

ガラス溶融炉における白金族及びYP挙動の仮焼層形成状態に基づく評価

Evaluation of noble metal and YP behavior based on the cold cap formation in glass melter

*吉岡 正弘¹, 渡邊 裕介¹, 山崎 淳司¹

¹日本原燃株式会社

これまで六ヶ所ガラス固化施設の実規模モックアップ試験において溶融炉型(現行炉/新型炉)や供給廃液へのDBP等添加条件をパラメータに安定運転条件及び運転影響を確認してきたが、それらの結果から仮焼層形成状態により仮焼層下の温度が変化し、白金族やイエロフェーズ(YP)の沈降挙動に影響を与えることが推定された。

キーワード: ガラス固化, 高レベル廃液, 白金族元素, イエロフェーズ, 仮焼層, Ru 針状晶, 新型炉

1. 緒言

これまでの試験で底部に沈降した白金族量の比較を行った結果、DBP添加無では新型炉(K2MOC)が均一混合モデルに従う抽出しに対して現行炉(KMOC)は最初から高い濃度で抽出し(沈降)量が多かった。また、沈降量の少ないK2MOCでもDBPを添加すると沈降量が増大した。DBP添加等は、仮焼層を増大させる(断熱性大)ことから白金族沈降量の増大は、仮焼層の形成状態が影響していると推定された。

2. 試験(評価)

KMOC及びK2MOC炉の試験運転データの評価により、仮焼層増大とともにRuO₂針状晶が生成する溶融界面(仮焼層下部)の温度が低下し[1]、かつ白金族沈降量が増加すること(図1)を確認した。これは、溶融界面を含む仮焼層下部の温度が仮焼層の大きさに依存し、その温度が低い(仮焼層が大きい)場合には生成したRu針状晶の高粘性による保持時間が長くなり、その成長が進みサイズが増大するとともに、流下による高温部への降下後の低粘性による凝集[2]によって白金族の底部への沈降性が加速されるという白金族沈降増大のメカニズム(図2)により説明できる。白金族各元素の沈降量は底部沈降濃度を供給濃度で除した底部沈降比率で評価するが、Ruはオフガス系への移行量が他元素より大きく、かつ比重の小さい酸化物に変換するため他元素に比し小さくなる筈である。しかし、Ru針状晶が成長すればRuの底部沈降比率が他元素より大きくなることが想定されるため、仮焼層増大に関連するDBP濃度、バブリング有無及び溶融速度の影響を新型炉の運転により確認した。

3. 結果・考察

RuとRh及びPdとの沈降量比較を安定したRhとの比(Ru/Rh)を用いることとし、DBP添加等のRu沈降割合増加への影響を調べた。その結果、新型炉ではDBPよりも溶融速度増加の影響が最も大きくなること(図3)から、仮焼層の形成状態により同下部温度がRu針状晶の成長に影響して白金族全体の沈降性に寄与するメカニズムを確認した。なお、仮焼層増大時には主電極レベルのガラス温度も上昇するため、同レベルに落ちてくるまでの針状晶成長によるRuO₂のサイズ増大に加えて粘性低下による沈降速度増大により、底部への白金族沈降量が著しく増大するものと推測される。したがって、安定した溶融炉運転には過度の仮焼層増大を引き起こす運転は避けるべきであり、溶融炉の開発面からは処理能力を増加して仮焼層制御に裕度を持たせることが重要である。また、運転条件によるYP発生も同メカニズムにおいて仮焼層下部ガラスの粘性による凝集性[2]の違いからYP液滴が大きくなる程度によってガラスへの溶け込みが変化しYP発生に至ると推測される。

参考文献

- [1] Pokomy R., Hrma P., Model for the conversion of nuclear waste melter feed to glass, Journal of Nuclear Materials 445, 190 (2014)
 [2] 西川真、川合康太、竹下健二、中野義夫、日本原子力学会 2016 秋の大会、2F01

*Masahiro YOSHIOKA¹, Yusuke WATANABE¹, Atsushi YAMAZAKI¹

¹Japan Nuclear Fuel Limited

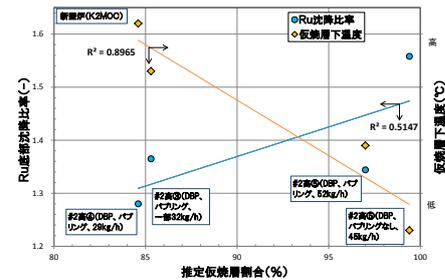


図1 仮焼層とRu沈降量及び仮焼層下部温度の関係

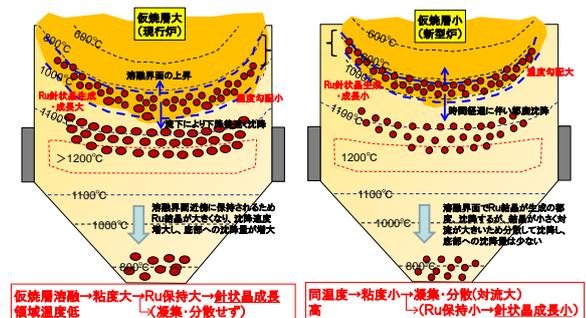


図2 白金族沈降増大の推定メカニズム

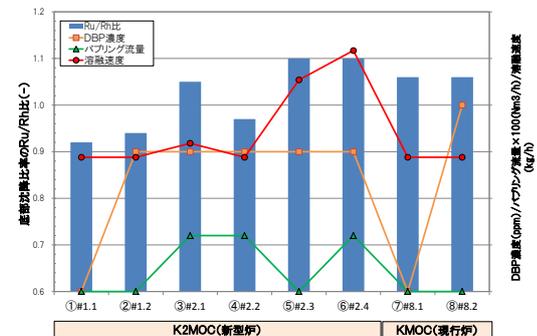


図3 仮焼層形成(Ru針状晶成長)への影響比較