

高レベル濃縮廃液の沸騰乾固事故の研究 (6) 凝縮液への揮発性 Ru 吸収速度係数の測定実験

Study on the boiling and drying accident of HLLW

(6) Experiment to measure the absorption rate coefficient of 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に、亜硝酸を含む沸騰蒸気凝縮液への RuO₄ 吸収速度係数をフラスコ実験により求めた。NO₂ 吸収速度係数については、前報 (5) に示している。

キーワード：ルテニウム, 高レベル濃縮廃液, 再処理

1. 緒言

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。RuO₄ の環境放出に至る経路での低減効果 (LPF) 検討に資するため、NO₂ 共存下で生成される凝縮液への RuO₄ 吸収速度係数を求めた。

2. 実験

装置概要を図 1 に示す。経路を模擬したフラスコ、NO₂ ガスおよび硝酸蒸気の導入は前報 (5) と同様である。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。

3. 結果および考察

フラスコ内の凝縮液およびフラスコ壁洗浄液中の Ru 量が Ru 吸収量であり、これを吸収時間と凝縮液表面積 (フラスコ内表面積に等しいとした) で除して、Ru 吸収流速 ϕ_R [mol m⁻² s⁻¹] を求めた。冷却器で回収した Ru 量を出口気体流量で除して出口 RuO₄ 濃度を求め、RuO₄ 分圧 p_R に換算して総括物質移動係数 $K_R = \phi_R / p_R$ を求めた。 K_R は気相物質移動係数 $k_{G,R}$ [mol m⁻² s⁻¹ Pa⁻¹], 液相物質移動係数 $k_{L,R}$ [m s⁻¹], RuO₄ の Henry 定数 h_R [mol m⁻³ Pa⁻¹] と $1/K_R = 1/k_{G,R} + 1/(h_R k_{L,R})$ の関係があるので $k_{G,R}$ と h_R が分かれば、 $k_{L,R}$ を算出できる。Henry 定数を文献値¹⁾により推定し、 $k_{G,R}$ 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 $k_G = 4.1 \times 10^{-7} \alpha$ により推定した。この式については熱と物質移動の相似を仮定して求めた。フラスコ出口の NO₂ 濃度については実測していないため、前報 (5) の予測式を用いて計算した。

入口 RuO₄ 濃度は 370~730 ppm, 出口 NO₂ 濃度は 1,500~76,000 ppm, 凝縮液の温度, 硝酸濃度は 85~116°C, 2.3~12.7 mol L⁻¹、凝縮率は 28~94%, RuO₄-LPF は 0.05~95% であった。吸収速度係数と凝縮液酸濃度および出口 NO₂ 濃度との間には相関が見られたが、凝縮液温度との相関は明確でなかった。そこで、凝縮液酸濃度 C_N [mol L⁻¹] と出口 NO₂ 濃度 y_{NO_2} [ppm] を説明変数として回帰分析を行い、次式を得た。

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

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。吸収速度係数が 10⁻³ m s⁻¹ より大きい場合は気相側の物質移動抵抗を考慮する必要がある。

[1] A. Sasahira and F. Kawamura, *J.N.S.T.*, **25**, 472, 1988.

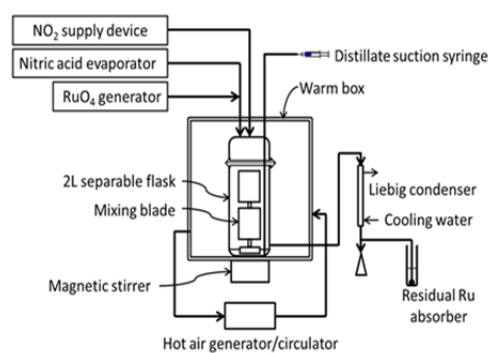


図 1 装置概要

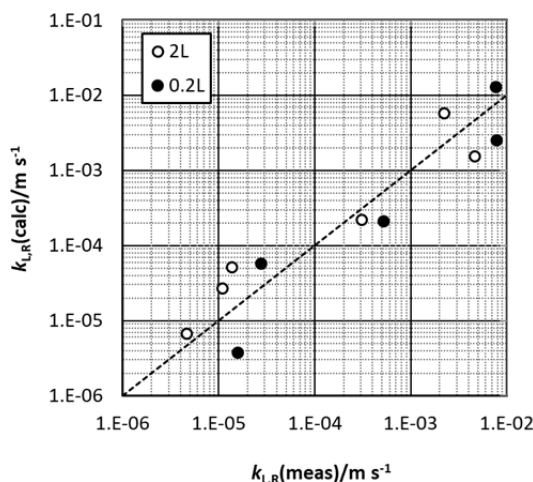


図 2 吸収速度係数の実測値と計算値の比較

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