

高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (7) 凝縮液への NO₂ および揮発 Ru 吸収速度係数の測定実験

Study on the boiling and drying accident of HLLW

(7) Experiment to measure the absorption rate coefficient of NO₂ and volatile Ru in the condensate

*衣旗 広志¹, 小玉 貴司¹, 鈴木 泰博², 熊谷 幹郎³, 鈴木 和則³, 林 慎一郎³, 松岡 伸吾³
¹日本原燃株式会社, ²日揮株式会社, ³株式会社 UI 技研

高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の進展とともに RuO₄ が気相に放出される。RuO₄ の環境放出に至る経路での低減効果を検討するため、沸騰蒸気凝縮液への NO₂ 吸収速度係数および NO₂ を含む凝縮液への RuO₄ 吸収速度係数をフラスコ実験により求めた。LPF の評価結果については次報 (8) 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

再処理する使用済燃料の半減期が短い場合には、沸騰乾固事故において揮発性 Ru (¹⁰⁶Ru) の影響が大きくなるため、本報告では RuO₄ の環境放出に至る経路での低減効果 (LPF) を検討している。亜硝酸を含む凝縮液へは RuO₄ が効率的に吸収されるため、凝縮液へ NO₂ 吸収速度係数を求めた上で、NO₂ を含む凝縮液への RuO₄ 吸収速度係数を求めた。

2. 実験

RuO₄ 吸収速度係数 $k_{L,R}$ [m s⁻¹] を求めるための実験の装置概要を図 1 に示す。経路を模擬した 0.2 または 2 L のフラスコを保温 Box 内 (40~100°C) に設置し、130°C に加熱した NO₂ ガスおよび硝酸 (2~14 mol L⁻¹) 蒸気を導入した。フラスコ内を完全混合に近づけるために、攪拌装置を設置した。RuO₄ ガスについては硝酸ニトロシル Ru 試薬に酸化剤としての過マンガン酸カリウムを添加して発生させた。フラスコ内の凝縮液を適宜回収し、量, Ru 濃度および硝酸濃度を測定した。流出ガスはリービッヒ冷却管で凝縮させ、通過する残留 RuO₄ を HCl-エタノール水溶液を入れた吸収瓶で回収した。NO₂ 吸収速度係数 k_{L,NO_2} [m s⁻¹] を求めるための実験では、RuO₄ ガスを導入せず、流出ガスを N₂ で希釈して露点を室温以下とし、NO₂ 濃度を測定した。

3. 結果および考察

k_{L,NO_2} を求めるための実験では、気相側の物質移動抵抗は無視小であり、液本体中の NO₂ 濃度はゼロと見なせるため、 k_{L,NO_2} は凝縮液への NO₂ の吸収流束 ϕ_{NO_2} [mol m⁻² s⁻¹] を NO₂ の気相中分圧 p_{NO_2} [Pa] および Henry 定数 h_{NO_2} [mol m⁻³ Pa⁻¹] で割った値に等しく、 $k_{L,NO_2} = \phi_{NO_2} / (h_{NO_2} p_{NO_2})$ の関係があるため、 k_{L,NO_2} が求まる。 k_{L,NO_2} を硝酸濃度および温度の 2 変数に相関ありと見做し、(1) 式により整理した。相関式の決定係数は 0.79 であった。

$$\ln(k_{L,NO_2}) = 19.17 - 9,330 / (\theta + 273.15) - 0.188 C_N \quad (1)$$

RuO₄ の総括物質移動係数 K_R [mol m⁻² s⁻¹ Pa⁻¹] は RuO₄ 吸収流束 ϕ_R [mol m⁻² s⁻¹] を RuO₄ 分圧 p_R [Pa] で割った値に等しい。また、 K_R は気相物質移動係数 $k_{G,R}$ [mol m⁻² s⁻¹ Pa⁻¹]、 $k_{L,R}$, Henry 定数 h_R [mol m⁻³ Pa⁻¹] と $1/K_R = 1/k_{G,R} + 1/(h_R k_{L,R})$ の関係がある。熱と物質移動の相似を仮定し、 $k_{G,R}$ をフラスコ内の凝縮挙動を再現できる気体-凝縮液間の熱伝達率 α を用いて $4.1 \times 10^{-7} \alpha$ と推定すると、 $k_{L,R}$ が求まる。凝縮液酸濃度 C_N [mol L⁻¹] と (1) 式より予測した出口 NO₂ 濃度 y_{NO_2} [ppm] を説明変数として回帰分析を行い、(2) 式を得た。この式による予測値と実験値との比較を図 2 に示す。決定係数は 0.88 であった。

$$\ln(k_{L,R}) = -16.20 - 0.402 C_N + 1.173 \ln(y_{NO_2}) \quad (2)$$

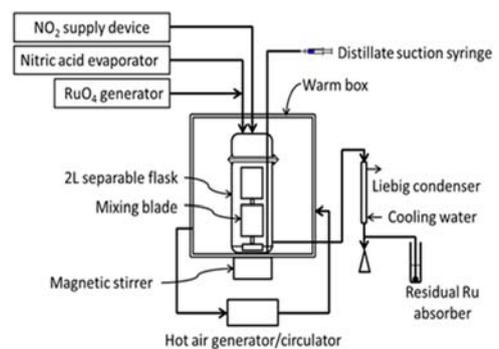


図 1 装置概要

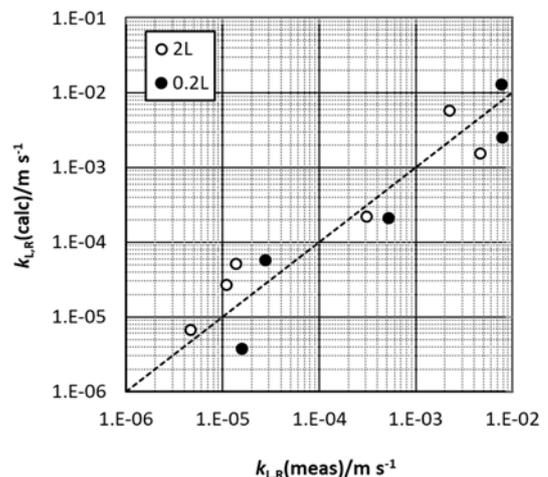


図 2 RuO₄ 吸収速度係数の
実測値と計算値の比較

* Hiroshi Kinuhata¹, Takashi Kodama¹, Yasuhiro Suzuki², Mikio Kumagai³, Kazunori Suzuki³, Shin-itiro Hayashi³, Shingo Matsuoka³; ¹Japan Nuclear Fuel Limited, ²JGC Japan Corporation, ³UI Sciences Inc.