

Oral presentation | V. Nuclear Fuel Cycle and Nuclear Materials : 504-3 Fuel Reprocessing

📅 Thu. Sep 12, 2024 9:30 AM - 10:20 AM JST | Thu. Sep 12, 2024 12:30 AM - 1:20 AM UTC 🏢 Room N(Recture RoomsB 2F B203)

[2N01-03] Evaporation to Dryness

Chair:Kenji Takeshita(Tokyo Tech)

9:30 AM - 9:45 AM JST | 12:30 AM - 12:45 AM UTC

[2N01]

Enhancement of Analysis Method for Important Phenomena of Severe Accident at Reprocessing Plant

(D-12) Development of Hygroscopic Aerosol Calculation Model for Two Component Solvent

*Daisuke Fujiwara¹, Hisayuki Kyo¹, Kouya Ganaha¹, Hiroshi Shirai¹, Takashi Kodama², Yoshikazu Tamauchi², Naoya Satou² (1. TEPSYS, 2. JNFL)

9:45 AM - 10:00 AM JST | 12:45 AM - 1:00 AM UTC

[2N02]

Enhancement of Analysis Method for Important Phenomena of Severe Accident at Reprocessing Plant

(D-13) Development of Gray Gas Emissivity Correlation for Radiative Heat Transfer Analysis

*Kouya Ganaha¹, Hisayuki Kyo¹, Daisuke Fujiwara¹, Hiroshi Shirai¹, Takashi Kodama², Yoshikazu Tamauchi², Naoya Satou² (1. TEPSYS, 2. JNFL)

10:00 AM - 10:15 AM JST | 1:00 AM - 1:15 AM UTC

[2N03]

Study on applicability of zeolite for mitigation of RuO₄ release

(3) Influence of gas flow rate on RuO₄ adsorption to X-type zeolite

*Yuma Sekiguchi¹, Tetsuya Kato¹, Tsuyoshi Usami¹ (1. CRIEPI)

10:15 AM - 10:20 AM JST | 1:15 AM - 1:20 AM UTC

Time reserved for Chair

再処理工場の重大事故に係る重要現象に関する評価手法の高度化
(D-12) 水-硝酸 2 成分溶液に対するエアロゾル吸湿モデルの開発

Enhancement of Analysis Method for Important Phenomena of Severe Accident at Reprocessing Plant
(D-12) Development of Hygroscopic Aerosol Calculation Model for Two Component Solvent

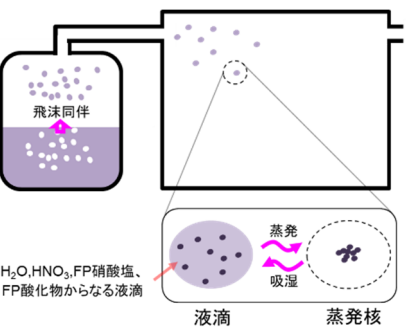
*藤原 大資¹, 京 久幸¹, 我那覇 功也¹, 白井 浩嗣¹, 小玉 貴司², 玉内 義一², 佐藤 直弥²
¹テプシス, ²日本原燃

蒸発乾固事故評価コード FATE の整備において重要となるエアロゾル吸湿モデルを開発した。当該モデルは Mason 方程式の溶媒を水-硝酸 2 成分溶液に拡張し、且つ Kelvin 効果、塩効果、及び Fuchs 補正を取り込んだものである。

キーワード：蒸発乾固、FATE、エアロゾル吸湿、Mason 方程式、Kelvin 効果、塩効果、Fuchs 補正

1. 緒言 再処理施設の蒸発乾固事故においては、廃液沸騰時に発生する飛沫がエアロゾルとして移行することが想定されており、その蒸発/吸湿挙動を適切に取り扱うことが建屋 LPF を評価する上で極めて重要となる。この現象は MAAP、MELCOR 等の発電炉を対象とした SA コードでも取り扱われており、これらには Mason 方程式[1]ベースのモデルが組み込まれている。一方、蒸発乾固事故ではエアロゾルは廃液の飛沫から成ると共に、水-硝酸蒸気雰囲気中での蒸発/吸湿を扱う必要が生じる。蒸発は液滴が比較的乾燥したセルに流入する状況（沸騰開始時）、若しくは乾固後の高温 NO_x ガスに曝される状況（沸騰晩期～乾固期）において想定され、吸湿はセル内が高湿度環境となる状況（沸騰早期～沸騰晩期）において想定される。この背景の下、本研究では Mason 方程式の溶媒を水-硝酸 2 成分溶液に拡張し、且つ Kelvin 効果（液滴表面の曲率が蒸気圧に及ぼす効果）、塩効果（溶質が蒸気圧に及ぼす効果）、及び Fuchs 補正（気相分子平均自由行程と液滴サイズが近い遷移領域に対する補正）を取り込み、蒸発乾固事故を対象としたエアロゾル吸湿モデルを開発した。

2. 評価モデル導出 図 1 に、飛沫同伴で発生した液滴の蒸発/吸湿のイメージを示す。またオリジナルの Mason 方程式を水-硝酸 2 成分溶液に拡張し、Köehler 理論に基づき Kelvin 効果、塩効果を取り込み、更に Fuchs 補正を施した式を以下に示す。ここで、 m_w 、 m_a は液滴の水成分/硝酸成分の質量[kg]、 f_{mass} 、 f_{heat} は蒸気の拡散項/放熱項[m・s/kg]、 f_{Kelvin} 、 f_{Solute} は Kelvin 効果/塩効果補正項[-]、 f_{FS} は Fuchs 補正項、及び S_∞ は飽和比[-]を表す。



Mason 方程式

$$\frac{dm}{dt} = 4\pi r \frac{S_\infty - S_s}{f_{mass} + f_{heat}}$$

拡張

$$\frac{dm_w}{dt} = 4\pi r \frac{(f_{mass} + f_{heat}^a)(S_\infty^w - 1 - f_{Kelvin}^w + f_{Solute}^w) - f_{heat}^w(S_\infty^a - 1 - f_{Kelvin}^a + f_{Solute}^a)}{(f_{mass} + f_{heat}^a)(f_{mass} + f_{heat}^w) - f_{heat}^a f_{heat}^w} f_{FS}$$
$$\frac{dm_a}{dt} = 4\pi r \frac{-f_{heat}^a(S_\infty^w - 1 - f_{Kelvin}^w + f_{Solute}^w) + (f_{mass} + f_{heat}^w)(S_\infty^a - 1 - f_{Kelvin}^a + f_{Solute}^a)}{(f_{mass} + f_{heat}^a)(f_{mass} + f_{heat}^w) - f_{heat}^a f_{heat}^w} f_{FS}$$

図 1 液滴の蒸発/吸湿のイメージ

3. 結言 当該モデルの開発は、水-硝酸 2 成分溶液を扱う先進的な取り組みであり、現時点において同等のモデルを組み込んだ SA コードは存在しない。今後、エアロゾル粒子径の変化を直接扱う区間分割モデルと共に FATE に組み込むことを計画しており、妥当性確認のための実験等も検討していく必要がある。

参考文献 [1] B. J. Mason, “The Physics of Clouds”, 2nd Edition, 1971, Oxford Classic Texts in the Physical Sciences

* Daisuke Fujiwara¹, Hisayuki Kyo¹, Kouya Ganaha¹, Hiroshi Shirai¹, Takashi Kodama², Yoshikazu Tamauchi², Naoya Sato²

¹TEPCO SYSTEMS CORPORATION, ²JAPAN NUCLEAR FUEL LIMITED

再処理工場の重大事故に係る重要現象に関する評価手法の高度化
(D-13) 輻射計算のためのグレイガス放射率相関式の開発

Enhancement of Analysis Method for Important Phenomena of Severe Accident at Reprocessing Plant

(D-13) Development of Gray Gas Emissivity Correlation for Radiative Heat Transfer Analysis

*我那覇 功也¹, 京 久幸¹, 藤原 大資¹, 白井 浩嗣¹, 小玉 貴司², 玉内 義一², 佐藤 直弥²
¹テプシス, ²日本原燃

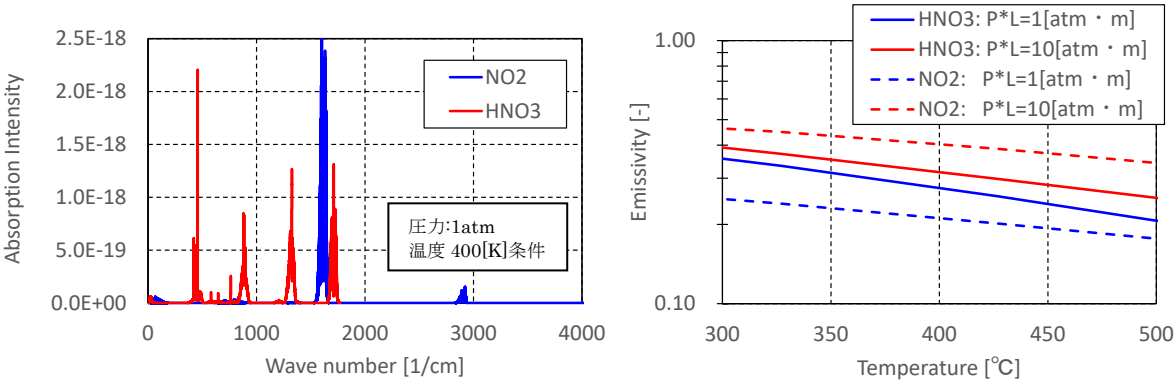
蒸発乾固事故評価コード FATE の輻射計算で必要となるグレイガス放射率評価モデルを開発した。蒸発乾固事故進展において重要となるグレイガスは H₂O、NO₂、HNO₃ であり、吸収線スペクトル計算データベース HITRAN を用いて「温度」、「圧力×ガス厚さ」依存の放射率相関式を得た。

キーワード：蒸発乾固、FATE、輻射、放射率、グレイガス、HITRAN

1. 緒言 再処理施設の蒸発乾固事故が継続した場合、沸騰早期から晩期までは水(H₂O)や硝酸(HNO₃)が廃液貯槽から下流領域に移行し、晩期からは NO_x が移行することとなる。これら気相成分と凝縮液、若しくは壁面間の輻射は気相温度の評価結果に影響し、エアロゾルの振る舞いに重要となるミスト発生/消滅にも影響する可能性が考えられる。この背景の下、本研究では輻射に寄与するグレイガス（輻射伝熱の観点から“不透明”な気相成分）の放射率相関式を整備する。対象となるグレイガスは H₂O、NO₂、HNO₃ であり、吸収線スペクトル計算データベース HITRAN を用いて「温度」、「圧力×ガス厚さ」依存の相関式を得る。

2. HIRATAN データベースを用いた放射率相関式の導出 放射率は式(1)で定義され、 E_b は黒体放射熱流束スペクトル[W/m³]、 a は吸収線スペクトル[1/m]、 L_R は気相厚さ[m]、 σ はステファーン・ボルツマン定数[W/m²/K⁴]、 T_g は気相温度[K]、及び λ は波長[m] である。各グレイガスの吸収線スペクトルは左図の通り温度、及び圧力に応じて HITRAN を用いて計算され、これを式(1)に代入することで右図に示す放射率が得られる。更に、この結果をフィッティングすることで、「温度」、及び「圧力×ガス厚さ」依存の放射率相関式が導出される。混合ガスの放射率については相互作用が小さいことを確認しており、分圧から計算された放射率の和を用いる。

$$Emissivity = \frac{\int_0^\infty \{1 - \exp[-a(\lambda, T_g)L_R]\} E_b(\lambda, T_g) d\lambda}{\sigma T_g^4} \quad (1)$$



3. 結言 吸収線スペクトルデータを利用してグレイガス (H₂O、NO₂、HNO₃) の放射率を計算し、これに基づき温度、圧力、ガス厚さ依存の相関式を整備した。得られた相関式は FATE に組み込むことを計画しており、これにより気相成分の違いが温度挙動、ミスト生成/消滅挙動に与える影響を定量的に分析することが可能となる。

参考文献 [1] HITRAN Application Programming Interface User Guide (<https://hitran.org>)
[2] “Thermal Radiation Heat Transfer”, Volume III, Robert Siegel and John R. Howell, NASA SP-164, 1971

* Kouya Ganaha¹, Hisayuki Kyo¹, Daisuke Fujiwara¹, Hiroshi Shirai¹, Takashi Kodama², Yoshikazu Tamauchi², Naoya Sato²
¹TEPCO SYSTEMS CORPORATION, ²JAPAN NUCLEAR FUEL LIMITED

RuO₄ 放出抑制策としてのゼオライトの適用性の検討
(3) X 型ゼオライトの RuO₄ ガス捕捉におけるガス流速の影響

Study on applicability of zeolite for mitigation of RuO₄ release

(3) Influence of gas flow rate on RuO₄ adsorption to X-type zeolite

*関口 裕真¹, 加藤 徹也¹, 宇佐見 剛¹

¹電中研

再処理施設の重大事故緩和策として、高レベル廃液の蒸発乾固事故時に放出される揮発性 Ru をゼオライトにより除去することを検討している。本研究では、X 型ゼオライトの揮発性 Ru 捕捉挙動に関し、ガス流速による影響についてカラム試験装置を用いて検討した。

キーワード：高レベル廃液、蒸発乾固、ルテニウム、ゼオライト

1. 緒言

再処理施設の重大事故の一つである高レベル廃液の蒸発乾固事故では、廃液沸騰時および乾固後の揮発性 Ru (RuO₄) の放出抑制が課題となっている[1]。このため、当所では X 型ゼオライトによる気相中からの RuO₄ の除去について検討しており、前報[2]で小規模カラム試験装置へのゼオライト配置量をパラメータとして RuO₄ の捕捉挙動を評価し、RuO₄ 生成時に共存する HNO₃ ガスの捕捉挙動への影響について示した。本研究では、捕捉挙動における速度論的評価のため、ガス流速をパラメータとした試験を実施した。

2. 実験

ガス流速の変更に対応した小規模カラム試験装置を、ガラス器具とマントルヒーターにより製作した(図1)。U 字状のガラス管に X 型ゼオライトを 6 g 配置し、ヒーター 1、2 で 200℃以上に保持した。RuO₄ 源として RuNO(NO₃)₃ を含む硝酸溶液(0.8wt%-Ru、5 ml)を用い、これをヒーター 3 で 3 時間かけて 135℃まで加熱した。ガラス管は試験後に部位ごとに洗浄し、バブラー水及びガラス管の洗浄液の化学分析により、部位ごとの HNO₃、RuO₄ の移行量を評価した。ゼオライトへの各ガス成分の移行量は、RuO₄ はゼオライトの固体分析、HNO₃ は初期投入量とバブラーへの移行量の差から導出した。

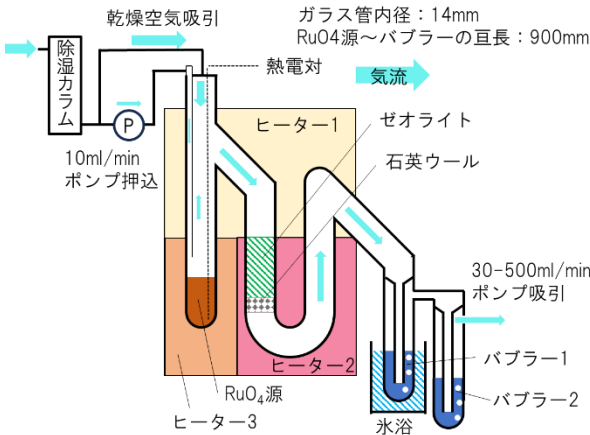


図1 小規模カラム試験装置

3. 結果

各部位への RuO₄、HNO₃ の移行量合計に対するゼオライトへの移行量の比率を捕捉率として導出した(図2)。ガス流速が 100 mL/min 以下では移行した RuO₄ の 99%以上がゼオライトに捕捉されたが、200 mL/min を超えると捕捉率は顕著に低下した。HNO₃ も同様に高流速では捕捉率が低下した。以上より、本研究の試験条件の範囲で速度論的效果によりゼオライトの RuO₄ 捕捉能力が低下することが示された。但し、本試験ではガス流速の上昇に伴い試験中の積算ガス流通量も増加したため、高流速条件で捕捉率低下の要因として、一度捕捉された RuO₄ の脱離の影響も考えられた。

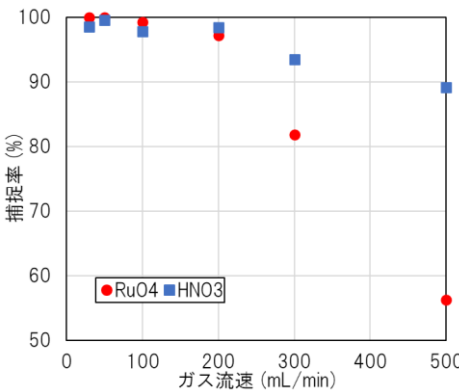


図2 ガス流速とガス成分捕捉率の関係

参考文献

[1] Y. Yamane et al., J. NUCL. SCI. TECHNOL., **53**(6) (2016), 783.
[2] 関口 他、日本原子力学会「2023 秋の大会」、**2B17**

*Yuma Sekiguchi¹, Tetsuya Kato¹ and Tsuyoshi Usami¹

¹CRIEPI