

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
2001. 6. 20
変更する。

[技術情報室]

昭和59年度電解還元パルスカラム工学試験装置(II)

試 験 報 告 書

1985年 10月

動力炉・核燃料開発事業団

東 海 事 業 所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

けに配
お、こ

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001



昭和59年度電解還元パルスカラム工学試験装置(II)
試 験 報 告 書

実施責任者 榎原英千世*

報 告 者 山本 徳洋*, 三浦 幸一*, 富樫 昭夫*
小島 久雄*, 綿引 正俊*, 川瀬 治**
南保 雅之**

要 報 旨

高速炉使用済燃料の再処理をピューレックス法で行う場合に特に重要な開発課題となるプルトニウムの還元を、電解還元法で行うべく研究開発を実施している。その一環として昭和58年度には、実規模相当処理能力を有する電解還元パルスカラム工学試験装置(II) (U及びR Iを用いての還元試験が可能)を、東海事業所・第一応用試験棟に設置した。本報告書は、同装置(II)を用いて昭和59年度に実施した試験の結果についてまとめたものである。試験は、流動特性試験及びウランを用いての水相電解試験、逆抽出電解試験より成り、これらの試験を通して以下の知見を得た。

- i) 本装置のパルスカラムとしての安定運転領域は、120 kg HM/d 処理を充分カバーしている事を、コールド試験により確認した。
- ii) 電解還元パルスカラム内の濃度プロフィール、副生ガス組成、消費電力、発熱量、過渡特性等の工学データを取得した。
 - ア) UO_2 の還元挙動については、従来の還元反応のみに着目するのではなく、還元及び酸化反応の両者を考慮した反応速度式を仮定する事により、実験事実をうまく表現する事が可能であった。
 - イ) H_2 ガス発生量は、全ての電流が水の電気分解に消費されたとして計算される H_2 ガス発生量の1/5倍以下である。

* 技術部 リサイクル技術開発室

** 旭化成工業 (株)



Annual Report of Electro-Pulse Column (II) in '84

Hidechiyo Kashihara*, Tokuhiko Yamamoto*
Kouichi Miura*, Akio Togashi*
Hisao Ojima*, Masatoshi Watahiki*
Osamu Kawase**, Masayuki Nanbo**

Abstract

For the purpose of Pu(IV) to Pu(III) reduction needed for FBR fuel reprocessing, Electro-Pulse Column has been studied during these years. And full scale test equipment (EPC(II); U and RI can be used) was installed in '83 at the 1st EDF. This report sums up the experimental results obtained in '84. These experiments consist of three parts, such as cold tests, aqueous phase U reduction tests and back extractive U reduction tests. These experimental results are shown below.

- i) Cold tests confirmed that 3 pulse columns in EPC(II) had enough capacity to cover operational regions corresponding to 120 kgHM/d through-put.
- ii) Many engineering data such as concentration profiles, composition of secondary generated gas, electric power consumed, generation of heat, transient properties and so on have been obtained.
 - ① U(IV) profiles obtained in EPC(II) are simulated by the assumption of rate equation which contain not only the reduction term but also oxidation term.
 - ② The generation rate of H₂ is lower than one fifth times of generation rate which is calculated on the assumption that all current was consumed by electrolysis of water.

* Recycling Technology Development Section

** Asahi Chemical Industry LTD.

目 次

1. はじめに	1
2. 電解還元パルスカラム工学試験装置(II)概要	6
3. 試 験	14
3.1 標準運転条件の選定	14
3.2 試験の目的及び運転実績	15
3.3 試験方法	16
3.3.1 流動特性試験	16
3.3.2 水相電解試験	17
3.3.3 逆抽出電解試験	18
4. 結果と考察	21
4.1 流動特性	21
4.2 平衡到達時間	25
4.3 塔内平衡濃度プロファイル	33
4.4 端子間電圧と電流との関係	36
4.5 電解還元反応速度式	38
4.6 還元率と電流効率	50
4.7 副生ガスの発生	52
5. 結 論	57
6. 参考文献	58
Appendix	59
A. 1 電解還元環境下で起こる諸反応について	59
A. 2 軸方向電流分布の推定	61
A. 3 試験データ	65
A. 3. 1 流動特性試験	65
A. 3. 2 通電試験	68
A. 3. 3 水相電解試験	84
A. 3. 4 逆抽出電解試験	103

Figure List

Fig.1.1	Conceptual flow of partition cycle (back extraction electrolysis)	2
Fig.1.2	Conceptual flow of partition cycle (aqueous phase electrolysis)	3
Fig.2.1	Conceptual scheme of EPC(II)	7
Fig.2.2	Structure of Electro-reduction column (column no. 2T-22, 2T-23)	8
Fig.2.3	Details of electrode of Electro-reduction column (column no. 2T-22, 2T-23).....	9
Fig.2.4	Structure of pulsed column (column no. 2T-21)	10
Fig.2.5	Current-voltage measurement flow (column no. 2T-22, 2T-23)	12
Fig.2.6	Secondary-generated gas measurement flow (column no. 2T-22, 2T-23)	12
Fig.2.7	Temperature measurement points.....	13
Fig.3.1.1	Standard operational conditions	14
Fig.3.3.1	Experimental flow of aqueous phase electrolysis	17
Fig.3.3.2	Experimental flow of back extraction electrolysis	19
Fig.4.1.1	Experimental results of hydraulic character in 2T-21	22
Fig.4.1.2	Experimental results of hydraulic character in 2T-22	23
Fig.4.1.3	Experimental results of hydraulic character in 2T-23	24
Fig.4.2.1	U(IV) concentration change with passage of time (run no. 2A-003)	26
Fig.4.2.2	U(IV) concentration change of aqueous phase with passage of time (run no. 20-005)	26
Fig.4.2.3	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-003)	27
Fig.4.2.4	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-003)	28
Fig.4.2.5	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-005)	29
Fig.4.2.6	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-005)	30

Fig.4.2.7	U(IV) concentration change of back extraction electrolysis experiments with passage of time	31
Fig.4.2.8	U(IV) concentration change of aqueous phase electrolysis experiments with passage of time	32
Fig.4.3.1	Equilibrium concentration profile (run no. 2A-003)	34
Fig.4.3.2	Equilibrium concentration profile (run no. 20-005).....	35
Fig.4.4.1	Relation between supplied current and measured voltage ..	37
Fig.4.5.1	Deviation of $\frac{[U(VI)]}{[U(VI)]_{in}} = \exp(-\frac{k}{u_0} Z)$ equation from experimental points	40
Fig.4.5.2	Piston flow model	44
Fig.4.5.3	Normalized U(VI) concentration profile at equilibrium state	48
Fig.4.5.4	Comparison of experimental profiles with calculated profiles by equation type A	48
Fig.4.5.5	Comparison of experimental profiles with calculated profiles by equation type A	49
Fig.4.5.6	Comparison of experimental profiles with calculated profiles by equation type C	49
Fig.4.6.1	Reduction ratio and current efficiency of aqueous phase electrolysis	51
Fig.4.6.2	Reduction ratio and current efficiency of back extraction electrolysis	51
Fig.4.7.1	Secondary generated gas evolution rate	54
Fig.4.7.2	Secondary generated H ₂ gas evolution rate	55
Fig.4.7.3	Secondary generated N ₂ gas evolution rate	55
Fig.4.7.4	Secondary generated N ₂ O gas evolution rate	56
Fig.4.7.5	Secondary generated O ₂ gas evolution rate	56
Fig.A.2.1	Equivalent circuit used for calculation of axial current distribution	62
Fig.A.2.2	Flow chart of calculation step	63
Fig.A.2.3	Estimation results of axial current distribution	64
Fig.A.3.1	Experimental flow of cold tests.....	69

Fig.A.3.2	Equilibrium concentration profile (run no. 3C-005)	76
Fig.A.3.3	HNO ₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-005)	77
Fig.A.3.4	N ₂ H ₄ concentration change with passage of time (run no. 3C-005)	78
Fig.A.3.5	HN ₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-005)	79
Fig.A.3.6	Equilibrium concentration profile (run no. 3C-006)	80
Fig.A.3.7	HNO ₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-006)	81
Fig.A.3.8	N ₂ H ₄ concentration change with passage of time (run no. 3C-006)	82
Fig.A.3.9	HN ₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-006)	83
Fig.A.3.10	Equilibrium concentration profile (run no. 2A-001)	85
Fig.A.3.11	Equilibrium concentration profile (run no. 2A-002)	86
Fig.A.3.12	Equilibrium concentration profile (run no. 2A-003)	87
Fig.A.3.13	Equilibrium concentration profile (run no. 2A-004)	88
Fig.A.3.14	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-002)	93
Fig.A.3.15	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-002)	94
Fig.A.3.16	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-003)	95
Fig.A.3.17	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-003)	96
Fig.A.3.18	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-004)	97
Fig.A.3.19	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-004)	98
Fig.A.3.20	Equilibrium concentration profile (run no. 20-001)	104
Fig.A.3.21	Equilibrium concentration profile (run no. 20-002)	105
Fig.A.3.22	Equilibrium concentration profile (run no. 20-003)	106
Fig.A.3.23	Equilibrium concentration profile (run no. 20-004)	107

Fig.A.3.24	Equilibrium concentration profile (run no. 20-005)	108
Fig.A.3.25	Equilibrium concentration profile (run no. 20-008)	109
Fig.A.3.26	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-001)	122
Fig.A.3.27	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-002)	123
Fig.A.3.28	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-002)	124
Fig.A.3.29	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-003)	125
Fig.A.3.30	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-003)	126
Fig.A.3.31	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-004)	127
Fig.A.3.32	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-004)	128
Fig.A.3.33	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-005)	129
Fig.A.3.34	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-005)	130
Fig.A.3.35	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-008)	131
Fig.A.3.36	Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-008)	132

Table List

Table 1.1	Development of electro-reduction process	4
Table 2.1	Fundamental specification of Electro-reduction Column (column no. 2T-22, 2T-23)	11
Table 2.2	Fundamental specification of Pulsed Column (column no. 2T-21)	11
Table 3.1.1	Design capacity of partition column	15
Table 3.2.1	Schedule of experimental operations	16
Table 3.3.1	Experimental conditions of aqueous phase electrolysis..	18
Table 3.3.2	Experimental conditions of back extraction electrolysis	20
Table 4.4.1	Average liquid composition in 2T-22, 2T-23	37
Table 4.5.1	Equation for U(VI) concentration at equilibrium state.....	45
Table 4.6.1	U(IV) generation rate, reduction ratio, current efficiency	50
Table 4.7.1	Secondary generated gas evolution rate	53
Table A.2.1	Electric resistance used for estimation of axial current distribution	63
Table A.3.1	Experimental conditions and results of hydraulic character in 2T-21	66
Table A.3.2	Experimental conditions and results of hydraulic character in 2T-22	67
Table A.3.3	Experimental conditions of cold tests	70
Table A.3.4	Analytical results of liquid concentration (run no. 3C-005)	71
Table A.3.5	Analytical results of liquid concentration (run no. 3C-006)	72
Table A.3.6	Results of hold up ratio (run no. 3C-005)	73
Table A.3.7	Results of hold up ratio (run no. 3C-006)	74
Table A.3.8	Supplied current and measured voltage of cold tests ...	75
Table A.3.9	Analytical results of liquid concentration (run no. 2A-001)	89

Table A.3.10	Analytical results of liquid concentration (run no. 2A-002)	90
Table A.3.11	Analytical results of liquid concentration (run no. 2A-003)	91
Table A.3.12	Analytical results of liquid concentration (run no. 2A-004)	92
Table A.3.13	Analytical results of secondary generated gas (run no. 2A-002)	99
Table A.3.14	Analytical results of secondary generated gas (run no. 2A-003)	99
Table A.3.15	Analytical results of secondary generated gas (run no. 2A-004)	100
Table A.3.16	Results of temperature measurements (run no. 2A-001)...	100
Table A.3.17	Results of temperature measurements (run no. 2A-002)...	101
Table A.3.18	Results of temperature measurements (run no. 2A-003)...	101
Table A.3.19	Results of temperature measurements (run no. 2A-004)...	102
Table A.3.20	Supplied current and measured voltage of aqueous phase electrolysis	102
Table A.3.21	Analytical results of liquid concentration (run no. 20-001)	110
Table A.3.22	Analytical results of liquid concentration (run no. 20-002)	112
Table A.3.23	Analytical results of liquid concentration (run no. 20-003)	114
Table A.3.24	Analytical results of liquid concentration (run no. 20-004)	116
Table A.3.25	Analytical results of liquid concentration (run no. 20-005)	118
Table A.3.26	Analytical results of liquid concentration (run no. 20-008)	120
Table A.3.27	Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-001)	133
Table A.3.28	Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-002)	133
Table A.3.29	Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-003)	134



Table A.3.30	Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-004)	134
Table A.3.31	Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-005)	135
Table A.3.32	Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-008).....	135
Table A.3.33	Results of temperature measurements (run no. 20-002)...	136
Table A.3.34	Results of temperature measurements (run no. 20-003)...	136
Table A.3.35	Results of temperature measurements (run no. 20-004)...	137
Table A.3.36	Results of temperature measurements (run no. 20-005)...	137
Table A.3.37	Results of temperature measurements (run no. 20-008)...	138
Table A.3.38	Supplied current and measured voltage of back extraction electrolysis	138
Table A.3.39	Observed hold up ratio	139
Table A.3.40	Aqueous phase entrainment to organic product flow	139

1. はじめに

使用済燃料を再処理するピューレックスプロセスにおいて、ウランとプルトニウムの分離は、Pu(IV)を分配係数の低いPu(III)に還元することにより達成される。このプルトニウムの還元法としては、

- i) スルファミン酸第1鉄法
- ii) 硝酸ウラナス法
- iii) 硝酸ヒドロキシルアミン法 (HAN法)
- iv) 電解還元法

等が知られている。^{1), 2), 3)}しかし、i)のスルファミン酸第1鉄法による還元は、大量の鉄の使用による廃水処理上の問題ならびに鉄イオン(2価)及び硫酸根の装置材料腐食促進の問題がある。ii)の硝酸ウラナス法による還元は、軽水炉燃料の再処理において現在なお広く利用されている方法であるが、東海再処理工場の運転経験に基づけば、分配工程でのウラナス使用量は、 $U(IV) / Pu = 6 \sim 8$ (モル比)⁴⁾のものほり、特に高速炉使用済燃料の再処理の様に $Pu / (U + Pu)$ 比率が $0.06 \sim 0.16$ と高い^{5), 6)}場合には、大量のウラナスを必要とし、工程内ウランのインベントリーが増大するため得策ではない。これに対し、iii)のHAN法による還元は固体廃棄物を増大させることがなく、その還元反応も比較的良好に調査され、かつ、ミキサーセトラを用いてのフローシートスタディーも進んでおり、^{7~11)}別途進めている高速炉燃料リサイクル試験施設の概念設計においてもHANによる還元法を採用している。しかし、同法の場合、HANの溶媒への溶解度が低い為、溶媒劣化生成物とPu(IV)との錯化合物の還元が難しいとの指摘もある。^{3), 12)}これに対し、iv)の電解還元法は、ウラン/プルトニウムの工程内インベントリー、固体廃棄物の発生、溶媒劣化生成物とPu(IV)との錯化合物の還元(プロセス内でウラナスが製造される為)等の点から、特に高速炉燃料再処理の様に $Pu / (U + Pu)$ 比が高い場合に適した方法だと考えられる。

Puの還元法として、電解還元法をとらえた場合、逆抽出電解法と水相電解法の2法がある。逆抽出電解法とはUとPuを装荷した溶媒から、主としてPuを逆抽出しつつPuをPu(IV)からPu(III)に還元する方法であり、水相電解法とは水相中の主としてPuをあらかじめPu(III)に還元しておき、Uのみを抽出する方法である。分配工程を例にとると、各方法の装置構成は、各々、Fig. 1.1, Fig. 1.2に示されるようになると思われる。水相電解法を用いた場合、分配工程におけるPu製品のD.F.を担保する為、分配工程の前半に抽出、洗浄、逆抽出サイクル(Fig. 1.2中、で囲った部分)が必要となる為、装置構成が複雑になる。そこで、電解法を採用する場合は、装置構成の簡単な逆抽出電解法をメインテーマとしてとらえている。(Fig. 1.2中、で囲った部分は、抽出第1サイクルあるいはPu精製サイクルのD.F.並びにスペックを詳細に検討する事により省略できる可能性もある為、別途検討を進める必要がある。)

以上の様な観点から、高速炉燃料再処理で必要となる Pu (IV) の還元を目的として、昭和55年に電解還元法の研究開発に着手し、昭和58年には実規模相当（別途進行している高速炉燃料リサイクル試験施設の 120kgHM/d 処理に対応する）処理能力を有する電解還元パルスカラム工学試験装置（Ⅱ）を第1応用試験棟に設置した。（この間の開発経緯概要を Table 1.1 に示した。）本報告書は、同装置を用いて昭和59年度に行った試験結果をまとめたものである。

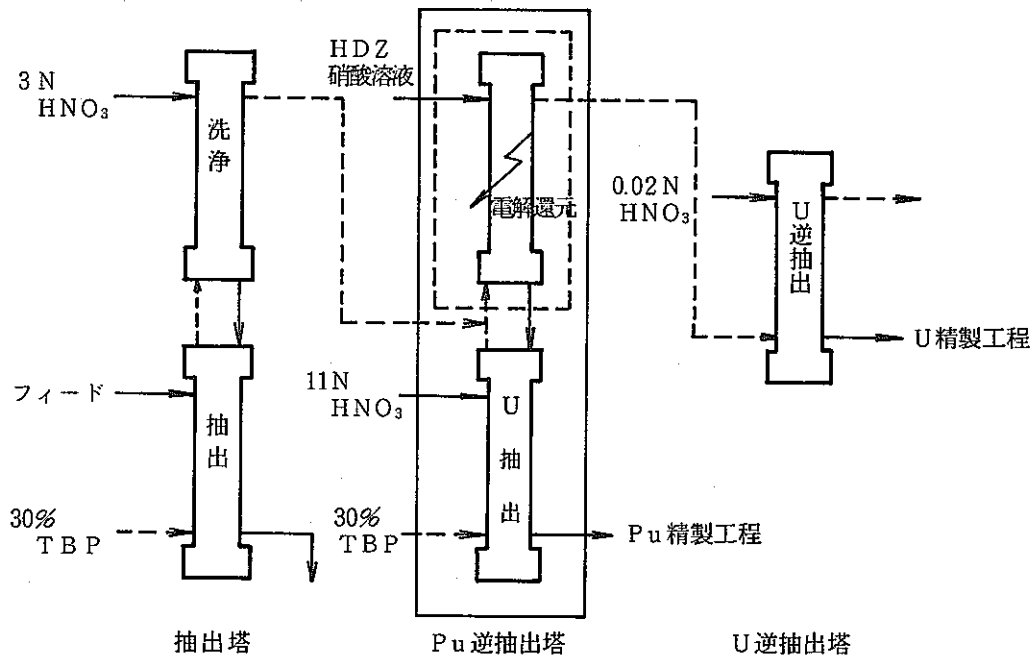


Fig.1.1 Conceptual flow of partition cycle (back extraction electrolysis)

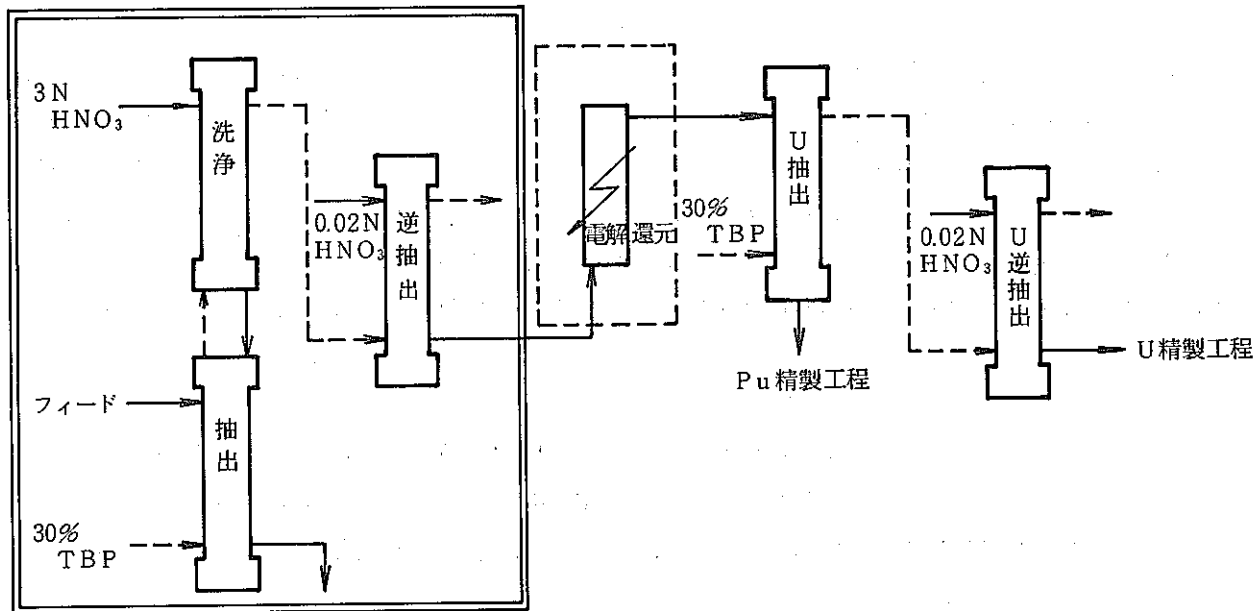


Fig.1.2 Conceptual flow of partition cycle (aqueous phase electrolysis)

Table 1.1 Development of electro-reduction process

年度	報告書No.	成 果 概 要	今 後 の 課 題
昭 和 55 年 度	PNCT 841 -80-65	<ul style="list-style-type: none"> ◦ KFK -2082 (主として電解還元ミキサーセトラ)の実験データを基にウラン、プルトニウムの電解還元速度式を導出した。同速度式を既存のMIXSET計算コードに組み込み、KFKレポートに記載される実験データを検証した。 	<ul style="list-style-type: none"> ◦ 同報告書にも指摘される様に、電解還元パルスカラムの場合、電極の構造が電解還元効率に及ぼす影響が大きいと考えられる為、実装置と同形状を有する電極に対する速度式を求める必要がある。
	SN 841 -81-07	<ul style="list-style-type: none"> ◦ ビーカースケールでの回分式電解還元試験装置を用いて、ウラン及びプルトニウムの電解還元基礎試験を行った。Pu(IV)の電解による還元速度は UO_2^{2+} より早く、また、Pu(IV)の還元速度は UO_2^{2+} の共存により更に上昇する。 	<ul style="list-style-type: none"> ◦ 還元速度式の再検討
	SJ 199 -81-16	<ul style="list-style-type: none"> ◦ ビーカースケールにおける分極曲線及び材料の耐食性試験(但しPu free)を実施し、陽極材…Ti + Ptメッキ、陰極材…Tiを選定した。 ◦ $50\phi \times 1000^L$の小型装置を用いて、UO_2^{2+}の還元に対し、積分形の還元速度式を導出した。 ◦ $100\phi \times 1000^L$の工学試験装置(I)を用いて、UO_2^{2+}の還元試験を実施した。電極形状により速度式が異なる。 	<ul style="list-style-type: none"> ◦ 実装置にメッキを用いる事は困難と考えられる為、代替法を調査しておく必要がある。 ◦ 還元速度式は微分形で出す必要があると共に、径方向スケールアップファクターを把握しておく必要がある。
昭 和 56 年 度	ZJ 199 -82-04	<ul style="list-style-type: none"> ◦ ビーカー試験及び小型装置($50\phi \times 1000^L$)を用いて、副生ガス発生の定性的傾向を得た。 ◦ 小型装置及び工学試験装置(I)を用いて、陰極構造を変えて UO_2^{2+}還元試験を行い、現在のタイプの陰極構造を定めた。 	

つづき

年度	報告書No	成 果 概 要	今 後 の 課 題
昭和 57 年度	PNC ZJ 199 -83-23	<ul style="list-style-type: none"> ◦ ビーカースケールで、F.P. の電極表面への付着を調べた結果、Ru, Rh の電着が確認された。溶媒の陽極への付着を考慮して、絶縁材部分に穴をあける事とした。 ◦ 工学試験装置(I)の運転領域を把握した。 ◦ 工学試験装置(I)の UO_2^{2+} 還元試験データを基に、工学試験装置(II) の設計 ($140\phi \times 2000^L \times 2$ 塔 実規模相当) を行った。 	◦ 第1サイクル分離の場合、F.P. 濃度が高い為、実液を用いた定量性評価試験が必要と考える。
		◦ 工学試験装置(II) (実規模相当 $140\phi \times 2000^L \times 2$ 塔) の製作	
昭和 58 年度	PNC ZJ 199 -84-27	<ul style="list-style-type: none"> ◦ カラム外筒に流れる電流量を小型装置 ($140\phi \times 300^L$) を用いて測定すると共に、カラム外筒材であるTiとステンレス鋼のガルバニック腐食試験を行った。同結果より、外筒材としてTiを選定する事の安全性及びTi-SUS材のカップリングには腐食上の問題はない事を確認した。 ◦ アジ化水素の安全性について確認した。 	

2. 電解還元パルスカラム工学試験装置(Ⅱ)*概要

EPC(Ⅱ)は実規模相当処理能力(120kgHM/d)を持つウラン試験用装置で、昭和58年11月に、東海事業所第1応用試験棟に設置された。同装置は、Fig.1.1中、□で囲った部分の試験が可能な様に設計されている。すなわち、電解還元パルスカラムとパルスカラムを主装置として有し、その他にポンプ、貯槽並びに、装置内で用いるウランのリサイクル使用が可能な様、液リサイクル用設備を有する。EPC(Ⅱ)の装置概要をFig. 2.1に示した。

電解還元パルスカラムは、電極部の保守という観点から2分割されており(column no. 2T-22, 2T-23)、両カラムは同一形状(すなわち電極部直径140mm、高さ2m)を有する。構成材料は、カラム外筒及び陰極がチタン材、陽極はチタン材に2μmの白金メッキを施したものをを用いている。また、カラム1塔当りの最大通電量は、D.C.300Ampである。(Fig.2.2, Fig. 2.3, Table 2.1参照)。一方、パルスカラム(column no. 2T-21)は、抽出部の直径約140mm、高さ4mで、標準目皿を使用しており、構成材料はSUS 304Lを用いている(Fig. 2.4, Table 2.2参照)。

試験では、パルス印加、流量制御を正確に行う為、メカニカルパルサーを使用し、カラム下部からの水相抽出は定量ポンプを用い、カラム上部からの油相は重力流移送を行った。さらに、界面検出には静電容量式の界面検出器を用いた。なお、EPC(Ⅱ)は、セル内設置を考慮して、保守頻度の少ないエアパルサー、エアリフトによる水相の抽出装置、エアバブリング方式による界面検出器の付加が可能な様配慮されている。

さらに、通電時の電流-電圧特性の把握、副生ガス発生量の測定、ジュール加熱による温度上昇の測定が可能な様、計装系が組まれている。測定方法の概要を各々Fig. 2.5～Fig. 2.7に示した。

* 以下EPC(Ⅱ)と略す。

- 2V-14 硝酸供給槽
- 2V-13 軽液貯槽
- 2V-21 軽液供給槽
- 2V-22 重液供給槽
- 2V-24 重液受槽
- 2V-23 軽液受槽
- 2T-22 電解還元パルスカラム
- 2T-23 電解還元パルスカラム
- 2T-21 パルスカラム

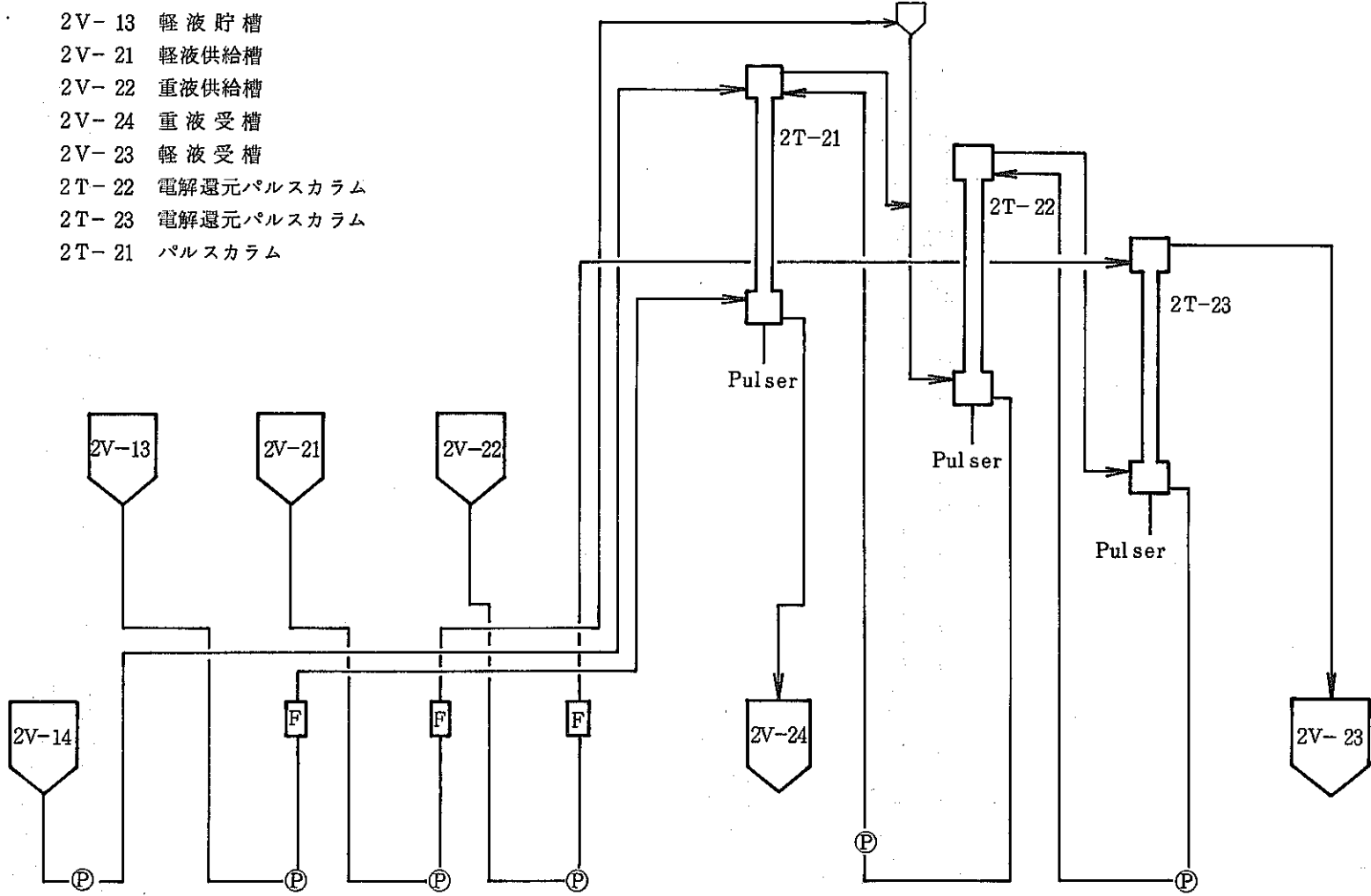


Fig.2.1 Conceptual scheme of EPC(II)

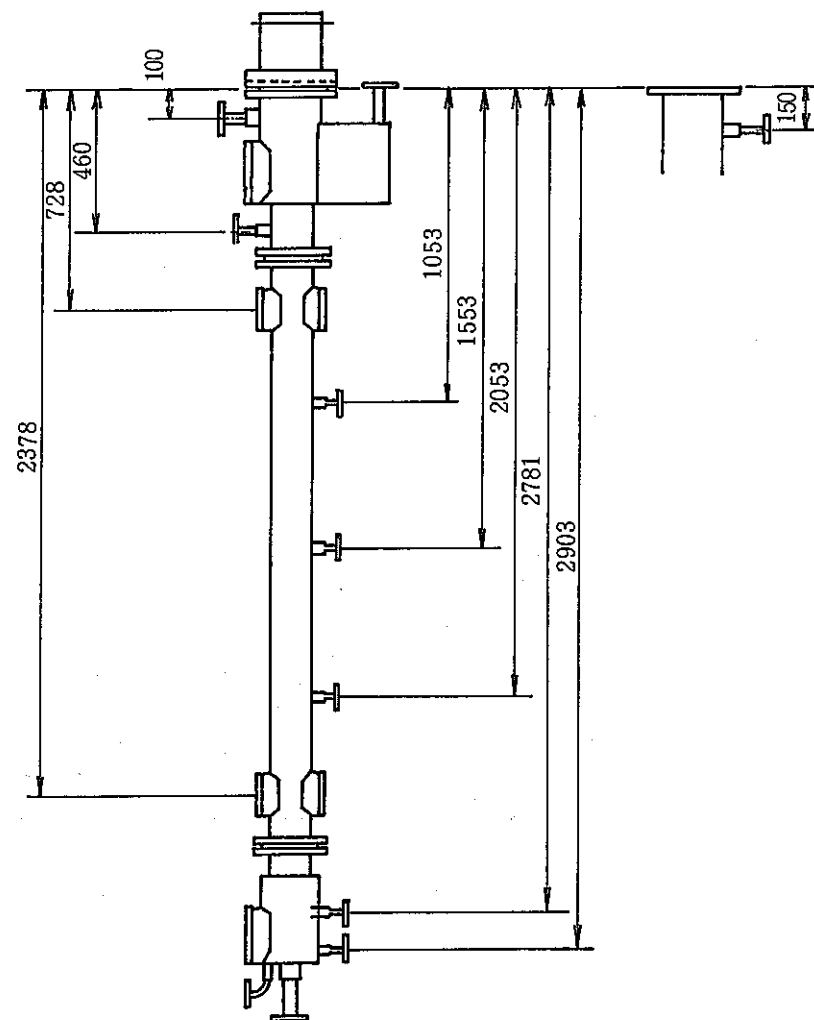
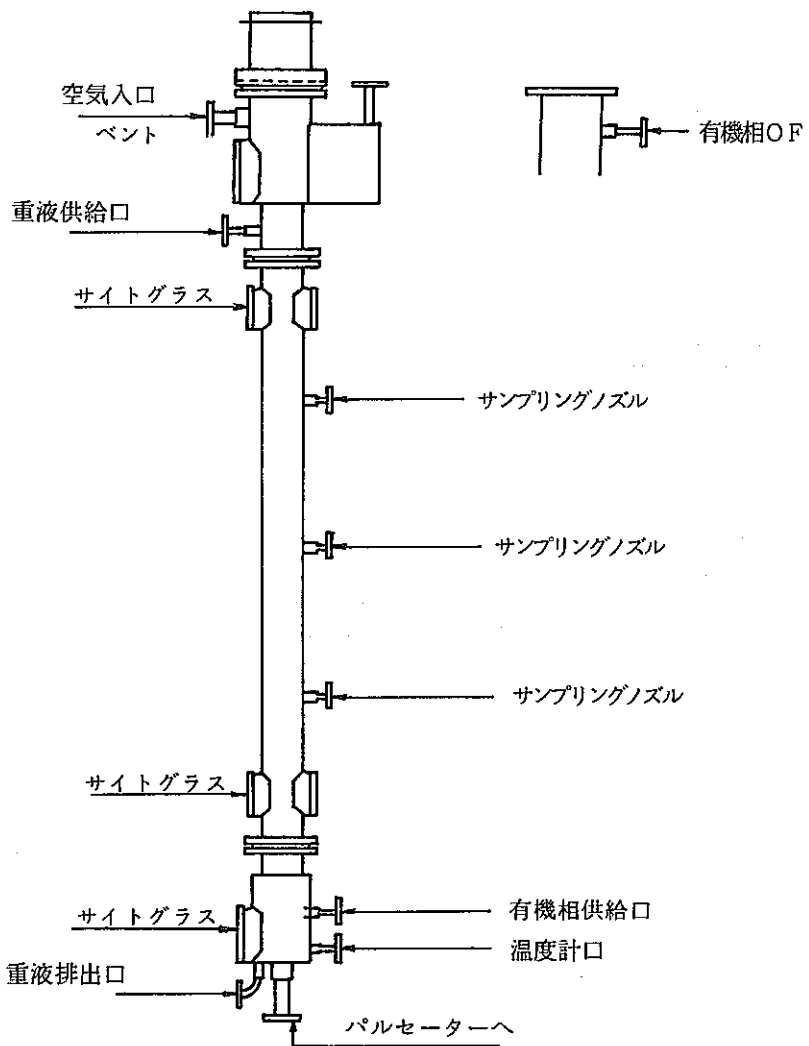


Fig.2.2 Structure of Electro-reduction column (column no. 2T-22, 2T-23)

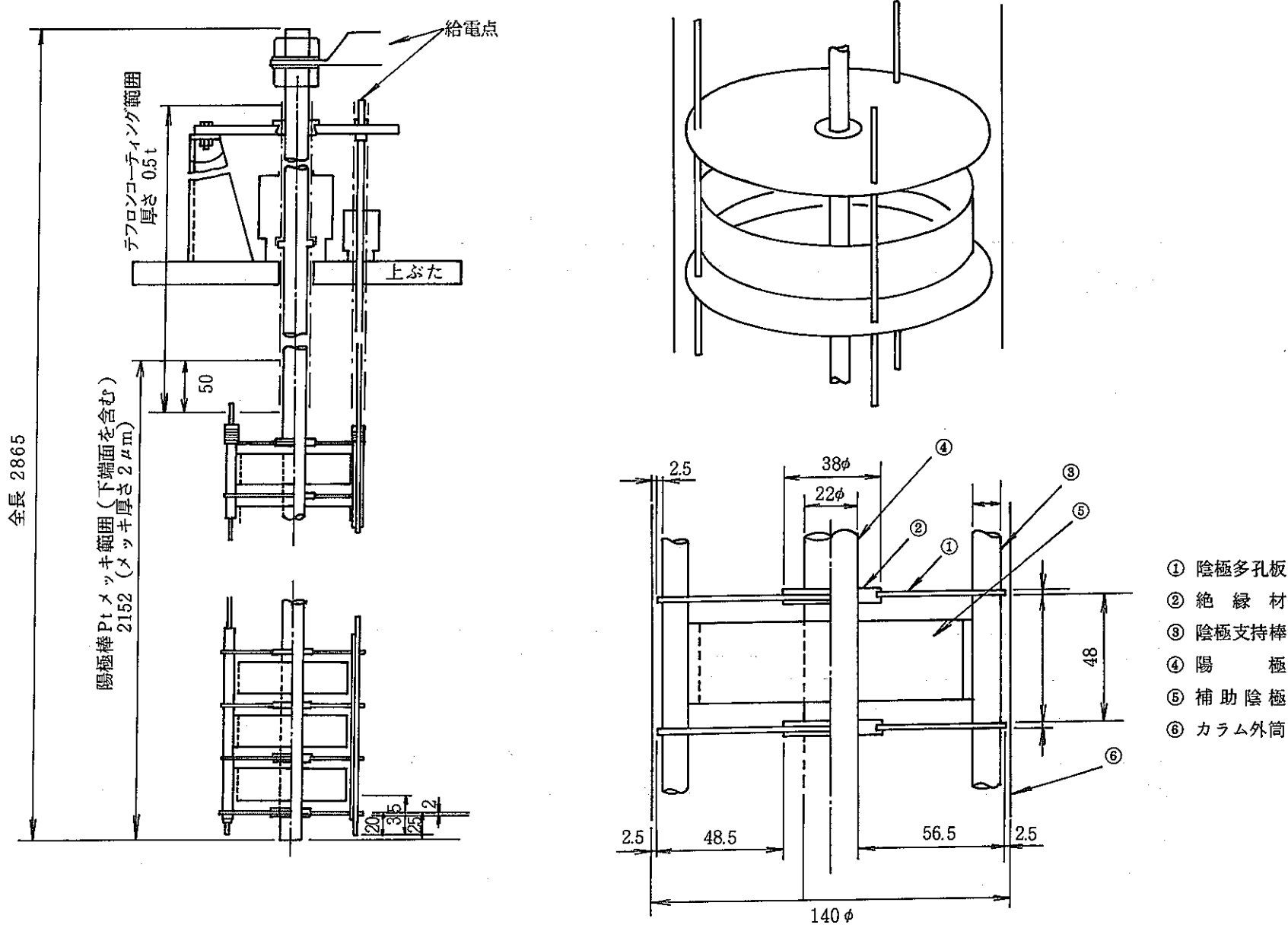


Fig.2.3 Details of electrode of Electro-reduction column (column no. 2T-22, 2T-23)

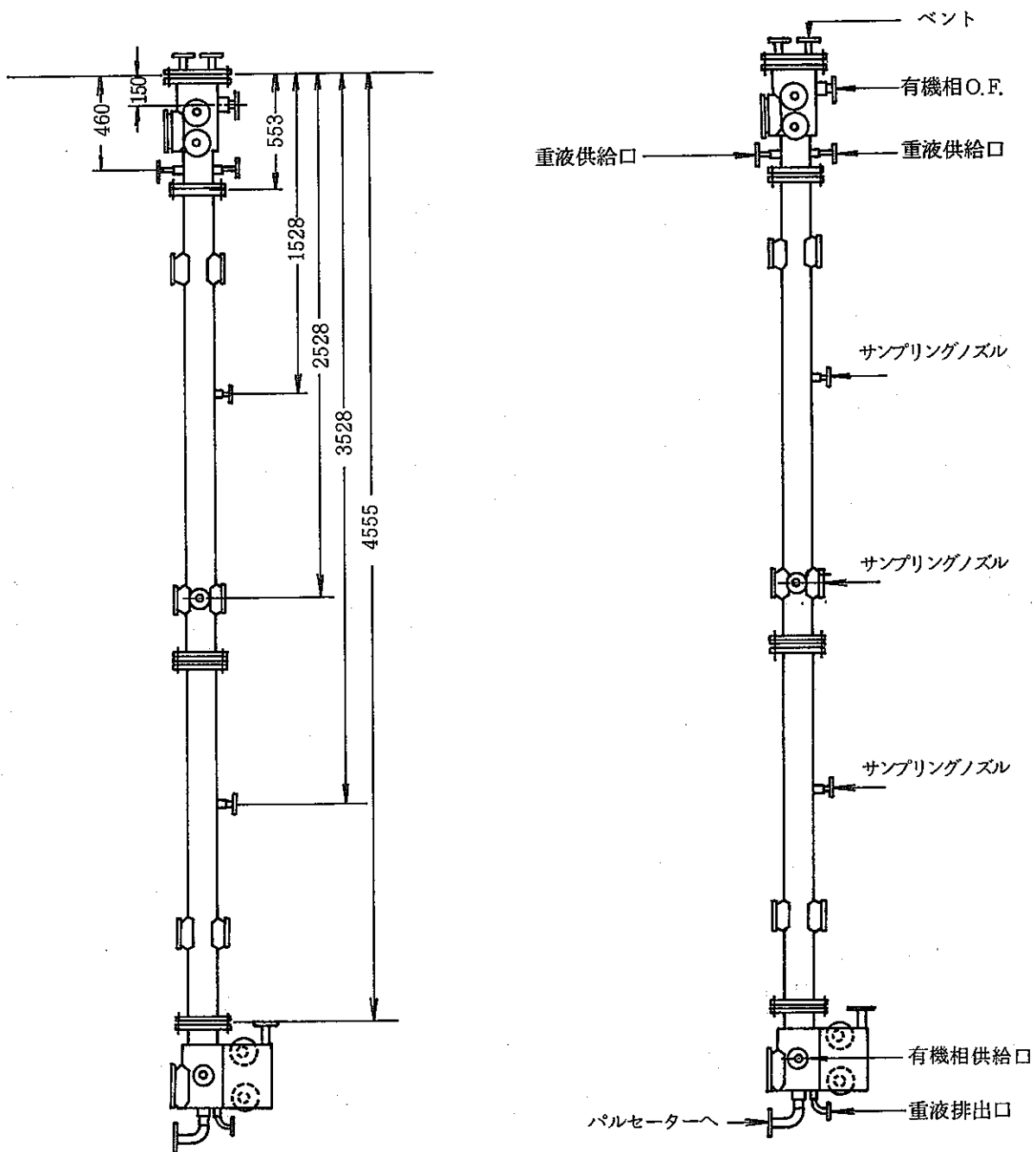


Fig.2.4 Structure of pulsed column (column no. 2T-21)

Table 2.1 Fundamental specification of Electro-reduction Column
(column no. 2T-22, 2T-23)

	形 状	材 質
カ ラ ム 部	塔高 ; 電極部 2 m 塔径 ; 内直径 140 mm 陰極 ; 全表面積 15152 cm ² 多孔版 表面積 ; 11234 cm ² 間隔 ; 50 mm 開孔率 ; 23 % 穴径 ; 3 mm 補助陰極 表面積 ; 3919 cm ² 陽極 ; 全表面積 ; 1216 cm ² 外直径 ; 22 mm ^φ 陰極比表面積 ; 0.513 (cm ² /cm ³) ($\frac{\text{陰極表面積}}{\text{陰極体積}}$)	カラム外塔 ; Ti 多孔板 ; Ti 補助陰極 ; Ti 絶縁材 ; テフロン 陽極 ; Ti-Ptメッキ (2 μm)
電源関係	1塔当り最大D. C. 300 Amp., 50 Vを給電可能 定電流及び定電圧制御が可能	

Table 2.2 Fundamental specification of Pulsed Column
(column no. 2T-21)

カラム部形状	カラム部材質
塔高 ; 目皿部 4 m 塔径 ; 内直径 143.2 mm 目皿 ; 間隔 50 mm 開孔率 23 % 穴径 3 mm	カラム外塔 ; SUS 304L 目皿 ; SUS 304L

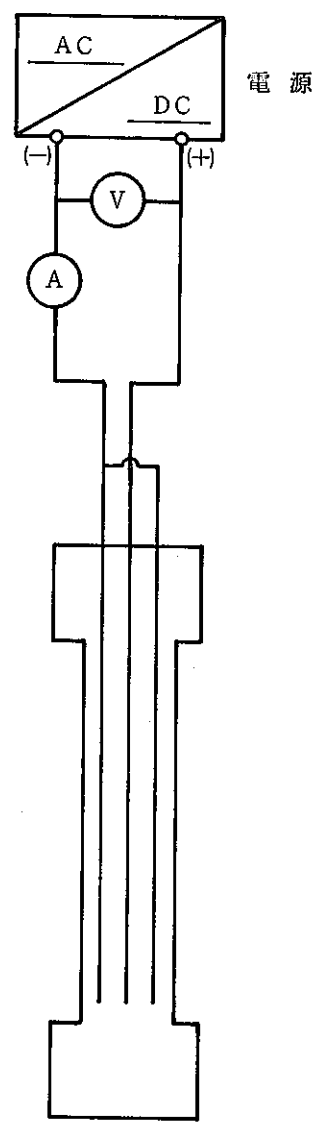


Fig.2.5 Current-voltage measurement flow (column no. 2T-22, 2T-23)

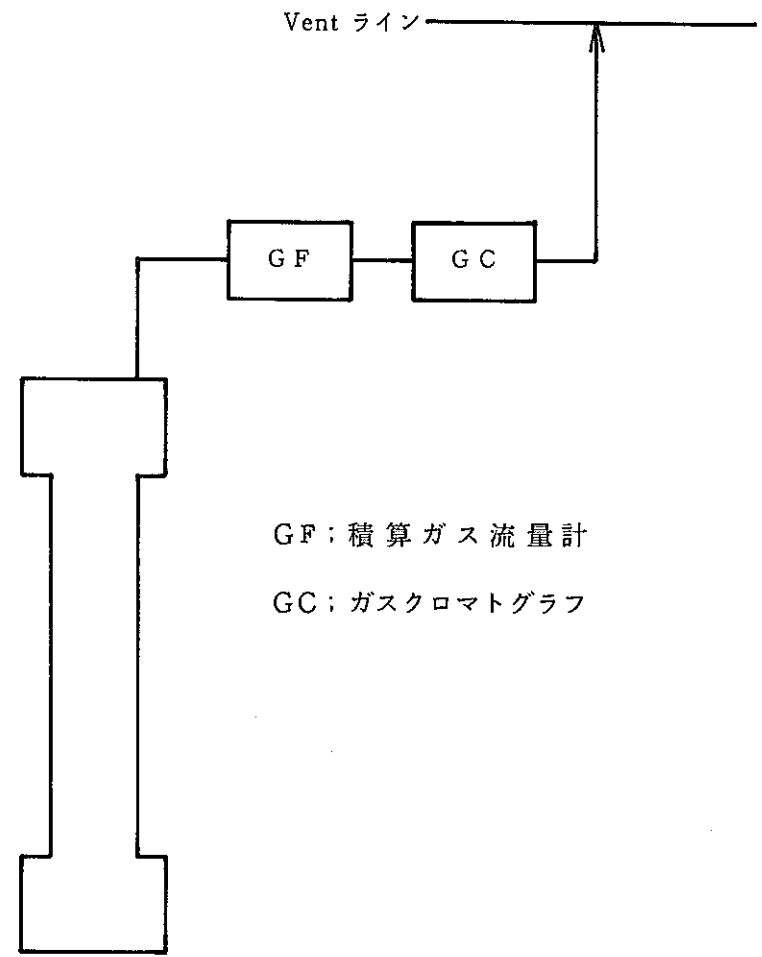
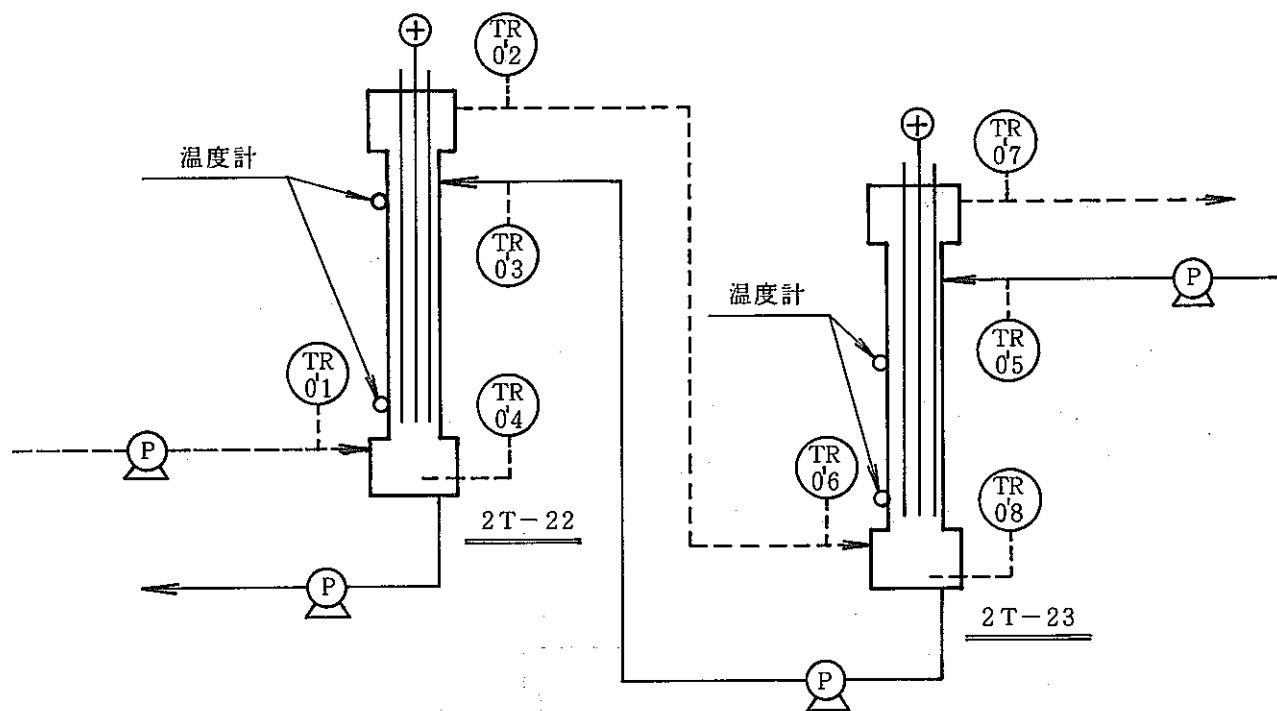
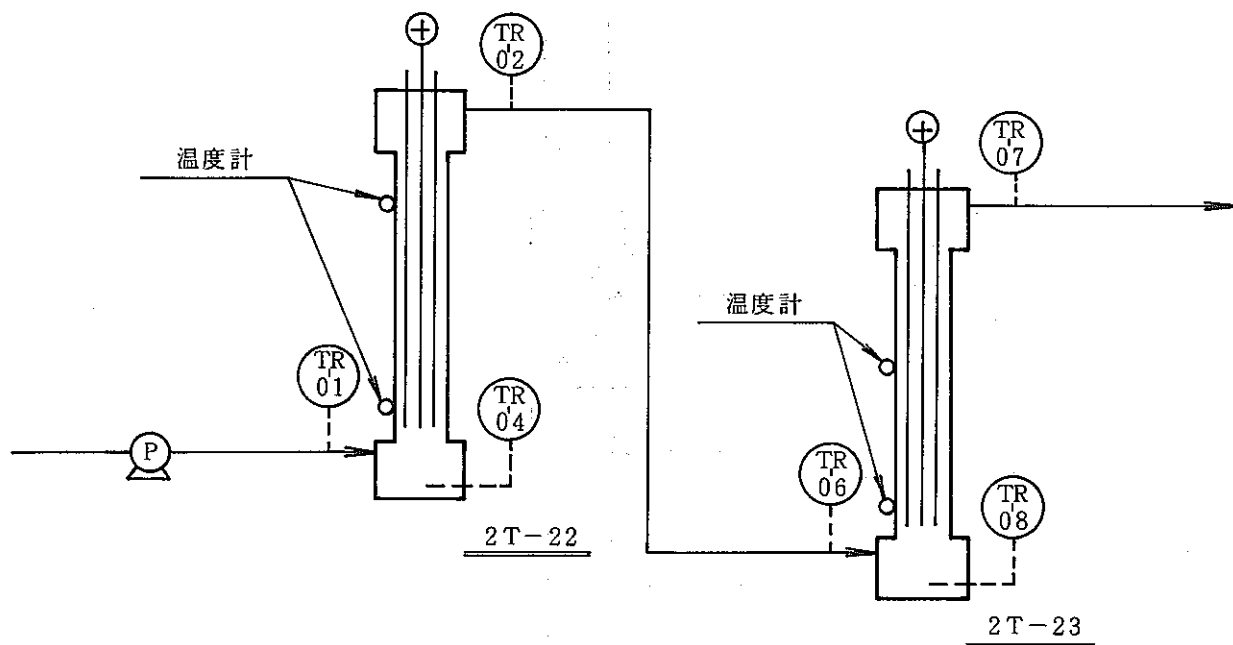


Fig.2.6 Secondary-generated gas measurement flow (column no. 2T-22, 2T-23)



逆抽出電解試験



水相電解試験

(TRは熱伝対を示し、プロセス液に接している。
 温度計は棒状温度計をカラム外筒に取り付けた。)

Fig.2.7 Temperature measurement points

3. 試 験

3.1 標準運転条件の選定

試験に先立ち、設計上要求される処理能力等について整理し、標準運転条件を選定しておく必要がある。別途進めている高速炉燃料リサイクル試験施設の概念設計では HAN 法による設計を行っている為、HAN 還元塔に関するケミカルフローを整理し、120kgHM/d 処理の中で最も Pu の処理量の大きい M-2 ケースを電解還元パルスカラムの標準運転条件として選定し、Fig. 3.1.1 に示した。なお、設計では、240kgHM/d 処理をも考慮している為、設計上要求させる処理能力等を Table 3.1.1 に整理し示した。

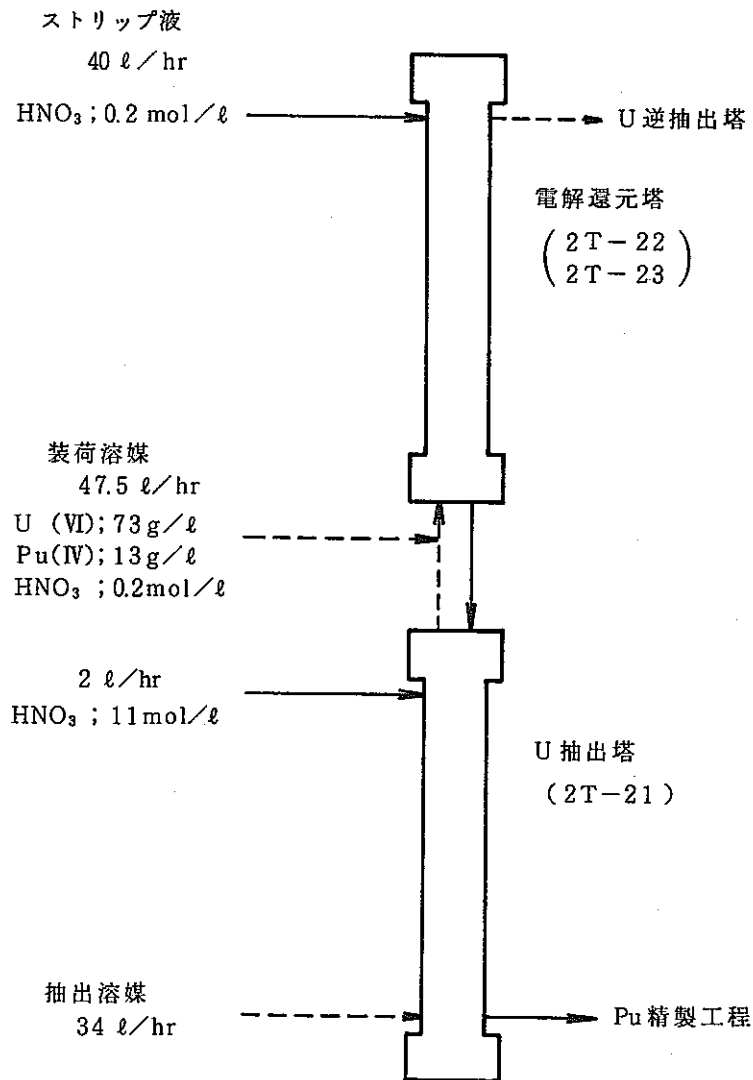


Fig.3.1.1 Experimental flow of aqueous phase electrolysis

Table 3.1.1 Design capacity of partition column

項 目	120 kg HM/d 対応	240 kg HM/d 対応
1) Pu の処理能力	1.4 ~ 2.8 mol/hr	2.4 ~ 5.3 mol/hr
2) Pu / (Pu + U)	0.06 ~ 0.16	0.05 ~ 0.16
3) 装荷溶媒 + 抽出溶媒	80 ~ 99 ℓ/hr	160 ~ 187 ℓ/hr
4) 還元塔内の O/A	2.0 ~ 2.5	2.0 ~ 2.6
5) 装荷溶媒		
ア) 流 量	47 ~ 59 ℓ/hr	94 ~ 117 ℓ/hr
イ) Loading 率	64 ~ 66 %	64 ~ 66 %

3.2 試験の目的及び運転実績

EPC (II) について

- i) パルスカラム (2 T-21) 及び電解還元パルスカラム (2 T-23) の安定に運転可能な領域の概略を把握する。
- ii) U (VI) → U (IV) 還元反応に対する反応速度式を得る。
- iii) 逆抽出電解時における塔内の各種濃度プロファイル及び副生ガスの生成状況の概要を得ることを目的に、各々、流動特性試験、水相電解試験、逆抽出電解試験を実施した。各々の試験運転実績を Table 3.2.1 に示した。

Table 3.2.1 Schedule of experimental operations

試 験	Run No.	運 転 月 日
コールド試験	流動特性試験	S. 58. 11 } S. 59. 3
	3C - 005	S. 59. 4 / 26
	3C - 006	S. 59. 5 / 17
逆抽出電解試験	20 - 001	S. 59. 7 / 3
	20 - 003	S. 59. 7 / 27
	20 - 008	S. 59. 9 / 7
	20 - 002	S. 59. 10 / 11
	20 - 004	S. 59. 11 / 13
	20 - 005	S. 59. 12 / 4
水相電解試験	2A - 001	S. 60. 1 / 29
	2A - 002	S. 60. 2 / 19
	2A - 004	S. 60. 2 / 26
	2A - 003	S. 60. 3 / 6

3.3 試験方法

3.3.1 流動特性試験

試験には、パルスカラムとして2T-21を、電解還元パルスカラムとして2T-22（構造は2T-23と同一）を用い、連続相は、通常選択されるであろう連続相（すなわち、2T-21；有機相連続、2T-22；水相連続）を用いた。試験は室温で行い、用いた液体は、

水相；1NHNO₃

有機相；30%TBP/n-ドデカン

である。試験は、以下の手順に従って実施した。

- カラムに連続相を張り、所定のパルスを印加する。
- カラム上部より水相を、カラム下部より有機相を供給する。
- 液の供給開始後、約1.5時間後にサイトグラスより塔内の分散状態を目視観察すると共に、各サンプリングポイントよりカラム内液及び有機相オーバーフロー液を約100cc抜き出す。
- 次のランは、カラム内の連続相を張りかえる事なく、b)、c)を繰り返した。

試験液のサンプリングは3mmφのテフロンチューブを介して重力流により行った。得られたサンプリング液は、油水分離後、各相の体積を測定する事により、塔内ホールドアップ率及び有機相オーバーフロー液中の水相エントレインメント率を求めた。

3.3.2 水相電解試験

2本の電解還元パルスカラム(2T-22, 2T-23)を用い、以下の手順に従って試験を実施した。

- a) 2本の電解還元パルスカラムに試験液を張る。
- b) 上記2本のカラムにパルスを印加し、この後、試験液を供給する。
- c) 通電を開始する。通電は定電流制御で行い、約8~9時間連続運転を行った。
- d) 通電開始時を $t = 0$ とし、通電開始後、1時間毎にサンプリングを行い、同試料の液組成を分析した。
- e) 試験終了後、カラム内液を抜き出し、そのまま放置した。
- f) 次の試験は再び a) ~ e) を繰り返す。

試験は室温で行った。Fig. 3.3.1 に水相電解試験フローを、Table 3.3.1 には水相電解試験条件を示した。

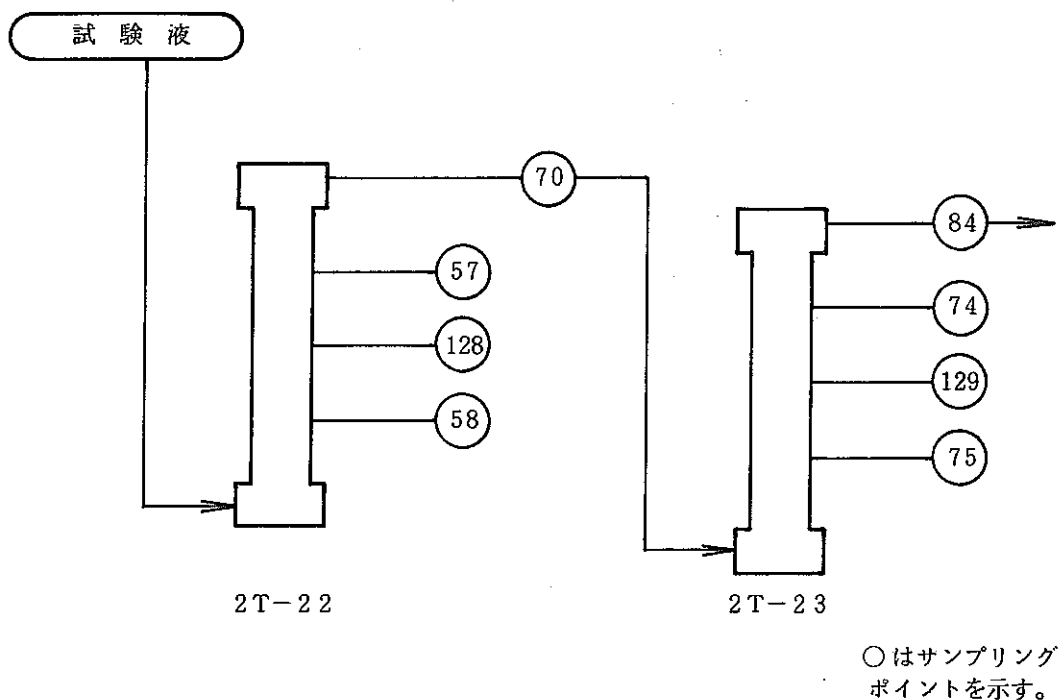


Fig.3.3.1 Experimental flow of aqueous phase electrolysis

Table 3.3.1 Experimental conditions of aqueous phase electrolysis

RUNNo.	試 験 液				電 流 条 件			パルス条件	
	流量 ℓ/hr	組 成 (mol/ℓ)			全電流 (A)	F/E _q	2T-22 / 2T-23	2T-22 mm×cpm	2T-23 mm×cpm
		U (VI)	HNO ₃	N ₂ H ₅ ⁺					
2A-001	41.0	0.205	0.20	0.21	168	0.37	84/84	20×60	20×60
2A-002	36.5	0.200	0.20	0.19	342	0.88	171/171	20×60	20×60
2A-003	39.8	0.200	0.20	0.19	514	1.13	257/257	20×60	20×60
2A-004	77.3	0.219	0.20	0.18	342	0.38	171/171	20×60	20×60

3.3.3 逆抽出電解試験

2本の電解還元パルスカラム(2T-22, 2T-23)を用い, 以下の手順に従って室温で試験を実施した。

- 2本の電解還元パルスカラムに逆抽出液を張る。
- 各カラムにパルスを印加し, この後, 装荷溶媒及び逆抽出液を供給する。
- 各カラムの有機相, 水相界面が安定した後, 通電を開始する。通電は定電流制御で行い, 約8~9時間連続運転を行った。
- 通電開始時を $t = 0$ とし, 通電開始後, 1時間毎にサンプリングを行い, 同試料の液組成を分析した。最終サンプリングについては, 油水分離後, 塔内ホールドアップ率及び有機相オーバーフロー液中に混入する水相エントレインメント量を測定した。
- 試験終了後, カラム内液を抜き出し, そのまま放置した。
- 次の試験は再び a) ~ e) を繰り返す。

Fig. 3.3.2 に逆抽出電解試験フローを, Table 3.3.2には逆抽出電解試験条件を示した。

なお, 水相電解試験及び逆抽出電解試験で行った液組成の分析には以下の分析法を用いた。

H ⁺	アルカリ滴定法
N ₂ H ₅ ⁺	アルカリ滴定法
total U	放射線 (γ線) 分析法
U (IV)	直接吸光光度法
HNO ₃	硝酸第2鉄添加吸光光度法

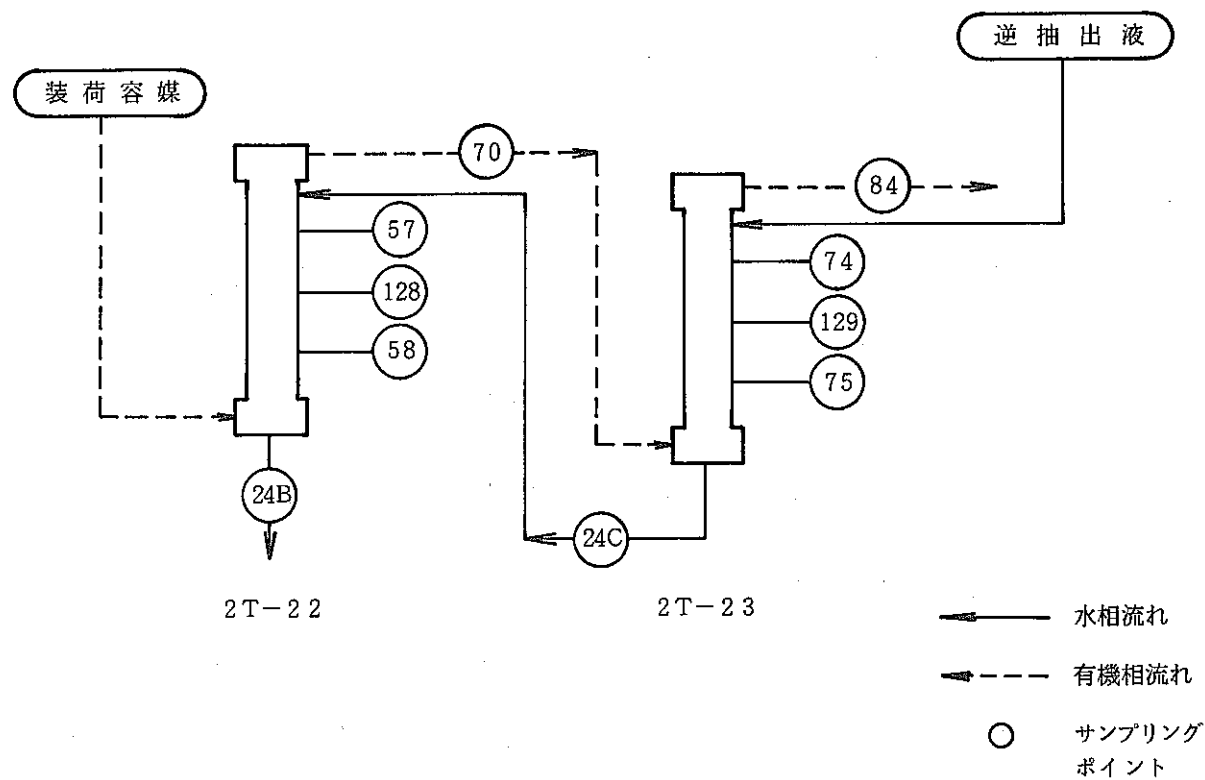


Fig.3.3.2 Experimental flow of back extraction electrolysis

Table 3.3.2 Experimental conditions of back extraction electrolysis

RUN No.	装 荷 溶 媒				逆 抽 出 液			電 流 条 件			パルス条件	
	流 量 (ℓ /hr)	組 成 (mol/ ℓ)			流 量 (ℓ /hr)	組 成 (mol/ ℓ)		全電流 (A)	F/E _q	2T-22 / 2T-23	2T-22 mm \times cpm	2T-23 mm \times cpm
		U (VI)	HNO ₃	HN ₃		HNO ₃	N ₂ H ₅ ⁺					
20-001	84.3	0.164	0.33	1.4×10^{-3}	40.6	0.21	0.21	171	0.23	85.7/85.7	20 \times 60	20 \times 60
20-002	81.9	0.222	—	7.5×10^{-3}	38.7	0.10	0.22	342	0.35	171/171	20 \times 60	20 \times 60
20-003	83.2	0.178	0.24	4.2×10^{-3}	39.8	0.21	0.20	514	0.65	257/257	20 \times 60	20 \times 60
20-004	80.8	0.201	0.18	8.0×10^{-3}	38.8	0.20	0.22	343	0.39	257/85.7	20 \times 60	20 \times 60
20-005	80.5	0.216	0.20	1.0×10^{-2}	37.7	0.21	0.22	343	0.37	214/129	20 \times 60	20 \times 60
20-008	78.5	0.202	0.25	5.7×10^{-3}	36.3	0.20	0.21	420	0.49	210/210	20 \times 60	20 \times 60

* 20-006, 20-007は欠番である。

4. 結果と考察

4.1 流動特性

パルスカラムあるいは電解還元パルスカラムについては、装置の構造、運転時の液組性、流量条件、パルス条件等により、安定に運転可能な領域が変動する事が知られているが、同領域の概要を把握する為に、本実験ではコールドな液組成(1 NHNO₃, 30%TBP/n-ドデカン)を用いて試験を行った。

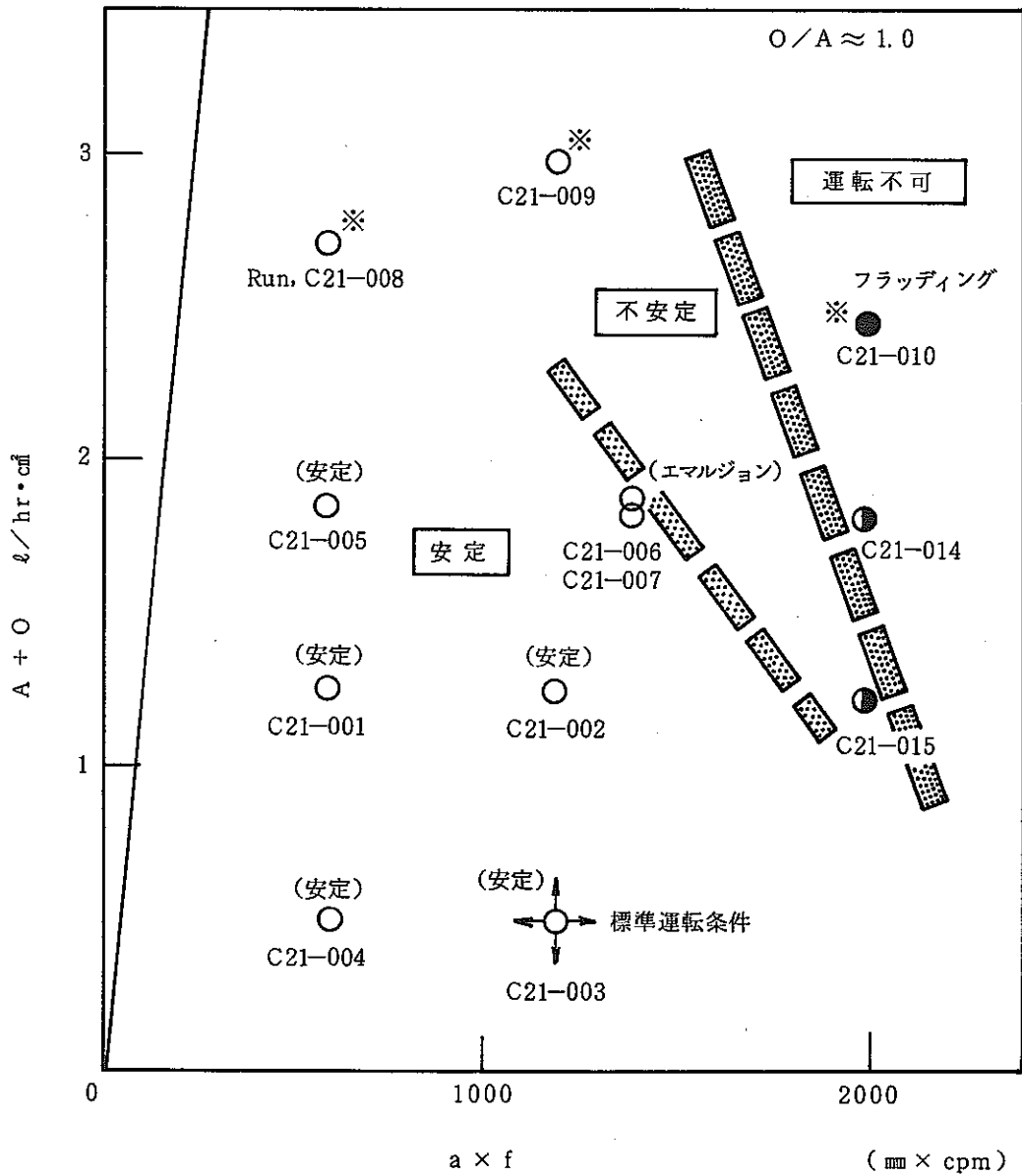
同試験結果を基に、安定運転領域を示す図としてパルスカラムの試験結果(使用カラム 2 T-21)を Fig.4.1.1 に、電解還元パルスカラムの試験結果(使用カラム 2 T-22)を Fig.4.1.2, Fig. 4.1.3 に示した。図中、フラッディングとは、有機相オーバーフロー液中の水相エントレインメント率が5%を超えたもの、エマルジョンとは塔内にて形成される分散相液滴が非常に細かく白濁して見える状態として記した。また、O/A は試験時の有機相と水相の流量比を示しており、同流量比は、標準運転条件を基に設定した。

電解還元パルスカラムの場合、液流速を上げる(あるいはパルス条件を厳しくする)事によって、水相における還元速度は早まる事が知られている¹³⁾が、一方、エアパルサーを用いる場合、60 cpm 程度がサイクル数の上限と考えられる。そこで、60 cpm×20mm(20mm は概念設計値)をパルス条件の標準と考える時、Fig.4.1.2 及び Fig. 4.1.3 より、電解塔(2 T-22)は、O/A = 2.5 ~ 4.0 の範囲内で、1.4 l/hr·cm²(A+O)まで安定に運転可能であった。(ポンプ及び流量計の構造上、現装置では、これ以上の流量がとれない。)この値は、3.1 節で示した標準運転条件の処理能力の約 1.7 倍に相当し、本装置は、標準運転条件下で充分安定に運転可能である事をコールドにて確認した。

通常の抽出塔(2 T-21)についても標準運転条件の処理能力の約 4 倍まで、安定に運転可能である事をコールドにて確認した。

<今後の課題>

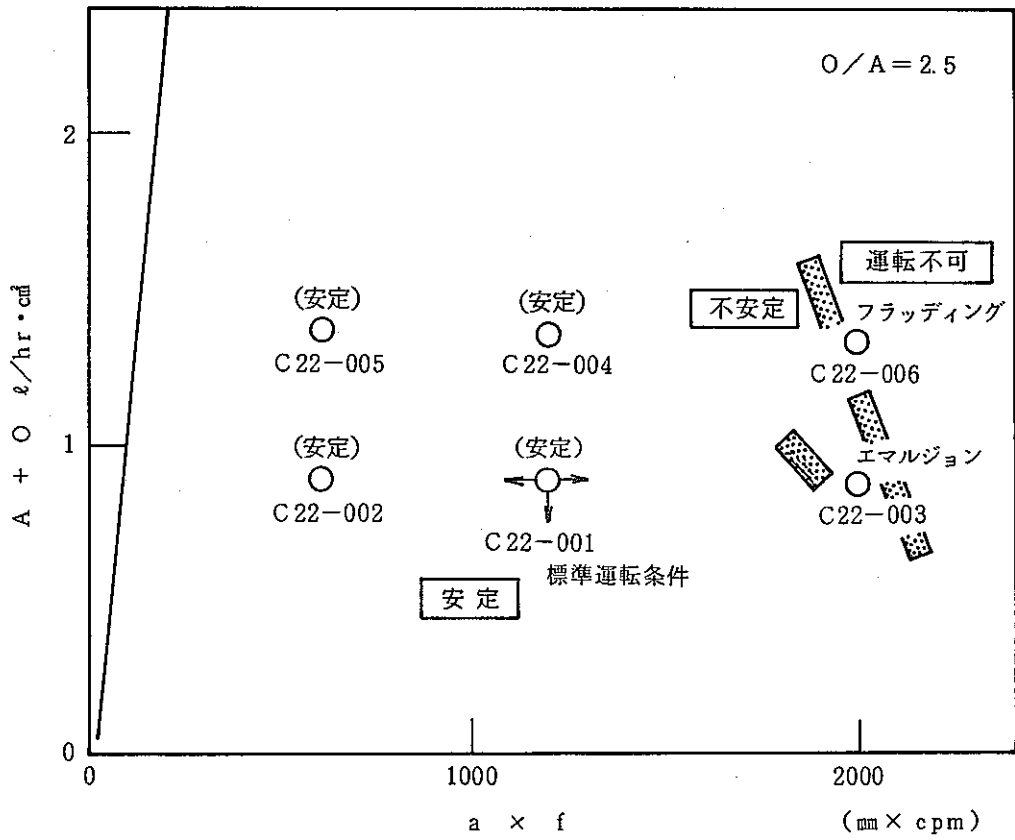
- i. 電解塔については、不安定な領域についてより詳細に試験を行っておくと共に、240 kg HM / d 処理に対応可能か否かを見きわめておく必要がある。
- ii. 電解塔、抽出塔共に、ウラン装荷時の安定運転領域を求めておく必要がある。



連続相；有機相
 液相；水相 1NHNO₃
 有機相 30% TBP/n-ドデカン

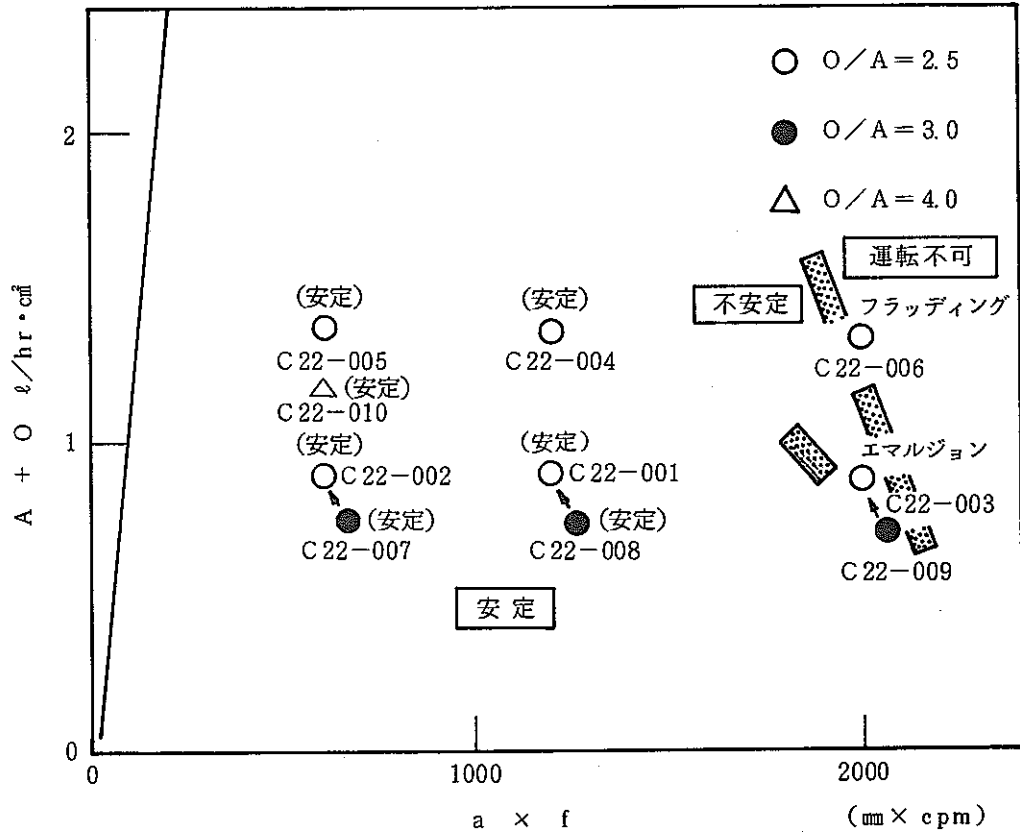
* 装置制約上 0.5hr 運転とした。

Fig.4.1.1 Experimental results of hydraulic character in 2T-21



連続相 ; 水 相
 液 相 ; 水 相 1NHNO₃
 有機相 30% TBP/n-ドデカン

Fig.4.1.2 Experimental results of hydraulic character in 2T-22



連続相；水 相
 液 相；水 相 1NHNO₃
 有機相 30% TBP/n-ドデカン

Fig.4.1.3 Experimental results of hydraulic character in 2T-23

4.2 平衡到達時間

系の平衡到達時間を把握する為に、水相電解試験及び逆抽出電解試験について i) U (IV)濃度の経時変化 ii) 副生ガス組成の経時変化 を調べた。経時変化の代表例として、水相電解試験については Run no. 2A-003 の結果を逆抽出電解試験については Run no. 20-005 の測定結果を Fig. 4.2.1 ~ Fig. 4.2.6 に示した。これらの図より

- i) 水相電解試験，逆抽出電解試験共に，U (IV) 濃度は水相の入口側から徐々に定常に到達してゆき，水相出口近傍が最も定常到達に時間がかかる。
- ii) 副生ガス組成の経時変化はU (IV) 濃度の経時変化よりもゆるやかにおこり，定常到達時間はU (IV) 濃度の定常到達時間よりも長い。

ことがわかった。他の Run no. のデータをも検討した結果，いずれの試験も副生ガス組成は定常に到達していない事がわかった。一方，U (IV) 濃度については，最も定常到達に時間がかかるポイント（水相電解試験； Sampling point 84，逆抽出電解試験； Sampling point 58）における経時変化を水相電解試験，逆抽出電解試験別に各々 Fig. 4.2.7 及び Fig. 4.2.8 に示したが，いずれも約6～7時間で定常に到達することがわかった。副生ガス組成が定常に到達していないという事は，厳密な意味で，系が平衡に到達しているとは言い難いが，4.3以降の解析では，液組成は平衡に到達しているものとして解析を進めた。

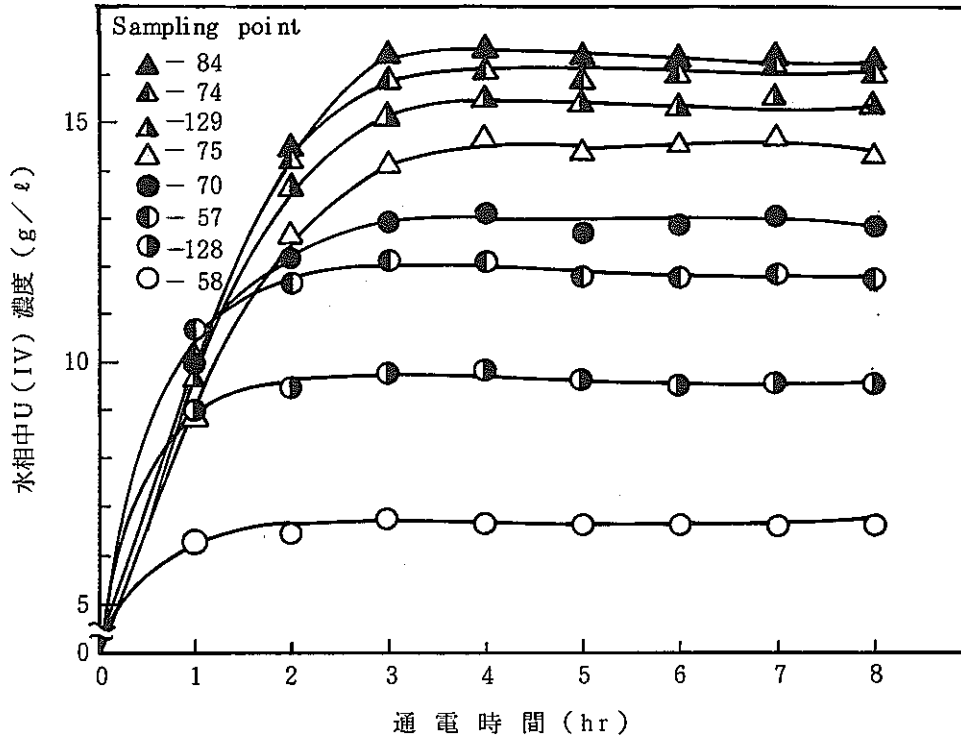


Fig.4.2.1 U(IV) concentration change with passage of time (run no. 2A-003)

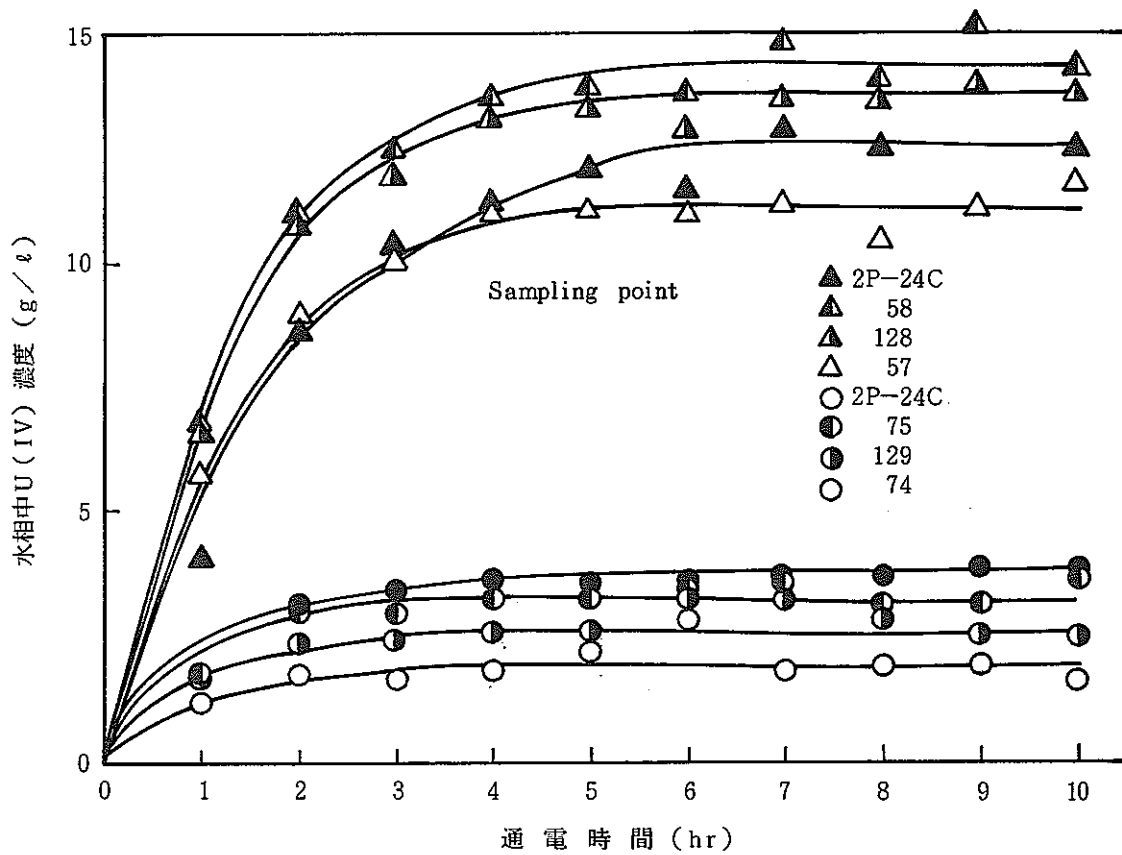


Fig.4.2.2 U(IV) concentration change of aqueous phase with passage of time (run no. 20-005)

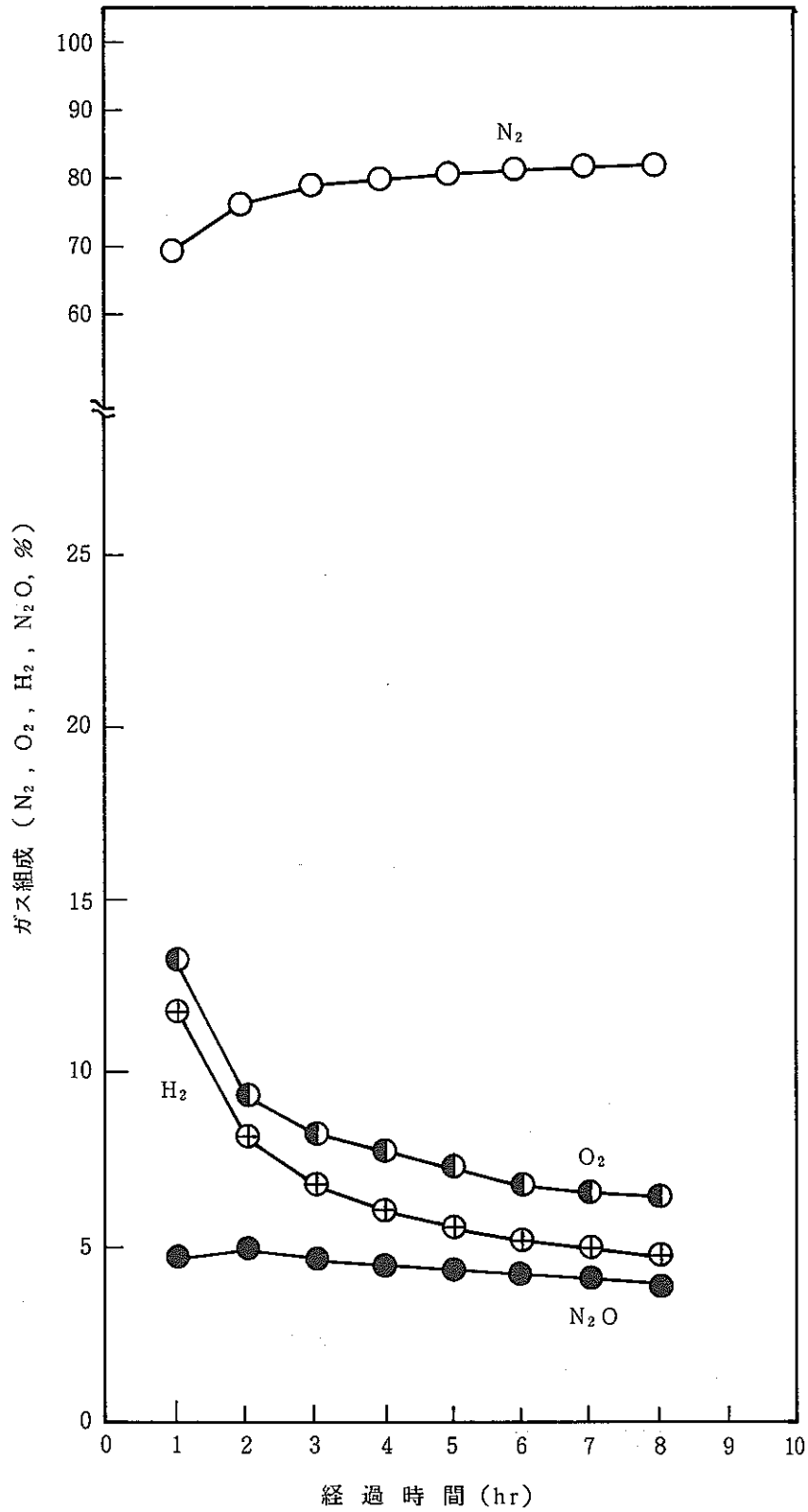


Fig.4.2.3 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-003)

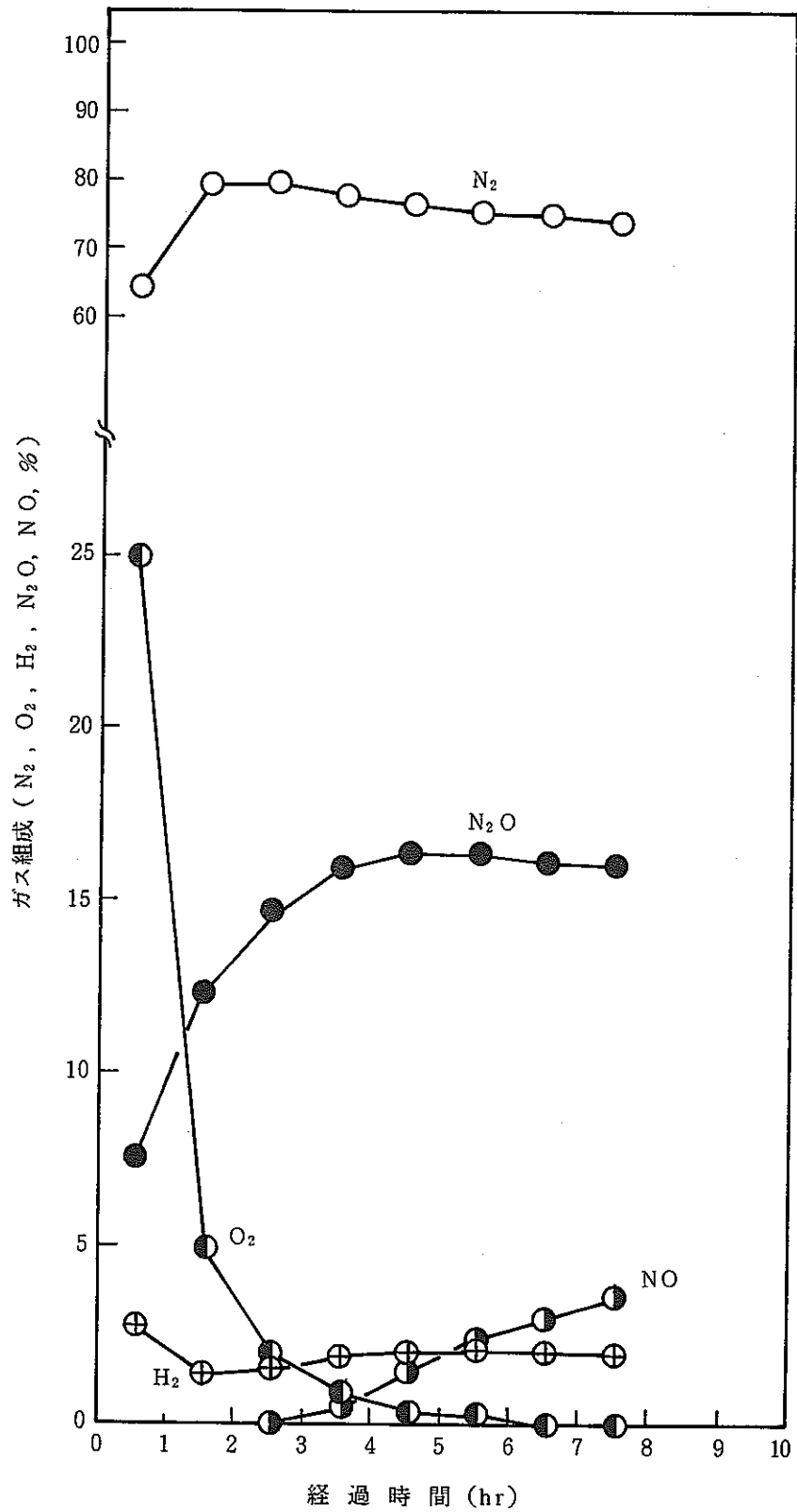


Fig.4.2.4 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-003)

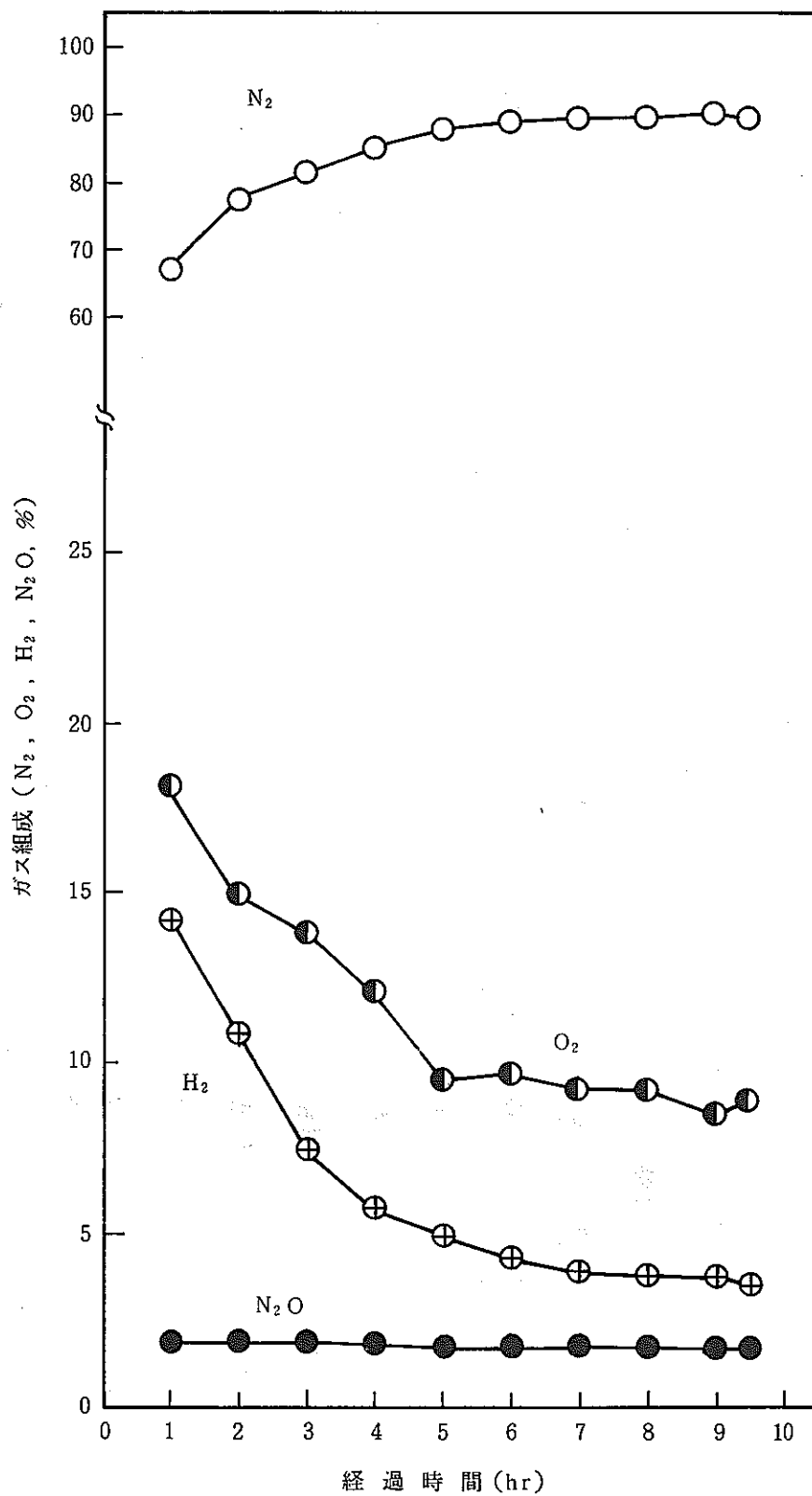


Fig.4.2.5 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-005)

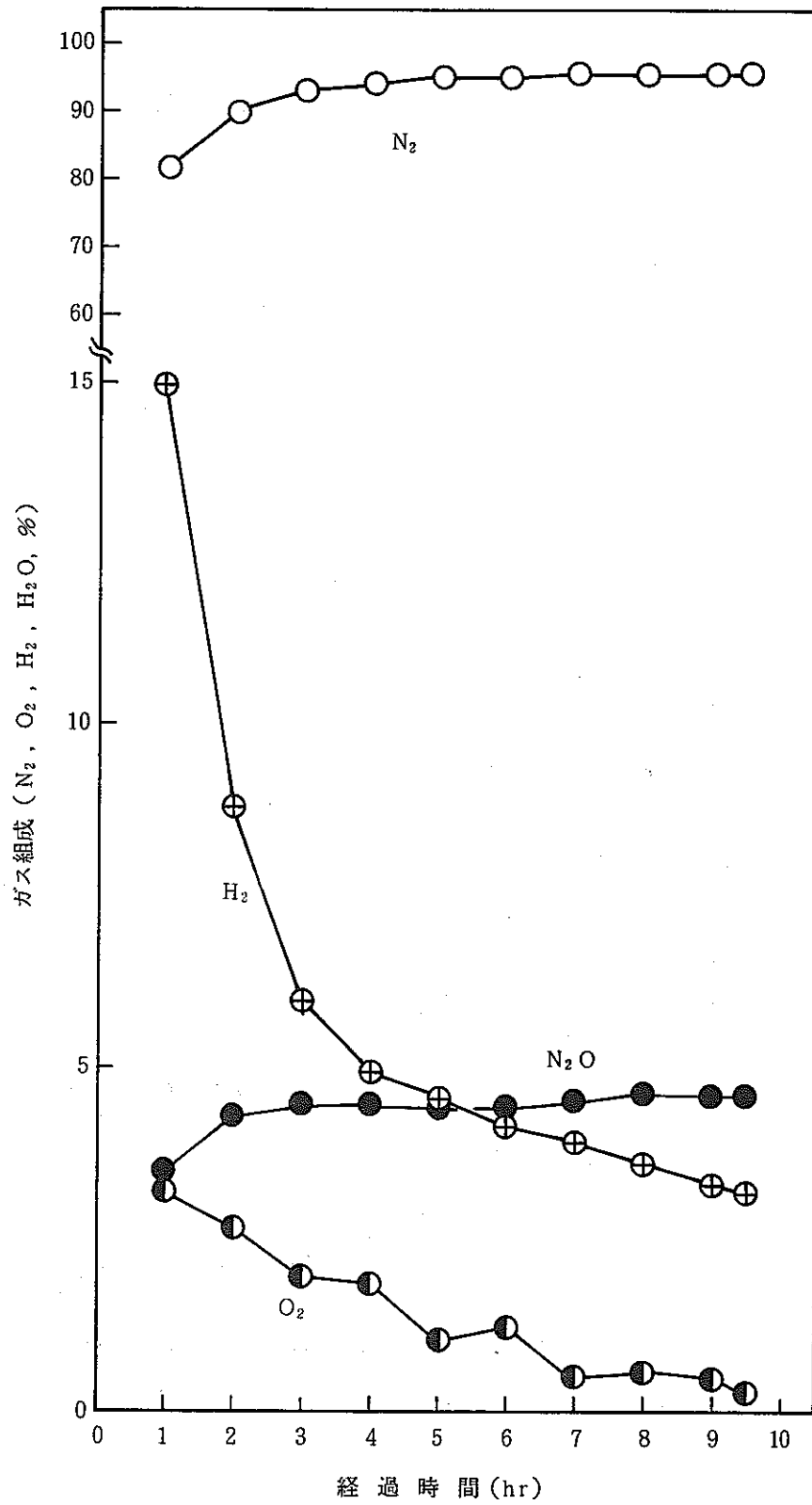


Fig.4.2.6 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-005)

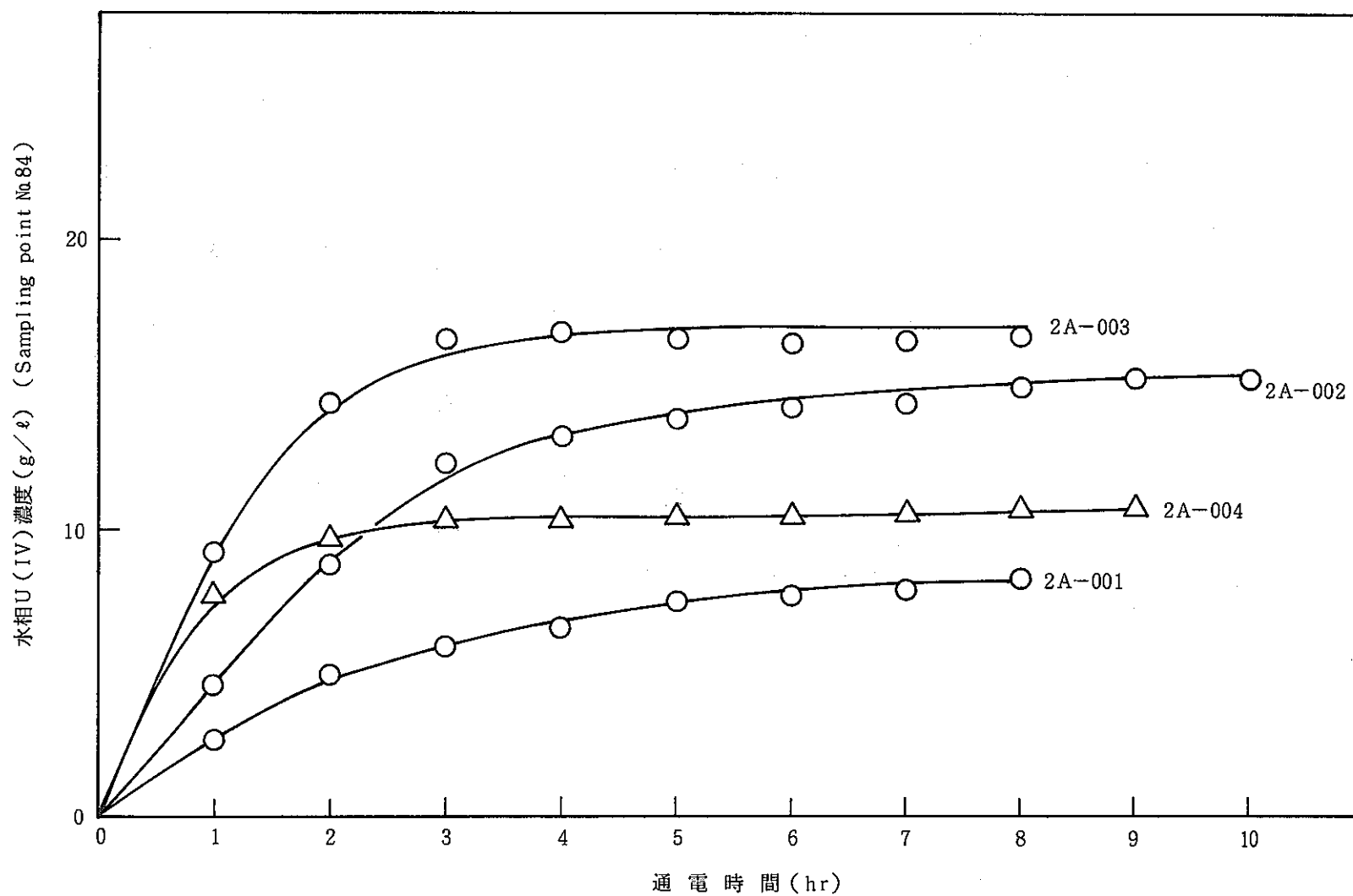


Fig.4.2.7 U(IV) concentration change of back extraction electrolysis experiments with passage of time

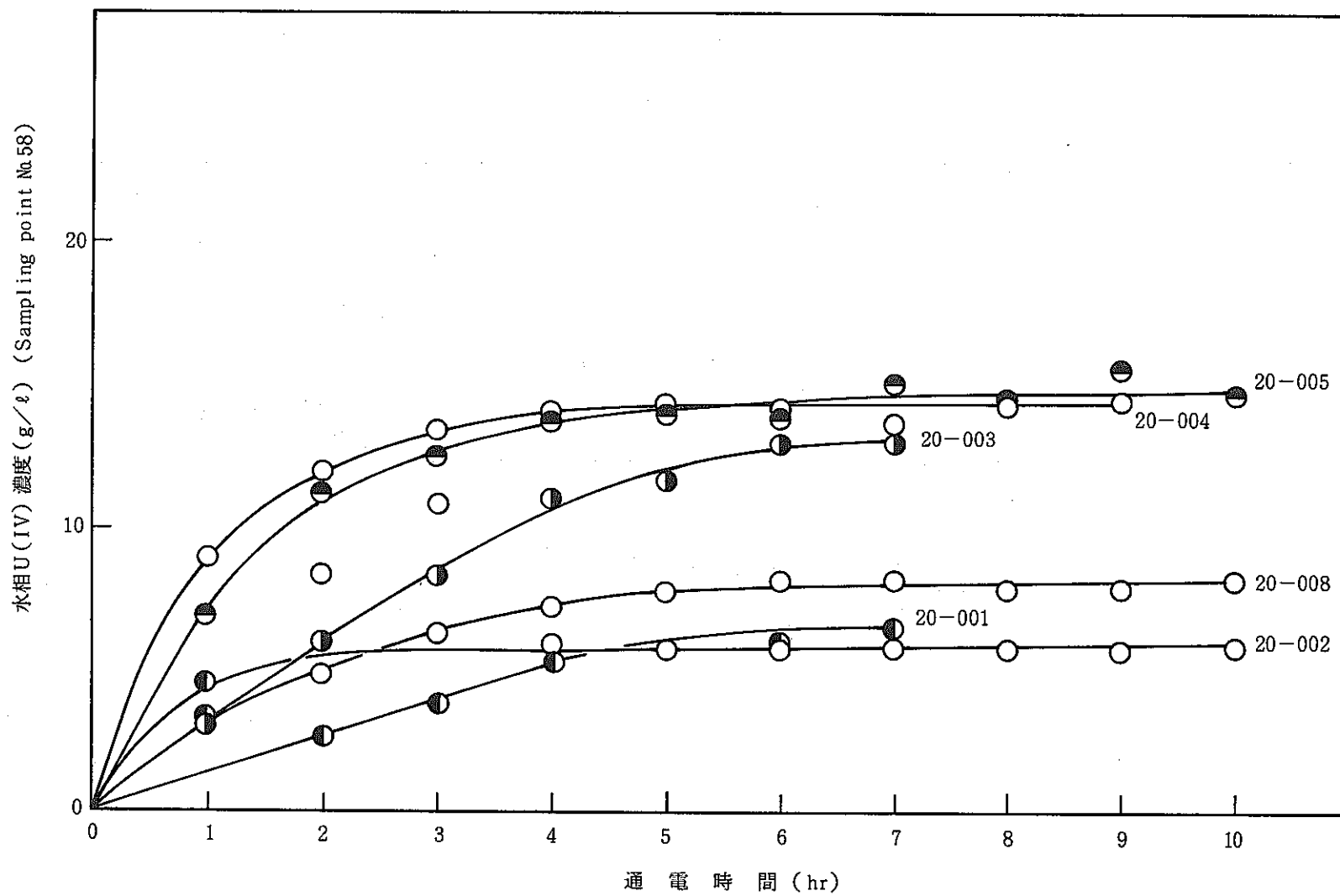


Fig.4.2.8 U(IV) concentration change of aqueous phase electrolysis experiments with passage of time

4.3 塔内平衡濃度プロフィール

4.3.1 水相電解試験

水相電解試験における塔内平衡濃度プロフィールの代表例をFig. 4.3.1 (Run no. 2A-003) に示した。特徴的な事はいずれの試験においても

- i) U (IV) の生成速度は、電極長さ方向に対し、徐々に遅くなっており、U (IV) 濃度はある一定の値で飽和する様である。
- ii) $N_2 H_5^+$ 濃度はほぼ直線的に減少する。
- iii) H^+ 濃度はほぼ直線的に上昇する。

であった。塔内には $N_2 H_5^+$ が 0.1 mol/l 以上存在しているにもかかわらず、i) は塔内でU (IV) が再酸化されている事を示唆するものである。(詳細は4.5節で述べる)

4.3.2 逆抽出電解試験

逆抽出電解試験における塔内平衡濃度プロフィールの代表例をFig. 4.3.2 (Run no. 20-005) に示した。特徴的な事は、いずれの試験においても、

- i) 有機相入口から約2mの間では、有機相中に抽出されていた酸が逆抽出される為、水相中の酸濃度が急激に上昇する。
- ii) $N_2 H_5^+$ 濃度は水相の流れ方向に単調に減少する。

ことである。またU(IV), U (VI) 濃度プロフィールは、通電量の選び方によって大きくその形状が異なる事がわかった。

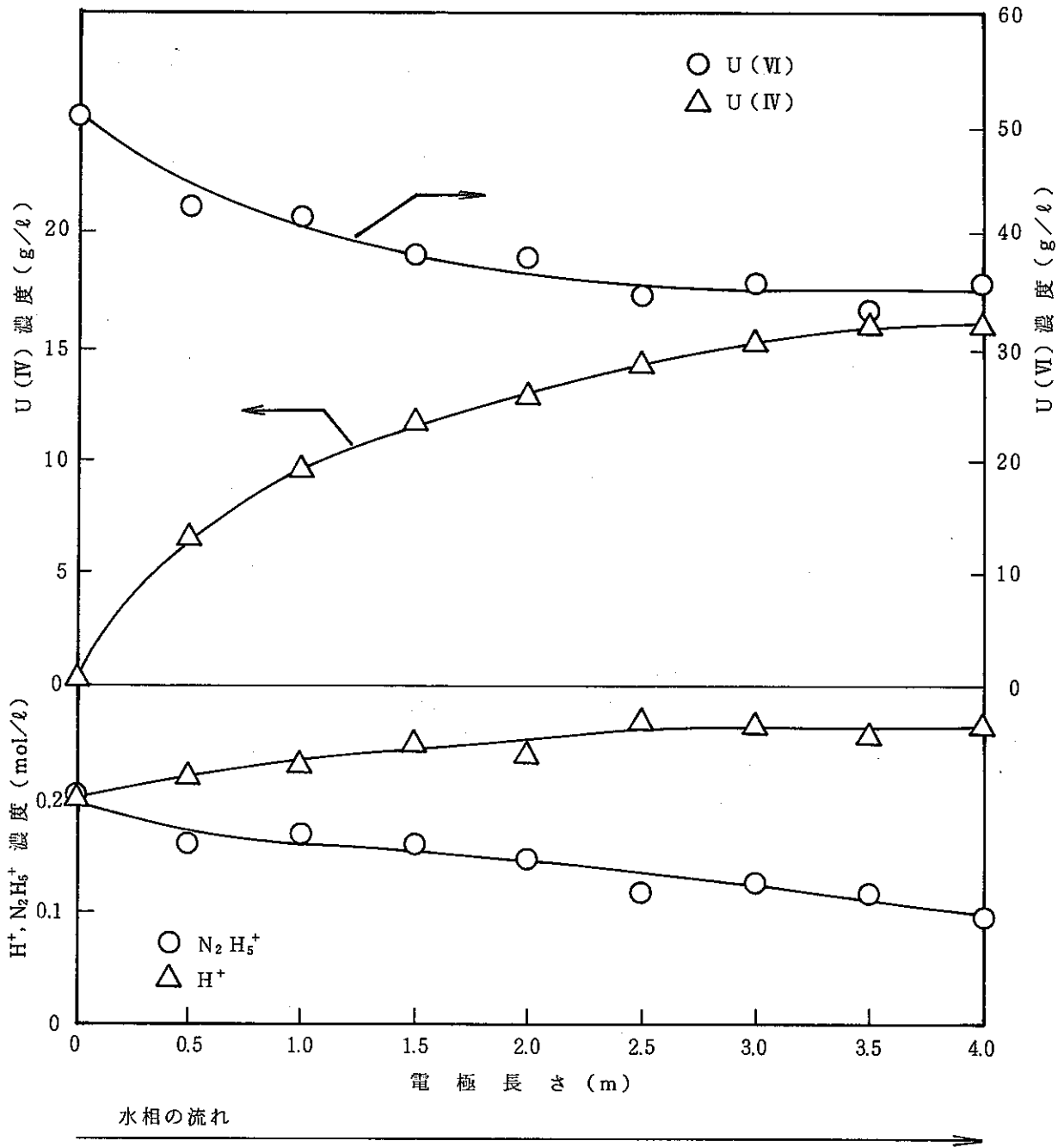


Fig.4.3.1 Equilibrium concentration profile (run no. 2A-003)

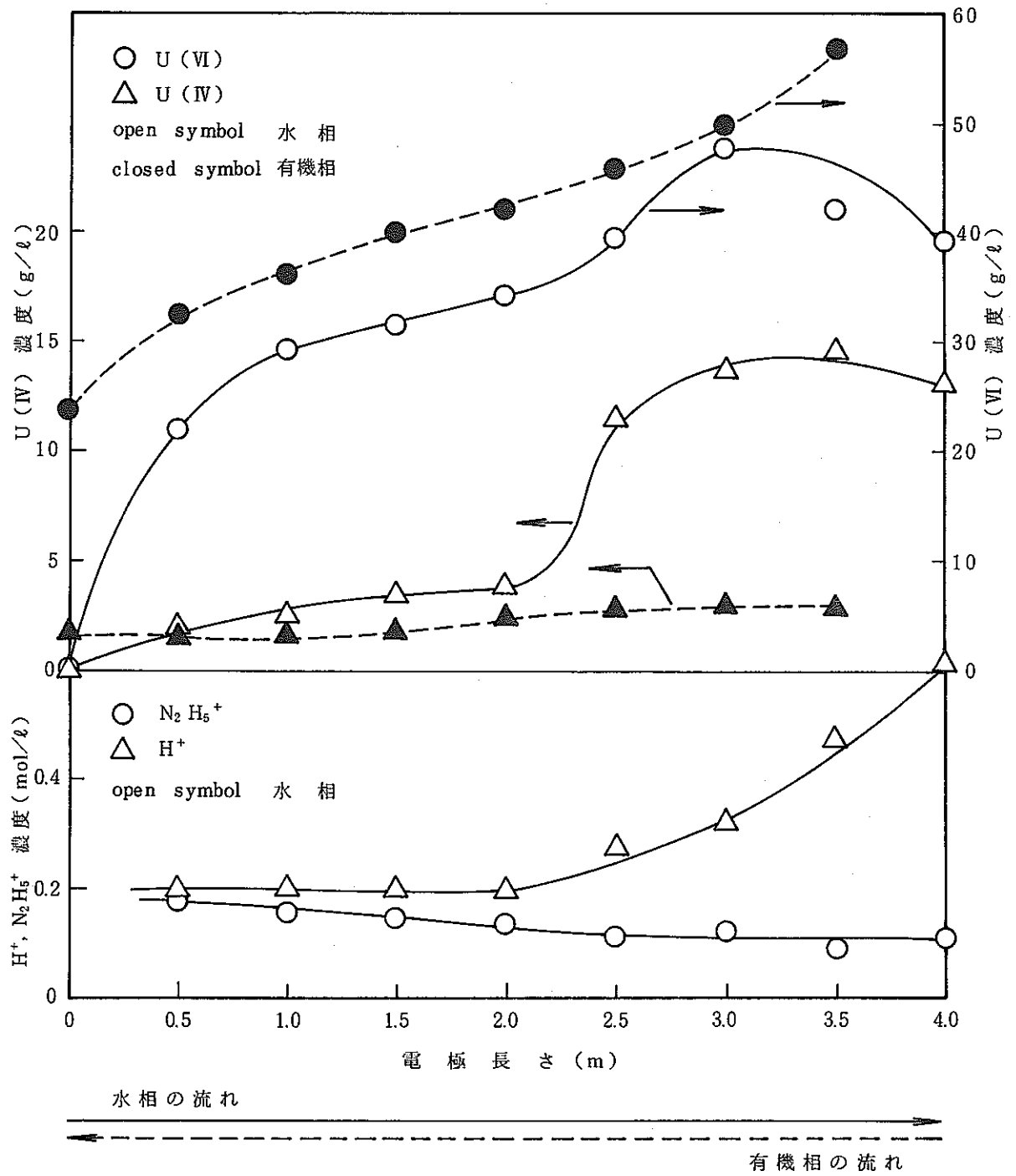


Fig.4.3.2 Equilibrium concentration profile (run no. 20-005)

4.4 端子間電圧と電流との関係

一般に、電解槽で得られる端子間電圧と電流との関係は、

- i) 電極材質・構造
- ii) 温度
- iii) 液組成

等により異なる事が知られており、以下に示される電流-電圧の関係は EPC (II) と同一材質・構造より成る電極を有する電解還元パルスカラムについて本試験条件(液組成及び温度)範囲内にて適用可能なものである。

Fig. 4.4.1 に、通電試験、水相電解試験、逆抽出電解試験時に得られた端子間電圧と電流との関係を示した。液組成分析結果及び温度測定結果を基に、電解還元パルスカラム(2T-22, 2T-23)内の液組成及び温度の概略値をまとめると Table 4.4.1 の様になる。Fig. 4.4.1 に示される様に水相電解試験及び逆抽出電解試験で得られた端子間電圧と電流との関係はほぼ直線に載り、同直線の式は、

$$[V] = 0.0182 \times [A] + 2.47 \quad \text{.....①}$$

[V] ; 端子間電圧

[A] ; 1塔当りの供給電流

で示される。同直線の式が原点を通らないのは、理論分解電圧、過電圧、分極抵抗等が存在する為である。これらを含んだ見かけの抵抗値は、通電量80~260 A に対して、0.05~0.03 であった。①式で示される様な関係は通常の工業電解槽でも一般的に知られており、見かけの抵抗値が変化する理由として、

- i) 電極表面でのガス発生による抵抗の変化
- ii) ジュール加熱による電解槽の抵抗の変化

等が知られている。①式の適用範囲は、Fig. 4.4.1 及び Table 4.4.1 より、

1塔当りの供給電流	;	80~260 A
温度	;	17~50 °C
液組成	;	H ⁺ ; 0.2 ~ 0.3 mol/l
		N ₂ H ₅ ⁺ ; 0.1 ~ 0.2 mol/l
		total U ; 35 ~ 50 gU/l
		hold up ; 7% 以下

となる。これに対し、通電試験では、見かけ上の抵抗値が低くなった。これは、水相中のH⁺濃度が、高い事に起因していると考えられる。

Pu の逆抽出をより効率よく行うと共に、Pu (III) の再酸化をより低くおさえる事を目的に、電解塔内の酸濃度を<0.1mol/l と低くして運転する事が考えられるが、この場合には、見かけの抵抗がより大きくなる傾向にあるので、電源装置の設計の際には注意を要する。

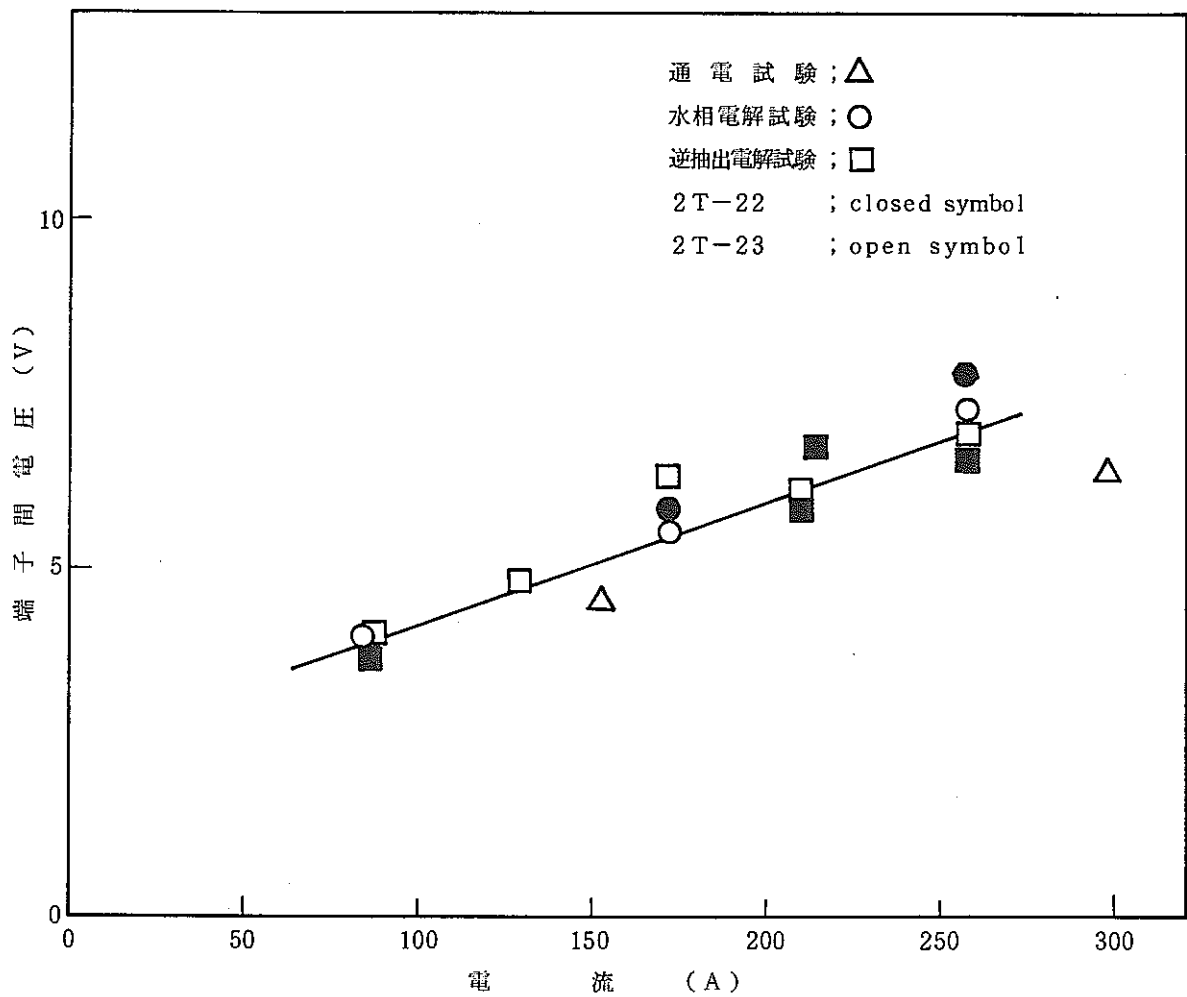


Fig.4.4.1 Relation between supplied current and measured voltage

Table 4.4.1 Average liquid composition in 2T-22, 2T-23

	水相液組成	有機相 ホールドアップ率	温度
通電試験	$\left(\begin{array}{l} \text{H}^+ ; 0.5 \text{ mol}/\ell \\ \text{N}_2 \text{H}_5^+ ; 0.1 \text{ mol}/\ell \end{array} \right.$	~ 3%	—
水相電解試験	$\left(\begin{array}{l} \text{H}^+ ; 0.2 \text{ mol}/\ell \\ \text{N}_2 \text{H}_5^+ ; 0.1 \sim 0.2 \\ \text{mol}/\ell \\ \text{total U} ; 50 \text{ gU}/\ell \end{array} \right.$	0%	17 ~ 50 °C
逆抽出電解試験	$\left(\begin{array}{l} \text{H}^+ ; 0.2 \sim 0.3 \\ \text{mol}/\ell \\ \text{N}_2 \text{H}_5^+ ; 0.1 \sim 0.2 \\ \text{mol}/\ell \\ \text{total U} ; 35 \sim 50 \\ \text{g U}/\ell \end{array} \right.$	4 ~ 6.5%	20 ~ 46 °C

4.5 電解還元反応速度式

4.5.1 権田, 小森らの速度式の適応性について

電解還元反応速度式としては, 権田らが, KFK-2082 レポートに示されるデータを基に速度式の形に整理したもの¹⁾ 及び, 小森らの手による, 小型電解還元パルスカラム試験データを速度式の形に整理したもの^{17), 18)} が知られている。そこで, ここでは, 上記2種の速度式の実験結果への適合性について述べる。

権田らの報告に従えば, 水相における UO_2^{2+} の電解還元速度式は,

i) $4.5 \leq [Id] \leq 20$

$$-\frac{d[U(VI)]}{dt} = k_1 \cdot \Omega \cdot [Id]^{0.448} [U(VI)] \quad \dots\dots\dots ①$$

$$k_1 = 1.25 \times 10^{-2}$$

$$\Omega = \text{電極特性} = \frac{\text{陰極面積}}{\text{陰極体積}} \left(\frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3} \right)$$

$$Id = \text{電流密度 (mA/cm}^2 \text{)}$$

[U(VI)] ; U(VI) 濃度

ii) $[Id] \leq 4.5$

$$-\frac{d[U(VI)]}{dt} = k_2 \cdot \Omega \cdot [Id]^{0.865} \cdot [U(VI)] \quad \dots\dots\dots ②$$

$$k_2 = 2.52 \times 10^{-3}$$

で示される。

一方, 小森らは, 水相中の UO_2^{2+} の電解還元速度式として,

$$-\frac{d[U(VI)]}{dt} = k_1 \cdot e^{k_2 c_1} \cdot [Id] \cdot \Omega \cdot [U(VI)] \quad \dots\dots\dots ③$$

$k_1 \cdot k_2$ は装置形状により異なり

$$\begin{cases} k_1 = 5.19 \times 10^{-3} \\ k_2 = -5.63 \end{cases}$$

$$\begin{cases} k_1 = 2.98 \times 10^{-3} \\ k_2 = -2.18 \end{cases}$$

C_1 ; 入口 U(VI) 濃度 (mol/l)

[Id] ; 電流密度 (mA/cm²)

$$\Omega ; \text{電極特性} = \frac{\text{陰極面積}}{\text{陰極室容積}} \left(\frac{\text{cm}^2}{\text{cm}^3} \right)$$

[U(VI)] ; U(VI) 濃度 (mol/l)

として示している。ここで, 塔内の電流密度は一定であると仮定する時, ①~③式はいずれも,

$$R \equiv \frac{d [U (VI)]}{d t} = -K [U (VI)]$$

の形で示され、ピストン流れを仮定する時、塔内の U(VI) 濃度プロファイルは、

$$\frac{d [U (VI)]}{d Z} = \frac{R}{u_0} = - \frac{K}{u_0} [U (VI)] \quad \dots\dots\dots ④$$

u_0 ; 線速 (cm/sec)

$$\therefore \frac{[U (VI)]}{[U (VI)]_{in}} = \exp \left(- \frac{K}{u_0} Z \right) \quad \dots\dots\dots ④$$

$[U (VI)]_{in}$; 入口 U(VI) 濃度 (mol/l)
 Z ; 電極部長さ

として示される。そこで、各ランに対し、 $y = \exp(aZ)$ 形の曲線について、最小二乗法*により係数 a を求め

$$K = - u_0 \cdot a$$

より K を求めた。この様にして求められた K を用いて、各実験と④式との fitting 状況を

Fig. 4.5.1 に示した。

	a	K
2A-001	-0.570×10^{-3}	0.422×10^{-4}
2A-002	-0.106×10^{-2}	0.700×10^{-4}
2A-003	-0.117×10^{-2}	0.839×10^{-4}
2A-004	-0.674×10^{-3}	0.941×10^{-4}

同図より、計算値の方は、塔入口側での U(IV) 生成速度を遅く、塔出口側での U(IV) 生成速度を速く見積りすぎる傾向にある。すなわち、塔内の U(IV) 濃度プロファイルのパターンは、④式タイプの速度式からは計算されない事になる。同原因は種々考えられるが、本報では、U(IV) の再酸化の項を速度式中に考慮する事により、かなり精度よく、U(IV) 濃度プロファイルを示す事が可能である事を 4.5.2 項に示した。

$$y = \exp(aZ)$$

$$\ln y = aZ$$

$$f = \sum (aZ_i - \ln y_i)^2$$

$$\frac{\partial f}{\partial a} = 0 \quad \text{より}$$

$$a = \frac{\sum \ln y_i Z_i}{\sum Z_i^2}$$

$\ln y$ に対しての原点を通る直線回帰としている為、 Z の小さい側の項をより小さく評価しすぎる傾向がある。

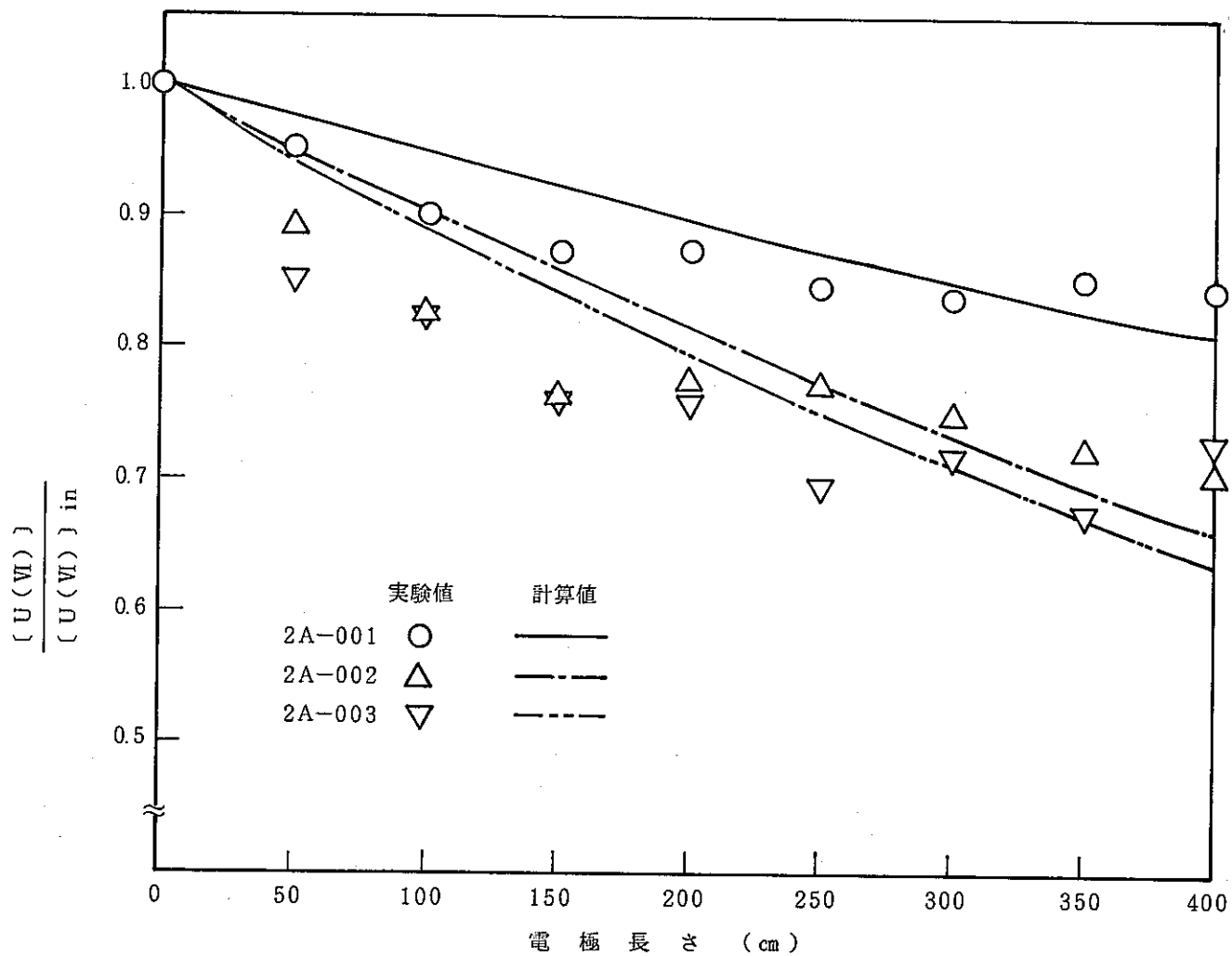


Fig.4.5.1 Deviation of $\frac{[U(VI)]}{[U(VI)]_{in}} = \exp(-\frac{k}{u_0}Z)$ equation from experimental point

4.5.2 U (IV) の酸化を含めた速度式の適応性

陰極面における U (VI) の還元反応に着目する時、その反応の律速段階として

- i) 反応律速
- ii) 拡散律速
- iii) i) ii) の移行段階

が考えられる。そこで、i), ii) の各々について相定される反応速度式を仮定し、実験結果への適合性を検討した。この種の反応速度式の検討は、データの蓄積に伴って随時行ってゆくべきものであり、現段階ではデータ点も少ない為、今後、速度式の形をも含めたより詳細な検討が必要となる事を特記しておく。

〔1〕 反応律速について

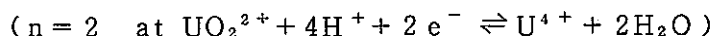
反応律速の場合 U (VI) の還元速度； ϕ_1 は、

$$\phi_1 = \eta \cdot [A] / nF$$

ϕ_1 ; 単位時間当たり、単位表面積当たりの U (IV) の生成量
(mol / cm² · sec)

[A] ; 陰極表面における電流密度 (A / cm²)

n ; 反応に関与する電子数



F ; ファラデー定数

η ; 供給電流量の内、着目反応に消費される割合

と表わせる。ここで η は微視的な電流効率を意味し

$$\eta = f(\text{H}^+, \text{U (VI)}, \text{T})$$

H⁺, U (VI) 濃度や温度の関数となる事が予想される。ここで、水相電解試験 (2A-001 ~ 2A-004) の結果によれば、各々のパラメータの変化幅は、

$$\text{H}^+ ; 0.2 \sim 0.3 \text{ mol} / \ell$$

$$\text{U (VI)} ; 30 \sim 50 \text{ g U (VI)} / \ell$$

$$\text{T} ; 15 \sim 50 \text{ }^\circ\text{C}$$

であるが、

- i) 酸濃度の変化幅は比較的小さい
- ii) 塔内の温度分布の正確な把握ができていない為、反応速度式の温度依存性がわかったとしても、プロフィルの計算ができない。

等の理由により、酸濃度及び温度は塔内で分布をもたず、一定と仮定した。 η の U (VI) 濃度依存性については、以下の2種を仮定した。

$$\text{type A} ; \eta = k [\text{U (VI)}]$$

$$\text{type B} ; \eta = k$$

$$\left(\begin{array}{l} k \quad ; \text{ 比例定数} \\ [U(VI)] \quad ; U(VI) \text{ 濃度 (mol/cm}^3\text{)} \end{array} \right)$$

この場合、 ϕ_1 は各々

$$\text{type A} \quad ; \quad \phi_1 = k \cdot [U(VI)] \cdot [A] / nF$$

$$\text{type B} \quad ; \quad \phi_1 = k \cdot [A] / nF$$

となる。

次に、U(IV)の再酸化に対する速度式が必要となる。U(IV)の再酸化反応については、別添に示した様に、 NO_2^- 、Pu(IV)、溶存酸素、陽極での酸化等が考えられる。(本試験条件下では、Puを用いていないので、Pu(IV)による再酸化反応はない。)ここで、溶存酸素、 NO_2^- による酸化速度式として、Revised MIXSETの中では、

$$\text{溶存酸素} \quad ; \quad - \frac{d[U(IV)]}{dt} = \frac{2.5 \times 10^{-4} [U(IV)]}{[H^+]} \quad (\text{at 酸素分圧} = 0.2 \text{ 気圧})$$

$$\text{NO}_2^- \quad ; \quad - \frac{d[U(IV)]}{dt} = 2.5 \times 10^{-2} [U(IV)] [H^+]^{2.7} [\text{NO}_2^-]^{0.38} \\ ([H^+] < 0.8 \text{ mol/l})$$

として整理されており、いずれも[U(IV)]に対し、1次の依存性を示す。ここでも、塔内の $[\text{NO}_2^-]$ 濃度が正確に把握されていない事及び、 $[H^+]$ 濃度の変化幅が小さい事より、これらの再酸化現象を包括した速度式として、

$$- \frac{d[U(IV)]}{dt} = k [U(IV)]$$

k ; 比例定数

を仮定する。

以上を整理すると、U(IV)の生成速度式として、

type A ;

$$R = -k_1 \cdot \Omega \cdot [U(VI)] \cdot [A] / nF + k_2 [U(IV)]$$

$$R = \frac{d[U(IV)]}{dt} \quad (\text{mol/cm}^3 \cdot \text{sec})$$

$$A \quad ; \quad A / \text{cm}^3$$

$$F \quad ; \quad \text{ファラデー定数 (} F = 9.649 \times 10^4 \text{ クーロン/eq.)}$$

$$n \quad ; \quad \text{反応に関与する電子数 (} n = 2 \text{) (eq./mol)}$$

$$\Omega \quad ; \quad \text{単位体積あたりの陰極面積 (cm}^2\text{/cm}^3\text{)}$$

$$k_2 \quad ; \quad (1 / \text{sec})$$

$$k_1 \quad ; \quad (\text{cm}^3\text{/mol})$$

type B ;

$$R = -k_1 \cdot \Omega \cdot [A] / nF + k_2 [U(IV)]$$

- k_1 ; (-)
 A ; A / cm^2
 F ; ファラデー定数 ($F = 9.649 \times 10^4$ クーロン / eq.)
 n ; 反応に関与する電子数 ($n = 2$) (eq. / mol)
 Ω ; 単位体積あたりの陰極面積 ($\text{cm}^2 / \text{cm}^3$)
 k_2 ; (1 / sec)

を得る。

[2] 拡散律速について

拡散律速の場合, $U(VI)$ の還元速度; ϕ_2 は

$$\phi_2 = \frac{k'}{4Z} ([U(VI)] - [U(VI)]_s)$$

$$\left(\begin{array}{l} [U(VI)]_s \approx 0 \\ \frac{k'}{4Z} = k \text{ として} \end{array} \right)$$

$$\approx k [U(VI)]$$

$$\phi_2 \quad ; \text{ mol / cm}^2 \cdot \text{ sec}$$

$$[U(VI)] \quad ; \text{ 溶液バルクの } U(VI) \text{ 濃度 (mol / cm}^3)$$

$$[U(VI)]_s \quad ; \text{ 陰極表面での } U(VI) \text{ 濃度 (mol / cm}^3)$$

$$4Z \quad ; \text{ 拡散相液厚 (cm)}$$

$$k' \quad ; \text{ cm}^2 / \text{ sec}$$

$$k \quad ; \text{ cm / sec}$$

と表わせる。そこで, [1] の場合と同様に, $U(IV)$ の再酸化をも考慮する事により

typeC ;

$$R = -k_1 \cdot \Omega \cdot [U(VI)] + k_2 [U(IV)]$$

$$k_1 \quad ; \text{ cm / sec}$$

$$\Omega \quad ; \text{ 単位体積あたりの陰極面積 (cm}^2 / \text{cm}^3)$$

$$k_2 \quad ; \text{ (1 / sec)}$$

を得る。

[3] 物質収支式について

ピストン流れ, 及び塔内の平衡を仮定すれば, 物質収支より,

$$u_0 \cdot S \cdot \{ [U(VI)]_{z+\Delta z} - [U(VI)]_z \} = R \cdot S \cdot \Delta Z$$

$$u_0 \quad ; \text{ 線速度 (cm / sec)}$$

$$S \quad ; \text{ カラム断面積 (cm}^2)$$

$$Z \quad ; \text{ 電極部長さ (cm)}$$

$$\frac{d [U (VI)]}{d Z} = \frac{R}{u_0}$$

を得る。(Fig. 4.5.2 参照)

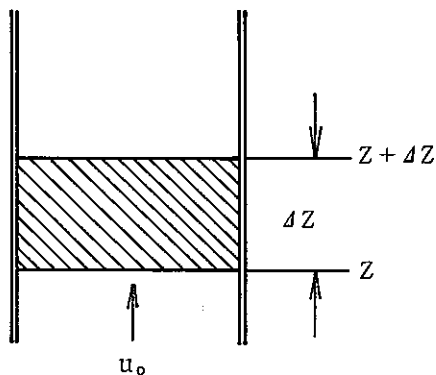


Fig.4.5.2 Piston flow model

[1],[2] で得た反応速度式を[3]の物質収支式に代入し、

実験条件

$$[U_{t\ell}] = [U (VI)] + [U (IV)] ; \text{一定}$$

$$[U (VI)] = [U_{t\ell}] \text{ at } Z=0$$

仮定, ; 電流分布は塔内で均一

の下で解くと Table 4.5.1 の様に, 平衡状態における塔内の U (VI) 濃度プロファイルが得られる。

Table 4.5.1 Equation for U(VI) concentration at equilibrium state

速度式のタイプ	平衡状態における塔内のU (VI) 濃度プロファイル
type A	$\frac{[U(VI)]}{[U(tl)]} = \frac{\frac{k_1 \Omega}{nF} [A]}{\frac{k_1 \Omega}{nF} [A] + k_2} \cdot \exp \left\{ - \frac{\frac{k_1 \Omega}{nF} [A] + k_2}{u_o} \cdot Z \right\} + \frac{k_2}{\frac{k_1 \Omega}{nF} [A] + k_2}$
type B	$\frac{[U(VI)]}{[U(tl)]} = \frac{k_1 \cdot \Omega \cdot [A]}{k_2 \cdot nF \cdot [U(tl)]} \cdot \exp \left(- \frac{k_2}{u_o} Z \right) - \frac{k_1 \cdot \Omega \cdot [A]}{k_2 \cdot nF \cdot [U(tl)]} + 1$
type C	$\frac{[U(VI)]}{[U(tl)]} = \frac{k_1 \Omega}{k_1 + k_2} \exp \left\{ - \frac{1}{u_o} (k_1 \Omega + k_2) Z \right\} + \frac{k_2}{k_1 \Omega + k_2}$

2A-001～2A-004の試験結果によれば (Fig. 4.5.3 参照), 1塔あたりの通電量が171 A (2A-002) 以下の場合には, 通電量の増加と共に塔内のU(VI)濃度 ($[U(VI)] / [U_{tl}]$) は減少している。(2A-001と2A-002の比較) が通電量が171 A以上の場合には, U(VI)濃度は全んど変化がない(2A-002と2A-003の比較)。この事は約170 A/塔近傍で, 反応律速から拡散律速への移行段階がある事を示唆している。

本報告書では,

1塔当りの通電量		律速段階	対応するRun No.
171 A 以下	;	反応律速	2A-001
		(type A)	2A-002
		(type B)	2A-004
171 A 以上	;	拡散律速	2A-002
		(type C)	2A-003

として, 各ランの試験結果より最小二乗法*を用いて, k_1, k_2 の値を求めた。その結果は,

	k_1	k_2
type A.	5×10^3	4×10^{-4}
type B.	1×10^5	7×10^{-11}
type C.	4×10^{-4}	5×10^{-4}

であった。この様にして得られた k_1, k_2 のセットを用いて計算される結果と実験値とのフィッティング状況を type A と type C の式について Fig. 4.5.4 ~ Fig. 4.5.6 に示した。Fig. 4.5.4 は通電量を反応律速領域の範囲内で変化させた場合 (2A-001 ; 84 A/塔, 2A-002 ; 171 A/塔) の塔内の規格化されたU(VI)濃度プロファイルの変化状況を示したもので, 実験結果は type A の速度式により, うまく表現される事がわかる。Fig. 4.5.5 は, 処理流速を変化させた場合 (2A-002 ; 36.5 l/hr, 2A-004 ; 77.3 l/hr) の塔内の規格化されたU(VI)濃度プロファイルの変化状況を示したもので, 流速の影響も, ほぼ今回の解析手法で評価可能である事がわかる。Fig. 4.5.6 は通電量を拡散律速領域の範囲内で変化させた場合 (2A-002 ; 171 A/塔, 2A-003 ; 257 A/塔) の塔内の規格化されたU(VI)濃度プロファイルの変化状況を示したもので, 同領域では通電量は濃度プロファイルに影響を与えない事及び, プロファイルは type C の速度式によりうまく表現される事がわかる。一方, 反応律速領域の速度式として仮定した type B の速度式により計算される塔内のU(VI)濃度

* 解析的解法が困難な為 $\sum_{\text{対象ラン}} (|y(z) - x(z)|)$ の値を k_1, k_2 のマトリクスに対して計算し,

上記値が最少となる k_1, k_2 のセットを求めた。 ($y(z)$: 計算式により予想される値)
($x(z)$: 実験値)

濃度プロファイルは、実験結果と整合性がとれず、 η をU(VI)濃度に依存せず一定と仮定した事に問題があると判断した。

以上を整理すると以下の様になる。

i) 約 170 A / 塔 以下の通電を行った場合、反応律速となり、U(VI)還元速度は、

$$\frac{d [U (VI)]}{d t} = -k_1 \cdot \Omega \cdot [U (VI)] \cdot [A] / nF + k_2 [U (IV)]$$

$$\left(\begin{array}{l} k_1 = 5 \times 10^3 \\ k_2 = 4 \times 10^{-4} \end{array} \right)$$

で表わせる。

ii) 約 170 A / 塔 以上の通電を行った場合、拡散律速となり、U(VI)還元速度は、

$$\frac{d [U (VI)]}{d t} = -k_1 \cdot \Omega \cdot [U (VI)] + k_2 [U (IV)]$$

$$\left(\begin{array}{l} k_1 = 4 \times 10^{-4} \\ k_2 = 5 \times 10^{-4} \end{array} \right)$$

で表わせる。

但し、適用範囲は、本電極構造を有するものについて

{	水相中の U (VI) 濃度	30~50 g / l
	水相中の H ⁺ 濃度	0.2~0.3 mol / l
	水相中の N ₂ H ₅ ⁺ 濃度	0.1~0.2 mol / l
	1塔当りの通電量	80~260 A

である。

<今後の課題>

反応速度式としてはより広範囲な液組成、流量条件下で適応可能な様、微分形の反応速度式を整備してゆく必要がある。この過程で再酸化の主要因を正確に把握しておく事により、より効率のよい電解塔を構築できる可能性がある。

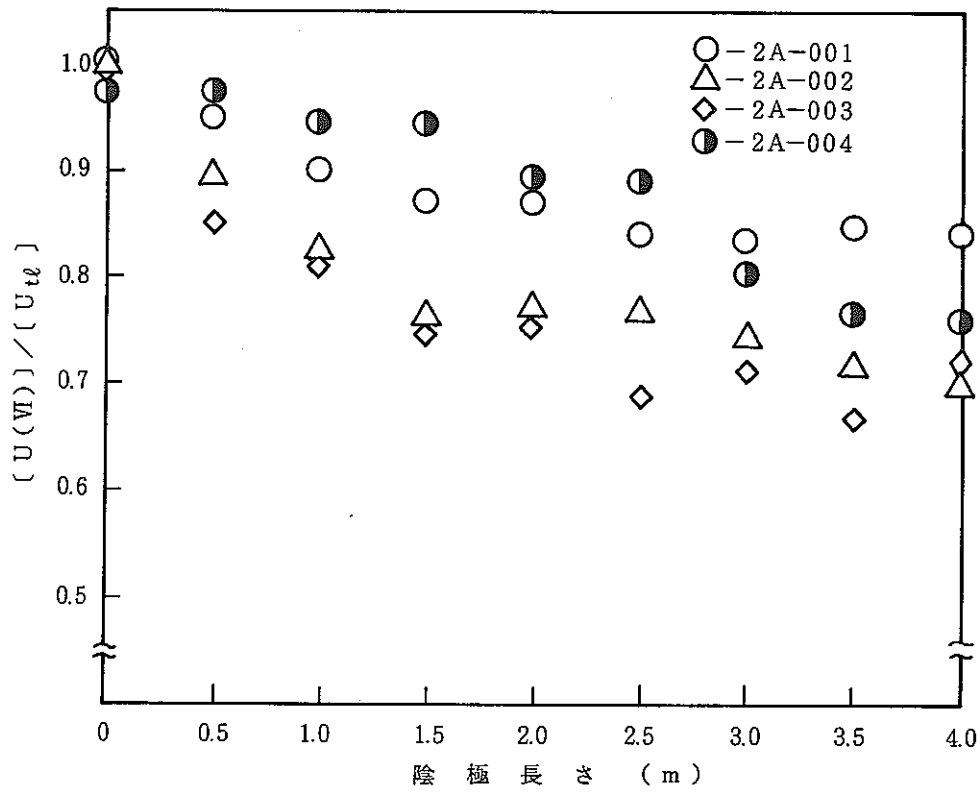


Fig.4.5.3 Normalized U(VI) concentration profile at equilibrium state

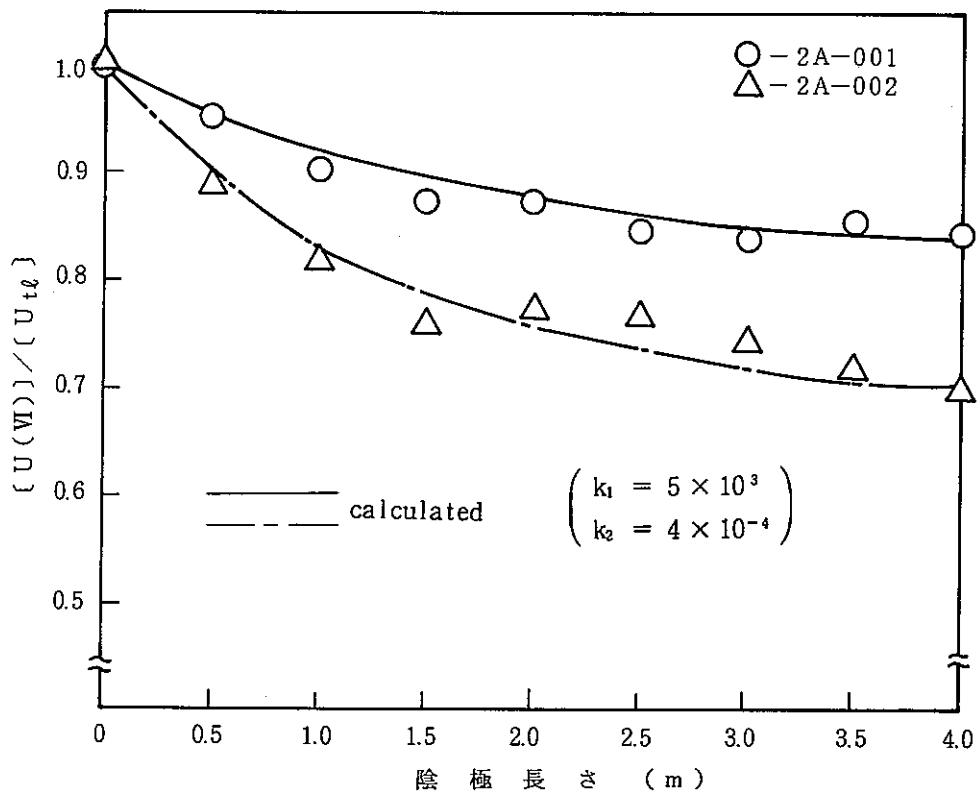


Fig.4.5.4 Comparison of experimental profiles with calculated profiles by equation type A

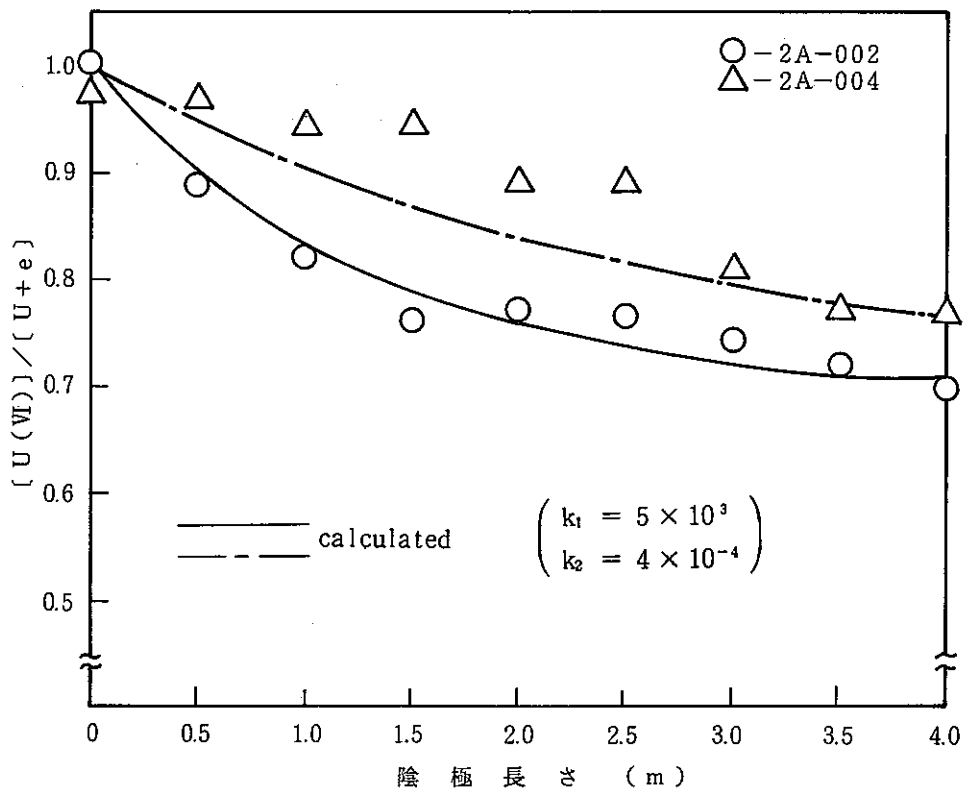


Fig.4.5.5 Comparison of experimental profiles with calculated profiles by equation type A

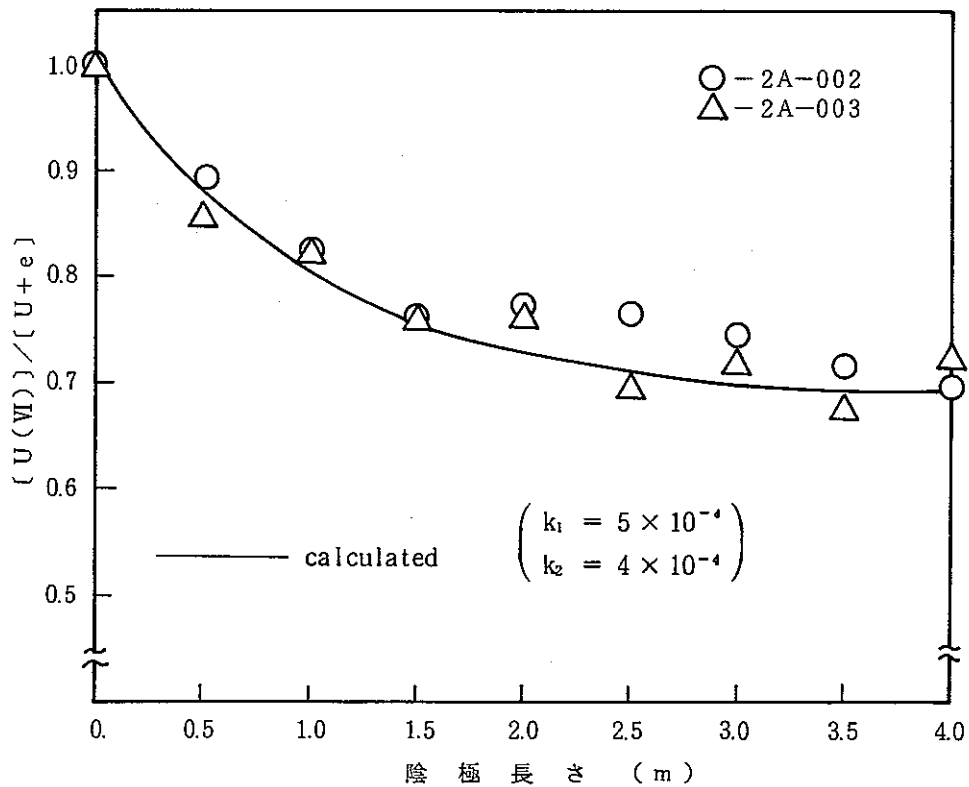


Fig.4.5.6 Comparison of experimental profiles with calculated profiles by equation type C

4.6 還元率と電流効率

4.5 で述べた様に塔内のU (VI) 還元挙動は、反応速度式を求める事により把握可能であり、同速度式を用いる事により、水相電解試験結果を解析する事ができた。しかし、逆抽出電解還元環境下では上記U (VI) の還元反応に加え、U (VI) , U (IV) の抽出、逆抽出挙動が加わる為、現在塔内濃度プロフィールを予測するには至っていない。そこで、本節では、実験結果より得られた還元率と電流効率を整理し、その特徴的な事を述べるにとどめる事とした。

水相電解試験、逆抽出電解試験について、塔別及び塔全体の還元率、電流効率を整理し、Table 4.6.1 に示した。同表に基づき、水相電解試験で得られた塔全体の還元率、電流効率をFig.4.6.1 に示した。図中実線は4.5節で述べた反応速度式を基に計算された ($u_0 = 40 \text{ l/hr}$, $[U_{tl}] = 0.2 \text{ mol/l}$) ものであり、ほぼ実験結果と一致するが、同計算結果によれば約340A(170A/塔) 以上通電量を上げてても還元率、電流効率共に向上しない事がわかる。一方、逆抽出電解試験で得られた塔全体の還元率、電流効率をFig. 4.6.2 に示した。同図より、塔全体として同一の通電量を供給したとしても、Column no. 2 T-22, 2 T-23の通電量比を変える事により、還元率、電流効率共に向上させる事が可能である事がわかった。

Table 4.6.1 U(IV) generation rate, reduction ratio, current efficiency

Run no	塔 全 体			2 T - 22			2 T - 23		
	生成U(IV) (mol/hr)	還元率 R(%)	電流効率 η (%)	生成U(IV) (mol/hr)	還元率 R(%)	電流効率 η (%)	生成U(IV) (mol/hr)	還元率 R(%)	電流効率 η (%)
2A-001	1.35	15.7	43.1	1.04	12.1	66.4	0.32	4.2	20.4
2A-002	2.30	31.3	36.0	1.60	21.8	50.0	0.73	13.0	23.0
2A-003	2.74	32.0	29.0	2.19	26.0	46.0	0.55	8.5	11.5
2A-004	3.41	20.0	53.0	2.11	12.0	66.0	1.30	9.0	41.0
20-001	1.17	8.5	36.6	0.49	2.4	30.4	0.69	4.5	43.0
20-002	1.21	6.8	18.9	0.92	3.5	28.8	0.29	1.6	8.9
20-003	2.29	15.4	23.9	1.51	7.0	31.5	0.78	5.7	16.3
20-004	2.65	16.3	41.4	2.31	11.0	48.2	0.33	2.5	20.8
20-005	2.61	15.0	40.8	2.30	9.9	56.7	0.35	2.4	14.4
20-008	1.42	9.0	18.1	1.22	4.4	25.9	0.40	2.4	10.2

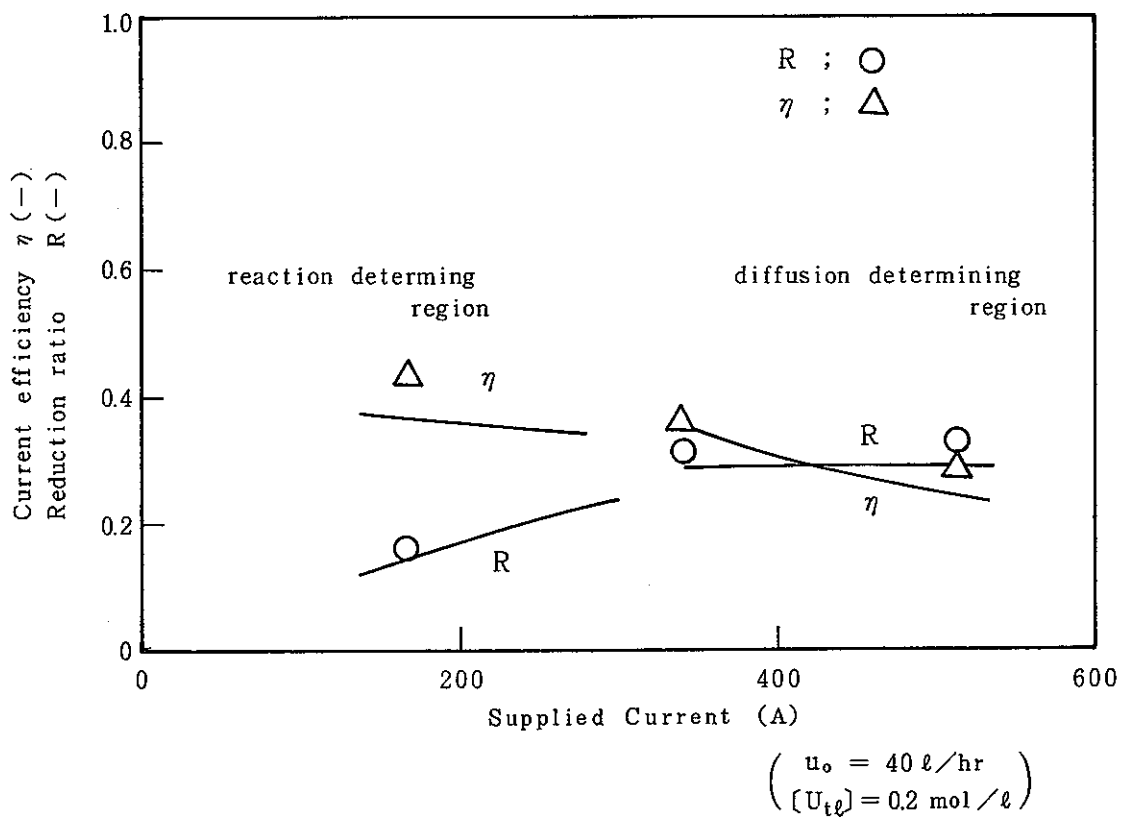


Fig.4.6.1 Reduction ratio and current efficiency of aqueous phase electrolysis

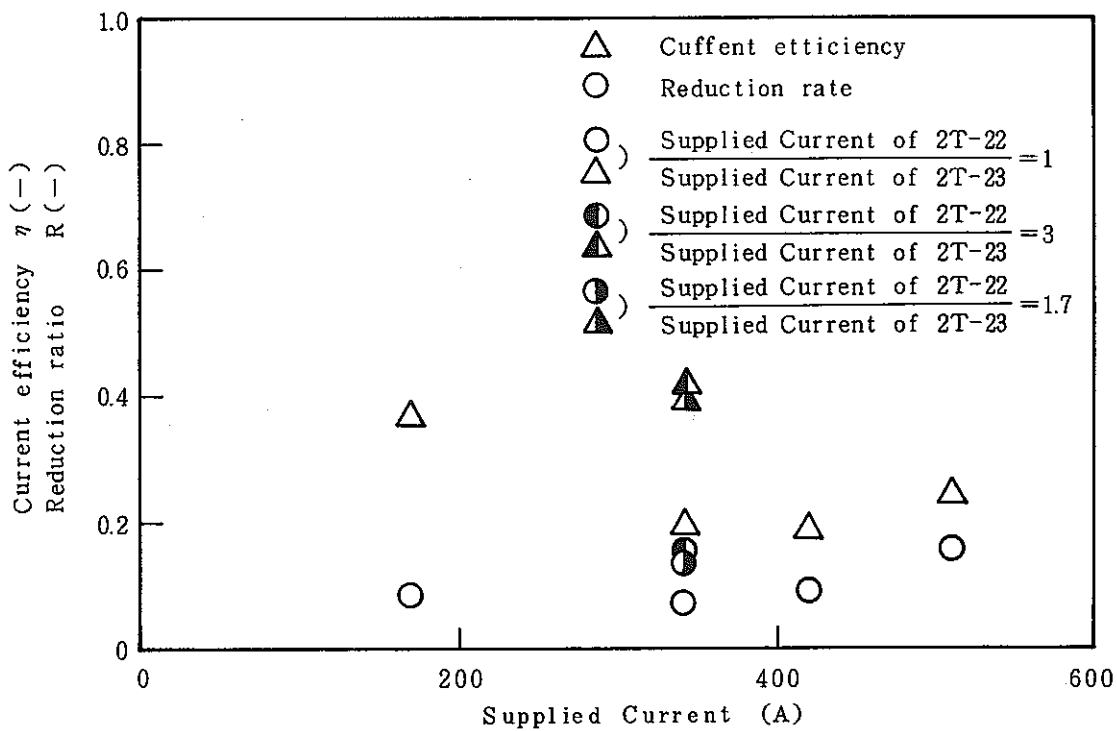


Fig.4.6.2 Reduction ratio and current efficiency of back extraction electrolysis

4.7 副生ガスの発生

電解還元パルスカラムからは O_2 , H_2 , N_2 , NO_x を含んだ副生ガスが発生する。この副生ガスについては、

- i) 安全性の観点から、 H_2-O_2 爆鳴気の生成状況を把握する。
- ii) 塔内で消費される電流の収支を解析する。

という点において重要となる。副生ガスの発生量を Table 4.7.1 にまとめると共に、全副生ガス発生量を Fig. 4.7.1 に示した。

i) 安全性について

H_2-O_2 爆鳴気に関する安全性という観点から水素ガスの発生量を Fig. 4.7.2 に示した。本実験条件内では、発生する水素ガス量は電流の増加に伴い増加する傾向にあるが、水素ガス発生量は、純粋に H_2O の電気分解により発生すると予想される水素発生量の $1/5$ 倍以下であった。同値を基に、 H_2 濃度を安全濃度である 4 vol % 以下に下げる為に必要となる希釈エア量を算出すると、供給電流 I (A) に対し

$$\begin{aligned} N (\ell/\text{hr}) &= 0.418 \times \frac{1}{5} \times \frac{100}{4} \times I (\text{A}) \\ &= 2.1 \times I (\text{A}) \end{aligned}$$

$$I = 300 \text{ A の時} \quad N = 627 \ell/\text{hr}$$

となる。上記希釈エア量は、実現可能な流量範囲内にある。

ii) 電流の収支について

別添で述べた種々のガス発生反応及び実際に測定された発生ガス量との関連性より、電流収支 100% となる様に、反応の割合を割りふるべく解析を進めているが、

- a) 溶液中のガス溶解度の測定
- b) 中間生成物 (例えば、 NH_4^+ , NO_2^- , 等) 濃度の測定

が困難な為、現在、上記解析に成功していない。ここでは、副生ガス発生について定性的傾向を述べるにとどめる。

ア) 全副生ガス発生量

Fig. 4.7.1 より明らかな様に、全副生ガス発生量は電流の増加と共に増加し、その傾向は直線近似すると

$$y = 0.31 x + 4.6 \quad (r = 0.74)$$

y ; 全副生ガス発生量 (ℓ/hr)

x ; 1塔当りの通電量 (A)

r ; 相関係数

であった。

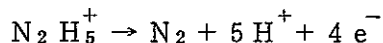
Table 4.7.1 Secondary generated gas evolution rate

Run No.	カラムNo.	供給電流 (A)	全副生ガス発生量 (ℓ/hr)	発生ガス量 (ℓ/hr)				
				N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
2A-001	2T-22	84	—	—	—	—	—	—
	2T-23	84	—	—	—	—	—	—
2A-002	2T-22	171	80 ± 6*	67.3	1.3	8.8	1.6	0.06
	2T-23	171	48 ± 3	39.6	1.4	0.4	4.4	0.01
2A-003	2T-22	257	116 ± 13	96.6	7.7	5.7	4.6	—
	2T-23	257	63.6 ± 0.3	48.0	0.04	1.3	10.4	2.4
2A-004	2T-22	171	50 ± 7	42.3	1.6	4.9	0.8	—
	2T-23	171	38.9 ± 0.4	34.0	2.3	0.3	1.8	—
20-001	2T-22	85.7	—	—	—	—	—	—
	2T-23	85.7	214 ± 0.3	20.7	0.2	0.1	0.1	—
20-002	2T-22	171	52.1 ± 1.3	38.0	2.4	10.0	1.9	—
	2T-23	171	72.6 ± 1.2	60.1	0.07	6.2	5.7	—
20-003	2T-22	257	57 ± 1	45.0	10.0	1.4	1.8	—
	2T-23	257	71.6 ±	60.9	0.07	0.5	2.3	—
20-004	2T-22	257	97 ± 1.9	80.0	7.4	5.6	3.0	—
	2T-23	85.7	35 ± 3	32.9	0.5	2.1	1.4	—
20-005	2T-22	214	—	—	—	—	—	—
	2T-23	129	46 ± 1	44.6	0.2	1.5	2.2	—
20-008	2T-22	210	82.7 ± 0.6	54.8	12.4	14.4	0.2	—
	2T-23	210	75 ± 2	64.6	0.2	2.7	0.2	—

$$* \text{標準偏差} ; \sigma = \sqrt{\frac{\sum(\bar{x} - X_i)^2}{n - 1}}$$

イ) N₂ ガス発生量

副生ガスの大部分 (約70 vol %以上) はN₂ ガスである。N₂ ガスの発生量を Fig. 4.7.3 に示した。図中には



で予想されるガス発生量を併記した。全般的に、上式で予想されるガス発生量よりも、実際に測定されたN₂ ガス発生量の方が多く N₂H₅⁺ のNO₂⁻ との反応による分解、NO₃⁻ の分解等によるN₂ ガス発生が示唆される。

ウ) N₂O ガス

全体的傾向として、水相電解、逆抽出電解共に、2 T-23側の方が、N₂O ガス発生量が多い様である。(Fig. 4.7.4 参照) N₂Oは亜硝酸の還元あるいは、亜硝酸のアジ化水素、ヒドラジンとの反応により生じる。亜硝酸は、硝酸の還元より生じる為、陰極でUO₂²⁺ の還元と競合反応となる。この為、UO₂²⁺ 濃度の小さい領域で硝酸の還元が起こりやすく、N₂O の発生が多いものと考えられる。

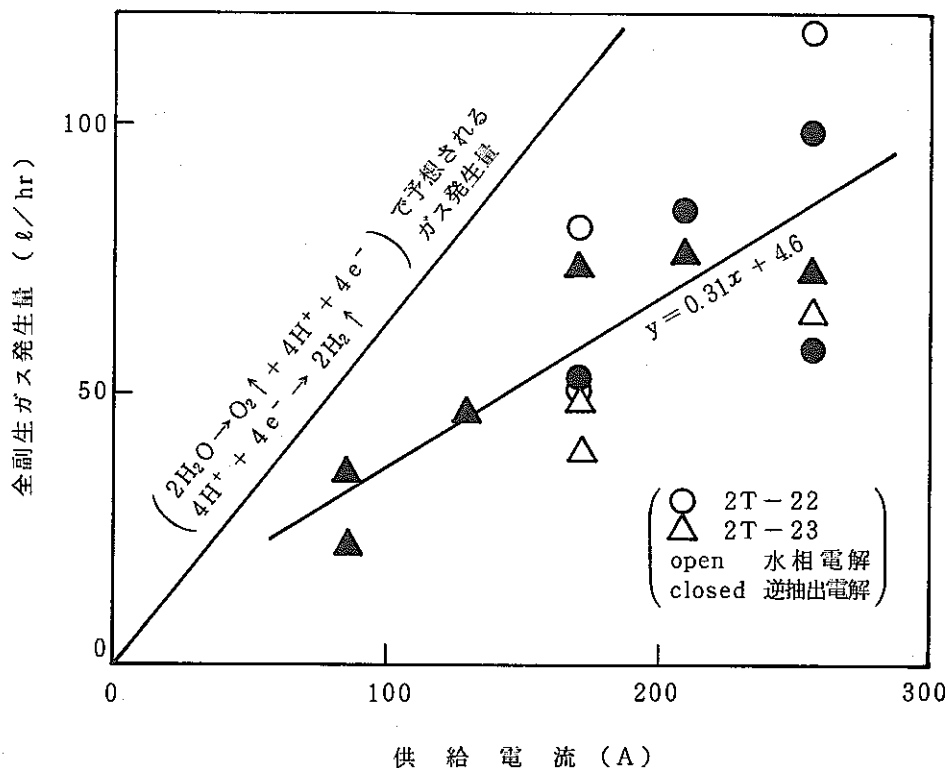


Fig.4.7.1 Secondary generated gas evolution rate

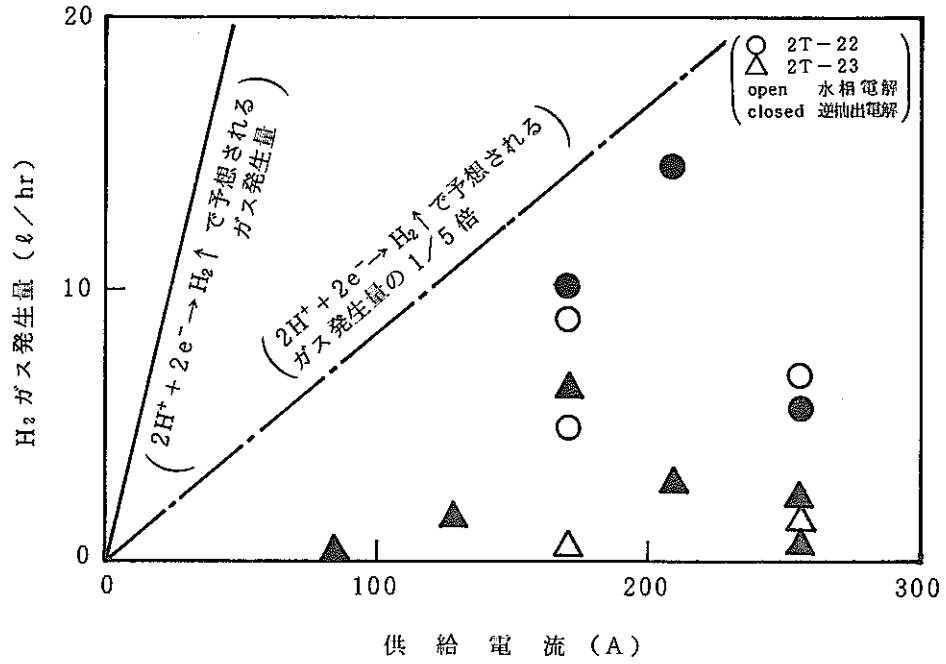


Fig.4.7.2 Secondary generated H₂ gas evolution rate

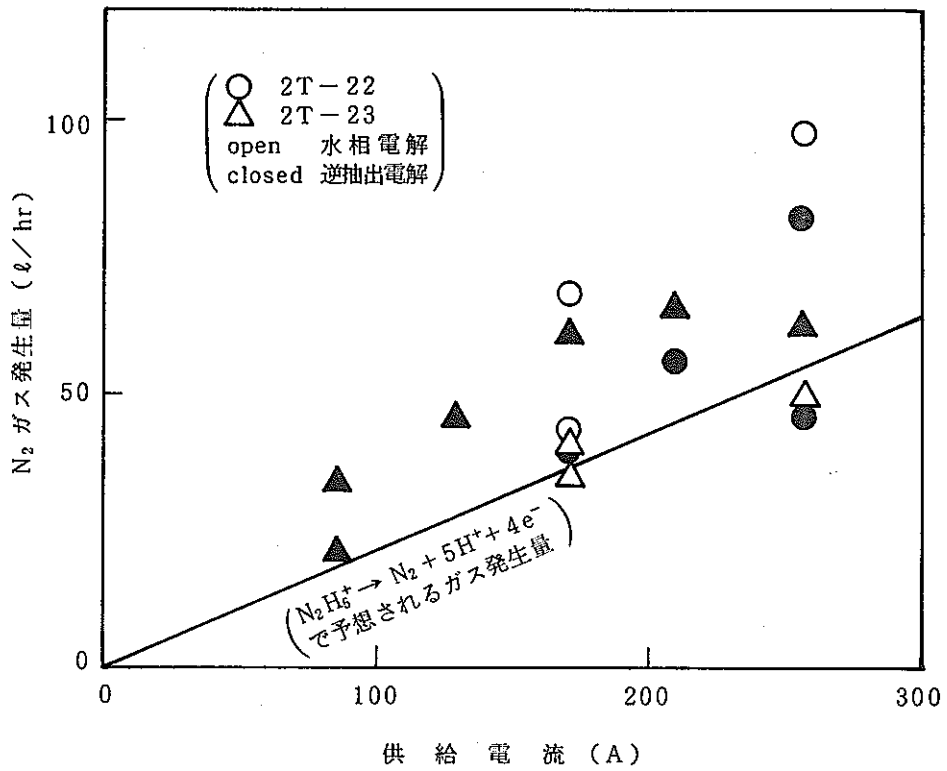


Fig.4.7.3 Secondary generated N₂ gas evolution rate

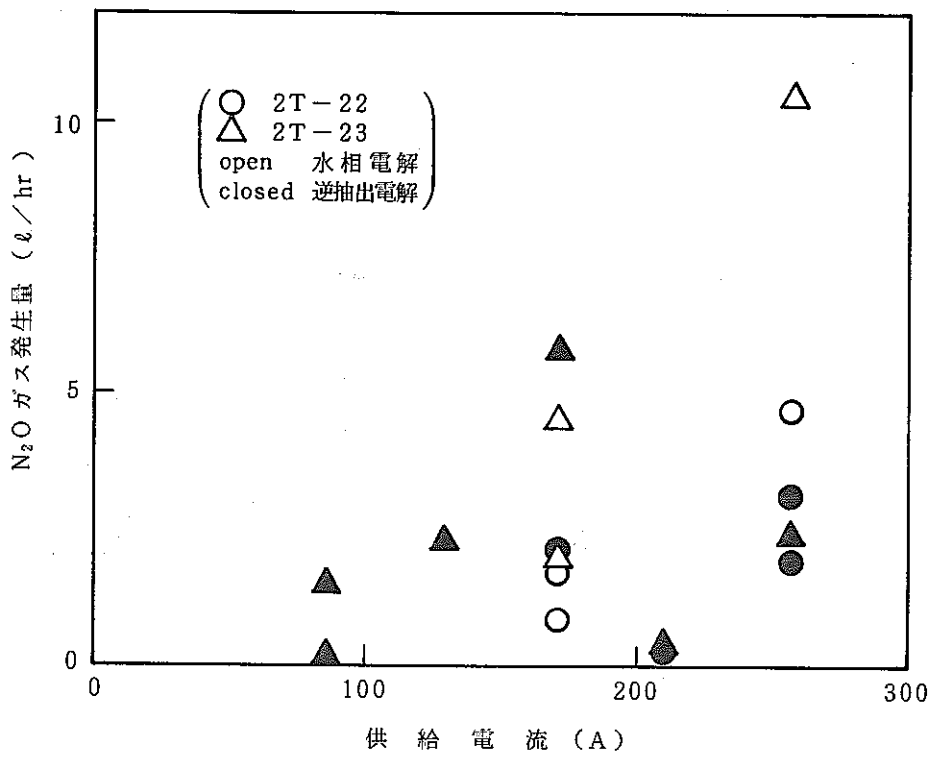


Fig.4.7.4 Secondary generated N_2O gas evolution rate

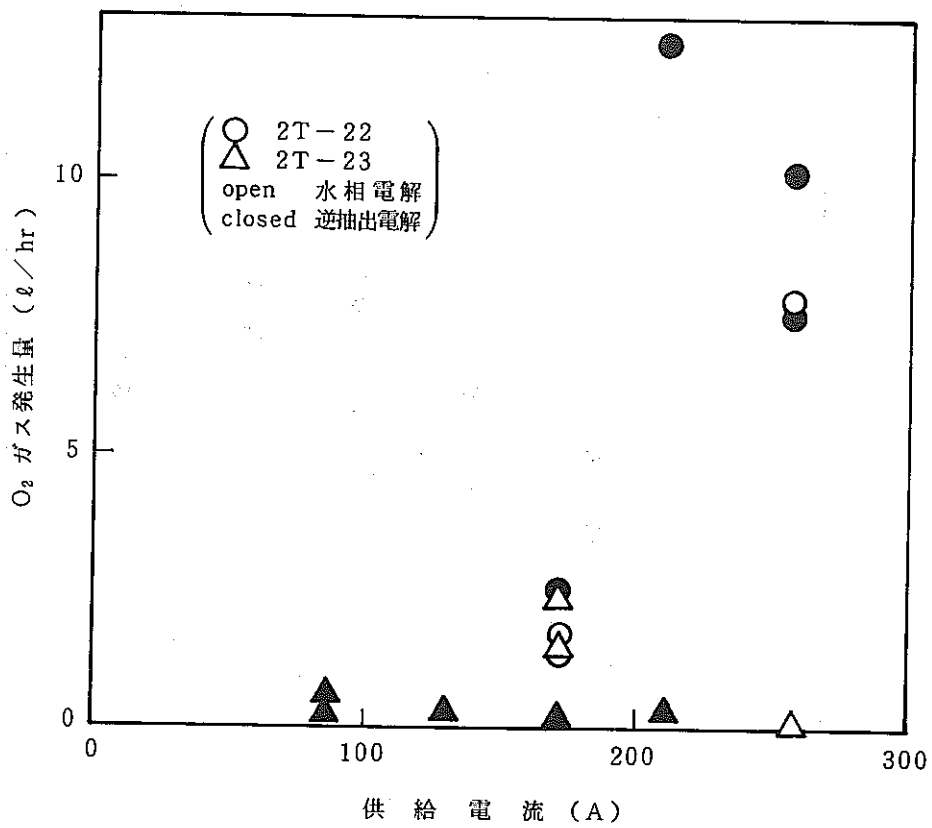


Fig.4.7.5 Secondary generated O_2 gas evolution rate

5. 結 論

実規模相当処理能力を有する、電解還元パルスカラム工学試験装置（Ⅱ）を用いて、昭和59年度は、コールド試験及びウランを用いての水相電解試験、逆抽出電解試験を実施し、以下の結論を得た。

- i) 本装置のパルスカラムとしての安定運転領域は、120 kg HM/d 処理を充分カバーしている事がコールド試験により確認された。今後、240 kg HM/d 処理への対応及びHM装荷時の安定運転領域の変動を評価しておく必要がある。
- ii) U (Ⅳ) 濃度の定常到達時間は、副生ガス組成の定常到達時間より早く、水相電解試験、逆抽出電解試験共に約6～7時間であった。
- iii) 電解塔の端子間電圧と電流との関係は、本試験条件下で、

$$V = 0.0182 A \times 2.47 \quad (\text{但し, } 80 < A < 260)$$

で示される事がわかった。

- iv) UO_2^{2+} の還元挙動については、従来の還元反応のみに着目するのではなく、還元及び酸化反応の両者を考慮した反応速度式を仮定する事により、本試験条件範囲内での実験事実をうまく表現することが可能であった。今後、より広範な試験条件に適応可能な様、反応速度式の改良が必要である。
- v) 電解塔より発生する副生ガスについては、
 - ア) 全副生ガス発生量は、全ての電流が水の電気分解に消費されたとして計算される副生ガス発生量より少ない。
 - イ) H_2 ガス発生量は、全ての電流が水の電気分解に消費されたとして計算される H_2 ガス発生量の1/5倍以下である。
- vi) 電解還元パルスカラムの設計データを取得する為には、引き続き、上記試験を継続してゆく必要があると共に、プルトニウムを用いての確証試験、抽出計算コードの整備、安全性評価試験等が必要となる。

6. 参 考 文 献

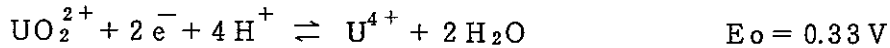
- 1) 権田浩三, 松田照夫「電解還元の Purex プロセスへの応用」PNCT 841-80-65
- 2) 星野忠也, 根本慎一他「電解還元法の Purex プロセスへの応用」SN 841-81-07
- 3) G. Petrich et al. Comparison of Experiment and Simulation for
Purex B-TYPE Electroreduction Pulsed Columns Extraction '84
- 4) 昭和59年(第22回)日本原子力学会年表要旨
- 5) 高速炉燃料リサイクル試験施設概念設計(Ⅲ)報告書 PNC ZJ 122-85-01
- 6) 高速炉燃料リサイクル試験施設概念設計(Ⅵ)報告書 ZJ 199-82-17
- 7) 権田浩三他「高速炉燃料再処理溶媒抽出工程の設計及び試験」ZN 841-80-68
- 8) 権田浩三他「高速炉燃料再処理溶媒抽出工程の設計及び試験(Ⅱ)」PNC ZN 841-82-
- 9) 篠原輝寿他「高速炉燃料リサイクル試験(1)」PNC ZN 841-83-80
- 10) 大内 仁他「高速炉燃料リサイクル試験(2)」PNC ZN 841-83-88
- 11) 大内 仁他「高速炉燃料リサイクル試験(4)」PNC ZN 841-84-25
- 12) F. BAUMGÄRTNER et al. Use of Electrochemical Process in Aqueous
Reprocessing of Nuclear Fuels, Radiochimica Acta 25 191-210 (1978)
- 13) 小森良三他「還元パルスカラム工学試験(Ⅱ)」SJ 199-82-04
- 14) V. S. Koltunov, G. I. Zhuravleva, Radiokhimiya 16, 84 (1974)
- 15) 高橋正雄, 増子昇著 「工業電解の化学」アグネ社
- 16) 電気化学便覧 電気化学協会編
- 17) 小森良三他 「還元パルスカラム工学試験」SJ 199-81-16

Appendix

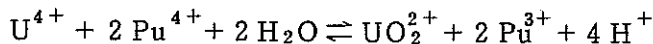
A. 1 電解還元環境下で起こる諸反応について

EPC (II) では、建屋の制約から Pu は使用できないが、実装置の電解還元環境下で起こる諸反応として、Pu の関与する反応をも含めて、下記の様な諸反応が知られている*。(但し、抽出逆抽出及び F. P. の酸化、還元反応は除いた。)

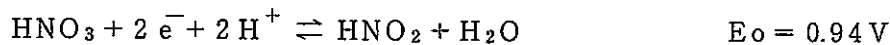
まず、水相において Pu (IV) , U (VI) は陰極表面で各々 Pu (III) , U (IV) に還元される。



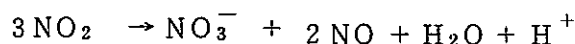
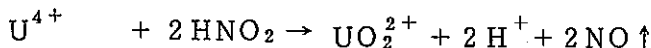
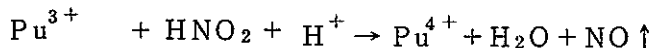
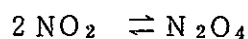
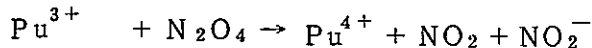
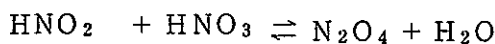
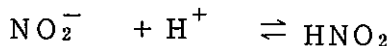
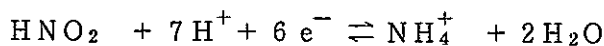
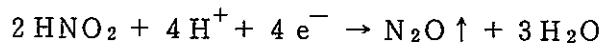
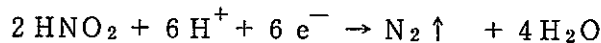
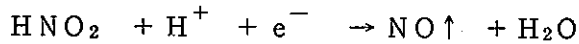
この様にして生成した U (IV) は他の Pu (IV) を還元する。



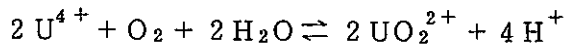
また、陰極では、 H^{+} , NO_3^{-} も還元され、水素及び亜硝酸を生成する。



この亜硝酸はさらに還元されて、 N_2 , NO_x を発生するとともに Pu (III) , U (IV) を酸化する。



また、U (IV) の酸化は溶存酸素によっても起こる。



* 反応の整理にあたっては、

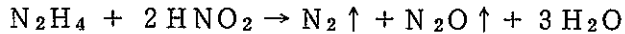
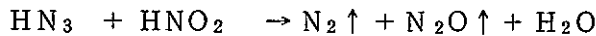
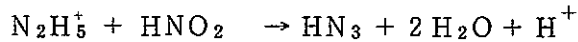
KFK-2082

Revised MIXSET

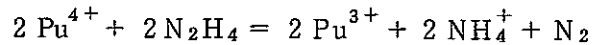
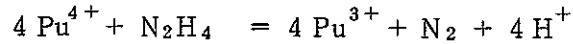
電解還元パルスカラム工学試験 (I) ~ (III)

を参考とした。

亜硝酸による Pu (III), U (IV) の酸化を防ぐため, 安定剤としてヒドラジンが用いられる。



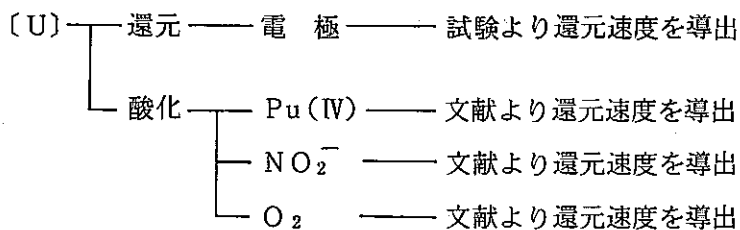
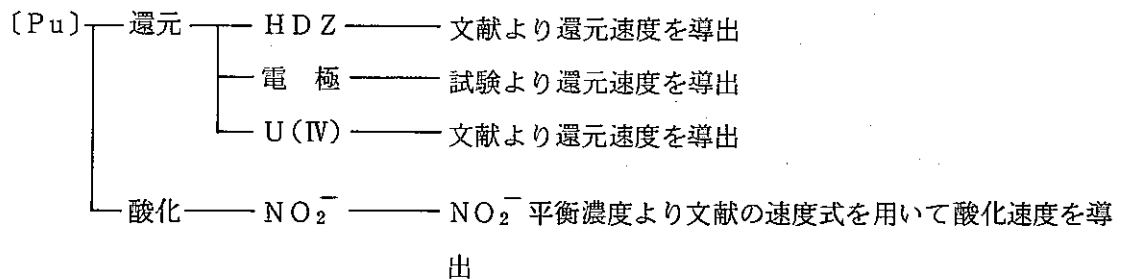
また, ヒドラジンが直接 Pu (IV) を還元する事も知られている。⁽³⁾



さらに, ヒドラジン及び OH^- は陽極にて酸化される。



この様に電解還元環境下で起こるであろう反応は非常に多岐にわたると共に, 電解塔内では, 電位, 電流分布が生じると考えられる為, その解析は複雑をきわめる。理想的には各々の反応に対し, 速度式を出す事が望ましいと考えるが, 現状では非常に困難である。この様に, 解析を困難にしている主要な原因は, i) 電解塔内では, 電位, 電流分布が生じると考えられる事, ii) 亜硝酸の生成, 消滅過程が多岐にわたる事, 等にあると考える。そこで, 電解還元パルスカラム開発の第1段階として, i) 電解塔内での電位, 電流分布は均一である。ii) 亜硝酸の生成, 消滅過程に関する詳細な検討は行わず, 実験結果として, 平衡濃度プロファイルを求めておく。という前提に立って今後の解析を進めてゆく事を提案する。同前提に基づけば, U, Pu の還元挙動は,



として把握可能と考える。(文献に基づく速度式は, PNCでも確認試験は必要だと考える。)

A.2 軸方向電流分布の推定

4.5節で示した電解反応速度式は、軸方向の電流分布が均一であるとの仮定に基づいているが、第2章で示した様に、本装置では電解還元パルスカラムへの通電は塔頂より行っている為、電極部のオーム降下により塔底近傍に流れる電流量が極端に少なくなる事が懸念される。

同現象をより詳細に調べる為には、電極部の電位分布を測定する事が有効な実験的手法だと考えるが、現在、電位分布の測定を行っておらず、以下に述べる手法を用いて、電流分布の推定を行った。なお、電位分布の測定は、昭和60年度以後の課題としてとらえている。

電流分布の推定は下記の仮定に基づき以下の手順に従って行った。

〔仮定〕；単位セル内の陽極，陰極間抵抗（R3）は一定である*。

電解塔の構造に従い、電極部を高さ5cmの単位セルに分割し、等価回路を示せば、Fig A.2.1の様になる。同回路を基に、キルヒホッフの法則を適用すれば、 $I_1 \sim I_{41}$ の間には①式の関係が成立する。ここで、 $I_1 = 1A$ と仮定し、R3をパラメータとして $I_2 \sim I_{41}$ を順に計算する。得られた結果を基に、②式を用いて、見かけの抵抗値

$$\frac{I_{41} \cdot (R3 + R10 + R20) - R3 \cdot I_{40}}{I_{41}}$$

を計算し、同抵抗値が試験で得られた供給電流，端子間電圧から計算される見かけの抵抗値

$$\frac{\text{端子間電圧}}{\text{供給電流}}$$

に一致するまでR3を変化させる。見かけの抵抗値が一致したなら、その時のR3を用いて、 I_1 の値を

$$\frac{\text{供給電流}}{I_{41} \text{ (at } I_1 = 1 \text{ の時)}}$$

倍して、再計算する事により、実験で得られた供給電流・端子間電圧を満足する $I_1 \sim I_{41}$ ，R3のセットが1組得られる。（同手順をFig. A.2.2にフローチャートとして示した。）実験から得られる見かけの抵抗値の計算に必要な供給電流・端子間電圧の関係は4.4節で示した次式を用いた。

$$[V] = 0.0182 \times [A] + 2.47$$

[V] ; 端子間電圧

[A] ; 1塔当りの供給電流

上記モデルを用い、1塔当り、50A，100A，200A通電した場合の塔内の電流分布の推定結果をFig. A.2.3に示した。通電量の増加に伴い電流分布が不均一になる傾向にあるが、200A/塔以下

* 第3章で示した液組成分析結果に基づけば、電解塔内の液組成は高さ方向に一定でない為、また、電流分布に伴いガス発生も分布を持つと考えられる為、同仮定は非常に粗い近似となる。同仮定の妥当性は、今後予定している電位分布の測定結果に基づき評価してゆく予定である。

の通電では塔内全域にわたって、ほぼ均一に電流が流れている事が推定される。

$$\begin{aligned}
 I_1 (R_1 + R_2 + R_3) &= R_3 \cdot (I_2 - I_1) \\
 I_2 (R_1 + R_2 + R_3) - I_1 R_3 &= R_3 \cdot (I_3 - I_2) \\
 &\vdots \\
 I_i (R_1 + R_2 + R_3) - I_{i-1} R_3 &= R_3 \cdot (I_{i+1} - I_i) \\
 &\vdots \\
 I_{40} (R_1 + R_2 + R_3) - I_{39} R_3 &= R_3 \cdot (I_{41} - I_{40})
 \end{aligned}
 \tag{①}$$

$$\begin{aligned}
 \text{供給電流} &= I_{41} \\
 \text{端子間電圧} &= I_{41} (R_3 + R_{10} + R_{20}) - R_3 \cdot I_{40}
 \end{aligned}
 \tag{②}$$

(R10, R20, R1, R2, は電極構造により決定される。この値を Table A.2.1 に示した。)

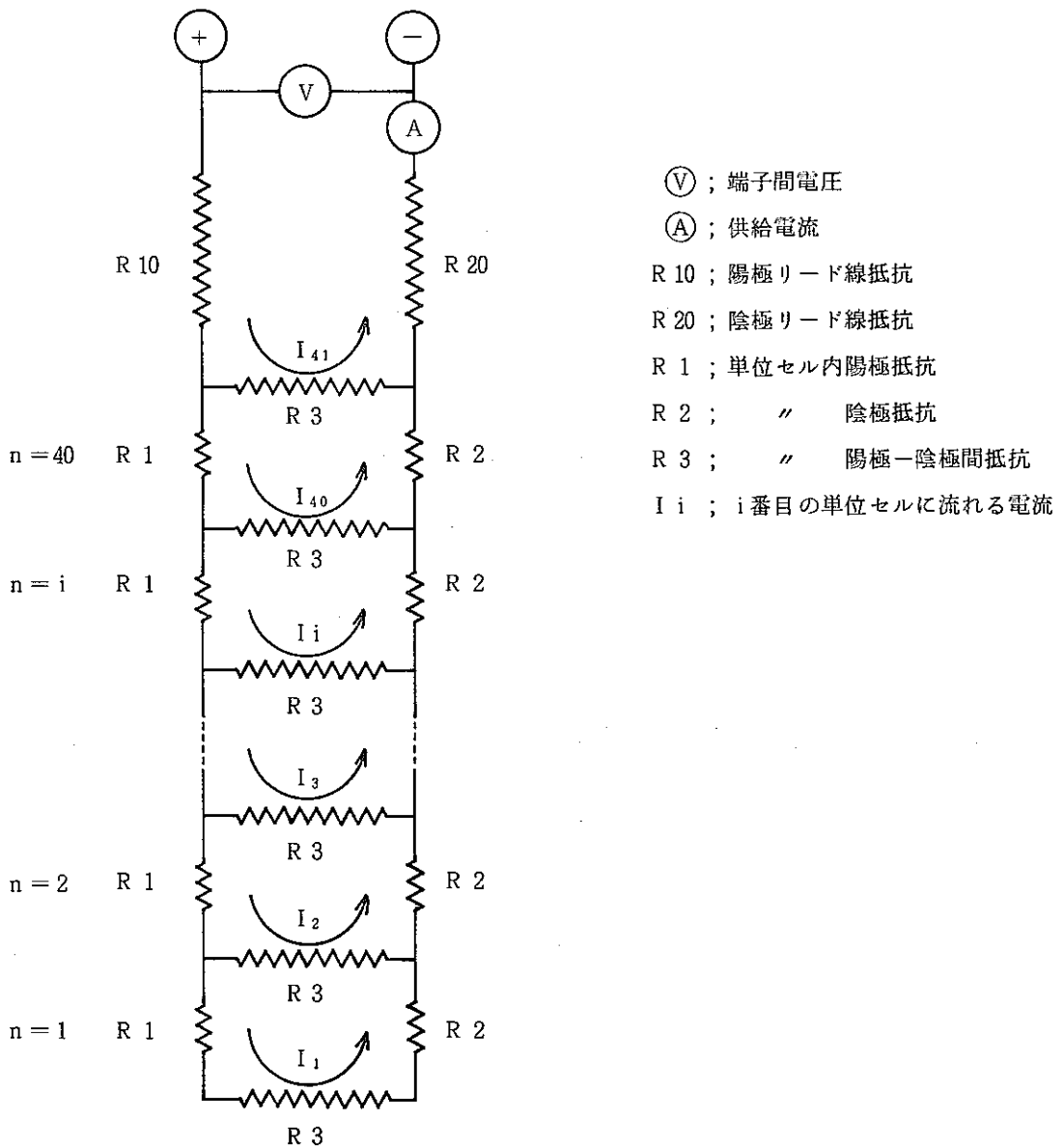


Fig.A.2.1 Equivalent circuit used for calculation of axial current distribution

Table A.2.1 Electric resistance used for estimation of axial current distribution

	Ω
R 10	2.70×10^{-3}
R 20	5.52×10^{-3}
R 1	6.29×10^{-5}
R 2	2.82×10^{-4}

* 鋼及び Ti の比抵抗は各々
 Cu $1.69 \times 10^{-8} \Omega \cdot m^{16)}$
 Ti $4.78 \times 10^{-7} \Omega \cdot m$
 を用いた。

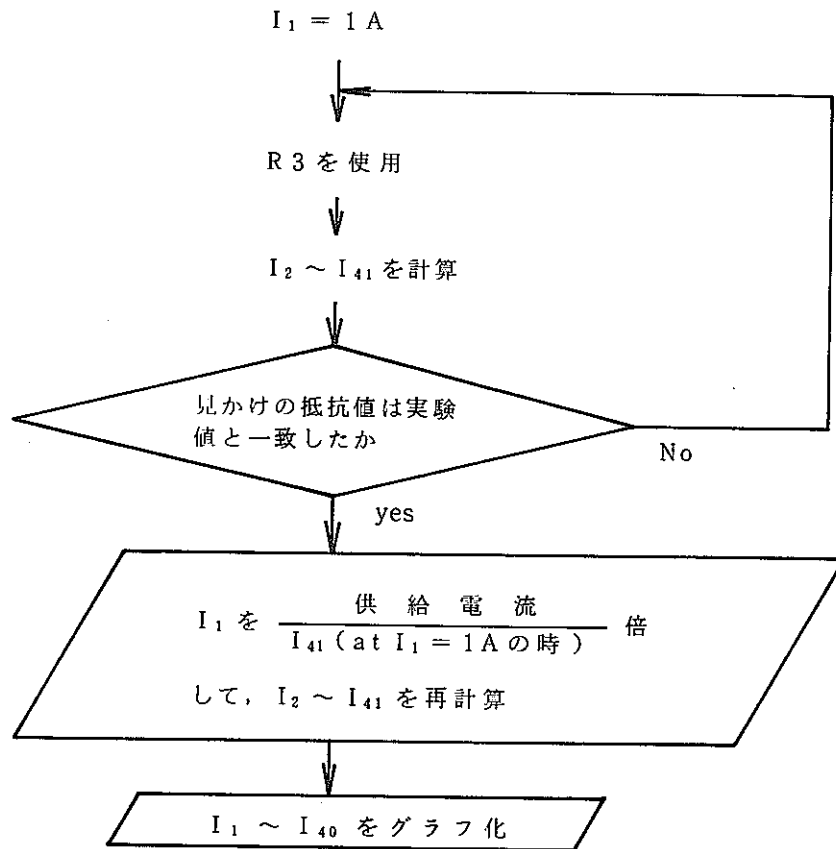


Fig.A.2.2 Flow chart of calculation step

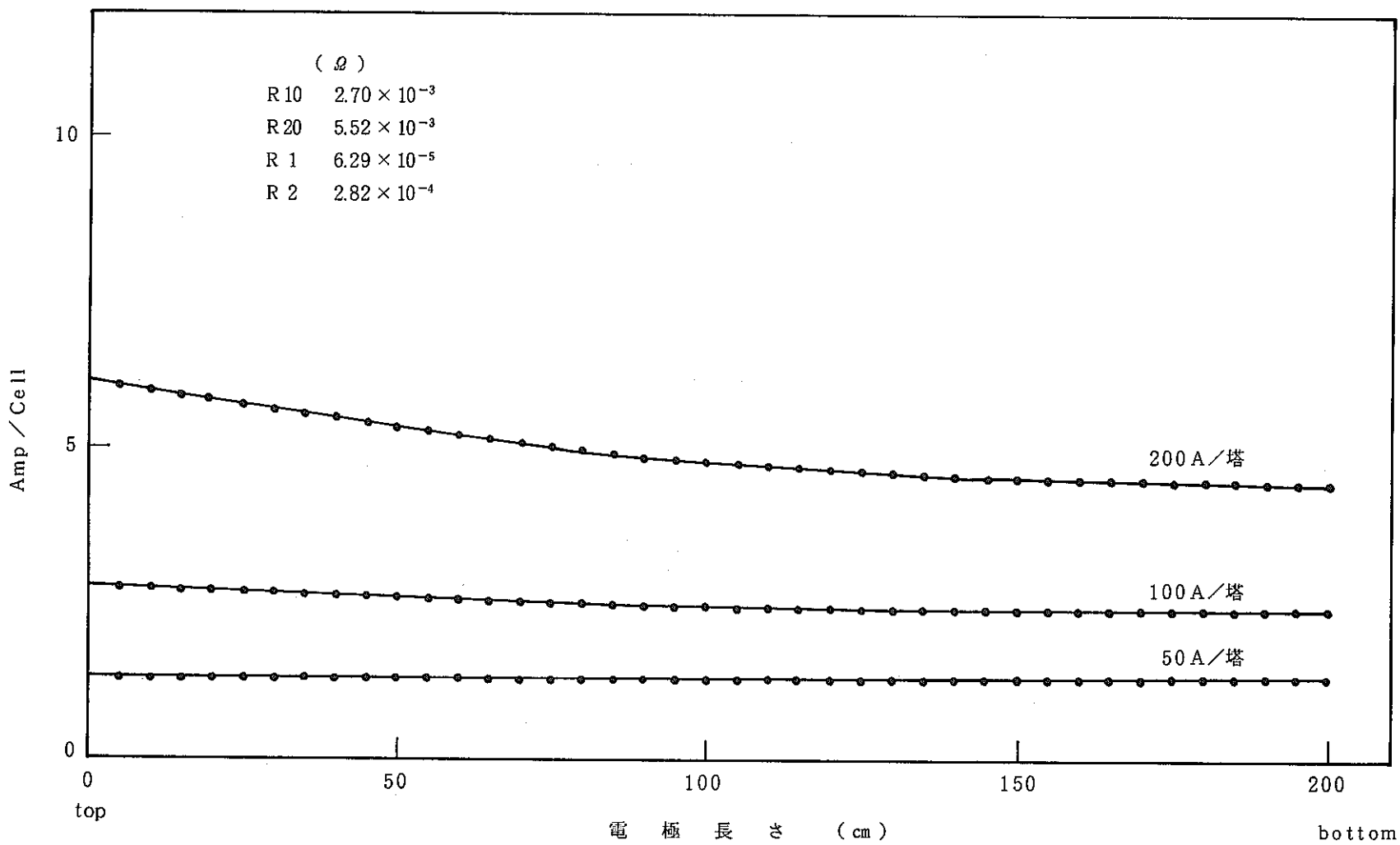


Fig.A.2.3 Estimation results of axial current distribution

A. 3 試験データ

A. 3. 1 流動特性試験

Table A.3.1 Experimental conditions and results of hydraulic character in 2T-21

Run No.	試 験 条 件			試 験 結 果			
	有機相流量 (ℓ/hr)	水相流量 (ℓ/hr)	パルス条件 (mm × cpm)	塔内ホールドアップ率(%)			有機相オーバー フロー中水相エ ントレインメン ト率(%)
				上	中	下	
C-21 -001	100	100	20×30	4.0	4.2	4.8	1.1
C-21 -002	100	100	20×60	4.4	3.4	2.2	1.9
C-21 -003	40	40	20×60	0.3	1.3	6.0	0.1
C-21 -004	40	40	20×30	2.5	3.0	4.3	0.4
C-21 -005	150	150	20×30	0.3	0.2	2.7	0.3
C-21 -006	150	150	20×70	4.3	7.9	3.1	0.3
C-21 -007	159	146	20×70	11	1.2	11	0.3
C-21* -008	186 ± 60	247 ± 60	20×30	4.7	8.7	8.8	0.3
C-21* -009	226	260	20×60	0.5	0.5	9.2	0.5
C-21* -010	191	211	20×100	-	56	44	30
C-21 -014	150	150	20×100	24	37	57	6.8
C-21 -015	100	100	20×100	3.3	19	29	3.8

連続相 ; 有機相

液組性 ; 水相 1N HNO₃

有機相 30%TBP/n-ドデカン

$$\text{塔内ホールドアップ率(}\%) = \frac{\text{水相体積}}{\text{有機相体積} + \text{水相体積}} \times 100$$

$$\text{有機相オーバーフロー
中水相エントレインメ
ント率(}\%) = \frac{\text{水相体積}}{\text{有機相体積} + \text{水相体積}} \times 100$$

* 装置制約上 0.5 hr 運転とした。

Table A.3.2 Experimental conditions and results of hydraulic character in 2T-22

Run No.	試 験 条 件			試 験 結 果			
	有機相流量 (ℓ/hr)	水相流量 (ℓ/hr)	パルス条件 (mm × cpm)	塔内ホールドアップ率(%)			有機相オーバー フロー中水相エ ントレインメン ト率 (%)
				上	中	下	
C-22 - 001	100	40	20 × 60	7.5	14	7.1	2.0
C-22 - 002	100	40	20 × 30	3.9	2.2	5.7	0.4
C-22 - 003	100	40	20 × 100	11	24	25	0.4
C-22 - 004	150	60	20 × 60	28	33	29	0.5
C-22 - 005	150	60	20 × 30	6.5	26	2.9	0.1
C-22 - 006	150	60	20 × 100	21	22	49	2.3
C-22 - 007	105	35	20 × 30	11	31	8.3	0.5
C-22 - 008	105	35	20 × 60	9.1	8.9	7.5	0.1
C-22 - 009	105	35	20 × 100	25	34	50	0.1
C-22 - 010	148	37	20 × 30	7.0	11	8.2	0.1

連続相 ; 水 相

液組性 ; 水 相 1 N HNO₃

有機相 30% TBP / n-ドデカン

$$\text{塔内ホールドアップ率(\%)} = \frac{\text{水相体積}}{\text{有機相体積} + \text{水相体積}} \times 100$$

$$\text{有機相オーバーフロー
中水相エントレインメ
ント率 (\%)} = \frac{\text{水相体積}}{\text{有機相体積} + \text{水相体積}} \times 100$$

A.3.2 通電試験

i) 目的

3.3.2 及び 3.3.3 項で示すウラン還元試験のバックデータとして、ウランフリーな系での電解副生物の成生状況等を把握する事を目的に試験を実施した。

ii) 試験方法

各カラムに連続相を張り、所定のパルスを印加した後に水相及び有機相の供給を開始する。次に、各カラムの油水、界面が安定した後に通電を開始する。通電は定電流制御で行った。通電開始後、1時間毎にサンプリングを行い、油水分離後、ホールドアップ率の測定及び液組性の分析を行った。試験は室温で行い、連続相は以下の様に選択した。

2 T-21 ; 有機相連続

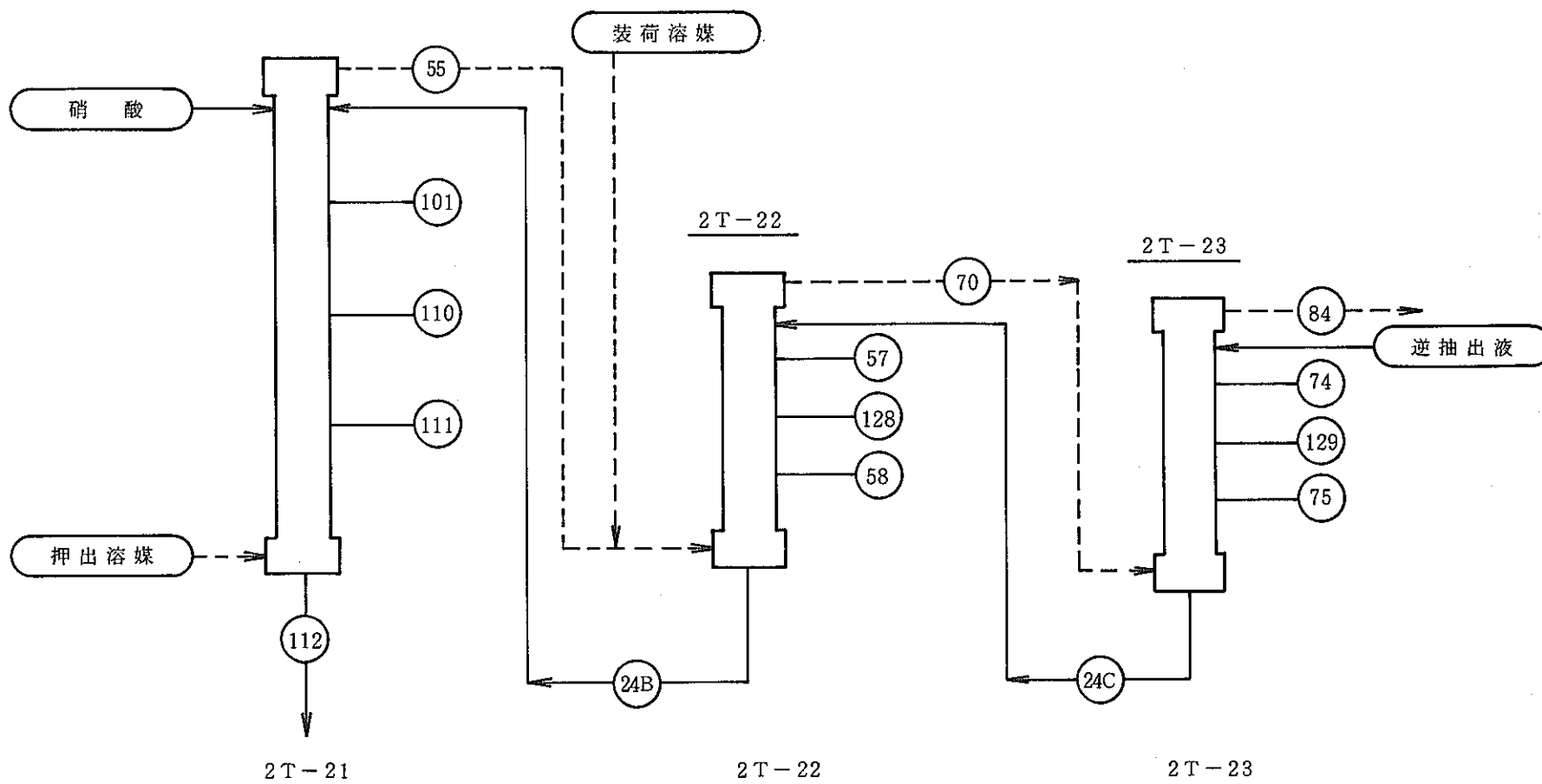
2 T-22 ; 水相連続

2 T-23 ; 水相連続

Fig. A.3.1 に通電試験フローを、Table A.3.3 に通電試験条件を示した。なお、次のランは、カラム内液を交換する事なく行った。

iii) 試験結果

通電試験で得られた液組性分析結果を Table A.3.4 及び Table A.3.5 に示すと共に、これらの関係を Fig. A.3.2 ~ Fig. A.3.9 に示した。(Fig. A.3.2 及び Fig. A.3.6 には塔内の平衡濃度プロファイルを示す。) 一方、ホールドアップ率の測定結果を Table A.3.6 及び Table A.3.7 に、通電時の電流と端子間電圧の関係を Table A.3.8 に示した。



○はサンプリングポイントを示す。

Fig.A.3.1 Experimental flow of cold tests

Table A.3.3 Experimental conditions of cold tests

Run No.	液 条 件										電 流 条 件						パルス条件		
	装 荷 溶 媒			逆 抽 出 液			硝 酸		押 出 溶 媒		2 T - 22		2 T - 23		2T-21	2T-22	2T-23		
	流量 (l/hr)	組 成		流量 (l/hr)	組成 (mol/ l)		流量 (l/hr)	組成 HNO_3 (N)	流量 (l/hr)	組成 HNO_3 (N)	電 流 (A)	電流密度(mA/ cm^2)		電 流 (A)	電流密度(mA/ cm^2)		a (mm) × f (cpm)	a (mm) × f (cpm)	a (mm) × f (cpm)
		U (V)	HNO_3 (N)		HNO_3	$N_2H_4^+$						陰極	陽極		陰極	陽極			
3 C -005	52	0	-	38	0.7	0.3	2	11	44	-	297	19.6	244	297	19.6	244	20 × 60	20 × 60	20 × 60
3 C -006	51	0	-	41	0.5	0.2	2	11	44	-	152	10	125	152	10	125	20 × 60	20 × 60	20 × 60

Table A.3.4 Analytical results of liquid concentration (run no. 3C-005)

塔名	Sampling Point	回数		1	2	3	4	5	6	
		時間								
				14:50 (0.5)	15:20 (1.0)	16:20 (2.0)	17:20 (3.0)	18:20 (4.0)	19:20 (5.0)	
有 機 相 連 統	2T-21	109	水相	HNO ₃						測定 不可
				N ₂ H ₄						
		有機相	HNO ₃							0
				N ₂ H ₄						
	110	水相	HNO ₃	1.182N	1.197N	1.217N	1.247N	1.317N	1.382N	
			N ₂ H ₄	0.084N	0.090N	0.100N	0.078N	0.070N	0.054N	
		有機相	HNO ₃	0.330N	0.306N	0.312N	0.324N	0.332N	0.331N	
				N ₂ H ₄	0	0	0	0	0	
	111	水相	HNO ₃							1.297N
			N ₂ H ₄							0.111N
		有機相	HNO ₃							0.299N
				N ₂ H ₄						0
112	水相	HNO ₃							0.865N	
		N ₂ H ₄							0.072N	
	有機相	HNO ₃							測定 不可	
			N ₂ H ₄							
55	水相	HNO ₃	0.925N	測定	測定	測定	測定	測定	1.136N	
		N ₂ H ₄	0	不可	不可	不可	不可	不可	測定不可	
	有機相	HNO ₃	0.190N	0.199N	0.196N	0.199N	0.196N	0.207N		
			N ₂ H ₄	0	0	0	0	0		
水 相 連 統	2T-22	57	水相	HNO ₃						0.550N
				N ₂ H ₄						0.114N
		有機相	HNO ₃						測定 不可	
				N ₂ H ₄						
	128	水相	HNO ₃	0.472N	0.480N	0.534N	0.533N	0.568N	0.543N	
			N ₂ H ₄	0.072N	0.096N	0.098N	0.077N	0.064N	0.063N	
		有機相	HNO ₃	測定	測定	0.201N	測定	0.207N	測定	
				N ₂ H ₄	不可	不可	0	不可	0	不可
	58	水相	HNO ₃							0.683N
			N ₂ H ₄							0.092N
		有機相	HNO ₃							0.362N
				N ₂ H ₄						0
70	水相	HNO ₃	測定	測定	0.483N	測定	測定	測定	測定	
		N ₂ H ₄	不可	不可	0.120N	不可	不可	不可	不可	
	有機相	HNO ₃	0.088N	0.104N	0.106N	0.099N	0.099N	0.102N		
			N ₂ H ₄	0	0	0	0	0		
水 相 連 統	2T-23	84	水相	HNO ₃	0.432N	0.530N	0.554N	0.561N	0.561N	0.557N
				N ₂ H ₄	0.181N	0.185N	0.213N	0.213N	0.209N	0.211N
		有機相	HNO ₃	測定	測定	測定	測定	測定	測定	
				N ₂ H ₄	不可	不可	不可	不可	不可	不可
	74	水相	HNO ₃							0.444N
			N ₂ H ₄							0.177N
		有機相	HNO ₃							測定 不可
				N ₂ H ₄						
	129	水相	HNO ₃	0.449N	0.521N	0.558N	0.565N	0.562N	0.562N	
			N ₂ H ₄	0.167N	0.220N	0.179N	0.171N	0.165N	0.165N	
		有機相	HNO ₃	測定	測定	測定	測定	測定	測定	
				N ₂ H ₄	不可	不可	不可	不可	不可	不可
75	水相	HNO ₃							0.487N	
		N ₂ H ₄							0.145N	
	有機相	HNO ₃							0.201N	
			N ₂ H ₄						0	

Table A.3.5 Analytical results of liquid concentration (run no. 3C-006)

塔名	Sampling Point	回数		1	2	3	4	5	6	7		
		時間		0.5 hr	1.0 hr	1.5 hr	2.5 hr	3.5 hr	4.5 hr	5.5 hr		
有 機 相 連 統	2T-21	水相	HNO ₃							測定	測定	
			N ₂ H ₄								不可	不可
		有機相	HNO ₃								0.322	0.277
			N ₂ H ₄								0	0
		110	水相	HNO ₃	1.33	1.32	1.25	1.25	1.22	1.22	1.22	測定
				N ₂ H ₄	4.22×10 ⁻²	8.04×10 ⁻²	0.119	0.111	9.25×10 ⁻²	9.45×10 ⁻²	不可	
	有機相	HNO ₃	0.327	0.302	0.302	0.292	0.279	0.277	0.269			
		N ₂ H ₄	0	0	0	0	0	0	0			
	111	水相	HNO ₃							1.41	1.21	
			N ₂ H ₄							5.53×10 ⁻²	0.111	
	有機相	HNO ₃								0.337	0.282	
		N ₂ H ₄								0	0	
	112	水相	HNO ₃							1.26	0.915	
			N ₂ H ₄							7.94×10 ⁻²	0.104	
	有機相	HNO ₃								測定	測定	
		N ₂ H ₄								不可	不可	
	55	水相	HNO ₃	測定	測定	測定	測定	測定	測定	測定	0.453	
			N ₂ H ₄	不可	不可	不可	不可	不可	不可	不可	測定不可	
有機相	HNO ₃	0.186	0.131	0.111	0.111	0.116	0.111	6.03×10 ⁻²				
	N ₂ H ₄	0	0	0	0	0	0					
水 相 連 統	2T-22	57	水相	HNO ₃						0.634	0.543	
				N ₂ H ₄							0.108	0.120
		有機相	HNO ₃								0.151	0.136
			N ₂ H ₄								0	0
		128	水相	HNO ₃	0.704	0.608	0.603	0.598	0.583	0.598	0.561	
				N ₂ H ₄	7.44×10 ⁻²	0.133	0.124	0.120	0.109	0.108	0.107	
	有機相	HNO ₃	2.01×10 ⁻²	0.136	0.136	0.181	0.151	0.181	0.118			
		N ₂ H ₄	0	0	0	0	0	0	0			
	58	水相	HNO ₃							0.739	0.573	
			N ₂ H ₄							6.34×10 ⁻²	9.25×10 ⁻²	
	有機相	HNO ₃								0.161	0.136	
		N ₂ H ₄								0	0	
	70	水相	HNO ₃	測定	0.553	0.603	0.654	測定	0.578	測定		
			N ₂ H ₄	不可	0.136	0.151	9.05×10 ⁻²	不可	8.05×10 ⁻²	不可		
	有機相	HNO ₃	0.111	0.121	0.111	0.106	9.55×10 ⁻²	9.55×10 ⁻²	9.55×10 ⁻²			
		N ₂ H ₄	0	0	0	0	0	0	0			
	水 相 連 統	2T-23	84	水相	HNO ₃	0.448N	0.493	0.478	0.463	0.458	0.458	0.437
					N ₂ H ₄	0.195N	0.190	0.186	0.189	0.191	0.203	0.163
有機相			HNO ₃	0.106	0.101	0.101	9.55×10 ⁻²	9.30×10 ⁻²	9.30×10 ⁻²	9.05×10 ⁻²		
			N ₂ H ₄	0	0	0	0	0	0	0		
74			水相	HNO ₃							0.543	0.503
				N ₂ H ₄							0.185	0.158
有機相		HNO ₃								測定	0.151	
		N ₂ H ₄								不可	0	
129		水相	HNO ₃	0.553	0.531	0.533	0.514	0.513	0.498	0.498		
			N ₂ H ₄	0.155	0.162	0.161	0.153	0.154	0.152	0.140		
有機相		HNO ₃	測定	測定	0.302	0.176	0.176	測定	測定			
		N ₂ H ₄	不可	不可	0	0	0	不可	不可			
75	水相	HNO ₃							0.528	0.523		
		N ₂ H ₄							0.156	0.143		
有機相	HNO ₃								0.201	0.201		
	N ₂ H ₄								0	0		

Table A.3.6 Results of hold up ratio (run no. 3C-005)

塔名	ポイント	回数		1	2	3	4	5	6
		時刻		14:50(0.5)	15:20(1.0)	16:20(2.0)	17:20(3.0)	18:20(4.0)	19:20(5.0)
2T-21	△ 109A	時刻							
		A/A+O							0.3 ^{以下} /86.5
	○ 110A	時刻							
		A/A+O	1/81	1.5/87	2.6/88	2.7/90	2.7/87	2.5/85	
	× 111A	時刻							
		A/A+O							0.6/86.5
	× 112A	時刻							
		O/A+O							0.3 ^{以下} /90.5
2T-210F + 装荷溶媒	○ 55A	時刻							
		A/A+O	0.5/89	0.3 ^{以下} /90	0.3 ^{以下} /89	0/93.5	0.3 ^{以下} /97.5	0.3 ^{以下} /92	
2T-22	△ 57A	時刻							
		O/A+O							0/87
	○ 128A	時刻							
		O/A+O	0.3 ^{以下} /86	0.3 ^{以下} /87.5	1/92	0.3/84	1/90.5	0.3 ^{以下} /87.5	
× 58A	時刻								
	O/A+O							0.3 ^{以下} /88.5	
2T-220F	○ 70A	時刻							
		A/A+O	0/79	0/77.5	0.3 ^{以下} /86.5	0.3 ^{以下} /95	0/90	0/92	
2T-230F	○ 84A	時刻							
		A/A+O	0.3 ^{以下} /87.5	0.5/89	0/86.5	0/93	0.3 ^{以下} /95	0/95	
2T-23	△ 74A	時刻							
		O/A+O							0.3 ^{以下} /86
	○ 129A	時刻							
		O/A+O	0.3 ^{以下} /87.5	0/88.5	0.3 ^{以下} /92	0/91.5	0/86	0/90	
	× 75A	時刻							
		O/A+O							1/93

Table A.3.7 Results of hold up ratio (run no. 3C-006)

塔名	ポイント	回数	1	2	3	4	5	6	7
			13:40(0.5)	14:10(1.0)	14:40(1.5)	15:40(2.5)	16:40(3.5)	17:40(4.5)	18:40(5.5)
2T-21	△ 109A	時刻							
		A/A+O						0/90	0.3 ^{以下} /92
	○ 110A	時刻							
		A/A+O	2.6/87	1.0/91	2.3/91	1.5/89	2.2/92	2.7/93	0.3 ^{以下} /91
	× 111A	時刻							
		A/A+O						1.5/90	1.3/91
	× 112A	時刻							
		O/A+O						0/86	0/90
2T-210F + 装荷溶媒	○ 55A	時刻							
		A/A+O	0/89	0.3 ^{以下} /85	0/91	0/92	0/97	0.3 ^{以下} /89	0.3 ^{以下} /95
2T-22	△ 57A	時刻							
		O/A+O						11/78	4/87
	○ 128A	時刻							
		O/A+O	1/89	3.5/91	2.5/85	1/97.5	1/93	1.5/91	6.0/90.5
	× 58A	時刻							
		O/A+O						7/91	3.5/85
2T-220F	○ 70A	時刻							
		A/A+O	0.3 ^{以下} /87	1/91	0.5/100.5	0.3/97	0.3 ^{以下} /96	0.5/90	0.3 ^{以下} /91
2T-230F	○ 84A	時刻							
		A/A+O	5/98	12/92	4.6/100	4.5/93	2.8/93	5/94	2/85
2T-23	△ 74A	時刻							
		O/A+O						0/87	1/94
	○ 129A	時刻							
		O/A+O	0.3 ^{以下} /89	0.3 ^{以下} /93	0.3 ^{以下} /95	1/91	1/94	0.3 ^{以下} /93	1/92
	× 75A	時刻							
		O/A+O						1.5/89	2/100

Table A.3.8 Supplied current and measured voltage
of cold tests

Run No.	2 T - 22		2 T - 23	
	電流(A)	電圧(V)	電流(A)	電圧(V)
3C-005	297	6.3	297	6.3
3C-006	152	4.5	152	4.5

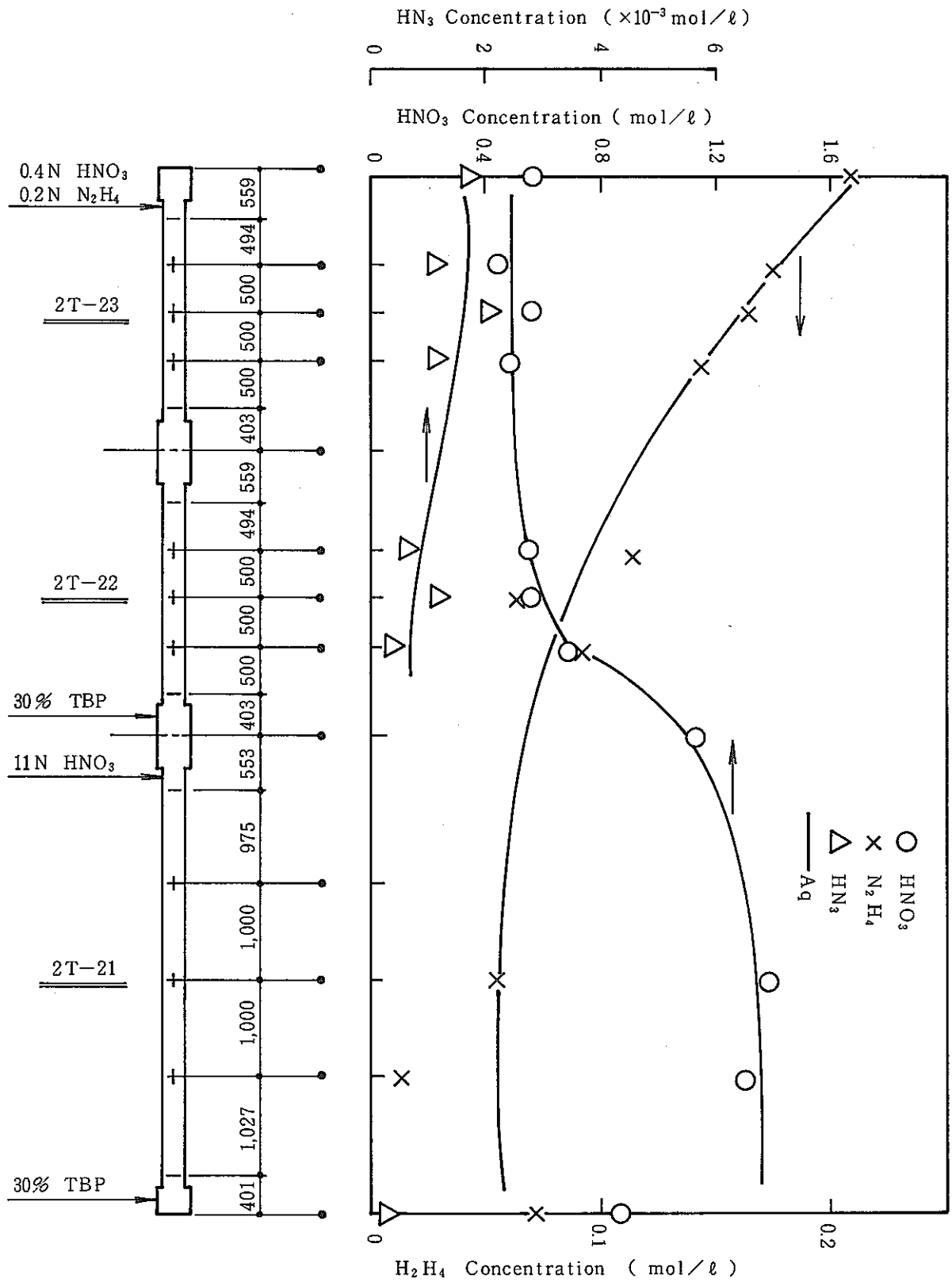


Fig.A.3.2 Equilibrium concentration profile (run no. 3C-005)

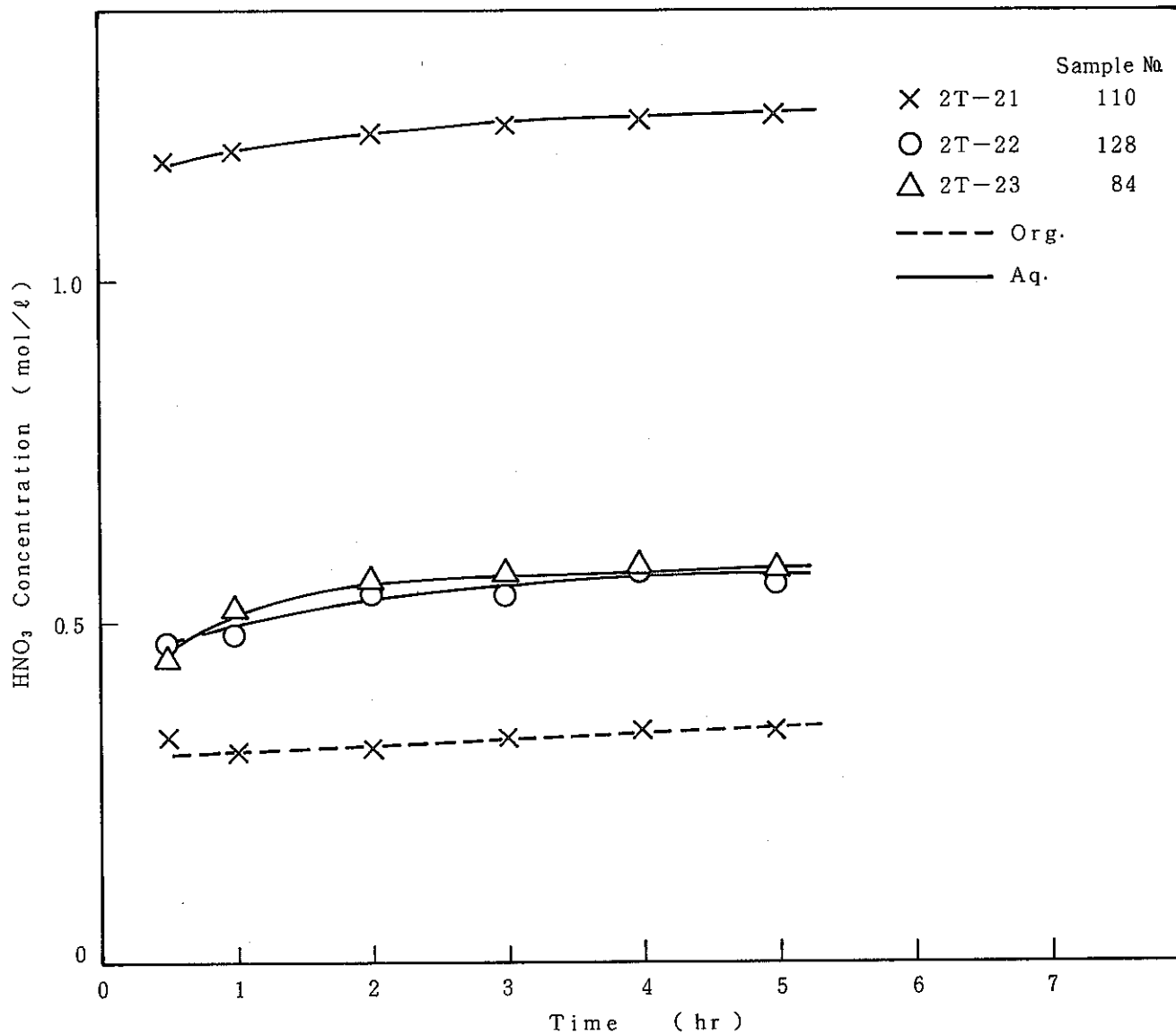


Fig.A.3.3 HNO₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-005)

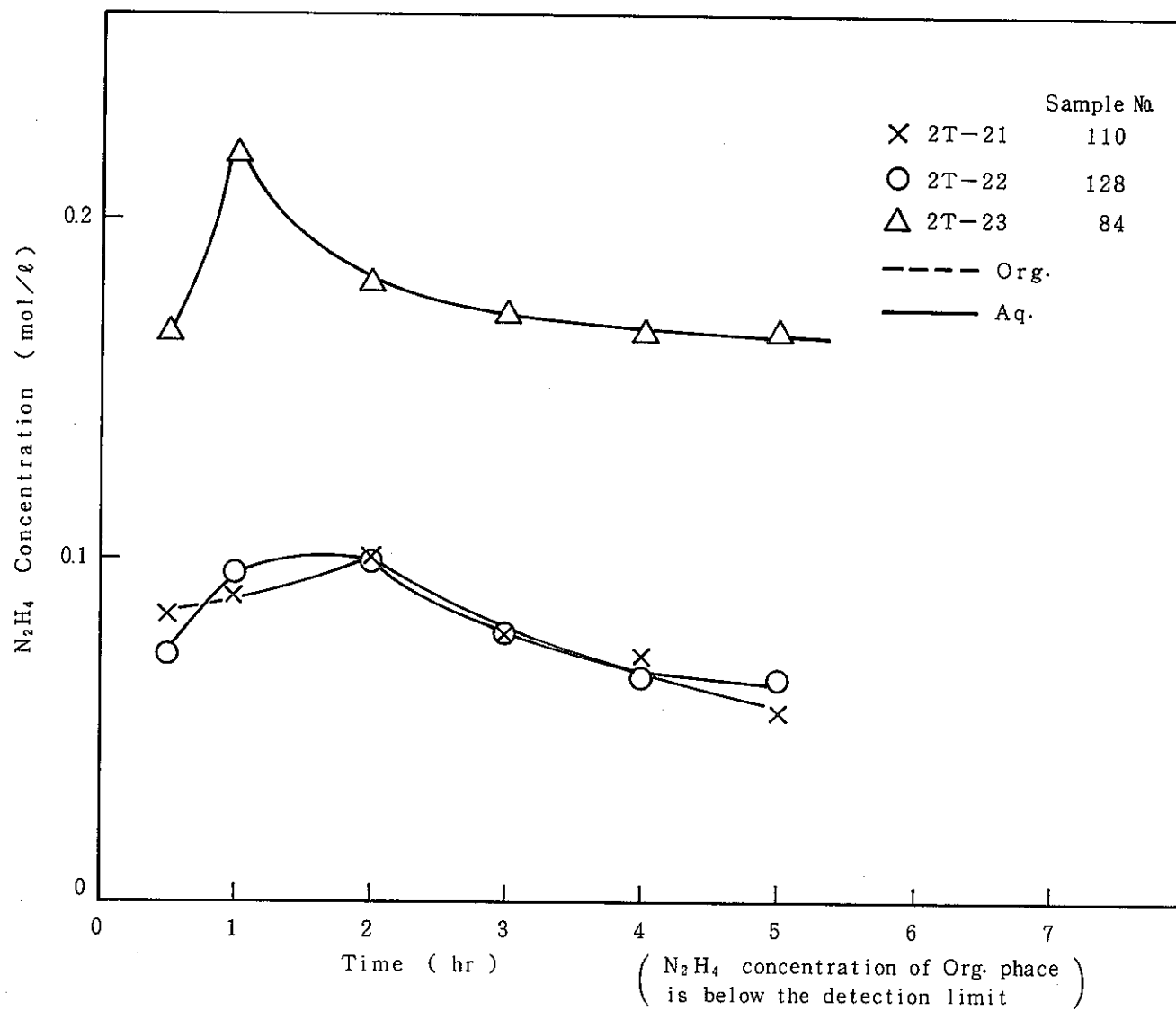


Fig.A.3.4 N_2H_4 concentration change with passage of time (run no. 3C-005)

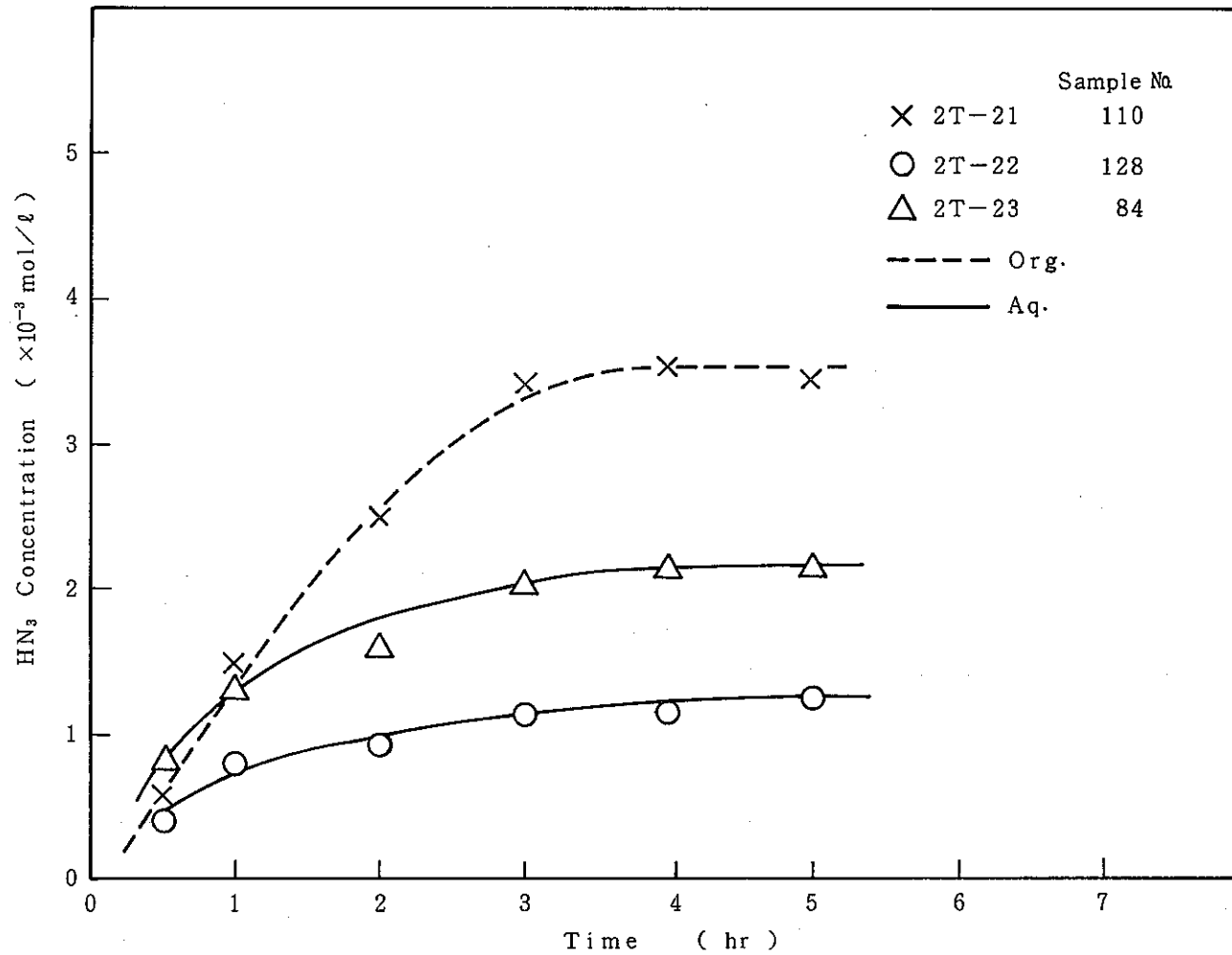


Fig.A.3.5 HN₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-005)

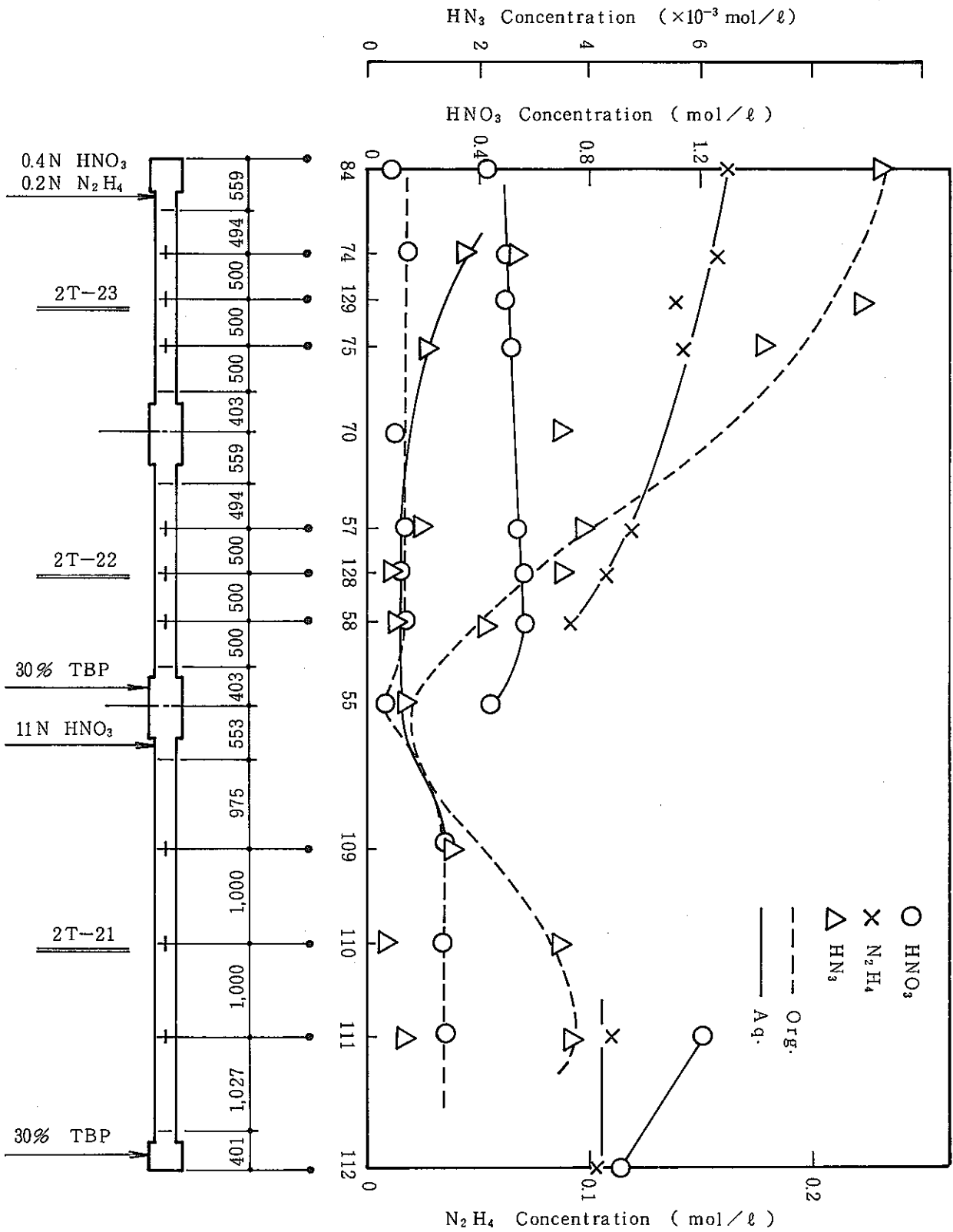
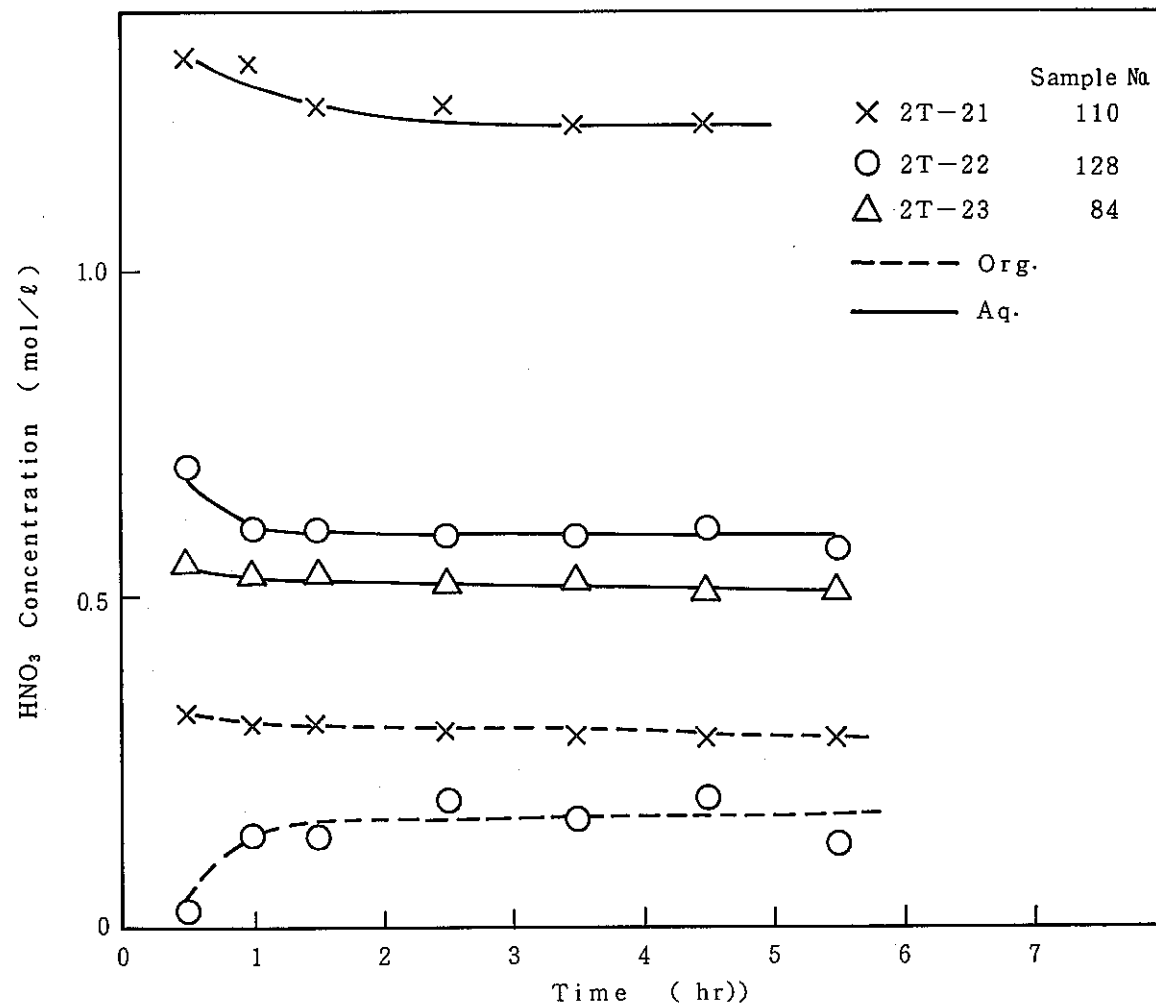
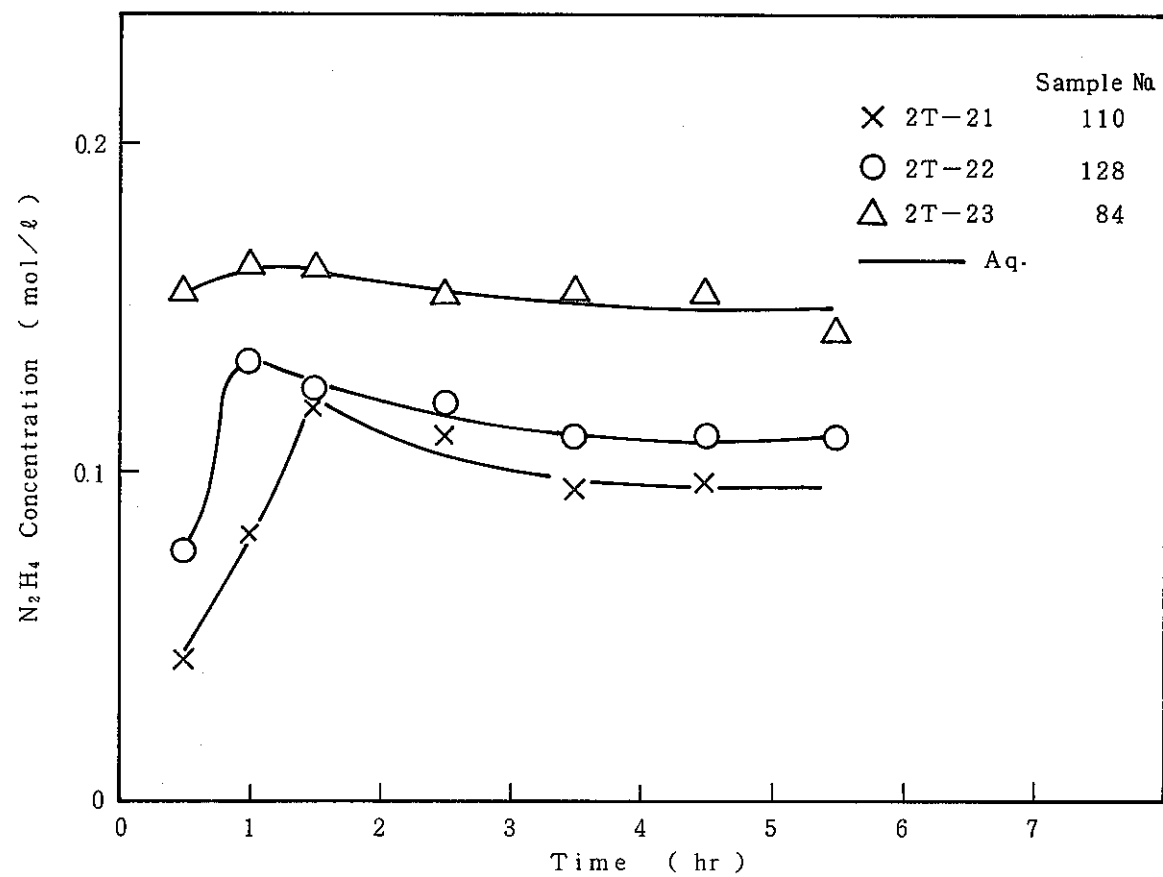


Fig.A.3.6 Equilibrium concentration profile (run no. 3C-006)

Fig.A.3.7 HNO₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-006)

Fig.A.3.8 N_2H_4 concentration change with passage of time (run no. 3C-006)

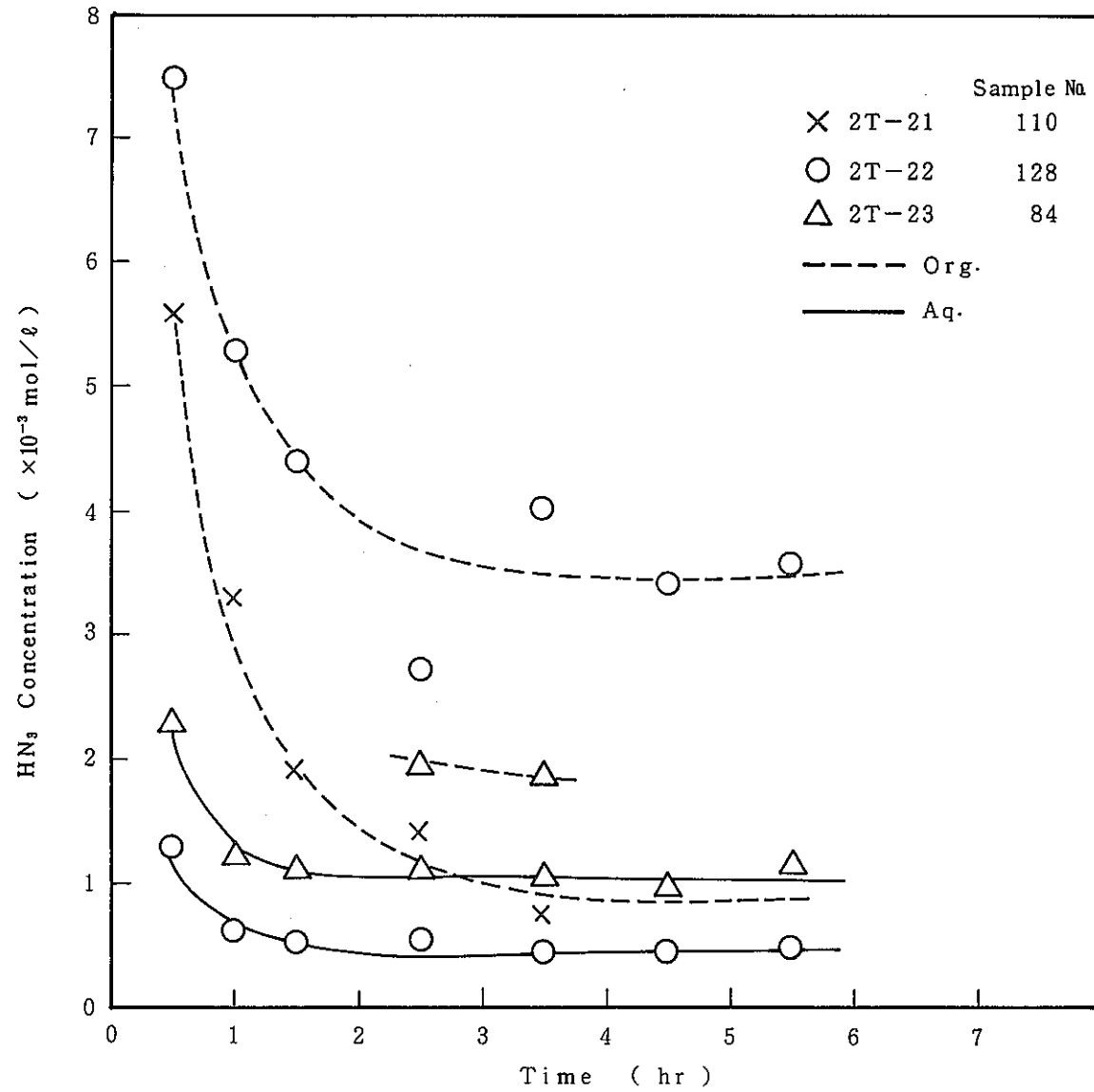


Fig.A.3.9 HN₃ concentration change with passage of time (run no. 3C-006)

A. 3. 3 水相電解試験

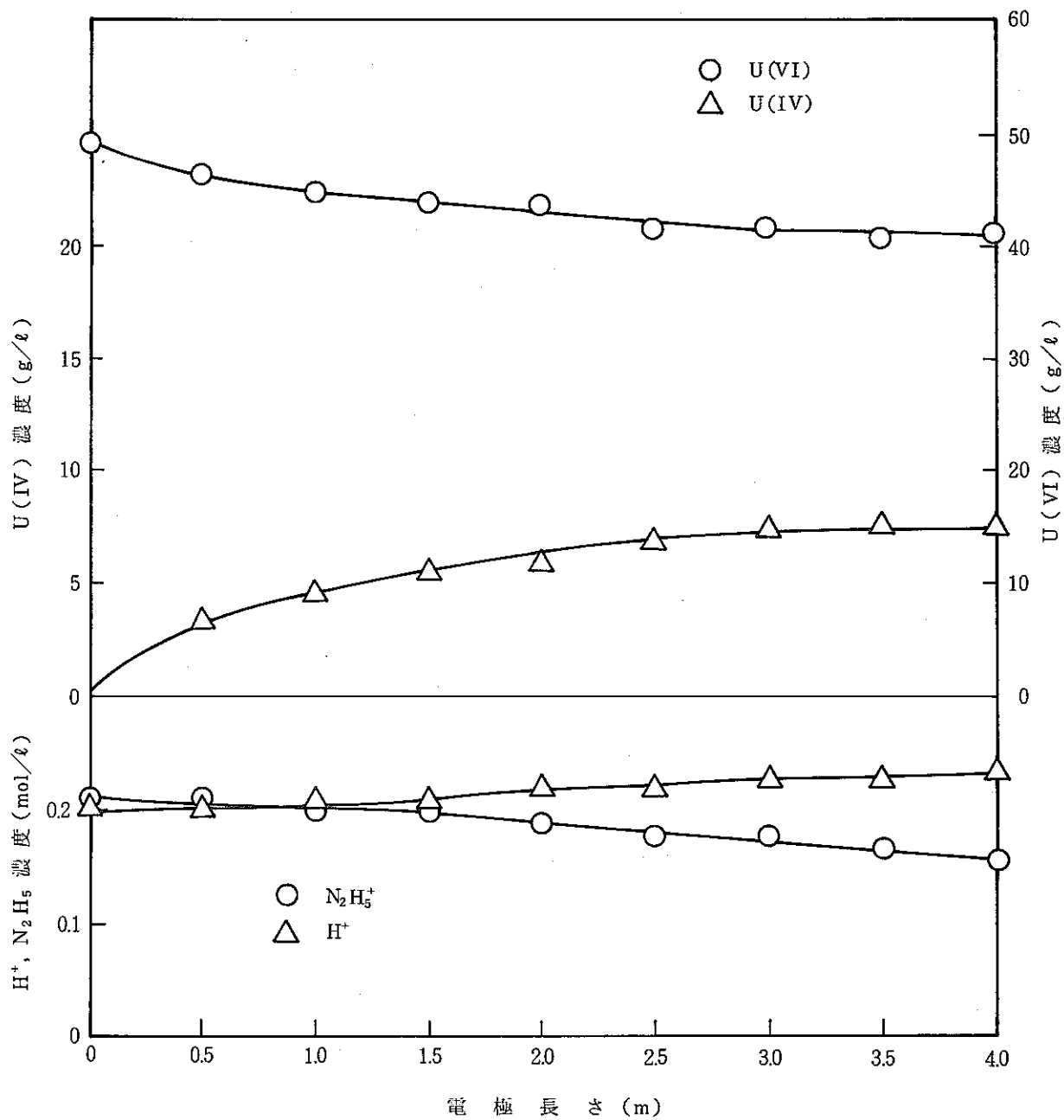


Fig.A.3.10 Equilibrium concentration profile (run no. 2A-001)

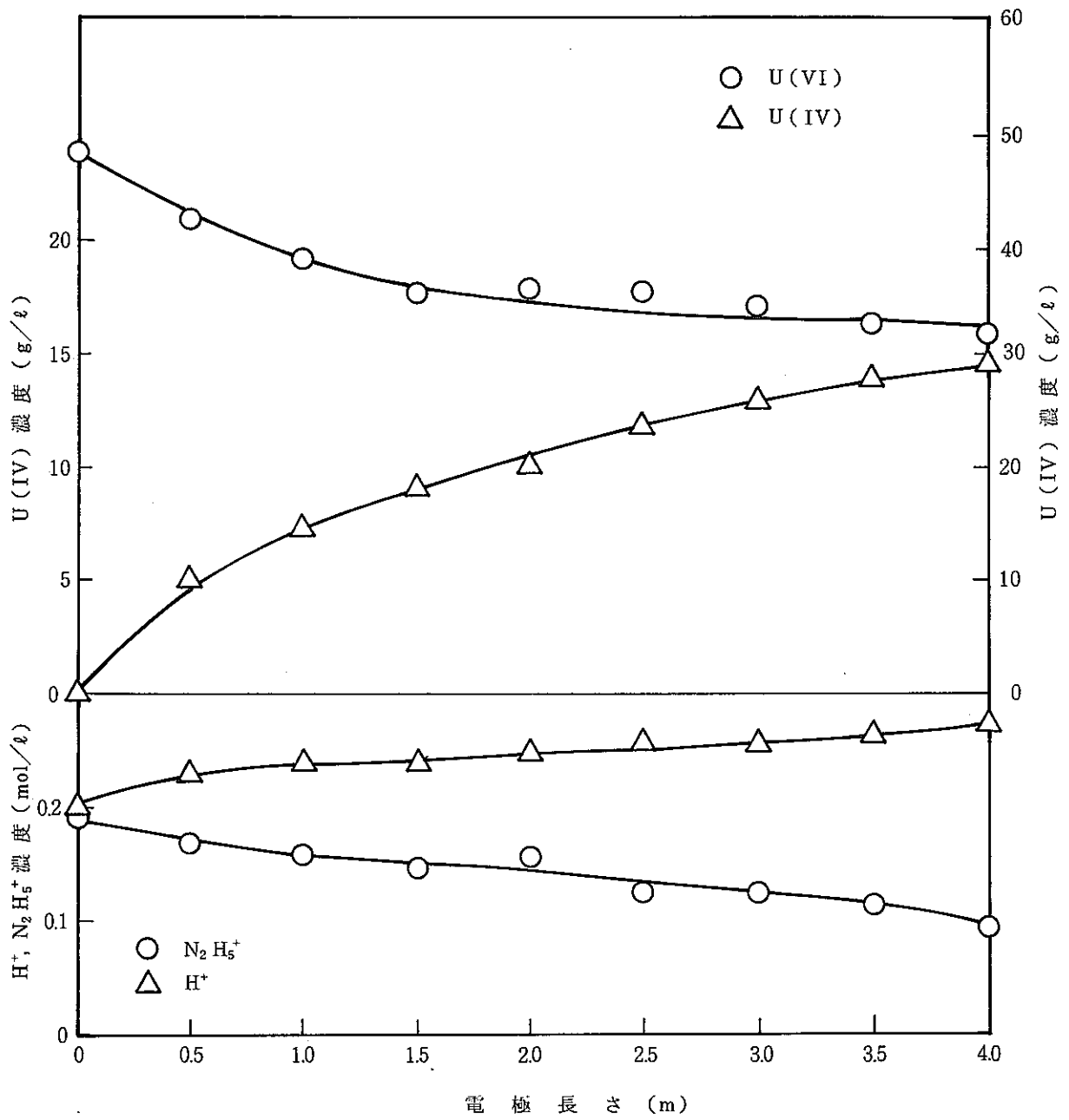


Fig.A.3.11 Equilibrium concentration profile (run no. 2A-002)

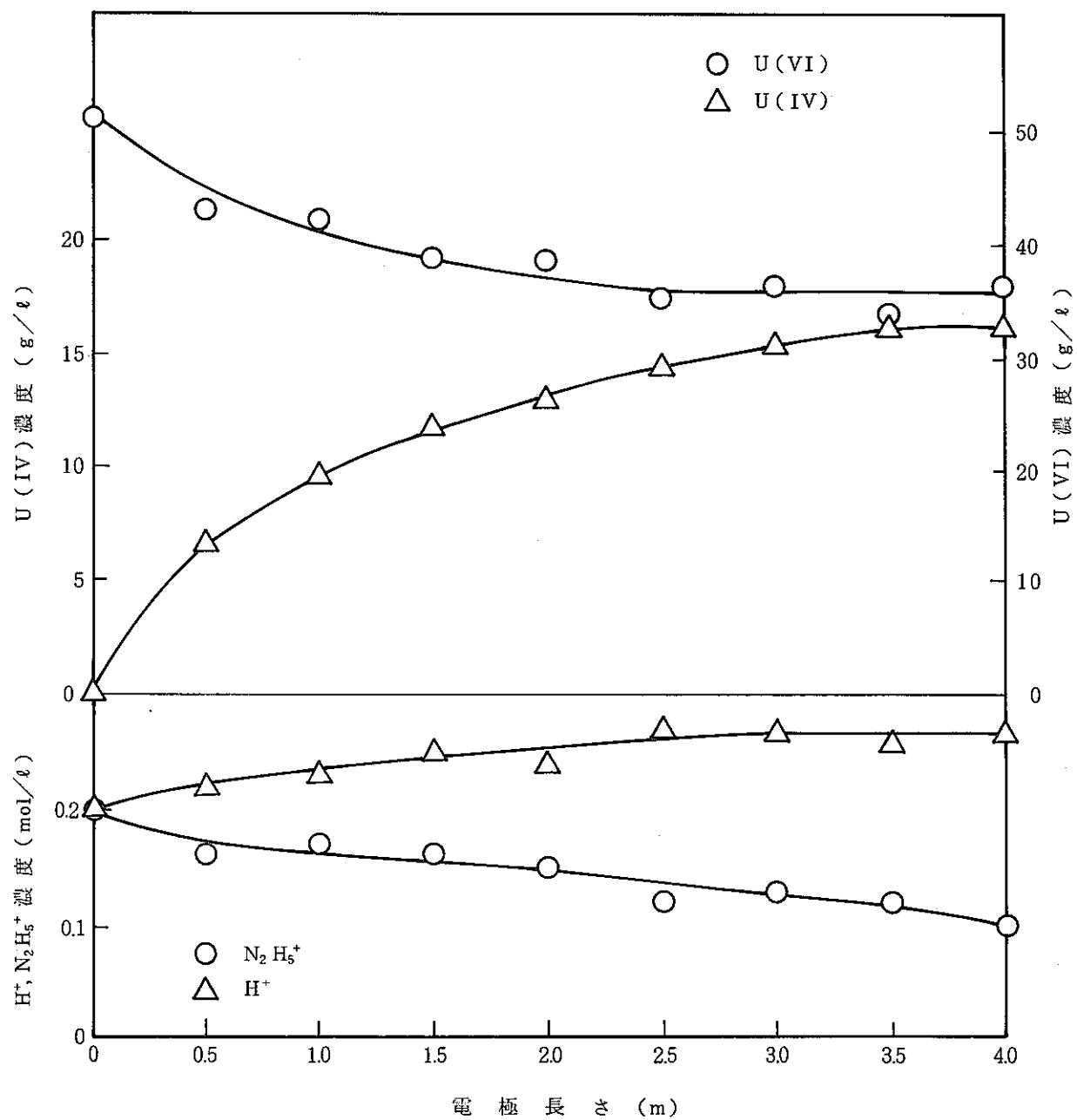


Fig.A.3.12 Equilibrium concentration profile (run no. 2A-003)

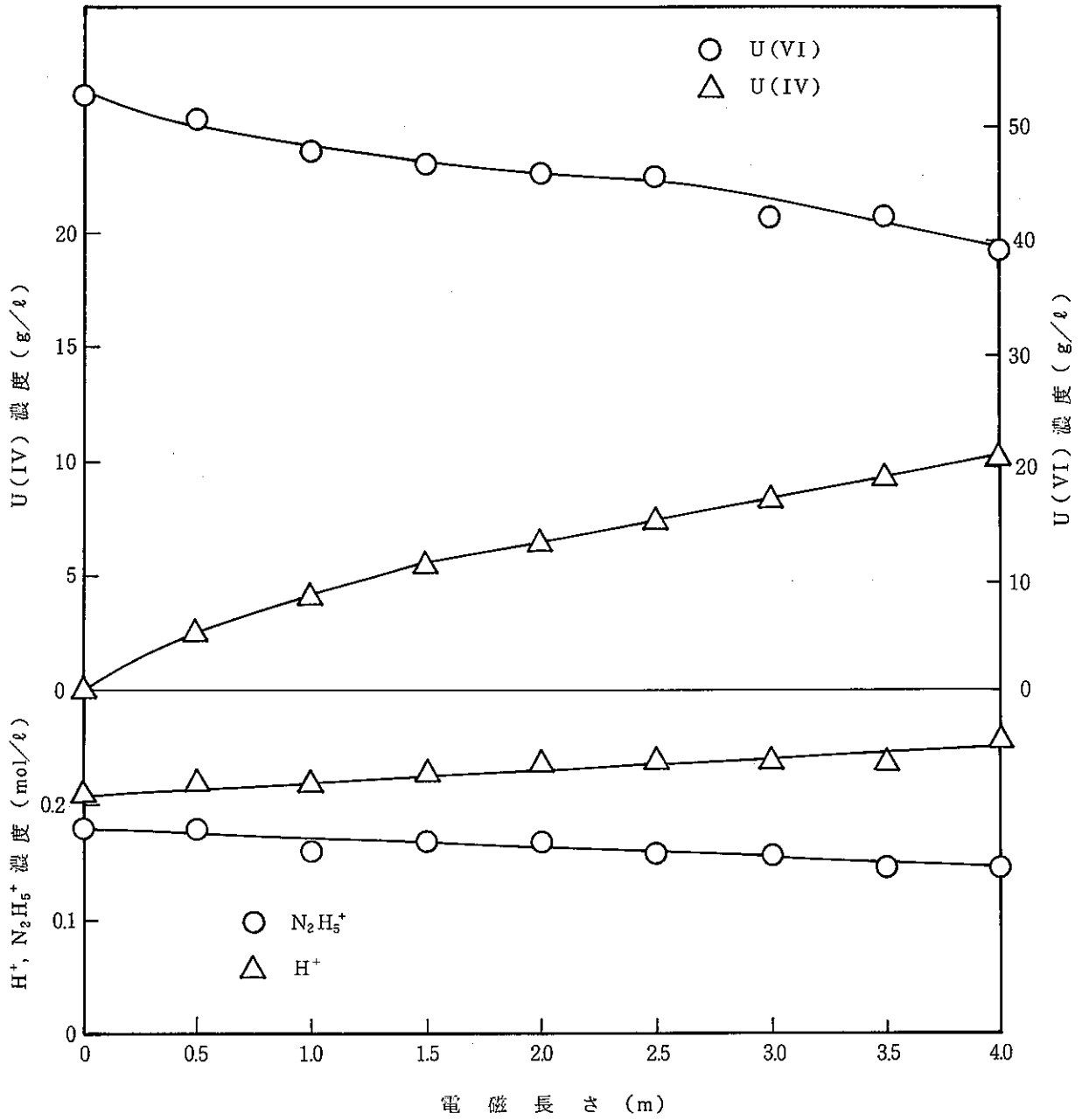


Fig.A.3.13 Equilibrium concentration profile (run no. 2A-004)

Table A.3.9 Analytical results of liquid concentration
(run no. 2A-001)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0		3H平均	
70 A	水	HNO ₃ (mol/l)	0.23	0.23	0.21	0.22	0.22	0.23	0.22	0.22		0.22
		N ₂ H ₄ (")	0.19	0.19	0.19	0.19	0.19	0.20	0.19	0.19		0.19
		HN ₃ (")								6.8×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	3.9	4.9	5.7	5.8	5.7	5.9	6.1	6.1		6.0
		TotalU(")	47.4	49.3	44.5	49.0	49.2	50.3	50.1	49.6		50.0
57 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.21	0.21	0.21		0.21
		N ₂ H ₄ (")						0.20	0.20	0.19		0.20
		HN ₃ (")								7.0×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	4.1	4.8	5.1	5.2	5.3	5.5	5.7	5.7		5.6
		TotalU(")	44.5	49.1	49.9	50.1	49.2	50.1	48.8	49.2		49.4
128 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.21	0.21	0.21		0.21
		N ₂ H ₄ (")						0.21	0.20	0.20		0.20
		HN ₃ (")								6.9×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	3.8	4.0	4.5	4.5	4.4	4.5	4.6	4.7		4.6
		TotalU(")	48.3	49.3	49.9	49.7	49.0	49.8	49.4	49.7		49.6
58 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.20	0.21	0.20		0.20
		N ₂ H ₄ (")						0.21	0.20	0.21		0.21
		HN ₃ (")								6.9×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	2.9	2.9	3.3	3.1	3.1	3.3	3.3	3.3		3.3
		TotalU(")	49.0	48.0	49.5	49.4	50.1	49.4	48.9	50.8		49.7
2V 22	水	HNO ₃ (mol/l)						0.20	0.20	0.19		0.20
		N ₂ H ₄ (")						0.21	0.21	0.22		0.21
		HN ₃ (")								8.0×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	1.3	1.3	1.2	1.2	<1.2	1.3	1.2	<1.2		<1.2
		TotalU(")	49.5	49.8	50.0	49.5	50.4	50.4	49.1	51.0		50.2
84 A	水	HNO ₃ (mol/l)	0.21	0.22	0.22	0.23	0.23	0.24	0.25	0.23		0.24
		N ₂ H ₄ (")	0.16	0.13	0.15	0.16	0.16	0.17	0.15	0.17		0.16
		HN ₃ (")								3.0×10 ⁻³		
	相	U(IV) (g/l)	2.7	4.9	5.9	6.5	7.4	7.6	7.8	8.1		7.8
		TotalU(")	45.0	46.3	47.0	45.9	45.9	48.8	50.5	49.9		49.7
74 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.23	0.22	0.23		0.23
		N ₂ H ₄ (")						0.17	0.17	0.17		0.17
		HN ₃ (")								2.9×10 ⁻³		
	相	U(IV) (g/l)	3.2	4.9	7.6	6.6	7.3	7.7	7.8	8.0		7.8
		TotalU(")	45.7	47.6	47.7	47.9	49.5	46.9	50.3	50.2		49.1
129 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.23	0.22	0.23		0.23
		N ₂ H ₄ (")						0.18	0.18	0.19		0.18
		HN ₃ (")								2.0×10 ⁻³		
	相	U(IV) (g/l)	3.4	5.0	6.2	6.5	6.9	7.3	7.5	7.7		7.5
		TotalU(")	44.6	47.8	48.6	48.3	48.8	50.1	49.2	49.4		49.6
75 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.22	0.22	0.22		0.22
		N ₂ H ₄ (")						0.19	0.18	0.18		0.18
		HN ₃ (")								1.8×10 ⁻³		
	相	U(IV) (g/l)	2.8	4.8	5.8	6.2	6.5	6.8	7.1	7.2		7.0
		TotalU(")	46.3	48.4	48.2	48.5	48.8	50.8	47.2	49.2		49.1

Table A.3.10 Analytical results of liquid concentration
(run no. 2A-002)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	9.5	3H平均	
70 A	水	HNO ₃ (mol/l)	0.25	0.22	0.24	0.23	0.24	0.24	0.24	0.24	0.24	0.26	0.25
		N ₂ H ₄ (")	0.16	0.17	0.14	0.17	0.14	0.15	0.14	0.15	0.19	0.15	0.16
		HN ₃ (")										1.7×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	6.5	8.5	9.1	9.3	9.7	9.7	9.9	10.2	10.1	10.2	10.2
		TotalU(")	48.8	46.5	43.6	49.1	45.8	50.3	46.0	49.0	45.9	44.0	46.3
57 A	水	HNO ₃ (mol/l)								0.24	0.24	0.25	0.24
		N ₂ H ₄ (")								0.15	0.15	0.15	0.15
		HN ₃ (")										1.4×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	6.9	8.0	8.4	8.6	8.7	8.8	8.9	9.2	9.1	9.2	9.2
		TotalU(")	48.7	47.9	48.5	48.0	49.1	50.2	50.0	43.9	48.2	42.6	44.9
128 A	水	HNO ₃ (mol/l)								0.23	0.24	0.24	0.24
		N ₂ H ₄ (")								0.17	0.16	0.16	0.16
		HN ₃ (")										2.1×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	5.9	7.8	6.8	6.8	6.9	7.1	7.2	7.2	7.3	7.3	7.3
		TotalU(")	46.6	50.4	49.7	49.2	47.3	48.4	49.7	43.4	48.5	45.7	45.9
58 A	水	HNO ₃ (mol/l)								0.22	0.23	0.23	0.23
		N ₂ H ₄ (")								0.18	0.16	0.16	0.17
		HN ₃ (")										2.7×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	3.8	4.4	4.7	4.7	4.8	4.8	4.8	5.1	5.0	5.2	5.1
		TotalU(")	45.7	49.9	49.0	49.8	47.6	49.5	45.0	44.0	49.5	47.5	47.0
2V 1 22	水	HNO ₃ (mol/l)								0.20	0.21	0.20	0.20
		N ₂ H ₄ (")								0.19	0.18	0.19	0.19
		HN ₃ (")											
	相	U(IV) (g/l)	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2
		TotalU(")	49.2	49.1	49.0	48.8	48.7	47.3	49.8	46.2	48.0	49.5	47.9
84 A	水	HNO ₃ (mol/l)	0.23	0.23	0.27	0.27	0.27	0.26	0.26	0.27	0.28	0.30	0.28
		N ₂ H ₄ (")	0.14	0.11	0.10	0.11	0.13	0.12	0.11	0.11	0.09	0.10	0.10
		HN ₃ (")										1.4×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	4.6	8.7	12.2	13.1	13.7	14.1	14.2	14.7	15.0	15.0	14.9
		TotalU(")	47.6	48.5	50.9	49.9	48.1	50.6	48.9	44.2	49.6	48.8	47.5
74 A	水	HNO ₃ (mol/l)								0.28	0.27	0.27	0.27
		N ₂ H ₄ (")								0.12	0.12	0.12	0.12
		HN ₃ (")										2.0×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	5.4	9.7	11.9	12.8	14.0	13.7	14.0	14.1	14.2	14.2	14.2
		TotalU(")	44.7	47.6	50.1	49.7	50.0	46.3	49.6	44.8	48.7	49.5	47.7
129 A	水	HNO ₃ (mol/l)								0.26	0.26	0.27	0.26
		N ₂ H ₄ (")								0.13	0.13	0.13	0.13
		HN ₃ (")										2.2×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	5.5	9.5	11.2	11.9	12.3	12.7	12.8	13.1	13.2	13.3	13.2
		TotalU(")	48.3	49.3	45.7	49.3	48.9	49.6	47.3	49.3	49.4	45.4	48.0
75 A	水	HNO ₃ (mol/l)								0.27	0.26	0.26	0.26
		N ₂ H ₄ (")								0.13	0.13	0.14	0.13
		HN ₃ (")										3.0×10 ⁻⁴	
	相	U(IV) (g/l)	5.4	8.9	10.6	11.0	11.3	11.4	11.7	11.9	12.0	12.2	12.0
		TotalU(")	46.0	47.1	46.6	44.6	49.6	47.0	48.8	45.4	48.7	49.6	47.9

Table A.3.11 Analytical results of liquid concentration
(run no. 2A-003)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0		3日平均	
70 A	水	HNO ₃ (mol/l)	0.23	0.23	0.24	0.24	0.24	0.24	0.25	0.23		0.24
		N ₂ H ₄ (")	0.16	0.15	0.17	0.16	0.16	0.17	0.13	0.16		0.15
		HN ₃ (")								3.4×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	10.0	12.2	13.0	13.2	12.8	13.0	13.2	13.0		13.1
		TotalU(")	48.9	46.5	47.5	52.1	51.2	51.6	51.6	51.4		51.5
57 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.25	0.24	0.25		0.25
		N ₂ H ₄ (")						0.16	0.16	0.15		0.16
		HN ₃ (")								4.4×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	10.7	11.7	12.2	12.2	11.9	11.9	12.0	11.9		11.9
		TotalU(")	52.2	46.9	49.1	50.7	52.4	52.1	52.6	46.8		50.5
128 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.24	0.23	0.23		0.23
		N ₂ H ₄ (")						0.17	0.17	0.17		0.17
		HN ₃ (")								6.9×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	9.0	9.5	9.8	9.9	9.7	9.6	9.7	9.7		9.7
		TotalU(")	52.7	47.9	48.2	51.8	51.9	50.8	52.1	51.9		51.6
58 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.23	0.22	0.22		0.22
		N ₂ H ₄ (")						0.17	0.18	0.14		0.16
		HN ₃ (")								1.1×10 ⁻³		
	相	U(IV) (g/l)	6.3	6.5	6.8	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7		6.7
		TotalU(")	51.0	47.3	46.3	51.6	50.1	47.5	49.8	50.5		49.3
2V 22	水	HNO ₃ (mol/l)						0.20	0.20	0.20		0.20
		N ₂ H ₄ (")						0.20	0.19	0.19		0.19
		HN ₃ (")								1.5×10 ⁻³		
	相	U(IV) (g/l)	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2		<1.2
		TotalU(")	54.0	51.0	52.1	52.7	51.6	51.8	51.7	49.0		50.8
84 A	水	HNO ₃ (mol/l)	0.23	0.24	0.27	0.26	0.28	0.29	0.27	0.25		0.27
		N ₂ H ₄ (")	0.12	0.12	0.10	0.11	0.09	0.08	0.11	0.10		0.10
		HN ₃ (")								1.9×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	9.2	14.3	16.5	16.7	16.5	16.3	16.4	16.5		16.4
		TotalU(")	52.2	51.2	47.5	51.1	52.9	59.6	46.9	52.2		52.9
74 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.29	0.27	0.22		0.26
		N ₂ H ₄ (")						0.09	0.10	0.16		0.12
		HN ₃ (")								3.6×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	10.2	14.5	16.0	16.2	16.0	16.5	16.5	16.2		16.4
		TotalU(")	52.1	51.2	48.7	50.9	53.2	52.8	52.4	46.0		50.4
129 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.28	0.28	0.26		0.27
		N ₂ H ₄ (")						0.11	0.16	0.12		0.13
		HN ₃ (")								3.7×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	9.7	13.7	15.2	15.6	15.5	15.5	15.7	15.5		15.6
		TotalU(")	50.9	52.5	48.2	48.1	48.5	51.8	51.8	52.1		51.9
75 A	水	HNO ₃ (mol/l)						0.27	0.26	0.27		0.27
		N ₂ H ₄ (")						0.12	0.13	0.11		0.12
		HN ₃ (")								5.1×10 ⁻⁴		
	相	U(IV) (g/l)	8.9	12.7	14.2	14.8	14.5	14.7	14.8	14.5		14.7
		TotalU(")	49.1	52.0	47.0	48.4	52.1	49.1	51.5	49.0		49.9

Table A.3.12 Analytical results of liquid concentration
(run no. 2A-004)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0		3H平均	
70 A	水相	HNO ₃ (mol/l)	0.19	0.20	0.22	0.22	0.22	0.23	0.24	0.24	0.23		0.24
		N ₂ H ₄ (")	0.19	0.17	0.16	0.16	0.15	0.15	0.16	0.17	0.18		0.17
		HN ₃ (")									4.4×10 ⁻⁴		
		U(IV) (g/l)	5.8	6.0	6.1	6.3	6.3	6.5	6.4	6.5	6.5		6.5
		TotalU(")	50.5	52.0	48.5	47.3	52.3	53.0	53.2	52.9	48.4		51.5
57 A	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.23	0.23	0.23		0.23
		N ₂ H ₄ (")							0.17	0.17	0.17		0.17
		HN ₃ (")									4.4×10 ⁻⁴		
		U(IV) (g/l)	5.4	5.3	5.3	5.4	5.5	5.5	5.5	5.5	5.5		5.5
		TotalU(")	52.2	49.4	47.4	52.2	54.0	47.3	52.8	48.8	53.8		51.8
128 A	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.22	0.22	0.21		0.22
		N ₂ H ₄ (")							0.18	0.12	0.17		0.16
		HN ₃ (")									4.2×10 ⁻⁴		
		U(IV) (g/l)	4.0	4.0	4.0	4.1	4.1	4.2	4.2	4.2	4.3		4.2
		TotalU(")	53.3	53.8	48.2	48.3	54.0	53.0	54.0	48.0	52.7		51.6
58 A	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.22	0.22	0.22		0.22
		N ₂ H ₄ (")							0.18	0.18	0.17		0.18
		HN ₃ (")									4.6×10 ⁻⁴		
		U(IV) (g/l)	2.7	2.7	2.7	2.6	2.6	2.6	2.6	2.5	2.8		2.6
		TotalU(")	53.3	48.1	49.3	48.3	52.6	53.1	53.6	51.5	52.7		52.6
2V 22	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.21		0.20		0.21
		N ₂ H ₄ (")							0.17		0.19		0.18
		HN ₃ (")											
		U(IV) (g/l)	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2		<1.2
		TotalU(")	53.9	53.3	53.5	47.3	54.0	52.6	53.7	53.4	50.3		52.9
84 A	水相	HNO ₃ (mol/l)	0.23	0.22	0.23	0.22	0.23	0.24	0.26	0.26	0.25		0.26
		N ₂ H ₄ (")	0.16	0.15	0.14	0.14	0.15	0.13	0.15	0.15	0.15		0.15
		HN ₃ (")									6.6×10 ⁻⁴		
		U(IV) (g/l)	7.7	9.7	10.3	10.2	10.3	10.3	10.4	10.5	10.5		10.5
		TotalU(")	52.6	52.9	47.9	48.6	50.5	53.7	53.2	46.6	49.5		49.8
74 A	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.25	0.24	0.24		0.24
		N ₂ H ₄ (")							0.14	0.15	0.17		0.15
		HN ₃ (")									7.6×10 ⁻⁴		
		U(IV) (g/l)	7.7	9.1	9.2	9.2	9.5	9.5	9.3	9.7	9.7		9.6
		TotalU(")	52.1	46.9	48.6	47.9	53.5	52.9	53.4	52.9	49.0		51.8
129 A	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.25	0.24	0.24		0.24
		N ₂ H ₄ (")							0.14	0.17	0.16		0.16
		HN ₃ (")									1.1×10 ⁻³		
		U(IV) (g/l)	7.2	7.9	8.1	8.2	8.3	8.4	8.3	8.5	8.6		8.5
		TotalU(")	52.1	52.9	47.5	52.8	53.0	52.3	53.5	47.8	49.8		50.4
75 A	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.23	0.23	0.25		0.24
		N ₂ H ₄ (")							0.16	0.16	0.15		0.16
		HN ₃ (")									6.7×10 ⁻⁴		
		U(IV) (g/l)	6.4	7.1	7.2	7.4	7.5	7.4	7.4	7.5	7.6		7.5
		TotalU(")	53.8	52.7	50.5	53.0	53.2	53.5	54.4	51.6	53.1		53.0

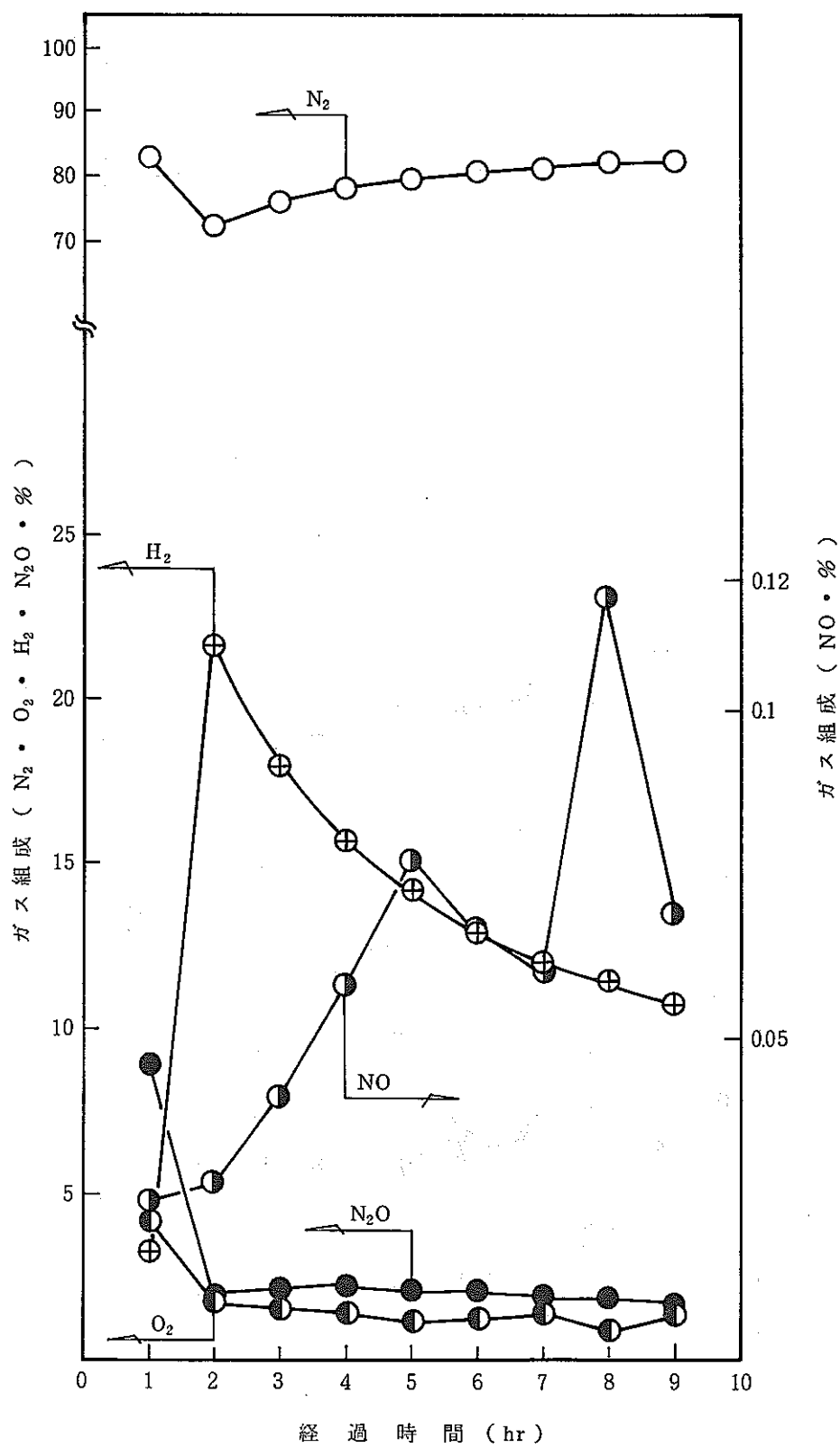


Fig.A.3.14 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-002)

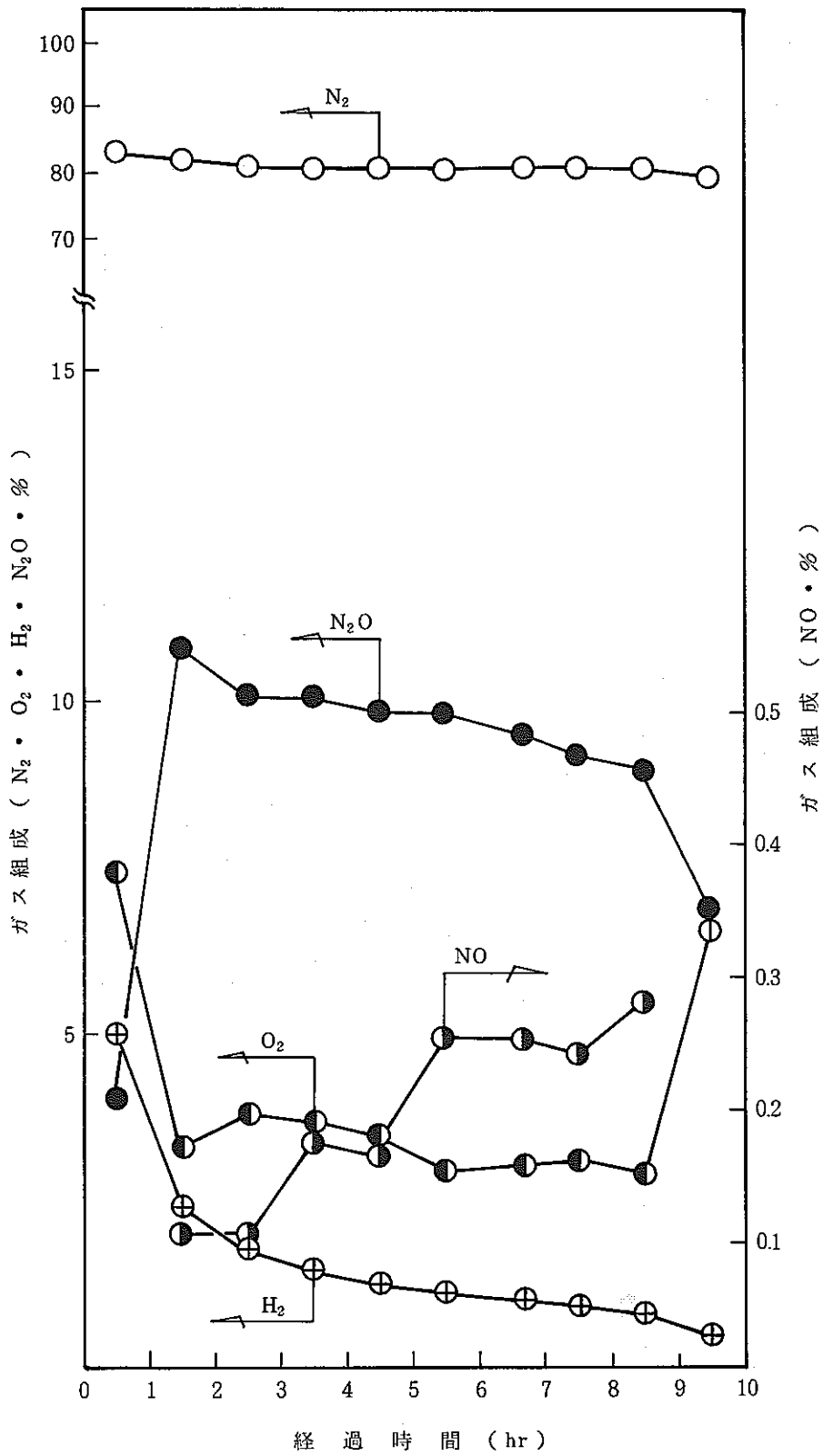


Fig.A.3.15 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-002)

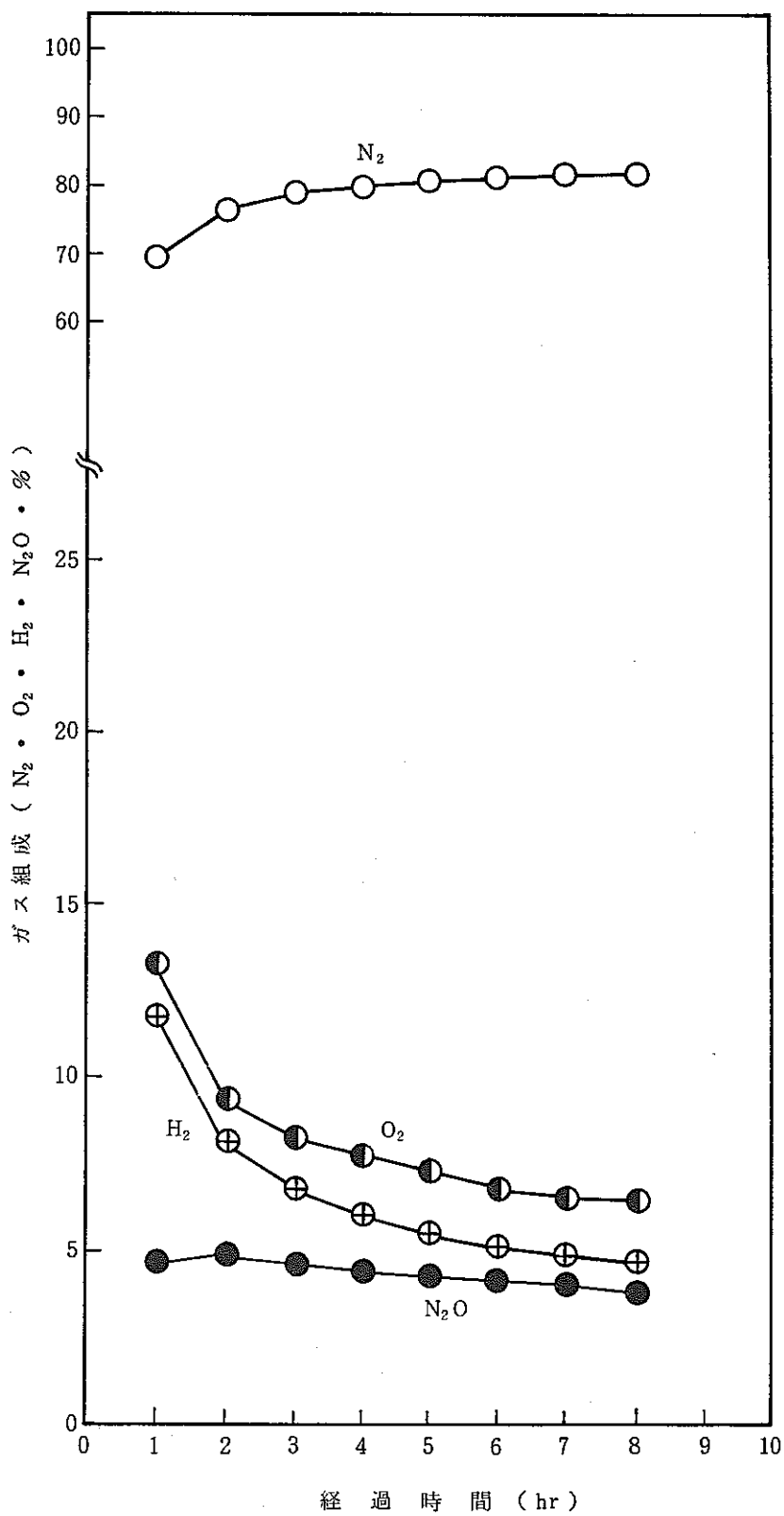


Fig.A.3.16 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-003)

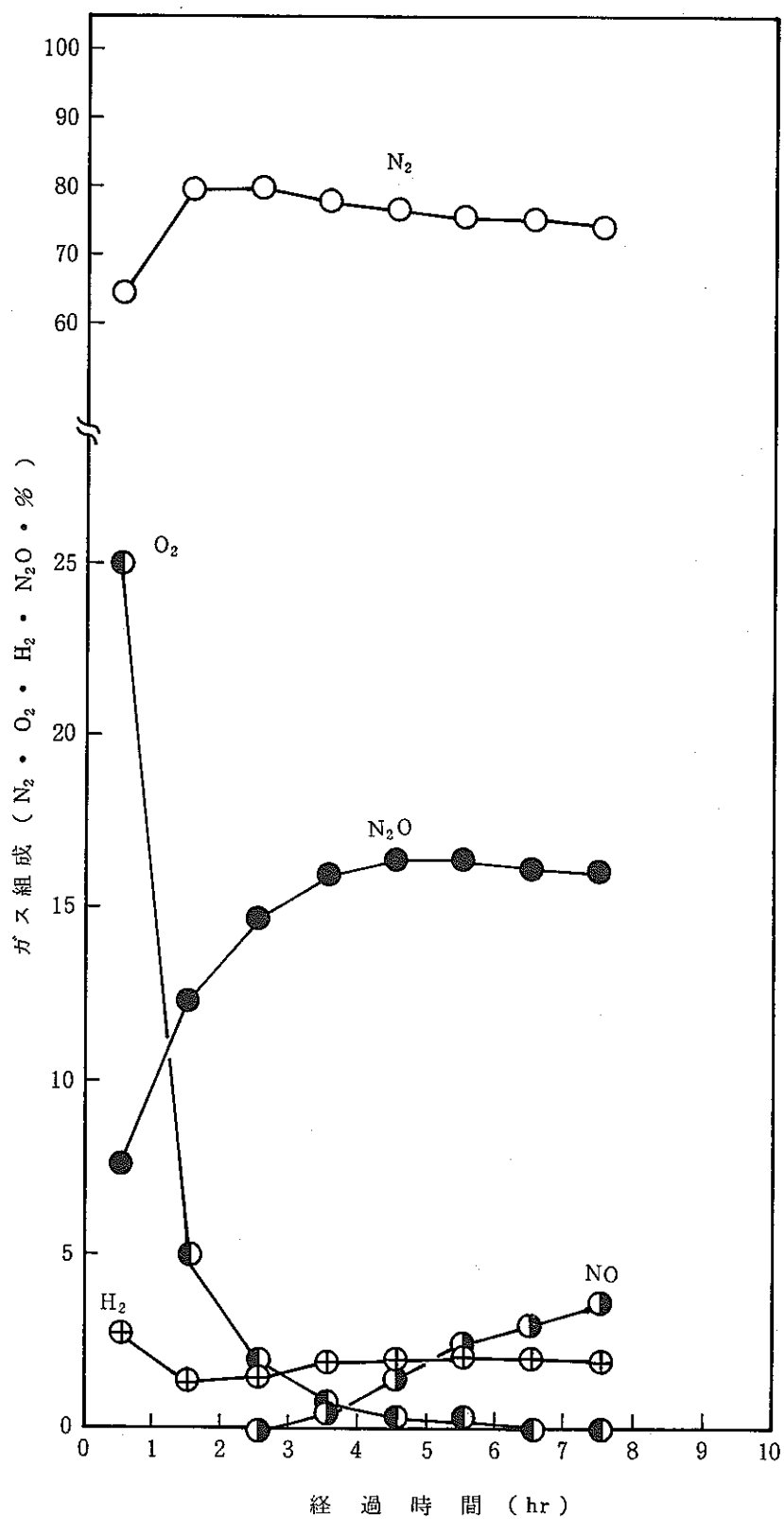


Fig.A.3.17 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-003)

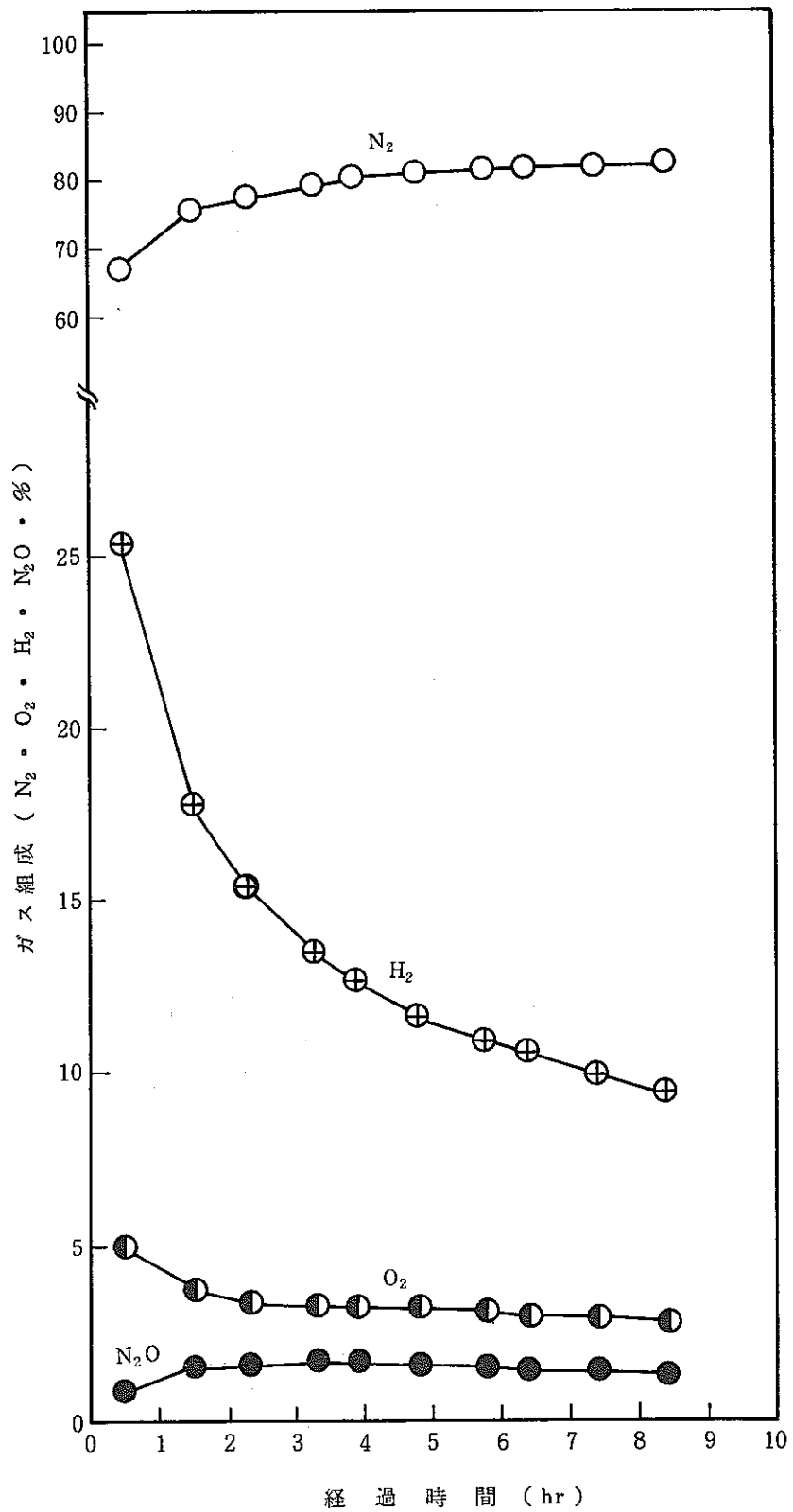


Fig.A.3.18 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 2A-004)

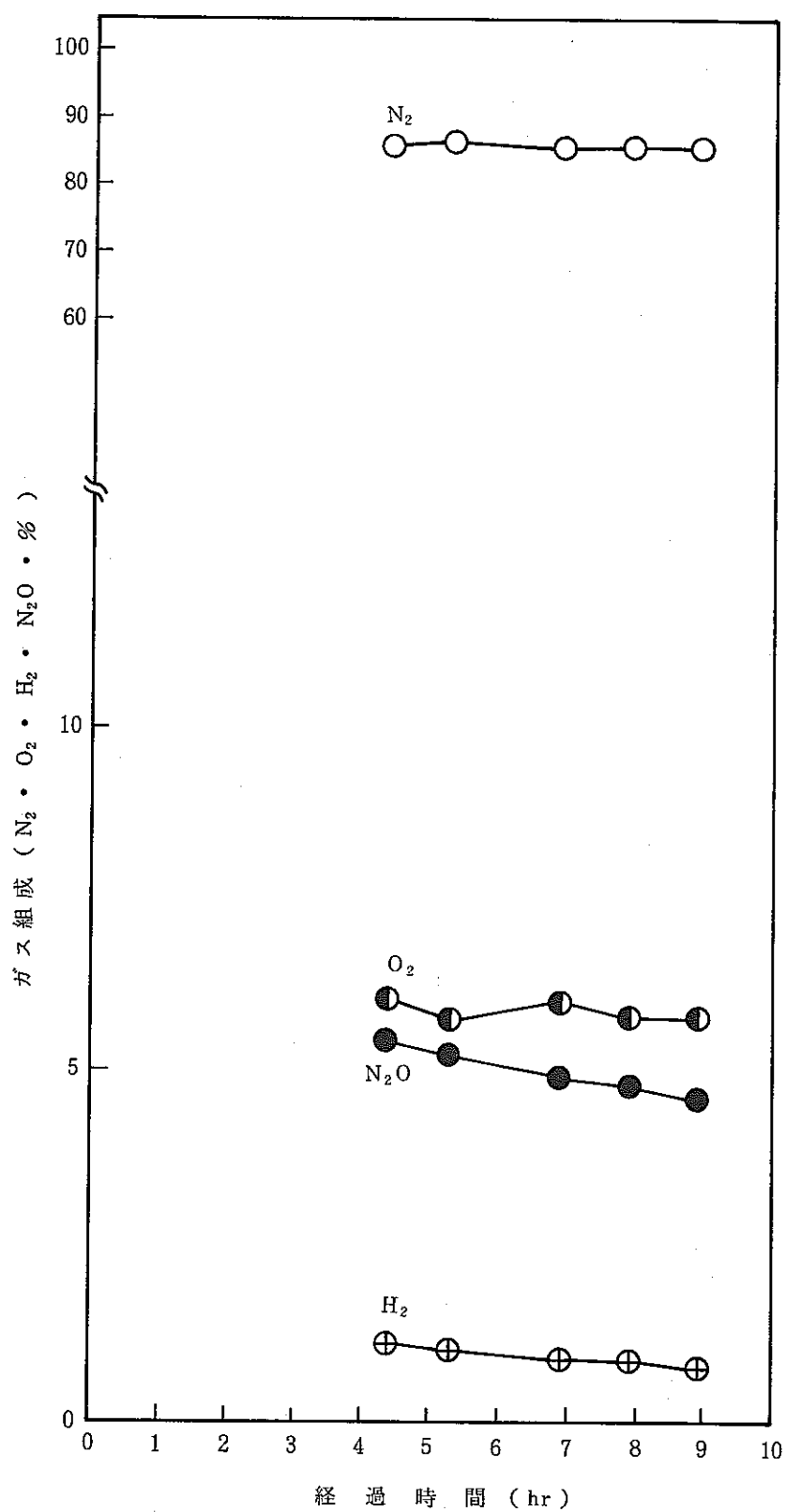


Fig.A.3.19 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 2A-004)

Table A.3.13 Analytical results of secondary generated gas (run no. 2A-002)

2 T - 2 2							2 T - 2 3						
時間 (hr)	平均ガス 流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス 流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
1.0	80 ±6	83.0	4.2	3.3	8.9	0.024	0.5	48 ±3	83.3	7.4	5.0	4.0	—
2.0		72.9	1.8	21.7	2.0	0.027	1.5		82.2	3.3	2.4	10.8	0.10
3.0		76.6	1.6	18.1	2.2	0.040	2.5		81.6	3.8	1.8	10.1	0.10
4.0		79.0	1.5	15.8	2.3	0.057	3.5		81.4	3.7	1.5	10.1	0.17
5.0		80.9	1.3	14.3	2.2	0.076	4.5		81.7	3.5	1.3	9.9	0.16
6.0		82.0	1.4	13.1	2.2	0.066	5.5		81.8	3.0	1.2	9.9	0.25
7.0		82.6	1.6	12.2	2.1	0.060	6.5		82.1	3.1	1.1	9.6	0.25
8.0		83.7	1.1	11.7	2.1	0.117	7.5		82.2	3.2	1.0	9.3	0.24
9.0		84.1	1.6	11.0	2.0	0.069	8.5		82.5	3.0	0.9	9.1	0.28

Table A.3.14 Analytical results of secondary generated gas (run no. 2A-003)

2 T - 2 2							2 T - 2 3						
時間 (hr)	平均ガス 流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス 流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
1.05	116 ±13	69.7	13.3	11.8	4.7	~	1.55	63.6 ±0.3	79.9	5.0	1.3	12.3	~
2.05		76.8	9.4	8.2	4.9	~	2.55		80.0	2.0	1.5	14.7	0.08
3.05		79.4	8.3	6.8	4.7	~	3.55		78.7	0.8	1.9	16.0	0.4
4.05		80.6	7.8	6.1	4.5	~	4.55		77.4	0.3	2.1	16.5	1.5
5.05		81.6	7.4	5.6	4.4	~	5.55		76.5	0.2	2.2	16.5	2.3
6.05		82.2	6.9	5.3	4.3	~	6.55		76.0	0.09	2.1	16.3	3.1
7.05		82.9	6.7	5.1	4.2	~	7.55		75.5	0.07	2.1	16.3	3.8
8.05		83.3	6.6	4.9	4.0	~							

Table A.3.15 Analytical results of secondary generated gas (run no. 2A-004)

2 T - 2 2							2 T - 2 3						
時間 (hr)	平均ガス 流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (V%)					時間 (hr)	平均ガス 流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (V%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
1.5	50 ±7	76.0	3.8	17.8	1.6	~		38.9 ±0.4					
2.3		78.4	3.5	15.5	1.7	~							
3.3		80.4	3.4	13.6	1.8	~							
3.9		81.2	3.4	12.8	1.8	~	4.4		86.8	6.1	1.1	5.5	~
4.8		82.2	3.4	11.8	1.7	~	5.3		87.1	5.8	1.0	5.3	~
5.8		83.0	3.3	11.1	1.7	~							
6.4		83.4	3.2	10.8	1.7	~	6.9		86.9	6.1	0.9	5.0	~
7.4		83.8	3.2	10.2	1.7	~	7.9		87.2	5.9	0.9	4.9	~
8.4		84.6	3.1	9.7	1.6	~	8.9		87.4	5.9	0.8	4.7	~

Table A.3.16 Results of temperature measurements (run no. 2A-001)

記録計	時間	温度 (°C)									
		1.2 H後	2.2	3.2	4.2	5.2	6.2	7.2	8.2		
TR - 0 1	温 度	22	23	22	22	22	22	22	22		
TR - 0 2		24	25	25	25	25	25.5	25	25		
TR - 0 3		18	19	19	20	20	20	20	20		
TR - 0 4		23	23	23	23	24	24	23.5	23		
TR - 0 5		18	18	18	18	18	18	18	18		
TR - 0 6		25	26	26	26	26.5	27	27.5	26		
TR - 0 7		21	23	24	24	25	25	25	25		
TR - 0 8		24	25	26	26	26	26.5	26.5	26		
2T-22	上部	23	23.5	24	24	24	24	24	24		
	下部	20	20.5	21	21	20	20.5	20	20		
2T-23	上部	21	23	23	23.5	23.5	24	23.5	23.5		
	下部	19	19	19.5	20	20	20	20	20		

Table A.3.17 Results of temperature measurements (run no. 2A-002)

記録計		時間	0.8 H後	1.8	2.8	3.8	4.8	5.8	6.8	7.8	8.8		
T R - 0 1		温 度 (° C)	15.5	17	17.5	18	18	18.5	19	19	21.5		
T R - 0 2			23.5	31.5	32.5	33.5	34	34	34.5	35	35		
T R - 0 3			15.5	19.5	21	22	22.5	23	23	23.8	23.5		
T R - 0 4			17	18.5	19	20	20	20	21	21	21		
T R - 0 5			15	17	17.5	18	19	19.5	20	20	20		
T R - 0 6			22.5	30	31	32	32	32.5	33	33	33.5		
T R - 0 7			19	27.5	30	32	33	33	34	34	34		
T R - 0 8			20	28	31	32	32	32.5	33	33	33		
2T-22	上 部	(°C)	23.5	26.5	27	27.5	28	28.5	28.5	28.5	28.5		
	下 部		16	16.5	17	17	17.5	18	18	18	19		
2T-23	上 部		21.5	27	29	30.5	31	31.5	32	32	32		
	下 部		16.5	22	24	25	25	25.5	26	26	26		

Table A.3.18 Results of temperature measurements (run no. 2A-003)

記録計		時間	0.3 H後	1.8	2.3	3.3	4.3	5.3	6.3	7.3			
T R - 0 1		温 度 (° C)	17.5	19.5	20	20	20	20	21.5	22			
T R - 0 2			27.5	44	46	48	48	49.5	50	50.5			
T R - 0 3			16	24	26	27	28	28.5	29	29.5			
T R - 0 4			18.5	22.5	23	24	24	25	25	25.5			
T R - 0 5			15	18	19	22	24	25.5	26.5	27.5			
T R - 0 6			21	40	41.5	43.5	44	44	45	45.5			
T R - 0 7			17.5	34.5	38.5	43	46	47	48	49			
T R - 0 8			19	37	40	42	43	44	44.5	45			
2T-22	上 部	(°C)	26	36.5	37.5	38.5	39	39.5	39.8	40.5			
	下 部		18	21	21	21	21	22	22	22			
2T-23	上 部		23.5	37.5	41	43.5	45	45.5	46	46			
	下 部		16.5	29	31	34	34	35	35.5	35.5			

Table A.3.19 Results of temperature measurements (run no. 2A-004)

記録計		時間	0.5 H後	1.5	2.5	3.5	4.5	5.5	6.5	7.5	8.5		
TR - 0 1		温 度 ($^{\circ}$ C)	18	20	20	20	20	20	20.5	21	21		
TR - 0 2			22	27.5	29	30	30	30	30.5	31	31		
TR - 0 3			14	18	20	20.5	20.7	22	22	22.5	22.5		
TR - 0 4			18	20	21	21	20.5	21	21.5	21.5	21.5		
TR - 0 5			14	15	16.5	17.5	18	19	19	19.5	19.5		
TR - 0 6			21.5	27.5	29	29	29.8	29.8	29.8	30	30		
TR - 0 7			17	24	28	29	30	30	30.3	30.5	30.5		
TR - 0 8			19.5	27	28.5	29	29	29.5	29.5	29.8	29.8		
2T-22	上部	21.5	23.5	24	24.5	24.5	25	25	25.2	25.2			
	下部	16.5	17.5	18	18	18	18.5	19	19	19			
2T-23	上部	19	25	26	27	27	27.5	27.5	28	28			
	下部	16	21	22	22.5	23	23	23	23.5	23.5			

Table A.3.20 Supplied current and measured voltage of aqueous phase electrolysis

Run No	2T - 22		2T - 23	
	電流 (A)	電圧 (V)	電流 (A)	電圧 (V)
2A-001	84	4.0	84	4.0
2A-002	171	5.8	171	5.5
2A-003	257	7.7	257	7.2
2A-004	171	5.9	171	5.6

A. 3. 4 逆抽出電解試験

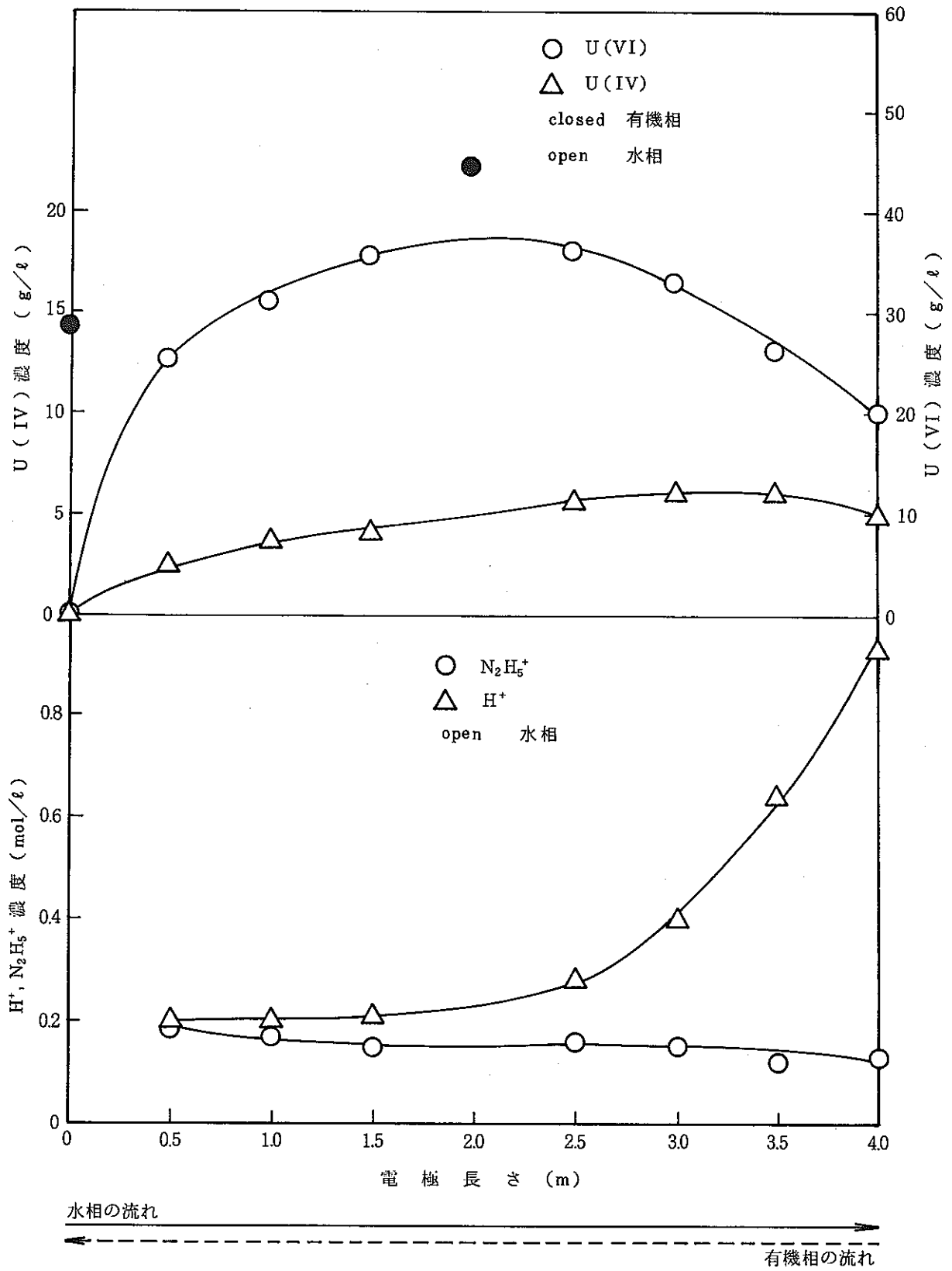


Fig.A.3.20 Equilibrium concentration profile (run no. 20-001)

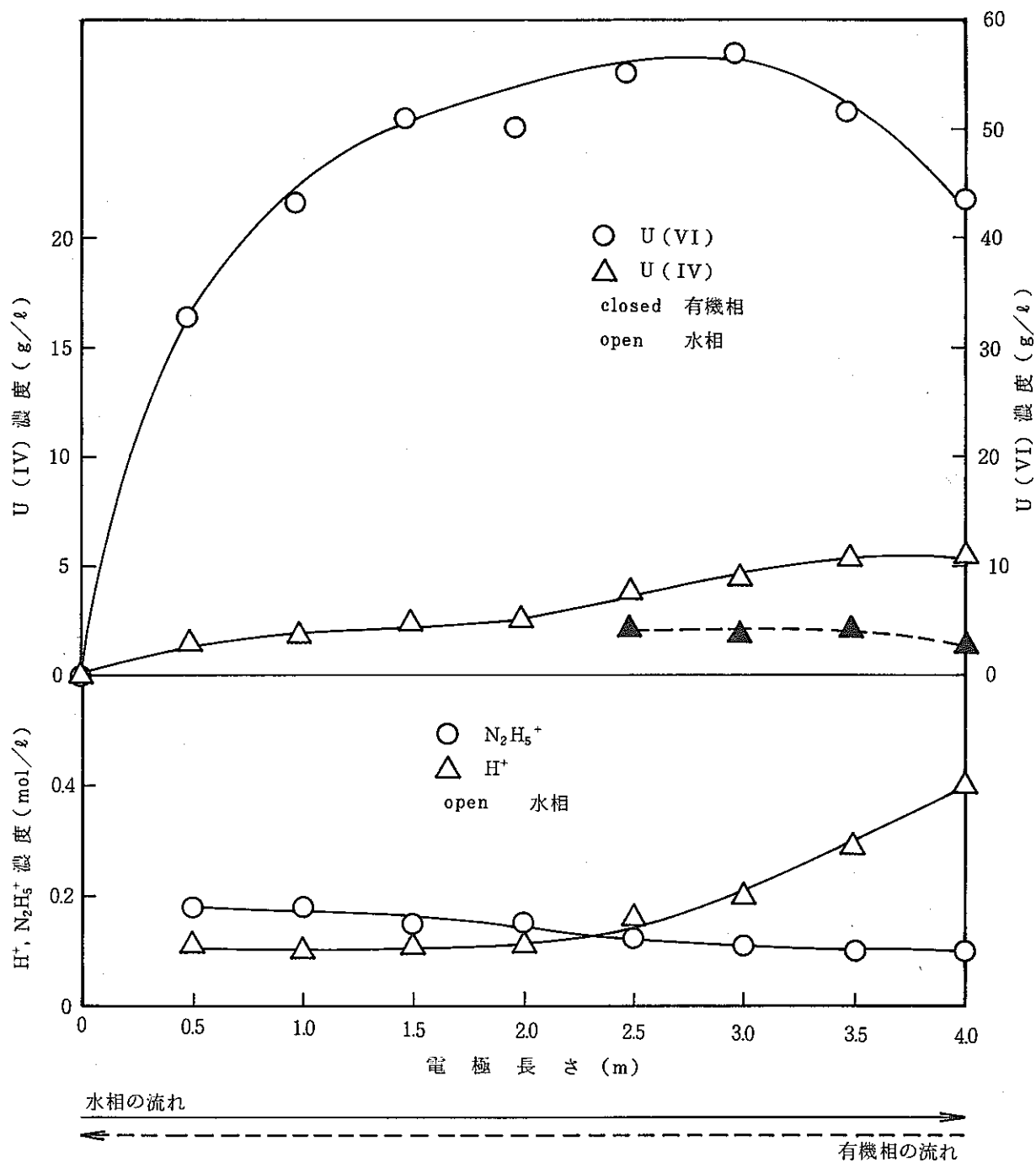


Fig.A.3.21 Equilibrium concentration profile (run no. 20-002)

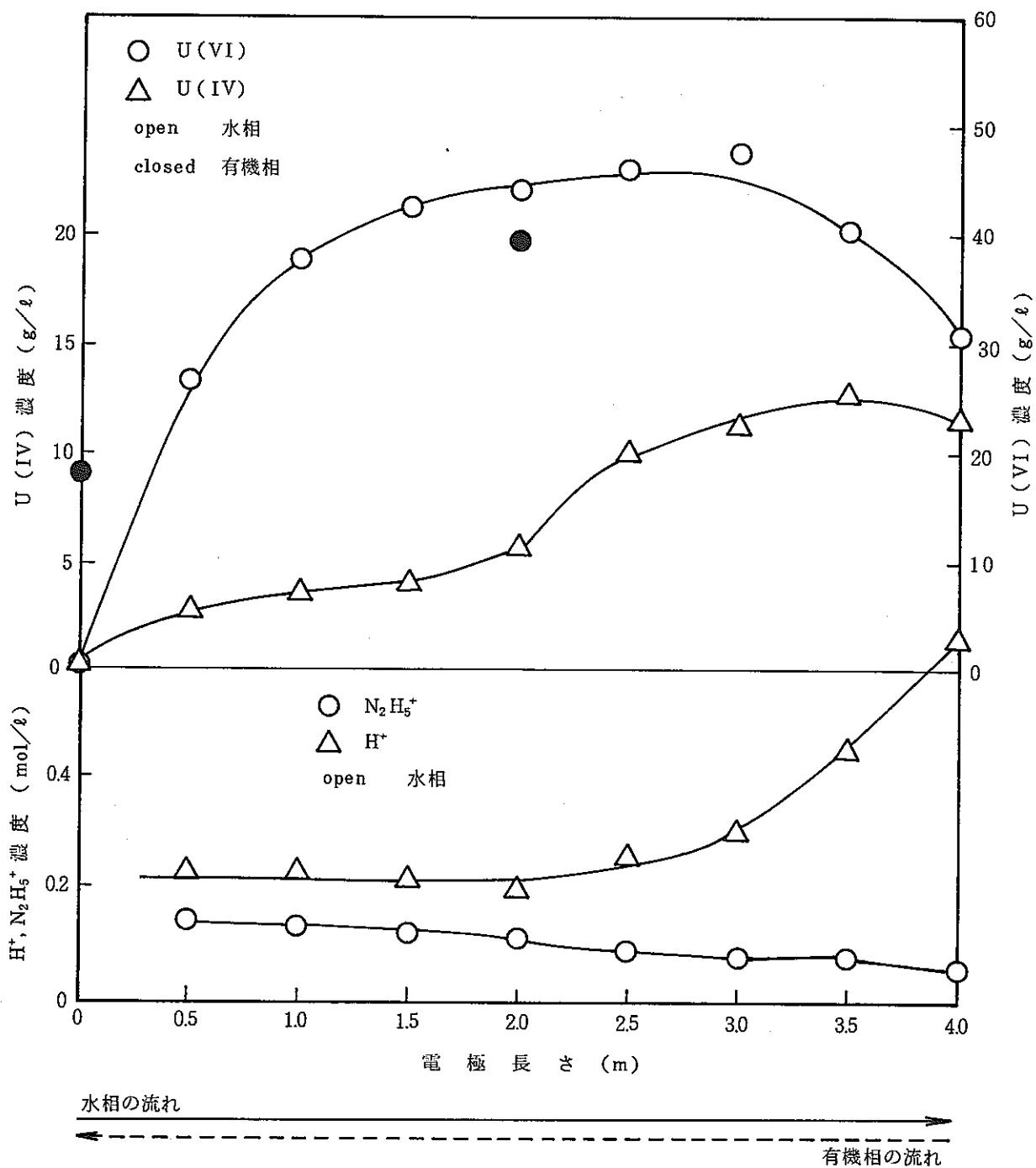


Fig.A.3.22 Equilibrium concentration profile (run no. 20-003)

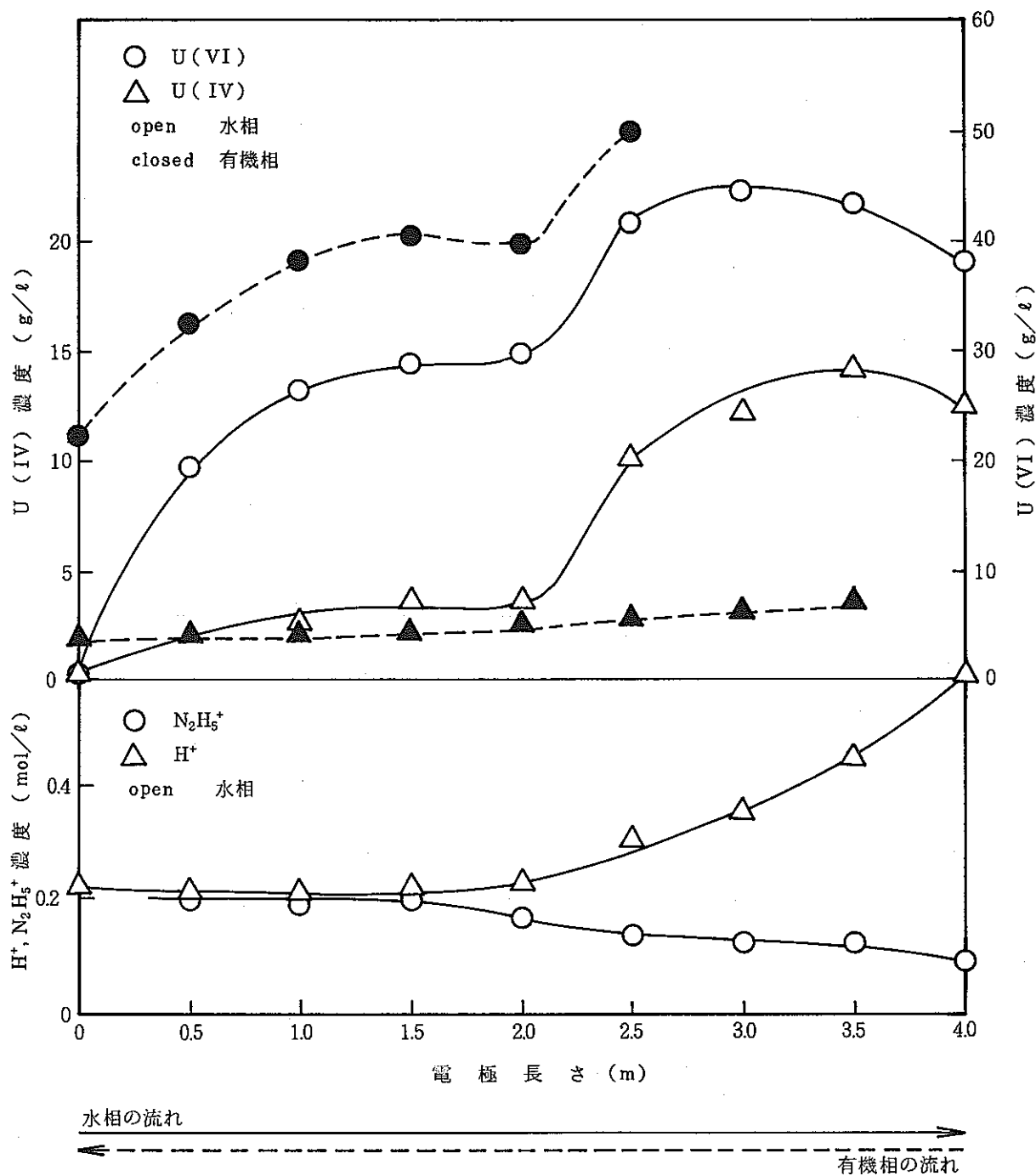


Fig.A.3.23 Equilibrium concentration profile (run no. 20-004)

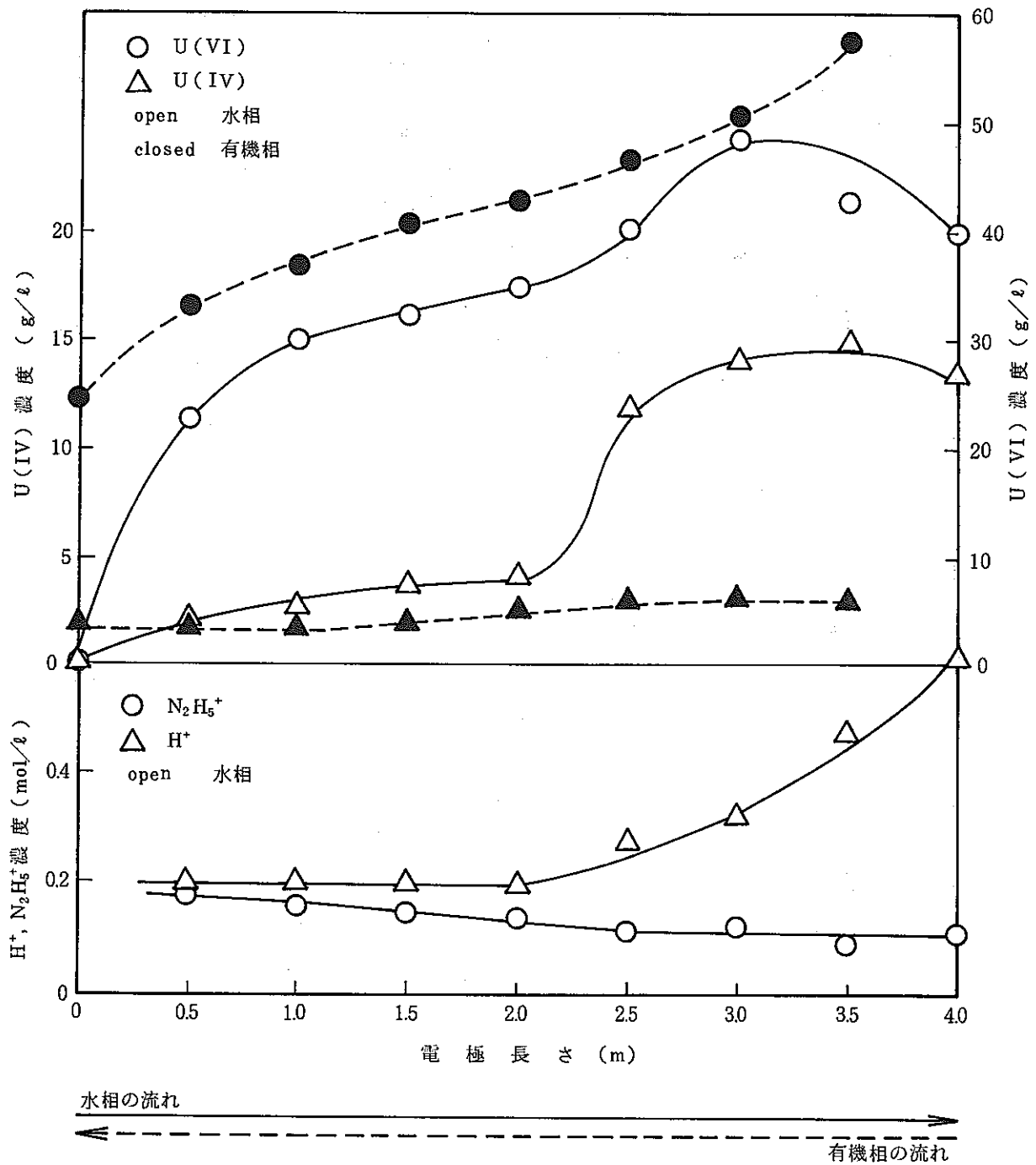


Fig.A.3.24 Equilibrium concentration profile (run no. 20-005)

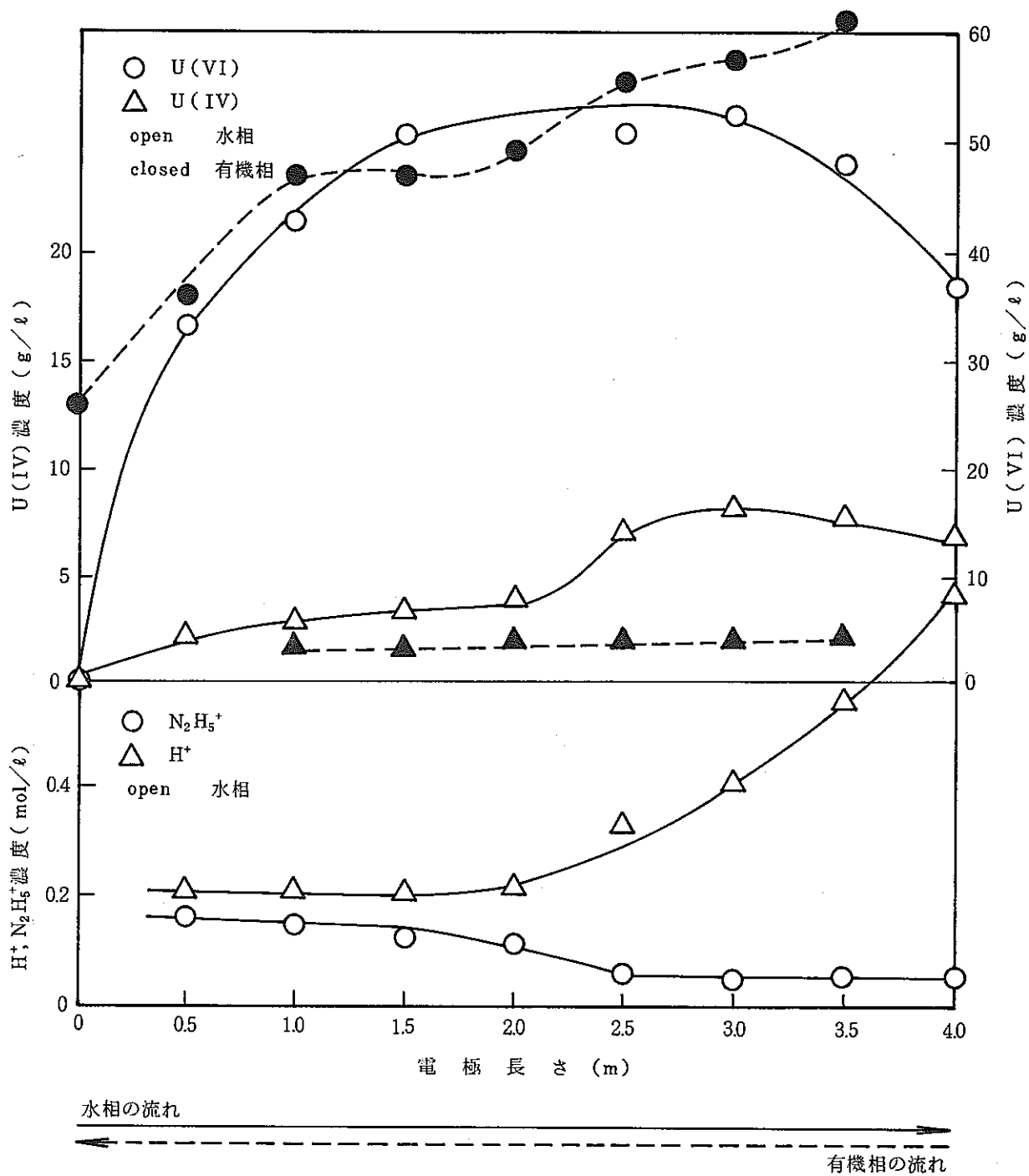


Fig.A.3.25 Equilibrium concentration profile (run no. 20-008)

Table A.3.21 Analytical results of liquid concentration (run no. 20-001)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	6.5		2 H平均	
84 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)						<0.05	<0.05		<0.05
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")						3.5×10 ⁻³	3.6×10 ⁻³		3.6×10 ⁻³
		U (IV) (g/ℓ)	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2		<1.2
		TotalU(")	24.2	26.3	27.9	28.0	28.0	27.8	31.2		29.5
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
74 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)						0.20	0.19		0.20
		N ₂ H ₄ (")						0.18	0.19		0.19
		HN ₃ (")						1.0×10 ⁻³	9.2×10 ⁻⁴		9.6×10 ⁻⁴
		U (IV) (g/ℓ)						2.4	2.4		2.4
		TotalU(")						27.9	27.5		27.7
129 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)						0.20	0.19		0.20
		N ₂ H ₄ (")						0.17	0.17		0.17
		HN ₃ (")						1.1×10 ⁻³	9.7×10 ⁻⁴		1.0×10 ⁻³
		U (IV) (g/ℓ)						4.0	3.1		3.6
		TotalU(")						34.5	34.8		34.7
75 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)						0.21	0.21		0.21
		N ₂ H ₄ (")						0.15	0.15		0.15
		HN ₃ (")						1.1×10 ⁻³	9.5×10 ⁻⁴		1.0×10 ⁻³
		U (IV) (g/ℓ)	2.3	2.7	3.1	3.3	3.8	3.7	4.3		4.0
		TotalU(")	28.0	30.5	34.1	34.6	38.5	39.7	39.5		39.6
2P 24C	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									

Table A.3.21

つ づ き

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	6.5		2 H平均	
70 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)						<0.05	<0.05		<0.05
		N ₂ H ₄ (")						"	"		"
		HN ₃ (")						4.7×10 ⁻³	2.4×10 ⁻³		3.6×10 ⁻³
		U (IV) (g/l)	<1.2	<1.2	<1.2	1.4	1.3	1.3	<1.2		1.3
		Total U(")	43.5	42.6	47.8	46.6	47.6	44.5	46.7		45.6
	水相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		Total U(")									
57 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		Total U(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.28	0.28		0.28
		N ₂ H ₄ (")						0.16	0.15		0.16
		HN ₃ (")						2.6×10 ⁻⁴	4.0×10 ⁻⁴		3.3×10 ⁻⁴
		U (IV) (g/l)						5.6	5.6		5.6
		Total U(")						41.2	42.2		41.7
128 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		Total U(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.40	0.39		0.40
		N ₂ H ₄ (")						0.15	0.14		0.15
		HN ₃ (")						9.4×10 ⁻⁴	5.8×10 ⁻⁴		7.6×10 ⁻⁴
		U (IV) (g/l)						6.0	6.2		6.1
		Total U(")						38.3	39.8		39.1
58 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		Total U(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.67	0.61		0.64
		N ₂ H ₄ (")						0.10	0.13		0.12
		HN ₃ (")						7.2×10 ⁻⁴	6.7×10 ⁻⁴		7.0×10 ⁻⁴
		U (IV) (g/l)	3.2	2.6	3.7	5.1	5.5	5.7	6.2		6.0
		Total U(")	23.3	23.5	26.7	28.9	29.8	31.3	33.3		32.4
2P I 24B	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		Total U(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.93	0.92		0.93
		N ₂ H ₄ (")						0.13	0.12		0.13
		HN ₃ (")						6.7×10 ⁻⁴	9.2×10 ⁻⁴		8.0×10 ⁻⁴
		U (IV) (g/l)	1.8	2.7	3.8	4.2	4.5	4.8	5.0		4.9
		Total U(")	15.3		20.4	20.9	21.4	25.0	25.0		25.0

Table A.3.22 Analytical results of liquid concentration (run no. 20-002)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	10.0		2H平均	
84 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)							<0.05	<0.05	<0.05		<0.05	
		N ₂ H ₄ (")							"	"	"		"	
		HN ₃ (")										1.2×10 ⁻²		
		U (IV) (g/l)	1.3	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2		<1.2
		TotalU(")	19.6	23.4	24.9	25.0	24.0	25.8	26.3	26.6	23.6	23.6		24.1
	水相	HNO ₃ (mol/l)									0.14	0.12		0.13
		N ₂ H ₄ (")									0.19	0.22		0.21
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
74 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)										<1.2		
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.10	0.11	0.11		0.11
		N ₂ H ₄ (")								0.18	0.18	0.18		0.18
		HN ₃ (")										2.5×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	1.6	1.5	1.8	1.5	1.3	1.4	1.3	1.3	1.4	1.5		1.5
		TotalU(")								34.3	33.7	34.4		34.1
129 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)										<1.2		
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.10	0.10	0.10		0.10
		N ₂ H ₄ (")								0.17	0.18	0.17		0.18
		HN ₃ (")										2.5×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	1.8	2.0	2.0	1.9	1.8	1.9	1.7	1.8	1.8	1.8		1.8
		TotalU(")								44.3	44.9	44.8		44.9
75 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)										1.3		
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.10	0.11	0.11		0.11
		N ₂ H ₄ (")								0.16	0.15	0.15		0.15
		HN ₃ (")										3.1×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	2.2	2.5	2.5	2.3	2.3	2.5	2.3	2.4	2.3	2.3		2.3
		TotalU(")								52.2	54.4	52.1		53.2
2P I 24C	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.11	0.11	0.11		0.11
		N ₂ H ₄ (")								0.14	0.15	0.14		0.15
		HN ₃ (")										2.8×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	2.1	2.6	2.7	2.6	2.8	2.7	2.5	2.5	2.6	2.6		2.6
		TotalU(")								52.7	52.4	53.2		52.8

Table A.3.22 つづき

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	10.0		2H平均		
70 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)								<0.05	<0.05	<0.05		<0.05	
		N ₂ H ₄ (")									"	"	"		"
		HN ₃ (")											1.0×10 ⁻²		
		U (IV) (g/ℓ)	1.6	1.6	1.5	1.5	1.5	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4		1.4
		Total U(")									52.3	49.6	52.5		51.1
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)													
		N ₂ H ₄ (")													
		HN ₃ (")													
		U (IV) (g/ℓ)													
		Total U(")													
57 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)													
		N ₂ H ₄ (")													
		HN ₃ (")													
		U (IV) (g/ℓ)											2.1		
		Total U(")													
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)								0.15	0.16	0.15		0.16	
		N ₂ H ₄ (")								0.12	0.12	0.12		0.12	
		HN ₃ (")											2.2×10 ⁻³		
		U (IV) (g/ℓ)	3.5	4.5	4.3	4.1	4.0	4.0	3.8	3.9	3.9	3.8		3.9	
		Total U(")								59.8	59.1	59.9		59.0	
128 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)													
		N ₂ H ₄ (")													
		HN ₃ (")													
		U (IV) (g/ℓ)											1.8		
		Total U(")													
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)								0.19	0.20	0.20		0.20	
		N ₂ H ₄ (")								0.11	0.10	0.11		0.11	
		HN ₃ (")											2.5×10 ⁻³		
		U (IV) (g/ℓ)	4.2	5.1	6.8	5.0	4.6	4.8	4.4	4.4	4.3	4.4		4.4	
		Total U(")								60.3	60.7	61.8		61.3	
58 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)													
		N ₂ H ₄ (")													
		HN ₃ (")													
		U (IV) (g/ℓ)											2.2		
		Total U(")													
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)								0.28	0.28	0.29		0.29	
		N ₂ H ₄ (")								0.10	0.10	0.10		0.10	
		HN ₃ (")											2.4×10 ⁻³		
		U (IV) (g/ℓ)	4.5	5.9	8.2	5.7	5.5	5.5	5.5	5.4	5.3	5.4		5.4	
		Total U(")								56.4	56.9	56.9		56.9	
2P I 24B	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)													
		N ₂ H ₄ (")													
		HN ₃ (")													
		U (IV) (g/ℓ)													
		Total U(")													
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)								0.40	0.40	0.40		0.40	
		N ₂ H ₄ (")								0.06	0.10	0.10		0.10	
		HN ₃ (")											2.2×10 ⁻³		
		U (IV) (g/ℓ)	5.0	5.4	5.5	5.5	5.4	5.4	5.3	5.4	5.4	5.3		5.4	
		Total U(")								49.3	48.6	49.5		49.1	

Table A.3.23 Analytical results of liquid concentration (run no. 20-003)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	6.7		2H平均	
84 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)						0.05	0.05		0.05
		N ₂ H ₄ (")						<0.05	<0.05		<0.05
		HN ₃ (")						9.6×10 ⁻³	1.2×10 ⁻²		1.1×10 ⁻²
		U (IV) (g/l)	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2	<1.2		<1.2
		TotalU(")	13.4	18.1	17.5	18.9	20.4	18.8	18.2		18.5
	水相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		TotalU(")									
74 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.24	0.22		0.23
		N ₂ H ₄ (")						0.14	0.14		0.14
		HN ₃ (")						3.9×10 ⁻³	1.8×10 ⁻³		2.8×10 ⁻³
		U (IV) (g/l)	1.4	2.0	2.8	2.3	2.4	2.6	2.6		2.6
		TotalU(")	21.5	25.4	25.6	25.1	27.3	29.0	27.2		28.1
129 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.23	0.22		0.23
		N ₂ H ₄ (")						0.12	0.13		0.13
		HN ₃ (")						2.2×10 ⁻³	2.0×10 ⁻³		2.0×10 ⁻³
		U (IV) (g/l)	1.6	2.6	3.7	3.2	3.2	3.8	3.0		3.4
		TotalU(")	24.5	28.7	35.0	37.2	38.5	38.3	35.7		37.0
75 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.22	0.22		0.22
		N ₂ H ₄ (")						0.12	0.12		0.12
		HN ₃ (")						2.5×10 ⁻³	2.0×10 ⁻³		2.3×10 ⁻³
		U (IV) (g/l)	2.2	3.9	4.8	4.8	4.5	3.2	4.4		3.8
		TotalU(")	30.8	39.9	41.5	45.5	45.2	44.8	44.7		44.8
2P 24C	有機相	HNO ₃ (mol/l)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/l)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/l)						0.19	0.20		0.20
		N ₂ H ₄ (")						0.10	0.12		0.11
		HN ₃ (")						1.1×10 ⁻³	1.1×10 ⁻³		1.1×10 ⁻³
		U (IV) (g/l)	1.9	4.4	5.6	5.6	6.0	5.7	5.5		5.6
		TotalU(")	28.6	38.2	42.0	47.6	45.4	48.9	45.8		47.4

Table A.3.23

つづき

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	6.7		2H平均	
70 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)						<0.05	<0.05		<0.05
		N ₂ H ₄ (")						"	"		"
		HN ₃ (")						4.3×10 ⁻³	2.5×10 ⁻²		1.5×10 ⁻²
		U (IV) (g/ℓ)	<1.2	<1.2	1.5	1.5	1.5	1.6	1.5		1.6
		TotalU(")	36.8	40.2	42.0	41.8	44.1	40.2	40.9		40.6
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
57 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)	0.31					0.26	0.25		0.26
		N ₂ H ₄ (")	0.11					0.10	0.07		0.09
		HN ₃ (")						1.4×10 ⁻³	9.7×10 ⁻⁴		1.2×10 ⁻³
		U (IV) (g/ℓ)	2.5	4.5	8.7	9.1	9.6	10.2	9.6		9.9
		TotalU(")	39.6	44.0	50.0	49.1	54.7	52.8	52.5		52.7
128 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)						0.13	0.12		0.13
		N ₂ H ₄ (")						<0.05	<0.05		<0.05
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)	0.39					0.32	0.30		0.31
		N ₂ H ₄ (")	0.10					0.08	0.08		0.08
		HN ₃ (")						2.0×10 ⁻³	7.9×10 ⁻⁴		1.4×10 ⁻³
		U (IV) (g/ℓ)	2.9	6.3	9.3	10.7	10.9	11.6	11.2		11.4
		TotalU(")	35.9	47.9	52.0	51.5	51.3	57.8	52.3		55.1
58 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)	0.54					0.46	0.45		0.46
		N ₂ H ₄ (")	0.10					0.08	0.07		0.08
		HN ₃ (")						1.2×10 ⁻³	1.0×10 ⁻³		1.1×10 ⁻³
		U (IV) (g/ℓ)	3.1	8.3	10.7	10.9	11.5	12.7	12.7		12.7
		TotalU(")	33.1	42.5	49.8	48.4	47.8	54.2	51.6		52.9
2P 24B	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)									
		N ₂ H ₄ (")									
		HN ₃ (")									
		U (IV) (g/ℓ)									
		TotalU(")									
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)	0.68					0.65	0.67		0.66
		N ₂ H ₄ (")	0.11					0.07	<0.05		0.06
		HN ₃ (")						7.6×10 ⁻⁴	5.3×10 ⁻⁴		6.5×10 ⁻⁴
		U (IV) (g/ℓ)	2.4	4.7	7.6	9.3	10.2	11.6	11.4		11.5
		TotalU(")	26.2	29.4	35.3	37.9	39.0	42.0	41.0		41.5

Table A.3.24 Analytical results of liquid concentration (run no. 20-004)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	9.5		2H平均	
84 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")									7.8×10 ⁻³			
		U (IV) (g/l)	1.6	1.5	1.8	1.6	1.5	1.5	1.6	1.5	1.6			1.6
		TotalU(")	25.0	25.3	22.1	24.4	24.5	24.1	24.6	24.5	21.8			23.1
	水相	HNO ₃ (mol/l)									0.22			
		N ₂ H ₄ (")									0.38			
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
74 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										1.2×10 ⁻²		
		U (IV) (g/l)										1.8		
		TotalU(")										33.6		
	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.21	0.21	0.21			0.21
		N ₂ H ₄ (")							0.19	0.20	0.20			0.20
		HN ₃ (")									2.1×10 ⁻³			
		U (IV) (g/l)	1.4	2.1	1.7	1.5	1.5	1.6	1.9	1.8	1.8			1.8
		TotalU(")							21.3	21.4	19.6			20.5
129 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										8.0×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)										1.8		
		TotalU(")										39.5		
	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.21	0.21	0.21			0.21
		N ₂ H ₄ (")							0.20	0.19	0.19			0.19
		HN ₃ (")									2.3×10 ⁻³			
		U (IV) (g/l)	1.9	2.6	2.4	2.3	2.0	2.2	2.1	2.3	2.4			2.4
		TotalU(")							28.0	27.9	28.4			28.1
75 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										5.0×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)										1.9		
		TotalU(")										41.9		
	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.21	0.21	0.22			0.22
		N ₂ H ₄ (")							0.20	0.20	0.19			0.20
		HN ₃ (")									2.2×10 ⁻³			
		U (IV) (g/l)	2.6	2.9	3.0	3.0	3.0	2.9	2.7	3.4	3.1			3.3
		TotalU(")							32.3	31.1	32.0			31.6
2P 24C	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)							0.22	0.23	0.23			0.23
		N ₂ H ₄ (")							0.18	0.10	0.18			0.11
		HN ₃ (")									2.5×10 ⁻³			
		U (IV) (g/l)	2.3	3.3	3.7	3.7	3.7	3.4	3.4	3.5	3.5			3.5
		TotalU(")							34.9	33.3	32.3			32.8

Table A.3.24

つづき

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	9.5		2日平均	
70 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)							<0.05	<0.05	<0.05		<0.05	
		N ₂ H ₄ (")							"	"	"		"	
		HN ₃ (")								1.	8.0×10 ⁻³			
		U (IV) (g/ℓ)	2.1	2.2	2.4	2.3	2.5	2.3	2.3	2.3	2.3			2.3
		TotalU(")							41.7	41.8	41.4			41.6
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/ℓ)												
		TotalU(")												
57 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")											3.7×10 ⁻³	
		U (IV) (g/ℓ)											2.7	
		TotalU(")											52.5	
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)							0.31	0.31	0.31			0.31
		N ₂ H ₄ (")							0.13	0.15	0.13			0.14
		HN ₃ (")									2.1×10 ⁻³			
		U (IV) (g/ℓ)	6.8	8.9	10.1	10.6	10.2	10.4	9.4	9.6	10.4			10.0
		TotalU(")							52.0	52.4	50.4			51.4
128 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")											1.9×10 ⁻³	
		U (IV) (g/ℓ)											3.2	
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)							0.36	0.36	0.36			0.36
		N ₂ H ₄ (")							0.13	0.13	0.13			0.13
		HN ₃ (")									1.7×10 ⁻³			
		U (IV) (g/ℓ)	7.8	10.5	11.6	12.5	12.9	12.0	11.8	12.1	12.0			12.1
		TotalU(")							57.4	56.5	56.5			56.5
58 A	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")											1.4×10 ⁻³	
		U (IV) (g/ℓ)											3.5	
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)							0.47	0.46	0.46			0.46
		N ₂ H ₄ (")							0.12	0.13	0.13			0.13
		HN ₃ (")									1.4×10 ⁻³			
		U (IV) (g/ℓ)	8.9	11.9	13.3	13.9	14.1	13.9	13.4	14.2	14.1			14.2
		TotalU(")							58.4	56.3	58.7			57.5
2P I 24B	有機相	HNO ₃ (mol/ℓ)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/ℓ)												
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/ℓ)							0.59	0.61	0.61			0.61
		N ₂ H ₄ (")							0.11	0.10	0.10			0.10
		HN ₃ (")									1.7×10 ⁻³			
		U (IV) (g/ℓ)	5.6	8.4	11.3	12.6	11.0	12.3	12.4	11.9	12.9			12.4
		TotalU(")	33.4	41.3	47.4	49.5	47.0	51.1	52.2	49.7	51.3			50.5

Table A.3.25 Analytical results of liquid concentration (run no. 20-005)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	10.0		2H平均	
84 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)							<0.05	<0.05	<0.05		<0.05	
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										1.1×10 ⁻²		
		U (IV) (g/l)	1.6	1.7	2.0	1.7	1.7	1.6	1.8	1.6	1.6	1.5		1.6
		TotalU(")								23.7	25.8	24.9		25.4
	水相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
74 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									<0.05			
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										6.8×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)										1.6		
		TotalU(")										34.2		
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.20	0.20	0.20		0.20
		N ₂ H ₄ (")								0.17	0.18	0.18		0.18
		HN ₃ (")										1.5×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	<1.2	1.7	1.6	1.8	2.2	2.9	1.9	2.0	2.0	1.7		1.9
		TotalU(")								23.6	24.0	23.8		24.0
129 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									<0.05			
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										6.3×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)										1.7		
		TotalU(")										37.9		
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.20	0.20	0.20		0.20
		N ₂ H ₄ (")								0.16	0.16	0.16		0.16
		HN ₃ (")										1.6×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	1.7	2.3	2.4	2.6	2.6	2.9	3.6	2.9	2.6	2.6		2.6
		TotalU(")								31.5	32.1	32.2		32.2
75 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									<0.05			
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										3.9×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)										1.8		
		TotalU(")										42.1		
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.20	0.20	0.20		0.20
		N ₂ H ₄ (")								0.14	0.15	0.14		0.15
		HN ₃ (")										1.7×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	1.6	3.1	2.9	3.3	3.3	3.3	3.3	3.1	3.3	3.8		35.5
		TotalU(")								38.1	34.3	36.6		
2P I 24C	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.20	0.20	0.20		0.20
		N ₂ H ₄ (")								0.12	0.14	0.14		0.14
		HN ₃ (")										1.4×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	1.5	3.1	3.3	3.6	3.6	3.6	3.8	3.8	4.0	4.0		4.0
		TotalU(")								40.3	39.6	37.5		38.6

Table A.3.25

つづき

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	10.0	2H平均	
70 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)							<0.05	<0.05	<0.05	<0.05	
		N ₂ H ₄ (")											
		HN ₃ (")										4.6×10 ⁻³	
		U (IV) (g/l)	2.1	2.3	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4
		TotalU(")								45.5	44.0	45.7	44.9
	水相	HNO ₃ (mol/l)											
		N ₂ H ₄ (")											
		HN ₃ (")											
		U (IV) (g/l)											
		TotalU(")											
57 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									<0.05		
		N ₂ H ₄ (")											
		HN ₃ (")										5.9×10 ⁻⁴	
		U (IV) (g/l)										7.9	
		TotalU(")										49.2	
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.28	0.28	0.27	0.28
		N ₂ H ₄ (")								0.10	0.10	0.13	0.12
		HN ₃ (")										1.1×10 ⁻³	
		U (IV) (g/l)	5.7	9.0	10.2	11.2	11.2	11.2	11.4	10.7	11.4	11.9	11.7
		TotalU(")								52.4	50.4	52.4	51.5
128 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									<0.05		
		N ₂ H ₄ (")											
		HN ₃ (")										3.8×10 ⁻⁴	
		U (IV) (g/l)										3.1	
		TotalU(")										53.5	
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.34	0.33	0.33	0.33
		N ₂ H ₄ (")								0.09	0.13	0.13	0.13
		HN ₃ (")										1.3×10 ⁻³	
		U (IV) (g/l)	6.7	10.9	11.9	13.1	13.3	12.9	13.6	13.6	14.0	13.8	13.9
		TotalU(")								61.9	61.3	63.1	62.2
58 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)									<0.05		
		N ₂ H ₄ (")											
		HN ₃ (")										5.2×10 ⁻⁴	
		U (IV) (g/l)										3.1	
		TotalU(")										60.4	
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.46	0.45	0.50	0.48
		N ₂ H ₄ (")								0.10	0.13	0.06	0.10
		HN ₃ (")										1.3×10 ⁻³	
		U (IV) (g/l)	6.9	11.2	12.4	13.6	13.8	13.6	14.8	14.0	15.2	14.3	14.8
		TotalU(")								61.1	56.7	58.3	57.6
2P 24B	有機相	HNO ₃ (mol/l)											
		N ₂ H ₄ (")											
		HN ₃ (")											
		U (IV) (g/l)											
		TotalU(")											
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.62	0.62	0.61	0.62
		N ₂ H ₄ (")								0.10	0.11	0.12	0.12
		HN ₃ (")										3.0×10 ⁻⁴	
		U (IV) (g/l)	4.0	8.6	10.5	11.4	12.1	11.7	12.9	12.6	14.0	12.6	13.3
		TotalU(")								52.2	54.3	51.7	53.3

Table A.3.26 Analytical results of liquid concentration (run no. 20-008)

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	9.5		2H平均	
84 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)								<0.05	<0.05	<0.05		<0.05
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")											1.3×10 ⁻³	
		U(IV) (g/l)	1.2	1.2	1.2	1.2	1.7	1.7	1.7	1.2	1.2	<1.2		1.2
		TotalU(")	26.0	26.9	27.1	27.6	28.0	27.3	27.3	27.6	27.0	25.5		26.3
	水相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U(IV) (g/l)												
		TotalU(")												
74 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)										<0.05		
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")											1.0×10 ⁻³	
		U(IV) (g/l)											1.2	
		TotalU(")											36.2	
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.21	0.22	0.21		0.22
		N ₂ H ₄ (")								0.16	0.16	0.17		0.17
		HN ₃ (")											9.8×10 ⁻³	
		U(IV) (g/l)	1.7	1.7	1.9	1.9	1.7	1.9	1.9	1.8	1.8	2.0		1.9
		TotalU(")							32.5	34.2	34.7	33.8		34.3
129 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)										<0.05		
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U(IV) (g/l)											1.3	
		TotalU(")											47.6	
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.22	0.21	0.21		0.21
		N ₂ H ₄ (")								0.14	0.15	0.15		0.15
		HN ₃ (")											3.0×10 ⁻³	
		U(IV) (g/l)	1.9	2.4	2.6	2.9	2.6	2.6	2.6	2.5	2.6	2.5		2.6
		TotalU(")							45.3	44.6	44.7	44.8		44.8
75 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)										<0.05		
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U(IV) (g/l)											1.3	
		TotalU(")											47.5	
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.21	0.21	0.21		0.21
		N ₂ H ₄ (")								0.14	0.15	0.13		0.14
		HN ₃ (")								2.9×10 ⁻³	3.3×10 ⁻³	1.1×10 ⁻³		2.2×10 ⁻³
		U(IV) (g/l)	2.4	2.9	3.1	3.1	3.3	3.3	3.3	3.2	3.0	3.1		3.1
		TotalU(")							52.7	53.2	51.9	54.6		53.3
2P 24C	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U(IV) (g/l)												
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.23	0.22	0.23		0.23
		N ₂ H ₄ (")								0.13	0.12	0.12		0.12
		HN ₃ (")											2.9×10 ⁻³	
		U(IV) (g/l)	2.3	3.2	3.6	3.6	3.8	3.8	3.6	3.8	3.6	3.7		3.7
		TotalU(")	36.7	47.7	48.2	54.4	55.1	55.6	54.5	54.9	54.0	50.7		52.4

Table A.3.26

つづき

Sampling Point	運転時間 (hr)	1.0	2.0	3.0	4.0	5.0	6.0	7.0	8.0	9.0	9.5		2H平均	
70 A OF	有機相	HNO ₃ (mol/l)								<0.05	<0.05	<0.05		<0.05
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")								7.7×10 ⁻³	7.5×10 ⁻³	7.8×10 ⁻³		7.7×10 ⁻³
		U (IV) (g/l)	1.2	1.4	1.4	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7	1.7	1.6		1.7
		TotalU(")	44.3	49.1	48.5	49.8	49.4	53.0	50.7	51.0	49.3	51.4		50.4
	水相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
57 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)										<0.05		
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)										1.8		
		TotalU(")										57.0		
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.34	0.34	0.34		0.34
		N ₂ H ₄ (")								0.08	0.08	0.06		0.07
		HN ₃ (")										2.0×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	3.3	4.5	5.7	6.4	6.9	7.1	6.9	7.1	6.9	6.9		6.9
		TotalU(")							56.8	58.5	56.2	58.3		57.3
128 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)										<0.05		
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")										1.9×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)										2.0		
		TotalU(")										59.4		
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.42	0.41	0.42		0.42
		N ₂ H ₄ (")								0.06	0.07	0.04		0.06
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)	3.3	3.6	5.2	6.4	7.1	8.1	8.1	8.0	7.7	8.4		8.1
		TotalU(")							58.7	53.0	59.5	61.2		60.4
58 A	有機相	HNO ₃ (mol/l)										<0.05		
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)										2.2		
		TotalU(")										63.8		
	水相	HNO ₃ (mol/l)								0.57	0.57	0.57		0.57
		N ₂ H ₄ (")								0.06	0.07	0.07		0.07
		HN ₃ (")										1.8×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	3.3	4.8	6.2	7.1	7.6	7.9	7.9	7.5	7.5	7.8		7.7
		TotalU(")							53.3	52.2	52.8	58.4		55.7
2P 1 24B	有機相	HNO ₃ (mol/l)												
		N ₂ H ₄ (")												
		HN ₃ (")												
		U (IV) (g/l)												
		TotalU(")												
	水相	HNO ₃ (mol/l)	0.67	0.73	0.74	0.74	0.78	0.76	0.78	0.76	0.78			0.77
		N ₂ H ₄ (")								0.06	0.08	0.06		0.07
		HN ₃ (")										2.5×10 ⁻³		
		U (IV) (g/l)	3.1	4.1	5.2	6.0	6.9	7.9	7.9	6.5	6.7	6.9		6.8
		TotalU(")	31.7	33.7	38.9	39.4	38.3	39.4	38.1	37.3	40.4	46.9		43.7

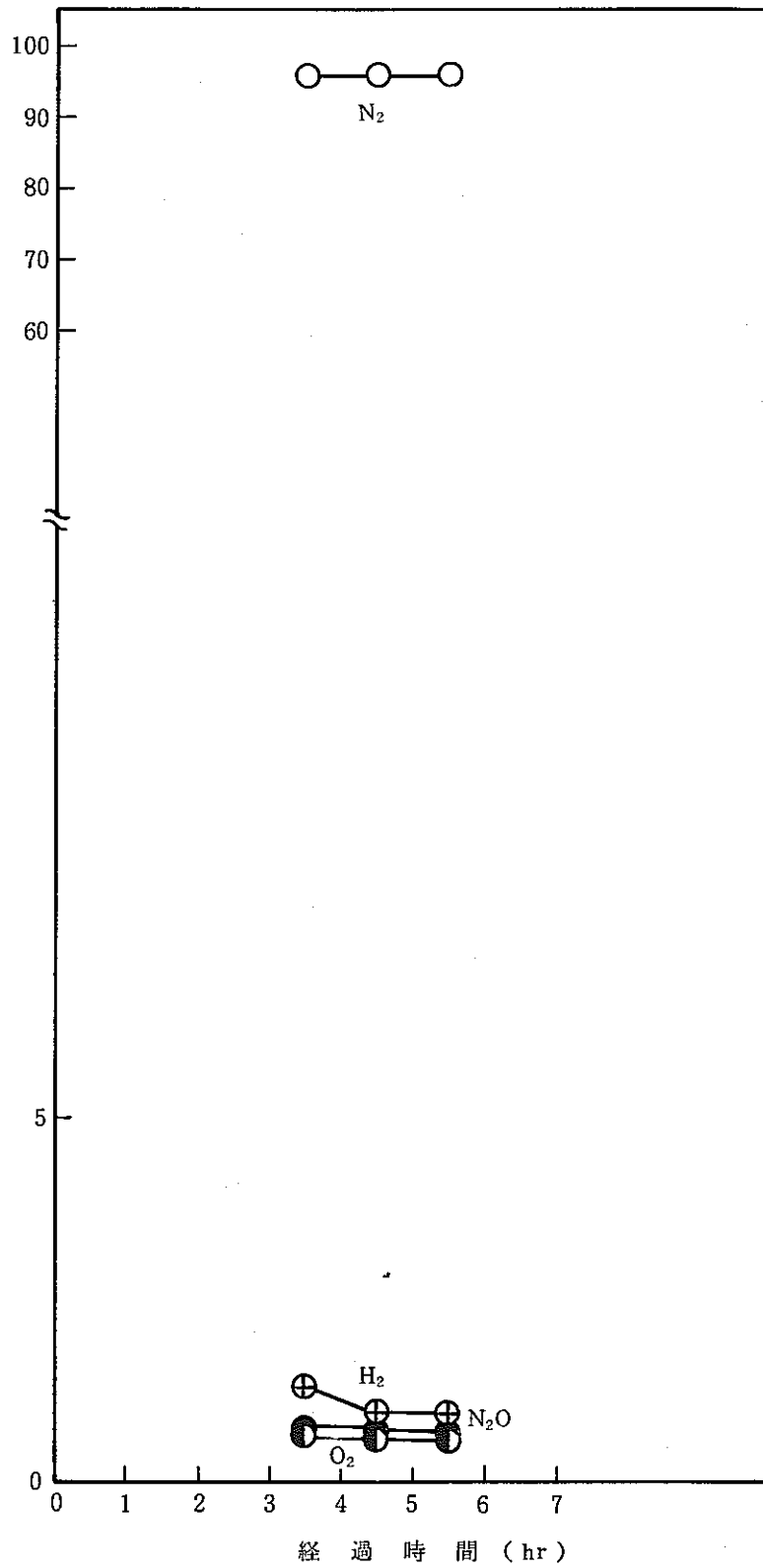


Fig.A.3.26 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-001)

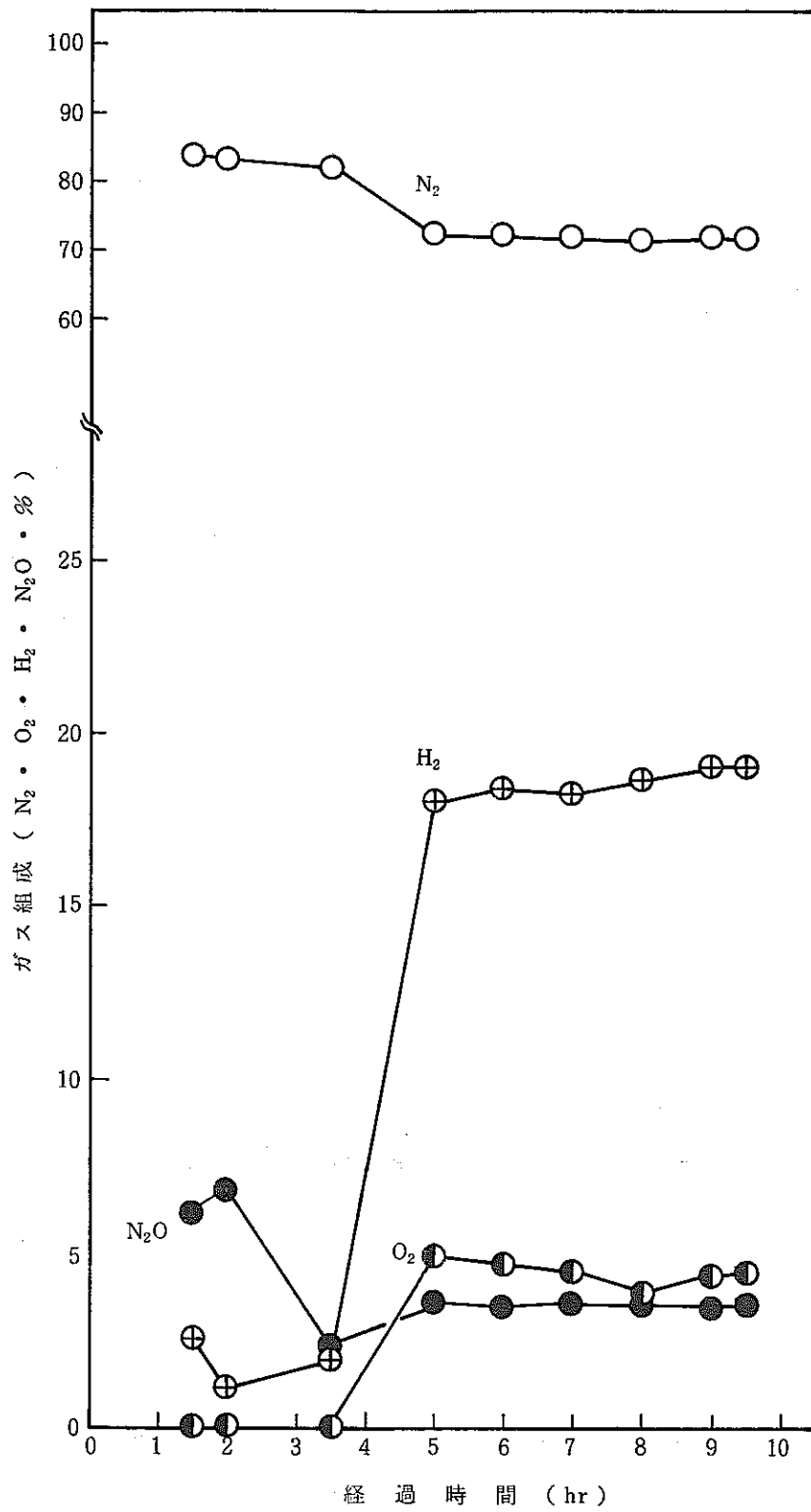


Fig.A.3.27 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-002)

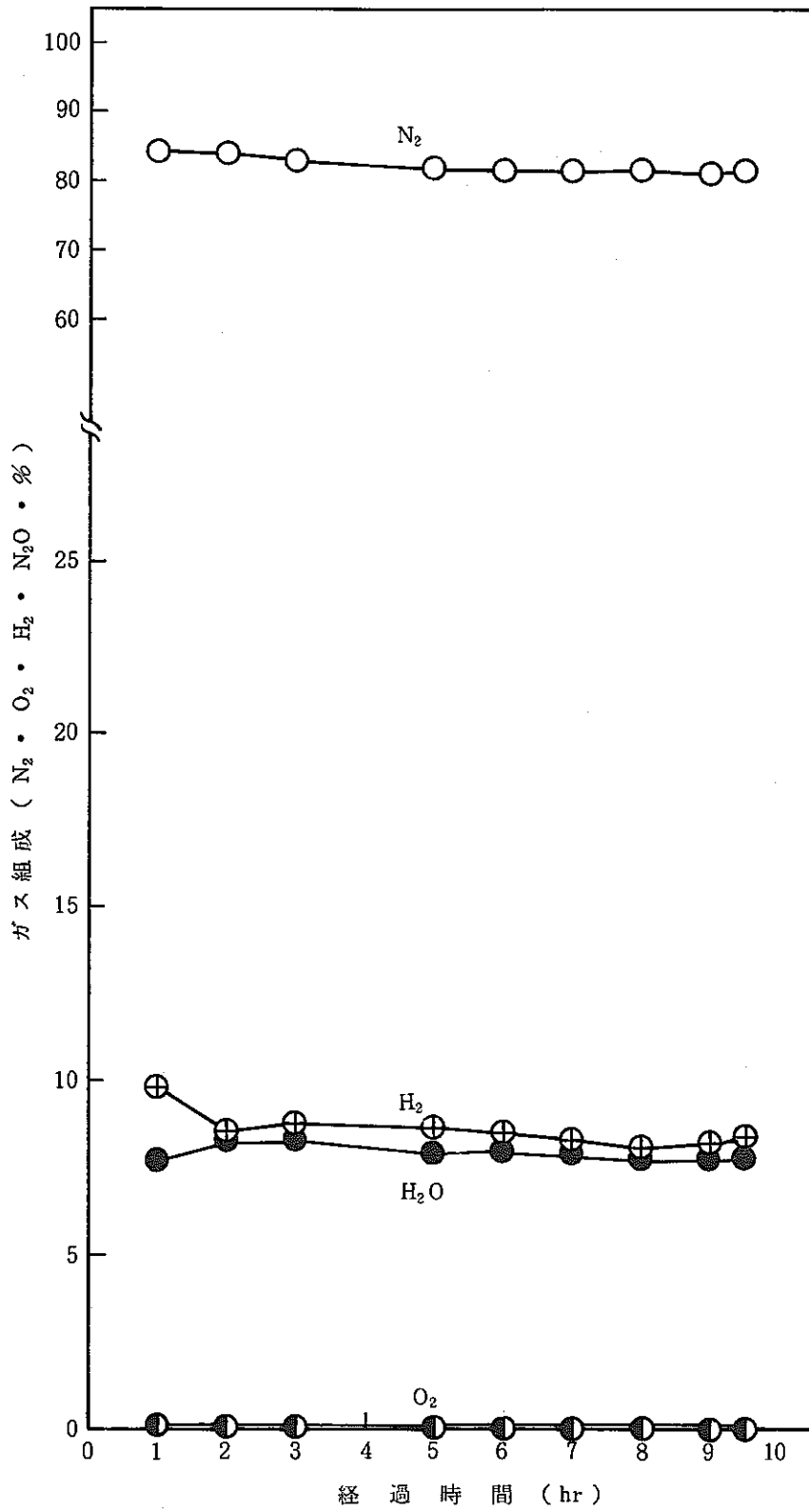


Fig.A.3.28 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-002)

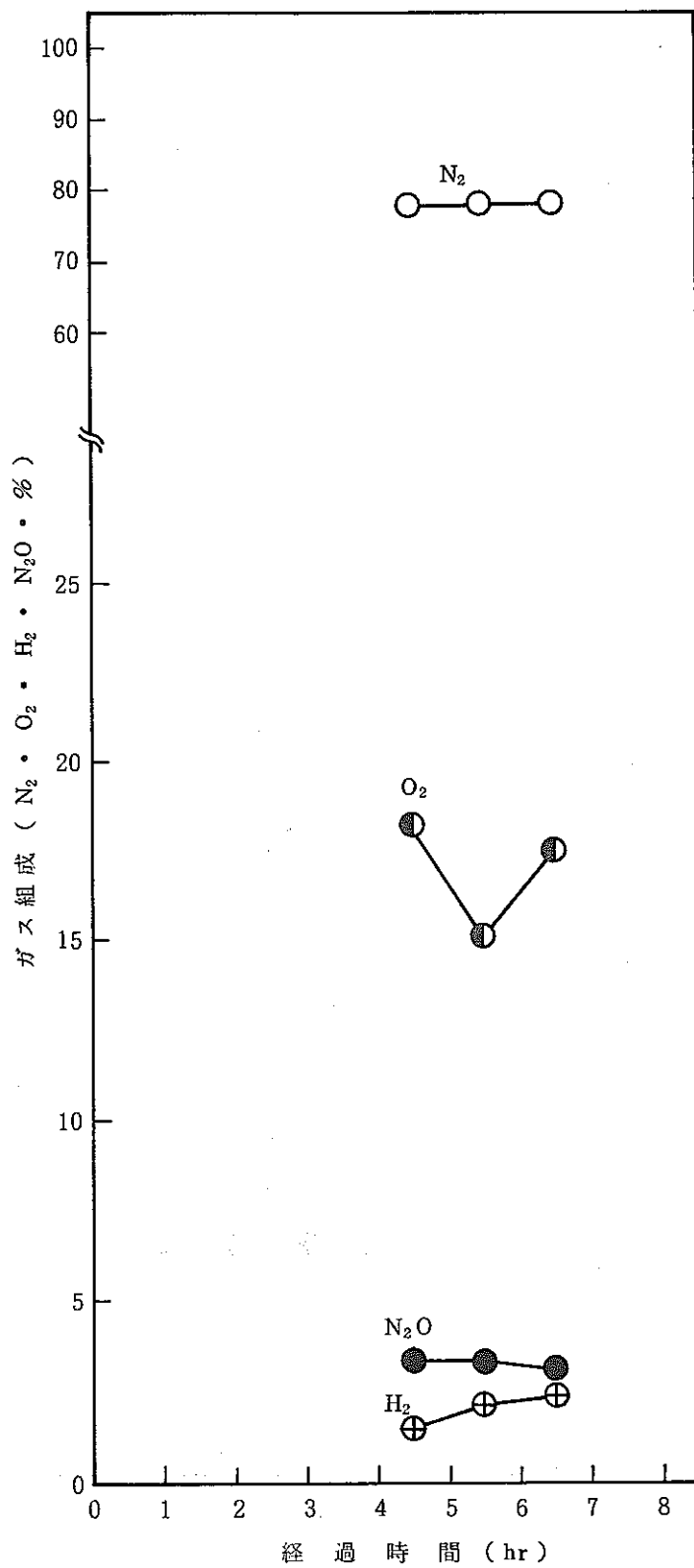


Fig.A.3.29 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-003)

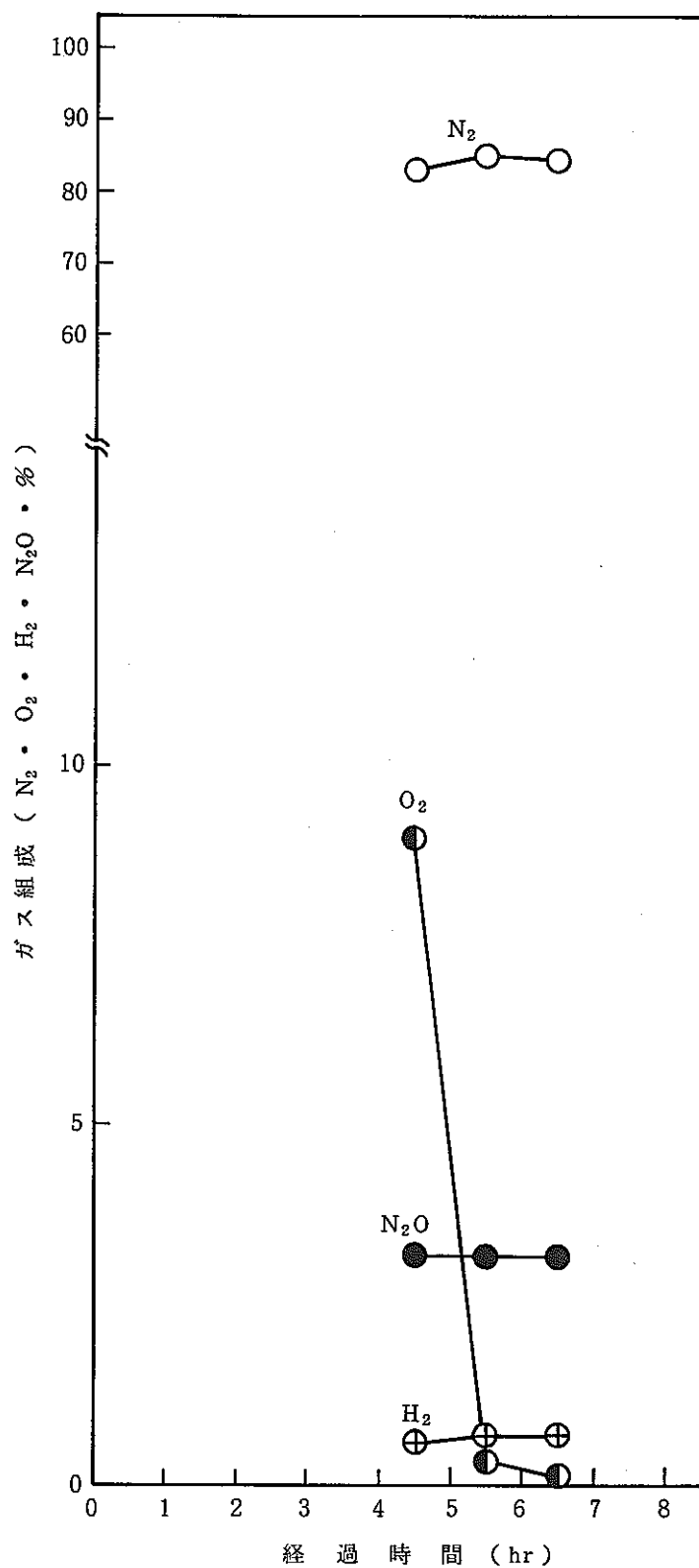


Fig.A.3.30 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-003)

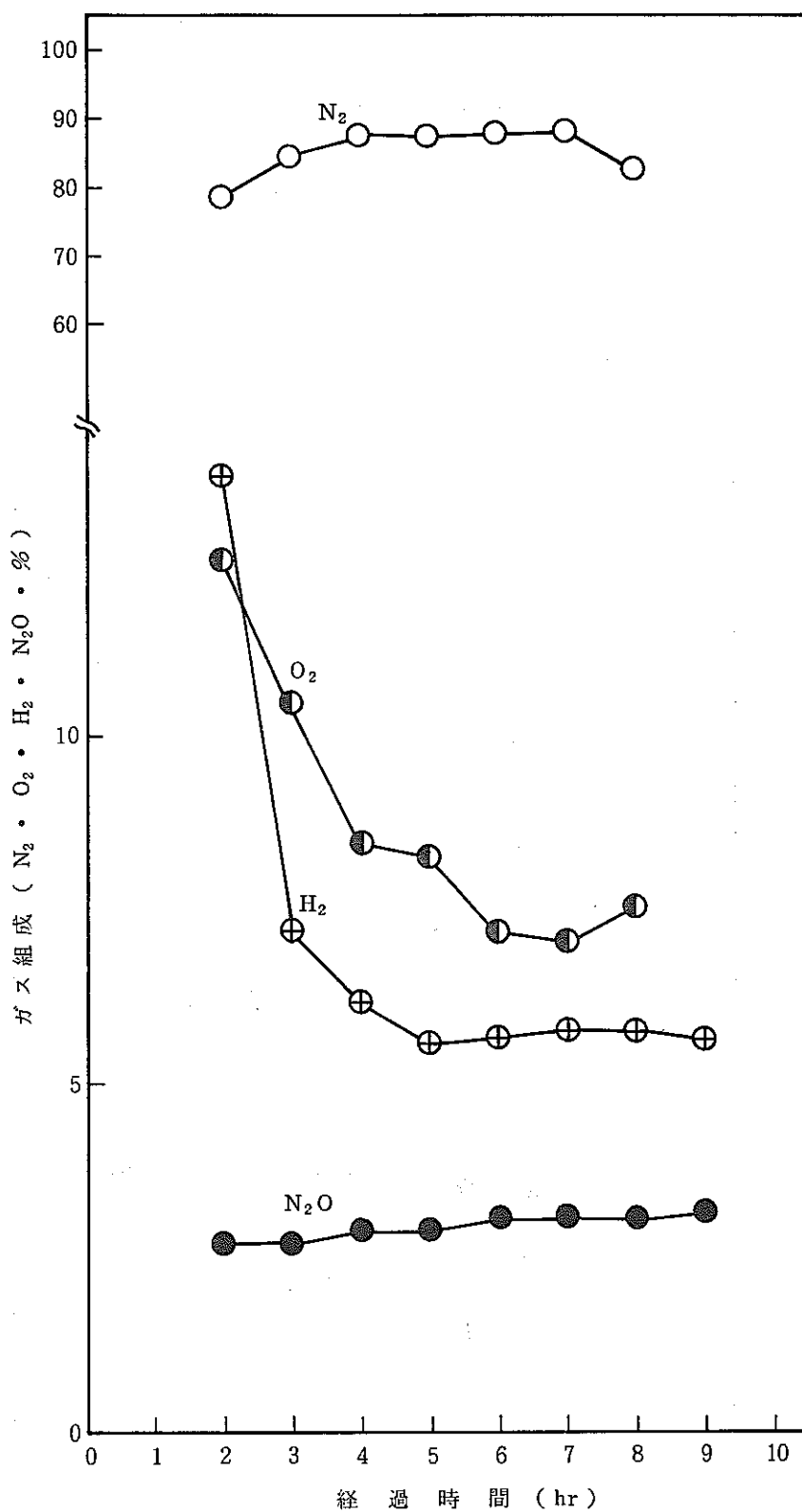


Fig.A.3.31 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-004)

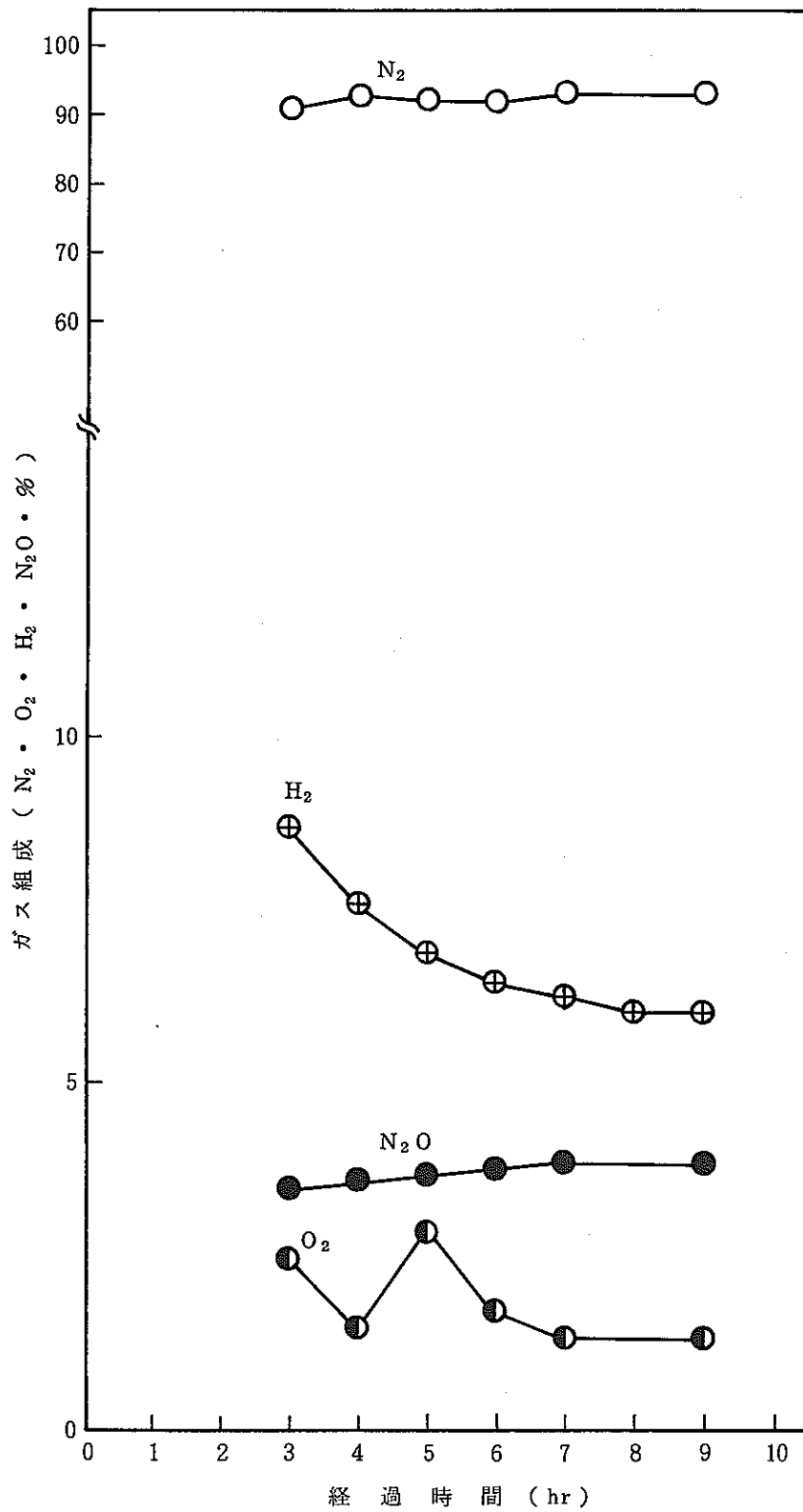


Fig.A.3.32 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-004)

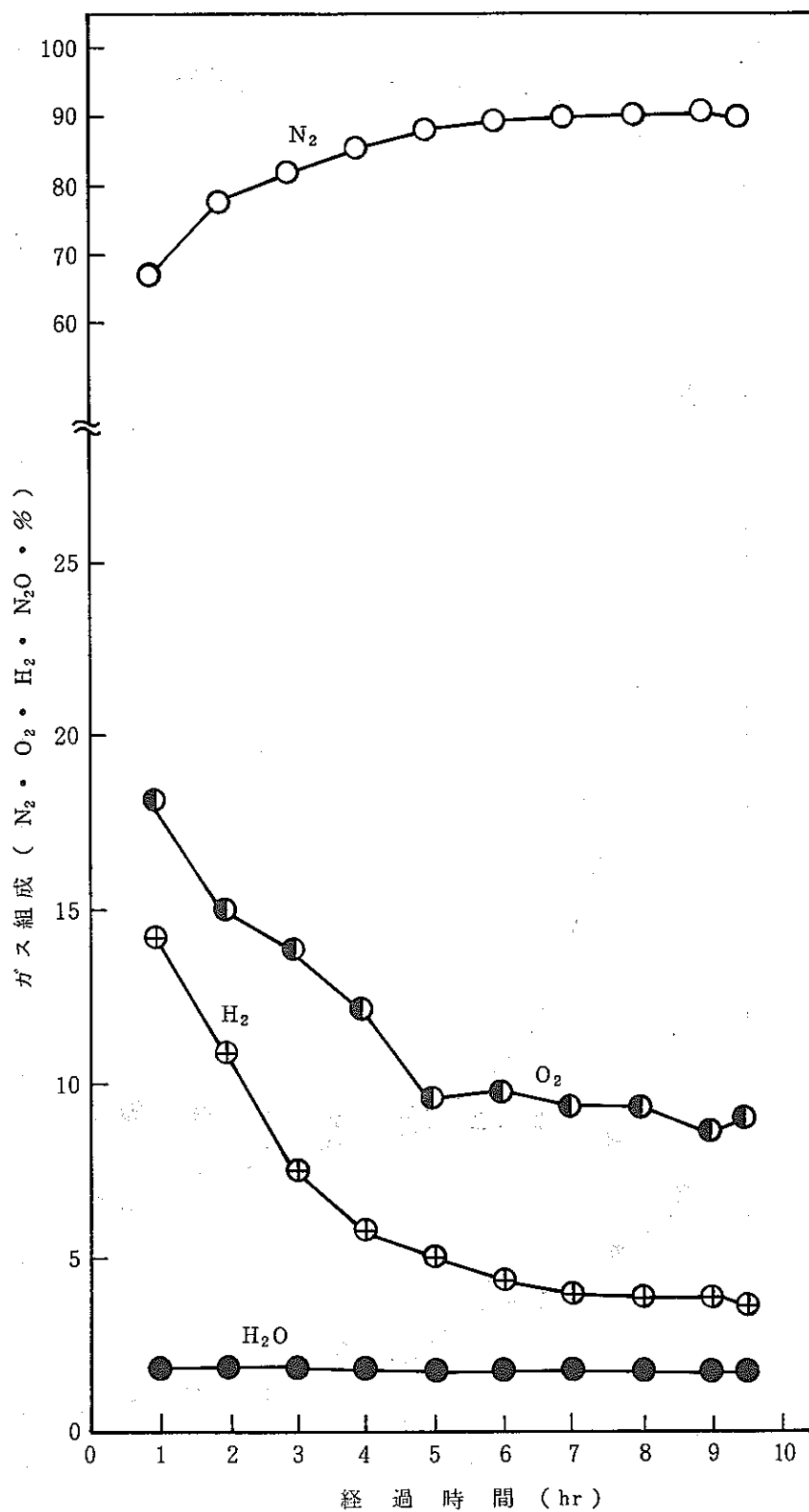


Fig.A.3.33 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-005)

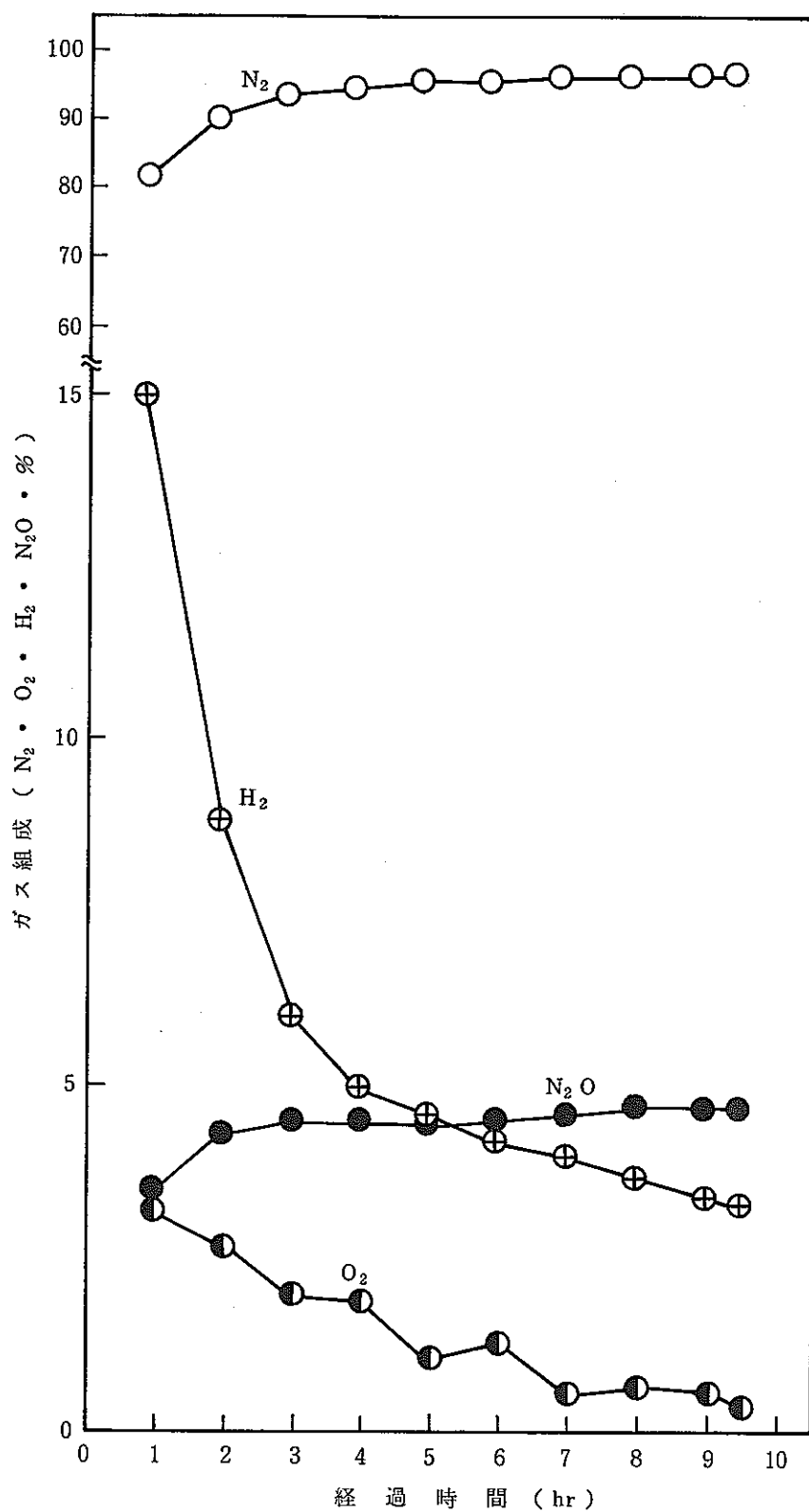


Fig.A.3.34 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-005)

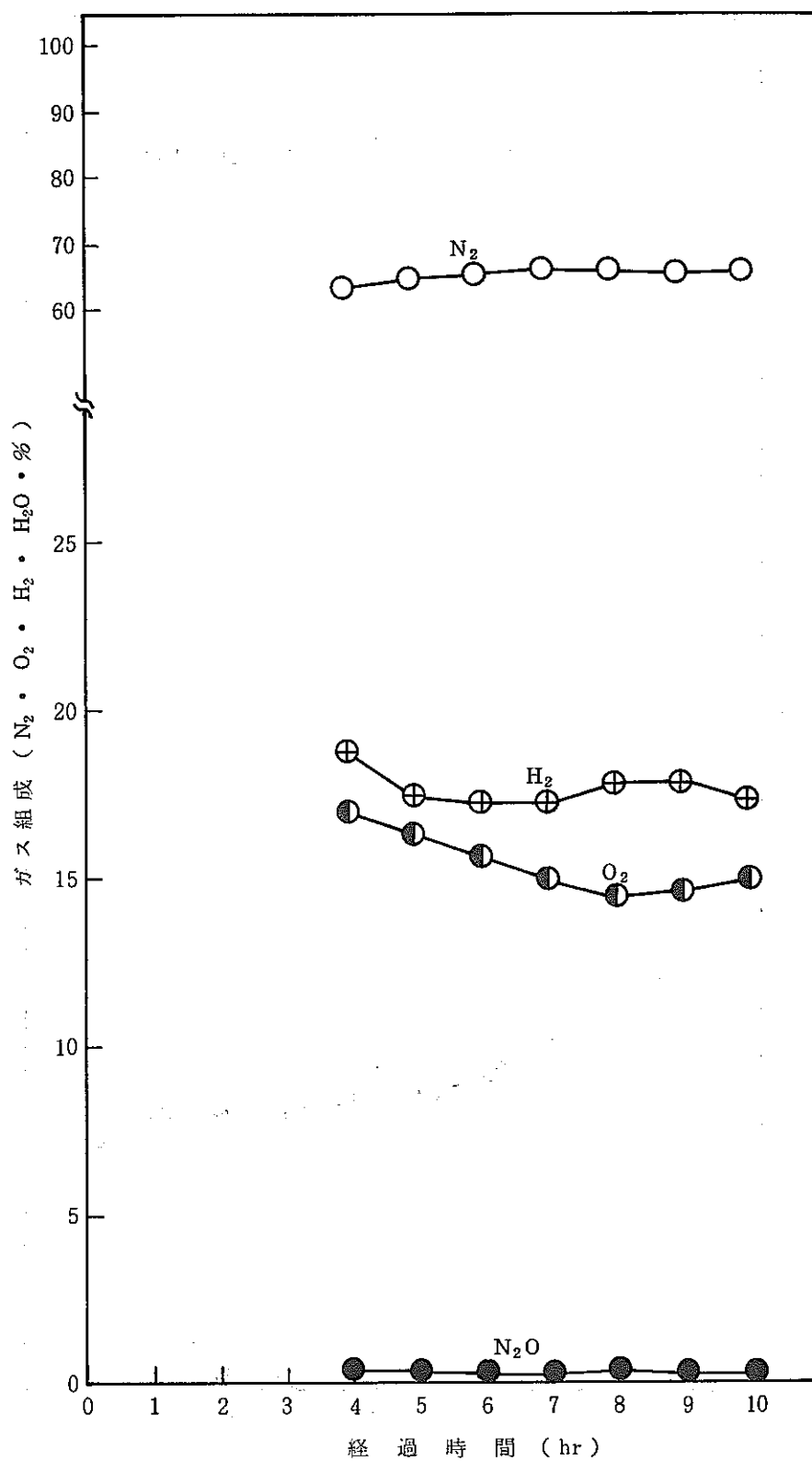


Fig.A.3.35 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-22, run no. 20-008)

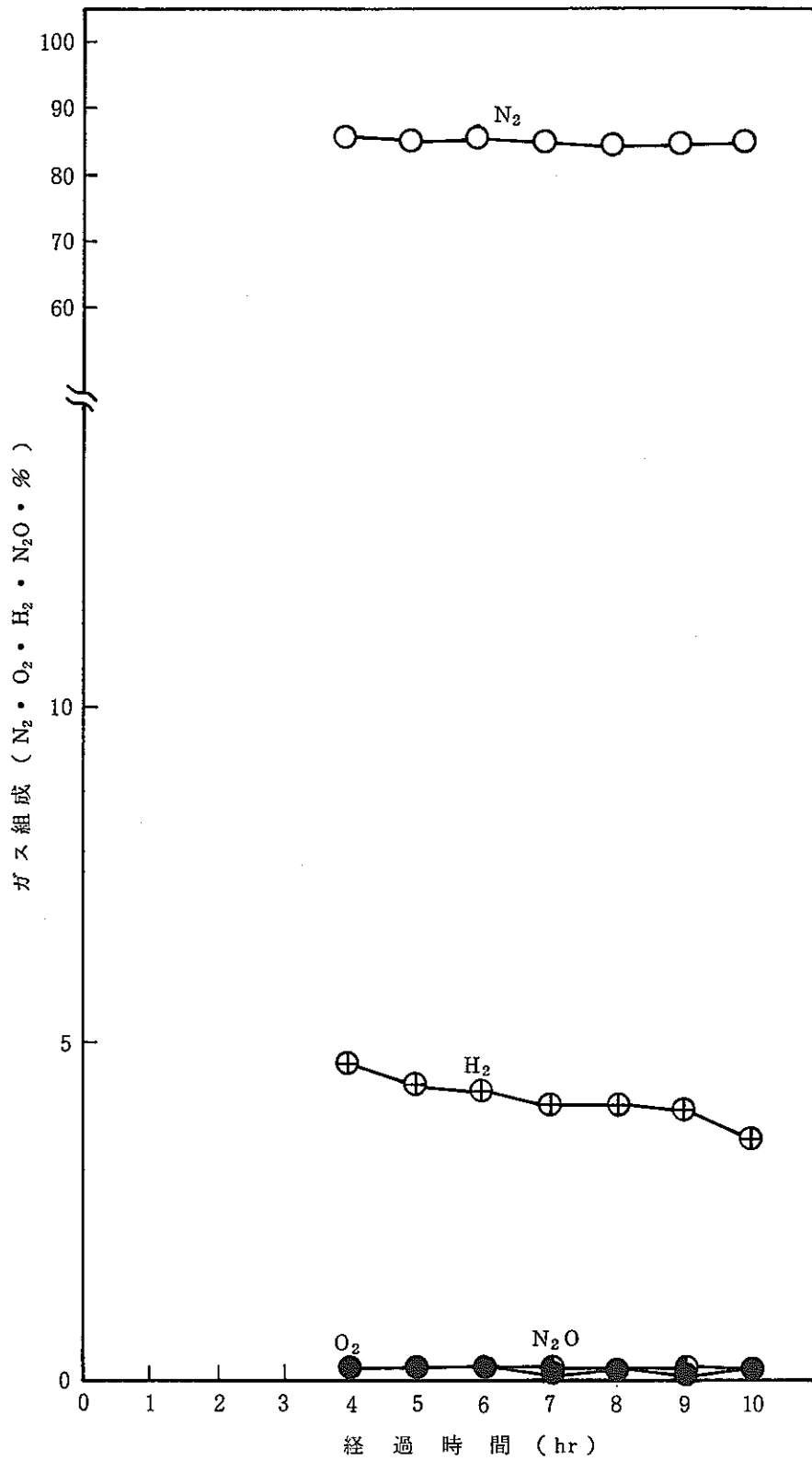


Fig.A.3.36 Secondary generated gas concentration change with passage of time (column no. 2T-23, run no. 20-008)

Table A.3.27 Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-001)

2 T - 2 2						2 T - 2 3							
時間 (hr)	平均ガス 流 量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス 流 量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
							3.5	21.4 ±0.3	96.4	1.30	0.62	0.70	
						4.5	96.5		0.94	0.58	0.70		
						5.5	96.7		0.93	0.53	0.60		

Table A.3.28 Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-002)

2 T - 2 2						2 T - 2 3							
時間 (hr)	平均ガス 流 量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス 流 量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
0.5	52.1 ±1.3	83.8	6.2	5.6	3.6		1.0	72.6 ±1.2	84.3	0.1	9.8	7.7	
1.5		84.1	0.1	2.6	6.2		2.0		84.2	0.1	8.6	8.3	
2.0		83.6	0.1	1.2	6.9		3.0		83.5	0.1	8.8	8.3	
3.5		82.5	0.1	2.0	2.5		~		~	~	~	~	
5.0		73.1	5.0	18.1	3.7		5.0		82.4	0.1	8.7	8.0	
6.0		73.0	4.8	18.5	3.6		6.0		82.4	0.1	8.6	8.1	
7.0		72.8	4.6	18.4	3.7		7.0		82.2	0.1	8.4	8.0	
8.0		72.6	4.0	18.8	3.7		8.0		82.5	0.1	8.2	7.9	
9.0		73.0	4.5	19.2	3.6		9.0		82.1	0.1	8.3	7.9	
9.5		73.0	4.6	19.2	3.7		9.5		82.8	0.1	8.5	7.9	

Table A.3.29 Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-003)

2 T - 2 2						2 T - 2 3							
時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
4.5	57 ± 1	78.3	18.3	1.5	3.4		4.5	71.6	83.5	9.0	0.6	3.2	
5.5		78.8	15.2	2.2	3.4		5.5		85.4	0.34	0.7	3.2	
6.5		79.0	17.6	2.5	3.2		6.5		85.1	0.11	0.7	3.2	

Table A.3.30 Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-004)

2 T - 2 2						2 T - 2 3							
時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
1.0	97 ± 19						1.0	35 ± 3	~	~	~	~	
2.0		78.8	12.6	13.8	2.7		2.0		~	~	~	~	
3.0		84.9	10.5	7.2	2.7		3.0		91.1	2.5	8.7	3.5	
4.0		87.8	8.5	6.2	2.9		4.0		93.0	1.5	7.6	3.6	
5.0		88.0	8.3	5.6	2.9		5.0		92.6	2.9	6.9	3.7	
6.0		88.7	7.2	5.7	3.1		6.0		92.7	1.8	6.5	3.8	
7.0		88.9	7.1	5.8	3.1		7.0		93.9	1.4	6.3	3.9	
8.0		83.3	7.6	5.8	3.1		8.0		~	~	6.1	~	
9.0		~	~	5.7	3.2		9.0		94.0	1.4	6.1	3.9	

Table A.3.31 Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-005)

2 T - 2 2						2 T - 2 3							
時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
1.0	*測定せず	67.1	18.2	14.2	1.8		1.0	46 ± 1	81.7	3.2	15.0	3.5	
2.0		77.9	15.0	10.9	1.9		2.0		90.1	2.7	8.8	4.3	
3.0		82.0	13.9	7.5	1.9		3.0		93.5	2.0	6.0	4.5	
4.0		85.7	12.2	5.8	1.8		4.0		94.7	1.9	5.0	4.5	
5.0		88.2	9.6	5.0	1.7		5.0		95.9	1.1	4.6	4.5	
6.0		89.6	9.8	4.4	1.8		6.0		95.9	1.3	4.2	4.5	
7.0		90.3	9.4	4.0	1.8		7.0		96.3	0.6	4.0	4.6	
8.0		90.5	9.4	3.9	1.8		8.0		96.4	0.7	3.7	4.7	
9.0		91.2	8.7	3.9	1.8		9.0		96.6	0.6	3.4	4.7	
9.5		90.6	9.1	3.7	1.8		9.5		97.0	0.4	3.3	4.7	

Table A.3.32 Analytical results of secondary generated gas (run no. 20-008)

2 T - 2 2						2 T - 2 3							
時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)					時間 (hr)	平均ガス流量 (ℓ/hr)	副生ガス濃度 (v%)				
		N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO			N ₂	O ₂	H ₂	N ₂ O	NO
4.0	82.7 ± 0.6	63.6	17.0	18.8	0.4		4.0	75 ± 2	85.9	0.2	4.7	0.2	
5.0		64.9	16.3	17.5	0.4		5.0		85.7	0.2	4.4	0.2	
6.0		65.9	15.7	17.3	0.3		6.0		85.9	0.2	4.3	0.2	
7.0		66.7	15.0	17.3	0.3		7.0		85.6	0.1	4.1	0.2	
8.0		66.6	14.5	17.9	0.4		8.0		85.2	0.2	4.1	0.2	
9.0		66.2	14.7	17.9	0.3		9.0		85.3	0.1	4.0	0.2	
10.0		66.3	15.0	17.4	0.3		10.0		86.1	0.2	3.6	0.2	

Table A.3.33 Results of temperature measurements (run no. 20-002)

Run No	通電開始後		1h後	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12h後	
20 002	T R - 0 1		温 度 (° C)	25	26	26	27	27	27	27	27	27	27		
	T R - 0 2			29	36	40	42	43	43	43.5	44	44	44		
	T R - 0 3			26	32	36	38	38	38	38.2	38	38	39		
	T R - 0 4			28	33	35	36	37	37	37	38	38	38		
	T R - 0 5			25	26	26	27	27	27	27	28	28	28		
	T R - 0 6			27	34	38	41	42	42	43	43	43	43		
	T R - 0 7			26	30	32	32	33	33	33	33	33	33		
	T R - 0 8			28	37	42	44	45	46	46	46	46	46		
	2T-22	上部	28.5	35.5	39	40	42	42.5	43	43	43	43			
		下部	26	30	32	33	33.2	34	34	34	34	34			
	2T-23	上部	29.1	36	37	39.5	40	40	40	40	40.5	40.5			
		下部	26	33.5	37	39	39.5	40	40.5	40.5	40.5	40.5			

Table A.3.34 Results of temperature measurements (run no. 20-003)

Run No	通電開始後		0.5 hr後	1.5	2.5	3.5	4.5	5.5	6.5					
20 003	T R - 0 1		温 度 (° C)	32	34	34	34	34	34	34				
	T R - 0 2			40	51	56	58	59	59	60				
	T R - 0 3			33	42	46	49	50	50	50				
	T R - 0 4			37	43	46	47	48	48	48				
	T R - 0 5			32	34	34	34	34	34	34				
	T R - 0 6			35	45	51	53	54	55	55				
	T R - 0 7			34	40	43	44	44	44	44				
	T R - 0 8			38	48	55	58	59	60	60				
	2T-22	上部		47	52	54	55	56	56					
		下部		33	39	42	42.5	43	44	44				
	2T-23	上部		35	52	56	57.5	58.5	59	59				
		下部		34	45	50	53	54	54	53				

Table A.3.35 Results of temperature measurements (run no. 20-004)

Run No.	通電開始後		1 hr後	2	3	4	5	6	7	8	9				
20 004	T R - 0 1		温 度 ($^{\circ}$ C)	20	21	22	22	22	22	22	23	23			
	T R - 0 2			24	34	37	39.5	40	41	42	42	42			
	T R - 0 3			20	27	30	32	32	33	33	34	34			
	T R - 0 4			23	30	32	34	34	35	36	36	37			
	T R - 0 5			21	22	22	22	22	22	22	23	24			
	T R - 0 6			24	36	40	42	43	44	44	44	44			
	T R - 0 7			20	22	24	24	22	24	24	24	25			
	T R - 0 8			22	22	35	38	39	40	40	40	40			
	2T-22	上部	29	38.7	38	45	46	46	46	46	46				
		下部	21	26.5	29	31	31	32	32.5	32.5	33				
	2T-23	上部	21	26.5	29	31	31	33	32.5	32.5	33				
		下部	19	26.3	29	31.8	33	33	34	34	34				

Table A.3.36 Results of temperature measurements (run no. 20-005)

Run No.	通電開始後		1 hr後	2	3	4	5	6	7	8	9				
20 005	T R - 0 1		温 度 ($^{\circ}$ C)	18	19	19	20	20	20	20	20	21			
	T R - 0 2			29	34	36	38	39	39	40	40	40			
	T R - 0 3			23	28	30	32	32	33	33.5	34	33			
	T R - 0 4			23	26	28	29	30	30	31	31	31			
	T R - 0 5			18	19	19	19	20	20	20.5	21	21			
	T R - 0 6			30	35	38	39	40	41	41	41	42			
	T R - 0 7			20	22	22	23	22	24	24.5	24	25			
	T R - 0 8			28	34	37	38	39	40	40	40	40			
	2T-22	上部	33	38	40	41	42	42.5	42	43	42.5				
		下部	20	23.5	25	26	26.5	27	27.5	27.5	28				
	2T-23	上部	26	30	32	33	34	35	33	33	32				
		下部	23	28	30	31	32	32.5	33	33	33				

Table A.3.37 Results of temperature measurements (run no. 20-008)

Run No	通電開始後		0.5 hr後	1.5	2.5	3.5	4.5	5.5	6.5	7.5	8.5	9.5				
20 • 008	T R - 0 1		温 度 (° C)	30	31	31	32	32	32	32	32	32	32			
	T R - 0 2			34	42	44	47	48	49	50	50	50	50			
	T R - 0 3			30	36	40	42	42	44	44	44	44	44	44		
	T R - 0 4			34	38	40	41	42	42	42	43	43	43	43		
	T R - 0 5			30	31	31	31	32	32	32	32	32	32	33		
	T R - 0 6			32	40	43	46	47	48	48	48	48	48	48		
	T R - 0 7			31	36	37	38	39	40	40	40	40	40	40		
	T R - 0 8			33	43	47	50	51	52	53	53	54	54	54		
	2T-22	上部	34	40	44	45.5	47	47.5	48	48.5	49	48.5				
		下部	31	34	36	37.5	38	39	39	39.5	39.5	39.5				
2T-23	上部	36	42	44	45.8	46	46.5	47	47.2	47.5	48					
	下部	31	37.5	42	44.8	45.8	46.6	47	47.2	47.5	48					

Table A.3.38 Supplied current and measured voltage of back extraction electrolysis

Run No	2 T - 2 2		2 T - 2 3	
	電 流 (A)	電 圧 (V)	電 流 (A)	電 圧 (V)
20 - 001	85.7	3.7	85.7	3.8
20 - 002	171	5.8	171	6.3
20 - 003	257	6.5	257	6.8
20 - 004	257	7.1	85.7	4.0
20 - 005	214	6.7	129	4.8
20 - 008	210	5.8	210	6.0

Table A.3.39 Observed hold up ratio

Sampling No. Run No.	塔内ホールドアップ $(\frac{O}{A+O})$ $(\frac{CC}{CC})$					
	74	129	75	57	128	58
20-002	$\frac{15}{460}$ (3.3)	$\frac{25}{475}$ (5.3)	$\frac{20}{500}$ (4.0)	$\frac{20}{460}$ (4.3)	$\frac{25}{500}$ (5.0)	$\frac{10}{450}$ (2.2)
20-004	$\frac{35}{485}$ (7.2)	$\frac{40}{485}$ (8.2)	$\frac{35}{470}$ (7.4)	$\frac{35}{485}$ (7.2)	$\frac{20}{450}$ (4.4)	$\frac{20}{470}$ (4.3)
20-005	$\frac{30}{485}$ (6.2)	$\frac{20}{470}$ (4.3)	$\frac{20}{480}$ (4.2)	$\frac{25}{475}$ (5.3)	$\frac{30}{505}$ (5.9)	$\frac{25}{525}$ (4.8)

()内の数値は有機相の hold up 率 (%) を示す。

Table A.3.40 Aqueous phase entrainment to organic product flow

Run No.	有機相 O.F (Sa No. 84) 中に混入する 水相エントレインメント量 $(\frac{A}{O+A})$ $(\frac{g}{g})$
20-001	測定せず
20-002	$\frac{1 \times 10}{8 \times 10^2}$ (2)
20-003	$\frac{1 \times 10}{6 \times 10^2}$ (2)
20-004	$\frac{1 \times 10}{6 \times 10^2}$ (2)
20-005	測定せず
20-008	測定せず

* ()内数値は水相エントレインメント率 $(\frac{A}{O+A})$ (%) を示す。

* Run No 20-001, 3, 8 については、他のデータは報告済。