

本資料は 2011.6.6 日付で登録区分、
変更する。

[技術情報室]

高レベル放射性廃液ガラス固化試験 —OTL廃液固化第1, 2, 3ラン—

Vitrification Experiment on High-level Liquid Waste.
(HLLW)

1983年12月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001



高レベル放射性廃液ガラス固化試験

— OTL 廃液固化第 1, 2, 3 ラン —

実施責任者 榎原英千世 *

堀江水明 *

報告者 猪野元信 *

山田一夫 *

坂井彰 *

期間 1982年12月～1983年6月

目的 高レベル放射性廃液のガラス固化試験を行う。

要旨 CPF高レベル放射性廃液固化試験系列設備の性能確認及びオフガスの定性的挙動把握を主目的に、再処理工場、小型試験設備（OTL）で調製された廃液を用い、放射能添加量として3 Ci, 100 Ci, 200 Ci の3回の固化試験を実施した。設備性能は一部を除いて良好であり、3体の固化体が作製できた。又、オフガス微粉塵もHEPAフィルターで捕集でき、フィルターの差圧上昇パターン及び γ スペクトル分析の結果、定性的な挙動を把握することができた。



COMMERCIAL
PNC ZN841-83-86
DECEMBER 1983

Vitrification Experiment on High-level Liquid Waste (HLLW)

— Vitrifying of HLLW generated from Operation
Testing Laboratory (OTL) in Tokai Reprocessing
Plant, 1st, 2nd, and 3rd Run —

Hidechiyo KASHIHARA
Misato HORIE
Motonobu KARINO
Kazuo YAMADA
Akira SAKAI

Abstract

To make sure that the vitrification process and equipments of the Chemical Processing Facility (CPF) are of good performance, and to get basic knowledge about the behavior of off-gas during the melting operation, we carried out three runs of vitrification experiment increasing the radioactivity of spiced HLLW by stages as 3 Ci, 100 Ci and 200 Ci.

The HLLW we treated was generated from Operation Testing Laboratory (OTL) in Tokai Reprocessing Plant.

The results obtained are summarized as follows.

- (1) The most part of the vitrification process and equipments are of good performance, and we succeeded in confining vitrified products in the three canisters.
- (2) The very fine dust flowed into off-gas stream during the melting operation could be trapped by HEPA filters installed in the off-gas treatment system. According to the result of different pressure measurement and gamma spectrometry analysis of HEPA filter elements, we obtained qualitative knowledge about the behavior of off-gas during the melting operation.

目 次

1. 緒 言 -----	1
2. 供試廃液 -----	1
2.1 OTL 廃液 -----	1
2.2 供試廃液調製法 -----	1
3. 試験工程及び工程分析 -----	2
4. 試験結果 -----	2
4.1 試料調製 -----	2
4.2 脱硝濃縮 -----	2
4.3 混合, 溶融 -----	3
4.3.1 溶融炉運転 -----	3
4.3.2 オフガス処理 -----	5
4.3.3 メルター, オフガス管残留放射能 -----	6
4.4 固化体均一性 -----	6
5. ま と め -----	7
6. 謝 辞 -----	8

List of Tables

- Table 1 OTL廃液元燃料の照射・再処理履歴
Table 2 OTL廃液の放射能濃度
Table 3 OTL廃液及び調製用模擬廃液の構成元素
Table 4 廃液調製計画
Table 5 ガラス固化試験主要工程スケジュール
Table 6 ガラス固化ホット試験従事者
Table 7 HLLWの添加方法
Table 8 HLLWの試料調製諸元
Table 9 脱硝濃縮条件及び結果一覧
Table 10 第3ラン脱硝時の脱硝率
Table 11 混合、溶融試験条件及び結果
Table 12 ガラス原料フリット組成
Table 13 ガラス流下結果
Table 14 メルターオフガス凝縮水回収率

List of Figures

- Fig. 1 OTL廃液の放射能減衰曲線
Fig. 2 ガラス固化試験フロー
Fig. 3 分析試料採取計画
Fig. 4 第1ラン脱硝濃縮運転記録
Fig. 5 第2ラン脱硝濃縮運転記録
Fig. 6 第3ラン脱硝濃縮運転記録
Fig. 7 第2ラン脱硝濃縮時の廃液中物質変化
Fig. 8 第2ラン脱硝濃縮時の廃液放射能変化
Fig. 9 第3ラン脱硝濃縮時の廃液中物質変化
Fig. 10 第3ラン脱硝濃縮時の廃液放射能変化
Fig. 11 第1ランメルター昇降温記録
Fig. 12 第2ランメルター昇降温記録
Fig. 13 第3ランメルター昇降温記録
Fig. 14 第1ラン流下時のガラス・ノズル温度及び加熱電流
Fig. 15 第2ラン流下時のガラス・ノズル温度及び加熱電流
Fig. 16 第3ラン流下時のガラス・ノズル温度及び加熱電流
Fig. 17 直接通電上段電極電極間抵抗（第2バッチ）
Fig. 18 直接通電下段電極電極間抵抗（第2バッチ）
Fig. 19 第3ランメルター間接加熱ヒータ電力、電流、抵抗変化
Fig. 20 メルター絶縁等価回路
Fig. 21 直接通電時の抵抗測定結果
Fig. 22 第1ランメルター運転時オフガス処理記録
Fig. 23 第2ランメルター運転時オフガス処理記録
Fig. 24 第3ランメルター運転時オフガス処理記録
Fig. 25 第2ランメルター運転時オフガス凝縮水放射能
Fig. 26 第3ランメルター運転時オフガス凝縮水放射能
Fig. 27 第3ラン工程別捕集微粉塵の放射能強度変化
Fig. 28 第3ラン後のガラス固化プロセス残留表面線量率
Fig. 29 第3ランキャニスター・スペクトル
Fig. 30 第3ランキャニスター・スペクティング結果

List of Photographs

Photo. 1 第3ラン流下状況

第3ランの水素供給管内、流下する水素ガス

Photo. 2 第3ラン後間接加熱発熱体外観

第3ランの後間接加熱発熱体

Photo. 3 第3ラン後メルターオフガス管内面

第3ランの後メルターオフガス管内面

1. 緒 言

CPF 高レベル放射性廃液ガラス固化試験系列（以下B系列）では、昭和57年12月3日及び同年12月23日の2回にわたって、再処理工場試験課（以下OTL）で調製された高レベル放射性廃液（以下HLLW）を受け入れ、HLLWガラス固化試験を開始した。

第1ランは、放射能約3Ciを添加して、B系列設備機器の性能確認を主目的に、昭和57年12月13日から12月27日までの間実施された。

第2、第3ランは、第1ランの運転結果に基づき、ガラス固化各工程におけるオフガスの定性的挙動把握を目的に、添加放射能を各々約100Ci、200Ciとして、昭和58年3月13日～3月27日、同年6月1日～6月17日の期間実施された。

本報告は、以上3回にわたって実施されたHLLWガラス固化試験の結果をまとめたものである。

2. 供給廃液

2.1 OTL廃液

本試験に使用したHLLWは、再処理工場のメインプラントで溶解された使用済燃料を、OTLで再処理し、調製されたものである。

元燃料の照射履歴、再処理履歴をTable 1に示す。

HLLW中の放射性核種及び成分元素について、ORIGEN Codeによる計算を実施し、分析値と比較した結果、各々次の様に考えることとした。

(1) 放射能：分析値が γ 核種のみであり、全放射能の崩壊補正が困難なため、添加放射能の推定にはORIGEN計算値を採用する。

ORIGEN計算値と分析値をTable 2に、ORIGEN計算値による全放射能の減衰曲線をFig. 1に示す。

(2) 成分元素：ORIGEN計算値と分析値の間に良い相関がみられることから、分析値を優先、分析値のない元素については、ORIGEN計算値を採用する。ORIGEN計算値と分析値、及びそれらに基づく酸化物重量計算値、並びに再処理工場メインプラント廃液の成分を安定元素で置き換えたコールド試験用模擬廃液（コード名SW-7）の各成分元素の一覧をTable 3に示す。

2.2 供試廃液調製法

B系列のガラス固化前処理設備は、再処理工場メインプラント廃液（処理後5年冷却）の処理を前提に設計されている。今回のOTL廃液は、前述の様に、設計廃液成分（SW-7と

同等)に対し、全酸化物重量比で約1/15とかなり薄い廃液であり、かつNaが添加されていない。又、3回の試験ランとも、OTL廃液の添加量が少ないとから、各廃液成分個々の調製は行なわず、SW-7模擬廃液のみで単に希釈する方法を採用した。各試験ランの廃液調製計画をTable 4に示す。

各ランの全酸化物重量に対するOTL廃液成分元素の添加比は、第1ラン0.02%，第2ラン0.51%，第3ラン1.02%である。

なお、第3ランで使用したSW-8模擬廃液は、SW-7の倍濃度仕様である。

3. 試験工程及び工程分析

各試験ランとも、設備の性能、機能確認、及びオフガスの定性的な挙動把握に重点をおいて実施した。オフガス処理系では、メルター運転時に多量の微粉塵が発生することが、コールド試験において確認されていたため、処理系の前段にHEPAフィルターを設置して、これを捕集することを試みた。特に第3ランでは、脱硝濃縮時及びメルター運転時に、9段階に分けてフィルターを交換し、各段階での微粉塵のサンプリングを実施した。

全体試験工程、各工程中の分析試料採取計画、主要工程スケジュール、試験従事者名を、各自Fig. 2, 3及びTable 5, 6に示す。

B系列ガラス固化試験設備の概略仕様及び系統図を付録に示す。

4. 試験結果

4.1 試料調製

HLLWの添加法は、添加量が少ないとから、第1ランでは直接脱硝濃縮槽へ、第2ランでは組成調製槽でSW-7と調製後、脱硝濃縮槽へ、また第3ランでは、計量範囲であったため定常の液移送ルートで実施した。

添加法の詳細、及び調製液量の諸元をTable 7, 8に示す。

4.2 脱硝・濃縮

調製済廃液中の硝酸根に対し、モル比で1.5倍の蟻酸を一定供給速度で加え、脱硝を行なった後、引き続き同一槽において、約95°Cの液温で濃縮を実施した。

第1、第2、第3ランとも、脱硝濃縮運転は順調に行なわれたが、第3ランについては脱硝濃縮を終了し、溶融第1バッチ用として、約半分の脱硝濃縮液を混合槽へ移送、残液を常温で貯蔵中、槽内スペーザに沈殿物によると思われる閉塞が起き、攪拌エアーが停止した。

試験終了後の熱硝酸洗浄で閉塞は回復したが、原因としては、模擬廃液として沈殿の生じ易いSW-8を使用したこと、沈殿物含有溶液を強力に攪拌するには、本設スパージャ能力に余裕が少なかったことが考えられる。

Table 9に脱硝濃縮条件を、Fig. 4, 5, 6に各ランの運転記録を示す。

(1) 脱硝率

実廃液2.9 ℥を添加した、第3ランの脱硝結果を、Table 10に示す。

脱硝率84.9%は、アルカリ及びアルカリ土類金属の硝酸根を除いた硝酸根に対しては、92.3%の脱硝に相当する。

(2) 物質変化

指標元素及び指標核種について、第2, 第3ラン脱硝濃縮前後の変化を、Fig. 7~10に示す。第2ランでは、脱硝後Moの割合が減少している。第3ランでは、脱硝時に大きく変化はないが、濃縮時、アルカリ金属を除いて全体的に沈殿が生じたことが推定できる。凝縮水中の捕集元素及び核種は、分析の定量限界以下であり、一定の傾向は見られないが、¹⁴⁴Ce, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁰⁶Ruが検出されている。

4.3 混合・溶融

4.3.1 溶融炉（メルター）運転

CPFメルターは、炉内容積が小さいことから、廃液スラリーを2バッチに分けて、メルターに投入、2度溶融後、1回で流下する運転モードを採用している。

第1バッチは、脱硝濃縮済廃液のほぼ半分を混合槽（ZV-2205）へ移送し、必要量のフリットと混合後、スラリーとしてメルターへ投入する。第2バッチは、第1バッチスラリーを仮焼し、溶融して減容後、降温状態で、第1バッチと同様に投入した。ただし、第3ラン、第2バッチの脱硝濃縮液は、前述の攪拌エア停止により、沈殿物の移送が困難なため、予定の7割程度の供給にとどまった。

ガラスは、ガラスを約1200°Cで溶融保持後、メルターアー下部の白金ノズルを加熱することにより行なわれた。キャニスターへ流下したガラスは、4~5°C/hrで徐冷させた。

第1, 第2, 及び第3ランのスラリー調製結果、及び溶融試験結果をTable 11に、使用したガラス原料フリットの成分組成をTable 12に示す。又、付録にメルター構造を示す。

(1) 溶 融

各ランにおける、メルター各部の温度プロファイルを、Fig. 11~13に示す。

第3ラン、第2バッチ溶融時の上段ガラス温度で、800°C前後に見られるプラトーは、運転中に間接加熱ヒーターの一部が断線（詳細後述）したため、ガラス温度が上昇せず期待通りの直接通電電流が流れなかつたためである。又、雰囲気温度の900°C前後にお

ける温度降下は、偶然発生した落雷停電によるものである。

(2) 流 下

流下開始ノズル温度、流下時間、及び流下重量の結果を Table 13に示すが、各ランともほぼ安定している。流下状況は、最初ノズル部のガラスが押し出されるのに従って、赤色の温度の低い溶融ガラスが流れ出す。溶融ガラスによって、ノズル部の温度が上昇するに従って、流下は連続した安定状態に入る。終盤は、メルターの溶融槽部のガラス液面の低下に伴い、直接通電電流が流れなくなり、ガラス温度が下がってくるため、粘度の高い間歇的な流下となる。最終的には、直接通電電流、ノズル加熱電流とも停止状態で、付属の刃物でシャーカットし、流下を停止した。

安定流下時の状況を、Photo. 1 に示す。又、流下時のガラス温度、ノズル温度、直接通電電流、及びノズル加熱電流の記録を Fig. 14~16 に示す。

(3) 直接通電電極間抵抗

コールドランのデータも含め、第2バッチ溶融時のガラス温度と上下電極間のガラス抵抗の関係を、Fig. 17, 18に示す。

各ランごとに傾向が異なり安定していない。特に第2ランについては、高温側で異常に低い抵抗値となった。運転上は、低い抵抗のため、電極の電流密度制限からくる最大電流値の設定により、パワーを入れることができず、所定の温度上昇が得られなかった。

直接通電電極間抵抗は、ガラスの量、組成、温度分布、溶融槽底の金属析出物の堆積状態、上下電極の相互作用、及び電極の絶縁状態により変化するものと考えられ、今後とも継続した監視が必要である。

(4) 間接加熱体抵抗

第3ランにおける間接加熱体の雰囲気温度、入力電力と発熱体の変化を、Fig. 19に示す。第1バッチと第2バッチとで、発熱体抵抗値に大きな増加が見られる。従って、第1バッチ終了間際か、もしくは第2バッチ開始直後に、発熱体の一部にクラックが入ったものと思われる。なお、その後に起きた落雷停電の前後の抵抗変化は見られない。Photo. 2 に、第3ラン終了後の発熱体の状況を示す。写真では明瞭さに欠けるが、クラックが観察されている。

(5) 直接通電電極絶縁抵抗

各ラン終了後の直接通電電極-ノズル間の抵抗測定の結果、ランを重ねるごとに抵抗が低下する傾向が見られた。廃液成分中、白金族の炉底部への堆積による影響と考えられ、今後とも継続して測定する必要がある。

メルタ絶縁の等価回路と測定結果を、Fig. 20, 21に示す。

4.3.2 オフガス処理

(1) オフガス中の微粉塵

オフガス処理系では、メルター運転時、特に直接通電時に、多量の微粉塵の発生することがコールド試験（本設備のコールド試運転）において確認されていたため、処理系の前段にHEPAフィルターを設置（TW-2401 A/B）し、これを捕集することを行なった。付録に微粉塵捕集用フィルターの構造を示す。

① 発生状況と対策

イ. 第1ラン

HEPAフィルターを2個用意したが、第2バッチの直接通電中に目詰りし、これをバイパスした結果、Ru吸着塔、I₂吸着塔も目詰りを起こしたので、放射能が非常に低いことを考慮し、吸着塔類をバイパスして運転を行なった。オフガス処理系の運転記録をFig. 22に示す。

ロ. 第2ラン

第2ランでは、第1ランの結果を反映して、TW-2401 A/Bのフィルターカートリッジを改造し、目詰り時にA-B間を切換え、フィルターエレメントのみを容易に遠隔交換できる様にして実施した結果、合計4個のフィルタ交換により吸着塔類の差圧上昇要因を除去し、安定した運転をすることができた。オフガス処理系の運転記録を、Fig. 23に示す。

又、運転の結果、微粉塵の発生は、スラリーの蒸発乾燥過程、及び直接通電時、特に第2バッチ溶融運転時（第1バッチより高温）に著しいことがわかった。

ハ. 第3ラン

メルター運転時の蒸発乾燥、直接通電溶融、降温の各運転モードにおいて、オフガス処理系へ排出される放射性ミストや微粉塵の核種を定性的に同定するため、運転モード毎に9段階に分けてフィルターを交換、微粉塵の捕集を実施した。

Fig. 24にオフガス処理系の運転記録を示す。

② 捕集結果

イ. クエンチャー

メルターオフガス管出口直後のクエンチャー、及び凝縮器で捕集された凝縮水の回収結果を、Table 14に、又、第2、第3ランの凝縮水アスペクトル分析結果を、Fig. 25, 26に示す。主要核種は、¹⁰⁶Ru, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Csであるが、¹⁰⁶Ruは蒸発乾燥時、比較的ガラス温度の低い時期に発生が多いのに対し、Cs核種はガラス温度の高い直接通電溶融時に発生が多い傾向が見られた。

ロ. 前段HEPAフィルター（TW-2401 A/B）

第3ランにおける脱硝濃縮工程を含めた、運転各工程毎のHEPAフィルタ捕集

物アスペクトル分析結果を, Fig. 27に示す。主要核種は, ^{106}Ru , ^{134}Cs , ^{137}Cs であり, クエンチャー凝縮水と同様であるが, その存在割合は, 各核種の γ 線放出割合を考慮しても, クエンチャー凝縮水の場合と逆転している。理由として, Ruはクエンチャー, 凝縮器の様な冷却能力の高い処理装置でDFが高い蒸気状の性格が強く, Csは微粉状で挙動していることが考えられるが, 明確ではない。

又, より後段に設置されているオフガス洗浄塔(TW-2402, TW-2403)での捕集は, 元素分析, 放射能分析とも検出限界前後であり, 一定の傾向は見られなかった。

ハ. メルターオフガス管内面付着状況

Photo. 3に, 第3ラン終了後のメルターオフガス管内面の観察結果を示す。

黒色の付着物が, 薄く均一に履っているのみで, 閉塞等の現象が起きそうな状況はない。

(2) その他のオフガス成分挙動

^3H について, 施設全体のスタックモニターで常時監視を行なっている。ホットランと関連して僅かな上昇が観察されたが, 詳細工程との関係は明確ではない。又, ^{131}I については, まだ検出されていない。

4.3.3 メルター及びオフガス管残留放射能

第3ラン終了後における, プロセス設備の残留放射能を測定した。Fig. 28に, CB-1セル(メルター廻り)とCB-2セル(オフガス処理装置)の設備機器表面線量率を示す。

4.4 固化体均一性

作製固化体の均一性を見るため, キャニスターのアスキャニング試験を実施した。第2ランキャニスターの代表点におけるアスペクトル, 及びスキャニング結果を, Fig. 29, 30に示す。キャニスター軸方向スキャニングの結果, キャニスター底面側に, 計数率のながらかな低下が見られた。

第1, 第2, 第3ランと順次放射能レベルを上げてきたことから, この現象は前回の残留ガラスの影響とも考えられるが, 今後の固化体評価試験で確認を検討したい。

5. まとめ

順次、放射能レベルを上げて実施したOTL廃液固化試験の結果、ほぼ予定通り3体のガラス固化体を製作することができた。又、設備性能及びオフガス挙動について、次のことが明らかとなった。

(1) 設備性能

① 脱硝濃縮槽

調製廃液の脱硝濃縮において、かなりの沈殿が生成され、それらを十分均一に攪拌した状態で液移送するには、現状の脱硝濃縮槽のスペーザでは能力に限界があり、改造を必要とする。

② メルター

大幅な小型化を計ったにもかかわらず、気密性、水密性は十分で、オフガス吸引能力不足、液洩れ等は発生しなかった。ただし、間接加熱ヒータは熱衝撃に敏感であり、クラックが発生、継続した。又、直接通電電極～ノズル間の電気絶縁は不安定であり、今後の監視が重要である。流下制御は比較的安定であった。

③ その他の設備

計装設備、バルブ及びエジェクター等の液送設備は、安定に作動した。

(2) オフガス処理

① 微粉塵

メルター運転時、特に第2バッチ直接通電時に微粉塵が発生するが、オフガス処理系前段にHEPAフィルターを設置することにより捕集可能である。捕集物質は本フィルターでCs核種、より前段のクエンチャー～凝縮器では、¹⁰⁶Ruが主体である。又、メルター直後のオフガス管内面への付着は比較的少ない。

② オフガスモニタ

スタックモニターでは、³Hが検出されたが、¹³¹Iは検出されていない。

又、プロセス内モニターとしては、微粉塵に対応したサンプラーが必要である。

(3) その他

一部分析試料のサンプリングに不備が出ており、今後、沈殿物を含む液体試料の採取には均一化もしくは分離等の処理を検討する必要がある。

今後、作製したガラス固化体について破壊試験を実施し、物性を評価するとともに、前述の問題点を設備、運転手法に反映する中で、オフガスの定量的挙動把握試験、及び本格物性評価用の高濃度実廃液固化試験を実施する予定である。

6. 謝 辞

高レベル放射性廃液入手に際しては、再処理工場の技術課、試験課、分析課を始めとして技術部各課室の関係各位に多大の御協力を頂いた。又、試験実施に当っては、ユーティリティの確保、及び分析等について、安全管理部関係課、技術部技術管理課、分析技術開発室、その他関係部門の御努力を頂いた。関係各位に深く感謝する。

なお、本試験の実施までには、CPR室員、及び関係者の大いなる努力があったことを付記し感謝する。

Table 1 OTL 廃液元燃料の照射及び再処理履歴

照 射 炉	開 西 電 力 美 浜 2 号 炉
燃 燒 度	24,459 MWD/MTU
炉 取 出 し 日	S55年11月6日
冷 却 期 間	694 Day
再 処 理 開 始 日	S57年10月1日
処 理 量	4.24 kg-U
HLLW 発 生 量	4.3 ℥

Table 2 OTL 廃液の放射能濃度

FP 核種	ORIGIN 計算値		分析値 (γ スペクトル)									
	処理後 0.25年 (57.12.31)	Ci / ℓ	処理後 0.5年 (58.3.31)	Ci / ℓ	再処理工場 分析							
					(57.11.25)	Ci / ℓ	(58.3.18)	Ci / ℓ	(58.4.8)	Ci / ℓ	(58.7.7)	Ci / ℓ
⁹⁰ Sr	5.45		5.42									
⁹⁰ Y	5.45		5.42									
⁹⁵ Zr	3.41×10^{-2}		1.30×10^{-2}									3.3×10^{-2}
⁹⁵ Nb	7.35×10^{-2}		2.80×10^{-2}		1.15×10^{-2}							
⁹⁹ Tc	1.07×10^{-3}		1.07×10^{-3}									
¹⁰⁶ Ru	1.03×10^1		8.65		4.95		4.1		4.4		4.4	
¹⁰⁶ Rh	1.03×10^1		8.65									
¹¹⁰ Ag	8.00×10^{-1}		6.23×10^{-1}									
^{113M} Cd	2.09×10^{-3}		2.07×10^{-3}									
¹²³ Sn	6.04×10^{-3}		3.70×10^{-3}									
¹²⁵ Sb	4.54×10^{-1}		4.26×10^{-1}		1.35×10^{-1}		1.1×10^{-1}		6.7×10^{-2}		9.4×10^{-2}	
^{125M} Te	1.11×10^{-1}		1.04×10^{-1}									
¹²⁷ Te	9.16×10^{-3}		5.13×10^{-3}									
^{127M} Te	9.36×10^{-3}		5.23×10^{-3}									
¹³⁴ Cs	8.12		7.46		4.45		4.0		4.4		4.3	
¹³⁷ Cs	7.66		7.61		9.0		7.3		8.1		9.0	
^{137M} Ba	7.25		7.20									
¹⁴⁴ Ce	1.48×10^1		1.19×10^1		1.35×10^1		8.1		9.2		8.0	
^{144M} Pr	1.48×10^1		1.19×10^1						8.3		6.9	
¹⁴⁷ Pm	5.58		5.22									
¹⁵¹ Sm	9.23×10^{-2}		9.21×10^{-2}									
¹⁵⁴ Eu	6.43×10^{-1}		6.30×10^{-1}				3.1×10^{-1}		3.5×10^{-1}		3.8×10^{-1}	
¹⁵⁵ Eu	1.27×10^{-1}		1.22×10^{-1}				1.5×10^{-1}				2.1×10^{-1}	
合計	9.23×10^{-1}		8.16×10^1		3.85×10^1		4.2×10^1		3.5×10^1		3.3×10^1	

Table 3 O T L 廃液及び調製用模擬廃液の構成元素

廃液構成元素	O T L 廃 液				調製用模擬 廃液
	ORIGIN 推定値 g·atom/l	CPF 分析値 g·atom/l	酸化物形	酸化物 換算重量 g/l	
Na			Na ₂ O		1.55e-1
Fe		1.33e-3	Fe ₂ O ₃	1.06e-1	1.43e-1
Ni		1.07e-3	NiO	7.99e-2	1.90e-1
Cr		3.92e-4	Cr ₂ O ₃	2.98e-2	2.31e-1
sub-total				2.16e-1	1.48e-1
Ge	4.16e-7		GeO ₂	4.35e-5	
As	1.25e-7		As ₂ O ₃	1.24e-5	
Se	5.12e-5		Se ₂ O ₃	5.78e-3	
Rb	2.92e-4		Rb ₂ O	2.76e-2	3.33e-1
Sr	7.18e-4		SrO	7.58e-2	8.99e-1
Y	3.81e-4	3.44e-4	Y ₂ O ₃	3.89e-2	5.51e-1
Zr	2.83e-3		ZrO ₂	3.55e-1	4.37e-0
Nb	2.19e-8		Nb ₂ O ₅	2.91e-6	
Mo	2.59e-3	6.77e-4	MoO ₃	9.86e-2	5.47e-0
Tc	6.34e-4		Tc ₂ O ₇	9.80e-2	
Ru	1.58e-3		RuO ₂	2.12e-1	2.23e-0
Rh	3.55e-4		Rh ₂ O ₃	4.51e-2	4.30e-1
Pd	9.45e-4	2.62e-4	PdO	3.19e-2	1.06e-0
Ag	4.63e-5		Ag ₂ O	5.42e-3	
Cd	5.13e-5		CdO	6.54e-3	
In	9.05e-7		In ₂ O	1.11e-4	
Sn	2.93e-5		SnO ₂	4.52e-3	
Bb	8.71e-6		Sb ₂ O ₃	1.28e-3	
Te	2.67e-4		TeO ₂	4.31e-2	5.58e-1
I	1.44e-7				
Cs	1.47e-3		Cs ₂ O	2.10e-1	2.24e-0
Ba	8.22e-4		BaO	1.26e-1	1.49e-0
La	6.57e-4	6.27e-4	La ₂ O ₃	1.02e-1	2.49e-0
Ce	1.30e-3	1.32e-3	Ce ₂ O ₃	2.17e-1	2.49e-0
Pr	6.02e-4	5.38e-4	Pr ₂ O ₃	8.87e-2	1.22e-0
Nd	2.03e-3	1.86e-3	Nd ₂ O ₃	3.14e-1	4.15e-0
Pm	4.09e-5		Pm ₂ O ₃	6.99e-3	8.95e-1
Sm	4.14e-4	3.58e-4	Sm ₂ O ₃	6.18e-2	
Eu	7.57e-5		Eu ₂ O ₃	1.34e-2	
Gd	4.08e-5		Gd ₂ O ₃	7.34e-3	
Tb	8.71e-7		Tb ₂ O ₃	1.59e-4	
Dy	5.52e-7		Dy ₂ O ₃	1.03e-4	
Ho	4.37e-8		Ho ₂ O ₃	8.23e-6	
Er	9.51e-9		Er ₂ O ₃	1.82e-6	
sub-total				2.20e-0	3.09e-1
U	2.00e-3		UO ₃	5.71e-1	
Np	1.25e-4		NpO ₂	3.36e-2	
Pu	1.67e-5		PuO ₂	4.54e-3	
Am	5.84e-5		Am ₂ O ₃	1.55e-2	
Cm	5.51e-6		Cm ₂ O ₃	1.48e-3	
sub-total				6.26e-1	
total				3.04e-0	6.07e-1

Table 4 廃液調整計画

		第1ラン	第2ラン	第3ラン
CTL廃液量	放射能	3 Ci	100 Ci	200 Ci
	容積	0.05 ℥	1.45 ℥	2.9 ℥
希釈用 模擬廃液	種類	SW-7	SW-7	SW-8
	容積	14 ℥	14 ℥	7 ℥
(酸化物換算重量)	Na	217 g	217 g	217 g
	CPs	206.8 g	207.1 g	207.4 g
	FPs	433.4 g	436.6 g	439.8 g
	ACTINIDES	0.03 g	0.91 g	1.82 g
	合計	857.2 g	861.5 g	866.0 g
	CTL廃液添加比	0.02 %	0.51 %	1.02 %
ガラスフリット	種類	FG-2D	FG-2D	FG-2D
	重量	2.2 kg	2.2 kg	2.2 kg
予想廃液含有率		28 %	28.1 %	28.2 %

Table 5 ガラス固化試験主要工程スケジュール

主要工程	第1ラン	第2ラン	第3ラン
脱硝・濃縮	S 57. 12. 13 ～ 12. 14	S 58. 3. 14 ～ 3. 15	S 58. 6. 2 ～ 6. 3
メルター昇温開始	S 57. 12. 15	S 58. 3. 16	S 58. 6. 6
スラリー第1バッチ投入	S 57. 12. 16	S 58. 3. 17	S 58. 6. 6
スラリー第2バッチ投入	S 57. 12. 21	S 58. 3. 22	S 58. 6. 9
流下	S 57. 12. 23	S 58. 3. 24	S 58. 6. 11
徐冷終了	S 57. 12. 28	S 58. 3. 31	S 58. 6. 16

Table 6 ガラス固化ホット試験従事者

◦ 試験IIグループ

狩野 元信
深沢 国雄(第1, 2ラン)
大津 幹男(〃)
山田 一夫(第3ラン)
坂井 彰
上野 勤
五十嵐 寛(第1, 2ラン)
北野 光昭
吉村 光彦
清宮 弘
大森 栄一(第1, 2ラン)
池上 靖志(〃)
山内 正(第3ラン)
宮原 要(〃)
桜井 伸昭*(第1, 2ラン)
藤田 勝利*
川上 金寿*

◦ 分析グループ

園部 次男
曾根 敏
岡本文敏
加藤木 賢
和田 光二
大内 隆雄
鈴木 真司*
柴 正憲**

* 検査開発

** 原子力技術

Table 7 HLLW の添加方法

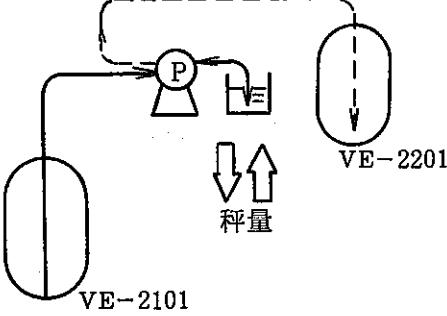
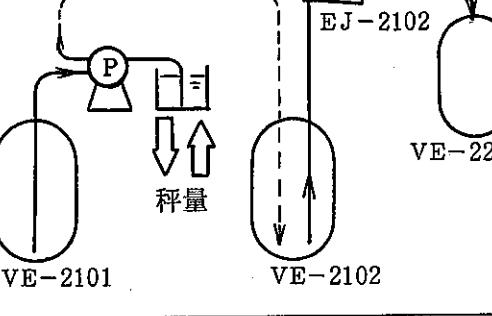
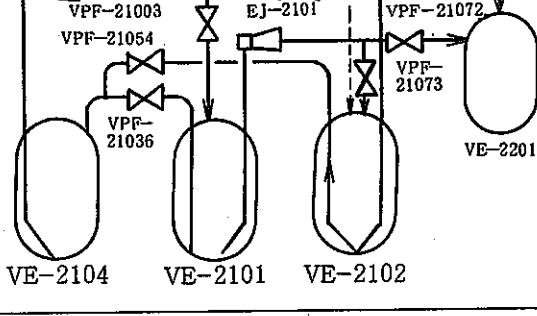
第 1 ラン	第 2 ラン	第 3 ラン
 <p>① 貯蔵槽 (VE-2101) より、チューブラポンプにて、約0.05ℓの廃液を吸引し、ポリびんに受け る。 ② 天秤にて、廃液を計量する。 ③ チューブラポンプの吸引側チューブを、脱硝濃縮槽 (VE-2201) 側へ挿入する。 ④ チューブラポンプを逆回転させ廃液を脱硝濃縮槽 (VE-2201) へ注入する。 (脱硝濃縮後)</p>	 <p>① VE-2101 より、チューブラポンプにて、約145ℓの廃液を吸引し、ポリびんに受ける。 ② 天秤にて、廃液を計量する。 ③ チューブラポンプの吸引側チューブを、組成調整槽 (VE-2102) 側へ挿入する。 ④ チューブラポンプを逆回転させ、廃液を VE-2102 へ注入する。 ⑤ エジェクタ (EJ-2102) を起動させ、廃液を VE-2201 へ移送する。</p>	 <p>① VPF-21072 閉、VPF-21073 開とし、EJ-2101 を作動させ、VE-2101 の廃液を VE-2102 へ移送する。 ② VPF-21054 開、VPF-21036 閉とし、真空ポンプ (PV-2101) でエアチャンバ(VE-2104) を真空引きし、VE-2102 の廃液を排出し、VE-2102 に残る廃液量 2.9ℓ を計量する。 ③ VPF-21003 開、VPF-21004 閉とし、EJ-2105 を作動させ、VE-2104 内の廃液を、VE-2101 へ戻す。 ④ EJ-2102 を作動させ、計量済のVE-2102 内廃液を、VE-2201 へ移送する。</p>

Table 8 HLLW 試料調製諸元

		第1ラン	第2ラン	第3ラン
放 射 能		3 Ci	100 Ci	200 Ci
模擬廃液	コード	SW-7	SW-7	SW-8
	投入量(l)	14.0	14.0	7.0
廃 液	種 類	OTL	OTL	OTL
	使用量(l)	0.05	1.45	2.9
SW供給ライン洗浄水(l)		1.0	1.0	1.0
調整用HNO ₃ (l)		-	-	1.1(3 N)

Table 9 脱硝濃縮条件及び結果一覧

		単位	第1ラン	第2ラン	第3ラン
廃液仕様	HLLW(OTL廃液)	l/Ci	0.05/3 (脱硝濃縮後添加)	1.45/100	2.9/200
	模擬廃液	l	SW-7 14.0	SW-7 14.0	SW-8 7.0
脱硝工程	脱硝濃縮槽液量	l	16→18.7	22.6→25.3	15.9→18.9
	脱硝濃縮槽密度	g/cm ³	1.19→1.03	1.11→1.03	1.12→1.04
	脱硝濃縮槽温度	°C	90~92	90~92	90~92
	脱硝濃縮槽压力	mmA g	MAX +25	MAX 0	MAX +50
	蟻酸供給速度	l/hr	1.0	1.0~1.1	1.1
	蟻酸供給量	l	4.6	4.6	4.6
濃縮工程	脱硝濃縮槽液量	l	18.7→9.6	25.3→9.1	18.9→9.2
	脱硝濃縮槽密度	g/cm ³	1.03→1.12	1.03→1.14	1.04→1.065
	脱硝濃縮槽温度	°C	94~95	92~95	95
	脱硝濃縮槽压力	mmA g	MAX +25	MAX +30	MAX +50
	濃縮度	g/cm ³	2.0	2.8	2.05
	濃縮時間	hr	7.3	14.5	8.5
	凝縮水液量	l	6.5	12.5	8.0
	凝縮水回収率	%	71	77	82

Table 10 第3ラン脱硝時脱硝率

脱 硝 前 硝 酸 根	86.7 mol
脱 硝 後 硝 酸 根	13.1 mol
脱 硝 率	84.9 %

Table 11 混合・溶融試験条件及び結果

			単位	第1ラン	第2ラン	第3ラン
第1バッチ	スラリ調整	脱 硝 濃 縮 液	ℓ	4.3	4.3	4.8
		ガラス原料	フリット	kg	1.12	1.07
			水	ℓ	1.12	1.07
	洗浄水	ℓ		0.5	0.5	0.5
	蒸発時間	hr		22	22	19
	蒸発温度	℃		100~600	100~600	100~600
第2バッチ	溶融	直接通電時間	hr	5.0	6.0	6.5
		溶融温度／保持時間	℃/hr	900/1.0	900~925/1.0	900~910/2.0
		昇降温速度	℃/hr	27	27	35
	スラリ調整	脱 硝 濃 縮 液	ℓ	3.8	3.4	2.5
		ガラス原料	フリット	kg	1.12	1.13
			水	ℓ	1.12	1.13
	洗浄水	ℓ		0.5	1.0*+0.5	1.0*+0.5
徐冷	蒸発時間	hr		22	22	30.5
	蒸発温度	℃		100~600	100~600	100~600
	直接通電時間	hr		7.5	10.5	10.5
	溶融温度／保持時間	℃/hr		1200~1250/2.5	1150~1200/3.0	1150~1230/2.0
	昇降温速度	℃/hr		27	27	35
	流下時間	min		13	11	11
徐冷	徐冷炉保持温度	℃		550	550	550
	徐冷速度	℃/hr		4~5	4~5	4~5

* VE-2201洗浄水

Table 12 ガラス原料フリット組成

フリットコード名 : FG-2D	
SiO ₂	60.4 wt%
B ₂ O ₃	20.3
Al ₂ O ₃	4.96
Li ₂ O	4.43
Na ₂ O	1.28
K ₂ O	2.79
CaO	2.85
ZnO	3.04

Table 13 ガラス流下結果

	第1ラン	第2ラン	第3ラン
流下開始ノズル温度 (下段)	820 °C	820 °C	840 °C
流下時間	13 min	11 min	11 min
流下ガラス重量	2.666 kg	2.572 kg	2.510 kg

Table 14 メルターオフガス凝縮水回収率

項目 区分		脱 濃 硝 縮 液	フリット中 水 分 量 ＊1	凝 縮 水 回 収 量 (VE-2204)	回 収 率 ＊2
第1ラン	第1バッチ	4.3 ℥	1.62 ℥	4.5 ℥	76.0 %
	第2バッチ	3.8 ℥	1.62 ℥	4.8 ℥	88.6 %
第2ラン	第1バッチ	4.3 ℥	1.57 ℥	4.8 ℥	81.8 %
	第2バッチ	3.4+1.0 ℥	1.63 ℥	4.4 ℥	73.0 %
第3ラン	第1バッチ	4.8 ℥	1.557 ℥	4.9 ℥	77.0 %
	第2バッチ	2.5+1.0 ℥	1.557 ℥	3.9 ℥	77.1 %

＊1 脱硝濃縮槽洗浄液量+フリット供給ライン洗浄液量

$$\text{＊2} \frac{\text{凝縮水回収量}}{\text{脱硝濃縮液} + \text{フリット中水分量}}$$

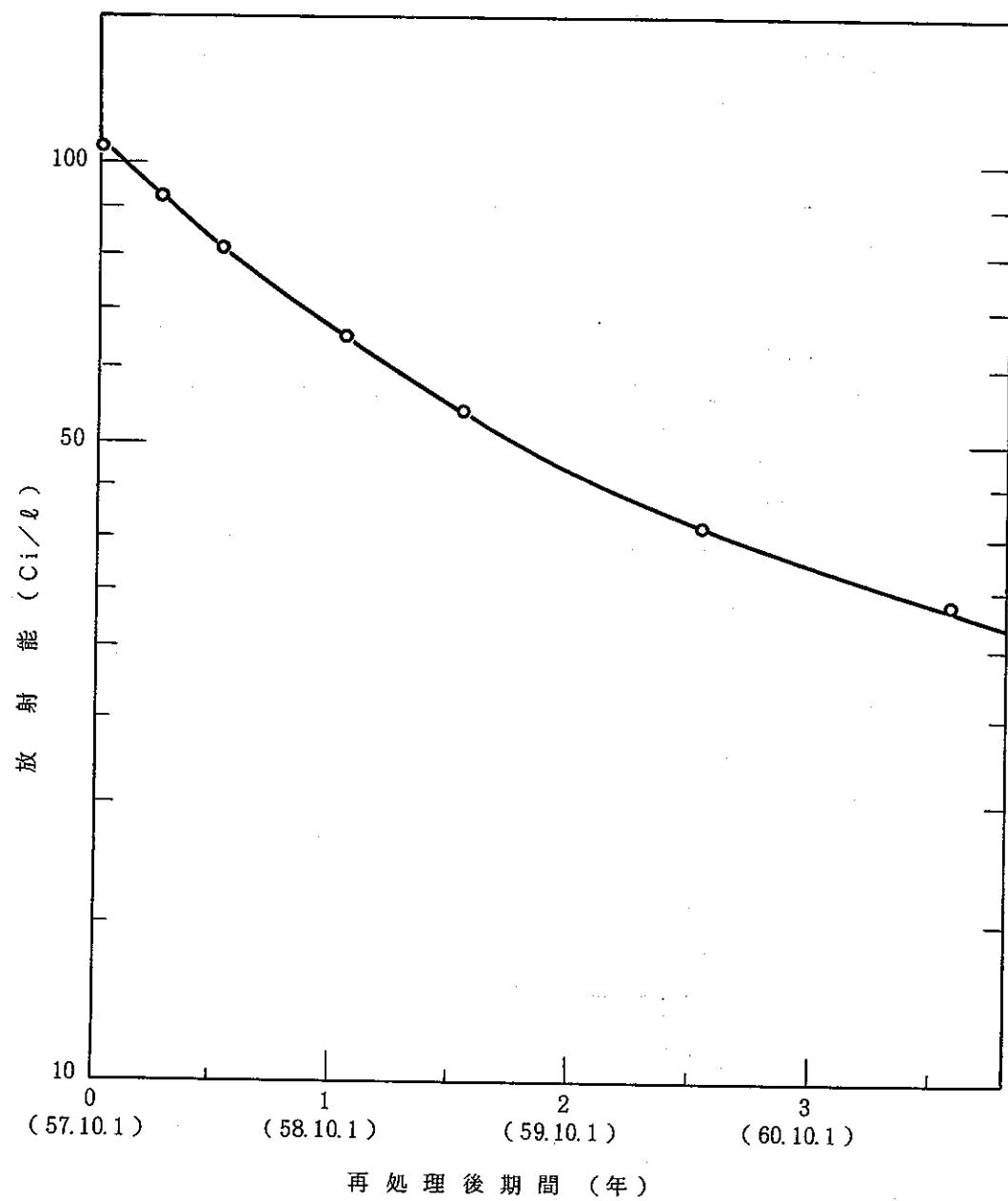


Fig. 1 O T L 廃液の放射能減衰曲線

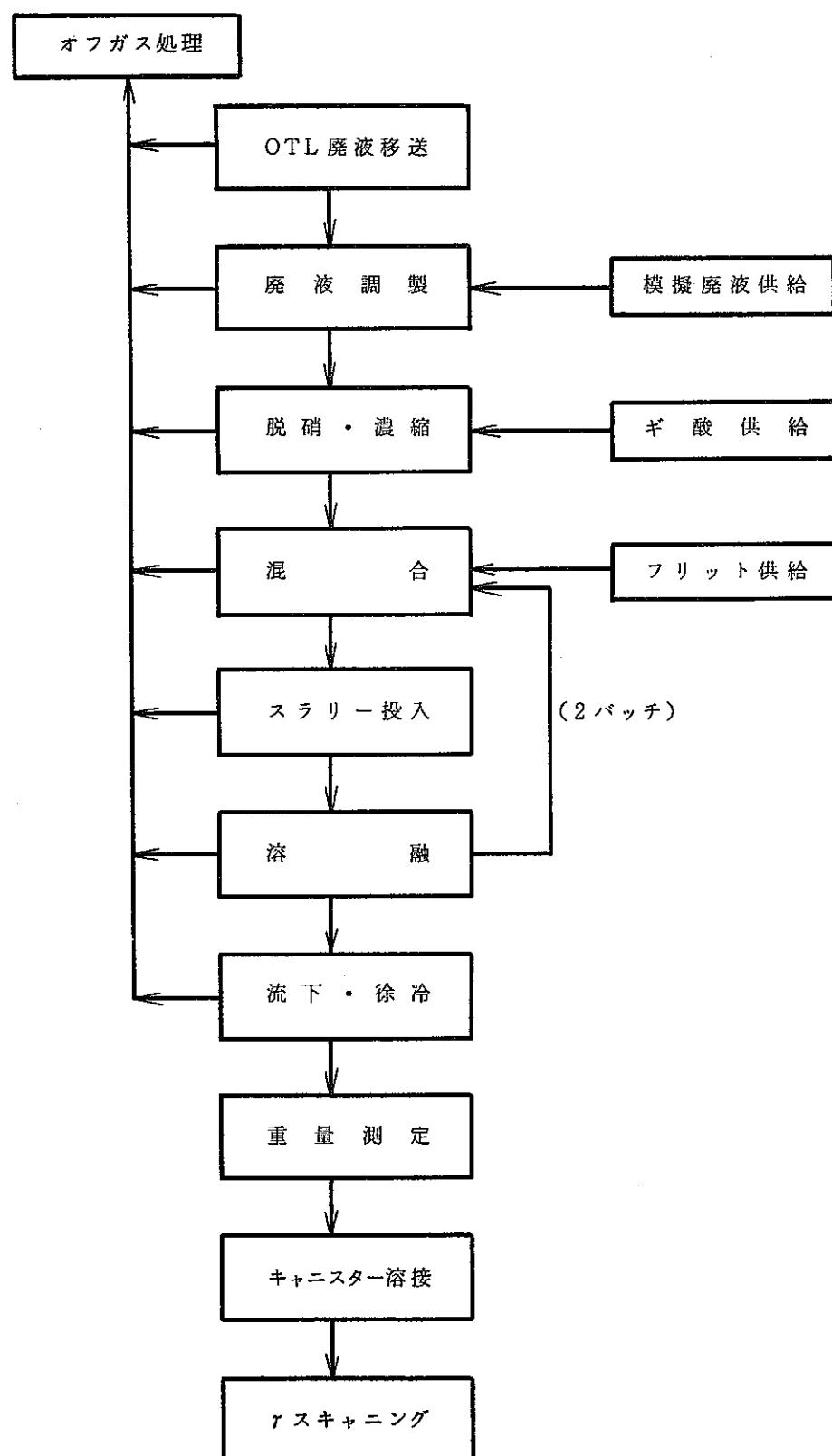
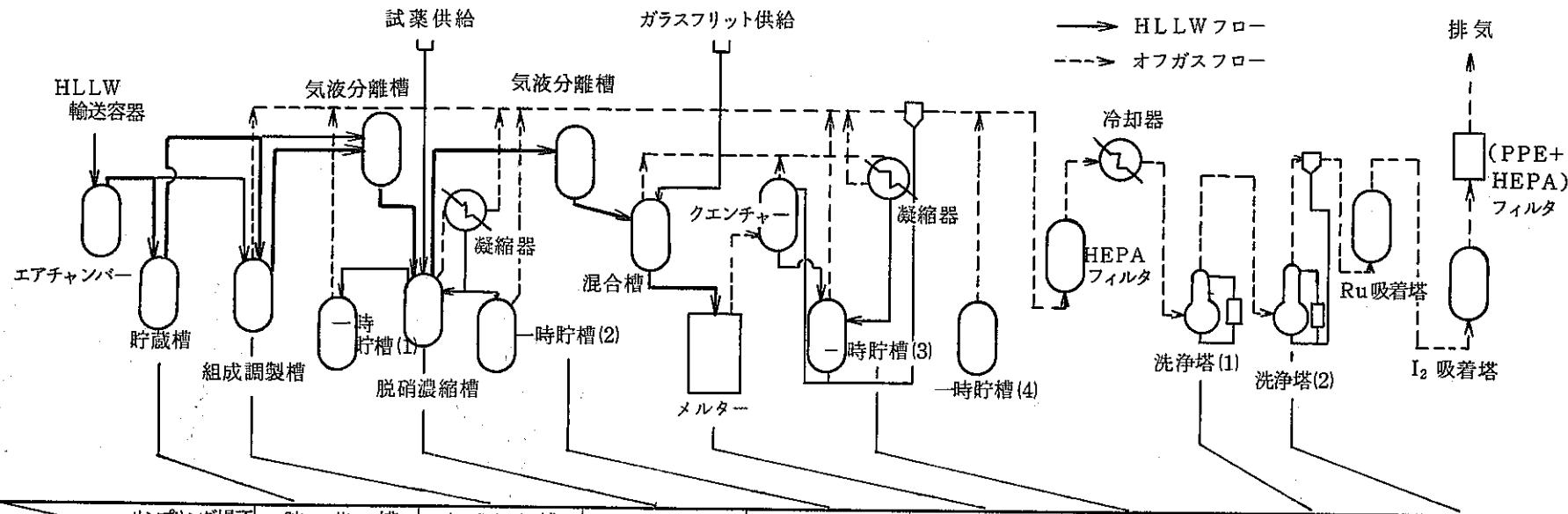


Fig. 2 ガラス固化試験フロー



サンプリング場所		貯蔵槽 (VE2101)	組成調製槽 (VE2102)	脱硝濃縮槽 (VE2201)	凝縮水貯槽 (VE2202)	メルター	洗浄液貯槽 (VE2204)	オフガス洗浄塔1 (TW2402)	オフガス洗浄塔2 (TW2403)
サンプリング時期		○							
組成調製前		○							
組成調製後			○						
脱硝濃縮	脱硝前			○				○	○
	脱硝後							○	○
	濃縮前			○	○				
	濃縮後			○	○				
メルタ一運転	第一バッチ 投入前						○	○	○
	蒸発乾燥後						○	○	○
	降温後								
	第二バッチ 投入前						○	○	○
	蒸発乾燥後						○	○	○
	降温後						○	○	○
流下後(ガラス)						○			

Fig. 3 分析試料採取計画

○ : サンプリング実施

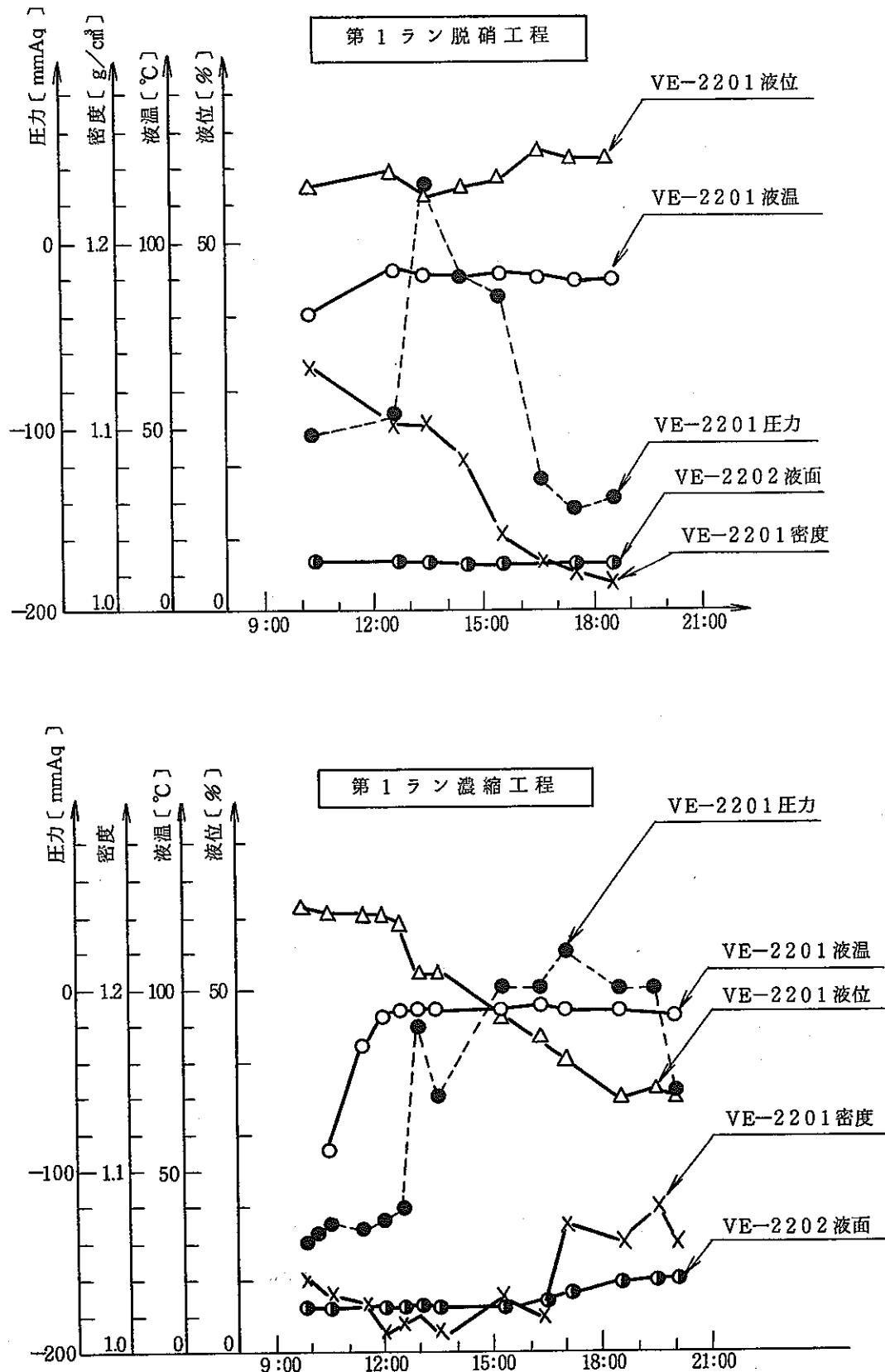
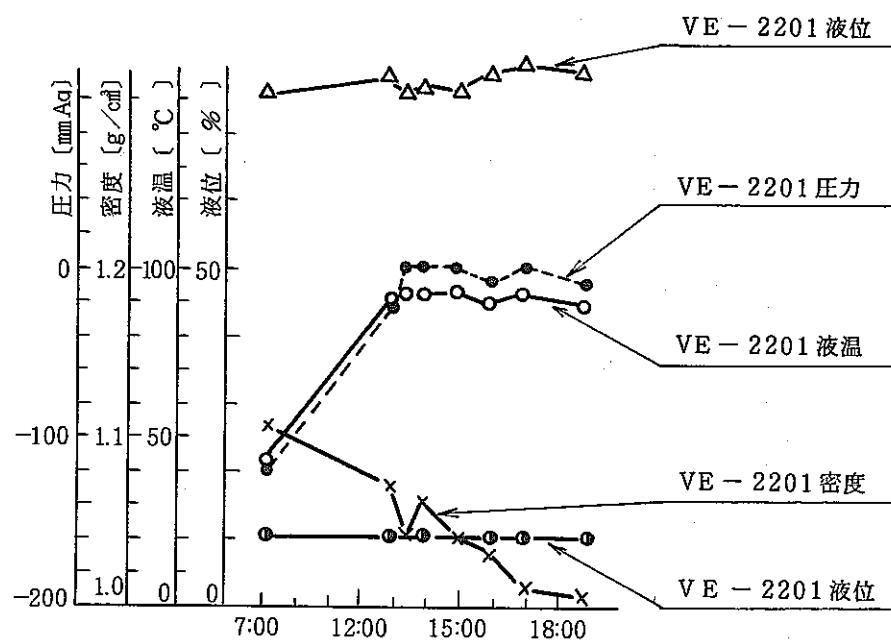


Fig. 4 第1ラン 脱硝・濃縮運転記録

第2ラン脱硝工程



第2ラン濃縮工程

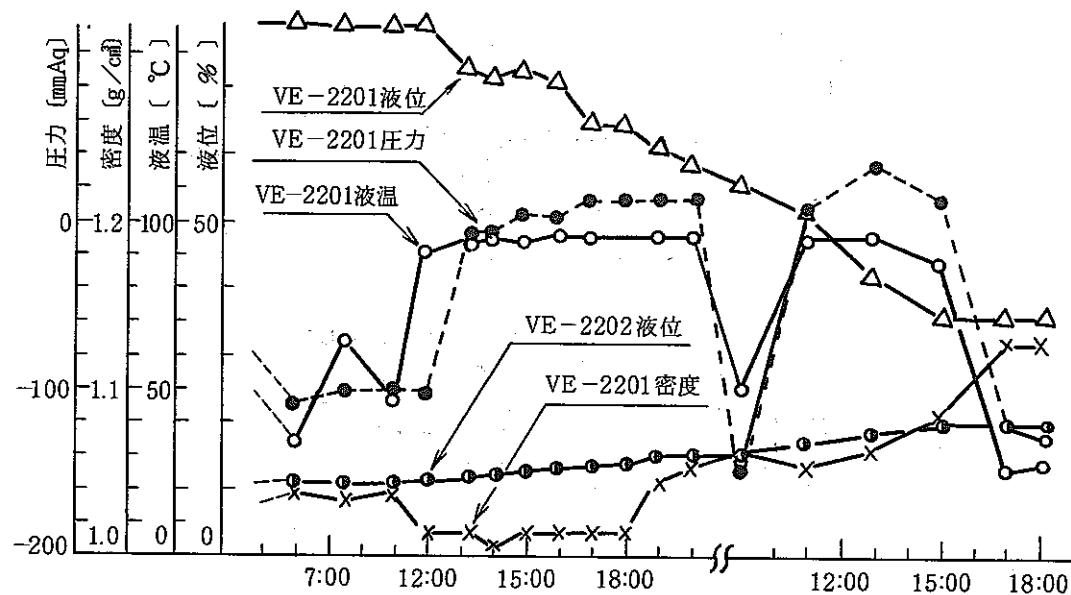


Fig. 5 第2ラン 脱硝・濃縮運転記録

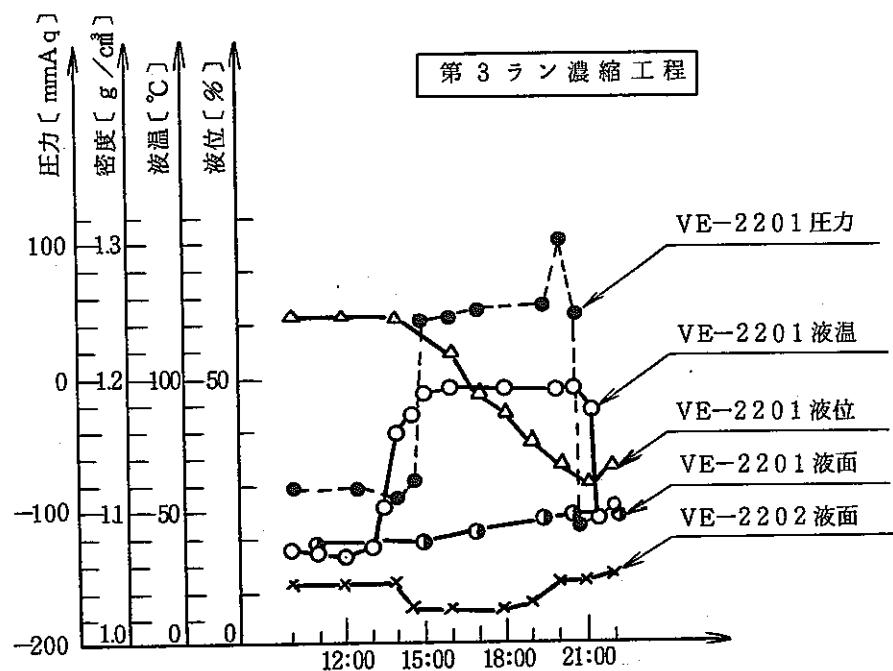
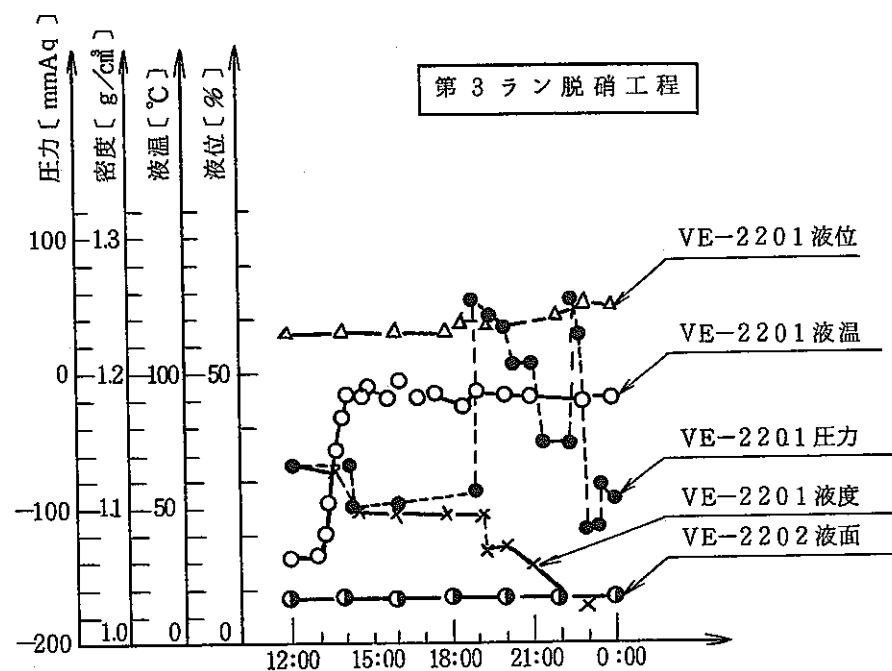


Fig. 6 第3ラン 脱硝・濃縮運転記録

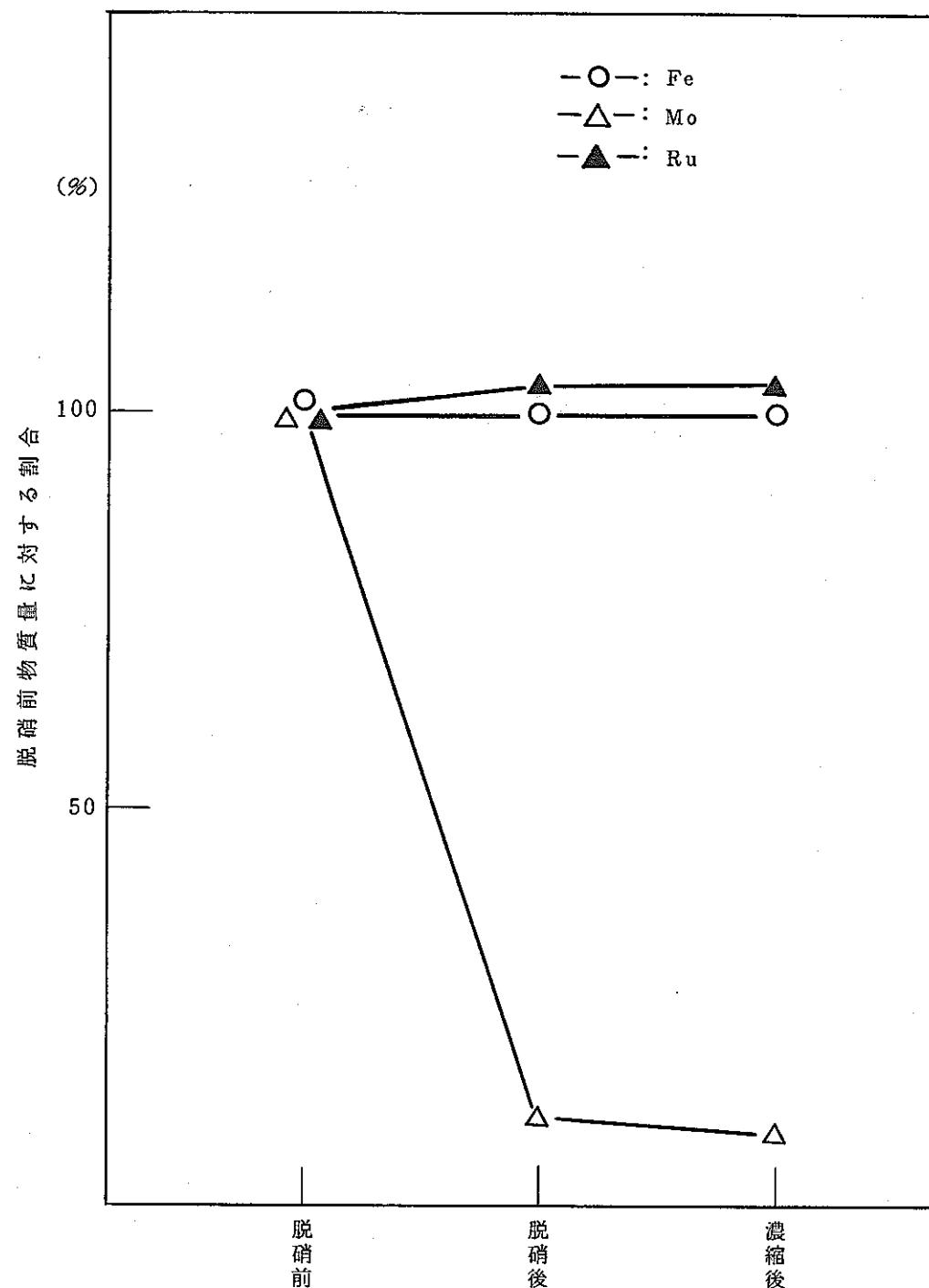


Fig. 7 第2ラン脱硝濃縮時の廃液中物質変化

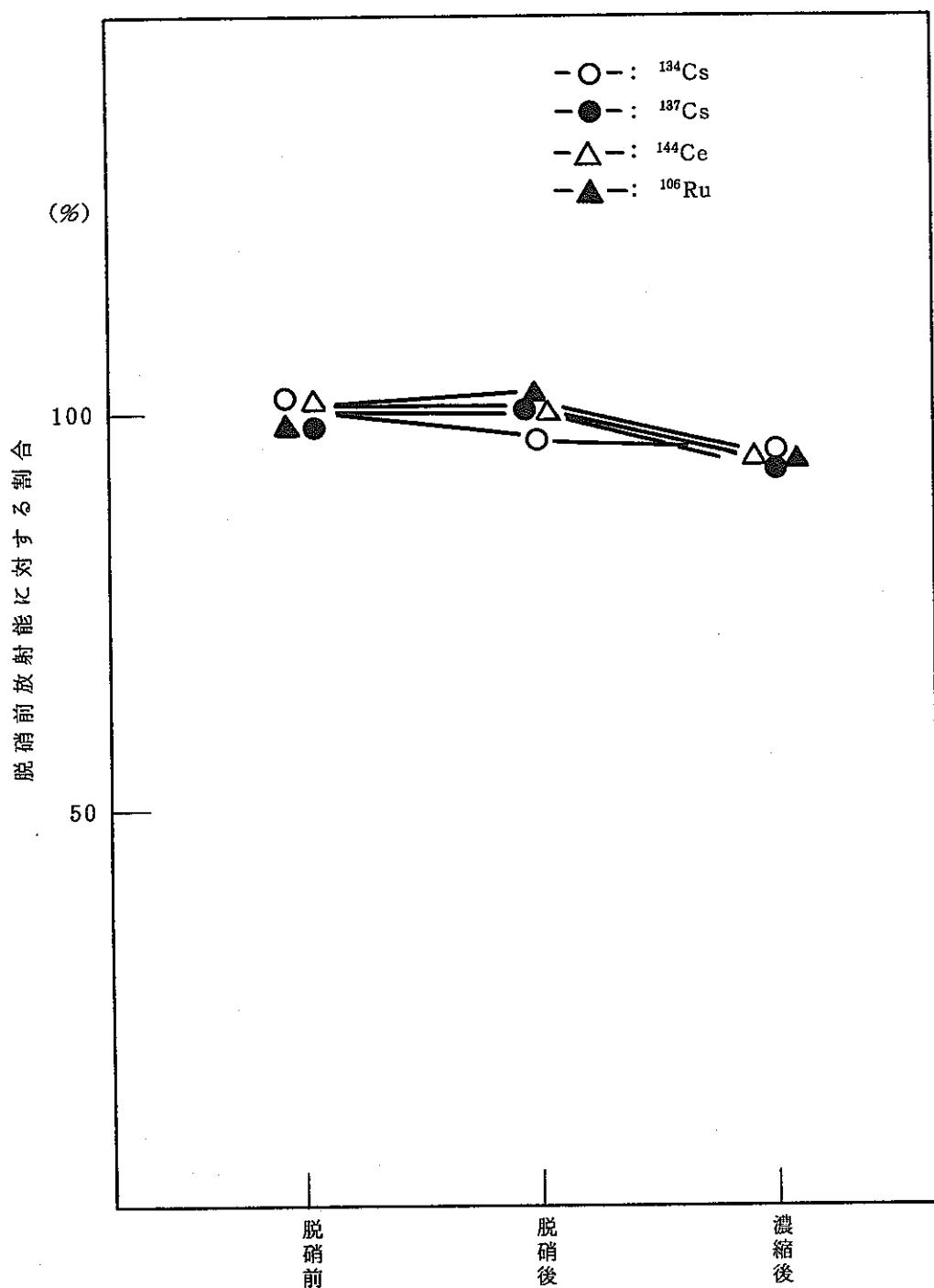


Fig. 8 第2ラン脱硝濃縮時の廃液放射能変化

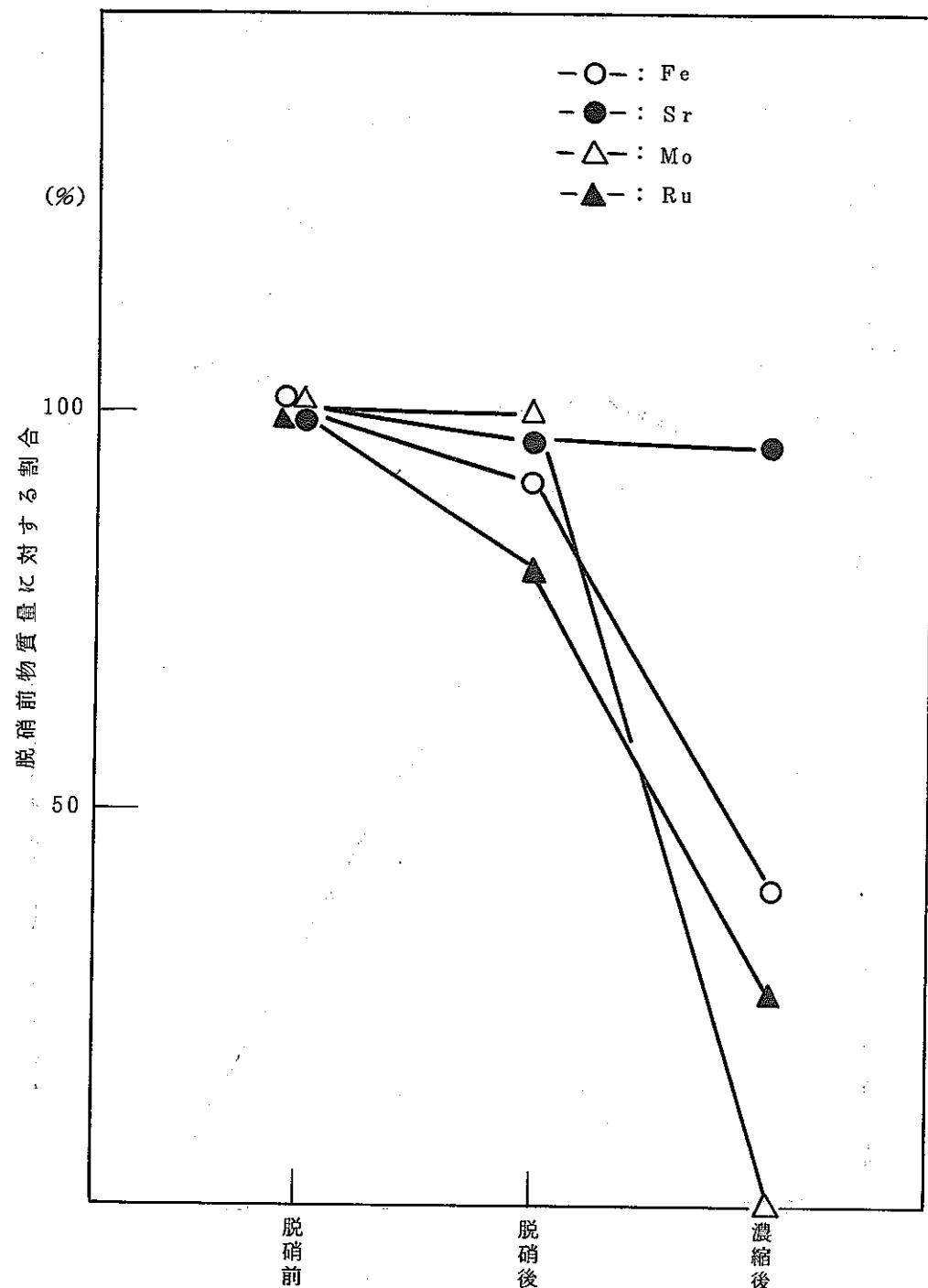


Fig. 9 第3ラン脱硝濃縮時の廃液中物質変化

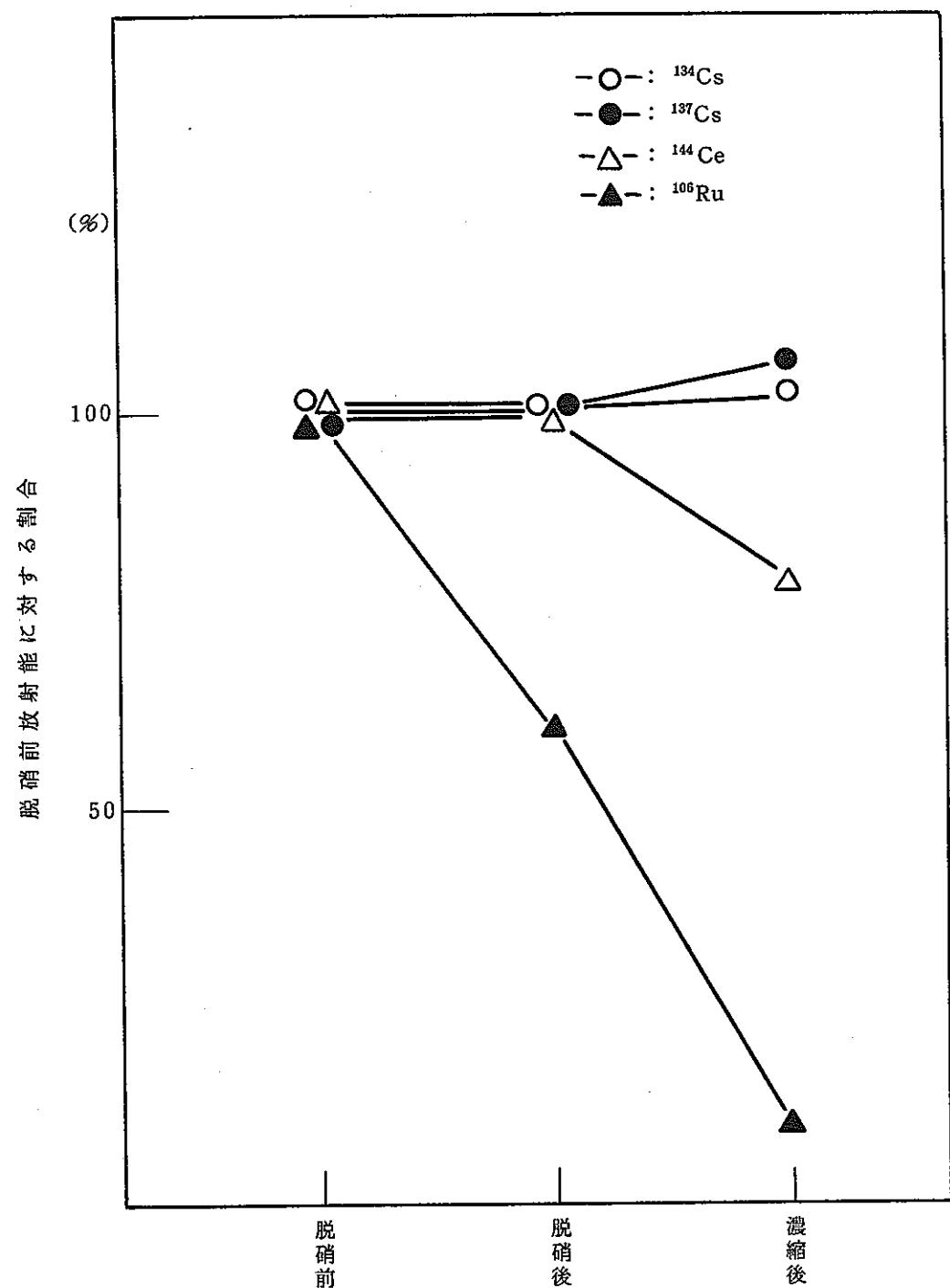


Fig. 10 第3ラン脱硝濃縮時の廃液放射能変化

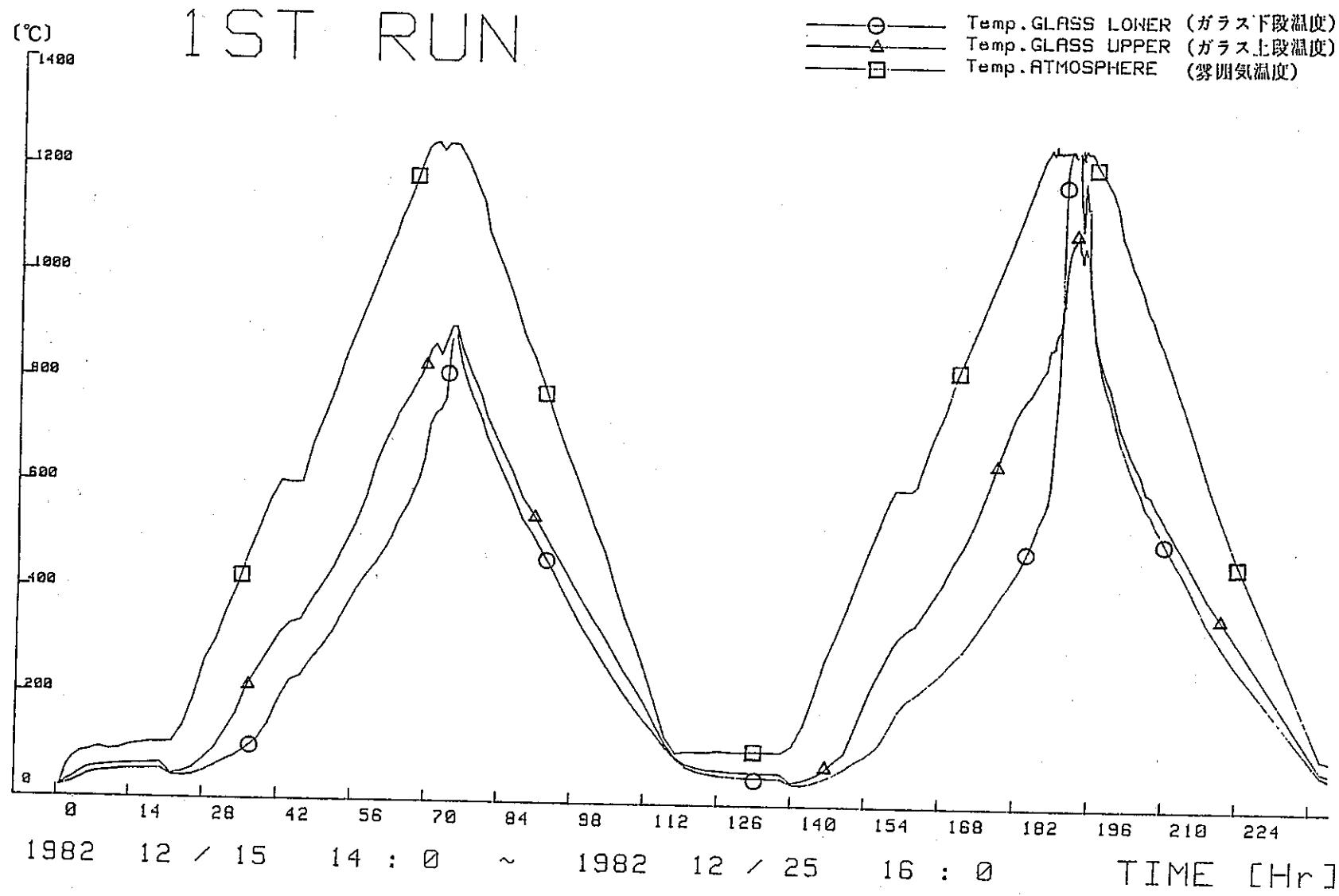


Fig. 11 第1ランメルター昇降温記録

- 30 -

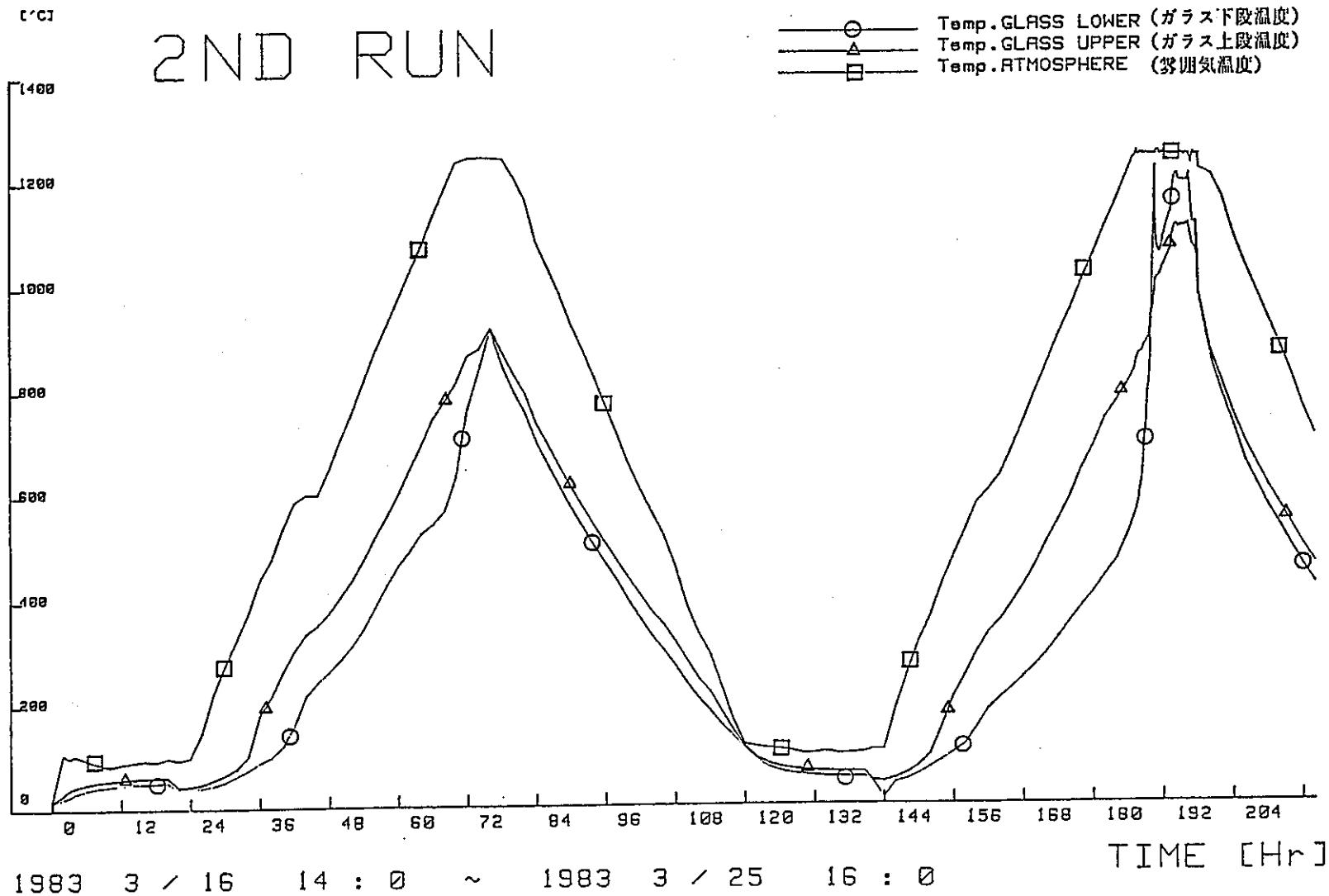


Fig. 12 第2ランメルター昇降温記録

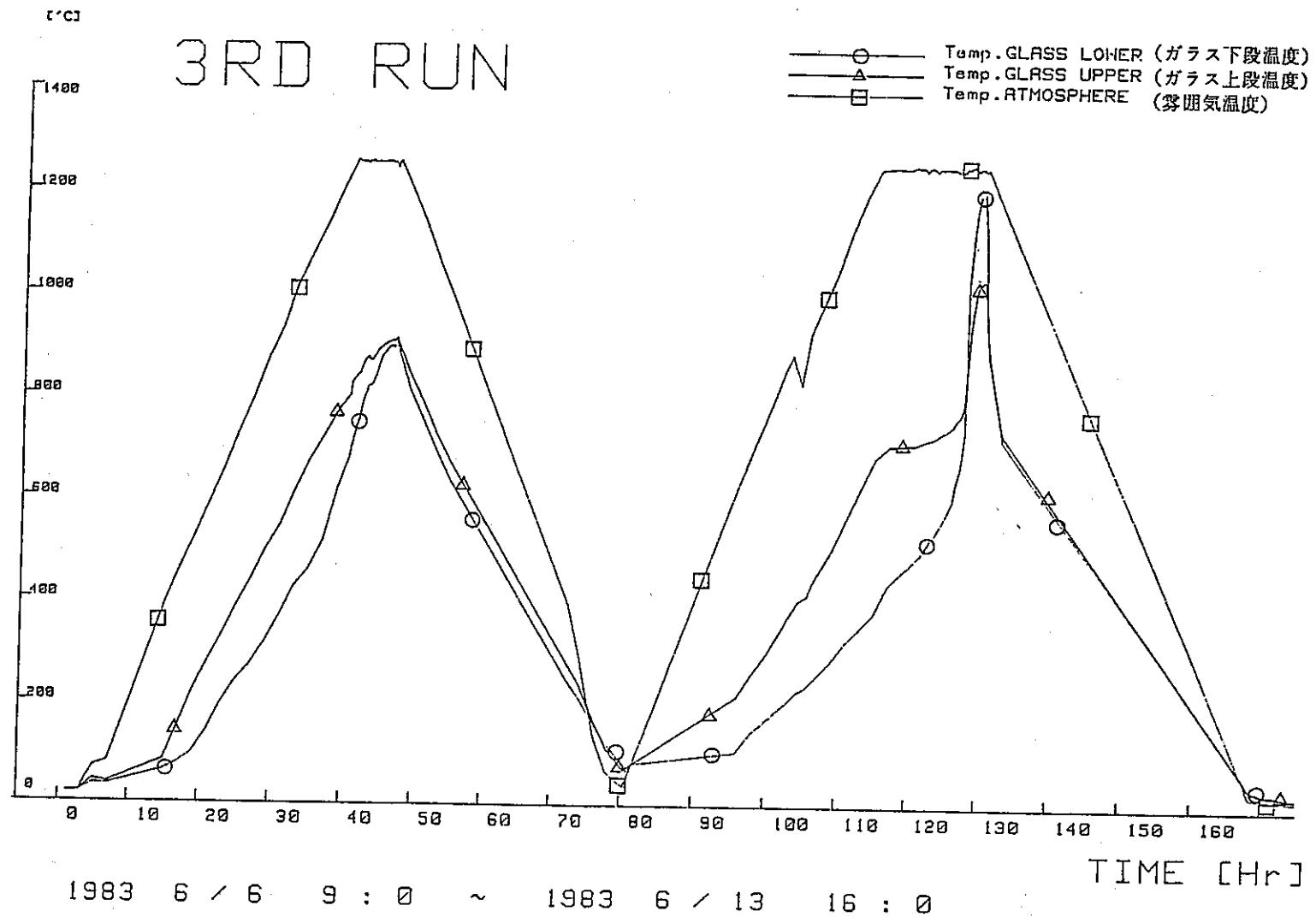


Fig. 13 第3ランメルター昇降温記録

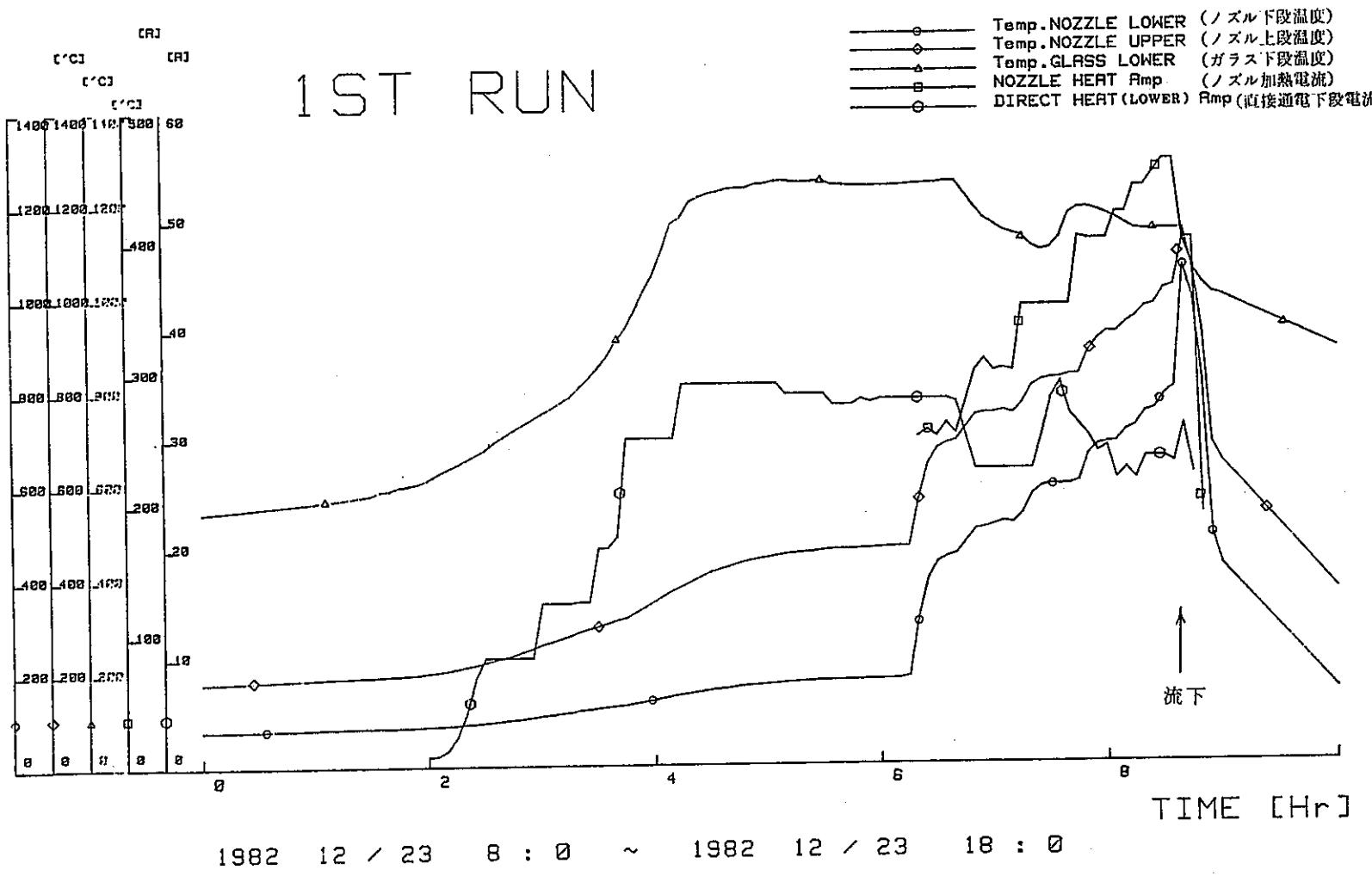


Fig. 14 第1ラン流下時のガラス・ノズル温度及び加熱電流

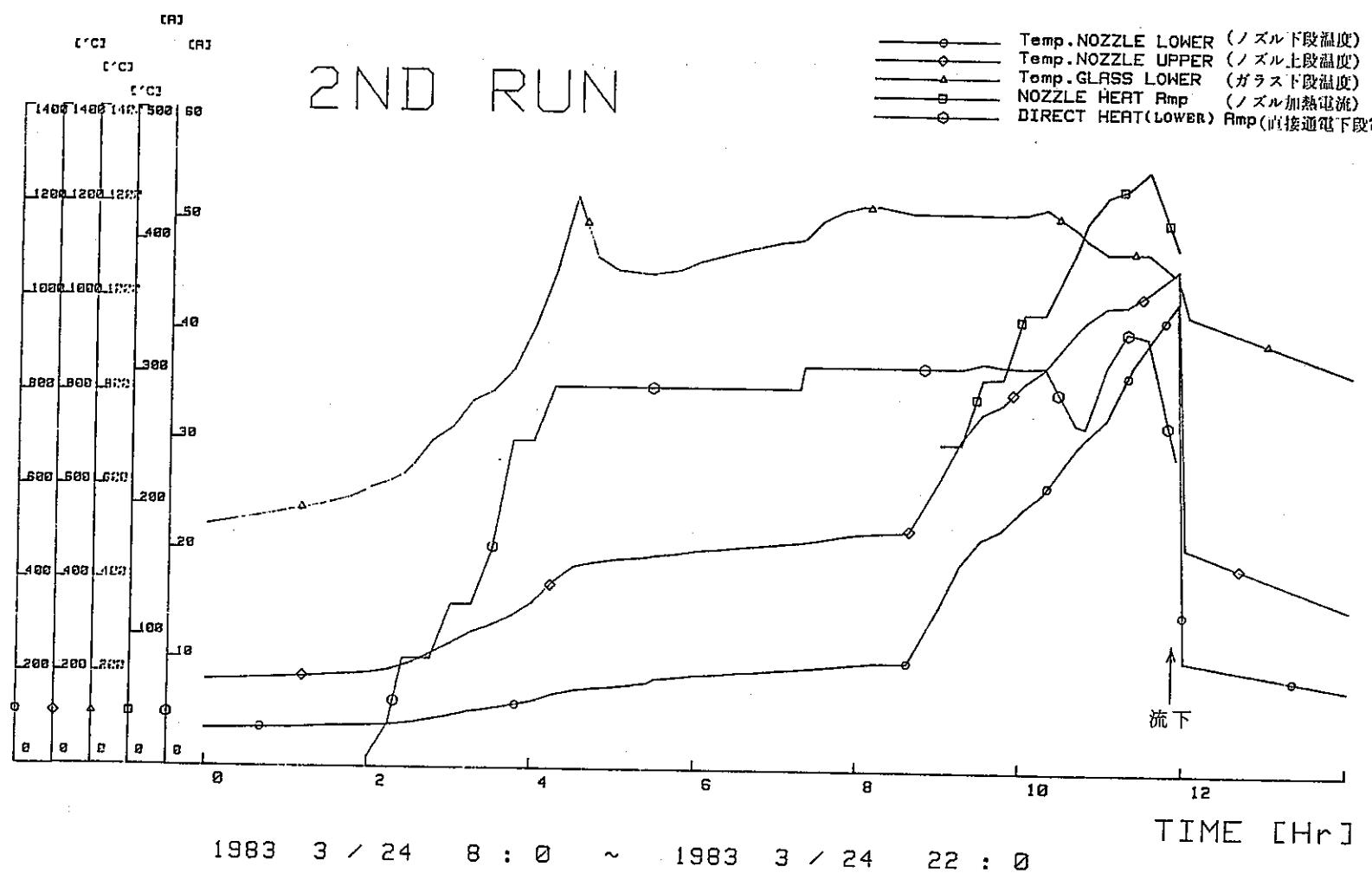


Fig. 15 第2ラン流下時のガラス・ノズル温度及び加熱電流

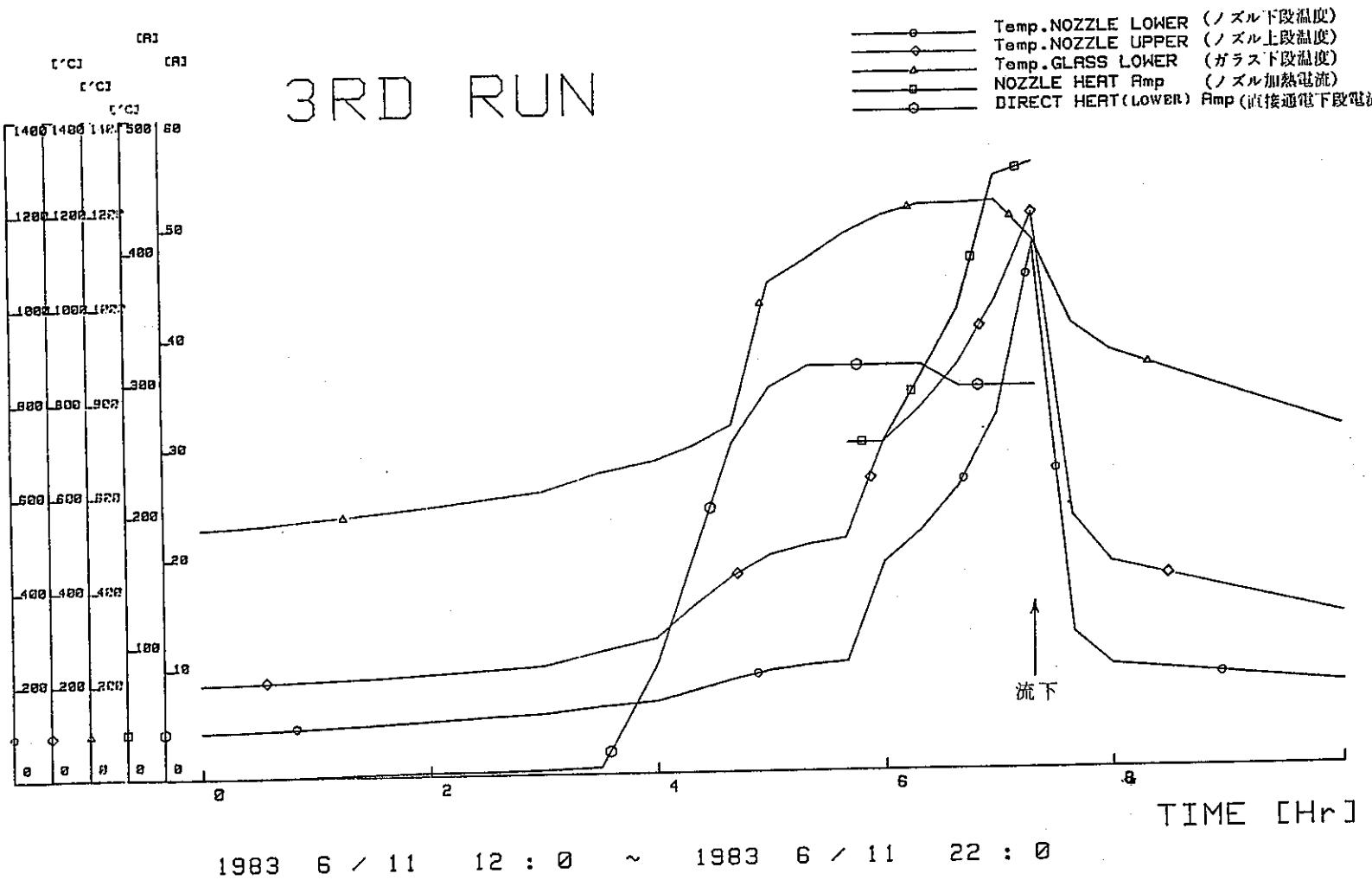


Fig. 16 第3ラン流下時のガラス・ノズル温度及び加熱電流

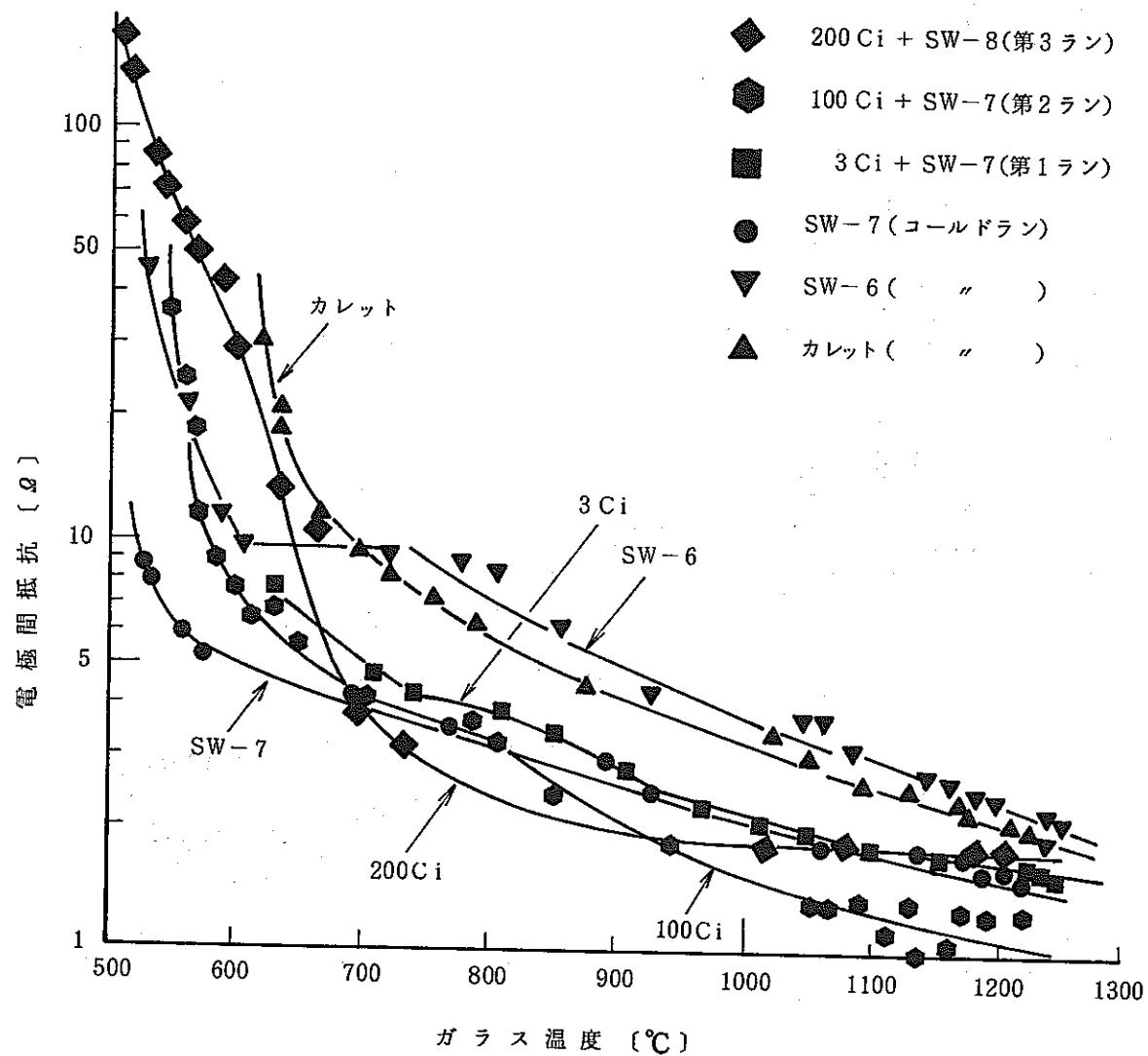


Fig. 17 直接通電上段電極電極間抵抗（第2バッチ）

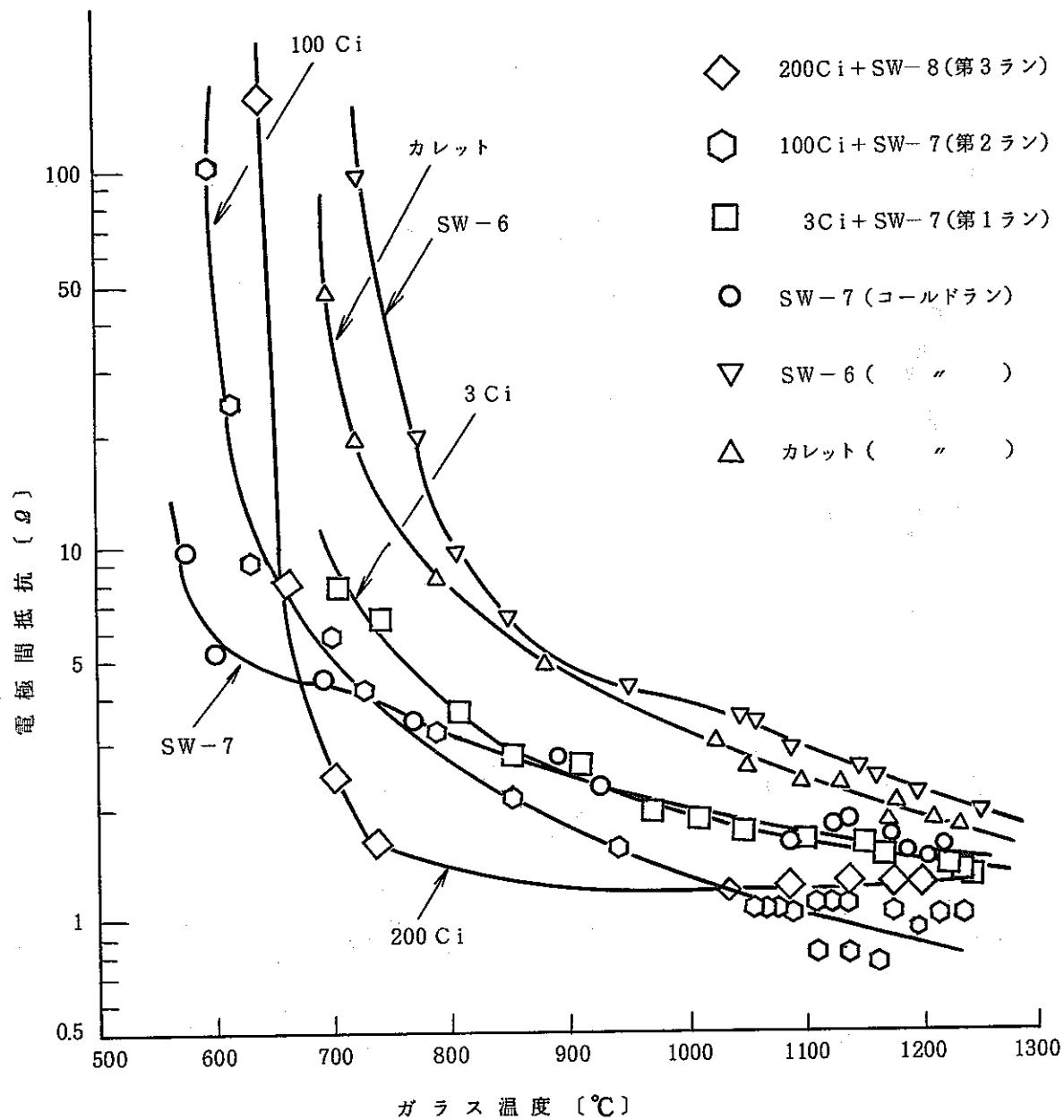
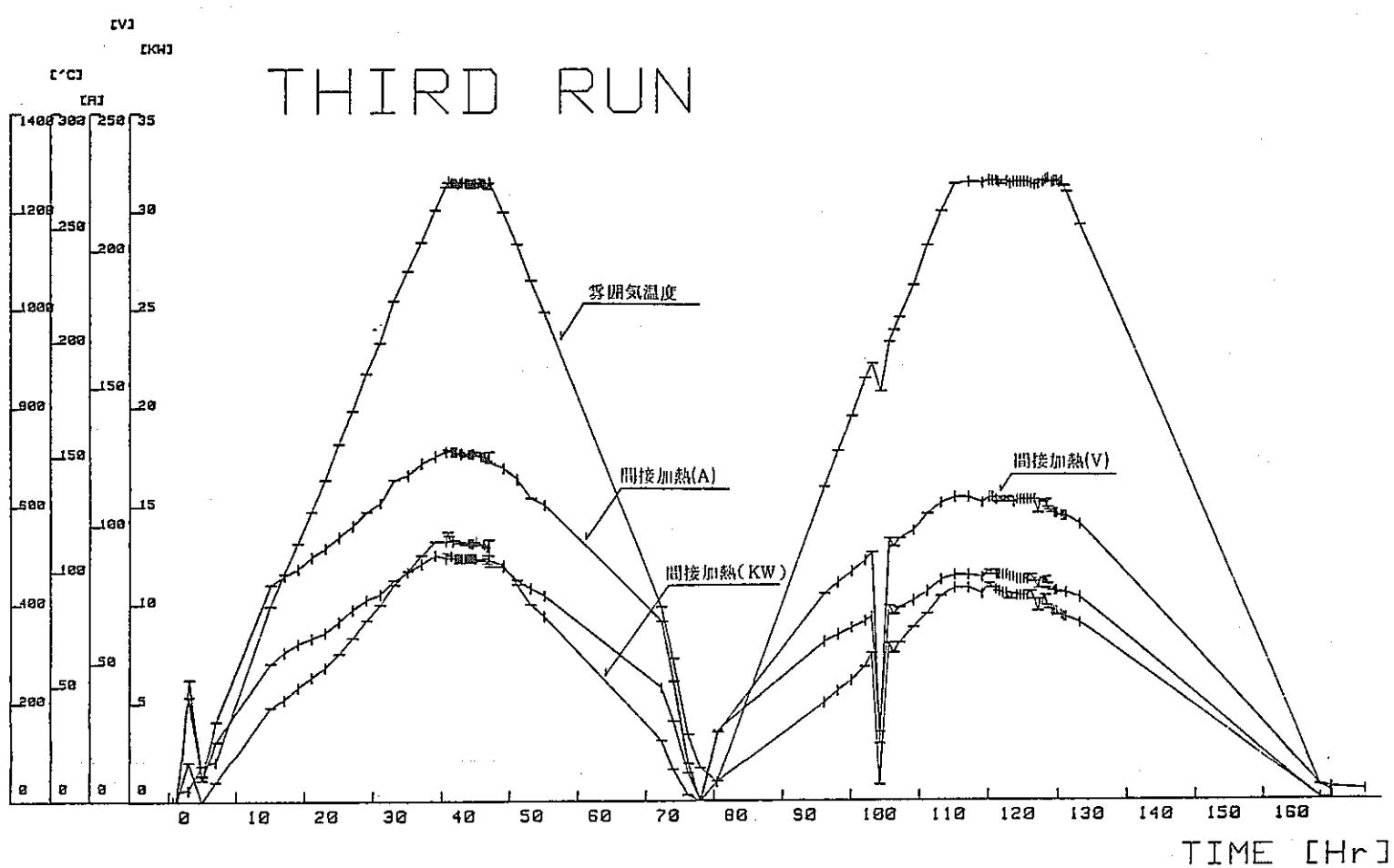
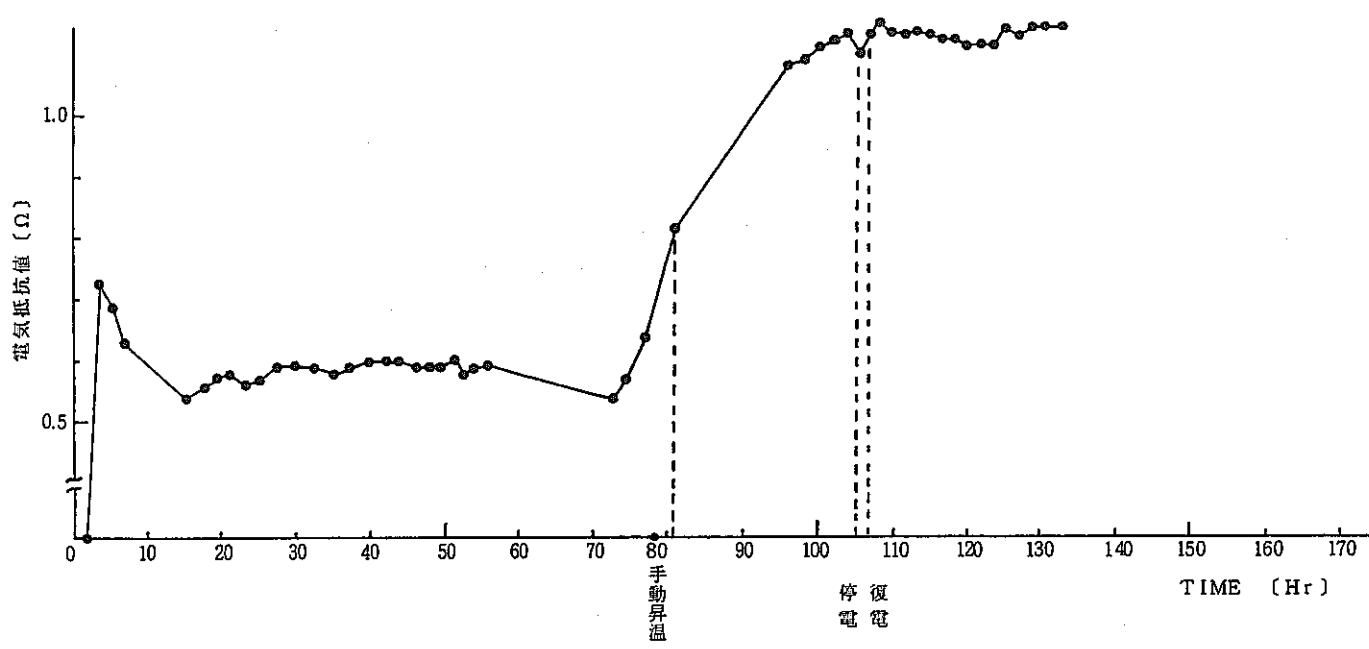


Fig. 18 直接通電下段電極電極間抵抗 (第2バッチ)



第3ラン間接加熱・霧囲気温度



間接加熱ヒータ電気抵抗値

Fig. 19 第3ランメルター間接加熱ヒーター電力、電流、抵抗変化

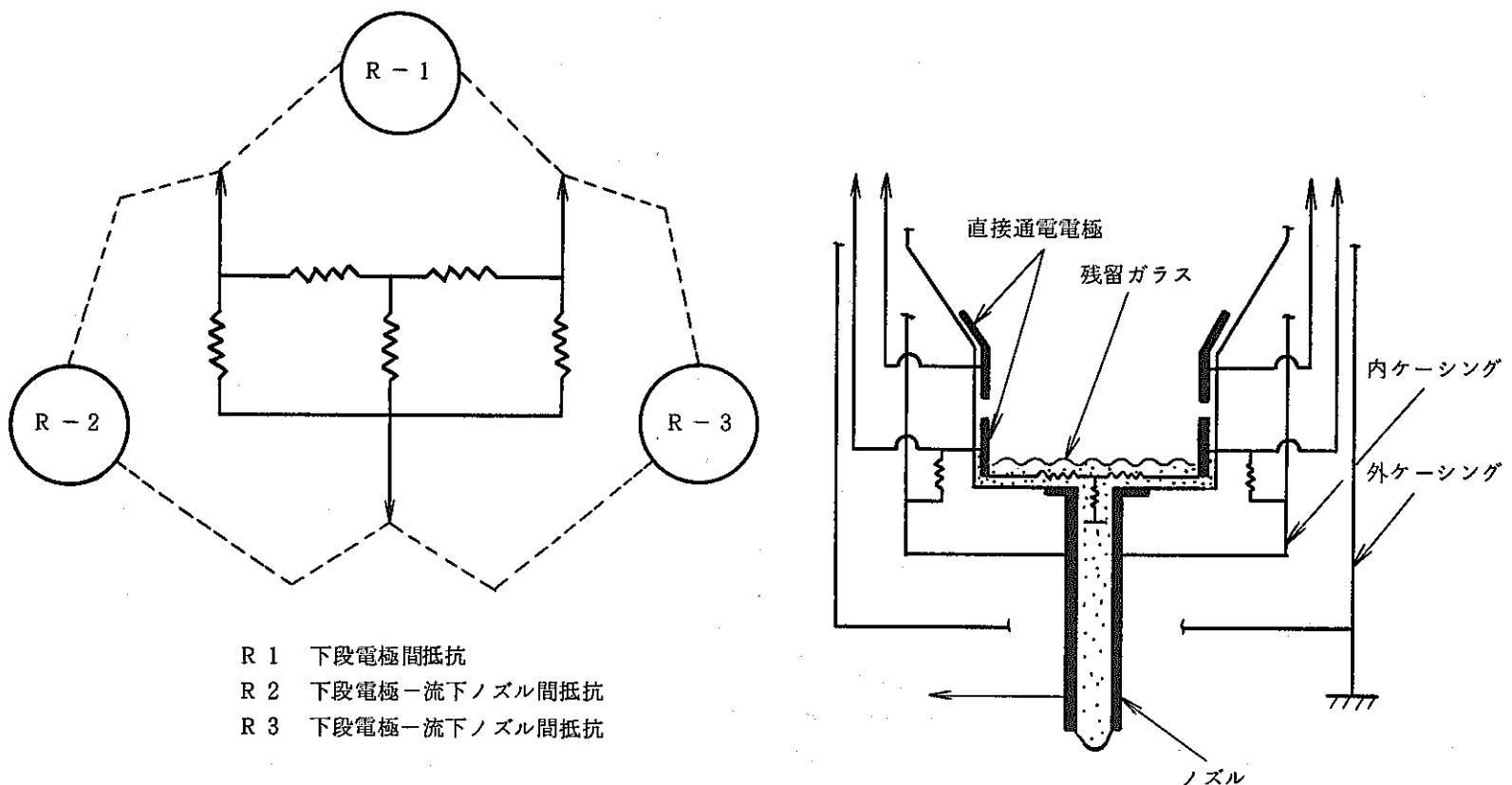


Fig. 20 メルタ絶縁等価回路

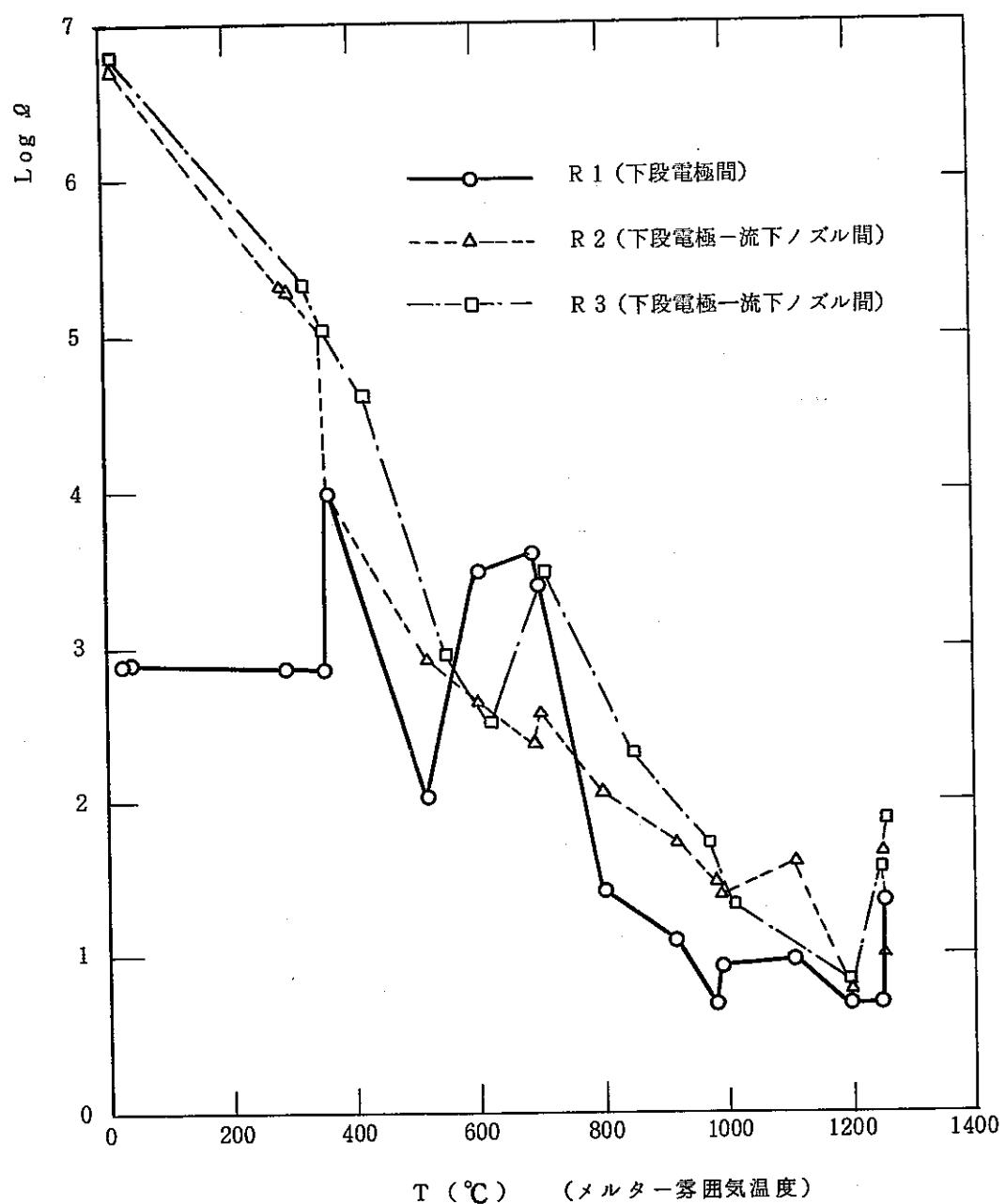


Fig. 21 直接通電時の抵抗測定結果

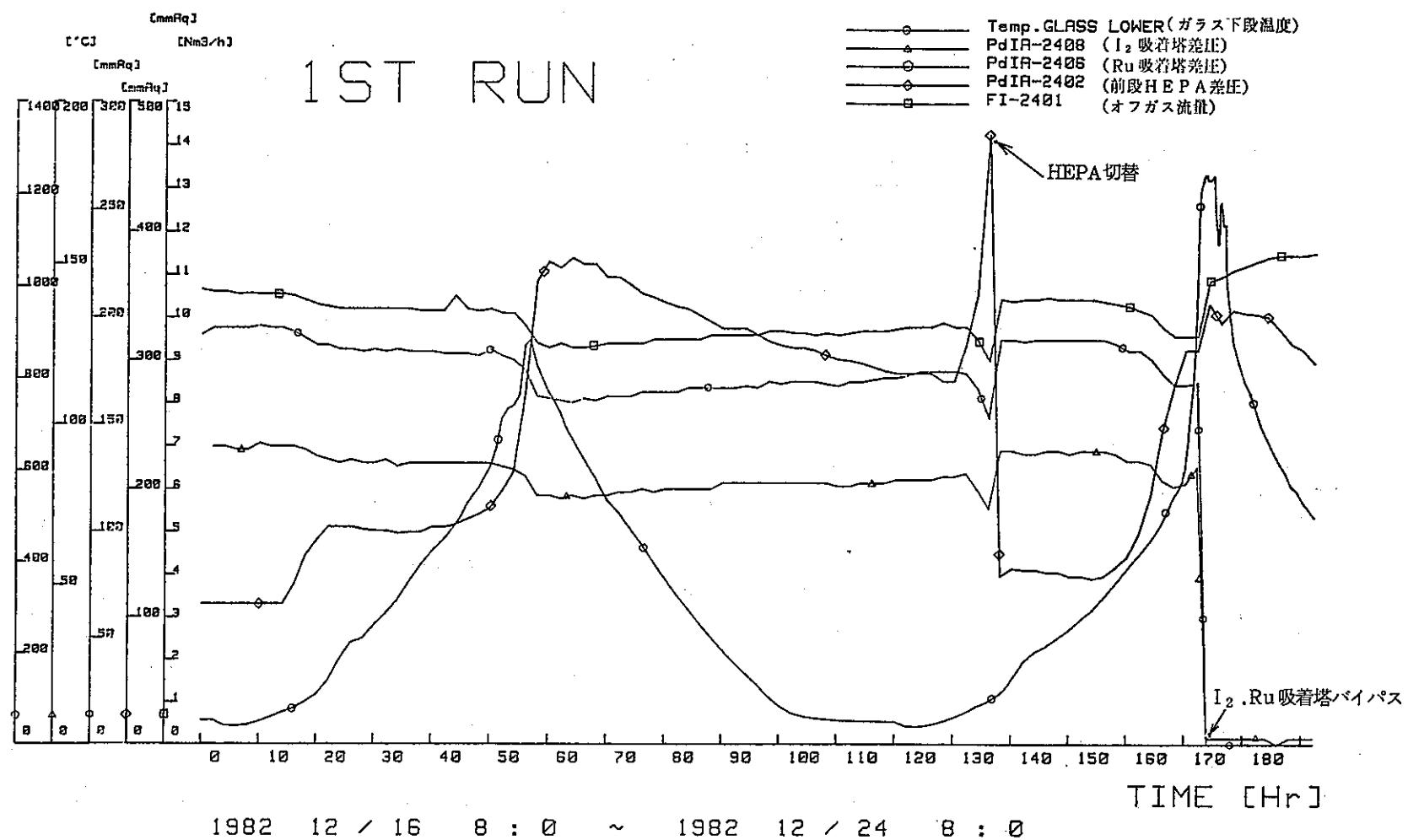


Fig. 22 第1ランメルター運転時オフガス処理記録

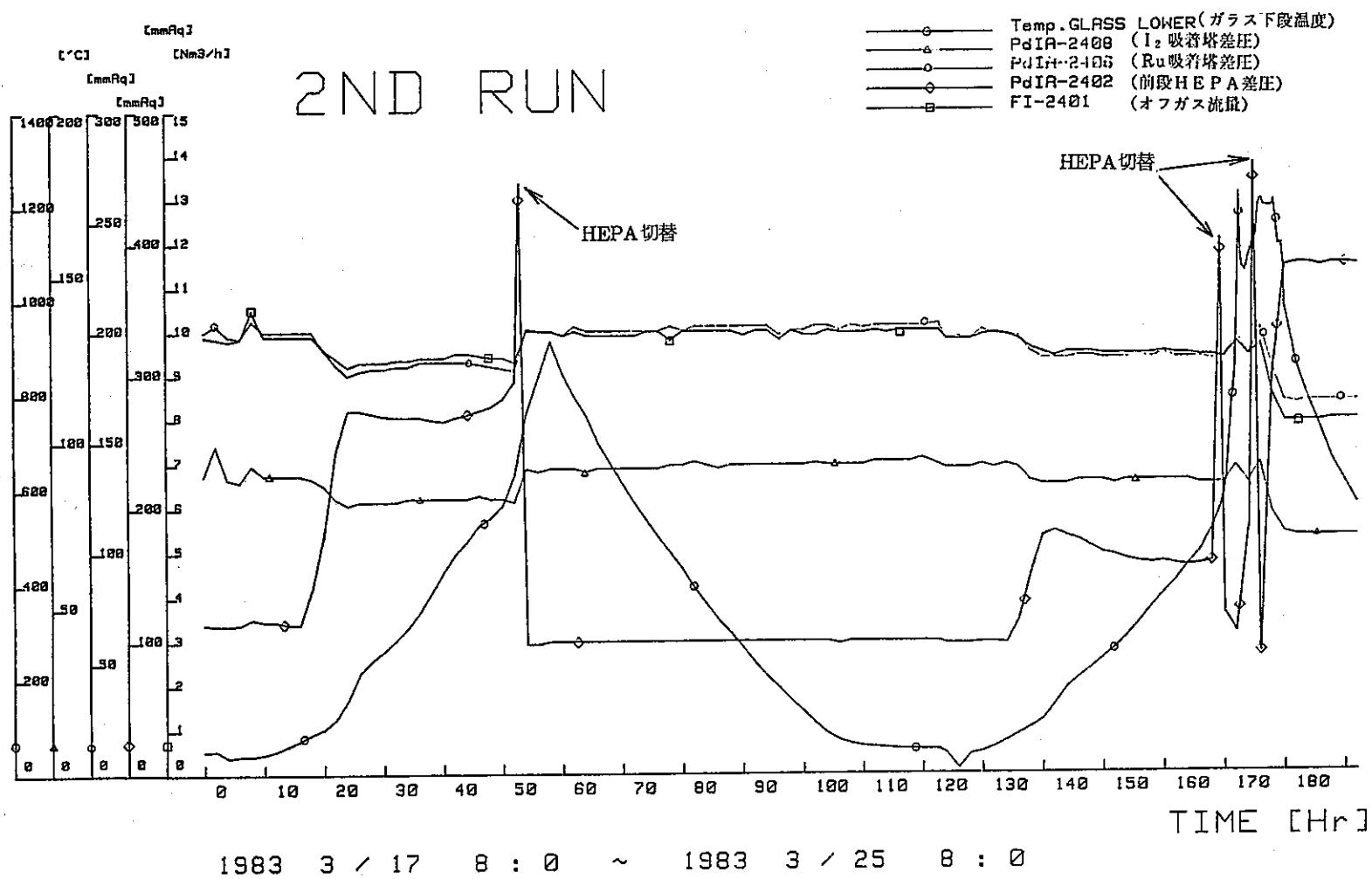


Fig. 23 第2ランメルター運転時オフガス処理記録

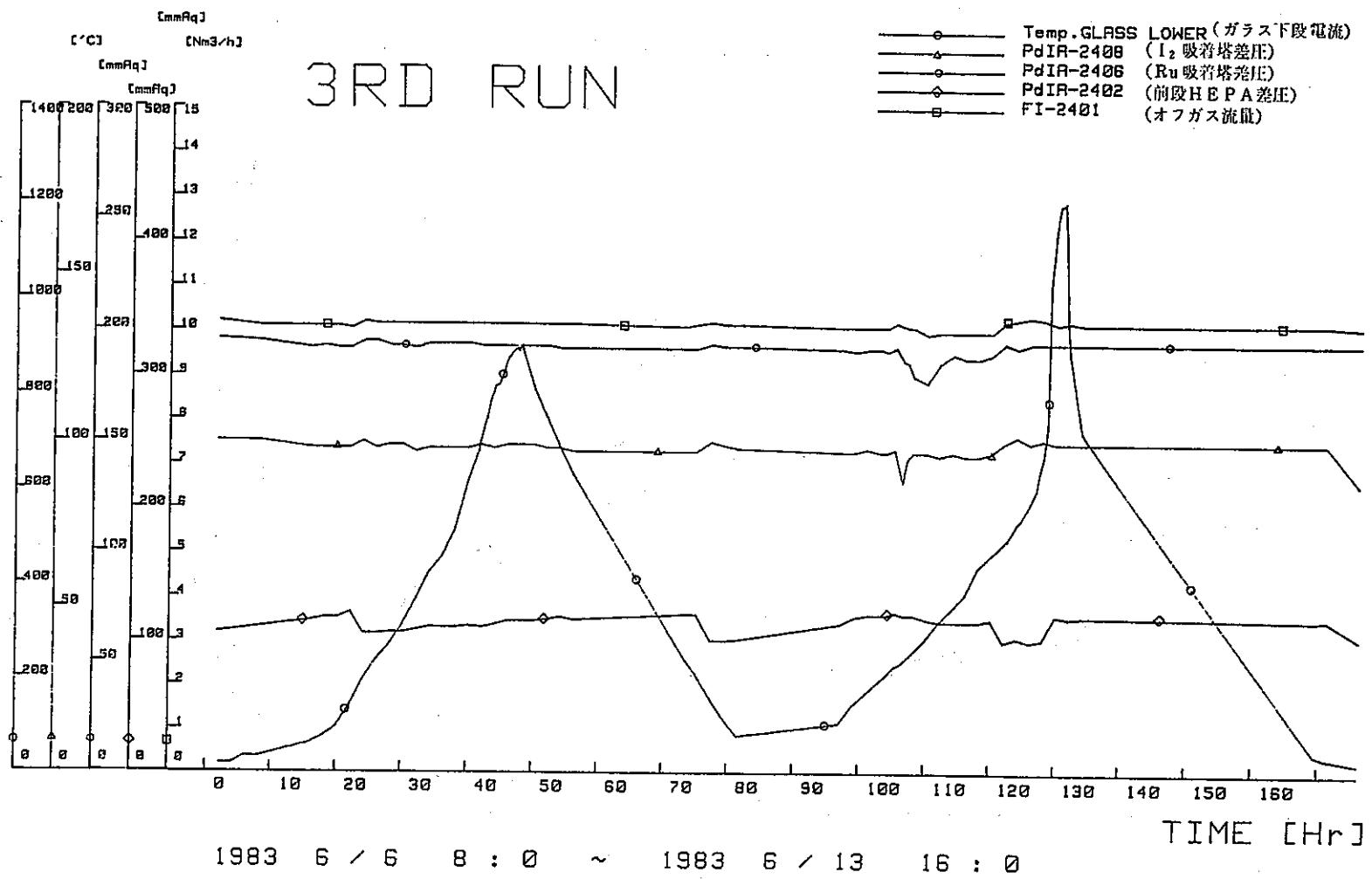


Fig. 24 第3ランメルター運転時オフガス処理記録

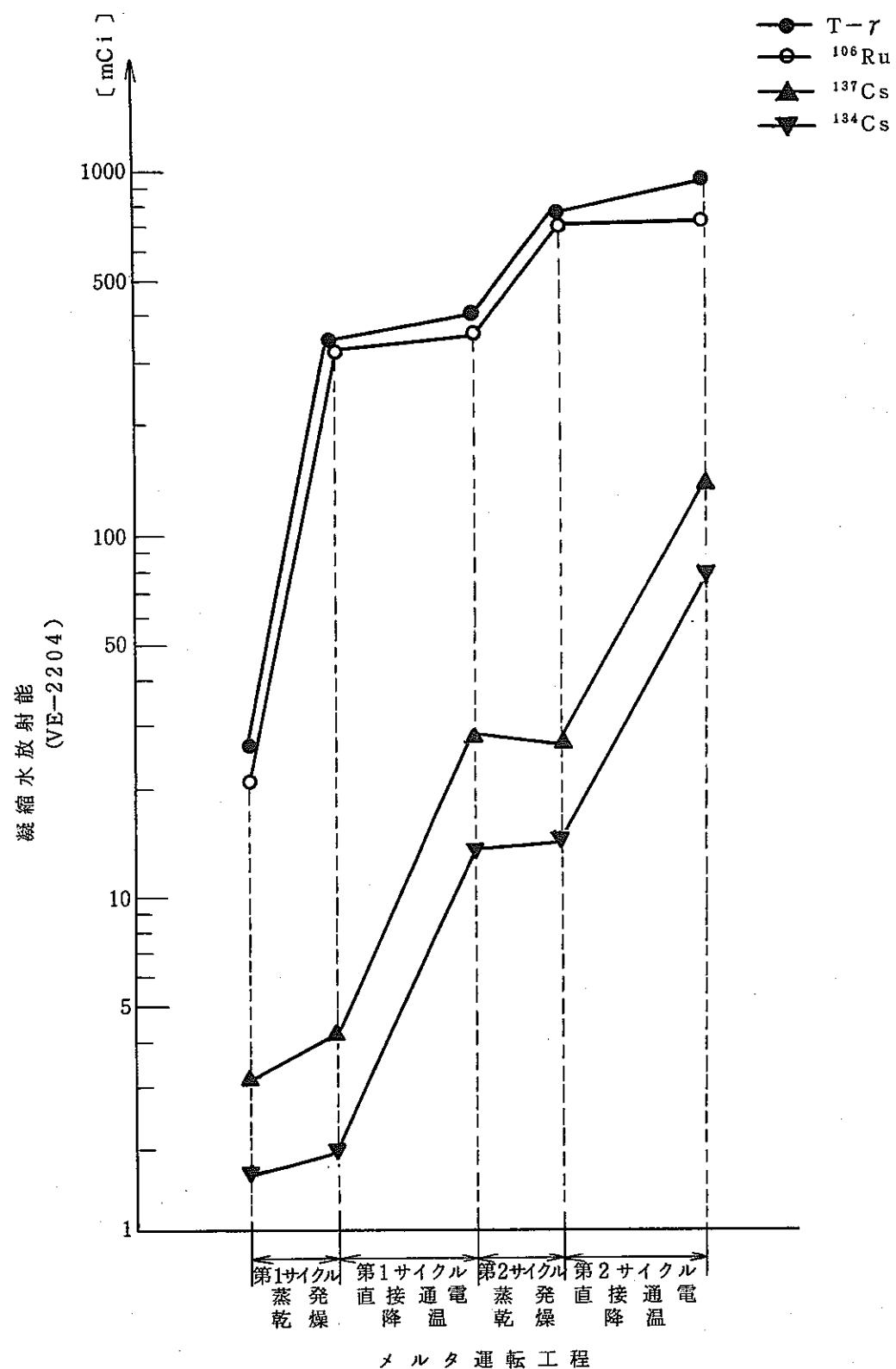


Fig. 25 第2ラン メルター運転時オフガス凝縮水放射能

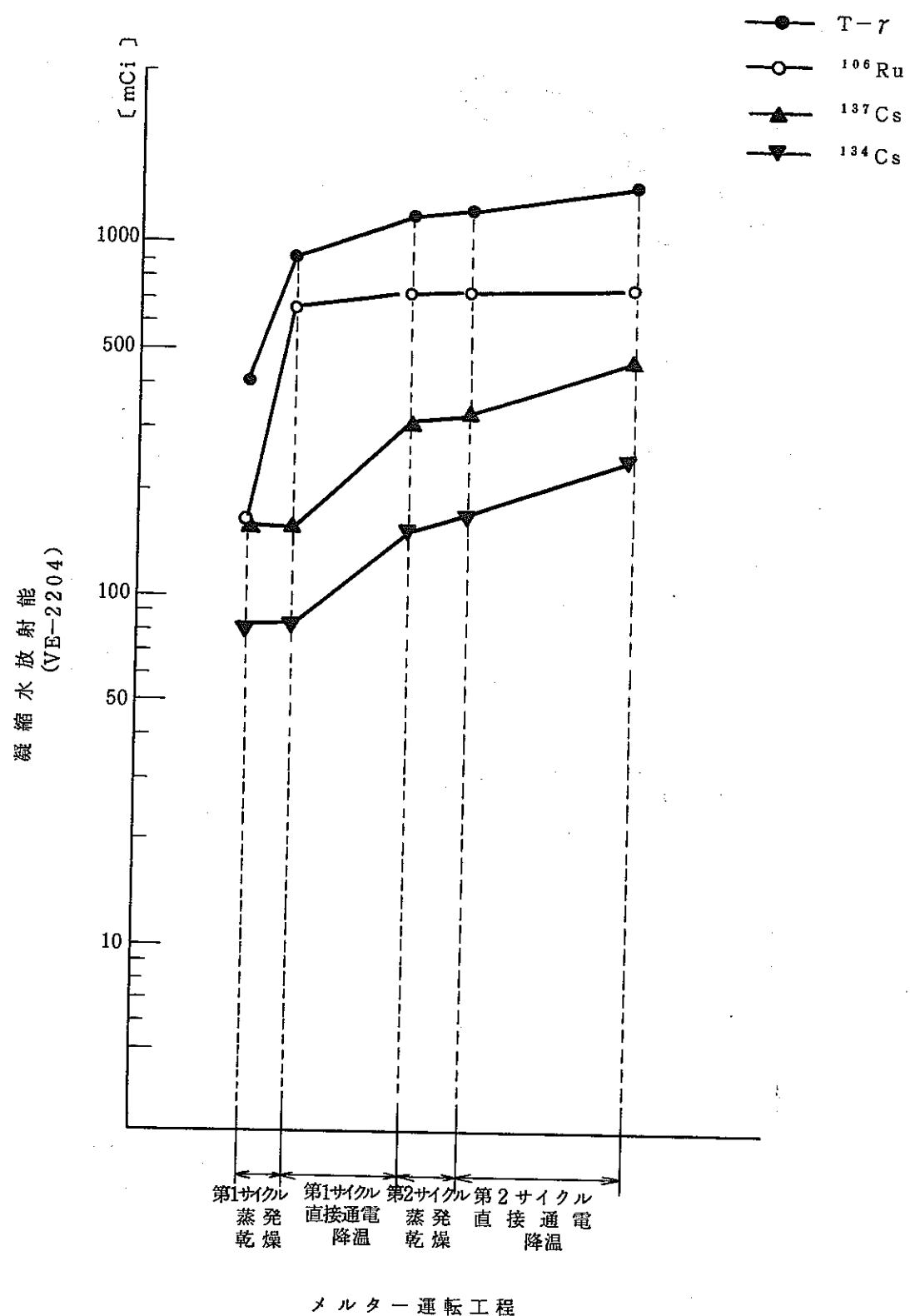


Fig. 26 第3ラン メルター運転時オフガス凝縮水放射能

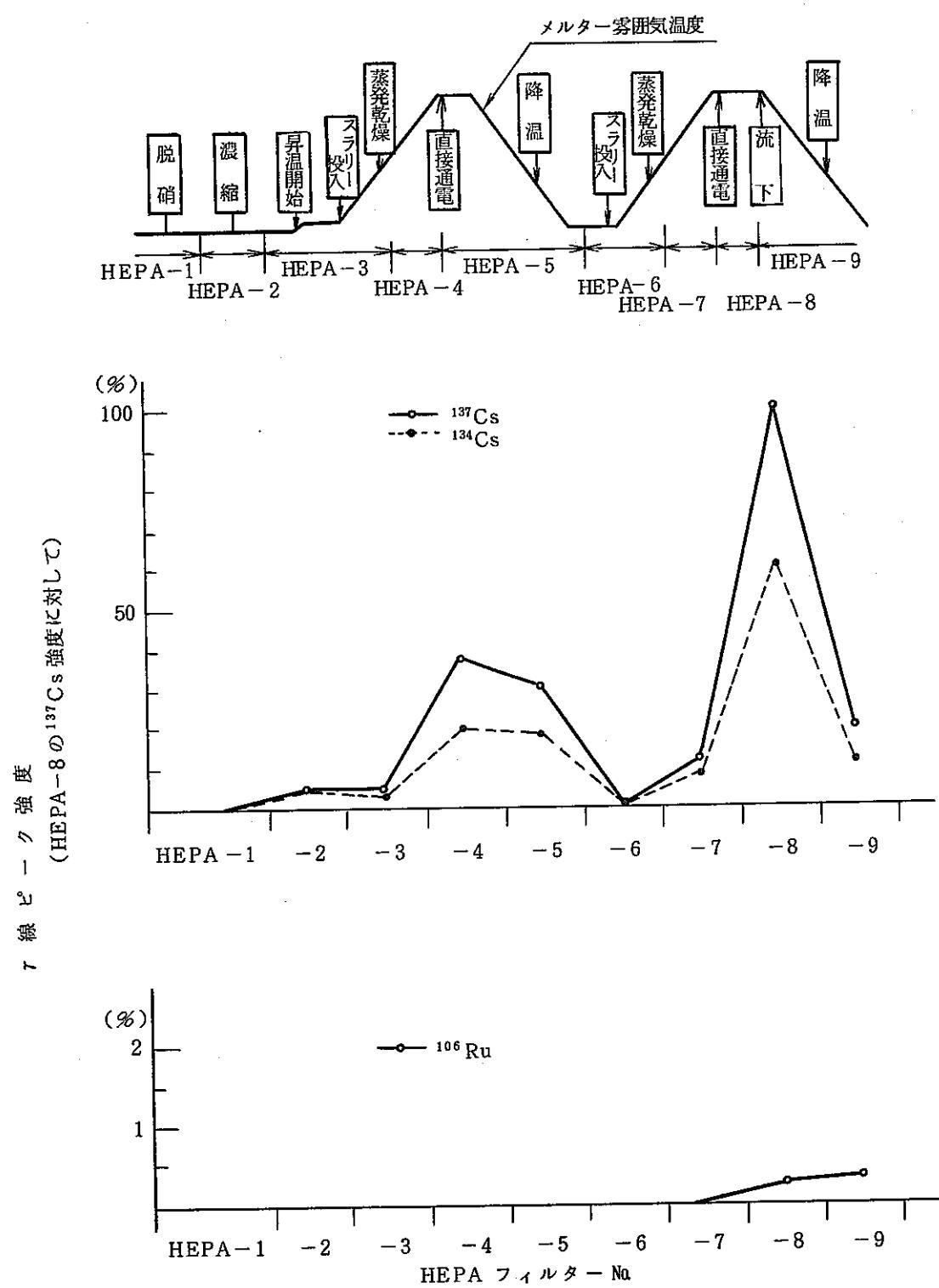


Fig. 27 第3ラン 工程別捕集微粉塵の放射能強度変化

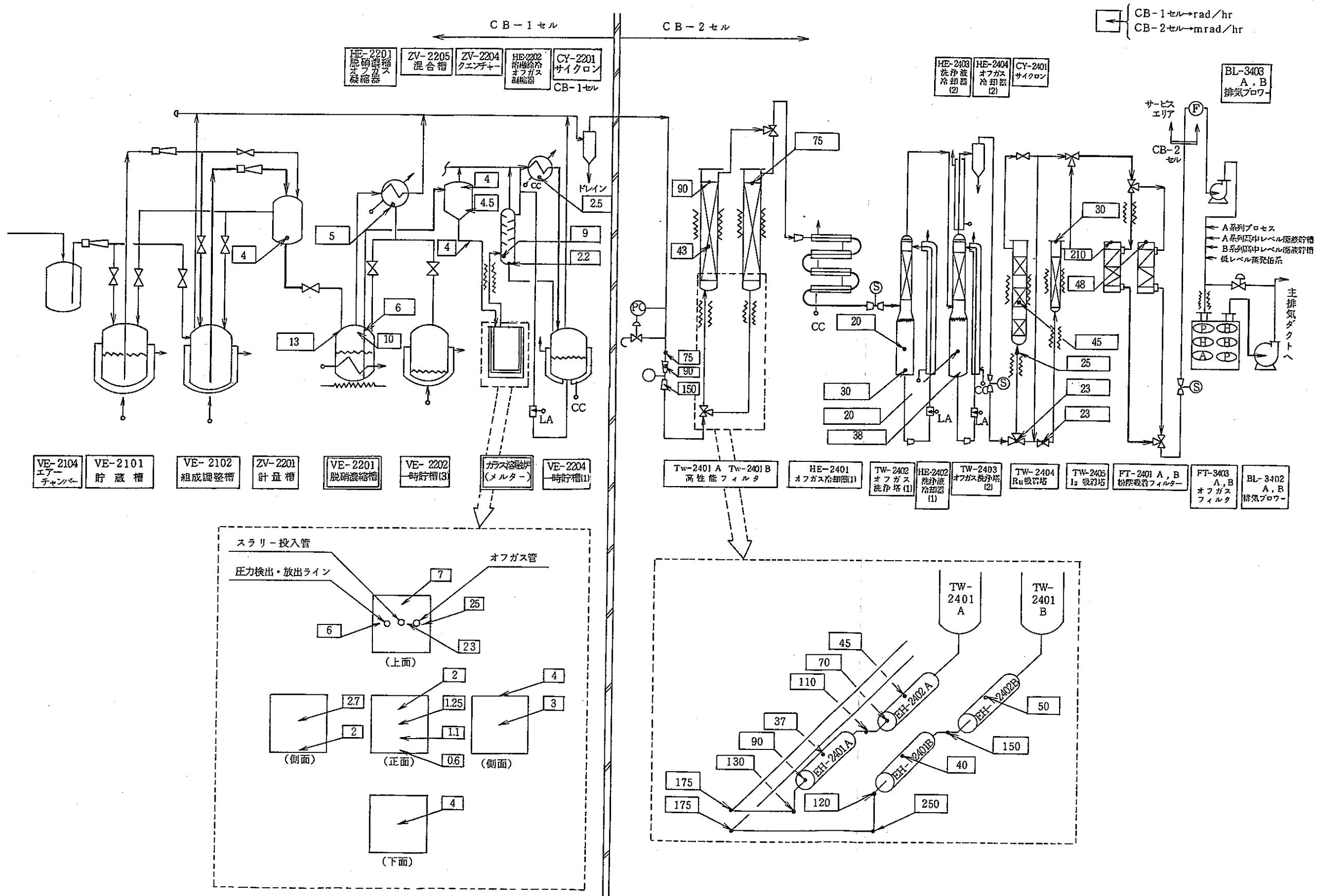


Fig. 28 第3ラン後のガラス固化プロセス残留表面線量率

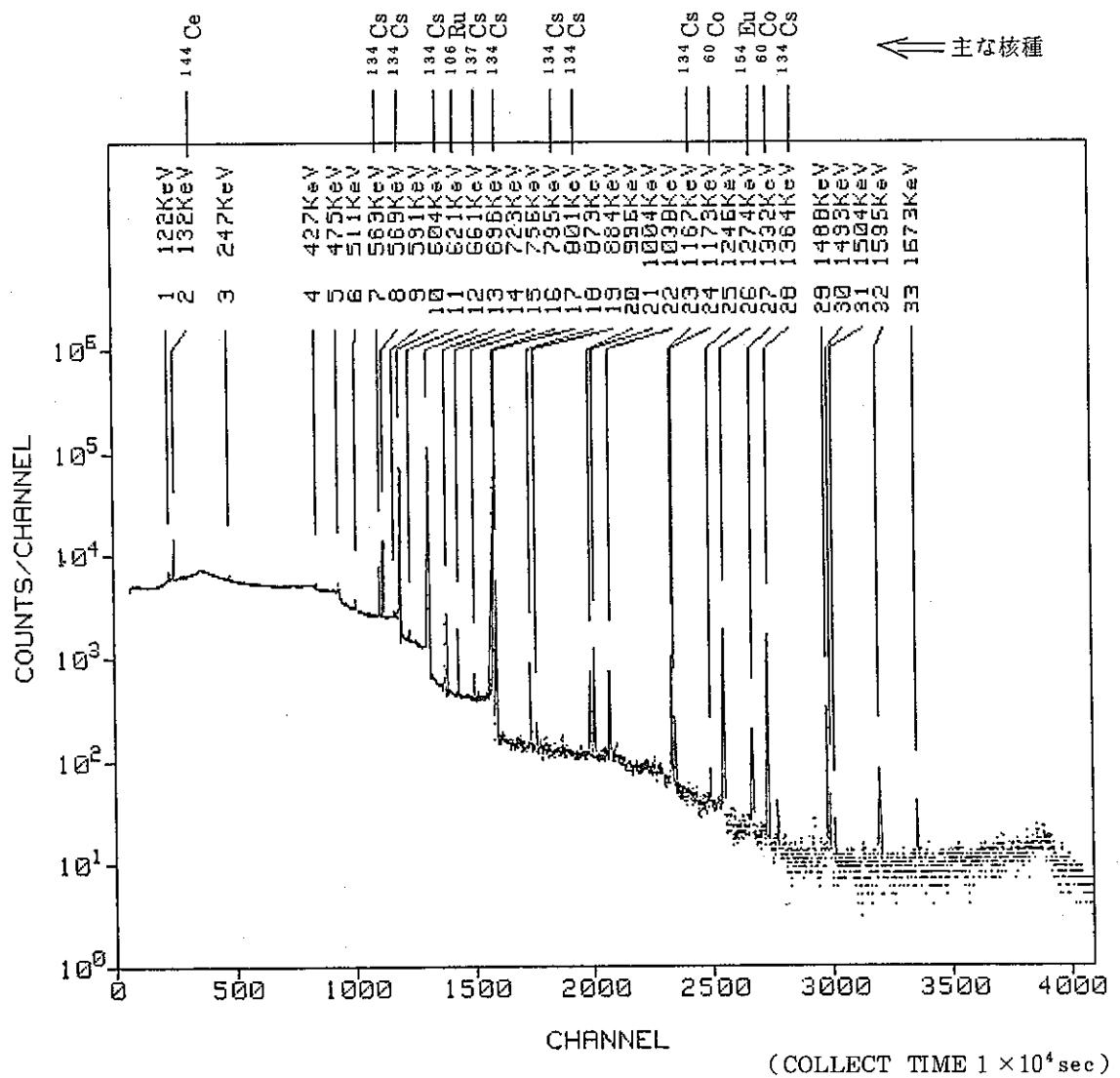


Fig. 29 第2ランキャニスター・スペクトル

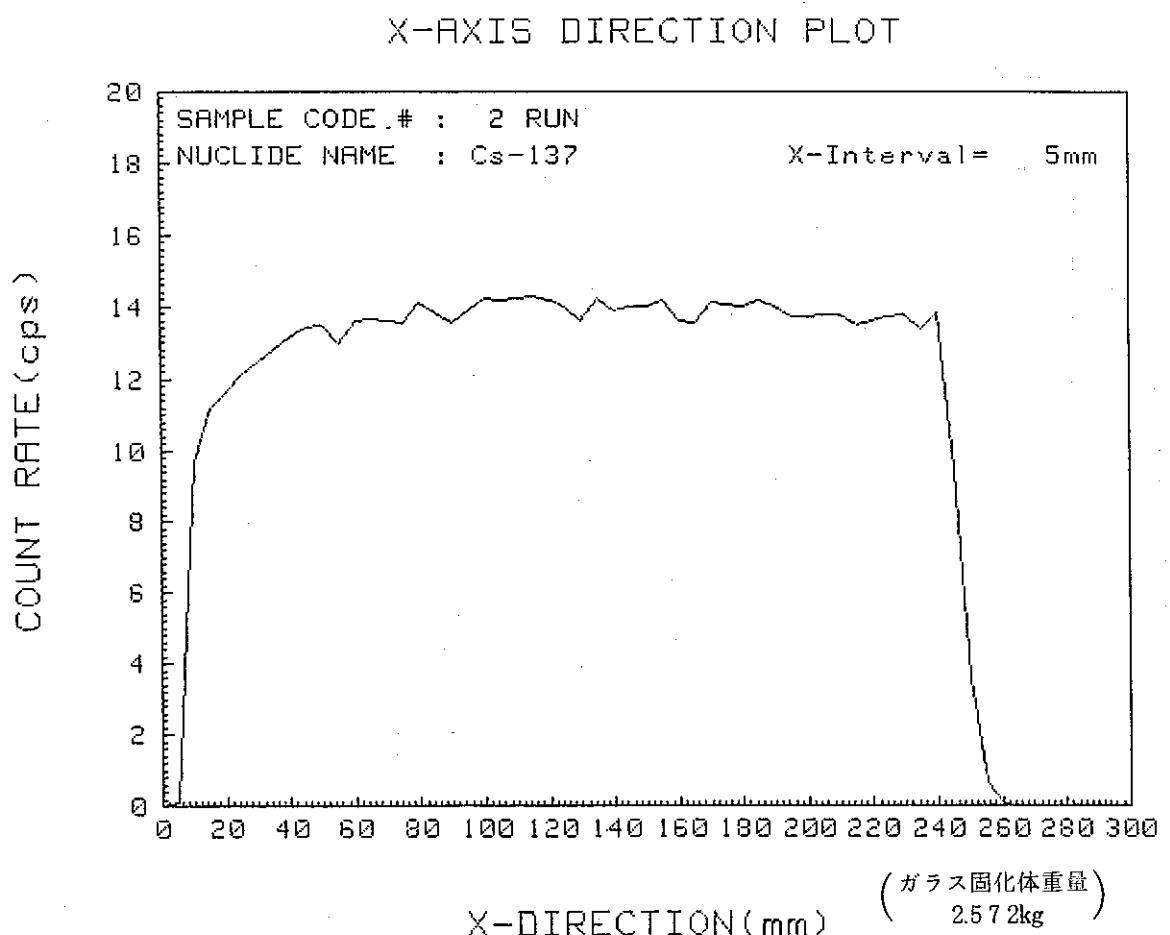


Fig. 30 第2ランキャニスターʌスキャニング結果

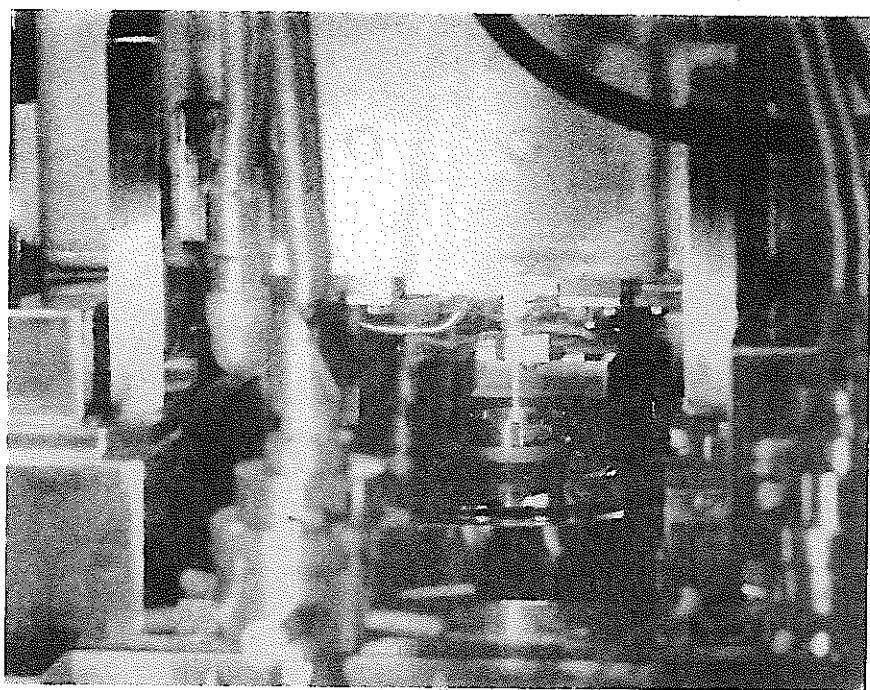


Photo. 1 第3ラン流下状況

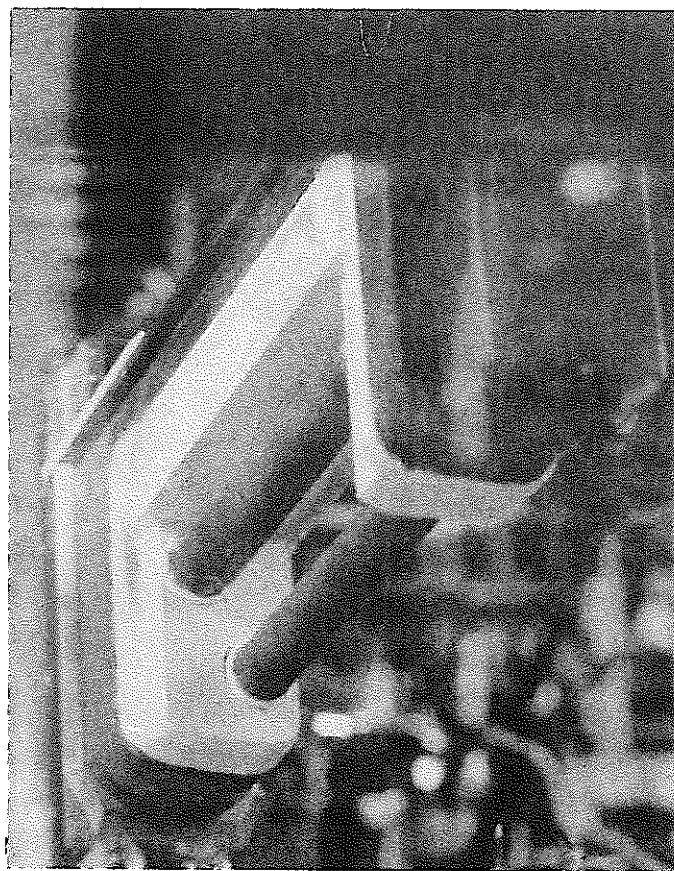


Photo. 2 第3ラン後間接加熱発熱体外観

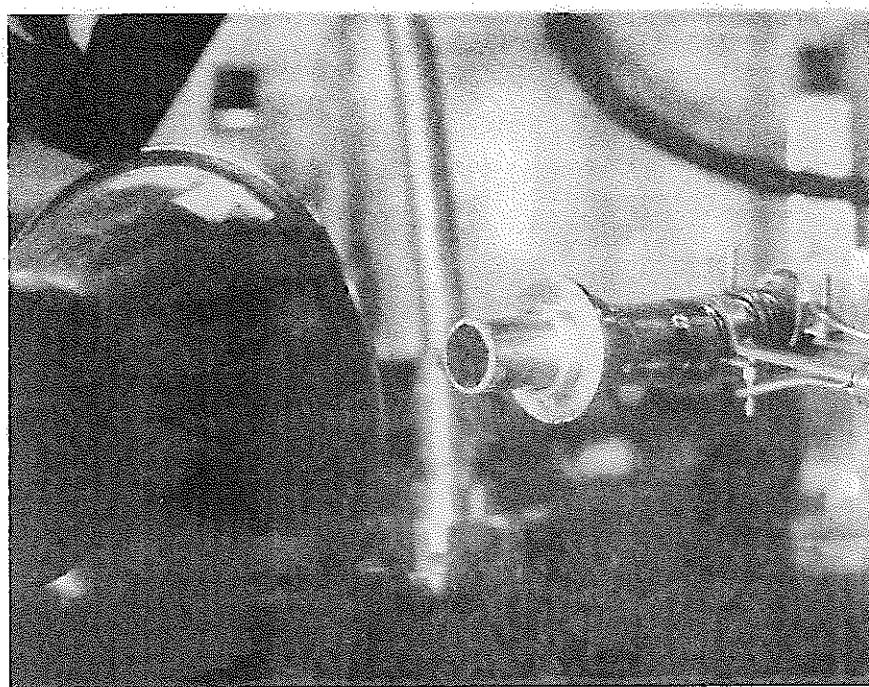


Photo. 3 第3ラン後 メルターオフガス管内面

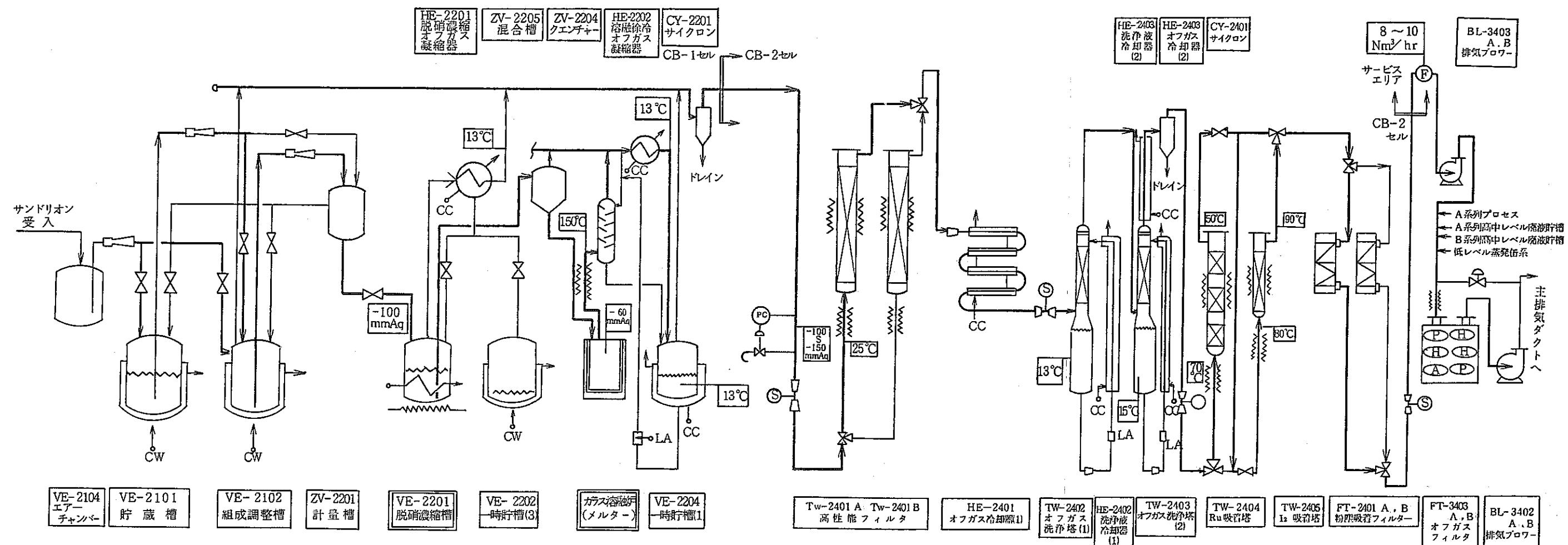
PNC ZN841-83-86

付 錄

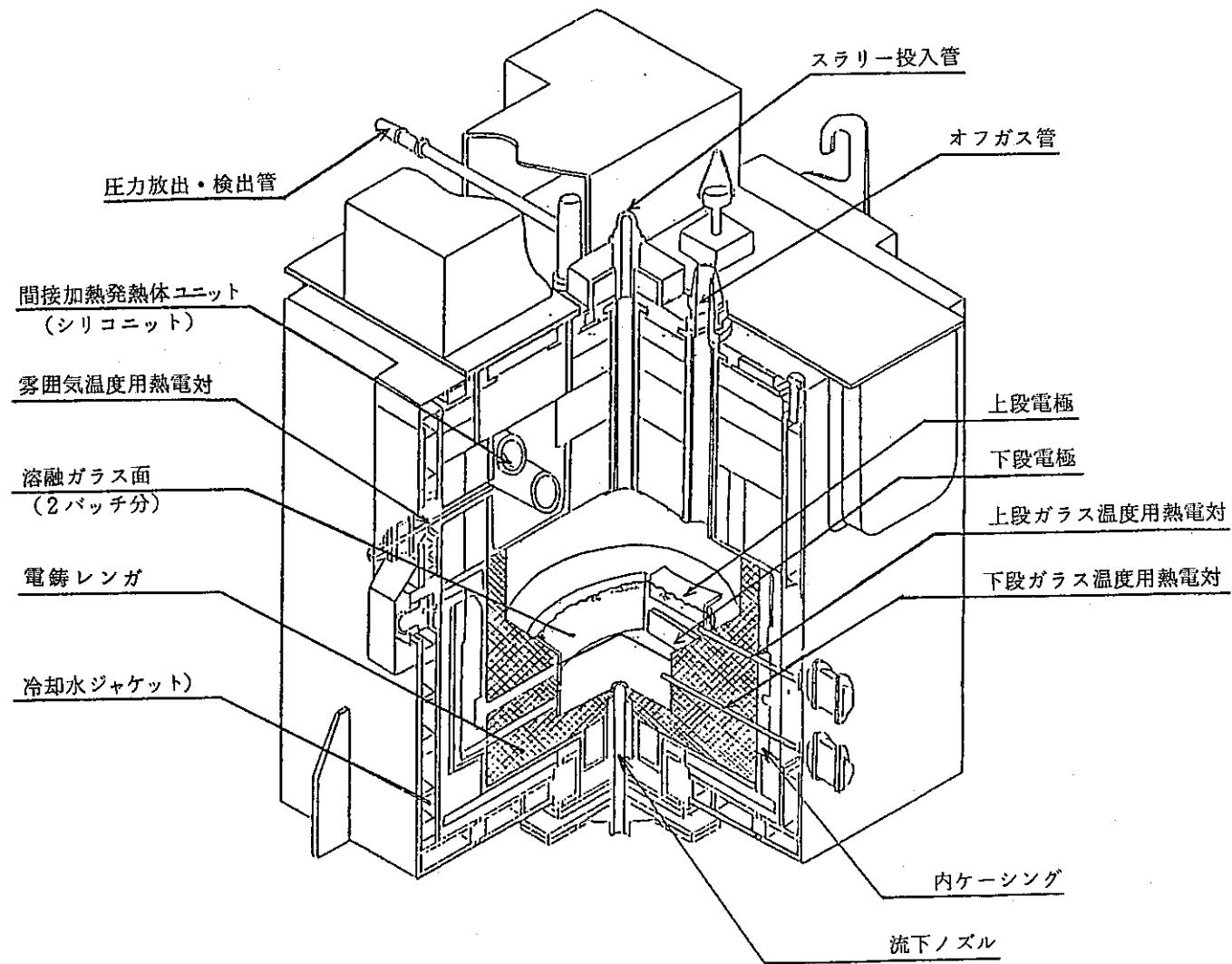
B系列ガラス固化試験設備概略仕様

設置場所	機器名称	機器番号	機能	概略仕様
CB-1セル	エアーチャンバ	VE-2104	HLLW受入れ	内容積：30ℓ
	貯蔵槽	VE-2101	HLLW貯蔵	内容積：132.5ℓ スページャ，冷却ジャケット付
	組成調整槽	VE-2102	HLLW計量調整	内容積：41.0ℓ スページャ，冷却ジャケット付
	脱硝濃縮槽	VE-2201	HLLWのギ酸による脱硝及び蒸発濃縮	内容積：43.2ℓ スページャ，冷却コイル，電気ヒーター 材質：SUS 316L付
	脱硝濃縮オフガス凝縮器	HE-2201	オフガス処理	冷水流量 { 脱硝濃縮時：760ℓ/hr メルター運転時150ℓ/hr }
	混合槽	ZV-2205	HLLWとフリットの混合，調整	内容積：11.0ℓ エアーパルセータ付
	ガラス溶融装置（メルター）	—	ガラス溶融，流下	直接通電式セラミックメルター 炉内容積 { 溶融部：1.7ℓ 蒸発部：7.2ℓ } 間接加熱：SiC型発熱体，15kw 直接加熱：白金電極上下2対 冷却ジャケット，流出ノズル付
	クエンチャー	ZV-2204	オフガス処理	循環水量：12ℓ/hr (エアリフトポンプ駆動)
	溶融除冷オフガス凝縮器	HE-2202	オフガス処理	冷水流量 { 脱硝濃縮時：150ℓ/hr メルター運転時600ℓ/hr }
	一時貯槽(4)	VE-2204	クエンチャー循環水，凝縮液回収	内容積：41.4ℓ スページャ，冷却ジャケット付
CB-2セル	圧力調整弁	PCV-2411	オフガスヘッダー圧力調整	脱硝濃縮時：150～ 負圧設定値 { —200mmAq メルター運転時： —100mmAq }
	高性能フィルタ	TW-2401A/B	オフガス処理	炉材：HEPAフィルタ(0.3μmDO P99.97%以上) 第1ラン：88.7cm ² 流路断面積 { 第2,3ラン：68.8cm ² (106.3φ) (93.6φ) } 操作温度：25℃
	オフガス冷却器(1)	HE-2401	オフガス処理	冷水流量：200ℓ/hr
	オフガス洗浄塔(1)	TW-2402	オフガス処理	内部充填物：1/4Bラシヒリング (SUS 304, 充填高さ700H) 洗净液循環量：22ℓ/hr 洗净液温度：13℃
	オフガス洗浄塔(2)	TW-2403	オフガス処理	内部充填物：1/4Bラシヒリング (SUS 304, 充填高さ300H) 洗净液循環量：20ℓ/hr 洗净液温度：15℃

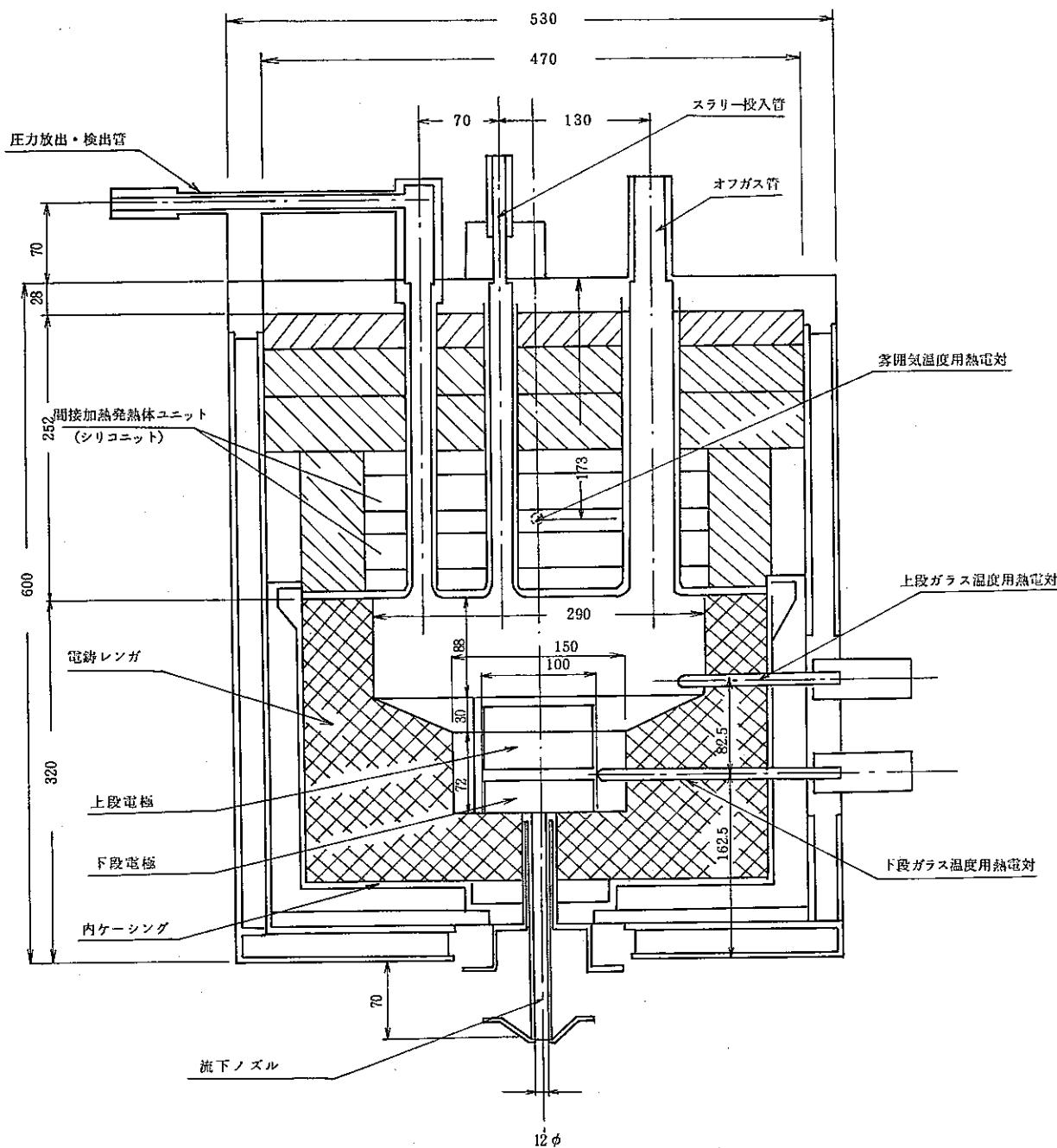
設置場所	機器名称	機器番号	機能	概略仕様
CB-2セル	洗浄液冷却器(1)(2)	HE-2402 HE-2403	オフガス洗浄塔 洗浄液冷却	冷水流量: 100 ℓ/hr
	オフガス冷却器(2)	HE-2404	オフガス処理	冷水流量: 250 ℓ/hr
	Ru吸着塔	TW-2404	オフガス処理	内部充填物: シリカゲル (RDゲル, 8メッシュ) 充填高さ: 400H × 3 操作温度: 50~60°C
	I ₂ 吸着塔	TW-2405	オフガス処理	内部充填物: 銀ゼオライト (AgZ, 10×16メッシュ) 充填高さ: 75H 操作温度: 90~100°C
地階 サービスエリア (2)	粉塵吸着フィルタ	FT-2401A/B	オフガス処理	フィルタ構成: プレフィルタ + 高性能フィルタ オフガス流量: 8~10 Nm ³ /hr
	オフガスフィルタ	FT-3403A/B	オフガス処理	フィルタ構成: プレフィルタ + 高性能フィルタ + 銀ゼオライトフィルタ + プレフィルタ + 高性能フィルタ + 高性能フィルタ オフガス流量: 105Nm ³ /hr



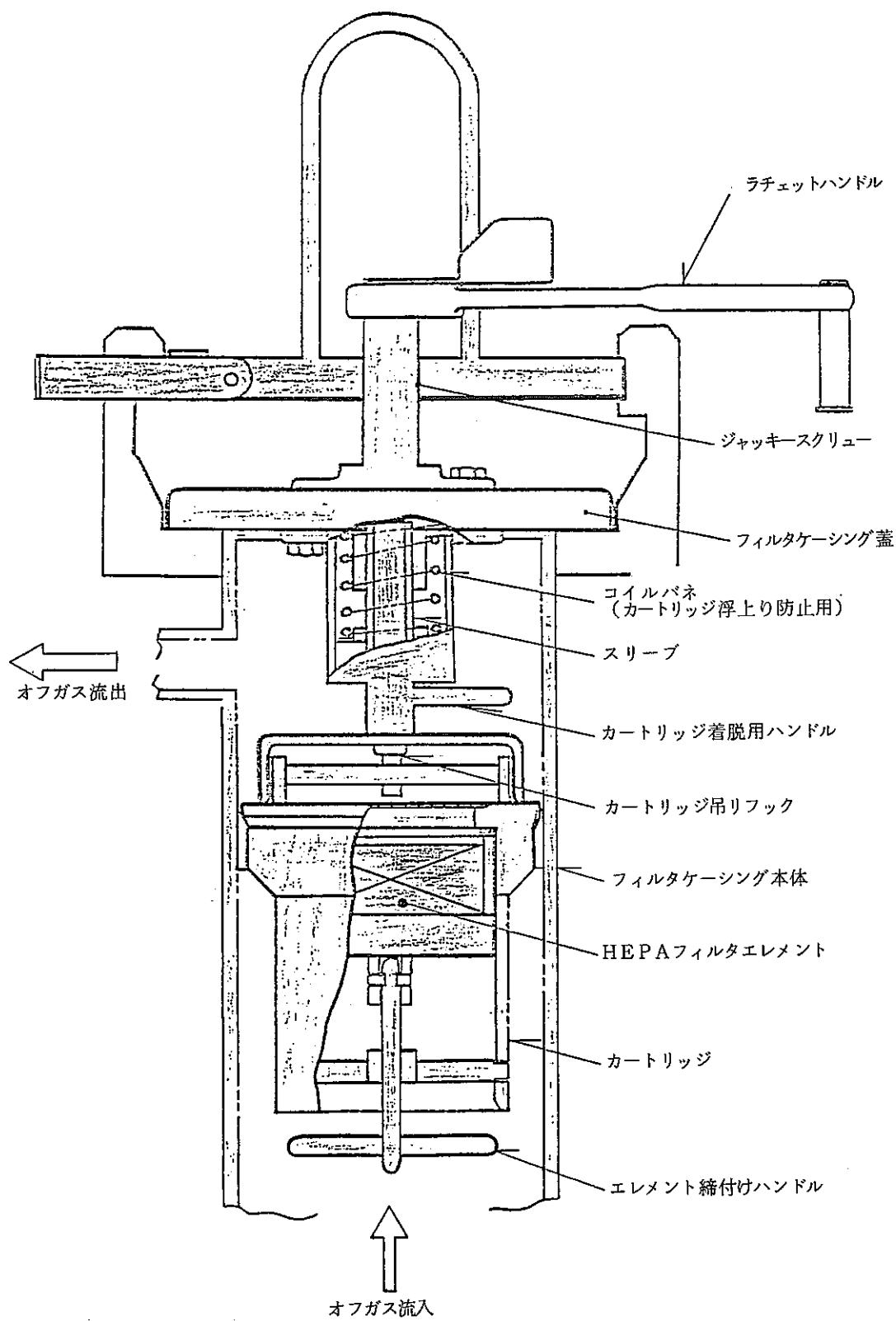
B系列ガラス固化試験設備系統図



ガラス溶融装置（メルター）構造図



ガラス溶融装置（メルター）断面図



捕集用 フィルター 構造図