

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。 2001. 6. 6

[技術情報室]

高レベル放射性廃液ガラス固化試験(4)

— CPFホット試験昭和57～60年度成果まとめ —

1986年6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

係者だけ
わないよ
の旨通知
い。

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

開示制限

PNC 8410 86-22

1986年6月



高レベル放射性廃液ガラス固化試験(4)

— CPFホット試験昭和57～60年度成果まとめ —

実施責任者 堀江 水明

報告者 大内 仁, 山田 一夫

上野 勤, 北野 光昭

吉村 光彦, 清宮 弘

斎藤 誠美, 富永 節夫

要旨

高レベル放射性物質研究施設(CPF)のガラス固化試験系列において、再処理工場小型試験設備及びCPF高速炉燃料再処理試験系列で調製された高レベル放射性廃液を用い、3,700 Ci ラン及び実廃液100%ランを含めた計8回のホット固化試験を実施した。また、各ランで作製した固化体について各種物性評価試験を実施した。

目 次

1. まえがき	1
2. 固化試験	2
2.1 試験工程	2
2.2 供試廃液	2
2.3 廃液の脱硝濃縮	3
2.4 脱硝濃縮時のオフガス挙動	4
2.5 混合及びスラリー供給	4
2.6 ガラス溶融	4
2.7 ガラス溶融炉運転時のオフガス挙動	5
3. 固化体物性評価	8
3.1 ナスキャニング	8
3.2 発熱量測定	8
3.3 密度測定	8
3.4 特性温度測定	9
3.5 光学顕微鏡観察	9
3.6 EPMA観察	9
3.7 浸出試験	9
4. 今後のスケジュール	11

表 目 次

Table 2 - 1	CPFにおける高レベル廃液ガラス固化ホット試験スケジュール	12
Table 2 - 2	HLLWの搬入日及び搬入量	13
Table 2 - 3	廃液調製実績	13
Table 2 - 4	廃液組成	14
Table 2 - 5	メインプラント廃液、OTL 廃液及びF再廃液と SW-11との酸化物重量比較	14
Table 2 - 6	脱硝濃縮槽のDF	15
Table 2 - 7	ガラス流下結果	15

図 目 次

Fig 2-1	B系列ガラス固化試験設備系統図	16
Fig 2-2	ガラス固化試験基本フロー	17
Fig 2-3	廃液組成比	18
Fig 2-4(1)	第6ラン脱硝濃縮槽運転記録(1)	19
Fig 2-4(2)	" (2)	19
Fig 2-4(3)	第7ラン "	19
Fig 2-4(4)	" (2)	19
Fig 2-5(1)	第4ラン脱硝濃縮液中核種量の変化	20
Fig 2-5(2)	第5ラン "	20
Fig 2-5(3)	第6ラン "	20
Fig 2-5(4)	第4ラン脱硝濃縮液中元素量の変化	20
Fig 2-5(5)	第5ラン "	20
Fig 2-5(6)	第6ラン "	20
Fig 2-6(1)	第4ラン濃縮凝縮液中核種量の変化	21
Fig 2-6(2)	第5ラン "	21
Fig 2-6(3)	第6ラン "	21
Fig 2-6(4)	第4ラン濃縮凝縮液中元素量の変化	21
Fig 2-6(5)	第5ラン "	21
Fig 2-6(6)	第6ラン "	21
Fig 2-7	脱硝濃縮槽2号基	22
Fig 2-8	第5ラン脱硝濃縮運転記録(フィルタ目詰り)	22
Fig 2-9	セラミックメルタ基本運転モード	23
Fig 2-10	セラミックメルタ構造図	23
Fig 2-11	ポットメルタ構造図	23
Fig 2-12	セラミックメルタ運転記録(第5ラン)	24
Fig 2-13	セラミックメルタ絶縁等価回路	24
Fig 2-14	セラミックメルタガス吹き込みライン	24
Fig 2-15(1)	ガラス溶融炉運転時オフガス凝縮液中核種量の変化(第6ラン)	25
Fig 2-15(2)	ガラス溶融炉運転時オフガス凝縮液中元素量の変化(第6ラン)	25
Fig 2-16(1)	ガラス溶融炉運転時オフガス系運転記録(第6ラン)	26
Fig 2-16(2)	攪拌ガス吹き込み時オフガス系運転記録(第6ラン)	26
Fig 2-17	使用済みフィルタ放射能測定結果	27

Fig 2-18 第6ランオフガスサンプル放射能測定結果	27
Fig 2-19(1) オフガス洗浄塔(1) オフガス洗浄液中核種量の変化(第6ラン)	28
Fig 2-19(2) " (2) " (第6ラン)	28
Fig 2-19(3) " (1) オフガス洗浄液中元素量の変化(第6ラン)	28
Fig 2-19(4) " (2) " (第6ラン)	28
Fig 2-20 Ru吸着塔(2) Cs-137軸方向分布	28
Fig 3-1 固化体物性評価試験基本フロー	29
Fig 3-2(1) 第5ラン固化体 α スキャニング測定結果	30
Fig 3-2(2) 第6ラン "	30
Fig 3-2(3) 第7ラン "	30
Fig 3-3 第6ラン固化体発熱量	31
Fig 3-4(1) 第1ランガラス固化体密度	31
Fig 3-4(2) 第5ラン "	31
Fig 3-4(3) 第6ラン "	31
Fig 3-5(1) ガラス固化体浸出率(重量減少量)	32
Fig 3-5(2) 第6ランガラス固化体浸出率(核種)	32

写 真 目 次

Photo 3-1 第6ラン固化体光学顕微鏡写真	33
Photo 3-2 第6ラン固化体EPMA写真（二次電子像及び組成像）	34
Photo 3-3 第6ラン固化体EPMA写真（二次電子像、X線像）	35
Photo 3-4 浸出試験前試料光学顕微鏡写真（第6ラン固化体）	36
Photo 3-5 浸出試験後試料光学顕微鏡写真（第6ラン固化体）	37

1. まえがき

高レベル放射性物質研究施設（以下、「CPF」という。）のガラス固化試験系列（以下、「CPF／B系列」という。）では、昭和57年度より高レベル放射性廃液（以下、「HLLW」という。）を用い、3,700 Ciラン及び実廃液100%ランを含めた計8回のガラス固化ホット試験を実施した。

これらの試験を通し、事業団が進めているガラス固化プロセスが実廃液に適用し得ることを確認すると共に、オフガス挙動等基礎特性を把握する上で重要な数多くのデータを取得した。また、各ランで作製した固化体について、貯蔵・処分関連データの取得を図っている。

本報告書は、上記試験の成果をとりまとめたものである。

2. 固化試験

2.1 試験工程

CPFにおける高レベル廃液ガラス固化ホット試験スケジュールをTable 2-1に示す。

第1ランから第5ランにかけて固化体の含有放射能量を徐々に上げ、ガラス固化試験設備の基本性能把握、オフガス挙動の把握等基本的試験を実施した。その後、第6ランにおいて固化プラントで計画されている固化体と同等の放射能レベル固化体を製作し、第7ランで実廃液100%固化体を製作した。また、第8ランでは固化プラント安全審査に対応したオフガス系Ru挙動の定量的把握を目的として試験を実施した。

CPF/B系列ガラス固化試験設備系統図をFig 2-1に、ガラス固化試験基本フローをFig 2-2に示す。

2.2 供試廃液

(1) 搬入

HLLWの搬入はサンドリオン型輸送容器を使用して、再処理工場小型試験設備（以下、「OTL」という。）で調製されたHLLW（以下、「OTL廃液」という。）を7回、CPF高速炉燃料再処理試験系列（以下、「CPF/A系列」という。）で調製されたHLLW（以下、「F再廃液」という。）を3回、合計10回実施した。

HLLWの搬入量、搬入放射能量をTable 2-2に示す。

(2) 廃液調製

各ランの使用廃液は、HLLWと模擬廃液の所定量を混合し調製を行った。廃液調製実績をTable 2-3に示す。

(3) 廃液組成

試験に供したOTL廃液、F再廃液及び模擬廃液の代表例として固化プラント詳細設計用実廃液相当のSW-11の組成分析結果をTable 2-4に、廃液組成比をFig 2-3に示す。また、再処理工場メインプラント廃液（以下、「MP廃液」という。）についても試料を採取し分析を行っているので合わせて示す。各廃液とSW-11の酸化物重量比較結果を、Table 2-5に示す。

OTL廃液の全酸化物濃度は、SW-11の約5%と低かった。組成比では、Na、CP（腐食生成物）が低く、FP及びActinideの割合が全体の70%を占めていた。これは、OTL廃液が溶解液のみを処理したものであり、実廃液中に多く含まれる溶媒洗浄用のNa、機器のCPであるFe等の含有量が少なくなっていることが原因と考えられる。

F再廃液も全酸化物濃度がSW-11の約4%と低く、組成比もOTL廃液と類似した傾向を示していた。

また、MP廃液の全酸化物濃度は、SW-11の約90%とはほぼ同じ値であったが、組成比では、

CP含有率が高く、FP, ActinideがSW-11の半分程度であった。MP廃液については、今後も分析試料を採取し、分析を行っていく予定である。

2.3 廃液の脱硝濃縮

第1ランから第6ランは、廃液の前処理として脱硝濃縮槽で蟻酸を用いて脱硝を行った結果、75%～96%の脱硝率^{*1}を得た。脱硝後、更に同一槽内において濃縮を行った。

第7ラン及び第8ランでは、固化プラントの非脱硝濃縮プロセス採用に合わせ、蟻酸による完全脱硝は行わず、濃縮のみを実施した。しかしながら、試験に供したOTL廃液及びF再廃液の濃度がSW-11に比べ低いため、これをSW-11並みに濃縮する工程で再処理工場同様、ホルマリンを使用した脱硝を行った。

還元剤の違いによる脱硝濃縮工程時のオフガス挙動に、顕著な違いは認められなかった。第6ラン及び第7ランの脱硝濃縮運転記録をFig2-4(1)～2-4(4)に示す。

$$*1 \text{ 脱硝率}(\%) = \frac{\text{脱硝前硝酸根}(g) - \text{脱硝後硝酸根}(g)}{\text{脱硝前硝酸根}(g)} \times 100$$

(1) 物質量変化

脱硝濃縮工程における脱硝濃縮液中物質量の変化をFig2-5(1)～2-5(6)に示す。

脱硝濃縮工程における廃液中の放射能及び元素量の変化は、全体として減少傾向を示しているが、Cs-137, Cs-134をはじめとするγ核種の変化はほとんどなかった。また、Moのように脱硝により沈殿することが知られている元素でも、バッチによっては変化が見られない場合もあり、脱硝濃縮工程時の元素の挙動に一定傾向が見られなかった。これは、脱硝率や濃縮度の違い、採取したサンプル自体のばらつきの影響があるように思われる。

(2) 凝縮液

濃縮工程における凝縮液中の放射能及び元素量の変化をFig2-6(1)～2-6(6)に示す。

凝縮液中にCs-137, Cs-134, Ce-144等が検出され、その放射能量は濃縮を行う都度上昇した。元素は、Feのみが検出されたが、凝縮液が酸性であることから貯槽等から溶出したと思われる。

凝縮液の回収率が、90%以上と高いことから脱硝濃縮槽のDF(decontamination factor)を求めた結果、10⁴オーダー(Total-r)であった。DFの計算方法及び第6ラン各バッチ毎のDFをTable2-6に示す。

(3) 脱硝濃縮槽の交換

模擬廃液SW-8を使用した第3ランでは、脱硝濃縮済廃液を保管中、槽底部に沈殿物の堆積が生じ攪拌空気ノズルが閉塞した。原因としては、沈殿物の生じ易い模擬廃液を使用したこと及び攪拌用スパー・ジャ能力に余裕がなかったことが考えられたため、第3ラン終了後攪拌能力、遠隔操作性等の機能改善を施したTi製脱硝濃縮槽2号基を製作し、遠隔操作で既設のSUS製脱

硝濃縮槽 1 号基と交換した。脱硝濃縮槽 2 号基の概略構造図を Fig 2-7 に示す。

2.4 脱硝濃縮時のオフガス挙動

調製用模擬廃液に SW-7 及び SW-8 を使用した第 1 ~ 第 4 ランの脱硝濃縮では、オフガス系の運転を異常なく行えたが、SW-11 を使用した第 5 ランにおいて脱硝濃縮後放冷中に粉塵フィルタの目詰りが発生し、廃液組成によるオフガス挙動の違いが見られた。

粉塵フィルタの差圧上昇は、脱硝濃縮放冷時の液温 60 °C 前後から発生し、時間とともに増加する傾向が見られたが、冷却水により急冷を行ったところ粉塵フィルタの差圧上昇を防止できた。そのため、このラン以降は脱硝濃縮終了後、急冷を実施し差圧上昇を防止している。

この差圧上昇が発生したフィルタについて γ スペクトル測定を行ったところ、放射性核種は検出されなかった。第 5 ラン脱硝濃縮運転記録を Fig 2-8 に示す。

2.5 混合及びスラリー供給

脱硝濃縮液を混合槽へ移送した後、ガラス原料を混合槽へ供給し、混合槽バルセータで混合後ガラス溶融炉へ重力流で投入している。

混合槽へのガラス原料供給ライン及び混合槽からガラス溶融炉へのスラリー供給ラインの閉塞が発生した。ガラス原料供給ラインは、閉塞位置がセル外であったので配管を分解して復旧させた。また、スラリー供給ラインは閉塞位置がセル内であったため、ラインを純水及び圧空で逆洗フラッシングして復旧させた。その後は、スラリー供給が終了する都度、逆洗フラッシングを行い閉塞を防止している。

2.6 ガラス溶融

CPF には、ガラス溶融炉として直接通電式ガラス溶融炉（以下、「セラミックメルタ」という。）及び小型ガラス溶融炉（以下、「ポットメルタ」という。）が設置されている。第 1 ランから第 6 ラン及び第 8 ランはセラミックメルタ、第 7 ランはポットメルタを使用して固化体を製作した。

(1) ガラス溶融炉の構造

セラミックメルタは、間接加熱ヒータ及び直接通電電極によるジュール加熱によって、投入した廃液スラリーを溶融した後、ステンレス製キャニスター ($\phi 76 \text{ mm} \times 600 \text{ mmH}$) に流下する。また、炉内容積が小さいことから廃液スラリーを数回に分けて炉内に投入するバッチ運転方式を採用している。セラミックメルタの基本運転モードを Fig 2-9 に、構造図を Fig 2-10 に示す。

ポットメルタは、インコネル製ポットをヒータで間接加熱し、ポット内で廃液スラリーを溶融・固化する構造で、廃液スラリーが少量でも固化体製作が可能な構造、形状とした。ポットメルタの構造図を Fig 2-11 に示す。

(2) 溶融・流下

セラミックメルタにおいて、流下前にガラス生地温度を $1,100\text{ }^{\circ}\text{C} \sim 1,150\text{ }^{\circ}\text{C}$ で3時間以上保持したランではスムーズに流下できた。各ランのガラス流下結果をTable 2-7に示す。また、セラミックメルタ運転記録をFig 2-12に示す。

第4, 5ランにおいて、下段電極間抵抗低下によるパワー不足が生じ、昇温速度が低下するという現象が発生した。炉底堆積物の影響と思われ、抵抗回復法については次項に示す。セラミックメルタ絶縁等価回路をFig 2-13に示す。

第7ランでは、ポットメルタを使用して約0.4kgの100%実廃液固化体を作製した。

(3) 炉底堆積物押出し流下

炉底堆積物の影響と思われる電極間抵抗の低下が発生したため、抵抗回復を目的とした流下試験を行った。

第4ラン後、ヘッド圧押出し流下試験を実施した結果、流下量は106%あったが電極間抵抗は回復しなかった。しかし、第5ラン後、ガス攪拌押出し流下試験を実施した結果、流下率は119%と高く抵抗も数Ωオーダから $k\Omega \sim M\Omega$ オーダに回復した。

ガス攪拌押出し流下を実施した固化体のRu-106/Cs-137計数比は、第5ラン固化体の約5倍になっており、白金族元素を多く含む炉底堆積物が効果的に押し出されたことがわかる。また、第6ランの流下でもガス攪拌を行った結果、均一な固化体の製作及び電極間抵抗の低下防止ができる、セラミックメルタの運転はスムーズに行えている。セラミックメルタへのガス吹き込み方法をFig 2-14に示す。

2.7 ガラス溶融炉運転時のオフガス挙動

ガラス溶融炉運転中（蒸発乾燥時及び直接通電時）には多量の微粉塵が発生するが、オフガス処理系の複数のフィルタシステムにより微粉塵は効率よく捕集され、最終段HEPAフィルタの差圧上昇は起こらなかった。

オフガスデータの収集を行うためオフガス処理系にサンプリング装置として、微粉塵を高性能フィルタで捕集する電動交換式フィルタユニット及び発生微粉塵の粒径分級機能を有するアンダーセンサプラを付設した。

(1) 凝縮液

ガラス溶融炉運転時のオフガス凝縮液中の核種量及び元素量の変化をFig 2-15(1)～2-15(2)に示す。

凝縮液中の放射性核種は、Ru-106が蒸発乾燥時に、Cs-137が直接通電時に増加する傾向があり、凝縮液中のRu-106/Cs-137濃度比=3/1で、Csに比べRuが多く捕集されている。

凝縮液中の元素は、ガラス溶融炉の運転バッチを重ねるに従い若干の上昇傾向がうかがえる

もの大きな変化は認められなかった。

(2) 微粉塵発生状況

ガラス溶融炉運転時のオフガス系運転記録を Fig 2-16 (1), 2-16 (2)に示す。

微粉塵の発生に伴いフィルタが目詰りし、差圧が上昇する。その結果、オフガス流量が低下する。図中の激しい上下変動はフィルタ交換時期と同義で、その間隔は微粉塵発生状況を示している。また、ガス吹き込み攪拌により微粉塵の発生量が多くなることがわかる。

(3) 微粉塵捕集結果

イ. ガラス溶融炉出口オフガス配管

ガラス溶融炉出口オフガス配管の閉塞は発生しなかったが、多量の付着物の γ スペクトル測定の結果、Cs-137, 134, Ru-106が検出され、Ru-106/Cs-137濃度比=1/5であった。

ロ. 定置式及び電動交換式フィルタ（粉塵フィルタ）

蒸発乾燥時及び直接通電時のフィルタ濾紙を観察すると、蒸発乾燥初期は白色の捕集物が観察され蒸発乾燥が進むにつれて捕集物の色は茶色となり、直接通電時には黒色の捕集物が観察された。

使用済粉塵フィルタの γ スペクトル測定の結果、Cs-137, 134, Ru-106が検出された。Ru-106の粉塵フィルタまでの到來率はCs核種の約1/6であった。

フィルタ切換モード及び使用済フィルタの γ スペクトル測定結果をFig 2-17に示す。

ハ. アンダーセンサンプラー

蒸発乾燥時に、粉塵フィルタ前からオフガスをサンプリングした結果、0.43 μm以下の捕集板に白色結晶様の捕集物が観察された。捕集板の γ スペクトル測定の結果何も検出されなかった。

直接通電時に発生する微粉塵の粒径は、サブミクロンがほとんどであり細かい程多く捕集された。分級板の γ スペクトル測定結果をFig 2-18に示す。

ニ. 洗浄塔

ガラス溶融炉運転時のオフガス洗浄塔内洗浄液中放射能及び元素量の変化をFig 2-19(1)～2-19(4)に示す。

洗浄液から核種ではCs-137, 134が検出され、元素ではSUS材料のFe, Cr, Niが検出された。核種、元素とも特に明瞭な変化は認められなかった。

オフガス洗浄塔のDFをアンダーセンサンプラーを使用して求めた結果、2基合わせて約2であった。

ホ. ルテニウム及びヨウ素吸着塔

ルテニウム吸着塔（シリカゲル）及びヨウ素吸着塔（銀ゼオライト）の吸着剤パッケージについて、 γ スペクトル測定を行った。

ルテニウム吸着塔は、Cs-137, 134が検出され、Cs-137はガス入口側100mmが最大で500mm以降はほぼ一定であった。Cs-137の吸着塔軸方向分布をFig 2-20に示す。
ヨウ素吸着塔では核種の検出はなかった。

3. 固化体物性評価試験

流下したキャニスターを溶接密封し、 γ スキャニング及び発熱量測定の非破壊検査を実施後、切断機、穿孔機により所定の寸法に調整した試料について、密度測定、示差熱分析、浸出試験、光学顕微鏡観察、EPMA観察を実施する。固化体物性評価基本フローをFig 3-1に示す。

現在、第1、5、6ラン固化体について一連の物性評価試験を実施中である。

3.1 γ スキャニング

固化体をセル内の走査装置にセットし、セル外に設置したGe半導体検出器で、固化体軸方向の γ スキャニングを実施した。

固化体からは、Cs-137, 134, Eu-154, Rh-106 (Ru-106) の4核種が検出された。Cs-137, 134, Eu-154は固化体軸方向に均一に分布しているのに対し、Rh-106は偏在しやすい傾向が見られた。しかし、ガス搅拌流下を行った第6ラン固化体では、Rh-106もほぼ均一に分布していることから、ガス搅拌により十分な搅拌効果が得られたと考えられる。また、ポツトメルタを用いた第7ラン固化体は、溶融時に測温用熱電対で搅拌を行ったが十分な搅拌効果が得られず、Rh-106がBottom部に堆積している。第5, 6, 7ラン固化体の γ スキャニング測定結果をFig 3-2(1)~3-2(3)に示す。

3.2 発熱量測定

熱量計法により固化体の発熱量測定を実施した。

測定の結果、第6ラン固化体の発熱量は、5.3 W (固化体貯蔵日数約10ヶ月) であった。ORIGEN Code を用いた計算値は、 $\alpha \cdot \beta \cdot \gamma$ 合わせて 10.8 W, $\alpha \cdot \beta$ のみで 5.8 W であり、測定値と $\alpha \cdot \beta$ のみの計算値とは良い一致を示した。他の固化体の発熱量は、固化体中のHLLW量が少ないため検出限界値 (1 W) 以下であった。第6ラン固化体発熱量測定結果及びORIGEN Codeを用いた計算結果をFig 3-3に示す。

3.3 密度測定

固化体上部、中部、下部より採取した試料についてアルキメデス法により密度測定を実施した。

測定の結果、密度は固化体ごとに多少の違いが見られたが、コールドガラスの測定値とほぼ同じ値で、2.8 g/cm³前後であった。また、第1, 5ラン固化体では、 γ スキャニングでRh-106の計数が高かった部分の密度がやや高い傾向が見られ、固化体中の試料採取位置による密度の違いが認められた。第1, 5, 6ラン固化体密度測定結果をFig 3-4(1)~3-4(3)に示す。

3.4 特性温度測定

示差熱分析法により転移点、屈伏点の測定を実施した。

測定の結果、転移点、屈伏点は、それぞれ $492^{\circ}\text{C} \sim 499^{\circ}\text{C}$, $514^{\circ}\text{C} \sim 524^{\circ}\text{C}$ であった。どの固化体も転移点が、固化体貯蔵時の最大温度目安値 450°C より十分高い値であった。

3.5 光学顕微鏡観察

試料を研磨後、光学顕微鏡観察を実施した。

全試料に微小なボイド及び白色の金属光沢を有する析出物が認められた。析出物は、 γ スキャニングで Rh-106 の計数の高かった部分に多く観察された。第 6 ラン固化体は、ガス攪拌流下により、炉底に堆積していた白金族元素が効果的に流下されたためか、他の固化体より析出物がやや多く認められた。第 6 ラン固化体光学顕微鏡写真を Photo 3-1 に示す。

3.6 EPMA 観察

研磨試料について、光学顕微鏡観察後 EPMA 観察を実施した。

光学顕微鏡で観察された析出物の構成元素は、Pd, Rh, Ru の白金族元素であった。(第 1 ラン固化体の一部には、Te も確認された。) 一般に、形状の大きい析出物は Pd, Rh が多く分布し、形状の小さい析出物は Ru が多く存在するという傾向が見られた。また、一部 Pd, Rh, Ru のそれぞれの元素が同一箇所に存在している部分も認められた。第 6 ラン固化体 EPMA 観察結果(析出物)を Photo 3-2, 3-3 に示す。

析出物のない生地部では、ガラス素材成分の Si, Al, K, Ca や廃液成分の Fe, Na, Mo, Nd, Ce 等が試料表面に均一に分布していた。

3.7 浸出試験

MCC-1 法に準じた方法で静的浸出試験を実施した。試験条件を以下に示す。

- a. 浸出液 蒸留水
- b. 浸出容器 テフロン容器(コールド試料及び第 1 ラン固化体)
又は、ステンレス製容器(内面金メッキ)、(第 6 ラン固化体)
- c. 温度 90°C
- d. 浸出時間 14 日間及び 28 日間
- e. 試料形状 $\phi 20\text{ mm} \times 5 \sim 15\text{ mm H}$
未研磨試料
- f. SA/V 0.1 cm^{-1}

測定の結果、28 日間の単位面積あたりの重量減少量は、第 1 ラン固化体で $9.8 \times 10^{-4}\text{ g/cm}^2$ 、第 6 ラン固化体で $8.5 \times 10^{-4}\text{ g/cm}^2$ と SW-7 コールド試料の $8.8 \times 10^{-4}\text{ g/cm}^2$ とほぼ同じ値で

あった。また、浸出液中からは、Cs-137、134が検出されており、その浸出割合は重量減少量とほぼ同程度であった。第1、6ラン固化体浸出率（重量減少量）をFig 3-5(1)、第6ラン固化体浸出率（核種）をFig 3-5(2)に示す。

浸出試験前後に、試料表面の光学顕微鏡観察を実施した結果、浸出試験前にはボイド、傷、輪郭等で鋭角であった部分が、浸出試験後丸みを帯びた部分や一部分微小片が欠け落ちた部分が認められた。第6ラン固化体浸出試験前後の光学顕微鏡観察をPhoto 3-4、3-5に示す。

4. 今後のスケジュール

今後は、各ランで作製した固化体の物性評価試験を継続し、貯蔵・処分関連データの蓄積を図って行くとともに、固化体CTスキャン測定技術等の技術開発並びに、再処理工場メインプラント廃液を用いたホット固化試験を実施し、安全関連項目のデータ蓄積を図って行く予定である。

Table 2-1 CPFにおける高レベル廃液ガラス固化ホット試験スケジュール

No.	項目	57年度	58年度	59年度	60年度	61年度
1	ガラス固化ホット試験					
	第1ラン	OTL廃液 3Ci+SW7 ○○	装置運転の習熟 機器特性の把握			
	第2ラン	OTL廃液 100Ci+SW7 ○○	オフガス処理系運転特性の把握			
	第3ラン	OTL廃液 200Ci+SW8 ○○	オフガス処理系運転特性の把握			
	第4ラン	OTL廃液 300Ci+SW7 ○○	オフガスサンプリング法の確認 整備項目の性能確認			
	第5ラン	OTL廃液 300Ci+SW11 ○○	オフガスデータの収集			
	第6ラン	OTL廃液 3700Ci+SW11 ○○	固化プラント並放射能レベル固化体の製作			
	第7ラン		OTL廃液 100% ○○(ボットメルタ)	100%実廃液固化体の製作		
	第8ラン		FBR再処理廃液 200Ci+SW11 ○○	オフガス中Ruの定量的挙動把握		
2	高レベル廃液受入れ					
	OTL廃液	12 ○○	34 56 ○○ ○○	7 ○		
	FBR再処理廃液				1 ○	23 ○○
3	固化体評価					
	第1ラン固化体			○		○
	第5ラン固化体			○		○
	第6ラン固化体				○	○
	第7ラン固化体				○	○

Table 2-2 HLLWの搬入日及び搬入量

項目 搬入回数	搬入年月日	搬入量(ℓ)	放射能量(Ci)	備考
第1回	昭和57年12月3日	17.5	1,357	OTL廃液
第2回	昭和57年12月23日	16	1,240	
第3回	昭和58年11月17日	15	1,223	
第4回	昭和58年12月1日	15	1,275	
第5回	昭和59年1月19日	17	748	
第6回	昭和59年2月22日	17	816	
第7回	昭和59年4月25日	17	650	
第8回	昭和60年3月20日	15.4	278	F再廃液
第9回	昭和60年10月8日	12.6	522	
第10回	昭和60年10月11日	12.2	266	

Table 2-3 廃液調製実績

		第1ラン	第2ラン	第3ラン	第4ラン	第5ラン	第6ラン	第7ラン ^{*2}	第8ラン
実廃液	廃液種類	OTL廃液	OTL廃液	OTL廃液	OTL廃液	OTL廃液	OTL廃液	OTL廃液	F再廃液
	放射能	3 Ci	100 Ci	200 Ci	300 Ci	300 Ci	3,700 Ci	300 Ci	300 Ci
	容積	0.05 ℓ	1.45 ℓ	2.9 ℓ	4.5 ℓ	4.8 ℓ	78.8 ℓ	29.4 ℓ	14.5 ℓ
調製用 模擬廃液	種類	SW-7	SW-7	SW-8	SW-7	SW-11	SW-11	—	SW-11
	容積	14 ℓ	14 ℓ	7 ℓ	13.5 ℓ	13.5 ℓ	6.64 ℓ	—	12 ℓ
(酸化物換算重量)	Na	217 g	217 g	217 g	209 g	410 g	401 g	43.4 g	372 g
	CPs	206.8 g	207.1 g	207.4 g	199 g	97.3 g	84.5 g	11.7 g	92.6 g
	FPs	433.4 g	436.6 g	439.8 g	498 g	527 g	439 g	42.8 g	476 g
	ACTINIDES	0.03 g	0.91 g	1.82 g	2 g	3.2 g	50 g	11.5 g	7.4 g
	合計	857.2 g	861.5 g	866.0 g	910 g	1,050 g	987 g	110.7 g	948 g
	実廃液添加比 ^{*1}	0.02 %	0.5 %	1.9 %	3.6 %	3.3 %	48.3 %	100 %	2.7 %
ガラスフリット	種類	FG-2D	FG-2D	FG-2D	FG-2D	GN-3	GN-3	GN-3	GN-3
	重量	2.2 kg	2.2 kg	2.2 kg	2.1 kg	3.2 kg	3.2 kg	324 g	2.8 kg
予想廃液含有率		28 %	28.1 %	28.2 %	30.1 %	24.6 %	23.5 %	25.5 %	25.3 %

*1 実廃液添加比

$$= \frac{\text{OTL廃液のFP, ACTINIDE成分の酸化物換算重量の合計}}{\text{調製後}} \quad " \quad " \quad " \quad "$$

*2 第7ランのみポットメルタで固化体作製。他のランはセラミックメルタを使用。

Table 2-4 廃 液 組 成

(単位 酸化物 g/l, 放射能 mCi/l)

項目	構成元素 (構成核種)	模擬廃液 (SW-11)	emainプラント (272V12) 廃液	OTL 廃液 (第6ラン廃液)	F 再廃液
Process Inert	Na ₂ O P ₂ O ₅	3.04 × 10 ¹ 9.00 × 10 ⁻¹	2.94 × 10 ¹ (1.03)	7.86 × 10 ⁻¹ —	5.2 × 10 ⁻¹
	Sub-TOTAL	3.13 × 10 ¹	3.04 × 10 ¹	7.86 × 10 ⁻¹	5.2 × 10 ⁻¹
C P	Fe ₂ O ₃ Ni O Cr ₂ O ₃	6.2 7.0 × 10 ⁻¹ 3.0 × 10 ⁻¹	1.44 × 10 ¹ 1.91 2.48	1.86 × 10 ⁻¹ 9.76 × 10 ⁻² 3.86 × 10 ⁻²	3.0 × 10 ⁻¹ 6.2 × 10 ⁻² 6.6 × 10 ⁻²
	Sub-TOTAL	7.2	1.88 × 10 ¹	3.22 × 10 ⁻¹	4.28 × 10 ⁻¹
F P	Cs ₂ O Sr O Zr O ₂ Mo O ₃ Ru O ₂ Ce O ₂ Nd ₂ O ₃	2.27 9.10 × 10 ⁻¹ 4.45 4.41 2.25 2.62 4.20	1.45 5.50 × 10 ⁻¹ 2.67 2.72 1.43 1.63 2.52	2.19 × 10 ⁻¹ 5.83 × 10 ⁻² 2.95 × 10 ⁻¹ 3.24 × 10 ⁻¹ 2.06 × 10 ⁻¹ 1.80 × 10 ⁻¹ 3.10 × 10 ⁻¹	1.39 × 10 ⁻¹ 3.30 × 10 ⁻² 1.62 × 10 ⁻¹ 1.76 × 10 ⁻¹ 1.10 × 10 ⁻¹ 9.43 × 10 ⁻² 1.59 × 10 ⁻¹
	Sub-TOTAL	3.05 × 10 ¹	1.85 × 10 ¹	2.35	1.27
Actinide	U O ₃ Pu O ₂ (Ce O ₂)	7.51 5.98 × 10 ⁻³	2.92 3.28	5.29 × 10 ⁻¹ 7.57 × 10 ⁻³	1.5 × 10 ⁻¹ 3.6 × 10 ⁻¹
	Sub-TOTAL	7.51		6.32 × 10 ⁻¹	5.1 × 10 ⁻¹
r 核種	Ru-106 Cs-134 Cs-137	—	2.5 × 10 4.4 × 10 3.6 × 10	1.5 × 10 ³ 2.5 × 10 ³ 7.1 × 10 ³	5.3 × 10 ² 1.3 × 10 ² 5.7 × 10 ³
	TOTAL		4.7 × 10 ⁴	1.6 × 10 ⁴	1.1 × 10 ⁴

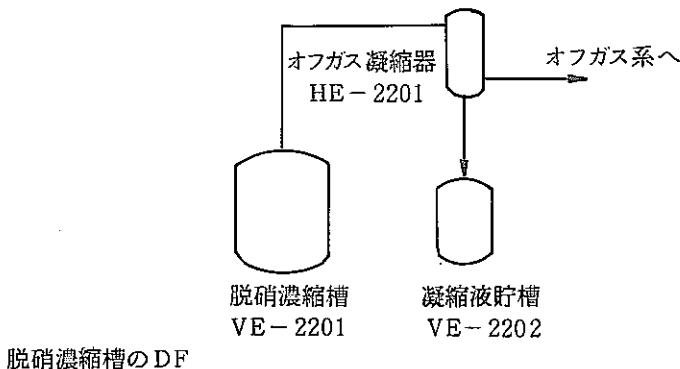
- OTL 廃液, F 再廃液, メインプラント廃液の Na, Fe, Ni, Cr, U, Pu 及び r 核種は分析値。
FP は ORIGEN 計算値。(但し、分析値で ORIGEN 値を確認)
- FP, Actinide, Total - r とも代表的な元素(核種)を記載。それぞれの total には他の元素(核種)も加えた。

Table 2-5 メインプラント廃液, OTL 廃液及び F 再廃液と SW-11 との酸化物重量比較

		emainプラント廃液 SW-11	OTL 廃液*	F 再廃液 SW-11
Process Inert	Na ₂ O	~ 1.0 g/g	~ 1/40 g/g	~ 1/60 g/g
C P	Fe ₂ O ₃	~ 2.3 "	~ 1/30 "	~ 1/20 "
	Ni O	~ 2.7 "	~ 1/7 "	~ 1/11 "
	Cr ₂ O ₃	~ 8.3 "	~ 1/8 "	~ 1/4 "
F P		~ 0.6 "	~ 1/13 "	~ 1/24 "
Actinide		~ 0.4 "	~ 1/12 "	~ 1/15 "
Total		~ 0.9 "	~ 1/19 "	~ 1/28 "

* 第6ラン使用廃液

Table 2-6 脱硝濃縮槽の DF (T-r)



$$DF = \frac{B_0}{C_1 - C_0}$$

B₀ : 脱硝濃縮槽 濃縮前の放射能 (mCi)C₀ : 凝縮液貯槽 濃縮前の放射能 (mCi)C₁ : 凝縮液貯槽 濃縮後の放射能 (mCi)

項目 バッチ No.	B ₀ (mCi)	C ₀ (mCi)	C ₁ (mCi)	DF	備考
1	1.15 × 10 ⁵	2.00 × 10 ¹	1.23 × 10 ¹	1.49 × 10 ⁴	
2	2.11 × 10 ⁵	3.71 × 10 ¹	1.94 × 10 ¹	1.19 × 10 ⁴	
3	2.47 × 10 ⁵	3.69 × 10 ¹	3.30 × 10 ¹	6.33 × 10 ⁴	
4	2.88 × 10 ⁵	5.71 × 10 ¹	4.43 × 10 ¹	2.25 × 10 ⁴	
5	2.07 × 10 ⁵	7.97 × 10 ¹	5.68 × 10 ¹	9.04 × 10 ³	
6	2.24 × 10 ⁵	1.02 × 10 ²	8.14 × 10 ¹	1.09 × 10 ⁴	

Table 2-7 ガラス流下結果

	第1ラン	第2ラン	第3ラン	第4ラン	第5ラン	第6ラン	第8ラン
流下開始ノズル温度 [°C]	820	820	840	856	830	810	1,020
流下時間 [min]	13	11	11	8.1	11.5	11.8	7.7
流下ガラス重量 [kg]	2,666	2,572	2,510	2,328	3,722	3,954	3,605
流下率 ^{*1} [%]	87.2	84.0	81.9	77.0	87.1	94.1	94.9
流下ガラス流量 [kg/min]	0.205	0.234	0.228	0.287	0.324	0.335	0.468

$$*1 \text{ 流下率} (\%) = \frac{\text{流下ガラス重量} (kg)}{\text{投入ガラスフリット重量} (kg) + \text{投入廃液酸化物重量} (kg)} \times 100$$

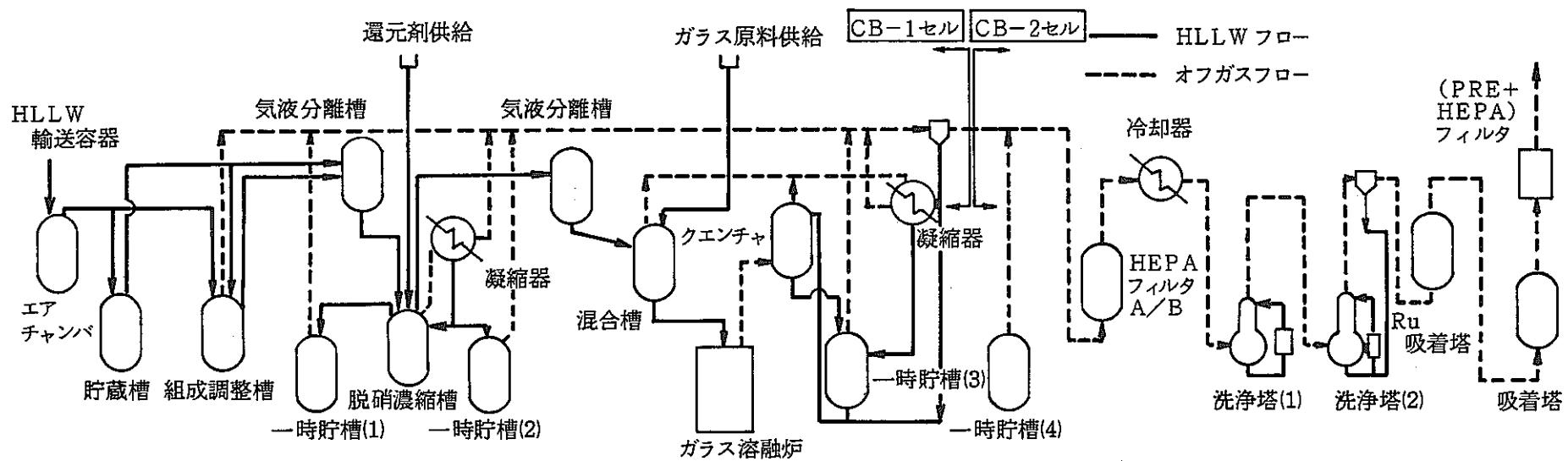


Fig 2-1 B 系列ガラス固化試験設備系統図

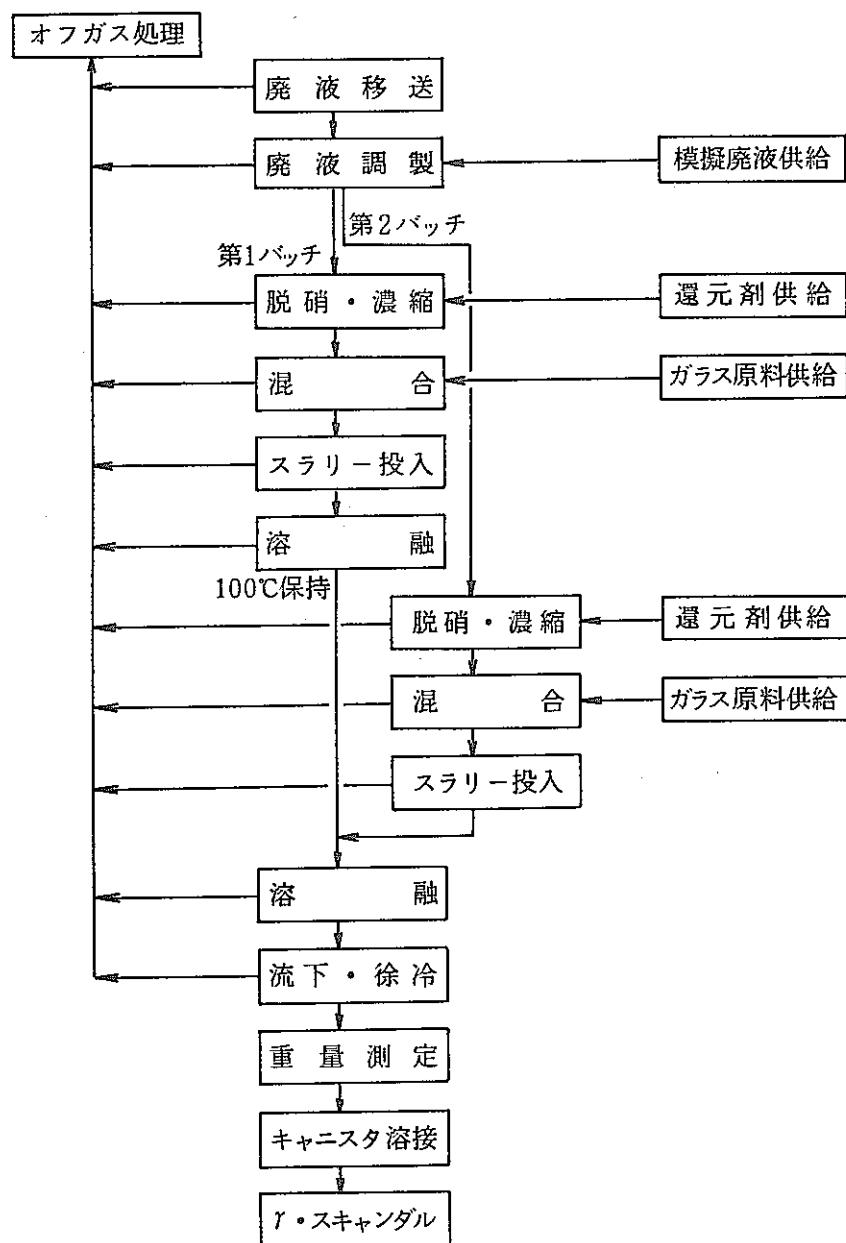


Fig 2-2 ガラス固化試験基本フロー

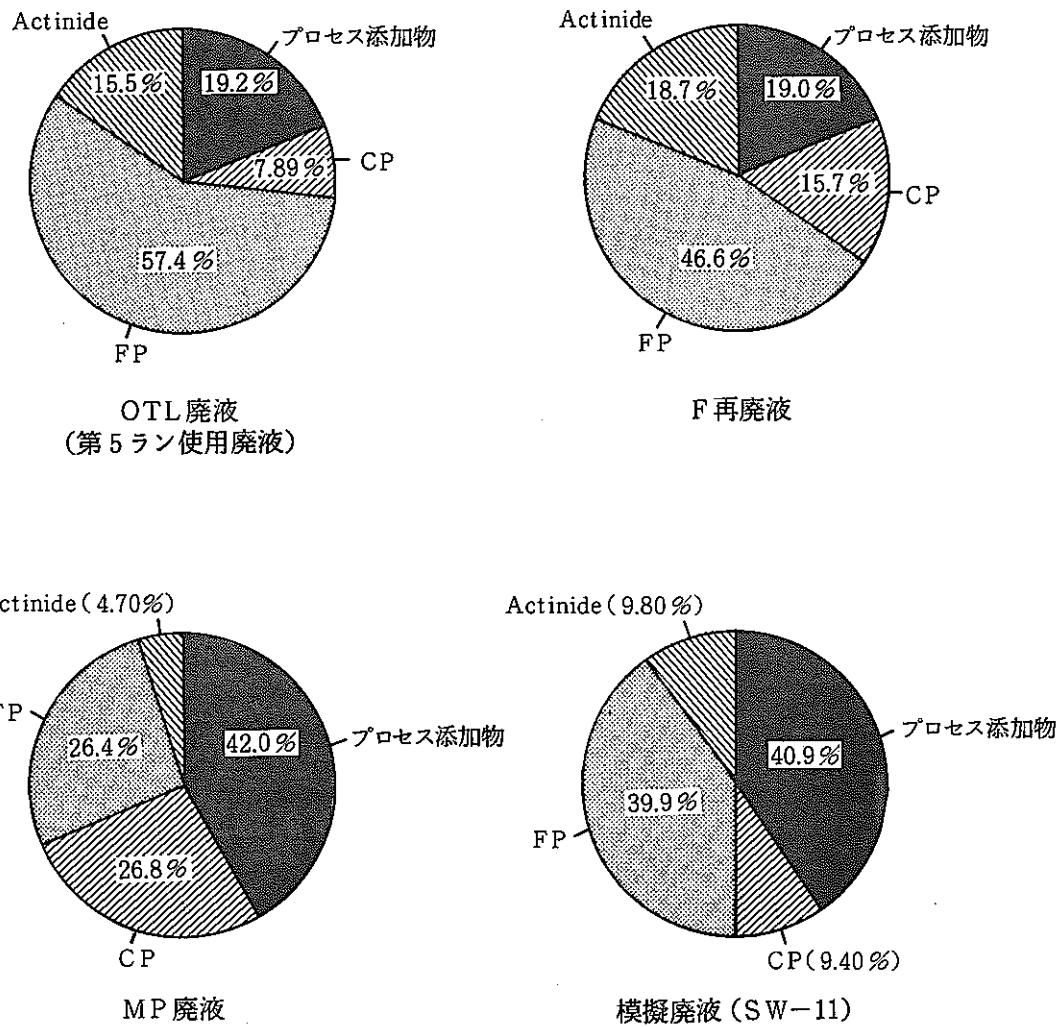
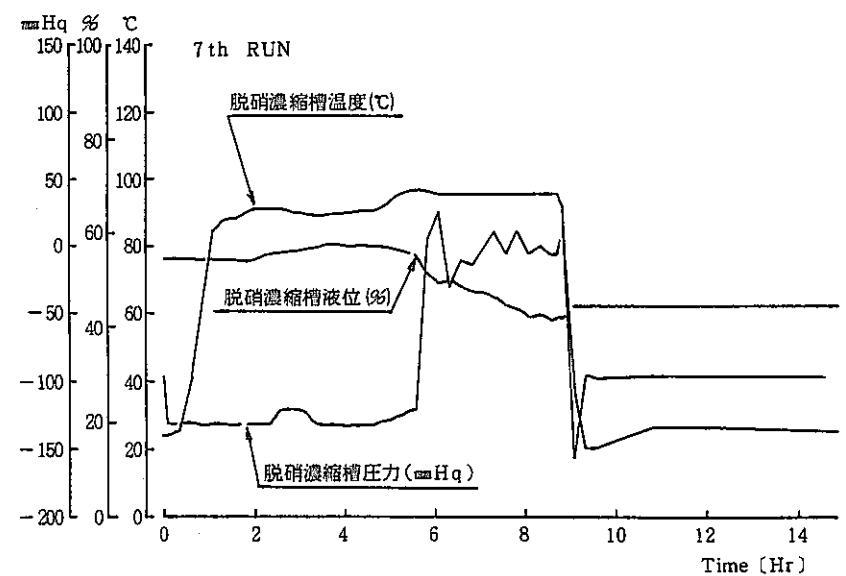
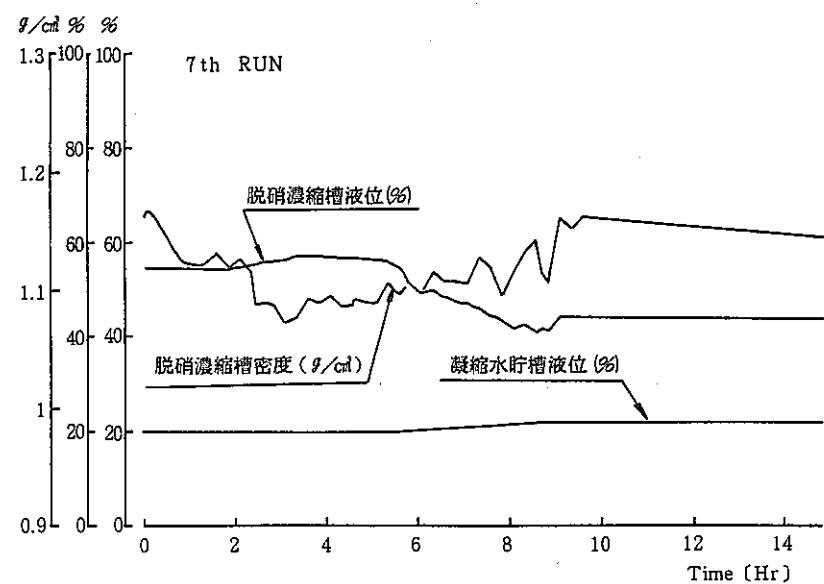
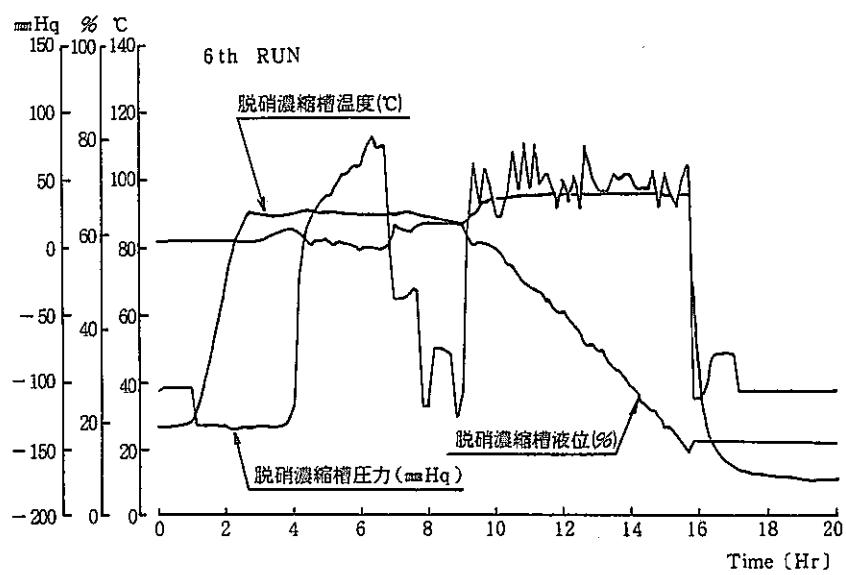
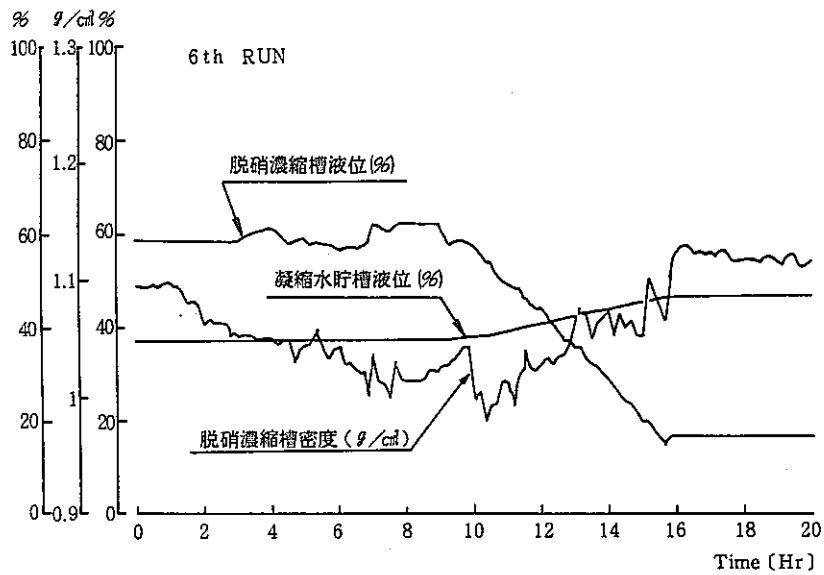


Fig 2-3 廃液組成比



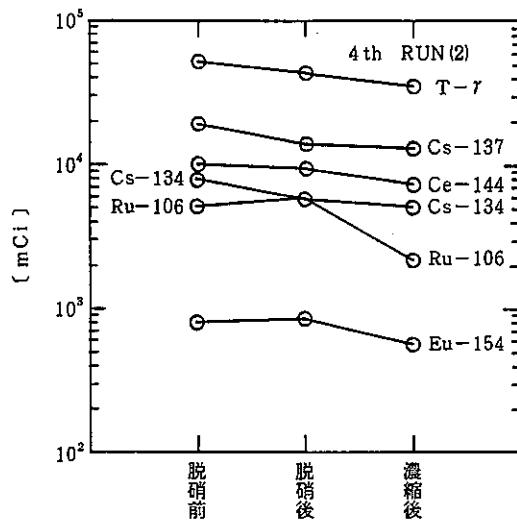


Fig 2-5(1) 第4ラン脱硝濃縮液中核種量の変化

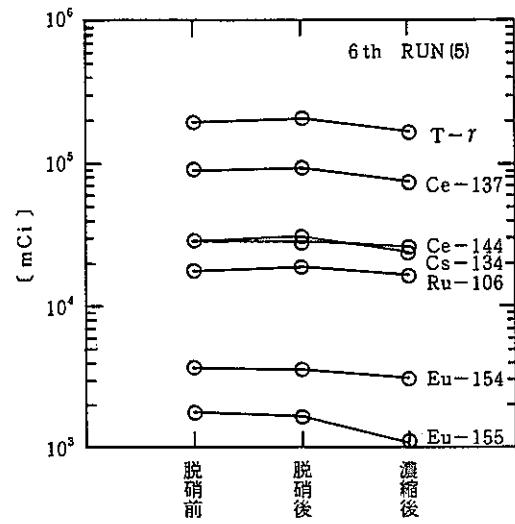


Fig 2-5(2) 第6ラン脱硝濃縮液中核種量の変化

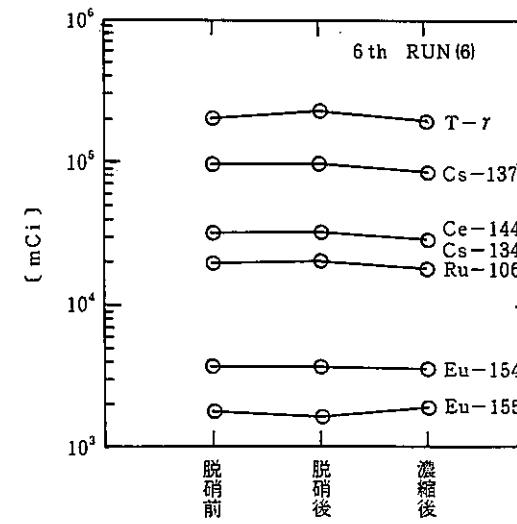


Fig 2-5(3) 第6ラン脱硝濃縮液中核種量の変化

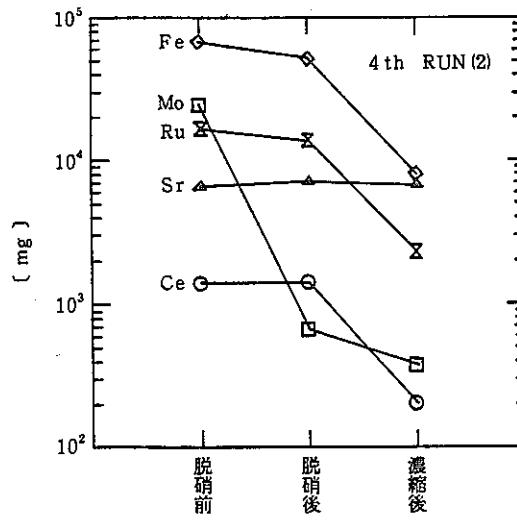


Fig 2-5(4) 第4ラン脱硝濃縮液中元素量の変化

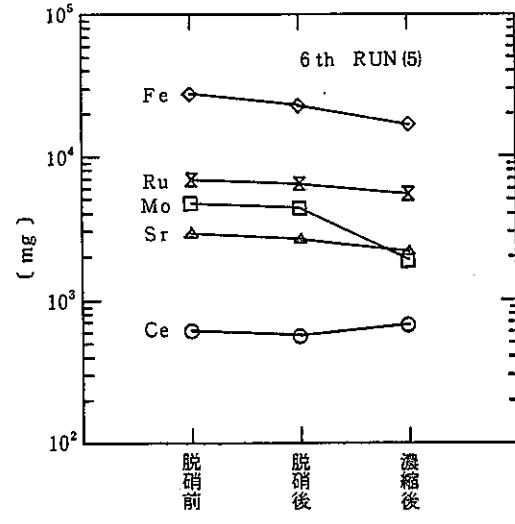


Fig 2-5(5) 第6ラン脱硝濃縮液中元素量の変化

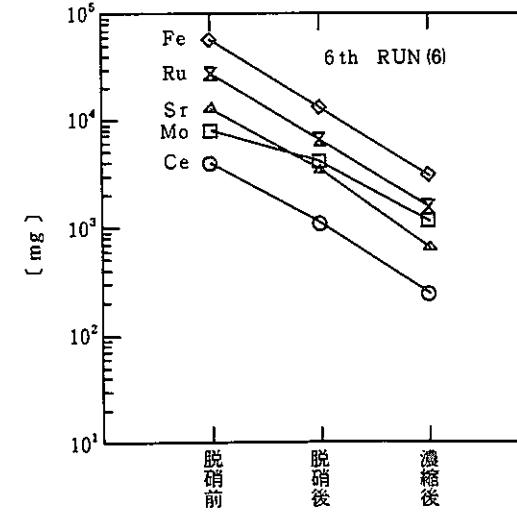


Fig 2-5(6) 第6ラン脱硝濃縮液中元素量の変化

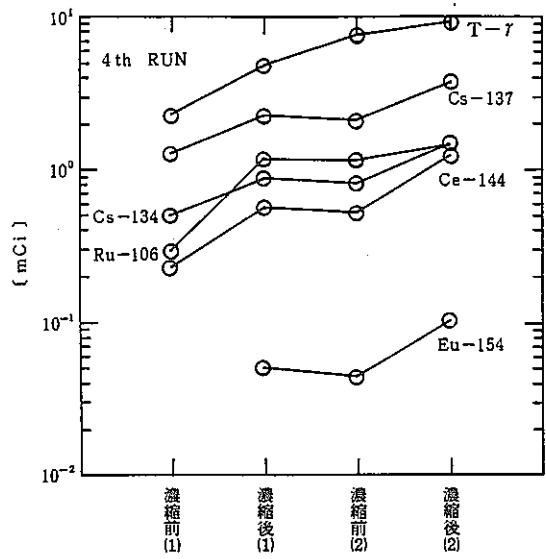


Fig 2-6(1) 第4ラン濃縮凝縮液中核種量の変化

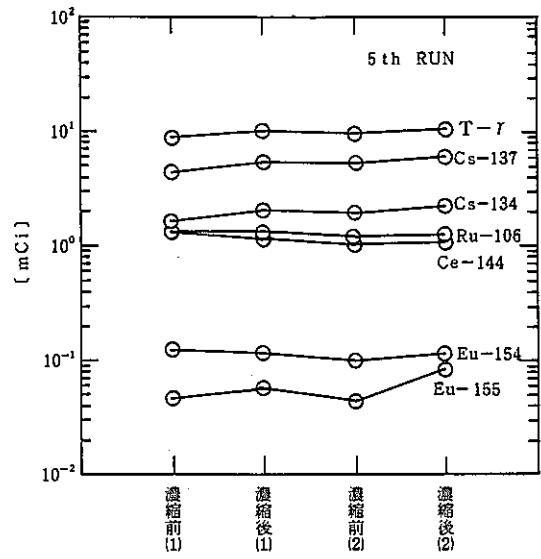


Fig 2-6(2) 第5ラン濃縮凝縮液中核種量の変化

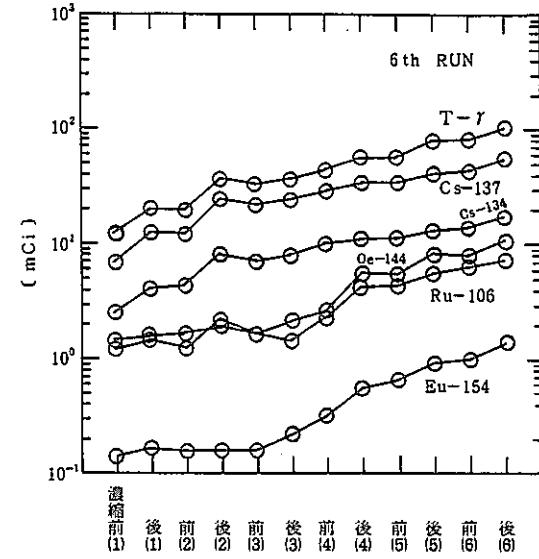


Fig 2-6(3) 第6ラン濃縮凝縮液中核種量の変化

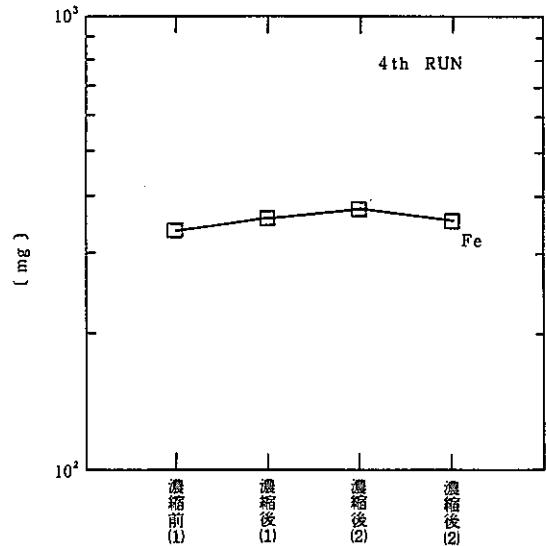


Fig 2-6(4) 第4ラン濃縮凝縮液中元素量の変化

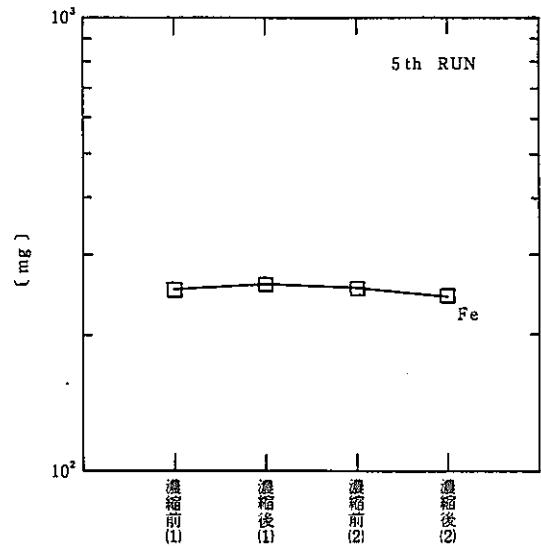


Fig 2-6(5) 第5ラン濃縮凝縮液中元素量の変化

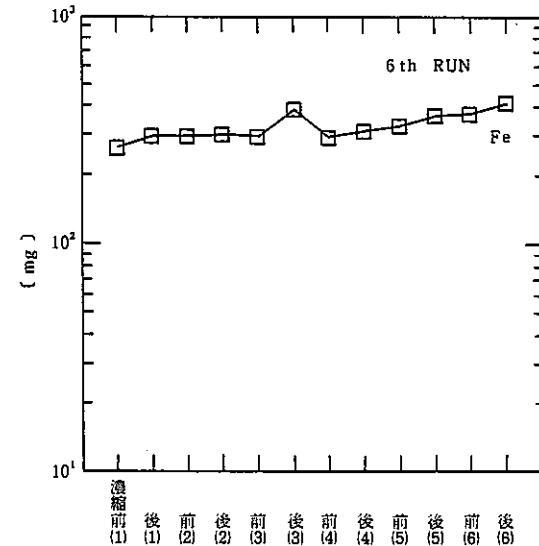


Fig 2-6(6) 第6ラン濃縮凝縮液中元素量の変化

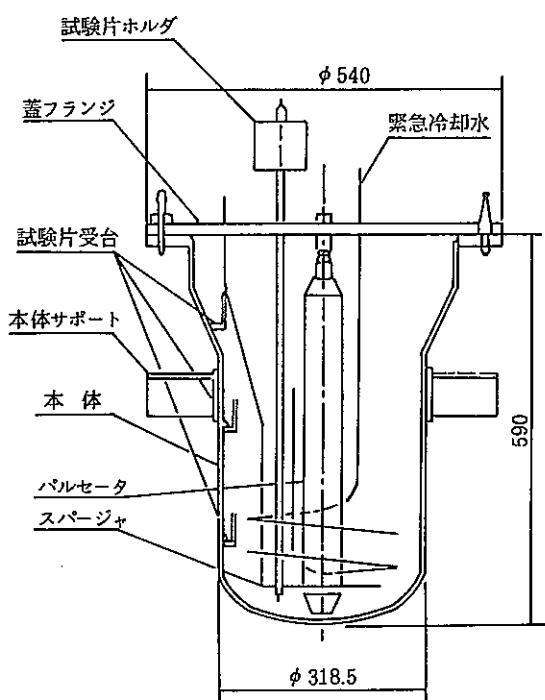


Fig 2-7 脱硝濃縮槽・2号基

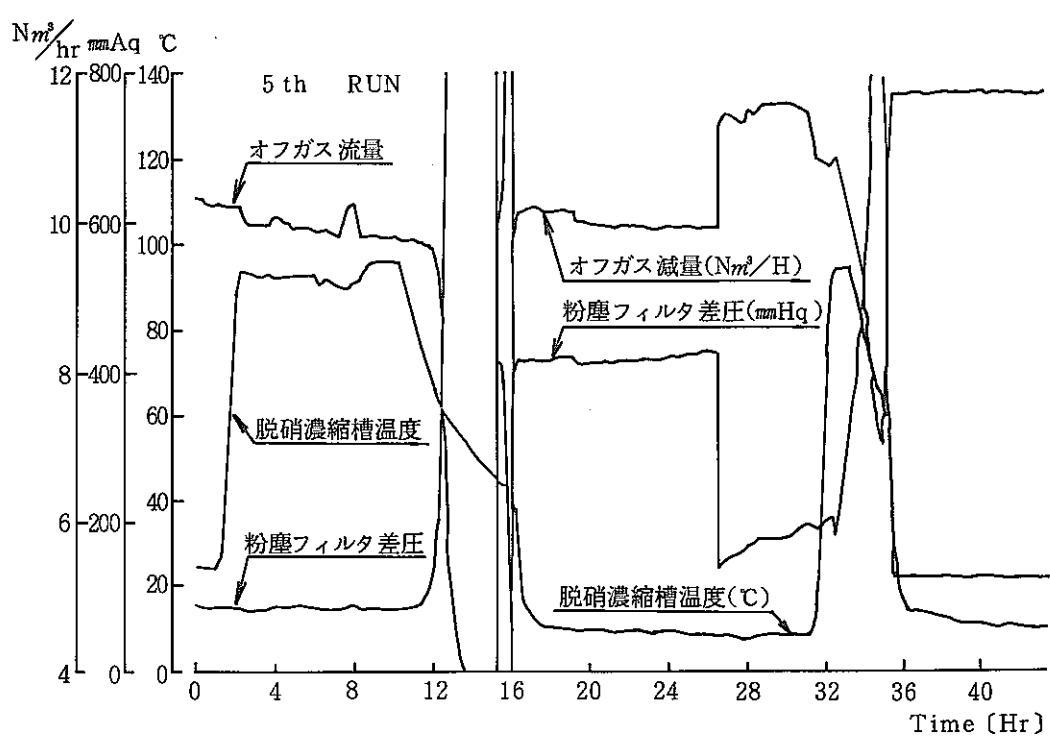


Fig 2-8 第5ラン脱硝濃縮運転記録（フィルタ目詰り）

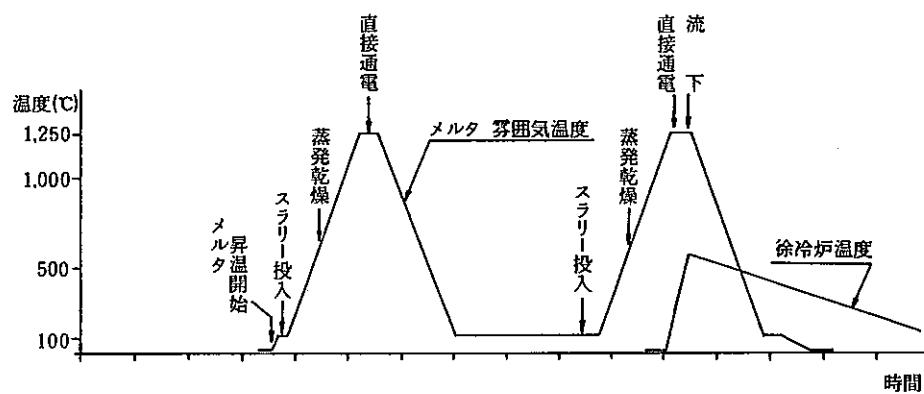


Fig 2-9 セラミックメルタ基本運転モード

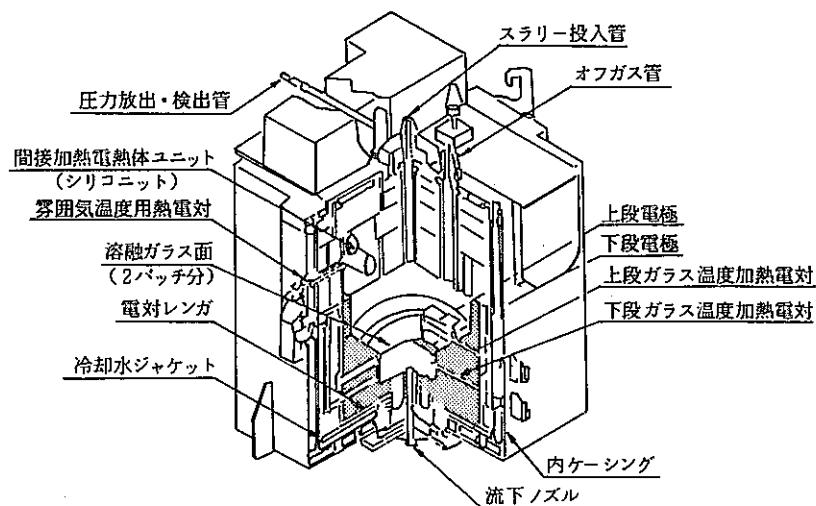


Fig 2-10 セラミックメルタ構造図

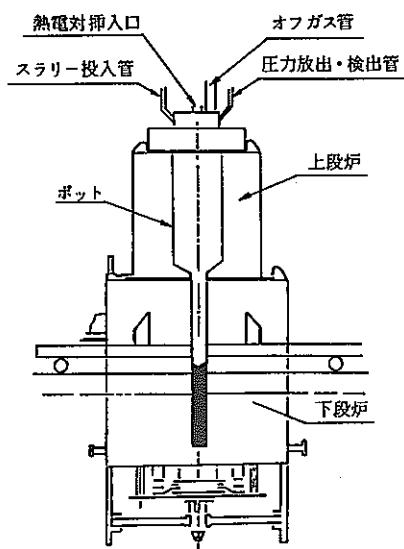


Fig 2-11 ポットメルタ構造図

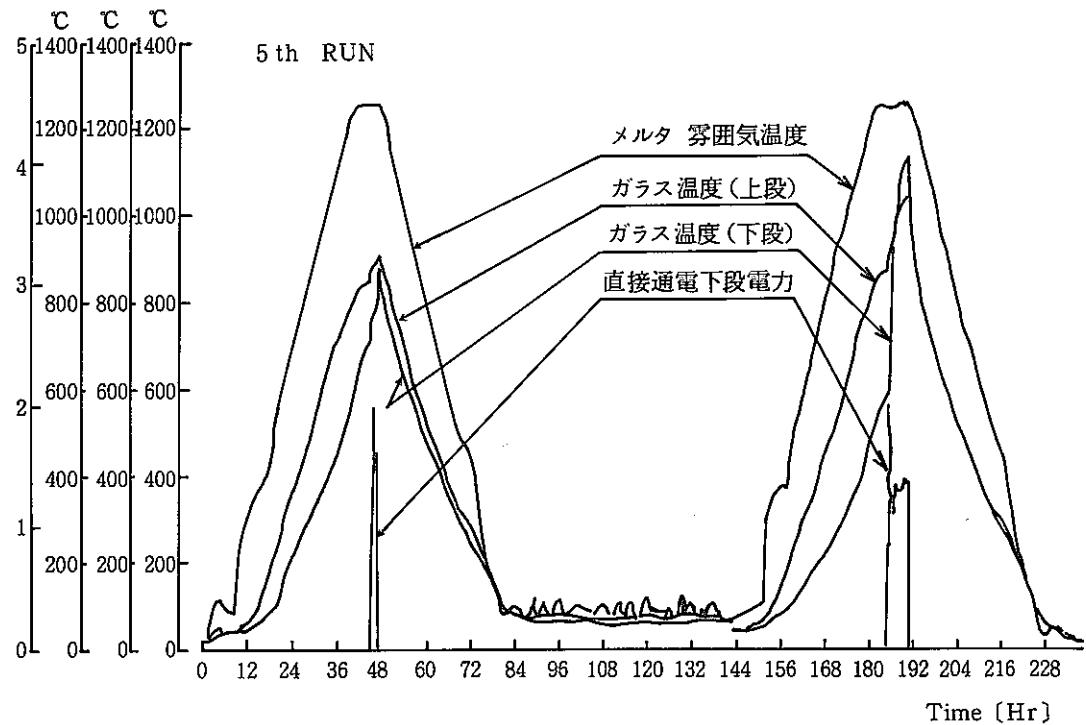
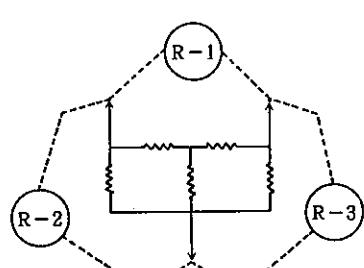


Fig 2-12 セラミックメルタ運転記録(第5ラン)



R-1 下段電極間抵抗
R-2 下段電極-流下ノズル間抵抗
R-3 下段電極-上段電極間抵抗

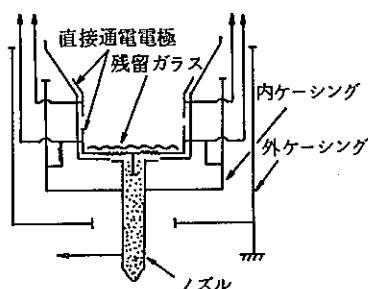


Fig 2-13 セラミックメルタ絶縁等価回路

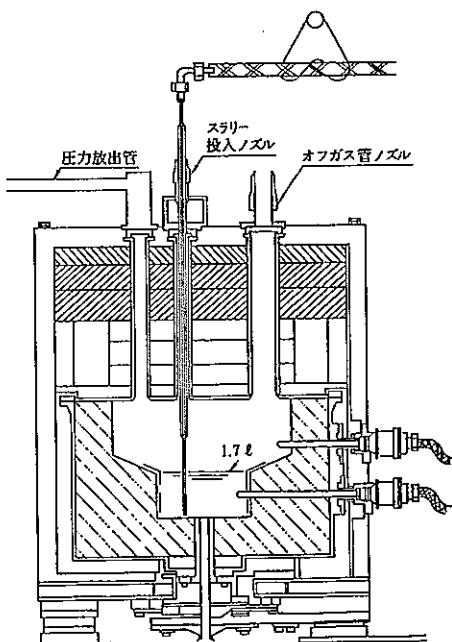


Fig 2-14 セラミックメルタ
ガス吹き込みライン

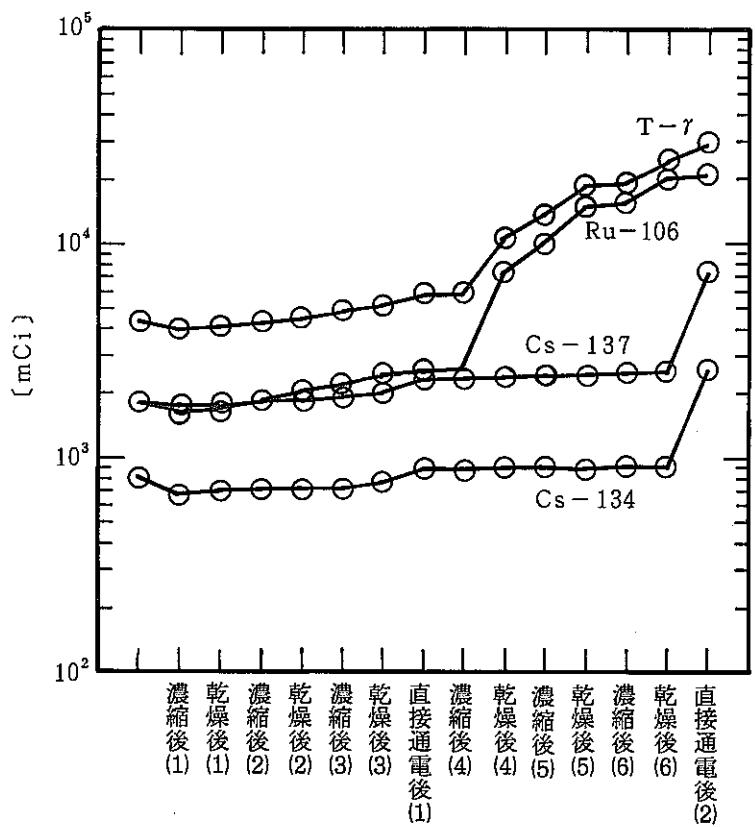


Fig 2 - 15(1) ガラス溶融炉運転時オフガス凝縮液中
核種量の変化 (第 6 ラン)

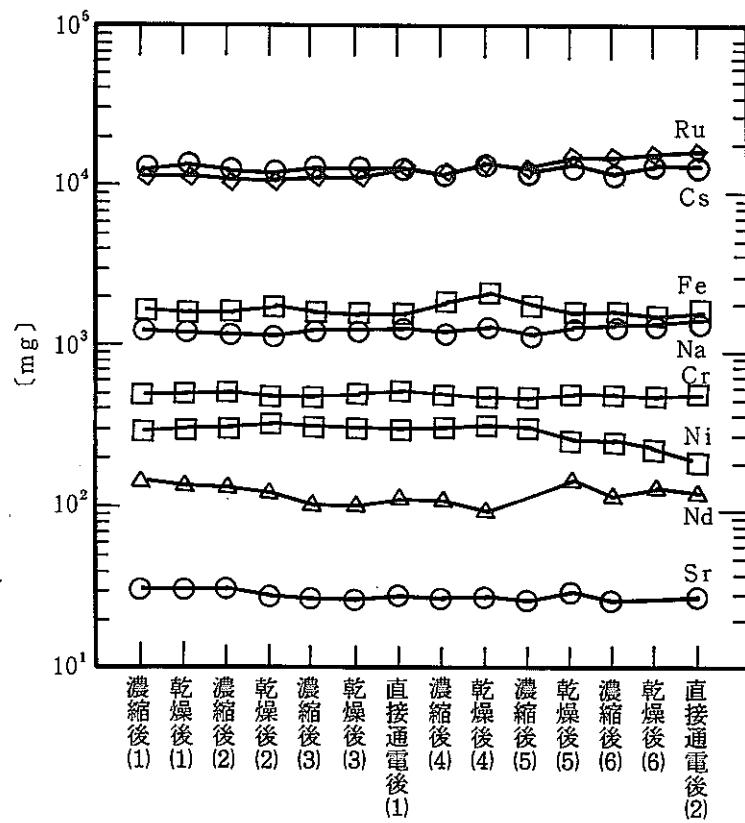


Fig 2 - 15(2) ガラス溶融炉運転時オフガス凝縮液中
元素量の変化 (第 6 ラン)

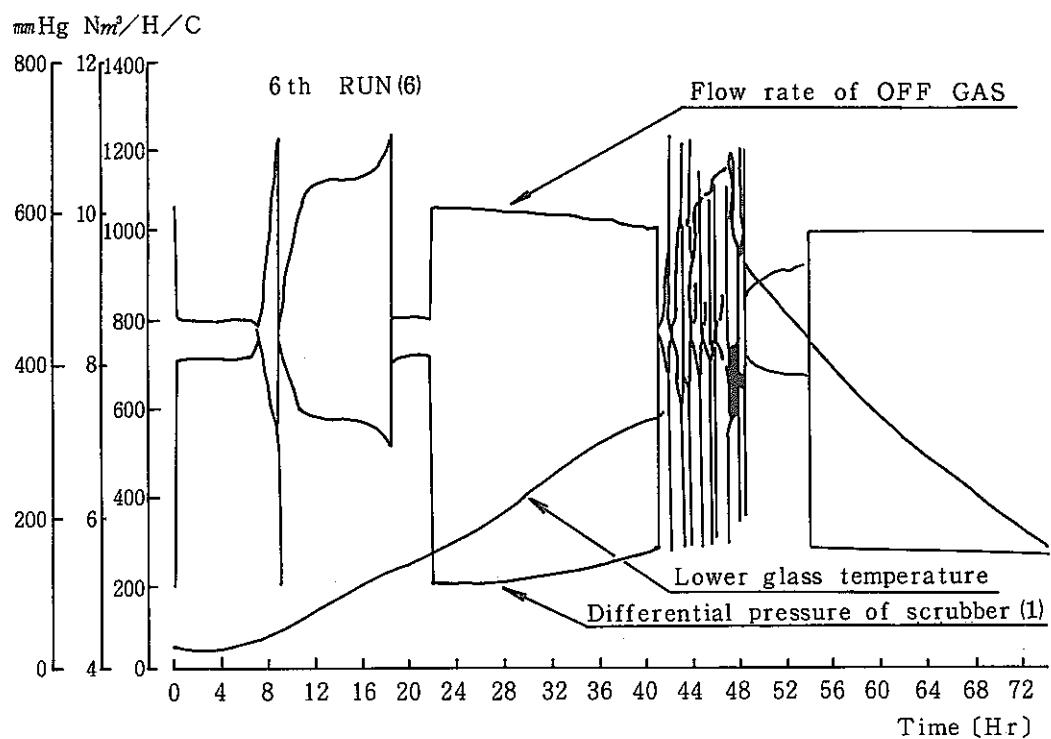


Fig 2-16(1) ガラス溶融炉運転時オフガス系運転記録（第6ラン）

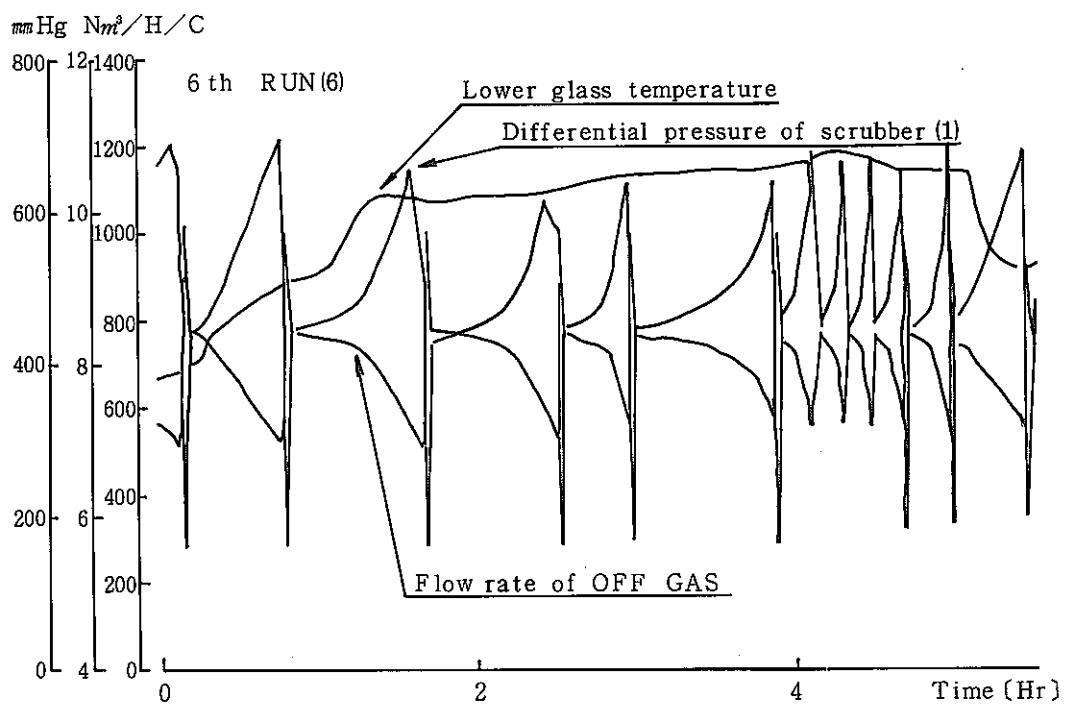


Fig 2-16(2) 搅拌ガス吹き込み時オフガス系運転記録（第6ラン）

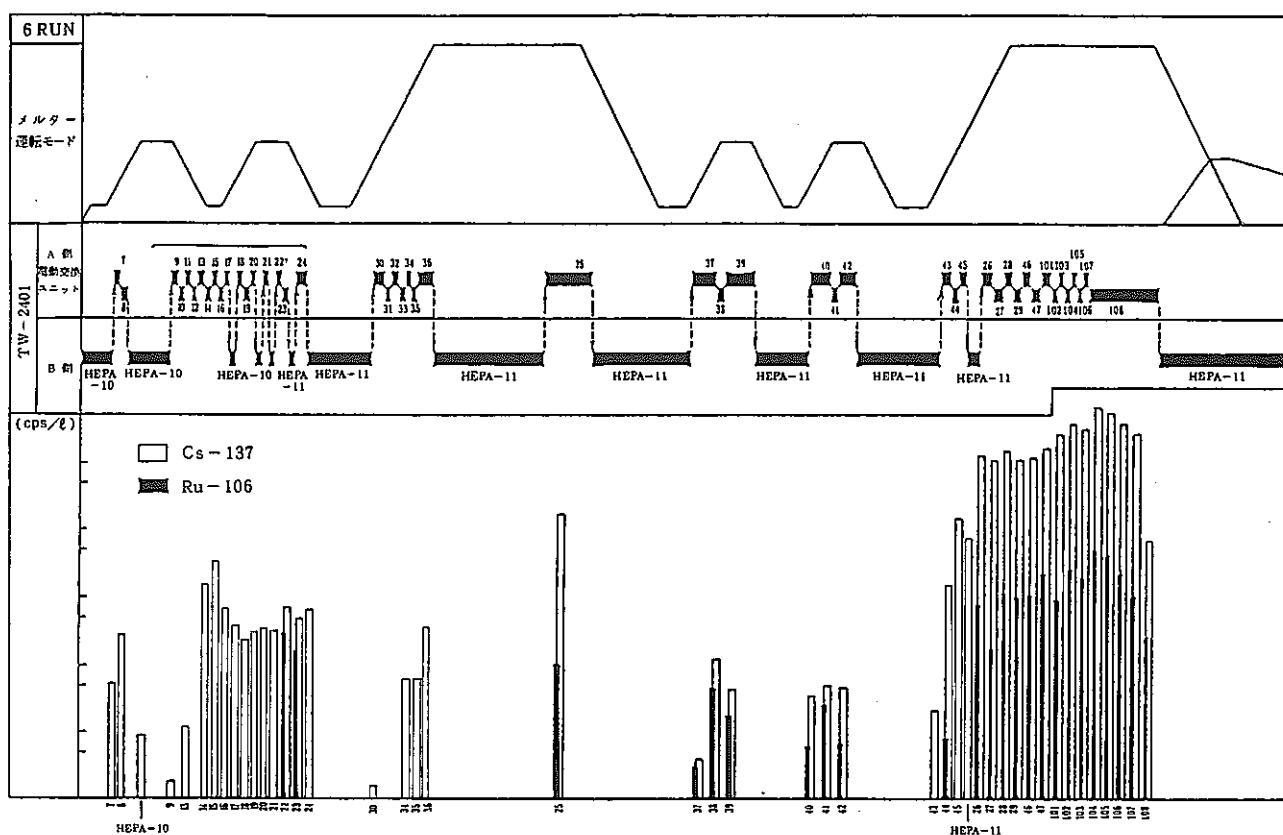


Fig 2-17 使用済みフィルタ放射能測定結果(第6ラン)

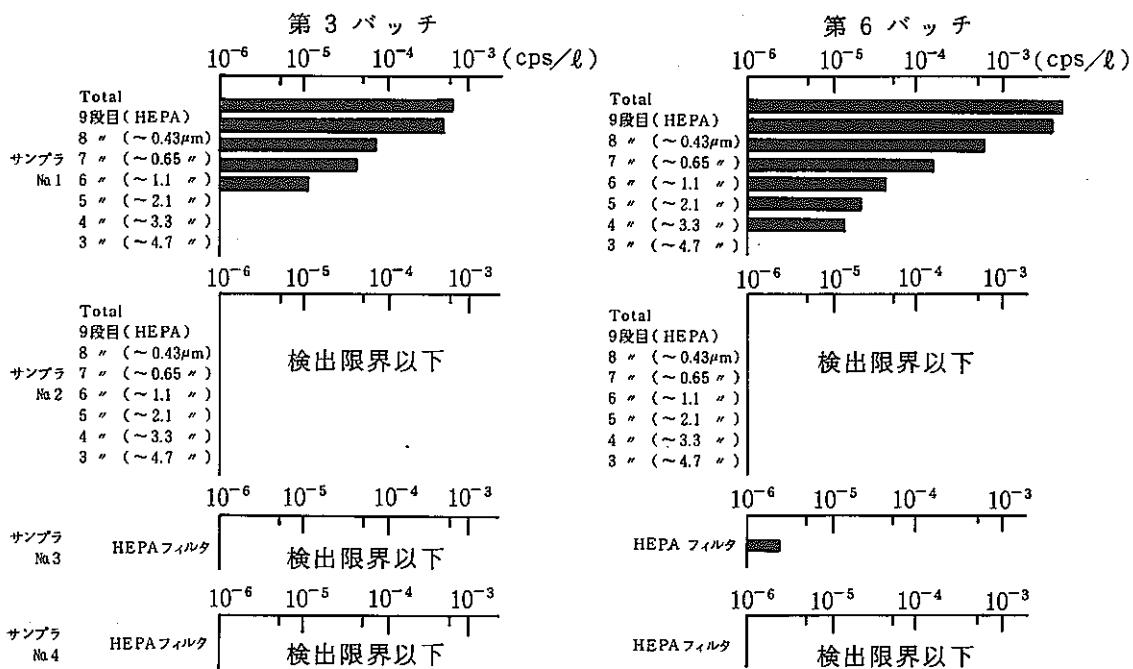


Fig 2-18 第6ランオフガスサンプラ放射能測定結果(Cs-137)

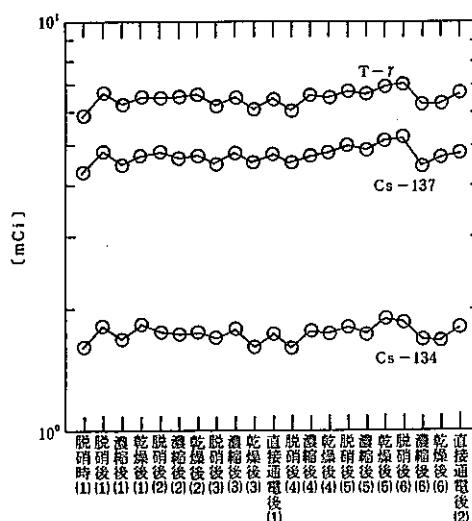


Fig 2-19(1) オフガス洗浄塔(1)
オフガス洗浄液中核種量の変化(第6ラン)

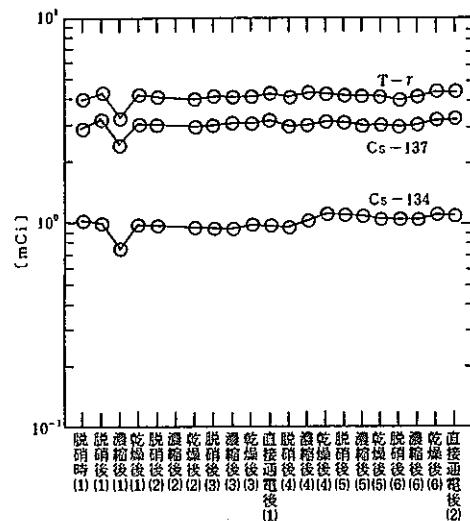


Fig 2-19(2) オフガス洗浄塔(2)
オフガス洗浄液中核種量の変化(第6ラン)

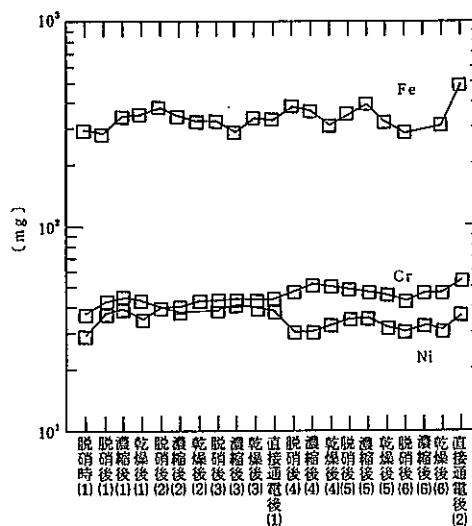


Fig 2-19(3) オフガス洗浄塔(1)
オフガス洗浄液中元素量の変化(第6ラン)

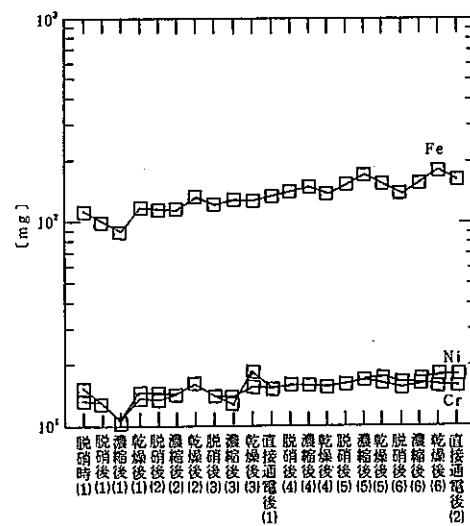


Fig 2-19(4) オフガス洗浄塔(2)
オフガス洗浄液中元素量の変化(第6ラン)

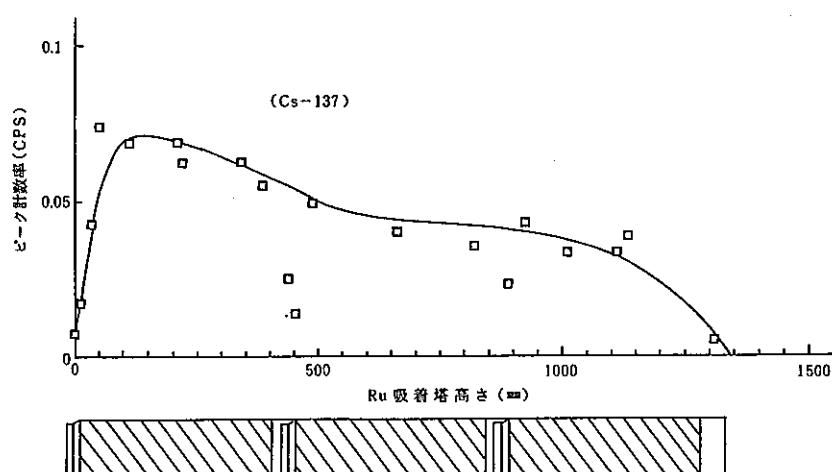
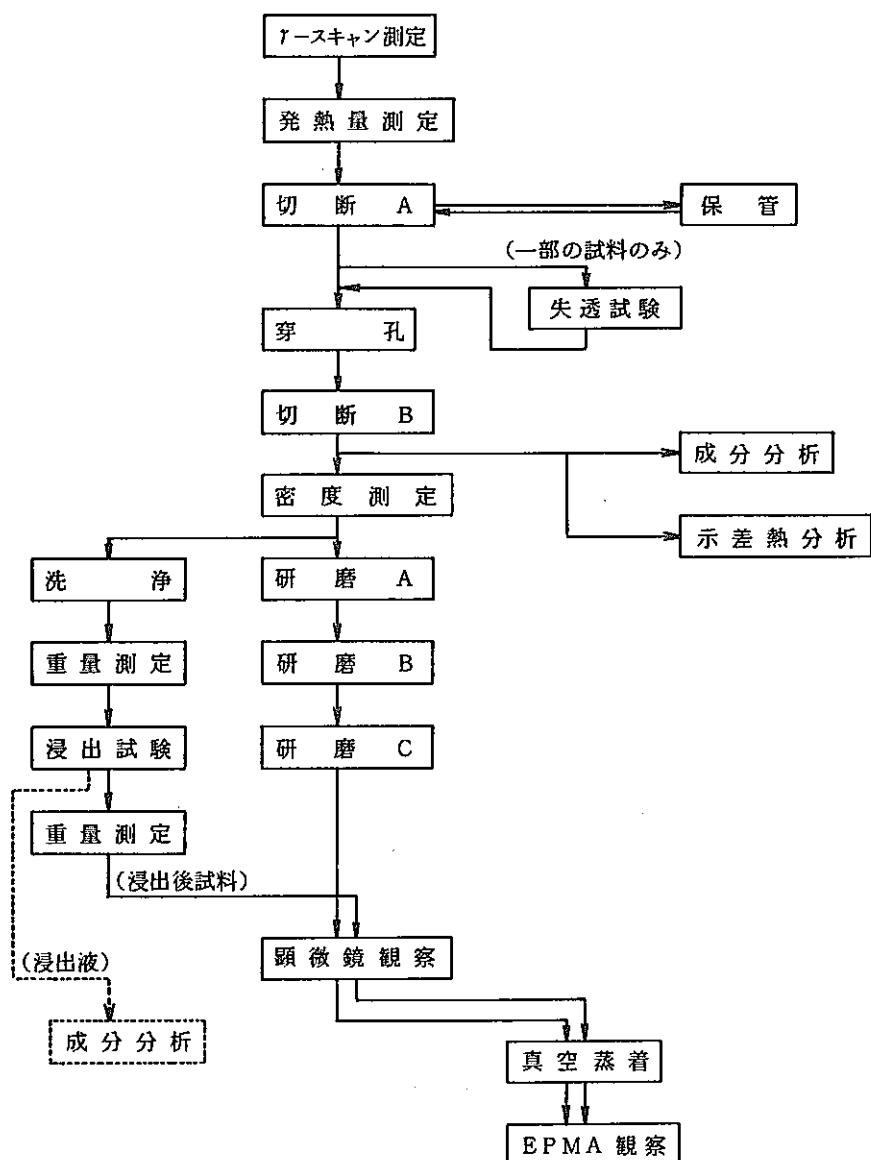


Fig 2-20 Ru吸着塔(2) Cs-137 軸方向分布



物性評価試験	試験目的又は内容	評価内容		備考
		定量	定性	
γ-スキャン測定	固化体の均質性の確認		○	
発熱量測定	固化体発熱量の測定	○		
密度測定	固化体の密度測定	○		
成分分析	固化体組成の確認	○		
示差熱分析	ガラス転移温度等特性温度の測定	○		
浸出試験	浸出率の測定	○		
顕微鏡観察	固化体均質性の確認		○	
EPMA観察	"		○	

Fig 3-1 固化体物性評価試験基本フロー

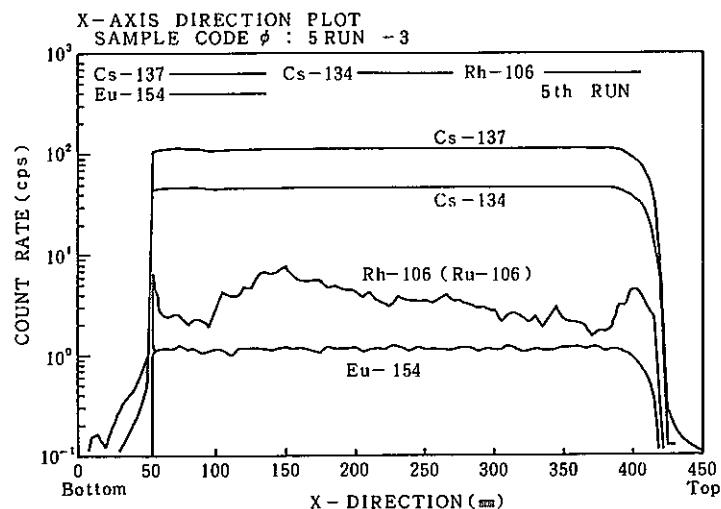


Fig 3-2(1) 第5ラン固化体 γ スキャニング測定結果

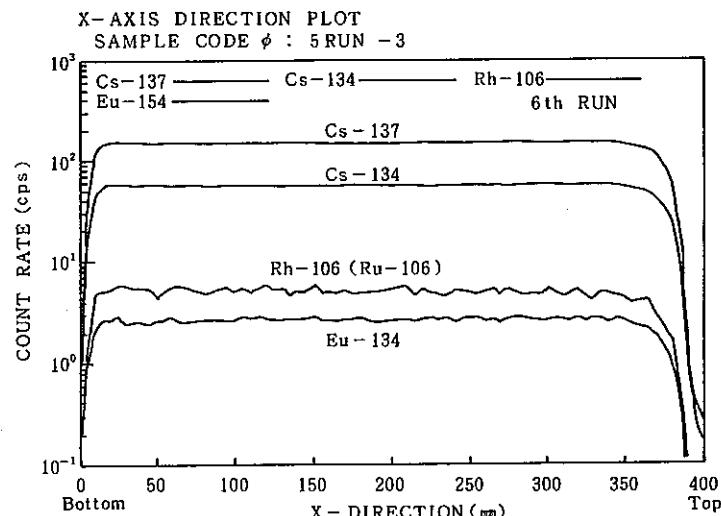


Fig 3-2(2) 第6ラン固化体 γ スキャニング測定結果

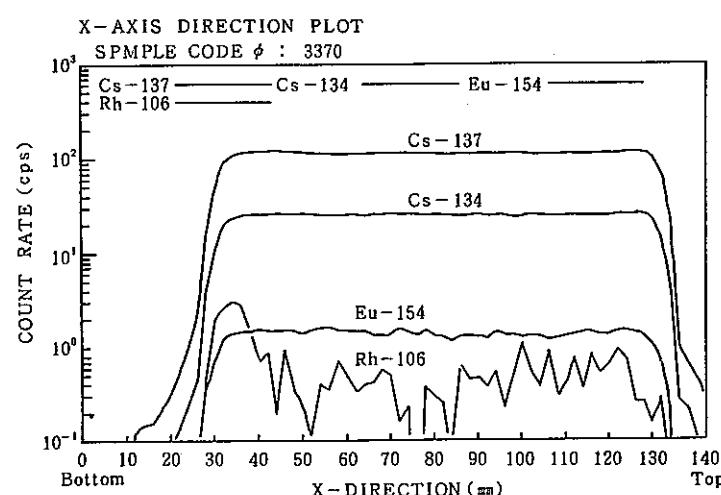


Fig 3-2(3) 第7ラン固化体 γ スキャニング測定結果

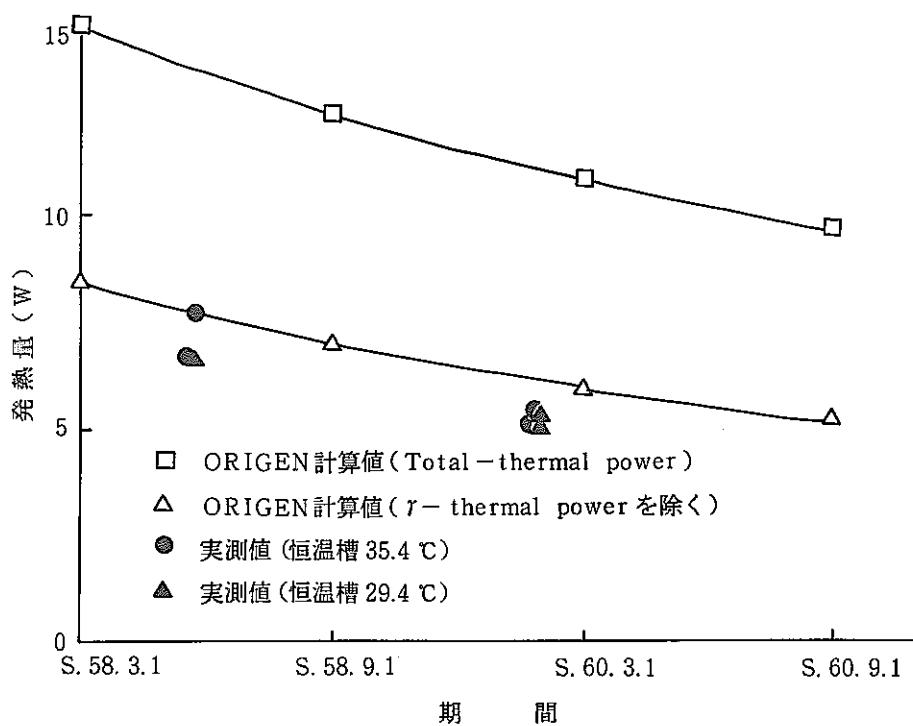
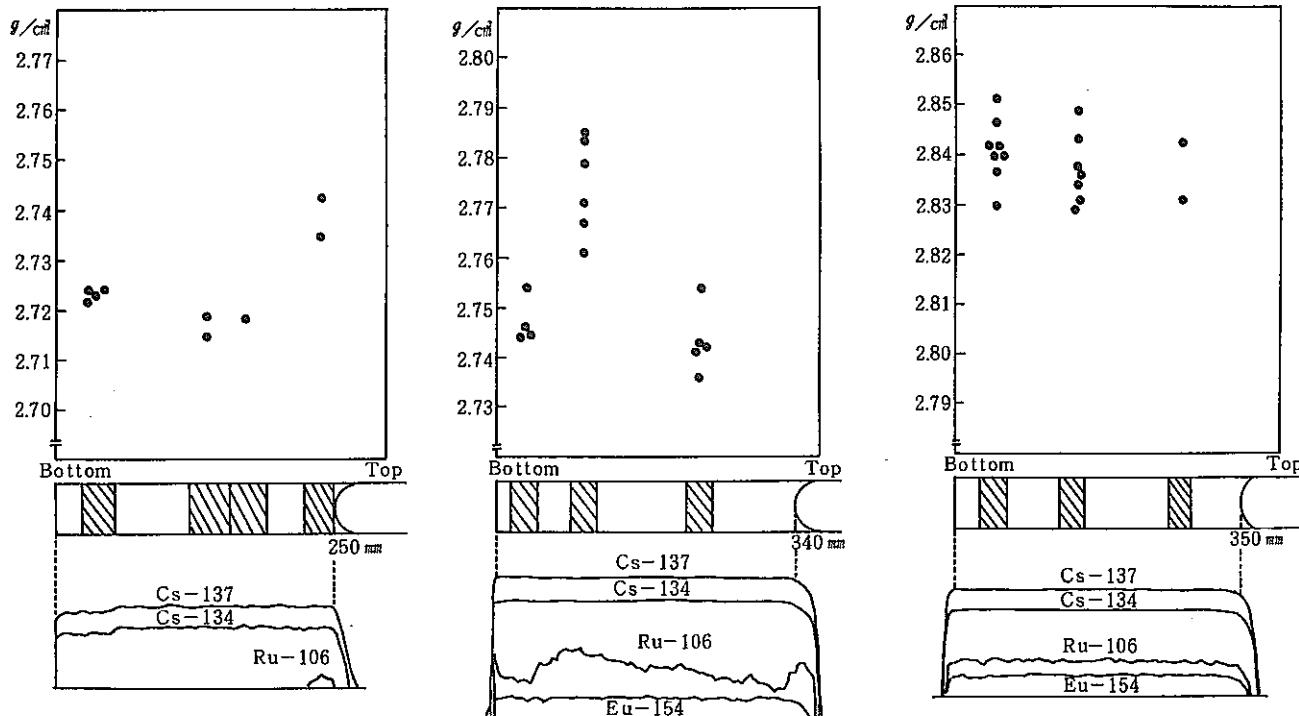


Fig 3-3 第6ラン固化体発熱量



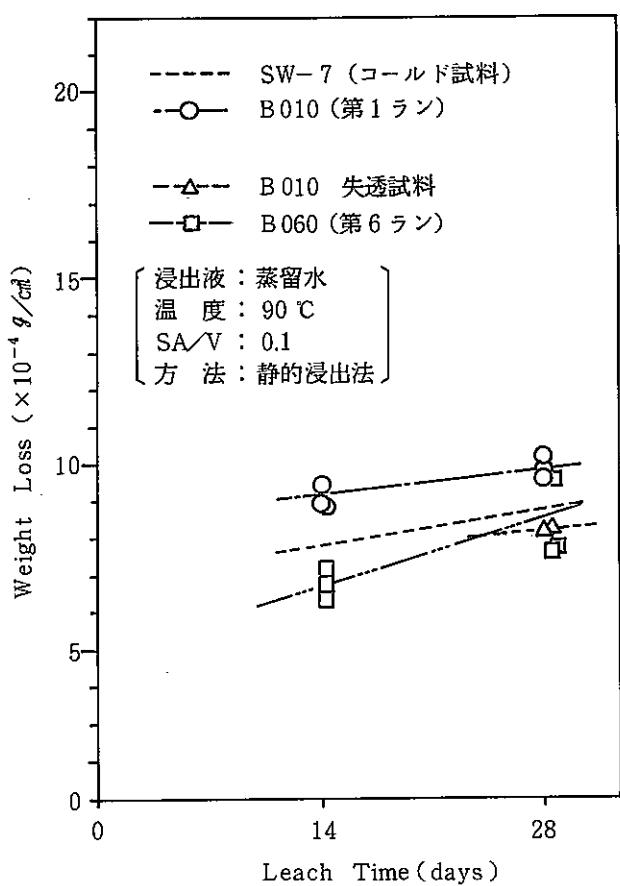


Fig 3-5(1) ガラス固化体浸出率(重量減少量)

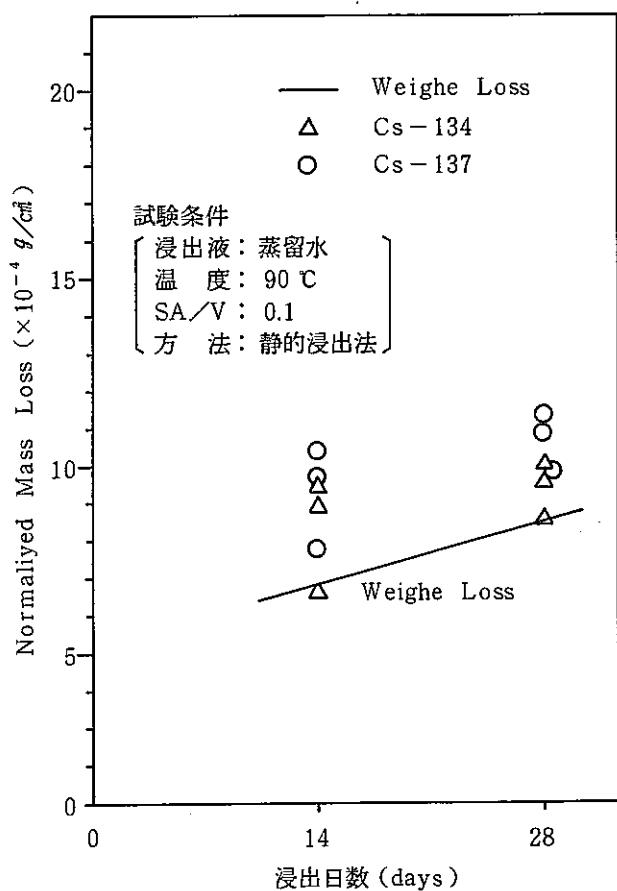


Fig 3-5(2) 第6ランガラス固化体浸出率(核種)

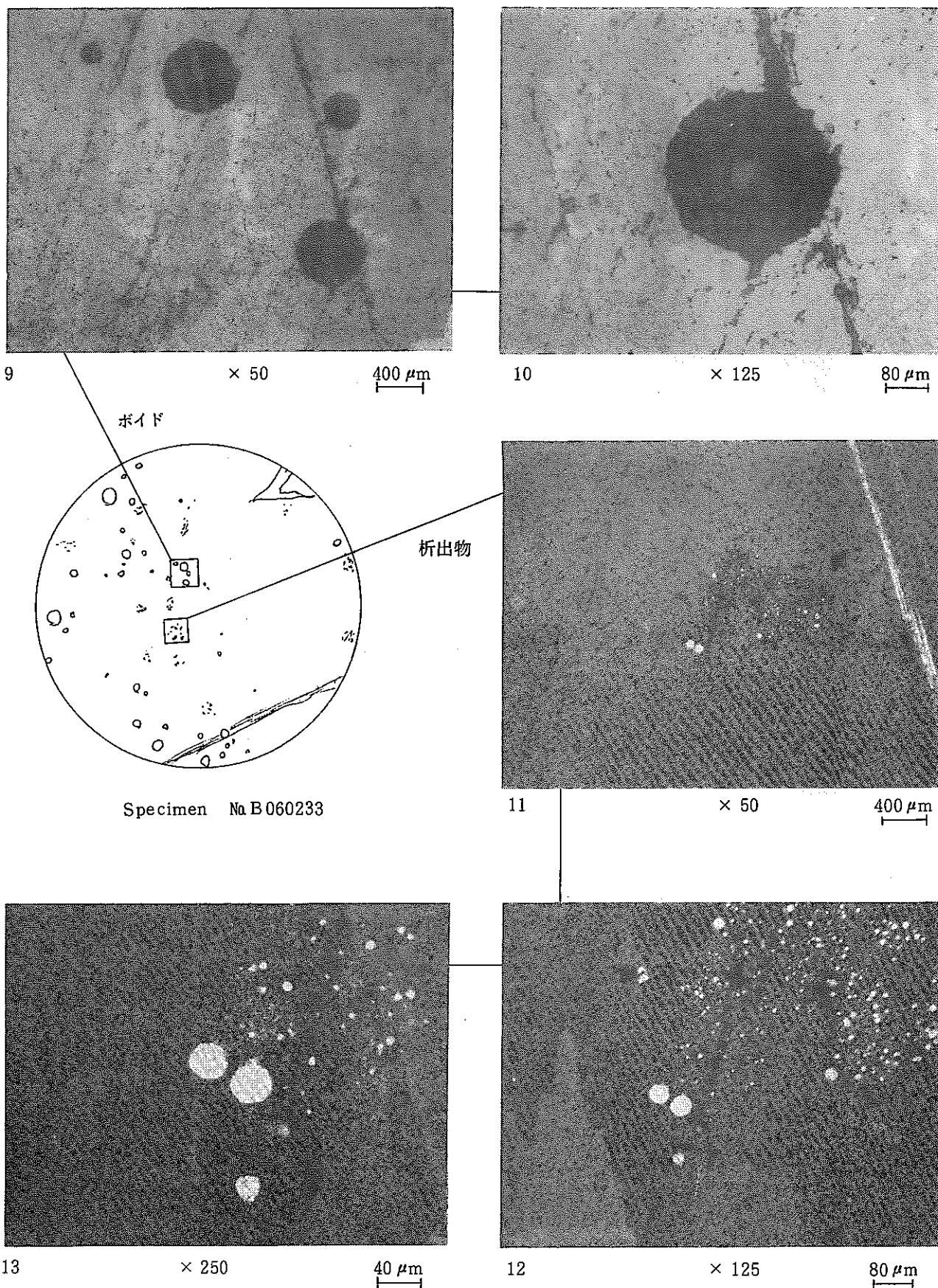


Photo 3-1 第6ラン固化体光学顕微鏡写真

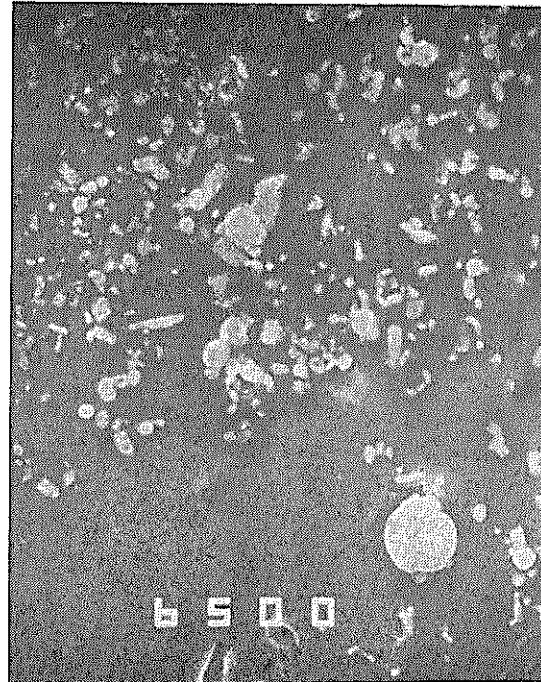
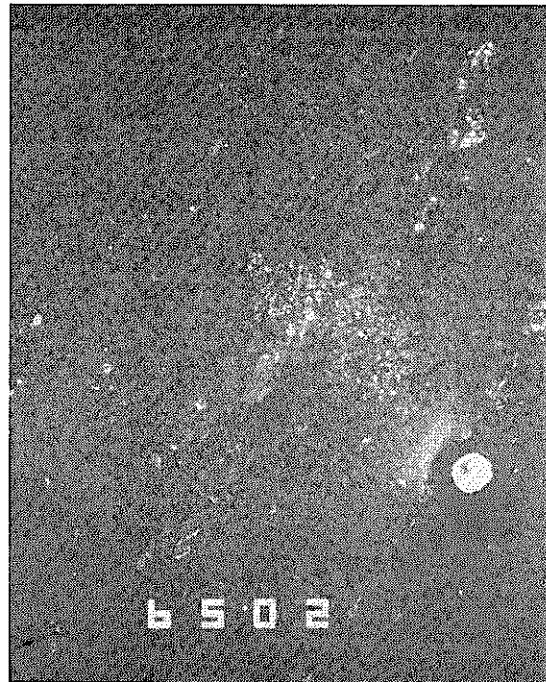


Photo 3-2 第6ラン固化体EPMA写真(二次電子像及び組成像)
Specimen No. B 060433

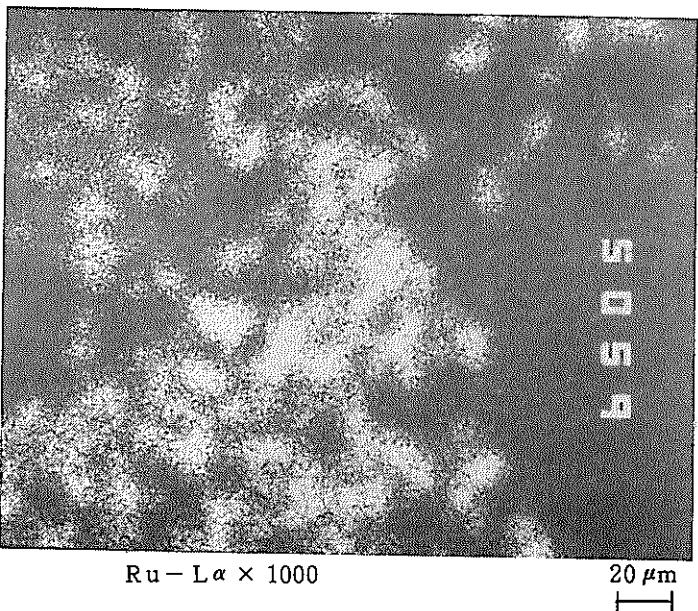
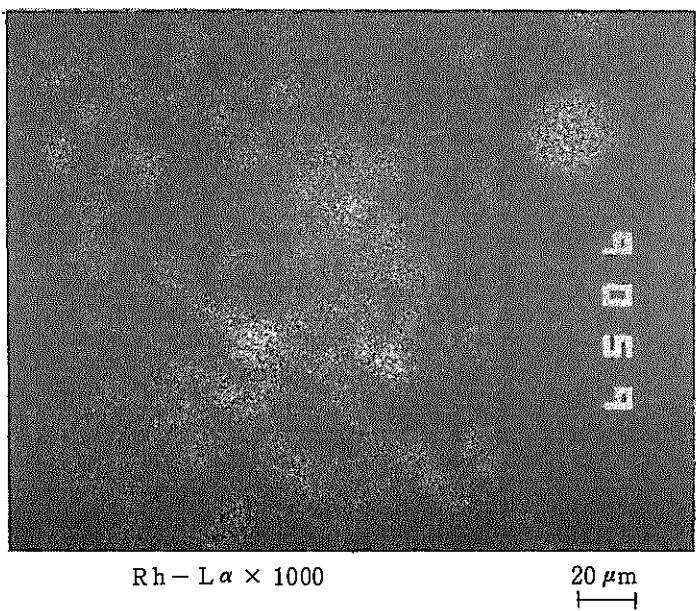
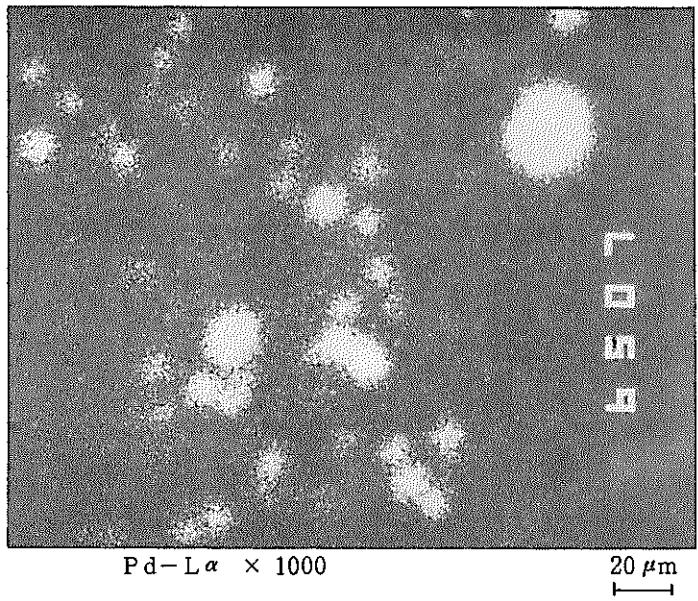
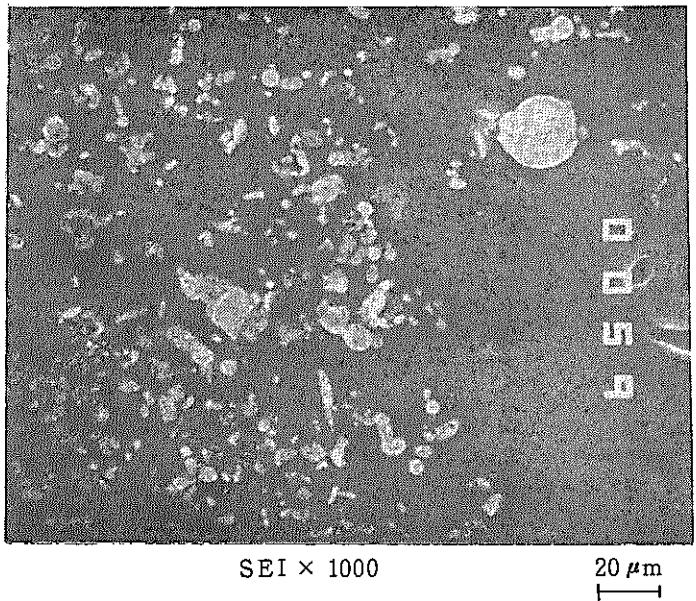
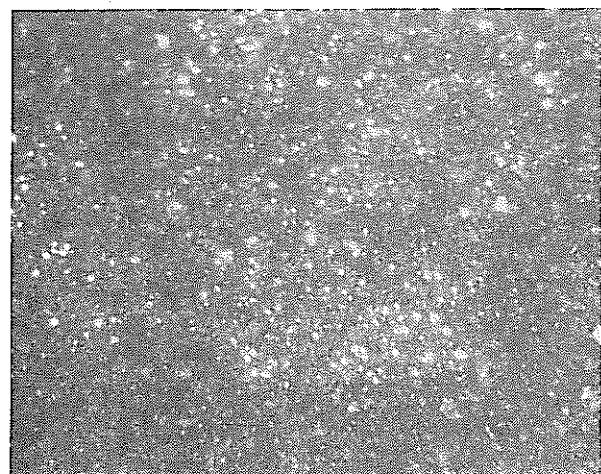
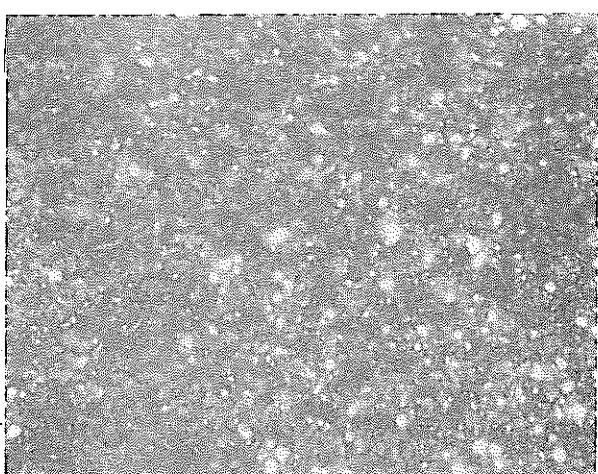


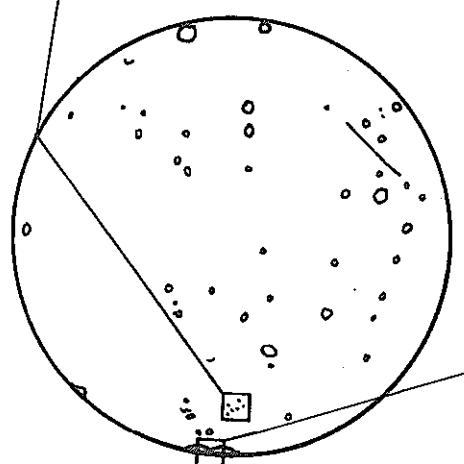
Photo 3-3 第6ラン固化体 EPM A写真(二次電子像・X線像) Specimen No.B060433



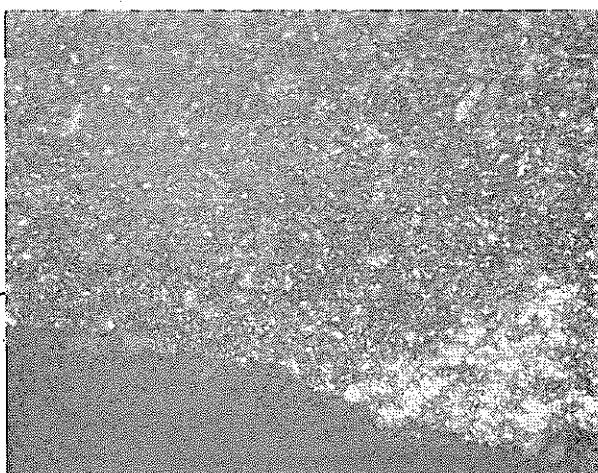
25 $\times 125$ 80 μm



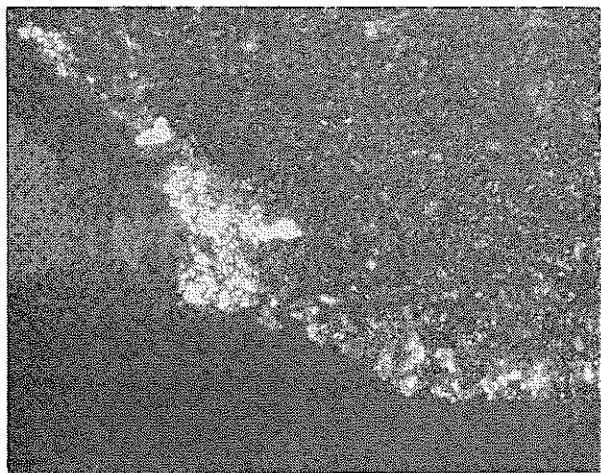
26 $\times 250$ 40 μm



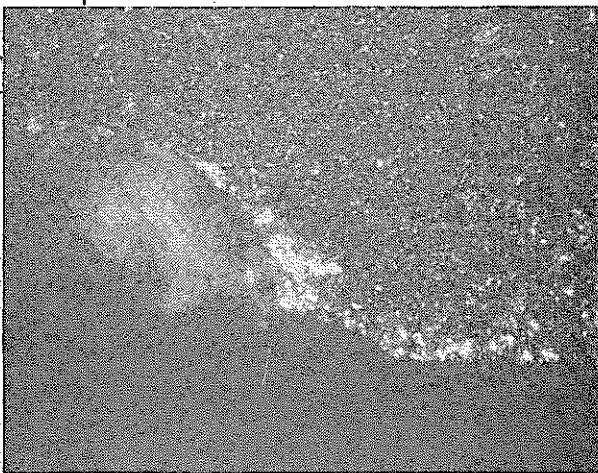
Specimen No B 060412



29 $\times 125$ 80 μm



28 $\times 250$ 40 μm



27 $\times 125$ 80 μm

Photo 3-4 浸出試験前試料光学顕微鏡写真(第6ラン固化体)

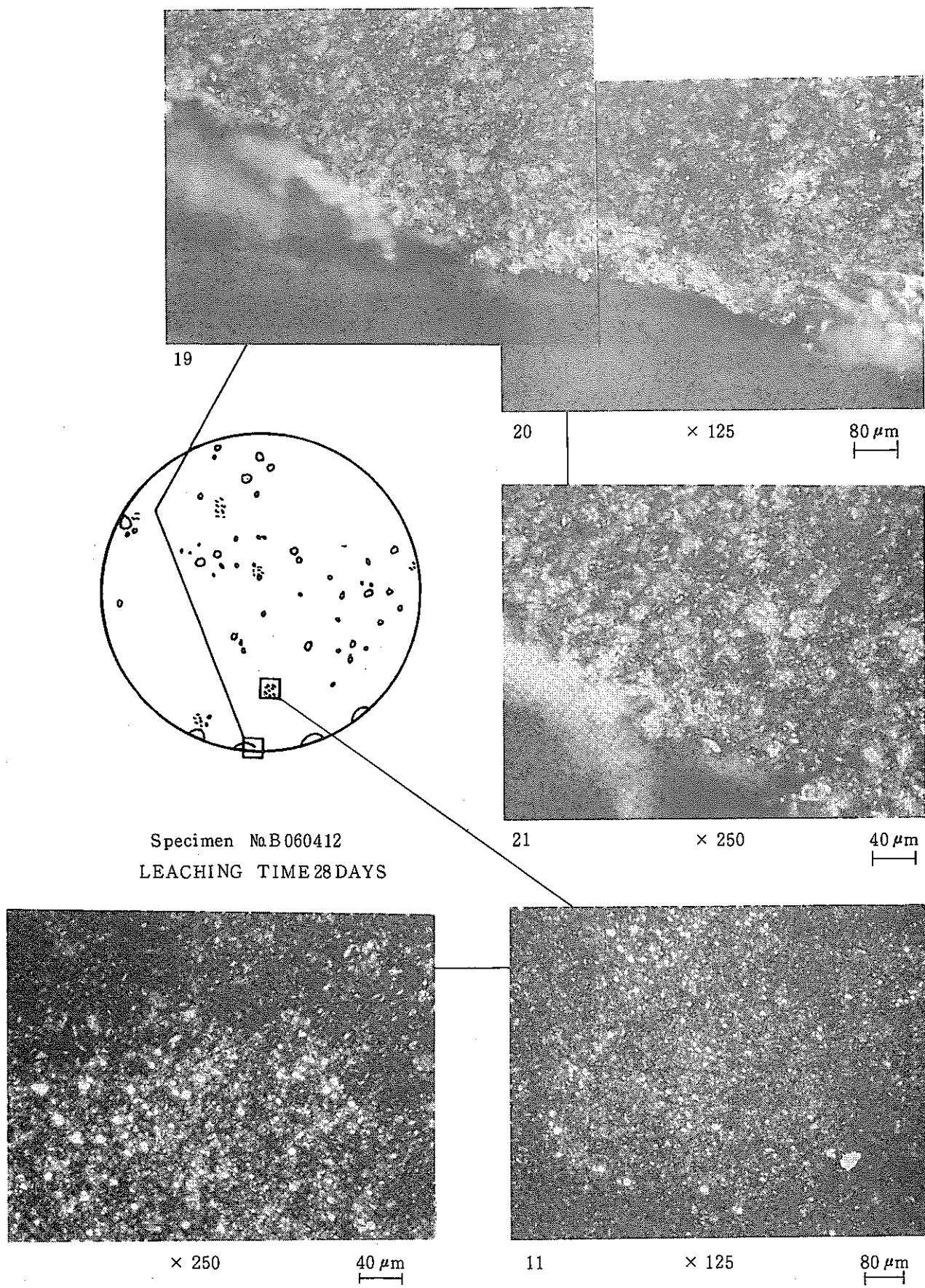


Photo 3-5 浸出試験後試料光学顕微鏡写真(第6ラン固化体)