

放射性廃棄物ガラスの溶融技術

動力炉核燃料開発事業団 企画部 虎田 真一郎

Development of Glass Melting Technology for Nuclear Waste Vitrification

Shinichiro TORATA

Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

Abstract

The vitrification process technology utilizing the Joule-heated electric melter has been developed by Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC). The technology development includes melter structural design for meeting the safety guideline of the equipment for nuclear facility, remote operation and remote maintenance technology for process equipment. The outline of the glass melting technology for the nuclear waste vitrification is explained in this report.

The result of the development in PNC is now going to be demonstrated at the Tokai Vitrification Facility (TVF) which will be in radioactive operation for demonstration of engineering scale vitrification of high-level radioactive waste.

The extended research on the advanced melting technology for future process of radioactive waste treatment is also carried on in advancing Joule-heated melting and the induction-heated melting.

1. はじめに

高放射性廃棄物のガラス固化技術開発を通じて、核燃料をリサイクル利用する際に発生する放射性廃棄物を、安定な固体にして長期にわたり安全に管理してゆくための技術開発を行ってきた。

ガラスは物理的・化学的に比較的安定であり、高放射性廃棄物に含まれる核分裂生成物や超ウラン元素（アクチニド）など多様な元素をその組成の中にとり込むことが出来る。また実験的な製造から大規模な生産まで、製造技術としての歴史も長いなど、工学的にもその応用の上

で利点を有している⁽¹⁾。

しかし、高温で溶融するという技術を原子力プロセスに適用する上で、安全面や運転操作に関して多くの改良開発がなされ、その結果を踏まえて現在、動燃事業団東海事業所においてガラス固化施設（TVF）⁽²⁾の試運転が行われている。

2. 放射性廃棄物を含むガラスの溶融技術

放射性廃棄物ガラスは、ウランの核分裂で生じた数十種の元素を含み、また、核燃料再処理の化学工程を経たことによって廃棄物に混入してくる、鉄、クロム等プラント材料の腐食生成物や、ナトリウム、リン等試薬として添加され

た元素も含むことになる。

ナトリウムやアルカリ元素はガラスの特性に対し影響が大きく、化学的耐久性（浸出性）や高温粘性などガラス固化の上で重要な品質特性を規定する重要な成分である。

クロムや核分裂生成元素の幾つかはガラスへの溶解度が低く偏在する傾向もあり、ガラスと廃棄物との混合比を決める上で、特に配慮すべき成分である。Table-1に標準的な廃棄物組成に対して開発された、硼珪酸系ガラス固化体の標準組成を例として示す。このガラス組成に対し、廃棄物に含まれるナトリウムの量が変動した時、浸出性や溶融時の粘性が、Fig.-1のように変動する⁽³⁾。固化体品質特性の管理や、溶融炉の運転性を考える上では、これらの変動を十分許容できるよう考慮している。

Table-2は廃棄物中の成分元素について、硼珪酸ガラスへの含有率の上限を調査したものの一例を示す。数十種の廃棄物の成分のうち、アルカリ/アルカリ土類元素は一般的に硼珪酸ガラスへの溶解度は高い。一方、溶解度の低い元素として、クロム、モリブデン、白金族元素等があり、これらについては含有率の上限と、上限を越えた場合の固化体特性への影響を考慮した上で、許容できる範囲内で、固化体の標準組成を決定した。

Table 1 ガラス固化体の標準組成

Component	(wt%)
Glass Additive	75.0
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
Waste	25.0
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
fission products	9.8
actinides	2.4

Table 2 廃棄物成分元素の硼珪酸ガラスへの溶解度

酸化物	溶解上限(%)	単体の密度(g/cm ³)
Fe ₂ O ₃	16	5.1
Cr ₂ O ₃	1	5.2
NiO	7	7
ZrO ₂	10	5.5
MoO ₃	~3	4.7
PdO	0.1>	8.7
RuO ₂	0.1>	4.7
CeO ₂	~5	7.6
Gd ₂ O ₃	20	7.4
UO ₃	10<	11

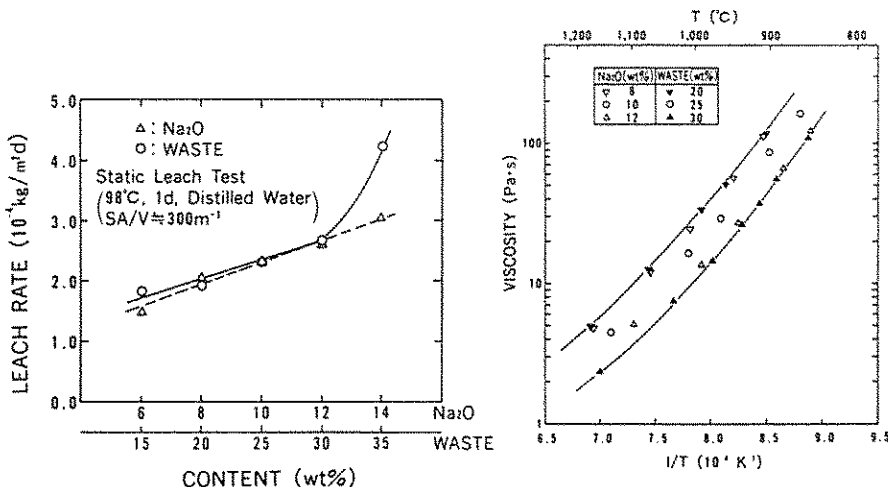


Fig. 1 固化体特性に及ぼす全廃棄物、ナトリウム含有率の影響

既に、本紙で既報のとおり、⁽⁴⁾ ガラス固化のための電気溶融法として二つの方法が世界的に選択されてきている。一つは米、独、日本が採用した直接通電加熱法で、他の一つは仏、英で採用した高周波誘導加熱法である⁽⁵⁾。動燃事業団では直接通電溶融炉技術に関し、Fig. -2のように技術の開発実証を行ってきた。

特に、直接通電溶融炉を原子力施設に適用するに当たって、施設の安全指針を満たす設備機器とするための技術の開発を行うと同時に、原子力施設のセル内で遠隔操作するための運転技術の開発が行われた。

3. 溶融炉技術開発の成果

直接通電溶融法を、ガラス固化プロセスに適用するに当たって行った改良開発の観点は、大別して以下の三点であり、そのそれぞれについて更に詳しく述べる。

- (1) 放射性物質の、炉内への閉じ込めのための構造設計
- (2) 廃液とガラス原料の混合定量供給運転法
- (3) 密閉された遠隔操作セル内での、運転と保守技術

- (1) ガラス固化施設は、核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律に基づく、原子力施設としての許認可の対象となる。その際に安全上の技術指針に照らした審査を受ける。

動燃事業団のガラス固化施設（TVF）については再処理施設技術指針を適用して審査が行われた。ガラス溶融炉の設計に直接関連する指針の記述としては、放射性物質の閉じ込め、耐震、火災爆発のそれぞれに対する安全対策がある。

直接通電溶融炉の主要構造は耐火煉瓦を組積みしたものである。この炉体の密閉度を高め、内部を負圧に維持して運転が可能となるよう、ケーシングと呼ぶステンレス製の箱の中に、炉体を組積みした。同時にこのケーシングは、組積みした耐火物の耐震強度を得るための構造体にもなっている。

溶融炉の内部は排ガス処理設備につながり、原料を供給した時に発生するガス等は常に排気され、外部に比べて、-100mmAq程度の負圧に維持して運転される。

- (2) ガラス固化プロセスは、高レベル廃液を受

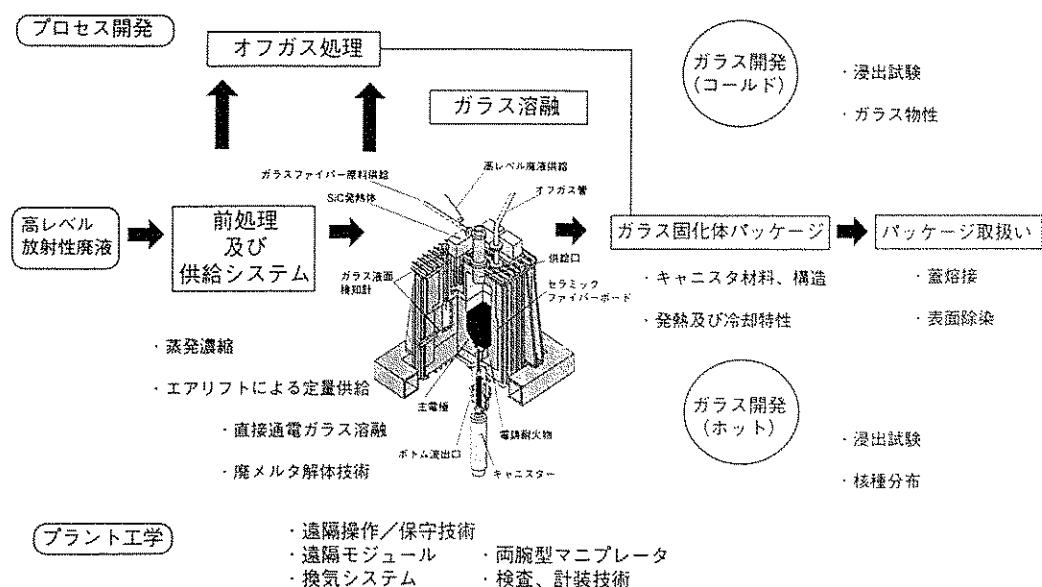


Fig. 2 ガラス固化技術とガラス溶融炉の開発

入れて、ガラス原料と共に溶融する工程であり、溶融炉には高レベル廃液とガラス原料を直接供給する。高温でガラスを溶融した炉内に、高レベル廃液を直接供給したときに、急激な蒸発を抑制しながら発生ガスに同伴される放射性物質量を低減する手段として、ガラス原料を繊維状にしたものを束ねて焼結し、廃液がしみ込むようにした供給原料を開発した。⁽⁶⁾ (Photo.)

直径、高さとも約70mmの円柱状に成型したガラス原料を、供給配管の中を溶融炉に向けて連続的に押し出してゆく。溶融炉に入る直前で、別配管から送られてきた高レベル廃液が原料にしみ込む。

廃液がしみ込んだガラス原料は、更に押し出されて、溶融炉の天井部から炉内に落下すると、溶融ガラスからの熱によって水分が蒸発し、さらにガラス原料と廃棄物が溶融しながら混合してゆく。

- (3) ガラス溶融炉は一旦稼働すれば、高い放射能を持つため、運転や保守の操作は全て遠隔で行わなければならない。そのため、溶融炉はそのような遠隔操作の頻度を極力低減するようにしている。主要な構造材料である耐火煉瓦や電極など溶融ガラスに接する部分の材料は、溶融炉の運転寿命を直接決定するので、耐蝕性に優れた材料を試験の結果に基づき選定した。廃棄物ガラスは、多くの金属元素を

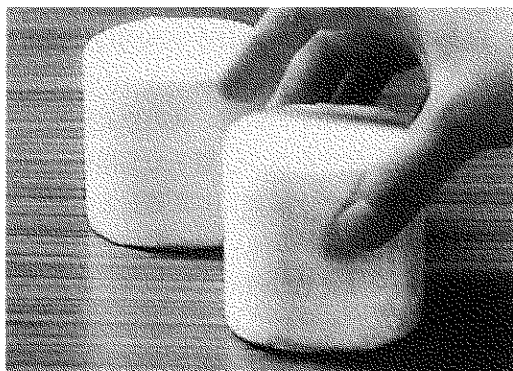


Photo ガラス繊維を焼結した供給原料
(ファイバー原料)

含み黒く着色しているの、一般のガラスと違い、炉材からの着色性不純物の混入も許容できる。その結果、一般には特殊な用途に限られていた、クロムを含有する電鍍耐火物(MONOFRAX K3)、電極や流下ノズルにはニッケル-クロム系耐熱合金(INCONEL 690)を選定した。これらの材料には、クロムを含み、使用時にはその表面に酸化クロム主体の皮膜を形成するので、侵食が抑えられる。これらの材料を、ガラス固化のモックアップ溶融炉に使用し、200～300日の運転を経て、最大侵食量が、耐火物で0.02mm、電極で0.024mmとなった。この結果から数年の材料寿命を確保できると考えている。⁽⁶⁾

この他、炉内の溶融ガラスの温度測定や、溶融ガラス液面が測定用プローブに達したときの電気抵抗の変化をもとに液位を検知するガラス液面計を備えて、運転状況を把握する。

以上のような、材料選定や運転技術開発の結果を踏まえて、溶融炉の一部の部品を遠隔で交換が出来るような設計を行い、数年以上の運転寿命が確保できると考えている。

T V Fに設置されている溶融炉の基本構造を、Fig. -3に示す。

4. ガラス溶融技術の高度化

現在、T V Fで運転している直接通電溶融炉は、一般産業で使用実績のあった電気溶融炉の設計を踏襲し改良を加えてガラス固化に適用したものである。

今後、商用規模の大型プロセスへの適用を考えたとき、耐火物を主要構造とする炉体は、遠隔での取扱重量が更に大きくなること、寿命がきたときに、炉全体が一括して廃棄体になり解体を必要とするなど⁽⁷⁾、大型化に向けて検討すべき課題がある。

またガラス固化体についても、さらに高温で溶融し安定度の高いガラスを溶融したり、高レベル廃液以外の廃棄物の処理へ適用範囲の拡大

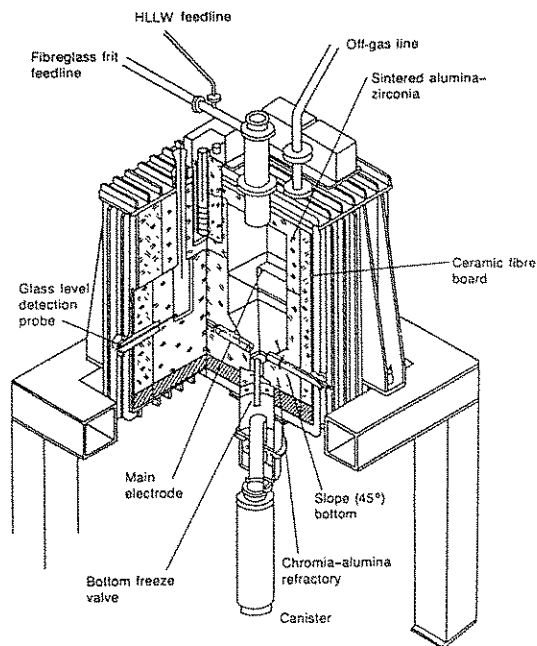


Fig. 3 T V F ガラス溶融炉の基本構造

などの検討もなされている。ガラス溶融技術もそれに応じた、効率的な改良を進める必要があり、改良高度化に向けて開発を継続している。

動燃事業団においては、高い溶融効率と、溶融に伴い劣化した材料だけを交換できる溶融炉をという観点で、溶融炉内壁を全て耐熱金属の内容器とし、中心に挿入した棒状電極との間に通電を行う方式の直接通電溶融炉を開発試験している。

内壁が全て金属であり、伝熱性が良いこと、ガラスに接する内容器だけを交換し、他の部分は引き続き使用できるなどの利点を有している。

また、高周波溶融法の改良においては、コールドクルーシブル法と呼ばれる、溶融対象を直接高周波で励振して加熱する溶融法の適用が検討されている⁽⁸⁾。

本法は、Fig-4 に示すように、電気的には互いに絶縁されたセグメントを組み合わせた容器を用いて、高周波が容器の中にある対象物に直接作用して加熱できるようにしたものである。また、容器のセグメントは内部を冷却しながら、対象物だけを加熱できるため、容器材料の損耗

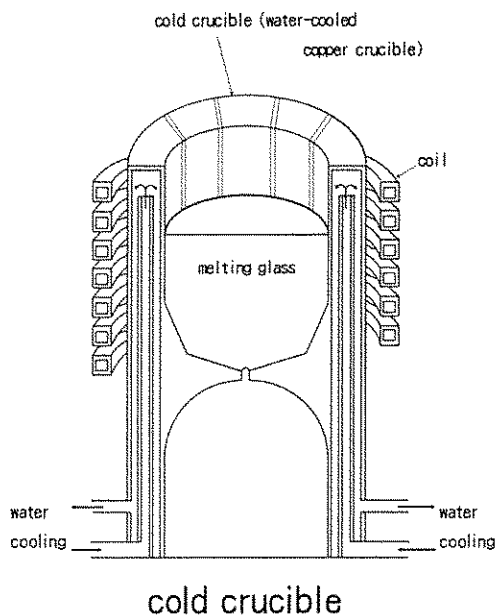


Fig. 4 コールドクルーシブル溶融の概念
(溶融炉の縦断面)

が少なく、同時に溶融物だけをより高温にできるという利点を有している。加熱の周波数を適切に選択することによって、ガラスにも金属にも適用可能でありフランス、ロシアでは工学装置の開発に着手している⁽⁹⁾。

動燃事業団においても、溶融物の容量として数百cm³の小型のコールドクルーシブルを使い、ガラスや各種金属の溶融性を調査している⁽⁸⁾。

5. おわりに

以上に、放射性廃棄物のガラス固化に採用したガラス溶融炉の開発の経緯を述べた。

原子力のエネルギー利用は他の資源利用と同様に廃棄物の発生を伴う。原子力発電が、日本の安定なエネルギー源として定着しており、今後もその利用を継続していく上で、その廃棄物の効率的な処理、処分の研究開発は、最新の技術を反映しながら続けられるべきものである。

放射性廃棄物をマトリックス素材と共に溶融し、廃棄物固化体とすれば、減容安定化の効果に加えて固化体特性がより平均化し、処分に際

しての安全性の予測評価の信頼性の面でも有利である。

従って、高レベル放射性廃液のガラス固化については、T V Fの円滑な運転をもって、商用規模の大型施設への技術の展開をはかっていく。とともに、熔融安定化処理に関して得られた知見を活用して、低レベルの放射性廃棄物の処理や、一般の有害廃棄物の処理にも広範に適用出来る技術をめざしてさらに継続して開発を行ってゆく。

参考文献

- (1) 高レベル廃棄物とガラス固化技術について
虎田真一郎他 “高レベル放射性廃液のガラス固化体への処理技術” エネルギー・資源 Vol.13 No.1 (1992)
- (2) ガラス固化施設 (T V F) について
本橋他 “ガラス固化技術開発施設の建設” PNC TN8410 92-336 動燃技報 No.84 pp35 ~40, (1992)
- (3) Kawamura K. et. al., “Characterization of High-Level Waste Glass” Ceramic Transactions Vol.9, Nuclear waste Management III, Edit.G.B.Mellinger, American Ceramic Society (1990)
- (4) 佐々木憲明; “高レベル放射性廃棄物のガラス固化処理技術” New Glass No.3 pp44-53 (1986)
- (5) IAEA Technical Report Series No.339, IAEA (1992) Design and Operation of High Level Waste Vitrification and Storage Facilities.
- (6) ガラス固化プロセスについて
・PNCT N1340 87-003 動年技報 No.63 pp78 ~88, (1987) (邦文)
・Yoshioka M. et al., “Glass Melter and Process Development for the PNC Tokai Vitrification Facility” Waste Management, Vol.12, pp7-16 (1992) (欧文)
- (7) 小林洋昭他, “廃ガラス熔融炉解体技術開発の現状” PNCT N1340 89-004 動燃技報 No.72 pp49 ~53, (1989)
- (8) 野口一也他 “コールドクルーシブル誘導熔融法の廃棄物ガラス熔融への適用研究” 日本原子力学会1993年春の年会 H-34

小林洋昭他 “コールドクルーシブル誘導熔融法の金属廃棄物熔融への適用” 日本原子力学会1993年秋の大会 L-51
- (9) Moncouyoux J.P. et al., “New Vitrification Techniques” Proceedings of the 3rd International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing & Waste Management RECOD '91 pp307 ~311 (1991)