JAEA-Review 2020-043 DOI:10.11484/jaea-review-2020-043



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)

- 令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-

Development of the Technology for Preventing Radioactive Particles' Dispersion during the Fuel Debris Retrieval (Contract Research) -FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project-

> 福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター 東京大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development The University of Tokyo

KRVIRN

January 2021

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(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) 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

© Japan Atomic Energy Agency, 2021

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)

-令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-

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 廃炉環境国際共同研究センター

東京大学

(2020年10月28日受理)

日本原子力研究開発機構(JAEA)廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)では、令和元年度 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はじめとした 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年度に採択された「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」の令和元年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、微粒子飛散を効果的に抑制する技術を開発しており、実験の結果、水ミストを使っ てスプレイする方法がエアロゾル除去効率と除去率を改善する上で効果的かつ適用可能な手法で あることが分かった。また燃料デブリを固めて切断時に微粒子飛散を抑制する手法として、ジオ ポリマーによる固化手法に注目し、同材の強度、熱伝導率や切断粉の特徴を把握するとともに、 RPV 施工時における温度分布や流動に関するシミュレーションを実施した。

廃炉環境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

i

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を取りまとめたものである。

Development of the Technology for Preventing Radioactive Particles' Dispersion during the Fuel Debris Retrieval

(Contract Research)

- FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project -

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development Japan Atomic Energy Agency Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

The University of Tokyo

(Received October 28, 2020)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to "the Project") in FY2019.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). 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 the technology for preventing radioactive particles' dispersion during the fuel debris retrieval" conducted in FY2019.

In this study, a technique to effectively suppress the scattering of fine particles has been developed, and as a result of experiments, a method of spraying with water mist was found to be an effective and applicable method for improving aerosol removal efficiency and removal rate. As a method of solidifying fuel debris to suppress fine particle scattering during cutting, geopolymer was evaluated for its strength, thermal conductivity and cutting powder. In addition, flow status of geopolymer and the temperature distribution inside RPV covered by geopolymer were simulated.

Keywords: Fukushima Daiichi NPS, Decommissioning, Fuel Debris, Laser Cutting, Aerosol Particles, Water Spray, Removal Efficiency, Geopolymer, Solidification

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(継続分)	2
3.	令和元年度 採択課題	5
付銀	录 成果報告書	9

Contents

1.	Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project 1
2.	Accepted Proposal in FY2018 ~Continued~2
3.	Accepted Proposal in FY20195
Ap	pendix Result Report9

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。現:廃炉環境国際共同研究センター)を組織し、「東京電 カホールディングス(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(令和元年度より新設)に再編した。

- 1 -

2. 平成 30 年度 採択課題(継続分)

平成30年度採択課題(継続分)については以下のとおりである。

課題数:19課題

共通基盤型原子力研究プログラム 11 課題

(若手研究6課題、一般研究5課題)

課題解決型廃炉研究プログラム 6課題

国際協力型廃炉研究プログラム 2課題

(日英共同研究)

平成 30 年度 採択課題一覧

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	山﨑 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	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶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
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

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

, <u>12</u> , 19, 19, 19, 19, 19, 19, 19, 19, 19, 19		
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
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	渡邉 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	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

JAEA-Review 2020-043

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度は、4 つの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31年4月24日~令和元年6月7日
 令和元年5月30日~令和元年7月18日 ※日露共同研究のみ

· 課題数:19課題

 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題 (若手研究 2 課題、一般研究 5 課題)
 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題 (日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題)
 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 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た。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、採択課題を決定 した。

令和元年度 採択課題一覧

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
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海 水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボッ トの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋 内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ス トレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オン ラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな 評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁	産業技術総合 研究所

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
Multi-Physics モデリングによる福島 2・3 号機ペデス タル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技 術を用いた分別方法の研究開発	渡邉 大輔	日立 GE ニュークリア・ エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物 の安定固化技術の開発	竹下 健二	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによ る圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

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
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアル カリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で 効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学

国際協力型廃炉研究プログラム(日露共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関 する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾大学

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のため の遠隔技術に関する研究人材育成	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合したデ ブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブ リ劣化機構の解明	大貫 敏彦	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

本報告書は、採択課題のうち、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」の令和元年度の研究成果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.

令和元年度

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 311049)

成果報告書

令和2年3月 国立大学法人東京大学

JAEA-Review 2020-043

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科学技術・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「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」の令和元年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略····································
1. はじめに ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・1
2. 業務計画 ······2
2.1 全体計画
2.1.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発
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・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
2.2 令和元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 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
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) ・・・・・5
3. 令和元年度の実施内容及び成果・・・・・・6
3.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発6
3.1.1 模擬燃料デブリの作製・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
3.1.2 微粒子飛散試験 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
3.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・53
3.2.1 被覆材の作製・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
3.2.2 被覆材特性評価 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
3.2.3 微粒子物性評価 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
3.2.4 被覆材流動解析 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
3.3 取りまとめ(課題抽出)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
3.4 研究推進・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
4. 結言 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

表一覧

表 3.1.1-1	密度・空隙率(HfO2焼結体ペレット・WO2焼結体ペレット)・・・・・・・・・・9
表 3.1.1-2	ビッカース硬さ・破壊じん性
表 3.1.2-1	3種のフルコーン水スプレーノズルの仕様
表 3.1.2-2	エアロゾル分析装置 Welas®digital 2000 の仕様
表 3.1.2-3	エアロゾルの特性 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
表 3.1.2-4	試験条件 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
表 3. 2. 1-1	GP 作製に必要な材料・機器······53
表 3. 2. 2-1	高温試験実施時の沈降型超重泥水の配合組成・・・・・・・・・・・・・・・・・・54
表 3. 2. 2-2	アトックス照射試験の照射試料一覧
表 3. 2. 2-3	圧縮強度試験の GP-J 試料 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
表 3. 2. 2-4	GP-J 試料の圧縮強度試験結果・・・・・58
表 3. 2. 2-5	GP 試料の条件と熱伝導率(東京大学低温センター)60
表 3. 2. 2-6	ガンマ線照射試料一覧
表 3. 2. 3-1	UO2、HfO2、WO2の密度と融点・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・72
表 3.2.3-2	Hf02-G 試料のレーザー切断によって生成した微粒子85
表 3.2.3-3	WO2-G 試料のレーザー切断によって生成した微粒子87
表 3. 2. 4-1	スランプ試験を模擬した粒子法計算における計算パラメータ ・・・・・・・89
表 3. 2. 4-2	計算から得られたスランプ値 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
表 3. 2. 4-3	文献(6)におけるスランプ値 ······92

図一覧

図 2-1 全体	は計画図 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
図 3.1.1-1	粒径ヒストグラム(Hf02原料粉) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・10
図 3.1.1-2	粒径ヒストグラム(WO2原料粉) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・10
図 3.1.1-3	焼結体ペレット外観(Hf02)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・10
図 3.1.1-4	焼結体ペレット外観(WO ₂)・・・・・10
図 3.1.1-5	X 線回折プロファイル及び定性カードデータ(Hf02焼結体ペレット) ・・・・・・11
図 3.1.1-6	X線回折プロファイル及び定性カードデータ(WO2焼結体ペレット) ・・・・・・11
図 3.1.1-7	元素マッピングデータ(Hf02焼結体ペレット)
図 3.1.1-8	元素マッピングデータ(WO2焼結体ペレット) ・・・・・・・・・・・・・・13
図 3.1.2-1	水ミストを用いた新しい凝集法の原理 ······14
図 3.1.2-2	研究の目的
図 3.1.2-3	単一の液滴と粒子間の相互作用 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
図 3.1.2-4	実験で観察された様々な相互作用メカニズム
図 3.1.2-5	UTARTS 装置の概念設計図······17

図 3.1.2-6	装置外観・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
図 3.1.2-7	円筒容器と光学窓の設計
図 3.1.2-8	エアロゾル発生器
図 3.1.2-9	低濃度と高濃度でのミストサイズ分布
図 3.1.2-10	3 種のノズルの写真・・・・・・20
図 3.1.2-11	3 種のノズルの液滴サイズ分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・21
図 3.1.2-12	ノズルの流出口から 250 mm 下の液滴流線と液滴速度の大きさ ・・・・・・・22
図 3.1.2-13	エアロゾル分析装置 Welas®digital 2000
図 3.1.2-14	実験手順 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
図 3.1.2-15	ミストを除去するためのヒーター巻きチューブ ・・・・・・・・・・・・・・・・・25
図 3.1.2-16	水スプレーが作動したときのヒーターなし(黒線)と
	ヒーターあり(赤線)のミスト粒子濃度 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・26
図 3.1.2-17	エアロゾル噴射中の SiC 粒子サイズ分布 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・27
図 3.1.2-18	エアロゾル注入後の SiC 粒子サイズ分布 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・27
図 3.1.2-19	3 種類の粒子の SEM 画像······28
図 3.1.2-20	容器内に 10 分間分散した後の初期サイズ分布 ・・・・・・・・・・・・・・・・29
図 3.1.2-21	水スプレー中のエアロゾル粒子のサイズ変化 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・31
図 3.1.2-22	エアロゾル径に対する水スプレー効率・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・32
図 3.1.2-23	試験容器内のガス中の総エアロゾル粒子濃度の時間変化
	(0.2μm≤DAP <1.0μmの場合)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・33
図 3.1.2-24	水スプレー時間に対するエアロゾル除去率 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・34
図 3.1.2-25	異なる粒子サイズでのエアロゾル除去 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・35
図 3.1.2-26	異なるミスト濃度レベルでの3種のノズルの全体的な水スプレー効率36
図 3.1.2-27	異なるミスト濃度レベルでの3種のノズルのエアロゾル数濃度の時間変化37
図 3.1.2-28	異なるミスト濃度レベルでの3種のノズルのエアロゾル除去率37
図 3.1.2-29	エアロゾルサイズ分布の時間変化 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・38
図 3.1.2-30	異なるミスト濃度レベルでの異なる粒子の水スプレー効率 ・・・・・・・・・・・39
図 3.1.2-31	異なるミスト濃度レベルでの異なる粒子のエアロゾル数濃度の時間変化 39
図 3.1.2-32	異なるミスト濃度レベルでの異なる粒子のエアロゾル除去率 ・・・・・・・・・40
図 3.1.2-33	1F1 の RPV 形状 3D モデル・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・43
図 3.1.2-34	解析モデルメッシュ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・44
図 3.1.2-35	燃料デブリ平均崩壊熱・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・44
図 3.1.2-36	境界条件と材料物性値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・45
図 3.1.2-37	種々の崩壊熱値に対する RPV 温度分布(損傷なし) ・・・・・・・・・・・・・・・46
図 3.1.2-38	種々の崩壊熱に対する各部位の温度分布(損傷なし) ・・・・・・・・・・・・47
図 3.1.2-39	30 %崩壊熱に対する RPV 温度分布(損傷あり) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・47
図 3.1.2-40	種々の崩壊熱に対する各部位の温度分布(損傷あり)・・・・・・・・・・・・・48

図 3.1.2-41	(1) 損傷有無の RPV の温度比較(1) ······48
図 3.1.2-41	(2) 損傷有無の RPV の温度比較(2) ···································49
図 3.1.2-42	種々の被覆材注入高さと被覆材熱伝導率に対する RPV 内温度 ・・・・・・・・50
図 3.1.2-43	制御棒案内管の被覆有無における溶融燃料デブリ冷却性 ・・・・・・・・・・51
🗵 3. 2. 2-1	照射室内と ⁶⁰ Co 線源カバー ······55
図 3.2.2-2	線量率測定状況 ····································
🗵 3. 2. 2-3	照射試験状況 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
図 3. 2. 2-4	GP-J 圧縮強度試験······57
図 3.2.2-5	PPMS (Quantum Design 製) の外観・・・・・59
図 3.2.2-6	熱伝導率測定装置とその外観 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
図 3.2.2-7	成型加工後の試料・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・59
🗵 3. 2. 2-8	GP 試料の熱伝導率······60
図 3.2.2-9	熱伝導率の時間変化(GP-J-加熱)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・61
図 3.2.2-10	熱伝導率の算出(GP-J-加熱) ·····62
図 3.2.2-11	照射試験試料及びガラスアンプル外観 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・63
図 3.2.2-12	GP-SのG(H2)値・・・・・・64
図 3.2.2-13	GP-AのG(H2)値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
図 3.2.2-14	GP-Jの加熱焼成後外観(砂添加なし)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・65
図 3.2.2-15	GP-Jの加熱焼成後外観(砂添加あり)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・65
図 3.2.2-16	GP-Jの加熱温度に対する質量減少率66
図 3.2.2-17	GP-J 試料の XRD 分析結果(砂添加なし、未照射)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・66
図 3.2.2-18	超重泥水の高温試験外観・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・67
図 3.2.2-19	シリンダー底部温度の時間変化 ·····68
図 3.2.2-20	バライト沈降層表面温度の時間変化
図 3.2.2-21	超重泥水上澄み液面温度の時間変化
図 3.2.2-22	バライト粒子平均沈降速さの時間変化(高温試験) ・・・・・・・・・・・・・・・69
図 3.2.2-23	超重泥水の沈降率の時間変化(高温試験) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・69
図 3.2.2-24	無機系超重泥水の G (H ₂) 値 · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
図 3.2.2-25	無機系超重泥水の加熱乾燥による質量減少率
🗵 3. 2. 3-1	切断試験用の試料の写真 ······73
🗵 3. 2. 3–2	ジオポリマー被覆 Hf02ペレットのレーザー切断
🗵 3. 2. 3-3	レーザー切断における試料回収
図 3.2.3-4	ジオポリマーの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布と
	30 分の沈降試験後の粒度分布 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
図 3.2.3-5	機械的切断で発生したジオポリマー微粒子の SEM 像 ・・・・・・・・・・・・・・・・・
図 3.2.3-6	機械的切断で発生したジオポリマー微粒子の EDX による元素マッピング 76
図 3.2.3-7	HfO2ペレットの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布と
	30 分の沈降試験後の粒度分布 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

図 3.2.3-8 機械的切断で発生した Hf02 微粒子の SEM 像
図 3. 2. 3-9 機械的切断で発生した Hf02 微粒子の EDX による元素マッピング ······77
図 3.2.3-10 WO₂ペレットの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布と
30 分の沈降試験後の粒度分布・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
図 3.2.3-11 機械的切断で発生した WO2 微粒子の SEM 像
図 3.2.3-12 機械的切断で発生した WO2 微粒子の EDX による元素マッピング ······79
図 3.2.3-13 ジオポリマーのレーザー切断で発生した微粒子の SEM 像 ······80
図 3.2.3-14 ジオポリマーのレーザー切断で発生した微粒子の EDX 元素マッピング81
図 3.2.3-15 Hf02ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の SEM 像 ······82
図 3.2.3-16 Hf02ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の EDX 元素マッピング82
図 3.2.3-17 WO2ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の SEM 像 ・・・・・・・83
図 3.2.3-18 WO2ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の EDX 元素マッピング83
図 3. 2. 3-19 ジオポリマー被覆を施した Hf0₂模擬デブリのレーザー切断で
生成した微粒子の SEM 像(HfO ₂ -G)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・84
図 3. 2. 3-20 ジオポリマー被覆を施した Hf0₂模擬デブリのレーザー切断で
生成した微粒子の EDX マッピング(Hf02-G)-1・・・・・・・・・・・・・・・84
図 3. 2. 3-21 ジオポリマー被覆を施した Hf0₂模擬デブリのレーザー切断で
生成した微粒子の EDX マッピング(Hf02-G)-2・・・・・・・・・・・・・・・・・85
図 3.2.3-22 ジオポリマー被覆を施した WO₂模擬デブリのレーザー切断で
生成した微粒子の SEM 像(WO ₂ -G)・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・86
図 3.2.3-23 ジオポリマー被覆を施した WO₂模擬デブリのレーザー切断で
生成した微粒子の EDX マッピング(WO ₂ -G)-1・・・・・・・・・・・・・・・・・86
図 3.2.3-24 ジオポリマー被覆を施した WO₂模擬デブリのレーザー切断で
生成した微粒子の EDX マッピング(WO₂-G)−2・・・・・・・・・・・・・・・・・・・87
図 3.2.4-1 スランプ試験を模擬した計算
(ケース1 降伏応力を 20 Pa とした場合) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 90
図 3.2.4-2 スランプ試験を模擬した計算
(ケース 2 降伏応力を 100 Pa とした場合) ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・91
図 3.2.4-3 障害物がある場合の計算(降伏応力 20 Pa) ························93

略語一覧

AP	:	Aerosol Particle	(エアロゾル粒子)
CEA	:	Commissariat à l'énergie atomique et a	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)

概略

福島第一原子力発電所の燃料デブリ取出し工法として現在、気中-上取出し工法、気中-横取出 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。閉じ込めを着実に行うためには、切断時に発生するα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。

本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:原子力機構)

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、微粒子飛散試験に適する 異なる組成の模擬燃料デブリ試験体を非放射性材料により作製した。今年度は試験材として、比 較的密度の高い材料でありフランス等で模擬材料として実績のある二酸化ハフニウム及び、酸化・ 揮発するプロセスを想定した二酸化タングステンを選択した。これらについて、1 cm ϕ ×1 cmH の 焼結ペレットを4 つずつ作製し、試験に供した。

2微粒子飛散試験

平成 30 年度に作製した装置を用いて、微粒子飛散挙動及び水スプレーによる抑制効果を試験及 びシミュレーションにより評価した。具体的には微粒子を用いた液滴試験を実施し、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した。 また密閉型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した。

これらの成果を基に、液滴寸法、注水圧力、水質条件を変えるなど効果的な水スプレーシステムとなるように装置を調整し、異なるサイズの液滴を用いた試験等を行い、微粒子捕獲が高く、かつ水量が少ない最適条件を把握した。また燃料デブリ被覆材を含めた飛散挙動を同装置により 把握するとともに、水スプレーの有効性についても評価を行った。

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 により継続して行った。

本年度は、エアロゾルの除去効率を改善するために、主として水噴霧液滴(ミスト)を使った 凝集方法を微粒子飛散装置により検証した。実験結果より、水ミストを使った凝縮方法がエアロ ゾル除去効率と除去率を改善する上で効果的かつ適用可能な手法であり、ミスト濃度が高いと改 善効果が高いことが分かった。また、液滴速度の大きさがエアロゾル除去効率を決める主要な要 因であることが分かった。

また、冷却性能に関しては、原子炉圧力容器内における燃料デブリ及び圧力容器の温度に関し て、被覆材有無の条件下での熱解析を行った。その結果、燃料デブリを被覆することにより、崩 壊熱が遮蔽され、圧力容器内の温度が低く保たれることが分かった。

(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:原子力機構)

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 の特性評価に供するジオポリマーを作製した。

今年度は、メタカオリンを使ったジオポリマーについて、川砂を含む 10 試料及び川砂を含まない 10 試料を作製し、燃料デブリ安定化被覆材の特性評価に供した。

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㈱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、作製した。

被覆材の評価としては、平成 30 年度に引き続いて、熱伝導率、粘性変化、流動特性等各種基礎 材料特性を把握した。また平成 30 年度の結果を基に、被覆材の一部についてγ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、廃棄体性能として重要な照射による水素 発生量が少ない組成を検討した。

今年度の試験結果から、ジオポリマー固化体内の水分量が熱伝導率、圧縮強度、水素発生量等、 各試験の結果に大きく影響することが分かった。また砂を添加することにより照射有無にかかわ らず、圧縮強度が改善されることを見出した。超重泥水に関しては、無機系の材料は80℃までの 高温試験の結果、約1日で沈降率が一定になることが分かった。

③微粒子物性評価

被覆材としてジオポリマーを施工した模擬デブリの切断試験を行い、溶液条件を変えて、微粒 子発生量、サイズ分布、組成、電荷、親水性、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、切断時における飛散特性を把握した。

今年度は、模擬デブリ及びジオポリマーを被覆した模擬デブリの機械的切断及びレーザー切 断を実施し、発生した微粒子のサイズ、形状、組成等を分析した。レーザー切断では、0.1から 100 μm程度の異なる形状の粒子が発生し、一部は、熱影響により特異的な形状を有するもの や、デブリ成分とジオポリマー成分が混在する粒子が存在することが分かった。また機械的切 断では、光散乱による粒径分布測定から、比較的大きな粒子が存在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)

平成 30 年度の調査を基に、燃料デブリ安定化被覆材の流動を模擬する数理モデルパラメータを 決定した。また、障害物等がある複雑形状を計算することで、計算規模と計算資源量との関係を 把握するなど、次年度に行う施工性評価のための準備を行った。

今年度は、土木的な施工を行う前に施工性を評価するために実際に用いられている簡易試験の 1つであるスランプ試験を模擬した3次元計算を行い、結果の様相が試験を模擬したものになるこ とを確認した。

(3)取りまとめ(課題抽出)

上記研究成果を取りまとめて、次年度に向けた課題を抽出した。

1. はじめに

福島第一原子力発電所の燃料デブリに関しては 2021 年の取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¹⁾。 取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²⁾³⁾。 RPV 内や CRD ハウジ ングに付着した燃料デブリ取出し時には、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 1 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、 極力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。

参考文献

- 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、原子力機構)

燃料デブリ取出し時における α 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原子力機構(日本原子力研究 開発機構:以下、JAEAと略記。)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。

なお、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 み合わせて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。

令和元年度には、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水スプレーシステム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 2.1.2 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行う。

令和2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、原子力機構

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 2.1.1 に示す飛散挙動試 験に資する。さら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、γ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。

令和元年度には、材料特性試験及びγ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。

令和2年度には上記測定を継続するとともに、取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出し時における α 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	令和2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)	●模擬燃料デブリ作製	● 使擬燃料デブリ作製	
②微粒子飛散試験 (東大)	 ①粉末購入 ②液滴試験、微粒子飛鼓試験、 水スプレー試験装置設計・製作 ③粒子漏空装置準備 ④冷却性能簡易計算 	 ①教粒子飛散試験(含む、被覆材有無) ②水スプレー試験(含む、被覆材有無) 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 ②水スプレー試験(含む、被覆材有無 、冷却効果確認) 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)	● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ● ●	● 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 ②γ線照射試験 ③微粒子物性確認試験	①被覆材粘性-流動性試験 ②γ線照射試験 ③微粒子物性確認試験	 ①被覆材粘性·流動性試験 ②γ線照射試験 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 ②ジオボリマー浸出試験
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)取りまとめ 報告書作成等(東大)	報告書作成	₩告書作成	報告書作成

図 2-1 全体計画図

2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法

令和元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:原子力機構)

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、微粒子飛散試験に適する 異なる組成の模擬燃料デブリ試験体を非放射性材料により作製する。

(2) 微粒子飛散試験

平成 30 年度に作製した装置を用いて、微粒子飛散挙動及び水スプレーによる抑制効果を試験及 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。 また微粒子の外部飛散を防止する密閉系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、液滴寸法、注水圧力、水質条件を変えるなど効果的な水スプレーシステムとなるように装置を調整し、異なるサイズの液滴を用いた試験等を行い、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。また燃料デブリ被覆材を含めた飛散挙動を同装置により 把握するとともに、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 により継続して行う。

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:原子力機構)

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 の特性評価に供するジオポリマーを作製する。

(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)等と、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、作製する。

被覆材の評価としては、平成30年度に引き続いて、熱伝導率、粘性変化、流動特性等各種基礎 材料特性を把握する。また平成30年度の結果を基に、被覆材の一部についてγ線照射を行い、照 射前後の熱伝導率変化を測定するとともに、照射後水素発生量等を測定し、廃棄体性能として重 要な照射による水素発生量が少ない組成を検討する。

(3) 微粒子物性評価

被覆材としてジオポリマーを施工した模擬デブリの切断試験を行い、溶液条件を変えて、微粒 子発生量、サイズ分布、組成、電荷、親水性、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、切断時における飛散特性を把握する。

(4) 被覆材流動解析(再委託先:產業技術総合研究所)

平成 30 年度の調査を基に、燃料デブリ安定化被覆材の流動を模擬する数理モデルパラメータを 決定する。また、障害物等がある複雑形状を計算することで、計算規模と計算資源量との関係を 把握するなど、次年度に行う施工性評価のための準備を行う。

2.2.3 取りまとめ (課題抽出)

上記研究成果を取りまとめて次年度に向けた課題を抽出する。

3. 令和元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:原子力機構)

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製方法、並びに作製後の材料分析結果を示す。

3.1.1.1 作製方法

(1) 装置

本試験に使用した装置等を以下に示す。

①サンプル作製

- ・圧粉体成型:超硬製ダイス及びハンドプレス機
- ・HfO₂焼結 :マッフル炉 (FULL-TECH、FT-1700GHW)
- ・WO₂焼結 :大容量同時熱分析装置 (NETZSCH、STA449 F3 Jupiter)

②サンプル等分析

- ・熱物性 : 熱分析装置 (RIGAKU、Thermo plus EVO2 TG-DTA)
- ・構造解析 : 粉末 X 線回折装置 (BRUKER、D2PHESER)
- ・粒度分布 : 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)
- ・元素分布 : SEM/EDS (JEOL、JCM-6000)
- ・密度 : 乾式自動密度計 (Micromeritics、Accupyc II 1340)
- ・ビッカース硬度:マイクロビッカース硬度計(Mitutoyo、HM-200)

③その他

- ・切断 : 大型切断機 (ムサシノ電子、MPC-200)
- ・研磨: 試料自動研磨装置(トビタ精機、特注)
- (2) 原料
 - ①HfO₂ : レアメタリック社製、純度 99.9 %
 - ②WO₂ : レアメタリック社製、純度 99 %

(3) 原料の分析

①熱分析

Hf02及び W02 原料粉の熱重量並びに反応熱を、熱分析装置を使用して測定した。また、W02 は雰囲気を還元性ガス掃気下とした熱分析についても実施した。

②X 線構造解析

HfO2及びWO2原料粉の回折プロファイルを、粉末X線回折装置を使用して取得した。

③粒度分布

レーザー回折式粒度分布測定装置を用いて取得した原料粉の粒径のヒストグラムを図 3.1.1-1、-2に示す。

(4) Hf02作製

①成型条件

- ・ ダイスへの装荷量:9.0 g
- ・ 加圧力:30 kN
- 加圧後の保持時間:1 min
- 作製個数:5個

②焼結条件

- 使用装置:マッフル炉
- 雰囲気:大気
 - 温度プログラム: 25→1500 ℃ (10 ℃/min)、1500 ℃ (3 hr 保持)、1500→25 ℃ (炉冷約 3 hr) ※上記プログラムを 5 日間実施(1500 ℃で合計 15 時間の保持)

(5) WO₂作製

①成型条件

- ・ ダイスへの装荷量:6.5 g
- ・ 加圧力:20 kN
- ・ 加圧後の保持時間:1 min
- 作製個数:5個

②焼結条件

- · 使用装置:大容量同時熱分析装置
- ・ 雰囲気:G1 グレードAr+H2(5%) 掃気、真空ガス置換4回
- ・ 温度プログラム:
 25→1000 ℃ (30 ℃/min)、1000 ℃ (5 hr 保持)、800 ℃ (40 ℃/min)、
 800→25 ℃ (炉冷約 0.5 hr)
 ※上記プログラムを 3 日間実施 (1000 ℃で合計 15 時間の保持)

(6) 製作手順

①圧粉体成型

トレーに原料粉を秤量し、下パンチを装着したダイスに原料粉を投入した。そこに上パン チを装着後、ハンドプレス機にセットしたダイスを所定の圧力に達するまで加圧し、その加 圧力の状態で1分間保持した。加圧が終了した圧粉体ペレットは取出し用治具で取出した。 ②加熱(焼結)

- <Hf0₂>:5個の圧粉体ペレットをアルミナ製坩堝に並べて、マッフル炉に装荷した後、所定の温 度プログラムに従い、1日につき1500 ℃で3時間の加熱を5日間実施した。
- <W0₂>: 圧粉体ペレットを同時熱分析装置用アルミナ坩堝に1個装荷し、同時熱分析装置にセットした。その後、真空ガス置換(500 Pa 程度までの減圧及び常圧までのAr+H₂ガス注入)を4回繰り返した上で、所定の温度プログラムに従って加熱した。加熱は1000 ℃で5時間の加熱を3日間実施、加熱の際はAr+H₂ガスを20 mL 掃気した。WO₂については、同時熱分析装置の炉内容量に従い、1 個ずつ作製した。マッフル炉及び同時熱分析装置から取り出した焼結体ペレットは大きな欠け等がないことを確認の上、デシケーター内で保管した。

③分析前処理

物性等の分析用として、Hf0₂及び W0₂の焼結体ペレットをそれぞれ1個ずつ選び取って樹 脂に埋め込んだ。樹脂は粘度が低く発熱量が少ない2液型の常温硬化埋込樹脂(Aqra、53型) を使用し、樹脂埋包から24時間以上静置した。樹脂の硬化を確認した後、大型切断機を用い てペレットを縦に切断の上、試料自動研磨装置にて露出させたペレット断面の鏡面研磨を施 して、切断時に生じた傷を可能な限り除去した。鏡面研磨は粒度が大きく面が粗い研磨紙か ら順に行い、最後に研磨液を用いたバフ研磨を施した。

(7) 分析·評価

鏡面研磨を施した樹脂埋包サンプル及び焼結体ペレットについて、それぞれ以下の分析を実施した。

①X 線構造解析

· 測定対象: 樹脂埋	包サンプル
-------------	-------

•	X 線管球:	Cu

- ・ ステップ: 0.02 degree
- スキャンスピード: 0.5 degree/min
 - $20{\sim}70$ degree
- ②断面観察·元素分布測定

.

•	測定対象:	樹脂埋包サンプル
•	倍率:	$\times 50$ 、 $\times 500$
•	対象元素:	$HfO_2-C \cdot O \cdot Hf$, $WO_2-C \cdot O \cdot W$

③ビッカース硬度・破壊じん性測定

 2θ :

•	測定対象:	樹脂埋包サンプル
•	試験力:	0.5 kgf
•	測定点数:	12 点
Ĩ		
•	測定対象 ·	焼結体ペレット

④密度測定

•	測定対象:	焼結体ペレット
•	使用ガス:	Не

3.1.1.2 模擬燃料デブリ試験材の分析結果

①形状

1)外観観察

Hf0₂及び W0₂焼結体ペレットの外観写真をそれぞれ図 3.1.1-3、-4 に示す。 ②物性

密度・空隙率

焼結体ペレットの密度、ノギスを使って測定・算出した焼結体ペレットの幾何学的体積、そしてそれらから算出した焼結体の空隙率を表 3.1.1-1 に示す。

2) 機械物性

ビッカース硬度及び破壊じん性の測定結果を表 1.1.1-2 に示す。

③定性分析

1)X線構造解析

樹脂埋包サンプルの X 線回折プロファイル及び定性カードデータをそれぞれ図 3.1.1-5、-6 に示す。

2) 元素分布測定

樹脂埋包サンプルの元素マッピングデータ及び定量分析の結果をそれぞれ図 3.1.1-7、-8 に示す。

組成	サンプル	幾何学的体積	乾燥重量	測定密度	測定体積	空隙率
	No	$[imes 10^3 \text{ mm}^3]$	[g]	$[g/cm^3]$	$[imes 10^3 \text{ mm}^3]$	[%]
HfO ₂	n1	1.200	8.9421	10.3640	0.862	28.10
	n2	1.183	8.9874	10.3087	0.872	26.33
	n3	1.215	8.9575	10.3672	0.864	28.94
	n4	1.209	8.9535	10.2607	0.873	27.87
WO ₂	n1	1.221	6.4374	11.3465	0.567	53.55
	n2	1.201	6.3704	11.0642	0.576	52.10
	n3	1.181	6.3559	11.1655	0.569	51.82
	n4	_	_	-	_	_

表 3.1.1-1 密度・空隙率(HfO2焼結体ペレット・WO2焼結体ペレット)

表 3.1.1-2 ビッカース硬さ・破壊じん性 (Hf0₂焼結体ペレット・W0₂焼結体ペレット)

組成	ビッカース硬さ [GPa]	破壊じん性 [MPa・m ^{0.5}]
HfO ₂	$1.79 \pm 6.53 \times 10^{-2}$	144 ± 4.5
WO ₂	$1.38 \pm 2.77 \times 10^{-2}$	35 ± 0.7



図 3.1.1-2 粒径ヒストグラム (WO2原料粉)



図 3.1.1-3 焼結体ペレット外観 (HfO₂)



図 3.1.1-4 焼結体ペレット外観 (WO₂)










ZAF 法 簡易定量分析 フィッティング係数:0.0683			
元素	KeV	質量 [%]	原子数 [%]
СК	0.277	27.89	57.66
O K	0.525	22.86	35. 49
Hf M	1.644	49.25	6.85
合計		100.00	100.00

図 3.1.1-7 元素マッピングデータ (HfO2焼結体ペレット)





ZAF法 簡易定量分析 フィッティング係数:0.0786			
元素	KeV	質量 [%]	原子数 [%]
C K	0.277	38.69	68.68
0 K	0.525	19.90	26. 51
W M	1.774	41.41	4.80
合計		100.00	100.00

図 3.1.1-8 元素マッピングデータ (WO2焼結体ペレット)

3.1.2 微粒子飛散試験

3.1.2.1 試験目的

2011年の福島第一原子力発電所事故の際、燃料は溶融して原子炉圧力容器(RPV)及び原子炉格 納容器(PCV)の底部で再凝固した。現在、福島第一廃炉のロードマップに従って、損傷した PCV から燃料デブリを回収する準備が進められている⁽¹⁾。燃料デブリは、機械切断やレーザー切断技 術等により細かく切断されるが、その際生成されるエアロゾル粒子は PCV 中に分散するため、飛 散を抑制する必要がある。したがって、より少ない水量でエアロゾル粒子の飛散を抑制可能な効 果的な水スプレーシステムを構築することが必要である。

エアロゾル粒子の特性の不確実性やエアロゾル粒子の除去の困難さを考慮すると、エアロゾル 粒子を凝集させ、慣性衝突メカニズムの効果を増加させることによって粒子寸法を大きくする新 たな手法が必要である。したがって、本研究では、水ミスト注入による凝集法を導入した。この アプローチでは、サブミクロンのエアロゾル粒子が拡散泳動力によりミスト粒子に向かって流れ、 ミストと合体して大規模な凝集ミストエアロゾル粒子を形成する(図3.1.2-1)。これらの大規模 なミストエアロゾル粒子は、慣性衝突の効果と粒子表面の親水性の向上により、水滴により効率 的に除去される。



図3.1.2-1 水ミストを用いた新しい凝集法の原理

本研究の目的を図3.1.2-2に示す。最終目標は、福島第一原子力発電所での燃料デブリ取出し中 にエアロゾル粒子を除去する効果的な水スプレーシステムを設計することであり、水ミストの影 響、水スプレー(液滴サイズ、速度など)の影響、並びにエアロゾルの特性(粒子サイズ、表面の 濡れ性など)の影響を調査した。

JAEA-Review 2020-043



図3.1.2-2 研究の目的

3.1.2.2 単一液滴実験

単一の液滴とエアロゾル粒子(約数ミクロンの小麦粉で代表)との相互作用現象を観測することにより、粒子の捕獲挙動とその相互作用メカニズムが明らかとなる。実験では、1つの液滴が毛細管(内径150 µm)の端から注入され、粒子を含んだガスが上向きに流れる。それらの相互作用プロセスは、顕微鏡レンズを備えた高速カメラによって記録された。試験装置や試験条件は昨年度と同一である。

図 3.1.2-3 は、1 秒間に 2.758 mm の液滴直径を持つ単一の液滴表面でのエアロゾル粒子の蓄積 を示す。また、図 3.1.2-4 に示すように、実験では様々な液滴とエアロゾルの相互作用が観察さ れた。



図 3.1.2-3 単一の液滴と粒子間の相互作用

図 3.1.2-4 において、(a) は慣性衝突を示し、大きな慣性と大きなストークス数を持つ粒子が運動方向に沿って、水の上流側で捕捉されている。(b) は捕獲を示しており、中間サイズ、ストークス数の粒子は、流体の流線に完全には従わず、粒子と液滴の間の距離が粒子半径よりも小さい

場合に液滴に捕捉される可能性がある。(c)は液滴の背後で発生する後流渦により、粒子が液滴 の後ろ側で捕捉されたことを示している。これらの実験により、微粒子の捕獲メカニズムを確認 することができ、次節の微粉末飛散試験の基本メカニズムを把握することができた。



図 3.1.2-4 実験で観察された様々な相互作用メカニズム

3.1.2.3 微粒子飛散挙動試験方法

エアロゾルの除去効率を向上させるために水ミストを追加する新しい凝集方法を提案し、以下 の順で試験を行った。

- (1) 水ミストを使用する場合と使用しない場合におけるエアロゾル除去試験を実施して、新しく 提案した凝集法を検証。
- (2) 3種の水スプレーノズルを使用して、エアロゾルの除去効率に対する水スプレー液滴の特性 の影響を調査。
- (3) さらに、3種類のエアロゾル粒子を使用して、エアロゾル除去効率に対するエアロゾル特性の影響を調査。

3.1.2.4 微粒子飛散試験装置の概要

(1) UTARTS 装置

図 3.1.2-5 に、UTARTS(東京大学での水スプレーを使用したエアロゾル除去試験)装置の設 計概念図を示す。UTARTS装置は、円筒形の容器と様々なサブシステムから構成されている。ま た図 3.1.2-6 に装置外観を示す。



図3.1.2-5 UTARTS装置の概念設計図



図3.1.2-6 装置外観

① 円筒容器

高さ2.5 m、内径1.5 m、総体積3.92 m³のステンレス鋼容器内で、エアロゾル除去試験を実施 した(図3.1.2-7)。装置には、13 個の光学観測窓とアクセス用のマンホールが1つあり、光学窓 を使用して試験状況を観察し、光学測定を行うことにより液滴速度場と液滴サイズ分布を測定し た。2 つの光学窓は、水平方向に対して66 °の角度で設計されているが、これは液滴サイジング (ILIDS) 方法の干渉レーザーイメージングを使った液滴サイズ測定に対する最適な角度である⁽²⁾。





図 3.1.2-7 円筒容器と光学窓の設計

②エアロゾル発生システム

エアロゾル発生システムは、空気圧縮機及びエアロゾル発生器から構成される。粒子はエアロ ゾル発生器に置かれ、エアコンプレッサーからの空気流がエアロゾル発生器に注入されて、エア ロゾル粒子を形成し容器内に分散される(図 3.1.2-8)。



(a) エアロゾル発生器の外観(b) エアロゾル発生器の設計

図 3.1.2-8 エアロゾル発生器

③ミスト発生システム

ミスト発生システムには、超音波ミスト発生器(モデル:山善社製 MZ-JH30)があり、サブミクロンの水ミストを生成して容器内に分散することができる。

図 3.1.2-9 にミストサイズ分布を示すが、低ミスト濃度と高ミスト濃度のピークレベルは、そ れぞれ 12566.82 P/cm³と 18922.43 P/cm³であった。どちらのミスト濃度も、ほとんどのミスト粒 子直径は 0.4~0.9 µm の範囲にあり、Dmist = 0.675 µm にピークがあった。しかしながら、2 ~10 µm の範囲の直径を持ついくつかの大きなミスト粒子も存在していた。エアロゾル粒子とミ ストは容器内で飛散して互いに衝突し、大きなサイズの粒子クラスターに凝集するまで、容器内 をランダムに移動した。評価された 3 種の試験ケースにおけるエアロゾル除去性能を比較するこ とにより、提案された凝集法の性能を検証し、エアロゾル水スプレーの除去効率に対するミスト 濃度の影響を調査した。



図 3.1.2-9 低濃度と高濃度でのミストサイズ分布

④水スプレー噴射システム

水スプレー噴射システムは、ウォーターテイク、ウォーターポンプ、フルコーン水スプレーノ ズルから構成されている。次の試験では、サイズの分布が異なる水スプレー液滴を生成できる 3 種のフルコーン水スプレーノズルを使用した。

図 3.1.2-10 に、3 種のノズル (ノズル1、ノズル2、ノズル3 など)の写真を示す。これらはす べて Spraying System Company から購入したもので、モデルはそれぞれ 1/8GG-SS3004、TG3.5、 TG2 であり、3 種のノズルのオリフィス径は、それぞれ 1.2 mm、1.7 mm、1.2 mm である。3 種のノ ズルはすべて、ノズル出口の下 300 mm に設置され、実験中の水スプレー噴射流量はすべて 3 L/min であった。 詳細を表 3.1.2-1 に示す。







.e 1 (b) nozzle 2 (c) nozzle 3 (a) ノズル 1 (b) ノズル 2 (c) ノズル 3 図 3. 1. 2-10 3 種のノズルの写真

	Nozzle 1	Nozzle 2	Nozzle 3
Model	1/8GG-SS3004	TG3. 5	TG2
Orifice diameter	1.2 mm	1.7 mm	1.2 mm
Distance from top of vessel	300 mm	300 mm	300 mm

表 3.1.2-1 3種のフルコーン水スプレーノズルの仕様

JAEA-Review 2020-043

非侵入型 ILIDS(液滴サイジングのための干渉レーザーイメージング)及び PIV(粒子画像速度 測定)の測定手法を使用して、それぞれ水スプレー液滴のサイズ分布と速度フィールドを測定した^(2,3)。ILIDSメソッドを使用した典型的な液滴サイズ測定結果を図 3.1.2-11 に示す。測定領域 は、高い液滴密度によって引き起こされる液滴フリンジの重なりの問題を回避するために、ノズ ル出口から遠く(ノズル出口の下 850 mm)配置した。図で、水色のバーはノズル1の液滴サイズ 分布を示し、赤いバーはノズル2、灰色のバーはノズル3の液滴サイズ分布を示す。



図 3.1.2-11 3 種のノズルの液滴サイズ分布

水スプレー液滴ノズル1によって生成された液滴直径は121~340 μ mの範囲で、194 μ mにピークがあった。ノズル2の場合、その液滴サイズ分布には2つのピークがあり、1つのピークの 直径は166 μ m、もう1つのピークの直径は381 μ mであった。ノズル3では、2つのピークがあ り、それぞれ103 μ mと308 μ mであった。平均液滴速度は、PIV 手法を使用して、ノズル1の 出口の下207.5 mm、ノズル2とノズル3の出口の下250 mmで測定された(図3.1.2-12)。

図中(a) には、3種のノズルの液滴流速分布、図中(b) には、ノズル出口の250 mm下における速度を示す。3種のノズルの最大液滴速度の大きさUmaxは、それぞれ22.22、18.81、及び15.05 m/s であり、 $U_{max, nozzle1} > U_{max, nozzle2} > U_{max, nozzle3}$ であることが分かる。また、3種のノズルの水スプレー角度は、それぞれ27°、60°、66°として計算できる。



(b) Droplet velocity magnitude at 250 mm below nozzle outlet

図 3.1.2-12 ノズルの流出口から 250 mm 下の液滴流線と液滴速度の大きさ

⑤エアロゾル濃度測定システム

エアロゾル濃度測定システムは、サンプリングチューブ、ヒーターを巻いたチューブ、及びエ アロゾルアナライザーWelas®digital 2000から構成される(図3.1.2-13)。エアロゾルサンプル フローは、容器半径の半分からと、ノズル出口の1400 mm下の測定ポイントから、5 L/minの固 定流量で取り出される。次に、サンプルを測定機器(エアロゾルアナライザーWelas2000)に通し て、実験中のエアロゾル粒子の濃度とサイズ分布を測定した。Welas2000は、<1 P/cm³~10⁶ P/cm³ の粒子濃度と、0.2~10 μ mの範囲の粒子サイズを測定でき、絶対測定誤差は±0.01 μ m、相対誤 差は 5 %である⁽⁴⁾。エアロゾルアナライザーWelas2000の前にヒーターを巻いたチューブを取り 付け、装置内の加熱可能なセルと一緒に150 ℃に加熱して、エアロゾル粒子濃度の測定時にミス トを除去した。Welas®digital 2000の詳細を表 3.1.2-2 に示す。



図 3.1.2-13 エアロゾル分析装置 Welas®digital 2000

エアロゾル分析装置	Welas [®] digital 2000
動作原理	光散乱分光計
粒子タイプ	固体、液体
測定範囲(サイズ)	0.2 \sim 10 μ m
(<i>C_n</i>) 測定範囲 (C_n)	$<1\sim 10^6$ P/cm ³
測定精度	± 0.01 µm, 5 %
耐熱温度	up to $250~^\circ\mathrm{C}$
	for エアロゾルセンサー
サンプリング流量	5 L/min
較正	標準の1 µm ラテックス粒子
測定誤差	5 %

表 3.1.2-2 エアロゾル分析装置 Welas®digital 2000 の仕様

⑥エアロゾル出口と排水システム

水スプレー注入が停止した後、純粋な空気が容器に注入されて、残っている浮遊エアロゾルは 確実に排出され、エアロゾル出口チューブから容器上部のHEPAフィルターを通って除去される。 容器下部のプレナムに溜まった水スプレー水も、容器底部の排水システムから外部に排出される。

(2) 実験手順

一般的な実験手順を図 3.1.2-14 に示す。はじめに、エアロゾル粒子の濃度が目標値に達するま で噴射した。次に、エアロゾルの注入を停止し、エアロゾル濃度が安定するまで約 10 分間実験を 行った。これは、エアロゾル粒子が容器内に均一に分散していることを示している。水ミストを 用いて実験を行う場合、水ミストの噴射を開始し、目標の高濃度または低濃度まで注入した後、 エアロゾル粒子とミストが合体して大型の凝集ミストエアロゾル粒子になるように再び 10 分間 実験を休止した。次に、エアロゾルの粒子数濃度を測定しながら、ウォーター水スプレーを 60 分 間連続して噴射し、これらの凝集したミストエアロゾル粒子を除去した。最後に、容器下部のプ レナムに溜まった水を排出し、マンホールを開けて容器内を清掃した。

実験は、大気条件下及び室温で行った。実験手順は次のとおりである。

①エアロゾルの準備とエアロゾル発生器への投入。この手順の間、実験者は浮遊粒子の吸入を防 ぐためにマスクを使用する。エアロゾル粒子のタイプは、100 nm~3000 nm のサイズ範囲の TiO₂

と ZrO₂を使用。

②エアロゾル発生器を閉じ、ガス漏れがないか確認。

③実験室でのエアロゾルの沈着を防ぐために、建物の外に出される排出管の出口または HEPA フィ

ルターの後に残った粒子を洗浄する水容器を挿入。

④容器の排水口と他のバルブは、排出ラインを除いて確実に閉止。

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、容器をエアロゾ ルガス混合物で満たす。

⑥テストの初期粒子濃度を識別するために粒子濃度を測定。

⑦排気ラインバルブは閉止で、容器は外気から遮断。

- ⑧水ミストで実験を行う場合は、水ミスト噴射を開始。ミストの注入時間は、目的のミスト濃度 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が合体するまで一定時間保持。
- ⑨ウォーターポンプを始動し、水スプレー噴射を開始。

⑩短い噴霧時間の後、噴霧注入を停止し、粒子濃度を測定。

①粒子濃度が所望のレベル以下に低下するまで、ステップ7と8を繰り返す。その後、水スプレー操作を停止し、データを保存。

12排気ラインバルブを開。

③容器の下部の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、そうでない場合には、排出された水は標準の水フィルターでろ過されてから環境に排出。

④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。

⑤エアパージ操作によるエアロゾルの除去が終了した後、メンテナンス作業またはクリーニングのためにマンホールを開。



図 3.1.2-14 実験手順

(3) ヒーターのミスト除去効果

水ミストを追加した実験ケースでエアロゾル粒子の濃度を正確に測定するには、サンプリング フローを Welas2000 に流す前にミストを除去する必要があった。粒子を含むガスからミストを除 去するために、図 3.1.2-15 に示すように、1.2 mのヒーターで包まれたパイプを使用して、エア ロゾルアナライザーにサンプリングフローを流した。実験中、パイプと加熱可能な容器の両方を 150 ℃に加熱し、この温度に維持して、サンプリングフローがエアロゾル分析装置に入った時に ミストが水蒸気に蒸発するように工夫した。



図 3.1.2-15 ミストを除去するためのヒーター巻きチューブ

ミスト除去におけるヒーターの有効性を検証するために、ヒーターを使用した場合と使用しな い場合の高濃度のミスト粒子濃度を測定した。エアロゾルアナライザーWelas2000を使用して様々 な種類の粒子のサイズ分布を測定する場合、エアロゾル屈折率(RI)に対して特定のエアロゾル 特性を設定する必要がある。本研究では、霧のサイズを測定する時に RIを1.33(水)に設定し、 エアロゾルの粒子サイズを測定する時に 2.2(ZrO₂)に設定した。確認テストでは、ヒーターがオ ンで RI = 2.2を使用して水スプレー噴射をアクティブにする必要がある時にミスト濃度を測定 した。次に、ヒーターがオフの時に RI = 1.3を使用して、測定されたミスト濃度を高ミスト濃度 と比較し、ミストが ZrO₂粒子濃度の測定に影響したかどうかを判断した。ヒーターがある場合と ない場合の結果を図 3.1.2-16に示す。黒い線はヒーターなしで RI = 1.33の高ミスト濃度でのミ ストサイズ分布を示し、赤い線はヒーターありで RI = 2.2のミストサイズ分布を示す。この結果 は、ミストがヒーターによって効果的に除去できることを示しており、エアロゾル粒子含有量の 測定に影響を与えることがないことが確認された。



ヒーターあり(赤線)のミスト粒子濃度

(4) エアロゾル粒子の特性評価

①凝集実験

粒子凝集実験はSiC粒子を用いて行った。容器内の粒子サイズ分布は、Dekati®ELPI®+(電気低 Eインパクター)を使用して測定され、測定範囲は0.006~10 µmであった。また、SiC粒子の初 期の0.1 µm未満から数µmであった。後述の3.2.3 に示すように、被覆材のジオポリマーの機 械的及びレーザー切断実験により、直径が0.1 µm未満から数百µmの粒子が生成されている。 また、生成された粒子はすべてSiの化学組成を含んでいた。このため、SiC粒子を使ったエアロ ゾルの除去実験はジオポリマーを切断することにより生成される粒子のうち、捕集しにくい比較 的小さな粒子の実験を模擬していると判断して、燃料デブリ被覆材の簡易的な飛散挙動評価も兼 ねて本実験を実施した。

図 3.1.2-17 に、容器内へのエアロゾル噴射中の SiC 粒子サイズ分布を示す。エアロゾル注入前の直径が 0.1 µm 未満の粒子が残っているが、0.1 µm 未満の直径を持つ小さな粒子の比率は、 注入時間とともに減少した。これは、質量平均直径が 0.06 µm の SiC 粒子が、0.1 µm より大き い直径の大きな粒子クラスターに凝集したことを示している。

図 3.1.2-18 に、容器内にエアロゾルを 30 分間注入した後の SiC 粒子サイズの変化を示す。より小さな粒子が、0.1 µmより大きい直径の大きな粒子クラスターに凝集したことが分かる。2.5 分間のエアロゾル注入後、直径が 0.1 µm未満の粒子は少なくなった。



図 3.1.2-17 エアロゾル噴射中の SiC 粒子サイズ分布



図 3.1.2-18 エアロゾル注入後の SiC 粒子サイズ分布

②エアロゾル特性の比較

実験では、エアロゾルの模擬物質として、特性の異なる3種類の粒子(初期質量平均直径、表面の濡れ性、溶解度など)として ZrO_2 、 TiO_2 、 $及び SiC を使用した。これらの質量平均直径 D50 は 0.15、0.165、及び 0.06 <math>\mu$ m である。 ZrO_2 粒子は親水性であり、水中でコロイド溶液を形成する。 TiO₂粒子は疎水性で不溶性であり、水面に浮遊する。また SiC は疎水性で水に不溶である。詳細 を表 3.1.2-3 に記載する。

図 3.1.2-19 には、これら 3 種類の粒子の SEM 画像を示す。粒子が凝集して様々な形態、即ち、 繊維状、球形、フラクタルな形状となった。

図 3.1.2-20 には、容器内に 10 分間分散した後の最初のエアロゾルサイズ分布を示す。図において、x 軸は粒子径、y 軸は数濃度(単位: P/cm^3)である。 $2r0_2$ を例にとると、すべてに 2 つのピークがあることが分かる。2 つのピークの直径は 0.16 μ m 及び 0.55 μ m であった。0.16 μ m は 0.15 μ m の質量平均直径 D50 に類似しており、0.55 μ m は 0.15 μ m の D50 よりはるかに大きいため、 $Zr0_2$ 粒子は容器内に分散した後に凝集する可能性がある。TiO₂では、2 つのピークは 0.16 μ m 及び 0.47 μ m にあった。SiC では、2 つのピークは 0.16 μ m 及び 0.44 μ m にあった。

	ZrO_2	TiO ₂	SiC
<i>D</i> ₅₀ [μm]	0.15	0.165	0.06
ぬれ性	親水性	疎水性	疎水性
溶解性	水中でコロイド溶液形成	不溶性で水面浮上	水に不溶

表 3.1.2-3 エアロゾルの特性



(a) ZrO_2

(b) TiO_2

(c) SiC

図 3.1.2-19 3 種類の粒子の SEM 画像



図 3.1.2-20 容器内に 10 分間分散した後の初期サイズ分布

3.1.2.5 微粒子飛散試験結果

水ミストを使用する場合と使用しない場合のエアロゾル捕捉実験を実施し、エアロゾル捕捉性 能を改善するために新たに提案された凝集法を検証した。次に、同凝集法により、3種の異なる水 スプレーノズルを使用してエアロゾル除去効率に対する水スプレー液滴の特性の影響を調査した。 さらに、3種類のエアロゾル粒子を使用してエアロゾルの除去効率に対するエアロゾルの特性の 影響を調査した。結果を以下に示す。

(1) エアロゾル除去に対する水ミストの影響

新しく提案された凝集法を検証して、エアロゾルの除去性能を向上させた。すべての実験は、 水スプレーノズル1(モデル:1/8GG-SS3004)を使用し、2 L/minのスプレー噴射流量で実施した。

①実験内容

表 3.1.2-4 に示すように 3 種類の実験を実施した。すべてのケースは、室温(約 20 ℃)大気条件下で、水スプレー噴射流量 2 L/min で実施した。3 種のケースの初期エアロゾル濃度は、可能な限り互いに近くなるように制御した。各ケースを 3 回繰り返し、実験の再現性を確認した。ケース 1 では、エアロゾル粒子のみが注入され、得られた除去効率は後続のケースの参照データとした。ケース 2 と 3 では、それぞれ低濃度と高濃度の水ミストを、図 3.1.2-7 に示すミストサイズ分布で容器に注入した。3 種の評価された実験ケースのエアロゾル除去性能を比較することにより、提案した凝集の性能を検証し、エアロゾル水スプレーの除去効率に対するミスト濃度の影響を把握した。

表 3.1.2-4 試験条件

	Spray nozzle	Aerosol particles	Mist
Case 1	Nozzle 1	ZrO_2	None
Case 2	Nozzle 1	ZrO_2	Low C _{mist}
Case 3	Nozzle 1	ZrO_2	High C_{mist}

② 異なる水スプレー時間におけるエアロゾルサイズ

図 3.1.2-21 は、噴霧時間によるエアロゾルサイズの変化を示す。総噴霧時間は、すべての場合 で 3600 秒とした。エアロゾル粒子のみが注入されたケース1において、図 3.1.2-21 (a) のt = 0 秒の黒線は、水スプレー注入前の初期 ZrO_2 サイズ分布を示す。サイズ分布には、0.16 μ m と 0.55 μ m の 2 つのピークがある。製造された ZrO_2 粒子の質量中央値径 D50 は 0.15 μ m であるため、こ の分布は、 ZrO_2 粒子自体が容器に注入された後、容易に合体できたことを示している。特に、エ アロゾルのサイズの変化は、図 3.1.2-21 の (a)~(c) に示すように、すべてのケースで同様の傾 向が観察された。

t=0 秒では、エアロゾルのサイズ分布は、0.16 μ m と 0.55 μ m で前述の 2 つのピークを示し た。t=120 秒では、0.55 μ m ピークの大きなエアロゾル粒子の濃度は、0.16 μ m ピークの小さな 粒子の濃度よりも速く減少し、t=600 秒では、直径 DAP> 1 μ m のエアロゾル粒子はほぼすべて除 去された。t=3600 秒後では、0.16 μ m ピークのエアロゾル粒子のみが残存した。どちらも小さな 粒子に対して効率的に機能しなかったが、サイズの大きなエアロゾル粒子は慣性衝突と捕獲によ り効率的に除去できた。3 種のケース間のエアロゾルサイズの変化を比較すると、ミスト濃度が 高いほどエアロゾルの除去率が速くなることが定性的に観察できる。例えば、t=360 秒でのエアロ ゾル粒子濃度では、ケース1の DAP =0.55 μ m でのピーク値は、6000 P/cm³を超えていたが、ケ ース 2 では約 4500 P/cm³ であり、ケース 3 では 3000 P/cm³未満であった。



図 3.1.2-21 水スプレー中のエアロゾル粒子のサイズ変化 (a) ケース1:エアロゾル粒子のみ (b) ケース2:エアロゾル粒子と低濃度ミスト (c) ケース3:エアロゾル粒子と高濃度のミスト

③水スプレー効率

図 3.1.2-22 には、3 種のケースに対するエアロゾル除去の水スプレー効率 E の比較を示す。水 スプレー効率 E は、t=0 秒と t=2400 秒の間のエアロゾル粒子濃度 Cn (P/cm³)の差と、t=0 秒での 濃度の比として定義される。

$$E = \left(C_n \Big|_{t=0s} - C_n \Big|_{t=2400s} \right) / C_n \Big|_{t=0s}$$

図 3.1.2-22 のすべてのケースで、エアロゾル粒子と水スプレー液滴の間の強い慣性衝突により、1.0 μ mより大きいエアロゾル粒子の水スプレー効率 E は 1 に向かう傾向が見られた。ただし、直径が 0.2 μ m \leq DAP \leq 1.0 μ m のエアロゾル粒子の場合、エアロゾル粒子の直径が大きくなると E は徐々に大きくなり、慣性衝突や捕獲などの機械的影響も徐々に大きくなる傾向を示した。

ケース2と3の場合、水ミストが捕獲効率の小さい領域(直径約0.1~1 µm)であるグリーン フィールドギャップ内のエアロゾル粒子の除去効率を向上させ、ミスト濃度が高いほどグリーン フィールドギャップのエアロゾル除去効率が向上していた。これは、エアロゾル粒子が拡散泳動 力によりミストに向かって移動し、ミストと合体したためである。ミスト濃度が高くなると、拡 散泳動力が強くなり、エアロゾル粒子がミストと合体する可能性が高くなる。さらに、エアロゾ ル粒子によるミストの凝集は、粒子表面を濡らし、親水性を向上させる。より高いミスト濃度で は、より多くのミストが単一の粒子と凝集し、それを水膜で包むことができると考えられる。結 果として得られる粒子サイズの拡大と粒子表面の親水性の向上により、ミスト濃度の増加ととも にEが向上したと判断される。



図 3.1.2-22 エアロゾル径に対する水スプレー効率

④エアロゾル除去率

容器内の総エアロゾル粒子濃度 Cn (0.2 μ m \leq DAP \leq 1.0 μ m) の時間変化を図 3.1.2-23 に示 す。エアロゾル粒子濃度は、時間の経過とともに粒子濃度の勾配が徐々に減少するが、初期は急 速に減少する。

水スプレー前は、かなりの量の大きなエアロゾル粒子が容器内に存在していた。ケース2及び 3 の場合、エアロゾル粒子はミストと合体して、大きなサイズのミストエアロゾル粒子を形成し た。水スプレーがアクティブになると、ケース1で観察された大きなエアロゾル粒子と、ケース 2 と 3 で凝集したミストエアロゾル粒子が、慣性衝突と捕獲の影響により水スプレー液滴によっ て簡単に除去された。水スプレー時間が進むにつれて、大きなエアロゾル粒子と凝集したミスト エアロゾル粒子の量が急速に減少し、小さなエアロゾル粒子と小さなミストだけが確率を減らし て合体した。最終段階では、慣性衝突及び捕獲の影響が徐々に弱まり、エアロゾル粒子は初期段 階よりも低い速度で除去されたと考えられる。



図 3.1.2-23 試験容器内のガス中の総エアロゾル粒子濃度の時間変化 (0.2 μm ≤ DAP < 1.0 μmの場合)

エアロゾル除去プロセスにおける容器のガス空間内エアロゾル粒子濃度は、次式で表される。

$$dC_n(t)/dt = -\lambda_s C_n(t) + S_{Source} + S_{Deposition}$$
(2)

ここで、 λ_s は水スプレー(s⁻¹)によるエアロゾル除去率、Cn(t)は噴霧時間t(P/cm³)での ガス中のエアロゾル粒子濃度、S_{Source}とS_{Deposition}(P/cm³・s)はエアロゾル生成と損失を示す。水 スプレーの注入が始まると、ミストとエアロゾルの粒子は容器に注入されなくなり、S_{Source}はゼロ になる。さらに、沈殿によるミスト及びエアロゾル粒子の損失率は、水スプレーによるエアロゾ ル除去率と比較して無視できるため、S_{Deposition}もゼロと想定される。したがって、容器内のエアロ ゾル粒子濃度の変化の式は次のように表わすことができる。

$$C_n(t) = C_n(0)e^{-\lambda_s t}$$
(3)

ここで、Cn(0)は初期のエアロゾル粒子濃度である。

噴霧の過程で、主なエアロゾル捕獲メカニズムが変化することが観察されたため、3ケースに分けてエアロゾル粒子除去率入sを評価した。図3.1.2-24に示すように、エアロゾル粒子のみが注入されたケース1の場合、エアロゾル除去率入sは120秒から1200秒までの間で0.000894であった。ミスト噴射のケース2と3の場合、ミスト濃度とともに入sが増加し、それぞれ0.00158と0.00203であった。この増加は、ミストが凝集核として機能した結果であり、ミスト濃度が高くなると凝集核が増えて、より多くのエアロゾル粒子と水スプレー液滴が合体し、最終的にエアロゾルの除去率が高くなった。



図 3.1.2-24 水スプレー時間に対するエアロゾル除去率

120 秒から 1200 秒の間における 0.2 μ m~1.0 μ m の範囲の様々なエアロゾル粒子直径のエア ロゾル除去率 λ s を図 3.1.2-25 (a) に示す。いずれの場合も、慣性衝突と捕獲の機械的収集メカ ニズムが働き、エアロゾル粒子が大きい程、 λ s が大きくなった。3 ケースを比較すると、同一エ アロゾル粒子サイズの除去率がミスト濃度とともに増加していた。異なる粒子直径のエアロゾル のミスト濃度に対する除去率比 η を図 3.1.2-25 (b) に示す。ここで、 η は、ミストありの場合の エアロゾル除去率とミストなしのケース1 との除去率の比として定義される。

$$\eta = \lambda_s / \lambda_{s_without mis}$$
⁽⁴⁾

 η =1は除去率がケース1の除去率と同じであることを示し、 η >1は除去率がケース1の除去 率よりも η の倍数で改善されたことを示す。図 3.1.2-25 (b) から明らかなように、エアロゾル粒 子のサイズが異なると、水ミストの程度により λ の改善が異なる。特に、エアロゾル粒子が小さ くなる程、すべてのミスト濃度で η が高くなることが観察され、0.2~0.9 μ mのエアロゾル粒子、 特に 0.2~0.6 μ mの範囲のエアロゾル粒子では、ミスト濃度とともに λ が明らかに増加した。1 μ mのエアロゾル粒子の場合、 η の値はケース 1 (ミストなし) からケース 2 (ミスト濃度が低 い。)で大幅に増加したが、ケース 2 からケース 3 (ミスト濃度が高い。)では、0.00469 から 0.00473 とわずかに増加した。

したがって、0.2~0.6 μ mのサイズの小さなエアロゾル粒子は、水ミストによって引き起こさ れる泳動力によって容易に駆動され、ミストと合体する可能性が高くなると推定される。ただし、 DAP = 1 μ mのエアロゾル粒子は、水ミストがなくても比較的高い効率で水スプレー液滴により 除去できる。水ミストが最初に注入されると、少量のミストでもエアロゾル粒子と合体し、グリ ーンフィールドギャップを超えてサイズが大きくなる。このため高濃度のミストは、DAP = 1 μ m のエアロゾル粒子に対し、DAP \leq 0.6 μ mのエアロゾル粒子ほどには η を改善しない。



図 3.1.2-25 異なる粒子サイズでのエアロゾル除去
 (a) エアロゾル除去率 λ s (b) エアロゾル除去率比 η

(2) エアロゾル除去に対する水スプレー特性の影響

3種類の異なるフルコーン水スプレーノズル (ノズル 1、ノズル 2、及びノズル 3)を使用して、 エアロゾル除去効率における異なる水スプレー特性の影響を調査した。

①水スプレー効率

図3.1.2-26は、異なるミスト濃度レベルでの3種類のノズルの水スプレー効率を示す。ミストがない場合、図中(a)に示すように、3種のノズルの水スプレー効率は非常に似ている。図中(c)に示すように、ミストを注入してCmistが高い場合を例にとると、ノズル1の水スプレー効率が最も向上し、次にノズル2、最後にノズル3となった。





- (c) Cases with high C_{mist}
- 図3.1.2-26 異なるミスト濃度レベルでの3種のノズルの全体的な水スプレー効率

②エアロゾル除去率

図3.1.2-27は、異なるミスト濃度レベルでの3種のノズルの正規化されたエアロゾル数濃度の時 間変化を示す。ミストがない場合、図中(a)に示すように、3種のノズルの正規化されたエアロ ゾル数濃度は非常に似ている。一方、図中(c)に示すように、ミストを注入した高Cmistの場合 を例にとると、エアロゾル粒子はノズル1、ノズル2、最後にノズル3の順に速く除去される。

図 3.1.2-28 は、異なるミスト濃度レベルでの 3 種のノズルのエアロゾル除去率を示す。ミストの注入によりエアロゾル除去率が向上したことはより明らかであり、 $\lambda_{s,nozzle1} > \lambda_{s,nozzle2} > \lambda_{s,nozzle3}$ となった。



(c) Cases with high C_{mist}

図3.1.2-27 異なるミスト濃度レベルでの3種のノズルのエアロゾル数濃度の時間変化



図3.1.2-28 異なるミスト濃度レベルでの3種のノズルのエアロゾル除去率

③議論

図 3.1.2-27 (b) から、 $U_{max, nozzle1} > U_{max, nozzle2} > U_{max, nozzle3}$ であることが分かる。またエアロゾル除去率にも同様の傾向があり、 $\lambda_{s, nozzle1} > \lambda_{s, nozzle2} > \lambda_{s, nozzle3}$ である。液滴 Umax が大きいほど、乱流と容器内の混合を引き起こし、噴霧領域外のエアロゾル粒子は、噴霧領域内により速く移動できると結論付けることができる。したがって、液滴 Umax は、E 及び λ s を決定する主要な要素であると考えられる。

(3) エアロゾル除去に対するエアロゾル特性の影響

エアロゾル粒子の模擬物質として3種の異なるタイプの粒子を使用して、エアロゾル特性がエ アロゾル除去性能に及ぼす影響を調査した。ここでは、すべての実験ケースで水スプレーノズル 3(モデル:TG2)を使用して実施した。

①エアロゾルサイズ分布の時間的推移

図3.1.2-29は、3種類の粒子を使用したミストのない実験ケースでのエアロゾルサイズ分布の時間変化を示す。粒子の特性(初期サイズ、濡れ性、溶解度など)は初期サイズ分布に影響を与え、 その後の除去プロセスに影響を与える。



(a) Case of ZrO_2 without mist (b) Case of TiO_2 without mist



(c) Case of SiC without mist

図 3.1.2-29 エアロゾルサイズ分布の時間変化

②水スプレー効率

図3.1.2-30は、異なるミスト濃度レベルでの種々の粒子の水スプレー効率を示す。高Cmistの場合、青い実線の三角形はZr02、青い半三角形はTi02、青い中抜き三角形はSiCの水スプレー効率である。同じC_mistでは、 $E_{Zr0_2} > E_{Ti0_2} > E_{SiC}$ であることが分かる。



図3.1.2-30 異なるミスト濃度レベルでの異なる粒子の水スプレー効率

③エアロゾル除去率

図3.1.2-31は、異なるミスト濃度レベルでの種々の粒子の正規化されたエアロゾル数濃度の時間変化を示す。高いCmistの場合、青い実線の三角形はZrO₂、青い半三角形はTiO₂、中抜きの青い 三角形はSiCの数濃度である。同じCmistでは、ZrO₂、TiO₂、SiCの順で速く除去できた。

図3.1.2-32は、異なるミスト濃度レベルでの種々の粒子のエアロゾル除去率を示す。すべての Cmistレベルで $\lambda_{s,Zro_2} > \lambda_{s,Sic}$ であることが分かった。



図3.1.2-31 異なるミスト濃度レベルでの異なる粒子の エアロゾル数濃度の時間変化



図3.1.2-32 異なるミスト濃度レベルでの異なる粒子のエアロゾル除去率

④議論

実験結果をまとめると、 $E_{ZrO_2} > E_{TiO_2} > E_{Sic}$ であり、また $\lambda_{s,ZrO_2} > \lambda_{s,TiO_2} > \lambda_{s,Sic}$ であった。この理由として以下が考えられる。まず、図 3.1.2-18 より、初期サイズ分布は ZrO_2 の2番目のピークが最も大きく、次に TiO_2の2番目のピーク、最後に SiC のピークが最も小さい。より大きな粒子は、より強い慣性衝突により、より高い効率で除去できる。次に、表 3.1.2-3 に示すように、3種の粒子は表面の濡れ性と溶解度が異なる。親水性の ZrO_2 粒子の場合、液滴の表面に接すると、高い確率で水滴に捕えられる。疎水性の TiO_2及び SiC 粒子の場合には、水スプレー液滴と相互作用しても、一部の粒子は液滴表面から離れると考えられる。

3.1.2.6 試験結果まとめ

液滴試験の成果

単一の液滴と微粒子との相互作用現象を観測して、粒子の捕獲挙動とその相互作用メカニズムを確認した。

②微粒子飛散試験の成果

種々の濃度の予備的な水ミストを噴射したスプレー液滴によるエアロゾル粒子捕捉の効果を評 価するための実験を実施した。スプレー液滴のサイズと速度、初期のミストのサイズと濃度、エ アロゾルの粒子サイズと濃度の時間変化などを測定し、様々なエアロゾル粒子直径に対するスプ レー効率やエアロゾル除去率などのパラメータを評価した。

実験では、グリーンフィールドギャップ内のエアロゾル粒子の除去効率を向上させるために、 液滴をスプレーする前に水ミストを使用して、新たに提案した凝集法を検証した。より高いミス ト濃度が、泳動によって水ミストとエアロゾル粒子間との合体を生じ、グリーンフィールドギャッ プ内のエアロゾル粒子に対してより高いスプレー効率と高い除去率をもたらす結果となった。エ アロゾル粒子のサイズ範囲が 0.2 μm~1 μm の場合、ミストを使用すると、すべてのミスト濃度 で大きなエアロゾル粒子をより速く除去したが、一方、より小さいエアロゾル粒子は、ミストに よってより早く除去された。

また、水ミストは異なるノズルに対して E とλs の改善に寄与することが分かった。液滴最大 速度である Umax が大きいと容器内の乱流/混合が強くなり、液滴とエアロゾル粒子の相互作用が 強化されるため、Umax は E 及びλs を決定する重要な因子である。

さらに、水ミストは ZrO₂、TiO₂、及び SiC 粒子の E 及び λ s の改善に役立つことが分かった。ただし、異なる種類の粒子毎に E 及び λ s は改善効果が異なり、 $E_{ZrO_2} > E_{TiO_2} > E_{SiC}$ であり、 $\lambda_{s,ZrO_2} > \lambda_{s,TiO_2} > \lambda_{s,SiC}$ であった。この理由は、それぞれの粒子の表面濡れ性と溶解性が異なるためであり、親水性の ZrO₂粒子の場合には、液滴表面に接触すると、高い確率で水滴に捕獲される。一方、疎水性の TiO₂及び SiC 粒子の場合には、水スプレー液滴と相互作用しても一部の粒子は液滴表面から離れる。

グリーンフィールドギャップにあるエアロゾル粒子は除去することが困難であるが、水ミスト を使用した凝集法は福島第一に適用可能であるため、有効な手法と考えられる。特に、より高い ミスト濃度が、より小さなエアロゾル粒子の除去に大きな改善効果があることが分かったことは 重要である。小さなエアロゾル粒子を対象とする場合には、より高いミスト濃度を PCV に事前に 注入することにより、水スプレー液滴によるエアロゾルの除去を可能にし、また、DAP>0.7µmの 大きなエアロゾル粒子を対象とする場合には低濃度のミストで効果が現われる。損傷していない 原子炉であっても、PCV 表面に振動または衝撃が加わると、堆積したエアロゾルの再浮遊が引き起 こされる可能性がある。したがって、本研究で開発された水スプレーシステムは、PCV 内における 浮遊エアロゾルを抑制するためにも使用可能である。

参考文献

- Inter-Ministerial Council for Contaminated Water and Decommissioning Issues, 2015. Mid-and-Long-Term Roadmap towards the Decommissioning of TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. https://www.meti.go.jp/english/earthquake/nuclear/decommissioning/pdf/20170926_01a.pdf (accessed 29 November 2019).
- (2) Lemaitre, P., Porcheron, E., Nuboer, A., Grehan, G. (2006). "Interferometric Laser Imaging development for Droplets Sizing (ILIDS) in Hostile Environment," in Proceedings of ICLASS, (Kyoto, Japan).
- (3) Raffel, M., Willert, C. E., Scarano, F., Kähler, C. J., Wereley, S. T., & Kompenhans, J. (2018). Particle Image Velocimetry: a Practical Guide. Springer.
- (4) Mölter, L., Keßler, P., (2004). Partikelgrößen-und Partikelanzahlbestimmung in Der außenluft Mit Eidem Neuen Optischen Aerosolspektrometer. Gefahrstoffe Reinhaltung der Luft. 64(10), 439-447.

3.1.2.7 RPV 内温度解析

(1) 目的

現在の推定と調査によると、1F1の RPV の内部には、溶融燃料デブリの一部が残存している。燃料デブリ取出し時に発生する放射性微粒子の閉じ込めのためには、燃料デブリをセメント系材料 により被覆する方法が有効な手段と考えられるが、一方、被覆によって、崩壊熱が放熱しにくく なり、燃料デブリ及び被覆材の温度を上昇させる可能性がある。

このため、本節では、CFD コード STAR-CCM+を使用して⁽¹⁾、被覆材による燃料デブリの温度を解 析するとともに、冷却性能について評価を行う。

具体的には、今年度は、原子炉圧力容器内における燃料デブリ及び圧力容器の温度に関して、 被覆材有無の条件下での熱解析を行った。

(2) 解析モデルの設定

RPV の 3D モデル形状

図 3.1.2-33 に 1F1 の RPV と底部が破損した RPV の形状の 3D モデルを示す。また図 3.1.2-34 に モデルのメッシュを示す。



図 3.1.2-33 1F1 の RPV 形状 3D モデル



図 3.1.2-34 解析モデルメッシュ

図 3.1.2-35 に燃料デブリの平均崩壊熱を示す。崩壊熱は Way-wigner 式⁽²⁾を使用して推定した。

Decay Heat Estimation

• Way-Wigner

$$P_{d}(t) = 0.0622 P_{o} \left[t^{-0.2} - (t_{o} + t)^{-0.2} \right]$$

- $P_d(t)$ thermal power generation due to beta and gamma rays
- P. is the thermal power before shutdown
- t is time elapsed after the accident in seconds t, is time of thermal power level before shutdown in seconds



図 3.1.2-35 燃料デブリ平均崩壊熱

格納容器の側壁を通る効果的な熱伝達がないと仮定すると、一定の境界条件が適用される。 図 3.1.2-36 に境界条件と使用した材料物性値を示す。



Boundary Conditions and Thermophysical Properties

Initial Temperature set as 15 °C for all regions

図 3.1.2-36 境界条件と材料物性値

②CFD 解析方法

熱伝達メカニズムとしては、固体ガス領域間の対流と固体領域間の伝導を考慮した。

崩壊熱は、固体のエネルギー方程式では熱源として表した。また、固体領域と流体領域の間の熱 伝達は、共役熱伝達法を使用して計算し、局所熱伝達係数は、自然対流の乱流モデルとの関係を 用いて計算した。

RPV と制御棒ガイドチューブの複雑な構造を考慮して、乱流モデルとして実現可能な k- ϵ 2 層 モデルを使用した。k- ϵ 乱流モデルは、乱流渦粘性を決定するために、乱流運動エネルギーk と 乱流散逸率 ϵ の輸送方程式を解くモデルである。2 層アプローチは、レイノルズ数が低いアプロ ーチの代わりに使用でき、粘性の影響を受けるレイヤー(粘性サブレイヤーとバッファーレイヤ ーを含む)に K-Epsilon モデルを適用できる。このアプローチでは、計算は 2 つの層に分割され、 壁の隣の層では、乱流散逸率 ϵ と乱流粘度 μ t が壁距離の関数として指定される。いくつかのタ イプの 2 層モデルが提案されており、STAR-CCM +にはせん断駆動流用に 2 種類、浮力駆動流用に 1 種類が実装されている。

本研究では、浮力が支配的な力であるため、浮力駆動(Xu)モデルを使用した⁽³⁾。このモデル は、自然対流の直接数値シミュレーションの分析から開発された手法であり、1 方程式乱流モデ ルを使用して自然対流境界層を評価できる。y + <= 160の領域には1方程式モデルを適用し、y +> 160には標準 k- ε モデルを適用して、2 層モデルを構築した。

(3) 解析結果(被覆材なし)

図 3.1.2-37 には種々の崩壊熱に対する損傷のない RPV 温度分布を示す。また図 3.1.2-38 に 種々の崩壊熱に対する各部位の温度分布を示す。



Effect of RPV Condition - Intact

2019-10% Decay Heat ,k_{debris} = 10 W/m-K





図 3.1.2-37 種々の崩壊熱値に対する RPV 温度分布(損傷なし)


Effect of RPV Condition – Intact



30 %崩壊熱の場合、空冷状態では RPV 内温度は 60 ℃近くに上がるが、ペデスタルの温度は約 20 ℃程度となる。

図 3.1.2-39 に 30 %崩壊熱に対する損傷のある RPV 温度分布を示す。また図 3.1.2-40 に各部位 における温度分布を示す。RPV 下部に損傷部があることにより、PCV 内の室温の気体と混合しやす くなるため、RPV 内温度は 30 ℃以下に抑えられる。



図 3.1.2-39 30 %崩壊熱に対する RPV 温度分布(損傷あり)



Effect of RPV Condition - Breached



ここで、図 3.1.2-41 に損傷していない RPV と損傷した RPV との温度の比較を示すが、損傷部 が空冷を促進していることが分かる。



Effect of RPV Condition – Comparison 2019 – 30% Decay Heat ,k_{debris} = 10 W/m-K

(a) RPV 内温度分布

図 3.1.2-41(1) 損傷有無 RPV の温度比較(1)



(b) RPV、燃料デブリ温度と崩壊熱の関係 図 3.1.2-41(2) 損傷有無 RPV の温度比較(2)

(4) 解析結果(安定化被覆材あり)

燃料デブリ取出し時に放射性物質の飛散防止及び安定化を図るために、セメント系材料を RPV に注入した場合における RPV 内温度評価結果を以下に示す。

図 3.1.2-42 は、種々の被覆材注入高さと被覆材熱伝導率に対する RPV 内温度解析結果を示す。 熱伝導率の高い被覆材は、溶融した燃料デブリからより多くの熱を伝達できる。評価の結果、被 覆材注入高さは温度分布にはあまり影響しないことが分かったため、図 3.1.2-42 の(b)、(c)に は、Level 1における結果のみを示す。

この結果、2021 年の崩壊熱 30 %の条件下で、被覆材の熱伝導度が 0.3 w/mk と低熱伝導度の場合には、燃料デブリ平均温度は約 120 ℃、被覆材温度は約 100 ℃、RPV 温度は約 20 ℃、ペデス タル温度は約 23 ℃となった。



(a) 被覆材高さ









(c)各部位における被覆材熱伝達率と温度の関係

図 3.1.2-42 種々の被覆材注入高さと被覆材熱伝導率に対する RPV 内温度



図 3.1.2-43 には、制御棒案内管を被覆した場合としない場合における溶融燃料デブリ冷却性に 関する比較を示す。RPV 底部下にある制御棒案内管を被覆せずに冷却すると、5 KW の除熱により、 燃料デブリの平均温度は約60 ℃(最大約90 ℃)、被覆材の平均温度は約50 ℃(最大約85 ℃) まで低減でき、被覆した場合の有効な手法であることが分かった。





Comparison

Comparison

2021 %30 Decay Heat - Level 1 RPV + Bioshield Fill



図 3.1.2-43 制御棒案内管の被覆有無における溶融燃料デブリ冷却性

(5) RPV 内温度分布のまとめ

STAR-CCM +を使用して、1F1 の RPV におけるコーティングされた燃料デブリの冷却性に関する 3D シミュレーションを実施した。

- ① シミュレーションは、溶融した燃料デブリからの崩壊熱による RPV 構造物の温度分布を解析 することを目的として実施した。解析結果から、燃料デブリと RPV の温度が RPV 内の空気の 対流に大きく依存することが分かった。
- ② 貫通部のある RPV に関するシミュレーションによる温度分布は、測定結果と一致するため、この条件でセメント系材料の被覆の影響を解析評価した。解析の結果、セメント系材料の被覆方法と熱的特性の両方が、燃料デブリからの熱伝達に影響を与えることが分かった。また、セメント系材料の施工高さは、燃料デブリからの熱伝達に大きな影響を与えないことが分かった。
- ③ RPV 下部にある制御棒案内管を被覆した場合としない場合における燃料デブリ冷却性について解析を行った。その結果、被覆せずに徐冷した場合には効果的に燃料デブリを効果的に冷却できることが判明した。本結果により、水スプレーや冷却管の設置などの様々な冷却方法によって、燃料デブリ、セメント系材料及び構造物の温度を十分に低減できる見通しを得た。

参考文献

- (1) STAR-CCM+ Documentation, Version 14.02.012 © 2015 CD-adapco[™].
- (2) K. Way, E. P. Wigner, "The Rate of Decay of Fission Products", Phys. Rev., vol. 73, no. 11, pp. 1318-1330, Jun. 1948.
- (3) W. Xu, Q. Chen, F.T.M. Nieuwstadt, 1998. "A new turbulence model for near-wall natural convection", Int. J. Heat Mass Transfer, 41, pp. 3161-3176.

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:原子力機構)

(1) ジオポリマーの仕様検討

被覆材のジオポリマーとしては、フランスで実績のある JAEA 製ジオポリマー、欧州で実績のあ るジオポリマーである富士電機 SIAL 及びアドバンエンジ製作のジオポリマーを試験材として使 用した。以下ではそれぞれを GP-J、GP-S、GP-A 材と呼ぶ。またジオポリマーの作成方法等はほぼ 同一のため、以下には作成方法は JAEA 材 GP-J を中心に記述する。

GP-J については、適切なジオポリマー性状に関して東京大学と JAEA と協議の上、燃料デブリ 安定化被覆材の特性評価に供するジオポリマーを作製した。

今年度は、メタカオリンを使ったジオポリマーについて、川砂を含む 10 試料及び川砂を含まない 10 試料を作製し、燃料デブリ安定化被覆材の特性評価に供した。以下の配合組成及び作成手順を示す。

(2) ジオポリマーの作製方法の検討

GP 作製に必要な原料を表 3.2.1-1 に示す。

原料(組成)	製造会社種類
① 水酸化ナトリウム (NaOH)	和光純薬 濃度 97 %以上
② 水ガラス (H ₂ 0, SiO ₂ , Na ₂ 0)	キシダ化学 ケイ酸ナトリウム溶液1号
③ 純水 (H ₂ 0)	MERCK Millipore
④ メタカオリン (SiO ₂ , Al ₂ O ₃)	Imeris Argical M1000

表 3.2.1-1 GP 作製に必要な材料・機器

GP-Jの配合組成は、3.8 SiO₂: 1 Al₂O₃: 1 Na₂O: 13 H₂O となるように原料を量りとる必要が ある。そのために必要な原料質量比は、①1.00: ②5.73: ③14.6: ④ 13.3 である。

(3) ジオポリマーの作製

- a)上記原料質量比をもとに、作製に必要な原料①~③の質量を量りとり、番号順に蓋付きビーカーに投入する。また、量りとりの誤差は、1 %未満に抑える。
- b)原料投入後、磁気攪拌器で24時間撹拌する。水ガラスは高分子化合物であり、その鎖状構造 を断ち切りその後の反応効率を高めるために長時間撹拌する。
- c)24時間の撹拌後、ポリビーカーに①~③の混合溶液と④を混ぜ合わせて、攪拌器で混錬する。 混合溶液は非常に高いアルカリ性の溶液であるため、液体が飛び散らないようゆっくり混錬し その後は④の粉末のダマがなくなるまで速く混錬する。
- d) 混錬した GP ペーストを樹脂材料の型枠に流し込み、念のため GP 内の気泡を抜くため容器に衝撃を与える作業を 10 回程度行う。その後、チャック付きの袋の中に湿らせたティッシュなど とともに入れ、密封した状態で1週間室温に静置する。湿らせたティッシュを入れるのは、GP

を相対湿度100%環境中に保った状態で養生するためである。

3.2.2 被覆材特性評価

ジオポリマーの評価としては、圧縮強度、熱伝導率等各種基礎材料特性を把握した。一部の材料は、 y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。

また、沈降型超重泥水については、高温時における沈降挙動を把握した。

(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⁽¹⁾

メタカオリン、水ガラス及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分間混錬し試作した。

また作成後、以下の測定条件で粘性試験等流動特性試験を実施した結果、加熱処理なしの混練 直後の粘度は、3.2 Pa·s であった。

<測定条件>

使用装置	: デジタル粘度計	Brookfield 製	DV1 MLV
Torque Range	: LV		
Spindle Name	: LV-3		
RPM	: 1,00		
Spindle Viscosity Range	:12 - 120 Pa.s		

②NB研究所沈降型重泥水の試作⁽²⁾

NB研究所と協議の上で試作した高温試験用超重泥水試料の作泥量と配合組成を表 3.2.2-1 に示す。

材料名	機能	配合組成
水道水 [g]	-	100
NBクレイ (ベントナイト) [g]	増粘剤	4.0
NB ウェイト(バライト粒子)[g]	_	0.5
NBフロー(ピロリン酸塩 Na)[g]	分散剤	400
超重泥水流体密度 [g/mL]	_	2. 57

表 3.2.2-1 高温試験実施時の沈降型超重泥水の配合組成

(2) 被覆材特性評価

①ジオポリマーの照射試験

1) 試験目的

ジオポリマー及び改良材について、照射による材料強度、熱伝導率及び水素発生挙動を把握し、 燃料デブリ取出し時と保管時に適した材料及び方法について検討する。 2)試験条件

(株) アトックス技術開発センター⁶⁰Co ガンマ線照射施設の照射室内と ⁶⁰Co 線源の外観を図 3.2.2-1 に示す。⁶⁰Co 線源(放射能:約0.60[PBq](2019年4月時点))は円筒形のカバーに囲ま れ、上下に駆動することで線源の出し入れを行っている。線量率はあらかじめ電離箱式線量率計 にて試料配置場所の線量率を測定し、線量率に照射時間を乗じることで試料のガンマ線積算線量 を算出する。線量率測定の様子を図 3.2.2-2 に示す。



図 3.2.2-1 照射室内と⁶⁰Co線源カバー



図 3.2.2-2 線量率測定状況

照射試験での試料配置を図 3.2.2-3 に示す。試験では試料を封入したガラスアンプルを照射したため、試験中の転倒防止や割れが生じた際の破片の飛散防止の対策を講じた。試験は、多くの 試料を高い線量率で照射する必要があったため、2 段で配置した。

JAEA-Review 2020-043



図 3.2.2-3 照射試験状況

照射試料の積算線量を表 3.2.2-2 に示す。なお、試料に厚みや奥行きがあるため配置位置により放射線量が異なるが、試料の中心を線量率として評価した。

試料	評価目的	積算線量 [kGy]	
アトックス 2 回目照射試験(2019 年 10 月実施)			
GP-J	圧縮強度	670	
GP-J	熱伝導率	670	
GP-S	水素ガス発生量	990	

表 3.2.2-2 アトックス照射試験の照射試料一覧

3) 試験結果及び考察

a) 強度評価

i)目的

炉心溶融により大きな穴が空いており非常に脆弱な状態であると想定される圧力容器下部をGP で固定すれば、制御棒駆動機構や燃料デブリ等の落下のリスクを低減することができ、燃料デブ リ取出しを容易にすることができる。また、GP を格納容器下部に存在する燃料デブリに被覆する ことは、燃料デブリの接触により脆弱な状態であると考えられるペデスタル等の基礎部分を補強 する役割として機能することが期待される。

本試験では、GP 及び添加剤を加えた改良材の圧縮強度試験を実施することで、圧力容器底部及 び格納容器の補強材として GP を評価した。 ii)試験方法

圧縮強度試験を実施した GP-J 試料は、直径 50 mm、高さ 100 mm のプラスチック製型枠に流し 込み、100 %相対湿度中で 1 週間養生し固化した。なお、被覆時に燃料デブリの熱による乾燥収縮 及び割れ防止対策を想定し、川砂を添加した。また、炉内環境における圧縮強度評価のため一部 の試料を照射した。作製した GP-J 試料の条件を表 3.2.2-3 に示す。

試料	条件	
ブランク	-	
川砂添加	添加量:27.7 wt% 粒径 0.2~0.4[mm] ((有)竹折砿業所 硅砂 6 号)	
照射	照射量:670[kGy]	
照射+硅砂添加	上記参照	

表 3.2.2-3 圧縮強度試験の GP-J 試料

GP-J 試料の圧縮強度試験は、一般財団法人建材試験センター(以下、建材試験センター。)の 中央試験所にて実施した。試験時の GP-J 試料の材齢は 92 日であった。試験前に、試料の両底 面を研磨により面出しした。試験方法は、日本工業規格の JIS A 1108 に準じて行った。試験中 の様子を図 3.2.2-4 に示す。



図 3.2.2-4 GP-J 圧縮強度試験

iii)結果及び考察

圧縮強度試験の結果を表 3.2.2-4 に示す。

試料	直径 [mm]	高さ [mm]	最大荷重 [kN]	圧縮強度 [N/mm ² (=MPa)]
ブランク	50.1	98	29.2	14.8
砂添加	50.1	97	123	62.4
照射	50.0	97	58.4	29.7
砂添加+照射	50.0	98	84.2	42.9

衣 3.2.2-4 GP-」 訊科の 上縮 独 度 訊 験 fi

ブランク試料に比べ、川砂の添加及び照射により GP-J の圧縮強度が高くなった。一般的にコン クリートを作製する際に乾燥時のヒビ割れ防止、体積増加、強度や耐久性の向上などの目的で砂 などの骨材が混錬されており、GP-J においても同様の効果が得られた。また、放射線を照射する ことで圧縮強度が高まる傾向が見られた。しかし、この傾向が照射に起因するのか、乾燥や照射 により GP 内水分量が減少したことに起因するのかを判断することができなかった。

砂を添加した照射試料は、ブランク試料に比べて約3倍の圧縮強度であったが、非照射試料に 比べて圧縮強度は低い結果となった。この原因解明のためには詳細調査が必要であるが、砂添加 により放射線環境下においても補強材として十分機能する強度を有することが分かった。

以上の結果より、GP を本工法へ適用する上では砂等硬い添加剤を加えることで圧縮強度を向上できること、放射線照射が圧縮強度を向上する可能性のあることが分かった。

b) 熱伝導率評価

i)目的

本試験では、GP3 種について燃料デブリに直接被覆する材料として重要な物性値である熱伝導 率を測定した。炉内に被覆した際の放射線や熱などの影響による性能の違いを確認するため、照 射や加熱焼成などの処理を加えた試料、及び材料自身の熱伝達性能向上を目的とした金属粉末の 添加よる改良材について熱伝導率を測定した。

ii)試験方法

熱伝導率の測定は、東京大学低温科学研究センター⁽³⁾(以下、「低温センター」。)が所有する 共同利用装置、Quantum Design 製の Physical Property Measurement System(以下「PPMS」。)を 用いて実施した。その外観を図 3.2.2-5 に示す。また図 3.2.2-6 に熱伝導率測定装置を示す。こ の装置内に測定試料をセッティングする必要があるが、測定装置にセッティング可能な試料大き さが 10 mm 角以下の直方体または円柱と小さかったため、試料を成型加工し PPMS 測定専用の金属 板を導電性接着剤により接着した。成型加工後の試料を図 3.2.2-7 に示す。

JAEA-Review 2020-043



図 3.2.2-5 PPMS (Quantum Design 製)の外観



図 3.2.2-6 熱伝導率測定装置とその外観



図 3.2.2-7 成型加工後の試料

PPMS による測定は、室温かつ真空環境で実施した。測定時間の前半は試料底面をヒーターで加熱して後半はヒーターを切ることで、高温である底部と低温である上部の温度を測定し、その温度差 ΔT [K]を計算する。測定後は ΔT [K]が無限遠時間後に定常状態となった時の温度差 ΔT_{∞} を PPMS 内プログラムにより計算する。

ΔT_∞を計算後、以下に示す式 (3.1)を用いて測定試料の熱伝導率を算出する。

$$\lambda = \frac{Q \cdot L}{S \cdot \Delta T_{\infty}} \tag{3.1}$$

ここで、 λ [W/m-K]は熱伝導率、Q[W]はヒーターからの熱量、L[m]は試料厚さ、S[m²]は試料断面積である。

iii)試験結果

熱伝導率の結果を表 3.2.2-5 に示す。なお、測定誤差は測定時に算出された値を使用した。

試料 条件 熱伝導率 [W/m-K] GP-J-ブランク $0.389 \pm$ GP-J-加熱 100 °Cで加熱乾燥 $0.462 \pm$ GP-J-照射 670[kGy] $0.398 \pm$ GP-J-加熱+照射 100 ℃で加熱乾燥, 670[kGy] $0.403 \pm$ GP-S-照射 993[kGy] $0.443 \pm$ GP-S-Pd 粉末添加 3 wt.%添加, 993[kGy] $0.514\pm$ GP-A-照射 990[kGy] $0.335 \pm$

表 3.2.2-5 GP 試料の条件と熱伝導率(東京大学低温センター)

また、平成30年度及び今年度取得した熱伝導率データを図3.2.2-8に示す。図の左側が平成30年度の試験結果であり、右側が今年度取得した測定結果である。



図 3.2.2-8 GP 試料の熱伝導率

60 - 80 - 平成 30 年度の結果では、ブランク試料に比べ照射及び加熱乾燥させた試料の熱伝導率は低くなった。特に、加熱乾燥処理後に照射した試料の熱伝導率は、ブランク試料のおよそ半分となった。水(20 ℃)の熱伝導率は 0.602 [W/m-K]⁽⁴⁾と GP よりも高く、照射や加熱による GP 内水分量の減少が大きく影響したと考えられる。また、Pd 粉末を添加した試料の熱伝導率は向上しなかった。Pd 自身の熱伝導率は 72 [W/m-K]⁽⁵⁾と GP に比べて高いが、粉末粒子が接触しておらず粒子間で熱伝達が効率良く行われなかった可能性がある。

一方、今年度測定した GP-J 試料については、熱伝導率が一定値をとらずに時間経過に伴い減少 する挙動を示した。測定結果を図 3.2.2-9 に示す。



図 3.2.2-9 熱伝導率の時間変化(GP-J-加熱)

原因の1つとして、GP 内部からの水分離脱が挙げられる。測定は、試料からの放熱を防ぐため 真空状態で実施したが、GP 内部の水分が抜けやすい環境であった可能性がある。または、高温側 を加熱したことによる水分脱離も考えられる。実際、測定後の試料の質量は測定前に比べ平均4% 程度減少していた。GP からの水分脱離は測定中絶えず起こっていたと予想され、長時間測定にお いても値が収束せず下がり続けた可能性がある。

以上のことから、熱伝導率の時間変化は、初期段階では GP の比熱による影響で比較的早く減少 し、測定中全体を通して水分が脱離した影響で長時間測定を行っても緩やかに減少したと判断さ れる。また、測定中に GP 内の状態が常に変化していること、真空中で測定を行っていることを考 慮すると、測定前の状態における熱伝導率として算出することが適切であるとした。したがって、 GP 内水分量の変化が小さく熱のみによる影響が大きい測定初期段階の値に関してフィッティング による直線式を求め、その切片を測定前状態における熱伝導率として求めた。

算出に用いた区間及びフィッティング直線を図 3.2.2-10 に示す。



図 3.2.2-10 熱伝導率の算出(GP-J-加熱)

図 3.2.2-8 より、GP-J 試料は熱伝導率が照射や加熱によらない結果となった。これは、GP 内の 細孔の大きさが関係していると考えられる。GP-J は空隙割合が小さく、熱伝導率に大きく影響を 与えなかった可能性がある。一方、GP-S の内部細孔は、その径が大きかったために水の影響を受 けやすくブランク試料の熱伝導率は高かったが、照射後や加熱後は水分が抜けた影響で空隙が多 く存在し、熱伝導率が大きく減少したと考えられる。GP-A はブランク試料の中で最も小さい値と なったが、組成及び作製(養生)方法に起因し、GP 内の水分量が少ない状態であったと考えられ る。

本測定を通じて、GP の熱伝達性能は組成(作製方法)、細孔大きさ(空隙割合)、及び含水量に 大きく依存する可能性があること、Pd など熱伝達性能が高い物質であっても粉末状態で添加する と材料自身の熱伝達性能は大きく向上しないことが分かった。これより、燃料デブリに直接接す る GP は熱により水分が蒸発し熱伝達性能が低い状態であること、被覆上部分は滞留水及び超重泥 水から水分が供給されるため熱伝導率は高くなることが推測される。

c)水素発生評価

i)目的

燃料デブリ取出し作業に使用された被覆材は、燃料デブリや炉内滞留水等に含まれる放射性核 種等と接触するため、放射性廃棄物として保管される。これら被覆材は自由水を固化体内に保持 しているため、長期保管中の放射線分解による水素ガス発生による保管容器の損傷につながる可 能性がある。したがって、放射線照射による水素ガス発生特性の調査及び廃棄物保管時における 水素ガス発生量低減対策が肝要である。

本試験では、3 種類の GP 及び超重泥水バライト沈降層についてガンマ線照射により発生した水 素ガス量を分析し、有効な水素ガス発生低減方法について評価した。

ii)試験方法·条件

各試験において準備した試料大きさ、条件、積算照射量について表 3.2.2-6 に示す。

JAEA-Review 2020-043

GP 種類	条件	大きさ [mm]	積算照射量 [kGy]
GP-S	- TiFe 3 wt% ZrO ₂ 3 wt% ZrO ₂ 10 wt% ZrO ₂ 30 wt% ZrO ₂ ナノ粉末 3 wt% Fe ₂ O ₃ 3 wt% Fe ₂ O ₃ ナノ粒子 3 wt% FeO 3 wt% CuO 3 wt% Pd 3 wt% Pt 0.05 wt%	φ 32×3	993

表 3.2.2-6 ガンマ線照射試料一覧

平成 30 年度の結果では、Pd は水素発生の点から優れた特性を示したが、大規模施工が想定される場合には極めて高コストになる。このため、大量使用が可能な安価で水素吸蔵効果のある代替材料を選定するため、様々な合金及び金属酸化物を添加し、水素ガス発生量低減効果を確認した。また、金属酸化物は表面積が大きくなることによる有効性を期待し、一部の添加剤にナノ粒子(粒径 10[nm])を用いた。照射試験では、試料をガラスアンプル内に封入した。ガラスアンプルの大きさは試料大きさを考慮し、試験では φ40×200[nm]とした。試料及びガラスアンプルの外観を図 3.2.2-11 に示す。



図 3.2.2-11 照射試験試料及びガラスアンプル外観

照射試験終了後、ガラスアンプル内のガスを採取しガスクロマトグラフ GC-TCD (島津製作所製) により水素ガス発生量を測定した。測定対象ガスは窒素、酸素、水素の3種類である。測定結果 は採取したガスの体積分率として得られるが、その値は試料大きさや積算線量に依存しており比 較ができないため、吸収エネルギー1[J]あたりに発生した水素濃度[mol]として表される G(H₂)値 [mo1/J]を計算することで、各条件における水素ガス発生特性を評価した。(3.5)~(3.7)式にその計算式を示す。

$$G(\mathrm{H}_2) = \frac{n(\mathrm{H}_2)}{E}$$
 (3.5)

ここで、*n*(H₂)、*E*はそれぞれ発生した水素ガスの物質量[mo1]、試料の吸収エネルギー[J]を表し、

$$n(\mathrm{H}_2) = \frac{r_{H_2} \times V_{\mathrm{Ample}}}{22400}$$
(3.6)

$$E = m \times R \tag{3.7}$$

で算出される。 r_{H_2} は測定された水素ガスの体積分率、 V_{Ample} はガラスアンプルの体積[cm³]、mは 試料の質量[kg]、Rは試料の積算線量[Gy (= J/kg)]である。

iii)結果及び考察

測定結果をもとに計算した G(H₂) 値を試験毎に図 3.2.2-12、-13 に示す。図 3.2.2-12 より、Pd 粉末を添加した試料は、ガスクロマトグラフで検出されず水素ガス発生の低減に大きな効果が見 られた。

金属酸化物を添加したことによる水素ガス発生量低減効果を確認できたのは、検出限界値以下 であった Pd と ZrO₂のみであった。ZrO₂はコストが安く、大規模な施工が想定される本工法におい ては大量に使用することも可能である。しかしながら、添加量 30 wt%試料の G(H₂)値は 3 wt%試料 の約 2 倍となり、最適な添加量が存在することが推測される。他の金属酸化物については、高温 及び高圧条件であればその酸化物が水素ガスにより還元されることが知られているが、本試験は 常温常圧環境であったため、その効果がほとんどなかった可能性が考えられる⁽⁴⁾。

また、GP-A では、Pt 粉末を 0.05 wt%添加したことで水素ガス発生量は微減したが、効果を大きくするためには添加量を増やす必要があることが分かった。



図 3.2.2-12 GP-S の G(H₂)値

64 - 84 -



図 3.2.2-13 GP-A の G(H₂) 値

②ジオポリマーの水分脱離と熱的影響

圧縮強度試験及び熱伝導率測定より、GP 内の含水量は熱により脱離しやすく特性に大きく影響 を与える可能性が高いことが分かった。熱を発する燃料デブリに GP を被覆することで熱が蓄積 し、GP の温度も上昇する可能性が想定される。したがって、熱の曝露による水分脱離挙動及び材 料への影響を調査した。

圧縮強度試験と同じ大きさの未照射かつ砂添加なし/ありの GP-J 試料について、100 ℃、 300 ℃、 500 ℃、 700 ℃で加熱焼成した。焼成は、昇温速度 10[℃/min]で焼成温度に達してか ら 5 時間加熱した。焼成後の外観を図 3.2.2-14 と図 3.2.2-15 に示す。



図 3.2.2-14 GP-J の加熱焼成後外観(砂添加なし)



図 3.2.2-15 GP-J の加熱焼成後外観(砂添加あり)

両図より、100 ℃から 500 ℃までは試料表面に割れが生じているのが確認できる。高温条件ほ ど多少収縮し割れの程度は大きくなったが、試料中心まで割れていなかった。700 ℃で加熱焼成 した試料は内部まで完全に割れており、他の温度条件とは色や見た目が異なっていた。また、乾 燥収縮の程度が非常に大きかった。

一方、砂を添加した材料はいずれの温度条件においても割れや収縮の程度が小さかった。砂の 添加により含水率が減少したことが原因であると考えられる。加熱焼成前後の加熱温度に対する 質量減少率を図 3.2.2-16 に示す。



図 3.2.2-16 GP-J の加熱温度に対する質量減少率

この結果より、砂を添加していない試料については 100 ℃程度で 15 %以上の水が放出したが 300 ℃から 700 ℃ではおよそ 37 %と横ばいになった。GP-Jの組成よりその含水率は理論的に約 37 %であるため、GP-Jの水分量は約 300 ℃でほぼすべて蒸発したことが分かる。今回、原料であ るメタカオリンと同量の砂を添加した試料の含水率は理論的に約 26 %であるが、水分脱離挙動は 砂を添加していない試料と同じ傾向を示した。したがって、700 ℃条件では 300 ℃、500 ℃条件 と質量は変わらないものの体積が大きく減少したことになるため、GP 内の構造が変化した可能性 が高いと判断し、XRD 分析による結晶構造分析を実施した。結果を図 3.2.2-17 に示す。なお、比 較しやすくするために同じ図に複数のデータを載せているため、縦軸は相対的な強度とみなす。



図 3.2.2-17 GP-J 試料の XRD 分析結果(砂添加なし、未照射)

図中で 2*θ*=27[deg]付近にピークが見られるが、これは SiO₂が GP の主成分であることを示して いる⁽⁵⁾。加熱焼成なし及び 100~500 ℃条件の XRD 分析結果はほとんど変わらないが、700 ℃条 件は同じピークが見られながらもその前後に複数のピークが確認できる。GP は本来非晶質構造で あるが、加熱したことにより構造の一部が複数の SiO₂結晶構造⁽⁶⁾ へと変化した可能性が高い。

以上の結果から、GP-Jは含水率約37%のほとんどが300 ℃程度で脱離すること、GPの構造は 500 ℃程度までの加熱であれば変化しないことが分かった。

③沈降型重泥水の特性

1) 沈降速度評価

a)目的

本試験では、燃料デブリから伝熱した GP からの熱の影響を確認するため、高温環境における超 重泥水の沈降挙動試験を実施し、施工可能性を評価した。組成は平成 30 年度の無機系材料と同一 である。

b)試験条件

超重泥水試料を作製中に、試験に用いるガラスシリンダーを床もしくはホットプレートに置き、 熱電対を先端がシリンダー底部に接触するよう固定した後、室温(20 ℃)条件以外のシリンダー の底部温度がそれぞれ40、60、80 ℃程度になるようヒーターの温度を調整した。温度を調整後、 超重泥水250 mLをガラスシリンダーに投入し、投入後経過時間を0として1、3、5、7、24 時間後のバライト粒子沈降層高さと液面温度を測定した。試験外観を図3.2.2-18 に示す。



図 3.2.2-18 超重泥水の高温試験外観

c)試験結果及び考察

高温試験で測定した、測定時間毎の無機系超重泥水のシリンダー底部・バライト粒子沈降層表面・上澄み液面の温度をそれぞれ図 3.2.2-19、-20 に示す。

図 3.2.2-20 より、投入直後では沈降層表面に温度差が見られたが、時間経過に伴いその差が小 さくなり 24 時間後にはすべての温度条件において室温条件である 20 ℃に近い値となった。この ことから、時間経過に伴い厚くなった沈降層がホットプレートからの熱を遮蔽したと考えられる。 図 3.2.2-21 では各温度条件における液面温度にほとんど差がないため、液面にはホットプレートからの熱はほとんど伝達されていなかったことが分かる。



図 3.2.2-19 シリンダー底部温度の時間変化



図 3.2.2-20 バライト沈降層表面温度の時間変化



図 3.2.2-21 超重泥水上澄み液面温度の時間変化

また、沈降高さ測定時のバライト粒子の平均沈降速さ及び沈降率をそれぞれ図 3.2.2-22 と図 3.2.2-23 に示す。



図 3.2.2-22 バライト粒子平均沈降速さの時間変化(高温試験)



図 3.2.2-23 超重泥水の沈降率の時間変化(高温試験)

投入1時間後での沈降速さ及び沈降率には多少のばらつきがあり、底面温度が高い試料の沈降 がわずかに速い結果となった。これは、液体内のバライト粒子自身の沈降作用に加えて底面から の熱により液体に対流が起こりバライト粒子をシリンダー底部方向へ輸送したためと考えられる。 しかしながら、沈降速さ及び沈降率が投入24時間後で安定していることから、前述したように時 間経過とともに形成される沈降層が底部からの熱を遮蔽したことで、その効果が弱まったと推測 される。

以上より、無機系の超重泥水は沈降作用が数日以内で安定すること、高温環境であってもその 沈降挙動は変化しないことが分かり、本工法への適用可能性が示された。

2) 水素発生評価

超重泥水バライト沈降層のG(H₂)値を図 3.2.2-24 に示す。



図 3.2.2-24 無機系超重泥水の G(H₂)値

超重泥水バライト沈降層のG(H₂)値は、GPに比べ10分の1程度であった。バライト粒子の重み により水分が上方向に押し出されたため含水率が低くなったと考えられる。また、110 ℃で乾燥 させた試料のG(H₂)値は約半分に減少した。超重泥水の主成分はバライト粒子であり、その表面に のみ水が付着しているため比較的低温で乾燥させたとしても容易に水分を飛ばすことが可能であ ると考えられる。無機系超重泥水の加熱乾燥による質量減少率を図3.2.2-25に示す。なお、沈降 層の位置により含水率が異なると考え、沈降層を最下層・中間層・上部層それぞれ直径50[mm]× 高さ20[mm]に切り出して加熱試験を実施した。



図 3.2.2-25 無機系超重泥水の加熱乾燥による質量減少率

いずれの層もおよそ2時間半で質量変化がなくなっており、沈降層内の水分が比較的低温の乾燥ですぐに脱離したと考えられる。なお、最下層・中間層と上部層の含水率が異なることから、バライト粒子の重さによる水分を押し出した可能性が示唆された。この結果より、超重泥水は簡易的な乾燥工程を加えることで水素ガス発生量を大幅に低減できることが分かった。

- A. F. Wheeler, 富士電機株式会社, "チェコ・スロバキアで実績のある固化剤「SIAL」のご提案", https://www.fujielectric.co.jp/products/nuclear/topics/2016/nuclear_2016_02.pdf.
- (2) NB 研究所 西武建設, "デブリ取出しにおける超重泥水の活用方法 一超重泥水を用いた止水・遮へい技術—"
- (3) 東京大学 低温科学研究センター, "共同利用実験装置 実験装置紹介", http://www.crc.u-tokyo.ac.jp/openlab_HP/index.html.
- (4) National Institute of Standards and Technology, "X-Ray Mass Attenuation Coefficients", https://www.nist.gov/pml/x-ray-mass-attenuation-coefficients.
- (5) アグネ技術センター、"技術紹介 第4回 X線回折の測定", https://www.agne.co.jp/analysis/gijutsu_004.htm.
- (6) A. F. Wright , M. S. Lehmann, "The structure of quartz at 25 and 590° C determined by neutron diffraction", Journal of Solid State Chemistry, 1981, pp. 371-380.

3.2.3 微粒子物性評価

(1) はじめに

福島第一原子力発電所における燃料デブリの取出し、気中、液中で行われるが、いずれの場合 も、放射性微粒子の発生が想定されている。本実験では、模擬デブリと本課題の検討項目の1つ であるジポポリマーの機械式切断とレーザー切断で発生する粒子の性状を評価した。また、レー ザー切断に対しては、ジオポリマーの被覆による模擬デブリからの微粒子生成に与える影響を検 討した。

(2) 実験方法

非放射性の模擬燃料デブリとして、実デブリの主成分である二酸化ウラン(UO₂)の密度や融点 との類似性から、二酸化ハフニウム(HfO₂)と二酸化タングステン(WO₂)を選択し、連携先であ る JAEA より提供を受けた。

表3.2.3-1 に、本試験における模擬デブリ材料とUO2の密度と融点をまとめた。HfO2がUO2と近い融点を有しており、WO2がUO2と近い密度を有していることが分かる。これらの模擬デブリ材料の粉末をペレット状に圧密し焼結したもの、及び、模擬デブリペレットにJAEAで検討が進められているメタカオリンベースのジオポリマーを被覆したものを切断試験に供した。

Material	Density (g/cm^3)	Melting point ($^{\circ}\!\mathrm{C}$)
UO_2	10.97	2, 865
HfO_2	9.68	2, 758
WO ₂	10. 8	1,700

表 3.2.3-1 UO₂、HfO₂、WO₂の密度と融点

図 3.2.3-1 に、切断試験用の試料の写真を示す。模擬デブリペレットは直径 10 mm、高さ 10 mm の円筒形であり、ジオポリマー試料は直径 20 mm、高さ 15 mm の円筒形であった。また、ジオポリ マーの被覆の厚さは円周方向に 5 mm (直径 20 mm)、高方向に 5 mm (試料高さ 15 mm) であった。 すべての試料の切断は機械式切断とレーザーを用いた熱的切断で行った。ここで、ジオポリマ ー単体試料の機械式切断では、歯厚 0.5 mm のバンドソーによる切断を行い、HfO₂, WO₂ペレットの 切断には、歯厚 1.3 mm のダイアモンドソーによる手動での切断を行った。また、レーザー切断で は、平成 30 年度の試験同様、Yb-TAG レーザー (Trump, Trudisk6002, 6 kW, 波長 1030 nm)を用 い、切断中はアシストガスとして窒素ガス(流量 100 L/min)を用いた。



HfO2-ジオポリマー WO2-ジオポリマー

図 3.2.3-1 切断試験用の試料の写真

図 3.2.3-2 に、ジオポリマー被覆 HfO₂ペレットのレーザー切断時の写真を示す。切削部に発生 した粒子はアシストガスの流れによって運ばれる。本試験では前年度の試験を踏まえ、微粒子の 回収効率を改善するために、複数の回収部を設けて粒子の回収を試みた。

図 3.2.3-3 に、レーザー切断における試料回収装置の写真を示す。装置は、3 種の区面(照射 室、回収室、ストップ室)から成る。試料は照射室に設置され、発生した微粒子はアシストガス によって、回収室に運ばれる。回収室には回収用のバッグが取り付けられており、微粒子がバッ ク内に堆積するようになっている。



図 3.2.3-2 ジオポリマー被覆 HfO2ペレットのレーザー切断

JAEA-Review 2020-043



図 3.2.3-3 レーザー切断における試料回収

回収した粒子の評価には複数の手法を用いた。まず、すべての試料の切断微粒子の形状と組成 を走査型電子顕微鏡(SEM,日立ハイテクS-3400N)とエネルギー分散型蛍光X線分光装置(EDX, Quantax, XFlash Detector 5010 (BRUKER))を使用して観察した。機械的切断では、十分量の微 粒子が回収できたことから、レーザー回折による微粒子の粒度分布を評価するとともに(島津製 作所 SALD-2300)、水中での微粒子のコロイド安定性を沈降試験にて、また、ゼータ電位をレーザ ードップラー式電気泳動法によって評価した(Malvern ゼータサイザーナノZS)。

(3) 機械的切断で生成する微粒子

①ジオポリマー

図 3.2.3-4 に、ジオポリマーの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布を示す。図には、比較のために、30分静置による沈降試験後の上積み中の微粒子の粒度分布も併せて示す。切断で発生するジオポリマー微粒子は約1~100 µmに分布していることが分かった。さらに、30分静置による沈降で、10 µm以上の粒子の大部分が沈降して上澄みから取り除かれていることが分かった。

機械的切断で発生したジオポリマー微粒子のゼータ電位は-41±2 mV と比較的大きかったこと から、特に、微小な粒子は水中での静電反発によって安定化し、重力による沈降が相対的に大き く寄与していないものと考えられる。

図 3.2.3-5 に、機械的切断で発生したジオポリマー微粒子の SEM 像を示す。ジオポリマーは数 µm から数十µm のサイズの不定形な粒子から成っていることが分かった。図 3.2.3-4 に示した 粒度分布の測定結果との比較から、水中では、ある程度の凝集による見かけの粒子径の増加が生 じていることが示唆される。



図 3.2.3-4 ジオポリマーの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布と 30 分の沈降試験後の粒度分布



図 3.2.3-5 機械的切断で発生したジオポリマー微粒子の SEM 像

図 3.2.3-6 に、機械的切断で発生したジオポリマー微粒子の EDX による元素マッピングを示す。 ジオポリマーを構成する元素(Si、A1、Na)が均一に分布している様子が観察された。



図 3.2.3-6 機械的切断で発生したジオポリマー微粒子の EDX による元素マッピング

②模擬デブリ試料(二酸化ハフニウム、HfO2)

Hf02ペレットの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布を図 3.2.3-7 に示す。ジオポリマー同様、比較のために、30分静置による沈降試験後の上積み中の粒度分布も併せて示す。初期の Hf02 粒子は約 0.5~50 μ m に分布しており、それが 30 分間の静置によって、3 μ m 以上の粒子が沈降で取り除かれている様子が観察された。



図 3.2.3-7 Hf02ペレットの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布と 30 分の沈降試験後の粒度分布

切断で発生した HfO₂ 微粒子のゼータ電位は-5±2 mV であった。ゼータ電位の絶対値が小さいこ とから、水中での静電反発は弱く、微粒子の分散は van der Waals 力等による凝集に対して不安 定であり、特に、3 μ m 以上の粒子は比較的短時間に沈降によって水中から取り除かれているも のと考えられる。

図 3.2.3-8 に、機械的切断で発生した HfO₂ 微粒子の代表的な SEM 像を示す。HfO₂の一次粒子は 比較的小さく、1 μm 以下から数 μm の粒子が見られた。観察された SEM 像は、レーザー回折に よる粒度分布の結果と合致するものであった。

図 3.2.3-9 に、機械的切断で発生した HfO2 微粒子の EDX による元素マッピングの結果を示す。



図 3.2.3-8 機械的切断で発生した HfO2 微粒子の SEM 像



図 3.2.3-9 機械的切断で発生した HfO2 微粒子の EDX による元素マッピング

③模擬デブリ試料(二酸化タングステン、WO₂)

WO₂ペレットの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布を図 3.2.3-10 に示す。ジオポリマー同様、比較のために、30 分静置による沈降試験後の上積み中の粒度分布も併せて示す。初期の WO₂ 粒子は約 1~20 μm に分布しており、それが 30 分間の静置によって、5 μm 以上の粒子が沈降で 取り除かれている様子が観察された。



図 3.2.3-10 WO₂ペレットの機械的切断で発生した微粒子の粒度分布と 30 分の沈降試験後の粒度分布

切断で発生した WO₂ 微粒子のゼータ電位は-34±4 mV と、機械的切断で発生したジオポリマー微 粒子と同程度であった。ゼータ電位の絶対値は比較的大きいことから、水中での静電反発は大き く、微粒子の分散性は良いものと考えられる。

図 3.2.3-11 に、機械的切断で発生した Hf02 微粒子の代表的な SEM 像を示す。Hf02 の一次粒子 は比較的小さく、1 μm以下から約 10 μmの粒子が観察された。レーザー回折による粒度分布の 結果と比較すると、一次粒子の粒子径は小さく、水中での凝集体の形成が示唆される。

図 3.2.3-12 に、機械的切断で発生した WO2 微粒子の EDX による元素マッピングの結果を示す。



図 3.2.3-11 機械的切断で発生した WO2 微粒子の SEM 像



図 3.2.3-12 機械的切断で発生した WO2 微粒子の EDX による元素マッピング

(4) レーザー切断による微粒子発生

上述したように、レーザー切断では、発生した微粒子を回収室に設置したバックで回収した(図 3.2.3-3)。しかしながら、回収された粒子の量はレーザー回折による粒度分布評価として少なか った。そこで、微粒子を直接導電性のカーボン両面テープで回収し、SEM-EDX分析に供した。特に、 ジオポリマー被覆を施した試料では、異なる微粒子の同定のために EDX によるマッピングが有効 であった。

①ジオポリマー

図 3.2.3-13 に、ジオポリマーのレーザー切断で発生した微粒子の代表的な SEM 像を示す。



図 3.2.3-13 ジオポリマーのレーザー切断で発生した微粒子の SEM 像

図 3.2.3-13 より、ジオポリマーのレーザー切断により、大別して異なる形状の3種類の粒子が 生成していることが観察された。まず、繊維状の粒子がかなりの割合で存在していることが分か るが、これは、溶融した高粘性のジオポリマーがアシストガスによって引き伸ばされて生成した ものと考えられる。このような繊維状の粒子の直径は数 μ mから1 μ m以下であった。次に、球 状の粒子が観察され、粒子のサイズは100 μ m以上の大きなものから、数 μ mと小さなものまで、 様々であった。最後に、数 μ mから数百 μ m程度の比較的大きな矩形状のジオポリマー片が観察 された。

また、これらの比較的大きな微粒子以外にも、比較的小さな不定形のジオポリマー粒子も観察 された。これらは、上記の結果との比較から、レーザー切断の熱的な作用ではなく、高流量のア シストガスによる物理的な衝撃によって発生した微粒子であると考えられる。 図 3.2.3-14 に、ジオポリマーのレーザー切断で発生した微粒子の EDX 元素マッピングの結果を 示す。ジオポリマーの構成元素である Al、Si、Na の存在が確認できるが、特に、レーザーによる 熱影響を受けた繊維状の粒子は主に Si から成り、球状の粒子は Al、Si から成り、熱影響による 組成変化が示された。



図 3.2.3-14 ジオポリマーのレーザー切断で発生した微粒子の EDX 元素マッピング

②模擬デブリ試料(二酸化ハフニウム、HfO₂)

図 3.2.3-15 に、HfO₂ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の代表的な SEM 像を示す。図より、HfO₂ペレットのレーザー切断により、大別して、球状の粒子と不定形粒子の 2 種類の粒子が 生成されることが観察された。まず、溶融した試料の冷却によって発生したと考えられる球状の 粒子はサイズが約 10 から 200 μ m であり、一部、断片になっているものや、内部が空洞の球殻状 になっているものが観察された。冷却の際に気泡を取り込んだ可能性が示唆される。一方、不定 形の粒子は、見かけの大きさが数十 μ m の凝集体であり、一次粒子のサイズは約 0.1 から 5 μ m であった。

図 3.2.3-16 に、レーザー切断で発生した HfO₂ 微粒子の EDX による元素マッピングの結果を示 す。



図 3.2.3-15 HfO2ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の SEM 像



図 3.2.3-16 HfO2ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の EDX 元素マッピング

③模擬デブリ試料(二酸化タングステン、WO₂)

図 3.2.3-17 に、WO₂ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の代表的な SEM 像を示す。また、 図 3.2.3-18 に、同微粒子の代表的な EDX 元素マッピングを示す。


図 3.2.3-17 WO2ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の SEM 像



図 3.2.3-18 WO2ペレットのレーザー切断で発生した微粒子の EDX 元素マッピング

図 3.2.3-17、-18 から、2 種類の粒子の存在が分かる。なお、大きな球状の粒子は HfO₂粒子の コンタミである。まず、不定形の粒子は、アシストガスによって機械的に生成した WO₂粒子である と考えられる。もう一方の粒子は微細な粒子で、前述の不定形の粒子の表面に付着していた。こ の微細な粒子は 0.1 µm 以下の非常に小さな粒子径を有しており、レーザーの熱的切断自体で生 成したものと考えられる。 ④ジオポリマー被覆を施した HfO2 模擬デブリ、HfO2-G

図 3.2.3-19 に、ジオポリマー被覆を施した HfO₂ 模擬デブリのレーザー切断で生成した微粒子の代表的な SEM 像を示す。

また、図 3.2.3-20、-21 に、HfO₂-G 試料の EDX マッピングの結果の例を示す。



図 3.2.3-19 ジオポリマー被覆を施した HfO₂模擬デブリのレーザー切断で 生成した微粒子の SEM 像(HfO₂-G)



図 3.2.3-20 ジオポリマー被覆を施した HfO₂模擬デブリのレーザー切断で 生成した微粒子の EDX マッピング(HfO₂-G)-1



図 3.2.3-21 ジオポリマー被覆を施した HfO₂ 模擬デブリのレーザー切断で 生成した微粒子の EDX マッピング (HfO₂-G) -2

図 3. 2. 3-19 の SEM 像による粒子のサイズ、形状、及び、図 3. 2. 3-20、-21 の EDX マッピングより、 ジオポリマー被覆を施した HfO₂ 模擬デブリ試料 (HfO₂-G) は、レーザー切断によって、表 3. 2. 3-2 にまとめたような 4 種類の粒子が生成することが明らかになった。

Type No.	形状	主要元素	サイズ
1	繊維状、ジオポリマー	Si, Al, Na	0.1 $^{\sim}$ 10 μ m
2	大きいジオポリマー片	Si, Al, Na	$10~~100~\mu$ m
3	球状	Hf, Si, Al, Na	$1~~100~\mu$ m
4	微細な粒子	Hf, Si, Al, Na	$<$ 0.1 μ m

表 3.2.3-2 HfO ₂ -G	試料のレーザ	ー切断によっ	て生成し	た微粒子
-------------------------------	--------	--------	------	------

④ ジオポリマー被覆を施した WO2 模擬デブリ、WO2-G

図 3.2.3-22 に、ジオポリマー被覆を施した WO₂模擬デブリのレーザー切断で生成した微粒子の代表的な SEM 像を示す。

また、図 3.2.3-23、24 に、WO2-G 試料の EDX マッピングの結果の例を示す。



図 3.2.3-22 ジオポリマー被覆を施した WO₂模擬デブリのレーザー切断で 生成した微粒子の SEM 像(WO₂-G)



図 3.2.3-23 ジオポリマー被覆を施した WO₂模擬デブリのレーザー切断で 生成した微粒子の EDX マッピング (WO₂-G)-1



図 3.2.3-24 ジオポリマー被覆を施した WO₂ 模擬デブリのレーザー切断で 生成した微粒子の EDX マッピング(WO₂-G)-2

図 3.2.3-22 の SEM 像による粒子のサイズ、形状、及び、図 3.2.3-23、24 の EDX マッピングより、 ジオポリマー被覆を施した HfO₂ 模擬デブリ試料(WO₂-G) はレーザー切断によって、表 3.2.3-3 に まとめたような 5 種類の粒子が生成することが明らかになった。

Type No.	形状	主要元素	サイズ
1	繊維状、ジオポリマー	Si, Al, Na	0.1 $^{\sim}$ 10 μ m
2	ジオポリマー片	Si, Al, Na	10μ m [~] 100 μ m
3	球状	W, Si, Al,	1 ~ 100 <i>u</i> m
		Na	$1 100 \mu$ m
4	不定形	W, Si, Al,	$1 \sim 100 \mu m$
	个足形	Na	$1 100 \mu$ m
5	油石如平台之。	W, Si, Al,	(0 1
J	加以不四个立丁	Na	$\sim 0.1 \ \mu \text{m}$

表 3.2.3-3 WO2-G 試料のレーザー切断によって生成した微粒子

表より、ジオポリマー被覆を施した模擬デブリ試料(HfO₂-G, WO₂-G)のレーザー切断で発生す る粒子の大部分は粒径10μm以上の比較的大きな粒子であることが分かった。また、同時に、比 較的小さな球状の粒子や繊維状のジオポリマー片、不定形の粒子や、0.1μm以下とさらに小さ な粒子も存在していた。0.1μm以下の非常に微細な粒子は、先行研究で観察されているように、 気中でエアロゾルとして長期間滞在したり^{(1),(2)}、水中で重力による影響を受けず長期間分散して 存在したりする可能性があり、1F 廃炉のデブリ取出しにおけるオフガス系や水処理系の設計上重 要なポイントになると判断される。また、レーザー切断の特徴として、ジオポリマーに由来する 繊維状の粒子や模擬デブリに由来する球状の粒子など、熱影響によって生成したと考えられる粒 子が存在することが特徴である。特に、後者の球状粒子は一部ジオポリマー由来の元素(A1, Si) を含むことから、高温下での反応や微細な粒子との凝集体の形成が示唆される。 (5) まとめ

模擬デブリペレット、及び、ジオポリマー被覆を施した模擬デブリ(HfO₂、WO₂)ペレットの機 械的切断とレーザー切断を行い、発生した粒子の性状を複数の手法で評価した。

レーザー切断では、ジオポリマー単体からは繊維状の粒子が生成し、模擬デブリからは、熱影響による球状の粒子や非常に微細な粒子を含む様々な形状(球状、不定形)、サイズ(0.1~数百 μm)の粒子が生成した。ジオポリマー被覆を施した模擬デブリのレーザー切断では、各材料に由 来する粒子が観察されたが、一部、高温下での反応や異種粒子の凝集体の形成が示唆された。

機械的切断では、比較的大きな比較的大きな不定形の粒子が生成した。このような粒子の大部 分は、母材の組成を反映したゼータ電位の違いによるコロイド安定性の相違はあるものの、概ね、 水中での沈降によって速やかに除去されると判断される。

参考文献

- C. Journeau, D. Roulet, E. Porcheron, P. Piluso, C. Chagnot, (2018). Fukushima Daiichi fuel debris simulant materials for the development of cutting and collection technologies. Journal of Nuclear Science and Technology, 55(9), 985-995.
- (2) E. Porcheron, S. Peillon, T. Gelain, C. Chagnot, C. Journeau, E. Excoffier, D. Roulet, (2018, October). Fukushima Dai-ichi fuel debris retrieval: analysis of aerosol emission and dispersion during simulants laser cutting. In Proc. DEM-2018 InT; Conf. Dismantling Challenges 22-24.

3.2.4 被覆材流動解析(再委託先:産業技術総合研究所)

平成 30 年度の調査を基に、燃料デブリ安定化被覆材の流動を模擬する数理モデルパラメータを 決定した。

具体的には、平成 30 年度に調査した文献(1)~(3)をもとにして、降伏応力(約 20 Pa)及び塑 性粘度(約 0.5 Pas)を決め、これらのモデルパラメータを用いて、スランプ試験を模擬した 3 次 元解析を行った。スランプ試験は、土木的な施工を行う前に施工性を評価するために実際に用い られている簡易試験の 1 つであり、この試験を模擬することで、施工性評価への適用性が確認で きるものと期待される。計算手法としては、独自に開発した粒子法^{(4)、(5)}にビンガム流体のレオロ ジー特性を導入したものを用いた。この計算手法は、前年度にジオポリマーの流動性を模擬する 上での適用性を確認したものである。具体的には、文献(6)のスランプ試験を模擬した 3 次元計算 を行った。計算パラメータの影響を把握するため、降伏応力を変えた複数の計算を行った。表 3.2.4-1 に、それぞれのケースにおける計算パラメータを示す。図 3.2.4-1~図 3.2.4-2 に解析結 果の様相を示す。結果の様相が試験を模擬したものになることを確認した。また、表 3.2.4-2 に それぞれのケースから得られたスランプフロー値を示す。文献(6)に記載された実験値は、表 3.2.4-3 に示したものであることから、文献(1)~(3)を参照して定めたモデルパラメータを用い ることで、ジオポリマーペーストの流動性を大方再現していると考えられる。ただし、文献(6)に 示すように、ジオポリマーの流動特性は、混錬状態や混錬してからの時間経過によって異なるた め、ジオポリマーの状態に合わせてパラメータを設定する必要があると判断される。

計算パラメータ	ケース1	ケース2
粒子径	0.005 m	0.005 m
影響半径	0.013 m	0.013 m
降伏応力	20 Pa	100 Pa
固体時の粘度	10 ⁶ Pa s	10 ⁶ Pa s
塑性粘度	0.5 Pa s	0.5 Pa s
重力	9.8 m/s ²	9.8 m/s ²

表 3.2.4-1 スランプ試験を模擬した粒子法計算における計算パラメータ



図 3.2.4-1 スランプ試験を模擬した計算(ケース1 降伏応力を 20 Pa とした場合)



図 3.2.4-2 スランプ試験を模擬した計算(ケース 2 降伏応力を 100 Pa とした場合)

JAEA-Review 2020-043

表 3.2.4-2 計算から得られたスランプ値

	ケース1	ケース2
降伏応力	20 Pa	100 Pa
スランプ値	21.7 cm	13.3 cm

表 3.2.4-3 文献(6)におけるスランプ値

混錬後の時間	0 時間	1時間	2 時間	3時間
スランプ値	32.2 cm	34.6 cm	26.1 cm	16.7 cm

また、障害物等がある複雑形状を計算した。

具体的には、スランプ試験を模擬した計算に障害物となる壁を導入し、障害物に対する回り込みについて計算した。計算パラメータは、表 3.2.4-1 に示したものを用い、降伏応力は 20 Pa とした。計算結果の様相を図 3.2.4-3 に示す。

障害物となる壁の裏側への回り込みは限定的であった。ジオポリマーなどのビンガム流体の特 性を示す被覆材は、被覆材が広がり平滑になる前に流動が停止するため、障害物を回り込むため には、流し込む被覆材の量などの条件が関係すると考えられる。

なお、粒子径・粒子数を大きくすると、計算時間が増大した。

以上のように、スランプ試験を模擬した3次元計算を行うことで、計算規模と計算資源量との 関係を把握し、次年度に行う施工性評価のための準備を行った。



図 3.2.4-3 障害物がある場合の計算(降伏応力 20 Pa)

- A. Palomo, P.F.G. Banfil, A. Fernandez-Jimenez and D.S. Swift (2005), Properties of Alkali-Activated Fly Ashes Determined from Rheological Measurements, Advances in Cement Research, 17, No. 4, 143-151.
- (2) Aurelie Favier, Julie Hot, Guillaume Habert, Nicholas Roussel, and Jean-Baptiste d'Espinose de Lacaillerie (2014), Flow Properties of MK-based Geopolymer Pastes. A Comparative Study with Standard Portland Cement Pastes, Soft Matter, 10, 1134-1141.
- (3) Kirk Vance, Akashi Dakhane, Gaurav Sant, Narayanan Neithalath (2014), Observations on the Rheological Response of Alkali Activated Fly Ash Suspensions: the Role of Activator Type and Concentration, Rheol Acta 53:843-855.
- (4) 酒井泰地(2018), 修士論文,燃料デブリ取出しに向けたジオポリマーの適用可能性に関する 研究, 東京大学大学院原子力国際専攻.
- (5) 近藤雅裕, 圧力速度同時陰解法を用いた粒子法非圧縮性流体解析手法, 第 21 回計算工学講演 会, 新潟, 2016-5.
- (6) 近藤雅裕,高粘度流体解析のための角運動量を保存する粒子法の開発,第22回計算工学講演 会,埼玉,2017-5.

3.3 取りまとめ(課題抽出)

上記研究成果を取りまとめて次年度に向けた課題を抽出した。

(1) 微粉末飛散

今年度は様々なミスト濃度を試すことにより、微粉末飛散防止の水スプレー効率の評価 を行った。提案された方法の除去効率をさらに改善するためには、今後、下記に示す他のパ ラメータを組み込んだ追加の試験やシミュレーションを行う必要がある。

- 今回の実験では、エアロゾル粒子とミストの合体に10分間のアイドリング時間を設けている。ただし、10分のアイドル時間は最初の試みのため、今後アイドル時間を変えて、エアロゾル除去効率への影響を確認する。
- 2) 高圧電源を使用して水ミストに電荷をかけた電気的除去メカニズムがエアロゾル除去効率 の向上に役立つかどうかを確認する。
- 3)福島廃炉における実際の水スプレーシステムでは、複数の水スプレーノズルを同時に使用 することができる。今後、複数の水スプレーノズルを用いた実験やシミュレーションを実施することにより適切なシステムを考案する。

(2) RPV 温度解析

温度解析対象として、本年度は RPV 内及び ICM ハウジング等 RPV 下部領域における伝熱 解析、並びに除熱効果について解析評価を行った。今後は水スプレーによる冷却効果を評 価する必要がある。

(3) 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上げる必要性 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(令和元年6月5日、10月25日、12 月25日、令和2年3月10日)実施するとともに、令和元年5月には関連先端技術を保有する仏研究 機関を視察し議論を行うなど、随時関連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2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) 水スプレーシステムによる微粒子除去性能評価
- (3) RPV 底部における異なる崩壊熱及び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 γ 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解析

来年度は、さらにパラメータを変えて実験を実施するとともにシミュレーションを実施することにより、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を開発し、最終的には微粒 子の気中・液中挙動並びに飛散防止対策に関する総合評価を行う予定である。

_

表 1. SI 基本単位			
甘大昌	SI 基本単位		
本平里	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	Α	
熱力学温度	ケルビン	Κ	
物質量	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			
AI 立 是 SI 組 立 単位			
名称	記号		
面 積 平方メートル	m ²		
体 積 立方メートル	m ³		
速 さ , 速 度 メートル毎秒	m/s		
加 速 度メートル毎秒毎秒	m/s^2		
波 数 毎メートル	m ⁻¹		
密度,質量密度キログラム毎立方メートル	kg/m ³		
面 積 密 度 キログラム毎平方メートル	kg/m ²		
比体積 立方メートル毎キログラム	m ³ /kg		
電 流 密 度 アンペア毎平方メートル	A/m ²		
磁 界 の 強 さ アンペア毎メートル	A/m		
量 濃 度 ^(a) , 濃 度 モル毎立方メートル	mol/m ⁸		
質量濃度 キログラム毎立方メートル	kg/m ³		
輝 度 カンデラ毎平方メートル	cd/m ²		
屈 折 率 ^(b) (数字の) 1	1		
比 透 磁 率 ^(b) (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

	SI 旭立単位			
組立量	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 ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体鱼	ステラジアン ^(b)	$sr^{(c)}$	1 (b)	m^2/m^2
周 波 数	ヘルツ ^(d)	Hz	-	s ⁻¹
力	ニュートン	Ν		m kg s ⁻²
E 力 , 応 力	パスカル	Pa	N/m ²	$m^{-1} kg s^{-2}$
エネルギー,仕事,熱量	ジュール	J	N m	$m^2 kg s^2$
仕 事 率 , 工 率 , 放 射 束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電 荷 , 電 気 量	クーロン	С		s A
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 kg s^{\cdot 3} A^{\cdot 1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2 kg s^{-3} A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	s	A/V	$m^{2} kg^{1} s^{3} A^{2}$
磁東	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2 kg s^2 A^{-1}$
磁束密度	テスラ	Т	Wb/m ²	$kg s^{-2} A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	$m^2 kg s^2 A^2$
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光東	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照度	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量,比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^2 s^2$
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 ^(g)	Sv	J/kg	$m^2 s^{-2}$
酸素活性	カタール	kat		s ⁻¹ mol

酸素活性(1) ダール kat [s¹ mol]
 (w)SH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。
 (h)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。
 (a)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)へルツは周期現象についてのみ、ペラレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。 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。それシウス度とケルビンの
 (a)やレシウス度はケルビンの特別な名称で、温度器や温度開隔を表す整備はどもらの単位で表しても同じである。
 (b)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物告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

	S	[組立単位	
組立量	名称	記号	SI 基本単位による 表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
カのモーメント	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
表 面 張 九	リニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角 速 度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
角 加 速 度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m m^{-1} s^{-2} = s^{-2}$
熱流密度,放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	kg s ⁻³
熱容量、エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 kg s^{2} K^{1}$
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^{2} s^{2} K^{1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2 s^2$
熱伝導率	「ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電 荷 密 度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
表面電荷	「クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
電東密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² s A
誘 電 辛	コアラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$
透 磁 率	ペンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2 kg s^2 mol^1$
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^2 kg s^{-2} K^{-1} mol^{-1}$
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
吸収線量率	ダレイ毎秒	Gy/s	$m^{2} s^{3}$
放 射 強 度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4 m^{-2} kg s^{-3} = m^2 kg s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2 sr)$	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	$m^{-3} s^{-1} mol$

表 5. SI 接頭語					
乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10^{24}	э 9	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	с
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	Р	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	Т	10^{-9}	ナノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	р
10^{6}	メガ	М	10^{-15}	フェムト	f
10^3	+ 1	k	10^{-18}	アト	а
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	v

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	۰	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 ² =10 ⁴ m ²	
リットル	L, 1	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³	
トン	t	$1 t=10^3 kg$	

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								
3	名称		記号	SI 単位で表される数値				
電子	ボル	ŀ	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J				
ダル	- F	\sim	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg				
統一原	子質量単	単位	u	1 u=1 Da				
天 文	単	位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ 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=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海 里	Μ	1 M=1852m
バーン	b	$1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=(10^{-12} \text{ cm})^2=10^{-28} \text{ m}^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	ci単位しの粉結的な間接け
ベル	В	対数量の定義に依存。
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		
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J		
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N		
ポアズ	Р	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s		
ストークス	St	$1 \text{ St} = 1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{\cdot 1} = 10^{\cdot 4} \text{ m}^2 \text{ s}^{\cdot 1}$		
スチルブ	$^{\mathrm{sb}}$	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd cm}^{-2} = 10^4 \text{ cd m}^{-2}$		
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx		
ガ ル	Gal	1 Gal =1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²		
マクスウエル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$		
ガウス	G	1 G =1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T		
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe ≙ (10 ³ /4 π)A m ⁻¹		
(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	ユ		IJ	ſ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq		
$\scriptstyle u$	\sim	ŀ	ゲ	\sim	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$		
ラ				K	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy		
$\scriptstyle u$				Д	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv		
ガ		$\boldsymbol{\mathcal{V}}$		7	γ	$1 \gamma = 1 \text{ nT} = 10^{-9} \text{T}$		
フ	T.		N	"		1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m		
メー	ートル	/系	カラゞ	ット		1 メートル系カラット= 0.2 g = 2×10 ⁻⁴ kg		
ŀ				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa		
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa		
+1	ы		11	_		1 cal=4.1858J(「15℃」カロリー), 4.1868J		
15	Ц		9		cal	(「IT」カロリー), 4.184J(「熱化学」カロリー)		
3	ク			~	u	$1 \mu = 1 \mu m = 10^{-6} m$		