高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究
(3) 廃液の温度上昇に係る熱収支式の導出ならびに水および硝酸放出速度の検討

Study on the boiling and drying accident of HLLW
(3)Derivation of the heat-balance equation, and examination of the water and nitric acid release velocity

*小玉 貴司[1]，衣旗 広志[1]，熊谷 幹郎[2]，鈴木 和則[2]，林 慎一郎[2]，松岡 伸吾[2]
[1]日本原燃株式会社，[2]株式会社 UI 技研

再処理工場における高レベル濃縮廃液（HLLW）の沸騰乾固事故では H_2O，HNO_3，NO_2，NO および O_2 ガスも生成し、揮発性 Ru の環境放出に影響を与える。本報告では、HLLW が沸騰し 600℃の乾固状態に至るまでの温度変化および気相に放出される各種ガスの生成速度の変化を時間の関数として求めるため、冷却機能喪失後の HLLW の温度上昇に係る熱収支式の導出ならびに熱収支式の解に必要となる水および硝酸放出速度の検討を行った。熱収支式の数値解については、次報(4)に示す。

キーワード：ルテニウム，高レベル濃縮廃液，再処理

1. 緒言

冷却機能喪失後の HLLW の温度上昇に係る熱収支式を導出するとともに、六ヶ所再処理工場の HLLW を模擬した廃液を用いて、熱収支式の解に必要となる水および硝酸放出速度を求めた。なお、その他のパラメータについては、物性値または前報(1)[1)]から求めることが可能である。

2. 熱収支式の導出

冷却機能喪失後の HLLW の温度を θ、HLLW の貯蔵量（初期量）を M_0、核壊変による単位時間当たりの放出エネルギー量を R_h および貯槽から放出される γ 線による単位時間当たりの放出エネルギー量（γ－ヒーティング）を R_γ、時間 t における廃液中の水の量を $M_W(t)$および蒸発速度を $Y_W(t)$、水のモル熱容量を C_W および蒸発潜熱を $\lambda_W(\theta)$、時間 t における廃液中の硝酸の量を $M_N(t)$および蒸発速度を $Y_N(t)$、硝酸のモル熱容量を C_Nおよび蒸発潜熱を $\lambda_N(\theta)$、硝酸塩の量を M_S、硝酸塩の熱分解に伴う吸熱速度を $R_S(t)$、硝酸塩の熱容量を $C_S(\theta)$、貯槽構造物（貯槽および内部構造物）の質量を M_{ST} および熱容量を $C_{ST}(\theta)$、対流熱伝達による貯槽からセルへの放熱速度を $R_{loss1}(\theta)$、ふく射による放熱速度を $R_{loss2}(\theta)$、その和を $R_{loss}(\theta) = R_{loss1}(\theta) + R_{loss2}(\theta)$とすると、廃液温度（= 貯槽温度）については、(1)式で記述できる。

$$\Gamma(t)\frac{d\theta}{dt} = R_h - \{\lambda_W(\theta)Y_W(t) + \lambda_N(\theta)Y_N(t) + R_S(t)\} - R_{loss}(\theta) - R_\gamma \qquad (1)$$

(1)式で Γ(t) は HLLW および貯槽構造物から成る熱容量であり、(2)式で与えられる。

$$\Gamma(t) = c_W M_W(t) + c_N M_N(t) + c_S(\theta)M_S + c_{ST}(\theta)M_{ST} \qquad (2)$$

3. 水および硝酸放出速度の検討

3-1. 実験方法

六ヶ所再処理工場の HLLW を模擬した廃液 120mL を 300℃まで加熱し、水および硝酸の留出量を測定した。

3-2. 実験結果および考察

水の温度 θ における留出率 $\xi_W(\theta)$については、実験結果より(3) , (4)式で近似できる。

$$104 < \theta < 160\ ℃, \qquad \log_{10}\left[d\xi_W(\theta)/d\theta\right] = -0.04715\theta + 3.96 \qquad (3)$$

$$\theta > 160\ ℃, \qquad \log_{10}\left[d\xi_W(\theta)/d\theta\right] = -0.00410\theta - 2.975 \qquad (4)$$

水の蒸発速度 $Y_W(t)$については、水の積算留出量 $M_W(0)\xi_W(\theta)$の時間微分に等しく、(5)式で記述できる。

$$Y_W(t) = M_W(0)\frac{d\xi_W(\theta)}{dt} = M_W(0)\frac{d\xi_W(\theta)}{d\theta}\frac{d\theta}{dt} \qquad (5)$$

(5)式で $d\xi_W(\theta)/d\theta$ は(3), (4)式で与えられる。硝酸の蒸発速度 $Y_N(t)$も同様に求めた。

参考文献

[1] 高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (1)模擬廃液を用いた NO_2, NO および O_2 生成挙動の検討，日本原子力学会 2019 春の年会 予稿集 3D07

* Takashi Kodama[1], Hiroshi Kinuhata[1], Mikio Kumagai[2], Kazunori Suzuki[2], Shin-itiro Hayashi[2], Shingo Matsuoka[2]
[1]Japan Nuclear Fuel Limited, [2]UI Sciences Inc.