

放射性廃棄物処理処分技術開発

東海事業所環境工学開発部
大洗工学センター管理部

資料番号：63-7

Development of Management Technology for Radioactive Waste

Waste Management Technology Development Division,
Tokai Works.

Administration Division, O-arai Engineering Center.

動燃は、高レベル放射性廃液のガラス固化処理技術開発のため、昭和50年以来基礎工学、モックアップ試験を行っており、小規模ホット試験を実施中である。プルトニウム系廃棄物の減容安定化のため、処理技術開発を進めている。再処理工場からの低レベル放射性廃棄物の廃液、スラッジはアスファルト固化し、廃容液・廃希釈液は TBP とドデカンに分離し、TBP は固化処理、ドデカンは焼却または再利用するための技術開発を実施中である。固体廃棄物のうち可燃物は焼却、難・不燃物は未処理のまま貯蔵庫に保管している。気体廃棄物のクリプトン85の放出低減化技術開発のため、クリプトン回収開発技術施設を建設し、コールド試験を実施中である。大洗工学センターでは、各施設から発生する大型固体廃棄物の除染、解体を中心とした技術開発を進めている。

1. 高レベル廃棄物処理貯蔵技術開発

1.1 はじめに

動燃では、国の方針に従い、高レベル放射性廃液のガラス固化処理技術開発を進めてきている。これまで数多くの大学、民間企業、国立試験研究機関の協力と指導を得て、さらに国際協力も踏まえ、現在技術開発の仕上げの段階に至っている。

高レベル放射性廃液の固化処理に関する技術開発の方策は、昭和51年6月の原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会によって策定された基本方針及びその後55年12月と59年8月に見直された研究開発計画に定められている。その主要内容は次の通りである。

- (1) ホウケイ酸ガラスによる固化処理技術に重点をおく。
- (2) 官民の研究機関の協力の下に、動燃が中心的な役割を担って技術開発を行う。

(3) 研究成果を集大成し、動燃におけるガラス固化技術開発施設の建設・運転を通じ、1990年代前半を目途に、処理技術の実証を図る。

動燃では、このような方針に従って昭和50年以來の多くの研究開発を行い、その成果を蓄積しておりガラス固化技術開発施設 (Tokai Vitrification Facility: TVF) の昭和63年着工をめざし、その安全審査の段階にある。

ここでは、これまでの技術開発の概要を、主工程に重点をおいて紹介する。

1.2 固化プロセスの概要

高レベル放射性廃液のガラス固化技術は、使用済燃料の再処理において発生する高レベル廃液に含まれる核分裂生成物、アクチノイド元素 (ウラン、プルトニウムの抽出回収残渣を含む) Fe、Cr 等の腐食生成物、及び硝酸ソーダ等をガラスという媒体に高

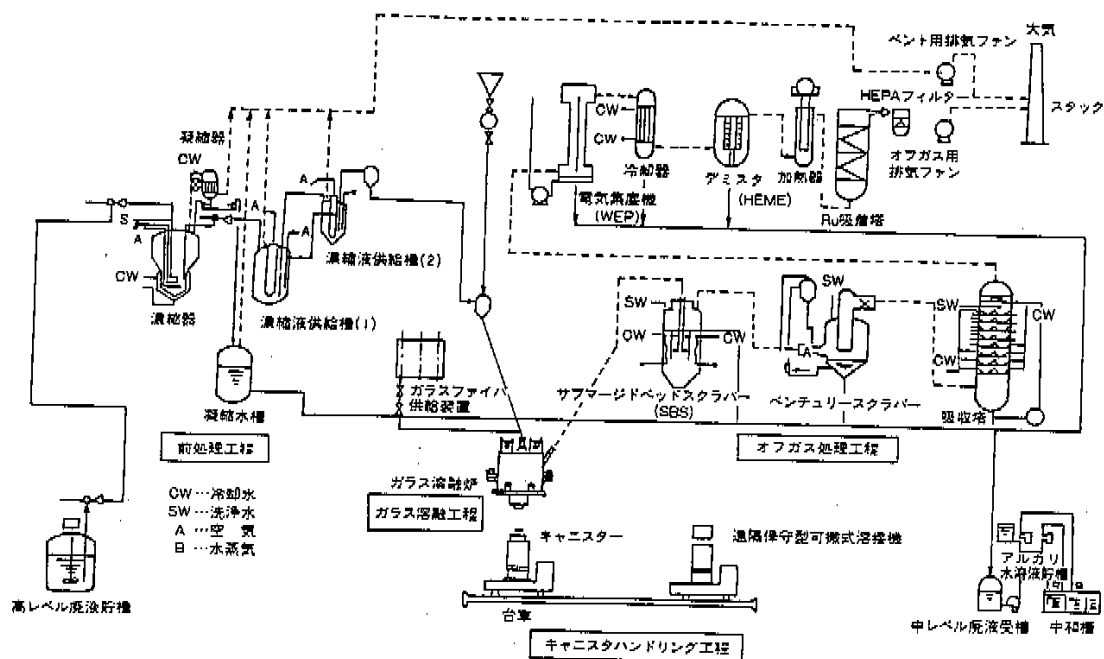


図2 モックアップ試験設備プロセスフローシート(昭和62年6月現在)

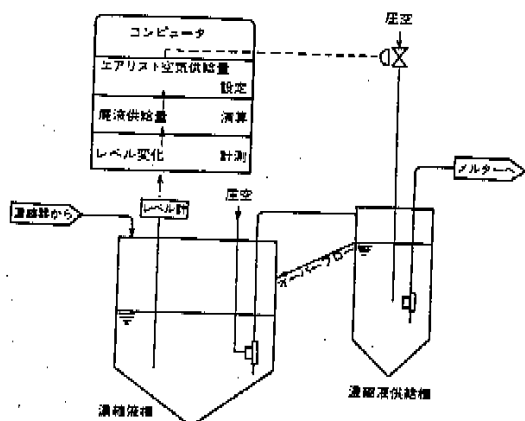


図3 2段エアリフト供給システム制御フロー

表1 ギ酸による廃液脱硝条件^(注1)

廃液の温度	① 90°C - 100°C
NaNO ₂ 添加 (自触媒)	① 0.02 mole/l-HLLW ② ギ酸供給直前に添加する
ギ酸の供給 ^(注2)	① 供給速度: 0.03 mole/min - l-HLLW ② 供給量: 廃液中の硝酸根に対し、モル比で1.2-1.5倍のギ酸を供給する。

(注1) pH領域までの脱硝を意味している。

(注2) ギ酸は、濃度80%のものをを用いている。

給する技術として、2段エアリフト法の開発を行ってきた(図3)。定量供給性の管理は、濃縮液槽のレベル変化の計測結果から濃縮液供給槽内エアリフトのエア量を制御することで行っている。この方法で、約15 l/hの供給量に対し、±5%以内の精度が得られている。

(4) 脱硝技術

ガラス溶融中における揮発性ルテニウムの発生を抑制する目的で、ギ酸によるpH領域までの脱硝技術の開発を行った。主な試験項目は、

- 1) 脱硝条件の把握(温度、ギ酸供給速度、自触媒の添加など)
- 2) 反応生成ガスの特性の把握(発生速度、組成など)
- 3) 脱硝液性状の把握(沈殿物の量、組成、液のpHなど)

であり、基礎試験、モックアップ試験を通じ十分な知見が得られた。例えば表1は、ギ酸による脱硝条件である。図4は、モックアップ試験で行った脱硝時の気体発生挙動である。

しかし、オフガス処理技術の進捗により、脱硝を行わなくても、揮発性ルテニウムの除去が可能であるとの見通しが得られたことから、脱硝操作は不要と結論づけている。

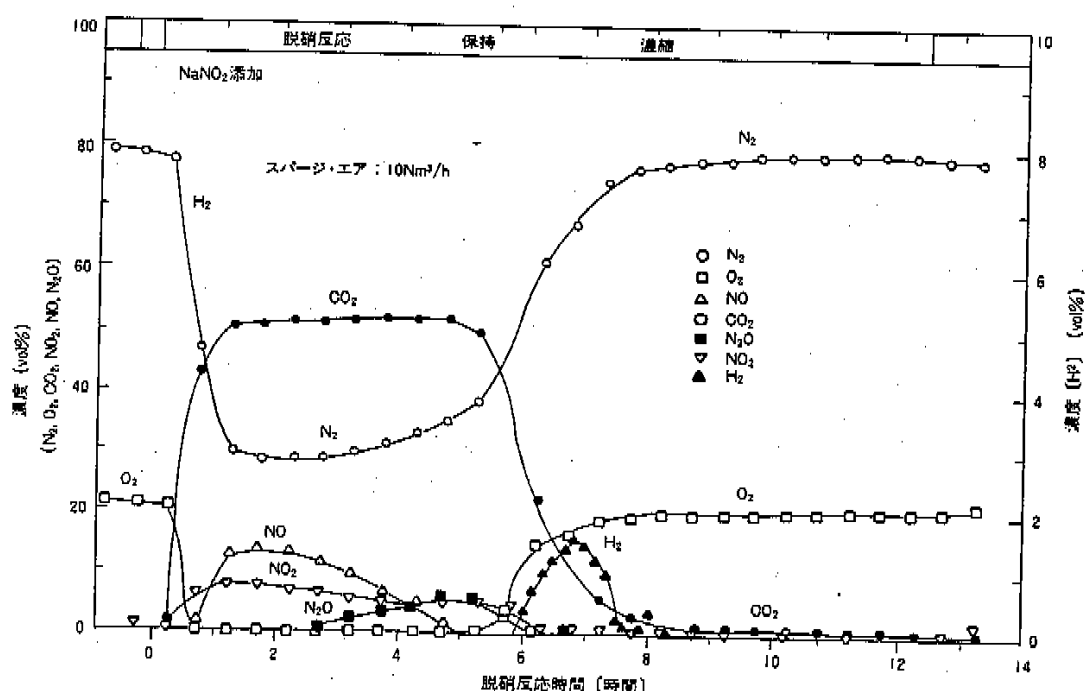


図4 廃液の脱硝及び濃縮時における反応ガスの発生
(エアーを常時スパージしていることに注意)

1.4 ガラス溶融工程及び関連技術

ガラス溶融工程は、前処理工程を経た高レベル廃液とガラス原料を定量的に溶融炉へ供給し、溶融ガラスを製造する工程である。

ガラス原料とともに溶融炉へ供給された高レベル廃液は、蒸発、乾燥、仮焼を経て溶融状態となり、廃液中に含まれていた放射性物質は、溶融ガラスの中にとり込まれる。

溶融炉は、溶融ガラス温度を通常1100℃～1200℃程度に保つよう運転する。

溶融ガラスは、溶融炉底部に設けた流下ノズルを加熱することにより、定期的にキャニストに注入する。

ガラス溶融工程技术については、全電気加熱の直接通電型セラミックメルター方式の溶融炉の設計・運転・保守技術について、以下の各項に示すような開発を実施した。

(1) 溶融炉構造と形状の検討

セラミックメルターの構造と形状の決定に影響を及ぼす因子は、

- ① 溶融炉熱上げ方式
- ② 炉材料の選定及び炉内ガラスの温度分布と流れ
- ③ 配極配置
- ④ ガラス流下方式

- ⑤ 容量
 - ⑥ 耐震性
 - ⑦ ガラス液面位置の計測方式
- などである。

ガラスは常温では絶縁体であるため、直接通電が可能な温度まであらかじめ昇温してやらなければならない。この方法として、動燃では遠隔交換式の抵抗ヒーター（後出）を溶融炉の上部壁面内に設置する形を採用している。

ガラス流下方式については、オーバーフロー方式、ボトムフロー方式及びこれらの組合せ方式について試験を行った結果、特に、ガラス中に析出する白金族元素が炉底に蓄積することを防止するボトムフロー方式が適するものとしてこれを選定した。炉底の形状は析出物の流下を容易にするために30～60°の勾配をつけることとしている。

電極は板状主電極を一对、補助電極を一对設置している。時間当りの処理能力は東海再処理工場相当の約9 kg ガラス/hr に合わせている。耐震については、レンガの組み方、金属ケーシングの強度を付与することで確保している。なお、耐震性は、震動実験を行って確認している。

ガラス液面位置の計測は、電気抵抗検出方式（後出）を用いることとしたため、溶融槽とは独立したレベル計測槽を設ける構造とした。図5にガラス溶

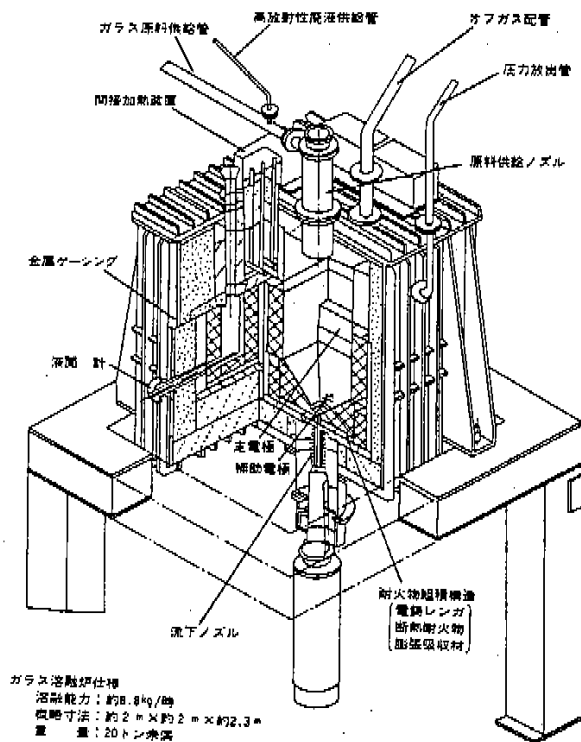


図5 溶融炉

融炉の概要を示す。

1) 熱上げ方式

溶融炉の起動及び再起動時の加熱方式について、SiC発熱体またはMoSi₂発熱体を用いた方式、さらにマイクロ波加熱方式について、主に発熱体の配置、寿命、遠隔交換性等の観点から比較検討を行った。その結果、遠隔交換式のSiH発熱体を溶融炉の上部壁面に設置する方式を採用することとした。

なお、マイクロ波加熱技術については将来技術として位置づけ、さらに試験を継続して新しい溶融炉の設計に反映する。

2) 電極材料、構造及び形状について検討した。材料については、初期には金属モリブデン、酸化スズを用いたが、それぞれ耐食性や強度の面で難点があった。検討の結果、クロムを含むインコネル系合金が廃棄物ガラスに適しており、インコネルの中でも、耐食性、耐酸化性の面から、インコネル600、601、690を比較した結果、インコネル690が最も優れていると結論づけ、これを採用した。動燃における基礎試験結果及び工学規模メルターでの使用データから、溶融炉内でのインコネル690電極のガラスによる侵食速度として0.024mm/dayの値を得ている。なお、米国、西インドで開発中のセラミックメルターにおいても、電極材料としてインコネル690を使用している。

電極の侵食速度は、接触するガラス温度のほか、表面電流密度にも依存することを実験的に確かめた。この結果、表面電流密度が0.5A/cm²以下で電極を使えるよう表面積を大きく設計している。さらに、使用温度を低くし電極腐食量を少なくするために、電極内部は空気により冷却している。

3) 耐火物材料

ガラス溶融炉の内側は、耐火物を組み上げて、ガラスを溶融するための槽をつくる。

各種耐火物のガラスに対する耐食性を評価した結果、クロム系電鍍耐火物の耐食性が良く、中でもMonofrax K-3が、許容される範囲の電気抵抗値を持つ材料として最も優れているとしてこれを選定した。

このような基礎試験結果及び工学規模メルターでの使用データから、炉内でのK-3の腐食速度として0.022mm/dayの値を得、これを用いて耐火物の必要厚みを評価し、余裕を持った耐火物の寸法設計を行った。

なお、接液部以外の耐火物として断熱性、ガラスリーク防止、膨張吸収などを考慮して、ジルコニア系電鍍耐火物、焼成アルミナジルコン、焼成ムライト、断熱アルミナキャストブル、セラミッ

表2 溶融炉耐火物組成表

耐火物の種類		成分						
		Al ₂ O ₃	SiO ₂	CaO	MgO	Cr ₂ O ₃	ZrO ₂	Fe ₂ O ₃
電鍍クロム-アルミナ	MONO K-3	58.0	1.5	0.5	6.0	27.3		6.0
電鍍 AZS	MONO GS-5	45.9	13.0	0.01	0.01		40.0	0.04
焼成アルミナ-ジルコン	AZ-GS	70.0	11.0	0.27			19.5	0.5
焼成ムライト	MRT-70K	69.5	28.5	0.41				1.0
断熱レンガ	C-1	32.7	54.7	0.6	0.2			1.4
断熱キャストブル	LN-135	45	35					
セラミックファイバーボード	20B-20	50	50					

表3 粉末、ビーズ、ガラスファイバークートリッジ原料の特性

特 性	形 態	粉 末	ガ ラ ス ビ ー ズ	ガラスファイバークートリッジ
粒度分布 形状、寸法、重量		10 μm 以下 $\geq 50\%$ 10~40 μm $< 50\%$ 40~44 μm $< 1\%$ 44 μm 以上 0%	1 ~ 2 mm $\leq 50\%$ (直径) 2~2.83 mm $\geq 50\%$ (直径)	・ガラス繊維径 9~12 μm ・形状 (円柱) $\phi 70 \pm 1 \text{ mm} \times L 70 \pm 1 \text{ mm}$ ・重 量 54 $\pm 2 \text{ g/個}$
比 重		・真 比 重 2.47 ・密 比 重 1.0	・真 比 重 2.47 ・密 比 重 1.65	・真 比 重 2.47 ・密 比 重 0.2
そ の 他				・圧縮時の変形量 直径方向 2mm以下(10kgf) 軸 方 向 1mm以下(10kgf) ・廃液吸収量 4ml/g 以上

ク繊維ボードを層状に組み合わせて使用する。

以上の各種耐火物の組成を表2に表す。

4) 原料供給技術

ガラス原料の形態として、粉末、ビーズ、ガラス繊維(ファイバークートリッジ)の3種類を開発し、溶融試験を行うとともに供給技術の開発を行った。表3はこの3種類の原料の特性を比較したものである。写真1はこれらの外観である粉末(水に分散させて供給)、ビーズ原料とも、高レベル放射性廃液とは別の供給ラインから供給するが、ファイバークートリッジの場合には、炉内に供給する直前で廃液を中にしみ込ませる所が大きく異なる。このため、前二者の原料の場合には炉内に廃液が液溜まりを作って存在するが、ファイバークートリッジの場合には、しみ込んでいるために液溜まりはほとんど存在しない。溜まった液は熱を受けて沸騰し、蒸気に混じってミスト状の粒子を発生する。その結果、炉内オフガスに微粉が同伴することになるが、特にファイバークートリッジの場合は他の原料と比べて微粉量を1/10以下に抑え、溶融炉の運転を行うことができる。図6は、この様子を示したものである。

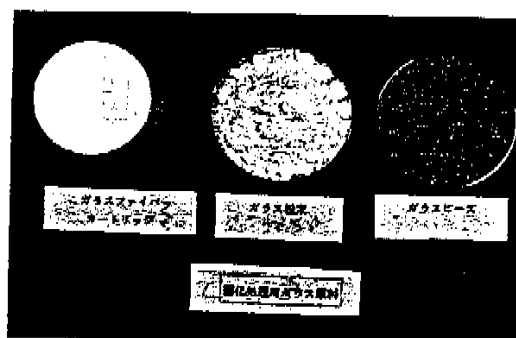


写真1 3種類のガラス原料

以上のことから、ファイバークートリッジ原料を用いると、溶融炉出口配管の閉塞の可能性が著しく小さくなり、さらにオフガス処理系の負荷も軽減でき、ガラス固化プロセスの運転を円滑に行うことができることとなったので、これを採用することに決定した。

5) 溶融能力

液体供給式セラミックメルターの溶融能力は、溶融表面に廃液とガラス原料が供給され、高温のガラスからこれらの原料に熱が伝わり、蒸発、溶融させ能力によって決まる。これまでの溶融炉の運転結果から、この溶融能力は原料が供給される炉内の溶融ガラス表面積にほぼ比例することがわかっていてる。

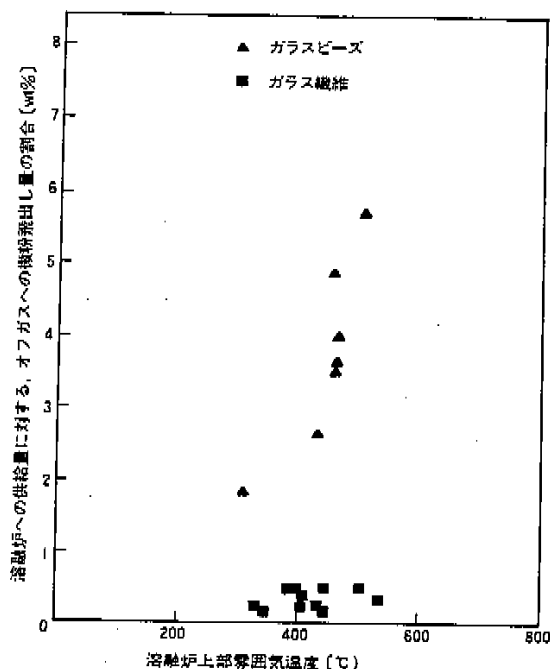


図6 ガラス原料形態のちがいによる微粉飛出し量の比較

種々の大きさの溶融炉の運転によって、必要処理能力に対する炉の大きさを決定するための基礎データを得て、設計に反映した。

6) 溶融温度の確保

溶融炉において、固化体ガラスの溶融に必要な温度である約1100°C~1200°Cの溶融温度を得るため、加熱及び放熱の条件を設定しなければならない。

これまで、数基の工学規模溶融炉の設計、製作、運転を通じて、一定電力で加熱を制御し、原料を所定の速度で連続供給する運転方法によって、溶融温度を上記の範囲ではほぼ一定に保って運転できることを確認している。

7) ガラス流下技術

溶融炉から、溶融ガラスを抜き出し容器（キャニスタ）に注入する方法として、主にフリーズバルブ方式の流下ノズルを開発して来ている。これは金属性のパイプを加熱あるいは冷却することにより、パイプ内部のガラスを溶融あるいは固化し、これによってガラスの流下あるいは流下の停止を行わせる技術である。

加熱方法として、動熱ではノズルに直接通電して発熱させる抵抗加熱方式と高周波加熱方式を比較検討し、現設計では後者を採用している。

図7は、高周波流下ノズルの概略である。ノズル材料はインコネル690を採用している。

その他、エアリフトを用いるオーバーフロー方式、真空中に引いた容器に吸い上げる方式についても試験・検討を行っている。

8) 炉外面冷却方式

ガラス溶融炉の外面を構成する金属ケーシングの冷却方式として、水冷式と空冷式について、工学規模の溶融炉の運転を行いながら比較検討した結果、金属ケーシングの構造の複雑さや冷却水等のユーティリティ及びそれに関する計費が少ないという点から、空冷式時に自然空冷の方が良いと判断している。ただし水冷方式は、ケーシング温度を低くし、周辺の放熱を小さくできるという長所があるので、施設全体の設計との関係で必要に応じて採用することも可能である。

9) ガラス液面検出技術

溶融炉内部のガラス液面位置を計測する方式として、溶融ガラスが電気伝導性を有することを利用し検出器が溶融ガラスに接触した時に電流が流れる回路を持つ電気検出システムを開発した。

検出器としては、溶融炉天井から吊下げた接触針または炉壁を通して設置した電極を用い、これらの先端部に溶融ガラスが接触したときにコモン

プローブとの間の電気抵抗が変化することを検出する。図8に概念図を示す。ガラスレベルの連続測定はできないが、選定したレベルの検出は可能である。なお、接触針式レベル計は遠隔交換可能である。

連続式レベル計として、マイクロ波レベル計の試験も現在実施中である。

10) 炉内ガラス流動解析

炉の基本構造を決定したり、ガラス中の温度分布、電位、流動などの特性を解析するために、3次元の解析コードを開発している。計算フローを図9に示す。このコードは改良を進めて溶融炉の設計に役立てるとともに、このコードをベースに簡易コードを開発し、溶融炉の運転に使用していく予定である。

11) 炉内検査技術

溶融炉内部の状態（侵食状況など）を検査する方法として、レーザー法及び超音波法に基づく測距技術について基礎試験を行って比較検討した結果、超音波法が適していることが明らかとなり、装置の試設計を行った。

12) 廃炉解体技術

廃炉を解体し、二次廃棄物としての管理を容易

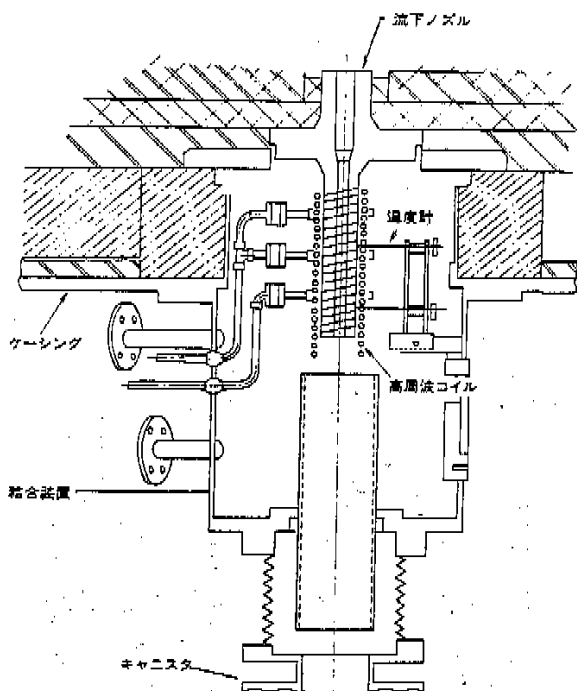


図7 高周波加熱流下ノズル
(工学規模溶融炉での一例)

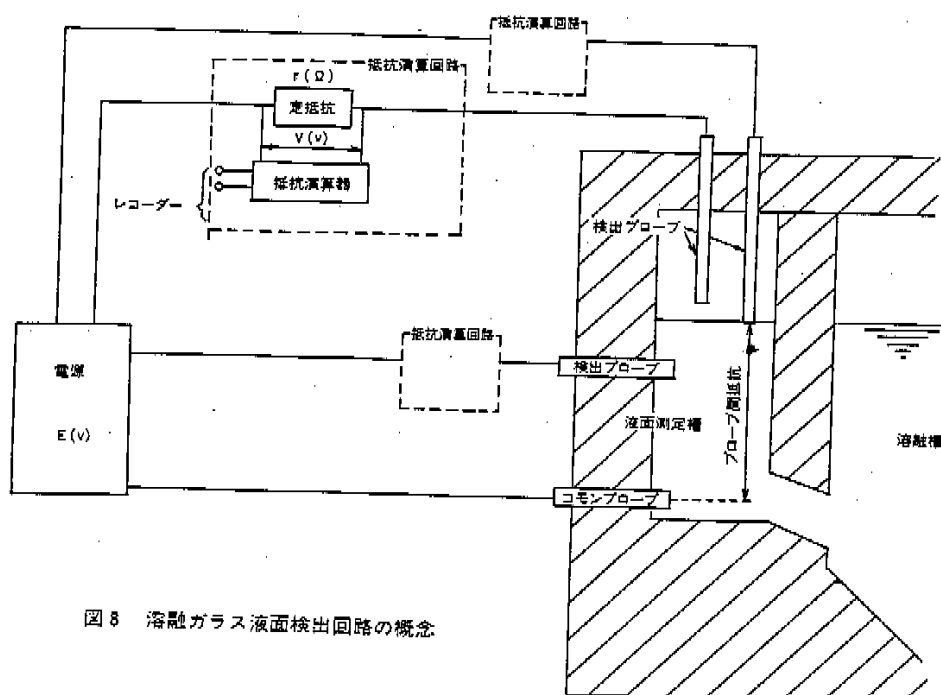


図8 溶融ガラス液面検出回路の概念

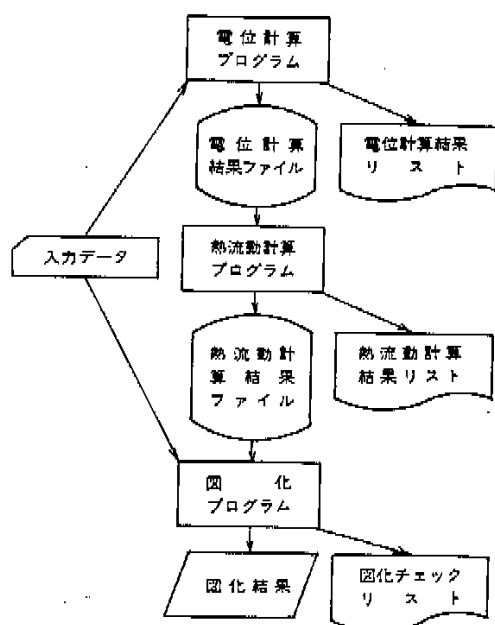


図9 3次元炉内流動解析コード計算フロー

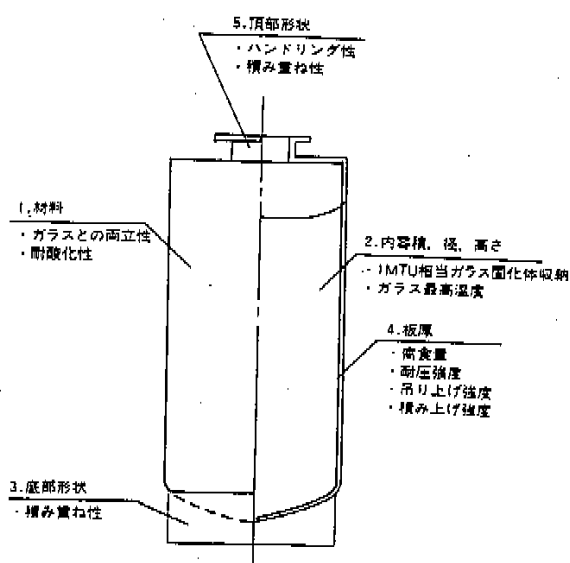


図10 キャニスタの設計要因

にするための技術を開発中である。60年度までに適用可能な技術をサーベイした。61年度には、コールド工学試験を実施し、解体装置、解体手順の検討を行っており、62年度には解体モックアップ試験を計画している。

1.5 キャニスタハンドリング工程及び保管工程 (1) キャニスタの設計

キャニスタの設計要因として、図10に示すように、材質、内容積・径・高さ、頂底部形状、板厚に大別

して評価し、仕様を次のように決定した。

- 1) 形状 円筒容器
- 2) 寸法 外径 430mm
全高 1040mm
胴板厚 6mm
- 3) 材質 SUS304L
頂部は SUSF304L
- 4) 頂底部形状 頂部：外部把握式
底部：皿形
脚部：スカート

図11はキャニスタの基本形状である。

この中にガラス固化体約110l(約300kg)が注入される。

(2) キャニスタ材料の腐食試験

溶融ガラスや固化ガラスとの両立性並びに長期腐食データを測定あるいは評価した。このデータに基づき、ガラス注入から保管・貯蔵に至るまでのキャ

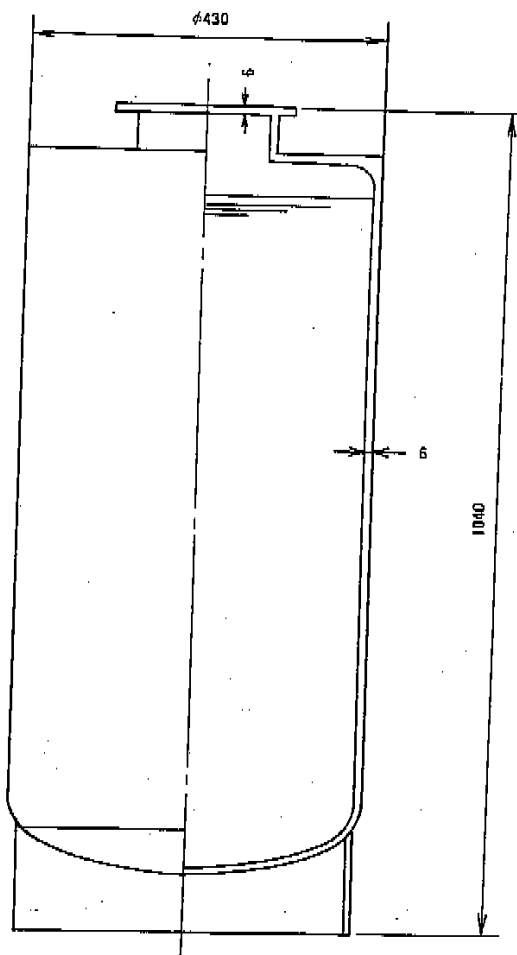


図11 固化パッケージ基本形状

ニスタ材(SUS304L)の健全性を確認し、適切な腐食量を設定した。

(3) ガラス注入時に固化パッケージ特性の把握

溶融ガラス注入時の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、これらの結果をハンドリング治具や設備の設計、ハンドリングスケジュールの設定の基礎データとして用いている。また、別途開発した温度分布解析コードの解析結果との比較により、コードの有効性を裏証した。

(4) キャニスタ蓋溶接技術

キャニスタキャップ溶接機を用い、溶接条件管理を行うことで溶接健全性を保証する技術の開発を行っている。最適溶接条件の確立、各パラメータの許容変動力の把握、溶接部検査データ取得、溶接条件の記録などを進めて来ており、良好な結果が得られている。図12にキャニスタキャップ溶接装置の概略図を示す。

(5) 固化パッケージ表面除染技術

CPFにおけるホットのガラス固化試験で使用した小型キャニスタから試験試料を切り出し、高圧水スプレー法及びワイヤブラシ法の組み合わせにより、キャニスタ表面の除染試験を行っている。その結果、 $10^{-4}\text{Ci}(\beta\gamma)/\text{cm}^2$ 以下まで除染可能であるとの見通しが得られた。図13に結果の1例を示す。

(6) 固化パッケージ表面汚染検査技術

遠隔操作により表面除染検査が行えることを試験設備を設計、製作、運転することにより確認した。また高温用スミヤろ材として「フランネル」を使用できることが確認できた。

(7) 固化パッケージ落下試験

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た。

試験は施設での取扱い高さ、考えられる姿勢等を考慮して、表4に示す9ケースについて行い、落下後、外観検査、寸法測定、気密試験及び遠隔操作性試験を行い、健全性、取扱い上問題のないことを確認した。さらに、別途実施した衝撃解析コードを用いた解析結果と試験結果とを比較し、コードの有効性を確認した。

(8) 冷却システムの開発

固化パッケージの保管、貯蔵は、多数ビットに多段階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

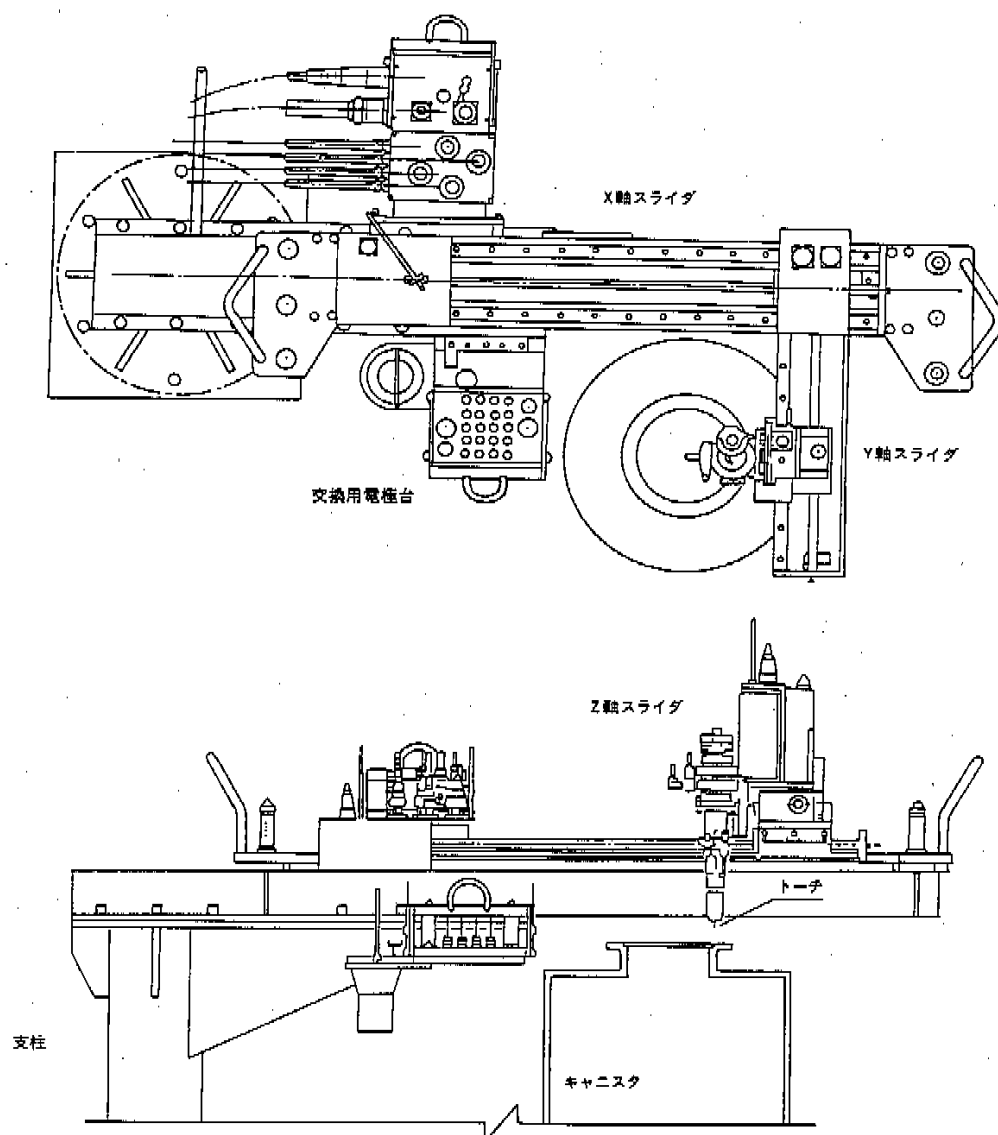


図12 キャニスタキャップ溶接装置

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1/5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。図14に試験装置を示す。

1ビット内の伝熱特性は、高さ9 m、内径約0.55 mの実規模の冷却ビット内に図15に示す一様発熱模擬固化パッケージ等を多段積みし、試験データを取得することともに、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。

(9) 貯蔵ビットの耐震性

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。図16に試験装置を示す。

(10) 固化パッケージの非破壊検査技術

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

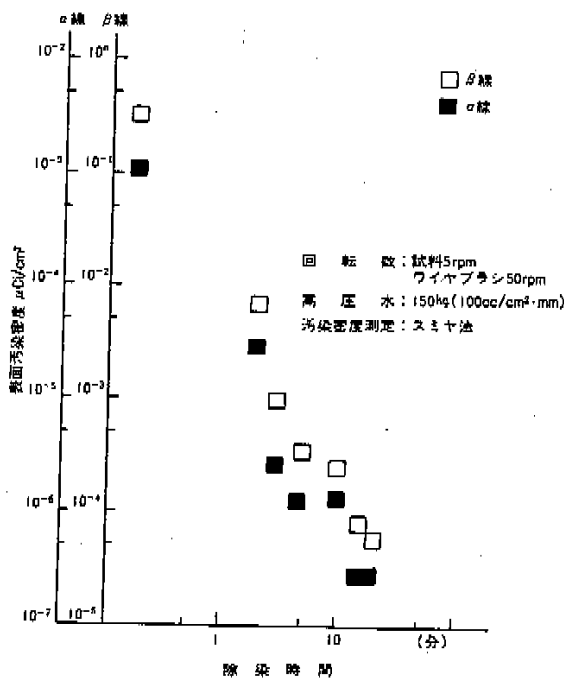


図13 高圧水(連続)及びワイヤブラシによる除染後の表面汚染密度測定結果

1.6 オフガス処理工程

オフガス処理工程では、高レベル放射性廃液のガラス溶融時に発生する溶融炉オフガスを洗浄、ろ過等の処理を行う。オフガス処理工程で特に留意しているところは、サブミクロン粒子、ミスト及び揮発性ルテニウムを除去するために高性能の機器を導入したことである。

オフガス処理工程については、主に次の4つの技術について試験検討を行ってきた。

(1) ガラス溶融炉からオフガス処理工程への核種移行率の評価

モックアップ試験により、ガラス溶融炉に供給し

た量に対するオフガス処理系への核種の移行率を測定、評価した。

(2) ガラス溶融炉出口オフガス配管の粉塵による閉塞の防止技術の開発

ガラス溶融炉から飛出す粉塵量を少なくする方法としてガラスファイバークートリッジ原料を開発したほか、エアフィルムクーラを開発した(図17)。これは、配管内壁にエアを吹き出させ、粉塵の沈着を防止するとともに吹き飛ばし、さらにオフガス温度を下げることにより、粉塵の蓄積と焼結を防ぐことをねらったものである。

(3) 粉塵除去技術の開発

大粒子、サブミクロン粒子及びミストの除去技術を開発するため、スクラップ(液膜式スクラップ、サブマージドスクラップ(SBS)及びベンチュリスクラップ)、吸収塔、デミスタ(High Efficiency Mist Eliminator; HEME)等を導入し、各機器の除塵性能を測定、評価した。図18、図19にSBS、HEMEの概要を示す。

(4) ルテニウム除去技術の開発

ガラス溶融炉オフガス中のルテニウム量を、揮発性及び粉塵性に分けて測定、評価した。また、オフガス処理系におけるルテニウムの挙動を、揮発性ルテニウムと粉塵性ルテニウムに分けて評価した。吸収塔については、Rエトレーサを用いて揮発性ルテニウムの除去性能を確認した。揮発性ルテニウムに対しては、さらにシリカゲル吸着剤を用いた除去試験を数多く実施し、使用条件や性能を明らかにした。

1.7 ガラス固化体組成の開発とその特性

(1) ホウケイ酸ガラス固化体の選定

ガラス固化体に期待する機能は「放射性核種の閉じ込め」である。

この閉じ込めを果たすために、各国で多くの種類の固化体が研究されてきている。大きく分けると6種類となる。

表4 落下試験モード

落下高さ及び条件 落下姿勢	9m 自由落下 落下衝撃台上	17m 自由落下 落下衝撃台上	17m 自由落下 ビット座台上	17m 自由落下ビット 座台上キャ ニスター上	13m 自由落下 落下衝撃台上
正立	○	○	○	○	●
側立	○	—	—	—	—
斜正立	●	—	—	—	—
斜側立	●	—	—	—	—
水平	●	—	—	—	—

○: 加速度・重量測定実施。

●: 加速度・重量測定なし。

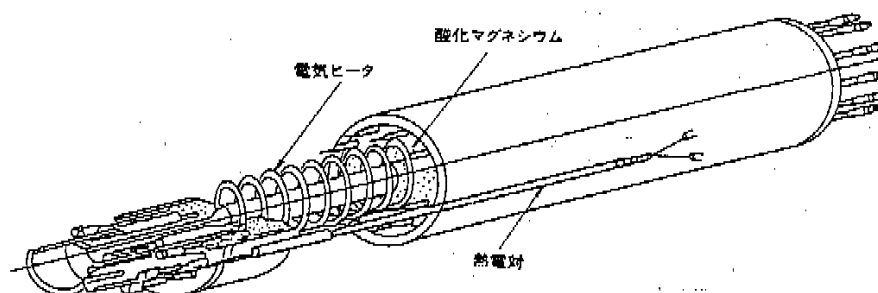
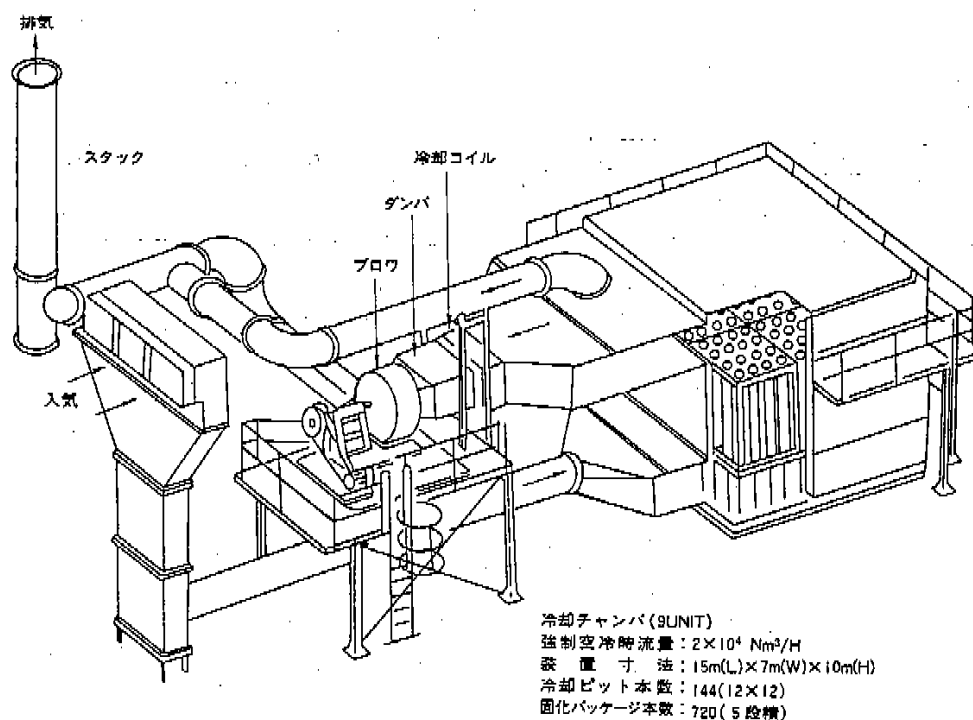


図14 風量分配特性試験装置

第1は、仮焼体（酸化物の粉末）である。第2はコンクリート固化体、第3はガラス固化体であり、リン酸ガラス、ホウケイ酸ガラス等多くの種類のガラスが研究されている。第4は結晶化ガラスである。第5はセラミックスであり、この中にはスーパーカルサイン、合成岩石（SYNROC と呼ばれ、主にチタン系の鉱物3種類から構成されている）、その他が含まれる。第6はマルチバリアーを有するもので、例えばコーティングあるいはカプセル化したものであ

る。鉛の合金の中にホウケイ酸ガラスのビーズを埋め込む Vitromet は代表例である。このように数多くの固化体が研究されてきたが、現在はホウケイ酸ガラス固化体（塊状）が世界の主流である。

アメリカには、工業的規模で仮焼体を製造している工場（New Waste Calcination Facility: NWCF）がある。仮焼体は現在貯蔵されているが、これを将来セラミックスとかガラスに変換するということが研究開発が進められている。

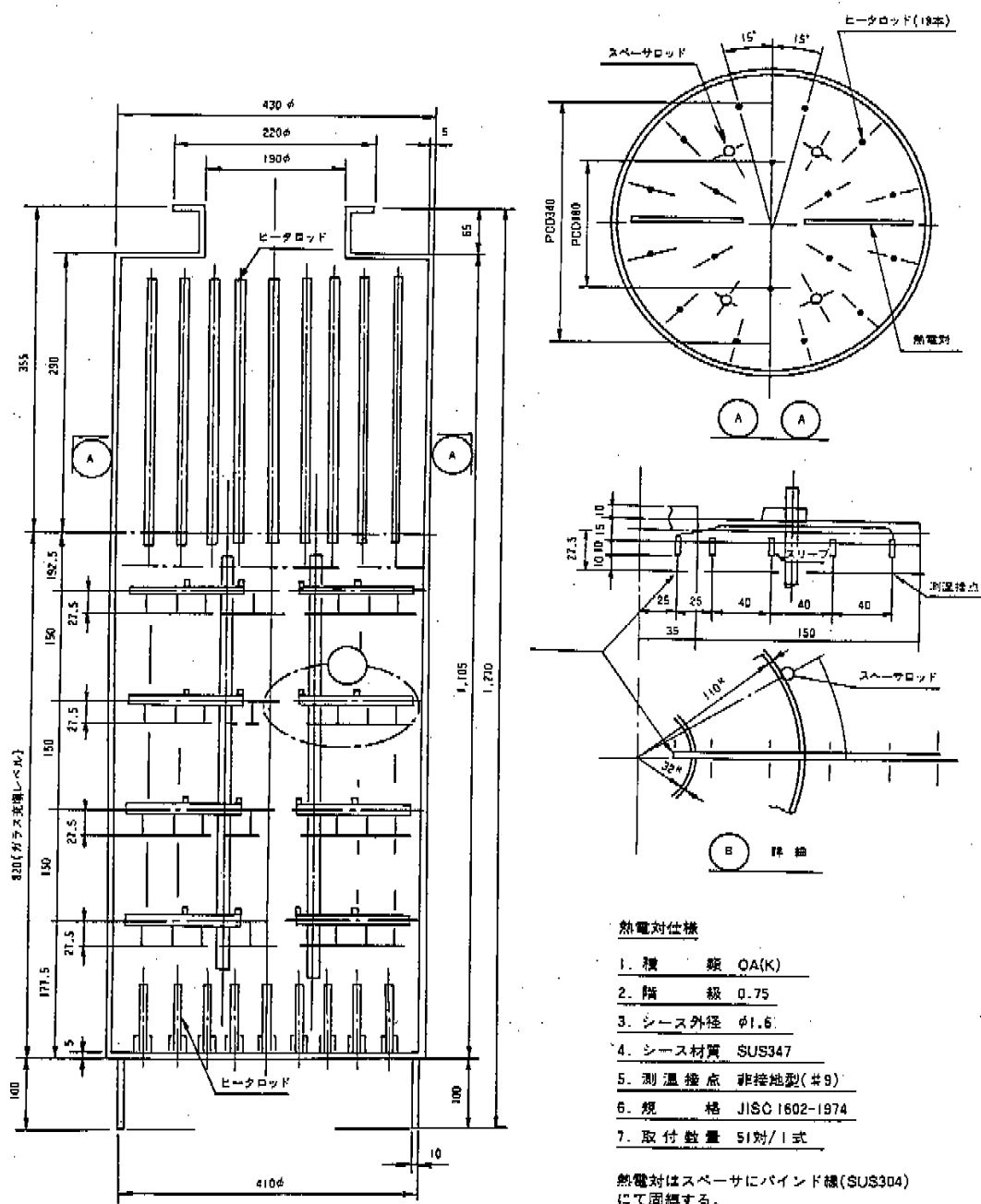


図15 一様発熱模擬固化パッケージ

SYNROCについては、日本では、原子力研究所でオーストラリアと協力して基礎的な研究が続けられている。

Vitrometはベルギーが開発した技術で、昭和61年にはほぼ実規模で実際のものがつくられ技術の実証が行われている。ただし、工業規模で生産されてい

るのは、ホウケイ酸ガラスと仮焼体ということである。

固化体を選定する場合の主要項目は以下の点があげられる。

- 固化プロセスの実証性
- 固化体の浸出率

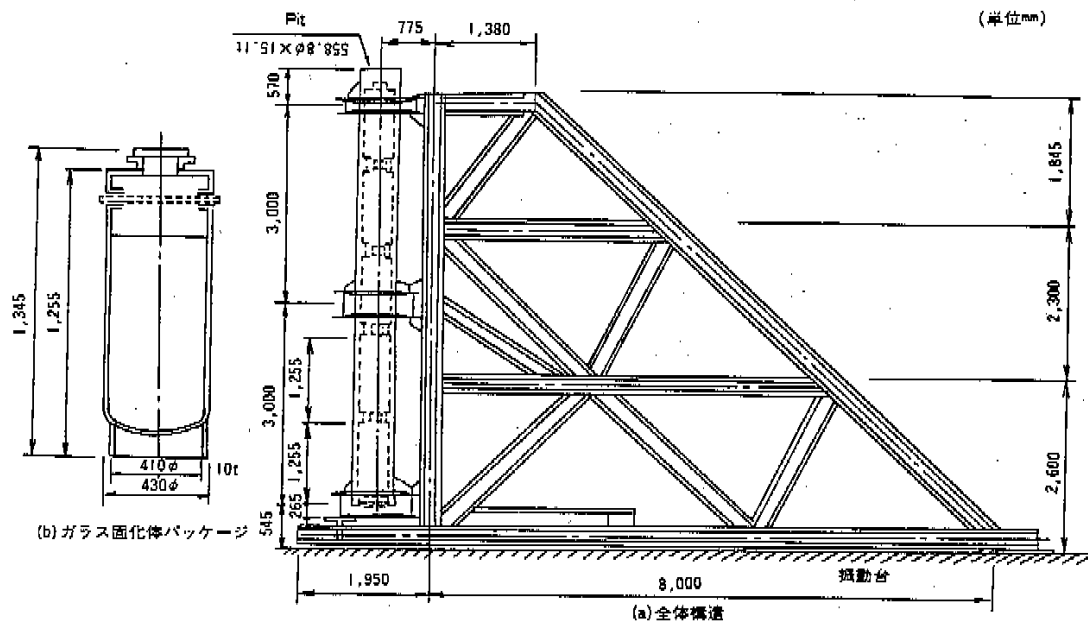


図16 耐震評価試験装置

- 固化体の廃棄物含有率
- 耐放射線性
- 熱的安定性

● 物理的機械的性質

最終的にはこの廃棄物は地層等に処分することになるため、人間に対する影響という面では、水に対する耐久性が最も重要である。(ただし、水との接触

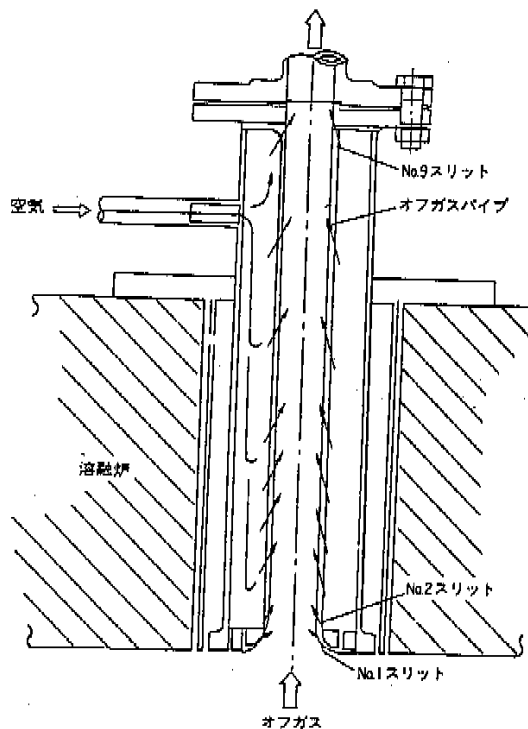


図17 エアーフイルムクーラ構造

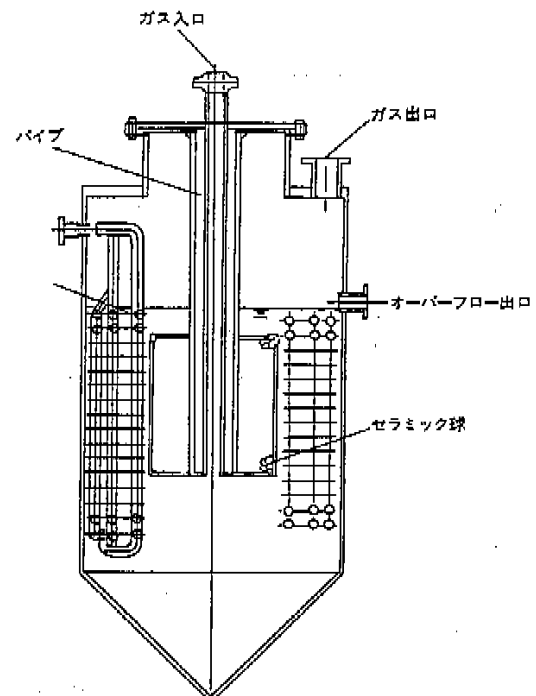


図18 サブマージドベッドスクラッパ(SBS)の構造

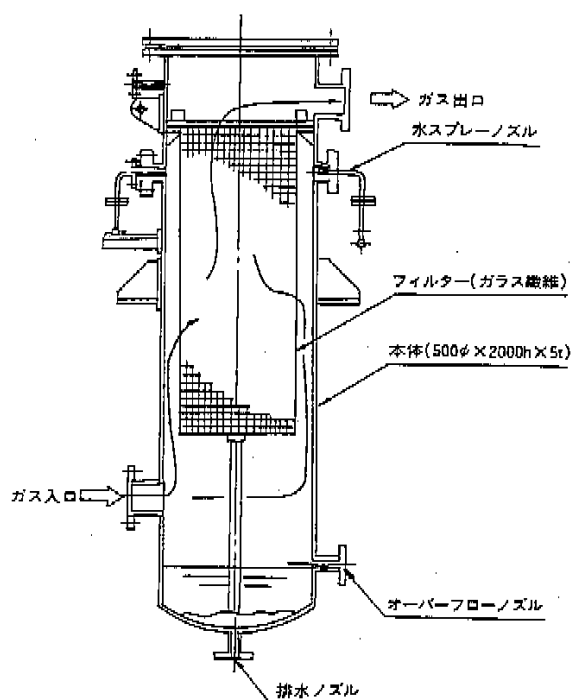


図19 高性能ミストエリミネーター(HEME)の構造

は「安全性論証」のための仮説であり、水との接触が必ず生じるということではない。）

固化体の形態としてガラスが採用されている理由として次の点が挙げられる。

- 耐浸出性、耐放射線性に優れている。
- 適度な熱的安定性、機械的強度、物理的性質を有する。
- ほとんどの廃棄物成分を均一に固溶することができるとともに、廃液組成変動に対する特性の変動が小さい。
- 固化体製造プロセスの開発度が高く、実用の域に達している。
- 品質管理が容易で品質保証性に優れている、ガラスの中でもホウケイ酸ガラスが選定されている理由は次のとおりである。
- 熔融温度が低い（現在の開発プロセス上で問題がない）。
- 耐浸出性等に優れるとともに、他の物性も固化体製造の上で問題がない。また、物性データの取得率が高い。
- 廃棄物含有、特にガラス構造になじみ難いと言われているモリブデンの固溶に対する許容性が比較的高い。

(2) ガラス固化体の組成

表5 ガラス固化体組成の代表例(P0893ガラス)

成 分	組 成 (wt%)
SiO ₂	46.7
B ₂ O ₃	14.3
Al ₂ O ₃	5.0
Li ₂ O	3.0
CaO	3.0
ZnO	3.0
Na ₂ O	9.6
P ₂ O ₅	0.3
Fe ₂ O ₃	1.9
NiO	0.5
Cr ₂ O ₃	0.5
F, P, 酸化物	9.8
アクチニド酸化物	2.4
計	100.0

ガラス固化体の組成の例を表5に示す。

組成を開発するに当たっては次の点が特に考慮される。

- 廃棄物成分をできるだけ多量にかつ均一に固溶できること。
- ガラス熔融温度が低いこと（1100～1200℃で熔融可能なこと）。
- 化学的耐久性に優れていること。
浸出率が10⁻⁶g/cm²・dayのオーダーで、さらにできるだけ小さいこと。
- 廃液の変動に対し、許容幅が広いこと。
- 結晶化傾向が低いこと。

このような点を考慮しながら組成を決定する場合添加物の種類の選択とそれらの含有量を適切に決めることが重要である。

動燃ではボロン、シリコンのほかに、リチウム、カルシウム、亜鉛、アルミニウムの酸化物を3～5%程度加えたものを選定している。以下は、各酸化物の役割と適正範囲についてまとめたものである。

SiO₂ : 化学的耐久性の向上、揮発率の低下、結晶化傾向の抑制に有効であるが、多すぎると高温粘性が増加し溶融性が悪化する。

B₂O₃ : 化学的耐久性、揮発特性を劣化させるが、廃棄物成分の溶融性、特にMoO₃の固溶限を高める。また結晶化傾向の抑制効果もある。

Na₂O : 化学的耐久性、揮発特性を劣化させるが、高温粘性を低くし、ガラス全体の溶融性を確保するために6～12wt%必要と考えられる。

Al₂O₃ : 化学的耐久性、揮発特性を向上させるが、多すぎるとガラスの溶融性、流動性を悪化させるとともに結晶化傾向も助長する。

Li₂O : 化学的耐久性を悪化させるが、高温粘性を

表6 高レベル廃棄物管理工程と主な関連ガラス物性

	工 程	関 連 物 性
ガラス固化体の製造	ガラス熔融	電気抵抗、揮発性、高温粘性、液相温度、酸化物溶解度
	容器への注入	密度、高温粘性
	冷 却	熱伝導率、比熱、発熱量、熱膨張係数、結晶化速度
	保 管	熱伝導率、発熱量、結晶化速度、転移点
輸 送		熱伝導率、発熱量、結晶化速度、転移点
貯 蔵		熱伝導率、発熱量、結晶化速度、転移点
処 分		浸出特性 (温度、圧力、pH/Eh、地下水組成、放射線照射量、地下水流速、共存物質等)

低下させガラスの溶融性を増す。添加量当りの効果が大きいので高温粘性の調整に有効である。

CaO : Li_2O 、 Na_2O 、 K_2O とほぼ同様の添加効果があるが、多量に含有されると溶融性を悪化させ、結晶化傾向も助長する。処分環境下では、ガラス表面に皮膜を作り、浸出を抑制することが期待される。

ZnO : 化学的耐久性をやや改善するとともに、 MoO_3 の固溶限を高める効果がある。

(3) ガラス固化体の特性

表6は、高レベルガラス固化体の管理工程に関連する物性の主なものをまとめたものである。

このような関係物性が測定評価されて、ガラス組成が決定され、処理や貯蔵の条件が決められている。

1) ガラス組成変動と物性変化

動燃では、ガラス組成の開発において、さまざまな組成のガラスの物性を測定してきた。ここでは廃棄物成分の変動に対する物性変化について述べる。

① 廃棄物含有率の変動に伴う物性変化

ガラス固化体中含有される廃棄物成分が増加すると、密度及び浸出率の増加傾向が見られる。しかし、ガラス固化体中の廃棄物の含有率は30wt %以下(目標: 25wt %)に管理するので、その範囲で物性変化は小さく、プロセスの運転上問題とならない。

② Na_2O 含有率の変動に伴う物性変化

ガラス固化体中の Na_2O 成分の増加は浸出率の増加、ガラス粘性の低下等をもたらす。しかし、製造される固化体の Na_2O 含背率を8~12wt % (10wt %目標)に管理すれば、その変動範囲内で

大きな物性変化はないことがわかる。

③ 核分裂生成物 (F.P.) 含有率に伴う物性変化
ガラス固化体中の核分裂生成物 (F.P.) の含有率が増加すると、浸出率は減少し、密度は増加する傾向がみられる。ただしガラス固化体中への MoO_3 の溶解度を考慮し、F.P.含有率を12wt %以下(標準10wt %)とするので固化体物性上の問題は無いと考えられる。

④ 腐食生成物含有率等の変動に伴う物性変化
高放射性廃液中の腐食生成物及びプロセス劣化物に起因する主要成分は、Fe、Cr、Ni、Pと考えられる。各成分の増加に対してNiOで若干浸出率の増加傾向がある程度で大きな変化は見られない。したがって、腐食生成物等の変動に対しては十分な許容性があるものと考えられる。

2) 化学的耐久性

ガラス中の核種が水に溶け出すことはガラス固化体の「閉じ込め機能」が損なわれることを意味する。そのためガラスと水との接触は地層処分の安全性論証上の仮定条件になっている。

「閉じ込め機能」に影響を及ぼす可能性のある因子としては以下の項目が挙げられる。

① ガラス固化体自身に関係するもの

- ガラス固化体の組成
- ガラス固化体の温度
- ガラス固化体の耐放射線性

② 浸出プロセスに関係するもの

- 水の流速、浸出時間、液組成、pH、Eh、イオン濃度、その他
- 各元素の水への溶解度
- 表面状態
- γ 線などによる水の放射線分解生成物による

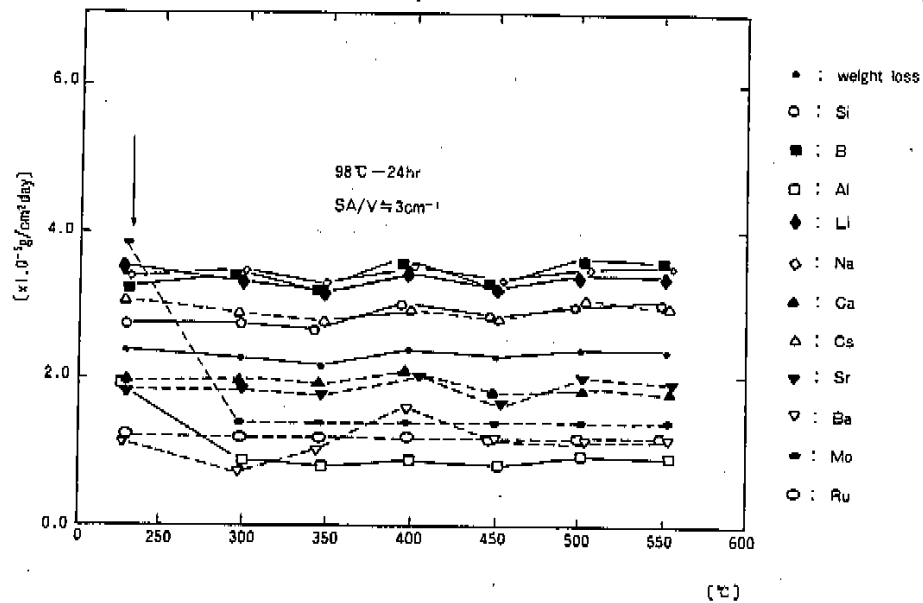


図20 1年間の熱処理後の浸出率の変化(P0798ガラス)

る影響

●共存物質（金属、岩石、バッファ材など）

これらの影響については、世界的にもかなりよく調べられてきているが、動燃においても以下のような点を評価してきている。

① ガラス中への元素の溶解度

ガラス固化体の組成の決定には各元素の酸化物のガラス固化体への溶解度が重要な因子となる。主要元素のガラス中への溶解度を調べた結果、白金族元素の溶解度が低いことが認められた。

② 熱的安定性

ガラス固化体は崩壊熱で温度が高くなる。貯蔵中の性質が劣化しないことが望ましいので、温度による影響、特に浸出率の変化を調べた。

ガラス転移点（動燃仕様のガラス固化体では500°C前後）を超えない温度で管理すれば失透を生ずることなく安定であることがわかっている。図20は300～550°Cの温度で1年間加熱処理をした試料の浸出率である。この例ではほとんど変化がみられない。

③ 耐放射線性

放射線の影響では α によるものが最も大きいとされている。現在まで得られている結果では、 $10^5 \sim 10^6$ 年に相当する α 線の照射により密度の0.2%以下の減少と浸出率のわずかな減少傾向が認められている。

④ ガラス固化体の浸出試験

ガラス固化体の長期にわたる浸出挙動及び処分

環境を模擬した条件下での浸出挙動を評価するために以下のような項目の試験を行っている。

- 長期ソックスレー浸出試験（70°C、100°C、最高1500日）
- 長期静的浸出試験（MCC-1法準拠、40°C、98°C、最高728日）
- 溶解度評価試験（MCC-3法準拠 98°C、最高728日）
- 高温高压試験（温度、圧力の影響評価、最高300°C、250kg/cm²）
- 岩石・緩衝材共存浸出試験（岩石共存の影響評価、98°C、28日間）
- 金属材料共存試験（金属共存の影響評価、98°C28日間）

1.8 CPFにおけるホットガラス固化試験

(1) 施設及び工程の概要

高レベル放射性物質研究施設（CPF）では、実験室規模のガラス固化ホット試験をB系列で行っている。CPFのB系列は、運転する5つのセル（CB-1～CB-5セル）とX線マイクロアナライザー測定用の付属セル（EPMA 付属セル1つから成り、再処理工場等からの高レベル放射性廃液（HAW）を用いたガラス固化試験、作製した固化体の評価試験及び廃棄物の処分に関する試験を実施している。

CPF B系列の試験セル概要を図21に示す。ガラス固化試験プロセスを以下に述べる。

1) 受入れ・調整・濃縮

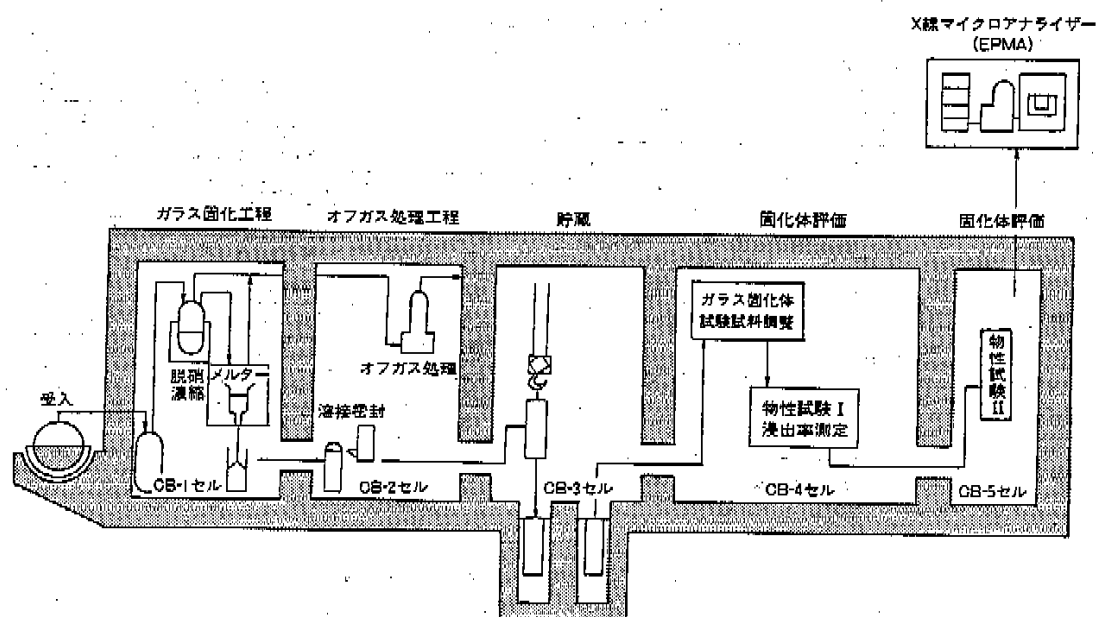


図21 GPFガラス固化試験系列(B系列)試験セル

ガラス固化試験用の高レベル放射性廃液は、サンドリオン型輸送容器を用いて再処理工場等から受入れ、必要に応じて添加物を入れ組成調整を行う。その後、所定濃度まで濃縮を行う。

2) ガラス熔融

混合槽で高レベル放射性廃液とガラス原料を混合後ガラス溶融炉へ供給し溶融を行う。CPFに設置されているガラス溶融炉は、セラミックメルトとポットメルトの2型式がある。セラミックメルトは、直接通電ジュール加熱方式で、溶融したガラスをステンレス製キャニスタ(φ76mm×600mmH)に流下する。ポットメルトはインコネル製のポットを電気ヒーターで間接加熱し、ポット内で溶融後、同一ポットで固化する構造になっている。

3) オフガス処理

ガラス固化試験で発生するオフガスは、HEPAフィルタ、洗浄塔等の組合わせで処理している。

4) 蓋溶接及び保管

ガラスを流下した後、キャニスタを徐冷し、キャニスタの蓋の溶接を行う。蓋溶接後は、固化体評価試験までCB-3セルの固化体貯蔵ピットに貯蔵する。

ガラス固化体評価試験の手順は以下の通りである。

① 非破壊試験

作製したガラス固化体中の核種分布を調べるために、γスキャンニング測定を行う。次に、ガラス固化体の発熱量を測定する。

② 破壊試験

ガラス固化体を切断及び穿孔し、所定の大きさに調整した。調整試料を用いて、密度測定、示差熱分析、光学顕微鏡・X線マイクロアナライザー(EPMA)及びX線回折による表面分析、浸出率の測定を行っている。

また、処分基礎試験としてガラス固化体と金属、緩衝材等との共存下での処分環境模擬浸出試験を開始した。

(2) 試験経過

実廃液を用いたガラス固化試験は、昭和57年12月に開始した。当初は、再処理工場小型試験設備(OTL)及びCPFの高度炉燃料再処理試験で調整された高レベル放射性廃液を、一定量模擬廃液に添加して試験を行った。その後、廃液の放射エネルギーを増加してガラス固化試験設備の基本性能把握、オフガス挙動の確認等基本的試験を実施した。ついで、再処理工場の高レベル放射性廃液貯蔵場から高レベル放射性廃液を輸送し、ガラス固化技術開発施設と同等のガラス固化体を作製した。これらの試験を通じて、廃液の性状確認、装置特性の把握、オフガス中の粉塵性状の確認等を行った。

作製した固化体については、各種物性評価試験を

表7 作製ガラス固化体リスト

run No.	固化体放射能 [ci]	固化体重量 [kg]	実廃液添加比*1 (%)	廃液発生元	使用メルター
1	3	2.7	0.02	再処理工場 OTL*2	セラミック
2	100	2.6	0.5	再処理工場 OTL	セラミック
3	200	2.5	2	再処理工場 OTL	セラミック
4	300	2.3	4	再処理工場 OTL	セラミック
5	300	3.7	3	再処理工場 OTL	セラミック
6	3,700	3.9	50	再処理工場 OTL	セラミック
7	300	0.4	100	再処理工場 OTL	ポット
8	300	3.6	3	CPF A系列	セラミック
9	500	0.4	100	CPF A系列	ポット
10	4,500	3.1	100	再処理主工場	セラミック
11	4,700	3.2	100	再処理主工場	セラミック

*1 実廃液添加比 = $\frac{\text{実廃液中のFP,ACTINIDE成分}}{\text{実廃液+模擬廃液中のFP,ACTINIDE成分}}$

*2 OTL: Operation Testing Laboratory

実施し、貯蔵・処分関連データの蓄積を図っている。

これまでに作製したガラス固化体の概略仕様を表7に示す。

(3) ガラス固化試験

1) 廃液性状

再処理主工場の高レベル放射性廃液について放射能分析、元素分析を行い、現在再処理工場に貯蔵されている高レベル放射性廃液の組成を把握し、計算値との比較を行い、ほぼ同等の組成であることがわかった。

2) 固化体作製

ジュール加熱セラミックメルターを用いて、これまで9回の試験を行い、良好な運転結果が得られ、コールド試験の裏付けを行うとともに、溶融ガラスのキャニスタ注入方法の確認など有効なデータが得られた。

3) オフガス挙動

ガラス固化試験におけるオフガスの挙動について、オフガスのサンプリング等により調べ、粉塵の粒径分布及び核種等についてデータが得られた。また、HEやAフィルターと洗浄塔の組み合わせによるオフガス処理で放射性核種に十分に除去されている事を確認した。

(4) 固化体物性評価

作製したガラス固化体について固化体の評価試験を実施し、以下のような結果を得た。

1) γ放射能分布

ガラス固化体の軸方向の放射能分布をGe半導体検出器を用いて測定した。検出された核種は、Cs-134、137、Eu-154、Rh106の4核種で、各核種ともほぼ均一であるが、特にArガスの吹込みにより均一性が高まることが確認された。

2) 発熱量測定

熱量計法により固化体の発熱量測定を実施した。測定の結果は、ORIGENコードを用いて計算した値とほぼ同一であった。

3) 密度測定

アルキメデス法により密度測定を行った。密度は廃液組成により多少の違いが見られ、また廃棄物含有量に応じて高くなる傾向にあるが、概略2.7-2.8g/cm³であった。

4) 特性温度

示差熱分析により転移点、屈伏点の測定を行った。

転移点は500°C付近、屈伏点は約520°Cで、コールド試験で作製したガラス固化体とほぼ同様の値であった。

5) 表面観察

光学顕微鏡及びEPMA観察により、ガラス固化体の表面分析を行った。全体として均一な固化体であり、部分的に微小な金属光沢が認められたが、それらはPd、Rh等の白金族元素であった。また、いずれの固化体でも相分離は見られなかった。

6) 浸出試験

MCC-1法に準じた方法で静的浸出試験を実施した。条件としては、SA/V=0.1、90°C、28日間、重量減少は8-9×10⁻⁴g/cm²で、コールド試料による同一条件で浸出試験結果とほぼ同じであった。

7) 除染試験

ガラス固化体キャニスタの上部から試験片を切出し、ワイヤブラシと高圧水による除染効果を試験した。その結果、ワイヤブラシと高圧水の紙

表8 外国との協力関係

	協 定 先	協 定 分 野	開始時期	協 力 関 係
1	(1) KfK (西ドイツ)	高レベル放射性廃棄物 管理及び再処理の 分野における協力協 定	1981年 (S.56年) 2月	●高レベル放射性廃棄物管理の研究開発分野における情報交換及び協定 ○高レベル液体廃棄物の固化処理 ○高レベル固化廃棄物の特性評価 ○高レベル廃棄物管理システムにおける遠隔操作 ●専門家交換制度 1981年、83年、85年、87年、PNC→KfK (各1名) 1982年、84年、86年、KfK→PNC ●高レベル廃棄物管理会議(1回/年)の開催 1981年、83年、85年 於 KfK 1982年、84年、86年、於 PNC
	(2) DWK (西ドイツ)		1985年 3月	
2	DOE (米 国)	廃棄物管理分野にお ける協力協定	1980年 (S.55年) 11月	●高レベル廃棄物(使用済燃料を含む)および超ウラン廃棄物管理の研究開発分 野における情報交換等に関する協定 ○廃棄物区分技術 ○廃棄物の貯蔵、処分 ○廃棄物形態の開発と特性評価 ○施設の運転、除染及び解体 ○プロセスの開発試験 ○環境及び安全 ○廃棄物の前処理、梱包及び輸送 ○PA問題 ●ワーキンググループの全議及び専門家会議の開催 1981年、82年、84年、85年、86年、87年 ●専門家の交換 ○PNL駐在(2名)1984~1986年 ○サバンナリバー研究所駐在 1986年~
3	DOE (米 国)	遠隔技術協力 日米高速炉協定 に基づく高速炉 燃料サイクルワ ーキンググルー プの協力テーマ	1980年 (S.55年) 11月	●協力項目 ○両国型サーボマニピュレータの開発に関する情報交換 ○高品位テレビシステム共同評価研究 ○テレビシステムの耐放射線研究に関する情報交換 ○信号伝送技術の情報交換 ○マン・マシン・インターフェイスの共同研究(専門家派遣) ○マニピュレータシステムの比較評価研究(専門家派遣) ●遠隔技術専門家会議
4	中 国 インドネシア	科学技術庁科学者交 流制度	1985年 10月	●ガラス固化体の物性評価、処分研究 ●ガラス固化プロセス開発

合わせがキャニスタ表面の除染を有効であることが確認された。

(5) 今後の計画

今後のガラス固化試験としては、標準条件からやや外れた条件で試験し、変動幅を確認するとともに、これまでに作製した固化体の健全性評価について、さらにデータを蓄積していく。

また、処分関連のホット試験として、処分環境を模擬した条件での浸出試験、緩衝材中の核種の移行について実固化体を用いて試験を進めていく。

さらに有用金属の回収等の新技術に関連する試験及び評価を実施する予定である。

1.9 国際協力

高レベル廃棄物処理技術の開発を進めるために、積極的に外国との国際協力を行ってきている。表8はガラス固化技術に関連して実施している国際協力の内容を示したものである。

西ドイツカールスルーエ原子力センター(KfK)とは高レベル放射性廃棄物管理等に関する協力協定に基づき、56年2月以来、これまでに6回の専門家

会議を実施し、活発な情報交換を行った。技術者の交流についても、これまでに4名の技術者を派遣し、西独側からも3名を受入れた。また、ベルギーのモルに建設されたガラス固化施設であるPAMELAプラントへも技術者の派遣を行った。米国エネルギー省(DOE)とは、55年10月に廃棄物管理ワーキンググループの設置が合意された。ワーキンググループの全議は56年10月の第1回以来、これまでに4回開催され、廃棄物管理全体にわたる情報交換を行った。また、ガラス固化技術に関する専門家会議も開催された。さらに、59年以来、米国のホットのセラミックメルター(RLFCM)試験施設の運転及び大型ガラス固化施設(DWPF)の建設、並びにコールド試験などにこれまでに3人の動燃技術者を派遣している。またオーストラリアー日本間での研究開発協力に基づき合成岩石固化体(SYNROC)に関する研究開発及び情報交換にも参加している。

表9は、ガラス固化プラントの設計を進めるに当たって受けた設計レビューの内容である。

以上の協力を通じ、共通技術の開発が効率的に進められており、今後とも一層の協力が期待される。