



放射性廃棄物の処理

2. 高レベル廃棄物対策

2.3 プロセス技術開発

東海事業所環境工学開発部

高レベル廃棄物処理処分技術開発室

資料番号: 59-18

2.3 Development of Vitrification Process

High Level Waste Conditioning and Isolation Technology
Development Section, Waste Management Technology
Development, Division, Tokai Works.

高レベル廃液をガラス固化するためのプロセス技術の開発と実証を目的として、工学試験設備及びモックアップ試験設備が建設され、試験が実施されている。これらの設備における開発の内容とその結果を、前処理、ガラス溶融、キャニスターハンドリング及びオフガス処理の各工程について紹介した。

また、このプロセスで製造される固化体の組成・物性の開発の現状についても述べた。

Key Words: High-Level Waste, Vitrification, Process Technology, Mock Up Test, Product Characterization.

2.3 プロセス技術開発

(1) はじめに

ガラス固化技術を実規模にて実証するために、昭和54年度に工学試験設備が、また昭和57年度にモックアップ試験設備が建設され、現在まで模擬高レベル廃液を使用しての試験が行われている。図2.3-1にモックアップ試験設備のプロセスフローシートを示す。ガラス固化プロセスは、前処理工程、ガラス溶融工程、キャニスターハンドリング工程及びオフガス処理工程より成る。以下に、各工程における技術開発及びガラス固化体の組成・物性について紹介する。

(2) 前処理工程

高レベル廃液の前処理及びエアリフトポンプによる定量供給が重要な技術開発項目である。

前処理技術としては、ガラス溶融炉からのルテニウムの揮発を防止することを目的として、以前は硝酸による脱硝濃縮技術の開発を行ってきた。しかし、ルテニウムの揮発量及びオフガス処理機器での除去性能を測定した結果、脱硝は行わなくてもプロセス

として十分処理できると評価されたので、脱硝は採用しないこととした。現在ではガラス溶融炉へ供給する水分量を極力少なくし、炉の負荷を軽減することを目的とした廃液の濃縮についての試験を継続している。

また、製造される廃棄物ガラスの品質管理においては、ガラス溶融炉への高レベル廃液の定量供給性が重要であるので、二段エアリフトポンプによる試験を継続して行っている。

(3) ガラス溶融炉技術開発

ガラス固化技術開発施設で採用するガラス溶融炉には、その溶融能力に加えて、良好な操作性、保守性が要求される。このため、一般のガラス産業で使われている溶融技術をベースに、ホット施設での運転が可能なガラス溶融炉の完成を目指して、技術開発を行ってきた。

溶融炉として、①高レベル廃液を液体のまま溶融炉に供給し、溶融炉で乾燥、仮焼、溶融を行う。②溶融炉の炉材がセラミックである。③ガラス加熱方法として溶融ガラスに通電する、いわゆる Liquid



溶融炉の運転状態を把握するための計装システムの開発も並行して実施し、特に溶融ガラスの液面を検出するため、電気抵抗検知式のレベル計を開発し

た。

さらに、炉内の溶融ガラスの温度分布や流動分布を、直接通電加熱の入力や炉内測温点のデータをもとに解析するコードの開発も実施している。

(4) キャニスタハンドリング技術開発

キャニスタハンドリング工程は、溶融ガラスを溶融炉からキャニスタへ定量注入し、蓋の溶接、表面の除染及び必要な検査を行い、保管セルに収納するまでをいう。

保管工程では、固化パッケージを保管セル内に格子状に配置する垂直な冷却ビット内に多段積みし、空冷により除熱する予定である。

キャニスタハンドリング及び保管工程に関連して実施している技術開発の概要を以下に述べる。

固化パッケージの特性を把握するために、実形状キャニスタに模擬ガラスを注入し、温度分布、キャニスタ変形量、残留応力を測定した。さらに、ガラス固化体内部の観察を行い、蓋溶接のタイミングや保管・貯蔵施設の設計に必要な諸データを得るとともに、温度分布解析コードの有効性を実証した。

固化パッケージのハンドリングは施設側で万全な取扱い対策を講ずるため固化パッケージの落下はありえない。しかし万が一、固化パッケージが落下した場合を想定して落下試験を実施し、健全性を確認するとともに、解析結果との比較を行った。

貯蔵ビットの耐震性については、実規模のビットを用いて加振試験を実施し、地震遭遇時の冷却ビット及び固化パッケージの健全性を確認した。さらに、別途実施した耐震解析結果と試験結果とを比較し、解析による耐震評価が有効であることを確認した。

蓋部の溶接はノンフィラTIG溶接で行う予定であり、溶接機を製作し健全な溶接部が得られることを確認した。

ガラス固化体の温度解析を行うためには、ガラス固化体の熱伝導率が必要である。熱伝導率についてはガラスの基本物性の1つとして測定しているとともに、実形状固化パッケージを製作して測定を実施し十分なデータを得ている。

固化パッケージの保管、貯蔵は、多数ビットに多段積みで収納し冷却する予定である。冷却システムの設計を行うためには、各ビットへの冷却風量分配特性と1ビット内の伝熱特性を把握しておく必要がある。

風量分配特性は、12行×12列の冷却ビットを有する1/3スケールモデルによる試験を実施し、積段数、

使用ビット数等を変化させて各設計因子の影響を確認した。1ビット内の伝熱特性は、実規模の冷却ビット内に実形状発熱パッケージを多段積みし、試験データを取得するとともに、別途実施した解析結果との比較を行い、解析手法の有効性を確認した。

さらに、ガラス固化体の内部情報を収集するために、CT*スキュン法を用いた非破壊検査技術を開発している。

(5) オフガス処理工程

オフガス処理工程では、微粉塵及びミストの除去揮発性ルテニウムの除去及びNOxの除去が重要な技術開発項目である。モックアップ試験設備のガラス溶融炉に模擬高レベル廃液及びガラス原料を供給しての試験、及びトレーサを用いたの実験スケールの試験等により、オフガス処理技術の開発を行ってきた。

ガラス溶融炉から発生するオフガス中の微粉及びミストは、スクラバー、ベンチュリスクラバー、吸収塔、デミスタ及びHEPAフィルターで除去される。また、NOxは主に吸収塔で、揮発性ルテニウムはスクラバー、吸収塔及びルテニウム吸着塔で除去される。

微粉除去技術としては、特にサブミクロン粒子の除去が重要であり、高性能の微粉除去装置の開発とサブミクロン粒子測定装置の製作を行ってきた。ガラス溶融炉から発生するオフガス中の微粉塵については、原料形態や溶融炉空間温度の影響による粒子の飛出率や粒径を確認している。スクラバーからデミスタまでの各オフガス処理機器について、各機器の入口及び出口における微粉塵の量や粒径分布を測定し、また各機器の槽内洗浄液またはドレン液をサンプリング・分析して主要な元素の物質収支を評価した。これらの結果、ガラス溶融炉からの粉塵飛出率や各オフガス処理機器の除塵性能が確認された。

ガラス溶融炉から飛出す揮発性ルテニウムの飛出量やスクラバー出口での存在量は、ルテニウムガスサンプラーで測定した。また、各オフガス処理機器の洗浄液をサンプリング分析して、ルテニウムの物質収支を評価した。これらの結果、ガラス溶融炉から飛出す揮発性ルテニウムと粉塵性ルテニウムの割合やスクラバーでのルテニウム除去率を把握できた。

さらに、RIトレーサを用いた実験室スケールの試

* Computed Tomograph

表 2.3-1 ガラス固化体組成の例

ガラス原料	(75) (wt%)
SiO ₂	43~47
B ₂ O ₃	14
Li ₂ O	3
ZnO	3
Al ₂ O ₃	3.5~5
BaO	0~3.5
廃棄物(酸化物)	(25)
核分裂生成物	10
Na ₂ O	10
その他	5

験により、ルテニウム吸着塔における揮発性ルテニウムの挙動を把握した。ルテニウム吸着塔に使用する吸着剤としてはシリカゲルを選定した。

吸収塔などの処理機器におけるNO_x除去性能は、ガスサンプラーによりオフガス中のNO_x濃度を測定して評価し、十分であることを確認した。

スクラバーとしては、今までに液膜式のものの性能評価を行ってきた。現在サブマージドベッドスクラバーの試験を実施中である。これは、米国のガラス固化プラントに設置が予定されている装置であり、オフガス処理工程の除塵性能を一層向上せしめることが期待されている。また、微粉塵及びミストの除去装置として、電気集塵装置が有効と考えられる。これは、現在モックアップ試験設備に設置して試験中であり、高い除去性能を示している。

(6) ガラス固化体の組成・物性

ガラスの基本組成系としてホウケイ酸ガラスを選定し、ガラス原料組成の開発、廃棄物含有率の最適化と廃棄物成分の許容変動中の確認等を約600種類のガラスの溶融試験により実施してきた。これらのガラス組成の検討は、主としてガラスの溶融性、化

学的耐久性、相分離の防止等を考慮して行った。代表的なガラス固化体組成の一例を表2.3-1に示す。

ガラス固化体の基本的物性の一例は、密度(室温)2.7~2.8g/cm³、熱伝導率(室温)約0.9W/m℃、熱膨張率約80~90×10⁻⁷/℃、転移温度500℃前後、軟化点600℃前後、ヤング率(室温)約8×10¹⁰N/m²、ポアソン比(室温)約0.25である。これら諸物性のガラス組成に対する変動は比較的小さいことを確認している。

ガラス固化体の化学的耐久性は、通常、水への浸出率によって評価される。浸出率は様々な因子によって支配されるので、温度、圧力、時間、溶液の組成・pH・流速等のパラメータを広範囲に変化させてデータの取得を行ってきた。これらの諸因子が固化体の浸出に及ぼす影響に関しては、固化体自身の持つ基本特性としての評価をほぼ終了した段階にある。また、地層処分を想定した固化体の性能評価として、長期の浸出試験、岩石・緩衝材・容器材料等の共存効果の評価、実規模スケールガラス固化体の浸出評価等を実施し、長期的な浸出挙動に関するデータの蓄積を行っている。

ガラス固化体の熱的安定性に関しては、長期熱処理試験(1~3年)を実施し、転移温度以下に保持すれば、固化体は結晶化せず長期的に安定であることを確認した。また、安定性評価として、結晶化を起こさせたときの浸出挙動も把握したが、浸出率には顕著な変化がないことを確認した。

放射線による固化体の照射効果としては、その影響が最も大きいと考えられるα崩壊を中心に評価を実施した。α崩壊の模擬として、B(n,α)Li反応を利用したα線の内部照射による評価を行い、浸出特性等の物性に大きな変化がないという結果を得ている。

以上のような動燃ガラス固化体の組成・物性は、諸外国で開発されたガラス固化体との比較において略同等である。