

JAERI-M

6405

J
A
E
R
I
-
M
3
4
0
5

連続流動層コールドトラップのフッ化物
揮発法への適用

1976年2月

再処理研究室

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

連続流動層コールドトラップの
フッ化物揮発法への適用*

日本原子力研究所，東海研究所，燃料工学部

再処理研究室

(1976年1月26日受理)

フッ化物揮発法に適用し，プロセスの連続化と六フッ化プルトニウム放射線の分解を防止する観点から，流動層型凝縮器および揮発器による連続コールドトラップの有用性について評価し，さらに六フッ化ウランを用いた実験によりその技術的可能性を示した。

ここでは，プルトニウムおよびウラン精製工程におけるコールドトラップの具備すべき条件，2インチ径流動層装置の実験を通じて得られたその装置特性および凝縮塔におけるミスト生成のモデル解析結果について述べる。

* この報告は昭和49年日本原子力学会年会において口頭発表した内容をもとに作成したものである。

(F42/43, 東北大学, 仙台)

Adaptation of the continuous cold trap system of
fluidized-bed to the Fluoride Volatility Process

Fuel Reprocessing Laboratory

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received January 26, 1976)

A continuous cold trap system consisting of fluidized condenser and stripper has been evaluated with a view to adapt it to the Fluoride Volatility Process in establishing the continuous purification process without radiation decomposition of PuF_6 . Its feasibility is shown by the test with UF_6 -air.

Necessary conditions for the cold trap, and performance of the two inch-dia. fluidized bed cold trap system are presented, and also a model of mist formation in the condenser.

The summaries of oral presentation at the 1974 annual meeting of the Japan Atomic Energy Society (F42/43, Tohoku University, Sendai)

目 次

1	序 言	1
2	コールドトラップに関する予備検討	2
2.1	凝縮プロセスの特性	2
2.1.1	プロセスの概要	2
2.1.2	プロセス条件	2
2.1.3	揮発性フッ化物の捕集とその放射線分解	2
2.2	コールドトラップの選定とその性能	4
2.2.1	型 式	4
2.2.2	操作条件	4
2.2.3	具備すべき性能	4
3	UF ₆ の凝縮特性	9
3.1	実 験	9
3.1.1	実験装置	9
3.1.2	実験条件	9
3.2	実験結果および考察	9
3.2.1	捕集効率	9
3.2.2	滞留時間および蓄積量	10
3.2.3	操作限界	10
3.2.4	ミスト生成率	10
4	結 言	17
	参考文献	17
	記 号	18
	付 録	19
	学会における質疑応答	19

Contents

1.	Introduction	1
2.	Preliminary study of cold trap	2
2.1	Characteristics of condensation process	2
2.1.1	Outline of the process	2
2.1.2	Process conditions	2
2.1.3	Cold trapping of volatile fluorides and their radiation decomposition	2
2.2	Selection of equipment type and its required performances for continuous cold trap	4
2.2.1	Equipment type	4
2.2.2	Operating conditions	4
2.2.3	Performances required for continuous cold trap system of fluidized beds	4
3.	Condensation characteristics of UF ₆	9
3.1	Experimental	9
3.1.1	Equipment system	9
3.1.2	Experimental conditions	9
3.2	Results and discussion	9
3.2.1	Efficiency of cold trapping	9
3.2.2	Residence time and accumulation	10
3.2.3	Operational limit	10
3.2.4	Fraction of mist formation	10
4.	Conclusions	17
	References	17
	Nomenclature	18
	Appendix	
	Discussion at the 1974 annual meeting of The Japan Atomic ...	19
	Energy Society	

List of Tables

Table 1	Partial pressure of UF_6 and PuF_6 in Fluorinator Effluents
Table 2	Vapor pressure of UF_6 and PuF_6
Table 3	Retention of volatile fluorides in cold traps
Table 4	Effect of chemical species on retention of fission products in cold traps
Table 5	Decomposition of fluorides in cold traps
Table 6	Typical operating conditions for continuous cold trap system of fluidized beds
Table 7	Performances required for continuous cold trap system of fluidized beds
Table 8	Experimental conditions for UF_6 condensation by continuous cold trap system of fluidized beds
Table 9	Condensation model for continuous cold trap system of fluidized beds.

List of Figures

Fig. 1	Conceptual process block-diagram of the fluoride volatility process proposed by JAERI for reprocessing FBR fuel
Fig. 2	Conceptual flowsheet of the fluoride volatility process proposed by JAERI for reprocessing FBR fuels
Fig. 3	Simplified flowsheet for continuous cold trap system of fluidized beds
Fig. 4	Condensation profile and mass balance of UF_6 in continuous cold trap system of fluidized beds
Fig. 5	Effect of UF_6 concentration in inlet gas on mist formation
Fig. 6	Effect of mass flow rate of Alumina particles on mist formation.
Fig. 7	Comparison of experimental data with calculated values on mist formation
Fig. 8	Model analysis of mist formation (Effect of temperature gradients in fluidized condenser)
Fig. 9	Assumed temperature profiles in fluidized condenser for model analysis
Fig. 10	UF_6 concentration profile in stripper effluent gas (Run UC-112)

1 序 言

日本原子力研究所・再処理研究室では、1966年以来高速炉燃料を対象としたフッ化物揮発法に関する研究開発を行なって来ており、この中、ウランおよびプルトニウムの精製工程においては、コールドトラップによる分縮法が提案されている。^{1,5)}この方法は、フッ素化塔出口ガスをまず UF_6 または PuF_6 が凝縮しない温度まで冷却し、同伴する NbF_5 、 RuF_5 などの低沸点成分の一部を凝縮除去し、つづいて約 $-80^{\circ}C$ に冷却して UF_6 または PuF_6 を凝縮させ、非凝縮成分から分離するもので原研フローシートの精製工程において基本的な操作となっている。

UF_6 コールドトラップとしては、すでに工業規模で内部冷却フィン型または外部冷却“egg-crate”型が用いられていて、通常の使用条件下では特に問題はないが¹⁾いずれも回分式で装置内における固相の滞留時間が長い。フッ化物揮発法においては PuF_6 を始め化学的に不安定なフッ化物を高放射線場で取扱うため、これらの型式では放射線分解生成物による閉塞などのトラブルが予想されるほか、プルトニウムを回収するためには再フッ素化が必要である。また回分操作であるためフローシートおよび操作はかなり複雑となる。

一方、連続式コールドトラップとしては、壁面かきとり型²⁾および流動層型³⁾が知られており、これらの型式は壁面伝熱係数が大きいので装置が小型となる上、分縮操作の連続化をはかることができるので好ましい装置型式と考えられる。しかしながら、回分式と比べて装置構造および周辺粉体給排系などが複雑となる。

両者の中、流動層型は、流動媒体を冷却しその表面に凝縮成分を凝縮させ、これを加熱器に送って凝縮成分をキャリアガス中に揮発させるもので、基本的にそれぞれの流動層二基と、流動媒体の循環系より構成される。この型式は工業的にまだ実用化されていないようであるが、加熱が容易なので析出した不揮発性物質の再フッ素化がはかり易く、場合によっては不揮発性物質を含む流動媒体をフッ素化塔に送り、ここで回収するシステムを描くことができ、フローシートの単純化が期待される。

そこで予備検討として、原研で提案するフローシートに基づく揮発性フッ化物の捕集率、放射線分解量などの考察から、連続コールドトラップの有用性を示し、かつ工程装置として具備すべき性能を明らかにした。さらにこれに基づいて製作した2インチ直径流動層の連続操作コールドトラップにおいて、 UF_6 を試料とした凝縮実験を行ない、その特性を把握することによって工程装置としての可能性を示した。

また、通常の間分型コールドトラップについての理論的解析はTompsonによって報告⁴⁾されているが、連続流動層型についての報告はまだなされていない。そこで流動層内における熱および物質移動に関するモデル解析を行ない、とくにミスト生成率について実験値と比較し、さらに操作因子の影響を調べた。

この報告は、昭和49年日本原子力学会年会において口頭発表した内容をプロセス評価に備えて、まとめて公開するものである。

2 コールドトラップに関する予備検討

○八木英二, 前田 充, 鏡八留雄

2.1 凝縮プロセスの特性

2.1.1 プロセスの概要

フッ化物揮発法による高速炉燃料再処理プロセスブロック図をFig. 1に示す。

使用済燃料は、解体・融解脱被覆・粉末化後、20% F_2-O_2 により約330℃でフッ素化することによって、ウランは、六フッ化ウラン(UF_6)となり、揮発する。 UF_6 の工程流れは、核分裂生成物の部分凝縮、フッ化ウラニル(UO_2F_2)による吸着、フッ化ソーダ(NaF)による吸着、 UF_6 の凝縮、さらに UF_6 の分留、フッ化マグネシウム(MgF_2)および $NaF-UO_2F_2$ による吸着の各工程を通され、同伴するプルトニウム(Pu)、ネプツニウム(Np)および核分裂生成物が除去される。

一方、プルトニウムは、約100% F_2 により高温でフッ素化することによって PuF_6 となり、揮発する。 PuF_6 の工程流れは、核分裂生成物の部分凝縮、 PuF_6 の凝縮および PuF_6 の熱分解の各工程により、同伴するウラン、ネプツニウムおよび核分裂生成物が除去される。

これらの精製工程において、コールドトラップは、 UF_6 および PuF_6 工程流れ中の核分裂生成物の部分凝縮、 UF_6 および PuF_6 凝縮の合計4ヶ所で使用される。

2.1.2 プロセス条件

フッ素化塔からの工程流れ中のウランおよびプルトニウムの分圧をTable 1に示す。 UF_6 の最大濃度は化学量論的に、 PuF_6 の最大濃度は400℃において平衡状態にあると仮定して求められた。

一方、Table 2に示すように、 UF_6 の蒸気圧は15℃において55.62mmHg、 PuF_6 の蒸気圧は-10℃において7.90mmHgである。したがって、核分裂生成物の部分凝縮工程の操作温度は、 UF_6 または PuF_6 がそれぞれ凝縮を起さないキリの良い温度として、 UF_6 工程流れについて15℃、 PuF_6 工程流れについて-10℃と定められた。また、 UF_6 および PuF_6 の凝縮工程の操作温度は、 UF_6 および PuF_6 が99.9%以上の回収率で得られる温度として、-80℃と定められた。このような操作温度は、ANLの提案プロセスと同様である。¹⁾

2.1.3 揮発性フッ化物の捕集とその放射線分解

前述の操作温度における核分裂生成物の捕集率は、プロセス中のこれらフッ化物の化学形および濃度によって異なってくる。そこで、炉心燃料を200kg/日*で処理するとしたときの凝縮工程操作温度における揮発性フッ化物の捕集率を試算し、これより UF_6 および PuF_6 の放射線分解量を求めた。

○印 □頭発表者

* 500万KWの高速炉炉心燃料の再処理に相当する処理量

捕集率 η は、次式で表わされる。

$$\eta = \frac{M_{\text{sub}}}{M_{\text{desub}}} \quad (1)$$

$$= 1 - \frac{V \cdot \theta \cdot x \cdot m / 2.2.4}{M_F \cdot \theta \cdot w_F} ; \text{ (回分操作の時)} \quad (2)$$

$$= 1 - \frac{V \cdot x \cdot m / 2.2.4}{M_F \cdot w_F} ; \text{ (連続操作の時)} \quad (3)$$

今、フッ素化塔の処理能力を 600 kg (U+Pu 金属)/バッチとし、1バッチ内のウランフッ素化時間を 31 時間、プルトニウムのフッ素化時間を 26 時間、揮発率は核分裂生成物の揮発性フッ化物成分についてウランフッ素化時に 90%、プルトニウムフッ素化時に 10%、ネプツニウムについてそれぞれの操作時に 50% づつ、かつフッ素化速度は一定であると仮定したとき、²⁾各凝縮工程操作温度における揮発性フッ化物の捕集率は Table 3 のようになる。すなわち、核分裂生成物の部分凝縮工程では、 RuF_6 の大部分と NbF_6 の一部のみが捕集され、一方 UF_6 および凝縮工程では、 UF_6 および PuF_6 のほかに核分裂生成物の揮発性フッ化物の大部分が捕集される。

これらの工程における核分裂生成物の捕集は、生成されるフッ化物の化学形によって異なる。Mo, Te, Ru, I については、オキシフッ化物の存在が知られており、これらフッ化物がそれぞれ 100% 存在していると仮定したときのそれぞれの捕集率を Table 4 に示した。Mo について、 MoOF_4 の存在を仮定するときは、部分凝縮工程においてその一部が捕集されることが期待される。一方、Ru については、 RuF_6 以外の化学形で存在するときは、部分凝縮工程での捕集率が著しく低下することが予想される。I については、 IF_6 以外の化学形の成分はコールドトラップを通過する。したがって、これらフッ化物の化学形は、コールドトラップでの捕集率を知る上で極めて重要である。これらの計算に用いた蒸気圧データは、いずれも ANL の概念設計書¹⁾ によった。

コールドトラップ内において、これらフッ化物が捕集され滞留することにより、揮発性のフッ化物は放射線分解をうけて低次の不揮発性フッ化物に変化することが予想される。コールドトラップ内においてフッ化物の放射線分解に有効な放射能を、 α および β 線について 100%、 γ 線について 10% と仮定したとき、 UF_6 および PuF_6 の放射線分解率は、Table 5 に示すように 0.04%/日 および 8.6%/日 と推定される。核分裂生成物の部分凝縮工程の性能すなわちこれによる除染効果が期待されないときは、 UF_6 の分解速度は 0.3%/日、 PuF_6 の分解速度は 4.8%/日にも達するものと予想される。核分裂生成物フッ化物の放射線分解速度について、G 値が不明であるために求められなかったが、無視しえないであろう。

このような放射線分解が工程内で生じるときは、その再揮発のためにフッ素化操作が必要であり、フローシートは極めて複雑になるものと予想される。したがって、 UF_6 の凝縮に対しては、在来の回分型コールドトラップが使用できるが、核分裂生成物の部分凝縮および PuF_6 凝縮用には、滞留時間の短い、すなわち連続型コールドトラップの使用が必要となる。

2.2 コールドトラップの選定とその性能

2.2.1 型式

連続型コールドトラップの型式としては、かきとり²⁾と流動層型³⁾の2つが知られている。ここでは、つぎの理由から後者を選定した。

- 1) 機械的部分がないので、気密がより得られ易い。
- 2) 揮発操作との連携がよりはかり易い。
- 3) 流動媒体にアルミナを使用し、使用後はフッ素化塔の流動媒体として用いることにより、アルミナ上に析出したプルトニウムの回収が容易に行なえ、廃棄物の増加ももたらさない。コールドトラップに流動層を用いたときの装置フローシートをFig. 2に示す。

フッ素化塔を出た UF_6 流れは、15℃のアルミナ流動層内を通り冷却される。表面に RuF_6 、 NbF_5 などが凝固せるアルミナは、約300℃に加熱された揮発塔へ送られ、ここで揮発性フッ化物はキャリアガス中へ揮発除去される。アルミナは、再び凝縮塔へ送られ、冷却用流動媒体として使用される。 PuF_6 流れにおいても、同様の操作が描かれる。

2.2.2 操作条件

各コールドトラップの操作条件は、2.1.3に述べた概念設計条件においてTable 6のようになる。部分凝縮工程の入口ガス中の核分裂生成物濃度は、 UF_6 流れについて800ppm、 PuF_6 流れについて100ppm、 PuF_6 凝縮工程入口ガス中の PuF_6 濃度は4000ppmといずれも低い値である。

2.2.3 具備すべき性能

以上の検討から、フッ化物揮発法再処理工程に用いるコールドトラップの性能は、Table 7の条件を満たす必要がある。すなわち、コールドトラップ内の凝縮固相の滞留時間は、放射線分解量を1%以下におさえるために30分以内、捕集率は PuF_6 の回収および核分裂生成物の除染の観点から99%以上、流動媒体に用いるアルミナの循環系を通しての漏れ率は除染係数の観点から0.1%以下、さらにプロセス流れ中の F_2 ガスの稀釈はこれを再循環使用する観点から無視しうることの諸条件を満たす必要がある。

Table 1 Partial pressure of UF₆ and PuF₆ in Fluorinator Effluents

	Fluorinator	
	Uranium	Plutonium
Main Products	UF ₆	PuF ₆
Pressure (mmHg)	1000	1000
Fluorine (vol %)	20	100
Max. Concentration (vol %)	6.7	0.56*
Partial Pressure (mmHg)	67	5.6

* value in equilibrium at 400°C

Table 2 Vapor pressure of UF₆ and PuF₆

Compound	-80°C	-10°C	15°C	80°C
UF ₆	4.6X10 ⁻⁴	7.44	55.62	1840
PuF ₆	3.5X10 ⁻³	7.90	53.24	1315

Table 3 Retention of volatile fluorides in cold traps

Compound	UF ₆ stream		PuF ₆ stream	
	15°C	-80°C	-10°C	-80°C
UF ₆	~0	-1.0	-0	-1.0
PuF ₆	~0	—	-0	0.999
NpF ₆	~0	-0	-0	~0.2
HF	~0	~1.0	~0	~1.0
NbF ₅	0.76	-1.0	0.95	-1.0
MoF ₆	~0	0.72	~0	~0
TcF ₆	~0	0.88	~0	0.29
RuF ₅	0.9997	-1.0	~1.0	-1.0
SbF ₅	~0	~1.0	~0	~1.0
TeF ₆	~0	-0	-0	-0
IF ₅	~0	0.98	~0	0.85
XeF ₄	~0	-1.0	-0	-1.0

Table 4 Effect of chemical species on retention of fission products in cold traps

	UF ₆ stream		PuF ₆ stream	
	FP	UF ₆	FP	PuF ₆
Mo				
MoF ₆	~0	~0.72	~0	~0
MoOF ₄	0.46	~1.0	0.39	~1.0
Tc				
TcF ₆	~0	0.88	~0	0.29
TcO ₃ F	~0	~1.0	~0	~1.0
Ru				
RuF ₅	0.9997	~1.0	~1.0	~1.0
RuF ₆	~0	0.93	~0	0.61
RuOF ₄	0.38	~1.0	0.56	~1.0
RuO ₄	~0	~1.0	~0	~1.0
I				
IF ₅	~0	0.98	~0	0.85
IF ₇	~0	~0	~0	~0
IOF ₅	~0	~0	~0	~0
Xe				
XeF ₂	~0	~1.0	~0	~1.0
XeF ₄	~0	~1.0	~0	~1.0
XeF ₆	~0	~1.0	~0	~1.0

Table 5 Decomposition of fluorides in cold traps

	UF ₆ stream		PuF ₆ stream	
	FP	UF ₆	FP	PuF ₆
Desublimated fluorides	RuF ₅ , NbF ₅	UF ₆	RuF ₅ , NbF ₅	PuF ₆
G value	?	2	?	7
Available energy (eV/d)				
by FP	3.6X10 ²⁷	8.2X10 ²⁴	4.4X10 ²⁶	1.8X10 ²⁴
by α	0	0	0	9.5X10 ²⁵
Decomposed rate (%/d)	?	0.04	?	8.6
Max. decomposed rate* (%/d)	—	0.3**	—	48

* under the condition that FP cold trap failed completely

** assumed that the outlet gas concentration of NaF bed are 1 ppm for both NbF₅ and RuF₅

Table 6 Typical operating conditions for continuous cold trap system of fluidized beds

Condition	UF ₆ stream		PuF ₆ stream	
	FP	UF ₆	FP	PuF ₆
Temperature (°C)	15		-10	-80
Inlet conc. (vol%)				
UF ₆	1.5		0.01	0.01
PuF ₆	0.009		0.40	0.40
FP	0.08		0.01	0.008
F ₂	15		90	90
O ₂	83		10	10
Pressure (mmHg)	1000		1000	1000

Table 7 Performances required for continuous cold trap system of fluidized beds

Residence time	< 30 min
Removal efficiency	> 99 %
Gas leak rate through solid transfer system	< 0.1 %
Dilution of fluorine	none

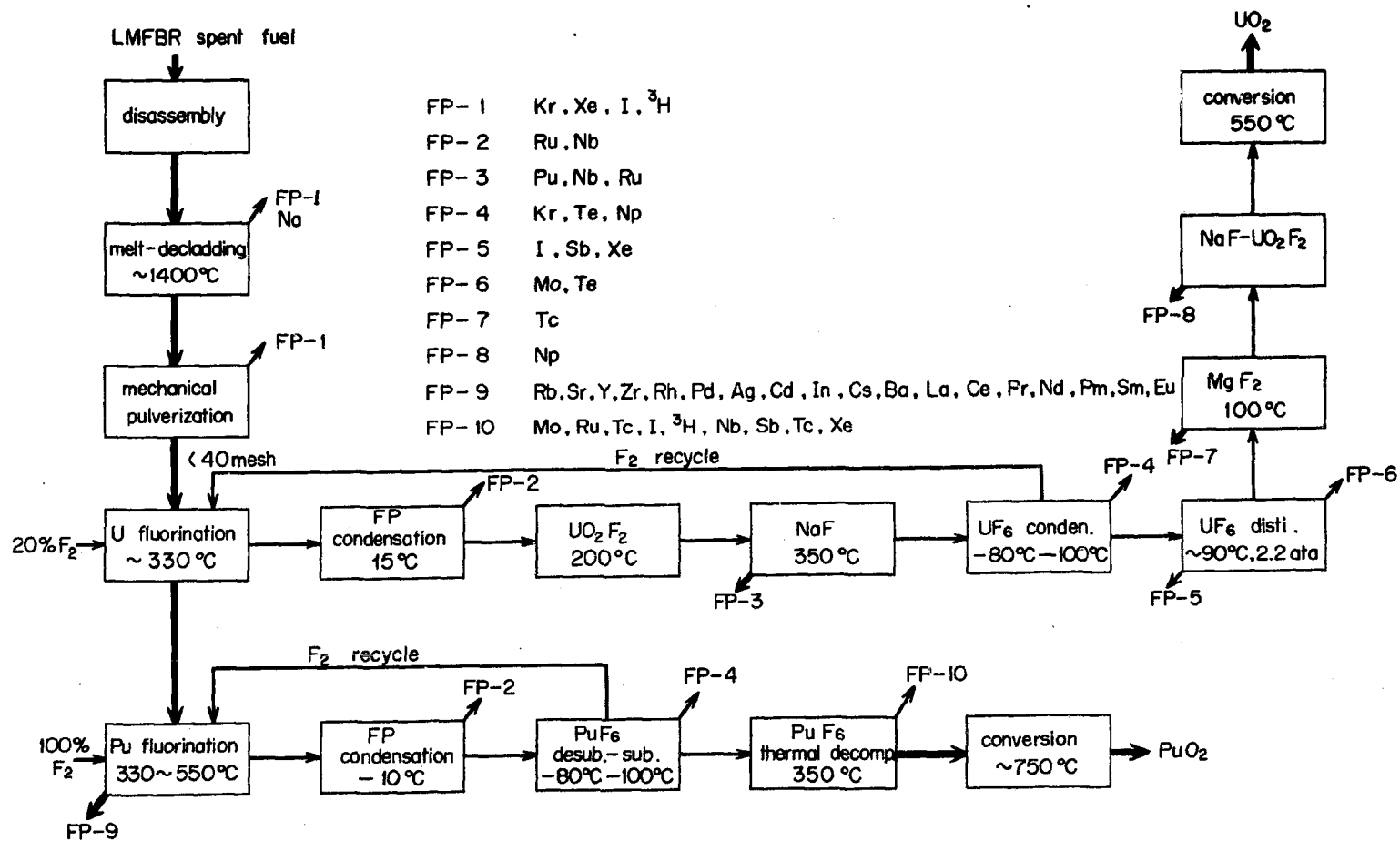


Fig. 1 Conceptual process block-diagram of the fluoride volatility process proposed by JAERI for reprocessing FBR fuel

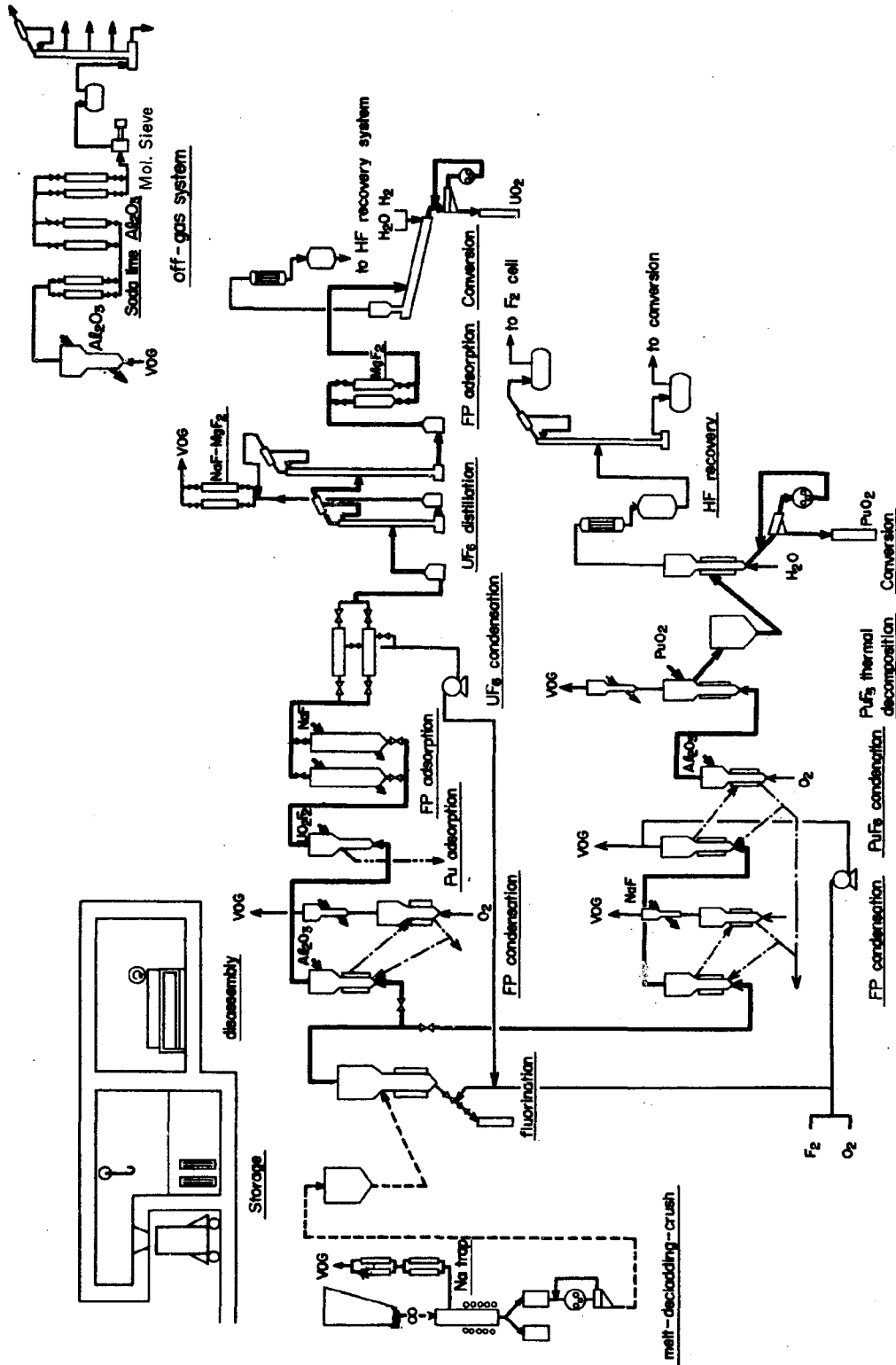


Fig.2 Conceptual flowsheet of the fluoride volatility process proposed by JAERI for reprocessing FBR fuels

3 UF₆ の凝縮特性

八木英二, 前田 充, [○]鏡八留雄, 宮島和俊

前章で述べた連続流動層コールドトラップについてUF₆による凝縮実験を行ない、捕集率、滞留時間、操作限界、ミスト生成率などの凝縮特性を調べ本法の可能性と問題点の把握を行なった。とくにプロセス上重要な因子と考えられるミスト生成に関し、種々の操作条件下における生成特性を調べ、生成機構に関する理論的考察を行なった。

3.1 実験

3.1.1 実験装置

実験装置の概略をFig. 3に示す。UF₆は恒温槽内で90℃に加熱されているUF₆ボンベから稀釈ガスと混合したのち、揮発塔から送られてきたアルミナと共に凝縮塔下部に供給される。凝縮塔は2インチ径の流動層であり、-72℃の冷媒で冷却されている。ガスが上昇するにつれてUF₆はアルミナ表面に凝縮しアルミナと共に粉体中間槽を経由しガスリフトにより揮発塔上部に移送される。揮発塔は2インチ径の流動層であり約40℃に加熱されており、ここでUF₆は再揮発され流動化ガスと共に揮発塔を出てオフガス処理系に排気される。アルミナは揮発塔下部からプロセスガスを利用してガスリフトにより粉体流量計⁶⁾に送られ、再び凝縮塔にもどされる。

両塔の出口にはTCC(差動型熱伝導計)⁷⁾を設け出口ガス中のUF₆濃度を測定した。

凝縮塔では供給されたUF₆の一部が固体微粒子となり流動化ガスに同伴する(これをミストと呼ぶことにする)。このミストを回収するために焼結フィルターを設けてあり、ミストは分離部内側下部に取付けた網目状ヒーターで同伴ミストを再揮発させることにより測定した。

3.1.2 実験条件

主な実験条件をTable 8に示す。UF₆濃度はフッ素化塔におけるUF₆またはPuF₆濃度をカバーするために0.2~5 vol %の範囲とした。

アルミナ循環流量はこの循環系の安定な流量範囲である6~20 kg/hr, 凝縮塔におけるガス線速度は流動化開始速度の比として2.5~4.6倍で行なった。

アルミナはフッ素化塔で用いられる粒径と同じ80メッシュのものを使用し、アルミナ移送ガスおよび流動化ガスには脱湿空気を用いた。

3.2 実験結果および考察

3.2.1 捕集率

ミストを焼結フィルターで捕集しているために凝縮塔出口ガス中のUF₆濃度はフィルター温度(流動部出口ガス温度に等しい)に平衡な蒸気圧に等しく捕集率は供給ガス濃度1 vol %,

○印 口頭発表者

温度 67℃において99%以上であった。

3.2.2 滞留時間および蓄積量

凝縮塔におけるミスト生成量を知る目的で行なった実験結果の一例をFig. 4に示す。図中、横軸の実験時間に対して上図には UF_6 濃度変化を、下図には物質収支を示す。

a 滞留時間：上図において、供給ガス中の UF_6 濃度を0.4から3, 1, 5 vol%と変えるに伴って揮発塔(OT-2)および凝縮塔(OT-1)出口ガス濃度に変化し、数分から10分程度で揮発塔出口ガス濃度が一定となっている。このことから滞留時間はアルミナをピストン流とみなしたときのアルミナの滞留時間にはほぼ一致していることがわかった。

b 蓄積量：凝縮塔内においては UF_6 が壁面に次第に蓄積してくる。この時間変化を下図の点線で示すが、これはやがて一定に達するものと考えられる。 PuF_6 濃度と予想される0.4 vol%においては 100 g/m^2 程度であり連続操作においては特に問題となる量ではないことが明らかとなった。

3.2.3 操作限界

操作限界には粉体移送とアルミナに多量の UF_6 が付着することによる流動化阻害の2つの原因がある。 UF_6/Al_2O_3 比が0.07以上で前者に異常をきたしたため実験操作の維持が困難となり後者に関する値は把握されていないが、この範囲では問題がなかった。

3.2.4 ミスト生成率

Fig. 4下図に凝縮塔内で発生するミスト量を示す。凝縮塔と揮発塔からの UF_6 の排出速度に対するミスト生成速度の比、すなわちミスト生成率は条件によってかなり大きな値を示すことが分った。

このようなミストの発生はフィルターの負荷が大きくなると共に、実際のプロセスでは PuF_6 の滞留時間の増大をもたらすものと考えられる。そこでミスト生成率におよぼす操作条件の影響について実験的および理論的に詳細に検討した。

a 実験的検討：Fig. 5にミスト生成率におよぼす UF_6 濃度およびガス線速度の影響を調べた実験結果を示す。ミスト生成率は濃度が低い程、ガス線速度が大きい程高い値を示している。Fig. 6にはアルミナ循環流量の影響を示すが、この影響はほとんど受けないことが分った。

b 理論的検討：このようなミスト生成機構を明らかにするために、流動層内における熱および物質移動に関するモデル解析を行ない実験値と比較した。Table 9に計算式を、Fig. 7に実験値と計算値との比較を示す。両者はよく一致しており、また1962年にJ.Ciborowskiらの行なった流動層でのナフタリンの凝縮実験⁸⁾についても同様の解析を行なった結果よく一致することが分った。

そこでこのモデルにより種々の操作条件下でミスト生成率を計算した結果、ミスト生成率に大きな影響を与える操作因子は、アルミナ温度、 UF_6 濃度および入口ガス温度の3つであり、アルミナ粒子径や塔内圧力、ガス線速度などはほとんど影響を与えないことが分った。

凝縮塔の軸方向温度分布をFig. 9のように変化させた場合における凝縮特性の計算結果の一例をFig. 8に示す。横軸には入口部における温度勾配 k_A を取り、(4)の曲線がミスト生成率を示す。 k_A が小さい程完全混合に近く、大きい程ピストン流に近づくことを意味してい

る。

温度勾配 k_1 の増大に伴ってミスト生成率は変化し、ある値以上では一定になっていること、およびミスト生成率を最小とする温度分布の存在することが分った。実験においてミスト生成率がアルミナ循環流量に影響されなかったのは実験時の温度分布が⑤、⑥の部分に入っていたためと考えられる。

ミストは、理論的には多段流動層としてガスを加熱・冷却と繰返すことにより完全に発生をおさえることは可能であると考えられるが、通常の流動層では最適な温度分布を与えても多少のミストの生成は避けられないと思われる。

そこで、このようなミストの生成がある場合の流動層コールドトラップの操作特性を把握するために、長時間にわたるUF₆の凝縮実証実験を行なった。

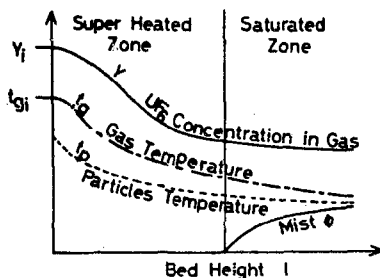
Fig. 10はUF₆濃度が1.2 vol %、ミスト生成率が14%の条件下の揮発塔出口におけるUF₆濃度を示したものであり、濃度は一定でこのような条件下において定常操作を維持できることが確認された。また分離部に吹き上げられたミストは、フィルターを周期的に逆洗することにより相当量が回収でき、分離部への蓄積が一定量に抑え得る見通しが示された。この逆洗操作による循環系への影響は、周期を最適に選ぶことにより最小に抑えられることが判った。

Table 8 Experimental conditions for UF₆ condensation by continuous cold trap system of fluidized beds

Run No	UF ₆ Conc. in Inlet Gas (vol %)	Mass Flow Rate of Alumina (Kg/hr)	U _r / U _{mf} in CT-1 (-)	Effluent Gas Flow Rate (NL/min)		Bed Temperature (°C)			CT-2
				CT-1	CT-2	Inlet Gas Alumina	CT-1 Middle	Upper	
UC-106	0.4 - 4.3	16.9	3.9 - 4.0	37	45	31	-21	-46	11 - 40
UC-107	0.4 - 2.8	10.2-11.0	3.3 - 3.9	30-33	45	33	-30	-63	20-50
UC-108	0.4 - 3.0	5.7- 8.1	3.6 - 4.0	33	43	33	-35	-67	40- 60
UC-109	0.5 - 4.9	16.2-17.6	4.3 - 4.6	38	43	34	-19	-44	30- 40
UC-110	0.3 - 2.8	19.1	3.0-3.3	24	42	35	-11	-50	30-40
UC-111	0.2 - 2.7	19.5-20.8	2.5 - 2.7	18	43	38	- 4	-48	30-40
UC-112	1.2	17	4.3	38	42	30	-21	-48	30-40

- (1) Pressure of Fluidized - Bed 975-1120 mmHg ab.
- (2) Charged Alumina (80 mesh) 8 Kg
- (3) Gas Air

Table 9 Condensation model for continuous cold trap system of fluidized beds



Super Heated Zone

(1) Mass Transfer

$$-G \frac{dY}{dl} = K_p (P(Y) - P(t_p)) \frac{da}{dl} = \left(\frac{Sh \cdot D_v}{D_p} \times \frac{\rho_g}{M_{gm}} \times \ln(1 + Y) \right) \times \left(\frac{P(t_p)}{P} \right) \times \left(\frac{6(1-E_t) \lambda_t}{D_p \phi_s} \right) \dots (1)$$

(2) Heat Transfer

$$-G C_{gm} (1+Y) \frac{dt_g}{dl} = h_p (t_g - t_p) \frac{da}{dl} = \left(\frac{Nu \cdot K_{gm}}{D_p} \right) \times (t_g - t_p) \times \left(\frac{6(1-E_t) \lambda_t}{D_p \phi_s} \right) \dots (2)$$

Saturated Zone

(1) Mass Transfer

$$-G \frac{dY}{dl} = K_p (P(t_g) - P(t_p)) \frac{da}{dl} + G \frac{d\phi}{dl} \dots (3)$$

(2) Heat Transfer

$$-G C_{gm} (1+Y) \frac{dt_g}{dl} = h_p (t_g - t_p) \frac{da}{dl} - G \lambda_u \frac{d\phi}{dl} \dots (4)$$

$$\frac{dY}{dl} = \frac{P_s}{(P_s - P(t_g))} P'(t_g) \quad , \quad P'(t_g) : \text{Vapor Pressure of UF}_6 \text{ (5)}$$

$$t_p = t_p(1) \dots (6)$$

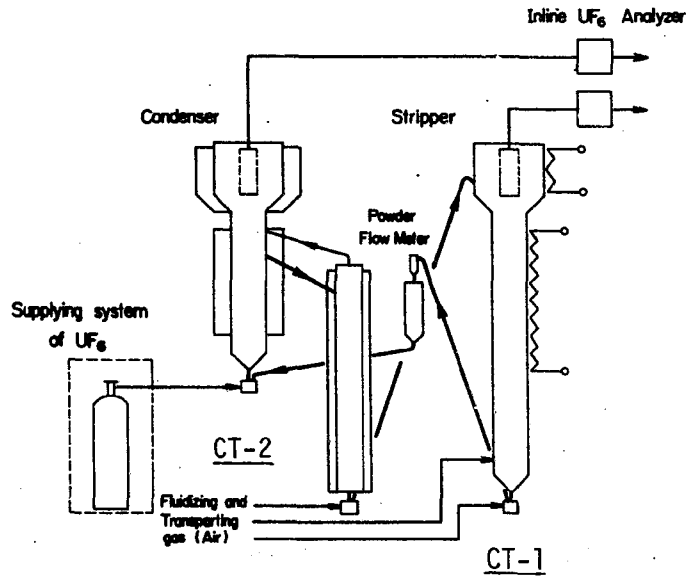


Fig. 3 Simplified flowsheet for continuous cold trap system of fluidized beds

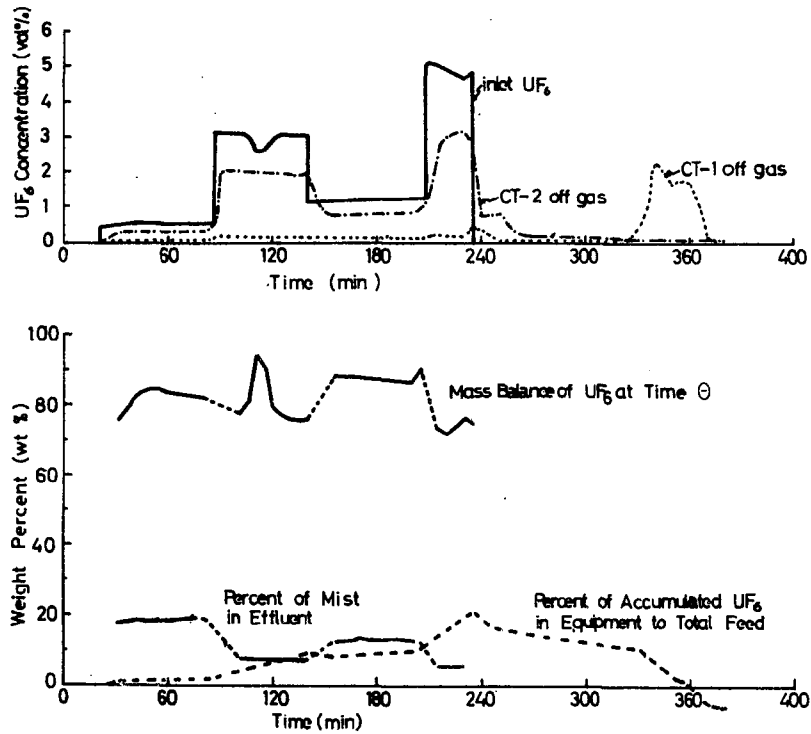


Fig. 4 Condensation profile and mass balance of UF_6 in continuous cold trap system of fluidized beds

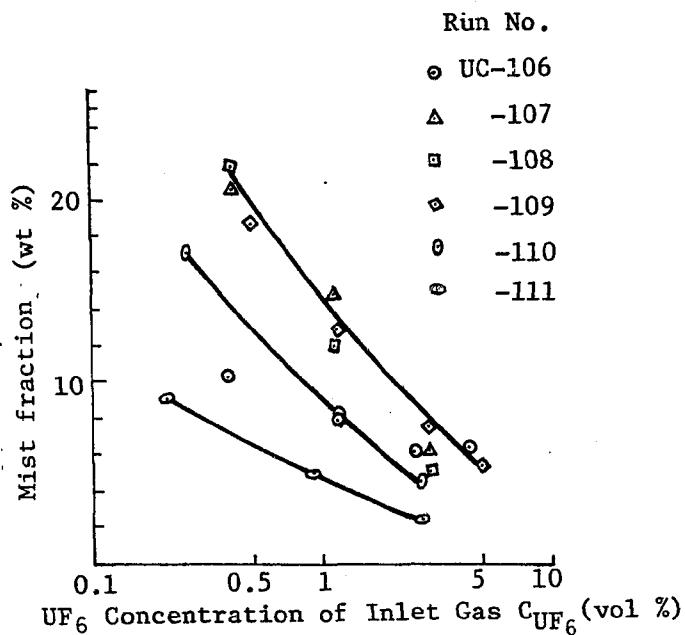


Fig. 5 Effect of UF₆ concentration in inlet gas on mist formation

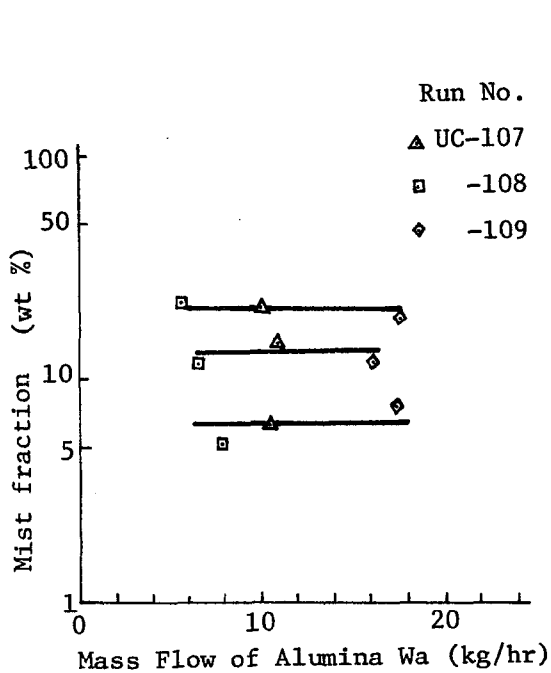


Fig. 6 Effect of mass flow rate of alumina particles on mist formation

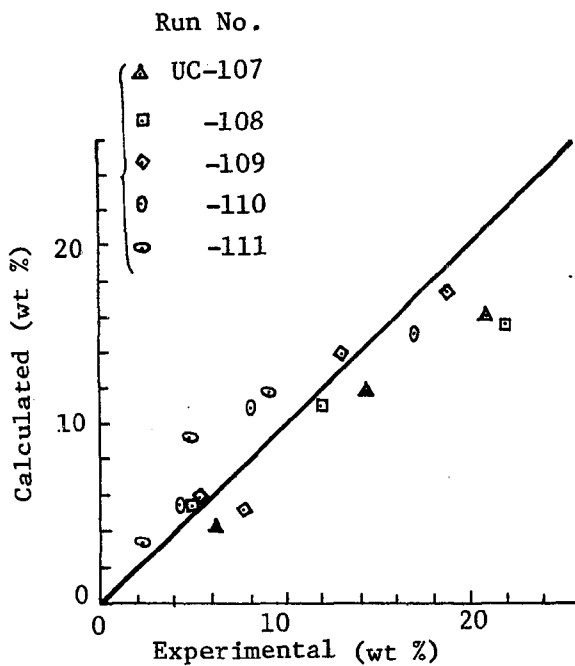


Fig. 7 Comparison of experimental data with calculated values on mist formation

Condenser; $t_{g1}=30^{\circ}\text{C}$, $C=3.0 \text{ UF}_6 \text{ v/o}$,
 $N=33 \text{ N\&/min}$, $P_0=1.42\text{atm}$, $d_p=0.75\text{mm}$

- (1) Total condensed UF_6
- (2) Condensed UF_6 in super heated zone
- (3) Condensed UF_6 in saturated zone
- (4) Mist fraction
- (5) Mist fraction in condensed UF_6 in saturated zone

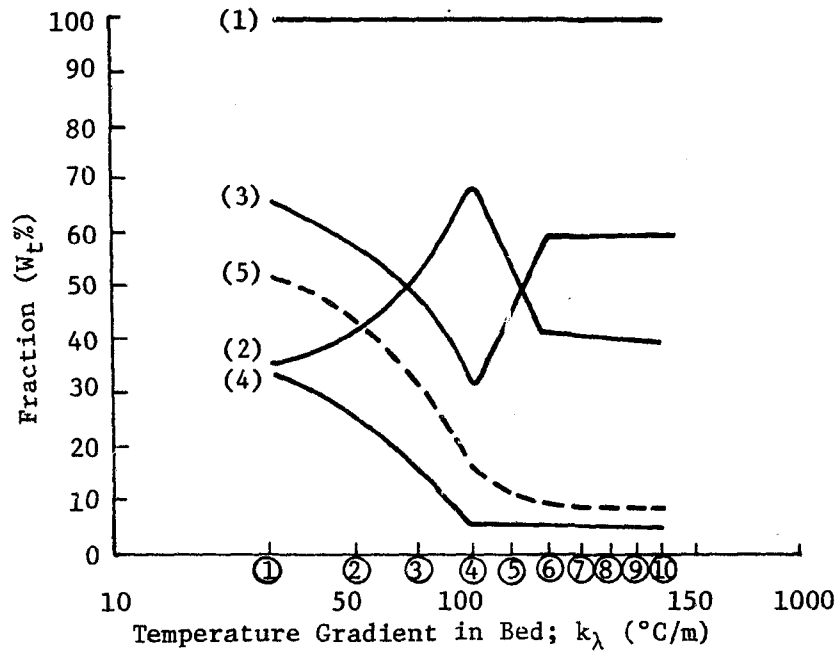


Fig. 8 Model analysis of mist formation (Effect of temperature gradients in fluidized condenser)

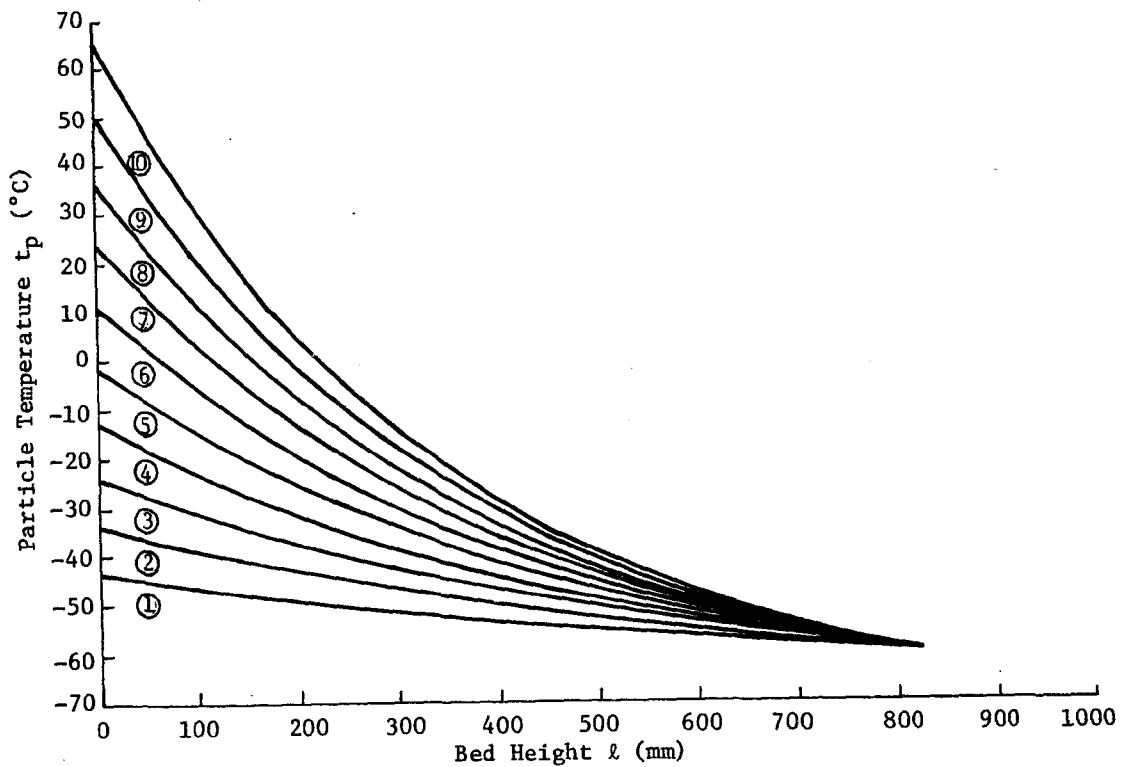


Fig. 9. Assumed temperature profiles in fluidized condenser for model analysis

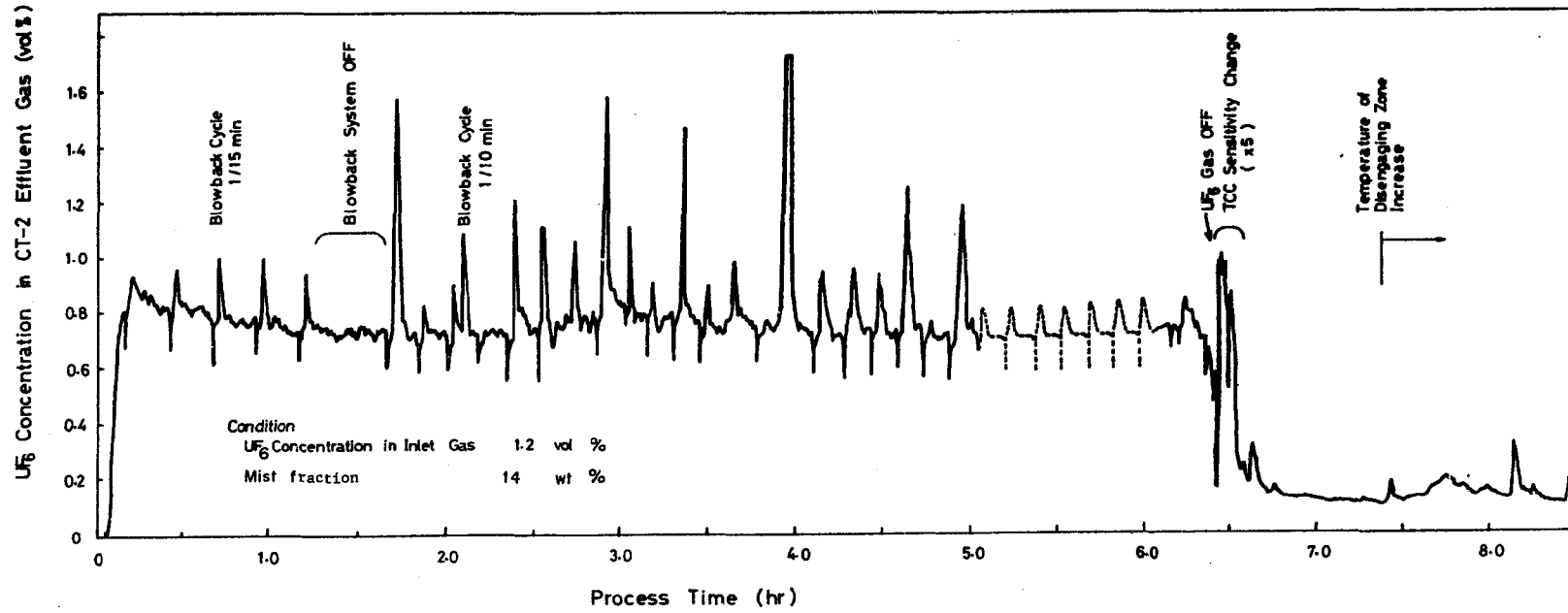


Fig. 10 UF₆ concentration profile in stripper effluent gas (Run UC-112)

4 結 言

高速炉燃料のフッ化物揮発法再処理プロセスに用いるコールドトラップについて考察し、工程装置として具備すべき条件を明らかにし、2インチ流動層からなる連続流動層コールドトラップによるUF₆の凝縮実験を行ない、プロセス上の目標である30分以内の固相滞留時間および99%以上の捕集率の達成が容易であり、また、粉体循環系を通してのガスリークが無視できることが実証された。さらに実験結果で検証した凝縮モデルから、ミストの生成を最小にする最適な凝縮塔温度分布のあることを示した。

これより連続流動層コールドトラップをフッ化物揮発法再処理工程に適用することの技術的可能性が示されたものと考えられる。しかしながら、この方式を実用化するにあたっては、今後さらに安定した粉体循環技術を確立するとともに、ミストの低減化、凝縮塔内壁面での凝縮防止などの改善が望まれる。

以上の結果の詳細については、各章ごとに「技術報告」としてまとめているが、ここではとりあえず速報性を期して、学会発表の内容をまとめたものである。

昭和49年 日本原子力学会年会発表

(1974年4月1日, 仙台)

流動層コールドトラップのフッ化物揮発法への適用

参考文献

- 1) Levitz N. M. et al ; ANL-7583 (1968)
- 2) 化学工学協会編 ; 「化学装置便覧」, p 1175 (1970)
- 3) Bresee J. C. and Larson P. R. ; I&E.C. Vol. 49, No.9, p 1349~1354 (1957)
- 4) Tompson W. I. ; "Theory of Heat and Mass Transfer in Batch Condensation of Solids", Chapter 6, "Engineering Developments in the Gaseous Diffusion Process" (1949)
- 5) 八木 ; 「日本原子力学会昭和47年化学・化学工学分科会予稿集, 特別講演」 (1972)
- 6) 鏡ら ; "粉体流量計の開発" 化学工学論文集 Vol. 1, No.3, p 327 (1975)
- 7) Tsujino T. et al ; J. Nucl. Sci. Tech. 10, 118 (1973)
- 8) Ciborowiski J. and Wronski S. ; Chem. Eng. Sci. Vol. 17, p 481 (1962)

記号

- a : Surface area of solid per bed volume [$1/m$]
 A_c : Cross sectional area of bed [m^2]
 $c_{g,m}$: Specific heat of mixed gas [$kcal/mol \cdot deg.$]
 d_p : Particle diameter [m]
 D_v : Diffusion coefficient of condensable gas [m^2/hr]
 G : Mass velocity of inlet gas [mol/hr]
 h_p : Heat transfer coefficient between fluid and particle [$kcal/m^2 \cdot hr \cdot deg$]
 k_λ : Coefficient of temperature gradient in condenser
 k_p : Mass transfer coefficient between fluid and particle [$mol/m^2 \cdot hr \cdot atm$]
 l : Bed height [m]
 m : Molecular weight of the component [g/mol]
 M_{desub} : Totally condensed amounts [g]
 M_F : Feed rate [g/hr]
 $M_{g,m}$: Average molecular weight of mixed gas [g/mol]
 M_{sub} : Totally sublimated amounts [g]
 N_u : Nusselt number
 P : Partial pressure of component [atm]
 P_o : Total system pressure [atm]
 S_h : Sherwood number [$-$]
 t_g : Temperature of gas [$^{\circ}C$]
 t_p : Temperature of particle [$^{\circ}C$]
 V, N : Flow rate of process gas [ℓ/hr]
 x : Mole fraction of component in condenser effluent gas,
 $x = P/P_o$ [$-$]
 Y : Mole ratio of the condensable gas to inert gas [$-$]
 w_F : Mole fraction of the component in condenser feed gas [$-$]
 ϵ_f : Void fraction in a bed [$-$]
 λ_u : Latent heat of sublimation of condensable gas [$kcal/mol$]
 ρ_F : Fluid density [kg/m^3]
 ϕ : Mole ratio of condensed solid to inert gas [$-$]
 ϕ_s : Sphericity of particle [$-$]
 θ : Time [hr, min]

付 録

学会における質疑応答

- (1) コールドトラップ内の放射線損傷の推定において、 α および β について100%、 γ について10%の吸収線量を仮定した根拠は何か（荏原製作所）

答 α および β については飛程が小さいので100%と仮定し、 γ については任意に10%とした。このような仮定はANLの考えと同一である。

UF₆流れの最大分解速度への寄与は、 β が支配的であり、PuF₆流れに対しては最大分解速度は β により、通常の分解速度は α によりそれぞれ支配される。したがって、 γ 線の吸収率が変動しても計算結果にはあまり影響を与えない。

- (2) 凝縮塔でのミスト生成量はどのようにして測定したのか（京大炉）

答 凝縮塔分離部にヒータを入れ、ガスを加熱して同伴ミストをガス化し、塔出口UF₆濃度を測定することにより、同伴ミスト量を求めた。流動層部出口のガス温度では、UF₆の飽和蒸気圧は十分に低く、このようにして測定されたUF₆はミストとして飛散したものと判断される。