電加熱溶融固化試験	90
7.1.1	溶融助剤系選定試験	90
7.1.2	マイクロ波誘電加熱溶融固化基礎試験	98
7.2	セメントガラス固化試験	104
7.2.1	試験の方法	104
7.2.2	試験の結果及び考察	108
7.3	水熱固化試験	121
7.3.1	試験の方法	121
7.3.2	試験の結果及び考察	125
7.4	プラスチック圧縮成形固化試験	155
7.4.1	試験の方法	155
7.4.2	試験の結果及び考察	158
8.	総合評価	171
8.1	固化プロセスの選定基準	171
8.2	固化プロセスの選定	173
8.2.1	選定基準に基づく固化プロセスの比較	173
8.2.2	総合評価	184
8.3	今後の課題	188
9.	結語	189
10.	謝辞	190
11.	引用文献	191

## 1. はじめに

動燃東海再処理工場にはその運転に伴い発生する可燃性雑固体廃棄物及び TBP 含有廃希釈剤の焼却処分を行う横型火格子炉 1 基（設計処理能力：可燃性雑固体廃棄物 50 kg/h，廃希釈剤 50 kg/h）があり，昭和 50 年 2 月より稼動開始後すでに約 13 年経過し，昭和 62 年 3 月現在，可燃性雑固体廃棄物約 366 ton，廃希釈剤（回収ドデカン含む）約 78 m<sup>3</sup> を焼却処分した実績を有し，生成した焼却灰はドラム缶内に収納し，約 130 本が第 1 低放射性固体廃棄物貯蔵場に保管蔵されている。

長期運転に伴い炉材及びオフガス処理系機器類の老朽化が進んでおり，部分的な手直し交換の他，加熱温度を約 600～800℃と多少低くするとともに，廃希釈剤（TBP 5～10%）の焼却もできるだけ避ける様な配慮により，どうにか焼却炉の運転を行ってきているのが現状である。

この様な中で，再処理工場では溶解槽補修工事や蒸発缶交換工事を予定しており，さらに今後多種の設備更新工事の実施が考えられること，又，新規施設の稼動も予定されることから可燃性雑固体廃棄物の発生量の増大が予想される。

そのため，これに対処すると共に，新たに，放射性廃液油分除去施設からの廃活性炭等の処分をめざして，低レベル  $\beta$ ， $\gamma$  廃棄物焼却施設（以下焼却施設と称す。）の建設工事プロジェクトが昭和 57 年度からスタートした。予備設計，基本設計及び工学試験，詳細設計及び実施設計を実施し，現在，建設工事の先行工事及び施設設置に係わる許認可の準備業務を実施中である。

焼却施設からの生成焼却灰は当面ドラム缶内に収納し，第 1 及び第 2 低放射性固体廃棄物貯蔵場に運搬し保管貯蔵するが，焼却灰の固化試験装置を将来，焼却施設内に追加設置したい場合に設置可能な様に配慮し，詳細設計の取りまとめに当っては，一定のスペースを確保した他，オフガス処理系ダクトへのつなぎ込みや，電気供給容量上の配慮等予備的措置をこうじている。

焼却灰固化に関しては，詳細設計と並行して，建設室及び処理部化学処理第三課が共同して，マイクロ波誘電加熱熔融固化法の開発を，引続き化学処理第三課がセメントガラス固化法及び水熱固化法の開発を，さらにこれらの固化法を補完する目的で建設室がプラスチック圧縮成形固化法の開発と計 4 種の固化プロセスの開発を実施した。

再処理焼却灰は， $\beta$ ， $\gamma$  放射能濃度が比較的高くかつ微量の  $\alpha$  核種を含有する他，発生量自体もそれほど多くない特徴を有する。

焼却灰の固化に際しては、固化装置を共用して、できるだけ廃ヨウ素吸着剤(AgX)や廃シリカゲル等も固化できるプロセスが望ましい。一方、固化体又は固化体パッケージはできるだけ長期にわたり健全性が保持できるものでなければならない。

これらの点を配慮して焼却施設にふさわしい優れた再処理廃棄物焼却灰等低レベル放射性固体廃棄物の固化法を選定する必要がある。

本報では、これまでに実施した4種の固化基礎試験の成果を取りまとめるとともに、固化プロセスに関し総合評価し報告する。

各章の主な内容は以下のようになる。

第2章では原子力発電所及び再処理工場からの低レベル放射性廃棄物のプラスチック固化技術開発の現状、第3章では低レベル放射性固体廃棄物の浅地中埋設処分に関する規制の現状、第4章では再処理廃棄物の焼却灰の他廃AgX、廃シリカゲル及び廃PVCの発生量とその性状について取りまとめた。

第5章では、固化体パッケージの長期健全性に関する固化体収納容器の寿命、プラスチック固化体の長期健全性、固化体中の含有微量 $\alpha$ 核種の固化体物性への影響について取りまとめた。

第6章では、溶融固化法、セメントガラス固化法、水熱固化法及びプラスチック圧縮成形固化法の概要を、第7章では、これらの固化法による基礎試験と固化体物性に関する研究成果を取りまとめた。

第8章では、固化プロセスの選定基準と選定結果、今後の課題について取りまとめた。

## 2. 原子力施設からの焼却灰等の減容固化技術開発の現状

原子力発電所から発生する固体廃棄物の種類とその発生量およびそれらの処理システムに関しては表 2.1 の様な報告が知られている<sup>1)</sup>。

最も発生量が多いものは、PWR および BWR とともに可燃性雑固体で、BWR の場合は約 250 m<sup>3</sup>/年という。なお、100 万 KW 原子力発電所の場合、BWR で 400 m<sup>3</sup>/年 (160 ton/年)、PWR で 100 m<sup>3</sup>/年 (40 ton/年) という報告もある<sup>2)</sup>。

再処理工場の場合、順調に稼働している場合、約 50 ton/年の発生量 (実績) となるので、原子力発電所よりやや少な目の発生量とみられる。原子力発電所の可燃性雑固体は KfK 焼却技術に改良を加えた自燃式堅型円筒炉に 2 段の SiC 製セラミックフィルタによるオフガス処理方式を組み合わせた焼却設備 (NGK 納入、焼却能力 50 ~ 100 Kg/h) で処理されている。表 2.2 に原子力発電所の焼却設備の仕様と運転実績を示す<sup>2)</sup>。

表 2.1 原子力発電所からの発生固体廃棄物の種類・発生量・処理システム<sup>1)</sup>

廃棄物名称	P	W	R	B	W	R
	廃棄物内容	発生量	処理システム	廃棄物内容	発生量	処理システム
濃縮廃液	・廃液処理系濃縮液等	60 (m <sup>3</sup> /年)	乾燥→固化	・高電導度廃液系濃縮廃液	100 (m <sup>3</sup> /年)	乾燥→固化
酸液等 (中和剤)	・強酸ドレン ・塩化物等	1	固 化	—	—	—
可燃性雑固体	・布ウエス、紙ウエス、 ポリシート等	130	焼 却	・紙、布、ウエス等 廃液	250	焼 却
難 燃 物	ゴム類、チャコール等	10	保管または焼 却	・ゴム類等	20	保管または 焼却
使用済樹脂	・H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> 回収装置脱塩 塔樹脂 ・廃液蒸留水脱塩塔樹 脂等	15	タンク貯蔵また は乾燥→固化	・復水浄化系 過器 樹脂 ・復水浄化系脱塩塔 樹脂 ・廃棄物処理系脱塩 塔樹脂	200	タンク貯蔵 または 乾燥→固化 または 焼却→固化
不燃性雑固体	・空調フィルタ、液体 フィルタ ・保温材等	70	梱包または 圧縮、保管	・空調用フィルタ、 保温材等	70	梱包または 圧縮
金 属 類	・パイプ、缶、機器、 部品等	20	梱包または 圧縮	・パイプ、缶、機器 部品等		



表 2.2 原子力発電所の焼却設備の仕様と運転実績<sup>2)</sup>

仕 様	実 績
(1) 対象廃棄物 可燃性雑固体 ( 手ふき紙, 除染ウエス, 除染紙タオル, ポリエチレンシート・袋, 作業着, 手 袋, 木材, その他 ) 原油 (主としてタービン油)	ポリエチレン類 約 50 % 紙, 布類 約 40 % その他 約 10 % (塩ビ類は原則として焼却しない)
(2) 焼却処理能力 雑固体 (廃油) 50 kg/h (30 l/h), 75 kg/h (45 l/h), 100 kg/h (60 l/h)	年間処理実績の例 A. 約 100 t (約 2,000 h) B. 約 300 t (約 5,000 h)
(3) 減容比 1/40 (低圧縮ドラム詰に対し)	1/60 ~ 1/140
(4) 減重比 1/40	1/40 ~ 1/90
(5) 灰の強熱減量 10 % 以下	1 % 以下
(6) 排ガス処理系総括除染係数 (粒子状物質に対し) 2次セラミックフィルタまで 10 <sup>5</sup> 以上 排ガスフィルタ (HEPA) まで 10 <sup>7</sup> 以上	10 <sup>5</sup> ~ 10 <sup>6</sup> 以上 特別な除染性能テストにより 10 <sup>7</sup> ~ 10 <sup>8</sup> 以上を確認

焼却対象物は再処理工場の場合、酢酸ビニール類約 50 %であるのに対し、原子力発電所の場合、ポリエチレン類約 50 %である。いずれにしてもプラスチック類の焼却割合が約 50 %に達しており、都市ごみ焼却炉の場合のプラスチックの混入量は約 10 ~ 20 %と言われる<sup>3)</sup>ので、プラスチック専焼炉に近い焼却の仕方であることがわかる。

原子力発電所の焼却設備の運転実績では減容比 1/60~1/140, 減重比 1/40~1/90と高く、かつ灰の強熱減量も 1 %以下と低く、良好に雑固体が焼却されている。

焼却灰に関しては、処分方法が確定していないことと焼却灰の発生量そのものも少ないこともあって、固化処理されず、当面そのままドラム缶に収納し保管貯蔵されている。しかし、いずれ焼却灰の固化処理は必要となることから、濃縮廃液等の減容固化技術の開発の一環として、各種の固化法が開発されつつある。

PWR では可燃性雑固体の次に使用済イオン交換樹脂、濃縮廃液の順に発生量が多い。BWR においては、不燃性雑固体を除き、可燃性雑固体の次に濃縮廃液が多い。そこで、これら濃縮廃液および使用済イオン交換樹脂の堅型薄膜乾燥機等による粉体化後にプラスチック固化する技術や粉体をペレット化しさらにセメントガラスを流し込んで固化する技術が開発され一部実用化されつつある。

原子力発電所の低レベル放射性廃棄物の減容処理技術開発の現状に関しては生田目氏の総説がよくまとまっているので参照願いたい<sup>4)</sup>。

なお、これらの固体廃棄物の性状を表 2.3 に示す。

従来開発されたセメント固化法では廃棄物混合比が約 30 %以上にできず、セメント固化体からの放射性核種の浸出率が高く、一方廃棄物混合比を約 40 ~ 50 %に改良し、固化体からの浸出率を改善したアスファルト固化法では、硬度の低い固化体にとどまる他、固化体の膨潤性を防止するため固化対象廃液の  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  の含有量に制限があり、さらに固化体が自燃性を有する等の難点がある。

セメント固化法およびアスファルト固化法の代替技術は、全て固化処理に先立ち、濃縮廃液等の液状廃棄物を乾燥粉末化する。すでに開発済で一部実用化されているものは、化学工業の分野で実用化されているプラスチック固化技術を応用した不飽和ポリエステル固化法やポリエチレン固化法<sup>5)~9)</sup>と従来のセメント固化法を改良したセメントガラス固化法<sup>10), 11)</sup>である。

このセメントガラス固化法は粉末のままの固化も可能だが、粉末をペレット化することにより減容性を高め、ドラム缶に充てんしたペレットと缶壁との隙間に水硬性セメントを流し込んで固化する方法で、従来のセメント固化法よりは減容性・操作性・固化体物性に優れる。

わが国の処分法が確立するまでは、固化せずペレットのまま中間貯蔵することもできるので、中間貯蔵を望む場合に有利と言える方法である。

一方、開発途上にあるのは、高温 (1000 °C 以上) で乾燥粉末を熔融し、岩石状やガラス状の固

表 2.3 原子力発電所からの発生固体廃棄物の性状

項 目		割 合	
BWR濃縮廃液の性状	組成 (w/o)	Na <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	20.7
		NaCl	0.8
		Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.0
		SiO <sub>2</sub>	0.5
		樹脂	1.0
		固形分濃度	25.0
	比 重	1.2	
	放射能濃度 (μCi/dryg)	1.6	
PWR濃縮廃液の性状	組成 (w/o)	Na <sub>2</sub> B <sub>4</sub> O <sub>7</sub>	10.8
		NaCl	0.1
		Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.1
		固形分濃度	12.0
	比 重	1.03	
放射能濃度 (μCi/cc)	6.6		
粉状樹脂の性状	組成 (wt%)	クラッド分*1	0.91
		固形分濃度	10.0
	沈降密度 (drykg/m <sup>3</sup> )	210	
	比 重	1.05	
	放射能濃度 (μCi/dryg)	6.2	

\*1 1kgの樹脂に0.1kgのクラッド

項 目		割 合	
粒状樹脂の性状	組成 (w/o)	クラッド分*2	0.03
		固形分濃度	10.0
	沈降密度 (drykg/m <sup>3</sup> )	380	
	比 重	1.03	
	放射能濃度 (μCi/dryg)	1.4	
クラッドスラリー	組成 (w/o)	クラッド分	2.6
		固形分濃度	2.6
	比 重	1.0	
	放射能濃度 (μCi/dryg)	350	
可燃性雑固体	組成 (w/o)	ポリエチレン	60
		布 ・ 紙	30
		その他(木材等)	10
	放射能濃度 (mCi/本)	3.6*3	
不燃性雑固体	組成 (発生本数比)	金 属	63.0
		保 温 材	17.1
		コンクリート	10.9
		フィルタ(HEPA)	6.5
		ガ ラ ス	2.5
	放射能濃度 (mCi/本)	3.6*3	

\*2 2kgの樹脂に0.03kgのクラッド

\*3 不燃性雑固体と可燃性雑固体を合せたドラム缶1本当りの平均

化体とする高周波誘導加熱溶融法<sup>12)~14)</sup>、マイクロ波誘電加熱溶融法<sup>15)~17)</sup>、直接通電ジュール加熱溶融法<sup>18)~20)</sup>、高温高圧下のアルカリ水熱反応より岩石状の固化体とする水熱固化法<sup>21)</sup>がある。

次に、原子力発電所の低レベル放射性廃棄物の減容固化技術として実用化されているプラスチック固化法（不飽和ポリエステル固化法及びポリエチレン固化法）と再処理工場の低レベル廃棄物の減容固化技術として開発に成功したプラスチック固化法（エポキシ固化法及び不飽和ポリエステル固化法）について、その固化法の特徴と固化体物性について述べる。

なお、マイクロ波誘電加熱溶融固化法、セメントガラス固化法、水熱固化法に関しては6及び7で詳細に述べる。

## 2.1 原子力発電所低レベル放射性廃棄物のプラスチック固化技術開発

### 2.1.1 不飽和ポリエステル固化法

不飽和ポリエステル樹脂に開始剤、促進剤等の触媒を添加し、不飽和ポリエステル樹脂の不飽和基にスチレンモノマーを共重合反応により架橋させ、この架橋させた網目構造内に濃縮廃液乾燥粉末を取込み、優れた物性の固化体とする方法である。この方法の場合スチレンの引火点が32℃と低く、火災爆発を防止するため、反応させる混合槽はN<sub>2</sub>シールし、さらに-20℃位に冷却する。これによりあわせて反応速度の制御と反応熱の内部蓄熱による固化体の割れ防止をはかっている。

さて、この固化法では廃液等の乾燥粉末と樹脂系の混合比（以下廃棄物混合比と称す。）を約65w/oまで取ることができ、廃棄物混合比50w/oの固化体に関しては圧縮強度が約690kg/cm<sup>2</sup>G、耐放射線性は約10<sup>8</sup>radまで問題なく又、100日間浸漬したCo-60及びCs-137の浸出率はそれぞれ8×10<sup>-5</sup>g/cm<sup>2</sup>・日及び7×10<sup>-4</sup>g/cm<sup>2</sup>・日であった<sup>5)</sup>。

日本原子力研究所東海研究所がBWR濃縮廃液乾燥粉末を58w/oの混合比で固化処理した場合、その固化体のCo-60及びCs-137の浸出率はそれぞれ6.2×10<sup>-9</sup>cm<sup>2</sup>/日及び2.1×10<sup>-6</sup>cm<sup>2</sup>/日であった。これに対し焼却灰を混合比50w/oで固化処理した場合、その固化体のCo-60の浸出率は1.1×10<sup>-11</sup>cm<sup>2</sup>/日と著しく低い。（表2.4）<sup>6)</sup>

本法による固化プラントは、中部電力浜岡1～3号機用増強廃棄物処理設備（東芝納入）、東京電力福島第2-3,4号機共用廃棄物処理設備（日揮納入）及び東京電力柏崎・刈場5号機廃棄物処理設備（日揮納入）で稼動中である。

（〔参考〕セメントガラス法による固化プラントは、東京電力福島第1-1～4号機廃棄物集中処理設備（日立納入）で稼動中である。）

表 2.4 各種固化体の仕様及びその浸出性<sup>6)</sup>

固 化 体 No	セメント		アスファルト	
	CH-1	CH-2	BH-1	BH-2
固 化 材 廃 棄 物 混 入 比(w/o) 浸出率 (cm <sup>2</sup> /日) Cs - 137 Co - 60 備 考	高炉セメント BWR濃縮廃液 5.4  $1.6 \times 10^{-4}$ $1.2 \times 10^{-9}$	ポルトランドセメント PWR濃縮廃液 3.8  $1.5 \times 10^{-3}$ -	ストレートアスファルト40/50 BWR濃縮廃液 50  $5.7 \times 10^{-6}$ $5.9 \times 10^{-6}$ pH7	ストレートアスファルト40/50 BWR濃縮廃液/ケイソウ土 20/20  $1.9 \times 10^{-9}$ -

固 化 体 No	プラスチック				
	PH-1	PH-2	PH-3	PH-4	PH-5
固 化 材 廃 棄 物 混 入 比(w/o) 浸出率 (cm <sup>2</sup> /日) Cs - 137 Co - 60 備 考	ポリエチレン BWR濃縮廃液 52  $1.7 \times 10^{-7}$ $3.1 \times 10^{-6}$ pH7	ポリエチレン BWR濃縮廃液/粉末樹脂 22.5/23  $7.4 \times 10^{-5}$ $2.2 \times 10^{-6}$ pH7	ポリエチレン ケイソウ土 45  $1.3 \times 10^{-5}$ -	不飽和ポリエステル BWR濃縮廃液 57.8  $2.1 \times 10^{-6}$ $6.2 \times 10^{-9}$ pH10	不飽和ポリエステル 焼却灰 50  - $1.1 \times 10^{-11}$

### 2.1.2 ポリエチレン固化法

約 180°C で溶融したポリエチレンと濃縮廃液やイオン交換樹脂の乾燥粉体とを混練して均一な固化体とする方法で連続式にする場合にはエクストルーダが使用される。この方法では、廃棄物の混合比を約 70 w/o までとれるものの、エクストルーダ部出口の固化体の流動性や、固化体の機械的強度の点より約 50 w/o が適切と言われる<sup>7)</sup>。廃棄物の混合比 50 w/o の固化体の圧縮強度は 215 kg/cm<sup>2</sup>G である。

カチオン樹脂の混合比 50 w/o の固化体の耐放射線性については、10<sup>9</sup> rad までの吸収線量では、形状変化や圧縮強度の低下は認められないものの、線量に比例して放射性分解ガス（主として H<sub>2</sub>）が発生し、約 3×10<sup>-2</sup> cm<sup>3</sup>/g・Mrad の発生率であるという<sup>8)</sup>。10<sup>6</sup> rad の吸収線量で、200 l ドラム換算で約 300 ml 発生にとどまる<sup>9)</sup>。吸収線量があまり高くなければ固化体の耐放射線性に問題ないものと考えられる。

濃縮廃液の混合比 52 w/o の Co-60 及び Cs-137 の浸出率はそれぞれ 3.1×10<sup>-6</sup> cm<sup>2</sup>/日及び 1.7×10<sup>-7</sup> cm<sup>2</sup>/日である<sup>6)</sup>。（表 2.4 参照）

なお、焼却灰に関しても混合比 50 w/o の場合、バッチ式混練で圧縮強度 235 kg/cm<sup>2</sup>G のポリエチレン固化体が得られている<sup>8)</sup>。

日本原子力研究所東海研究所では、溶融能力 10 kg/H で 50 l ドラムサイズ固化体を製造する工学試験装置により固化処理条件と固化体物性について試験中である。

## 2.2 再処理工場低レベル放射性廃棄物のプラスチック固化技術開発

再処理工場から発生する低レベル放射性廃棄物の発生量等に関しては 4.3 にて述べるが、その種類は、かなり多種にわたるので、これらの減容固化処理の方策を明確化するため、廃溶媒処理技術開発施設でプラスチック固化（PVC 固化又はエポキシ固化）する TBP を除いた次の廃棄物に関する固化基礎試験を実施し固化プロセスの開発を行った<sup>21)</sup>。

すなわち、焼却灰、含硝酸塩廃液、銀ゼオライト、ドデカン浸漬廃シリカゲル、廃シリカゲル、廃活性炭の 6 種類を対象とし不飽和ポリエステル固化法、エポキシ固化法、シリコン固化法及びウレタン固化法の計 4 種のプラスチック樹脂固化法に関しスクリーニング試験を実施し、廃棄物混合比ができるだけ高くとれ、かつ外観及び機械的強度等の優れた固化体物性が期待できる固化法として不飽和ポリエステル固化法およびエポキシ固化法を選定した。次にこれらの固化法により、固化処理条件と固化体物性との関係を求める試験を実施し、固化処方確立をはかった。

これら対象廃棄物毎の発生元、模擬廃棄物の仕様、固化に先立つ前処理条件を表 2.5 に示す。

次に、不飽和ポリエステル固化法及びエポキシ固化法の原理を示す。なお、両固化法の反応模式図を図 2.1 に示す。

### 2.2.1 不飽和ポリエステル固化法の原理

#### (1) 不飽和ポリエステル樹脂

不飽和ポリエステル樹脂とは、有機酸（無水マレイン酸等）とグリコール（プロピレングリコール等）より脱水縮合（エステル化）して得られた不飽和ポリエステルをその不飽和基と共重合しうるビニルモノマー（架橋剤；通常スチレンモノマー）に溶解させたものである。

この有機酸、グリコール、架橋剤の組合せ、配合比によって多種、多様の製品が得られる。

#### (2) 重合硬化反応

不飽和ポリエステル樹脂は開始剤、促進剤等の添加剤により常温で重合硬化することが可能である。硬化反応は、以下の 3 段階の反応で進行する。（図 2.1）

##### ① 開始剤の活性化

促進剤により開始剤（有機過酸化物）がレッドックス反応によって分解し、活性ラジカルが発生する。その際、促進助剤は促進剤に働きかけ、促進剤の作用が助長される。

##### ② 開始剤ラジカルと固化剤の反応

開始剤から生じた活性ラジカルが不飽和ポリエステル、スチレンの二重結合と反応し、それらのラジカルを発生させる。

##### ③ 架橋反応の進行

以上により生じたラジカルはさらに不飽和ポリエステル、スチレンと連鎖的に反応を繰返し、巨大な分子（ポリマー）を形成する。スチレンラジカルは不飽和ポリエステルと反応し、

表 2.5 対象廃棄物毎の発生元、模擬廃棄物の仕様、固化に先立つ前処理条件

対象廃棄物	発生元施設名	模擬廃棄物の仕様	固化処理の前処理条件
焼却灰	焼却炉	紙、布、ポリエチレン、酢酸ビニール等の焼却残渣を電気炉等で再焼成し、さらに $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ 15%及び $\text{CaO}$ 2%を添加混合し、再処理焼却灰の模擬灰を調整した。	—
ゼオライト	工場内各施設設置 AgX フィルタ	銀ゼオライトの代用として天然ゼオライト使用	—
ドデカン浸漬シリカゲル	廃溶媒処理技術開発施設	0.1～0.3 mmφのマイクロビーズ 3A (富士デビソン製)をドデカン中に浸漬	スクリーデカンターによる遠心脱ドデカン
シリカゲル	クリプトン回収技術開発施設	ビーズゲル RD と破砕状 FD-01 4:6 の混合物、水分飽和	
廃活性炭	放出廃液油分除去施設	0.4～1.0 mm のビーズ炭 BaC-LLP (クレハ製) を $\text{NaNO}_3$ 20 g/l, TBP 300 mg/g 活性炭の濃度の水溶液中に浸漬	堅型薄膜乾燥機による乾燥処理
含硝酸塩廃液	廃棄物処理場蒸発濃縮廃液貯槽	$\text{NaNO}_3$ 22- $\text{NaNO}_2$ 6- $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 12 w/o の模擬廃液、アスファルト固化前の反応槽の pH 9 に調整	同上
スラッジ	廃棄物処理場スラッジ貯蔵場	$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$ 4- $\text{Ca}(\text{NO}_3)_2$ 3- $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 2-廃活性炭 1 w/o に調整した模擬廃液で pH～10	スクリーデカンターによる遠心脱水



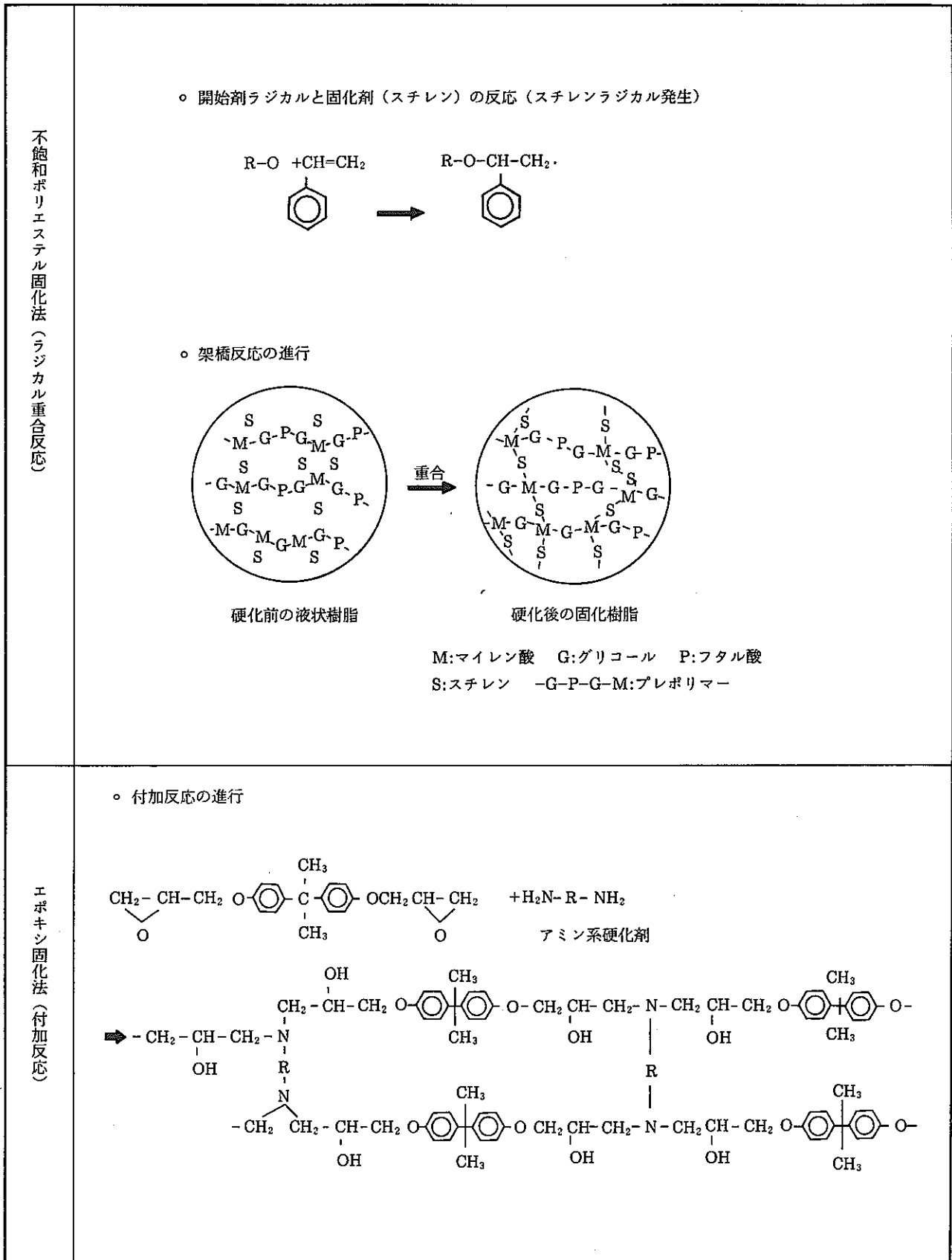


図 2.1 不飽和ポリエステル固化及びエポキシ固化の反応模式図

不飽和ポリエステル間の架橋が進行する。最終的にはスチレンにより架橋された網目構造が生成し、強固な固化体となる。

このような重合硬化反応により形成される網目構造内に焼却灰等対象廃棄物粉体を取り込まれ、機械的強度、均一性、耐水性の優れた固化体を得ることが期待できる。

### 2.2.2 エポキシ固化法の原理

エポキシ樹脂は、1分子中に2個以上のオキシラン環（エポキシ環）を持ち適当な硬化剤の存在で3次元網目構造を形成する。

エポキシ樹脂を常温硬化させる硬化剤としてアミン系硬化剤がある。エポキシ樹脂の硬化反応は、エポキシ樹脂の末端エポキシ基とアミン系硬化剤のアミノ基（ $-NH_2$ ）が図 2.1 に示すような反応に従って逐次的に付加反応を繰返し3次元網目構造を形成することにより行われる。

焼却灰等対象廃棄物粉体をエポキシ樹脂と混合し硬化剤を添加すると、上記硬化反応により形成される網目構造内に焼却灰等対象廃棄物粉体が捕捉され機械的強度、均一性、耐水性の優れた固化体を得ることが期待できる。

不飽和ポリエステル固化基礎試験の結果を表 2.6 に、エポキシ固化基礎試験の結果を表 2.7 に示す。

表 2.6 及び表 2.7 より次のことがわかる。

- ① 焼却灰に関しては、エポキシ固化法では廃棄物混合比が不飽和ポリエステル固化法の高くとれず、ほぼ 45 w/o どまりである。（別に実施した試験では 50 w/o も可能であった。処方改良により多少向上させることは可能とみられる。）
- ② 焼却灰を除き、5種類の廃棄物は、いずれも廃棄物混合比 50 w/o 以上で、いずれの固化法によっても安定な固化体としうる。
- ③ ゼオライト、遠心脱ドデカン除去した浸漬シリカゲルに対し、一部不飽和ポリエステル固化法を除き、廃棄物混合比を約 60 w/o と高くとれ、固化体の硬度（単位：ショアD）約 80 以上、圧縮強度約 400 kg/cm<sup>2</sup>G 以上となる。

なお、不飽和ポリエステル固化法による遠心脱ドデカン除去した浸漬シリカゲルの圧縮強度が 270 kg/cm<sup>2</sup>G と低かったが、これは廃棄物混合比が 67 w/o と多少高かったためと考えられる。（別途試験した廃棄物混合比が 60 w/o でも、圧縮強度が 320 kg/cm<sup>2</sup>G であった。）

（注）エポキシ固化法で試験したドデカン浸漬シリカゲル固化体の圧縮強度は、後述する水熱固化法の固化体よりかなり高いが、これはドデカンがブリードしない様に変成したエポキシ樹脂を採用したことによるものと考えられる。

表 2.6 再処理廃棄物の不飽和ポリエステル固化基礎試験結果<sup>21)</sup>

	廃棄物量 (wt%)	樹脂量 (wt%)	開始剤 (HPR*)	促進剤 (HPR)	助 剤 (HPR)	混合時粘度 (P)	ゲル化時間 (分)	固化体比重	硬 度 (H <sub>b</sub> D)	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)
焼 却 灰	55	45	0.5	0.25	0	30	22	1.30	83	581
ゼ オ ラ イ ト	62	38	1.0	0.5	0	28	25	1.61	88	629
ドデカン浸漬シリカゲル (遠心脱ドデカン処理)	67	33	0.5	0.25	0	6	25	1.31	77	264
シ リ カ ゲ ル	60	40	1.0	0.5	0	12	20	1.32	55	29
廃 活 性 炭 (薄膜乾燥処理)	50	50	1.0	0.5	0.3	25	15	1.20	78	226
含 硝 酸 塩 廃 液 (薄膜乾燥処理)	65	35	0.5	0.25	0	7	15	1.76	73	198
ス ラ ッ ジ (遠心脱水処理)	50	50	2.0	1.0	0.5	26	45	1.16	67	192

\* (HPR) : 樹脂 100 重量部に対する添加量

表 2.7 再処理廃棄物のエポキシ固化基礎試験結果<sup>21)</sup>

	廃棄物量 (wt%)	樹脂量 (wt%)	硬化剤量 (HPR*)	混合時粘度 (P)	ゲル化時間 (時間)	固化体比重	硬 度 (H <sub>b</sub> D)	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)
焼 却 灰	45	55	25	44	1.7	1.47	82	402
ゼ オ ラ イ ト	60	40	25	108	4.5	1.46	89	417
ドデカン浸漬シリカゲル (遠心脱ドデカン処理)	60	40	38	6	6.0	1.24	85	560
シ リ カ ゲ ル	55	45	38	24	7.0	1.16	89	299
廃活性炭(薄膜乾燥処理)	50	50	40	27	2.0	0.98	65	125
含硝酸塩廃液 (薄膜乾燥処理)	60	40	25	43	6.5	1.63	89	618

\* (HPR) : 樹脂 100 重量部に対する添加量

一方、表 2.6 及び表 2.7 の処方及び廃棄物混合比で固化した焼却灰の不飽和ポリエステル固化体及びエポキシ固化体に関する  $\text{Na}^+$  の浸出率（43 日間浸漬）はそれぞれ  $8 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$  及び  $7 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$  であった。又、同様固化した焼却灰の固化体の  $10^8 \text{ Rad}$  までの耐放射線性に関しては、不飽和ポリエステル固化体及びエポキシ固化体ともに着色やひび割れ等は認められず、重量変化、形状変化も小さかった。なお、エポキシ固化体の圧縮強度はほとんど変わらないが、不飽和ポリエステル固化体の圧縮強度が約 1.6 倍に増大した。

廃活性炭に関しては、発生量があまり多くなく、その後調整設計の実施に伴い焼却施設にてドデカンと混合し、滴下燃焼することとしており、固化対象物からはずれた。減容性及び安定性に優れた無機質固化体をめざした固化法の開発が最近活発に実施されつつあるが、廃棄物固化体の寿命は、浅地中埋設処分を考えると約数百年で良く、かつ固化体中の  $\alpha$  核種の含有量の固化体物性への影響が無視しうる程度ならば、プラスチック固化法も依然魅力的な固化法である。

プラスチック固化体は浅地中埋設処分に適合するのか、又無機性固化体をうる各種固化法だけでなくプラスチック固化法を含め、どの固化法が技術的・経済的にみて処分にふさわしい固化法と言えるのか総合的に評価する必要がある。（8 総合評価参照）

いずれにせよ、焼却灰、ゼオライト（AgX）、廃シリカゲルは廃棄物混合比を比較的高くとりかつ、優れた圧縮強度および硬度を有する不飽和ポリエステル固化体及びエポキシ固化体としうる。

エポキシ固化法は常温固化であるのに対し、不飽和ポリエステル固化法では重合反応させる混合槽内の  $\text{N}_2$  パージや冷凍設備による反応速度制御等の安全対策設備が不可欠という特徴を有するので、どちらかと言えばエポキシ固化法の方が設備的にも、コスト的にも不飽和ポリエステル固化法より優れるものと考えられる。

さて、次に、低レベル放射性固体廃棄物の浅地中埋設処分に関する規制の現状について述べる。

なお、プラスチック固化体の長期安定性に関しては 5 を参照願いたい。

### 3. 低レベル放射性固体廃棄物の浅地中埋設処分に関する規制の現状

再処理工場の可燃性雑固体廃棄物は $\beta$ 、 $\gamma$ 核種以外に微量の $\alpha$ 核種を含有する。廃棄物処理場の既設焼却炉においては、分離精製工場のプルトニウム操作区域からの可燃性雑固体廃棄物は受入れず当面ドラム缶収納し保管貯蔵しているものの、それ以外の区域からの雑固体廃棄物を焼却処分するため、焼却灰中への微量の $\alpha$ 核種の混入は避けがたい。

焼却灰中の $\alpha$ 核種の含有量は後述する様に、米国の陸地処分に関するTRU規制値10 nCi/g (10 CFR 61に定めるクラスAの廃棄物; 100年間保管)<sup>22), 23)</sup>の約1/10に相当する。この規制値を超えるとクラスCに分類されコンクリートバリアで500年以上保管しなければならない。したがって、必要以上に長期間にわたり廃棄物を保管管理しなくて済む様に、焼却灰の固化プロセスの選定に当っては焼却灰固化体中のTRUの含有量を10 nCi/g以下に確実に保持しうる固化プロセスとすることが重要である。

最近になり、わが国の基準も整備されてきたので、本章では浅地中埋設処分に関する国際動向について取りまとめた。

#### 3.1 日本

62年1月に原子力安全委員会の放射性廃棄物安全規制専門部会は「低レベル放射性固体廃棄物の陸地処分の安全規制に関する基準値について」(中間報告)を取りまとめ、浅地中処分することができる低レベル放射性固体廃棄物の放射能濃度の上限値として、表3.1の数値を政令で定めることを提案した。

本案に関しては、その後原子力安全委員会、放射線審議会の審議をへて3月に閣議決定し、近々政令として公布施行の予定という。

なお、再処理工場、プルトニウム燃料加工工場等において発生するTRU核種を多く含む廃棄物に関しては、処分技術開発の途上のため、表3.1には含まれていない。

表3.1の数値は、原子炉施設から発生し容器に固型化された廃棄物に関し、次の様な処分方法及び被ばく経路等を想定し、処分場跡地に建設された住居に居住する人の被ばく線量について個人被ばく線量1 mrem/年及び仏国における浅地中埋設処分の管理期間300年を参考とし計算し、さらに実際に処分される固体廃棄物の濃度分布のバラツキを考慮して計算値を10倍化したものである。

なお、廃棄物中に含有される $\alpha$ 核種に関しては、類似挙動を示し、被ばく経路も同一であるので、全 $\alpha$ として取りまとめ、全 $\alpha$ の値は、被ばく線量評価上最も厳しいAm-241の値で計算したものである。

(1) 処分方法

地表面から深さ 3 m より下に設けられたコンクリートピットの中に、原子炉施設から発生した放射性廃棄物をセメント固化した 200 ℓ 鋼製ドラム缶が 100 万本俵積みされており、ドラム缶の間には充填材が詰められている。

(2) 被ばく経路

IAEA が規制除外濃度の導出のために用いている次の被ばく経路

◎ 処分場跡地において住居を建設する人の被ばく：

処分場閉鎖後、跡地で住居を建設するため住居の基礎のために穴が掘られる。建設作業者が作業中に、埋設された放射性廃棄物からの放射線を受け被ばくする。

◎ 処分場跡地において建設された住居に居住する人の被ばく：

処分場跡地において建設された住居に居住する人が、埋設された放射性廃棄物からの放射線を受け被ばくする。また、居住者が住居の周囲で農作物を栽培し、埋設された廃棄物中の放射性物質を吸収した農作物を食べることによって被ばくする。

◎ 放射性物質が地下水とともに河川に移行し、その水を介して受ける被ばく：

処分場跡地に降った雨が地下に浸透し、これにより放射性物質の一部が地下水とともに河川に移行する。この河川の水を介して以下の経路で被ばくする。

- ① 河川の水を飲用する。
- ② 河川の水で飼育した家畜の肉や牛乳を摂取する。
- ③ 河川で取れた魚を摂取する。

(3) Co-60 の上限値設定の際に想定した被ばく経路

Co-60 の上限値については、半減期が比較的短いので、放射能濃度の低減を期待する期間後の濃度を基に設定するのではなく、処分場管理期間中に、処分場敷地境界に住む人の被ばく経路から上限値を設定する：

処分場敷地境界に住む人が、処分場管理期間中に、廃棄物の収納作業のためにふたが開いているピットからのスカイシャイン放射線を受け被ばくする。

表 3.1 浅地中埋設処分可能な低レベル放射性固体廃棄物の放射能濃度の上限値

核 種	半減期 (年)	計算結果 ( $\mu\text{Ci/g}$ )	上 限 値 ( $\text{Ci/t}$ )
Co-60	5	$3 \times 10^1$	$3 \times 10^2$
Sr-90	29	$2 \times 10^{-1}$	$2 \times 10^0$
Cs-137	30	$3 \times 10^0$	$3 \times 10^1$
Ni-63	96	$1 \times 10^0$	$3 \times 10^1$
C-14	5730	$1 \times 10^{-1}$	$1 \times 10^0$
全 $\alpha$	432	$3 \times 10^{-3}$	$3 \times 10^{-2}$

表 3.2 米国及び仏国における放射性固体廃棄物の陸地処分に関する上限値にちいて

核 種	米 国 (注 1)	仏 国 (注 2)
Co-60	—	$1.3 \times 10^3 \text{ Ci/t}$
Sr-90	$7 \times 10^3 \text{ Ci/m}^3$	$2 \times 10^1 \text{ Ci/t}$
Cs-137	$4.6 \times 10^3 \text{ Ci/m}^3$	$1.3 \times 10^2 \text{ Ci/t}$
Ni-63	$7 \times 10^2 \text{ Ci} \times \text{m}^3$	—
C-14	$8 \times 10^0 \text{ Ci/m}^3$	—
$\alpha$ 核種	半減期 5 年を超える TRU 核種 : $1 \times 10^{-1} \text{ Ci/t}$ Pu-241: $3.5 \times 10^0 \text{ Ci/t}$ Cm-242: $2.0 \times 10^1 \text{ Ci/t}$	$1 \times 10^{-1} \text{ Ci/t}$

(注 1) ・ 10 CFR Part 61 に定められている基準。

- ・ 固化体を 5 m 以深に埋設するか、500 年間は偶発的侵入を防護できるバリアを設ける処分の場合の固化体一体当たりの上限値。

(注 2) ・ ラマンシェにおいて埋設する場合の濃度基準。

- ・ 固化体を埋設する場合の固化体一体当たりの上限値。
- ・  $\alpha$  核種の濃度は 300 年後の値。



### 3.2 米 国

放射性廃棄物安全専門部会は表 3.1 の数値設定に当って参考例として米国および仏国の陸地処分に関する上限値として表 3.2 を紹介している。

しかしながら、米国の規制は 10 CFR 61 に基づき長寿命および短寿命の核種含有廃棄物に関し、クラス A, B, C に分類し管理しており、表 3.2 の注記だけでは説明不十分の様に思われるので、次に補足説明する。

すなわち、長寿命核種含有廃棄物に関して表 3.3 の 1/10 以下の濃度の廃棄物がクラス A に分類され、処分場でも他のユニットから十分隔離し浅地中埋設処分し、100 年間制度上保管管理される。これに対し、1/10 以上表 3.3 の数値までの廃棄物がクラス C に分類され、その廃棄物の形態又は容器は 300 年以上安定にその物性を保ち、識別できるものでなければならず、さらに、コンクリートカバーを用いる等により、人の侵入に対し約 500 年間バリアを保持できなければならない。表 3.3 の濃度を超えたものの浅地中埋設処分は認められない。

クラス A に分類される  $\alpha$  核種は半減期 5 年以上のもの、Pu-241 (半減期約  $3.8 \times 10^5$  年) 及び Cm-242 (半減期 35 年) にわけて規制されており、半減期 5 年以上のものは 10 nCi/g 以下である。<sup>22), 23)</sup>

この他、わが国では I-129 含有廃棄物に対する規制値は未定だが、米国ではクラス A に分類されるためには  $8 \times 10^{-3}$  Ci/m<sup>3</sup> 以下とする必要がある。

表 3.3 10 CFR 61 における低レベル放射性廃棄物の分類 - 長寿命核種<sup>22)</sup>

核 種	放射能濃度 (Ci/m <sup>3</sup> )
C - 14	8
放射化された全量中の C - 14	80
放射化された全量中の Ni - 59	220
放射化された全量中の Nb-94	0.2
Te - 99	3
I - 129	0.08
半減期 5 年以上の $\alpha$ 核種	( 100 )
Pu - 241	( 3,500 )
Cm - 242	( 20,000 )

( )内の数値の単位は nCi/g とする。

この表の 1/10 以下の濃度の廃棄物が Class A, それ以上でこの表の数値の範囲までの廃棄物が Class C である。

### 3.3 英国、仏国

英国においては1959年の「放射性廃棄物の管理」(Cwnd 884)(原子炉発生廃棄物が対象)が基本規制で、さらに1979年からCwnd 884の見直しが行なわれ、 $\beta$ ,  $\gamma$  60 mCi/m<sup>3</sup>,  $\alpha$  20 Ci/m<sup>3</sup>の低放射性廃棄物のドリッグ(素掘りトレンチに直接廃棄物を投入し1 m程度の覆土する方式)における浅地中埋設処分が実施されているという<sup>23)</sup>。

仏国においては、表3.2の様にラマンシュで浅地中埋設処分する場合に固化体1体当たりの $\alpha$ 核種の濃度は300年後の値で、100 nCi/g以下に、Pu-239の濃度は0.3 g/m<sup>3</sup>に規制している。

Pu-239の比放射能16 mg/mCiより0.3 g/m<sup>3</sup>は190 mCi/m<sup>3</sup>に相当する。

なお、天沼によれば、ラマンシュで受入れる廃棄物中の $\alpha$ 核種の含有量は平均で10 nCi/g以下であるという<sup>26)</sup>。

仏国の規制値は英国のものより1桁高いが、これは廃棄物でなく固化体についての規制値であり、固化体とすることにより廃棄物中の放射性物質を安定させている点を配慮したためと推定される。

### 3.4 わが国の場合と海外の場合の比較

$\alpha$ 核種含有廃棄物の浅地中埋設処分可能な上限濃度に関しては、3.1(1)~(3)に述べた様に計算前提条件がかなり違いがあり、その上各国毎にサイト条件、考え方、歴史的背景、国民的コンセンサス等の違いがあるわけで、単純に数値を比較するのは正しくない。

しかしながら、大略の傾向を把握するためにあえて比較すると、わが国の基準値は若干、米国、仏国より低くみえる(表3.1および表3.2)が、むしろ米国のクラスA規制値と対比すれば、逆にわが国の基準の方が若干高い様にもみえる。(これは、わが国の基準は容器に固形化されることを条件しているのに対し、米国の場合は、条件としていない。)今後の世論の動向によっては、わが国の基準もさらに下げられることが考えられる。いずれにしても、焼却灰およびその固化体は $\alpha$ 核種の含量が10 nCi/g(米国のクラスA相当)以下となるように管理しなければ浅地中埋設処分は不可能となることが明らかになった。

すなわち、長期保管管理のロードの軽減化を図り、施設管理の経済性を向上させるためにも、再処理工場からの廃棄物焼却灰の固化体は、含有 $\alpha$ 核種量が確実に10 nCi/g以下となる様なプロセスで固化処理する必要がある。なお、I-129含有AgX、廃シリカゲル固化体に関してもやはり米国のクラスA相当となる様な固化プロセスとすることが好ましい。

### 3.5 無拘束限界値について

放射性廃棄物中の濃度が極めて低いものに関しては、もはや放射性廃棄物としての特殊性を考慮せずに一般産業の廃棄物と同等に考えるいわゆる無拘束限界値（すそ切り値）を設けようという議論がおこり、IAEAは1985年10月に陸地処分において個人に対し1 mrem/yを規制免除線量とすることを定め、適用される廃棄物中の放射能濃度の誘導に関する報告書を作成中という<sup>81)</sup>。わが国では前記放射性廃棄物安全規制専門部会にて検討中という。すでに法律で無拘束限界値を設けている国は少ないが、西独国では、放射線障害防止規則（1976年10月）により、Pu-238, Pu-239, Am-241, Sr-90等含有廃棄物に対し、10 pCi/g以下としている。

又、スイス国でも放射線防護規則（1976年8月）により、 $\alpha$ 核種含有廃棄物に対し20 pCi/g未滿、 $\beta \cdot \gamma$ 核種含有廃棄物に対し20 nCi/g未滿としている<sup>24)</sup>。天沼らによれば英国では10 pCi/g以下としているという。（1983年3月にHarwell研究所訪問時の先方の説明）

わが国ではこの様な無拘束限界値はまだ設けておらず、原安協固体廃棄物処理処分専門委員会範囲分科会では、現実的な考察ができないための暫定的数値として0.1 pCi/gを提案したことがある。（1979年1月）<sup>25)</sup>

IAEAは、1985年10月の規制免除線量決定に先立ち、1984年12月の諮問グループ会議で規制免除線量に対応する廃棄物濃度（無拘束限界値）の具体的誘導方法の確立に必要な被曝経路、評価モデル及び計算パラメータ等について検討し、次の計算結果を例示するとともに、一般的な値を提案していると聞く<sup>81)</sup>。

Pu-239に関する計算例：	無拘束限界値
$\left\{ \begin{array}{l} \text{埋設処分作業時の吸入} \\ \text{居住（処分場閉鎖後10年）時の経口摂取} \end{array} \right.$	$3.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci/g}$
	$1.0 \times 10^{-4} \mu\text{Ci/g}$
一般的な値の範囲：	$10^{-6} \sim 10^{-5} \mu\text{Ci/g}$ （1～10 pCi/g）

IAEAの提案しているPu-239に対する無拘束限界値は、西独及びスイスとほぼ同一か1桁低い数値であり、又、10 CFR 61のクラスAの基準10 nCi/gに対し、 $10^{-3} \sim 10^{-4}$ のレベルであることがわかる。

各国は、IAEAの提案に基づきさらにサイトの特性を上乗せし、適切な値に設定することになるが、国民的コンセンサスを得て、この様な無拘束限界値を定めるにはかなり長時間を要するものと思われる。

## 4. 再処理廃棄物焼却灰の性状

再処理廃棄物焼却灰に関しては、雑固体廃棄物と混焼する廃希釈剤の含有TBP濃度と焼却量によって生成焼却灰の組成が大きく変動する。

又、工場内の分析設備との関係で、焼却灰の含有放射能濃度以外の実測データに乏しい。

そこで、本章では既設焼却炉より回収した焼却灰のデータに別途簡易焼却炉より得た焼却灰に関するコールド性状測定試験結果を加えさらに再処理廃棄物焼却灰、廃AgX及び廃シリカゲルの発生量とその性状について述べる。

### 4.1 既設焼却炉より回収した焼却灰の放射能濃度データ

少し古いデータになるが、既焼却炉に関する減重比および減容比を表4.1に示す<sup>27)</sup>。

- 減重比は約1/40，減容比は約1/75である。

又、生成焼却灰の含有 $\gamma$ 放射能濃度を表4.2に、含有 $\alpha$ 放射能濃度を表4.3に示す。雑固体廃棄物のみ専焼した場合の焼却灰 $\gamma$ 核種分析結果を表4.4に示す。

- $\gamma$ 放射能濃度に関しては、57～60年度平均で $3 \times 10^{-2} \gamma \mu\text{Ci/g}$ ，最大 $1.4 \times 10^{-1} \gamma \mu\text{Ci/g}$ であった。
- $\alpha$ 放射能濃度に関しては57年度だけが異常に高く、平均で $1.0 \times 10^{-1} \alpha \mu\text{Ci/g}$ ，最大 $3.2 \times 10^{-1} \alpha \mu\text{Ci/g}$ であったが、これを除くと、52～60年度の平均は $3.1 \times 10^{-3} \alpha \mu\text{Ci/g}$ であり、58～60年度についてみると平均 $3.2 \times 10^{-3} \alpha \mu\text{Ci/g}$ ，最大 $1.2 \times 10^{-2} \alpha \mu\text{Ci/g}$ で又、雑固体廃棄物焼却量や $\gamma$ 放射能濃度にも依存せず約 $3 \times 10^{-3} \alpha \mu\text{Ci/g}$ と一定であった。

57年度だけ異常に高かった理由は未だはっきりしないが、 $\alpha$ 含有量の高い廃希釈剤を焼却したためでないかと推定される。

60年より、廃希釈剤はできるだけ焼却せず廃溶媒処理技術開発施設にて処理するので、今後既設焼却炉の焼却灰中の $\alpha$ 含有量が、異常に高くなることはないものとみられる。

(廃溶媒処理施設では廃溶媒、廃希釈剤の処理に先立ち、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 洗浄によりあらかじめこれらの含有 $\alpha$ 核種を除去し、使用済 $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 溶液は、アスファルト固化処理施設へ送液する。)

表 4.1 減重比・減容比比較表<sup>27)</sup>

年 度	焼却重量 (t)	焼却容量 (m <sup>3</sup> )	灰 重 量 (t)	灰 容 量 (m <sup>3</sup> )	減 重 比	減 容 比
51	17.3	139.2	0.5	1.6	1/35	1/87
52	10.8	92.3	0.3	1.0	1/36	1/92
53	16.9	150.4	0.3	1.6	1/56	1/94
54	19.7	183.6	0.5	2.0	1/39	1/92
55	37.0	294.7	1.1 (0.3)	4.8 (1.4)	1/34 1/46*	1/61 1/87*
56	28.0	180.4	0.6 (0.1)	2.8 (0.2)	1/47 1/56*	1/64 1/69*
合 計	129.7	1,040.6	3.3 (0.4)	13.8 (1.6)	1/39 1/45*	1/75 1/85*

( )内の値は、高温熱交換器清掃時の灰である。

\*は、高温熱交換器清掃時の灰を除いた値である。

表 4.2 焼却灰の発生量と $\gamma$ 放射能濃度

年 度	① 雑固体焼却灰		② 混焼焼却灰		(① + ②) 平均	
	発生量 (kg)	放射能濃度 ( $\gamma \mu\text{Ci/g}$ )	発生量 (kg)	放射能濃度 ( $\gamma \mu\text{Ci/g}$ )	発生量 (kg)	放射能濃度 ( $\gamma \mu\text{Ci/g}$ )
51	35.8	—	—	—	35.8	—
52	276.8	—	—	—	276.8	—
53	294.6	—	—	—	294.6	—
54	441.3	—	—	—	441.3	—
55	868.8	—	126.4	—	995.2	—
56	536.4	—	112.3	—	648.7	—
57	415.0	$5.8 \times 10^{-2}$ (Max $8.6 \times 10^{-2}$ )	412.8	$5.1 \times 10^{-2}$ (Max $2.7 \times 10^{-1}$ )	827.8	$5.5 \times 10^{-2}$
58	908.1	$2.7 \times 10^{-2}$ (Max $1.4 \times 10^{-1}$ )	—	—	908.1	$2.7 \times 10^{-2}$
59	701	$2.9 \times 10^{-2}$ (Max $9.3 \times 10^{-2}$ )	—	—	701	$2.9 \times 10^{-2}$
60	863.4	$3.3 \times 10^{-2}$ (Max $1.2 \times 10^{-1}$ )	111.4	$2.7 \times 10^{-2}$ (Max $2.9 \times 10^{-2}$ )	974.8	$3.0 \times 10^{-2}$
計	5341.2	$3.3 \times 10^{-2}$	762.9	$5.0 \times 10^{-2}$	6104.1	$4.2 \times 10^{-2}$

表 4.3 焼却灰の発生量と $\alpha$ 放射能濃度

年 度	① 雑固体焼却灰		② 混焼焼却灰		(① + ②) 平均	
	発生量 (kg)	放射能濃度 ( $\alpha \mu\text{Ci/g}$ )	発生量 (kg)	放射能濃度 ( $\alpha \mu\text{Ci/g}$ )	発生量 (kg)	放射能濃度 ( $\alpha \mu\text{Ci/g}$ )
51	35.8	—	—	—	35.8	—
52	276.8	$1.9 \times 10^{-4}$ (Max $6.0 \times 10^{-4}$ )	—	—	276.8	$1.9 \times 10^{-4}$
53	294.6	$2.0 \times 10^{-2}$ (Max $1.2 \times 10^{-1}$ )	—	—	294.6	$2.0 \times 10^{-2}$
54	441.3	$3.6 \times 10^{-3}$ (Max $2.7 \times 10^{-2}$ )	—	—	441.3	$3.6 \times 10^{-3}$
55	868.8	$3.8 \times 10^{-4}$ (Max $2.9 \times 10^{-3}$ )	126.4	$5.4 \times 10^{-3}$ (Max $1.4 \times 10^{-2}$ )	995.2	$1.0 \times 10^{-3}$
56	536.4	$1.3 \times 10^{-4}$ (Max $8.2 \times 10^{-3}$ )	112.3	$7.2 \times 10^{-3}$ (Max $1.0 \times 10^{-2}$ )	648.7	$1.4 \times 10^{-3}$
57	415.0	$9.5 \times 10^{-2}$ <sup>1</sup> (Max $1.9 \times 10^{-1}$ )	412.8	$1.1 \times 10^{-1}$ (Max $3.2 \times 10^{-1}$ )	827.8	$1.0 \times 10^{-1}$
58	908.1	$3.7 \times 10^{-3}$ (Max $7.9 \times 10^{-3}$ )	—	—	908.1	$3.7 \times 10^{-3}$
59	701	$2.5 \times 10^{-3}$ (Max $3.0 \times 10^{-3}$ )	—	—	701	$2.5 \times 10^{-3}$
60	863.4	$3.5 \times 10^{-3}$ (Max $1.2 \times 10^{-2}$ )	111.4	$2.6 \times 10^{-3}$ (Max $2.8 \times 10^{-3}$ )	974.8	$3.4 \times 10^{-3}$
計	5341.2	$1.0 \times 10^{-2}$	762.9	$6.2 \times 10^{-2}$	6104.1	$1.7 \times 10^{-2}$

表 4.4 雑固体専焼灰のスポットデータ

灰サンプリング時		60. 8. 21 *	60. 9	60. 9. 26	60. 10. 11	60. 10. 14	60. 10. 22
運 転 期 間		7. 31 ~ 8. 10	8. 19 ~ 8. 22	9. 9 ~ 9. 19	9. 26 ~ 10. 6	第3炉室 メンテナンス	10. 14 ~ 10. 18
処 理 量	可 燃 物 (kg)	3,684	1,231	3,981	4,032	—	1,140
	希 釈 剤 (ℓ)	269	—	—	—	—	—
焼 却 灰	灰 No	341SX-009	341SX-010	341SX-011	341SX10-012	341SX10-013	341SX10-014
	表面線量率(mR/h)	86	15	10	1.5	5	6
	重 量 (kg)	57.1	54.3	74.1	52.5	15.2	16.2
γ ス ペ ク ト ル ( $\mu\text{Ci/g}$ )	Am - 241	$2.1 \times 10^{-3}$	$1.1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$2.5 \times 10^{-3}$
	Ce - 144	$1.7 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$
	Cs - 137	$1.5 \times 10^{-3}$	$7.7 \times 10^{-3}$	$3.0 \times 10^{-3}$	$3.7 \times 10^{-3}$	$6.5 \times 10^{-3}$	$4.3 \times 10^{-3}$
	Cs - 134	$1.8 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$8.1 \times 10^{-3}$
	Sb - 125	$1.9 \times 10^{-3}$	$1.8 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$
	Ru - 106	$< 1 \times 10^{-3}$	$4.7 \times 10^{-3}$	$3.1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$3.5 \times 10^{-3}$	$4.3 \times 10^{-3}$
	Ru - 103	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$
	Zr - 95	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$
	Nb - 95	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$	$< 1 \times 10^{-3}$
	Co - 60	$6.3 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-2}$	$2.5 \times 10^{-3}$	$6.7 \times 10^{-3}$	$1.1 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-3}$
計	$2.9 \times 10^{-2}$	$2.6 \times 10^{-2}$	$0.9 \times 10^{-2}$	$1.0 \times 10^{-2}$	$2.1 \times 10^{-2}$	$6.8 \times 10^{-2}$	

\* 混焼



- (1) 焼却施設の焼却灰については、設計仕様に基づく、雑固体廃棄物のみの専焼の場合、平均  $5.7 \times 10^{-1} \gamma \mu\text{Ci/g}$  と計算される。 $\alpha$  放射能濃度に関しては、設計仕様上含まれないとしているが、焼却対象物とその組成は既設焼却炉の場合とほぼ同一で、しかも既設焼却灰の実績より  $\alpha$  放射能濃度は  $\gamma$  放射能濃度に依存しないので、既設焼却灰と同一オーダーとなるものと考えられる。

焼却施設では廃活性炭・ドデカン専焼用の小型焼却炉で  $\alpha$  含有量検出限界以下の精製済ドデカンを焼却するものの、廃希釈剤等は一切焼却しないため、その焼却灰中の  $\alpha$  濃度は既設焼却炉混焼時の焼却灰より 1 桁程度低くなるものと期待される。

わが国における浅地中処分可能な低レベル固体廃棄物中の  $\alpha$  含有量は  $30 \text{ nCi/g}$  すなわち  $3 \times 10^{-2} \mu\text{Ci/g}$  に規制されており、しかも、容器に固型化される必要がある。(表 3.1 参照)

既設焼却炉および焼却施設の焼却灰の  $\alpha$  含有量をわが国の基準値と対比すると

- ① 既設焼却炉の焼却灰に関しては、57 年度を除き 52～61 年度の平均のもので、わが国の基準値の約  $1/30$  であり、58 年度以降最大のもは、ほぼ同一値となった。
- ② 焼却施設の焼却灰に関しては、運転データが出なければ何とも言えないが、少なくとも既設焼却炉の焼却灰と同一オーダーすなわち、わが国の基準値の約  $1/10$  程度になるものと想定される。すなわち、既設焼却炉の様に廃希釈剤および廃溶媒は一切焼却せず、 $\alpha$  含有量検出限界以下の回収ドデカン（廃溶媒処理技術開発施設で精製したドデカン）を焼却するため、 $\alpha$  核種の焼却灰への混入は少なく、上記基準値より多少低いレベルに留まることが期待される。

なお、一部高いものが生じた場合には、発生量は極めて少量のためより低いものとブレンドして基準値以下に下げることができるし、一方当面高いもののみ一定期間保管し、 $\beta \cdot \gamma$  放射能の点で問題がなくなれば PWTF 等にてプルトニウム系焼却灰と一緒にマイクロ波溶融固化体とすることも考えられるだろう。

- (2) 焼却灰の  $\gamma$  核種組成に関しては、再処理する燃料の燃焼度や冷却期間は言うまでもなく、焼却するまでの工程や滞留及び一時貯蔵期間により影響を受け、大きく変動する。

しかしながら常時検出されるものは表 4.4 の場合では Cs-137 および Co-60 であり、Ru-106 がこれに続く。これ以外で時折出現するものは Am-241, Ce-144, Cs-134, Sb-125 であった。

次に表 4.4 の焼却灰の核種組成例を表 4.5 に示す。

表 4.5 焼却灰の核種組成例

		ケースA (60年10月22日)	ケースB (60年8月21日)	ケースC (60年9月26日)
核 種 組 成	Am-241	4%	7%	—
	Cs-137	63%	52%	35%
	Ce-134	12%	6%	—
	Ru-106	6%	—	36%
	Co-60	15%	22%	29%
	Ce-144	—	6%	—
	Sb-125	—	7%	—
表面線量率		6 mR/h	86 mR/h	10 mR/h

#### 4.2 生焼却灰及び合成焼却灰の性状

日本原子力研究所大洗研究所の焼却炉は、焼却施設と同様な炉構造を有する CECE タイプの焼却炉で、ポリエチレン 50 %、その他紙及びカートンボックス 50 % を焼却した際の焼却灰に関しては、強熱減量が 1.45 %、高比重 0.23 ~ 0.30、真比重 2.58 ~ 2.67、炉床上の灰の平均粒径は 70 μm、又焼却灰の化学組成としては一例として Si 19.7 - Mg 8.3 - Ca 3.8 - Na 1.6 - Fe 1.4 - その他 1.7 w/o が報告されている<sup>28)</sup>。(表 4.7 参照)

焼却施設の焼却灰に関しても類似した性状となるものと推定されるが、動燃事業団は、焼却灰のマイクロ波誘電加熱溶融試験用の原料としての焼却灰を入手するために、表 4.6 に示す割合に混合した焼却物約 80 kg を簡易焼却炉で焼却して約 1.5 kg の焼却灰（以下生焼却灰という。）を作り、これにさらに所定量の Ca<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> および合成焼却灰の一部をサンプリングしその性状を測定した<sup>29)</sup>。

表 4.6 試験用焼却物の混合割合及び焼却量<sup>29)</sup>

焼却物	混合割合 w/o	焼却量 kg	推定灰量 kg
塩化ビニル（シート）	10	8	0.2
酢酸ビニル（エスチックシート）	35	28	0.2
ポリエチレン（シート）	9	7	—
紙（段ボール、紙ウェス）	23	19	0.8
手袋（チオックス） ウェス（綿 50 %、化繊 50 %）	18	14	0.2
木材（ラワン材、梱抱棒）	5	4	0.1
金属（グリップ、ホッチキス歯、サビ）	—	（若干）*	—
タイベックススーツ	—	（1着）	—
計	100	80	1.5

\* 金属の焼却時の混入量は Total 焼却量に対して 0.1 w/o（0.08 kg）程度とする。

## (1) 生焼却灰の性状

- 強熱減量 (Ig. Loss) (JIS-M 8812 準拠) …… 32.6 %
- 高比重, 真比重 (JIS-Z 2505 準拠) …… 0.21 及び 2.62
- 化学組成

蛍光X線分析 (JIS-K 0121 準拠) データを参考に化学分析 (JIS-K 0115 準拠)

SiO<sub>2</sub> 25.1 - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 16.4 - Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 10.7 - CaO 13.0 - Cl 4.4 - MgO 4.2 -

TiO<sub>2</sub> 3.9 - Na<sub>2</sub>O 1.7 - その他 3.7 w/o (計 83.1 %)\*

なお, 強熱減量 (800 °C) 25.2 %であった。

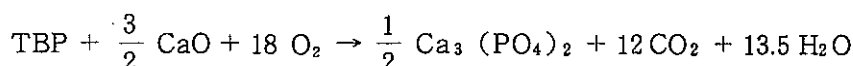
生焼却灰は, 200 l ドラム缶を改造して作った火格子タイプの簡易焼却炉からの灰で, このため当然強熱減量等が著しく悪かったのはやむをえない。

日本原子力研究所大洗研究所の焼却炉及び日本原子力発電 (株) 敦賀発電所の焼却炉からの焼却灰の組成分析例をそれぞれ表 4.7<sup>28)</sup> 及び表 4.8<sup>2)</sup> に示す。

## (2) 合成焼却灰の組成について

焼却施設は当初の設計 (詳細設計) では, 既設焼却炉と同一の横型固定床式の混焼炉であった。

この炉では, 廃希釈剤中に TBP 最大 10 % (平均 5 %) を含むもの及び廃活性炭中に TBP 最大 25 % を含むものを焼却する仕様としていたため, TBP 燃焼時に生成する燐酸による炉材等の腐食防止用としてカルシウム系の助剤 (オクチル酸カルシウム) を添加し焼却する。



で生成した Ca<sub>3</sub> (PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 粉末が焼却灰中に混入してくる。

なお, TBP の燐当量に対し, Ca 1.2 当量となる様にオクチル酸カルシウムを添加するため, 反応しない Ca により, CaO 0.3 当量が生成する。

TBP 含有量が高い廃希釈剤を焼却するほど焼却灰中の Ca<sub>3</sub> (PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 及び CaO の割合が高くなり, 焼却灰の性状が変わってゆく。すなわち,

- ① TBP 含有量 5 % の廃希釈剤 50 kg/h, 雑固体廃棄物 50 kg/h 及び廃活性炭 5 kg/h で焼却した場合の焼却灰の生成量及び組成は, 生焼却灰 1.3 kg (36 %) - Ca<sub>3</sub> (PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 2 kg (58 %) - CaO 0.2 kg (6 %) 計 3.5 kg/h となる。

なお, 既設焼却炉の焼却灰も, 廃希釈剤中の TBP 含有量を 5 % に調製すると共に, ほぼ 1 : 1 の割合で雑固体廃棄物を混焼しているので, 同一組成となるものと考えられる。

\* 実際の焼却炉では生焼却灰の強熱減量は約 1 % と見積られることと, Cl 分も揮散するものと考えられるので, これらを除外した上記灰の組成を試算すると

SiO<sub>2</sub> 32.6 - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 21.3 - Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 13.9 - CaO 16.9 - MgO 5.5 - TiO<sub>2</sub> 5.1 - その他 3.9 w/o

表 4.7 焼却灰の組成分析例～日本原子力研究所大洗研究所<sup>28)</sup>

サンプル名		B G 2
組成 (w/o)	Si	19.7
	Mg	8.27
	Ca	3.84
	Na	1.56
	K	0.31
	Fe	1.40
	S	0.12
	Cl	0.16
	C	1.45
密度 (g/cm <sup>3</sup> )		2.67

表 4.8 焼却灰の化学組成分析例～日本原子力発電(株)敦賀発電所<sup>2)</sup>

元 素	焼却炉灰(w/o)	一次セラミック フィルタ付着灰(w/o)
Si (as. SiO <sub>2</sub> )	32.8	19.2
Al (as. Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	8.6	5.2
Fe (as. Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	19.2	5.4
Na (as. Na <sub>2</sub> O)	2.5	6.7
K (as. K <sub>2</sub> O)	1.3	2.9
Mg (as. MgO)	4.4	2.8
Ca (as. CaO)	12.7	3.1
Cu (as. CuO)	1.4	0.3
Pb (as. PbO)	0.5	1.0
Zn (as. ZnO)	3.2	14.7
Ti (as. TiO <sub>2</sub> )	5.8	4.3
S (as. SO <sub>3</sub> )	0.8	20.0
P (as. P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> )	—	—
Cr (as. Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	—	1.9
計	93.2	87.5

② 参考として、既設焼却炉でTBPの含有量約20%の廃溶媒と雑固体廃棄物を混焼した場合について試算すると焼却灰の組成は、生焼却灰 17 - Ca<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 77 - CaO 6 w/o となる。

③ 一方、廃溶媒処理技術開発施設のコールド及びホット試験の結果、廃希釈剤及び廃溶媒 (TBP 10 ~ 30%) は良好に処理できることが判明し、その結果焼却施設では廃希釈剤の焼却が不要となりかつ、廃溶媒処理技術開発施設の回収ドデカン (シリカゲル吸着精製済のドデカンでTBP含有量約0.1%以下) が再処理工場で再利用不可能の場合にのみ焼却処理することに仕様変更された。

したがって、焼却施設では高くみてもTBP含有量1%以下の回収ドデカンの焼却で焼却灰の組成を考えれば十分である。

雑固体廃棄物 35 kg/h, 回収ドデカン 10 kg/h 及び廃活性炭 2 kg/h で専焼した場合の焼却灰の生成量はそれぞれ 0.95 kg/h, 0.13 kg/h で計 1.1 kg/h と①の32%の生成量である。

なお、各専焼炉の灰は混焼炉の場合と異なり任意の割合にブレンドしうるが、仮に全量ブレンドし平均化した場合の焼却炉の組成は、

生成灰 0.88 kg (81%) - Ca<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 0.18 kg (17%) - CaO 0.02 kg (2%) となる。

④ 再処理焼却灰特有の固化体物性を評価する際に、高い割合で含有されるCa<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>の固化体物性への影響が懸念される。

次章の各種固化法の開発においては、この点を含めて評価したいと考え、4.1で生成した生焼却灰に①、②及び③の割合となる様に市販のCa<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> およびCaOを添加して、試験用合成灰を調整した。(以下、合成焼却灰I、II及びIIIとよぶ。) すなわち、生焼却灰の強熱減量は実際には約1%位と見積られることと、Cl分も揮散すると考えられるのでこれらは除外することとし、無機成分に対し、添加量を調整した。

調整後の合成灰の組成は次の様になる。

合成焼却灰-I : (詳細設計ベース~混焼方式)

P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 25.8 - CaO 43.1 - SiO<sub>2</sub> 11.2 - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 7.3 - Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 4.8 - MgO 1.9 -  
TiO<sub>2</sub> 1.8 - その他 4.2 w/o

合成焼却灰-II : (既設焼却炉で廃希釈剤を混焼したケースに相当)

P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 35.3 - CaO 50.5 - SiO<sub>2</sub> 5.4 - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 3.5 - Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 2.3 - MgO 0.9 -  
TiO<sub>2</sub> 0.8 - その他 1.3 w/o

合成焼却灰-III : (調整設計ベース~焼却施設の両炉からの焼却灰を合成平均化したもの)

P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 16.5 - CaO 15.8 - SiO<sub>2</sub> 26.6 - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 17.4 - Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 11.3 - MgO 4.4 -  
TiO<sub>2</sub> 4.1 - その他 3.9 w/o

### 4.3 再処理工場からの焼却灰，廃AgX，廃シリカゲル，PVCの発生量とその性状

#### 4.3.1 発生量

焼却灰，廃AgX，廃シリカゲル（ドデカン浸漬），PVCの発生量を表4.9に示す。

- 既設焼却灰からの焼却灰は200ℓオープンドラムに充てんするか線量の高いものは5cmコンクリート内巻の200ℓマルチドラムに充てんし，第1低放射性固体廃棄物貯蔵場に保管貯蔵している。60年度末までの累積焼却灰保管量は，200ℓドラム換算で約130本，推定約7tonとそれほど多くない。今後の発生量に関しては年間約120本，約4tonと見積られている。
- これに対し，I-129を含む廃AgXフィルタに関しては，累積保管料が約50個，約1.5tonで，各施設内に一時貯蔵されている。今後の発生量に関しては年間約6個，約180kgと見積られている。
- 一方，I-129を含むドデカン浸漬廃シリカゲル（廃溶媒処理技術開発施設の回収ドデカン精製用）はホット稼動後間もないため，累積保管量は，約6m<sup>3</sup>で，今後の発生量は200ℓドラム換算で年間約3本，約0.5m<sup>3</sup>と推定される。CPFで実験中のドデカン中ヨウ素除去用AgX吸着剤寿命試験の結果によっては，さらに発生量が低減化する可能性がある。

なお，廃シリカゲルに関しては，ホット試験開始前のためデータがなくクリプトン回収技術開発施設からのものを含めていないが，仮に含めたとしてもそれほど多くないと見られる。

- PVCに関しては，累積PVC保管量は200ℓドラム換算で約2400本（推定約36ton）と比較的多い。昭和59年頃よりPVCシートを可燃性の酢酸ビニール製シートに切換えつつありPVC廃棄物の発生量も減少してきているが，未だ全面的に切換っておらず，今後の工事量に依存し年間300～600本発生するものと推定される。

表4.9より発生量的にはPVCと焼却灰が最も多く，他の廃棄物の発生量は極めて少ない。

PVC廃棄物固化に際しては，現状ドラム缶に不燃物と一緒に混合保管しているため，不燃物とPVCとの選別前処理工程が不可欠となるため，広いスペースが必要となる。

PVC廃棄物を除いた廃棄物中に占める焼却灰の割合は95%と圧倒的に高く，廃AgXと廃シリカゲル（ドデカン浸漬）は計5%にすぎない。

なお，PVC廃棄物に関しては焼却施設の詳細設計時に雑固体廃棄物に最大約10%混合して焼却処理することを検討したが，生成HClガスによるオフガス系機器材料の耐食性とHClガスのアルカリスクラビング廃液の既設廃棄物処理場での受入に問題があり，総合評価の結果，焼却施設での焼却は見合せることとした。PVC廃棄物に関しては，焼却よりむしろ加熱圧縮成形により，PVCの真密度に近い安定な固化体とし保管貯蔵することが望ましい。（PNC ZN 8410-86-46 参照<sup>30)</sup>）

#### 4.3.2 廃棄物の性状

再処理の低レベル放射性固体廃棄物に関しては前述した様に、発生量、累積保管量はスラッジを除きそれほど多くないものの焼却灰以外に非常に特殊な性状の廃棄物が残されている。すなわち、

- ① PVC 廃棄物の様に焼却処理ができないもの
- ② 又、廃溶媒処理時に発生する廃シリカゲルの様にドデカン中に浸漬保管しているため、前処理として一度ドデカンを分離除去しないと固化処理法によっては固化しにくく、放射性核種の浸出率が高くなるか懸念される他、ドデカンの引火点が低いので火災防止対策に配慮が必要となるもの
- ③ ヨウ素吸着した廃 AgX や廃シリカゲルの様に、固化処理時の加熱等により、長半減期の I-129 が脱着しオフガス系に移行しない様に配慮が必要となるもの
- ④ Ru 吸着した廃シリカゲルの様に固化処理時の加熱により Ru が脱着し、揮発性 RuO<sub>4</sub> となりオフガス系に移行することのない様に配慮が必要となるもの

前述した様に、PVC 廃棄物を除いた廃棄物中に占める焼却灰の割合は極めて高く、廃 AgX や廃シリカゲルの割合は低く、かつ量的にも少ないことから、これらの廃棄物の固化処理に当っては、できるだけ同一の固化装置を共用して多種少量のこれらの廃棄物もあわせ固化しうれば、場所的にも設備面でもコスト面でも好ましい。

したがって、焼却灰固化法の開発に際しては、同一固化法の廃 AgX や廃シリカゲル等への適用性に関しても併せ試験し技術開発を進めた。試験の結果は 7 章で述べる。

なお、装置共用化に際し、固化体の長期健全性確保と浅地中埋設処分の基準との関係上懸念が生じない様に、設計上配慮が必要である。（他種の廃棄物の誤混入による混合廃棄物組成の固化体生成防止対策等）

#### 〔備考〕

焼却灰固化体はその含有  $\alpha$  濃度からみて、わが国の原子力発電所からの廃棄物の浅地中埋設処分の基準 30nCi/g 又は 10CFR61 のクラス A の基準以下に確実に保持することが得策である。

一方、ヨウ素吸着した廃 AgX や廃シリカゲルは固化体中のヨウ素含有量が米国の 10CFR61 の基準で 500 年以上の管理の必要なクラス C に相当する懸念があり、今後はサンプリング試験によりヨウ素吸着量の確認とクラス C に既当するか試算する必要がある。

この様な懸念のある廃棄物と焼却灰は混合せず、単独に固化すべきであり、固化体自体も厳密に区分して長期貯蔵しなければならない。

装置共用化により焼却灰固化体自体がクラス C 相当の長期健全性を確保しうる物性を有するなら問題はないが、逆にヨウ素含有廃棄物の固化体がクラス C 相当の長期健全性を保持しえず、クラス A 相当にとどまってしまう固化法では、装置の共用化は採用できない。



表 4.9 動燃東海再処理工場から発生する焼却灰, AgX, 廃シリカゲル, PVCの発生量(推定)

	既設施設からの累積保管量		新規年度毎の発生量		備 考
	ドラム本数	重 量	ドラム本数	重量(容積)	
焼 却 灰	130本	7.0 ton	120本/y	4.0 ton/y (~ 14 m <sup>3</sup> /y)	35 kg/本充てん
廃 Ag X	50ヶ	1.5 ton	6ヶ/y	0.18 ton/y (0.22 m <sup>3</sup> /y)	30 kg/本充てん, I-129 含有廃棄物
廃シリカゲル (ドデカン浸漬)	—	0.6 m <sup>3</sup>	3本/y	0.5 m <sup>3</sup> /y	170 l 充てん, I-129 含有廃棄物, (現在 CPF で試験中の AgX 吸着剤寿命データによっては発生量低減する。)
P V C	2,400本 (不燃物と混合)	推定 36 ton	300 ~ 600年/y (不燃物と混合)	4.5 ~ 9 ton/y	15 kg/本充てん

## 5. 固化体パッケージの長期健全性

低レベル放射性廃棄物の地層処分の安全性評価に当たっては、処分した廃棄物中から漏洩した放射性核種が、環境に移行し、人間に影響を与えるまでの移行経路と挙動を明確にする必要がある。それらの挙動に関係するファクターを表 5.1 に示す。特に低レベル放射性廃棄物固化体パッケージの長期健全性の確保データが安全評価に際する出発点となるため、表 5.2 に示した様な評価試験項目に関する試験を実施し、十分なデータベースを整備する必要がある<sup>31)</sup>。

動燃事業団は東海サイトから発生する中低レベル廃液のアスファルト固化体、廃溶媒処理時の回収TBPのプラスチック固化体さらに焼却灰・廃シカリゲル等の低レベル雑固体廃棄物の固化体に関し、固化体の基本的物性の確認、製造時の品質管理、長期貯蔵中の固化体の健全性の確認、又、払出時の固化体の健全性の確認等の試験を実施し、試験データを国の固化体パッケージ及び輸送容器の輸送基準の作成、工学的貯蔵施設の受入基準の作成、処分基準等の作成に役立てると共に工学的貯蔵施設関係の設計、運転時の参照データをうることを目的として、現在、固化体健全性評価試験設備を第二アスファルト固化体貯蔵施設内に組み込み設置中である(図 5.1 固化体評価試験設備の位置付)

固化体評価試験設備は 63 年 8 月に完成を予定し、完成後当面、アスファルト固化体、プラスチック固化体に関し、それぞれ表 5.3 に示した様な項目に関して試験する計画である。本設備の稼動により固化体の長期健全性に関する具体的なデータが得られることになる。

本章では低レベル放射性廃棄物固化体の浅地中埋設処分を考えるに当たって、全く問題にしくなくとも良いのか、あるいはどの程度配慮したら良いのかを大略把握するために検討した次の項目について報告する。

- 1) 固化体収納容器の寿命
- 2) プラスチック固化体の長期健全性
- 3) 固化体中の含有微量  $\alpha$  核種の固化体物性への影響

表 5.1 地層処分の安全評価に際し影響を与える経路と現象，その現象に影響を及ぼすファクター

経路	現象	現象に影響を及ぼすファクター
放射性廃棄物 処分体	浸出	<ul style="list-style-type: none"> <li>核種の種類</li> <li>核種の形態</li> <li>処分体の性質</li> </ul>
↓		
処分施設	浸出	<ul style="list-style-type: none"> <li>止水性</li> <li>透水係数</li> <li>亀裂</li> <li>防水工</li> <li>経年変化</li> <li>核種浸出阻止性</li> <li>コンクリートの分配係数</li> <li>通気層中の核種移動</li> <li>中詰砂中の水分移動</li> <li>中詰砂中の核種移動</li> <li>遮蔽性</li> </ul>
↓		
地中	移動	<ul style="list-style-type: none"> <li>通気層中移動</li> <li>水分移動（土壌水分，毛管伝導度，空隙率等）</li> <li>核種移動（分配係数，pH等）</li> <li>帯水層中移動</li> <li>地下水移動（流向，流速等）</li> <li>核種移動（分配係数，溶存物質，pH等）</li> </ul>
↓		
地表水	希釈 拡散	<ul style="list-style-type: none"> <li>気象</li> <li>流速</li> <li>水量</li> <li>拡散係数</li> </ul>
↓		
動・植物	濃縮	<ul style="list-style-type: none"> <li>摂取量</li> <li>濃縮係数</li> <li>生態</li> </ul> <p>⇒ 生態系への影響</p>
↓		
人	被曝	<ul style="list-style-type: none"> <li>食物摂取量</li> <li>飲料水摂取量</li> </ul> <p>⇒ 人への影響</p>

表 5.2 廃棄物保管，処分における安全性評価のための評価試験項目<sup>31)</sup>

保管処分方式	安全性評価項目 (試験目的)	評価試験項目	試験内容	
人工構造物内 長期保管 および 地層処分	固化体運搬	落下衝撃	ドラム缶を高所より落下し破壊の有無確認	
	保管施設火災	熱特性	引火点，発火点，熱膨張，耐火性測定	
	有害ガス発生	発ガス性	固化体の発生ガス化学組成，放射能測定	
	固化体水没	比重	比重	ドラム缶の重量を測定，小サンプルの比重測定
		浸出性	浸出性	小サンプル，ドラム缶固化体の浸出率測定
		均質性	均質性	ドラム缶固化体の均質性を測定 小サンプルのマイクロな均質性を測定
		膨潤性	膨潤性	小サンプル，ドラム缶固化体の膨潤性測定
	ドラム缶多層積上げ	圧縮強度	圧縮強度	小サンプルおよびドラム缶固化体の1軸圧縮強度測定
長期保管	耐候性	耐候性	温度，湿度のプログラムコントロール耐久性，浸出性	
地層処分	長期地層内埋設	地層埋設	特定の土壌内での耐久性，浸出性	
(参考)  海洋投棄	法的条件確認	圧縮強度	1軸圧縮強度を確認	
		均質性	ドラム缶固化体の均質性を確認 小サンプルのマイクロな均質性を確認	
		比重	比重を確認	
	海洋投棄時 固化体挙動確認	落下衝撃	落下衝撃	ドラム缶を重力落下させ破損の程度確認
		高水圧	高水圧	海洋投棄を推定した水圧で固化体挙動観察
	環境影響評価	海水浸漬	海水浸漬	海水中にドラム缶を浸漬し腐食進行度測定
		浸出性	浸出性	海水中条件での浸出率を測定
		膨潤性	膨潤性	海水中条件での膨潤性を測定

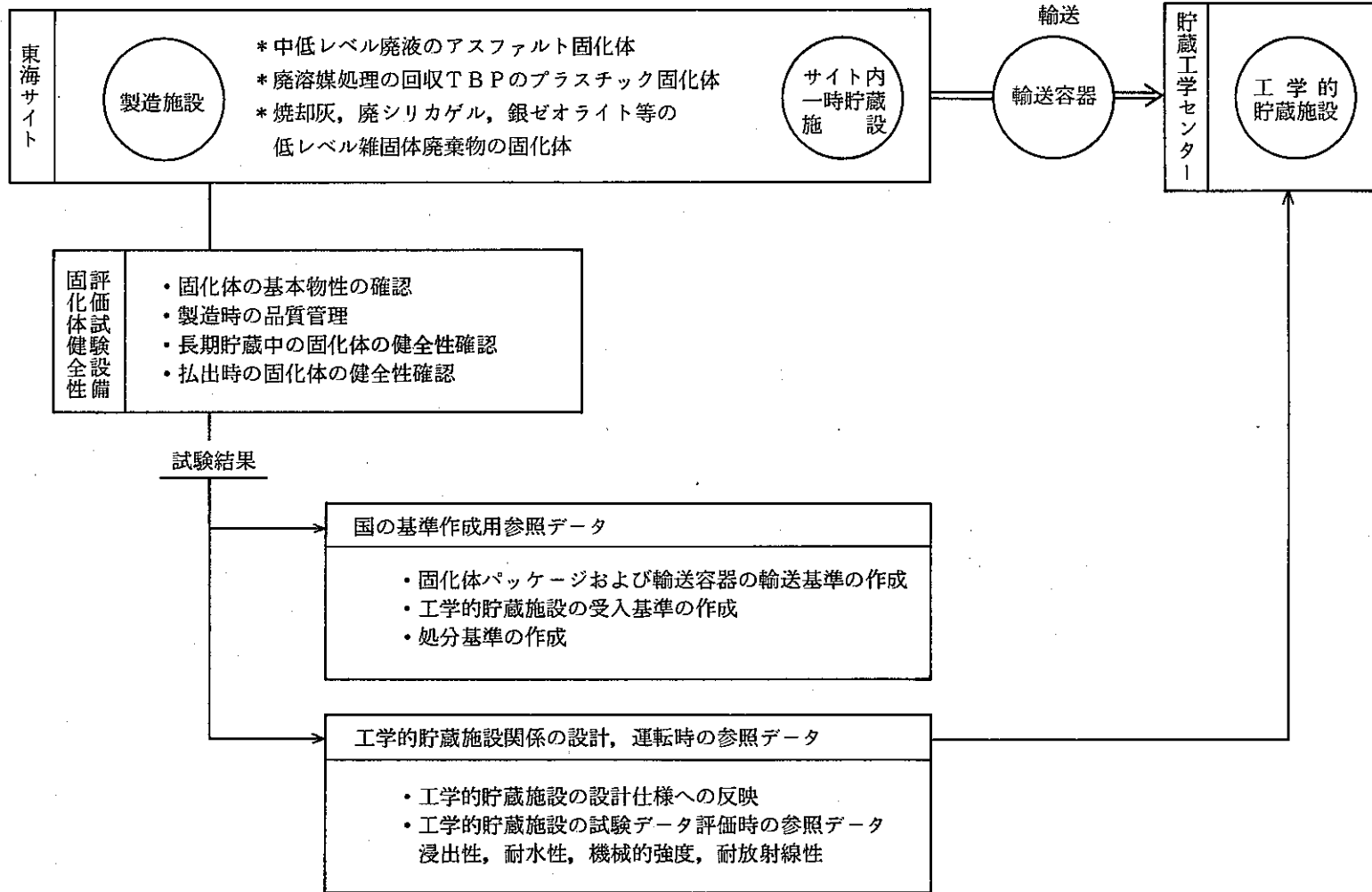


図 5.1 第二アスファルト固化体貯蔵施設固化体評価試験設備の位置付

表 5.3 第二アスファルト固化体貯蔵施設固化体評価試験設備の試験計画

固化体		アスファルト		プラスチック		備 考
		小サンプル	ドラム	小サンプル	ドラム	
機械特性	圧縮強度分布	—	—	●	—	
	硬 度 分 布	—	—	●	—	
	針 入 度 分 布	●	—	—	—	
外 観	上 面 観 察 (ペリスコープ)	—	●	—	●	
	断 面 観 察	◎	—	●	—	アスファルトは搬出測定,(注) プラスチックは本設備で測定
均 質 性	比 重 分 布	●	—	●	—	
	表面線量率分布	—	●	—	●	
	放射性核種分布	●	—	●	—	γ線測定
熱 特 性	示 差 熱 (D T A)	◎	—	◎	—	搬出測定
	耐 水 性	●	—	●	—	比重測定(膨潤性)
浸 漬 性	浸 出 性 (放射性核種)	●	●	●	●	γ線測定
	浸 出 性 (化学成分)	◎	◎	◎	◎	搬出測定
発ガス性	発ガス量成分	—	◎	—	◎	搬出測定
鉄 皮	鉄 皮 肉 厚	—	●	—	●	

記号説明 ●;本設備で測定 ◎;本設備でサンプリングし他の設備へ搬出する。

\* (注) アスファルト小サンプルの断面観察は、搬出し OTL にて精密測定する。(SEM, EPMA)

## 5.1 固化体収納容器の寿命

### 5.1.1 ドラム缶容器の寿命

日本原子力研究所東海研究所では 200 ℓ (厚さ 1.6 mm, メラミン塗装) ドラム缶にコールドの模擬廃棄物セメント固化体を封入し, 5 年間にわたり海水・陸水・海岸砂, 室内及び野外大気におけるドラム缶 (SS 41 製) 耐食性実証試験を実施した<sup>32), 33)</sup>。

土, 海岸砂環境での試験は, 週 1 回水シャワーを降らし, 排水口より自然に抜き長期保管後, 人工構造物にひび破れ等が発生し, 地下水又は雨水の侵入した場合を想定したものである。

一方, 陸水環境での試験は, 1~3 cm/s で流れる陸水中に浸漬させ, 週 1 回試験液の交換を行ない, 人工構造物が何らかの事情で浸水した場合を想定したものである。

無塗装試験片の重量変化から求めたドラム缶の平均侵食度を図 5.2 に示す。土中では半年後の侵食度が約 0.10 mm/y であったものが, 徐々に少なくなり 2 年後から約 0.06 mm/y 一定となる。陸水の場合には経過時間によらずほぼ 0.055 mm/y 一定となった。

これらのドラム缶鋼板の侵食度とドラム塗膜劣化面積の経時変化データ (土中では 5 年後の塗膜劣化面積は約 3%) より, 前田らはドラム缶容器に生じた腐食貫通孔が経時変化とともに拡大してゆく様子を図 5.3 の様に推定している。

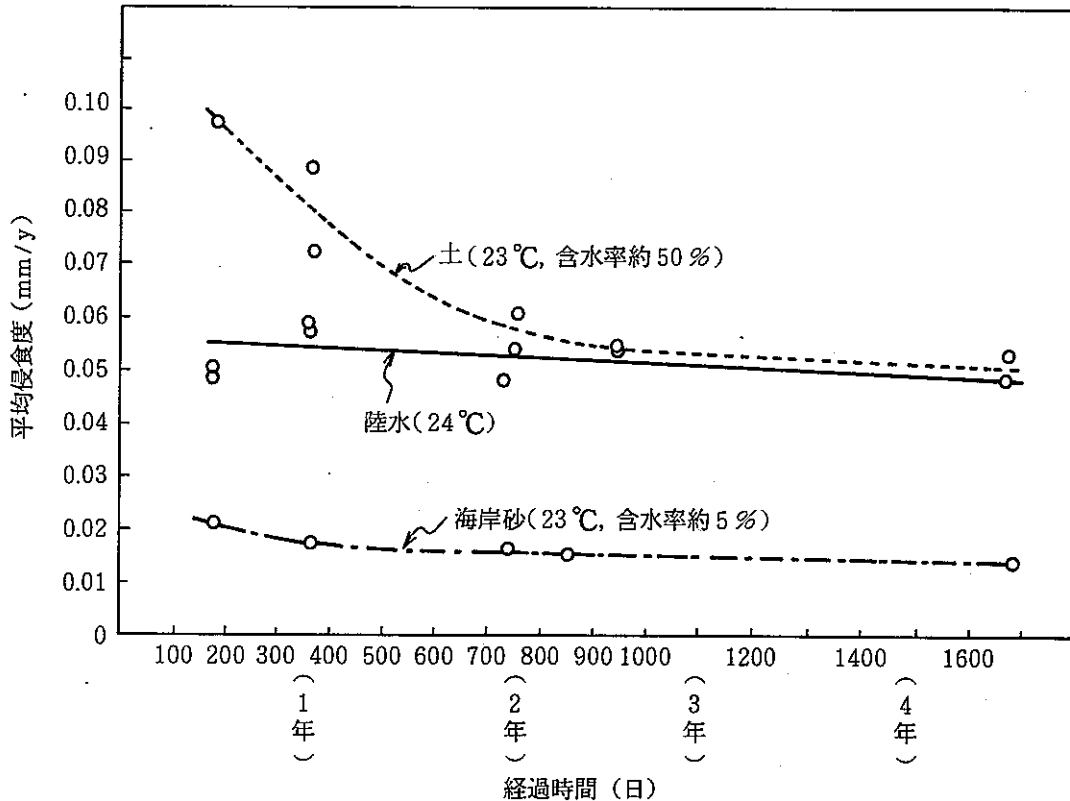


図 5.2 無塗装試験片の重量変化から求めた平均侵食度<sup>32)</sup>

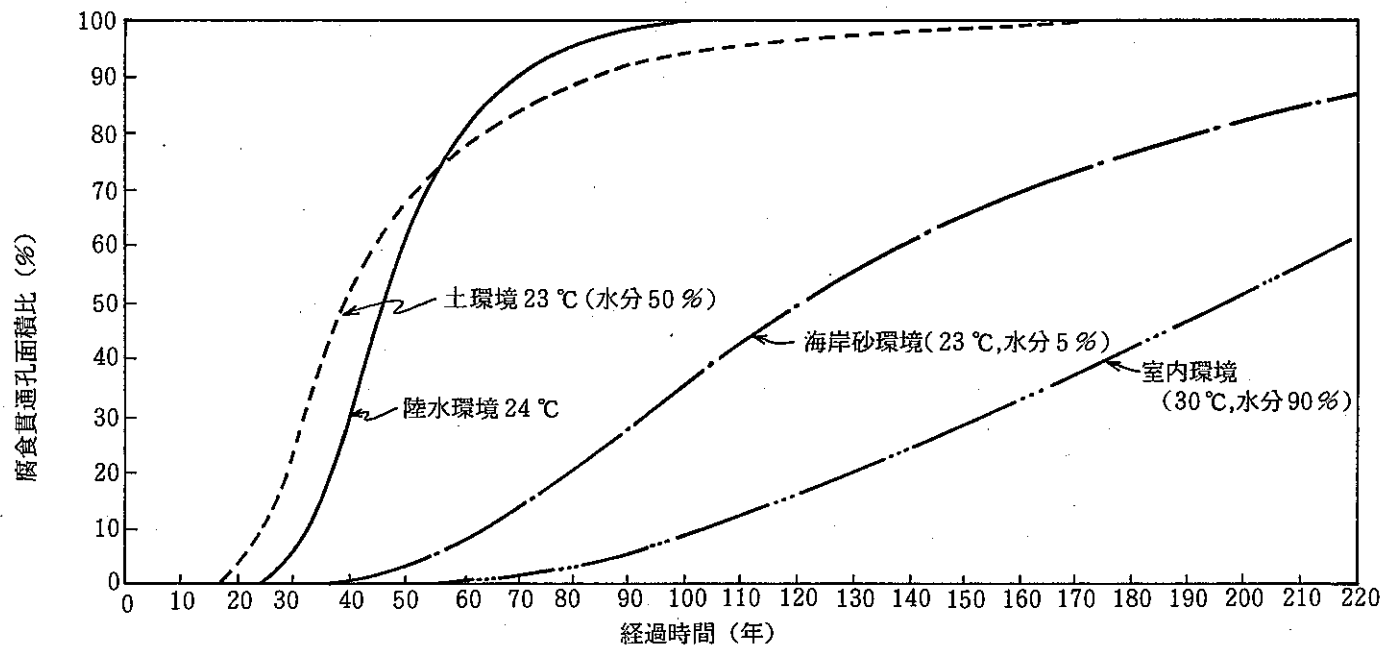


図 5.3 ドラム缶容器 (メラミン塗装, 1.6 mm 厚) の各種環境における腐食貫通孔面積比の経時変化推定結果<sup>32)</sup>



今後、固化体から浸出した核種のドラム缶腐食速度への影響等に関しては詳しく試験されることになるだろうが、図 5.3 によれば、ドラム缶の健全な期間は土環境では約 23 年、室内環境では約 60 年と推定され、予想外に長い様に思われる。

しかしながら、固化体パッケージは 100 年以上の長期にわたる健全性を保持する必要があるため、鋼製ドラム容器では不十分であることが再確認された。

最近になり、ドラム缶と鋼繊維補強ポリマー含浸コンクリート (SFPIIC) を複合化させた複合コンクリート容器が開発されてきており、容器自体に 100 年程度の寿命を持たせ、これにより固化体自体の高物性と合わせ、固化体パッケージの長期健全性保持期間を延伸することが試みられている。

セメントガラス固化法では廃棄物ペレットを複合コンクリート容器に収納後セメント水ガラスを流し込み、セメントガラス固化体とし、固化体と複合コンクリート容器がセメントガラスで完全に接着一体化される。

以下複合コンクリート容器の寿命について述べる。

#### 5.1.2 複合コンクリート容器の寿命

複合コンクリート容器は、ドラム缶の内側にポリマー含浸コンクリートを内張した多重構造容器であり、特にコンクリートの細孔にポリマーを含浸させ重合させることにより細孔を約 1/6 に減少させ、化学的安全性と強度の向上をはかり、容器からの放射性物質の浸出防止と、容器の長期耐久性の確保をめざしている（コンクリートだけでは耐酸性、多孔性、水密性、凍結融解性の点で難点が生ずる。）。

米国原子力規制委員会 NRC は 10 CFR 61 で規制する低レベル廃棄物の陸地処分に対応する廃棄物自体又は複合コンクリート容器 High Integrity Container (HIC) に関し技術的要件を 1983 年 5 月に定めた (Technical Position on Waste Form)<sup>69)</sup>。

HIC に係わる NRC の技術要件を表 5.4 に示す。

主要なポイントは、300 年以上の構造上の健全性保持を設計目標とし、具体的には容器の耐放射性が  $10^8$  rad 以上、耐熱性が  $-40 \sim 60$  °C で連続 30 サイクル以上、機械的強度は埋戻し土 (密度  $1.92 \text{ t/m}^3$ ) の土圧に耐えることである。

秩父セメント (株) は、鋼繊維補強ポリマー含浸コンクリート Steel Fiber-reinforced Polymer Impregnated Concrete (SFPIIC) 容器の開発に成功し、NRC に許可申請し、61 年 6 月に許可を取得し、引続き米国サウスカロライナ州及びワシントン州の認可を取得している<sup>70)</sup>。

表 5.4 健全性の高い容器 (HIC) 係わる NRC の技術要件<sup>69)</sup>

項 目	内 容 (測定または試験方法)
1) 自由水の最大許容量	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 廃棄物中の自申水は廃棄物容積の 1% を越えてはならない。</li> <li>• Dewatering System の設計案を示すこと。</li> </ul>
2) 設計目標	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 最低 300 年間、構造上の健全性を持たせること。</li> </ul>
3) 化学抵抗性	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 廃棄物および処分場のトレンチの環境に混入する可能性のある無機有機物の影響を考慮。</li> <li>• 容器の材質が設計寿命の目標を満たす上で適当であるか確認。</li> <li>• 廃棄物の PH は 4 ~ 11 であること。</li> </ul>
4) 機械的設計強度	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 埋戻し材 (土) の密度を 120 lbs/ft<sup>3</sup> (1.92 t/m<sup>3</sup>) と想定して容器にかかる土圧に耐える機械的強度を持つよう設計。〔既往の構造計算法で立証〕</li> <li>• 日常的な負荷や影響 (輸送, ハンドリング, 処分場の埋戻し材の土圧) に耐えるよう設計。</li> </ul>
5) 有機高分子材料の機械的設計強度	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 強度設計は、クリープ試験データを重視すること。</li> </ul>
6) 熱安定性	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 処理, 貯蔵, 輸送および埋設から発生する熱負荷を考慮。</li> <li>• -40℃ ~ 60℃ の連続 30 サイクル試験を行い, 容器材質の設計特性が大巾に変化しないこと。〔ASTM-R553〕</li> </ul>
7) 放射性劣化および紫外線劣化	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 300 年間に相当する 10<sup>8</sup> Rad の全照射線量にさらしても容器材質の設計特性が大巾に変化しないこと。〔ガンマ線照射またはそれに相当する方法〕</li> <li>• 試験試料は申請した容器と同一材料を使用。</li> <li>• 有機高分子材料 HIC の設計には紫外線劣化も考慮, 紫外線放射にさらした後, 容器材質の特性に大巾な変化がないこと。</li> </ul>
8) 有機高分子材料の生物学的劣化	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 有機高分子材料の生物学的劣化試験を行い, 目視によるカビ, バクテリアの培養成長の兆候があってはならない→ASTM ランクで 0〔ASTM-G 21 および 22〕</li> </ul>
9) A 型容器の要件および自由落下試験	<ul style="list-style-type: none"> <li>• IAEA の A 型輸送容器の規準を満たすこと。</li> </ul>
10) 吊り上げ負荷	<ul style="list-style-type: none"> <li>• HIC および関連する吊り上げ装置は, 吊り上げ作業時に加えられる力, 少なくとも 3g の垂直吊り上げ負荷に耐えうるよう設計。</li> </ul>
11) 容器上面への水の蓄積防止	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 腐食および化学的劣化の原因となる容器蓋上部のトレンチ水の蓄積を最小限に抑えるため, 容器の蓋上部表面に水が貯らないよう設計。</li> </ul>
12) 内容物の検査	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 必要に応じて容器の健全性を損ねることなく, 収納した廃棄物を検査できるよう設計すること。</li> <li>• Passive Vent System を設置すること。</li> </ul>
13) プロトタイプ容器によるデモンストラーション	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 試作試験により, 容器が, 廃棄物調合, ハンドリング, 輸送および処分に関して, 申請された要件に耐えられると立証。</li> </ul>
14) 品質保証計画	<ul style="list-style-type: none"> <li>• HIC は, 品質保証計画に従って製造, 試験, 検査, 使用, 充填, 貯蔵, ハンドリング, 輸送および処分されること。</li> <li>• 品質保証計画には, HIC の材質を損ねる廃棄物の容器内への侵入を防げる方法を記載。</li> </ul>

SFPIC 容器の製造時のコンクリート配合を表 5.5 に、製造工程を図 5.4 に示す<sup>71)</sup>。

SFPIC は表 5.5 の配合でコンクリート容器を製作・乾燥・脱気させ、次にメタクリル酸メチルモノマー (MMA) にアゾビスイソブチロニトリル (1.5%) を反応開始剤として添加した溶液を調製し、その溶液にコンクリート容器を 18 時間浸漬させ、最後に 95℃ に 2 時間加熱してラジカル重合反応を完了させて出来る。

ポリマー部分含浸率と割裂引張・圧縮強度との関係を図 5.5 に示す。

この図より、ポリマー含浸率が 100% になると、圧縮強度、割裂引張強度がポリマー含浸しないものに対し約 4 倍向上することがわかる。

SFPIC 容器サンプル (4 × 4 × 16 cm) の耐放射線性を図 5.6 に示す<sup>73)</sup>。

Co-60 の  $\gamma$  線外部照射線量増大にしたがい、圧縮強度が若干低下してゆく。

MMA にポリスチレンを架橋剤として添加したものは、耐放射線性に優れ  $10^8$  rad で約 1300 kg/cm<sup>2</sup>G と高い圧縮強度を保持している。又、発生ガス量は廃棄物を含有していないこともあり、 $10^8$  rad で H<sub>2</sub> ガスで約  $2.5 \times 10^{-6}$  mol/g と低い<sup>70)</sup>。

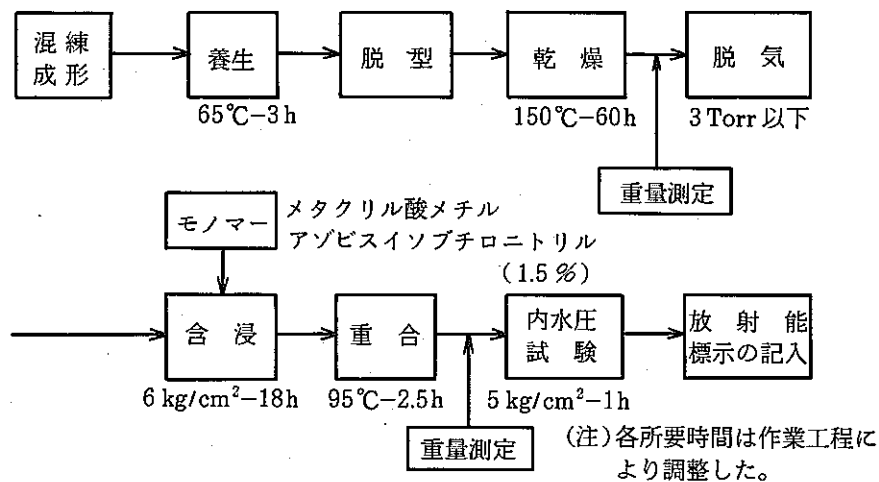


図 5.4 PIC 容器の製造工程図<sup>71)</sup>

表 5.5 コンクリートの示法配合<sup>71)</sup>

最大骨 材寸法 (mm)	水セメン ト比 (%)	細骨 材率 (%)	スラ ンプ (cm)	空気量 (%)	単位重量 (kg/m <sup>3</sup> )				
					水	セメント	砂	砂利	鋼繊維
10	43	60	8±1.5	2±0.5	237	550	871	579	117

(注) 各材料の比重は下記のとおり

セメント = 3.17    砂 = 2.64    砂利 = 2.63    鋼繊維 = 7.80

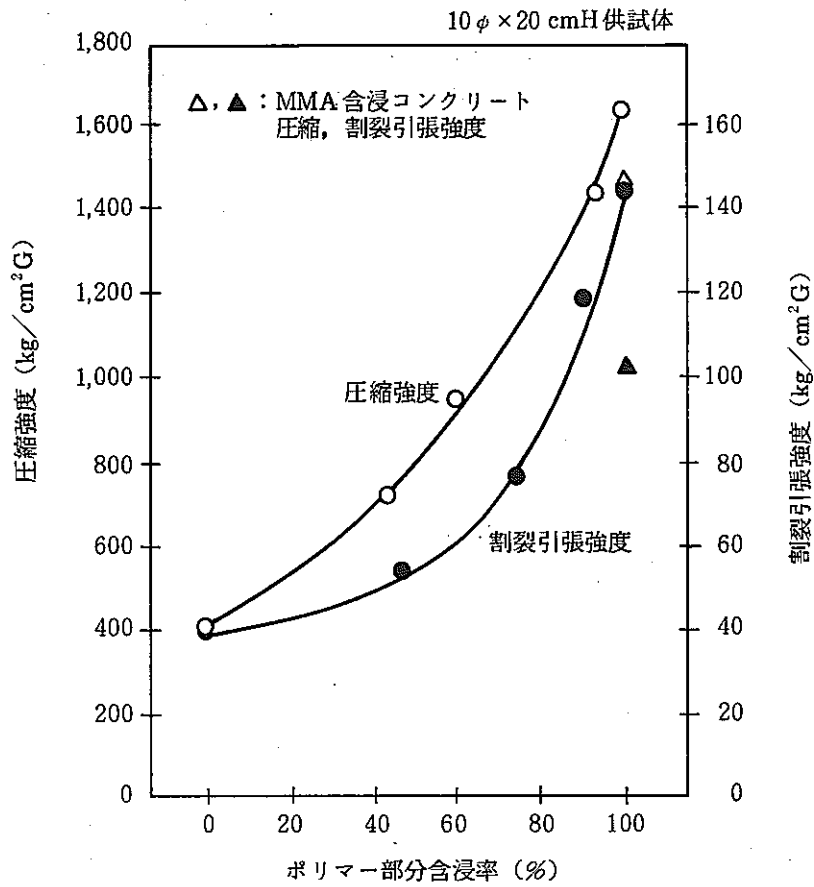


図 5.5 ポリマー部分含浸率と割裂引張・圧縮強度の関係<sup>72)</sup>

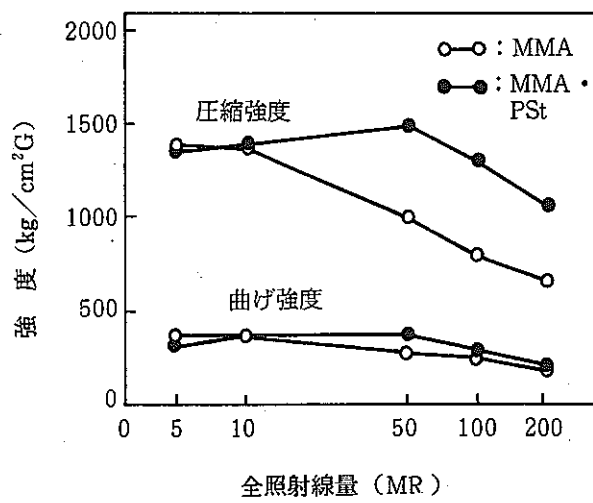


図 5.6 MMA, MMA - PSt 含浸モルタルの耐放射線性<sup>73)</sup>

日本原子力研究所東海研究所では、主として海洋投棄用容器としてのPIC容器の適用性確認をめざし、耐高水圧性と耐RI浸出性の試験を実施し、表5.6の様に結果を取りまとめ報告している<sup>74)</sup>。

耐圧型PIC容器は500 kg/cm<sup>2</sup>G-24時間の高水圧に対しても十分な耐圧強度を保持し、浸水を防止できるとともに不透水性を有した。又、容器内からの<sup>134</sup>Csの浸出は認められず、耐RI浸出性に優れていた。500 kg/cm<sup>2</sup>G-24時間載荷後のホット供試体(No.6)について、常温常圧下で約144日間浸漬したが、<sup>134</sup>Csの浸出は全く認められなかった。さらに、東海研究所では、160℃に加熱溶融した模擬ホット廃棄物とポリエチレンの混練物をPIC容器に注入固化し試験し、容器の外観上の異常はなく、容器の膨張及びひずみも無視できるほど小さいことを確認している<sup>71)</sup>。

これらの検討より、石崎らはPIC容器の遮蔽性、耐圧強度、不透水性、耐熱性、耐火性、耐落下衝撃性を考えると処理処分用容器だけでなく輸送容器としても十分使用できるとしている。

さて、この様にSFPIC容器は優れた物性を有するので、今後処分用容器として必須のものになると考えられる。

しかしながら、セメントの歴史は短い。すなわち、セメントはイギリスのアस्पジャンにより発明され、1824年にポルトランドセメントの名で特許が成立した。わが国では琵琶湖疎水運河白岡山トンネル東口に1903年に作られた鉄筋コンクリート橋が最初で、約80年の歴史である<sup>75)</sup>。100～300年と長期間にわたるセメントやセメントガラス固化体の健全性を示すデータはほとんどない。

秩父セメントの取得したSFPIC容器に関するNRCの許可は、容器厚で300年以上構造強度を有することを計算にて示した他、表5.4の技術要件にそったデータを提示し、得たものである。

表 5.6 高水圧下の PIC 容器の耐圧試験及び RI 浸出試験結果<sup>74)</sup>

容器 No.		1	2	3	4	5	6
項目	略号	均 200 - Cold (1)	均 200 - Cold (2)	耐 60 - P <sub>B</sub>	耐 200 - C <sub>B</sub>	均 200 - W <sub>A</sub>	耐 60 - W <sub>A</sub>
	試験日 (1980年)	3月28日	4月3日	4月11~12日	4月23~24日	5月22~23日	7月7~8日
	容器サイズ	200ℓ	200ℓ	60ℓ	200ℓ	200ℓ	60ℓ
	混入核種	-	-	Cs-137 6.10 mCi	Cs-134 9 mCi	Cs-134 0.95 mCi	Cs-134 4 mCi
	試験条件	10°C, 500 kg/cm <sup>2</sup> G-1hr	11°C, 500 kg/cm <sup>2</sup> G-2h	2°C, 500 kg/cm <sup>2</sup> G-24h	同左	同左	同左
	試験目的	予備実験 (均圧容器の耐圧力, 機器の作動チェック)	予備実験 (簡便な吹付接着剤の耐圧シール性, 測定法のチェック)	ポリエチレン固化体の高水圧下での耐圧性と容器からの RI の浸出性	セメント固化体の高水圧下での耐圧性と容器からの RI の浸出性	ウェスに Cs を散布して封入した均圧容器の耐圧性と容器からの RI の浸出性	ウェスに Cs を散布して封入した耐圧容器の耐圧性と容器からの RI の浸出性
	蓋のシール方法	パッキンをボルト締め	パッキンに SBR 系吹付接着剤を塗布してボルト締め	エポキシ樹脂を塗布後ボルト締め	同左	パッキンをボルト締め	エポキシ樹脂を塗布後ボルト締め, 数日後ポリウレタンシールを塗布
容器の健全性	破壊・クラックの発生	健全	健全	健全	健全	健全	健全
	不透水性	253 kg/cm <sup>2</sup> Gまで不透水性を有し, 以後パッキン部分より約34分間で水が浸入	223 kg/cm <sup>2</sup> Gまで不透水性を有し, 以後パッキン部より約31分間で水が浸入	500 kg/cm <sup>2</sup> Gまで不透水性を有し, 2°Cに冷却後蓋の接着部分より徐々に水が浸入	500 kg/cm <sup>2</sup> Gまで不透水性を有し, 保持中にボルト穴部分より徐々に水が浸入	270 kg/cm <sup>2</sup> Gまで不透水性を有し, 以後パッキン部より約16分で水が浸入	水の浸入なし
	RI の全浸出量	500 kg/cm <sup>2</sup> G-24h 降圧後	-	-	検出限界濃度以下	検出限界濃度以下	検出限界濃度以下
容器の重量変化 (kg)	試験前	420	458	167.2	477	432	161.2
	試験後	476	513	173.2	500	475	161.3
	増加重量	56	55	6.0	23	43	0.1
変位量 (mm)	容器胴部半径方向	250 kg/cm <sup>2</sup> G; 500 kg/cm <sup>2</sup> G	250 kg/cm <sup>2</sup> G; 500 kg/cm <sup>2</sup> G	500 kg/cm <sup>2</sup> G	500 kg/cm <sup>2</sup> G	500 kg/cm <sup>2</sup> G	500 kg/cm <sup>2</sup> G
		0.31 mm 0.26 mm	0.30 mm -	0.28 mm	0.64 mm	-	0.33 mm
	容器胴部軸方向	0.38 mm 0.28 mm	0.33 mm -	0.42 mm	0.63 mm	0.48 mm	0.52 mm
	蓋部底中央部軸方向	-	-	-	-	0.04 mm	-
備考		未充填	未充填	[固化体の組成] ポリエチレン 49.7% 粒状樹脂 50.3	[固化体の組成] セメント 620, 水 525 パーミキュライト 110 kg/cm <sup>3</sup> の配合	試験後の容器により長期 (400日間) の浸出試験を継続中	同左

(注) \* 検出限界濃度は  $1.4 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{ml}$  で, 全浸出量の限界濃度は 60ℓ 容器で  $1.57 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}$ , 200ℓ 容器で  $1.30 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}$  である。

わが国の場合、容器の長期健全性を確認する試験内容がNRCの技術要件だけでは十分かどうか懸念される。確かに吸収線量  $10^8$  rad は動燃再処理工場の中低レベル廃液のアスファルト固化体の生涯吸収線量に相当する（図 5.8 参照）ので、耐放射線性の要件としては一般的に十分であるものと考えられる。しかしながら、化学的にどの程度長期間安定に形状を保持しうるか不明である。複合コンクリート容器に関しては、実環境下におけるコンクリート中性化学反応速度等の解析と反応速度式の外挿により長期間にわたる化学的安定性の実証等が今後求められることになるだろう。

コンクリートは多量の  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  を含むので、空気中の  $\text{CO}_2$  ガスと反応して中性化し、コンクリートの鉄筋の防錆効果が失われてゆく。コンクリートの中性化速度は施工を含めたコンクリートの品質、表面仕上材、環境条件により著しい影響を受けるが、依田らの提案している普通ポルトランドセメント、屋外環境条件 ( $\text{CO}_2$  0.03%) 内におけるコンクリートの中性化速度式より、100年及び300年貯蔵後の平均中性化深さを試算するとともに、依田らの提案している平均中性化深さとの関係式より最大中性化深さを試算してみよう<sup>76)</sup>。

#### ① 普通ポルトランドセメントの中性化速度式（依田ら）

水セメント比 0.55～0.70，屋外環境条件 ( $\text{CO}_2$  0.03%) の場合

$$t = \alpha \cdot \beta \cdot \gamma \frac{148.80}{(100w - 38.44)^2} \bar{X}^2$$

ここで

t : 期間 (年)

w : 水セメント比

$\bar{X}$  : 平均中性化深さ (mm)

$\alpha$  : コンクリートの品質係数 ( $\alpha = 1$ )

$\beta$  : 仕上げ種別の程度 (仕上げなし  $\beta = 1$ , ペイント\*  $\beta = 2$ , モルタル  $\beta = 4$ ,  
タイル  $\beta = 7$ )

$\gamma$  : 環境条件による係数 ( $\gamma = 1$ )

(\* 2～3年毎に塗り替えることを前提とした場合に適用する。)

#### ② 最大中性化深さと平均中性化深さとの関係式（依田ら）

$$X_{\max} = 4.05 \bar{X}^{-0.72}$$

$X_{\max}$  : 最大中性化深さ

$\bar{X}$  : 平均中性化深さ

PIC 容器の場合、上記計算式が適用しうるかどうか不明だが、適用しうるものと仮定し、さらに  $w = 0.55$ ,  $\beta = 2$  (ペイント), 4 (モルタル), 7 (タイル);  $t = 100$  及び 300 年と仮定して計算すると表 5.7 の様になる。

表 5.7 貯蔵期間とコンクリート容器表面仕上げ程度と中性化深さとの関係

	100年貯蔵後			300年貯蔵後		
	ペイント	モルタル	タイル	ペイント	モルタル	タイル
平均中性化深さ (mm)	9.6	6.8	5.1	16.6	11.7	8.9
最大中性化深さ (mm)	20.6	16.1	13.1	30.6	23.8	19.5

SFPIC 容器の場合、仕上種別係数としてどの数値を採用すべきかはっきりしないし、上記の係数自体も仕上厚によって係数自体もかなり変動してくる。

一般にコンクリートの中性化は、表面より5～10mm以降はかなり緩慢になり、かつ表面から均一に進むものでなく、骨材下面、ブリージングの水隙、ジャンカ（豆板：巣の一種）などの弱点にそって進む傾向があると言われる。

コンクリートの構造強度の劣化は、コンクリート中性化→鉄筋の腐食→コンクリート鉄筋の膨張→コンクリートの亀裂発生の経過を経て生ずるため、鉄筋表面まで中性化が進行したからといって直ちにコンクリートの構造強度がなくなるわけではないので、コンクリート容器の寿命としては平均中性化深さへの到達とすれば十分安全側の評価とみなせる。しかも、SFPIC 容器の場合、容器のコンクリート外壁部はMMAのフィルムでカバーされ、かつコンクリート内部厚の約100mmまではMMAが含浸されるため細孔部が全くなくなるため、中性化が進行しにくい構造をしている。したがって、ここではSFPIC 容器の寿命を、タイル仕上げした場合の平均中性化深さへの到達時として評価してみよう。

300年貯蔵後でも平均中性化深さは約9mm（最大中性化深さ約20mm）と計算され、SFPIC 容器の厚さは実績で約20～115mmと20mm以上の任意の厚さに製作しうるので、SFPIC 容器の寿命としては300年以上が十分に期待できるだろう。上記中性化反応式が適用しうるかどうか現状では不明のため参考例として計算してみたものである。

なお、セメントガラス固化体は、セメントガラス流し込みにより、SFPIC 容器と完全に接着一体化しており、SFPIC 容器自体が中性化により貫通してから始めて、セメントガラス固化体の浸食（浸出）が始まるため、固化体自体の耐久性、耐水性等を加味して考えると、セメントガラス固化体パッケージ全体の寿命は数百年以上（少なくとも300年以上）と想定される。



## 〔参考〕酸性溶液浸漬に対するPIC容器の耐久性試算

酸のコンクリート腐食速度に関して、坂本は酸と反応した部分が脱離せずそのまま残っているとすると、反応した部分での酸の拡散速度が反応律速となるとし次の式を提案している<sup>78)</sup>

$$\frac{dx}{dt} = \frac{K'}{x} \cdot C$$

$$\text{これより } x = \sqrt{2K' \cdot C \cdot t}$$

x : 反応部分の厚さ (mm)

t : 時間 (日)

K' : 速度定数 (mm<sup>2</sup>/日)

C : 溶液の水素イオン濃度

石崎は、普通コンクリート、SFPIC容器供試体(4×4×16 cm, 表面積 288 cm<sup>2</sup>, ρ 2.45)を pH 4 の HCl 溶液に 2000 時間浸漬して供試体の重量減を測定した。普通コンクリート及び SFPIC 容器供試体の 1000 時間当りの重量減はそれぞれ 53.1 g 及び 3.3 g であった。

そこでまず、この場合の劣化厚みを求めると、それぞれ  $1.8 \times 10^{-2}$  mm/日及び  $1.1 \times 10^{-3}$  mm/日となる。

次に  $x = \sqrt{2K' \cdot C \cdot t}$  より K' を求めるとそれぞれ 1.64,  $6.4 \times 10^{-3}$  mm<sup>2</sup>/日となる。

したがって、300 年後の劣化厚さ(反応部分の厚さ)は、K', C, t を上記に代入し普通のコンクリート及び SFPIC 容器供試体についてそれぞれ 6.0 mm 及び 0.37 と試算される。

空気中の CO<sub>2</sub> 吸収によるコンクリート中性化の反応速度と対比すると、酸性溶液浸漬によるコンクリート腐食速度は 1 桁ほど小さい様に見える。

## 5.2 プラスチック固化体の長期健全性

一般にプラスチック製品は耐水性、耐浸出性、耐薬品性に優れる。プラスチック製品の劣化は主として紫外線の他、温度・湿度条件により高分子が分解して生ずるものと考えられる。

一般産業分野におけるプラスチック製品の長期健全性は、試験サンプルを約6ヶ月～1年程度屋外に曝露したり、所定の温度、湿度、紫外線照明下で数100時間曝露する促進耐候性試験により、製品の機械的強度（引張強度、伸び、衝撃値、曲げたわみ）等を測定し、製品の劣化の程度を評価している<sup>79)</sup>。

屋外曝露した結果と促進耐候性試験した結果に関してはかなりの相関係数が認められるものの、各ケース毎に具体的に対比しないとはっきりとは言えないものと考えられる。

さて、プラスチック製品の長期健全性に関しては、現在まで100年以上の長期健全性(寿命)に関する要求がなかったこともあり、データはほとんど報告されていない。文献調査した範囲で最も長期間試験したものは22年間屋外曝露した低密度ポリエチレンに関する脆化温度の測定である<sup>80)</sup>。

（\* 促進耐候性試験ではサンシャイン方式で800 hr 照射が、22年間の屋外曝露に相当して）  
いた。-40℃で脆化するまで約2300 hr 照射の実績データが報告されている。

カーボンブラックは、紫外線劣化防止効果を有する他、コストも安く、成形性・強度・耐熱性・寸法安定性の向上に効果があるため、ゴム・プラスチックの紫外線劣化防止用安定剤として使用される。

ポリエチレンに5%ほどのカーボンブラックを添加すると22年屋外曝露してもそれほど脆化温度の低下は認められなかった(図5.7)<sup>80)</sup>。

焼却灰のプラスチック圧縮成形固化体の場合、プラスチック樹脂約20%にカーボンブラックに相当する無機物(焼却灰)が約80%と大量に含まれているためプラスチック樹脂単味のものよりは、耐候性が著しく向上しているものと推定される。

しかも固化体は施設内一時貯蔵、浅地中埋設処分等の過程では直接裸のまま紫外線にさらされるわけではなく、プラスチック固化体の劣化速度は著しく遅延され、固化体寿命は大巾に向上するものと考えられる。

この様に考えると、プラスチック固化体の寿命は相当に長いものが期待できるが残念ながら現状ではデータに乏しい。今後具体的な長期貯蔵環境下での長期健全性確認試験にて固化体の耐候性、耐放射線性、耐浸出性さらに微生物に対する耐性等を確認し、正確に寿命を評価してゆく必要がある。

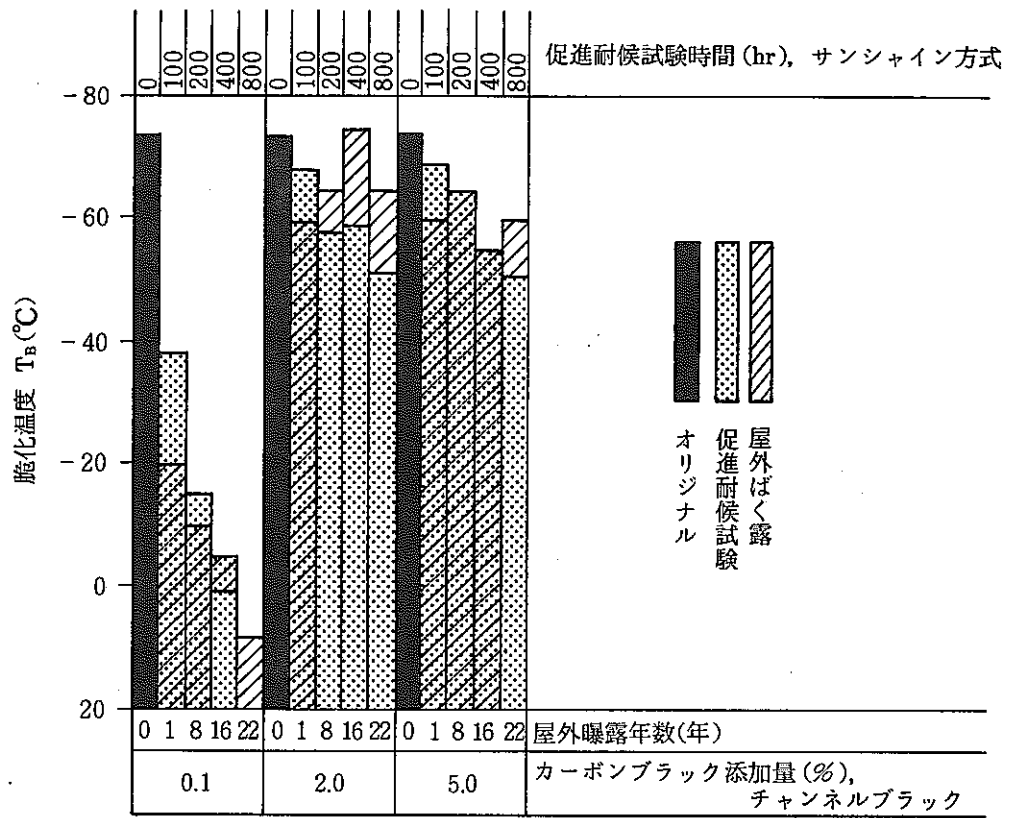


図 5.7 低密度ポリエチレンの屋外曝露と促進耐候試験との比較<sup>80)</sup>

### 5.3 固化体中の含有微量 $\alpha$ 核種の固化体物性への影響

焼却灰等低放射性廃棄物固化体中に含まれる微量 $\alpha$ 核種（ここでは $30\text{ nCi/g}$ 程度とする。）の固化体物性に及ぼす影響に関してはほとんど知見が得られていないのが現状である。

今後、短半減期のアクチニド元素を添加した加速試験等により試験が行なわれると思うが、本節では文献調査により、現状で明らかになった事項を取りまとめる。

#### 5.3.1 固化体中の微量 $\alpha$ 核種含有量と固化体の吸収線量

KfKのS.Kowaらは、 $34,000\text{ MWd/T}$ で3年冷却した軽水炉燃料の再処理に伴い発生した中低レベル廃液のアスファルト固化体に関して、貯蔵期間に対する $\alpha$ 、 $\beta$ ・ $\gamma$ 累積吸収線量を試算した<sup>34)</sup>。

アスファルト固化体中の $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度を $0.1\text{ Ci/l}$ 、 $\alpha$ （Pu同位体）放射能濃度を約 $4 \times 10^{-3}\text{ Ci/l}$ 、固化体の比重を1.4として計算した固化体の累積吸収線量を図5.8に示す。

なお、この図には筆者が推定した以下の内容も併せて記載した。

- ・動燃東海再処理工場のMA系アスファルト固化体の $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度は $1.15\text{ Ci/l}$ （設計値）で、S.Kowaの試算したアスファルト固化体の放射能濃度よりも1桁高い。S.Kowaらの $\beta$ ・ $\gamma$ 累積吸収線量曲線と同一カーブとなるものとしてMAアスファルト固化体の $\beta$ ・ $\gamma$ 累積吸収線量を推定した。
- ・わが国の原子力発電所からの低レベル固体廃棄物中の $\alpha$ 含有量に関する規制値 $30\text{ nCi/g}$ 含有固化体に関し貯蔵期間に対する $\alpha$ 累積吸収線量をS.Kowaらの $\alpha$ 累積吸収線量曲線と同一カーブとなるものとして推定した。
- ・動燃東海再処理工場の廃溶媒処理により回収したTBPのプラスチックの固化体（含有放射能 $66\beta\text{ mCi}$ —設計値）の貯蔵期間に対する累積吸収線量を試算し、曲線を作成した。

この図より以下の点が明らかになった。

- (1) 焼却灰固化体（含有放射能 $30\gamma\text{ mCi}$ ）は、回収TBPのプラスチック固化体（含有放射能 $66\text{ mCi}$ ）より若干含有放射能は低く、かつ含有 $\beta$ 、 $\gamma$ 核種組成も異なるため、正確な累積吸収線量を求めるには、きちんと計算しなければならないが、ここでは回収TBPのプラスチック固化体とほぼ同一傾向を示すものと簡便化すると、約1000年後の $\beta$ 、 $\gamma$ 累積の吸収線量は高々約 $2 \times 10^4\text{ rad}$ と見込まれる。

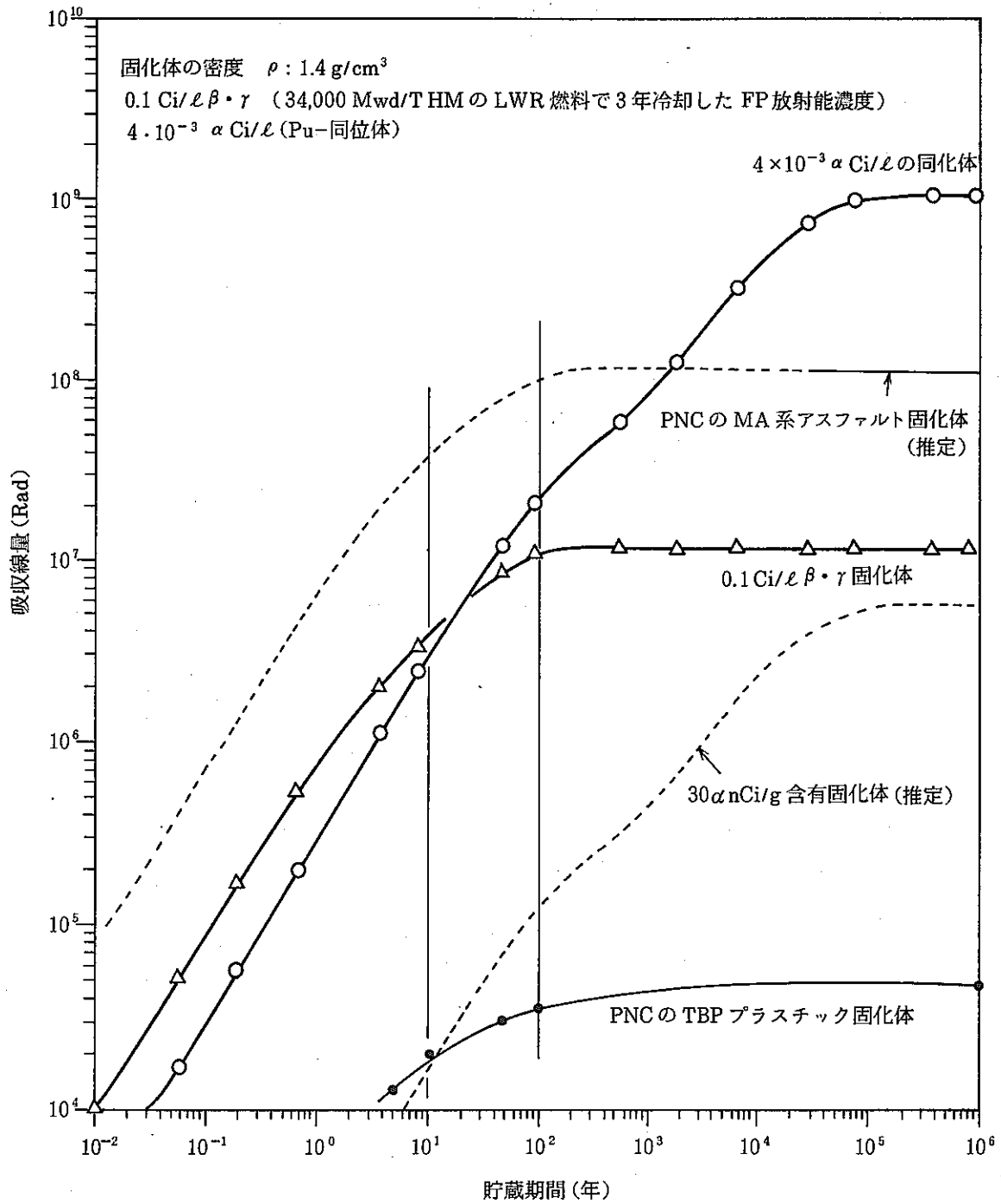


図 5.8 固化体の貯蔵期間と固化体の  $\alpha, \beta, \gamma$  累積吸収線量

(2) 一方、焼却灰の固化体の $\alpha$ 含有量が $30 \text{ nCi/g}$ の場合、100年後の $\alpha$ 累積吸収線量は約 $10^5 \text{ rad}$ と、 $\beta$ 、 $\gamma$ 累積吸収線量の5倍ほど高い。なお、 $10^6$ 年後では約 $5 \times 10^6 \text{ rad}$ に達するものと見込まれる。

(3) したがって焼却灰の固化体は少くとも $10^7 \text{ rad}$ に対する耐放射線性を、できれば $10^8 \text{ rad}$ に対する耐放射性を有することが望ましい。

なお、この程度の吸収線量であれば、後述する様にプラスチック固化体でも十分耐えうるものと考えられる。

(4) 固化体中の $\alpha$ 含有量が高いものほど短期間で高い吸収線量を示し、 $10^6$ 年後の吸収線量も大きく増大するものと考えられる。動燃東海再処理工場のアスファルト固化体に関しては、当初海洋投棄を想定して計画されたものであり、長期間貯蔵時の健全性の確認はこれからである。

短半減期のアクチニド元素 ( $\text{Cm}-242$ : 半減期 163年,  $\text{Cm}-244$ : 半減期 18.1年) を添加した加速試験により各種固化体の内部照射に対する耐放射線性の確認を行なうことが望ましい。

### 5.3.2 $\alpha$ 核種含有による固化体からの発生ガス $\sim \text{H}_2$ のG値

プラスチック固化体に関しては、その検討の必要性がなかったためであろうが文献は全く見受けなかった。アスファルト固化体に関し若干の知見がえられた。

放射線の固化体への影響は、吸収線量だけでなく、LET (Linear Energy Transfer) を加味し総合的に評価しなければならない。 $\alpha$ 核種は $\beta$ 、 $\gamma$ 核種よりLETが大きく、固化体中に共存する $\alpha$ 核種の量が多ければ、 $\beta$ 、 $\gamma$ 核種だけの場合よりも放射線効果が強く出るものと期待されるがはっきりしない。アスファルト固化体は、アスファルト自体が有機物であるため、 $\text{H}_2$ 、 $\text{CH}_4$ 等が生成しやすくかつ、固化体硬度が低いいため発生ガスが固化体中より抜けやすいと考えられる。

S. T. Kosiewicz は $\text{PuO}_2$  ( $\text{Pu}-238$   $0.064 \text{ Ci/g}$ 又は $\text{Pu}-239$   $0.0004 \text{ Ci/g}$ )をアスファルトに混入し、アスファルト固化体サンプルを作り、これに圧力ゲージとサンプリングバルブのついた $300 \text{ cc}$ の容器に封入し、 $20^\circ \text{C}$ 及び $70^\circ \text{C}$ に保持し、圧力上昇によりガス発生量を、また質量分析計によりガス分析した<sup>35)</sup>。

試験の結果、 $H_2$  の G 値は固化体の累積吸収線量に逆比例し減少し、低線量率  $3.9 \times 10^7 \text{ rad/y}$  で 1.4, 高線量率  $7 \times 10^9 \text{ rad/y}$  で 0.8 ~ 1.0 を示した。発生ガスの 97 % は  $H_2$ , 1 ~ 2 % が  $CH_4$  であった。

Dojiri らによる外部  $\gamma$  線照射時の  $H_2$  の G 値 0.3 と対比すると、 $\alpha$  線を含む内部照射の方が約 3 ~ 5 倍 G 値が高くなることがわかる<sup>36)</sup>。

一方、S. Kowa らは  $NaNO_3$  の模擬廃棄物に  $Cm_2O_3$  及び  $PuO_2$  を含む廃棄物混合比 20 ~ 40 % のアスファルト固化体 (固化体中の  $Cm_2O_3$  含有量 1.5 ~ 14 mg / 100 g,  $PuO_2$  含有量 4.2 %) 10 g をガラスアンプルに封入し、1 年及び 2.5 年放置し  $\alpha$  吸収線量をそれぞれ  $10^8 \text{ rad}$  及び  $2.4 \times 10^8 \text{ rad}$  とさせ、アンプルを真空装置内で開封し、発生ガス量およびガス組成の分析をした<sup>34)</sup>。

発生ガスは 98 % 以上が  $H_2$  で、 $1.2 \text{ mL} / 10^8 \text{ rad} \cdot \text{g}$  (760 Torr, 25 °C) の発生割合であった。これは  $H_2$  の G 値 0.47 に相当する。この G 値は、Hild らの  $NaNO_3$  アスファルト固化体の外部  $\gamma$  線照射や 10 MeV 電子線照射の平均  $H_2$  G 値<sup>37)</sup> に対比し、約 2.7 倍高い。

これらの試験の結果、 $\alpha$  核種含有により多少 G 値が高くなり  $H_2$  の発生量が増大するもののアスファルト固化体の放射線分解速度やアスファルト固化体のスウェリングに大きな影響は生じないことがわかった。

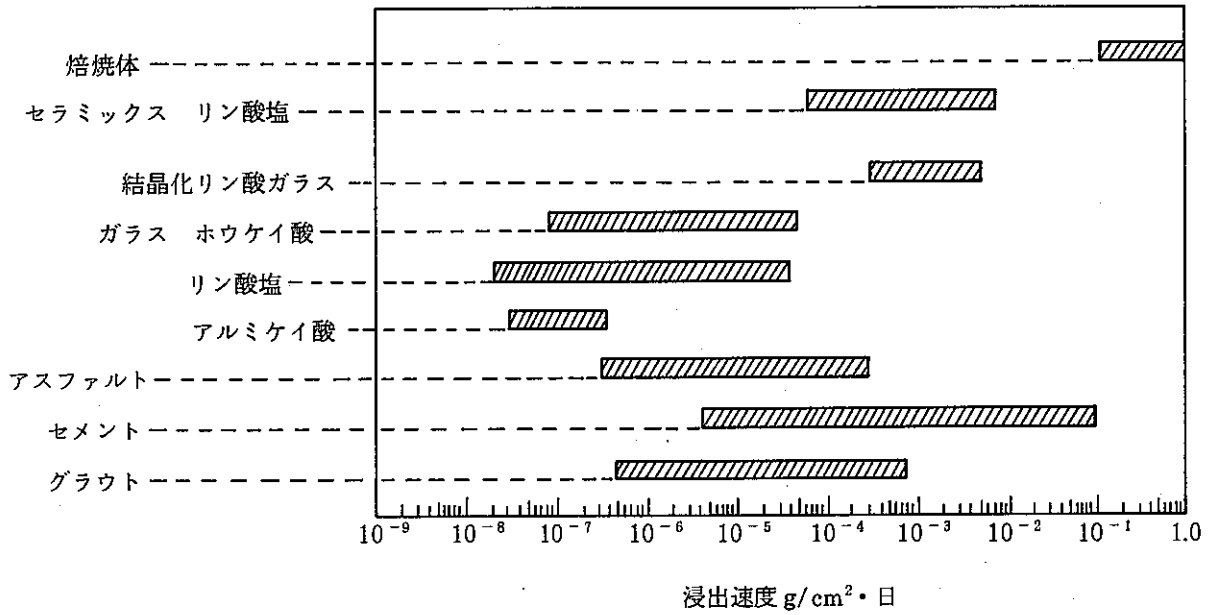
### 5.3.3 固化体からの $\alpha$ 核種の浸出率

図 5.9 に各種固化体からのアルカリ元素、アルカリ土類元素、希土類元素、アクチニド元素の浸出率を示す<sup>38)</sup>。なお、これらの浸出率は、廃棄物 / 固化剤混合比、固化剤の種類、添加剤の種類と量等製造条件によって変るため、図 5.9 は大略の傾向を示すデータにすぎず、かつ古いデータである。セメント固化体、アスファルト固化体等からの Pu-239, Am-241, Sr-90 の浸出率に関する比較的新しいデータを表 5.8 に示す<sup>39), 40)</sup>。

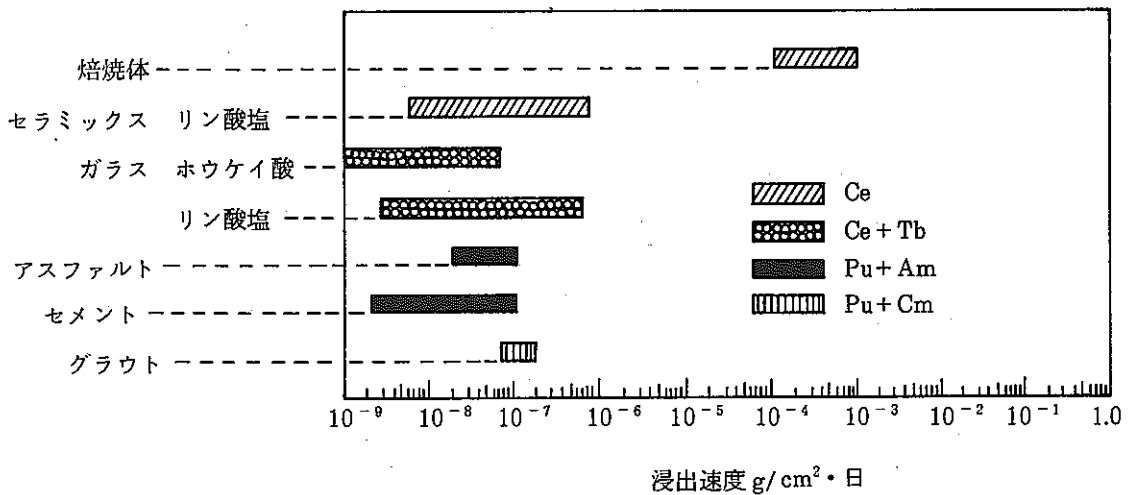
固化体中からの元素の浸出は、固化体の種類によって多少差はあるが一般的に Cs, Na 等のアルカリ元素と固化剤基質 (ガラス固化体では Si, B, 焼却灰水熱固化体では Si, AgX 水熱固化体では Ag 等) が最も高く、次いでアルカリ土類元素、遷移元素が浸出しやすく、酸素との結合力の強い希土類元素、アクチニド元素が最も浸出しにくいと言われる。図 5.9 及び表 5.8 はこの傾向を裏付けるものである。

セメント、セメントガラス、水熱、アスファルトの各固化体中ではアルカリ条件下となるため  $\alpha$  核種は水酸化物を形成し、不溶化するため浸出率が低くなるものと考えられる。

固化体の種類



a) アルカリ元素, アルカリ土類元素の浸出速度



b) 希土類元素, アクチニド元素の浸出速度

図 5.9 種々の固化体中での浸出速度の比較<sup>38)</sup>



表 5.8 セメント固化体及びアスファルト固化体からの Pu-239, Am-241, Cs-137, Sr-90 の浸出比<sup>39), 40)</sup>

No	廃棄物 / 固化剤 (実施場所)	固化体放射能濃度		浸漬期間 (日)	浸 出 比			
		$\beta, \gamma \text{Ci/m}^3$	$\alpha \text{Ci/m}^3$		Pu-239	Am-241	Cs-137	Sr-90
WF 2	PWR 濃縮廃液 / セメント又はシリカセメント (EdF)	0.5 - 50	$< 10^{-3}$	615	-	-	$4.8 \times 10^{-2}$	$1.5 \times 10^{-3}$
WF 5	イオン交換樹脂 / ポリエステル又はエポキシ (CHOOZ)	5 - 500	$< 10^{-6}$	365	-	-	$1 \times 10^{-2}$	-
WF 7	再処理濃縮廃液 / アスファルト (KfK)	60	2	885	$1.4 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-5}$	-	-
WF 8	再処理濃縮廃液 / セメント (WAK)	10 - 40	$\sim 1$	885	$8 \times 10^{-6}$	$2 \times 10^{-6}$	$5 \times 10^{-2}$	$9 \times 10^{-3}$
WF 9	再処理スラッジ / アスファルト (Marcoule)	70 - 850	0.3 - 0.8	525	$< 1 \times 10^{-6}$	$< 1 \times 10^{-6}$	$7.5 \times 10^{-4}$	$1.5 \times 10^{-3}$

以上の検討より、焼却灰の固化体の長期健全性を考慮するに際し、焼却灰中の微量 $\alpha$ 核種の固化体物性に与える影響は耐放射線性の点でも、浸出性の点でもほとんど影響がないことがわかった。

すなわち、後述する様に焼却灰固化体のうち最も耐放射線性の低いとみられるプラスチック圧縮成形固化体でも、プラスチックの含有量は20 w/oと低く80%は無機物(焼却灰)である。又、焼却灰固化体の含有 $\beta, \gamma$ 放射エネルギーも低く、かつ、仮に含有 $\alpha$ 放射エネルギーが30 nCi/gとしても図5.8より1000年貯蔵後の固化体の吸収線量は高くても $10^6$  rad未満にとどまる。

一般にポリエチレンの様にプラスチックは $10^8 \sim 10^9$  radまで耐放射線性を有するので、焼却灰のプラスチック圧縮成形固化体が、耐候性に優れた環境下(紫外線遮断下)で長期貯蔵され、形状を保持しうれば耐放射線性上の問題はないものと考えられる。

いずれの固化法による焼却灰固化体も、長期貯蔵の実績は未だない。300～500年の長期貯蔵を模擬しうる耐放射線性、耐候性等に関する試験法自体の開発も併せて行なうべきであろう。

## 6. 固化法の概要

焼却灰の固化法としては2で紹介したプラスチック固化法その他、さらに廃棄物混合比を高くし減容性を向上させたプラスチック圧縮成形固化法がある。一方、固化体の無機化がはかれれば有機物の様に経年劣化の懸念もなく長期にわたり安定な固化体とすることができる。そこで、無機化をめざした固化法の開発が進められており、焼却灰を溶融しガラス固化体とするものでは、マイクロ波誘電加熱溶融固化法、高周波誘導加熱溶融固化法、直接通電ジュール加熱溶融固化法があり、この他、従来のセメント固化法を改良したセメントガラス固化法、さらに自然界の岩石生成反応を応用した水熱固化法が知られている。

これらの固化法の固化プロセスの簡単な比較一覧表を表6.1に示す。

以下に各固化法毎に(1)原理、(2)特徴、(3)開発状況を取りまとめ述べる。

### 6.1 溶融固化法

廃棄物処理に際し、優れた減容性が期待できる方法としては、マイクロ波誘電加熱溶融、高周波誘導加熱溶融、直接通電ジュール加熱溶融等種々の溶融固化法が知られているが、これらの方法は焼却灰等廃棄物を溶融させるための加熱原理に関する相違によるもので、焼却灰等の廃棄物自体の溶融現象は各方法とも共通で廃棄物にガラス形成剤として $B_2O_3$ 、 $Al_2O_3$ を添加せずそのまま溶融すれば鉍物状の固化体となり、ガラス形成剤を添加すればガラス状の固化体となる。

耐水性、耐浸出性の優れたガラス状の固化体を得るには、ガラス構成各成分組成をある一定範囲内に入れる必要がある。

高レベル廃液のホウケイ酸ガラスの場合、その適正範囲は

$SiO_2$  38～50 w/o

$B_2O_3$  10～18

$Na_2O$  6～12

$Al_2O_3$   $5 \leq$

$Li_2O$  2～5

$CaO$  2～4

$ZnO$   $\sim 4 \leq$

$BaO$   $\sim 3.5 \leq$

とされている。<sup>41)</sup>

表 6.1 焼却灰の固化法の概要比較

項目	プロセス	プラスチック圧縮成形固化法	セメントガラス固化法	マイクロ波誘電加熱固化法	高周波誘導加熱固化法	水熱固化法
概要						
運転条件		圧縮成形条件 加熱時 200℃, 100kg/cm <sup>2</sup> 冷却時 水冷, 100kg/cm <sup>2</sup>	常温・常圧操作	加熱熔融温度 1200～1300℃	加熱熔融温度 1200～1400℃	圧縮成形条件 加熱時～300℃, 350kg/cm <sup>2</sup> 冷却時 350kg/cm <sup>2</sup>
減容性		80/20	45/55	55/45	セラミック状固化体の場合 ～100/～1 (ガラス状固化体の場合) 5/45	70/30
減容比		プレスによる減容比～2.3 全減容比～1.8	プレスによる減容比～2.7 全減容比～1.0	熔融による減容比～11 全減容比～6	熔融による減容比～11 全減容比～6(～11)	プレスによる減容比～26 全減容比～1.5
固化体物性		2割プラスチック含有の 無機質固化体 圧縮強度 340kg/cm <sup>2</sup> G 硬度 75 (ショアD) 比重 1.53 浸出率 10 <sup>-4</sup> ～10 <sup>-5</sup> cm <sup>3</sup> /cm <sup>2</sup> ・日	1割セルロース含有の セメント質固化体 圧縮強度 180kg/cm <sup>2</sup> G 硬度 80～90 (ショアD) 比重 1.78 浸出率 ～10 <sup>-5</sup> (浸出比)	ガラス質固化体 圧縮強度 >～8,000kg/cm <sup>2</sup> G 硬度 600 (ビッカース硬度) 比重 2.70 浸出率 ～10 <sup>-4</sup> g/cm <sup>2</sup> ・日	セラミック質固化体 圧縮強度 >1000kg/cm <sup>2</sup> G 硬度 — 比重 2.5～3.0 浸出率 —	堆積岩質固化体 圧縮強度 360kg/cm <sup>2</sup> G 硬度 — 比重 1.8 浸出率 10 <sup>-4</sup> ～10 <sup>-5</sup> g/cm <sup>2</sup> ・日
開発状況		再処理焼却灰の固化基礎試験の実績あり (PNC-三石) ～470×530×30 <sup>t</sup> のコールド試験	東電福島で200ℓサイズ固化体とする装置を実用化 再処理焼却灰の固化基礎試験の実績あり (PNC-日立)	P WTF (5kw), 原研大洗(25kw)のホット試験, 神鋼(25kw)のコールド試験の実績あり 再処理焼却灰の固化基礎試験の実績あり (PNC-日造)	原研東海 (30kw, 5kg/h)のホット試験, 日碍(100kw, 30kg/h)のコールド試験の実績あり いずれもインキャンメル方式	三造で180°×360 <sup>H</sup> のコールド工学試験の実績あり 再処理焼却灰の固化基礎試験の実績あり (PNC-三造)

Hench . L.L によれば各成分組成と固化体浸出率の間には図 6.1 の様な関係があり、最小浸出率で最も優れたホウケイ酸ガラス固化体は

$\text{SiO}_2$  51 ~ 53 %

$\text{Na}_2\text{O} + \text{B}_2\text{O}_3$  24 ~ 28 %

$\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe} + \text{廃棄物}$  21 ~ 25 %

の組成であるという<sup>42)</sup>。

しかし再処理焼却灰（合成焼却灰Ⅲ）の場合、4.2で述べた様に $\text{SiO}_2$ の割合が約27%と低く、一方、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の割合が約17%と高く、ホウケイ酸ガラスよりも、アルミノケイ酸ガラス（ $\text{Al}_2\text{O}_3$  : 18 ~ 22 %）に近い組成を有する。この他、廃希釈剤等TBP含有物の焼却灰（合成焼却灰Ⅰ）は、TBP濃度に比例して灰中の $\text{P}_2\text{O}_5$ 、 $\text{CaO}$ の割合が高くなり、相対的に $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ の割合がさらに低くなる組成となる。

$\text{SiO}_2$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{P}_2\text{O}_5$ は網目形成酸化物（NWF）と呼ばれ共有結合性が高く、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ は中間酸化物と呼ばれこれらはガラス形成しやすい。これに対し、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Cs}_2\text{O}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$ は網目修飾酸化物（NWM）は、イオン結合性が高く、ガラス形成しにくいと言われる<sup>43)</sup>。

この様な組成の再処理焼却灰のガラス状固化体の性状に関しては、ガラス化適正範囲が高レベル廃液のホウケイ酸ガラス固化体の場合とは全く異なるため固化体の性状も同様に異なり、独自に試験等により確認してゆかねばならないことがわかる。

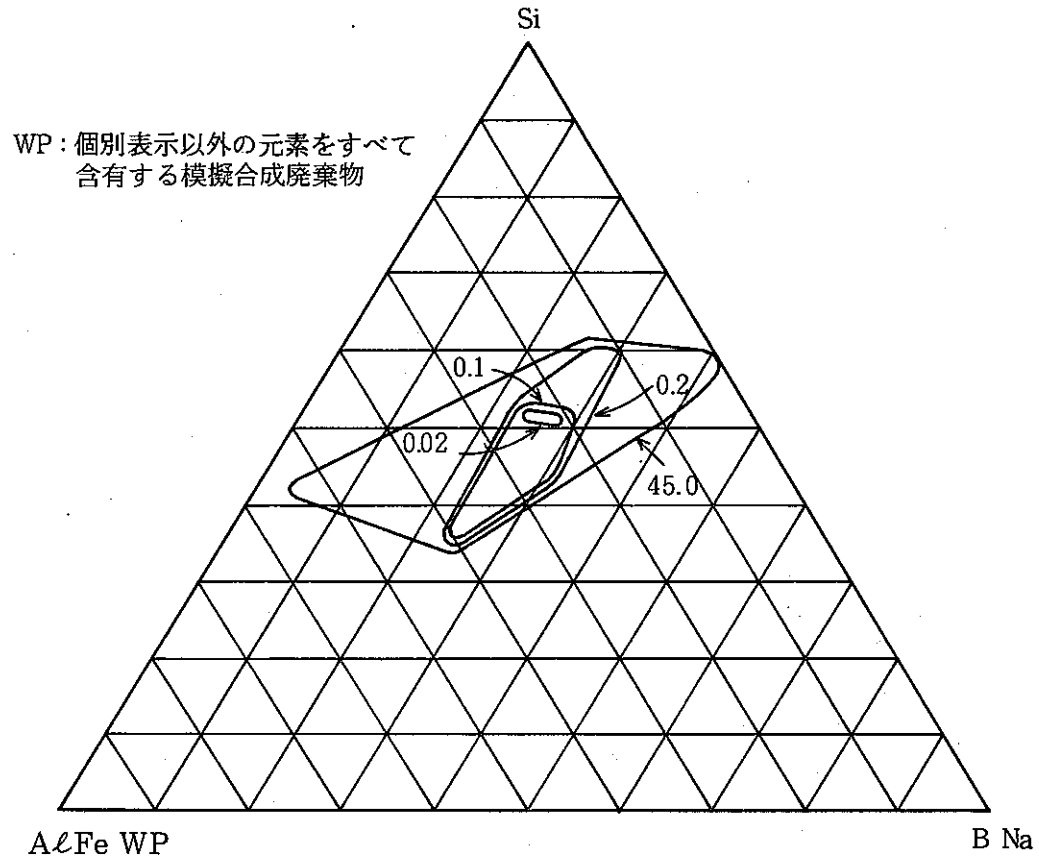
熔融温度が高いほど一般にガラスの耐久性も高いと言われるが図 6.2 に示す様に熔融中に焼却灰等廃棄物中のCs等の揮発量が増大してゆくためこれを防止するため廃棄物に $\text{B}_2\text{O}_3$ 等融点降下剤を添加し、比較的低い約1200℃で低粘性の熔融物とさせると共に、熔融物表面に未熔融の供給廃棄物でカバーさせ、Csの揮発率を減少させる必要がある（図 6.3）<sup>44)</sup>。

熔融物の性状は、分相がなく均質で、発泡が少なく稠密であることが望ましい。動燃事業団一日立造船（株）は熔融物による炉材の腐食を防止するため助剤として $\text{Al}_2\text{O}_3$ を添加することとし、廃棄物中の $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ の量に比例して添加量を増やしマイクロ波誘電加熱熔融固化試験を実施した<sup>29)</sup>。

試験の結果、1200℃熔融で良好なガラス固化体をうるための組成を表 6.2 に示す。

なお、同表の(1)に添加物調整からみた合成灰Ⅰ及びⅡに対する焼却灰 -  $\text{H}_3\text{BO}_3$  -  $\text{Al}_2\text{O}_3$ の混合割合を、(2)に固化体組成からみた各成分割合を示す。

次に、各熔融固化法の原理と特徴、固化体物性について紹介する。



温度90°C, SA/V of 10m<sup>-1</sup>で28日間の浸漬した場合におけるガラス中のSi元素の浸出率が45.0, 0.2, 0.1, 0.02 g/m<sup>2</sup>/日となるガラスの成分組成 (w/o)

図 6.1 高レベル廃液のホウケイ酸ガラス固化体の成分組成と固化体浸出率の関係<sup>42)</sup>

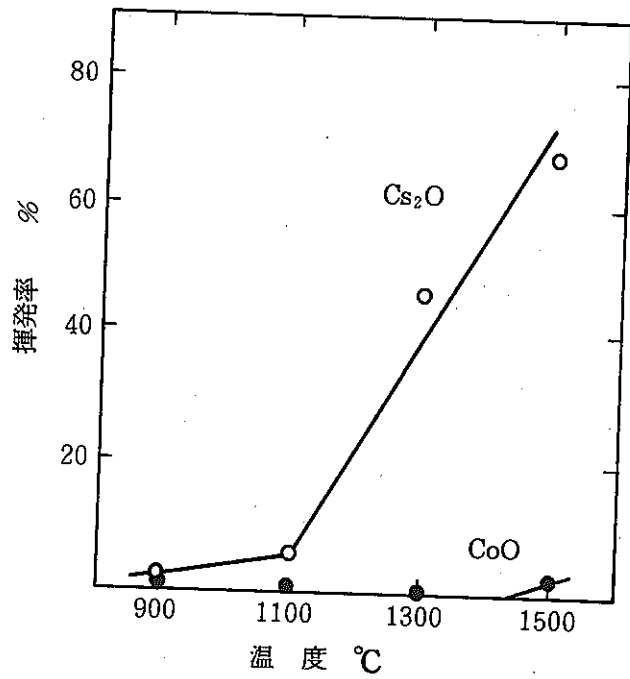
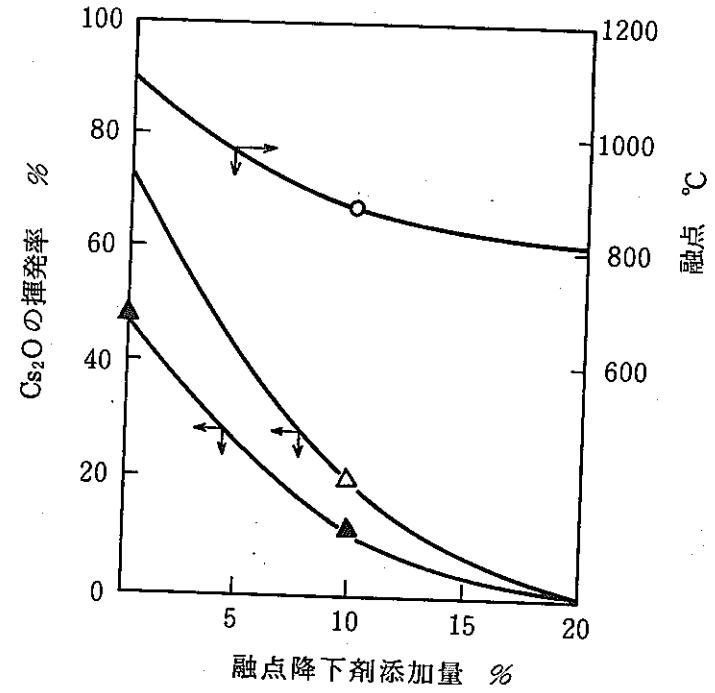


図 6.2 Cs<sub>2</sub>O と CoO の加熱温度と揮発率の関係<sup>44)</sup>



- : 焼却灰の融点
- △: 供給した焼却灰で部分的に溶融物表面を覆って溶融処理
- ▲: 供給した焼却灰で完全に溶融物表面を覆って溶融処理

図 6.3 融点降下剤および処理方法の Cs<sub>2</sub>O 揮発率に及ぼす影響<sup>44)</sup>

表 6.2 1200 °C 溶融で良好なガラス固化体をうるための成分組成

(1) 添加調整からみた焼却灰 -  $H_3BO_3$  -  $Al_2O_3$  の混合割合

	合成焼却灰 I	合成焼却灰 II
焼却灰	35 ~ 50	20 ~ 40
$H_3BO_3$	35 ~ 50	45 ~ 65
$Al_2O_3$	10 ~ 20	15 ~ 20
備 考	TBP 約 5 % の廃希釈剤 の混焼灰相当	TBP 約 20 % の廃溶媒 の混焼灰相当

(2) 固化体組成からみた各成分の割合

	$P_2O_5$	CaO	$SiO_2$	$Al_2O_3$	その他	$B_2O_5$	NWF* 計
合成焼却灰 I の固化体	9 ~ 13	15 ~ 22	4 ~ 6	20 ~ 45	5 ~ 6	35 ~ 50	50 ~ 70
合成焼却灰 II の固化体	42 ~ 85	10 ~ 20	1 ~ 2	16 ~ 21	1 ~ 2	45 ~ 60	90 ~ 100

\* NWF 網目形成酸化物



## 6.1.1 マイクロ波誘電加熱溶融固化法

## (1) 原理

一般に、マイクロ波とは周波数 1,000～30,000 MHz の電磁波を総称するが、誘電加熱とはこのマイクロ波をエネルギー源として誘電体を直接加熱する方法をいう。

誘電体にマイクロ波のような高周波の電界をかけると、誘電体は分極を起し、電気双極子となる。この分極作用は電界の変化に追従しようとするが、他の分子や原子との結合力の抵抗があるため、摩擦熱が発生し、誘電体が加熱される。

誘電加熱による誘電体の単位体積あたりの誘電発熱力Pは、次式のように表わされる。

$$P = 5/9 f E^2 \epsilon_s \tan \delta \times 10^{-12} \text{ [W/cm}^3\text{]}$$

ここで、 f : マイクロ波周波数 [Hz]

E : 電界強度 [V/cm]

$\epsilon_s$  : 誘電体比誘電率

$\tan \delta$  : 誘電体損失角

従って、上記式から比誘電率と損失角の大きい物質ほど加熱され易く、また、周波数および電界即ち高周波電力が大きいほど発熱効果が大きいことになる<sup>15)</sup>。

この原理を焼却灰等の溶融に応用したのがマイクロ波誘電加熱法である。

インキャンメルト方式のマイクロ波誘電加熱溶融装置の溶融部の概念図を図 6.4 に示す<sup>29)</sup>。

マイクロ波発振器としては 2450 MHz、915 MHz が認可されており、大出力加熱用には 915 MHz が利用される。発生させたマイクロ波を導波管にて炉上部に導入する。導波管系に発生させたマイクロ波を導波管にて炉上部に導入する。

導波管系に設けたマイクロ波照射効率調整用の E-H チューナ及び炉頂に設けたヘッドチューナーの調整により、加熱部の構造や被加熱物の状態変化による影響を相殺しつつ、被加熱物の部位で電界分布が最大となる様にマイクロ波の位相を制御する。

るつばに所定量溶融物がたまったら加熱を終了し、ゆっくりと徐冷し固化させる。

## (2) 特徴

マイクロ波を用いた誘電加熱を焼却灰等放射性廃棄物の処理に適用した場合、次のような特徴が挙げられる。

○ 誘電体の分子運動に起因した内部加熱であるため

加熱昇温が迅速である。

表面と内部を一樣加熱できる。

熱効率が良い。(ただし、マイクロ波の吸収効率は被焼却物の物性で定まる。)

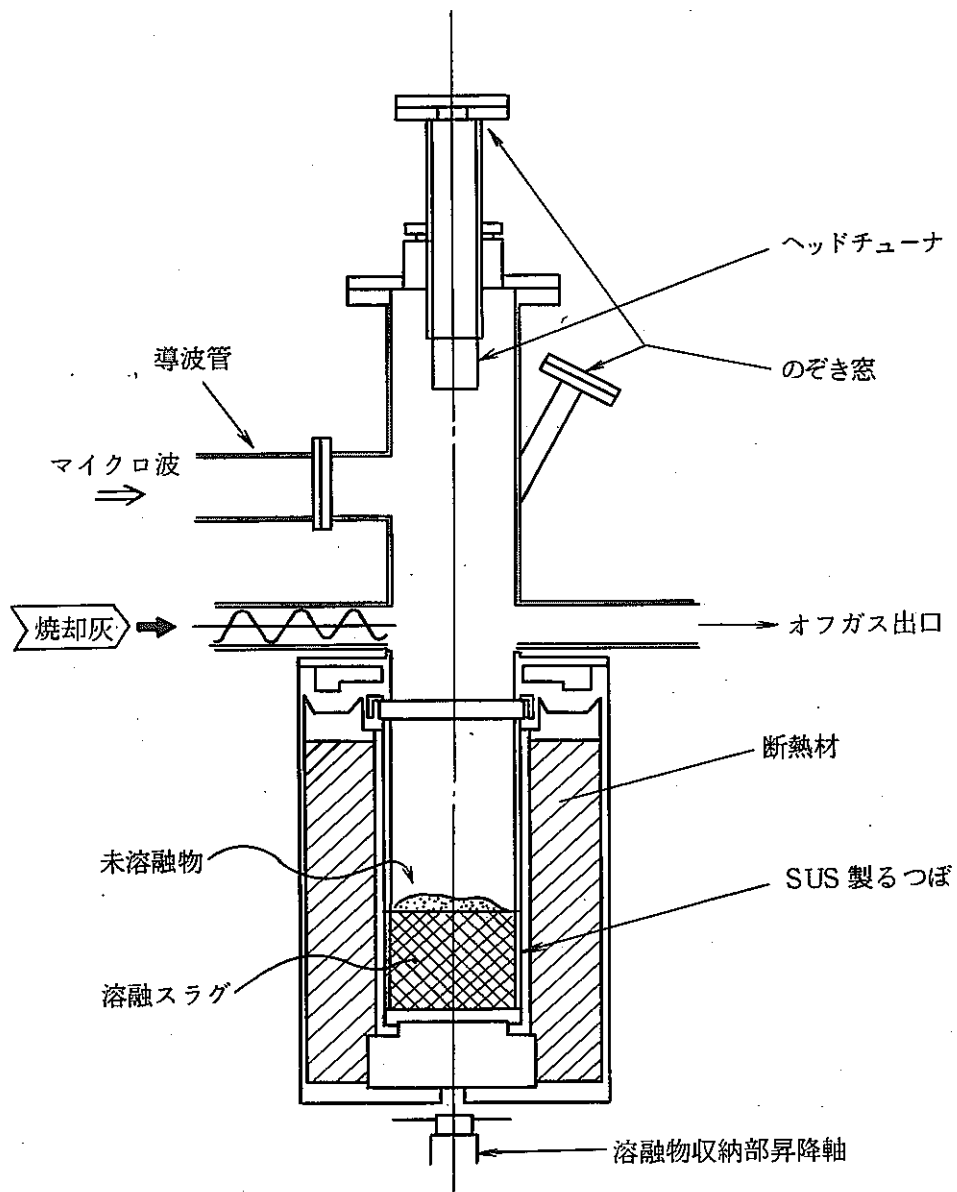


図 6.4 マイクロ波誘電加熱溶融装置の溶融部の概念図<sup>29)</sup>

- レンガ等の保温材，炉材が不用で炉を簡素化できる。従って二次廃棄物の発生が少なく，また，炉体のメンテナンスが簡単である。
- マイクロ波は導波管により無限延長に伝送できるためマイクロ波発生装置，制御盤はコントロールエリアに配置し，管理できる。このため，遠隔制御が可能であり，保守点検も容易となる。
- 装置の起動・停止が容易である。

この様な利点を持つ一方，次の様な欠点も有する<sup>45)</sup>。

- 非常に強い電界のため，炉内に発生するガスやダストによって，放電現象が生じ，加熱効率の著しい低下と機器の破損の原因となることがある。したがって炉内の速やかなガス抜き，放電自動消去機構が必要となる。
- 被溶解物中に金属片等が混入するとマイクロ波の反射や放電の原因となる。したがって金属等の混入量をおある程度制限する必要がある。
- 周波数により熔融炉のサイズが制限され（るつば径……915 MHz → 250 φ；2450 MHz → 130 φ），また，炉内の幾何学的な形状にも制限がある。
- 出力制御の他にマイクロ波の位相制御が必要。

### (3) 開発状況

一般産業分野では，都市ごみや下水汚泥の焼却残渣処理用の連続熔融炉（3～5 t/日）が一部実用化されている<sup>46)</sup>。（横浜市金沢下水処理場）

原子力産業分野では，動燃事業団がプルトニウム転換技術開発施設の20 kwの装置で硝酸プルトニウムと硝酸ウラニルの混合溶液の蒸発・脱硝の技術開発を進めている（2450 MHz，転換能力10 kg Pu-U/日）<sup>47)</sup>。

放射性廃棄物処理用としては，日本原子力研究所大洗研究所が25 kwの装置で難燃性廃棄物（含水物），PVC・ゴム類，イオン交換樹脂の熱分解・灰化・熔融を一元的に行う技術開発を進めている<sup>15)</sup>。

又，動燃事業団はPWTFの5 kwの装置でプルトニウム含有雑固体廃棄物の焼却灰処理の技術開発を進めている。

神戸製鋼所は電力共研で25 kwの装置により原子力発電所の雑固体廃棄物焼却時の焼却灰処理の技術開発を進めている<sup>44)</sup>。

動燃事業団は60年度に再処理焼却灰を対象とした基礎試験を実施している<sup>29)</sup>。

## 6.1.2 高周波誘導加熱溶融固化法

### (1) 原理

金属とかセラミック製メルタ（導電性の物質）の周囲に設置した水冷銅コイルに高周波電流を流すと、容器内に誘導うず電流が流れ、ジュール熱が発生してメルタが加熱される。

この原理の応用により焼却灰等の廃棄物を間接的に溶融するのが高周波誘導加熱溶融法である。図 6.5 に高周波誘導加熱溶融固化装置の溶融炉部の概念図を示す<sup>48)</sup>。

1,000～3,000 MHz の高周波発振器により発振させた高周波によりセラミックスメルタを加熱し、メルタに投入された焼却灰を溶融する。メルタ内の溶融物が所定量に達したら、高周波誘導をメルタ下部の拔出ノズル側に切替えて拔出ノズルを加熱し、メルタ下部にセットしたキャニスターへ溶融物を拔出し、冷却固化させる。

### (2) 特徴

次の様なメリットを有する。

- 廃棄物に対するフレキシビリティが高く、金属片や未燃炭化物等が混入しても加熱溶融に支障がない。
- 炉の温度制御性が、マイクロ波誘電加熱溶融法より容易である。
- キャニスターの寸法、形状に対するフレキシビリティが高い。
- 溶融物のメルタ下部拔出し方式だけでなく、インキャンメルト方式も使用できる。

一方、短所は少なく、メルタは繰返し高温に加熱されるため腐食されやすく耐久性が短い点である。P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> をかなり含む焼却灰の場合、セラミック質に対し非常に強い浸食性を示すため、セラミック質だけのメルタは使用できないものとみられる<sup>45)</sup>。

### (3) 開発状況

高周波誘導加熱溶融技術は一般産業分野では広く実用化されており、原子力産業分野では、日本原子力研究所東海研究所がインキャンメルト法による 30 kw、3～5 kg/h の装置で焼却灰処理の技術開発を進めている<sup>13)</sup>。日本ガイシ（株）が電力共研で 100 kw、25～30 kg/h のコールド装置（キャニスター容量 50 ℓ）により原子力発電所等の焼却灰処理の技術開発を進めている<sup>12), 14)</sup>。

なお、この他仏国の AVM では溶融物のメルタ下部拔出し方式による約 15 kg/h の装置で高レベル廃液のガラス固化処理の技術開発を進めている（AVH では 25 kg/h の装置を計画中という。）<sup>49)</sup>。

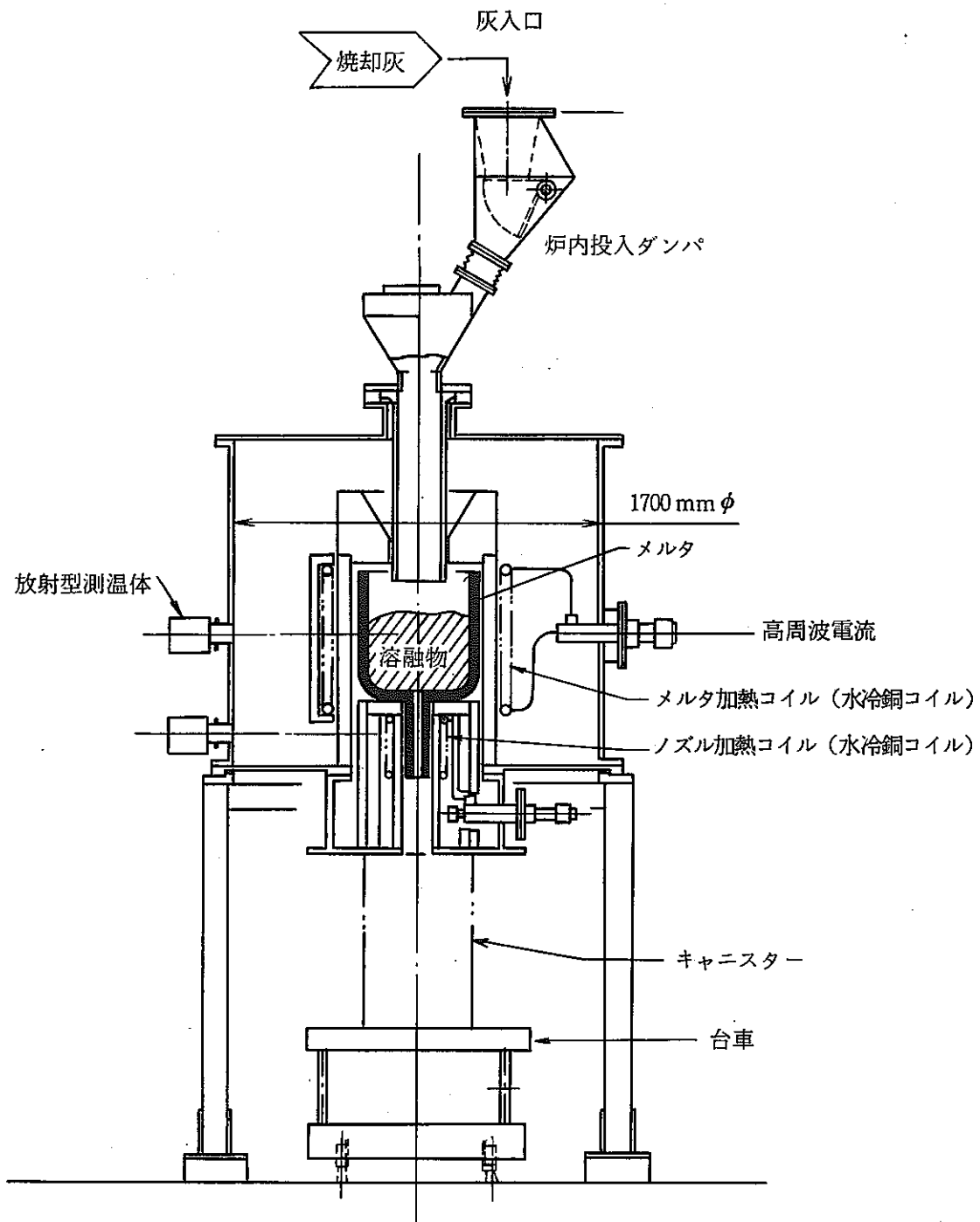


図 6.5 高周波誘導加熱溶融固化装置の溶融炉部の概念図<sup>48)</sup>

### 6.1.3 直接通電ジュール加熱溶融固化法

#### (1) 原理

常温では絶縁体であるガラスが高温では導電体となる性質を利用し、あらかじめ他の加熱方法により高温にしたガラスに直接電流を流し、ガラス自体に発生するジュール熱でガラスや焼却灰等を高温に維持して溶融し、溶融物の一部は抽出し放冷固化する。図 6.6 に直接通電ジュール加熱固化装置の溶融炉部の概念図を示す<sup>18)</sup>。

#### (2) 特徴

長所としては

- 内部加熱のため、外部加熱より効率がよい。
- 運転中の制御が比較的容易である。
- スケールアップが容易である。
- ガラス産業界で大規模に使用され、経験、実績が多い。

短所としては

- 起動用の加熱源が別に必要となる。
- 電極金属の溶出、腐食が避けられない。
- 耐熱レンガの侵食、ひび割れが生じやすい。
- 耐熱レンガ等で構成されるため炉自体が大きかつ、重い。

(なお、動燃事業団では高レベル廃液のガラス固化の技術開発を進め、レンガの溶液部には高温耐食性に優れたセラミックス〜クロム系電鍍耐火物 Monoflax K-3 を、又、電極材料としてインコネル 690 を採用し、炉及び電極の長寿命化を計ることとしている<sup>49)</sup>。)

#### (3) 開発状況

ガラス産業界では古くから広く大規模にこの固化法が使用されている。原子力発電所の焼却灰処理としては、日立造船(株)の7kg/hのコールドの装置がある<sup>18)</sup>ものの、炉が大きく重くなるためか、本格的な装置は未だ実用化されていない。

一方、高レベル廃液のガラス固化処理用としては、動燃事業団でガラス固化技術開発施設用には約15kg/hの装置を計画中である。

動燃事業団が高レベル廃液のガラス固化技術の開発を進めている方式は、廃液を円筒状に成型したガラス繊維に吸収させながらメルタに投入し溶融するもので、これによりメルタ投入前の仮焼工程が省略できるプロセスである。(液体供給式直接通電セラミックメルタ方式と呼ばれている。)

米国ではガラス固化施設 DWPF の建設中であるが、ここの装置は日本と同一の直接通電セラミックメルタ方式で104kg/hの処理能力を有するという<sup>49)</sup>。

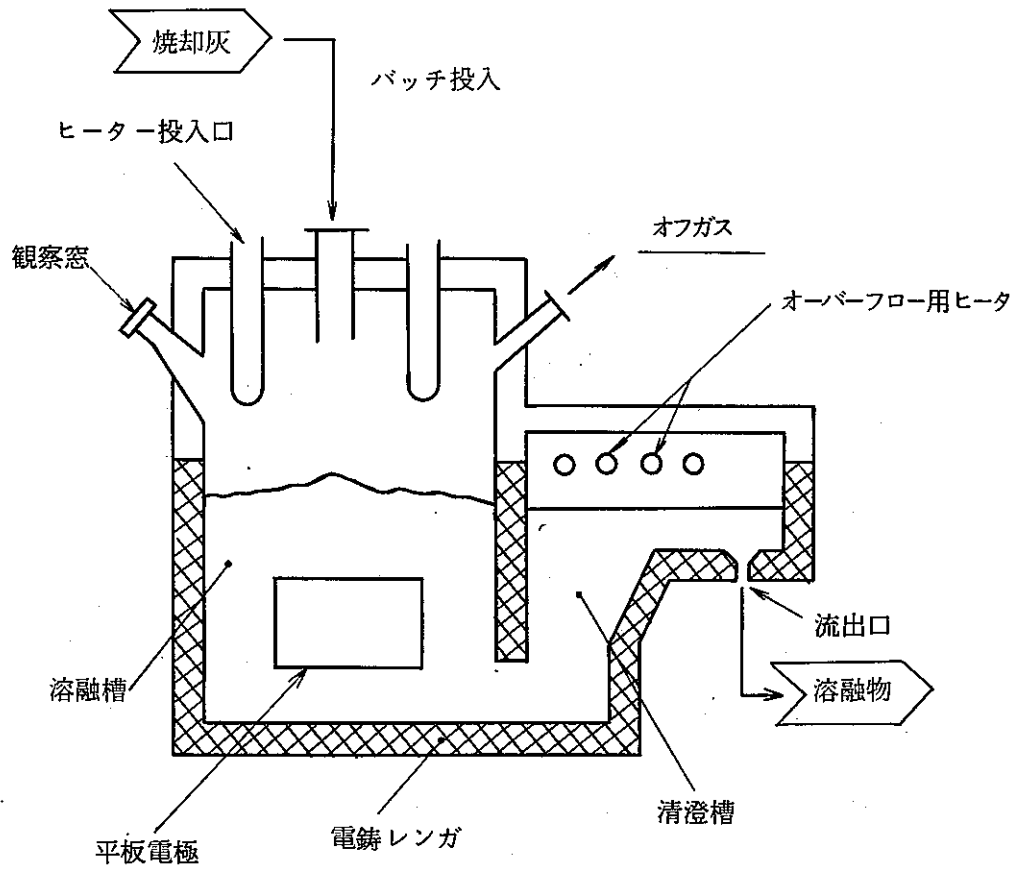


図 6.6 直接通電ジュール加熱溶融固化装置の溶融炉部の概念図<sup>18)</sup>

## 6.2 セメントガラス固化法

### (1) 原理

最も安価で一定の固化体強度が期待できる従来のセメント固化法の長所を生かしながら、減容性及び耐水性・耐浸出性の向上をはかった改良セメント固化法である。

本法の固化自体の原理は、天然に存在する酸性白土を原料とするケイ酸ナトリウムを母材とし、リン酸ケイ素を硬化剤とし、両者の反応で生成するリン酸ケイ素ナトリウムの「 $-O-Si-O-$ 」の架橋による三次元網目構造の中に焼却灰等の廃棄物を取り込み安定な固化体とする方法である。反応生成水は添加するセメントにより吸水させ結晶水として取り込まれる他、固化体中の骨材と作用させ固化体の強度を向上させる役割を果す。

図 6.7 に硬化反応の模式図を示す<sup>50)</sup>。

ケイ酸ナトリウム等の混練物をドラム缶底部まで流し込むには混練物の粘度を約 1000 cP とする必要があり、従来のセメント固化法では 50～60 w/o の添加水が不可欠であったが、その後さらに処方改良が進み、今日では流動化促進剤（ナフタリンスルホン酸ホルムアルデヒドの高縮合物）0.1%に水分 20 w/o を添加混合することによりドラム缶底部までに容易に注入できるだけでなく、同時にペレット状廃棄物の溶解度も 2%以下と少ないため、吸水剤も不要となっている（図 6.8）<sup>51)</sup>。

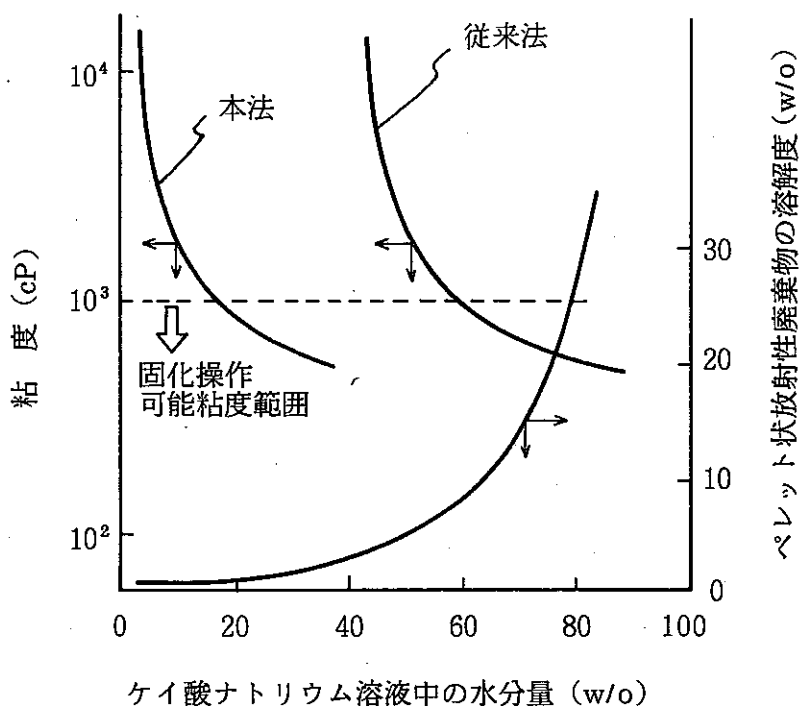


図 6.8 ケイ酸ナトリウム溶液中の水分量と粘度及びペレット状放射性廃棄物の溶解度との関係<sup>51)</sup>





本法は一元的に廃棄物の高減容無機固化をはかる固化システムの一部として位置づけられており、図 6.9 に本法のプロセスフローを示す<sup>52)</sup>。

- ① 焼却灰等粉体状廃棄物にバインダを添加し、造粒機で圧縮成型し、アーモンド状又は円筒状ペレットとする。
- ② 固化材（あらかじめ母材と硬化剤は一定の割合で混合したもの）と添加水を混練してスラリー状のセメントガラスを調整し、混練槽下部にセットしたペレット収納ドラム缶等の容器に流し込む。  
セメントガラスは粘性が低く、流し込むだけで容易にペレット間隙へ注入され、固化する。
- ③ 容器は、通常のポルトランドセメントを骨材及び鋼繊維で補強し含浸材にて組織を緻密化し、強度、耐食性、耐水性を向上させた複合コンクリート製の容器を使用する。  
これにより、ペレット・固化材・容器が完全に一体化した固化体となる。

## (2) 特徴

次の様な長所を有する。

- セメントガラススラリーの粘度が低いため、容器中へ注入後、廃棄物ペレットとスラリーを攪拌混合する必要がない（廃棄物と固化材との混練不要）。
- セメントガラススラリーを調整する混練槽等は非放射性区域としうるため、操作及び保守が容易である（図 6.9）。
- 混練タンク内の残留スラリーは温水洗浄により排出するが固形分除去後、上澄液は再使用できる。
- 固化反応は常温・常圧硬化性で、プロセスもシンプルで特殊な装置を必要としないので安価である。
- 複合コンクリート容器と固化体が完全に一体化となっているだけでなく、容器自体の有する強度、耐火性、耐熱性、耐浸出性等の性状により固化体パッケージの物性をかなり向上させうる。
- 処分用固化体の技術基準が明確になるまで当面固化せずペレット状態のまま容器に保管し（中間貯蔵）、技術基準の明確化後に最適条件で固化することもでき、最終処分対応への柔軟性を有する。

なお、焼却灰はペレット化せず、粉体のまま固化することもできる。

一方、短所は少ないが、基本的な点としては焼却灰や廃棄物乾燥粉体を圧縮成型しペレット化しているものの、固化処理時の廃棄物／固化材及び添加水の混合比を 50 / 50 以上に高くできないため、全体としての減容比はほぼ 1 前後で、高減容性が期待できないことである（焼却灰ペレットに対する水／セメントガラス比：0.33、廃棄物混合比：45 v/o）。

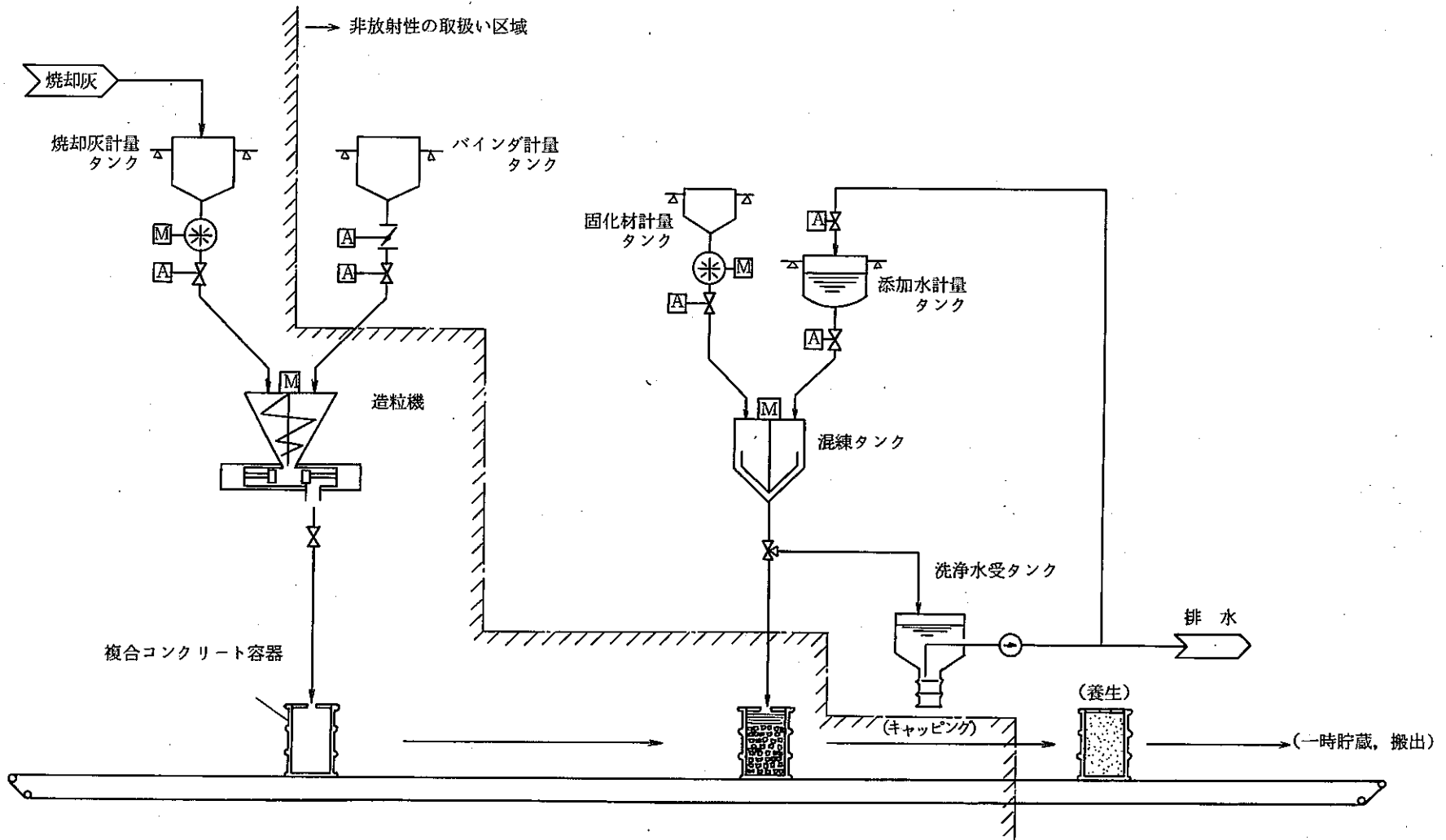


図6.9 セメントガラス固化法のプロセスフロー図<sup>52)</sup>

(3) 開発状況

東京電力福島第1-1～4号機廃棄物集中処理設備で濃縮廃液、スラッジ、イオン交換樹脂を遠心薄膜乾燥機で粉末化後、さらに焼却灰とともに200ℓ規模の固化体とする固化装置が実用化されている。

動燃事業団は53年よりLWR再処理廃液及び57年よりFBR再処理廃液を対象とした遠心薄膜乾燥基礎試験及び工学試験を実施し、58年にはFBR再処理廃液を対象とした造粒基礎試験を実施し<sup>61)</sup>、60年にはLWR再処理時の焼却灰、ヨウ素吸着剤(AgS, AgA)、スラッジ、濃縮廃液の固化基礎試験を実施している<sup>53)</sup>。

### 6.3 水熱固化法

#### (1) 原理

高温高压（100℃以上）下の水の性質は常温付近のものとは著しく異なり250℃以上では急激に水の構造や諸物性の変化が生ずる。SiO<sub>2</sub>やAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>などの酸化物は常温付近では難水溶性だが、高温高压下では水酸化物となり、水にかなり溶解する様になり（図6.10参照）<sup>54)</sup>、これを常温にもどせば無水酸化物となり析出し岩石状の固化体となる。

さらに、高温高压下で水に少量のアルカリを添加するとSiO<sub>2</sub>の溶解速度が増大し、Na<sub>2</sub>O-H<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub>系において、アルカリ溶液にSiO<sub>2</sub>が飽和する様になり、冷却するとガラス状の固化体となることが知られている。

自然界では、CaCO<sub>3</sub>やSiO<sub>2</sub>が水と地熱の作用のもとで長時間経て上記の様な現象を生じ石灰岩や珪石などの岩石に転化するものと考えられている。

人工結晶及び人工ルビーの製造にもこの原理は応用されている。

本法はこの現象に着目し、高温高压下のアルカリ溶液中に焼却灰等の廃棄物を取込み、安定な岩石状の固化体を製造するもので岩石固化法とも呼ばれる（完全な結晶を作るのではなく、各種鉱物結晶の外周部の溶解および化学反応により粒子間結合をさせ、廃棄物を不純物として結合間に取り込む方法である（写真7.1～7.3参照）。

図6.11に水熱固化法によるプロセスフロー概念図、図6.12に水熱固化装置の反応装置部の概念を示す<sup>55)</sup>。

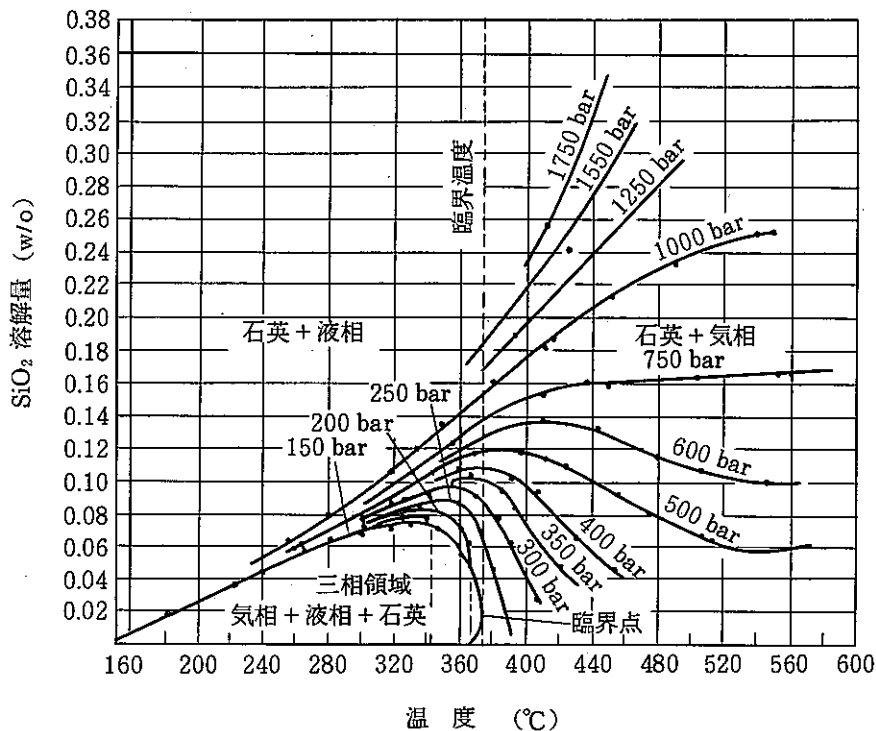
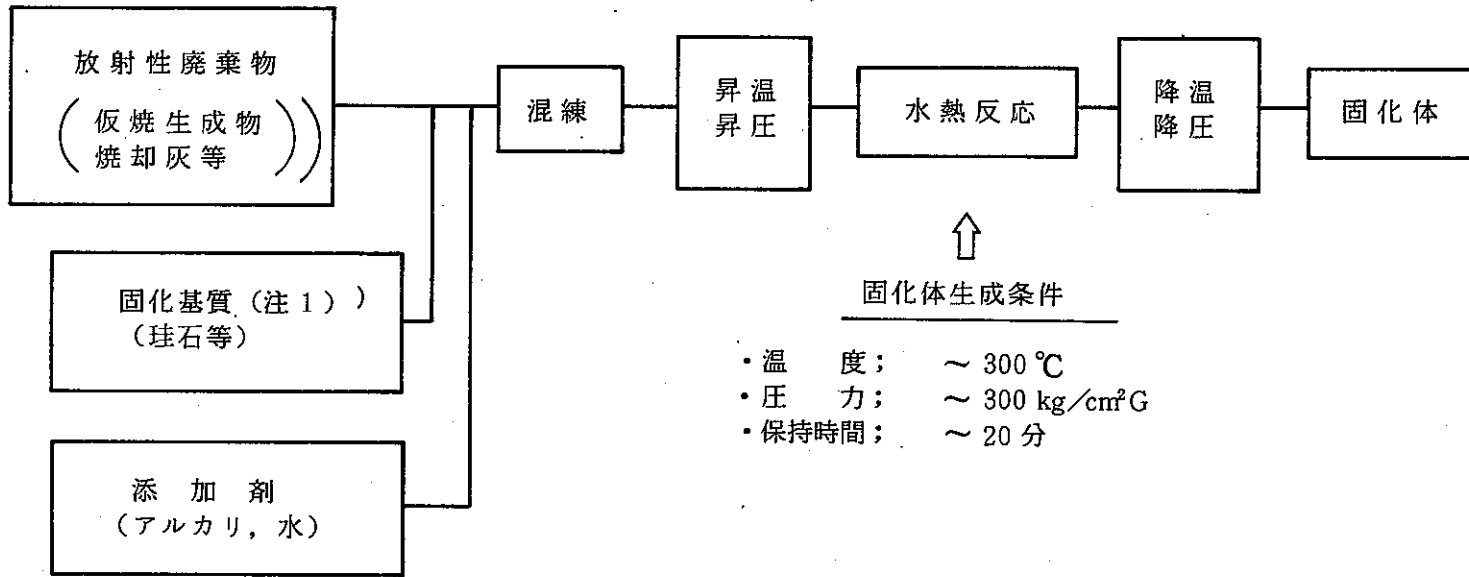


図6.10 温度—SiO<sub>2</sub>溶解量関係図<sup>54)</sup>



(注1) 天然に広く存在する岩石素材を用いる。  
珪石の成分は  $\text{SiO}_2$ 。  
焼却灰固化の場合には、固化基質の添加不要

図 6.11 水熱固化プロセスフロー概念図<sup>55)</sup>

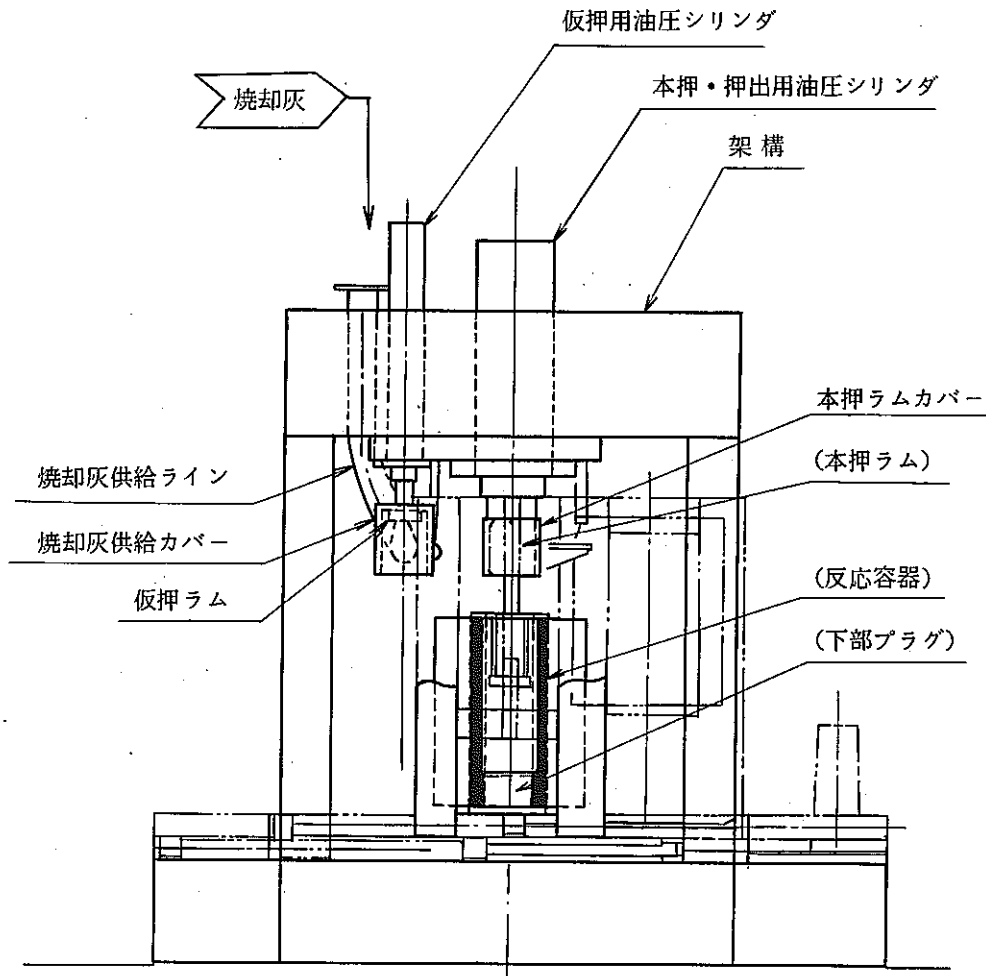


図 6.12 水熱固化装置の反応装置部の概念<sup>55)</sup>

粒度調整した焼却灰にNaOH溶液を添加し混練し、次に混練粉末を反応器に充てんし、電気ヒータおよび油圧プレスにより約300℃、約300kg/cm<sup>2</sup>Gに昇温・昇圧し、約20分位保持し、水熱反応を生成させ、その後降温・降圧し、固化体とする。

## (2) 特徴

次の様な長所を有する。

- プレス圧が高いものの静圧による粉末の圧縮で、温度も溶融固化法よりも低いため、比較的マイルドな運転条件である。
- アルカリ溶液以外の添加の必要がないので、廃棄物混合比を約70v/oまで高く取れ、減容性が比較的高く取れる。
- 溶融固化体に比較し、固化体の浸出性は若干劣るが耐熱衝撃性に優れ、クラックのない固化体となる。
- 密閉容器内の固化処理であり、オフガス処理系設備の負担が軽い。
- アルカリ添加するため、オフガス処理系へのヨウ素の放出を防止できるので特にヨウ素を吸着したゼオライト(AgX)やシカリゲル(廃溶媒処理技術開発施設からのドデカン浸漬シカリゲル)を設備を共用して安定な固化体としうる。

すなわち、ヨウ素吸着したAgXにアルカリを添加すると、加熱による脱着でヨウ素が発生することがあってもそのヨウ素がAgXから解離したAg<sup>+</sup>と反応するため、水熱固化体中にヨウ素がAgI及びAgIO<sub>3</sub>として安定的に取り込まれる<sup>56)</sup>(図6.13参照)。

一方、短所としては、静圧であるが約300kg/cm<sup>2</sup>Gと比較的高い圧力が不可欠であること。又、その他未だ開発途上にある技術であるため、実規模の装置による実証試験が今後必要と考えられることである。

## (3) 開発状況

水熱反応による人工岩石を作る技術は古くから高知大学で実施されていたが<sup>57)</sup>、これを焼却灰等の固化に応用する研究は最近開始されたばかりである<sup>58)</sup>。

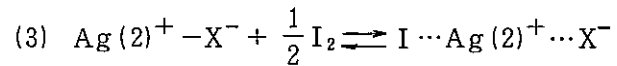
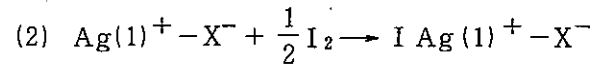
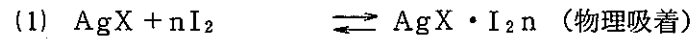
三井造船(株)は59年度より固化体サイズ180mmφ×360mmLの水熱固化装置により濃縮廃液乾燥粉末、AgX、シカリゲルを対象とした工学試験を実施している<sup>59)</sup>。

動燃事業団は60年度に再処理焼却灰、AgX、シカリゲルを対象とした基礎試験と、再処理廃液及びスラッジを対象とした基礎試験を実施している<sup>54)</sup>。

三井造船(株)は、原研、高知大学と共同で、Co-60、Cs-137、Sr-85トレーサーによる模擬焼却灰を対象とした基礎試験を実施している<sup>60)</sup>。



## a. AgX とヨウ素の吸着反応



## b. ヨウ素吸着 AgX のアルカリ処理時の反応

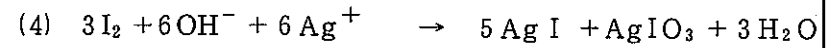
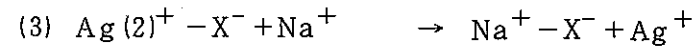
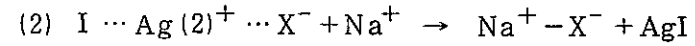
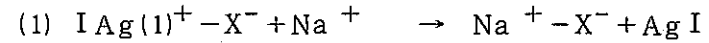


図 6.13 AgX のヨウ素吸着反応とヨウ素吸着 AgX のアルカリ処理時の反応

## 6.4 プラスチック圧縮成形固化法

### (1) 原理

プラスチックに無機物をフィラー（充てん物）として充てんし、プラスチックの耐摩耗性、難燃性等を向上させたり、導電性特殊機能を持たせた複合材料は梱包材料から宇宙航空材料まで幅広く実用化されている。

一般に、熱可塑性樹脂の場合、フィラーの量は50%程度である。

放射性廃棄物の固化処理法としては、ポリエチレンをフィラーとし、廃棄物混合比80 w/oまで高め、エクストルーダで熔融混練し複合材（固化体）としうるが、エクストルーダ出口で混練物の流動性が悪く、流動物をカッティングし小さなペレットとせざるをえない<sup>62)</sup>。

一方、廃棄物混合比約50 w/oまでならば、日本原子力研究所東海研究所で10 kg/hの装置によりポリエチレン固化の技術開発を進めている。

なお、超高密度ポリエチレンにフィラーとして $B_2O_3$ 約50 w/o充てんし圧縮成形した中性子遮蔽材が市販されている<sup>62)</sup>。

本法は、超高分子量を持つ熱可塑性樹脂であるポリブテンが、ポリエチレンに劣らず高充てん性、耐ストレスクラッキング性を有することに着目し、再処理廃棄物の焼却灰やPVCへの応用をめざして動燃事業団が三井石油化学工業（株）と共同して、新たに技術開発したものである<sup>63)</sup>。

本法では熱可塑性樹脂を使用するが、その樹脂含有量は20 w/oと少なく、プラスチック固化法というよりは、無機物のペレット固化法とよぶのがふさわしい。本法は加熱圧縮成形する点では水熱固化法及びセメントガラス法（ペレット化の部分のみ該当）と装置上及び操作上共通している。

焼却灰にバインダとして熱可塑性樹脂粉末（ポリブテン等）を約20 w/o添加し攪拌混合し、次に反応容器（金型）に入れ約200℃、約100 kg/cm<sup>2</sup>Gに昇温・昇圧し、約20分保持し、熔融した樹脂に流動性を与えて、焼却灰を取り込ませる。その後降温・降圧させ、均一な固化体とする。

この方法では効率よく圧縮することと、金型から効率よく伝熱させるため、430φと径の大きな円盤状の固化体とし、ドラム缶内に固化体を数枚積み上げ収納する方法となる。

図6.14にプラスチック圧縮成形固化プロセスフロー概念図を示す。

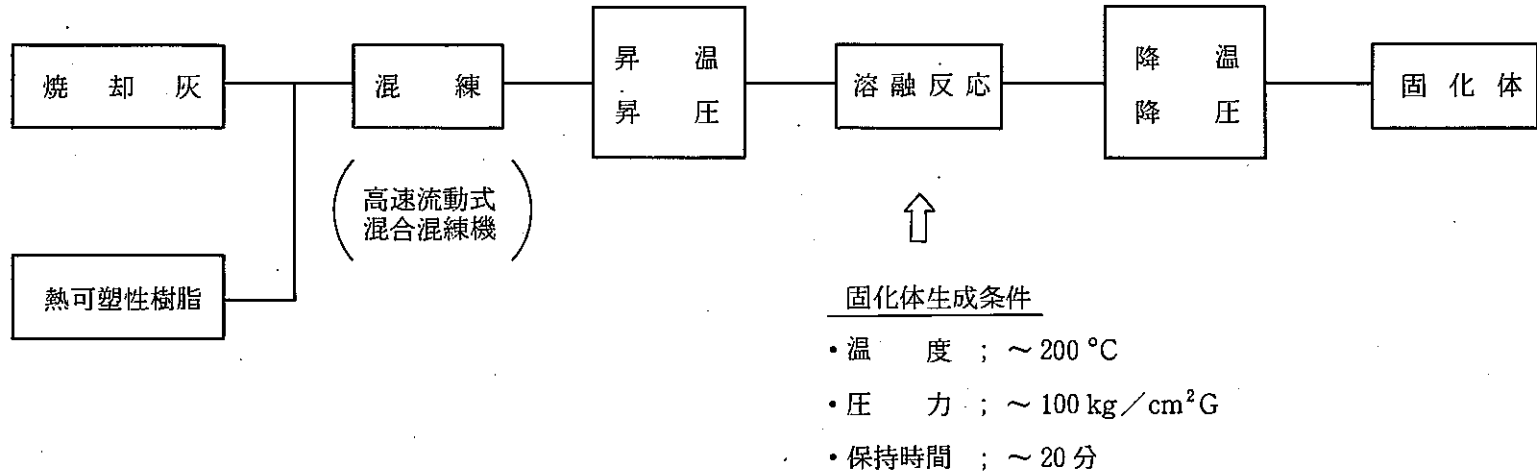


図 6.14 プラスチック圧縮成形固化プロセスフロー概念図<sup>63)</sup>

## (2) 特徴

次の様な長所を有する。

- 焼却灰等の廃棄物混合比は約 80 w/o まで高く取れるため減容性に優れる。
- プラスチック固化体としての優れた物性を有する。
- 一般プラスチック産業における圧縮成形固化技術の実績を生かし容易にスケールアップ可能である。
- 設備を共用して大量に発生する再処理廃棄物の廃 PVC シートの圧縮成形固化ができる。
- 再処理廃棄物の様な多種少量のものの固化処理にむいている。

一方、短所としては、プラスチック固化体特有の問題点として燃焼性が気になるが、廃棄物 80 w/o と無機物が大部分のため、難燃化されているものと推定され、複合コンクリート容器を併用すれば固化体パッケージの耐熱性・耐火性・耐浸出性等を大巾に向上させうる。

## (3) 開発状況

一般産業界においては、圧縮成形品用の樹脂としては、熱硬化性樹脂の方が熱可塑性樹脂よりも広く使用されている。

原子力分野では作新工業（株）が大型プレス機械（4000 t）により超高分子量ポリエチレンに  $B_2O_3$  を添加し、中性子遮蔽材（厚さ 15 cm）を生産し、プルトニウム転換技術開発施設のグローブボックスに使用している。

放射性廃棄物処理の分野では、未だ実用化の例はなく、動燃事業団が三井石油化学工業（株）と共同で、再処理焼却灰を対象として、ポリブテン、高密度ポリエチレンの圧縮成形の基礎試験を実施し、470 mm × 530 mm × 30 mm 厚の固化体とする技術を開発している<sup>63)</sup>。

又、再処理の PVC シートを対象として、圧縮成形の基礎試験を実施し、180 mm φ × 30 mm の固化体とする技術を開発している<sup>64)</sup>。

今後実規模装置による実証試験を行なうことが望ましい。

次章では動燃事業団が再処理焼却灰等を対象として実施したマイクロ波誘電加熱熔融固化法、水熱固化法、セメントガラス固化法、及びプラスチック圧縮成形固化法の 4 種の固化法に関する固化試験と固化体物性に関して取りまとめ報告する。

## 7. 固化基礎試験と固化体物性

本章では再処理焼却灰等の固化に際し、実用化が期待される固化法として動燃事業団が開発した4種の固化法すなわちマイクロ波誘電加熱溶融固化法、セメントガラス化法、水熱固化法及びプラスチック圧縮成形固化法に関し、固化処理条件と固化体物性との関係等の試験データを取りまとめ報告する。

各固化法の選定理由；

### ① マイクロ波誘電加熱溶融固化法

加熱溶融法としては、マイクロ波誘電加熱溶融固化法、高周波誘導加熱溶融固化法及び直接通電ジュール加熱溶融固化法があげられるが、固化法の選定に際し、各固化法毎に溶融条件と固化体物性との関係を把握する必要があるもののデータに乏しかった。そこで三種の固化法のうち、マイクロ波誘電加熱溶融固化法は他の溶融固化法よりも運転操作及び保守が比較的容易と考えられるので、溶融固化法の代表として選定した。

### ② 水熱固化法

岩石状の固化体とする方法だが、開発途上にあるためデータに乏しい。そこでガラス固化体とする溶融法等との優劣を把握する必要がある。この他、長半減期を有するヨウ素吸着剤の固化処理に適した方法として期待されるので選定した。

### ③ セメントガラス固化法

原子力発電所で一部実用化され始めた方法であり、経済性に優れた方法として期待されるが、他の固化法と総合評価するためのデータに乏しいため選定した。

### ④ プラスチック圧縮成形固化法

ガラス固化体とする溶融法では溶融自体により高減容化がはかれるもののガラス状の固化体とするため添加剤の必要量も多く、廃棄物混合比が45w/o以下となるため、全体の減容比は約1/3程度にとどまる。

又、セメントガラス固化法では、圧縮造粒により減容性を高めても圧縮造粒時にバイндаが約20w/o必要であり、かつ廃棄物混合比が約50w/oとなるため、全体の減容比は約1となり、減容効果は期待できない。

一方、プラスチック圧縮成形固化法では、圧縮により減容性を高めた上、廃棄物混合比を約80w/oと高く取りうるので、全体の減容比を約1/2にすることができる(表6.1参照)。シンプルなプロセス構成で、この様にかなり高い減容比が期待できる方法である。そこで、この点に着目し新たに開発することとし、選定した。

## 7.1 マイクロ波誘電加熱溶融固化試験<sup>29)</sup>

合成焼却灰Ⅰ及びⅡの溶融温度は1400～1500℃、1500～1600℃で原子力発電所等の焼却灰の1100～1250℃よりもかなり高い。溶融温度が高くなるほど図6.4の様にオフガス系へのCsの揮散量が増大するので、できるだけ低温で溶融でき、かつ固化体物性が優れ、できるだけ焼却灰の混合比が高くとれる溶融助剤系を選定する必要がある。そこで、まず優れた溶融助剤系を選定するための電気炉による溶融基礎試験を実施し、次に選定した溶融助剤系によるマイクロ波誘電加熱溶融固化基礎試験を実施し、固化処理条件と固化体物性との関係、減容性、今後のR & D必要項目等について評価検討した。

### 7.1.1 溶融助剤系選定試験

#### 1) 試験方法

焼却灰に溶融助剤を添加混合調整した試料をアルミナルツボ又は白金ルツボに入れ、電気炉で1200～1400℃で加熱し、焼却灰を溶融固化させ、固化体の外観、浸出性の測定評価を行った。

#### (1) 試験対象溶融助剤系 (めざす固化体性状)

- ・クレ－ (又はカオリン) -  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  系 ～ソーダ石灰質ガラス
- ・クレ－ (又はカオリン) -  $\text{H}_3\text{BO}_3$  系 ～硼磷酸質ガラス
- ・ $\text{H}_3\text{BO}_3$  系 ～硼磷酸質ガラス
- ・ $\text{H}_3\text{BO}_3$  -  $\text{Al}_2\text{O}_3$  系 ～硼磷酸質ガラス

再処理焼却灰だけでは硅酸ガラス又は硼磷酸ガラスとするにはそれぞれ網目形成イオン供給物質である $\text{SiO}_2$ 分及び $\text{B}_2\text{O}_3$ 分が不足するので、クレ－やカオリン(クレ－： $\text{SiO}_2$  97% -  $\text{Al}_2\text{O}_3$  1% -  $\text{CaO}$  1.5%, カオリン： $\text{SiO}_2$  60% -  $\text{Al}_2\text{O}_3$  40%)を添加するか、 $\text{H}_3\text{BO}_3$ を添加し補充することとした。又、 $\text{H}_3\text{BO}_3$ は融点降下剤の役割をかねているが、 $\text{H}_3\text{BO}_3$ を添加せずに硅酸ガラスをめざす場合には、融点降下剤として $\text{Na}_2\text{CO}_3$ を添加することとした。一般に磷酸ガラスの場合、 $\text{H}_3\text{BO}_3$ の他 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を添加し、製品ガラスの耐久性を向上させているので、 $\text{H}_3\text{BO}_3$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ の混合系についても検討することとした。

#### (2) 焼却灰の組成 (4.2 参照)

- ・合成焼却灰Ⅰ  $\text{P}_2\text{O}_5$  25.8 -  $\text{CaO}$  43.1 -  $\text{SiO}_2$  11.2 -  $\text{Al}_2\text{O}_3$  7.3 -  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  4.8  
-  $\text{MgO}$  1.9 -  $\text{TiO}_2$  1.8 - その他 4.2 w/o

#### (3) 焼却灰/溶融助剤系の混合比

##### A. 焼却灰/クレ－ - $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 系：アルミナルツボ使用

- 70/30, 60/40, 60/30-10, 50/30-20, 40/30-30, 30/40-30, 30/30-40,  
30/20-50, 40/30-30, 40/20-40

- B. 焼却灰／クレー（カオリン）- $H_3BO_3$ 系：アルミナルツボ使用  
60/30-10, 50/30-20, 40/30-30, 20/30-50, 35/(15)-50, 35/(25)-40, 35/(35)-30, 20/(30)-50, 20/(40)-40
- C. 焼却灰／ $H_3BO_3$ 系：アルミナルツボ使用  
40/60, 45/55, 50/50, 55/45, 60/40, 70/30
- D. 焼却灰／ $H_3BO_3$ - $Al_2O_3$ 系：アルミナルツボ使用  
65/30-5, 55/40-5, 45/50-5, 40/50-10, 35/50-15, 39/56-5, 37/53-10, 33/47-15, 29/41-20, 40/46-14, 45/42-13, 50/39-11
- E. 焼却灰／ $H_3BO_3$ - $Al_2O_3$ 系：白金ルツボ使用  
45/55-0, 38/47-15

(4) 試験温度 1200, 1300, 1400 °C

$H_3BO_3$  系及び  $H_3BO_3$ - $Al_2O_3$  系は 1200 °C 加熱とした。

(5) 固化体の物性、性状の測定評価

- ・外観観察～溶融具合、均質性、発泡性、着色、クラック
- ・浸出性～JIS-R 3502 準拠

沸騰水中に 4 時間浸漬し減重率を測定、又、浸出液の成分に関しては、P, Ca, B,

Al は原子吸光分析法、 $SiO_2$  は重量法により測定した。

なお、浸出性に関しては、溶融固化体のうち、均質で、稠密な、比較的良好と思われるものについてのみ測定した。

## 2) 試験結果

クレー（カオリン）- $Na_2CO_3$  系、クレー（カオリン）- $H_3BO_3$  系、 $H_3BO_3$  系、 $H_3BO_3$ - $Al_2O_3$  系の試験結果をそれぞれ表 7.1 ~ 7.4 に示す。これらはいずれもアルミナルツボによるものである。白金ルツボによる  $H_3BO_3$ - $Al_2O_3$  系の試験結果を表 7.5 に示す。

又、アルミナルツボによる TBP 約 20 % 含有廃溶媒混焼時の焼却灰Ⅱに対する  $H_3BO_3$  時の試験結果を表 7.6 に示す。

これらの試験結果より次のことがわかる。

- ① クレー（カオリン）- $Na_2CO_3$  系では、1300 °C で溶融しても発泡性の著しいセラミック状にとどまり、1400 °C で溶融しても灰の混合比 30 % 以上ではガラス化しなかった。
- ② クレー（カオリン）- $H_3BO_3$  系では、灰／クレー- $H_3BO_3$  の混合比 20/30-50 で約 1300 °C 溶融時の場合のみ均一にガラス化した。しかし、灰の混合比が低すぎ、選定対象からはずすこととする。
- ③  $H_3BO_3$  系でアルミナルツボの場合、灰の混合比 45/55 まで 1200 °C 溶融で均一にガラス化されたが、溶融物による高純度アルミナルツボの浸食が激しかった。

表 7.1 溶融助剤系選定試験結果〜クレー（カオリン）-Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>系/アルミナルツボ使用

試料No.	混合率 (w/o)			溶融 温度*	固化体形状	Note.	浸出試験 減重率	考 察
	焼却灰-I	クレー (カオリン)	Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>					
A 1	70	30	—	1,200	溶融せず焼結化			<ul style="list-style-type: none"> <li>・助剤としてクレーだけでは全く溶融し そうにない。(at 1200℃)</li> <li>・クレーとソーダを添加してソーダガラ ス系のガラス体にしようと試みたが、 ガラス化しなかった。(1,200~1,400℃)</li> <li>・黄褐色のセラミック質になったものも 浸出性が大きく、安定性に劣る。</li> <li>したがって、クレーとソーダの組み合 せでは低い温度で合理的な固化はでき ない。</li> </ul>
A 2	60	40	—	1,200	溶融せず焼結化			
A 3	60	30	10	1,300	発泡著しいセラミック状	大変脆い		
A 4	50	30	20	1,300	発泡著しいセラミック状	大変脆い		
A 5	40	30	30	1,300	ややポーラスなセラミック状	黄褐色で透明感はない		
A 6	30	40	30	1,400	セラミック状固化体	黄褐色で透明感はない	17.31	
A 7	30	30	40	1,400	セラミック状固化体,微小な発泡あり	緑褐色で透明感はない		
A 8	30	20	50	1,400	ボロボロでセラミック状	暗緑色で透明感はない		
A 9	40	30	30	1,400	ポーラスでセラミック状	A5を1400℃で加熱したもの		
A 10	40	20	40	1,400	溶融せず焼結化			

\* °C



表 7.2 溶融助剤系選定試験結果～クレ－（カオリン）－H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>系／アルミナルツボ使用

試料 No.	混合率 (w/o)			溶 融 温 度	固 化 体 形 状	Note.	浸出試験 減 重 率	考 察	
	焼却灰-I	ク レ ー (カオリン)	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>						
B 1	60	30	10	1,300	ポーラスでセラミック状	暗茶褐色	0.29	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ B 2 では結晶質の固化体となり、B 4 では均一なガラスとなったが、その中間の組成の B 3 では 2 相に分相してしまった。</li> <li>・ 化学的安定性（耐浸出性）には優れても B 4 では灰の混合比が低すぎる。</li> </ul>	
B 2	50	30	20	1,300	結晶化ガラス	微細な泡が残っている。			
B 3	40	30	30	1,300	分相(上：乳濁，下：ガラス)				
B 4	20	30	50	1,300	均一なガラス	黒褐色			0.50
B 5	35	(15)	50	1,200	ガラスと結晶化ガラスの 2 相	微細な泡がある。			<ul style="list-style-type: none"> <li>・ クレーがほぼ 100% シリカであるのに対し、カオリンは 40% ほどしかアルミナを含まない。そのためか、非常に分相しやすく、またポーラスになりやすい。</li> <li>従って特にクレーの代わりにカオリンを用いるメリットはない。</li> </ul>
B 6	35	(25)	40	1,200	ポーラスで分相あり	上相は褐色			
B 7	35	(35)	30	1,200	ポーラスで分相あり	上相は褐色			
B 8	20	(30)	50	1,300	ガラスと乳濁結晶質に分相	上相は褐色			
B 9	20	(40)	40	1,300	ガラスと乳濁結晶質に分相	上相は褐色			

表 7.3 溶融助剤系選定試験結果～H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>系／アルミナルツボ使用

試料No.	混合率 (w/o)		溶融 温度	固化体形状	Note.	浸出試験 減重率	考 察
	焼却灰-I	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>					
C 1	40	60	1,200	均一なガラス	黒褐色でるつぼ浸食激しい。	0.80	<ul style="list-style-type: none"> <li>・混合灰-Iはホウ酸だけで十分溶融固化できる。</li> <li>・クレーを加えた場合に比して浸出性ではやや劣るが、1200℃で十分溶融でき、相対的に助剤が少なくすむため、メリットは大きい。</li> <li>・ただし、溶融物の浸食力が大きく、るつぼから大量のアルミナが溶け込んでいると考えられる。</li> </ul>
C 2	45	55	1,200	均一なガラス	黒褐色でるつぼ浸食激しい。	0.92	
C 3	50	50	1,200	表層部に結晶析出	表面はポコポコだが稠密	1.14	
C 4	55	45	1,200	結晶化ガラス	表面はポコポコだが稠密	0.88	
C 5	60	40	1,200	ポーラスなセラミック状			
C 6	70	30	1,200	ポーラスな焼結体状			

表 7.4 溶融助剤系選定試験結果～H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系/アルミナツボ使用

試料 No.	混合率 (w/o)			溶融 温度	固化体形状	Note.	浸出試験 減重率	考 察		
	焼却灰-I	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>							
D 1	65	30	5	1,200	やっと溶融した感じ	暗褐色で結晶質	0.35	<ul style="list-style-type: none"> <li>アルミナを添加しても、るつぼそのものがアルミナであるため、C1～C6とあまり顕著な差は出ていない。しかし、アルミナ量が15%ほどになるとるつぼの溶出量がかなり減少した。</li> </ul>		
D 2	55	40	5	1,200	結晶化ガラス	暗褐色で結晶質				
D 3	45	50	5	1,200	均一なガラス	黒褐色、浸食あり				
D 4	40	50	10	1,200	均一なガラス	黒褐色、浸食あり				
D 5	35	50	15	1,200	均一なガラス	黒褐色、るつぼ浸食少ない。				
D 6	39	56	5	1,200	均一なガラス	黒褐色、浸食大			0.86	
D 7	37	53	10	1,200	均一なガラス	黒褐色、浸食小				1.02
D 8	33	47	15	1,200	均一なガラス	黒褐色、るつぼ浸食微小			1.13	
D 9	29	41	20	1,200	ポーラスな結晶質	表面は濁った暗褐色			0.91	<ul style="list-style-type: none"> <li>アルミナ含量が浸出率に及ぼす影響も見ようとしたが、るつぼから溶出したアルミナのために有意な差は認められずかえて相対的にホウ酸量の影響が出てしまったと考えられる。</li> </ul>
D 10	40	46	14	1,200	ガラス質でわずかに結晶析出	黒褐色				
D 11	45	42	13	1,200	結晶化ガラス	黒褐色				
D 12	50	39	11	1,200	結晶化ガラス	やや泡が残っている。			0.98	<ul style="list-style-type: none"> <li>相対的にH<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>が少なく、アルミナも十分含まれているため、D6～D8よりも総じて浸出量が少ない。</li> </ul>

表 7.5 溶融助剤系選定試験結果～H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系/白金ルツボ使用

資料No.	混合率 (w/o)			溶融 温度	固化体形状	Note.	浸出試験 減重率	考 察
	焼却灰-I	H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>					
E 1	45	55	—	1,200	ポーラスなセラミック状	白金るつぼ使用	—	<ul style="list-style-type: none"> <li>本試験により、表 7.4においてアルミナなしでガラス化したものは、るつぼから溶出したアルミナがガラス化助剤として働いていることが判明した。</li> </ul>
E 2	38	47	15	1,200	均一なガラス	E1+アルミナ,白金るつぼ使用	—	

表 7.6 TBP 約 20% 含有廃溶媒混焼時の焼却灰 ( $P_2O_5$ , CaO の含有量高く,  $SiO_2$  含有量低い) の熔融試験結果  
 ~焼却灰 II -  $H_3BO_3$  系/アルミナツボ使用

試料 No.	混合率 (w/o)		溶 融 温 度	固 化 体 形 状	Note.	浸出試験 減 重 率	備 考	
	焼却灰-II	$H_3BO_3$						
F 1	19	81	1,200	白濁層とガラスに分相	るつぼ浸食激しい。	4.02	<ul style="list-style-type: none"> <li>・混合焼却灰-IIは<math>H_3BO_3</math>を57~87%程度添加することにより, 良好なガラス固化体とすることができ, これよりも<math>H_3BO_3</math>量が多いと分相を生じる。</li> <li>また<math>H_3BO_3</math>量が45~50%程度であると, 結晶質の固化体が得られる。</li> <li>・しかし, いずれの場合もるつぼ(高純度アルミナ)の溶出が起きており, 熔融物の浸食力は焼却灰-Iよりも強いと考えられる。</li> <li>従ってガラス化するためにはアルミナの添加も必要であると考えられる。</li> <li>(Cf. E1, E2の白金るつぼでの実験)</li> <li>・固化体の浸出率は混合灰-Iと同様, 灰の混合比が大きいかほど小さい。</li> </ul> <p>以上より混合灰-IIと<math>H_3BO_3</math>をおよそ4:6の比で混合し, 更にアルミナを15%程度添加するのが最も有望である。</p> <p>固化体の結晶質化を許せば, もう少し灰の混合比を大きくできる。</p>	
F 2	24	76	1,200	均一なガラス(暗緑色)	るつぼ浸食激しい。			
F 3	29	71	1,200	均一なガラス(暗緑色)	るつぼ浸食激しい。			
F 4	34	66	1,200	均一なガラス(暗緑色)	るつぼ浸食激しい。			
F 5	39	61	1,200	均一なガラス(褐色)	最も透明感あり。浸食著しい。			1.36
F 6	44	56	1,200	底部が結晶化				
F 7	49	51	1,200	結晶部が厚くできた。	中心部のみガラス質			
F 8	54	46	1,200	全体に結晶化				
F 9	59	41	1,200	上部に溶け残り有り	溶け残りは焼結状			
F 10	64	36	1,200	焼結固化体				

- ④  $H_3BO_3 - Al_2O_3$  系でアルミナルツボの場合、同様に灰の混合比 35/50-15 から 45/50-5 まで 1200 °C 溶融で均一にガラス化され、溶融助剤系の  $Al_2O_3$  の割合を高めた灰の混合比 35/50-15 ではアルミナルツボの浸食は少なかった。(表 7.4)。又、固化体の減重率は灰の混合比によらず、ほぼ 1% で並板ガラス(ソーダガラス)と同程度であった。
- ⑤ 白金ルツボによる  $H_3BO_3$  系の場合、灰の混合比 45/55 では、ガラス化が生じずポーラスなセラミック状の固化体となったことから、③のガラス化は、ルツボから浸出した  $Al_2O_3$  が固化体のガラス形成に有効利用されたためと考えられる。(表 7.5)

白金ルツボによる  $H_3BO_3 - Al_2O_3$  系の場合、灰/ $H_3BO_3 - Al_2O_3$  の混合比 38/47-15 で 1200 °C 溶融で均一なガラス固化体を得られた。

以上の結果、1200 °C で溶融でき、均質なガラス固化体をうるることができる。優れた溶融助剤系としては、 $H_3BO_3 - Al_2O_3$  系を選定することとした。

なお、TBP 約 20% 含有廃溶媒を混焼した時の焼却灰は  $P_2O_5$ 、CaO の含有量が高く、 $SiO_2$  の含有量が低いため、前記の灰よりも  $H_3BO_3$  の含有量を高めてガラス化する必要がある。 $H_3BO_3$  系でアルミナルツボの場合、灰の混合比 24/76 ~ 39/61 で均一なガラス固化体がえられた。又、 $H_3BO_3$  の添加量の多いほど減重率が 1.3 から 4% に増大したが、これは  $H_3BO_3$  の溶出によるものと考えられる。(表 7.6)

## 7.1.2 マイクロ波誘電加熱溶融固化基礎試験

### 1) 試験方法

#### (1) 試験装置

- ・マイクロ波バッチ型溶融固化装置
  - ・東京電子技研(株)製、PLASMAX-1 型
  - ・2450 MHz, 5 kw, インキャンメルト方式
- ・ルツボ SUS 304 TP 製, 101  $\phi$   $\times$  100 H (0.78  $\ell$ )  
(約 600 g の固化体)

#### (2) 焼却灰

- ・合成焼却灰-II (既設焼却炉で廃希釈剤を混焼したケースに相当)
  - $P_2O_5$  35.3 - CaO 50.4 -  $SiO_2$  5.1 -  $Al_2O_3$  3.4 -  $Fe_2O_3$  2.2 - MgO 0.9 -  $TiO_2$  0.9 - その他 1.8 w/o
- ・合成焼却灰-III (焼却施設の両炉からの焼却灰を合成平均化したものに相当)
  - $P_2O_5$  6.3 - CaO 22.3 -  $SiO_2$  25.7 -  $Al_2O_3$  16.8 -  $Fe_2O_3$  11.0 - MgO 4.3 -  $TiO_2$  4.0 - その他 9.6 w/o

7.1.1 の結果、合成焼却灰-Ⅱは合成焼却灰-Ⅰより溶融しにくく、 $H_3BO_4$  の含有量が高める必要があったため、マイクロ波溶融固化する場合の問題点を把握しやすいと考えられる。

一方、合成焼却灰-Ⅲは、実際に焼却施設から排出される灰に最も近く、かつ  $P_2O_5$  や  $CaO$  の含有量が少ないため、溶融しやすい性状と考えられる。(4.2 参照)

したがって、この両者について試験することにより、マイクロ波溶融固化法に関し、合成焼却灰の組成が大きく変動した場合の技術的問題点をつめることができる。この様な考え方で試験対象焼却灰として合成焼却灰-Ⅱ及び合成焼却灰-Ⅲを選定した。

### (3) 焼却灰/ $H_3BO_3$ - $Al_2O_3$ 系の混合比

試料番号	合成灰の種類	混合比 灰/ $H_3BO_3$ - $Al_2O_3$	溶融温度 ( $^{\circ}C$ )
G-1	Ⅱ	37/48-15	1,200
G-2	Ⅱ	42/43-15	1,200
H-1	Ⅲ	45/45-10	1,200
H-2	Ⅲ	55/35-10	1,200

### (4) 溶融方法

- ・ 試料投入 最初約 200 g 投入し、約 30 分かけて溶融し、以降、約 15 分間隔で約 150 g ずつ投入する。
- ・ 出力上昇 急激に出力上昇させると激しい放電を生ずるため、ゆっくり昇温させる。
- ・ 放電対策 放電を生じたら電源をカットし、約 10 秒後に復帰させる。激しい放電時には出力を下げる。
- ・ 徐冷対策 製造時の固化体中へのクラック発生を防止するため、充分ルツボの温度が低下してからルツボを取出す。

### (5) 測定項目

- ① 溶融状態の目視観察 … 溶融時の溶融物の流動性、溶け込み状況。
- ② 発生オフガスの流量、温度測定、成分ガス中の水分測定
- ③ 固化体断面の外観観察 … 平滑さ、気孔・分相・クラックの有無
- ④ 固化体の浸出性：JIS-R 3502 準拠及びソックスレー法
- ⑤ 固化体の圧縮強度：20 t 万能試験機使用
- ⑥ 固化体のビッカース硬度：10 kgf の荷重にて試験
- ⑦ 電子顕微鏡による固化体の断面観察
- ⑧ EPMA による Na, Mg, Al, Si, Fe, Zn, Pb の固化体内分布測定

## 2) 試験結果

試験結果を取りまとめ表 7.7 に示す。

- (1) G, H いずれの合成焼却灰も、均一なガラス質固化体にできた。
- (2) 焼却施設から発生する焼却灰に最も近い組成を有する H シリーズでは、焼却灰/ $H_3BO_3 - Al_2O_3$  系の混合比 55/35-10 まで容易にガラス質固化体とすることができる。
- (3) 一方、G シリーズの場合には、H シリーズより  $H_3BO_3$  及び  $Al_2O_3$  の割合を高くする必要があり、焼却灰/ $H_3BO_3 - Al_2O_3$  系の混合比 37/48-15 までは結晶析出のない均一なガラス質固化体とすることができる。
- (4) 試料の追加投入後数分間、約 20 mg/ℓ の水分が発生したが、これは、 $H_3BO_3$  の溶融に伴うものと考えられる ( $2H_3BO_3 \rightarrow B_2O_3 + 3H_2O$ )。今後溶融助剤として  $H_3BO_3$  の代わりに  $B_2O_3$  を使用すれば水分の発生は防止しうるものと考えられる。
- (5) 放電について

試料の組成では、H より G の方が放電しやすく、同じ灰でも  $H_3BO_3$  含有量の多いものほど比較的放電が少なかった。又、溶融状況では、溶融開始時点では放電しにくく、溶融が表面全体に及ぶか赤熱してくると放電の生ずる場合が多かった。

- (6) 浸出率は、G シリーズが H シリーズより 1 ケタ高いものの、一般の並板ガラスの浸出率  $4.6 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$  (JIS-R 3502 準拠, 日立造船(株)社内データ) と同一オーダーである。
- (7) 圧縮強度は、いずれも  $2,500 \text{ kgf/cm}^2$  以上と高く、又ビッカース硬度も約 500 以上と硬い。
- (8) EPMA で測定したが各元素とも均一に分布しており、電子顕微鏡による断面写真でも均一分布が確認された。

## 3) 考 察

## (1) 減容比の評価

$H_3BO_3$  の溶融で揮発する水分を除き、固化体の組成を補正すると

$$G-1: \text{灰}/B_2O_3 - Al_2O_3 = 47/34-19$$

$$H-2: \text{灰}/B_2O_3 - Al_2O_3 = 65/23-12$$

となる。固化体の比重及び焼却灰の比重 (0.23) により減容比を求めると、G-1 及び H-2 はそれぞれ約 5.4 及び 7.6 と評価される。

## (2) 必要な安全対策設備と今後の技術開発課題

再処理焼却灰をマイクロ波誘電加熱溶融固化法で固化する場合、PWTF で採用しているマイクロ波溶融炉の安全対策設備及び放電防止対策を応用すれば、特に問題なく対処しうるものと考えられる。PWTF で採用しているこれらの安全対策設備及び放電防止対策をそれぞれ表 7.8 及び表 7.9 に示す。

本法は、この様に今後の技術開発の課題もほとんどなしにすぐに短期間に実用化がはかれる技術である。



表 7.7 マイクロ波誘電溶融固化基礎試験結果

試料番号	混合比(%) 灰/H <sub>3</sub> BO <sub>3</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	溶融状態及び固化体表面の外観観察結果	固 化 体 の 物 性				
			圧縮強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	ビッカース 硬 度	減重率 (w/o) JIS/ソックスレー	浸出率(g/cm <sup>2</sup> ・日) JIS/ソックスレー	比 重
G-1	37/48-15	<ul style="list-style-type: none"> <li>非常に流動性あり，一様に溶融</li> <li>表面にやや凹凸があるが，つやのあるガラス質固化体。</li> <li>濃緑黒色，分相や気孔なし，稠密</li> </ul>	5,040	平均 551	1.8/4.9	$8.3 \times 10^{-4}$ / $8.7 \times 10^{-3}$	2.66
G-2	42/43-15	<ul style="list-style-type: none"> <li>G-1と同様溶融しているが，表面に若干ガス状のものが認められる。</li> <li>G-1と同様ガラス質固化体が，表面部に若干結晶物の析出（厚さ3mm）。</li> <li>溶融時抜け切らなかった泡が約5mmの気孔となり多少のこった。</li> </ul>	2,570	—	2.1/5.2	$9.5 \times 10^{-4}$ / $9.2 \times 10^{-3}$	—
H-1	45/45-10	<ul style="list-style-type: none"> <li>非常に粘度が低く，一様に溶融</li> <li>表面が非常に滑らか，均質で良好なガラス質固化体。黒褐色，分相や気孔なし，稠密</li> </ul>	9,130	—	0.3/1.2	$1.6 \times 10^{-4}$ / $2 \times 10^{-3}$	—
H-2	55/35-10	<ul style="list-style-type: none"> <li>H-1と同様，若干粘度が高い。</li> <li>H-1と同様，滑らかで良好なガラス質固化体</li> </ul>	7,970	604	0.2/0.8	$1.1 \times 10^{-4}$ / $1.4 \times 10^{-3}$	2.70

試料番号 G, H はそれぞれ合成焼却灰Ⅱ及び合成焼却灰Ⅲを示す。減重率及び浸出率の JIS は，JIS-R 3502 準拠を示す。

表 7.8 PWTF におけるマイクロ波溶融炉の安全対策設備

No.	目 的	設 備	内 容
1.	ルツボ溶損防止	過加熱防止装置	ルツボ底部温度を熱電対で監視し、温度が異常に高くなった場合、マイクロ波の発振を停止する。
2.	溶融物のオーバーフロー防止	灰供給量監視装置	ルツボへの灰供給量を監視し、所定の供給量になった場合、灰供給設備を停止する。
3.	炉表面温度上昇防止	炉水冷構造及び冷却水系	グローブボックスに対し熱的悪影響を防止するため、炉を水冷構造とし、ポンプ、熱交換器等から成る冷却水系を設置する。
4.	マイクロ波導波管での、グローブボックス気密性維持	2重気密スペーサ	マイクロ波導波管内に気密スペーサを設置し、グローブボックスの内と外を区別し、グローブボックスの閉じ込め機能を維持する。

表 7.9 PWTF におけるマイクロ波溶融炉の放電対策

ステージ	No.	対 策	内 容	備 考
灰の受入れ	1.	未燃カーボン量制限	未燃カーボン量定常運転時 2 w/o 以下, Max 5 w/o 以下の灰を受け入れる。	灰以外の成分からの電離ガス生成の低減
	2.	強熱減量成分制限	強熱減量成分 5 w/o 以下の灰を受け入れる。	同 上
灰の調整	3.	異物分離	未燃カーボン及び金属等で粒径の大きいものが考えられる場合, 櫛分及び微細化し粒径を整える。	電離ガス発生が集中することの防止
	4.	添加剤の混入	添加剤のマトリックス効果を利用するため, B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> を約 10 % 混入する。但し, 量は灰組成により変動する。	灰そのものからの電離ガス生成の低減
運 転	5.	出力調整	放電が多発する場合は, マイクロ波出力を下げる。	電離ガス生成に必要なエネルギーを与えない。
	6.	自動放電停止装置	放電検知した場合, 出力を下げ電離ガス層消失を待って, 再立上げすることを自動的に行う。	運転効率低下の防止, 運転員負荷の低減

## 7.2 セメントガラス固化試験<sup>53)</sup>

焼却灰やヨウ素吸着剤（銀シリカ）等廃棄物粉体の他、硝酸ナトリウム等の低レベル濃縮廃液を遠心薄膜乾燥機により乾燥した粉体を対象とし、これらを造粒機の圧縮造粒によりペレット化し、ドラム缶に収納し、ペレットとドラム缶壁との隙間にセメントガラスを流し込んでペレット固化体とする試験と、ペレット化せず、粉体のままセメントガラスと攪拌混合して粉体固化体とする試験を実施した。

本節では、これらの試験のうち、焼却灰に関するペレット固化試験および焼却灰粉体固化試験について述べる。本セメントガラス固化法は、他の廃棄物の固化にも有望と期待されるので、一部参考データとしてヨウ素吸着剤、シリカゲル、ドデカン浸漬シリカゲル、硝酸溶液の乾燥粉体等の固化試験についても併せ報告する。

### 7.2.1 試験の方法

合成焼却灰等模擬廃棄物にバインダを添加混合し、タブレット型造粒機で圧縮成型し、ペレットとする。次にペレットを容器に収納し、添加水で混練したセメントガラスを容器上部より注入し、静置固化する。

一方、粉体固化体製造時には混練タンク内で、廃棄物粉体とセメントガラス固化材及び添加水を攪拌混合し、次に容器に混練物を流し込み静置固化する。

試験は、まずセメントガラスペーストの混練試験を実施し、適切な混練条件を把握する。次にペレット固化体及び廃棄物粉体固化体の物性を測定し、固化処理条件と固化体物性について評価する。

#### 1) 廃棄物、廃棄物ペレット、セメントガラス固化材

##### (1) 試験対象模擬廃棄物の調整

##### ① 合成焼却灰

生焼却灰に  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  及び  $\text{CaO}$  を添加して再処理焼却灰（合成焼却灰Ⅲ）を模擬し合成した。

生焼却灰：ポリエチレン 48.0 - 布・紙 24.0 - 木材等 8.0 w/o の焼却灰

生焼却灰の組成：  $\text{SiO}_2$  26~30 -  $\text{Al}_2\text{O}_3$  17~18 -  $\text{CaO}$  6~7 -  $\text{MgO}$  11~15

-  $\text{Na}_2\text{O}$  3~4 -  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  12~17 - その他 8~10 w/o

合成焼却灰：生焼却灰 80.0 -  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  18.4 -  $\text{CaO}$  1.6 w/o

合成焼却灰の比重：0.39

##### ② ヨウ素吸着剤（AgS）

東レ製 AgS（粒状）にヨウ素を飽和吸着させたもの

③ ドデカン浸漬シリカゲル

富士デビソン（株）製マイクロビーズ3A（粒径0.1～0.3φ）をn-ドデカン中に1週間浸漬しその後ドデカン切りし、さらに洗淨水をかけ、その後水切りをしたもの

④ 硝酸ナトリウム

市販品の硝酸ナトリウムを溶解した溶液を遠心薄膜乾燥機により粉体化処理したもの

(2) ペレットの製造と物性

造粒機：タブレット型造粒機

油圧駆動のピストンにより粉体をペレットに圧縮成型する。

バイнда：

焼却灰用—繊維状ソルカブロック（商品名：KCブロック）

～繊維のからみつきにより強度を与える<sup>65)</sup>。

銀シリカゲル等圧縮時に廃棄物粉体が圧縮変形しないもの用

—メチルセルロースを主成分とするもの～粘着性を与える。

硝酸ナトリウム用—バイнда不要

バイнда配合比：

バイнда／廃棄物粉体（焼却灰）＝20／80（重量比）

ペレット寸法：20φ×10t（mm）

成型圧力：約750 kg/cm<sup>2</sup>G

廃棄物ペレットの物性：

焼却灰 — 比重1.7，圧縮強度600±30 kg/cm<sup>2</sup>G

銀シリカゲル — 比重1.2，圧縮強度140±20 kg/cm<sup>2</sup>G

ドデカン浸漬シリカゲル — 比重0.9，圧縮強度47±5 kg/cm<sup>2</sup>G

硝酸ナトリウム — 比重2.0，圧縮強度480 kg/cm<sup>2</sup>G

(3) セメントガラス固化材

硅酸ナトリウム（母材）に磷酸硅素（硬化剤）とセメント（吸水性骨材）をセメントガラス固化材としてメーカーが配合調整したもの。

各成分の配合比についてメーカーは開示していないが、パテント等より硅酸ナトリウム100部に対し、磷酸硅素10～30部、セメント50～120部配合したものと推定される。

なお、水硬性セメントペーストはこれらの固化材配合に対し水を22～30部添加して調整する。

## 2) 固化処理条件の検討

## (1) ペレット固化～セメントガラスペーストの注入性及び混練条件(表 7.10)

表 7.10 セメントガラスペーストの注入性及び混練条件

項目 固化材名	水/セメントガラス比	混練機回転数	サンプリング時間	測定項目
ペレット固化用 セメントガラス ペースト	① 0.30	初期 6 分間	① 6 分	① ペースト粘度
	② 0.33	: 90 rpm	② 10 分	② 固化体比重
	③ 0.36	6 分以降: 30 rpm	③ 15 分	③ 固化体強度
	④ 0.39	サンプリング前 1 分間: 90 rpm	④ 35 分 ⑤ 65 分	

## (2) 粉体固化～セメントガラス固化材/廃棄物の混合比及び混練条件

セメントガラス固化材/廃棄物の混合比及び混練条件は、水/セメントガラスと廃棄物充てん率により決まる。水/セメントガラス比を変化させ、廃棄物充てん率と固化体一軸圧縮強度を測定する。

固化体は、 $\phi 28 \times 50$  H で、 $35^\circ\text{C}$  で 14 日養生後に物性測定する。

## (3) 硬化養生条件

固化体の養生条件による硬化特性(硬度の経時変化)を把握し、適切な養生条件を確立するために、養生温度、養生期間を変化させ固化体の硬度及び圧縮強度を測定する。

養生温度: 加温  $35^\circ\text{C}$ 、室温平均  $13^\circ\text{C}$

養生期間: 3, 7, 14, 28 日

測定項目: ショア硬度, 一軸圧縮強度

固化体サイズ:  $28 \phi \times 50$  H

## 3) 固化体物性測定

- ・ 外観観察
- ・ 比重
- ・ 硬度
- ・ 圧縮強度
- ・ 耐火性 …  $800^\circ\text{C}$  に保持したマッフル炉内に固化体を 30 分間入れ、外観、重量変化を測定
- ・ 耐水性 … イオン交換水に浸漬し外観観察
- ・ 浸出性 …  $20^\circ\text{C}$  のイオン交換水中に固化体を安全に所定時間浸漬し、浸出液中の Cs-134 の放射能濃度を測定し、又、銀シリカゲル固化体のみ浸出液中のヨウ素トレーサをヨウ素電極測定する。

- ・耐放射線性 … Co-60 の  $\gamma$  線を  $10^8$  Rad 照射し，強度及び重量変化の測定
- ・耐候性 … 耐候性促進試験機（ウェザーメータ）により温度  $20^\circ\text{C}$  一定とし，約 3 時間／サイクルで，相対湿度を 90 % から 35 % に変動させ，計 20 サイクル繰返し，固化体の外観，圧縮強度，重量変化の測定

なお，試験に使用した固化体の寸法を図 7.1 に示す。

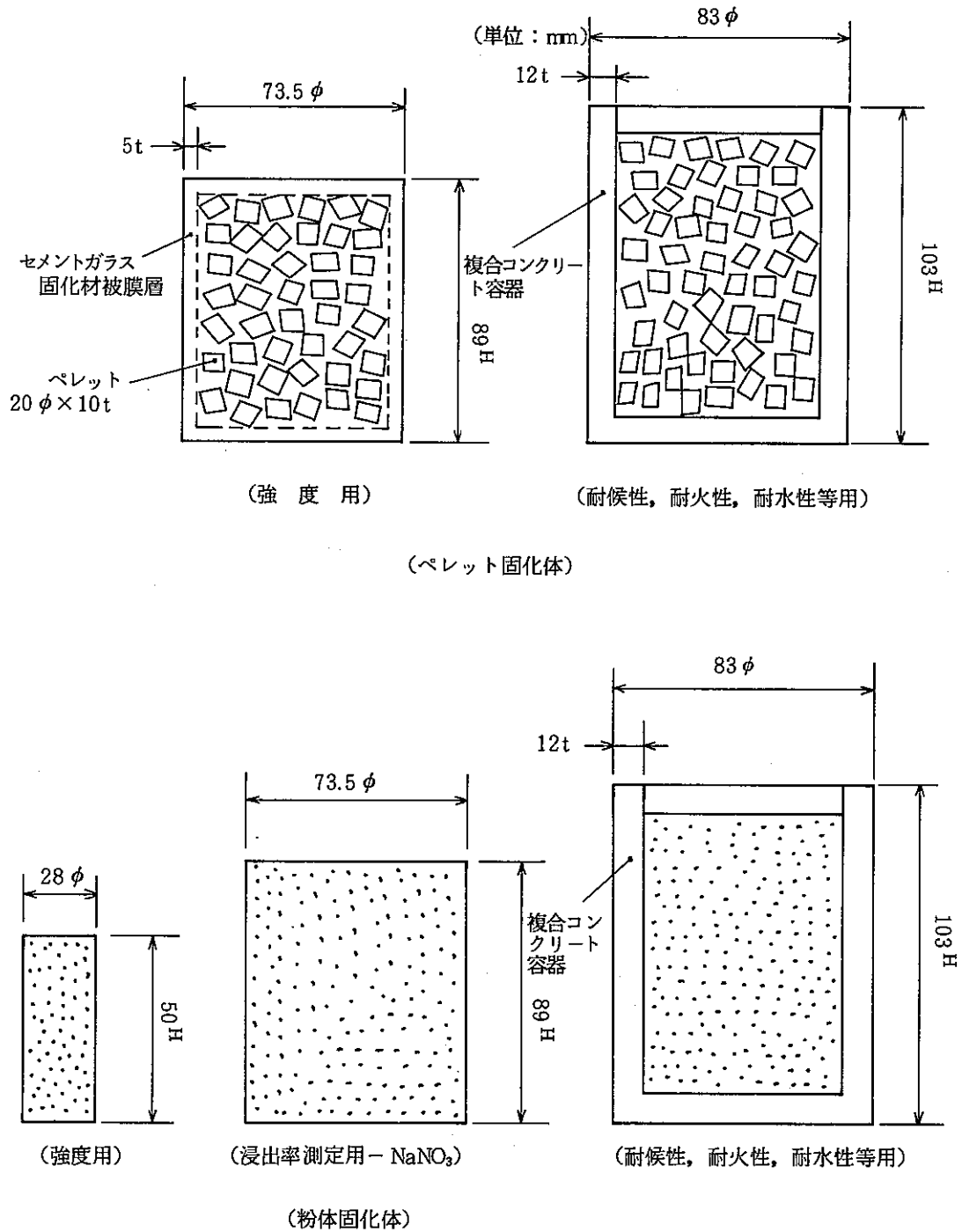


図 7.1 ペレット固化体，粉体固化体の寸法

## 7.2.2 試験結果及び考察

## 1) 固化処理条件の検討

## ① ペレット固化時のセメントガラスペーストの注入性：

ペーストの粘度 13,000 cP ではドラム高さを模擬した 850 mmH の円筒管底部まで注入できなかったが 10,000 cP では注入できたので 10,000 cP が上限粘度と考えられる。

## ② ペレット固化時のセメントガラスペーストの混練性：図 7.2

水/セメントガラス比が高くなるほどペーストの粘度が下がり、注入性が良くなるが、逆に、固化体の比重及び圧縮強度が低下した。又、水/セメントガラス比が 0.30 の場合にのみ混練時間に対しペースト粘度の上昇が認められたが、65 分間混練でも粘度が約 6,700 cP と低いので、攪拌上問題はない。

今回試験した範囲 (0.30 ~ 0.39) 内では、ブリージング水の発生やペレットの膨張、クラックの発生は認められなかった。

## ③ 粉体固化時の廃棄物/セメントガラス固化材混合比 (廃棄物充てん率) とセメントガラス固化材の混練性

焼却灰粉体固化時の水/セメントガラス比と廃棄物充てん率及び固化体の圧縮強度の関係を図 7.3 に示す。

参考までに銀シリカゲル粉体、ドデカン浸漬シリカゲル粉体及び硝酸ナトリウム粉体類の固化時の同様な関係を図 7.4 に示す。

水/セメントガラス比を高くすると、粘度が下がるため廃棄物の充てん率は上昇するものの逆に固化体の圧縮強度が低下し、ペレット固化時と同様な傾向がみられる。実用化をめざした固化処理条件の選定に当っては固化体が一定程度以上の機械的強度を満足すれば、できるだけ廃棄物の充てん率が高くなる様にすべきである。

これらの図より、焼却灰粉体固化時には水/セメントガラス比が 1.0 の場合、廃棄物充てん率 43 % である。若干ブリージング水 (0.03 w/o) の発生が認められた。

なお、ヨウ素吸着剤 (銀シリカゲル) の粉体固化時には、水/セメントガラス比 0.5 の場合、廃棄物充てん率 40 % である。

一方、ドデカン浸漬シリカゲル粉体固化時には水/セメントガラスを 0.2 と下げても廃棄物充てん率が約 22 % と低すぎるし、0.3 の場合、廃棄物充てん率は約 35 % と高くなるものの圧縮強度が約 20 kg/cm<sup>2</sup>G と非常に低くなり、ドデカン浸漬シリカゲルはもはやセメントガラス固化法の固化対象物から除外すべきことがわかった。

硝酸ナトリウム粉体固化時には、ヨウ素吸着剤粉体固化時とほぼ同一の傾向を示し、セメント固化体の海洋投棄基準 150 kg/cm<sup>2</sup>G 以上を満足させるには、水/セメントガラス比を 0.5 とし、廃棄物充てん率 45 % とすれば良いことがわかる。



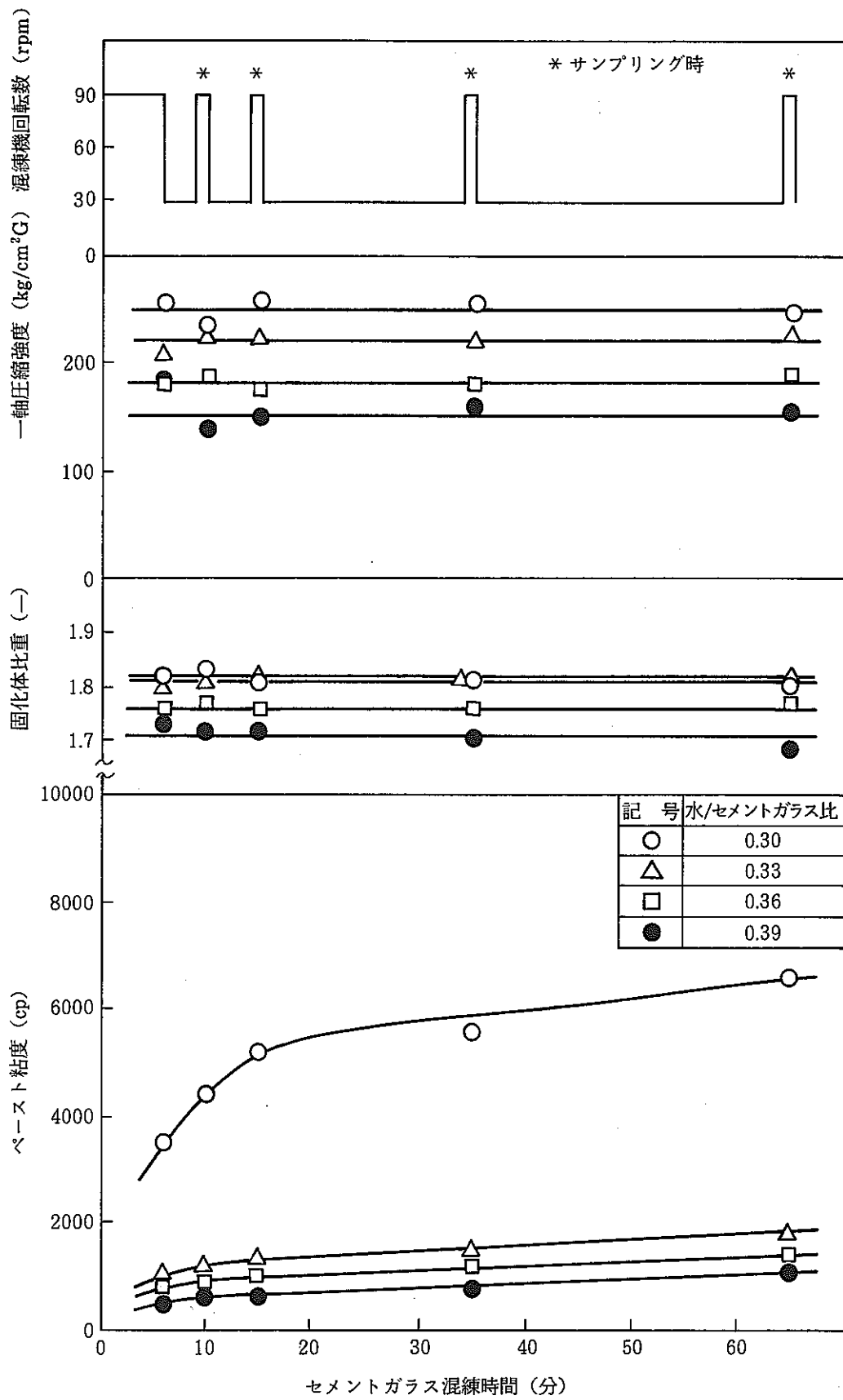


図7.2 セメントガラスペースト混練試験結果

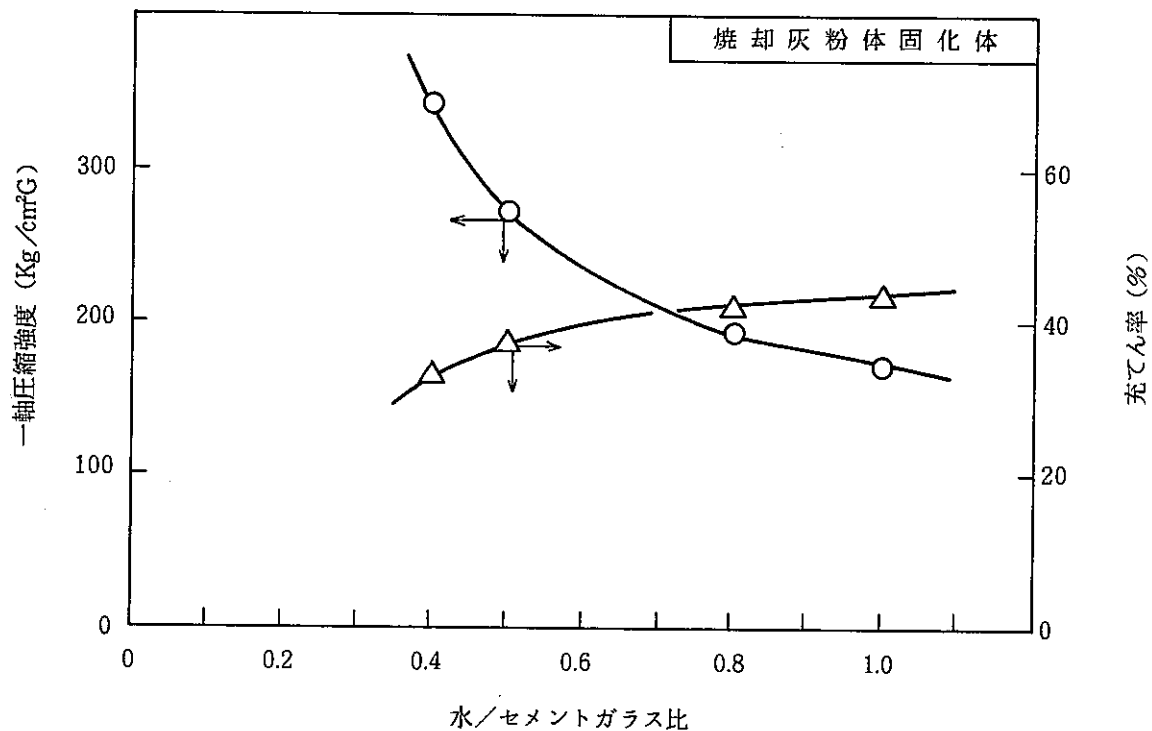


図 7.3 水/セメントガラス比と一軸圧縮強度および充填率の関係～焼却灰粉体固化体

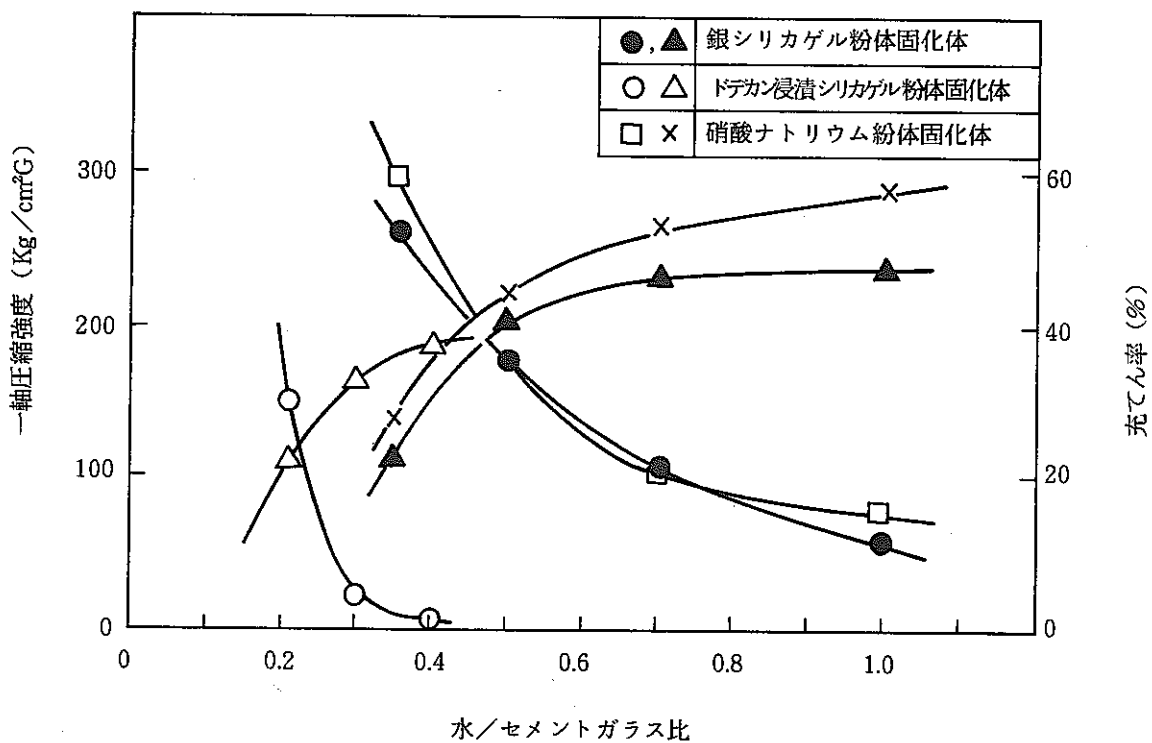


図 7.4 水/セメントガラス比と一軸圧縮強度および充填率の関係～銀シリカゲル粉体固化体、ドデカン浸漬シリカゲル粉体固化体及び硝酸ナトリウム粉体固化体～

#### ④ 養生条件と固化体の硬度及び圧縮強度

ペレット固化用セメントガラス固化体の養生温度、養生期間と固化体の硬度及び圧縮強度との関係を図 7.5 に示す。加温（35℃）養生条件の方が室温（13℃）より硬化反応が迅速に進行するため早く平衡値に到達するが、1週間後には室温でもほぼ平衡値に近づき、2週間で平衡値（硬度 80、圧縮強度 200 kg/cm<sup>2</sup>G）に到達する。したがって、室温下でも十分硬化は可能である。

焼却灰の粉体固化体に関しては加温での養生時には1週間以降の固化体の硬度及び圧縮強度がペレット固化用セメントガラス固化体と同一値を示した。一方、室温での養生時には、固化体の圧縮強度が加温時の7割にとどまるものの28日養生後の圧縮強度は約150 kg/cm<sup>2</sup>Gあり、室温下でも十分硬化は可能である。

なお、ヨウ素吸着剤粉体固化体も焼却灰粉体固化体とほぼ同一の傾向を示しており、室温下、28日養生後の圧縮強度は約140 kg/cm<sup>2</sup>Gあり、室温下でも十分硬化が可能である。

一方、硝酸ナトリウム粉体固化体はペレット固化用ガラス固化体とほぼ同一の傾向を示し、室温下14日養生後の圧縮強度は約190 kg/cm<sup>2</sup>Gあり、室温下でも硬化が可能である。

## 2) 固化体物性評価

固化体物性測定結果を取りまとめ表 7.11 に示す。

- ① 焼却灰、ヨウ素吸着剤（AgS）及び硝酸ナトリウム溶液のペレット固化時のセメントガラス固化体及び粉体固化時のセメントガラス固化体に関しては、水/セメントガラス比を適切に選定することにより、いずれも比重はセメント固化体海洋投棄基準値 1.2 より大きく、圧縮強度もセメント固化体海洋投棄基準値 150 kg/cm<sup>2</sup>G より大きかった。
- ② 耐火性に関しては、廃棄物の種類及びペレット固化・粉体固化を問わず、重量減少は約 10% 弱で、内容物の飛散もなく試験後の運搬が可能であった。
- ③ 浸出性に関しては、硝酸ナトリウムペレット及び粉体、焼却灰粉体等の固化体の Cs-134 浸出特性及びヨウ素吸着剤粉体固化体のヨウ素溶出特性を図 7.6 に示す。複合コンクリート容器入りの硝酸ナトリウムペレット及び硝酸ナトリウム粉末の両個体は16日浸出後でも浸出比は約 10<sup>-5</sup> 一定であり、有意差が認められなかった<sup>(注)</sup>。一方、複合容器に入れない裸のままの硝酸ナトリウムの粉末固化体の場合、16日浸出後の浸出比は約 10<sup>-1</sup> であった。これより複合容器自体で浸出率を 10<sup>-3</sup> に大きく低減化していることがわかる。

又、複合容器入りの焼却灰粉体固化体も硝酸ナトリウム粉体固化体とほぼ同一の浸出比を示したことより、焼却灰のペレット固化体も、焼却灰粉体固化体と同一浸出比を示すものと考えられる。

(注) 浸出比を浸出率に換算すると、Cs-134 ~ 約 10<sup>-6</sup> g/cm<sup>2</sup>・日、Co-58 ~ 約 10<sup>-7</sup> g/cm<sup>2</sup>・日 となるという<sup>66)</sup>。

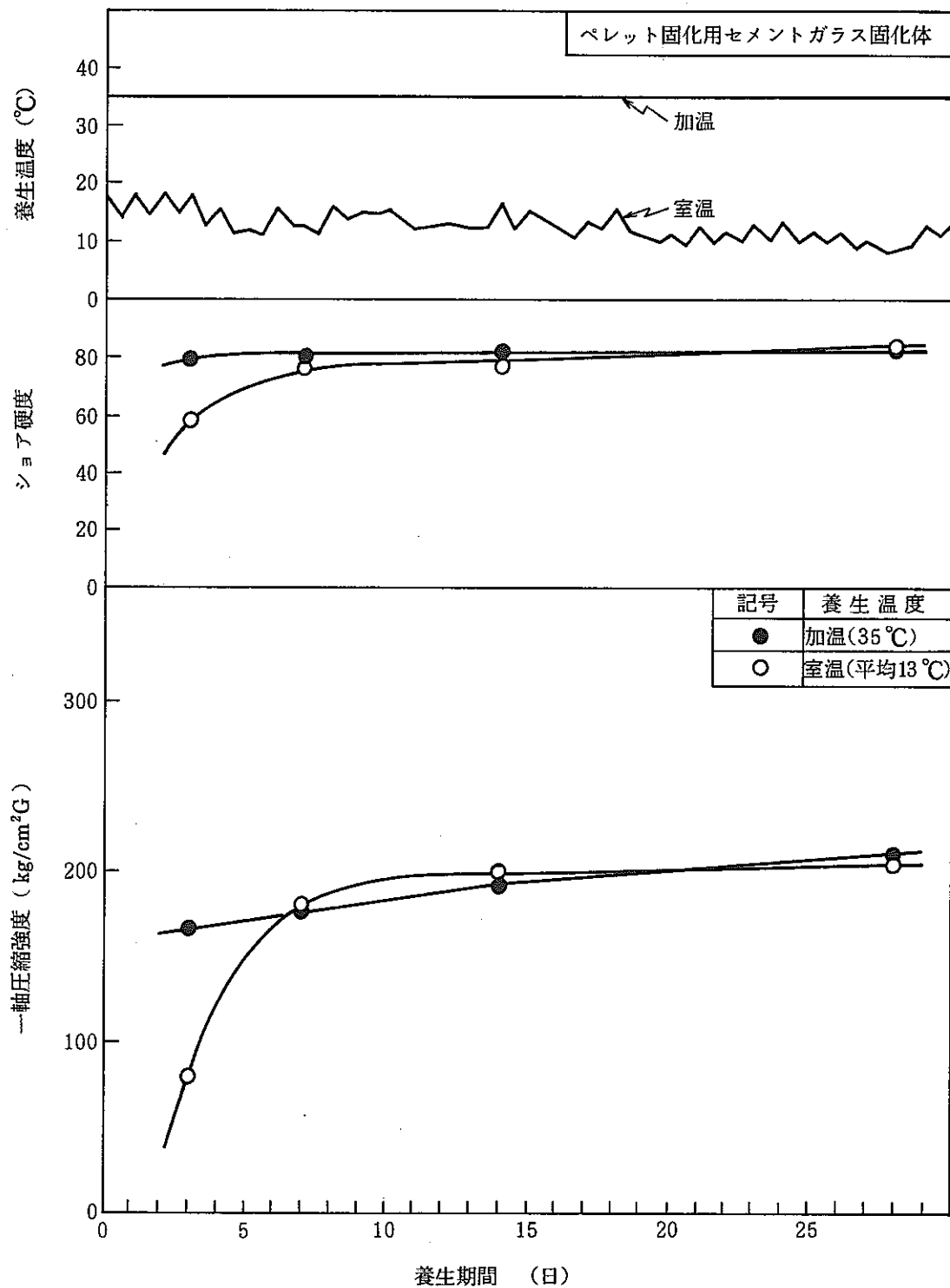


図 7.5 ペレット固化時のセメントガラス固化体の養生温度・期間とショア硬度・一軸圧縮強度の関係

試験項目		廃棄物 焼却灰	使用済ヨウ素 吸着剤 (AgS)	シリカゲル (n-ドデカン浸漬)	濃縮廃液 (NaNO <sub>3</sub> )	総合評価	
ペレット 固化体	充填量 (kg/172ℓ)	147	111	84	212	減容性良好 200ℓ実充填試験要	
	比重 (小規模)	1.78	1.52	1.41	1.87	セメント固化体海洋投 棄基準値1.2より大	
	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)	水/セメントガラス比 = 0.33 180	水/セメントガラス比 = 0.33 158	水/セメントガラス比 = 0.33 172	水/セメントガラス比 = 0.33 168	セメント固化体海洋投 棄基準値150kg/cm <sup>2</sup> G より大	
	耐火性 (800℃ 30分)	—	—	—	内容物飛散せず 運搬可能	良好 200ℓ規模耐火試験実施要	
	耐水性	耐水性	—	—	—	浸漬16日 外観変化なし	継続してdata up必要 浸漬日数すくないが良 好
		浸出比 (16日後)	—	—	—	< 1×10 <sup>-5</sup> (複合コンクリート容器入)	結果良好 継続してdata up必要
	耐候性	—	—	—	20サイクル後 外観変化なし	継続してdata up必要 サイクル数すくないが 良好	
耐放射線性	10 <sup>8</sup> R照射 異常なし	10 <sup>8</sup> R照射 外観異常なし 約30% 強度低下	—	10 <sup>8</sup> R照射 異常なし	良好 但しAgS造粒 バインダさらに検討要		
粉体 固化体	充填量 (kg/172ℓ)	127	103	65	143	減容性良好 200ℓ混練試験要	
	比重 (小規模)	水/セメントガラス比 = 1.0 1.73	水/セメントガラス比 = 0.5 1.50	水/セメントガラス比 = 0.2 1.66	水/セメントガラス比 = 0.5 1.85	セメント固化体海洋投 棄基準値1.2より大	
	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)	水/セメントガラス比 0.80 : 192 水/セメントガラス比 0 : 172	水/セメントガラス比 0.50 : 175 水/セメントガラス比 0.70 : 105	水/セメントガラス比 0.20 : 150 水/セメントガラス比 0.30 : 25	水/セメントガラス比 0.35 : 290 水/セメントガラス比 0.50 : 180	水/セメントガラス比の 選定により150kg/cm <sup>2</sup> G 以上となる	
	耐火性	内容物飛散せず 運搬可能	内容物飛散せず 運搬可能	—	—	良好 200ℓ規模耐火試験実 施要	
	耐水性	耐水性	浸漬16日 外観変化なし	浸漬16日 外観変化なし	—	浸漬16日 外観変化なし	継続してdata up必要 浸漬日数すくないが良 好
		浸出比 (16日後)	1.6×10 <sup>-5</sup> (複合コンクリート容器入)	1.8×10 <sup>-5</sup> (複合コンクリート容器入)	—	< 1×10 <sup>-5</sup> (複合コンクリート容器入) 9×10 <sup>-2</sup> (容器なし)	継続してdata up必要 NaNO <sub>3</sub> 容器なし セメント固化体よりや や良好
	耐候性	20サイクル後 外観変化なし	20サイクル後 外観変化なし	—	20サイクル後 外観変化なし	継続してdata up必要 サイクル数すくないが 良好	
耐放射線性	10 <sup>8</sup> R照射 異常なし	* 10 <sup>8</sup> R照射 外観は異常ないが約30 %強度低下	—	10 <sup>8</sup> R照射 異常なし	良好 但しAgS造粒 バインダさらに検討要		

\* AgSのみ造粒時のバインダが異なる。(メチルセルロース・ヒドロキシプロピルメチルセルロース)

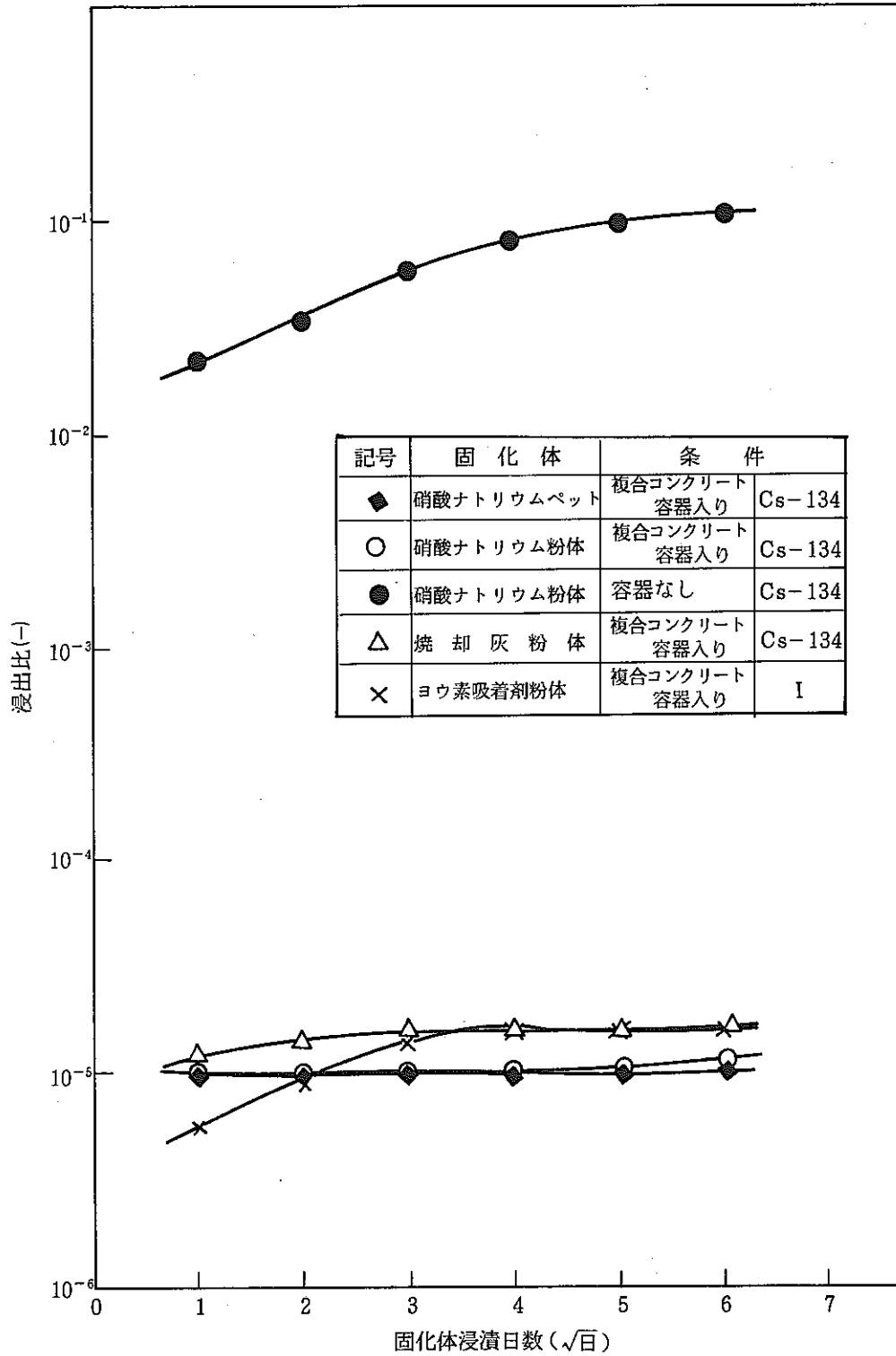


図 7.6 ペレット固化体及び粉体固化体の浸出特性

なお、ヨウ素吸着剤粉体固化体は焼却灰粉体及び硝酸ナトリウム粉体の固化体と同一の浸出比を示した。

今後、長期にわたる浸出試験が必要と考えられるが、複合容器自体の厚さが浸出防止に大きな役割を果たしており、長期にわたる浸出試験をしても上記浸出比とほぼ変わらぬ浸出比となるものと推定される。

- ④ 耐放射線性に関しては、 $10^8$  Rad 照射してもペレット用セメントガラス、焼却灰ペレット、硝酸ナトリウムペレット共にほとんど重量変化、圧縮強度の変化は認められなかったが、ヨウ素吸着剤 (AgS) ペレットのみ、重量1%減少、圧縮強度約30%減少した。これはAgSをペレット化するのに使用したバインダ (メチルセルロース・ヒドロキシプロピルメチルセルロース) が分解した可能性もあり、再試験での確認が必要と考えられる。

⑤ 耐候性

20サイクル後でも固化体にクラック、膨張等の異常は認められず、健全性を保持していた。又、重量変化もほとんど認められなかった。

3) ペレットの長期貯蔵安定性について

堀内らはBWR濃縮廃液 (主成分  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ) を遠心薄膜乾燥した粉末のペレットを室内雰囲気下で放置し、経過時間とペレットの含水率及び圧潰強度の関係について試験し、その結果3年以上にわたりペレットの含水率が約15%及び圧潰強度も約  $120\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$  と一定であったのでペレットの長期安定性が確認されたと報告している<sup>10)</sup>。

一方、動燃事業団は、高速炉燃料の再処理に伴ない硝酸ナトリウム廃液が発生するが、その模擬廃液を遠心薄膜乾燥後ペレット化し、そのペレットに関し長期貯蔵安定性について試験し、相対湿度を70%以下の雰囲気に保持すれば、約80日間潮解が生ぜず、ペレットは安定であることを確認している<sup>61)</sup>。

相対湿度70%で約80日間保持後のペレットは約1%の重量増がみられた (図7.7)。

この様に乾燥粉体をペレット化後 (ただし吸湿性の粉体は除く)、室温下における湿度管理に十分留意すれば、ペレットをさらに固化せず一時期貯蔵する (すなわち、中間貯蔵する) ことも、意味のあることである。処分に関する国の基準の確定までかなり長期を要し、かつ発生廃棄物量が多い場合にはこの様な中間貯蔵方式をとることも民間では考えられる。動燃事業団においては、各種の技術開発が大切であり、発生廃棄物量もそれほど多くないので、中間貯蔵方式をとらず直接ペレットを固化体にかためてしまうべきであろう。

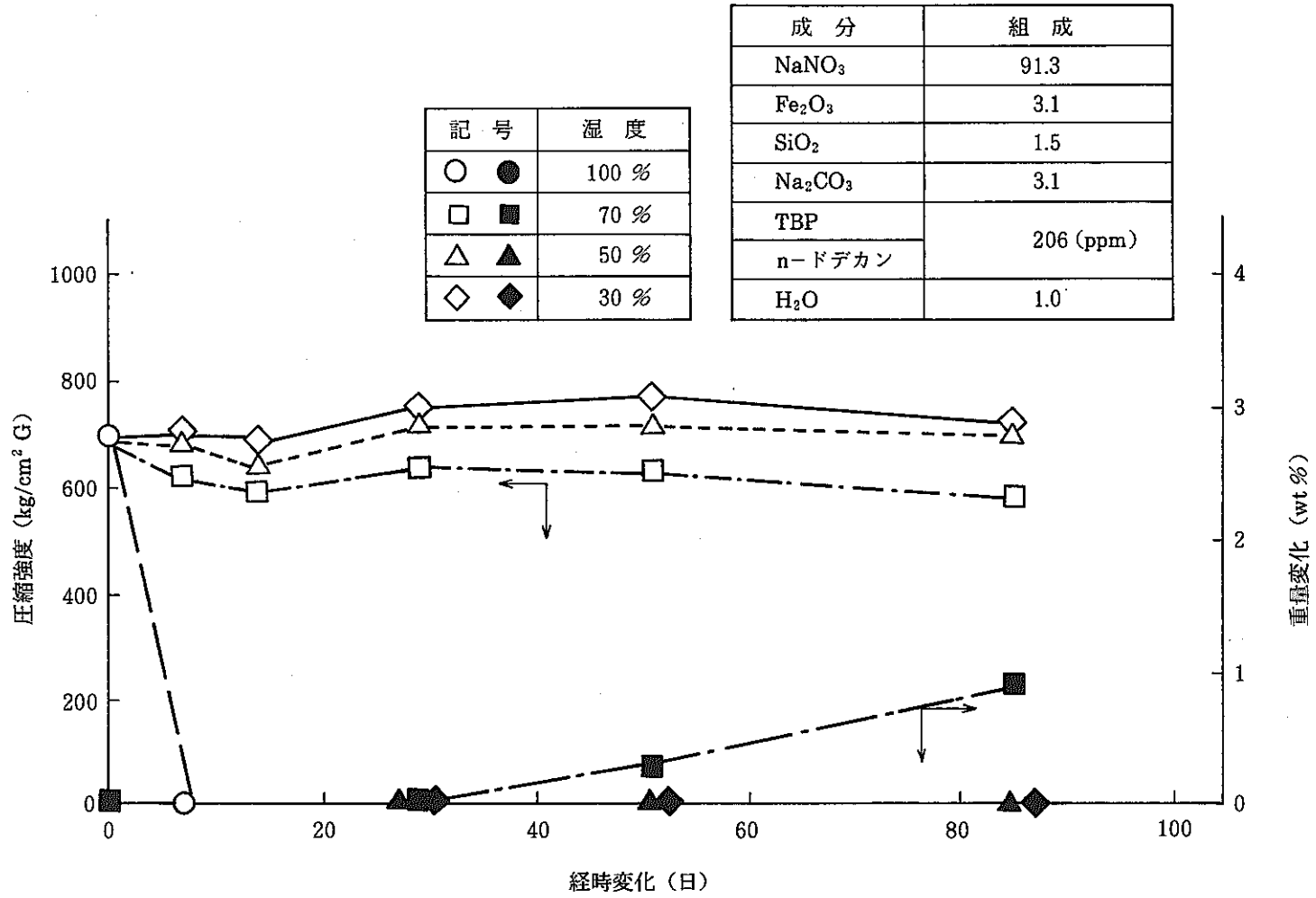


図 7.7 一定湿度雰囲気条件での硝酸ナトリウムペレット物性の経時変化(軸方向)<sup>61)</sup>



## 4) セメントガラス固化装置の焼却施設内への設置について

焼却施設では将来、焼却灰固化装置が必要に応じ設置できる様に1階に予備室を配置した設計となっている。この予備室内に設置する構想で検討した焼却灰ペレットのセメントガラス固化装置の概要を以下に示す。

## 〔前提条件〕

- ・ 固化設備能力は、焼却施設からの焼却灰（26kg／日発生）に、既設焼却炉からの焼却灰（累積貯蔵量約7.0t、200ℓドラム約130本分相当）も、併せて固化処理することとし、かつ固化処理装置規模が適切なサイズにおさまり、かつ既設焼却炉からの焼却灰は約7年程で全量固化できる様な処理能力となる様に配慮する。
- ・ 焼却灰収納ドラムは、既設焼却炉のものはドラム渡しで、焼却施設のものはドラム渡し又は隣室の焼却灰受槽よりスクリーコンベアで直接焼却灰渡しで受け入れる。
- ・ 電気、冷却水、プロセスオフガス及びプロセス排液は焼却施設側で負担する。
- ・ スペース 約7×7×6 mH、床荷重 1 ton/m<sup>2</sup>

## 〔設備能力〕

焼却灰ペレットの造粒能力：41 kg／回，1回／2日，1日～6時間運転

固化能力：147 kg／回（83ℓ／回），1回／7日

（必要養生期間：2日間コンベア上静置養生）

〔フローシート〕 省略（図6.9参照）

〔主要機器概略仕様〕 表7.12参照

〔配置図〕 図7.8参照

表7.12 セメントガラス固化装置の主要機器概略仕様

No.	名 称	数 量	形 式	容 量	備 考
1	焼却灰計量タンク	1	縦形円筒	90ℓ	
2	バインダ投入タンク	1	同上	90ℓ	
3	造 粒 機	1	タブレット型	14kg/h	
4	固化材計量タンク	1	縦形円筒	180ℓ	
5	添加水計量タンク	1	同上	50ℓ	
6	混 練 タ ン ク	1	同上	200ℓ	攪拌機付
7	洗 浄 水 受 タ ン ク	1	同上	300ℓ	
8	洗 浄 水 タ ン ク	1	同上	600ℓ	ヒータ付
9	ド ラ ム 反 転 機	1	反転機構付リフト	—	
10	キャッピング装置	1	電動インパクトレンチ式ボルトじめ		

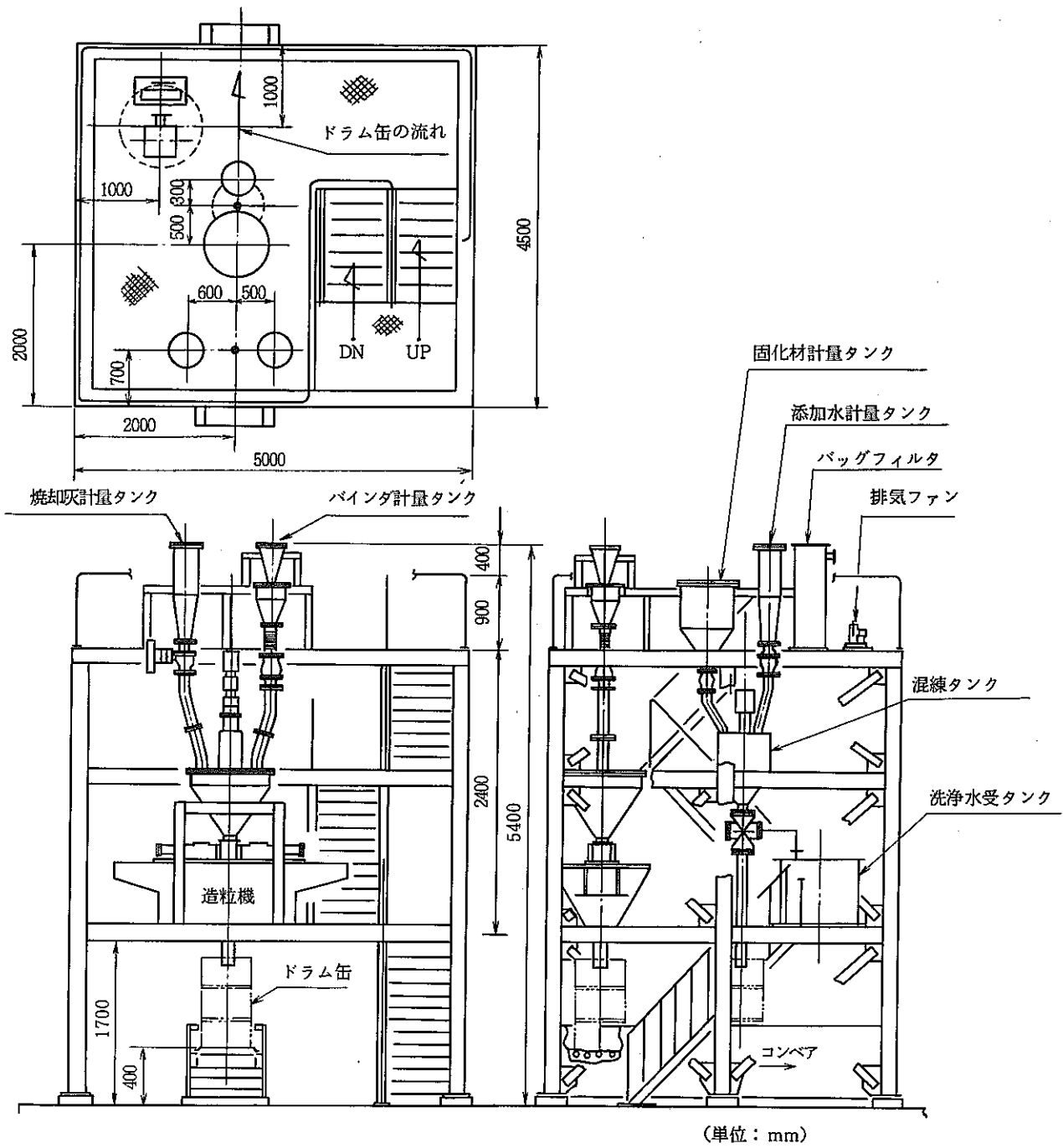


図 7.8 焼却灰セメントガラス固化装置の配置図例

5) 今後の技術開発課題

試験の結果、本法はドデカン浸漬シリカゲルを除き、焼却灰、ヨウ素吸着剤、硝酸ソーダ乾燥粉末の固化に適することがわかった。ドデカン浸漬シリカゲルに関しては、水熱固化の場合と同様に乾燥脱ドデカン処理すればヨウ素吸着剤同様に固化しうるものと考えられる。固化処理時の硬化反応熱はわずかで、固化体内部温度もほとんど上昇しないことから、反応熱の内部蓄積による熱応力の発生もほとんどないものと考えられる。したがって、200 ℓドラムサイズにスケールアップする上での問題点はない。既に、原子力発電所で実機が稼動中であり、再処理廃棄物対象とした実機の詳細設計を直ちに開始しうる段階にある。

今後の技術開発の課題は少なく、次の様な試験が課題である。すなわち、Ru-106 及び Co-60 トレーサーによる長期間にわたる固化体浸出試験、発生 H<sub>2</sub> 量を測定する耐放射線性試験（固化時に有機性バインダを約 20% 使用するため）及び固化体の完全無機化をめざした無機性バインダの開発試験が今後の技術開発の課題である。

### 7.3 水熱固化試験<sup>54)</sup>

本法は焼却灰の他、ヨウ素吸着剤、シリカゲル（クリプトン回収時のXe吸着用及び焼却処理時のRu吸着用）及びドデカン浸漬シリカゲル（廃溶媒処理時のドデカン精製用）の固化処理に有望とみられるので、これらの廃棄物を対象とした固化試験を実施した。

#### 7.3.1 試験の方法

合成焼却灰、ヨウ素吸着剤等の模擬廃棄物にアルカリ溶液又は粉末を添加し、さらに必要ならばバインダとして少量のSiO<sub>2</sub>等を添加し攪拌混合し、混合物を反応容器に入れ所定の温度及び圧力に一定時間保持し、水熱反応を行なわせる。次に所定の圧力を保持したまま一定時間冷却し室温まで降温させ、水熱固化体とし、その後降圧して容器より固化体を取り出す。試験は、固化処理条件を変えて適切な固化処理条件を選定し、次に、選定した条件下での固化試験を行ない、固化体物性について評価した。

##### 1) 廃棄物の調整

###### ① 合成焼却灰

生焼却灰にCa<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>及びCaOを添加して再処理焼却灰（合成焼却灰Ⅲ）を模擬合成した。

生焼却灰：主として廃木材及び紙類の焼却灰

生焼却灰の組成：SiO<sub>2</sub> 29 - Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 12 - Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 21 - CaO 7 - MgO - 4 - その他 23  
- 強熱減量 5 w/o

合成焼却灰：生焼却灰 85.5 - Ca<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> 12.8 - CaO 1.7 w/o

合成焼却灰の比重：0.59

合成焼却灰の粒度分布：0.50 - 0.15 mmにピーク（52 w/o）

###### ② ヨウ素吸着剤

Ag X (IONEX Ag-400) 及びヨウ素の結晶を三角フラスコに入れ、70℃の振とう恒温槽につけAg Xにヨウ素を吸着させた。

ヨウ素吸着後のAg Xの比重：1.22

Ag Xのヨウ素吸着量：0.140 g-I<sub>2</sub>/g-Ag X

###### ③ シリカゲル

富士デビソン社製シリカゲルFD-01（2.4～4.8 mmφ）及びRD（1.4～2.4 mmφ）を6：4に混合後、粉碎し0.07～0.125 mmφにピークある様に粒度調整したもの。

###### ④ ドデカン浸漬シリカゲル

富士デビソン社製マイクロビーズ3Aシリカゲル（0.1～0.3 mmφ）5 kgにドデカンを3 kg 加え24時間放置後、0.15 mmのフルイに乗せドデカン切り後、恒温槽中に80℃×24 hr 置き乾燥処理したもの。ドデカン含有量 5.2 w/o。

## 2) 試薬類

- ① 焼却灰固化には、水熱反応時における $\text{SiO}_2$ の溶解を促進させるために5 N NaOH溶液を添加する。固化体の圧縮強度を増大させるために $\text{SiO}_2$ 粉末を必要ならばバインダとして添加する。
- ② Ag X 固化には、ビーズ状のAg XはNaOH溶液と混練するとビーズの破碎が懸念されるため結晶水中に適度な結晶水を有する $\text{Ba}(\text{OH})_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ を添加する。同様に必要ならばバインダとして $\text{SiO}_2$ 粉末を使用する。
- NaOH,  $\text{Ba}(\text{OH})_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{SiO}_2$ 粉末: いずれも市販品試薬
- ③ シリカゲル固化には、 $\text{H}_2\text{O}$ やNaOH溶液だけの添加では、良好な固化体が得られるものの、SUS製の反応容器自体が触媒として作用し、固化体と著しく接合してしまい反応容器から固化体だけを取り出すのが難しいと懸念される。そこでこの様な懸念のない $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 粉末と水を添加する。バインダ含有時の効果をみる場合には $\text{SiO}_2$ 粉末をさらに添加する。
- ④ ドデカン浸漬シリカゲル固化には、シリカゲル固化時と同様に $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 及び水を添加する。バインダ含有時の効果をみる場合には、 $\text{SiO}_2$ 粉末をさらに添加する。

## 2) 固化装置及び運転モード 図 7.9

## 3) 固化処理条件の検討

表 7.13 の様にパラメータをふった固化試験を行ない、固化体の密度、圧縮強度、浸出率を測定し、優れた物性をうるための固化処理条件を選定する。

## 4) 固化体物性評価試験

選定した固化条件で、固化体を作り、その固化体の物性を測定し、詳細に評価する。

## (1) 選定した固化条件

- ① 焼却灰:  $300^\circ\text{C}$ ,  $350\text{ kg/cm}^2\text{G}$ , 5 N NaOH 100 cc/kg 添加, バインダなし  
 焼却灰:  $300^\circ\text{C}$ ,  $350\text{ kg/cm}^2\text{G}$ , 5 N NaOH 100 cc/kg 添加, バインダ25w/o 添加  
 (注) 浸出試験用焼却灰には固化に先立ち $\text{RuO}_2$  2 w/o,  $\text{CsNO}_3$  2 w/o 添加した。
- ② ヨウ素吸着Ag X:  $250^\circ\text{C}$ ,  $350\text{ kg/cm}^2\text{G}$ ,  $\text{Ba}(\text{OH})_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$  200 g/kg 添加, バインダなし
- ③ シリカゲル:  $300^\circ\text{C}$ ,  $350\text{ kg/cm}^2\text{G}$ ,  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  500 g/kg 添加  
 水 200 cc/kg 添加, バインダなし
- ④ ドデカン浸漬シリカゲル:  $350^\circ\text{C}$ ,  $350\text{ kg/cm}^2\text{G}$ ,  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  500 g/kg 添加,  
 水 100 cc/kg 添加, バインダなし

(注) シリカゲル及びドデカン浸漬シリカゲルには浸出試験用として固化に先立ち $\text{Ru}(\text{OH})_3$  2 w/o,  $\text{CsNO}_3$  2 w/o 添加した。

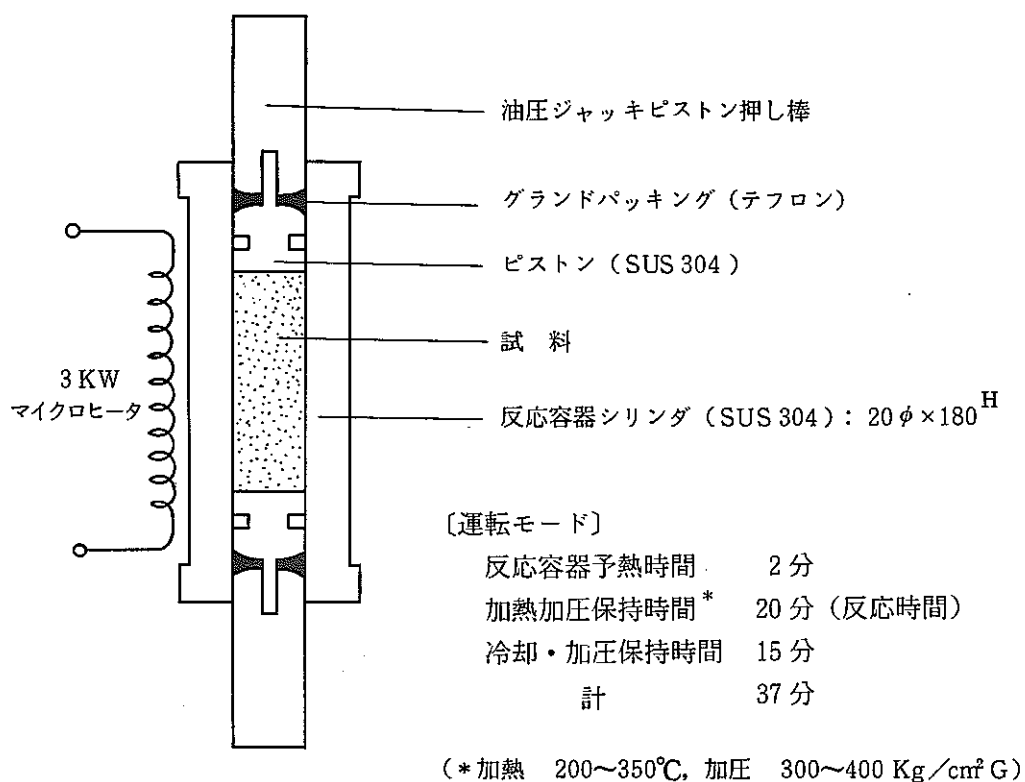


図 7.9 水熱固化基礎試験装置及び運転モード

表 7.13 固化処理対象物と固化処理条件

	焼 却 灰	ヨウ素吸着 Ag X	シリカゲル	ドデカン浸漬シリカゲル
アルカリ添加量	5 N NaOH 100 cc/kg 粉末 (一律に粉末の 10%)	Ba (OH) <sub>2</sub> · 8 H <sub>2</sub> O 100, 200, 300 g/kg 粉末	Ca (OH) <sub>2</sub> 10, 33.3, 50 w/o	Ca (OH) <sub>2</sub> 10, 33.3, 50 w/o
水 添 加 量 (cc/kg)	—	—	200	66.7, 200, 333
バインダ添加量 (w/o)	0, 25, 50	0, 25, 50	0, 33.3	0, 10, 33.3
圧 縮 圧 力 (kg/cm <sup>2</sup> )	300, 350, 400	300, 350, 400	300, 350, 400	300, 350, 400
反 応 温 度 (℃)	200, 250, 300, 350	200, 250, 300	200, 250, 300, 350	250, 300, 350
反 応 時 間 (分)	20	20	20	20

## (2) 固化体物性測定

- 外観観察
- 比 重
- 圧縮強度
- 浸 出 性

IAEA 法

45 φ × 44 H の固化体を 750 ml の浸出水中に浸漬した。

最初の 1 週間毎日、その後 3 週間は毎週浸出液を交換、28 日間浸漬し、浸出液の交換を原子吸光分析法により測定

&lt;固化体の種類&gt;

&lt;測定核種&gt;

焼却灰

～Ru, Cs, Si, Na

ヨウ素吸着 Ag X

～I, Si, Ba, Ag

シリカゲル

～Si, Ca

ドデカン浸漬シリカゲル

～Ru, Cs, Si, Ca

- 耐 熱 性 400 °C, 800 °C の電気炉内に 30 分間固化体を置き、寸法・重量、圧縮強度を測定、一部示差熱分析した。
- 耐放射線性 20 φ × 12.5 H の固化体に Co-60 の  $\gamma$  線を  $10^7$  及び  $10^8$  Rad 照射し、外観、圧縮強度を測定
- 耐 候 性 耐候性促進試験機により約 24 時間/サイクルで、温度 50 °C から -20 °C に変動させ、計 7 サイクル及び 28 サイクル繰返し、固化体の外観、寸法、重量、圧縮強度を測定

## 7.3.2 試験の結果及び考察

## 1) 固化処理条件の検討

焼却灰、ヨウ素吸着 Ag X、シリカゲル及びドデカン浸漬シリカゲルの固化処理条件と固化体の圧縮強度の関係をそれぞれ図 7.10 ～図 7.13 に示す。同様に、焼却灰、ヨウ素吸着 Ag X、シリカゲル及びドデカン浸漬シリカゲルの固化処理条件と固化体の浸出率との関係をそれぞれ図 7.14 ～図 7.17 に示す。

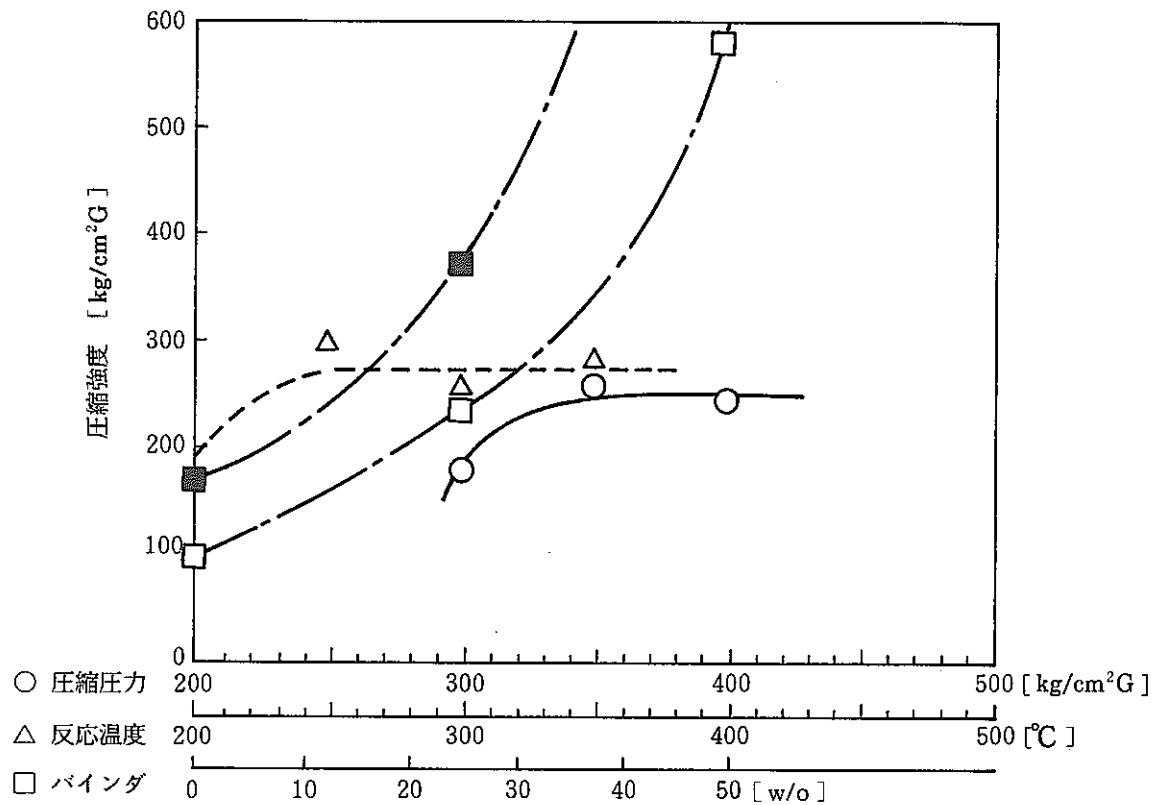
## (1) 比 重

焼却灰固化体の比重はバインダの添加量、圧縮圧力の増加と共に多少増大し、反応温度の上昇により多少減少する傾向を示すが 1.71 ～ 1.92 とあまり変わらない。

ヨウ素吸着 AgX 固化体の比重は、バインダの添加や他の固化条件の影響を受けず、ほぼ 2.0 一定である。

シリカゲル固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体は、バインダ添加量とともに多少増大するが、他の固化条件の影響を受けずほぼ 1.0 一定である。

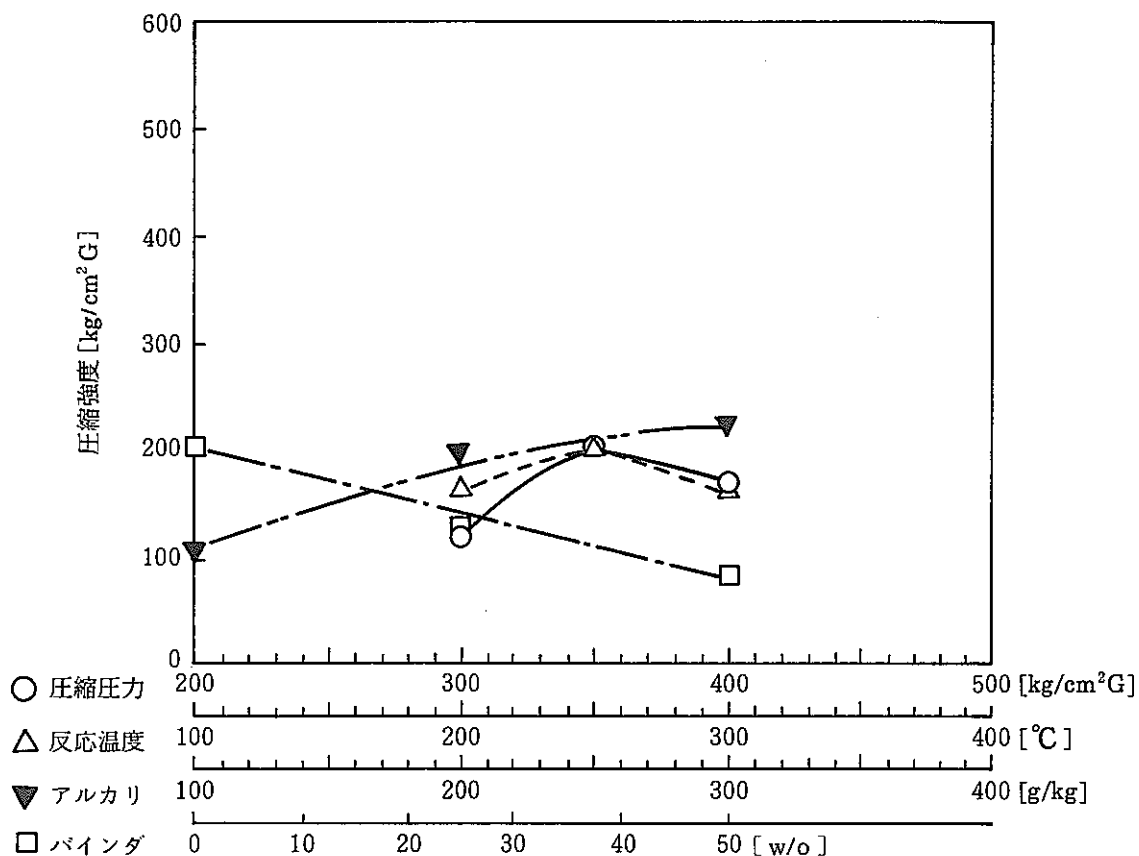




〈 固化処理条件 〉

記号	圧力 kg/cm <sup>2</sup> G	温度 °C	バインダ w/o	アルカリ	cc/kg
○	-	300	0	5 N-NaOH	100
△	350	-	0	5 N-NaOH	100
■	350	300	-	5 N-NaOH	100
□	350	300	-	1 N-NaOH	100

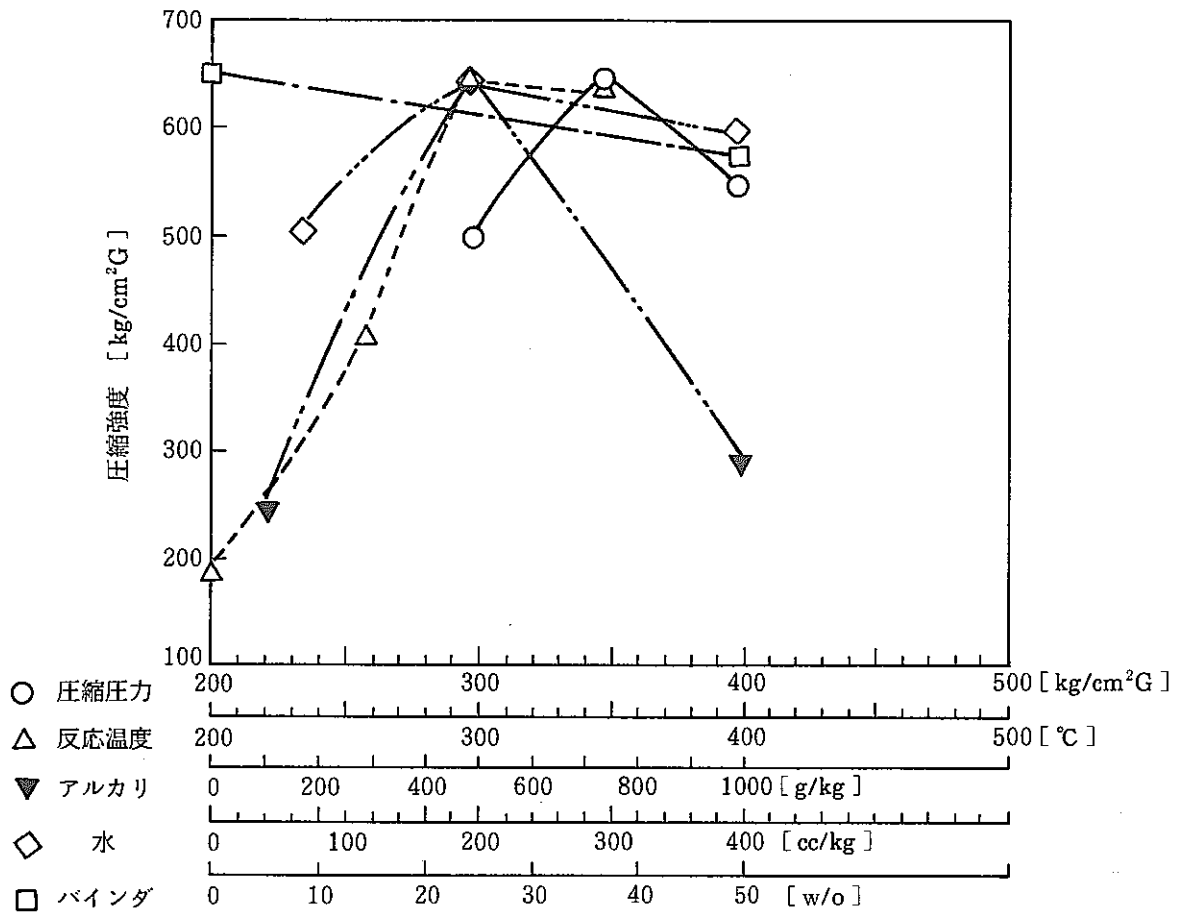
図 7.10 焼却灰の水熱固化条件と固化体の圧縮強度との関係



<固化処理条件>

	圧力 kg/cm <sup>2</sup> G	温度°C	アルカリ g/kg Ba(OH) <sub>2</sub> · 8 H <sub>2</sub> O	バインダ w/o
○	—	250	200	0
△	350	—	200	0
▼	350	250	—	0
□	350	250	200	—

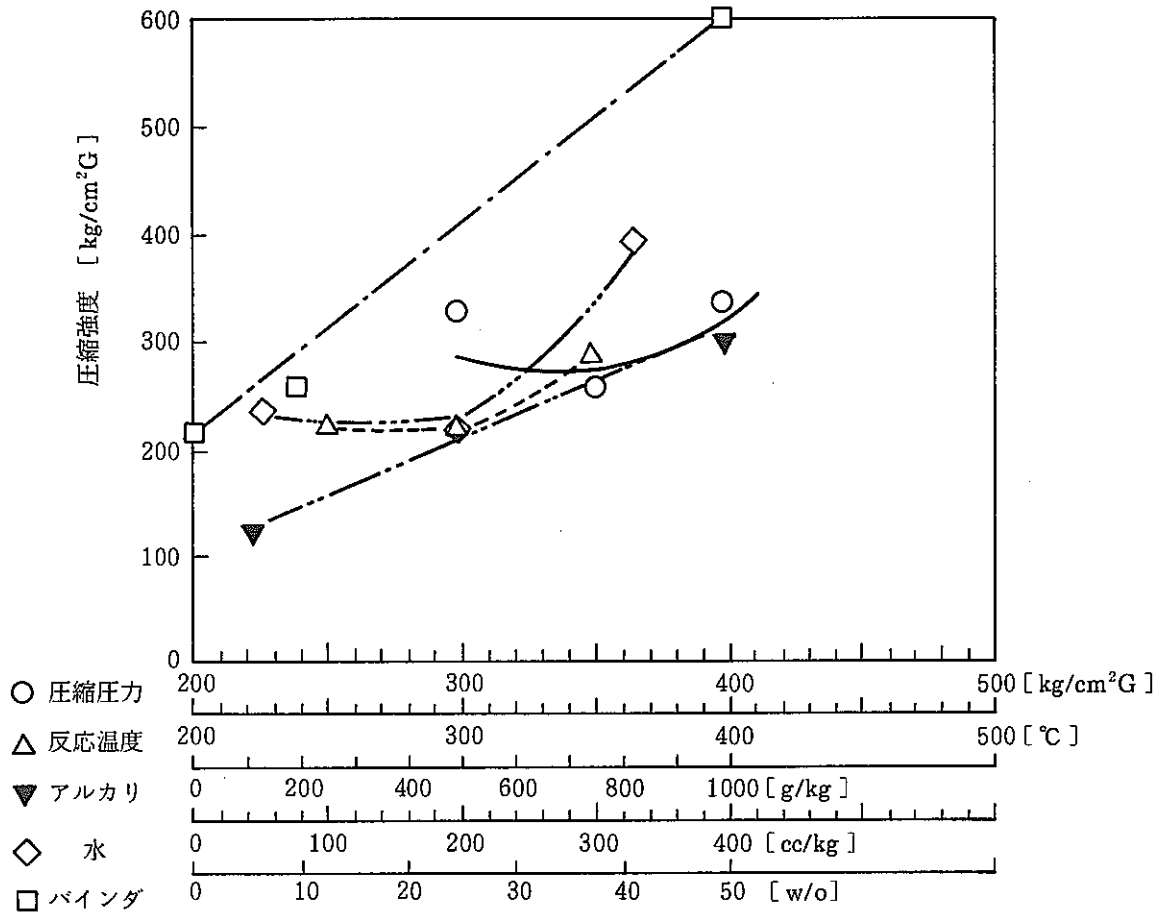
図 7.11 ヨウ素吸着 AgX の固化処理条件と固化体の圧縮強度との関係



〈 固化処理条件 〉

記号	圧力 kg/cm <sup>2</sup> G	温度 °C	アルカリ g/kg Ca(OH) <sub>2</sub>	水 cc/kg	バインダ w/o
○	-	300	500	200	0
△	350	-	500	200	0
▼	350	300	-	200	0
◇	350	300	500	-	0
□	350	300	500	200	-

図 7.12 シリカゲルの水熱固化処理条件と固化体の圧縮強度との関係



〈 固化処理条件 〉

記号	圧力 kg/cm <sup>2</sup> G	温度 °C	アルカリ g/kg Ca(OH) <sub>2</sub>	水 cc/kg	バインダ w/o
○	—	300	500	200	0
△	350	—	500	200	0
▼	350	300	—	200	0
◇	350	300	500	—	0
□	350	300	500	200	—

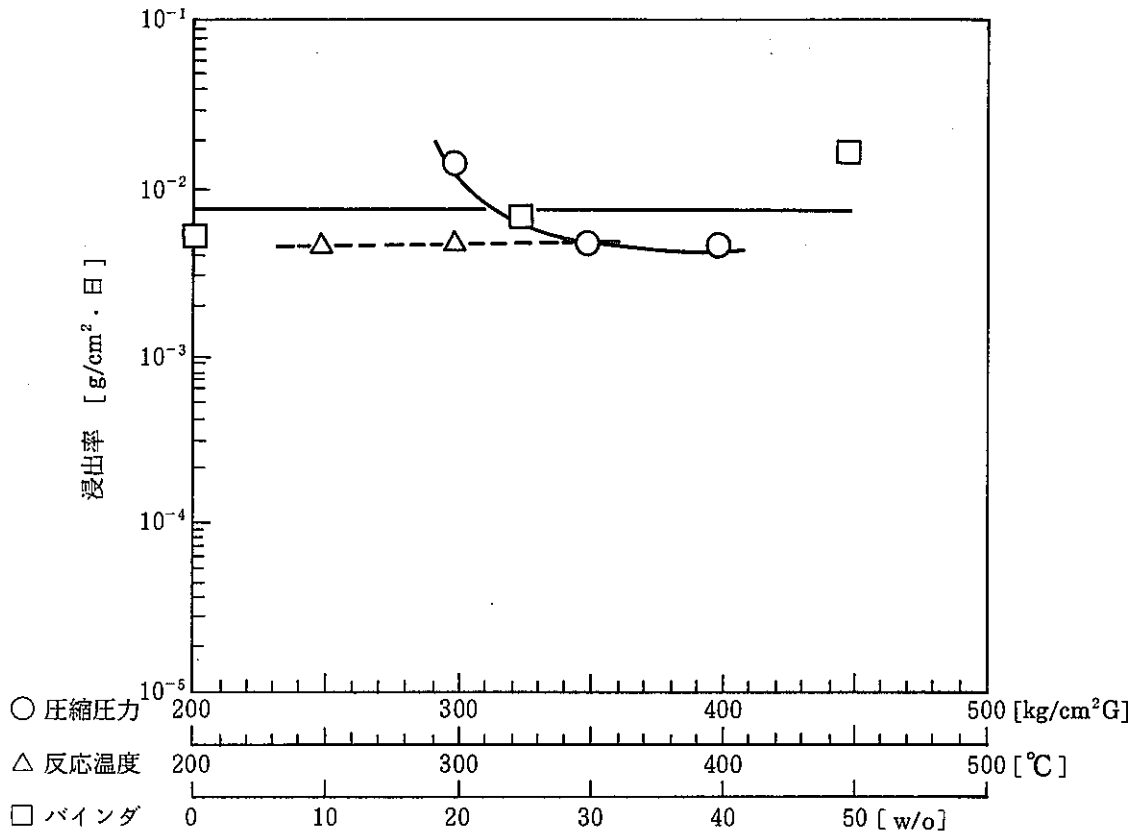
図 7.13 ドデカン浸漬シリカゲルの水熱固化処理条件と固化体の圧縮強度との関係

## (2) 圧縮強度

- ① 焼却灰固化体の圧縮強度は、圧縮圧力の増大に比例して増加してくるが、 $350\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$  以上ではほぼ一定となる。又、反応温度  $200\text{ }^\circ\text{C}$  の時には低いが  $250\text{ }^\circ\text{C}$  以上ではほぼ一定となる。バインダの添加により圧縮強度が著しく増大し、約  $25\text{ w/o}$  添加で倍増する。さらに  $\text{NaOH}$  溶液の濃度も  $1\text{ N}$  よりも  $5\text{ N}$  にすると圧縮強度がほぼ倍増する (図 7.10)。
- ② ヨウ素吸着 Ag X 固化体の圧縮強度は、アルカリの添加量に比例して増加し、バインダの添加量に逆比例し減少する。反応温度及び圧縮圧力が  $250\text{ }^\circ\text{C}$ 、 $350\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$  の時に最大となる (図 7.11)。
- ③ シリカゲル固化体の圧縮強度は、若干バラツキが大きいものの、それぞれ水  $200\text{cc}/\text{kg}$ 、圧縮圧力  $350\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 、アルカリ  $500\text{g}/\text{kg}$  で圧縮強度が最大となる。バインダ添加量に逆比例して、圧縮強度が減少する。他の廃棄物より高い圧縮強度を示したが、これは前処理として粉碎処理したため、他の廃棄物より微細な粒子結合となったためと考えられる (図 7.12)。なお、粉碎処理しない場合の固化体の圧縮強度は約  $78\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$  と低い。
- ④ ドデカン浸漬シリカゲルの固化体の圧縮強度は、アルカリの添加量に比例して増大し、反応温度も  $300\text{ }^\circ\text{C}$  以上になると高いほど増大する。水も  $200\text{g}/\text{cc}$  以上になるほど増大する。特にバインダ添加の効果は著しい (図 7.13)。

## (3) 浸出率

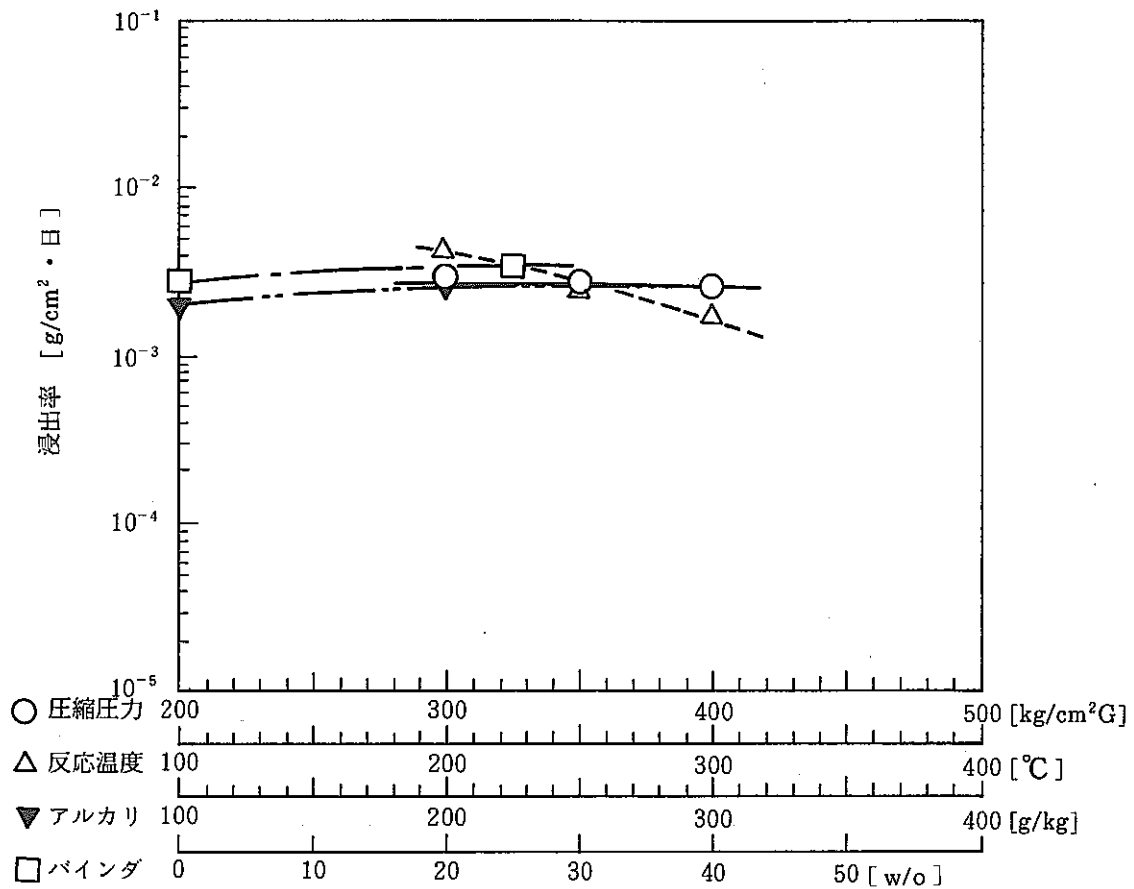
- ① 焼却灰固化体の浸出率は、圧縮圧力の増加に逆比例して減少し、バインダの添加量に比例して増加する。反応温度の影響は受けない (図 7.14)。
- ② ヨウ素吸着 Ag X 固化体の浸出率は、反応温度の上昇に逆比例し、減少する。他の固化処理条件の影響は受けない (図 7.15)。
- ③ シリカゲル固化体の浸出率は、アルカリの添加量が  $500\text{g}/\text{kg}$  及び圧縮圧力が  $350\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 、水の添加量が  $200\text{cc}/\text{kg}$ 、反応温度は  $250\text{ }^\circ\text{C}$  の時にそれぞれ最少となる。バインダは添加しない方が若干浸出率が低い (図 7.16)。
- ④ ドデカン浸漬シリカゲル固化体の浸出率は、アルカリ添加量  $500\text{g}/\text{kg}$  の時に最少となる。反応温度は高い方及びバインダの添加量の多いものほど浸出率は減少する (図 7.17)。



〈 固化処理条件 〉

記号	圧力 kg/cm <sup>2</sup> G	温度 °C	バインダ w/o	アルカリ cc/kg
○	-	300	0	5 N-NaOH 100
△	350	-	0	5 N-NaOH 100
□	350	300	-	5 N-NaOH 100

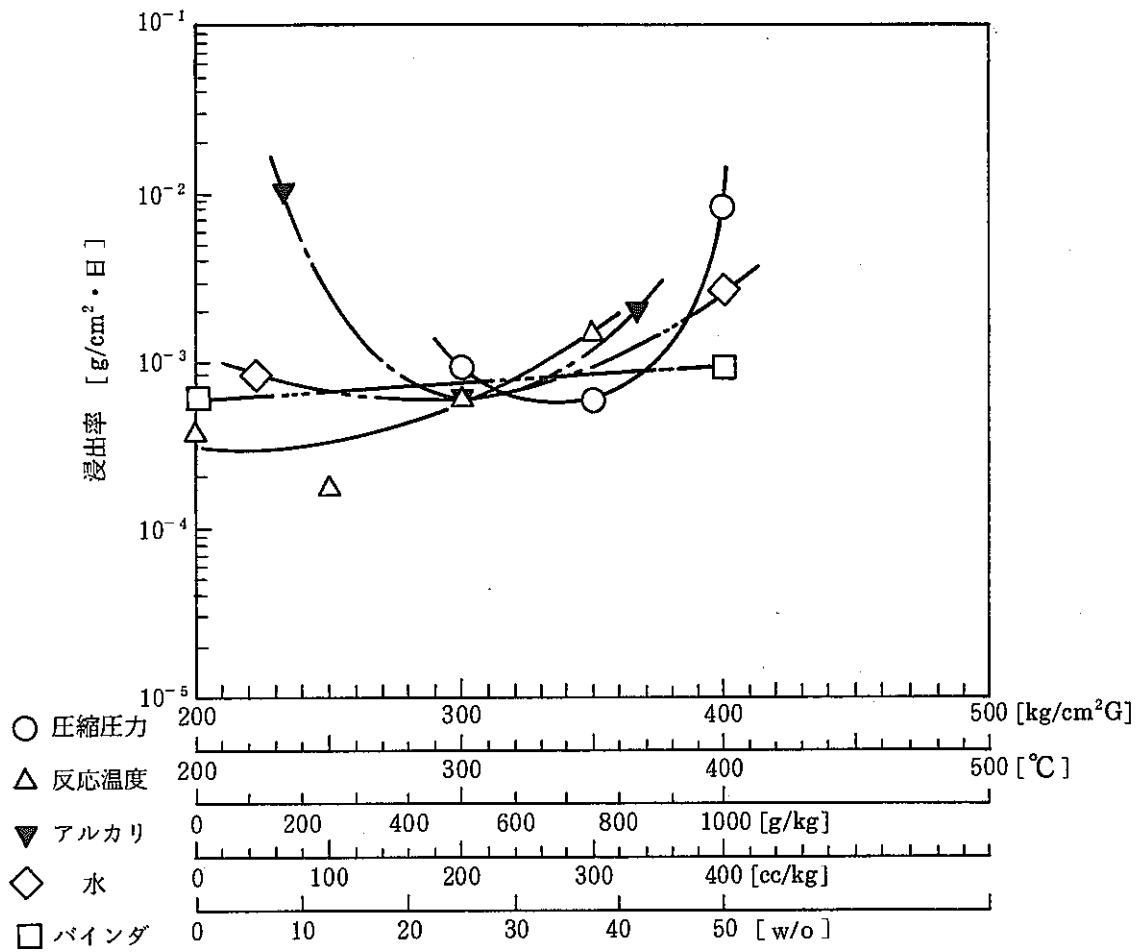
図 7.14 焼却灰固化処理条件と固化体の浸出率との関係



〈 固化処理条件 〉

記号	圧力 kg/cm²G	温度 °C	アルカリ g/kg Ba(OH) <sub>2</sub> · 8 H <sub>2</sub> O	バインダ w/o
○	-	250	200	0
△	350	-	200	0
▼	350	250	-	0
□	350	250	200	-

図 7.15 ヨウ素吸着 AgX の固化処理条件と固化体の浸出率

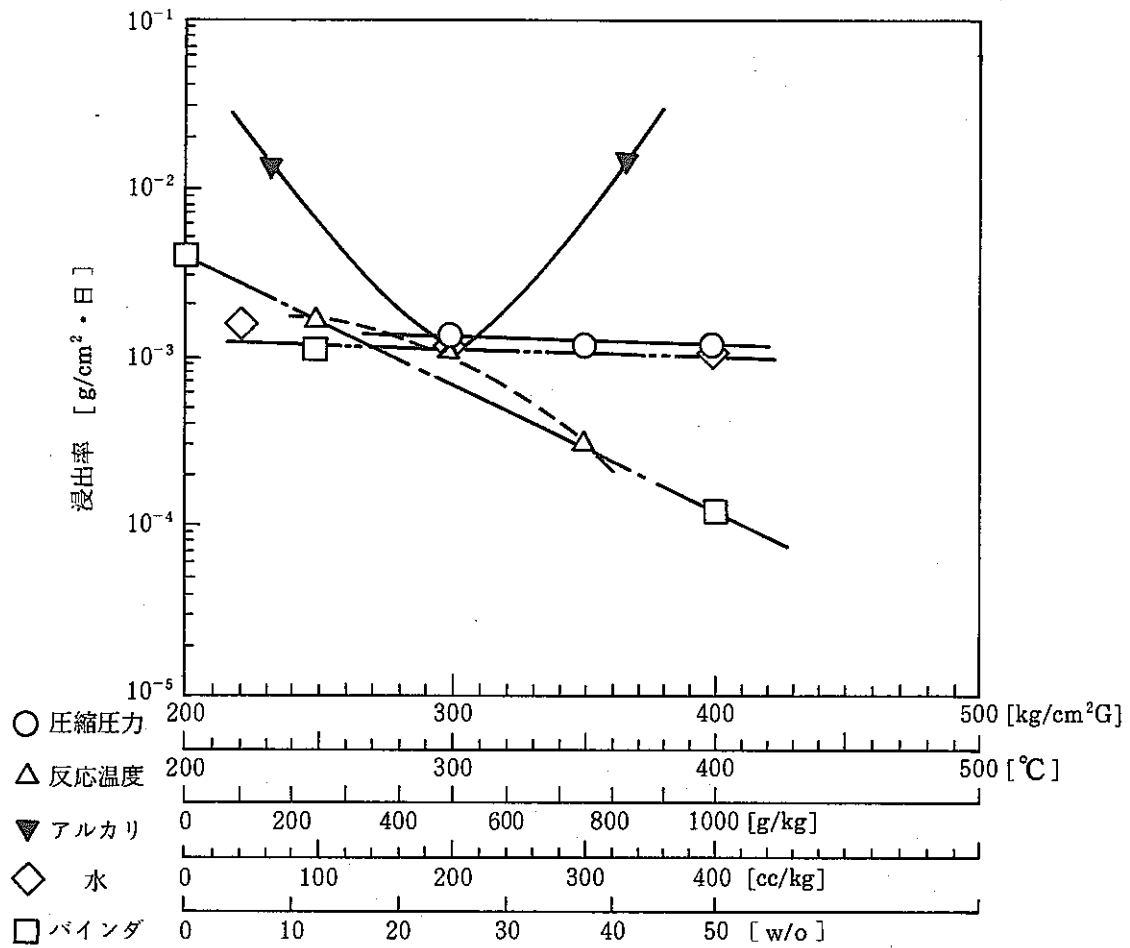


〈 固化処理条件 〉

記号	圧力 kg/cm <sup>2</sup> G	温度 °C	アルカリ g/kg Ca(OH) <sub>2</sub>	水 cc/kg	バインダ w/o
○	-	300	500	200	0
△	350	-	500	200	0
▼	350	300	-	200	0
◇	350	300	500	-	0
□	350	300	500	200	-

図 7.16 シリカゲルの水熱固化処理条件と固化体の浸出率との関係





〈 固化処理条件 〉

記号	圧力 kg/cm <sup>2</sup> G	温度 °C	アルカリ g/kg Ca(OH) <sub>2</sub>	水 cc/kg	バインダ w/o
○	-	300	500	200	0
△	350	-	500	200	0
▼	350	300	-	200	0
◇	350	300	500	-	0
□	350	300	500	200	-

図 7.17 ドデカン浸漬シリカゲルの水熱固化処理条件と固化体の浸出率との関係

## (4) 優れた固化処理条件の選定

## ① 焼却灰の固化処理条件:

バインダの添加量増大により固化体の圧縮強度は増加するが逆に浸出率が增大するだけでなく、又、固化処理時の減容比が悪くなるので、あまり高くすべきでない。圧縮強度は一定以上有すれば良く、できるだけ浸出性及び減容比が良くなる固化処理条件を選定すべきであり、バインダなしもメリットがある。現状データでは、二者択一は難しいので、当面次の二つの固化処理条件を選定することとし、固化体物性評価試験の結果をみて総合評価し最終選定すれば良いものとする。

A. 300℃, 350 kg/cm<sup>2</sup> G, 5 N NaOH 100 cc/kg 添加, バインダ不添加

B. 300℃, 350 kg/cm<sup>2</sup> G, 5 N NaOH 100 cc/kg 添加, バインダ 25w/o 添加

## ② ヨウ素吸着 Ag X の固化処理条件

250℃, 350 kg/cm<sup>2</sup> G, Ba(OH)<sub>2</sub> · 8 H<sub>2</sub>O 200 g/kg 添加, バインダ不添加

## ③ シリカゲルの固化処理条件

300℃, 350 kg/cm<sup>2</sup> G, Ca(OH)<sub>2</sub> 500 g/kg 添加, 水 200 cc/kg 添加, バインダなし

## ④ ドデカン浸漬シリカゲルの固化処理条件

バインダの添加は、圧縮強度の増大と浸出率減少に効果があるものの、アルカリ(33.3%)に追加して添加することになるので、減容比が悪くなっていく。バインダの添加量はできるだけ少なく、高くとも15w/o以下としたい。バインダの添加量がこの程度では浸出率の減少に関しては反応温度の上昇による効果とほぼ変わらない様に見える(図7.17)し、又、バインダがなければ減容比上もメリットが出てくるので、バインダ添加なしとすることとする。

350℃, 350 kg/cm<sup>2</sup> G, Ca(OH)<sub>2</sub> 500 g/kg 添加, 水 100 cc/kg 添加, バインダなし

## 2) 固化体物性評価試験

(1) 外観, 比重, 圧縮強度 表 7.14, 写真 7.1 ~ 7.3

(2) 浸出性

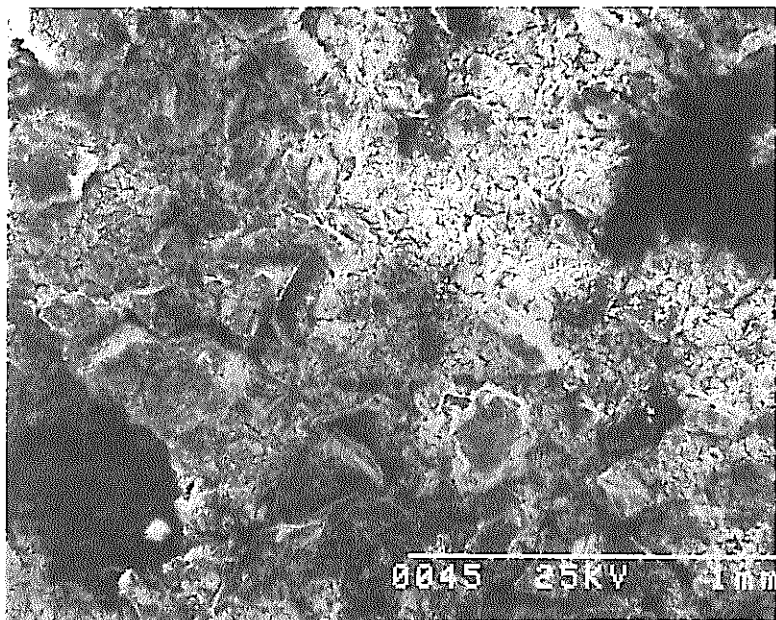
焼却灰(バインダなし)固化体及び焼却灰(バインダあり)固化体, ヨウ素吸着 AgX 固化体, シリカゲル固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体の浸出率をそれぞれ図7.18~7.22 に示す。

## ① 焼却灰固化体

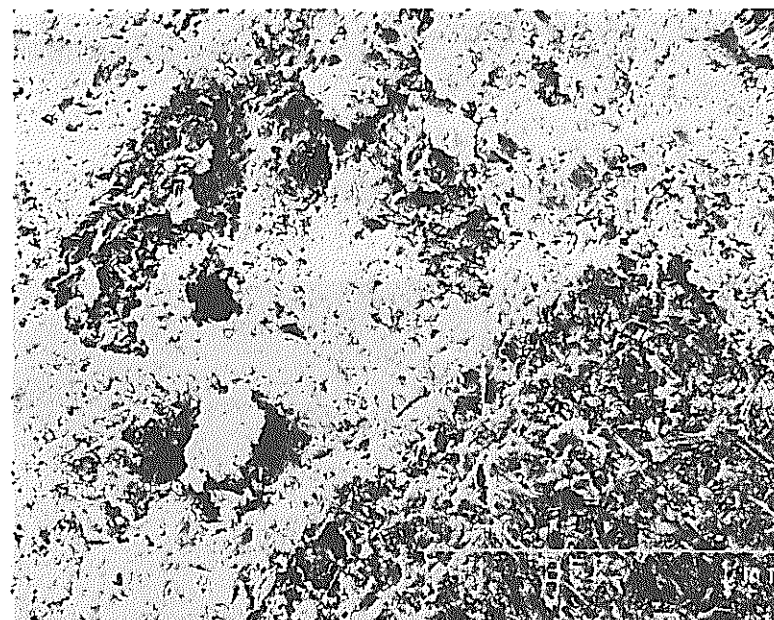
- 各元素のうち Na が最も高い浸出率を示し、28日間浸漬で  $1.8 \times 10^{-5}$  g/cm<sup>2</sup>・日であった。これは余剰なアルカリ分の溶出によるものと考えられる。
- Ru に関しては、バインダの有無にかかわらず検出限界以下であった。
- Cs に関しては、バインダの添加により浸出性が抑制された。

表 7.14 固化体評価試験用固化体の外観, 比重, 圧縮強度

対象廃棄物	外 観	比 重	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)
焼却灰(バインダなし)	<ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 暗灰色</li> <li>◦ 焼却灰の粗大粒子が点在し, その間隙を微細な粒子が埋めた形となっている。(写真 7.1 参照)</li> </ul>	1.78	256
焼却灰(バインダあり)	<ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 表面に一部白いまだら模様があるものが認められたが, これは反応容器から固化体を引抜きやすい様に塗ったはく離材が付着したため。</li> </ul>	1.81	363
ヨウ素吸着 AgX	<ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 暗褐色</li> <li>◦ 粗大粒子間の際隙に水熱状態で解け出た物質が埋まり, 緻密な様相を示す。(写真 7.2 参照)</li> </ul>	2.07	202
シリカゲル	<ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 表面が茶色と白色のまだら模様を示した。茶色の部分は反応器内面の鉄分, 白い部分は固化体と反応器間のはく離材が付着したため。切断面は白色でシリカゲル本来の色であった。</li> </ul>	1.13	643
ドデカン浸漬シリカゲル	<ul style="list-style-type: none"> <li>◦ シリカゲルと同様に表面が茶色と白色のまだら模様を示した。</li> <li>◦ なお, 水熱状態で溶出したシリカゲルの表面物質が粒子間の際隙に埋まり緻密な様相を示す。ヨウ素吸着 AgX 固化体より緻密である。(写真 7.3 参照)</li> </ul>	1.17	267

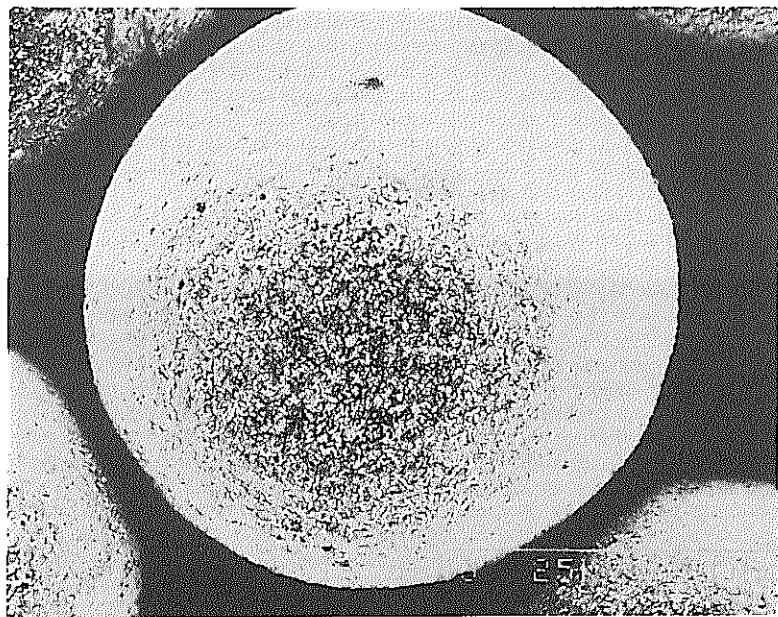


(a) 焼却灰

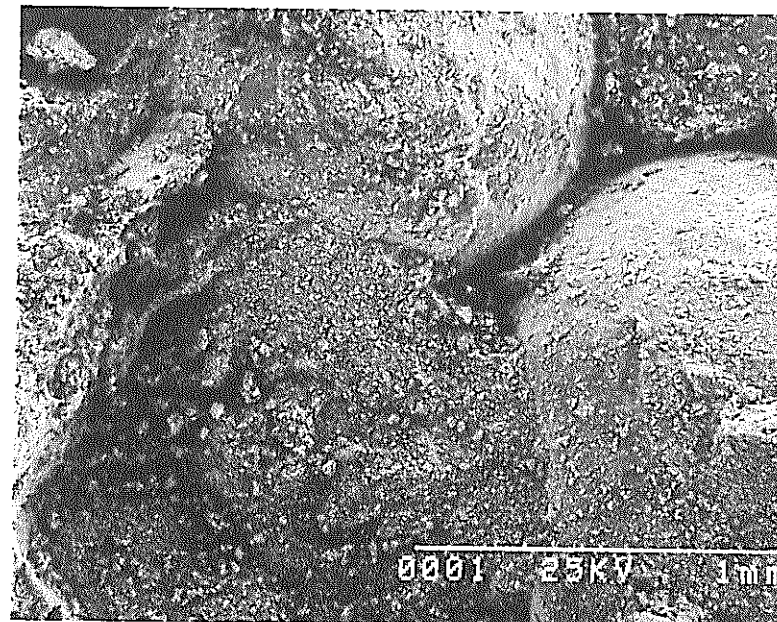


(b) 焼却灰水熱固化体

写真 7.1 焼却灰及び焼却灰水熱固化体の顕微鏡写真 (× 50)



(a) AgX



(b) ヨウ素吸着 AgX 水熱固化体

写真7.2 AgXとヨウ素吸着 AgX 水熱固化体の顕微鏡写真 (×50)

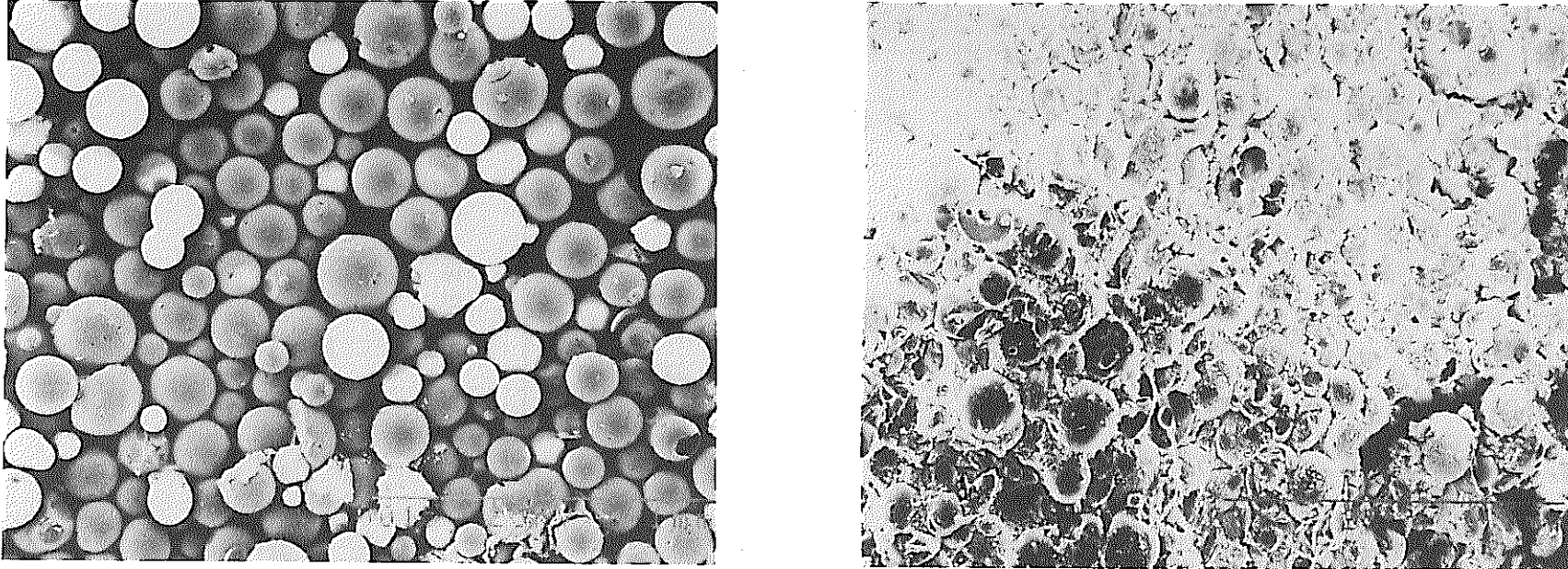
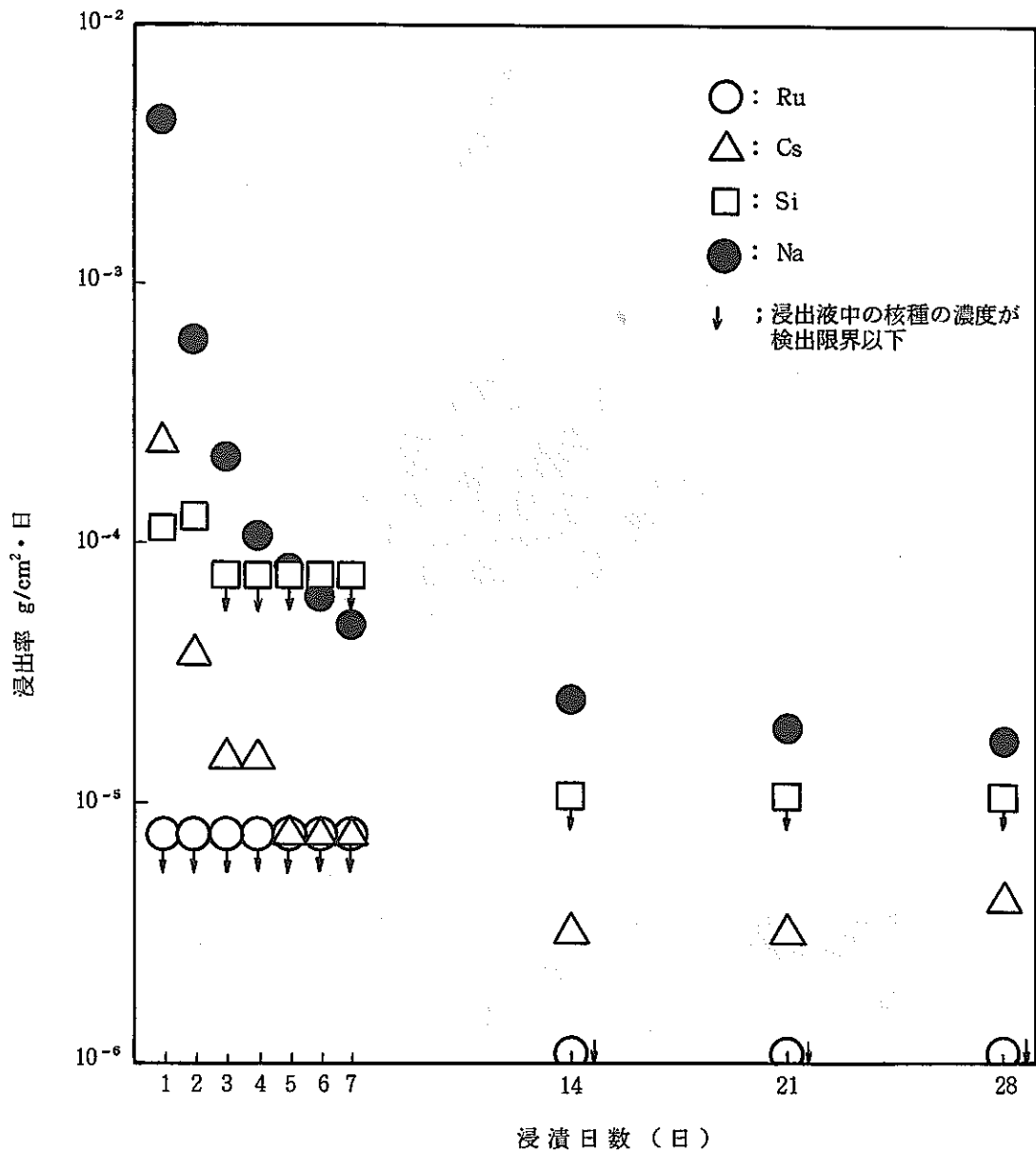


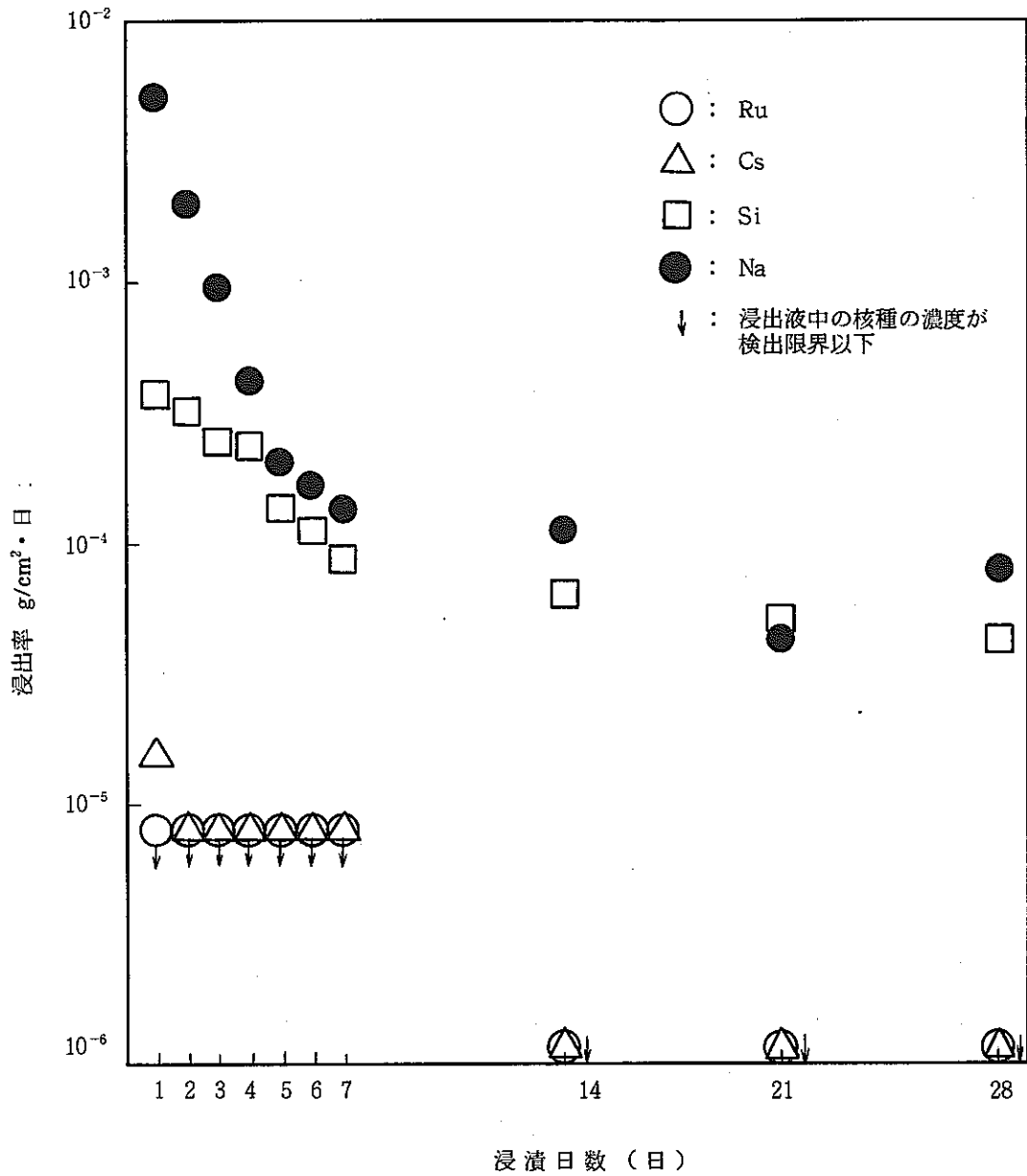
写真7.3 ドデカン浸漬シリカゲルとその水熱固化体の顕微鏡写真（×50）



固化処理条件

- 温度 : 300 °C
- 圧力 : 350 Kg/cm²G
- バインダ含有量 : 0 w/o
- アルカリ添加量 : 5N-NaOH 100 cc/Kg

図 7.18 焼却灰 (バインダなし) 固化体の浸出率

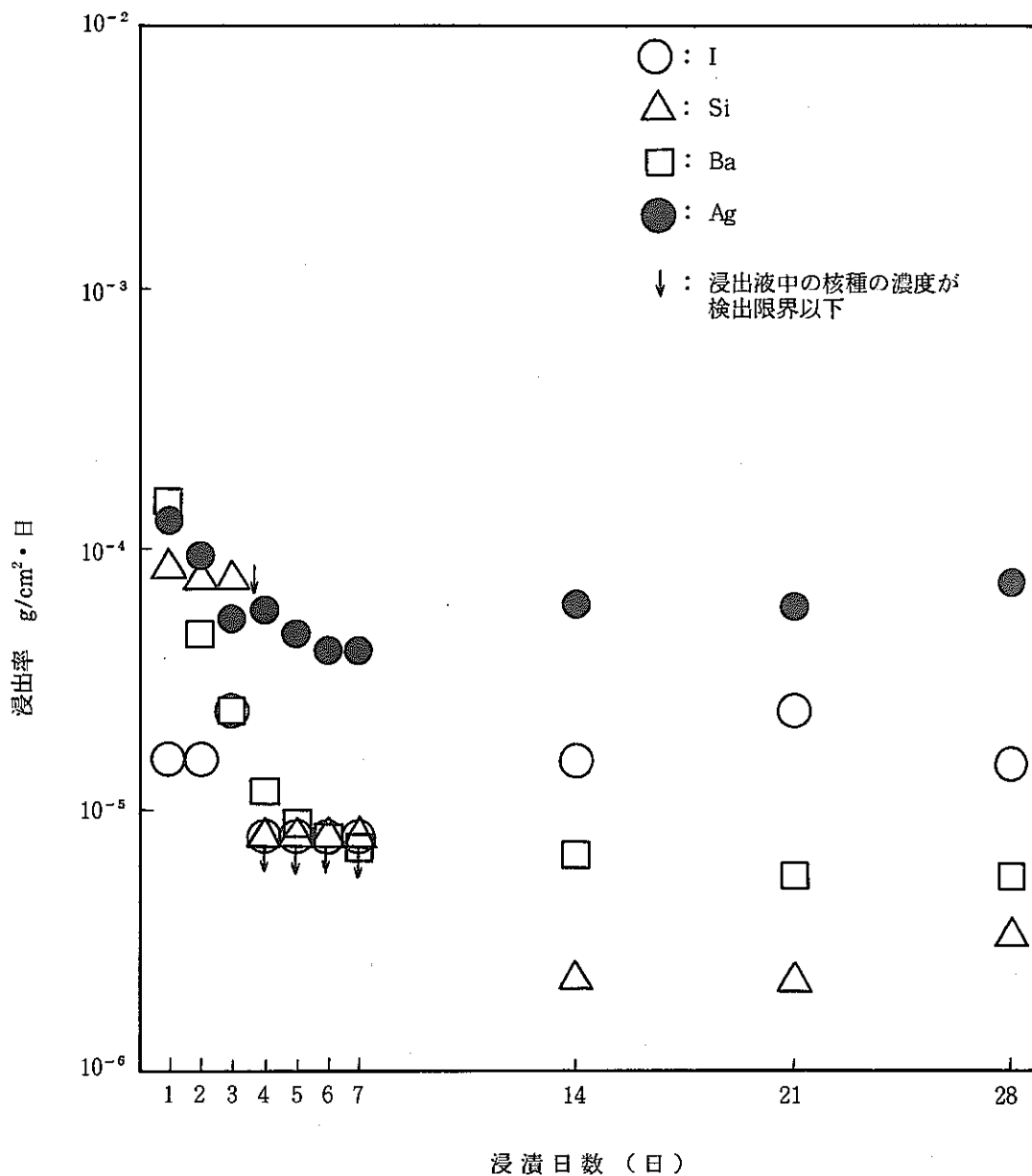


固化処理条件

- 温度 : 300 °C
- 圧力 : 350 Kg/cm²G
- バインダ含有量 : 25 w/o
- アルカリ添加量 : 5H-NaOH 100 cc/Kg

図 7.19 焼却灰 (バインダあり) 固化体の浸出率

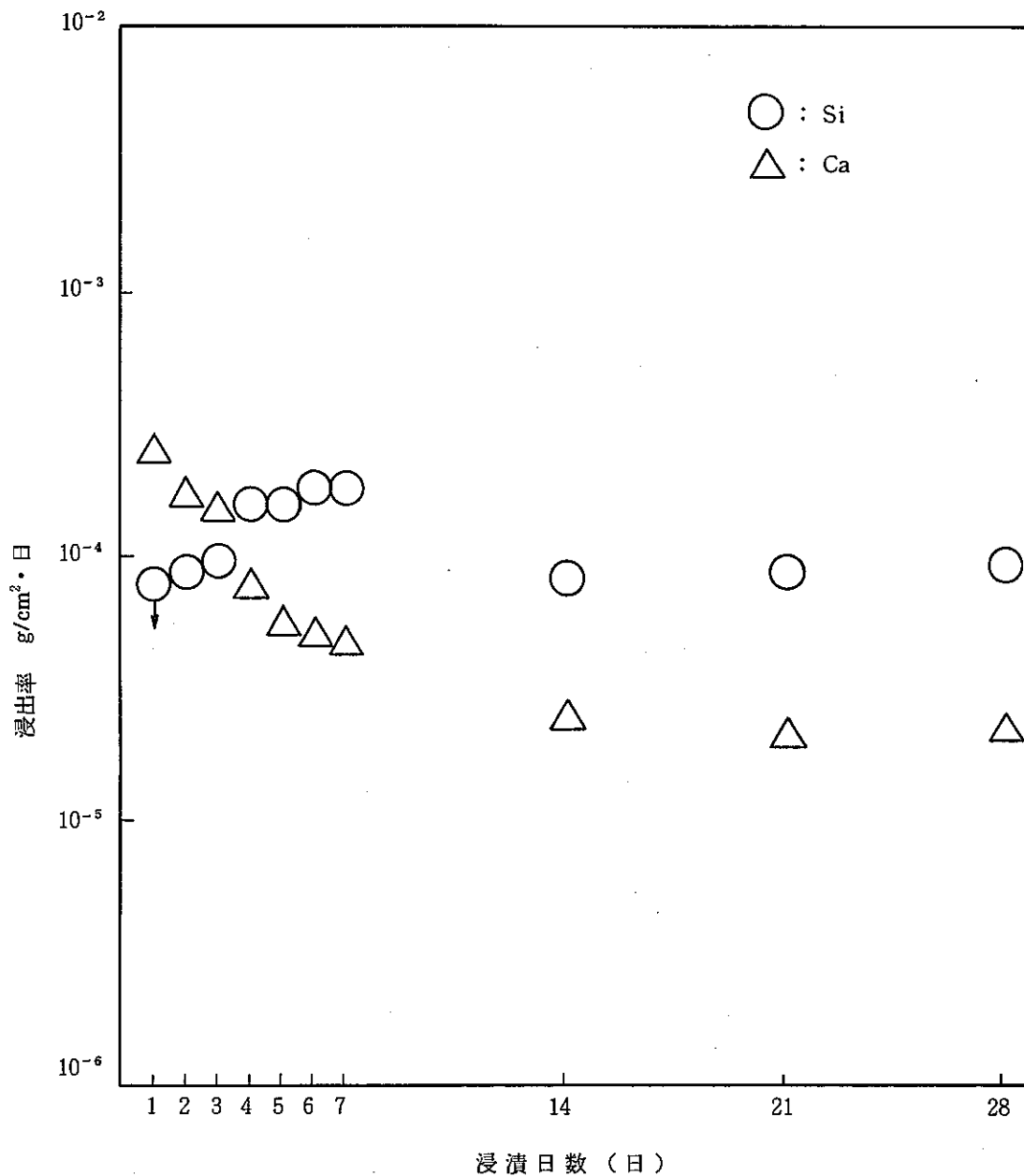




固化処理条件

- 温度 : 250 °C
- 圧力 : 350 Kg/cm²G
- バインダ含有量 : 0 w/o
- アルカリ添加量 : Ba(OH)₂ · 8H₂O 200 g/Kg

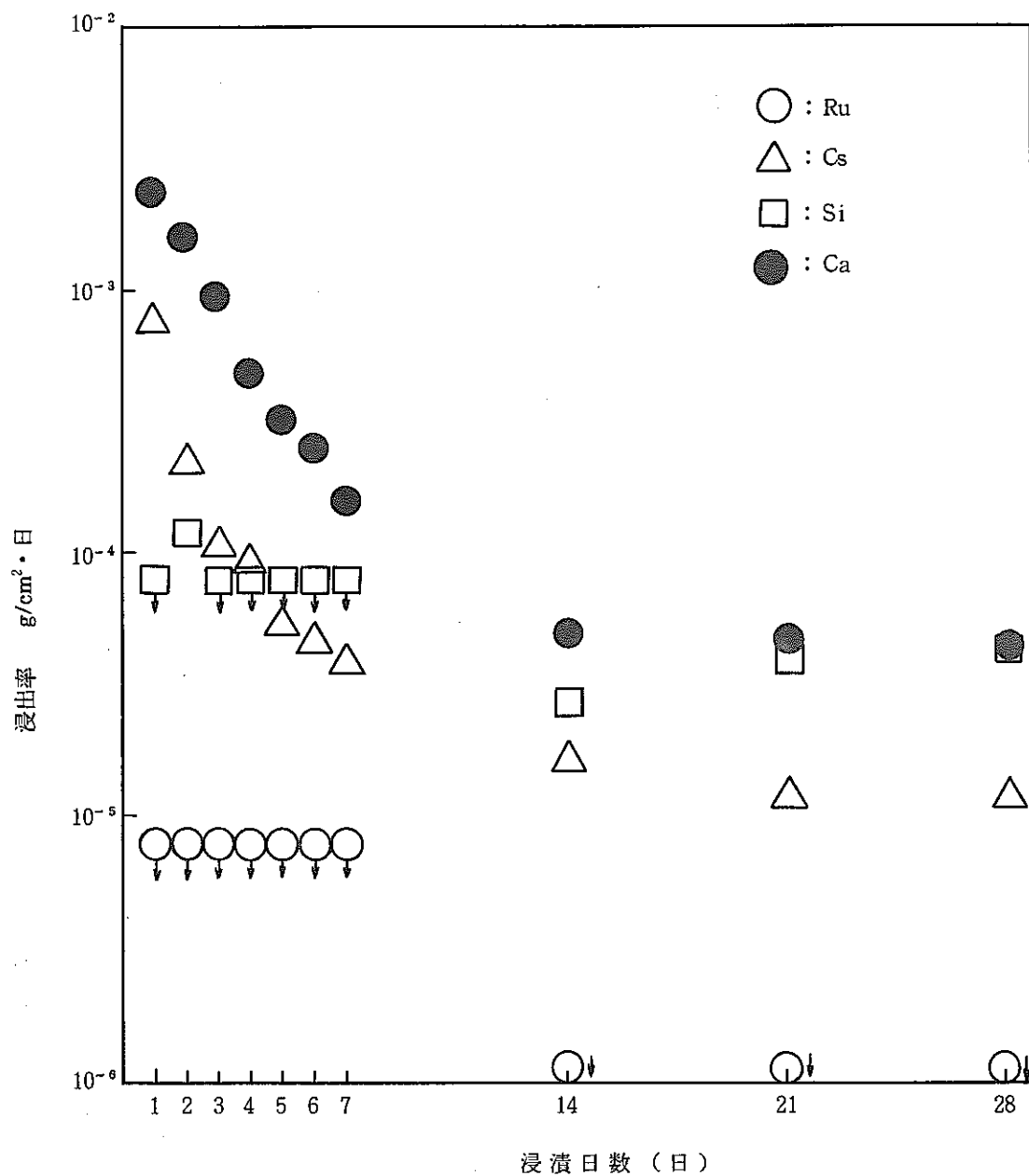
図 7.20 ヨウ素吸着 Ag X 固化体の浸出率



固化処理条件

- 温度 : 300 °C
- 圧力 : 350 Kg/cm<sup>2</sup>G
- バインダ含有量 : 0 w/o
- アルカリ添加量 : Ca (OH)<sub>2</sub> 500 g/kg

図 7.21 シリカゲル水熱固化体の浸出率



固化処理条件

- 温度 : 350 °C
- 圧力 : 350 Kg/cm<sup>2</sup>G
- バインダ含有量 : 0 w/o
- アルカリ添加量 : Ca (OH)<sub>2</sub> 500 g/Kg

図 7.22 ドデカン浸漬シリカゲルの水熱固化体の浸出率

これは  $\text{CsNO}_3$  が水熱反応中に  $\text{SiO}_2$  や  $\text{Al}_2\text{O}_3$  と反応して  $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$  ,  $\text{CsAlSi}_5\text{O}_{12}$  や  $\text{CsAlSiO}_4$  等を形成して固化体中に安定に保持されるためと考えられる<sup>67), 68)</sup>。

- Si に関しては、バインダの有無にかかわらず同様な傾向を示し、最初比較的高い浸出率を示し、急激に低下してゆく。全体としては、バインダ添加固化体の方が多少高い浸出率を示した。

これらは、水熱反応中に生成された低品位ガラスが溶け出ることと、この様な低品位ガラスの生成をバインダが促進するためでないかと推定される。

## ② ヨウ素吸着 Ag X 固化体

- 各核種のうち Ag が最も高い浸出率を示した。
- I に関しては、浸出初日から浸出終了（28日間）まで約  $1.6 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$  と比較的低い浸出率であった。
- Ag に関しては、最初の2日間若干高い浸出率を示すものの3日目以降は約  $6 \times 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$  一定となり、I と類似した傾向を示した。

ヨウ素吸着 AgX はアルカリ処理により図 6.13 に示す様な反応で AgI 及び  $\text{AgIO}_3$  となり、水熱固化体中に取り込まれ固定化される。

難水溶性（ $0.056 \text{ mg/l}$  at  $25^\circ\text{C}$ ）の AgI は固化体浸出試験時に浸出しにくく、又、Ag と I の浸出が類似した傾向を示していることから、これは  $\text{AgIO}_3$  の溶出によるものと考えられる。

- Si に関しては焼却灰の場合と同様に低品位ガラスの溶出によるものと考えられる。
- Ba に関しては余剰のアルカリ分の溶出によるものと考えられる。

## ③ シリカゲル固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体

- 浸漬初期には Ca の浸出率が高いもののその後急激に低下してゆく。これは焼却灰固化体の Na, Ag X 固化体の Na と同様な傾向で、これは余剰なアルカリ分の溶出によるものと考えられる。
- Ca の浸出率はドデカン浸漬シリカゲル固化体の方がシリカゲル固化体よりも高く、浸漬開始1週間目までは1桁ほど高い。これはシリカゲル固化体の方は、固化に先立ち粉碎したシリカゲルを使用しているため、ドデカン浸漬シリカゲル固化体よりも水熱反応が良好で固化体表面が緻密となっているためと考えられる。ドデカン浸漬シリカゲル固化体の場合、固化体はいぜんシリカゲルの大きなピース形状が保持されている（写真7.3）。
- Si の浸出率はいずれの固化体も浸漬期間によらず  $10^{-4} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$  とほぼ一定である。
- ドデカン浸漬シリカゲル固化体からの Cs の浸出率は Ca よりも1桁低いものの同様な傾向を示した。
- ドデカン浸漬シリカゲル固化体からの Ru の浸出率は小さく、全て検出限界以下であった。

なお、シリカゲル固化体からの Ru の浸出率に関するデータは取っていないので、今後、焼却施設からの Ru 吸着塔用シリカゲルへの本固化法の適用をめざし、Ru の浸出率測定が望まれる。ドデカン浸漬シリカゲル固化体はドデカンの含有量 5.2% (乾燥処理後) と低いいため、この場合と同様にシリカゲル固化体からの Ru の浸出率は小さいものと推定される。

(3) 耐熱性 表 7.15, 表 7.16

① 焼却灰固化体

外 観：400℃ではあまり変化ないが、800℃で赤褐色、クラックはなし

寸 法：バインダの有無および反応温度によらずほとんど変化なし

重 量：バインダなしのものが約 10%、添加したものが約 5% 減少。

これは焼却灰中の未燃カーボン等がガス化したためと考えられる。

圧縮強度：800℃の場合、バインダ添加したものは 400℃の場合とあまり変わらず高い値を示したが、バインダなしのものは、著しく低下した。

示差熱分析：バインダなしのものは 63℃で水分の蒸発による吸熱ピークを、466℃で未燃分ガス化による発熱のピークを示した。

バインダ添加したのものには吸熱のピークはなく、365℃で酸化鉄の  $\gamma$  型から  $\alpha$  型への転位ピークが、483℃で未燃分ガス化による発熱ピークを示した。

② ヨウ素吸着 Ag X 固化体

外 観：400℃では白色、800℃では黄色となった他、若干固化体外周部の中央部がへこんだ形状となった。クラックはなし。

寸法及び重量：若干減少した。

圧縮強度：800℃になるとかなり低下した。

これらより、 $\text{Ba}(\text{OH})_2$  の結晶水が遊離し (78℃)、結晶形態に変成が生じたためと考えられる。

示差熱分析：88℃から結晶水遊離等による重量減少が始まり、382℃で Ag X 中の Ag の O との反応による発熱ピークが認められた。

③ シリカゲル固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体

外 観：400℃では変化がないが、800℃では若干焼きしまりが生じた。

寸法及び重量：若干減少した。

圧縮強度：800℃になるとかなり低下した。

示差熱分析：シリカゲル固化体は 32℃から 150℃まで重量がかなり減少した。約 80℃位に吸熱ピークが認められ、これは水分の蒸発によるものと考えられる。400℃～650℃にある小さなピークは結晶の変成によるものと考えられる。ドデカン浸漬シリカゲル固化体はシリカゲル固化体ほど重量は減少せず、63℃位に吸熱ピークが認められたが、これはドデカンの揮発によるものと考えられる。

表 7.15 焼却灰固化体及びヨウ素吸着 AgX 固化体の耐熱性試験結果

	固 化 条 件	サンプルNo.	温度(°C)	固 化 体 物 性		
				外 観 寸 法 (mm)	重 量 (g)	圧 縮 強 度 (kg/cm <sup>2</sup> G)
焼 却 灰 固 化 体	◦温 度 300°C ◦圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G ◦バインダ添加量 0w/o ◦アルカリ添加量 5N-NaOH 100cc/kg	123	室 温	20.0 × 20.9	11.91	256
			400	20.0 × 20.9	10.68	117
		125	室 温	19.0 × 20.2	10.64	256
			800	19.0 × 20.2	9.82	16
	◦温 度 300°C ◦圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G ◦バインダ添加量 25w/o ◦アルカリ添加量 5N-NaOH 100cc/kg	138	室 温	20.0 × 20.6	11.44	363
			400	20.0 × 20.6	11.08	132
		141	室 温	20.0 × 20.5	11.00	363
			800	20.0 × 20.6	10.44	153
* AgX 固 化 体	◦温 度 250°C ◦圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G ◦バインダ添加量 0w/o ◦アルカリ添加量 Ba(OH) <sub>2</sub> · 8H <sub>2</sub> O 200g/kg	242	室 温	20.0 × 20.4	13.41	202
			400	19.9 × 20.4	12.95	86
		241	室 温	20.0 × 20.0	13.10	202
			800	18.5 × 19.3	12.39	21

\*ヨウ素吸着 AgX 固化体

表 7.16 シリカゲル固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体の耐熱性試験結果

	固 化 条 件	サンプルNo.	温度 [°C]	固 化 体 物 性		
				外観寸法 (mm)	重 量 (g)	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)
シリカゲル 固化体	◦温 度 300°C ◦圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G ◦バインダ添加量 0w/o ◦アルカリ添加量 Ca(OH) <sub>2</sub> 500g/kg		室 温	20.0 × 20.4	7.47	643
			400	20.0 × 20.4	7.17	439
			室 温	20.0 × 20.3	7.20	643
			800	19.4 × 19.4	6.66	286
ドシリカ ドデカン ゲル浸漬 固化体	◦温 度 350°C ◦圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G ◦バインダ添加量 0w/o ◦アルカリ添加量 Ca(OH) <sub>2</sub> 500g/kg		室 温	20.0 × 20.3	7.65	286
			400	20.0 × 20.3	7.48	256
			室 温	20.0 × 20.1	7.59	286
			800	18.8 × 20.1	7.13	255*

(注)\*…他のデータからみて、信頼性に乏しく、今後再確認必要である。

## (4) 耐放射線性 表 7.17, 7.18

- ① 焼却灰固化体は、 $10^7$  及び  $10^8$  Rad 照射しても寸法及び重量もほとんど変わらない。圧縮強度はバイндаなしの場合、 $10^7$  rad まではあまり変りないが、 $10^8$  rad になるとかなり減少する様に見える。バイнда添加の場合未照射のものより  $10^7$  rad ではかなり減少するが、それでもバイндаなしのものと同程度の圧縮強度を有する。
- ② ヨウ素吸着 Ag X 固化体は、 $10^8$  Rad 照射しても寸法、重量もほとんど変わらない。圧縮強度は、未照射の測定データがないため照射前後の比較はしにくい、図 7.11 で約  $200 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  示したこととロットちがいによりサンプルの物性値にバラツキが出ることを考えると、 $10^8$  rad 照射しても圧縮強度はほぼ変わらないものと推定される。
- ③ シリカゲル固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体は、 $10^7$  及び  $10^8$  rad 照射しても寸法、重量はほとんど変わらず、圧縮強度もロットちがいによるサンプル物性値のバラツキを考えると、ほぼ変わらないものと推定される。

## (5) 耐 候 性

焼却灰固化体、ヨウ素吸着 Ag X 固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体は 7 及び 28 サイクル試験しても共に外観、寸法、重量はほとんど変化せず、又、圧縮強度もそれぞれ  $150 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ 、 $90 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ 、 $330 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  以上を有する。

一方、シリカゲル固化体は、寸法、重量はほとんど変化せず、圧縮強度は  $380 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  以上を有するが、28 サイクル試験用の試料に 7 サイクル試験した所、固化体側面に円周方向に 1 本の細いクラックが認められた。

これは  $-20^\circ \text{C}$  まで冷却され固化体中の水分が凝固し、膨張した際に、固化体が緻密であるため、固化体内に逃げ場がなく固化体が膨張に抗し切れずクラックが生じたものと考えられる。このクラックがあっても、固化体の圧縮強度は上述の様に高い。



表 7.17 焼却灰固化体及びヨウ素吸着 AgX 固化体の耐放射線性試験結果

	固 化 条 件	サンプルNo.	照射量[R]	固 化 体 物 性		
				外観寸法 (mm)	重 量 (g)	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)
焼 却 灰 固 化 体	○温 度 300°C ○圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G	115	0	20.0 × 11.7	6.32	256
			10 <sup>7</sup>	20.1 × 11.8	6.31	235
	○バインダ添加量 0w/o ○アルカリ添加量 5N-NaOH 100cc/kg	117	0	20.0 × 12.2	6.57	256
			10 <sup>8</sup>	20.2 × 12.2	6.56	295
	○温 度 300°C ○圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G	130	0	20.0 × 11.9	6.28	263
			10 <sup>7</sup>	20.1 × 12.1	6.29	238
	○バインダ添加量 25w/o ○アルカリ添加量 5N-NaOH 100cc/kg	131	0	20.0 × 11.8	6.46	263
			10 <sup>8</sup>	20.2 × 12.2	6.46	229
ヨウ素 吸着 固 化 体	○温 度 250°C ○圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G	233	0	20.0 × 11.8	7.60	202
			10 <sup>7</sup>	20.1 × 11.8	7.60	253
	○バインダ添加量 0w/o ○アルカリ添加量 Ba(OH) <sub>2</sub> ・8H <sub>2</sub> O 200g/kg	235	0	20.0 × 12.1	7.87	202
			10 <sup>8</sup>	20.1 × 12.1	7.86	226

表 7.18 シリカゲル固化体及びドデカン浸漬シリカゲル固化体の耐放射線性試験結果

	固 化 条 件	サンプルNo.	照射量 [R]	固 化 体 物 性		
				外観寸法 (mm)	重 量 (g)	圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)
シリカゲル 固化体	◦ 温 度 300°C ◦ 圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G ◦ バインダ添加量 0w/o ◦ アルカリ添加量 Ca(OH) <sub>2</sub> 500g/kg	334	0	20.0 × 11.6	4.17	
			10 <sup>7</sup>	20.0 × 11.7	4.17	514
		336	0	20.0 × 12.3	4.70	—
			10 <sup>8</sup>	20.0 × 12.5	4.71	563
ドデカン 浸漬 シリカゲル 固化体	◦ 温 度 350°C ◦ 圧 力 350kg/cm <sup>2</sup> G ◦ バインダ添加量 0w/o ◦ アルカリ添加量 Ca(OH) <sub>2</sub> 500g/kg	466	0	20.0 × 11.7	4.26	—
			10 <sup>7</sup>	20.0 × 11.7	4.26	261
		468	0	20.0 × 12.2	4.55	—
			10 <sup>8</sup>	20.0 × 12.2	4.54	302

## 3) 水熱固化試験装置の焼却施設内への設置について

焼却施設1階予備室に設置する構想で検討した焼却灰の水熱固化試験装置の概要を以下に示す。

〔前提条件〕 セメントガラス固化装置の場合と同一とする。(7.2 参照)

〔設備能力〕

固化体サイズ：18 cm $\phi$  × 36 cm, 16 kg (9 $\ell$ )

固化能力 : 16 kg/本 × 2 本/日

固化体パッケージ：14 本/缶 (7 本毎 2 段積収納)

7 日/缶

〔フローシート〕 省略

〔主要機器概略仕様〕 表 7.19

〔配置図〕 図 7.23

表 7.19 水熱固化試験装置の概略仕様

No.	名 称	数量	形 式	容量等	備 考
1.	ドラム反転機	1	反転機構付リフト	—	
2.	混 合 機	1	ナウター型ミキサー	300 $\ell$	
3.	固 化 装 置				
	油圧プレス	2		100ton	本じめ用 (水熱反应用)
	油圧プレス	1		50ton	仮じめ用 (反応器充てん用)
	反応容器	1	加熱・冷却両用		加熱：シース型電気ヒータ 冷却：オイル又は空冷方式
4.	固化体ドラム充てん機	1	天井走行型	—	
5.	キャッピング装置	1	電動ボルトじめ	—	インパクトレンチ方式

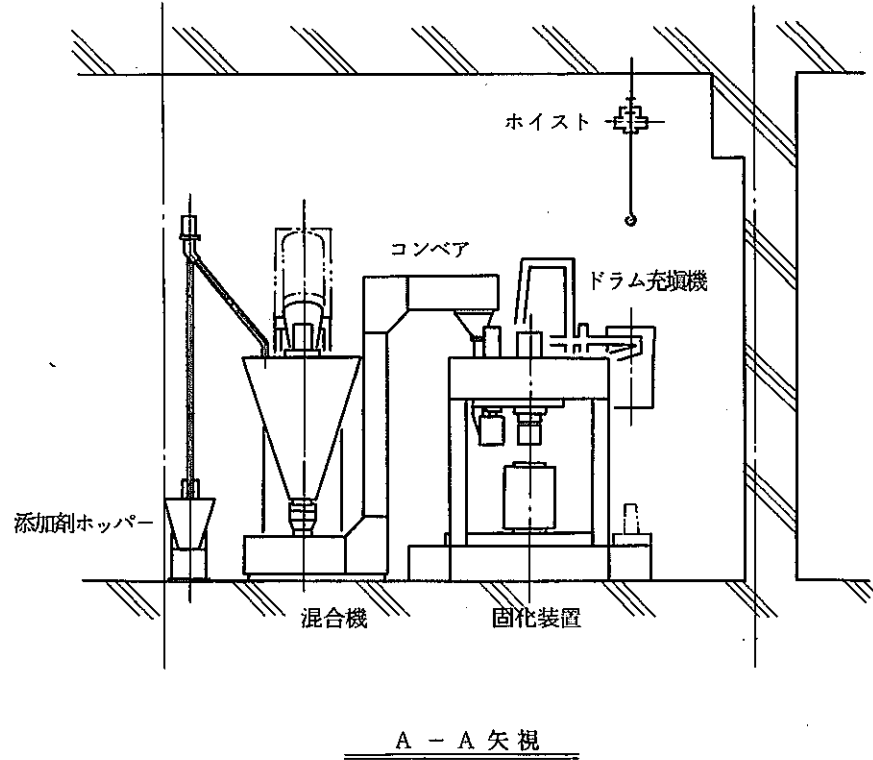
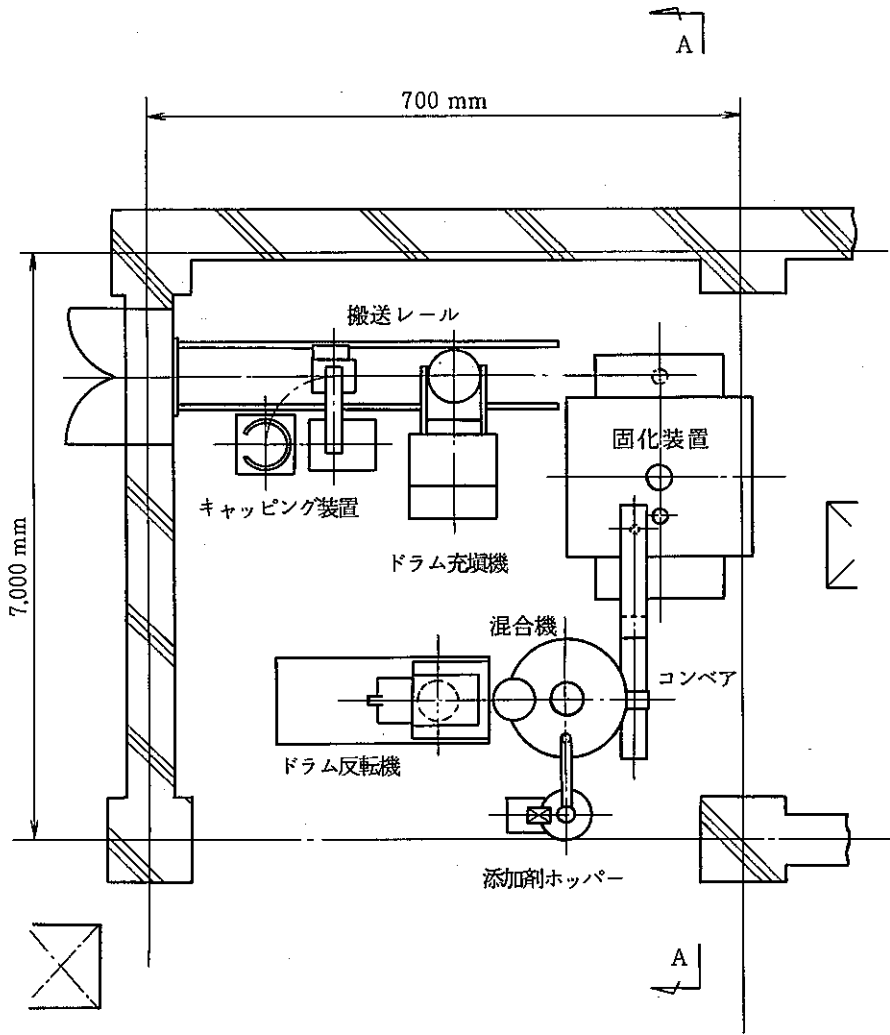


図 7.23 焼却灰水熱固化装置の配置図例

#### 4) 今後の技術開発の課題

試験の結果、本法は焼却灰，ヨウ素吸着剤，シリカゲルの固化に適することがわかった。ドデカン浸漬シリカゲルに関しては，乾燥により脱ドデカンしたものならば固化しうることがわかった。

本法は一般産業界における HIP 設備の技術の応用であり，技術開発の課題はそれほど多くないが，以下の課題についての技術開発が必要と考えられる。

##### ① 実規模工学試験による大口径固化体製造システムの実証

固化体サイズは現状実績データにもとづき  $18\phi \times 36\text{ cmH}$  としたが，200 l ドラム缶には 14 本収納しなければならないし，細い径の固化体を多数収納してもデッドスペースは減らない他，毎日 2 本製造する必要がある。したがって，できるだけドラム缶径に近づけた固化体を製造する技術を確立しなければならない。固化体径が大きくなるほどプレス能力を高めなければならないが，圧縮機自体の荷重増に伴う床の耐荷重性より 500 トン圧縮機（自重 15 トン）を使用する  $43\text{ cm}\phi \times 30\text{ cmH}$  サイズに制限せざるを得ない（この場合の固化体パッケージは固化体 2 段積となる）。 $2\phi$  から  $10\phi$ ， $18\phi$  にスケールアップした際に固化体の軸方向，径方向の強度を測定した所スケールアップの影響が認められなかったため， $18\phi$  から  $43\phi$  にスケールアップした影響は小さいものと考えられるが，実規模工学試験により確認する必要がある。

又，反応容器から成形固化体を遠隔操作により確実に取出せる様な機器構造の検討が必要である。

さらに本法は特に技術開発の途上にある技術を配慮すると実規模工学試験による大口径固化体製造システムの実証が望ましい。

##### ② 高圧使用に伴う安全対策設備の検討

油圧プレスにより間接的に反応容器内を  $350\text{ kg/cm}^2\text{ G}$  の高圧にするが，反応容器自体が機械装置の一部となるため，エンジンのシリンダ室やポンプの空気室と同等とみなされ，圧力容器として取扱われない様に思われる。過剰圧力に対しては油圧配管上に安全弁を設けて対処する他，水熱反応中に油圧プレス圧を除くと加熱生成した水蒸気が反応容器から室内へ漏れることが懸念されるので，反応容器にフードを設け吸引除去する。原子力施設で粉体を高圧で取扱う事例が少ないので，ボイラー及び圧力容器安全規則，高圧ガス取締法の適用の有無，必要な安全対策設備の内容等について今後明確化してゆく必要がある。

##### ③ 固化体の耐放射線性及び浸出率の確認

固化体の圧縮強度分布を測定する。又，今回の耐放射線性試験結果は各サンプル毎の圧縮強度の測定値がばらついたため，耐放射線性に有意差が生じたものなのか多少疑問が残っており，今後再測定して確認する必要がある。又，焼却施設のオフガス中の Ru 吸着除去用シリカゲルを対象とした Ru 浸出率測定試験の実施が不可欠である。

#### 7.4 プラスチック圧縮成形固化試験<sup>63)</sup>

焼却施設の焼却対象物から除外することにした PVC 廃棄物の減容固化法として、プラスチック圧縮成形固化法の開発に成功したので、その延長上として焼却灰と PVC 廃棄物の混合物を圧縮成形すると予想外に高い減容比の固化法となることに気づき、さらに焼却灰単味の熱可塑性樹脂による圧縮成形固化法の開発に至った。後述する様に、この方法はセメントガラス固化法及び水熱固化法より減容比が高く、実用化が期待される方法の一つである。

##### 7.4.1 試験の方法

合成焼却灰にバインダとして熱可塑性樹脂を添加混合し、金型に入れ、圧縮成形機で加熱圧縮成形し、次に加圧保持のまま水冷し、焼却灰固化体とする。

試験は、まずラボ試験規模のスクリーニング試験を実施し、焼却灰固化に適した熱可塑性樹脂を選定し、次に選定した樹脂によるスケールアップ試験を実施し、固化体の物性を測定し、固化処理条件と固化体物性について評価する。

##### 1) 試験対象成形用試料の調整

###### (1) 合成焼却灰の調整

主として化成品を焼却した場合の生焼却灰に  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  及び  $\text{CaO}$  を添加して再処理焼却灰（合成焼却灰Ⅲ）を模擬し合成した。なお、さらに  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  及び  $\text{CaO}$  の割合が高いものも一部模擬合成した（以下合成焼却灰Ⅳという。）。

合成焼却灰Ⅲ：生焼却灰 80.0 -  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  18.4 -  $\text{CaO}$  1.6 w/o  
比 重 0.67

合成焼却灰Ⅳ：生焼却灰 60.0 -  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  36.8 -  $\text{CaO}$  3.2 w/o  
比 重 0.57

###### (2) 成形用試料の調整

スクリーニング試験では合成焼却灰と熱可塑性樹脂を家庭用ミキサーで攪拌混合調整した。スケールアップ試験では、ヘンシェルミキサーで攪拌混合調整した。

##### 2) スクリーニング試験

###### (1) 原料樹脂

ポリブテン、ポリエチレン、合成ゴム及びエチレン-酢酸ビニル共重合樹脂  
—粉体状 4種 6銘柄 表 7.20

(2) 合成焼却灰／樹脂混合比 60／40, 70／30 (一部 75／25<sup>\*</sup>), 80／20  
\*合成ゴムのみ

(3) 固化体サイズ 50 φ × 40 H

(4) 圧縮成形機

① 金型（試料収納スペース）：50 φ × 80 H

② 圧縮成形機：最大使用圧力 210 kg/cm<sup>2</sup>

電気ヒーター加熱，水冷却方式

盤面スペース 400 × 4500

(5) 圧縮成形条件 表 7.21

(6) 固化体物性測定

- ・ 外観観察
- ・ 硬度（ショア D） JIS-K-7215 準拠
- ・ 比 重
- ・ 圧縮強度 JIS-K-7208 準拠
- ・ 浸 出 率 常温の水に約60日間浸漬し，重量変化率，体積変化率及び Ca の浸出率を測定する。
- ・ 燃 焼 性 酸素指数の測定～ JIS 7201 準拠

表 7.20 熱可塑性樹脂の種類

種 類	記 号	一般用途
① ポリブテン（A）	PB-A	パイプ用
② " （B）	PB-B	一般ブレンド用
③ 超高分子量ポリエチレン	UHMWPE	機械部品用
④ 高密度ポリエチレン	HDPE	工業部品用
⑤ タフマー（合成ゴム）	TF	熱可塑性樹脂の改質材
⑥ エチレン-酢酸ビニル共重合樹脂	EVA	繊維接着用

〔参考〕

メルトフローレート 密度  
(ASTM-D1238)(ASTM-D1505)

・ PB-A	： 三井石油化学工業株製	ポリブテン M801	0.03	0.927
・ PB-B	： (同 上)	ポリブテン KHT-712	20	0.915
・ UHMWPE	： (同 上)	ミリオン 145M	—	0.942
・ HDPE	： (同 上)	ハイゼックス 2100J	6.0	0.957
・ TF	： (同 上)	タフマー A-4085	3.6	0.88
・ EVA	： 三井デュポンポリケミカル株製	エバフレックス 2030M	70	0.93

表 7.21 圧縮成形条件

条件	樹脂名	加熱条件			冷却条件		
		温度 (°C)	圧力* (kg/cm <sup>2</sup> G)	時間 (分)	温度 (°C)	圧力* (kg/cm <sup>2</sup> G)	時間 (分)
1	PB-A	200	100	20	水温	100	15
	PB-B						
	UHMWPE						
	HDPE						
2	TF	170	100	20	水温	100	15
	EVA						

\*圧力：成形品に掛かる圧力

## 3) スケールアップ試験

(1) 原料樹脂 ポリブテン (PB-B), 高密度ポリエチレン (HDPE) 及び合成ゴム (TF)

(2) 合成焼却灰/樹脂混合比 80/20

(3) 固化体サイズ 470 × 530 × 30 mmH (14 kg)

(4) 金型, 圧縮成形機

金 型 470 × 530 × 100 mmH

圧縮成形機 300 ton, 電気ヒータ加熱, 水冷却方式

最高使用圧力 72 kg/cm<sup>2</sup>G

(5) 圧縮成形条件

加熱: 230 °C, 72 kg/cm<sup>2</sup>G, 2時間45分<sup>(注1)</sup>冷却: 水温, 72 kg/cm<sup>2</sup>G, 一晚(約10時間)<sup>(注2)</sup>(注1) 使用圧縮成形機の最高使用圧力が100 kg/cm<sup>2</sup>G 出ないので加熱温度を上げ, 時間を長くして試験する。

(注2) 作業時間との兼ね合いで, 成形固化体の取り出しを翌日にしたため。

(6) 固化体物性測定

・外観観察

・硬度 (ショアD) JIS-K-7215 準拠

・比 重

・圧縮強度 JIS-K-7208 準拠



## 7.4.2 試験の結果及び考察

### 1) スクリーニング試験

硬度及び圧縮強度以外は全て合成焼却灰Ⅲに関する試験データである。圧縮成形固化体の比重、硬度及び圧縮強度をそれぞれ表7.22、表7.23及び図7.24に示す。又、浸出率を図7.25に示す。

#### (1) 外 観

EVA樹脂を除く、全ての樹脂で合成焼却灰／樹脂の配合比80／20まで堅固な成形固化体がえられた。EVAの場合、合成焼却灰／樹脂の混合比75／25で成形数日後、表面の一部がふくらみ、割れが発生した。これは樹脂が合成ゴムで他の樹脂よりも強度が低いため、たまたまあった試料中の混合不良部分で、成形時の内部応力に樹脂が抗しきれず生じたものと考えられる。

合成焼却灰Ⅳによる試験では、PB-B、HDPE、TFの全ての樹脂で同様に合成焼却灰／樹脂の混合比80／20まで堅固な成形固化体が得られた。

#### (2) 比重、硬度及び圧縮強度

- ① 全般的な傾向としては、圧縮成形固化体は、樹脂の種類によらず廃棄物／樹脂の混合比70／30まではその比重、硬度及び圧縮強度が混合比60／30のものとはほぼ変わらないが、物によっては多少増大するが混合比80／20になると全て明確に減少した。
- ② 合成焼却灰Ⅳの固化体は、合成焼却灰Ⅲの固化体より、その比重、硬度はほぼ変わらないが多少減少する傾向を示した。又、圧縮強度については、PB-B及びHDPEの混合比70／30の固化体が混合比60／40のものより増大したものの混合比が80／20になるといずれも合成焼却灰Ⅳの固化体より減少した。

これは合成焼却灰Ⅳの方が微粉状の $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ の含有量が多いため同一成形条件では脱気が不十分となり、廃棄物／樹脂の混合比80／20と高い場合に、固化体の比重、圧縮強度及び硬度の低下率が大きくなるものと考えられる。

- ③ 廃棄物／樹脂の混合比80／20で各種の樹脂系のうち高い比重及び圧縮強度を示すものはPB-BとHDPEの合成焼却灰Ⅲの圧縮成形固化体である。両者の圧縮強度－歪曲線を図7.26に示す。

PB-Bの固化体はHDPEの固化体ほど圧縮強度が高くないものの、逆に歪に対しねばり強く破断しにくい（塑性変形する）ことがわかる。

表 7.22 圧縮成形固化体の比重

(a) 合成焼却灰Ⅲの圧縮成形固化体

樹脂名 \ 混合比	60/40	70/30(75/25)*	80/20
PB-A	1.42 (35.8)	1.41 (36.2)	1.22 (46.0)
PB-B	1.47 (34.8)	1.59 (32.0)	1.53 (36.8)
UHMWPE	1.38 (37.1)	1.45 (35.2)	1.23 (45.7)
HDPE	1.48 (34.4)	1.67 (30.5)	1.46 (38.4)
TF	1.43 (35.7)	1.57 (32.6)	1.26 (44.7)
EVA	1.47 (34.8)	1.61 (31.7)	1.41 (39.8)

\* EVAのみ75/25

( )内は厚さの測定値

(b) 合成焼却灰Ⅳの圧縮成形固化体

樹脂名 \ 混合比	60/40	70/30	80/20
PB-B	1.40	1.43	1.31
HDPE	1.45	1.52	1.31
TF	1.41	1.35	1.22

表 7.23 圧縮成形固化体の硬度 (ショアD)

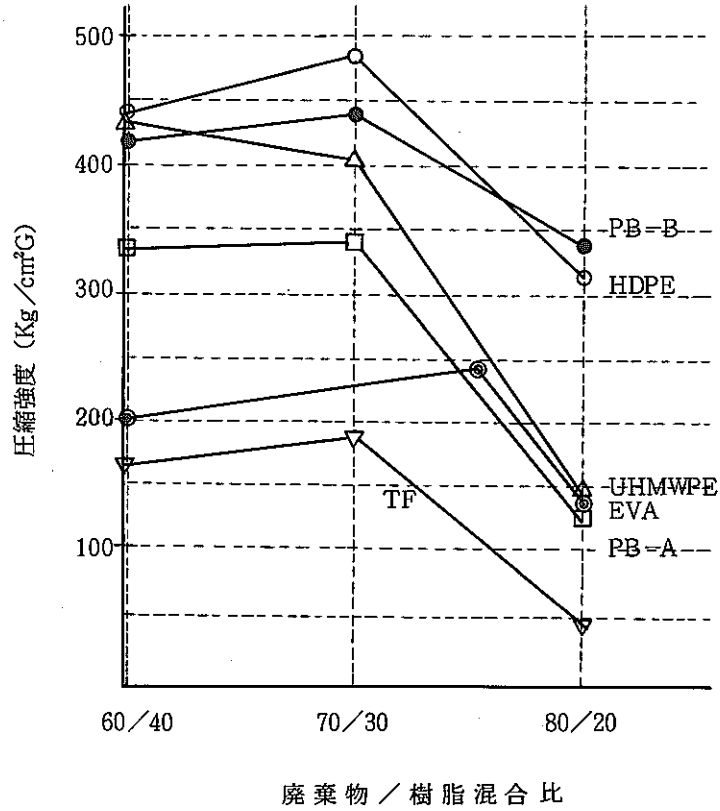
(a) 合成焼却灰Ⅲの圧縮成形固化体

樹脂名 \ 混合比	60/40	70/30 (75/25)*	80/20
PB-A	76.8	80.7	71.2
PB-B	76.5	79.5	75.5
UHMWPE	73.2	72.2	67.2
HDPE	72.2	76.0	75.7
TF	57.5	60.3	46.8
EVA	60.0	65.7	68.2

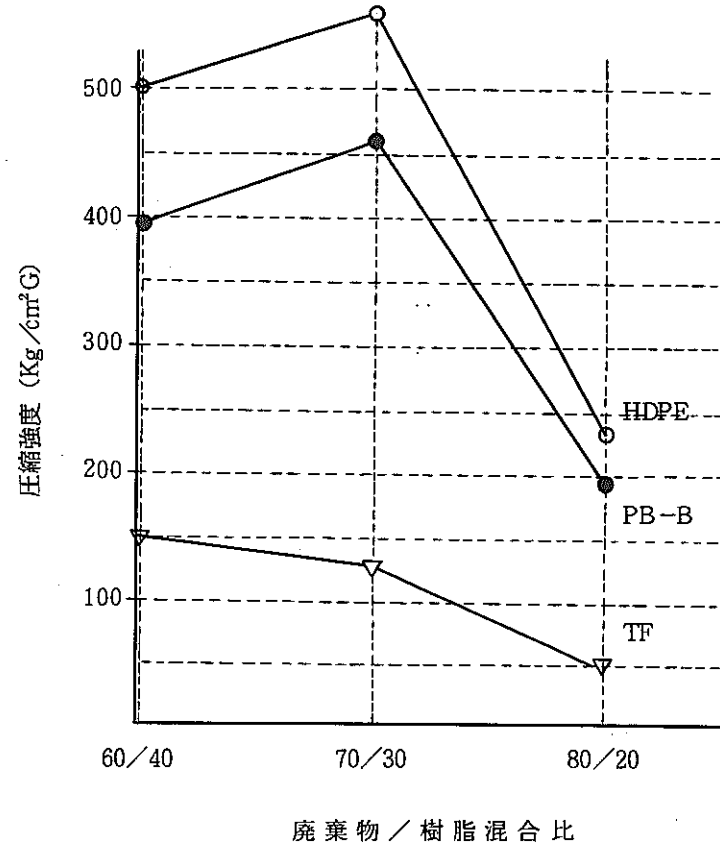
\* EVAのみ 75/25

(b) 合成焼却灰Ⅳの圧縮成形固化体

樹脂名 \ 混合比	60/40	70/30	80/20
PB-B	74.0	79.8	73.5
HDPE	73.8	78.0	74.8
TF	61.5	59.0	50.3



(a) 合成焼却灰Ⅲの圧縮成形固化体



(b) 合成焼却灰Ⅳの圧縮成型固化体

図 7.24 圧縮成形固化体の圧縮強度

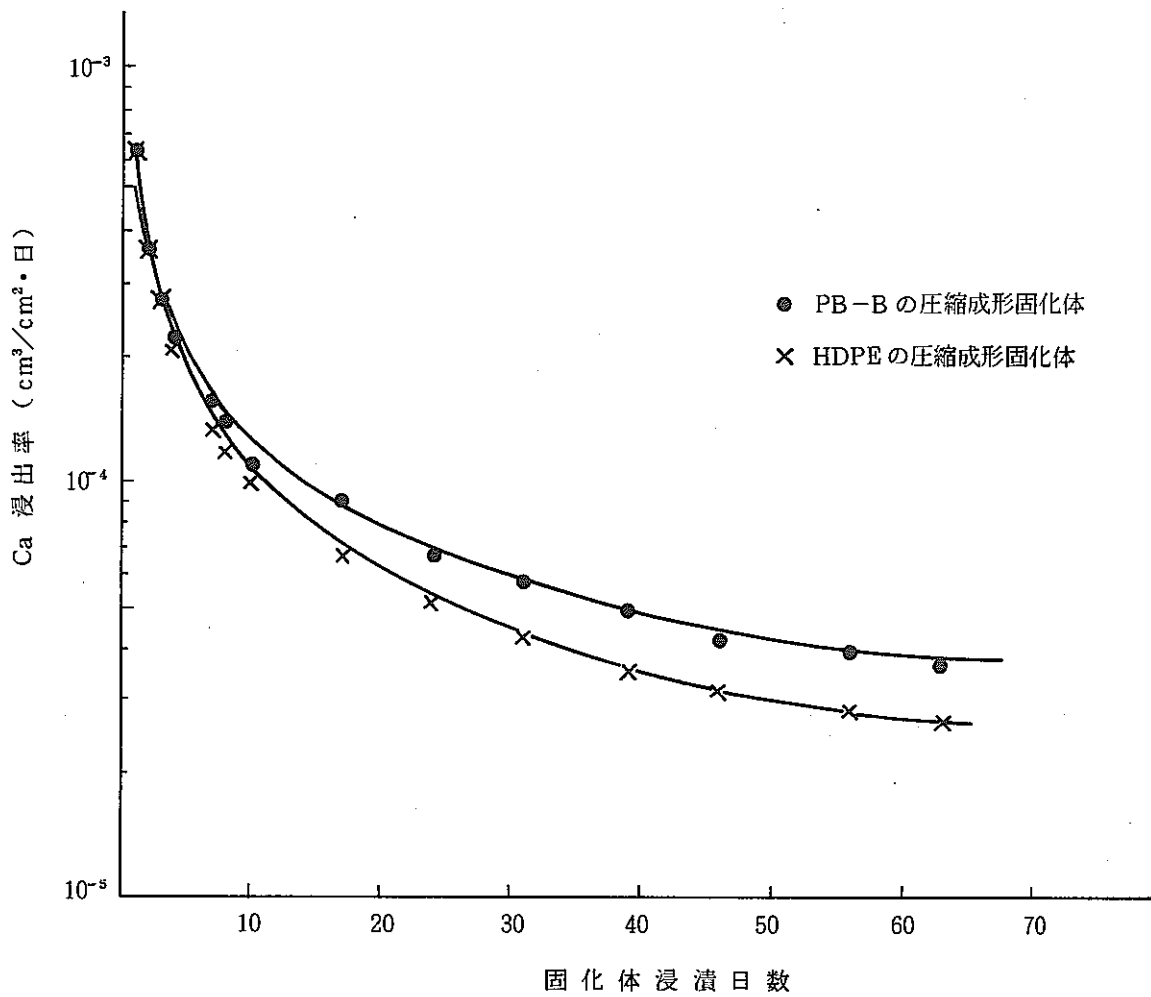


図 7.25 圧縮成形固化体の Ca 浸出特性 (焼却灰/樹脂混合比 80/20)

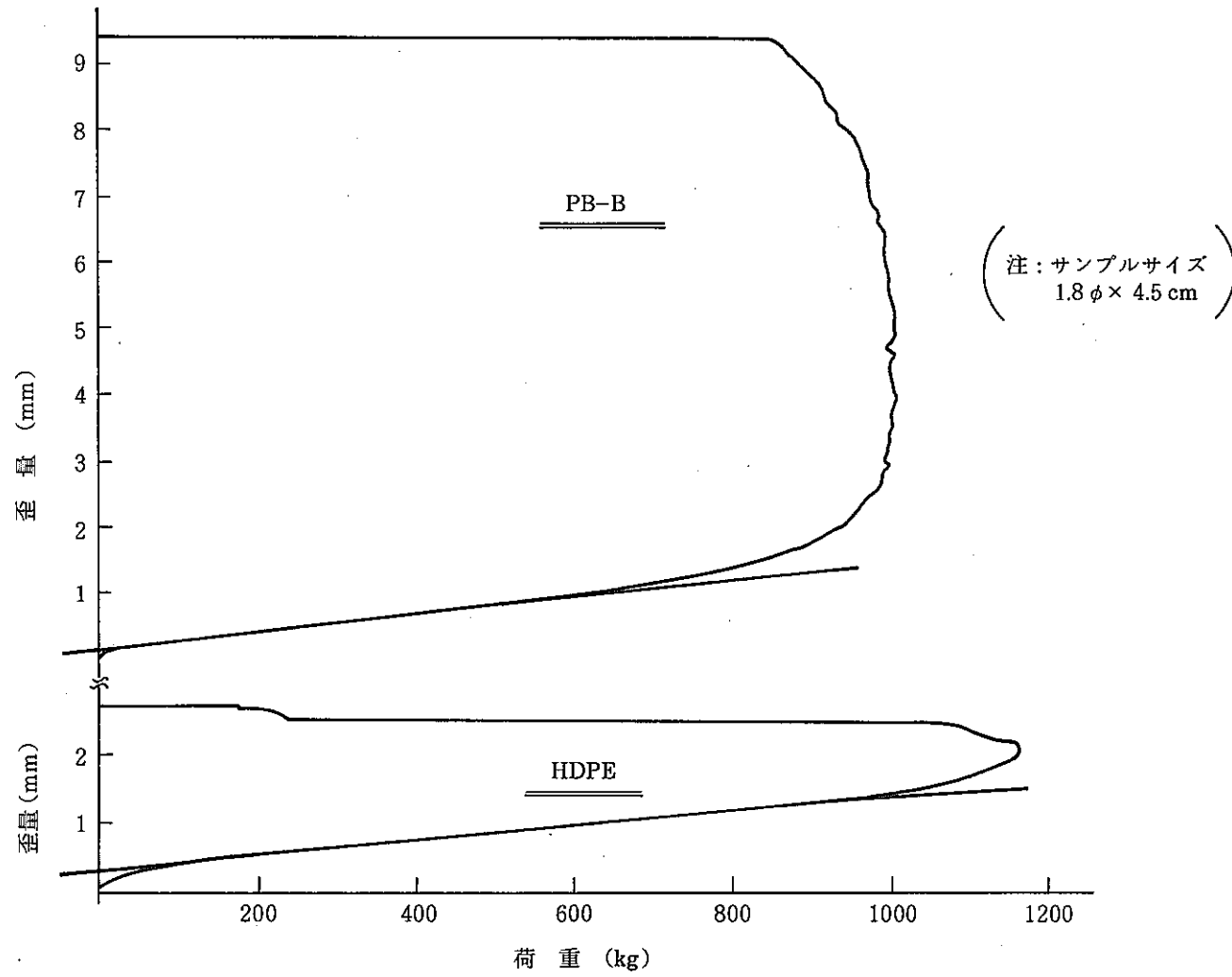


図 7.26 PB-B 及び HDPE の圧縮成形固化体の圧縮強度 - 歪曲線 (合成焼却灰Ⅲ/樹脂配合比 70/30)

### (3) 固化用樹脂の選定

以上のスクリーニング試験より、高い圧縮強度、比重及び硬度を示すPB-B及びHDPEを固化に適した樹脂として選定することとする。

### (4) 浸出率

PB-B及びHDPEの合成焼却灰Ⅲの圧縮成形固化体を63日間浸漬した場合の重量減少は7%、体積減少は3~2%であり、Caの浸出率は図7.25に示す様に約 $10^{-5}\text{cm}^3/\text{cm}^2\cdot\text{日}$ であった。

約7%、体積減少は3~2%であり、Caの浸出率は図7.25に示す様に約 $10^{-5}\text{cm}^3/\text{cm}^2\cdot\text{日}$ であった。

本試験期間中に、固化体へのクラック等の発生は認められなかった。

### (5) 燃焼性（酸素指数）

JISに定める試験方法で3分以上継続して燃焼するか、着炎後の燃焼長さ50mm以上燃え続けるに必要な最低の酸素流量を測定した。

測定結果は焼却灰/樹脂の混合比80/20のPB-B及びHDPEの圧縮成型固化体は、ともに、酸素指数26.0%であった。

消防法では酸素指数26%以上は特殊可燃物の対象外と定めているので、これらの固化体は消防上の規制を受けない。

固化体表面の樹脂が燃えて、不燃性の焼却灰が露出してくると、これが空気の遮断効果を生み、かつ樹脂分の含有量が少ないため、燃焼熱量が小さく、したがって炎を遠ざければ消炎することが期待できる。

耐火性を求める場合には、セメントガラス固化法で採用している様な5cm厚程度の複合コンクリート容器を併用すれば、より効果的である。

### (6) 耐候性

一般に高密度ポリエチレンはテフロンやエポキシ樹脂に比較し、耐候性が劣ると言われている。

今回耐候性に関する試験を実施していないが、一般にプラスチックの耐候性を向上させるには、特に紫外線を遮断するか、吸収除去する方法がとられる。

プラスチックに添加されるカーボンブラック、無機顔料等の充てん剤及び着色剤は紫外線遮断効果を有し、例えばポリエチレンへのカーボンブラックを2%添加した場合、 $-40^\circ\text{C}$ で脆化するまでの促進劣化時間が約24倍以上に延長したという<sup>79)</sup>。(5.2参照)

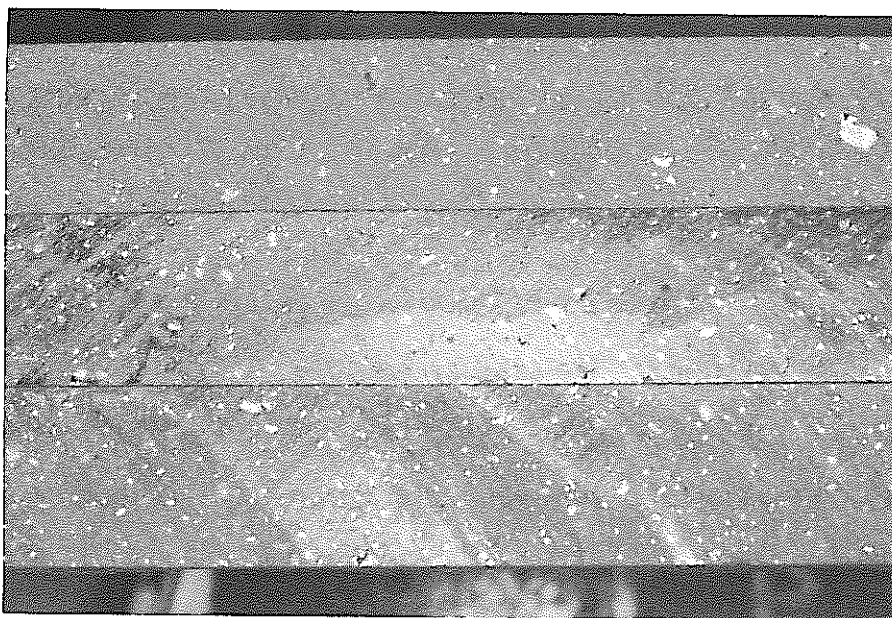
本圧縮成形固化体については、無機顔料に相当する充てん剤（廃棄物）が大量に充てんされており、かつ固化体自体もキャッピングされた状態で貯蔵されるため、樹脂単味よりも充分な耐候性を有しているものと推定される。今後試験にて確認することが望ましい。

## 2) スケールアップ試験

### (1) 外 観

HDPE および PB-B の圧縮成形固化体はクラック等もなく良好に圧縮成形されている。固化体の厚みに差はない。各固化体の断面写真を写真 7.4 に示す。

なお、この写真には参考として実施した TF も一緒に写っている。写真中白くみえるのは、生焼却灰中に含有された金属片と生焼却灰に添加した  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  である。



上から順に TF, PB-B, HDPE の圧縮成形固化体である。

写真 7.4 TF・PB-B・HDPE による焼却灰圧縮成形固化体の断面



## (2) 比重、硬度及び圧縮強度

固化体中の中央部及び端部の比重・硬度・圧縮強度の測定結果を表 7.24 に示す。

- ① 端部は中央部よりも比重・硬度・圧縮強度が小さかった。これは脱気が中央部から端部に向けて行われるため、端部の方が脱気が不十分であること及び溶融した樹脂が脱気に伴って中央部から端部に一部移行するためと推定される。
- ② PB-B の固化体の比重、硬度及び圧縮強度がスクリーニング結果よりも低下したが、これは成形圧力が  $72 \text{ kg/cm}^2 \text{G}$  とスクリーニング時の圧力 ( $100 \text{ kg/cm}^2 \text{G}$ ) より低かったことと加熱時の脱気が不十分であったためと推定される。
- ③ HDPE の固化体の比重及び硬度はスクリーニング試験とあまり変化しないのに対し圧縮強度は約 20 ~ 25 % 減少した。その原因ははっきりしないが、使用した焼却灰がスクリーニング試験の場合よりも多少粒度の大きな金属片を多く含んでいたためと考えられる。
- ④ いずれにしても、PB-B で約  $200 \text{ kg/cm}^2 \text{G}$ 、HDPE で約  $240 \text{ kg/cm}^2 \text{G}$  を有する固化体が得られた。

なお、今後加熱時の成形圧力の上昇等により、廃棄物/樹脂の混合比 80/20 以上でも固化体の物性をさらに向上させることができるものと考えられる。

## 3) プラスチック圧縮成形固化試験装置の焼却施設内への設置について

焼却施設 1 階予備室に設置する構想で検討した焼却灰のプラスチック圧縮成形固化試験装置の概要を以下に示す。

〔前提条件〕 セメントガラス固化装置の場合と同一とする。 (7.2 参照)

〔設備能力〕

固化体サイズ :  $55 \phi \text{ cm} \times 3.5 \text{ cm}$ , 14 kg (10 ℓ)

固化能力 : 8 枚/日

固化体パッケージ : 21 枚/缶 (21 枚段積収納)

3 日/缶

なお、大型の圧縮成形機を導入できれば固化体の厚みを 15 cm とすることが可能となり、

固化体重量 60 kg/板となる。この場合の固化能力等

固化能力 : 2 枚/日

固化体パッケージ : 5 枚/缶 (5 枚段積収納)

3 日/缶

〔フローシート〕 省略 (図 6.14 参照)

〔主要機器概略仕様〕 表 7.25

〔配置図〕 図 7.27

表 7.24 スケールアップした圧縮成形固化体の比重・硬度・圧縮強度分布

	樹脂の種類	中央部	端 部	(参考) スクリーニング試験結果
比 重	PB-B	1.48	1.33	1.53
	HDPE	1.47	1.41	1.46
硬 度 (ショア D)	PB-B	45.5	49.5	75.5
	HDPE	70.8	53.0	75.7
圧縮強度 (kg/cm <sup>2</sup> G)	PB-B	210 (1.2)	191 (1.3)	338 (1.7)
	HDPE	251 (1.0)	231 (1.1)	307 (0.9)

注：( )内は圧縮強度測定と同一サンプルの比重測定値である。

表 7.25 プラスチック圧縮成形固化試験装置の主要機器概略仕様

No.	名 称	数量	形 式	容量等	備 考
1.	ド ラ ム 反 転 機	1	反転機構付リフト	—	
2.	混 合 機	1	高速流動式 混合混練機	500 ℓ	ヘンシェルミキサー
3.	固 化 装 置 油圧プレス 反応容器	1	加熱・冷却両用	500 t	仮じめ・本じめ共用 加熱：シース型電気ヒータ 冷却：冷媒オイル方式
		1		—	
4.	反応容器操作装置	1	—	—	反応容器(金型)出入用
5.	固化体ドラム充てん機	1	天井走行型	—	—
6.	キャッピング装置	1	電気ボルトじめ	—	インパクトレンチ方式

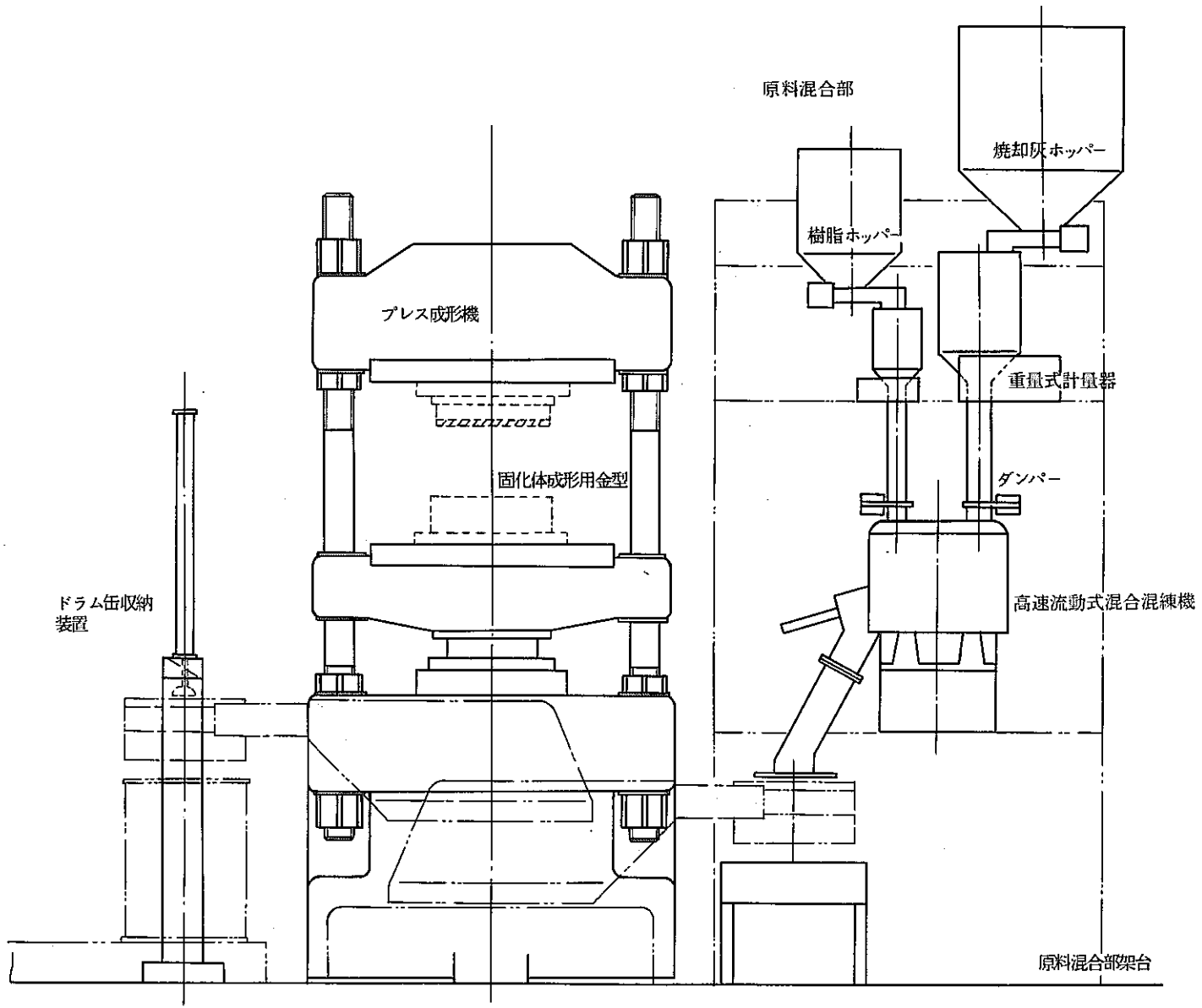


図 7.27 プラスチック圧縮成形固化装置の概念図

#### 4) 今後の技術開発の課題

試験の結果、本法は焼却灰の固化に適することがわかった。

一般産業界のプラスチック圧縮成形技術の応用であり、それほど多くないが、以下の課題について技術開発が必要と考えられる。

##### (1) 焼却灰／樹脂混合比 80／20 以上の固化体製造のための圧縮成形条件の検討

混合比 80／20 以上の場合についても成形圧力を上げた試験を実施し、圧縮成形条件及び固化体物性の関係を求め、圧縮成形機のサイズ、重量、必要耐床荷重等を考慮して混合比及び成形圧力の上限を定める必要がある。

##### (2) 加熱前脱気操作条件の検討

スケールアップ試験時に参考として TF 樹脂に関し、加熱前に脱気操作した所、圧縮成形固化体の比重はスクリーニング試験時よりも高かった。固化体の硬度の上昇が期待されたが TF 樹脂自身の硬度が低いため、脱気操作の影響が表われるほどでなかった。今回選定した樹脂 PB-B、HDPE に関して、脱気操作が固化体物性向上につながるか試験により確認することが望ましい。

##### (3) 固化体の浸出率、耐放射線性、耐候性、耐衝撃性の測定

実際に Ru-106、Co-60、Cs-137 等のトレーサーによる浸出率の測定。又、Co-60 外部照射による耐放射線性、その他耐候性、耐落下衝撃性等の物性測定データの入手が必要である。

##### (4) 実規模工学試験による厚肉固化体製造システムの実証

固化処理量の増大をめざし、固化体厚みと圧縮成形条件（加熱圧縮時間）との関係を把握すると共に、成形固化体を遠隔操作により確実に取出せる様な金型の構造を検討する必要がある。さらに実規模工学試験による厚肉固化体の製造システムの実証が望ましい。

##### (5) 焼却灰以外の廃棄物への適用性の検討

PVC シートに関しては別途実施した試験により、シート細断したもの又はそのまま折たたんだものを圧縮成形（160℃加熱、60 kg/cm<sup>2</sup> G で 10 分間仮押脱気後 20 kg/cm<sup>2</sup> G で本押、加熱・冷却計 60 分間）し、割れのない真密度に近い 180 φ × 30 mm の PVC 固化体ができる。シートは細断した方がバリ、空気の巻込みのない均一透明な固化体を得られた。

細断しない場合には、脱気するため加圧力が数倍必要となり、金型の隙間から溶融した樹脂が押出されバリが発生しやすくなるため、今後シートに針孔開け等の脱気前処理条件の検討が必要。

この PVC 固化体の長期健全性に関しては、複合コンクリート容器に収納後、容器と固化体との隙間にセメントガラスを流し込んでさらに固化体の耐熱性、耐火性及び耐浸出性の向

上をはかることができる。

一方、硝酸ソーダ乾燥粉末に関しては、 $200^{\circ}\text{C}$ 、 $150\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ の圧縮成形固化基礎試験で、バインダ(PB-B)/廃棄物混合比が2/98でも圧縮強度 $737\text{kg}/\text{cm}^2\text{G}$ と優れた物性のペレットが得られている。今後これらの廃棄物の他、ヨウ素吸着剤、シリカゲル等の廃棄物に関しても詳細な試験を実施し、本法の適用性を明確にすべきである。

熔融したバインダで廃棄物をくるみ、それらをバインダ自身が接着する現象で廃棄物の固化をしているため、廃棄物粉体の粒径が大きくなるほど固化体の物性が低下してゆくので、バインダの添加量を増大させれば、十分固化しうるものと考えられる。

すなわち、本法は上記廃棄物の固化に十分適用しうるものと考えられる。

## 8. 総合評価

7章で述べた固化基礎試験の成果をもとに、マイクロ波誘電加熱溶融固化法、水熱固化法、セメントガラス固化法及びプラスチック圧縮成形固化法に関し、比較検討、総合評価し、再処理廃棄物焼却灰の固化に適した固化法を選定する。

固化プロセスの選定基準、固化プロセスの選定結果、今後の課題について以下に述べる。

### 8.1 固化プロセスの選定基準

次の8つの基準に基づき選定するものとする。

1) 固化体ハンドリング時の $\gamma$ 線遮蔽対策及び輸送時にキャスク等が不要であること。

ドラム容器は灰の収納効率を考慮して、最大5cm厚のコンクリート内張容器(マルチドラム)とし、固化体パッケージの表面線量率は200mrem/hを、1m離れた線量率は10mrem/hを超えないものとする。

2) 固化体中の $\alpha$ 含有量が確実に10nCi/g以下とすること。

わが国の原子力発電所からの廃棄物に関しては30 $\alpha$ nCi/g以下に決まったが、再処理廃棄物に関しては、今のところ未定であり流動的である。今後固化体の性状とピット等人工バリアの強固さについて十分検討評価してから決めることになるが、放射性廃棄物の人間環境からの隔離が原点であり、原子力発電所からの廃棄物に対する規制値と同一値か、多少厳しくなっても米国の基準10CFR61のクラスAの基準10 $\alpha$ nCi/g以下になるものと推定される。

少し楽観的すぎる推定であるとの批判はまぬがれえないが、仮りに固化体パッケージが長期保管後細断され含有 $\alpha$ 核種が固化体外に飛散したとしても、わが国の浅地中埋設処分ではコンクリートピット内に固化体が収納される方式のため、 $\alpha$ 核種が裸の状態ではピット外の土壌中へ大量に移行することは考えにくい。土壌中への $\alpha$ 核種の吸着効果も期待できるので、人間環境への影響が生ずるとしても長期経年後となろう。

今後これらに関し実験等により確認し十分評価する必要があることは言うまでもないが、再処理廃棄物の含有 $\alpha$ 核種に関するわが国の規制値として、10nCi/g以下より厳しくなる可能性は少ないと考え、この固化プロセス選定基準としてはとりあえず確実に10nCi/g以下に保持できることとする。

3) 固化体パッケージの健全性が少くとも100年以上、できれば300年以上保持できること。

米国では10CFR61のクラスAの廃棄物は、処分場でも他のユニットから十分隔離し、浅地中埋設処分し、100年間制度上保管管理する様に定めており、クラスCに関しては、その廃棄

物の形態又は容器は300年以上安定にその物性を保ち、識別できるものでなければならないと定めている。

本報で検討している動燃東海再処理工場からの焼却灰固化体に関しては米国のクラスA相当の $\alpha$ 核種の含有量となるものと見込まれるため、固化体パッケージの健全性保持必要期間についても、少なくとも米国の基準値を満すべきものと考え、少なくとも100年以上、できれば300年以上保持できるものとした。

固化体パッケージの耐放射線性、耐浸出性、耐候性を重視して評価するものとする。

(わが国の場合、この基準で良いのか、さらに上乘せすべきか、さらにその健全性確認手法の妥当性等多々議論はあるものと思うが、一応この様に設定してみた。)

長期間にわたる固化体パッケージの健全性に優れる固化法など、将来 $\alpha$ 規制値がさらに厳しくなった場合でも対処が容易となるメリットを有するので、できるだけ長期の健全性に優れた固化法を選定するのが望ましい。

4) 固化装置共用によりできるだけ焼却灰以外の廃棄物も固化しうること(必須条件ではない)。

4.3で述べた様に、焼却灰以外の再処理工場からの低レベル固体廃棄物は、スラッジを除き発生量、累積保管量ともそれほど多くなく、しかも非常に特殊な性状のものが残されている。そこで、I-129を吸着したAgX、Ru-106を吸着したシリカゲル、FP含有NaNO<sub>3</sub>乾燥粉末、Ru-106及びI-129を吸着したドデカン浸漬シリカゲル(乾燥処理後のもの)等も同一装置の共用により固化できれば、装置稼働率が向上するだけでなく、経済性の点でも好ましい。

5) 安全性及び操作性・保守性

6) 実証性

7) 経済性

8) 固化装置の焼却施設予備室への収納の可否

## 8.2 固化プロセスの選定

### 8.2.1 選定基準に基づく固化プロセスの比較

加熱溶融固化法、プラスチック圧縮成形固化法、水熱固化法、セメントガラス固化法の各固化体のサイズと固化体パッケージの線量率を表 8.1 に示す。

又、セメントガラス固化法、水熱固化法、プラスチック圧縮成形固化法に関しその減容性、固化体物性、設備保守性、安全性、経済性、開発状況、R&D 項目、設備共用による再処理廃棄物焼却灰以外の固化可能な廃棄物の種類を対比し表 8.2 に示す。

なお、加熱溶融固化法は後述する様に、減容比が比較的高く、固化体ハンドリング時に $\gamma$ 線遮蔽対策及び輸送時にキャスクの使用が不可欠であり、又、固化体中の $\alpha$ 含有量を確実に $10\text{nCi/g}$ 以下に維持するのが極めて難しいため、本施設への採用を見送らざるをえないので、表 8.2 では記載していない。

#### 1) 固化体のハンドリング時の $\gamma$ 線遮蔽対策及び輸送時のキャスク使用の要否について

オープンドラム及び 5cm 厚コンクリート内張マルチドラムに収納した固化体容積は、ドラム缶壁とドラム缶内への固化体収納時の固化体ハンドリング機器間の操作クリアランスを考えるとそれぞれ 129 ℓ 及び 116 ℓ となる。表中には、ケーススタディの意味で、一部容量を変えた場合についてもあわせ表示した。

表 8.1 より次のことがわかる。

- ① 溶融固化体は減容比が 6 と高く、したがって固化体含有放射エネルギーが増大し、5cm 厚コンクリート内張マルチドラムでは 65 ℓ サイズの固化体でも表面線量率、1m 離れた線量率のいずれも基準値より高く、もしキャスク不要としたい場合にはコンクリート内張厚が約 10cm 位必要と見込まれる。この場合、最大固化体容量は 65 ℓ にとどまり、固化体収納時のドラム缶壁とハンドリング機器の操作クリアランスを考えると現実的な固化体サイズはこれよりさらに小さくなる。

この様にドラム容器の固化体収納効率が、他の固化法の固化体の約  $1/2$  にとどまるため、溶融固化体の場合は、むしろ固化体サイズを小さくせず、輸送時やハンドリング時に遮蔽キャスクを使用すべきであろう。(なお、容器内への収納量を加味すると全減容比は 3 にすぎず、他の固化法に対比し、結果的にそれほど減容比は高くないことがわかる。)

- ② 一方、プラスチック圧縮成形固化体及び水熱固化体は 5cm 厚コンクリート内張マルチドラムで十分基準値を満足する。
- ③ セメントガラス固化体は、減容比 1.0 となり減容性は期待できないが、反面オープンドラムに 129ℓ 固化体収納時の表面線量率が  $200\text{mrem/h}$ 、1m 離れた線量率が  $9.5\text{mrem/h}$  と基準値と同一になる。したがって厚さ 1cm 位のコンクリート容器か、複合コンクリート容器を使用すれば十分基準値を満足するものと考えられる。



表 8.1 固化体サイズと固化体パッケージの線量率

	オープンドラム				マルチドラム (5 cm コンクリート内張)				評 価
	固化体容量, 放射能 ℓ γμCi	表面線量率 mrem/h	1 m 離れた線量率 mrem/h		固化体容量, 放射能 ℓ γμCi	表面線量率 mrem/h	1 m 離れた線量率 mrem/h		
加熱溶融固化体 (減容比 6)	129 1.57 × 10 <sup>5</sup>	—	—		73 8.9 × 10 <sup>4</sup> 65 7.9 × 10 <sup>4</sup>	350 300	21 17		コンクリート厚 10 cm 必要と見込れる。この場合、最大固化体容量 65 ℓ にとどまる。
プラスチック圧縮成形 固化体 (減容比 1.8)	129 4.7 × 10 <sup>4</sup>	350	18		116 4.2 × 10 <sup>4</sup> 129 4.7 × 10 <sup>4</sup>	160 180	8.7 9.5		コンクリート厚 5 cm で十分 (コンクリート厚 5 cm の 129 ℓ 固化体はハンドリング上のクリアランスとれず難しい。)
水熱固化体 (減容比 1.5)	129 3.9 × 10 <sup>4</sup>	300	14		116 3.5 × 10 <sup>4</sup> 129 3.9 × 10 <sup>4</sup>	130 150	7 8		
セメントガラス固化体 (減容比 1.0)	129 2.6 × 10 <sup>4</sup>	200	9.5		116 2.4 × 10 <sup>4</sup>	85	5.0	コンクリート厚 1 cm 位で十分。複合コンクリート容器使用で 129 ℓ 固化体と一体化を計るのが得策。	
	116 2.4 × 10 <sup>4</sup>	175	8.4		129 2.6 × 10 <sup>4</sup>	95	5.4		

(注 1) 雑固体廃棄物の焼却灰の比放射能  $2.03 \times 10^{-1} \gamma\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ ,  $6.77 \times 10^{-1} \gamma\mu\text{Ci}/\text{g}$

(注 2) 固化体容量と寸法 129 ℓ:  $475 \phi \times 730^{\text{H}}$ , 116 ℓ:  $462 \phi \times 695^{\text{H}}$ , 73 ℓ:  $370 \phi \times 675^{\text{H}}$ , 65 ℓ:  $362 \phi \times 630^{\text{H}}$

表 8.2 再処理廃棄物焼却灰の各固化法の比較 (1)

	セメントガラス固化法	水熱固化法	プラスチック圧縮成形固化法
概要	<p>焼却灰 バインダ (セルローズ)</p> <p>＜非放射性取扱＞</p> <p>セメント固化材 (粉末)</p> <p>添加水</p> <p>750kg/cm<sup>2</sup>G</p> <p>混練 *1</p> <p>注入 *2</p> <p>小サイズペレット 20φ×10<sup>t</sup> ～400ヶ 充てん</p> <p>200ℓドラムサイズ固化体</p> <p>・指触固化 約5時間 ・養生期間 3日間</p> <p>*1 水/セメントガラス比=0.3 *2 混練タンク洗浄排水～200ℓ/バッチ発生</p>	<p>焼却灰 バインダ (珪石)</p> <p>NaOH溶液</p> <p>灰:バインダ:NaOH 溶液=70:20:10</p> <p>750kg/cm<sup>2</sup>G</p> <p>圧縮成形</p> <p>・～300℃, 350kg/cm<sup>2</sup>G, 1.5時間 ・水冷又は空冷, 350kg/cm<sup>2</sup>G, 3.5時間</p> <p>棒状固化体</p> <p>φ 18cm × H 36cmの場合*</p> <p>14本収納</p> <p>200ℓドラムサイズ固化体</p> <p>φ H (* 43cm × 36cmの場合2本収納 ただし, 500Tonプレス必要)</p>	<p>焼却灰</p> <p>熱可塑性樹脂 (粉末)</p> <p>750kg/cm<sup>2</sup>G</p> <p>圧縮成形</p> <p>・～200℃, 100kg/cm<sup>2</sup>G, 15分間 ・水冷, 100kg/cm<sup>2</sup>G, 15分間</p> <p>ドラム径薄厚円盤状固化体</p> <p>50cmφ</p> <p>数ヶ収納*</p> <p>200ℓドラムサイズ固化体</p> <p>・圧縮機予熱 1時間 ・運転時間 45分/ヶ</p> <p>(* 3.5cmtなら21枚収納 15cmtなら5枚収納)</p>
減容性	<p>○ プレス時の灰/樹脂混合比</p> <p>○ 混練時のペレット/固化材混合比</p> <p>○ プレス又は造粒による減容比</p> <p>○ 全減容比</p> <p>○ 80/20</p> <p>○ 45/55 (v/o)</p> <p>○ ～2.7 (1.80/0.67)</p> <p>○ 1.0 (2.7×0.8×0.45)</p>	<p>○ 70/30</p> <p>—</p> <p>○ ～2.7 (1.78/0.67)</p> <p>○ ～1.5 (2.7×0.7×0.8*)</p> <p>(*ドラム内収納時の空隙生ずるため0.8倍となる)</p>	<p>○ 80/20</p> <p>—</p> <p>○ ～2.3 (1.53/0.67)</p> <p>○ ～1.8 (2.3×0.8)</p>

表 8.2 再処理廃棄物焼却灰の各固化法の比較 (2)

	セメントガラス固化法	水熱固化法	プラスチック圧縮成形固化法
<p>固化体物性</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 圧縮強度</li> <li>◦ 硬度 (ショアD)</li> <li>◦ 比重</li> <li>◦ 浸出率</li> <li>◦ 耐水性</li> <li>◦ 耐放射線性</li> <li>◦ 耐火性</li> </ul>	<p>&lt; 35℃, 14日間養生 &gt;</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 約 180 kg/cm<sup>2</sup>G (ペレット自体約 500 kg/cm<sup>2</sup>G)</li> <li>◦ 約 80</li> <li>◦ 1.72</li> <li>◦ <sup>134</sup>Cs 浸出比 (36日間のラボデータ) <ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 容器なし, Na<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粉体固化体のみ ~ 10<sup>-1</sup></li> <li>◦ 複合コンクリート容器あり 焼却灰粉体固化体 ~ 2 × 10<sup>-5</sup>* NaNO<sub>3</sub>ペレット固化体 ~ 1 × 10<sup>-5</sup> ~ 10<sup>-6</sup> g/cm<sup>3</sup>・日相当</li> </ul> </li> <li>◦ 耐水性 データなし 問題ないものと考えられる。</li> <li>◦ 10<sup>8</sup> Rad まで寸法, 重量, 圧縮強度 ~ 変化なし (<sup>60</sup>Coγ線照射, ペレット, セメントガラス固化体 ~ 同一結果) &lt; バインダ (セルロース) の放射線分解により, ポリエチレンの場合とほぼ同程度の H<sub>2</sub> ガスが発生するものと推定される。 &gt;</li> <li>◦ オープンファイヤー方式で 800℃ × 30分加熱 12t 複合コンクリート容器付約 560 m<sup>3</sup> 固化体 <ul style="list-style-type: none"> <li>◦ ~ 重量減 9.7%, 再運搬可能</li> <li>◦ 鉄皮ドラムでコンクリート内張なしの耐火性データなし</li> <li>◦ 酸素指数 データなし</li> </ul> </li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 363 kg/cm<sup>2</sup>G (バインダ 25w/o), 256 kg/cm<sup>2</sup>G (バインダなし)</li> <li>—</li> <li>◦ 1.78 (バインダ 25 w/o) 1.81 (バインダなし)</li> <li>◦ Na, Si の浸出率 (g/cm<sup>2</sup>・日) (28日間のラボデータ) <ul style="list-style-type: none"> <li>◦ バインダあり    バインダなし</li> <li>◦ Na    ~ 1 × 10<sup>-4</sup>    2 × 10<sup>-5</sup></li> <li>◦ Si    ~ 4 × 10<sup>-6</sup>    &lt; 1 × 10<sup>-5</sup></li> </ul> </li> <li>◦ 耐水性 データなし 問題ないものと考えられる。</li> <li>◦ 10<sup>8</sup> Rad まで寸法, 重量 ~ ほとんど変化なし 圧縮強度 ~ 若干減少する様にみえるが 再測定確認必要 &lt; バインダはガラス粉末のため固化体の放射線分解により H<sub>2</sub> ガスはほとんど発生しないものと推定される。 &gt;</li> <li>◦ 800℃ × 30分加熱 <ul style="list-style-type: none"> <li>◦ ~ 重量減 5% (バインダあり), 10% (バインダなし)</li> <li>◦ 圧縮強度 1/2 (バインダあり), 1/16 (バインダなし)</li> <li>◦ 酸素指数 データなし 未燃炭素以外は全て無機物のため, 不燃物に分類されるものと推定される。</li> </ul> </li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>◦ 約 340 kg/cm<sup>2</sup>G</li> <li>◦ 約 75</li> <li>◦ 1.53</li> <li>◦ Ca 浸出率 (63日間のラボデータ) ~ 5 × 10<sup>-5</sup> cm<sup>3</sup>/cm<sup>2</sup>・日</li> <li>◦ 耐水性 データなし 問題ないものと考えられる。</li> <li>◦ データなし &lt; 類似した粒状樹脂のポリエチレン固化体 ~ 10<sup>9</sup> Rad まで外観, 圧縮強度ほぼ不変。 なお, ポリエチレンの放射線分解により約 10<sup>7</sup> Rad まで H<sub>2</sub> 0.1 ml/g 発生するものと 推定される。 &gt;</li> <li>◦ 酸素指数 (26 以上で不燃, 難燃) 3 分以下, 5cm 以下 26 ドラム缶サイズ固化体燃焼テストなし</li> </ul>

表 8.2 再処理廃棄物焼却灰の各固化法の比較 (3)

	セメントガラス固化法	水熱固化法	プラスチック圧縮成形固化法												
◦耐 候 性	<p>◦＜湿度変化試験＞                      相対湿度 35% ↔ 90%, 1時間毎切換,                      20℃一定, 小サンプル                      (12t複合コンクリート容器付約 560 ml                      の固化体)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 焼却灰粉体固化体                          20 サイクル後の重量減 0.03 %</li> <li>• ピロリン酸カリペレット固化体                          20 サイクル後の重量減 0.009 %</li> </ul> <p>◦＜凍結融解試験＞                      15℃ ↔ -20℃, 1.5 時間切換</p> <table style="margin-left: 20px;"> <thead> <tr> <th></th> <th>相対弾性 係 数</th> <th>重 量 変 化 率</th> <th>寸 法 変 化 率</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>• 灰粉体 固化体</td> <td>82.2</td> <td>-0.2</td> <td>0.00</td> </tr> <tr> <td>• 灰ペレット 固 化 体</td> <td>84.9</td> <td>-0.2</td> <td>-0.04</td> </tr> </tbody> </table>		相対弾性 係 数	重 量 変 化 率	寸 法 変 化 率	• 灰粉体 固化体	82.2	-0.2	0.00	• 灰ペレット 固 化 体	84.9	-0.2	-0.04	<p>◦＜凍結融解試験＞                      50℃ ↔ -20℃, 12時間毎切換, 小サンプル                      28 サイクル 7 サイクル                      (バインダ) (バインダ)                      (あ り) (な し)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>• 重量変化率 -0.6%, +3.1%</li> <li>• 圧 縮 強 度 362 → 124, 256 → 92                          ( -66%) ( -64%)                          kg/cm<sup>2</sup>G</li> </ul>	◦データなし
	相対弾性 係 数	重 量 変 化 率	寸 法 変 化 率												
• 灰粉体 固化体	82.2	-0.2	0.00												
• 灰ペレット 固 化 体	84.9	-0.2	-0.04												
◦落下強度	◦＜1.2m落下試験＞ 衝突個所がつぶれた, 固化体は健全, 最大加速度 250 G, 内容物飛散せず再運 搬可能	◦データなし	◦データなし												
◦固化体と容器の密着性	◦固化体上部にもセメントガラスを流し込 むので, 容器のフタを含め容器と固化体 が完全に一体化する。固化時の膨張, 収 縮ないため, 複合コンクリート容器と固 化体の密着力は大きく, 固化体が容器内 で移動することはない。	◦円筒状の固化体を7本×2段積み上げた ものなので, このままでは容器面とは間 隙あり, ただし, 必要ならセメントガラ スやプラスチック樹脂を空隙部に流し込 んで固化し, 固化体と容器面との密着化 が可能。	◦円盤状の固化体を積上げただけなので, このままでは容器面とは空隙あり。 ただし, 空隙部にプラスチック樹脂やセ メントガラスを流し込んで固化し, 固化 体と容器面との密着化が可能。												

表 8.2 再処理廃棄物焼却灰の各固化法の比較 (4)

	セメントガラス固化法	水 熱 固 化 法	プラスチック圧縮成形固化法
<b>設備保守性</b> ◦ 操作性  ◦ 保守性	◦ 造粒時には加熱源不要 ◦ 混練ペーストは低粘性(～2000 cp)のため操作容易, 配管閉塞のポテンシャル少ない。 ◦ 非放射性下での混練ペースト作成のため作業性, 保守性に優れる。 ◦ 混練タンクの水洗浄が不可欠。洗浄排水の処理が必要。洗浄排水の発生量をおさえるため, 再利用必要。洗浄排水貯槽には沈降物除去フィルター要。	◦ 焼却灰, バインダ, NaOH 溶液の攪拌混合物は多少湿った粉体となるため, 移送時の配管閉塞防止対策が必要。 ◦ 圧縮成形時に加熱源, 冷却水必要。 ◦ 圧縮成形時間が 1 バッチ約 5 時間と長い。	◦ 機器点数少なく, システムシンプルで, 運転が容易。 ◦ 圧縮成形金型の加熱源(電気ヒータ), 冷却水必要。 ◦ 高速流動式混練機(ヘンシェルミキサー)付着物は次バッチの運転で削り取られるため混合機内の洗浄不要。
<b>安 全 性</b> ◦ 可燃性固化材の有無  ◦ 廃棄物粉体飛散ポテンシャル  ◦ 圧縮成形時の加熱 ◦ 硬化発熱	◦ バインダとしてセルロース使用  ◦ 造粒機はグローブボックス収納要。ペレット化後は粉体飛散ポテンシャルほとんどなし。 ◦ 加熱不要。 ◦ セメントガラス硬化反応 ～温和(50℃以下)	◦ 可燃性固化材不要。  ◦ 粉体ミキサー, 圧縮固化装置はグローブボックス収納要。  ◦ 300℃, 350 kg/cm <sup>2</sup> G —	◦ バインダとしてプラスチック使用 ( 引火点 分解温度 融点 ) ( ポリエチレン 340℃ 335～450℃ 127℃ ) プラスチック 3,000 kg 未満は特殊可燃物の取扱不要。 ◦ ヘンシェルミキサー, 圧縮成形機は粉体飛散防止のため, グローブボックス内収納要。 ◦ 約 200℃(シリコンオイル), 100 kg/cm <sup>2</sup> G —
<b>経 済 性</b> ◦ 固化剤コスト	セメントガラス 約 350 円/kg バインダ 約 350 円/kg	バインダ 500 円/kg	{ ポリブテン 約 600～700 円/kg { ポリエチレン 約 300～400 円/kg

表 8.2 再処理廃棄物焼却灰の各固化法の比較 (5)

	セメントガラス固化法	水熱固化法	プラスチック圧縮成形固化法
開発状況	<ul style="list-style-type: none"> <li>コールドの小サンプル固化基礎試験の実績あり (PNC)</li> <li>東電福島第1原子力発電所で焼却灰や濃縮廃液の乾燥粉末を200ℓドラムサイズ固化体とする固化装置が実用化されている。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>コールドの小サンプルの固化基礎試験の実績あり (PNC)</li> <li>一般産業のHIP技術が適用できる。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>コールドの500×500×4tのスケールアップ試験の実績あり (PNC)</li> <li>一般産業の成形技術が適用できる。 〔超高密度ポリエチレンで板状の中性子遮蔽材生産技術の応用可〕</li> </ul>
R & D 項目 <ul style="list-style-type: none"> <li>固化システム関係</li> <li>固化体物性データ</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>R &amp; D 特に必要なし</li> <li>詳細設計即時開始可</li> <li>安全審査に必要と考えられる詳細な物性試験データの入手 <ul style="list-style-type: none"> <li>浸出性, 耐水性 ~トレーサーテスト</li> <li>耐放射線性 ~発生H<sub>2</sub>ガス量測定</li> </ul> </li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>430φにスケールアップした実規模工学試験での固化システムの実証が望ましい。</li> <li>詳細設計開始は63年度以降と見込れる。</li> <li>安全審査に必要と考えられる詳細な物性試験データの入手 <ul style="list-style-type: none"> <li>浸出性, 耐水性 ~トレーサーテスト</li> <li>耐放射線性 ~圧縮強度の再現性, 発生ガス分析</li> <li>スケールアップした固化体に関し最適処方と固化体物性との関係解明</li> <li>落下強度</li> </ul> </li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>実規模工学試験による厚肉固化体製造システムの実証が望ましい。</li> <li>詳細設計即時開始可</li> <li>安全審査に必要と考えられる詳細な物性試験データの入手 <ul style="list-style-type: none"> <li>浸出性, 耐水性 ~トレーサーテスト</li> <li>耐放射線性 ~発生H<sub>2</sub>ガス量測定</li> <li>耐候性</li> <li>落下強度</li> </ul> </li> </ul>
設備共用による焼却灰以外に 固化可能な廃棄物	ヨウ素吸着剤, 硝酸ソーダ粉末 なお, ドデカン浸漬シリカゲルは乾燥脱ドデカン処理すれば可能と思われる。シリカゲルも可能と思われる。今後確認要。	ヨウ素吸着剤, シリカゲル, 乾燥脱ドデカン処理したドデカン浸漬シリカゲル 特にヨウ素吸着剤の固化に最適。	PVCシート, 硝酸ソーダ粉末 なお, ヨウ素吸着剤, シリカゲルに関しても可能と思われる。今後確認要。
総合評価	◎	○	△

2) 固化体中の $\alpha$ 含有量が確実にクラスA ( $10 \text{ nCi/g}$ 以下)とすること。

セメントガラス固化法について、クラスA規制値に対する余裕を評価してみよう。

焼却灰ペレット中の廃棄物/バインダ	: 80/20
ペレット重量/固化体容積	: 147 kg/172 $\ell$
固化体密度	: 1.78
焼却灰中の $\alpha$ 含有量	: $x \text{ } \mu\text{Ci/g}$

$$x \text{ } \mu\text{Ci/g} \times \frac{147}{1000} \times \frac{80}{100} = 10^{-2} \text{ } \mu\text{Ci/g} \times \frac{172}{1000} \times 1.78$$

$$x = 2.6 \times 10^{-2} \text{ } \mu\text{Ci/g}$$

既設焼却炉の焼却灰中の $\alpha$ 含有実績 (52～60年度平均, ただし57年度除く)

$$3 \times 10^{-3} \text{ } \mu\text{Ci/g} \quad (4.1 \text{ 参照})$$

したがって、既設焼却炉焼却灰のセメントガラス固化体のクラスA規制値に対する余裕は

$$\frac{2.6 \times 10^{-2} \text{ } \mu\text{Ci/g}}{3 \times 10^{-3} \text{ } \mu\text{Ci/g}} \sim 10 \text{ 倍}$$

となり、廃棄物中の混入量の変動等運転側の変動要素を加えて考えると、慎重に運転することにより、クラスAとなる様に管理しうるものとみられる。

プラスチック圧縮成形法及び水熱固化法の減容比はいずれも2以下と低いため、固化体中の $\alpha$ 含有量が確実にクラスAとなる様に管理しうる様に慎重に対処する必要がある。

一方、熔融固化法の場合は減容比が6と比較的高く、運転側の変動要素を加味すると、クラスAとなる様に管理するのは極めて難しいものと考えられる。

3) 固化体パッケージの長期健全性

- 固化体パッケージに要求される耐放射線性は少くとも $10^7 \text{ rad}$ であり、約 $10^8 \text{ rad}$ で十分と見込れる (5.2 参照)。これに対し最も弱いと考えられるプラスチック圧縮成形固化法を含めいずれの固化法の固化体も $10^8 \text{ rad}$ までは寸法、重量、圧縮強度等がほとんど変わらず十分な耐放射線性を有する。
- 固化体パッケージからの浸出率に関しては、対比できるほど十分なデータはなく今後試験にて確認が必要である。

試験条件及び核種により数値が大きく変動してくることは言うまでもないが、大局的な傾向を把握するため、既存のデータより固化体中からCs-134又はCs-137の浸出率を比較してみよう。

セメントガラス固化体の場合：5週間浸漬で約  $10^{-5} \sim 10^{-6} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$   
 水熱固化体の場合：5週間浸漬で約  $10^{-4} \sim 10^{-5} \text{ g/cm}^2 \cdot \text{日}$  \*

(\* 日本原子力研究所大洗研究所焼却炉からの焼却灰)

水熱固化体はポーラスと言われるのに対し、セメントガラス固化体はプラスチック樹脂を  
 含漬させた複合コンクリート容器と一体化しているためか1桁浸出率が低かった。

7.2で述べた様に複合容器自体で浸出率を  $10^{-3}$ まで低減しうるので、水熱固化体等他の  
 固化法の固化体を複合コンクリート容器に収納すれば、固化体パッケージからの核種の浸  
 出率をさらに低減化しうる。

Cs-137の浸出率に関する限り、セメントガラス固化体及び水熱固化体ともに実用化に  
 際し、問題視するほど大きくないものと考えられる。

- 固化体の圧縮強度は加熱溶融固化体が約  $8000 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ と圧倒的に高く、水熱固化体及  
 びプラスチック圧縮成形固化体が約  $300 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ と中位で、セメントガラス固化体は約  
 $180 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ と最も低い。

NRCはHIC容器に関する設計強度としては、密度  $1.92 \text{ g/cm}^3$ の埋戻し材の土圧に耐  
 えることとしており(表5.4参照)、約15mの埋戻しの場合約  $30 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ となる。地殻  
 大変動を考慮する必要がなければ、セメントガラス固化体をはじめいずれの固化体も十分  
 な圧縮強度を有するものと考えられる。

- 耐候性に関しては、セメントガラス固化体及び水熱固化体の凍結融解試験時の重量減の  
 データがあるが、試験条件の違いがどの程度影響を及ぼすのか不明のため比較が難しいが、  
 実用化に際し問題視するほどの重量減ではない。なお、圧縮強度に関しては、水熱固化体  
 の場合、かなり大きな変化が認められたが、セメントガラス固化体に関してはデータがな  
 いため、対比できない。
- 耐火性に関しては、水熱固化体及び加熱溶融固化体はほとんど全て無機物より構成され  
 るため本質的に耐火性に優れる。セメントガラス固化体では有機バインダが、プラスチック  
 圧縮成形固化体では樹脂がそれぞれ20w/o含有されているが、いずれの固化体も消防  
 法上の難燃性に分類される。特に後者は、複合コンクリート容器に収納すればさらに耐火  
 性を向上させうる。



さて、以上の検討より比較的短期間（数 10 年程度）に関してはいずれの固化体も十分健全性を有するものと考えられる。次に 5 で検討した内容とあわせ、固化体パッケージの長期健全性を推定してみよう。

なお、（ ）内は乏しい試験データや情報より想定したものである。

#### 推定寿命

セメントガラス固化体	: 中 期 ( ~ 300 年 )
プラスチック圧縮成形固化体	: 短 期 ( ~ 100 年 )
水熱固化体	: 長 期 ( 300 年以上 )
加熱溶融固化体	: 長 期 ( 500 年以上 )

- セメントガラス固化体は、複合コンクリート容器に関するコンクリート中性化平均深さ等より約 300 年と想定した。
- プラスチック圧縮成形固化体は、プラスチック製品に関する長期健全性のデータがないため根拠に乏しいが、ポリエチレンにカーボンブラック 5 % 添加で大巾に寿命が延びる事例と、今回はカーボンブラックに相当する焼却灰が約 80 % 含まれること、又、固化体はドラム容器等に収納され直接紫外線や日光に曝露されないこと等より、樹脂の化学的分解は考えにくくかなり長期間の寿命が期待できる。そこで筆者としては期待を込めて約 100 年程度の寿命と想定した。
- 水熱固化体に関しては、全くデータがないが全て無機物より構成されるため、化学的分解現象は考えにくい。堆積岩の生成と同一原理と見られるので、セメントガラス固化体よりも長寿命を有するものではないかと見込れる。そこで筆者としては期待を込めて約 300 年以上の寿命と想定した。
- 加熱溶融固化体に関しては、一般にガラス製品でギリシャ時代等数 1000 年前のものが残されている事例と、ガラス自体が耐食性に優れ、浸出率も相当低いものと考えられる点を考慮すると、500 年以上の寿命は期待できるものと想定した。

なお、セメント固化法を除き、いずれの固化法の固化体も SFPIC 容器（複合コンクリート容器）への収納により、固化体パッケージとしての寿命をさらに 300 年程度の延長化が期待される。（5.1.2 参照）

#### 4) 装置共用による焼却灰以外の廃棄物の固化処理の可否

- ① セメントガラス固化法は、廃棄物のペレット化後、混練したセメントガラスを流し込み固化するため、廃棄物が乾燥粉末化されれば廃棄物の種類を問わず、全て固化体としうる。焼却灰、AgX、NaNO<sub>3</sub>粉末を安定に固化できたが、シリカゲル、乾燥処理したドデカン浸漬シリカゲルも試験はしていないものの安定に固化しうるものとする。
- ② 水熱固化法では、焼却灰、AgX、シリカゲル、乾燥処理したドデカン浸漬シリカゲルを安定に固化した。NaNO<sub>3</sub>粉末に関してはデータがないが、別途 NaNO<sub>3</sub>溶液に関して実

施した試験結果では廃棄物の含有量が約 30%になると固化体の耐水性が劣る他、耐候性も劣る（凍結融解の耐候性試験の結果、水分凝縮により塩が固化体表面に析出する様になり、固化体上面がくずれる様になった）ので、乾燥粉末の固化は難しいものと推定される。

なお、 $\text{NaNO}_3$ 乾燥粉末のセメントガラス固化体でこの様な現象が認められなかったのは、セメントガラス固化体の耐候性・耐水性・耐火性の試験サンプルは 1.2cm 厚のセメント容器で固化体外部を包装したもので実施したため、セメントガラス固化体ミート自体が直接環境にさらされなかったことによる。

本固化法では、廃棄物に含まれるヨウ素がアルカリ条件下の固化のため固化体中に安定に取り込まれるので、ヨウ素含有廃棄物の固化に最適な方法である。

- ③ 加熱溶融固化法では、焼却灰以外の廃棄物に関し試験はしていないが、技術的には廃棄物の種類を問わず固化処理は可能である。しかし、約 1200℃以上の高温で処理するため廃棄物中のヨウ素やルテニウムが揮散してしまい、これらを回収する大型のオフガス設備が不可欠となるので、大量のヨウ素を含有する AgX やシリカゲル、大量のルテニウムを含有するシリカゲルの固化用としては加熱溶融法は不適と考える。
- ④ プラスチック圧縮成形固化法では焼却灰の他、PVC と一部  $\text{NaNO}_3$  粉末を安定に固化しえた。廃棄物が乾燥粉末化されれば、廃棄物の種類を問わず全て固化体としうるので、AgX やシリカゲルも安定な固化体としうるものと考えられる。

## 5) 安全性について

セメントガラス固化法は常温・常圧での固化となるため、安全性に優れる。溶融固化法は約 1200℃以上の高温となるため、使用機器材料等の耐熱性、耐火性に配慮が必要となる。

水熱固化法の圧縮成形条件は約 300℃、約 350 kg/cm<sup>2</sup>G でプラスチック圧縮成形固化法の圧縮成形条件は約 200℃、約 100 kg/cm<sup>2</sup>G である。いずれも静圧であるが、高圧の使用となるため必要な安全対策設備の内容、高圧ガス取締法の適用の有無等今後つめる必要がある。

## 6) 保守性・操作性について

水熱固化法及びプラスチック圧縮成形固化法の場合、固化装置（圧縮成形部）は、グローブボックス内に収納せざるをえないが、セメントガラス固化法ではセメントガラススラリー調整用混練槽はグローブボックス内に収納せず、ボックス内の廃棄物ペレット収納ドラムに混練物を単に流し込むだけなので、操作性、保守性に優れる。

加熱溶融固化法ではマイクロ波誘電加熱溶融固化法を例にとると、マイクロ波発生装置等はグローブボックス内に収納しなくてよいが、やはり溶融炉部分はグローブボックス内に収納せざるをえず、操作性、保守性は水熱固化法と同等で、セメントガラス固化法には及ばないものと考えられる。

この他、水熱固化法の場合、大口徑の円筒状固化体製造技術を確立しなければ、小口径の固化体を十数本ドラム容器に収納しなければならず、固化体製造のための運転頻度が他の固化法の数倍多くなるという欠点がある。

#### 7) 実証性

セメントガラス固化法は原子力発電所の焼却灰等の固化に実用化されている。加熱溶融固化法はマイクロ波誘電加熱溶融固化法を例にとれば、原子力発電所の焼却灰を対象にしたパイロット規模の試験等が実施されている。水熱固化法やプラスチック圧縮成形固化法は未だ工学試験規模の開発レベルにある。

#### 8) 経済性

試薬等の原材料費では水熱固化法がNaOH溶液に若干バインダを使用するだけなので最も安い。装置費では、シンプルな構成で高価な計測機器が不要なセメントガラス固化法が最も安く、マイクロ波発生器や計測制御機器及びオフガス除染設備の必要な加熱溶融固化法は最も高いものとみられる。水熱固化法やプラスチック圧縮成形固化法は両者の中間とみられる。

#### 9) 固化装置の焼却施設予備室への収納の可否

いずれの固化法も焼却施設予備室への収納は可能である。

### 8.2.2 総合評価

以上の比較検討を踏まえ、総合評価した再処理廃棄物焼却灰固化プロセスの選定結果を表8.3に示す。

- 1) 加熱溶融固化法は、減容性に優れるため、逆に固化体中の $\alpha$ 含有量を確実に $10\text{nCi/g}$ 以下に維持しえず、固化体ハンドリング時に $\gamma$ 線遮蔽対策やキャスクが不可欠となってしまう。又、発生する $\text{I}_2$ や $\text{RuO}_4$ 等回収するためのオフガス系機器の負担が大きくなるため、 $\text{AgX}$ やシリカゲルの固化に装置を共用できない。

この固化法は、500年以上の固化体の長期健全性を求め、かつ対象廃棄物が $\text{I}_2$ や $\text{RuO}_4$ を大量に含まない場合にのみ装置共用して固化すべき固化法と言える。

浅地中埋設処分を念頭において今回焼却灰固化プロセスを選定しており、上記の様な難点があるので、加熱溶融固化法を選定対象からはずすこととする。

- 2) プラスチック圧縮成形固化法は上記の様な難点がないものの、やはり、固化体パッケージの長期健全性は約100年程度と短いものと推定される。今回焼却灰固化プロセスとしてはできるだけ100～300年と長期の健全性を保持できる固化法としたいので、プラスチック圧縮成形固化法を選定対象からはずすこととする。

表 8.3 再処理廃棄物焼却灰固化プロセスの選定結果

	セメントガラス固化法	水熱固化法	プラスチック圧縮成形 固 化	加熱熔融固化法	備 考
1.固化体ハンドリング時におけるγ線 遮蔽対策及びキャスクの要否	不 要	不 要	不 要	要	高減容比の固化法ほど必要となる
2.固化体中のα含有量≤ 10 nCi/g	◎	◎	○	×	10 CFR 61 によるクラス A の TRU 含 有量相当
3.固化体パッケージの長期健全性 (推定寿命)	中 期* (~ 300 年)	長 期* (300 年以上)	短 期 (~ 100 年)	長 期 (500 年以上)	* 複合コンクリート容器で担保する ** データないが堆積岩と同一生成原理
4.装置共用による焼却灰以外の 廃棄物の固化処理の可否 (AgX シリカゲル NaNO <sub>3</sub> 粉末 乾燥処理したドデカン浸漬 シリカゲル PVC)	可 ○ ○ ○ ○ ×	可 ◎ ○ △ ○ ×	可 ○ ○ ○ △ ◎	否*** △ △ ○ △ ×	実線記号対象物は今回試験にて確認済、 点線記号対象物は今回試験していない が、粒径等より推定 *** 発生する RuO <sub>4</sub> , I <sub>2</sub> 等回収するた めのオフガス系機器の負担が大き くなる。
5.安 全 性	優	並	並	並	
6.保 守 性・操 作 性	良	並	並	並	
7.実 証 性	◎	△	△	○	
8.経 済 性	大	中	中	小	
9.固化装置の焼却施設予備室への 収納の可否	可	可	可	可	
総 合 評 価	◎	○	△	×	

3) さて、セメントガラス固化法と水熱固化法の二つの固化法が残ったが、最終的な選定は、国の浅地中埋設処分に関する再処理廃棄物中の $\alpha$ 含有量の規制値の見通しや、固化体に要求する長期健全性保持期間(寿命)とも関連するため非常に難しい。

- わが国における TRU 含有廃棄物に関する処分基準は今のところ未定であり流動的であること。
- 焼却施設が完成し実際に稼動してみなければ焼却灰中の $\alpha$ 含有量が推定通りかはっきりしない。
- 焼却灰の発生量も調整設計の実施に伴ない大巾に減少し、21 kg/日と少なく焼却灰収納ドラムの第1低放射性固体廃棄物貯蔵場での貯蔵上の問題がない。

これらの点を考えると、早急に焼却灰固化プロセス選定の結論を出す必要はなく、事業団内の十分な議論及び関係機関の見解を踏まえ、最終結論を出すことになる。

現段階での試験データ及び情報に基づき、実用化が最も期待される固化法を次に選定してみよう。

- ① 固化体製造技術の観点からは、セメントガラス固化法の方が、安全性・操作性・保守性さらに実証性のいずれの項目においても水熱固化法より優れ、しかも容易に量産化にむいており、総合的にみて水熱固化法を凌駕している。
- ② 固化体の健全性全般に関しては両者に実用上の難点はなく、短期的には両者の健全性に差は認められない。両固化体とも $10^8$  Rad の吸収線量に対しても十分耐放射線性を有する。発生した放射線分解ガスは容易に固化体中より抜け出るものと推定される。しかしながら、固化体パッケージの100年以上の長期健全性に関しては、現在加速試験等の十分な対比データはないので、評価は難しい。水熱固化体は完全無機物で構成され、堆積岩に類似した構造を有する。これに対し、セメントガラス固化体は、10%程度有機バインダを含有する他、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を含むため、(特に $\text{Ca}(\text{OH})_2$ は空気中の $\text{CO}_2$ により中性化し固化体劣化の原因となる。)長期経年後には固化体物性の低下の懸念が残る。したがって、長期健全性(寿命)の点では、水熱固化法がセメントガラス固化法より優れるものと考えられる。
- ③ 処分に適した固化体物性ができるだけ優れ、かつ長期間にわたり健全性を保持できる(長寿命である)こと。これにより国の再処理廃棄物中の $\alpha$ 含有量等の処分基準が将来さらに厳しくなった場合でも容易に対処しうるメリットがある。

- ④ 国の $\alpha$ 含有量等の処分基準に関しては、処分サイト上に居住する人が固化体から浸出した物質が地下水とともに河川に移行し、その食物連鎖より受ける長期被曝量の計算により定まることになるだろうが、 $\alpha$ 核種は固化体中より浸出しにくく、かつ土壌中に吸着されやすい等の特性と、もともと固化体中への含有量が低い点を考えれば、おそらく原子力発電所からの廃棄物に関する現行基準や米国の 10 CFR 61 のクラス A 基準と大差のないものになるのではないかと推定される。
- ⑤ SFPIC 容器自体で約 300 年間の長期健全性の保持が期待できる可能性があり、いずれの固化体も SFPIC 容器に収納することとし、固化体パッケージとしての長期健全性を考えることとするので、固化体自体に要求すべき長期健全性保持期間を多少緩和して考えることもできる。
- ⑥ 水熱固化法及びセメントガラス固化法のいずれでも、装置を共用してヨウ素含有 AgX やシリカゲルを固化しうるが、セメントガラス固化法の場合、廃棄物ペレットの外側をセメントガラスでくみ接着しているのに対し、水熱固化法の場合、廃棄物中のヨウ素がアルカリ処理により AgI 及び AgIO<sub>3</sub> として化学的に安定に固定化される（本質的に安定化される。）ものと考えられる。しかしながら、コールドの浸出試験では再者に差が認められなかった。

これらの点を総合評価すると以下の結論となる。

①、④、⑥より、セメントガラス固化法が優望だが、最終処分と直結する固化法の選定となるため、慎重に対処する必要がある。②、③で述べた固化体の長期健全性保持と将来の国の基準変更等への対処の容易性も重要な指標となる。

⑤の SFPIC 容器及びセメントガラス固化体の長期健全性試験による 300 年間の寿命保持が今後確認されれば、②の要求が緩和されるし、又、そのうち④の国の基準等も明確化されるであろう。

焼却灰収納ドラムの貯蔵容量上の問題は当面なく、今後追加試験を実施するとともに試験結果を評価し、最適な固化法を最終選定する時間は十分にあるものと考えられる。

したがって、どちらかと言えば、セメントガラス固化法が優望だが、最終固化法として選定するには重要な試験データが不足しているため、時期尚早であり、当面セメントガラス固化法及び水熱固化法の両固化法を選定することとし、今後、試験データが出そろった段階で再度見直しし、最終選定すべきであろう。

### 8.3 今後の課題

- 1) SFPIC 容器の長期健全性確認試験～中性化反応速度の理論解析及び寿命評価
- 2) 焼却灰, Ag X, シリカゲルの固化試験の実施
  - ① 固化体の物性確認～長期健全性関係～セメントガラス, 水熱固化法対象
    - ・ 浸出性, 耐水性～Ru-106, Co-60, Cs-137, I-131 トレーサーテスト,  $\alpha$  添加加速試験
    - ・ 耐放射線性 ～圧縮強度の再現性, 発生ガス分析
    - ・ 耐 候 性 ～重量, 寸法変化, 圧縮強度
  - ② 実規模工学試験装置による固化システムの実証～水熱固化法のみ対象
    - ・ 詳細設計に必要なデータの取得
    - ・ 安全審査に必要と考えられる核種挙動と機器のDF データ
    - ・ スケールアップした固化体に関する最適処方と固化体物性との関係解明
- 3) 固化体パッケージの長期寿命予測～調査及び試験
  - ① ナチュラルアナログ (固化体組成に類似した岩石類の発見とその岩石の長期安定性) に関する調査検討～水熱固化体対象
  - ② 土壌中の  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\alpha$  核種の吸着量に関する調査及び試験
  - ③ 固化体パッケージからの  $\alpha$  核種浸出～トレンチ-土壌-地下水, さらに人間への各ステージにおける移行率の評価と, 食物連鎖サイクルを通じた人の被曝量の総合評価。
- 4) 固化体パッケージ長期寿命予測のための加速試験法の開発
  - ①  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  核種含有固化体パッケージの耐放射線性加速試験法と固化体寿命判定基準～特に線質の違いが寿命へどの程度影響を及ぼすのか明確化する必要がある。
  - ② 促進耐候性試験法と固化体の寿命判定基準～特に促進耐候性試験サイクル数と実環境下の長期経年変化との関係を明確化する必要がある。

なお, 3) 及び 4) に関しては, セメントガラス固化体, 水熱固化体, SFPIC 容器について併せ調査, 試験れ行うべきである。

これらの課題に関し, 今後十分な試験の実施が望まれる。

1), 3) 及び 4) に関する試験がある程度進展すれば, セメント固化体パッケージで 300 年以上の長寿命を保持しうるかどうかが明確化してくるであろう。

その時点で焼却灰固化法の最終選定を行うことになる。

## 9. 結 語

焼却施設の設計実施に当たり、当時の運転課〔再処理工場処理部廃棄物処理課、(現・化学処理第三課)〕とともに再処理廃棄物焼却灰のマイクロ波誘電加熱溶融固化基礎試験を実施し、設計へ採用する上で問題点を検討した。その後、運転課において、セメントガラス固化基礎試験及び水熱固化基礎試験が実施され、一方、これらを補完する目的で当建設室においてもプラスチック圧縮成形固化基礎試験を実施し、全ての固化法に関する基礎データが不十分ながら一応出そろった。

再処理焼却灰中に含有する微量 $\alpha$ 核種の固化体物性への影響等未知の問題もあり、かつ、再処理低レベル廃棄物の浅地中埋設処分に関する国の基準等が未定で流動的であること等により、直ちに固化法を選定し、焼却施設の設計に取り込むのは難しかった。

そこで、焼却施設では将来必要時焼却灰固化装置の追加設置ができる様に予備的措置を講じた設計とするとともに、並行して今までの再処理廃棄物の焼却灰に関する固化基礎試験成果の取りまとめと固化プロセスの総合評価を行い、固化プロセスの選定と今後の課題について検討した。

固化体製造技術上の問題はほぼ解決しており、残された問題は長期間にわたる固化体パッケージの健全性担保の必要性とその担保期間、さらにその判定法とその判定基準の妥当性等の解明であり、非常に深味のある難しい研究課題である。

再処理低レベル廃棄物中に含まれる $\alpha$ 核種や I-129 の様な長半減期核種の固化体物性への影響等処分を展望した上に今後の課題での指摘項目に関し、今後環境工学部においてじっくりと試験が実施されることを期待する。



## 10. 謝 辞

再処理焼却灰の固化基礎試験成果のとりまとめと固化プロセスの総合評価に当たり、当技術開発部建設室をはじめ、再処理工場処理部化学処理第三課及び環境工学開発部減容処理技術開発室、本社環境資源部環境計画課等関係各課各位の御指導と御協力を受けた。深く感謝する。

## 11. 引用文献

- 1) 火力原子力発電技術協会  
“原子燃料サイクルと廃棄物処理, K. 原子力発電所の放射性廃棄物処理”  
火力原子力発電, 37 (1), 83, (1986)
- 2) 刈田陽一  
“わが国における原子力発電所の放射性廃棄物焼却装置”  
原子力工業, 29 (11), 51, (1983)
- 3) 三機工業  
“プラスチックごみ混焼実験報告 (II)”  
SANKI MONTHLY No. 320, 42, (1986)
- 4) 生田目康二  
“低レベル放射性廃棄物の減容処理技術開発”  
原子力工業, 30 (6), 26, (1984)
- 5) 東 芝(株)  
“沸騰水型原子力発電所放射性廃棄物のプラスチック固化” (パンフレット)
- 6) 伊藤彰彦等  
“低レベル廃棄物各種固化体の浸出挙動”  
日本原子力学会「昭60分科会」K44, 1985年10月
- 7) M. Moriyama, et al.  
"Incorporation of an Evaporator Concentrate in Polyethylene for  
a BWR"  
Nuclear and Chemical Waste Management, 3, 23 (1982)
- 8) 伊藤彰彦等  
“放射性廃棄物のプラスチック固化”  
JAERI-M 84-048, 1984年3月
- 9) 森山 昇等  
“プラスチック固化体の耐放射線性”  
日本原子力学会「昭60分科会」K45, 1985年3月
- 10) 堀内 進等  
“濃縮廃液減容処理設備の開発”  
日立評論, 62 (9), 53, (1980)

- 11) 泉田龍男等  
“放射性廃棄物の無機固化技術開発-(2)”  
日本原子力学会「昭59分科会」G 38, 1984年10月
- 12) 高橋和司等  
“焼却灰の高周波溶融固化技術開発(I), (II)”  
日本原子力学会「昭58分科会」K 16, 17, (1983)
- 13) 加藤 清等  
“放射性焼却灰の高周波溶融固化試験(I), (II)”  
日本原子力学会「昭59分科会」G 44, 45, 1984年10月
- 14) 刈田陽一等  
“低レベル放射性廃棄物のガラス固化装置”  
産業機械, 18, (1985)
- 15) 福田勝男等  
“マイクロ波加熱による $\beta$ ,  $\gamma$ 雑固体廃棄物の熱分解溶融固化試験”  
JAERI-M 84-001, 1984年2月
- 16) 三機工業(株)  
“放射性固体廃棄物の熱分解溶融固化処理技術 —マイクロ波誘導加熱法—”  
SANKI MONTHLY No.318, 44, (1985)
- 17) 栗林 寿等  
“ $\beta$ ,  $\gamma$ 固体廃棄物の熱分解溶融固化試験 —マイクロ波加熱法の適用— 処理システム確  
証試験”  
日本原子力学会「昭60分科会」K 14, 1985年10月
- 18) 長屋喜一等  
“放射性廃棄物のガラス固化—固化体の耐候性とテストプラントの運転—”  
日立造船技報, 46(2), 61-67, (1985)
- 19) 乃村一郎  
“低レベル放射性廃棄物の総合処理(II), 焼却灰成分のガラス固化体への影響”  
日本原子力学会「昭59分科会」G 46, 1984年10月
- 20) 角屋栄良等  
“不燃性固体廃棄物の溶融処理に関する研究(5) —低レベルガラス固化体のRI浸出率試  
験—”  
日本原子力学会「昭60分科会」K 7, 1985年10月

- 21) (株)東芝：動燃委託研究  
“再処理低レベル放射性廃棄物のプラスチック固化基礎試験”  
PNC-SJ 101, 84-15, (1984)
- 22)  
"Nuclear Regulation Reports 10CFR61 — Land Disposal of Radioactive Waste §61.55 Waste Classification"
- 23) 妹尾宗明  
“放射性廃棄物に関する各国規制基準の現状”  
原子力工業 29(4), 56, (1983)
- 24) 阪田貞弘, 天沼 稔監修  
“放射性廃棄物処理処分に関する研究開発 IV. 諸外国の規制と基準化の動向”  
(株)産業技術出版, テクノ・プロジェクト, 1983年2月
- 25) (財)原子力安全研究協会  
“放射性廃棄物の陸地保管と下限値の明確化(固体廃棄物処理処分委員会, 成果報告会) 予稿集”, 1979年1月
- 26) 天沼 稔, 石原健彦  
“放射性廃棄物対策に関する原子力委員会関係専門部会等報告書集大成第三編第2章放射性廃棄物対策専門部会報告をめぐって”  
テクノプロジェクト p.220~256, 1987年3月
- 27) 林 允之等  
“再処理工場における低放射性可燃性雑固体廃棄物の焼却処理実績”  
PNC ZN 843-82-04, 1982年4月
- 28) 阿部昌義等  
“放射性廃棄物焼却装置の性能試験”  
JAERI-M 9457, 1981年4月
- 29) 日立造船(株)  
“焼却灰溶融固化試験 - 試験結果報告書”  
IF-96 T-003, 焼却施設詳細設計図書
- 30) 今 哲郎, 市坪浩二  
“PVC 廃棄物処理技術開発(I) - PVC 廃棄物焼却技術に関する総合評価”  
PNC ZN 8410 86-46, 1987年3月
- 31) 三菱重工業(株), 三菱原子力工業(株)  
“中低放射性固体廃棄物固化体の健全性評価試験設備に関する設計研究報告書”  
PNC SJ 122 83-03, 1983年8月

- 32) 前田 頌等  
“低レベル放射性廃棄物ドラム缶容器の耐食性”  
日本原子力学会「昭60分科会」K47, 1985年10月
- 33) 科学技術庁  
“低レベル放射性廃棄物ドラム缶容器の耐食性実証試験”  
パンフレット, 1985年3月
- 34) S. Kowa et al.  
"Untersuchungen zur Älpharadiolyse von LAW/MAW-Bitumen-produkten  
aus Wiederaufarberitung"  
KfK 3241 (1983)
- 35) S.T. Kosiewicz  
"Gas Generation from the Alpha Radiolysis of Bitumen"  
Nucl. and Chem. Waste Management, 1, 139-141 (1980)
- 36) S. Dojiri, et al.  
"Safety Evaluation of Asphalt Products I. Radiation Decomposition  
of Asphalt Products"  
J. Nucl. Sci. Tech., 14, 125-130 (1979)
- 37) W. Hild, W. Kluger  
"Jahresbericht 1971 der Abteilung Dekontaminations-betriebe"  
KfK 1830 (1973)
- 38) ORNL Progress Report  
ORNL-5050 (1975)
- 39) R. De Batist et al.  
"Characterization of Conditioned Wastes and Low- and Intermediate  
Level Packages in the European Community: Contribution to Quality  
Assurance"  
IAEA-CN-43/115, Luxembourg, 1985年4月
- 40) D.C. Phillips et al.  
"Radiation Thermal and Mechanical Effects on Low and Medium Active  
Conditioned Waste"  
IAEA-CN-43, Luxembourg, 1985年4月
- 41) 佐々木憲明等  
“高レベル放射性廃液のガラス固化処理技術の開発”  
PNC SN 8410 86-43, 1986年10月

- 42) L.L. Hench, et al.  
"High Level Waste Immobilization Forms"  
Nucl. Chem. Waste Manage, 5, 149-173 (1984)
- 43) 作花濟夫等  
“ガラスハンドブック”  
朝倉書店, 1971年
- 44) 小松史明等  
“焼却灰のマイクロ波溶融固化処理技術”  
R & D 神戸製鋼技報, 33(1), 35-38, (1983)
- 45) 日立造船(株)  
“灰溶融固化処理技術の調査検討報告書”  
IF-96T-001, 焼却施設詳細設計図書
- 46) 東京電子技研(株)  
評価書“下水汚泥のマイクロ波溶融炉の開発”  
建技評 第78201号
- 47) H. Oshima et al.  
"Outline of the Co-conversion Facility of Pu-U Nitrate Solution to  
the Mixed-oxide Powder using MWH Method"  
Trans. Am. Nucl. Soc., 40, 48-50 (1982)
- 48) 日本碍子(株)  
“焼却灰の高周波溶融固化設備提案書”  
1986年2月
- 49) 動燃事業団  
“ガラス固化プロセスの開発状況 - 動燃及び海外”  
1985年7月
- 50) (株)日立製作所  
“焼却灰のセメントガラス固化技術について”  
WE-99-0249, 1985年11月
- 51) 河村文雄等  
“放射性廃棄物の固化方法”  
特許出願公開 昭58-155398
- 52) (株)日立製作所  
“焼却灰ペレットセメントガラス固化設備について”  
1986年1月

- 53) (株)日立製作所: 動燃委託研究  
“低レベル放射性廃棄物のセメントガラスによる固化技術の開発”  
PNC SJ 102 85-11 1985年12月
- 54) 三井造船(株): 動燃委託研究  
“低放射性廃棄物の水熱固化技術開発 - 固体系廃棄物の水熱固化基礎試験 -”  
PNC ZJ 133 85-09, 1985年11月
- 55) 三井造船(株)  
“焼却灰岩石固化設備説明書”  
DSP-A 390-001, 1985年10月
- 56) Private Communication from N. Tamura
- 57) 高知大学  
“高知大学理学部附属水熱化学実験所 1983要覧”
- 58) 久保田 雄等  
“焼却灰の水熱固化”  
日本原子力学会「昭59分科会」, G 42, 1984年10月
- 59) 田村伸彦等  
“水熱反応による焼却灰の合成岩石固化(Ⅲ)”  
日本原子力学会「昭60分科会」K 15, 1985年10月
- 60) 片倉正彦等  
“水熱反応による焼却灰の合成岩石固化(Ⅳ)”  
日本原子力学会「昭62年会」H 38, 1987年4月
- 61) (株)日立製作所: 動燃委託研究  
“含塩廃液固化工学試験(Ⅲ)”  
PNC ZJ 102 85-02(1), (1985)
- 62) 三井石油化学工業(株)  
“焼却灰の成形固化体について(一般産業界の実績)”  
1986年6月
- 63) 三井石油化学工業(株): 動燃役務契約  
“焼却灰の圧縮成形固化実験及び固化体物性測定”  
1986年2月
- 64) 三井石油化学工業(株): 動燃役務契約  
“塩ビシートの成形固化実験”  
1985年10月

- 65) 林 勝等  
“粉体結合剤”  
特許出願公開 昭59-171897
- 66) 菊地 恂等  
“放射性廃棄物の無機固化処理技術の開発(2)-セメントガラスの基礎物性-”  
日本原子力学会「昭62年会」, J 53, 1987年4月
- 67) K. Yanagisawa, et al.  
"Immobilization of Radioactive Wastes in Hydrothermal Synthetic Rock, (II)"  
J. Nucl. Sci. Technol, 21 (7), 558 (1984)
- 68) 柴田雅博  
“ゼオライトの水熱処理によるセシウムおよびストロウチウムの固定化”  
日本原子力学会「昭61分科会」H29, 1986年10月
- 69) U.S. Nuclear Regulatory Commission  
"Technical Position on Waste Form"  
Rev. 0, 1983年5月
- 70) 秩父セメント(株)  
"Topical Report for High Integrity Container 200ℓ/400ℓ-NP-A for Disposal of Low Level Radioactive Wastes Volume I Non-Proprietary, Approved Issue - July 1986"
- 71) 石崎寛治郎等  
“放射性廃棄物容器としてのPIC容器の安全性試験(II)-PIC容器の樹脂固化体収納容器としての適応性および遮蔽性試験-”  
JAERI-M 9263, 1981年1月
- 72) 石崎寛治郎等  
“鋼繊維補強ポリマー部分含浸コンクリートの強度特性と耐久性”  
鋼繊維補強コンクリートシンポジウム発表報文集, 54~59, (1977)
- 73) 石崎寛治郎等  
“低・中レベル放射性廃棄物の処理処分容器用PIC(ポリマー含浸コンクリート)の耐放射線性に関する研究”  
材料, vol 32, No. 354, 327~333, (1983)
- 74) 石崎寛治郎等  
“放射性廃棄物容器としてのPIC容器の安全性試験(I)-PIC容器の耐高水圧性と耐RI浸出性-”  
JAERI-M 9380, 1981年3月



- 75) Private Communication from K. Ishizaki
- 76) 依田彰彦等  
“各種セメントコンクリートの炭酸化”  
セメントコンクリート No.307, 40 (1972)
- 77) 依田彰彦  
“鋼材の腐食と対策 - コンクリートの中性化 - ”  
コンクリート工学, vol 15, No.9, 34 (1977)
- 78) 坂本 浩  
“セメントモルタルの耐酸性に関する実験”  
土木技術資料 vol 14, No.8, 38 (1972)
- 79) 大石不二夫  
“プラスチックの耐久性”  
(株)工業調査会, 1975年3月
- 80) J.B. Howard et al.  
Poly. Eng. Sci., Vol.9, 286 (1969)
- 81) 吉田芳和  
“放射性廃棄物の規制免除レベル設定に関する IAEA の動向”  
原子力工業, vol 32, No.4, 28, (1986)