

JAERI-M  
9192

ホット試験用ガラス固化体作製装置の  
モックアップ試験

1980年11月

田代 晋吾・谷口 彰正・三田村久吉・馬場 恒孝  
妹尾 宗明・上園 裕史・青山 三郎・松本征一郎  
高橋 伸二・森谷 俊夫・荒木 邦夫

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

ホット試験用ガラス固化体作製装置のモックアップ試験

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

田代晋吾・谷口彰正・三田村久吉・馬場恒孝

妹尾宗明・上園裕史・青山三郎・松本征一郎

高橋伸二・森谷俊夫・荒木邦夫

( 1 9 8 0 年 1 0 月 2 1 日受理 )

再処理廃液を用いた高レベル放射性廃棄物ガラス固化体のホット評価試験を実施するために、ガラス固化体作製装置の製作を進めているが、詳細設計を前にその装置のモックアップ試験を行った。

試験項目として、加熱性能及び温度分布、ブロッキング防止と加熱パターン、ガラス固化体の均質化、フリーズバルブ機能、材料の耐久性、装置の遠隔交換性を選びエンジニアリング上の諸点について試験を行った。

その結果、上段加熱によるブロッキングの防止、N<sub>2</sub>ガスのバブリングによるガラスの均質化と廃棄物の揮発、新しいフリーズバルブ機構によるガラスの取り出し方法等ホット試験を行うにあたって有用な情報を得た。

JAERI-M 9192

Mock-up Tests for a Hot Vitrification System

Shingo TASHIRO, Akimasa TANIGUCHI, Hisayoshi MITAMURA, Tsunetaka BANBA  
Muneaki SENOO, Hiroshi KAMIZONO, Saburo AOYAMA, Seiichiro MATSUMOTO  
Shinji TAKAHASHI, Toshio MORIYA and Kunio ARAKI

Division of Environmental Safety Research, Tokai Research  
Establishment, JAERI

(Received October 21, 1980)

A vitrification system for high-level wastes has been designed to prepare actural glass products used for the safety evaluation. For the final design making, mock-up tests of the system were performed.

Heating ability and temperature location, prevention method of blocking phenomenon in the melter, homogenization of the glass products, mechanics of freez valve, durability of used materials, and remote handling of the system were tested on the engineering points.

The prevention of blocking by the heating of the upper zone, the homogenization of the glass products by the bubbling with N<sub>2</sub> gas and its caused volatilization of the waste components, and new mechanics of freez valve were found as the results.

Keywords; High-Level Wastes, Vitrification, Freez Valve,  
Remote Control, Mock-up Test

## 目 次

1. 前 言 .....	1
2. 試験項目及び目的.....	1
2.1 加熱性能及び温度分布 .....	1
2.2 ブロッキング防止と加熱パターン.....	2
2.3 ガラス固化体の均質化 .....	2
2.4 フリーズバルブ機能 .....	2
2.5 材料の耐久性.....	3
2.6 装置の遠隔交換性 .....	3
3. 装 置 .....	3
3.1 概 要.....	3
3.2 各部詳細.....	4
4. 試験方法及び結果.....	6
4.1 加熱性能及び温度分布 .....	6
4.2 ブロッキング防止と加熱パターン.....	7
4.3 ガラス固化体の均質化 .....	7
4.4 フリーズバルブ機能 .....	9
4.5 材料の耐久性.....	11
4.6 装置の遠隔交換性 .....	11
5. 結 言 .....	12
謝 辞 .....	13
参考文献 .....	13

## Contents

1. Preface .....	1
2. Examination items and the purposes .....	1
3. Apparatus .....	3
4. Procedures and Results .....	6
5. Summary .....	12
Acknowledgement.....	13
References .....	13

## 1. 前 言

高レベル放射性廃棄物のガラス固化技術は、すでにフランス、イギリス、アメリカ等の諸外国でホット試験の段階まで進んでおり、多くの報告がなされている。<sup>(1)</sup>

我が国でも動燃事業団ではすでに実廃液の貯蔵が開始されており、昭和60年頃の運転を目指してホットパイロットプラントへの準備がなされている。<sup>(2)</sup>

原研においては高レベル廃棄物固化体の処理処分にかかる安全性について試験研究を進めしており、昭和49年にガラス固化体1ℓを製造する固化試験装置を試作して安全性試験用の試料を作製して来た。<sup>(3)</sup>

現在、コールド模擬試験の結果を基に、実際の再処理廃液を使用した試験を実施するため、廃棄物安全試験施設(Waste Safety Testing Facility : WASTEF)の建設整備を進めている。本施設では、最大 $5 \times 10^4$ Ciの放射能を持った5ℓのガラス固化体を取扱って長期貯蔵及び処分時の安全性試験を実施することにしている。<sup>(4)</sup>これらの試験に供する試料は、ライシングレベル方式によって1バッチ1ℓのガラス固化体を作製可能なガラス固化体作製装置によって作製する。この装置の仕様は、処理能力、ガラス取出し機構、溶融ルツボの材質、オフガス処理系等では、コールド試験装置の運転試験をもとに設計した。しかし、1m以上の遮蔽壁を持った限られたスペースしか持たないセルの中に設置し、遠隔操作によって運転はもとより、保守、交換等まで実施が容易な設計にするには多くの不明な点が残されている。

本試験では、ホット試験用ガラス固化体作製装置としての設計を進める上での技術的な不明点を明らかにし、その対応策を見出すために、溶融ルツボの加熱性能及び温度分布、溶融ルツボ内の仮焼生成物によるブロックキング防止と加熱パターンの関係、ガラス固化体の均質化の方法、フリーズバルブ機能、ルツボ及び熱電対用材料等の耐久性、装置及びその周辺配管等の遠隔交換性についてモックアップ装置を使用して試験した。

## 2. 試験項目及び目的

### 2.1 加熱性能及び温度分布

高レベル廃液をガラス固化する場合、溶融ルツボ内で蒸発減容し、一定量のガラス固化体を作成するため、ルツボ容積は少なくともガラス固化体の数倍の容積を必要とする。この場合、溶融ルツボの加熱帯は溶融ルツボの長さに応じて全面を温度制御できる様にする必要がある。この温度制御を容易にするため、加熱ゾーンを数段に区分し、各々を個別に制御できることが望ましい。加熱炉熱源としては、高周波誘導加熱等の種々の手段が考えられており、その選定が加熱性能に大きな影響をもたらす。さらに、その発熱体は、使用温度及び使用時間によって、その劣化の程度が変化するため、それに応じた発熱体の交換時期及び交換頻度等を知る必要が

ある。溶融ルツボ本体はガラス溶融に必要な高温度（通常1200℃以上）にまで加熱される。この際、炉内の温度分布によつては、ガラスの溶融性状、ルツボの耐久性等が大きく影響される。以上の諸点とホット試験の特殊性を考慮して、本試験では加熱ゾーンを3段に、加熱炉を抵抗加熱方式（発熱体は炭化ケイ素）にし、各加熱ゾーンの最高到達温度、溶融ルツボ内の温度分布及び発熱体の劣化の程度を試験した。

## 2.2 ブロックキング防止と加熱パターン

溶融ルツボ内で仮焼を行う際、硝酸塩が分解し多量の NO<sub>x</sub>ガスが発生する。このガスにより生成した仮焼体が吹き上げられ、溶融ルツボ上部で加熱ゾーンからはずれて凝固してケーキングが発生し、閉塞される恐れがある。ホット試験装置の場合、溶融ルツボ上部が閉塞されると次回の運転が不可能なだけではなく除染も容易に行うことできないのでケーキングの発生を未然に防ぐ必要がある。

本試験では、廃棄物量及び加熱パターンを変えて運転し、ケーキングの発生状況及び防止法を検討した。

## 2.3 ガラス固化体の均質化

溶融ルツボ内で作製されたガラスが不均質であるとガラスの物性評価を実施する際に支障を来たすと共に貯蔵時に固化体内部の温度分布に片寄りが起き、ガラスの物性が変化する可能性がある。

本試験では、ガラスフリットと廃棄物の供給条件、攪拌の有無等の条件を変え、製作したガラス固化体の均質性、密度及び廃棄物の揮発の割合について評価し攪拌機構の有無、また、攪拌する場合は攪拌時間をどの位にしたら良いかを検討した。

## 2.4 フリーズバルブ機能

フリーズバルブは、溶融ルツボ内の溶融ガラスを抜き出すための機構であり、フリーズバルブの径及び形状等により、流出温度、流出状況、流出時間、停止状況等が異なる。

カッターはフリーズバルブから流出してくるガラスの小出し及び糸引き現象の防止のために必要であり、カッターの形状、フリーズバルブとのクリアランス及びカッター内部、フリーズバルブ外表面の冷却等によりガラスの流出停止及びカッターへのガラスの付着が異なってくる。

本試験では、上記の条件を変えて運転し、ホット試験用ガラス固化体作製装置の設計に反映させた。

## 2.5 材料の耐久性

溶融ルツボ及び熱電対保護管は、溶融時に高温の溶融ガラスに晒されるため、構成材質の腐食が問題となる。ホット試験用ガラス固化体作製装置では、高温時の腐食を極力少なくするため、溶融ルツボ及び熱電対保護管には、白金ライニングを行うことにしており、白金の厚み、白金と耐熱材料との反応及び金属間の熱膨張の差による亀裂等が明確ではない。本試験ではこれらについて正確な知見を得るために、熱電対保護管に厚み 0.5 mm の白金ライニングを行い、白金とインコネルの間にはセラミックを溶射したものを試験し、白金及びインコネルの腐食の割合、白金の剥離、亀裂の有無及びセラミック溶射の効果を把握し、ホット試験用ガラス固化体作製装置の材料選定の基礎とすることとした。

## 2.6 装置の遠隔交換性

ホット試験を実施した場合、溶融ルツボは高濃度に汚染する可能性があるので、ホットセル内で直接保守することは難しく遠隔交換する必要がある。

溶融ルツボを遠隔交換する際は、溶融ルツボ単体だけではなく、これらに付随する熱電対、電気炉、及びユーティリティ配管、オフガス配管のコネクタの着脱等の遠隔操作及び交換が必要である。本試験ではこれらの一連の遠隔操作をマニブレータで実施し、装置の遠隔交換性を確性し、ホット試験用ガラス固化体作製装置の設計に反映させた。

# 3. 装 置

## 3.1 概 要

本装置はホット試験用ガラス固化体作製装置の主要部である溶融工程を模擬しており、溶融ルツボ、電気炉、カッター、ガラスフリット供給ホッパー、架台及び配管、電気コネクターで構成されている。

本装置は 1 Run 当り 1 ℥ のガラス固化体を作製できる能力を持ち、電気炉は最高 1300 ℃ まで加熱することができる。また、本装置は遠隔交換性を確性するため、溶融ルツボ上部フランジにはクランプを、電気ケーブル、オフガス配管及びユーティリティ配管には遠隔操作可能なコネクター及び治具を設けマニブレータによる遠隔操作が可能な様にした。その他、電気炉の昇降、熱電対の着脱等についてもマニブレータによる遠隔操作が可能な様にした。なおプロセスフローの詳細は図 1 と全体配置は図 2 及び図 3 に示す。

## 3.2 各部詳細

## (i) 電気炉

- a 型式 : 抵抗式(出力 25.5 kW)
- b 主要寸法 : 620 mm<sup>L</sup> × 700 mm<sup>W</sup> × 1185 mm<sup>H</sup>
- c 主要材質 : 発熱体 炭化ケイ素  
ケーシング SS-41
- d 加熱ゾーン : 3分割
- e 最高加熱温度 : №1 加熱ゾーン 300°C  
№2 " 800°C  
№3 " 1300°C  
フリーズバルブ " 1000°C
- f 昇温速度 : 600°C/hr
- g 制御方式 : ON-OFF制御

## (ii) 溶融ルツボ

- a 型式 : 縱型円筒
- b 主要寸法 : 図4に示す。
- c 主要材質 : インコネル600
- d 速隔操作 : 上部フランジには簡易型クランプを設け、マニプレータにより着脱する。

## (iii) 热電対保護管

- a 主要寸法 : 本体 16.2 mm<sup>Ø</sup> × 1185 mm<sup>H</sup>  
ライニング部 18.1<sup>Ø</sup> × 160<sup>H</sup>
- b 主要材質 : 本体 インコネル600  
ライニング Pt 0.5 mm<sup>t</sup>
- c その他 : インコネルと白金の間にはセラミックを溶射する。

## (iv) 热電対

- a 型式 : シース热電対(4本1組)
- b 主要材質 : 素線 Pt-PtRh  
シース インコネル
- c 主要寸法 : シース外径 1.6 mm<sup>Ø</sup>  
長さ 700, 1000, 1200, 1300 mm
- d 速隔操作 : マニプレータにより热電対を保護管に挿入挿着する。

## (V) カッター

- a 型式 ; カッター移動型 (図5参照)
- b 主要寸法 ; カッター  $16\text{ mm}^L \times 20\text{ mm}^W \times 35\text{ mm}^H$   
カッター台座上部開口  $20\text{ mm}^L \times 50\text{ mm}^W$
- c 主要材質 ; SUS 304
- d 構造 ; カッター内部には冷却水が供給できる。また、冷却用N<sub>2</sub>をフリーズバルブ外表面に供給できる。カッター台座下部には皿バネを設け、溶融ルツボ及びフリーズバルブの熱膨張を吸収しカッターとフリーズバルブのクリアランスを一定にする。
- e 操作 ; カッターの移動は手動で行う。

## (vi) 電気炉架台

- a 型式 ; 上下左右移動型
- b 主要寸法 ;  $1770\text{ mm}^L \times 1140\text{ mm}^W \times 445\text{ mm}^H$
- c 主要材質 ; SS - 41
- d 構造 ; ラチェットスパナを前後に動かすとローラチェーンが回転し、同時にジャッキシャフトが回転し、電気炉が昇降する。昇降距離は約20 mmである。また電気炉は左右に約700 mm移動する。
- e 操作 ; 電気炉昇降用のラチェットスパナの作動はマニプレータにより行い、左右の移動は手動にて行う。

## (vii) 電気用コネクター

- a 型式 ; 水防型コードコネクター
- b 構造 ; 電気用コネクターと治具の据付け状態は図6に示す。
- c 操作 ; マニプレータによりコネクターを治具に挿入しピンで固定する。治具のアームをマニプレータにより引き上げ装着する。取り外しは上記の逆の操作を行う。

## (viii) 配管用コネクター

- a 型式 ; オフガス用 ワンタッチパロット、冷却水用 ワンタッチ式流体接手
- b 構造 ; 配管用コネクターと治具の据付け状態は図7及び図8に示す。
- c 操作 ; マニプレータにより各治具を操作し着脱する。

## 4. 試験方法及び結果

前項に示した項目について合計 28 Run の試験を実施した。その一覧表を表 1 に示す。これらの試験は、各 Run ごとに 3 項目程度を組合せて実施した。供給条件はガラス固化体を作製するものを模擬して供給したものであり、試験の目的に応じてその組成を変えた。昇温時間については常温から溶融ガラス抜き出しまでの時間を示しており、全試験では 158 時間 30 分の運転時間となった。

### 4.1 加熱性能及び温度分布

#### (i) 試験方法

各加熱ゾーンの最高到達温度は、各加熱ゾーンに設けてある熱電対で測定した（図 9 参照）。また、溶融ルツボ内の温度分布は、各加熱ゾーンが最高温度に達し、ルツボ内温度が定常になった時点でルツボ内に挿入してある 4 本の熱電対を上下し、各点の温度を測定した。電気炉及び溶融ルツボ上部フランジ部外表面温度は、上記の条件と同じ条件で、表面温度計により測定した。発熱体の劣化は、運転初期（Run-6）と終期（Run-25）の昇温速度（発熱体にかける電圧を一定した場合の昇温速度）を比較して評価した。

#### (ii) 結 果

各加熱ゾーンの最高到着温度を以下に示す。

No 1 加熱ゾーン	;	1030°C
No 2	"	; 1200°C
No 3	"	1250°C

なお、No 3 ゾーンは溶融ルツボの耐久性を考慮して、1250°C 以上には加熱しなかった。

上記の結果は、装置の詳細に記した設計条件を充分に満足していた。また、Run-16 の溶融ルツボ内の温度分布は図 10 に示す。図に示めされた温度分布であれば、ガラス溶融は充分であるが、蒸発仮焼時に突沸等により廃棄物が加熱ゾーンよりはずれたルツボ上部の箇所に付着した場合を想定すれば、その付着物をも溶解するために No. 1 の加熱ゾーンの上限を高くする必要がある。

電気炉及び溶融ルツボ上部フランジの温度は図 11 に示す様に、設計条件の 200°C 以下を満足しており換排気系への影響は少なく、また、遠隔操作機器にも問題とはならない。

発熱体の劣化は、昇温速度が遅くなることで見出される。表 4 に各 Run の昇温速度を示す。この結果、No. 2 加熱ゾーンに多少劣化が見られるが、No. 1 及び No. 3 加熱ゾーンではほとんど劣化は見られない。20 Run 運転した本試験の結果から、2~3 年間は発熱体を交換せずに運転可能であることが分った。

## 4.2 ブロッキング防止と加熱パターン

### (i) 試験方法

加熱パターンは下段加熱（水分の蒸発はNo.1 加熱ゾーンの電源を切ったままでゆっくりと行う。仮焼はNo.2 及びNo.3 加熱ゾーンがNo.1 加熱ゾーンに比べて、高温度になる様に昇温する。図12 参照）及び上段加熱（水分の蒸発が完了する前にNo.1 及びNo.2 加熱ゾーンを昇温し、No.1 加熱ゾーンが750°Cを越えた後、No.3 ゾーンを昇温する。図13 及び図14 参照）の2つのパターンで実施した。また、ガラスと酸化鉄の割合が95:5 及び80:20 になる様に硝酸鉄を調整し模擬廃棄物として使用した。

運転開始後、仮焼体の吹き上げ高さを測定すると共に、ブロッキングの有無及び溶融ルツボ上部フランジへの仮焼体の付着を観察した。

### (ii) 結 果

ガラスと酸化鉄の割合が95:5 になる様に硝酸鉄を調整したものについて下段加熱した際の時間経過による仮焼体の高さを図15 に示す。この条件の場合、No.1 加熱ゾーンより上部の溶融ルツボ内にケーキングが発生し、ブロッキングが起つたが、ルツボ上部のフランジ面には仮焼体の付着は見られなかった。

なお上記の条件でケーキングが発生したため、ガラスと硝酸鉄の割合が80:20 になるものに関しては試験は実施しなかった。

硝酸鉄の供給条件は上記と同様にし、上段加熱した際の時間経過による仮焼体の吹き上げ高さを図16 に示す。この条件の場合、溶融ルツボ内にはケーキングの発生は見られなかった。また、溶融ルツボ上部フランジ面にも、仮焼体の付着は見られなかった。

ガラスと酸化鉄の割合を80:20 になる様に硝酸鉄を調整し、より悪い条件で上段加熱した際の時間経過による仮焼体の吹き上げ高さを図17 に示す。この条件の場合、上記の上段加熱の場合と同様の結果が得られた。これらの結果より、ホット試験用ガラス固化体作製装置では上段加熱方式で運転し、ブロッキングを防止することにした。

## 4.3 ガラス固化体の均質化

### (i) 試験方法

溶融ルツボ内に供給するガラスフリット及び廃棄物の供給方法、攪拌の有無及び攪拌時間は以下に示す様な条件に設定し、溶融ガラス化した。なお攪拌はバブリング管を通して窒素を供給して行った。

- ガラスフリットと廃棄物を均一に混合して供給し、攪拌は行わない。
- ガラスフリットと廃棄物を二層になる様に供給し、攪拌は行わない。
- (b)と同等の供給条件とし、攪拌は溶融時間と同じ2時間行う。なお、攪拌窒素は約1.5 l/hrで供給する。
- (b)の条件で作製したガラスを粉碎混合して供給し（再溶融），攪拌は行わない。

(e) 廃棄物に硝酸セシウムを添加し、ガラスフリットと均一に混合して供給し、攪拌は行わない。

(f) (e)と同等の供給条件とし、攪拌は溶融時間と同じ2時間行う。

(g) (e)と同等の供給条件とし、攪拌は30分間行い1時間30分静置する。

作製したガラス固化体の均一性及び揮発率は、上記の各条件で作製したガラスを取り出し時間を追って30~50秒の間隔でフリーズバルブより5~8回サンプリングし、その試料を螢光X線装置及び原子吸光分析装置による分析結果から求めた。

密度は、アルキメデス法によって求めた。

## (ii) 結 果

ガラス固化体の均一性は、(i)の(a)~(g)の条件で作製したガラスの各時間ごとに収集したサンプルについて、螢光X線分析を行い、その測定値の標準偏差を求め評価した。その結果を表5に示す。攪拌しない場合、ガラスの均一性は、二層で供給した場合よりも均一に混合し供給した場合の方が良く、また、再溶融すると均一性が良くなる。攪拌を行った場合、Seを除くと、攪拌しない場合(再溶融も含む)に比較して均一性は向上する。また、攪拌時間を比較するとNiについては均一性は向上するが、Csについてはあまり変化は見られなかった。

(i)の(a)~(g)の条件で作製したガラスの各時間ごとに採取したサンプルの密度の測定結果を図18に示す。2時間の攪拌を行った場合、行わない場合に比較して、全体的に密度は低下している。また、サンプルの採取の時間経過と共に密度は低下する。密度低下の原因是、攪拌に使用した窒素がガラス固化体中に微細気泡として残っているためであり、時間経過と共に密度が減少するのは、窒素ガスの気泡が溶融ルツボの上部ガラス側に多く残っているためであろう。30分の攪拌をした場合の密度は、攪拌しない場合の密度とほぼ同じである。これは30分の攪拌後、1時間30分攪拌せずに静置しているため、この時間内に窒素ガスがガラス中から抜け出るためと考えられる。

揮発の割合は、供給した廃棄物の内、SeとCsについて測定した。Seは2時間の攪拌で、攪拌しない場合に残っている量を1とすると0.1しか残っておらず0.9が揮発し30分の攪拌では0.7が残り0.3の揮発が認められた。一方、Csは2時間の攪拌で、攪拌しない場合に比較して4.4%の揮発が認められたが、30分の攪拌では、攪拌しないものと同じであつた。

上記の結果より、攪拌なしの1回の溶融では十分に均質なガラス固化体を得ることは困難であることが分り、それを補う方法として、一度固化したガラスを粉碎混合して再溶融する方法と、バーリングによる攪拌の方法が有力である。共に再溶融は取扱い上の問題が、バーリングには廃棄物の揮発の問題が残るが、今後解決できない問題ではなかろう。

#### 4.4 フリーズバルブ機能

##### (i) 試験方法

フリーズバルブ機能を評価するために、下記に示す条件で運転し、流出までの時間、流出温度、流出時間を測定すると共に、流出状況及び停止状況を観察した。

- a フリーズバルブは径を  $10\text{ mm}^\phi$ 、先端を  $7\text{ mm}^\phi$  に絞った形状を使用し、カッターとフリーズバルブのクリアランスは  $2\text{ mm}$  とした。
- b フリーズバルブは径が  $10\text{ mm}^\phi$  物を使用し、カッターとフリーズバルブのクリアランスは  $0.5\text{ mm}$  とした。
- c フリーズバルブ径は  $10.9\text{ mm}^\phi$  とし、先端の外側には  $45^\circ$  のテーパを付けた形状を使用し、カッターとフリーズバルブのクリアランスは  $0.2\text{ mm}$  とした。
- d フリーズバルブ径は  $7.8\text{ mm}^\phi$  とし、カッターとフリーズバルブのクリアランスは  $0.2\text{ mm}$  とした。

なお、(ii)の結果でも示す様に、上記 a 及び b の条件では、流出状況及び停止状況が満足されるものではなかったため、c 及び d の試験ではカッターを下記に示す様に改造して試験した。

##### カッター改造箇所

- イ. カッター寸法を  $22\text{ mm}^L \times 28\text{ mm}^W \times 25\text{ mm}^H$  と大きくした。
- ロ. 台座内寸法を  $35\text{ mm}^L \times 50\text{ mm}^W$  と広くした。
- ハ. 台座内面中に冷却水を供給出来る様にした。

##### (ii) 結 果

(i)の a ~ d の条件で運転した結果を以下に示す。

###### a の条件の場合

- イ. 流出までの時間 ; 約 7 分
- ロ. 流出温度 ; 約  $760^\circ\text{C}$
- ハ. 流出時間 ; 約 7 分
- ニ. 流出状況 ; 流出は一定ではなく、流出途中で曲がって台座内面をつたわって流れる場合が多かった。また、台座内面のステンレスにはガラスが付着した。
- ホ. 停止状況 ; №4 加熱ゾーンの電源を切った後カッターは入れずに、冷却窒素を  $2\text{ m}^3/\text{hr}$  で 1 分間フリーズバルブ外表面に供給したが、ガラスの流出を停止できなかった。また、カッターを入れた後、直ちに窒素ガスを供給したが、流出は止められず、カッターとフリーズバルブのクリアランスからガラスが流出した。

###### b の条件の場合

- イ. 流出までの時間 ; 約 5 分

- ロ. 流出温度 : 約 760°C  
 ハ. 流出時間 : 約 5 分  
 ニ. 流出状況 : 真直ぐ流出する場合と、途中で曲がって台座内面をつたわって流れる場合があった。特にカッターを入れた後、台座内面をつたわってガラスが流出する事が多かった。  
 ホ. 停止状況 : №4 加熱ゾーンの電源を切った後、カッターを入れ、直ちに窒素ガスを  $4.1 \text{ m}^3/\text{hr}$  供給すると、カッターとフリーズバルブのクリアランスからガラスが少しほみだして流出が停止する場合と、40~60秒程度流出してから、停止する場合があった。

c の条件の場合

1. 流出までの時間 : 約 4 分  
 ロ. 流出温度 : 約 760°C  
 ハ. 流出時間 : 一  
 ニ. 流出状況 : 流出は良好であり、台座の内側をつたわった流出することはなかった。  
 ホ. 停止状況 : №4 加熱ゾーンの電源を切った後、カッターを入れ、直ちに窒素ガスを  $3 \text{ m}^3/\text{hr}$  供給すると、ガラスはカッターの後側を少し流出した後固まって停止した。

d の条件の場合

1. 流出までの時間 : 約 6 分  
 ロ. 流出温度 : 約 810°C  
 ハ. 流出時間 : 一  
 ニ. 流出状況 : 流出は良好であり、台座の内側をつたわって流出することはなかった。また、カッターを入れて戻した後の流出も良好であった。(なお、流れを人為的に変えて台座の内壁をつたわらせたが、台座にはガラスは付着しなかった。)  
 ホ. 停止状況 : №4 加熱ゾーンの電源を切った後、カッターを入れ、直ちに窒素ガスを  $3 \text{ m}^3/\text{hr}$  供給すると、ガラスの流出は直ちに停止した。また、№4 加熱ゾーンを通電したままで、窒素ガスも供給せずにカッターを入れた場合にもガラスの流出は直ちに停止できた。なお、カッターを入れる場合、ゆっくり入れないと  $3\sim5 \text{ mm}^\phi$  のガラス球が飛ぶことが多かつた。

以上の結果を総合的に評価すると d の条件が最良であり、d の条件で 3 Run の確認試験を行ったがいずれも良好な結果を得たので、これをホット試験用ガラス固化装置のエンジニアリングの設計基礎条件とした。

#### 4.5 材料の耐久性

##### (i) 試験方法

白金及びインコネルの腐食の割合、白金の剝離、亀裂の有無及びセラミック溶射の効果を把握するため、各Runの終了ごとに熱電対保護管を溶融ルツボから抜き出し、保護管の外観及び外径の変化を目視及びノギスにより測定した。

##### (ii) 結 果

白金ライニング部の外観及び外径変化を以下に示す。

###### a. 先端から 20 mm 付近 :

158時間30分の運転では外径の変化は見られず ( $18.1\text{ mm}^\phi$ )、また、剝離、亀裂は見られなかった。

###### b. 先端から 60 mm 付近 :

158時間30分の運転で外径は  $18.1\text{ mm}^\phi$  から  $18.3\text{ mm}^\phi$  に変化したが、剝離、亀裂は見られなかった。

###### c. 先端から 130 mm 付近 :

50時間の運転で外径は  $18.1\text{ mm}^\phi$  から  $19\text{ mm}^\phi$  に変化し、その後運転ごとにふくらみ 119 時間後に外径は  $21.4\text{ mm}^\phi$  に変化し、亀裂が 3ヶ所出来た(図19参照)。外径が大きくなり亀裂が入った原因是、インコネルに白金を固定している箇所にクリアランスが生じこの中にガラス及び溶融金属が入り込んだためである。

###### d. 白金ライニング全般 :

白金外表面は 1 Run 運転後から輝きはなくなり、Run 数が多くなるにつれてガラスが付着しやすくなった。

一方、インコネルは 158 時間 30 分の運転で外径は最大  $16.2\text{ mm}^\phi$  から  $15.4\text{ mm}^\phi$  に減少し、表面には剝離が見られた。

以上の結果より、白金自体はほとんど腐食されないので、白金ライニングの肉厚は 0.5 mm 以上あれば充分と思われる。また、セラミック溶射の効果は、同条件でセラミック溶射しない場合 2 Run 程度で剝離を経験しており、それに比較して充分効果があったと思われる。なお、白金ライニングとインコネルの固定化に関して、クリアランスができない様に再度検討する必要がある。インコネルに関しては充分腐食しろを取れば長期の使用に耐えられると思われる。

#### 4.6 装置の遠隔交換性

##### (i) 試験方法

遠隔交換の対象機器をホット試験用ガラス固化体作製装置と同様に配置し、マニブレータにより操作性を試験した。なお、マニブレータは AMF 製の ER-40 を使用した。以下

に溶融ルツボの交換の一連の操作方法を述べる。なお、以下に述べるのは溶融ルツボを取り外す場合の操作方法であり、装着する場合は逆の操作を行う。

溶融ルツボフランジをしめついているネジの頭にあけた穴に、マニプレータによりシャフトを挿入し回転させネジをゆるめる。ネジがゆるんだらクランプをフランジからはずす。次に、マニプレータにより電気炉昇降用のラチエットスパナを前後に動かし 20 mm 電気炉を下げる。次に電気用コネクター着脱用の治具のアームをマニプレータにより下にさげ、コネクターを固定しているピンを抜き取る。次に、配管用コネクター着脱用の治具をマニプレータで操作し配管をはずす。次に、マニプレータにより熱電対を保護管より抜き出す。次に電気炉を移動し、チェーンブロックにより溶融ルツボを抜き出す。

## (ii) 結 果

溶融ルツボの交換の一連の操作を行った結果、以下に示す様な問題点があった。

溶融ルツボフランジの着脱の場合、マニプレータの操作上クランプの取り付け位置、シャフトの形状及び締め付け程度の把握に問題があった。電気炉昇降の場合、ラチエットスパナの長さが充分ではなく、操作する際、7 kg 以上の荷重が必要であった。また、電気用コネクターの着脱の場合も、アーム長さが充分ではなく操作する際、10 kg 以上の荷重が必要であった。熱電対の着脱は、熱電対保護管の取り付け位置に問題があり、マニプレータの操作範囲内では着脱出来なかつた。溶融ルツボを電気炉に据付ける場合フリーズバルブの芯出しが充分ではなかつた。

上記の問題点は、ホット試験用ガラス固化体作製装置の詳細設計を行ひに際しては、この結果をふまえて改良し、必要な場合は再度部分的な機構についてモックアップ試験を実施し、確認した後製作する予定である。

## 5. 結 言

ホット試験用の高レベル放射性廃棄物ガラス固化体を作製するガラス固化体作製装置の設計製作に先だち、設計上の不明確な点を試験するためモックアップ試験を行つた結果、次の様な知見を得た。

加熱炉の最高到達温度 1250°Cにおける炉表面の温度は 155°C であり、それらは設計値を満足していた。

溶融ルツボ内の生成仮焼体のブロッキングは上部加熱ゾーンから昇温するという上段加熱方式を行えば防止できる。

ガラス固化体の均質化については、再溶融方式と共に N<sub>2</sub> ガスバーリング方式も有効であることが分つた。

フリーズバルブ機能はバルブとカッターとのクリアランスを狭くし、カッターを大きくすることによって良好な作動を得ることができる。

材料の耐久性については、158 時間 30 分の運転によって白金ライニングは継目の部分を除いて健全であった。インコネルは厚みで 0.4 mm の減少が見られた。

装置の遠隔交換性については基本的な点でなお検討の余地が残っており今後さらに試験が必要である。

### 謝 詞

本試験を実施するに当たり御指導と御援助を賜った天野 恕 安全性試験研究センター長に感謝致します。

マニブレータの使用に関し御援助と御助言を頂いた群分離研究室 中村治人室長に感謝する。

ガラス固化体の螢光X線分析について御援助と御助言を頂いた環境第2研究室 笠井 篤室長並びに関根敬一副主任研究員に感謝する。

また、本試験において常に適切な御助言を頂いた三井造船原子力事業部鈴木重紀氏に感謝する。

### 参 考 文 献

- (1) IAEA : Techniques for the solidification of high-level wastes, IAEA Technical Reports Series № 176 (1977).
- (2) 動燃事業団 ; 高レベル放射性廃棄物の固化貯蔵に関する研究開発の現状について (Ⅵ), № 141, 80-05 (1980).
- (3) 馬場恒孝, 他 ; 模擬高レベル廃棄物ガラス固化体の安全性試験 (I) ( 固化体の熱的安定性 ), JAERI-M 8706 (1980).
- (4) 田代晋吾, 他 ; 廃棄物安全試験施設の概念設計, JAERI-M 8485 (1979).

表1 試験実施一覧表

Run番号	試験項目 <sup>*1</sup>	供給原料 <sup>*2</sup>	昇温時間	備考
1	(6)	—	—	
2	(1), (4), (5)	ガラスフリット, 水	4時間30分	
3	(1), (4), (5)	ガラスフリット, 水	5時間20分	
4	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	4時間45分	電気炉及び溶融ルツボ外表面温度測定
5	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	4時間15分	
6	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	3時間	
7	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	3時間	フリーズバルブ径を1.0φにし, カッタとのクリアランスを0.5mmとする。
8	(1), (3), (5)	ガラスフリット, 廃棄物, 水	6時間45分	均一混合供給
9	(1), (3), (5)	ガラスフリット, 廃棄物	7時間15分	供給原料を二層にして供給
10	(1), (3), (5)	ガラスフリット, 廃棄物	6時間	搅拌を実施
11	(1), (3), (5)	再溶融ガラス	5時間	Run-9のガラスを再溶融
12	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	4時間	
13	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	5時間	
14	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	4時間	
15	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	3時間45分	
16	(1), (2), (5)	ガラスフリット, 硝酸鉄, 水	11時間	ガラスフリット:酸化鉄=95:5 下段加熱
17	(1), (2), (5)	ガラスフリット, 硝酸鉄, 水	9時間30分	ガラスフリット:酸化鉄=95:5 下段加熱
18	(1), (2), (5)	ガラスフリット, 硝酸鉄, 水	8時間	ガラスフリット:酸化鉄=95:5 下段加熱
19	(1), (2)	—	9時間30分	Run-18の続き
20	(1), (3), (5)	ガラスフリット, 廃棄物	7時間15分	硝酸セシウムを添加して均一混合供給
21	(1), (3), (5)	ガラスフリット, 廃棄物	7時間15分	硝酸セシウムを添加して搅拌を2時間実施
22	(1), (3), (5)	ガラスフリット, 廃棄物	7時間15分	硝酸セシウムを添加して搅拌を30分間実施
23	(1), (2), (5)	ガラスフリット, 硝酸鉄, 水	7時間15分	ガラスフリット:酸化鉄=95:5 上段加熱
24	(1), (2), (5)	ガラスフリット, 硝酸鉄, 水	6時間30分	ガラスフリット:酸化鉄=80:20 上段加熱
25	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	4時間	フリーズバルブ径1.0.9φにし, カッタとのクリアランスを0.2mmとする。
26	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	4時間	フリーズバルブ径を7.8φとする。
27	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	5時間	
28	(1), (4), (5)	再溶融ガラス	5時間30分	電気炉及び溶融ルツボ外表面温度測定

\* 1 試験項目の(1)~(6)の内容を以下に示す。

- |                |                     |
|----------------|---------------------|
| (1) 加熱性能及び温度分布 | (2) ブロッキング防止と加熱パターン |
| (3) ガラスの均一性    | (4) フリーズバルブ機能       |
| (5) 材料の耐久性     | (6) 装置の遠隔交換性        |

\* 2 供給原料のガラスフリット, 廃棄物の組成及び供給量は表2, 表3に示す。

表2 ガラスフリット組成及び供給量

組 成	供 紹 量 (g)
SiO <sub>2</sub>	1 3 1 6. 0 0
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3 9 7. 9 9
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 1 1. 4 4
Na <sub>2</sub> O	5 8 9. 0 2
K <sub>2</sub> O	3 4. 4 9
CaO	2 0 4. 3 0
合 計	2 6 5 3. 2 4

表3 廃棄物組成及び供給量

組 成	供 紹 量 (g)
CsNO <sub>3</sub>	3 1. 4 2
K <sub>2</sub> O	9. 0 1
CaO	4 5. 8 9
TiO <sub>2</sub>	2 4. 7 7
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3 0. 2 8
MnO <sub>2</sub>	7. 4 5
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	7 5. 5 7
CoO	2. 7 8
NiO	1 5. 3 6
SeO <sub>2</sub>	3. 6 6
Na <sub>2</sub> O	7 4. 0 2
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	7. 4 7
合 計	3 2 7. 6 8

表4 各Runにおける昇温速度

Run番号 運転条件 加熱ゾーン	Run - 6			Run - 25		
	昇温速度 (°C/hr)	タップ電圧 (V)	温度範囲 (°C)	昇温速度 (°C/hr)	タップ電圧 (V)	温度範囲 (°C)
No.1 加熱ゾーン	3 9 6	5 1	30～ 400	4 1 8	5 1	30～ 400
	1 8 4	5 1	400～ 800			
	2 0 5 5	5 6	30～ 400	1 5 1 6	5 6	30～ 400
No.2 加熱ゾーン	4 2 2	5 6	400～ 800	4 1 6	6 0	400～ 800
	2 8 4	5 6	800～1000	3 2 8	6 4	800～1000
	3 5 6 2	6 5	30～ 500	3 6 2 5	6 5	30～ 500
No.3 加熱ゾーン	4 2 8	6 5	500～ 900	3 7 2	6 5	500～ 900
	4 6 2	7 5	900～1100	3 1 3	7 0	900～1100
	2 7 7	7 5	1100～1200	3 5 0	7 5	1100～1200

表5 試料中の各元素の不均一性(標準偏差)

評価元素 試験条件	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(f)	(g)
Ni	7.0	10.4	2.2	3.1	24.0	6.8	13.4
Se	10.9	21.0	30.0	9.9	56.0	15.5	12.0
Cs	-	-	-	-	10.4	3.4	3.5

表中の値は次の式より求めた;

$$\sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n - 1}} \times 100$$

x : 測定値

- (a) ; 均一混合して供給し, 搅拌は行わない。
- (b) ; 二層で供給し, 搅拌は行わない。
- (c) ; (b)と同じ条件で供給し, 搅拌を2時間行う。
- (d) ; (b)の条件で作製したガラス固化体を粉碎混合して供給し, 搅拌は行わない。
- (e) ; 均一混合(Csを添加)して供給し, 搅拌は行わない。
- (f) ; (e)と同じ条件で供給し, 搅拌を2時間行う。
- (g) ; (e)と同じ条件で供給し, 搅拌を30分間行い, 1時間30分静置する。

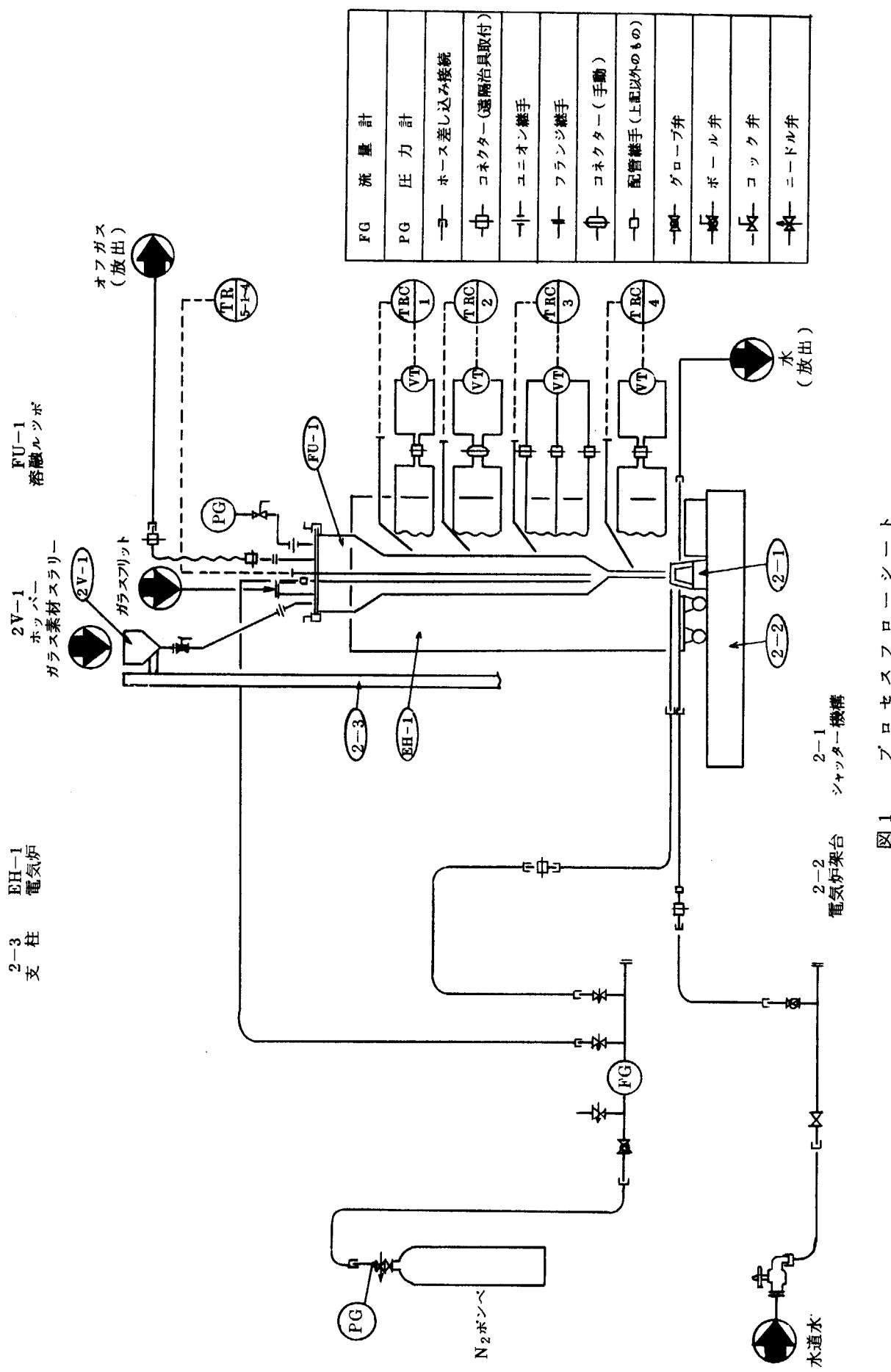


図 1 プロセスフロー・シート

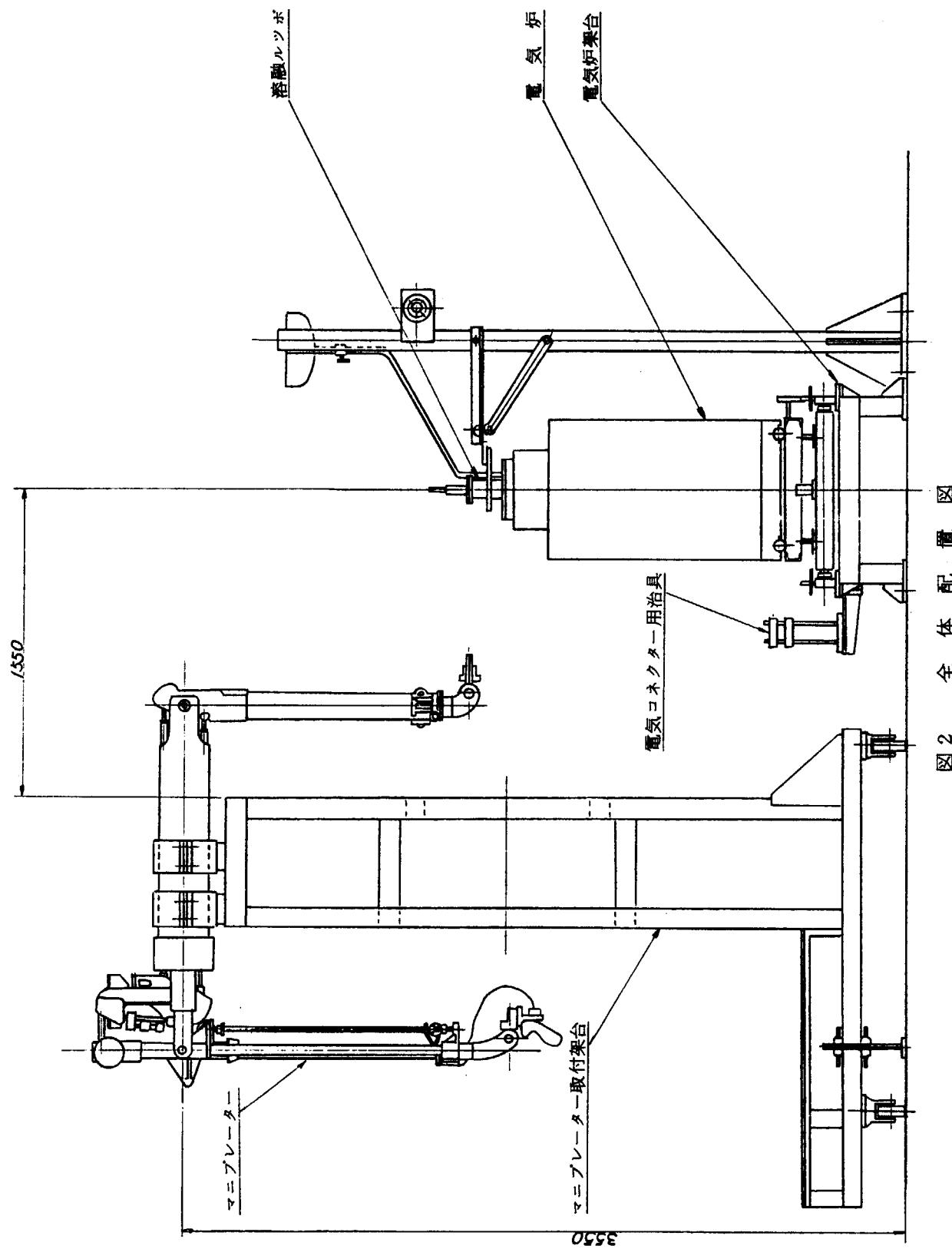
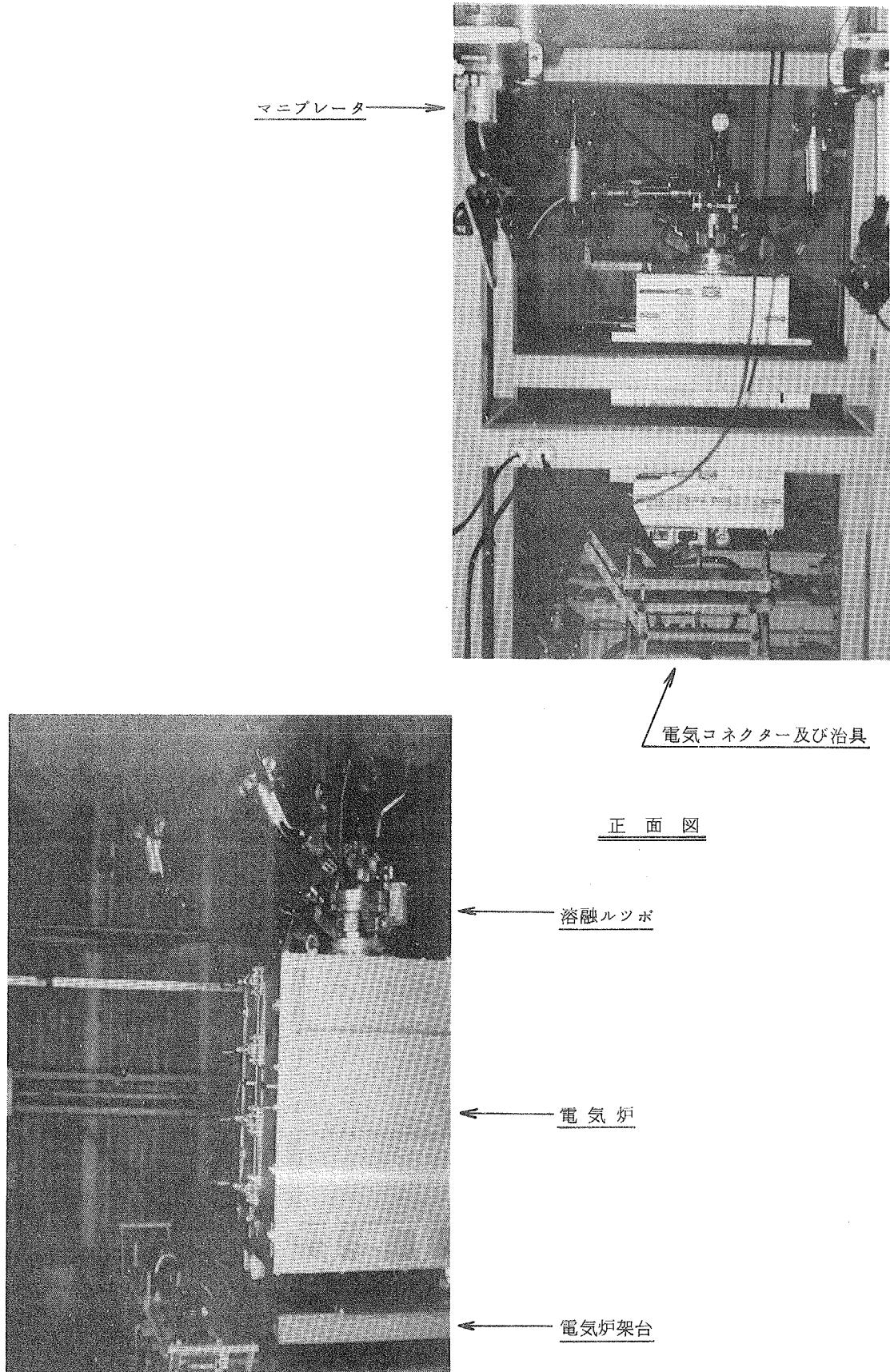


図2 全体配置図



側面図

図3 全体配置写真

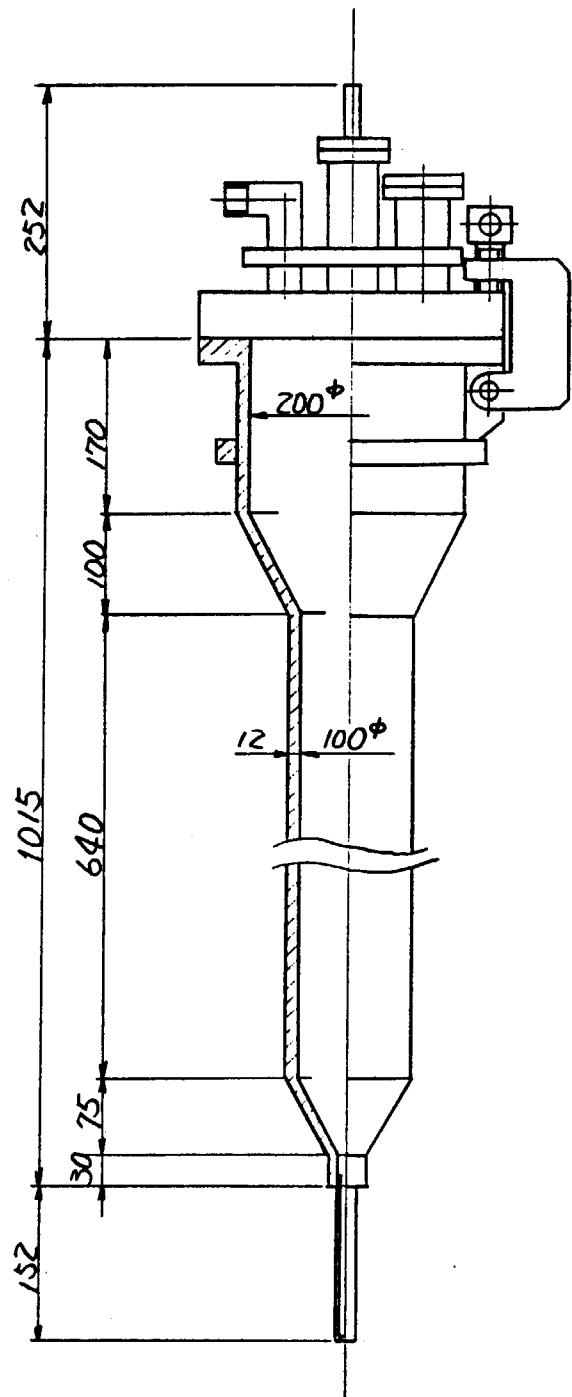


図4 溶融ルツボ寸法

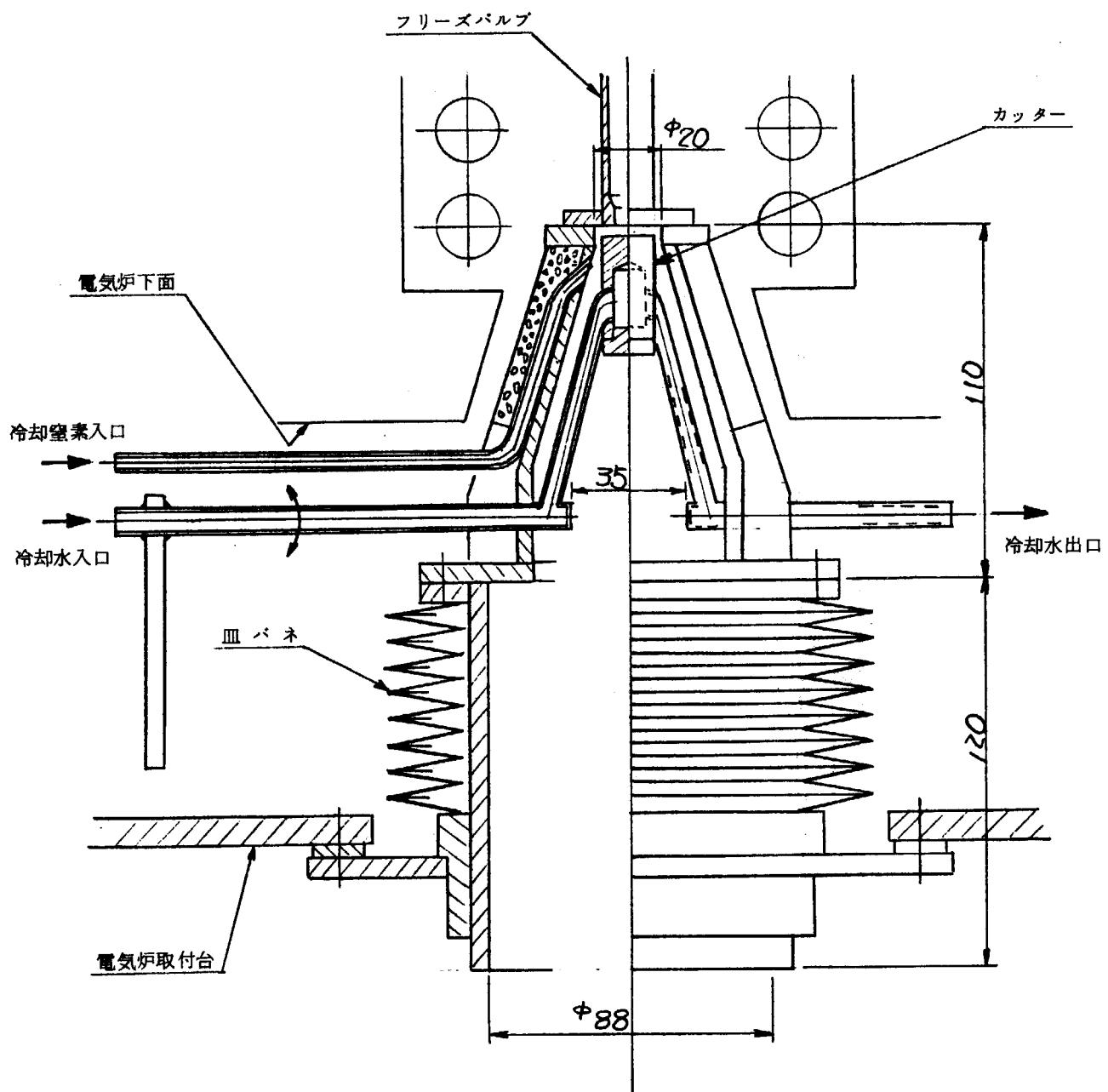


図5 カッター構造図

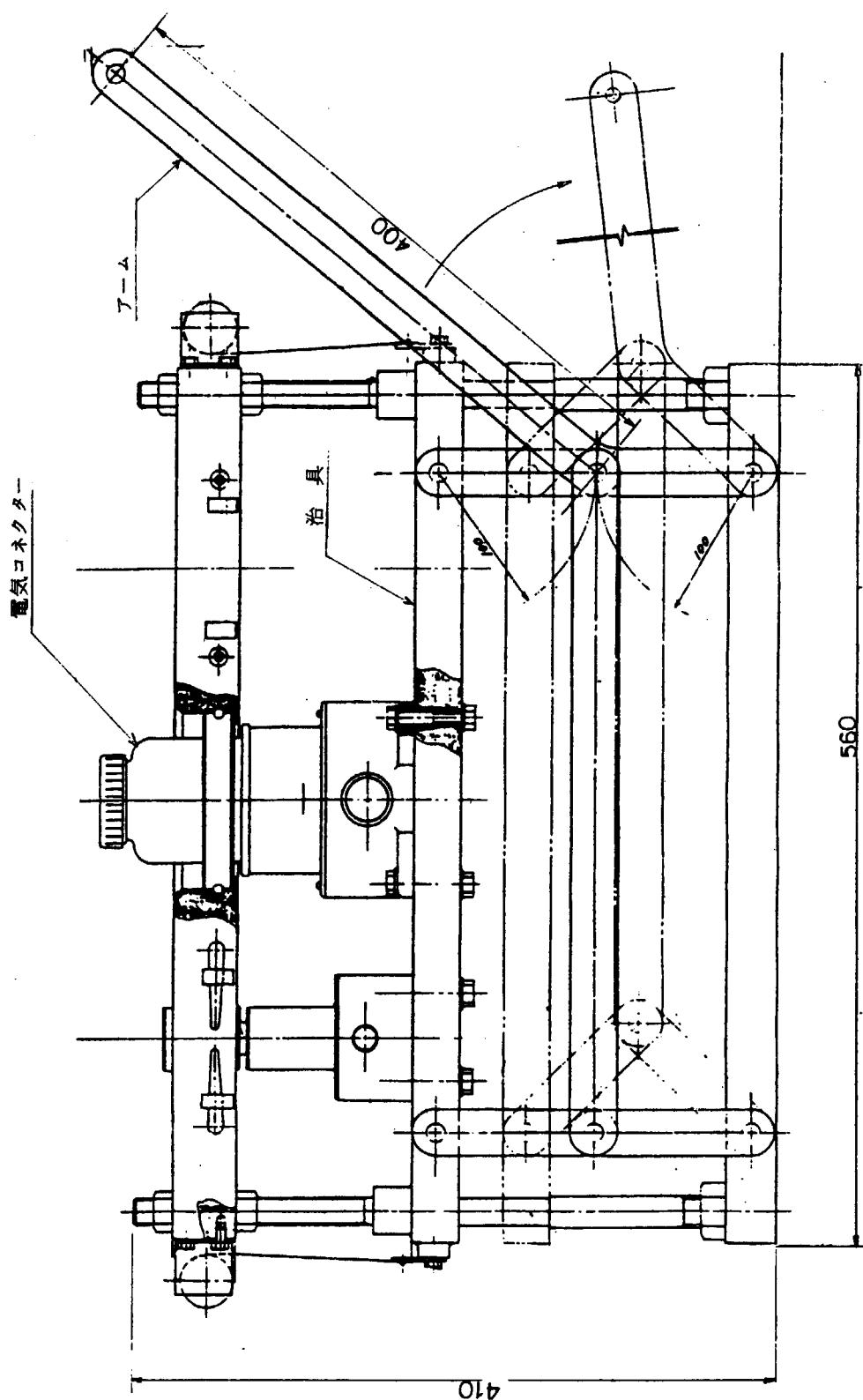


図6 電気用コネクター一括付図

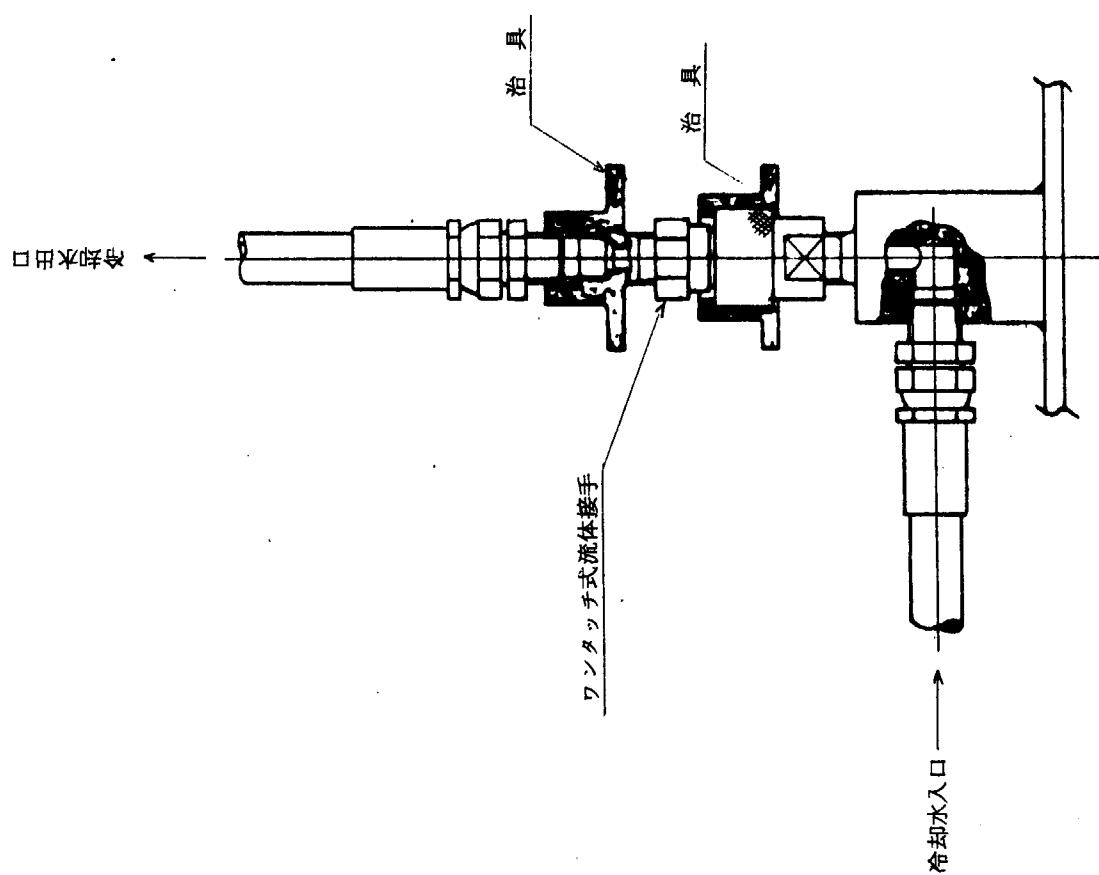


図 7

配管用コネクター据付図（冷却水用）

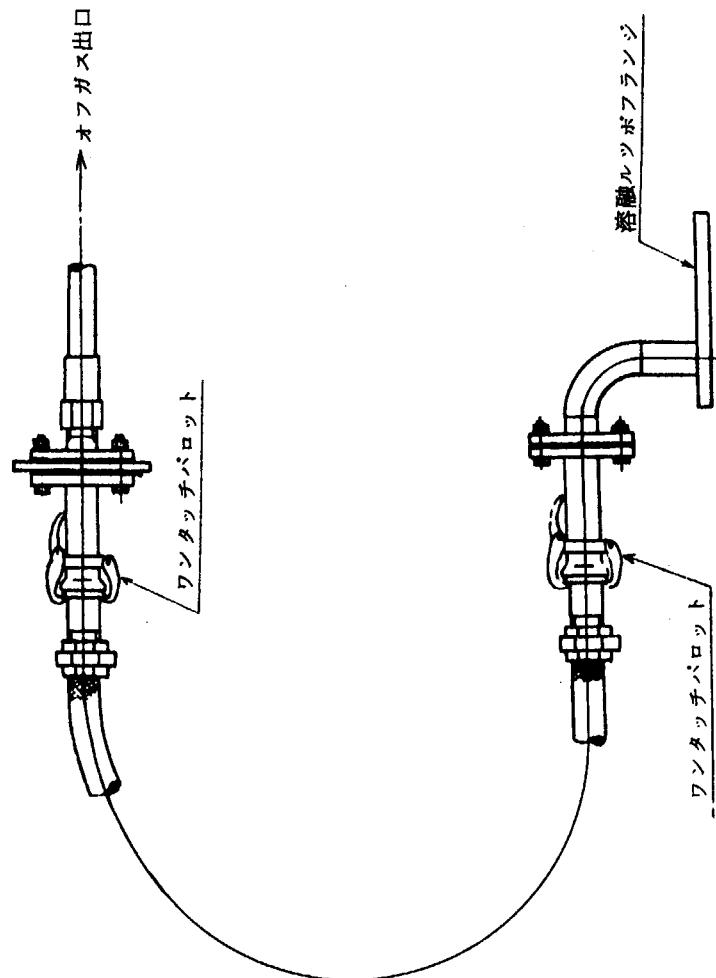


図 8 配管用コネクター据付図（オフガス用）

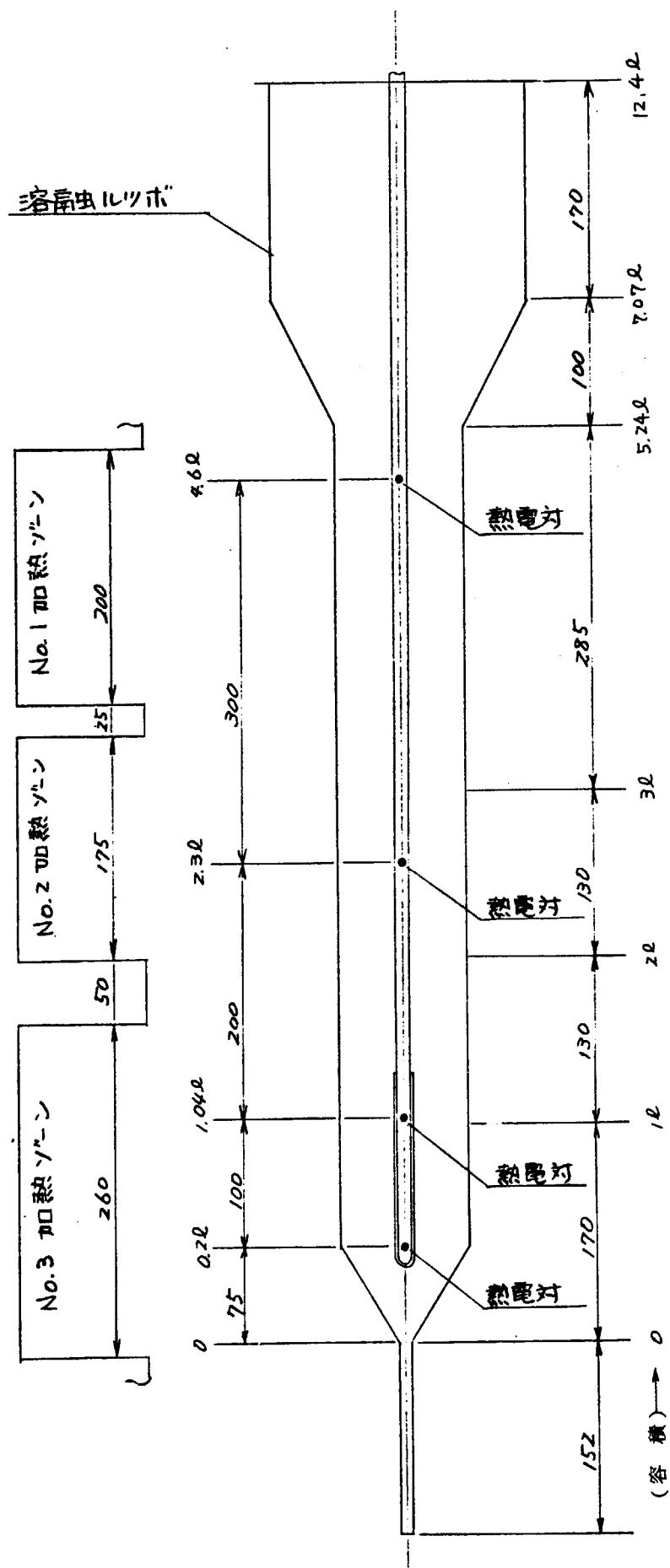


図9 熱電対配置図

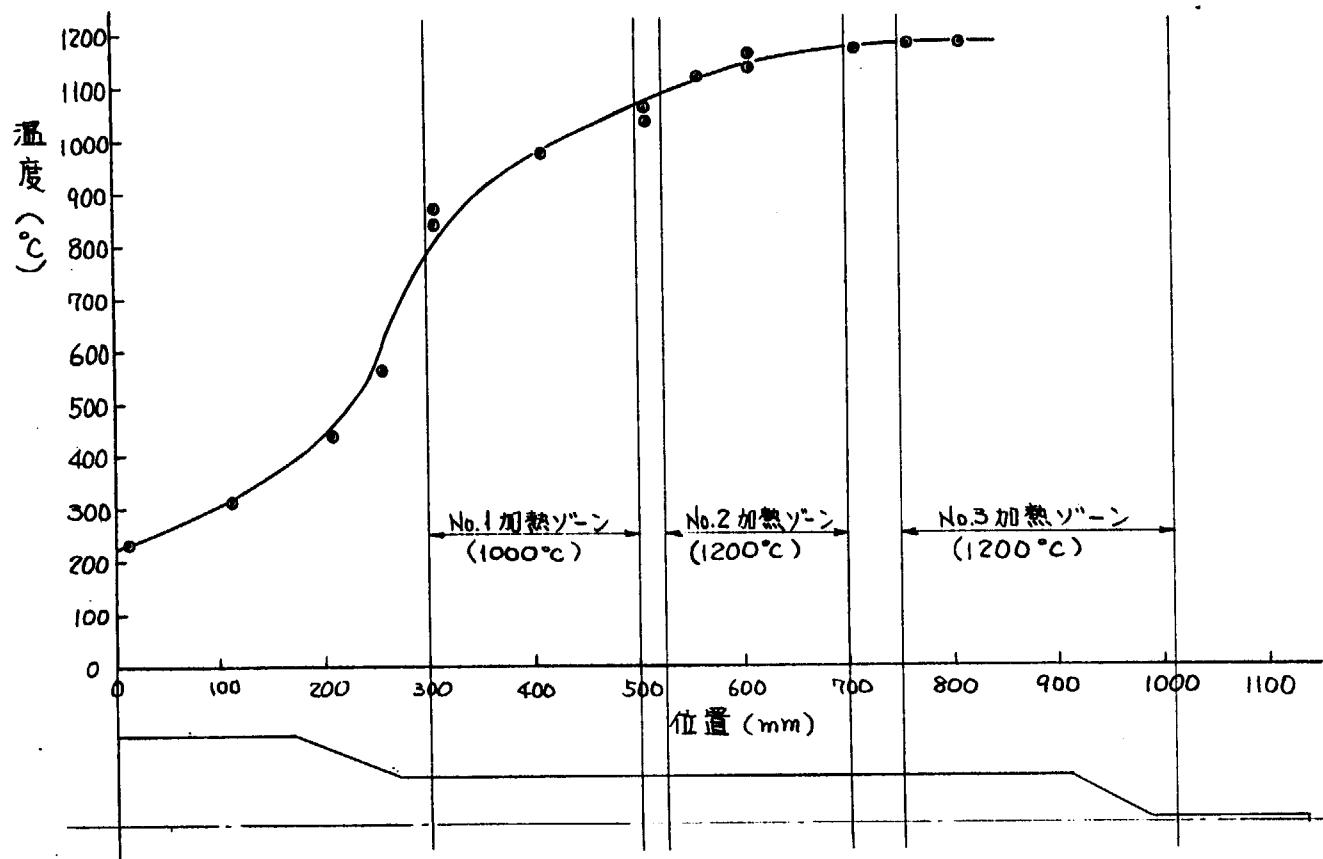


図10 溶融ルツボ内温度分布 (Run-16)

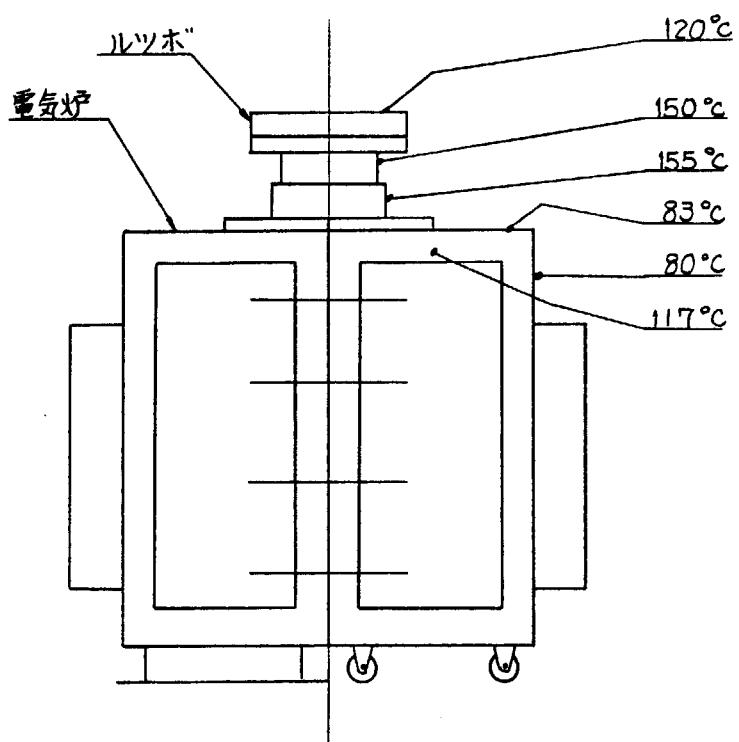


図11 電気炉および溶融ルツボ表面温度

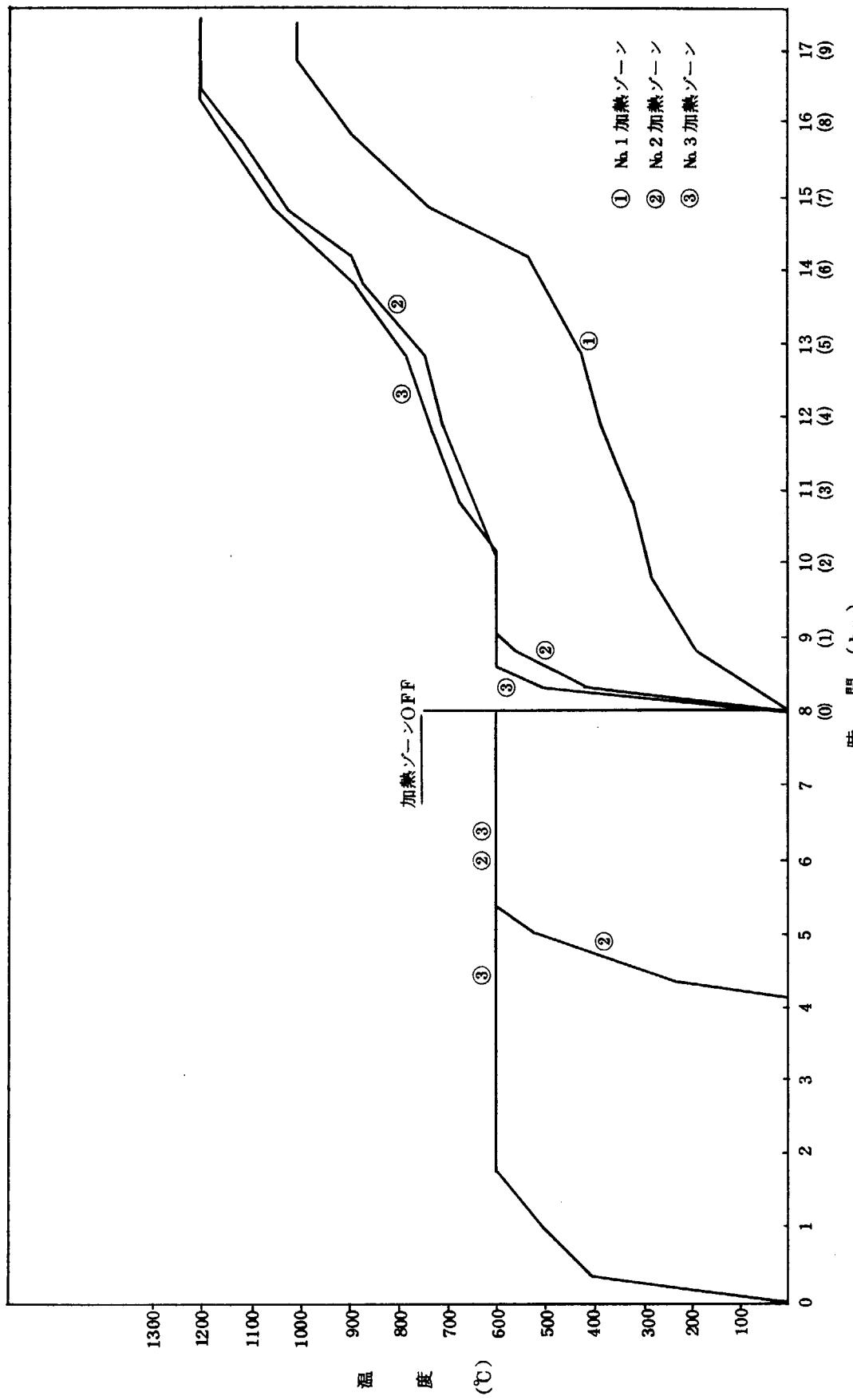


図 1.2 下段加熱運転モード

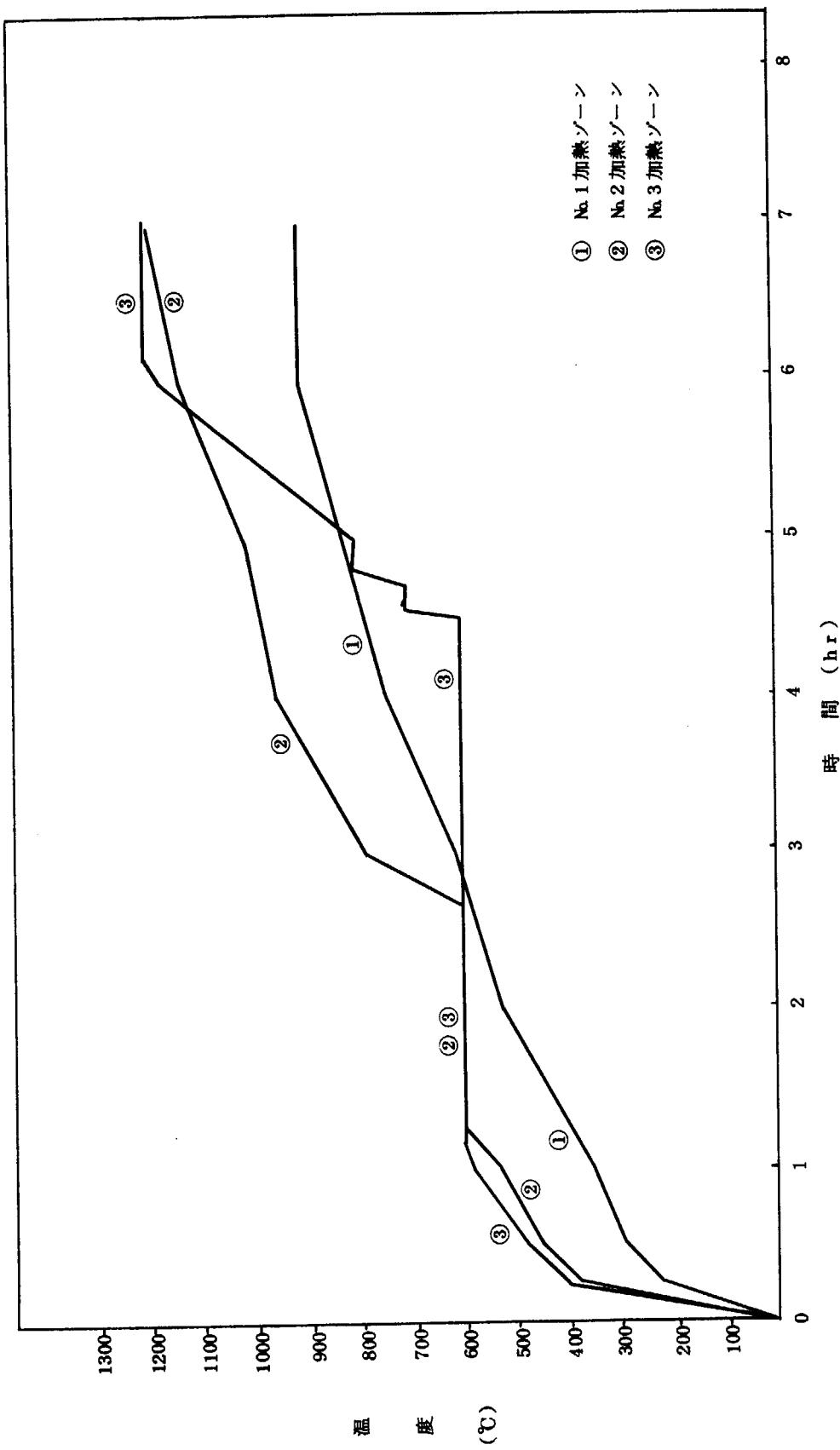


図 13 上段加熱運転モード(ガラスと酸化鉄の比=95:5)

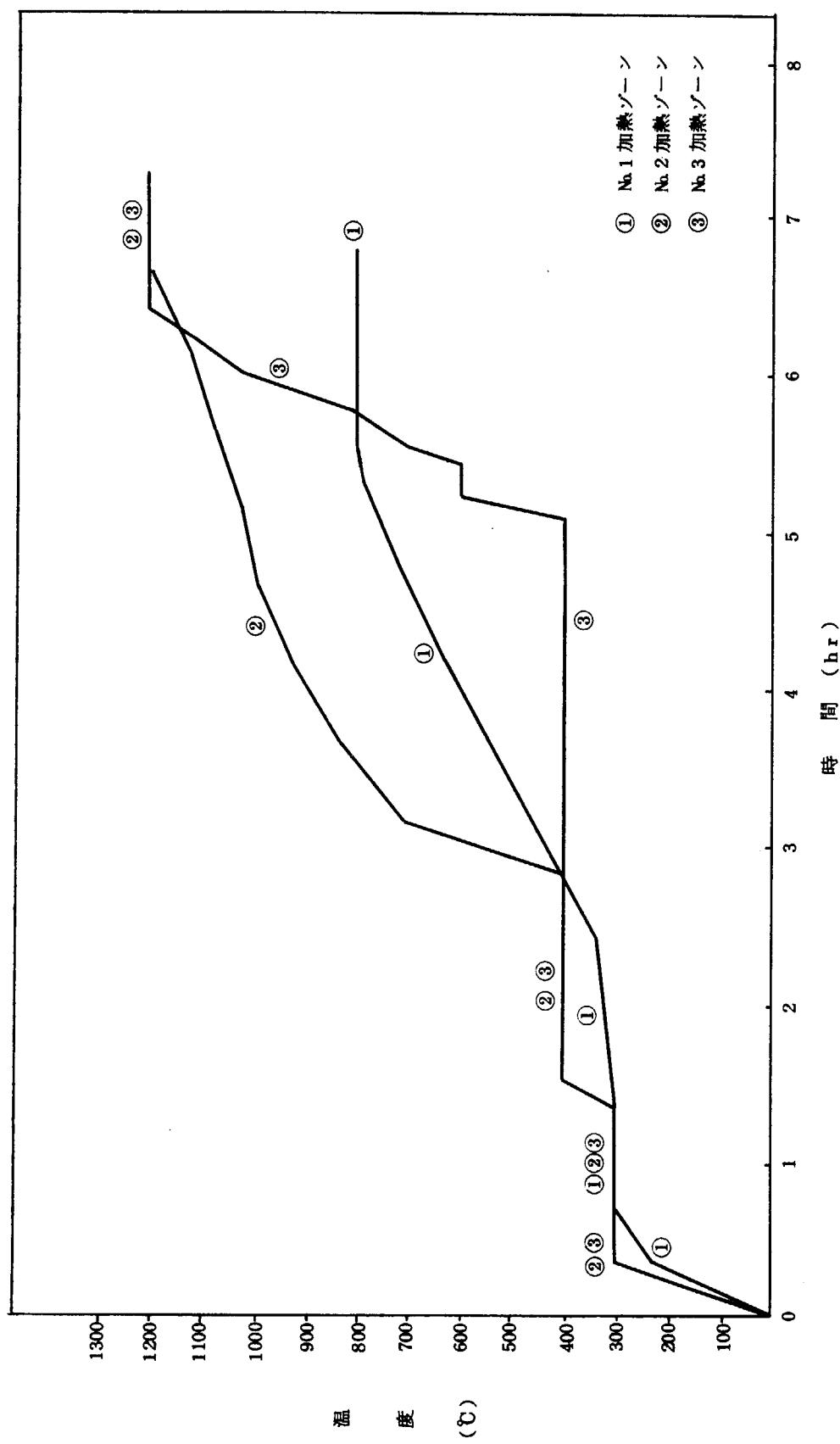
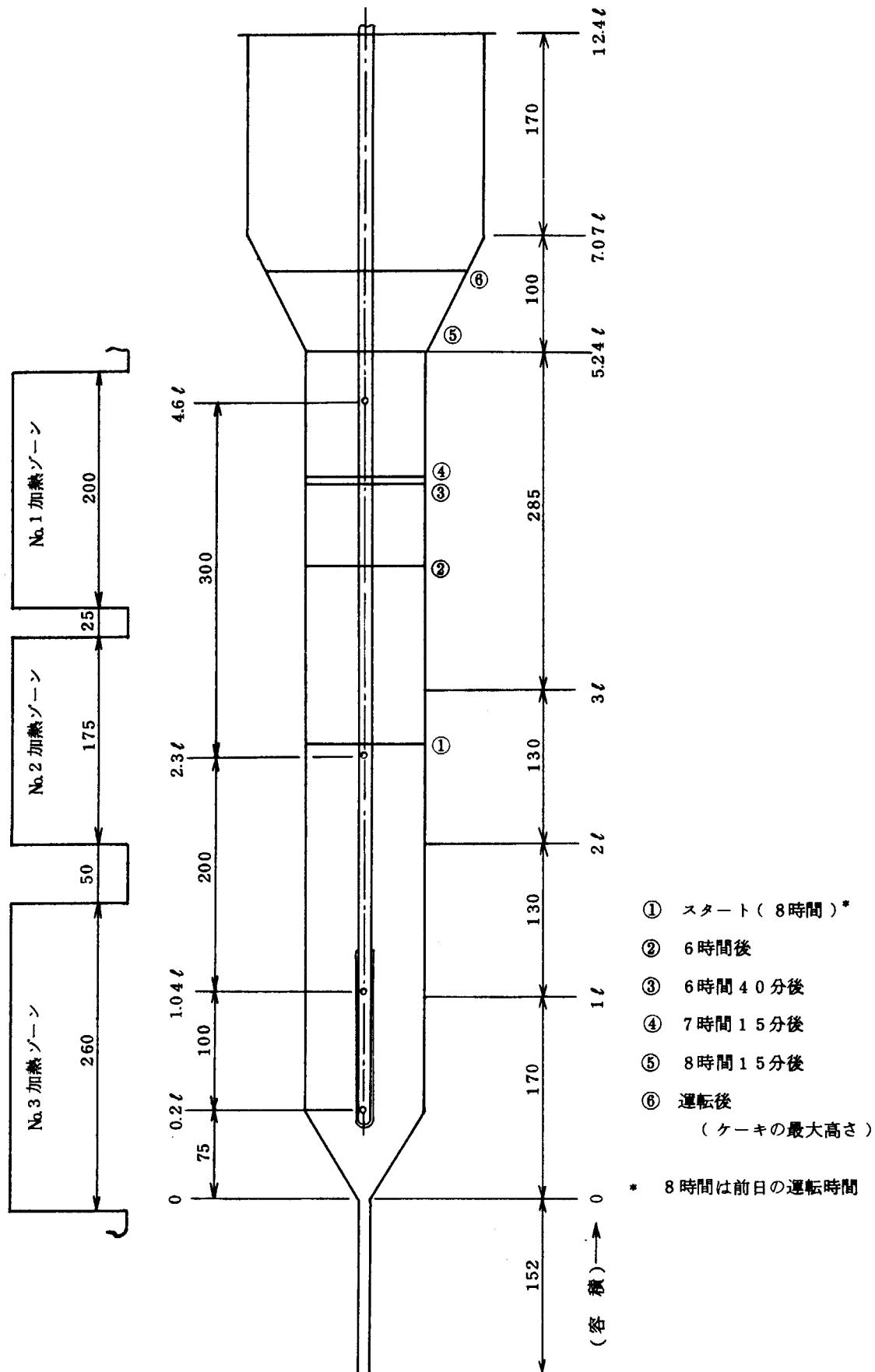


図 14 上段加熱運転モード(ガラスと酸化鉄の比=80:20)



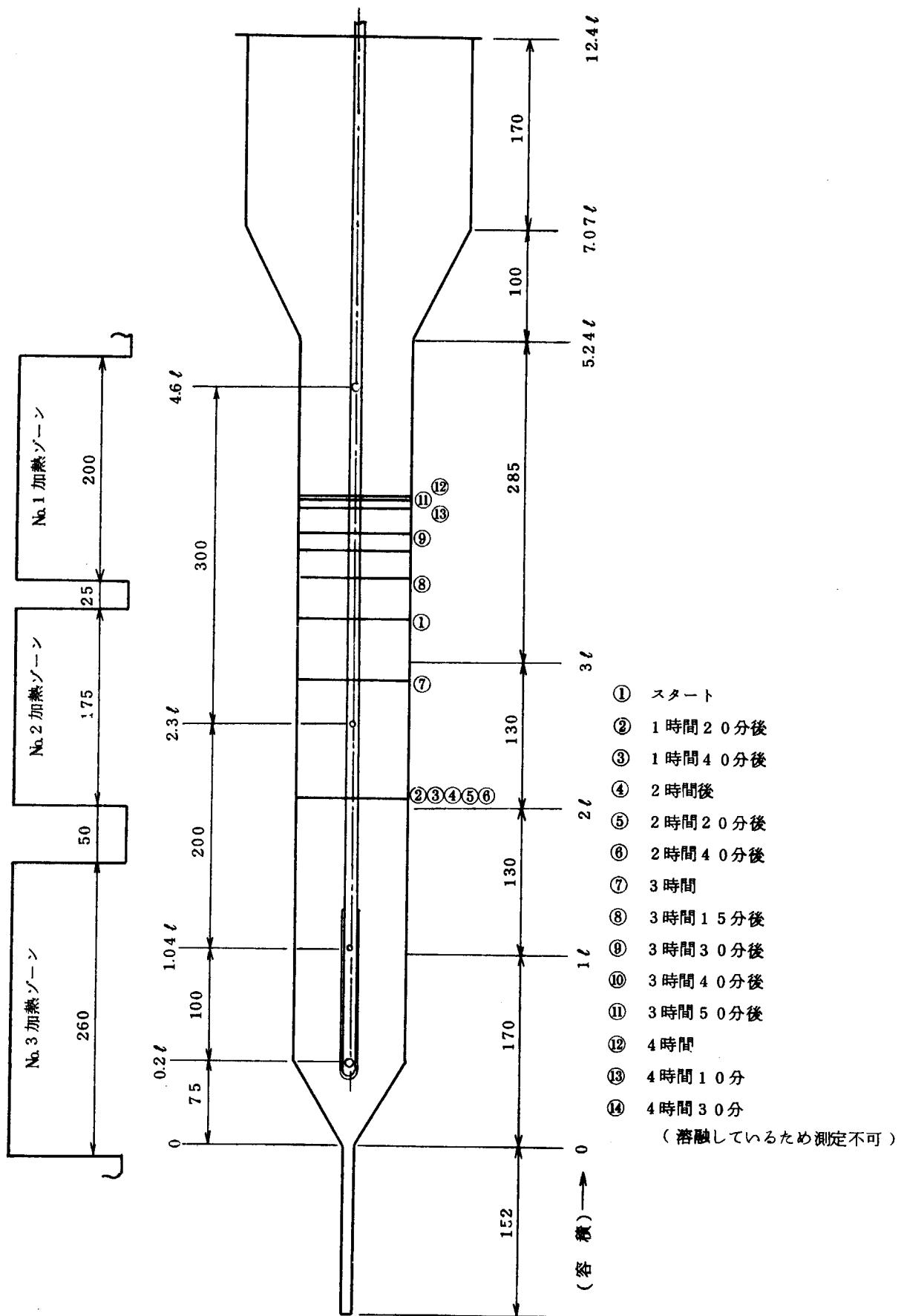
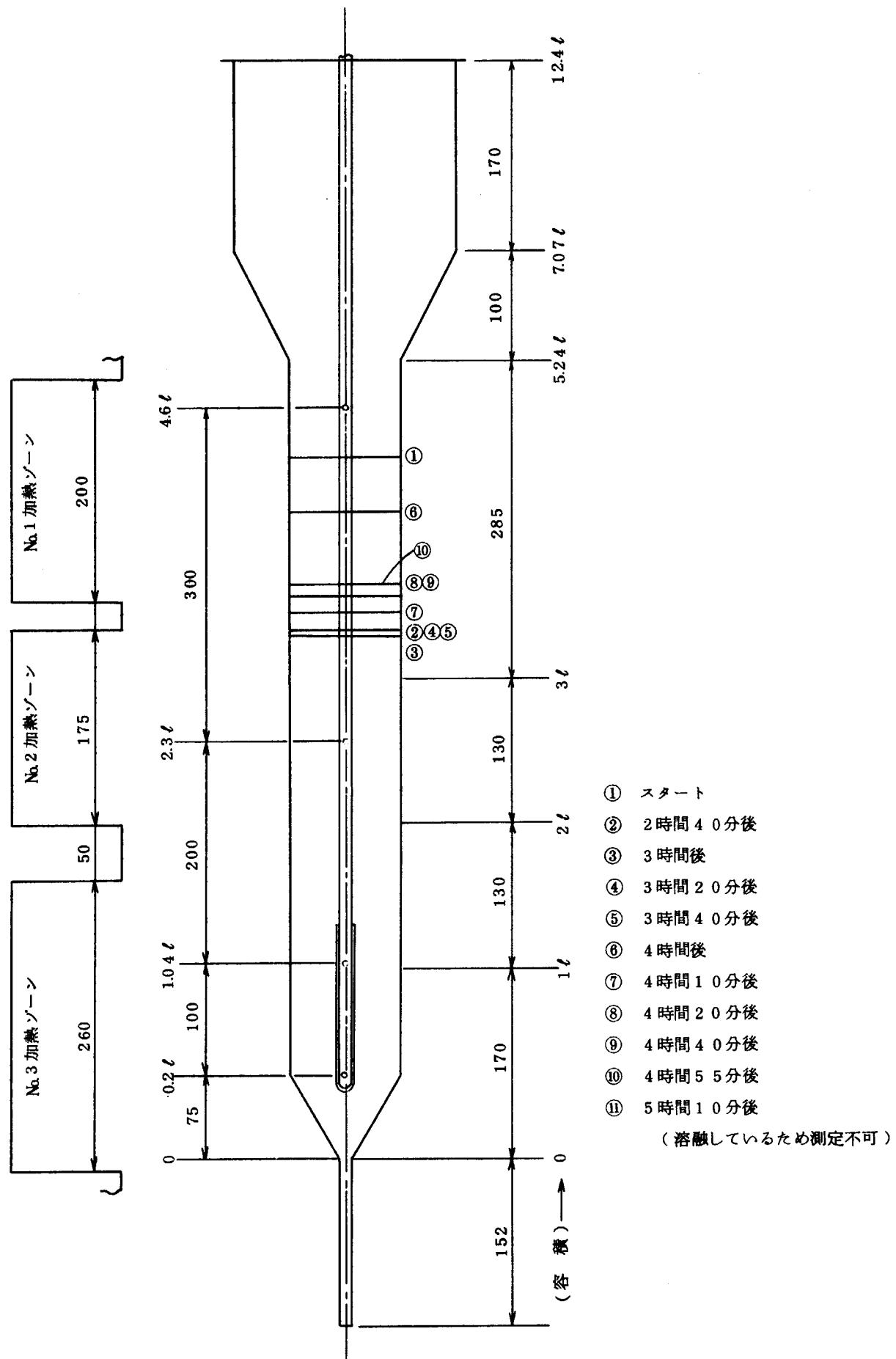


図 16 上段加熱(ガラスと酸化鉄の比=95:5)した際の仮焼体の吹上げ高さ



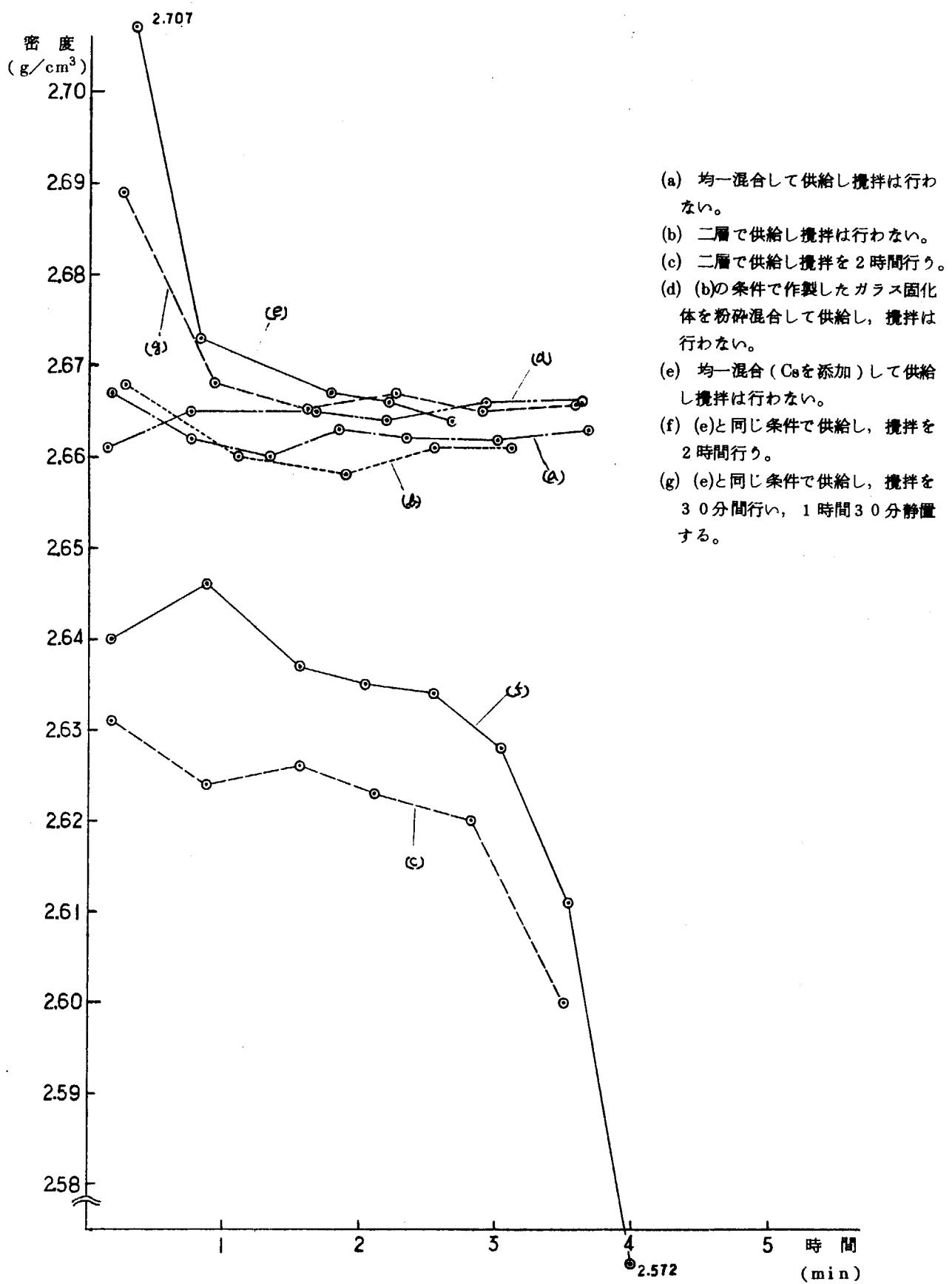


図18 各条件で作製したガラスの各時間ごとに採取したサンプルの密度

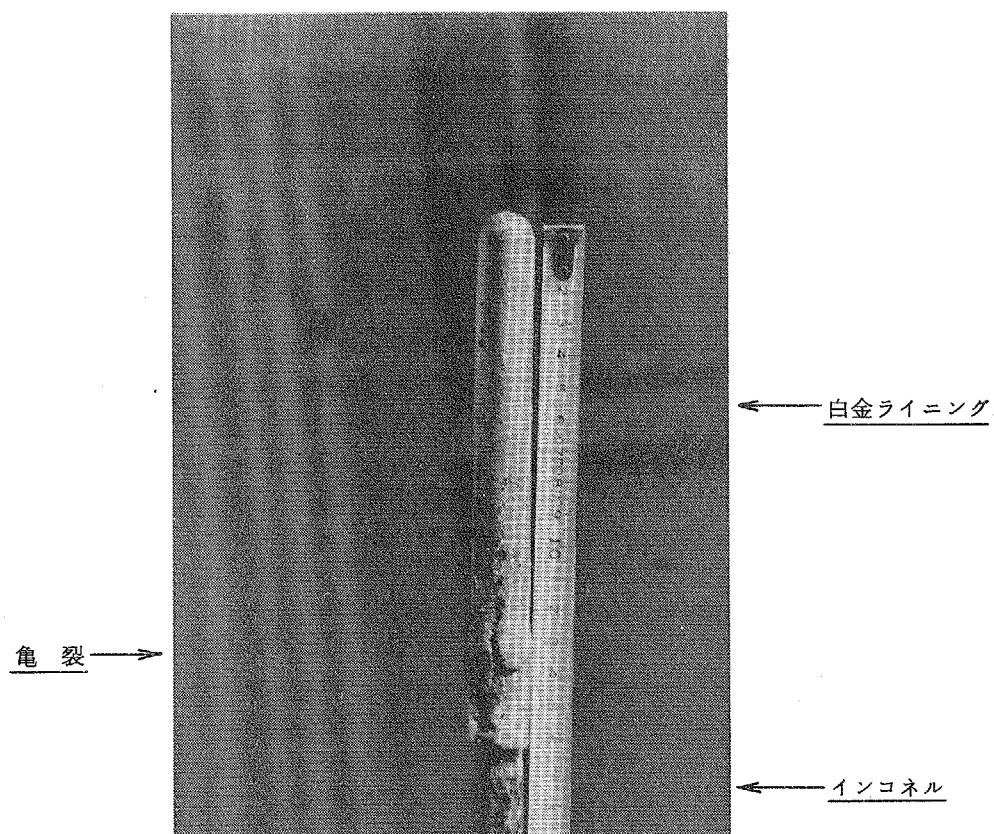


図 19 热電対保護管の外観図（158時間30分運転後）