

高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (5) 凝縮液への NO₂ 吸収速度係数の測定実験

Study on the boiling and drying accident of HLLW

(5) Experiment to measure the absorption rate coefficient of NO₂ in the condensate

*小玉 貴司¹, 衣旗 広志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亜硝酸を含む凝縮液への RuO₄ 吸収速度係数をフラスコ実験により求めた。RuO₄ については次報 (6) 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冷却期間が短い場合には、沸騰乾固事故において揮発性 Ru (¹⁰⁶Ru) の影響が大きくなる。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 が良く吸収されるため、先ず NO₂ の凝縮液への吸収速度係数を求めた。

2. 実験

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℃) に設置し、130℃ 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。凝縮液は適宜吸引回収し、量および硝酸濃度を測定した。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。これら成分の導入量および測定量からフラスコ内での NO₂ の凝縮液への吸収速度係数 k_{L,NO_2} [m s⁻¹] を求めた。

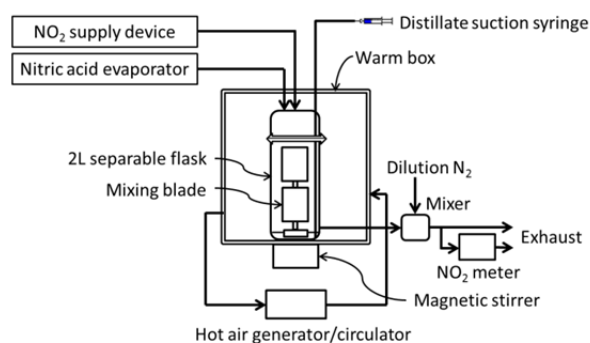


図 1 装置概要

3. 結果および考察

全実験で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 の吸収流速 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] で割った値に等しい。

$$k_{L,NO_2} = \phi_{NO_2} / (h_{NO_2} p_{NO_2})$$

また、吸収速度係数と出口気体中の NO₂ モル分率 $Y_{NO_2}^{out}$ [-] および NO₂ 吸収率 ξ [-] の間には、

$$Y_{NO_2}^{out} = (Y_{NO_2}^{in} - A\phi_{NO_2}) / Y_T^{out},$$

$$\xi = A\phi_{NO_2} / Y_{NO_2}^{in}$$

の関係がある。 $Y_{NO_2}^{in}$ は NO₂ の流入速度 [mol s⁻¹]、 A はフラスコ内部表面積 [m²]、 Y_T^{out} は出口気体の全モル流出速度 [mol s⁻¹] である。出口 NO₂ 濃度は 510~30,000 ppm、凝縮液の温度は 80~99℃、硝酸濃度は 3.0~14.3 mol L⁻¹、凝縮率は 60~96%、NO₂ 吸収率は 14~83% であった。

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て、次式により整理した。

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

測定値とこの回帰式による計算値との比較を図 2 に示す。相関式の決定係数は 0.79 であった。

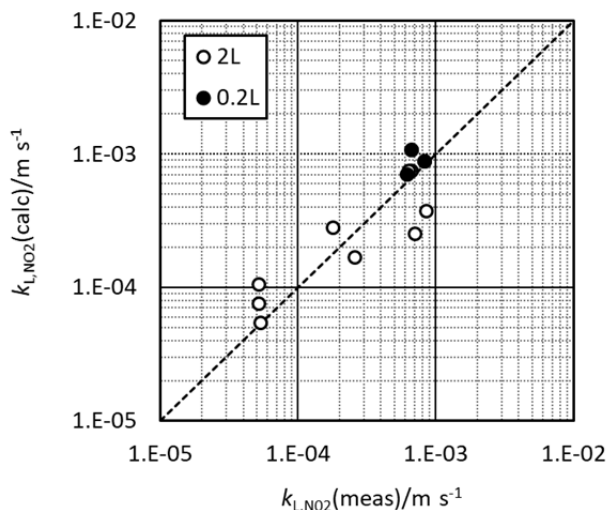


図 2 吸収速度係数の実測値と計算値の比較

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