

高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (8) 貯槽から放出された揮発性 Ru の移行経路における LPF の検討

Study on the boiling and drying accident of HLLW

(8) Examination of the LPF of volatilized Ru passing through a model pathway
from the storage tank to the environment

*熊谷 幹郎¹, 小玉 貴司², 衣旗 広志², 鈴木 和則¹, 林 慎一郎¹, 松岡 伸吾¹

¹株式会社 UI 技研, ²日本原燃株式会社,

高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の進展とともに水、硝酸、NO₂および RuO₄が気相に放出される。気相成分がセルに移行すると、冷却されて凝縮液が壁面に生成する。凝縮液に NO₂ および RuO₄ が吸収され、吸収された NO₂ から生成した亜硝酸が RuO₄ を還元する。本報告では、モデル経路の壁面で生成する凝縮液の温度、酸濃度および気相中の NO₂ 濃度を予測し、前報 (1) ~ (7) までの結果を利用して揮発性 Ru の LPF 評価を試行した結果を報告する。

キーワード: ルテニウム, 高レベル濃縮廃液, 再処理

1. 緒言

一連の報告の (1) および (2) では廃液が乾固する際に放出される NO_x, (3) および (4) では貯槽から排出される気体成分の経時変化, そして (5) および (6) では NO₂ と RuO₄ の凝縮液への吸収速度を報告し、(5) および (6) の内容を前報 (7) で取りまとめた。本報告ではこれらの結果を総合してセルに放出された揮発性 Ru の LPF 評価を試行した結果を報告する。

2. 貯槽排出気体の経時変化推定

報告 (3) および (4) で示したとおり、排出気体の大部分を占める水と硝酸の蒸発挙動は、昇温速度には依存せず温度によって決まっている。NO_x 生成速度を計算するための Arrhenius 型の式を別報告¹⁾で提案した。揮発性 Ru の生成については、水、硝酸と同様に温度で決まっていると仮定し、田代らの測定結果²⁾を参考にして 140℃ と 240℃ にピークを有する生成速度を仮定した。

3. 貯槽排出気体の凝縮条件推算

貯槽から再処理工場内のセル、通路等に排出された気体は、室温の空気と混合してミストを生成するが、大量の気体に置換されるため、すぐにミスト生成は終了する。気体中の蒸気は冷たい通路壁との接触によって冷やされ壁面で凝縮が起こる。凝縮温度と凝縮液の硝酸濃度は、凝縮液と気体との気液平衡で定まる。凝縮液量は壁面への冷却速度で決まる。壁面表面の温度は凝縮温度に等しい。壁への熱流束 $\dot{q}$ [W m⁻²] は、壁が十分に厚く、表面温度が一定と見なせる場合は次式で与えられる。

$$\dot{q} = -\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{z=0} = \frac{\lambda(T_c - T_\infty)}{\sqrt{\pi a t}} \quad (1)$$

λ はコンクリートの熱伝導率 (1.6 W m⁻¹ K⁻¹), a は熱拡散係数 (6.63×10⁻⁷ m² s⁻¹), T_c は凝縮温度, T_∞ はコンクリの初期温度, t は凝縮開始からの経過時間である。凝縮温度は実際にはゆっくりと上昇し、変動は遅いのでこの式にその時の凝縮温度を代入して熱流束を求めた。気体から壁面への熱伝達率は自然対流熱伝達率 (概ね 1~5 W m⁻² K⁻¹) を用いた。

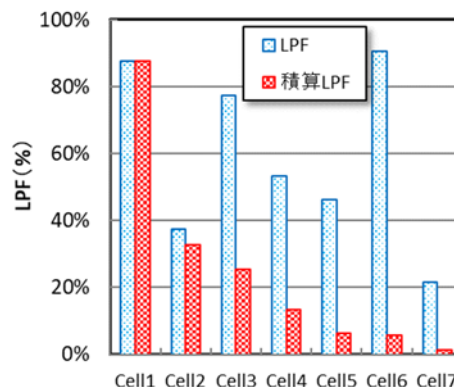
4. RuO₄ の LPF 評価の試行

気体の移行経路は大小の 7 セルから成るモデル経路 (体積 13,000m³), 廃液の発熱密度は 5 kW m⁻³ とそれぞれ仮定した。NO₂ および RuO₄ の吸収速度係数は前報 (7) で求めた値を使用した。貯槽温度 200℃ 以上では水、硝酸蒸気量が減少し、凝縮温度が壁温度よりも低い場合があった。この時に RuO₄ は乾いた壁面に沈着する。沈着速度定数は実験値を用いた。推定した Ru-LPF を右図に示す。経路全体の Ru-LPF は 1.2%, 蒸気凝縮率は 97mol%, NO₂ 吸収率は 44% であった。

[1] Kodama et al., JNST,

<https://doi.org/10.1080/00223131.2020.1764405>

[2] 田代ら, 2015, 和文誌, **14**, p227.



* Mikio Kumagai¹, Takashi Kodama², Hiroshi Kinuhata², Kazunori Suzuki¹, Shin-itiro Hayashi¹, Shingo Matsuoka¹; ¹UI Sciences Inc., ²Japan Nuclear Fuel Limited