

第10回PNC/KfK高レベル廃棄物管理会議

(1990年11月18日～22日動燃東海事業所および東京にて開催)

1991年4月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松4-33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所 技術開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation, 4-33 O-aza-Muramatsu, Tokai-mura, Naka, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

第10回PNC/KfK高レベル廃棄物管理会議

(1990年11月18日～22日動燃東海事業所および東京にて開催)

実施責任者 坪谷隆夫* 高橋武士**

報告者 吉岡正弘**五十嵐寛**青野忠純***
江本秀夫**鮎田文夫**遠藤昇**
正木敏夫**加藤功**菖蒲康夫**
池上靖志**

要 旨

第10回PNC/KfK高レベル廃棄物管理会議(1990年11月18日～22日、動燃事業団の東海事業所および東京にて開催)の概要を報告する。

この会議は、昭和55年に動燃事業団とドイツKfK(Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH)間で締結された協力協定に基づいて実施されるものであり、今回で10周年を迎えた。

この会議では、両国における原子力情勢が互いに紹介された。また、廃棄物の管理状況が紹介され、特に高レベル廃棄物のガラス固化技術を中心として情報交換が行われた。

さらにガラス固化技術に関しては、ガラス熔融技術、オフガス処理技術、ガラス物性および品質管理技術について詳細な討論が行われた。

本報告書は、これらの発表・討論の内容を要約したものである。

* 東海事業所 環境技術開発部
** 東海事業所 環境技術開発部 環境技術第一開発室
*** 東海事業所 環境施設部 技術課

目 次

1. はじめに	1
2. 議 事	2
2.1 議事録	2
2.2 会議日程	5
2.3 参加者	11
3. 技術発表における特記事項	18
3.1 State of the art of the HLLW conditioning program in Germany	18
(1) 国内情勢	
(2) K f K - I N Eでの高レベル廃棄物に関する技術開発	
(3) WAK廃液のK f Kからモルへの輸送許可	
(4) PAMELAの現状	
3.2 Overview and strategy for radioactive waste management	
in Japan	22
3.3 Evaluation of Mock-up Melter Operation with Noble Metals (PNC)	30
3.4 Operation Results with the K-6' Melter (KfK)	38
(1) WAK廃液固化処理プロジェクトの現状	
(2) K-6' メルタ運転のためのVA-WAKプラント	
(3) K-6' メルタ運転	
3.5 Off-gas treatment process (PNC)	47
3.6 Performance of the off-gas treatment system (KfK)	48
3.7 Development of three-dimensional thermal fluidic analysis code	
for electric glass melter (PNC)	54
3.8 3-dimensional melter modelling (KfK)	54
3.9 Advanced electrode and refractory materials (PNC)	56
3.10 Interactions between melter ceramics	
and glass product melts (KfK)	57

4. 詳細討議	63
4.1 PNC側の関心	63
4.1.1 K-6'メルタによる白金族元素供給運転	63
4.1.2 オフガス処理	64
4.1.3 数値解析	64
4.1.4 物理モデル	64
4.1.5 PAMELAプラントの運転状況	65
4.1.6 K-6'メルタの溶融能力	66
4.2 KfK側の関心	67
4.2.1 白金族元素の抜き出しに係わる溶融炉の設計と運転	67
(1) 溶融炉の設計と運転	
(2) メルタ運転に及ぼす白金族元素模擬の効果	
(3) メルタ保持運転時の影響	
(4) 白金族元素の抜き出しに及ぼす炉底部形状の影響	
(5) 白金族元素の抜き出しに及ぼす低温の効果	
(6) 白金族元素の抜き出しに及ぼす流下運転モードの効果	
4.2.2 白金族元素の特性評価	72
4.2.3 オフガス処理	74
4.2.4 材料評価	74
4.2.5 その他	76
(1) Glass sampling procedure from technical melter	
(2) Melt level detection	
(3) Cold cap control	
4.3 討議のまとめ	77
4.4 今後のガラス固化試験計画	80
5. 交換レポート	81
6. おわりに	81

1. はじめに

動燃事業団と西独K f Kとの間に結ばれている高レベル廃棄物管理における協定の一環として、ガラス固化技術を中心とする廃棄物管理に関する会議が1990年11月18日から11月22日までの間、東海事業所および東京において行われた。

この会議は、1981年の2月に協力協定を締結し、同年6月に開催された第1回会議から数えて第10回目となる。西独からは、Dr.Weisenburgerら4人が参加した。

現在、K f Kの状況は、WAW計画の中止によって、研究開発の今後が不透明であるにもかかわらず、ガラス固化技術の完成に向けた開発が着実に進められている。当面のガラス固化試験は、WAWの高レベル廃液処理(83m³)を対象とした白金族対策試験に向けられており、本年5月21日より6月24日にかけてK-6' 溶融炉の試運転を含む諸性能の確認運転が行われた。なお、この試験にはPNC側より池上研究員が参加している。

一方、ベルギーのPAMELAプラントは、1985年10月の運転開始から現在までに、LEWC(Low Enriched Waste Concentrate)を47.2m³、HEWC(High Enriched Waste Concentrate)を672.8 m³処理し、固化体の製造本数にして2000本を達成した。1990年11月現在、残廃液量は130m³(HEWC)であり、1991年にはその処理が終了する予定である。

この後のPAMELAプラントの予定としては、K-4メルタの解体および、WAK廃液の処理を計画している。なお、WAK廃液の処理については、現在その廃液移送のためのライセンス取得を進めており、計画では1993年に処理を開始することになっている。しかしながら諸般の情勢から見て、これは極めて困難なようである。

本会議では、昨年以降の双方の進捗状況について情報を交換した。発表は、R&Dのオーバー・ビュー、双方のキャンペーン結果を中心としたメルタの運転、オフガスシステムの評価、メルタ材料開発、3次元モデルの開発等について交互に行った。さらに、発表の後、白金族元素対策を中心に双方の関心ある項目について詳細な議論を行った。

今回の会議は、更なるガラス固化技術の向上に有意義なものであった。

なお、発表・討議に使用したOHP等の資料は、別冊「第10回PNC/K f K高レベル廃棄物管理会議(1990年11月18日～22日、動燃東海事業所および東京にて開催)別冊資料集」にまとめた。

2 議 事

2.1 議事録

Minutes of the Tenth Annual KfK-PNC Meeting
on
Cooperation in High-level Waste Management
held at
PNC, November 18-22, 1990

The tenth annual meeting on high-level waste vitrification in Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation (PNC) and Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH (KfK) was held at PNC Tokai Works and Tokyo on November 18-22, 1990.

The purpose of the meeting was to review the progress and the state of the art on both sides since the last meeting in October 1989, and to discuss in detail the melter technology as well as the process treatment technology.

The agenda of the meeting and the list of participants are attached in Appendices I and II respectively.

Both parties have achieved development progress since the last meeting at KfK. KfK started the operation of K-6' melter to overcome noble metal problem, and obtained good results on draining noble metals. PNC carried out a long-term operation in MTF and confirmed the effectiveness of the design and operational strategy to noble metal issues.

In the meeting, the noble metal behavior in the vitrification process was discussed in detail in most part of the technical sessions as the common interest in the process development in both countries. The results obtained through the discussions about all of the subjects are very useful for both sides.

Both parties confirmed that the exchange of specialists is an effective part of the cooperation and should be continued.

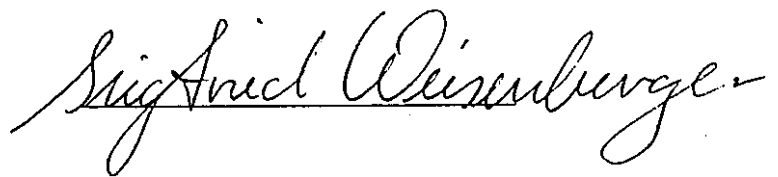
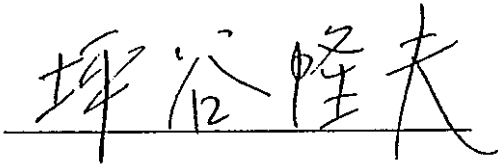
As the next exchange, PNC will accept a KfK's delegate for PNC's melter operation in autumn of 1991. KfK will accept a PNC's delegate for the operation of K-6' melter and to dismantling project for K-4 Melter and other events in PAMELA.

As a tentative date for the next meeting at KfK, October 1991 was envisaged. Topics to be treated in the next meeting will be announced and agreed upon in written form about three months ahead.

Both parties agreed to continue the cooperation in the field of HLLW management, and to exchange the information about TRU waste treatment technology.

For Power Reactor and
Nuclear Fuel Development
Corporation

For Kernforschungszentrum
Karlsruhe GmbH



T. Tsuboya
Director
Waste Management Technology
Development Division

S. Weisenburger
Leader of the Technology Division
of the Institute for
Nuclear Waste Treatment

2.2 会議日程

The 10th KfK-PNC Annual Meeting on High Level Waste Management

AGENDA

Nov. 17th(Sat.) Arrive at Narita

Stay at Shinbashi Daiichi Hotel

18th(Sun.) Meeting at Tokyo Bay Hilton Hotel with Tokyo staffs
in the evening

Stay at Tokyo Bay Hilton Hotel

19th(Mon.) General discussion at the Hilton Hotel

AM: 1. Welcome remarks

PNC Yamamoto, M

2. Presentation on the state of the arts on the HLLW
conditioning program

(1) State of the arts on the HLLW conditioning program
in Japan PNC Mano, T

(2) State of the arts on the HLLW conditioning program
in Germany KfK Dr. Weisenburger

3. Discussion

PM: Move to Katsuta

Stay at Hotel Crystal Plaza in Katsuta

20th(Tsu.) 8:20 Pick-up at Crystal Plaza in Katsuta

9:00 Welcome remarks

PNC Yamanouchi, T.

9:15 Opening remarks

PNC Tsuboya, T.

KfK Dr. Weisenburger

9:30 Technical Presentation

Chairman : Takahashi, T.

(1) Evaluation at Mock-up 3 melter operation with
noble metals

PNC Yoshioka, M

10:15 (2) Operation results with the K-6' melter

KfK Dr. Grunewald

10:40 (Coffee Break)

11:05 (3) Off-gas treatment process melter

PNC Igarashi, H.

11:25 (4) Performance of the off-gas treatment system

KfK Dr. Weisenburger

11:55 (5) Development of Three Dimensional Thermal

Fluidic Analysis Code for Electric Glass Melter

PNC Ayame, Y.

12:20 (Lunch)

(to be continued)

13:30 Technical Discussion

(6) 3-dimensional melter modelling

KfK Dr. Roth

14:30 (7) Advanced electrode and refractory materials

PNC Masaki, T.

15:00 (8) Corrosion of melter materials

KfK Prof. Pentinghaus

15:30 (Coffee Break)

15:50 Technical Discussion

17:00 (Dinner)

Transfer from PNC to Mito

21st(Wed.) 8:30 Pick-up at Crystal Plaza

9:00 Technical Discussion

10:00 (Coffee Break)

10:15 Technical Discussion

11:55 (Lunch)

13:20 Technical Discussion

14:50 (Coffee Break)

15:00 Transfer from Head Bulding to TVF construction site

15:10 Facility tour

TVF construction site

PNC (Construction & Maintenece Office)

PNC Karino, M

Ueno, T

EDF- III

PNC (CMS)

PNC Kawada, T

Kawatsuma, S

16:45 Transfer from EDF- III to Head Bulding

16:50 Discussion

17:05 (Dinner)

Transfer from PNC to Katsuta

(to be continued)

22th(Thu.) 8:30 Pick-up at Crystal Plaza

9:00 Technical Discussion

10:00 (Coffee Break)

10:15 Technical Discussion

11:55 (Lunch)

13:00 Technical Discussion

15:00 (Coffee Break)

15:15 Summarize the meeting records

15:45 Closing remarks PNC Tsuboya, T.

17:00 (Dinner)

Transfer from PNC to Katsuta

23th(Fri.) National Holiday (Labor thanks giving day)

Move to Osaka

Stay at Hotel Consolt in Osaka

24th(Sat.) Free

25th(Sun.) Free

Move to Kyoto

Stay at Kyoto Century Hotel in Kyoto

26th(Mon.) Visit to Nippon Electric Glass Co., Ltd. and Discussion

Stay at Kyoto Century Hotel in Kyoto

27th(tsu.) Move to Osaka

Leave Osaka for Frankfurt

2.3 参加者

Participant

Sunday, 18 Nov. at Tokyo Bay Hilton International

Reception

KfK side

Institute of Nuclear Waste Technology

Weisenburger, S Pentinghaus, H

Roth, G Grunewald, W

PNC side

Head Office

Radioactive Waste Management Project

Hashimoto, Y.

Yamamoto, M

Co-ordination Section

Tsurumaki, K.

Conditioning Research Program

Mano, T.

Wadamoto, A.

Nakanishi, M.

International cooperation Office

Nunome, R.

Tokai Works

Waste Technology Development Division

Tsuboya, T.

High-Level Waste Technology Section

Takahashi, T

Yoshioka, M.

Igarashi, H.

Ikegami, Y.

Monday, 19 Nov. at Tokyo Bay Hilton International

General Discussion

KfK side

Institute of Nuclear Waste Technology

Weisenburger, S Pentinghaus, H

Roth, G Grunewald, W

PNC side

Head Office

Radioactive Waste Management Project

Yamamoto, M.

Co-ordination Section

Tsurumaki, K.

Conditioning Research Program

Mano, T.

Wadamoto, A.

Nakanishi, M.

International cooperation Office

Nunome, R.

Tokai Works

Waste Technology Development Division

High-Level Waste Technology Section

Takahashi, T.

Yoshioka, M.

Igarashi, H.

Ikegami, Y.

Tuesday, 20 Nov. at Tokai Works

Technical Presentation and Technical Discussion

KfK side

Institute of Nuclear Waste Technology

Weisenburger, S Pentinghaus, H

Roth, G Grunewald, W

PNC side

Head Office

Conditioning Research Program

Nakanishi, M.

Tokai Works

Yamanouchi, T.

Technology Development Coordination Division

Research and Development Coordination Section

Ohshima, H.

Nuclear Waste Treatment Division

Asakura, Y.

Co-Ordination Section

Tomikawa, H.

Waste Technology Development Division

Tsuboya, T.

Geological Isolation Technology Section

Torata, S.

High-Level Waste Technology Section

Takahashi, T. Yoshioka, M.

Igarashi, H. Aono, T.

Emoto, H. Ayuta, F.

Kobayashi, H. Endo, N.

Masaki, T.	Noguchi, K.
Ayame, Y.	Kato, K.
Ikegami, Y.	Asano, N.
Fukuda, S.	

Wednesday, 21 Nov. at Tokai Works

Technical Discussion

KfK side

Institute of Nuclear Waste Technology

Weisenburger, S Pentinghaus, H

Roth, G Grunewald, W

PNC side

Head Office

Conditioning Research Program

Nakanishi, M.

Tokai Works

Waste Technology Development Division

Geological Isolation Technology Section

Torata, S.

High-Level Waste Technology Section

Takahashi, T. Yoshioka, M.

Igarashi, H. Aono, T.

Emoto, H. Ayuta, F.

Kobayashi, H. Endo, N.

Masaki, T. Noguchi, K.

Ayame, Y. Katoh, K.

Ikegami, Y.

Thursday, 22 Nov. at Tokai Works

Technical Discussion and Summarize

KfK side

Institute of Nuclear Waste Technology

Weisenburger, S Pentinghaus, H

Roth, G Grunewald, W

PNC side

Head Office

Conditioning Research Program

Nakanishi, M.

Tokai Works

Waste Technology Development Division

Tsuboya, T.

Geological Isolation Technology Section

Torata, S.

High-Level Waste Technology Section

Takahashi, T. Yoshioka, M.

Igarashi, H. Aono, T.

Emoto, H. Ayuta, F.

Kobayashi, H. Endo, N.

Masaki, T. Noguchi, K.

Ayame, Y. Katoh, K.

Ikegami, Y. Asano, N.

3. 技術発表における特記事項

3.1 State of the art of the HLLW conditioning program in Germany

(1) 国内情勢

ドイツにおける高レベル廃棄物処理技術開発の現状と計画が紹介された。東西両ドイツ統一後の最初の会議ということもあり、旧東ドイツの原子力情勢も含めて紹介された。図3.1-1にドイツ国内の発電所を示す。合計21基の原子炉があり総発電量は23,575MWeである。東側には3基の発電所が運転されていた。すべてソ連の技術に基づくものであるが、安全性が低いという理由により政府によって90年の9月までにすべての運転が停止された。東側原子炉の燃料の種類は不明である。使用済燃料の取扱いについては、ソ連に返還することも考えられるが未定である。本会議開催前のagenda調整で東側の情報・統一の影響について紹介してくれるよう依頼しておいたのだが、統一後間もないこともあり、K f K自体でも把み切れていないようだ。

(2) K f K-INEでの高レベル廃棄物に関する技術開発

① 白金族元素対応型ガラス溶融炉の開発

WAK再処理工場の高レベル廃液処理技術開発を行っている。廃液量は100m³と予想され、比放射能は500~1000Ci/lである。白金族元素は合計0.5ton含まれる。1990年の5~6月に行われたK-6¹メルトの第1キャンペーン(Rhを含まない白金族元素含有廃液)では25l/hの処理能力が得られたが、30l/hは可能のようだ。K-6¹メルトは60~75°の炉底勾配を有し、炉底に設けたガラス流下ノズルにより通常運転で白金族元素を抜き出すよう設計している。今後、K-6¹の運転は1992年まで続けられる予定である。PAMELAでWAK廃液が処理されるとすれば、1991~92年にK-6の設計をINEで行うことになる。又、白金族元素の影響を調べるため、数学モデルの開発を継続する。

② 実験室規模の溶融炉試験

この試験の目的は、白金族元素の相形成、粒径、形状および組成等、ガラス中の白金族元素挙動に関する基礎的研究を行うことである。

PdおよびRhの各々の単独の試験はすでに行い、Ru単独を今後行う予定であ

る。さらに、ガラスビーズの代わりにフリットを使用する試験および還元剤の効果を調べる試験を行う計画である。

③ オフガス処理系およびメルタ遠隔部品の最適化

WAK廃液の処理はWAKのセルを利用することが最有力である。この場合オフガス処理系が許認可の主要な対象となり、低い放出基準と高い安全基準が要求される。又、WAKのセル配置に合わせて遠隔部品を改良しなければならない。

④ ガラス特性評価（返還廃棄物）

物性はCOGEMAとBNFLから提供されるが、最終処分場条件下での詳細なガラス腐食研究はドイツで行う。COGEMAガラスの化学的耐久性に関する研究は近くまとめられる（HMIでの作業1987-90）。

COGEMAのR7/T7の放射性ガラスについては、INEの1991～94の計画の中で、高濃度Mg溶液中での化学的耐久性を調べる。試験時間は45～1300日、温度は110～190℃である。

BNFLガラスについては1991から1993年にかけて2種類の組成と3種類の塩溶液の中で同様の研究を行う予定である。

⑤ ガラス特性評価（WAK廃液固化ガラス）

現在フリット組成として2組成が候補に挙っている。電気抵抗および粘性等の溶解特性は許容範囲内で廃棄物含有率は15wt%である。

結晶化等詳細な特性評価はこれから始めるところであり、化学的耐久性の調査はCOGEMAおよびBNFLと同様になる。

⑥ キャニスタの腐食試験

岩塩処分場における100℃以上の高温環境でのバリアとしての長期耐食性（数百年間）を評価する。候補材料は非合金鋼、Ti 99.8-Pd、ハステロイC4である。Assesでの現位置試験が行われており、試験は1年間にわたり90～200℃の温度の塩溶液の中でγ線照射下（10 Gy/h）で行う。

⑦ 最終処分場における固化ガラスおよび使用済燃料のニアフィールド研究

ニアフィールドに対し、数学モデル化、熱-力の相互作用の計算、温度計算が行われている。すでにバテルーPNLで40本のガラス固化体が製造されているが、米
国からドイツへの輸送許認可が得られていない。

(3) WAK廃液対策

① WAK廃液のK f Kからモルへの輸送許可

許認可当局は、Baden-Wurtemberg州である。高レベル廃液の輸送許可取得は非常に疑わしい。仮に取得できるとしても、取得までに4～8年間必要とされ、
PAMELAでのHEWC固化が1991年までに終了することを考えると、許可取得
までの間PAMELAスタッフのやることがなくなる。

輸送対象となる廃液は約100m³で、鉄道輸送が考えられている。1バッチ当りの
輸送量は1m³以下となる。安全基準が著しいのでWAKの廃液払出し施設のコスト
が高くなろう。又、PAMELA側の受入施設も相当のコストとなる。

現在はWAKが州政府に許可申請を行っている。HAWC-WACの廃液が固化
された後、その最終処分場を決定しなければならない。(50ton, 130本の固化体)

② WAKサイトでのガラス固化に関する研究

LAVA-complexと呼ばれる未利用セルがガラス固化に適していると考え
られているが、セル構造の改造が必要である。メルタの大きさはPAMELAの
ものの60～80%となろう。

新しいプロセス建屋の建設も代替案として考えられているが、現在ではやはり、
PAMELAでの固化が最低コスト案である。

(4) PAMELAの現状

① ガラス固化の現状 (LEWC, HEWC)

すでに720m³の廃液が固化され、1990年11月20日に2000本目のキャニスタが製造
されることになっている。130m³のHEWCが未処理のまま残っている。K-5メ
ルタの処理速度は平均30～33ℓ/hである。運転は1991年夏には終ると予想される。

終了後、5つのタンクの洗浄と洗浄廃液の固化を1991年の後半に行う予定である。
予備のメルタであるK-5¹メルタが待機中であるが不要であろう。

② メルタの解体

1985年から1988年まで運転されたK-4メルタと1988年から1991年まで運転予定のK-5の2基のメルタが解体対象となる。解体スケジュールは未定である。解体に際しては低コストが要求されるが、メルタ部品の検査は行う予定。但し、以前考えられたサンプリングや分析は行わないだろう。検査項目はK-4メルタの電極および流下ノズルの損傷部、並びにK-5メルタの炉底と電極の状態である。

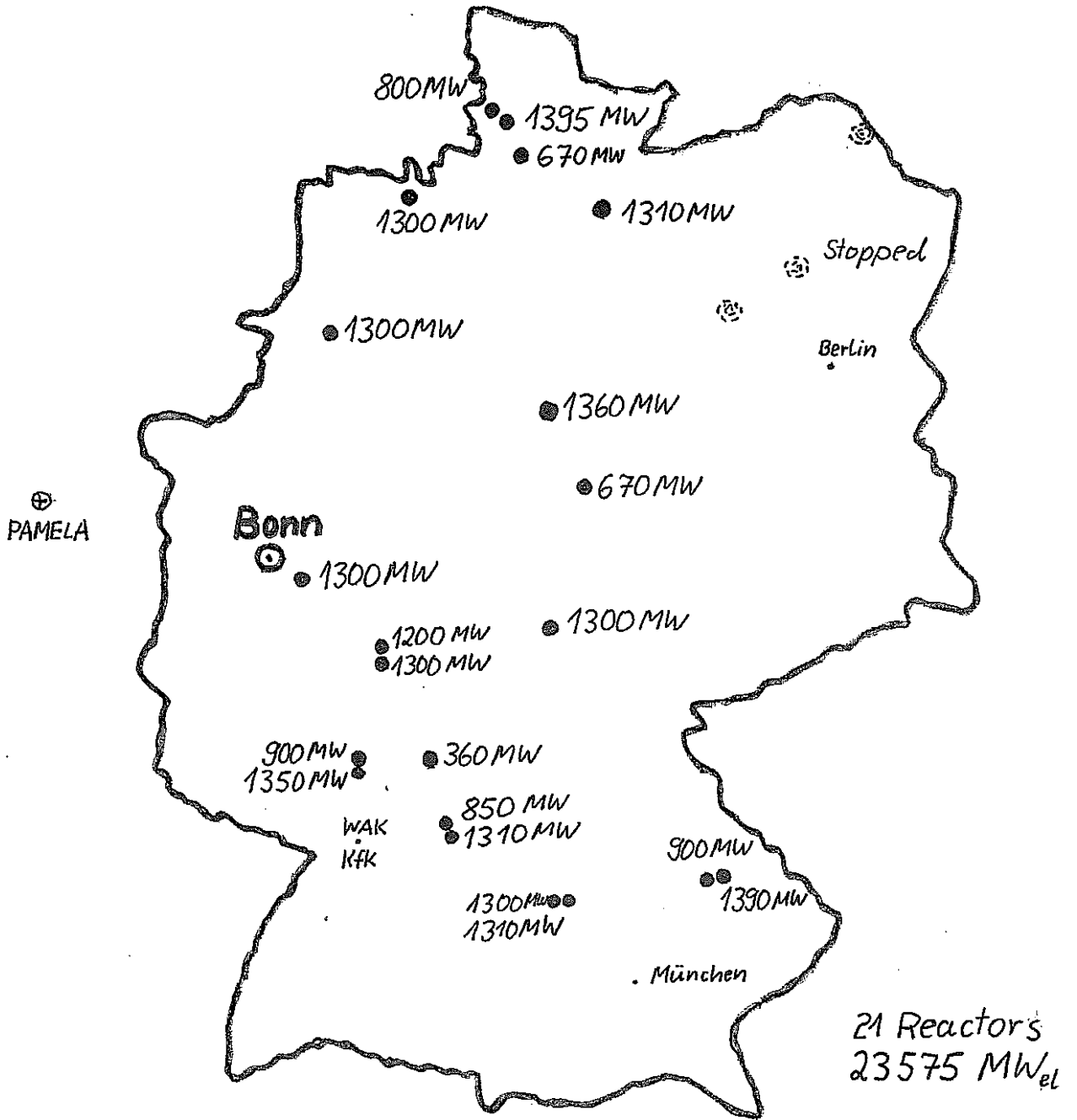
3.2 Overview and strategy for radioactive waste management in Japan.

(発表 間野主幹：PNC)

事業団側からの概要発表においては、事業団における廃棄物管理に関する体制・組織、国の高レベル廃棄物およびTRU発廃棄物の管理方針並びに事業団の核燃料サイクル施設から発生する廃棄物管理に関する技術開発状況について紹介した。

表3.2-1 に東海事業所で発生している廃棄物の種類と発生量を示す。これらの廃棄物処理に必要な技術開発項目を表3.2-2に、さらに事業団内の廃棄物関連施設を表3.2-2に示した。

K f Kからの質問は処理すべき高レベル廃液の量、ホット運転開始時期、交換用溶融炉の有無、およびTVFメルタの製作コストに関するものであった。



Nuclear Power Station in Operation in GERMANY

図 3.1-1 ドイツの原子力発電所

表 3.2 - 1 東海事業所における廃棄物量

Waste Arising and Conditioning in PNC Tokai Works
(Waste Containing TRU Nuclides)

	Waste	Conditioning Methods () : Under planning	Cumulative-Waste-after conditioning (drums)
Takai Reprocessing Plant	Hull and Hardware	(HIP)	1,300
	LLLW	Bitumen	17,000
	Spent Solvent	Plastics	1,900
	Solid Waste -Combustible -Non-combustible	(Cement) (Cement)	200 700
Mox Fuel Fabrication Facilities	Solid Waste -Combustible	Incineration-Melting with Microwave	200
	-Non-combustible	Melting with ESR	600

表 3.2 - 2 廃棄物処理技術開発項目

Technologies to be Developed

	Wastes	Technologies
from Reprocessing	Hull and hardware	<ul style="list-style-type: none"> • Compaction • HIP • Electro Slag Re-melting
	Spent Solvent	<ul style="list-style-type: none"> • Decomposition • Solidification(Hydro Thermal Solid., Ceramic)
	Low-Level Liquid Waste	<ul style="list-style-type: none"> • Solidification(Hydro Thermal Solid., Cement) • TRU Nuclides Separation
	Combustible Solid Waste	<ul style="list-style-type: none"> • Solidification (Hydro Thermal Solid., Cement, Melting with Microwave)
	Non-Combustible Solid Waste	<ul style="list-style-type: none"> • Electro Slag Re-melting • Compaction • Immobilization(Cement)
from MOX Fabrication	Combustible Solid Waste	<ul style="list-style-type: none"> • Acid Digestion • Solidification
	Non-Combustible Solid Waste	<ul style="list-style-type: none"> • Decontamination (Electro Polishing) • Solidification

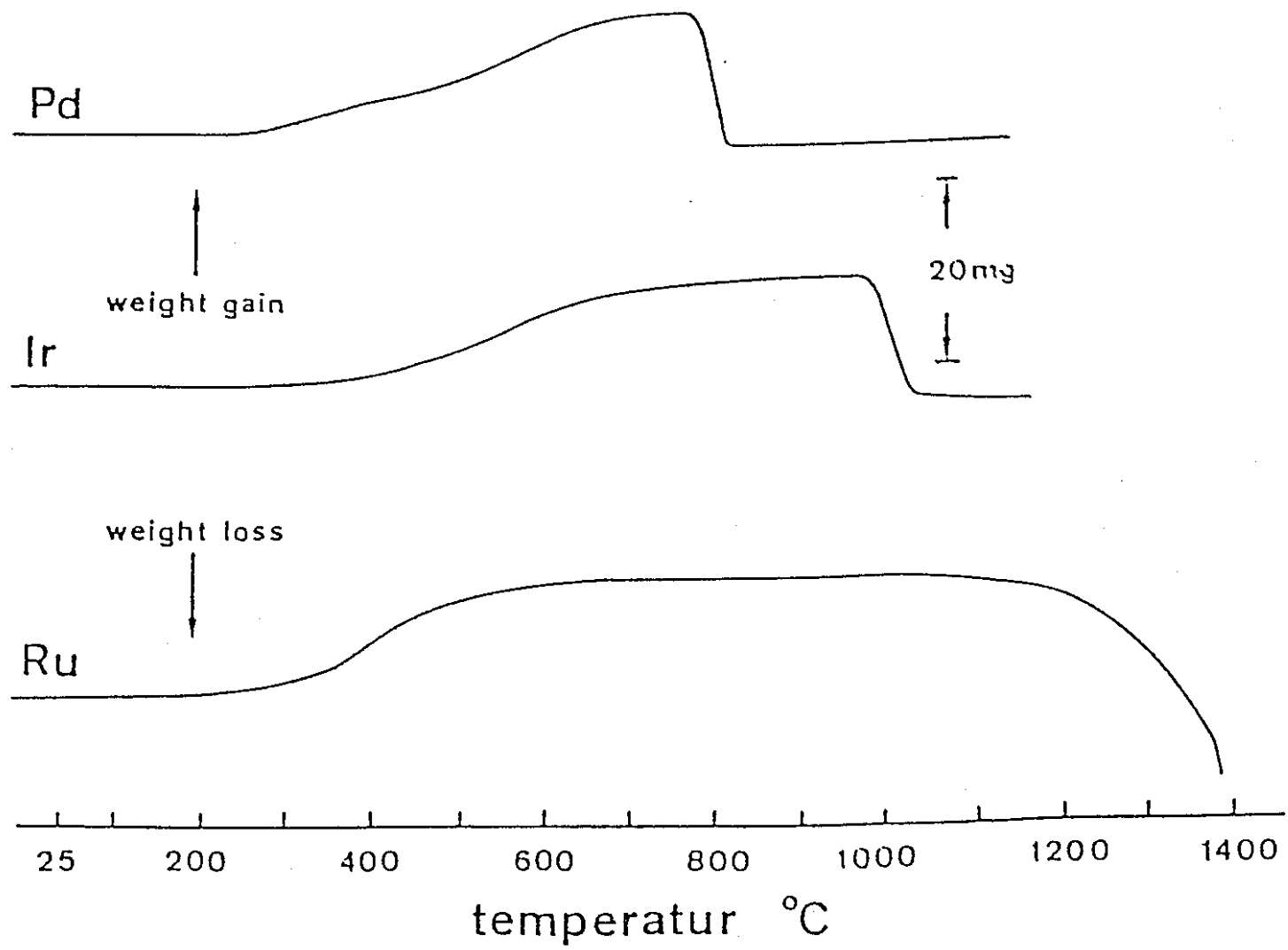
表 3.2-3 動燃における廃棄物施設

Facilities in PNC Concerned Waste Management

(*†) including TRU bearing waste

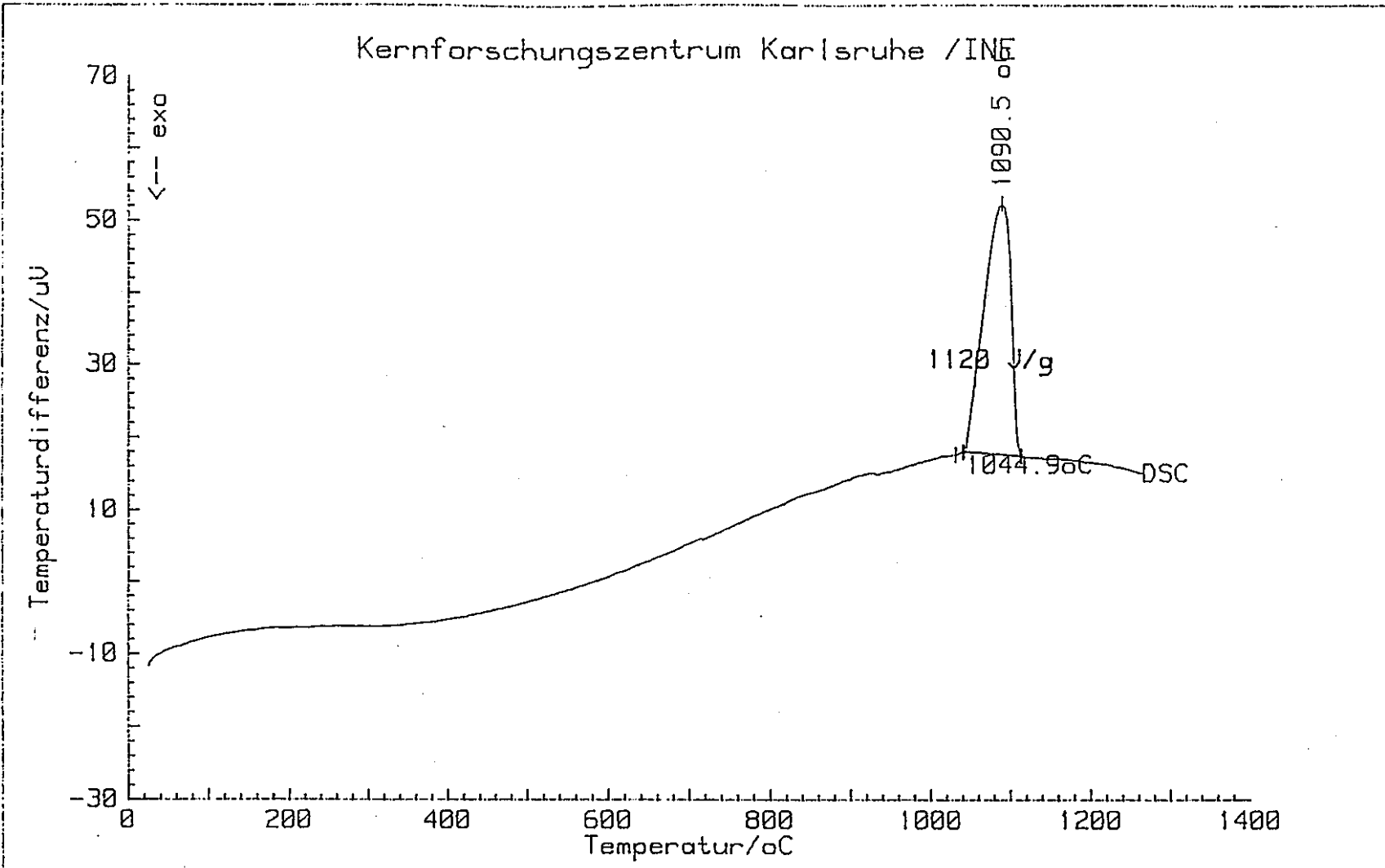
Waste Classification	HLW	LLW					
		from (**) MOX	from (**) Reprocessing	Hull (FBR)	U	Joyo	FMF
COZ D O Z O N I Z E D	Cold R&D ETF, MTF, EDF III	—	—	—	—	—	—
	Hot R&D	—	—	WDF	—	—	—
	Demonstration (in operation)	—	PWTF	AsF ST	—	—	* 1
	Demonstration (to be operated)	TVF	—	LWTF	HWTF	UWTF	* 2
	Storage (in operation)	—	PWSF	LASWS I LASWS II As I, As II	HASWS I HASWS II	UWSF	* 3
D & D (R & D)	WDF					—	—

- * 1 : Joyo Radioactive Waste Treatment Facility
 * 2 : New Joyo Radioactive Waste Treatment Facility
 * 3 : Radioactive Waste Treatment Plant of the O-arai Site



Formation and dissociation of PdO, IrO₂ and RuO₂.

図3.2.2-1 PdO・IrO₂・RuO₂の生成と分解



VERSUCHSNR.	6	PROBE	Rh203	21.40 mg	TG	100 mg	---
DATUM	7 Nov 1990	REFERENZ	AI203	36.60 mg	DSC	50 μV	Bas
OPERATEUR	NM	ATMOSPH.	LUFT	/ 0			
NETZSCH	STA 409	TIEGEL	AI203				
				Seg. 1: 25°C/10.00/1350 °C			

図 3.2.2 - 2(a) Rh₂O₃ の TG 分析

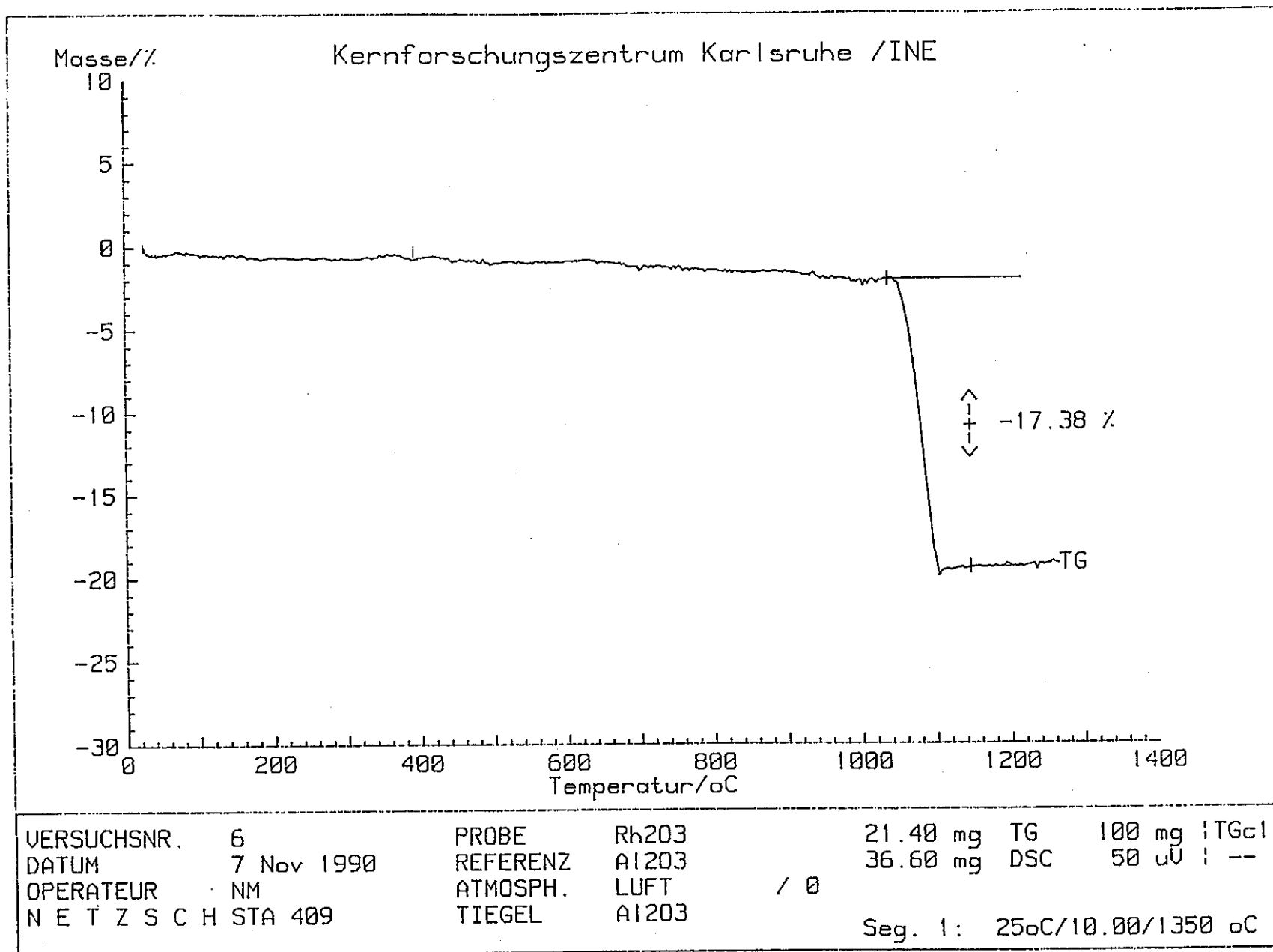


图 3.2.2 - 2(b) Rh₂O₃ の DSC 分析

3.3 Evaluation of Mock-up Melter Operation with Noble Metals.

(発表 吉岡主査：PNC)

白金族元素の抜き出し性向上を目指して実施したモックアップ第21～23キャンペーンの結果およびその評価について発表した。第20キャンペーンで実施した炉底低温運転の白金族元素抜き出しへの効果確認後、もう一つの手法であるバブリングの効果についての評価を第21キャンペーンで行った。

バブリング運転を8バッチ行ったが、運転が進むにつれて徐々にではあるが、主電極間抵抗の低下が認められた。また、バッチ毎の白金族元素の抜き出しは、バブリングにより均一濃度で抜き出されると仮定して求めた期待される抜き出し率に対して10～20%小さかった。(図3.3-1参照)さらに、ドレンアウト後の炉底残留ガラスで、東側に高濃度の白金族元素の堆積が確認されるとともに、通常の運転では堆積しない場所(補助電極上面等)への堆積が見られた(図3.3-2参照)。これはバブリング管が偏っていたためと考えられる。

以上から今回の堆積状況はバブリング管の挿入状態による特異なケースと考えられるが、バブリングを炉の中心に行ったとしても通常の運転では堆積しない部位に堆積する可能性が大きく、白金族元素の抜き出し性の向上には炉底低温運転より効果が小さいと結論した。白金族元素のバブリングによる抜き出し率の低下については、K f Kにおいても同様の結果が得られている。

第21キャンペーンの試験結果を受けて、炉底を低温に保持する運転手法の長期にわたる効果を確認する試験を第23キャンペーンで実施した。処理バッチ数は35バッチで、約70日の連続運転を行った。さらに白金族元素としてR u, P dのほかR hを含有した廃液をバッチ数にして20バッチ供給した。白金族元素の全供給量はメタル換算で約116kgであり、白金族元素の堆積により電極の損傷を引き起こしたPAMELAメルト運転時に供給した白金族元素量約95kgを超える量であった。

運転中、白金族元素の堆積に起因すると考えられる主電極間抵抗の低下は認められず、全期間を通して非常に安定した運転が可能であった(図3.3-3参照)。一方、ドレンアウト後に炉底に残留した白金族元素量の評価から、供給した白金族元素のうち99%以上が抜き出されたことが確認された(図3.3-4参照)。以上から、炉底低温運転によりメルトに供給された白金族元素の殆どを長期にわたって効果的に抜き出すことが出来ることが確認され、TVF運転において最も信頼できる手法と評価され

た。

この他、炉底低温運転は異常時におけるメルタ保持運転時にも白金族元素の沈降を抑制できることから効果的であることを確認した。

また、今回の運転で供給したRhの他の白金族元素の挙動に与える影響について評価した。Rhを添加すると炉底低温運転においては炉底へのRu, Pdの沈降が抑制されることが確認された。しかし、炉内高温部からでたガラス中のRu, Pd濃度はRhを添加すると低下しており、これはRhの添加がRu, Pdの沈降を促進することを意味している(図3.3-5参照)。このため、もし炉底を高温で運転すると白金族元素の沈降が促進され、白金族元素が炉底に堆積することが推定される。

発表に対し以下の質疑応答があった。

①Q：1バッチの意味は？

A：供給は連続であるが、ガラス流下はバッチで行っている。流下終了後から次のバッチが始まり、流下ガラス量 300kgの製造5時間前から流下の準備運転を行い流下を開始する。流下には約 2.5時間かかる。

②Q：ガラス抜き出し率の計算方法は？

A：2つの方法で行っている。一つは各バッチ時にサンプリングしたガラスの白金族元素濃度をもとに積分法により計算している。この問題点は分析の精度とRuの揮発量の推定である。Ruの揮発量は従来の分析結果から一定の割合を仮定している。他の方法はドレンアウト後に残留した白金族元素量を分析により推定し、供給量から抜き出し量を評価するものである。

これらの2つの方法で求めた抜き出し率の違いはそれほど大きくはなく、評価された抜き出し率は妥当と判断している。

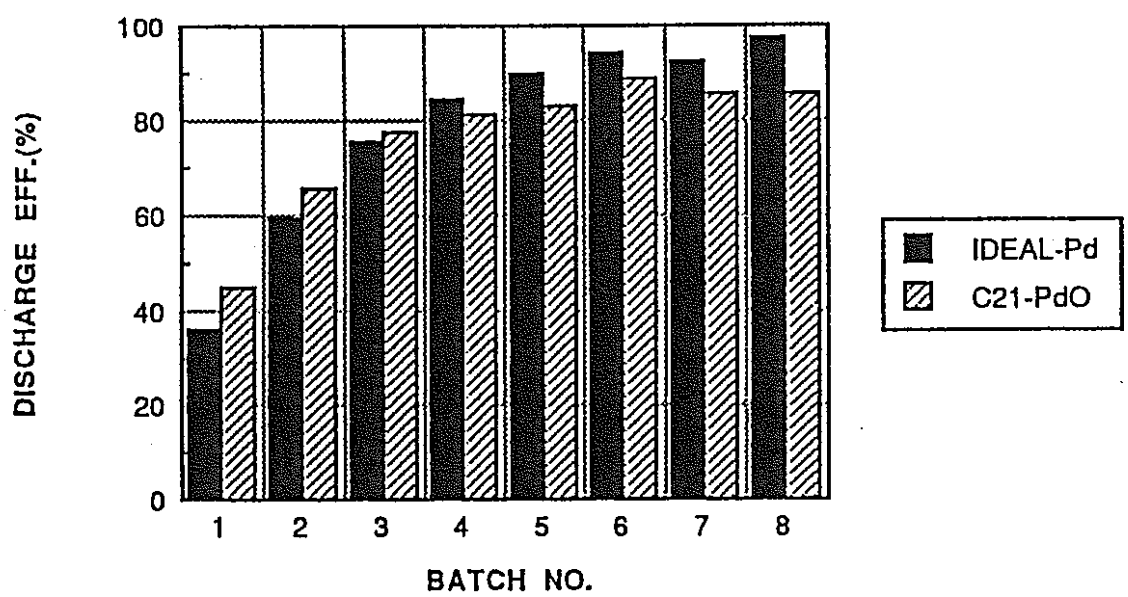
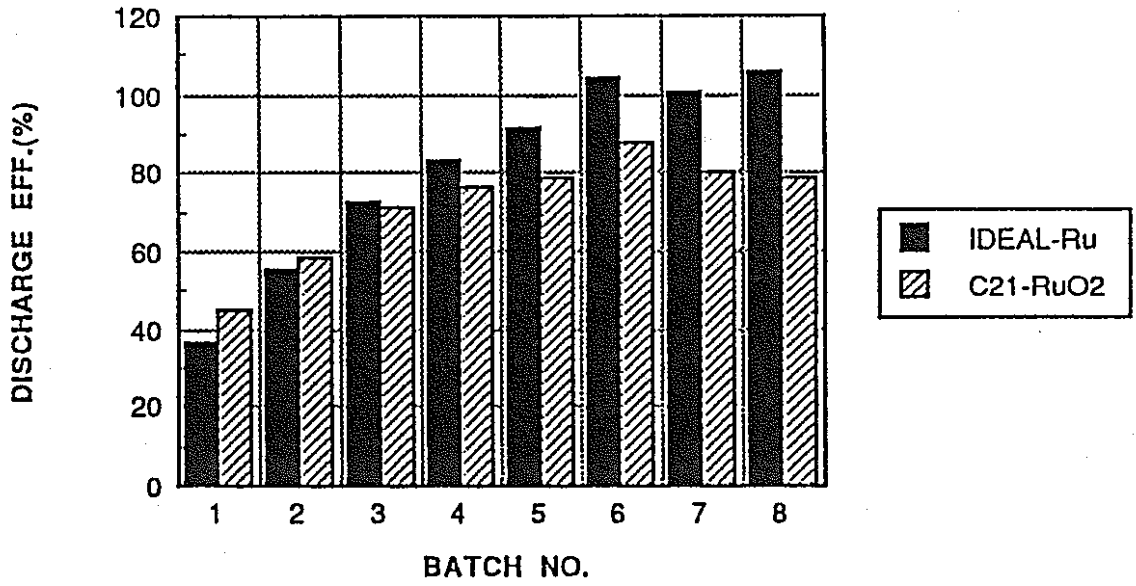
③Q：ガラス中の白金族元素濃度の分析方法は？

A：現在は分析結果を迅速に得るために蛍光X線分析を行っている。ただし、この分析結果をICP分析結果に合うように補正している。

④Q : K f KでのK-6' メルタの運転ではパッチを経るに従い、白金族元素の抜き出し率が低下した。PNCと同様に炉底低温運転を行っているのに、この原因をどう考えるか？

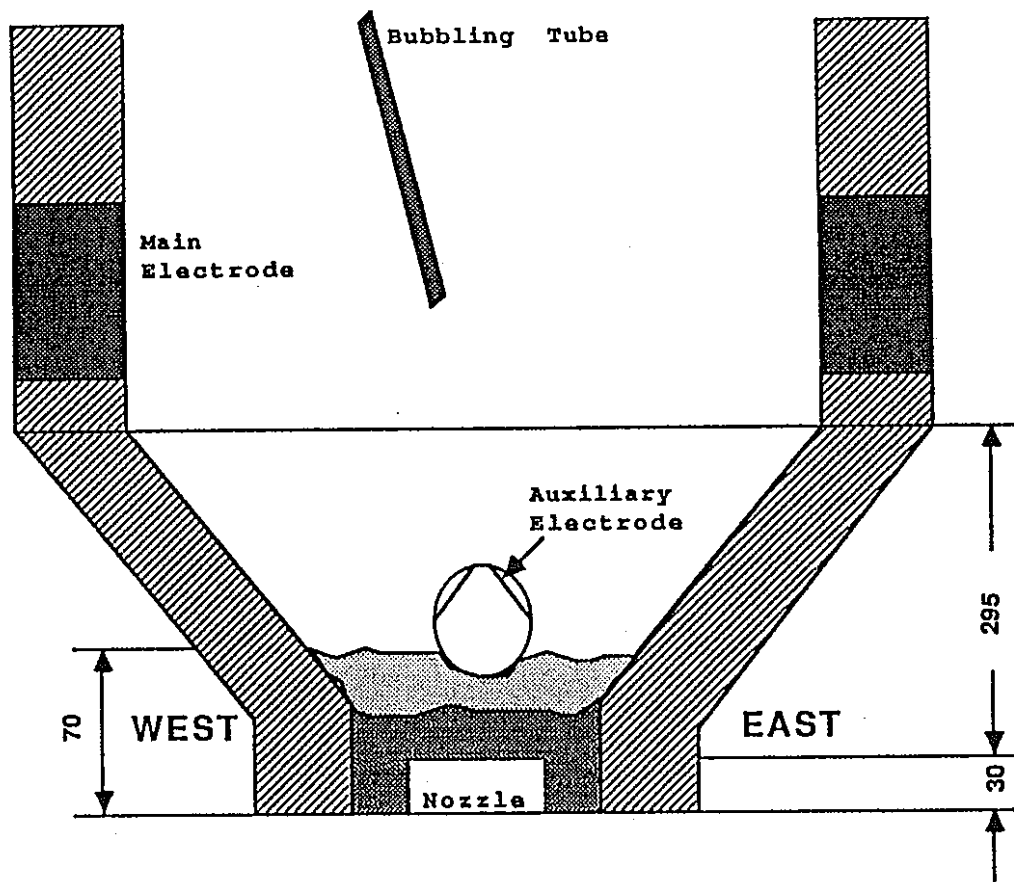
A : 非常に難しい問題である。一つには炉底形状の違いが考えられ、炉底の面積が大きくなっていることも影響しているかもしれない。また、流下ノズル径が小さいことにより炉内のガラスのノズルへの流入速度が大きくなっており、この影響も考えられる。しかし、これらは運転とともに抜き出し率が低下することを説明するには不十分である。この議論が相当長く続いたが、結論は得られなかった。

(後で第23キャンペーンの流下時の白金族元素濃度を調べてみて、炉底ガラス温度が高いと濃度が急激に低下することを見出した。すなわち、K-6' メルタでは中段電極に大きなパワー (25kW) を常時かけており、炉底の温度はPNCに比べると高くなっており、低温域が小さいと推定される。したがって、徐々に白金族元素の堆積が進行し、炉底部の温度が上昇するとさらに堆積が進行するために次第に抜き出し性が低下していったものと推定した。K f Kもこの考えに反対はしなかった。)



COMPARISON OF DISCHARGE EXPECTED AND RESULTED THROUGH BUBBLING

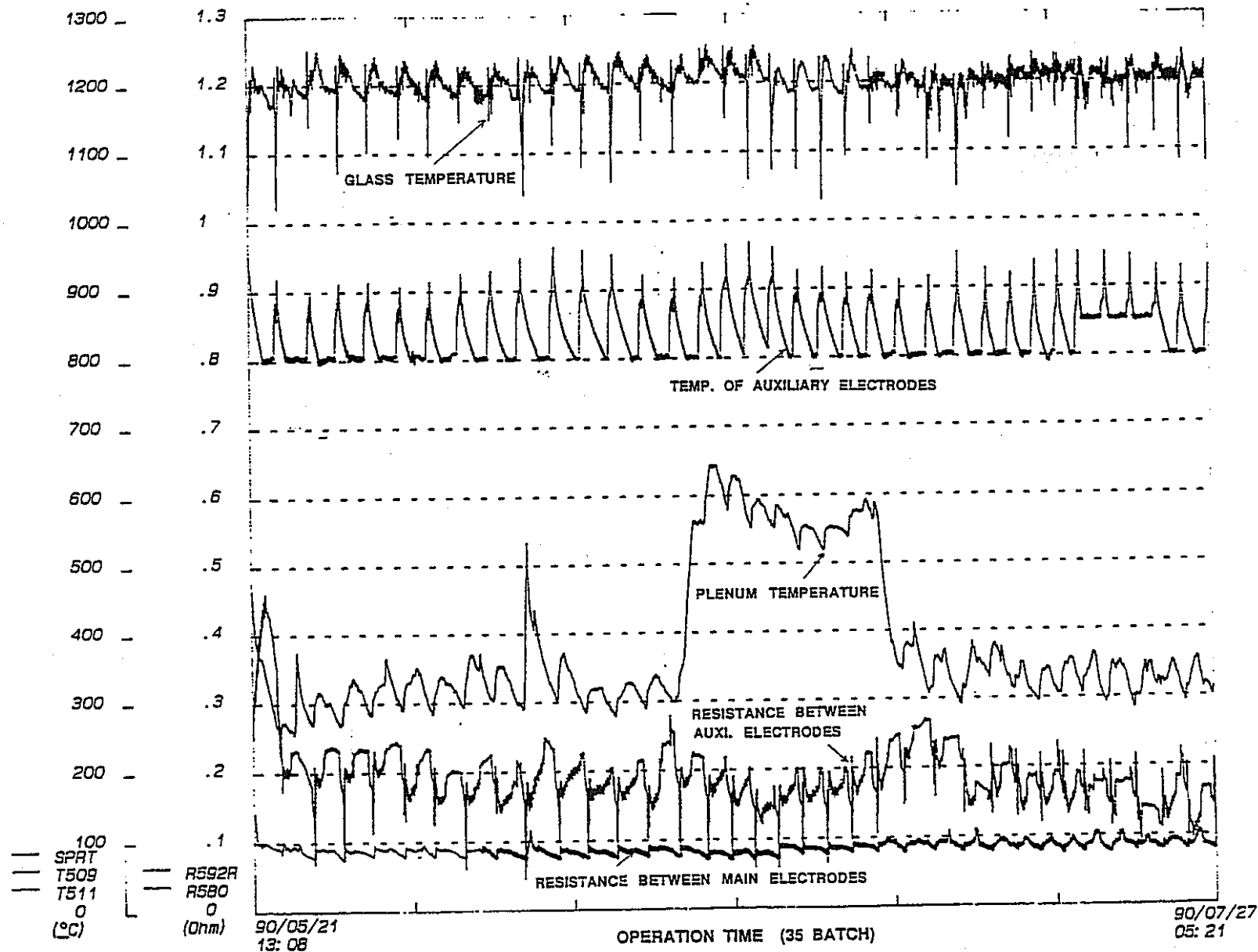
図 3.3-1 バブリングによる白金族元素の抜き出し



		RuO ₂ %			
		PdO			
WEST		6.7	8.4	1.1	11.3
		2.0	2.6	0.4	3.5
					EAST
		9.8	15.5	3.0	10.8
		2.8	4.6	0.8	3.2

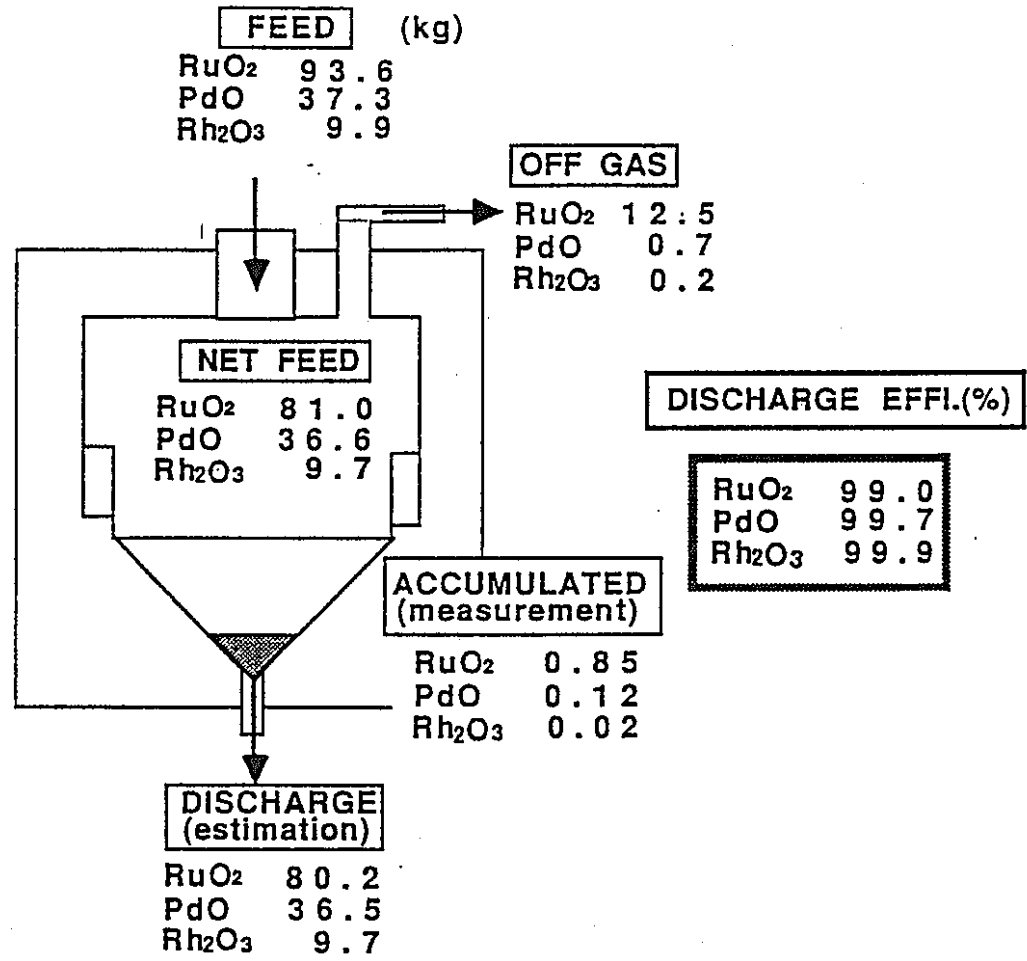
NOBLE METAL CONTENTS IN ACCUMULATED GLASS

図 3.3-2 バブリング運転後の炉底白金族元素分布



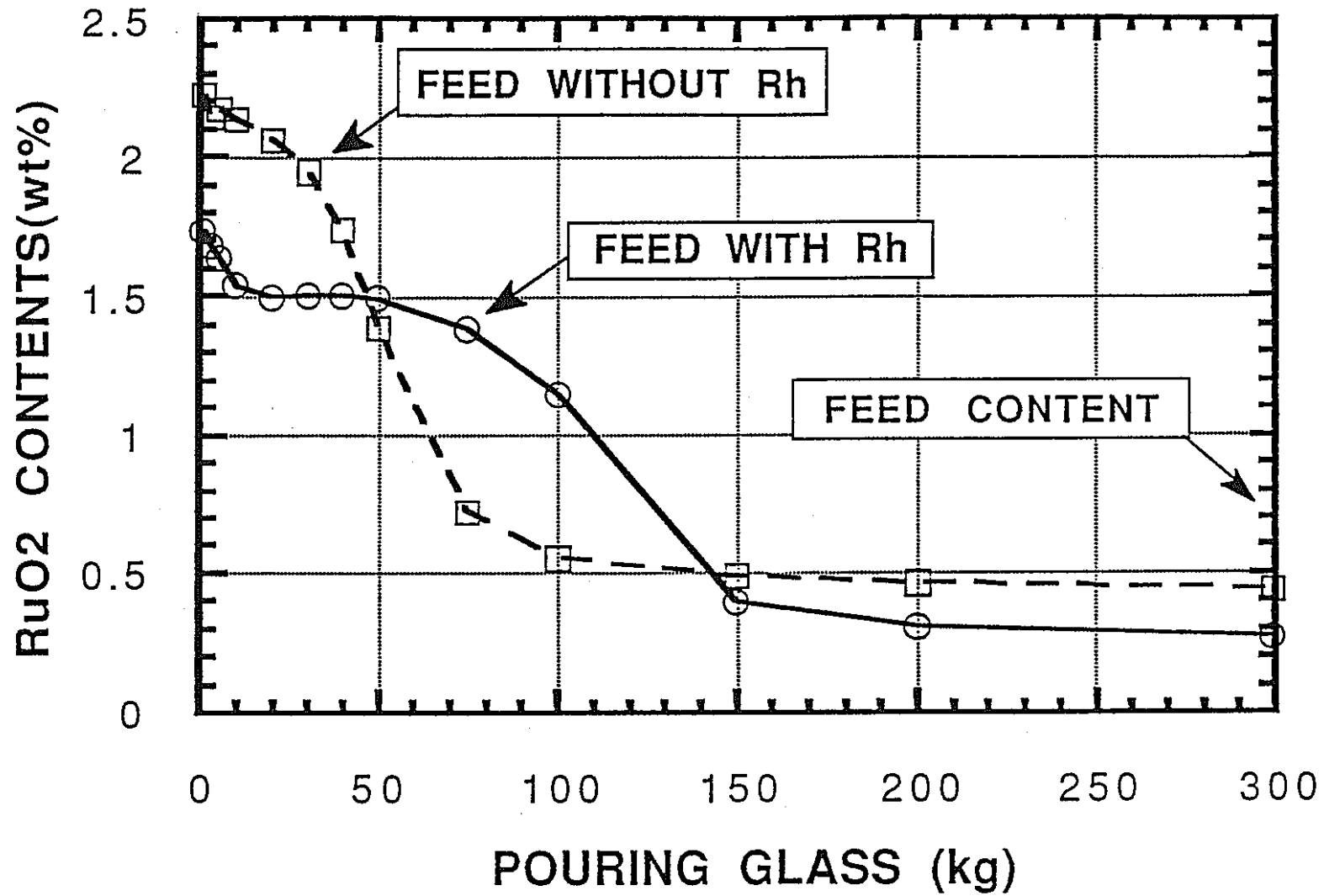
MELTER OPERATION DURING THE FEED OF NOBLE METALS

図 3.3 - 3 メルタ運転結果



BALANCE OF NOBLE METALS IN MELTER

図3.3-4 メルタにおける白金族元素収支



EFFECT OF Rh ON DISCHARGE CONTENTS

図3.3-5 白金族元素の抜き出しに及ぼすRhの効果

3.4 Operation Results with the K-6' Melter. (発表 Grunewald, W: K f K)

大きく以下の3項目について発表があった。

- (1) WAK廃液固化処理プロジェクトの現状
- (2) K-6' メルタ運転のためのVA-WAKプラント
- (3) K-6' メルタ運転

(1) WAK廃液固化処理プロジェクトの現状

WAKは1991年に運転を終了し、高レベル廃液の発生量はトータルで83m³が見込まれる。この廃液は2つのタンクに貯蔵されている。WAK廃液のガラス固化処理のために廃液を払い出す施設の建設と運転に対するライセンスが93年には得られる見込みである。

既に720m³の廃液が固化され、1990年11月20日には2000本目のキャニスタが製造された。130m³が残っているが、1991年夏までには処理される予定である。WAK廃液の処理はもともとの計画では1993年に開始されることになっているが、廃液輸送のライセンスが取れたとして4～8年かかることが予想され、開始は遅れると思われる。

INEではWAK廃液処理のためのメルタとしてこれまでの試験結果から60～75°の傾底勾配を有するK-6' メルタをVA-WAKプラントに製作し、その運転を90年6月に実施した。

(2) K-6' メルタ運転のためのVA-WAKプラント

VA-WAK運転の目的として以下が挙げられている。

- K-6' メルタ機能の実証確認
- 廃液処理能力(25 l/h)の確認
- 改善されたガラスフリットのテスト
- オフガス配管の粉塵除去(フィルムクーラ)性能の評価

K-6' メルタにはWAK模擬廃液が22 l/h、それにダストスクラバからの循環液3 l/hの計25 l/hが供給される。メルタの熔融温度は1200℃で、ガラス製造速度は13 kg/hである。流下は2度に分けて行い、COGEMAタイプのキャニスターに400kg

注入する。オフガス系はダストスクラバ、コンデンサ、ジェットスクラバ、NO_xスクラバ、クーラ、そしてデミスタが設置されている。

V-W1プラントで1988年から1989年にかけて行われた63m³の白金族元素を含有する廃液の供給による試験の結果、K-W2メルタの45°の炉底勾配では白金族元素の炉底への堆積を防止出来ないことが明らかとなった。このため炉底勾配を60~75°に大きくしたK-6'メルタをVA-WAKプラントに設置した。このメルタ構造を図3.4-1に示す。このメルタの電極は2対の上段電極、1対の中段電極、そして底部電極から構成され、定常運転においては上段および中段電極がそれぞれ通電されている。流下3時間前には中段電極の各電極と底部電極が交互に一定間隔で通電される3極通電（マルチプレックスと呼んでいる。）が行われる。この各通電は5kWであるが、平均すると1~2kWのパワーである。

K-6'メルタにはドレンノズルの形状に工夫が施されている。運転中に耐火物の一部が欠け、落下した場合にノズルを完全に塞ぐことがないようにノズル上端のガラス注入口が図3.4-2に示すようなチャンネルに分けられている。各チャンネルの入口径はノズル本体の径である22mmより小さい18mmとしてノズル本体を塞ぐことのないように、そして分割することによりこのうちの幾つかのチャンネルが塞がったとしても流下に支障がないように考慮されている。

(3) K-6'メルタ運転

K-6'メルタの運転が1990年5月から6月にかけて行われた。設備の試運転を廃液の代わりに水を使って（2.3m³）行われたD0キャンペーン、WAK廃液を模擬した白金族元素を含有しない廃液の供給（4.9m³）によるD1キャンペーン、そして本運転試験である白金族元素含有廃液の供給（10.3m³）によるD2キャンペーンが実施された。なお、白金族元素としてRu、Pdが供給され、その量はそれぞれ30kg、18kgであった。

定常運転時の供給電力は上段、中段それぞれ約25kWで、トータル75kWであった。D1キャンペーン時にはほぼ75kWで運転できたが、D2キャンペーンにおいては80kWを超えて運転された。（この一つの原因として白金族元素の堆積によるパワーのロスが考えられる。）

次に処理能力の評価では、25 l/hを目標にメルタへの供給を行い、設計処理能力を確認するとともに、まだ余裕が有ることが確認された。次回キャンペーンで30 l/hの供給による能力確認を実施する予定である。

K-6'メルタの炉底勾配60°、75°の効果を確かめる試験が白金族元素含有廃液の供給により行われた。D2キャンペーン運転では電極間抵抗の低下等白金族元素の堆積に起因すると考えられる明らかな異常は見られなかった。流下時のガラスサンプル分析の結果から白金族元素の抜き出し効率が流下バッチ毎に評価された。15キャニスタの製造での30回の流下およびドレンアウトの流下について実施された。初期の流下における白金族元素の抜き出し効率は100%を超えるものもあり、効率的に抜き出されたが、後半(9バッチ(17流下)目あたりから)では抜き出し効率が80%台に低下するのが見られた。(流下時の白金族元素濃度変化を図3.4-3に示す。)最終的なこの運転における抜き出し効率は平均でRu:92%, Pd:95-98%と評価されている。

K-W2メルタでの白金族元素の抜き出し効率がRu:66%, Pd:58%, Rh:62%であったから、90%を超える抜き出し効率はK-6'メルタの構造によるものと推定された。しかし、炉底電極に挿入した熱電対が800~850℃であることから炉底部のガラス温度は900℃前後と推定され、MU/3メルタで実施している運転と同様に炉底が低温に保持されていたと考えられる。また、流下時の白金族元素濃度の変化がMU/3メルタでの変化と同じであることから、白金族元素の抜き出し効率が高かったのは炉底が低温に保持されていたためと推定される。KfKはこの効果が炉底勾配によるものとは断言しなかったが、炉底勾配の効果は、今後、炉底部を高温にした運転で確認されることになる。

KfKからPNCと同様の運転条件で運転しているのにK-6'メルタでは徐々に白金族元素の抜き出し性が低下しているのは何故かという質問があり、長時間の議論を行ったが、定量的なデータにより説明することが出来ず結論はでなかった。3.3で述べたように、炉底温度の違い、低温域の幅の違いが原因と推定される。

D0~D2キャンペーンにおける各電極間抵抗および炉中間レベルで耐火物内(TR26)そして底部電極内温度(TR07)の変化(図3.4-4参照)を見ると、上段電極および中段電極の抵抗が徐々にではあるが低下しているのが見られる。また、TR26がD2キャンペーンにおいて徐々に上昇しており白金族元素の堆積に伴う温

度上昇ではないかと質問したが、供給パワーの関係であると明快な答は得られなかった。先に説明した抜き出し効率の低下および電極間抵抗の低下を考慮すると、この温度上昇は白金族元素の堆積に伴うものと推定される。

K-6' メルタ流下時の高周波誘導電力および温度の変化（図3.4-5参照）を見ると、運転中常時10kWのパワーがかけられており、流下を開始するために30kWまで1時間かけて上げられる。しかし、流下が開始するのは約2.5時間後で、かつガラス流速のコントロールも十分に出来ないのが大きな問題であるようだ。MU/3メルタでは上下段独立2段加熱方式の採用により、上段加熱を1.5時間実施したあと全段加熱を開始すると2～3分で確実に流下を開始し、その流速制御も非常に容易であることを確認しており、これが伊底低温運転を可能にしている。

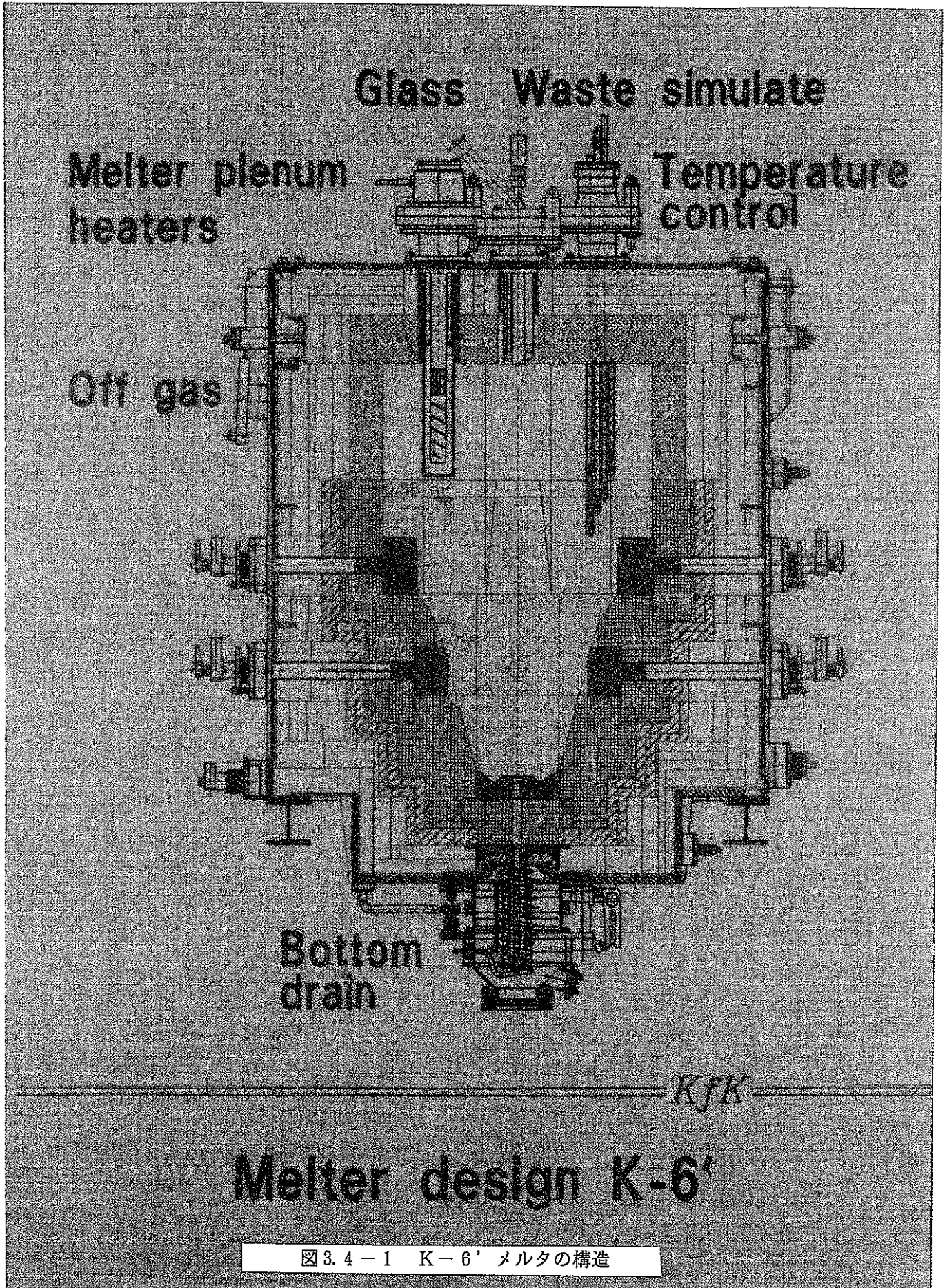


図 3.4-1 K-6' メルタの構造

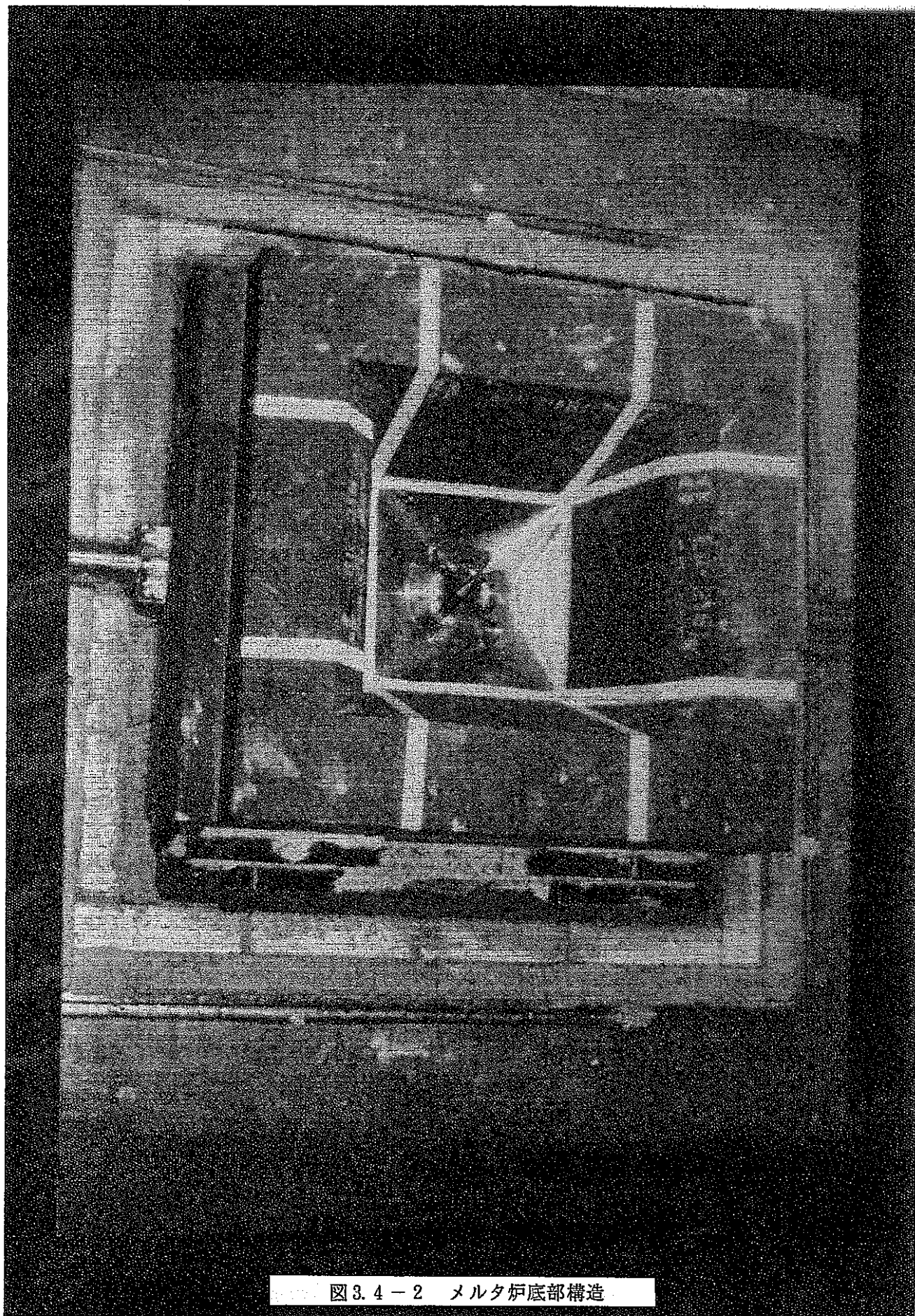


図 3.4-2 メルタ炉底部構造

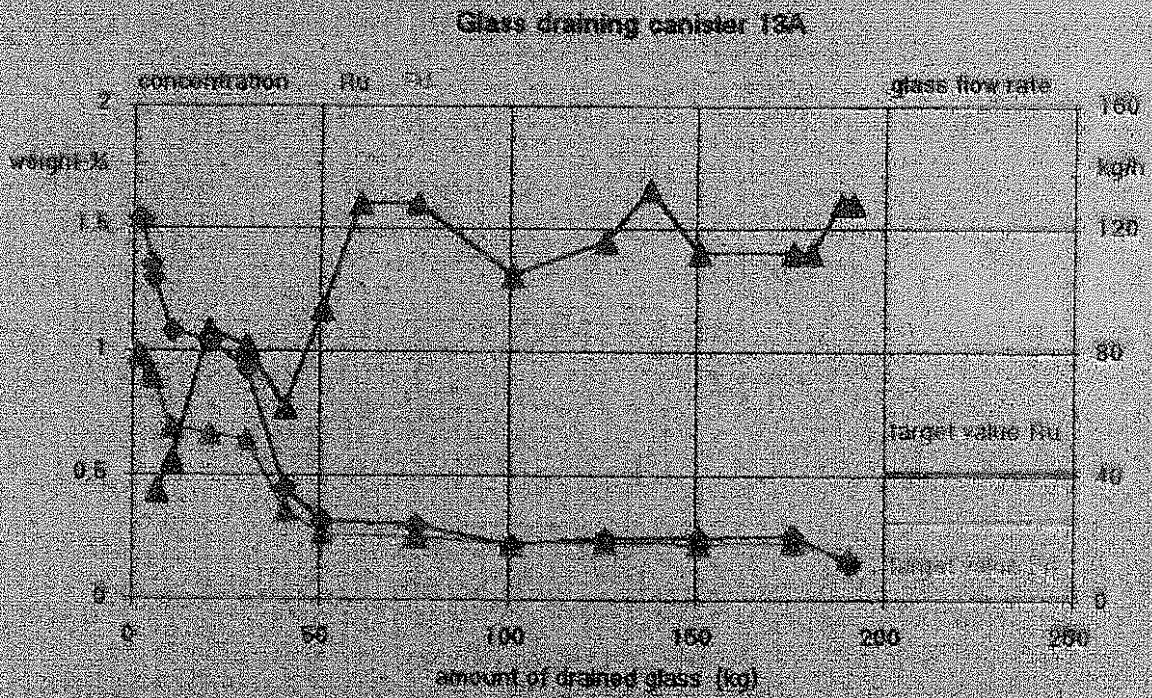
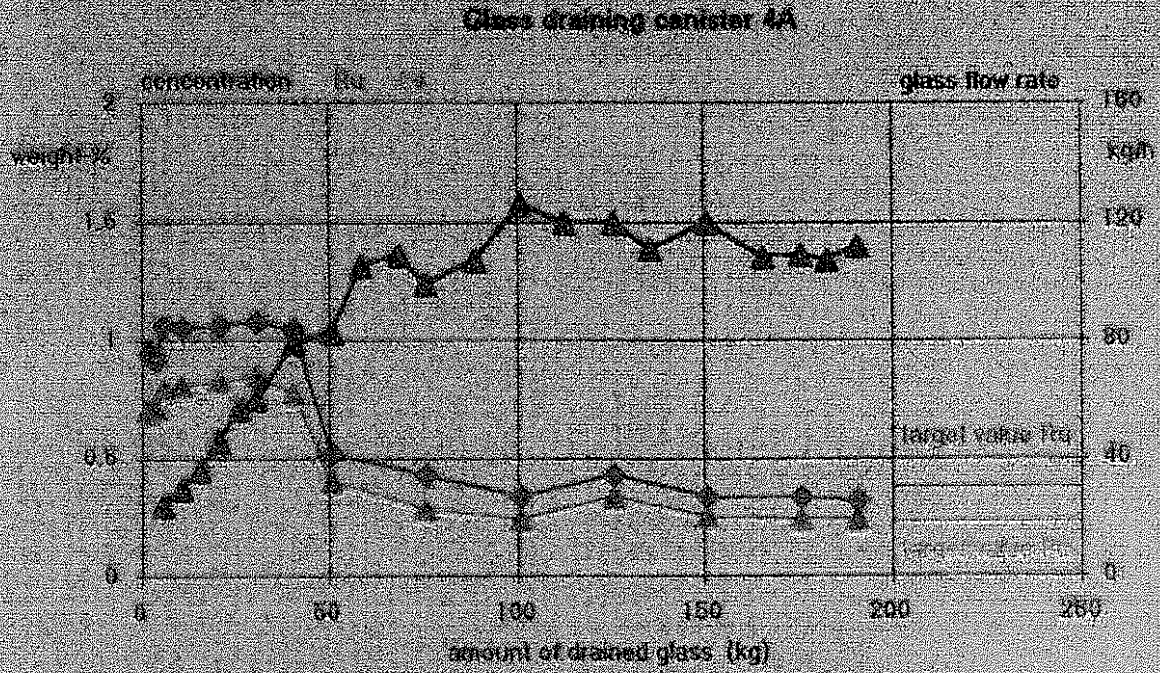
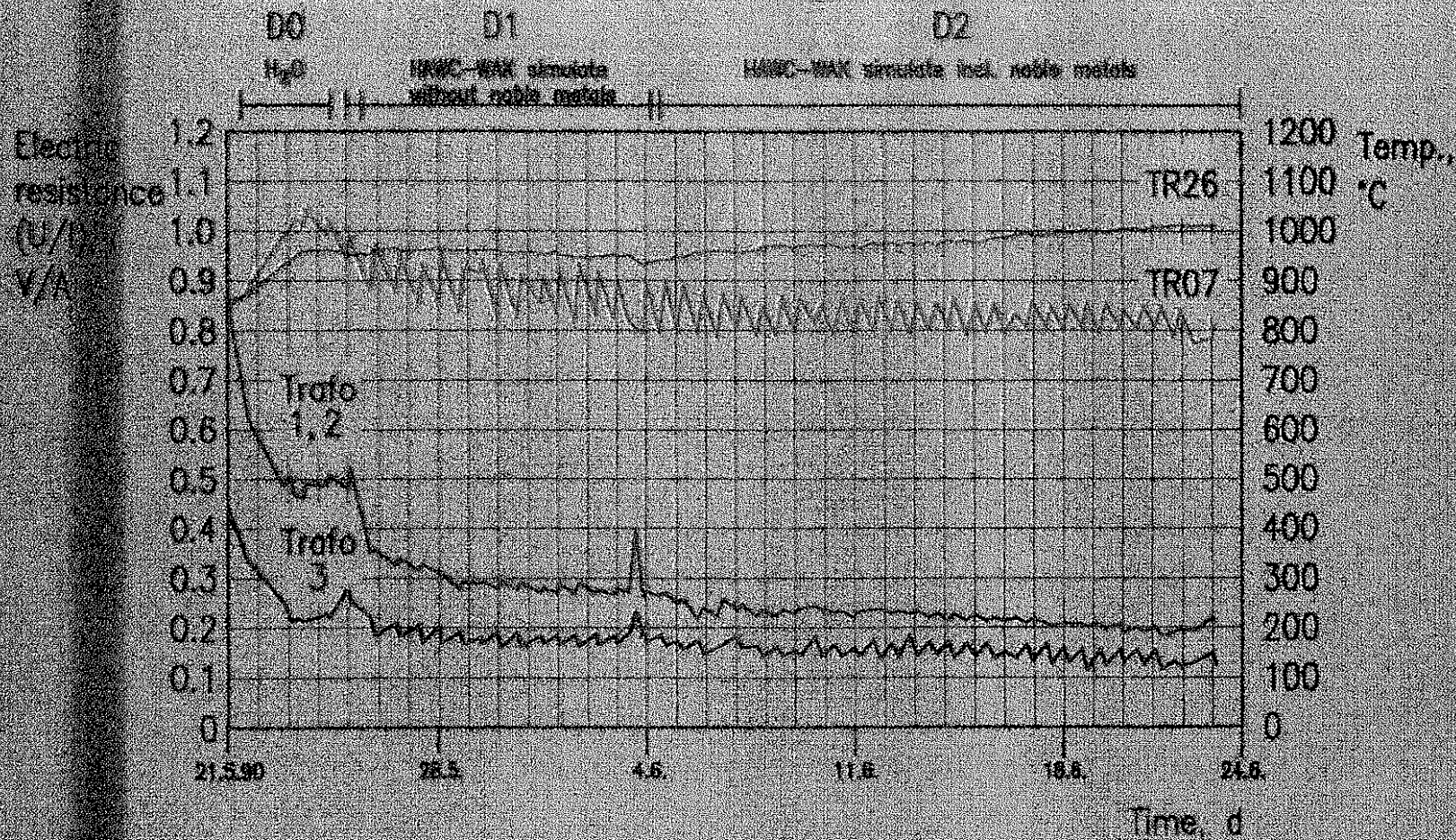


図 3.4-3 ガラス流下中の白金族元素濃度変化

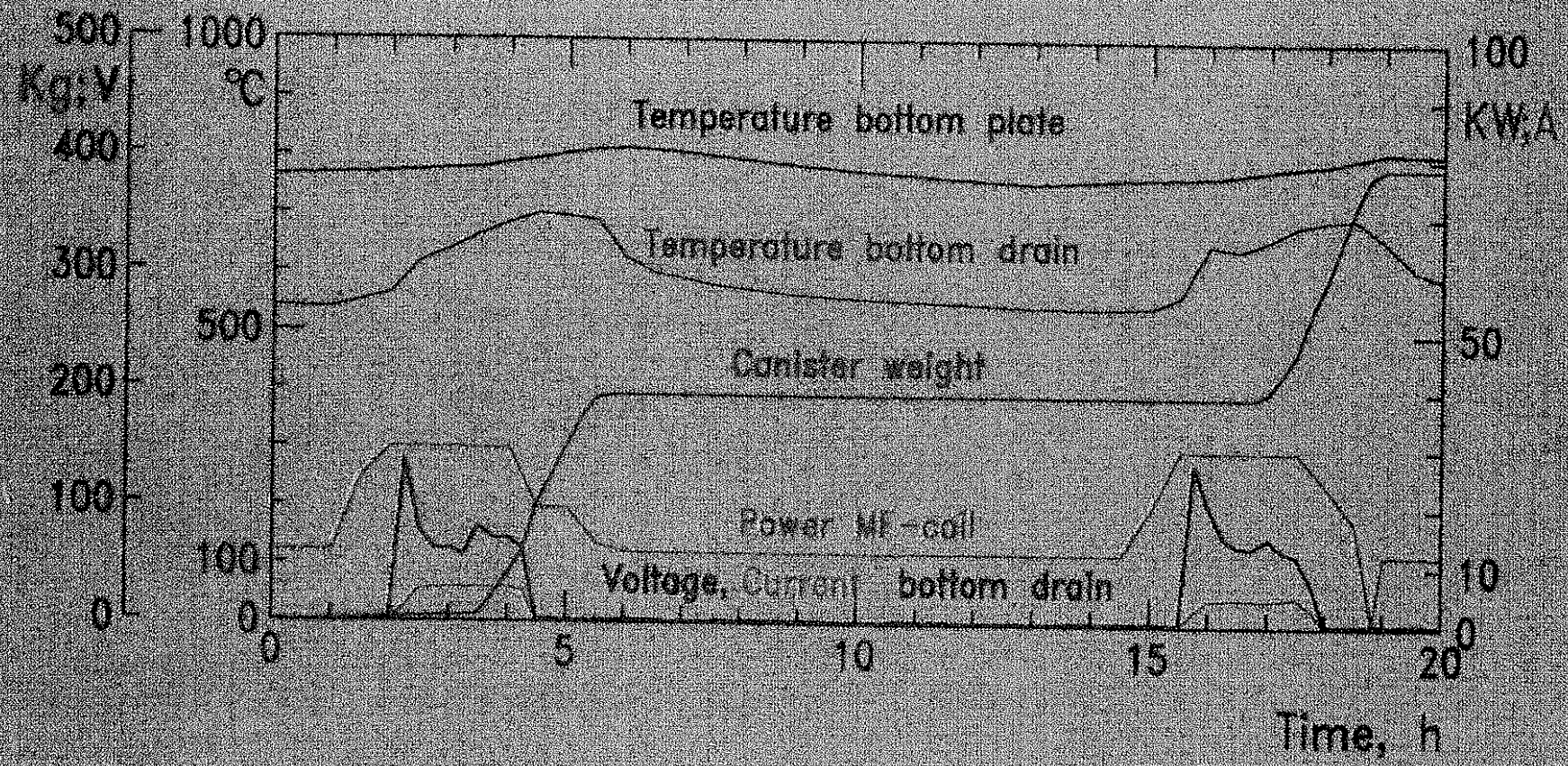
comparison of canister filling no 4A and 13A

dependance of glass flow rate



Course of the electric resistivity of the glass pool during the operation period

図 3. 4 - 4 メルタ運転における抵抗等の変化



Glass filling data of canister no. D2-14

図 3.4-5 ガラス流下運転

3.5 Off-gas treatment process

(発表 五十嵐主査：PNC)

モックアップ第21キャンペーンで行われた溶融炉のバブリング試験におけるオフガスへのRu、Cs、Srおよび粉塵の移行率評価結果ならびに、トレーサ試験による準揮発性元素(Tc、RuおよびSe)の模擬廃液仮焼時の揮発率について発表した。

溶融炉のバブリング運転では、各元素ともバブリング流量がふえるほど移行率が高くなる結果が得られたこと(図3.5-1~4)を紹介し、また、トレーサ試験では、各準揮発性元素の揮発率と雰囲気温度との関係を中心に紹介した。TcおよびSeの揮発率は温度が高くなるほど大きくなるが、一方、Ruは、TcやSeと反対に高温ほど揮発率が低下する結果が得られている(図3.5-5)。

KfK側からは、バブリング流量の設定とルテニウムの化学形態に関する質問があった。前者に対しては、TVFにバブリングを採用する予定がないため、運転をにらんだ流量の設定は行っていないが、KfKでのキャンペーンで実施した800 l/hでは攪拌が強すぎ、200~400 l/hの流量でも十分な攪拌効果が期待できる旨回答した。また、後者については、RuO₄でなく、ニトロシルルテニウムであると推定されているが、確実な形態の確認はできていない旨回答した。

3.6 Performance of the off-gas treatment system

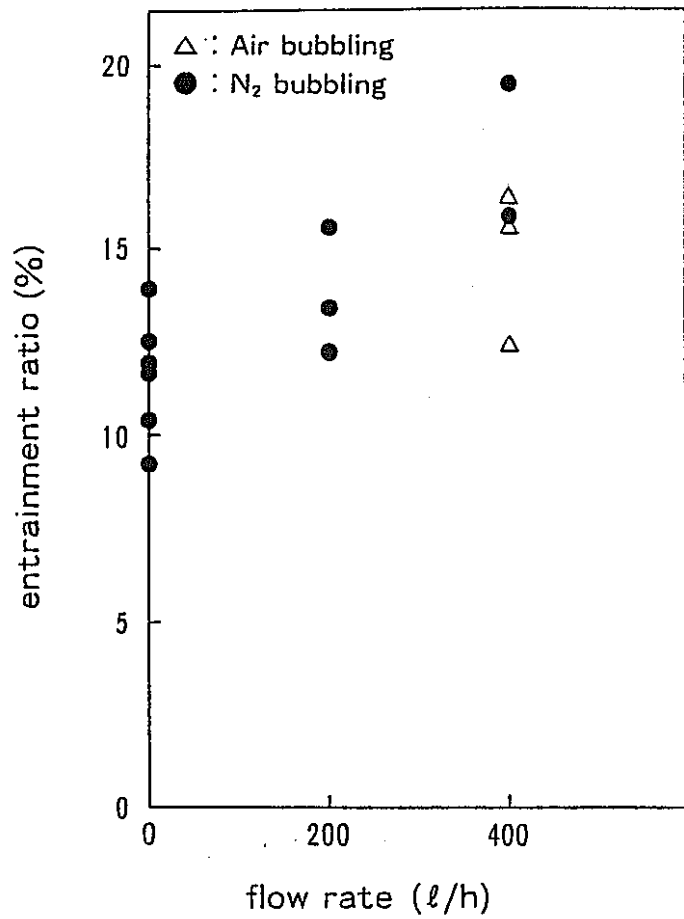
(発表 Weisenburger, S : K f K)

WAK廃液のガラス固化モックアップ施設(VA-WAK)におけるオフガス処理システムの性能評価試験結果について紹介された。

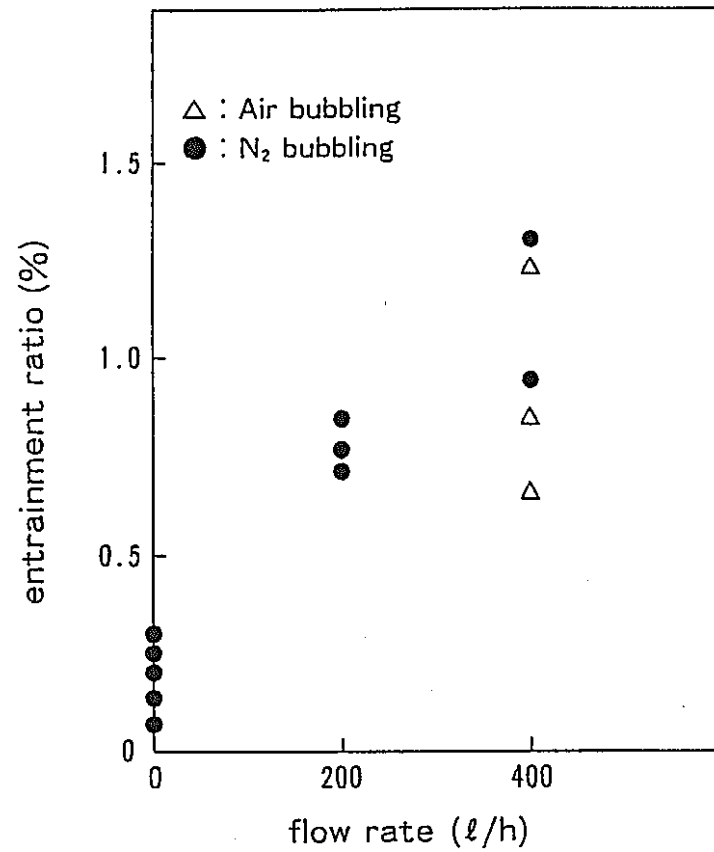
発表された内容は、主に新開発されたダストスクラッパの性能評価に係わるものであった。新開発されたダストスクラッパは、図3.6-1に示すように、5段の洗浄棚上に新たに3段のバルブプレートを追加設置したものであり、オフガスの洗浄効果を向上させたものである。

この試験の結果、Ruに対するDFは32程度、Cs等のエアロゾルに対するDFは3程度であることが確認された(図3.6-2)。現在、PAMELAにて稼働中のダストスクラッパと比較して性能が向上しており、WAK廃液のガラス固化プラントへの導入が期待されている。

PNCからは、ダストスクラッパの改良の目的について質問したが、WAK廃液のガラス固化プラントではPAMELAに比べて放出量の制限が厳しくなり、オフガス処理系の性能の向上が必要となったためであるとのことであった。



☒ 3.5 - 1 Effect of bubbling gas flow rate on Ru entrainment ratio



☒ 3.5 - 2 Effect of bubbling gas flow rate on Cs entrainment ratio

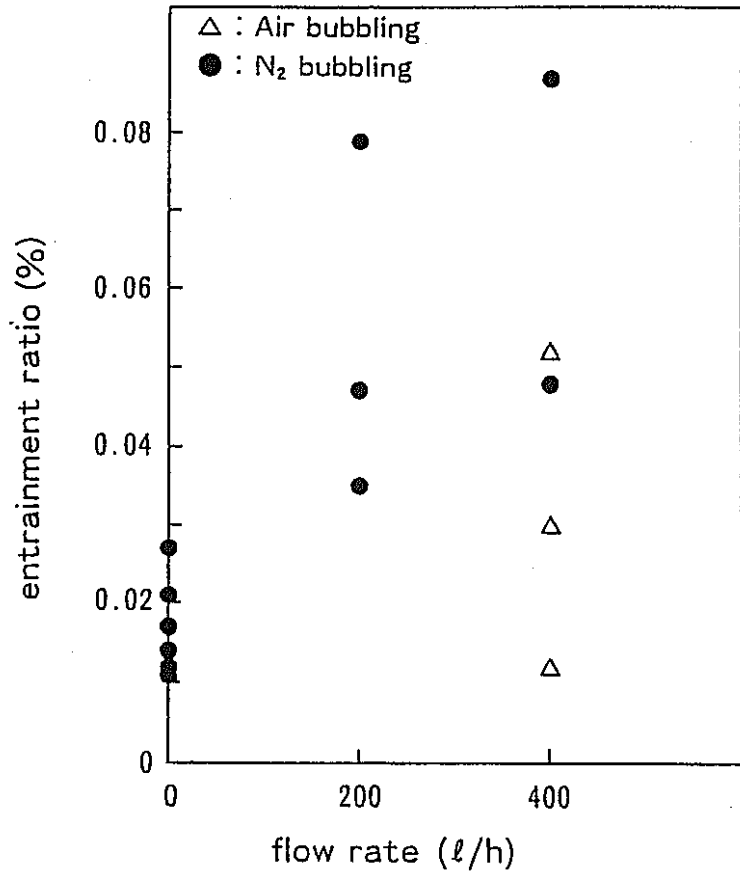


图 3.5-3 Effect of bubbling gas flow rate on Sr entrainment ratio

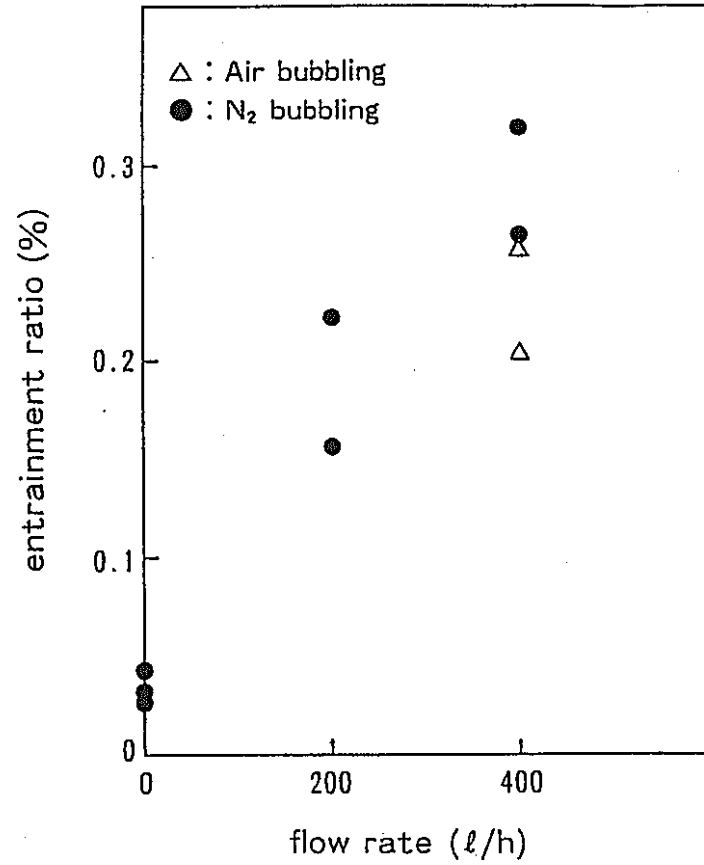
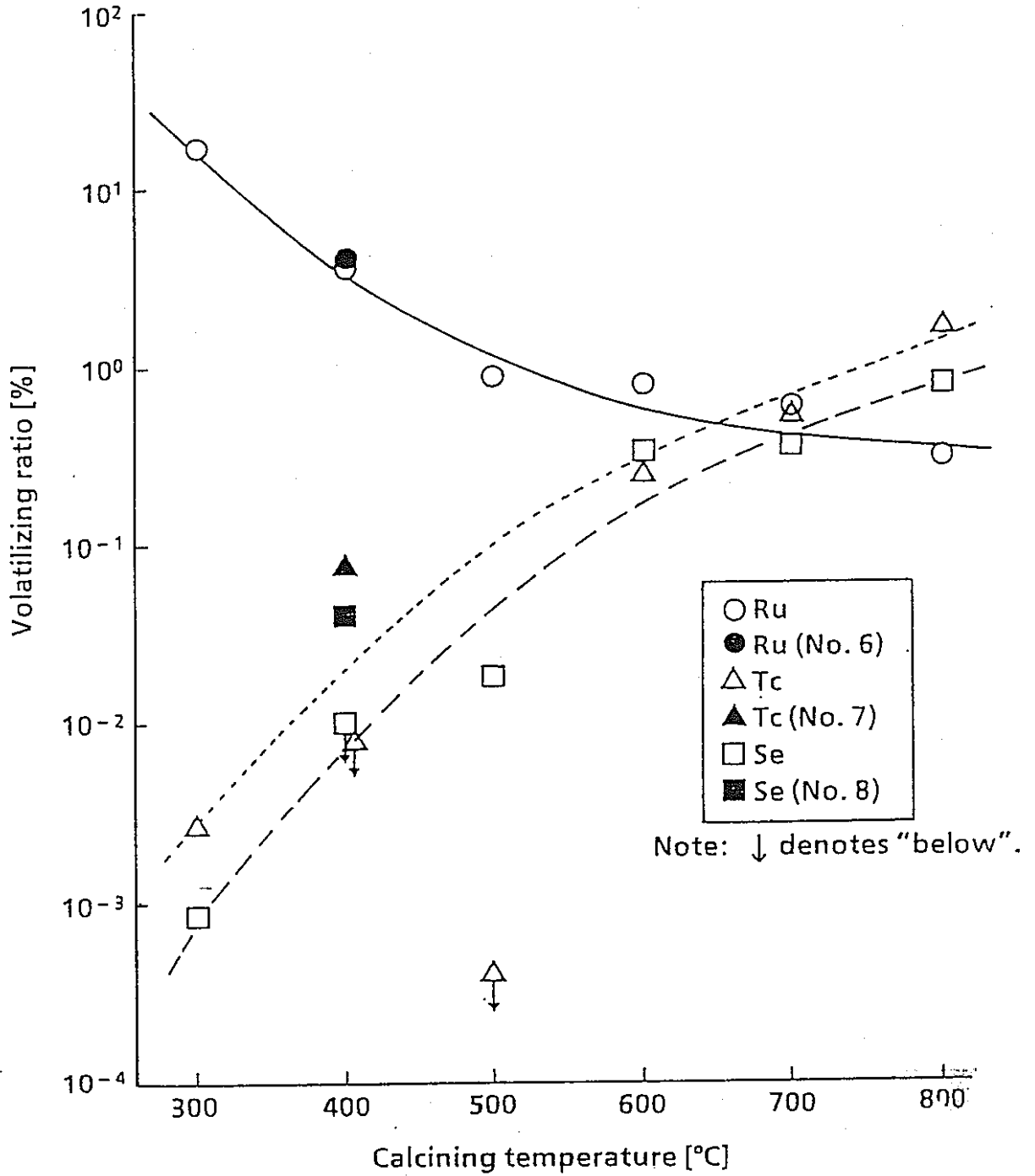
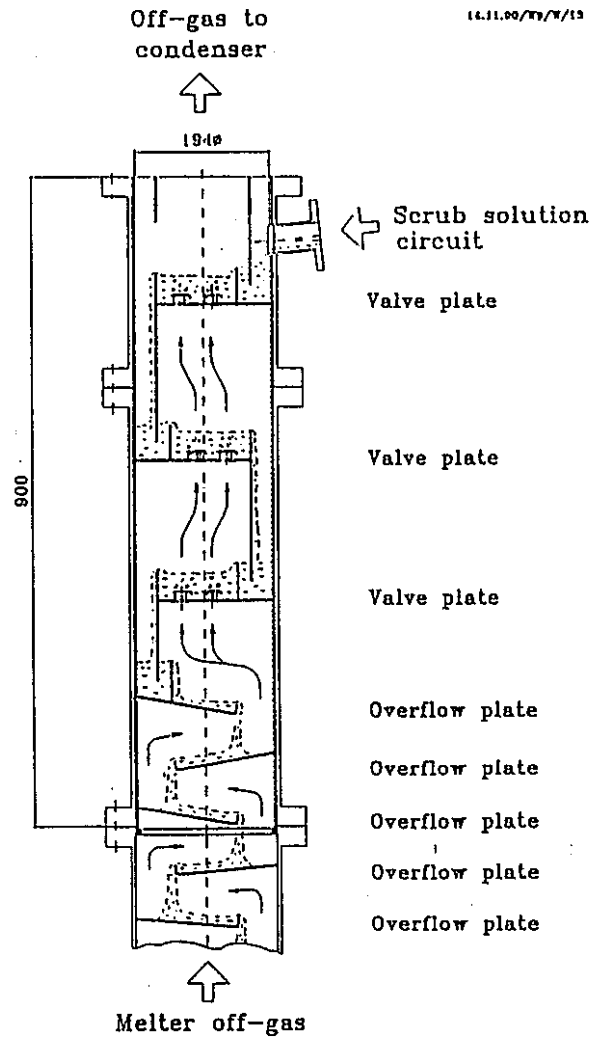
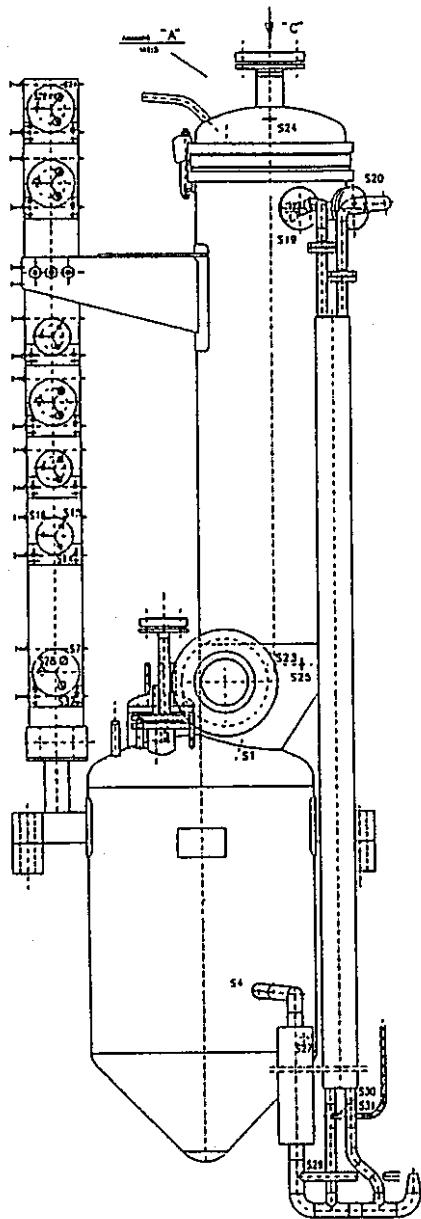


图 3.5-4 Effect of bubbling gas flow rate on dust entrainment ratio



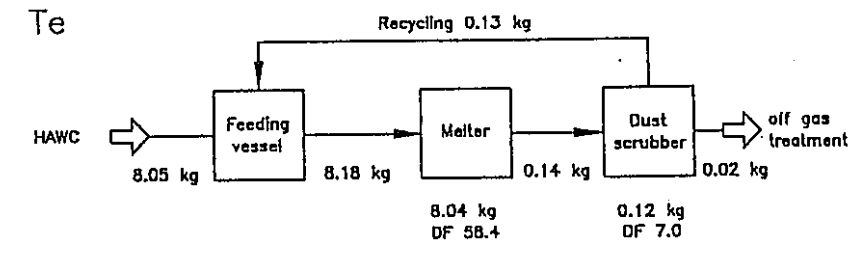
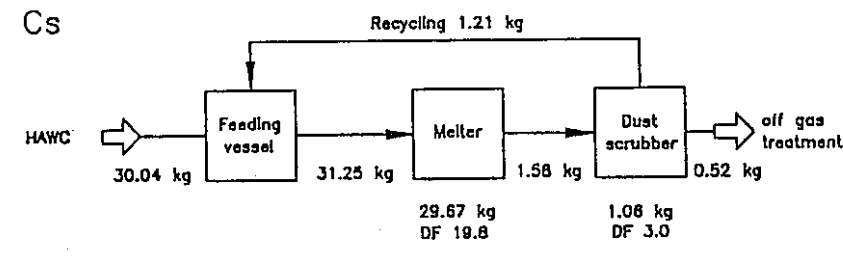
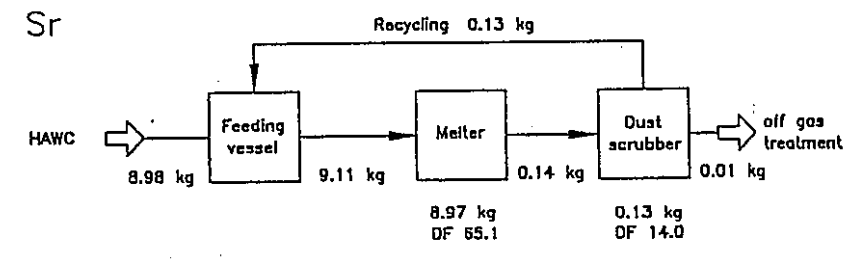
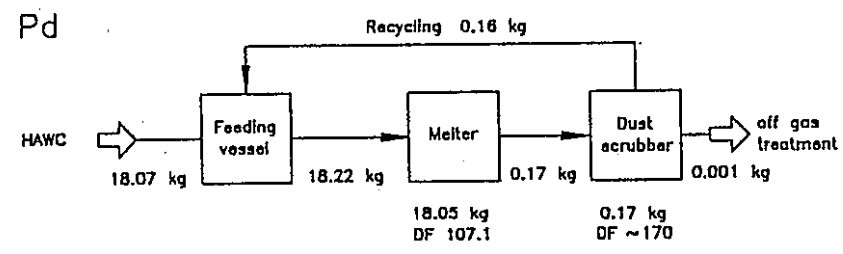
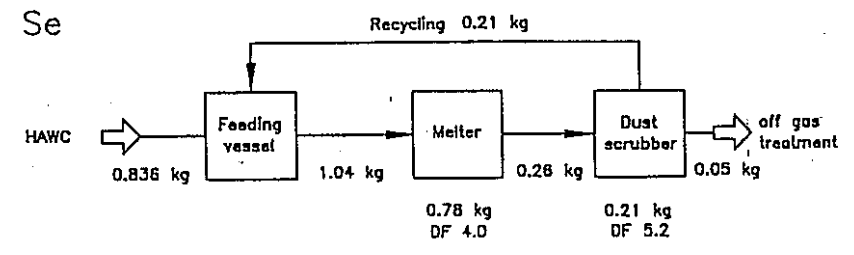
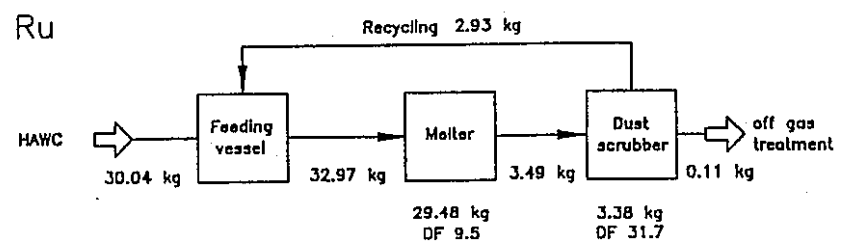
3.5-5 Volatilizing ratio of Ru, Tc and Se versus calcining temperature



VA-WAK: Optimized dust scrubber column

図 3.6 - 1 ダストクラッパ概略図

14.11.99/00/01/13



VA-WAK: Noble metal campaign D 2
June 1990

VA-WAK: Noble metal campaign D 2
June 1990

図 3.6-2 ダストスクラップのDF

3.7 Development of three dimensional thermal fluidic analysis code

for electric glass melter

(発表 菫蒲 : PNC)

ガラス溶融炉内の運転状況を把握するために開発を進めている、3次元熱流動解析コードの特徴、計算例および開発状況について発表した。解析対象は、改造Bメルタおよびモックアップ3号メルタとし、これらを3次元で解いた。

3次元熱流動解析コードは、電位分布計算プログラム、熱流動計算プログラム、図化プログラムで構成している。これらのプログラムは、解析対象の形状を忠実に模擬して、3次元で計算を行うことができる特徴を持っている。

解析例として、改造Bメルタにおける発熱密度分布図、温度分布図、流動ベクトル図を示す。また、解析コードによる解析結果の妥当性を評価するために、解析結果と運転結果における炉中央部での溶融ガラス温度分布の比較を行った。この結果から、解析コードによって炉内状況を推定できることが確認できた。

解析コードの開発進行状況は、解析結果を運転結果により近づけるために、設定境界条件の見直し、モックアップ3号メルタを対象に解析を行っている。また、種々の運転状況を計算できるように解析コードの改造を行っている。

3.8 3-dimensional melter modelling

(発表 Roth, G : K f K)

K f Kでは、K-6'メルタの任意の運転状況における炉内の温度分布、発熱状況等を解析するために行った、K-6'メルタと同じ構造の物理モデル実験装置による実験結果および解析コードによる計算結果についての報告が行われた。

模擬炉体は実機の1/2.5スケールモデルであり、模擬流体として食塩水が用いられている。また、炉底に堆積している白金族元素を模擬するために、厚さ0.02mmのアルミホイルが用いられている。測定には一本の測定装置が用いられ、それを3次元に移動させ炉体内各点の電位等の測定している。

実験は、実機の運転状況と同じ様に上部および下部それぞれの電極間通電、炉底部電極通電を行い、その時の炉内状況として電位、電流密度分布の測定が行われた。また、炉底部にアルミホイル敷いて白金族元素堆積時を模擬した実験も行なわれ、これらの実験結果が紹介された。

解析コードは、PNCで開発した解析コードと同様に溶融ガラス内の電位、電力密度、流動状況ならびに炉体全体の温度分布について計算を行うことができる。解析は、

①通常通電運転 ②炉底部電極通電運転 それぞれの運転について白金族元素堆積時と堆積していない場合について計算を行い、その計算結果から炉底に堆積している白金族元素および炉底部電極通電の運転に及ぼす影響についての考察が報告された。

これらの結果より物理モデルおよび数値解析から、任意の運転状況におけるK-6メルト内の状況が評価ができるとの報告がされた。

3.9 Advanced electrode and refractory materials (発表 正木：PNC)

動燃において高性能溶融炉の開発の一環として実施してきた、新電極材料および新耐火物材料の開発の成果について紹介した。

新電極材料については、ガラス溶融炉の電極材料として Inconel 690®を動燃、KfKとも用いているが、より高融点で通電状態での溶融ガラスに対する耐食性に優れた合金を開発し、その特性を評価した。試験方法は、Ti、Yを添加したNi-Cr-Fe系およびNi-Cr-Co系の計6合金ならびに比較のための Inconel 690®を供試材とし、溶融ガラス中で、表面電流密度 $0.8\text{A}/\text{cm}^2$ 、温度 1250°C の条件で20日間通電腐食試験を行った。また、溶融開始温度は示差熱分析により決定した。

試験結果を図3.9-1に示す。通電状態での耐食性は、全供試材が Inconel 690®より向上しており特にYを添加したものは Inconel 690®の侵食量の3分の1以下であった。また、Ni-Cr-Fe系の溶融開始温度は Inconel 690®と同じであるが、Ni-Cr-Co系では $30^\circ\text{C}\sim 60^\circ\text{C}$ 高くなった。

新耐火物材料については、ガラス溶融炉の接液耐火物材料として動燃では MONOFRAX K3®を、KfKでは ER-2161®を用いているが、耐食性の向上および耐熱衝撃性の改善並びにジュール加熱方式のガラス溶融炉で使用可能な電気抵抗特性を持つ耐火物材料の開発を行った。なお、MONOFRAX K3®の耐食性は ER-2161®よりも優れている。

開発した材料および MONOFRAX K3®の特性を図3.9-2に示す。溶融ガラス中での耐食性は MONOFRAX K3®に比較して3~4倍、耐熱衝撃性の2~3倍という性能を得、電気抵抗特性については、 $900\sim 1200^\circ\text{C}$ のガラス溶融温度域で動燃ガラスの10倍以上の電気比抵抗を有し、ジュール加熱方式のガラス溶融炉に使用できる性能が得られた。

3.10 Interactions between melter ceramics and glass product melts

(発表 Pentinghaus, H : K f K)

INEが同じK f KのPWA（再処理、廃棄物管理部）と共同で研究を行った、ガラス溶融炉の耐火物材料 ER-2161®および電極材料 Inconel 690®と溶融ガラスとの反応について発表された。

発表は、材料とガラスとの界面における種々の元素および酸化物の反応挙動の紹介であり、結果の概要として、耐火物材料の侵食は耐火物のガラス相を通じての化学的な溶解および拡散によって特徴づけられ、また、電極材料の侵食は、侵食界面におけるCrの酸化と Cr_2O_3 結晶の成長によって特徴づけられるというものであった。なお、本研究は侵食挙動の調査であるため、それぞれの材料の侵食速度は評価されていない。

試験方法は図3.10-1に示すように、ER-2161®、ガラスおよび Inconel 690®試料で構成した試験セルを電気炉内で加熱するもので、試験条件は温度1000°C~1150°C、時間は最短1日、最長128日である。

試験結果より得られた知見は、溶融ガラス中での耐火物の侵食挙動については次のとおりである。

- ① 侵食は均一に進行する。
- ② 侵食速度は、耐火物内の温度勾配、耐火物表面上における浮遊する Cr_2O_3 （図3.10-2参照）を含むガラスの粘性および廃棄物成分からの溶融ガラス中の Zr^{4+} および Cr^{3+} の濃度によって決定される。
- ③ 侵食の反応は耐火物中のガラス相などの非結晶質において生じ、物質の移動の形態は拡散である。
- ④ 二次相が侵食界面に生じる。

一方、溶融ガラス中での Inconel 690®の侵食挙動については次のとおりである。

- ① Inconel 690®は、母材中のCrおよびFeの約50%が酸素の作用によりから母材から離れていくという現象によって、選択的に酸化される。母材付近のCrの濃度変化を図3.10-3に示す。
- ② CrおよびFeは溶融ガラス中に溶解する。

- ③ Crの溶融ガラス中での過飽和は二次Cr₂O₃の生成を導く。
- ④ 選択的な酸化は溶融ガラス中のCr濃度に影響される。

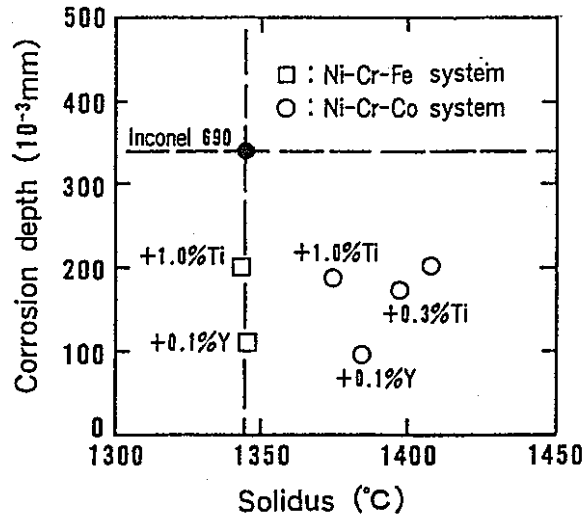


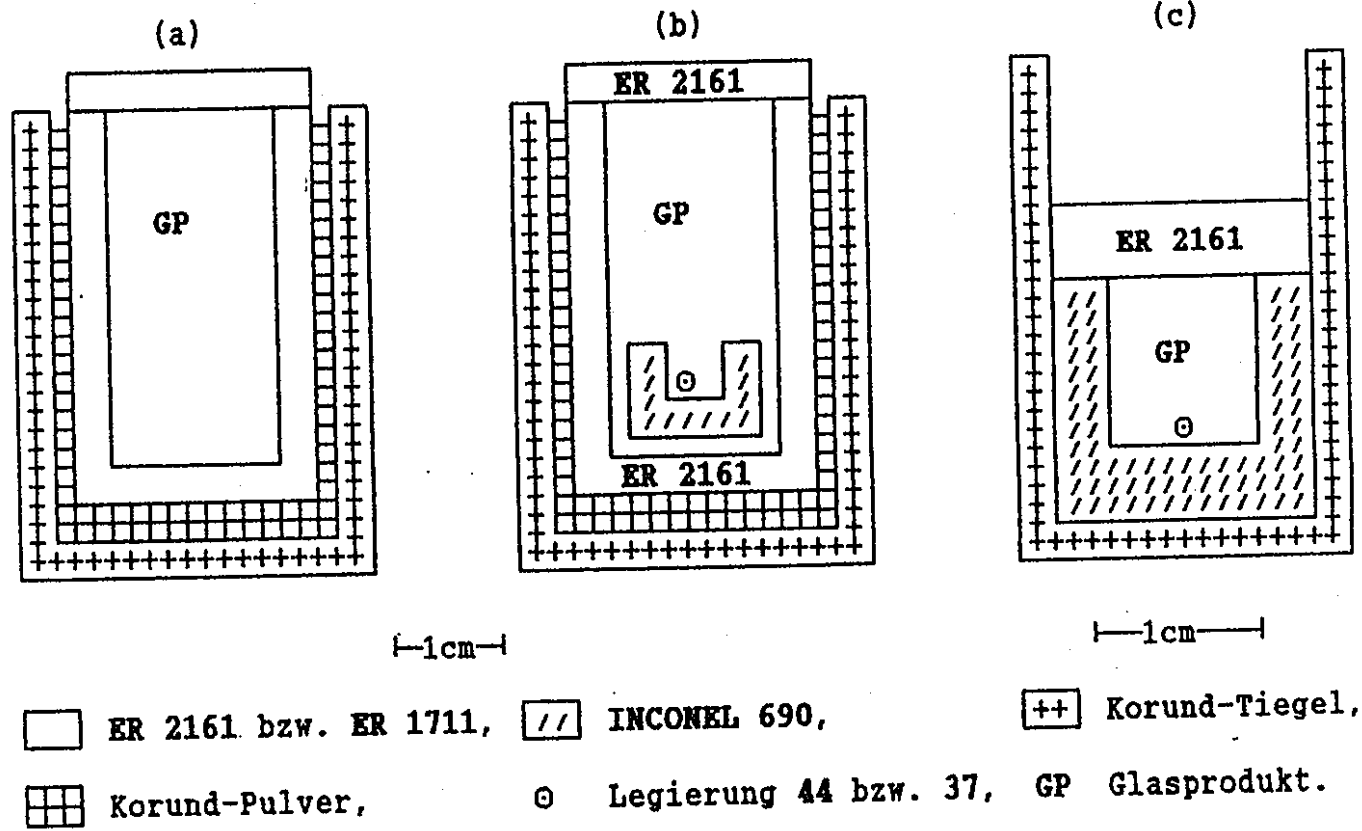
图 3.9 - 1 Corrosion resistance and solidus of experimental alloys

Corrosion test : in molten glass at 1250°C, 0.8A/cm² for 20 days

表 3.9 - 1 Properties of advanced refractory and MONOFRAX K3

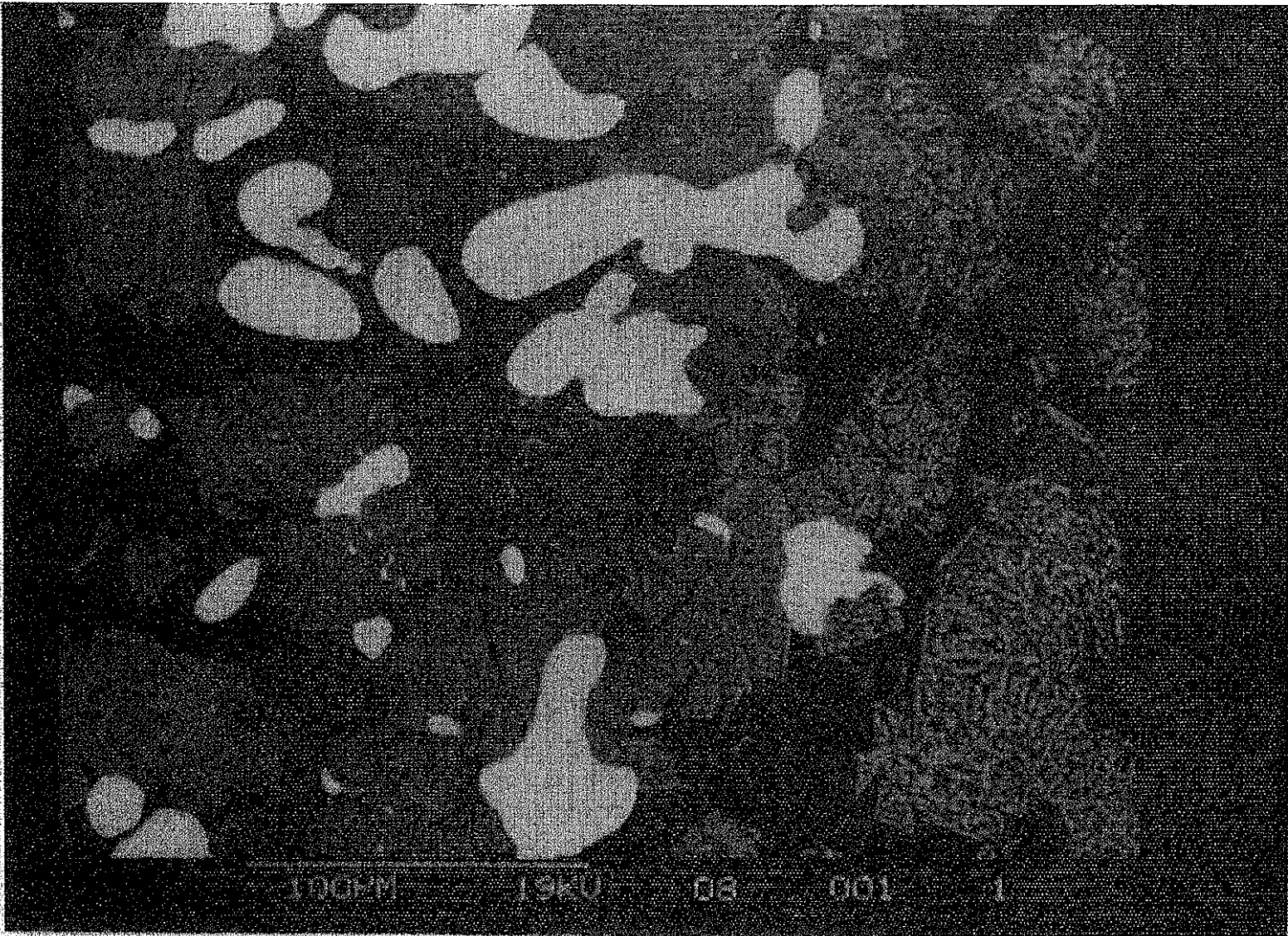
	New Composition	MONOFRAX K3®
Bulk density (10 ³ kg/m ³)	4.15	3.80
Apparent density (10 ³ kg/m ³)	4.54	3.97
Apparent porosity (%)	8.5	4.3
Modulus of rupture S (10 ⁴ Pa)	48	77
Young's modulus E (10 ⁴ Pa)	1940	2650
Poisson's ratio ν	0.21	0.21
Fracture energy γ (J/m ²)	24.8	13.2
Thermal expansion coefficient α (10 ⁻⁶ °C ⁻¹)	7.73	8.04
Thermal shock fracture resistance parameter ^{*1} R (°C)	24.8	28.0
Thermal shock damage resistance parameter ^{*2} R''' (m)	27.5	7.9
Corrosion factor static condition ^{*3}	0.301	1.000
dynamic condition ^{*4}	0.231	1.000
Electrical resistivity ^{*5} at 1000°C (10 ² Ωm)	136	478
1200°C	55	180

*1 $R = S(1 - \nu) / E\alpha$ *2 $R''' = E\gamma / S^2(1 - \nu)$ *3 1250°C, 720hrs.
 *4 1250°C, 336hrs., 50r.p.m.
 *5 Electrical resistivity of PNC glass is $10 \times 10^2 \Omega m$ at 1000°C and $4 \times 10^2 \Omega m$ at 1200°C



3.10-1 Schematische Darstellung der Meßzellen für die Wechselwirkungsexperimente zwischen (a) Keramik und Glasprodukt, (b) ER 2161, GP 98/12.2, INCONEL 690 und Legierung 37, (c) INCONEL 690 und GP 98/12.2 und Legierung 44 bzw 37.

- 61 -



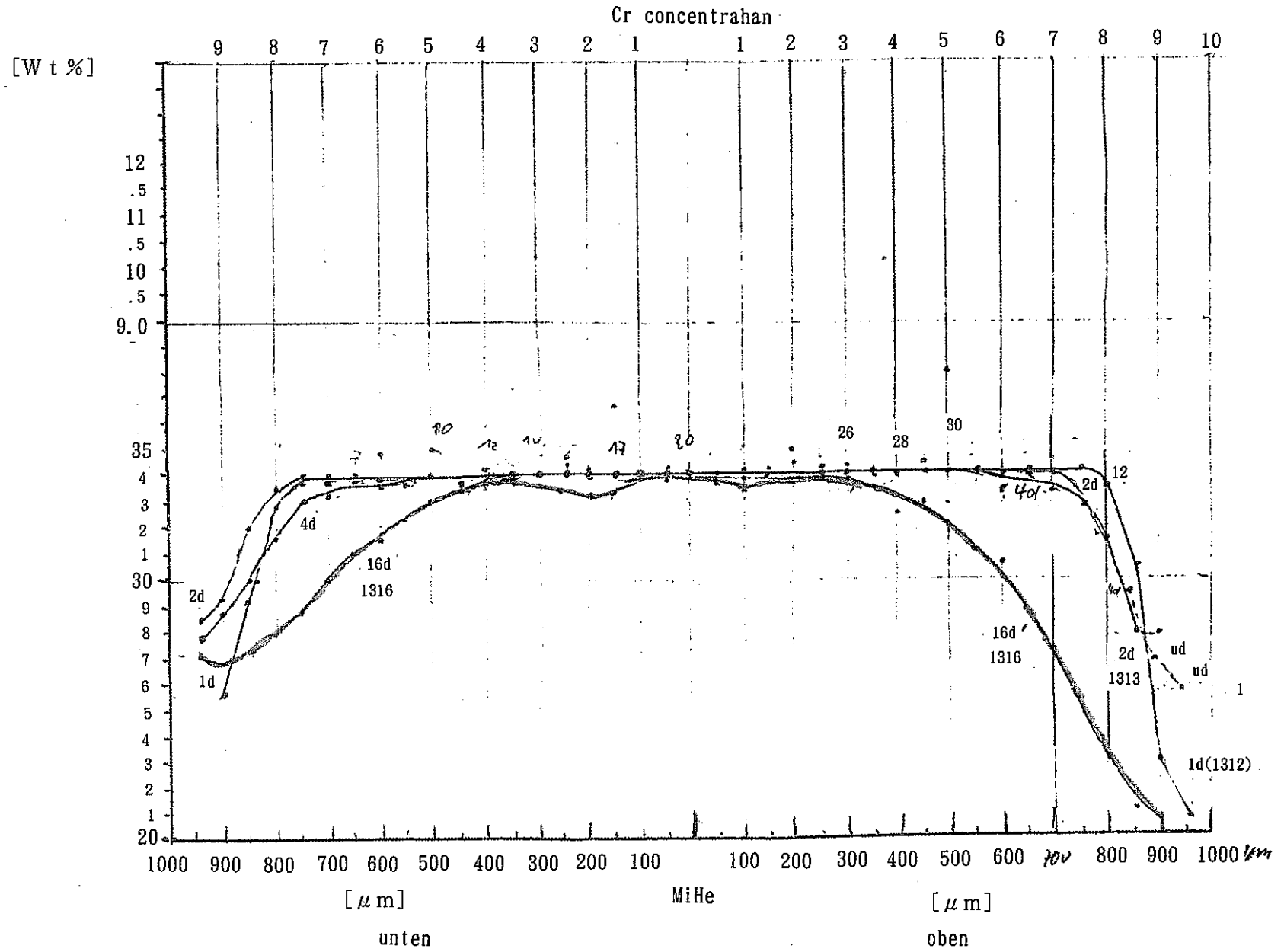
KIK

7.11.89 Pa13

E 13 Corroded region of ER 2161, secondary Cr₂O₃-crystals outside in the melt (glass)
(8/1000) RE

图 3.10-2 Corroded region of ER2161, secondary Cr₂O₃-crystals outside in the
melt (glass) (8/1000)RE

A10



4. 詳細討議

PNCおよびK f Kの各々から提案された討議項目を表4-1に示す。

4.1 PNC側の関心

4.1.1 K-6' メルタによる白金族元素供給運転

K f Kでは白金族元素の供給における運転で45°の炉底勾配では不十分と判断しより勾配を大きくすることにより対応しようとした。そのための運転をD2キャンペーンとして実施したが、白金族元素の抜き出し性を向上させる方法として炉底勾配の効果が期待できるのかどうかについて関心があった。

D2キャンペーンの結果は3.4で述べたように、白金族元素の抜き出し性は向上したが、それは大きな炉底勾配の効果ではなく、炉底部が低温に保持されていたためと推定される。炉底が高温の場合に、はたして抜き出し性が向上するか疑問である。確かに勾配が大きいと白金族元素は途中の斜面に堆積するようなことはなくなり、炉底部まで沈降してしまうが、問題はそれらが流下により抜き出されるかどうかである。MU/3メルタでも経験しているように、炉底部が高温だと沈降した白金族元素は殆ど抜き出されないと云える。沈降した白金族元素の抜き出しには炉底勾配は関係しないことから、炉底勾配を大きくした効果はほとんど認められないと判断される。

また、MU/3メルタの炉底部よりも大きい面積をもつK-6'メルタにおいて、バッチ毎に供給した殆どの白金族元素が炉底に沈降しても炉底部が低温に保持される(約900°C)とその殆どが抜き出されることが確認された。このことは炉底部を低温に保持する運転手法が沈降した白金族元素の抜き出しに大きな効果を持っていることを示すものである。

4.1.2 オフガス処理

PNC側としては、K f Kにて新開発されたダストスクラッパの構造について質問した。このダストスクラッパは、欧州における放射性物質等の放出規制が厳しくなることにより、除去性能を向上させる必要性から開発された機器である。基本構造は、PAMELAに導入されたダストスクラッパと酷似しているが、オフガスの洗浄、吸収を行う洗浄棚段部について、オフガスと洗浄水の接触時間（滞留時間）をかせぐとともに、接触効率を上げるためにバルブと呼ばれるパーツを設けている。本構造は、PNCのオフガス処理機器である吸収塔の除去原理に酷似していることがわかった。K f Kでは、このダストスクラッパについて、さらに評価を行うとともに、WAK廃液ガラス固化処理施設へ導入する計画であるとのことであった。

4.1.3 数値解析

PNCでは、炉内の熱流動解析を差分法によって解いているが、K f Kでは、どのような解析手法を用いているのか質問したところ、K f Kでも、差分法を用いて解析をしているとの回答がされた。

また、モデルによるシミュレーションは現在どの段階まで進んでいるかとの質問に、現在、K-6'における任意の運転状況での炉内状況を計算しモニタリングする位置を求めているとともに最適な運転状況を求めている段階であるとの回答がされた。

4.1.4 物理モデル

物理モデルで電位場が炉底近くで非対称になっているのに対して、これはK-6'メルタの構造上の問題であるのか、それとモデルの製作上の問題であるのか質問した。

この問題については、単に製作上の問題であってK-6'メルタの問題ではないとのことであった。

次に、メルタに必要なとされるパワーを求める方法について質問した。これに対して、K f Kの物理モデルは、ある測定する位置に検出部を移動させて電場を求める構造となっている。よってメルタに必要なパワーを求めるためには、この検出部を基準点に設置し、その点の温度が目的とする温度に達したときに自動的にパワーを

計算する方式を採用しているとの回答があった。

最後にPNCでは、炉内の熱的状況を模擬し流動状況の観察を行うが、なぜK f Kでは物理モデルで炉内の流動状況を求めないのかとの質問に対し、物理モデル全体の無次元数を合わせることは不可能であるために、電氣的のみ模擬し、電位分布を求めることを目的としてモデルを製作したために流動状況は見るできないとの回答であった。

4.1.5 PAMELAプラントの運転状況

PAMELAプラントは、1985年10月の運転開始から現在(1990年11月)までに、LEWCを47.2m³、HEWCを672.8m³処理し、固化体の製造本数にして2000本を達成した。この間PAMELAでは、メルタを1基交換(1988年5月～7月に交換)しており、現在2基目にあたるK-5メルタによってHEWCの処理運転を継続している。

しかしながら、このK-5メルタはドレンノズルからのガラス流下不能に陥り、ガラスの流下はエアーリフトを併用したオーバーフローに頼っている。この流下不能の推定原因としては、①炉底部ないしドレンノズル部でガラスが結晶化した。または、②ドレンノズル部に耐火物もしくは熱電対(熱電対の先端部の溶損物)が入り込んだかのいずれかであると推定される。なお、ガラスの結晶化に関しては、高レベル廃液中に多くのAlがあり(ガラス固化体中のAl含有率は、PNCでは5%であるのに対してPAMELAでは20%と多い)、これがガラスの粘性を上昇させるとともに結晶化を促進させる働きをしたものと考えられる。さらに悪いことには、ドレンノズルの加熱ケーブル(高周波加熱)のコネクタ部からの水漏れによって、ドレンノズルの加熱をを長期間停止していた。これによって、炉底部の耐火物で構成されているノズル部が600℃～700℃に保持されていたために、この影響により結晶化したこと等が推定される。

このため、このトラブル対応を11月26日の週に行う予定であるとのことである。

4.1.6 K-6' メルタの溶融能力

K-6' メルタを含めK f Kメルタは大きな溶融能力を持つように設計されている。この溶融能力を廃液濃度、固化体中の廃棄物含有率、コールドキャップ割合等をパラメータとして評価したが、その結果は設計値よりも小さかったことから質問した。

PNC側からは、その評価手法として用いた熱バランスモデルの説明およびその結果について報告した。K f Kメルタでは廃棄物含有率がPNCの約 1/2で能力増大に寄与するが、廃液中の酸化物濃度は約 1/2で逆に能力を低下させることになる。結果として溶融面を出した運転を行うかどうかを除けば、PNCと同様の溶融能力が得られるはずである。報告に対してK f Kからは、K f Kメルタの溶融能力が大きい理由の一つはPNCが指摘したように10%程度の溶融面を出した運転によりプレナム温度を高くすることができ（D2キャンペーンの実績では600～700℃）、その雰囲気からの熱がコールドキャップの水分の蒸発、即ち溶融能力の増大に大きな効果を与えるとコメントがあった。PNCは溶融面を出さないで運転しているため溶融能力の評価においても熱バランスモデルにより定常状態として扱かえると考えるが、コールドキャップを90%にする運転はその厚さ、反応等定常では扱えず、非定常のモデルによる評価が重要であるとK f Kはコメントしていた。

上述の評価よりも溶融能力が大きい理由についてK f Kから次のようなコメントがあった。K f Kの場合、ナトリウムがガラス原料に含有されており、かつコールドキャップでのその濃度は45%と計算されており、コールドキャップの溶融性が非常に高いために大きな溶融能力が得られている。確かに、ナトリウム濃度が高いと溶融性も良く、かつガラス粘性も小さく流動が大きくなるからさらに溶けやすくなることが考えられ、この点を評価において考慮すると高い溶融能力が得られるものと考えられる。

4.2 K f K 側の関心

4.2.1 白金族元素の抜き出しに係る溶融炉の設計と運転

(1) 溶融炉の設計と運転

白金族元素の抜き出しに係わる以外の溶融炉の設計において、K f Kは流下に係わる設計および運転について関心があった。3.4で述べたようにK f Kの流下運転はその開始に時間がかかるとともに流速の制御もほとんど出来ないという問題を持っている。これを解決するのにPNCでは、上下段独立高周波加熱法により先ずノズルの上端部を加熱し、この部分のガラスのみを溶融する。続いてノズル全体を加熱することによりノズル先端部のガラスが溶融し、流下が確実に開始するというものである。特に炉底部を低温に保持しているため、この方法の効果は大である。さらに流下開始5時間前からノズル-主電極間および補助電極間の通電を行い、炉底部のガラス温度を上昇させる運転も安定した流下運転に大きく寄与している。さらにこれらの運転モードは長期のメルタ運転により確立されている。

(2) メルタ運転に及ぼす白金族元素模擬の効果

メルタ運転に及ぼす白金族元素の効果を評価するのに白金族元素としてR u, P dを主に用いているが、この模擬は実廃液による挙動を過少評価するのではないかと、あるいは挙動を評価するのにR hを含めて評価する必要があるのではないかとということで関心が持たれた。これについてはPNCにおいても同様の理由で、他にR hを添加した模擬廃液による運転試験を第23キャンペーンにおいて実施した。

その結果は図3.3-5に示されているが、明らかに異なった挙動を示している。R hを加えると、R u等の初期の抜き出し濃度は低下する。またR hなしの場合、流下75kgまでに抜き出し濃度は供給濃度以下に低下するが、R hを加えると100kg以上まで抜き出し濃度が供給濃度以上に維持される。また、R hを加えると流下後期に一定となる抜き出し濃度が0.2%程度低下することが分かった。これらをまとめるとR hを加えた場合、炉底部への沈降量は減少し、その反面、補助電極の上まで供給した白金族元素が濃縮された形で存在していたと推定される。また、炉上部の高温領域においては白金族元素の沈降速度がR hの添加により増大したことは明らかである。次にこの抜き出し濃度とガラス温度との関係について流下中のガラスの流れをプラグ流として評価してみると、高温域で抜き出し濃度が逆転する温度は約1100°Cであるこ

とが分かった。また、組織分析の結果RhはPd-Te化合物の中、およびそれに若干のRuO₂を含んだ中に見られた。RuO₂中のRhの含有量は1%よりもずっと小さかった。

一方、KfKでは溶融過程でPd-Te合金が約900°Cで形成され、1060°C以上でRhがこれに取り込まれるという実験結果が得られている。

以上からRhは他の白金族元素の挙動に影響を及ぼすが、それはガラス温度が1050°C以上の温度範囲において特に明らかであり、これはガラス組織的には白金族元素とテルルの三元合金が溶融した状態で存在することに起因していると推定される。

(3) メルタ保持運転時の影響

メルタ運転において廃液の供給を行わず、保持運転を行うと白金族元素は時間とともに炉底に沈降し、堆積することが確認されている。PNCにおいては保持運転はメルタの立ち上げ時と他のプロセス機器の異常等により供給を停止する場合のみであるが、KfKではキャンペーン終了後はドレンアウトせずに保持運転状態でメルタは運転される。このため白金族元素の沈降を防止する対策を立てる必要がある。

この対策として、PNCが供給運転における白金族問題を解決する方法として提案した炉底低温運転が保持運転時にも非常に効果的であることを報告した。これはモックアップ第21および23キャンペーンでの各3日間の保持運転後の流下において抜き出し白金族元素濃度が供給運転時のそれと変わらず、かつ保持運転開始前に供給された白金族元素量がほぼ全量抜き出されたことから確認されている。図4.2.1-1に第23キャンペーンにおいて実施した保持運転での炉底低温保持の効果を示す。

(4) 白金族元素の抜き出しに及ぼす炉底部形状の影響

3.3、と3.4で述べたようにPNCの70日にわたる長期のメルタ運転では全運転バッチにわたって供給された白金族元素のうち99%以上が抜き出されたが、KfKのメルタ運転では前半はほとんど抜き出されたが、後半において抜き出し率が80%台まで低下した。この原因として炉底部形状が影響するかどうかについて議論した。

炉底部の形状として ①炉底水平部の大きさ ②ノズルまでの炉底部の勾配およびノズル回りの構造が考えられた。

① 炉底水平部の大きさ

MU/3 メルタ : 180mm × 180 mm

K-6' メルタ : 300mm × 300 mm

K f Kメルタが大きいのが、これが原因でキャンペーンの前半、抜き出しが良好であったものが後半に悪くなるとは考え難く、逆に4倍程度の大きさになっても抜き出せることが確認できた。炉底を低温に保持して運転すれば問題ないと考えられる。

② ノズルまでの炉底部の勾配およびノズル回りの構造

MU/3メルタではノズル回りでは炉底は勾配がなく、かつ耐火物破片によるノズルの閉塞を防止するためにステップアップ構造となっている。これらの構造は炉底部に沈降した白金族元素を抜き出すには不利である。一方、K-6'メルタでは炉底部は大きいものの勾配を持っており、抜き出しには有利と考えられる。また、K f Kでは耐火物破片によるノズル閉塞を防止するためにノズル上部を独特の構造としているが、抜き出しには大きな影響は無いものと考えられる。

以上からK f Kメルタの場合の問題の原因として炉底構造はほとんど関係しないものと考えられる。

(5) 白金族元素の抜き出しに及ぼす低温の効果

(4)の問題の原因として炉底部の温度が考えられる。K-6'メルタの運転においても中段電極より下の75°の斜面をもつ炉底部は900°C前後に保持されていたことが底部電極内に挿入された熱電対の温度測定結果から推定される。したがって、PNCが採用している炉底低温運転と同じ効果が期待され、運転結果もそれを示している。しかし、その効果がK-6'メルタの場合には後半において低下している。この原因として炉底温度低温域の大きさ、および温度が考えられる。

PNCでは炉底を800~900°Cに保持しているが、この低温域の上の温度が上昇すると白金族元素の抜き出し濃度が急激に低下することを第23キャンペーンの流下時の白金族元素濃度の調査から確認している。すなわち、K-6'メルタでは中段電極に大きなパワー(25kW)を常時かけており、炉底の温度はPNCに比べると高くなっており、かつ低温域が小さいと推定される。したがって、徐々に白金族元素の堆積が進

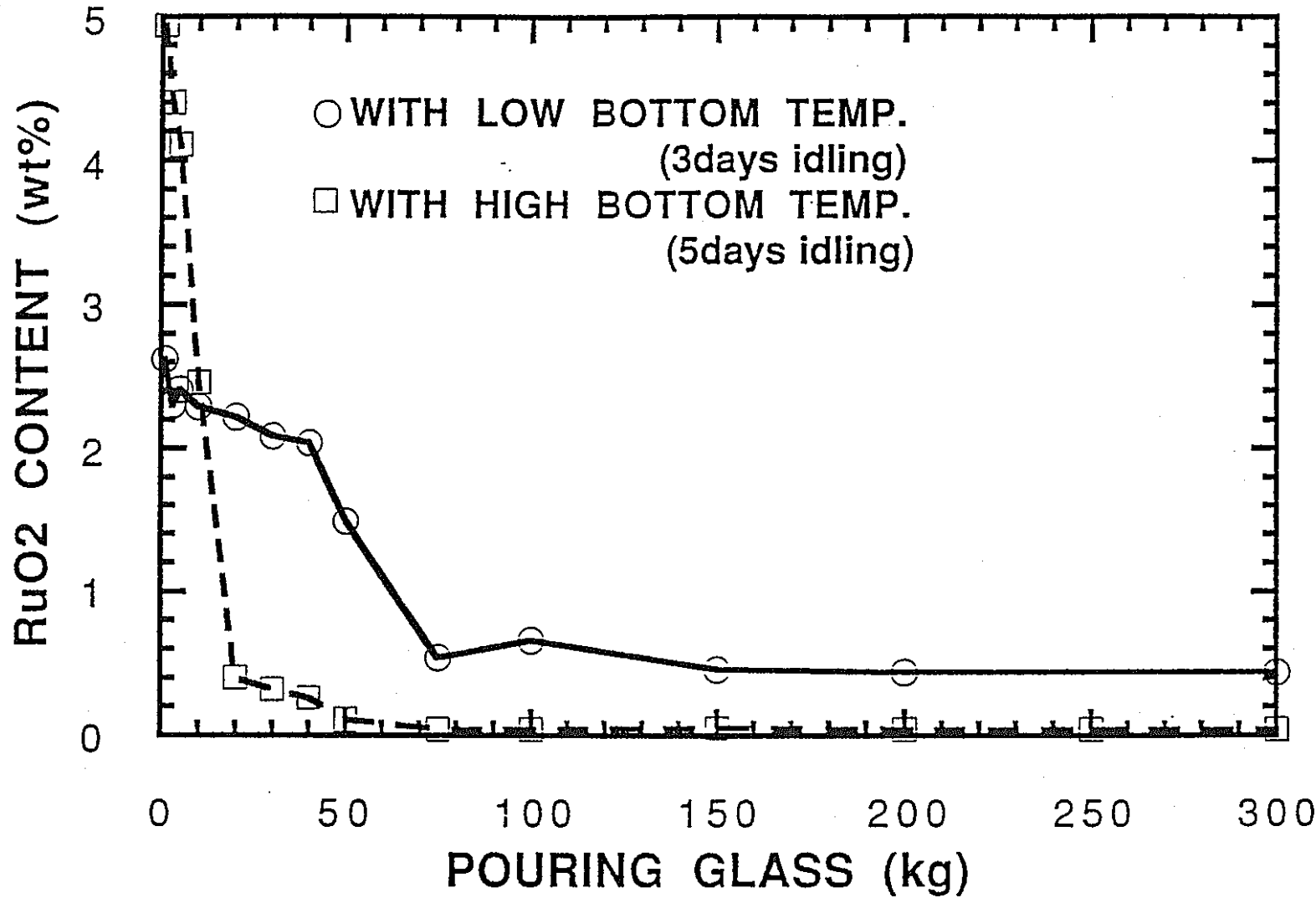
行し、炉底部の温度が上昇するとさらに堆積が進行するために次第に抜き出し性が低下していったものと推定される。

以上の推定からも白金族元素の抜き出し性向上、特に炉底に沈降した白金族元素の抜き出しに及ぼす炉底部の低温の効果は大きいと判断される。

(6) 白金族元素の抜き出しに及ぼす流下運転モードの効果

PNCでは白金族元素の抜き出し性にガラス流下速度が影響することを確認している。これは炉底部に沈降した白金族元素を流下時にガラスの流れにより引きずり出すには低いガラス流速での流下が効果的であるということである。このためPNCでは流下初期のガラス流速を80kg/h以下に制御した運転を行っている。K f Kでは定常で100kg/hのガラス流速で、定常に達するまで長時間を要していることから流下初期での白金族元素の抜き出しにはPNCよりも効果的であると推定される。

しかし、厳密にはガラス流速で評価するよりもノズルチャンネルに流入するガラスの流れを考慮する必要がある。PNCのノズル径が28mmであるのに対してK f Kでは22mmであるから同じガラス流速で流下すれば、K-6' メルタでのチャンネルへのガラス流入速度が大きくなり、白金族元素の抜き出し効率は低下することが考えられる。このように結果的には双方とも流下初期のガラス流速が低流速となっていることが白金族元素の抜き出し効率の向上に寄与していると判断された。



- 71 -

EFFECT OF OPERATION METHOD ON POURING AFTER IDLING

図4.2.1-1 保持運転における低温保持の効果

4.2.2 白金族元素の特性評価

溶融プロセスでの白金族元素挙動を評価するためには、白金族元素の溶融ガラス中における特性を理解することが重要となる。討議では白金族元素のプロセスでの化学的挙動(K1)、溶融炉で製造された固化ガラス中での白金族元素の分散状態(K4)、および粒子の特性について討議した。

KfKより白金族元素(Ru, Rh, Pd, Ir)の酸化物の生成および分解挙動が紹介された。図4.2.2-1はPd, IrおよびRuのTG分析結果を示すものである。酸化物は300°C前後から生成し、PdOは750~800°Cで、IrO₂は1000°C前後で、RuO₂は1200°C前後で分解することが分かる。

又、図4.2.2-2のRh₂O₃のTGとDSC分析結果は、Rh₂O₃が1080~1100°Cで分解することを示している。表4.2.2-1は白金族元素酸酸化物とTeO₂との混合系における反応をTGとDSCで調べた試料組成を示したものである。測定データは別冊資料集に譲るが、Rh₂O₃-TeO₂系では反応は見られない。Rh₂O₃-PdO-TeO₂では760~870°Cにかけて反応が認められた。これはPdO-TeO₂間の反応によるものであると考えられた。Rh₂O₃-RuO₂-PdO-TeO₂系でも同様の吸熱ピークが観察された。

以上の観察から、溶融過程ではまず900°C程度でPd-Te合金が形成され、1050°C前後でRhがこれにとり込まれると考えられる。ガラス中のRh-Pd-Te相の全相写真はRuがPd-Te相に入ると溶融温度域では固相となっていることを示している。このことがガラスの粘性にどのように影響を及ぼすかは不明である。RuO₂は溶融温度域で成長を続け、この成長過程でガラス中での溶解度の低いRhは、RuO₂に取り込まれると考えられる。溶融ガラス中の白金族元素の粒子は数μm程度の大きさである。KfKでは白金族元素の化学的挙動については調べているが、ガラスの物理的性質に及ぼす影響については調べていない。これに対し、PNCからは白金族元素が粘性に及ぼす影響について紹介した。

表4.2.2 - 表4.2.2-1 TG, DSC測定試料組成 (重量: mg)

mol% (カッコ内は重量: mg)

試料番号	Rh ₂ O ₃	RuO ₂ /Ru	PdO	TeO ₂
1	58 (14.7)			42 16.7
2	24 (8.3)		64 (10.5)	12 (2.6)
3	14 (5.1)	42(RuO ₂) (8)	32 (5.6)	12 (2.7)
4	14 (5.6)	42(Ru) 6.6	32 6.2	12 3.0

4.2.3 オフガス処理

K f Kでは、溶融炉オフガスの処理において、各機器の除染性能に対するPNCの研究実績について関心を持っており、オフガス処理機器としてK f Kに実績のないベンチュリ・スクラッパの性能と、溶融炉からの白金族元素の抜き出し率の評価上オフガスへのR u、R hの移行率に関して質問があった。

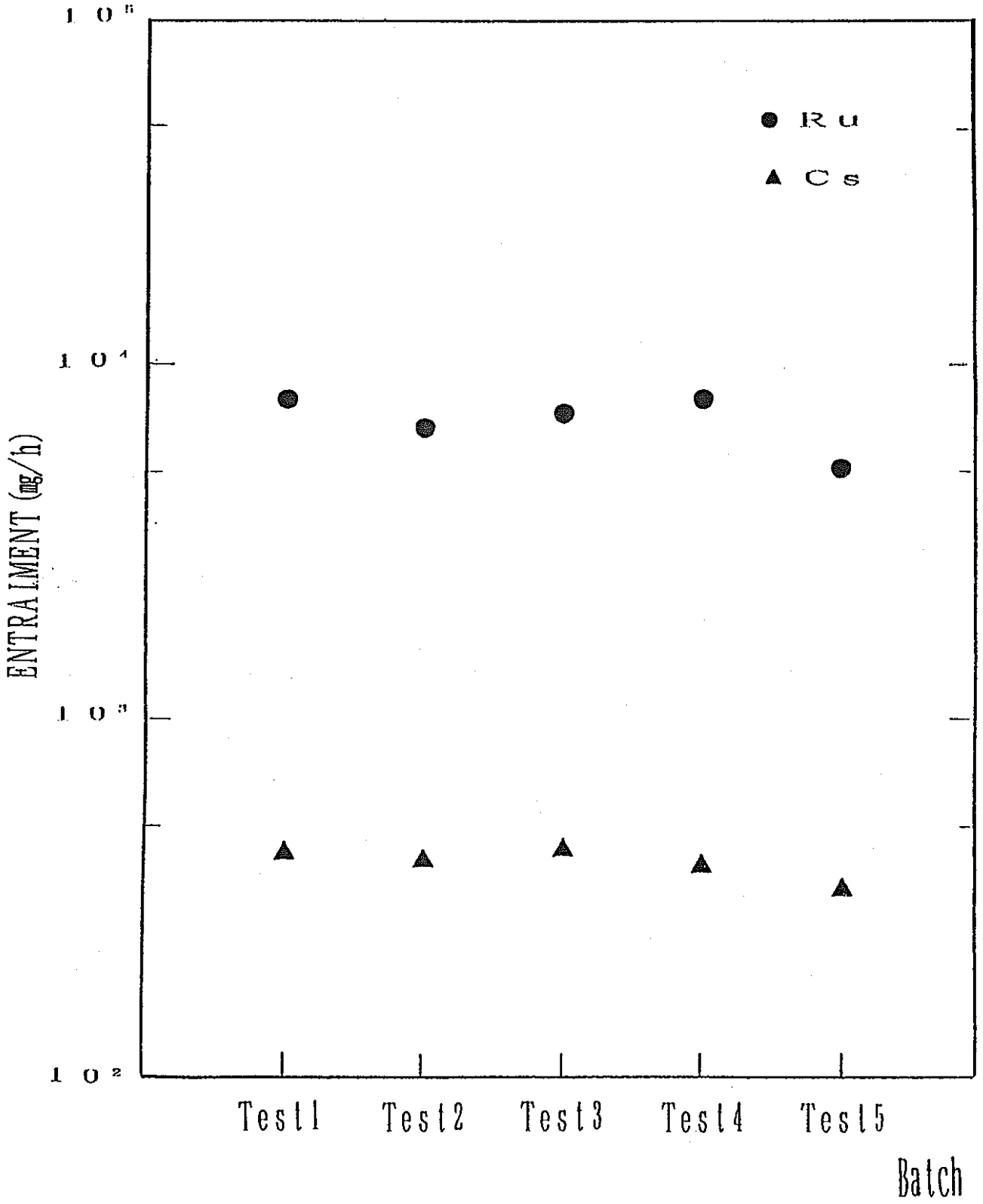
前者に対しては、ベンチュリ・スクラッパのエアロゾルに対する除去性能としてモックアップ試験結果を紹介した。エアロゾルの挙動をC sとS rで評価し、D Fとして10程度の値が得られていることを回答した。なお、ベンチュリ・スクラッパ以外のオフガス処理機器についても、モックアップ試験での評価実績をまとめた“*The 3rd International Aerosol Conference*”の予稿のリプリントを配付し簡単に紹介した。

また、後者に対しては、モックアップ第21キャンペーンでの評価結果を紹介した。ルテニウムの溶融炉からオフガスへの移行率として、10数パーセント程度が得られている(図4.2.3-1)。しかし、ロジウムの移行率については、PNCにおいては評価していない旨回答した。

4.2.4 材料評価

K f Kより Inconel 690の白金族元素による侵食についての討議の提案(K11 *Corrosion of noble metals on Inconel 690*)があったが、両者ともこれに関した研究を行っていない。しかし、動燃の経験として、モックアップ溶融炉を用いた白金族元素含有模擬廃液の長期連続供給試験において、白金族元素が接触する補助電極および流下ノズル(ともに材料は Inconel 690)において、特別な侵食は生じていないことを説明した。

また、材料に関する2つ目のK f Kの討議の提案である、接ガラス部材料の開発(K18 *Innovation of glass contacting materials*)については、先に述べた動燃側の発表の3.9 *Advanced electrode and refractory materials*の内容が、それにあたることであった。



4.2.3 - 1 Entrainment Off-gas from Melter

4.2.5 その他

(1) Glass sampling proceduer from technical melter

モックアップ試験において実施しているメルタから流出するガラスのサンプリング方法について説明した。ガラスのサンプリングは、キャニスタの頭部にサンプリング治具を乗せたもので、流下中任意の時期にそれを動作(流下ガラスにガラスを受ける容器を水平移動させてガラスを採取する)させ流下ガラスを採取する。なお、この作動は、エアーシリンダにより行っているが、TVFではマニプレータで行う。この説明の後、K f Kに対し何かアイデアがあるのか質問したが、現在のところ、よいアイデアはないとのことである。

(2) Melt level detection

ガラスレベル検出装置のシステムについて説明した。ガラス検出は、炉内インベントリの管理上重要なもので、PNCでは、抵抗式のレベル計を採用している。レベル槽にコモンプローブ、Lowレベル、Hiレベルの埋め込みのプローブがあり、それぞれの間の抵抗値を検出し、設定した基準の抵抗値の数倍(現在は3倍)に達した時にレベルの判断を行うものである。なお、基準の抵抗値は、コモンプローブとLowレベルの間の測定抵抗値であり、熔融温度およびガラスの組成変動による抵抗値の変化を考慮して、各流下の開始毎に、その基準抵抗値を読むことにしている。さらに、ガラスを熔融するための直接通電の影響を避けるために、抵抗測定用の電源は、3 kHzの高周波を用いるとともに、商用周波数のノイズフィルタも装備したシステムである。これについてK f Kからは、何か問題となることはないかとの質問があった。これに対する回答は、レベルON間際の液面変動(カートリッジの落下等による液面変動)で一時的にON, OFFが起こることがあった。このために、タイマを設け誤差動を防止した。

(3) Cold cap control

K f Kのようにガラスビーズ原料を用いたメルタの運転では、熔融表面におけるコールドキャップ面積の割合のコントロールは重要なものである。このため、PNCで行っているコントロール方法を知りたかったようであるが、PNCではガラスカートリッジ原料を用いていることから、その重要性はないとの回答をした。(ただし、供給量過剰の防止から雰囲気温度を管理する必要がある。)

4.3 討議のまとめ

詳細討議は溶融炉運転、炉材料、オフガス処理、ガラス固化特性等ガラス固化プロセスのほぼ全般に及んだが、中心は白金族元素の挙動であった。表4.3-1および4.3-2に白金族元素に関する討議のまとめを示す。K f KのK-6¹メルトのD-2キャンペーンでは、PNC程高い白金族元素の抜き出し性が得られなかった。その理由としては表4.3-1に示すように溶融炉内の温度分布、炉底付近の構造等が考えられた。白金族元素の化学的挙動も溶融炉内での挙動を理解する上で、又白金族元素の模擬方法（Rhの有無）の影響を理解する上で、両者の共通の関心となった。表4.3-2にまとめたように、PNCの溶融炉の運転結果ではRhは白金族元素の沈降を促進するようであるが、物性への影響という点では明らかになっていないところがある。

しかしながら、白金族粒子でのRhの存在状態についてはPNC-K f Kとも共通の知見が得られており、K f Kの基礎的な測定結果により白金族元素挙動の解明に有力な知見が得られつつある。

表 4. 3 - 1 白金族元素の抜き出し性

The findings on the noble metal draining

PNC : Effectiveness of design and operational strategy was confirmed in the long term operation where MU-III melter was operated for 70 days(35 canisters).

KfK : Good discharge efficiency was obtained in D-2 campaign of K-6' melter (15 canisters, 6 ton glass), however the efficiency had a trend to decrease with time. Noble metal contents in the melter hold-up was far below the nominal(target) concentration of those.

The reasons for the difference between KfK & PNC would be as follows.

① The difference in bottom structure such as the size of horizontal part of the bottom.

PNC : 180 × 180mm

KfK : 300 × 300mm

② Attribute to the temperature above the bottom area. The bottom structure includes plugging protection of the drain nozzle.

③ The size of the drain diameter(ϕ)

PNC : 28 mm

KfK : 22 mm

表 4.3 - 2 白金族元素模擬方法の
溶融炉運転への影響

Effects of Pt-metal simulation on melter operation

- 1) PNC findigs : Rh addition accelerate, the settling rate of noble metal phase about 1000°C.
- 2) PNC findigs : In texture analysis Rh has been found in Pd-Telluride and in some fraction on RuO₂. Rh content in RuO₂ can only be << 1% (microprobe analysis).
- 3) KfK findigs : There is experimental evidence that Rh enter Pd telluride and RuO₂ aft PNC TN8100 91-029 l telluride Rh above 1060 °C forming solde ternary tellurides, only growing RuO₂ crystals can incorporate Rh. A individual influence of Rh on the rheology of noble metals is yet unknow.

4.4 今後のガラス固化試験計画

PNC側では大型ガラス溶融炉の製作・試験を行うとともに、溶融炉運転のシミュレーション技術開発、白金族元素挙動解明のための基礎的試験、品質保証技術の確立に向けて研究開発を進めていくことになる。

KfK側でもVA-2 (K-6¹メルタ)のキャンペーンを継続するとともに、数学/物理モデルの開発、白金族元素化学の研究はさらに続けられる。K-6¹メルタのキャンペーンは1991年の夏に短期のものを、秋にはRhを含まない10~12m³の白金族元素含有模擬廃液を用いた比較的長期間の試験を行う予定である。

これら2回のキャンペーンでは処分に関連したガラス固化体製品の品質保証技術およびガラス特性を向上させるためフリット組成改良に関する研究を行うことが考えられている。

1992年にはRh含有模擬廃液を用いた固化処理試験が行われ、今後4年間は試験を継続することが計画されている。又、ヴァッカーズドルフ向けに製作運転されたKW-2メルタの改造が計画されている。これは、これまで多額の費用をかけて開発を進めてきたので、ヴァッカーズドルフ再処理工場の計画が中止されても、KfKとしては報告書作成を完結させる必要があることが理由となっている。

5. 交換レポート

第10回 PNC/KfK高レベル廃棄物管理会議までの過去一年間に双方で交換した
レポート

5.1 KfKよりPNCへ

- (1) Stoffliche Wechselwirkungen in einem keramischen Schmelzer zwischen Systemkomponenten und Glasproduktschmelzen , KfK4583 (1989).
- (2) The constitution of the Rh-Te system , 04・01・01P58A 47/89 (1989).
- (3) Zum Phasendiagramm Pd-Te palladiumreichen Teil , 04・01・03P29A PWA 10/89 (1989).
- (4) ON THE CONSTITUTION OF THE Pd-Te SYSTEM UP TO 28at. %Te , Journal of the Less-Common Metals, 166, pp125-133 (1990).

5.2 PNCよりKfKへ

- (1) ガラス固化モックアップ試験 第20キャンペーン報告書(高放射性廃液固化研究報告) , PNC SN8410 90-011 (1990).

6. おわりに

本会議では、ガラス固化技術開発の進捗状況についての情報交換や、双方の関心事項である白金族元素対策を中心に活発な意見の交換が行え、双方のガラス固化技術の現状および考えかたを理解することができた。

このことから、今回の会議は、ガラス固化技術開発の更なる向上に有意義なものであった。