

純水中への四酸化ルテニウムの吸収評価

Evaluation of RuO₄ absorption to the water

*柴田 勇木¹, 小玉 貴司¹, 大柿 一史¹, 鈴木 和則², 熊谷 幹郎²

¹日本原燃(株), ²(株)UI 技研

揮発性ルテニウム(RuO₄)の移行挙動に係る化学的特性について、これまで硝酸/亜硝酸水溶液に吸収された後の化学的形態の変化について報告しているが、本報では揮発性ルテニウムの物質移動係数等の測定を実施し、本試験で得られた物質移動係数を用いて揮発性ルテニウムを含むガスに水スプレーを接触させた場合の低減率を評価した。

キーワード：四酸化ルテニウム, 再処理, 重大事故, 物質移動係数, スプレー

1. 緒言

再処理工場の重大事故である冷却喪失時の蒸発乾固では RuO₄ の挙動が重要である。揮発した RuO₄ の挙動については凝縮液への吸収が大きな影響を持っていること^[1]、および、溶液中に吸収された RuO₄ は凝縮液中で亜硝酸により最終的にニトロシル Ru まで還元されることを報告している^[2]。本書では、気体の RuO₄ の液相への溶解特性を議論するために必要な、物理吸収による RuO₄ の物質移動係数を測定した。あわせて、これを用いた例として RuO₄ ガスに純水スプレーを噴霧した場合の低減率を評価した。

2. 実験

RuO₄ 含有空気をフラスコ内に 10 分通気した後、通気を継続しながらフラスコ内に所定濃度の硝酸 50mL を注入した。硝酸注入と同時にフラスコ内気相ないし気液両相の攪拌を開始した。20 分毎に吸収液からの試料採取、吸収液の交換を繰り返した。また、フラスコ下流にはガス吸収ビンを設置し、フラスコ外部へ流出した RuO₄ を回収した。試料中の RuO₄ は塩酸およびアスコルビン酸添加により固定化し、試験終了後 ICP-AES で定量した。

3. 結果

測定した溶液中の Ru 濃度および Sasahira により報告された Henry 定数^[3]を用いて、攪拌ありの場合は液面への物質移動係数を、攪拌無しでは RuO₄ の液相での拡散係数 D を無限深さの 1 次元拡散の式を用いて求めた。この結果を用いて Stokes-Einstein の関係式($\mu D = \text{一定}$; μ : 粘性係数)から純水における拡散係数を算出すると 20℃で $7.3 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ となり、各種物質の拡散係数と同程度の値となった。これにより RuO₄ と水との反応ないし解離が無く、密度差による沈降流の影響が無いことが確認できた。

4. 適用例

上記の結果に加え、放水機器メーカーのカatalog等から、放水装置で外部から建物内に水を吹き込んだとして DF=5000 を得るために必要な水量、液滴径および水温の関係を評価した。ここでは、液滴径 0.3~5mm, 最大水量 20000 L/min, 水温 10~30℃で 2 か所から放水することを想定して評価を行うこととし、液滴中の対流が無い(拡散律速)と仮定し、3.で算出した攪拌なしの拡散係数 D と粒径から算出した終端速度に基づく接触時間 t から、浸透説に基づいて物質移動係数 $2\sqrt{D/\pi t}$ m/s を与えた。

この結果を用いて、硝酸蒸気に同伴された RuO₄ ガスが流入する特定の領域に連続的に水を噴霧した場合の Ru の除去率を評価した結果、図 1 の関係が得られた。これにより、十分多量の水を微細化して噴霧することにより Ru を低減させることができること、除去の効率には水量、水温、液滴径が大きな影響をもつことが確認された。

5. 結論

RuO₄ が純水へ物理吸収する場合の吸収量を測定して物質移動係数を推定し、これを用いて RuO₄ ガスに純水を噴霧した場合の水量、水温、液滴径をパラメータとした評価を行った。今後、液滴径等を確認する予定である。

参考文献

- [1] T.Kodama, et.al., "Experiments on the leak path factor of ruthenium volatilized from high-level liquid waste tanks in a reprocessing plant in case of the boiling and drying accident", J Nucl.Sci.Technol, 52[4], 467-471(2015)
- [2] 柴田ら, 日本原子力学会「2014 年秋の大会」D35
- [3] A.Sasahira, et.al., "Application of "Hydration Model" to Evaluate Gas Phase Transfer of Ruthenium and Technetium from Reprocessing Solutions", J Nucl.Sci.Technol, 31[11] 1222-1229 (1994)

¹Yuki Shibata¹, Takashi Kodama¹, Kazushi Ogaki¹, Kazunori Suzuki² and Mikio Kumagai²

¹Japan Nuclear Fuel Ltd., ²UI Sciences Inc.

表 1 物理吸収による総括物質移動係数および拡散係数

硝酸濃度 M	攪拌	物質移動係数 $\times 10^{-6} \text{ m/s}$	拡散係数 $\times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$
10	有	2.2	-
10	無	-	4.1
10	有	1.4	-
4	無	-	7.0
4	有	1.4	-
2	有	1.3	-

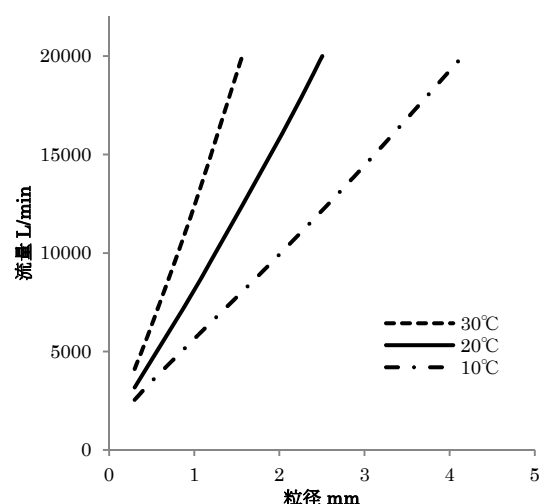


図 1 液滴径とスプレー流量の関係(DF:5000)