

## 燃料デブリ取出し時における 放射性核種飛散防止技術の開発 (委託研究)

－平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業－

Development of Technology to Prevent Scattering of Radioactive Materials  
in Fuel Debris Retrieval  
(Contract Research)

-FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology  
and Human Resource Development-

廃炉国際共同研究センター  
東京大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science  
The University of Tokyo

福島研究開発部門  
福島研究開発拠点

Fukushima Research Institute  
Sector of Fukushima Research and Development

March 2020

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Institutional Repository Section,  
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,  
Japan Atomic Energy Agency.  
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発（委託研究）  
ー 平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 ー

日本原子力研究開発機構  
福島研究開発部門 福島研究開発拠点

廃炉国際共同研究センター

東京大学

(2019 年 11 月 25 日受理)

日本原子力研究開発機構（JAEA）廃炉国際共同研究センター（CLADS）では、平成 30 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（以下、「本事業」という）を実施している。本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、平成 30 年度「燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発」について取りまとめたものである。

本研究は、福島第一原子力発電所の燃料デブリ取り出し時の放射性微粒子閉じ込めを着実に行うため、気相及び液相における微粒子の挙動を把握するとともに、飛散防止対策として①水スプレー等を活用し、極力少量の水で飛散を抑制する方法、②燃料デブリを固めて取り出すことで飛散を抑制する方法について実験及びシミュレーションによる評価、開発を行う。

---

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、東京大学が実施した成果に関するものである。

廃炉国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

Development of Technology to Prevent Scattering of Radioactive Materials in Fuel Debris Retrieval  
(Contract Research)  
—FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource  
Development—

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

The University of Tokyo

Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development  
Japan Atomic Energy Agency  
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

(Received November 25, 2019)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development (hereafter referred to “the Project”) in FY2018. The Project aims to contribute to solving problems in nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields. The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2018, this report summarizes the research results of the “Development of Technology to Prevent Scattering of Radioactive Materials in Fuel Debris Retrieval”.

The objective of the present study is to clarify the behavior of microparticles in gas and liquid phases in order to steadily confine radioactive microparticles at the time of debris retrieval in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. In addition, as measures to prevent scattering, we will evaluate and develop methods by experiments and simulation as to; 1) a method to suppress the scattering with minimum amount of water utilizing water spray etc., and 2) a method to suppress the scattering by solidifying fuel debris.

Keywords: Fuel Debris Retrieving, Fukushima Daiichi NPS, Preventing Scattering Radioactive Materials, Particle Behaviors in Air and Water, Aerosol Particles, Water Spray, Geopolymer, Moving Particle Full-implicit Method

---

This work was performed by The University of Tokyo under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

|                                    |   |
|------------------------------------|---|
| 1 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要 ..... | 1 |
| 2 平成 30 年度採択課題 .....               | 2 |
| 付録 成果報告書 .....                     | 5 |

Contents

|                                                                                                                        |   |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---|
| 1. Outline of Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development ..... | 1 |
| 2. Accepted Proposal in FY2018 .....                                                                                   | 2 |
| Appendix Result Report .....                                                                                           | 5 |

This is a blank page.

## 1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成26年6月文部科学省)」等を踏まえ、平成27年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。

また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(平成31年度より新設)に再編した。

## 2. 平成 30 年度採択課題

平成 30 年度は「共通基盤型原子力研究プログラム」、「課題解決型廃炉研究プログラム」、「国際協力型廃炉研究プログラム」において、研究課題の採択を決定した。公募の概要は以下のとおりである。

- ・ 公募期間：平成 30 年 5 月 22 日（火）～6 月 22 日（金）  
平成 30 年 5 月 22 日（火）～7 月 12 日（木）※日英共同研究のみ
- ・ 提案数：
  - 共通基盤型原子力研究プログラム 49 課題（若手研究 14 課題、一般研究 35 課題）
  - 課題解決型廃炉研究プログラム 28 課題
  - 国際協力型廃炉研究プログラム 5 課題

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定し、その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、表 2-1 に掲げる 19 の採択課題を決定した。

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧（1/3）

## 共通基盤型原子力研究プログラム

## 【若手研究】

| 課題名                                                       | 研究代表者 | 所属機関   |
|-----------------------------------------------------------|-------|--------|
| 被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発 | 河野 仁  | 東京工芸大学 |
| 汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化                         | 山崎 信哉 | 筑波大学   |
| ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価                      | 片岡 隆浩 | 岡山大学   |
| 炉心熔融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発                                   | 大石 佑治 | 大阪大学   |
| iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立                          | 島田 幹男 | 東京工業大学 |



表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (2/3)

| 課題名                                         | 研究代表者 | 所属機関 |
|---------------------------------------------|-------|------|
| レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発 | 岩田 圭弘 | 東京大学 |

## 【一般研究】

| 課題名                                | 研究代表者  | 所属機関        |
|------------------------------------|--------|-------------|
| 放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発 | 新井 剛   | 芝浦工業大学      |
| 燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発           | 牟田 浩明  | 大阪大学        |
| レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定             | 斉藤 拓巳  | 東京大学        |
| 過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発             | 岡本 保   | 木更津工業高等専門学校 |
| レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発      | 長谷川 秀一 | 東京大学        |

## 課題解決型廃炉研究プログラム

| 課題名                                        | 研究代表者 | 所属機関 |
|--------------------------------------------|-------|------|
| 合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究                  | 桐島 陽  | 東北大学 |
| ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法 | 谷森 達  | 京都大学 |
| 燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発                | 鈴木 俊一 | 東京大学 |

表 2-1 平成 30 年度採択課題一覧 (3/3)

| 課題名                               | 研究代表者 | 所属機関                    |
|-----------------------------------|-------|-------------------------|
| アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発 | 黒澤 俊介 | 東北大学                    |
| ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究               | 渡邊 隆行 | 九州大学                    |
| 先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発 | 萩原 雅之 | 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構 |

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

| 課題名                           | 研究代表者  | 所属機関 |
|-------------------------------|--------|------|
| 放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献 | 五十嵐 康人 | 茨城大学 |
| 放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発      | 三澤 毅   | 京都大学 |

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日仏共同研究）

| 課題名  | 研究代表者 | 所属機関 |
|------|-------|------|
| 採択なし | —     | —    |

本報告書は上記のうち、課題解決型廃炉研究プログラム「燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発」について記したものである。

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

# 付録

## 成果報告書

This is a blank page.

平成 30 年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

燃料デブリ取出し時における  
放射性核種飛散防止技術の開発

(契約番号 30I120)

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立大学法人東京大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人東京大学が実施した平成 30 年度「燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発」の成果を取りまとめたものです。

## 目次

|                             |    |
|-----------------------------|----|
| 概略                          | vi |
| 1. はじめに                     | 1  |
| 2. 業務計画                     |    |
| 2.1 全体計画                    | 2  |
| 2.1.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発        | 2  |
| 2.1.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価     | 2  |
| 2.1.3 取りまとめ                 | 3  |
| 2.2 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法 | 4  |
| 2.2.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発        | 4  |
| 2.2.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価     | 4  |
| 2.2.3 取りまとめ（課題抽出）           | 4  |
| 3. 平成 30 年度の実施内容及び成果        | 5  |
| 3.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発          | 5  |
| 3.1.1 模擬燃料デブリの作製（連携先：JAEA）  | 5  |
| 3.1.1.1 作成方法                | 5  |
| 3.1.1.2 模擬燃料デブリ試験材の分析結果     | 6  |
| 3.1.1.3 まとめ                 | 7  |
| 3.1.2 微粒子飛散試験               | 12 |
| 3.1.2.1 試験目的                | 12 |
| 3.1.2.2 試験方法                | 12 |
| 3.1.2.3 試験装置の概要             | 13 |
| 3.1.2.4 試験内容                | 15 |
| 3.1.2.5 熱解析                 | 23 |
| 3.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価       | 40 |
| 3.2.1 被覆材の作製（連携先：JAEA）      | 40 |
| 3.2.2 被覆材特性評価               | 48 |
| 3.2.3 微粒子物性評価               | 55 |
| 3.2.4 被覆材流動解析               | 66 |
| 3.3 取りまとめ（課題抽出）             | 73 |
| 3.4 研究推進                    | 73 |
| 4. 結言                       | 74 |

## 表一覧

|           |                             |    |
|-----------|-----------------------------|----|
| 表 3.1.1-1 | ジオポリマー配合表                   | 8  |
| 表 3.1.2-1 | 異なるケースの試験条件                 | 18 |
| 表 3.1.2-2 | 燃料デブリの熱物性値                  | 25 |
| 表 3.1.2-3 | コンクリートの熱物性値                 | 25 |
| 表 3.1.2-4 | 燃料デブリの体積分布                  | 27 |
| 表 3.1.2-5 | 各年毎の推定崩壊熱                   | 27 |
| 表 3.2-1   | ジオポリマー注入・養生・保管時の条件          | 41 |
| 表 3.2-2   | ベース泥水の配合組成                  | 48 |
| 表 3.2-3   | 沈降型重泥水の配合組成                 | 49 |
| 表 3.2-4   | 粘度測定試験の条件一覧                 | 49 |
| 表 3.2-5   | SIAL®ジオポリマーの試験項目及び測定項目、測定装置 | 50 |
| 表 3.2-6   | SIAL®ジオポリマーの粘度、フロー値測定結果     | 51 |
| 表 3.2-7   | 照射試験の試料一覧                   | 52 |
| 表 3.2-8   | ビンガム流体シミュレーションの計算条件         | 69 |
| 表 3.2-9   | ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算条件  | 70 |

## 図一覧

|            |                                |    |
|------------|--------------------------------|----|
| 図 2-1      | 全体計画図                          | 3  |
| 図 3.1.1-1  | 溶融体及び焼結体（加熱前後）                 | 8  |
| 図 3.1.1-2  | サンプルの粉化プロセス                    | 9  |
| 図 3.1.1-3  | X線回折パターン測定結果（アーク炉）             | 10 |
| 図 3.1.1-4  | X線回折パターン測定結果（電気炉）              | 10 |
| 図 3.1.1-5  | 粒子径の頻度分布及び累積分布測定結果（アーク炉）       | 11 |
| 図 3.1.1-6  | 粒子径の頻度分布及び累積分布測定結果（電気炉）        | 11 |
| 図 3.1.2-1  | チャンバー容器                        | 13 |
| 図 3.1.2-2  | 実験セットアップ状況                     | 14 |
| 図 3.1.2-3  | ILDS 試験の概略図と液滴寸法               | 16 |
| 図 3.1.2-4  | 単一液滴と AP 間の相互作用                | 16 |
| 図 3.1.2-5  | 実験で観察された異なる相互作用メカニズム           | 17 |
| 図 3.1.2-6  | チャンバー容器内で測定した $ZrO_2$ サイズ分布    | 18 |
| 図 3.1.2-7  | ミストサイズ分布                       | 19 |
| 図 3.1.2-8  | 噴霧時のエアロゾル粒子サイズの変化              | 20 |
| 図 3.1.2-9  | スプレー時間 $t=2400$ 秒でのグローバルスプレー効率 | 21 |
| 図 3.1.2-10 | チャンバー容器のガス中の全エアロゾル質量の発生        | 21 |
| 図 3.1.2-11 | エアロゾル除去速度の推定                   | 22 |
| 図 3.1.2-12 | 実用的なジオメトリ                      | 24 |
| 図 3.1.2-13 | 崩壊熱                            | 26 |
| 図 3.1.2-14 | 1F1 PCV 内の推定条件                 | 26 |



|            |                                               |    |
|------------|-----------------------------------------------|----|
| 図 3.1.2-15 | 解析モデルの初期境界条件                                  | 27 |
| 図 3.1.2-16 | 部分気中 PCV モデル                                  | 28 |
| 図 3.1.2-17 | 計算グリッドと境界条件                                   | 28 |
| 図 3.1.2-18 | 推定温度履歴                                        | 28 |
| 図 3.1.2-19 | 温度および流れ場                                      | 29 |
| 図 3.1.2-20 | 部分気中 PCV 条件の推定温度                              | 29 |
| 図 3.1.2-21 | 気中 PCV モデル                                    | 30 |
| 図 3.1.2-22 | 気中 PCV 条件の推定温度                                | 30 |
| 図 3.1.2-23 | セメント系材料での完全被覆モデル                              | 31 |
| 図 3.1.2-24 | 推定温度履歴                                        | 31 |
| 図 3.1.2-25 | セメント系材料被覆有無の温度比較                              | 32 |
| 図 3.1.2-26 | 熱伝導率を変えたセメント系材料完全被覆の影響                        | 33 |
| 図 3.1.2-27 | 完全被覆と部分被覆モデルの比較                               | 34 |
| 図 3.1.2-28 | ペDESTAL基部冷却モデル                                | 34 |
| 図 3.1.2-29 | 部分被覆の場合の熱伝導率の影響                               | 35 |
| 図 3.1.2-30 | 部分被覆に対する外部冷却の効果                               | 36 |
| 図 3.1.2-31 | 局所被覆のモデル                                      | 37 |
| 図 3.1.2-32 | 外部冷却の効果 (Case-1)                              | 38 |
| 図 3.1.2-33 | 外部冷却の効果 (Case-2 & Case-3)                     | 39 |
| 図 3.2-1    | ジオポリマーの各条件における粘性係数測定結果                        | 50 |
| 図 3.2-2    | 試料外観                                          | 51 |
| 図 3.2-3    | 照射位置概略図                                       | 51 |
| 図 3.2-4    | 照射時の写真                                        | 51 |
| 図 3.2-5    | 照射後ガス発生量分析結果                                  | 52 |
| 図 3.2-6    | 照射後水素ガス発生量結果                                  | 53 |
| 図 3.2-7    | 沈降率測定概念図                                      | 54 |
| 図 3.2-8    | 時間依存による沈降率変化                                  | 54 |
| 図 3.2-9    | 照射量依存による沈降率の変化                                | 55 |
| 図 3.2-10   | ジオポリマーサンプル                                    | 56 |
| 図 3.2-11   | ダイヤモンドソーによるジオポリマー試料切断の様子                      | 57 |
| 図 3.2-12   | レーザー切断によるジオポリマー試料切断の様子                        | 57 |
| 図 3.2-13   | 機械切断によって発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子の SEM 像の比較         | 58 |
| 図 3.2-14   | 機械切断によって発生したジオポリマー粒子の EDX マッピング結果             | 59 |
| 図 3.2-15   | 機械切断で発生したジオポリマー粒子とその粒子の懸濁液の様子                 | 59 |
| 図 3.2-16   | 人力切断で発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子のサイズ分布の比較             | 60 |
| 図 3.2-17   | 機械切断および手動切断で発生したジオポリマー粒子の粒径分布の比較              | 61 |
| 図 3.2-18   | 水中で 120 分間沈降させた後のジオポリマー粒子懸濁液のサイズ分布<br>(機械的切断) | 62 |
| 図 3.2-19   | ジオポリマー粒子懸濁液の吸光度の時間変化                          | 62 |

|              |                                                 |    |
|--------------|-------------------------------------------------|----|
| 図 3.2-20     | レーザー切断で発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子の SEM 画像              | 63 |
| 図 3.2-21     | レーザー切断で発生したジオポリマー粒子の EDX マッピング画像                | 63 |
| 図 3.2-22     | ギブサイト粒子（アルミナ三水和物）の粒度分布                          | 64 |
| 図 3.2-23     | ギブサイト粒子の SEM 像                                  | 64 |
| 図 3.2-24     | 高純度ジルコニア粒子の粒度分布                                 | 65 |
| 図 3.2-25     | 高純度ジルコニア粒子の SEM 像                               | 65 |
| 図 3.2-26     | ジオポリマーペーストのレオロジー特性 1                            | 67 |
| 図 3.2-27     | ジオポリマーペーストのレオロジー特性 2                            | 67 |
| 図 3.2-28     | ジオポリマーペーストのレオロジー特性 3                            | 68 |
| 図 3.2-29     | ビンガム流体シミュレーションの計算体系                             | 69 |
| 図 3.2-30     | ビンガム流体シミュレーションの計算結果                             | 70 |
| 図 3.2-31     | ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算体系                      | 70 |
| 図 3.2-32 (a) | ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算結果<br>(降伏応力が 10 Pa の場合) | 71 |
| 図 3.2-32 (b) | ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算結果<br>(降伏応力が 20Pa の場合)  | 71 |

## 写真一覧

|           |                                                                       |    |
|-----------|-----------------------------------------------------------------------|----|
| 写真 3.2-1  | 空气中・室温条件下での試料注入の様子（試料 No. 1、2）                                        | 43 |
| 写真 3.2-2  | 空气中・室温条件下で作製した試料を空气中（100%RH）・室温条件下で養生<br>および保管する様子（試料 No. 1、2）        | 43 |
| 写真 3.2-3  | 水中作製時、注入に用いたシリンジ                                                      | 44 |
| 写真 3.2-4  | 水中・室温条件下で作製した試料を水中・室温条件下で養生する様子<br>(試料 No. 3)                         | 44 |
| 写真 3.2-5  | 空气中・室温条件下で作製した試料、7 日間空气中（100%RH）室温条件下で<br>養生後、型枠からの取出し直前の様子（試料 No. 1） | 45 |
| 写真 3.2-6  | 空气中・室温条件下で作製した試料、7 日間空气中（100%RH）室温条件下で<br>養生後、型枠からの取出し直後の様子（試料 No. 1） | 45 |
| 写真 3.2-7  | 空气中・室温条件下で作製した試料、7 日間空气中（100%RH）、室温条件下で<br>養生後の様子（試料 No. 2）           | 46 |
| 写真 3.2-8  | 水中・室温条件下で作製した試料、7 日間水中・室温条件下で養生後の様子<br>(試料 No. 3)                     | 46 |
| 写真 3.2-9  | 水中・室温条件下で作製した試料、7 日間水中・室温条件下で養生後の様子<br>(試料 No. 4)                     | 47 |
| 写真 3.2-10 | 水中・50℃条件下で作製した試料、7 日間水中・50℃条件下で養生後の様子<br>(試料 No. 5)                   | 47 |

## 略語一覧

|      |                                                                            |                    |
|------|----------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| AP   | : Aerosol Particle                                                         | (エアロゾル粒子)          |
| CEA  | : Commissariat à l' énergie atomique et aux énergies alternatives          | (フランス原子力・代替エネルギー庁) |
| CRD  | : Control Rod Drive                                                        | (制御棒駆動)            |
| EDX  | : Energy Dispersive X-ray spectrometry                                     | (エネルギー分散型 X 線分析)   |
| GP   | : Geopolymer                                                               | (ジオポリマー)           |
| HEPA | : High Efficiency Particulate Air                                          | (高効率空気中微粒子)        |
| HMW  | : Heavy Mud Water                                                          | (沈降型重泥水)           |
| ILDS | : Interferometric laser imaging                                            | (干渉レーザーイメージング法)    |
| JAEA | : Japan Atomic Energy Agency                                               | (日本原子力研究開発機構)      |
| MCCI | : Molten Core Concrete Interaction                                         | (溶融炉心—コンクリート相互作用)  |
| NDF  | : Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation | (原子力損害賠償・廃炉等支援機構)  |
| PCV  | : Primary Containment Vessel                                               | (原子炉格納容器)          |
| PIV  | : Particle Image Velocimetry                                               | (粒子画像流速測定法)        |
| RPV  | : Reactor Pressure Vessel                                                  | (原子炉圧力容器)          |
| SEM  | : Scanning Electron Microscope                                             | (走査型電子顕微鏡)         |

This is a blank page.

## 概略

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（1F）の燃料デブリ取り出し工法として現在、気中-上取り出し工法、気中-横取り出し工法が有力候補であるが、格納容器補修による閉じ込め機能の確保は現状困難である。このため、取り出し時に放射性微粒子をいかに閉じ込めるかが安全機能を確保する上で極めて重要な課題である。閉じ込めを着実にを行うためには、切断時に発生する $\alpha$ 核種を含む放射性飛散微粒子の挙動を明確にし、飛散を抑制する技術を開発する必要がある。本研究では、気相及び液相における微粒子の挙動を把握するとともに、飛散防止対策として①水スプレー等を活用し、極力少量の水で飛散を抑制する方法、②燃料デブリを固めて取り出すことで飛散を抑制する方法について実験及びシミュレーションにより評価を行う。また併せて水スプレーによる冷却性能に関する評価も行い、燃料デブリ取出し時に発生する微粒子の効率的な閉じ込め技術を開発する。

平成30年度実施した研究の概要を以下に示す。

### (1) 燃料デブリ飛散防止技術の開発

#### ①模擬燃料デブリの作製（連携先：JAEA）

試験材として適切な燃料デブリ性状に関して東京大学と協議の上、微粒子飛散試験に供する模擬燃料デブリ試験体を非放射性材料により試作した。

アーク炉での作製では Zr を主材とし、粉碎効率を上げるために  $ZrO_2$  を混合、電気炉では  $ZrO_2$  を主材とし、粉碎効率を上げるために  $CeO_2$  を混合した。さらに、Fe を少量添加した条件も追加し、合計 4 種類のサンプルを試作した。

#### ②微粒子飛散試験

微粒子と液滴との相互作用を調べるため、液滴試験装置、密閉容器内微粒子飛散試験装置および水スプレー試験装置を設計し、製作を行った。さらに、PIV、レーザー等微粒子測定装置、機械的切削工具、並びに物性や形状の異なるエアロゾル粒子を準備して簡易試験を行い、基本性能を確認した。また、燃料デブリの冷却性能に関しては、汎用コードである STAR-CCM により、PCV 下部に燃料デブリがある場合における水冷・空冷・施工材有無の条件下での熱解析を実施した。

### (2) 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価

#### ①被覆材の作製（連携先：JAEA）

試験材として適切なジオポリマー性状に関して東京大学と協議の上、燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価に供するジオポリマーを試作した。

ジオポリマー試作にあたっては、注入時・養生時における環境（空气中、水中）および温度（室温、50℃）条件を変化させ、メタカオリンを使ったジオポリマーを 5 種類試作した。

#### ②被覆材特性評価

安定化被覆材に関しては、上記ジオポリマーの他、欧州で実績のあるジオポリマー SIAL® を富士電機株式会社と、飛散抑制効果のある沈降型超重泥水を NB 研究所と協議し、試作した。

また、被覆材の評価としては、熱伝導率、時間経過に伴う粘性変化等各種基礎材料特性を把握するとともに、一部の被覆材について流動試験を行い、流動、拡散、凝固挙動を把握した。

被覆材の一部は、 $\gamma$ 線照射を行い、照射前後の熱伝導率変化や照射後水素発生量等を測定した。 $\gamma$ 線照射試験の結果、水分含有量の少ない材料およびパラジウム添加材は照射による水素発生

量が少なくなることが判った。

### ③微粒子物性評価

異なる性状の微粒子についてサイズ分布、組成、形状を光散乱、電子顕微鏡観察、ゼータ電位計等により評価した。また、安定化被覆材のジオポリマーを対象に、微粒子発生量、サイズ分布、組成、形状を光散乱、電子顕微鏡観察、ゼータ電位計等により評価した。

購入した微粒子の測定から、本実験で用いる測定手法の妥当性を確認した。また、機械的切断およびレーザー切断で生じたジオポリマー粒子の測定から、粒子は均質な組成を持つ $\mu\text{m}$ 以上の比較的大きな粒子とサブ $\mu\text{m}$ の小さな粒子からなり、特に、レーザー切断では熱影響によって、球状の粒子が生成することが分かった。

### ④被覆材流動解析（再委託先：産業技術総合研究所）

燃料デブリ安定化被覆材の流動特性を表現する数理モデル選定するため、被覆材ジオポリマーについて文献調査を行い、流動に関する数理モデルとしては、ビンガム流体あるいはニュートン流体として表現されるモデルが適切であることを確認した。

また、新たに開発した幅広い粘性を統一的に扱える粒子法を用いて、被覆材の流動試験の試験体系を模擬した計算を行い、降伏応力によりある程度流れた時点で流動が停止する挙動を計算できることを確認した。

## 1. はじめに

1F の燃料デブリに関しては 2021 年の取り出し開始に向けて工法の検討が進められており、気中-上アクセス工法及び気中-横アクセス工法が有望な工法と評価されている<sup>1)</sup>。取り出しに重要な安全機能は、①冷却、②閉じ込め（気体、液体）、③不活性化及び④未臨界であるが、PCV 上部を補修せずに気中で取り出しを行う場合、放射性核種を含む粉塵の飛散防止や PCV 止水などの閉じ込めに関する課題を解決する必要がある。今までの実機調査やシミュレーション結果から、1、3 号機においては多くの燃料デブリが PCV 底部に落下、2 号機においては多くは RPV 底部に一部は PCV に落下していると判断されている。一方、昨年度の福島第一原子力発電所 2 号機、3 号機における PCV 内部調査では燃料ハンドルや制御棒が PCV 底部に観察されており、CRD の RPV 貫通孔よりも大きな開口部が RPV 底部に生じていると考えられる<sup>2) 3)</sup>。RPV 内や CRDハウジングに付着した燃料デブリ取り出し時には、RPV 底部からの燃料デブリ落下による臨界、損傷などを防ぎつつ、併せて切断時の放射性物質飛散を極力抑制することが重要である。また PCV 下部にある CRD 交換用構造物や底部の MCCI 生成物を取り出す際にも、切断時の気相中、気液界面、液相中微粒子挙動を把握し、微粒子の気中拡散を極力抑制することが重要である。多量の注水の循環は、取り出し時の循環ラインにおいてフィルター交換頻度を高めることや、ポンプ・配管の詰まり・腐食等を生じる原因となるため、将来的には注水量を極力低減することが望ましく、この場合、負圧管理とともにより簡便に飛散防止を図る手段が必要となる。

本研究は、NDF の 6 つの重要廃炉研究開発課題の一つであるデブリ取出し時に発生する微粒子閉じ込めに関する研究であり、上記潜在的課題を解決するため、燃料デブリ取出し時における微粒子挙動の観察及び微粒子閉じ込めシステム技術の開発を行い、総合的な閉じ込め性能を評価することを目的とする。

具体的には取り出し時における放射性飛散微粒子を飛散させないため、（1）水スプレーを活用し、極少量の水で飛散を抑制する方法及び、（2）燃料デブリを固めてから取り出すことにより飛散を抑制する方法について実験及びシミュレーションにより評価を行う。また併せて冷却性能についても解析評価を行う。

以上の研究により、微粒子の気中・液中挙動並びに飛散防止対策について総合評価を行い、最終的には福島第一原子力発電所に実装可能なシステムを提案する。

- 1) 原子力損害賠償・廃炉等支援機構，“東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン 2015”，（2015）
- 2) 東京電力 HD(株)，“福島第一原子力発電所 2 号機原子炉格納容器内内部調査実施結果”，2018 年 2 月 1 日
- 3) 東京電力 HD(株)，“福島第一原子力発電所 3 号機原子炉格納容器内部調査について”，2017 年 11 月 30 日



## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

本業務の内容を以下に示めすとともに、全体計画図を図 2-1 に示す。

#### 2.1.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発：担当機関 東京大学、JAEA

燃料デブリ取り出し時における  $\alpha$  ダストを含む放射性物質飛散防止技術を評価するため、模擬燃料デブリを作製し、取り出し時の放射性微粒子（含むエアロゾル）の飛散挙動並びに水スプレー等による飛散抑制効果を実験及びシミュレーションにより評価する。また水スプレーによる燃料デブリ除熱効果（含む被覆材有無）についてシミュレーションにより評価を行う。

平成 30 年度には、福島第一原子力発電所特有の模擬燃料デブリを JAEA と協議して作製し、試験に供するデブリ微粒子を準備する。併せて試験材として物性や形状の異なるエアロゾル粒子（カーバイド、シリカ等）を購入する。

またエアロゾル粒子と液滴との相互作用を調べるため、液滴試験装置、小型密閉容器内での微粒子飛散試験装置、及び中型密閉容器内での水スプレー試験装置を設計し、製作を行う。尚、微粒子飛散試験装置には機械的な切削工具を組み合わせることにより微粒子を発生させ、飛散状況を把握する。測定に関しては、PIV、レーザー等微粒子測定装置を準備し、試験装置と組み合わせ性能確認のための簡易試験を実施する。燃料デブリの冷却性能に関しては、STAR-CCM により、簡易計算を行う。

平成 31 年度には、異なる組成の模擬燃料デブリを作製するとともに、上記装置を用いて微粒子飛散挙動及び水スプレーによる抑制効果を実験及びシミュレーションにより評価する。具体的には微粒子を用いた液滴試験を先ず実施し、①電荷、②親水性、③寸法及び形状等によって特有の性質を有する微粒子と水滴との相互作用を把握する。また微粒子飛散装置を用いて、切断により発生する微粒子の飛散挙動を把握する。これらの成果を基に、液滴サイズ、注水圧力、水質条件を変えるなど効果的なスプレースystemとなるように水スプレー試験装置の調整を行う。調整後の水スプレー試験では、密閉容器内において異なるサイズの液滴を用いた試験を行い、微粒子捕獲が高く、かつ水量が少ない最適条件を把握する。

また下記(2)に示す燃料デブリ被覆材を含めた飛散挙動を同試験装置により把握するとともに、飛散防止対策としての水スプレーの有効性についても評価を行う。

燃料デブリ冷却性能に関しては、被覆材有無の条件下での燃料デブリ表面及び内部温度の評価を STAR-CCM code を用いた数値流体力学シミュレーションにより評価する。

平成 32 年度には、上記微粒子飛散試験を継続するとともに、粗い高温表面へ落下させた液滴の沸騰や拡がり状況の確認試験、及び水スプレーによる表面冷却試験を実施し、水スプレーによる燃料デブリ冷却効果を実験及び数値流体力学シミュレーションにより評価する。

最終的には燃料デブリ等放射性物質飛散防止のための対策の有効性について除熱性も含めた評価を行う。

#### 2.1.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価：担当機関 東京大学、JAEA

放射性核種の飛散抑制のために、安定化被覆材を模擬燃料デブリ表面に流し込んで安定固定化し、その後取り出す施工方法を検討する。本課題では、安定化並びに飛散防止材として、ジオポリマー及び沈降型超重泥水等を選択し、流動性、温度特性、耐放射性、水素発生特性等各種基礎特性を評価する。また形状の異なるエアロゾル粒子や模擬燃料デブリ及び被覆材の微粒



子について、表面電荷（電位）、親水性、形状等基礎物性データを取得し、上記(1)に示す飛散挙動試験に資する。更に冷却水の組成を変えた場合（例、ホウ酸水）における電荷、親水性についても併せて評価を行う。冷却水は最終的には廃棄物となるため、被覆材を含めた浸出試験を行い、廃棄物保管処分に資するための評価を行う。

平成 30 年度には、ジオポリマー及び沈降型超重泥水について粘性、流動特性を測定するとともに、 $\gamma$ 線照射により、熱伝達率、水素発生特性を一部取得する。また上記材料の微粒子について、電荷、親水性、形状、粒径分布等を測定する。

平成 31 年度には、材料特性試験及び $\gamma$ 線照射試験による特性把握を継続するとともに、模擬燃料デブリ微粒子、ジオポリマー（+沈降型超重泥水）を被覆した模擬燃料デブリ微粒子、及び実機施工を想定して溶液条件を変えた（例えば臨界防止のためホウ素を入れた）微粒子について、電荷、親水性、形状、粒径分布等を測定する。

平成 32 年度には上記測定を継続するとともに、取り出し後の廃棄物保管処分に資するため、ジオポリマーの浸出試験を実施する。

### 2.1.3 取りまとめ：担当機関 東京大学

本研究では大規模燃料デブリ取り出し時における $\alpha$ ダストを含めた放射性物質飛散等のリスクを低減するため、最適水スプレーシステムによる飛散防止工法や燃料デブリを一旦安定化してから取り出す工法について総合評価を行い、実機プラントへの適用を提案する。

| 実施項目                     | 平成30年度                                                          | 平成31年度                                                    | 平成32年度                                                           |
|--------------------------|-----------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------|
| (1)燃料デブリ飛散防止技術に関する研究（東大） |                                                                 |                                                           |                                                                  |
| ①模擬燃料デブリ作製（JAEA）         | ①模擬燃料デブリ作製                                                      | ①模擬燃料デブリ作製                                                |                                                                  |
| ②微粒子飛散試験（東大）             | ①粉末購入<br>②液滴試験、微粒子飛散試験、水スプレー試験装置設計・製作<br>③粒子測定装置準備<br>④冷却性能簡易計算 | ①微粒子飛散試験(含む、被覆材有無)<br>②水スプレー試験(含む、被覆材有無)<br>③温度分布シミュレーション | ①微粒子飛散試験(含む、被覆材有無)<br>②水スプレー試験(含む、被覆材有無、冷却効果確認)<br>③冷却効果シミュレーション |
| (2)安定化被覆材施工に関する研究（東大）    |                                                                 |                                                           |                                                                  |
| ①被覆材作製（JAEA）             | ①被覆材作製                                                          | ①被覆材作製                                                    |                                                                  |
| ②被覆材特性試験（東大）             | ①被覆材粘性・流動性試験<br>② $\gamma$ 線照射試験<br>③微粒子物性確認試験                  | ①被覆材粘性・流動性試験<br>② $\gamma$ 線照射試験<br>③微粒子物性確認試験            | ①被覆材粘性・流動性試験<br>② $\gamma$ 線照射試験<br>③微粒子物性確認試験                   |
| ③微粒子物性評価（東大）             | ①被覆材微粒子物性評価                                                     | ①燃料デブリ・被覆材物性評価                                            | ①燃料デブリ・被覆材物性評価<br>②ジオポリマー浸出試験                                    |
| ④被覆材流動解析（産総研）            | ①被覆材流動モデルの構築                                                    | ①被覆材流動モデルのパラメータ設定                                         | ①施工性シミュレーション                                                     |
| (3)とりまとめ 報告書作成等（東大）      | 報告書作成                                                           | 報告書作成                                                     | 報告書作成                                                            |

図 2-1 全体計画図

## 2.2 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法

平成 30 年度の各項目の計画概要を以下に示す。

### 2.2.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発

#### (1) 模擬燃料デブリの作製（連携先：JAEA）

試験材として適切な燃料デブリ性状に関して東京大学と協議の上、微粒子飛散試験に供する模擬燃料デブリ試験体を非放射性材料により試作する。

#### (2) 微粒子飛散試験

微粒子と液滴との相互作用を調べるため、液滴試験装置、密閉容器内微粒子飛散試験装置及び水スプレー試験装置を設計し、製作を行う。更に、PIV、レーザー等微粒子測定装置、機械的切削工具、並びに物性や形状の異なるエアロゾル粒子を準備し、性能確認のための簡易試験を実施する。また、燃料デブリの冷却性能に関して、STAR-CCM により、簡易計算を行う。

### 2.2.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価

#### (1) 被覆材の作製（連携先：JAEA）

試験材として適切なジオポリマー性状に関して東京大学と協議の上、燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価に供するジオポリマーを試作する。

#### (2) 被覆材特性評価

安定化被覆材に関しては、上記ジオポリマーの他、欧州で実績のあるジオポリマー SIAL を富士電機（株）と、飛散抑制効果のある沈降型超重泥水を NB 研究所と協議し、試作する。

被覆材の評価としては、熱伝導率、時間経過に伴う粘性変化等各種基礎材料特性を把握するとともに、一部の被覆材について流動試験を行い、流動、拡散、凝固挙動を把握する。

また被覆材の一部は $\gamma$ 線照射を行い、照射前後の熱伝導率変化や照射後水素発生量等を測定する。

#### (3) 微粒子物性評価

異なる性状の微粒子についてサイズ分布、組成、形状を光散乱、電子顕微鏡観察、ゼータ電位計等により評価する。また、安定化被覆材のジオポリマーを対象に、微粒子発生量、サイズ分布、組成、形状を光散乱、電子顕微鏡観察、ゼータ電位計等により評価する。

#### (4) 被覆材流動解析（再委託先：産業技術総合研究所）

燃料デブリ安定化被覆材の流動特性を表現する数理モデルの候補を調査・選定する。また、新たに開発した幅広い粘性を統一的に扱える粒子法を用いて、被覆材の流動試験の試験体系を模擬した計算を行い、安定化被覆材を模擬する数理モデルを開発するための準備を行う。

### 2.2.3 取りまとめ（課題抽出）

上記研究成果をとりまとめて次年度に向けた課題を抽出する。

### 3. 平成 30 年度の実施内容及び成果

#### 3.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発

##### 3.1.1 模擬燃料デブリの作製（連携先：JAEA）

試験材として適切な燃料デブリ性状に関して東京大学と協議の上、微粒子飛散試験に供する模擬燃料デブリ試験体を非放射性材料により試作した。

以下には試作にあたっての材料選定と作成方法、ならびに作成後の材料分析結果を示す。

##### 3.1.1.1 作成方法

###### (1) 非放射性材料の選定

飛散させる微粒子を以下の観点から検討した。なお、事前の協議により、水スプレーによる試験には、20～50g の粉末が必要として検討を行った。

###### ① 実際の燃料デブリの取出し時に生じる微粒子を想定した粒子径のもの

レーザー等を用いた熱切断により生じる粒子径（ $0.1\mu\text{m}$  以下）が想定される最小と考える。また、切削等の機械切断により生じる粒子径の場合は、 $1\sim 100\mu\text{m}$  程度と考えられる。

###### ② 燃料デブリを考慮した材料として説明しやすいもの

非放射性材料という条件においては燃料デブリに U の次に含まれている組成の 1 つと想定される Zr を用いることが適切と考えられる。また、化学的な模擬性の説明は難しいが U の代替として Ce を添加することも検討するため、本件では Ce の有無をパラメータとして扱うこととした。

###### ③ 現有の設備等を用いて必要量が試作可能なもの

$0.1\mu\text{m}$  の粒子を期間内に 20～50g 準備することは作業時間を確保する観点から困難であると考えられたため、遊星ボールミルを利用して試作可能と考えられる機械切断により生じる粒子径  $1\sim 100\mu\text{m}$  程度の粉末を試作することとした。

上記の条件をふまえて、表 3.1.1-1 に示す供試材の原料及びその配合を設定した。試作には、金属系に限定されるものの熔融体の作製が可能である真空置換アーク溶解炉（ACM-S01TMP 特型、大亜真空株式会社。以下、アーク炉）若しくは焼結体の作製が可能である電気炉（FT-1700GHW、FULL-TECH）を用いることとした。アーク炉での試作においては Zr を主材とし、粉砕効率を上げるために  $\text{ZrO}_2$  を混合して弾性率の低下を狙った。一方、電気炉の場合は  $\text{ZrO}_2$  を主材とし、粉砕効率を上げるために  $\text{CeO}_2$  を混合して、じん性の低下を狙った。さらに、燃料デブリに存在が想定される Fe を少量添加した条件も追加し、合計 4 種類のサンプルを試作することとした。

###### (2) 模擬燃料デブリ試験材の試作

###### ① 熔融固化体、焼結体の試作

アーク炉を用いた熔融体のサンプルについては、表 3.1.1-1 の配合比に従った量の Zr 片と  $\text{ZrO}_2$

圧粉体を炉内型枠に直接装荷した。Fe を含む条件では  $ZrO_2$  粉と Fe 粉を混合した圧粉体を用意した。いずれも粉末のまま装荷すると炉内で飛散してしまい配合比が崩れるためであり、圧粉体は一軸ダイス及びハンドプレス機で作製した。加熱（溶融）は Ar 置換雰囲気下において 250A の出力で 1 分間アークを照射し、冷却固化後溶融体を反転させ再度同条件でのアーク照射を 3 セット実施した。

電気炉を用いた場合は、 $ZrO_2$ 、 $CeO_2$  及び Fe のそれぞれの粉末を表 3.1.1-1 の配合比に従って混合し、作製した圧粉体を  $Al_2O_3$  製のつばに並べて電気炉に装荷した。加熱（焼結）の条件は空気雰囲気下において  $1500^{\circ}C$  で 15 時間（3 時間/日×5 日間）加熱することとした。

アーク炉及び電気炉で試作した溶融体及び焼結体を図 3.1.1-1 に示す

## ②粉化

粉化のフローを図 3.1.1-2 に示す。ボタン状（アーク炉製）又はペレット状（電気炉製）のサンプルを粉化させる際は、破碎、粗砕、そして粉碎の 3 工程で実施した。まず、スタンプミルを用いてサンプルを人力で 5mm 以下程度の粒になるまで破碎した。次の粗砕では遊星ボールミルを使用した。遊星ボールミル用のポットに破碎片と、直径 20mm の炭化タングステン（以下、WC）製ボールを装荷して 250rpm で 5 分間運転した。取出した粗砕粉は、最後に WC 製ボールを直径 5mm に入れ替え、さらに溶媒として Novec™7200 を装荷して 250rpm で 5 分間運転した。なお、粉碎効率を上げるために、遊星ボールミルのポットへ 1 回に投入する試験材は 10g 程度とした。

粉碎後、Novec™7200 に浸っているサンプルをポットに入れたままの状態です真空乾燥装置を用いて、温度  $50^{\circ}C$  及び減圧雰囲気条件下で 12 時間乾燥させた。

### 3.1.1.2 模擬燃料デブリ試験材の分析結果

粉末状のサンプルに対し、粉末 X 線回折装置（D2 PHASER2、BRUKER。以下、XRD）を用いた定性分析及びレーザー回折式粒度分布測定装置（Malvern、マスターサイザー3000。以下、粒度分布測定装置）を用いた平均粒子径等の測定を実施した。それぞれの測定条件を以下に示す。

- XRD

測定条件：ステップ= $0.02^{\circ}$ 、スキャンスピード= $0.5^{\circ}$ /分、 $2\theta=10\sim90^{\circ}$

- 粒度分布測定装置

測定条件：湿式ユニット（蒸留水）、300rpm

#### (1) X 線回折パターン測定結果

アーク炉を用いて作製したサンプル（A1、A2）及び電気炉を用いて作製したサンプル（F1、F2）の X 線回折パターン測定結果をそれぞれ図 3.1.1-3 ならびに図 3.1.1-4 に示す。

原料を Zr と  $ZrO_2$  とする A1 は、 $Zr_3O$  が新たに生成されているものの、一部は  $ZrO_2$  が残存していることを確認した。また、A1 の原料に Fe を加えた A2 は、A1 で検出された  $Zr_3O$  と  $ZrO_2$  のピークに加えて、Zr と Fe の合金（ $Zr_2Fe$ ）のピークを確認した。

一方、 $ZrO_2$  と  $CeO_2$  を混合した焼結体である F1 については、Zr と Ce が互いに固溶したとみられる混合酸化物のピークが確認され、Zr リッチと Ce リッチのものが 1 種類ずつ、比率が 1 : 1 に近いものが 1 種類と確認されたピークが多くあった。Fe を加えた F2 については検出されたピーク

が F1 に比べて少なくなっており、また、そのピークの位置も F1 のピークから僅かにシフトしていた。これについては、F1 の組成に Fe が酸化された  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  が固溶することでピークがシフトした可能性がある一方で、Zr と Ce の固溶挙動に Fe が何らかの形で影響した可能性も考えられる。

## (2) 粒子径等測定結果

アーク炉を用いて作製したサンプル (A1、A2) 及び電気炉を用いて作製したサンプル (F1、F2) の粒子径等測定結果 (頻度分布・累積分布) をそれぞれ図 3.1.1-5 ならびに図 3.1.1-6 に示す。

A1 及び A2 はどちらも  $10\mu\text{m}$  付近のシャープなピークが確認でき、測定結果の大部分を占めていた。また、 $100\mu\text{m}$  付近にもピークを確認したが、僅かな比率であることから溶融体の硬度にバラつきが少ない、つまり、偏析の少ない均質な組成の溶融体と推定できる。

F1 及び F2 についても、アーク炉で作製したものと類似の形のピークを確認した。しかし、明確に異なる部分もあり、 $0.5\mu\text{m}$  付近で見られたブロードなピーク及び  $100\mu\text{m}$  付近のピークのシフトが挙げられる。これらはどちらも組成が影響していると考えられ、F1 及び F2 については組成が均一ではない、つまり、硬度のバラつきが大きいため粉砕の進行具合に差が生じたと推測される。

### 3.1.1.3 まとめ

非放射性材料の組成及び試験材の作製方法を検討し、試作した試験材のサンプルを粉砕したうえで性状等分析を行った。その結果、機械切断により生成する粒子径 ( $1\sim 100\mu\text{m}$ ) であるサンプルを 4 種類試作することができた。これらのうち、アーク炉で試作した溶融体の 2 種類 (A1、A2) については U は入っていないが、生成相が実際の燃料デブリにも有意に存在すると考えられる。電気炉で試作した焼結体の 2 種類 (F1、F2) については  $\text{ZrO}_2$  と  $\text{CeO}_2$  の混合酸化物となっていたものの、固溶状態が一樣でなく試験材としては適切ではないと判断された。このことから、アーク炉で作製した溶融体が模擬燃料デブリ試験材としての妥当性が高く、微粒子飛散試験に適していると考えられる。



表 3. 1. 1-1 ジオポリマー配合表

| Lot No | 材 A              | 材 B              | 材 C | 使用する炉 |
|--------|------------------|------------------|-----|-------|
|        | 配合比[mol]         |                  |     |       |
| A1     | Zr               | ZrO <sub>2</sub> | —   | アーク炉  |
|        | 1.0              | 1.0              | —   |       |
| A2     | Zr               | ZrO <sub>2</sub> | Fe  |       |
|        | 1.0              | 1.0              | 0.1 |       |
| F1     | ZrO <sub>2</sub> | CeO <sub>2</sub> | —   | 電気炉   |
|        | 1.0              | 1.0              | —   |       |
| F2     | ZrO <sub>2</sub> | CeO <sub>2</sub> | Fe  |       |
|        | 1.0              | 1.0              | 0.1 |       |

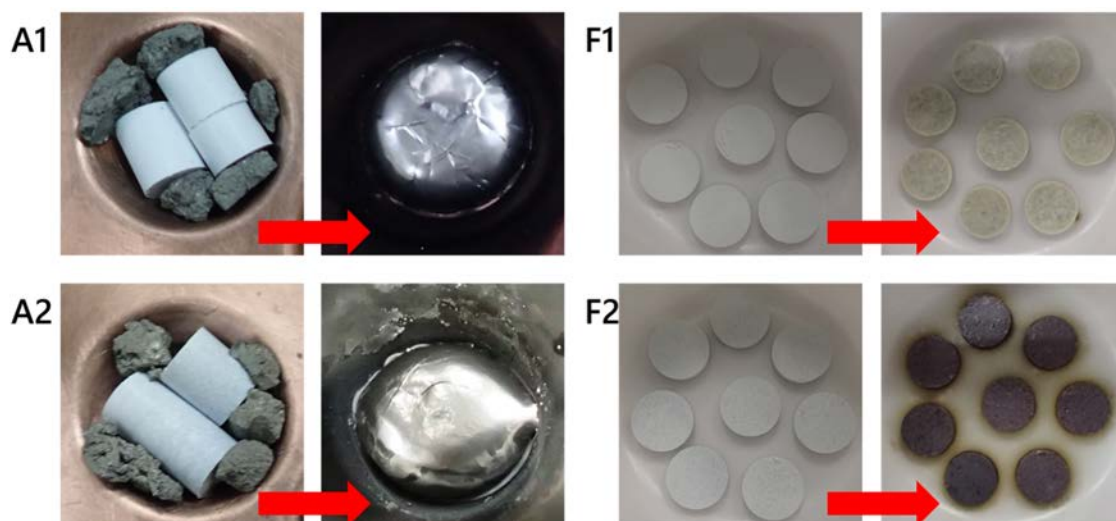


図 3. 1. 1-1 溶融体及び焼結体（加熱前後）

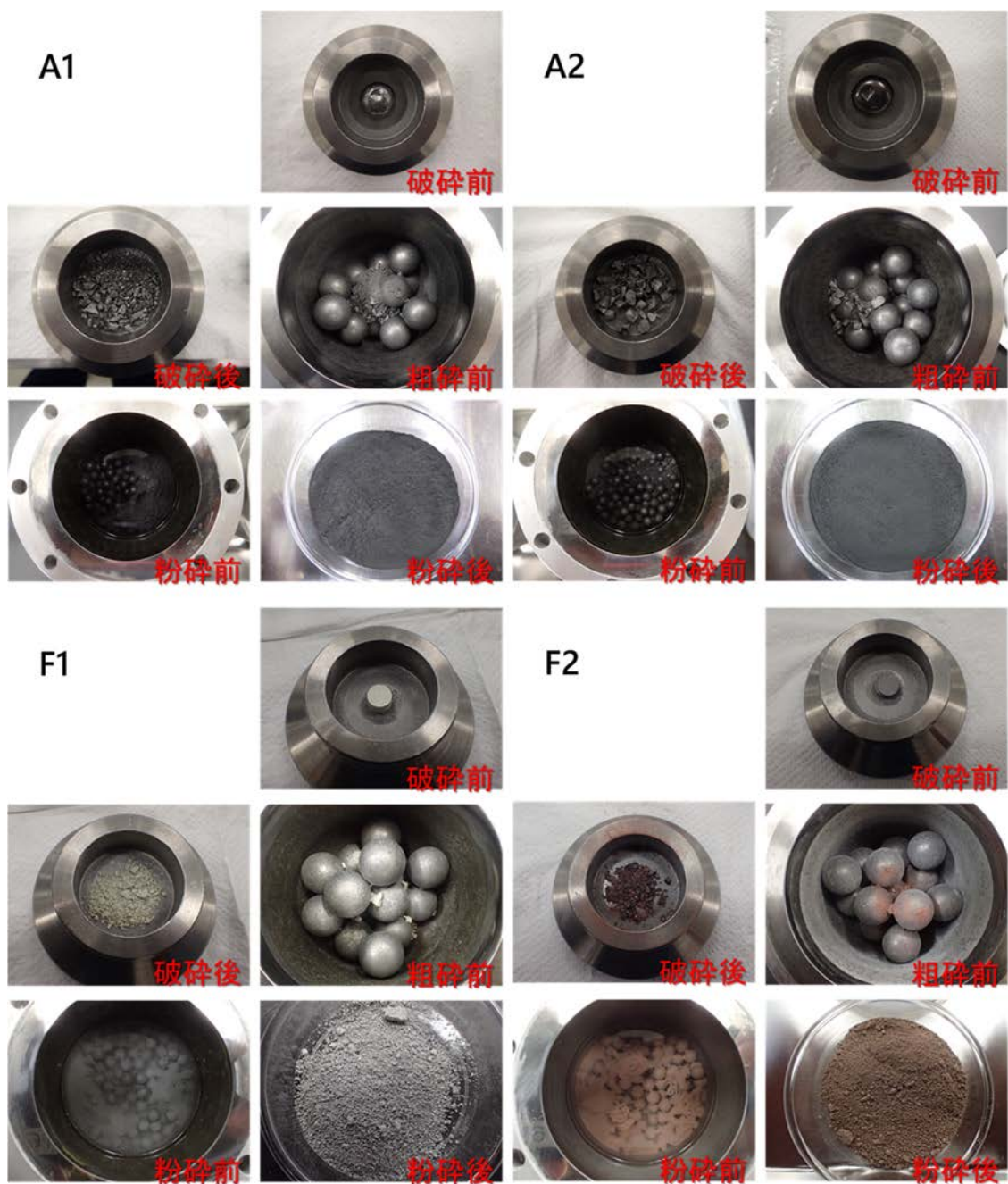


図 3. 1. 1-2 サンプルの粉化プロセス

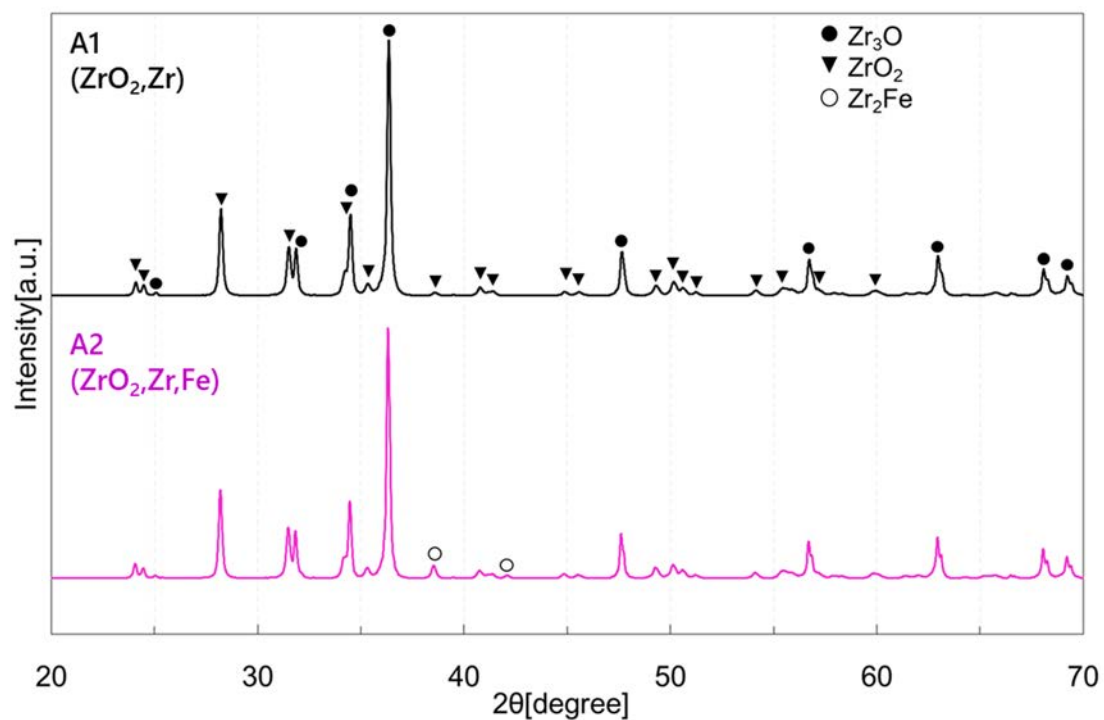


図 3. 1. 1-3 X線回折パターン測定結果（アーク炉）

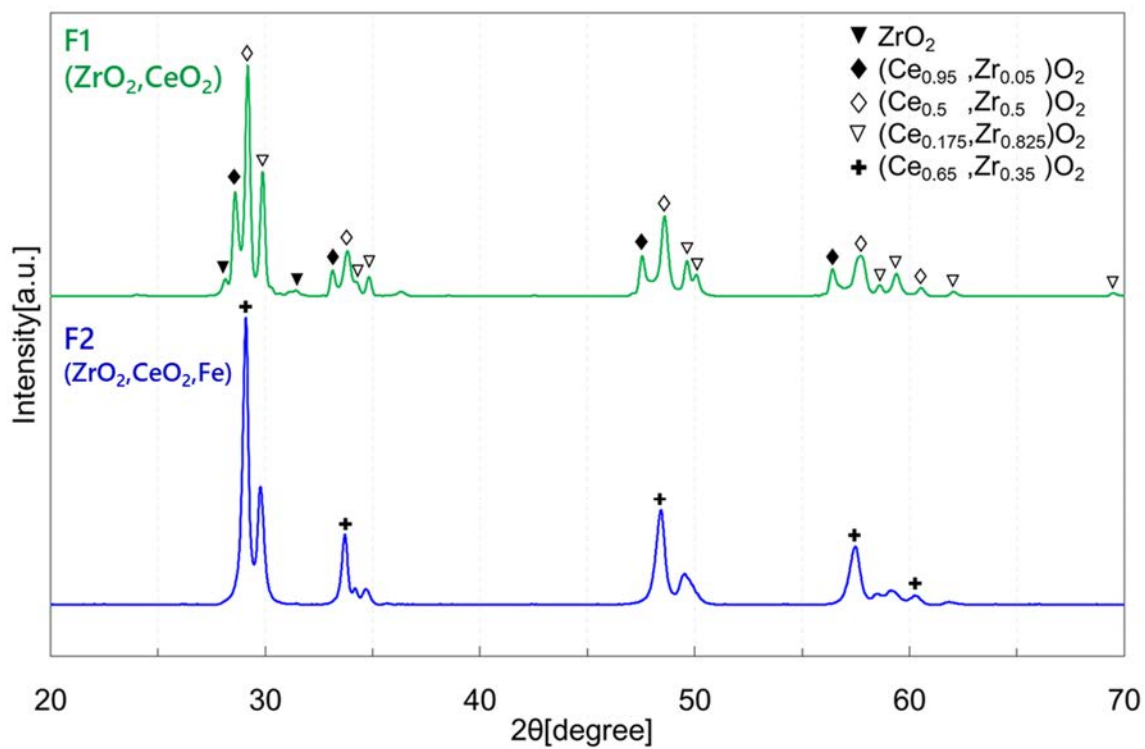


図 3. 1. 1-4 X線回折パターン測定結果（電気炉）



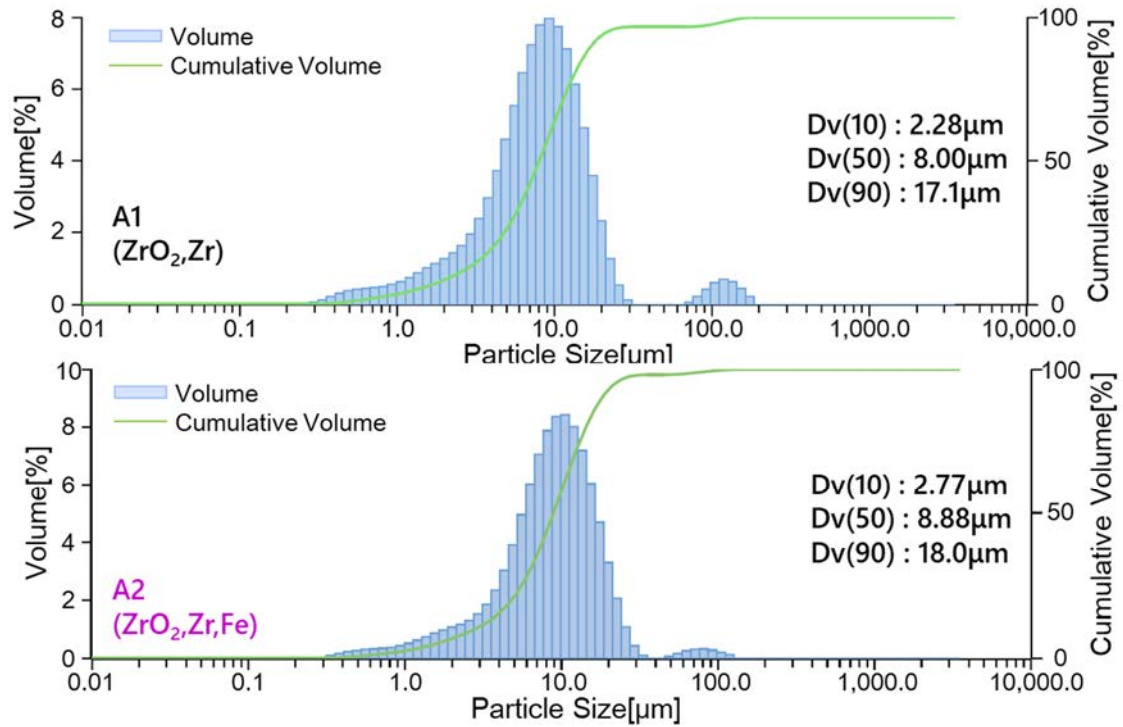


図 3. 1. 1-5 粒子径の頻度分布及び累積分布測定結果（アーク炉）

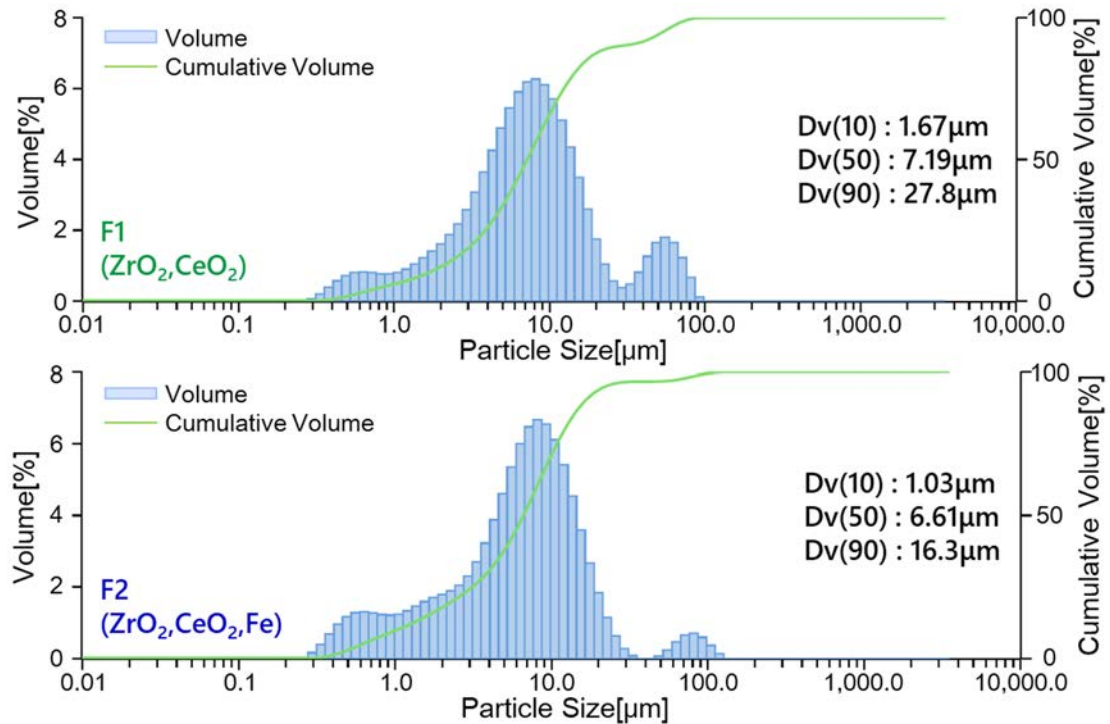


図 3. 1. 1-6 粒子径の頻度分布及び累積分布測定結果（電気炉）

### 3.1.2. 微粒子飛散試験

#### 3.1.2.1 試験目的

現状の 1F における燃料デブリ取り出し計画では、取り出し候補技術として機械的切断およびレーザー切断技術[1]が考えられているが、ともに長所と短所を有する。特に、レーザー切断は、より微細で大量の揮発性エアロゾルを発生させると考えられており、十分な対策が取られないと作業員および周辺環境に影響を与える可能性がある。一方、機械的切断は、放射性作業環境における遠隔操作として多種多様な治具が必要になるなどの困難さを有する。また採用される技術にかかわらず、PCV 内部のいかなる操作も、ガスの突然の対流発生により、堆積したエアロゾルを再浮遊する可能性がある。浮遊エアロゾル粒子は、リークタイトな閉じ込めがされない限り、放出を抑制することは極めて困難である。

軽水型原子力発電所では、エアロゾル除去のために 3 つの安全設計システム、すなわち、スプレー、蒸気抑制プール、ファンクーラーおよびベントシステムが設置されている。また水噴霧によるエアロゾル除去は、様々な用途があるため、多くの研究分野で開発されているが、いずれの技術も福島第一原発の廃止作業に伴う多種多様な困難を完全に克服できる技術とはいえない。しかしながら、スプレーシステムによるエアロゾル制御は、損傷した PCV からの微粒子飛散防止を図る技術として現状最も有効かつ適用可能なシステムの 1 つであり、1F 廃炉に求められる要求性能を加味した技術の開発が求められている。

廃炉作業において生成されたエアロゾル雲は、様々な放射性種の組成を持つナノからマイクロスケールまでの範囲の様々なサイズの粒子を潜在的に含んでいる。ガス環境からのエアロゾルのスプレー除去が広く研究されているが[2]、PCV 雰囲気における効果的な放射性エアロゾル制御のために、福島廃炉特有のスプレーシステムが設計されるべきである。エアロゾル粒子と水滴の相互作用は、粒子と液滴のサイズ、粒子形状、粒子電荷、ガス雰囲気の熱水力特性に応じて、さまざまなパラメータに支配される[3]。そこで、PCV 環境を考慮して、最適化されたスプレー構成を備えた効率的なエアロゾル制御システムを構築する必要がある。

#### 3.1.2.2 試験方法

上記目的を達成するため、以下の視点から調査・実験を行い、最適化されたスプレー構成を備えた効率的なエアロゾル制御システムを設計した。

- (1) サイズ、形態、電荷などの粒子特性に関する不確実性を考慮して、福島特有のスプレー捕捉効率の実験は、液滴サイズ、粒子サイズなどのスプレーおよびエアロゾルパラメータを変えて実施する。
- (2) グリーンフィールド領域サイズ（直径  $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ ）の極微小なエアロゾル粒子（AP）の捕捉は非常に困難であるため、粒子を凝集させてサイズを増大させるための追加方策が必要であり、慣性衝突効果を増大させることにより高い除去効率を得ることができる。このため、スプレーミストの前に水ミストまたは帯電水ミストを添加するなどいくつかの手法で実験を行う。
- (3) 上記手法と組み合わせて、異なるサイズの液滴を生成する複数のスプレーノズルを用いた実験を行い、複数のスプレーの連続操作または同時操作の有効性を把握する。

### 3.1.2.3 試験装置の概要

ガス雰囲気からのエアロゾルのスプレー捕集実験は、ステンレス鋼製のチャンバー容器中で行う。容器の 3D および 2D 図を、関連する寸法情報とともに図 3.1.2-1 に示す。容器は厚さ 5mm のステンレス鋼製であり、13 個の観察窓、および容器内側へのアクセスのための 1 つのマンホールを有している。底部には、バルブで制御される排水口があり、容器側壁には、計装およびエアロゾルサンプリングライン用のいくつかの小さな穴が開いている。上部プレナム中央のフランジからスプレー噴射パイプを挿入し、スプレーノズルの入口フランジの近くには、エアロゾル含有ガスを外部に排出するための穴を設けている。なお、排気ガスは、建物外に放出する前に、HEPA フィルターでろ過される。

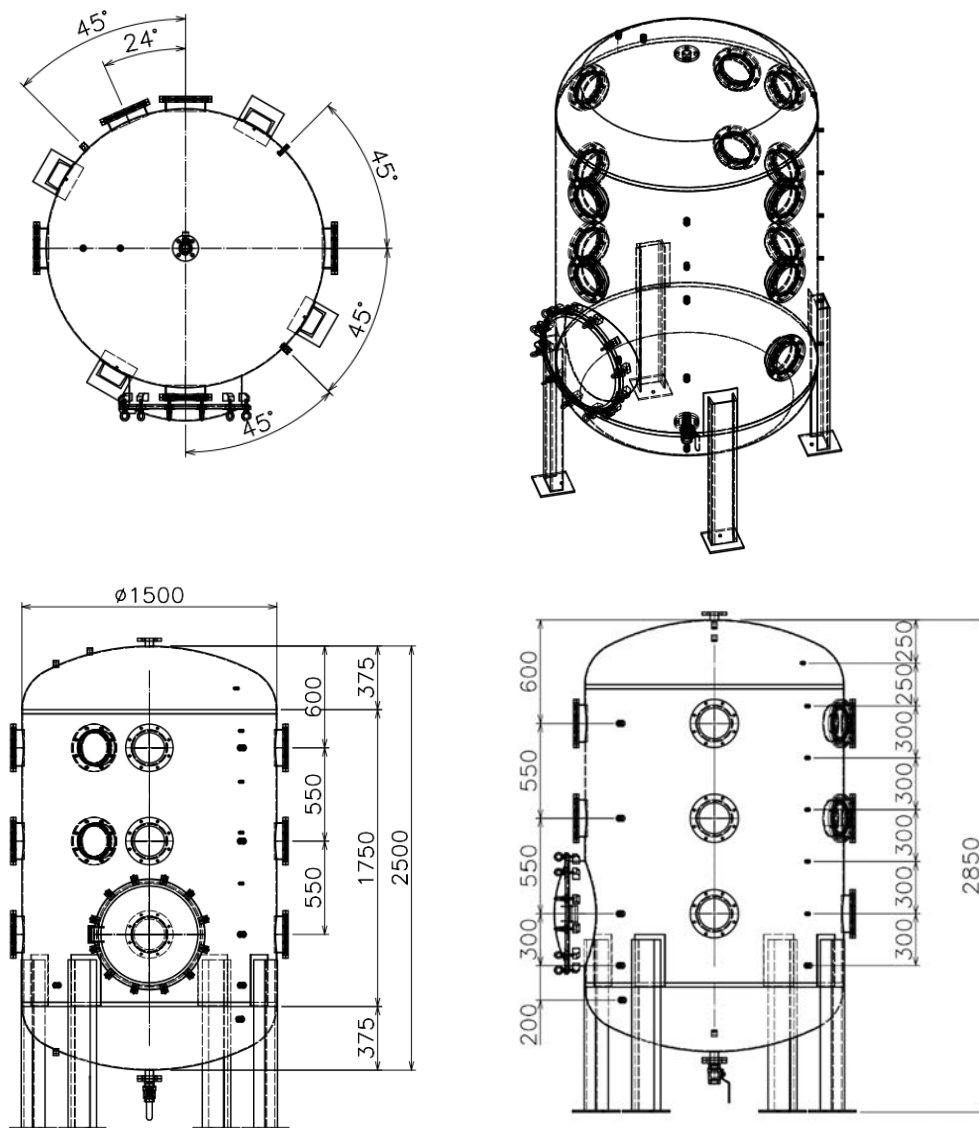
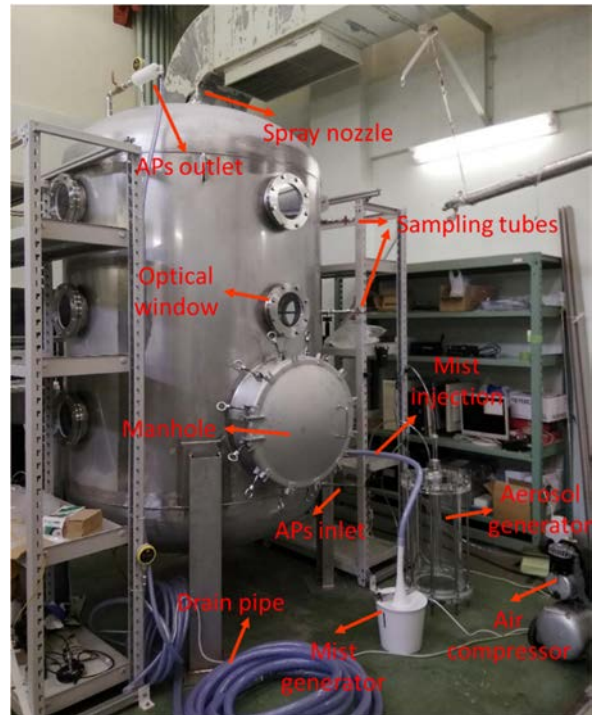
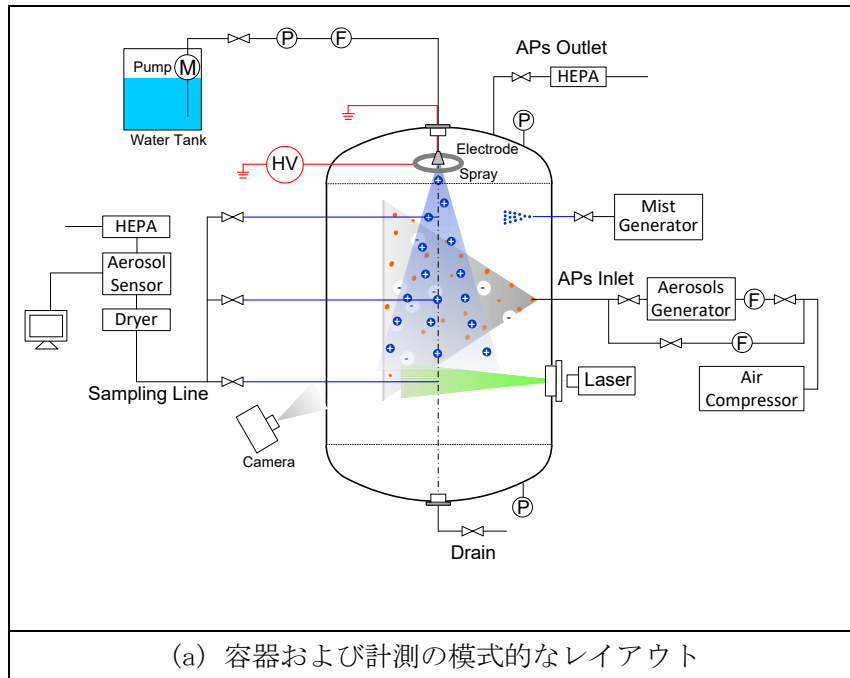


図 3.1.2-1 チャンバー容器

図 3.1.2-2 (a) には、容器と計装の他の機器との概略レイアウトを示す。また、図 3.1.2-2 (b) には設置されたチャンバー容器と計装を他の機器と一緒に示す。スプレー水は水タンクからポンプを経てスプレーの形で容器に注入される。フルコーンスプレーノズルを使用して、異なる高圧

条件下で異なる直径および速度を有する液滴を生成する。燃料デブリの切断中に生成される粒子を模擬したエアロゾル粒子は、エアロゾル発生器の内部で生成され、チャンバー容器内に注入される。ミスト発生器は、蒸留水ミストを容器上部から注入するために使用される。また、レーザーをスプレー液滴サイズおよび速度測定に使用する。



(b) 設置されたチャンバー容器と計装

図 3.1.2-2 実験セットアップ状況



### 3.1.2.4 試験内容

#### (1) 試験手順

試験に先立ち、以下に示す試験手順を定めた。なお試験は大気条件下および室温で行った。

- ①エアロゾルの準備およびエアロゾル発生器への投入においては、実験者は微粒子吸入を防ぐためにマスクを必ず装着する。エアロゾル粒子は、100nm～30000nmのサイズ範囲を有するTiO<sub>2</sub>およびZrO<sub>2</sub>を使用。
- ②エアロゾル発生器を閉じて、ガス漏れがないかチェックを行う。
- ③実験室でのエアロゾルの沈着を防ぐために、HEPA フィルター後に残る粒子を除去するための排出パイプを格納容器に挿入する。
- ④チャンバー容器ドレン出口及び弁は、排出ライン以外は閉止する。
- ⑤エアコンプレッサー付きの空気または窒素ガスをエアロゾル発生器に注入し、容器にエアロゾルガス混合物を充填する。
- ⑥試験の初期粒子濃度を特定するために粒子濃度測定を実施する。
- ⑦排気ラインバルブを閉じ、容器を外気から隔離する。
- ⑧（実験を水ミストで行う場合、）水ミストの注入を開始する。ミスト噴射の持続時間は、所望のミスト濃度に応じて決定する。ミスト注入後、エアロゾル粒子とミストの混合を可能にするために特定の時間を待つ。
- ⑨ポンプを始動し、スプレー噴射が始める。
- ⑩短時間のスプレー後、スプレー噴射を止めて粒子濃度測定を行う。
- ⑪粒子濃度が所望のレベル以下に減少するまで工程⑦および⑧を繰り返す。その後、スプレー操作を停止し、データを保存する。
- ⑫排気ラインバルブを開く。
- ⑬容器の下部プレナムに蓄積された水は、濃度が低い場合は外部に排出され、それ以外の場合は、排水は環境に排出する前にフィルターでろ過する。
- ⑭純粋な空気を容器に注入して、残っている浮遊エアロゾルを確実に除去する。
- ⑮エアパージ操作によるエアロゾル除去が完了後、メンテナンス作業または清掃時にマンホールを開く。

#### (2) 予備試験

予備試験の目的は、ミストの注入がエアロゾル除去効率の向上に役立つかどうかを明確にすることである。エアロゾル除去実験の前に、液滴サイズ測定を行ってスプレー液滴サイズ分布を決定し、単一液滴とAPの相互作用実験を行うことによりスプレー液滴とAPの間の基本的な相互作用メカニズムを把握した。

##### 1) スプレー液滴サイズ測定実験

スプレー液滴サイズは、エアロゾル除去効率に影響を与える重要な要素の1つである。その効果を調べるために、異なる大きさのスプレー液滴を異なるスプレー圧力（0.1-2 MPa）下で発生させ、サイズ分布を干渉レーザーイメージング（ILDS）法を用いて測定した [4, 5]。

図 3.1.2-3(a)は、ILDS 実験設定の概略図を示す。洗浄用スプレーボトルを使用してスプレー液滴を生成した。レーザーシートはこれらの球状スプレー液滴を照らすために使用した。小滴からの反射光と屈折光との間の干渉により、縞模様が CCD アレイ上に現れ、フリンジ数および実験設定構成パラメータに基づいて小滴直径を計算した。図 3.1.2-3(b)は、ILIDS 技術によって行われる液滴サイズ測定の実例を示す。9000 以上の液滴直径が計算され、大部分は  $125\mu\text{m}$  のピークで  $90\text{--}150\mu\text{m}$  の範囲内に入ることが確認された。本 ILIDS 技術を使って、格納容器内でのフルコーンスプレーノズルによって生成される液滴のサイズを測定する。

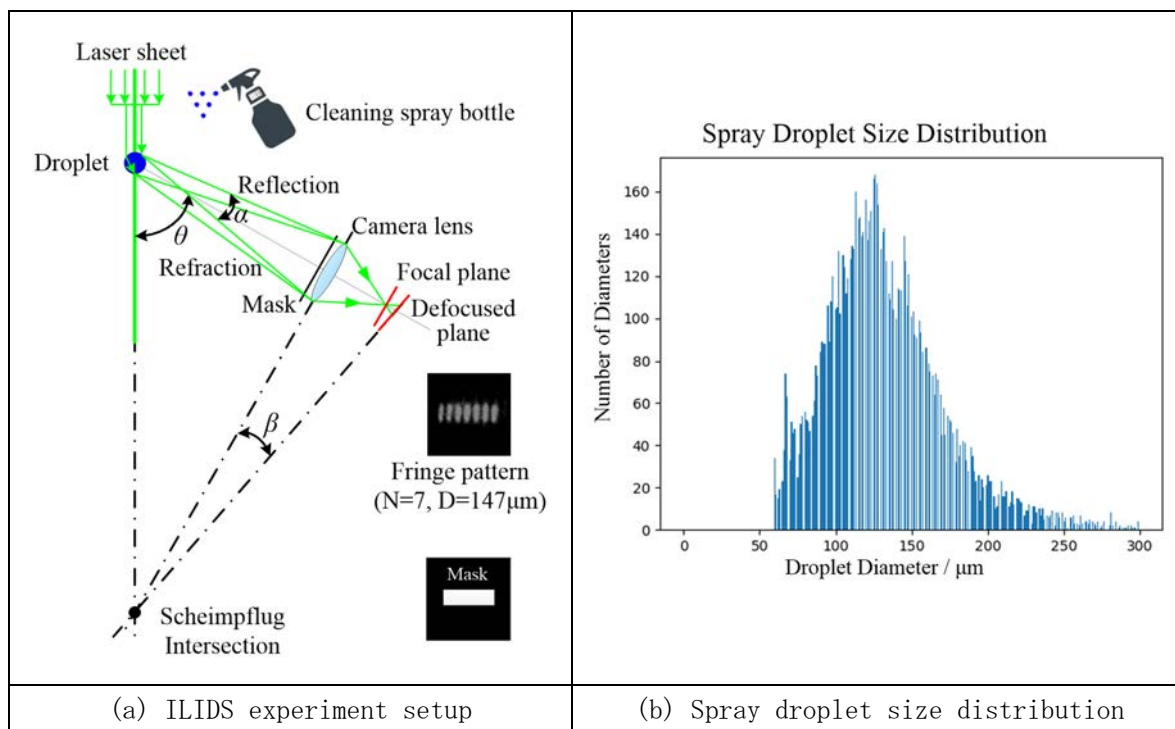


図 3.1.2-3 ILDS 試験の概略図と液滴寸法

## 2) 単一液滴とエアロゾル粒子の相互作用試験

単一液滴と AP 間の相互作用現象を観察することにより、粒子の捕獲挙動とそれらの相互作用機構を明らかにした。試験は、単一の液滴を毛細管の端部に浮遊させ、粒子を含むガスを上方から流した。これらの相互作用過程は、顕微鏡レンズを備えた高速度カメラによって記録した。

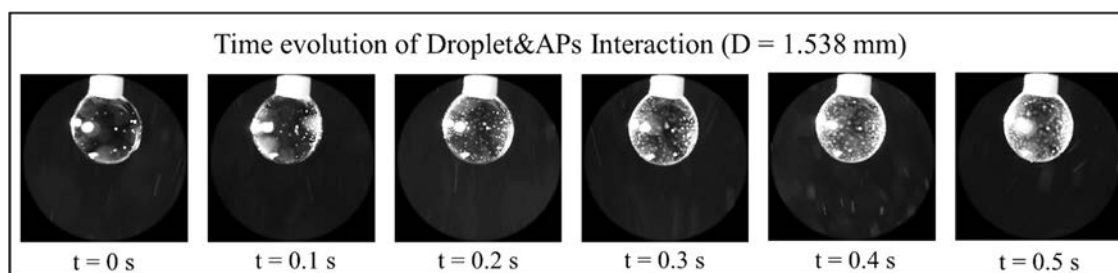


図 3.1.2-4 単一液滴と AP 間の相互作用

図 3.1.2-4 は、単一の小滴と、1.538mm の小滴直径を有する AP との間の相互作用の時間的变化を示す。多くの AP が非常に短時間で捕獲されて、液滴表面に蓄積していた。

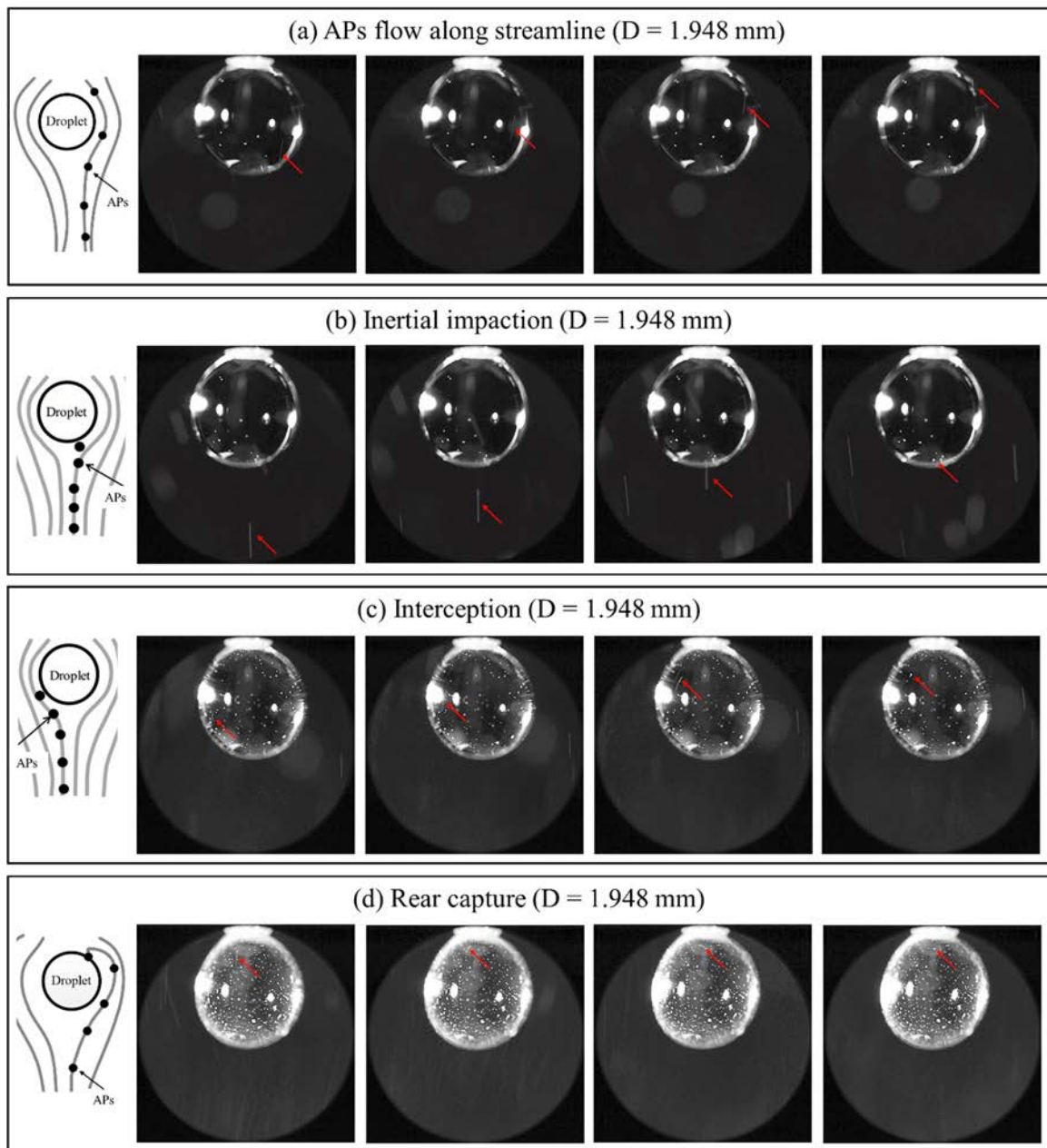


図 3.1.2-5 実験で観察された異なる相互作用メカニズム

図 3.1.2-5 には、実験において観察された異なる相互作用メカニズムを示す。図 3.1.2-5(a) に示すように、ストークス数が小さな粒子は流体流線に沿って流れ、水滴と相互作用しない。図 3.1.2-5(b) に示すように、ストークス数が大きな粒子は元の運動方向をたどり、慣性衝突により水滴の上流側で簡単に捕らえることができる[6]。中間サイズおよびストークス数を有する粒子の場合、図 3.1.2-5(c) に示すように、流体の流線に完全には追従せず、AP と液滴との距離が粒子半径より小さいときには液滴と接触する場合がある。他の粒子は、図 3.1.2-5(d) に示すように、液滴の背後に発生する後流渦によって液滴の裏側で捕捉される。

### 3) 噴霧実験によるエアロゾル除去

グリーンフィールドギャップ AP (直径  $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ ) の捕捉効率を改善するために、水ミストの注入による凝集法を提案した。サブミクロン AP は、熱泳動および拡散泳動の影響下でミスト表面に向かって流れて付着すると予想される。これらの凝集した AP とより大きいサイズのミストは、従来のスプレー装置で簡単に除去できると考えられる。

表 3.1.2-1 に示すように、水ミストを注入することによって凝集方法を検証するために 4 つの試験を計画した。ケース 1 では AP のみ、ケース 2 ではミストのみを注入する。またケース 3 とケース 4 では、低濃度ミストと高濃度ミストを含む AP をそれぞれ格納容器に注入し、AP の除去効率に対するミスト注入の影響を把握する。

表 3.1.2-1 異なるケースの試験条件

|                    | Aps | Mist                 |
|--------------------|-----|----------------------|
| Case 1: Only Aps   | √   |                      |
| Case 2: Only mist  |     | √                    |
| Case 3: APs&L-mist | √   | √ (Low $C_{mist}$ )  |
| Case 4: APs&H-mist | √   | √ (High $C_{mist}$ ) |

### 4) エアロゾル特性

試験には、質量中央径  $D_{50} = 0.15 \mu\text{m}$  の高純度  $\text{ZrO}_2$  粒子を使用した。エアロゾル発生器を通してチャンバー容器に注入すると、 $\text{ZrO}_2$  粒子の粒度分布が変化する (図 3.1.2-6)。ここで図の横軸は粒径、縦軸は数濃度 (単位:  $\text{P}/\text{cm}^3$ ) で、青線は空気の粒度分布である。AP をチャンバー容器に 3 回注入したところ、3 回目の注入ではサイズ分布のピークは  $0.41 \mu\text{m}$  であった。このことは、 $\text{ZrO}_2$  粒子がチャンバー容器に注入されると、より大きなサイズの粒子に凝集することを意味している。

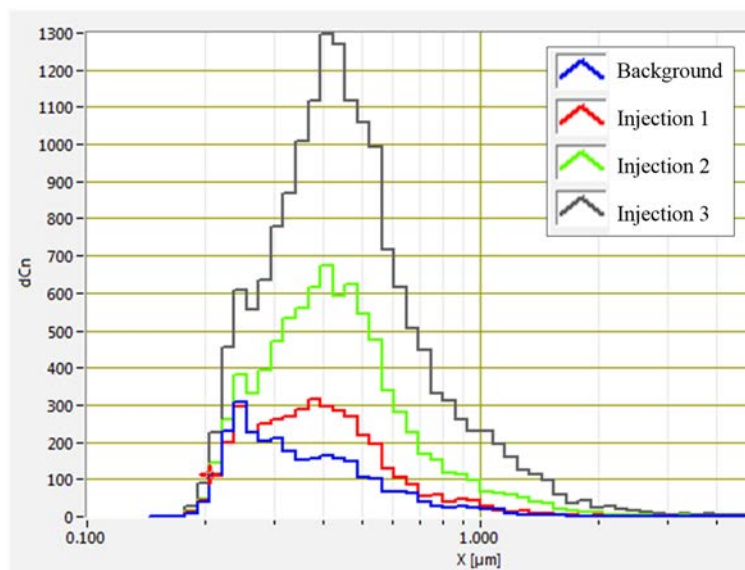


図 3.1.2-6 チャンバー容器内で測定した  $\text{ZrO}_2$  サイズ分布



## 5) ミスト特性

60 分間連続してチャンバー容器に注入し、10 分ごとにそのサイズ分布を測定することにより、ミストの特性を評価した。結果を図 3.1.2-7 に示す。青線は空気からの粒子を表しており、ミスト濃度と比較すると無視できる。最初の 10 分間（赤線）のミストサイズの分布には  $0.23\mu\text{m}$  と  $1.86\mu\text{m}$  の 2 つのピークがあり、 $0.23\mu\text{m}$  付近のミスト濃度は  $1.86\mu\text{m}$  付近のそれよりはるかに高い値を示した。10 分後には、 $0.4\mu\text{m}$  から  $1\mu\text{m}$  の間の直径のミストがチャンバー容器の中に蓄積した。また 60 分後（黒線）には、サイズが  $0.2\sim 0.4\mu\text{m}$  の小さなミストと、直径が最大  $3\mu\text{m}$  の大きなミストの両方が存在した。

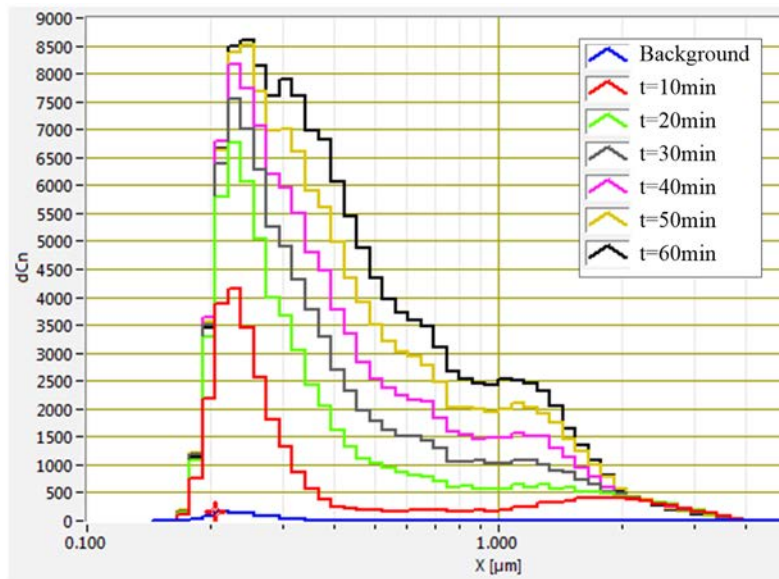


図 3.1.2-7 ミストサイズ分布

## 6) 噴霧中のエアロゾルサイズの変化

AP とミスト除去プロセスに関する試験を行った。図 3.1.2-8(a) (c) (d) は噴霧中の AP サイズの変化を示し、図 3.1.2-8(b) はミストサイズの変化を示す。AP 注入を行ったケース 1、3 および 4 の場合、総噴霧時間は 2400 秒である。2400 秒後、エアロゾル濃度はバックグラウンドの空気に近くなった。ケース 2 では、ほとんどのミスト、特に直径が  $0.5\mu\text{m}$  を超えるミストは液滴で除去でき、150 秒以降はミスト数濃度はほとんど変化せずに、合計スプレー時間はわずか 210 秒であった。

図 3.1.2-8(a) に示すケース 1 では、初期 AP サイズ分布のピーク（青線）は  $0.41\mu\text{m}$  にあり、非常に狭い領域であった。ミストの注入を伴うケース 3 および 4 では、初期 AP サイズ分布のピークは  $0.23\sim 0.41\mu\text{m}$  の範囲で、より幅広く、より多くの小さい粒子が観察された。これは凝集した AP がミスト内側に衝突すると、ミストの内側で小さな粒子に分散するためと考えられる。

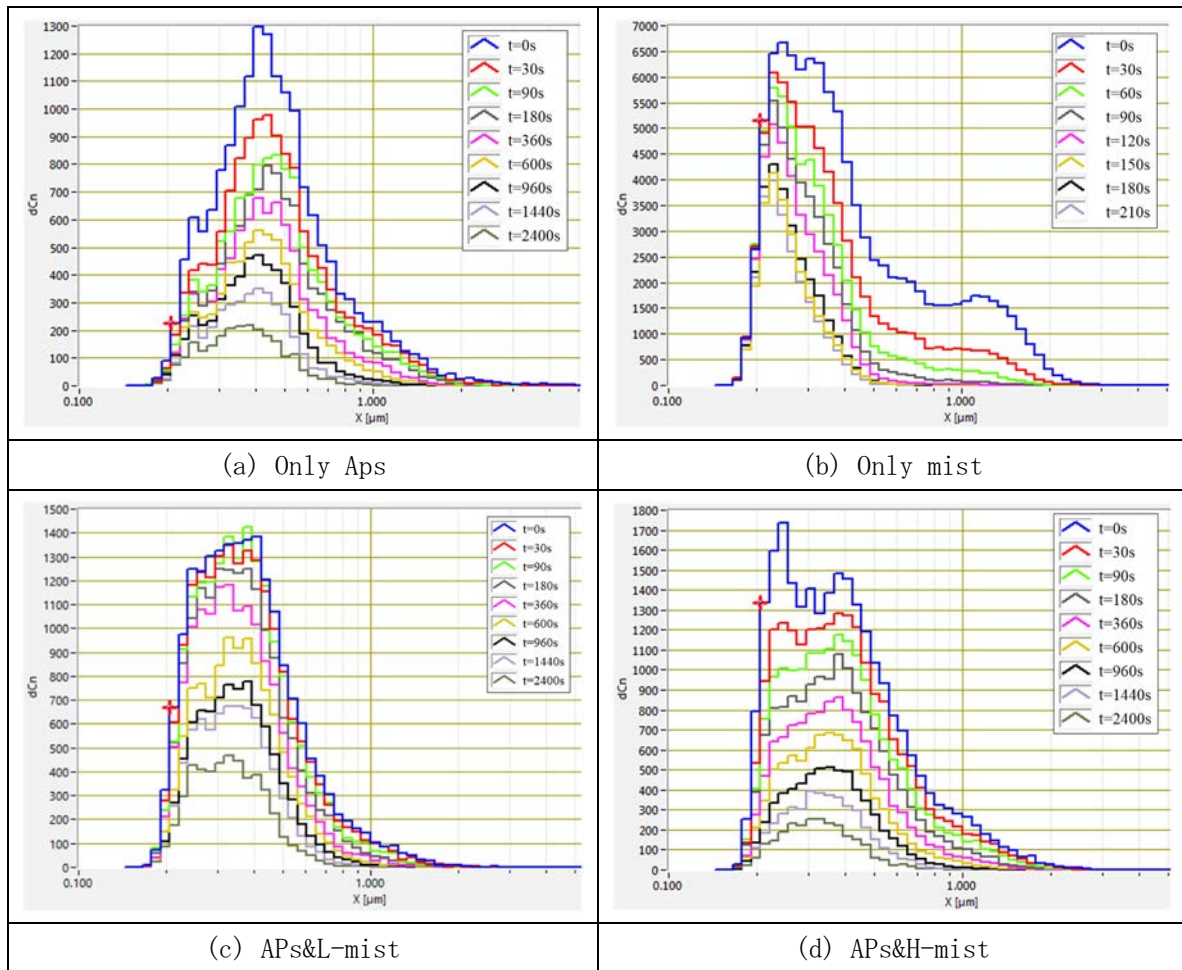


図 3.1.2-8 噴霧時のエアロゾル粒子サイズの変化

図 3.1.2-9 は、ケース 1、3、4 の AP 除去のスプレー効率を示す。スプレー効率は、 $t=0s$  と  $t=2400s$  の間の AP 数濃度差の比として定義される。3 つの場合全てについて、AP サイズが  $1\mu m$  より大きい場合、スプレー収集効率は 1 に近づく傾向が見られた。グリーンフィールドギャップにある AP のスプレー効率は非常に悪く、 $D = 0.33\mu m$  付近に最小値が存在した。これは、機械的メカニズム（慣性衝突、接触、ブラウン拡散）も電気泳動メカニズム（熱および拡散泳動）も、 $0.33\mu m$  付近の AP には効果的に機能しないためと考えられる。ケース 1 と比較すると、効率は、高濃度ミスト噴射で増加し、低濃度ミスト噴射で減少した。今後は、さまざまなミスト濃度を試すことにより、スプレー効率を向上させるための最も適切な条件を見つける予定である。

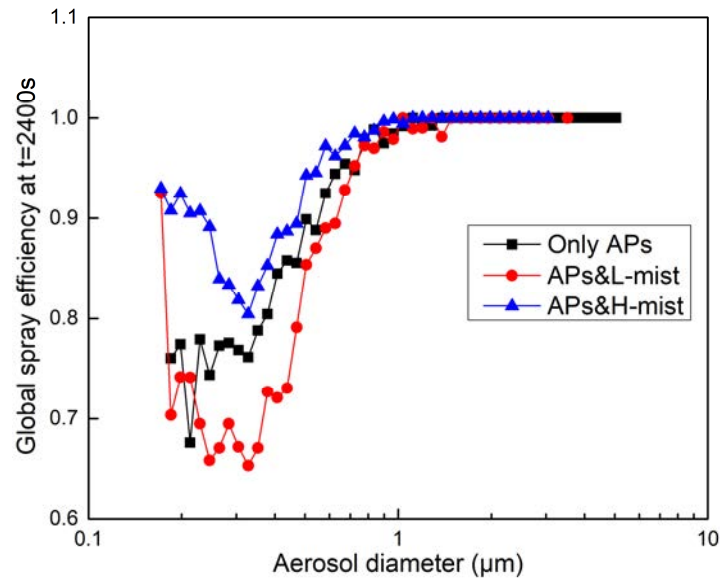


図 3.1.2-9 スプレー時間  $t=2400$  秒でのグローバルスプレー効率

## 7) エアロゾル除去率

チャンバー容器内のガス中の総エアロゾル質量の時間変化を図 3.1.2-10 に示す。ミスト注入のみのケース 2（桃色線）では、水ミストは非常に短時間で除去されたが、他の 3 つのケースでは、除去率は最初は高いものの、時間経過とともに徐々に減少した。

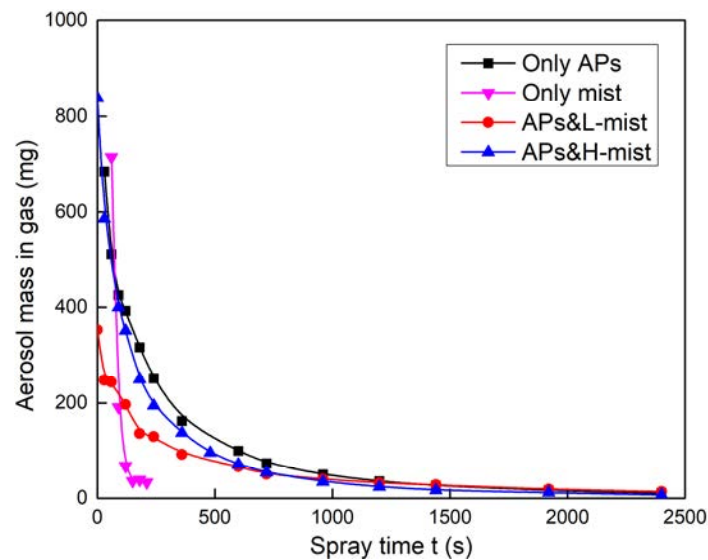


図 3.1.2-10 チャンバー容器のガス中の全エアロゾル質量の発生

AP の除去プロセス中、ガス中のエアロゾル質量の平衡方程式は次のように説明できる [7]。

$$\frac{dM(t)}{dt} = -\lambda_s M(t) + S_{Source} + S_{Deposition}$$

ここで、 $\lambda_s$  はエアロゾル除去率（単位： $s^{-1}$ ）、 $M(t)$  は時間  $t$  における気体中のエアロゾル質量、 $S_{Source}$  と  $S_{Deposition}$  はそれぞれエアロゾル生成項と損失項である。スプレー噴射が始まった後、ミスト/ AP はチャンバー容器に噴射されないので、 $S_{Source}$  はゼロとなる。また、スプレー除去率と比較すると、堆積によるミスト/ AP の損失率は無視できるので、 $S_{Deposition}$  もゼロと見なせる。また、チャンバー容器内のエアロゾル質量の方程式は以下の式で表される。

$$M(t) = Ce^{-\lambda_s t}$$

ここで、 $C$  は初期エアロゾル質量とチャンバー容器の容積に関連する係数である。

1 分から 10 分の噴霧時間の間、ガス中のエアロゾル質量のデータは APs 除去率を得るために図 3.1.2-11 に示すようにフィッティングされた。APs 注入のみのケース 1 では、除去率は  $\lambda_s = 0.00237$  であり、低濃度ミスト注入によるケース 3 ( $\lambda_s = 0.00172$ ) よりも高い値を示したが、高濃度ミスト注入によるケース 4 ( $\lambda_s = 0.00254$ ) より低い。低濃度ミスト注入の場合（例、図 3.1.2-7 の  $t = 10\text{min}$  の注入時間の赤線）、ほとんどのミストは約  $0.23\mu\text{m}$  の小さいサイズで、わずかな数のミストは約  $1.8\mu\text{m}$  のサイズであった。一方、高濃度のミスト注入の場合、 $0.8\mu\text{m}$  より大きいサイズのミストがはるかに多く観察された。実験ではミスト注入が停止した後、AP がミストと凝集するように 30 分間待った。噴霧液滴によって容易に除去することができるより大きなサイズのミストにはより多くの AP が付着するので、高濃度ミスト注入による除去効率は大幅に向上したと考えられる。一方、低濃度のミスト噴射の場合、大きなサイズのミストの数が少なすぎるため、AP の除去効率を上げることができなかったと考えられる。

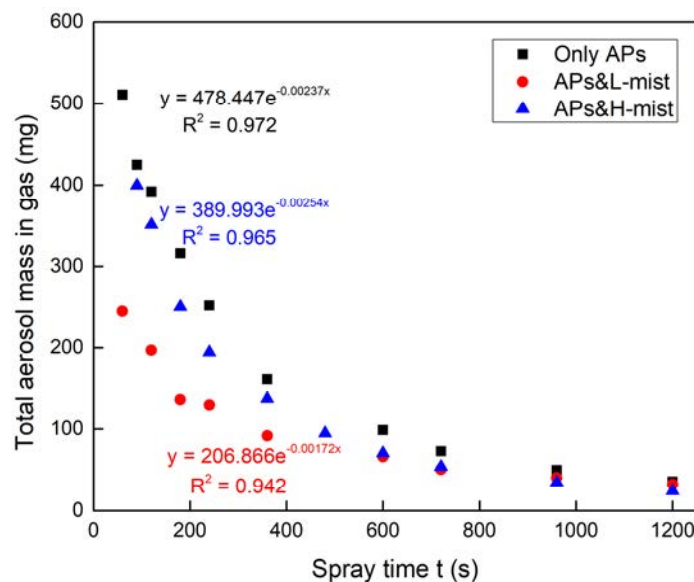


図 3.1.2-11 エアロゾル除去速度の推定

以上の試験結果から、試験装置の基本性能が確認できた。

## 参考文献

- [1] Vetrovec, J., Hindy, R. N., Subbaraman, G., & Spiegel, L. P. (1997, April). High-power iodine laser application for remote D and D cutting. In XI International Symposium on Gas Flow and Chemical Lasers and High-Power Laser Conference (Vol. 3092, pp. 780-784). International Society for Optics and Photonics.
- [2] Quérel, A., Monier, M., Flossmann, A. I., Lemaitre, P., & Porcheron, E. (2014). The importance of new collection efficiency values including the effect of rear capture for the below-cloud scavenging of aerosol particles. *Atmospheric research*, 142, 57-66.
- [3] Powers, D. A., & Burson, S. B. (1993). A simplified model of aerosol removal by containment sprays (No. NUREG/CR-5966; SAND-92-2689). Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC (United States). Div. of Safety Issue Resolution; Sandia National Labs., Albuquerque, NM (United States).
- [4] Glover, A. R., Skippon, S. M., & Boyle, R. D. (1995). Interferometric laser imaging for droplet sizing: a method for droplet-size measurement in sparse spray systems. *Applied Optics*, 34(36), 8409-8421.
- [5] Kobayashi, T., Kawaguchi, T., & Maeda, M. (2000). Measurement of spray flow by an improved interferometric laser imaging droplet sizing (ILIDS) system. In 10th International Symposium on Applications of laser techniques.
- [6] Murata, K. K., Williams, D. C., Griffith, R. O., Gido, R. G., Tadios, E. L., Davis, F. J. & Tills, J., etc (1997). Code manual for CONTAIN 2.0: a computer code for nuclear reactor containment analysis.
- [7] Porcheron, E., Lemaitre, P., Marchand, D., Plumecocq, W., Nuboer, A., & Vendel, J. (2010). Experimental and numerical approaches of aerosol removal in spray conditions for containment application. *Nuclear Engineering and Design*, 240(2), 336-343.

### 3.1.2.5 熱解析

#### (1) 解析目的

1Fの燃料デブリ取り出しにあたっては取り出し時に発生する微粒子の飛散防止を図ることが重要であり、水スプレーにより飛散防止を図ることやセメント系材料を使用して一旦安定化してから取り出す手法が有効と考えられる。一方、セメント系材料の使用はRPVやペデスタル支持部の崩壊を未然に防止するとの長所を有するが、被覆による燃料デブリからの熱の移動を困難にするとの短所もある。そこで本研究では、STAR-CCM+を用いた数値計算により、1F1号機PCV内部の崩壊熱除去に対するスプレーの効果並びにセメント系材料注入の影響を評価することを目的として水冷・空冷・施工材有無の条件下での試解析を実施した。

## (2) 実用的なジオメトリ

STAR-CCM + のジオメトリモジュールを使用して、寸法等は公開された文献から収集して計算のためのジオメトリを作製した[1, 2]。

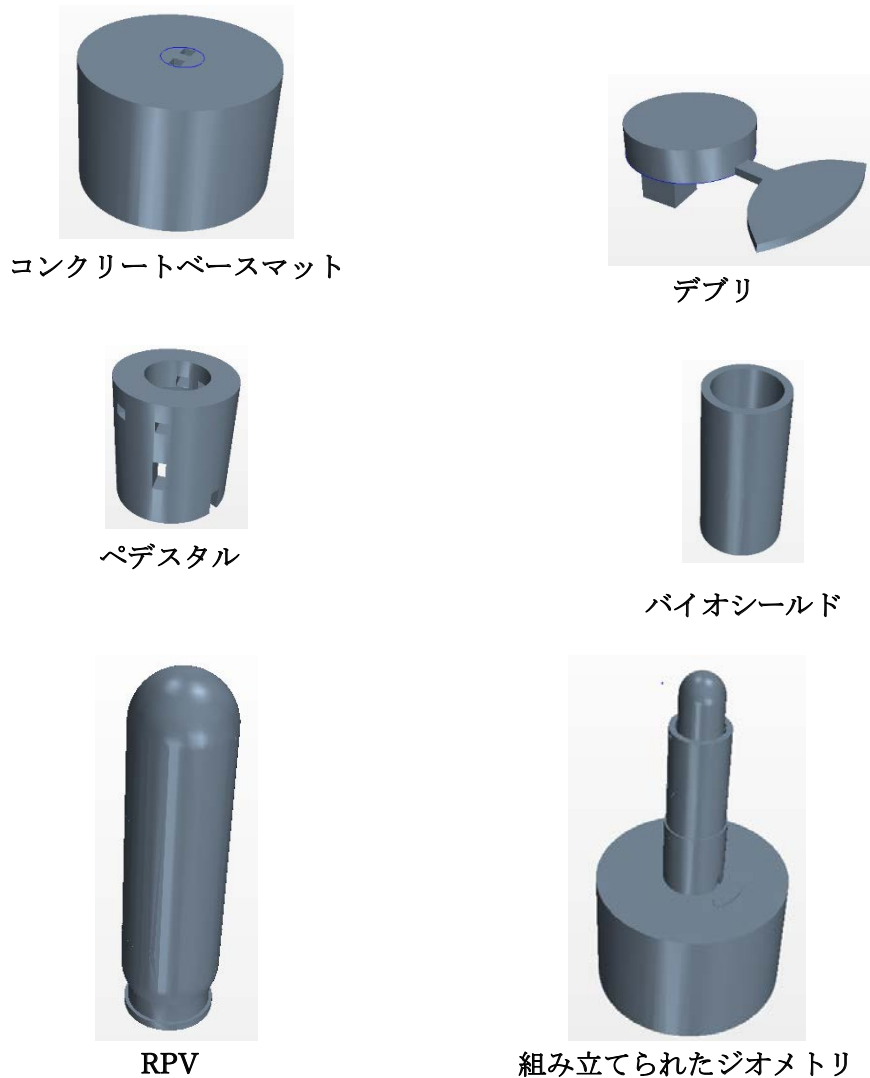


図 3.1.2-12 実用的なジオメトリ

最終的な形状は、図 3.1.2-12 に示すように、組み立てられた形状を構成する 5 つの異なるソリッド領域から構成した。

## (3) 材料特性

1F 内の燃料デブリは現状ではサンプリングされていないため、組成と材料特性の両方に大きな未確定要素がある。燃料デブリの組成や特性は、事故時の温度履歴、酸素分圧、熔融凝固状態など多数の条件によって大きく異なる[3]。燃料デブリは、二酸化ウラン、ステンレス鋼、ジルコニウム、プルトニウム、マイナーアクチニド (Np、Cm、Bk、Cf など) を含むほか、PCV 底部ではコンクリートと反応した MCCI 生成物が生じている。さらに、注入された海水により、RPV およ



び PCV 下部のコンクリートには塩化物が堆積している可能性もある。

CEA は燃料デブリ材料の特性を推定するために、いくつかの条件下で溶融燃料とコンクリートとの相互作用を考慮した VULCANO 試験[4]を実施しており、試験結果は 1F の燃料デブリ特性を推定する上で参考となる。そこで本解析では同試験結果を活用し、燃料デブリ関連の基本データとして表 3.1.2-2 に示す値を用いて計算を行った。

表 3.1.2-2 燃料デブリの熱物性値

|                         |      |
|-------------------------|------|
| 密度 [kg/m <sup>3</sup> ] | 4940 |
| 熱伝導率[W/m-K]             | 2.5  |
| 比熱 [J/kg-K]             | 350  |

また、コンクリート構造物の材料特性は表 3.1.2-3 に示す値を用いて計算を行った[5]。

表 3.1.2-3 コンクリートの熱物性値

|                        |      |
|------------------------|------|
| 密度[kg/m <sup>3</sup> ] | 2300 |
| 熱伝導率[W/m-K]            | 1.3  |
| 比率 [J/kg-K]            | 2100 |

#### (4) 崩壊熱の計算

運転停止後のいかなる時点においても燃料デブリから発生する崩壊熱の量は、運転停止時に存在する核分裂生成物の量を決定することによって高い信頼性で推定することができる。より良い推定のためには、何百もの異なる放射性核種を考慮に入れなければならないが、これらの計算は、減衰計算用 SCALE / TRITON や初期燃料組成および燃焼度の崩壊熱計算用 SCALE/ORIGEN-ARP などの専用コードを使用して評価ができる。一方、工学的には、ある期間にわたる炉心全体の減衰を表す単一の半減期を使用することによって比較的信頼できる近似をすることも可能である。このような近似は、Way-Wigner [6]の公式を使用して行う。

$$P_d(t) = 0.0622P_o \left[ t^{-0.2} - (t_o + t)^{-0.2} \right] \quad (2.3.1)$$

ここで、 $P_d(t)$  はベータ線とガンマ線による発熱、 $P_o$  はシャットダウン前の熱出力、 $t$  は事故後の経過時間（秒）、 $t_o$  はシャットダウン前の熱出力レベルの時間（秒）である。1F1 は 460MWe の電気出力を有し、熱出力は 1380MWt と推定される。Way-Wigner 式を使用することにより、図 3.1.2-13 に示すように事故後の最大 10 年間の崩壊熱を計算することができる。



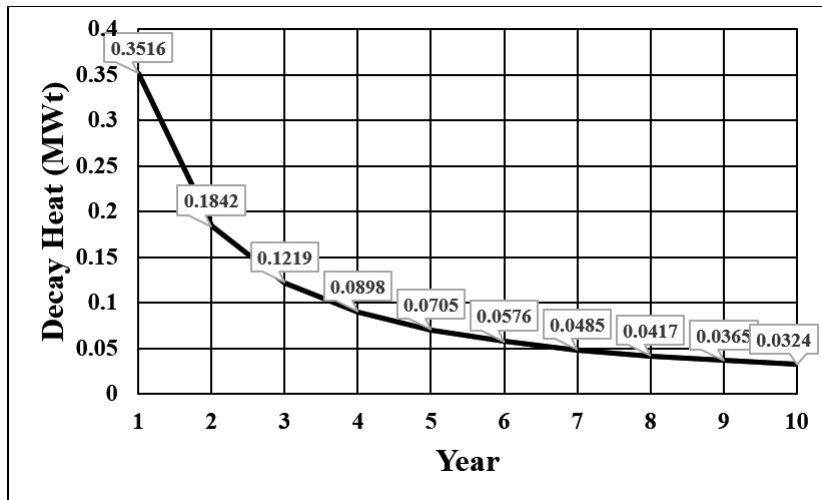


図 3.1.2-13 崩壊熱

#### (5) 境界条件

境界条件として、デブリ位置での体積熱源を燃料デブリからの崩壊熱と定義した。本研究では、燃料デブリの位置と量を推定するために、専用のシビアアクシデントコードで得られた研究結果を参考とした[7]。これらの研究の結果は、図 3.1.2-14 のような燃料デブリ分布を推定している。

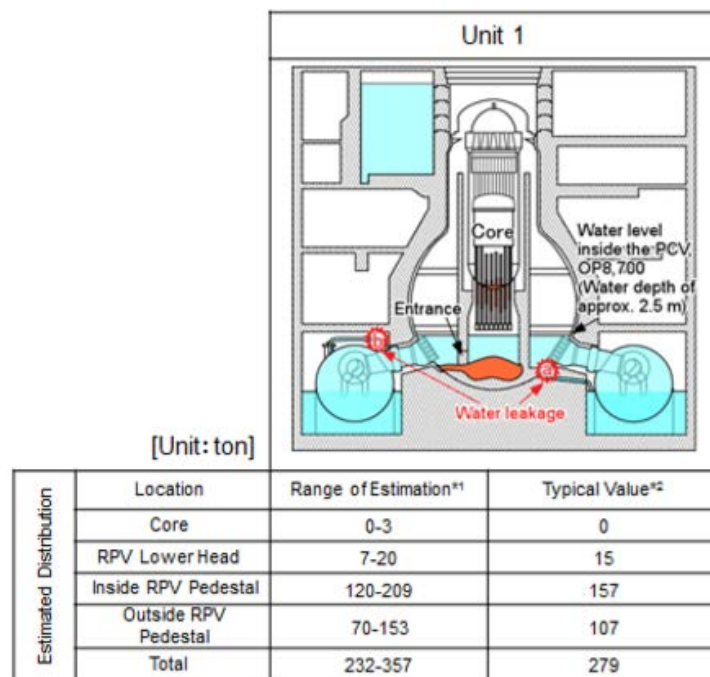


図 3.1.2-14 1F1 PCV 内の推定条件

また、表 3.1.2-2 に与えられたデブリ特性を使用することによって、表 3.1.2-4 のように燃料デブリの体積分布を推定した。

表 3. 1. 2-4 燃料デブリの体積分布

| Location         | Mass (ton) | Volume (m <sup>3</sup> ) |
|------------------|------------|--------------------------|
| Core             | 0-3        | 0.00-0.61                |
| RPV Lower Head   | 7-20       | 1.42-4.05                |
| Inside Pedestal  | 120-209    | 24.29-42.31              |
| Outside Pedestal | 70-153     | 14.17-30.87              |
| Total            | 232-357    | 46.96-72.27              |

燃料デブリは、PCV の内側の異なる場所に広がって構造物または PCV の壁に付着している可能性があるため、崩壊熱分布を表 3. 1. 2-5 のように変化させた。

表 3. 1. 2-5 各年毎の推定崩壊熱

| Year | Decay Heat (kW) | Decay Heat (90%) | Decay Heat (80%) | Decay Heat (70%) |
|------|-----------------|------------------|------------------|------------------|
| 2019 | 41.72           | 37.55            | 33.38            | 29.20            |
| 2020 | 36.50           | 32.85            | 29.20            | 25.55            |
| 2021 | 32.36           | 29.12            | 25.89            | 22.65            |

コンクリートの壁境界とガス領域の上部境界温度は、福島県の気象データに基づく温度を用いた[8]。解析モデルの初期設定の境界条件の概要を図 3. 1. 2-15 に示す。

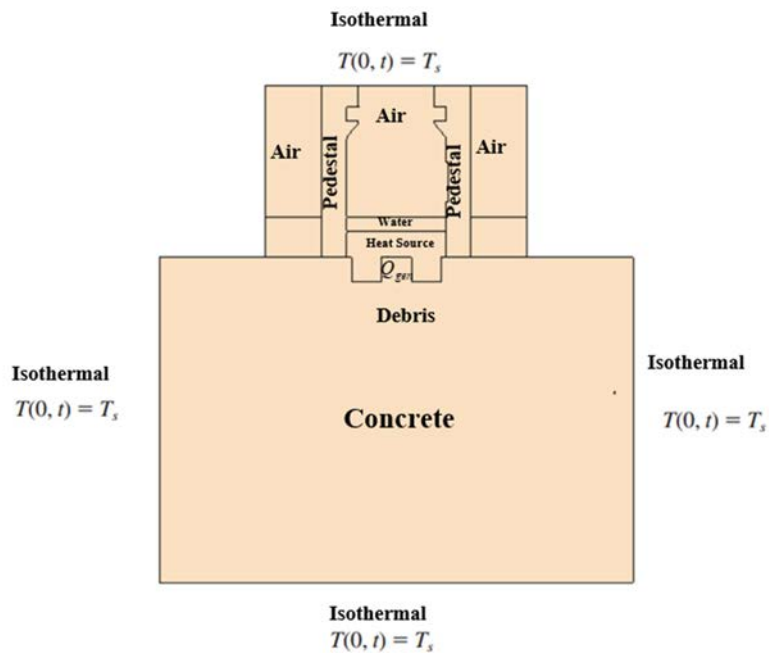


図 3. 1. 2-15 解析モデルの初期境界条件

## (6) CFD 計算結果

## ①部分気中 PCV 状態

PCV 内部に 2 メートル深さの水が溜まっていることを考慮して、部分気中条件における PCV 内部の温度分布を解析した。評価のためにモデル化された固体と流体領域を図 3.1.2-16 に示す。

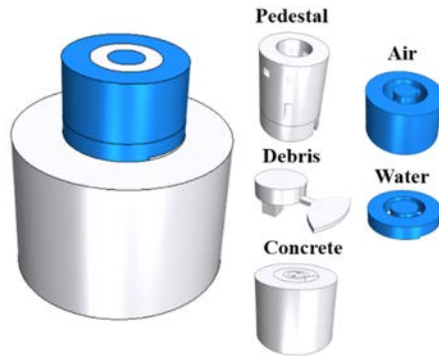


図 3.1.2-16 部分気中 PCV モデル

図 3.1.2-17 に示すグリッドおよび境界条件に対して、図 3.1.2-18 のように定常温度値が達成されるまで過渡シミュレーションを実施した。

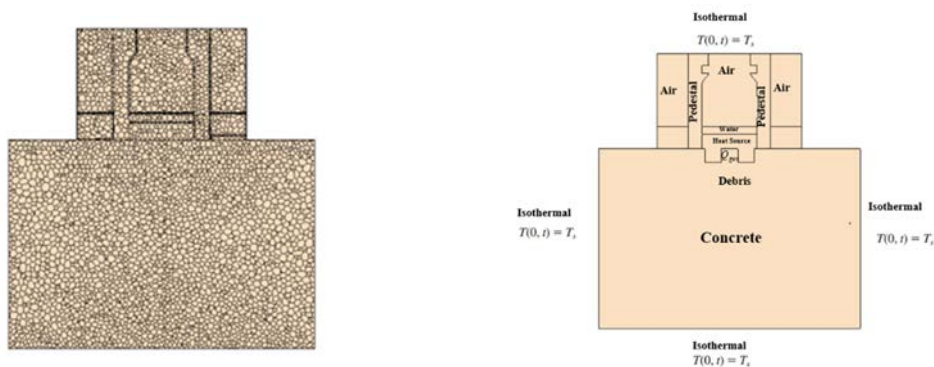


図 3.1.2-17 計算グリッドと境界条件

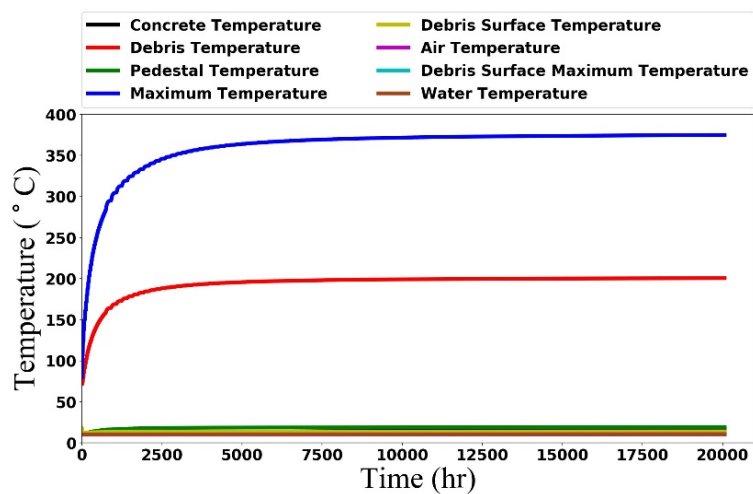


図 3.1.2-18 推定温度履歴

2019 年時点の崩壊熱が 90%分布している場合の温度分布と流れ場を図 3. 1. 2-19 に示す。

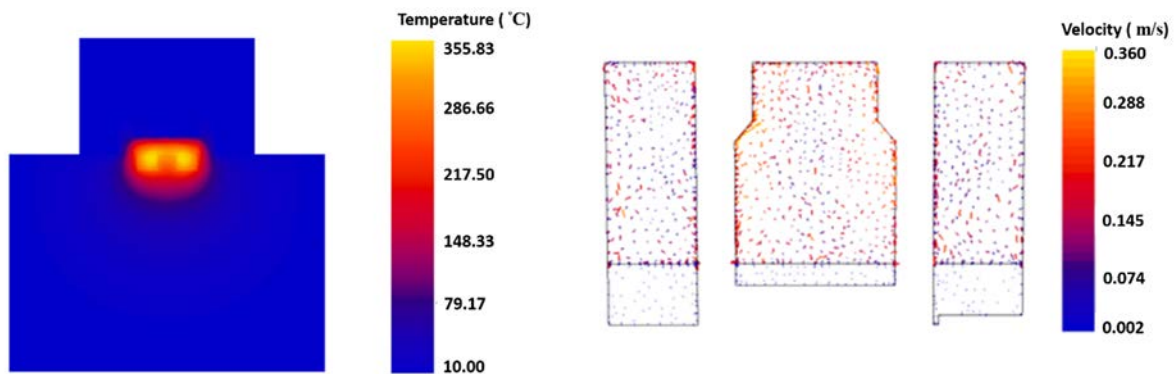


図 3. 1. 2-19 温度および流れ場

流れ場は、燃料デブリと PCV 底部の両方から崩壊熱の一部を除去する自然循環を示す。自然対流によって除去された熱の一部は、全崩壊熱の 92%と推定された。図 3. 1. 2-20 に PCV 内の異なる場所における温度解析結果を示す。最も高温である燃料デブリの中央領域は現状約 360℃と高い温度を示したが、燃料デブリの平均温度は 150℃～200℃であり、時間の経過とともに減少した。またペDESTAL、コンクリート等その他の温度はほぼ 30℃以下となった。

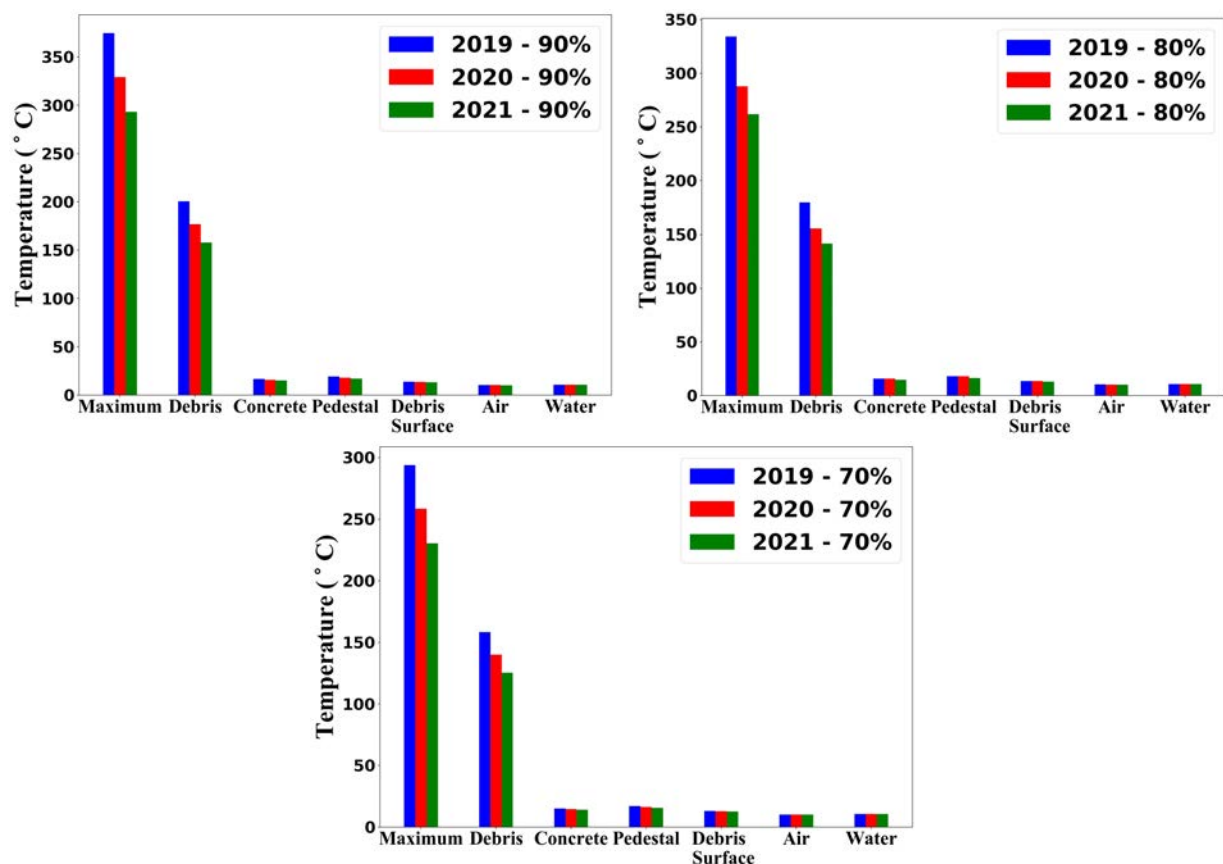


図 3. 1. 2-20 部分気中 PCV 条件の推定温度

## ②気中 PCV 条件

1F1 号機の気中条件下でのモデルを図 3.1.2-21 に、各部位の温度分布を図 3.1.2-22 に示す。

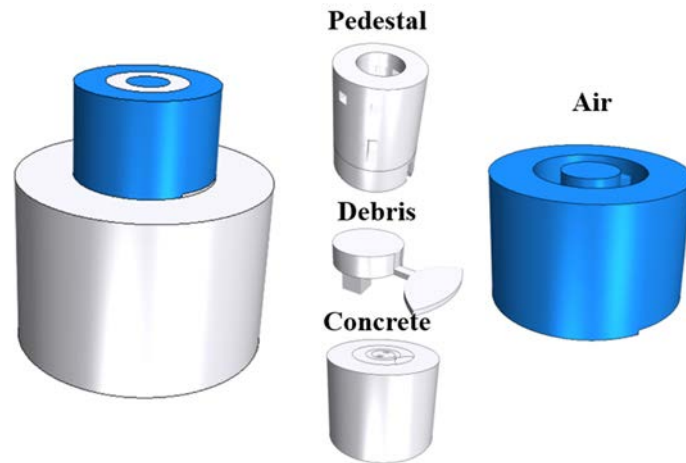


図 3.1.2-21 気中 PCV モデル

部分気中条件の PCV 内温度と比較して、特にペデスタル及び燃料デブリ表面において温度上昇が見られた。

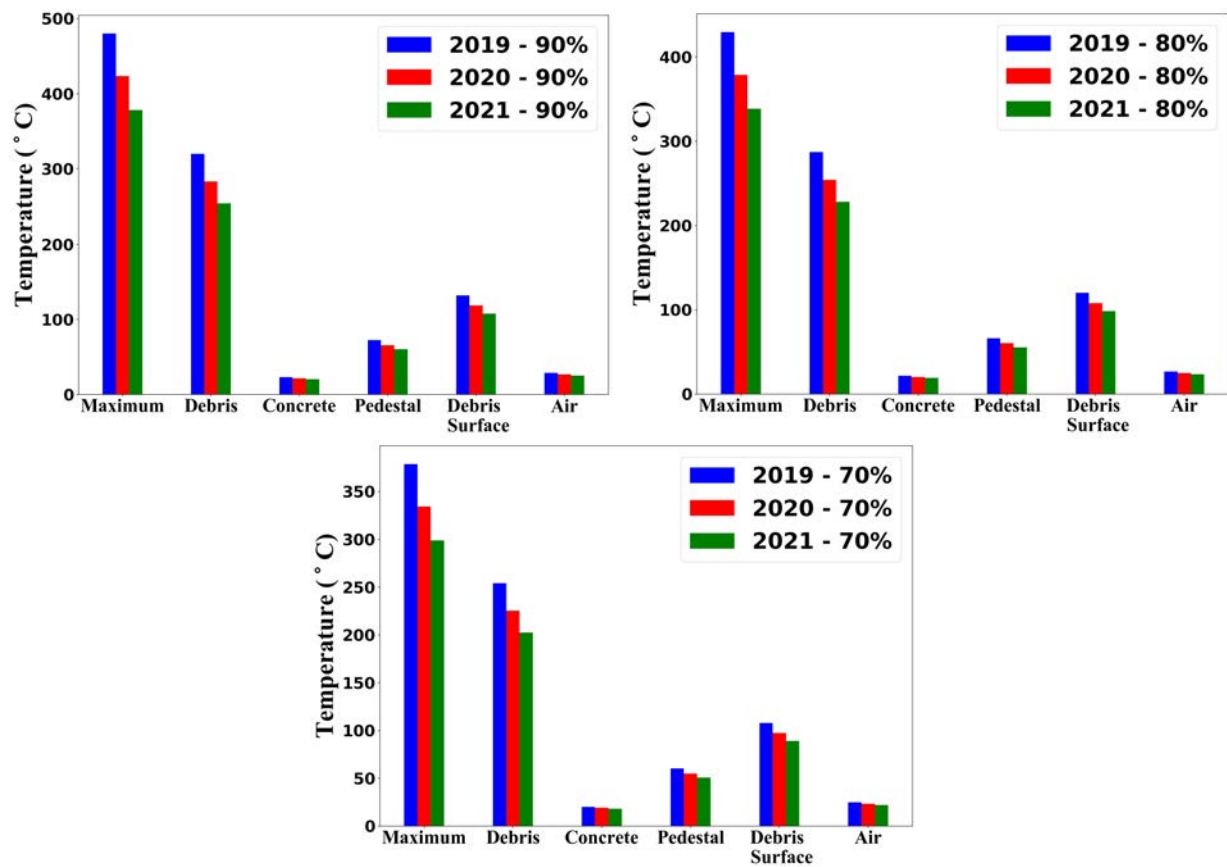


図 3.1.2-22 気中 PCV 条件の推定温度

### ③ セメント系材料による全面被覆

取り出し時において放射性微粒子の飛散防止や構造物安定化を図るため、PCV 内部へセメント系材料を注入することは有効な手段であるが、燃料デブリの被覆により各部位の温度上昇の懸念がある。そこで、先ずは図 3.1.2-23 に示すセメント系材料による PCV 底部全面被覆の場合について温度解析を行った。セメント系材料は PCV 底部から 2.5 m、燃料デブリ表面から 1 m の深さを全面被覆すると仮定し、初期熱伝導率を 0.3 W/m-K に設定した。

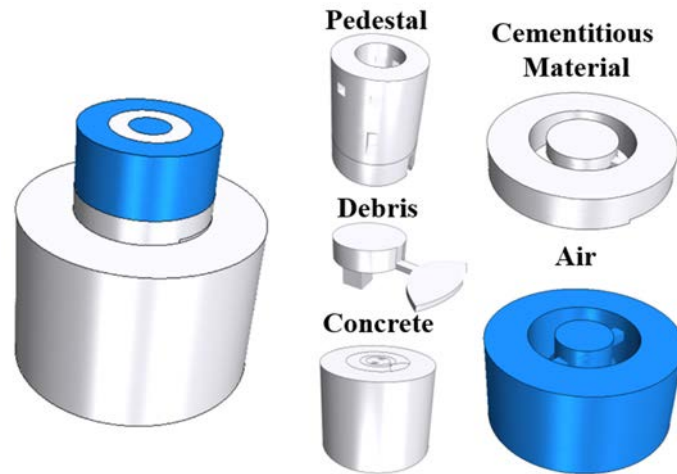


図 3.1.2-23 セメント系材料での完全被覆モデル

結果は、図 3.1.2-24 に示すように、気中と比較して全体的に温度が上昇し、特にペデスタル及び燃料デブリにおいて著しく温度が上昇した。

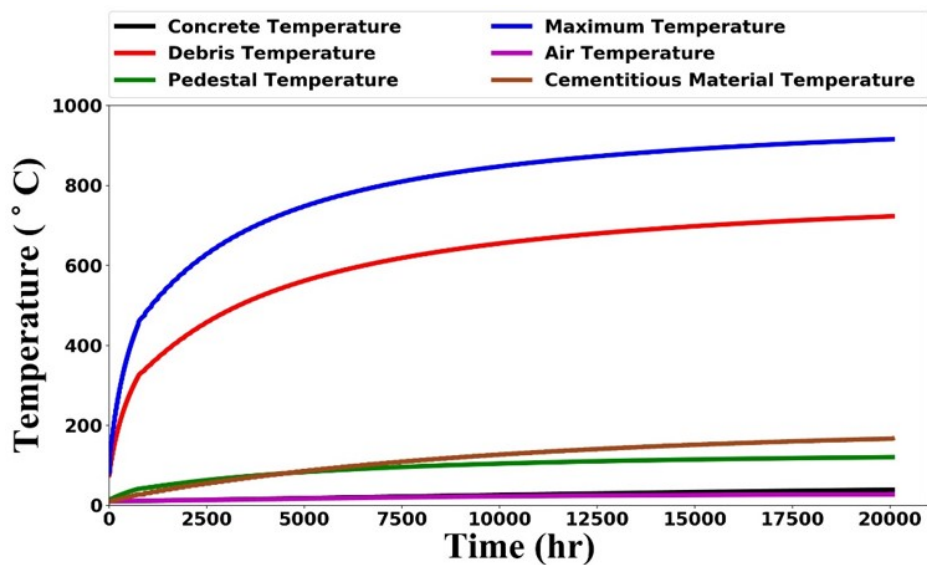


図 3.1.2-24 推定温度履歴

次にセメント系材料の熱伝導率の影響を調査するために、熱伝導率  $0.7\text{W/m-K}$  の場合の解析を行ったところ、図 3.1.2-25 に示すようにペDESTALおよび燃料デブリ温度はそれぞれ  $0.3\text{W/m-K}$  と比較して約  $20^\circ\text{C}$  及び約  $100^\circ\text{C}$  と低下した。

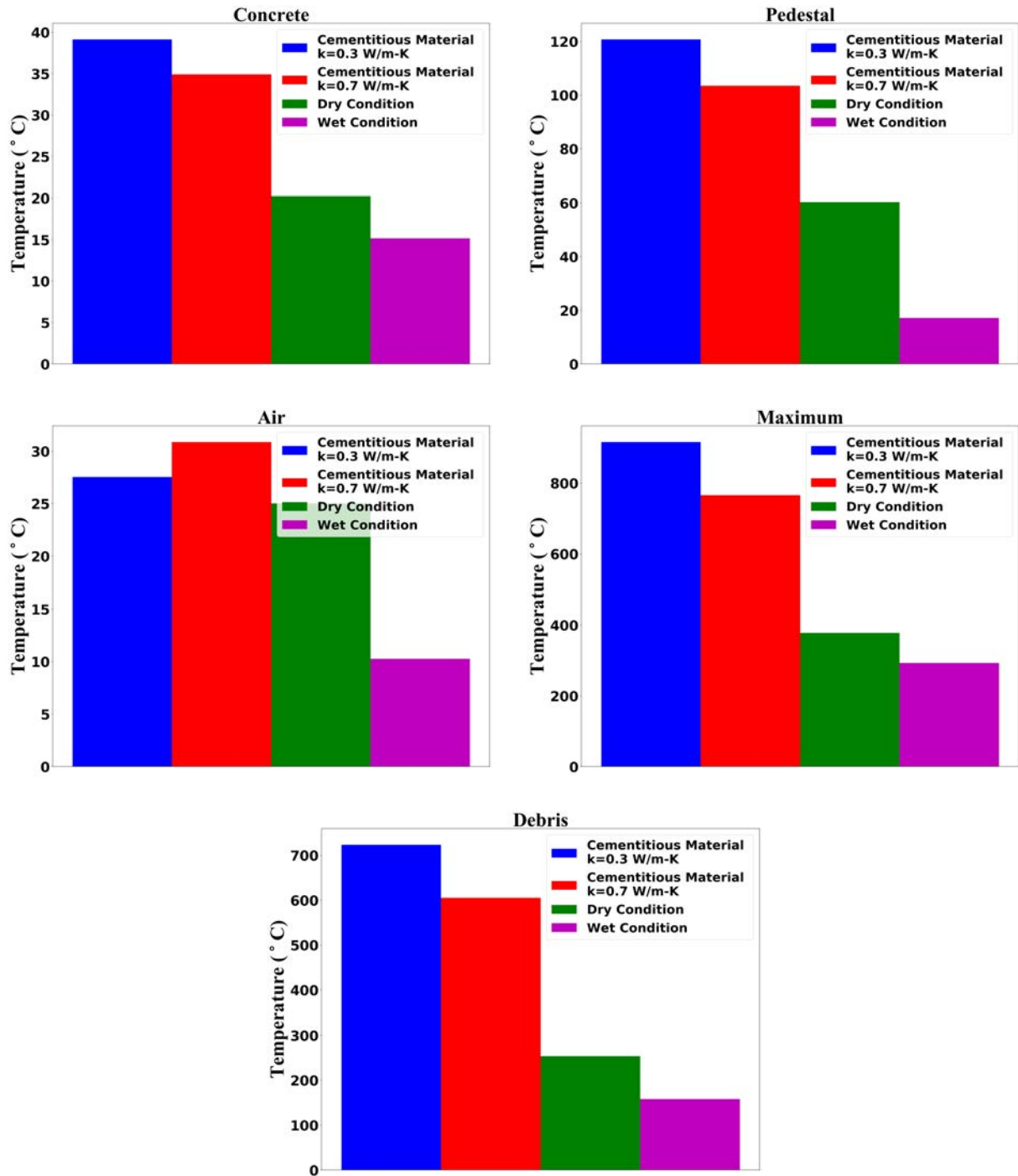


図 3.1.2-25 セメント系材料被覆有無の温度比較

セメント系材料の熱伝導率を増大させることにより、燃料デブリからセメント系材料への熱伝達、さらにはガス領域への自然対流を増大させることができる。ペDESTALおよび燃料デブリの



温度分布に対する熱伝導率の影響を調べるために、0.3～2.2 W/m-K. の範囲の熱伝導率で解析を行い、図 3.1.2-26 に示す温度分布を得た。

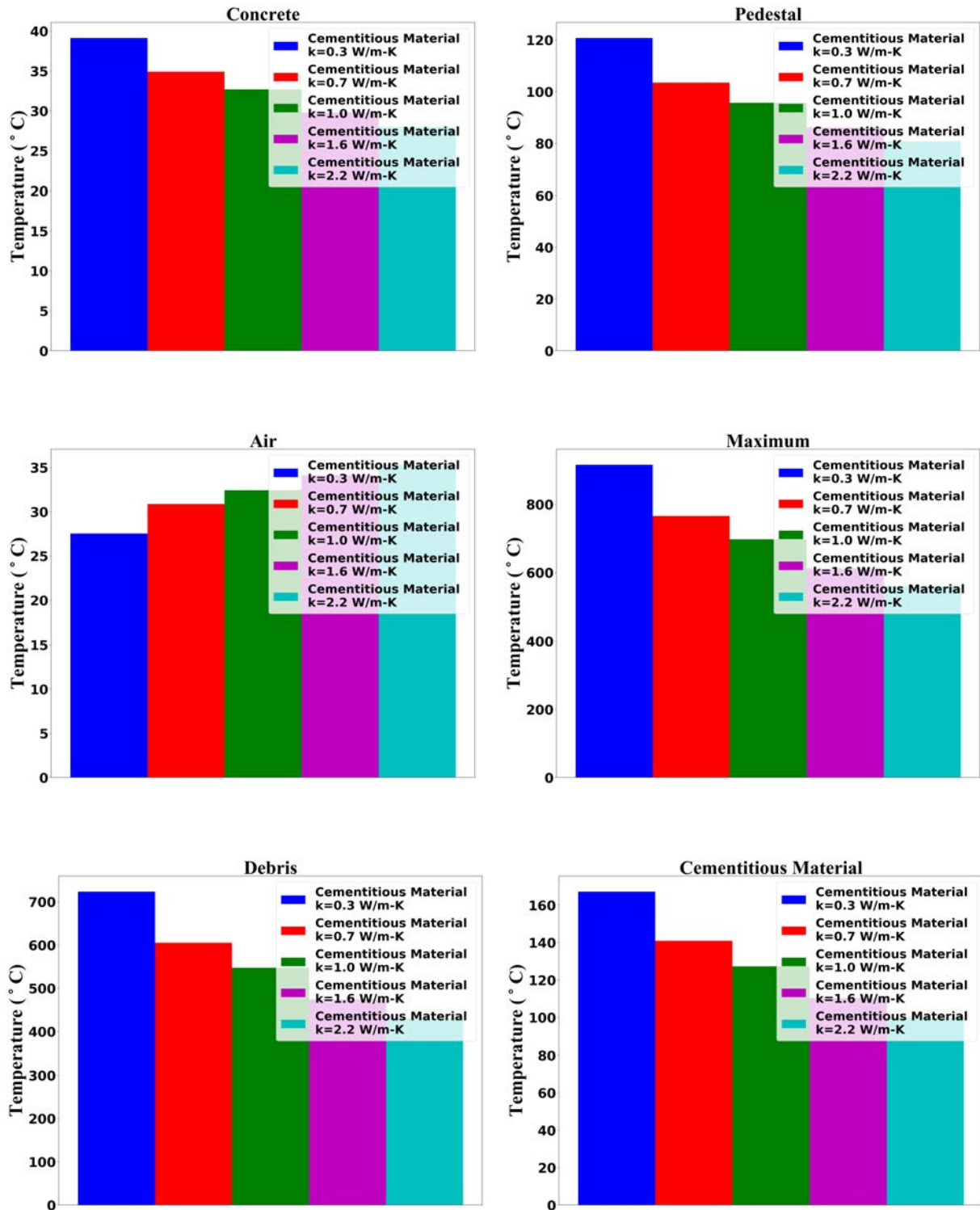


図 3.1.2-26 熱伝導率を変えたセメント系材料完全被覆の影響

熱伝導率の増加によりペデスタル及びセメント系材料の温度は徐々に低下し、 $2.2 \text{ W/m-K}$  の熱伝導率ではそれぞれ  $80^\circ\text{C}$  と  $100^\circ\text{C}$  となった。

#### ④ セメント系材料による部分被覆

廃棄物の量を減らし、セメント系材料の注入を容易にするためには、セメント系材料による部分的な被覆が有効な選択肢となり得る。そこで図 3.1.2-27 に示される被覆条件で解析を行った。

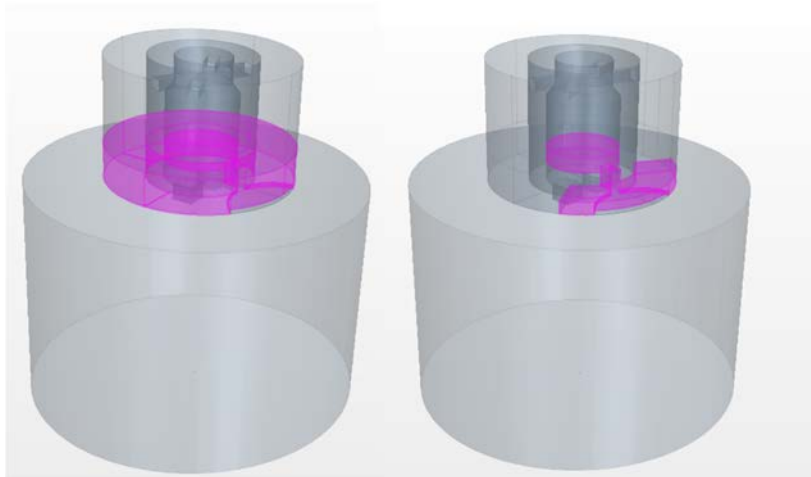


図 3.1.2-27 完全被覆と部分被覆モデルの比較

2021 年の崩壊熱 90%条件で、 $0.3 \sim 2.2 \text{ W/m-K}$  の範囲の異なる熱伝導率を持つセメント系材料の解析を行った。また、ペデスタル近傍に水冷管等による冷却配管を設置した場合の温度評価を実施するため、図 3.1.2-28 に示すようにペデスタル基部内壁から  $0.5 \text{ m}$  の距離で  $7 \text{ m}^2$  の冷却面積を有するケースを解析した。

部分被覆の場合の結果を図 3.1.2-29 に示すが、ペデスタル領域の温度はセメント系材料の熱伝導率により影響を受けないことが判った。

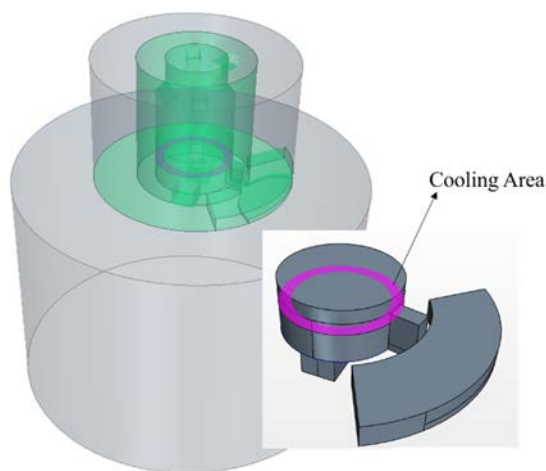


図 3.1.2-28 ペデスタル基部冷却モデル

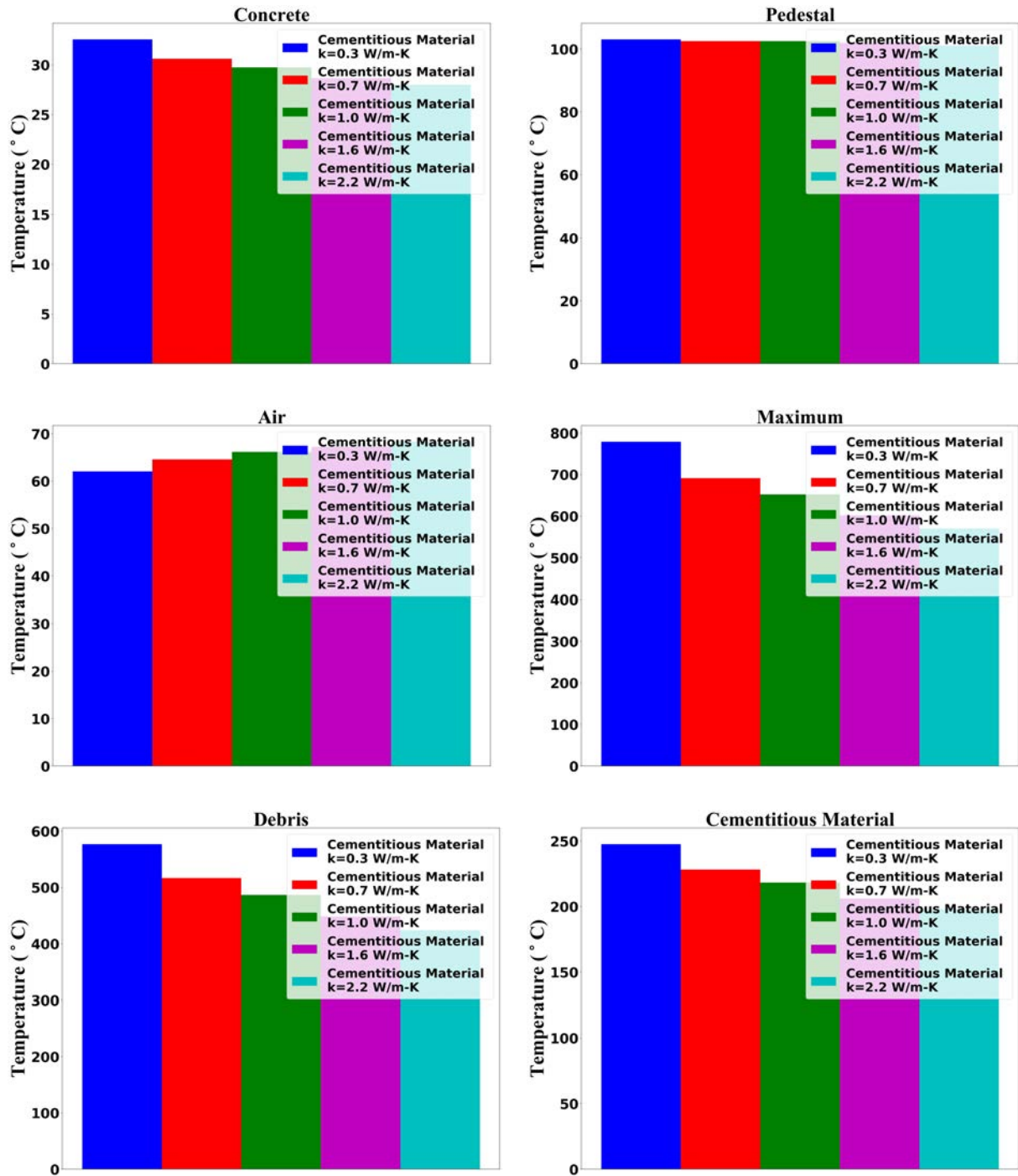


図 3. 1. 2-29 部分被覆の場合の熱伝導率の影響

また、2021 年の崩壊熱 90%に対して 5.8 kW～ 14.2 kW の範囲の異なる外部冷却による除熱を想定した結果、図 3. 1. 2-30 に示すように、14.2 kW の除熱により、ペデスタル領域の温度を 45℃ まで下げることができ、外部冷却によって効果的に冷却することができることが判った。

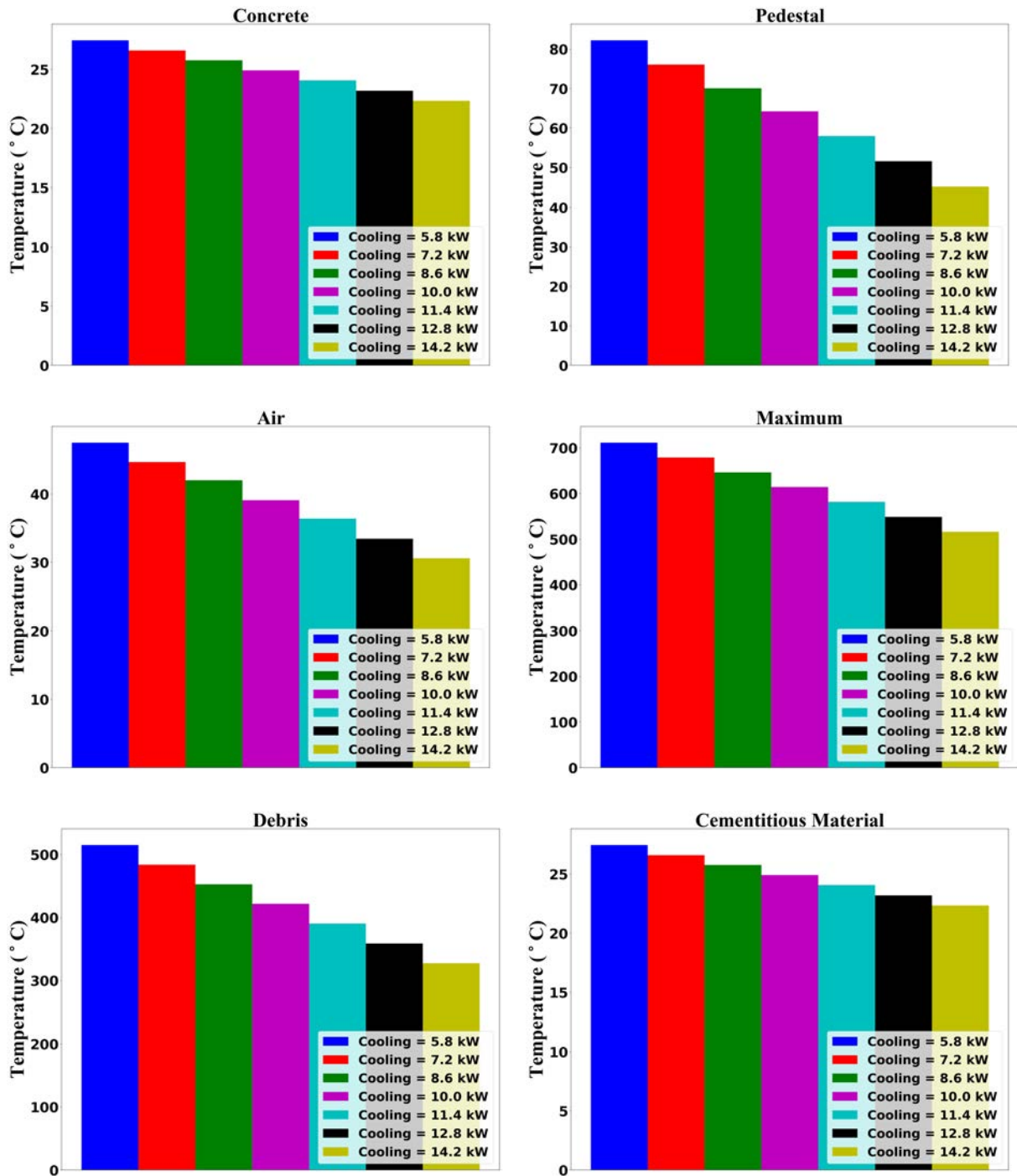


図 3. 1. 2-30 部分被覆に対する外部冷却の効果

更に、燃料デブリを取り出すエリアのみ被覆する条件で解析を行った。解析ケースとしては図 3. 1. 2-31 のような 3 つの異なるケースを想定した。Case-1 と Case-2 ではそれぞれ高さ 1 m・直径 2 m、高さ 2 m・直径 2 m の円柱状の取り出し用チャンバーを想定し、その中にセメント系材料を注入することを想定した。Case-3 では、PCV 底部から 2.5m 高さまで注入し、その高さまで水位があると仮定して解析を行った。結果を図 3. 1. 2-32、図 3. 1. 2-33 に示す。

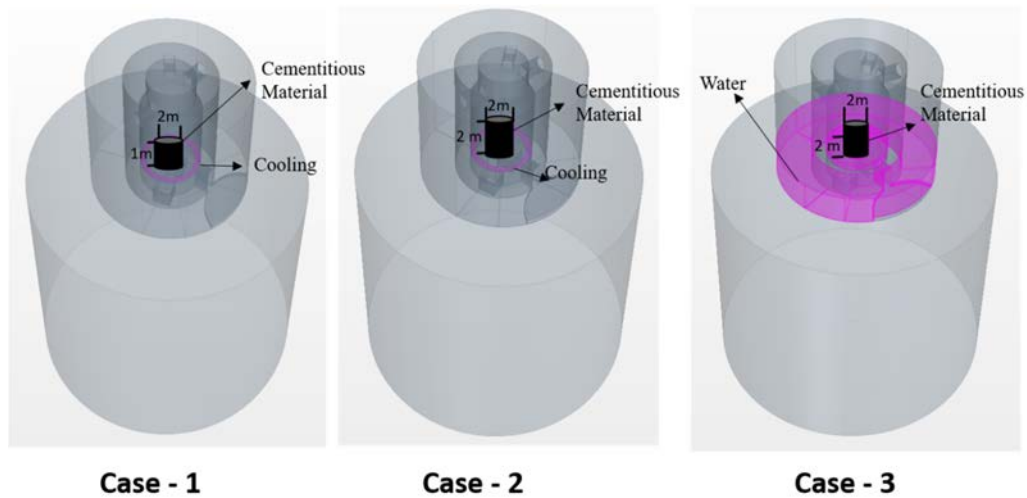


図 3.1.2-31 局所被覆のモデル

Case-1 の結果から、12 ～ 15 kW の除熱はペデスタルに対しては有効であるが、セメント系材料の温度は依然として高いことが判る。

一方、Case-2 & Case-3 の結果から、PCV 内に水があることにより、燃料デブリ領域とペデスタル領域の両方において効果的に除熱可能なことが判った。

#### (7) 熱解析結果のまとめ

本研究では、汎用熱流体解析プログラム STAR-CCM +を用いて、燃料デブリ崩壊熱の除熱性能について解析を行い、以下の結果を得た。

- ①水冷・空冷条件下での PCV 内温度を解析するとともに、セメント系材料を注入した場合との比較を行った。セメント系材料で PCV 底部を完全に被覆すると、ペデスタル及び燃料デブリの温度上昇を生じる。この温度上昇はセメント系材料の熱伝導率を高めることにより、改善される。
- ②燃料デブリのみを被覆する部分被覆条件では、冷却管をペデスタル基部近傍に配置することにより、有効な除熱が可能となる。具体的には 14 kW の除熱によりペデスタル領域における温度を許容範囲まで低減することができる。
- ③燃料デブリ取り出しエリアのみ被覆した場合、冷却管を配置するかあるいは PCV 底部に水を張ることにより、ペデスタル及び燃料デブリの温度上昇を効果的に抑制することができる。

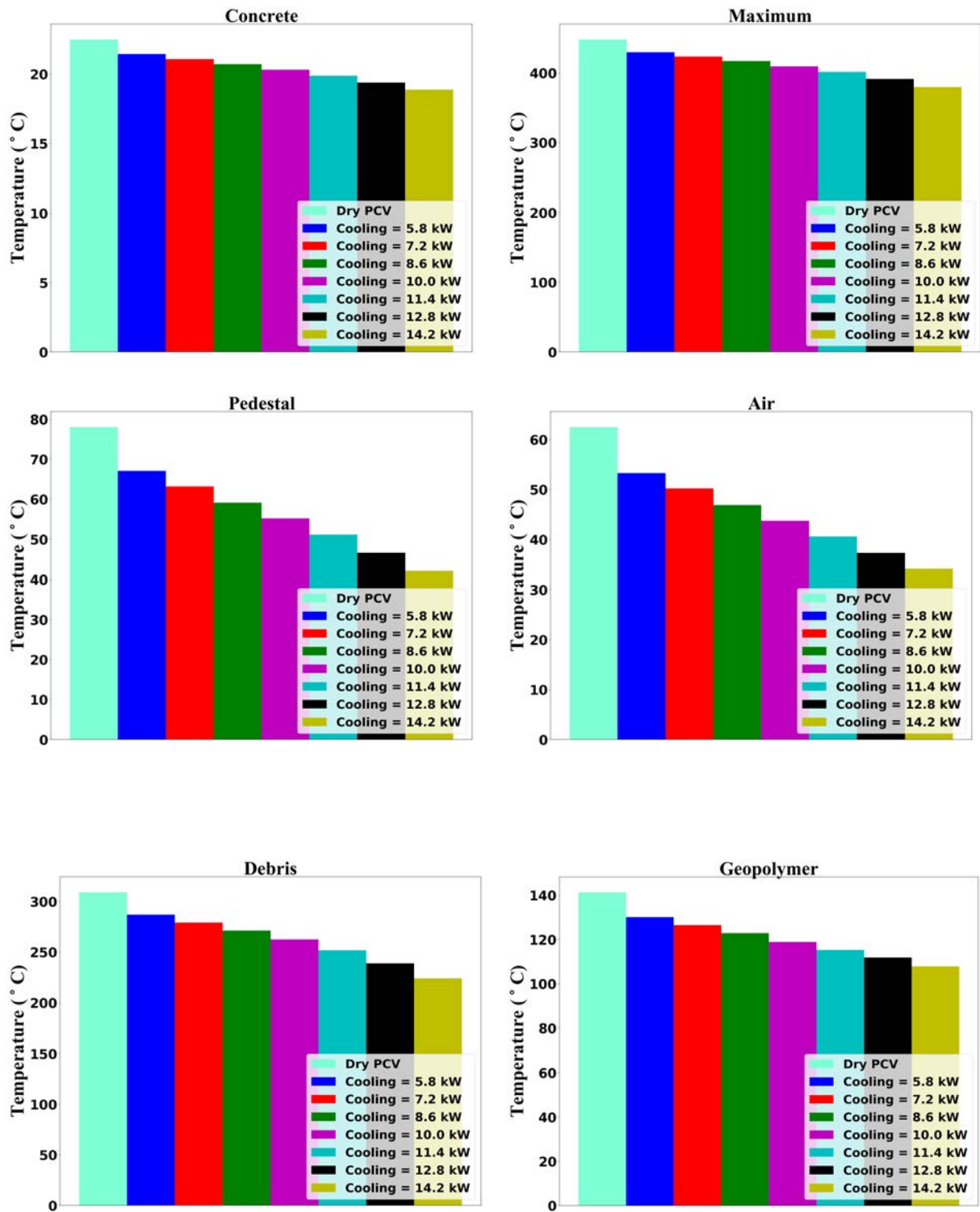


図 3.1.2-32 外部冷却の効果 (Case-1)



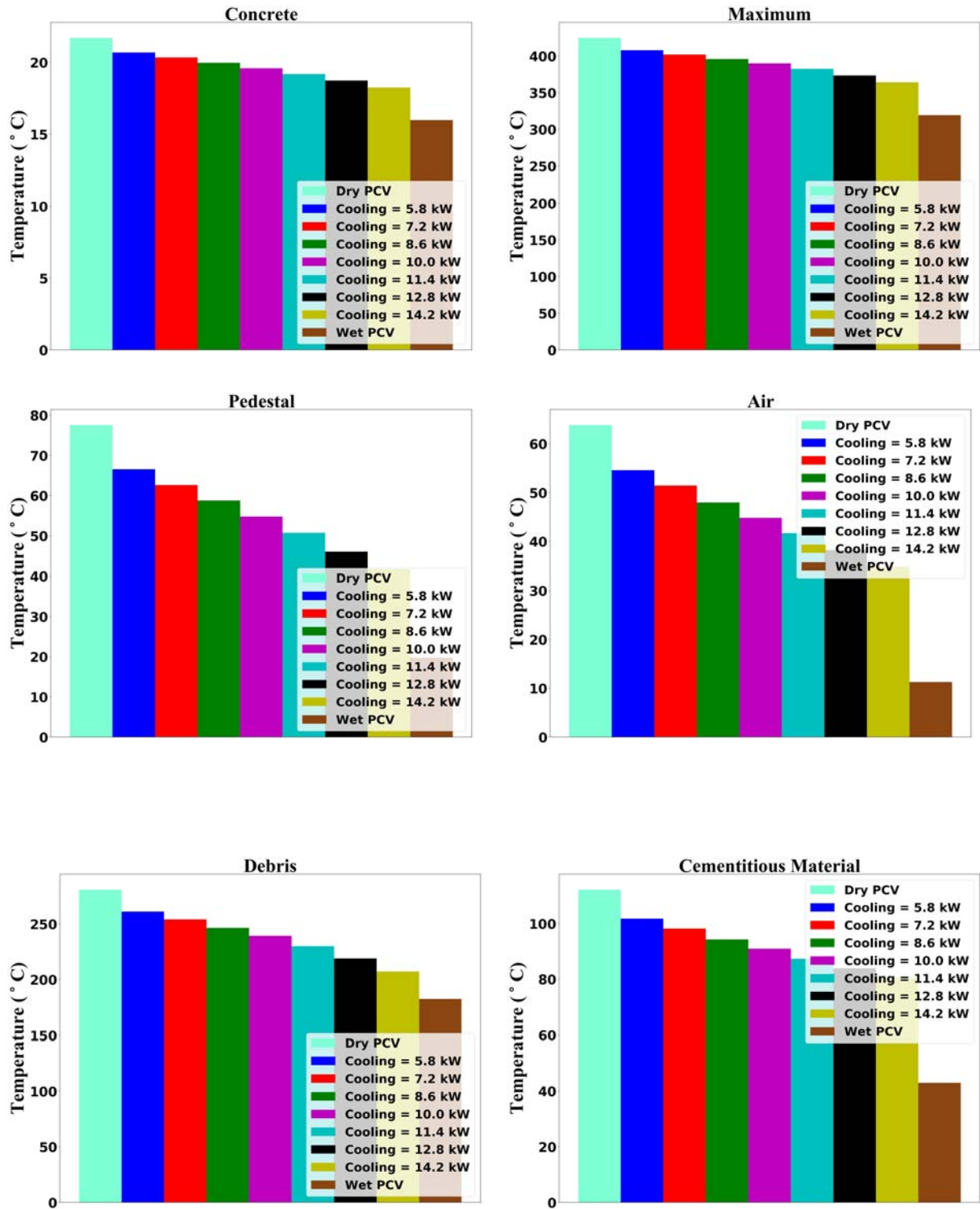


図 3. 1. 2-33 外部冷却の効果 (Case-2 & Case-3)



## 参考文献

- [1] 廃炉・汚染水対策事業費補助金（総合的な炉内状況把握の高度化） Available online : [http://irid.or.jp/\\_pdf/20170000\\_01.pdf](http://irid.or.jp/_pdf/20170000_01.pdf) (Accessed on 15/01/2019)
- [2] 原子炉格納容器内部調査技術の開発 Available online: [http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000\\_11.pdf](http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000_11.pdf) (Accessed on 15/01/2019)
- [3] Journeau C, Piluso P. Core concrete interaction. In: Konings RJM, editor. Comprehensive nuclear materials. Vol. 2. Amsterdam:Elsevier;2012. p. 635-654.
- [4] Journeau, C. et al. 2006, “The VULCANO VE-U7 Corium spreading benchmark,” Prog. Nucl. Ener. pp.215-234.
- [5] Yamashita S, Uesawa S, Yoshida H. Development of Numerical Simulation Method to Evaluate Heat Transfer Performance of Air Around Fuel Debris: Part 1 – Effect of the Debris Shape. ASME. International Conference on Nuclear Engineering, Volume 6: Thermal-Hydraulics:V006T08A096. doi:10.1115/ICONE25-67516.
- [6] K. Way and E. P. Wigner, “The Rate of Decay of Fission Products,” Phys. Rev., vol. 73, no. 11, pp. 1318-1330, Jun. 1948.
- [7] Technical Strategic Plan 2016 for Decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station of Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. [http://www.dd.ndf.go.jp/en/strategic-plan/book/20170322\\_SP2016esum.pdf](http://www.dd.ndf.go.jp/en/strategic-plan/book/20170322_SP2016esum.pdf)
- [8] Japan Meteorological Agency, Monthly mean Air Temperature Available online : [https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/monthly\\_s3\\_en.php?block\\_no=47595&view=2](https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/monthly_s3_en.php?block_no=47595&view=2)

## 3.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価

### 3.2.1 被覆材の作製（連携先：JAEA）

試験材として適切なジオポリマー性状に関して東京大学と協議の上、燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価に供するジオポリマーを試作した。

ジオポリマー試作にあたっては、注入時・養生時における環境（空气中、水中）及び温度（室温、50℃）条件を変化させ、メタカオリンを使ったジオポリマーを5種類試作した。

以下には試作にあたっての材料選定と作成方法、ならびに作成後の材料分析結果を示す。

#### (1) 作成方法

##### ① 燃料デブリ安定化被覆材ジオポリマーの仕様検討

技術開発に必要となる試験や測定項目などを検討し、必要となるジオポリマーの仕様を検討し、表 3.2-1 の通りに決定した。

表 3.2-1 ジオポリマー注入・養生・保管時の条件

| 試料 No. | 注入時 |     | 養生時           |     | 保管時           |    |
|--------|-----|-----|---------------|-----|---------------|----|
| 1、2    | 空气中 | 室温  | 空气中<br>(100%) | 室温  | 空气中<br>(100%) | 室温 |
| 3、4    | 水中  | 室温  | 水中            | 室温  | 空气中<br>(100%) | 室温 |
| 5      | 水中  | 50℃ | 水中            | 50℃ | 空气中<br>(100%) | 室温 |

## ② ジオポリマーの作製方法の検討

上記仕様を満たすジオポリマーの作製方法について検討し、以下の通りに決定した。

ジオポリマーは、水酸化ナトリウム (NaOH)、ARGICAL M 1000 (メタカオリン) 及び珪酸ナトリウム溶液 1 号 (水ガラス) を用いて試作した。NaOH は純度 97%以上のものを和光純薬株式会社から、メタカオリンは Imerys High Resistance Minerals から、水ガラスはキシダ化学株式会社から購入した。用いたメタカオリンの組成は  $2.13 \text{ SiO}_2 : 1 \text{ Al}_2\text{O}_3$  であり、6.54wt%の吸着水または不純物またはその両者を含んでいた。なお、不純物は作製に際して非反応性と考えられる。用いた水ガラスの組成は ICP 発光分光法により確認し、 $2.18 \text{ SiO}_2 : 1 \text{ Na}_2\text{O} : 8.96 \text{ H}_2\text{O}$  であった。

まず、活性化溶液を調製した。47.34 g の NaOH を 271.62 g の超純水に溶解し、その後、692.8 g の水ガラスを添加し、一晚攪拌した。この攪拌操作は、NaOH の溶解熱による水分蒸発を避けるため密閉容器を用いた。

次に、オーバーヘッドミキサーを用いて活性化溶液を攪拌しながら、630 g のメタカオリンを少しずつ添加した。添加後、最終混合物が均質なペーストになるまで 5 分間攪拌した。

## ③ ジオポリマーの作製

②で検討した作製方法にしたがって、ジオポリマーを試作した。

試料は全て 1 バッチのジオポリマーで調製した。なお、実験室内の温度は空調機により制御されており、 $22 \pm 1^\circ\text{C}$  の範囲であった。注入・養生・保管方法について、条件毎に詳細を示す。

### 【試料 No. 1 及び 2】

- ① 調製したジオポリマーを空气中・室温で型枠に流し込んだ (写真 3.2-1 参照)。
- ② 試料を空气中 (100%RH) ・室温で 7 日間養生するため、水を含ませたキムワイブと一緒にビニールバッグに封入した (写真 3.2-2 参照)。
- ③ 提供まで引き続き空气中 (100%RH) ・室温で保管した。

### 【試料 No. 3 及び 4】

- ① 5L ビーカーに水を張り、型枠に重しを付けて沈めた。
- ② 50 ml のプラスチック製シリンジ (写真 3.2-3 参照) を用い、調製したジオポリマーを型枠

に注入した。

- ③ 水中・室温で7日間養生した（写真 3.2-4 参照）。
- ④ 養生後、提供まで空气中（100%RH）・室温で保管するため、水を含ませたキムワイプと一緒にビニールバッグに封入した。

【試料 No. 5】

- ① 2L ビーカーに水を張り、型枠に重しを付けて沈めた。
- ② ①で用意したビーカー等は、予め恒温槽を用いて 50℃まで加温した。
- ③ 50 ml のプラスチック製シリンジを用い、調製したジオポリマーを型枠に注入した。
- ④ 水中・50℃で7日間養生するため、注入後、恒温槽に戻した。
- ⑤ 養生後、提供まで空气中（100%RH）・室温で保管するため、水を含ませたキムワイプと一緒にビニールバッグに封入した。

作製・養生時の様子及び試作した試料を以下に写真 3.2-5～3.2-10 に示す。



写真 3.2-1 空气中・室温条件下での試料注入の様子（試料 No. 1、2）



写真 3.2-2 空气中・室温条件下で作製した試料を空气中（100%RH）・室温条件下で養生および保管する様子（試料 No. 1、2）

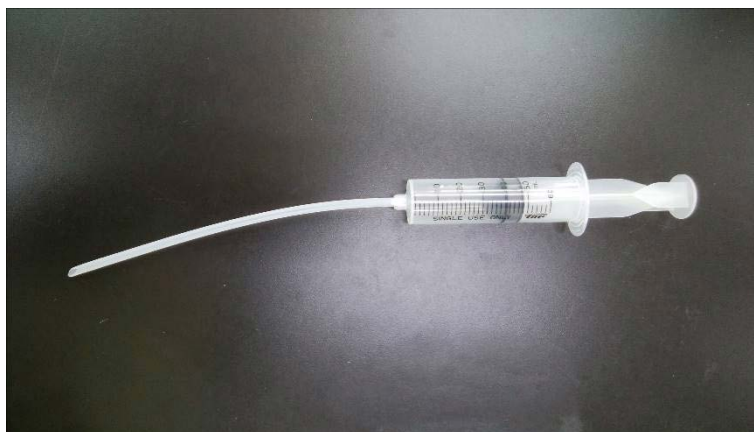


写真 3. 2-3 水中作製時、注入に用いたシリンジ



写真 3. 2-4 水中・室温条件下で作製した試料を  
水中・室温条件下で養生する様子（試料 No. 3）



写真 3.2-5 空气中・室温条件下で作製した試料

7 日間、空气中（100%RH）、室温条件下で養生後、型枠からの取出し直前の様子（試料 No. 1）



写真 3.2-6 空气中・室温条件下で作製した試料

7 日間空气中（100%RH）、室温条件下で養生後、型枠からの取出し直後の様子（試料 No. 1）



写真 3.2-7 空気中・室温条件下で作製した試料  
7 日間、空気中（100%RH）、室温条件下で養生後の様子（試料 No. 2）



写真 3.2-8 水中・室温条件下で作製した試料  
7 日間、水中・室温条件下で養生後の様子（試料 No. 3）





写真 3.2-9 水中・室温条件下で作製した試料  
7日間、水中・室温条件下で養生後の様子（試料 No. 4）



写真 3.2-10 水中・50℃条件下で作製した試料  
7日間、水中・50℃条件下で養生後の様子（試料 No. 5）

### 3.2.2 被覆材特性評価

安定化被覆材に関しては、上記ジオポリマーの他、欧州で実績のあるジオポリマーSIALを富士電機㈱と、飛散抑制効果のある沈降型超重泥水をNB研究所と協議し、試作した。

被覆材の評価としては、熱伝導率、時間経過に伴う粘性変化等各種基礎材料特性を把握するとともに、一部の被覆材について流動試験を行い、流動、拡散、凝固挙動を把握した。

また被覆材の一部は、 $\gamma$ 線照射を行い、照射前後の熱伝導率変化や照射後水素発生量等を測定した。作成された一部のジオポリマー、沈降型超重泥水については、流動特性、熱伝導特性等の基本材料特性を取得した。

#### (1) 被覆材の試作

##### ① 富士電機における SIAL®ジオポリマーの試作

メタカオリン、水ガラスおよび水酸化ナトリウム等からなるアルカリ活性材料の SIAL®ジオポリマーを使い、室温 17℃、ホバート社製のホバートミキサーを用いて 4 分間混練して試作した。

##### ② NB 研究所沈降型重泥水の試作

以下の手順で試験に供する材料を試作した。

手順 1：水道水をラボミキサーで攪拌しながら、有機タイプは NB ポリマー800HC を、無機タイプは NB クレイ、NB フローを所定量添加し、継粉が無くなるまで攪拌する。

手順 2：NB ウェイトを所定量添加し、継粉が無くなるまで攪拌する。

手順 3：ベース流体を攪拌しながら、有機タイプは NB ブレーカーを、無機タイプは NB フローを所定量添加し約 10 分間攪拌する。

手順 4：作製した沈降型重泥水をブリージング袋に入れ 500ml シリンダーに設置する。

手順 5：上述のシリンダーを 40℃に設定した恒温槽に約 1 週間静置し固形分を沈降させる。

手順 6：沈降した固形分を 50mm  $\phi$  × 20mm の寸法に成型する。

手順 7：無乾燥試料に加え、110℃、200℃、300℃で恒量になるまで乾燥した試料を試作する。

試作したベース泥水の組成配合を表 3.2-2 に示す。

表 3.2-2 ベース泥水の配合組成

| 材料名          | 配合量(g) |       |
|--------------|--------|-------|
|              | 有機タイプ  | 無機タイプ |
| 水道水          | 700    | 700   |
| NB ポリマー800HC | 4.9    | －     |
| NB クレイ       | －      | 28    |
| NB ウェイト      | 2800   | 2800  |
| NB フロー       | －      | 0.35  |

次に沈降試験に供するため以下の手順で試験体を試作した。

手順 1：水道水をラボミキサーで攪拌しながら、有機タイプは NB ポリマー800HC を、無機タイプ

はNB クレイ、NB フローを所定量添加し、ママコが無くなるまで攪拌する。

手順2：NB ウェイトを所定量添加し、ママコが無くなるまで攪拌し静置する。

手順3：2 日後、ベース流体を攪拌しながら、有機タイプはNB ブレーカーを、無機タイプはNB フローを所定量添加し約 5 分間攪拌する。

試作した沈降型重泥水の配合組成を表 3. 2-3 に示す。

表 3. 2-3 沈降型重泥水の配合組成

| 材料名      | 配合量(g) |        |
|----------|--------|--------|
|          | 有機タイプ  | 無機タイプ  |
| ベース泥水量   | 1700   | 1700   |
| NB ブレーカー | 0. 095 | －      |
| NB フロー   | －      | 0. 843 |

### (3) 被覆材特性評価

#### ①ジオポリマー粘度測定試験（JAEA との協働）

##### 1) 試験目的

実際の施工環境を想定し、混練後ジオポリマーの外部環境の違いによる固化過程を把握することを目的として実施した。

##### 2) 試験条件

水酸化ナトリウムと水ガラスを 24 時間攪拌し、水ガラスの鎖状構造を断ち反応効率を高める。その後メタカオリンを混ぜてよく攪拌し、測定用の容器に分ける。測定する条件と諸注意を表 3. 2-4 に示す。また、ジオポリマーの組成は  $3.8\text{SiO}_2 : 1\text{Al}_2\text{O}_3 : 1\text{Na}_2\text{O} : 13\text{H}_2\text{O}$  となるように調整した。

表 3. 2-4 粘度測定試験の条件一覧

| 条件     | 作製・保管時の注意点                         | 目的                                                                                                    | 備考                                   |
|--------|------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------|
| 気中/室温  | 表面の乾燥を防ぐためにシートで覆う                  | <ul style="list-style-type: none"> <li>施工前のジオポリマー保管方法の確立</li> <li>注入時の炉内環境によるジオポリマー固化過程の把握</li> </ul> | 水とジオポリマーが混ざらないよう同サンプルを2つ用意し、交互に測定した。 |
| 気中/50℃ | 表面の乾燥を防ぐためにシートで覆う<br>ウォーターバスで温度を保つ |                                                                                                       |                                      |
| 水中/室温  | 水中でジオポリマーを流し込む                     |                                                                                                       |                                      |
| 水中/50℃ | 水中でジオポリマーを流し込む<br>エアバスで温度を保つ       |                                                                                                       |                                      |

#### 3) 試験結果および考察

各条件について粘性係数を測定した結果を図 3. 2-1 に示す。気中/水中どちらの条件においても固化中の温度が高いと固化反応が非常に早く進む傾向となり、2 時間未満で測定不可(100Pa・s 以上)となった。また、室温/50℃どちらの条件でも気中での固化が早い傾向となった。GP は脱水

縮合反応により固化するが、その水が GP から出て行きやすく固化が早まったと考えられる。室温条件では、気中/水中どちらの条件でも 6 時間後に 10Pa・s 以下と施工可能な流動性を確保することができた。

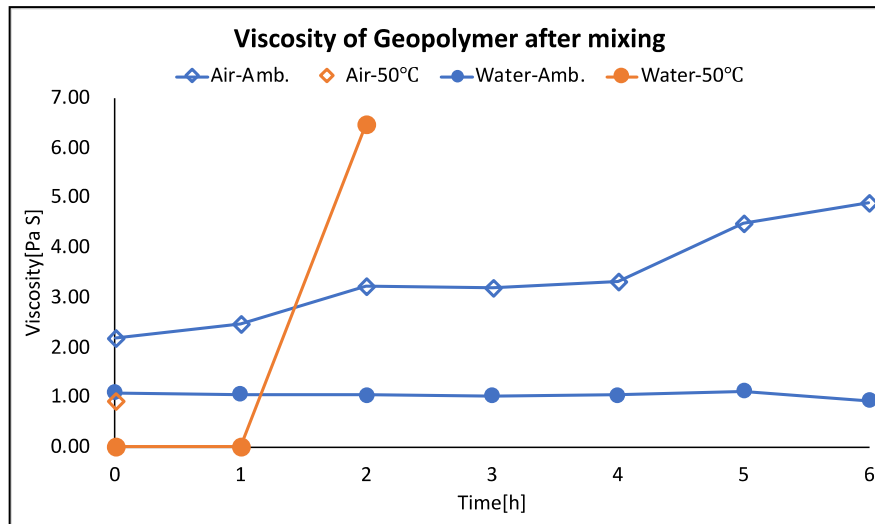


図 3.2-1 ジオポリマーの各条件における粘性係数測定結果

## ② SIAL®ジオポリマーの基本特性評価

### 1) 試験目的

SIAL®ジオポリマーについて、粘度測定およびスランプフロー試験によるフロー値測定を行い、実機施工時の流動挙動推定に資する。

### 2) 試験項目および条件

試験項目及び測定項目、測定装置についての一覧を表 3.2-5 に示す。

表 3.2-5 SIAL®ジオポリマーの試験項目及び測定項目、測定装置

| 試験項目      | 測定項目(単位) | 測定装置               |
|-----------|----------|--------------------|
| 粘度測定試験    | 粘度[Pa・s] | RB-85H<br>(東洋産業社製) |
| スランプフロー試験 | フロー値[cm] | モルタルフロー試験          |

### 3) 試験結果

試験結果を表 3.2-6 に示す。JAEA 試作材と比較して、本試作材の粘度は一般的に高く、粘度は作成後 5 時間後から高くなり、粘度上昇とともにフロー値も減少した。

表 3.2-6 SIAL®ジオポリマーの粘度、フロー値測定結果

| 試料名  | 測定温度        | 粘度<br>[Pa・s] | フロー値<br>[cm] |
|------|-------------|--------------|--------------|
| 0 時間 | 17℃<br>(室温) | 21.36        | 28.1         |
| 1 時間 |             | 28.72        | 26.7         |
| 2 時間 |             | 36.76        | 26.3         |
| 3 時間 |             | 56.48        | 25.3         |
| 4 時間 |             | 75.92        | 23.8         |
| 5 時間 |             | 183.2        | 23.1         |
| 6 時間 |             | 262.8        | 22.0         |

### ③ ジオポリマー (GP) および沈降型重泥水 (HMW) のガンマ線照射試験

#### 1) 試験目的

ジオポリマーおよび沈降型重泥水、さらにその改良材について、照射によるガス発生挙動を把握し、燃料デブリ取り出し時と保管時に適した材料および方法について検討する。

#### 2) 試験条件

a) 試料 (大きさ:  $\phi 50\text{mm} \times \text{高さ } 20\text{mm}$  (図 3.2-2) )

ガス分析のため枝付きガラスアンプル内に封入されている。今回照射試験を行った試料の一覧を表 3.2-7 に示す。

b) 照射位置: 概略図と実際の写真を図 3.2-3、4 に示す。

c) 積算照射量: 第一列目 (緑色部分): 1.15MGy

第二列目 (青色部分): 0.35MGy



図 3.2-2 試料外観

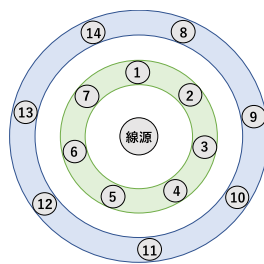


図 3.2-3 照射位置概略図



図 3.2-4 照射時の写真

表 3.2-7 照射試験の試料一覧

| サンプル       | 番号     | 測定項目    | 目的                               | 備考        |
|------------|--------|---------|----------------------------------|-----------|
| GP-P       | 1, 8   | Gas, TC | リファレンス                           |           |
| GP-P-D     | 2, 9   | Gas     | (取り出し後)乾燥によるガス発生量の変化             | 500℃乾燥    |
| GP-P-W80   | 3      | Gas, TC | (取り出し中)炉内環境での施工を想定               | 水中で固化     |
| GP-P-W80-D | 4      | Gas     | (取り出し後)乾燥によるガス発生量の変化             | 500℃乾燥    |
| GP-Pd      | 5, 10  | Gas, TC | (取り出し後)Pd添加による水素抑制効果             | 3wt.%添加   |
| HMW-O-D    | 6      | Gas     | (取り出し後)乾燥によるガス発生量の変化             | 炉外で110℃乾燥 |
| HMW-M-D    | 7      | Gas     | (取り出し後)乾燥によるガス発生量の変化             | 炉外で110℃乾燥 |
| HWM-O      | 11, 12 | Gas     | (取り出し中)組成の違いによる<br>ガス発生量と熱伝導性の変化 | 水分を含む固体   |
| HMW-M      | 13, 14 | Gas, TC | (取り出し中)組成の違いによる<br>ガス発生量と熱伝導性の変化 | 水分を含む固体   |

GP: ジオポリマー, P: 添加なし, D: 加熱乾燥, W80: 80℃水中で作製, Pd: Pd 粉末添加  
 HMW: 沈降型重泥水, O: 有機系添加剤, M: 無機系添加剤, Gas: ガス分析, TC: 熱伝導率測定

### 3) 試験結果考および考察

ガス分析は、照射後のアンプル内の気体を採取し、ガスクロマトグラフで水素、酸素、窒素ガスの発生量を体積分率で測定した。結果を図 3.2-5 に、また水素の発生量のみ示した結果を図 3.2-6 に示す。

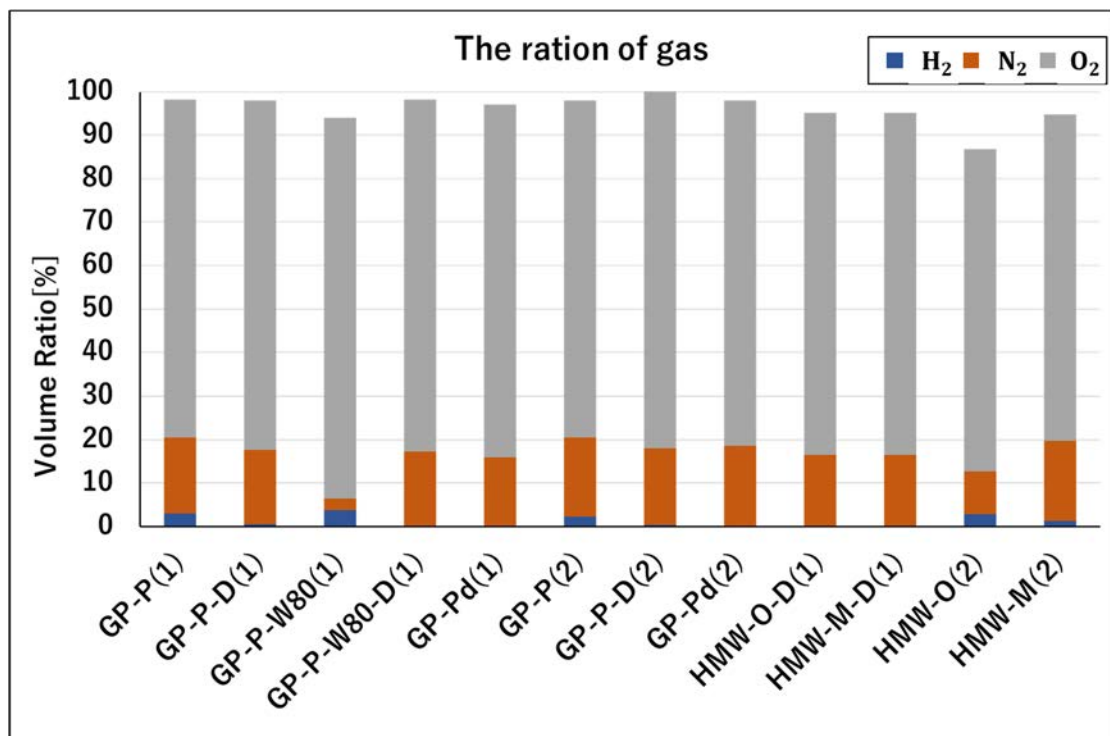


図 3.2-5 照射後ガス発生量分析結果

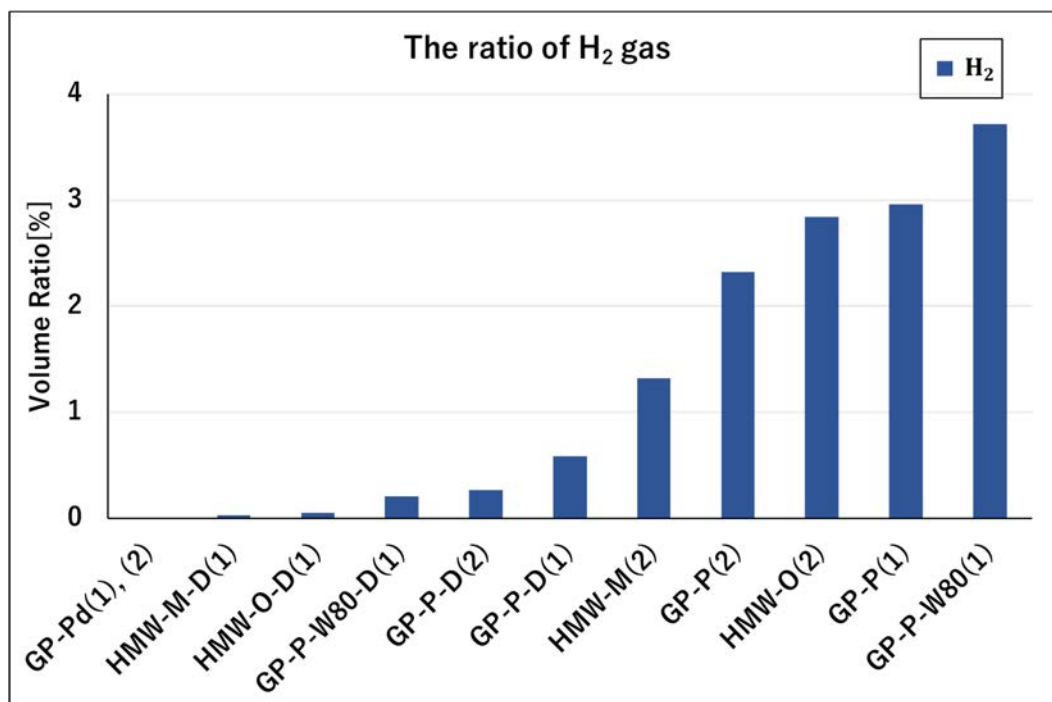


図 3.2-6 照射後水素ガス発生量結果

本試験では水中で作製したジオポリマー、気中で作製したジオポリマー、水分を含む沈降型重泥水が放射線照射により水素発生量が多い傾向となった。ジオポリマーは固化中に閉じ込められた自由水、沈降型重泥水は主成分であるバライト粒子表面に付着した水分からそれぞれ放射線分解により水素が発生していると考えられる。それぞれの試料に乾燥工程を加えた試料では、水分の蒸発により水素発生量が低減する傾向が見られた。また、ジオポリマーに Pd 粉末を加えた試料については、水素発生量は検出限界値(0.01%)以下と水素発生抑制に大きな効果を示した。GP-P-W80については、酸素の割合が低く放射線分解の過程で酸素が消費されたと予想されるが、その反応メカニズムについて今後解明する必要がある。

熱伝導率測定は ASTM E1530 に準拠した円板熱流計法で実施し、TA インストルメンツ社製 DTC-300 型を使用して室温で測定した。その結果、未照射のジオポリマー、Pd 粉末添加ジオポリマーおよび沈降型重泥水の熱伝導率は、それぞれ 0.562, 0.463, 0.691 W/mK、第一列目で照射したジオポリマー、加熱乾燥ジオポリマーおよび Pd 粉末添加ジオポリマーの熱伝導率は、0.322, 0.260, 0.345 W/mK と低い値を示した。また照射によって熱伝導率は低下する傾向を示した。

この結果から、安定化被覆材を使用する場合には、冷却維持の観点から、材料の熱伝導率をあげる工夫をするか、被覆率を下げるか、あるいは冷却システムを新たに構築するか、いずれかの手法を選択する必要があると考えられる。

#### 4) 沈降型重泥水の沈降速度試験

##### a) 目的

沈降型重泥水の有機系/無機系添加剤の違いによる放射線照射時の沈降挙動を把握する。以下に添加材の目的を示す。

- ・増粘剤：炉内に均一にポンプで打設するために適度な粘性を持たせる



- ・破壊材：打設後素早く沈降層を形成するため、増粘剤を破壊し流動性を高める
- ・有機系添加剤：増粘剤は CMC、破壊材は酵素
- ・無機系添加剤：増粘剤はベントナイト、破壊材はピロリン酸塩 Na

#### b) 試験条件

有機系/無機系ともに増粘剤を混ぜた重泥水をシリンダーに入れ用、破壊材を加えて 5 分間攪拌した。攪拌後、シリンダー底面から液面までの高さを測定した。照射用試料を照射し始めた時間を開始時間とし、照射後 1、3、5、7、24 時間後の沈降高さを測定して沈降率を求めた(図 3.2-7 で沈降率= $h_t / h_0 \times 100$ )。また、照射試料のうち、有機系試料は 497[Gy/h]、無機系の照射率は 504[Gy/h]であった。

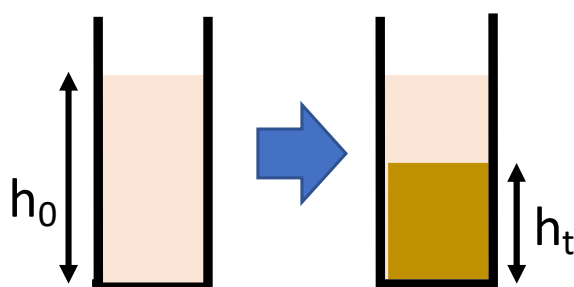


図 3.2-7 沈降率測定概念図

#### c) 試験結果および考察

時間依存による沈降率の変化を図 3.2-8 に、照射量依存による沈降率の変化を図 3.2-9 に示す。有機系添加剤は照射により沈降が早まったため、増粘剤の劣化もしくは破壊材の活性化が考えられる。また、HMW-0 の結果から、測定ガス以外のガスの発生も確認できる。本結果から、放射線照射環境下での有機系添加剤による沈降時間の調整は難しいと考えられる。一方、無機系添加剤は放射線照射の影響が確認されなかったため、1 日の沈降時間が許容されれば、無機系添加剤を被覆材として利用することは可能であることが分かった。

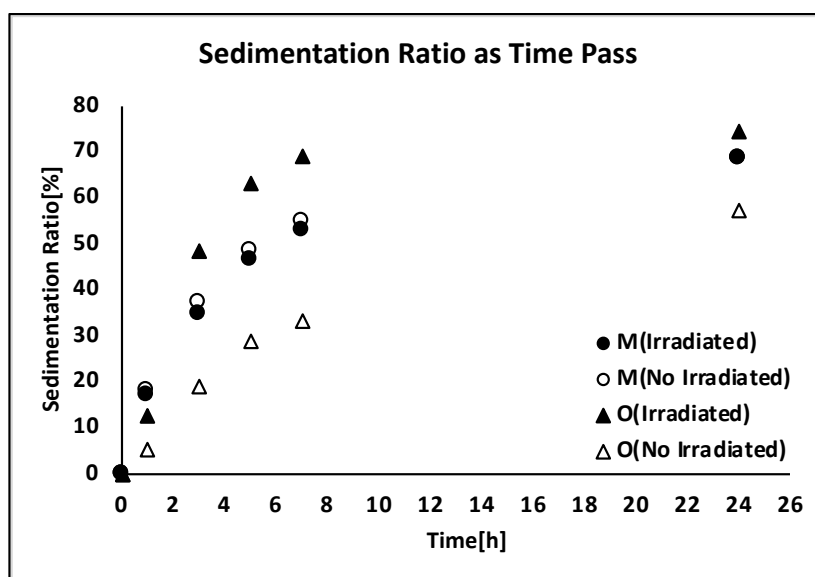


図 3.2-8 時間依存による沈降率変化

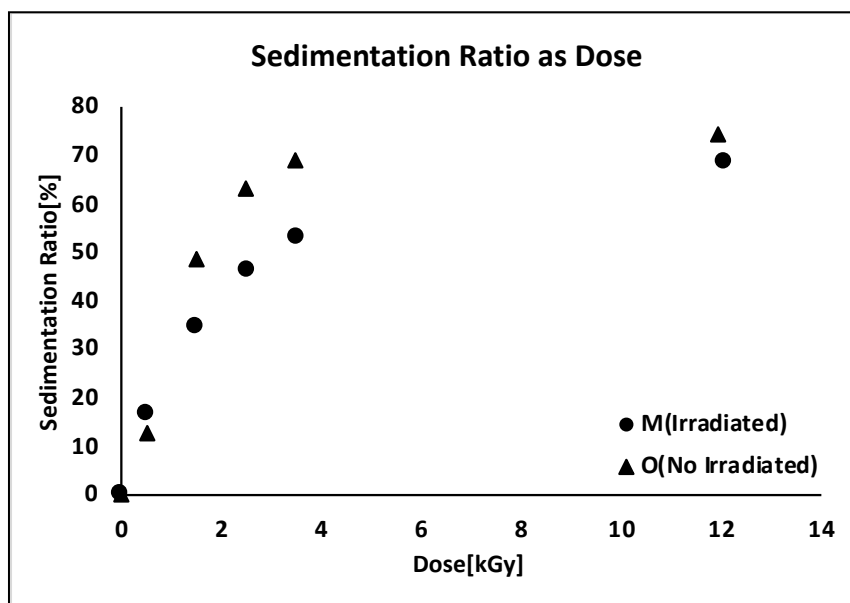


図 3.2-9 照射量依存による沈降率の変化

### 3.2.3 微粒子物性評価

#### (1) 試験目的

1F の格納容器 (PCV) から燃料デブリを除去するためには、燃料デブリの切断作業が必要である。PCV 全体の構造安定性を確実にするために、燃料デブリを安定化させるための被覆材としてのジオポリマーの適用も有望な工法である。この場合、切断プロセス中に、燃料デブリ、ジオポリマー被覆材、ならびに格納容器内のコンクリートおよび金属構造などの建築材料から、放射性粒子が発生する可能性がある。これらの放射性粒子は、デブリ取り出しに伴う二次廃棄物となることから、汚染水処理系の設計や廃棄物の保管、処理、処分の対応が求められる。また、これらの粒子生成の特徴と気相中および水相中での粒子の挙動を把握する必要がある。そこで本研究では、機械的切断およびレーザー切断からのジオポリマー粒子生成の特性を調べるとともに、機械的切断生成された粒子の懸濁安定性を試験した。また、(1) 燃料デブリ飛散防止技術の開発において、気相でのエアロゾル除去で使用する粒子の特性評価の一環として市販の微粒子サンプルとして、ギブサイト ( $\alpha\text{-Al}(\text{OH})_3$ )、および、ジルコニア ( $\text{ZrO}_2$ ) 分析も行った。

#### (2) 試験方法

図 3.2-10 は、切削試験に使用されたジオポリマーサンプルである。

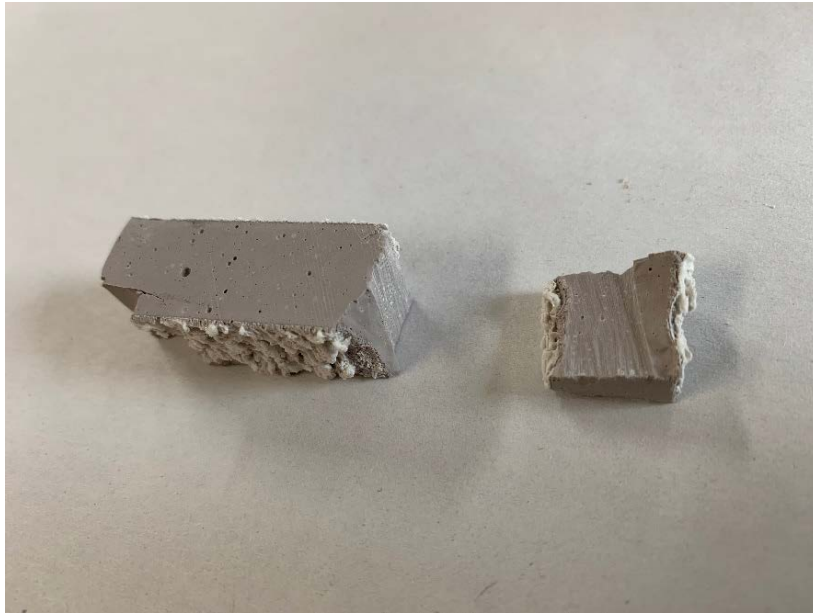


図 3.2-10 ジオポリマーサンプル

ジオポリマーサンプルを、ダイヤモンドソー（1.3mm 厚、手動切断）およびバンドソー機械（高速度スチールブレード、0.5mm 厚、機械切断）によって機械的に切断し、発生した微粒子を回収した。回収したジオポリマー粒子を、150  $\mu\text{m}$  メッシュの篩を通して粗大粒子を除去し、測定に供した。そして、最終的に得られた異なる切断方法で得られたジオポリマー粒子のサイズ分布や形状を評価し、それらの違いを比較した。

図 3.2-11 に、ダイヤモンドソーを用いたジオポリマー試料の切断の様子を示す。図より、切断中にジオポリマー粒子が切断切粉として発生していることが分かる。またジオポリマー試料をレーザー切断には、レーザー加工機（Yb:TAG レーザー、6kW、発振波長 1030 nm、切断速度 500 mm/s、切断中のアシストガス 100 L/分  $\text{N}_2$ ）によって切断した。図 3.2-12 に、ジオポリマー試料のレーザー切断の様子を示す。



図 3.2-11 ダイヤモンドソーによるジオポリマー試料切断の様子

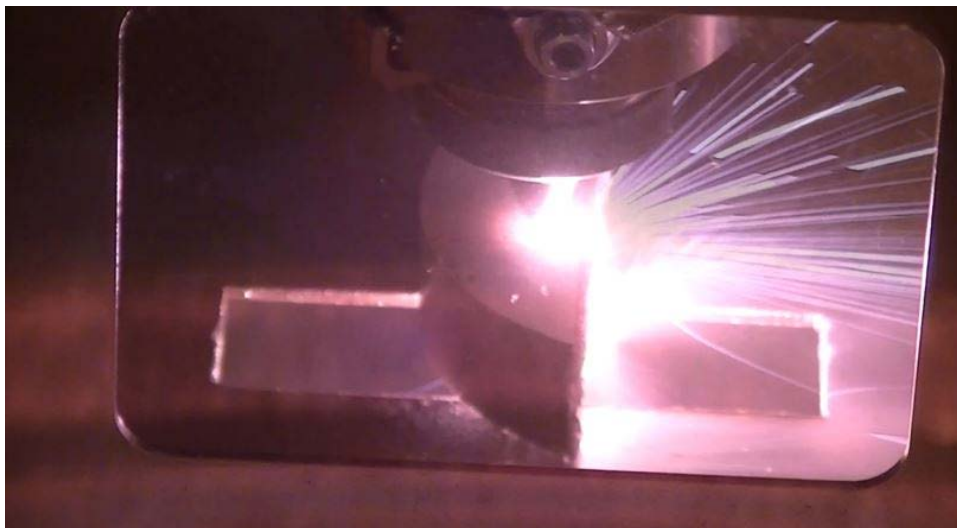


図 3.2-12 レーザー切断によるジオポリマー試料切断の様子

回収したジオポリマー粒子、および、関連する試験用に購入した粒子サンプルを様々な方法で分析した。粒度分布の測定には島津製作所製 SALD-2300 粒度分析計を用い、粒子の形態、および、成分の評価には日立ハイテクノロジーズ社製 S-3400N を用いた走査型電子顕微鏡（SEM）観察とブルカー社製 X-Flash Detector 5010 を用いたエネルギー分散型X線分光法（EDX）を行った。なお、SEM/EDX 観察には、粒子を超純水中に懸濁させた懸濁液の上澄み液を風乾して作成した。機械切断によるジオポリマー粒子、および、市販の微粒子のゼータ電位の測定には、Malvern 社製の Zetasizer Nano ZX を使用した。ジオポリマー粒子については、試料を 1 g/L に、市販微粒子については、0.2 g/L になるようイオン交換水に分散させた後、ゼータ電位の測定に供した。

### (3) 結果と考察

#### ① 機械的切断によるジオポリマー粒子

##### 1) SEM/EDX 観察

機械的切断からのジオポリマー粒子の形態と成分を SEM / EDX 分析を用いて評価した。比較のために、普通ポルトランドセメントからなるモルタル試験を同様の方法で切断した際の粒子と比較した結果を図 3.2-13 に示す。

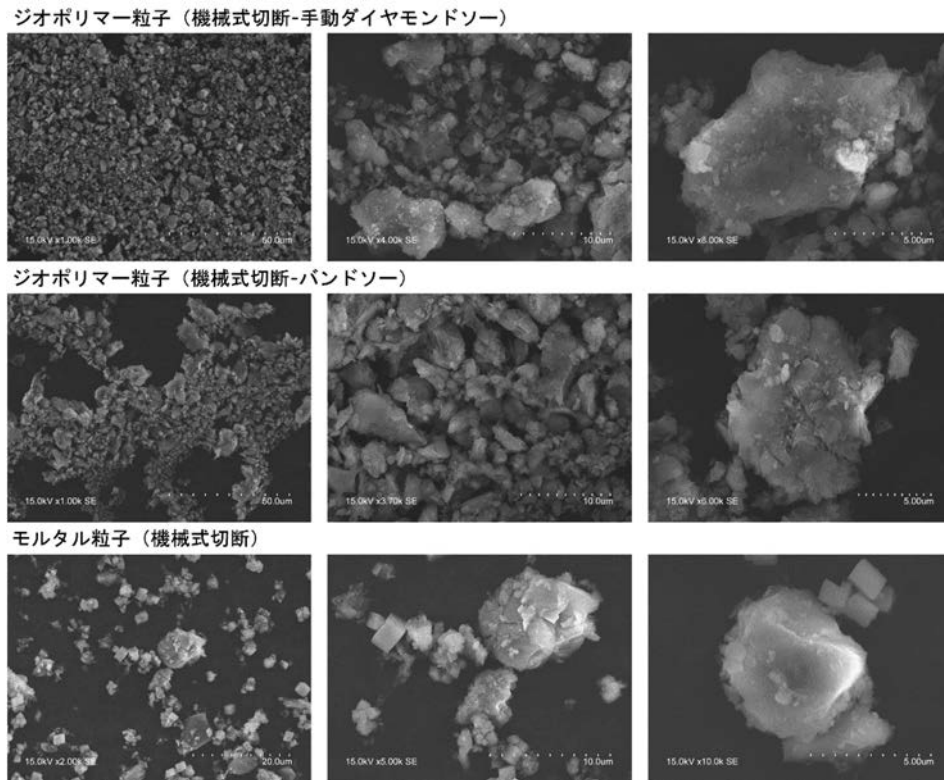


図 3.2-13 機械切断によって発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子の SEM 像の比較

SEM 画像から、機械切断で発生するジオポリマー粒子として、サイズが  $1\mu\text{m}$  未満から数  $10\mu\text{m}$  までの断片が確認できる。ジオポリマー粒子の形態は比較的均質であり、これは 2 種類のサイズ、形状の異なる粒子（大きな破砕片と小さな立方体状粒子）からなるモルタル粒子とは異なる。

さらに、手動切断で発生したジオポリマー粒子との比較から、機械的切断では、より大きな粒子が発生し、またその発生量も比較的少ない傾向があることが分かった。その一方で、機械切削で発生するジオポリマー粒子で、端面がより鋭い破片が観察された。このような切断によって発生する粒子の粒径および形状における違いは切断時の速度やトルクによるものと考えられる。



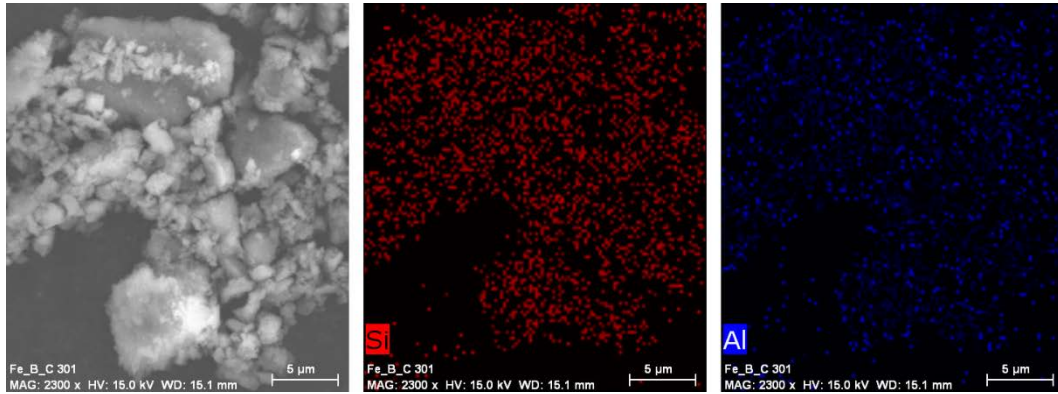


図 3.2-14 機械切断によって発生したジオポリマー粒子の EDX マッピング結果

図 3.2-14 に、機械切断で発生したジオポリマー粒子の代表的な EDX マッピング画像を示す。ジオポリマー粒子は Si と Al 元素を均等に含んでいることが分かる。このことから、機械切断で発生するジオポリマー粒子は形状と成分の両方において比較的均質であると言える。このようなジオポリマー粒子の特性は、モルタル粒子とは異なる。モルタル粒子についての追加の EDX 分析の結果では、図 3.2-13 に示される大きな断片が Si に富み、小さな立方体状粒子が Ca を多く含んでおり、不均質な粒子からなっていた。

SEM/EDX 観察のための粒子サンプルは、超純水中の粒子懸濁液の上澄み液から作成した。24 時間の沈降後に、懸濁液の上澄みから同様に追加の SEM/EDX サンプルを作製し、観察に供したが、粒子を観察することはできなかった。これは機械切断で発生したジオポリマー粒子の大部分が 24 時間で沈降し得ること意味する。ジオポリマー粒子のこの沈降挙動はまた、多くの Ca を含有する立方体状粒子が 24 時間沈降後に依然として観察されたモルタル粒子の場合とは異なる。

## 2) 粒度分布

機械的切断から生じたジオポリマー粒子の粒度分布をレーザー回折粒度分布計 SALD-2300 を用いて測定した。粒子を超純水中に分散させ、次いでサイズ分布を測定しそしてモルタル粒子と比較した。



図 3.2-15 機械切断で発生したジオポリマー粒子とその粒子の懸濁液の様子

図 3.2-15 に、機械切断で発生したジオポリマー粒子、および、粒子の懸濁液（2 g/L）の様子を示す。

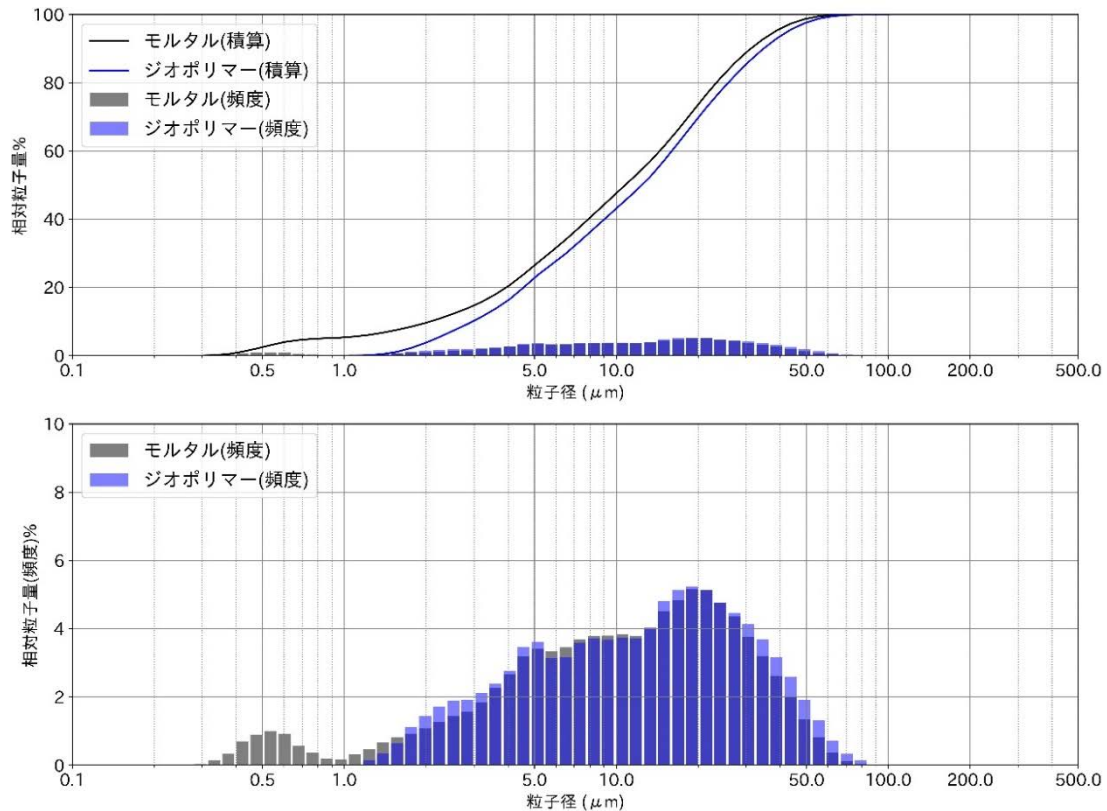


図 3.2-16 人力切断で発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子のサイズ分布の比較

図 3.2-16 に、手動切断で発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子のサイズ分布（上図：累積分布、下図：相対粒子量分布）を比較した結果を示す。縦軸は粒子の体積分率を表す。サイズ分布の比較から、1  $\mu\text{m}$  以上のサイズ域では、ジオポリマー粒子とモルタル粒子のサイズ分布は類似しているものの、より小さいサイズ域では異なることが分かる。モルタル粒子に見られたおよそ 0.5  $\mu\text{m}$  サイズを有する比較的小さな粒子は、そのほとんどが図 3.2-13 の立方体状の粒子であると言える。一方で、ジオポリマー粒子は 1～100  $\mu\text{m}$  で単峰性の分布を示し、形状、組成に加えて、サイズ分布の点でも比較的均質であると言える。

図 3.2-17 に、機械切断と手動切断で発生したジオポリマー粒子のサイズ分布の比較を示す。機械切削により大きな粒子が生成されたことが明確に観察でき、上述した SEM 観察の結果と対応する。



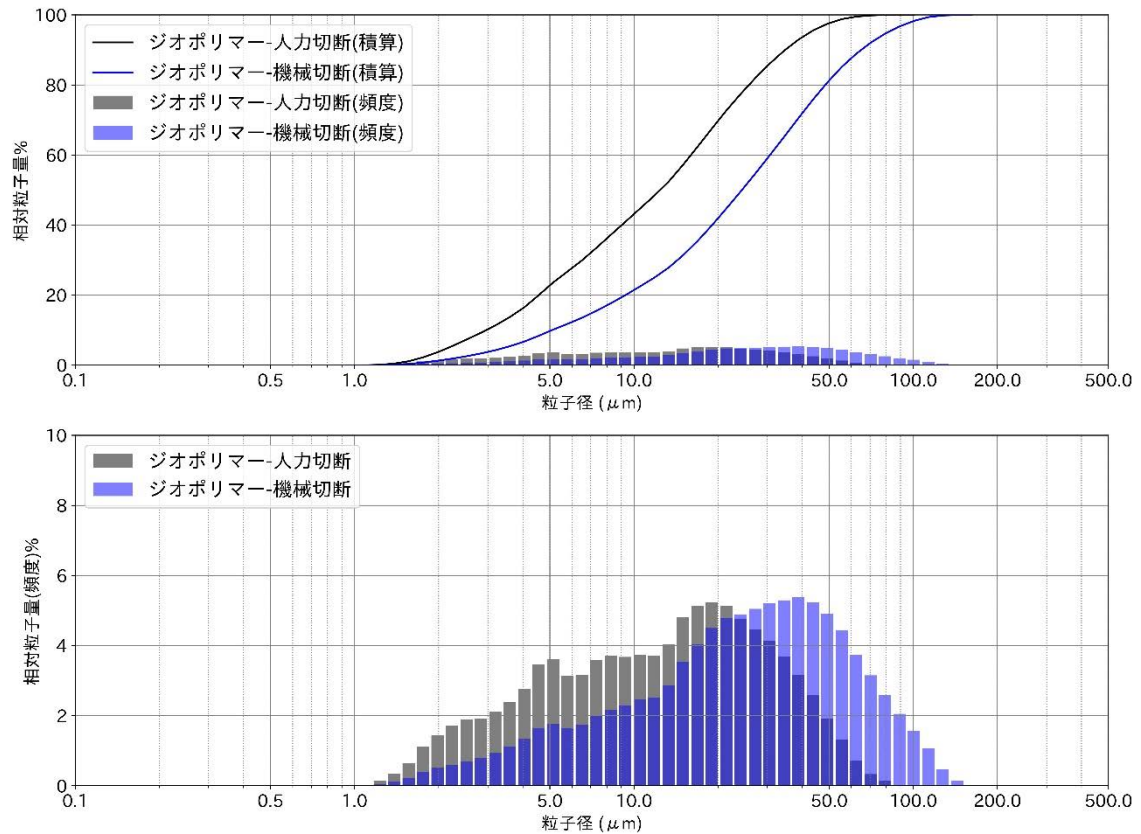


図 3.2-17 機械切断および手動切断で発生したジオポリマー粒子の粒径分布の比較

### 3) 水相における懸濁安定性の評価

1F の PCV の底部、特に 3 号機には大量の水が存在する。したがって、水中での切断のみならず、気中での切断においても、水相におけるデブリ由来粒子の懸濁安定性を評価することが重要である。

SEM/DEX 観察結果は、全てのジオポリマー粒子が 24 時間以内に水相中に沈降することを示した。さらに詳細な粒子懸濁液の粒度分布の時間変化を測定し、水相中の粒子の沈降過程を評価した。図 3.2-18 は、水相中に 120 分間沈降させた後のジオポリマー粒子懸濁液の粒度分布を示す。図 3.2-17 との比較から、5  $\mu\text{m}$  より大きいサイズの粒子の大部分が 2 時間以内に沈降していることが分かる。機械的切断から発生した粒子と比較すると、おそらく、比較的小さい粒子凝集体の分離のために、手動切断で発生した粒子の沈降実験中に 1  $\mu\text{m}$  未満の少量の粒子が現れた。機械切断の場合の粒子についても同様のサイズ分布の変化が観察されたが、手動の切断の場合と比較して、小さい粒子量の出現は 150 分後に生じており、比較的遅く、また、その量は少ないなかった。

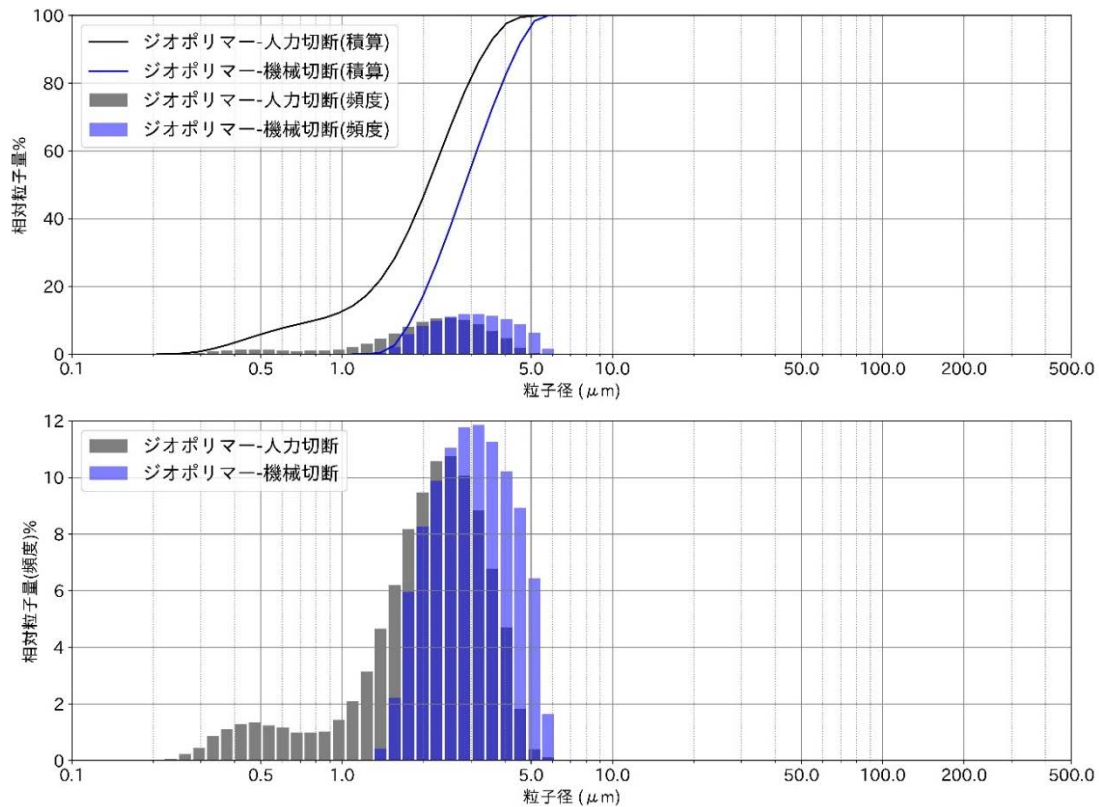


図 3.2-18 水中で 120 分間沈降させた後のジオポリマー粒子懸濁液のサイズ分布  
(機械的切断)

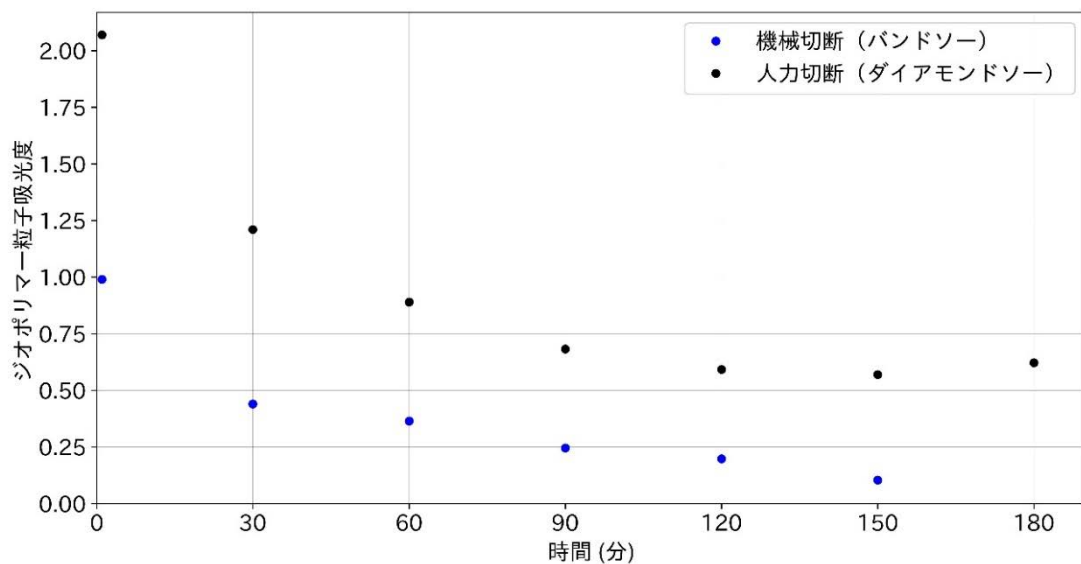


図 3.2-19 ジオポリマー粒子懸濁液の吸光度の時間変化

図 3.2-19 に、水相中のジオポリマー粒子懸濁液の吸光度の時間変化を示す。懸濁液の吸光度、つまり、濁度は粒子濃度に対応することから、その時間変化は沈降の程度を表す。機械切断、人力切断、それぞれの場合において、吸光度は最初の 120 分で急速に減少した。図 3.2-18 より、その際、大部分の大きな粒子 ( $> 5 \mu\text{m}$ ) の沈降が起こったと言える。比較的小さいサイズ範囲の

粒子が多いため、機械切断によるジオポリマー粒子の吸光度は、人力切断によるジオポリマー粒子のそれよりも大きかった。

#### 4) ゼータ電位

バンドソーによる機械切断で発生したジオポリマー微粒子のゼータ電位は $-37.8 \pm 1.7$  mV であった。ゼータ電位の絶対値が数十 mV を下回ると、粒子間の静電的な反発と比べて、van der Waals 力に起因する親和力が卓越し、粒子の分散系が不安定となり、凝集に至る。ジオポリマー粒子の電位の絶対値は比較的大きく、少なくとも重力の影響が相対的に小さな $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子については、静電的相互作用の点から、比較的分散しやすい条件にあると言える。

#### ① レーザー切断によるジオポリマー粒子の生成（SEM / EDX 観察）

レーザー切断から発生した収集ジオポリマー粒子の量は、SALD-2300 を用いたサイズ分布測定には不十分であった。したがって、これらのサンプルに関しては、SEM/EDX 観察のみを行った。図 3.2-20 に、レーザー切断で発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子の SEM 画像を示す。また、図 3.2-21 に、レーザー切断から生成されたジオポリマー粒子の代表的な EDX マッピングの結果を示す。

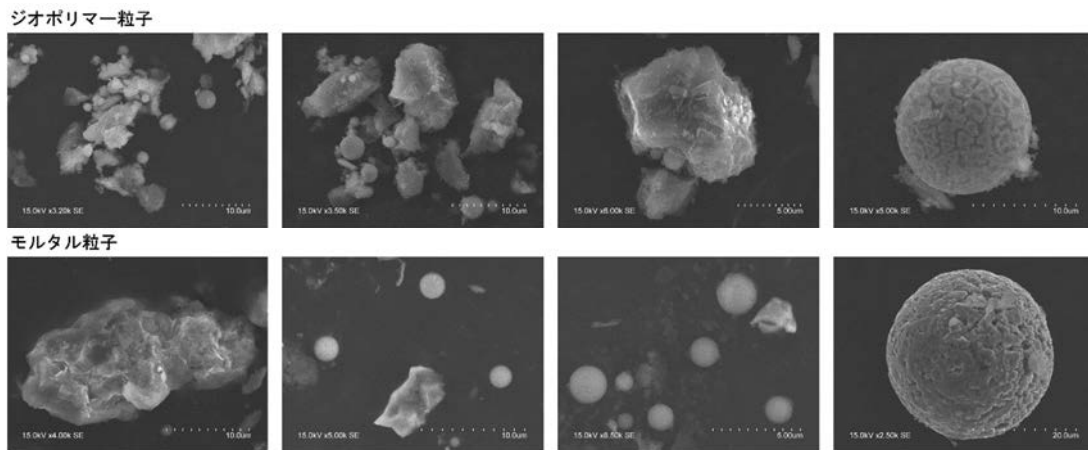


図 3.2-20 レーザー切断で発生したジオポリマー粒子とモルタル粒子の SEM 画像

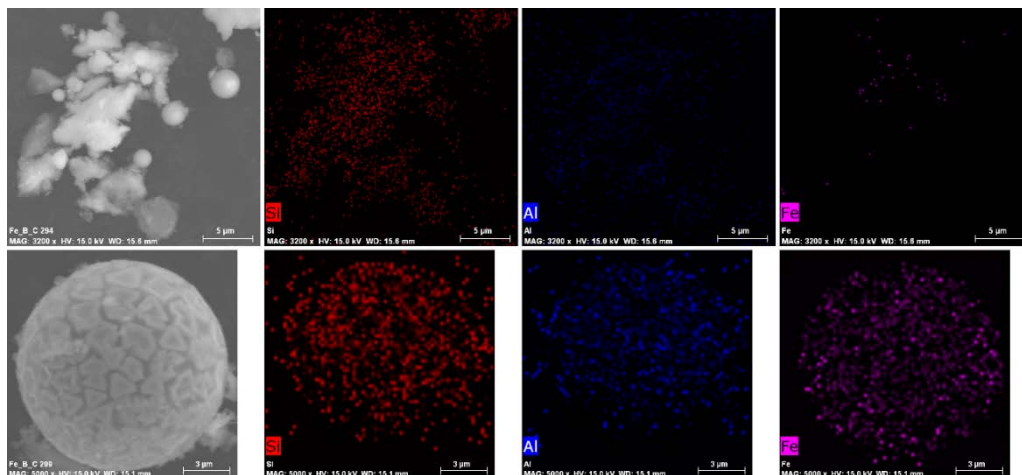


図 3.2-21 レーザー切断で発生したジオポリマー粒子の EDX マッピング画像

両図から、ジオポリマーはレーザー切断によって、不規則な破片と熱影響による球状粒子が発生したことが分かった。これらの粒子はすべて Si と Al の両方の元素を含んでいた。またモルタルのレーザー切断は、類似の形態およびサイズを有する粒子を生成していた。いくつかの球形粒子は滑らかな表面を有し、いくつかの球形粒子は粗い表面を有する。粗い表面を有する球状粒子は、比較的大きいサイズを有し、切断プロセス中に混入する不純物として、Si および Al だけでなく Fe 元素も含有する。このことは、レーザー切断プロセスでは、金属材料の存在が粒子生成に影響を及ぼし得ることを示している。

## ② 購入した粉末サンプルの分布

飛散試験に供するため購入した粉末サンプルについて同一の手法により分布測定を行った。

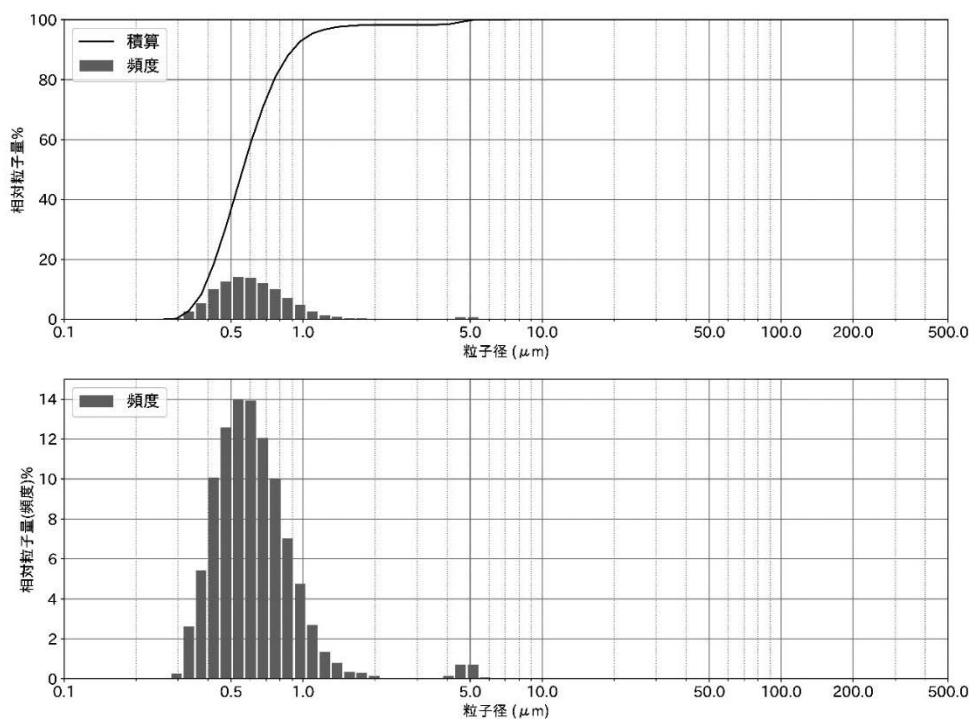


図 3.2-22 ギブサイト粒子（アルミナ三水和物）の粒度分布

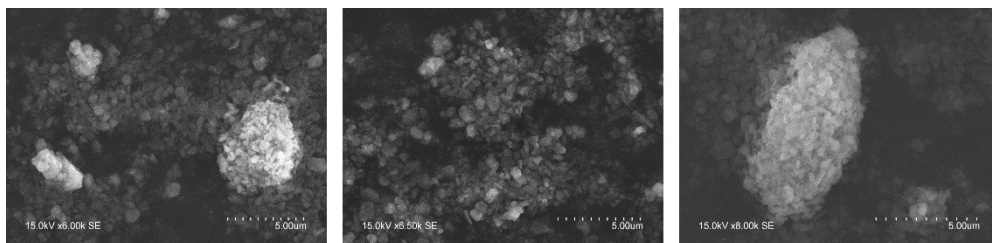


図 3.2-23 ギブサイト粒子の SEM 像

図 3.2-22, 23 に、ギブサイト ( $\alpha\text{-Al}(\text{OH})_3$ ) 粒子の粒度分布と SEM 像を示す。ギブサイト粒子の粒度分布は約  $0.5 \mu\text{m}$  に単峰性のピークを有しており、SEM 像からは  $1 \mu\text{m}$  以下の非常に小さな粒子の凝集体が確認できた。



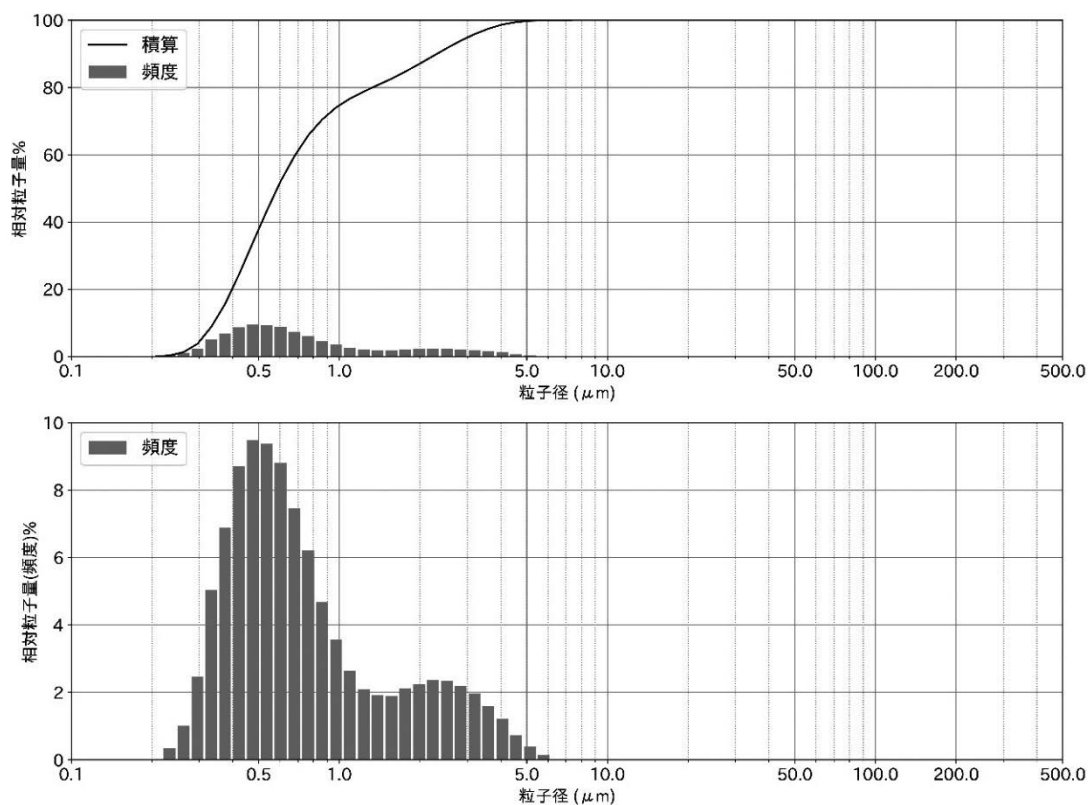


図 3.2-24 高純度ジルコニア粒子の粒度分布

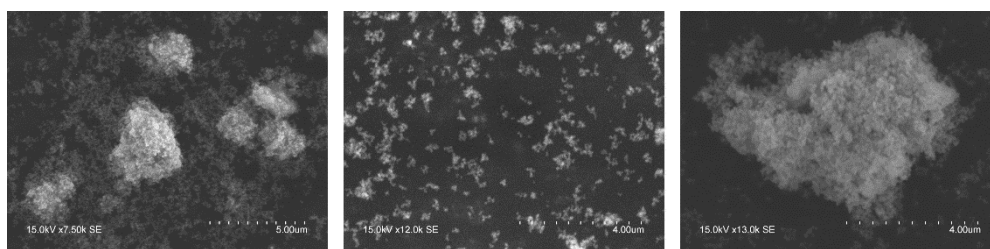


図 3.2-25 高純度ジルコニア粒子の SEM 像

図 3.2-24 は、高純度ジルコニア粒子 ( $\text{ZrO}_2$ 、KZ-0Y-LSF, KCM Co.) の粒度分布を示す。

本研究では、これらの粒子をエアロゾル除去試験に使用する。粒度分布測定の結果から、水相中のジルコニア粒子の粒度分布はそれぞれ約  $0.5 \mu\text{m}$  と  $2\sim3 \mu\text{m}$  に 2 つのピークを持つことが分かった。

図 3.2-25 は高純度ジルコニア粒子の SEM 像である。観察結果から、ジルコニア粒子もギブサイト粒子同様、 $1 \mu\text{m}$  以下の非常に小さな粒子の凝集体からなっていることから、粒度分布で見られた  $2\sim3 \mu\text{m}$  のピークは凝集体に対応すると考えられる。

ジルコニアとギブサイトのゼータ電位は、それぞれ、 $0.0 \pm 0.1$ 、 $29.2 \pm 0.5 \text{ mV}$  であった。ジルコニア粒子表面は電氣的に中性であり、反発が無く、凝集し易い条件にあるといえる。一方、ギブサイトの電位は絶対値としてはそれほど大きくないものの、ジオポリマー粒子同様、ある程度は分散する条件にあると判断される。

#### (4) まとめ

機械切断およびレーザー切断で発生したジオポリマー粒子のサイズ分布、形状、元素組成を粒度分布測定、および、SEM / EDX 観察で評価した。その結果、機械切断で発生したジオポリマー粒子は、水相中で 1~150  $\mu\text{m}$  のサイズ範囲を有していた。SEM/EDX によって、サイズが 1  $\mu\text{m}$  未満から数十  $\mu\text{m}$  までの不規則な断片が観察された。これらの粒子は、Si と Al の両方を含み、組成の点で均一であった。

機械切断と手動切断から発生した粒子を比較すると、前者では後者よりも大きな粒子を生成し、より鋭い破片が観察された。その結果、水相では、機械切断からの粒子の吸光度は手動のそれよりはるかに低く検出された。また、サイズが 5  $\mu\text{m}$  を超えるジオポリマー粒子のほとんどは 2 時間以内に沈降し、24 時間後には、粒度分布計と SEM の両方を使用しても、上澄み液から粒子を検出することはできなかった。

レーザー切断で発生する粒子は大きさが数  $\mu\text{m}$  の不規則な破片と球状粒子からなり、全ての粒子は Si と Al の両方を含んでいた。

#### 3.2.4 被覆材流動解析（再委託先：産業技術総合研究所）

燃料デブリ安定化被覆材の流動特性を表現する数理モデルの候補を調査・選定した。

また、新たに開発した幅広い粘性を統一的に扱える粒子法を用いて、被覆材の流動試験の試験体系を模擬した計算を行い、安定化被覆材を模擬する数理モデルを開発するための準備を行った。被覆材ジオポリマーについて調査を行い、流動に関する数理モデルとしては、ビンガム流体あるいはニュートン流体として表現されるモデルが適切であることを確認した。また、粒子法を用いて被覆材流動挙動を計算し、降伏応力によりある程度流れた時点で流動が停止する挙動を計算できることを確認した。

##### (1) モデルの調査・選定

燃料デブリ安定化被覆材の流動特性を表現する数理モデルの候補を調査・選定した。

燃料デブリ安定化被覆材の候補の 1 つであるジオポリマーに関する書籍[1-3]を購入し、ジオポリマーに関する調査を行った。特に、被覆材の施工時の流動を把握する上で重要となるレオロジー特性に関する調査を重点的に行った。書籍[1]によると、石炭灰をもとにしたジオポリマーのレオロジー特性（せん断速度と粘性の関係）に関して、Palomo ら（2005）[4]の研究が詳しいとされていたため、Palomo ら（2005）[4]の文献を取得して調査した。ジオポリマーペーストは、大方、粘塑性流体（visco-plastic fluid）モデルによってあらわされるとされていることが確認された。その他の文献[5-10]についても、取得・調査を行った。特に、メタカオリンをベースとしたジオポリマーペーストのレオロジー特性を通常のポルトランドセメントと比較した文献[5]、アルカリシリカ溶液および石炭灰の種類によりレオロジー特性がどのように変化するかを記載した文献[6]、について調査した。

それぞれの文献[4-6]より取得した、レオロジー特性（せん断速度と応力の関係）を図 3.2-26 から図 3.2-28 に示す。

これらの調査の結果より、ジオポリマーペーストとは、大方、降伏応力が約 5~20Pa、塑性粘度が約 0.5~2.0Pa・s のビンガム流体としてあらわされることが確認された。



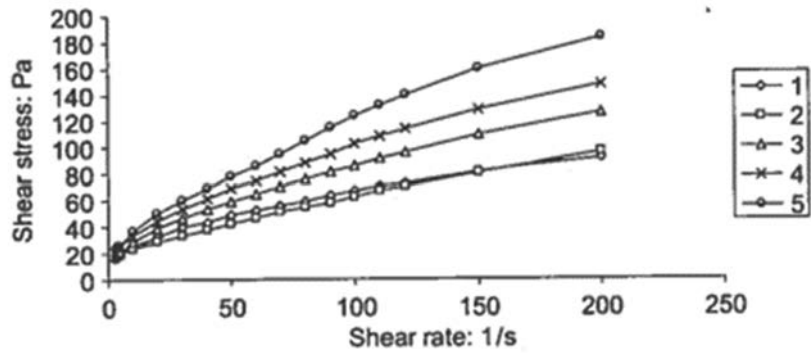


図 3.2-26 ジオポリマーペーストのレオロジー特性 1 (Palmo ら (2005) [4] より)

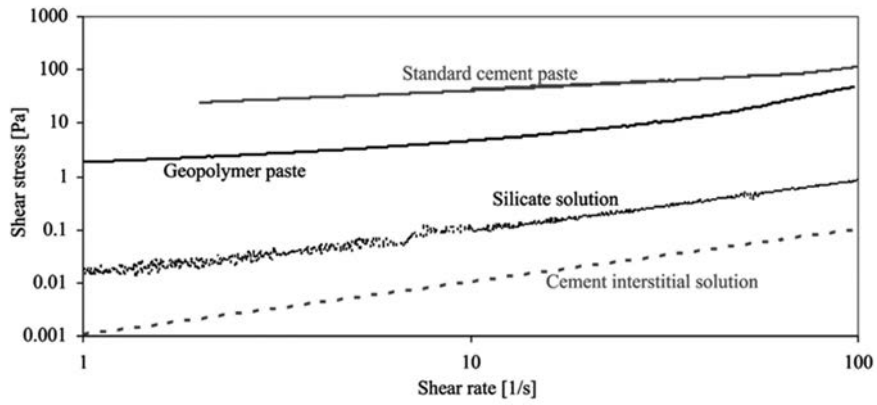


図 3.2-27 ジオポリマーペーストのレオロジー特性 2 (Favier ら (2014) [5] より)

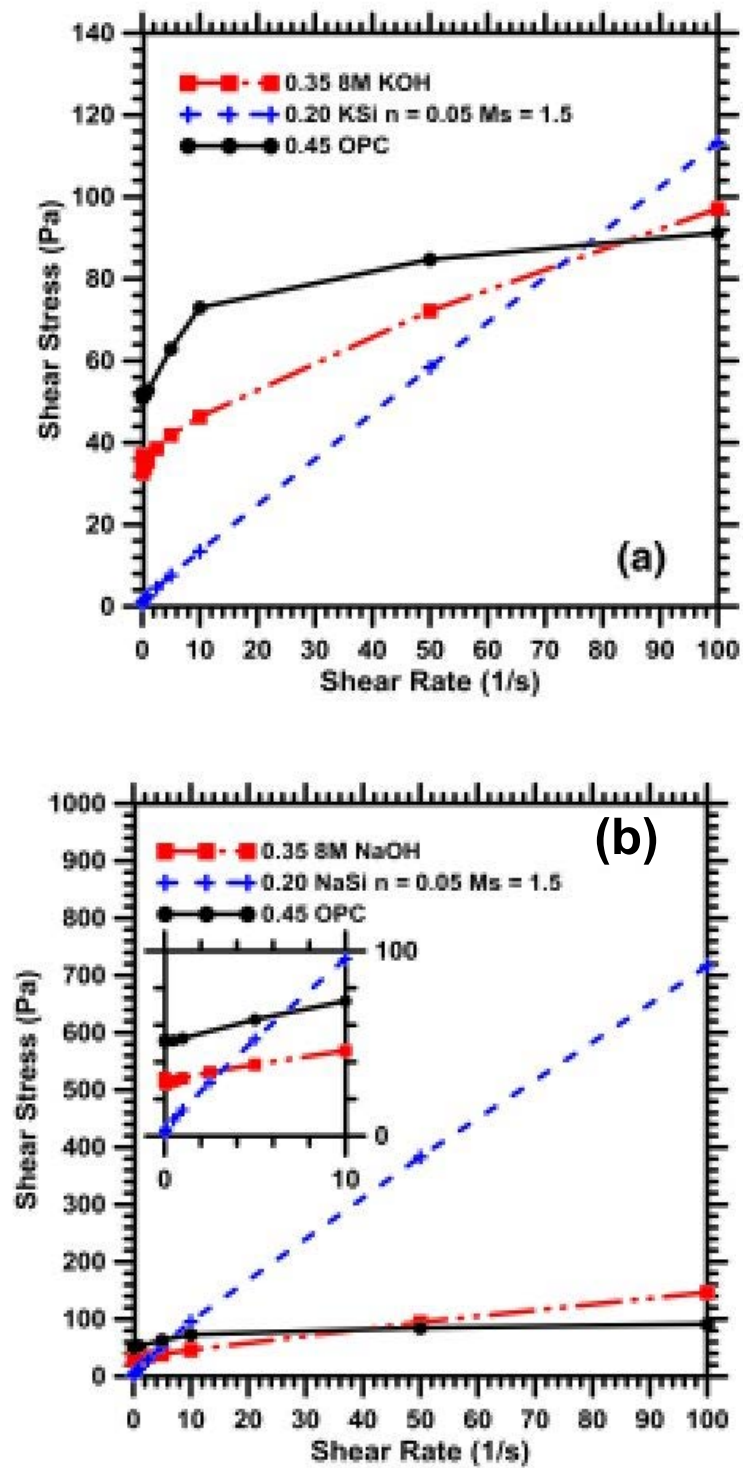


図 3.2-28 ジオポリマーペーストのレオロジー特性 3 (Vance ら (2014) [6] より)

(a) K ベースのアルカリシリカ溶液を使った場合

(b) Na ベースのアルカリシリカ溶液を使った場合

## (2) モデルの開発

新たに開発した幅広い粘性を統一的に扱える粒子法[11-12]を用いて、被覆材の流動試験の試験体系を模擬した計算を行い、安定化被覆材を模擬する数理モデルを開発する準備を行った。

具体的には、新たに開発した粒子法[11-12]ビンガム流体の流動挙動として特徴的な“ある程度流動したのちに完全に平滑になる前に流動が停止する”様子がシミュレーションできることを確認した。図 3.2-29 に示す 2 次元の計算体系においてビンガム流体の塊が崩壊し停止する様子を計算した。表 3.2-8 に計算条件を示す。ここでは特に流動後に停止する様子を計算するため、ジオポリマーペーストよりも降伏応力を大きく、塑性粘度を小さく設定して計算した。図 3.2-30 に計算の様子を示す。ビンガム流体塊が崩壊して、流動が生じたのちに、平滑な形状に至る前に停止している様子が確認された。

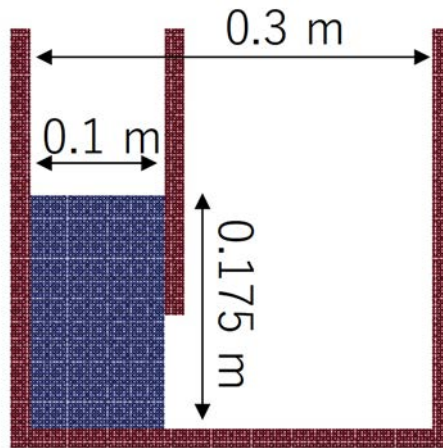


図 3.2-29 ビンガム流体シミュレーションの計算体系

表 3.2-8 ビンガム流体シミュレーションの計算条件

|          |                     |
|----------|---------------------|
| 粒子径      | 0.0025 m            |
| 影響半径     | 0.0065 m            |
| 降伏応力     | 120 Pa              |
| 固体時の疑似粘性 | $10^6$ Pa s         |
| 塑性粘度     | 0.33 Pa s           |
| 重力       | $9.8 \text{ m/s}^2$ |

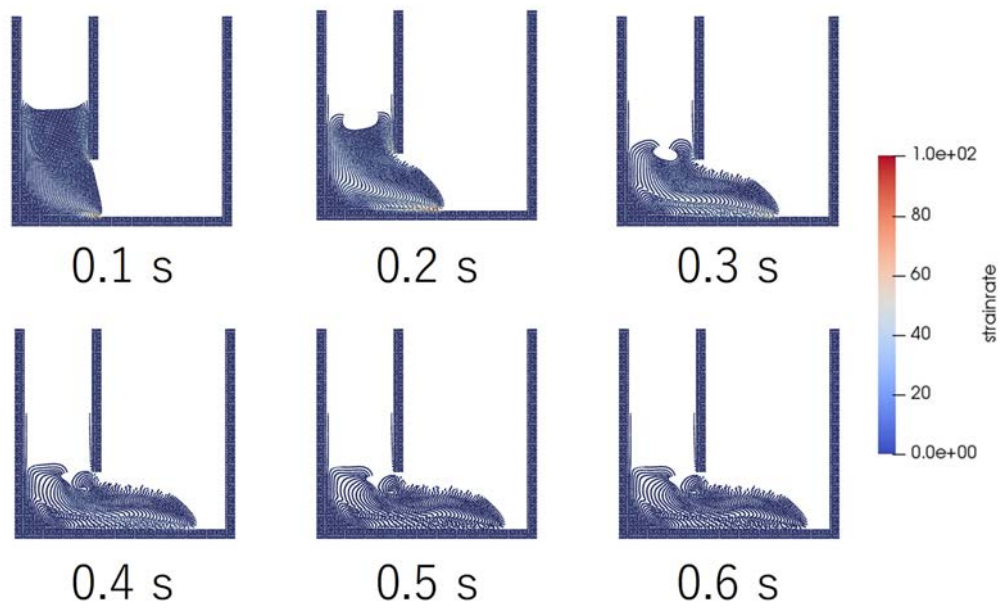


図 3.2-30 ビンガム流体シミュレーションの計算結果

また、文献調査により得られたジオポリマーの降伏応力（約 5-20 Pa）および塑性粘度（約 0.5-2.0 Pa・s）に近い値を用いた崩壊計算も行った。図 3.2-31 および表 3.2-9 に計算体系および計算条件をそれぞれ示す。また、図 3.2-32(a)、(b) に計算結果を示す。図 3.2-30 の結果と比較して、降伏応力が小さい条件を用いると崩壊後に停止するまでの距離が延び、広くジオポリマーを模擬した流体が広がることが確認された。

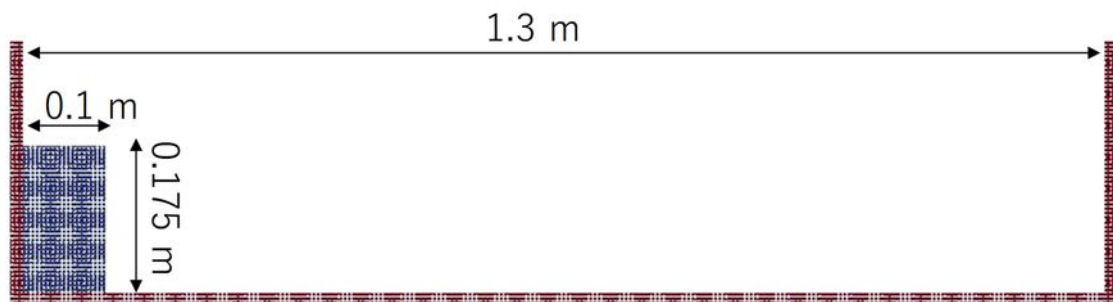


図 3.2-31 ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算体系

表 3.2-9 ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算条件

|          |                     |
|----------|---------------------|
| 粒子径      | 0.0025 m            |
| 影響半径     | 0.0065 m            |
| 降伏応力     | 10, 20 Pa           |
| 固体時の疑似粘性 | $10^6$ Pa・s         |
| 塑性粘度     | 0.33 Pa・s           |
| 重力       | $9.8 \text{ m/s}^2$ |

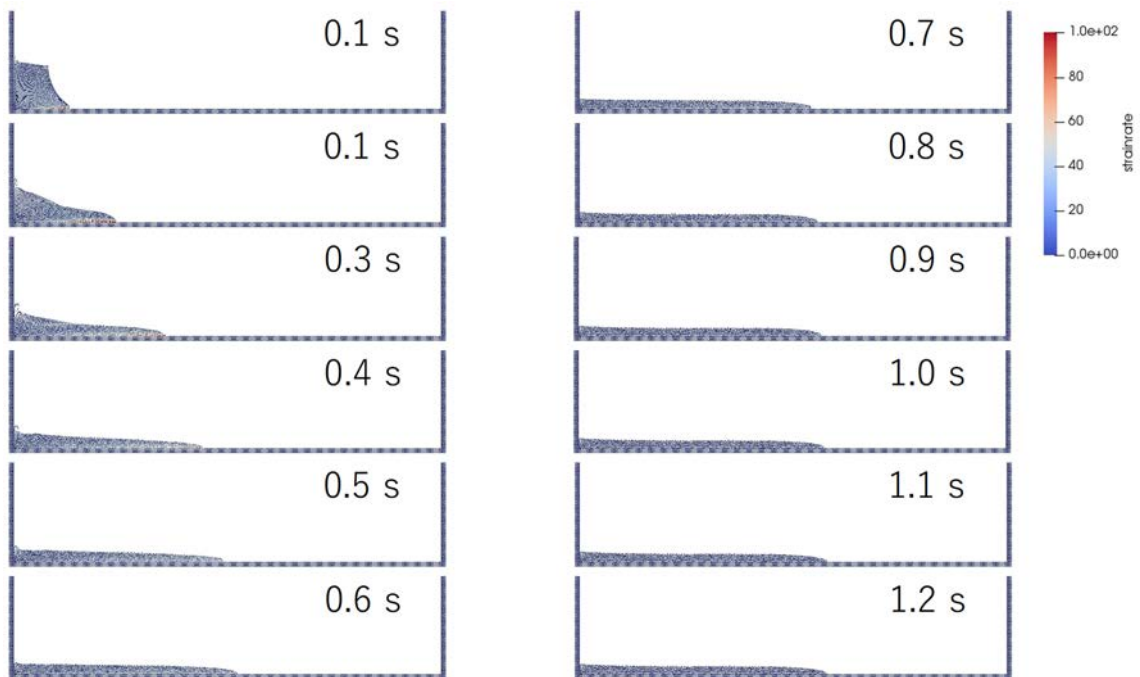


図 3.2-32 (a) ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算結果  
(降伏応力が 10Pa の場合)

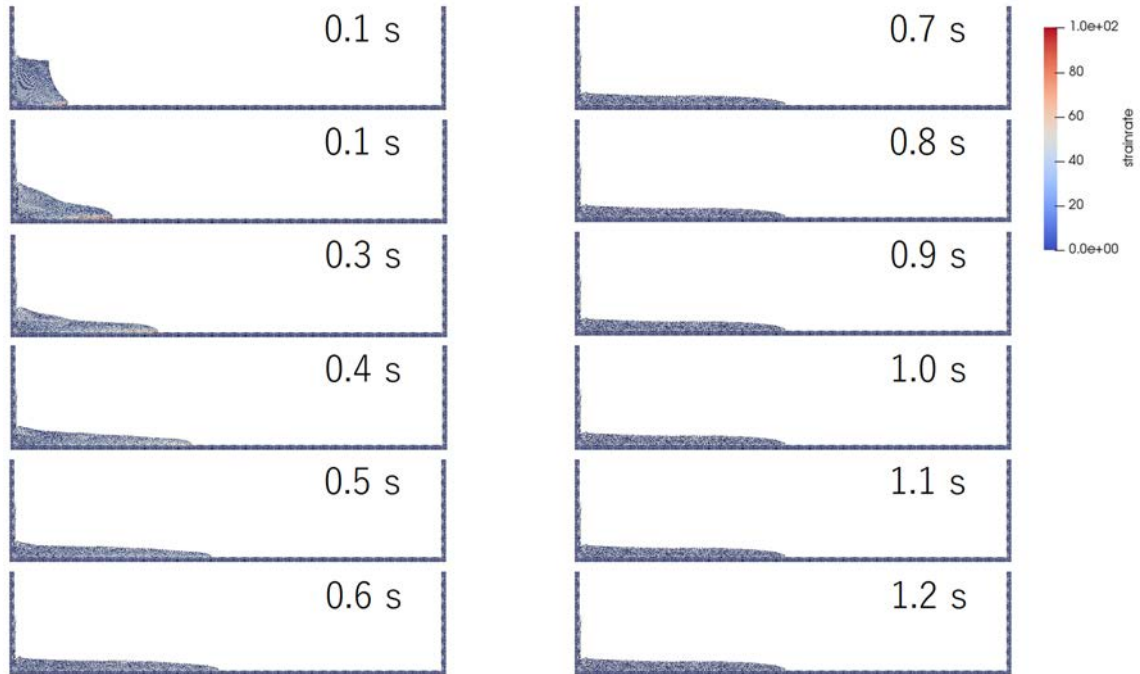


図 3.2-32 (b) ジオポリマーのレオロジー特性を模擬した場合の計算結果  
(降伏応力が 20Pa の場合)

以上の予備計算により、燃料デブリ安定化被覆材の候補の 1 つであるジオポリマーの施工に関する流動解析を行うための準備を行った。

## 参考文献

- [1] Geopolymers -Structure processing properties and industrial applications-, John L. Provis and Jannie S.J. van Deventer, Woodhead Publishing Limited and CRC Press LLC (2009)
- [2] 無機高分子の開発最前線, 梶原鳴雪 監修, シーエムシー出版 (2009)
- [3] Geopolymer -Chemistry & Applications- 4<sup>th</sup> edition, Joseph Davidovits, Institut Geopolymere (2015)
- [4] A. Palomo, P.F.G. Banfil, A. Fernandez-Jimenez and D.S. Swift, Properties of alkali-activated fly ashes determined from rheological measurements, *Advances in Cement Research*, 2005, 17, No. 4, October, 143-151
- [5] Aurelie Favier, Julie Hot, Guillaume Habert, Nicholas Roussel, and Jean-Baptiste d'Espinoze de Lacaille, Flow properties of MK-based geopolymer pastes. A comparative study with standard Portland cement pastes, *Soft matter*, 2014, 10, 1134-1141.
- [6] Kirk Vance, Akashi Dakhane, Gaurav Sant, Narayanan Neithalath, Observations on the rheological response of alkali activated fly ash suspensions: the role of activator type and concentration, *Rheol Acta* (2014) 53:843-855.
- [7] Hamaza Gullu, Abdulkadir Cevik, Kifayah M.A. Al-Ezze, M. Eren Gulsan, On the rheology of using geopolymer for grouting: A comparative study with cement-based grout included fly ash and cold bonded fly ash, *Construction and Building Material* 196 (2019) 594-610.
- [8] Biranchi Panda, Cise Unluer, Ming Jen Tan, Investigation of the rheology and strength of geopolymer mixtures for extrusion-based 3D printing, *Cement and Concrete Composition* 94 (2018) 307-314.
- [9] Marcello Romagnoli, Cristina Leonelli, Elie Kamse, Magdalena Lassinantti Gualtieri, Rheology of geopolymer by DOE approach, *Construction and Building Materials* 36 (2012) 251-258.
- [10] A. Poulesquen, F. Frizon, D. Lambertin, Rheological behavior of alkali-activated metakaolin during geopolymerization, *Journal of Non-Crystalline Solids* 357 (2011) 3565-3571.



### 3.3 取りまとめ（課題抽出）

上記研究成果をとりまとめて次年度に向けた課題を抽出した。

#### (1) 模擬デブリ材料の選定

取出し時に放射性核種を飛散させる燃料デブリの模擬材作成にあたり、何を模擬するかによって成分は異なるため、飛散防止の観点から重要な物性因子を検討する必要がある。

#### (2) 微粉末飛散

微粉末飛散に関する簡易試験を実施したが、今後は、さまざまなミスト濃度を試すことにより、スプレー効率を向上させるための最も適切な条件を見つける必要がある。

#### (3) 熱解析

熱解析対象として、本年度は PCV 下部に焦点を置いて評価を行ったが、今後は RPV 内および ICM ハウジング等 RPV 下部領域における伝熱解析、並びに水スプレーによる除熱効果について解析評価を行う必要がある。

また燃料デブリ性状により熱伝導率が異なるため、目的に応じて物性値を変更する必要がある。

#### (4) ジオポリマー

燃料デブリをより除熱しやすくするためには、ジオポリマーの熱伝導率をあげる必要がある。また PCV に注入される安定化材は、将来の廃棄物となるため、水素発生を極力抑制する組成、形状とする必要があり、反応メカニズムも含めて検討する必要がある。

### 3.4 研究推進

本研究を推進するにあたり、研究代表者の下で、連携先である JAEA と打ち合わせを行う等各研究項目間の連携を密にして、研究を進めた。具体的には研究実施計画を推進するための全体会議を4回（平成29年12月18日 場所：東大本郷キャンパス、平成30年1月30日 場所：東大本郷キャンパス、平成30年2月25日 場所：東大東海キャンパス、平成30年3月20日 場所：東大東海キャンパス）実施するとともに、随時、関係者と研究内容について打合せを行った。

#### 【CLADS報告会への参加と論文別刷り等の提出】

CLADS にて開催される研究進捗等の報告会等（日仏廃炉ジョイントセミナー（平成29年10月10日 東大本郷キャンパス）、課題解決型廃炉研究プログラム情報連絡会（CLADS 報告会）（平成29年11月9日 場所：会議するなら-新橋会議室））に参加して、事業の計画もしくは進捗状況の報告を行った。

以上、3カ年計画の1年目である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

#### 4. 結言

本研究は、燃料デブリ取出し時における微粒子挙動の観察および微粒子閉じ込めシステム技術の開発を行い、総合的な閉じ込め性能を評価することを目的としている。今年度は、上記目的を達成するため、以下の項目を実施した。

- (1) 試験に必要な燃料デブリ模擬微粒子の作製と購入
- (2) 飛散微粒子の挙動を把握できる装置の設計・開発と簡易性能評価
- (3) PCV 底部における異なる冷却条件・被覆材有無の条件下における熱解析
- (4) 安定化被覆材の作製と基礎特性評価（一部 $\gamma$ 線照射試験を含む）
- (5) 安定化被覆材流動シミュレーション手法の予備解析

来年度以降は、今年度購入した装置や試験データを加味して、①水スプレーシステムにより極力少量の水で飛散を抑制する方法、②燃料デブリを固めて取り出すことにより飛散を抑制する方法について試験およびシミュレーションを行い、最終的には微粒子の気中・液中挙動ならびに飛散防止対策に関する総合評価を行う予定である。

# 国際単位系（SI）

表 1. SI 基本単位

| 基本量   | SI 基本単位 |     |
|-------|---------|-----|
|       | 名称      | 記号  |
| 長さ    | メートル    | m   |
| 質量    | キログラム   | kg  |
| 時間    | 秒       | s   |
| 電流    | アンペア    | A   |
| 熱力学温度 | ケルビン    | K   |
| 物質량   | モル      | mol |
| 光度    | カンデラ    | cd  |

表 2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

| 組立量                     | SI 組立単位      |                    |
|-------------------------|--------------|--------------------|
|                         | 名称           | 記号                 |
| 面積                      | 平方メートル       | m <sup>2</sup>     |
| 体積                      | 立方メートル       | m <sup>3</sup>     |
| 速度                      | メートル毎秒       | m/s                |
| 加速度                     | メートル毎秒毎秒     | m/s <sup>2</sup>   |
| 波数                      | 毎メートル        | m <sup>-1</sup>    |
| 密度, 質量密度                | キログラム毎立方メートル | kg/m <sup>3</sup>  |
| 面積密度                    | キログラム毎平方メートル | kg/m <sup>2</sup>  |
| 比体積                     | 立方メートル毎キログラム | m <sup>3</sup> /kg |
| 電流密度                    | アンペア毎平方メートル  | A/m <sup>2</sup>   |
| 磁界の強さ                   | アンペア毎メートル    | A/m                |
| 量濃度 <sup>(a)</sup> , 濃度 | モル毎立方メートル    | mol/m <sup>3</sup> |
| 質量濃度                    | キログラム毎立方メートル | kg/m <sup>3</sup>  |
| 輝度                      | カンデラ毎平方メートル  | cd/m <sup>2</sup>  |
| 屈折率 <sup>(b)</sup>      | (数字の) 1      | 1                  |
| 比透磁率 <sup>(b)</sup>     | (数字の) 1      | 1                  |

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。

(b) これらは無次元量あるいは次元 1 をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の 1 は通常は表記しない。

表 3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

| 組立量                           | SI 組立単位               |                   |                      |                                                                |
|-------------------------------|-----------------------|-------------------|----------------------|----------------------------------------------------------------|
|                               | 名称                    | 記号                | 他のSI単位による表し方         | SI基本単位による表し方                                                   |
| 平面角                           | ラジアン <sup>(b)</sup>   | rad               | 1 <sup>(b)</sup>     | m/m                                                            |
| 立体角                           | ステラジアン <sup>(b)</sup> | sr <sup>(c)</sup> | 1 <sup>(b)</sup>     | m <sup>2</sup> /m <sup>2</sup>                                 |
| 周波数                           | ヘルツ <sup>(d)</sup>    | Hz                |                      | s <sup>-1</sup>                                                |
| 力                             | ニュートン                 | N                 |                      | m kg s <sup>-2</sup>                                           |
| 圧力, 応力                        | パスカル                  | Pa                | N/m <sup>2</sup>     | m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>                             |
| エネルギー, 仕事, 熱量                 | ジュール                  | J                 | N m                  | m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>                              |
| 仕事率, 工率, 放射束                  | ワット                   | W                 | J/s                  | m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>                              |
| 電荷, 電気量                       | クーロン                  | C                 |                      | s A                                                            |
| 電位差 (電圧), 起電力                 | ボルト                   | V                 | W/A                  | m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>              |
| 静電容量                          | ファラド                  | F                 | C/V                  | m <sup>-2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup> |
| 電気抵抗                          | オーム                   | Ω                 | V/A                  | m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>              |
| コンダクタンス                       | ジーメンズ                 | S                 | A/V                  | m <sup>-2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>3</sup> A <sup>2</sup> |
| 磁束                            | ウェーバ                  | Wb                | Vs                   | m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>              |
| 磁束密度                          | テスラ                   | T                 | Wb/m <sup>2</sup>    | kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>                             |
| インダクタンス                       | ヘンリー                  | H                 | Wb/A                 | m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>              |
| セルシウス温度                       | セルシウス度 <sup>(e)</sup> | °C                |                      | K                                                              |
| 光束度                           | ルーメン                  | lm                | cd sr <sup>(c)</sup> | cd                                                             |
| 照射度                           | ルクス                   | lx                | lm/m <sup>2</sup>    | m <sup>-2</sup> cd                                             |
| 放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>      | ベクレル <sup>(d)</sup>   | Bq                |                      | s <sup>-1</sup>                                                |
| 吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ           | グレイ                   | Gy                | J/kg                 | m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>                                 |
| 線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量 | シーベルト <sup>(g)</sup>  | Sv                | J/kg                 | m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>                                 |
| 酸素活性化                         | カタール                  | kat               |                      | s <sup>-1</sup> mol                                            |

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。

(b) ラジアンとステラジアンは数字の 1 に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の 1 は明示されない。

(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。

(d) ヘルツは周期現象についてののみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてののみ使用される。

(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。

(f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。

(g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表 4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

| 組立量             | SI 組立単位           |                       |                                                                                      |
|-----------------|-------------------|-----------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|
|                 | 名称                | 記号                    | SI 基本単位による表し方                                                                        |
| 粘着力のモーメント       | パスカル秒             | Pa s                  | m <sup>-1</sup> kg s <sup>-1</sup>                                                   |
| 表面張力            | ニュートンメートル         | N m                   | m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>                                                    |
| 角速度             | ニュートン毎メートル        | N/m                   | kg s <sup>-2</sup>                                                                   |
| 角加速度            | ラジアン毎秒            | rad/s                 | m m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>                                   |
| 熱流密度, 放射照度      | ラジアン毎秒毎秒          | rad/s <sup>2</sup>    | m m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>                                   |
| 熱容量, エントロピー     | ワット毎平方メートル        | W/m <sup>2</sup>      | kg s <sup>-3</sup>                                                                   |
| 比熱容量, 比エントロピー   | ジュール毎ケルビン         | J/K                   | m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>                                    |
| 比エネルギー          | ジュール毎キログラム毎ケルビン   | J/(kg K)              | m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>                                       |
| 熱伝導率            | ジュール毎キログラム        | J/kg                  | m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>                                                       |
| 体積エネルギー         | ワット毎メートル毎ケルビン     | W/(m K)               | m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>                                                 |
| 電界の強さ           | ジュール毎立方メートル       | J/m <sup>3</sup>      | m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>                                                   |
| 電荷密度            | ジュール毎平方メートル       | V/m                   | m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>                                                 |
| 表面電荷密度          | クーロン毎立方メートル       | C/m <sup>3</sup>      | m <sup>-3</sup> s A                                                                  |
| 電束密度, 電気変位      | クーロン毎平方メートル       | C/m <sup>2</sup>      | m <sup>-2</sup> s A                                                                  |
| 誘電率             | クーロン毎平方メートル       | C/m <sup>2</sup>      | m <sup>-2</sup> s A                                                                  |
| 透磁率             | ファラド毎メートル         | F/m                   | m <sup>-3</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>                       |
| モルエネルギー         | ヘンリー毎メートル         | H/m                   | m kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>                                                 |
| モルエントロピー, モル熱容量 | ジュール毎モル           | J/mol                 | m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>-1</sup>                                  |
| 照射線量 (X線及びγ線)   | ジュール毎モル毎ケルビン      | J/(mol K)             | m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>-1</sup>                  |
| 吸収線量率           | クーロン毎キログラム        | C/kg                  | kg <sup>-1</sup> s A                                                                 |
| 放射線強度           | グレイ毎秒             | Gy/s                  | m <sup>2</sup> s <sup>-3</sup>                                                       |
| 放射輝度            | ワット毎ステラジアン        | W/sr                  | m <sup>4</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> |
| 酵素活性濃度          | ワット毎平方メートル毎ステラジアン | W/(m <sup>2</sup> sr) | m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> =kg s <sup>-3</sup>                |
|                 | カタール毎立方メートル       | kat/m <sup>3</sup>    | m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> mol                                                  |

表 5. SI 接頭語

| 乗数               | 名称  | 記号 | 乗数                | 名称   | 記号 |
|------------------|-----|----|-------------------|------|----|
| 10 <sup>24</sup> | ヨタ  | Y  | 10 <sup>-1</sup>  | デシ   | d  |
| 10 <sup>21</sup> | ゼタ  | Z  | 10 <sup>-2</sup>  | センチ  | c  |
| 10 <sup>18</sup> | エクサ | E  | 10 <sup>-3</sup>  | ミリ   | m  |
| 10 <sup>15</sup> | ペタ  | P  | 10 <sup>-6</sup>  | マイクロ | μ  |
| 10 <sup>12</sup> | テラ  | T  | 10 <sup>-9</sup>  | ナノ   | n  |
| 10 <sup>9</sup>  | ギガ  | G  | 10 <sup>-12</sup> | ピコ   | p  |
| 10 <sup>6</sup>  | メガ  | M  | 10 <sup>-15</sup> | フェムト | f  |
| 10 <sup>3</sup>  | キロ  | k  | 10 <sup>-18</sup> | アト   | a  |
| 10 <sup>2</sup>  | ヘクト | h  | 10 <sup>-21</sup> | ゼプト  | z  |
| 10 <sup>1</sup>  | デカ  | da | 10 <sup>-24</sup> | ヨクト  | y  |

表 6. SIに属さないが、SIと併用される単位

| 名称    | 記号   | SI 単位による値                                                                                   |
|-------|------|---------------------------------------------------------------------------------------------|
| 分     | min  | 1 min=60 s                                                                                  |
| 時     | h    | 1 h=60 min=3600 s                                                                           |
| 日     | d    | 1 d=24 h=86 400 s                                                                           |
| 度     | °    | 1°=(π/180) rad                                                                              |
| 分     | ′    | 1′=(1/60)°=(π/10 800) rad                                                                   |
| 秒     | ″    | 1″=(1/60)′=(π/648 000) rad                                                                  |
| ヘクタール | ha   | 1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>                                      |
| リットル  | L, l | 1 L=1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup> |
| トン    | t    | 1 t=10 <sup>3</sup> kg                                                                      |

表 7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

| 名称       | 記号 | SI 単位で表される数値                                |
|----------|----|---------------------------------------------|
| 電子ボルト    | eV | 1 eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J   |
| ダルトン     | Da | 1 Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg  |
| 統一原子質量単位 | u  | 1 u=1 Da                                    |
| 天文単位     | ua | 1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m |

表 8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

| 名称        | 記号   | SI 単位で表される数値                                                                                  |
|-----------|------|-----------------------------------------------------------------------------------------------|
| バール       | bar  | 1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 <sup>5</sup> Pa                                                      |
| 水銀柱ミリメートル | mmHg | 1 mmHg=133.322 Pa                                                                             |
| オングストローム  | Å    | 1 Å=0.1 nm=100 pm=10 <sup>-10</sup> m                                                         |
| 海里        | M    | 1 M=1852 m                                                                                    |
| バイン       | b    | 1 b=100 fm <sup>2</sup> =(10 <sup>12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup> |
| ノット       | kn   | 1 kn=(1852/3600) m/s                                                                          |
| ネーパ       | Np   | SI単位との数値的な関係は、<br>対数量の定義に依存。                                                                  |
| ベレル       | B    |                                                                                               |
| デシベル      | dB   |                                                                                               |

表 9. 固有の名称をもつCGS組立単位

| 名称                    | 記号  | SI 単位で表される数値                                                                            |
|-----------------------|-----|-----------------------------------------------------------------------------------------|
| エル                    | erg | 1 erg=10 <sup>-7</sup> J                                                                |
| ダイン                   | dyn | 1 dyn=10 <sup>-5</sup> N                                                                |
| ポアズ                   | P   | 1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1 Pa s                                                  |
| ストークス                 | St  | 1 St=1 cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> |
| スチルブ                  | sb  | 1 sb=1 cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>                          |
| フオット                  | ph  | 1 ph=1 cd sr cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> lx                                       |
| ガリ                    | Gal | 1 Gal=1 cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>                           |
| マクスウェル                | Mx  | 1 Mx=1 G cm <sup>2</sup> =10 <sup>-8</sup> Wb                                           |
| ガウス                   | G   | 1 G=1 Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T                                           |
| エルステッド <sup>(a)</sup> | Oe  | 1 Oe ≡ (10 <sup>3</sup> /4 π) A m <sup>-1</sup>                                         |

(a) 3 元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≡ 」は対応関係を示すものである。

表 10. SIに属さないその他の単位の例

| 名称        | 記号   | SI 単位で表される数値                                                      |
|-----------|------|-------------------------------------------------------------------|
| キュリー      | Ci   | 1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq                                      |
| レントゲン     | R    | 1 R = 2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg                                  |
| ラド        | rad  | 1 rad=1 cGy=10 <sup>-2</sup> Gy                                   |
| レム        | rem  | 1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv                                   |
| ガンマ       | γ    | 1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T                                       |
| フェルミ      | f    | 1 フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m                                   |
| メートル系カラット |      | 1 メートル系カラット=0.2 g = 2×10 <sup>-4</sup> kg                         |
| トル        | Torr | 1 Torr = (101 325/760) Pa                                         |
| 標準大気圧     | atm  | 1 atm = 101 325 Pa                                                |
| カロリ       | cal  | 1 cal=4.1858 J (「15℃」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ) |
| マイクロン     | μ    | 1 μ =1 μm=10 <sup>-6</sup> m                                      |

