



溶融炉改良に係るガラス固化モックアップ試験の評価

池田 秀雄 遠藤 昇 吉岡 正弘 豊嶋 至*
白土 克之*

東海事業所 再処理センター 環境保全部

*石川島播磨重工業株式会社 エネルギー事業本部 原子力事業部 原燃プラント設計部

Cold Test for Improvement of the Glass Melter Performance

Hideo IKEDA Noboru ENDO Masahiro YOSHIOKA *Itaru TOYOSHIMA *Katsuyuki SHIRATO

Vitrification Technology Section Waste Management Division, Tokai Reprocessing Center, Tokai Works

* Nuclear Fuel Cycle Plant Engineering Dept, Nuclear Power Division, Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co.Ltd

ガラス固化技術開発施設（TVF）において、長期間の断続的な運転により高放射性廃液に含まれる白金族元素が炉底部に堆積する課題が確認されており、長期的に安定した運転を継続するためには解決すべき重要な課題であった。また、日本原燃株式会社（JNFL）において建設中のK施設溶融炉もTVF溶融炉と同様の溶融方式を採用し、スケールアップしていることから、上記課題が発生する可能性があるとともに、大型溶融炉の運転特性を把握する必要があった。そこで炉底構造を改良し白金族元素の抜き出し性を向上させたK施設とほぼ同スケールの溶融炉を用いて溶融試験を実施し、白金族元素の抽出率99%以上が確認され、その課題に対する有効性を確認した。

The vitrification of a high-level liquid waste has been carried out at Tokai Vitrification Facility (TVF). In the long-term operation of the TVF melter, the fact that noble metals in the high level liquid waste (HLLW) accumulate on the bottom of the melter has been confirmed. This is an important problem which has to be improved in order to continue stable operation of the TVF melter for a long time. At the same time, the operational characteristics of a large commercial melter that adopts the TVF melter process at the K-facility in Japan Nuclear Fuel Limited (JNFL) also has to be studied. So, a cold test was conducted using a melter of the same scale as the K-facility melter with a modification in discharge performance of the noble metal by changing the bottom structure. In the cold test, the discharge rate of the noble metal was more than 99%. Thus the problem was solved through the cold test.

キーワード

白金族元素，ガラス溶融炉，高放射性廃液，炉底構造，液体供給式直接通電型セラミックメルタ，ルテニウム，溶融処理能力，白金族元素抜き出し性

Noble Metal, Melter, High-Level Liquid Waste, Bottom Structure, Liquid Fed Joule-Heated Ceramic Melter, Ruthenium, Melting Rate, Discharge Performance of Noble Metal



池田 秀雄

処理第三課 確証試験対応
チーム所属
副主任技術員
確証改良溶融炉を用いたモックアップ試験の実施、評価等に従事
第1種放射線取扱主任者，
第1種情報処理技術者



遠藤 昇

処理第三課 確証試験対応
チームリーダ
副主任研究員
確証改良溶融炉を用いたモックアップ試験管理等に従事



吉岡 正弘

環境保全部次長
ガラス固化技術開発施設の
運転管理等に従事
核燃料取扱主任者，
第1種放射線取扱主任者



豊嶋 至

課長
高レベル廃液ガラス固化・
貯蔵施設設計に従事



白土 克之

課長
高レベル廃液ガラス固化・
貯蔵施設設計に従事

1. はじめに

東海事業所のガラス固化技術開発施設（Tokai Vitrification Facility：以下、TVF）は、使用済燃料を再処理した際に発生する高放射性廃液（以下、HLLW）をガラス固化処理する技術をプラント規模で実証する施設である。

TVFは、HLLWを用いたホット試験を1995年1月から開始し、2001年10月までに123本のガラス固化体を製造、同施設の保管ピットにて保管管理している。

TVFは、ガラス溶融炉の方式としてLFCM法¹⁾（液体供給式直接通電型セラミックメルタ）を採用しており、長期間の断続運転によりHLLWに含まれる白金族元素（Ru, Pd, Rh）が炉底部に堆積する課題が確認されている。白金族元素は電気伝導度が高く炉底部に堆積した場合、電極間の電流が一部堆積した白金族元素を介して流れ、溶融ガラスを加熱する電流が低下することから、ガラスの発熱が抑えられ溶融能力の低下を引き起こすことが知られている²⁾。このためTVFの安定運転にとって、白金族元素の堆積防止を図ることが重要な課題とされた。またTVF溶融炉と同様の溶融方式を採用し大型化された日本原燃㈱（以下、JNFL）K施設溶融炉についても同様の課題が予想されると共に、スケールアップに伴う運転特性の把握が建設を進めている石川島播磨重工業㈱（以下、JHI）により急務と指摘されていた。

これらの状況を受けて、サイクル機構とJHIは「溶融炉改良に係る共同研究」を1999年12月に締結し、K施設溶融炉と同規模の確証改良溶融炉を用いて模擬廃液により上記課題の解決等を図ることとした。

本報告では、上記課題に対する対策の効果、商業用大型炉の運転特性を確認するために実施した確証改良溶融炉1次試験の結果、1次試験で新たに確認された課題、この原因・究明のための基礎試験結果、その対策の検討結果、及びその確認のために実施した確証改良溶融炉2次試験の結果について報告する。

2. 確証改良溶融炉の構造と運転条件

2.1 溶融炉の構造

確証改良溶融炉の構造を図1に示す。本炉はK施設溶融炉とほぼ同スケールの溶融炉でTVF溶融炉の約4倍の溶融表面積を持つ。溶融方式として

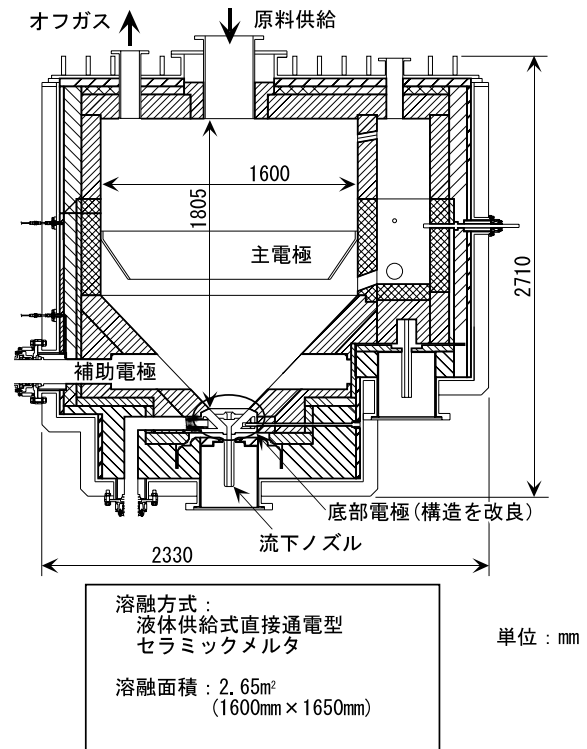


図1 確証改良溶融炉構造概略

はTVF溶融炉と同じLFCM法を採用している。溶融炉は、溶融ガラスに対して耐食性に優れた耐火レンガ及び直接通電電極で構築され、炉底部には溶融ガラスを抜き出すための高周波加熱方式の流下ノズルを設置している。

2.2 溶融処理能力

K施設溶融炉の溶融処理能力は、通常溶融処理速度*で43.1kg/h（使用済燃料の処理能力2.0tU/dayに相当）、最大溶融処理速度で51.7kg/h（2.4tU/day）である。なお、溶融運転中における溶融処理能力が達成されているか否かの判断の指標は以下のとおりである。

(1) 溶融処理能力が達成されている状態

ホットスポット（表面の未溶融のガラス原料層に部分的に溶融ガラス面が露出した状態）が継続して観察され、雰囲気温度が下降せず安定している状態。

(2) 溶融処理能力が不足している状態

溶融表面全体を未溶融のガラス原料層が覆い、ホットスポットが観察されず炉内雰囲気温度が低

* 1時間当たりに溶融されるガラスの重量。ガラス製造速度。

下する状態。

2.3 溶融運転と流下サイクル

ガラス原料の供給は連続式、流下はバッチ式で行なわれる。流下から次の流下までの一連の操作(流下サイクル)は、流下、炉底部冷却、炉底部の低温保持、流下前準備としての炉底部加熱、流下である。これは炉底低温運転という運転手法で、流下時以外は炉底部を低温に保持し、ガラスの粘性を高め、白金族元素が炉底部に堆積するのを防ぐことを目的とした運転手法である。そのため、流下前準備として炉底部加熱が必要となり、白金族元素の炉底への堆積防止の観点から加熱は短時間に効率良く行わなければならない。よって炉底部の加熱能力は本炉の運転性能を左右する要素となる。

また流下サイクルは、通常処理速度時で約9時間30分、最大処理速度の場合約8時間となり、各段階での遅れが全体工程に影響を与えることとなる。

2.4 白金族元素が溶融炉の運転に与える影響

白金族元素は、溶融ガラスに取り込まれにくい*上、その比重が溶融ガラスよりも大きいことから、炉底部に沈降しやすい性質を持っている。またRuO₂、Pd、Rhは高い電気伝導度を示し、中でもRuO₂は酸化物でありながら、高い電気伝導度を示す。このような性質を有する白金族元素が炉底部に堆積した場合、抵抗の低下により直接通電の電流が堆積物に流れ、加熱電流が低下することからガラスの発熱が抑えられ溶融能力の低下を引き起こす。

3. 試験の経緯

炉底部構造の改良による白金族元素の抜き出し性向上対策の確認及びK施設溶融炉と同等の大型溶融炉の運転特性を確認するために2000年8月から10月にかけて確認改良溶融炉1次試験を行った。本試験の結果、白金族元素の抜き出し性の向上は達成できたものの、新たな問題点として白金族元素含有模擬廃液(以下、高模擬度廃液)を供給した場合、白金族元素を含有しない模擬廃液(以下、低模擬度廃液)に比し溶融処理量が減少する

溶融処理能力不足及び炉底部の加熱能力不足が原因と見られるガラス流下性不良が確認された。一方、TVFにおける運転データの再評価から、HLLWの処理においては、低模擬度廃液よりも溶融処理能力が向上することが明らかとなった。

そこで、HLLW、高模擬度廃液及び低模擬度廃液について処理能力の違いの原因を明らかにするために性状分析、るつぼ規模での溶融試験等の廃液性状確認試験を実施した。また、炉底部の加熱能力不足の問題に対しては、溶融炉の電位分布解析、温度分布解析等を実施し、炉底構造を再度見直した。

以上の対策の効果を確認するために2001年5月から6月にかけて確認改良溶融炉2次試験を実施し、その結果TVF溶融炉及びK施設溶融炉における技術的課題が解決できることを確認できた。

4. 確認改良溶融炉1次試験

4.1 試験の目的と概要

本試験の目的は以下の3点である。

- ① 底部構造変更による白金族元素抜き出し性向上の確認
- ② 商用大型溶融炉における廃気配管水洗浄効果の確認(TVFでは実証済み³⁾)
- ③ 商用大型溶融炉(K施設)の運転特性把握

本試験はK施設と同スケールで、白金族元素の抜き出し性を向上させる目的で炉底部のステップアップ構造をなくし、炉底部の勾配を流下ノズルまで延長した構造に改良した確認改良溶融炉を用いて試験を実施した。図2に炉底構造の比較を示す。

試験はガラス溶融特性、ガラス流下特性等の溶融炉基本性能の確認として低模擬度廃液を用いて30バッチの溶融運転を実施した後、白金族元素が運転に与える影響及び炉底構造改良の効果を確認する目的で高模擬度廃液を用いて30バッチの溶融運転を実施した。

また、廃気配管の水洗浄は、炉内から発生する粉塵等が廃気配管に堆積し、圧力損失が上昇し、長期間に渡る連続運転が困難となる課題に対し、水による配管内の洗浄を行うもので、TVFにおいては実証されている技術である。本試験では大型溶融炉における水洗浄システムの効果の確認を行

*白金族元素がガラス中に取り込まれにくいことを前提の上、ガラス固化体の浸出率評価を実施しており、処分上の問題はない。

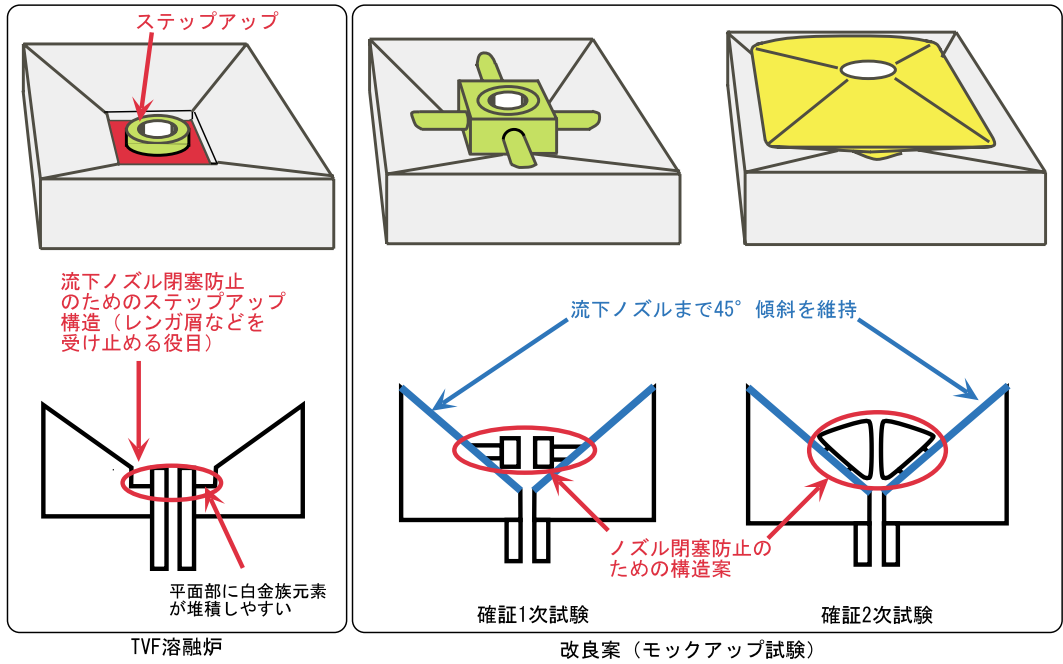


図2 炉底構造の比較

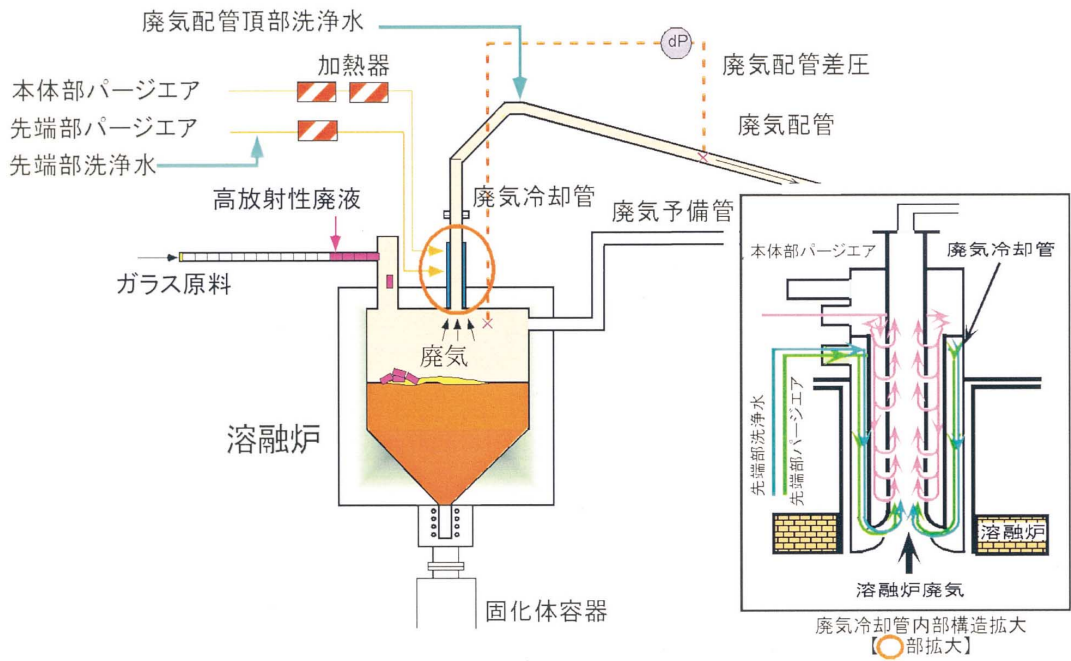


図3 水洗浄システム概要

うために、廃気配管の差圧がある程度上昇した段階で水洗浄を実施した。図3に水洗浄システムの概要を示す。

4.2 試験結果

(1) 白金族元素の抜き出し性

白金族元素の抜き出し性は、①バッチごとの流

下ガラスのサンプル分析による白金族元素の抜き出し量の測定及び②ドレンアウト後の残留ガラスのサンプル分析による炉内残留量の測定の2通りの方法により評価し、白金族元素の収支を算出した。精度の高い後者の方法による評価の結果99%程度の白金族元素抜き出し率が得られたが、残留ガラス中には局部的であるものの、約10wt%と高

濃度（固化ガラス中の平均濃度約0.8wt%）の白金族元素（Ru）が検出された部分があった。この原因は、炉底部加熱能力が不足しており、炉底低温運転の状態から安定な流下に必要な温度まで底部のガラス温度を上昇させることが困難となったことから、流下後の炉底部冷却を緩和し、その後の炉底部温度を高め、保持せざるを得なかったことにより白金族元素の堆積を促進したためと考えられる。

また、主電極の位置におけるガラス温度が低い状態で原料供給・溶融運転を継続した場合、流下における白金族元素の抜き出し量が固化体1本あたりの標準値より少なく、その後約15時間の保持運転（原料の供給を行わず、ガラスの加熱・溶融を継続する運転）を行うことによって保持運転後の1回の流下で固化体2本分の白金族元素が抜き出された。これは、主電極の位置におけるガラス温度が低いことから、ガラスの粘性が高くなり、この位置に白金族元素が滞留し抜き出し量が標準値よりも少なくなり、その後の保持運転及び原料供給運転の再開（主電極の位置のガラス温度を高い温度で運転）によって炉底部へ沈降し、流下により通常の2倍もの白金族元素が抜き出されたものと考えられる。以上の結果から、白金族元素が多量に沈降しても抜き出すことができ、白金族元素抜き出し性向上のための炉底部構造変更の妥当性が

確認されるとともに、この運転条件では多量の白金族元素が沈降することが確認された。一方、主電極の位置におけるガラス温度が高い状態で運転を継続した後の保持運転では、主電極の位置における白金族元素の滞留がなく炉内保有量が増加しなかったことから、1バッチ分の白金族元素しか抜き出されず、沈降量が少ないことを示している。以上のことから炉底部への白金族元素の堆積を防止するには、主電極の位置におけるガラス温度を高くした運転を行う必要があることが確認できた。図4にRuの供給量、流下量及び炉内残存量の関係について示す。

(2) 廃気配管水洗浄効果の確認

本運転において、低模倣度廃液を用いた溶融試験30バッチ実施後、水洗浄試験を実施した結果、廃気配管の差圧が約0.8kPaから約0.2kPaとほぼ初期の値に復帰した。また、強制換気により常時負圧に保たれている炉内圧力についても異常な変動は確認されなかった。以上の結果より大型の溶融炉においても廃気配管の粉塵堆積に対する水洗浄の効果が確認できた。図5に運転中の廃気温度変化及び廃気配管差圧の変化を示す。

(3) 溶融炉基本性能の確認

溶融炉基本性能のうち溶融処理能力については、低模倣度廃液を用いた試験では最大処理能力である51.7kg/hを確認した。しかしながら、高模

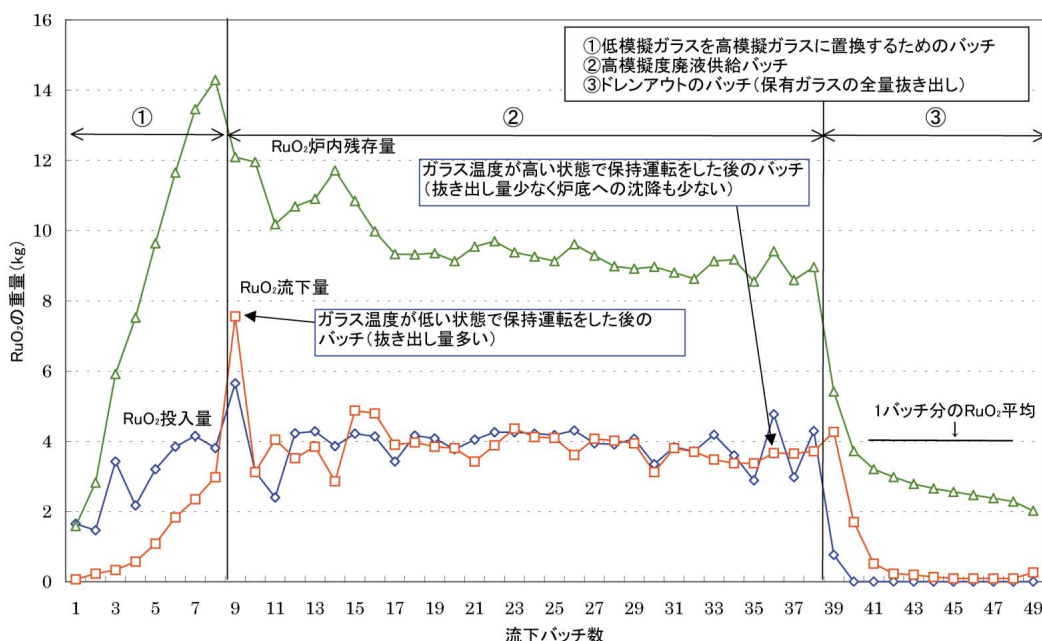


図4 RuO₂の供給量、流下量及び炉内残存量の関係

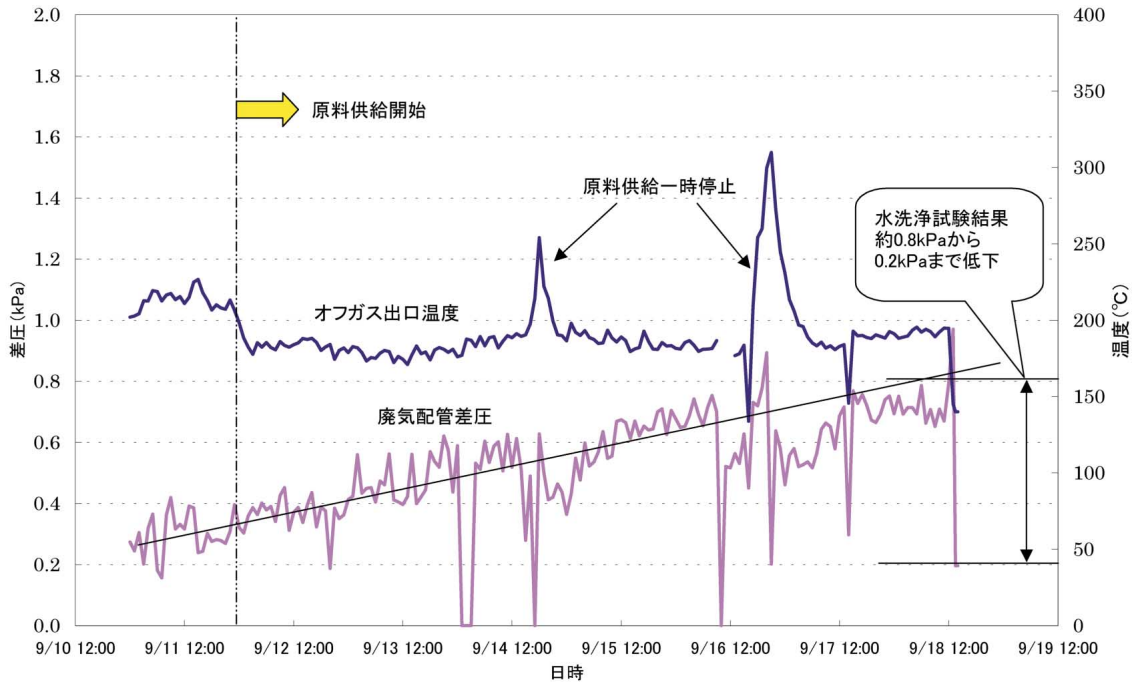


図5 廃気配管水洗浄試験結果

擬度廃液を用いた試験では溶融処理能力判断の指標である炉内雰囲気温度が低下する一方、溶融ガラス温度が上昇する傾向を示したため、ガラス温度を運転範囲(最大1250)で制御するために主電極の投入電力を降下させる必要が生じた。その結果、最大処理能力での溶融運転は困難となり、溶融処理能力は34.1kg/hまで低下した。その後、溶融層上部に対する主電極冷却の影響を緩和*させる目的で、流下開始時間を1バッチのみ遅らせ、溶融中のガラスレベルを上昇させるといった変更を行った。これにより、多少の改善が見られたが最終的に38.5kg/hと最大処理能力の約75%にとどまった。図6に試験結果を示す。

また、流下準備としての炉底部加熱時の性能については、高模擬度廃液を用いた試験では、低模擬度ガラスと比して粘性が高く、より高い温度まで上昇させる必要があったが、十分な加熱能力が得られず、安定流下に必要な温度まで炉底部を加熱できなかった。炉底部の加熱が十分でないとし、流下初期のガラスの粘性が高く流下速度が低下することとなり、結果として流下時間目標値の3時間を大幅に越えるバッチが発生した。

(4) 技術的課題

以上の結果から、当初の目的であった、炉底構造の改良による白金族元素の抜き出し性の向上、及び大型溶融炉における廃気配管の水洗浄効果については確認できたものの、新たな課題として以下の2点が挙げられた。

- ① 高模擬度廃液供給時の溶融処理能力不足
- ② ガラス流下性不良

5. 技術的課題に係る試験

5.1 試験の目的と概要

最大溶融処理速度(51.7kg/h)に対する溶融処理能力不足の原因を明らかにするために、低模擬度廃液と高模擬度廃液の性状の違いに着目し、成分分析及びるつぼを用いた溶融試験を実施した。また、HLLWと模擬度廃液の違いについても調査することとし、これまでのTVF運転実績のデータ再評価及びホットセルでのるつぼを用いた模擬度廃液とHLLWの溶融比較試験を実施した。

ガラス流下性不良については、流下前準備としての炉底部の加熱能力(主電極-底部電極間通電による加熱)が不足しており、安定流下に必要な温度まで十分に加熱できていないことから、流下

*ガラスレベル変更前は主電極と仮焼層との距離が近く(最短で10mm程度)主電極の冷却の影響で仮焼層への入熱が減少し、溶融処理能力の低下を招いた。

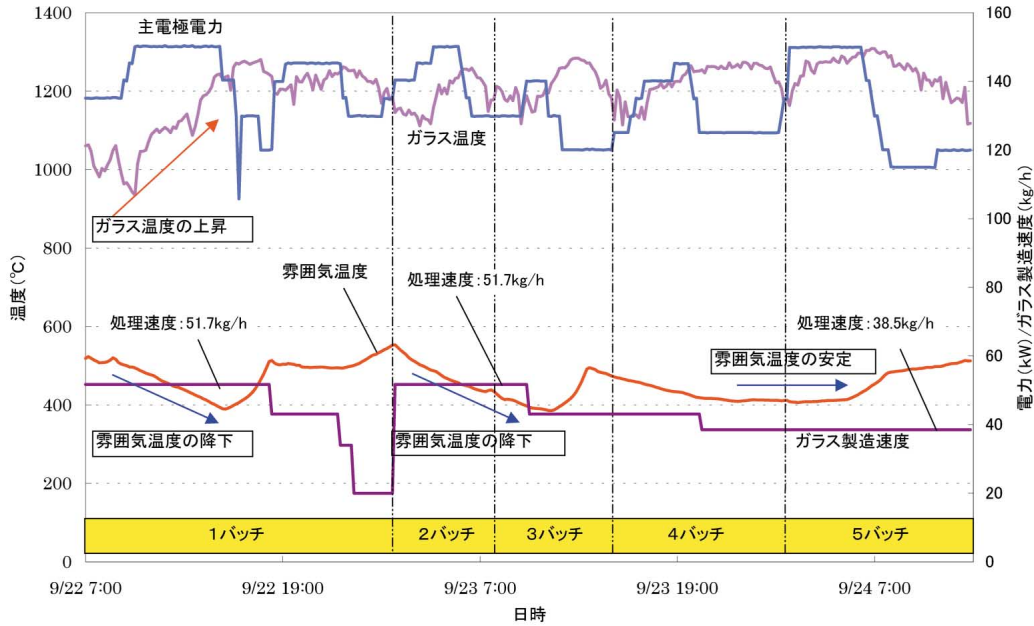


図6 高模擬度廃液供給試験状況

初期のガラス流速低下を招き、しいては流下目標時間3時間を大幅に上回るバッチが発生した。主たる要因である炉底部加熱能力不足の原因を解明するために、電位分布解析及び温度分布解析を実施した。

5.2 試験結果

(1) 廃液性状確認試験結果

1) 調査結果

廃液性状調査として、HLLWについて元素濃度分析を実施した。低模擬度廃液、高模擬度廃液については、調整の再確認のため濃度分析を実施した。なお、HLLWはサイクル機構東海再処理工場の実廃液であり、低模擬度廃液及び高模擬度廃液はJNFL六ヶ所再処理施設の設計値を基に調整している。濃度分析の結果、HLLWでは腐食生成物であるFe, Crが低模擬度廃液、高模擬度廃液に比して多く含有されている。逆に白金族元素については、高模擬度廃液の方がHLLWに比して多い。また、Zr, Moなどの沈降成分もHLLWに比して低模擬、高模擬の方が多い結果となった。元素濃度の比較を図7に示す。

るつば規模での溶融試験では、表面状態の観察結果から低模擬度廃液とHLLWは同程度の溶け込

み性*を示したが、高模擬度廃液は、るつば壁面やガラス表面に未溶融の成分が残っており、溶け込み性が劣ることが確認された。さらに、低模擬度廃液に白金族元素(Ru)を添加した場合、高模擬度廃液と同様に未溶融物が生成し、溶け込み性が悪化した。また、Na濃度は通常の10wt%に相当するNaを模擬廃液側に添加し、ガラス原料に含まれるNaを0とした場合、未溶融物はかなり減少し、廃液成分の溶け込み性は向上した。写真1にるつば試験結果を示す。

過去のTVF溶融炉運転データの再評価を行った結果、TVFの模擬廃液試験³⁾において高模擬度廃液は低模擬度廃液に比して、10%程度溶融処理能力が劣ることが確認されるとともに、HLLWは低模擬度廃液よりも向上することが確認された。

また、確認改良溶融炉1次試験で製造されたガラスの粘性を測定した結果、高模擬度ガラスが低模擬度ガラスよりも高かった。図8にガラス粘性測定結果を示す。

2) 溶融処理能力低下のメカニズム

以上の試験結果から、溶融処理能力低下のメカニズムは以下のように推察される。

高模擬度廃液ではRuの影響により溶融ガラスの粘性が上昇し、自然対流が小さくなり、溶融層

*廃液成分がガラス中に溶け込む度合い。溶け込み性が悪いと未溶融物(ガラス中に取り込まれない廃液成分)が発生する。

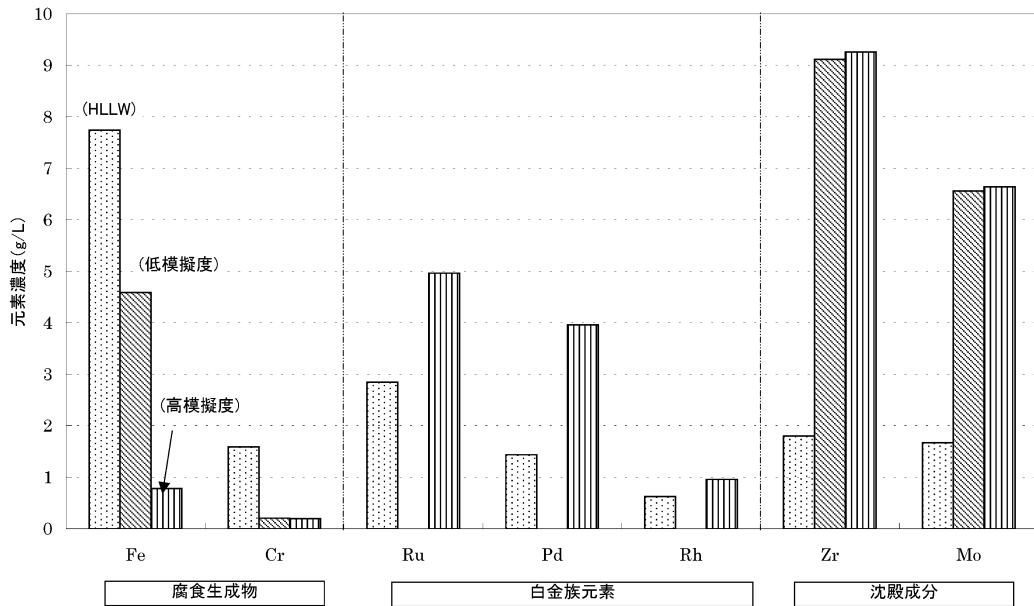


図7 廃液性状比較結果

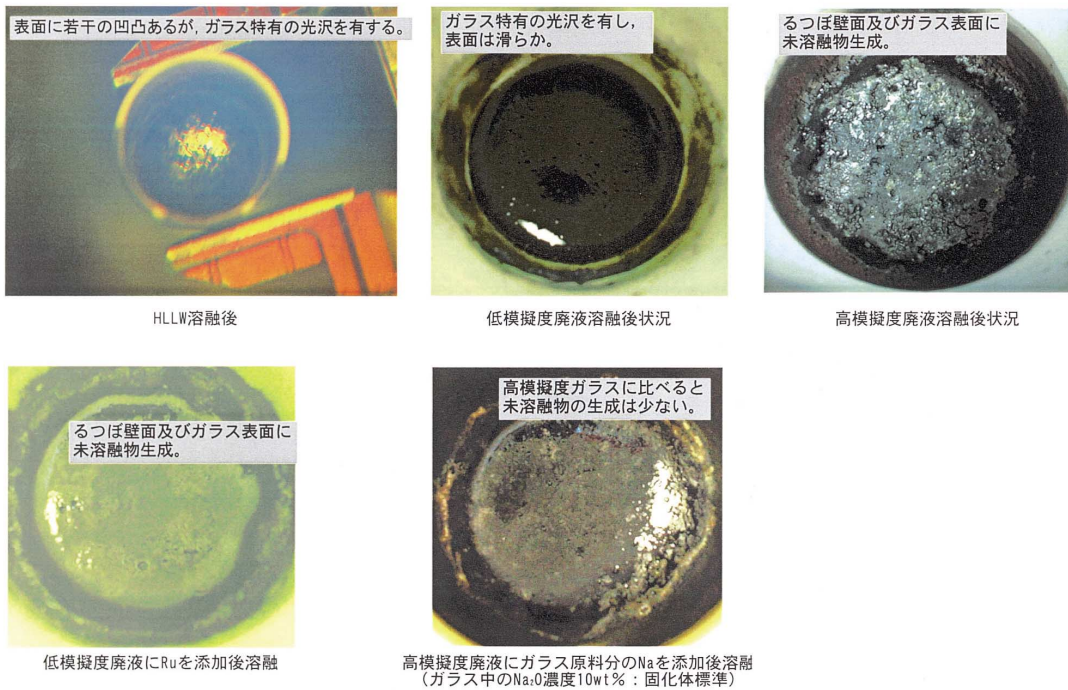


写真1 るつぼ規模の溶融試験結果

から仮焼層（溶融ガラス上の層でガラス原料と廃液成分が混合した状態のもの）への熱伝達量が低下したことにより、仮焼層に十分な熱が供給されなかった。さらに、仮焼層に未溶融物が生成し、熱伝導性が小さくなり、加熱が十分に行なわれなかった。このようなメカニズムにより溶融すべき仮焼層への入熱量が低下し溶融処理能力が低下したと評価される。これは、ガラス中に発生したジ

ュール熱の移動量が小さいため、溶融ガラス自体が加熱され温度が上昇したことも一致する。

なお、HLLWにもRuが含有されているにもかかわらず溶融処理能力が向上した点については、HLLWにはFeが多く含有されており、Feはガラスの粘性を低下させる効果があることから自然対流が大きくなり熱移動量が増大していると推察される。また、NaはRuによる廃液成分のガラスへの

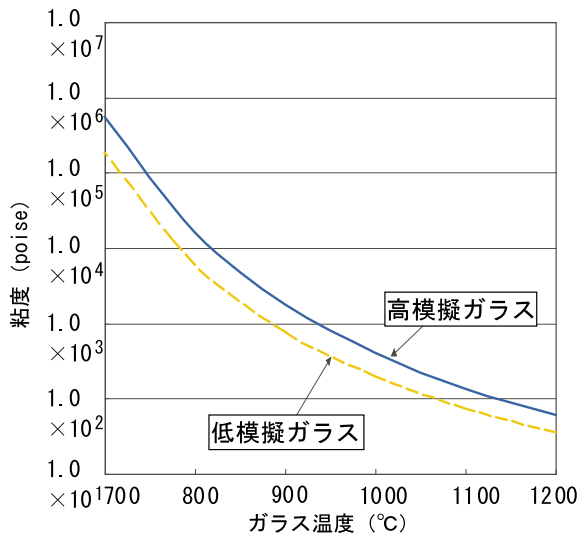


図8 低模擬及び高模擬ガラスの粘性

溶け込み性低下を改善する効果があることから、HLLW中に多いNaが仮焼層における未溶融物の生成を少なくし仮焼層の熱伝導性が改善され仮焼層での熱移動が多くなることによって、Ruによる負の影響を打ち消していると考えられる。

3) 溶融処理能力低下の対策

以上の検討から、仮焼層への入熱量低下が、溶融処理能力低下の原因と考えられることから、溶融炉上部に取り付けてあり、通常熱上げ運転に使用する間接加熱ヒータ（SiC発熱体による外部加熱ヒータ）を溶融運転中に併用し、溶融ガラスから供給される熱で不足する熱量を上部から補うことで溶融処理能力が改善できると考えられた。さらにHLLWの溶融処理能力の向上メカニズムからFeの添加及びNaの廃液側への添加も効果があると考えられるため、これらの対策について再度確認改良溶融炉によるモックアップ試験にて効果の確認を実施することとした。図9に溶融処理能力低下のメカニズムと対策について示す。

(2) 炉底部に係る解析結果

1) 解析結果

主電極 - 底部電極間通電における電位分布解析の結果、改良型の底部構造では閉塞防止リング（耐火レンガ層などによる流下ノズルの閉塞防止の目的で設置）に電流が集中するが、電極材料の電流密度の制限から十分な電力が投入できなかったこと、及び閉塞防止リングより下のガラスには加熱源がなく、熱伝導による加熱のみであり昇温性が不十分であることが確認できた。また温度分布解

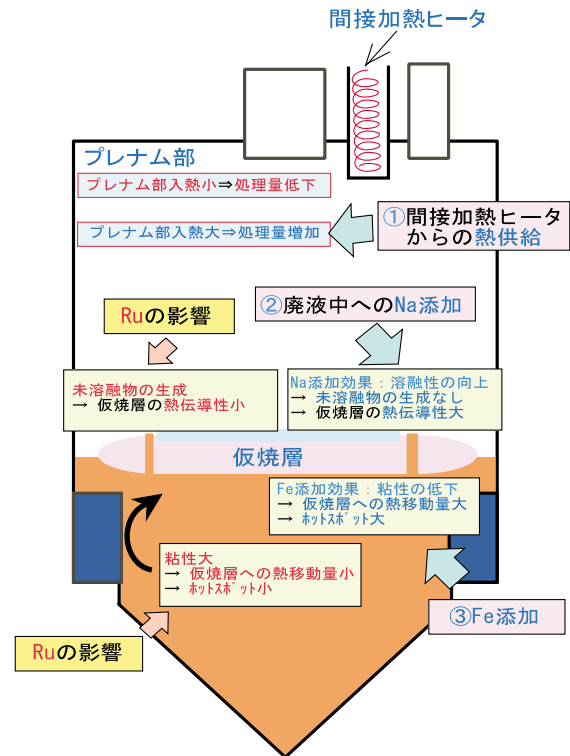


図9 溶融処理能力低下のメカニズムと対策

析により、熱伝導では閉塞リングより下のガラスが十分に加熱できないことが確認できた。図10に電位分布解析結果を示す。

2) 炉底部構造の改良条件

以上の結果から、改良すべき底部構造の条件としては、閉塞防止リングのような電流集中を来さないように、電極上面はできる限り平面状で、かつ電極の通電により加熱できない電極下部のガラス容量をできる限り少なくする構造とする必要がある。また当初の目的であった白金族元素の抜き出し性の向上については、その効果が確認されていることから、ノズル上部まで傾斜部を延長する構造は引き続き採用することとした。

3) 改良型底部構造の妥当性

改良条件に見合う構造案として図2に示す構造を考案し、改良前の底部構造の解析と同様に電位分布解析を実施した。その結果、改良前は11kWだった主電極 - 底部電極間通電による発熱量が39kWまで増加すると共に、底部が均一に加熱されることが確認された。また、通電により加熱されていない部分のガラス量が少ないことから、底部全体の昇温性が向上している。更に構造変更によって白金族元素の抜き出し性に影響を与えないこ

とを模擬粒子を用いたアクリルモデル試験によって確認した。よって本構造案を確証改良溶融炉に適用し、再度試験を実施することとした。図10に電位分布解析結果を示す。

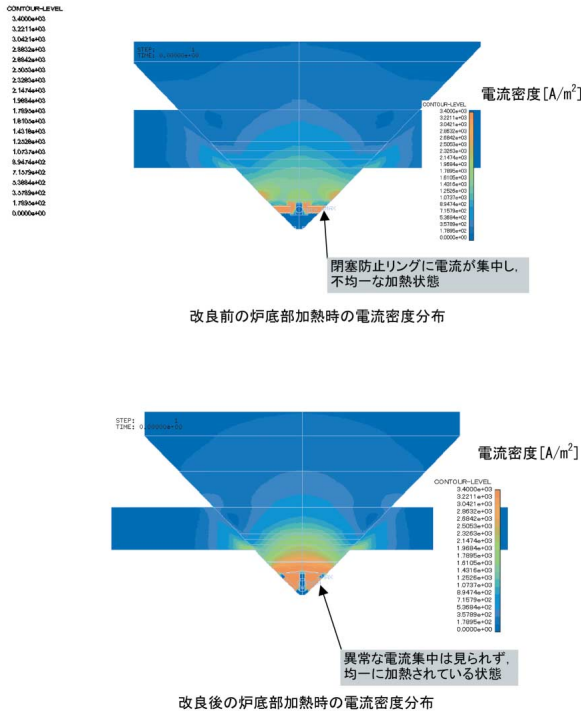


図10 改良前及び改良後の炉底部加熱時の電流密度分布

6. 確証改良溶融炉 2次試験

6.1 試験の目的と概要

本試験の目的を以下に示す。

溶融処理能力不足対策の効果確認（間接加熱併用運転, Naの廃液側への添加*, Feの添加**）

流下性不良対策の効果確認

白金族元素の抜き出し性評価

試験は溶融炉改良後の定常運転状態における運転条件の把握及びガラス溶融特性, ガラス流下特性等の溶融炉基本性能の確認として低模擬度廃液を用いて9バッチの溶融運転を実施した。そのうち後半の4バッチについては, 間接加熱ヒータを併用した場合の運転特性データ取得を行うため, 間接加熱併用運転を実施した。続いて高模擬度廃液を使用した運転試験に移行し, 間接加熱併用試験, Na添加試験, Fe添加試験及びこれらの複合条件における効果の確認を実施した。高模擬度廃液による溶融は20バッチ実施した。

これらの結果を踏まえて流下性不良改善及び白金族元素の抜き出し性向上を図るため, 炉底部構造を再度変更した。これまでの炉底部の構造比較を図2に示す。

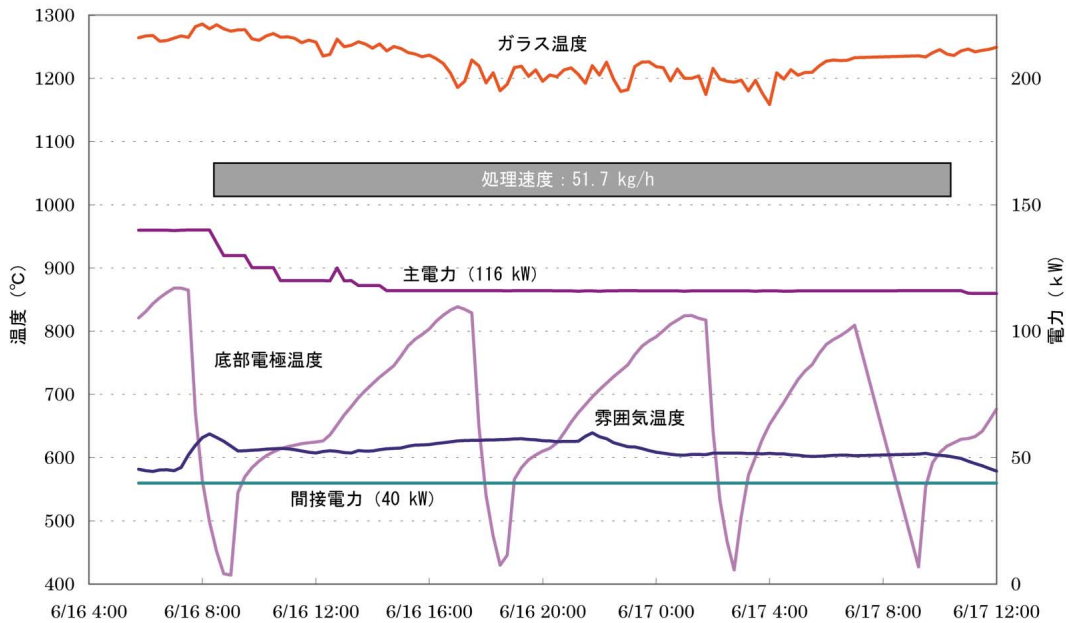


図11 最大処理能力時の間接加熱併用運転試験結果

* Na添加試験は, 模擬廃液にNaOH水溶液及びNaNO₃水溶液としてあらかじめ添加している。
 ** Fe添加試験は, 模擬廃液にFe(NO₃)₃水溶液としてあらかじめ添加している。

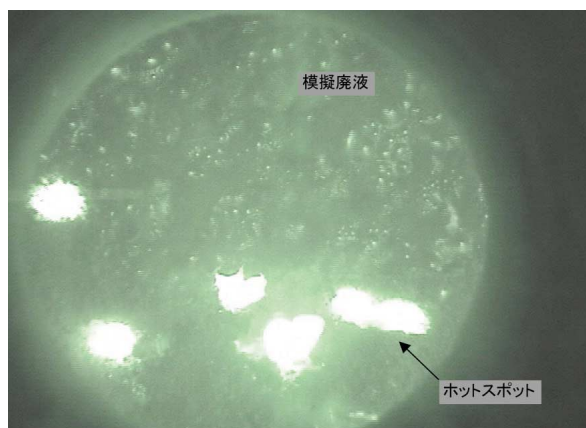


写真2 溶融表面の状態（赤外線撮影）

6.2 試験結果

(1) 溶融処理能力不足対策の効果確認

1) 間接加熱併用試験

高模擬度廃液を用いた試験では、ガラス温度が上昇するといった特有の傾向が見られたためガラス温度の上限管理の観点から、主電極電力を徐々に低下させる必要が生じ、最大処理能力が得られなかった。これに対して間接加熱ヒータを40kWで併用運転することにより（加熱間接加熱ヒータで熱量を補っていることから、溶融に必要な主電極間電力は低下する。）51.7kg/hの速度で原料を供給している状態でも溶融表面にホットスポットが継続して観察され、雰囲気温度の下降傾向は見られず600程度で安定したことから、最大処理能力を有することを確認した。図11に試験結果を示す。また写真2に溶融表面の状態を示す。

2) Na添加試験

Naの添加は、ガラス原料の成分として含まれる量を廃液側にあらかじめ添加し、Naを含まないガラス原料を供給することで実施した。本試験では雰囲気温度の低下が継続したことから最大溶融処理能力は有していないと判断した。Naの添加は白金族元素のガラスへの溶け込み性を向上し（仮焼層における未溶融物の生成抑止）、仮焼層自体の熱伝達性は向上させるものの、溶融ガラス中のNaの総量は変わらないことから、ガラスの粘性をさらに低下させる効果はなく、対流によるガラスから仮焼層への熱伝達は期待ほど大きなものとはならず、溶融処理能力向上への効果が小さかったと推定される。また、模擬廃液中の全酸化物濃度を変えずにNaを溶液として模擬廃液に添加したため

に溶融炉への供給液量が増加し、蒸発の熱負荷が増大したことも原因の一つと考えられる。

3) Fe添加試験

Feを廃液に添加した試験において、最大処理速度で原料供給を実施したところ炉内雰囲気温度が徐々に低下した。しかしながら、通常溶融ではホットスポットが確認されない低い炉内雰囲気温度でもホットスポットが観察されたこと、ガラス温度が異常な上昇を示すことなく、主電極電力の投入量を上昇できたことから、Fe添加のガラス粘性低下効果によって溶融ガラスの対流が増加し、仮焼層への熱移動量が増加したものと考えられる。なお、本試験においても最大処理能力を達成できなかったが、模擬廃液中の全酸化物濃度を変えずにFeを溶液で添加したことにより溶融炉への供給液量が増加し、蒸発の熱負荷が増大したことが、一要因と考えられ、溶融炉へ供給する廃液の濃縮倍率を上げ水分を相対的に減らすことにより溶融処理能力向上が期待できる。

(2) 流下性不良対策の効果確認

炉底部の加熱能力不足に起因する流下性不良を改善するために実施した炉底部の構造変更の結果、変更前では14kW程度であった炉底部加熱能力が、変更後では20kW以上と大幅に改善した。また、炉底部の昇温性（底部電極温度で評価）についても、変更前は数/h程度であったものが、変更後には約50/hと改善した。さらに安定流下に必要な底部電極温度（流下開始時）について、変更前は局部的にしか加熱されず、熱伝導でのみ加熱されるガラス量が多かったことから800以上必要であったのに対し、変更後は均一に加熱され、熱伝導のみで加熱されるガラス量が減少したことから730の昇温で十分であった。この結果、安定流下に必要な底部温度を十分に上回ることができ、流下目標時間3時間を達成できた。また流下初期の流速の低下も見られず、低温で粘性が高く細い糸状になったガラスが流路に堆積するような状態も観察されなかった。流下速度の上昇傾向と流下所要時間の比較について図12に、炉底部の昇温性について図13に示す。

(3) 白金族元素の抜き出し性評価

白金族元素の抜き出し性については、確証改良溶融炉1次試験と同様の手法により算出した。その結果、1次試験を上回る抜き出し率が得られたことにより、炉底構造変更により白金族元素抜き

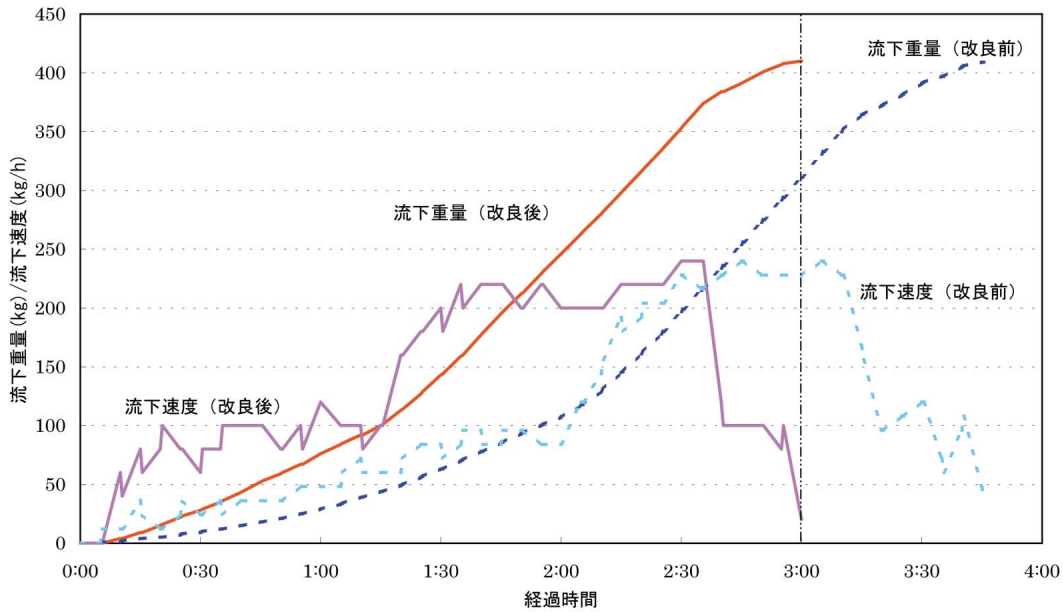


図12 1次試験及び2次試験における流下速度の比較

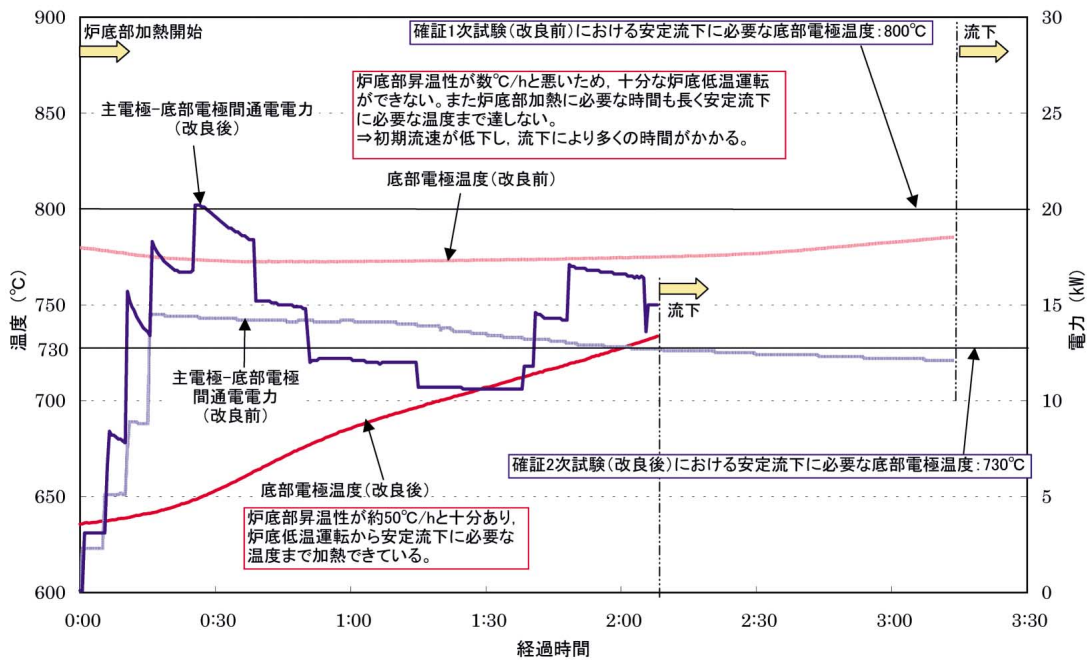


図13 炉底部の昇温性比較

出し性が良好であることが確認できた。また、廃液供給試験後、保有ガラスを全量抜き出すためのドレンアウトを行った後の炉内観察結果からも炉内残留ガラスはほとんど見られず、かつその中の白金族元素濃度は、改良前の構造での10wt%程度から通常流下における濃度に低下し、確実に抜き出されており、白金族元素の抜き出し性向上には十分に有効な構造であることが確認された。

確認改良溶融炉における白金族元素堆積の可能

性について検討した結果、炉底部の冷却及び主電極 - 底部電極間通電による炉底部の加熱能力の増大により確実な炉底低温運転が可能であり、炉底低温運転を着実に実行すれば、炉底部への堆積を防止できる。また、TVFのように熟上げ後の最初のバッチで、一度に多量の白金族元素が炉底部に沈降した場合においても抜き出し可能であることから、炉底部へ白金族元素が堆積する可能性は低いといえる。なお、運転終了時に仮焼層を完全に

溶融するための保持運転（主電極レベルのガラス温度を高温にし、粘性を低下させ白金族元素を沈降させる運転）を行った後、炉内保有ガラス量11バッチの内3バッチ分だけ流下を行えば溶融炉内に保有する白金族元素の90%以上を抜き出すこと

ができることから、運転終了時に3本分を流下することは、熱上げ後の最初のバッチでの白金族元素の沈降を防止するのに有効な手法の一つであると考えられる。

図14に白金族元素収支について示し、図15に運転終了時のドレンアウト効果について示す。また、ドレンアウト直後の炉底部の状況を写真3に示す。

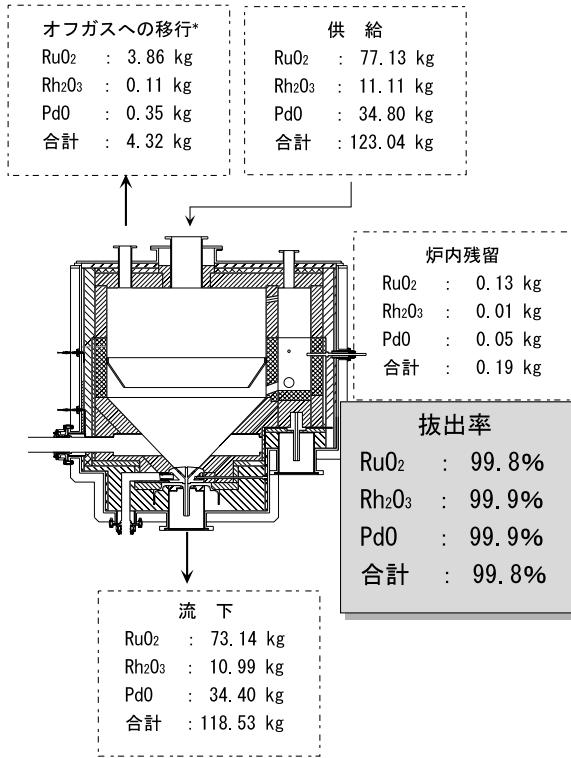


図14 確証改良溶融炉における白金族収支
*) 設計値を用いた。



写真3 ドレンアウト後の底部状況

7. おわりに

コールドのモックアップ試験である確証改良溶融炉試験を通じて、白金族元素の抜き出し性向上のための炉底構造変更の妥当性が、関連する炉底部加熱能力を含めて確認できた。この結果はTVF 2号溶融炉に反映し、今後運転を通じて有効性を

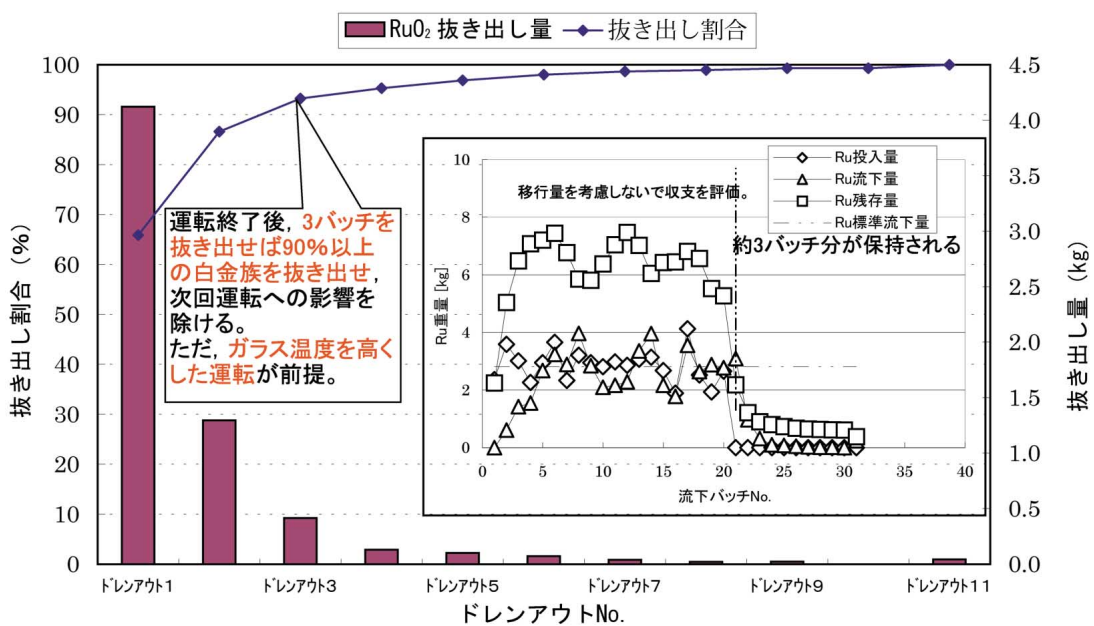


図15 ドレンアウト経過に伴う白金族元素抜き出し評価

実証していく予定である。また、溶融処理能力不足については、白金族元素（特にRu）の影響による熱移動量の低下が主要因であるとの判断から、間接加熱装置によりガラス溶融層上部における原料の溶融と廃液の蒸発に必要な熱量を補うことによって、最大処理能力を確保できることを確認できた。併せて、廃気配管水洗浄効果の確認を始め、商用大型溶融炉に関する運転特性の把握ができた。これらの知見は、TVF技術を基本としてスケールアップを図ったJNFLのK施設溶融炉の設計及び運転に適宜反映していく。

参考文献

- 1) M.Yoshioka,T.Takahashi,et al.: "Glass Melter and Process Development for PNC Tokai Vitrification Facility", WASTE MANAGEMENT, Vol12,p7-16(1992)
- 2) 遠藤 吉岡,他:“TVFガラス溶融炉の運転評価(Ⅰ)”日本原子力学会 1999春の年会 要旨集, M5,p697,(1999)
- 3) 浅野,吉岡,他:“廃気配管水洗浄システムの開発(Ⅱ)”日本原子力学会 2001秋の大会 要旨集, M70, p799,(2001)
- 4) 吉岡,稲田:“ガラス固化技術開発施設(TVF)コールド試運転結果”,動燃技報, No.91,p111(1994)