JAEA-Review 2022-010 DOI:10.11484/jaea-review-2022-010

# 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2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) -FY2020 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

June 2022

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。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 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. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en</u>). Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under

the same terms and conditions as CC-BY. For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, 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, 2022

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)
 一令和2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

(2022年3月2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2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」の平成30年度から令和3年度の研究成果について取りまとめたものであ る(令和3年度まで契約延長)。本課題は令和3年度が最終年度となるため4年度分の成果を取り まとめた。

本研究は、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燃料デブリ取出し時に 発生する放射性微粒子を着実に閉じ込めるために、気相及び液相における微粒子の挙動を明らか にするとともに、微粒子飛散防止技術を開発することを目的としている。具体的には、微粒子飛 散防止技術として、(1)スプレー水等を利用して最小限の水で微粒子飛散を抑制する方法、及び(2) 燃料デブリを固化して取り出すことで微粒子飛散を抑制する方法について、実験及びシミュレー ションにより評価し、実機適用可能性を評価した。

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。

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

Development of the Technology for Preventing Radioactive Particles' Dispersion during the Fuel Debris Retrieval (Contract Research) - FY2020 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 March 2, 2022)

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 FY2020.

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 from FY2018 to FY2021 (this contract was extended to FY2021). Since the final year of this proposal was FY2021, the results for four fiscal years were summarized.

The present study aims to clarify the behavior of microparticles in gas and liquid phases in order to steadily confine radioactive microparticles during fuel debris retrieval in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, TEPCO.

As measures to prevent dispersion of microparticles, (1) a method to suppress the dispersion with minimum amount of water utilizing water spray etc., and (2) a method to suppress the dispersion by solidifying fuel debris were evaluated by experiments and simulation. The applicability of these methods to the actual plants was also evaluated.

Keywords: Fuel Debris Retrieval, Fukushima Daiichi NPS, Preventing Dispersion of 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  |
| 3. | 令和元年度 採択課題                 | 5  |
| 4. | 令和2年度 採択課題                 | 8  |
| 付  | 録 成果報告書                    | 11 |

### Contents

| 1.  | Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Projec | t |
|-----|--|---|
|     |  | 1 |
| 2.  | Accepted Proposal in FY2018  | 2 |
| 3.  | Accepted Proposal in FY2019  | 5 |
| 4.  | Accepted Proposal in FY2020  | 8 |
| App | endix Result Report  | 1 |

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式会社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

平成30年度採択課題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<br>半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマ<br>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<br>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<br>被ばくの横断的生体影響評価                          | 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<br>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<br>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】

| 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<br>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<br>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<br>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<br>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<br>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<br>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<br>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<br>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<br>ブリセンサーの研究開発          | 萩原 雅之 | 高エネルギー<br>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<br>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 |

### 3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題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

#### 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<br>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<br>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             |
|--|---------------------------------------|------------------|
| ー次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建<br>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<br>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<br>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<br>な評価系の構築            | 飯塚 大輔                                 | 量子科学技術<br>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<br><sup>(令和元年度まで)</sup><br>大曲 新矢 | 産業技術総合<br>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<br>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<br>技術を用いた分別方法の研究開発              | 渡邉 大輔 | 日立 GE<br>ニュークリ<br>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<br>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<br>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<br>ルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安<br>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<br>システムの開発                         | 渡邊 実  | 静岡大学<br><sup>(令和2年度<br/>まで)</sup><br>岡山大学 |

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<br>関する評価研究 | 金井 昭夫 | 慶應義塾   |

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<br>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<br>デブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育<br>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<br>ブリ劣化機構の解明                  | 大貫 敏彦<br><sup>(平成 30 年度まで)</sup><br>竹下 健二 | 東京工業<br>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       |

JAEA-Review 2022-010

### 4. 令和2年度 採択課題

令和2年度は、2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: 令和2年3月17日~令和2年5月14日(課題解決型) 令和2年5月13日~令和2年7月15日(国際協力型)

課題数:10課題

| 課題解決型廃炉研究プログラム | 8 課題 | (若手研究2課題、 | 一般研究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)  |          |

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2年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

【若手研究】

| 課題名  | 研究代表者 | 所属機関          |
|--|-------|---------------|
| 燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れ<br>の調査                   | 楊 会龍  | 東京大学          |
| 健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の<br>分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発 | 岡本 章玄 | 物質・材料<br>研究機構 |

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

| 課題名   | 研究代表者 | 所属機関                  |
|---|-------|-----------------------|
| 遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド<br>中性子検出器の要素技術開発                           | 田中 真伸 | 高エネルギー<br>加速器研究<br>機構 |
| α / β / γ 線ラジオリシス影響下における格納<br>容器系統内広域防食の実現:ナノバブルを用いた<br>新規防食技術の開発 | 渡邉 豊  | 東北大学                  |
| β、γ、X線同時解析による迅速・高感度放射性核<br>種分析法の開発                                | 篠原 宏文 | 日本分析<br>センター          |
| 合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄<br>筋コンクリート長期状態変化の定量評価                      | 丸山 一平 | 東京大学                  |
| 溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄<br>物の合理的処理・処分の検討                           | 小崎 完  | 北海道大学                 |
| マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高<br>度化と同位体の直接計測への挑戦                      | 池田 裕二 | アイラボ                  |

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                  |
|-----------------------------------|-------|-----------------------|
| 革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技<br>術の開拓    | 浅尾 直樹 | 信州大学                  |
| 無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン<br>技術の研究開発 | 鎌田 創  | 海上・港湾・<br>航空技術<br>研究所 |

本報告書は、以下の課題の平成30年度から令和3年度の研究成果について取りまとめた ものである(令和3年度まで契約延長)。本課題は令和3年度が最終年度となるため4年度 分の成果を取りまとめた。

課題解決型廃炉研究プログラム

| 朱超將伏望廃炉研先ノログノム                  |       |      |
|---------------------------------|-------|------|
| 課題名                             | 研究代表者 | 所属機関 |
| 燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散<br>防止技術の開発 | 鈴木 俊一 | 東京大学 |

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2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 R02I026-1)

## 成果報告書

## 令和3年8月

国立大学法人東京大学

JAEA-Review 2022-010

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」の平成30年度から令和3年度の研究成果について取り まとめたものである(令和3年度まで契約延長)。本課題は 令和3年度が最終年度となるため4年度分の成果を取りま とめた。

### 目次

| 概略  |       | X      |
|---|-------|--------|
| 1. はじめに                                     | 1     | l.1-1  |
| 2. 業務計画                                     | 2     | 2.1-1  |
| 2.1 全体計画                                    | 2     | 2.1-1  |
| 2.1.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発(東京大学、連携先:原子力機構)        | 2     | 2.1-1  |
| 2.1.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価(東京大学、連携先:原子力機       | 構) 2  | 2.1-1  |
| 2.1.3 取りまとめ                                 | 2     | 2.1-2  |
| 2.1.4 実施体制図                                 | 2     | 2.1-3  |
| 2.2 各年度の成果の目標及び業務の実施方法                      | 2     | 2.2-1  |
| 2.2.1 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法               | 2     | 2.2-1  |
| 2.2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法                  | 2     | 2.2-1  |
| 2.2.3 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法                  | 2     | 2. 2-3 |
| 3 業務の実施内容及び成果                               |       | 3.1-1  |
| 3.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発【平成 30 年度 – 令和 2 年度】      |       | 3. 1-1 |
| 3.1.1 模擬燃料デブリの作製(連携先:原子力機構)【平成 30 年度-令和元    | 年度】 3 | 3.1-1  |
| 3.1.2 微粒子飛散試驗【平成 30 年度 - 令和 2 年度】           |       | 3.1-4  |
| 3.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価【平成30年度-令和2年度】         | 8     | 3.2-1  |
| 3.2.1 被覆材の作製((1)~(3)連携先:原子力機構)【平成 30 年度-令和元 | 年度】 3 | 3.2-1  |
| 3.2.2 被覆材特性評価【平成 30 年度-令和 2 年度】             | 3     | 3.2-2  |
| 3.2.3 微粒子物性評価【平成 30 年度-令和 2 年度】             | 3.    | 2-25   |
| 3.2.4 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-令    | 和2年度  | Ē]     |
|   | 3.    | 2-36   |
| 3.3 取りまとめ(課題抽出)                             | 3     | 3.3-1  |
| 3.4 研究推進【平成 30 年度-令和 2 年度】                  | 3     | 3.4-1  |
| 4. 結言                                       |       | . 4-1  |
| 参考文献  |       | . 5-1  |

### 執筆者リスト

| 事業代表者 | 国立大学法人東京大学   | 特任教授      | 鈴木 俊一             |
|-------|--------------|-----------|-------------------|
|       |              | 特任准教授     | Nejdet Erkan      |
|       |              | 准教授       | 斉藤 拓巳             |
|       |              | 元学術専門職員   | Zhou QIAN         |
|       |              | 元学術専門職員   | Liang Hui         |
|       |              | 元特任研究員    | Blaisot Benjamin  |
|       |              | 元学術支援専門職員 | Ozdemir Erdal     |
|       |              | 元特別研究学生   | Ahmet Gultekin    |
|       |              | 元修士課程学生   | 黒澤 克則             |
|       |              | 元修士課程学生   | 高橋 佑介             |
|       |              | 修士課程学生    | 横山 開              |
|       |              | 修士課程学生    | Yildirim Anil Can |
| 再委託先  | 国立研究開発法人産業技術 | 所総合研究所    |                   |
|       |              | 主任研究員     | 近藤 雅裕             |
| 連携機関  | 国立研究開発法人日本原子 | 一力研究開発機構  |                   |
|       |              | 課長        | 小泉 健治             |
|       |              | 技術副主幹     | 矢野 公彦             |
|       |              |           | 鈴木 誠矢             |
|       |              | グループリーダー  | 山岸 功              |
|       |              | 研究副主幹     | 有阪 真              |
|       |              |           | Cantarel Vincent  |
|       |              |           |                   |

| 表 3.1.1-1  | 焼結体ペレットの密度・空隙率 3.1-2   |
|------------|--|
| 表 3.1.1-2  | 焼結体ペレットのビッカース硬さ・破壊じん性 3.1-2                                      |
| 表 3.1.2-1  | 蒸留水及びエタノールの物理的性質 3.1-9   |
| 表 3.1.2-2  | 液滴衝突条件(上表 We 18、下表 We 40) 3.1-10                                 |
| 表 3.1.2-3  | T <sub>s</sub> = 350 ℃における単一及び複数の液滴の衝突条件 3.1-11                  |
| 表 3.1.2-4  | 3種のフルコーン水スプレーノズルの仕様 3.1-17                                       |
| 表 3.1.2-5  | エアロゾル分析装置 Welas®digital 2000 の仕様 3.1-19                          |
| 表 3.1.2-6  | エアロゾルの特性 3.1-22  |
| 表 3.1.2-7  | 試験条件   |
| 表 3.1.2-8  | ノズル1と2の除去率3.1-34   |
| 表 3.1.2-9  | ミストなしとミストありのノズル1と2の除去率 3.1-34                                    |
| 表 3.1.2-10 | 2 L/min でのスプレー帯電及びミスト有無の除去率 3.1-36                               |
| 表 3.1.2-11 | 4 L/min でのスプレー帯電及びミスト有無の除去率 3.1-36                               |
| 表 3.1.2-12 | メッシュの独立性チェックのための3つのメッシュスキーム 3.1-37                               |
| 表 3.1.2-13 | シミュレーションケースの境界条件 3.1-38  |
| 表 3.1.2-14 | 多分散エアロゾル粒子のサイズクラス 3.1-39   |
| 表 3.1.2-15 | 異なるケースの初期条件と境界条件 3.1-45  |
| 表 3.1.2-16 | シミュレーションのケース 3.1-47  |
| 表 3.1.2-17 | PCV 内熱収支シミュレーションのケース 3.1-53                                      |
| 表 3.1.2-18 | 燃料デブリの熱物性値 3.1-57  |
| 表 3.1.2-19 | コンクリートの熱物性値 3.1-57   |
| 表 3.1.2-20 | 燃料デブリの体積分布 3.1-58  |
| 表 3.1.2-21 | 各年毎の推定崩壊熱 3.1-59   |
| 表 3.2.1-1  | GP 作製に必要な材料・機器 3.2-1   |
| 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 3.2-2                                       |
| 表 3.2.2-2  | 粘度測定を実施した試料条件一覧 3.2-3  |
| 表 3.2.2-3  | V-1からV-4までの粘度測定結果 3.2-4  |
| 表 3.2.2-4  | V-5からV-12までの粘度測定結果 3.2-5   |
| 表 3.2.2-5  | アトックス照射試験の照射試料一覧 3.2-7   |
| 表 3.2.2-6  | 圧縮強度試験を実施した試料条件一覧 3.2-8  |
| 表 3.2.2-7  | 全試料の圧縮強度試験結果 3.2-9   |
| 表 3.2.2-8  | 添加剤の添加量と含水率の関係 3.2-10  |
| 表 3.2.2-9  | 熱伝導率測定を実施した試料条件一覧 3.2-13   |
| 表 3.2.2-10 | 全試料の熱伝導率測定結果 3.2-14  |
| 表 3.2.2-11 | 照射試験の試料一覧 3.2-15   |
| 表 3.2.2-12 | 水素発生量測定を実施した試料条件一覧 3.2-17  |
| 表 3.2.2-13 | 全試料の水素発生量測定結果 3.2-18   |
| 表 3.2.3-1  | UO <sub>2</sub> 、HfO <sub>2</sub> 、WO <sub>2</sub> の密度と融点 3.2-25 |
| 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 3.2-27                               |

| 表 3.2.3-3 | ₩02-G 試料のレーザー切断によって生成した微粒子     | 3.2-29 |
|-----------|--------------------------------|--------|
| 表 3.2.3-4 | 浸漬試料の元素組成                      | 3.2-31 |
| 表 3.2.4-1 | スランプ試験を模擬した粒子法計算パラメータ          | 3.2-36 |
| 表 3.2.4-2 | 計算から得られたスランプ値                  | 3.2-39 |
| 表 3.2.4-3 | 文献[24]におけるスランプ値(平均値)           | 3.2-39 |
| 表 3.2.4-4 | 原子炉格納容器 (PCV) の形状を用いた計算 (計算条件) | 3.2-41 |
| 表 3.2.4-5 | ペデスタル内側に被覆材を設置した計算(計算条件)       | 3.2-43 |
| 表 3.2.4-6 | 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算(計算条件)   | 3.2-45 |
|           |                                |        |

### 図一覧

| 図 2-1      | 全体計画                             | 2.1-2  |
|------------|----------------------------------|--------|
| ⊠ 2-2      | 実施体制図                            | 2.1-3  |
| ⊠ 3.1.1-1  | 焼結体ペレット外観(HfO <sub>2</sub> )     | 3.1-2  |
| ⊠ 3.1.1-2  | 元素マッピングデータ(HfO2焼結体ペレット)          | 3.1-3  |
| 図 3.1.1-3  | 元素マッピングデータ(WO2焼結体ペレット)           | 3.1-3  |
| ⊠ 3.1.2-1  | 水ミストを用いた新しい凝集法の原理                | 3.1-4  |
| ⊠ 3.1.2-2  | 研究の目的                            | 3.1-4  |
| 図 3.1.2-3  | 単一の液滴と粒子間の相互作用                   | 3.1-5  |
| 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             | 3.1-6  |
| ⊠ 3.1.2-5  | 可視化研究室(東京大学)での実験                 | 3.1-6  |
| ⊠ 3.1.2-6  | 実験セットアップの概略図                     | 3.1-7  |
| 図 3.1.2-7  | 温度制御試験板                          | 3.1-7  |
| ⊠ 3.1.2-8  | 同期マスターとスレーブ高速カメラ                 | 3.1-8  |
| 図 3.1.2-9  | PIV 概略図                          | 3.1-8  |
| 図 3.1.2-10 | レーザーデバイス                         | 3.1-9  |
| 図 3.1.2-11 | 異なる温度及びウェーバー数のシャドーグラフ            | 3.1-10 |
| ⊠ 3.1.2-12 | 異なる温度表面への2つの液滴の様子                | 3.1-11 |
| 図 3.1.2-13 | 350 ℃で固体表面に単一及び複数の液滴衝突画像         | 3.1-12 |
| ⊠ 3.1.2-14 | 異なる衝突速度の二重液滴に対する表面温度分布の変化        | 3.1-13 |
| ⊠ 3.1.2-15 | 異なる衝突速度の二重液滴に対する熱流束の変化           | 3.1-13 |
| 図 3.1.2-16 | UTARTS 装置の概念設計図                  | 3.1-14 |
| 図 3.1.2-17 | 装置外観                             | 3.1-14 |
| 図 3.1.2-18 | 円筒容器と光学窓の設計                      | 3.1-15 |
| 図 3.1.2-19 | エアロゾル発生器                         | 3.1-16 |
| 図 3.1.2-20 | 低濃度と高濃度でのミストサイズ分布                | 3.1-16 |
| 図 3.1.2-21 | 3種のノズルの写真                        | 3.1-17 |
| 図 3.1.2-22 | 3種のノズルの液滴サイズ分布                   | 3.1-18 |
| 図 3.1.2-23 | 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 | 3.1-18 |
| ⊠ 3.1.2-24 | エアロゾル分析装置 Welas®digital 2000     | 3.1-19 |
| 図 3.1.2-25 | 実験手順                             | 3.1-20 |
| 図 3.1.2-26 | ミストを除去するためのヒーター巻きチューブブ           | 3.1-20 |
| 図 3.1.2-27 | エアロゾル噴射中の SiC 粒子サイズ分布            | 3.1-21 |
| 図 3.1.2-28 | 3 種類の粒子の SEM 画像                  | 3.1-22 |
| 図 3.1.2-29 | 容器内に 10 分間分散したあとの初期サイズ分布         | 3.1-22 |
| 図 3.1.2-30 | 水スプレー中のエアロゾル粒子のサイズ変化             | 3.1-24 |
| 図 3.1.2-31 | エアロゾル径に対する水スプレー効率                | 3.1-25 |
| ⊠ 3.1.2-32 | 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        | 3.1-25 |
| 図 3.1.2-33 | 水スプレー時間に対するエアロゾル除去率              | 3.1-26 |
| 図 3.1.2-34 | 異なる粒子サイズでのエアロゾル除去                | 3.1-27 |
| ⊠ 3.1.2-35 | 3種のノズルの全体的な水スプレー効率               | 3.1-28 |

| ⊠ 3.1.2-36 | 3種のノズルのエアロゾル数濃度                       | 3.1-29   |
|------------|---------------------------------------|----------|
| ⊠ 3.1.2-37 | 3種のノズルのエアロゾル除去率                       | 3.1-29   |
| ⊠ 3.1.2-38 | エアロゾルサイズ分布の時間変化                       | 3.1-30   |
| ⊠ 3.1.2-39 | 異なる粒子の水スプレー効率                         | 3.1-31   |
| ⊠ 3.1.2-40 | 異なる粒子のエアロゾル数濃度                        | 3.1-31   |
| ⊠ 3.1.2-41 | 異なる粒子のエアロゾル除去率                        | 3.1-32   |
| ⊠ 3.1.2-42 | 開始エアロゾルサイズ濃度の平均、最小、及び最大値              | 3.1-32   |
| ⊠ 3.1.2-43 | ノズル1のエアロゾル濃度(左)と除去率(右)                | 3.1-33   |
| ⊠ 3.1.2-44 | ノズル2のエアロゾル濃度(左)と除去率(右)                | 3.1-33   |
| ⊠ 3.1.2-45 | ミストがある場合とない場合のエアロゾル濃度(左)と除去率(右)       | 3.1-34   |
| ⊠ 3.1.2-46 | スプレー帯電有無の2 L/min でのエアロゾル濃度の比較         | 3.1-35   |
| ⊠ 3.1.2-47 | スプレー帯電、ミスト有無の2 L/min でのエアロゾル濃度と除去率    | 3.1-35   |
| ⊠ 3.1.2-48 | 帯電有無の4 L/min でのエアロゾル濃度及び除去率           | 3.1-36   |
| ⊠ 3.1.2-49 | 実験データとシミュレーション結果の比較                   | 3.1-39   |
| 図 3.1.2-50 | シミュレーションケース I のスプレー中の AP6 質量分率        | 3.1-40   |
| 図 3.1.2-51 | シミュレーションケース I の AP6 質量分率とガス速度ベクトル     | 3.1-40   |
| ⊠ 3.1.2-52 | シミュレーションケースⅡのスプレー中の AP6 質量分率          | 3.1 - 41 |
| 図 3.1.2-53 | シミュレーションケースⅡの AP6 質量分率とガス速度ベクトル       | 3.1-41   |
| 図 3.1.2-54 | スプレー中の容器内の流れ領域                        | 3.1-42   |
| 図 3.1.2-55 | 異なる捕集メカニズムを考慮した場合の総エアロゾル質量            | 3.1-43   |
| 図 3.1.2-56 | 異なる捕集メカニズムの寄与                         | 3.1-43   |
| 図 3.1.2-57 | 1F 3 号機の実物大 PCV の形状                   | 3.1-44   |
| 図 3.1.2-58 | スプレーBを使用した容器内の AP6 質量分率               | 3.1-46   |
| 図 3.1.2-59 | スプレーCを使用した容器内の AP6 質量分率               | 3.1-46   |
| 図 3.1.2-60 | 1分後のスプレーB、スプレーC、スプレー中央の速度場            | 3.1-47   |
| 図 3.1.2-61 | スプレーなしの場合の PCV 内の AP6 エアロゾル質量分率       | 3.1-48   |
| 図 3.1.2-62 | スプレー中央(チャージ)の場合の PCV 内の AP6 エアロゾル質量分率 | 3.1-48   |
| 図 3.1.2-63 | PCV ガス出口での AP6 エアロゾル質量分率              | 3.1-49   |
| 図 3.1.2-64 | スプレーC とスプレー中央の AP6 エアロゾル質量分率          | 3.1-49   |
| 図 3.1.2-65 | PCV 内の AP6 エアロゾル質量分率の平均値              | 3.1-50   |
| ⊠ 3.1.2-66 | PCV モデルの形状                            | 3.1-51   |
| 図 3.1.2-67 | スプレーの概要                               | 3.1-52   |
| 図 3.1.2-68 | PCV 内の 4 つの評価対象箇所                     | 3.1-53   |
| 図 3.1.2-69 | ペデスタル中心の気相温度の比較                       | 3.1-54   |
| 図 3.1.2-70 | ペデスタルの最高温度の比較                         | 3.1-54   |
| 図 3.1.2-71 | 熱解析用ジオメトリ                             | 3.1-56   |
| 図 3.1.2-72 | 崩壊熱の時間推移                              | 3.1-58   |
| 図 3.1.2-73 | 1F 1 号機 PCV 内の推定条件                    | 3.1-58   |
| 図 3.1.2-74 | 解析モデルの初期境界条件                          | 3.1-59   |
| 図 3.1.2-75 | 部分気中 PCV モデル                          | 3.1-60   |
| 図 3.1.2-76 | 推定温度履歴                                | 3.1-60   |
| 図 3.1.2-77 | 部分気中 PCV 条件の推定温度                      | 3.1-61   |

| 図 3.1.2-78   | 気中 PCV 条件の推定温度  | 3.1-62  |
|--------------|---|---------|
| 図 3.1.2-79   | 部分被覆に対する外部冷却の効果   | 3.1-63  |
| 図 3.1.2-80   | 1F 1 号機の RPV 形状 3D モデル  | 3.1-64  |
| 図 3.1.2-81   | 境界条件と材料物性値  | 3.1-64  |
| ⊠ 3.1.2-82   | 種々の崩壊熱値に対する RPV 温度分布(損傷なし)  | 3.1-65  |
| 図 3.1.2-83   | 種々の崩壊熱に対する各部位の温度分布(損傷なし)  | 3.1-66  |
| 図 3.1.2-84   | 30 %崩壊熱に対する RPV 温度分布(損傷あり)  | 3.1-66  |
| 図 3.1.2-85   | 種々の崩壊熱に対する各部位の温度分布(損傷あり)  | 3.1-67  |
| 図 3.1.2-86   | 損傷有無 RPV の温度比較(1)   | 3.1-67  |
| 図 3.1.2-86   | 損傷有無 RPV の温度比較(2)   | 3.1-68  |
| 図 3.1.2-87   | 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  | 3.1-69  |
| 図 3.1.2-88   | 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   | 3.1-70  |
| ⊠ 3.2.2-1    | 珪砂量を変化させた場合の粘度の経時変化   | 3.2-4   |
| ⊠ 3.2.2-2    | 養生温度を変化させた場合の粘度の経時変化  | 3.2-5   |
| ⊠ 3.2.2-3    | 照射試験状況  | 3.2-6   |
| 図 3.2.2-4    | 養生温度・珪砂量・粒径を変えた場合の圧縮強度  | 3.2-10  |
| ⊠ 3.2.2-5    | 含水率と圧縮強度の関係(未照射試料のみ)  | 3.2-11  |
| 図 3.2.2-6    | 照射の有無による圧縮強度と含水率の比較   | 3.2-12  |
| ⊠ 3.2.2-7    | 添加剤・照射の有無と熱伝導率の関係   | 3.2-14  |
| 図 3.2.2-8    | 照射後ガス発生量分析結果  | 3.2-15  |
| 図 3.2.2-9    | 照射後水素ガス発生量分析結果  | 3.2-16  |
| 図 3.2.2-10   | G(H <sub>2</sub> )値の比較  | 3.2-19  |
| 図 3.2.2-11   | GP-Jの加熱焼成後外観(砂添加なし)   | 3.2-19  |
| ⊠ 3. 2. 2-12 | GP-Jの加熱焼成後外観(砂添加あり)   | 3. 2-19 |
| ⊠ 3. 2. 2-13 | GP-Jの加熱温度に対する質量減少率  | 3.2-20  |
| ⊠ 3. 2. 2-14 | GP-J 試料の XRD 分析結果(砂添加なし、未照射)  | 3.2-20  |
| ⊠ 3.2.2-15   | 沈降率測定概念図  | 3.2-21  |
| ⊠ 3.2.2-16   | 時間依存による沈降率変化  | 3.2-22  |
| ⊠ 3.2.2-17   | 照射量依存による沈降率の変化  | 3.2-22  |
| ⊠ 3.2.2-18   | 超重泥水の高温試験外観   | 3.2-23  |
| ⊠ 3.2.2-19   | 超重泥水の沈降率の時間変化(高温試験)   | 3.2-23  |
| ⊠ 3.2.2-20   | 照射時の沈降試験の結果   | 3.2-24  |
| 図 3.2.3-1    | 切断試験用の試料の写真   | 3.2-25  |
| ⊠ 3.2.3-2    | GP 被覆を施した HfO <sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 SEM 像(HfO <sub>2</sub> -G)       | 3.2-26  |
| ⊠ 3.2.3-3    | GP 被覆を施した HfO <sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 EDX マッピング (HfO <sub>2</sub> -G)  | 3.2-27  |
| ⊠ 3.2.3-4    | GP 被覆を施した WO <sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 SEM 像(WO <sub>2</sub> -G)         | 3.2-28  |
| 図 3.2.3-5    | GP 被覆を施した WO <sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 EDX マッピング(WO <sub>2</sub> -G)-1   | 3.2-28  |
| 図 3.2.3-6    | GP 被覆を施した WO <sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 EDX マッピング (WO <sub>2</sub> -G) -2 | 3.2-28  |
| ⊠ 3.2.3-7    | 浸出試験固相の XRD プロファイル  | 3.2-32  |

| ⊠ 3.2.3-8  | 浸出試験固相の FTIR スペクトル                 | 3.2-33 |
|------------|------------------------------------|--------|
| ⊠ 3.2.3-9  | 浸出試験固相のラマンスペクトル                    | 3.2-33 |
| ⊠ 3.2.3-10 | 浸出試験期間中の液相の pH 変化                  | 3.2-34 |
| ⊠ 3.2.3-11 | 浸出試験期間中の液相のNa、A1、Si濃度、Si/A1 モル比の変化 | 3.2-35 |
| 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 20 Pa)    | 3.2-37 |
| ⊠ 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 100 Pa)   | 3.2-38 |
| ⊠ 3.2.4-3  | 障害物がある場合の計算(降伏応力 20 Pa)            | 3.2-40 |
| ⊠ 3.2.4-4  | 原子炉格納容器 (PCV) の形状を用いた計算(初期粒子配置)    | 3.2-41 |
| 図 3.2.4-5  | 原子炉格納容器 (PCV) の形状を用いた計算(計算結果)      | 3.2-42 |
| 図 3.2.4-6  | ペデスタル内側に被覆材を設置した計算(計算体系)           | 3.2-43 |
| 図 3.2.4-7  | ペデスタル内側に被覆材を設置した計算(計算結果)           | 3.2-44 |
| ⊠ 3.2.4-8  | 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算(計算体系)       | 3.2-45 |
| 図 3.2.4-9  | 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算(計算結果)       | 3.2-46 |
| 図 3.2.4-10 | 降伏応力と盛り上がり高さの関係                    | 3.2-46 |
| ⊠ 3.2.4-11 | 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算             | 3.2-47 |

略語一覧

| 原子力機構:Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構) |  |                     |  |  |  |
|--|--|---------------------|--|--|--|
| CLADS  | ADS : Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science      |                     |  |  |  |
|  |  | (廃炉環境国際共同研究センター)    |  |  |  |
| 1F   | :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             |  |  |  |
| NDF  | : Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation |                     |  |  |  |
|  |  | (原子力損害賠償・廃炉等支援機構)   |  |  |  |
| 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)            |  |  |  |
| ILIDS  | : Interferometric Laser Imaging for Droplet Sizing                         |                     |  |  |  |
|  |  | (液滴サイジングのための干渉レーザーイ |  |  |  |
|  |  | メージング)              |  |  |  |
| MCCI   | : Molten Core Concrete Interaction   | (溶融炉心―コンクリート相互作用)   |  |  |  |
| 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   | (走查型電子顕微鏡)          |  |  |  |
|  |  |                     |  |  |  |

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(以下、「1F」と略記。)の燃料デブ リ取出し工法として現在、気中-上アクセス工法、気中-横アクセス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 価を行った。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した。

令和2年度の実施業務の概略を、以下に述べる。

- (1) 燃料デブリ飛散防止技術の開発
  - ① 微粒子飛散試験

令和元年度に引き続き、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 プレーによる微粒子飛散防止効果や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した。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った。

特に、スプレー流量の影響や電荷したスプレー効果を実験により確認し、ミスト噴霧と 併せて、スプレーの流量増や電荷付与を組み合わせることにより、さらに効率的に微粒子 を捕獲できる見通しを得た。

また、得られた実験成果を基に、実機サイズのシミュレーションを行い、1F3号機原子 炉格納容器(Primary Containment Vessel:以下、「PCV」と略記。)内において、微粒子飛 散防止に有効なスプレー位置を把握した。

- (2) 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価
  - ① 被覆材特性評価

安定化被覆材に関しては、ジオポリマー(以下、「GP」と略記。)を富士電機株式会社等 と、飛散抑制効果のある沈降型超重泥水を一般社団法人 NB 研究所(以下、「NB 研究所」と 略記。)と協議し、作製した。

被覆材の評価としては、令和元年度に引き続いて、添加剤有無の熱伝導率、粘性変化、 流動特性等各種基礎材料特性を把握した。また、令和元年度の結果を基に、被覆材の一部 について 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。

特に、GPの流動性及び収縮防止に効果のある添加物(珪砂等)の影響について、流動性、 機械的特性、照射特性等を把握し、GPが、温度条件等を変えることにより十分に流し込み ができ、また安定した固化体となることを確認した。 2 微粒子物性評価

令和元年度に回収した微粒子のサイズ分布、組成、形状の評価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、GPの浸出試験を実施した。

180 日間の長期の浸出試験を行い、GP の長期安定性を評価した。浸出試験期間中、GP 固 相の元素組成、骨格構造、結晶相には大きな変化はなく、GP が安定に存在していた。一方、 液相の分析から、浸出直後、速やかに pH が減少し、おおよそ 30 日後に、定常に達するこ とが分かった。

③ 被覆材流動解析(再委託先:産業技術総合研究所)

令和元年度に決定したモデルパラメータを用いることにより被覆材の流動を外挿的に模 擬し、施工性評価のためのシミュレーションを行った。計算資源量を考慮して計算体系を 選定し、被覆材の障害物に対する回り込みなど、施工性の観点から結果を評価し、取りま とめを行った。

粒子法により、(1)PCV 体系を模擬した計算により被覆材の降伏応力と流動性の関係を確認、及び、(2)2 次元計算により流動停止時の被覆材の高さと降伏応力の関係を確認し、PCV 下部へ GP を広範囲に流し込むための材料物性を明らかにした。

(3) 取りまとめ(課題抽出)

上記研究成果を取りまとめて、燃料デブリ取出し時における微粒子飛散を効果的に抑制 する技術について総合評価を行った。

(4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター(Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science:以下、「CLADS」と略記。)等との 連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打ち合わせや会議 等を開催した。

以上、3ヵ年計画の研究業務項目をすべて完了し、「燃料デブリ取出し時における放射性核 種飛散防止技術」に関して極めて有効な技術を開発でき、所期の研究目標を達成した。 1. はじめに

1F の燃料デブリに関しては令和4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 中ー上アクセス工法及び気中ー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、令和元年度の 1F 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、制御棒駆動 (Control Rod Drive:以下、「CRD」と略記。)の原子炉圧力容器 (Reactor Pressure Vessel: 以下、「RPV」と略記。)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。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溶融炉心-コンクリート相互作用(Molten Core Concrete Interaction:以下、「MCCI」と略記。) 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、原子力損害賠償・廃炉等支援機構(Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation:以下、「NDF」と略記。)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、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微粒子を飛散させないため、(1)水スプレーを活用し、極 カ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・液中挙動ならびに飛散防止対策について総合評価を行い、 最終的には 1F に実装可能なシステムを提案する。 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、全体計画を図 2-1 に示す。

2.1.1 燃料デブリ飛散防止技術の開発(東京大学、連携先: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(エアロゾルを含む。)の飛散挙動ならびに水 スプレー等による飛散抑制効果の実験及びシミュレーションを行う。また、水スプレーによる 燃料デブリ除熱効果(被覆材の有無を含む。)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、1F 特有の模擬燃料デブリを日本原子力研究開発機構(以下、「原子力機構」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、粒子画像流速測定法 (Particle Image Velocimetry: 以下、「PIV」と略記。)、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、CFD コード STAR-CCM+ (Siemens) 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+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(東京大学、連携先: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、その後取出す施工方法を検討する。本課題では、安定化ならびに飛散防止材として、GP 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、前述の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(例えばホウ酸水)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、GP 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、GP(+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、GP の浸出試験を実施する。

2.1.3 取りまとめ

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。



図 2-1 全体計画

**2.1-2** - 28 -

### 2.1.4 実施体制図

本業務の実施体制図を図 2-2 に示す。





- 2.2 各年度の成果の目標及び業務の実施方法
- 2.2.1 平成 30 年度の成果の目標及び業務の実施方法
  - (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。さらに、PIV、レーザー等微粒子測定装置、機械的切削工具、なら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) 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価
- 被覆材の作製(再委託先:原子力機構)

試験材として適切な GP 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 GP 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 GP の他、欧州で実績のある GP 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 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 GP 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。

(3) 取りまとめ(課題抽出)

上記研究成果を取りまとめて令和元年度に向けた課題を抽出する。

- 2.2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法
  - (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) 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価
- 被覆材の作製(連携先:原子力機構)

試験材として適切な GP 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 GP の他、欧州で実績のある GP SIAL®を富士電機株式会 社等と、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 GP 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: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、令和2年度に行う施工性評価のための準備を行う。

(3) 取りまとめ(課題抽出)

上記研究成果を取りまとめて令和2年度に向けた課題を抽出する。

- 2.2.3 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法
  - (1) 燃料デブリ飛散防止技術の開発
  - ① 微粒子飛散試験

令和元年度に引き続き、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 プレーによる微粒子飛散防止効果や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) 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価
- ① 被覆材特性評価

安定化被覆材に関しては、GPを富士電機株式会社等と、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、令和元年度に引き続いて、 添加剤有無の熱伝導率、粘性変化、流動特性等各種基礎材料特性を把握する。また、令和 元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する。

- 3. 業務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【平成30年度-令和2年度】
- 3.1.1 模擬燃料デブリの作製(連携先:原子力機構) 【平成30年度-令和元年度】 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。平成30年度には構造材を模擬した、 Zr、ZrO<sub>2</sub>、CeO<sub>2</sub>、Fe を試作後、令和元年度では燃料デブリ成分を模擬したHfO<sub>2</sub>、WO<sub>2</sub>を作製し た。

以下には燃料デブリ模擬材の代表として令和元年度に作製した材料選定と作製方法、ならび に作製後の材料分析結果を示す。

- 3.1.1.1 作製方法
  - (1) 原料
    - IfO<sub>2</sub>:株式会社レアメタリック製、純度 99.9 %
    - ② WO<sub>2</sub> :株式会社レアメタリック製、純度 99 %
  - (2) 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)
  - <Hf0<sub>2</sub>>: 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の ち、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。
  - <W0<sub>2</sub>>: 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+H<sub>2</sub>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+H<sub>2</sub>ガスを20mL 掃気した。W0<sub>2</sub>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、HfO<sub>2</sub>及び WO<sub>2</sub>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のち、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。

(4) 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、①X線構造解析、② 断面観察・元素分布測定、③ビッカース硬度・破壊靭性測定、及び④密度測定、を実施した。

- 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焼結体ペレットの外観写真を一例として図 3.1.1-1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、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靭性の測定結果を表 3.1.1-2 に示す。

③ 定性分析

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 3.1.1-2、図 3.1.1-3 に示す。

| 知氏              | 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   |
|-----------------|------|----------|--------|------------|----------|-------|
| 术且,万久           | No   | $[mm^3]$ | [g]    | $[g/cm^3]$ | $[mm^3]$ | [%]   |
|                 | n1   | 1200     | 8.9421 | 10.3640    | 862      | 28.10 |
| $HfO_2$         | n2   | 1183     | 8.9874 | 10.3087    | 872      | 26.33 |
|                 | n3   | 1215     | 8.9575 | 10.3672    | 864      | 28.94 |
|                 | n4   | 1209     | 8.9535 | 10.2607    | 873      | 27.87 |
|                 | n1   | 1221     | 6.4374 | 11.3465    | 567      | 53.55 |
| WO <sub>2</sub> | n2   | 1201     | 6.3704 | 11.0642    | 576      | 52.10 |
|                 | n3   | 1181     | 6.3559 | 11.1655    | 569      | 51.82 |
|                 | n4   | -        | -      | -          | _        | -     |

表 3.1.1-1 焼結体ペレットの密度・空隙率

表 3.1.1-2 焼結体ペレットのビッカース硬さ・破壊じん性

| 組成               | ビッカース硬さ<br>[GPa]               | 破壊じん性<br>[MPa・m <sup>0.5</sup> ] |
|------------------|--------------------------------|----------------------------------|
| HfO <sub>2</sub> | $1.79 \pm 6.53 \times 10^{-2}$ | $144 \pm 4.5$                    |
| $WO_2$           | $1.38 \pm 2.77 \times 10^{-2}$ | $35 \pm 0.7$                     |



図 3.1.1-1 焼結体ペレット外観(HfO<sub>2</sub>)



| Z    | AF 法*1 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[%]     |
| C K  | 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 3.1.1-2 元素マッピングデータ(HfO2焼結体ペレット)

\*1 ZAF法:特性X線の分光分析において、目的元素の定量に用いる補正法



|     | ZAF 法 簡易定量  | き分析 フィッティンク               | "係数:0.0786 |
|-----|-------------|---------------------------|------------|
| 元素  | KeV         | 質量[%]                     | 原子数[%]     |
| C K | 0.277       | 38.69                     | 68.68      |
| O K | 0.525       | 19.90                     | 26.51      |
| W M | 1.774       | 41.41                     | 4.80       |
| 合計  |             | 100.00                    | 100.00     |
| 义   | 3.1.1-3 元素マ | ッピングデータ(WO <sub>2</sub> タ | 尭結体ペレット)   |

**3.1-3** - 35 - 3.1.2 微粒子飛散試験【平成 30 年度-令和 2 年度】

3.1.2.1 試験目的【平成 30 年度 - 令和 2 年度】

2011 年の 1F 事故の際、燃料は溶融して RPV 及び PCV の底部で再凝固した。現在、1F 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、水滴によって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、1F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、なら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。



図3.1.2-2 研究の目的

3.1.2.2 単一液滴実験【平成 30 年度-令和元年度】

本実験の目的は、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、単一液滴とエアロゾル粒子の相互作用実験を行うことにより、スプレー液滴と エアロゾル粒子の間の基本的な相互作用メカニズムを把握した。

平成 30 年度では、実験のためのレーザー測定装置を設置してスプレー液滴サイズの測定を 開始した。また令和元年度では、測定データの拡充を図った。以下には代表的な実験結果を 示す。

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用)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。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、後述の 3.1.3 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 高温部での液滴挙動及び冷却評価【令和2年度】

令和2年度では燃料デブリを想定し、高温部に落下した場合の液滴沸騰、拡がり等の飛散 挙動及び冷却効果を把握した。

- (1) 装置及び試験方法
  - ① 落下試験装置

実験セットアップと概略図をそれぞれ図 3.1.2-5 と図 3.1.2-6 に示す。本システムは 液滴の生成及び制御システム、温度制御実験プレートシステム、可視化及びデータ取得 システムの3つの主要なシステムから構成される。



図 3.1.2-5 可視化研究室(東京大学)での実験

**3.1-6** - 38 -



図 3.1.2-6 実験セットアップの概略図

② 液滴の生成と制御システム

複数の液滴を実現するために、液滴生成及び制御システムが開発された。このシステムは、信号発生器、シリンジポンプ、ホルダー、スピーカー、及び針で構成されている。 キャピラリーチューブは、シリンジの出口に1つずつ接続した。針は、毛細管の両端に シリコンを使用して、それらの間の距離が同じになるようにホルダーに固定した。

③ 温度制御実験プレートシステム

温度制御実験プレートは、銅ブロック、絶縁材料、サファイアガラス、熱電対、カートリッジヒーター、及び温度コントローラから構成される。図 3.1.2-7 に示すように、 サファイアガラス (10×10×0.5 mm) で作られた試験板を、下に絶縁材を備えた温度制 御銅ブロックに置いた。各側面に 6 穴を持つ銅ブロックが作製され、カートリッジヒー ター (250 W、200 V、1.25 A) が両側の穴に埋め込まれた。動作するカートリッジヒー ターの最高温度は 871 ℃で、熱電対はサファイアガラスの温度を測定するために使用さ れた。



図 3.1.2-7 温度制御試験板

④ 可視化・データ収集システム

図 3.1.2-8 に示すように、同期カメラ(株式会社フォトロン、FASTCAM Mini と FASTCAM SA5)を使用して、衝撃後の左右と底方向からの相互作用全体にわたって液滴の動的変化 を記録した。



図 3.1.2-8 同期マスターとスレーブ高速カメラ

データは、測定後に画像またはビデオファイルに変換されたのち、オープンソースソフトウェア ImageJ と Python を使用して後処理した。また、実験の一部として液滴の形状変化の観察に適した最も単純な光学系であるシャドーグラフ法を用いた。

### ⑤ PIV 試験

PIV は、所定の領域における流れの挙動を調べるために使用される流れ可視化技術である。図 3.1.2-9 は、PIV 実験の実験用セットアップの概略図を示す。PIV システムはレーザーデバイスと高速カメラから構成される。



図 3.1.2-9 PIV 概略図

本研究では、図 3.1.2-10 に示すように、レーザー(出力電力 10 Wの DPSS 532 nmの 緑色波長)を液滴照明に使用した。ライトシートはサファイアガラスと平行に並べた。 また、長距離顕微鏡レンズとロングパスフィルターから構成される FASTCAM Mini はレ ーザー点灯面に平行に設置し、円穴を通して下側からの粒子の動きを記録した。また、 高分子蛍光粒子(6 µm)を流体に加え、流れを可視化した。



(2) 試験結果

種々の液滴衝突条件と表面温度に対して数多くの実験を行った。液滴発生に用いる液体 は蒸留水及びエタノールであり、これらの物理的性質を表 3.1.2-1 に示す。実験は、大気 条件下での広範囲の温度(23 ℃~520 ℃)の固体表面で行った。液滴生成システムは、表 面から既知の距離に垂直に位置し、液滴衝撃速度は距離によって変化させた。

表 3.1.2-1 蒸留水及びエタノールの物理的性質

| 液体    | T[℃] | $ ho \; [kg/m^3]$ | $\sigma$ [N/m] | $U_0(m/s)$ | We            | $T_s[^{\circ}C]$ |
|-------|------|-------------------|----------------|------------|---------------|------------------|
| 蒸留水   | 100  | 998               | 0.0725         | 0.4~3.15   | $4 \sim 350$  | $23 \sim 520$    |
| エタノール | 78.2 | 789               | 0.022          | 0.54~2.37  | $27 \sim 485$ | $23 \sim 370$    |

① 単一液滴実験

a. 表面温度とウェーバー数の影響

熱い表面に液滴の衝撃が加わると、異なる流力特性及び熱的挙動が観察される。これらの動作は、ウェーバー(We)数と表面温度とに非常に関連している。図 3.1.2-11は、異なる温度(T<sub>s</sub> = 150 °C、200 °C、250 °C、300 °C)及び低ウェーバー数((a) 18及び(b) 40)における固体表面上の単一液滴のシャドーグラフ画像を示す。ここで $\tau$ は無次元の時間である。

これらの液滴の衝突条件を表 3.1.2-2 に示す。We 数が大きくなるにつれてより高い 衝撃エネルギーのため、拡がり面積は大きくなる。拡散開始時点では、200 ℃までの サファイアガラス上の液滴衝突では、核沸騰及び二次液滴は認められなかった。一方、 250 ℃の表面温度では、拡がり段階の初期からかなりの量の二次液滴が観察された。

| パラメータ     | 150 °C | 200 °C | 250 °C | 300 °C |
|-----------|--------|--------|--------|--------|
| 液滴径[mm]   | 2.31   | 2.26   | 2.25   | 2.25   |
| 液滴速度[m/s] | 0.77   | 0.75   | 0.75   | 0.75   |
| We 数      | 19     | 18     | 18     | 18     |
| パラメータ     | 150 °C | 200 °C | 250 °C | 300 °C |
| 液滴径[mm]   | 2.39   | 2.32   | 2.38   | 2.30   |
| 液滴速度[m/s] | 1.12   | 1.13   | 1.12   | 1.12   |
| We 数      | 42     | 42     | 41     | 42     |

表 3.1.2-2 液滴衝突条件(上表 We 18、下表 We 40)

(a) We 18



(b) We 40



図 3.1.2-11 異なる温度及びウェーバー数のシャドーグラフ

**3.1-10** - 42 -

## b. 複数の液滴実験

複数の液滴では、近接する液滴間の相互作用が影響する。加熱された表面上の複数の液滴の衝突のあと、異なる流力特性及び熱挙動が観察された。図 3.1.2-12 には異なる温度(T<sub>s</sub> = 100 ℃、200 ℃、300 ℃)の表面への2つの液滴の衝突の様子を示す。



図 3.1.2-12 異なる温度表面への 2 つの液滴の様子

図 3.1.2-13 は、350 ℃の表面温度との単一及び複数の液滴相互作用を示す。 また、液滴衝突条件を表 3.1.2-3 に示す。

|             | 単一液滴 | 二重   | 液滴   |      | 三重液滴 |      |
|-------------|------|------|------|------|------|------|
| 液滴径[mm]     | 2.28 | 2.25 | 2.30 | 2.25 | 2.25 | 2.25 |
| 液滴速度[m/s]   | 1.89 | 1.90 | 1.92 | 1.92 | 1.92 | 1.92 |
| We 数        | 113  | 113  | 118  | 115  | 115  | 115  |
| $d_{\rm h}$ | _    | 1.   | 78   | 1.78 |      | 1.67 |
| $d_{v}$     | -    |      | 0    | 0.03 |      | 0.01 |

表 3.1.2-3 T<sub>s</sub> = 350 ℃における単一及び複数の液滴の衝突条件

液滴の変形のメカニズムは次のように説明される。先ず液滴は熱い表面に衝突する 前に放射熱によって加熱される。しかし、放射熱はごくわずかであるため、液滴と熱 い表面との間には蒸気層は生成しない。接触後、主なる熱伝達は薄膜と熱い表面の温 度差によって生じる。接触領域温度は、表面に近い液体を加熱すると瞬時に低下する。 蒸気気泡の生成は、接触領域での沸騰に起因して発生し、熱い表面から分離されて薄 膜の浮力によって持ち上げられ、最終的には大気中に放出される。この気泡の動きに より多くの二次液滴が生成され、分散する結果となる。



図 3.1.2-13 350 ℃で固体表面に単一及び複数の液滴衝突画像

c. 複数液滴の冷却に及ぼす熱流束評価

水スプレーによる表面冷却試験として、複数液滴を用いることにより、表面温度評 価ならびに熱流束評価等冷却性能評価を実施した。

液滴相互作用は多くの領域で起こり、相互作用は主に複数の液滴衝突で起こる。相 互作用の第1段階では衝撃面積が非常に小さいが、加熱された表面と二重液滴の間の 温度差が大きいため、表面温度が急激に低下し、単位面積あたりの熱伝達がより効果 的になる。表面温度のより顕著な低下は、最も低い衝撃速度の場合に観察された。図 3.1.2-14は、異なる衝撃速度に対する無次元時間の同時二重液滴熱流量の変化を示す。 無次元時間の熱流量変動は、時間とともに広がる面積の変動と同様の振る舞いを示し た。また、図 3.1.2-15に示すように、衝撃速度の増加に伴い表面の拡がり領域が増加 し、表面からの熱流束は増加した。



図 3.1.2-14 異なる衝突速度の二重液滴に対する表面温度分布の変化



図 3.1.2-15 異なる衝突速度の二重液滴に対する熱流束の変化

3.1-13 - 45 -

- 3.1.2.4 微粒子飛散試験装置の概要【平成 30 年度】
  - 平成30年度には微粒子飛散試験のための装置設計及び製作及び予備試験を行った。
  - (1) UTARTS 装置

図 3.1.2-16 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 3.1.2-17 に装置外観を示す。



図3.1.2-16 UTARTS装置の概念設計図



図3.1.2-17 装置外観

① 円筒容器

高さ2.5 m、内径1.5 m、総体積3.92 m<sup>3</sup>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3.1.2-18)。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 ILIDS(液滴サイジングのため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 3.1.2-18 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 3.1.2-19)。



(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 3.1.2-19 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(株式会社山善、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 3.1.2-20 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/cm<sup>3</sup>と 18922.43 P/cm<sup>3</sup>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、C<sub>mist</sub> = 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 3.1.2-20 低濃度と高濃度でのミストサイズ分布

3.1-16 - 48 -

### 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 3.1.2-21 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 Systems Co.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 3.1.2-4 に示す。



(a) ノズル 1



(c) ノズル3

図 3.1.2-21 3種のノズルの写真

(b) ノズル2

|                                | ノズル 1        | ノズル 2  | ノズル 3  |
|--------------------------------|--------------|--------|--------|
| モデル                            | 1/8GG-SS3004 | TG3.5  | TG2    |
| オリフィス径                         | 1.2 mm       | 1.7 mm | 1.2 mm |
| Distance from<br>top of vessel | 300 mm       | 300 mm | 300 mm |

表 3.1.2-4 3種のフルコーン水スプレーノズルの仕様

非侵入型 ILIDS 及び PIV 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 3.1.2-22 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 3.1.2-22 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 µm の範囲で、194 µm 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 µm、もう1つのピークの直径は381 µm であった。ノズル3では、2つのピークがあり、それぞれ103 µm と308 µm であった。平均液滴速度は、PIV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3.1.2-23)。

図 3.1.2-23(a)には、3 種のノズルの液滴流速分布、図 3.1.2-23(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 $U_{max}$ は、それぞ れ 22.22 m/s、18.81 m/s、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。



図 3.1.2-23 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

3.1-18 - 50 - 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3.1.2-24)。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Welas®digital 2000)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。Welas®digital 2000は、<1 P/cm<sup>3</sup>~10<sup>6</sup> P/cm<sup>3</sup>の粒子濃度と、0.2~10 µm の範囲の粒子サイズを測定でき、絶対測定誤差は±0.01 µm、相対誤差は5%である[4]。 エアロゾルアナライザーWelas®digital 2000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を一緒に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3.1.2-5 に示す。



図 3.1.2-24 エアロゾル分析装置 Welas®digital 2000 (PALAS 社から許諾を得て掲載)

| 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)                           | 0.2~10 µm                       |
| ( <i>C<sub>n</sub></i> ) 測定範囲 (C_n) | $<1\sim 10^6$ P/cm <sup>3</sup> |
| 測定精度                                | $\pm 0.01$ µm, 5 %              |
| 动物油库                                | up to $250~^\circ\!\mathrm{C}$  |
| 间然通及                                | 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 3.1.2-5 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あと、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 3.1.2-25 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のち、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。



図 3.1.2-25 実験手順

(3) ヒーターのミスト除去効果

エアロゾル粒子濃度を正確に測定するために、図 3.1.2-26 に示す 1.2 mのヒーターパイ プを使用して、パイプと加熱可能な容器の両方を 150 ℃に加熱し、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 3.1.2-26 ミストを除去するためのヒーター巻きチューブ

(4) エアロゾル粒子の特性評価【令和元年度】

令和元年度には、平成 30 年度に製作した装置を用いた本格実験を行い、エアロゾル粒子の特性評価を実施した。

 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 Ltd.、 Dekati®ELPI®+(電気低圧インパクター)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GP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GP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 3.1.2-27 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 µmSiC 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 3.1.2-27 エアロゾル噴射中の 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<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、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 µm である。ZrO<sub>2</sub>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 3.1.2-6 に示す。

図 3.1.2-28 には、これら 3 種類の粒子の走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope:以下、「SEM」と略記。)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 3.1.2-29 には、容器内に 10 分間分散した あとの最初のエアロゾルサイズ分布を示す。図で、x 軸は粒子径、y 軸は数濃度(単位: P/cm<sup>3</sup>)である。ZrO<sub>2</sub>を例にとると、2 つのピークの直径は 0.16 µm 及び 0.55 µm であっ た。0.16 µm は 0.15 µm の質量平均直径 D50 に類似しており、0.55 µm は 0.15 µm の D50 より大きいため、ZrO<sub>2</sub>粒子は容器内に分散したのちに凝集する可能性がある。

|                             | $ZrO_2$     | $TiO_2$  | SiC  |
|-----------------------------|-------------|----------|------|
| <i>D</i> <sub>50</sub> [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 3.1.2-6 エアロゾルの特性



(a)  $ZrO_2$ 





(c)SiC



(b)  $TiO_2$ 



図 3.1.2-29 容器内に 10 分間分散したあとの初期サイズ分布

3.1.2.5 微粒子飛散試験結果【令和元年度-令和2年度】

本試験では、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。

令和元年度には、平成30年度に製作した装置を用いた本格実験を行い、エアロゾル粒子の 特性評価を実施した。具体的には、水ミスト、エアロゾルサイズ、及びスプレーノズルのエ アロゾル除去への影響を把握した。

また令和2年度には、スプレー流量、スプレー角度、スプレー電荷の影響等を把握した。 各年度で実施した試験結果を以下に示す。

(1) エアロゾル除去に対する水ミストの影響【令和元年度】

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の水スプレー噴射流量で実施した。

#### 実験内容

表 3.1.2-7 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。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 とケース 3 では、それぞれ低濃度と 高濃度の水ミストを容器に注入した。3 種のエアロゾル除去性能を比較することにより、 凝集性能を検証し、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。

|      | Spray nozzle | Aerosol particles | Mist                     |
|------|--------------|-------------------|--------------------------|
| ケース1 | Nozzle 1     | $ZrO_2$           | None                     |
| ケース2 | Nozzle 1     | $ZrO_2$           | Low $C_{\text{mist}}$    |
| ケース3 | Nozzle 1     | $ZrO_2$           | $High \ C_{\text{mist}}$ |

表 3.1.2-7 試験条件

2) 異なる水スプレー時間におけるエアロゾルサイズ

図 3.1.2-30 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、t = 0 秒の黒線は、水スプレー注入前の初期 ZrO<sub>2</sub>サイズ分布を示す。特に、エアロゾルのサイズの変化は、図の(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。

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り、t = 360 秒でのエアロゾル粒子濃度では、ケース1の DAP = 0.55 µm でのピーク値は、6000 P/cm<sup>3</sup>を超えていたが、ケース2 では約 4500 P/cm<sup>3</sup>であ り、ケース3 では 3000 P/cm<sup>3</sup>未満であった。



(c)

図 3.1.2-30 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 3.1.2-31 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/cm<sup>3</sup>) 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 3.1.2-31 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 µm 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 µm  $\leq$  DAP  $\leq$  1.0 µm のエアロゾル粒子の場合、粒子径が大きくなると 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 3.1.2-31 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 µm  $\leq$  DAP  $\leq$  1.0 µm)の時間変化を図 3.1.2-32 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。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 初期段階より低い速度で除去されたと考えられる。



図 3.1.2-32 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)

3.1-25 - 57 - 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。

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

ここで、 $\lambda_s$ は水スプレー(s<sup>-1</sup>)によるエアロゾル除去率、 $C_n(t)$ は噴霧時間 t (P/cm<sup>3</sup>) でのガス中のエアロゾル粒子濃度、 $S_{Source} \geq S_{Deposition}$  (P/cm<sup>3</sup>・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0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0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すことがで きる。

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

ここで、C<sub>n</sub>(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除去率入。を評価した。図 3.1.2-33 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。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。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 3.1.2-33 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 µm~1.0 µm 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。を図 3.1.2-34(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。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 3.1.2-34(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 mist

 $\eta = 1$ は除去率がケース1の除去率と同じであることを示し、 $\eta > 1$ は除去率がケース1の除去率よりも $\eta$ の倍数で改善されたことを示す。図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 $\lambda$ 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 $\eta$ が高くなることが観察され、0.2~0.9 µmのエアロゾル粒子、特に 0.2~0.6 µmの範囲のエアロゾル粒子では、ミスト濃度とと もに $\lambda$ が明らかに増加した。1 µmのエアロゾル粒子の場合、 $\eta$ 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 µm 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 µm 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 µm のエアロゾル粒子に対し、DAP  $\leq$  0.6 µm のエアロゾル粒子ほどには  $\eta$  を改善しない。



(2) エアロゾル除去に対する水スプレー特性の影響【令和元年度】
 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。

水スプレー効率

図3.1.2-35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C<sub>mist</sub>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。



図3.1.2-35 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3.1.2-36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3.1.2-36(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3.1.2-36(c)に示すように、 ミストを注入した高C<sub>mist</sub>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 3.1.2-37 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。



図3.1.2-37 3種のノズルのエアロゾル除去率

**3.1-29** 

③ 結果の考察

図 3.1.2-36(b)から、 $U_{max, nozzle1} > U_{max, nozzle2} > U_{max, nozzle3}$ であり、またエアロゾル除去率にも、 $\lambda_{s, nozzle1} > \lambda_{s, nozzle2} > \lambda_{s, nozzle2}$ と同様の傾向を示した。液滴 U<sub>max</sub>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 U<sub>max</sub> は、E 及び $\lambda_s$ 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【令和元年度】

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3.1.2-38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<sub>2</sub> without mist

(b) Case of  $TiO_2$  without mist



(c)Case of SiC without mist

図 3.1.2-38 エアロゾルサイズ分布の時間変化

② 水スプレー効率

図3.1.2-39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 C<sub>mist</sub>の場合、青い実線の三角形はZrO<sub>2</sub>、青い半三角形はTiO<sub>2</sub>、青い中抜き三角形はSiCの 水スプレー効率である。同じC<sub>mist</sub>では、 $E_{ZrO_2} > E_{TiO_2} > E_{SiC}$ であった。



図3.1.2-39 異なる粒子の水スプレー効率

③ エアロゾル除去率

図3.1.2-40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C<sub>mist</sub>の場合、青い実線の三角形はZrO<sub>2</sub>、青い半三角形はTiO<sub>2</sub>、 中抜きの青い三角形はSiCの数濃度である。同じC<sub>mist</sub>では、ZrO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、SiCの順で速く除 去できた。図3.1.2-41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C<sub>mist</sub>レベルで $\lambda_{s,ZrO_2} > \lambda_{s,SiC}$ であった。





図3.1.2-41 異なる粒子のエアロゾル除去率

④ 結果の考察

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。先ず、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、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。

(4) エアロゾル除去に対する流量の影響【令和2年度】

エアロゾルが大きいほど衝突現象からスプレーで除去しやすいため、除去率はエアロゾルのサイズによって異なる。図 3.1.2-42 は、実験開始時の平均エアロゾルサイズ確率密度 関数と、測定された最小値及び最大値を示す。



図 3.1.2-42 開始エアロゾルサイズ濃度の平均、最小、及び最大値

図 3.1.2-43 の左図はノズル1の異なる流量におけるエアロゾル濃度の時間変化、右図は 除去率の時間変化である。エアロゾルは、より高い流量のテストでより速く除去される。





図 3.1.2-43 ノズル1のエアロゾル濃度(左)と除去率(右)

(5) エアロゾル除去に対するスプレー角度の影響【令和2年度】

スプレー角度は、液滴がエアロゾルの除去を制御する。推定される公称液滴直径範囲も ノズル1と2とでは異なり、これにより除去のダイナミクスが変化する可能性がある。図 3.1.2-44の左図はノズル2のエアロゾル濃度の時間変化、右図は除去速度の時間変化であ る。1~4 L/min の流量の平均除去速度はそれぞれ 9.07×10<sup>-5</sup>、5.95×10<sup>-4</sup>、2.38×10<sup>-3</sup>及び 4.58×10<sup>-3</sup>/s であった。



図 3.1.2-44 ノズル2のエアロゾル濃度(左)と除去率(右)

表 3.1.2-8 は、ノズル1とノズル2の間の除去率の変化を示す。1 L/min の場合、噴霧 と再循環は部分的にしか進行しないため、スプレーはエアロゾル除去に効率的ではない。2 及び3 L/min の場合、ノズル2の除去率はノズル1の除去率より約33%高くなったが、こ れは生成される液滴が小さく分散するにつれて有効面積が大きくなり、除去率が向上する ためである。4 L/min の場合、容器内の再循環が大きいため、スプレー形状は、2 L/min 及 び3 L/min の場合ほど影響を受けなかった。

| Flow rate<br>[L/min] | ノズル 1<br>[s <sup>-1</sup> ] | ノズル 2<br>[s <sup>-1</sup> ] | $\lambda$ change |
|----------------------|-----------------------------|-----------------------------|------------------|
| 1                    | $1.08 \times 10^{-4}$       | 9.07 $\times 10^{-5}$       | -16 %            |
| 2                    | 4. $52 \times 10^{-4}$      | 5.95 $\times 10^{-4}$       | +32 %            |
| 3                    | $1.78 \times 10^{-3}$       | 2.38 $\times 10^{-3}$       | +34 %            |
| 4                    | 4. $49 \times 10^{-3}$      | 4.58 $\times 10^{-3}$       | +2 %             |

表 3.1.2-8 ノズル1と2の除去率

(6) エアロゾル除去に対するミストの影響【令和2年度】

図 3.1.2-45 は、ミストがある場合とない場合について左側にエアロゾル濃度の時間変化、右側に除去率の時間変化を示している。実験はすべて、2 L/minの水流量で行われた。 両方のノズルにミストを使用した実験では、除去率が高くなり、表 3.1.2-9 に示すように、 噴霧前にミストを注入すると、除去率が約 20 %向上した。



図 3.1.2-45 ミストがある場合とない場合のエアロゾル濃度(左)と除去率(右)

| Nozzle No. | No mist                | Mist                   | $\lambda$ change |
|------------|------------------------|------------------------|------------------|
| 1          | 4. $52 \times 10^{-4}$ | 5. $51 \times 10^{-4}$ | +22 %            |
| 2          | 5.95 $\times 10^{-4}$  | 6.98 $\times 10^{-4}$  | +17 %            |

表 3.1.2-9 ミストなしとミストありのノズル1と2の除去率

(7) エアロゾル除去に対するスプレー電荷の影響【令和2年度】

スプレーまたはミストを帯電させることは、除去率を改善するための提案である。放射 性エアロゾルは帯電するので、液滴も帯電させると効率が上がると考えられる。電気力は
液滴に蓄積される電荷数に依存し、レイリー限界は液滴に蓄積可能な電荷の最大数がそれ らのサイズに依存することを示しているため、液滴が大きいほど効率が高くなる。

帯電器は、直径 100 mm の円の中に直径 10 mm の銅管を1本備えており、ノズル先端が約 20 mm 帯電器の上になるように固定した。この帯電器の電圧は、高電圧発生器によって制 御される。発電機は、発電機モジュールに応じて正または負の電圧を負荷できる。本実験 では、発電機は-15 kV の電圧に設定した。

最初の2つの実験では、ノズル1を使ってスプレー帯電と、スプレー前のミストの影響 を確認した。図3.1.2-46は、スプレー帯電有無のエアロゾル濃度の比較を示す。また、図 3.1.2-47は、ミストがある場合とない場合の2L/minでスプレー帯電したエアロゾル濃度 を示す。また、これらの除去率の比較を表3.1.2-10に示す。



図 3.1.2-46 スプレー帯電有無の 2 L/min でのエアロゾル濃度の比較



| Mist presence | Neutral                | Charged                | λ change |
|---------------|------------------------|------------------------|----------|
| No            | 4. $52 \times 10^{-4}$ | 3. $16 \times 10^{-3}$ | +599 %   |
| Yes           | 5. $51 \times 10^{-4}$ | 3. $19 \times 10^{-3}$ | +479 %   |

表 3.1.2-10 2 L/min でのスプレー帯電及びミスト有無の除去率

これらの結果は、スプレー帯電により除去率が大幅に向上することを示している。実験 のエアロゾルは、液滴が負に帯電しているため、摩擦により正に帯電している可能性が高 く、このような効果が生じたと考えられる。

図 3.1.2-48 は、4 L/min で帯電した場合と帯電しない場合の比較を示す。これらの実験 では、帯電の除去率も高くなるが、両者の差は2 L/min の差よりも低くなる。この理由の 1 つは、流量が高くなると、噴霧が強くなり、噴霧によって小さな液滴が生成されるためで あり、液滴は小さいほどより少ない電荷を運び、エアロゾルを捕集する効率が悪くなると 考えられる。実験結果を表 3.1.2-11 に示す。

放射性エアロゾルは正または負に帯電するため、実際のシナリオでは効率が低下すると 予想される。そこで正と負の両方に帯電したエアロゾルを確実に除去するために、電圧の 符号を時々変更することが1つの方法と考えられる。



表 3.1.2-11 4 L/min でのスプレー帯電及びミスト有無の除去率

| Neutral                | Charged                | λ change |
|------------------------|------------------------|----------|
| 4. $49 \times 10^{-3}$ | 9. $61 \times 10^{-3}$ | +114 %   |

- 3.1.2.6 微粒子飛散シミュレーション【令和2年度】
- (1) 目的

実験ではエアロゾル除去プロセスの詳細評価は困難であるが、数値シミュレーションで は予測可能である。そこで、ミストのないスプレー液滴によるエアロゾル除去をシミュレー トする数値モデルを開発した。数値モデルは、0.2 µm~1 µmのエアロゾル質量を模擬して UTARTS 施設の実験データとの比較により検証した。さらに、シミュレーションモデルを拡 張して、1F3号機 PCV での燃料デブリ切断時に発生するエアロゾル挙動を解析した。

- (2) シミュレーション手法と結果
  - 計算手法

エアロゾル除去モデルではオイラーラグランジュアプローチを使用した。オイラー法 を使用して、空気と多分散エアロゾル粒子で構成された粒子含有ガスの連続相を、ラグ ランジュ粒子トラッキング法を使用して、スプレー液滴の離散相を評価した。連続相と 分散相の間の相互作用をモデル化するために、双方を結合する手法を検討した。慣性衝 突、干渉、ブラウン拡散など、スプレー液滴によるエアロゾル除去をモデル化するため に、3つの捕集メカニズムを検討した。スプレーによるエアロゾル除去は、オイラー方程 式ではシンク項として、ラグランジュ方程式ではソース項として扱った。2つの異なるフ ルコーンスプレーノズルを使用した実験結果を使用して、数値シミュレーションモデル を検証した。スプレー注入流量は2 L/min、スプレー角度はノズル1とノズル2でそれぞれ 27°と66°である。

数値シミュレーションは、容器の3次元形状(高さ2.5 m、直径1.5 m、体積3.92 m<sup>3</sup>) で解析した。スプレーノズルは、容器の上部から300 mm下に設置した。メッシュの詳細 を表3.1.2-12 に示す。エアロゾル粒子とスプレー液滴間の相互作用の解析には、壁に隣 接する領域の流れは重要ではないため、容器内壁近くの境界層に2つの層のみを追加し た。3つのメッシュすべての最大歪度は0.54 未満であり、計算時間は、スプレーを開始 してから1200秒とした。

| Mesh   | Cells in horizontal<br>direction | Cells in vertical<br>direction | Total number of cells |
|--------|----------------------------------|--------------------------------|-----------------------|
| Coarse | 60                               | 100                            | 141, 335              |
| Medium | 75                               | 125                            | 268, 252              |
| Fine   | 100                              | 150                            | 555, 653              |

表 3.1.2-12 メッシュの独立性チェックのための 3 つのメッシュスキーム[5]

- ② 数値シミュレーションの境界と初期条件
  - a. 境界条件

表 3.1.2-13 に示す 2 つの検証実験ケースに対応する 2 つの数値シミュレーション を実施した。シミュレーションケース1は 291 K と大気圧で、ケース 2 は 288 K と大 気圧で実施した。両方のノズルのオリフィス径は 1.2 mm、スプレー注入流量は、両方 のシミュレーションケースで 2 L/min に設定した。シミュレーションケース1 とケー ス 2 では、ノズル 1 とノズル 2 の測定された液滴サイズとスプレー角度がそれぞれ使 用された。容器の内壁に当たるとスプレー液滴が消えるように設定して、容器底のス プレー水蓄積を無視した。

|                           | ケース1           | ケース2                    |
|---------------------------|----------------|-------------------------|
| Temperature               | 291 K          | 288 K                   |
| Pressure                  | 1 atm          | 1 atm                   |
| Nozzle model              | Nozzle 1       | Nozzle 2                |
| Nozzle orifice diameter   | 1.2 mm         | 1.2 mm                  |
| Spray injection flow rate | 2 L/min        | 2 L/min                 |
| Droplet size              | peak at 195 µm | peaks at 103 and 308 µm |
| Spray angle               | 27°            | 66°                     |
| Droplet-wall interaction  | Disappear      | Disappear               |
| Courant number            | <1             | <1                      |
| Convergence criteria      | $10^{-6}$      | $10^{-6}$               |

表 3.1.2-13 シミュレーションケースの境界条件[5]

b. 初期条件

表 3.1.2-14 に示すように、直径 0.2~1 µm のエアロゾル粒子の 9 つのサイズグルー プを、AP2~AP10 の 9 つのガス種として扱った。また、シミュレーション用の様々な直 径での初期エアロゾル質量を、測定された実験データから取得した。また、2 つのシ ミュレーションケースの開始時に、エアロゾル粒子が容器内に均一に分散していると 仮定した。

| ケース1 |               |                      | ケーヌ  | K 2           |                      |
|------|---------------|----------------------|------|---------------|----------------------|
|      | $d_P [\mu m]$ | Initial mass<br>[mg] |      | $d_P [\mu m]$ | Initial mass<br>[mg] |
| AP2  | 0.198         | 0.42                 | AP2  | 0.198         | 0.65                 |
| AP3  | 0.305         | 2.24                 | AP3  | 0.305         | 3.20                 |
| AP4  | 0.407         | 7.32                 | AP4  | 0.407         | 9.38                 |
| AP5  | 0.505         | 18.94                | AP5  | 0.505         | 20. 43               |
| AP6  | 0.583         | 31.07                | AP6  | 0.583         | 27.66                |
| AP7  | 0.724         | 38.14                | AP7  | 0.724         | 24. 31               |
| AP8  | 0.778         | 38.66                | AP8  | 0.778         | 22. 43               |
| AP9  | 0.899         | 35. 50               | AP9  | 0.899         | 17.82                |
| AP10 | 1.038         | 33. 12               | AP10 | 1.038         | 15.52                |

表 3.1.2-14 多分散エアロゾル粒子のサイズクラス[5]

① エアロゾル除去モデルの検証

OpenFOAM に実装されたエアロゾル除去モデルは、図 3.1.2-49 に示すように、実験デー タとシミュレーション結果の間でエアロゾル質量の時間変化を比較することによって検 証した。左図はケースⅠ、右図はケースⅡで、どちらも、シミュレーション結果と実験 データの間に良好な一致が見られた。



図 3.1.2-49 実験データとシミュレーション結果の比較[5]

**3.1-39** - 71 -

<sup>(3)</sup> UTARTS 施設におけるエアロゾル除去の数値シミュレーション

② 気相のエアロゾル質量分率と速度ベクトルの時間変化

図 3.1.2-50 は、ケース I の直径 0.6 µm のエアロゾル粒子 (AP6) のエアロゾル質量分 率の時間変化を示す。T = 0 秒の開始時に、エアロゾル粒子は容器内に均一に分散し、ス プレー噴射が開始すると、スプレー液滴の近くのエアロゾル粒子が最初に除去された。 図 3.1.2-50 (b) ~ (e) から、左下と右下のエアロゾル粒子が除去され始め、スプレー時間 とともに領域が拡大した。図 3.1.2-50 (e) では、スプレー時間 t = 10 s で、2 つの底面 のウォッシュアウト領域はそれ以上拡大しなかったが、容器の上部空間のエアロゾル粒 子は除去され始めた。t = 10 s から、図 3.1.2-50 (e) ~ (h) に示すように、異なる領域間 に明確な境界が存在し、この理由は、図 3.1.2-51 に示す気相の速度ベクトルで説明でき る。



図 3.1.2-50 シミュレーションケース I のスプレー中の AP6 質量分率[5]



図 3.1.2-51 シミュレーションケース Iの AP6 質量分率とガス速度ベクトル[5]

3.1-40 - 72 - 図 3.1.2-52 は、ケース II の AP6 質量分率の時間変化を示し、図 3.1.2-53 は、ケース II の気相と AP6 質量分率の速度ベクトルを示す。結果はケース I の場合と同様に、渦構 造と異なる流れ領域間の明確な境界を示した。ただし、ノズル 2 は、スプレー角度が広 いため、より広い領域をカバーできる。また、渦構造もケース II の方がケース I よりも 大きかった。



図 3.1.2-52 シミュレーションケース II のスプレー中の AP6 質量分率[5]



図 3.1.2-53 シミュレーションケース IIの AP6 質量分率とガス速度ベクトル[5]

2 つのシミュレーションケースにおけるエアロゾルの質量分率と気相の速度場の時間 変化によると、図 3.1.2-54 に示すように、動的に安定したあと、容器内の流れの空気は 3 つの領域に分割できる。領域 1 はスプレー領域(またはエアロゾルウォッシュアウト 領域)で、エアロゾル粒子は主にスプレー液滴と直接相互作用することによってこの領 域で除去される。領域 2 は循環領域であり、この領域のエアロゾル粒子は最初に渦構造 とともに循環し、次にスプレー領域内に拘束され、最後にスプレー液滴によって除去さ れる。領域 3 は取り込み領域であり、この領域のエアロゾル粒子も最初にスプレー領域 内に取り込まれ、次にスプレー液滴によって除去される。



(a) 狭いスプレー角度のケース I



図 3.1.2-54 スプレー中の容器内の流れ領域[5]

③ 異なる捕集メカニズムの寄与

エアロゾル除去モデルでは、3種類の捕集メカニズム(慣性衝突:imp、干渉:int、ブ ラウン拡散:diff)が考慮され、ミストのないスプレー液滴によるZrO<sub>2</sub>除去をモデル化 できることが検証された。これらの3つの捕集メカニズムを考慮した場合の総エアロゾ ル質量の時間変化を図3.1.2-55に示す。図3.1.2-56は異なる捕集メカニズムの寄与を 示すが、エアロゾル粒子の95%以上が慣性衝突によって除去されたことが分かった。干 渉の寄与は最も低く、1200秒のスプレー時間でわずか0.6%であるが、ブラウン拡散の 寄与は1200秒で1.85%であった。したがって、エアロゾル粒子は主にスプレー領域内 の液滴との慣性衝突によって除去され、渦循環と取り込みは、エアロゾル粒子を領域2 と3から領域1に輸送する上で重要な役割を果たしていた。



図 3.1.2-55 異なる捕集メカニズムを考慮した場合の総エアロゾル質量



図 3.1.2-56 異なる捕集メカニズムの寄与

- (4) 1F 3 号機における燃料デブリの切断によるエアロゾル発生とスプレー液滴によるエア ロゾル除去の数値シミュレーション
  - ① 燃料デブリ切断によるエアロゾル生成の数値シミュレーション 前述の3.1.2.6(3)で数値モデルと実験では、エアロゾル粒子はスプレー開始の前に容 器内に分散されていたが、実際の1F廃炉では、燃料デブリの切断前にPCV内にエアロゾ ルがないため、燃料デブリを切断することによるエアロゾル生成とスプレー液滴による

エアロゾル除去が同時に生じるものとして解析した。

気相中のすべての化学種はパッシブスカラー輸送方程式によって解かれ、エアロゾル 粒子のみが燃料デブリの切断によって生成され、スプレー液滴による捕捉によって消費 される。気相中の個々の種の質量方程式は、次のように表される。

$$\frac{\partial \rho Y_i}{\partial t} = \nabla \cdot \left(\rho \boldsymbol{U}_{\boldsymbol{G}} Y_i\right) - \nabla \cdot \left(\mu_{eff} \nabla Y_i\right) = \dot{\rho}_s^{\ i} + \rho S_{\boldsymbol{G}}^{\ i} \tag{1}$$

$$\dot{\rho}_s = \sum_i \dot{\rho}_s^{\ i}, \qquad S_G = \sum_i S_G^{\ i} \tag{2}$$

ここで、 $Y_i$ はi番目のガス種(i = 1, 2, 3, …)の直径 $d_{P,i}$ のエアロゾルの質量分率、  $\mu_{eff}$ は総粘度であり、層流粘度と乱流粘度の合計として定義される( $\mu_{eff} = \mu_L + \mu_T$ )。 $\dot{\rho}_s$ は、スプレー液滴によるエアロゾル除去から計算されたシンク項、 $S_G^i$ は、燃料デブリの切断によるエアロゾルの質量分率の生成率を示す。

② 実物大 PCV の形状とメッシュ

図 3.1.2-57 は、数値シミュレーションで使用した 1F 3 号機の PCV と吸気ロ/排気ロの 形状を示す。RPV の底部には直径 1 m の丸穴があり、溶融する高温の燃料デブリによっ て形成される穴を模擬した。2 つの循環空気入口(PCV ガス入口と RPV ガス入口)と1つ の空気出口(PCV ガス出口)があり、PCV ガス入口は PCV の上部に位置し、ガス注入流量 は 2000 m<sup>3</sup>/h、注入配管の直径は 450 mm である。RPV ガス入口は RPV の上部空間にあり、 ガス注入流量は 1000 m<sup>3</sup>/h で、直径 25 mm の 6 つの小さなガス注入口から構成される。 PCV の排気口は、PCV の下部にあり、ガス流量は 3000 m<sup>3</sup>/h、配管直径は 300 mm である。 本解析では、エアロゾル除去性能に対する 2 つの異なるスプレー位置(スプレーB とス プレーC)の影響を評価した。



図 3.1.2-57 1F 3 号機の実物大 PCV の形状(資料提供:三菱重工業株式会社)

**3.1-44** 

実物大の PCV 形状で、2 つの異なるスプレー噴射位置を使用した 2 つのシミュレーショ ンを実施した。初期条件と境界条件を表 3.1.2-15 に示すが、いずれも最初はエアロゾル 粒子が容器内に分散せず、APi の質量分率はすべて 6.69×e<sup>-10</sup> (i = 2, 3, …, 10) に設 定した。ここで APi は、直径 0.i µm のエアロゾル粒子の略であり、例えば、AP2 は直径 0.2 µm のエアロゾル粒子を意味する。ケース 1 の場合、スプレー液滴はスプレーB から 注入され、ケース 2 では、スプレーC から液滴が注入される。両方のケースで同じスプ レーノズルが使用され、スプレー注入流量は 2 L/min、スプレー角度は 27°とした。スプ レー液滴は、PCV の内壁に衝突すると消えると想定した。両シミュレーションケースの温 度と圧力は、UTARTS 施設での検証実験と同一に設定した。

|   | ケース1            | ケース2                  |
|---|-----------------|-----------------------|
| Initial aerosol concentration           | 0               | 0                     |
| APi mass fraction generation rate       | 6.69× $e^{-10}$ | 6.69 $\times e^{-10}$ |
| Spray injection location                | Spray B         | Spray C               |
| Spray injection flow rate (L/min)       | 2               | 2                     |
| Droplet-wall interaction                | Disappear       | Disappear             |
| Flow rate at PCV gas inlet $(m^3/h)$    | 2000            | 2000                  |
| Flow rate at RPV gas inlet $(m^3/h)$    | 1000            | 1000                  |
| Flow rate at PCV gas outlet (m $^3/h$ ) | 3000            | 3000                  |
| Courant Num. for droplets               | $\leq 1$        | $\leq 1$              |
| Courant Num. for gas                    | $\leq 10$       | $\leq 10$             |
| Convergence criteria                    | $10^{-6}$       | $10^{-6}$             |
| Temperature (K)                         | 291             | 291                   |
| Pressure (atm)                          | 1               | 1                     |

表 3.1.2-15 異なるケースの初期条件と境界条件

④ シミュレーション結果

a. 容器内のエアロゾル分布

図 3.1.2-58 は、場所 B からのスプレー注入による AP6 (直径 0.6 µm のエアロゾル 粒子)の容器内のエアロゾル質量分率の時間変化を示す。エアロゾル粒子は PCV 底部 で生成され、次に、粒子を含んだガスは、ガスの流れとともに次の 2 つの方向に流れ る。(a)エアロゾル粒子はペデスタルの上部空間全体に分散し、RPV とペデスタル支持 構造の間の狭いギャップを上向きに流れる。(b)粒子を含んだガスも、ペデスタルの下 部にある点検用開口部を通って流れ、PCV 空間を上向きに流れる。なお、RPV 内にはエ アロゾル粒子は観察されなかった。

また図 3.1.2-59 に示すように、スプレーC からのスプレー注入では、粒子を含んだ ガスは主にペデスタルの下部にある点検用開口部を通って流れ、次に PCV 内を上向き に流れた。

③ 初期条件と境界条件



図 3.1.2-58 スプレーBを使用した容器内の AP6 質量分率



図 3.1.2-59 スプレーCを使用した容器内の AP6 質量分率

b. 流量増及び帯電を考慮したシミュレーション結果

④ a で述べたように、シミュレーション結果は、2 L/min 流量と 27°スプレー角度を 持つ1 つのスプレーノズルは、PCV 全体でのエアロゾル分散を抑制するのに十分では ないことを示している。そこで、より大きなスプレー流量とスプレー角度で計算を行っ た。スプレー液滴への帯電によるエアロゾル除去効果の向上も、UTARTS 施設での実験 から得られた一定係数(AP6 の場合は 4.3)を除去効率に単純に掛けることにより、2 つのケースで計算した。

表 3.1.2-16 に、PCV エアロゾル除去シミュレーションのケースを示す。ここでスプレー中央(チャージ)はペデスタルの中央で帯電したスプレーを実施した場合を示す。

| Case                     | Base | スプレー<br>B | スプレー<br>C | スプレーC<br>(チャージ) | スプレー<br>中央         | スプレー中央<br>(チャージ)   |
|--------------------------|------|-----------|-----------|-----------------|--------------------|--------------------|
| Spray flow<br>rate       | 0    |           |           | 8 L/min         |                    |                    |
| Spray angle              | N/A  |           |           | 66°             |                    |                    |
| Spray nozzle<br>location | N/A  | В         | С         | С               | Pedestal<br>center | Pedestal<br>center |
| Electric<br>charge       | N/A  | Ν         | Ν         | Y               | N                  | Y                  |

表 3.1.2-16 シミュレーションのケース

図 3.1.2-60 は、スプレーB、スプレーC、及びスプレー中央での速度場を示す。流れ は、最初は短時間で発達し、その後は比較的安定していた。画像は1分での速度場を 示している。



図 3.1.2-60 1分後のスプレーB、スプレーC、スプレー中央の速度場

図 3.1.2-61 はスプレーなしの場合、図 3.1.2-62 はペデスタル中央で帯電したスプレーを行った場合の PCV 内 AP6 エアロゾル質量分率の時間変化を示す。

**3.1-47** - 79 -



図 3.1.2-61 スプレーなしの場合の PCV 内の AP6 エアロゾル質量分率



図 3.1.2-62 スプレー中央(チャージ)の場合の PCV 内の AP6 エアロゾル質量分率

3.1-48 - 80 - スプレーなしでエアロゾル粒子はガスの流れとともに PCV 内を自由に移動した。ペ デスタルと PCV ドライウェル内のガスの流れは、体積が大きいために激しくないため、 エアロゾル粒子の輸送にはある程度のランダム性があり、出口でのエアロゾルの質量 分率の変動は不安定であった。高いエアロゾル質量分率は、16 分と 18 分で出口の近 くで観察された。

一方、ペデスタル中心での帯電したスプレーによる除去は良好な効果を示しており、 ドライウェル内でのエアロゾル質量分率の増加のペースは他の場合よりも遅かった。

図 3.1.2-63 は、PCV ガス出口での AP6 エアロゾル質量分率の時間変化を示す。ガス 出口のエアロゾル質量分率に対するエアロゾルスプレー除去の影響が最初の 20 分間 で明らかに観察できないことを示しているが、その理由は、エアロゾル生成の開始時 に、エアロゾルの割合がスプレー領域でまだ低いためである。時間が経ち、エアロゾ ルの割合が増えると、スプレー中央(チャージ)の場合、1000 秒後に効果が確認され 始める。

図 3.1.2-64 は、最初の 30 分間のスプレーC (チャージ) とスプレー中央 (チャージ) の PCV ガス出口での AP6 エアロゾル質量分率の時間変化を示す。



図 3.1.2-63 PCV ガス出口での AP6 エアロゾル質量分率



図 3.1.2-64 スプレーC とスプレー中央の AP6 エアロゾル質量分率

3.1-49 - 81 - エアロゾル生成の1000秒後、スプレー中央(チャージ)の場合のスプレーは、スプレーC(チャージ)の場合のスプレーと比較して、PCVガス出口でのエアロゾルの割合の増加を遅くする優れた効果が見られた。この結果は、エアロゾル生成場所をカバーするスプレー位置が重要であることを示している。

図 3.1.2-65 は、PCV 全体の内部の AP6 エアロゾル質量分率の平均値の時間変化を示す。



図 3.1.2-65 PCV 内の AP6 エアロゾル質量分率の平均値

1200 秒での AP6 分率に関して、スプレーC はケースベースの 97 %、スプレー中央は 90 %、スプレーC (チャージ) は 83 %、スプレー中央 (チャージ) は 75 %である。帯 電により、エアロゾルの除去効果を効果的に高めることができ、時間の経過とともに、 エアロゾルの割合が増加するにつれて、エアロゾルスプレーの除去率が増加し、曲線 勾配の減少が観察された。帯電したスプレーがエアロゾル生成スポット全体を覆った スプレー中央 (チャージ) の場合、より長い時間で良好なエアロゾルスプレー除去効 果が推定される。曲線は最終的に限界に達する可能性があり、エアロゾルスプレー除 去率と出口からのエアロゾル放出率の合計がエアロゾル生成率と平衡になると、PCV 内 平均質量分率はそれ以上増加しなくなる。

- (5) PCV 内熱収支に関する評価
- ① シミュレーション手法

PCV 内の熱収支を数値的に解析し、PCV と RPV 容器に空気と窒素を供給した場合の PCV 内温度を推定した。また、ペデスタルに配置されたエアロゾル除去スプレーの気相での 冷却効果も評価した。

PCV の熱水力モデルは、STAR-CCM+により作成した。3D CFD (3 dimensional Computational Fluid Dynamics:3 次元数値流体力学) モデルには、4 つの固体領域 (RPV、 生体遮蔽、ペデスタル、及び燃料デブリ) と 1 つの流体領域 (気相) が含まれる。ペデ スタル底部の燃料デブリは、均一な発熱を伴う直径 2 m、高さ 0.5 m のシリンダーに簡 略化し、デブリの密度、比熱、熱伝導率は、10042.95511 kg/m<sup>3</sup>、305.7215275 J/(kg・K)、 10.27305595 W/(m・K)に設定した。

図 3.1.2-66 に PCV モデルの形状を示す。右上の画像は、PCV への 2000 m<sup>3</sup>/h の空気供給と RPV への 1000 m<sup>3</sup>/h の窒素供給を含むガス供給入口を示す。左下の画像は、PCV のガス出口を示す。計算では、PCV 温度に対するガス供給の影響を把握するために、ガス供給が 50 %とガス供給がない場合を計算した。



図 3.1.2-66 PCV モデルの形状 (Siemens の許諾を得て掲載)

本解析では静的シミュレーションを使用して、PCVの平衡熱水力条件を計算した。また、総崩壊熱はWay-Wignerの式[6]によって計算し、29123.2134 Wとした。PCV壁の境界条件は15 ℃の温度条件に設定され、PCV底部は断熱に設定した。ガス入口温度は、空気供給と窒素供給の両方で15 ℃、ガス出口は0 Pa(大気圧)の圧力出口に設定した。

スプレー冷却計算については、CFD 数値シミュレーションでは、スプレー冷却効果を効率的かつ適切に予測することが困難であるため、本研究では、静的アルゴリズム法を使用して、スプレー液滴の熱交換を計算することにより気相でのスプレー冷却効果を大まかに計算し、その合計値をガス量のヒートシンクとして使用した。

計算では、図 3.1.2-67 に示すように試験結果に基づきスプレーはいくつかの簡略化を 行った。

- (a) スプレー領域は、スプレー角度が 27°の円錐形の領域
- (b)スプレー液滴はすべて直径 250 µm
- (c)スプレー液滴がスプレー領域に均一に分布

(d) 液滴ガスの相対速度は、スプレーノズルから垂直方向に 0.5 mの距離内で5 m/s、 スプレーノズルから垂直方向に 0.5~1 m の距離で 3 m/s、垂直方向に 1 m 未満で 1 m/s



図 3.1.2-67 スプレーの概要 (Siemens の許諾を得て掲載) (a)ペデスタルにあるスプレー領域 (b)液滴ガスの相対速度設定

式の簡略化により、気相と飛散液滴間の熱交換は次のように計算できる。対流熱伝達 係数は、Ranz&Marshall 相関を使用して計算した[7]。

## $Nu = 2 + 0.6Re^{1/2}Pr^{1/3}, 2 \le Re \le 200$

次に、メッシュ内の液滴と周囲のガスとの間の総熱交換は、次式で計算した。

 $O = hA\Delta T$ 

ここで、h = Nu・k/D は対流熱伝達係数、A = N・4πr<sup>2</sup>は液滴の総表面積、ΔT は液滴 と周囲のガスとの温度差(メッシュ内のガス温度)。表面積の計算では、Nはメッシュ内 の液滴数であり、次式で計算した。

$$N = \frac{V_{mesh}}{V_{spray}} \cdot \frac{m_{spray}}{\frac{4}{3} \cdot \pi r^3 \rho}$$

ここで、V<sub>mesh</sub>はメッシュの体積であり、V<sub>spray</sub>はスプレー領域全体の体積、m<sub>spray</sub>は、ス プレー操作中の空気相におけるスプレー液滴の総質量であり、OpenFOAMを使用したエア ロゾル除去シミュレーションから取得した。

この方法は、気相でのスプレー冷却効果の大まかな予測が可能となるが、特にスプレー 液滴の高速性と密度のために強い対流が発生する可能性があるスプレーノズルの近くで のガスの流れに対するスプレー影響は無視した。ただし、PCV (ペデスタル) は大規模で あり、スプレー領域の体積は小さいため、気相全体に対する局所的な現象の影響は無視 できる。

本方法では、気相でのスプレー冷却効果は、スプレー領域のメッシュにある特定のヒー トシンクによって計算でき、2 L/min、27°のスプレー角度スプレーの冷却効果を評価し た。

廃炉中の PCV 内熱状態を評価し、要因(RPV 内残存燃料、スプレー冷却、ガス供給)の 影響を把握するために、PCV 内の熱収支計算を表 3.1.2-17 に示す条件に対して行った。

| Case   | Remained fuel in the RPV | Spray cooling effect | Gas supply |
|--------|--------------------------|----------------------|------------|
| 00N100 | 0 %                      | Ν                    | 100 %      |
| 00Y100 | O %                      | Y                    | 100 %      |
| 20N100 | 20 %                     | Ν                    | 100 %      |
| 20Y100 | 20 %                     | Y                    | 100 %      |
| 00N050 | O %                      | Ν                    | 50 %       |
| 00Y050 | O %                      | Y                    | 50 %       |
| 20N050 | 20 %                     | Ν                    | 50 %       |
| 20Y050 | 20 %                     | Y                    | 50 %       |
| 00N000 | O %                      | Ν                    | 0 %        |
| 00Y000 | O %                      | Y                    | 0 %        |
| 20N000 | 20 %                     | Ν                    | 0 %        |
| 20Y000 | 20 %                     | Y                    | 0 %        |

表 3.1.2-17 PCV 内熱収支シミュレーションのケース

② シミュレーション結果

図 3.1.2-68 は、3D モデルの評価対象箇所を示す。また評価の一例として、図 3.1.2-69 及び、図 3.1.2-70 にペデスタル中心の気相温度及び、最高温度を示す。

全体として、PCV 気相では温度は PCV 上部領域の近くの方が下部近くよりも高くなる。 PCV 気相では、高温はデブリ近くでのみ発生し、この限られた高温ゾーンを除いて、気相 全体の温度は 12 のすべてのケースで 35 ℃未満であり、生体遮蔽、ペデスタル等、RPV のほとんどの部分の温度は 25 ℃未満であった。



図 3.1.2-68 PCV 内の 4 つの評価対象箇所 (Siemens の許諾を得て掲載)

3.1-53 - 85 -



図 3.1.2-69 ペデスタル中心の気相温度の比較



図 3.1.2-70 ペデスタルの最高温度の比較

- (6) 試験及びシミュレーション結果のまとめ
- 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水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。水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水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 ために滴を水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水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速く除去された。

また、水ミストは異なるノズルに対して E と λ<sub>s</sub>の改善に寄与することが分かった。液 滴最大速度である U<sub>max</sub>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、U<sub>max</sub>は E 及び λ<sub>s</sub>を決定する重要な因子である。 さらに、水ミストは ZrO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>、及び SiC 粒子の E 及び $\lambda_s$ 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 $\lambda_s$ 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 ZrO<sub>2</sub> 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 TiO<sub>2</sub>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。

水ミストを使用した凝集法は IF に適用可能な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除去を可 能にし、また、DAP  $\geq$  0.7 µm 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。

スプレーによるエアロゾルの除去率をさらに改善する方法を調査するために実験が行われた。関心のある主なパラメータは、流量、インジェクターのタイプ(スプレー角度)、 注入前のエアロゾルによるミストの存在、及びスプレー液滴の帯電である。

流量は非常に良好な結果を示し、流量を2 L/min から4 L/min に2 倍にすると、除去 速度は 10 倍に高くなった。この理由として第一に、より高い流量のために容器内により 多くの液滴があり、液滴の速度はより速く、衝突によるより多くの除去につながる。霧 化が強くなるため、液滴も小さくなり、表面積が大きくなり、拡散による除去に有益で ある。最後に、容器内の再循環がより強力になる。

スプレー角度に関連するインジェクターのタイプも興味深い結果を示している。ノズ ル間の主な違いはスプレー角度であるが、結果は、最大角度(50°)のスプレーの除去率 が高いことを示している。

エアロゾルを凝集させ、水中の空気を飽和させるためにスプレーの前にミストが存在 することも、得られる除去率の改善を示している。この改善は、エアロゾルサイズの増 加、小さなミスト液滴への凝集、または核形成と呼ばれるエアロゾル自体への飽和水の 凝縮によって引き起こされ、両方のノズルで約20%の改善が見られた。

また、スプレーを帯電させることにより、約5倍の除去率が得られ、大幅なエアロゾル除去の改善が図れた。

エアロゾルの質量分率の時間変化や気相の流れ場など、UTARTS でのエアロゾル除去プロセスは、数値シミュレーションによって評価された。シミュレーション結果によると、容器内の流れ場は、スプレー領域(またはエアロゾルウォッシュアウト領域)、循環領域、エントレインメント領域の3つの領域に分けることができる。エアロゾル粒子は、主にスプレー液滴と直接相互作用することによってスプレー領域で除去されたが、循環領域及び同伴領域のエアロゾル粒子は、最初にスプレー領域内に同伴され、次にスプレー液滴によって除去された。

UTARTS のシミュレーションで得られたパラメータを使用して 1F 3 号機の PCV 内にお ける 2 つの異なるスプレー噴射位置での燃料デブリ切断によるエアロゾル発生とスプ レー液滴によるエアロゾル除去の数値シミュレーションを行った。シミュレーション結 果では、1 つのスプレーノズルでは PCV 空間全体のエアロゾル飛散抑制には十分でない ことを示していたが、スプレー位置をペデスタル中央部の燃料デブリ直上に設置し、ス プレーを帯電することにより、より効率的なエアロゾル除去が可能になるとの結果を得 た。1F 廃炉におけるスプレーシステムの実際の利用では、複数のスプレーノズルを同時 に使用する必要があると判断される。

- 3.1.2.7 PCV内温度解析【平成30年度】
- (1) 解析目的

燃料デブリ取出しにあたっては取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なら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) 熱解析用ジオメトリ

STAR-CCM+のジオメトリモジュールを使用して、図 3.1.2-71 に示すジオメトリを作製した。





燃料デブリ



バイオシールド



全体ジオメトリ



図 3.1.2-71 熱解析用ジオメトリ

(3) 材料特性

IF 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、溶 融凝固状態など多数の条件によって大きく異なる[8]。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 及び 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。

フランス原子力・代替エネルギー庁(以下、「CEA」と略記)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[9]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は表 3.1.2-18 に示す値、コンクリート構造物の材料特性[10]は表 3.1.2-19に示す値を用いて計算を行っ た。

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

表 3.1.2-18 燃料デブリの熱物性値

表 3.1.2-19 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

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 や初期燃料組成及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。

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

ここで、 $P_d(t)$ は $\beta$ 線と $\gamma$ 線による発熱、 $P_0$ はシャットダウン前の熱出力、t は事故後の 経過時間(秒)、 $t_0$ はシャットダウン前の熱出力レベルの時間(秒)である。1F1号機は 460 MWe の電気出力を有し、熱出力は1380 MWt と推定される。Way-Wigner 式を使用するこ とにより、図 3.1.2-72 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 3.1.2-72 崩壊熱の時間推移

(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の研 究結果を参考[11]とし、図 3.1.2-73 のような燃料デブリ分布を推定した。



また、表 3.1.2-20 のように燃料デブリの体積分布を推定した。

| 表 3.] | 1.2-20 | 燃料デブリ | の体積分布 |
|-------|--------|-------|-------|

| ÷ •              | ,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,,, |                         |
|------------------|--|-------------------------|
|                  | 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拡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 3.1.2-21 のように変化させた。

| Year | Decay<br>Heat(kW) | Decay<br>Heat(90 %) | Decay<br>Heat(80 %) | Decay<br>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               |

表 3.1.2-21 各年毎の推定崩壊熱

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[12]。解析モデルの初期設定の境界条件の概要を図 3.1.2-74 に示す。



図 3.1.2-74 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 m 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。モデル化された固体と流体領域を図 3.1.2-75 に示す。また、図 3.1.2-76 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 3.1.2-76 推定温度履歴

図 3.1.2-77 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、ペデスタル、コンクリー ト等、その他の温度はほぼ 30 ℃以下となった。



図 3.1.2-77 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各部位の温度分布を図3.1.2-78に示す。

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。



③ セメント系材料による被覆

取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、セメント系材料はペデスタル底部から 2.5 m、燃料デブ リ表面から 1 mの深さを被覆すると仮定した。

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 3.1.2-79 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 ことが分かった。なお、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になると判断される。



- 3.1.2.8 RPV 内温度解析【令和元年度】
  - (1) 目的

現在の推定と調査によると、1F1号機の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、3.1.2.8 では、STAR-CCM+を使用して、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 3.1.2-80 に 1F 1 号機の RPV と底部が破損した RPV の形状の 3D モデルを示す。



図 3.1.2-80 1F 1 号機の RPV 形状 3D モデル

崩壊熱は Way-Wigner 式[6]を使用して推定した。格納容器の側壁を通る効果的な熱伝 達がないと仮定して、境界条件を定めた。図 3.1.2-81 に境界条件と使用した材料物性値 を示す。

# **Boundary Conditions and Thermophysical Properties**



| <b>Thermophysical Properties of Debris</b> |       |  |
|--|-------|--|
| Density [kg/m <sup>3</sup> ]               | 10042 |  |
| Thermal conductivity [W/m-K]               | 10    |  |
| Specific heat [J/kg-K]                     | 305   |  |

## **Thermophysical Properties of Concrete**

| Density [kg/m <sup>3</sup> ] | 2300 |
|------------------------------|------|
| Thermal conductivity [W/m-K] | 1.3  |
| Specific heat [J/kg-K]       | 2100 |

# **Thermophysical Properties of Stainless Steel**

| Density [kg/m <sup>3</sup> ] | 7700 |
|------------------------------|------|
| Thermal conductivity [W/m-K] | 28   |
| Specific heat [J/kg-K]       | 750  |

Initial Temperature set as 15 °C for all regions

図 3.1.2-81 境界条件と材料物性値

**3.1-64** - 96 - ② CFD 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構造を考慮して、 乱流モデルとして実現可能な k-  $\epsilon$  2 層モデルを使用し、浮力が支配的であるため浮力駆 動(Xu)モデルを使用した[13]。

(3) 解析結果(被覆材なし)

図 3.1.2-82 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 3.1.2-83 に種々の崩壊熱に対する各部位の温度分布を示す。



図 3.1.2-82 種々の崩壊熱値に対する RPV 温度分布(損傷なし)



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 3.1.2-84 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 3.1.2-85 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 3.1.2-84 30%崩壊熱に対する RPV 温度分布(損傷あり)

3.1-66 - 98 -



図 3.1.2-85 種々の崩壊熱に対する各部位の温度分布(損傷あり)

ここで、図 3.1.2-86 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 3.1.2-86 損傷有無 RPV の温度比較(1)

3.1-67 - 99 -



(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 3.1.2-87 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 3.1.2-87 (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/m-K 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



Geometry



図 3.1.2-87 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

**3.1-69** - 101 - 図 3.1.2-88 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。

# Coated CRGT Suffer Suffer

# Comparison

2021 %30 Decay Heat - Results 2.5 kW - Level 1 RPV + Bioshield Fill

# Comparison

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


(5) 温度解析結果のまとめ

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 PCV 内温度分布
  - a. 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。
  - b. 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。
  - c. 燃料デブリ取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できる。
- ② RPV 内温度分布
  - a. 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。
  - b. 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。
  - c. 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。

3.2 燃料デブリ安定化被覆材の施工性評価【平成 30 年度 - 令和 2 年度】

3.2.1 被覆材の作製((1)~(3)連携先:原子力機構)【平成 30 年度-令和元年度】

(1) GP の仕様検討

被覆材の GP としては、フランスで実績のある原子力機構製 GP、欧州で実績のある GP である富士電機株式会社、SIAL®[14]及びアドバンエンジ株式会社製作の GP 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、GP の作製方法等はほぼ同一のため、以下には作製方法は原子力機構材(GP-J)を中心に記述する。

GP-J については、適切な GP 性状に関して東京大学と原子力機構と協議の上、燃料デブ リ安定化被覆材の特性評価に供する GP を作製した。

各年度において異なる試験に供するため、平成 30 年度、令和元年度、令和 2 年度いずれ も同一仕様の GP を用いた。以下に配合組成及び作製手順を示す。

(2) GP 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   | 富士フイルム和光純薬株式会社              |  |  |  |  |  |
| (NaOH)   | 濃度 97 %以上                   |  |  |  |  |  |
| ② 水ガラス   | キシダ化学株式会社                   |  |  |  |  |  |
| (H <sub>2</sub> 0、SiO <sub>2</sub> 、Na <sub>2</sub> 0) | ケイ酸ナトリウム溶液1号                |  |  |  |  |  |
| ③ 純水 (H <sub>2</sub> 0)                                | Merck Millipore             |  |  |  |  |  |
| <ul> <li>④ メタカオリン</li></ul>                            | Imerys Performance Minerals |  |  |  |  |  |
| (Si0₂、A1₂0₃)   | 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 Si02:1 Al203:1 Na20:13 H20 となるように原料を量りと る必要がある。必要な原料質量比は、①1.00:②5.73:③14.6:④13.3 である。

- (3) GP の作製
  - a. 上記原料質量比を基に、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 にゆっくり混錬し、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ペーパーなどとともに入れ、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ペーパーを入れるのは、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。

(4) 沈降型超重泥水の作製【平成 30 年度 - 令和 2 年度】

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[15]。各年度のおいて異なる試験に供するため、平成30年度、令和元年度、 令和2年度いずれも同一仕様の沈降型超重泥水を用いた。以下に配合組成を示す。

| 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

3.2.2 被覆材特性評価【平成 30 年度 - 令和 2 年度】

3.2.2.1 被覆材特性評価の実施概要【平成 30 年度-令和 2 年度】

GP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、 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た。

各年度に実施した内容の概略を以下に示す。

<平成 30 年度>

GP については、①ベース材粘度、②ベース材流動特性、③ベース材及び Pd 添加材のγ線 照射によるガス発生を、沈降型超重泥水については、γ線照射有無環境下での無機及び有 機材の沈降速度を測定・評価した。

<令和元年度>

GP については、①  $\gamma$  線照射有無の圧縮強度、②  $\gamma$  線照射有無の熱伝導率、③Zr0<sub>2</sub>、Fe0、 Fe<sub>2</sub>0<sub>3</sub> 添加材の  $\gamma$  線照射によるガス発生、④加熱による水分脱離影響を、沈降型超重泥水に ついては、無機材の沈降速度の温度依存性(室温、40 °C、60 °C、80 °C)を測定・評価し た。

<令和2年度>

GP については、①珪砂を添加(10 wt%、20 wt%、30 wt%)した場合の粘度、②珪砂添加 材の養生温度を変化(室温、40 °C、60 °C、80 °C)させた場合の粘度、③珪砂添加量、珪 砂粒径、養生温度を変化させた場合の圧縮強度、④  $\gamma$ 線照射有無における珪砂、Ti、Zr 添 加材の熱伝導率、⑤  $\gamma$ 線照射による珪砂、Ti、Zr、Mg、SiC 添加材のガス発生を、沈降型超 重泥水については、 $\gamma$ 線照射下における無機材の沈降速度の温度依存性(室温、40 °C、 60 °C)を測定・評価した。

以下には平成 30 年度及び令和元年度に実施した内容の代表的な試験結果と令和 2 年度 に実施した内容を記す。

3.2.2.2 GP 流動性評価【令和 2 年度】

(1) 目的

GP を充填材として何らかの廃棄体容器内に満たす際に、廃棄物を完全に覆うためには、 十分な流動性を持ち、容器内を完全に充填させる必要がある。また、燃料デブリ取出しの 際にも工法の1つとして、 GP を用いて RPV 内を充填・固化させるという工法が現在検討 されているが、このような工法を実現させるためにも流動性についての検討は必要である。 流動性を評価するための指標としては粘度やテーブルフロー値などがあるが、粘度に着目 して測定・評価を実施した。

本研究における流動性評価の目的は、養生条件や添加剤条件を変えた際に性能がどのように変化するかを確認することであり、特に実際に GP が用いられる状況を想定して養生温 度等を指定し、流動性を評価した。

(2) 試験方法

GPの混錬が完了後、完了直後から7時間後まで1時間毎に計8回同じ試料で粘度を繰り返し測定した。後半の実験では、固化までの時間が短いことから15分毎に計8回測定を実施した。また、今回測定した試料条件については表3.2.2-2に示す通りである。

| 試料 No. | 測定時間  | 養生温度[℃]      | 養生湿度[%] | 珪砂添加量[wt%] |
|--------|-------|--------------|---------|------------|
| V-1    | 7 時間  | 22.5±2.5(室温) | 100     | -          |
| V-2    | 7 時間  | 22.5±2.5(室温) | 100     | 10         |
| V-3    | 7 時間  | 22.5±2.5(室温) | 100     | 20         |
| V-4    | 7 時間  | 22.5±2.5(室温) | 100     | 30         |
| V-5    | 105 分 | 22.5±2.5(室温) | 100     | -          |
| V-6    | 105 分 | 22.5±2.5(室温) | 100     | 20         |
| V-7    | 105 分 | 40           | 100     | -          |
| V-8    | 105 分 | 40           | 100     | 20         |
| V-9    | 105 分 | 60           | 100     | -          |
| V-10   | 105 分 | 60           | 100     | 20         |
| V-11   | 105 分 | 80           | 100     | -          |
| V-12   | 105 分 | 80           | 100     | 20         |

表 3.2.2-2 粘度測定を実施した試料条件一覧

V-1 から V-4 については養生温度及び養生湿度を固定し、珪砂の添加量を 0 から 30 wt% まで 4 種類用意した。珪砂は、乾燥収縮やひび割れを防止する効果を持つとされ、有限会 社竹折砿業所の粒径が 0.2 mm~0.4 mm である珪砂 6 号を用いた。V-5 から V-12 について は、燃料デブリ等発熱廃棄体から熱を受けることを想定して養生温度を室温、40 ℃、60 ℃、 80 ℃の 4 種類を用意した。また、これらについて珪砂を無添加のものと 20 wt%添加した ものをそれぞれ準備した。なお、室温以上の環境では恒温槽を使用して温度を管理し、保 管中はすべて密封可能な袋に湿らせたティッシュペーパーとともに試料を入れることで湿 度を管理した。

(3) 結果及び考察

V-1から V-4までの粘度測定結果を表 3.2.2-3及び図 3.2.2-1に示す。

| 経過時間[h]   | 0    | 1    | 2    | 3    | 4     | 5    | 6    | 7    |
|-----------|------|------|------|------|-------|------|------|------|
| V-1[Pa·s] | 0.85 | 1.35 | 1.56 | 1.82 | 1.86  | 1.89 | 1.93 | 4.35 |
| V-2[Pa·s] | 1.02 | 1.60 | 1.78 | 2.14 | 2.66  | 2.85 | 3.23 | 4.35 |
| V-3[Pa·s] | 1.19 | 1.85 | 2.12 | 2.77 | 3.22  | 3.27 | 3.49 | 4.63 |
| V-4[Pa·s] | 1.46 | 2.13 | 2.38 | 2.97 | 3. 29 | 3.32 | 3.75 | 4.71 |

表 3.2.2-3 V-1から V-4 までの粘度測定結果



図 3.2.2-1 珪砂量を変化させた場合の粘度の経時変化

珪砂添加なしの試料(V-1)については、6時間まで粘度が漸増し、その後粘度が急増し 固化に至ることが確認された。一方、珪砂添加ありの試料(V-2~V-4)については、V-1と 比較して、粘度の増加の仕方が異なるため固化過程に違いがある可能性が考えられるが、 これは珪砂を添加することによって GP 内の相対的な含水量が減少するためであると考え られる。V-2~V-4の中で比較をすると、珪砂の添加量が多いほど粘度は大きくなることが 分かる。以上の結果より、室温養生の GP について6時間程度では、珪砂添加の有無に関わ らず十分な流動性を確保するということが確認された。

V-5からV-12までの粘度測定結果を表 3.2.2-4及び図 3.2.2-2に示す。

| 経過時間<br>[m] | 0    | 15   | 30   | 45   | 60   | 75   | 90   | 105  |
|-------------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| V-5[Pa·s]   | 0.99 | 1.15 | 1.29 | 1.45 | 1.53 | 1.64 | 1.74 | 1.80 |
| V-6[Pa·s]   | 1.02 | 1.18 | 1.36 | 1.57 | 1.74 | 1.92 | 2.00 | 2.02 |
| V-7[Pa·s]   | 0.97 | 0.70 | 0.77 | 0.99 | 1.07 | 1.25 | 1.35 | 1.62 |
| V-8[Pa•s]   | 1.04 | 0.89 | 1.01 | 1.10 | 1.21 | 1.41 | 1.73 | 2.11 |
| V-9[Pa·s]   | 0.85 | L    | L    | 1.39 | Н    | 固化   | -    | -    |
| V-10[Pa·s]  | 1.08 | L    | 0.64 | 2.27 | 固化   | -    | -    | -    |
| V-11[Pa·s]  | 0.88 | L    | 0.87 | 固化   | -    | -    | -    | -    |
| V-12[Pa·s]  | 0.99 | 0.53 | 2.39 | 固化   | _    | _    | -    | -    |

表 3.2.2-4 V-5 から V-12 までの粘度測定結果



図 3.2.2-2 養生温度を変化させた場合の粘度の経時変化

表 3.2.2-4 にて「L」と表記しているものは機器の測定範囲(1 Pa·s~100 Pa·s)を下回ったことを示し、「H」と表記しているものは測定範囲を上回ったことを示している。さらに V-9~V-12 の「固化」は、固化により測定不可であったことを示す。

室温養生の試料(V-5、V-6)については養生開始後105分まで粘度が単調に増加していることが確認された。一方40℃養生の試料(V-7、V-8)では、養生開始後15分で粘度が一度減少し、その後に増加した。60分以降の粘度の増加幅は室温養生の試料(V-5、V-6)と比較して大きくなった。さらに、60℃養生(V-9、V-10)と80℃養生の試料(V-9、V-10)でも同様の傾向が見られ、養生温度が高いほど粘度の一時的な減少幅とその後の増加幅が大きくなることが分かった。養生温度が60℃以上の時には固化過程の進展が速いことが確認された。これは周りから熱を加えることでGPの縮重合反応が促進されるためであると考えられる。

また、本測定において珪砂を添加することにより流動性が減少することが確認されたが、 これは相対的な含水量が減少しているためと考えられる。

以上より、本測定から室温環境では6時間以上、60 ℃の養生環境では45分、80 ℃の養 生環境では30分、流動性を確保できること、珪砂添加により粘度が高くなること、高温環 境では、一時的に粘度が減少しその後急増する傾向があることが分かった。

3.2.2.3 GP 強度評価【令和2年度】

(1) 目的

本研究における強度評価の目的は、養生条件や添加剤条件を変えた際に性能がどのよう に変化するかを確認することであり、特に実際に GP が用いられる状況を想定して養生温度 等を設定し、強度を評価するために圧縮強度を代表の指標として用いることにした。

また、照射試験は①GPの照射試験は株式会社アトックス 技術開発センター<sup>60</sup>Coy線照射施設の <sup>60</sup>Co線源を使って実施した。<sup>60</sup>Co線源(放射能:約0.53 PBq(令和2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y線積算線量を算出した。照射試験での試料配置を図3.2.2-3に示す。



図 3.2.2-3 照射試験状況

**3.2-6** – 109 –

照射試料の種類、及び積算線量については評価目的別に表 3.2.2-5 に示す。

| No. | 試料<br>No. | 評価目的             | 試料種類                   | 試料厚さ<br>[mm] | 積算線量       |
|-----|-----------|------------------|------------------------|--------------|------------|
| 1   | H-1       | -                | 室温養生、ブランク              | 20           | 1.17 [MGy] |
| 2   | H-2       |                  | 室温養生、珪砂9号 20 wt%添加     | 10           | 786 [kGy]  |
| 3   | H-3       |                  | 室温養生、珪砂9号 20 wt%添加     | 20           | 786 [kGy]  |
| 4   | H-4       |                  | 室温養生、珪砂9号 20 wt%添加     | 40           | 786 [kGy]  |
| 5   | H-5       |                  | 室温養生、珪砂9号 20 wt%添加     | 80           | 1.05 [MGy] |
| 6   | H-6       |                  | 室温養生、Ti 粉末 3 wt%添加     | 20           | 1.05 [MGy] |
| 7   | H-7       |                  | 室温養生、Ti 粉末 10 wt%添加    | 20           | 1.05 [MGy] |
| 8   | H-8       | 水まガラ             | 室温養生、Zr 粉末 3 wt%添加     | 20           | 1.07 [MGy] |
| 9   | H-9       | 小奈カス<br>発生島      | 室温養生、Zr 粉末 10 wt%添加    | 20           | 1.07 [MGy] |
| 10  | H-10      | 元<br>王<br>重<br>価 | 室温養生、Mg 粉末 3 wt%添加     | 20           | 1.07 [MGy] |
| 11  | H-11      |                  | 室温養生、Mg 粉末 10 wt%添加    | 20           | 859 [kGy]  |
| 12  | H-12      |                  | 室温養生、Pd 合金粉末 3 wt%添加   | 20           | 859 [kGy]  |
| 13  | H-13      |                  | 富士電機①                  | 20           | 713 [kGy]  |
| 14  | H-14      |                  | 富士電機②                  | 20           | 713 [kGy]  |
| 15  | H-15      |                  | 富士電機③                  | 20           | 713 [kGy]  |
| 16  | H-16      |                  | アドバンエンジ①               | 20           | 681 [kGy]  |
| 17  | H-17      |                  | アドバンエンジ②               | 20           | 681 [kGy]  |
| 18  | H-18      |                  | アドバンエンジ③               | 20           | 681 [kGy]  |
| 19  | C-2       |                  | 室温養生、ブランク              | 100          | 1.17 [MGy] |
| 20  | C-7       |                  | 室温養生、珪砂6号10 wt%添加      | 100          | 1.17 [MGy] |
| 21  | С-8       | 工綻跆声             | 室温養生、珪砂6号20wt%添加       | 100          | 1.21 [MGy] |
| 22  | C-12      | 工相强度             | 室温養生、珪砂9号10 wt%添加      | 100          | 1.21 [MGy] |
| 23  | C-13      | рт рщ            | 室温養生、珪砂9号20wt%添加       | 100          | 1.21 [MGy] |
| 24  | C-17      |                  | 40 ℃養生、珪砂 9 号 20 wt%添加 | 100          | 1.05 [MGy] |
| 25  | C-21      |                  | 60 ℃養生、珪砂 9 号 20 wt%添加 | 100          | 1.05 [MGy] |
| 26  | T-2       |                  | 室温養生、ブランク              | 20           | 1.05 [MGy] |
| 27  | T-4       | 執仁道家             | 室温養生、珪砂6号20wt%添加       | 20           | 983 [kGy]  |
| 28  | T-6       | が四等平<br>証価       | 室温養生、珪砂9号 20 wt%添加     | 20           | 983 [kGy]  |
| 29  | T-8       | рі іші           | 室温養生、Ti 粉末 10 wt%添加    | 20           | 983 [kGy]  |
| 30  | T-10      |                  | 室温養生、Zr 粉末 10 wt%添加    | 20           | 933 [kGy]  |

表 3.2.2-5 アトックス照射試験の照射試料一覧

(2) 試験方法

圧縮強度試験に用いた GP の試験体の大きさは直径 50 mm、高さ 100 mm である。用意した試料の種類は全部で 27 種類で、サンプル数は n = 1 である。圧縮強度試験を実施した 27 種類の試料条件一覧を表 3.2.2-6 に示す。

| 試料 No. | 養生温度[℃]      | 養生湿度<br>[%] | 珪砂種類 | 添加量<br>[wt%] | 照射 |
|--------|--------------|-------------|------|--------------|----|
| C-1    | 22.5±2.5(室温) | 100         | -    | -            | -  |
| C-2    | 22.5±2.5(室温) | 100         | -    | _            | 有  |
| С-3    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 6号   | 5            | -  |
| C-4    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 6号   | 10           | -  |
| C-5    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 6号   | 20           | -  |
| C-6    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 6号   | 30           | -  |
| C-7    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 6号   | 10           | 有  |
| C-8    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 6号   | 20           | 有  |
| С-9    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 9号   | 5            | -  |
| C-10   | 22.5±2.5(室温) | 100         | 9号   | 10           | -  |
| C-11   | 22.5±2.5(室温) | 100         | 9号   | 20           | -  |
| C-12   | 22.5±2.5(室温) | 100         | 9号   | 10           | 有  |
| C-13   | 22.5±2.5(室温) | 100         | 9号   | 20           | 有  |
| C-14   | 40           | 100         | -    | _            | -  |
| C-15   | 40           | 100         | 9号   | 10           | -  |
| C-16   | 40           | 100         | 9号   | 20           | -  |
| C-17   | 40           | 100         | 9号   | 20           | 有  |
| C-18   | 60           | 100         | -    | _            | -  |
| C-19   | 60           | 100         | 9号   | 10           | -  |
| C-20   | 60           | 100         | 9号   | 20           | -  |
| C-21   | 60           | 100         | 9号   | 20           | 有  |
| C-22   | 80           | 100         | -    | -            | -  |
| C-23   | 80           | 100         | 6号   | 20           | -  |
| C-24   | 80           | 100         | 6号   | 30           | -  |
| C-25   | 150          | 100         | -    | -            | -  |
| C-26   | 150          | 100         | 6号   | 20           | -  |
| C-27   | 150          | 100         | 6号   | 30           | -  |

表 3.2.2-6 圧縮強度試験を実施した試料条件一覧

添加材としては、基本条件であるブランクをはじめ、乾燥収縮やひび割れを防止する効果を持つとされる珪砂を添加した試料を用意した。珪砂の種類としては有限会社竹折砿業所の、粒径が 0.2 mm~0.4 mm である珪砂 6 号と粒径が 0.01 mm~0.04 mm である珪砂 9 号の2種類を用いた。また、添加量の圧縮強度への影響を調べるために 5 wt%、10 wt%、20 wt%、30 wt%の4種類の試料を用意した。養生温度については基本条件の室温に加え、40  $^{\circ}$ 、60  $^{\circ}$ 、80  $^{\circ}$ 、150  $^{\circ}$ のものを、恒温槽を用いて準備した。40  $^{\circ}$ 、60  $^{\circ}$ 、80  $^{\circ}$ の3 ケースについては脱型前の 1 週間と脱型後の 2 週間の計 3 週間をこの温度で保管した。150  $^{\circ}$ については樹脂製の容器を型枠として使っており、脱型前の 1 週間は型枠が溶けてしまうため室温保管とし、脱型後の 2 週間を、恒温槽を用いて 150  $^{\circ}$ で固定した。

さらに、一部の試料 (C-2、C-7、C-8、C-12、C-13、C-17、C-21) に対して、γ線を照射 後、圧縮強度試験を行った。

本圧縮強度試験は一般財団法人建材試験センター 中央試験所(以下、「建材試験センター」 と略記。)にて実施した。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。

(3) 結果及び考察

すべての圧縮強度試験結果を表 3.2.2-7 に示す。

| 試料<br>No. | 脱型後<br>質量<br>[g] | 研磨前<br>質量<br>[g] | 含水率<br>[%] | 研磨後<br>質量<br>[g] | 試験時<br>材齢<br>[日] | 平均<br>直径<br>[mm] | 高さ<br>[mm] | 最大<br>荷重<br>[kN] | 圧縮強度<br>[N/mm <sup>2</sup> ]<br>(= MPa) |
|-----------|------------------|------------------|------------|------------------|------------------|------------------|------------|------------------|---|
| C-1       | 338.32           | 336.8            | 37.1       | 330.2            | 29               | 50.1             | 87.5       | 86.9             | 44.1                                    |
| С-2       | 339.27           | 284.8            | 25.4       | 301.4            | 71               | 50.1             | 98         | 70.6             | 35.8                                    |
| С-3       | 347.32           | 347.7            | 35.7       | 344.5            | 29               | 50.1             | 99.7       | 98               | 49.7                                    |
| C-4       | 354.22           | 354.6            | 34.1       | 347.2            | 29               | 50               | 98.7       | 132              | 67.2                                    |
| С-5       | 359.87           | 358.2            | 30.9       | 357.6            | 29               | 50.2             | 99.7       | 113              | 57.1                                    |
| С-6       | 369.88           | 366.5            | 28.1       | 362.2            | 29               | 50.1             | 98         | 115              | 58.3                                    |
| C-7       | 363.36           | 312.3            | 23.2       | 319.4            | 71               | 50               | 99.5       | 108              | 55                                      |
| С-8       | 369.22           | 339.5            | 25.2       | 342.8            | 71               | 50.1             | 99.4       | 97.3             | 49.4                                    |
| С-9       | 350.06           | 350.2            | 35.6       | 344.7            | 29               | 50               | 99.1       | 131              | 66.7                                    |
| C-10      | 353.65           | 352.8            | 33.8       | 345.1            | 29               | 50               | 98.5       | 132              | 67.2                                    |
| C-11      | 363.36           | 364.1            | 31.3       | 356.9            | 29               | 50.1             | 98.1       | 130              | 66                                      |
| C-12      | 349.97           | 313.8            | 26.4       | 316.8            | 64               | 50               | 99.3       | 95.5             | 48.7                                    |
| C-13      | 358.86           | 324.1            | 23.8       | 330.3            | 64               | 50               | 98.3       | 122              | 62.1                                    |
| C-14      | 340.73           | 342.6            | 37.7       | 336.8            | 29               | 50.1             | 99.6       | 132              | 67                                      |
| C-15      | 352.45           | 353.3            | 34.2       | 348.2            | 29               | 50.2             | 99.6       | 140              | 70.7                                    |
| C-16      | 363.71           | 365.2            | 31.5       | 356.8            | 29               | 50.2             | 99         | 120              | 60.6                                    |
| C-17      | 362.81           | 330.1            | 24.4       | 334.9            | 47               | 50.1             | 100.2      | 143              | 72.6                                    |
| C-18      | 334.28           | 331              | 36.8       | 332.2            | 29               | 50.1             | 99.6       | 96.1             | 48.8                                    |
| C-19      | 349.07           | 350              | 34.2       | 348.1            | 29               | 50.2             | 100.4      | 86.7             | 43.8                                    |
| C-20      | 363.05           | 358.7            | 30.4       | 358.2            | 29               | 50.2             | 100.4      | 101              | 51                                      |
| C-21      | 351.97           | 312.6            | 22.5       | 327.6            | 47               | 50.1             | 99.7       | 54.8             | 27.8                                    |
| C-22      | 325.36           | 280.4            | 27.4       | 315.2            | 29               | 50.3             | 98.4       | 7.4              | 3.72                                    |
| C-23      | 343.43           | 317.2            | 25.5       | 339.5            | 29               | 50.4             | 99         | 16.2             | 8.12                                    |
| C-24      | 354.17           | 308.9            | 18.4       | 328.4            | 29               | 50.3             | 97.4       | 12.2             | 6.14                                    |
| C-25      | 337.64           | 227.5            | 7.1        | 282.1            | 29               | 47.4             | 94         | 33.2             | 18.8                                    |
| C-26      | 358.57           | 261.7            | 5.7        | 310.7            | 29               | 48.4             | 94.6       | 31.2             | 17                                      |
| C-27      | 367.58           | 275.9            | 5.1        | 328.2            | 29               | 48.7             | 95.9       | 28               | 15                                      |

表 3.2.2-7 全試料の圧縮強度試験結果

含水率は、下記の式によって求めた。

= (脱型後質量 [G]×元の含水率) - (脱型後質量 [G] - 研磨前質量 [G])×100 研磨前質量 [G]

ここで基準としたのは研磨前の試料の質量であり、表 3.2.2-8 に示す通り添加剤の添加 量により元の含水率とは異なる。

| 添加量[wt%] | 含水率[%] |
|----------|--------|
| 0        | 37.4   |
| 5        | 35.6   |
| 10       | 34     |
| 20       | 31.2   |
| 30       | 28.8   |

表 3.2.2-8 添加剤の添加量と含水率の関係

圧縮強度は試料の平均直径と最大荷重から求めた。さらに、γ線照射試料を除いた未照 射試料 20 体の結果を図 3.2.2-4 に示す。



図 3.2.2-4 養生温度・珪砂量・粒径を変えた場合の圧縮強度

図より、室温環境で養生した試料では珪砂を10 wt%以上添加することで圧縮強度が向上 することが確かめられた。しかしながら10 wt%以上であれば、20 wt%であっても30 wt%で あっても圧縮強度はそれ以上変化せず、添加量10 wt%で珪砂の効果が最大になるという結 果が得られた。また、珪砂6号(0.2 mm~0.4 mm)と珪砂9号(0.01 mm~0.04 mm)の粒 径の違いによる圧縮強度への影響は認められなかった。

室温養生以外の高温養生を行った試料については、珪砂を添加しても圧縮強度の向上が 確認されなかった。さらに、養生温度別の圧縮強度の傾向としては、40 ℃養生においては 圧縮強度は室温の場合よりも増加傾向であり、60 ℃養生では室温と同程度、80 ℃以上で は室温よりも減少傾向となった。以上のことから養生温度は GP の固化過程及び固化状態に 影響を与えるということが考えられる。

続いて含水率と圧縮強度の関係をまとめた結果を図 3.2.2-5 に示す。図より、GP 内の水 分量が大きいほど圧縮強度も大きくなることが分かった。以上より、含水率も圧縮強度に 影響を与え、初期の養生温度がより大きな支配要因となると推測される。



図 3.2.2-5 含水率と圧縮強度の関係(未照射試料のみ)

最後に、照射を行った試料と未照射試料の圧縮強度の比較について図 3.2.2-6 に示す。 図より、γ線照射により GP 内の水分が脱水されたことが分かった。未照射試料は試験直前 まで密封袋に湿らせたティッシュペーパーとともに入れていたため水分が保持されたと考 えられるが、照射済み試料は約 2 週間の照射期間中に袋から出して照射を行ったため、そ の間に脱水が進んだことも一因と考えられる。

圧縮強度については含水率とほとんど同じ傾向を示すことが確認できた。照射により圧 縮強度は、40 ℃養生・珪砂9号20 %添加の場合を除いて小さくなった。これは前述の通 り含水率による影響か、もしくは照射による影響と考えられる。

以上より、本試験から室温では珪砂を10%以上添加することで圧縮強度が向上すること、 40℃養生で圧縮強度が最も大きくなり、80℃以上の養生では圧縮強度が低下すること、 GP内の含水率と圧縮強度には相関があること、照射により圧縮強度は10~20%程度小さく なることが分かった。



図 3.2.2-6 照射の有無による圧縮強度と含水率の比較

- 3.2.2.4 GP 熱伝導率評価【令和 2 年度】
- (1) 目的

GP を充填材・緩衝材として用いるためには、燃料デブリ等発熱廃棄体を直接被覆するために重要な物性値である熱伝導率を把握することが重要である。本研究における熱伝導性評価の目的は、養生条件や添加剤条件を変えた際に熱伝導率がどのように変化するかを確認することであり、特に、GP が用いられる状況を想定して y 線照射を実施した。

(2) 試験方法

熱伝導率測定に用いた GP の試験体の大きさは直径 50 mm、高さ 20mm である。用意した 試料の種類は全部で 10 種類で、サンプル数は n = 1 である。熱伝導率測定を実施した 10 種類の試料条件一覧を表 3.2.2-9 に示す。

| 試料 No. | 養生温度[℃]      | 養生湿度<br>[%] | 添加剤種類         | 添加量<br>[wt%] | 照射 |
|--------|--------------|-------------|---------------|--------------|----|
| T-1    | 22.5±2.5(室温) | 100         | -             | -            | -  |
| T-2    | 22.5±2.5(室温) | 100         | -             | -            | 有  |
| T-3    | 22.5±2.5(室温) | 100         | <b>珪砂 6 号</b> | 20           | -  |
| T-4    | 22.5±2.5(室温) | 100         | 珪砂 6 号        | 20           | 有  |
| T-5    | 22.5±2.5(室温) | 100         | <b>珪砂 9 号</b> | 20           | -  |
| T-6    | 22.5±2.5(室温) | 100         | <b>珪砂 9 号</b> | 20           | 有  |
| T-7    | 22.5±2.5(室温) | 100         | Ti 粉末         | 10           | -  |
| T-8    | 22.5±2.5(室温) | 100         | Ti 粉末         | 10           | 有  |
| T-9    | 22.5±2.5(室温) | 100         | Zr 粉末         | 10           | -  |
| T-10   | 22.5±2.5(室温) | 100         | Zr 粉末         | 10           | 有  |

表 3.2.2-9 熱伝導率測定を実施した試料条件一覧

養生環境は、試料数の都合上、熱伝導率評価に関してはすべての試料を3週間の室温・ 相対湿度100 %養生とした。

添加剤は、基本条件であるブランク以外に、珪砂6号と珪砂9号や熱伝導率の向上を狙っ てチタン粉末とジルコニウム粉末をそれぞれ10%ずつ添加する試料を用意した。

さらに、一部の試料(T-2、T-4、T-6、T-8、T-10)に対して、γ線を照射したあとに熱伝 導率測定を行った。その他としては、脱型直後の質量と試験直前の質量を測定し、含水量 についても分析を実施した。

本熱伝導率測定は、TA Instruments 社製の DTC 300 を用いて実施した。測定方法は ASTM E 1530 に準拠している円盤熱流計法(保護熱流計法)であり、熱伝導率が既知の参照試料 を同時測定し、熱量の絶対値測定を行わずに正確な熱伝導率を測定する方法である。試験 片の上下に 30 ℃の温度差で定常状態になるようにヒーターと基準熱量計を密着し、試験 片両端の温度差と基準熱量計の出力から熱伝導率を求めた。

(3) 試験結果

すべての試験体の熱伝導率測定結果を表 3.2.2-10 及び図 3.2.2-7 に示す。

添加剤を加えていない試料と比較して、チタン粉末やジルコニウム粉末を添加した試料 の熱伝導率は2倍以上に向上することが確認できた。チタンの熱伝導率は21.9 W/(m・K)で あり、ジルコニウムの熱伝導率は22.7 W/(m・K)であるため、粉末状態の金属でも一定量以 上添加することで熱伝導率を向上させることが分かった。さらに珪砂9号を添加した試料 についても、添加剤なしの試料と比較して熱伝導率が高いことが確認された。

次に、添加剤なし及び珪砂6号20%添加の試料では照射により熱伝導率が高くなり、他 は照射済み試料の熱伝導率が低くなった。前者の2試料のみ異なるタイミングで作製、測 定を実施したことが関係している可能性があるが、その他は含水率の増減とも一致してお り、照射によってGP内水分が抜けたため熱伝導率が低下した可能性が考えられる。

以上より、珪砂や金属粉末を一定量添加することで熱伝導率が向上すること、照射により GP の熱伝導率は変化することが分かった。

| 試料<br>No. | 測定<br>温度<br>[℃] | 脱型後<br>質量<br>[g] | 研磨前<br>質量<br>[g] | 含水<br>率<br>[%] | 測定前<br>質量<br>[g] | 測定後<br>質量<br>[g] | 試験時<br>材齢<br>[日] | 試料<br>厚さ<br>[mm] | 熱伝導率<br>[W/(m・K)] |
|-----------|-----------------|------------------|------------------|----------------|------------------|------------------|------------------|------------------|-------------------|
| T-1       | 25              | 69.33            | 69.24            | 37.3           | 58.85            | 58.69            | 36               | 21.2             | 0.353             |
| T-2       | 25              | 71.61            | 70.82            | 36.7           | 70.48            | 70.15            | 69               | 20.8             | 0. 797            |
| T-3       | 25              | 72.44            | 71.34            | 30.1           | 61.27            | 61.14            | 36               | 20.0             | 0.484             |
| T-4       | 25              | 77.08            | 75.43            | 29.7           | 74.72            | 74.49            | 69               | 20.9             | 1.001             |
| T-5       | 25              | 79.13            | 79.21            | 31.3           | 74.17            | 73.40            | 38               | 20.7             | 0.961             |
| T-6       | 25              | 71.09            | 67.49            | 27.5           | 65.78            | 65.61            | 62               | 18.9             | 0.914             |
| T-7       | 25              | 80.99            | 81.02            | 34.0           | 77.46            | 77.04            | 38               | 21.5             | 0.868             |
| T-8       | 25              | 73.63            | 68.76            | 29.3           | 66.05            | 65.88            | 62               | 19.6             | 0.764             |
| T-9       | 25              | 85.43            | 85.90            | 34.4           | 78.22            | 77.98            | 38               | 21.5             | 0.853             |
| T-10      | 25              | 68.95            | 63.32            | 28.1           | 61.55            | 60.99            | 63               | 18.1             | 0.674             |

表 3.2.2-10 全試料の熱伝導率測定結果



図 3.2.2-7 添加剤・照射の有無と熱伝導率の関係

- 3.2.2.5 GP 水素発生評価【令和元年度-令和2年度】
  - (1) 目的

GP を充填材・緩衝材として用いるためには、水素発生低減の方法を考える必要がある。 これは、GP が自由水を固化体内に保持しているため、長期保管中に放射線分解による水素 ガスの発生及びそれによる保管容器の破損・爆発等の不具合につながる可能性があるためである。そこで令和元年度では、はじめに GP 単体、乾燥した GP、水素吸収材を添加した GP ならびに超重泥水(詳細は後述)を照射し、水素発生挙動を確認した。試料一覧を表 3.2.2-11 に示す。

| 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             | <b>500°C</b> 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             | <b>500°C</b> 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             | <b>3wt.%</b> 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 <b>110℃</b> 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 <b>110℃</b> 乾燥 |
| HWM-0      | 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            |

表 3.2.2-11 照射試験の試料一覧

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、0: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

## (2) 試験結果考及び考察【令和元年度】

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 3.2.2-8 に、また、水素の発生量のみ 示した結果を図 3.2.2-9 に示す。



図 3.2.2-8 照射後ガス発生量分析結果

**3.2-15** - 118 -



図 3.2.2-9 照射後水素ガス発生量分析結果

本試験では、水中で作製した GP、気中で作製した GP、水分を含む沈降型重泥水(HMW) が放射線照射により水素発生量が多い傾向となった。GP は固化中に閉じ込められた自由水、 HMW 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、GP にパラジウム(Pd)粉末を加えた 試料については、水素発生量は最小検出限界値(0.01 %)以下と、水素発生の抑制に大き な効果を示した。

以上のように、パラジウムは水素発生低減のための添加剤として極めて有効な材料であ るが、かなり高価であるために、実機での大規模施工には必ずしも適さない。

そこで次に令和元年度では、パラジウムに代わる新たな水素発生低減候補材料を見つけ るために、再度照射試験を行った。本測定ではガスクロマトグラフィーによって照射後の ガラスアンプル内の水素ガス体積分率を測定し、G 値を用いて水素ガス発生特性を評価し た。

(3) 試験方法・条件【令和2年度】

水素ガス発生量測定に用いた GP の本試験体の大きさは直径 50 mm、高さは基本的には 20 mm である。作製方法及びγ線照射試験については前述の通りである。用意した試料の種類 は全部で 18 種類で、サンプル数は n = 1 である。水素ガス発生量測定を実施した 18 種類 の試料条件一覧を表 3.2.2-12 に示す。

| 試料   | ▲ 上 泪 庄 [ ℃ ] | 養生湿度 | 沃加刘廷新   | 添加量   | 試料厚さ |
|------|---------------|------|---------|-------|------|
| No.  | 食生価度しし」       | [%]  | 你们们们性知  | [wt%] | [mm] |
| H-1  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | -       | -     | 20   |
| H-2  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | 珪砂9号    | 20    | 10   |
| H-3  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | 珪砂9号    | 20    | 20   |
| H-4  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | 珪砂9号    | 20    | 40   |
| H-5  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | 珪砂9号    | 20    | 80   |
| H-6  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | Ti 粉末   | 3     | 20   |
| H-7  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | Ti 粉末   | 10    | 20   |
| H-8  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | Zr 粉末   | 3     | 20   |
| H-9  | 22.5±2.5(室温)  | 100  | Zr 粉末   | 10    | 20   |
| H-10 | 22.5±2.5(室温)  | 100  | Mg 粉末   | 3     | 20   |
| H-11 | 22.5±2.5(室温)  | 100  | Mg 粉末   | 10    | 20   |
| H-12 | 22.5±2.5(室温)  | 100  | Pd 合金粉末 | 3     | 20   |
| H-13 | 23(恒温槽)       | 100  | -       | -     | 20   |
| H-14 | 23(恒温槽)       | 100  | ジルカロイ   | 3     | 20   |
| H-15 | 23(恒温槽)       | 100  | ジルカロイ   | 10    | 20   |
| H-16 | 60            | 100  | _       | _     | 20   |
| H-17 | 60            | 100  | SiC 粒子  | 30    | 20   |
| H-18 | 60            | 100  | 金属繊維    | 30    | 20   |

表 3.2.2-12 水素発生量測定を実施した試料条件一覧

H-1 は基本条件であり、H-2 から H-5 までは試験体の大きさを変えた。その他にはパラジウムの代替材料候補として、チタン、ジルコニウム、マグネシウムといった金属単体の粉末とパラジウムの合金粉末を用意した。

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-熱伝導度検出器 (GC-TCD:株式会社島津製作所製)により水素ガス発生量を測定した。測定対象ガスは水 素、酸素、窒素の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、 その値は試料の大きさや積算線量に依存しており単純に比較ができないため、吸収エネル ギー1Jあたりに発生した水素濃度(mol)として表されるG(H<sub>2</sub>)値(mol/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。下にその計算式を示す。

$$G(H_2) = \frac{n(H_2)}{F}$$

ここで、 $n(H_2)$ 、Eは発生した水素ガスの物質量(mol)、試料の吸収エネルギー(J)を表し、

$$n(H_2) = \frac{r_{H_2} \times V_{Ample}}{22400}$$
$$E = m \times R$$

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(cm<sup>3</sup>)、 mは試料の質量(kg)、Rは試料の積算線量(Gy (= J/kg))である。

(4) 試験結果【令和2年度】

試験体の水素ガス発生量測定結果を表 3.2.2-13 及び図 3.2.2-10 に示す。

| 試料 No. | 照射量[Gy] | 試験時質量<br>[kg] | 水素ガス<br>体積分率 | G(H <sub>2</sub> )値<br>10 <sup>-8</sup> [mol/J] |  |
|--------|---------|---------------|--------------|---|--|
| H-1    | 1170000 | 0.073         | 0.064        | 1.03  |  |
| Н-2    | 786000  | 0.0371        | 0.022        | 1.04  |  |
| H-3    | 786000  | 0.0704        | 0.052        | 1.30  |  |
| H-4    | 786000  | 0.147         | 0.11         | 1.31  |  |
| H-5    | 1050000 | ※破損           |              |   |  |
| Н-6    | 1050000 | 0.072         | 0.063        | 1.15  |  |
| H-7    | 1050000 | 0.0735        | 0.062        | 1.11  |  |
| H-8    | 1070000 | 0.0701        | 0.06         | 1.10  |  |
| Н-9    | 1070000 | 0.0756        | 0.068        | 1.16  |  |
| H-10   | 1070000 | 0.0705        | 0.067        | 1.22  |  |
| H-11   | 859360  | 0.0687        | 0.065        | 1.52  |  |
| H-12   | 859360  | 0.0699        | 0.024        | 0.55  |  |
| H-13   | 712640  | 0.0607        | 0.063        | 2.01  |  |
| H-14   | 712640  | 0.061         | 0.07         | 2.22  |  |
| H-15   | 712640  | 0.0656        | 0.074        | 2.18  |  |
| H-16   | 681200  | 0.0761        | 0.11         | 2.92  |  |
| H-17   | 681200  | 0.0827        | 0.089        | 2.18  |  |
| H-18   | 681200  | 0.0931        | 0.086        | 1.87  |  |

表 3.2.2-13 全試料の水素発生量測定結果

令和2年度の試験では、金属粉末の添加剤を加えたものについては、パラジウム合金粉 末を除いてブランクと有意な差は確認できなかった。今後、チタン、ジルコニウム、マグ ネシウム以外の他の物質についても検討する必要がある。



図 3.2.2-10 G(H<sub>2</sub>) 値の比較

3.2.2.6 GP の水分脱離と熱的影響【令和元年度】

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。圧縮強度試験と同一寸法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3.2.2-11、図3.2.2-12に示す。



図 3.2.2-11 GP-J の加熱焼成後外観(砂添加なし)



図 3.2.2-12 GP-J の加熱焼成後外観(砂添加あり)

**3.2-19** - 122 - 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、試料中心までは割れていなかった。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 3.2.2-13 に示す。



図 3.2.2-13 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 %以上の水が放出され 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(X-Ray Diffraction : X線回折)分析に よる結晶構造分析を実施した。結果を図 3.2.2-14 に示す。



図 3.2.2-14 GP-J 試料の XRD 分析結果(砂添加なし、未照射)

図中で20 = 27 (deg) 付近にピークが見られるが、これはSiO<sub>2</sub>がGPの主成分であること

を示している[16][17]。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SiO<sub>2</sub>結晶構造[18]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。

- 3.2.2.7 沈降型重泥水の沈降速度試験【平成 30 年度 令和 2 年度】
- (1) 目的

HMW 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。
- (2) 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、破壊材を加えて5分間 撹拌した。撹拌後、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3.2.2-15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 3.2.2-15 沈降率測定概念図

(3) 試験結果及び考察【令和元年度】

時間依存による沈降率の変化を図 3.2.2-16 に、照射量依存による沈降率の変化を図 3.2.2-17 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。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 降時間の調整は困難と考えられる。一方、無機系添加剤は放射線照射の影響が確認されず、 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 3.2.2-16 時間依存による沈降率変化



図 3.2.2-17 照射量依存による沈降率の変化

- (4) 高温環境での沈降挙動【令和元年度】
  - 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またはホットプレート 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のち、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

② 試験結果及び考察

沈降高さ測定時のバライト粒子の沈降率を図 3.2.2-19 に示す。



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。

(5) y線照射下での沈降速度の温度依存性【令和2年度】

令和2年度では、室温40 ℃、60 ℃で照射試験(0.5 kGy/h)を実施した。結果を図3.2.2-20 に示すが、照射条件における、0時間及び24時間経過による沈降率は、温度条件毎に大きな変化は見られなかった。この結果から、高線量下かつ燃料デブリが発熱している場合であっても、超重泥水の沈降に大きな変化はないことが確認された。



図 3.2.2-20 照射時の沈降試験の結果

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。

3.2.2.8 被覆材特性評価のまとめ【平成 30 年度 - 令和 2 年度】

本研究では、GP と超重泥水を活用した燃料デブリ飛散防止対策の適用可能性について、上 記被覆材を適用した際に考えられる課題に対し、実験を通じて技術的成立性を評価した。

緩衝材の候補材料として検討した GP は、室温環境だけでなく高温・放射線環境下において も各種性能を発揮することが確認された。今後水素発生を低減するための GP への添加剤につ いてさらに検討する必要があるが、求められる状況に応じて GP に適切な添加剤を加えること で、さらに性能向上に寄与することが確認された。

本結果から、燃料デブリ表面に被覆した GP は水分を失うことで乾燥収縮・割れを生じて強 度と熱伝達性能が低下するが、添加剤を加えることで強度・放射線遮蔽性能を向上し、熱によ る影響を緩和できる可能性が示唆された。

また、無機系超重泥水は放射線環境下及び高温環境下においても、その性能を変えずに沈降 可能であることが分かった。

以上により、本工法において提案された被覆材について、金属粉末や砂などの添加剤を加えた GP は補強・遮蔽・保管の観点から、超重泥水は炉内環境における施工性の観点から適用可能であり、技術的に成立すると判断された。

**3.2-24** - 127 -

- 3.2.3 微粒子物性評価【平成 30 年度 令和 2 年度】
- 3.2.3.1 GP物性評価【平成 30 年度 令和 2 年度】

1F 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 GP 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、GP 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。

(1) 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(UO<sub>2</sub>)の密度 や融点との類似性から、二酸化ハフニウム(HfO<sub>2</sub>)と二酸化タングステン(WO<sub>2</sub>)を選択し、 連携先である原子力機構より提供を受けた。

表 3.2.3-1 に、本試験における模擬デブリ材料と UO<sub>2</sub>の密度と融点をまとめた。HfO<sub>2</sub>が UO<sub>2</sub>と近い融点を有しており、WO<sub>2</sub>が UO<sub>2</sub>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原子 力機構で検討が進められているメタカオリンベースの GP を被覆したものを切断試験に供 した。

| Material         | Density(g/cm <sup>3</sup> ) | Melting point( $^{\circ}\!$ |  |  |  |  |
|------------------|-----------------------------|---|--|--|--|--|
| U0 <sub>2</sub>  | 10. 97                      | 2, 865  |  |  |  |  |
| HfO <sub>2</sub> | 9.68                        | 2, 758  |  |  |  |  |
| WO <sub>2</sub>  | 10.8                        | 1,700   |  |  |  |  |

表 3.2.3-1 UO<sub>2</sub>、HfO<sub>2</sub>、WO<sub>2</sub>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、GP 試料は直径 20 mm、高さ 15 mmの円筒形であった。また、GP 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、GP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、HfO<sub>2</sub>、WO<sub>2</sub>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、TruDisk 6002、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。



図 3.2.3-1 切断試験用の試料の写真

レーザー切断における試料回収装置は、3種の区画(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。

回収した粒子の評価には複数の手法を用いた。先ず、すべての試料の切断微粒子の形状 と組成を SEM(株式会社日立ハイテクノロジーズ、S-3400N)とエネルギー分散型蛍光 X 線 分光装置(EDX、QUANTAX、XF1ash® Detector 5010、BRUKER)を使用して観察した。

(2) レーザー切断による微粒子発生

上述のように、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。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、GP 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。

a. GP 被覆を施した HfO<sub>2</sub> 模擬デブリ、HfO<sub>2</sub>-G

図 3.2.3-2 に、GP 被覆を施した HfO<sub>2</sub> 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 3.2.3-3 に、HfO2-G 試料の EDX マッピングの結果の例を示す。



図 3.2.3-2 GP 被覆を施した HfO2 模擬デブリの微粒子 SEM 像(HfO2-G)



図 3.2.3-3 GP 被覆を施した HfO<sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 EDX マッピング (HfO<sub>2</sub>-G)

図 3.2.3-2の SEM 像による粒子のサイズ、形状、及び、図 3.2.3-3の EDX マッピングより、GP 被覆を施した HfO<sub>2</sub> 模擬デブリ試料(HfO<sub>2</sub>-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、GP   | Si, Al, Na     | 0.1~10 µm                |
| 2        | 大きい GP 片 | Si, Al, Na     | $10{\sim}100~\mu{\rm m}$ |
| 3        | 球状       | Hf, Si, Al, Na | $1{\sim}100~\mu{\rm m}$  |
| 4        | 微細な粒子    | Hf, Si, Al, Na | <0.1 µm                  |

表 3.2.3-2 HfO2-G 試料のレーザー切断によって生成した微粒子

b. GP 被覆を施した WO<sub>2</sub> 模擬デブリ WO<sub>2</sub>-G

図 3.2.3-4 に、GP 被覆を施した  $WO_2$  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 3.2.3-5、図 3.2.3-6 に、WO2-G 試料の EDX マッピングの結果の例を示す。



図 3.2.3-4 GP 被覆を施した WO<sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 SEM 像 (WO<sub>2</sub>-G)



図 3.2.3-5 GP 被覆を施した WO<sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 EDX マッピング(WO<sub>2</sub>-G)-1



図 3.2.3-6 GP 被覆を施した WO<sub>2</sub> 模擬デブリの微粒子 EDX マッピング(WO<sub>2</sub>-G)-2

**3.2-28** - 131 - 図 3.2.3-4 の SEM 像による粒子のサイズ、形状、及び、図 3.2.3-5、図 3.2.3-6 の EDX マッピングより、GP 被覆を施した HfO<sub>2</sub>模擬デブリ試料(WO<sub>2</sub>-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、GP | Si、Al、Na      | 0.1~10 µm                |
| 2        | GP 片   | Si, Al, Na    | $10{\sim}100~\mu{\rm m}$ |
| 3        | 球状     | W、Si、Al、Na    | $1\sim\!100~\mu\text{m}$ |
| 4        | 不定形    | W, Si, Al, Na | $1\sim\!100~\mu{\rm m}$  |
| 5        | 微細粒子   | W, Si, Al, Na | <0.1 µm                  |

表 3.2.3-3 WO<sub>2</sub>-G 試料のレーザー切断によって生成した微粒子

表より、GP 被覆を施した模擬デブリ試料(Hf02-G、W02-G)のレーザー切断で発生する粒子の大部分は粒径10 µm 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 GP 片、不定形の粒子や、0.1 µm 以下とさらに小さな粒子も存在していた。0.1 µm 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[19][20]、水中で重力による影響を受けず長期間分散して存在する可能性があり、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、GP 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 GP 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。

(3) まとめ

模擬デブリペレット、及び、GP 被覆を施した模擬デブリ(HfO<sub>2</sub>、WO<sub>2</sub>)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、GP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。GP 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。

3.2.3.2 GP 浸出試験【令和 2 年度】

燃料デブリ安定化の被覆材として GP を使用した場合、冷却水との接触によって、GP の変 質が想定される。そこで、本実施項目では、3.2.1 被覆材の作製と同様の水酸化ナトリウムを 活性化剤として用いたメタカオリンベースの GP (以下、「Na-MKGP」と略記。)の浸出試験を行 い、その安定性を評価した。 (1) 実験方法

円柱状の Na-MKGP 供試体をメノウ乳鉢で粉砕後、1 µm 以下に篩い分けしたものを浸出試 験に供した。また、一部の Na-MKGP 粉末試料をイオン交換水にて洗浄し、溶脱可能なアル カリ成分の除去が浸出特性に与える影響を評価した。洗浄は、遠心分離法にて行い、Na-MKGP 粉末5 gを400 mL のイオン交換水に分散、振動させたのち、遠心分離(10000 rpm、久保 田商事株式会社、Model 700) にて固相を回収した。この操作を3回繰り返すことで洗浄を 実施した。

浸出試験は、Na-MKGP 粉末、洗浄済み NaMKGP 粉末を用いて、Na-MKGP 粉末に対しては、 イオン交換水、及び、人工海水(海産微細藻類用ダイゴ人工海水 SP)を用いて、洗浄済み NaMKGP 粉末に対しては、イオン交換水を用いて行った。以下、これらの異なる浸出試験を DWS、SWS、WSS と称する。5 gの GP 試料を 400 mL の液相に添加し、恒温振とう機(タイ テック株式会社、BR-11FP)を用いて、25 ℃で6ヶ月間振とうさせた、その間、定期的に、 計 20 回、液相の pH を測定するともに、上澄みを回収し、Na、A1、Si 濃度を決定した。ま た、期間中、3 回(28、85、180 日)、固相の一部を回収し、乾燥後、X 線蛍光(XRF)分析 による元素組成の評価、XRD による結晶相の評価、赤外吸収分光(FTIR)測定、及び、ラマ ン分光測定による、GP 骨格構造の評価を行った。

浸出液相の pH 測定には、pH 複合電極(サーモフィッシャーサイエンティフィック株式 会社、Orion ROSS 複合電極)を、液相の元素濃度測定にはアジレント・テクノロジー株式 会社、720 ICP-OES を用いた。また、固相の XRF 分析には、株式会社島津製作所、XRF-1800 を用い、0 から 145°を 4°/分のスキャン速度で測定を行った。また、XRD 分析には、株式会 社リガク、SmartLab を用い、ステップサイズ 0.01°、スキャン速度 5°/分で、2 $\theta$  = 5°~65° の範囲で回折プロファイルを得た。そして、FTIR 分析は、日本分光株式会社、FTIR-6600 を 用いて、KBr 錠剤法にて行った。また、ラマン分光測定は、株式会社ラムダビジョン、 MicroRAM-532A を用い、20 倍の対物レンズ、励起光 532 nm で、300 から 1200 cm<sup>-1</sup>の範囲 で測定を行った。

- (2) 結果と考察
  - a. Na-MKGP の元素組成変化

表 3.2.3-4 に、XRF 測定より得られた浸漬試験中の Na-MKGP 固相の元素組成の変化 を示す。浸漬前の Na-MKGP は重量 Si/Al 比が 2.16 で、これは、元素比 2.30 に対応し、 構造式として、Na<sub>1.32</sub>AlSi<sub>2.3</sub>0<sub>8.94</sub> であることが分かる。洗浄によって、この構造式は Na<sub>1.02</sub>AlSi<sub>2.3</sub>0<sub>8.79</sub> に変わっている。GP の理論的な構造式は NaAlSi<sub>2</sub>0<sub>6</sub> であることを考え ると、本試験で使用した洗浄前の Na-MKGP は、Al に対して、Na、Si、0 が過剰である と言える。これは、作製直後の Na-MKGP が未反応のアルカリ成分 (NaOH) を含んでい ること、及び、後述するように、XRD から不純物としてメタカオリンに由来する石英を 含んでいることから説明できる。また、一部、大気中の水分の吸収による水和も酸素 の元素比の増加に繋がっていると考えられる。特に、未反応のアルカリ成分の存在は、 洗浄済み Na-MKGP において、Na 量が有意に減少していることからも見て取れる。また、 Na-MKGP には、出発物質であるメタカオリンに由来する微量の K、Ca、Mg が含まれてい る。

3 つの浸出試験系の内、イオン交換水を用いた DWS、WSS では、浸漬時間によらず、 Na-MKGP の骨格構造に関わる Si/Al 比が出発物質の値より若干小さくなった。これは、 後述する通り、Si の選択的な溶脱によるものと考えられる。しかし、その程度は小さ く、180 日間の浸漬で、GP の骨格組成は大きくは変化していないものと言える。一方、 海水に浸漬させ SWS では、Si/A1 比に変化は見られず、こちらも骨格組成が変化して ないことが分かる。固相中の Na については、DWS では、大きくは変化していないもの の、WSS では、若干の減少傾向が見て取れる。

一方、SWS では、固相中の Na 量の時間変化はないものの、その値は元々の Na-MKGP よりも小さく、同時に、K、Ca、Mg の含有量が増えている。これは、人工海水中のこれ らの陽イオンが Na と交換され、GP 内部に取り込まれたことを示唆する。

|                |      | X 0. 2. 0 | I KR |       |      |      |       |       |  |
|----------------|------|-----------|------|-------|------|------|-------|-------|--|
|                |      | 元素重量%     |      |       |      |      |       |       |  |
|                | 0    | Si        | A1   | Si/Al | Na   | К    | Ca    | Mg    |  |
| Org. Na-MKGP   | 51.5 | 23.3      | 10.8 | 2.16  | 10.9 | 0.41 | 0.052 | 0.051 |  |
| Washed Na-MKGP | 52.5 | 24.1      | 11.2 | 2.15  | 8.8  | 0.42 | 0.053 | 0.054 |  |
|                |      |           |      |       |      |      |       |       |  |
| DWS1           | 52.2 | 24.2      | 11.3 | 2.14  | 9.19 | 0.43 | 0.051 | 0.057 |  |
| DWS2           | 52.3 | 23.9      | 11.2 | 2.13  | 9.08 | 0.43 | 0.051 | 0.053 |  |
| DWS3           | 52.7 | 24.1      | 11.4 | 2.11  | 9.14 | 0.43 | 0.052 | 0.059 |  |
|                |      |           |      |       |      |      |       |       |  |
| WSS1           | 52.3 | 24.2      | 11.3 | 2.14  | 8.74 | 0.43 | 0.052 | 0.054 |  |
| WSS2           | 52.8 | 23.4      | 11   | 2.13  | 8.60 | 0.41 | 0.053 | 0.050 |  |
| WSS3           | 52.2 | 24        | 11.2 | 2.14  | 8.61 | 0.44 | 0.050 | 0.048 |  |
|                |      |           |      |       |      |      |       |       |  |
| SWS1           | 51.9 | 23.4      | 10.8 | 2.17  | 5.66 | 1.3  | 1.51  | 1.59  |  |
| SWS2           | 51.6 | 23.5      | 10.9 | 2.16  | 5.66 | 1.31 | 1.50  | 1.59  |  |
| SWS3           | 51.5 | 22.7      | 10.6 | 2.14  | 5.86 | 1.38 | 1.72  | 1.42  |  |

表 3.2.3-4 浸漬試料の元素組成

b. Na-MKGP の結晶相の変化

図 3.2.3-7 に、浸漬試験固相の XRD プロファイルを示す。Na-MKGP は非晶質な材料 であるが、出発物質に由来する石英やモンモリロナイトといった結晶相を含んでいる。 浸出試験から得られた固相の XRD プロファイルは、一部、石英に由来するピークの減 少やモンモリナイトに由来するピークの増加が見られるものの、全体としては、時間 の経過とともにあまり変化せず、非晶質構造が保持されていることが分かった。なお、 SWS の最初の固相 (SWS1) で、ハライト (NaCl)の回折ピークが確認されているが、こ れは、海水由来の NaCl が乾燥によって、析出したことによるものと考えられ、実際、 回収した固相の洗浄によって、以後の試料では、見られなくなっている。



図 3.2.3-7 浸出試験固相の XRD プロファイル (a) DWS、(b) WSS、(c) SWS

c. Na-MKGPの骨格構造の変化

上述したように Na-MKGP は非晶質な材料であり、その骨格構造の評価には、FTIR や ラマン分光測定のような試料中の局所構造を反映した分析手法が有効である。図 3.2.3-8、図 3.2.3-9 に、浸漬試験固相の FTIR スペクトルとラマンスペクトルを示す。

Na-MKGPの赤外吸収スペクトル (図 3.2.3-8) は大きく試料中の水分子や水酸基の OH 伸縮振動に由来する 3500 cm<sup>-1</sup>付近のピークと Si-O-Si (A1)の非対称伸縮振動に由来する 1000 cm<sup>-1</sup>付近のピークによって特徴付けられる。特に、後者は、異なる重合度にある SiO4 四面体の存在によって、複数のピークからなっており、構造変化によってその 割合が変化する。2 番目の固相試料を除く、すべての固相試料でこのピークの形状は元々の GP のものから変化しておらず、GP の骨格構造が 180 日間の浸出試験期間中保持されたことを見て取れる。一方、全ての浸出試験系の 2 番目の固相試料では、3500、及び、1000 cm<sup>-1</sup>付近のピーク強度が減少しており、また、その形状も変化している。これは、乾燥時状態の違いなど、固相回収後の状態の違いを反映しているものと考えられる。

Na-MKGP のラマンスペクトル (図 3.2.3-9) は、GP の骨格構造に由来する 4 つのピーク (383、452、501、621 cm<sup>-1</sup>) からなる。これらのピークの位置、強度は、浸出条件 の違い、あるいは、浸出時間によって、大きくは変化していない。したがって、FTIR 同様、ラマン散乱からも、浸出試験期間を通して、Na-MKGP の骨格構造が保持されたことが確認できた。



図 3.2.3-8 浸出試験固相の FTIR スペクトル (a) DWS、(b) WSS、(c) SWS



図 3.2.3-9 浸出試験固相のラマンスペクトル (a) DWS、(b) WSS、(c) SWS

**3.2-33** - 136 -

## d. 浸出試験液相の変化

浸漬期間中の液相の pH 変化を図 3.2.3-10 に、Na、A1、Si 濃度変化を図 3.2.3-11 に 示す。浸出試験開始直後の液相の pH は、DWS で 11.7、WSS で 10.9、SWS で 9.5 であっ た。DWS と比べた WSS の pH は Na-MKGP 粉末の洗浄の効果、SWS の pH は海水中の陽イオ ンによる pH の緩衝の効果であると考えられる。液相の pH は、すべての系で浸出試験 開始後数日から 1 ヶ月の間に急激に減少しており、その後はゆっくりと断続的に減少 し、180 日後、DWS では pH 11.3、WSS では、pH 9.8、SWS では pH 8.3 となった。期間 中の pH 変化は、特に、WSS、SWS で大きい。



図 3.2.3-10 浸出試験期間中の液相の pH 変化

液相の Na、A1、Si 濃度(図 3.2.3-11)は、pH 変化と同様、浸出開始後の速やかに 増加し、おおよそ1ヶ月後にプラトーに達している。特に、pH の違いを反映して、DWS でこれらの元素の溶脱量が顕著であり、次いで、WSS、SWS となっている。液相の Si/A1 濃度比を見ると、DWS では、10 程度であり、WSS では、4 程度であった。本試験で使用 した Na-MKGP の組成は、洗浄前のもので、Na<sub>1.32</sub>A1Si<sub>2.3</sub>0<sub>8.94</sub> であり、洗浄後の試料で Na<sub>1.02</sub>A1Si<sub>2.3</sub>0<sub>8.79</sub> であることから、液相の大きな Si/A1 比は、GP からの Si の選択的な 溶解、つまり、非調和溶解によると言える。特に、その程度は、液相 pH の高い、DWS で顕著であった。なお、XRF による固相バルク試料の元素組成は、出発物質から大きく は変化していないことから、このような Si の選択な溶解は GP 粒子表面に限定されて いるものと考えられる。



SWS に対しては、Na 濃度の測定は行っていない。

(3) まとめ

180日間の長期の浸出試験を行い、Na-MKGPの長期安定性を評価した。事前に洗浄した GP 試料を含む、3 つの浸出条件において、GP 固相の元素組成、骨格構造、結晶相には大きな 変化はなく、浸出試験期間中、GP が安定に存在していたことが分かる。一方、液相の分析 から、浸出直後、速やかに pH が減少し、おおよそ 30 日後に、定常に達することが分かっ た。液相の Na、A1、Si 濃度変化も、pH と同様に変化するが、特に、これらの元素の溶出量 は、pH の高い溶出条件において顕著であった。また、液相の Si/A1 比は、固相の比よりも 大きく、特に、その傾向は、pH の高い溶出条件において顕著であった。このことは、GP 表 面からの、Si の選択的な溶出を示唆する。なお、上述したように、GP 固相の元素組成は、 溶出試験期間を通して、あまり変化しないことから、このような Si の溶解は表面近傍に限 られているものと考えられた。
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-令和2年度】

3.2.4.1 粒子法による GP 流動モデルの構築【平成 30 年度 - 令和元年度】

燃料デブリ安定化被覆材の流動を模擬する数理モデルとしてビンガム流体のモデルを選 定し、文献[21][22][23]を基にして、降伏応力(約20 Pa)及び塑性粘度(約0.5 Pa・s) を決め、粒子法[25][26]を用いて、スランプ試験[24]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[25][26]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。具体的には、文献[24]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[23]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 [21][22][23]を参照して定めたモデルパラメータを用いることで、GP 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[24]に示すように、GP 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、GP 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 <sup>6</sup> Pa•s | 10 <sup>6</sup> Pa • s |
| 塑性粘度    | 0.5 Pa•s             | 0.5 Pa•s               |
| 重力      | 9.8 m/s <sup>2</sup> | 9.8 m/s <sup>2</sup>   |

表 3.2.4-1 スランプ試験を模擬した粒子法計算パラメータ



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 20 Pa)



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 100 Pa)

|       | 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 3.2.4-2 計算から得られたスランプ値

表 3.2.4-3 文献[24]におけるスランプ値(平均値)

| 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、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も計算を実施した。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。GP 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。

3.2.4.2 PCV内GP施工性評価【令和2年度】

令和元年度までの結果を考慮し、施工性の観点から更に以下を実施し、取りまとめを行った。

(1) PCV 体系を模擬した計算により被覆材の降伏応力と流動性の関係を確認

(2) 2 次元計算により流動停止時の被覆材の高さと降伏応力の関係を確認

また、燃料安定化被覆材の施工時流動性を模擬するモデルパラメータを用いて、実機 PCV 形状を用いた被覆材の流動を計算し、施工性評価のためのシミュレーションを行った。

具体的には、文献[20][21][22]を基にして決定したモデルパラメータを用いて、PCVの形 状を模擬した体系を用いて、放射性物質飛散防止被覆材(GP)の流動解析を行った。シミュ レーションのための計算手法として、自由表面の追跡及びビンガム流体のレオロジーを考 慮することが可能な粒子法[24][25]を採用し、表 3.2.4-4 に示すパラメータを用いて計算 を行った。PCVの形状データ(st1データ)を基にPCVの壁面を表す壁粒子を生成し、その 中に GPペーストを模擬した流体粒子を設置した図 3.2.4-4 を初期状態とし、重力により GPペーストが落下拡散する様子を計算した。計算の様子を図 3.2.4-5 に示す。ここで、カ ラーコンターは粘性を表し、赤色が固体のように固まった状態、青色が液体のように流れ ている状態である。PCV 中に設置した GPペーストが PCV 底部に広く拡散してから流動が停 止する様子が確認された。令和元年度に実施したスランプ試験を模擬した計算の空間スケー ルは大きいため、GPの自重に対して降伏応力(20 Pa)が相対的に小さくなり、薄く拡がっ てから流動が停止する挙動になったと考えられる。GPペーストを施工する際に平らに拡げ る観点では、薄く拡がってから流動停止することは好ましいが、流動性が大きいと PCV 底 部などに存在する貫通部から GPペーストが流出してしまうことが懸念される。



図 3.2.4-3 障害物がある場合の計算(降伏応力 20 Pa)

| 計算パラメータ | 値                      |
|---------|------------------------|
| 総粒子数    | 733329 個               |
| 被覆材粒子数  | 17500 個                |
| 粒子径     | 0.1 m                  |
| 影響半径    | 0.25 m                 |
| 時間刻み幅   | 0.001 sec              |
| 降伏応力    | 20 Pa                  |
| 固体時の粘度  | 10 <sup>6</sup> Pa • s |
| 塑性粘度    | 0.5 Pa•s               |
| 体積粘性率   | 10 <sup>6</sup> Pa • s |
| 体積弾性率   | 10 <sup>8</sup> Pa     |
| 密度      | $1000 \text{ kg/m}^3$  |
| 重力      | 9.8 m/s <sup>2</sup>   |

表 3.2.4-4 原子炉格納容器 (PCV) の形状を用いた計算(計算条件)



<u>Z方向から見た図</u>





X方向から見た図 Y方向から見た図

図 3.2.4-4 原子炉格納容器 (PCV) の形状を用いた計算(初期粒子配置)

## JAEA-Review 2022-010



図 3.2.4-5 原子炉格納容器 (PCV) の形状を用いた計算(計算結果)

**3.2-42** - 145 -

## JAEA-Review 2022-010

先ず、(1)については、図 3.2.4-6 に示すように PCV を模擬した体系のペデスタル中心部 に被覆材を設置し、表 3.2.4-5 の計算条件を用いて被覆材の降伏応力を 20 Pa、200 Pa、 2000 Pa、20000 Pa と変えて計算を行った。図 3.2.4-7 に計算結果を示す。ここで、カラー コンターは粘性を表し、赤色が固体のように固まった状態、青色が液体のように流れてい る状態である。降伏応力が 20 Pa の結果では、ペデスタル外側に広く被覆材が拡散するの に対して、降伏応力が 200 Pa の場合には、ペデスタル外側への広がりは限定的となった。 さらに、降伏応力を 2000 Pa とするとペデスタル外側への流出はほとんどなくなり、降伏 応力 20000 Pa の場合には、ペデスタル外側への流出はほとんどなくなり、降伏



図 3.2.4-6 ペデスタル内側に被覆材を設置した計算(計算体系)

| 計算パラメータ | 値                      |
|---------|------------------------|
| 総粒子数    | 747829 個               |
| 被覆材粒子数  | 32000 個                |
| 粒子径     | 0.1 m                  |
| 影響半径    | 0.25 m                 |
| 時間刻み幅   | 0.001 sec              |
| 降伏応力    | 20、200、2000、20000 Pa   |
| 固体時の粘度  | 10 <sup>6</sup> Pa • s |
| 塑性粘度    | 0.5 Pa•s               |
| 体積粘性率   | 10 <sup>6</sup> Pa • s |
| 体積弾性率   | 10 <sup>8</sup> Pa     |
| 密度      | $1000 \text{ kg/m}^3$  |
| 重力      | 9.8 m/s <sup>2</sup>   |

表 3.2.4-5 ペデスタル内側に被覆材を設置した計算(計算条件)

**3.2-43** - 146 -



(b)上から見た図 図 3.2.4-7 ペデスタル内側に被覆材を設置した計算(計算結果) 次に、(2)については、図 3.2.4-8に示す 2 次元体系で、薄く拡げた被覆材を垂直の板で 削りとった場合の被覆材の盛り上がりを計算した。表 3.2.4-6に計算条件を示す。20 秒間 床面を壁方向に移動させて被覆材を盛り上げたのちに、5 秒間の緩和計算を行い、最終状態 における被覆材の高さ及び幅を計算した。このような計算を行ったあとには、被覆材の量・ 密度・降伏応力に応じて被覆材を積み上げられる高さが現れると考えられる。PCV 底部など に存在する貫通部を閉塞し、被覆材及び汚染水の流出を抑える目的からは、被覆材を積み 上げられる高さが貫通部の大きさに対して十分に大きい必要があり、この高さを把握する ことは重要である。図 3.2.4-9 に降伏応力を 50~12800 Pa と変えた場合の結果を示す。盛 り上がり高さは降伏応力が大きいほど大きく、この結果では降伏応力の約 0.2 乗に比例し た(図 3.2.4-10)。また、空間スケールを 2 倍(粒子径 2 倍、床面速度 2 倍)にした場合と の比較を図 3.2.4-11 に示す。ここで、カラーコンターは応力テンソルの xy 成分である。 空間スケールを 2 倍(粒子径 2 倍、床面速度 2 倍)にし、降伏応力を 2 倍とした時 に、盛り上がり高さ及び応力がともに約 2 倍になり、対応関係が確認された。したがって、 2 次元体系における盛り上がり高さは、降伏応力の約 0.2 乗、空間スケールの約 0.8 乗に 比例すると考えられる。



$$0.1 \text{ m/s}$$
 (t=0~20 s),  $0.0 \text{ m/s}$  (t=20~25 s)

図 3.2.4-8 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算(計算体系)

| 計算パラメータ | 值                      |
|---------|------------------------|
| 総粒子数    | 31250 個                |
| 被覆材粒子数  | 10000 個                |
| 粒子径     | 0.002 m                |
| 影響半径    | 0.007 m                |
| 時間刻み幅   | 0.001 sec              |
| 降伏応力    | 50~12800 Pa            |
| 固体時の粘度  | 10 <sup>6</sup> Pa • s |
| 塑性粘度    | 0.5 Pa•s               |
| 体積粘性率   | 10 <sup>6</sup> Pa • s |
| 体積弾性率   | 10 <sup>9</sup> Pa     |
| 密度      | $2000 \text{ kg/m}^3$  |
| 重力      | 9.8 m/s <sup>2</sup>   |

表 3.2.4-6 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算(計算条件)

**3.2-45** - 148 -



図 3.2.4-9 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算(計算結果)





**3.2-46** - 149 -



図 3.2.4-11 降伏応力と盛り上がり高さの関係を調査する計算 (粒子径 2 倍、床面速度 2 倍にした場合との関係)

- 3.3 取りまとめ(課題抽出) 平成30年度から約3年にわたる研究により、下記に示す研究成果が得られた。
  - (1) 試験に必要な燃料デブリ模擬微粒子を作製した。
  - (2) 水スプレーシステムによる微粒子除去性能評価を実験及びシミュレーションにより評価した。その結果、水スプレーとともにミストを注入することや水スプレーを電荷することにより微粒子の除去が改善されることが分かった。また、実験をベースにしたシミュレーションにより、1F3号機の適切なスプレー位置について評価を行った。
  - (3) PCV 及び RPV 底部における異なる崩壊熱及び被覆材(GP) 有無の条件下における熱解析 を実施した。
  - (4) 安定化被覆材の基礎特性評価として、GP及び超重泥水を対象材料として選択した。GPに ついては、流動特性、強度特性、熱伝導率、水素発生特性等を評価するとともに、y線 照射試験を実施し、耐放射線性を評価した。また、超重泥水については温度による沈降 性についてy線照射を含み評価を行った。
  - (5) GP については更に、燃料デブリ模擬物質を被覆した状態でレーザーにより微粒子を作製 し、飛散する微粒子の基礎物性評価を行った。また、将来廃棄体となる GP について浸出 試験を実施した。
  - (6) GP について粒子法による流動シミュレーション手法を開発し、PCV 底部に流し込んだ場 合のシミュレーションを行った。

以上の研究成果により、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出すことにより飛散を抑制する方法を開発し、本手法が微粒子の気 中・液中挙動ならびに飛散防止対策に関して実機に適用可能である見通しを得た。

なお、本研究成果の実機への適用にあたっては、下記に示す課題を今後深掘りする必要が あると判断される。

- (1) エアロゾル飛散挙動については、1 µm以下の更に微小な超微粒子飛散挙動を把握することにより、より精度の高い評価を行う必要がある。
- (2) GP等被覆材については、大規模注入時における流動・固化挙動、再臨界防止のための臨 界防止材添加の影響、より安価な水素発生抑制材の開発、ならびにα線環境下における 材料評価を実施する必要がある。

3.4 研究推進【平成30年度-令和2年度】

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て議論を行うなど、随時関連者と研究内容について打ち合わせを行い、研究を効率的に推進した。

令和2年度はコロナ感染拡大による実験の制限等の影響を受け、令和3年8月末まで研究期間 を延長し、その間、個別打ち合わせの他、以下に示す研究関連会議を実施した。

- (1) プロジェクト全体会議:令和2年6月16日、8月18日、9月30日、11月2日、12月1日、令和3 年3月29日、6月1日、7月12日、8月19日
- (2) 原子力機構CLADS関連会議: 令和2年12月10日 PO会議、12月21日 CLADS燃料デブリ関係英 知事業情報交換会
- (3) 微粒子飛散防止研究に関する福島廃炉実施企業との会議:令和2年6月19日、8月4日、9月 15日、10月7日、11月25日、12月4日、令和3年2月10日、3月12日、6月4日、7月19日、8月 25日

【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ヵ年計画のすべての業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

4. 結言

1Fの廃炉完遂のためには、①放射性物質の流出を極力抑制し、周辺環境に影響を及ぼさない こと、ならびに、②被ばくを含めた作業員の安全を確保することが最重要の課題である。

現状の燃料デブリ取出し工法としては、補修困難な多数の貫通部があるため冠水工法は困難であり、水中と気中の組み合わせによる取出し工法が検討されている。

このため、燃料デブリ取出し時に発生する微粒子飛散挙動を評価するとともに、微粒子を極 力閉じ込める技術や工法の開発は急務であり、本研究ではこの目的を解決するための技術の開 発を目指した。

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い、また併せて冷却性能に ついても解析評価を行うことにより、1Fに実装可能なスプレーシステム手法の提案、ならびに、 燃料デブリ安定化に資する固化方法の技術的成立性を確認した。

研究成果として、検討された手法が微粒子の気中・液中挙動ならびに飛散防止対策に関して 実機に適用可能であるとの見通しを得ることができたことは意義が大きいと判断できる。

今後は、得られた研究成果を更に発展させて、1F 廃炉への実機適用に向けた更なる研究が望まれる。

参考文献

- [1] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構,東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電 所の廃炉のための技術戦略プラン 2019, 2019, 201p., https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisa kuteam/2019/09/4-6.pdf(参照日:2021年8月31日).
- [2] Lemaitre, P., Porcheron, E., Nuboer, A., and Grehan, G., Interferometric Laser Imaging Development for Droplets Sizing (ILIDS) in Hostile Environment, Proceedings of ICLASS-2006, Kyoto, Japan, 2006, 7p.
- [3] Raffel, M., Willert, C. E., Scarano, F., Kähler, C. J., Wereley, S. T., and Kompenhans, J., Particle Image Velocimetry - A Practical Guide, 3<sup>rd</sup> edition, Springer, 2018.
- [4] Mölter, L. and Keßler, P., Partikelgrößen-und Partikelanzahlbestimmung in Der Außenluft Mit Einem Neuen Optischen Aerosolspektrometer, Gefahrstoffe-Reinhaltung der Luft, vol. 64, no. 10, 2004, pp. 439-447 (in German).
- [5] Liang, H., Erkan, N., Solans, V., and Suzuki, S, Numerical Simulation and Validation of Aerosol Particle Removal by Water Spray Droplets with OpenFOAM during the Fukushima Daiichi Fuel Debris Retrieval, Frontiers in Energy Research, vol.8, Article 102, 2020, pp. 1-15.
- [6] K. Way and E. P. Wigner, The Rate of Decay of Fission Products, Physical Review, vol. 73, no. 11, 1948, pp. 1318-1330, DOI:https://doi.org/10.1103/PhysRev. 73. 1318.
- [7] W. E. Ranz and W. R. Marshall, Evaporation from Drops, Chemical Engineering Progress, vol. 48, no. 3, 1952, pp. 141-146.
- [8] Journeau, C. and Piluso, P., Core Concrete Interaction, Konings RJM(Ed.), Comprehensive Nuclear Materials, vol. 2, 2012, pp. 635-654.
- [9] Journeau, C. et al., The VULCANO VE-U7 Corium Spreading Benchmark, Progress Nuclear Energy, vol. 48, no. 3, 2006, pp. 215-234.
- [10] Yamashita, S., Uesawa, S. and Yoshida, H., Development of Numerical Simulation Method to Evaluate Heat Transfer Performance of Air Around Fuel Debris: Part 1 -Effect of the Debris Shape, Proceedings of 2017 25th International Conference on Nuclear Engineering, 2017, vol. 6: Thermal-Hydraulics: ICONE25-67516, V006T08A096, 8p., DOI:https://doi.org/10.1115/ICONE25-67516.
- [11] Technical Strategic Plan 2016 for Decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station of Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc., 2016, http://www.dd.ndf.go.jp/en/strategic-plan/book/20170322\_SP2016esum.pdf(参照日: 2021年8月31日).
- [12] Japan Meteorological Agency, Monthly Mean Daily Maximum Temperature(℃), https://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/monthly\_s3\_en.php?block\_no=47595& view=2 (参照日:2021年8月31日).
- [13] Xu, W., Chen, Q., and Nieuwstadt, F.T.M., A New Turbulence Model for Near-Wall Natural Convection, International Journal of Heat and Mass Transfer, vol. 41, no. 21, 1998, pp. 3161-3176.

- [14] Amec Foster 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材「SIAL」 のご提案, https://www.fujielectric.co.jp/products/nuclear/topics/2016/nuclear\_2016\_02.pdf (参照日:2021年8月31日).
- [15] 一般社団法人 NB 研究所, 西武建設株式会社, デブリ取出しにおける超重泥水の活用方法 -超重泥水を用いた止水・遮へい技術-, 第 53 回地盤工学研究発表会特別セッション, 2018.
- [16] National Institute of Standards and Technology, X-Ray Mass Attenuation Coefficients, https://www.nist.gov/pml/x-ray-mass-attenuation-coefficients (参照 日:2021年8月31日).
- [17] 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(参照日:2021年8月31日).
- [18] A. F. Wright and M. S. Lehmann, The Structure of Quartz at 25 and 590 °C Determined by Neutron Diffraction, Journal of Solid State Chemistry, vol. 36, no. 3, 1981, pp. 371-380.
- [19] Journeau, C., Roulet, D., Porcheron, E., Piluso, P., and Chagnot, C., Fukushima Daiichi Fuel Debris Simulant Materials for the Development of Cutting and Collection Technologies, Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 55, no. 9, 2018, pp. 985-995.
- [20] Porcheron, E., Peillon, S., Gelain, T., Chagnot, C., Journeau, C., Excoffier, E., and Roulet, D., Fukushima Dai-ichi Fuel Debris Retrieval: Analysis of Aerosol Emission and Dispersion during Simulants Laser Cutting, Proc. DEM 2018 Dismantling Challenges, 2018, pp. 22-24.
- [21] 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, vol. 17, no. 4, 2005, pp. 143-151.
- [22] Aurelie Favier, Julie Hot, Guillaume Habert, Nicholas Roussel, and Jean-Baptiste d'Espinose de Lacaillerie, Flow Properties of MK-based Geopolymer Pastes. A Comparative Study with Standard Portland Cement Pastes, Soft Matter, vol. 10, no. 8, 2014, pp. 1134-1141.
- [23] Kirk Vance, Akashi Dakhane, Gaurav Sant, and Narayanan Neithalath, Observations on the Rheological Response of Alkali Activated Fly Ash Suspensions: the Role of Activator Type and Concentration, Rheologica Acta, 2014, vol.53, pp. 843-855.
- [24] 酒井泰地, 鈴木俊一, 岡本孝司, 燃料デブリ取り出しに向けたジオポリマーの適用可能性 に関する研究, 保全学, vol. 17, no. 2, 2018, pp. 87-94.
- [25] 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 講演会論文集, A-3-2, 新潟, 2016.
- [26] 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 講演会論文集, A-08-2, 埼玉, 2017.

**5-2** - 155 - This is a blank page.