ガラス固化溶融炉における白金族元素粒子挙動解析

河村 拓己^{3,*}, 伊藤 啓¹, 堺 公明¹,
中島 正義², 藤原 孝治², 大島 宏之¹

Numerical Analysis of Platinum Group Particle Behavior in Vitrification Melter

Takumi KAWAMURA^{3,*}, Kei ITO¹, Takaaki SAKAI¹,

Masayoshi NAKAJIMA², Kouji FUJIWARA² and Hiroyuki OHSHIMA¹

¹Japan Atomic Energy Agency, 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-ibaraki-gun, Ibaraki 311-1393, Japan

²Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirane Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1195, Japan

³NESI Inc., 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-ibaraki-gun, Ibaraki 311-1313, Japan

(Received September 4, 2007 and accepted in revised form May 23, 2008)

In the vitrification of high-level radioactive liquid wastes, platinum group particles originally included in the liquid wastes are mixed into molted glass and convected with the glass flow in vitrification melters. Though behaviors of the platinum group particles in the melters should be investigated to establish efficient melter operation methods, difficulties in observations or measurements of the particles in the actual melters due to high radioactivity have prevented enough investigation. In this paper, we present a numerical analysis method to evaluate the behaviors of the particles in the melters. Since the thermal convection field of the molten glass, electrical potential and particle distribution are formed by the interaction of the particles in the melters, we coupled these physical behaviors in the numerical method to evaluate the melter status with high accuracy. A numerical simulation was conducted and transient behaviors of the particles in the melters were determined. The results of simulation for ten batches of operation (each batch consists of melting, bottom heating and discharging operations) showed that an effective particle discharge can be achieved, as observed in mock-up experiments. These results imply that our numerical method can evaluate transient behaviors of the platinum group particles in vitrification melters.

KEYWORDS: *high-level radioactive liquid waste, vitrification melter, LFCM, TVF, platinum group particle, numerical analysis, solid-liquid two-phase flow, DEM*

I. 緒 言

使用済み核燃料の再処理過程で発生する高レベル放射性廃液(High-level radio-Active liquid Waste: HAW, 以降 HAW という)は, 非常に高い放射能を有する核分裂生成物を多く含むことから, 我が国では物理的, 化学的に安定なガラス固化体に処理し, 人間の生活環境から十分離れた地層中に処分する計画である^{1,2)}。ガラス固化体の製造に使用されるガラス固化溶融炉(以降, 溶融炉という)には, 誘導加熱式と直接通電加熱式の2つの加熱方式が実用化

されており, 我が国では, 後者の加熱方式による液体供給式直接通電型セラミックメルター(Liquid Fed joule-heated Ceramic Melter: LFCM, 以降 LFCM という)方式の溶融炉が採用されている。LFCM 式溶融炉の特徴は, Fig. 1 に示すように, HAW をガラス原料とともに溶融炉内に供給して溶融・混合する点, また, 溶融ガラスの加熱に溶融炉内の電極を介して直接通電することによって生じるジュール熱を利用する点である。

溶融炉の運転においては, HAW 中に含まれる金属元素のうち, ガラスマトリクスに溶解せず, 酸化物などの形態で溶解ガラス中に懸濁する白金族元素(Ru, Rh, Pd)^{3,4)}の考慮が重要である。これら白金族元素は導電率が溶融ガラスよりも高い(約10⁶倍)ことから, 溶融炉内で偏析や堆積が生じた場合, 新たな電流のパスを形成することにより加熱効率を低下させる可能性がある。そのため, 日本原子力研究開発機構(Japan Atomic Energy Agency, 以降 JAEA

¹ 鈷日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門

² 鈷日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所 再処理技術開発センター

³ 鈷NESI 大洗事務所 技術開発部

* Corresponding author, E-mail: kawamura@nesi.co.jp

Fig. 1 Concept of LFCM type vitrification melter

という)のガラス固化技術開発施設⁵⁾(Tokai Vitrification Facility: TVF, 以降 TVF という)では, このような堆積を抑制する「炉底低温運転モード」という特殊な運転方法を開発し, これを実際の運転に適用するとともに, 熔融ガラスがスムーズに抜き出せるような炉底構造を開発し, 2号熔融炉の設計に適用している⁶⁾。さらに, 熔融炉の運転に当たっては, 電極の抵抗測定値の連続的な監視により, 白金族元素の蓄積状況を推測する方法の開発を行っている^{7~10)}。これらの研究開発においては, 熔融ガラス中に懸濁する白金族元素粒子の挙動そのものを把握することが重要である。しかしながら, 熔融炉内は放射線レベルが高く, 熔融ガラスが非常に高温(1,000~1,200℃程度)であるため, 熔融炉の運転中に炉内ガラスのサンプリングや直接観察を行うことにより, 白金族元素粒子の挙動などのメカニズムを把握することは極めて困難である。

そこで本研究では, これまで把握が困難であった運転中の熔融炉内における白金族元素粒子の挙動や堆積のメカニズムを, 数値解析により解明することを目的として, 熔融ガラスの熱対流と熔融ガラス中の白金族元素粒子の挙動を連成した数値解析手法を構築し, その適用性について検討した。

II. 数値解析モデル

1. 固液二相流解析手法

熔融炉では直接通電加熱に伴い, 熔融ガラスの熱対流が生じており, 熔融ガラス中に懸濁した白金族元素粒子は, 熔融ガラスの熱対流により輸送されているものと考えられる。そのため, 白金族元素粒子挙動の評価には, 直接通電加熱による熱対流と, その熱対流による白金族元素粒子の輸送を評価する必要がある。そのため本研究では, 流体中の個々の粒子挙動を精度よく追跡することが可能な Euler-Lagrange Model の固液二相流解析手法に基づく解析手法

Fig. 2 Interaction among thermohydrodynamical, particle kinematical and electrical phenomena in vitrification melter

を構築することとした。ここで, Euler-Lagrange Model とは, 流体(流れ場)の計算は解析体系中に固定された計算格子点上で実施し, 固体粒子の運動は計算格子によらず個々の粒子の運動方程式を時間積分することにより, Lagrange 的に各時刻における個々の粒子の位置を決定するモデルである。

2. 相互作用モデル

Figure 2 に本手法で考慮(モデル化)した各現象(ガラスの熱対流, 白金族元素粒子挙動, 直接通電によるガラスの加熱)の連成の構図を示す。

流体中に存在する粒子の流体運動への追従性は(1)式によって表されるストークス数(以降, St 数という)を用いて判断することができ, St 数が1よりも十分に小さい場合, 粒子は流れに追従する。

$$St = \frac{\rho_p \cdot r_p^2 \cdot u}{\mu \cdot L} \quad (1)$$

熔融炉内の熱対流と白金族元素粒子の St 数はおおむね 10^{-9} であり, 熔融炉内では粒子は流体運動(熔融ガラス熱流動)に追従すると考えられる。したがって, 力学的作用として流体から粒子に対する作用のみを考慮し, 粒子に流体抗力と浮力が作用するものとした。また, 熔融炉内の白金族元素粒子の濃度は標準組成で数 wt% 程度と比較的低いため, 粒子同士の衝突は頻度が非常に少ないと考え考慮しないこととした。粒子と壁の衝突は, 離散要素法(Distinct Element Method: DEM, 以降 DEM という)¹¹⁾によりモデル化した。DEM は, 固相間(粒子-壁など)の接触力をバネ+ダッシュポッド系(Voigt Model)によって近似するモデルであり, 複雑な衝突現象を比較的少ない計算負荷で高精度に解析計算できる手法である。先にも述べたように導電性の高い白金族元素粒子の存在は, 熔融ガラスの導電率を高める効果があるため, 電位分布の計算を行う際に白金族元素濃度分布とガラス温度分布から得られる導電

率分布を用いた。電位分布から得られるジュール発熱密度分布を用いて温度分布を計算することにより、直接通電による加熱効果を熱流動計算へと反映した。このように、LFCM 式溶融炉特有の直接通電加熱に伴う熱対流や白金族元素粒子の分散・偏析の影響を、電場および温度場を介した粒子運動と流体運動の相互作用としてモデル化した。

3. 基礎式および構成式

本研究で構築した数値解析手法の基礎式と構成式を、以下に示す。白金族元素粒子の運動は、流体からの作用を外力として考慮した粒子の運動方程式((2)式)により表される。ここで、粒子はすべて球形と仮定し、白金族元素粒子の密度(物性値)は一定とした。粒子に作用する外力は、(2)式中右辺第1項が流体から受ける抗力、第2項が浮力および重力を表している。溶融ガラスの熱対流は、連続の式((5)式)および Navier-Stokes の式((6)式)、温度場の基礎式であるエネルギーの式((7)式)、ブジネスク近似による浮力の式((8)式)によって表される。直接通電による溶融ガラスの加熱は、電位分布の基礎式である電位の式((9)式)と、電位分布から計算される電流密度の式((10)式)および発熱密度の式((11)式)によって表される。また、粒子-壁間の接触に関して、接触している壁から力学的作用を受ける粒子の並進運動および回転運動は、並進運動方程式((12)式)および回転運動方程式((13)式)によって記述できる。ここで、粒子が壁から受ける力学的作用は、接触している粒子表面の法線方向と接線方向に分けて計算する。すなわち、運動方程式中の弾性係数および粘性係数を法線方向と接線方向のそれぞれについて計算し、運動方程式に適用する。法線方向の弾性係数はヘルツの弾性接触理論¹²⁾((14)~(18)式)、粘性係数は臨界減衰の条件((19)式)により求める。接線方向については、縦弾性係数と横弾性係数の比を法線方向の値に乗じて与える。

〈白金族元素粒子の運動〉

- 粒子の運動方程式

$$\frac{\pi}{6} D_p^3 \rho_p \frac{d\bar{U}_p}{dt} = \frac{\pi}{8} C_D \rho_l D_p^2 |\bar{U}_l - \bar{U}_p| (\bar{U}_l - \bar{U}_p) + \frac{\pi}{6} D_p^3 (\rho_p - \rho_l) \bar{g} \quad (2)$$

- 抗力係数

$$C_D = \frac{24}{\text{Re}_p} \quad (3)$$

- 粒子周りのレイノルズ数

$$\text{Re}_p = \frac{|\bar{U}_l - \bar{U}_p| D_p}{\nu} \quad (4)$$

〈溶融ガラスの熱対流〉

- 連続の式

$$\nabla \cdot \bar{u} = 0 \quad (5)$$

- Navier-Stokes の式

$$\rho \frac{\partial \bar{u}}{\partial t} + \rho \bar{u} \cdot \nabla \bar{u} = -\nabla p + \nabla \cdot (\mu \nabla \bar{u}) + \bar{F} \quad (6)$$

- エネルギーの式

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p \bar{u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (\lambda \nabla T) + q \quad (7)$$

- 浮力(ブジネスク近似)

$$\bar{F} = \rho \bar{g} \beta (T - T_0) \quad (8)$$

〈直接通電加熱〉

- 電位の式

$$\nabla \cdot (\epsilon \nabla \phi) = 0 \quad (9)$$

- 電流密度

$$I = -\epsilon \cdot \text{grad } \phi \quad (10)$$

- 発熱密度

$$q = I^2 \cdot \epsilon^{-1} \quad (11)$$

〈粒子-壁間相互作用(非弾性衝突条件)〉

- 粒子の並進変位

$$m \frac{d^2 \bar{x}}{dt^2} + \eta \frac{d\bar{x}}{dt} + K \bar{x} = 0 \quad (12)$$

- 粒子の回転変位

$$I_m \frac{d^2 \varphi}{dt^2} + \eta r^2 \frac{d\varphi}{dt} + K r^2 \varphi = 0 \quad (13)$$

- 法線方向弾性係数

$$K_n = \frac{4b}{3\pi} \left(\frac{1}{\delta_p + \delta_w} \right) \quad (14)$$

$$\delta_p = \frac{1 - \nu_p^2}{E_p \pi} \quad (15)$$

$$\delta_w = \frac{1 - \nu_w^2}{E_w \pi} \quad (16)$$

$$b = 3 \sqrt{\frac{3r_p}{4} \left\{ \frac{(1 - \nu_p^2)}{E_p} + \frac{(1 - \nu_w^2)}{E_w} \right\}} \cdot P \quad (17)$$

$$P = \frac{4}{3\pi} \left(\frac{1}{\delta_p + \delta_w} \right) \sqrt{(r_p - d_{pw})^3 \cdot r_p} \quad (18)$$

- 法線方向粘性係数

$$\eta_n = 2 \sqrt{m \cdot K_n} \quad (19)$$

- 接線方向弾性係数

$$K_s = \frac{G}{E} \cdot K_n = \frac{1}{2(1 + \nu)} \cdot K_n \quad (20)$$

- 接線方向粘性係数

$$\eta_s = \sqrt{\frac{G}{E}} \cdot \eta_n = \sqrt{\frac{1}{2(1 + \nu)}} \cdot \eta_n \quad (21)$$

4. 数値解法

本解析手法の計算手順を **Fig. 3** に示す。本解析手法は、まず粒子運動に関する計算を行い、次に直接通電加熱の計算を行い、最後に流体の熱対流を計算する。流体運動の数値解法には、計算の安定性や収束性の観点から、圧力を計算セル中心で定義し、流速をセル境界で定義するスタッガード格子を用い、質量および運動量の保存則を厳密に満たすコントロール・ボリューム法により離散化した。

Navier-Stokes 方程式の離散化には、移流項に 2 次精度風上差分法、拡散項に 2 次精度中心差分法を適用した。連続の式と Navier-Stokes の式から導出される圧力の Poisson 方程式の行列解法には、前処理付き共役勾配法 (Incomplete Cholesky Conjugate Gradient method : ICCG 法) を用いた。また、圧力の Poisson 方程式と Navier-Stokes の式の結合アルゴリズムには、SIMPLE 法 (Semi-Implicit Method for Pressure-Linked Equation)¹³⁾を採用した。

構築した数値解析手法の基本的な機能検証は、Cavity-Flow 等の一般的なベンチマーク問題を実施し、定量的に正しい解が得られることを確認した。また、DEM および固液二相流解析機能の検証は、粒子衝突問題や河床流砂の数値解析を行い、理論値および実験結果と良好に一致する結果が得られることを確認した¹⁴⁾。

Fig. 3 Flow chart of numerical simulation

Fig. 4 Birds-eye view of TVF-1

Fig. 5 Glass temperature fluctuation during vitrification process

ラス原料と廃液を溶融・混合する。次に炉底加熱運転モードにおいて、溶融ガラスを溶融炉底部の流下ノズルに向かって流動させるため、溶融炉底部を加熱する。最後に流下運転モードにおいて溶融ガラスをキャニスタへ流下させる。

炉底低温運転では、溶融運転モードにおいて白金族元素粒子の沈降・堆積を抑制するため、溶融炉底部に設けられた補助電極出力を調整することにより炉底部のガラス温度を800～850℃に保ち、炉底部ガラスの粘性を上昇させることで炉底領域の熱対流を抑制し、白金族元素粒子を炉底領域よりも上の溶融ガラス中に保持している。加えて、流下操作の前に短時間で炉底部を加熱することで、白金族元素粒子を効率的に流下させる運転を行っている。

2. 解析条件

(1) 解析体系

Figure 6 に解析体系を示す。本研究では、炉底部の傾斜角度が最も緩やかになる炉底部稜線を含む断面における2次元数値解析を実施した。直接通電加熱の電極について、主電極は境界条件として考慮し、補助電極による通電加熱効果は、主な加熱領域が補助電極間の領域であると仮定し、この領域の各計算メッシュに補助電極による通電加熱に相当する発熱密度を付与することで考慮した。

(2) 解析条件

先に述べたようにガラス固化工程は主に3つの運転モードで行われる。そのため、数値解析では各運転モードをそれぞれの計算条件で実施し、計算結果を次の運転モードの初期条件とし、これら3つの運転モードの計算を合わせて1バッチとし、10バッチの連続バッチ運転を模擬した。また、溶融運転モードの解析において、炉底部を低温(800～850℃)で保持する炉底低温運転条件を課した。溶融ガラスの物性値に関して、密度および比熱は温度に対する感度が低いことから一定とし、温度に対する感度の高い粘性係数および熱伝導度、導電率は温度変化を考慮した。また、導電率は溶融ガラス中の白金族元素濃度によって、実効的な導電率が大きく変化することから、導電率を白金族元素濃度の関数として与えた。これらの物性値は、

Fig. 6 Simulation mesh of TVF-1 (Two dimensional)

小規模な物性評価試験などにより取得されデータを整理した実験式を用いて評価した。

境界条件について Table 1 に示す。速度に対する境界条件は、壁面を Non-Slip 条件とし、溶融ガラス液面についても未溶融のガラス層(仮焼層)に覆われているため流動は抑制されると仮定し Non-Slip とした。また、流下運転モードでは、溶融ガラスの液位変化は考慮せず、流下時は流下ノズル出口に一定流速条件を課し、流出量を上部境界から一様に流入させることで計算を行った。熱的境界条件として、主電極および流下ノズルの表面温度については、過去の試験および数値解析結果¹⁵⁾から得られている温度を参考に温度境界条件を与えた。仮焼層との界面である溶融ガラス液面についても、HAW の蒸発潜熱やガラスの融解熱によりおおむね一定温度でバランスしていると仮定し、同様に温度境界条件を与えた。耐火・耐熱物の壁面は各構造材の厚さと溶融炉の熱バランスを考慮した熱通過率(22式)を与えた。

・熱通過率

$$k = \frac{1}{\sum_{i=1}^n \frac{\delta_i}{\lambda_i} + \frac{1}{h_{out}}} \cdot a_k \quad (22)$$

電場に対する境界条件は、主電極に一定電位を与えることにより主電極間電圧を一定とし、他の境界には流入流出条件(電位勾配0)を課した。主電極間電圧は、あらかじめ白金族粒子を含まない条件でパラメータサーベイを実施し、溶融炉上部における溶融ガラス温度が、実機の溶融ガラス温度である1,100～1,200℃となるように設定した。白金族元素粒子の運動については、垂直壁面および溶融ガラス液面(仮焼層と溶融ガラスの界面)で非弾性衝突条件をDEMによって模擬した。また、溶融炉底部の水平壁面には白金族元素粒子の固着を模擬するため、粒子の転がりや移動を抑止する吸着条件を課した。ここで吸着条件とは、粒子と壁が接触した場合に粒子を接触位置に固定し、以降はその粒子の移動は行わないことを意味する。また、流下ノズル出口から流出した粒子は解析体系外に放出(計算から除外)されるものとした。

粒子の発生数について、実機における粒子数は膨大であり、それらのすべてを計算で追跡することは、計算負荷や計算機資源の観点から困難である。そのため、1バッチに投入される白金族元素の量を粒子3,000個で代表させて粒子挙動を計算することとした。ただし、(23)、(24)式に示すように、各計算セルにおける白金族元素濃度を計算する際には、実機に投入される白金族元素の量に相等するように各粒子に重み付け(補正係数を乗ずる)をして評価する。また、粒子は主電極上端高さ近傍の位置(溶融ガラス液面近傍)において、溶融運転モード初期に発生させた。

〈白金族元素濃度の計算式〉

$$C_{NM} = \frac{V_p \cdot \rho_p}{V_p \cdot \rho_p + V_l \cdot \rho_l} \cdot 100.0 \quad (23)$$

Table 1 Boundary conditions

Vitrification melter operation mode			
	<i>Melting</i>	<i>Heating</i>	<i>Discharging</i>
〈Fluid〉			
Velocity			
Molten glass surface		Non-slip	Constant velocity
Discharging nozzle outlet		Non-slip	Constant velocity
Other		Non-slip	
Temperature			
Main electrpde (Left/South)	Constant temprature	Constant temprature	
Main electrpde (Right/North)	Constant temprature	Constant temprature	
Molten glass surface	Constant temprature	Constant temprature	
Discharging nozzle	Constant temprature	Constant temprature	
Discharging nozzle outlet		grad. T = 0.0	
Other		Heat transfer (Eq. 22)	
Electrical potential			
Main electrpde (Left/South)		57 V	
Main electrpde (Right/North)		0 V	
Other		grad. ϕ = 0.0	
〈Particle〉			
Molten glass surface		Inelastic collosion	
Vertical wall		Inelastic collosion	
Horizontal wall		Adhesion	
Discharging nozzle outlet		Outflow	

Melting : Glass Melting and Mixing Operation Mode,

Heating : Bottom Heating Operation Mode,

Discharging: Glass Discharging Operation Mode.

$$V_p = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_p^3 \times N_{cell} \times N_p \quad (24)$$

3. 溶融炉内における溶融ガラス・白金族元素粒子挙動解析結果

(1) 溶融炉内非定常温度変化挙動

構築した解析モデル(解析手法および解析体系, 解析条件)の妥当性を確認するため, 実機にて定点(溶融炉中央で主電極上端高さ)測定された溶融ガラス温度の時間変動について, 数値解析との比較を行った¹⁶⁾。Figure 7 に溶融ガラス温度の時間変動, Fig. 8 にそれぞれの温度変動データをFFT (Fast Fourier Transformation) 処理して得たパワースペクトルの周波数特性を示す。実機の溶融ガラス温度変化挙動は, 運転員の出力操作による長周期の温度変動と20℃程度の振幅で短周期の非定常的な温度変動が生じている。数値解析結果では, 主電極の出力操作を模擬していないために長周期変動は模擬できなかったが, 実機と同様に短周期の温度変動が現れた。数値解析における非定常的な温度変動は, 加熱された溶融ガラスが液面近傍へ上昇した後, 低温の液面(仮称層底面)で冷却され, 沈み込む際に測定点を通ることが原因であることを確認した。また, 非定常的な温度変動の周波数特性に関して実機および数値解析を比較したところ, 出力操作に対応する低

周波領域では両者の相違がみられるが, 冷却された溶融ガラスの沈み込みに対応する周波数($10^{-3} \sim 10^{-4}$ 程度)におけるパワースペクトルは両者で非常によく一致しており, 同様の熱流動現象に起因する温度変動であると考えられる。したがって, 本解析モデルは溶融炉内の複雑な熱流動現象を定性的に再現しており, 溶融炉に対して本解析モデルを適用することは妥当であると考ええる。

(2) 第1バッチの溶融炉内挙動解析結果

(a) 第1バッチの溶融運転モードにおける溶融炉内挙動解析結果

Figure 9 に第1バッチの溶融運転モードにおける白金族元素粒子挙動と溶融ガラスのフローパターンを示す。Figure 9 上段は粒子挙動, Fig. 9 下段は熱対流のフローパターン(流線)をそれぞれ示しており, 粒子が流れ場により輸送され溶融炉内に分散する様子が明らかとなった。

Figure 10 に第1バッチの溶融運転モード終了時における溶融炉内の様子を示す。溶融ガラスの主な加熱源である主電極近傍で, 比較的発熱密度が高い傾向にあるが, 主電極は内部の空冷により比較的低温に保持されているため, 主電極表面では溶融ガラスが冷やされ下降流が生じている。一方, 主電極からやや離れたところでは, 通電加熱により比較的高温となっており上昇流が生じている。そのため, 主電極近傍では安定した大きな渦が形成されており,

Fig. 7 Temperature fluctuation of molten glass

Fig. 8 Frequency characteristic of temperature fluctuation of molten glass

Fig. 9 Platinum group particle distributions (Upper) and flow patterns (Lower) in vitrification melter (Transient behavior during melting operation mode in 1st batch)

Fig. 10 States of vitrification melter at end of melting operation mode in 1st batch

Fig. 11 States of vitrification melter at end of bottom heating operation mode in 1st Batch

粒子の一部はこの渦にトラップされ熔融炉内を循環している。熔融炉上部中央付近では、ガラス原料の融解熱や廃液水分の蒸発に伴う蒸発潜熱によって仮焼層が冷却されているため熔融ガラス液面が低温となっている。この液面付近の熔融ガラスが沈み込むことによって、比較的小さな渦が発生と消滅を繰り返しており、これらの渦によって粒子は混合されている。一方、炉底部の流下ノズル近傍は、炉底低温運転により比較的低温で保持されているため、粘性が高く流れが抑制され、この領域に粒子はほとんど輸送されなかった。

(b) 第1バッチの炉底加熱運転モードにおける熔融炉内挙動解析結果

Figure 11 に第1バッチの炉底加熱運転モード終了時における熔融炉内の様子を示す。炉底加熱運転モードでは、炉底部のガラスを補助電極間通電により加熱する。炉底部の温度が上昇すると炉底部中央(補助電極加熱領域)付近で上昇流が誘起され、斜面近傍の下降流が徐々に発達するとともに、主電極近傍の大きな渦の発達を促し、熔融炉内を循環する大きな流れが形成された。また、炉上部中央付近の不規則な渦は、主電極近傍の大きな渦の発達に伴い、ほぼ2つの大きな渦にまとまった。白金族元素粒子は、炉底部の温度が上昇して流れ場が形成されたことにより、熔融運転モードの場合とは異なり流下ノズルの近傍まで輸送された。

Fig. 12 States of vitrification melter at end of discharging operation mode in 1st batch

Fig. 13 Platinum group particle distributions and flow patterns in vitrification melter in 10th batch (Left: End of melting operation mode, center: End of bottom heating operation mode, Right: End of discharging operation mode)

Fig. 14 Comparison of platinum group particles distribution at end of discharging operation mode in 1st and 10th batches (Left: Platinum group particle distribution, Right: Platinum group particle concentration)

(c) 第1バッチの流下運転モードにおける溶融炉内挙動解析結果

Figure 12 に第1バッチの流下運転モード終了時における溶融炉内の様子を示す。流下運転モードでは、流下ノズルに向かう下降流が発達し、炉底加熱運転モードでみられた溶融炉内を循環するような流れは消散した。溶融炉内の流れ場は、流下ノズルへと向かう下降流と溶融炉上部に形成される渦からなる。ほとんどの粒子は下降流によって流下ノズルへと輸送されるが、一部の粒子は溶融炉上部の渦の中に滞留する傾向がみられた。

(3) 第10バッチにおける溶融炉内挙動解析結果

Figure 13 に第10バッチにおける各運転モード終了時の白金族元素粒子挙動と溶融ガラスのフローパターンを示

す。第1バッチの解析結果と比較して、溶融炉内に蓄積された粒子数が増加しているものの、溶融炉内のフローパターンや粒子分布に大きな変化は現れなかった。

Figure 14 に、第1バッチと第10バッチにおける、流下運転モード後の斜面近傍における白金族元素粒子分布と白金族元素濃度分布を示す。第10バッチにおける斜面近傍は、第1バッチにおける斜面近傍と比較して多くの粒子が存在している。また、第1バッチでは左右の斜面における白金族元素粒子分布の違いは顕著には現れなかったが、第10バッチにおいては左右の斜面における白金族元素粒子分布を比較すると、右斜面は流下ノズルに近づくにつれ、白金族元素粒子が斜面から離れた位置に分布していたが、左斜面は主電極の直下から斜面全体に渡って白金属

Fig. 15 Platinum group particle and glass temperature distributions at end of discharging operation mode in 10th batch

Fig. 16 Discharging rate of platinum group particle during 10 batch operations

元素粒子が斜面近傍に分布していた。これは Fig. 15 に示すように、右斜面は左斜面に比べて温度が高く、浮力などの影響により流れが斜面から剥離しやすい傾向にあったためと考えられる。白金族元素粒子は流れに乗って輸送されながら、自重によって沈降し斜面に堆積する。このため、流れが斜面に沿っていない右側斜面では斜面への粒子の堆積は比較的生じ難いが、温度の比較的低い左側斜面では、流下ノズルまで斜面に沿った流れが形成されるため、粒子が斜面に堆積しやすいと考えられる。このような熔融炉底部の斜面における白金族元素粒子の非対称的な堆積傾向は、TVF の熔融炉と同じ構造をもつ実規模のモックアップ熔融炉においても、ガラス抜き出し後の熔融炉内観察によって確認されており、特に比較的低温な斜面上に白金族元素が比較的多く堆積していたことがわかっている¹⁷⁾。このことから、数値解析は白金族元素粒子の堆積挙動のメカニズムを定性的に再現できていると考えられる。

(4) 連続バッチ運転による白金族元素粒子流出挙動

流下運転モードにおける流出粒子率を Fig. 16 に示す。ここで、流出粒子率は以下のように定義した。

- 流出粒子率

$$R_{dis} = \frac{N_{dis}}{N_{in}} \quad (25)$$

流出粒子率は、1 バッチ目は0.8程度であったが、2 バッチ目以降は1.0程度で推移しており、各バッチにおいて投入した量とほぼ同量の粒子が流出した。数値解析結果の流出粒子率は、炉底低温運転により粒子の抜き出し率が向上

し、効率よく粒子を抜き出せる傾向を示しており、炉底低温運転の有効性¹⁸⁾を数値解析によって確認することができた。

IV. 結 論

ガラス固化熔融炉内における白金族元素粒子の移流挙動や堆積のメカニズムを数値解析により評価することを目的に、LFCM 式熔融炉特有の直接通電加熱に伴う熱対流や白金族元素粒子挙動を、電場および温度場を介した粒子運動と流体運動の相互作用としてモデル化し、Euler-Lagrange Model の固液二相流解析手法へ導入した数値解析手法を開発した。

本解析手法により TVF の熔融炉を模擬した数値解析モデルを構築し、熔融ガラス温度の時間変動を比較した。その結果、熔融炉特有の熱流動現象に起因する非定常的な温度変動特性を再現しており、本解析手法の妥当性および本解析モデルの熔融炉への適用性を確認した。さらに熔融炉内の白金族粒子挙動を評価するため、本解析モデルを用いて、10バッチの連続運転を模擬した数値解析を実施し、ガラスの熔融・加熱時に熔融ガラスの熱対流により分散・混合される過程および、流下時に熔融炉内に残留する挙動を明らかにした。また、白金族元素粒子の熔融炉底部斜面への堆積傾向に関して、比較的高温の斜面では白金族元素粒子が斜面から離れた位置に分布するため堆積が生じ難く、比較的低温の斜面では白金族元素粒子が斜面近傍に分布するため堆積を生じやすい傾向が得られ、実規模のモックアップ熔融炉で観察された非対称な堆積傾向が再現された。このことから、本解析手法は熔融炉内の白金族元素粒子の堆積傾向を定性的に再現できることが示された。

これらの結果により、開発した数値解析手法は熔融炉内の熱流動および白金族元素粒子挙動を定性的に再現可能であり、運転中の熔融炉内における白金族元素粒子の移流挙動や堆積の現象解明に有効であることを示した。

今後、実機の運転支援や次世代熔融炉設計などに反映できるよう、本解析手法の高度化を図っていく。

〔記 号〕

- a_k : 熱通過率補正係数(-)
- b : 接触幅(m),
- C_D : 抗力係数(-)
- C_{NM} : 白金族元素濃度(wt%)
- C_P : 定圧比熱(J/kg/K)
- D_p : 粒子径(m)
- d_{pw} : 粒子中心と壁の距離(m)
- E : 縦弾性係数(N/m²)
- F : 浮力(m · kg/s²)
- g : 重力加速度(m/s²)
- G : 横弾性係数(N/m²)
- h_{out} : 外壁-外気間熱伝達率(W/m² · K)

I	: 電流密度(A/m ²)
I_m	: 慣性モーメント(kg・m ²)
k	: 熱通過率(W/m ² ・K)
K	: バネの弾性係数(Pa),
L	: 代表長さ(m)
m_p	: 粒子質量(kg)
N_{cell}	: 計算セル内の粒子数
N_{dis}	: 各バッチにおける流出粒子数(個)
N_{in}	: 各バッチにおける投入粒子数(個)
N_p	: 1粒子が代表する粒子数
p	: 圧力(Pa)
P	: 圧縮力(N)
q	: 発熱密度(W/m ³)
R_{dis}	: 各バッチにおける流出粒子率(-)
Re_p	: 粒子レイノルズ数
r_p	: 粒子半径(m)
St	: ストークス数(-)
t	: 時間(s)
T	: 温度(deg.C)
T_K	: 温度(K)
T_0	: 基準温度(deg.C)
u, U	: 速度(m/s)
X	: 粒子-壁間の接触力による並進変位(m)
V	: 体積(m ³)
δ_i	: 構造材厚さ(m)
δ_p	: 粒子中心の接近量(m)
δ_w	: 壁の接近量(m)
ε	: 導電率(S/m)
ϕ	: 電位(V)
λ	: 熱伝導率(W/m・K)
λ_i	: 構造材熱伝導率(W/m・K)
η	: ダッシュポットの粘性係数(Pa・s)
ν	: 動粘性係数(m ² /s)
μ	: 粘性係数(kg/m/s)
π	: 円周率(-)
ρ	: 密度(kg/m ³)
ν	: ポアソン比(-)
φ	: 粒子-壁間の接触力による回転変位(m)

添え字

i	: 材料番号
n	: 法線方向
l	: 流体
p	: 粒子
s	: 接線方向

— 参考文献 —

- 1) 通商産業省, 特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針を定めた件, 平成12年10月2日, 通商産業省告示第591号(2000).
- 2) 原子力委員会, 原子力の研究, 開発及び利用に関する長期計画, 平成12年11月24日, 33 (2000).
- 3) C. h. Krause, B. Luckscheiter, "Properties and behavior of the platinum group metals in the glass resulting from the vitrification of simulated nuclear fuel reprocessing waste," *J. Mater. Res.*, **6**[12], 2535 (1991).
- 4) T. Akai, J. Nishii, M. Yamashita et al. "Chemical behavior of platinum-group metals in oxide glasses," *J. Non-Cryst. Solids*, **222**, 304 (1997).
- 5) 大内 仁, 宮本陽一, 池田論史, 他, "放射性廃棄物の処理技術開発," 動燃技報, **100**, 215 (1996).
- 6) 遠藤 昇, 吉岡正弘, "TVF ガラス溶融炉の運転評価(I)," 日本原子力学会「1999年春の年会」要旨集, M5 (1999).
- 7) 池田秀雄, 遠藤 昇, 吉岡正弘, 他, "溶融炉改良に係るガラス固化モックアップ試験の評価," サイクル機構技報, **14**, 25 (2002).
- 8) 小高 亮, 菖蒲康夫, 新妻孝一, 他, "ガラス固化技術開発施設(TVF)における溶融炉更新(1)—更新への取り組み—," 日本原子力学会「2004年秋の大会」予稿集, F1 (2004).
- 9) 清水 亮, 伊藤義之, 菖蒲康夫, 他, "ガラス固化技術開発施設(TVF)における溶融炉更新(3)—2号溶融炉の運転管理手法—," 日本原子力学会「2004年秋の大会」予稿集, F3 (2004).
- 10) 小坂哲生, 富永節夫, "ガラス固化技術開発施設(TVF)における溶融炉技術開発," サイクル機構技報, **28**, 35 (2005).
- 11) P. A. Cundall, "A computer model for simulating progressive large scale movements in blocky rock systems," *Symp. ISRM, Nancy, France, Proc.*, **2**, 129 (1971).
- 12) Timoshenko, S. P. J. N. Goodier, *Theory of Elasticity*, McGraw-Hill, 409 (1970).
- 13) S. V. パタンカー, 水谷幸夫, 香月正司, コンピュータによる熱移動と流れの数値解析, 森北出版, 130 (1985).
- 14) 伊藤 啓, 堺 公明, 三浦昭彦, "粒子対流評価のための固液二相流解析コードの開発(コードの検証と溶融ガラス体系への適用)," 日本混相流学会年会講演会 2005講演論文集, B111, (2005).
- 15) 須藤 収, 小林洋昭, 菅生 徹, TVF 炉のコールド試験データを用いた熱流動解析, JNC TN8410 98-008, 核燃料サイクル開発機構, (1998).
- 16) 河村拓己, 中島正義, 堺 公明, "電場-温度-流動連成による溶融ガラス数値解析手法の開発," 「日本原子力学会2006年春の年会」要旨集, L43 (2006).
- 17) 吉岡正弘, 中山治郎, ガラス固化施設の運転技術, JNC TW8419 99-003, 核燃料サイクル開発機構 (1999).
- 18) M. Yoshioka, T. Takahashi, "Evaluation of glass melter operation using highly simulated waste for TVF," *Spectrum 90* (1990).