

ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修  
及び安定化に関する研究  
(委託研究)

—令和 4 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Study on Water Stopping, Repair and Stabilization of Lower PCV

by Geopolymer, etc.

(Contract Research)

-FY2022 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

November 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

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。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）  
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（<https://www.jaea.go.jp>）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 研究開発推進部 科学技術情報課  
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49  
E-mail: [ird-support@jaea.go.jp](mailto: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 (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).  
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 Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan  
E-mail: [ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究  
(委託研究)

—令和 4 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

(2024 年 3 月 25 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 4 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、令和 3 年度に採択された研究課題のうち、「ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究」の令和 4 年度分の研究成果について取りまとめたものである。

本研究では、PCV 底部の止水及び補修を目的として、改良したジオポリマーや超重泥水によりジェットデフレクター等を止水し、併せてドライウェル下部を補修する施工法を提案する。

また、堆積状況など未解明な状況にある現場施工の選択肢を増やすため、止水・補修材の対象部位周辺への局所的施工のみならず、ペDESTAL 外の広範囲にわたる施工についても検討し、最新の熱流動シミュレーション法により、工法実現性を評価する。

広範囲に施工する場合には、ペDESTAL 外に流出した燃料デブリや堆積物は止水・補修材で被覆されて廃棄体となる。このため、燃料デブリの成層化状態等性状を実験及び解析により把握した上で、廃棄体を安定化する方策を検討するとともに、核種浸出性を含めた廃棄体の長期寿命を評価する。

---

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

Study on Water Stopping, Repair and Stabilization of Lower PCV by Geopolymer, etc.  
(Contract Research)

— FY2022 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 25, 2024)

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 FY2022.

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 FY2021, this report summarizes the research results of the “Study on water stopping, repair and stabilization of lower PCV by geopolymer, etc ” conducted in FY2022.

The present study aims to propose a construction method to stop jet deflectors by improved geopolymer and ultra-heavy muddy water, and to repair the lower part of the dry well.

In addition, in order to increase the options for on-site construction in unknown situations such as deposition conditions, we will examine a wide range of construction outside the pedestal, and evaluate the feasibility of the construction method by the latest thermal flow simulation method.

When widely constructed, fuel debris and deposits discharged out of the pedestal are coated with water stop and repair materials and become waste materials. For this reason, after grasping the characteristics of fuel debris by experiments and analysis, measures to stabilize the waste materials will be examined, and the long life span of the radioactive waste including nuclide leachability will be evaluated.

Keywords: Geopolymer, PCV, Jet Deflector, Fuel Debris, Water Stop, Repair, Stabilization, Nuclear Waste

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
5. 令和 3 年度 採択課題 .....	10
6. 令和 4 年度 採択課題 .....	12
付録 成果報告書 .....	15

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project .....	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
5. Accepted Proposal in FY2021.....	10
6. Accepted Proposal in FY2022.....	12
Appendix Result Report .....	15

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。

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半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学



共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

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

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邊 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー 加速器研究機構

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

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水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 (~R2. 3. 31) 大曲 新矢 (R2. 4. 1~)	産業技術総合 研究所

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島2・3号機ペダスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立GE ニュークリ ア・エナジー
アパタイトセラミックスによるALPS沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1~)	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学 (~R3. 3. 31) 岡山大学 (R3. 4. 1~)

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

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

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とティアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (~R2. 3. 31) 竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1~)	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

#### 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の調査	楊 会龍 (～R4. 7. 31) 村上 健太 (R4. 8. 1～)	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 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中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー加速器研究機構
$\alpha$ / $\beta$ / $\gamma$ 線ラジオリシス影響下における格納容器系統内広域防食の実現：ナノバブルを用いた新規防食技術の開発	渡邊 豊	東北大学
$\beta$ 、 $\gamma$ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
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技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・航空技術研究所

5. 令和3年度 採択課題

令和3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3年3月16日～令和3年5月17日（課題解決型）  
                  令和3年4月13日～令和3年7月1日（国際協力型 日英共同研究）  
                  令和3年7月12日～令和3年8月18日（国際協力型 日露共同研究）

課題数：12 課題

課題解決型廃炉研究プログラム                   8 課題  
国際協力型廃炉研究プログラム               2 課題（日英）、2 課題（日露）

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・日露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）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和3年度 採択課題一覧

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
建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性評価法の開発研究	前田 匡樹	東北大学
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化	宇埜 正美	福井大学
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究	鈴木 俊一	東京大学
世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの性状把握分析手法の確立	坂本 哲夫	工学院大学
アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分析法の高度化	豊嶋 厚史	大阪大学



課題名	研究代表者	所属機関
連携計測による線源探査ロボットシステムの開発研究	人見 啓太郎	東北大学
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発	安原 亮	自然科学研究機構
福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価	中瀬 正彦	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
福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性エアロゾル制御及び除染に関する研究	Erkan Nejdet (~R4. 1. 31) 三輪 修一郎 (R4. 2. 1~)	東京大学
燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレータのナビゲーションおよび制御	浅間 一	東京大学

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
福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業大学
非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の高度化	小原 徹	東京工業大学

6. 令和4年度 採択課題

令和4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4年3月1日～令和4年5月6日（課題解決型）

令和4年4月7日～令和4年6月16日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：8 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）

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）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和4年度 採択課題一覧

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
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニタの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3次元線量拡散予測法の確立と $\gamma$ 線透過率差を利用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
$\alpha$ 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

## 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
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの開発	渡邊 実	岡山大学
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の探求	塚原 剛彦	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和4年度分の研究成果について取りまとめたものである。

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
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修 及び安定化に関する研究	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 4 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

ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び

安定化に関する研究

(契約番号 R04I028)

成果報告書

令和 5 年 3 月

国立大学法人東京大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・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「ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究」の令和 4 年度分の研究成果を取りまとめたものである。



目次

概略.....	viii
1. はじめに.....	1-1
2. 業務計画.....	2-1
2.1 全体計画.....	2-1
2.1.1 PCV 底部デブリ性状評価（東京大学）.....	2-1
2.1.2 PCV 底部最適止水・補修材評価（東京大学、再委託先：東京都市大学、アトックス、 連携先：JAEA）.....	2-1
2.1.3 PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション（再委託先：産総研）.....	2-2
2.1.4 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）.....	2-2
2.1.5 研究推進（東京大学）.....	2-2
2.2 実施体制.....	2-4
2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法.....	2-5
2.3.1 PCV 底部デブリ性状評価（東京大学）.....	2-5
2.3.2 PCV 底部最適止水・補修材評価（東京大学、再委託先：東京都市大学、アトックス、 連携先：JAEA）.....	2-5
2.3.3 PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション（再委託先：産総研）.....	2-5
2.3.4 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）.....	2-5
2.3.5 研究推進（東京大学）.....	2-6
3. 実施内容及び成果.....	3-1
3.1 PCV 底部デブリ性状評価（東京大学）【令和3年度～令和4年度】.....	3-1
3.2 PCV 底部最適止水・補修材評価.....	3-25
3.2.1 止水・補修試験及び評価（東京大学）【令和3年度～令和4年度】.....	3-25
3.2.2 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学） 【令和3年度～令和4年度】.....	3-47
3.2.3 照射試験（再委託先：アトックス）【令和3年度～令和4年度】.....	3-53
3.2.4 ジオポリマーの最適化（連携先：JAEA）【令和3年度～令和4年度】.....	3-59
3.3 PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション（産総研） 【令和3年度～令和4年度】.....	3-74
3.4 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）【令和3年度～令和4年度】.....	3-81
3.5 研究推進.....	3-88
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

上席研究員

鈴木 俊一

教授

斉藤 拓巳

特任准教授

Marco Pellegrini

助教

戸田 賀奈子

再委託先

学校法人五島育英会東京都市大学

教授

佐藤 勇

再委託先

国立研究開発法人産業技術総合研究所

主任研究員

近藤 雅裕

再委託先

株式会社アトックス

主事

中塩 信行

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

山岸 功

Cantarel Vincent

表一覧

表 2-1	全体スケジュール	...	2-3
表 3.1.1-1	VULCANO VE-U9 実験解析の計算条件	...	3-4
表 3.1.2-1	解析条件	...	3-12
表 3.1.3-1	k-eff の計算結果	...	3-19
表 3.1.3-2	保守的デブリ分布条件探索の解析条件	...	3-20
表 3.1.3-3	保守的分布条件でのジオポリマー注入解析条件	...	3-20
表 3.2.1-1	テーブルフロー試験条件	...	3-26
表 3.2.1-2	閉塞試験条件	...	3-28
表 3.2.1-3	閉塞試験結果	...	3-28
表 3.2.1-4	止水試験実施条件	...	3-30
表 3.2.1-5	引張試験体作製条件	...	3-36
表 3.2.1-6	引張試験結果	...	3-38
表 3.2.1-7	超重泥水の配合組成	...	3-42
表 3.2.1-8	炭化タングステンの材料仕様	...	3-42
表 3.2.1-9	NB クレイを変えた超重泥水の配合組成	...	3-43
表 3.2.1-10	炭化タングステン混合率	...	3-44
表 3.2.1-11	流体温度・比重・フロー値	...	3-44
表 3.2.1-12	B 型粘度計による測定結果	...	3-44
表 3.2.1-13	遊離水の体積割合	...	3-45
表 3.2.1-14	試料高さ毎の含水率（重量基準）	...	3-45
表 3.2.1-15	試料高さ毎のタングステン含有率	...	3-45
表 3.2.1-16	超重泥水の引張試験結果	...	3-46
表 3.2.2-1	照射試験用ジオポリマーに添加した模擬白金族合金の組成	...	3-49
表 3.2.3-1	恒温照射試験を実施した試料条件（照射時期：令和 4 年 11 月）	...	3-54
表 3.2.3-2	室温照射試験を実施した試料条件（照射時期：令和 4 年 11 月）	...	3-55
表 3.2.3-3	照射試験の実施時期とターム毎の照射時間	...	3-56
表 3.2.4-1	水中注入の試験条件	...	3-71
表 3.3-1	高粘性ダム崩壊計算における計算条件	...	3-75
表 3.3-2	積み上がりシミュレーションの計算条件	...	3-76
表 3.3-3	スランプ試験シミュレーションの計算条件	...	3-78
表 3.3-4	閉塞シミュレーションの計算条件	...	3-79

図一覧

図 2. 2-1	体制図	...	2-4
図 3. 1. 1-1	No-slip/Slip boundary model の定義	...	3-2
図 3. 1. 1-2	計算体系 (a) 実験体系外観、(b) 計算体系外観、(c) 計算体系詳細	...	3-3
図 3. 1. 1-3	No-slip boundary model を適用したセラミックス床面上での拡散挙動 (鳥瞰図) (a) 実験、(b) 固相率、(c) 粘性分布	...	3-5
図 3. 1. 1-4	Non-slip boundary model を適用したセラミックス床面上での拡散挙動 (side view) (a) 速度分布、(b) 固相率、(c) 粘性分布	...	3-6
図 3. 1. 1-5	実験と計算結果の比較 (a) 拡散先端部位置における流速変化に関する比較、(b) 拡散長さに関する比較	...	3-6
図 3. 1. 1-6	セラミックス床面条件での自由表面形状推移	...	3-7
図 3. 1. 1-7	Slip boundary model を適用したコンクリート床面上での拡散挙動 (鳥瞰図) (a) 実験、(b) Slip boundary 1 での固相率、(c) Slip boundary 2 での固相率	...	3-8
図 3. 1. 1-8	Slip boundary model を適用したコンクリート床面上での拡散挙動 (side view) (a) Slip boundary 1 の速度分布、(b) Slip boundary 2 の速度分布	...	3-9
図 3. 1. 1-9	コンクリート床面上での (a) コリウム先端位置の流速分布に関する実験と計算の比較及び (b) 拡散長さに関する実験と計算の比較	...	3-9
図 3. 1. 1-10	コンクリート床面条件での自由表面形状推移 (a) 実験、(b) Slip boundary 1 を適用した条件での結果、(c) Slip boundary 2 を適用した条件での結果	...	3-10
図 3. 1. 2-1	解析体系 (a) 側面図、(b) 側面から見た断面図、(c) 上面図、(d) 上面から見た断面図	...	3-12
図 3. 1. 2-2	異なる初期粘性係数を有する溶融コリウムの異なる強制対流蒸気熱伝達率、沸騰熱伝達率下での拡散挙動及び温度分布 (鳥瞰図)	...	3-14
図 3. 1. 2-3	異なる初期粘性係数を有する溶融コリウムの異なる強制対流蒸気熱伝達率、沸騰熱伝達率下での拡散挙動及び温度分布 (下方向：床面方向)	...	3-15
図 3. 1. 2-4	異なる初期粘性係数を有する溶融コリウムの異なる強制対流蒸気熱伝達率、沸騰熱伝達率下での拡散挙動及び温度分布 (断面図)	...	3-16
図 3. 1. 2-5	3D 復元処理をした 3 号機 PCV 底部の堆積物高さ分布	...	3-17
図 3. 1. 2-6	OECD/NEA BSAF project で実施された 3 号機 PCV 上の燃料デブリ組成推定結果	...	3-18
図 3. 1. 3-1	燃料デブリをジオポリマーで被覆した場合のペDESTAL 3D 形状	...	3-19
図 3. 1. 3-2	保守的デブリ分布条件解析体系の例 (粒子状ウラン均一分布)	...	3-21
図 3. 1. 3-3	保守的デブリ分布条件探索結果 (固体 UO <sub>2</sub> )	...	3-22
図 3. 1. 3-4	保守的デブリ分布条件探索結果 (水-ウラン均質混合)	...	3-22

図 3.1.3-5	保守的デブリ分布条件探索結果（粒子状ウラン均一分布）	...	3-23
図 3.1.3-6	保守的デブリ分布条件へのジオポリマー適用時の解析結果	...	3-24
図 3.2.1-1	フロー試験結果と厚みの関係	...	3-27
図 3.2.1-2	養生 9 時間後のフロー試験の様子	...	3-27
図 3.2.1-3	閉塞試験体系	...	3-28
図 3.2.1-4	開口部閉塞の様子（左から試験 1、2、3）	...	3-29
図 3.2.1-5	止水試験模式図	...	3-30
図 3.2.1-6	止水試験用水槽と開口部の様子	...	3-30
図 3.2.1-7	開口部縮小施工の様子（左：試験 1、右：試験 2）	...	3-31
図 3.2.1-8	ジオポリマーの温度変化（試験 1）	...	3-32
図 3.2.1-9	ジオポリマーの温度変化（試験 2）	...	3-32
図 3.2.1-10	フロー試験結果（試験 1）（試験 2）	...	3-32
図 3.2.1-11	ドラム缶ヒーター	...	3-33
図 3.2.1-12	止水試験終了後の水槽の状態（左：試験 1、右：試験 2）	...	3-33
図 3.2.1-13	ジオポリマー固化体切断面（令和 3 年度分）	...	3-34
図 3.2.1-14	引張試験体作製フロー	...	3-34
図 3.2.1-15	使用型枠概略図	...	3-35
図 3.2.1-16	気中養生で作製された試験体の引張強度	...	3-39
図 3.2.1-17	水中養生で作製された試験体の引張強度	...	3-39
図 3.2.1-18	高温水（80 °C）中養生で作製された試験体の引張強度	...	3-40
図 3.2.1-19	80 °C 環境にて $\gamma$ 線照射実施後の試験体（気中養生分）	...	3-40
図 3.2.1-20	80 °C 環境にて $\gamma$ 線照射実施後の試験体（水中養生分）	...	3-41
図 3.2.1-21	超重泥水の外観	...	3-42
図 3.2.1-22	炭化タングステンの外観	...	3-42
図 3.2.1-23	沈降型重泥水の乾燥供試体外観	...	3-43
図 3.2.1-24	測定の様況	...	3-44
図 3.2.1-25	粘度測定の様況	...	3-45
図 3.2.2-1	粉碎した模擬白金族合金の SEM 像	...	3-49
図 3.2.2-2	粉碎した模擬白金族合金の EDS による元素マッピング	...	3-49
図 3.2.2-3	模擬白金族合金粉末に対する EXAFS 構造関数	...	3-50
図 3.2.2-4	パラジウム添加ジオポリマーに対する XRD 分析	...	3-50
図 3.2.2-5	パラジウム添加ジオポリマーに対する SEM-EDS 分析	...	3-50
図 3.2.2-6	パラジウム添加ジオポリマー断面の SEM 画像モザイク図	...	3-51
図 3.2.2-7	模擬白金族合金を添加したジオポリマーの G 値	...	3-51
図 3.2.2-8	模擬白金族合金の格子定数のモリブデン濃度依存性	...	3-52
図 3.2.2-9	水素吸蔵評価装置	...	3-52
図 3.2.2-10	模擬白金族合金元素のエリಂಗムダイアグラム	...	3-52
図 3.2.3-1	照射試験状況（令和 3 年度）	...	3-53
図 3.2.3-2	照射試験状況（令和 4 年度）	...	3-57
図 3.2.3-3	恒温照射試験状況（恒温条件）	...	3-57
図 3.2.3-4	恒温照射試験状況（室温条件）	...	3-58
図 3.2.3-5	室温照射試験状況（引張強度評価）	...	3-58
図 3.2.3-6	室温照射試験状況（水素ガス発生量評価）	...	3-58

図 3.2.4-1	ジオポリマー配合比と粘度の関係	...	3-59
図 3.2.4-2	水中注入試験の進行イメージ	...	3-60
図 3.2.4-3	試験装置の構成図	...	3-61
図 3.2.4-4	混合槽とチューブを接続するためのユニオン	...	3-61
図 3.2.4-5	小規模予備試験の準備写真	...	3-62
図 3.2.4-6	室温小規模試験後 7 日間養生したジオポリマーペーストの写真	...	3-63
図 3.2.4-7	室温小規模試験後 7 日間養生したジオポリマーモルタルの写真	...	3-64
図 3.2.4-8	80 °C 小規模試験のジオポリマーモルタル注入時及び 7 日間養生後試料の写真	...	3-64
図 3.2.4-9	水ガラスのロット、水分量がジオポリマーペーストの粘度に与える影響	...	3-65
図 3.2.4-10	試料 G-RT を調製するための容器の初期状態を示す写真	...	3-67
図 3.2.4-11	試料 G-RT の養生 7 日後及び表面洗浄後の写真	...	3-68
図 3.2.4-12	試料 G-HT の養生 7 日後及び表面洗浄後の写真	...	3-68
図 3.2.4-13	試料 G-RT 及び G-HT 切断面の写真	...	3-69
図 3.2.4-14	試料 G-RT と G-HT 表面の軟質層、メタカオリン製品のラマンスペクトル	...	3-70
図 3.2.4-15	軟質層等の X 線回折図	...	3-70
図 3.2.4-16	試料 G-HT 軟質層の SEM 画像（結晶状の部分）	...	3-71
図 3.3-1	高粘性ダム崩壊計算	...	3-74
図 3.3-2	計算時間の比較（高粘性ダム崩壊計算）	...	3-75
図 3.3-3	積み上がりシミュレーションの計算体系	...	3-77
図 3.3-4	積み上がりシミュレーションの計算結果（1 秒後の速度分布）	...	3-77
図 3.3-5	スランプ試験シミュレーションの計算体系	...	3-78
図 3.3-6	ジオポリマーの様相模擬のための降伏応力及び塑性粘度	...	3-78
図 3.3-7	閉塞性能シミュレーションの計算体系	...	3-79
図 3.3-8	閉塞性能シミュレーションの計算結果（20 秒後の速度分布、降伏応力 5 Pa の場合）	...	3-80
図 3.3-9	閉塞性能シミュレーションの計算結果（20 秒後の速度分布、降伏応力 30 Pa の場合）	...	3-80
図 3.4-1	PFA 製のチューブ内でのジオポリマー試験体の養生の様子	...	3-82
図 3.4-2	NaMKGP からの Cs <sup>+</sup> の浸出挙動（pH、Cs <sup>+</sup> 浸出量の CLF）	...	3-83
図 3.4-3	NaMKGP からの Sr <sup>2+</sup> の浸出挙動（pH、Sr <sup>2+</sup> 浸出量の CLF）	...	3-83
図 3.4-4	NaMKGP からの I <sup>-</sup> の浸出挙動（pH、I <sup>-</sup> 浸出量の CLF）	...	3-84
図 3.4-5	洗浄済みジオポリマーへの I <sup>-</sup> の吸着割合の pH、イオン強度（I. S.）依存性	...	3-85
図 3.4-6	拡散試験における高濃度側、低濃度側タンクの pH 変化	...	3-86
図 3.4-7	拡散試験における高濃度側、低濃度側タンクの I <sup>-</sup> 濃度変化	...	3-87
図 3.4-8	D <sub>2</sub> O 拡散試験における低濃度側タンクの D <sub>2</sub> O 濃度変化	...	3-87

略語一覧

JAEA	: Japan Atomic Energy Agency	(国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	(廃炉環境国際共同研究センター)
東京電力 HD	: 東京電力ホールディングス株式会社	
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	
OECD	: Organization for Economic Co-operation and Development	(経済協力開発機構)
NEA	: Nuclear Energy Agency	(原子力機関)
MPH	: Moving Particle Hydrodynamics	(粒子法)
LES	: Large Eddy Simulation	(ラージエディシミュレーション)
RPV	: Reactor Pressure Vessel	(原子炉圧力容器)
PCV	: Primary Containment Vessel	(原子炉格納容器)
BSAF	: Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station	(福島第一原子力発電所事故のベンチマーク研究)
IAE	: Institute of Applied Energy	(エネルギー総合研究所)
IRSN	: Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire	(放射線防護・原子力安全研究所)
DEM	: Discrete Element Method	(個別要素法) または (離散要素法)
CAD	: Computer Aided Design	(コンピューター支援設計)

## 概略

燃料デブリ取り出しを行うためには、原子炉格納容器（Primary Containment Vessel：以下、「PCV」という。）水位制御のためドライウエル下部の止水や補修を行う必要がある。そこで本業務では、改良したジオポリマー等によりジェットデフレクター等を止水し、併せてドライウエル下部を補修する施工法を実験及びシミュレーションにより評価する。また、ジオポリマーにより被覆される燃料デブリ性状を把握した上で、廃棄体としての長期寿命を評価することにより、施工から廃棄物管理までを考慮した PCV 下部の止水及び補修工法を確立することを目的としている。

以下に、3 ヶ年計画の 2 年目である令和 4 年度の業務実績を述べる。

### (1) PCV 底部デブリ性状評価（国立大学法人東京大学（以下、「東京大学」という。））

燃料デブリを模擬した酸化物や金属溶融物の溶融物落下試験並びに粒子法によるシミュレーションを継続実施するとともに、溶融金属の水表面への落下実験やコンクリートに落下した場合の燃料デブリ拡散・ガス発生モデルについて数値計算を継続した。

また、止水材で被覆した場合における臨界評価を継続した。

### (2) PCV 底部最適止水・補修材評価

#### ① 止水・補修試験及び評価（東京大学）

止水・補修材として臨界防止材や水素発生抑制材を添加し、組成を改善したジオポリマーを作製して、流動試験や強度試験等を実施した。また超重泥水について添加材の効果を確認した。貫通部についてはジオポリマーを使用した止水試験を継続した。

#### ② 水素発生対策添加材評価

（再委託先：学校法人五島育英会東京都市大学（以下、「東京都市大学」という。））

令和3年度に作製したバルク状試料を微粒子状に加工し、形状における実機との模擬性向上を図った。また、バルク状の試料と同様の冶金学的観察を行い、総合的な模擬性を評価した。さらに、当該微粒子試料を充填材へ添加し、照射試験等を行い、水素再結合性能等を評価した。さらなる性能向上のための酸化加熱処理装置を構築した。

#### ③ 照射試験（再委託先：株式会社アトックス（以下、「アトックス」という。））

令和3年度に構成した試験体系で恒温に保持した改良ジオポリマー及び超重泥水についてγ線照射試験を実施した。

#### ④ ジオポリマーの最適化（連携先：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

（以下、「JAEA」という。））

流動と凝固をある程度制御可能なジオポリマーについて、マイクロラマン分光分析等による適用性確認を行い、水中注入試験を実施して間隙への充填と硬化の状態を確認した。得られた結果から、止水用ジオポリマーの配合比を最適化し、注入プロセスを検討した。

### (3) PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション（再委託先：国立研究開発法人産業技術総合研究所（以下、「産総研」という。））

閉じ込め材料（ジオポリマーなど）の特性を用いた粒子法シミュレーションの妥当性を確認した。特に、閉塞性能及びスケール効果についての計算手法の妥当性確認を行った。東京大学で実施するジオポリマーを用いた開口部閉塞試験を模擬してシミュレーションを行い、閉塞性能に関する模擬性を確認した。また、施工するジオポリマーの量及び開口部の大きさを変えた試験とも比較することで、空間スケールが大きくなった場合の適用性を確認した。



(4) 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）

模擬核種を添加した種類の異なるジオポリマーを用いて、降水系地下水及び海水系地下水を対象に、長期の浸出試験を継続した。また、バッチ法による異なるpH、イオン強度条件での模擬核種の収着試験を継続した。さらに、ディスク状に整形したジオポリマー試料を用いて、模擬核種の拡散試験（through-diffusion、あるいは、in-diffusion）を開始し、予察的に実効拡散係数を取得した。

令和3年度までの成果報告書

ジオポリマー等によるPCV下部の止水・補修及び安定化に関する研究(委託研究)；令和3年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

JAEA-Review 2022-062 <https://doi.org/10.11484/jaea-review-2022-062>

## 1. はじめに

PCV 底部では、サブプレッションチェンバーやサンドクッションドレンラインからの漏洩があり、また原子炉圧力容器（Reactor Pressure Vessel：以下、「RPV」という。）ペデスタル内外には燃料デブリ（推定）及び堆積物があることから、燃料デブリ取り出しには PCV 内水位制御のためにドライウエル下部の止水や補修を行う必要がある[1]。

そこで本研究では、PCV 底部の止水及び補修と目的として、改良したジオポリマーや超重泥水によりジェットデフレクター等を止水し、併せてドライウエル下部を補修する施工法を提案する。

また、堆積状況など未解明な状況にある現場施工の選択肢を増やすため、止水・補修材の対象部位周辺への局所的施工のみならず、ペデスタル外の広範囲にわたる施工についても検討し、最新の熱流動シミュレーション法により、工法実現性を評価する。

広範囲に施工する場合には、ペデスタル外に流出した燃料デブリや堆積物は止水・補修材で被覆されて廃棄体となる。このため、燃料デブリの成層化状態等性状を実験及び解析により把握した上で、廃棄体を安定化する方策を検討するとともに、核種浸出性を含めた廃棄体の長期寿命を評価する。

以上、本研究では、改良止水・補修材を利用した工法によるドライウエル下部の止水・補修、燃料デブリ安定化及び廃棄物管理に与える影響を評価し、廃炉工程全体の合理化に資する。

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

燃料デブリ取り出しを行うためには、PCV の水位制御のためドライウエル下部の止水や補修を行う必要がある。そこで本研究では、改良したジオポリマー等によりジェットデフレクター等を止水し、併せてドライウエル下部を補修する施工法を実験及びシミュレーションにより評価する。

また、ジオポリマーにより被覆される燃料デブリ性状を把握した上で、廃棄体としての長期寿命を評価することにより、施工から廃棄物管理までを考慮した PCV 下部の止水及び補修工法を確立することを目的とする。

本業務の内容を以下に示すとともに、全体スケジュールを表 2-1 に示す。

#### 2.1.1 PCV 底部デブリ性状評価（東京大学）

令和 3 年度には、酸化物-金属溶融物実験・計算や溶融金属水表面実験等を開始する。また、止水材で被覆した場合の臨界評価を開始する。

令和 4 年度には、酸化物-金属溶融物実験・計算や溶融金属水表面実験等を継続する。また、止水材で被覆した場合の臨界評価を継続する。

令和 5 年度には、得られた結果から、実機燃料デブリ分布を推定するとともに、被覆した廃棄体の安全評価を行う。

#### 2.1.2 PCV 底部最適止水・補修材評価（東京大学、再委託先：東京都市大学、アトックス、連携先：JAEA）

##### (1) 止水・補修試験及び評価（東京大学）

令和 3 年度には、止水・補修材として臨界防止材や水素発生抑制材を添加したジオポリマーを製作して、スランプフロー試験、粘度測定、圧縮強度試験等を実施する。また、超重泥水についても添加剤の効果を確認する。さらに、メッシュや温度制御を活用した貫通部からの漏洩防止手法を検討し、止水試験を開始する。

令和 4 年度には、上記材料の組成を改善して、止水・補修材の流動試験や強度試験を継続するとともに、貫通部の止水試験を継続する。

令和 5 年度には、止水・補修材の各種試験及び止水試験を行い、最適な止水・補修条件を選定する。

##### (2) 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学）

令和 3 年度には、照射済み燃料中に発生する核分裂生成物合金（以下、「白金族合金」という。）に関して、文献調査より既存の実機分析データを基に組成幅を設定し、温度などの燃料内環境を模してバルク状の模擬白金族合金を加熱炉で作製する。また、作製した模擬白金族合金に対して冶金学的観察を行い、結晶学的な模擬性を評価する。

令和 4 年度には、令和 3 年度に作製したバルク状試料をいくつかの方法（機械的粉碎及び蒸発凝縮法）で微粒子状に加工し、形状における実機との模擬性向上を図る。また、バルク状の試料と同様の冶金学的観察を行い、総合的な模擬性を評価する。さらに、当該微粒子試料を充填材へ添加し、照射試験等を行い、水素再結合性能等を評価する。さらなる性能向上のための酸化加熱処理装置を構築する。

令和 5 年度には、酸化加熱処理装置を用いて、雰囲気の種類をパラメータとして粉末試験に酸化処理を施し、冶金学的性状変化を観察評価する。粉末特性の性能を評価し、照射

試験等を行い、水素再結合性能等を評価する。これらの結果を基に、照射済燃料から回収される白金族合金の添加剤としての適用性を評価する。

(3) 照射試験（再委託先：アトックス）

令和 3 年度には、照射試験に必要な恒温槽等を準備して試験体系を構成し、最適な照射条件を確立する。また一部改良材料について室温照射試験を実施する。

令和 4 年度には、恒温に保持された改良ジオポリマー及び超重泥水に  $\gamma$  線を照射する照射試験を実施する。

令和 5 年度には、長期間、照射を受けた材料を用意するため、令和 3 年度に引き続き、照射試験を実施する。

(4) ジオポリマーの最適化（連携先：JAEA）

令和 3 年度には、ジオポリマーの流動と凝固を制御するため、配合比を変化させて粘性を調べる。また、令和 4 年度以降に使用するセメントペースト試料の作製、分析などの準備を行う。

令和 4 年度には、流動と凝固をある程度制御可能なジオポリマーについて、水中注入試験を実施し、間隙への充填と硬化の状態を確認する。

令和 5 年度には、ジオポリマーと異種材料の接着界面を観察し、高温に保持した時の剥離の有無を調べる。また、令和 3 年度に作製・養生したセメントペースト試料に模擬クラックを作り、ジオポリマーを流してクラックを充填し、界面における化学的な相互作用を調べるとともに、補修性を考察する。

2.1.3 PCV底部止水・補修材施工シミュレーション（再委託先：産総研）

令和 3 年度には、3 次元大規模計算に向けた計算手法を開発する。また、並列化などを利用して陰的な計算を効率化することで計算速度の向上を図る。

令和 4 年度には、閉じ込め材料（ジオポリマーなど）の特性を用いた粒子法シミュレーションの妥当性を確認する。

令和 5 年度には、実機形状を用いた開口部閉塞シミュレーションによる開口部の閉塞に必要な材料特性を把握する。閉塞性能及びスケール効果についての妥当性が確認された計算手法を用いて、実機開口部の閉塞シミュレーションを行う。

2.1.4 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）

令和 3 年度には、ジオポリマーの浸出試験及び収着実験を開始する。

令和 4 年度には、ジオポリマーの浸出試験及び収着実験を継続する。また、拡散試験を開始する。

令和 5 年度には、ジオポリマーの浸出試験及び拡散試験を継続し、得られたパラメータに基づいて、予察的な安全評価を実施する。

2.1.5 研究推進（東京大学）

各年度において、研究代表者の下で各研究項目間並びに廃炉環境国際共同研究センター（以下、「CLADS」という。）等との連携を密にして、研究を進める。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する。

表 2-1 全体スケジュール

項目	年度		
	令和3年度	令和4年度	令和5年度
(1) PCV底部デブリ性状評価 (東京大学)	デブリ溶融落下試験 臨界評価準備	デブリ溶融落下試験 臨界評価	デブリ溶融落下試験 臨界評価及び評価まとめ
(2) PCV底部最適止水・補修材評価			
① 止水・補修試験及び評価 (東京大学)	試験準備・止水試験	止水・補修試験	止水・補修試験及び評価まとめ
② 水素発生対策添加材評価 (東京都市大学)	模擬合金作製・評価	模擬合金の粉末調整及び照射試験	模擬合金の粉末改良及び照射試験
③ 照射試験 (アトックス)	試験体系整備・ 予備試験 (室温)	照射試験	照射試験
④ ジオポリマーの最適化 (JAEA)	流動と凝固試験	水中注入試験	接着界面の分析
(3) PCV底部止水・補修材施工 シミュレーション (産総研)	計算コード開発	妥当性確認	実機体系シミュレーション
(4) 廃棄体閉じ込め性能評価 (東京大学)	溶出試験	溶出試験	溶出試験及び評価まとめ
	収着試験	収着試験及び評価まとめ	拡散試験及び評価まとめ
		拡散試験	予察的安全評価
(5) 研究推進 (東京大学)	技術評価委員会の開催	技術評価委員会の開催	技術評価委員会の開催
	△ まとめ・評価	△ まとめ・評価	△ まとめ・評価

2.2 実施体制

図 2.2-1 に、実施体制を示す。

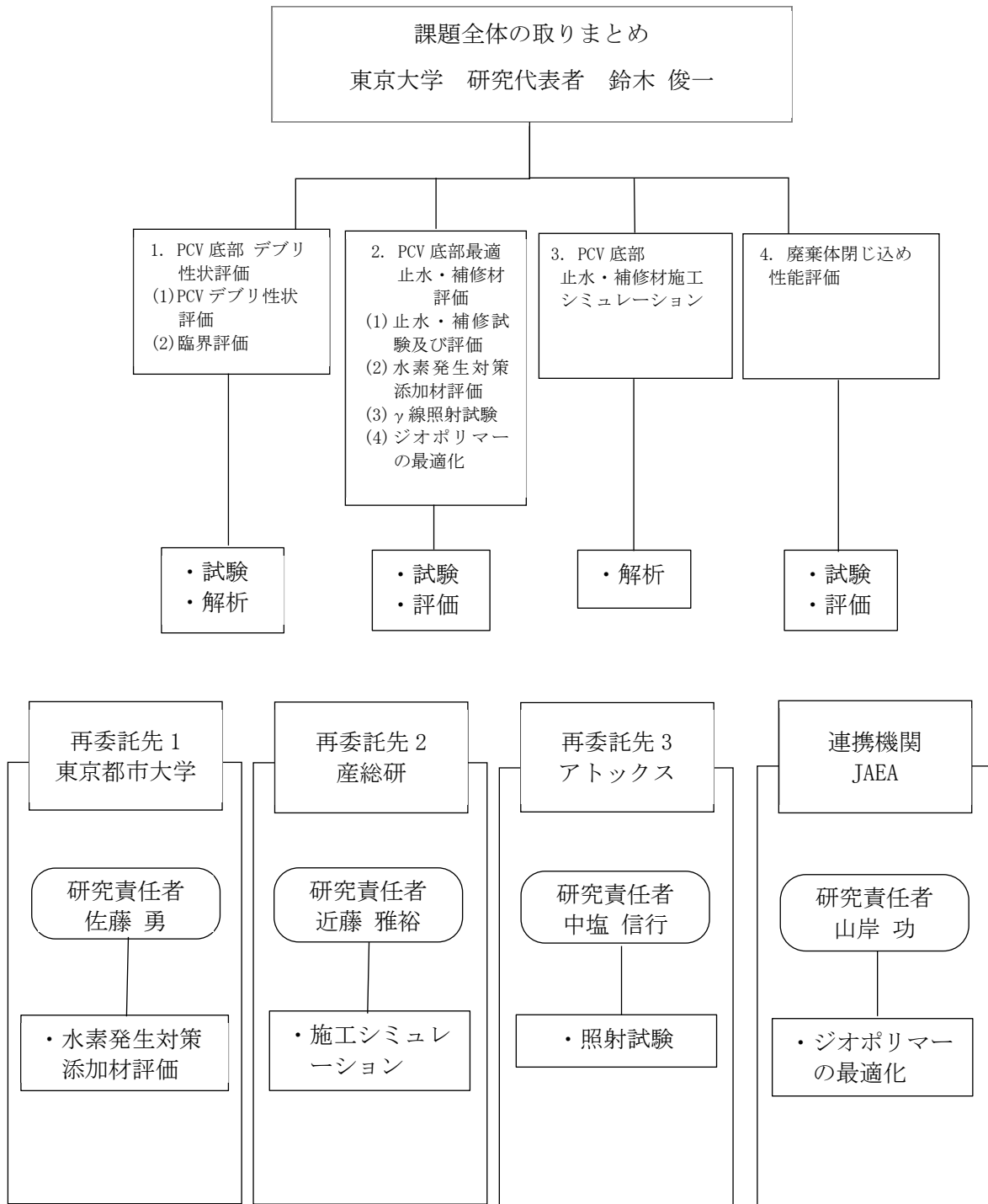


図 2.2-1 体制図

## 2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

### 2.3.1 PCV底部デブリ性状評価（東京大学）

燃料デブリを模擬した酸化物や金属溶融物の溶融物落下試験並びに粒子法によるシミュレーションを継続実施するとともに、溶融金属の水表面への落下実験やコンクリートに落下した場合の燃料デブリ拡散・ガス発生モデルについて数値計算を継続する。

また、止水材で被覆した場合における臨界評価を継続する。

### 2.3.2 PCV底部最適止水・補修材評価（東京大学、再委託先：東京都市大学、アトックス、連携先：JAEA）

#### (1) 止水・補修試験及び評価（東京大学）

止水・補修材として臨界防止材や水素発生抑制材を添加し、組成を改善したジオポリマーを作製して、流動試験や強度試験等を実施する。また、超重泥水について添加材の効果を確認する。貫通部についてはジオポリマーを使用した止水試験を継続する。

#### (2) 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学）

令和3年度に作製したバルク状試料を微粒子状に加工し、形状における実機との模擬性向上を図る。また、バルク状の試料と同様の冶金学的観察を行い、総合的な模擬性を評価する。さらに、当該微粒子試料を充填材へ添加し、照射試験等を行い、水素再結合性能等を評価する。さらなる性能向上のための酸化加熱処理装置を構築する。

#### (3) 照射試験（再委託先：アトックス）

令和3年度に構成した試験体系で恒温に保持した改良ジオポリマー及び超重泥水について $\gamma$ 線照射試験を実施する。

#### (4) ジオポリマーの最適化（連携先：JAEA）

流動と凝固をある程度制御可能なジオポリマーについて、マイクロラマン分光分析等による適用性確認を行い、水中注入試験を実施して間隙への充填と硬化の状態を確認する。得られた結果から、止水用ジオポリマーの配合比を最適化し、注入プロセスを検討する。

### 2.3.3 PCV底部止水・補修材施工シミュレーション（再委託先：産総研）

閉じ込め材料（ジオポリマーなど）の特性を用いた粒子法シミュレーションの妥当性を確認する。特に、閉塞性能及びスケール効果についての計算手法の妥当性確認を行う。東京大学で実施するジオポリマーを用いた開口部閉塞試験を模擬してシミュレーションを行い、閉塞性能に関する模擬性を確認する。また、施工するジオポリマーの量及び開口部の大きさを変えた試験とも比較することで、空間スケールが大きくなった場合の適用性を確認する。

### 2.3.4 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）

模擬核種を添加した種類の異なるジオポリマー用いて、降水系地下水及び海水系地下水を対象に、長期の浸出試験を継続する。また、バッチ法による異なるpH、イオン強度条件での模擬核種の収着試験を継続する。さらに、ディスク状に整形したジオポリマー試料を用いて、模擬核種の拡散試験（through-diffusion、あるいは、in-diffusion）を開始し、予察的に実効拡散係数を取得する。

2.3.5 研究推進（東京大学）

研究代表者の下で各研究項目間並びにCLADS等との連携を密にして、研究を進める。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する。



### 3. 実施内容及び成果

#### 3.1 PCV 底部デブリ性状評価（東京大学）【令和3年度～令和4年度】

##### (1) PCV 底部デブリ性状解析及び評価

###### 【令和3年度までの概要】

令和3年度のPCVデブリ性状推定に関する研究では、系統実験による水位毎の溶融物の凝固挙動の整理及び水中で拡散する溶融金属の凝固挙動の解析モデル開発及び比較を行った。

実験に関しては、溶融物の水位と凝固物の関係を整理した。これは実機のデブリ幾何形状を推定するために重要である。溶融コリウムの模擬物質として密度が似ている低融点合金(U-alloy70)を用いた。U-alloyを150℃まで加熱し、異なる水位のプールへ拡散させた。拡散の様相をビデオカメラで撮影し、実験終了後、凝固物の堆積厚さをノズルで測定した。流出口径及び落下高さも同様に変化させ、堆積挙動の変化を観察した。

実験の結果、ノズルが大きな条件では、水位に関係なく、溶融物が堆積せず、薄く広く拡散した。さらに跳水現象が発生し、花火のような形状に凝固した。跳水現象の支配因子はレイノルズ数及び流出口径であることが、実験式によって示唆された。さらに、落下高さが増加するに連れ、溶融物の細分化が顕著となる現象が確認された。この主たる原因として、ケルビン-ヘルムホルツ不安定性及び臨界ウェーバー数に起因する不安定性波長の減少であると分かった。ノズルが小さな条件では、水位が増加するに伴い、堆積物の高さが増加する傾向が観察された。また、同様に落下高さが増加するに連れて、溶融物の堆積高さが増加する傾向が観察された。体積比による溶融物高さの無次元数を用いた解析を開始した。その結果、水位が上昇するに連れ、体積高さが飛躍的に上昇する傾向が確認された。一方、ある水位以下では堆積高さは水位に依存せず一定となることが分かった。この水位に関する変曲点によって、堆積するモードと拡散するモードに大別できる可能性が示唆された。

数値解析では、粒子法的一种であるMoving Particle Hydrodynamics(以下、「MPH」という。)にLarge Eddy Simulation(以下、「LES」という。)に基づく乱流モデルを導入し、熱伝達の向上を考慮した。溶融凝固は、固相率を用いて、粘度を大きく変化させることによってモデリングした。溶融物の拡散は実験と数値計算の両方に関して行った。溶融拡散挙動に対する水位の影響を調査するため、(i)dry、(ii)shallow及び(iii)deepの3つの水位を試験した。(i)dry conditionでは、乱流モデルは計算結果に大きな影響を与えなかった。溶融金属は滑らかに広がり、薄く固化した。(ii)shallow conditionでは、計算結果に対して乱流効果は顕著ではなかった。溶融金属は滑らかな自由表面で不規則な形状に固化した。(iii)deep conditionでは、乱流モデルは計算結果に著しく影響を与えた。溶融金属は、乱流モデルを導入することによって、山のように堆積した。計算結果は、凝固面積と堆積高さの両面において、水位に依存せず一致した。また、高粘性流体の水中での拡散挙動を調査した。計算結果は実験結果を良好に再現することができた。全体として、水中に広がる溶融物解析手法の妥当性が示され、実機燃料デブリ性状推定に応用できる見通しを得た。

###### 【令和4年度実施内容及び成果】

###### ① VULCANO VE-U9 実験の解析

令和4年度は、主として令和3年度に開発した燃料デブリを模擬した酸化物や金属溶融物の水中での拡散凝固を解析する手法[2][3]を用いて実際の実機体系での燃料デブリの拡

散・凝固解析を実施した。実機体系での解析を実施する前に、本手法が高温かつ高粘性流体である溶融物質（以下、「コリウム」という。）の流動挙動を適切に評価できる手法であるかの検証を実施した。具体的にはフランスで実施された VULCANO VE-U9 実験[4]を対象に妥当性評価を実施した。妥当性を確認した本手法を用いて、3号機を対象に、実機体系での数値計算を実施した。はじめに、境界条件を設定するための事故時の圧力変化等に関する文献調査を実施した。文献調査に基づいた境界条件を設置した後、溶融物初期粘性係数及び除熱率（蒸気熱伝達率及び沸騰熱伝達率）をパラメータに感度解析を実施し、計算結果をまとめた。得られた結果を基に、3号機で予想される最も合理的な燃料デブリ性状を推定した。

(a) 解析方法

VULCANO VE-U9 実験の解析には、令和3年度に開発した MPH 法[2]のうち、乱流項を除いたモデルを採用した。また、VULCANO VE-U9 実験では、基本的なコリウムの流動・凝固挙動を観察するだけでなく、床面条件の違い（不活性セラミックス及び犠牲材コンクリート）が拡散挙動に与える影響を調査した。具体的には床面条件に応じた粘性に関する境界条件を開発し、実験結果の再現を試みた。図 3.1.1-1 に粒子法における No-slip/slip boundary model の概略図を示す。No-slip boundary model では、コリウム-コンクリート境界において、粘性抵抗が働き、それによって床面から自由表面にかけて速度勾配が発生するようなモデルを定義する。この No-slip boundary model は、床面溶融が発生しない不活性セラミックスの実験に対して適用する。一方、本研究では 2 種類の Slip boundary model を定義し、犠牲材コンクリート床面条件時に適用する。Slip boundary model 1 では、コンクリート床面に接するコリウム側の粘性を下げ、Slip boundary model 2 では、コリウムに接するコンクリート床面の粘性を下げ、境界面で双方が混合している現象を、粘性を変化させることでモデル化する。この境界面における粒子の粘性は、以下に示すコリウムと溶融コンクリートの調和平均値とし、

$$\mu_{interface,i} = \frac{2\mu_{AC,i} \cdot \mu_{corium,j}}{\mu_{AC,i} + \mu_{corium,j}}, \tag{3.1.1}$$

と定義する。ここで、 $\mu_{interface}$ 、 $\mu_{AC}$ 及び $\mu_{corium}$ はそれぞれコリウム-コンクリート境界での粘性係数、溶融コンクリートの粘性係数及びコリウムの粘性係数を表す。

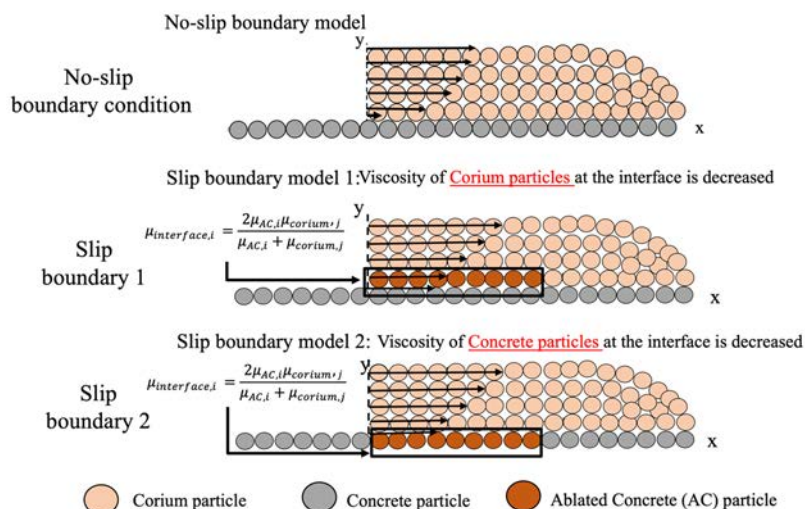


図 3.1.1-1 No-slip/Slip boundary model の定義 [5]

(b) 実験方法及び解析体系

実験体系の模式図及び解析体系を図 3.1.1-2 に示す。ジルコニア製坩堝に粉末状のサンプルを充填した。充填したサンプルは、坩堝内でテルミット反応によって、高温溶融物を形成する。坩堝底部には 6 cm の流出口が設けてあり、流出口は錫の薄板でシーリングしてある。高温溶融物により、錫が溶融することで、坩堝内の溶融物が拡散部へ流出する構成となっている。一方、解析ではテルミット反応による加熱は考慮せず、一様な粘性を有する溶融物を坩堝内に配置し、6 mm 直径の穴から流出させる。流出した溶融物は実験同様 stabilization zone へ流出し、拡散領域に移行する。実験の spreading section は総距離約 2000 mm であるのに対し、本解析では計算コストを抑えるために 850 mm とした。

解析に係る計算条件を表 3.1.1-1 に示す。物性条件等はすべて VULCANO VE-U9 の実験データを参照した[4]。

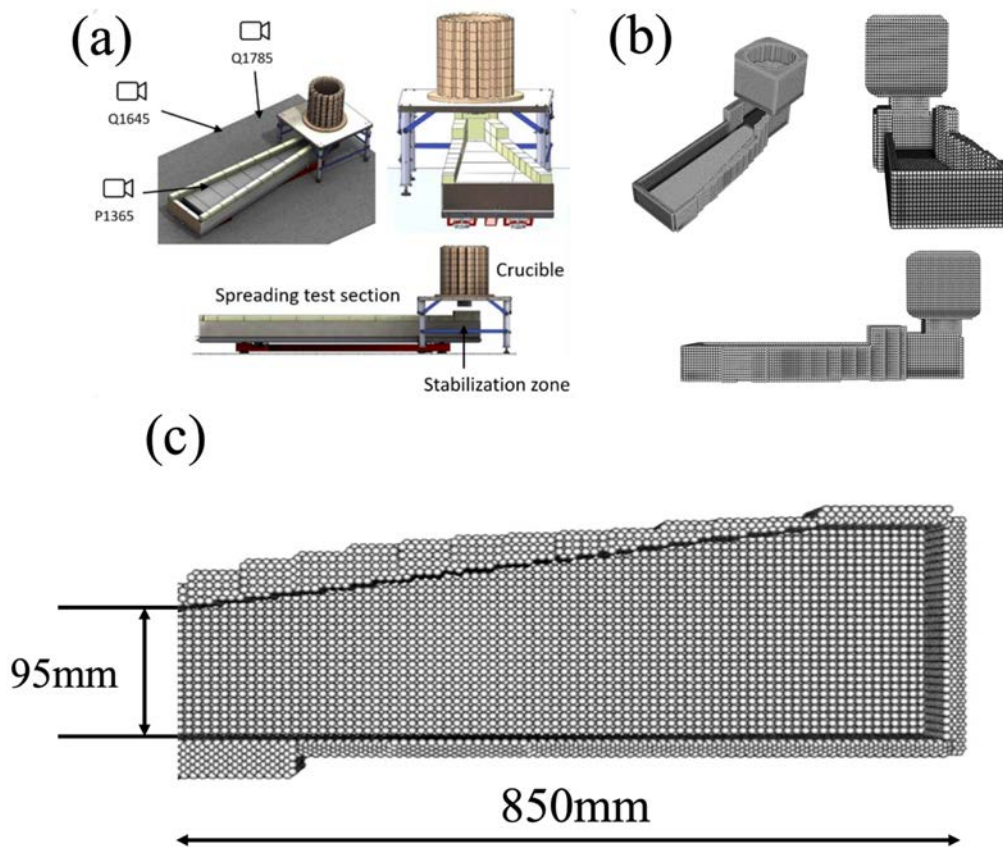


図 3.1.1-2 計算体系 (a)実験体系外観、(b)計算体系外観、(c)計算体系詳細 [5]

表 3.1.1-1 VULCANO VE-U9 実験解析の計算条件

	VE-U9-ceramic	VE-U9-concrete
Particle diameter [m]	0.005	0.005
Effective radius [m]	0.0125	0.0125
～Corium～		
Bulk viscosity [Pa s]	$1 \times 10^8$	$1 \times 10^8$
Bulk modulus [Pa]	$1 \times 10^9$	$1 \times 10^9$
Crust solid fraction	>0.7	>0.7
Ambient temperature [K]	313	313
Stephan-Boltzmann constant [ $W m^{-2} K^{-4}$ ]	$5.67 \times 10^{-8}$	$5.67 \times 10^{-8}$
Mass [kg]	34.2	26.5
Liquidus temperature [K]	2083	2083
Solidus temperature [K]	1413	1413
Initial viscosity [Pa s]	$4.0 \times 10^0$	$4.0 \times 10^0$
Specific heat in molten phase [ $J kg^{-1} K^{-1}$ ]	800	800
Specific heat in solid phase [ $J kg^{-1} K^{-1}$ ]	800	800
Latent heat [ $kJ kg^{-1}$ ]	420	420
Thermal conductivity [ $W m^{-2} K^{-1}$ ]	6.0	6.0
Emissivity	0.8	0.8
～Substrates～		
Boundary model	No-slip	Slip 1 & 2
Thermal conductivity [ $W m^{-2} K^{-1}$ ]	3.0	10.0
Viscosity of the substrate [Pa s]	$1.0 \times 10^5$	$1.0 \times 10^5$
Viscosity of the ablated concrete [Pa s]	-	$1.0 \times 10^{-1}$
※ The viscosity was changed to this value when the corium particle touched with substrate		

(c) セラミックス床面上での拡散及びNo-slip boundary modelでの計算結果

図 3.1.1-3 に、No-slip boundary model を適用したセラミックス床面上でのコリウム挙動の鳥瞰図を示す。図 3.1.1-3(a)、(b)、(c) はそれぞれ実験現象、固相率、粘性分布を表す。セラミックス床面上での拡散に関しては、実験・計算ともに、非常にゆっくりと拡散する高粘性流体の特徴的な挙動が観察された。拡散開始から 3.5 s までは、固相率・粘性ともに大きく変化することなく拡散した。7.0 s 以降、輻射の影響により自由表面にクラストが形成され、速度が減少し始めた。13.0 s 以降、強固なクラスト形成された影響により流動が停止した。図 3.1.1-4 に No-slip 境界条件を適用させたセラミックス床面でのコリウム拡散挙動の side view を示す。図 3.1.1-4(a)、(b)、(c) はそれぞれ速度分布、固相率及び粘性分布を示す。コリウムは実験と計算ともに、先端部で回

転運動を伴いながら拡散した。速度分布に着目すると（図 3.1.1-4(a)）、0.0 s～7.0 s において、溶融物は床面から自由表面にかけて速度勾配が発生したことが分かり、壁面近傍の流速は水平方向に対して 0 m/s となっていた。7.0 s 以降の固相率分布・粘性分布に着目すると（図 3.1.1-4(b)、(c)）、自由表面及び床面に接する粒子がクラストに変化している一方、バルクに関しては液相を保持していることが分かった。コリウムの流動停止を支配する重要因子は自由表面からの輻射及び床面との熱伝達であることが示唆された。

図 3.1.1-5 に、(a)コリウム先端部における流速の実験と計算の比較及び(b)拡散距離に関する実験と計算の比較を示す。拡散距離は、解析結果と実験結果で良好に一致していた。コリウム先端位置での拡散速度に関しては、3 s 付近でピークを迎えた後、実験では急激に低下しているのに対し、計算では緩やかに下降した。テルミット反応による流入条件を実験では制御できなかった一方、計算では制御したことが原因の 1 つと考えられる。また 18 s 付近にて、実験では流速が一時的に上昇した一方、計算では観察されなかった。原因として実験では、クラストが破断し内包されている液相が再流出したため、流速が上昇した一方、計算ではその挙動は発生しなかったことが考えられる。

図 3.1.1-6 に、自由表面形状に関する実験と計算の比較を示す。各色は実験での画像解析結果時に使用した色に準じている。実験・計算ともにインレットから先端部にかけて緩やかな傾斜を維持したまま拡散したことが分かった。なお、図中の post-mortem は、実験後の凝固物形状を意味する。

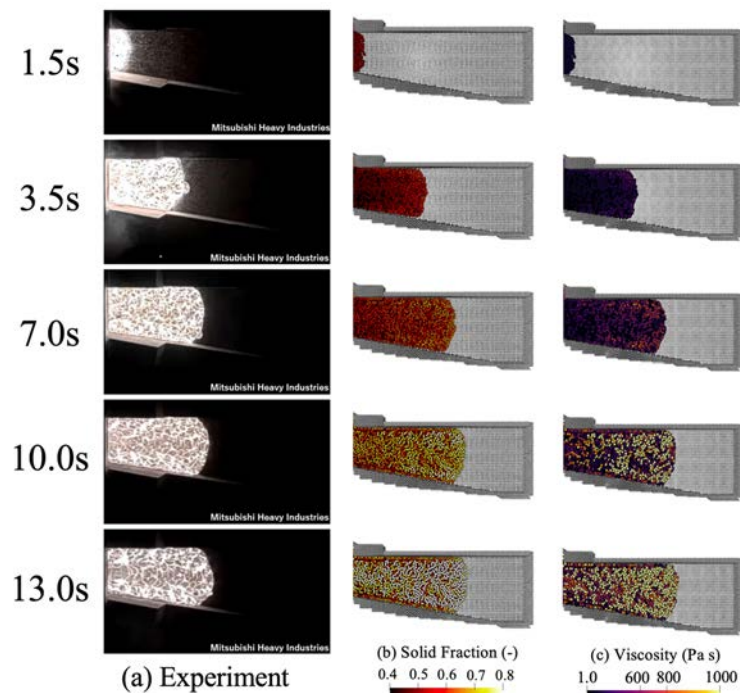


図 3.1.1-3 No-slip boundary model を適用したセラミックス床面上での拡散挙動（鳥瞰図）  
 (a)実験、(b)固相率、(c)粘性分布 [5]

(The VE-U9 experiments were performed by the CEA with financial support from Mitsubishi Heavy Industries, Ltd. and METI in Japan.)

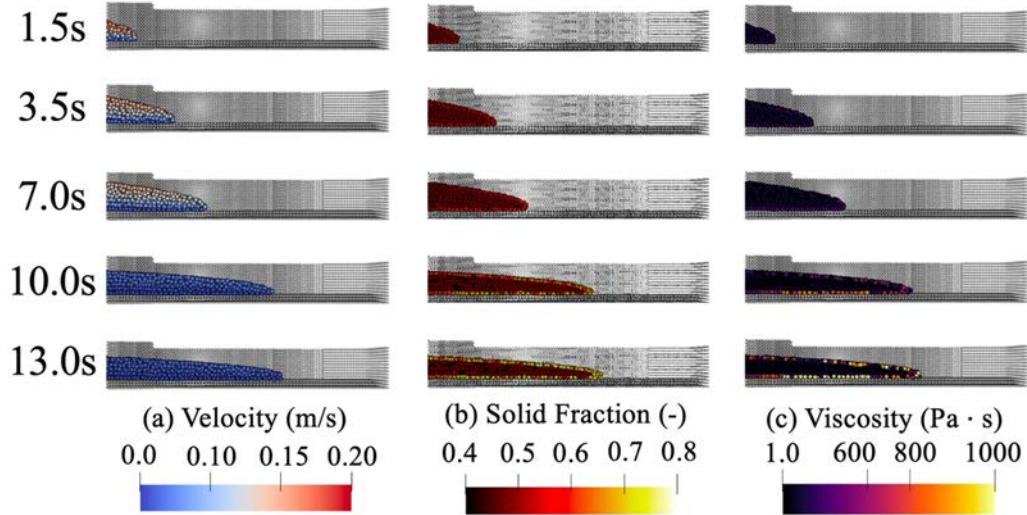


図 3.1.1-4 No-slip boundary model を適用したセラミックス床面上での拡散挙動 (side view) (a)速度分布、(b)固相率、(c)粘性分布 [5]

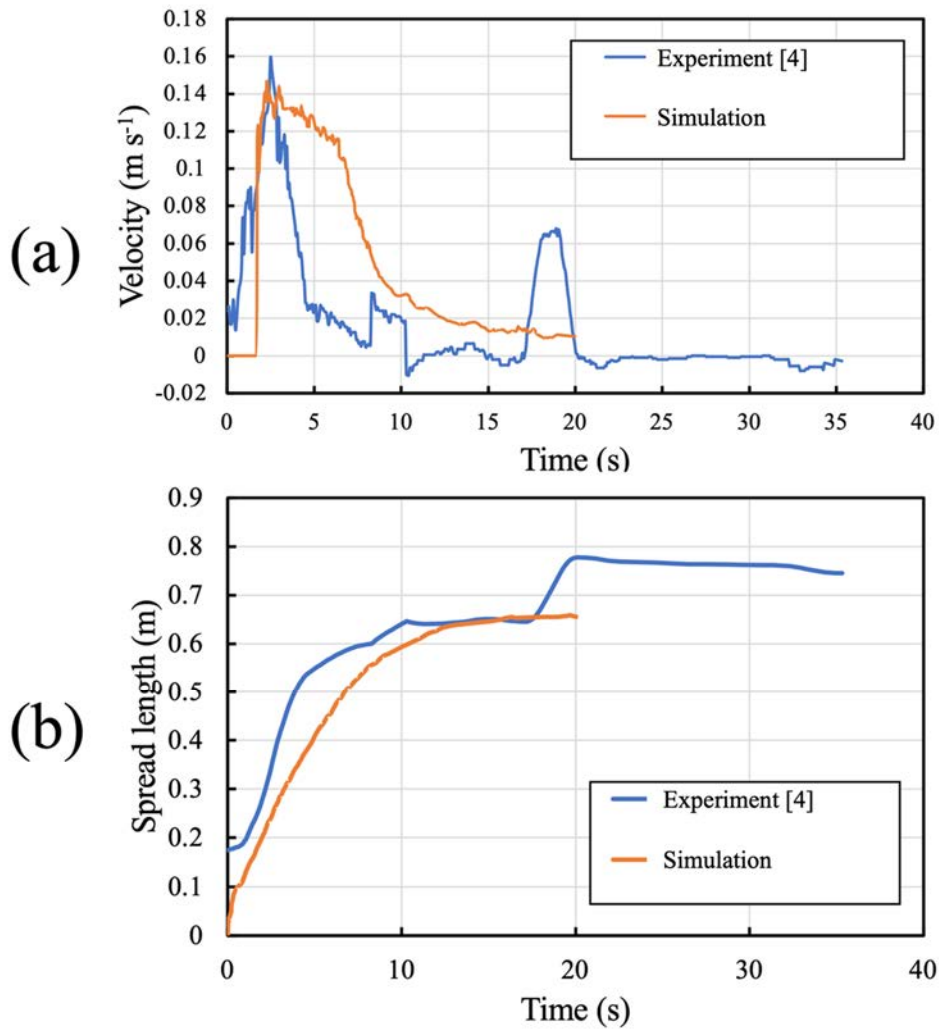


図 3.1.1-5 実験と計算結果の比較  
 (a) 拡散先端部位置における流速変化に関する比較、(b) 拡散長さに関する比較 [4] [5]

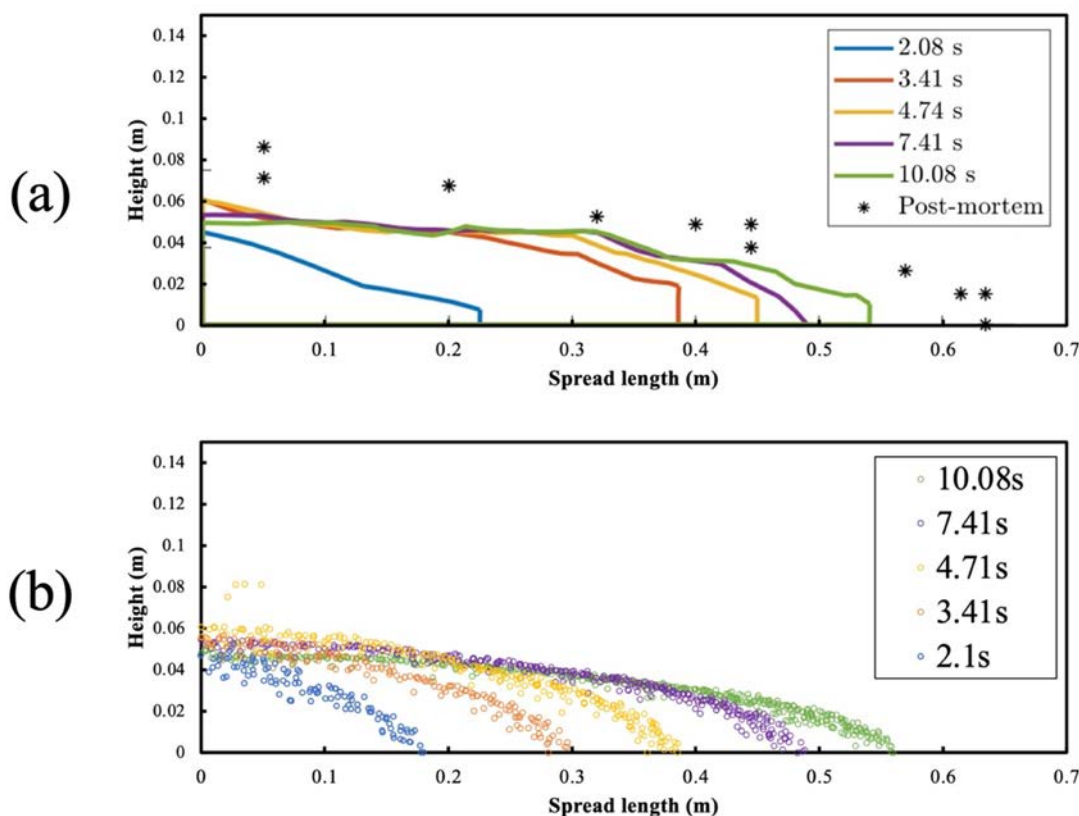


図 3.1.1-6 セラミックス床面条件での自由表面形状推移 [4][5]

(d) コンクリート床面上での拡散及び Slip boundary model での計算結果

図 3.1.1-7 に、Slip boundary model を適用させたコンクリート床面上でのコリウム挙動に関する鳥瞰図を示す。図 3.1.1-7(a)、(b)、(c) はそれぞれ実験現象、Slip boundary 1 を適用した際のコリウムの固相率、Slip boundary 2 を適用した際のコリウムの固相率分布を表す。図 3.1.1-3 とは異なり、Slip boundary model を適用させたコンクリート床面では、コリウムが非常に速く拡散し停止する挙動が観察された。セラミックス床面では、10 s 付近まで拡散は緩やかに継続していた一方、コンクリート床面では 5.0 s 付近で流動は停止した。Slip boundary 1 と Slip boundary 2 の結果を比較すると、Slip boundary 1 では先端位置における溶融コリウム粒子が発散することなくまとまり、滑らかな端部を形成した。一方、Slip boundary 2 では端部で粒子が分散し、実験で観察されたような複雑な先端形状を形成した。

図 3.1.1-8 に、各 Slip boundary model を適用させたコンクリート床面でのコリウム拡散挙動の流速分布に関する side view を示す。速度勾配に関して、図 3.1.1-3(a) に示す速度分布と大きな違いが見られた。図 3.1.1-8 の 1.0 s ~ 2.0 s に着目すると、床面から自由表面にかけて速度勾配が均質化した。Slip 境界モデルの導入により、コリウム-コンクリート境界の粘性が低下し、潤滑剤の役割を果たしたため、床面近傍で流速が増加し、全体として流速が均質化したと考えられる。3.0 s 以降では、輻射及び床面との熱伝達の影響により凝固が顕著となり、速度勾配が発生した。最終的には、図 3.1.1-3(a) 同様に流動が停止する傾向が観察された。

図 3.1.1-9 に、(a) コリウム先端部における流速の実験と計算の比較及び(b) 拡散距離に関する実験と計算の比較を示す。流速分布は実験と計算で、Slip 境界の違いに依存せず良好に一致した。約 3.0 s 秒付近でピークに達した後、急速に減少する結果が双方ともに得られた。

拡散距離に関しては、Slip boundary 2 を用いた場合の拡散距離が、実験結果と良好に一致していた。Slip boundary 1 と Slip boundary 2 とを比較すると、約 4.0 s 付近までは各境界条件による違いはなかったが、それ以降違いが生じた。実験で発生している現象は、低粘性化物質を発生させるのは犠牲材コンクリートであるため、実験現象に近いモデルは Slip boundary 2 の条件であると言える。したがって、現象に近いモデリングを採用した slip boundary 2 が実験を良好に再現できたと推察される。

図 3.1.1-10 に、コンクリート床面上での自由表面形状に関する実験と計算の比較を示す。実験では、インレットから端部にかけて急激に薄くなっており、先端部が鋭角になっていることが分かった。この傾向は計算でも再現することができた。

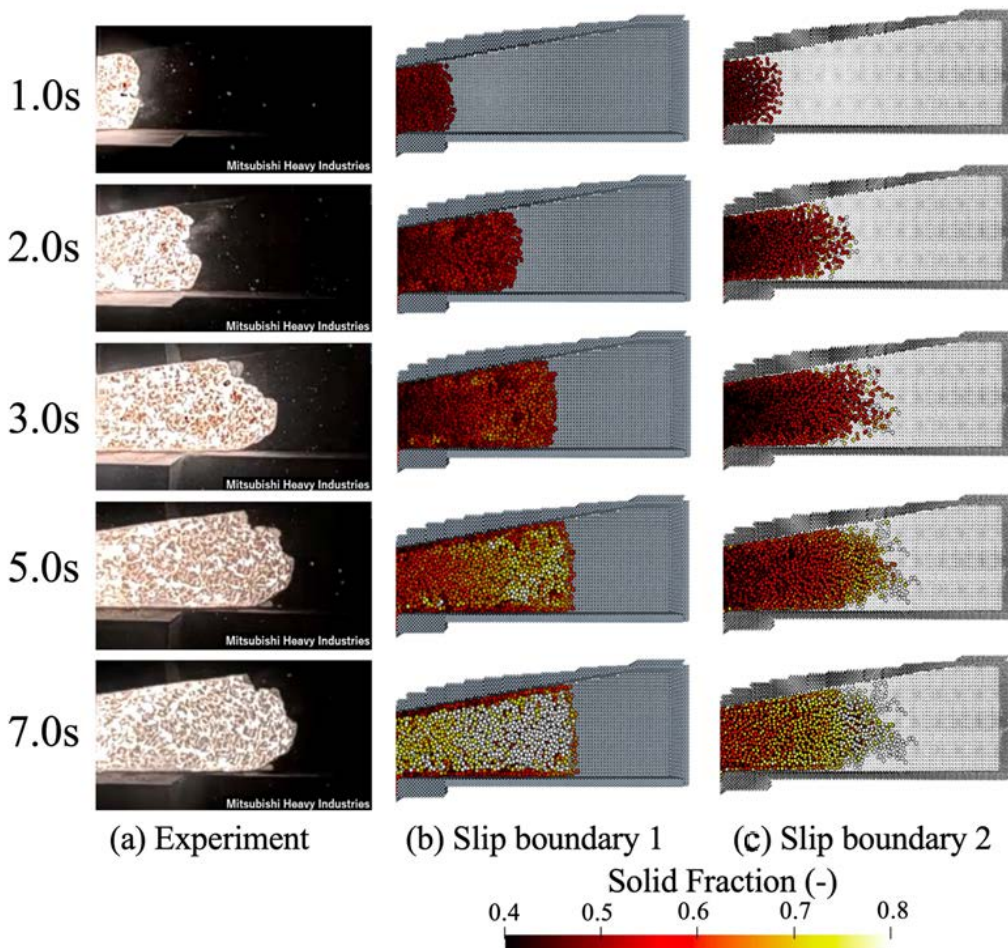


図 3.1.1-7 Slip boundary model を適用したコンクリート床面上での拡散挙動（鳥瞰図）  
 (a) 実験、(b) Slip boundary 1 での固相率、(c) Slip boundary 2 での固相率 [5]  
 (The VE-U9 experiments were performed by the CEA with financial support from Mitsubishi Heavy Industries, Ltd. and METI in Japan.)



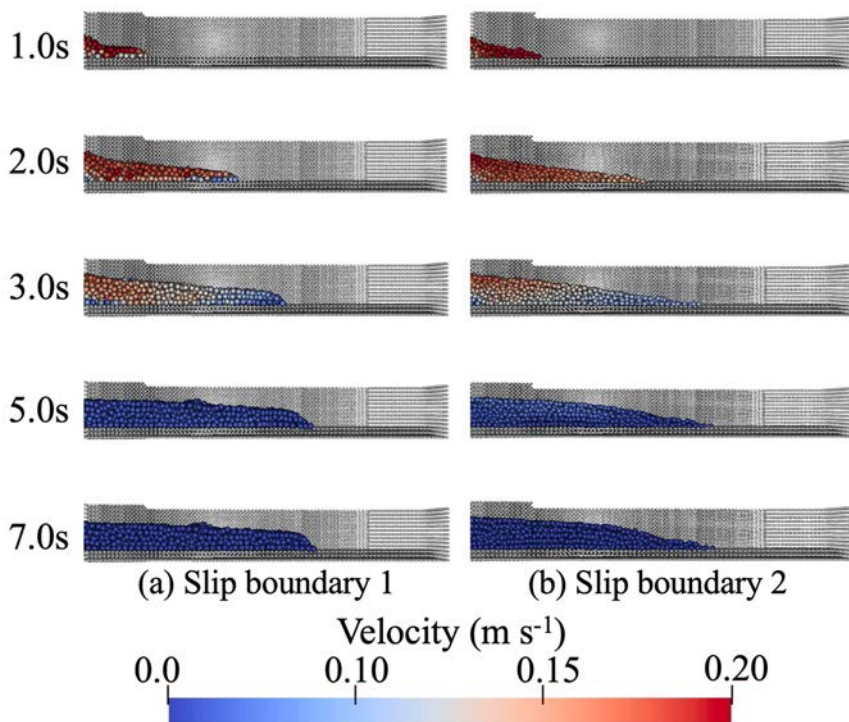


図 3.1.1-8 Slip boundary model を適用したコンクリート床面上での拡散挙動 (side view)  
 (a)Slip boundary 1 の速度分布、(b)Slip boundary 2 の速度分布 [5]

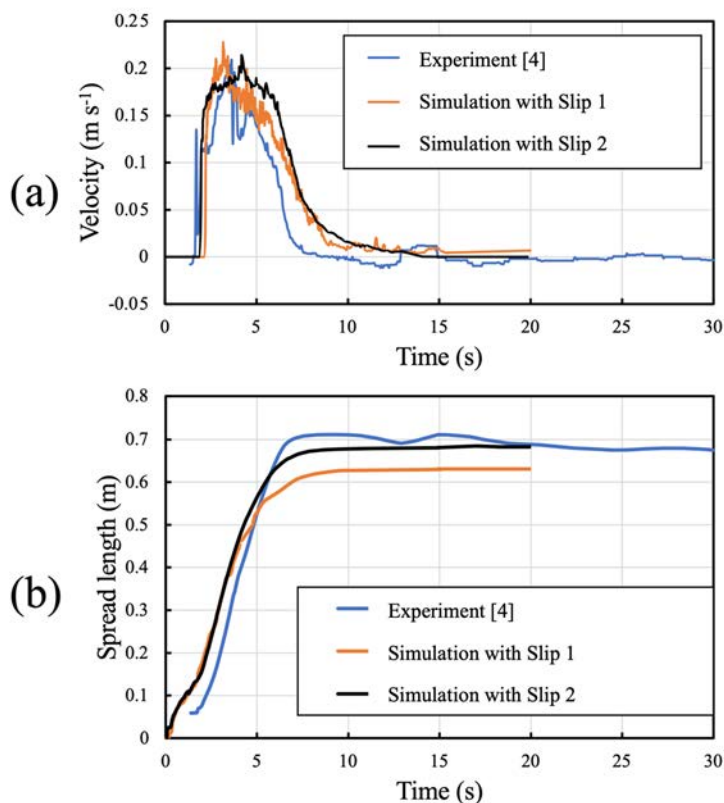


図 3.1.1-9 コンクリート床面上での (a) コリウム先端位置の流速分布に関する  
 実験と計算の比較及び (b) 拡散長さに関する実験と計算の比較 [4] [5]

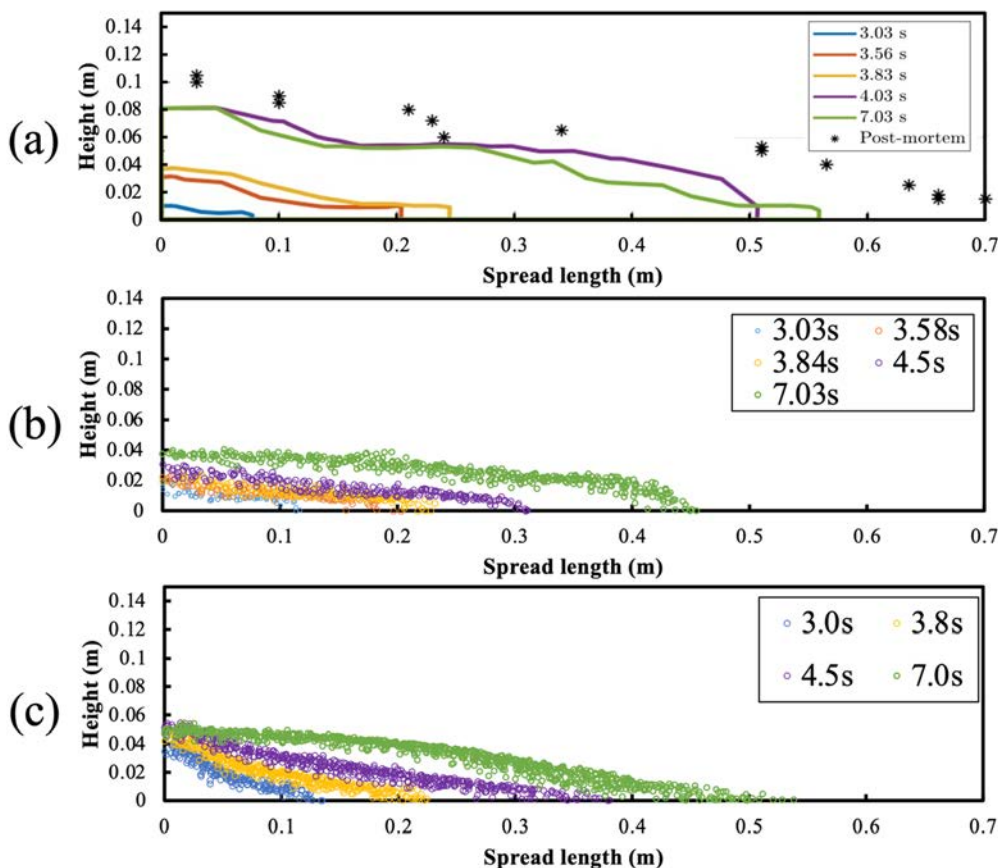


図 3.1.1-10 コンクリート床面条件での自由表面形状推移  
 (a)実験、(b)Slip boundary 1を適用した条件での結果、  
 (c)Slip boundary 2を適用した条件での結果 [4][5]

(e) VULCANO VE-U9 数値計算結果の結論

本研究では、フランス CEA が行った VULCANO VE-U9[3]の数値解析を通じ、MPH 法の 1F 実機適用性を確認するとともに、異なる床面条件での拡散挙動を再現する Slip/No-slip 境界条件を開発した。

MPH法で、VULCANO 実験を解析するために、熱伝導・熱伝達モデル及び相変化モデルを導入した。相変化モデルは、粘性を急激に増加させることによりモデリングした。異なる Slip boundary model による拡散挙動の影響を調査するために、2 種類の Slip boundary model を開発した。Slip boundary 1 は、床面に接するコリウムの粘性の調和平均を採用するモデルであり、Slip boundary 2 はコリウムに接する床面の粘性の調和平均を採用するモデルとした。解析条件は実験を模擬し、計算コストを削減するために、spreading test section の領域を小さくした。

No-slip boundary model を採用したセラミックス床面条件に関しては、熔融物はゆっくり拡散する高粘性流体の特徴的な挙動を示した。熔融物の先端部は、回転挙動を伴って拡散した。角運動量保存の影響と考えられる。速度分布に関しては、床面から自由表面にかけて大きな勾配が発生した。また、流動停止時には、自由表面及び床面に接する流体は、輻射及び熱伝達により、クラストを形成した一方内包されるバルクは液相を保持していた。高粘性流体の流動停止を司る支配因子は、輻射及び床面との熱伝達と分

かった。また、実験と計算において、拡散距離及び先端位置の流速は定量的に良い傾向を示した。

Slip boundary model を採用したコンクリート床面条件に関しては、セラミックス床面条件と異なり、溶融物は拡散初期において速く拡散する傾向が観察された。No-slip boundary model を適用したセラミックス床面と比べ、インレットから先端位置にかけて傾斜が急になった。また、床面から自由表面にかけて速度勾配が均質化した。この傾向は Slip boundary 1 と Slip boundary 2 の双方で観察された。凝固過程に関しては No-slip boundary model 同様、自由表面及び床面との熱伝達が主導であると分かった。また、拡散距離及びコリウムの先端部における流速の定量比較を行った。双方ともに実験と定量的に良好な一致を示した。最後に、自由表面形状に関する比較を行った。Slip boundary 2 の方が、Slip boundary 1 に比べて良好に形状を再現していた。なお、実験と比較して計算の方がより滑らかな形状を全体的に形成したが、この理由は、実験後の画像解析が、キャリブレーションの関係上、自由表面トラッキングに大きな不確実性を有しており、より直線近似的な形状となったためと考えられる。

本研究により、

1. 1F デブリ分布推定に必要な高温高粘性流体の解析に関する妥当性評価
2. 異なる床面条件での境界条件構築

を行うことができた。本研究の発展により 1F 実機体系での大規模シミュレーション実施可能性を示すことができた。

## ② 実機体系を用いた 3 号機デブリ分布推定に関する数値計算

### (a) 解析体系及び解析条件

計算体系を図 3.1.2-1 に示す。本計算体系では 1 号機の Computer Aided Design データ（以下、「CAD」という。）を粒子に変換した。なお、3 号機の実機データは入手できなかったため、1 号機の形状を用いて計算を実施した。よって、実際の 3 号機と比較するとスケールが小さいことに留意する必要がある。計算条件を表 3.1.2-1 に示す。下線で示す部分が本研究で対象とした感度解析のパラメータであり、コリウムの初期粘性係数、強制対流蒸気熱伝達率、沸騰熱伝達率の値を変更して解析を実施した。

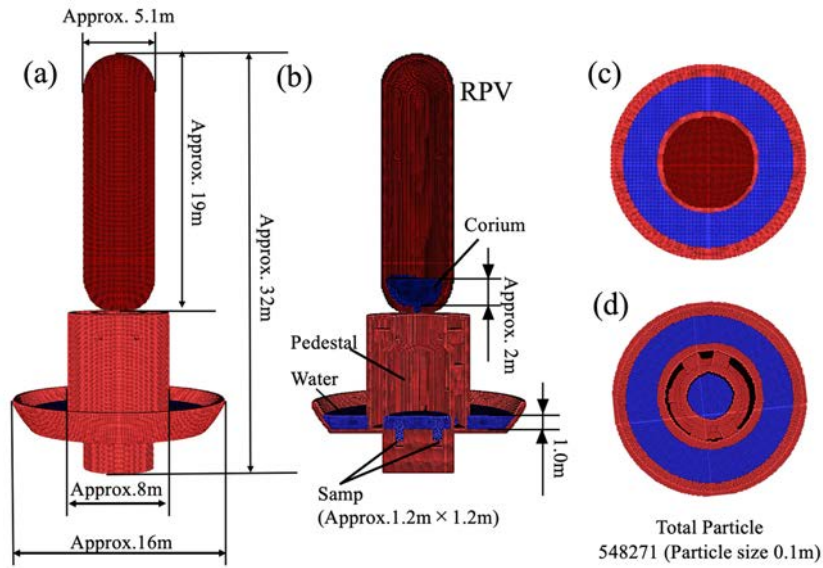


図 3.1.2-1 解析体系  
 (a)側面図、(b)側面から見た断面図、(c)上面図、(d)上面から見た断面図

表 3.1.2-1 解析条件

	Corium	Water	RPV	Pedestal
Particle size (m)	0.1	0.1	0.1	0.1
Effective radius (m)	0.25	0.25	0.25	0.25
Density (kg m <sup>-3</sup> )	8000	1000	7000	2000
Bulk viscosity (Pa. s)	$5.0 \times 10^5$	$2.0 \times 10^5$	$5.0 \times 10^6$	$5.0 \times 10^6$
Bulk modulus (Pa)	$1.0 \times 10^4$	$1.0 \times 10^4$	$1.0 \times 10^5$	$1.0 \times 10^5$
Initial shear viscosity (Pa. s)	$1.0 \times 10^0 - 1.0 \times 10^{-3}$	$1.0 \times 10^{-4}$	$1.0 \times 10^5$	$1.0 \times 10^5$
Surface tension (N m <sup>-1</sup> )	0.5	0.0014	0.0	0.0
Thermal Conductivity (W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	3.0	0.1	10.0	1.0
Melting point (K)	2073	273	1273	473
Specific heat (J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )	600	4200	200	800
Latent heat (kJ kg <sup>-1</sup> )	420	2260	300	400
Immobilized solid fraction (-)	0.8>	-	-	-
Saturated vapor temperature (K)	-	673	-	-
Saturated water temperature (K)	-	388	-	-
Forced convection vapor heat transfer coefficient (W m <sup>-2</sup> K)	-	<u>100-1000</u>	-	-
Boiling heat transfer coefficient (W m <sup>-2</sup> K)	-	<u>1000-10000</u>	-	-
Decay heat (MW)	8.5	-	-	-

## (b) 計算結果

図 3.1.2-2 に、異なる初期粘性係数を有する熔融コリウムの異なる強制対流蒸気熱伝達率及び沸騰熱伝達率下での拡散挙動及び温度分布を示す。強制対流蒸気熱伝達率及び沸騰熱伝達率の双方が高い場合、熔融、コリウムは端部から中心に向けて急激に凝固を開始していることが分かった。300 s～500 sにかけて端部で強固なクラスト壁が形成されており、この存在により中心部に存在する熔融コリウムの拡散進展が制限されている。1000 s時点では、熔融コリウムの初期粘性係数の大小により拡散挙動が2種類に大別されていることが分かった。初期粘性係数が高い場合（すなわち、初期粘性係数  $\mu = 1.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^0$  Pa. s）、熔融コリウムはペDESTALの外側に流出することなく、すべてペDESTAL内部に堆積・凝固した。一方、初期粘性係数が低い場合（すなわち、初期粘性係数  $\mu = 1.0 \times 10^{-3} \sim 1.0 \times 10^{-2}$  Pa. s）、熔融コリウムはペDESTAL外側まで拡散する傾向にあった。一方、強制対流蒸気熱伝達率及び沸騰熱伝達率の双方が低い場合、熔融コリウムの初期粘性係数に依存せず、コリウムはペDESTALの外側まで拡散する傾向にあることが分かった。500 sまでは熔融コリウムの顕著な凝固は見られなかったが、熔融コリウムがペDESTAL外まで液相を保持したまま拡散した後、端部から急激に凝固が開始され、拡散が停止した1000 s時点では自由表面のほとんどが凝固した。

図 3.1.2-3 は熔融物を底面から撮影した拡散挙動を示しており、同様に温度分布を示す。図 3.1.2-3 では強制対流蒸気熱伝達率及び沸騰熱伝達率の双方が高い場合、300 s時点で端部のほとんどのコリウムが凝固している一方、中心付近ではほとんどが液相を保持していることが分かった。また、流動が停止した1000 s時点でも中心付近の大部分は液相を保持していることが分かった。強制対流蒸気熱伝達率及び沸騰熱伝達率の双方が低い場合、ペDESTAL内部の熔融コリウムのほとんどが液相を保持している一方、ペDESTAL外に流出したコリウムは端部のみ凝固していることが分かった。このことは、水中での熔融コリウムの拡散・停止は拡散した熔融コリウム端部の水による除熱効率により決定されることを示唆している。また、すべてのケースにおいてサンプル内に侵入した熔融コリウムは凝固していることが分かった。

図 3.1.2-4 は熔融物を断面から撮影した拡散挙動を示している。強制対流蒸気熱伝達率及び沸騰熱伝達率の双方が高い場合、水との境界に存在するコリウムは沸騰熱伝達により急激に冷却され凝固している一方、クラスト近傍及び内包されるコリウムは液相を保持していることが分かった。すなわち、コリウムは熔融プールをクラスト内部で形成していることが示唆された。現象時間が進行するとともに、クラストは高く堆積する傾向があり、それに伴って熔融コリウムの領域も拡大していることが分かった。水中での熔融物の堆積挙動は令和3年度に実施した低融点合金を使用した簡易実験結果及び対応するMPH-LESを用いた数値計算結果と類似しており、水中での熔融物の堆積挙動はスケール及び熱物性に依存せず一貫することが示唆された。

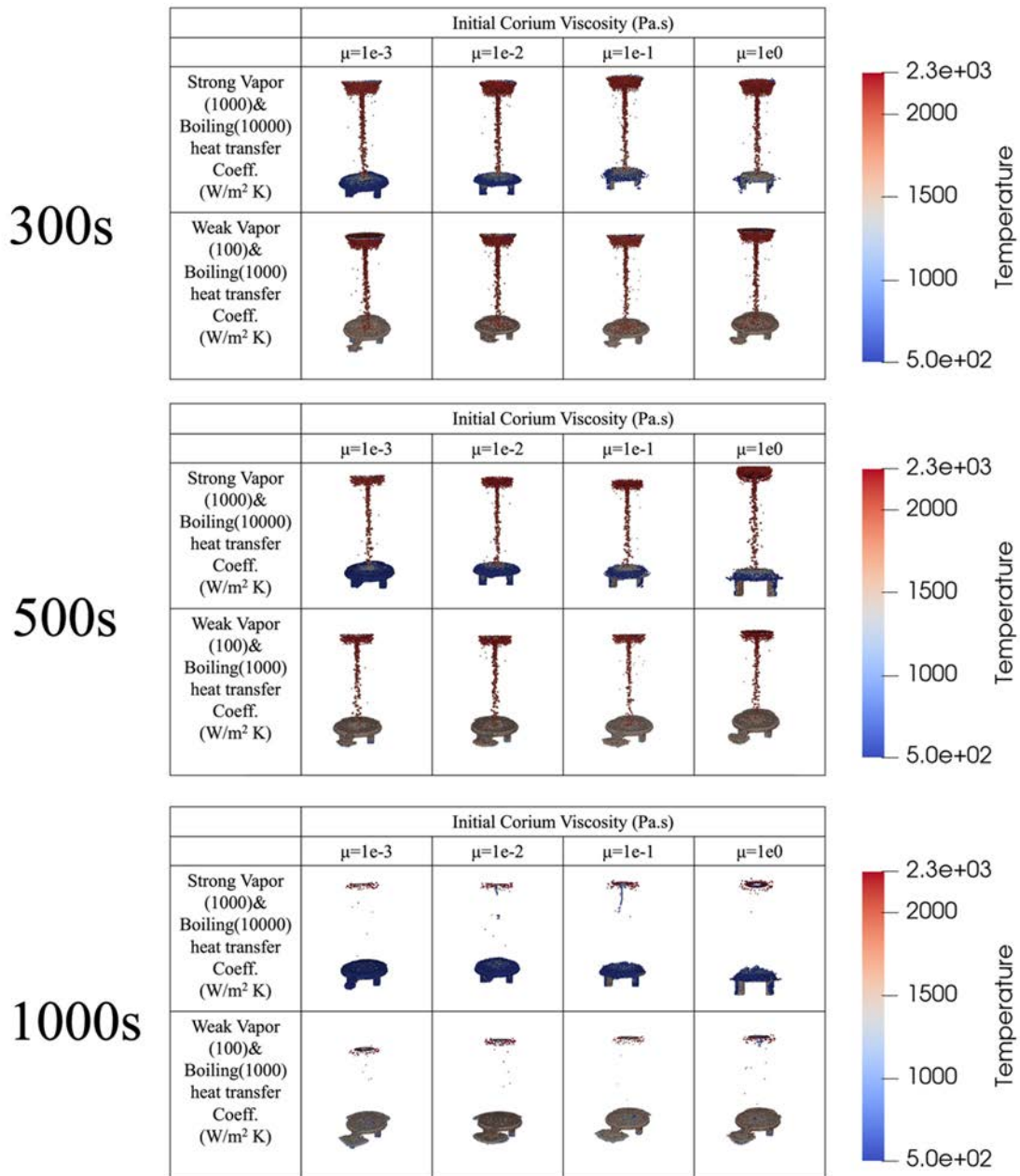


図 3.1.2-2 異なる初期粘性係数を有する溶融コリウムの異なる強制対流蒸気熱伝達率、沸騰熱伝達率下での拡散挙動及び温度分布（鳥瞰図）

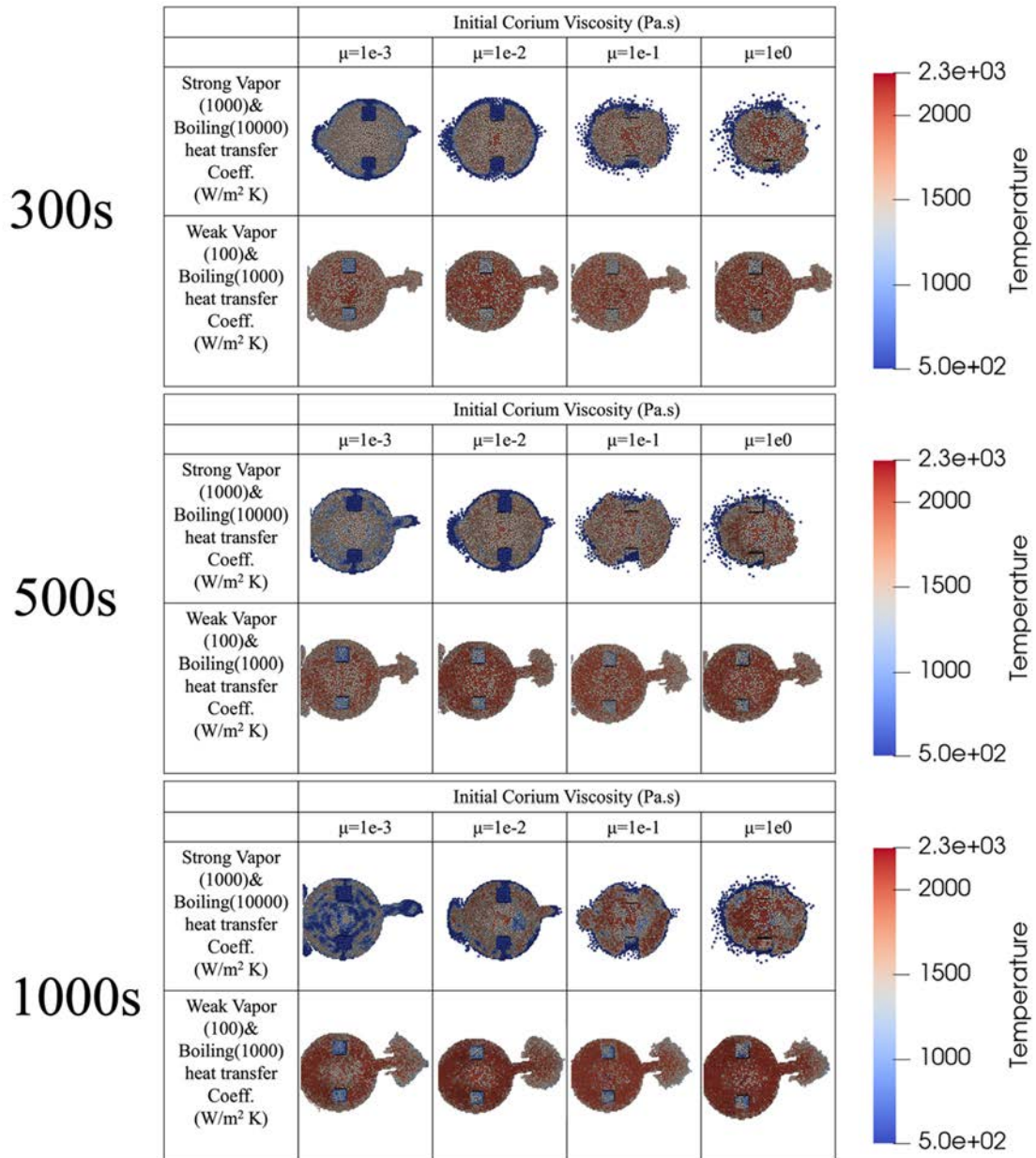


図 3. 1. 2-3 異なる初期粘性係数を有する溶融コリウムの異なる強制対流蒸気熱伝達率、沸騰熱伝達率下での拡散挙動及び温度分布（下方向：床面方向）

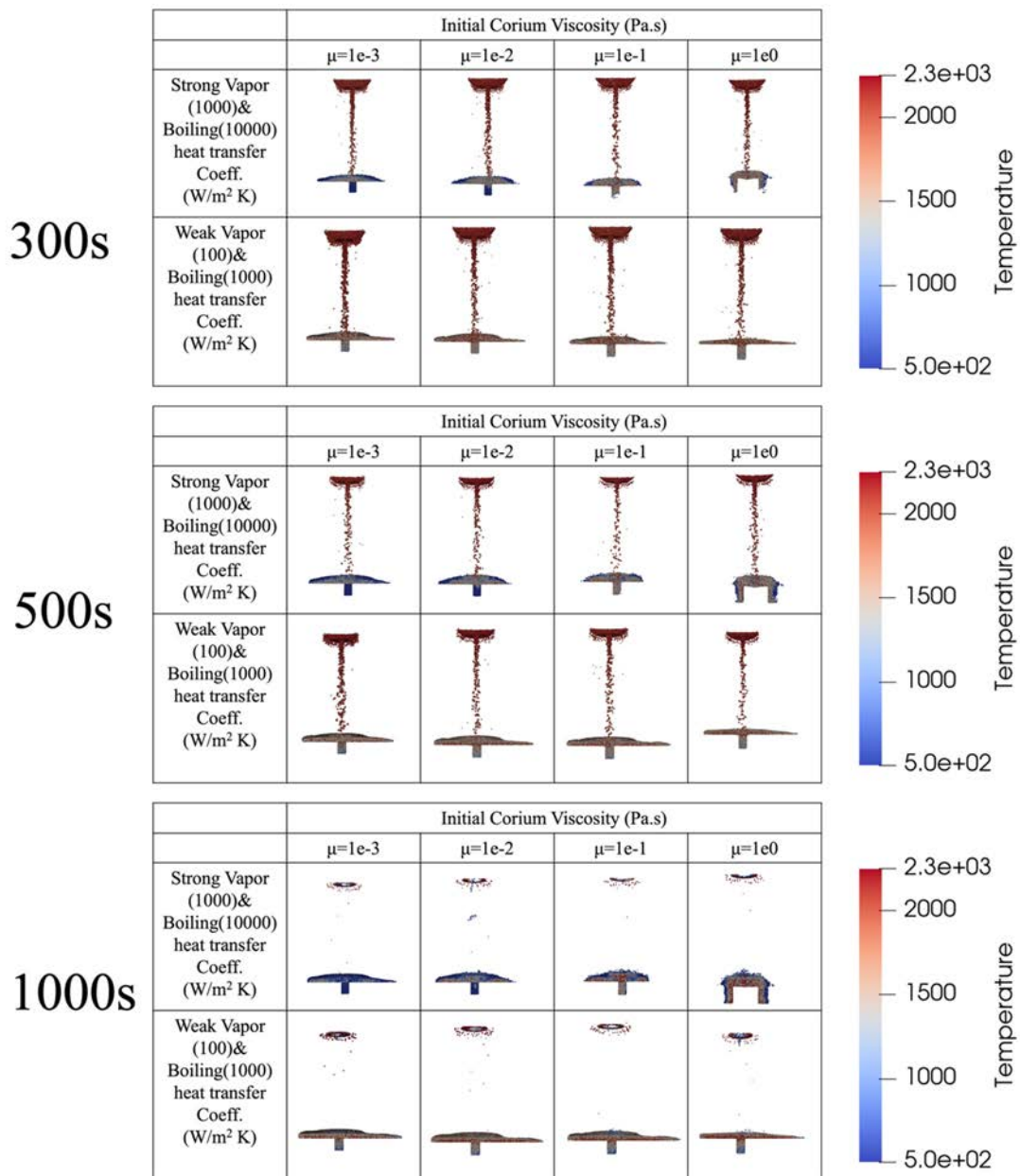


図 3.1.2-4 異なる初期粘性係数を有する溶融コリウムの異なる強制対流蒸気熱伝達率、沸騰熱伝達率下での拡散挙動及び温度分布（断面図）

(c) 考察及び3号機を対象とした燃料デブリ性状推定

東京電力ホールディングス株式会社（以下、「東京電力 HD」という。）が実施した PCV 底部の堆積物高さ分布について 3 次元復元処理した結果を図 3.1.2-5 に示す[6]。推定結果から中心付近が最も堆積物の高さが高く、その高さは約 3.0 m であると推定されている。堆積物の高さは燃料デブリが RPV から落下してきた場所、すなわち RPV 底部に開いた穴の位置と関係があると推定されている。以上から、3 号機では RPV 底部の中央付近に大きな破損口があるものと推定されており、その理由から中心付近で堆積物が最も高く堆積していると推定されている。また、3 号機の PCV 内の総堆積物量は全燃料の量を超える量であると試算されており、燃料だけでなく周辺の構造物等を巻き込みなが



ら流出・堆積したと考えられている。さらに、そのほとんどがペDESTAL内部に保持されていると考えられており、ペDESTAL外側への堆積物の流出は限定的である可能性が示唆されている。

以上の東京電力HDが実施した推定結果及び本数値解析により得られた結果を比較し、3号機の燃料デブリ性状を推定した。本数値計算結果において3号機のPCV堆積物形状同様、ペDESTAL内部で溶融物が山のように堆積する傾向にあったのは初期の溶融物粘性係数が高い条件（すなわち、 $\mu = 1.0 \times 10^{-1} \text{ Pa} \cdot \text{s} \sim 1.0 \times 10^0 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ ）かつ蒸気及び水による除熱効率が極めて高い条件の時であった（図3.1.2-2参照）。一般的に、溶融コリウムは酸化物含有量が多くなるほど、溶融物初期粘性係数が増加する。このことは、3号機においてPCVへ流出した溶融物の組成は主として「酸化物」であることを示唆している。また、この流出した酸化物系溶融コリウムがペDESTAL内部に残存する飽和蒸気及び飽和水により急激に除熱され、広がることなく山型に堆積したと考えられる。

本研究から推定した燃料デブリ組成（すなわち、3号機のPCV上堆積物の組成は主として酸化物系の可能性があるという推定）の妥当性を評価するために、経済協力開発機構/原子力機関（以下、「OECD/NEA」という。）Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station（以下、「BSAF」という。）による燃料デブリ性状推定結果との比較を行った。図3.1.2-6に、各研究機関が推定した3号機PCV上の燃料デブリの組成割合を示す[7]。解析実施機関はInstitute of Applied Energy（以下、「IAE」という。）、JAEA、Institut de Radioprotection et de Surete Nucleaire（以下、「IRSN」という。）である。また、各研究機関が解析に使用した計算コードは、IAEがSAMPSON-B 1.4 beta、JAEAがTHALES 2、IRSNがASTEC V2.0 rev3 p1である。IAE、JAEA、IRSNはそれぞれ80%、80%~90%、70%のPCV上に堆積した燃料デブリが酸化物で構成されていると試算した、すなわち、すべての研究機関が3号機のPCV上に落下した燃料デブリの主組成は酸化物であると推定した。以上から本研究により得られた結果を基に推定した3号機のPCV上燃料デブリ性状「3号機のPCV上堆積物の組成は主として酸化物系との推定」は、過去に実施されたBSAF projectベンチマーク結果と比較して、妥当な推定であると言える。

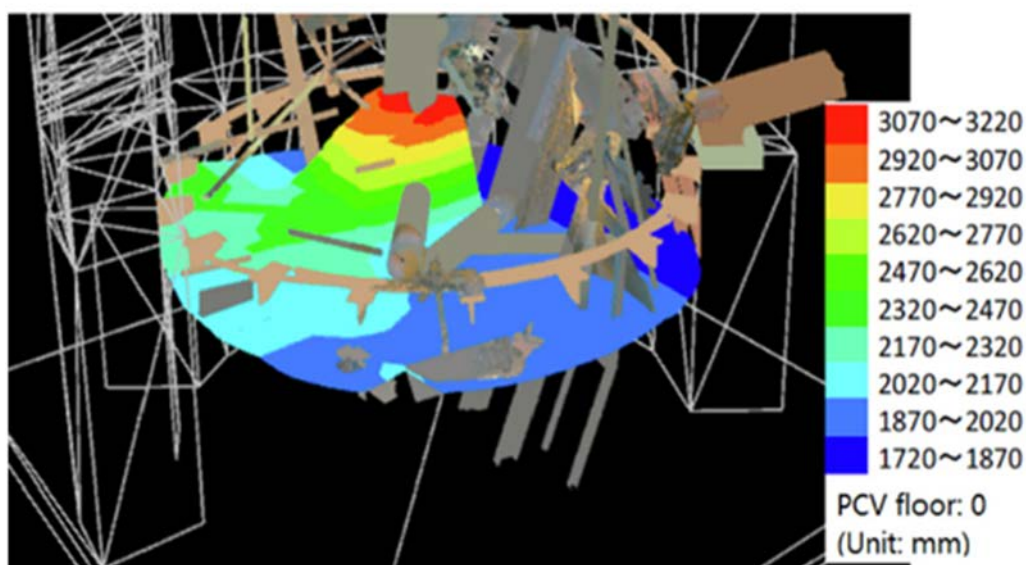


図 3.1.2-5 3D 復元処理をした 3 号機 PCV 底部の堆積物高さ分布 [6]

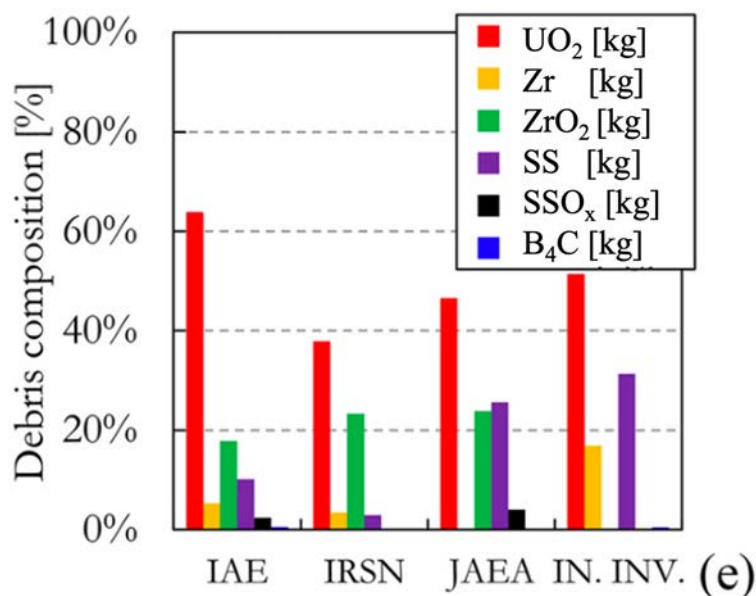


図 3.1.2-6 OECD/NEA BSAF project で実施された 3 号機 PCV 上の燃料デブリ組成推定結果 [7]

③ 令和 5 年度の研究計画

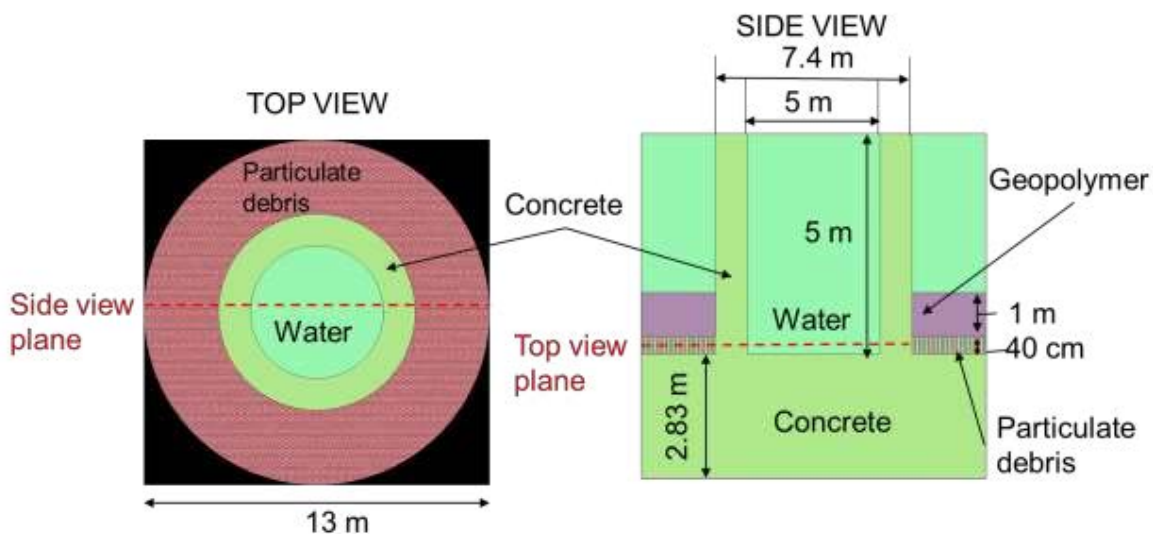
令和 4 年度は、フランスで実施した VULCANO VE-U9 実験結果を用いた高粘性流体解析手法の妥当性評価及び 3 号機を対象とした実機規模の計算を実施した。令和 5 年度は、主として以下の項目に関して研究を実施する予定である。

- 1 号機を対象とした燃料デブリ拡散に関する数値計算
- 拡散したデブリ中での物質分布を推定するための、炉内成層化を想定した燃料デブリ拡散数値計算（気中/水中）
- 2 号機の燃料デブリ分布を推定するためには、RPV から固体状態のままペDESTALへ落下したデブリの挙動評価が必要と考えられるが、現在の MPH 法では固体や剛体の流体中での挙動を正確に計算することができない。そのため、固体の挙動を計算する手法（Discrete Element Method（以下、「DEM」という。））等と MPH 法の連成計算手法の構築を開始する予定とする。

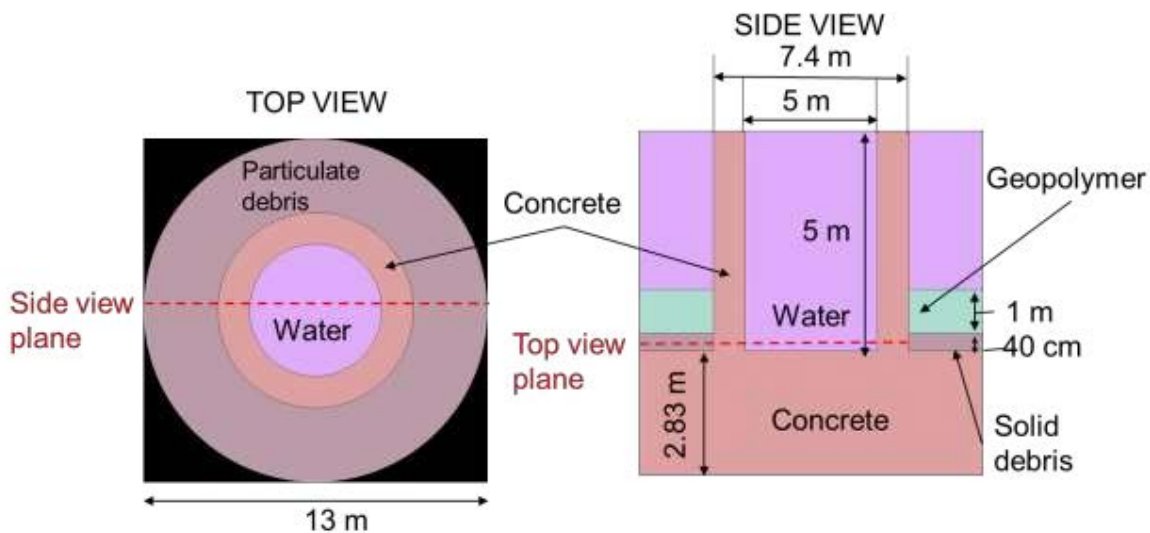
(2) 臨界評価

【令和 3 年度までの概要】

令和 3 年度では PCV 底部を模擬した体系を作成し、PCV 底部にある燃料デブリの臨界評価に関する予備的な解析を 3 次元連続エネルギーモンテカルロ粒子輸送コード Serpent2 により実施した。図 3.1.3-1 に実施した解析の体系を示す。解析より燃料デブリの形状によって臨界評価基準となる実効増倍率  $k_{\text{eff}}$  が大きく変動することが明らかとなった。表 3.1.3-1 に実施した解析結果を示す。



a. 粒子状デブリをジオポリマーで被覆したペDESTAL 3D 形状



b. 固体状デブリをジオポリマーで被覆したペDESTAL 3D 形状

図 3. 1. 3-1 燃料デブリをジオポリマーで被覆した場合のペDESTAL 3D 形状  
(a. 粒子状デブリ、b. 固体状デブリ)

表 3. 1. 3-1 k-eff の計算結果

	k-eff
Particulate debris	1.05±0.0018
Solid debris	0.568±0.0029

【令和4年度実施内容及び成果】

① 背景

令和3年度に得られた成果より、燃料デブリの形態（例えば、粒子状のデブリまたは固体）が  $k\text{-eff}$  に大きな影響を与えることが明らかとなった。しかしながら、実際の燃料デブリの分布は未知である。令和4年度では、燃料デブリの形態、高さを変化させた保守的デブリ分布条件を作成する。この条件を用いて、止水材（ジオポリマー）適用時に保守的分布条件下であっても未臨界が維持されるために必要となる中性子吸収材の添加量を推定する。

②解析条件

まず予備解析として保守的デブリ分布条件を探索し、次に保守的分布条件でジオポリマー注入を行った場合の解析を行った。前者の条件を表3.1.3-2に、後者の条件を表3.1.3-3に示す。なお、参考として保守的デブリ分布条件解析体系の1例を図3.1.3-2に示す。

表 3.1.3-2 保守的デブリ分布条件探索の解析条件

デブリ組成	UO <sub>2</sub> (4 wt%濃縮)
デブリ体積	7,025,547 cm <sup>3</sup>
デブリ形態	固体/ 水-ウラン均質混合/ 粒子状ウラン均一分布
デブリ領域の高さ (固体以外は100 cm 固定)	10 cm/ 50 cm/ 100 cm
デブリ領域の形状 (固体以外は円柱固定)	直方体/ 円柱/ 六角柱
デブリ粒径 (粒子状ウランのみ)	0.1 cm/ 0.5 cm/ 1 cm/ 2 cm/ 5 cm/ 10 cm
デブリ粒径/ピッチ比 (粒子状ウランのみ)	0.25/ 0.35/ 0.4/ 0.45/ 0.5/ 0.6/ 0.75/ 0.88/ 0.93/ 1

表 3.1.3-3 保守的分布条件でのジオポリマー注入解析条件

デブリ組成	2011年当時の燃料棒組成[1]
デブリ体積	7,025,547 cm <sup>3</sup>
デブリ形態	粒子状ウラン均一分布
デブリ領域の高さ	100 cm
デブリ粒径	1 cm
デブリ粒径/ピッチ比	0.75
ジオポリマー組成	blank/ B <sub>4</sub> C 0.1 wt%添加/ Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 0.05 wt%添加

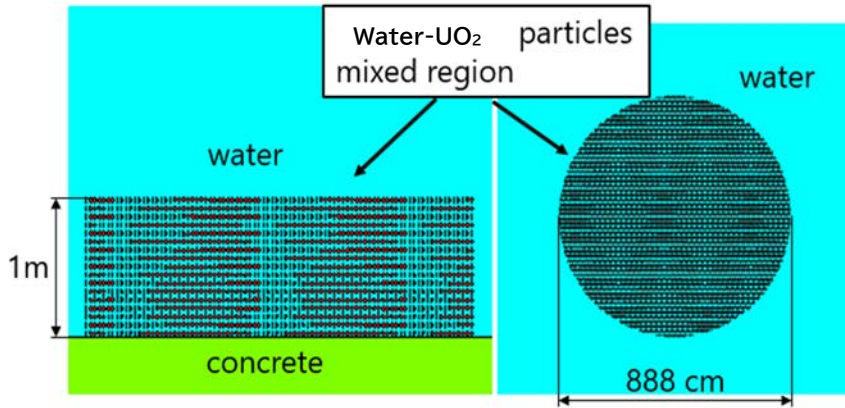


図 3.1.3-2 保守的デブリ分布条件解析体系の例（粒子状ウラン均一分布）  
（左：側面図、右：上面図）

### ③解析結果

まず、予備解析として実施した保守的デブリ分布条件探索の結果を示す。固体 UO<sub>2</sub> の解析結果を図 3.1.3-3 に示す。図より、k-eff はこの計算体系ではデブリ領域の形状や高さの影響を受けないことが分かったため、以降のデブリ領域は高さ 100 cm 円柱形状として解析を行った。図 3.1.3-4 に水-ウラン均質混合のケースを示す。ここではウランと水の混合割合を変化させて保守的な k-eff が得られる条件を探索した。最後に、図 3.1.3-5 は粒子状ウランのケースを示す。最も保守的な分布条件（すなわち、最も k-eff が高いケース）は粒子状ウランが均一分布しているケースとなった。具体的には、ウラン粒径が 1 cm、ピッチが 1.33 cm のものである。

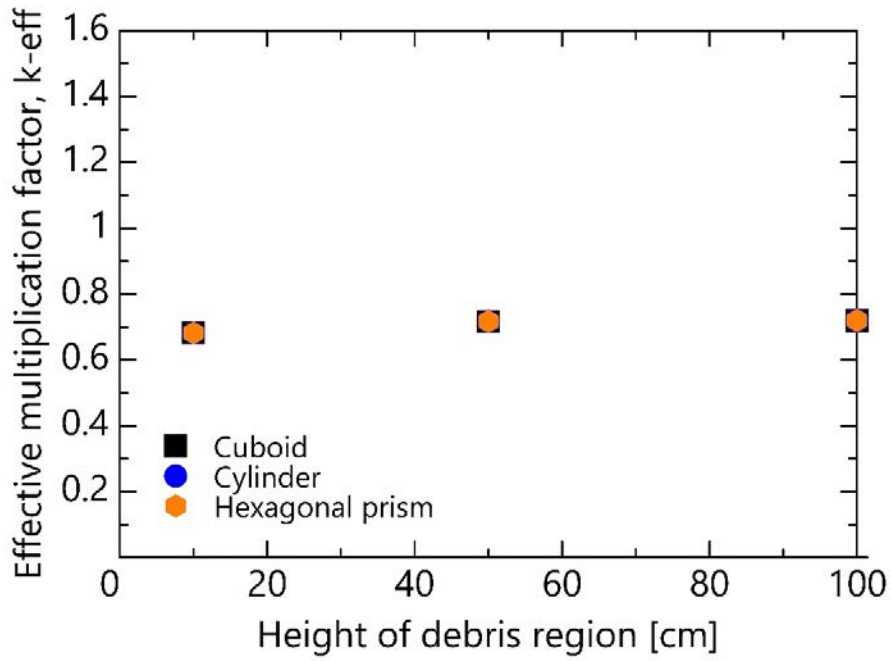


図 3. 1. 3-3 保守的デブリ分布条件探索結果 (固体  $\text{UO}_2$ )

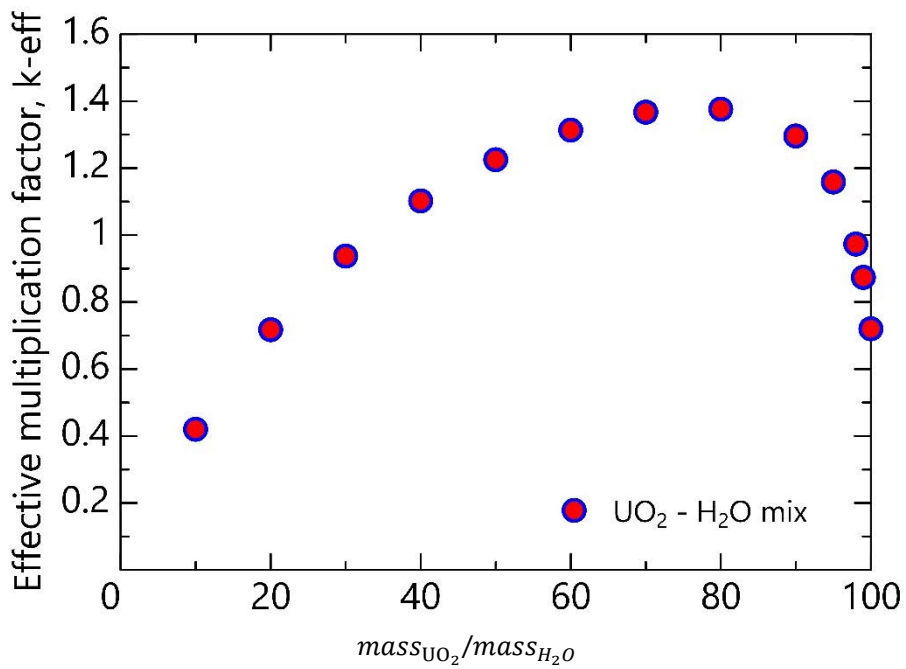


図 3. 1. 3-4 保守的デブリ分布条件探索結果 (水-ウラン均質混合)

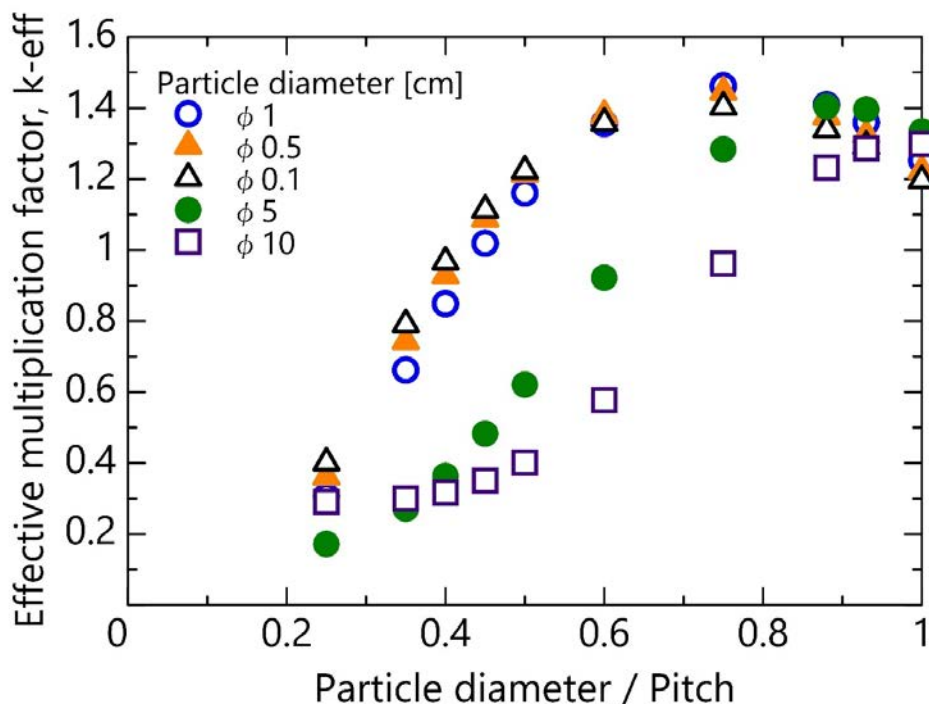


図 3.1.3-5 保守的デブリ分布条件探索結果 (粒子状ウラン均一分布)

次に、保守的分布条件でのジオポリマー適用の結果を示す。なお、以降の結果は現実的な解析を行うために燃料条件が 2011 年当時の燃焼済み組成となっている。図 3.1.3-6 に保守的デブリ分布条件にジオポリマーを適用した際の k-eff 並びに中性子吸収材を添加したジオポリマーを適用した際の k-eff を示す。この図より、中性子吸収材を適切に添加した場合、保守的なデブリ分布条件にジオポリマーを適用した際であっても未臨界が維持されることが明らかとなった。なお、今回の解析では燃料とジオポリマーのみを用いたが、実際の炉内環境ではデブリは制御棒をはじめとする炉内構造物が一体となって存在しているため、より低い k-eff となることが考えられる。

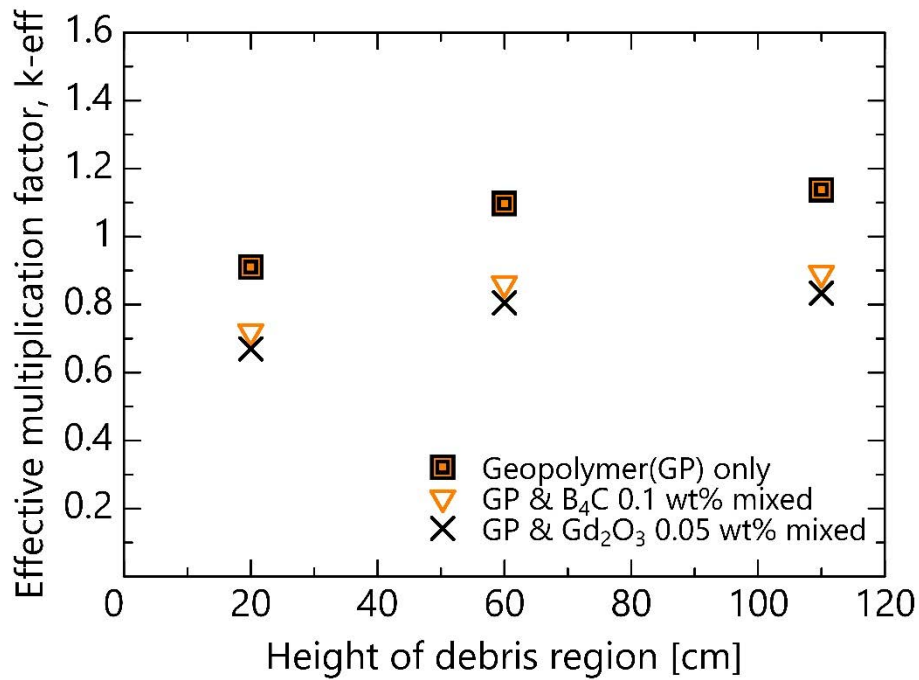


図 3.1.3-6 保守的デブリ分布条件へのジオポリマー適用時の解析結果

\* まとめ

燃料デブリを模擬した酸化物や金属溶融物の溶融物落下試験並びに粒子法によるシミュレーションを継続実施するとともに、溶融金属の水表面への落下実験やコンクリートに落下した場合の燃料デブリ拡散・ガス発生モデルについて数値計算を継続した。

また、止水材で被覆した場合における臨界評価を継続した。



## 3.2 PCV 底部最適止水・補修材評価

### 3.2.1 止水・補修試験及び評価（東京大学）【令和3年度～令和4年度】

#### 【令和3年度までの概要】

ジオポリマー添加材条件毎の流動性評価を行い、混練直後の状態で添加割合が大きいほど流動性が低下する結果を得た。また、止水・補修材として臨界防止材や水素発生抑制材を添加したジオポリマーを作製して、スランプフロー試験、粘度測定、圧縮強度試験、熱量測定等を実施した。併せて、超重泥水について添加剤の効果を確認した。

具体的には、スランプフロー試験及び粘度測定の結果から、添加剤の割合を調整することでジオポリマーの流動性を制御可能であることを確認した。また、添加剤の種類や割合に応じて強度や熱伝導性を改善できることを確認した。

次にジオポリマーを用いた PCV 止水試験の一環として、メッシュや温度制御を活用した貫通部からの漏洩防止手法を検討し、止水試験を開始した。

また、より規模の大きな試験として、PCV 底部を模擬した環境において、ジオポリマー注入による模擬開口部の止水可否を確認し、流水の圧力によって開口部付近からジオポリマーが流出するとの結果になった。ただし、試験体を切断した結果、水路なしで模擬ジェットデフレクター近傍はジオポリマーにより閉塞されていることが観察された。

強度試験として、ジオポリマーの圧縮強度試験を行い、放射性廃棄体に要求される基準強度、1.47 MPa を満足することが明らかとなった。具体的には、ジオポリマーのブランク材、再臨界防止を目的とした酸化ガドリニウムを添加したジオポリマー、水素発生の抑制を目的としたチタン及びマグネシウム粉末を添加したジオポリマー、ジオポリマー固化時の収縮抑制を目的としたケイ砂を添加したジオポリマーを試験に供した。さらに、養生環境の違い（気中/水中）並びに固化後の $\gamma$ 線照射が強度発現に与える影響も圧縮強度試験により確認した。

超重泥水については、高比重粒子を添加した場合でも、材料の均一性を保つことが可能であることを確認した。具体的には、臨界防止や水素発生抑制等を目的として添加されることの多い酸化ガドリニウムやパラジウム等と似た比重の物質であるヘマタイト粉末を混合した超重泥水を作製し、均質性評価を実施した。試験材として粘度が異なる4種類のヘマタイト混合超重泥水を作製した。超重泥水はメスシリンダー内にて24時間静置した後、メスシリンダー内の遊離水量の測定並びに複数の高さから超重泥水をサンプリングして、鉄含有率を測定した。結果より、遊離水は存在せず、鉄含有率は高さによらずほぼ同等の値であったことから、重泥水中に比重が大きく異なる高比重粒子を混合しても、均一性を保つことは十分可能であることが示された。

#### 【令和4年度実施内容及び成果】

##### (1) 流動性評価

###### ① 目的

ジオポリマーを用いてジェットデフレクター止水を達成するためには、ジオポリマーが施工可能な流動性を保ちながら、開口の高さまで積み上がる程度の粘性を有していることが求められる。よって、流動性・粘性を変化させたジオポリマーについて、作製条件による積み上がり傾向を把握することを目指した。また、粘度が異なるジオポリマーを用いた際の開口の閉塞性能を確認した。

## ② テーブルフロー試験条件・方法

本項では、作製したジオポリマーにテーブルフロー試験を実施し、流動性・積み上がりの傾向を確認した。表 3.2.1-1 に実施したテーブルフロー試験条件を示す。No. 2～No. 6 ではケイ砂添加材添加、含水率減少によってスラリーの液相を減少させたジオポリマーを作製した。ケイ砂はジオポリマーと不活性であることから、固化中の乾燥収縮によるひび割れ防止材や材料費の削減が期待される添加材料である。No. 7～No. 10 では固化反応を進展させるために、相対湿度 100 %の室温環境と、温浴による加温養生を行った。No. 11 では再臨界防止剤として酸化ガドリニウム、No. 12 では水素発生抑制のためのパラジウムアルミナを添加したジオポリマーの流動性能を確認した。

表 3.2.1-1 テーブルフロー試験条件

No.	確認目的	材料・添加物条件	測定タイミング
1	通常	ブランク	混練直後
2	液相減少	ケイ砂9号50wt%添加	混練直後
3		ケイ砂9号70wt%添加	混練直後
4		含水率40wt%減少	混練直後
5		含水率50wt%減少	混練直後
6		含水率60wt%減少	混練直後
7		固化進展	ブランク
8	ブランク		室温養生8h後
9	ブランク		室温養生9h後
10	ブランク		50°C加熱養生1.5h後
11	添加材の影響	酸化ガドリニウム2wt%添加	混練直後
12		パラジウムアルミナ1wt%添加	混練直後

## ③ 結果・考察

図 3.2.1-1 は全条件のフロー試験結果である。棒グラフはフロー値、橙点は厚み測定結果に対応する。ジオポリマーに添加する珪砂の割合を大きくすると、フロー値が低下し積み上がりが高くなることが確認された。含水率を低下させた場合も同様の傾向であった。室温・加温養生条件の時間によっては、積み上がる量が本試験の中で最も大きくなった。図 3.2.1-2 は室温養生 9 時間後のジオポリマーの広がりの様子である。7 時間経過時点では円状に等方の広がりを見せたが、8 時間・9 時間が経過した時点では写真の通り固まった形状を維持しながら落下するほど粘度が高まった状態であった。以上 2 条件では、等方に広がらず測定条件を統一できなかったことから、厚みのみを測定した。ジオポリマーの重合反応速度が高まる加温環境では、室温に比較して短い作業時間で目的粘度を発現できることが示唆された。養生によって固化を促進する場合は、養生環境と粘度発現時間の傾向を把握した利用が目指される。以上より、添加物や作成条件によって流動性や積み上がり量が制御可能であることが確認された。

酸化ガドリニウムとパラジウムアルミナの添加は、ジオポリマーの流動性に大きく影響しないことが確認された。それぞれ再臨界防止、水素発生抑制機能を追加するために要する質量割合は 2 wt%程度と小さいため、ブランク条件に近い流動性能を示したと考えられる。

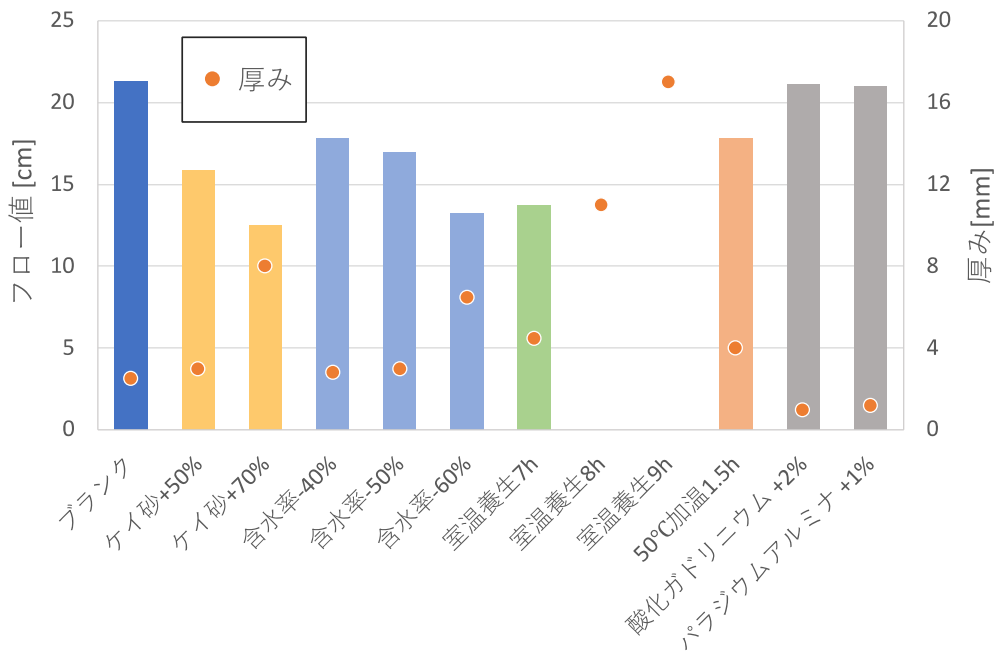


図 3.2.1-1 フロー試験結果と厚みの関係



図 3.2.1-2 養生 9 時間後のフロー試験の様子

(2) 閉塞試験

① 試験条件・方法

図 3.2.1-3 は試験体系の模式図と実際の開口の様子である。34×55×88 mm の容器内部に、厚み 1 cm の仕切りを設置した。仕切りの底部には直方体型の開口部があり、はじめはストッパーにより塞がれた状態とした。容器手前の領域をジオポリマーで満たした後、ストッパーを離すことにより開口からのジオポリマーの流出を開始させた。流出が停止した後、注入領域に積み残ったジオポリマーの高さを測定した。表 3.2.1-2 は実施した試験条件一覧である。表中の「隙間」「注入領域」で指定される長さは図 3.2.1-3 の側面図で示される位置と対応している。試験 2 では室温養生により粘性が高まったジオポリマーの閉塞性能を確認した。試験 3 では注入スケールと開口の大きさが変化した場合の影響を確認した。

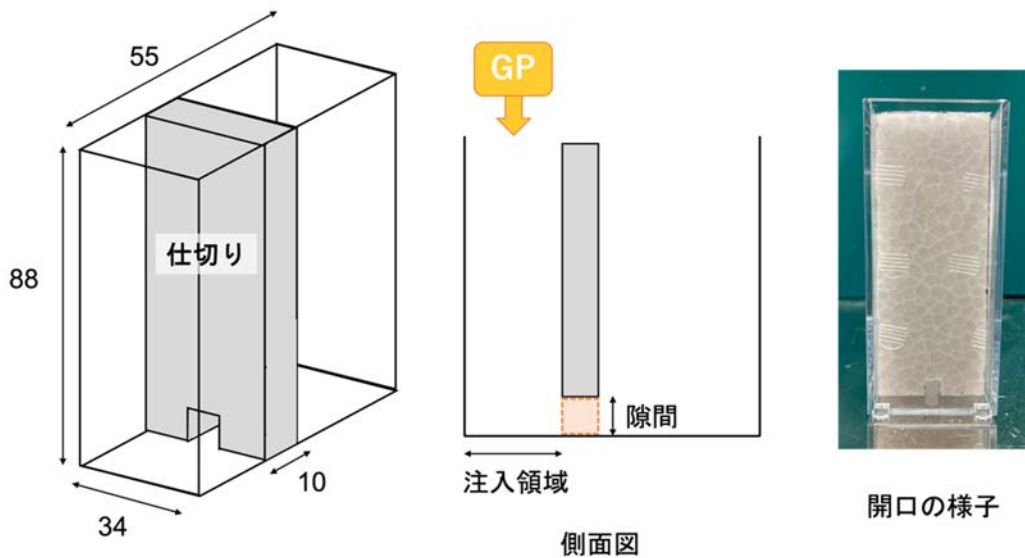


図 3.2.1-3 閉塞試験体系

表 3.2.1-2 閉塞試験条件

No.	ジオポリマー	隙間	注入領域
1	ブランク	5mm	10mm
2	養生7時間	5mm	10mm
3	養生7時間	1cm	20mm

② 結果・考察

積み残った高さ測定結果と、注入全量に対し開口から流出したジオポリマー量の割合を表 3.2.1-3 に示す。図 3.2.1-4 は試験後の流出結果を 3 条件並べた様子である。試験 1 では、ストッパーを外すとジオポリマーが速やかに仕切り外領域へ流出して高さが平坦に近づいた一方、試験 2 での開口部からの流出は限定的であった。開口サイズや注入スケールは同一であることから、固化進展により粘度が高まったジオポリマーは開口の閉塞に有効であることが確認された。開口を 1 cm に拡大した試験 3 では、試験 2 と同一粘度のジオポリマーを用いたが、試験 1 と同様、全体が平坦になるまで流出した。以上より、ジオポリマーの粘度を高めることは開口の閉塞に有効であるが、それぞれ粘度のジオポリマーが閉塞可能な開口の大きさを把握する必要があることが明らかになった。

表 3.2.1-3 閉塞試験結果

No.	積み残り[mm]	流出量割合[%]
1	20	77.3
2	84.5	4.0
3	40.5	77.0

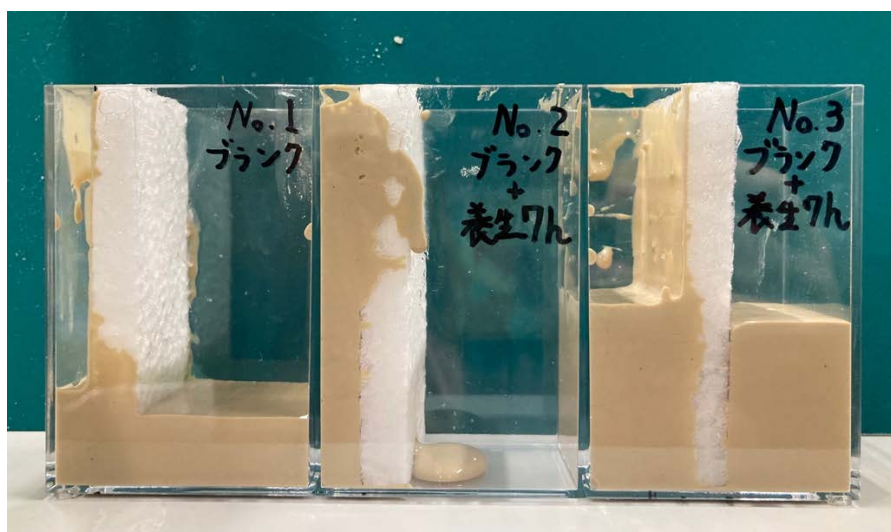


図 3.2.1-4 開口部閉塞の様子（左から試験 1、2、3）

### (3) ジオポリマーを用いた PCV 止水試験

#### ① 目的

令和 3 年度と同様に、PCV 実環境を再現した体系において、前回の結果を踏まえた工学的施工とジオポリマー注入を組み合わせた止水技術の実機適用性を評価した。

#### ② 試験条件・方法

図 3.2.1-5、図 3.2.1-6 に、止水試験体系の模式図と試験水槽の写真を示す。1 辺 60 cm の立方体水槽の側面下部に直径 34 mm の開口配管と接続構造を設け、PCV 底部のジェットデフレクター開口部が模擬されている。試験水槽から流出した水が流れ込むバッファタンクとの間に水位差を設け、ポンプ接続によって試験水槽に水を戻すことで、PCV 内の流水環境を再現した。以上の試験水槽にジオポリマーを注入し、模擬開口部における止水可否を確認した。

表 3.2.1-4 に、2 回実施した止水試験条件を示す。いずれも収縮量低減、粘度増加目的でケイ砂 9 号を 30 % 添加したジオポリマーを用いた。試験 1 ではジオポリマーを混練し、すぐに注入試験を行った。試験 2 ではより高粘度のジオポリマーを作製する目的で、ドラム缶ヒーターを用いた加温養生を計 60 分行った後に注入した。両試験とも混練直後、かつ試験 2 では養生中の 10 分毎にテーブルフロー試験を実施し、注入時のジオポリマーの粘度・流動性が止水目的に適切であるかを現場判断した。ジオポリマーの作成規模が大きくなるほど、外部条件の影響を受け、発現する性能を正確に予測することが難しいためである。本試験では目的部へ積み上がりやすくなる高粘性のジオポリマーを目指す一方で、注入完了時まで施工に十分な流動性を維持する状態を目標とした。ジオポリマーの流下中はバイブレーターでドラム缶出口付近に振動を与えながら流下を行った。両試験ともジオポリマー容器の底部中央から 10 cm の位置に熱電対を設置し、試験中の温度を確認した。

また、令和 3 年度に実施した結果、開口部からジオポリマーが多量流出したため、令和 4 年度はジオポリマーを注入する前に開口の大きさを縮小する材料を設置した。試験 1 では開口の形に沿った高強度合成繊維布製型枠（旭化成株式会社製、ファブリフォーム）の内部に超吸水性樹脂を投入したものを事前に作製した。以上の型枠を水槽内に設置すると、

ポリアクリル酸ナトリウム吸水ポリマーが水を吸収して膨らみ、開口部周囲を囲う状態となった。試験 2 ではナイロン製防水シートで開口を覆うように上部から吊り下げた。図 3. 2. 1-7 は以上の開口縮小施工を行った開口部の様子である。

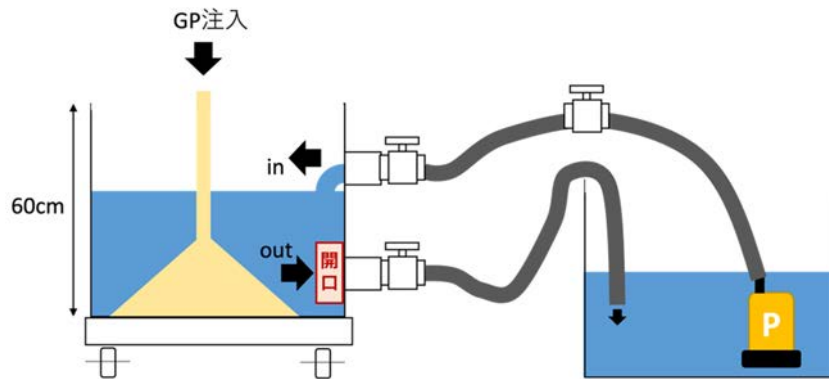


図 3. 2. 1-5 止水試験模式図

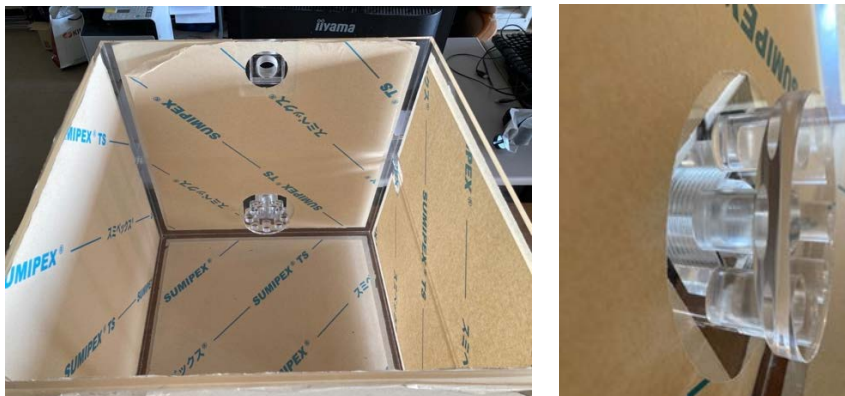


図 3. 2. 1-6 止水試験用水槽と開口部の様子

表 3. 2. 1-4 止水試験実施条件

試験	1回目	2回目
気温[°C]	10.8	14.3
湿度[%]	31	26
添加物条件	ケイ砂9号30%添加	ケイ砂9号30%添加
加温養生	なし	30°C 20分 → 50°C 40分
初期流量[L/min]	9.96	9.90
開口縮小条件	布製型枠内に吸水ポリマーを投入	防水シートで覆う

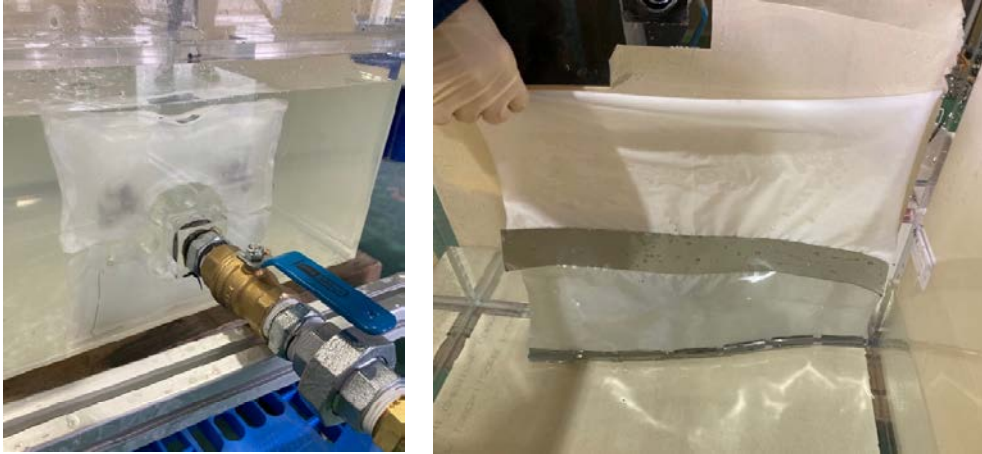


図 3.2.1-7 開口部縮小施工の様子（左：試験 1、右：試験 2）

### ③ 結果・考察

図 3.2.1-8、図 3.2.1-9 は混錬から試験終了までのジオポリマー内部温度測定の結果である。2 回とも作製直後の内部温度はおおよそ 14 °C で同一であった。加熱養生を行った試験 2 では 19 °C まで上昇し、注入中も保たれていた。

図 3.2.1-10 は試験 1、試験 2 で実施したテーブルフロー試験の全結果である。混錬直後の状態は、試験 1 のジオポリマーの方が試験 2 より低い流動性を示した。両条件では混錬手順や温度などの外部環境条件は同一であったため、作成材料にロット番号が異なるメタカオリン粉末を用いたことが流動性能の差に影響したと考えられる。

試験 2 で 60 分間の加温養生を行っている間のジオポリマーのフロー値は 19 cm 前後でばらつき、大きく固化が促進される変化は確認されなかった。ジオポリマーへの加温は図 3.2.1-11 橙色の底部加熱ヒーターを用いて行ったため、底部側のジオポリマーが直接的に入熱の影響を受けた。テーブルフロー試験は容器上部のジオポリマーを用いて実施した結果を表しており、熱伝導率が低いジオポリマー内で場所や領域によって固化状況に差異が生じた可能性がある。また、本試験では、加温養生中に底部が集中して固化することを避けるため、作業員の攪拌による振動を与え続けたことも流動性の変化が小さかった要因と考えられる。

以上より、実機を想定し試験規模が大きくなるほど、ジオポリマーの粘度・流動性能は外部環境や作成材料、施工方法、時間進行、位置などの様々な条件によって影響される可能性があることが明らかになった。開口部の止水閉塞を達成するためには、注入に十分な流動性を維持しながら、高粘性のジオポリマーの作製が求められる。現場でテーブルフロー試験を実施することは、作製したジオポリマーの状態を簡易操作で判断できる指標として有効である。

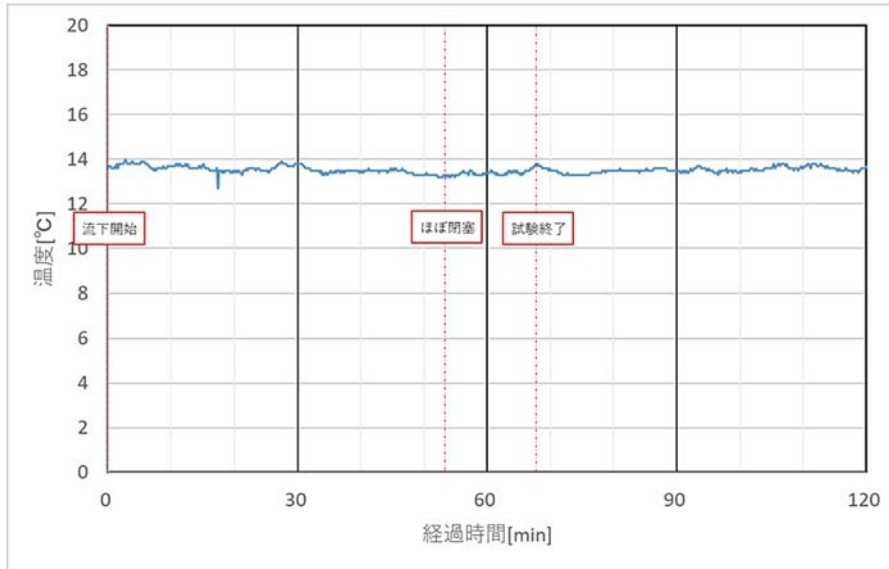


図 3.2.1-8 ジオポリマーの温度変化 (試験 1)

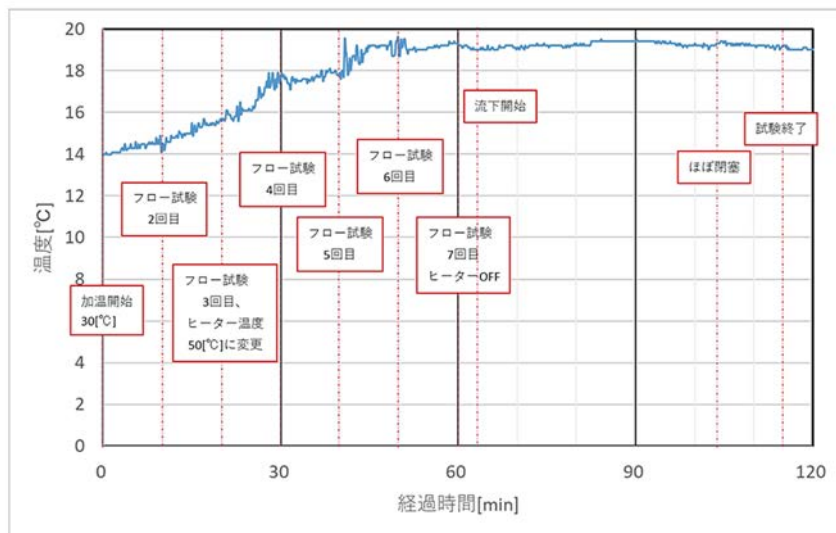


図 3.2.1-9 ジオポリマーの温度変化 (試験 2)

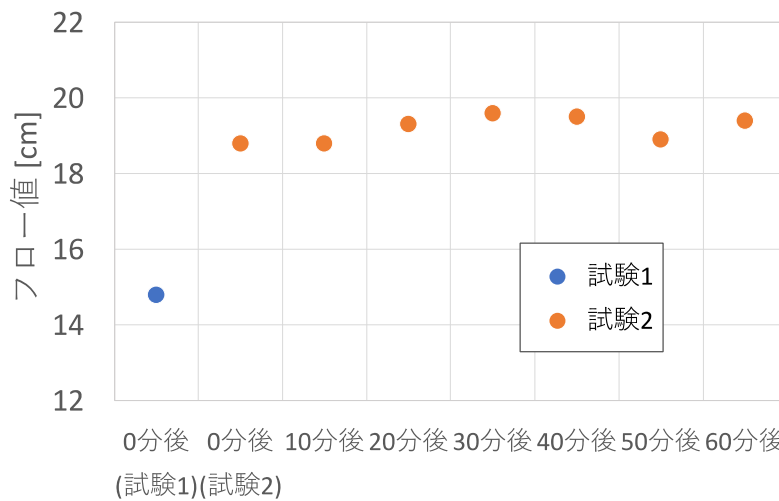


図 3.2.1-10 フロー試験結果 (試験 1) (試験 2)





図 3. 2. 1-11 ドラム缶ヒーター

ジオポリマーを流水水槽に注入した結果、2 回の試験とも開口部の止水が確認された。図 3. 2. 1-12 は試験終了後の水槽の状態である。注入量が少ない初期段階では、開口から水とともにジオポリマーが流出していたが、積み上がる高さが高くなるに連れ流出量が減少し、開口部が閉塞した。両条件とも最終的なジオポリマーの注入高さはおよそ 17 cm であった。開口の大きさを縮小するために設置した布製型枠・防水シートは、ジオポリマーの流出量を減少させ、対象領域の充填、閉塞達成に有効であった。布製型枠工法には目的に沿った任意形状に成型が可能かつコンパクトで持ち運びが容易などの利点がある一方、設置方法などの未知数な点がある。よって、実施工で要求される機能を整理し、満たす施工方法を選択、改良して用いることが重要である。以上より、開口を縮小する施工とジオポリマー注入技術を組み合わせた場合の、止水工法の実機適用性を確認した。



図 3. 2. 1-12 止水試験終了後の水槽の状態（左：試験 1、右：試験 2）

図 3. 2. 1-13 は令和 3 年度の止水試験で注入したジオポリマー固化体の断面の様子である。令和 3 年度の報告書では、ジオポリマーのみを注入した同様の試験体系について、流水の循環を停止した後開口が閉塞された結果を報告した。およそ 1 ヶ月後にワイヤーソー

を用いて切断を行った結果、充填して積み上がったジオポリマーは隙間や水道を生じることなく固化が進展し、目的部への閉塞性能に影響がないことが確認された。

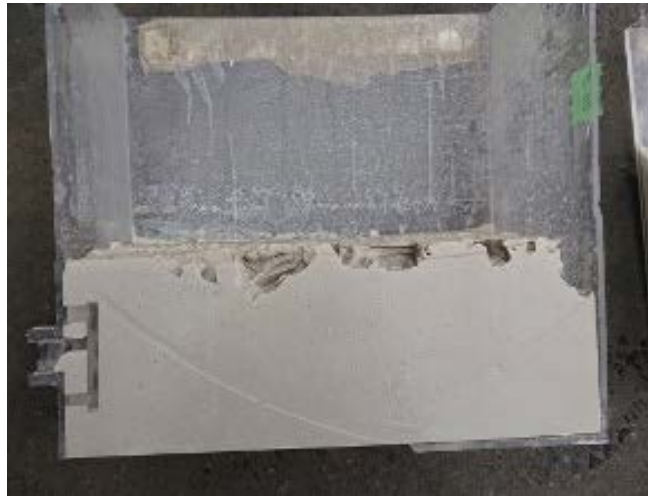


図 3.2.1-13 ジオポリマー固化体切断面（令和3年度分）

(4) 強度試験

① 引張強度試験

(a) 目的

令和4年度では、実施工を念頭に置いて上下2層に打ち重ねを行った試験体を作製した。実際に止水材を一度に注入することは難しい、もしくは何らかのトラブルにより1度に必要量の止水材が注入できない状況が発生した場合、先に注入した層と後から注入した層とで不連続面が発生する可能性がある。このような場合に備えて打ち重ね時間を変化させて試験体を作製し、ジオポリマー同士の界面強度を確認することを目的に単軸引張試験を実施した。さらに、3.2.3項にて後述する照射試験を、いくつかのサンプルに対して実施した。図3.2.1-14に今回の試験体作製フローを示す。

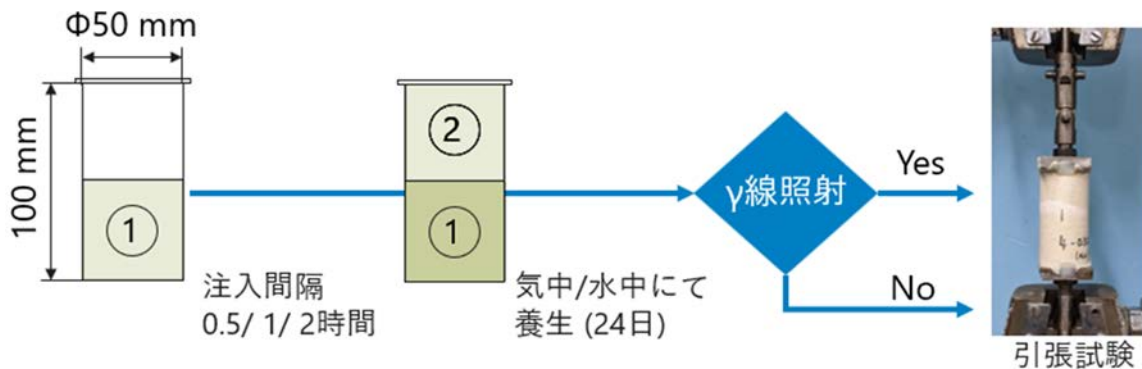


図 3.2.1-14 引張試験体作製フロー

(b) 実験方法・条件

表 3.2.1-5 に引張強度試験に供した試験体作製条件を示す。なお、非照射試験体のレファレンスデータについては、令和4年度 IRID - 日立GEプロジェクト「福島第一原子力発電所燃料デブリ取り出し上部接近工法」の研究成果[8]を参照する。

作製したジオポリマーについては、実施工を想定した際には収縮割れ対策として骨材は必要となると考えられ得るため、すべての試験体にケイ砂を 30 wt%添加している。また、作製後の養生環境は、気中・水中・高温水中 (80 °C) と 3 条件を用意し、ジオポリマーが適用できる施工環境についての知見を得ることとしている。投入間隔については、上図にあるようにはじめに試験体型枠の半分 (98 mL) ジオポリマーを注入し、一定時間経過後に新たに作製したジオポリマーを残り半分 (98 mL) 注入した。2 層に打ち重ねする際のパラメータとして打ち重ね間隔を 3 条件設定した。条件の決定には日本建築学会編 建築工事標準仕様書・同解説 JASS5 鉄筋コンクリート工事[2] 記載のコンクリート許容打ち重ね時間が、環境温度 25 °C 以上においては 2 時間以内であることから、これを参考に 0.5 時間、1 時間、2 時間と設定した。さらに、一部試験体については投入容器を 2 種類用意した。1 つは通常のコップ容器、もう 1 つはコップ容器の側面に直径  $\phi 4$  mm 程度の穴が千鳥状に開けられたものである。これにより、ジオポリマーの固化進展時に外部環境に接する面積が大きくなることから、より実際の環境に近い条件を準備し、外部環境との接触面積の影響を確認した。型枠の概略図を図 3.2.1-15 に示す。

$\gamma$ 線照射は、ジオポリマーを 24 日間養生後に型枠を取り外し、アトックス技術開発センター<sup>60</sup>Co  $\gamma$ 線照射施設に持ち込み、 $\gamma$ 線照射を行った。照射試験の詳細は 3.2.3 項を参照のこと。

引張試験は一般財団法人建材試験センター中央試験所にて実施した。試験前に試料の両底面を研磨により面出ししたのちに、エポキシ樹脂系接着剤を用いて引張試験用鋼製治具を上下面に接着し、24 時間以上静置したのち試験に供した。試験は NEXCO 試験方法 422 (付着性能試験) を実施した。引張試験は株式会社前川試験機製作所製ねじ式万能試験機 MAG-2GVC-LF4 を使い、載荷速度  $0.06 \pm 0.04$  [N/(mm<sup>2</sup>・s)]にて実施した。試験においては、破断荷重を測定し、試験前の試験体断面積で除すことで引張強度を算出した。

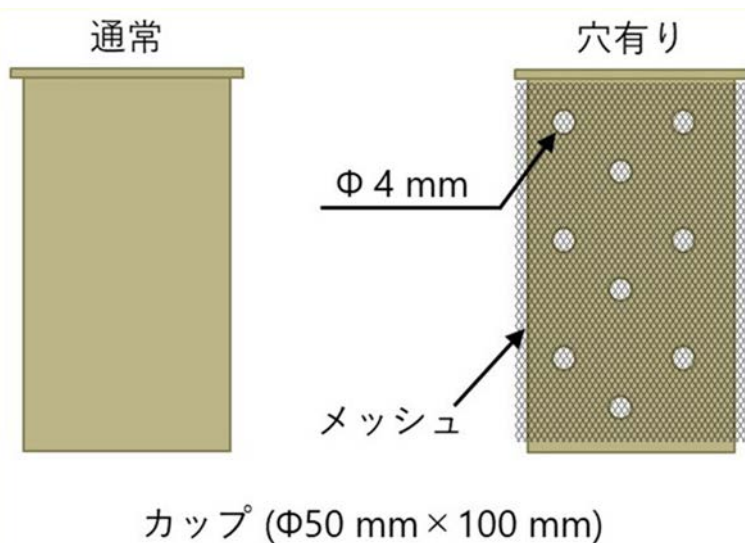


図 3.2.1-15 使用型枠概略図

表 3. 2. 1-5 引張試験体作製条件

試験体番号	作製条件				
	養生環境	投入間隔	使用型枠	積算線量[MGy]	添加材
0826-4	気中	0.5 h	通常 (穴なし)	非照射	ケイ砂 30 wt%
0826-5		1 h			
0826-6		2 h			
0826-7	水中	0.5 h			
0826-8		1 h			
0826-9		2 h			
0826-14	水中	1h	穴あり		
1013-4	気中	0.5 h	通常 (穴なし)	2.63	
1013-5		1 h			
1013-6		2 h			
1013-7	水中	0.5 h		2.63	
1013-8		1 h		2.45	
1013-9		2 h			
1013-10	高温水中 (80 °C)	0.5 h	2.45		
1013-11		1 h	2.36		
1013-12		2 h			
1013-14	水中	1h	穴あり	2.36	
1025-4-1	気中	0.5 h	通常 (穴なし)	0.063	
1025-5-1		1 h			
1025-6-1		2 h			
1025-7-1	水中	0.5 h			
1025-8-1		1 h			
1025-9-1		2 h			
1025-4-2	気中	0.5 h	0.0559 (80 °C環境)		
1025-5-2		1 h			
1025-6-2		2 h			
1025-7-2	水中	0.5 h		0.0645 (80 °C環境)	
1025-8-2		1 h			
1025-9-2		2 h			

## (c) 結果・考察

表 3.2.1-6 に、試験より得られた引張強度を示す。以降では、表内試験体番号 1013-4～1013-14 を高線量照射試験体、1025-4-1～1025-9-2 を低線量照射試験体と呼ぶ。図 3.2.1-16 に、気中養生にて作製した試験体の引張強度を、図 3.2.1-17 には水中養生にて作製された試験体の引張強度を示す。図 3.2.1-18 には高温水中養生にて作製された試験体の引張強度を示す。なお、穴付き容器の試験結果は穴なし通常容器とほとんど変わらない傾向であるが、容器に穴があることで試験体表面にくぼみが発生した。そのため、あくまで参考値とすることとし、図中には穴付き容器のデータは載せていない。

上記図より、80℃環境にて照射された試験体は極端に低い引張強度を示している。これは、図 3.2.1-19、図 3.2.1-20 で確認できるように、照射後の試験体表面には亀裂が多数存在していることに起因すると考えられる。高温気中環境で長期間放置されていたため、試験体が乾燥し収縮が加速され、ジオポリマー内部と外表面間での収縮量の差により亀裂が発生し、試験体に応力集中部が存在したために低い値となったと考えられる。

また、打ち重ね時間と引張強度との関係については、打ち重ね時間 2 時間のものは他のものより低い傾向にある。これは、先に投入した 1 層目のジオポリマーの固化が進展し、1 層目と 2 層目が一体化しづらかったためと考えられる。今回、打ち重ね間隔の参考として、コンクリート施工標準を採用したが、ジオポリマーは一般にコンクリートよりも可使時間が短いと言われており、打ち重ね間隔 2 時間では、十分に一体化されなかった可能性がある。

次に、養生環境の違いが打ち重ね部強度に及ぼす影響を考える。強度は水中養生により作製された試験片が高い傾向を示しており、気中・高温水中養生については水中養生と比べて少し低い値を示した。水中養生分は、ジオポリマーに常に水が供給されている環境であったため、ジオポリマー固化進展に伴って発生する脱水と外部から供給される水の量がバランスした状態で、ジオポリマー固化が進んだため、高い引張強度が得られたと推察される。

照射線量の影響については、低線量照射のものが高線量照射のものよりも低く、かつ非照射のものよりも低い引張強度を示している。この原因については、今後細孔分析や結晶構造解析などを行って考察を行う必要がある。

表 3.2.1-6 引張試験結果

試験体 番号	作製条件	積算線量 [MGy]	材齢 (引張試験時)	引張強度 [MPa] (カッコ内の値は再試験)
0826-4	気中養生、打ち重ね間隔 0.5 h	非照射	31 日	1.18
0826-5	気中養生、打ち重ね間隔 1 h			1.40
0826-6	気中養生、打ち重ね間隔 2 h			-
0826-7	水中養生、打ち重ね間隔 0.5 h			3.19
0826-8	水中養生、打ち重ね間隔 1 h			3.21
0826-9	水中養生、打ち重ね間隔 2 h			4.10
0826-14	水中養生、打ち重ね間隔 1 h、 穴あり型枠			0.621 (3.17)
1013-4	気中養生、打ち重ね間隔 0.5 h	2.63	63~69 日	1.78
1013-5	気中養生、打ち重ね間隔 1 h			0.174
1013-6	気中養生、打ち重ね間隔 2 h			0.0511
1013-7	水中養生、打ち重ね間隔 0.5 h	2.63		3.62
1013-8	水中養生、打ち重ね間隔 1 h	2.45		4.01
1013-9	水中養生、打ち重ね間隔 2 h			0.321
1013-10	高温水中 (80 °C) 養生、 打ち重ね間隔 0.5 h	2.45		0.715
1013-11	高温水中 (80 °C) 養生、 打ち重ね間隔 1 h	2.36		0.901
1013-12	高温水中 (80 °C) 養生、 打ち重ね間隔 2 h			0.798
1013-14	水中養生、打ち重ね間隔 1 h、 穴あり型枠	2.36		3.22
1025-4-1	気中養生、打ち重ね間隔 0.5 h	0.0630	62~71 日	0.476
1025-5-1	気中養生、打ち重ね間隔 1 h			0.982
1025-6-1	気中養生、打ち重ね間隔 2 h			0.411
1025-7-1	水中養生、打ち重ね間隔 0.5 h			0.103
1025-8-1	水中養生、打ち重ね間隔 1 h			0.144
1025-9-1	水中養生、打ち重ね間隔 2 h			1.08
1025-4-2	気中養生、打ち重ね間隔 0.5 h	0.0559 (80 °C環境)		0.0219
1025-5-2	気中養生、打ち重ね間隔 1 h			0.0442
1025-6-2	気中養生、打ち重ね間隔 2 h			-
1025-7-2	水中養生、打ち重ね間隔 0.5 h	0.0645 (80 °C環境)		0.103
1025-8-2	水中養生、打ち重ね間隔 1 h			0.0477
1025-9-2	水中養生、打ち重ね間隔 2 h			-

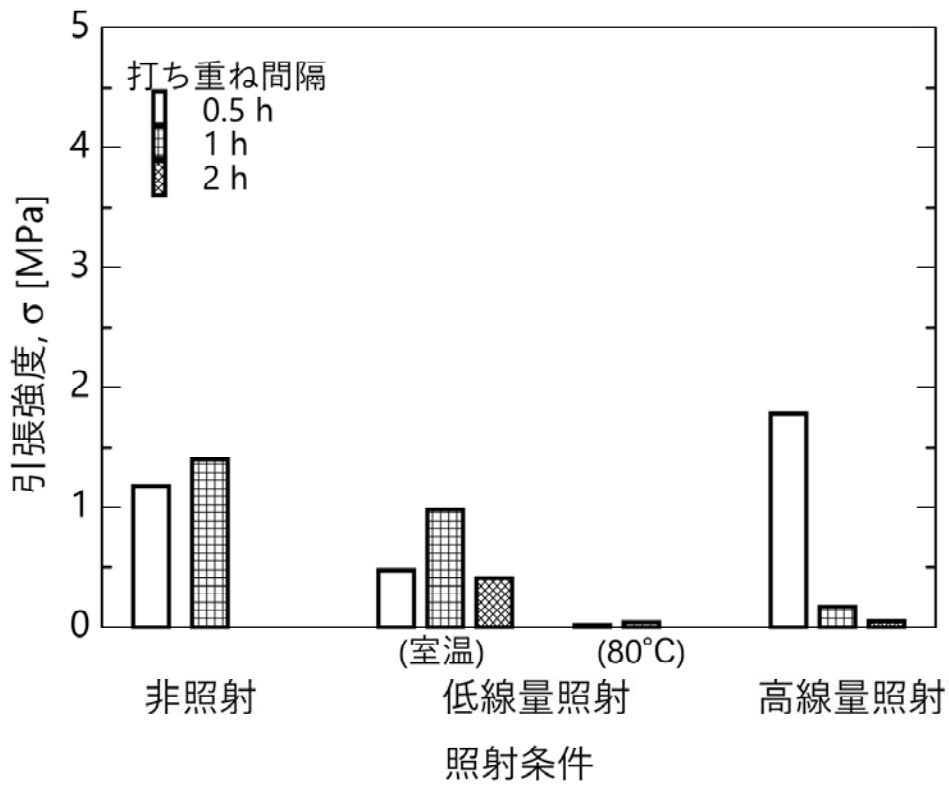


図 3.2.1-16 気中養生で作製された試験体の引張強度

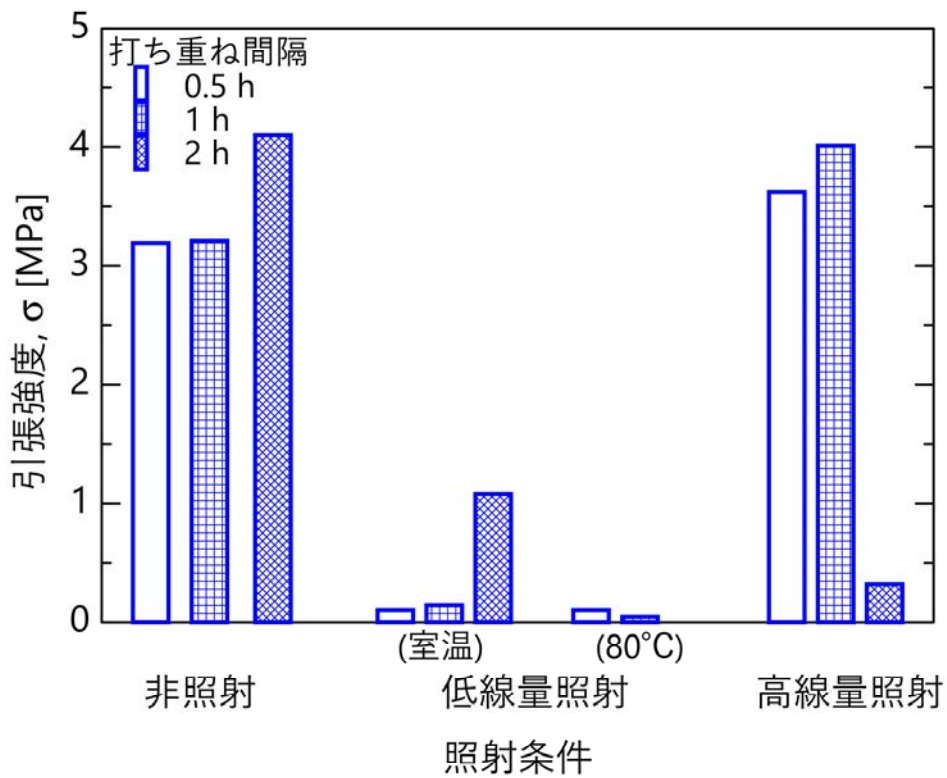


図 3.2.1-17 水中養生で作製された試験体の引張強度

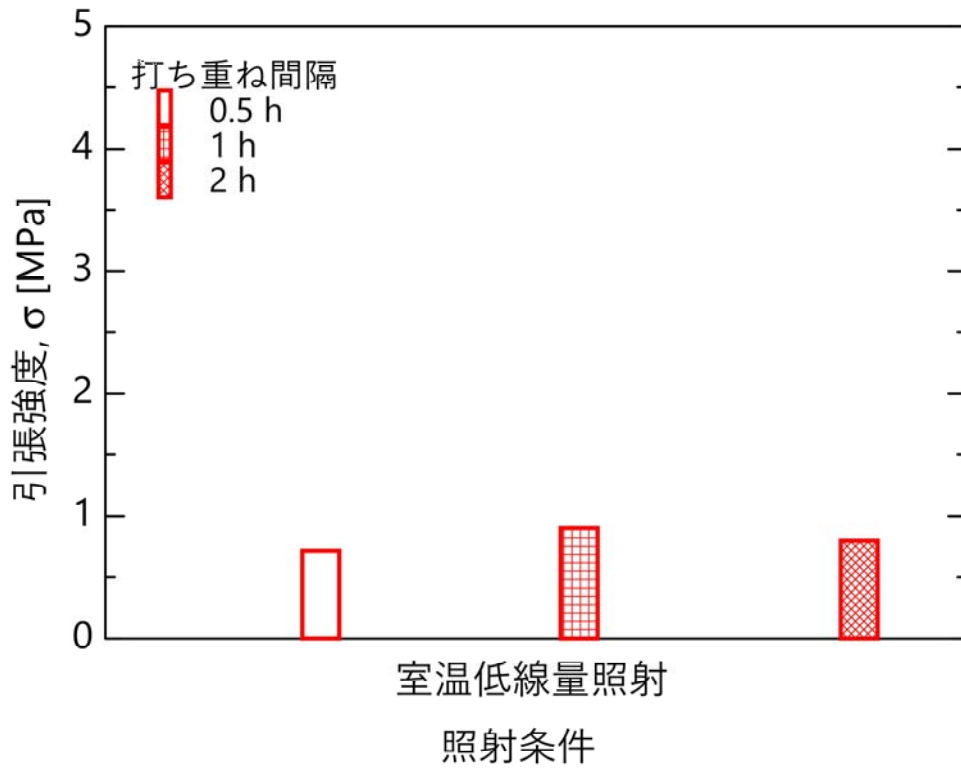


図 3.2.1-18 高温水 (80 °C) 中養生で作製された試験体の引張強度



図 3.2.1-19 80 °C環境にて $\gamma$ 線照射実施後の試験体 (気中養生分)



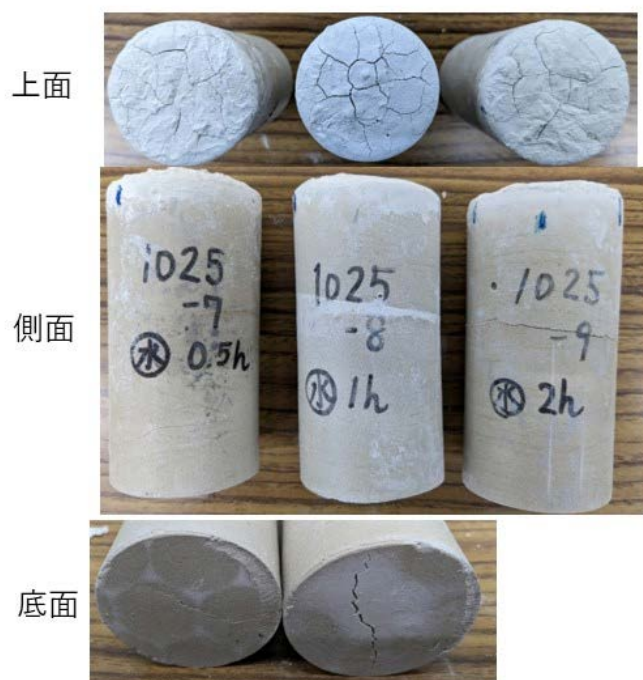


図 3.2.1-20 80 °C環境にて $\gamma$ 線照射実施後の試験体（水中養生分）

(5) 超重泥水における高比重粒子の均質性評価試験

① 目的

超重泥水を放射線環境下で適用するにあたり、臨界防止や水素発生抑制等を目的とした酸化ガドリニウムやパラジウム等の添加材の添加を検討している。一方で、酸化ガドリニウムやパラジウムの比重は超重泥水の比重よりも2倍以上高いため、流体中での沈降が懸念される。

令和3年度で比重が約5.3のヘマタイトを添加した。水素発生抑制対策として検討されているパラジウムは比重がおよそ12 [g/cm<sup>3</sup>]とヘマタイトよりも大幅に高い。そのため、令和4年度は炭化タングステン（比重：約15.6 [g/cm<sup>3</sup>]）を使用し、重泥水に混合した時の均質性について評価並びに乾燥させた重泥水供試体による引張強度測定を行った。

② 試験方法・条件

超重泥水は使用用途に合わせた作製組成が存在し、今回は沈降型重泥水と呼ばれる、比重が大きく、かつ沈降層の強度があるものを強度試験用供試体作製に、超高比重泥水を均質性評価用試料に使用した。

沈降型重泥水の配合組成を表3.2.1-7に示す。また、炭化タングステンの混合率を表3.2.1-7(c)に示す。使用した材料であるNBクレイ、NBフロー、NBウェイトを図3.2.1-21に、炭化タングステンの材料仕様を表3.2.1-8に、外観を図3.2.1-22に示す。

表 3. 2. 1-7 超重泥水の配合組成

(a) ベース流体の配合組成

水道水 (g)	100
NB クレイ (g)	2
NB フロー (g)	0.02
NB ウェイト (g)	400
合計 (g)	502.02

(b) 沈降型重泥水配合組成

ベース流体 (g)	100
NB フロー (g)	0.1
合計 (g)	100.1

(c) 炭化タングステンの混合率

沈降型重泥水 (g)	100
炭化タングステン (g)	10
合計 (g)	110



(a) NB クレイ外観



(b) NB フロー外観



(c) NB ウェイト外観

図 3. 2. 1-21 超重泥水の外観

表 3. 2. 1-8 炭化タングステンの材料仕様

販売元	高純度化学研究所
粒度	0.7~1.2 μm
純度	99 %



図 3. 2. 1-22 炭化タングステンの外観

試料の作製方法は、水道水を高速攪拌装置で攪拌しながら、NB クレイ、NB フローを所定量添加して攪拌を行ったのち、72 時間静置する。次に、NB フローを所定量添加し、攪

拌する。その後速やかに炭化タングステンを混合し、攪拌する。完成したサンプルを内径 5 cm 高さ 15 cm の型枠に入れて、24 時間静置、その後 100 °C で乾燥させ、型枠から取り外し、高さを 10 cm に整形したのちに 110 °C でさらに 24 時間乾燥させることで強度試験用試験体を作製した。試験体外観を図 3.2.1-23 に示す。作製した試験体は 3.2.3 項にて後述するγ線照射を実施し、照射後の試験体は一般財団法人建材試験センター中央試験所にて単軸引張試験を実施した。試料の両底面を研磨により面出ししたのちに、エポキシ樹脂系接着剤を用いて引張試験用鋼製治具を上下面に接着し、24 時間以上静置したのち試験に供した。試験は NEXCO 試験方法 422 (付着性能試験) を実施した。引張試験は前川試験機製作所製ねじ式万能試験機 MAG-2GVC-LF4 を用い、載荷速度 0.06±0.04 [N/(mm<sup>2</sup>・s)] にて実施した。試験においては、破断荷重を測定し、試験前の試験体断面積で除すことで引張強度を算出した。



(a) 沈降型重泥水の乾燥供試体

(b) 沈降型重泥水の乾燥供試体  
(炭化タングステン混合)

図 3.2.1-23 沈降型重泥水の乾燥供試体外観

超重泥水の配合組成は、NB クレイの配合量を変化させた表 3.2.1-9 の 4 種類を選定した。炭化タングステンの混合率は、4 種類の超重泥水配合に共通してすべて表 3.2.1-10 に示す通りである。

表 3.2.1-9 NB クレイを変えた超重泥水の配合組成

配合 No.	1	2	3	4
水道水 (g)	100	100	100	100
NB クレイ (g)	5	6	7	8
NB フロー (g)	0.2	0.2	0.2	0.2
NB ウェイト (g)	400	400	400	400
合計 (g)	505.05	506.5	507.05	508.5

表 3. 2. 1-10 炭化タングステン混合率

超重泥水 (g)	100
炭化タングステン (g)	10
合計 (g)	110

試料は以下の作製方法に従って作製した。水道水を高速攪拌装置で攪拌しながら、NB クレイ、NB フローを所定量添加して攪拌を行ったのち、72 時間静置する。次に、NB ウェイトを所定量添加し、攪拌する。その後速やかに炭化タングステンを混合し、攪拌する。

③ 結果・考察

4 種類の超重泥水に対して流体温度、比重、フロー値を測定した。測定結果を表 3. 2. 1-11 に、測定の状況を図 3. 2. 1-24 に示す。また、B 型粘度計により粘度を測定した結果を表 3. 2. 1-12 に、測定に使用した B 型粘度計と測定状況を図 3. 2. 1-25 に示す。

表 3. 2. 1-11 流体温度・比重・フロー値

配合 No.	1	2	3	4
流体温度 (°C)	24	25	25	27
比重	2. 80	2. 80	2. 80	2. 79
フロー値 (mm) ※	297	260	218	168

※JHS A 313-1992「エアモルタル及びエアミルクの試験方法」準拠。



(a) 流体温度測定



(b) 比重測定



(c) フロー値測定

図 3. 2. 1-24 測定の状況

表 3. 2. 1-12 B 型粘度計による測定結果

配合 No.		1	2	3	4
粘度 (mPa. s) [ローター No. 6]	2 rpm	17, 500	33, 500	70, 500	155, 000
	4 rpm	11, 750	23, 000	45, 750	97, 500
	10 rpm	7, 000	13, 000	26, 200	57, 000
	20 rpm	4, 550	86, 00	17, 500	35, 750



(a) B型粘度計(東機産業 MH-II型)



(b) 粘度測定状況

図 3. 2. 1-25 粘度測定状況

超重泥水は、作製後、メスシリンダーに投入し、乾燥しないよう注ぎ口を密封し、24時間静置した後の遊離水体積割合を求めた。結果を表 3. 2. 1-13 に示す。

表 3. 2. 1-13 遊離水の体積割合

配合 No.	1	2	3	4
遊離水の体積割合 (%)	0	0	0	0

遊離水の体積割合を求めたのちに、メスシリンダーから試料を複数の高さから採取し、含水率評価並びにタングステン含有率を求めた。含水率評価については、採取試料を110℃の乾燥炉で乾燥させ、乾燥前後での質量変化を求めた。タングステン含有率は含水率評価に用いた試料を蛍光 X 線分析により測定を行った。含水率評価を表 3. 2. 1-14 に、タングステン含有率を表 3. 2. 1-15 に示す。

表 3. 2. 1-14 試料高さ毎の含水率 (重量基準) 単位:wt%

配合 No.	1	2	3	4
目盛り 200~300 ml (高さ 156~234 mm)	18.1	18.1	18.0	18.0
目盛り 100~200 ml (高さ 78~156 mm)	18.0	18.1	18.0	17.9
目盛り 0~100 ml (高さ 0~78 mm)	18.0	18.1	18.0	17.9

表 3. 2. 1-15 試料高さ毎のタングステン含有率 単位 wt%

配合 No.	1	2	3	4
目盛り 200~300 ml (高さ 156~234 mm)	9.5	9.6	9.6	9.6
目盛り 100~200 ml (高さ 78~156 mm)	9.5	9.4	9.6	9.6
目盛り 0~100 ml (高さ 0~78 mm)	9.4	9.4	9.6	9.5

表 3.2.1-15 より、高さ方向でのタングステン含有率に顕著な違いは見られなかった。また、配合による含有率の違いも見られなかった。一方、フロー値や粘度は配合の違いによって大きく変動している。これより、種々の特性付与を目的として比重が 15 g/cm<sup>3</sup> 程度、粒径約 1 μm の粒子を超重泥水に添加するケースにおいても、均質な超重泥水の作製が可能であることが明らかとなった。

また、引張試験より得られた引張強度を表 3.2.1-16 に示す。

表 3.2.1-16 超重泥水の引張試験結果

供試体	積算線量 [MGy]	試験時材齢	引張強度 [MPa]	最大引張荷重 [N]
沈降型重泥水	0.0630	32~41 日	0.0254	50
沈降型重泥水 (炭化タングステン混合)	0.0630		0.0873	170

### 3.2.2 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学）【令和3年度～令和4年度】

#### 【令和3年度までの概要】

燃料デブリを安全に保管するにあたり、燃料デブリ中に内在する水分の放射線分解に起因する水素の発生に留意する必要がある。代表的な水素低減触媒であるパラジウムは需要増加による価格の高騰から使用が現実的ではない。そこでパラジウムに代わる水素低減機能材料の開発が必要となる。令和3年度に水素低減機能が見込まれる既存材料の調査及び新材料の開発として使用済燃料中に存在する白金族合金（Mo-Tc-Ru-Rh-Pd）の利用について検討を行った。また、模擬白金族合金を作製し、水素吸蔵・触媒能力評価に大きく関わると考えられる結晶構造等の冶金学的観察を行い、模擬材料として活用できる見込みを得た。

#### 【令和4年度実施内容及び成果】

##### (1) 模擬白金族合金試料の微粒子状加工

令和3年度に作製したバルク状の模擬白金族合金試料を微粒子状に加工し、形状における実機との模擬性向上を図り、総合的な模擬性の評価として令和3年度と同様の冶金学的観察を行った。微粒子状への加工手順として、ダンシングミル（株式会社伊藤製作所製、型番：ADA-48）を使用して300回粉碎した後に遊星ボールミル（FRITSCH製、型番：Classic line P-6）を用いて500rpmで10分粉碎を4セット行った。ダンシングミル及び遊星ボールミルを用いた粉碎後のSEM画像を図3.2.2-1に示す。ダンシングミルでの粉碎では粒径が800 $\mu\text{m}$ 程度の大粒のものが観測された。一方で、遊星ボールミルを用いた粉碎では粒径が十数 $\mu\text{m}$ 以下であることが確認できた。実際に析出する白金族合金の粒径に関してもサブミクロンオーダーであるため[9]模擬性として妥当であると考えられる。また、東京都市大学・ナノ科学技術学際研究センター所有の走査型電子顕微鏡（日立ハイテク株式会社：28TM3000）を使用し、試料表面に対してSEM-EDSを用いた元素マッピング（図3.2.2-2）を行った。結果として、均一な元素分布が確認された。高エネルギー加速器研究機構 PF BL27Bにてモリブデン及びルテニウムK吸収端SSD検出器を用いた蛍光法によるEXAFS分析を実施した。結果としてモリブデン及びルテニウム近傍の元素は金属として存在していることが確認された（図3.2.2-3）。

##### (2) 充填剤添加状況の確認

パラジウムをはじめとする密度の高い金属の添加材はジオポリマーに添加された際に重力で沈降する懸念があり、分散状態を制御することにより水素低減の効率の向上を図る必要がある。そのため、令和3年度に作製したパラジウム添加剤（0.5 wt%）を含むジオポリマーを低速カッターで切断し、上・下端面に対しXRD分析を行い、一方で切断面に対してSEM-EDS分析を実施し、パラジウムの分散状態を観察した。東京都市大学・原子力研究所に設置されているXRD装置（ブルカージャパン株式会社：MXP3TAHF22）を用いて、試料ホルダ窓から表面が出るよう設置し、樹脂部分を固定した。X線ターゲットはCu、走査角度は $20^{\circ}$ ～ $100^{\circ}$ 、走査速度は $1^{\circ}/\text{min}$ 、加速電圧40kV、放電電流30mAで測定した。SEM-EDS分析は白金族合金模擬体を試料ステージにカーボンテープを用いて固定し、印加電圧15kVの二次電子モードにて観察した。図3.2.2-4にXRD分析結果を、図3.2.2-5に、SEM-EDSによる元素マッピング結果を、図3.2.2-6に、ジオポリマー上面（画像左）から下面（画像右）にかけて観察SEM画像モザイク図を示す。XRD分析結果よりパラジウムを示すピーク強度は同程度であった。また、元素マッピング結果よりパラジウムは数十 $\mu\text{m}$ ～数百 $\mu\text{m}$

の大きさであることが分かった。モザイク図より添加剤は、重力による沈降などの影響を受けずに、上下左右に一様に分布していることが示された。

### (3) 水素発生評価

模擬白金族合金の水素再結合機能等を評価するために、本測定では、令和3年度と同様の手順で作製したジオポリマーに対し<sup>60</sup>Coによるγ線照射を行い、照射後のガラスアンプル内の水素ガス体積分率をガスクロマトグラフィーで測定し、G値（単位照射量に対する水素発生量）という指標を用いて水素ガス発生特性を評価した。水素ガス発生量測定に用いたジオポリマーの試験体の大きさは直径50 mm、高さ20 mmである。表3.2.2-1に添加剤の詳細を示す。図3.2.2-7に水素発生評価（G値）の結果一覧を示す。なお、②試料はガラスアンプルへ封入する際に破損したため、本結果から除外している。ブランク試料と比較すると添加材を含む条件ではG値が低い。また、モリブデン濃度が低くなるに連れて、G値が低くなっている。そのため、モリブデンが水素低減機能の阻害をしている可能性が示唆された。この理由としては、模擬白金族合金はルテニウムが母相となる結晶構造に、モリブデンが置換型固溶体として存在しているため、モリブデンにより格子に歪みが発生することが考えられる。今回使用した模擬白金族合金のXRDデータから格子定数を算出し、モリブデン濃度と格子定数の関係を図3.2.2-8に示す。モリブデン濃度と格子定数の関係はベガード則から比例の関係があり、これは、モリブデン濃度の増加により格子の歪みが大きくなっていることを示している。そのため、触媒機能に影響を及ぼすことが考えられる。モリブデンを除去することで機能の向上を図ることができると考えられる。

### (4) 水素吸蔵評価

水素量を低減した作用として酸素と水素の再結合または水素吸蔵が考えられる。そこで水素吸蔵機能の評価を実施した。2つの耐圧容器、水素ガスボンベ、真空ポンプ（ULVAC製型番：GLD-051）及びデータロガーに接続したデジタル圧力計（株式会社クローネ製、型番：KDM30）から構成される装置を構築し、反応容器内に試料、蓄圧容器に水素ガスを導入して圧力値を計測することで性能評価を行った（図3.2.2-9）。圧力容器内に開放型の容器に入れた試料をセットし、容器内部に水素を導入して圧力計で容器内の圧力を計測した。吸蔵機能があれば、容器内の吸蔵量に応じて、圧力は低下する。パラジウムによる確認試験においては、試料量約1 gを用いて行ったが、合金の物質質量に対する吸蔵水素量物質質量の割合（H/M比とする。）が0.57となり、文献[10]のH/M比 = 0.6と同程度であり、装置としては性能が明らかになった。一方、ルテニウム：ロジウム：パラジウム = 70：20：10（wt%）の模擬合金に対して行った測定では、容器内の圧力は変化せず、水素吸蔵の機能は確認されなかった。当該合金が有意な水素吸蔵性能を持たないことを示唆していると考えられるが、当該測定に供した粉末試料に問題があった可能性もある。文献[11]によると、急冷を施したパラジウム-ロジウム合金は冷却速度の増大で水素吸蔵量が低下する。この文献が示すように、測定前の熱処理に関しては、実機燃料と同じく、加熱ののちは徐冷しておくことが重要であると考えられる。

### (5) 酸化加熱処理装置の構築

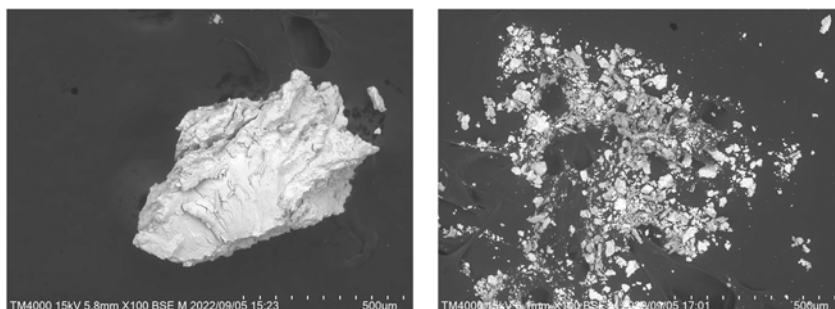
白金族合金の触媒性能のさらなる向上としてモリブデンの除去が挙げられる。モリブデンの除去方法の1つに選択的な酸化・蒸発があり、加熱炉内の酸素雰囲気をコントロールすることで熔融した酸化モリブデン（融点795℃）を蒸発させることを検討している。本



試験ではロータリーポンプを用いて炉内を減圧することで酸素量を低減する機構の酸化加熱処理装置を構築した。加熱炉（フルテック株式会社 FT-01VAC-1650）に対し、R 熱電対を用いた温度校正及びゲージ計より炉内酸素分圧を算出した。図 3.2.2-10 にエリンガムダイアグラムを示す。エリンガムダイアグラムより構築した酸化加熱処理装置において 1000 °C では模擬白金族合金はモリブデン及びルテニウムは酸化物を形成し、ロジウム及びパラジウムは金属の形状を取ると予測される。MoO<sub>3</sub>の融点は 795 °C であり、RuO<sub>2</sub>の融点は 1200 °C であるため、構築した酸化加熱処理装置にて選択的なモリブデンの除去が可能であると予測できる。モリブデン-ルテニウム-ロジウム-パラジウムの四元系の模擬白金族合金は加熱することで、最初にモリブデンを、次にルテニウムを酸化及び蒸発させることができると報告されている[12]。令和 5 年度は酸化・加熱によるモリブデンの除去を実施した試料にて水素低減の機能を実施する。

表 3.2.2-1 照射試験用ジオポリマーに添加した模擬白金族合金の組成  
試料番号 Mo[wt%] Ru[wt%] Rh[wt%] Pd[wt%] 質量[g]

試料番号	Mo[wt%]	Ru[wt%]	Rh[wt%]	Pd[wt%]	質量[g]
① (ブランク)	0	0	0	0	0
② (模擬合金)	15	65	10	10	0.35
③ (模擬合金)	20	60	10	10	0.35
④ (模擬合金)	25	55	10	10	0.35
⑤ (模擬合金)	30	50	10	10	0.35
⑥ (模擬合金)	0	70	20	10	0.35



(1) ダンシングミルによる粉砕 (2) ダンシングミル+ボールミルによる粉砕

図 3.2.2-1 粉砕した模擬白金族合金の SEM 像

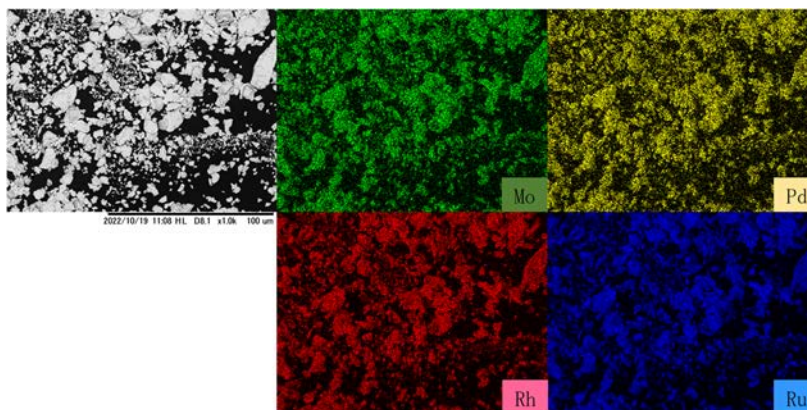


図 3.2.2-2 粉砕した模擬白金族合金の EDS による元素マッピング

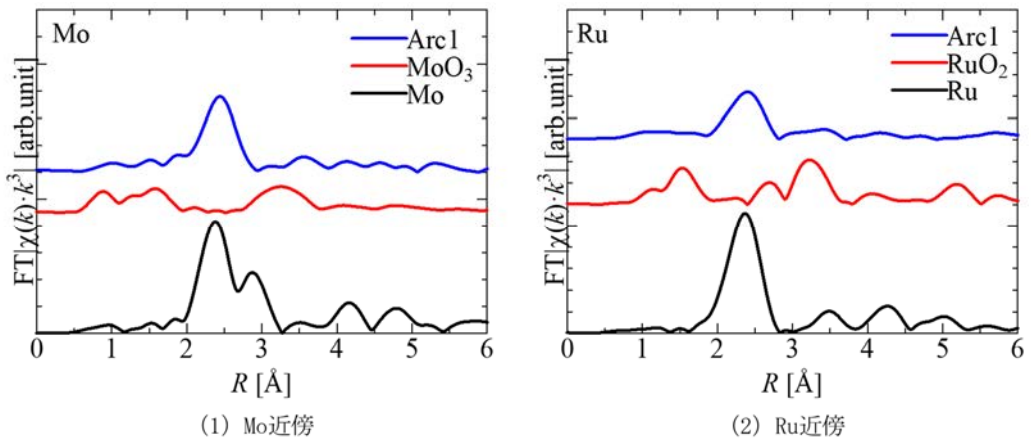


図 3. 2. 2-3 模擬白金族合金粉末に対する EXAFS 構造関数

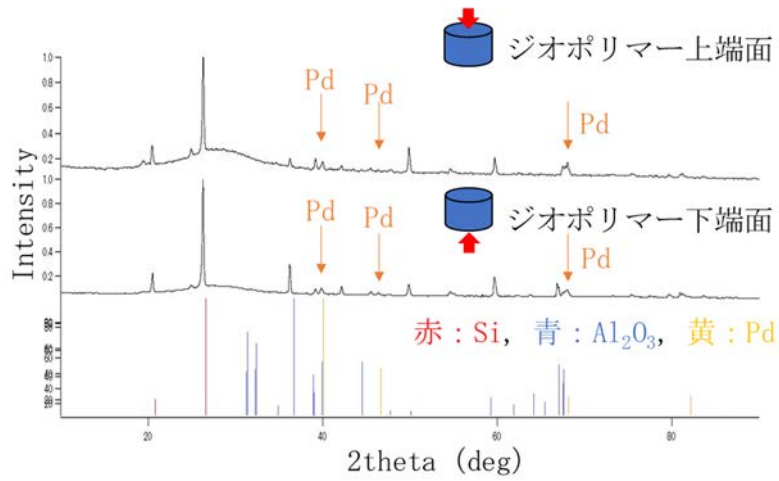


図 3. 2. 2-4 パラジウム添加ジオポリマーに対する XRD 分析

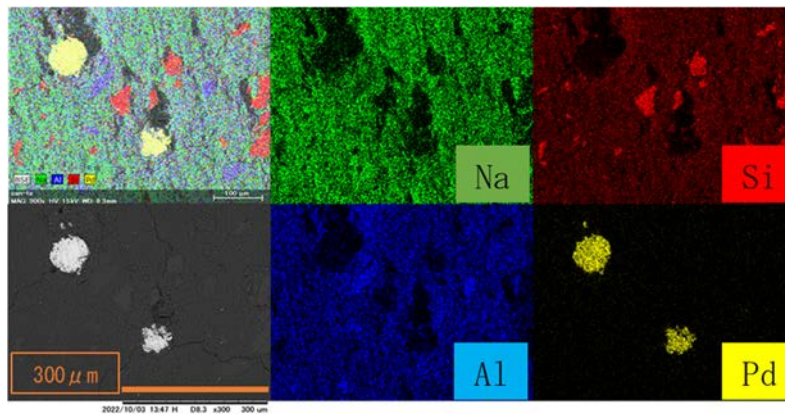


図 3. 2. 2-5 パラジウム添加ジオポリマーに対する SEM-EDS 分析

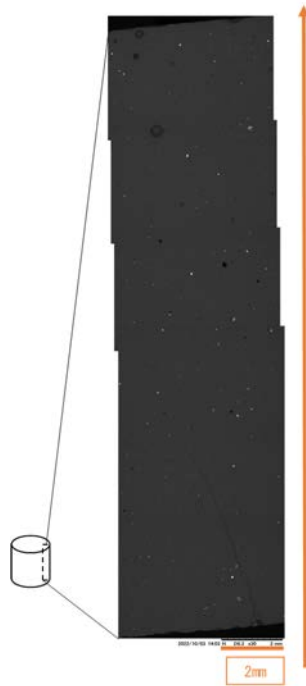


図 3. 2. 2-6 パラジウム添加ジオポリマー断面の SEM 画像モザイク図

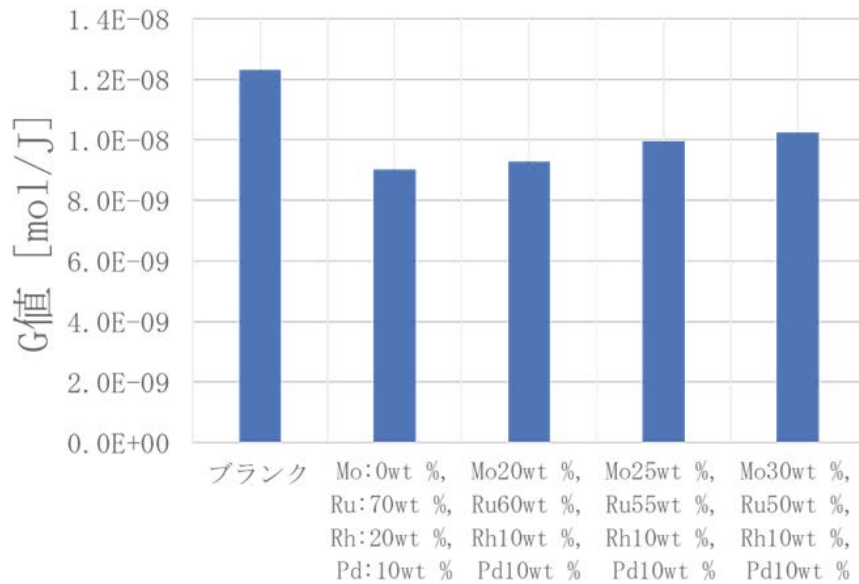


図 3. 2. 2-7 模擬白金族合金を添加したジオポリマーの G 値

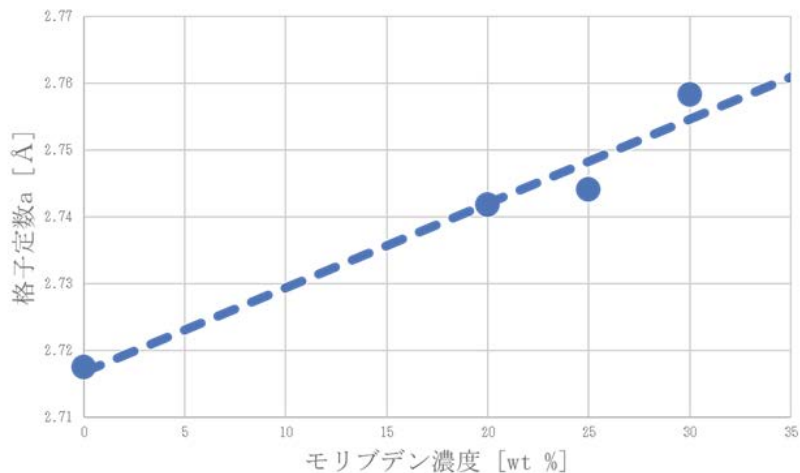


図 3.2.2-8 模擬白金族合金の格子定数のモリブデン濃度依存性

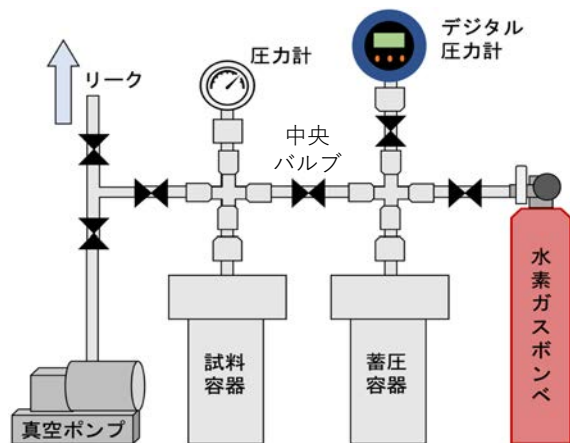


図 3.2.2-9 水素吸蔵評価装置

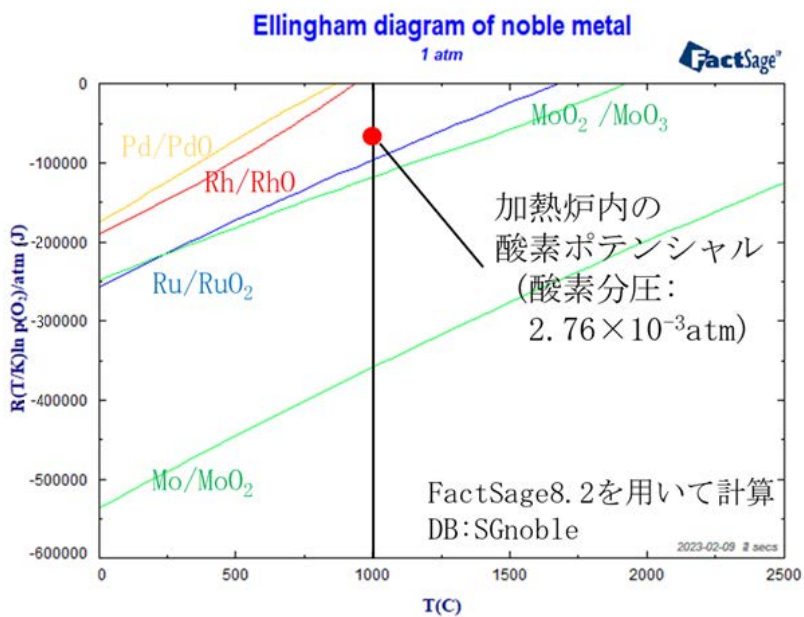


図 3.2.2-10 模擬白金族合金元素のエリンガムダイアグラム

### 3.2.3 照射試験（再委託先：アトックス）【令和3年度～令和4年度】

#### 【令和3年度までの概要】

#### (1) 目的

燃料デブリの被覆材としての適用可能性を評価する上で、原子炉内が高放射線環境にあることを前提にした評価を行う必要がある。本研究では作製した試料の一部について、アトックス技術開発センター<sup>60</sup>Co γ線照射施設において、水素ガス発生量評価、圧縮強度評価、引張強度評価及び熱伝導率評価に供するジオポリマーに対して積算線量 0.555～1.88 MGy の範囲となる γ線照射試験を室温にて実施した。また、令和4年度及び令和5年度照射試験に必要な恒温槽等を準備して試験体系を構成し、最適な照射条件を確立した。

#### (2) 実験方法・条件

アトックスの<sup>60</sup>Co線源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γ線積算線量を算出している。より多くの試料を高線量率で照射するために3段構造にして照射を実施した。γ線照射試験状況を図3.2.3-1に示す。さらに転倒防止のために各種対策を講じている。さらに、1つの試料内においても部分による照射量の偏りを出さないようにするために、総照射時間の約4分の1が経過する毎に90度ずつ試料を回転させた。



図 3.2.3-1 照射試験状況（令和3年度）

#### 【令和4年度実施内容及び成果】

#### (1) 目的

##### ① 恒温照射試験

引張強度評価に供するジオポリマー及び超重泥水に対して積算線量 55.9～64.5 kGy の範囲となる<sup>60</sup>Co γ線照射試験を恒温下（80℃前後）及び室温下で実施した。表 3.2.3-1 に γ線照射を実施した試料条件を示す。

② 室温照射試験

令和3年度に引き続き、水素ガス発生量評価及び引張強度評価に供するジオポリマーに対して積算線量2.23～2.63 MGyの範囲となる<sup>60</sup>Co γ線照射試験を室温下で実施した。表3.2.3-2にγ線照射を実施した試料条件を示す。

表 3.2.3-1 恒温照射試験を実施した試料条件（照射時期：令和4年11月）

No.	試料 No.	評価目的	照射時の温度	試料種類	照射開始時の材齢[日]	積算線量 [kGy]
1	1025-7-2	引張強度評価	高温 (78.4～81.4℃)	水中養生、打継間隔：0.5 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	64.5
2	1025-8-2			水中養生、打継間隔：1 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
3	1025-9-2			水中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
4	1025-4-2			気中養生、打継間隔：0.5 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	55.9
5	1025-5-2			気中養生、打継間隔：1 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
6	1025-6-2			気中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
7	超重 泥水-1	—	室温 (9.4～20.7℃)	ブランク	3	63.0
8	超重 泥水-2			炭化タングステン (WC) 添加：10 wt%	3	
9	1025-9-1	引張強度評価		水中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
10	1025-8-1			水中養生、打継間隔：1 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
11	1025-7-1			水中養生、打継間隔：0.5 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
12	1025-6-1			気中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
13	1025-5-1			気中養生、打継間隔：1 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	
14	1025-4-1			気中養生、打継間隔：0.5 h、 通常容器、珪砂9号：30 wt%	30	

表 3.2.3-2 室温照射試験を実施した試料条件（照射時期：令和4年11月）

試料 No.	評価目的	照射時の温度	試料種類	照射開始時の材齢[日]	積算線量 [MGy]		
1013-4	引張強度評価	室温 (9.4 ~ 20.7 °C)	気中養生、打継間隔：0.5 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28	2.63		
1013-5			気中養生、打継間隔：1 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28			
1013-6			気中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28			
1013-7			水中養生、打継間隔：0.5 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28			
1013-8			水中養生、打継間隔：1 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28	2.45		
1013-9			水中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28			
1013-10			高温水中養生、打継間隔：0.5h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28			
1013-11			高温水中養生、打継間隔：1 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28			
1013-14			水中養生、打継間隔：1 h、 穴有り容器、珪砂 9 号：30 wt%	28	2.36		
1013-12			高温水中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	28			
①			水素ガス発生量評価	室温 (9.4 ~ 20.7 °C)	ブランク	49	2.23
②					Mo：15wt.%、Ru：65 wt%、 Rh：10 wt.%、Pd：10 wt%	49	
③	Mo：20wt.%、Ru：60 wt%、 Rh：10 wt.%、Pd：10 wt%	49					
④	Mo：25wt.%、Ru：55 wt%、 Rh：10 wt.%、Pd：10 wt%	49			2.38		
⑤	Mo：30wt.%、Ru：50 wt%、 Rh：10 wt.%、Pd：10 wt%	49					
⑥	Mo：0wt.%、Ru：70 wt%、 Rh：20 wt.%、Pd：10 wt%	49					

(2) 実験方法・条件

恒温照射試験の試料 14 体のうち引張強度評価に供するジオポリマー6 体を恒温槽内に格納し、80 °C前後の環境で照射を実施した。温度による影響を評価するため引張強度評価に供するジオポリマー6 体の他、超重泥水 2 体に対して室温下で照射を実施した。室温照射試験の試料 16 体は高線量率で照射するため線源の周囲に円周上に設置し、照射を実施した。試料設置箇所を決定するため電離箱線量率計で線量率を 9 箇所測定し、線量率測定箇所に近接する同心円上の線量率は同一とみなした。積算線量は 3.2.3【令和 3 年度までの概要】(2)実験方法・条件で示した内容と同様の方法で実施した。γ 線照射試験状況を図 3.2.3-2 に示す。

試料に対してγ線を極力均一に照射するために、恒温照射試験では総照射時間の約 3 分の 1 が経過する毎に試料を 120 度ずつ回転した。一方、室温照射試験では総照射時間の約 4 分の 1 が経過する毎に試料を 90 度ずつ回転した。しかし試料 1013-9 については回転漏れにより不均一照射となった。照射試験の実施時期とターム毎の照射時間について表 3.2.3-3 に示す。恒温照射試験状況（恒温条件）及び恒温照射試験状況（室温条件）を図 3.2.3-3 及び図 3.2.3-4 に、室温照射試験状況（引張強度評価）及び室温照射試験状況（水素ガス発生量評価）を図 3.2.3-5 及び図 3.2.3-6 に示す。

表 3.2.3-3 照射試験の実施時期とターム毎の照射時間

照射試験の時期	ターム	照射時間[h]
1 回目の照射試験 (令和 3 年 10 月)	1	100
	2	137
	3	126
	4	137
	合計	500
2 回目の照射試験 (令和 4 年 11 月： 恒温照射試験)	1	170
	2	161
	3	173
	合計	504
2 回目の照射試験 (令和 4 年 11 月： 室温照射試験)	1	172
	2	184
	3	170
	4	161
	合計	687



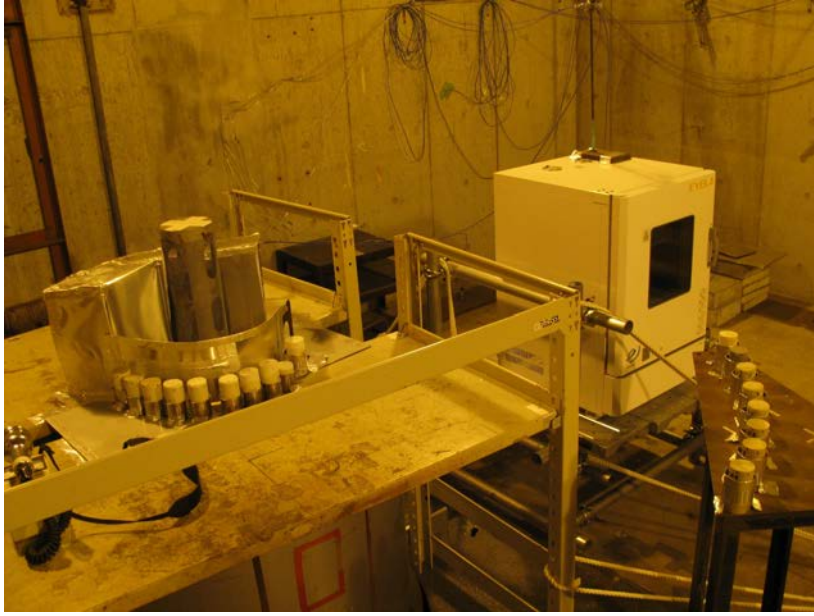


図 3. 2. 3-2 照射試験状況（令和 4 年度）



図 3. 2. 3-3 恒温照射試験状況（恒温条件）



図 3.2.3-4 恒温照射試験状況 (室温条件)



図 3.2.3-5 室温照射試験状況 (引張強度評価)

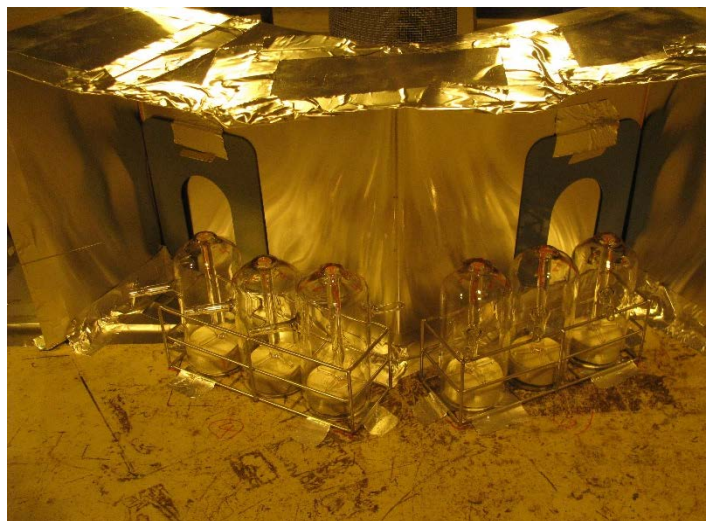


図 3.2.3-6 室温照射試験状況 (水素ガス発生量評価)

3.2.4 ジオポリマーの最適化（連携先：JAEA）【令和3年度～令和4年度】

【令和3年度までの概要】

令和3年度に配合比の異なるジオポリマーの粘度を測定し、水分の配合比は粘度に大きな影響を及ぼし、凝固と流動性を制御する基本的かつ重要な因子であることを確認した。水分を減らすと粘度は増加し、砂を加えるとさらに粘度を増加させることができた（図3.2.4-1）。一方、 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  配合比の影響は少なかった。これらの知見から、令和4年度に実施する水中注入試験に用いるジオポリマーの配合割合としては、最も粘度が低かった配合比（ $1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-15\text{H}_2\text{O}$ ）から、砂を加えたり水分を減らしたりすることにより粘度を高めるなどの最適化を進めることとした。また、セメントペーストを熱処理してジオポリマーに埋め込み、その界面をマイクロラマン分光分析装置で観察できることを確認した。

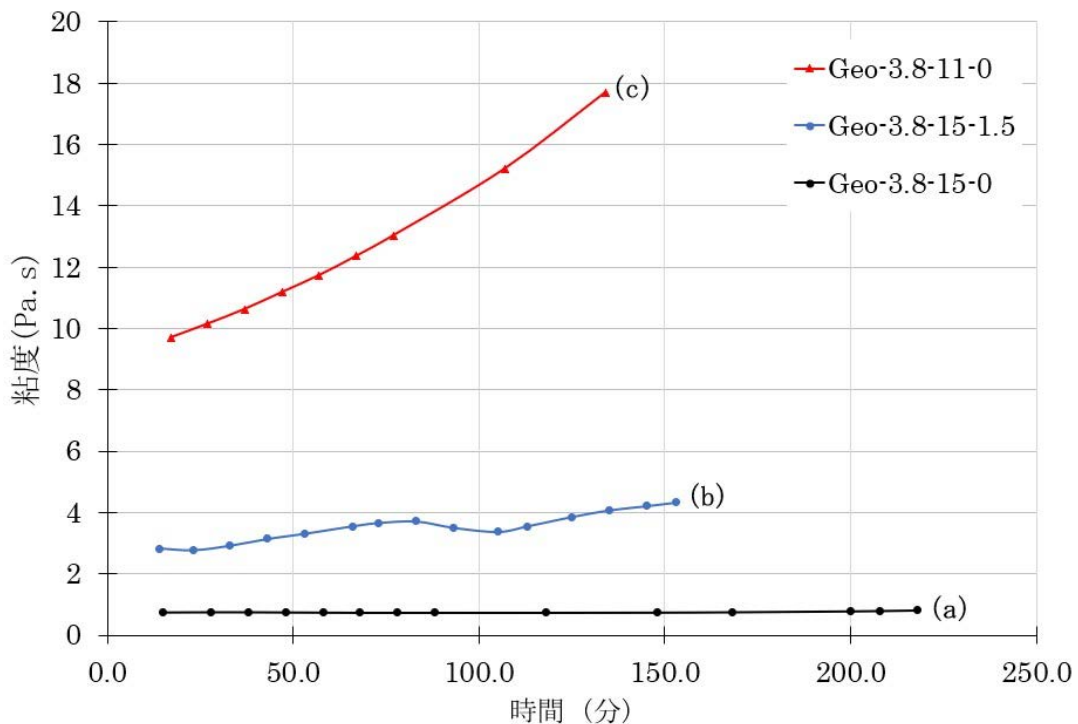


図 3.2.4-1 ジオポリマー配合比と粘度の関係

(a) 標準配合： $1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-15\text{H}_2\text{O}$  ( $\text{Na}_2\text{O}$  に対するモル)、砂なし

(b) 砂添加：砂/メタカオリン質量比 = 1.5 (c) 低水分： $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$  モル比 = 11

【令和4年度実施内容及び成果】

(1) 水中注入試験の準備

① 試験装置

令和4年度は、室温と80℃の水中にジオポリマーを注入し、流動と凝固をある程度制御して縮重合反応で硬化させる技術の実現可能性を検討した。水中注入試験の進行を模式的に図3.2.4-2に示す。ジオポリマーの注入にはチューブポンプを採用した。この方法は規模によって限界があるが、ジオポリマーの粘度がポンプで注入可能な最大値に近い場合、層流で最良の結果が期待できる。



図 3.2.4-2 水中注入試験の進行イメージ  
(配管等を含む 3 L 試験容器内の水にジオポリマーを注入する場合)

試験装置の構成を模式的に図 3.2.4-3 に示す。アルカリシリカ溶液（アルカリ刺激剤）とメタカオリンは、混合槽で、オーバーヘッドミキサー（IKA EUROSTAR 200、アンカー型プロペラ）により混合される。混合槽は、底部にユニオンがあり、これを介してポンプに接続されている。このユニオンは、この用途のために、強靱な熱可塑性樹脂 PLA で 3D プリントしたものである（図 3.2.4-4）。3 L 規模の注入試験を考慮し、使用するチューブポンプは Masterflex L/S モデル 07528-30 とイーザーロード 77200-62 ポンプヘッド、チューブは Masterflex 6424-36 を選択した。この組み合わせにより、15 mL/min 以下の流量であれば、粘度 2.7 Pa・s の液体を送液できる。図 3.2.4-5 に装置の写真を示す。

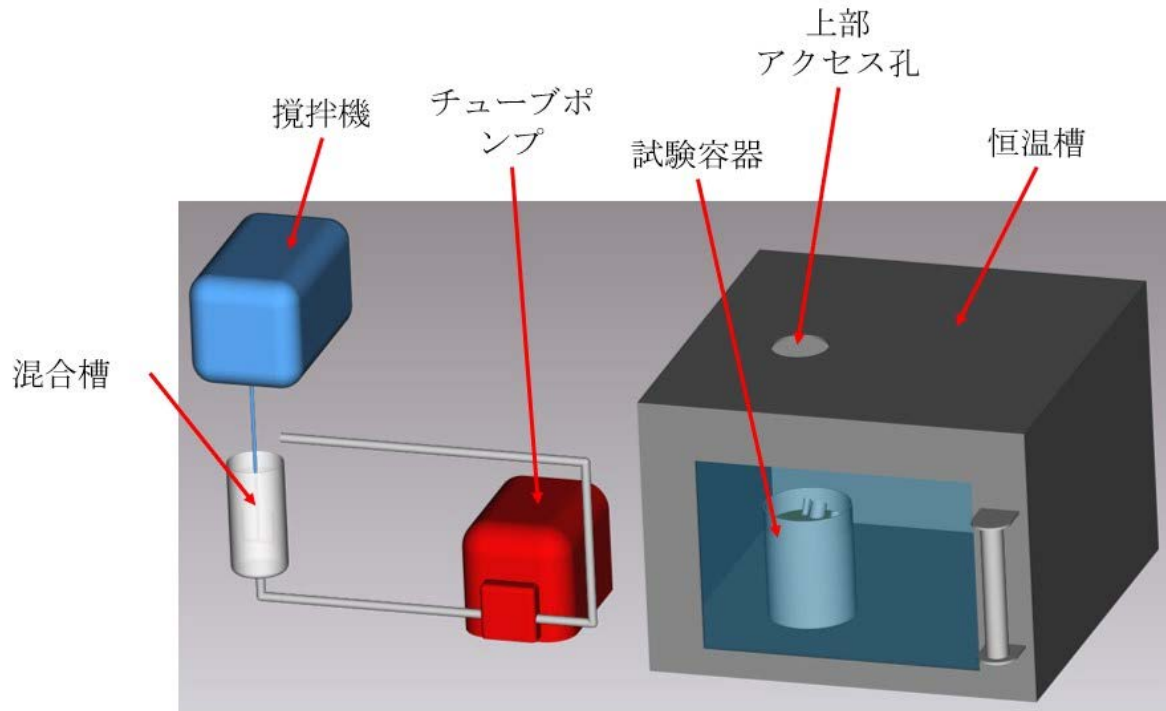


図 3.2.4-3 試験装置の構成図  
(注入前、混合槽→ポンプ→混合槽の循環ライン構成)

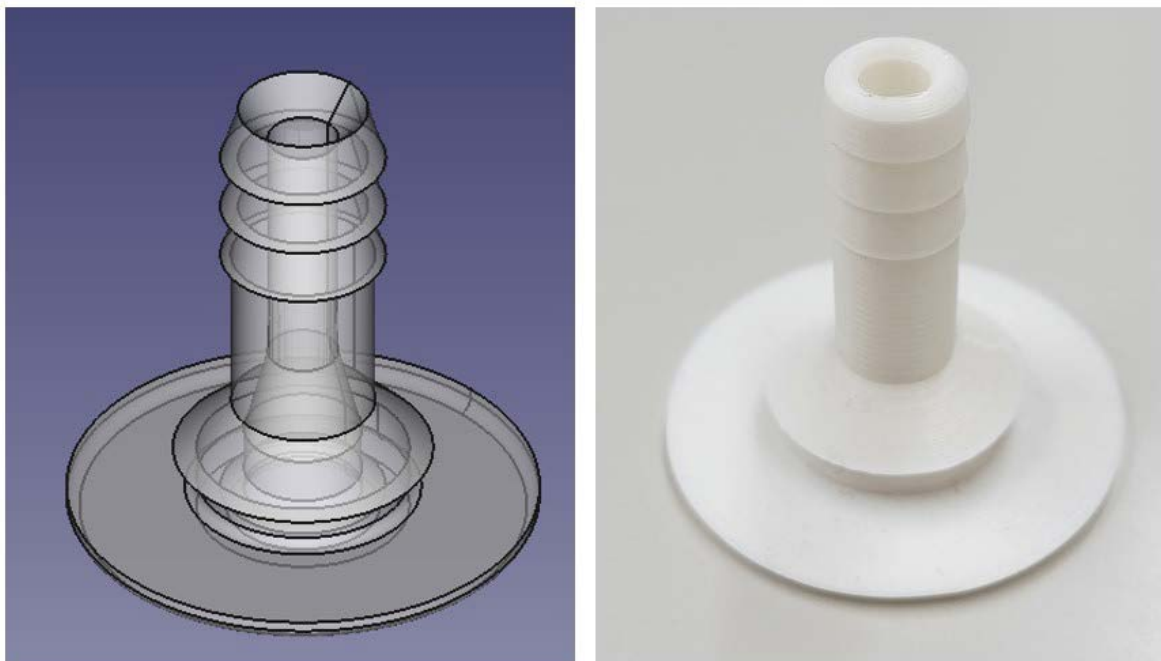


図 3.2.4-4 混合槽とチューブを接続するためのユニオン  
左：3D モデル、右：3D プリントしたユニオン

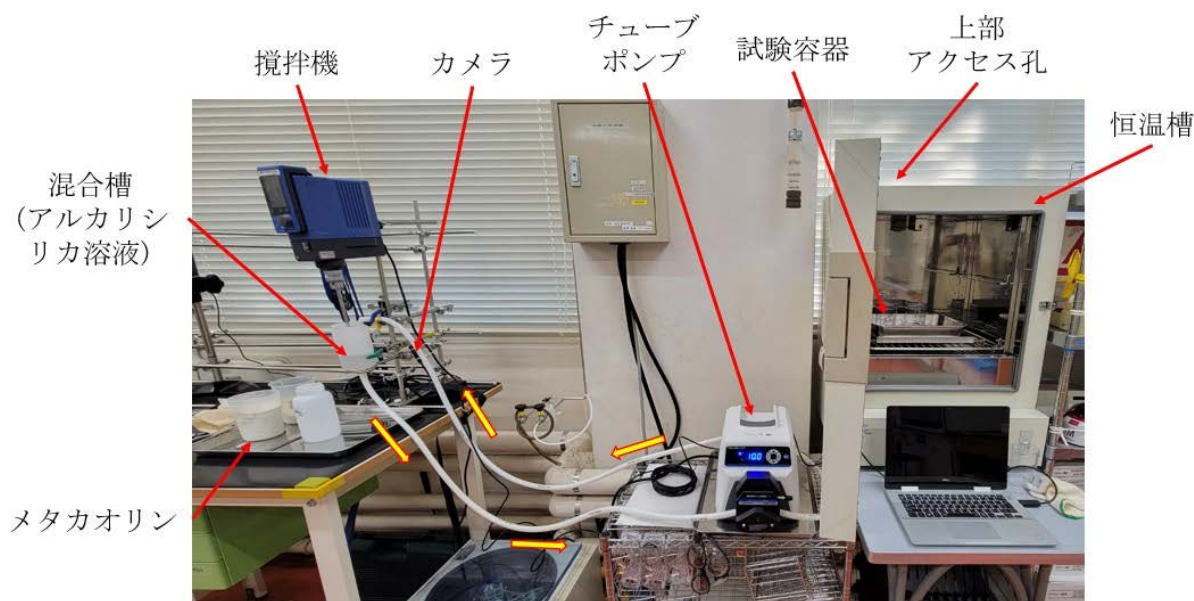


図 3. 2. 4-5 小規模予備試験の準備写真  
(注入前、混合槽→ポンプ→混合槽の循環ライン構成)

## ② 材料

ジオポリマーの合成には、メタカオリン（Imerys 社製 M1000）、水酸化ナトリウム（富士フイルム和光純薬株式会社製、関東化学株式会社製）及び水ガラス（キシダ化学株式会社製 けい酸ナトリウム溶液（1号））を精製せずに用いた。なお、水ガラスの保有量が少なくなったため、200 mL の小規予備試験には令和 3 年度と同じ「業務用」（ロット番号：281215）を用いたが、3 L 規模試験には「試験研究用」（ロット番号：3. 2. 1-17）を新たに用いた。両水ガラスとも同じ仕様であるが、試験中に水ガラスロット間に粘度の差が認められたため、ジオポリマー粘度への影響についても検討した。

3 L 規模の水中注入試験には、止水対象のジェットデフレクター部分とジオポリマーの接着性を調べるために、高張力鋼（SPFC590）製の試験容器（厚み 2.3 mm、内径 150 mm、高さ 200 mm、内容量 3.3 L）を 2 つ使用した。室温試験では、セメントペーストのブロックと 3 本の金属管を 3 L 試験容器に入れてジオポリマーの充填性、接着性も調べた。金属管は、銅、アルミニウム、ステンレス製の 3 種類で、外径 12 mm、内径 10 mm である。セメントは、一般社団法人セメント協会のポルトランドセメントを使用し、水とセメントの比を 0.4 として、90 日以上養生した。

## ③ 注入方法の検討

予備試験に先立ち、以下のように手順を検討した。水酸化ナトリウム、水、水ガラスを適量混合してアルカリシリカ溶液を調製し、密閉容器内で一晩攪拌する。この溶液を混合槽に移し、ポンプを起動してチューブ内を溶液で満たしながら混合槽に戻すように循環させる。その循環運転のままメタカオリン粉末（必要な場合は砂も）を混合槽に添加・攪拌する。固形物の添加後、均質な混合物が得られるまで、20 分程度攪拌を継続する。その後、ポンプを停止し、チューブの出口にパラフィルムを貼る。恒温槽上部の開口部から試験容器底部にチューブ出口をセットする。ポンプを始動し、フィルムが破れ、ジオポリマーが

連続注入される。ポンプを停止して注入を完了し、容器からチューブを取り出す。この最初の検討をさらに具体化すると、以下のようになる。

- アルカリシリカ溶液を調製する（24 時間前）。
- 混合槽に溶液を注ぐ。
- 混合槽下部ユニオン→ポンプ→混合槽上部のようにチューブで循環ループを作り、ポンプを起動する。
- 混合槽の攪拌を低速で開始する。
- メタカオリンを混合槽に少しずつ加える。
- メタカオリン添加終了後も、混合槽とチューブの両方で均質な混合物が得られるまで攪拌と循環を続ける。
- ポンプを停止する。
- チューブの出口をパラフィルムで塞ぐ。
- 水張りした試験容器の底にチューブ出口をセットする。
- ゆっくりとした速度でポンプを始動する（約 0.6 mL/min）。
- 注入が完了したらポンプを停止する。
- チューブを取り出す。

## (2) 水中注入の予備試験

### ① 小規模（200 mL）の室温予備試験

先に検討した手順により、2つの配合で 200 ml 規模の予備試験を室温で実施した。最初の試験は、 $1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-12\text{H}_2\text{O}$  のモル配合になるように水分を減らしたジオポリマーペーストを水中に注入した。もう 1 つは、同じベース配合で、砂とメタカオリンの質量比率が 1 のジオポリマーモルタルである。いずれの場合も容器内の水と混ざることなくジオポリマーを注入することができた。ジオポリマーモルタルの場合、砂はジオポリマー中によく分散している様子が観察された。注入後に室温で 7 日間養生したジオポリマーペースト試料の写真を図 3.2.4-6 に、ジオポリマーモルタルの写真を図 3.2.4-7 に示す。いずれの場合も硬化後、ジオポリマー表面に数 mm 程度の軟らかい層が形成された。この軟質層は以降の注入試験でも観察されたため、マイクロラマン分光等で分析することとした。



図 3.2.4-6 室温小規模試験後 7 日間養生したジオポリマーペーストの写真



図 3.2.4-7 室温小規模試験後 7 日間養生したジオポリマーモルタルの写真

② 小規模の高温 (80 °C) 予備試験

室温小規模試験と同じ配合のジオポリマーモルタルを用い、80 °Cに保った恒温槽内で水中注入試験を行った。80 °Cの熱水と接触した直後にパラフィルムが破れ、ジオポリマーが熱水中に放出された。しかし、ポンプが作動していなかったため、ポンプを作動させ、注入を開始した。注入中、ジオポリマー表層が熱水に触れて急速に硬化しているのが確認された。そのため、注入箇所付近にジオポリマーモルタルが堆積し、噴火のような現象が発生した (図 3.2.4-8)。このような挙動は、特に小さな隙間や管にジオポリマーを浸透させる必要がある場合、均質な充填に支障をきたす可能性がある。そこで、注入開始から 1 分後にポンプの注入速度を 10 rpm から 50 rpm に加速し、室温の混合液を素早く加えることで試験容器内のジオポリマーの温度上昇を抑制することにした。また、容器に挿入する際にチューブ出口を塞ぐために使用したパラフィルムは、80 °Cの水と接触してフィルムがすぐに溶けるのを防ぐために、以降の試験ではポリ塩化ビニル (PVC) フィルムに置き換えることにした。



図 3.2.4-8 80 °C小規模試験のジオポリマーモルタル注入時及び 7 日間養生後試料の写真



③ 3 L 規模の室温予備試験

3 L 規模の予備試験は、ジオポリマーモルタルの配合で室温にて行った。メタカオリンと砂の添加量が多いため、メタカオリンをアルカリシリカ溶液に添加し、均質な混合物を得るまでの時間は、小規模試験よりも大幅に長くなった。メタカオリンの添加開始から 1 時間後、室温の容器内で水中での注入を開始した。最初の 10 分間は、ポンプ速度を上げても予想より遅いものの、正常に注入が進んでおり、予想より粘度が高いことが判明した。混合槽の温度が 40 °C 以上に上昇し、ジオポリマーモルタルが既に硬化していることに気付いた。ジオポリマーモルタルの粘度が高すぎるためにポンプが停止してしまい、試験はすぐに中断された。容器内のジオポリマーは水で冷やされて液体状態であったので、試験容器とチューブを洗浄して再試験に備えた。

この速やかな硬化の原因を調べるため、令和 4 年度から使用した試験研究用を含めて水ガラスの粘度測定を再度実施した。図 3.2.4-9 に、時間の経過に伴う粘度の変化を示す。ジオポリマーペーストの初期粘度はほぼ同じである。しかし、試験研究用水ガラスを用いた粘度は時間の経過とともに業務用水ガラスの場合よりも速く上昇し、このロットの反応性が高いことを示している。このことから、3 L 規模の予備試験の早期硬化は、連続混合時の粘度上昇が原因と考えられる。粘度が高くなると、プロペラ攪拌によって混合槽内で発生する熱量が増加し、このロットの水ガラスの場合では反応が速く進行することになる。そこで、この問題を回避するために、より低い粘度のジオポリマーペーストを使用することにした。図 3.2.4-9 では、水分配合比を 13H<sub>2</sub>O に増やしたジオポリマーペーストの場合、初期に粘度が低いものの、6 時間経過しても 3 Pa・s 以下に保たれることが分かった。この粘度範囲は試験に用いた注入ポンプに適していることから、以降の 3 L 規模の注入試験には、1Na<sub>2</sub>O-1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-3.8SiO<sub>2</sub>-13H<sub>2</sub>O という配合のジオポリマーペーストを用いることにした。また、ジオポリマーモルタルの場合、砂の沈降を防ぐために高速混合する必要があり、混合による発熱も増えることから、3 L 規模試験に砂は用いないこととした。混合と注入の間、混合速度もできる限り 400 rpm に制限した。メタカオリンを添加するたびに数秒間だけ速度を上昇させ、メタカオリンをすべて取り込むのに必要な時間を短縮した。

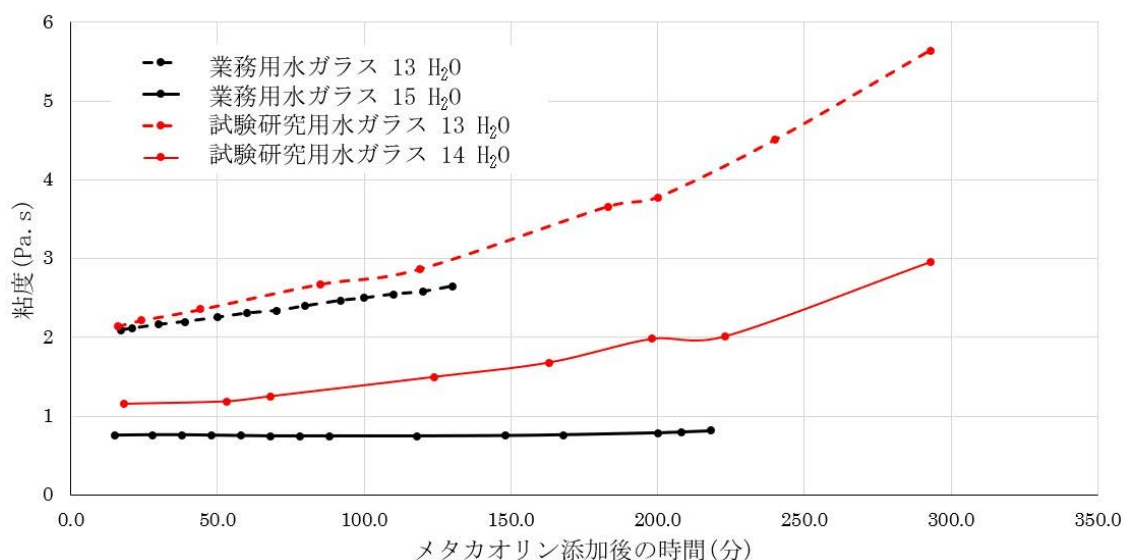


図 3.2.4-9 水ガラスのロット、水分量がジオポリマーペーストの粘度に与える影響

## ④ 3 L 規模試験に最適な注入方法とジオポリマー配合比の検討

ジオポリマーを注入するための予備試験から、ジオポリマー配合比と注入方法を検討した。配合としては、砂を含まない  $1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-13\text{H}_2\text{O}$  というジオポリマー配合比を選択することで、チューブポンプを使った注入に適した粘度が期待できることが分かった。また、3 L 規模の注入は以下の手順で行うように改良した。

- アルカリシリカ溶液を調製する (24 時間前)
- 混合槽に溶液を注ぐ。
- 混合槽下部ユニオン→ポンプ→混合槽上部のようにチューブで循環ループを作り、ポンプを起動する。
- 混合槽の攪拌を低速で開始する。
- メタカオリンを混合槽に少しずつ加える。
- 加熱を避けるため、ほとんどの時間、攪拌速度を 400 rpm 以下に保つ。
- メタカオリン添加終了後も 400 rpm で攪拌を続け、混合槽とチューブの両方で均質な混合物が得られるまで攪拌と循環を続ける。
- ポンプを停止する。
- チューブの出口を塞ぐ (水温が高い場合は PVC フィルムで塞ぐ)。
- 水張りした試験容器の底にチューブ出口をセットする。
- ゆっくりとした速度でポンプを始動する (約 0.6 mL/min)。
- 初期層が形成されたらポンプの注入速度を上げる。
- 注入が完了したらポンプを停止する。
- チューブを取り出す。

## (3) 3 L 規模の水中注入試験

## ① 室温での水中注入試験

この注入試験は令和 5 年 1 月 25 日に実施し、3.3 L 高張力鋼容器内で硬化したジオポリマーペースト試料を得た。室温で実施したことから、この試料を G-RT と称する。G-RT 試料には 5.1 kg のジオポリマーが使用された。注入前、セメントペーストのブロック、3 本の金属管 (銅、アルミニウム、ステンレス)、500 mL の純水を容器に入れた (図 3.2.4-10)。ポンプを起動すると、想定通りにフィルムが破断せず、ジオポリマーによってチューブから押し出されてしまった。フィルムはピンセットで慎重に回収した。ジオポリマーペーストの粘度が低いため、注入は問題なく 22 分続けることができた。平均流量は、1 分あたり 136 mL に相当する。注入チューブを取り外した後、数時間後、金属管の真上にあたるジオポリマー表面にいくつかの気泡が現れ始めた。試料 G-RT は、水の蒸発を防ぐためにガラス蓋で覆い、室温で 7 日間養生した。



図 3. 2. 4-10 試料 G-RT を調製するための容器の初期状態を示す写真

#### ② 高温（80 °C）での水中注入試験

この注入試験は、80 °Cに保った恒温槽を用いて令和5年1月27日に実施した。高温で得られた試料なので、以降 G-HT と称する。注入前の容器には金属管等は設置せず、80 °Cに予熱した水のみである。ジオポリマー配合と注入方法は G-RT と同様であるが、G-HT の注入時間は17分であった。注入後、G-RT のような表面の気泡は観察されなかった。80 °Cの小規模試験で観察された注入口付近のジオポリマー蓄積現象は発生しなかった。室温のジオポリマーの流量が多いため、水と容器が冷却されて流動性が高まったと考えられる。試料 G-HT の表面に水張りしたまま 80 °Cで7日間養生した。養生中に約 100 mLの水が蒸発したが、数回に分けて 80 °Cの純水を同量補充した。

#### (4) 間隙への充填と硬化の状態の確認

##### ① 注入後7日間養生した3 L試料の観察

7日養生後、試料 G-RT 及び G-HT の外観を観察した。どちらも表面に凹凸があり、厚さ数 mm の軟質層が形成されていた。この軟質層を分析のために回収し、表面を純水で洗浄した後の写真を、図 3. 2. 4-11 と図 3. 2. 4-12 に示す。いずれの試料でも、ジオポリマーペーストが高張力鋼に隙間なく接着し、硬化している様子が観察された。試料 G-RT では、金属管の上の試料表面に穴の開いた盛り上がり認められた。一方、試料 G-HT では、割れ目のある凹凸が中央に1つだけ観察された。洗浄後の試料は切断するまで室温で相対湿度 100 %に保った袋に密閉保管した。



7日養生後

表面の析出物除去と洗浄後

図 3. 2. 4-11 試料 G-RT の養生 7 日後及び表面洗浄後の写真



7日養生後

表面の析出物除去と洗浄後

図 3. 2. 4-12 試料 G-HT の養生 7 日後及び表面洗浄後の写真

## ② 試料切断面の観察

ウォータージェットによる試料切断は、試料 G-RT 作製から 28 日後、G-HT 作製から 26 日後にあたる令和 5 年 2 月 22 日に実施した。切断には株式会社フロージャパン製 Mach3-1007b を用い、圧力は 370 MPa で実施した。試料を横に寝かせた状態で、以下の順番に合計 3 回の切断を行った。

- 金属管のない試料 G-HT の側面を試し切り
- 試料 G-HT の中心軸で切断
- 金属管を含む試料 G-RT の中心軸で切断

切断した試料の写真を図 3. 2. 4-13 に示す。高張力鋼容器や金属管のような比較的硬い材料をウォータージェットで切断する場合、切断方向の下側で水圧が低下することが避けられない。このため、ウォータージェットが出て行く部分で比較的軟らかいジオポリマーに損傷が観察された。これを考慮すると、両試料の内部でも、ジオポリマーが高張力鋼容

器に対して良好な接着性を有することが確認された。金属管のない試料 G-HT では、ジオポリマー表面から約 3 cm 下に空洞が観察され、それ以外は均質のように見える。混合槽での攪拌で巻き込まれた空気は微細な気泡としてジオポリマーとともに容器に注入される。この気泡は表面から放出されるが、G-HT では熱水でジオポリマー表面が速やかに硬化したため、残存する気泡が集まって空洞を形成したと思われる。試料 G-RT の切断面では、ジオポリマーとセメント、銅、ステンレスの界面が明瞭で隙間がなく、注入時に充填が良好であったことを示している。ただし、アルミニウム管の表面と内部には、球状の空洞が大量に見られた。アルカリ性のジオポリマーがアルミニウムを腐食させ、水素の気泡がこのような空洞を形成したと考えられる。

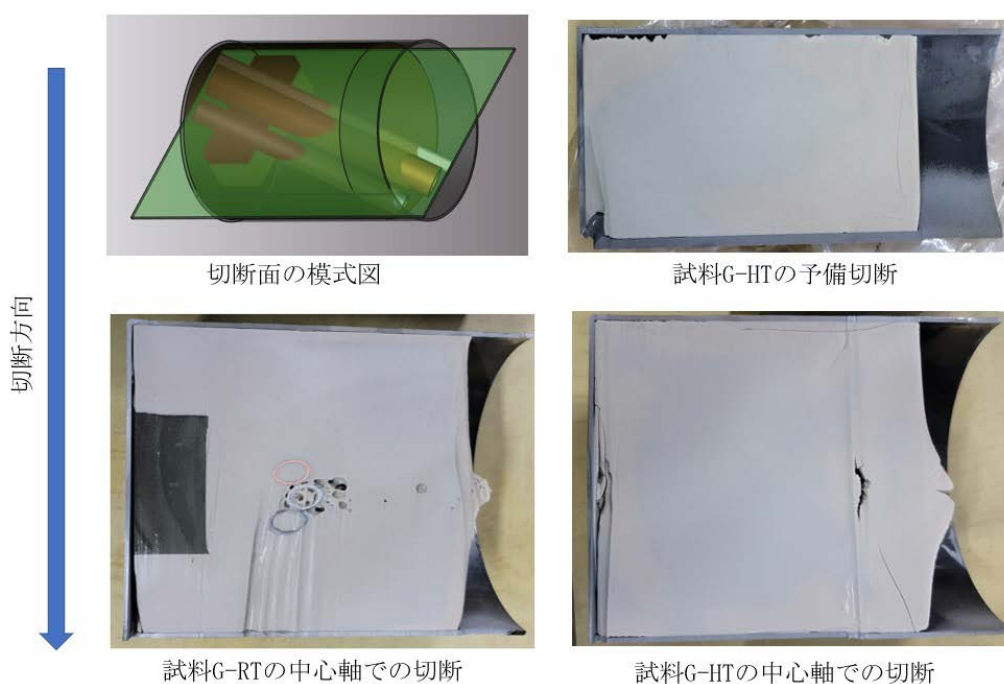


図 3.2.4-13 試料 G-RT 及び G-HT 切断面の写真

#### (5) マイクロラマン等による試料分析

試料 G-RT 及び G-HT の表面から採取した軟質層は、遠心分離と 80 °C 乾燥後、マイクロラマン分光、XRD、SEM で分析した。ラマン分析によって得られたスペクトルを図 3.2.4-14 に示す。ラマンスペクトルで特徴的なくつかの強いバンドは、用いたメタカオリン製品 M1000 に含まれる不純物  $\text{TiO}_2$  に起因するものである。この  $\text{TiO}_2$  相はメタカオリン製品の 1.9 wt% しか占めていないが、ジオポリマーのバンド測定の障害となる。 $\text{TiO}_2$  相以外について、247、323、463、797  $\text{cm}^{-1}$  付近のバンドはメタカオリンあるいはカオリンのいずれかに起因し、弱いものの、G-RT と G-HT の両方の軟質層のスペクトルでも確認することができる。試料 G-RT と G-HT の軟質層、メタカオリン製品並びに別途合成したジオポリマーの X 線回折図を図 3.2.4-15 に示す。メタカオリン製品 M1000 では、メタカオリンの非晶質構造が 23 度を中心とした幅広いバンドとして観察された。ジオポリマーでは、この非晶質バンドは 28 度を中心としている。試料 G-RT と G-HT の軟質層のバンド中心は、それぞれ 24 度と 27 度にあることから、軟質層がジオポリマーとメタカオリン製品の間隔的な性状を有することが示唆される。80 °C で養生した試料 G-HT の軟質層の回折図には  $2\theta$  で 13 度付近に弱いピークが存在し、結晶化の兆候を示唆している。この G-HT 軟質層の結晶化について、さらに

SEM で調べた。図 3.2.4-16 に示すように、軟質層には糸玉のような形状の構造物がいくつか確認できた。XRD 回折パターンにあった 1 つのピークだけでは結晶相を明確に特定することはできないが、このピークと糸玉の形状はいずれもヒドロキシソーダライトの構造と一致する。

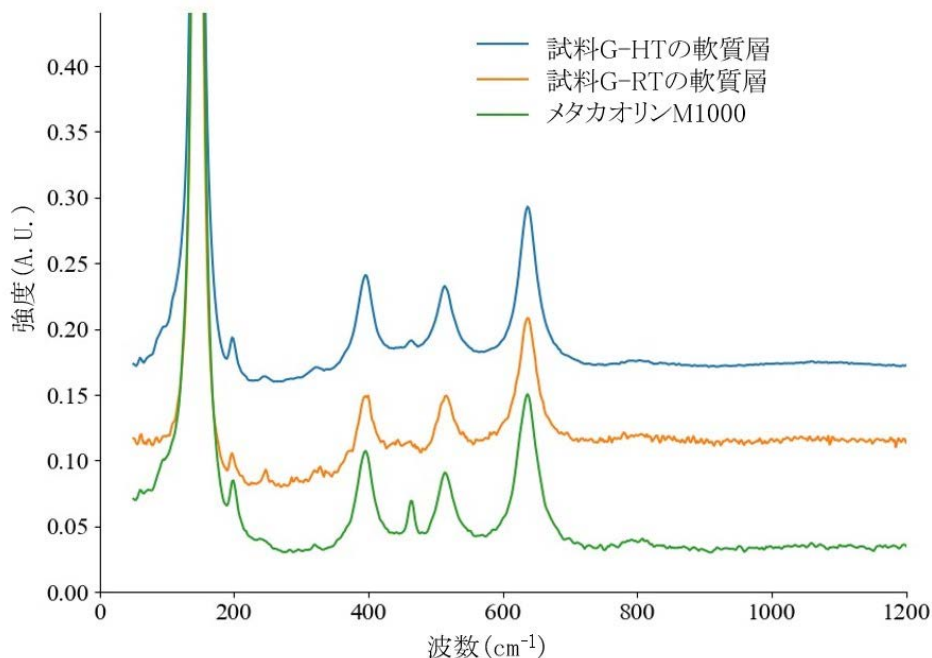


図 3.2.4-14 試料 G-RT と G-HT 表面の軟質層、メタカオリン製品のラマンスペクトル

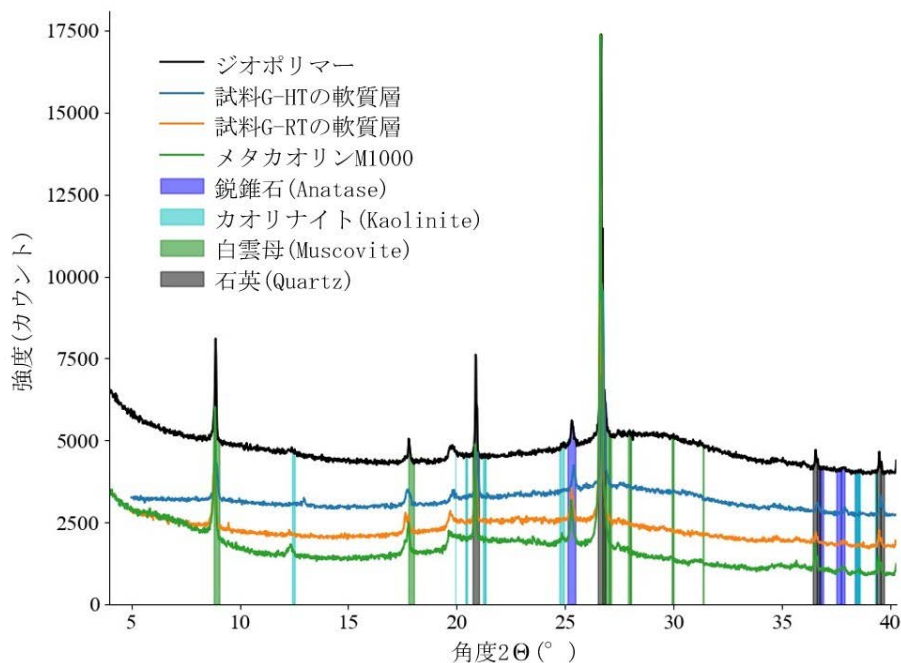


図 3.2.4-15 軟質層等の X 線回折図

(図中に「ジオポリマー」と表記した試料の作製条件：配合比  $1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-13\text{H}_2\text{O}$ 、業務用水ガラスとメタカオリン M1000 を使用、28 日養生、室温実施)

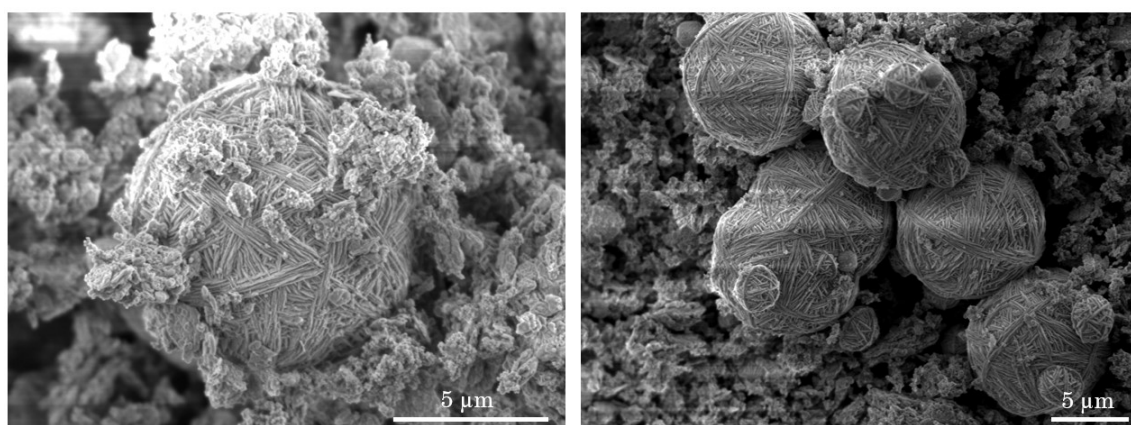


図 3. 2. 4-16 試料 G-HT 軟質層の SEM 画像（結晶状の部分）

(6) 止水用ジオポリマーの注入プロセス検討

令和 4 年度に実施したジオポリマー水中注入試験について、試験条件と結果の一部を時系列で表 3. 2. 4-1 に示す。

表 3. 2. 4-1 水中注入の試験条件

試験の順序	H <sub>2</sub> O 砂	規模	温度	試験容器	配管	セメント	備考
予備試験 1	12 ×	200 mL	室温	PE	×	×	業務用水ガラス使用 注入完了 軟質層を初確認
予備試験 2	12 ○	200 mL	室温	PE	×	×	業務用水ガラス使用 注入完了
予備試験 3	12 ○	200 mL	80 °C	PE	×	×	業務用水ガラス使用 注入口周辺に蓄積
予備試験 4	12 ○	3.3 L	室温	高張力鋼	○	○	試験研究用水ガラス 注入失敗
本試験 G-RT	13 ×	3.3 L	室温	高張力鋼	○	○	試験研究用水ガラス 注入完了 A1 管の上に気泡
本試験 G-HT	13 ×	3.3 L	80 °C	高張力鋼	×	×	試験研究用水ガラス 注入完了 中央部に盛り上がり

注) H<sub>2</sub>O 欄はジオポリマー配合の H<sub>2</sub>O/Na<sub>2</sub>O モル比、PE はポリエチレン製容器

最終的に、Na<sub>2</sub>O に対するモル比で 1Na<sub>2</sub>O-1Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-3.8SiO<sub>2</sub>-13H<sub>2</sub>O という配合のジオポリマーを用いて、チューブポンプによる注入に適した粘度を得ることができた。また、この配合比とチューブポンプによる注入により、3 L 規模の高張力鋼容器での水中注入が室温と 80 °C の両方で可能となった。これら試験で得られた知見について、PCV 止水の注入プロセスという観点から検討した事項を抽出し、以下に記す。

- ・砂を配合することはジオポリマー粘度を上げるメリットがあるが、不利になることも判明した。3 L 規模試験での観察では、混合槽で均質混合を維持するために熱を発生させる高速混合が必要となり、これが硬化を促進した。また、使用する水ガラス等の原料も粘度に影響を与える。砂やニュートロンポイズンなどの追加配合が必要な場合、熱をあまり発生させずに均質化できる混合装置を適切に選択することが推奨される。
- ・注入時に水とジオポリマーの混合はなかったが、界面に薄い軟質層が形成されることが判明した。この軟質層は、メタカオリンとジオポリマーの中間的なものと推測され、80 °Cでは結晶化の兆候が観察された。この軟らかい物質はジオポリマー化には問題なく、硬化したジオポリマー全体に比べてごくわずかな量であった。しかし、PCV 内部では潜在的な問題となる可能性がある。例えば、洗浄や水循環が必要となった場合、この柔らかい物質は容易に洗浄され、フィルターを詰まらせる可能性がある。
- ・ジオポリマーペーストと金属との反応や接着性について、高張力鋼、ステンレス鋼及び銅で良好な接着が観察され、ジオポリマーペーストは内径 10 mm の管内に注入できた。アルミニウムの場合、腐食によりチューブ内とその周辺に気泡が発生した。また、この気泡はジオポリマーの硬化時に表面に段差を生じさせた。密閉状態で水素が蓄積される水素リスクに加え、この気泡がジオポリマーによる止水作用を阻害する可能性がある。ジオポリマー注入前にアルミニウムなどの高 pH で腐食しやすい金属がないことを確認することが推奨される。
- ・アルミニウム材料を含まない 3 L 規模試験でも、80 °Cでジオポリマーを注入すると表面から約 3 cm の深さに空洞ができ、その上のジオポリマーが変形していることが確認された。これは、表面のジオポリマーが早期に硬化し、この層の下に気泡が蓄積されたためと考えられる。また、80 °Cでの小規模試験では、熱水との接触で早い硬化が見られ、ペーストの流れが不規則であったことから、クラックや配管などの狭い空間でボイドが形成される懸念がある。不完全な注入や不均一な注入を防ぐ対策として、注入時に注入口温度を計測したり、ジオポリマーや注入箇所を冷却したりすることが推奨される。

#### (7) まとめ

流動と凝固をある程度制御可能なジオポリマーについて、予備的な水中注入を試行して適用性を確認し、ジオポリマーの配合比と注入方法を最適化した。室温と 80 °Cで 3 L 規模の水中注入試験を実施し、試料の切断面観察により間隙への充填と硬化の状態を確認した。注入したジオポリマーと水の境界に形成された軟らかい層について、マイクロラマン分光分析等で性状を評価した。得られた結果から、止水用ジオポリマーの配合比と注入プロセスを検討した。

#### \* まとめ

##### ① 止水・補修試験及び評価（東京大学）

止水・補修材として臨界防止材や水素発生抑制材を添加し、組成を改善したジオポリマーを作製して、流動試験や強度試験等を実施した。また、超重泥水について添加材の効果を確認した。貫通部についてはジオポリマーを使用した止水試験を継続した。

##### ② 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学）

令和3年度に作製したバルク状試料を微粒子状に加工し、形状における実機との模擬性



向上を図った。また、バルク状の試料と同様の冶金学的観察を行い、総合的な模擬性を評価した。さらに、当該微粒子試料を充填材へ添加し、照射試験等を行い、水素再結合性能等を評価した。さらなる性能向上のための酸化加熱処理装置を構築した。

③照射試験（再委託先：アトックス）

令和3年度に構成した試験体系で恒温に保持した改良ジオポリマー及び超重泥水について $\gamma$ 線照射試験を実施した。

④ジオポリマーの最適化（連携先：JAEA）

流動と凝固をある程度制御可能なジオポリマーについて、マイクロラマン分光分析等による適用性確認を行い、水中注入試験を実施して間隙への充填と硬化の状態を確認した。得られた結果から、止水用ジオポリマーの配合比を最適化し、注入プロセスを検討した。

### 3.3 PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション（産総研）【令和3年度～令和4年度】

#### (1) 3次元大規模計算に向けた計算の高速化

##### 【令和3年度までの概要】

令和3年度は、3次元大規模計算に向けた計算手法を開発した。これまでに開発した粒子法（MPH法[13]）を基にして、並列化などを利用して陰的な計算を効率化することで計算速度の向上を図った。具体的には、3次元大規模解析に向けた計算の高速化に関する取り組みとして、粒子法のプログラムの並列化を行った。OpenMP 及び OpenACC を用いたメモリ共有型の並列化を行い、GPU上でプログラムが実行できるようにすることで、計算効率を向上した。

##### 【令和4年度実施内容及び結果】

令和3年度に引き続き、令和4年度にも、粒子法プログラムの高速化の検討を行った。粒子法による3次元大規模計算に向けて、計算効率の向上は重要であるためである。具体的には、粒子法へのマルチグリッド法[14]の導入を行った。有限要素法や MPH for incompressible (MPH-I) 法のように、行列計算を伴う数値計算では、計算規模が大きくなるに連れて、行列計算におけるソルバー反復回数が増大し、計算規模以上に計算量が増大するため、大規模化への障壁となる。マルチグリッド法は、ソルバー反復回数が計算規模によらずほとんど一定とするようなソルバー解法技術であり、マルチグリッド法をうまく適用することができれば、大規模計算における計算量を大幅に抑制することが可能である。MPH-I法に関するマルチグリッド法[14]が実現したことを受けて、本課題においてもマルチグリッド法を採用し、計算効率を向上させた。図3.3-1は、表3.3-1の計算条件を用いた高粘性ダム崩壊計算の様子を示しており、図3.3-2はこの計算例に関して、単スレッド、OpenMP4並列、OpenMP4並列マルチグリッドを用いて計算した際にかかった時間を示しており、令和3年度に行ったスレッド並列化、令和4年度に行ったマルチグリッド法の導入によって、計算効率が向上していることが確認できる。

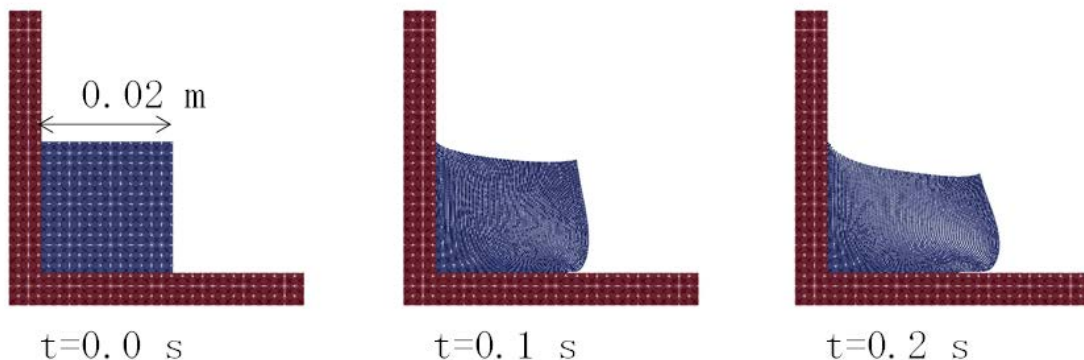


図 3.3-1 高粘性ダム崩壊計算[14]

表 3.3-1 高粘性ダム崩壊計算における計算条件

計算条件	値
粒子径 (m)	$0.25 \times 10^{-3}$
時間刻み幅 (s)	$0.25 \times 10^{-3}$
重力 ( $m/s^2$ )	10
せん断粘性 (Pa. s)	$1 \times 10^1$
体積粘性 (Pa. s)	$1 \times 10^4$
体積弾性率 (Pa)	$1 \times 10^6$
密度 ( $kg/m^3$ )	$1 \times 10^3$
影響半径比 (圧力)	1.75
影響半径比 (粘性)	3.5
粒子数	6400

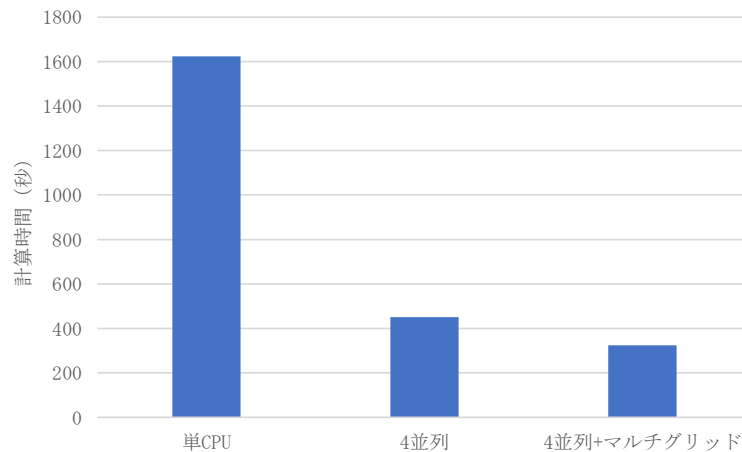


図 3.3-2 計算時間の比較 (高粘性ダム崩壊計算)

(2) スケール効果の検討と開口部閉塞シミュレーション

【令和4年度実施内容及び結果】

令和4年度は、閉じ込め材料（ジオポリマーなど）の特性を用いた粒子法シミュレーションの妥当性を確認した。特に、閉塞性能及びスケール効果についての計算手法の妥当性確認を行った。東京大学で実施するジオポリマーを用いた開口部閉塞試験を模擬してシミュレーションを行い、閉塞性能に関する模擬性を確認した。また、施工するジオポリマーの量及び開口部の大きさを変えた試験とも比較することで、空間スケールが大きくなった場合の適用性を確認した。

具体的には、令和3年度に実施した閉じ込め材の開口部閉塞性能に関する実験の検討に引き続き、閉塞性能のために重要となる積み上がりに関して、スケール効果を理論的に考察した。また、ジオポリマーを用いた開口部閉塞試験の一環として実施したスランプフロー

試験を模擬したシミュレーションを実施した。さらに、ジオポリマー量及び開口部の大きさが閉塞性能に与える影響をシミュレーションにより検討した。

① スケール効果の検討

ジオポリマー施工による開口部閉塞のために重要となる積み上がりに関して、積み上がり高さ $h$ と降伏応力の関係を理論的に考察した。ジオポリマーの積み上がり高さ $h$ 、ジオポリマーペーストの密度 $\rho$ とする時、ジオポリマーが積み上がった床面にかかる垂直方向の圧力（応力）は、

$$P_v = \rho gh \tag{3.3.1}$$

と概算される。一方、積み上がったジオポリマーの側面における水平方向の圧力（応力）は、

$$P_h = 0 \tag{3.3.2}$$

であるため、垂直方向と水平方向の応力差は

$$\sigma = P_v - P_h = \rho gh \tag{3.3.3}$$

となる。大方、降伏応力がこの応力差を超える場合に変形が生じると考えると、変形が生じずに積み上がるための条件は、応力差が降伏応力よりも小さい場合ということになる。ジオポリマーが四角い形状を保ったまま積み上がる場合には、

$$\sigma_y < \alpha \rho gh \tag{3.3.4}$$

である必要があるため、積み上がり高さは高々

$$h = \frac{\sigma_y}{\alpha \rho g} \tag{3.3.5}$$

と見積もれる。このことを確認するため、積み上がり維持に関する計算を実施した。計算条件を表 3.3-2 に、計算体系を図 3.3-3 にそれぞれ示す。また、図 3.3-4 に計算結果を示す。なお、図 3.3-4 では、初期状態から 1 秒後の速度分布を描画しており、これにより、変形が生じているかを示している。上記の理論的考察に従った降伏応力と積み上がり高さの関係が得られていることが確認できる。

表 3.3-2 積み上がりシミュレーションの計算条件

計算条件	値
粒子径 (m)	$5.0 \times 10^{-3}$
時間刻み幅 (s)	$1.0 \times 10^{-4}$
重力 ( $m/s^2$ )	10
降伏応力 (Pa)	20, 40, 80, 160
塑性粘度 (Pa. s)	5
固体粘度 (Pa. s)	$5 \times 10^4$
体積粘性 (Pa. s)	$5 \times 10^5$
体積弾性率 (Pa)	$1 \times 10^8$
密度 ( $kg/m^3$ )	$2 \times 10^3$
影響半径比 (圧力)	1.75
影響半径比 (粘性)	3.5

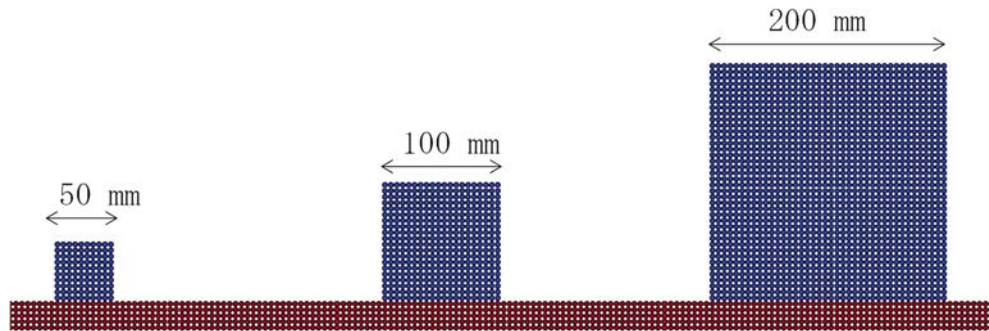


図 3.3-3 積み上がりシミュレーションの計算体系

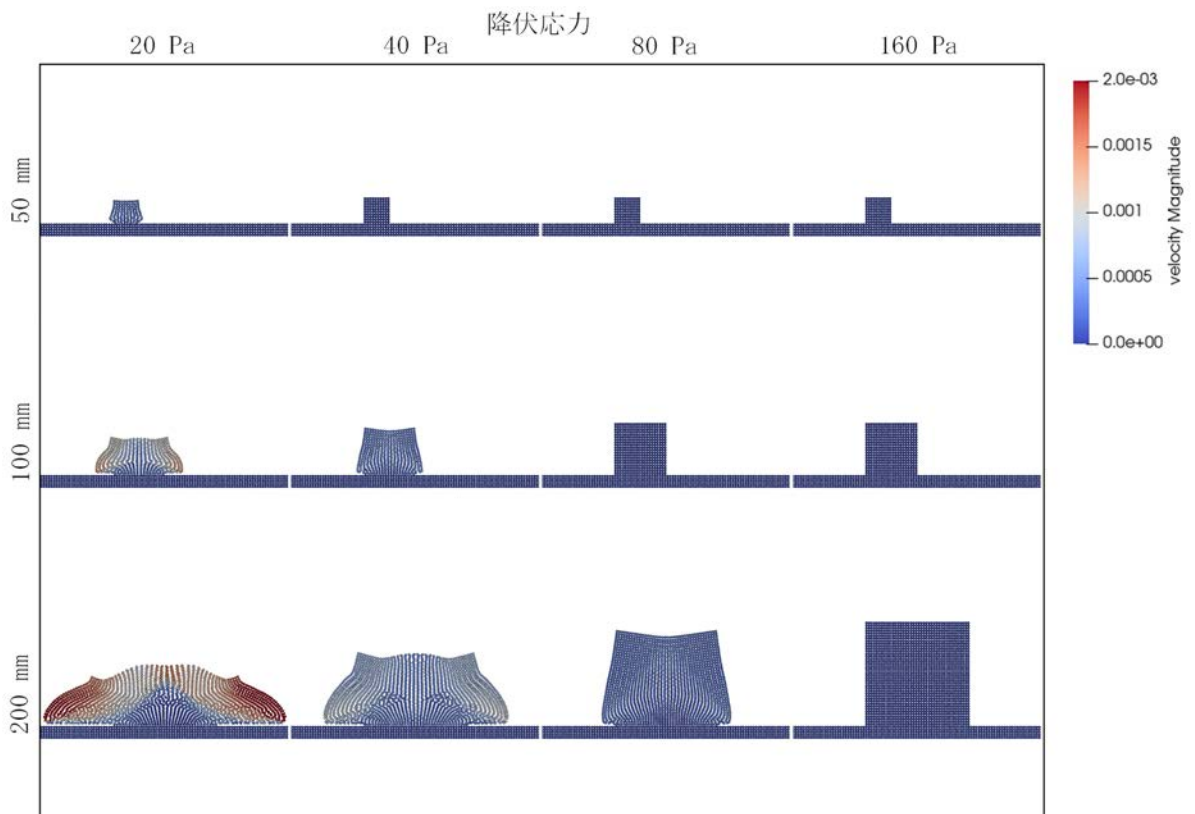


図 3.3-4 積み上がりシミュレーションの計算結果（1秒後の速度分布）

② スランプ試験を模擬したシミュレーション

閉塞性能試験の一環として実施したジオポリマーを用いたスランプ試験を模擬する物性を探索するためのパラメータサーベイを実施した。ジオポリマーペーストのみのもの、ジオポリマーペーストに珪砂を 50 wt%添加したもの、ジオポリマーペーストを 8 時間養生したものの 3 種類に関して実施したスランプ試験に対して、スランプ試験の様相を模擬する物性を探した。具体的には、表 3.3-3 の計算条件、図 3.3-5 の計算体系（3 次元）を用いて、パラメータサーベイを実施した。それぞれの様相を模擬した結果を図 3.3-6 に示す。

表 3.3-3 スランプ試験シミュレーションの計算条件

計算条件	値
粒子径 (m)	$2.5 \times 10^{-3}$
時間刻み幅 (s)	$1.0 \times 10^{-4}$
重力 ( $m/s^2$ )	10
降伏応力 (Pa)	パラメータ
塑性粘度 (Pa. s)	パラメータ
固体粘度 (Pa. s)	$5 \times 10^3$
体積粘性 (Pa. s)	$5 \times 10^5$
体積弾性率 (Pa)	$1 \times 10^8$
密度 ( $kg/m^3$ )	$2 \times 10^3$
影響半径比 (圧力)	1.75
影響半径比 (粘性)	3.5

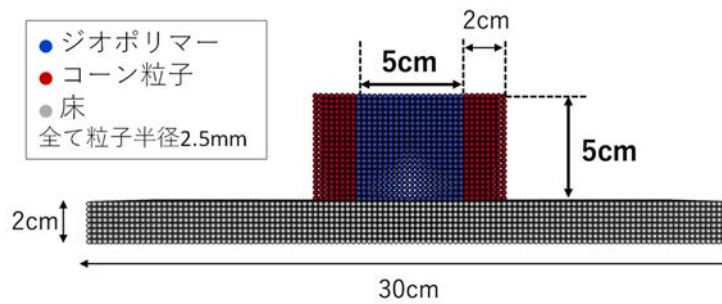


図 3.3-5 スランプ試験シミュレーションの計算体系

	ブランク	珪砂50wt%添加	養生8時間後
実験			
シミュレーション	<div style="border: 1px solid black; padding: 2px; width: fit-content; margin: 0 auto;">                     降伏応力=10 Pa                      塑性粘度=5 Pas                 </div>	<div style="border: 1px solid black; padding: 2px; width: fit-content; margin: 0 auto;">                     降伏応力=5 Pa                      塑性粘度=100 Pas                 </div>	<div style="border: 1px solid black; padding: 2px; width: fit-content; margin: 0 auto;">                     降伏応力=30 Pa                      塑性粘度=150 Pas                 </div>

図 3.3-6 ジオポリマーの様相模擬のための降伏応力及び塑性粘度

③ 閉塞性能に関する検討

スランプ試験を模擬したシミュレーションで得られたジオポリマーを模擬するための物性値（降伏応力及び塑性粘度）を用いて、開口部閉塞に関する2次元シミュレーションを行った。計算条件を表3.3-4に、計算体系を図3.3-7にそれぞれ示す。また、計算結果を図3.3-8及び図3.3-9示す。ここでは初期状態から20秒後の速度分布を示している。どの条件でもジオポリマーが速度を持っており、閉塞できていない。これは、(2) ①の考察より、降伏応力  $\sigma_y = 30 \text{ Pa}$  のケースであっても、積み上がり高さが閉塞すべき開口部高さを下回っている。通常は積み上がり高さ以上の開口部を閉塞するのは難しいと考えられ、この結果はそのことと整合している。逆に、開口部高さが積み上がり高さ  $h = \sigma Y / \rho g$  に満たない場合であれば開口部の閉塞が可能であると考えられる。

表 3.3-4 閉塞シミュレーションの計算条件

計算条件	値	
粒子径 (m)	$5.0 \times 10^{-3}$	
時間刻み幅 (s)	$1.0 \times 10^{-4}$	
重力 ( $\text{m/s}^2$ )	10	
降伏応力 (Pa)	5	30
塑性粘度 (Pa·s)	100	150
固体粘度 (Pa·s)	$5 \times 10^4$	
体積粘性 (Pa·s)	$5 \times 10^5$	
体積弾性率 (Pa)	$1 \times 10^8$	
密度 ( $\text{kg/m}^3$ )	$2 \times 10^3$	
影響半径比 (圧力)	1.75	
影響半径比 (粘性)	3.5	

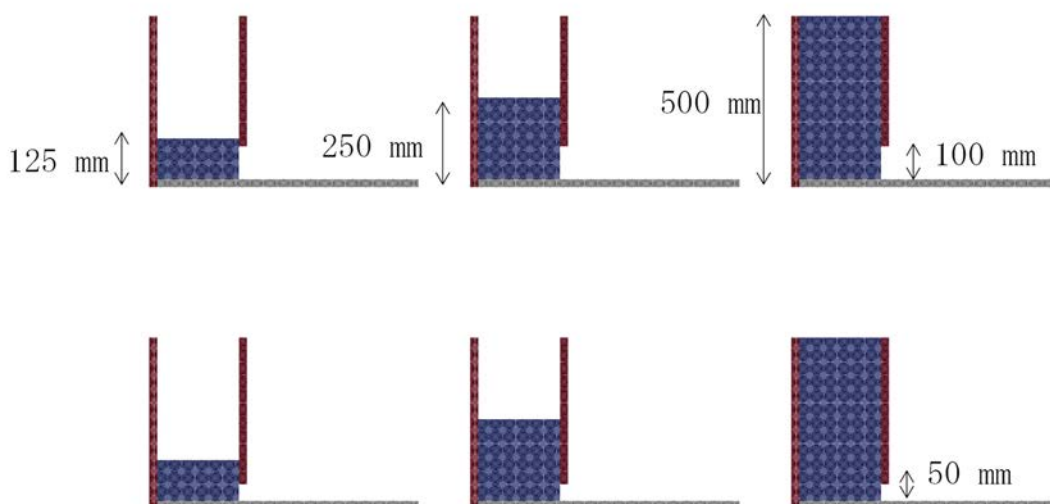


図 3.3-7 閉塞性能シミュレーションの計算体系

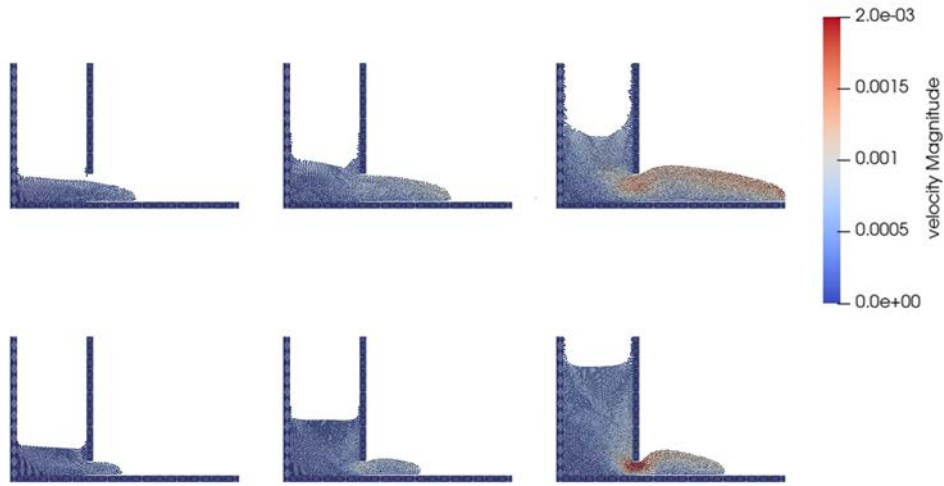


図 3.3-8 閉塞性能シミュレーションの計算結果 (20 秒後の速度分布、降伏応力 5 Pa の場合)

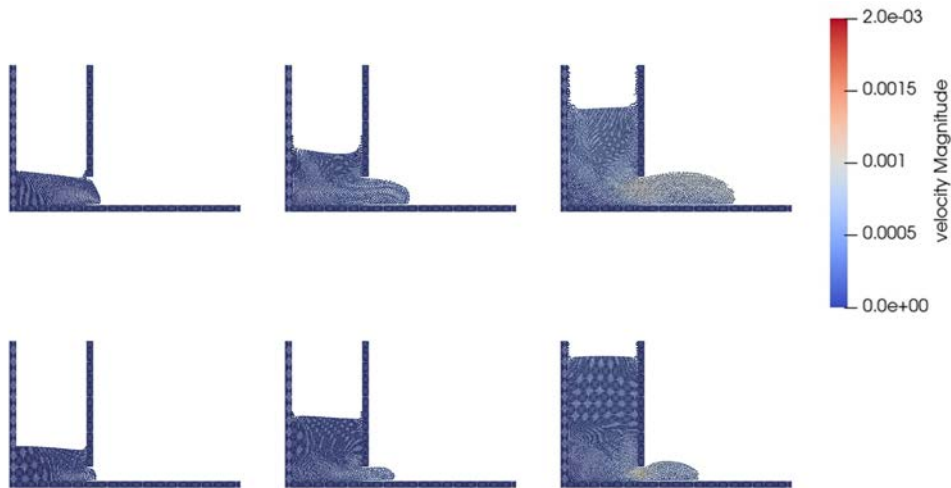


図 3.3-9 閉塞性能シミュレーションの計算結果 (20 秒後の速度分布、降伏応力 30 Pa の場合)

\* まとめ

令和 3 年度に引き続き、粒子法プログラムの高速化の検討を行った。具体的には、粒子法へのマルチグリッド法[14]の導入を行った。

閉じ込め材料（ジオポリマーなど）の特性を用いた粒子法シミュレーションの妥当性を確認した。特に、閉塞性能及びスケール効果についての計算手法の妥当性確認を行った。東京大学で実施するジオポリマーを用いた開口部閉塞試験を模擬してシミュレーションを行い、閉塞性能に関する模擬性を確認した。また、施工するジオポリマーの量及び開口部の大きさを変えた試験とも比較することで、空間スケールが大きくなった場合もシミュレーションを適用できることを確認した。



### 3.4 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）【令和3年度～令和4年度】

#### 【令和3年度までの概要】

擬核種を添加した種類の異なるジオポリマーを作製した。降水系地下水及び海水系地下水を対象に、長期の浸出試験を開始した。定期的に、サンプリングを行い、固液分離後、液相中の模擬核種、ジオポリマーの構成元素の濃度を ICP-MS、ICP-AES で測定した。また、固相の結晶相及びシリカネットワークを XRD、レーザーラマン分光光度計で評価した。バッチ法にて、模擬核種の収着試験を開始した。異なる pH、イオン強度条件で、核種を添加したジオポリマー懸濁液を振とう後、固液分離を行い、液相中の模擬核種濃度を ICP-MS、ICP-AES で測定することで、収着量及び収着の分配比を評価した。模擬核種としてセシウム、ストロンチウム、ユーロピウムを用い、それらの元素の収着を異なる pH、塩濃度条件で取得した。セシウムの収着は、主にイオン交換により、そして、ユーロピウムは表面錯体形成に、また、ストロンチウムはそれら両方の収着機構によることが分かった。

#### 【令和4年度実施内容及び成果】

本業務では、ジオポリマーによって安定化させた燃料デブリを取り出し後、容器への充填措置の上、最終的に燃料デブリを含む放射性廃棄物として保管及び直接処分することを想定している。したがって、燃料デブリの安定化には、取り出し時に求められる機械的安定性に加えて、処分時の廃棄体として、含有する放射性核種の浸出・収着・拡散特性を把握することが求められる。

令和4年度は、模擬核種（セシウム、ストロンチウム、ヨウ素）を添加した種類の異なるジオポリマーを用いて、降水系地下水及び海水系地下水を対象に、長期の浸出試験を継続した。また、バッチ法による異なる pH、イオン強度条件での模擬核種の収着試験を継続した。そして、ディスク状に整形したジオポリマー試料を用いて、模擬核種の拡散試験（through-diffusion）を開始し、予察的に実効拡散係数を取得した。

#### (1) 浸出試験

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ジオポリマー（ケイ素/アルミニウム モル比 2、アルミニウム/ナトリウム モル比 1）を試験に供した（以下、「NaMKGP」という。）。特に断らない限り、試験には、特級の試薬とイオン交換水（Milli-Q、 $>18.2 \text{ M}\Omega$ ）を用いた。水ガラス（ケイ酸ナトリウム溶液 1 号、キシダ化学株式会社）20.30 g に、イオン交換水と水酸化ナトリウム（富士フイルム和光純薬株式会社）1.66 g、塩化セシウム（富士フイルム和光純薬株式会社）を加え、あらかじめ十分攪拌した溶液（アクティベーター溶液）に、メタカオリン（Imeris Argical M1000）20.80 g を、攪拌機で攪拌しながら添加した。その後、模擬核種（セシウム、ストロンチウム、ヨウ素）の 1 mM 母溶液（塩化セシウム、塩化ストロンチウム、ヨウ化ナトリウム溶液）を 1 mL を 10 g のジオポリマースラリーに添加した。得られたジオポリマースラリーをパーフルオロアルコキシアルカン（PFA：フッ素樹脂の一種）製のチューブ（内径 6 mm、長さ 10 mm）に流し込み、相対湿度 100 %、室温下で、7 日間養生させた（図 3.4-1）。浸出試験の液相条件は、Milli-Q 水、模擬地下水（0.02 M  $\text{NaNO}_3$ ）、模擬海水（海産微細藻類用ダイゴ人工海水 SP）とした。浸出試験開始後、液相所定の期間で液相を採取するとともに、複合 pH 電極（Thermo Fisher、Orion Ross 電極、内部液 1 M NaCl）を用いて液相の pH を測定した。採取した液相中の模擬核種濃度の測定を、 $\text{Cs}^+$ 、 $\text{Sr}^{2+}$  については、誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS、Agilent 7500cs）を用いて、 $\text{I}^-$  については、イオンクロマトグラフィー（Metrohm、

930 Compact IC Flex) を用いて行った。なお、模擬地下水には  $\text{Sr}^{2+}$  が含まれていることから、 $\text{Sr}^{2+}$  については、この条件での浸出試験を実施していない。



図 3.4-1 PFA 製のチューブ内でのジオポリマー試験体の養生の様子

3 種類の模擬核種 ( $\text{Cs}^+$ 、 $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{I}^-$ ) を対象にした降水系地下水、海水系地下水、また、比較のために Milli-Q 水を用いた浸出試験の結果を図 3.4-2～図 3.4-4 に示す。各イオンの浸出量は、次式に示す累積浸出割合 (Cumulative leaching fraction, CLF) で示している。

$$CLF = \frac{\sum_{n=1}^{n=N} a_n}{A_0} \quad \text{式(3.4-1)}$$

ここで、 $a_n$  は対象元素の  $n$  回目のサンプリング時の液相モル数、 $A_0$  は全モル数である。

3 種類の液相条件における浸出液の pH は、3 つの模擬核種に対して同様であり、Milli-Q 水、模擬地下水系では、初期 pH が高く (Milli-Q : 11.6、模擬地下水 : 11.4) であり、時間とともに減少し、30 日後、9.5 程度となっている。海水系では、初期 pH が 9 程度と比較的に小さく、また、その減少幅も小さい。 $\text{Cs}^+$  の CLF は液相条件に大きく依存し、海水系では大きく、時間とともに増加し、2 週間程度でプラトー ( $CLF 1.9 \times 10^{-3}$ ) に達している (図 3.4-2)。一方、模擬地下水系、Milli-Q 系では小さく、特に、Milli-Q では、 $CLF 1 \times 10^{-3}$  程度と小さく、また時間変化もない。これは、ジオポリマーの外表面近くの細孔や微細な亀裂中に保持されていた液相からの直接的な溶出に対応すると考えられる。一方、模擬海水系や模擬地下水系で見られた緩慢、かつ、液相の支持電解質濃度に大きく依存した  $\text{Cs}^+$  の浸出は、イオン交換反応で吸着した  $\text{Cs}^+$  が  $\text{Na}^+$  イオンなどの競合イオンによって脱離し、ジオポリマーマトリクス中での拡散を経て、液相に溶出したものと考えられる。 $\text{Sr}^{2+}$  の脱離は、 $\text{Cs}^+$  と同様であり、模擬地下水系において確認された緩慢な脱離が、Milli-Q 水では、ほとんど脱離が見られなかった (図 3.4-3)。また、 $\text{Cs}^+$  と  $\text{Sr}^{2+}$  の浸出量比べると、後者の方が 2 桁程度小さい。 $\text{I}^-$  の浸出は、 $\text{Cs}^+$  や  $\text{Sr}^{2+}$  と比べると、大きく、後述する NaMKGP に対する  $\text{I}^-$  の吸着量が小さいことに対応する。Milli-Q 水系、模擬地下水系での CLF は同程度であり、また、経過時間にも依存していないことから、Milli-Q 系での  $\text{Cs}^+$  の浸出と同様に、ジオポリマーの外表面近くの細孔や微細な亀裂中に保持されていた液相からの直接的な溶出に対応すると考えられる。また、 $\text{I}^-$  の模擬海水の CLF は、Milli-Q 水系、模擬地下水系での CLF と比べて大きいものの、経過時間には依存していないこと及び後述する吸着実験の結果において、 $\text{I}^-$  の吸着が見られていないことから、イオン交換による脱離ではなく、模

擬海水の高いイオン強度によるジオポリマーマトリクスの変化、つまり、I<sup>-</sup>の拡散経路の変化によるものと考えられる。

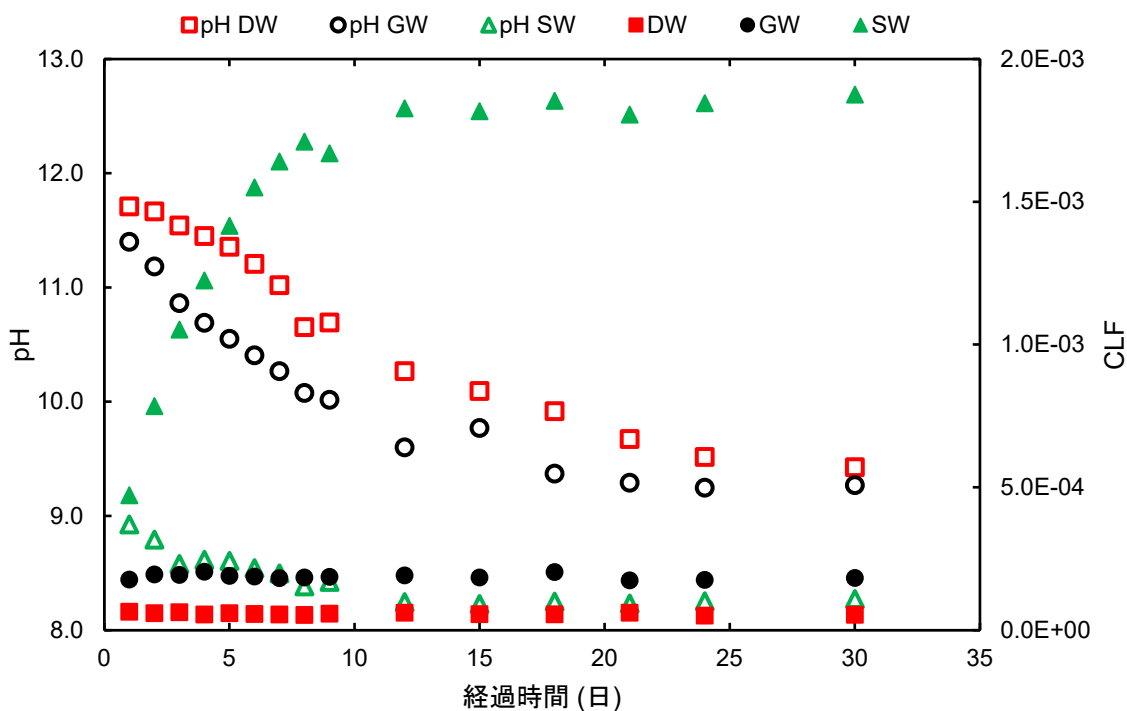


図 3.4-2 NaMKGP からの Cs<sup>+</sup>の浸出挙動 (pH、Cs<sup>+</sup>浸出量の CLF)

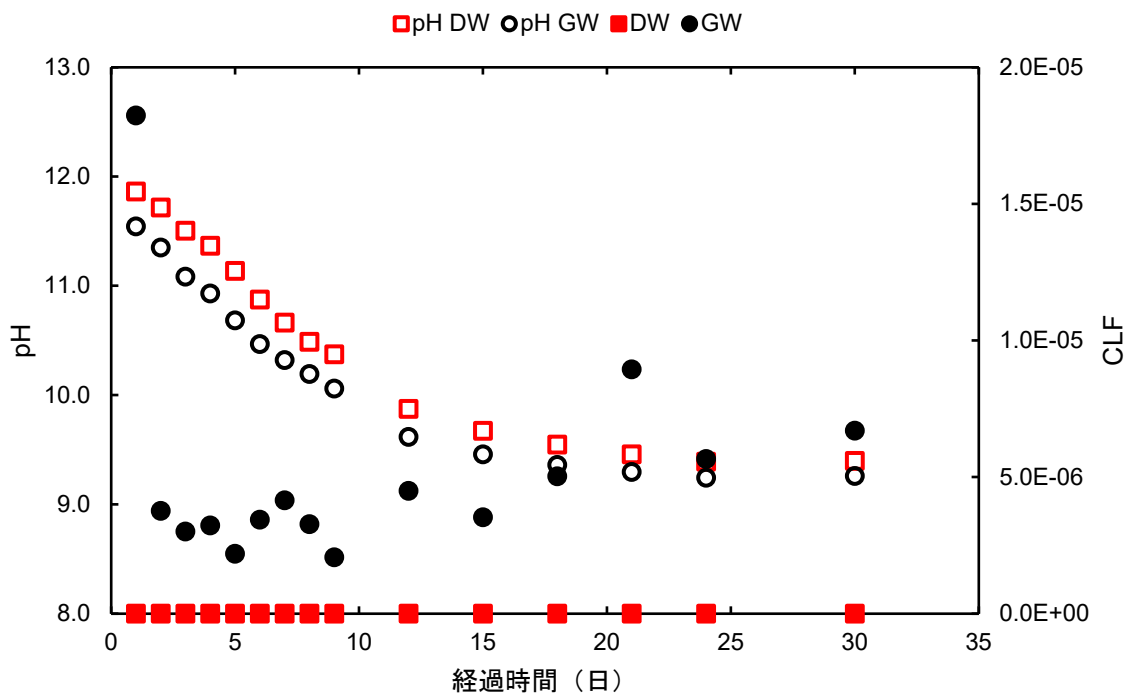


図 3.4-3 NaMKGP からの Sr<sup>2+</sup>の浸出挙動 (pH、Sr<sup>2+</sup>浸出量の CLF)

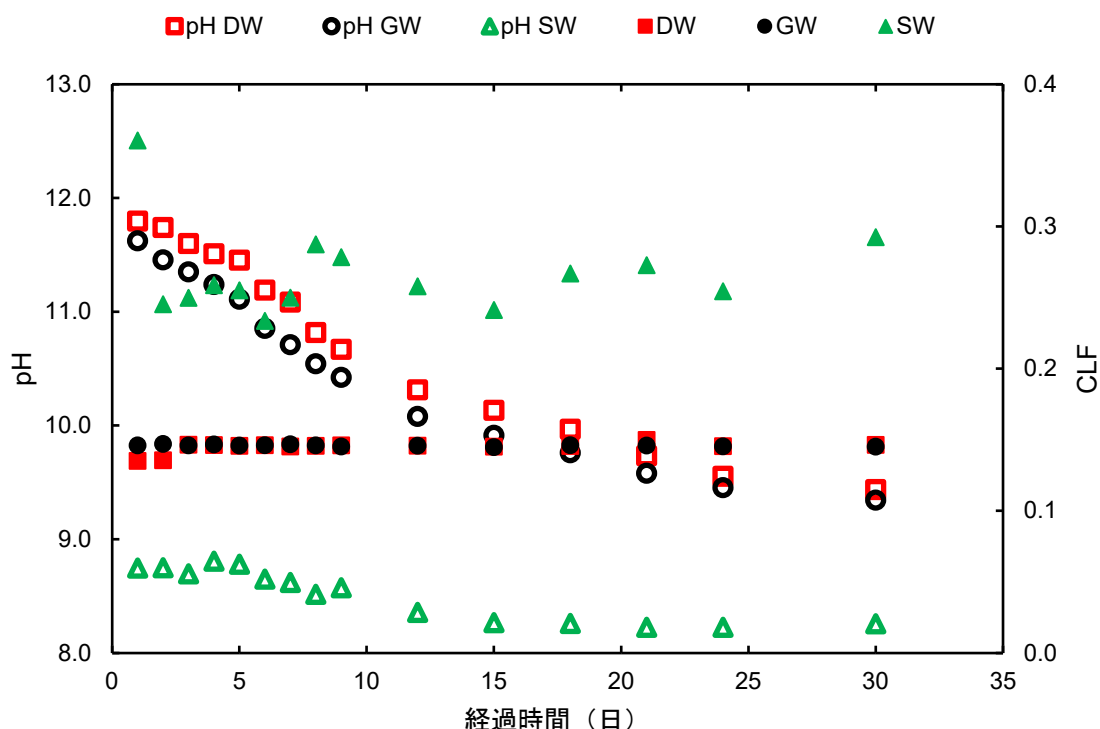


図 3.4-4 NaMKGP からの I<sup>-</sup>の浸出挙動 (pH、I<sup>-</sup>浸出量の CLF)

(2) 収着試験

令和3年度は、模擬核種として、Cs<sup>+</sup>、Eu<sup>3+</sup>、Sr<sup>2+</sup>を用いた収着試験を行ったが、令和4年度は I<sup>-</sup>を対象とした。(1)で用いた同様のジオポリマーを、残存する活性化剤の NaOH の影響を除去するために透析法にて洗浄した後、収着試験に供した。50 g/L となるように調整したジオポリマー懸濁液を透析膜に封入し、Milli-Q 水に浸漬させた。外側溶液の pH が 9 以下になるまで、定期的に Milli-Q を交換した。洗浄完了後のジオポリマー懸濁を 10000 rpm で、10 分間遠心分離 (Kubota Model 7000、A-2506 ローター) し、固液分離をした後、得られた固相を 60 °C で乾燥させ、洗浄済みジオポリマー試料を得た。

収着試験は濃度 1 g/L、体積 8 mL の洗浄済みジオポリマー懸濁液を用いて、バッチ法にて行った。支持電解質は NaClO<sub>4</sub> として、0.1 M、0.01 M の異なる濃度 (イオン強度 I.S.) での試験を行った。また、試料の pH は pH 4~10 で変化させた。模擬核種の濃度は 1 mM、0.1 mM とした。15 mL のポリプロピレン製遠沈管に、洗浄済みジオポリマーを秤量し、所定量の 1 M NaClO<sub>4</sub> 母溶液 (Merck)、10 mM 模擬核種母溶液 (I : NaI)、pH 調整のための 0.1 M、あるいは、0.01 M HClO<sub>4</sub>、NaOH 溶液 (ともに、富士フイルム和光純薬株式会社)、Milli-Q 水を添加し、全体積を 8 mL とした。なお、pH 調整のための酸塩基の添加量は、あらかじめ各イオン強度、模擬元素濃度のジオポリマー懸濁液を滴定し、決定した。得られた懸濁液を 24 時間 25 °C にて振とう (水平型往復振とう、TAITEC、BR-11FP) 後、pH 4、7、10 の pH 緩衝液で校正した複合 pH 電極 (Thermo Fisher、Orion Ross 電極、内部液 1 M NaCl) で、懸濁液の pH を測定した。pH 測定後の懸濁液を、10000 rpm で 10 分間遠心分離 (Kubota 7000、A-6512C ローター) することで、固液分離をした。得られた液相を Milli-Q 水で希釈し、I<sup>-</sup>濃度をイオンクロマトグラフィー (Metrohm、930 Compact IC Flex) を用いて測定した。

NaMKGP への I<sup>-</sup> の吸着割合 ( $R_s$ ) を図 3.4-5 に示す。ここで、吸着割合  $R_s$  (%) は、元素の初期濃度を  $c_0$  (M)、液相の濃度を  $c_a$  (M) として、

$$R_s = \frac{c_0 - c_a}{c_0} \times 100 \quad \text{式(3.4-2)}$$

と表される。I<sup>-</sup> の NaMKGP への吸着割合は数%程度であり、令和 3 年度に取得した Cs<sup>+</sup>、Sr<sup>2+</sup>、Eu<sup>3+</sup> と比べて小さく、pH にも依存しないことが分かった。これは、ジオポリマーマトリクスが負に帯電しており、陰イオンである I<sup>-</sup> との間に静電的な反発が働くことによると考えられる。

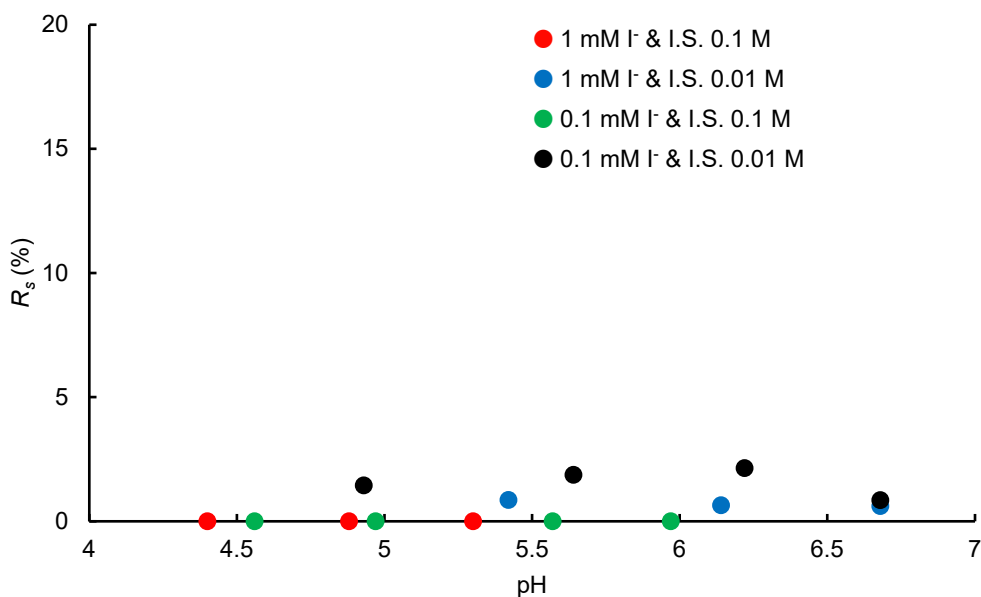


図 3.4-5 洗浄済みジオポリマーへの I<sup>-</sup> の吸着割合の pH、イオン強度 (I.S.) 依存性

### (3) 拡散試験

拡散実験では、Si : Al 比 2 : 1 の NaMKGP を直径 2 cm の PFA 型で約 50 g 作製し、相対湿度 100 % の環境で 1 週間養生させた。ジオポリマー化した試料を、湿式切断により厚さ 5 mm、直径 20 mm のディスク状試験片に加工した。その後、105 °C で 6 時間乾燥させて水分を除去し、乾燥質量を記録した。Through-diffusion 拡散実験を行う前に、試料を Milli-Q 水に 2 週間浸漬し、コンディショニングし、過剰なアルカリイオンを除去した。Through-diffusion 拡散実験では、試料をエポキシ樹脂でサンプルホルダーに取付け、ターゲットイオンを高濃度を含む区画と含まない区画で挟み込み、拡散実験を行った。高濃度コンパートメントは、対象模擬核種であるヨウ化ナトリウム (NaI) を 6.3 mM 入れ、1 ヶ月間、複合 pH 電極 (Thermo Fisher、Orion Ross 電極、内部液 1 M NaCl) を用いて液相の pH を連続的に測定するとともに、サンプリングを行った。サンプリングした液相試料中の I<sup>-</sup> 濃度をイオンクロマトグラフィー (Metrohm、930 Compact IC Flex) を用いて測定した。なお、比較のために、同様の試験を I<sup>-</sup> の代わりに、水のトレーサーとして重水 (D<sub>2</sub>O) を用いて行った。低濃度側タンク中の D<sub>2</sub>O 濃度の測定には、ATR 法による赤外吸収分光測定を用いた。

模擬核種として I<sup>-</sup>を用いた Milli-Q 水中での I<sup>-</sup>の拡散試験の結果を図 3.4-6、図 3.4-7 に示す。図 3.4-6 は、高濃度側及び低濃度側タンクの pH の推移であり、図 3.4-7 は、I<sup>-</sup>濃度の推移である。図 3.4-6 より、高濃度側タンクは、NaI 溶液の添加によって、初期 pH が pH 7 程度と小さく、初期に時間とともに、pH 8 程度まで増加した。一方、低濃度側タンクの pH は比較的大きく、10 日目以降、pH 9.1 程度まで減少していることが分かる。厚さ 5 mm のディスク状ジオポリマー試料に対する I<sup>-</sup>の拡散（図 3.4-7）は、試験開始後 4 日でプラトーに達していることが分かる。図 3.4-8 に示した D<sub>2</sub>O の破過曲線と比較して、I<sup>-</sup>の破過は早く、負に帯電したジオポリマーマトリクスによる陰イオン排除の効果が見て取れる。また、図 3.4-7 の低濃度側タンクの初期の濃度増加部分から、NaMKGP の空隙率を 10 %と仮定することで[15]、近似値として、I<sup>-</sup>の実効拡散係数が  $6.9 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  と見積もることができた[16]。

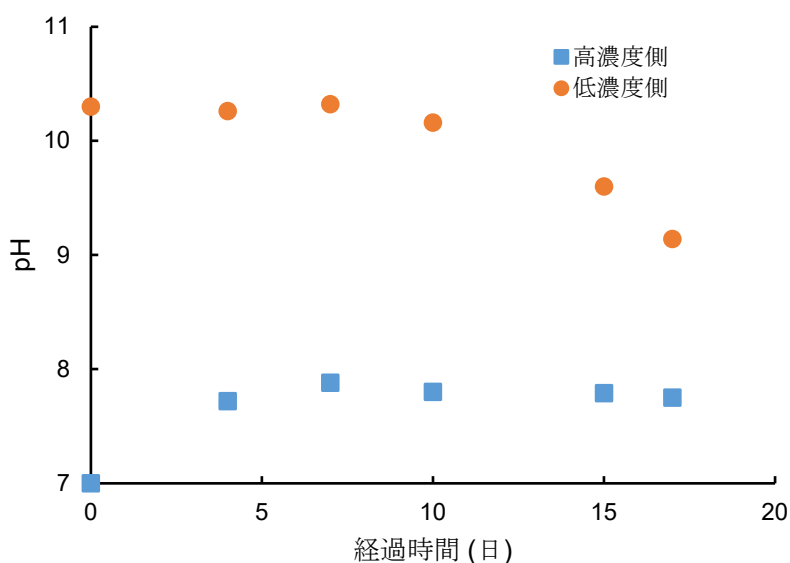


図 3.4-6 拡散試験における高濃度側、低濃度側タンクの pH 変化

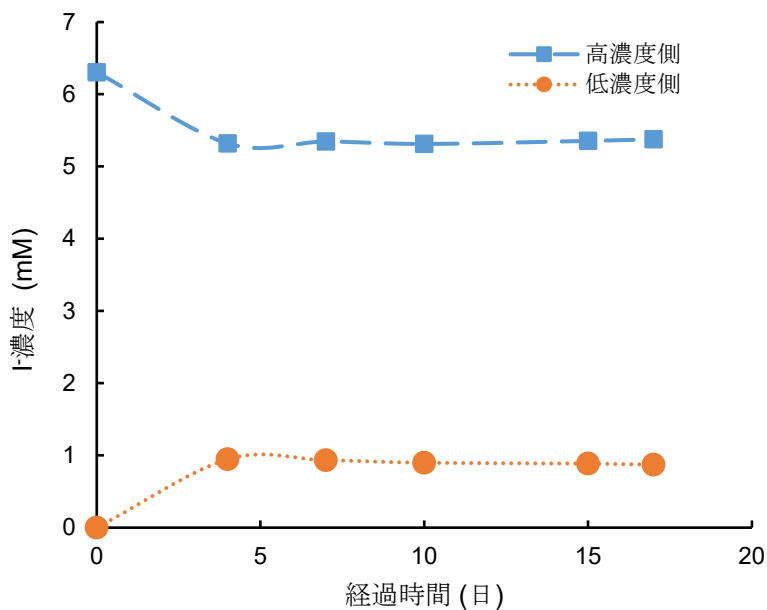


図 3.4-7 拡散試験における高濃度側、低濃度側タンクの I<sup>-</sup>濃度変化

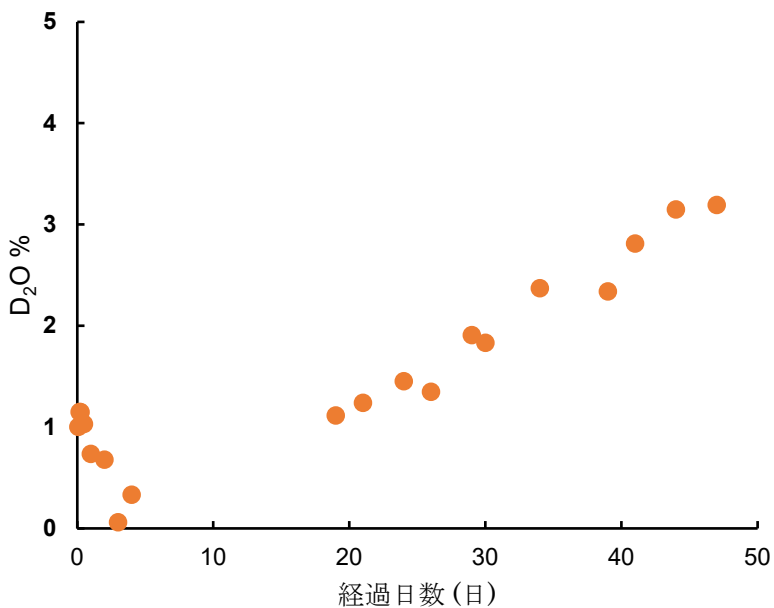


図 3.4-8 D<sub>2</sub>O 拡散試験における低濃度側タンクの D<sub>2</sub>O 濃度変化

\* まとめ

模擬核種として Cs<sup>+</sup>、Sr<sup>2+</sup>、I<sup>-</sup>を含有させた NaMKGP の浸出試験を行い、1 ヶ月間の浸出挙動を評価した。NaMKGP からのセシウムとストロンチウムの浸出量を比べると、前者の方が大きいものの、その挙動はともに支持電解質存在下で大きく、また、緩慢なものであった。

これは、 $\text{Na}^+$ イオンなどの競合イオンによってイオン交換で脱離した模擬核種が、ジオポリマーマトリクス中での拡散を経て、ゆっくりと液相に溶出したものと考えられた。ヨウ素の浸出は、セシウムやストロンチウムと比べて、非常に大きく、また、時間に依存しないことから、ジオポリマーの外表面近くの細孔や微細な亀裂中に保持されていた液相からの直接的な溶出に対応すると考えられた。

模擬核種として  $\text{I}^-$  の NaMKGP への吸着の pH 及び電解質濃度の依存性を調べたところ、NaMKGP への吸着割合は数%程度であり、令和3年度に取得した  $\text{Cs}^+$ 、 $\text{Sr}^{2+}$ 、 $\text{Eu}^{3+}$  と比べて小さく、pH にも依存しないことが分かった。この結果は、上述した  $\text{I}^-$  の浸出試験の結果とも対応した結果であった。

### 3.5 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間並びにCLADS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。具体的には、令和4年10月11日及び令和4年11月28日に打ち合わせ会を実施した。また、11月28日にはPOフォロー会議に参加し、令和5年3月17日実施の成果報告会用に研究概要を公開した。



#### 4. 結言

##### (1) PCV 底部デブリ性状評価（東京大学）

燃料デブリを模擬した酸化物や金属溶融物の溶融物落下試験並びに粒子法によるシミュレーションを継続実施するとともに、溶融金属の水表面への落下実験やコンクリートに落下した場合の燃料デブリ拡散・ガス発生モデルについて数値計算を継続した。

また、止水材で被覆した場合における臨界評価を継続した。

##### (2) PCV底部最適止水・補修材評価

###### ① 止水・補修試験及び評価（東京大学）

止水・補修材として臨界防止材や水素発生抑制材を添加し、組成を改善したジオポリマーを作製して、流動試験や強度試験等を実施した。また、超重泥水について添加材の効果を確認した。貫通部についてはジオポリマーを使用した止水試験を継続した。

###### ② 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学）

令和3年度に作製したバルク状試料を微粒子状に加工し、形状における実機との模擬性向上を図った。また、バルク状の試料と同様の冶金学的観察を行い、総合的な模擬性を評価した。さらに、当該微粒子試料を充填材へ添加し、照射試験等を行い、水素再結合性能等を評価した。さらなる性能向上のための酸化加熱処理装置を構築した。

###### ③ 照射試験（再委託先：アトックス）

令和3年度に構成した試験体系で恒温に保持した改良ジオポリマー及び超重泥水について $\gamma$ 線照射試験を実施した。

###### ④ ジオポリマーの最適化（連携先：JAEA）

流動と凝固をある程度制御可能なジオポリマーについて、マイクロラマン分光分析等による適用性確認を行い、水中注入試験を実施して間隙への充填と硬化の状態を確認した。得られた結果から、止水用ジオポリマーの配合比を最適化し、注入プロセスを検討した。

##### (3) PCV底部止水・補修材施工シミュレーション（再委託先：産総研）

閉じ込め材料（ジオポリマーなど）の特性を用いた粒子法シミュレーションの妥当性を確認した。特に、閉塞性能及びスケール効果についての計算手法の妥当性確認を行った。東京大学で実施するジオポリマーを用いた開口部閉塞試験を模擬してシミュレーションを行い、閉塞性能に関する模擬性を確認した。また、施工するジオポリマーの量及び開口部の大きさを変えた試験とも比較することで、空間スケールが大きくなった場合の適用性を確認した。

##### (4) 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）

模擬核種を添加した種類の異なるジオポリマー用いて、降水系地下水及び海水系地下水を対象に、長期の浸出試験を継続した。また、バッチ法による異なるpH、イオン強度条件での模擬核種の収着試験を継続した。さらに、ディスク状に整形したジオポリマー試料を用いて、模擬核種の拡散試験（through-diffusion、あるいは、in-diffusion）を開始し、予察的に実効拡散係数を取得した。

以上、3ヵ年計画の2年目である令和4年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

令和5年度は、主として以下の項目に関して研究を実施する予定である。

**【PCV 底部デブリ性状評価】**

得られた結果から、実機燃料デブリ分布を推定するとともに、被覆した廃棄体の安全評価を行う。また、拡散したデブリ中での物質分布を推定するため、炉内成層化を想定した燃料デブリ拡散数値計算（気中/水中）を行う。2号機の燃料デブリ分布を推定するためには、RPV から固体状態のままペDESTALへ落下したデブリの挙動評価が必要と考えられるが、現在の MPH 法では固体や剛体の流体中での挙動を正確に計算することができない。そのため、固体の挙動を計算する手法（Discrete Element Method (DEM)）等と MPH 法の連成計算手法の構築を目指す。

**【止水・補修試験及び評価】**

(1) 止水・補修試験及び評価

止水・補修材の各種試験及び止水試験を行い、最適な止水・補修条件を選定する。

照射線量の影響については、低線量照射のものが高線量照射のものよりも低く、かつ非照射のものよりも低い引張強度を示している。この原因について、今後細孔分析や結晶構造解析などを行って考察を行う。

(2) 水素発生対策添加材評価

酸化加熱処理装置を用いて、雰囲気の種類をパラメータとして粉末試料に酸化処理を施し、冶金学的性状変化を観察評価する。粉末特性の性能を評価し、照射試験等を行い、水素再結合性能等を評価する。これらの結果を基に、照射済燃料から回収される白金族合金の添加剤としての適用性を評価する。

(3) 照射試験

令和4年度までに開発した装置を用いて照射試験を実施する。

(4) ジオポリマーの最適化

注入されたジオポリマーは止水・補修対象の材料と強固に接着されている必要がある。このため、ジオポリマーと異種材料の接着界面を観察する。

具体的には、PCV、ジェットデフレクターなどの金属材料との接着界面について、室温で作製したジオポリマーと金属を高温に保持し、剥離の有無を調べる。また、界面における化学的な相互作用を調べ、補修性を考察する。

**【PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション】**

実機形状を用いた開口部閉塞シミュレーションによる開口部の閉塞に必要な材料特性を把握する。具体的には、閉塞性能及びスケール効果についての妥当性が確認された計算手法を用いて、実機開口部の閉塞シミュレーションを行う。特にジェットデフレクターを閉塞するために必要な、降伏応力、塑性粘度などの材料特性を把握する。これにより、閉じ込め材料が満たすべき材料特性を明らかにする。

**【廃棄体閉じ込め性能評価】**

浸出試験及び拡散試験を継続する。試験により得られたパラメータに基づき、ジオポリマーによる廃棄体閉じ込めに関する予察的な安全評価を実施する。

参考文献

- [1] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構, 東京電力ホールディングス(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.
- [2] Kondo, M. et al., A physically consistent particle method for high-viscous free-surface flow calculation. *Comp. Part. Mech.*, Vol.9, 2022, pp.265-276.  
<https://doi.org/10.1007/s40571-021-00408-y>
- [3] Yokoyama, R. et al., Simulating melt spreading into shallow water using moving particle hydrodynamics with turbulence model. *Comp. Part. Mech.*, Vol.10 2022, pp.677-690.  
<https://doi.org/10.1007/s40571-022-00520-7>
- [4] Johnson, M. et al., High-temperature Ex-vessel Corium Spreading. Part1: Experimental investigations on ceramics and sacrificial concrete substrates. *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol.59, No.4, 2022, pp.446-458.  
<https://doi.org/10.1080/00223131.2021.1977199>
- [5] Yokoyama, R. et al., A Lagrangian Approach to Ex-vessel Corium Spreading Over Ceramic and Concrete Substrates Using Moving Particle Hydrodynamics. *Nucl. Eng. Des.*, Vol.399, 2022, 112029, <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2022.112029>
- [6] 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事故発生後の原子炉圧力容器内・格納容器内の状態推定について, 2021, pp.159-163.  
[https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident\\_unconfirmed/pdf/20210719.pdf](https://www.tepco.co.jp/decommission/information/accident_unconfirmed/pdf/20210719.pdf) [参照日 2023年2月1日].
- [7] Pellegrini, M. et al., Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi NPS: Best-Estimate Case Comparison. *Nucl. Technol.*, Vol.196, No.2, 2016, pp.198-210. <https://doi.org/10.13182/NT16-63>
- [8] 野田篤志, Mohammad Allaf, 鈴木俊一, 燃料デブリ取り出しに向けたジオポリマーの適用性検討: 強度評価及び臨界評価. 日本原子力学会 2023年秋の年会, 2023年9月6日.
- [9] Kleykamp, H., The Chemical State of The Fission' Products in Oxide Fuels *J.Nucl.Mater.*, Vol.131, 1985, pp.221-246.
- [10] Brian D. Adams and Aicheng Chen, The role of palladium in a hydrogen economy, *materialstoday*, Vol.14, No.6, 2011, pp.282-289.
- [11] Noh,H., The effect of annealing pretreatment of Pd-Rh alloys on their hydrogen solubilities and thermodynamic parameters for H<sub>2</sub> solution, *Journal of Alloys and Compounds*, Vol.196, 1993, pp.7-16, 7JALCOM 531.
- [12] Liu, J.Z. et al., Evaporation of Ruthenium from Simulated Fission-produced Alloy Precipitates in A Nuclear Fuel, *Journal of Nuclear Materials*, Vol.527, 2019, 151819
- [13] Kondo, M., A physically consistent particle method for incompressible fluid flow calculation, *Computational Particle Mechanics*, Vol.8, 2021, pp.69-86.
- [14] Kondo,M., Matsumoto,J., Sawada,T., A scalable physically consistent particle method for high-viscous incompressible flows, *Computational Particle Mechanics*, Vol.11, 2024, pp.511-527.
- [15] Tan, QW., Li, N., Xu, ZH., Chen, XY., Peng, X., Shuai, Q., Yao, ZZ., Comparative performance of cement and metakaolin based-geopolymer blocks for strontium immobilization, *J. Ceram Soc. Jpn.*, Vol.127, No.1, pp.44-49, 2019.

- [16] Tanaka S. Bentonite barrier performance affected by precipitation of secondary minerals: Diffusivities of water and iodide ions in the presence of calcium carbonate. *Appl Geochem*, Vol.146, 105448, 2022.



