

六ヶ所再処理工場のガラス固化試験と新型炉開発

兼平憲男*1

六ヶ所再処理工場におけるガラス固化施設は2007年からアクティブ試験を実施したが、白金族元素の沈降・堆積による流下不良等の幾つかの技術的課題により一時中断した。その後のモックアップ試験成果により設備や運転管理方法の改善を行い、2012年5月からアクティブ試験を再開した結果、安定した運転を可能にした。一方、原燃は炉底部の構造を大幅に変更した新型ガラス溶融炉の開発を実施しており、試作機のモックアップ試験を完了、良好な結果を得ている。本報告では、再処理工場におけるガラス固化試験の完遂と新型ガラス溶融炉の開発状況について報告する。

Keywords: 六ヶ所再処理工場, アクティブ試験, ガラス固化施設, ガラス溶融炉, 新型ガラス溶融炉, 白金族元素

The vitrification facility in Rokkasho Reprocessing Plant started the active tests to solidify HAW into the glass in 2007 which was the examination of the final stage before the operation, but the active test had to be discontinued due to the trouble of glass melter operation with down of pouring by deposit of noble metals on the melter bottom. After the equipment and operating conditions were improved in response to the result of the mock-up tests, a series of active tests were restarted active tests in May, 2012. These tests were finished with enough confirmation of stability in the state such as glass temperature and controlling the noble metals. JNFL has been developed the advanced melter, Joule heated ceramic melter, and the design of the advanced melter is largely different from the existing one. For the confirmation of the advanced melter performances, the full-scale inactive tests had been performed and successfully finished.

This paper describes outline of development for advanced melter in Rokkasho Reprocessing Plant.

Keywords: Rokkasho reprocessing plant, Active test, Vitrification Facility, glass melter, Advanced glass melter, K2MOC, noble metals

1 緒言

六ヶ所再処理工場では、試験運転の最終段階として使用済核燃料を用いたアクティブ試験を2006年3月より開始し、2007年11月より高レベル放射性廃液をガラス固化処理する試験（以下、「ガラス固化試験」という。）を開始している。このガラス固化試験では数々のトラブルに遭遇したが、顕在化した技術的課題について徹底的に原因究明を行うとともに、対策の検証を積み重ねて2013年5月、約5年半に及ぶガラス固化試験を完遂した。

一方、ガラス固化試験において発生したトラブルを含めて、より安定した処理運転を達成するため独自に新型ガラス溶融炉の開発にも着手している。

2 施設概要とガラス固化試験の経緯

2.1 ガラス溶融炉の概要

六ヶ所再処理工場のガラス溶融炉は、直接通電によるジュール加熱を使うセラミックメルタ方式（LFCM方式；Liquid Fed Ceramic Melter）を採用している。

図1に六ヶ所再処理工場の固化セルおよびガラス溶融炉の鳥瞰図を示す。ガラス溶融炉は耐火レンガで構成された溶融槽とその外側を金属製のケーシングで覆った構造であり、溶融槽には対向する壁面に主電極と補助電極がそれぞれ一対ずつ、炉底部には底部電極が設置されており、底部電極の下に流下ノズルが設置されている。ガラスの溶融は電極間に通電することによるジュール加熱により行い、上部に設置した電気ヒータ（間接加熱装置）による加熱を補助的に使用することにより気相温度を調整する。ガラスを

流下するときは流下ノズルを加熱し内部のガラスを溶融して流下し、停止するときは加熱をやめ流下ノズルに空気を吹付けて停止させる。

ガラス溶融炉には高レベル放射性廃液を供給するため高放射線環境となり、人が直接メンテナンスすることができないためパワーコンピュータと呼ばれるロボットアームを使って遠隔操作で実施する。

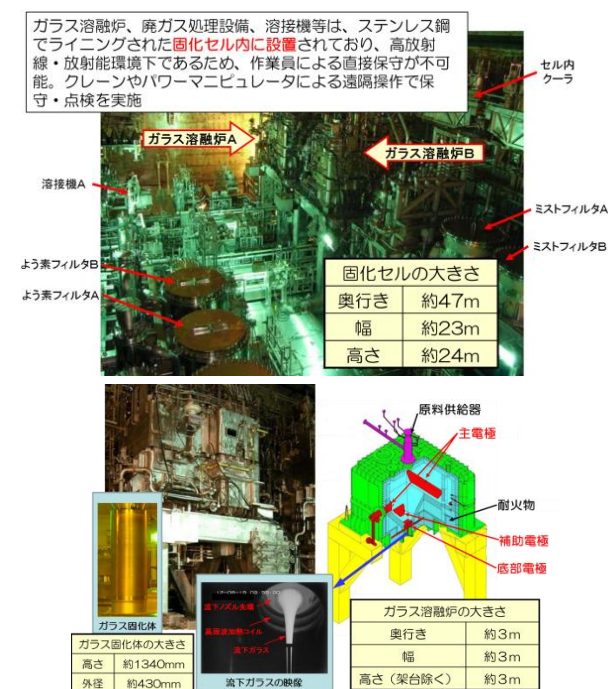


図1 六ヶ所再処理工場の固化セル（上）、ガラス溶融炉鳥瞰図（下）

2.2 ガラス固化試験の経緯

再処理工場のアクティブ試験は処理する使用済燃料の燃焼度を段階的に高くしながら実施しており、ガラス固化試験は使用済燃料の燃焼度が比較的高くなった段階で開始した。ガラス固化試験の開始後、高レベル放射性廃棄物に含

Current Status of the Active Test at RRP and Development Programs for the Advanced Melter by Norio KANEHIRA (norio.kanehira@jfnl.co.jp)

*1 日本原燃株式会社

Japan Nuclear Fuel Limited (JNFL)

〒039-3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駈字沖付4番地104

本稿は、日本原子力学会バックエンド部会主催第32回バックエンド夏期セミナーにおける講演内容に加筆したものである。

まれる白金族元素（Ru, Rh, Pd）が炉底部へ沈降、堆積してガラス流下性が悪化する事象が発生した。対策の検討を行い運転方法の改善を図ったものの、次に実施した試験においても同様にガラスの流下性が悪化し、安定的な運転の継続には至らなかった。さらに、流下ガラスによる流下ノズル閉塞やガラス溶融炉の天井レンガの一部損傷など設備に関するさまざまなトラブルにも遭遇した。図2にガラス固化試験の経緯を、図3にアクティブ試験の時系列を示す。

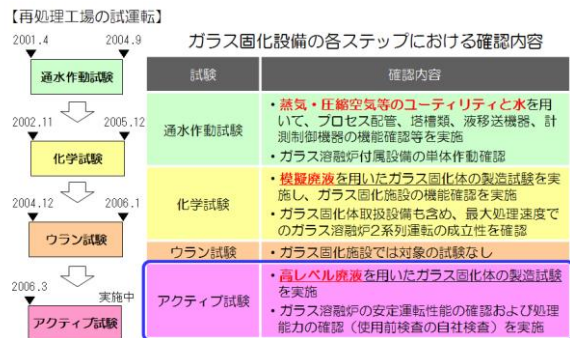


図2 ガラス固化試験の経緯

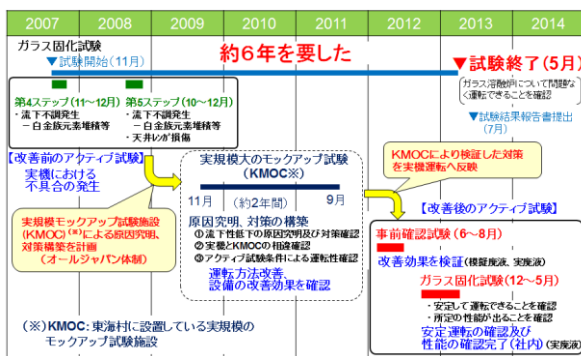


図3 アクティブ試験の時系列

設備トラブルについては、遠隔技術を駆使して処置を行い復旧しており、特にガラス溶融炉の天井レンガの一部損傷に関しては、天井レンガの一部が剥離して落下したものであるが、遠隔操作によるレンガ回収装置を短期間で開発するなどして対応した。なお、ガラス溶融炉については安全に運転できることを確認したうえで以降の試験を実施している。

一方、ガラス溶融炉の運転方法の改善については、白金族元素が炉底部へ沈降、堆積しないよう溶融ガラス温度を適切に監視しコントロールすること、ガラス流下性を確保するため流下ノズルの温度を上昇させることなど、設備改善もあわせて検討した。対策の検討はガラス関係の研究機関、大学、企業等の有識者にも積極的に意見を伺うなど協力を得て取り組んだ。

これらの対策について、ガラス溶融炉の開発時代に製作された JAEA（日本原子力研究開発機構）の東海事業所にある実規模大のモックアップ溶融炉（以下、「KMOC」という。）を活用し、対策の効果を検証する試験を約2年間に亘り行い、KMOCにより検証した運転方法と設備改善を六ヶ所再処理工場のガラス溶融炉（以下、「実機溶融炉」とい

う。）に反映してガラス固化試験を再開した。

再開後のガラス固化試験では、改善効果を確認するための試験として「事前確認試験」を先行して実施し、ステップ・バイ・ステップで効果の一つずつ確認した上で「ガラス固化試験」を実施し、2013年5月にガラス固化試験を完了した。

3 運転改善とガラス固化試験結果

3.1 ガラス溶融炉の運転管理

(1) ガラス温度の監視と仮焼層形成

ガラス溶融炉内では、高レベル放射性廃液とガラス原料（ビーズ形状）が混合され加熱されることにより、廃液の水分の蒸発・脱硝・酸化等の反応が起こるとともにガラス原料が溶融し廃棄物成分と混ざり合う。この過程で形成される層を「仮焼層」と呼んでいる。一旦、仮焼層となった廃棄物成分とガラス原料はその後さらに加熱されガラス化し、廃棄物成分を含有したガラスとなる。

ガラス溶融炉の運転では、溶融炉内の熱的なバランスを保つために、この仮焼層が非常に重要である。仮焼層の存在によりジュール加熱して溶融したガラスは効率的に高温で維持することができる、つまり仮焼層は「蓋」の役割を果たしているのである。

仮焼層が厚く形成されると溶融ガラスから気相への熱逃げがなくなりガラス温度が過剰に高くなるが、仮焼層が薄いと気相への熱逃げが多くなりガラス温度が低くなる。適度な厚さの仮焼層を形成して維持するためには、ガラス温度、気相温度を適切な目標温度に調整する必要がある。図4にガラス溶融炉の運転概要を示す。

- ガラス溶融炉運転は、ガラス温度と気相温度を目標範囲内に制御する必要がある
①主電極間電力（ジュール加熱）と②間接加熱電力によって調整
- これまでの経験から、温度制御には仮焼層のコントロールが重要

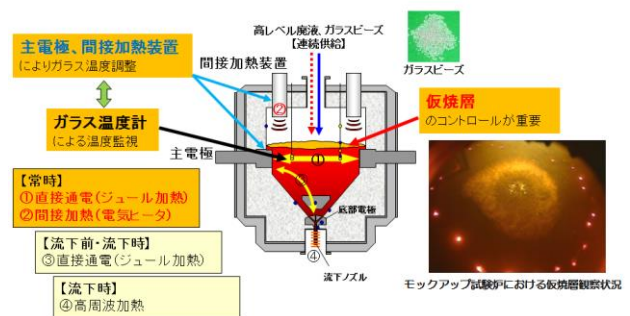


図4 ガラス溶融炉の運転概要

(2) 白金族元素の挙動管理

高レベル放射性廃液中に含まれる白金族元素はガラスへの溶解度が低く、溶融ガラス中では粒子状で存在しておりガラスより比重が大きいため沈降しやすい性質がある。また、白金族元素が炉底部に沈降して濃度が上昇するとガラスの粘性が増加して流動しにくくなると共に、沈降した白金族元素に電流の一部が流れてしまいガラスを加熱するためのジュール発熱に影響を与えるというガラス溶融炉の運転においては非常に厄介な物質である。

白金族元素の沈降を抑制するため炉底部温度は低めに維持して運転するが、流下操作を行うためには炉底部を加熱する必要がある。運転管理においては、炉底部温度を流下に必要な温度まで短時間で上昇させ、流下操作を完了したら直ちに炉底部を冷却し、白金族元素の過剰な沈降を抑制する運転方法を採用している。これを「炉底低温運転」と呼んでいる。図5に炉底低温運転の概要を示す。

炉底部温度の調整方法は補助電極と底部電極の空気冷却により行っているが、炉底部の加熱、流下、冷却を繰り返しながら炉底部を適正な温度に調整するためには、きめ細かな冷却空気流量の調整が必要となる。

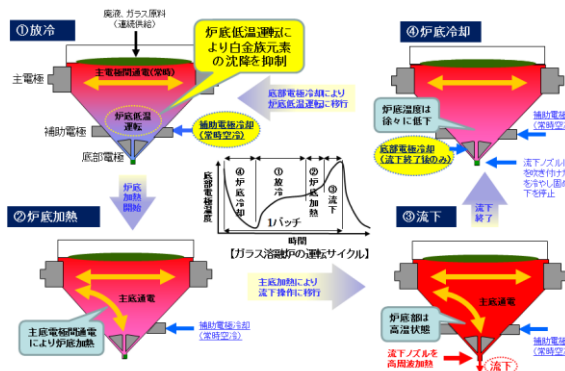


図5 炉底低温運転の概要

(3) 設備と運転方法の改善

① ガラス温度測定点の追加

ガラス固化試験の開始段階で発生した流下性の悪化は、適切な仮焼層形成ができず、ガラス温度が安定しなかったことが直接原因であった。仮焼層が安定しない要因は熔融ガラス温度の測定点が1点のみであり温度を的確に把握できていなかったことが考えられた。KMOCにおいて従来より深い位置で熔融ガラス温度を計測した結果、平均的に高くかつ比較的安定した温度を測定できることを確認した。この結果を踏まえて、実機熔融炉においても従来より深い位置の計測ができるよう温度計測点を追加するとともに、温度監視の信頼性を高めるため、同じ深さで水平方向の別の位置でも熔融ガラス温度が計測できるよう温度計を追加する改造を行った。

② 流下ノズル温度上昇対策

ガラス熔融炉は運転中、負圧を維持しているためケーシングの貫通部やフランジの隙間からインリーク（微小の空気吸込み）があり流下ノズル温度が低くなっている。流下ノズル温度を高く維持することができれば流下しやすくなるため、流下ノズル周辺のインリークを抑制する改善方法を検討した。具体的にはケーシングと流下ノズルの隙間に断熱材を施工したのであるが、これを KMOC により検証した結果、流下性が向上することが確認されたため実機熔融炉にも適用した。

③ その他の改善

上述した改善のほか、以下の事項について KMOC で検証し実機熔融炉へ反映している。

- ・主電極電力と間接加熱電力の調整についてガラス熔融

炉の運転状態の熱バランスを評価する専用プログラムを導入

- ・熔融炉内における白金族元素の沈降状態をより的確に把握するためにガラス流下速度や電気抵抗値、炉底加熱性などについて運転指標を定めた
- ・運転指標に基づいて白金族元素の沈降が進行した場合に、高レベル放射性廃液の代わりに模擬廃液を供給することによる白金族元素の抽出し運転（以下、「洗浄運転」という。）が実施できる設備を設置、白金族元素の炉底部への堆積を予防するため定期的な洗浄運転を実施

また、KMOC において2年間に亘って実施した試験を通してガラス熔融炉の運転操作に習熟したことも大きな成果の一つと考えている。図6に設備と運転方法の改善を示す。

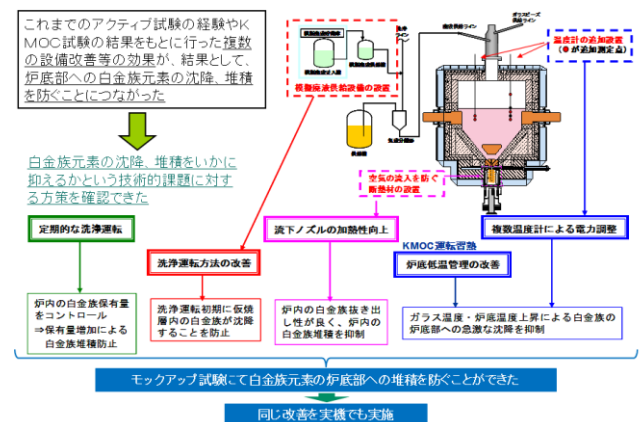


図6 設備と運転方法の改善

(4) ガラス固化試験結果

再開後のガラス固化試験は、改善効果を実機熔融炉で確認するための「事前確認試験」と、安定運転やガラス熔融炉の処理能力を確認する試験とを分けて実施した。事前確認試験では模擬ガラスや模擬廃液を使用して改善効果の確認を行い、KMOC と実機熔融炉の熱特性の違いを踏まえて運転条件の微調整を行った。

ガラス固化試験における安定運転確認では、10 バッチごとに洗浄運転を行いながら合計で 25 バッチの処理運転を行い、ガラス温度、気相温度、炉底温度とも所定の管理目標範囲内に収めることにより良好な流下性を維持することができた。また、処理能力確認では、高レベル放射性廃液 70L/h 以上を供給して処理できることを確認し、2013 年 5 月にガラス固化試験を完遂した。図7に改善後のガラス固化試験の結果を示す。

4 新型ガラス熔融炉の開発状況

本章では、日本原燃㈱がガラス熔融炉高度化研究として、白金族元素の堆積の抑制、流下性の向上等を目指して開発を進めてきた各種ガラス固化技術開発の成果について報告する。

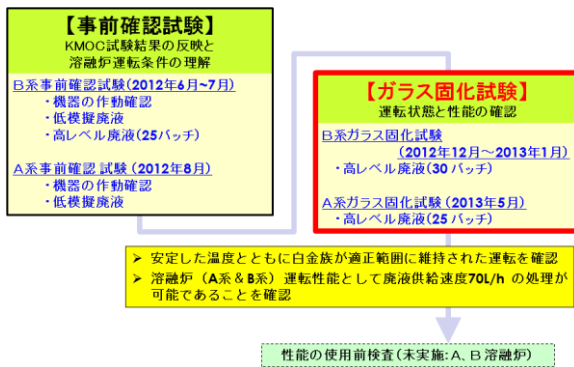


図7 改善後のガラス固化試験の結果

4.1 開発の背景

六ヶ所再処理工場に設置している現行型のガラス溶融炉のアクティブ試験において、幾つかの技術的課題が発生した。設備の不具合を除き以下の2事象に代表される。

- ① 炉底傾斜部に白金族元素が沈降、堆積すると、白金族元素堆積部に電流が選択的に流れ、炉底ガラスの加熱性が低下し、増粘することで流下性能が悪化する事象
- ② ガラス溶融炉内に溶融炉の運転等に影響を及ぼすイエローフェーズ (Yellow phase, 以下「YP」という。)が発生した事象

これら事象は、炉内温度管理を厳密に行い、定期的に模擬廃液を溶融炉に供給して白金族元素の炉内濃度を低下させる、実廃液に調整液と呼ばれる添加剤を加えることでYPを形成する成分濃度を低下させて発生を抑制する等の運転管理によって事象発生を防止している。このように現行型のガラス溶融炉は KMOCC 試験やアクティブ試験を通じて一部の設備改造や運転管理技術の改良によって安定的に運転できることを確認している。一方、本ガラス溶融炉は設計寿命が5年程度であり、その更新時期に合わせて、ガラス素材自身やハード設計により事象の発生を抑制できる、より性能の高い新型ガラス溶融炉を導入することを目標に開発を実施した。図8に新型ガラス溶融炉の開発目的を示す。

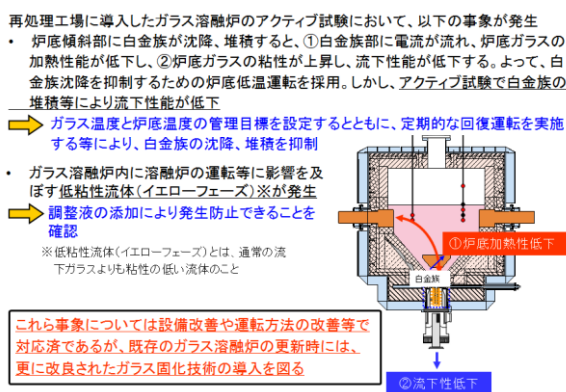


図8 新型ガラス溶融炉の開発目的

4.2 開発内容について

改良されたガラス固化技術の開発の中で現行型ガラス溶融炉の性能を向上させるため、以下の項目を重点に置いた

開発を進めた。なお、開発には現行型ガラス溶融炉の KMOCC 試験やアクティブ試験で得られた知見や改善点をすべて反映する。

(1) 新ガラス素材の開発

- ① より多くの高レベル廃液中の廃棄物成分等を充填可能な新しいガラス素材の開発
- ② YPの発生を抑制可能な新しいガラス素材を開発

(2) 白金族元素の抜き出し性の向上

- ① 現行型ガラス溶融炉の設計を変更し、白金族元素の沈降、堆積抑制を図れるガラス溶融炉の構造や炉底部加熱方法等の開発
- ② ガラスを溶融する性能や炉内モニタリング性能等を向上させる要素技術の開発
- ③ 上記を踏まえた実規模の新型ガラス溶融炉の設計、製作
- ④ 開発を補完するガラス溶融炉解析コード、物性等の基礎データ取得の拡充

4.3 開発マネジメント

(1) 開発方法

- ① 新ガラス素材の開発においては、候補となるガラス素材について実験室規模での試験（るつぽ試験）や小型溶融炉等を用いた試験を段階的に進めて評価を行い、最終的には新型ガラス溶融炉の実規模モックアップ試験により性能を確認する計画とした。
- ② 新型ガラス溶融炉の開発においては、ガラス溶融炉の構成技術である炉底部技術および炉内要素技術の開発を進めるとともに、それらを反映した新型ガラス溶融炉の実規模モックアップ試験炉の設計・製作を行い、また、ガラス物性等の基礎試験で得られた基礎データ等を元に高度化したガラス溶融炉解析コードを用いて実規模モックアップ試験方法の検討に利用した。開発の最終段階では、実規模の試験用ガラス溶融炉を運転した成果に基づいて性能を評価する方法を採用した。図9に開発フローを示す。

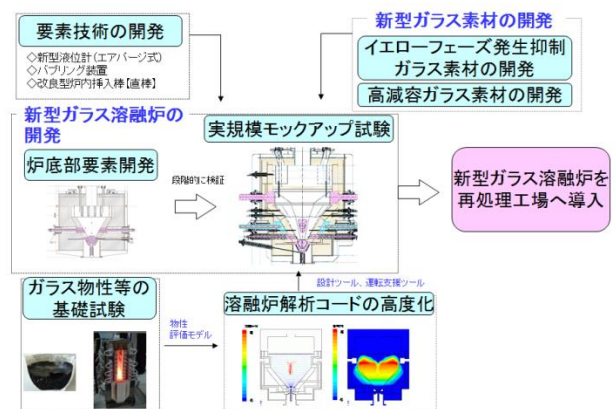


図9 開発フロー

(2) 開発体制

日本原燃は本開発の実施にあたり、試験計画の策定、実施、評価等について総括的に管理を行っており、新型ガラ

ス溶融炉の開発に係る専門的・工業規模での試験を六ヶ所再処理工場のガラス溶融炉の設計・製作・試運転の実績を有するメーカーに、基礎的研究を大学・研究機関・メーカーに請負または委託した。

また、日本原燃は本研究開発の遂行にあたり、ガラス、製鉄溶鋳炉および原子力の専門家等の外部有識者から構成されるガラス固化技術研究評価委員会を開催し、都度開発の方向性、試験の計画策定、成果等において評価・助言を受けた。図 10 に開発体制を示す。

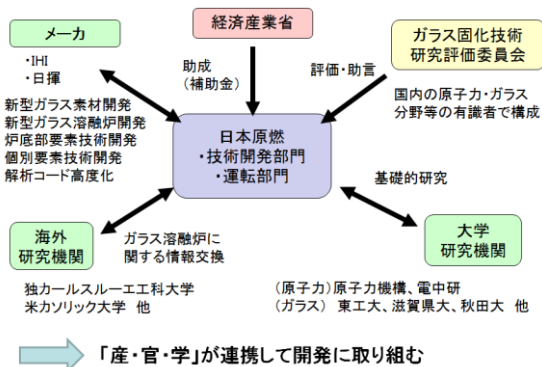


図 10 開発体制

(3) 研究開発計画

開発は 2009 年度から開始し、2011 年度末までに新ガラス素材開発や新型ガラス溶融炉の構成技術である各要素技術開発を完了させており、炉底部技術開発等の部分モックアップ試験の結果や現行型ガラス溶融炉のアクティブ試験結果等を十分に設計反映した後、2012 年度末までに試験用の新型ガラス溶融炉（以下、「K2MOC」という。）の製作を完了した。ガラス溶融炉解析コードによる運転方法等の事前解析を行った後に 2013 年度 11 月から模擬廃液を用いた実規模モックアップ試験を開始した。図 11 に研究開発スケジュールを示す。

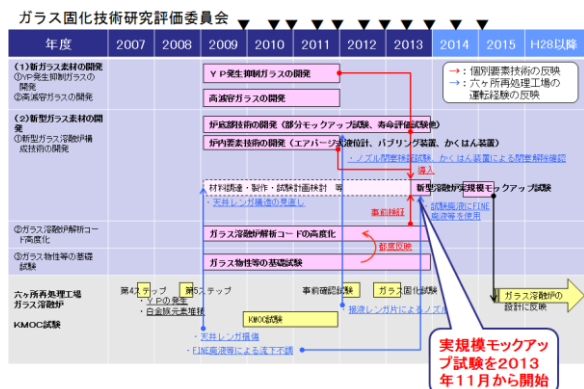


図 11 研究開発スケジュール

4.4 新型ガラス溶融炉の開発

(1) 主な改良点

新型ガラス溶融炉には、白金族元素の流下性を向上させるため、電極構造を円型、それに伴い炉底部の形状をこれまでの四角すい・45° 傾斜から円すい・60° 傾斜に変更し、さらに底部電極高周波加熱装置等の炉底部の加熱手段を追

加している。これらの新型ガラス溶融炉に導入するガラス固化技術については、炉底部部分を模擬したモックアップ試験装置等による試験で効果の検証を事前に行っている。図 12 に現行ガラス溶融炉と新型ガラス溶融炉の構造の比較および底部電極高周波加熱装置を示す。

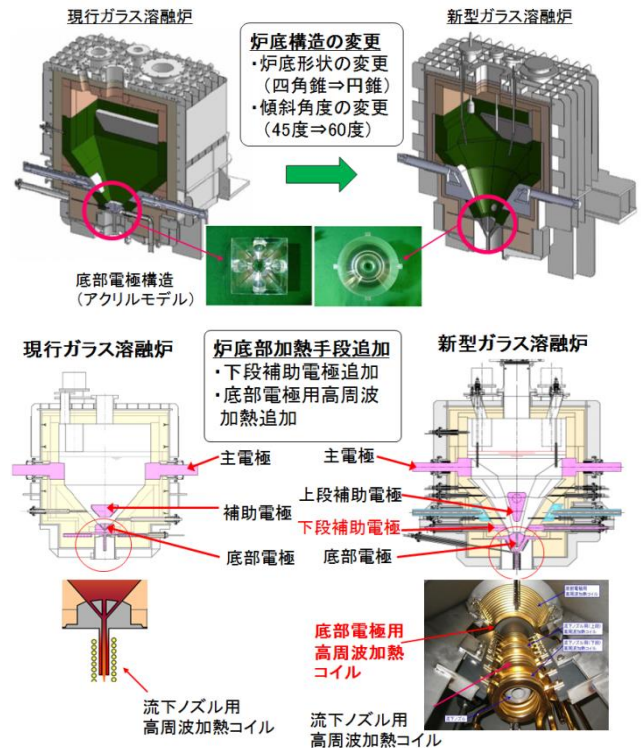


図 12 現行ガラス溶融炉と新型ガラス溶融炉（K2MOC）の構造の比較（上）、底部電極高周波加熱装置（下）

(2) 要素技術および新ガラス素材の開発

① 要素技術の開発

新しい要素技術の開発として、白金族元素の炉底部への堆積時における対策、炉内のガラス保有量の正確な把握、YP の発生抑制対策として、それぞれかくはん装置、エアパージ式液位計、バブリング装置を開発した。

② 新ガラス素材の開発

アルミニウム（Al）、ケイ素（Si）等の原料ガラスビーズ中のガラス成分の一部を廃液側に分配し、ガラスの溶解性を高める方法（再分配法）により、廃液中に含まれるモリブデン（Mo）酸塩等と原料ガラスビーズの初期の溶解反応速度を向上させて YP 発生抑制できる新素材の開発を行った。

4.5 新型ガラス溶融炉のモックアップ試験

(1) 試験計画について

上述のガラス溶融炉構成技術は、総合的な効果の検証のために、高レベル放射性廃液の成分・組成を非放射性の成分で模擬した、模擬ガラス、低模擬廃液、高模擬廃液（白金族元素を含む模擬廃液）を K2MOC に供給して段階的に溶融試験を行い、炉の熱特性把握、白金族元素の抜き出し性、ガラスの流下性等を確認した。

モックアップ試験は試験目的に応じて試験フェーズを設

定し、データを取得しながら段階的に実施している。得られた試験成果で総合的に評価を行い、更新用のガラス溶融炉の設計に反映する計画である。

① 第一段階試験（K2MOC 試験フェーズⅠ）

新型ガラス溶融炉における基本特性の把握や改良項目の効果の確認を実施。炉内温度分布や運転方法は性能の比較を行うため、現行型ガラス溶融炉と可能な限り同じにした。

② 第二段階試験（K2MOC 試験フェーズⅡ）

第一段階試験の結果を踏まえ、前半試験では新型ガラス溶融炉に適した運転方法を確立、連続的な安定運転性を確認した。また、現在実施中である後半試験では設計条件での運転性及び最大処理能力等を確認した。図13に新型ガラス溶融炉のモックアップ試験計画を示す。

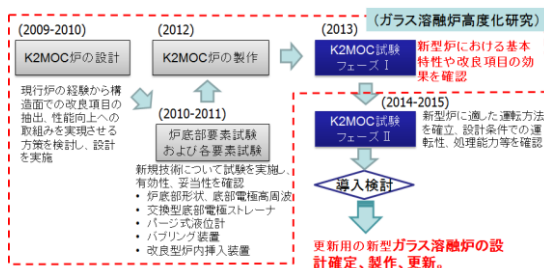


図13 新型ガラス溶融炉のモックアップ試験計画

(2) 試験結果について

① 温度管理

高模擬廃液試験の温度推移は、フェーズⅠ、Ⅱ試験ともに各ガラス温度計指示値をもとに主電極電力、間接加熱電力を調整することで、ガラス温度および気相温度を目標温度に制御することができた。また、炉底部の温度管理についても高周波加熱装置等を用いた炉底加熱、放冷を繰り返し安定して運転することができた。

② ガラスの流下性

バッチ毎に、ガラス流下時の流下速度が50kg/hに到達した時間の推移を図14に示す。本到達時間は、現行ガラス溶融炉において、白金族元素の堆積によりガラス流下速度が顕著に悪化する前に回復運転（洗浄運転）に移行するための流下性低下の判断指標として用いている。試験の結果、アクティブ試験（2008年10月）と比較して、フェーズⅠ、Ⅱ試験ともに流下開始後数分程度で流下速度50kg/hに到達しており、流下回数を重ねても流下性は良好であり、白金族元素が炉底部に堆積した傾向は確認されなかった。現行型ガラス溶融炉では定期的な洗浄運転を実施することで白金族元素の堆積を抑制し、安定した継続運転が実現できていることに対して、新型ガラス溶融炉では洗浄運転を行わずに40バッチの連続運転を実現した。

5 まとめ

2007年より開始した六ヶ所再処理工場のガラス固化試験では数々のトラブルに遭遇したものの、国内のガラス関係研究機関、大学、企業等の協力も得ながらKMOCにより改善の効果を検証し、2013年にガラス溶融炉の安定運転

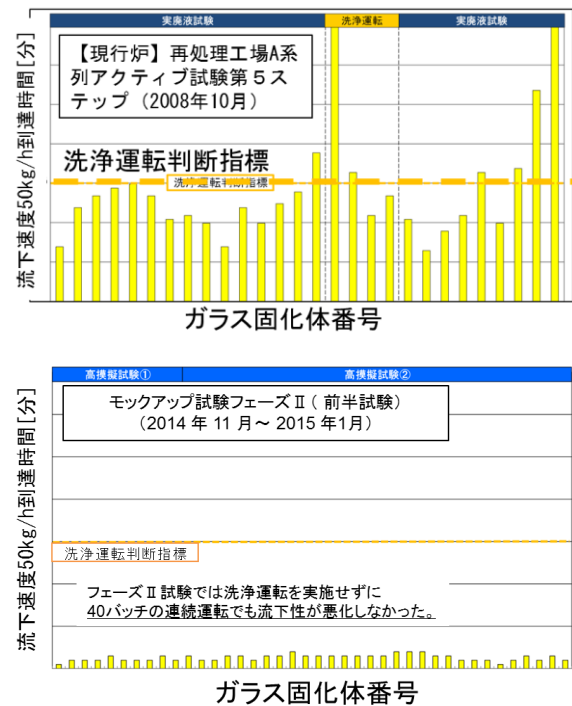


図14 流下速度が50kg/hに到達する時間
アクティブ試験（上）、K2MOC試験フェーズⅡ（下）

試験、処理能力試験について完遂した。

また、2009年度から開始した新型ガラス溶融炉の開発は、各技術の開発を段階的に進め、フルスケール規模の試験用ガラス溶融炉の製作を行った後に模擬廃液を用いた実規模モックアップ試験を2013年度から実施している。構造変更に伴う溶融炉の熱的特性の把握、底部電極高周波加熱装置を用いた炉底部加熱性、白金族元素の抜き出し性等の現行型ガラス溶融炉から改良設計した項目が現行型ガラス溶融炉よりも優れた性能を示すことを確認した。K2MOC試験フェーズⅡの終了後に技術導入検討を実施し、現在は更新用ガラス溶融炉の設計を実施中である。

参考文献

- [1] 第1回核燃料サイクル関連分野に係る技術に関する施策・事業評価検討会使用済燃料再処理事業高度化補助金に係る事業評価用資料 資料6
- [2] Hiroshi Sugiyama, Noriyasu Moriya, Yuji Tanaka, Eiji Ochi, Mock-Up Test for Development of an Advanced Melter, Proceedings of GLOBAL 2011, Paper No. 442223.
- [3] 核燃料サイクル技術の安定性に関する検討 第一ステップ 再処理工場におけるガラス固化設備の安定運転実現に向けた見通しの技術評価 報告書（平成25年9月）、エネルギー総合工学研究所
- [4] 第10回 再処理・リサイクル部会セミナー 報告 (http://www.aesj.or.jp/~recycle/2015_semi_05.pdf)
- [5] 大久保哲郎, 兼平憲男: 原子燃料サイクル施設における技術開発の現状. 電気評論 2016年2月号, pp.59-66
- [6] Satoshi Komamine et al, Full-Scale Inactive Test of the Advanced Melter in RRP, Proceedings of Global 2015 September 20-24, 2015 - Paris (France) Paper No.5193