

高レベル廃液ガラス固化 モックアップ試験 (第1キャンペーン)

Mock-up Test of The High Level Liquid Waste Solidification Process (1st Campaign)

永木 裕 *
Hiroshi Nagaki

稲田 栄一 **
Eiichi Inada

1. まえがき

動燃事業団は、実用ガラス固化技術確立のため、昭和62年度運転開始を目途にパイロットプラントを建設し、東海再処理工場から発生する高レベル廃液を固化し、技術の実証をはかることを当面の目標にしている。

本モックアップ試験設備は、昭和51年から研究開発を進めてきた、ガラス固化基礎試験及び工学規模試験の成果を基に昭和55年度に設計を実施した。昭和56年度には、ガラス固化パイロットプラントの概念設計の結果を反映させ、前年度実施した設計を見直して製作設計を行い、56年11月から工程機器の据付調整に入り、57年3月に機器据付工事を終了した。57年4月からは、全機器の調整試運転を行って57年5月から

連続運転を開始した。

本設備の運転試験は、プロセスの運転特性の把握と遠隔操作、保守技術の開発である。

ここでは、モックアップ試験設備の概要と、5月～7月までの連続運転(第1キャンペーン)での試験結果概要について報告する。

2. モックアップ試験棟

建屋は平屋部と高棟部から成っており試験設備は高棟に設置した5層の試験用架台にセルを模擬して配置した。試験用架台の構成は、図2-1に示すように架台半分(6.5m)を模擬セルとし、1～2F吹抜け部にキャニスターハンドリング設備を、3～4F吹抜け部に前処理・オフガス処理設備を、M2Fにガラス溶融設備と一部張り出し部に二次廃液処理設備を設置した。

* 技術部高レベル廃棄物処理処分技術開発室 Chemical Technology Division, Waste Treatment Technology Laboratory

** 現、大洗工学センター廃棄物処理課 O-arai Engineering Center, Waste Treatment Section

一方、セル想定外の残る6.5mスパン部を操作エリアとし、1Fに試薬供給設備及び中和処理設備、2Fにプロセス全体を制御する中央制御室、3Fに全設備の動力盤、4～5Fにバルブブラック及びガラス原料供給設備を配置している。

また、遠隔保守設備は表2-1に示す機器が用意されており、キャニスターハンドリング設備保守用のパワーマニプレータ、インセルクレーンが3F下に、前処理設備保守用のパワーマニプレータが5F梁下にそれぞれ設置されている。ただし本設備では、ガラス溶融炉を遠隔保守する場合には、前処理設備用のパワーマニプレータを遠隔で解体移設し、使用する。模擬遮蔽窓は可動型で随時必要個所に移設して使用する。ビューイングシステム（ITV）としては横移動式ITVを前処理設備に、縦移動式ITVをガラス溶融設備に適用し、他は固定式ITVを使用している。

3. プロセス構成

本設備は、処理方式の選定のため回分式前処

理と連続式前処理の2系統を有している。廃液のガラス固化プロセスは、廃液を受け入れてから、1)廃液前処理工程(脱硝、濃縮)、2)ガラス原料供給工程、3)ガラス溶融工程、4)オフガス処理工程、5)キャニスターハンドリング工程、6)二次廃液処理工程の6工程から構成されている。モックアップ試験設備のプロセス構成を図3-1に、プロセスフローシートを図3-2に示す。

3.1 回分式前処理工程

廃液を回分操作で処理する方式で、本設備では $0.5 \sim 1.2 \text{ m}^3/\text{day}$ の処理能力で設計した。このプロセスでは、廃液(第1キャンペーンでは 1 m^3)中に亜硝酸ナトリウム添加後、ギ酸を所定の供給速度で供給し、硝酸を分解する。この場合、オフガスの急激な発生を防止し、槽内圧の変動を最小限に押えるため、ギ酸供給方式を従来の工学試験で実施してきた一定供給から、30分間隔で $15 \sim 30 \sim 54 \text{ l/H}$ と3段階に供給速度を変化させる方式を採用した。廃液は、脱硝後2倍に濃縮し、エジェクターで脱硝液供給槽

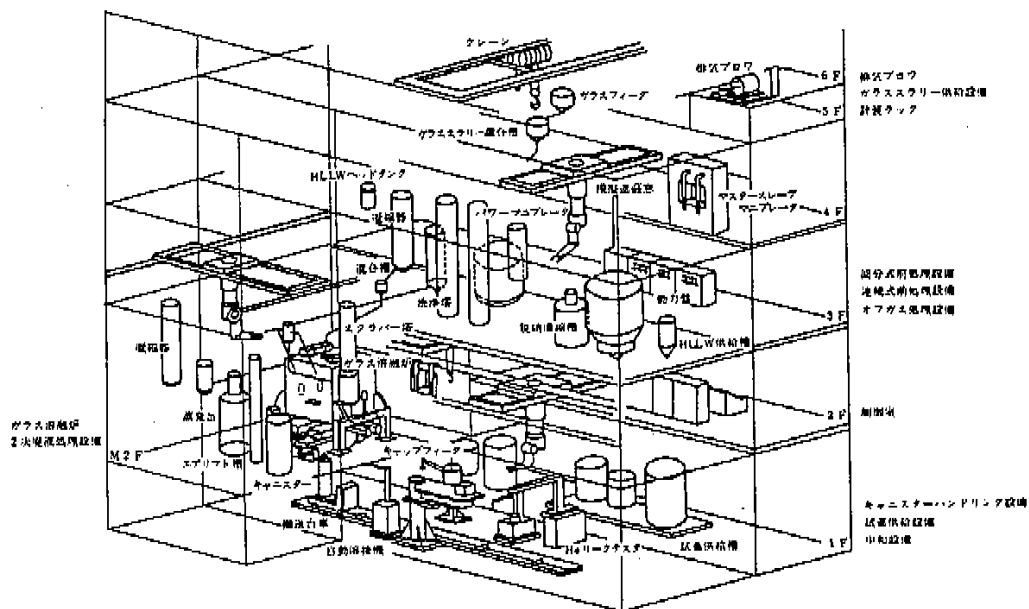


図2-1 モックアップ試験設備鳥瞰図

へ抜液する。一方、廃液の計量は、容量300ℓの計量槽で200ℓ/回の計量を行い、脱硝濃縮槽に所定量エジェクターで移送する。

3.2 連続式前処理工程

回分式前処理と異なる点は、廃液とギ酸を一定比率で連続的に反応槽へ供給し、脱硝と濃縮を同時に行う点である。従って、塔槽サイズを前者に比べて極めて小型化できる。廃液の計量

表2-1 遠隔保守機器リスト

機 器	仕 様
天 井 ク レ ーン	吊上荷重 10/2.8(t)
	縦行 15 (m/min)
	横行 10 (m/min)
	巻上 5 (m/min)
	吊上荷重 2.0 (t)
	縦行 5 (m/min)
	横行 5 (m/min)
	巻上 4.2/2.1(m/min)
パワーマニプレータ	取扱い荷重 25 (kg)金姿勢
	肩フック荷重 450 (kg)
	8関節
MSマニプレータ	取扱荷重 23.5 (kg)
	最長(arm) 3.4 (m)
模 擬 遮 蔽 窓	窓
	セル側1000 ^{mm} (mm)
	操作側 700 ^{mm} (mm)
	セル壁模擬 1000 (mm)
	1.8~4.8(m) 1 F
	2.4 (m) M 2 F
	高さ 1.5 (m) 3 F
	(目の位置) 1.0~1.9(m) 4 F
I V シ ス テ ム	電動ズーム f=10~100(mm)
	電動雲台 施回角 340° 俯仰角 ±45°
移動式ITVシステム	移動式TV取付台 1.8~4.6(m)可変
	電動ズーム f=10~100(mm)
	電動雲台 施回角 ±135° 俯仰角 上20° 下60°
	移動速度 無段速
電動インバクトレンチ	最大出力トルク 20(kg)

は、デーネード式連続計量槽により、20~50ℓ/Hの範囲で計量し、反応槽へ連続的に供給する方式を採用している。脱硝濃縮液は、反応槽からオーバーフローし、ガラス溶融炉へ供給される。一連のプロセス流体の流れはすべて重力流である。

3.3 ガラス原料供給工程

前処理された廃液をガラス化するために、ガラス溶融炉に入る手前でガラス原料と混合する。本設備では、管閉塞を抑制する目的で、粉末状ガラス原料を一旦、1:1の比率で水に分散し、スラリー状にしたガラス原料を、脱硝廃液と混合する方式を採っている。

3.4 ガラス溶融炉

ガラス溶融炉は、スラリー状の脱硝廃液及びガラス原料を連続的に供給し、1200℃の高温でガラス化する工程である。表3-1にガラス溶融炉の設計条件、及び設備構成を示す。この炉の特徴は、炉全体を水冷金属ケーシングで覆った、セラミックス製(耐火物)の溶融炉である。また加熱方式としては、2対のインコネル690製電極により、直接溶融ガラス中に電流を流し、その時に発生するジュール熱で、供給されるガラス原料を溶かす方法である。一方溶融ガラスの抜き出しは、オーバフロー式ノズル(モックアップ炉の場合3コーナに各1本/計3本を設けてある)からガラスを流下する。また炉内を完全に空にする場合は、ドレンアウトノズル(1本)からガラスを流下する。ガラス流下の制御は、インコネル600製のノズルに直接通電して、ノズル内ガラスを加熱する直接抵抗加熱方式で、一般にフリーズドバルブ方式と言われる方式である。図3-3にガラス溶融炉構造を示す。

3.5 オフガス処理工程

主要オフガスは、前処理オフガスとガラス溶融炉オフガスの2系がある。前者は廃液脱硝濃縮時に発生する主としてNO_x処理、後者は、ガラス溶融炉から発生する粉塵及びNO_x処理である。NO_x処理は、フロー中の第1及び第2水洗浄塔で水に吸収除去し、粉塵に対しては、シャワリングポット及びスクラバー塔で洗浄除去する。

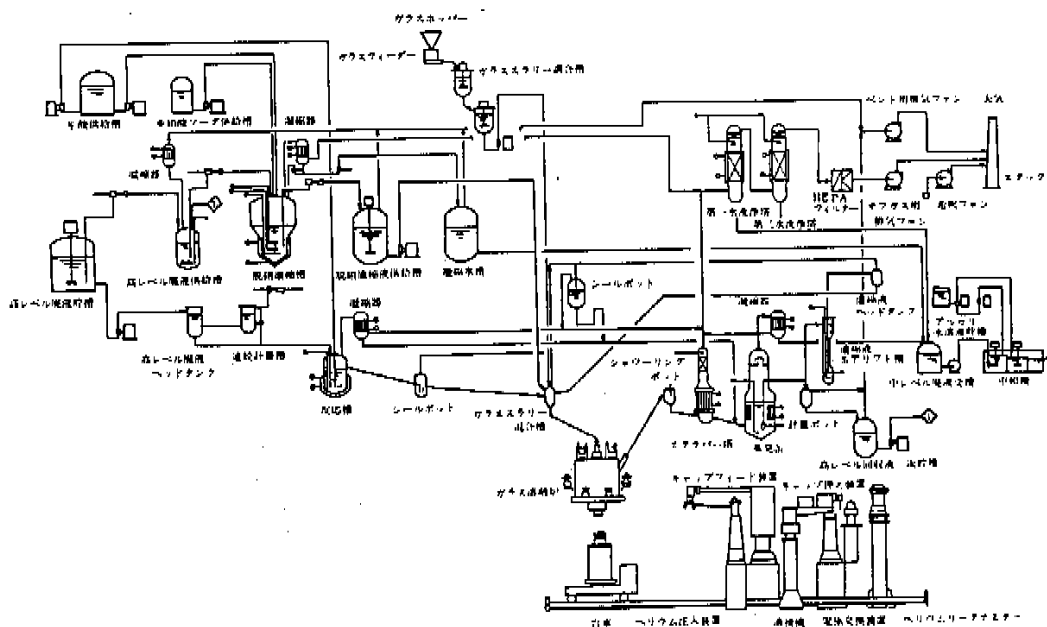
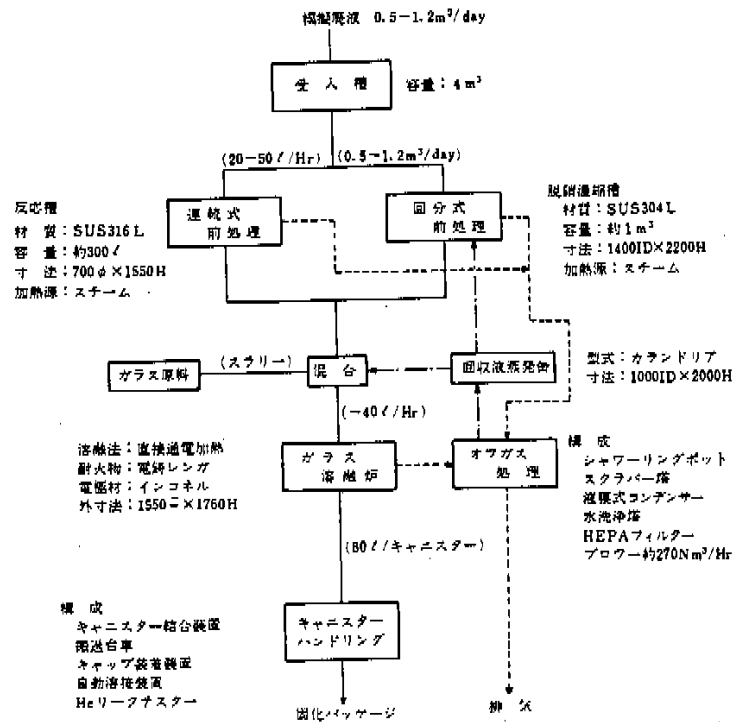


表 3-1 ガラス熔融炉設計条件及び設備の構成

要 目		主 要 諸 元
設 計 条 件	① 加 熱 方 式	直接通電加熱方式
	② 溶 融 能 力	Max 40 t/hrスラリー (ガラス換算 100 t/day)
	③ 保 持 能 力	約160 t (ガラス)
	④ 溶 融 温 度	Max 1250°C
	⑤ 流 下 速 度	Av 130kg/hr
	⑥ 設 備 電 力	電 極 用: 100kW 間接加熱用: 120kW 流下ノズル: 25kW
設 備 の 構 成 (炉本体)	① 外 形 寸 法	1550 $\square$ ×1765H
	② 溶 融 断 面	550×950
	③ 耐 火 物	Al-Zr-Si(CS-5)、k-3、窒化珪素、AZ-G
	④ 主 電 極	インコネル690 (プレート形、空冷) 1対
	⑤ 間接加熱用ヒーター	炭化珪素質U型 14本
	⑥ 流 下 ノ ズ ル	インコネル600 (オーバーフロー3本、ドレンアウト1本)
	⑦ 炉 体 ケー シ ン グ	SUS304 (水冷)
	⑧ 生 地 止 メ 機 構	シャークット、水冷板
	⑨ サ ン プ リ ン グ	シュート方式
	⑩ ガラスレベラー	抵抗式 (接触形)、HH、HI、LOW、COMN可動式

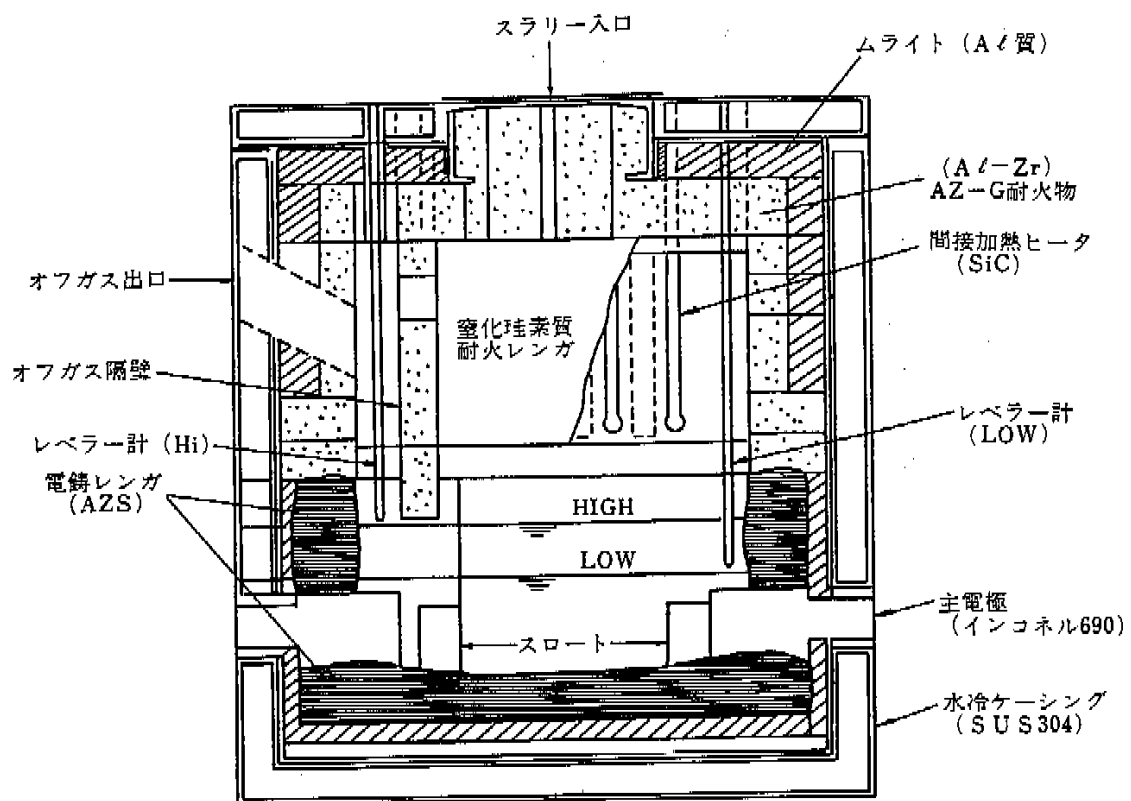


図 3-3 ガラス熔融炉構造 (メルタ中心での縦断面)

3.6 キャニスターハンドリング工程

ガラス溶融炉でガラス化された廃液は、キャニスターハンドリング工程で容器（キャニスター）に充填され、密封して固化パッケージにする。

システムは、空キャニスターの搬入後キャップを一時保管して、ガラス溶融炉下部で溶融ガラスを注入し、溶接前にキャップを再装着すると同時にヘリウムガスを注入する。その後、キャップをTIG溶接し、溶接部の健全性を確認するため、部分ベルジャー法によるヘリウム漏洩検査を行う。これら一連のキャニスター搬送には、自走式駆動台車が使われる。また、キャップ溶接には、自動アーク長制御式TIG溶接機を適用し、3層下向き溶接を実施している。電極は、安定な溶接条件を確保するため1本/キャニスターで設計されており、溶接終了後電極交換機（電極保持量100本）で自動的に交換される。この工程は、1日に1本のキャニスターを封入する処理能力を持っている。

3.7 二次廃液処理工程

粉塵を含んだガラス溶融炉オフガスを処理し

た後のスクラバー塔回収廃液を蒸発濃縮処理する工程である。二次廃液中には、高レベルの粉塵を含有しているため蒸発処理後の液は、1) 前処理工程へ、2) ガラス溶融炉へと2系統のリサイクルフローが可能になっている。蒸発缶では、400倍（設計値）に回収廃液を濃縮し、凝縮水は中和処理系へ移送し処理後排出する。

4. 機器配置

ガラス固化プラントの主要プロセス機器は、交換保守を考え、すべて遠隔保守セルに設置することで本設計は検討が進められている。モックアップ試験設備は、これまでの設計検討を基に、遠隔操作・保守性を考慮すると共にプロセス流体及びユーティリティの流路をも十分考慮に入れ、全体の機器レイアウトを決定した。全体の物流は、上から下を基本原則とし、プロセス上圧力バランス維持が必要なUシール部以外は、エア溜めが起きないように配管引廻し、あるいは勾配等に注意を払った。各工程機器の平面配置を図4-1～図4-3に示す。

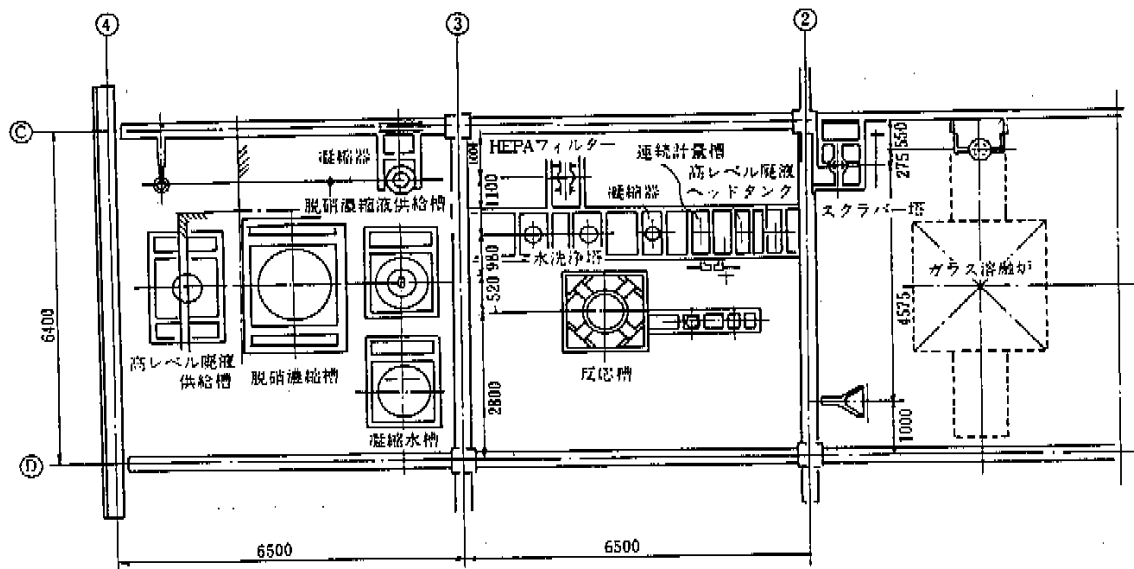


図4-1 前処理工程配置図

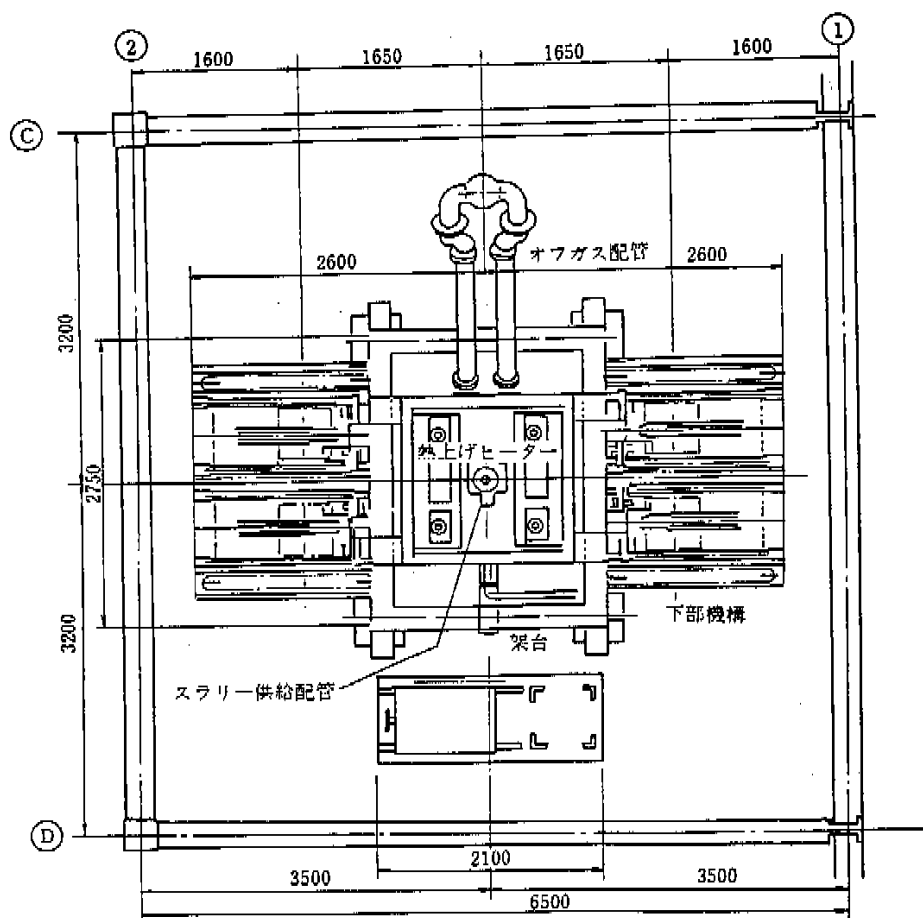


図 4 - 2 ガラス溶融炉配置図

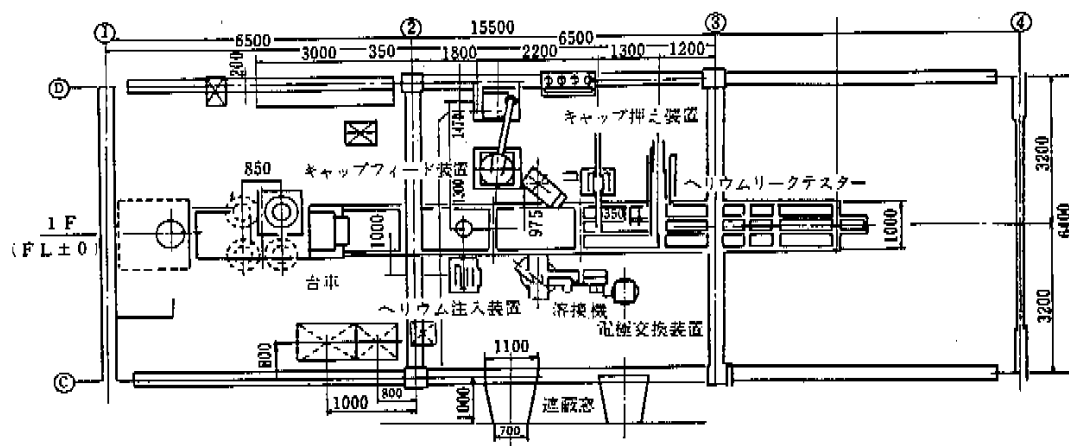


図 4 - 3 キャニスターハンドリング工程配置図

4.1 前処理／オフガス処理設備

前処理／オフガス処理機器は、3Fの6.4m^W×13m^Lの部分に配置し、1)回分式前処理機器、2)連続式前処理及びオフガス処理機器がそれぞれ1/2の面積を占有している。配管類は、すべて④通りを立ち下り、③通りと機器との間の専用配管架台を通して、機器背面側から各塔槽へ分配する。各塔槽の配管配置は、遠隔操作を①通り面から行うため、操作上の視界を十分確保するため縦段式を主として採用した。

4.2 ガラス溶融炉

ガラス溶融炉は、前処理及びキャニスターハンドリング設備との位置関係を考慮し、M2Fの6.4m^W×6.5m^Lの部分に配置した。遠隔操作は、①通り側から行うため、ガラス溶融炉オフガス処理機器を炉背面に配置し、炉体保守交換時、あるいは炉下部機構保守時の視界を確保した。

4.3 キャニスターハンドリング設備

キャニスターハンドリング工程は、溶融ガラ

スをキャニスターに充填するガラス注入工程とキャニスター密封工程とから成り、各機器を1Fの6.5m^W×15m^Lの部分に配置した。密封工程機器は、図4-3に示すように搬送台車用軌道の両側に配置し、遠隔保守時の視界、操作性も検討してセルのコンパクト化を計った。

5. 運転制御

本設備の運転制御は、すべて中央制御室に設置された分散型DDC (Direct Digital Control) システムと、固定型シーケンサーによってコントロールする中央制御方式を採用し、運転管理の合理化、運転制御の信頼性向上、遠隔自動化を計った。

DDCシステムによる運転制御は、前処理／オフガス処理工程、ガラス溶融工程、ガラス原料供給工程及び回収廃液処理工程のフィードバック制御／シーケンス制御を受け持ち、固定型シーケンサーによる運転制御は、キャニスターハンドリング工程に適用した。

今回採用したDDCシステムの構成は、図5-1に示すように操作・監視部とプロセス制御部から成っている。運転に必要な液面、温度、圧力、流量等の設定は、オペレータズ・ステーションと呼ばれる操作卓の2台のCRTディスプレイによりすべて行い、通常運転時は、ここで運転状態をグラフィックディスプレイ及び操作画面等で監視する。また、運転時のデータは、定刻及び任意印字でプリントアウトされる他、フロッピーディスクにすべてトレンド記録するようになっている。

一方、本設備の運転モードは図5-2に示す様に、前処理工程の違いにより2つのモードがある。回分式前処理工程を運転する場合、廃液の計量から溶融ガラス流下までを1サイクルとし、1バッチ処理24時間である。主要タイムシーケンスは、脱硝6.5時間、濃縮10時間であり、ガラス溶融炉へのスラリー供給時間は22時間である。ガラス流下時(2時間)には、炉内に水を所定供給速度で供給し、次のスラリー供給開始まで炉内温度を一定に保つ。

連続式前処理工程を運転する場合は、設備の

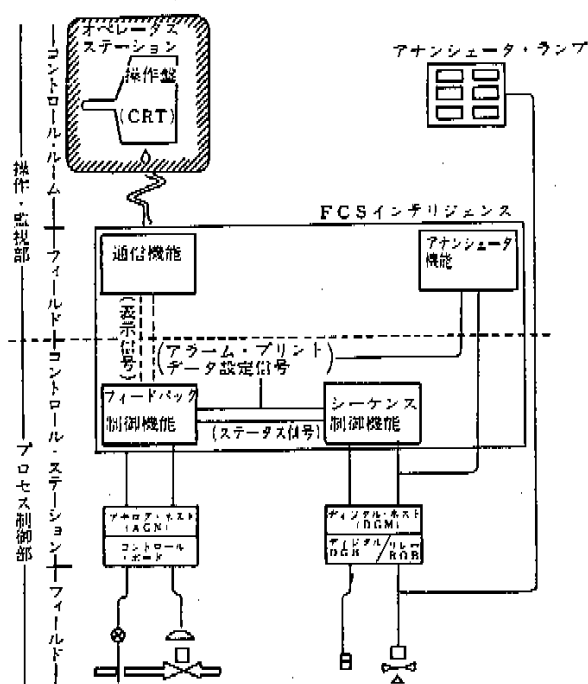


図5-1 DDCシステムの構成

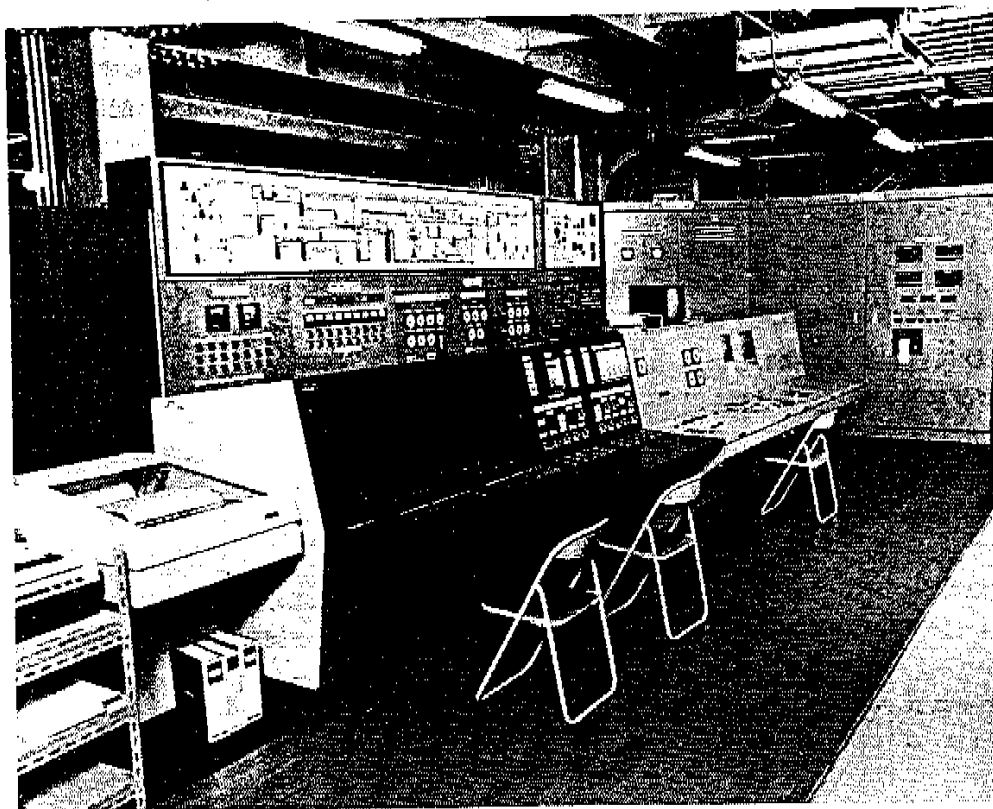


写真5-1 モックアップ室の制御盤

起動時のみ回分操作で脱硝・濃縮を行い、反応槽からのオーバーフロー開始後は、連続的にガラス溶融炉ヘスラリーを供給し、ガラス流下もスラリー供給を継続しながら行う。この点が回分式前処理運転モードと大きく異なる。

キャニスターハンドリング工程のタイムシーケンスは、図5-2に示すとおりで、空キャニスターの搬入から固化パッケージの搬出までの所要時間は、ガラス注入を含め約4時間である。

6. 試験計画

モックアップ試験の目的は、ガラス固化プラントにおける主プロセス機器の運転特性を把握すること、及び遠隔操作・保守技術を開発することである。前者は、回分式か連続式かの廃液前処理方式を選定するための重要な試験でもある。従って両者のフローシート確認試験等によるプロセス比較に必要な、データの収集・解析

とプロセス及び各機器の問題点を摘出し、ガラス固化プロセスの決定の一助とする。一方、後者は遠隔保守セルにおける主要機器の遠隔操作性、保守性を検討評価し、機器及び遠隔治工具類の改良を重ねプラント設計に反映させる。

試験は次の手順により実施する。

- (1) 定常時運転特性；本設備の定常運転における各プロセス機器の性能評価及び運転制御特性の確認。
- (2) 遠隔操作、保守試験；塔槽類の交換（遠隔継手、及び計装部品）、ガラス溶融本体の交換及び周辺付帯機器、キャニスターハンドリング機器等を、遠隔保守機器（パワーマニプレータ、マスタースレーブマニプレータ、模擬遮蔽窓、ITVシステム）を使用し、予め設定した保守手順に従って、実際の姿に可能な限り近づけた形で試験を行う。
- (3) 非定常時運転特性；各工程毎に想定され

る異常状態を人為的に発生させ、プロセスの運転条件の変動、及び全体の運転制御特性の変動を把握し、プロセスの安全性に関する問題点を摘出する。

これらを昭和57年度試験の骨子として、順に性能を確認しながら試験を進めることとした。

本報告では、第1キャンペーンで実施した、
(1)定常時運転特性の試験概要と結果の概要を

示す。

6.1 定常時運転特性

模擬廃液処理量 $1 \text{ m}^3/\text{日}$ 、ガラス固化体中の廃棄物含有量23.6W%の条件で通常運転を行い、以下の項目の評価を行った。

1. 前処理工程（回分式及び連続式）

- (1) 脱硝濃縮運転モードの確認
- (2) 廃液の供給及び計量性の確認
- (3) 濃縮度の制御性確認

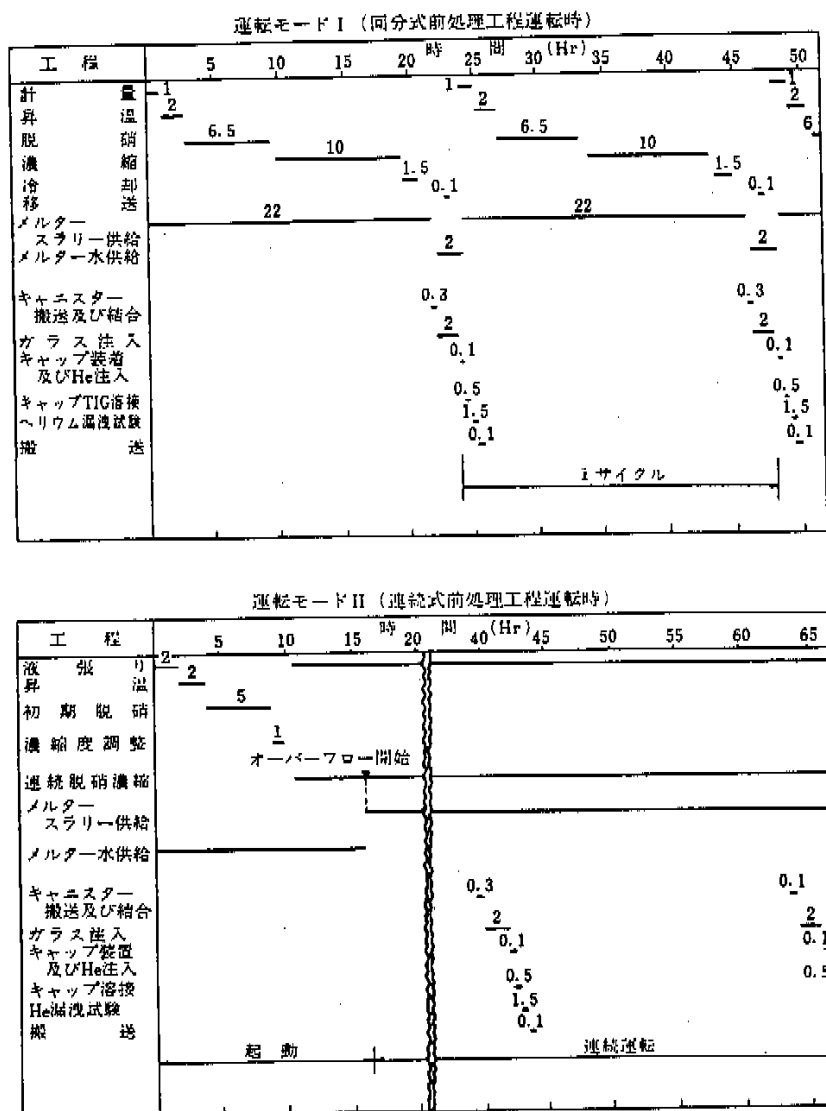


図 5 - 2 運転モード

(4) 脱硝率の確認

(5) 運転制御性の確認

2. オフガス処理工程

(1) オフガス発生状況の確認

(2) ギ酸供給速度の制御

(3) NaNO_2 添加効果の確認

(4) 粉塵除去性の確認

(5) 圧力制御性の確認

3. ガラス熔融工程

(1) スタート時の熱上げ特性の確認

(2) スラリー熔融特性の確認

(3) ガラス流下特性の確認

4. キャニスターハンドリング工程

(1) 各機器の作動性及び機能の確認

7. 運転試験結果

6. 1で述べた試験項目のうち(a)前処理/オフガス処理試験、(b)ガラス熔融試験等の試験結果の概要を次に示す。

7. 1 前処理/オフガス処理試験

高レベル廃液の処理量としてモックアップ試験では $1 \text{ m}^3/\text{バッチ}$ を標準処理量とした。標準運転条件を表 7-1 に回分式、連続式合わせて示す。

脱硝工程では、硝酸をギ酸で分解する。回分式脱硝の場合、反応の誘導期に伴う急激なオフガス発生を防止するためギ酸供給開始前に予め亜硝酸ナトリウム (NaNO_2) を 0.014 mol/l の廃液、添加し、反応開始までの誘導期を無くし、且つギ酸供給速度も急激なオフガス発生を防止するため表 7-1 に示す供給パターンで実施した。両プロセスの運転特性を図 7-1 及び 7-2 に示す。脱硝時のオフガス組成については図 7-3、図 7-4 に示すように従来の基礎、工学試験で得られた結果と同様の傾向を示している。

脱硝濃縮時の圧力制御も脱硝初期に若干の変動が見られる以外、安定した制御が行えることが確認できた。連続式の場合、回分式で得られた脱硝液に比べ残留ギ酸の量が多く、酸濃度が高くなっている。この点については、今後プロセス全体に与えるギ酸の影響等の問題を十分検討しておく必要がある。

表 7-1 前処理工程運転条件

項 目	回 分 式	連 続 式
模 擬 廃 液 処 理 量	$1 \text{ m}^3/\text{バッチ}$	42 t/h
脱 硝 温 度	96°C	94°C
ギ 酸 供 給 モ ル 比	1.5	1.5~2.0
ギ 酸 供 給 速 度 (標準)	(1) $15 \text{ t/h} : 30 \text{ 分}$ (2) $30 \text{ t/h} : 30 \text{ 分}$ (3) $54 \text{ t/h} : 4.8 \text{ 時間}$	$13.5 \sim 18 \text{ t/h}$
亜硝酸ナトリウム添加量	0.014 mol/l -廃液	—
ギ酸供給終了後保持時間	30分	—
滞 留 時 間	—	7~8時間
濃 縮 度	2倍濃縮	1.5~2.0倍濃縮
濃 縮 温 度	$98 \sim 100^\circ\text{C}$	94°C^*
攪 拌 エ ア ー 量	$9.4 \text{ Nm}^3/\text{h}$	$5.0 \text{ Nm}^3/\text{h}$

*脱硝と濃縮は同時に行う。

7. 2 ガラス熔融試験

ガラス熔融炉は、固化プラントの心臓部であり(a)遠隔自動運転、(b)安定な運転条件の把握(均質な固化体の製造)、(c)遠隔保守に適した炉構造の開発、が主な試験項目である。ここでは、(a)(b)の試験結果の概要を述べる。

炉の熱上げ(炉の最初のスタート時に直接通電が可能な状態まで温度を上げる操作)については、14本の間接加熱ヒータ(SiC)で昇温しガラス温度約 800°C でインコネル690主電極による直接通電が可能であった。熱上げに関しては、自動操炉上何ら問題はないことが確認できた。

スラリー熔融試験では、高温での放射性核種の揮発を防ぐため熔融ガラス表面を、スラリー及び仮焼体層で覆うコールドトップ運転を行っているため、ガス抜けの時に発生する大きな突沸現象を防ぐ運転条件の把握が重要な点になる。スラリー供給時の運転パターンを図 7-5 に示す。モックアップ炉の場合、スラリー供給速度上限として、 $30 \sim 35 \text{ t/h}$ が安定な熔融速度であることが確認できた。炉内雰囲気温度も 300°C 前後になり、コールドトップ状態を監視する重要なチェックポイントである。この炉内雰囲気温度とガラス熔融炉外(オフガス系)に飛び出す微粉量の関係を図 7-6 に示す。上記運転条件での微粉移行率は、約 $0.5 \text{ W\%}$ で短時間にオ

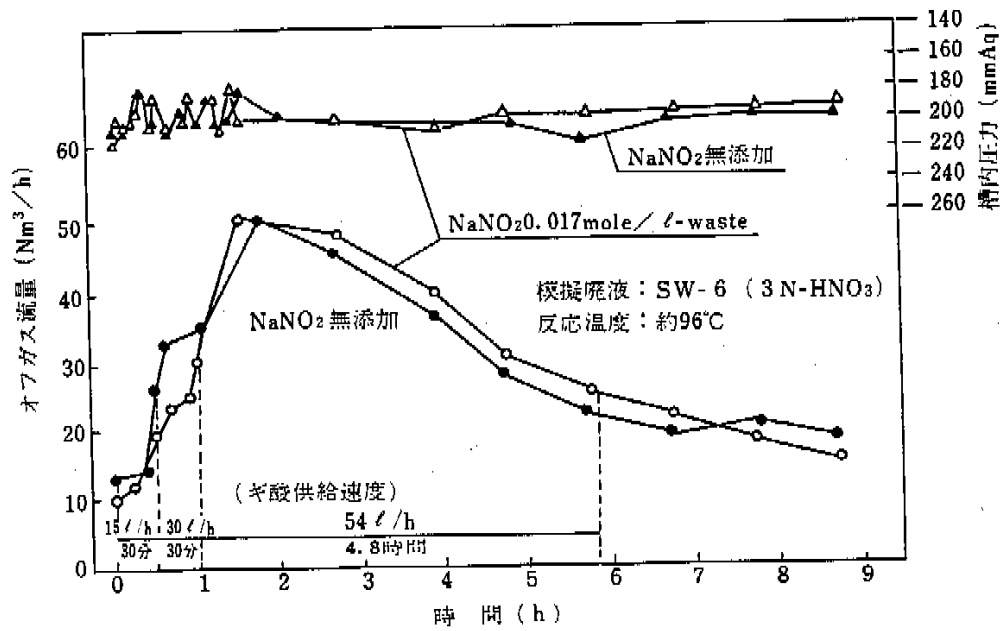


図 7 - 1 回分脱硝時の運転特性

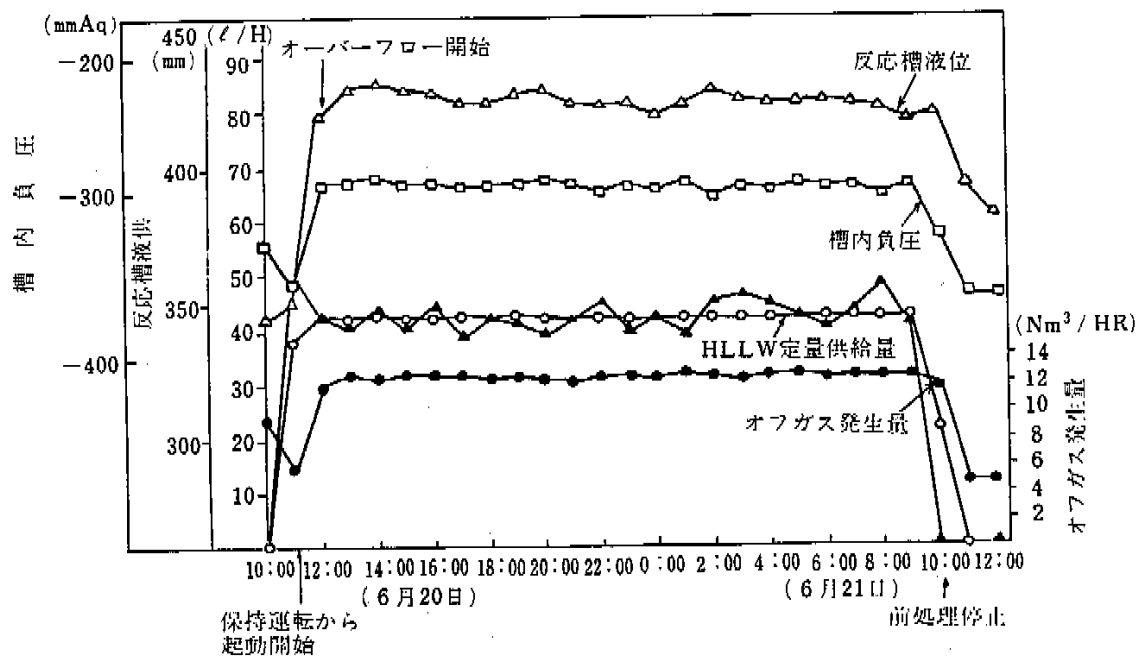


図 7 - 2 連続脱硝時の運転特性

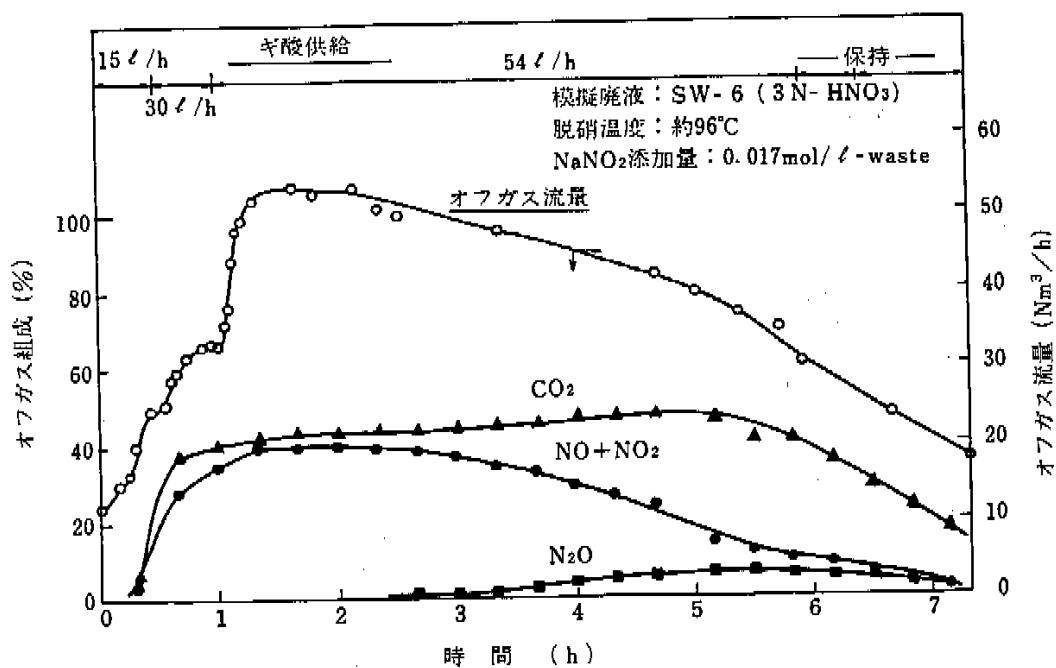


図7-3 回分脱硝時のオフガス組成

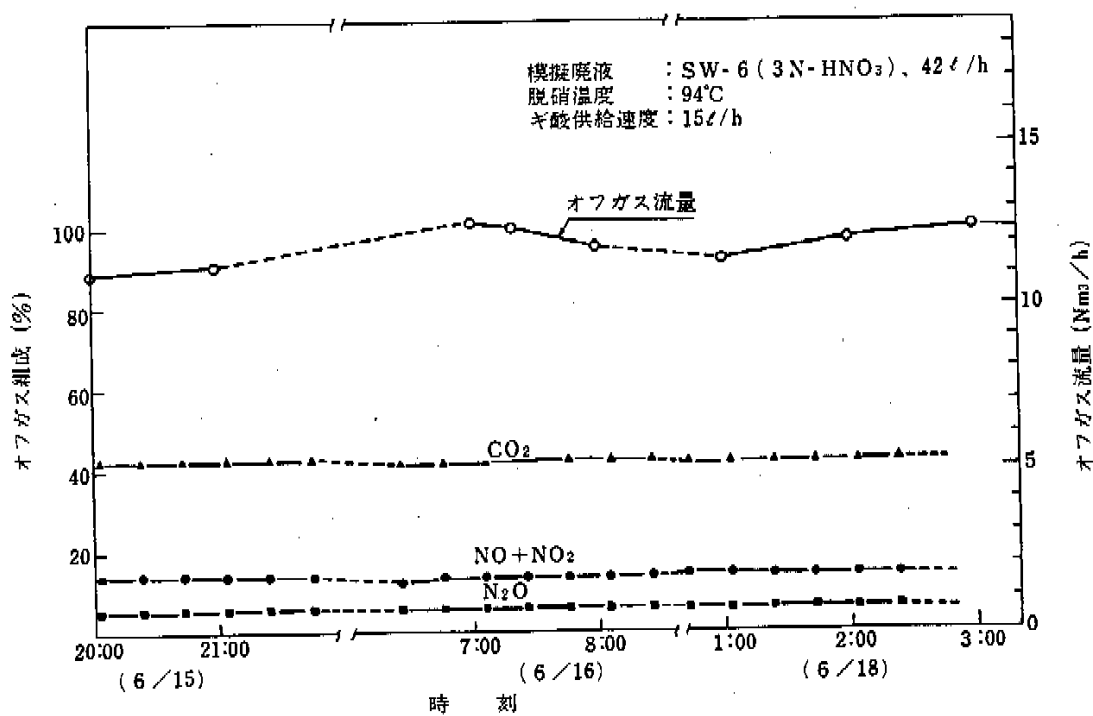


図7-4 連続脱硝時のオフガス組成

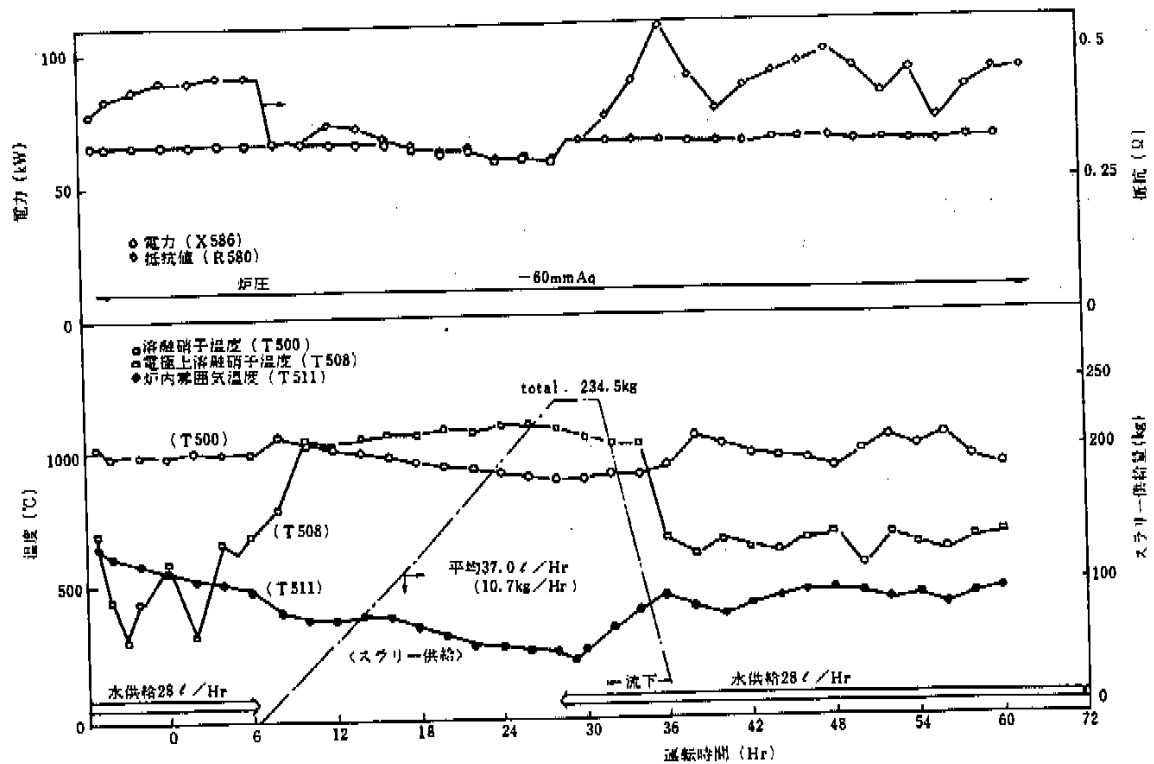


図7-5 スラリー供給運転モード（連続式前処理）

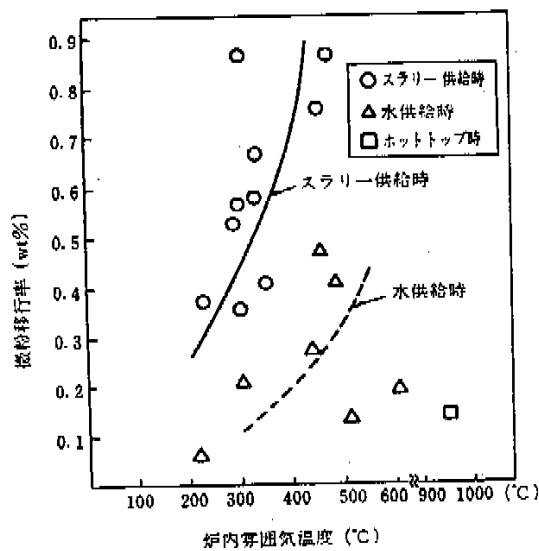


図7-6 微粉移行率に及ぼす炉内雰囲気温度の影響

フガス配管等を閉塞させるような問題もなく、安定な運転が行えることを確認した。

ガラス流下は、インコネル600製のオーバーフローノズル及び炉底からガラスを抜き出す、ドレンノズルの2方式で、前者は(1)ノズルの上部-下部間に通電する1段ノズル、(2)ノズルの上部-中間点-下部と2ゾーンに分けて通電する2段加熱ノズルの計3種類の方式で試験を行った。すべての方式について、流下速度の立上りが若干ゆるやかであったが、ガラスレベル高を検知してから流下停止まですべて自動運転できることを確認し、良好な結果が得られた。流下速度の増加対策については、流下ノズル上部のガラス生地温度を上昇させる必要があり、炉構造等からの再検討を行い設計に反映させる予定である。

8. むすび

昭和57年度後期には、ガラス固化パイロットプラントの最終設計段階である詳細設計（Ⅰ）に入る。そのためには、モックアップ設備を使ったコールド実規模試験で得られるプロセス全体の運転特性データが、今後設計を進める上で大きな役割を果たすものと期待される。

今後の試験は、非定常時運転特性及び遠隔保

守試験を十分行って、更には、問題点解決のための設備改造を実施しながら、詳細設計（Ⅱ）に成果を反映させて行く予定である。

最後にあたって、モックアップ試験設備の設計製作並びに試験計画のため、御協力戴いたメーカー各位、及び動燃の関係各位に深く感謝の意を表すると共に、今後より多くの有用なデータを取得し高レベル廃液ガラス固化技術開発に貢献できるよう、御助言御協力を御願いたい。