

角運動量を保存する粒子法を用いた相変化を伴う 高温・高粘性流体の拡散・凝固挙動評価

Evaluation of spreading-solidification behavior of high-temperature and highly viscous fluid by particle method with angular momentum conservation

東京大学	横山 諒	Ryo YOKOYAMA	Student-member
東京大学	鈴木 俊一	Shunichi SUZUKI	Member
東京大学	岡本 孝司	Koji OKAMOTO	Member
産総研	近藤 雅裕	Masahiro KONDO	Non-member

Abstract

For predicting the fuel debris distribution in Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants (1FNPPs), it is essential to figure out the melt spreading behavior on primary containment vessel (PCV) floor. In this paper, we analyzed VULCANO spreading experiment programs using a particle method called “Moving Particle Full-Implicit method (MPFI)” which conserves an angular momentum. Phase change model was installed into MPFI method. Two experiments having different corium characteristics were analyzed to confirm the corium composition effect for the influence of the spreading and the solidification behaviors. As a result, the molten corium drastically spread up to 10 seconds and rapidly solidified after 10 seconds. The free surface particles were solidified by the radiation. Besides, the corium in VE-U9 spread rather than that in VE-U7 due to the low viscous corium effect. It was confirmed that this method has a potential to utilize to simulate corium spreading in Fukushima

Keywords: 燃料デブリ, コリウム, シビアアクシデント, 熔融凝固, 福島第一, 粒子法, 高粘性流体

1. 緒言

福島第一原子力発電所事故により発生した燃料デブリを最適かつ安全に取り出すためには、燃料デブリ分布を推定することが重要である。そのためには、RPV (reactor pressure vessel) 内部で、燃料や構造物等が熔融・混合した超高温・高粘性流体「コリウム」のPCV (primary containment vessel)床面上での拡散・凝固挙動を理解することが必要不可欠である。

フランスで行われた「VULCANO spreading」プログラムは、コリウム拡散現象を理解する上で極めて重要な大規模実験であり、その現象は福島第一コリウム拡散推定への有用な知見としてしばしば用いられている。

「VULCANO VE-U7」実験[1]では酸化物重量比が90wt.%を超えるような熔融物をセラミックス床面上へ拡散させ、その挙動を観察した一方、「VULCANO VE-U9」実験[2]では、コリウム組成に占める鉄成分割合を約20%上昇させた。これにより、低粘性化した熔融コリウムの拡散挙動をVE-U7同様にセラミックス/コンクリート床面条件で観察した。しかしながら、上記実験だけでは詳細な拡散・凝固

挙動は明らかにされず、数値解析による詳細な検討がなされてきた。

VULCANO 実験を対象とした数値計算の例として、空間を離散化するVOF法(volume of fluid)[3]を用いた解析やJAEAによるJUPITERコード[4]を用いたものが挙げられる。上記のオイラー的手法の他に、詳細に自由表面追跡及び相変化を伴う高粘性流体の解析を行うために、ラグランジュ的手法を用いたVULCANO実験解析も行われてきた。粒子法は、自由表面を伴う流体解析を得意とする手法であり、特にMPS法[5](moving particle semi-implicit)を用いたVULCANO実験解析も行われてきた実績がある[6,7]。しかしながら、従来のMPS法による高粘性流体の解析では、粘性上昇による流動停止が起こらない数値的クリープ[8]が発生することや角運動量が保存されていないことによる流体の回転挙動が再現できないことが課題となっている。

これらの課題を解決した手法MPFI法(moving particle full-implicit)が提案されており[9-11]、同時にMPFI法を用いた熔融凝固解析手法の提案及び検証も行われた[12,13]。本研究では、MPFI法を用いたVULCANO VE-U7実験及びVE-U9実験の解析を行うことにより、超高温・高粘性流体の拡散・凝固挙動の詳細な検討を行うと共に、コリウム組成が異なる流体の拡散挙動の違いを計算上で再現できることを確認する。得られた結果から、福島第一

コリウム拡散現象推定に活用できる手法であることを確認する。

2. MPFI 法概略

2.1 支配方程式

本研究では、以下に示すナビエ-ストークス方程式を支配方程式として適用する。

$$\rho \frac{du_i}{dt} = \frac{\partial}{\partial x_i} \mu \dot{\varepsilon}_{ij} + \frac{\partial}{\partial x_i} P_i + \rho g_i \quad (1)$$

ここで $g, P, u, \rho, \mu, \varepsilon$ はそれぞれ重力加速度, 圧力, 速度, 流体密度, 流体粘性, 歪速度を表す。右辺第一項は粘性項, 右辺第二項は圧力項を表す。ここで圧力項は以下の式で表す。

$$P = \left(-\lambda \dot{\varepsilon}_{kk} + \kappa \frac{\rho_k - \rho_0}{\rho_0} \right) \quad (2)$$

ここで λ, κ は体積粘性率及び体積弾性率を表す。 λ, κ が十分大きな値を採用することで、非圧縮条件を達成する。粒子法では以下に示す粒子間相互作用モデルを用いて、離散化を行う。

$$\nabla \phi = \sum_j (\phi^j + \phi^i) r_r^{ij} \frac{w^{ij}}{d^{ij}} \quad (3)$$

$$\nabla \cdot A = \sum_j (A^j - A^i) r_r^{ij} \frac{w^{ij}}{d^{ij}} \quad (4)$$

$$\nabla^2 \phi = \sum_j (\phi^j - \phi^i) \frac{w^{ij}}{d^{ij}} \quad (5)$$

ここで ϕ, A, r^{ij} 及び d^{ij} は任意のスカラー値, 任意のベクトル, 粒子 i, j 間の相対距離及び粒子間距離を表す。 w^{ij} は, 重み関数の微分であり, 重み関数は以下のように定義される。

$$w^{ij} = \begin{cases} (r_e - d^{ij}) & (d^{ij} < r_e) \\ 0 & (d^{ij} > r_e) \end{cases} \quad (6)$$

ここで r_e は影響半径を表す。以上の粒子間相互作用モデルを用いて式(1)-(2)を離散化すると

$$\frac{du_i}{dt} = 2\mu \sum_j \left(u_r^j - u_r^i - \frac{\omega_p^j + \omega_p^i}{2} r_q^{ij} \varepsilon_{pqr} \right) \frac{w^{ij}}{d^{ij}} - \lambda \sum_j (\dot{\varepsilon}^j + \dot{\varepsilon}^i) r_r^{ij} \frac{w^{ij}}{d^{ij}} + \rho g \quad (7)$$

$$P^i = -\lambda \sum_j (u^j - u^i) r_r^{ij} \frac{w^{ij}}{d^{ij}} + \kappa \frac{n_i - n_0}{n_0} \quad (8)$$

$$\sum_j \left(u_r^j - u_r^i - \omega_p^j r_q^{ij} \varepsilon_{pqr} \right) r_s^{ij} \varepsilon_{rst} \frac{w^{ij}}{d^{ij}} \Delta t = 0 \quad (9)$$

ω 及び式(9)は角速度及び角運動量保存式を表している。

2.2 熱伝導・熱伝達モデル

本研究では、以下のエネルギー保存式から温度を算出する。

$$\frac{DH}{Dt} = k \nabla^2 T + Q, \quad (10)$$

ここで、 H, k, T, Q は単位体積あたりのエンタルピー、熱伝導率、温度及び熱源を表している。また、固体-液体間の熱伝達方程式は

$$\frac{DH_i}{Dt} = \sum_j hL(T^j - T^i) \frac{w^{ij}}{d^{ij}} + Q \quad (11)$$

ここで熱伝達率は並行平板を流れる Nu 数から算出する。

$$Nu = 0.664 Re^{1/2} Pr^{1/3} \quad (Re < 3.2 \times 10^5) \quad (12)$$

$$Nu = 0.037 Re^{0.8} Pr^{1/3} \quad (Re > 3.2 \times 10^5) \quad (13)$$

Re, Pr はそれぞれレイノルズ数, プラントル数である。また、ステファン-ボルツマン則から自由表面において輻射熱損失を考慮すると

$$\frac{DH}{Dt} = k \nabla^2 T - \frac{\sigma \varepsilon A T_e^4}{l} \quad (14)$$

となる。ここで、 σ, ε, T_e はそれぞれステファン-ボルツマン定数, 放射率, 環境温度である。式(10),(11),(14)はラプラシアンモデル (式(5)) を用いて離散化を行う。

2.3 相変化モデル

本研究では、相変化を流体粒子の粘性を変化させることによりモデル化を行う。粒子の温度及び固相率は

$$T = \begin{cases} T_m + \frac{h-h_0}{\rho C_{ps}} & (h < h_0) \\ T_m + \frac{h-h_0}{\rho C_{pm}} & (h_0 < h < h_1) \\ T_m + \frac{h_1-h_0}{\rho C_{pm}} + \frac{h-h_1}{\rho C_{pl}} & (h_1 < h) \end{cases} \quad (15)$$

$$\gamma = \begin{cases} 1 & (h < h_0) \\ \frac{h_1-h}{h_1-h_0} & (h_0 < h < h_1) \\ 0 & (h_1 < h) \end{cases} \quad (16)$$

ここで $C_{ps}, C_{pm}, C_{pl}, h_0, h_1, T_m$ は固相比熱, 融点時の比熱, 液相比熱, 凝固エンタルピー, 融解エンタルピー, 融点である。 γ は固相率を表し, 1 の時に固体, 0 の時に液体, その間で固体-液体混合状態を表す。上記の固相率を元に, Rammaccioti[14]の粘性モデルを用いて粘性を求める。

$$\begin{cases} \mu = \mu_0 \exp(2.5C\gamma) & (0 < \gamma < 0.70) \\ \mu = 100\mu_0 \exp(2.5C\gamma) & (0.70 \leq \gamma < 1) \end{cases} \quad (17)$$

C は定数であり, 通常 4-8 の間の値を採用する。

3. VULCANO spreading 解析条件

VULCANO VE-U7 実験体系の模式図を Fig.1 に示す。VE-U7 はセラミックス床面、コンクリート床面の二つのチャンネルを有する装置となっているが、本解析では床面材質の溶融を考慮しないために、セラミックス床面を解析対象とした。同様に VULCANO VE-U9 実験もセラミックス床面での実験を解析対象とした。

Table1 に VULCANO 実験で用いた溶融物物性をまとめた。VULCANO VE-U9 では VULCANO VE-U7 と比べて溶融物組成全体に含まれる鉄成分の割合が多くなっている。それにより、液相線温度が低下している。また、初期固相率も双方共に高いことから、溶融物の粘性も高くなっている。Table1 の物性を有する流体粒子を計算領域へ流出させる。尚、粒子径は 0.005m、影響半径は 0.01m とした。

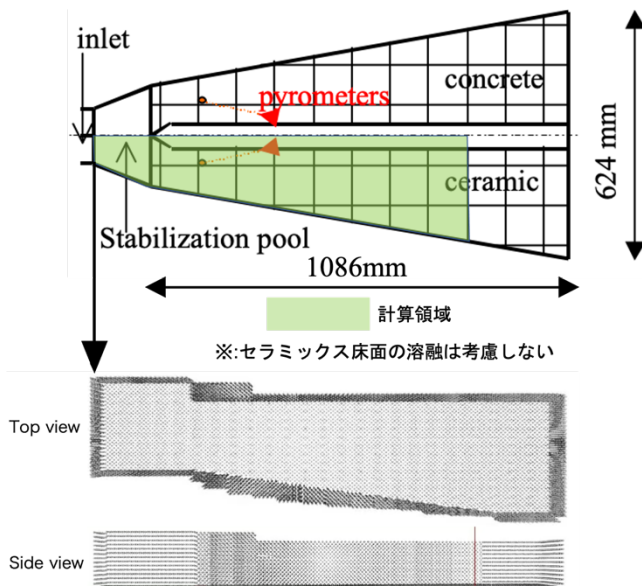


Fig. 1 VULCANO 解析体系模式図

Table 1 VULCANO 実験コリウム物性

	VE-U7 (CEA)	VE-U9 (CEA&MHI)
溶融物組成	61%:UO ₂ , 30%:ZrO ₂ , 3.0%:FeO, 2.0%:Fe	46.4%:UO ₂ , 24.0%:ZrO ₂ , 21.8%:Fe ₂ O ₃ , 2.4%:Cr ₂ O ₃
液相温度 (K)	2623 ± 50K	2083
固相温度 (K)	1273 ± 50	1413
初期固相率 (-) ^[7]	0.5	0.45
初期粘性 (Pa s) ^[7]	4e2	1e2
初期温度 (K)	2450	2050
溶融物熱伝導率 (W/m · K)	3.0	6.0
潜熱(J/kg)	1×10 ⁴	1×10 ⁴
比熱(J/kg · K)	800	800

4. 解析結果

4.1 VULCANO VE-U7 の解析結果

VULCANO VE-U7 の解析結果を Fig.2 に示す。図は温度履歴を表し、上部からのスナップショットである。10秒程度までは温度が大きく下がることなく拡散しているが、それ以降溶融物の温度が急速に減少し、拡散が緩やかになっている傾向が見て取れる。横からのスナップショットを Fig.3 に示す。溶融物は角運動量保存の影響を受け、先端部を巻き込みながら拡散していく様相が確認された。また、凝固挙動を解析すると、床面及び自由表面は熱伝達及び輻射熱損失によりクラストを形成している一方、内包されている粒子は液相を保持していることが確認された。このような傾向は過去の解析でも同様に確認されている。

拡散距離の実験と数値計算の比較を Fig. 4 に示す。数値計算の結果は実験結果と同様の傾向を示した。

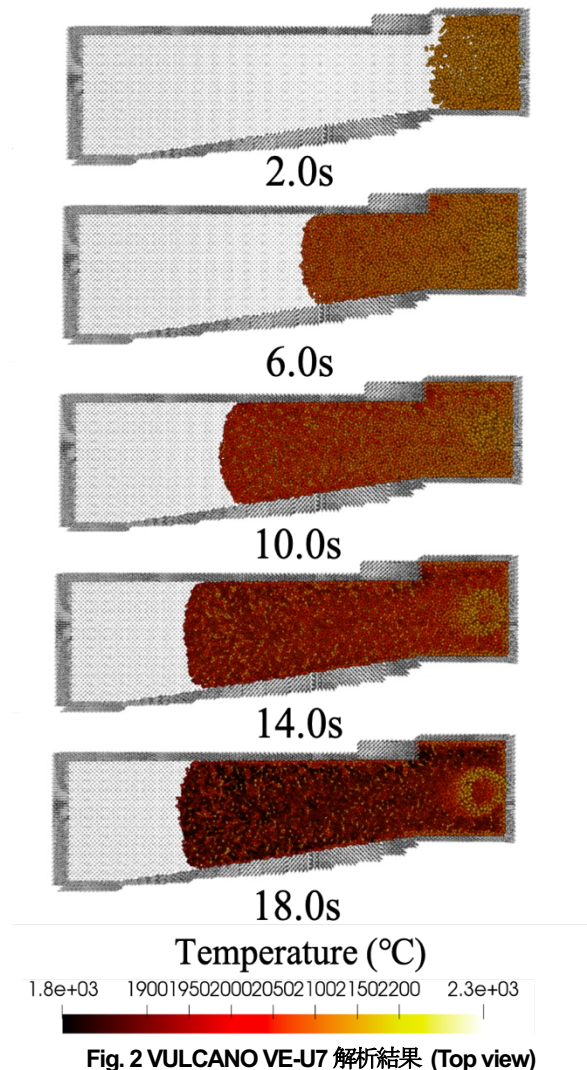


Fig. 2 VULCANO VE-U7 解析結果 (Top view)

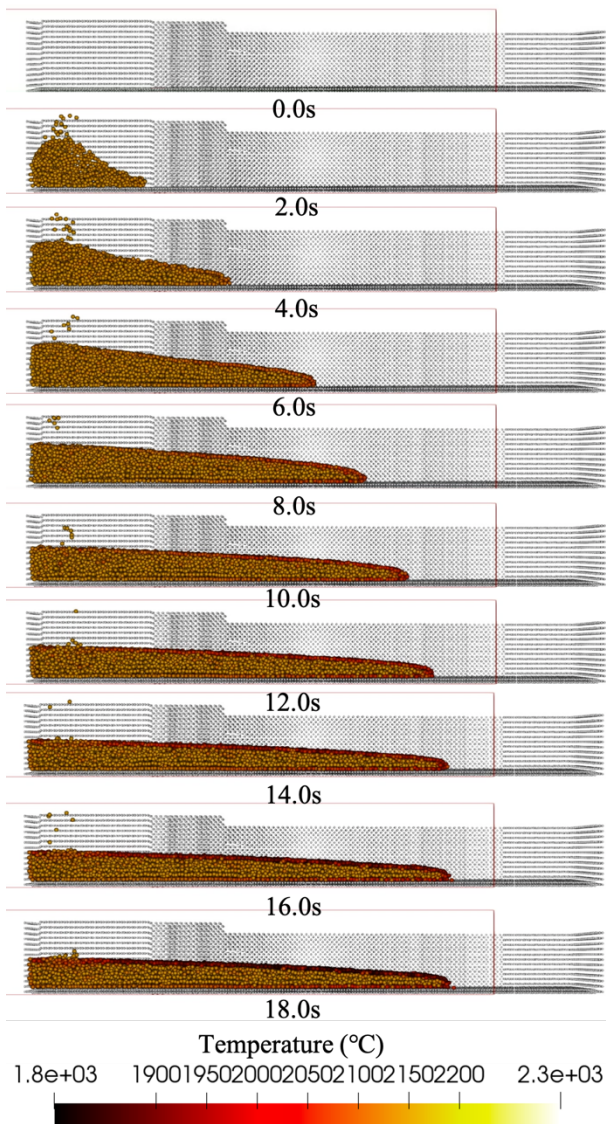


Fig. 3 VULCANO VE-U7 解析結果 (Side view)

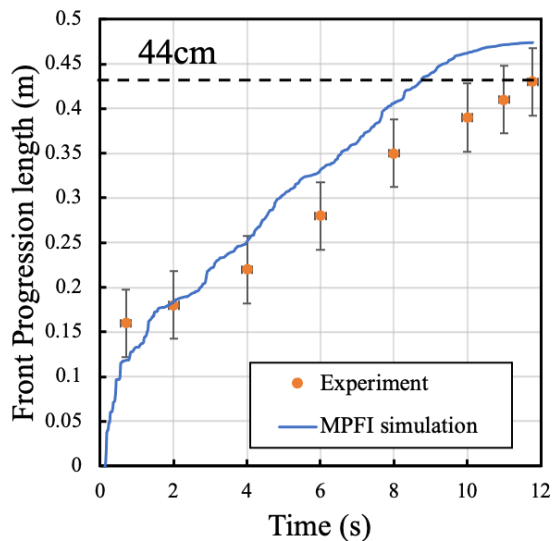


Fig. 4 VULCANO VE-U7 の拡散進展比較

4.2 VULCANO VE-U9 の解析結果

VULCANO VE-U9 の解析結果を Fig.5 に示す. 同様に温度履歴を示している. VE-U7 の結果と比較すると VE-U9 の方がより拡散している傾向が確認される. これは粘性が低下したことで、より拡散しやすくなったからである. VE-U7 解析結果同様に、10秒以降拡散が緩やかになった. 横からのスナップショットを Fig.6 に示す. 横から観察すると VE-U9 の方が薄く広く拡散している傾向がわかる. また、凝固メカニズムはVE-U7 と同様であった.

最後に拡散進展に関する定量比較を Fig.7 に示す. 同様に計算結果は実験結果を良好に再現できた.

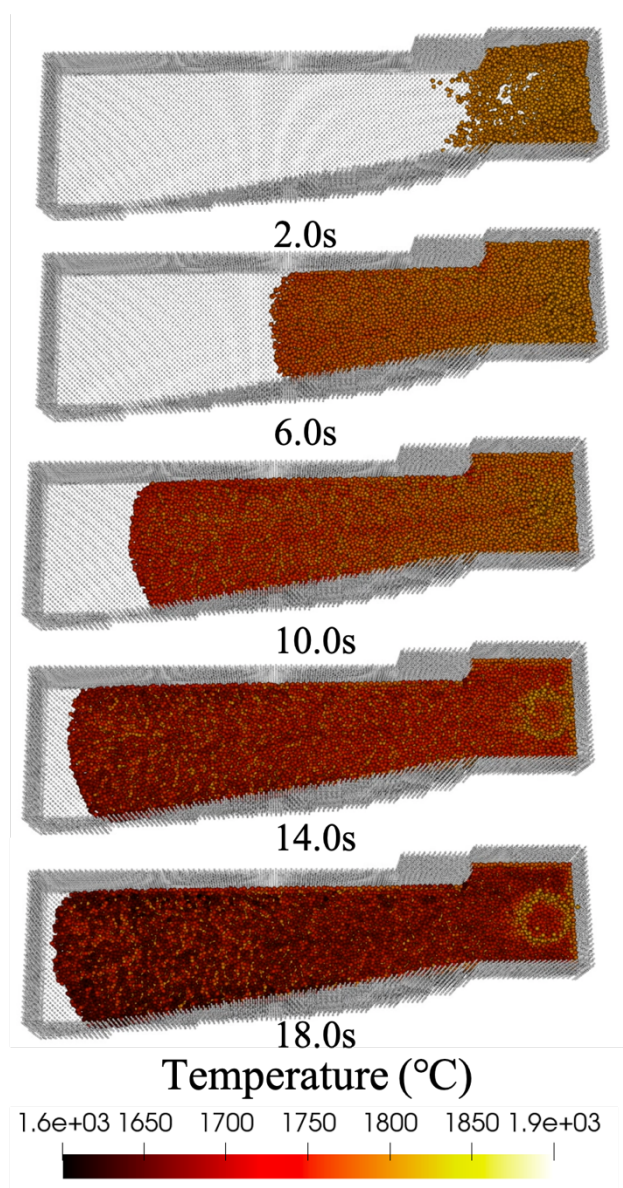


Fig. 5 VULCANO VE-U9 解析結果 (Top view)

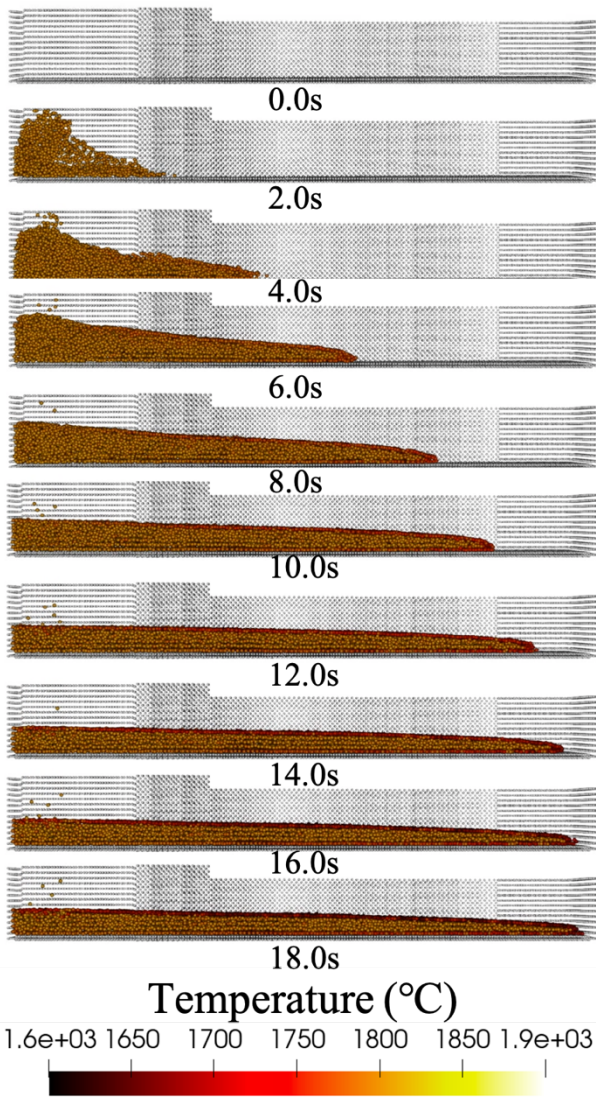


Fig. 6 VULCANO VE-U9 解析結果 (Side view)

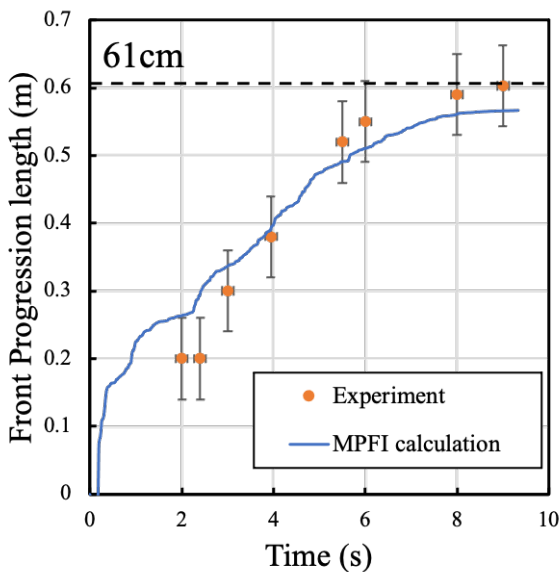


Fig. 7 VULCANO VE-U9 の拡散進展比較

5. 結論

本研究では相変化を伴う高粘性流体の溶融凝固挙動を調査するために角運動量を保存する粒子法である MPFI 法を用いた溶融凝固解析を行なった。フランスで行われた大規模実験「VULCANO」を対象とし、セラミックス床面上でのコリウムの拡散挙動を解析した。酸化物が主成分である VULCANO VE-U7 実験と鉄成分が多く含まれる VE-U9 実験の二つを解析し、コリウム組成の違いが拡散・凝固挙動に与える影響を調査した。相変化は粒子の粘性を変化させることでモデリングした。

解析の結果、VE-U7,VE-U9 とともに、初期は急激にコリウムが拡散していき、10 秒以降急激に拡散が停止される傾向が確認された。また、床面及び自由表面の粒子は熱伝達・輻射によりクラストを形成した一方、内包される粒子は液相を保持していた。VE-U7 と VE-U9 を比較すると VE-U9 の方が拡散したことがわかった。また、VE-U9 の方が薄く凝固した。粘性が低下したことが影響したと考えられる。以上のことから、コリウム組成の違いによる拡散挙動の違いを再現することができた。本手法を利用することにより、福島第一原子力発電所で発生した溶融コリウムの PCV 床面上での拡散挙動を推定できる可能性が示唆された。

謝辞

本研究は東京大学社会連携講座「統合廃炉工学」の燃料デブリ性状推定に係る三菱重工（株）との共同研究の成果である。本研究の遂行にあたり、有益な助言並びに VULCANO VE-U9 の実験データを提供して下さりました事、心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1] C Joumeau, E Boccaccio, P Fouquart et al., Corium spreading over concrete: the VULCANO VE-U7 and VE-8 test, Proceedings of ICONE 10, Arlington, VA, April 14-18, 2002, No.22278.
- [2] 合田 博志, 蒲原 覚, 竹内 淳一他, シビアアクシデント時の溶融炉心冷却・MCCI 対策の信頼性向上に係る研究, 日本原子力学会 2020 年秋の大会, 2K11.
- [3] 原 伸英, 小田 拓央, 吉田 啓祐他, シビアアクシデント時の溶融炉心冷却・MCCI 対策の信頼性向上に係る研究, 日本原子力学会 2020 年秋の大会,

2K12.

- [4] S Yamashita, T Ina, Y Idomura et al., A numerical simulation method for molten material behavior in nuclear reactors, *Nuclear Engineering and Design*, **322**, 2017, 301-312.
- [5] S Koshizuka, Y Oka, Moving particle semi-implicit method for fragmentation of incompressible fluid, *Nuclear Science and Technology*, **123**, 1996, 421-434.
- [6] Y Yasumura, A Yamaji, M Furuya et al., Investigation on influence of crust formation on VULCANO VE-U7 corium spreading with MPS method, *Annals of Nuclear Energy*, **107**, 2017, 119-127.
- [7] Jubaidah, G Duan, A Yamaji et al., Investigation on corium spreading over ceramic and concrete substrates in VULCANO VE-U7 experiment with moving particle semi-implicit method. *Annals of Nuclear Energy*, **141**, 2020, 107266.
- [8] G. Duan, A Yamaji, S Koshizuka, A novel multiphase MPS algorithm for modeling crust formation by highly viscous fluid for simulating corium spreading, *Nuclear Engineering and Design*, **343**, 2019, 218-231.
- [9] M Kondo, A physically consistent particle method for incompressible fluid flow calculation. *Computational Particle Mechanics*, **8**, 2021, 69–86.
- [10] M kondo, S Ueda, K Okamoto, Melting simulation using a particle method with angular momentum conservation, proceedings of ICONE 25, Shanghai, China, July 2-6, 2017, 67588.
- [11] M Kondo, A New Particle Method for Incompressible flow with Thermodynamic Consistency. Proceedings of the 9th XJTU-UT-SJTU Joint Symposium on Nuclear Science and Technology, Shanghai, China, November 13–15, 2016.
- [12] R Yokoyama, M Kondo, S Suzuki et al., Analysis of molten metal spreading and solidification behaviors using moving particle full-implicit method, *Frontiers in Energy*, 2021 (in press)
- [13] R Yokoyama, M Kondo, S Suzuki et al., Investigation of the outflow and spreading-solidification behavior of stratified molten metal, *Journal of Nuclear Engineering*, **2**, 2021, 168-189
- [14] M Rammacciotti, C Journeau, F Sudreau et al., Viscosity models for corium melts, *Nuclear Engineering and Design*, **(1-3)**, 2001, 377-389