



5.2.4 再処理蒸発缶の異常化学反応評価の研究 Abnormal Reactions in a Evaporator in a Fuel Reprocessing Plant

日本原子力研究所 安全試験部

Department of Safety Research Technical Support, Japan Atomic Energy Research Institute

木田 孝

梅田 幹

杉川 進

Kida Takashi

Umeda Miki

Sugikawa Susumu

In order to evaluate a self-accelerated reaction in an evaporator in a fuel reprocessing plant due to organic-nitric acid reactions, a development of a calculation code is under way. Mock-up tests were performed to investigate the fluid dynamic behavior of the organic solvent in the evaporator. Based on these results, the model of the calculation code was constructed. This report describes the results of mock-up tests and the model of the calculation code.

はじめに

蒸発缶における有機溶媒 (TBP 等) の混入による自己加速反応は、有機溶媒と硝酸の反応熱と放熱のバランスから決まる。特に、運転液の内部循環を伴うサーモサイフォン型蒸発缶の場合は、水の蒸発潜熱による反応熱の抑制効果により、自己加速反応が起こりにくいことが考えられる。蒸発缶における有機溶媒と硝酸の反応に関する研究は、反応の基礎研究が主体であり、蒸発缶での評価は余り行われていない。このため、再処理施設のプルトニウム蒸発缶等への有機溶媒混入による急激な自己加速反応の発生する条件を解明し、蒸発缶の安全裕度を評価することを目的に、蒸発缶異常化学反応の解析コードの作成を進めている。本報告では、蒸発缶内への混入有機溶媒の分布状態等を確認するために行ったモックアップ試験の結果及び解析モデルの構築の概要について述べる。

モックアップ試験

蒸発缶に混入された有機溶媒の分布状態等を確認するために、再処理工場サーモサイフォン型プルトニウム蒸発缶モックアップ試験装置 (透明塩化ビニール製) を製作し、モックアップ試験を行った。この試験では、7N 硝酸溶液を運転液とし、有機溶媒として色素を添加した 100%TBP 及び 30%TBP/ドデカンを混入させ、ポンプによって内部循環を模擬することにより、蒸発缶内部での有機溶媒の分布状態を観察した。また、循環流量を変えることにより、混入した有機溶媒の分布状態の変化の観察、有機相及び混合相での水分割合の測定を行った。

その結果、①蒸発缶に混入した有機溶媒は、リボイラ部オーバーフロー管からの運転液の落下により、有機相及び有機溶媒と運転液の混合相が形成した。硝酸との急激な反応が予想される有機相の割合は、循環流量の減少または混入有機溶媒の増加とともに、増加する傾向を示した。②有機相内は、対流を起こしながら混合する。③内部循環の流量増加に伴って、有機相及び混合相中の水分割合が増加する傾向を示した。有機相中の水の蒸発潜熱に係る水分割合は 6~10%であった。

解析モデルの構築

モックアップ試験の結果に基づき、本評価で用いる解析モデルでは蒸発缶カラム部に有機相及び混合相を設定し、この有機相での有機溶媒と硝酸の急激な自己加速反応の解析を行うこととした。この解析モデルを図 1 に示すとともに、解析モデルを以下に示す。

① 加熱蒸気の運転液への伝熱と運転液の蒸発濃縮

- ・ 蒸発缶リボイラ部の総括伝熱係数を与え、伝熱量を計算。
- ・ 運転液の密度計算。
- ・ 運転液の沸点は、Clausius-Clapeyron の式より算出。
- ・ 硝酸プルトニウム、硝酸等の気液平衡の計算。

② 水相から混合相への物質及び熱移動

- ・水相中の運転液から混合相中の TBP へ抽出されるプルトニウム、硝酸及び水分を分配平衡から算出。
- ・混合相は運転液と熱平衡にあるとする。

③ 混合相から有機相への物質及び熱移動

- ・混合相中の TBP と有機相の TBP の交換によって移行する熱、プルトニウム、硝酸及び水分を物質移動係数と界面積から算出。
- ・混合相中の運転液から有機相中の TBP へ抽出されるプルトニウム、硝酸及び水分を分配平衡から算出。

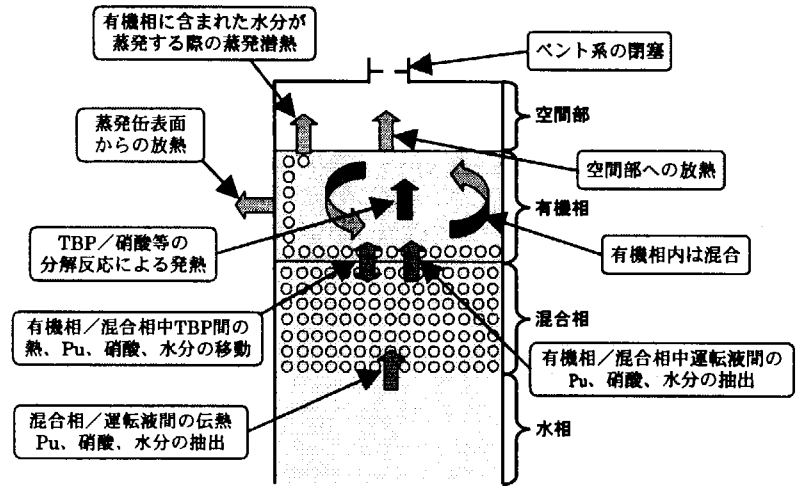
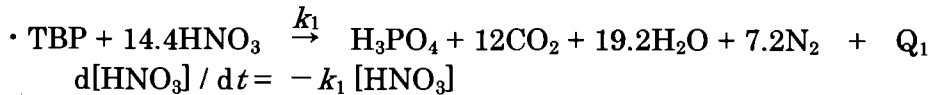


図1 解析モデル

④ 有機相での TBP 及び TBP 劣化物 (硝酸ブチル) と硝酸の化学反応



$$k_n(t) = A_n \times \exp(-E_n / (R \times T_{ST}(t)))$$

- | | |
|------------------|-----------------------------|
| Q_1, Q_2 : 反応熱 | $k_1, k_2, k_n(t)$: 反応速度定数 |
| A_n : 頻度因子 | E_n : 活性化エネルギー |
| R : 気体定数 | $dT_{ST}(t)$: 有機相温度 |

⑤ 蒸発缶内の物質収支

- ・①~④に基づく、蒸発缶内の水相、混合相、有機相及び空間部の各相におけるプルトニウム、硝酸及び TBP 等の物質収支計算。

⑥ 蒸発缶ベント系の閉塞及び缶内圧力

- ・オリフィスモデルに基づく、ベント系閉塞による蒸発缶空間部の圧力変化

⑦ 有機相に同伴する水の蒸発潜熱、運転液及び蒸発缶外部等への放熱等の熱収支

$$dT_{ST}(t)/dt = \{ X(1) + X(2) + X(3) - X(4) - X(5) - X(6) \} / \{ V_{ST}(t) \times C_{TBP} \times D_{TBP} \}$$

- | | |
|-------------------------|--------------------------|
| $dT_{ST}(t)$: 有機相温度 | C_{TBP} : TBP 比熱 |
| $V_{ST}(t)$: 有機相体積 | D_{TBP} : TBP 密度 |
| $X(1)$: 混合相中の運転液からの熱伝達 | $X(2)$: 混合相中の TBP との熱交換 |
| $X(3)$: 化学反応に伴う反応熱 | $X(4)$: 水の蒸発潜熱 |
| $X(5)$: 空間部への放熱 | $X(6)$: 蒸発缶表面からの放熱 |

今後は、作成した解析コードを用いて、自己加速反応が起きる条件を解明する予定である。