



高レベル放射性廃棄物の
地層処分研究開発特集

高レベル放射性廃棄物の処理貯蔵 技術の開発

東海事業所 環境技術開発部

資料番号: 85-2

Development of Solidification and Storage Technology
for High-Level Liquid Waste

(Waste Technology Development Division, Tokai Works)

ガラス固化技術開発では、固化プロセスに関する機器開発と模擬ガラス固化体評価試験を実規模で行うとともに、実廃液による固化試験と固化体評価を実験室規模で行ってきた。ガラス溶融工程については、ガラス固化体品質管理、ガラス溶融炉オフガスへの粉塵の移行抑制およびガラス溶融炉の閉じ込め機能確保の観点から技術開発を行った。また、炉内検査装置および使用済となった溶融炉の解体技術についても開発を進めている。貯蔵技術開発としては、貯蔵ピットの安全性に係わる試験を行ってきた。ガラス組成については、固化ガラスの化学組成と物性との関係を把握するための固化体評価を実施し、最適な固化ガラス組成を開発した。

1. はじめに

動燃事業団では、国の方針にしたがって昭和50年以來高レベル放射性廃棄物の処理貯蔵技術の研究開発を行い、ガラス固化技術開発施設(Tokai Vitrification Facility: TVF)を1992年4月に完成し、現在コールド試運転の段階にある。また、青森県下北の商用再処理施設には、TVFの技術が採用されている。

ここでは、高レベル廃棄物処分技術に先立つ処理・貯蔵の技術開発について、その現状を紹介する。高レベル放射性廃液（以下高レベル廃液）のガラス固化技術は、使用済燃料の再処理工程から発生する高レベル廃液に含まれる核分裂生成物、アクチニド元素、腐食生成物等をホウケイ酸ガラスを媒体として高温で溶融し、安定な形態に固化する技術である。

この研究開発は、処理・貯蔵・処分に適した性質を有するガラスの開発を目的とする基礎試験、機器開発・運転技術開発、実規模装置での安全性データの取得等を主目的とする工学規模ならびに実規模の試験および東海再処理工場で発生した高レベル廃液を用いたガラス固化体の製造および物性測定を行うホット確認試験を組み合わせ実施してきている。

2. ガラス固化プロセス技術開発の概要

TVFでは、受け入れた高レベル廃液を前処理した後、ガラス原料とともにガラス溶融炉に供給し溶融する。ガラス固化プロセス全体の構成を図1に示す。

ガラス固化工程は、高レベル廃液を受け入れガラス固化体に転換し、保管するまでの工程であり、前処理工程、ガラス溶融工程、オフガス処理工程、ガラス固化体取扱い工程等からなる。

以下に、これまでの研究開発の概要を紹介する。

2.1 前処理工程関連技術

前処理工程では、高レベル廃液をTVFの受入槽に1週間に1回程度の頻度で受け入れる。受入毎に元素分析を行い、廃液濃縮度等の工程パラメータを決定し、この条件に沿って高レベル廃液の組成調整または濃縮を行う。

組成調整は、再処理工程の添加物として高レベル放射性廃液に含まれるNaが、ガラスの溶融性および固化ガラスの化学的耐久性に影響する成分であるため、その濃度を調整するために行う。また、濃縮により溶融炉に供給する総液量が低減できる。

溶融炉に供給する高レベル廃液は、プロセスの運転管理および固化体の品質管理の観点から供給量を

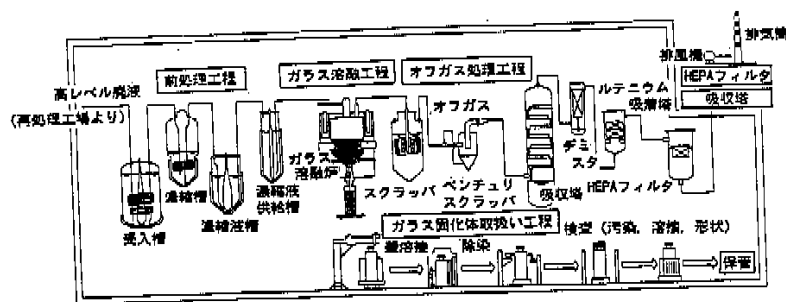


図1 ガラス固化プロセスの構成

管理する必要がある。移送方式は、耐放射線性、保守性および低流量での供給安定性の観点から再処理工場等での実績があるエアリフト方式である。

廃液は、繊維状のガラスを円柱形（ $\phi 70 \times L70$ ）に成型・焼結したファイバ原料に染み込ませた後にガラス溶融炉に供給する。ファイバ原料に染み込んだ廃液は、炉内で穏やかに乾燥・仮焼・溶融される。この方式は、ファイバ原料のフィルタ効果により、溶融時に発生する粉塵が少ない特徴¹⁾がある。

2.2 ガラス溶融工程関連技術

ガラス溶融炉は液体供給式直接通電型セラミックメルト炉である。ガラス溶融炉は耐火レンガで構築され、外側を金属で覆っている。溶融ガラスに接触する材料として、耐食性に優れた電鍍クロムれんがを使用し、電極材料には、ニッケル・クロム系耐熱合金である。

ガラスに電流を通じ、ガラス自体を発熱させることにより、 $1100 \sim 1200^\circ\text{C}$ 程度で溶融する。起動時には、炉上部に設置した間接加熱装置（SiCヒータ）を用い、炉内のガラス温度が直接通電可能温度に達するまで加熱する。溶融したガラスは、炉底部にある金属製の高周波加熱流下ノズルを経て炉下部に設置したガラス固化体容器（キャニスタ）に流下する。

(1) ガラス溶融炉の構造

図2にガラス溶融炉の構造を示す²⁾。ガラス溶融炉は、耐火物でガラスを保持する槽（溶融槽）を構成し、最外部をステンレス鋼ケーシングで覆った構造のものである。ガラス溶融炉の耐火レンガとしては、溶融ガラスと接触する部分には耐食性に優れた電鍍クロムれんがを、その外側にはムライト質レンガを用いている。さらに、断熱用としてキャストアル材料を、断熱およびレンガ構造の熱膨張吸収のためにケーシングの内側にセラミックファイバボードを設置している。

ガラス溶融炉の上部には、ガラス原料および高レベル廃液の原料供給ノズルならびに廃ガス配管等を設置している。溶融槽の対向する壁面には、直接通電加熱を行うための主電極を設置している。主電極はその表面の侵食条件を緩和するために内部を空気冷却している。ガラス溶融炉の底部には、溶融したガラスをガラス固化体容器に注入するための流下ノズルおよびこれを加熱、冷却するための設備のほか、ガラス固化体容器との結合装置を設けている。溶融槽の底部は流下ノズルに向けて $45 \sim 55^\circ$ の勾配を有している。この他、液位計を設置するための液位測定槽および溶融槽の底部を加熱するための補助電極を設けている。電極、流下ノズルをはじめとする接ガラス部の金属材料はニッケル・クロム系耐熱合金である。

溶融槽内の製造ガラス量が所定量に達したところで、流下ノズルを加熱し、ノズル内の固化ガラスを溶融することによって溶融ガラスの注入を開始する。注入の停止は流下ノズルの加熱を停止すること

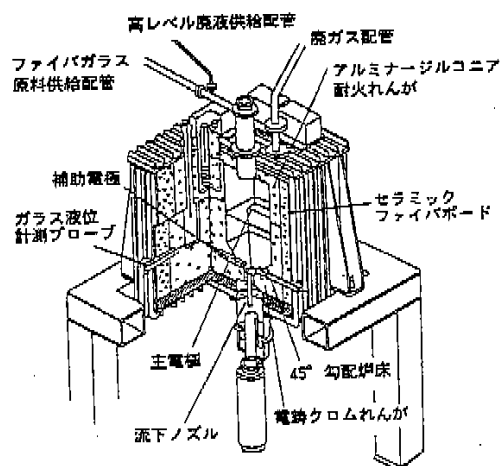


図2 ガラス溶融炉の構造

によって行う。

(2) ガラス溶融炉材料

ガラス溶融炉の接ガラス部材料として、耐火れんがに電鍍クロムれんがMONOFRAX K3[®]を、電極にニッケルクロム系耐熱合金 Inconel 690[®]を選定している。

モックアップ溶融炉の試験において、電極表面温度800℃～1010℃、電極表面電流密度 $3 \times 10^3 \sim 8 \times 10^3$ A/m²の条件で231日間の直接通電運転を行った結果、電極の侵食速度は表面電流密度が比較的高い電極端部で最大となり0.024 mm/dであった。また、耐火物材料表面温度800℃～1060℃の条件で379日間直接通電運転を行った結果、耐火物の侵食速度は0.02mm/dであった³⁾。

(3) ガラス溶融炉の計測装置

ガラス溶融炉には、その運転状態を監視するために、温度、液位、圧力および通電データの計測装置を設けている。溶融ガラスの液位測定については抵抗検知式溶融ガラス液位計により、測定プローブ間の溶融ガラスの電気抵抗の変化から検知する。

(4) ガラス溶融炉の熱流動解析

ガラス溶融炉の運転性および放射性物質の閉じ込め性を評価する観点から、数値解析によりガラス溶融炉内の流動、温度分布、通電状況等のガラス溶融炉運転状態の解析を進めている⁴⁾。

解析コードの機能は、溶融ガラスおよび耐火物構造を3次元で電位、温度および流動の定常・非定常計算を行うものである。計算では、溶融ガラスの粘性係数、密度、電気伝導率の温度依存性を考慮する。構成方程式は、電荷、質量、エネルギーおよび運動量の保存に対する各方程式からなり有限差分法により解く。また、解析時間短縮のために、解析領域を流動解析が必要な領域(溶融ガラス等：内部メッシュ)と流動計算を必要としない領域(炉構成材：外部メッシュ)とに分ける2メッシュ系を採用している。計算出力項目としては、電位、電流密度、発熱密度、圧力、温度、流動ベクトル等がある。

また、解析コードの検証のためのデータ取得および、より詳細な炉内情報の取得を目的に、模擬流体を使用した溶融炉物理モデルによる試験を実施している⁵⁾。物理モデルはTVFで使用する溶融炉の内部を1/3スケールで模擬したものであり、アクリル樹脂製で、溶融ガラスの模擬流体としてはグリセリン溶液を用いている。物理モデルによる溶融模擬試験により溶融炉内の熱流動状況および流速に関する情報が取得された。

(5) 溶融炉内検査技術

ガラス固化プロセスの主要機器である溶融炉は高

温(1100～1200℃程度)で運転を行うため、溶融ガラスに接する耐火物および電極が徐々に侵食される。溶融炉は接ガラス材料として十分な腐食代を有するが、一方、侵食量の検査技術開発も進めている。検査は高レベル廃液を取り扱うセル内で実施するので高空間線量率の環境で使用可能なシステムの開発を進めている。すでに、基本設計を行い、健全性の確認手段としてはITVが、侵食量の測定方法としては光学的原理に基づく測距法が有効と判断された。

(6) ガラス溶融炉の解体技術

使用済となった溶融炉は、高放射性の大型廃棄物となる。合理的な廃棄物貯蔵管理を行うためには、溶融炉の解体および解体片の分別が必要であり、解体に関する技術開発を進めている。

これまでに溶融炉の解体手順を明らかにするとともに、TVFに設置される解体設備の設計を進め、TVFの建設に反映した。また、耐火物解体法の検証として、コールド溶融炉を対象に、耐火物部分の遠隔解体試験を実施した⁶⁾。今後は、模擬金属ケーシングのプラズマ切断試験⁷⁾等の結果を基に、総合的な遠隔解体試験を行い、溶融炉解体技術を確立する予定である。

2.3 ガラス固化体取扱い工程関連技術

溶融ガラスを注入したキャニスタ(以下ガラス固化体と呼ぶ)は、ノンフィラーTIG溶接機により蓋を溶接し、溶接部外観を検査する。蓋溶接後、高圧水スプレーとワイヤブラシで除染する。除染後、スミヤ法による表面汚染検査、異常変形の有無の検査、識別番号の照合および外観検査を行う。検査を終了したガラス固化体は、保管セルへ搬送され保管ビットに収納する。

(1) 工程の概要

TVFにおけるキャニスタ搬入からガラス固化体の保管までの運転操作の概要は次のとおりである。

- ① 搬送セルから除染装置を経て、固化セル内の台車バレット内にキャニスタを搭載し、溶融炉下まで台車を移動させ結合装置によりキャニスタと結合する。
- ② 結合装置内を負圧にした後、溶融炉の流下ノズルを加熱してガラス注入を開始する。台車の重量検出器(ロードセル)によりガラス注入重量を管理する。
- ③ ガラスの注入が終了したキャニスタを所定時間自然放冷する。
- ④ 台車に搭載した状態で、ノンフィラーTIG自動溶接装置によりキャニスタの蓋を溶接しガラス固化体とする。

- ⑤ 煮溶後、同化セル内でガラス固化体を放冷後、除染装置内に吊り上げ高圧水およびワイヤブラシを用いて除染する。
 - ⑥ 除染後、搬送セル内で表面汚染密度検査、閉じ込め確認検査、形状検査を行う。
 - ⑦ 検査後、搬送セル内のクレーンを用いて、ガラス固化体を保管セルの保管ビット内に収納する。
- (2) ガラス固化体の健全性確認に関する技術
- 上記のガラス固化体取扱い工程において、ガラス固化体の健全性を確認するために下記の技術が反映されている。

- ① ガラス注入時のガラス固化体特性

工学試験等によりガラス注入時のキャニスタ各部の温度分布、変形量、残留応力等を測定評価しており、これらを健全性評価、ハンドリング器具、設備設計、ハンドリングスケジュールの設定等に反映した。

- ② キャニスタ蓋溶接技術

蓋溶接については、管理すべき溶接条件の少ないノンフイラーTIG自動溶接装置を採用している。Heリーク試験、液体浸透探傷試験、放射線透過試験等の非破壊検査および金相検査、腐食試験、硬度試験等の破壊検査を実施し、健全な溶接が得られることを確認している。

- ③ ガラス固化体表面除染技術

CPFにおける実廃液ガラス固化試験で得られた試験試料について、高圧スプレー法およびワイヤブラシ法を組み合わせた除染法が十分な除染能力を有していることを確認した。

2.4 オフガス処理工程関連技術

ガラス溶融炉からの廃気は、スクラップ、ベンチュリスクラップ、吸収塔、デミスタ、ルテニウム吸着塔、よう素吸着塔、およびHEPAフィルタにより吸着、ろ過等の処理がされた後、さらにルテニウム吸着塔、ヨウ素吸着塔およびフィルタで吸着、ろ過等を行う。

受入工程、前処理工程および廃液処理工程からの廃気も、機器構成は一部異なるが同様の処理を行い、ガラス溶融炉からの廃気と合流する。

(1) オフガス処理工程の構成

ガラス固化プロセスのオフガスには、高レベル廃液をガラス原料とともに溶融する際にガラス溶融炉から発生するものと、受け入れ・前処理工程の高レベル廃液貯槽系のものとがある。

ガラス溶融炉から発生するオフガスは、核分裂生成物を含むミストや粉塵、揮発性放射性物質および

NOx等を含み、オフガス処理工程で湿式および乾式の処理機器により処理される。ガラス溶融炉オフガス出口には、粉塵付着防止のためのエアフィルムクーラが取り付けられている。これは、その内側にスリットを配置した構造で、そこからエアパージし内壁に沿ってエアフィルムを形成することによって、高温のオフガスを冷却するとともに、粉塵の配管への付着を防止する機器である。

スクラップは、サブマージドベッドスクラップ(SBS)と呼ばれるもので、廃気を洗浄水中に設置したベッド(セラミックボール充填層)に導き、洗浄水と接触させ、廃気の冷却、蒸気の凝縮を行い、その過程で廃気中の放射性物質を洗浄水に捕集、吸収させ除去する。ベンチュリスクラップは、のど部(ベンチュリ部)で廃気の流速を上げ、のど部に供給する洗浄水と衝突接触させ、その過程で廃気中の放射性物質を洗浄水に捕集、吸収させ除去する。吸収塔は、多孔板式(シーブトレイ式)の棚段に廃気を導き洗浄水に接触させ、その過程で廃気中の放射性物質を洗浄水に捕集、吸収させ除去する。デミスタでは、廃気をガラス繊維からなるフィルタエレメント中を通過させ、ミストをろ過することにより除去する。ルテニウム吸着塔では、廃気をシリカゲル充填層に通し、揮発性ルテニウムを吸着除去する。よう素吸着塔では、廃気を銀ゼオライト充填層に通し、よう素を吸着除去する。

(2) オフガス処理性能

オフガス処理工程における各々の機器の除染係数(Decontamination factor: DF)はコールドの実規模試験およびRIトレーサを用いた試験により確認されてきた。その結果に基づき、TVFのオフガス処理機器の設計上のDFが設定された。

2.5 貯蔵工程技術

保管セルに収納されたガラス固化体は強制空冷により冷却保管する。冷却空気は施設内のアンバー区域から取り入れ、入気フィルタを通過後、保管ビットの下部よりガラス固化体を冷却しながら上昇する。その後排気フィルタを経て排気筒から放出する。

(1) ガラス固化体実効熱伝導率の測定

ヒータを内蔵した実規模大の模擬ガラス固化体について、ガラス・キャニスタ間の熱抵抗等を考慮した、実効熱伝導率を測定し、設計においてガラス固化体の温度を保守側に評価できる実効熱伝導率を設定した。

(2) ガラス固化体温度解析

ガラス固化体の温度解析コードを開発し、ガラス注入時および冷却時の試験結果との比較により解析

コードの検証を行った。この解析コードにより各種条件下でのガラス固化体の温度解析を実施し、保管温度の妥当性等を確認した。

(3) 1ピット内の温度解析

ヒータを内蔵した実規模大の模擬ガラス固化体を用いて1ピット内の伝熱試験を行い、伝熱特性の把握および解析コードによる温度解析との比較により、解析コードの検証を行っている。本解析コードにより、各種条件下でのガラス固化体の温度解析と保管条件の妥当性を確認した。

(4) 多数ピットにおける冷却空気風量分配特性の把握

保管設備の1/5スケールモデルを用いて、各ピットへの冷却空気風量分配特性データの取得を行った。その結果に基づいて実施設における風量分配量を評価した。

(5) 保管ピットの耐震試験と解析

実規模大のガラス固化体および保管ピットを用いた耐震試験を行い、ガラス固化体および保管ピットの地震遭遇時の安全性を確認した。さらに、耐震解析コードによる解析結果との比較により、コードの検証を行いその有効性を確認した。

(6) ガラス固化体の落下試験と解析

実規模大のガラス固化体および保管ピットの受台を用いて、施設内での取り扱い高さを想定した落下試験を実施し、落下後のガラス固化体のハンドリング性や閉じ込め性に影響のないことを確認した。さらに、落下試験コードによる解析結果との比較により、コードの検証を行いその有効性を確認した。

2.6 ガラス組成開発

高レベル廃液中の放射性核種を閉じ込めるため、各国において多くの種類の固化体が研究されてきた。仮焼体（酸化物粉体）、コンクリート固化体、リン酸ガラスやホウケイ酸ガラス等のガラス固化体、セラミックス（SYNROC等）、および結晶化ガラス固化体が研究され、固化プロセスの実現性、化学的耐久性（浸出率）、廃棄物の含有量、耐放射線性、熱的安定性等の比較評価の結果、ホウケイ酸ガラスが各国で採用された。わが国においても昭和59年、原子力委員会によってホウケイ酸ガラスが選定されている。固化ガラス組成の開発に当たっては、以下の点に留意して検討が進められた。

- (1) 廃棄物成分をできるだけ多量、かつ均一にガラス化できる。
- (2) ガラス熔融温度が低い。（1100～1200℃程度で熔融可能なこと）
- (3) 化学的耐久性に優れている。

表1 固化ガラスの組成例

成 分		組 成 (wt %)
ガラス添加物	SiO ₂	46.7
	B ₂ O ₃	14.3
	Al ₂ O ₃	5.0
	Li ₂ O	3.0
	CsO	3.0
	ZnO	3.0
廃棄物	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 アクチニド酸化物	9.8 2.4
合 計		100.0

(4) 廃液の組成、量の変動に対し、許容幅が広い。

(5) 結晶化の傾向が小さい。

表1に、固化ガラスの組成例を示した。

2.7 CPFにおけるホット試験

高レベル放射性物質研究施設（Chemical Processing Facility : CPF）では、そのB系列セルにおいて実高レベル廃液を用い実験室規模のガラス固化ホット試験を行っている。

CPFのB系列は、連続する5つのコンクリートセル（CB-1～CB-5セル）と2つの鉛セル（物性評価セルおよびX線マイクロアナライザ付属セル）等からなり、再処理工場の高レベル廃液を受け入れ、廃液の組成分析、ガラス固化試験、作製したガラス固化体の評価試験、処分に関する試験等を実施している。

(1) ガラス固化試験プロセス

試験に使用する高レベル廃液は、サンドリオン型輸送容器を用いて再処理工場から受け入れる。組成分析を行って元素量等の確認と、組成調整を行った後、所定の濃度まで濃縮する。濃縮した高レベル廃液とガラス原料を混合し、ガラス熔融炉へ供給する。ガラス熔融炉は、直接通電ジュール加熱方式のセラミック熔融炉で、熔融したガラスは炉底のノズルからステンレス製キャニスタ（φ76mm×600mmH）に流下する。1回の試験で約1.2ℓのガラス固化体を作製する。発生するオフガスは、洗浄塔、吸着塔、HEPAフィルタの組合せで処理する。

(2) 固化体評価試験

作製したガラス固化体は、発熱量測定およびβスキャン測定によるγ核種の分布状態の確認等を行った後、切断して測定試料を調整し、密度測定、熱特性測定、光学顕微鏡観察、EPMA観察等を行っている。

また、ガラス固化体と緩衝材、金属を共存させた系での浸出試験等、処分条件を模擬した基礎試験も行っている。

(3) CPF試験の主な成果

- ① 再処理工場高放射性廃液貯蔵場に貯蔵されている高レベル廃液の組成が把握できた。
- ② 直接通電ジュール加熱方式セラミック溶融炉は、特に問題なく運転を行うことができ、実廃液への適応性を確認できた。
- ③ 作製したガラス固化体の評価試験により、コールド試験と同様な固化体特性を有していることを確認できた。

これらガラス固化試験の成果は、TVFの設計、試運転計画等へ反映してきた。

3. 国内外機関との協力

わが国のガラス固化技術は、動燃事業団を中心に自主技術として開発されているが、その効率的推進のために、国内外の機関との技術協力も積極的に行われた。

具体的な研究協力としては、国内政府関係研究機関である日本原子力研究所、工業技術院大阪工業技術試験所との共同研究、データ取得に関する大学との協力、ガラス固化プロセス設計に関係した関連企業の参加等を通じて、自主開発の目的が達せられた。

また、動燃事業団は、ドイツのカールスルーエ原子力研究センター(KfK)との間に、高レベル放射性廃棄物管理等に関する協力協定を1981年に締結し、毎年の情報交換会議の開催と技術者の相互派遣を行ってきた。米国エネルギー省(DOE)との間には1986年に廃棄物分野における技術協力協定を締結し、高レベル廃棄物に関する専門家会議をすでに5回開催してきた。

このような協力関係を通じ、研究開発の効率化が

図られてきており、今後、TVFの実証運転開始およびガラス固化技術の高度化開発という新しい段階においても、さらに積極的な協力関係の展開が期待されている。

4. まとめ

ガラス固化技術開発は、高レベル廃液と固化体特性の評価および固化処理プロセス技術の両面にわたり効率的に推進してきた。ガラス固化工程に関するプロセス機器開発と固化体評価試験をコールドで実施することと並行して、実廃液を用いたガラス固化試験および固化体評価を実験室規模で行い、これらの成果をTVFの設計建設に反映した。

ガラス固化プロセス開発試験では、主にガラス溶融炉等の単体機器の開発のための工学試験と、主に全体プロセスの運転制御・遠隔保守技術のためのモックアップ試験によってTVFの設計および建設に必要なデータを取得した。また、ガラス固化体の化学組成と物性との関係を調査研究し、良好な固化体の条件を把握するための固化体評価試験を通じて、固化体の物理的、化学的特性等の性能データが得られている。

(東海事業所 環境技術開発部 環境技術第一開発室
大内 仁、五十嵐 寛)

参考文献

- 1) Sasaki, N., Torata, S., Igarashi, H., Kashiwara, H., and Yamamoto, M., Proceedings of American Nuclear Society International Topical Meeting on the Nuclear and Hazardous Waste Management, Niagara Falls, New York, vol. 1, pp. 737-744, September 14-18, (1986).
- 2) Yoshioke, H., Torata, S., Igarashi, H., Takahashi, T., and Horie, M., Waste Management, Vol.12, pp7-16 (1992).
- 3) 正木誠夫、五十嵐寛、高橋武士：日本原子力学会1991年春の年会K44 (1991)。
- 4) Igarashi, H., and Takahashi, T. et al., Glass Technol. Vol.32, No. 6 December, p206 (1991)。
- 5) 高橋盛夫、五十嵐寛、高橋武士：日本原子力学会1992年会C38(1992)。
- 6) 小林洋昭、五十嵐寛、高橋武士：動燃誌 72 pp49-53 (1989)。
- 7) 小林洋昭、五十嵐寛、高橋武士：日本原子力学会秋の大会 J62 (1991)。