

JNC TN9400 2004-050

ガラス溶融炉内白金族粒子挙動に関する数値解析

(研究報告)

2004 年 9 月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合には、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
電話：029-282-1122（代表）
ファックス：029-282-7980
電子メール：jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Toukai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構

(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2004

ガラス溶融炉内白金族粒子挙動に関する数値解析

(研究報告)

伊藤 啓^{*1} , 三浦 昭彦^{*2} , 堺 公明^{*1}

要旨

原子炉燃料の再処理過程において、高放射性廃液は、ガラス溶融炉を用いてガラス固化する。ガラス溶融炉内において、廃液中の白金族元素が炉底部に堆積し、通電によるガラス溶解の効率が低下する課題が確認されており、炉内白金族粒子挙動を把握し、白金族粒子抽出し率を向上させる運転を行うことが必須となっている。

本研究では、固液二相流の数値解析コードを用いて、ガラス溶融 1 号炉(TVF1 号炉)内の白金族粒子挙動解析を行い、白金族粒子の堆積挙動を調査するとともに、白金族粒子抽出し率に対する、各種パラメータの感度を調査した。

その結果、本解析が白金族粒子堆積挙動や抽出しプロファイル等の点において試験結果と良く一致する結果を与えることが分かった。また、試験結果における白金族堆積の傾向及び炉底温度に対する抽出しプロファイル変化の傾向について、これらの解析結果から明らかにした。更に、ガラス流下速度や炉底温度に対する、白金族粒子抽出し率の変化の傾向とその原因を明らかにした。

*1 大洗工学センター 要素技術開発部 流体計算工学研究 Gr

*2 東海事業所 再処理センター 技術部技術開発課

Numerical Study on Noble Metal Particles Behavior in Glass Melter of Vitrification Process

Kei Ito ^{*1}, Akihiko Miura ^{*2}, Takaaki Sakai ^{*1}

Abstract

Solid particles of noble metals in the high-level liquid waste tend to accumulate on the bottom of the TVF glass melter of the Tokai reprocessing center. The sediments of the noble metals reduce the electric heating efficiency by forming short circuit of electric current. For the long-term steady operation of the glass melter, the accumulation mechanism should be investigated to improve outflow ratio of noble metal particles.

In this study, a numerical simulation code for solid-liquid two-phase flow was employed to investigate the noble metal particles behavior in the melter. Effects of some parameters on the outflow ratio were evaluated as well as the accumulation mechanism.

As a result, this simulation method could lead same accumulation and outflow profile tendencies with them in experimental results, so that the particle behaviors that created these tendencies became clear. In addition, we found that the outflow ratio reaches the maximum value at both certain outflow velocity of glass and the glass temperature near the bottom of melter.

*1 Thermal-Hydraulic Research Group, Advanced Technology Division, O-arai Engineering Center

*2 Technology Development Section, Technology Co-ordination Division, Tokai Reprocessing Center

青色の項目をクリックすると当該ページへジャンプします

目次

1.	緒言	1
2.	解析手法	3
2.1	固液二相流解析手法	3
2.2	固相-液相間相互作用	3
2.3	固相間相互作用	4
2.4	解析コードの概要	4
3.	解析体系・解析条件	7
3.1	解析体系	7
3.2	解析メッシュ	7
3.3	解析条件	7
3.4	解析手順	8
4.	解析結果	12
4.1	流れ場検証解析	12
4.2	炉底低温運転時の粒子堆積挙動(粒子径依存性)	17
4.3	炉底高温運転時の粒子挙動	22
4.4	ガラス流下モード時の粒子挙動	25
4.5	白金族抜出しのガラス流下速度依存性	35
4.6	白金族粒子抜出しの炉底温度依存性	43
5.	結言	50
	参考文献	51

表リスト

表 3.1	流体側解析条件	9
表 3.2	粒子側解析条件	9

図リスト

図 2.1	速度・圧力の定義点	6
図 2.2	粒子移動計算の模式図	6
図 3.1	TVF1 号炉概略図と解析対象断面	10
図 3.2	解析体系	10
図 3.3	解析メッシュ	11
図 4.1	FLOWMEL 解析結果	13
図 4.2	PS Code 解析結果	13
図 4.3	流速比較位置	14
図 4.4	y=300 mm における流速比較	14
図 4.5	y=500 mm における流速比較	15
図 4.6	y=700 mm における流速比較	15
図 4.7	y=900 mm における流速比較	16
図 4.8	炉底低温運転時の流れ場	18
図 4.9	粒子径 0.2 mm の場合の解析結果	19
図 4.10	粒子径 2.0 mm の場合の解析結果	20
図 4.11	白金族粒子堆積率	21
図 4.12	炉底高温運転時の流れ場	23
図 4.13	粒子径 0.2mm の場合の粒子挙動($t=10^3$ s)	23
図 4.14	粒子径 0.2mm の場合の粒子挙動($t=10^4$ s)	24
図 4.15	粒子径 0.2mm の場合の粒子挙動($t=10^5$ s)	24
図 4.16	解析の FLOWCHART	27
図 4.17	流下運転時の流れ場	27
図 4.18	粒子挙動(炉底低温運転後の流下, 第 1 サイクル)	28
図 4.19	粒子挙動(炉底高温運転後の流下, 第 1 サイクル)	29
図 4.20	白金族粒子拔出しプロファイル(第 1 サイクル)	30
図 4.21	白金族粒子拔出し率(第 1 サイクル)	30

図 4.22	粒子挙動(炉底低温運転後の流下, 第 7 サイクル)	31
図 4.23	粒子挙動(炉底高温運転後の流下, 第 7 サイクル)	32
図 4.24	白金族粒子抜き出しプロファイル(第 7 サイクル)	33
図 4.25	白金族粒子抜き出し率(第 7 サイクル)	33
図 4.26	流出粒子率	34
図 4.27	炉内蓄積粒子率	34
図 4.28	粒子初期配置	37
図 4.29	炉内流速分布及び 100 kg 流下後の粒子分布 (流下速度 20 kg/h)	37
図 4.30	炉内流速分布及び 100 kg 流下後の粒子分布 (流下速度 30 kg/h)	38
図 4.31	炉内流速分布及び 100 kg 流下後の粒子分布 (流下速度 40 kg/h)	38
図 4.32	炉内流速分布及び 100 kg 流下後の粒子分布 (流下速度 50 kg/h)	38
図 4.33	炉内流速分布及び 100 kg 流下後の粒子分布 (流下速度 60 kg/h)	39
図 4.34	炉内流速分布及び 100 kg 流下後の粒子分布 (流下速度 80 kg/h)	39
図 4.35	炉内流速分布及び 100 kg 流下後の粒子分布 (流下速度 100 kg/h)	39
図 4.36	白金族粒子抜き出しプロファイル (流下ガラス 100 kg まで)	40
図 4.37	白金族粒子抜き出し率(流下ガラス 100 kg まで)	40
図 4.38	白金族粒子抜き出し率の流下速度依存性 (流下ガラス 100 kg まで)	41
図 4.39	流下速度と白金族粒子抜き出し性	41
図 4.40	炉内軸方向流速分布(y=300 mm)	42
図 4.41	炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布 (炉底 700)	44
図 4.42	炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布 (炉底 830)	44
図 4.43	炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布 (炉底 860)	45
図 4.44	炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布 (炉底 1000)	45

図 4.45	白金族粒子抽出しプロファイル及び抽出し率 (第 1 サイクル)	46
図 4.46	白金族粒子抽出しプロファイル及び抽出し率 (第 7 サイクル)	47
図 4.47	流出粒子率及び炉内蓄積粒子率	48
図 4.48	各炉底温度における白金族粒子抽出し率	49
図 4.49	炉底温度に対する白金族粒子抽出し性	49

1. 緒言

原子炉燃料の再処理過程において、高放射性廃液は、ガラス溶融炉を用いてガラス固化する。廃液中には高融点の白金族粒子が含まれており、大部分はガラスの流れに乗って炉内を対流した後、流下ノズルから抜出されるが、一部は炉底に堆積する。炉底に堆積した白金族粒子は、局所的に電気抵抗の小さい領域を形成し、通電によるガラス加熱を阻害するとともに、局所的な電流密度の集中と温度上昇を生じさせるため、この領域が拡大すると健全な炉の運転が不可能になる。一方、ガラス固化体数削減の観点から、白金族粒子抜出し性を向上させることが重要となっている。これらの課題に関して評価するためには、ガラス溶融炉内における白金族粒子挙動を知ることが必要である。

本件は、従来、流下する白金族粒子の濃度変化等から推定していた白金族粒子挙動について、固液二相流解析コード^[1]を用いて、ガラス溶融 1 号炉(TVF1 号炉)体系での数値解析を行い、その白金族粒子の堆積機構を明らかにするとともに、運転条件最適化の観点から、白金族粒子の抜出し率に対する流下速度および炉底部温度の依存性について明らかにすることを目的とする。

以下、主な実施項目及び内容について示す。

(1) ガラス溶融炉内白金族粒子挙動評価用解析コードの整備

流体 Gr にて開発した固体粒子と流体の相互作用を考慮した解析コードについて、ガラス中粒子の挙動を比較的高速で評価可能となるように整備するとともに、ガラス溶融炉用の解析メッシュモデルを作成する。

(2) 解析コードの比較検証

既存のガラス溶融炉用解析コード (FLOWMEL) との比較によって、解析モデルの妥当性について概略評価する。

(3) 炉底低温運転時の粒子挙動評価 (粒子径依存性)

炉底低温運転時の粒子の対流挙動を数値解析により求めるとともに、堆積する粒子の径について調べる。

(4) 炉底高温運転時の粒子挙動評価

炉底高温運転時の粒子の対流挙動を数値解析により求め、炉底低温運転時と比較評価する。

(5) ガラス流下モード時の粒子挙動

ガラス流下モード時(下部のノズルを開いて、炉内で溶融させたガラスを流下させる運転時)の粒子の対流挙動を数値解析により求め、堆積機構について考察する。

(6) 白金族粒子抽出し率に対するガラスの流下速度依存性

運転手法最適化の観点から、白金族粒子抽出し率に対する溶融ガラスの流下速度依存性を数値解析で求め、その特性を明らかにするとともに、モックアップ試験データとの比較により最適な運転条件を検討する。

(7) 白金族粒子抽出し率に対する炉底温度依存性

運転手法最適化の観点から、白金族粒子抽出し率に対する炉底温度依存性を数値解析により求め、その特性を明らかにするとともに、モックアップ試験データとの比較により最適な運転条件について検討する。

2. 解析手法

白金族粒子挙動解析に用いた解析コード(PS Code : Particle behavior Simulation Code)について以下に示す。

2.1 固液二相流解析手法

本件では熔融ガラス中の白金族粒子の対流・堆積挙動を精度良く解析するために、固定メッシュで解析した流れ場を用いて、個々の粒子の対流・堆積挙動を追跡する Euler-Lagrange Model を採用した。以下に、その概要について述べる。

2.2 固相-液相間相互作用

Euler-Lagrange Model は、液相(流体)は解析メッシュを用いて解析し、固相(粒子)は解析メッシュによらず、Lagrange 的に各時刻における座標を決定するモデルである。その際、固相-液相間の相互作用として、液相から固相への作用のみを考慮し、固相から液相への作用を無視する方法(One-Way Method)、及び、液相から固相への作用と固相から液相への作用の両者を考慮する方法(Two-Way Method)の 2 通りの方法が存在する。一般に、流体中の粒子濃度が高い場合は Two-Way Method の方が解析精度は良くなるが、計算負荷が大きくなる。本件では、白金族粒子濃度がそれ程高くない(実炉で約 0.5 wt%程度)こと、また、長時間の解析が必要($10^4 \sim 10^5$ オーダー)であることを考慮して、One-Way Method を用いて、定常流れ場における白金族粒子挙動を追跡することとし、計算の効率化を図った。

流体からの作用を考慮した粒子の運動方程式を以下に示す。粒子は全て球形として取り扱い、粒子密度は一定とする。粒子に作用する外力として浮力(+重力)と流体からの抗力のみを考慮し、ガラスの流速及び加速度が小さいため、付加質量項や Basset 項、揚力については、考慮していない。

粒子の運動方程式

$$\frac{\pi}{6} D_p^3 \rho_p \frac{dU_p}{dt} = \underbrace{\frac{\pi}{8} C_D \rho_l D_p^2 |\vec{U}_l - \vec{U}_p| (\vec{U}_l - \vec{U}_p)}_{\text{流体の抗力}} + \underbrace{\frac{\pi}{6} D_p^3 (\rho_p - \rho_l) \vec{g}}_{\text{重力+浮力}} \quad (2.1)$$

$$C_D = \frac{24}{\text{Re}_p} \quad (2.2)$$

$$\text{Re}_p = \frac{|\vec{U}_l - \vec{U}_p| D_p}{\nu} \quad (2.3)$$

π 円周率

D_p 粒子径 (m)

ρ	密度 (kg/m ³)
U	速度 (m/s)
t	時間 (s)
C_D	抗力係数
g	重力加速度 (m/s ²)
Re_p	粒子周りのレイノルズ数
ν	動粘性係数 (m ² /s)

添え字

p	粒子
l	流体

2.3 固相間相互作用

2.2 項で述べたように、炉内の白金族粒子濃度はそれ程高くないと考えられるため、本解析では白金族粒子間衝突は無視した。そのため、粒子の重なりを認めるモデルとした。粒子-壁間の衝突について、垂直壁面およびガラス液面との衝突は、離散要素法(DEM: Distinct Element Method)^[2]によって計算した。DEMは、固相間接触力をバネ+ダッシュポット系(Voigt Model)によって近似するものである。ただし、本解析において、粒子-壁間衝突の発生頻度は低く、粒子挙動に対する影響は小さい。粒子が水平壁面に接触した場合、反射するのではなく、壁面に付着するものとした。

2.4 解析コードの概要

(1) 液相部分の解法

計算の安定性・収束性の観点から、質量・運動量等の保存則を厳密に満たすコントロールボリューム法を用い、チェッカーボードエラーを防ぐために、圧力と流速を互い違いに配置する、スタッガード格子を用いた。スタッガード格子による速度・圧力の定義点と、その時のコントロールボリュームを図 2.1 に示す。ただし、 u は x 方向速度、 v は y 方向速度、 p は圧力である。移流項は、解析精度向上の観点から、2次精度の差分式を用い、拡散項は、数値的な安定性と精度の観点から、2次精度中心差分を用いた。また、圧力の Poisson 方程式は、一般に安定で収束が速いとされている、ICCG法(前処理付き共役勾配法)を用いて計算した。これらの圧力方程式と N-S 方程式の結合アルゴリズムとして、SIMPLE法^[3](Semi-Implicit Method for Pressure-Linked Equation)を用いて解析を行った。

(2) 粒子部分の解法

粒子の移動は、メッシュを用いずに個々の粒子に関して Lagrange 的に追跡した。そ

の際、粒子の移動量は陽解法で計算する。粒子の移動計算の模式図を図 2.2 に示す。ただし、 $t_2=t_1+\Delta t$ 、 $t_3=t_2+\Delta t$ 、(Δt はタイムステップ)である。陽解法で計算するので、 Δt 秒間の間は、直前の時刻における速度で移動する。

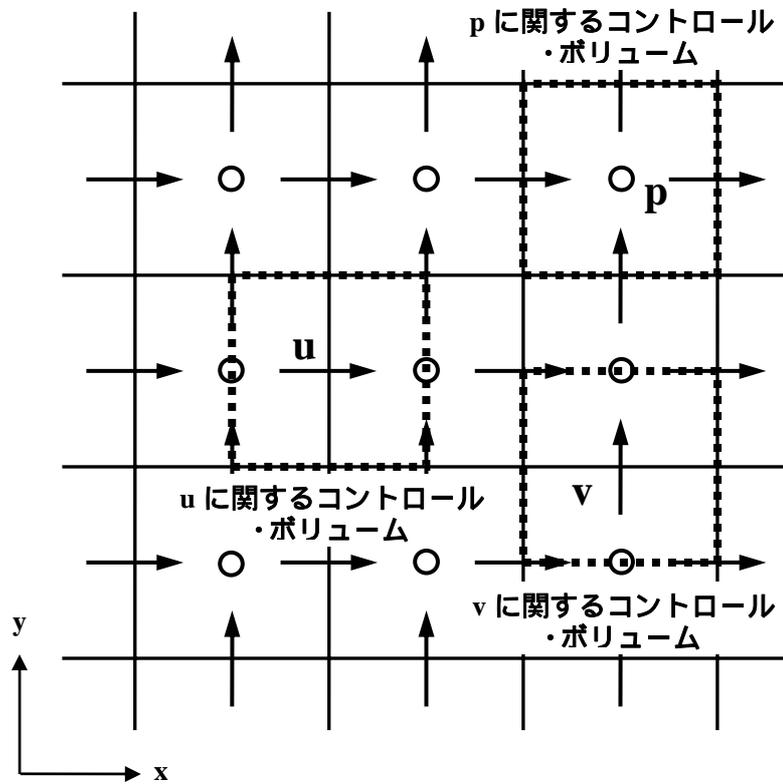


図 2.1 速度・圧力の定義点

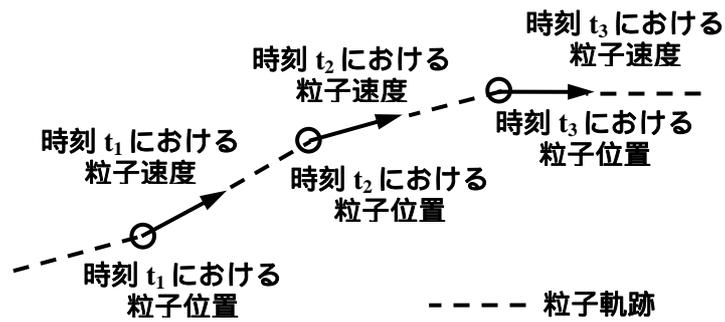


図 2.2 粒子移動計算の模式図

3. 解析体系・解析条件

3.1 解析体系

ガラス溶融炉内の白金族粒子解析を行うにあたり、過去の試験データと比較する観点から、解析体系としてガラス溶融 1 号炉(TVF1 号炉)を選択した。TVF1 号炉の概略と解析対象断面を図 3.1 に示す。右側の図に示すように、解析対象は、TVF1 号炉において、斜面の接続部及び炉底の 4 辺形部分を斜めに横切る面(本来は 1 つの面では無いが、そのように仮定する)である。白金族は斜面の角度が小さい程、堆積しやすいと考えられるため、最も斜面の角度が小さくなる面、即ち斜面と斜面の接続部を含む断面として、上記の面を解析対象とした。解析体系を図 3.2 に示す。解析対象の下限はノズル出口、上限はガラス液面に設定した。TVF1 号炉内には、レベラー槽と呼ばれる、ガラス液位を一定に保つための恒温槽が存在する。そのため、温度分布は解析体系の中心軸に対して対称にならず、右側部分が左側部分より高い温度となる傾向にある。

3.2 解析メッシュ

図 3.2 の解析体系をもとに作成した解析メッシュを図 3.3 に示す。x 方向 60 メッシュ(最小サイズ:7.00mm、最大サイズ:19.15mm)、y 方向 62 メッシュ(最小サイズ:8.50mm、最大サイズ:20mm)の長方形メッシュを用いた。斜面部分は、階段状に模擬した。

3.3 解析条件

流体側の解析条件を表 3.1 に示す。PS コードは非定常解析コードであるため、タイムステップを流速に対して十分小さな値(0.01s)に設定し、流れ場が定常になるまで解析を行った。流出口の境界条件名は速度一定条件とし、流出が無い場合は 0.0m/s とした。実炉においてガラス液面には溶解していないガラスカートリッジが存在しており、それが流れを阻害すると考えられるため、ガラス液面は No-Slip 条件で与えた。ただし、流出がある場合、液面の一部に圧力一定条件を与えた。その他の壁面は No-Slip 条件を与えた。ガラス温度は、加熱を行っている電極間で高くなり、炉底近傍で低くなる傾向がある。ガラス密度は一定とし、1050 (基準温度)の値を与えた。粘性係数は温度依存性を考慮し、炉内の計測値から補間した式を用いた。ただし、東海再処理センターが所有している、ガラス溶融炉 3 次元熱流動解析コード「FLOWMEL」^[4]を用いた過去の解析結果より、粘性係数を 20 倍とした場合に試験結果と良く一致する結果が得られているため、本解析においても 20 倍した粘性係数を用いて解析を行った。流体は浮力によって駆動されるため、ブシネスク近似を用いて浮力の寄与を考慮した。体積膨張係数は 1050 における値である。

粒子側の解析条件を表 3.2 に示す。粒子速度との関係から、可能な限り大きなタイムステップ(流下解析では 1.0 s、それ以外では 10.0 s)とした。白金族粒子は、各解析の初期(0 ~ 150 s)において、y=800 mm の位置に 3000 個(炉内白金族粒子挙動を観察するのに十分な個数を、

計算負荷を考慮しながら選択した)挿入される。x 方向の発生位置はランダムであるが、炉形状の対称性を考慮して、対称軸に対して左右同じ位置で同時に発生することとした。粒子径は、TVF1 号炉内の試験で観測された最大値に近い、0.2 mm を標準値とし、粒子径依存性を見るために、1.5 mm まで増加させた解析を行った。

3.4 解析手順

ガラス溶融炉では、主電極間通電、補助電極間通電および主-ノズル間通電(主電極と流下ノズル間の通電)の 3 種の通電加熱によってガラスを溶かしている。従って、通電によってガラスの温度が上昇し、浮力が生じ、流れ場が形成される。PS Code は通電およびエネルギー方程式を計算できないので、FLOWMEL を用いて定常温度場を求め、その温度場を用いて炉内流速分布を計算した。

表 3.1 流体側解析条件

計算条件	タイムステップ	0.01s
	解法	SIMPLE 法
境界条件	ガラス液面	No-Slip 条件(圧力一定条件)
	流出口	速度一定条件
	壁面	No-Slip 条件
物性値	密度	2509 kg/m ³ (1050 における値)
	粘性係数	$\mu = 20 \exp\left(\frac{5025.14}{T - 364.776} - 4.999\right)$ Pa·s T: 温度 ()
外力	浮力(ブシネスク近似)	$F = \rho g \beta (T - T_0)$ ρ : 密度 2509 kg/m ³ g : 重力加速度 9.8 m/s ² β : 体積膨張係数 $1.674 \times 10^{-4} 1/$ T_0 : 基準温度 1050

表 3.2 粒子側解析条件

計算条件	タイムステップ	1.0s(流下解析)、10.0s
	解法	Lagrange 的に追跡
	粒子発生数	各サイクルにおいて 3000 個
	粒子発生位置	y=800mm、x 方向はランダム
境界条件	垂直壁面+ガラス液面	反射条件(DEM で計算)
	流出口	流出条件(流出した粒子は消去)
	水平壁面	付着条件
物性値	密度	7050 kg/m ³
	粒子径	0.2 ~ 3.0 mm

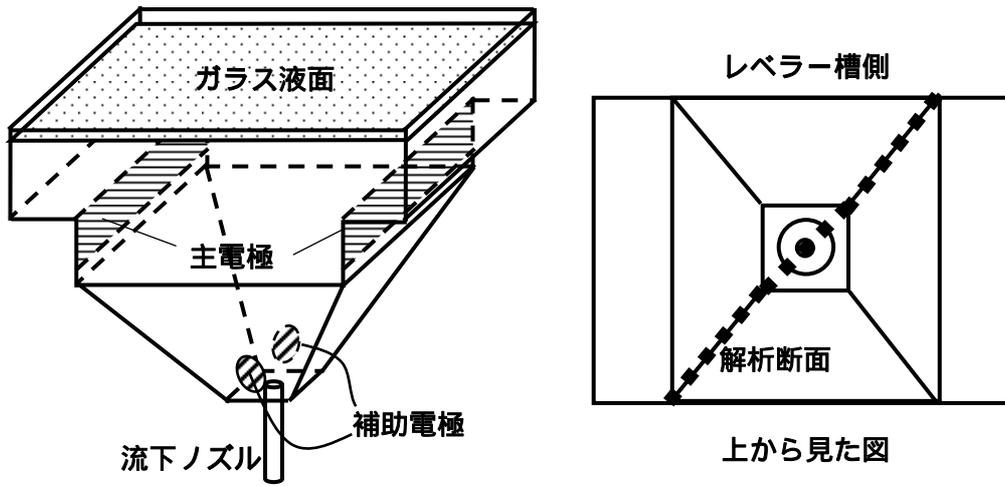


図 3.1 TVF1 号炉概略図と解析対称断面

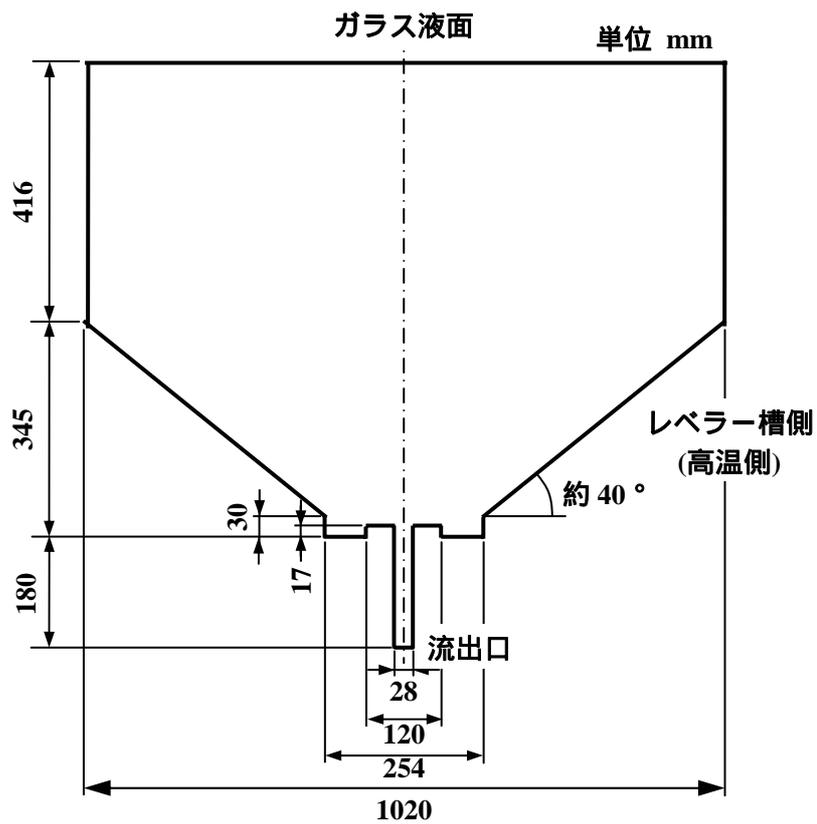


図 3.2 解析体系

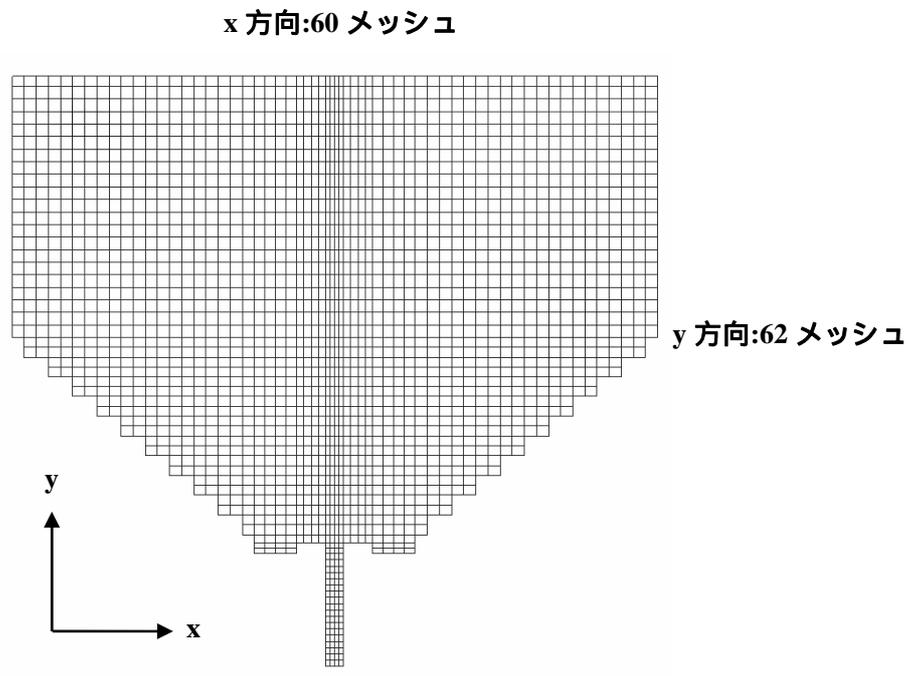


図 3.3 解析メッシュ

4. 解析結果

4.1 流れ場検証解析

3.4 項に示したように、本解析では FLOWMEL コードによって計算した温度場を元に、流れ場の解析を行っている。そのため、PS コードで解析した流れ場を FLOWMEL コードの流れ場と比較することで、流れ場解析の検証作業を行った。

図 4.1、図 4.2 にガラス流下直前状態(主電極間通電+補助電極間通電+主-ノズル間通電を行っている状態)における、FLOWMEL と PS Code の温度場・流速場を示す。ただし、温度場は両者で共通のものを用いている。両者の流れ場は、渦の発生位置等、良く一致した。

図 4.3 に示す各高さ位置における x 方向・y 方向流速の比較を図 4.4 ~ 図 4.7 に示す。FLOWMEL の結果と PS Code の結果を比較すると、全体的に PS Code の方が大きめの流速を評価するが、両者の流速分布の傾向はほとんど一致しており、また、両者の流速の絶対値は、最大でも 2 倍程度の差であった。

以上より、PS Code によって計算された流れ場は、FLOWMEL 結果と良く一致しており、TVF1 号炉内の流れ場を模擬可能と考える。

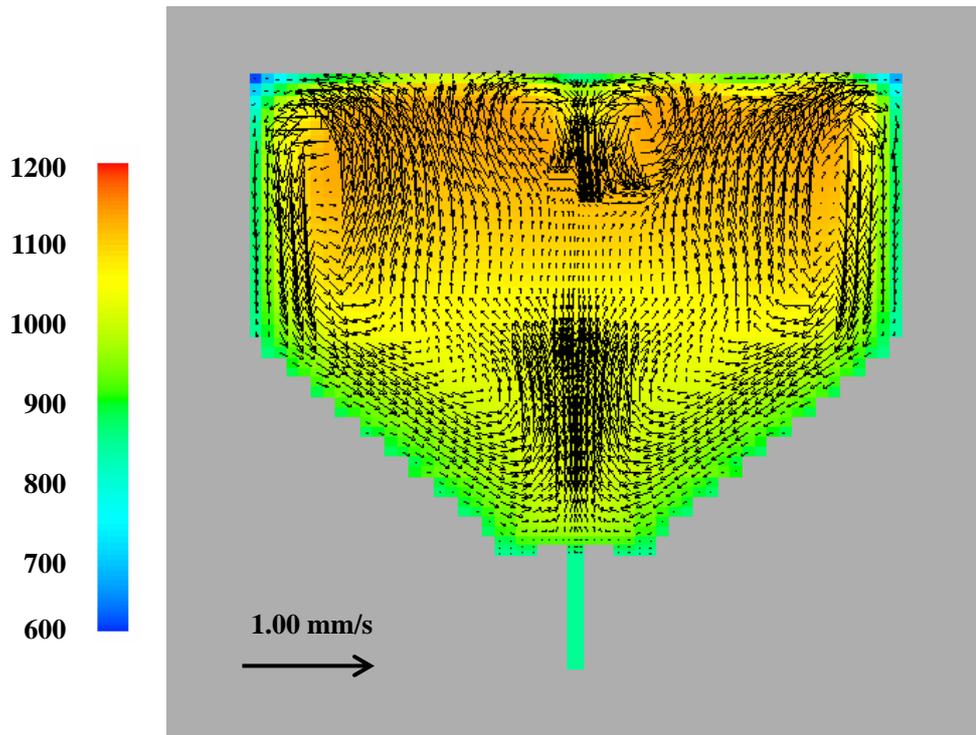


圖 4.1 FLOWMEL 解析結果

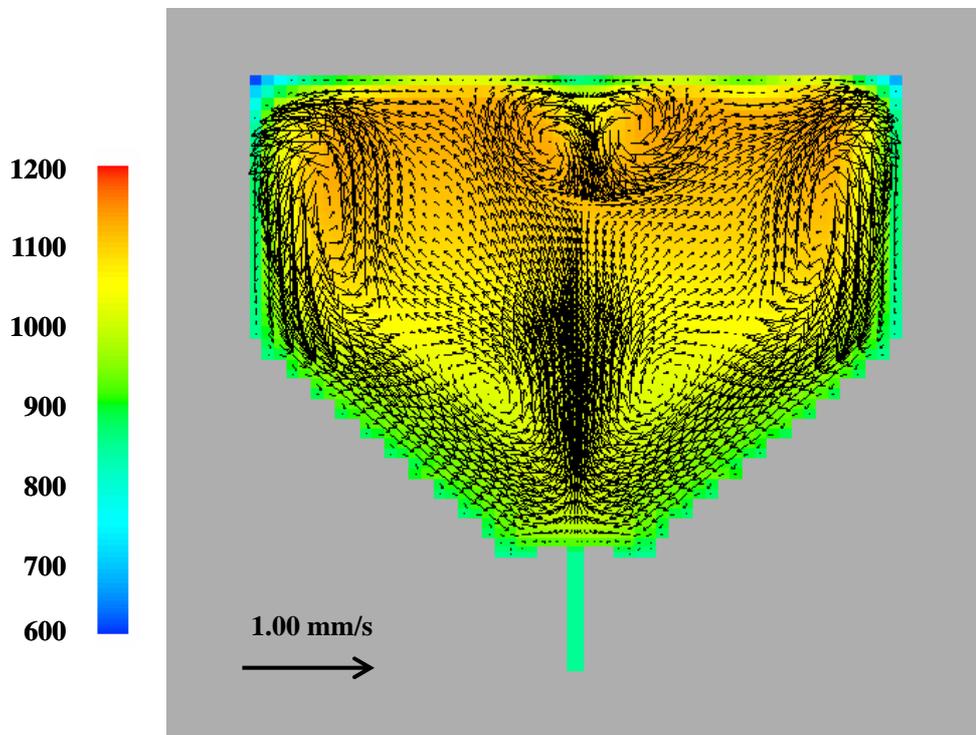


圖 4.2 PS Code 解析結果

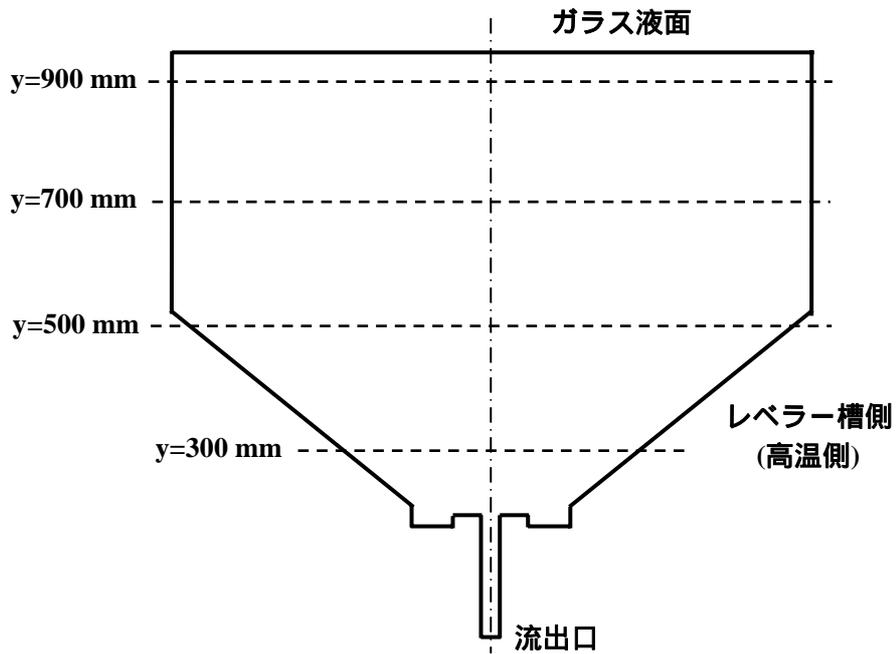


図 4.3 流速比較位置

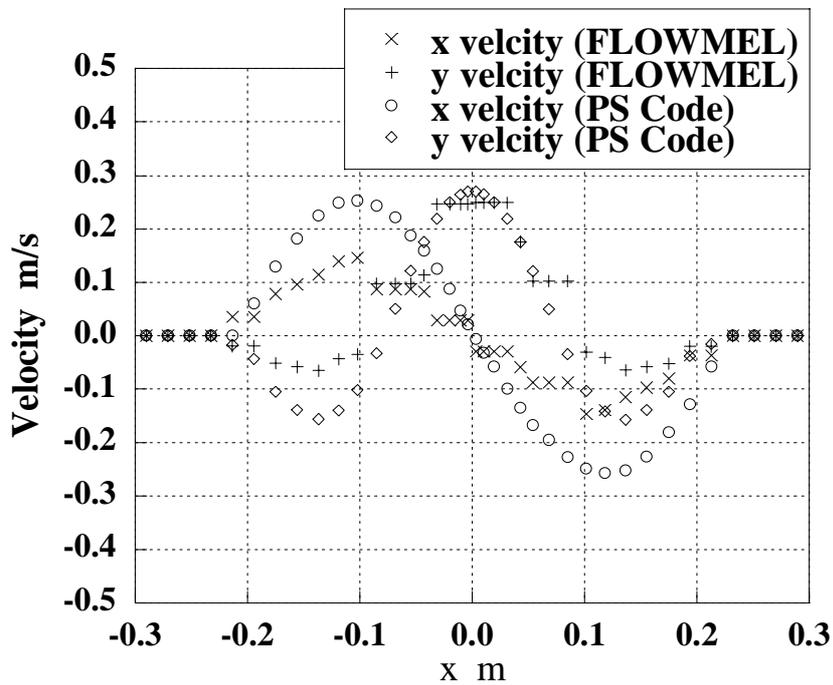


図 4.4 y=300 mm における流速比較

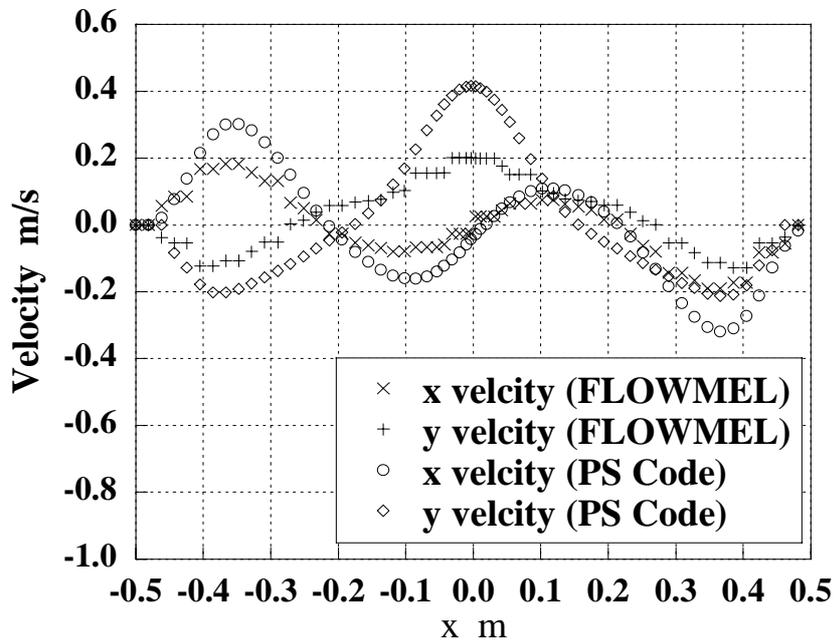


図 4.5 y=500 mm における流速比較

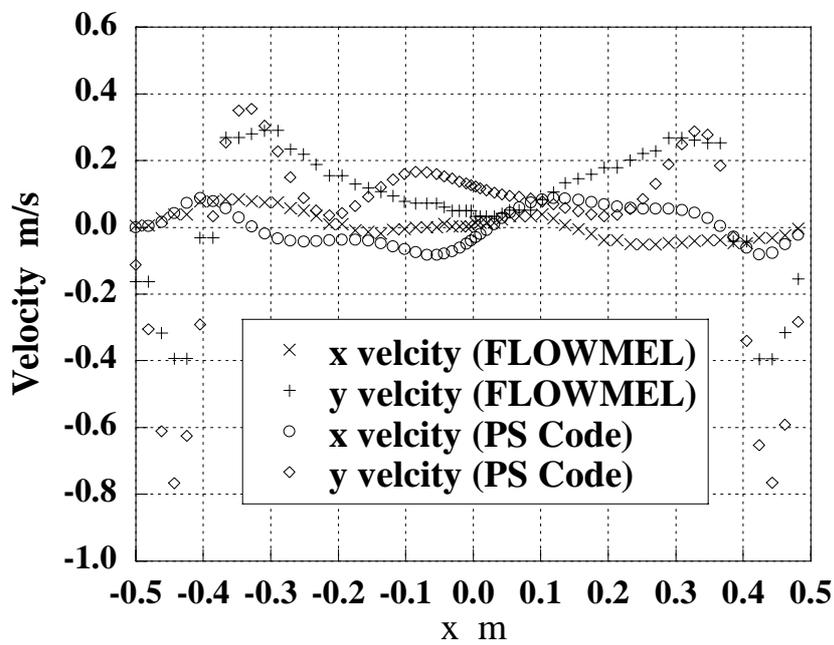


図 4.6 y=700 mm における流速比較

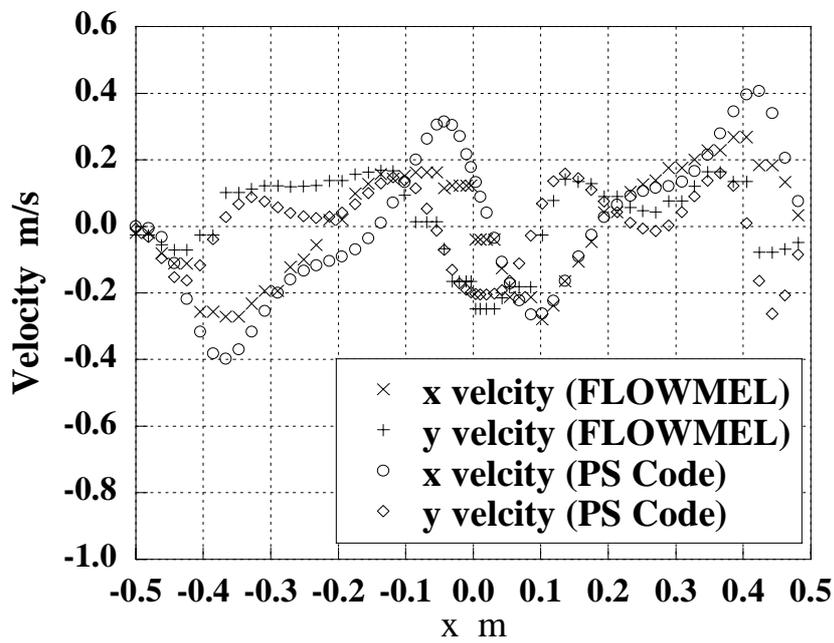


図 4.7 y=900 mm における流速比較

4.2 炉底低温運転時の粒子堆積挙動(粒子径依存性)

炉底低温運転時(補助電極間温度約 830)における、ガラス流動解析結果を図 4.8 に示す。電極を空気冷却しているため、電極近傍は低温になり下降流速が生じ、左右の電極付近に渦が発生する。中心近傍は上昇流領域になるが、TVF1 号炉内の温度分布は、レベラー槽と呼ばれる恒温槽側が高くなる傾向にあり、それに応じて上昇流が中心よりレベラー槽側に生じ、流動場も左右非対称になる傾向が見られた。

計算した流動場を用いて、白金族粒子を発生させた場合の解析を実施した。粒子径を 0.2mm , 1.0mm , 1.2mm , 1.4mm , 1.6mm , 1.7mm , 1.8mm , 2.0mm , 2.4mm , 3.0mm の 10 通りに変化させた場合において約 3000 個の粒子を炉内に発生させ、白金族粒子挙動を解析し粒子径と堆積量の関係を調査した。

粒子径 0.2mm の場合と 2.0mm の場合の粒子挙動を図 4.9 および図 4.10 に、粒子径と堆積率(発生量に対する堆積量の割合)の関係を図 4.11 に示す。ただし、図 4.11 では、レベラー槽側を高温側(Hot Side)、レベラー槽と逆側を低温側(Cold Side)として、それぞれの側の斜面における堆積率を示した。粒子径が 1.8mm より小さい粒子は炉底に沈降せずガラスの対流に乗って炉内を循環し、粒子径が 1.8mm 程度になると白金族の堆積が起こり始め、1.8mm より大きい径の粒子では粒子径の増加に伴って堆積量が増大する傾向となった。実機で観察される粒子径は最大でも 0.2mm 程度であることから、適切な温度に管理されていれば、炉底低温運転条件では、白金族粒子の堆積は生じないことが明らかになった。

また、TVF 1 号炉等では白金族粒子が偏った堆積状況となる(低温側に多く堆積する)ことが観察されたが、解析でも、堆積が生じたケースでは低温側に多く堆積する結果となっており、実機と同様の傾向が観察された。白金族粒子が低温側に多く堆積するのは、レベラー槽の存在により温度場が左右非対称であるため、流れ場が左右非対称となり、粒子軌跡が低温側でより炉底傾斜部に近くなるためと推定される。

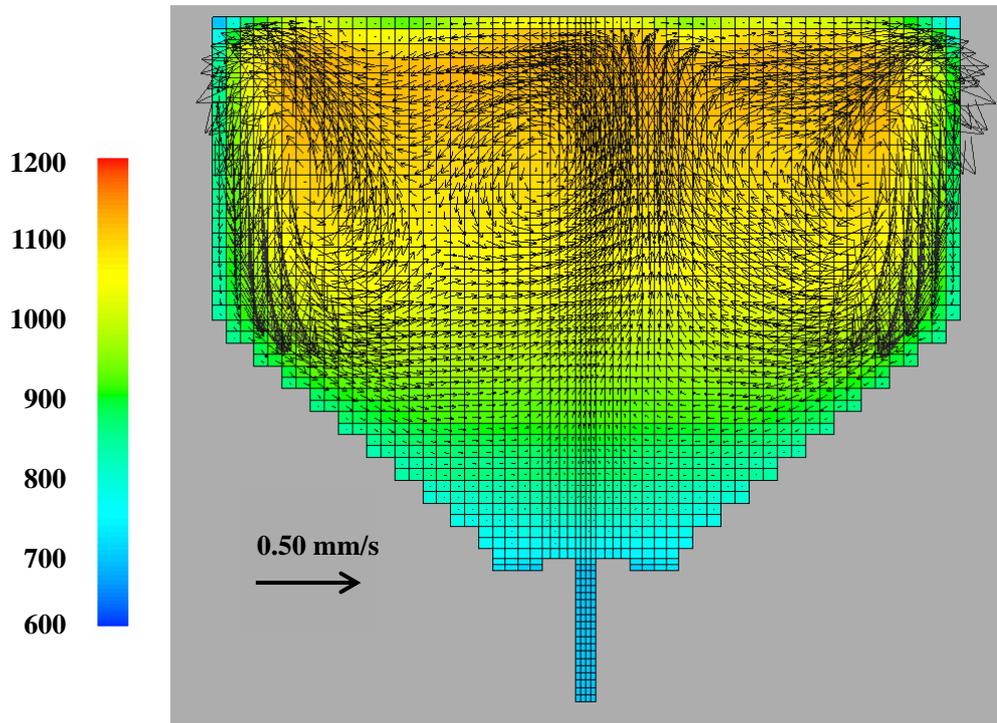


図 4.8 炉底低温運転時の流れ場

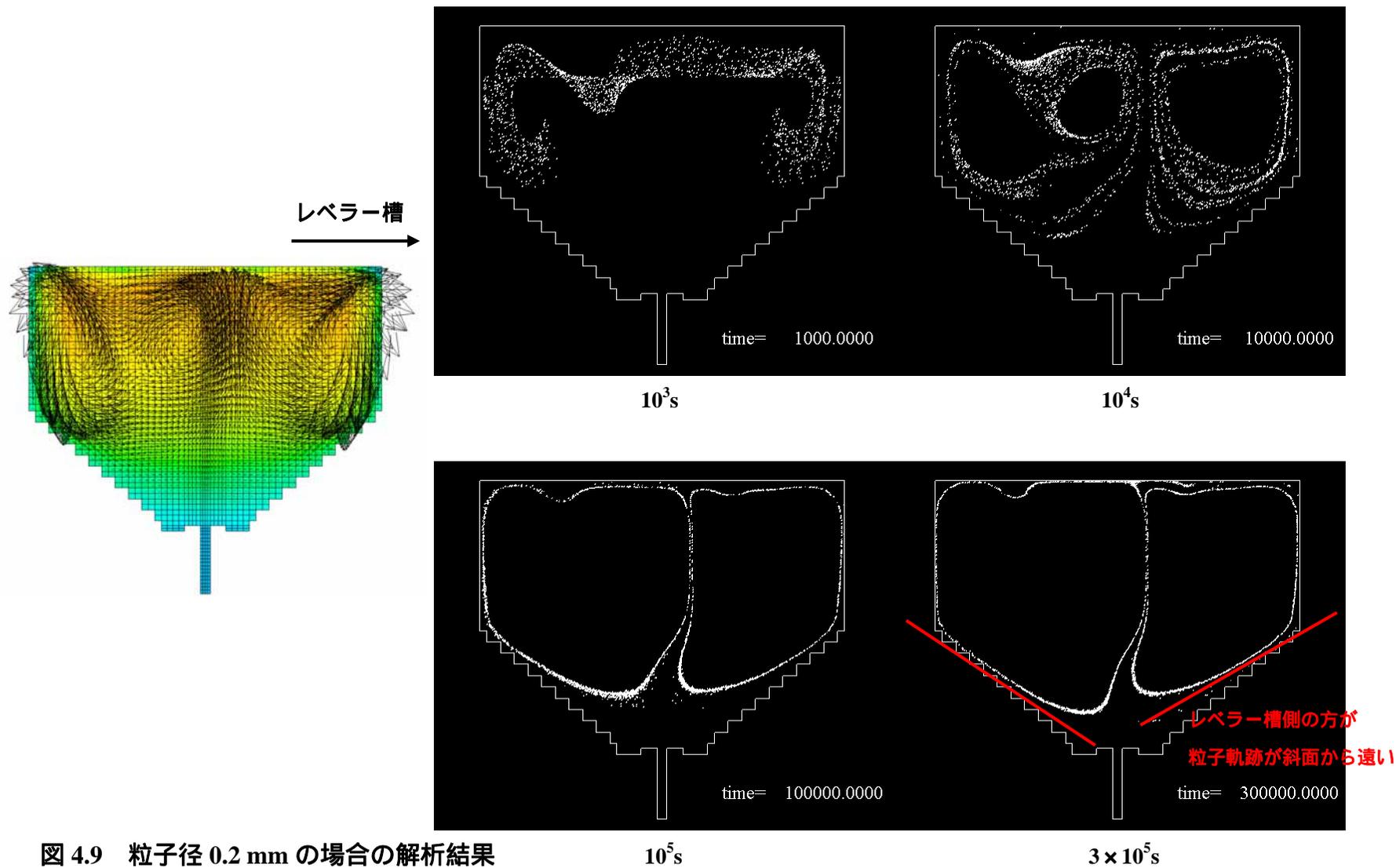


図 4.9 粒子径 0.2 mm の場合の解析結果

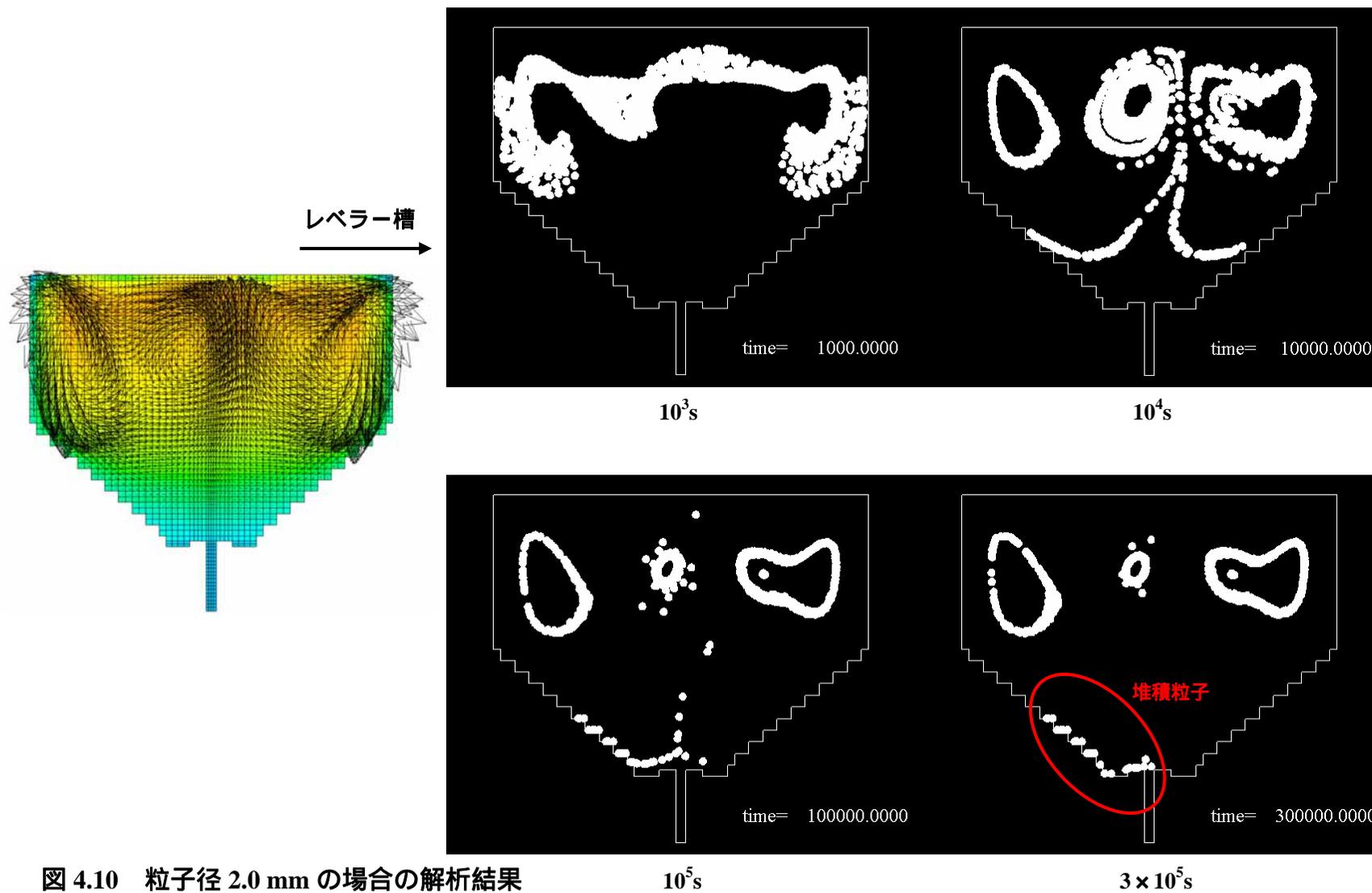


図 4.10 粒子径 2.0 mm の場合の解析結果

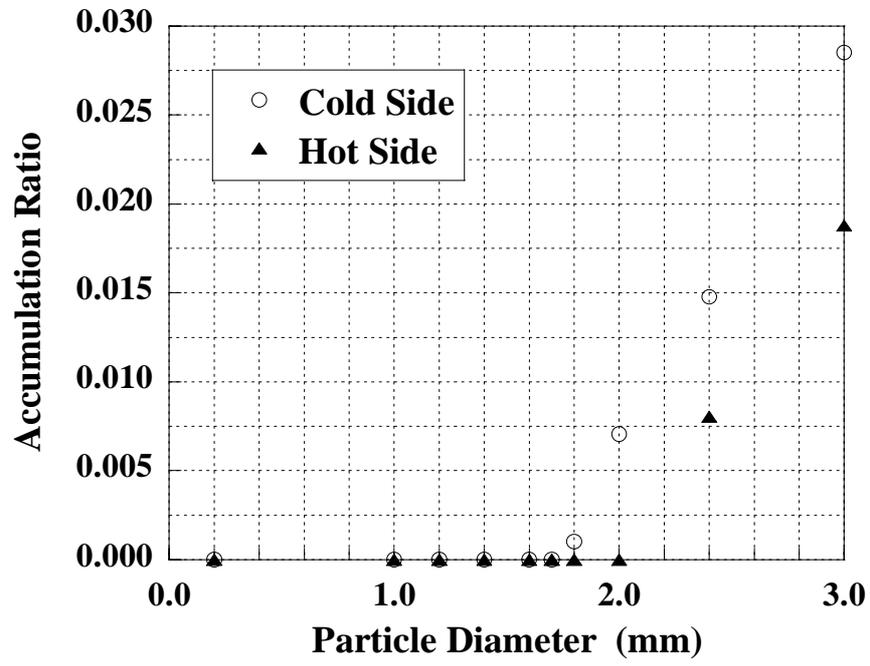


图 4.11 白金族粒子堆積率

4.3 炉底高温運転時の粒子挙動

炉底高温運転時(補助電極間温度約 1000)の温度分布・速度分布を図 4.12 に示す。図 4.8 に示すように、炉底低温時は炉底部の粘性が大きくなっているため、傾斜部の中心付近より下側にはほとんど流れが存在しなかったが、炉底高温時は流下ノズル近傍の粘性が小さくなるため、炉底低温時と比較して、傾斜部に沿った下降流がノズル近傍まで到達した。また、電極近傍に下降流速が存在することは両者に共通しているが、炉底低温時には体系中心で上昇流の顕著な領域が見られるのに対し、炉底高温時では中心部に強い上昇流は現れなかった。

図 4.13～図 4.14 に、計算された流れ場を用いて行った粒子挙動解析結果について示す。粒子径は 0.2mm である。炉底低温時も高温時も、粒子は左右 1 つずつの軌道に集中する傾向が見られた。炉底低温時は流下ノズル近傍まで粒子が到達することはなかったが、粒子炉底高温時は流れ場がより流下ノズルに近い位置まで発達するため、それに伴い、粒子軌跡も流下ノズル近傍を通るものとなった。また、粒子軌跡が炉底低温時より炉底傾斜部に近くなった。

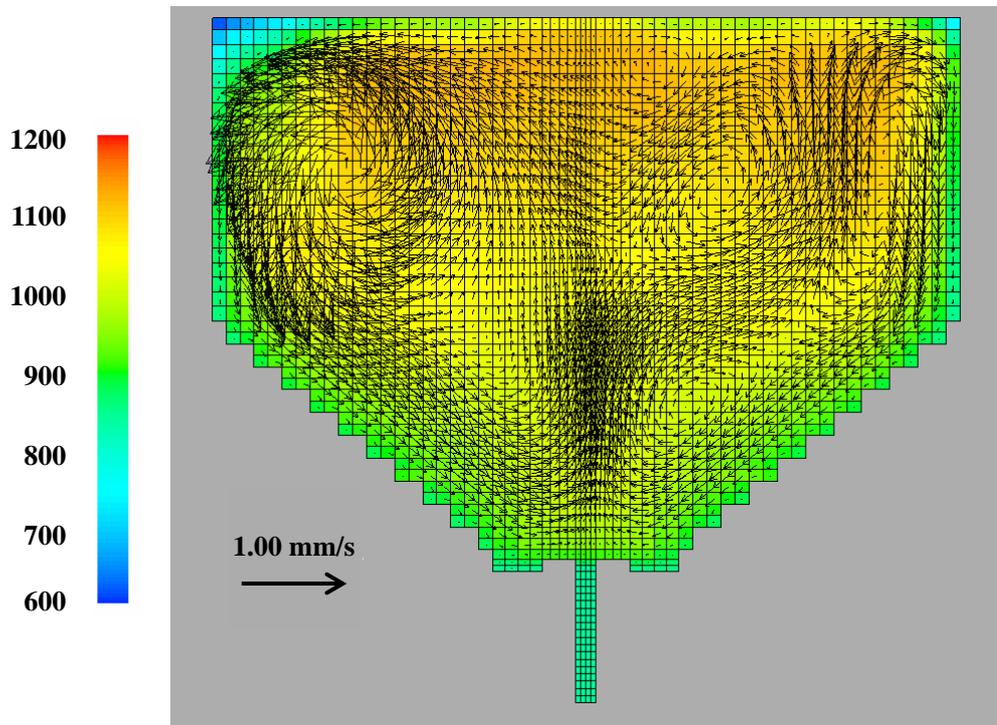
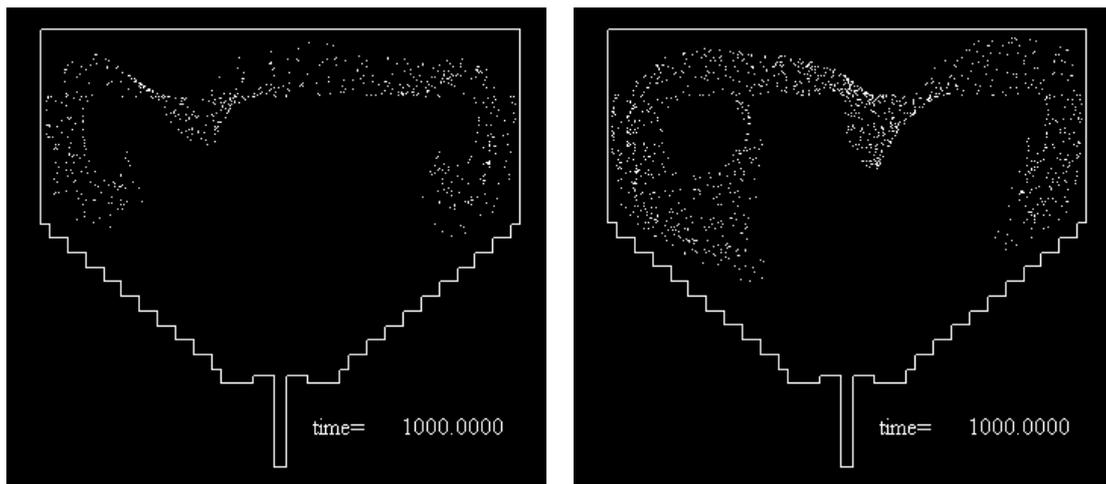


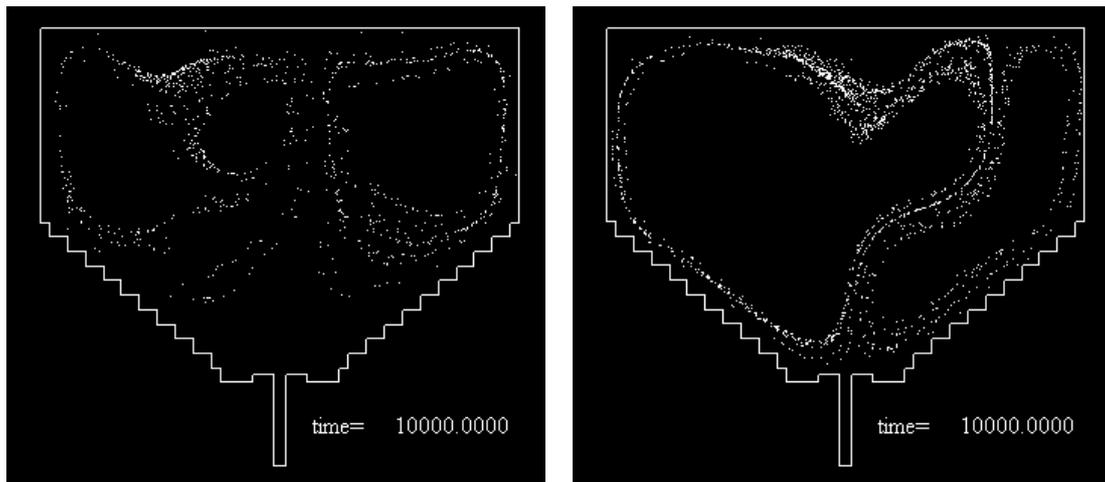
図 4.12 炉底高温運転時の流れ場



炉底低温時

炉底高温時

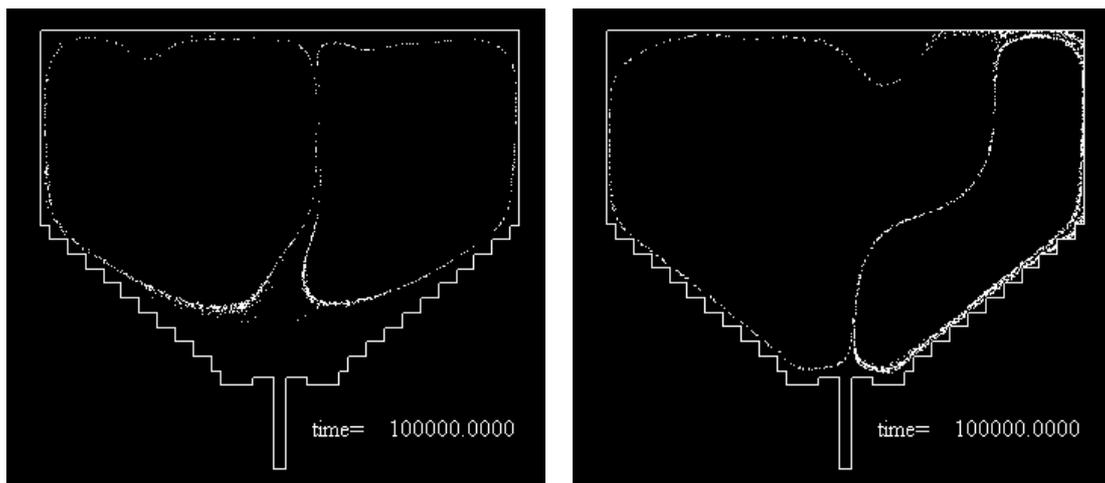
図 4.13 粒子径 0.2mm の場合の粒子挙動($t=10^3$ s)



炉底低温時

炉底高温時

図 4.14 粒子径 0.2mm の場合の粒子挙動($t=10^4$ s)



炉底低温時

炉底高温時

図 4.15 粒子径 0.2mm の場合の粒子挙動($t=10^5$ s)

4.4 ガラス流下モード時の粒子挙動

ガラス流下運転時の粒子挙動を解析した。流下時の流れ場を計算し、4.2, 4.3 項の粒子分布を初期条件として、流下時の粒子挙動を解析した。ただし、粒子径は全て 0.2 mm とした。図 4.16 に解析方法を示す。まず、炉内に 3000 個の白金族粒子を挿入し、炉底低温 or 炉底高温運転時の速度場を用いて t_h 秒間の粒子挙動を計算した。ただし、本解析では、実機の運転条件より $t_h=50,000$ 秒とした。次に、 t_h 秒における炉内粒子分布を初期条件にして、流下運転時の流れ場を用いて t_s 秒間の粒子流下挙動を計算した。ここまでする。その後、 t_s 秒における粒子分布において再び 3000 個の白金族粒子を発生させ、同じ手順で次のサイクルの計算を行った。

図 4.17 にガラス流下時の温度分布・流速分布を示す。ただし、流速の向きが分かるように、ベクトルの大きさは等しくしてある。FLOWMEL はガラス流下時の解析ができないため、流下直前状態の温度場をもとに、流出口に TVF1 号炉の値と等しい流下流速を与えて解析を行った。解析は 2 次元で行っているため、炉内の水平断面における平均下降流速は実機より 5~20 倍程度大きくなり、解析においてはガラスの流下が実機より速やかに行われる。そのため、解析結果の抜出しプロファイルにおいて、白金族濃度が一定値(約 0.5 wt%)に収束する時間が、実機における収束時間と一致するように、解析における流下時間を決定した。その結果、おおよそ実機の 1/10 の流下時間となったため、実機における流下時間は 10,800 秒(3h)に対し、解析における流下時間を $t_s=1,080$ 秒と定めた。

図 4.18 及び図 4.19 に、第 1 サイクルにおける、炉底低温及び炉底高温運転後のガラス流下時の粒子挙動解析結果を示す。炉底低温運転時は、炉底近傍の低温領域(高粘性領域)には粒子が流れ込まないため、粒子軌道が炉底から離れて存在した。そのため、ガラス流下開始後 $0.1t_s$ 秒程度経過してから粒子の流下が起こった。その後、 $0.5 t_s$ 秒までに粒子の流下数は減少し、それ以後はほぼ一定値になった。一方、炉底高温運転時には、炉底近傍でも粘性が小さいため、粒子軌道が炉底近傍に存在した。そのため、ガラス流下開始後間もなく粒子の流下が始まった。その後、 $0.1 t_s$ 秒程度までに粒子流下数が減少し一定値に落ち着いた。解析結果から求めた粒子抜出しプロファイルを、図 4.20 に示す。ただし、横軸は流下時間(試験と解析で異なる流下時間を使用)で無次元化した時間、縦軸は流下ガラス中の白金族濃度である。解析における炉底低温及び炉底高温運転後の抜出しプロファイルを比較すると、炉底高温の場合は流下開始後直ちに濃度が上昇し、 $0.02 t_s$ 秒程度で白金族濃度のピークが現れ、その後、速やかに減少して $0.1 t_s$ 秒以降はほぼ一定値となった。一方、炉底低温の場合、ガラス流下開始後 $0.05 t_s$ 秒程度までは濃度は 0 であるが、その後、濃度が上昇し、流下開始後 $0.15 t_s$ 秒でピークとなった。ピーク後は、高温の場合よりも緩やかに濃度が減少して、 $0.3 t_s$ 秒以降はほぼ一定値となった。試験結果と比較すると、炉底高温の場合、ピーク値の計測されるタイミングは合っていたが、初期($0.0 t_s$ 秒 ~ $0.2 t_s$ 秒)における濃度を解析では低く評価した。また、炉底低温の場合、濃度が一定値に落ち着く時間帯はほぼ一致したが、試験ではガラス流下開始直後から高い粒子濃度が計測されているのに対し、解

析では流下開始直後の濃度は 0 であった。図 4.21 に白金族の抽出率の時間変化を示す。試験結果と比較して、炉底低温・炉底高温運転共に、解析結果は明らかに抽出率が低くなった。

図 4.22 及び図 4.23 に第 7 サイクルにおけるガラス流下時における粒子挙動を示す。炉底低温の場合、第 1 サイクルと比較すると、初期状態において炉底近傍に粒子が存在した。これは、第 6 サイクルの流下操作時において流下できなかった粒子が、炉底近傍の高粘性領域に残留したためである。これらの粒子が初期に流下するため、第 1 サイクルの場合よりも早期に抽出しが開始された。炉底高温の場合は、第 1 サイクルの場合と粒子分布自体に大きな差はないが、炉内の粒子数が第 1 サイクルよりかなり増大した。これは、第 6 サイクルまでに流下できなかった粒子が炉内に蓄積されているためである。第 7 サイクルの抽出しプロファイルを図 4.24 に示す。炉底低温の場合、ガラス流下開始直後の時間帯における抽出しが生じており、第 1 サイクルと比較すると、試験結果との一致性が高まった。ただし、試験結果では顕著なピークは現れないプロファイルとなっているため、その点において両者は異なった。炉底高温の場合、ガラス流下開始初期の時間帯($0 t_s$ 秒 ~ $0.2 t_s$ 秒)における粒子の抽出し量が増加しており、この時間帯において試験結果のプロファイルと良い一致を示した。図 4.25 に白金族粒子抽出率の時間変化を示す。流下開始初期は炉底高温の抽出率が高く、その後、炉底低温の抽出率が増加し、炉底低温の抽出率が高くなった。そして、最終的に炉底低温の抽出率はわずかに炉底高温を上回った。この傾向は試験結果と一致しており、全体的に試験結果と良く一致する抽出率変化が得られた。炉底高温運転後の流下において抽出率が低下するのは、粒子軌跡が斜面部の近傍に存在するからである。斜面近傍ではガラス流速が小さくなっているため、斜面部近傍の粒子はなかなか流下しない。炉底低温運転後の流下では、炉底高温の場合より粒子が中心に近い(斜面から離れた)領域を通して流下するため、よりスムーズな粒子の抽出しが可能となっている。

図 4.26 に各サイクルにおける流出粒子率(各サイクルにおける流出粒子数と挿入粒子数の比)を示す。第 1 サイクルでは、炉底低温運転で約 0.7、炉底高温運転で約 0.35 の流出率となった。流出率はサイクルが進むと増加し、炉底低温運転では第 5 サイクル、炉底高温運転では第 10 サイクルにおいて、流出粒子率が約 1.0 となり、挿入粒子数と流出粒子数がバランスした。挿入と流出がバランスするまでの両者の差の積分が、炉内に蓄積される粒子数となる。各サイクルにおける炉内蓄積粒子率(各サイクルにおける流下後の炉内残留粒子数と挿入粒子数の比)を図 4.27 に示す。炉内蓄積粒子率は、バランスした状態において、炉底低温で約 0.45、炉底高温で約 1.7 となっており、炉底低温運転を行った方が効率良く白金族粒子を抜き出せることが分かった。

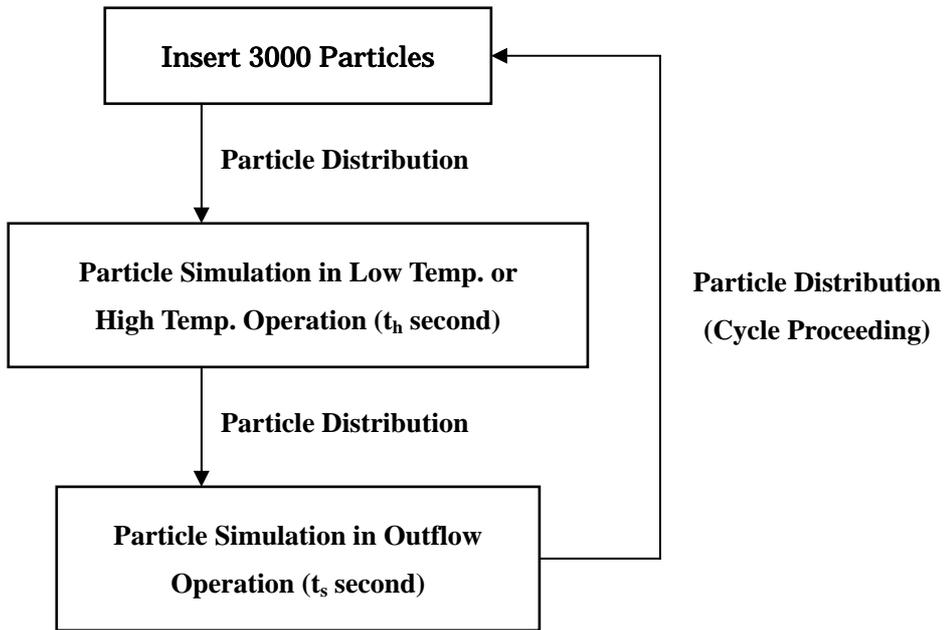


図 4.16 解析の FLOWCHART

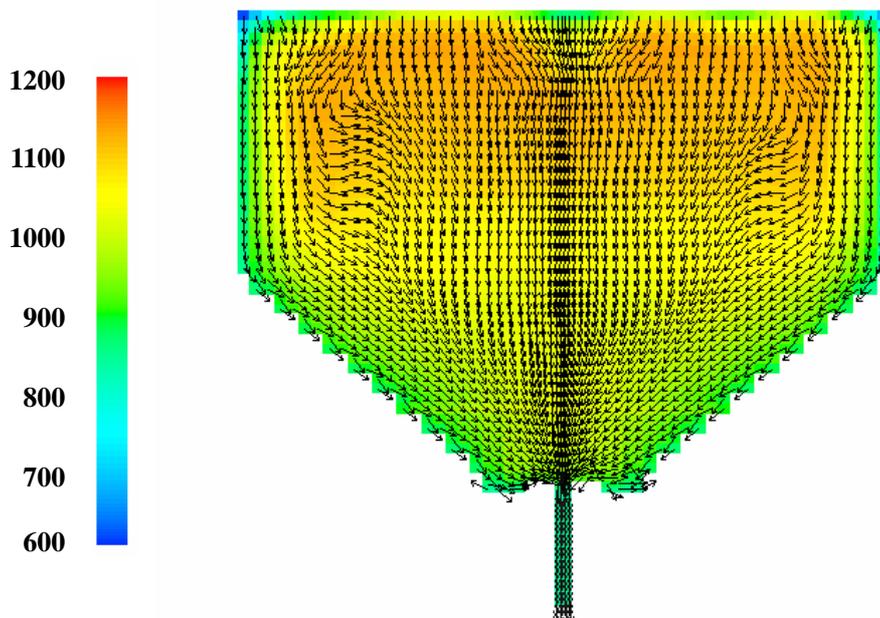


図 4.17 流下運転時の流れ場

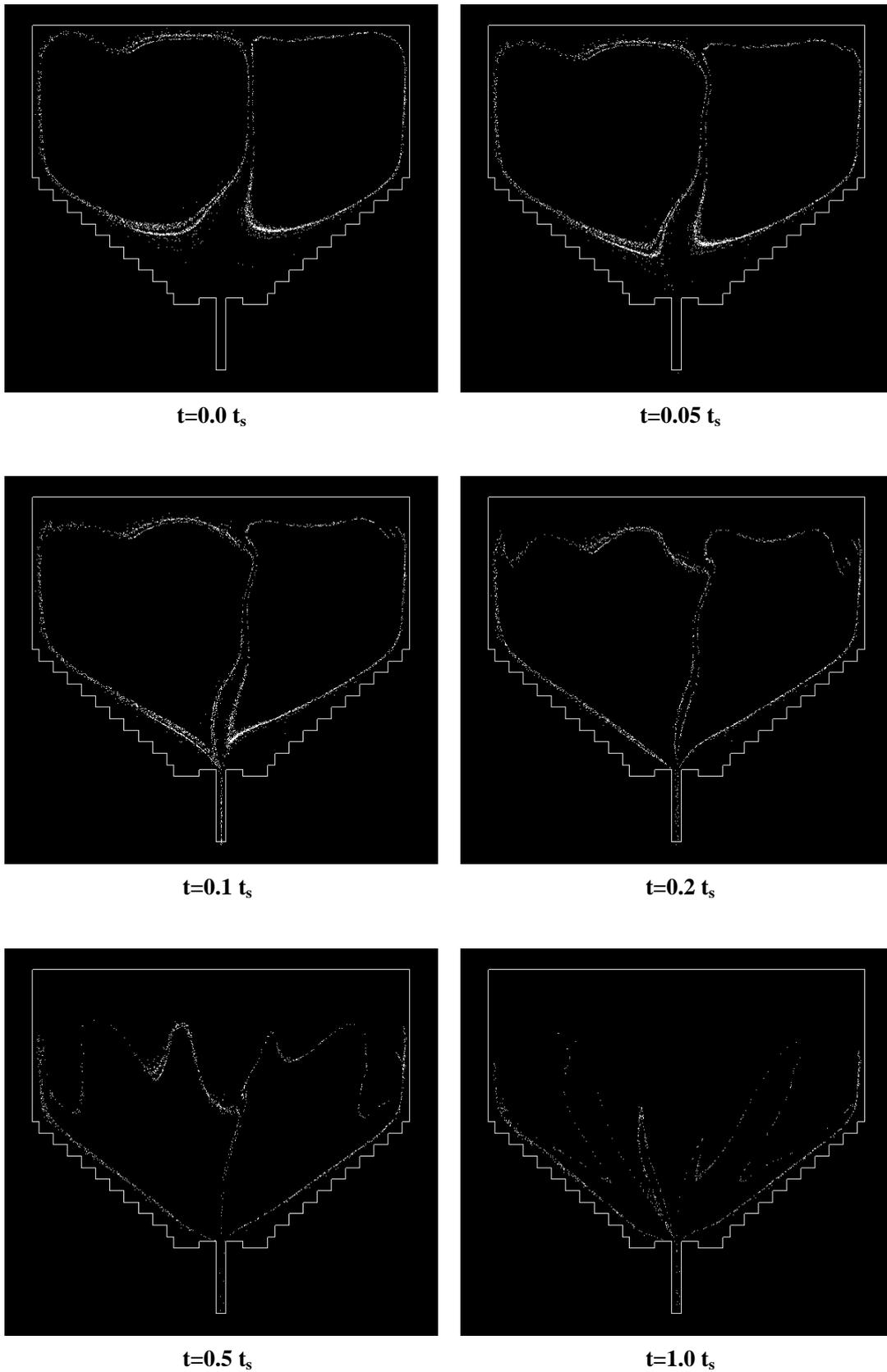


図 4.18 粒子挙動(炉底低温運転後の流下、第1サイクル)

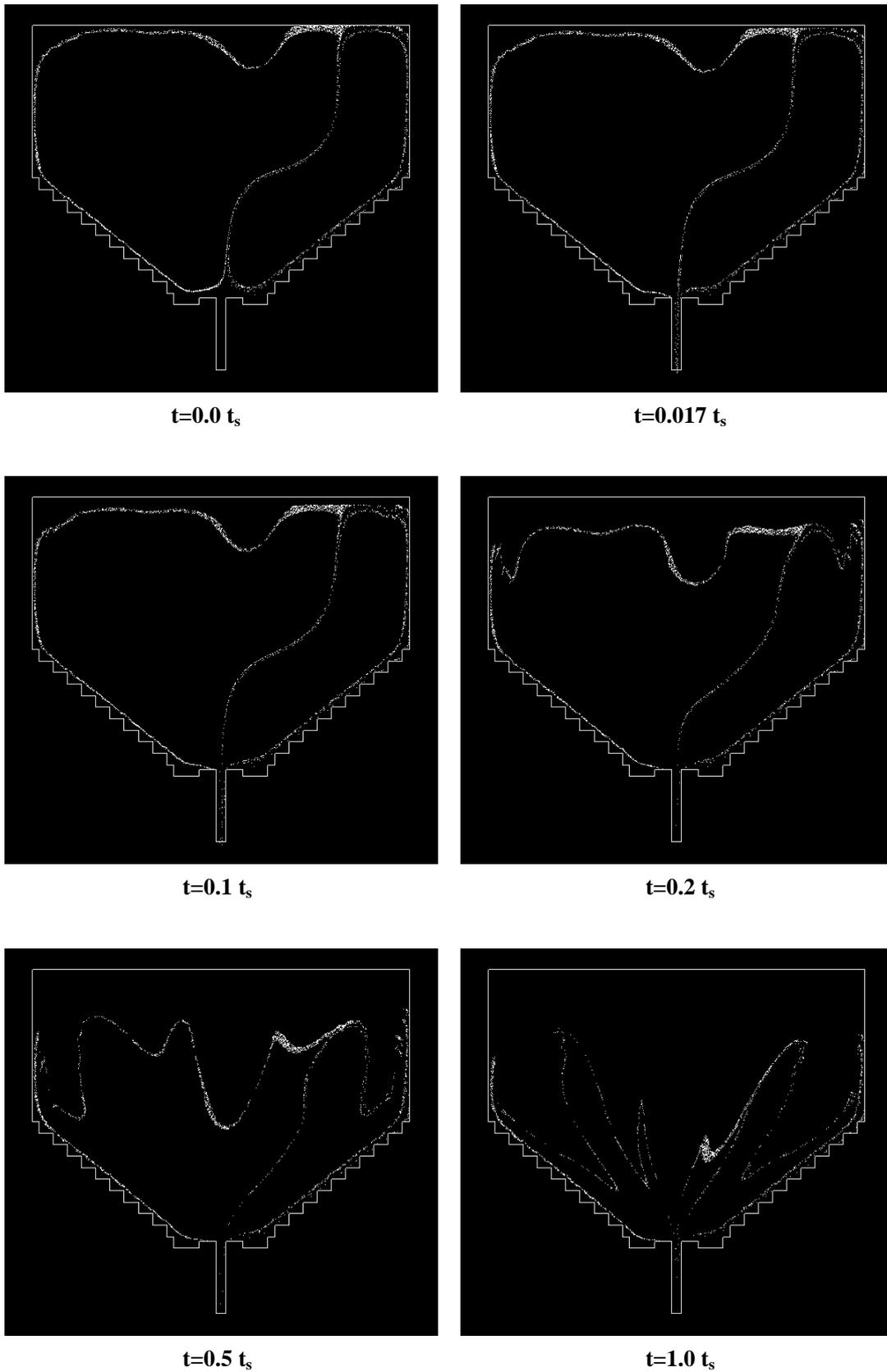


図 4.19 粒子挙動(炉底高温運転後の流下、第1サイクル)

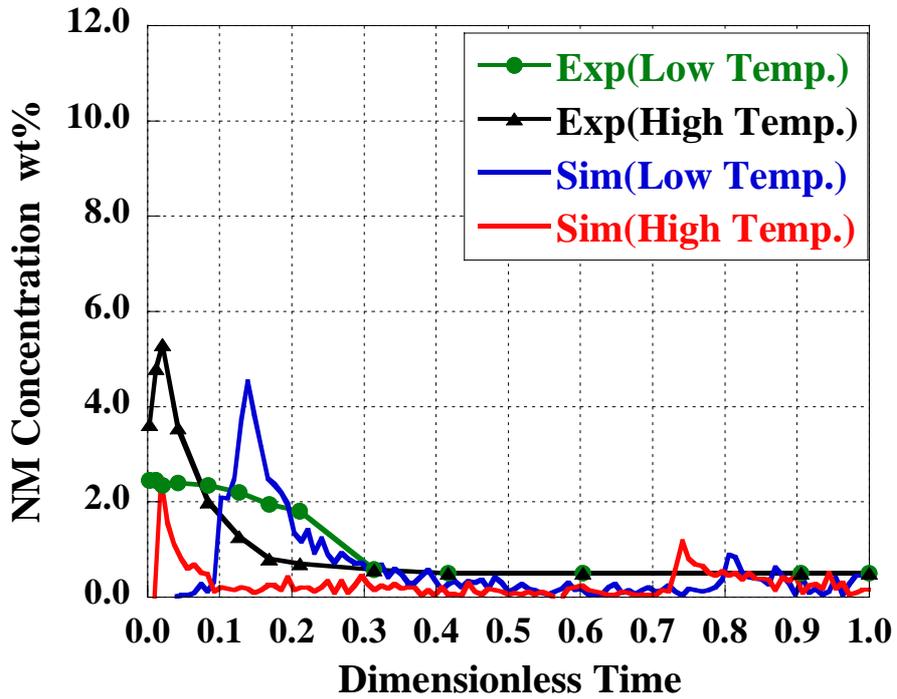


図 4.20 白金族粒子抽出しプロファイル(第 1 サイクル)

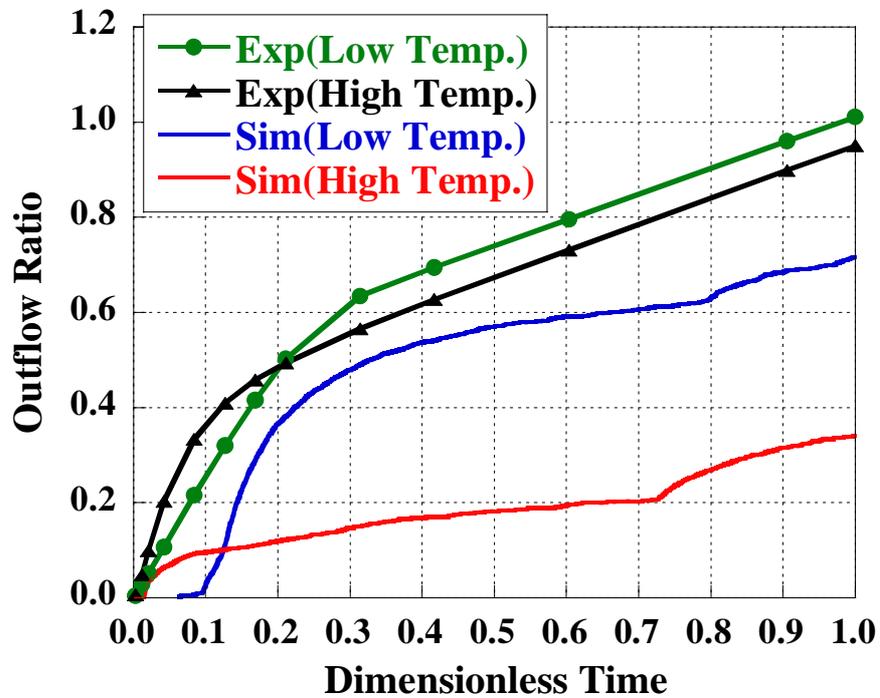


図 4.21 白金族粒子抽出し率(第 1 サイクル)

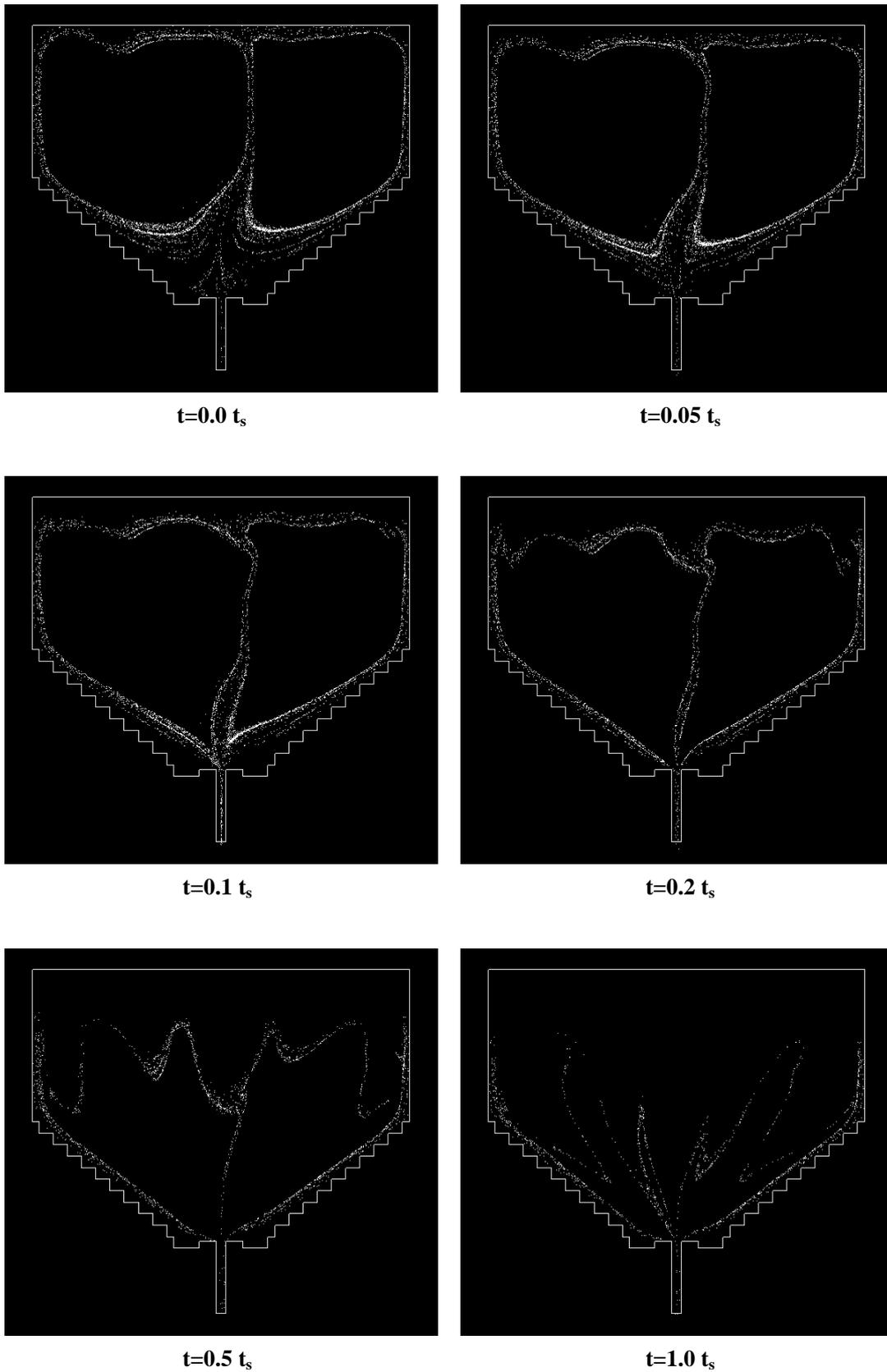


図 4.22 粒子挙動(炉底低温運転後の流下、第7サイクル)

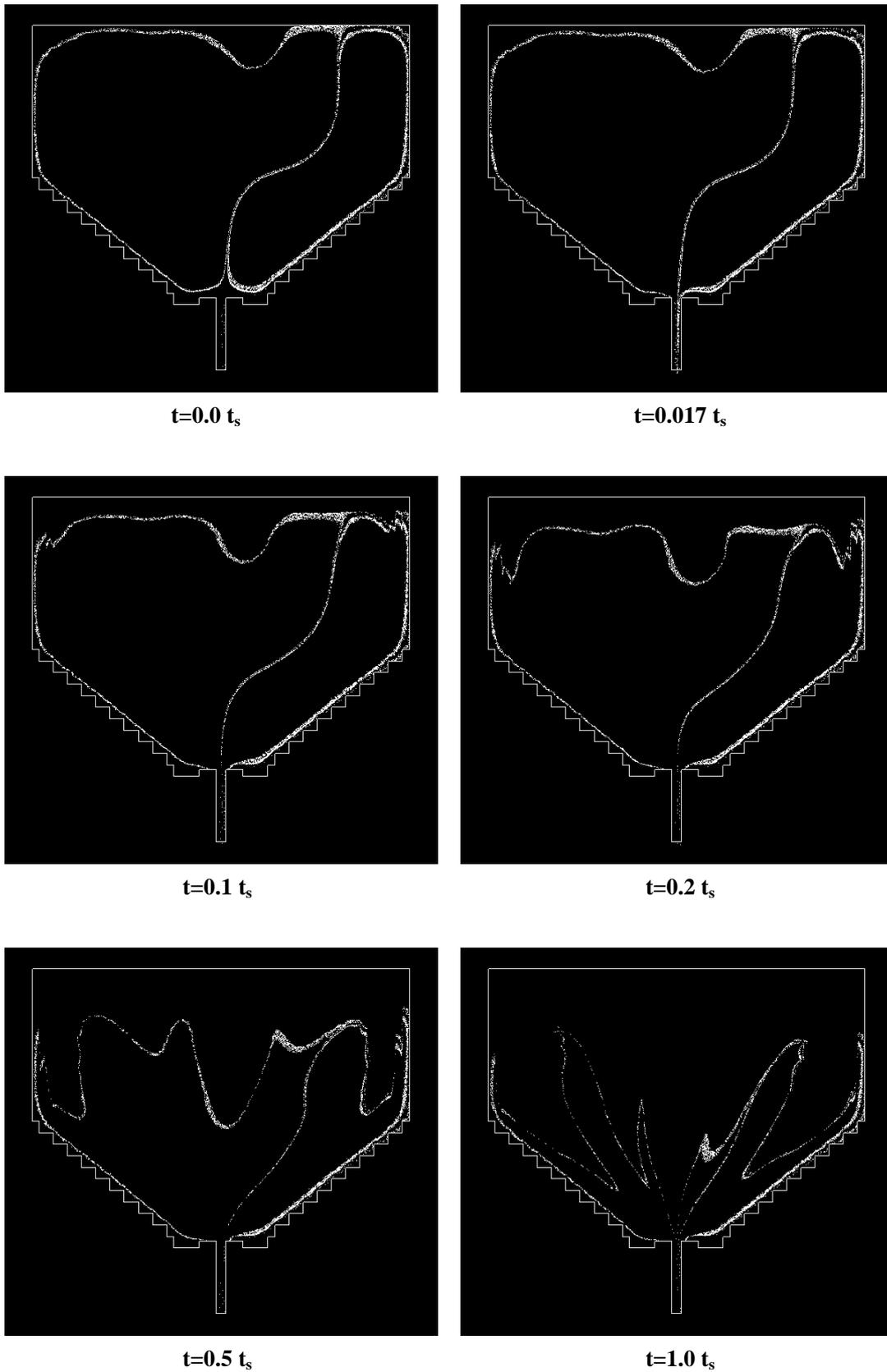


図 4.23 粒子挙動(炉底高温運転後の流下、第7サイクル)

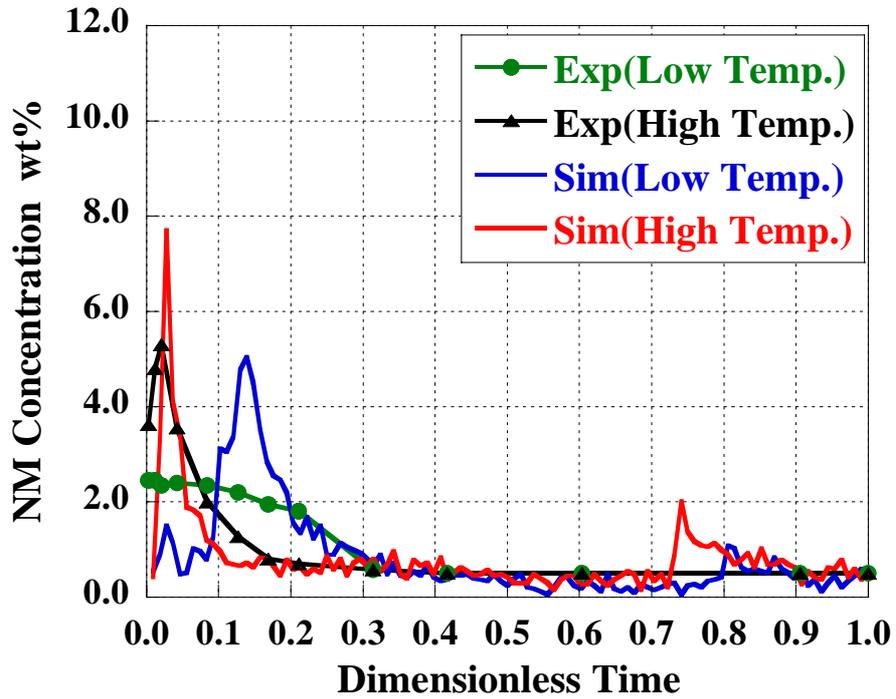


図 4.24 白金族粒子抽出しプロファイル(第7サイクル)

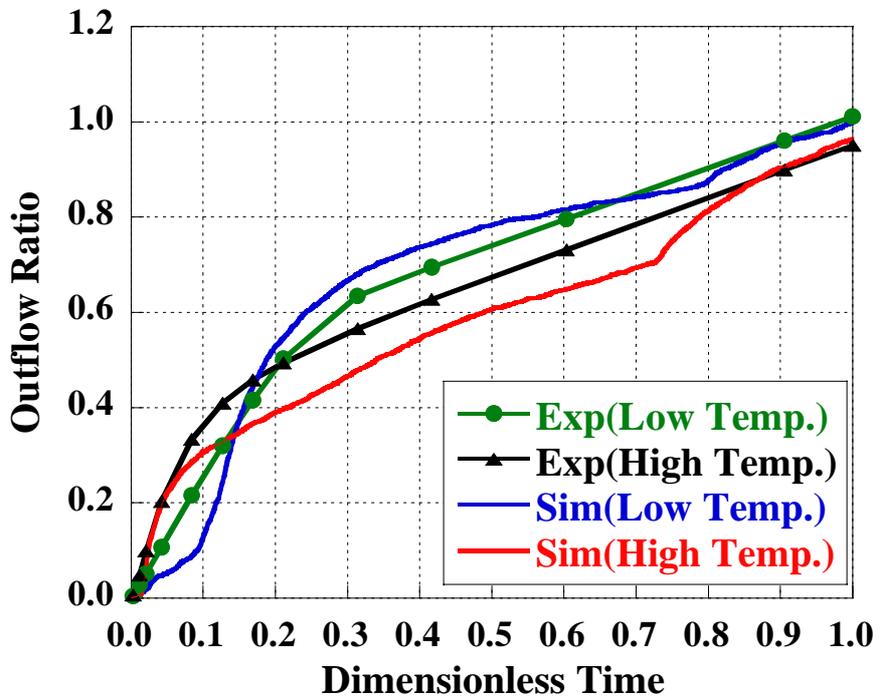


図 4.25 白金族粒子抽出し率(第7サイクル)

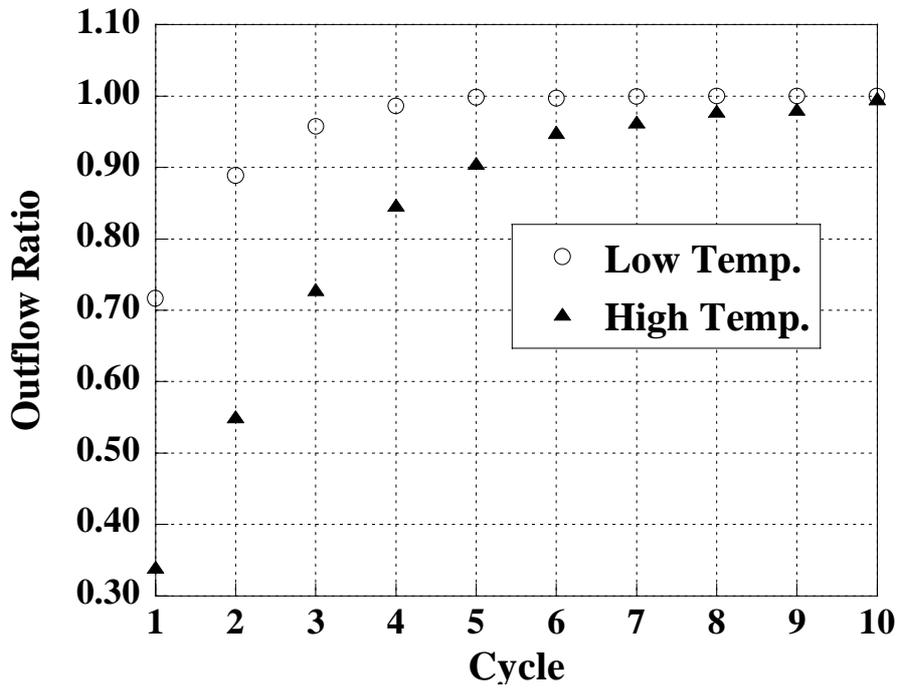


图 4.26 流出粒子率

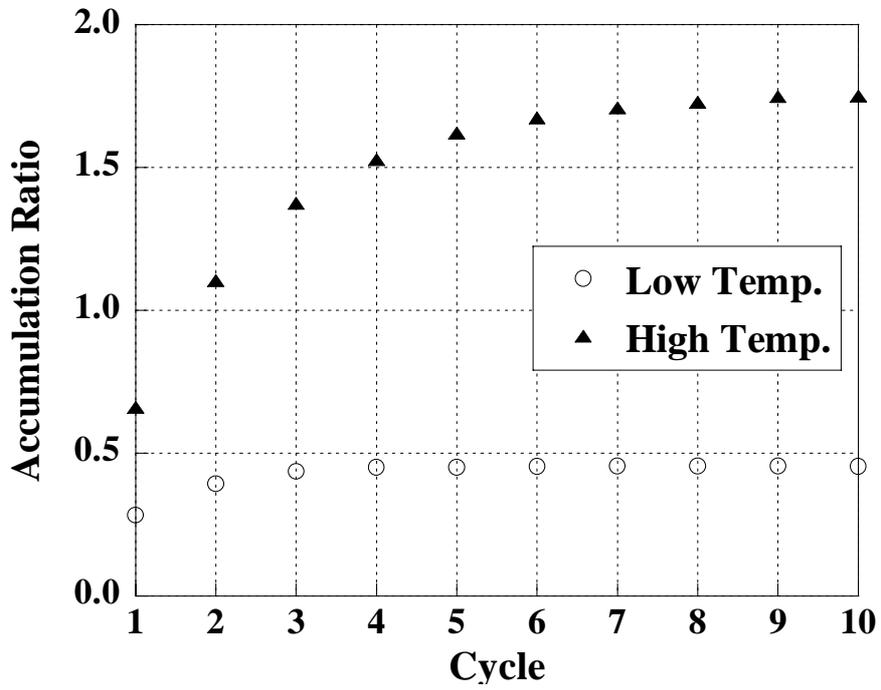


图 4.27 炉内蓄積粒子率

4.5 白金族粒子抽出率のガラス流下速度依存性

白金族粒子抽出率のガラス流下速度依存性を調査するために、ガラス流下速度をパラメータとし、実機における、20, 30, 40, 50, 60, 80, 100kg/h の各条件において流下解析を行った。ただし、解析の境界条件としては、流下ノズル出口における流速が実機と一致するように与えた。

図 4.28 に初期粒子配置を示す。この粒子配置は、4.4 項の炉底低温運転時の流下解析(第 7 サイクル)における流下開始時の粒子配置であり、この状態から、各流下速度で流下を行った。ガラス流下量 100kg まで(流下ガラス中の白金族濃度がほぼ一定に落ち着くまで)を解析対象とするため、解析時間は、それぞれ、1800, 1200, 900, 720, 600, 450, 360s とした。これは、4.4 項において 80kg/h で行った解析より、100kg 流下するまでの時間を 450s と定め、各流速の大きさに応じて決定したものである。

図 4.29~図 4.35 に、各流下速度における、炉内流速分布及び 100kg 流下後の炉内粒子分布を示す。20, 30kg/h の場合、流下速度が炉内流速分布に与える影響は比較的少なく、炉内中央部近傍にいくつかの渦が観測された。粒子はこれらの渦にトラップされるため、流下する粒子数は少なくなった。40~60kg/h においては、流下速度の影響が大きくなるため、炉内中央部近傍の渦は顕著でなくなり、電極近傍に左右対称な 1 対の渦が見られるだけとなった。白金族粒子は、ほとんどトラップされることなく、ノズルに向かって流下した。80, 100kg/h では、更に流下速度の影響が強まり、電極近傍の渦も消失した。白金族粒子抽出プロファイルを図 4.36 に、白金族粒子抽出率を図 4.37 に示す。どちらも、横軸は 100kg 流下するのに必要な時間で無次元化した。20, 50, 80kg/h の場合を示したが、プロファイルは 3 者でおおよそ相似形状となった。また、抽出率は、無次元時間 0.4 程度までは 3 者でほぼ等しいが、その後、50, 80kg/h のケースは、20kg/h のケースよりも大きく上昇した。また、100kg 流下時では、50kg/h の方がわずかに 80kg/h よりも抽出率が良かった。

図 4.38 に白金族粒子抽出率の流下速度依存性を示す。グラフは、50kg/h のあたりでピーク値を取り、それよりも高い流速でも低い流速でも抽出率は低下した。図 4.39 に MU2 号炉および TVF2 号炉における、流下速度と白金族粒子抽出性を示す。TVF1 号炉とは体系が多少異なるものの、試験においてもある流速で抽出率がピーク値を取るような傾向が見られた。このことから、解析は試験結果を定性的に再現しているものと考えられる。流速に対して抽出率がピーク値を取ることにに関して、低い流速において抽出率が低下する現象については、上で述べたように炉内の渦によるトラップが原因である。高い流速において抽出率が低下する現象は、流下速度を変化させた時に炉内流速分布がどのように変化するか依存している。図 4.40 に、 $y=0.30\text{m}$ (ノズル出口から 0.30m 上方の炉底傾斜部の断面)における y 方向流速分布を示す。グラフより、下降流速は、炉の中央部においては、流下速度に追従して大きく変化するが、炉壁近傍(炉底傾斜部近傍)では、流下速度を変化させてもほとんど変化しないことが分かった。100kg 抽出後の粒子分布を見ると、炉底傾斜部近傍に多くの粒子が存在するため、これらの粒子を流下させることが抽出率向上につ

ながる。流下速度を変化させた時、その速度に応じて解析時間も変化させるため、遅い速度の方が流下時間は長くなる。炉壁近傍の速度が同等であれば、時間が長い方が抽出率は良くなるため、流下速度が速くなると抽出率が低下する。

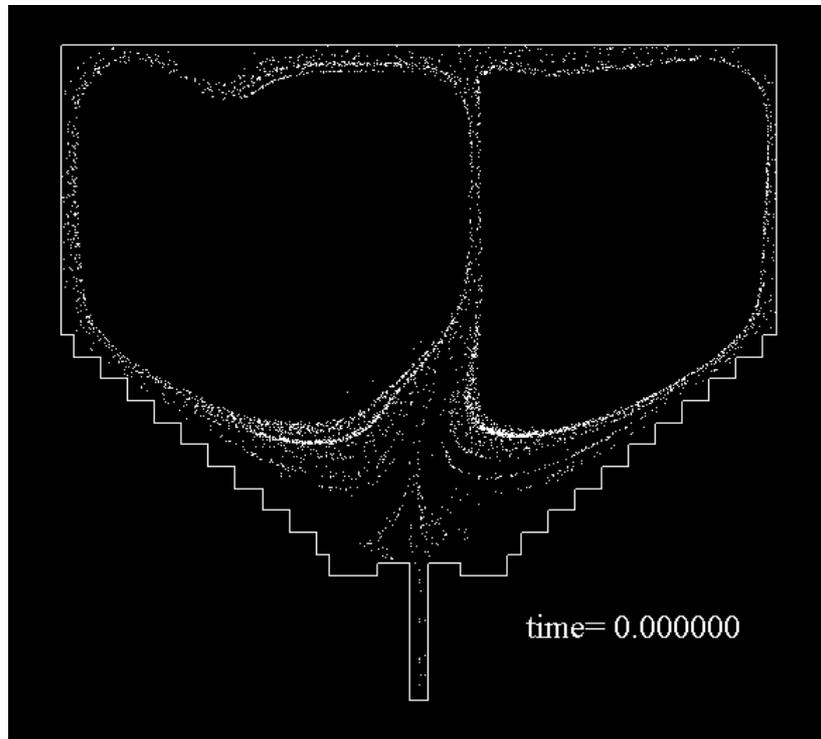


図 4.28 粒子初期配置

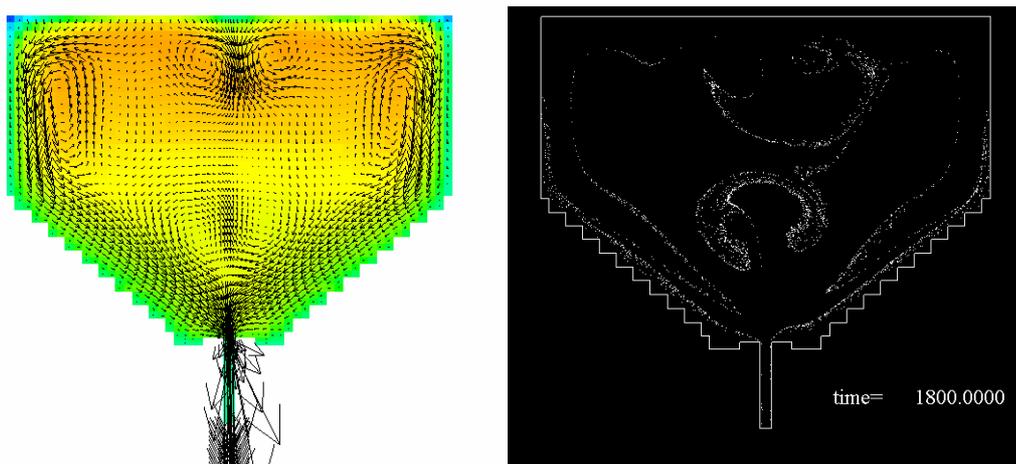


図 4.29 炉内流速分布及び 100kg 流下後の粒子分布(流下速度 20kg/h)

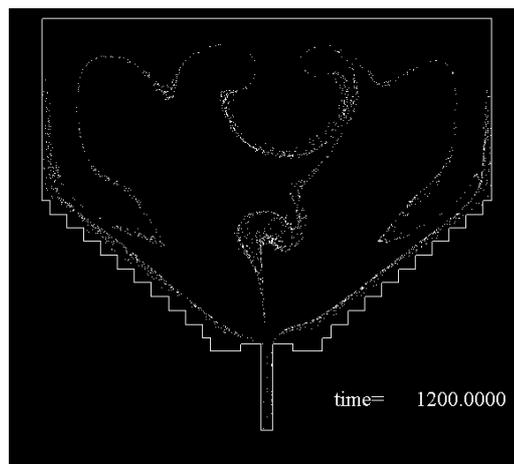
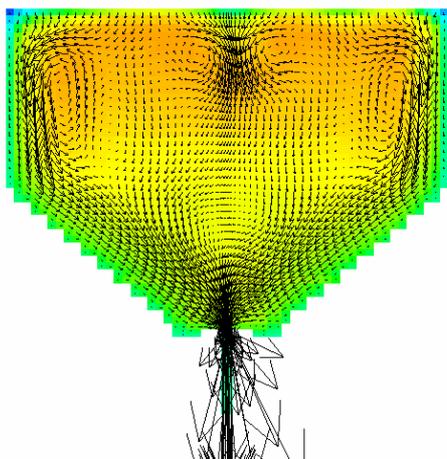


図 4.30 炉内流速分布及び 100kg 流下後の粒子分布(流下速度 30kg/h)

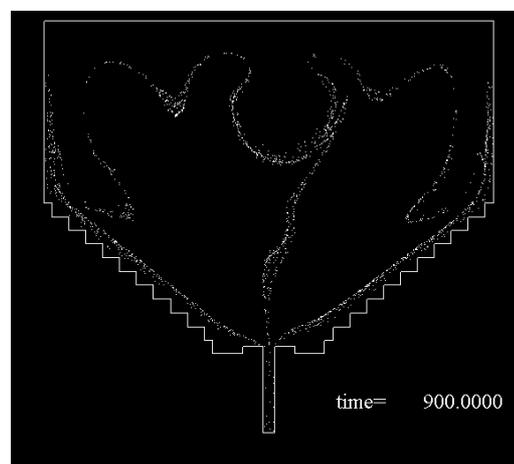
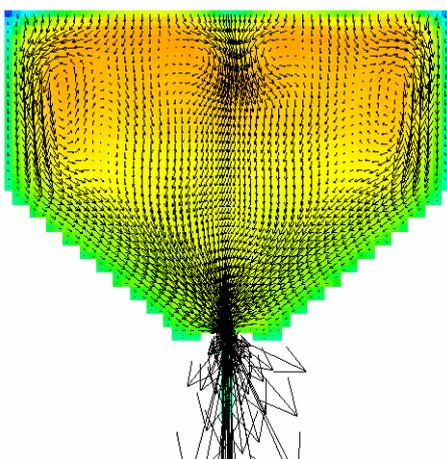


図 4.31 炉内流速分布及び 100kg 流下後の粒子分布(流下速度 40kg/h)

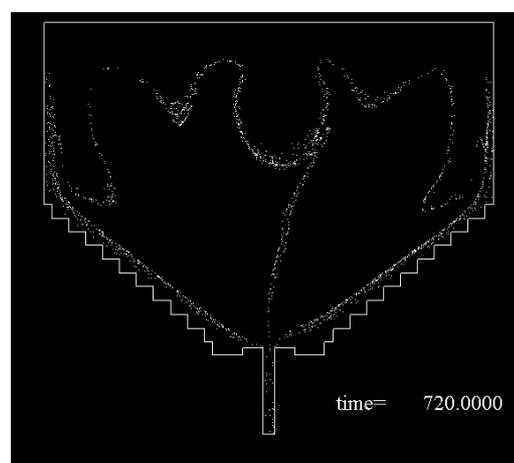
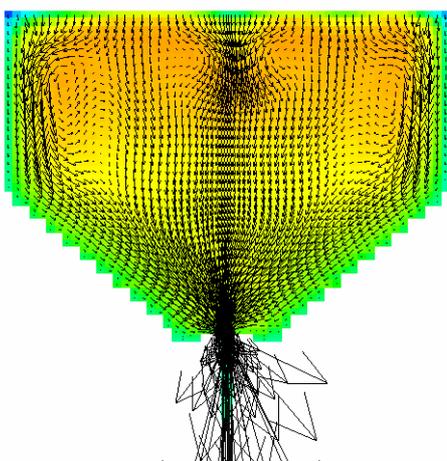


図 4.32 炉内流速分布及び 100kg 流下後の粒子分布(流下速度 50kg/h)

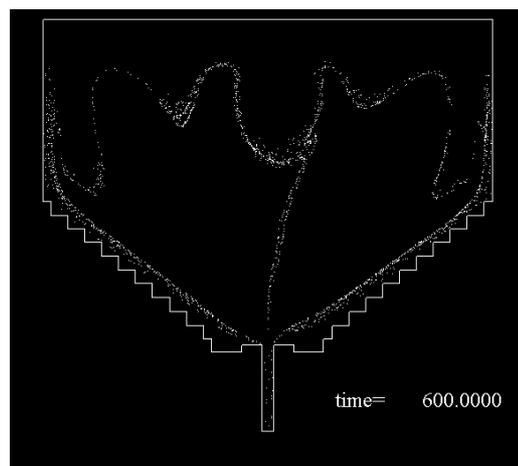
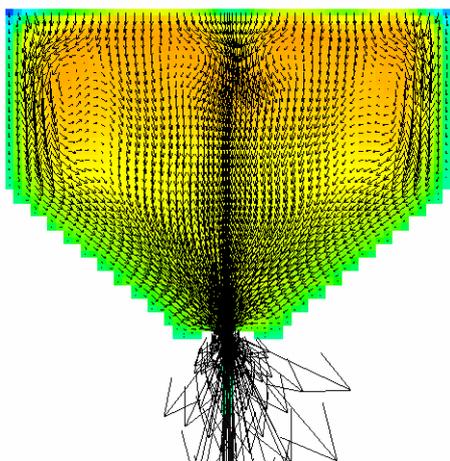


図 4.33 炉内流速分布及び 100kg 流下後の粒子分布(流下速度 60kg/h)

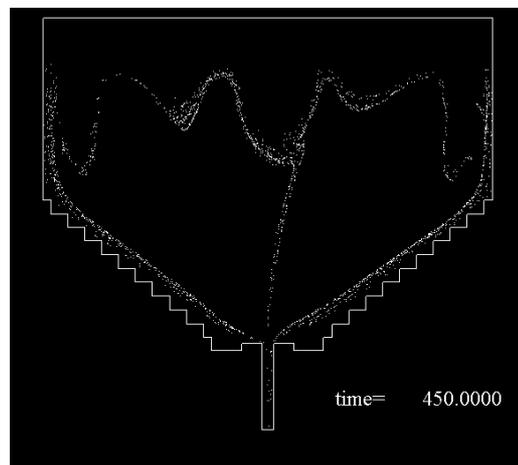
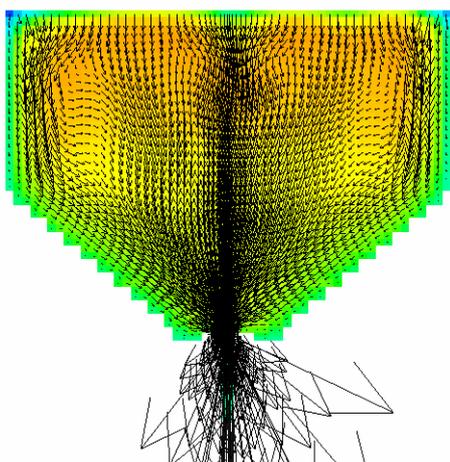


図 4.34 炉内流速分布及び 100kg 流下後の粒子分布(流下速度 80kg/h)

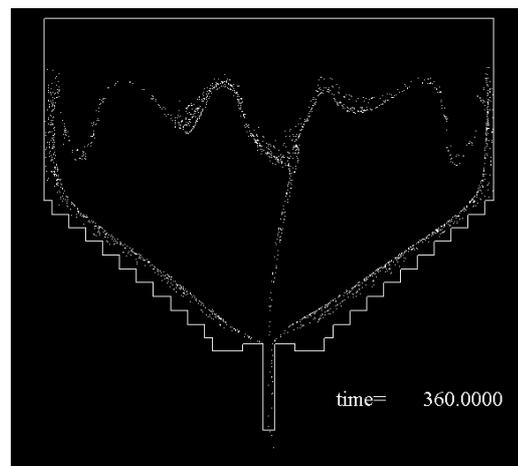
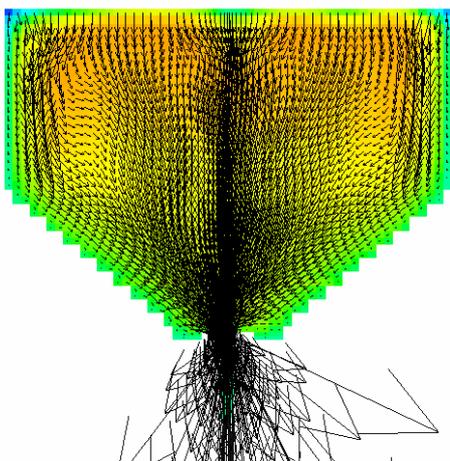


図 4.35 炉内流速分布及び 100kg 流下後の粒子分布(流下速度 100kg/h)

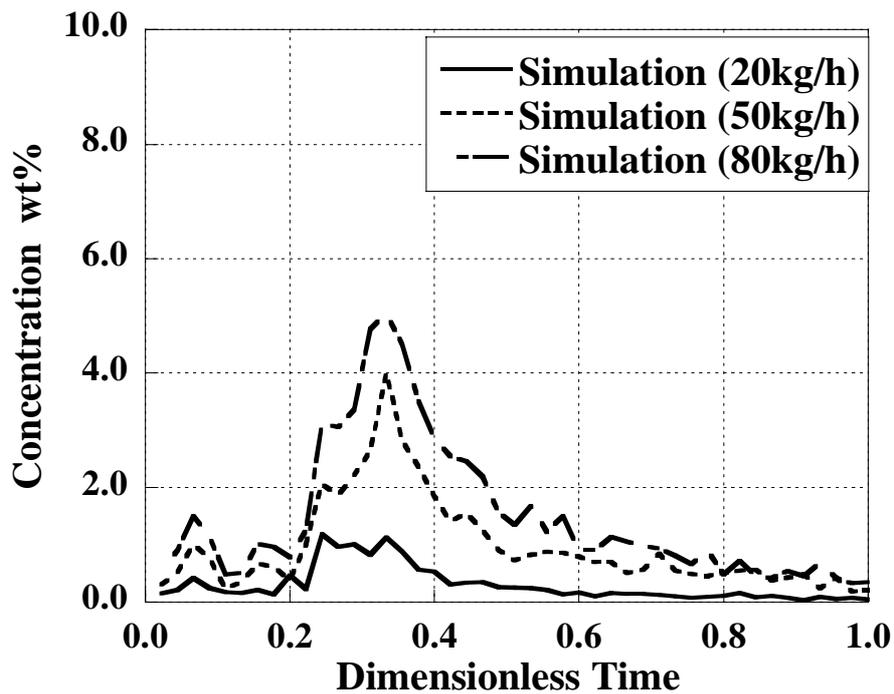


図 4.36 白金族粒子抽出しプロファイル
(流下ガラス量 100kg まで)

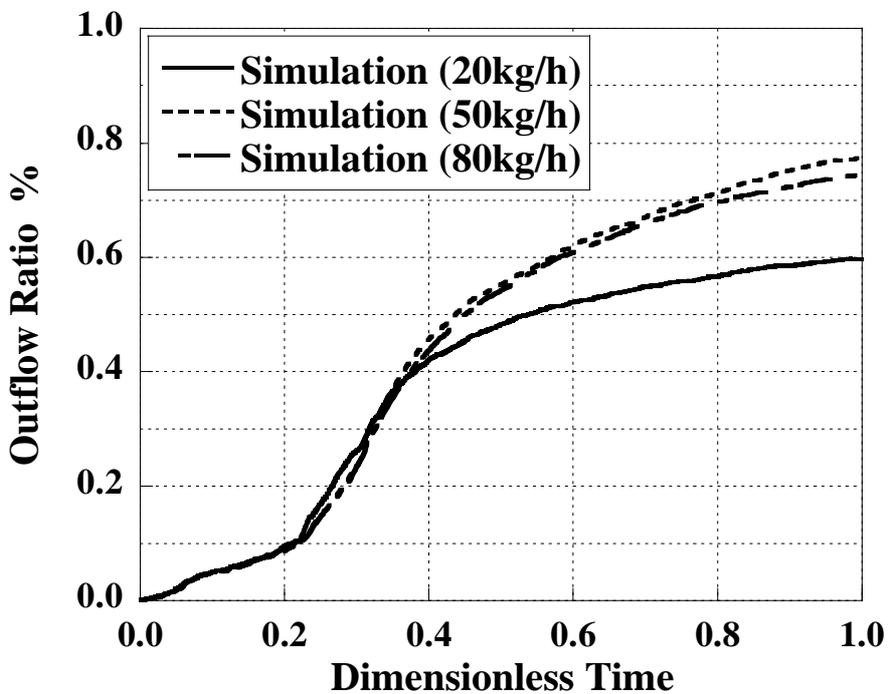


図 4.37 白金族粒子抽出し率
(流下ガラス量 100kg まで)

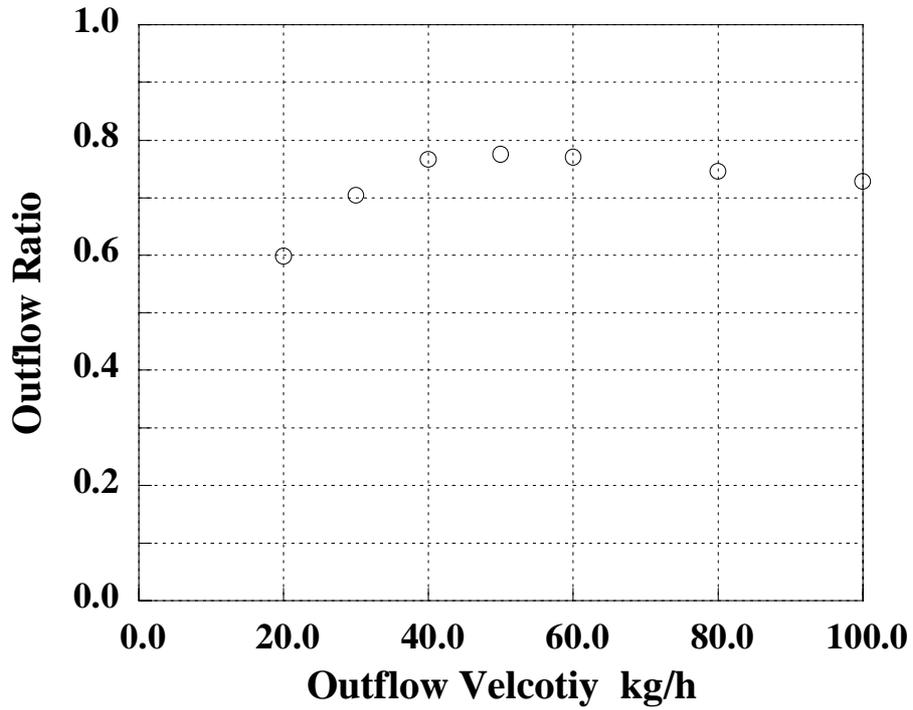


図 4.38 白金族粒子抜き出し率の流下速度依存性
(流下ガラス量 100kg まで)

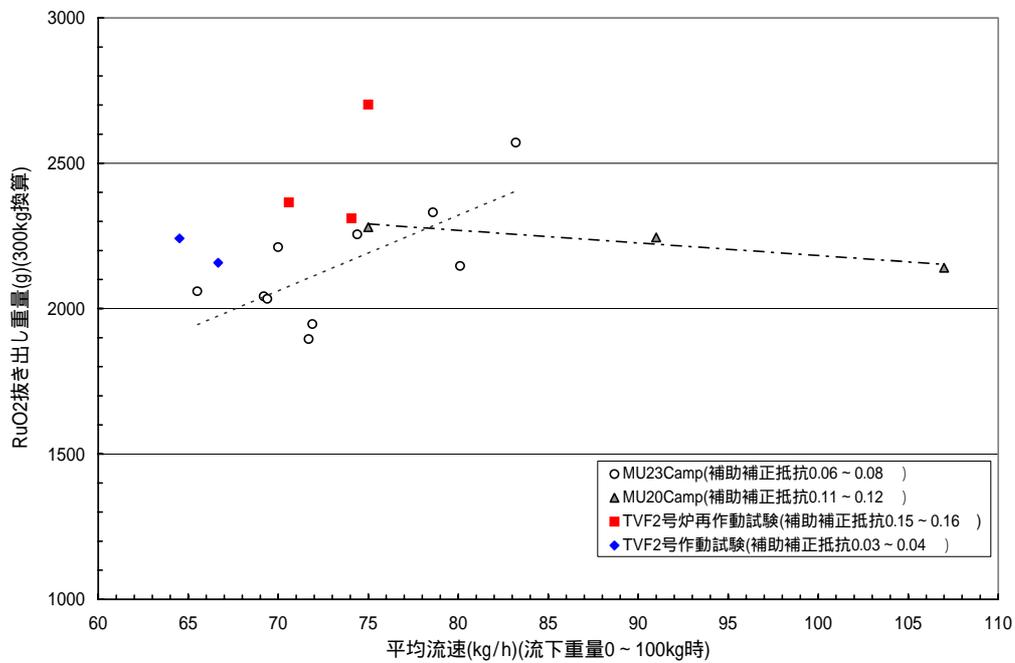


図 4.39 流下速度と白金族粒子抜き出し性

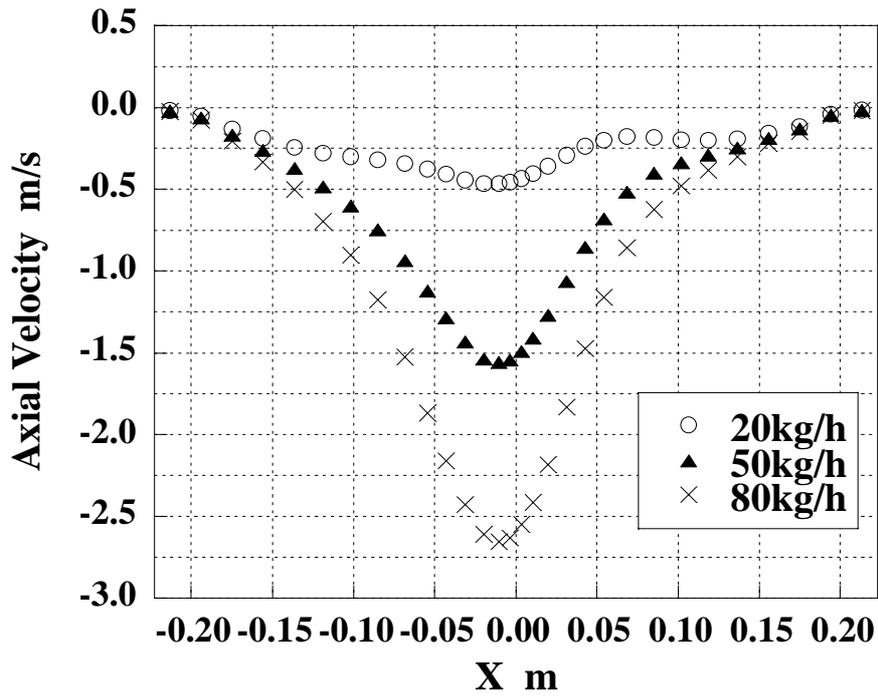


图 4.40 炉内轴方向流速分布(y=0.30m)

4.6 白金族粒子抽出し率に対する炉底温度依存性

白金族粒子抽出し率に対する流下操作前の炉底温度依存性を調査し、最適運転条件決定に対する知見とするために、炉底温度(補助電極間中心温度)をパラメータとし、700, 830, 860, 1000 の各条件において流下解析を行った。ただし、830 および 1000 は、前項までにおける炉底低温および炉底高温運転に相当し、それらの温度場より、700 および 860 の温度場を外挿・内挿によって求めた。

図 4.41 ~ 図 4.44 に各炉底温度における加熱時の温度・流速場および流下直前状態における粒子配置を示す。ただし、全て第 7 サイクルのものである。炉底 700 のケースでは、炉底近傍の粘性が大きいため、炉底近傍ではほとんど流れが存在しなかったが、炉底温度が高くなるにつれて炉底近傍における流速が大きくなり、それに伴い、粒子軌道も炉底に近づいた。

図 4.45 に第 1 サイクルにおける白金族抽出しプロファイルおよび抽出し率を示す。860 のケースは、830 のケースと比較して、抽出しの開始時間が多少早くなったが、流下終了時の抽出し率は 830 の方がわずかに良かった。ただし、両者の挙動に大きな差は見られなかった。700 のケースでは、抽出し開始時間が他のケースと比較してかなり遅くなった。これは、粒子軌跡が流下ノズルから最も離れているためであるが、この影響によって、抽出し率は 830 や 860 のケースよりも低下した。図 4.46 に第 1 サイクルにおける白金族抽出しプロファイルおよび抽出し率を示す。第 7 サイクルにおいては、炉底 1000 以外のケースは準定常状態(挿入粒子数と流下粒子数が等しい)となっており、炉底近傍にトラップされた粒子が初期に流下するため、700, 830, 860 の 3 ケースにおいて、抽出し率に大きな差は見られなかった。

図 4.47 に、流出粒子率および炉内蓄積粒子率を示す。流出粒子率は 1000, 700, 860, 830 の順に大きくなったが、1000 以外の 3 ケースでは、第 5 サイクル以降ほとんど差はなかった。蓄積粒子率は、逆に、830, 860, 700, 1000 の順で増加した。700 の場合は、初期(第 1 サイクル)における蓄積量が多いため、準定常状態における蓄積量も多くなった。

図 4.48 に、炉底温度に対する白金族粒子抽出し率を示す。第 1 サイクルにおいては、800 付近においてピークを持つと予想される分布となったが、第 3~4 サイクルにおいては、1000 以外の 3 温度の抽出し率に差はなくなった。炉底温度 1000 のケースで抽出し率が低下するのは、4.4 項と同様の理由であり、粒子が斜面部近傍を通過して流下するためである。図 4.49 に、モックアップ試験および TVF2 号炉体系における、炉底温度に対する白金族粒子抽出し性を示す。データは 830 以上しか取得されていないが、温度が高くなるにつれて抽出し性が低下する傾向が見られ、この点で解析は試験結果を再現できている。これらの結果より、最も白金族抽出し率が良くなる炉底温度は 800 程度であると予想されるが、700 ~ 860 程度の範囲では抽出し率に本質的な差は見られず、炉底を 900 程度以上に加熱する炉底高温運転を行わない限りは、良好な抽出しが行えるものと考えられる。

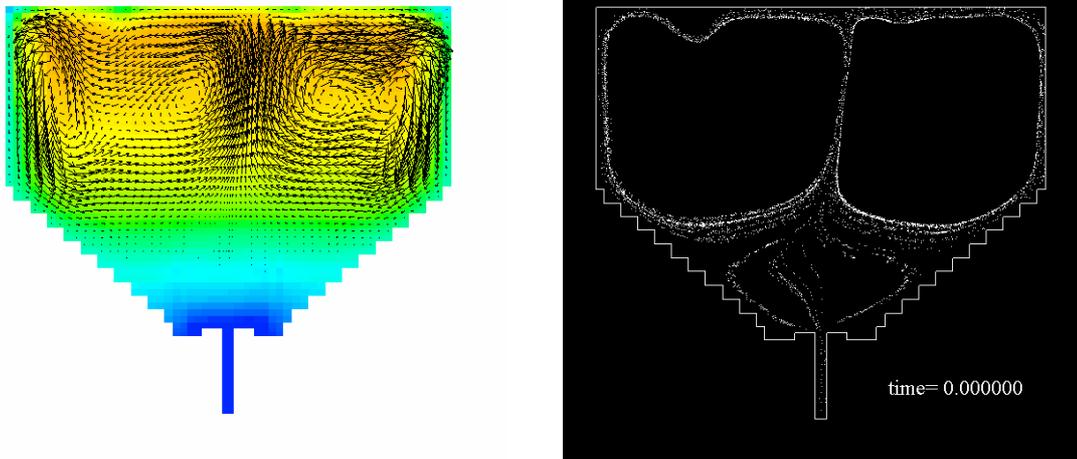


図 4.41 炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布(炉底 700)

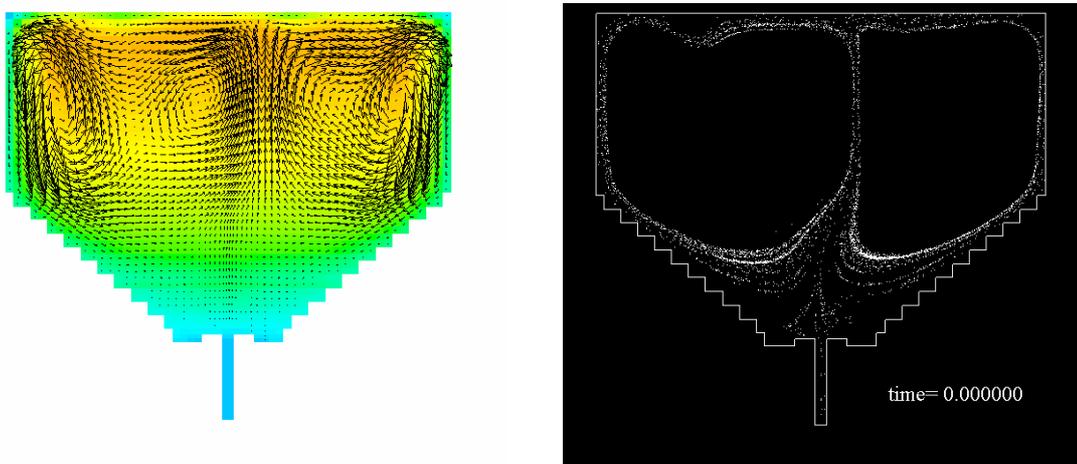


図 4.42 炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布(炉底 830)

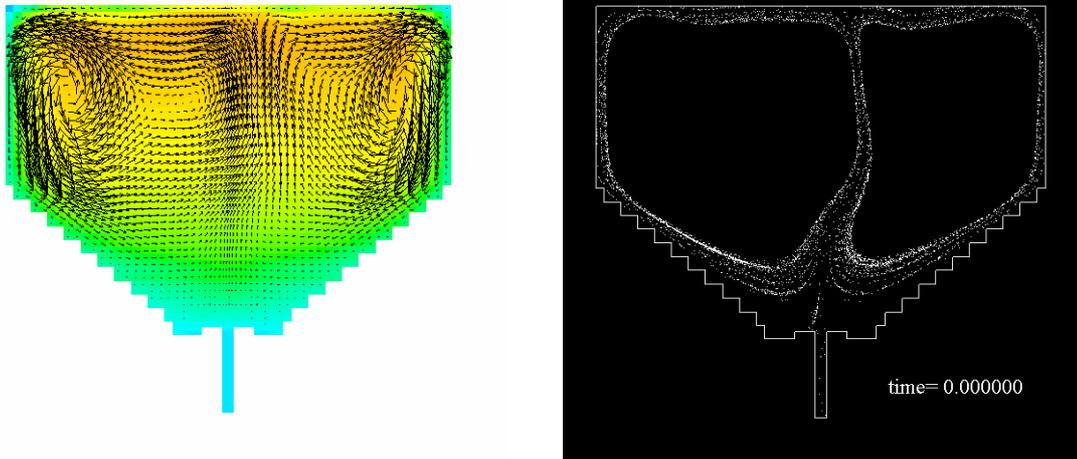


図 4.43 炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布(炉底 860)

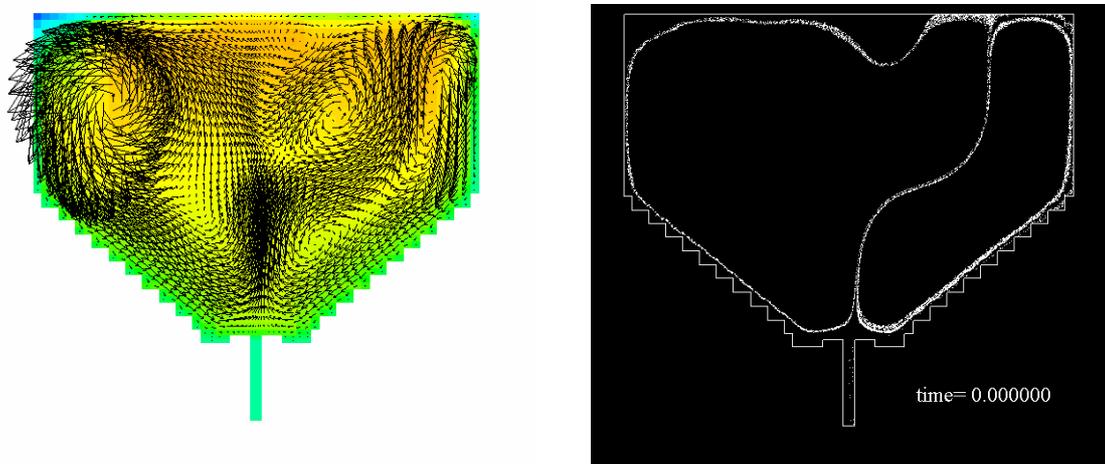


図 4.44 炉内温度・流速分布及び流下直前の粒子分布(炉底 1000)

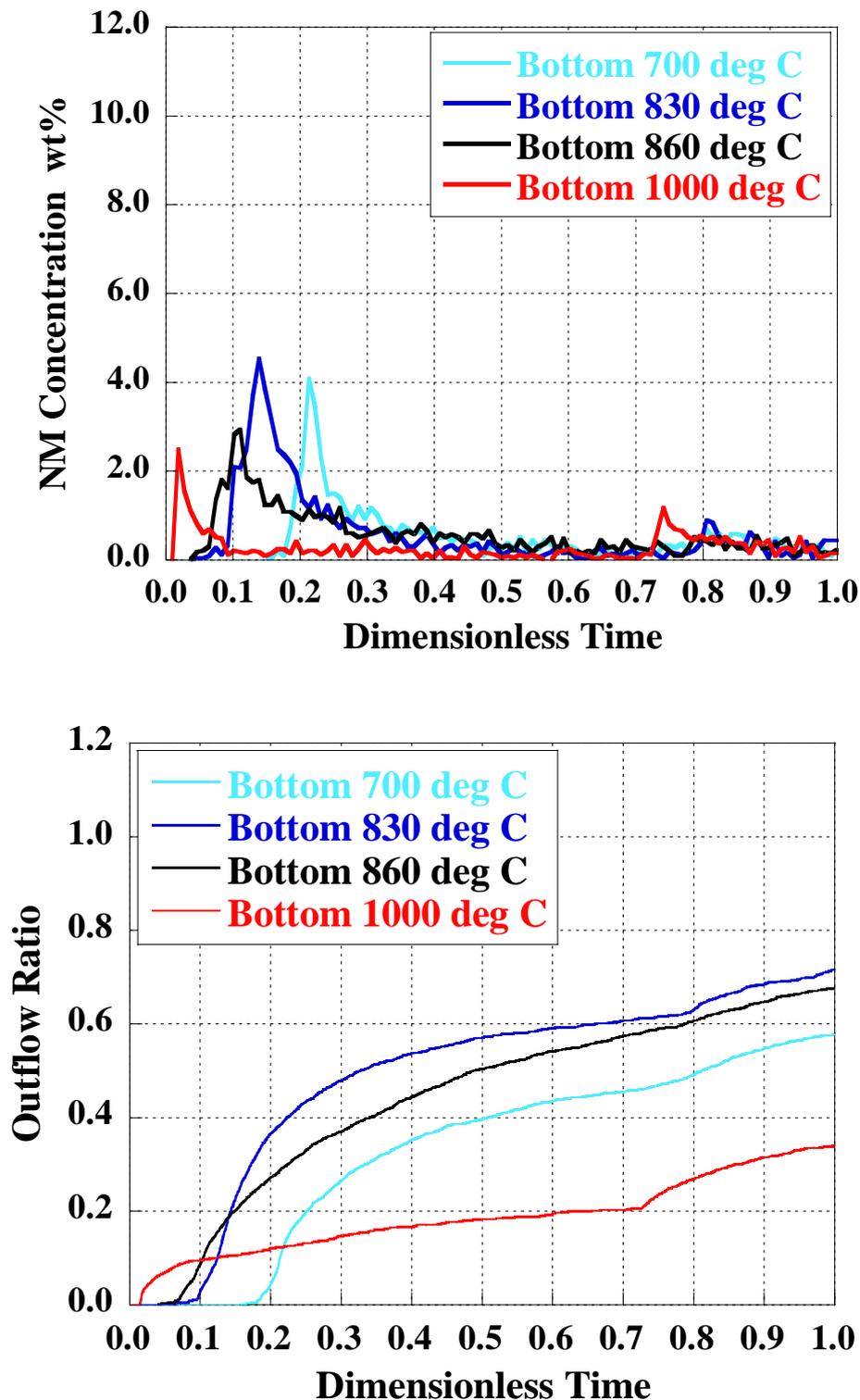


図 4.45 白金族粒子抽出しプロファイル及び抽出し率 (第 1 サイクル)

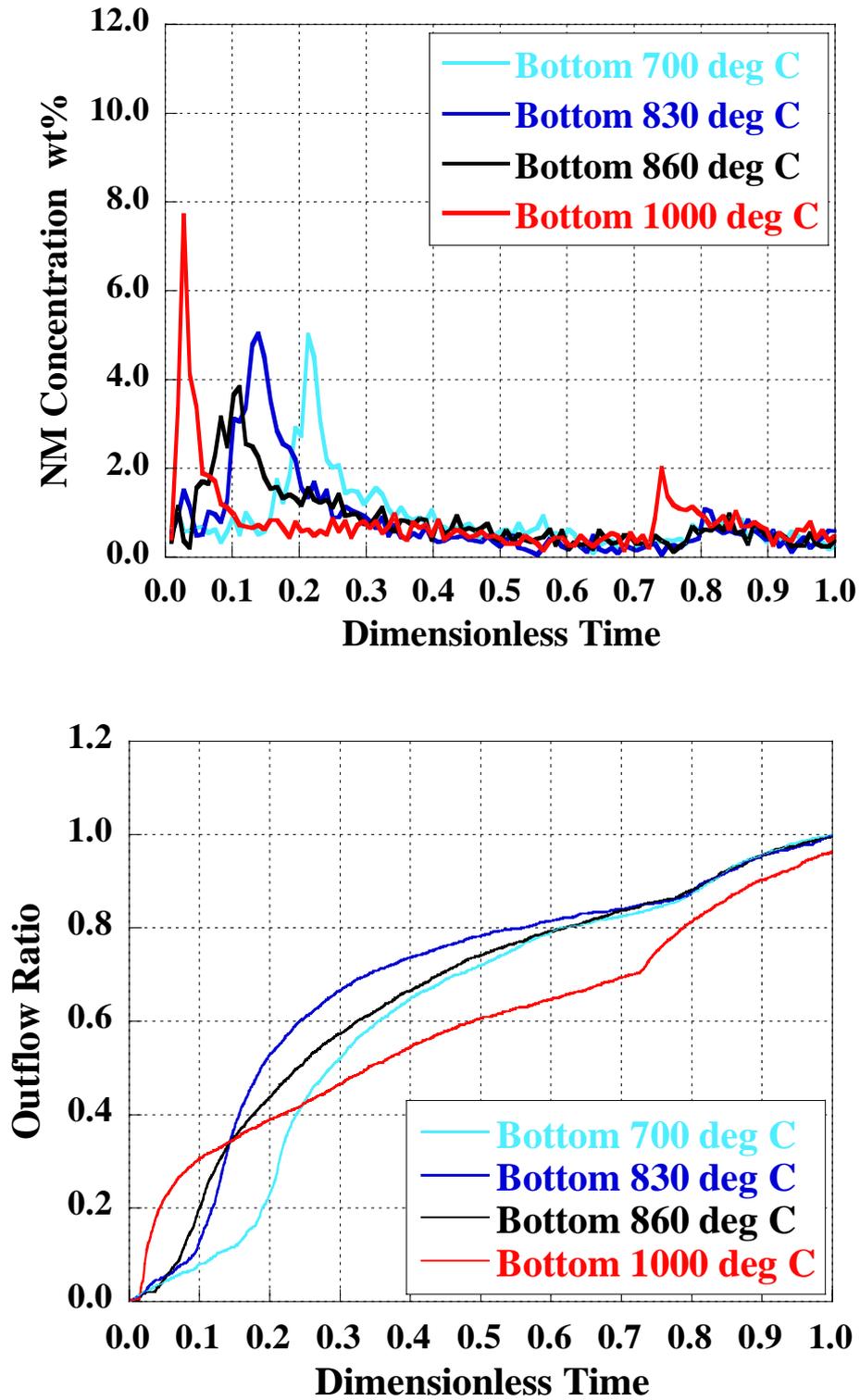


図 4.46 白金族粒子抽出しプロファイル及び抽出し率
(第7サイクル)

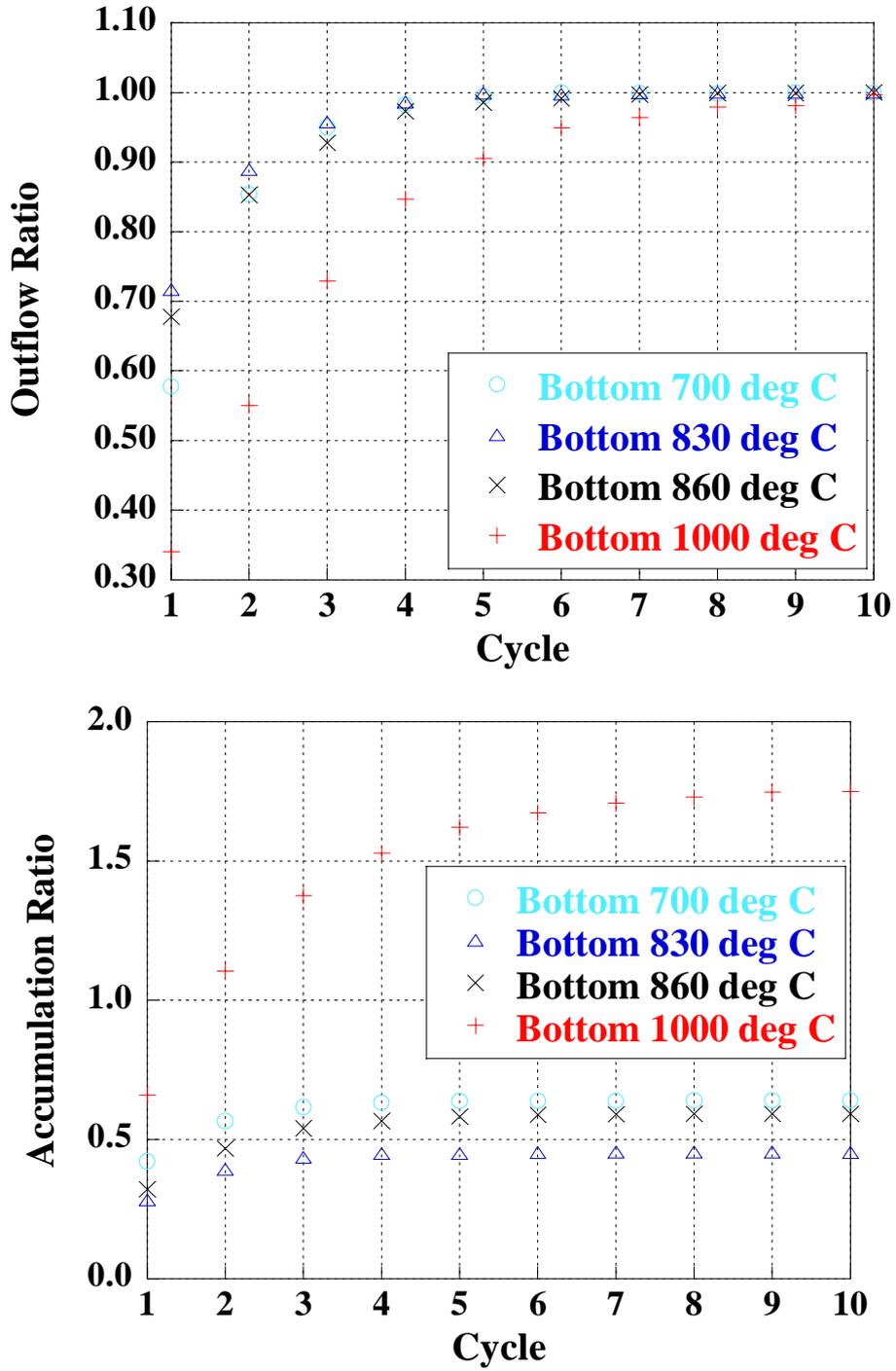


図 4.47 流出粒子率及び炉内蓄積粒子率

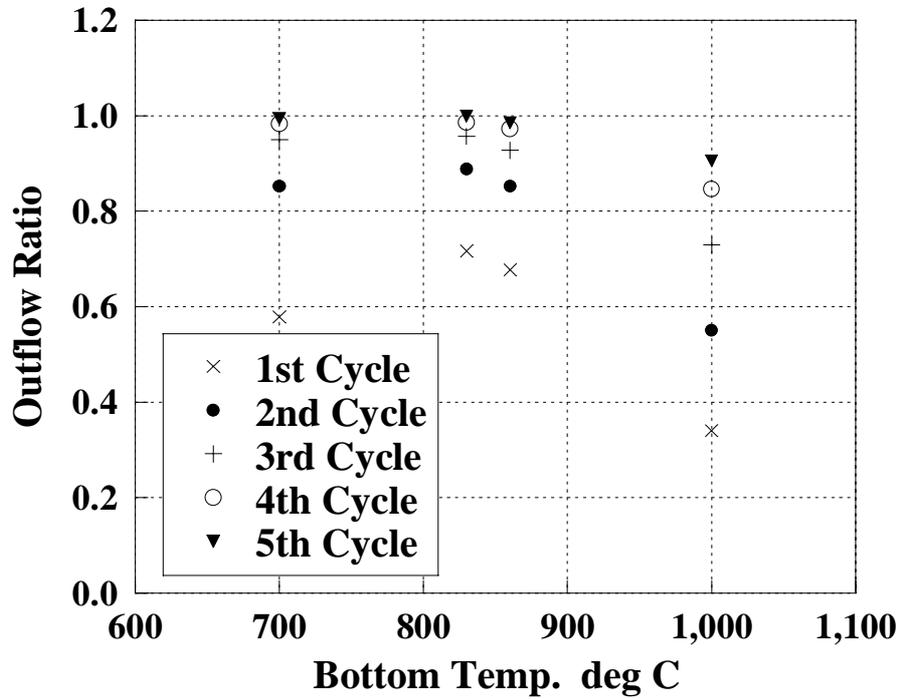


図 4.48 各炉底温度における白金族粒子拔出し率

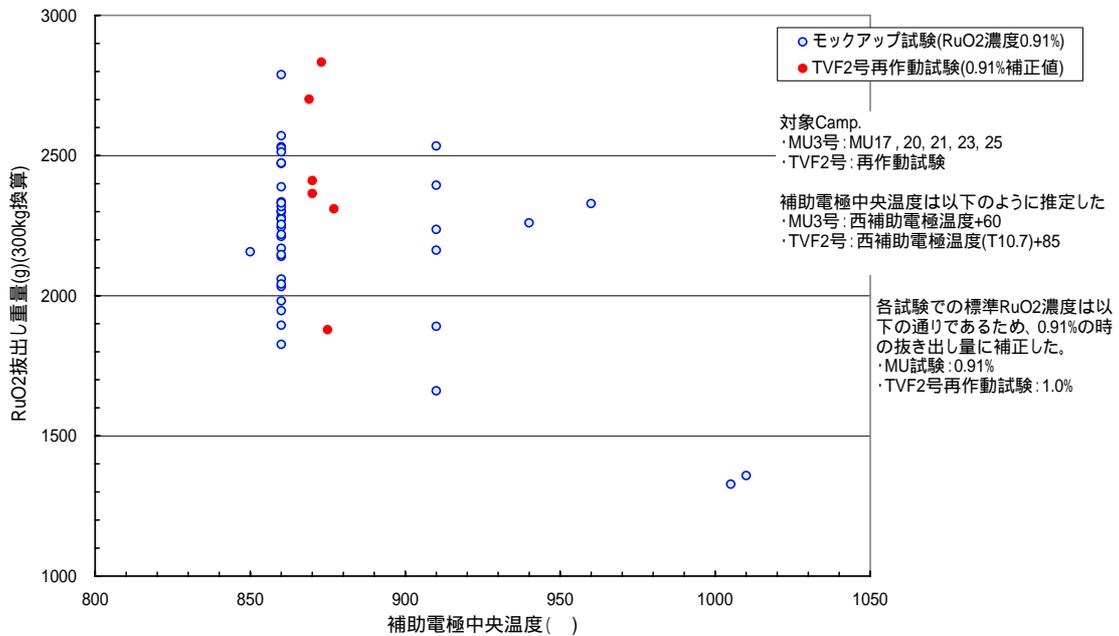


図 4.49 炉底温度に対する白金族粒子拔出し性

5. 結言

ガラス溶融炉体系における白金族粒子挙動解析を行い、以下の結果を得た。

- (1) TVF1 号炉の炉底低温運転状態においては、粒子の軌跡は斜面から離れており、粒子の堆積は生じない。堆積を生じるためには、粒子径を 1.8mm 程度まで大きくする必要があった。尚、堆積が生じる場合、レベラー槽と逆側(低温側)の方が、白金族粒子軌跡が炉底傾斜部に近づくため、堆積を生じやすいことが示された。
- (2) 炉底高温運転時は、流下ノズル近傍の粘性が低下することにより、粒子軌跡が炉底低温時より流下ノズル近傍の炉底部及び斜面近傍を通るものとなった。
- (3) 流下操作を数バッチ繰り返した解析結果は、炉底低温運転後、炉底高温運転後、それぞれの流下時のプロファイルについて、試験結果と良く一致することが分かった。また、炉内に蓄積される粒子数が炉底低温運転の方が少なくなり、効率良く白金族粒子を拔出せることが分かった。
- (4) ガラス流下速度をパラメータとした解析を行い、炉内の流れ場の変化により、白金族粒子拔出し率は 50 kg/h 程度のガラス流下速度でピーク値を取ることが分かった。この結果は、試験結果とも定性的に一致しており、炉底傾斜部付近の流速は流下流速が増加してもあまり増加しないことが、その原因であると考えた。
- (5) 炉底温度をパラメータとした解析を行い、炉底温度が 800 程度の時に白金族粒子拔出し率が最大となり、炉底温度が高くなると拔出し率が大幅に低下することが分かった。この傾向は試験結果とも一致した。炉底温度が 800 より低い場合は、粒子軌跡が流下ノズルから離れており、そのために拔出し開始時間が遅くなるため拔出し率が低下し、炉底温度が 850 より高い場合は、ガラス流速の遅い斜面部近傍に存在する粒子数が増加するため、拔出し率が低下する。

参考文献

- [1] 伊藤 啓、堺 公明、山口 彰、固液二相流解析コードの開発()-DEM を用いた定式化とコードの検証-、JNC TN9400 2004-001、2004
- [2] Cundall、 P. A.、 A computer model for simulating progressive large scale movements in blocky rock systems、 Symp. ISRM、 Nancy、 France、 Proc. Vol. 2、 pp. 129-136、 1971
- [3] Patankar、 S. V. and Spalding、 D. B.、 A Calculation Procedure for Heat、 Mass and Momentum Transfer in Three-Dimensional Parabolic Flows、 Int. J. Heat Mass Transfer、 Vol. 15、 pp. 1787、 1972
- [4] 大内 仁、菖蒲 康夫、寺田 明彦、正木 敏夫、小林 洋昭、五十嵐 寛、ガラス熔融炉 3次元熱流動解析技術の開発-解析コード(FLOWMEL)と解析パラメータの影響-、PNC TN8410 94-219、1994

謝辞

本研究を実施するにあたり、再処理センター環境保全部処理第三課の菅蒲康夫氏および藤原孝司氏より、研究の各段階において助言を頂きました。

ここに、感謝の意を表します。