



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5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)

－ FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
Development Project –

福島廃炉安全工学研究所 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 and Engineering Institute
The University of Tokyo

September 2025

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

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

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)

ー令和 5 年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー

日本原子力研究開発機構 福島廃炉安全工学研究所
廃炉環境国際共同研究センター

東京大学

(2025 年 2 月 14 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 5 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 3 年度から令和 5 年度分の研究成果について取りまとめたものである。本課題は令和 5 年度が最終年度となるため 3 年度分の成果を取りまとめた。

燃料デブリ取り出しを行うためには、PCV 水位制御のためドライウェ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、併せてドライウェ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した。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した。この結果、ジオポリマーを活用することにより、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が可能であるとの見通しを得た。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、東京大学が実施した成果を取りまとめたものである。

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

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

— FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

The University of Tokyo

(Received February 14, 2025)

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 FY2023.

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 from FY2021 to FY2023. Since the final year of this proposal was FY2023, the results for 3 fiscal years were summarized.

In order to retrieve fuel debris, it is necessary to shut off the water at the bottom of the dry well and repair it in order to control the PCV water level. Therefore, in this study, we evaluated a construction method of stopping the water of the jet deflector with an improved geopolymer and repairing the lower part of the dry well by experiments and simulations. In addition, after understanding the properties of the fuel debris coated with the geopolymer, the long-term life of the waste body was evaluated.

As a result, it was predicted that by utilizing geopolymers, it is possible to stop water and repair the lower part of the PCV in consideration of steps from construction to waste management.

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
7. 令和 5 年度 採択課題	14
付録 成果報告書	17

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
7. Accepted Proposal in FY2023.....	14
Appendix Result Report	17

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）

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 2 課題、日露 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 康一郎	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DESTAL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・ エネルギー
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	慶應義塾大学

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合したデブリ性状把握手法の開発と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）

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
α / β / γ 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
β 、 γ 、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）

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
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

課題名	研究代表者	所属機関
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）

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 γ 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
α 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 (～R5.3.31) 理化学研究所 (R5.4.1～)
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
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

7. 令和 5 年度 採択課題

令和 5 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 5 年 3 月 1 日～令和 5 年 4 月 14 日（課題解決型）

令和 5 年 4 月 12 日～令和 5 年 6 月 15 日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：9 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 7 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 5 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
遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発	金子 純一	北海道大学
簡易非破壊測定に向けた革新的な $n \cdot \gamma$ シンチレーション検出システムの開発	鎌田 圭	東北大学
ペデスタル部鉄筋コンクリート損傷挙動の把握に向けた構成材料の物理・化学的変質に関する研究	五十嵐 豪	名古屋大学
動画像からの特徴量抽出結果に基づいた高速 3 次元炉内環境モデリング	中村 啓太	札幌大学
放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討	小崎 完	北海道大学

課題名	研究代表者	所属機関
高バックグラウンド放射線環境における配管内探査技術の開発	鳥居 建男	福井大学
PCV 気相漏洩位置及び漏洩量推定のための遠隔光計測技術の研究開発	椎名 達雄	千葉大学

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
革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証	牟田 浩明	大阪大学
燃料デブリ除去に向けた様々な特性をもつメタカオリンベースのジオポリマーの設計と特性評価	Yogarajah Elakneswaran	北海道大学

本報告書は、以下の課題の令和 3 年度から令和 5 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 5 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 R05I044)

成果報告書

令和 6 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 3 年度から令和 5 年度分の研究成果を取りまとめたものである。

目次

概略	ix
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	2-1
2.1.2 PCV 底部最適止水・補修材評価	2-1
2.1.3 PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション	2-2
2.1.4 廃棄体閉じ込め性能評価	2-2
2.1.5 研究推進	2-2
2.2 実施体制	2-4
2.3 令和5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	2-5
2.3.2 PCV 底部最適止水・補修材評価	2-5
2.3.3 PCV 底部止水・補修材施工シミュレーション	2-5
2.3.4 廃棄体閉じ込め性能評価	2-5
2.3.5 研究推進	2-5
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5年度】	3-1
3.2 PCV 底部最適止水・補修材評価【令和3年度～令和5年度】	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5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5年度】	3-46
3.2.3 照射試験（再委託先：アトックス）【令和3年度～令和5年度】	3-52
3.2.4 ジオポリマーの最適化（連携先：原子力機構）【令和3年度～令和5年度】	3-62
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） 【令和3年度～令和5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5年度】	3-78
3.5 研究推進（東京大学）	3-92
4. 結言	4-1
参考文献	5-1

執筆者リスト

研究代表者

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

マルコ・ペリグリーニ

助教

戸田 賀奈子

博士課程学生

横山 諒

博士課程学生

アニル・チャン・イリデリム

修士課程学生

里見 穂

修士課程学生

野田 篤志

再委託先

学校法人五島育英会東京都市大学

教授

佐藤 勇

修士課程学生

樽見 直樹

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

カンタレル・ビンセント

表一覧

表 2-1	全体スケジュール	……	2-3
表 3.1-1	溶融金属水中拡散実験条件	……	3-1
表 3.1-2	1F 1号機の計算条件	……	3-9
表 3.1-3	1F 1号機の感度解析条件	……	3-10
表 3.1-4	保守的デブリ分布の詳細	……	3-21
表 3.1-5	ジオポリマーを構成する物質とその構成比	……	3-22
表 3.2.1-1	ケイ砂添加材の号数と粒度	……	3-25
表 3.2.1-2	流動性評価条件	……	3-26
表 3.2.1-3	2023 年度（令和 5 年度）に照射を実施した試験体の引張試験 結果一覧	……	3-30
表 3.2.1-4	照射前後の試験体質量変化	……	3-34
表 3.2.1-5	実施条件（超重泥水併用試験）	……	3-35
表 3.2.1-6	超重泥水配合組成	……	3-36
表 3.2.1-7	性状測定結果	……	3-37
表 3.2.1-8	止水試験条件	……	3-41
表 3.2.1-9	止水試験後のスケジュール	……	3-43
表 3.2.2-1	1000 °Cにおける炉内及び模擬白金族合金の各元素における 酸素ポテンシャル	……	3-49
表 3.2.2-2	ジオポリマーへ添加した模擬白金族合金	……	3-49
表 3.2.2-3	段階注入によるジオポリマーの重量比	……	3-49
表 3.2.3-1	γ線照射を実施した試料条件一覧	……	3-52
表 3.2.3-2	恒温照射試験を実施した試料条件一覧 （照射時期：令和 4 年 11 月）	……	3-54
表 3.2.3-3	室温照射試験を実施した試料条件一覧 （照射時期：令和 4 年 11 月）	……	3-55
表 3.2.3-4	照射試験を実施した試料条件一覧Ⅰ（照射時期：令和 5 年 11 月）	……	3-56
表 3.2.3-5	照射試験を実施した試料条件一覧Ⅱ（照射時期：令和 5 年 11 月）	……	3-57
表 3.2.3-6	照射試験を実施した試料条件一覧Ⅲ（照射時期：令和 5 年 11 月）	……	3-58
表 3.2.3-7	照射試験の実施時期とターム毎の照射時間	……	3-61
表 3.2.4-1	ジオポリマー合成に用いたメタカオリンの組成	……	3-63
表 3.2.4-2	複合体作製に用いたメタカオリンと試験片	……	3-64
表 3.2.4-3	化合物のラマンバンドの波数と帰属の報告例	……	3-66
表 3.3-1	閉塞性能試験を再現した流動特性パラメータ （降伏応力、塑性粘度）	……	3-75
表 3.4-1	予察的安全評価に用いたパラメータ	……	3-91

図一覧

図 2. 2-1	体制図		2-4
図 3. 1-1	大きく拡散した凝固物形状及びその条件		3-2
図 3. 1-2	山型に堆積した凝固物形状及びその条件		3-3
図 3. 1-3	不規則に拡散した凝固物形状及びその条件		3-3
図 3. 1-4	無次元数を導出するための実験現象に関する簡略図		3-6
図 3. 1-5	無次元凝固率及び無次元堆積厚さの関係（気中・水中）		3-6
図 3. 1-6	水ありでの無次元凝固率及び(a)無次元拡散面積、(b)無次元堆積厚さの関係		3-7
図 3. 1-7	1F 1 号機の解析体系		3-9
図 3. 1-8	拡散面積に対する粒子感度解析結果		3-10
図 3. 1-9	異なる粒子径条件での拡散挙動		3-11
図 3. 1-10	3000 秒時の広がったデブリ分布の上からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0 Pa・s）		3-13
図 3. 1-11	3000 秒時の広がったデブリ分布の斜め上からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0 Pa・s）		3-14
図 3. 1-12	3000 秒時の広がったデブリ分布の下からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0 Pa・s）		3-14
図 3. 1-13	3000 秒時の広がったデブリ分布の横からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0 Pa・s）		3-15
図 3. 1-14	デブリ端部における温度の推移		3-15
図 3. 1-15	デブリ端部における固相分率の推移		3-16
図 3. 1-16	3000 秒時の広がったデブリ分布の上からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0×10 ⁻³ Pa・s）		3-16
図 3. 1-17	3000 秒時の広がったデブリ分布の斜め上からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0×10 ⁻³ Pa・s）		3-17
図 3. 1-18	3000 秒時の広がったデブリ分布の下からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0×10 ⁻³ Pa・s）		3-17
図 3. 1-19	3000 秒時の広がったデブリ分布の横からの視点における、(a)固相分率及び(b)温度分布（コリウムの粘性係数=1.0×10 ⁻³ Pa・s）		3-18
図 3. 1-20	弱除熱効率時のデブリの厚さ分布：(a)上から、(b)斜め上から、(c)横から、(d)正面から		3-19
図 3. 1-21	強除熱効率時のデブリの厚さ分布：(a)上から、(b)斜め上から、(c)横から、(d)正面から		3-20
図 3. 1-22	各冷却効率時に堆積したデブリ厚さと実測値との比較		3-20

図 3.1-23	保守的デブリ分布ジオメトリ		3-21
図 3.1-24	解析に用いた体系		3-22
図 3.1-25	ジオポリマーへの B_4C 添加量と k_{eff} の関係		3-23
図 3.1-26	ジオポリマーへの Gd_2O_3 添加量と k_{eff} の関係		3-23
図 3.1-27	燃料デブリを被覆したジオポリマーが完全に脱水した場合の k_{eff}		3-24
図 3.2.1-1	流動性評価試験容器		3-26
図 3.2.1-2	流動開始操作		3-26
図 3.2.1-3	ジオポリマーの 5 秒間の平均流速		3-27
図 3.2.1-4	ジオポリマーが高さ 1 cm の開口を閉塞固化した様子 (No. 4)		3-27
図 3.2.1-5	試験体作製フロー		3-29
図 3.2.1-6	照射試験体 (気中養生/令和 5 年度分) の引張試験結果		3-30
図 3.2.1-7	照射試験体 (水中養生/令和 5 年度分) の引張試験結果		3-31
図 3.2.1-8	同等の積算線量となる低線量試験体の比較 (線量率効果の確認)		3-31
図 3.2.1-9	同等の積算線量となる中・高線量試験体の比較 (線量率効果の確認)		3-32
図 3.2.1-10	引張試験後の照射試験体 (気中養生/令和 5 年度分) 外観		3-32
図 3.2.1-11	引張試験後の照射試験体 (水中養生/令和 5 年度分) 外観		3-32
図 3.2.1-12	水中養生試験体の γ 線照射中の温度変化 (令和 5 年度試験体)		3-33
図 3.2.1-13	ジオポリマー作製状況 (左図：混錬時、右図：加熱時)		3-35
図 3.2.1-14	超重泥水作製状況		3-36
図 3.2.1-15	フロー試験の様子 (左：ジオポリマー、右：超重泥水)		3-36
図 3.2.1-16	比重測定の様子 (左：ジオポリマー、右：超重泥水)		3-37
図 3.2.1-17	超重泥水併用試験装置図 (左：側面図、右：上面図)		3-37
図 3.2.1-18	超重泥水併用試験装置 (左図：外観、右図：上面)		3-38
図 3.2.1-19	大気圧下の試験体の状態 (左：No. 1、右：No. 2)		3-38
図 3.2.1-20	加圧値毎のジオポリマー・超重泥水の残存量推移 (No. 2)		3-38
図 3.2.1-21	1/6 模擬ジェットデフレクター止水試験水槽		3-40
図 3.2.1-22	止水試験手順模式図		3-40
図 3.2.1-23	止水試験装置外観		3-40
図 3.2.1-24	土嚢設置イメージ図 (左：ジェットデフレクター正面図、右：ジェットデフレクター横図)		3-41
図 3.2.1-25	止水試験の様子		3-42
図 3.2.1-26	止水試験終了後の試験水槽 (左：側面、右：ジェットデフレクター模擬部側)		3-42
図 3.2.1-27	ジオポリマーペーストの温度変化		3-43
図 3.2.1-28	試験水槽 28 日後 (左：試験水槽側面、右：試験水槽上部拡大)		3-44
図 3.2.1-29	試験水槽水抜き後		3-44
図 3.2.1-30	水位の確認 (左：水入れ直後、中央：水入れ 1 時間後、右：水入れ 1 日後)		3-44

図 3.2.1-31	引き渡し前の試験水槽		3-45
図 3.2.1-32	コアボーリング体		3-45
図 3.2.1-33	試験水槽切断面（左：ジェットデフレクター模擬部底部、 右：ジェットデフレクター模擬部上部）		3-45
図 3.2.2-1	酸化加熱処理後における板状試料表面の SEM-EDS 像 （ $\text{Mo}_{40}\text{Ru}_{45}\text{Rh}_{7.5}\text{Pd}_{7.5}$ 試料）		3-50
図 3.2.2-2	酸化加熱処理後における板状試料断面の SEM-EDS 像		3-50
図 3.2.2-3	酸化加熱処理後における板状試料深さ位置における XRD ピーク		3-50
図 3.2.2-4	酸化加熱処理後における板状試料表面の SEM-EDS 像 （ $\text{Mo}_{15}\text{Ru}_{55}\text{Rh}_{15}\text{Pd}_{15}$ 試料）		3-51
図 3.2.2-5	酸化加熱処理前後における粉末試料 XRD ピーク		3-51
図 3.2.2-6	照射試験後のバイアル内ガスの分析結果		3-51
図 3.2.3-1	線量率測定状況（令和 5 年度）		3-59
図 3.2.3-2	恒温照射試験状況（恒温・低線量）		3-59
図 3.2.3-3	恒温照射試験状況（室温・低線量）		3-59
図 3.2.3-4	室温照射試験状況（高線量）		3-60
図 3.2.3-5	室温照射試験状況（奥側から 1 列目と 2 列目に並んだ試料は 高線量、手前の列に並んだ試料は中線量で照射）		3-60
図 3.2.3-6	室温照射試験状況（室温・低線量）		3-60
図 3.2.4-1	水中注入試験試料の切断面		3-62
図 3.2.4-2	本項の試験概要と目的		3-63
図 3.2.4-3	500 °C 加熱前後の各種試験片の外観		3-64
図 3.2.4-4	各メタカオリンで合成したジオポリマー試料の例		3-65
図 3.2.4-5	ジオポリマーのラマンスペクトルに及ぼす不純物 TiO_2 の影響		3-67
図 3.2.4-6	ジオポリマーで補修したセメントクラックの断面写真		3-67
図 3.2.4-7	セメントクラック補修部分のラマン測定箇所		3-68
図 3.2.4-8	セメントクラック補修箇所のラマンスペクトル		3-68
図 3.2.4-9	複数スペクトルのマッピングと個別スペクトルの帰属を併用した 分析		3-69
図 3.2.4-10	非加熱セメントとジオポリマーの接着界面のマッピングの一例		3-70
図 3.2.4-11	500 °C 加熱セメントとジオポリマーの接着界面のマッピングの 一例		3-70
図 3.2.4-12	非加熱高張力鋼とジオポリマーの接着界面のマッピングの一例		3-71
図 3.2.4-13	500 °C 加熱高張力鋼とジオポリマーの接着界面のマッピングの 一例		3-71
図 3.2.4-14	高温保持試験におけるセメントとジオポリマー複合体の外観		3-72
図 3.2.4-15	高温保持試験における高張力鋼とジオポリマー複合体の外観		3-72
図 3.3-1	粒子法（MPH-I 法）マルチグリッドソルバー適用による 計算効率向上		3-74
図 3.3-2	閉塞性能試験の流動再現（ケイ砂 30 wt% 添加条件）		3-76
図 3.3-3	閉塞性能試験の流動再現（ケイ砂 70 wt% 添加条件）		3-76

図 3.3-4	閉塞性能試験の流動再現（ケイ砂 150 wt% 添加条件）		3-77
図 3.4-1	洗浄済みジオポリマーへの Cs^+ の吸着割合の pH、イオン強度依存性		3-79
図 3.4-2	洗浄済みジオポリマーへの Eu^{3+} の吸着割合の pH、イオン強度依存性		3-80
図 3.4-3	洗浄済みジオポリマーへの Sr^{2+} の吸着割合の pH、イオン強度依存性		3-80
図 3.4-4	洗浄済みジオポリマーへの I^- の吸着割合の pH、イオン強度依存性		3-81
図 3.4-5	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 3.4-6	浸出試験試料の XRD 分析の結果		3-82
図 3.4-7	浸出試験試料のレーザーラマン散乱測定の結果		3-83
図 3.4-8	浸出試験試料の FT-IR スペクトル測定の結果		3-84
図 3.4-9	NaMKGP からの Cs^+ の浸出挙動（pH、浸出量の CLF）		3-85
図 3.4-10	NaMKGP からの Sr^{2+} の浸出挙動（pH、浸出量の CLF）		3-86
図 3.4-11	NaMKGP からの I^- の浸出挙動（pH、浸出量の CLF）		3-86
図 3.4-12	NaMKGP からの Eu^{3+} の浸出挙動（pH、浸出量の CLF）		3-86
図 3.4-13	NaMKGP からの UO_2^{2+} の浸出挙動（pH、浸出量の CLF）		3-87
図 3.4-14	透過拡散試験の様子		3-88
図 3.4-15	NaMKGP ディスクに対する Cs^+ の破過曲線		3-88
図 3.4-16	NaMKGP ディスクに対する Sr^{2+} の破過曲線		3-89
図 3.4-17	NaMKGP ディスクに対する I^- の破過曲線		3-89
図 3.4-18	NaMKGP ディスクに対する HD0 の破過曲線		3-89
図 3.4-19	I. S. 0.1 M における NaMKGP ディスクに対する HD0 の破過曲線の比較		3-90
図 3.4-20	予察的安全評価の計算体系		3-90
図 3.4-21	ジオポリマー（GP）、セメント（Cement）廃棄体下部における ^{137}Cs 放出率		3-91
図 3.4-22	ジオポリマー（GP）、セメント（Cement）廃棄体から溶出した ^{137}Cs の帯水層出口における放出率		3-91

略語一覧

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	
ATR	: Attenuated Total Reflection	(全反射)
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)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science	(廃炉環境国際共同研究センター)
CLF	: Cumulative Leaching Fraction	(累積浸出割合)
FCC	: Face-Centered Cubic	(面心立方格子)
GPU	: Graphics Processing Unit	(画像処理装置)
HCP	: Hexagonal Close-Packed	(六方最密格子)
ICP-AES	: Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry	(誘導結合プラズマ発光分光分析)
ICP-MS	: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry	(誘導結合プラズマ質量分析)
LES	: Large Eddy Simulation	(大渦シミュレーション)
MPH	: Moving Particle Hydrodynamics	(粒子法)
OECD/NEA	: Organization for Economic Co- operation and Development/Nuclear Energy Agency	(経済協力開発機構/原子力機関)
PCV	: Primary Containment Vessel	(原子炉格納容器)
RPV	: Reactor Pressure Vessel	(原子炉圧力容器)
SEM-EDS	: Scanning Electron Microscope- Energy Dispersive Spectrometry	(走査型電子顕微鏡-エネルギー 分散型 X 線分光法)
XRD	: X-Ray Diffraction	(X 線回折)
原子力機構	: 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	
東京大学	: 国立大学法人東京大学	
東京都市大	: 学校法人五島育英会東京都市大学	
産総研	: 国立研究開発法人産業技術総合研究所	
アトックス	: 株式会社アトックス	
東京電力HD	: 東京電力ホールディングス株式会社	

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 と略記。）水位制御のためドライウェ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、併せてドライウェ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 カ年計画の 3 年目である令和 5 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、東京大学と略記。））

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実施した。

令和 4 年度に開発した水中でのデブリ凝固解析手法並びにコンクリート床面上での拡散モデルを用いて、実機体系でのデブリ拡散の数値解析を実施した。また、成層化等の異種組成物質混在を初期条件とした解析も実施し、詳細なデブリ分布推定を行った。さらに、止水材で被覆した場合における臨界評価を実施した。

具体的には溶融金属水中拡散試験において、過熱度及びサブクール度等を変化させた実験を実施し、熱的パラメータが拡散にかかる影響を調査するとともに、無次元数の提案を実施した。無次元数により、実験条件によってどのように拡散挙動が変化するかを推定できた。数値計算においては、1 号機を対象に実機体系計算を実施した。溶融物の粘性係数及び除熱効率が大きく拡散挙動に寄与することがわかった。

また、未臨界維持に必要となる中性子吸収材量の感度分析を行い、ジオポリマーに対して少量の Gd_2O_3 の添加で未臨界維持が可能となる見通しを得た。

(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継続実施した。また、超重泥水については、ジオポリマーとの併用について効果を確認した。さらに、実機を模擬した試験体を作製し、ジオポリマーを使用したジェットデフレクター止水試験を実施することにより、最適な止水・補修条件を選定した。

具体的には添加材量、養生時間条件によるジオポリマーの流速変化を評価し、粘性が高く閉塞に有効な条件を確認した。強度試験については、令和 5 年度は線量率やガンマ線加熱の強度への影響調査を目的とした引張試験を実施した。

また、ジオポリマーと超重泥水を併用することで、開口を閉塞する性能を高めることができた。最終的には、ジオポリマー単体で 1/6 スケールジェットデフレクター試験体を用いた止水試験を行った結果、ジオポリマーを入れた土嚢袋により開口部を縮小した上でジオポリマーを注入することにより、止水が達成されることを確認した。

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、東京都市大学と略記。））

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し、

冶金学的性状変化を観察評価した。粉末特性の性能を評価し、照射試験等を行い、水素再結合性能等々を評価した。これらの結果及び添加剤の合理的適応法の検討を基に、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した。

具体的には、使用済燃料から回収される白金族合金を加熱することで Mo を除去し、多孔質にすることは可能であり、一定の触媒機能の向上は確認できた。また、触媒等の設置場所の工夫を検討し、水素酸素再結合メカニズムを十分考察した上で、設置方法を決定する必要があるとの結論に至った。

③ 照射試験（再委託先：株式会社アトックス（以下、アトックスと略記。））

照射を受けた材料を用意するため、恒温あるいは室温に保持した改良ジオポリマーについて γ 線照射試験を実施した。具体的には高線量率（2.90 kGy/h以上）、中線量率（2.00～2.30 kGy/h）及び低線量率（0.070～0.085 kGy/h）の照射場を用意設定し、各照射場に改良ジオポリマーと触媒関連試料を設置して、1030時間の 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、原子力機構と略記。））

セメントペーストのクラックをジオポリマーで補修し、接着界面を目視やマイクロラマン分析等により観察した。ジオポリマーと金属の複合体を高温に保持し、金属からの剥離の有無を確認した。得られた結果からジオポリマーの補修性を評価した。具体的には、熱損傷セメントの微細なクラックにジオポリマーが充填されたことを顕微鏡とラマン分析により確認した。金属とセメントの複合体には、高温水中で剥離は見られなかったが、高温乾燥下では亀裂と完全な剥離が見られた。これはジオポリマーの乾燥と熱収縮、金属の熱膨張の結果である。接着性を維持するには補修に関する材料特性を考慮することが重要である。

(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、産総研と略記。））

閉じ込め材料（ジオポリマーなど）を模擬した粒子法シミュレーションを実施した。具体的には、実機を模擬した大規模シミュレーションのために並列化等の計算の高速化を検討するとともに、開口部閉塞のための施工方法を検討し、閉じ込め材料による閉塞施工シミュレーションを行い、開口部閉塞に必要な材料特性を把握した。具体的には、高速化に関しては、令和5年度に論文公開されたマルチグリッド行列ソルバーによる大規模計算高速化技術を本研究・開発の計算にも適用した。また、閉塞材の材料特性に関しては、閉塞性能試験と粒子法シミュレーションの比較により、ケイ砂を添加した場合のジオポリマーペーストの流動特性を把握した。

(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、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を継続した。そして、得られたパラメータに基づき、予察的な安全評価を実施した。具体的には、長期の浸出試験及び拡散試験の結果、浸出量が液相条件に大きく依存し、特に海水系地下水を想定した条件で大きくなることを見出した。また、放射性Csを対象にした予察的な安全評価から、セメント固化体と比較してジオポリマー固化体の天然バリア出口における放出率が減少することが示された。

(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廃炉環境国際共同研究センター（CLADS）等との連携を密にして、研究を推進した。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、個別の各担当との多数の議論の他、9月11日に全体プロジェクト会議を、12月12日にP0会議を開催した。

以上、3ヵ年計画の3年目である令和5年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

前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・人材育成事業

JAEA-Review 2022-062

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

- ・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・人材育成事業

JAEA-Review 2024-021

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2024-021>

1. はじめに

PCV 底部では、サ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えいがあり、また、原子炉圧力容器（Reactor Pressure Vessel：以下、RPV と略記。）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法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 水位制御のためドライウェ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、併せてドライウェ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

(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作製して、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えい防止手法を検討し、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、白金族合金と略記。）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（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 γ 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 4 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：原子力機構）

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せや会議等を開催する。

表 2-1 全体スケジュール

年度 項目	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 (原子力機構)	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 収着試験	溶出試験 収着試験及び評価まとめ 拡散試験	溶出試験及び評価まとめ 拡散試験及び評価まとめ 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 △ まとめ・評価	技術評価委員会の開催 △ まとめ・評価	技術評価委員会の開催 △ まとめ・評価

2.2 実施体制

図 2.2-1 に、実施体制を示す。

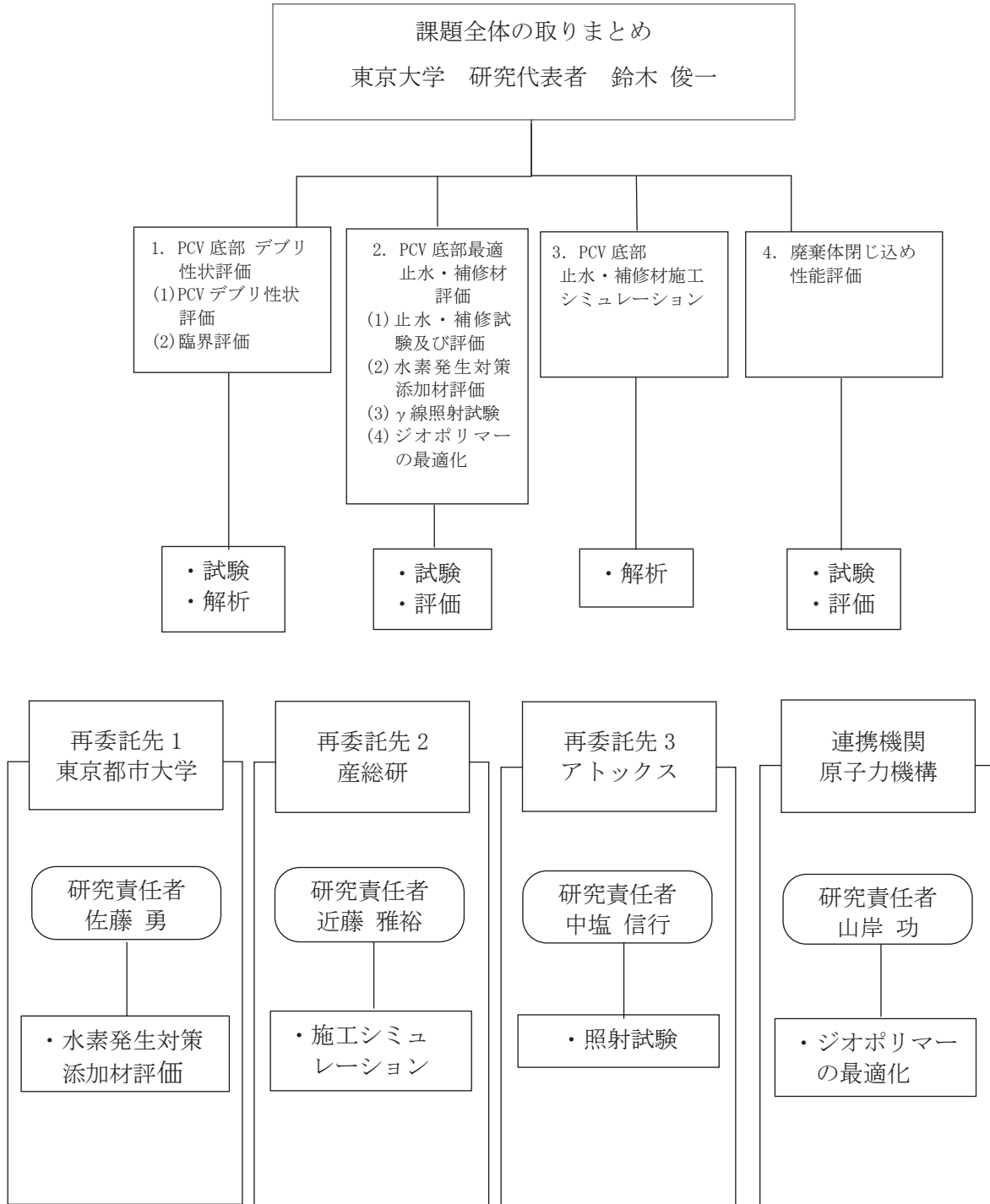


図 2.2-1 体制図

2.3 令和5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実施する。

令和4年度に開発した水中でのデブリ凝固解析手法並びにコンクリート床面上での拡散モデルを用いて、実機体系でのデブリ拡散の数値解析を実施する。成層化等の異種組成物質混在を初期条件とした解析も実施し、詳細なデブリ分布推定を行う。

また、止水材で被覆した場合における臨界評価を実施する。

2.3.2 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継続実施する。また、超重泥水については、ジオポリマーとの併用について効果を確認する。さらに、実機を模擬した試験体を作製し、ジオポリマーを使用したジェットデフレクター止水試験を実施することにより、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）

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。これらの結果及び添加剤の合理的適応法の検討を基に、照射済み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）

照射を受けた材料を用意するため、恒温あるいは室温に保持した改良ジオポリマーについて γ 線照射試験を実施する。

④ ジオポリマーの最適化（連携先：原子力機構）

セメントペーストのクラックをジオポリマーで補修し、接着界面を目視やマイクロラマン分析等により観察する。ジオポリマーと金属の複合体を高温に保持し、金属からの剥離の有無を確認する。得られた結果からジオポリマーの補修性を評価する。

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）を模擬した粒子法シミュレーションを実施する。具体的には、実機を模擬した大規模シミュレーションのために並列化等の計算の高速化を検討するとともに、開口部閉塞のための施工方法を検討し、閉じ込め材料による閉塞施工シミュレーションを行い、開口部閉塞に必要な材料特性を把握する。

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する。また、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を継続する。そして、得られたパラメータに基づき、予察的な安全評価を実施する。

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 底部デブリ性状把握（東京大学）【令和3年度～令和5年度】

(1) PCV 底部デブリ性状解析及び評価 【令和3年度～令和5年度】

① 熔融金属水中拡散実験

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

令和3年度には、熔融金属の水中での拡散凝固挙動を実験的に調査した。事故当時、ドライウェル残存の水位・水量が号機毎に異なっていたと推定されており、水位に応じた熔融物の拡散・凝固挙動を把握することは重要である。よって、低融点合金を用いて熔融金属の水位に応じた拡散挙動を重点的に調査した。また、流量の影響を調査するために、流出口径を変化させた実験も実施した。その結果、流出口径が大きい条件においては、熔融金属の細分化等が顕著に観察された。この影響を不安定性、クリティカルウェーバー数を用いた調査をした。流速が増加するにつれて、不安定性波長が小さくなることから、より細かな粒子径で熔融金属が細分化したと考えられる。一方で、流出口径が小さい条件においては、水位に応じて拡散挙動が大きく異なることがわかった。水位が高い場合、ヒートシンクの増大により、熔融金属が山のように堆積する傾向が観察された。一方、水位が低い場合は期中条件での実験と同様に熔融金属が大きく拡散した。

令和4年度は、令和3年度に実施した実験を継続し、現象の不確かさ、再現性等を調査した。燃料デブリを模擬した酸化物や金属熔融物の熔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、熔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。

【令和5年度の実施内容及び成果】

令和5年度は、これまでの実験条件に加えて熱的影響を調査するために、熔融金属の過熱度、水のサブクール度等を変化させた実験を行った。また、現象を推定するために新しい無次元数の提案も実施した。

1) 実験条件

実験体系は、令和3年度までに実施した実験体系と同様である。表 3.1-1 に実験条件をまとめた。令和3年度までは、融点が 70 °C の低融点合金 (U-alloy70) を用いていたが、過熱度に関する影響を調査するため、異なる熔融温度 (U-alloy47, U-alloy70, U-alloy109) を有する低融点合金を用いて実験を実施した。さらに、熔融金属の初期温度を 423 K、473 K、523 K と変化させて実験を実施した。また、サブクール度の影響を調査するために、水の初期温度を変化させて実験を実施した。

表 3.1-1 熔融金属水中拡散実験条件

パラメータ	値
熔融金属初期重量 (g)	100, 200, 300
熔融温度 (K)	320, 343, 382
熔融金属初期温度 (K)	423, 473, 523
初期水温 (K)	278, 288, 298, 323, 353
流出口径 (mm)	3.0, 5.0, 9.0
落下高さ (cm)	3.0, 12.0, 36.0, 48.0
水位 (mm)	0.0, 8.0, 16.0, 32.0, 48.0, 64.0

2) 実験結果

図 3.1-1～図 3.1-3 に、溶融金属形状が類似しているもの同士でまとめた。

図 3.1-1 に示す通り、溶融金属は過熱度が大きい条件もしくはサブクール度が小さい条件において、大きく拡散する傾向が観察された。除熱効率が悪いもしくはエンタルピーが高いからであると考えられる。また、跳水現象が観察された。この条件においては、溶融金属のフルード数が 1 を超えていたためであると考えられる。一方、図 3.1-2 では溶融金属が拡散することなく堆積していることがわかる。このような堆積挙動は、過熱度が小さいもしくはサブクール度が大きい条件で見られた。また、落下高さが大きいほど、堆積する傾向が確認された。溶融金属ジェットの熱伝達率が向上したためであると考えられる。

図 3.1-3 では溶融金属の特徴的な挙動が確認された。この条件では、はじめに先行流出した溶融金属が水中で堆積する挙動を示した。しかしながら、形成されたクラストが後続の溶融金属によって部分的にブリーチされることによって、再流動が発生する挙動が確認された。最終的に、象の鼻のような不規則な形状で凝固した。この拡散挙動は、ヒートシンクが十分な高水位では確認されず、溶融金属の慣性力と水による冷却が均衡した条件で発生したと考えた。

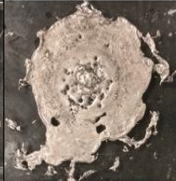
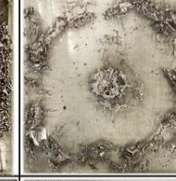
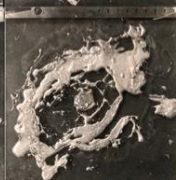
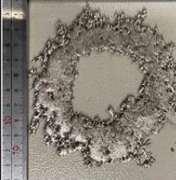
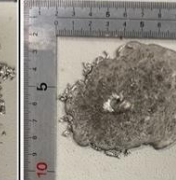
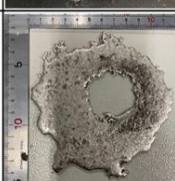
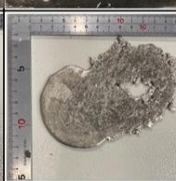
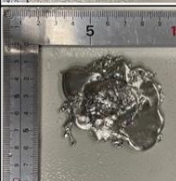
Melt mass ⇔ 200g			Melt mass ⇔ 100g		
	1000ml	250ml		1000ml	250ml
Outlet 9mm Water 25°C Height 12cm Melting T 70°C Melt T 150°C			Outlet 9mm Water 5°C Height 12cm Melting T 109°C Melt T 200°C		
Outlet 9mm Water 25°C Height 4cm Melting T 70°C Melt T 150°C			Outlet 3mm Water 50°C Height 12cm Melting T 70°C Melt T 200°C		
Outlet 3mm Water 80°C Height 12cm Melting T 70°C Melt T 200°C			Outlet 3mm Water 15°C Height 12cm Melting T 47°C Melt T 200°C		

図 3.1-1 大きく拡散した凝固物形状及びその条件

	Melt mass $\Rightarrow$ 200g			Melt mass $\Rightarrow$ 100g	
	2000ml	1500ml		2000ml	1500ml
Outlet 3mm Water 15°C Height 12cm <u>Melting T 109°C</u> Melt T 200°C			Outlet 3mm Water 15°C Height 12cm <u>Melting T 109°C</u> Melt T 200°C		
Outlet 3mm <u>Water 5°C</u> Height 12cm Melting T 70 °C Melt T 200°C			Outlet 3mm <u>Water 5°C</u> Height 12cm Melting T 70 °C Melt T 200°C		
Outlet 3mm Water 25°C <u>Height 48cm</u> Melting P 70°C Melt T 150°C			Outlet 3mm Water 25°C <u>Height 48cm</u> Melting P 70°C Melt T 150°C		

図 3. 1-2 山型に堆積した凝固物形状及びその条件

	Melt mass $\Rightarrow$ 200g			Melt mass $\Rightarrow$ 100g	
	1000ml	250ml		1000ml	250ml
Outlet 3mm Water 15°C Height 12cm <u>Melting T 47°C</u> Melt T 150°C			Outlet 3mm <u>Water 5°C</u> Height 12cm Melting T 109°C Melt T 150°C		
Outlet 3mm Water 15°C Height 12cm <u>Melting T 109 °C</u> Melt T 200°C			Outlet 3mm Water 25°C <u>Height 36cm</u> Melting T 70°C Melt T 150°C		
Outlet 3mm Water 25°C Height 12cm <u>Melting P 70°C</u> Melt T 150°C			Outlet 3mm Water 25°C <u>Height 4cm</u> Melting T 70°C Melt T 150°C		

図 3. 1-3 不規則に拡散した凝固物形状及びその条件

3) 無次元数の提案

図 3. 1-1～図 3. 1-3 の結果は、これらの熔融金属の特徴的な挙動は主として、熔融金属ジェットの慣性力と水による冷却効率のバランスによって決定されることを示唆している。以上のことから、この現象を推定するための「慣性力」と「凝固率」に関する定式化を実施し、無次元数を提案する。また、実験現象に関する簡易図を図 3. 1-4 に示す。

熔融金属の水表面での流速及び熔融ジェットの高さは、

$$v = \sqrt{2gL}, \quad \text{式(3.1-1)}$$

$$Z = \frac{4M}{\rho\pi D^2}. \quad \text{式(3.1-2)}$$

と表される。ここで v 、 g 、 L 、 Z 、 M 、 D 及び ρ はそれぞれ流速、重力加速度、落下高さ、熔融ジェット長さ、熔融金属重量、流出口径及び熔融金属密度である。式(3.1-1)及び式(3.1-2)から熔融金属が深さ H_p のプールを通過する時間を、

$$t = \frac{1}{\sqrt{2gL}} \left\{ \frac{4M}{\rho\pi D^2} + H_p \right\}, \quad \text{式(3.1-3)}$$

と求めることができる。

一方で、円柱状の熔融金属ジェットが水中へ放出する単位時間あたりのエンタルピー E は、

$$E = h_f \pi D H_p (T_{\text{melt}} - T_{\text{water}}), \quad \text{式(3.1-4)}$$

である。ここで、 h_f 、 T_{melt} 及び T_{water} は熱伝達率、熔融金属温度、水温度である。この熱伝達率は、レイノルズ数に応じて以下のように定義される^[1]。

$$h_f = \frac{k}{D} (0.35 + 0.56 Re^{0.52}) Pr^{0.3}, (200 \leq Re < 2.0 \times 10^4) \quad \text{式(3.1-5)}$$

$$h_f = \frac{k}{D} (0.35 + 0.34 Re^{0.5} + 0.15 Re^{0.58}) Pr^{0.3}, (2.0 \times 10^4 \leq Re < 10^5) \quad \text{式(3.1-6)}$$

熔融金属が有する総エンタルピー Q は、

$$Q = M(h_{fs} + c_p(T_{\text{melt}} - T_m)), \quad \text{式(3.1-7)}$$

である。 h_{fs} 、 c_p 、 T_m はそれぞれ凝固潜熱、比熱及び熔融温度である。

式(3.1-4)を式(3.1-7)で除することにより、単位時間あたりの凝固率を求めることができる。

$$t^{-1} = \frac{h_f \pi D H (T_{\text{melt}} - T_{\text{water}})}{M(h_{fs} + c_p(T_{\text{melt}} - T_m))}. \quad \text{式(3.1-8)}$$

また、式(3.1-8)はヌセルト数(Nu)及びステファン数(St)を用いて整理することができ、

$$t^{-1} = \frac{\pi Nu H k (T_{\text{melt}} - T_{\text{water}})}{h_{fs} M (1 + St)}, \quad \text{式(3.1-9)}$$

と求めることができる。ここで、 Nu 及び St は、以下の式から求めることができる。

$$Nu = \frac{h_f D}{k}, \quad \text{式(3.1-10)}$$

$$St = \frac{c_p (T_{melt} - T_m)}{M}. \quad \text{式(3.1-11)}$$

ここで、 k は溶融金属の熱伝導率である。式(3.1-3)、式(3.1-9)から溶融金属ジェットの慣性力と凝固に関する無次元数 N^* （凝固率）を、以下のように求めることができる。

$$N^* = \frac{1}{\sqrt{2gL}} \left\{ \frac{M}{\rho\pi D^2} + H \right\} \frac{\pi Nu H k (T_{melt} - T_{water})}{hM(1 + St)}. \quad \text{式(3.1-12)}$$

気中の条件における無次元数は、以下のように導くことができる。

$$N^* = \frac{M}{\sqrt{2gL} \rho\pi D^2} \frac{kD^2(T_{melt} - T_{plate})}{hM(1 + St)}. \quad \text{式(3.1-13)}$$

図 3.1-5 に、溶融物の無次元凝固率及び無次元堆積厚さの関係を示す。なお、無次元凝固物厚さ及び無次元拡散面積は、以下のように定義される。

$$t^* = \frac{\bar{t}}{(M/\rho)^{1/3}}, \quad \text{式(3.1-14)}$$

$$A^* = \frac{\bar{A}}{(M/\rho)^{2/3}}, \quad \text{式(3.1-15)}$$

ここで、 t^* 、 $\bar{t}$ 、 A^* 、 $\bar{A}$ は、それぞれ凝固物の無次元凝固物厚さ、凝固物の平均測定厚さ、無次元拡散面積、凝固物の平均測定面積である。図 3.1-5 の結果から、溶融物の拡散凝固に関しては、水が存在するか否かが極めて大きなパラメータとなっている。水が存在しないことにより、拡散する溶融物の凝固率が著しく低下する。

図 3.1-6 に、水が存在する条件における (a) 無次元拡散面積と無次元数 N^* の関係、(b) 無次元堆積厚さと無次元数 N^* の関係をまとめた。なお、両対数軸である。横軸の N^* が、0.3 付近で溶融物の面積と厚さの傾向が変化していることが観察される。図 3.1-6(a) においては、0.3 から大きくなるにつれて単調減少している傾向にある一方、図 3.1-6(b) においては、0.3 から大きくなるにつれて単調増加している傾向にある。 N^* は物理的に(除熱効率)/(慣性力)で表されるため、 N^* が大きくなることはすなわち慣性力に比較して、除熱効率が支配的となっていることを意味する。よって、拡散面積が小さくなる一方、凝固高さが増大したと考えられる。ここで、この $N^*=0.3$ の変曲点の意味を考察する。既往研究によると、溶融物の粘性係数は、溶融物の固相率に強く依存し、金属系物質の場合、0.3～0.5 付近に変曲点を有し、変曲点以上の固相率で溶融物の見かけの粘性係数が急激に増加する^[2]。以上のことから、この変曲点は金属系溶融物の見かけの粘性が急上昇する固相率と考察することができる。

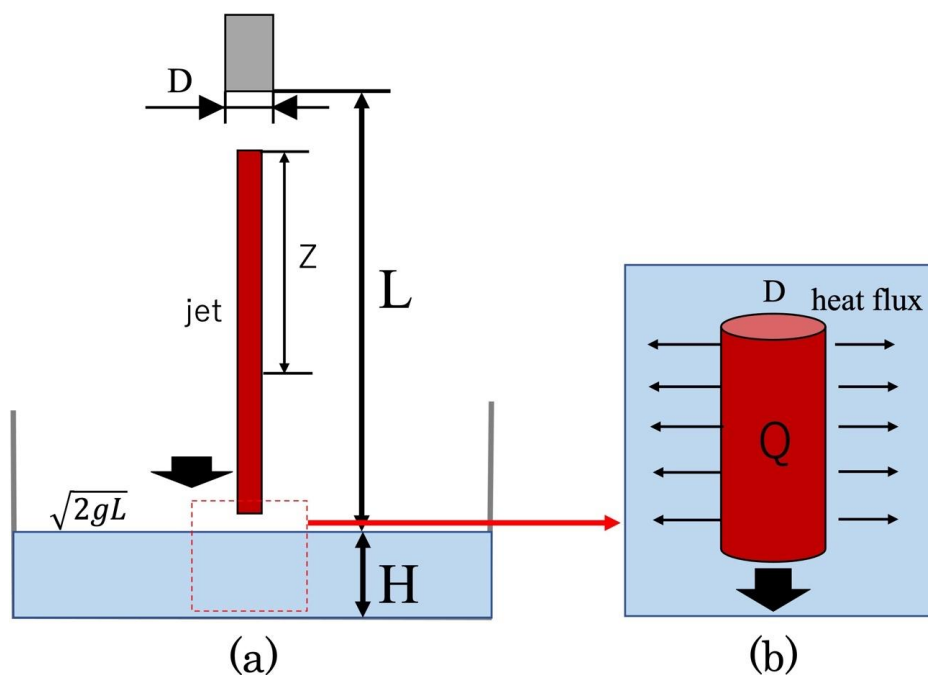


図 3.1-4 無次元数を導出するための実験現象に関する簡略図

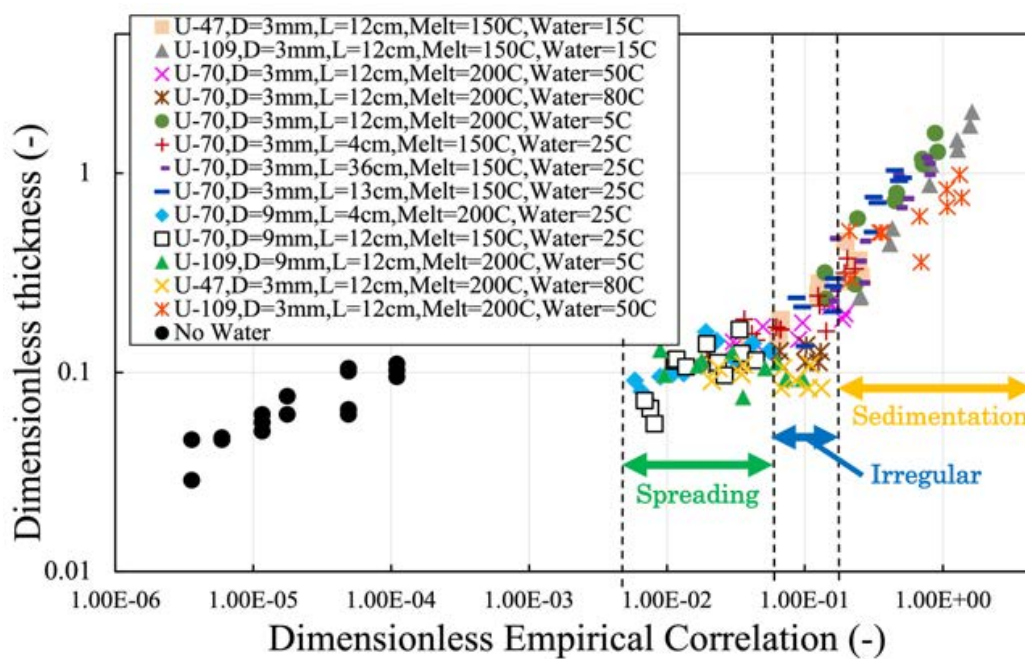


図 3.1-5 無次元凝固率及び無次元堆積厚さの関係（気中・水中）

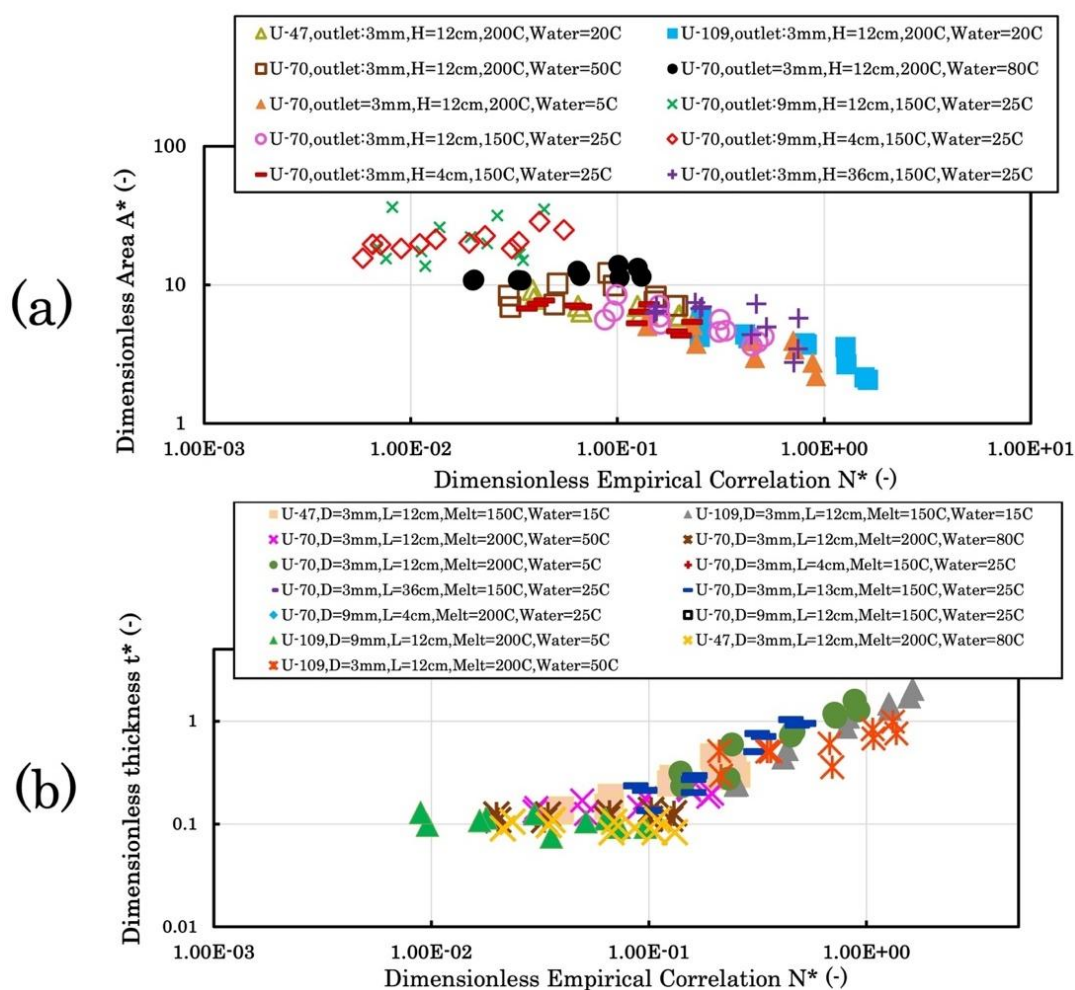


図 3.1-6 水ありでの無次元凝固率及び(a)無次元拡散面積、(b)無次元堆積厚さの関係

② 数値解析【令和3年度～令和5年度】

- 1) 東京電力ホールディングス株式会社（以下、東京電力HDと略記。）福島第一原子力発電所（以下、1Fと略記。）体系を用いた大規模解析

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

令和3年度には、水中での溶融物の基本的な拡散・凝固挙動を解析するための数値解析手法を開発した。実験においては、レイノルズ数が極めて大きいため、乱流の影響を考慮する必要がある。とりわけ、渦熱流束の影響を考慮するために空間平均モデルであり、非定常な流れの解析に利点を有する Large Eddy Simulation（大渦シミュレーション：以下、LESと略記。）とのカップリングを実施した^[3]。開発した手法を実験結果と比較することで、妥当性を評価した。浅い水位条件での数値計算結果では、溶融物は水中で拡散した後、クラストを乗り越えて再拡散する同様の挙動を示した。深い水位条件での数値計算結果では、溶融物は大きく拡散することなく、水中で山型に堆積する同様の傾向を再現することができた。以上の妥当性評価により、開発した手法が水中での溶融物拡散・凝固を再現できる見通しのある手法であることを確認した。

令和4年度には、本手法が実機で想定されている高粘性・高温溶融物質の流動性を適切に評価できるかを確かめるために、フランス原子力・代替エネルギー庁（CEA）で実施

された、VULCANO VE-U9 実験との比較を実施した^{[4][5]}。VULCANO VE-U9 実験では、 UO_2 等を含む実際の溶融物を 2 種類の床面（非溶融セラミックス床面、犠牲材コンクリート）上に拡散させ、その拡散挙動を把握した。セラミックス床面上では、回転挙動を伴う高粘性流体特有の挙動が観察された一方、犠牲材コンクリート床面上では、溶融したコンクリートが潤滑油の役割を担ったことによる、滑り挙動が観察された。このような異なる床面条件に起因する流動挙動の違いを、粘性を変化させることでモデリングした。具体的には、高粘性流体と床面の調和平均粘性係数を床面境界条件として与えることで、滑り境界条件を模擬した。一方、滑らない条件では、元々の粘性を与えることで粘性抵抗を与える滑らない境界条件とした。滑らない境界条件を与えた場合、非溶融セラミックス床面条件で見られたような、高粘性流体特有の流動挙動を示した。また、滑り境界条件を与えた場合でも、犠牲材コンクリート上で見られた、滑り挙動が観察された。以上から、手法の妥当性を確認した。

さらに、燃料デブリの分布を直接的に推定するため、実機体系の大規模数値解析を実施した。境界条件などがある程度推定されている 3 号機を対象に計算を行った^[6]。境界条件の設定には、ドライウェルに残存していたと推定される水の水位、サブクール度、ペDESTAL内残存蒸気温度などを文献調査から設定した。燃料デブリ拡散・凝固に寄与すると考えられる蒸気・沸騰熱伝達率及び粘性係数に関する感度解析を行い、拡散挙動・凝固挙動などを評価した。数値解析の結果、蒸気及び沸騰からなる除熱効率が悪い場合、燃料デブリの粘性係数に関わらず、デブリはペDESTAL外側まで大きく拡散する傾向がわかった。この結果は、ペDESTALの外側まで大きく拡散する傾向が見られていない 3 号機とは異なるものとなった。一方で、除熱効率が良い場合、デブリの粘性係数に応じて拡散挙動・凝固挙動が異なることがわかった。粘性が高い場合（すなわち、粘性係数が概ね $1.0 \times 10^{-1} \sim 1.0 \times 10^0$ (Pa・s) の場合）、燃料デブリは広く拡散せず、ペDESTAL内で山型に堆積する挙動が発生した。この結果は、1F 3 号機で発生した燃料デブリの様相と類似しており、このことから 3 号機では粘性の高いデブリ（すなわち、おおよそ酸化物組成の燃料デブリ）が、高効率で冷却された結果、堆積したと推定した。数値計算結果の妥当性を評価するため、経済協力開発機構/原子力機関 (OECD/NEA) が実施したベンチマーク計算との比較を行った。その結果、本研究による推定結果は、OECD/NEA と同様の推定結果を示した。このことから、本数値計算手法の有効性を確認するとともに、これまで理解が不十分であった 3 号機の燃料デブリ拡散・凝固過程を推定することができた。

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

令和 5 年度は、1F 3 号機に引き続き、1F 1 号機に関する数値解析を実施した。

a) 計算体系

解析体系を図 3.1-7 に示す。1F 1 号機は 1F 3 号機と異なり、事故時に D/W 水位がなかったと推定されていることから、水なし条件で計算を実施した。計算条件、感度解析条件を表 3.1-2、表 3.1-3 に示す。

計算条件は、令和 4 年度に実施した 1F 3 号機と概ね同じ値を設定した。また、令和 4 年度と同様に、拡散に影響を与えられる粘性係数と蒸気熱伝達率に関する感度解析を実施した。また、1F 1 号機においては、注水がうまく機能しなかったために、炉心溶融が早期に発生したと推定されている。そのため、崩壊熱が比較的高かったと推定されていることから、崩壊熱に関する感度解析も実施し、計 12 ケース実施した。

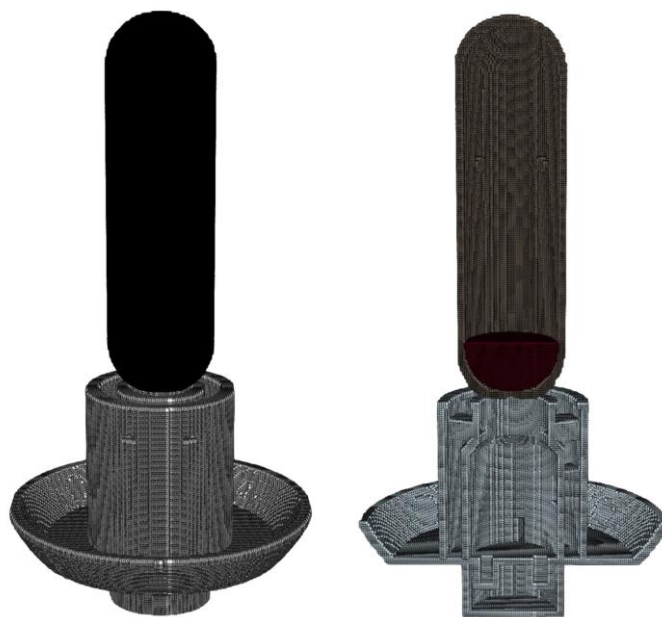


図 3.1-7 1F 1 号機の解析体系

表 3.1-2 1F 1 号機の計算条件

	コリウム	RPV	Pedestal
粒子径 (m)	0.08	0.08	0.08
影響半径 (m)	0.16	0.16	0.16
密度 (kg m^{-3})	8000	7000	2000
体積粘性係数 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$)	5.0×10^5	5.0×10^6	5.0×10^6
体積弾性率 (Pa)	1.0×10^4	1.0×10^5	1.0×10^5
初期粘性係数 ($\text{Pa} \cdot \text{s}$)	$1.0 \times 10^0 - 1.0 \times 10^{-3}$	1.0×10^5	1.0×10^5
表面張力 (N m^{-1})	0.5	0.0	0.0
熱伝導率 ($\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$)	3.0	10.0	1.0
溶融温度 (K)	2073	1273	473
比熱 ($\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$)	600	200	800
潜熱 (kJ kg^{-1})	420	300	400
限界流動固相率 (-)	0.7>	-	-
飽和蒸気温度 (K)	-	-	-
崩壊熱 (MW)	8.5-1.5	-	-

表 3.1-3 1F 1号機の感度解析条件

	初期粘性係数 (Pa・s)	蒸気熱伝達率 ($\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$)	崩壊熱 (MW)
ケース 1	1.0×10^0	1.0×10^3 (Strong)	8.5
ケース 2	1.0×10^0	1.0×10^3 (Strong)	6.0
ケース 3	1.0×10^0	1.0×10^3 (Strong)	1.5
ケース 4	1.0×10^0	1.0×10^2 (Weak)	8.5
ケース 5	1.0×10^0	1.0×10^2 (Weak)	6.0
ケース 6	1.0×10^0	1.0×10^2 (Weak)	1.5
ケース 7	1.0×10^{-3}	1.0×10^3 (Strong)	8.5
ケース 8	1.0×10^{-3}	1.0×10^3 (Strong)	6.0
ケース 9	1.0×10^{-3}	1.0×10^3 (Strong)	1.5
ケース 10	1.0×10^{-3}	1.0×10^2 (Weak)	8.5
ケース 11	1.0×10^{-3}	1.0×10^2 (Weak)	6.0
ケース 12	1.0×10^{-3}	1.0×10^2 (Weak)	1.5

b) 粒子径に関する感度解析結果

粒子サイズが、粒子法 (Moving Particle Hydrodynamics : 以下、MPH と略記。) の計算結果に与える影響を理解するため、特に広がり挙動に関して、粒子径に関する感度解析を行った。図 3.1-8 及び図 3.1-9 はそれぞれ、拡散挙動に関するスナップショットと拡散距離の履歴を示している。ラベルは温度分布を示している。計算の結果、粒子径が自由表面の温度には大きく影響するものの、最終的な広がり長さには影響しないことがわかった。500 秒前後での溶融プロセスは大きく異なるものの、最終的な広がり長さは比較的に変わらなかった。この解析では、自由表面に現れる粒子のみで、放射熱損失モデルや蒸発熱伝達モデルなどのモデルが採用されているため、ジェットのような粒子数密度が小さくなりやすい場合で、粒子径依存性が確認されたと考えられる。したがって、自由表面粒子の検出精度が非常に重要であることがわかった。一方で、拡散面積に関しては大きな違いが観察されなかったため、以下の研究では粒子サイズを 10.0 cm に設定して計算を実施した。

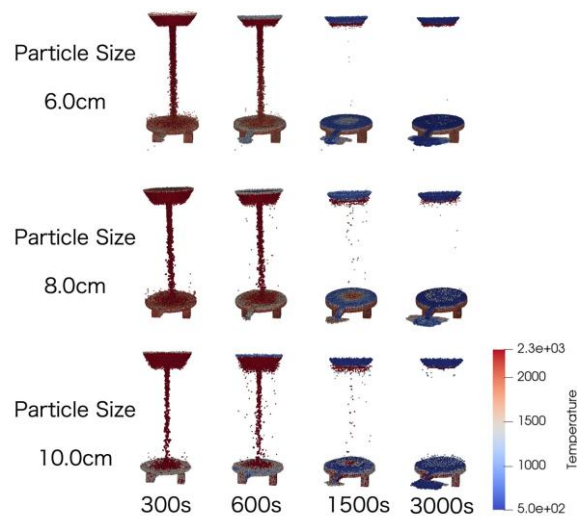


図 3.1-8 拡散面積に対する粒子感度解析結果

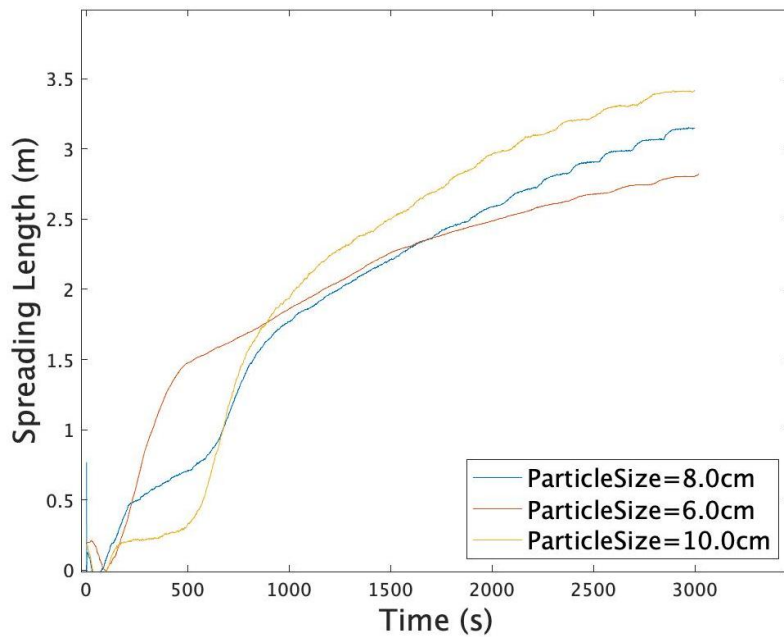


図 3.1-9 異なる粒子径条件での拡散挙動

c) 計算結果

図 3.1-10 は、初期粘度が $1.0 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ のコリウムの広がり を 3000 秒時点で上から見たものであり、(a) 固相分率と (b) 温度分布を示している。すべての計算結果において、溶融物はペDESTALの境界を越えて大きく拡散した。しかしながら、広がり のパターンは蒸気熱伝達係数の大きさに依存して異なることが観察された。蒸気熱伝達率が高い場合、溶融物の広がり は制限され、自由表面のほとんどが輻射熱損失と蒸気熱伝達の組み合わせによって固化した。対照的に、蒸気熱伝達率が低い場合、コリウムは高温を維持しながら広がり を継続した。また、蒸気熱伝達係数が低いと、固相率分布と温度分布はともに崩壊熱の大きさに大きく依存し、顕著な変動を示した。特に、崩壊熱が 8.5 MW で蒸気熱伝達率が低い場合、コリウムは液相のまま広がり続ける挙動が観察された。

図 3.1-11 は、3000 秒時点で初期粘度が $1.0 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ のコリウムを斜め上から見たもので、(a) 固相分率と (b) 温度分布を示している。計算結果から、コリウムからの熱損失は主に自由表面で起こることが一貫して確認された。同時に、ペDESTAL内のサンプルに落ちたコリウムは、大部分が液相のままであった。コリウムの溶融と凝固のプロセスは、主に自由表面からの輻射と蒸気熱伝達によって支配されていることが示唆された。蒸気熱伝達係数が高いシナリオでは、崩壊熱の強度に関係なく、固化したコリウムの形状は出口付近で複雑になった。それに対して蒸気熱伝達係数が低い条件では、固化したコリウムは、より流線型の形状となった。

図 3.1-12 は、3000 秒で底面から見た初期粘度が $1.0 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ のコリウムの広がり を示し、(a) 固相分率と (b) 温度分布を示している。コリウムの相変化と温度変化は、主にペDESTAL外に流れたコリウムの端部から生じていることが確認された。RPV から熱源を常に受け取るペDESTAL内部のコリウムは、顕著な温度変化を示さなかったと考えられる。対照的に、ペDESTAL外に流れるコリウムは薄く広がり、表面積を増加させた結果、冷却が進んだと考えられる。

図 3.1-13 は、3000 秒時点での断面視点からの初期粘度が $1.0 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ のコリウムの広がりを示しており、(a) 固相分率と (b) 温度分布を示している。ペデスタルの内側と外側の自由表面は平坦である一方で、ペデスタルの開口部付近のコリウムは斜面を形成し、内側から外側へ流れている傾向が確認された。流れの経路が制限されているため、ペデスタルの開口部では顕著に吸い込まれる効果が発生したと考えられる。蒸気熱伝達率が高い条件下では、すべての結果は類似の断面プロファイルを示した。特筆すべき結果は、広がったコリウムの端 (PCV 側壁近傍) で、コリウムの一部が隆起し、壁面に固着した点である。この挙動は、固化した溶融物がペデスタル側壁やジェットデフレクターに付着したか、場合によってはベント管を通じて圧力抑制プール側に移行した可能性を示唆した。一方、蒸気熱伝達係数が低い条件下では、このような挙動は見られなかった。

図 3.1-14 と図 3.1-15 は、溶融コリウムの端での広がりプロセス中の温度と固相分率の履歴をそれぞれ示している。データの揺らぎ、ノイズに似たものは、溶融物が固化と再溶融の間で断続的に繰り返していることを意味している。8.5 MW の崩壊熱と、 $100 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ の蒸気熱伝達率のシナリオを除き、広がりの中で、溶融物の端での温度は低下し、液相から固相へ相変化した。しかしながら、8.5 MW の崩壊熱かつ $100 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ の蒸気熱伝達率の特定のケースでは、温度は安定もしくはわずかに増加する傾向があり、溶融物が液相を維持しながら広がり続けたことを示唆した。この特定のシナリオは、熱伝達と輻射熱損失を組み合わせた除熱効率が、熱生成率 (崩壊熱) に等しいか、それ以下であることを示唆している。対照的に、他のすべてのケースでは、熱除去の効率が熱生成率を上回ることが明らかになった。

図 3.1-16 は、初期粘度が $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ のコリウムの 3000 秒時点で上から見た広がりを示している。(a) は固相分率、(b) は温度分布を示している。図 3.1-10 と同様に、すべてのシミュレーション結果において、溶融コリウムがペデスタルの出口を大きく越えて広がったことが明らかとなった。さらに、広がりパターンは蒸気熱伝達係数の大きさの変動によって影響を受けた。特に、高い蒸気熱伝達条件下での広がりパターンは顕著に異なっている。図 3.1-10 では、ペデスタル開口部付近でコリウムが主に固化する傾向が示されたが、図 3.1-16 では、ペデスタルの外側でより広く広がっている挙動が示されており、これは粘性係数の減少による流動性の向上が関連していると考えられる。

図 3.1-17 は、初期粘度が $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ で 3000 秒時点のコリウムの広がりを斜め上から見たものである。(a) は固相分率、(b) は温度分布を示している。図 3.1-11 では、ペデスタル開口部の近くから外側に向かって顕著な厚さに関する勾配が見られた。これはペデスタルを超えて広がるにつれて、コリウムの初期粘度が厚さの勾配を決定する上で重要な役割を果たしていることを示唆している。

図 3.1-18 は、初期粘度が $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ で 3000 秒時点のコリウムの広がりを底面から見たものである。(a) は固相分率、(b) は温度分布を示している。温度と固相分率の分布は、初期粘度係数が $1.0 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の図 3.1-10 に示されているものと傾向として一致している。一方で、図 3.1-12 でペデスタルを超えて広がったコリウムは、図 3.1-10 のものより冷え固まっていた。この温度差は、より低い粘度によってコリウムが広がり、大きな表面積を形成したため、輻射と蒸気熱伝達によってより効率的に除熱が進んだためであると考えられる。

図 3.1-19 は、初期粘度が $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ で、3000 秒時点のコリウムの広がりを断面で示している。特に、図 3.1-13 で明らかだったコリウムの PCV 壁面付近での隆起や、壁への付着などの独特な挙動は観察されなかった。

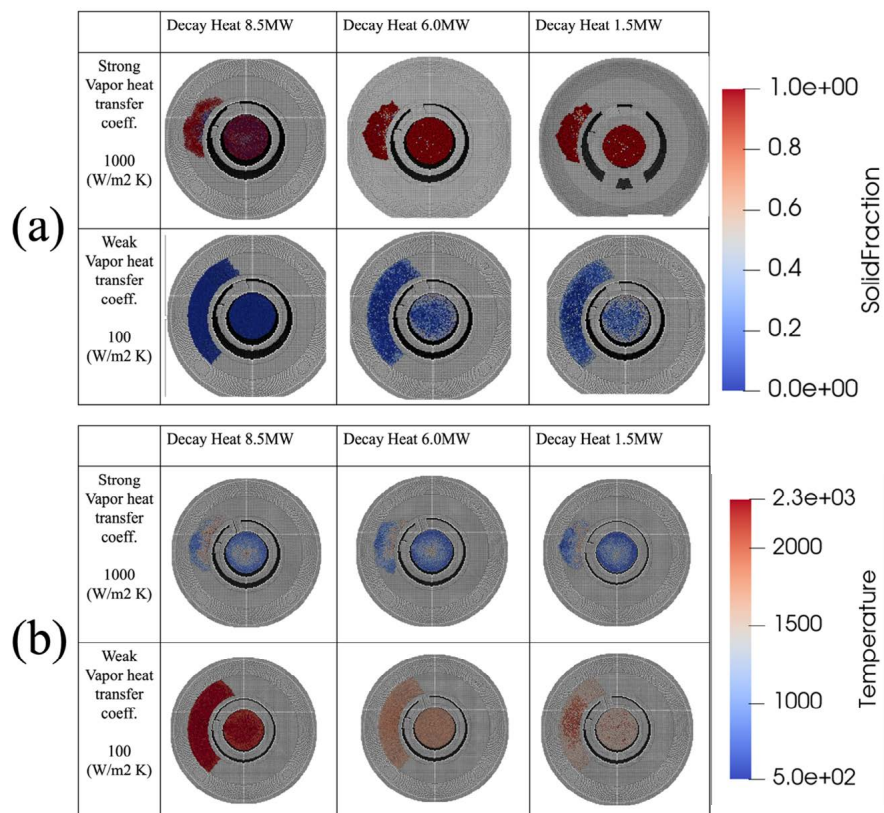


図 3.1-10 3000 秒時の広がったデブリ分布の上からの視点における、
(a) 固相分率及び(b) 温度分布 (コリウムの粘性係数 = $1.0 \text{ Pa} \cdot \text{s}$)

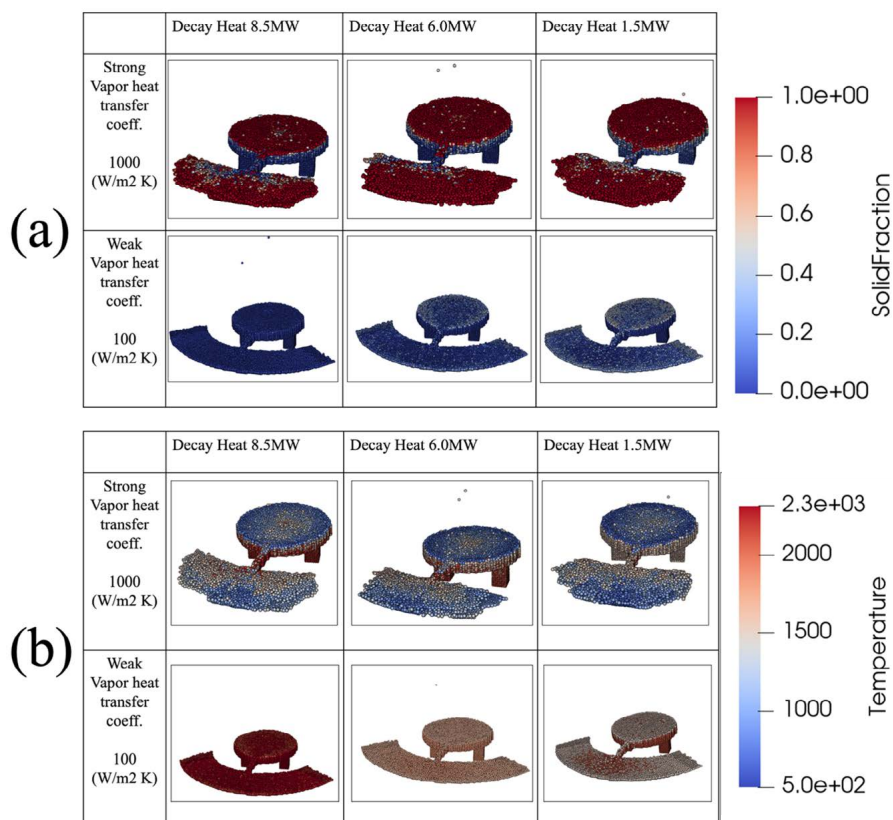


図 3.1-11 3000 秒時の広がったデブリ分布の斜め上からの視点における、
(a) 固相分率及び (b) 温度分布 (コリウムの粘性係数=1.0 Pa・s)

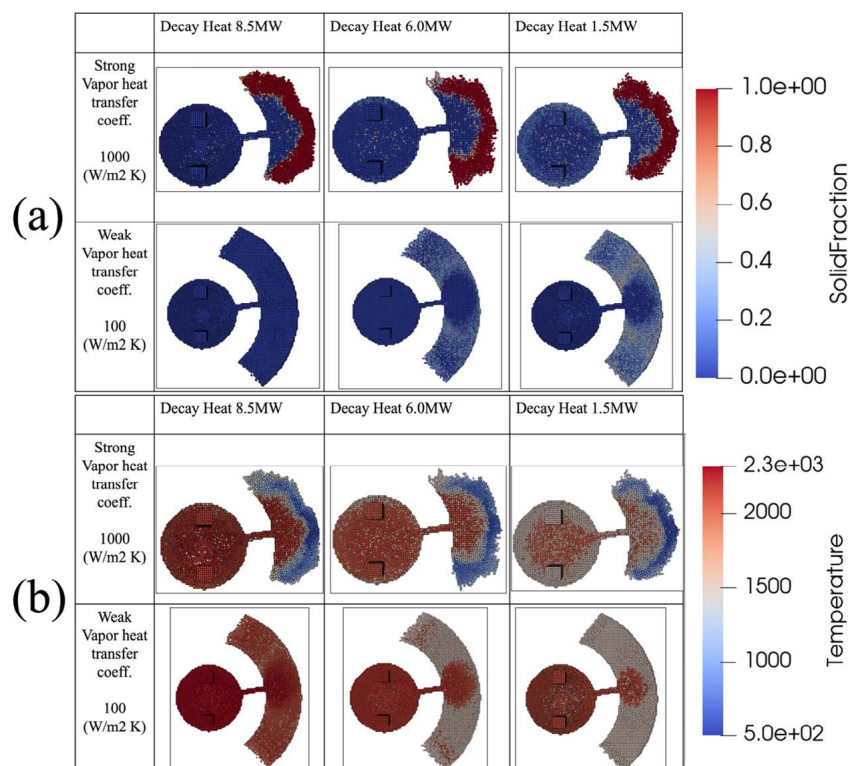


図 3.1-12 3000 秒時の広がったデブリ分布の下からの視点における、
(a) 固相分率及び (b) 温度分布 (コリウムの粘性係数=1.0 Pa・s)

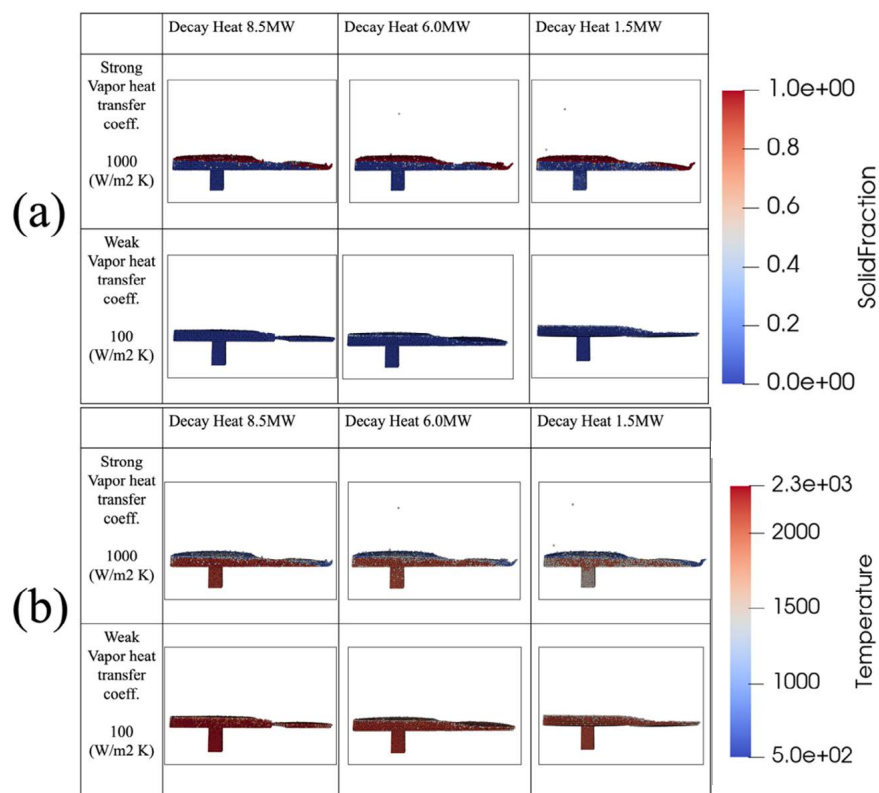


図 3.1-13 3000 秒時の広がったデブリ分布の横からの視点における、
(a) 固相分率及び(b) 温度分布 (コリウムの粘性係数=1.0 Pa・s)

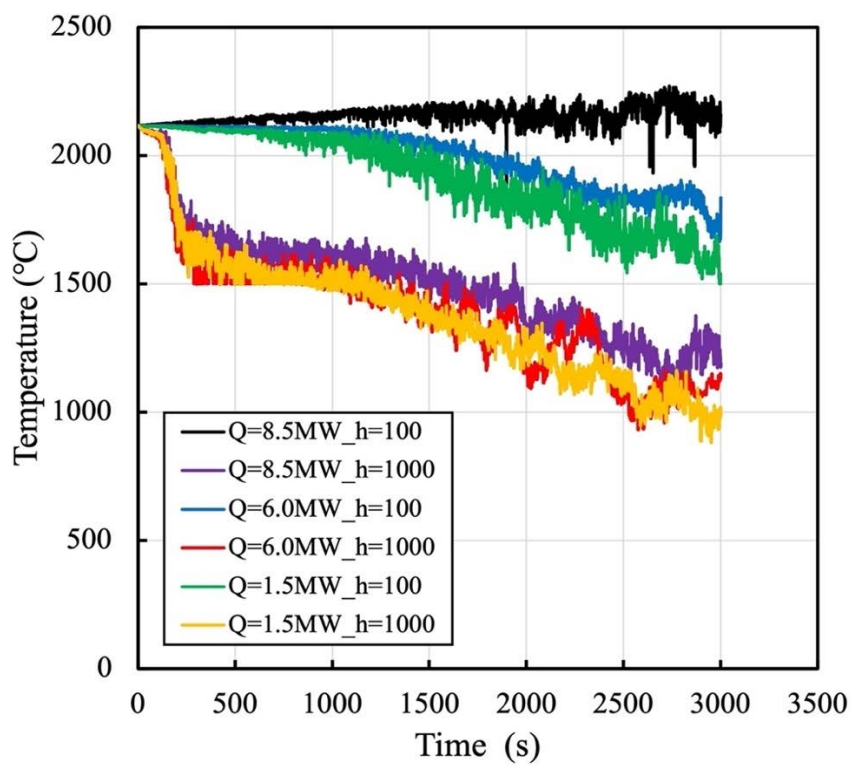


図 3.1-14 デブリ端部における温度の推移

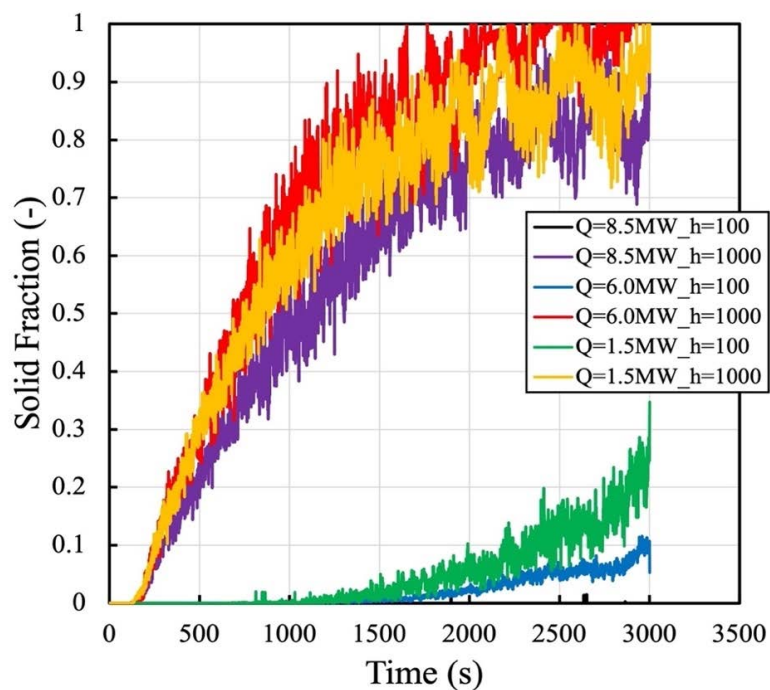
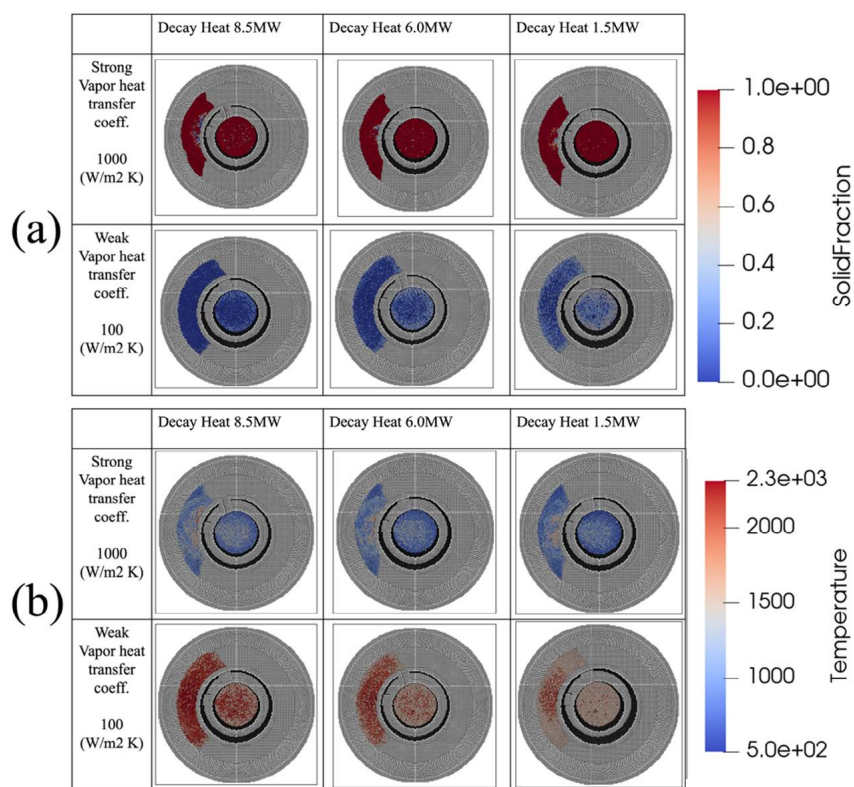


図 3.1-15 デブリ端部における固相分率の推移

図 3.1-16 3000 秒時の広がったデブリ分布の上からの視点における、
(a) 固相分率及び(b) 温度分布 (コリウムの粘性係数= $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$)

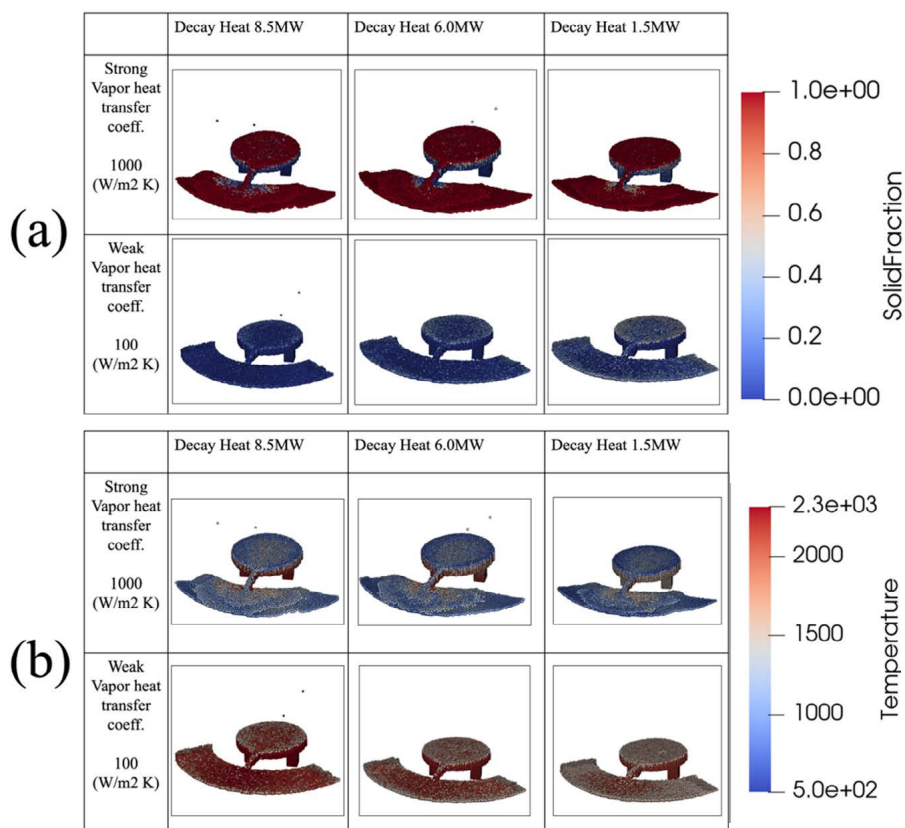


図 3.1-17 3000 秒時の広がったデブリ分布の斜め上からの視点における、
(a) 固相分率及び(b) 温度分布 (コリウムの粘性係数= 1.0×10^{-3} Pa・s)

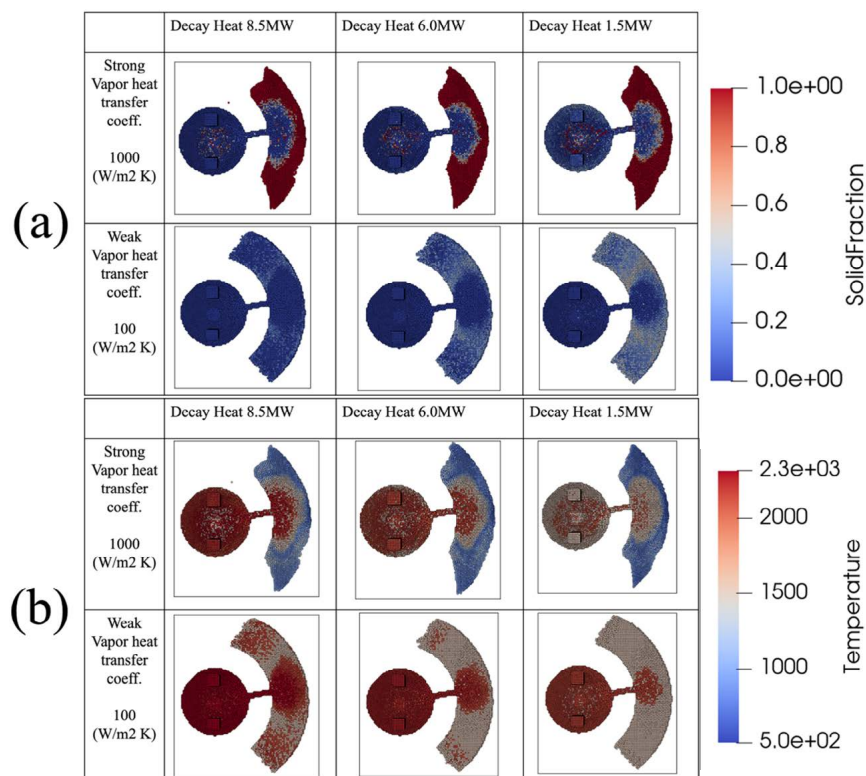


図 3.1-18 3000 秒時の広がったデブリ分布の下からの視点における、
(a) 固相分率及び(b) 温度分布 (コリウムの粘性係数= 1.0×10^{-3} Pa・s)

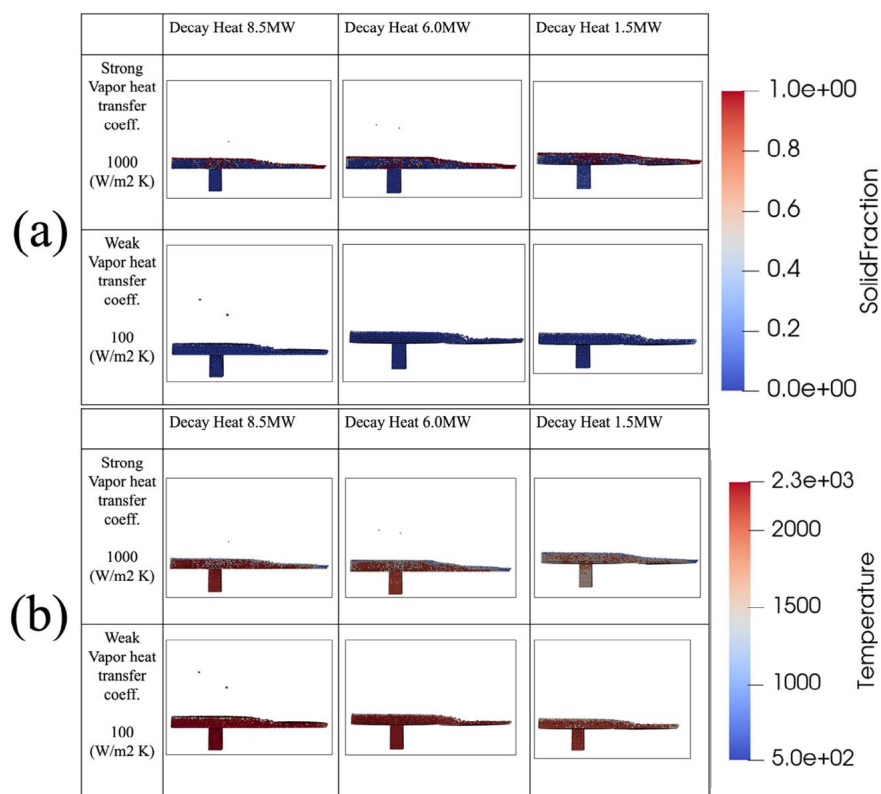


図 3.1-19 3000 秒時の広がったデブリ分布の横からの視点における、
(a) 固相分率及び(b) 温度分布 (コリウムの粘性係数= $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{s}$)

2) 考察

図 3.1-20 は、蒸気熱伝達係数の条件が異なる場合の拡散した燃料デブリの厚みの分布を示している。(a)は上からの眺め、(b)は空中からの眺め、(c)はペデスタル開口に平行な断面、(d)はペデスタル開口の正面からの眺めである。蒸気熱伝達係数が $100 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ の場合、燃料デブリは PCV の半分を取り巻くように広がる傾向にあった。また、厚みの分布を観察すると、デブリがペデスタル内で最も蓄積する傾向があり、約 50 cm まで積み上がった。ペデスタル開口部から外側に広がるにつれて薄くなり、ペデスタル開口部で約 25 cm、端の点で 5 cm から 10 cm の高さに減少した。図 3.1-20(c)の赤い線は、ジェットデフレクターの開口部の高さを示しており、その高さは約 40 cm である。隣接する燃料デブリは 25 cm の高さに蓄積し、ジェットデフレクターの開口部には達していないことが示唆された。そのため、蒸気熱伝達係数が低い条件下での広がり際には、燃料デブリがベント管を通じて、圧力抑制室に広がる確率は低いと考えられる。

一方で、蒸気熱伝達係数が $1000 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ の場合、燃料デブリの広がりには制限されるものの、全体的な厚みの顕著な増加が見られる。同様に、最も顕著なデブリの堆積はペデスタル内で起こり、約 65 cm に達した。さらに、ペデスタル開口部と広がったデブリの端の点での厚みはそれぞれ 45 cm と 10~15 cm であった。図 3.1-21(c)のジェットデフレクター周辺のデブリ蓄積の厚みとジェットデフレクター開口部の位置を比較すると、燃料デブリの蓄積高さがベント管の開口部位置を越えていることがわかる。これは、蒸気熱伝達係数が高い条件下での広がり際には、燃料デブリがベント管を通じて、圧力抑制室に広がった可能性があることを示唆している。

東京電力 HD は、1F 1 号機の PCV の底に堆積した物質の厚さ測定に関して、遠隔ロボットを使用して実施した。その結果、広範囲にわたって何らかの堆積物が観察された（図 3.1-22^[7]）。さらに、堆積物の厚さは場所によって異なり、ペデスタル開口部付近では最も厚い部分で約 0.8～1.1 m に達すると推定され、最も薄い部分では 0.0～0.4 m であることが観察された。

観測結果と計算結果を比較することにより、燃料デブリの存在する場所を区別することで 2 つの可能性を提案することができる。実際の測定値の中で、燃料デブリが赤とオレンジの領域にのみ存在する（つまり、緑の領域には燃料デブリが含まれていないと仮定する）場合、燃料デブリが広がった範囲は限定的であると解釈できる。この条件は、蒸気熱伝達係数が高い条件下での広がりが発生したケースに似ている。一方、測定されたすべての物質が燃料デブリであると仮定する（つまり、緑の領域にも燃料デブリが含まれている）場合、燃料デブリは非常に広範囲に広がっている。この条件は、蒸気熱伝達係数が低い条件下で広がりが発生したケースに類似している。上記の結果から、緑の領域に存在する物質の組成を明らかにすることの重要性が示唆され、これが将来サンプリングの場所選びなどの決定において、重要であることを示している。

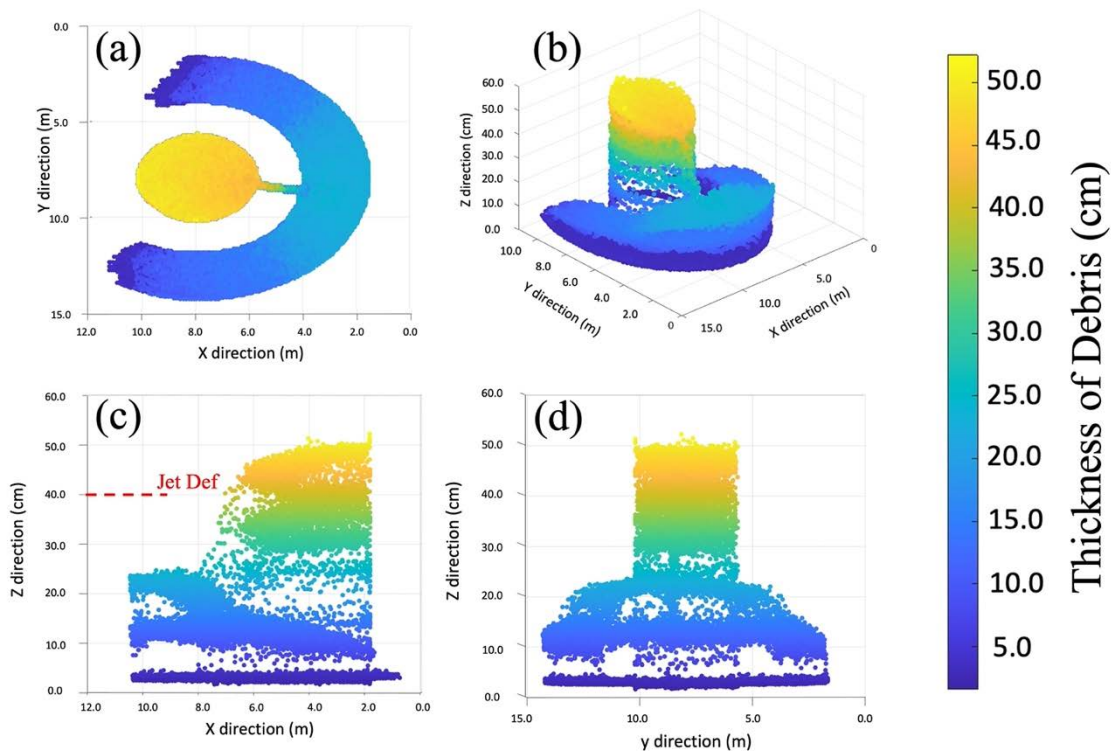


図 3.1-20 弱除熱効率時のデブリの厚さ分布：(a) 上から、(b) 斜め上から、(c) 横から、(d) 正面から

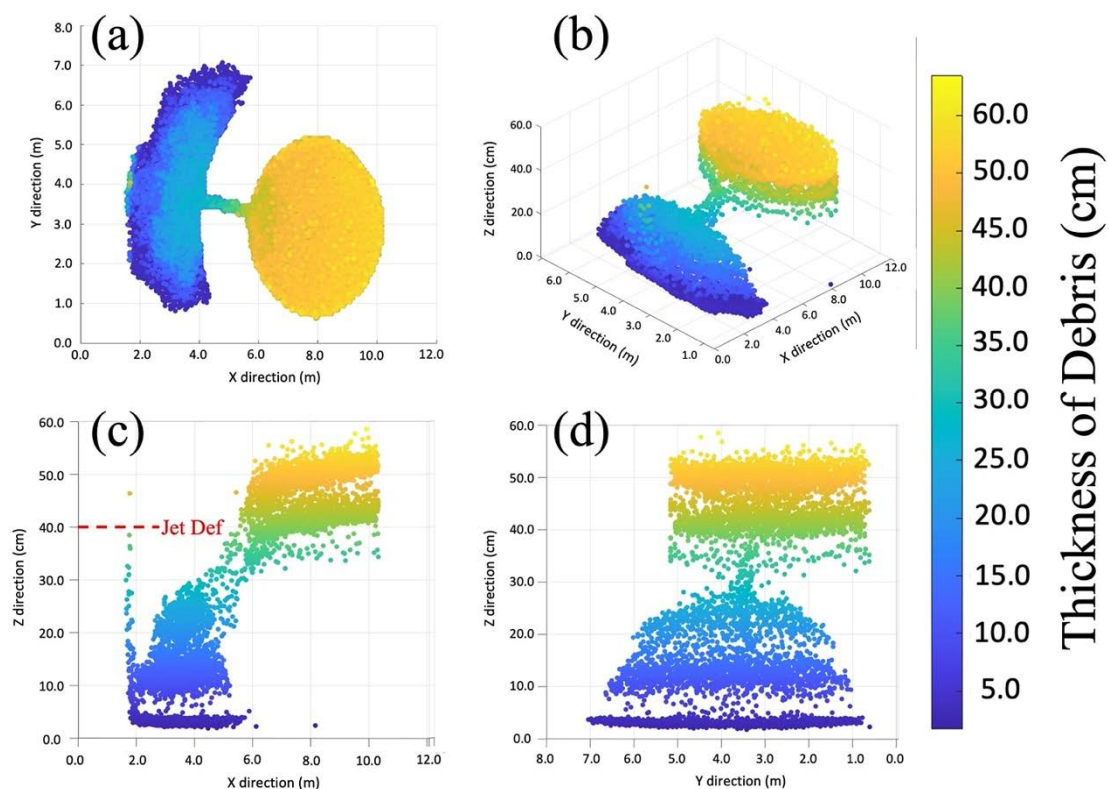


図 3.1-21 強除熱効率時のデブリの厚さ分布：(a) 上から、(b) 斜め上から、(c) 横から、(d) 正面から

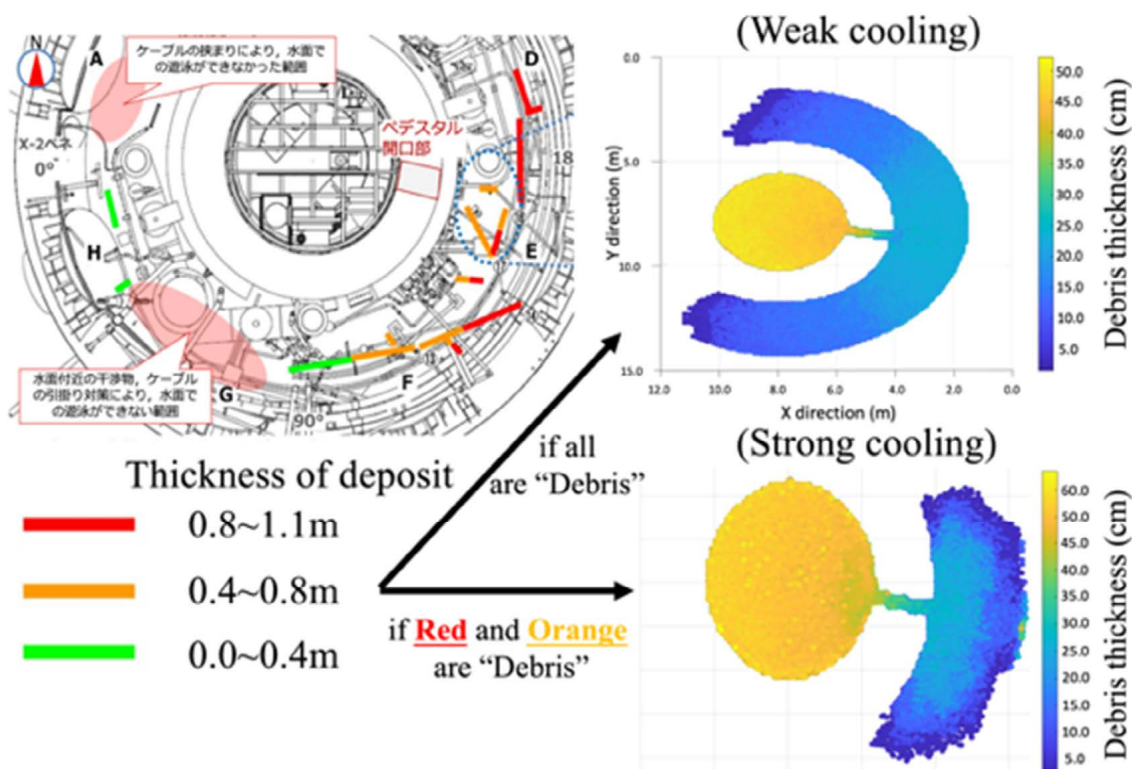


図 3.1-22 各冷却効率時に堆積したデブリ厚さと実測値との比較[7]

(2) 臨界評価

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

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。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_{eff} が大きく変動することが明らかとなった。

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した。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、未臨界を維持する中性子吸収材の必要添加量の推定を行った。図3.1-23に示す、 UO_2 粒子が均一に分散した体系が最も保守的な条件となった。保守的デブリ分布条件の詳細を表3.1-4に示す。この体系の燃料デブリ領域にジオポリマーを適用した場合の臨界評価並びに中性子吸収材を添加したジオポリマーを体系に適用した場合の臨界評価を実施した。

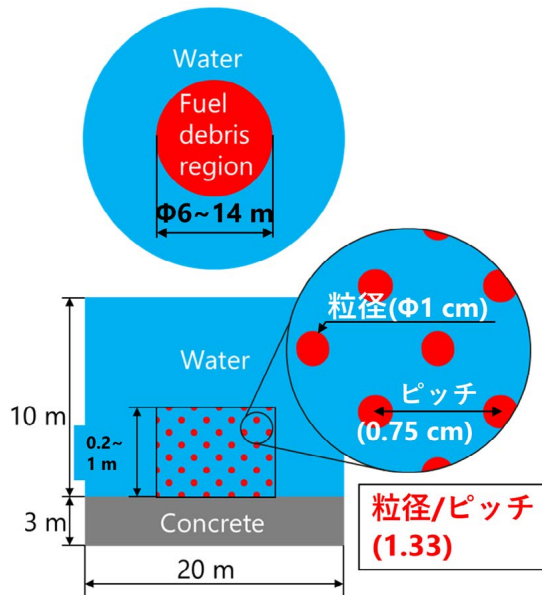


図 3.1-23 保守的デブリ分布ジオメトリ

表 3.1-4 保守的デブリ分布の詳細

Debris volume [cm ³]	7,025,547
Debris mass [ton]	77
Fuel debris composition ^[8]	Burnt fuel of 1F unit 1 (as of March 2011)
Fuel debris region's shape	Cylindrical
Fuel debris form	Uniformly distributed particulate debris
Debris particle size [cm]	1
Debris particle diameter/pitch ratio	1.33

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

① 背景

令和 4 年度では、中性子吸収材添加ジオポリマーは臨界防止に効果があることが解析より明らかとなった。これを踏まえて、令和 5 年度では、添加する中性子吸収材の感度解析を行い、臨界防止に必要となる中性子吸収材の必要最低添加量を見積もる。加えて、ジオポリマーは固化時に脱水することが知られているため、ジオポリマー中の水分が脱水した場合の臨界評価も実施した。

(1) 解析条件

令和 4 年度の実施内容である保守的燃料デブリ分布にジオポリマーを適用した体系を継続して使用した。体系の概略図を図 3. 1-24 に示す。また、ジオポリマーの組成は表 3. 1-5 に示す。ジオポリマーに添加する中性子吸収材として、 Gd_2O_3 と B_4C を用意し、添加なし～1 wt% 添加の間で添加量を変化させることで k_{eff} への影響を確認した。また、脱水後のジオポリマーの臨界評価については、表 3. 1-5 のジオポリマー組成のうち、 H_2O をゼロとすることで解析を行った。

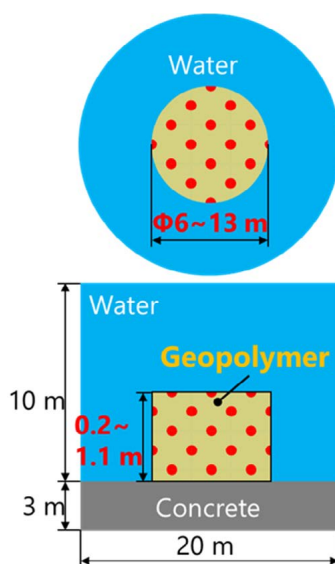


図 3. 1-24 解析に用いた体系

表 3. 1-5 ジオポリマーを構成する物質とその構成比

物質	構成割合 [wt%]
SiO_2	36.4
Al_2O_3	16.3
Na_2O	9.9
H_2O	37.4

② 解析結果・考察

図 3. 1-25 にはジオポリマーへの B_4C 添加量を変化させて計算を行った結果を、図 3. 1-26 にはジオポリマーへの Gd_2O_3 添加量を変化させて計算を行った結果をそれぞれ示す。

そして、図 3.1-27 には中性子吸収材の入っていない、ブランク材のジオポリマーが脱水した場合の計算結果を示す。 B_4C の場合においては、ジオポリマーへ 0.055 wt%以上の添加で未臨界が維持されることがわかった。また、 Gd_2O_3 の場合では、0.02 wt%以上の添加で未臨界が維持される。

中性子吸収断面積が ^{157}Gd (存在比 15.7%) で 254000 barn、 ^{155}Gd (存在比 14.8%) では 61000 barn と大きい Gd に対して、B では ^{10}B (存在比 19.8%) で 3837 barn と大きな差がある^[9]ことから、Gdの方が少ない量で効果を発揮している。さらに、実機適用を考えた際には、固化体を廃棄する処分場ピットはポルトランドセメントのコンクリートが用いられることも考えられる。この場合、B の化合物であるホウ酸はコンクリートを浸食することや、B は有害物質であるため環境基準が設定されていることから、B よりも Gd の方が長期間保管・処分には適していると考えられる。

これらより、再臨界防止の方策としてはジオポリマーに Gd_2O_3 を 0.02 wt%添加することが望ましいと言える。なお、 Gd_2O_3 をジオポリマーに添加した際の影響としては、2 wt%添加した場合においても強度への影響は見られていないことが、本研究・開発初年度の成果より明らかとなっている。そのため、解析より見積もった 0.02 wt%の添加はジオポリマーに対する影響はないと考えられる。また、脱水後のジオポリマーについては、ジオポリマーによる中性子の反射効果よりも、水がなくなったことによる中性子減速効果の低下が支配的となったために k_{eff} が低下したと考えられる。

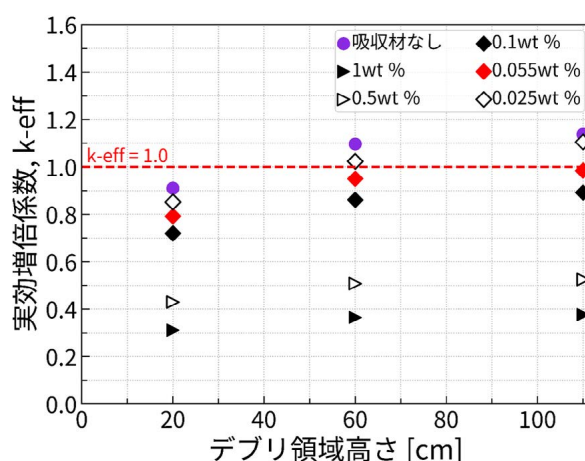


図 3.1-25 ジオポリマーへの B_4C 添加量と k_{eff} の関係

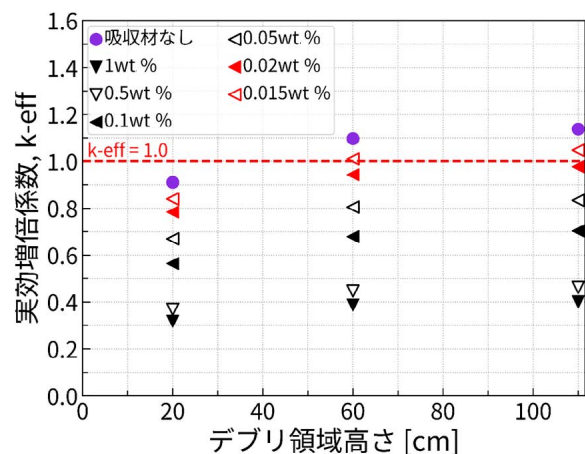


図 3.1-26 ジオポリマーへの Gd_2O_3 添加量と k_{eff} の関係

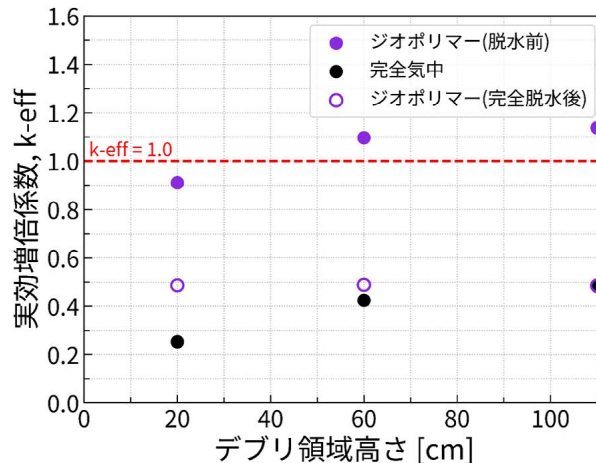


図 3.1-27 燃料デブリを被覆したジオポリマーが完全に脱水した場合の k-eff

※ まとめ

溶融物の水中拡散実験データの拡充、無次元数の提案を実施した。特に、過熱度、サブクール度が拡散・凝固挙動に与える影響を調査した。溶融物の挙動は慣性力と凝固率に応じて、大きく 3 種類に大別できることが確認された。慣性力と凝固率に関する無次元数を提案した。(除熱能力) / (慣性力) で表現される無次元数を計算したところ、この無次元数が 0.1 ~ 0.3 付近で、変曲点が存在することがわかった。

次に、1F 1 号機を対象とした大規模数値解析を実施した。1F 1 号機は水位がないと推定されていることから、気中条件で解析を実施した。特に、影響が大きかったと考えられる粘性係数、蒸気熱伝達率、崩壊熱に関する感度解析を実施した。蒸気熱伝達及び輻射によって構成される除熱効率の大小によって拡散挙動が異なることがわかった。除熱効率が良い場合、ペデスタル開口部付近で凝固する一方、除熱効率が悪い場合、拡散が継続されることがわかった。また、凝固は主として拡散した端部の自由表面から開始されることがわかった。表面積が拡大したことにより、効率的に除熱が起こったからであると考えられる。実機測定値と厚さを比較したところ、どちらの結果も合理的な解釈を得ることができた。この結果から、今後のサンプリングにおいて最も薄い領域の組成を調査することの重要性が示唆された。

また、再臨界防止の方策としては臨界評価により、ジオポリマーに Gd_2O_3 を 0.02 wt% 添加することが望ましいことがわかった。

3.2 PCV 底部最適止水・補修材評価【令和3年度～令和5年度】

3.2.1 止水・補修試験及び評価（東京大学）【令和3年度～令和5年度】

(1) 流動性評価

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

令和3年度には、スランプフロー試験及び粘度測定の結果から、ジオポリマー添加材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。

令和4年度には、ジオポリマーの作成条件を変化させたスランプフロー試験を実施し、添加材量を多くする、含水率減少、養生時間経過によって流動性を低下させ、積み上がり量を高く制御できることが明らかになった。

【令和5年度実施内容及び成果】

① 背景

ジオポリマースラリーを注入してジェットデフレクター開口部の止水を達成するためには、開口からの流出量が極力少ないジオポリマーを使用して、固化が完了するまで対象開口部前に積み上がった状態を維持する必要がある。本試験では骨材添加量・養生時間経過操作によって粘度を調整したジオポリマーについて、ダムブレイク体系における流速を測定した。

② 試験条件

使用したケイ砂の粒度を表3.2.1-1に示す。また、表3.2.1-2に流速評価を実施したジオポリマー条件一覧を示す。No.1～No.4では、ジオポリマーの収縮防止材を兼ねるケイ砂添加材について、添加量と流速の関係を調べた。No.1～No.3では粒径の細かいケイ砂9号のみを使用した。No.4では可能な限り流速の小さいジオポリマーを作成するため、ケイ砂9号、6号、3号をそれぞれ50 wt%ずつ添加し、計150 wt%とした。No.5、No.6では、養生時間経過による粘度調整を実施した。No.7、No.8ではジオポリマーに再臨界防止機能、水素発生抑制機能を付与する Gd_2O_3 、 Pd/Al_2O_3 を添加した場合の影響を確認した。操作によって粘度を調整したジオポリマーについて、ダムブレイク体系における流速を測定した。

図3.2.1-1、図3.2.1-2に、それぞれ流動性能評価に用いた試験容器、手順図を示す。試験容器は端から2 cm地点に仕切り板が設置され、底部に高さ1 cmの隙間が空いている。試験は以下の手順で実施した。

- L字ストッパーにより容器底部の開口を塞いだ状態で、初期高さが30 cmとなるようにジオポリマー120 mlを注入する。
- ストッパーを持ち上げ、開口からジオポリマーの流動を開始させる。開始直後のジオポリマー自重による流出圧力は約6000 Paである。
- ジオポリマーの流動を動画で撮影し、5秒後の到達地点から平均流速を算出する。

表 3.2.1-1 ケイ砂添加材の号数と粒度

ケイ砂号数	粒度
9号	0.01～0.04 mm
6号	0.2～0.4 mm
3号	1.2～2.4 mm

表 3. 2. 1-2 流動性評価条件

No.	GP 条件	確認目的
1	ブランク	骨材による 粘度調整
2	ケイ砂 9 号 30 wt% 添加	
3	ケイ砂 9 号 70 wt% 添加	
4	ケイ砂混合 150 wt% 添加	
5	ケイ砂 9 号 70 wt% 添加 養生時間 4 時間経過	固化進展による 粘度調整
6	ケイ砂 9 号 70 wt% 添加 養生時間 6 時間経過	
7	Gd ₂ O ₃ 2 wt% 添加	添加材の影響
8	Pd/Al ₂ O ₃ 1 wt% 添加	

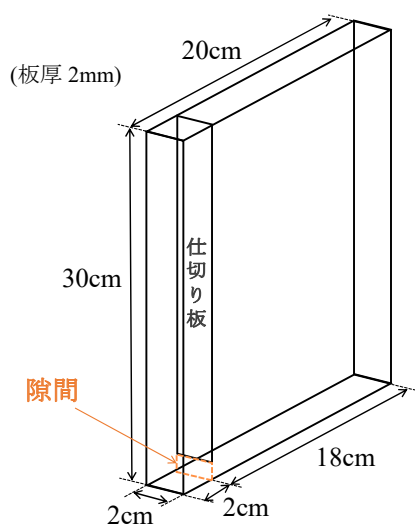


図 3. 2. 1-1 流動性評価試験容器

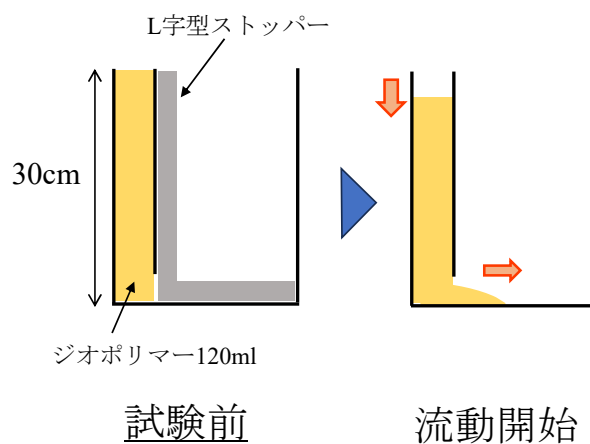


図 3. 2. 1-2 流動開始操作

③ 結果考察

図 3.2.1-3 に、流動開始後 5 秒間の平均流速測定結果を示す。ケイ砂の添加量によって粘性を高めた場合、ブランク条件に比較して流速を 1/10 オーダーで制御できることが明らかになった。No. 4～No. 6 の流速は 1 mm/s を下回っており、これらは緩慢な流動状態を継続するが、高さ 1 cm の開口に対して十分な積み上がり高さを維持したまま閉塞固化することが確認された。図 3.2.1-4 に、No. 4 のジオポリマーが開口を閉塞して固化した様子を示す。ケイ砂 9 号を 70 wt% 添加し、養生時間を 4～6 時間経過させることによって同様に、高さ 1 cm の開口閉塞に有効な流速を示すジオポリマー作製が可能になったことがわかった。長時間の圧送を可能にする一定の流動性確保、作成の単純さといった施工面から閉塞止水に使用するジオポリマー条件を選定することが求められる。

No. 7、No. 8 において、それぞれ再臨界防止・水素発生低減機能を備えたジオポリマーはブランク条件に近い程度の流速を示した。添加材の質量割合は 2 wt% 程度と小さいためにブランクの状態に近く、流動性能に大きく影響しないと考えられる。

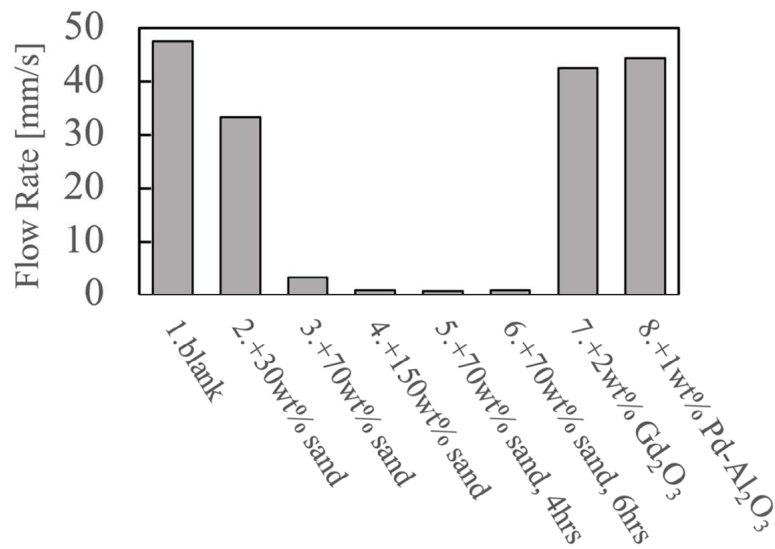


図 3.2.1-3 ジオポリマーの 5 秒間の平均流速



図 3.2.1-4 ジオポリマーが高さ 1 cm の開口を閉塞固化した様子 (No. 4)

(2) 強度評価

【令和 4 年度までの実施内容及び成果の概要】

令和 3 年度においては、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 Gd_2O_3 を添加したジオポリマー、水素発生の抑制を目的とした Ti 及び Mg 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 γ 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 Gd_2O_3 や Pd 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 年度においては、ジオポリマーの強度試験として引張試験を実施した。試験体は実施工を念頭に置いて上下 2 層に打ち重ねを行ったものとし、パラメータとして、打ち重ね時間を変化させることで試験体強度と打ち重ね間隔の関係を確認した。さらに、養生環境の違い（気中/水中）、並びに固化後の γ 線照射が強度発現に与える影響も強度試験により確認した。

超重泥水については、令和 3 年度に使用したヘマタイト（比重：約 5.3 g/cm³）より高比重である WC（比重：約 15.6 g/cm³）を超重泥水に添加し、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。

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

① 引張強度試験

1) 背景

令和 4 年度に実施した引張強度試験では、 γ 線照射を行った試験体の強度が未照射材と比べて低下する傾向が見られた。そのため令和 5 年度では、ジオポリマー固化体に γ 線照射（3.2.3 項にて後述）を実施後、引張試験を実施し、強度低下原因の調査を行った。実施内容は、線量率効果、 γ 線加熱影響有無の調査である。

2) 実験方法・条件

図 3.2.1-5 に、試験体の作製フローを示す。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・水中の 2 条件とした。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

ンクリート工事記載のコンクリート許容打ち重ね時間が、環境温度 25℃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。

γ線照射は、ジオポリマーを 23 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⁶⁰Co γ線照射施設に持ち込み、γ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、前川試験機製作所製のねじ式万能試験機 MAG-2GVC-LF4 を用い、載荷速度 $0.06 \pm 0.04 \text{ N}/(\text{mm}^2 \cdot \text{s})$ にて実施した。試験においては、最大荷重を測定し、試験後の試験体断面積で除すことで引張強度を算出した。

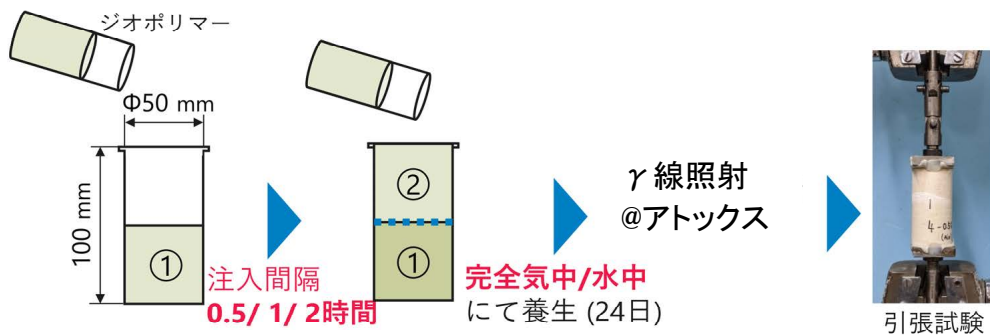


図 3.2.1-5 試験体作製フロー

3) 結果・考察

2023 年度 (令和 5 年度) に実施した分の試験結果一覧を表 3.2.1-3 に示す。これ以降、表 3.2.1-3 中、試験体番号が 2023-X-1 の形のを高線量照射試験体、2023-X-2 のものを低線量照射試験体、2023-X-3 のものを中線量照射試験体と呼ぶ。また、表中 (H) と書かれたものは、80℃に設定した恒温槽内で照射を実施したものである。

図 3.2.1-6 に、気中養生を行い照射を行った試験体、図 3.2.1-7 に、水中養生の後照射を行った試験体の引張強度を示す。また、線量率効果を見るために、同程度の積算線量であった令和 4 年度低線量試験体と、令和 5 年度低線量試験体の気中養生分の強度試験結果を整理して比較したものを図 3.2.1-8 に示す。また、同様に令和 4 年度高線量試験体と、令和 5 年度中線量試験体の気中養生分の強度試験結果を整理して比較したものを図 3.2.1-9 に示す。試験後の試験体外観は、図 3.2.1-10、図 3.2.1-11 に示す。積算線量並びに線量率と引張強度の間には、顕著な相関は見られなかった。また、照射材の強度低下の原因調査として、養生～照射時の温度変化の影響についても調査した。

表 3.2.1-3 2023 年度（令和 5 年度）に照射を実施した試験体の引張試験結果一覧

試験体番号	注入間隔	養生環境	照射線量 [MGy]	引張試験時の 材齢	引張強度 [MPa]
2023-4-1	0.5h	気中	7.96	87～93 日	1.06
2023-5-1	1h		8.32		0.132
2023-6-1	2h		7.76		研磨中に破断
2023-7-1	0.5h	水中	8.81		0.243
2023-8-1	1h		8.55		0.0975
2023-9-1	2h		7.60		研磨中に破断
2023-4-2	0.5h	気中	0.080		0.686
2023-5-2	1h		0.082		0.621
2023-6-2	2h		0.083		0.215
2023-7-2	0.5h	水中	0.084		0.151
2023-8-2	1h		0.083		0.460
2023-9-2	2h		0.080		0.0529
2023-7-2 (H)	0.5h	水中	0.080		0.0814
2023-8-2 (H)	1h		0.082		研磨中に破断
2023-9-2 (H)	2h		0.080		研磨中に破断
2023-4-3	0.5h	気中	2.12		0.990
2023-5-3	1h		2.22		0.163
2023-6-3	2h		2.17		0.162
2023-7-3	0.5h	水中	2.2		0.955
2023-8-3	1h		2.11		0.211
2023-9-3	2h		2.11		研磨中に破断

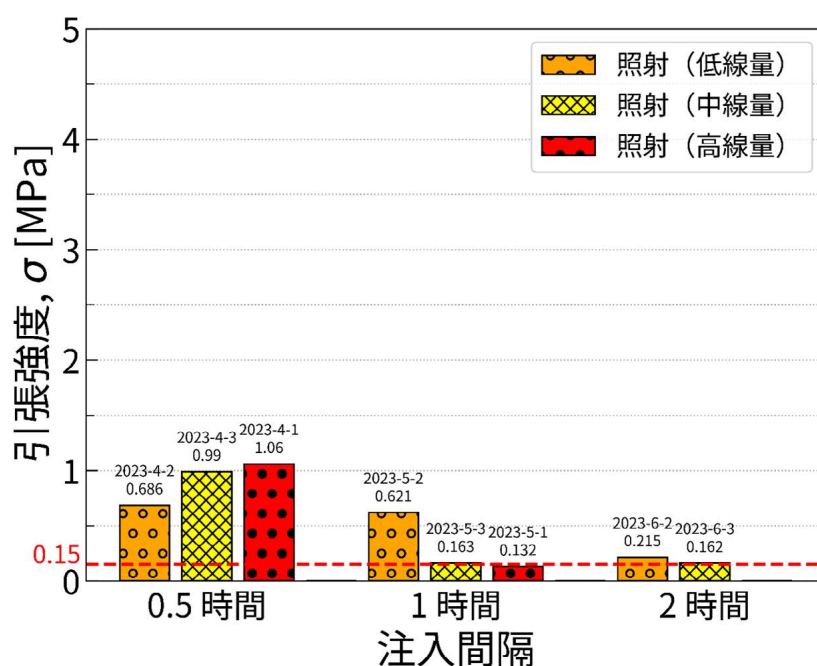


図 3.2.1-6 照射試験体（気中養生/令和 5 年度分）の引張試験結果

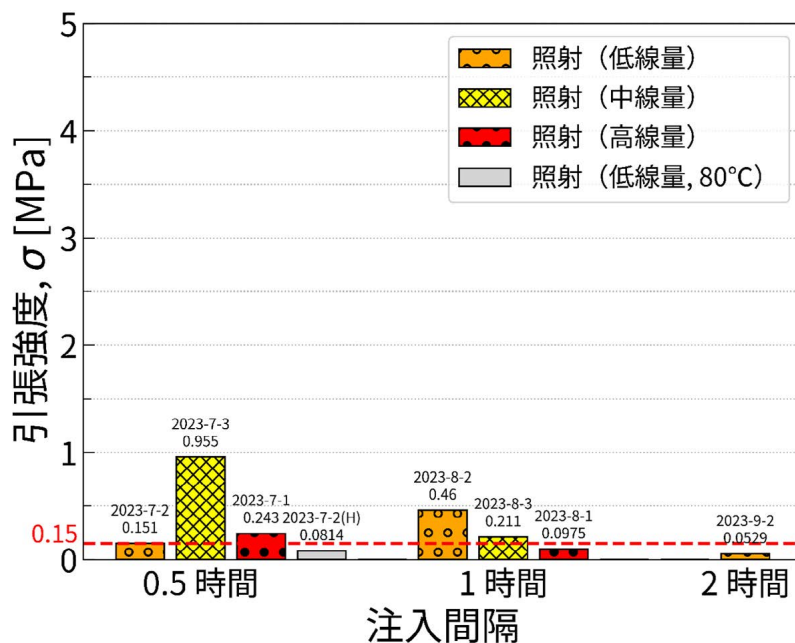


図 3.2.1-7 照射試験体（水中養生/令和5年度分）の引張試験結果

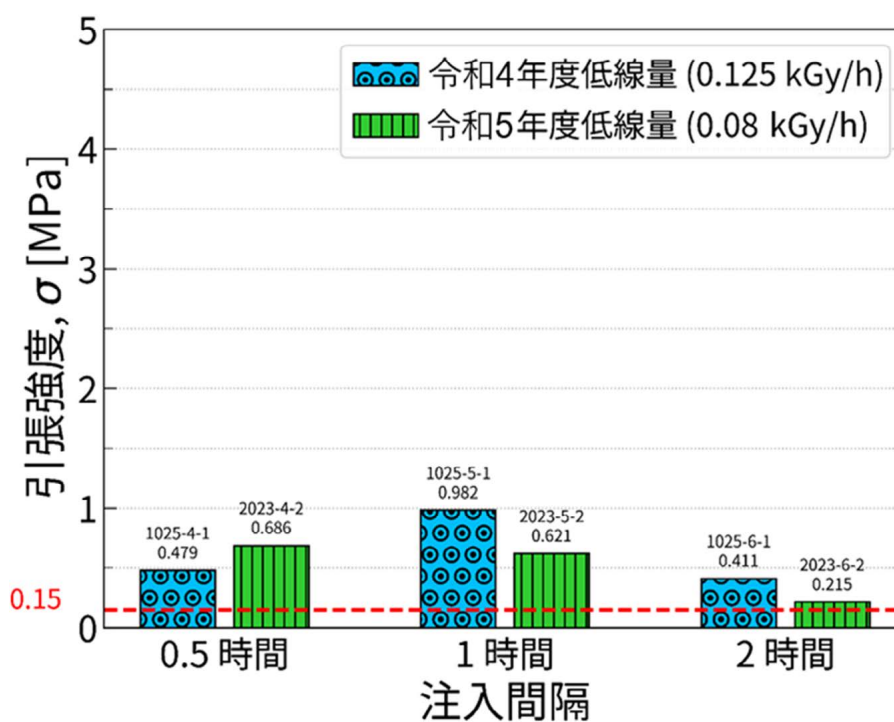


図 3.2.1-8 同等の積算線量となる低線量試験体の比較（線量率効果の確認）

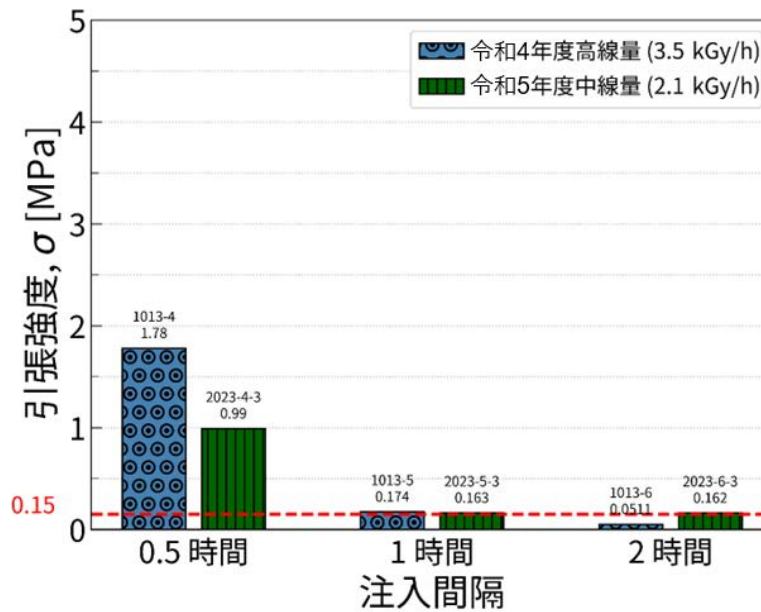
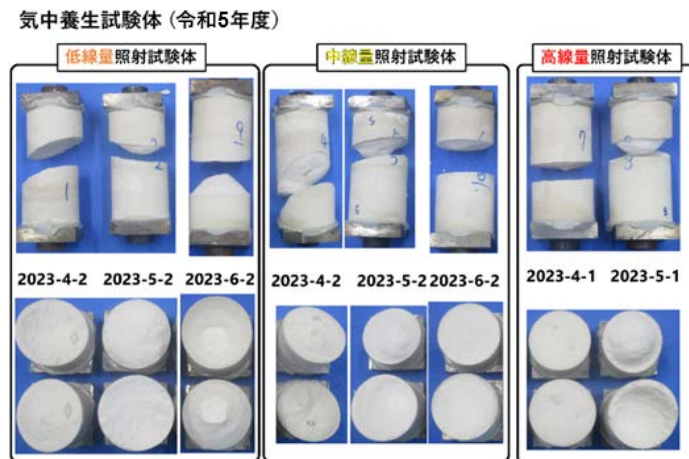
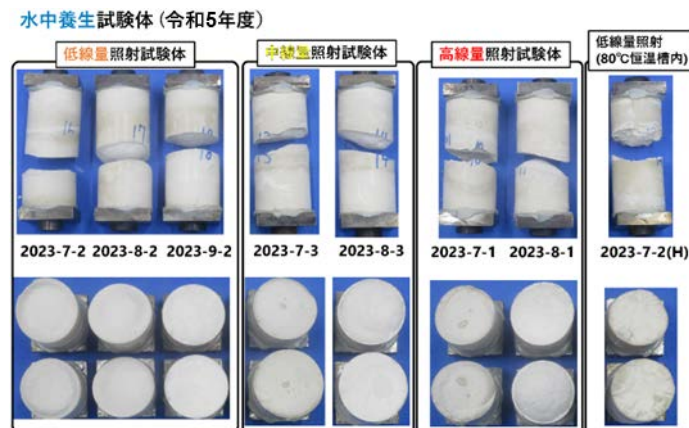


図 3. 2. 1-9 同等の積算線量となる中・高線量試験体の比較（線量率効果の確認）



※試験体の色が異なって見えるのはカメラのホワイトバランスの違い

図 3. 2. 1-10 引張試験後の照射試験体（気中養生/令和 5 年度分）外観



※試験体の色が異なって見えるのはカメラのホワイトバランスの違い

図 3. 2. 1-11 引張試験後の照射試験体（水中養生/令和 5 年度分）外観

養生～照射時の温度変化の影響：

コンクリートのクラック原因として固化体内部と外部との温度差も挙げられる。割れていない試験片であってもクラック部には応力が集中し、結果として強度低下の原因となる。そのため、養生時及び γ 線照射時のジオポリマー内部の温度計測を実施した。照射期間中の記録を図 3.2.1-12 に示す。養生期間においては水中で養生していたことから温度はほぼ一定となっている。照射期間中の試験体温度については、照射室が常時換気されているため、外気温と連動して試験体の温度も変化している。環境温度よりも照射試験体内部の温度が多少高いが、試験体内外での温度差は 5°C 以内となっており、強度低下の原因とは考えにくい。また、照射前後での試験体の質量変化を表 3.2.1-4 に示す。いずれの線量率でも養生環境が同じであれば同程度の質量減少率であった。これらより、 γ 線加熱による試験体内外の温度差は 5°C 以内とわずかで、なおかつ質量変化記録より線量率の違いがジオポリマーの自由水の脱水の促進に影響していないと言える。

これらより、強度には積算線量、線量率、試験体の温度変化以外のパラメータも関係している可能性がある。例えば、気孔率である。試験体に含まれる気孔の割合を示す気孔率は、強度と相関関係があることが知られている^{[10][11]}。そして、気孔率及び細孔径の分布は γ 線照射によって影響があることも調査されている^[12]。また、試験後の試験体外観より、打ち重ね部での破断が多く見られている。打ち重ねなど行っていない通常の試験体に対して γ 線照射を行うと、強度が向上する結果もいくつか見られている^{[12][13]}ことから、打ち重ね部に γ 線照射を行ったことによる局所的な硬度変化などが発生していることも考えられる。今後も継続した強度低下原因調査の必要がある。

なお、ジオポリマーにはコンクリートと同様遮へい能があるため、打ち継ぎ部の変質に起因する強度低下であれば、RPV 内の除染や打ち重ね位置を適切に設定することで γ 線の影響を受けない打ち重ねが可能になると思われる。

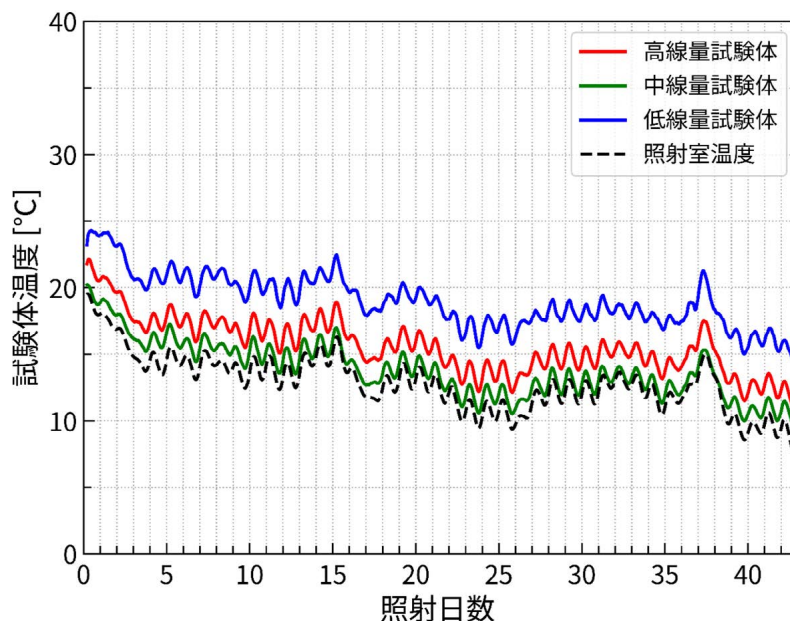


図 3.2.1-12 水中養生試験体の γ 線照射中の温度変化（令和 5 年度試験体）

表 3.2.1-4 照射前後の試験体質量変化

試験体番号	養生環境	照射環境 (温度、線量率)	照射前 質量 [g]	照射後 質量 [g]	質量減少率, %
2023-4-1	気中	室温 (14±6℃) 7.73 kGy/h	358.53	312.05	13.0
2023-5-1		室温 (14±6℃) 8.08 kGy/h	366.63	319.78	12.8
2023-6-1		室温 (14±6℃) 7.53 kGy/h	359.85	311.02	13.6
2023-7-1	水中	室温 (14±6℃) 8.55 kGy/h	366.37	302.09	17.5
2023-8-1		室温 (14±6℃) 8.30 kGy/h	365.19	303.5	16.9
2023-9-1		室温 (14±6℃) 7.38 kGy/h	367.76	305.39	17.0
2023-4-2	気中	室温 (14±6℃) 0.078 kGy/h	361.01	317.39	12.1
2023-5-2		室温 (14±6℃) 0.080 kGy/h	360.27	315.57	12.4
2023-6-2		室温 (14±6℃) 0.081 kGy/h	364.8	319.87	12.3
2023-7-2	水中	室温 (14±6℃) 0.082 kGy/h	368.76	309.39	16.1
2023-8-2		室温 (14±6℃) 0.081 kGy/h	369.43	309.16	16.3
2023-9-2		室温 (14±6℃) 0.078 kGy/h	370.88	310.02	16.4
2023-7-2 (H)	水中	高温 (80℃) 0.078 kGy/h	369.13	276.16	25.2
2023-8-2 (H)		高温 (80℃) 0.080 kGy/h	369.18	照射後に破断	-
2023-9-2 (H)		高温 (80℃) 0.078 kGy/h	365.04	照射後に破断	-
2023-4-3	気中	室温 (14±6℃) 2.06 kGy/h	359.48	313.08	12.9
2023-5-3		室温 (14±6℃) 2.16 kGy/h	362.34	314.51	13.2
2023-6-3		室温 (14±6℃) 2.11 kGy/h	364.13	318.08	12.6
2023-7-3	水中	室温 (14±6℃) 2.14 kGy/h	369.11	307.61	16.7
2023-8-3		室温 (14±6℃) 2.05 kGy/h	368.96	309.04	16.2
2023-9-3		室温 (14±6℃) 2.05 kGy/h	368.31	307.54	16.5
Temp-1	水中	室温 (14±6℃) 6.20 kGy/h	465.96	400.1	14.1
Temp-2		室温 (14±6℃) 2.06 kGy/h	467	409.42	12.3
Temp-3		室温 (14±6℃) 0.075kGy/h	465.02	405.94	12.7

(3) 超重泥水併用閉塞試験

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

令和4年度には、作製条件により粘度を変化させたジオポリマーについて、5 mm、1 cm の開口の閉塞を確認した。粘度を高めることは開口の閉塞に有効であるが、各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。

【令和 5 年度実施内容及び成果】

① 背景

ジオポリマーによる開口部の閉塞止水効果を高める補助材として、超重泥水の併用を検討した。超重泥水は IRID プロジェクト「原子炉格納容器漏えい箇所の補修技術の開発」におけるベント管止水補修材として開発が進められた材料であり、現場環境を想定した閉塞・遮水性、耐ホウ素性、耐放射線性等を備える。超重泥水による止水メカニズムを以下に示す。

- a. 水道を粒径の大きい無機閉塞材で塞ぎ、閉塞層が形成する。
- b. 閉塞層周辺の補修材が脱水され、不透水性の骨格を形成する。
- c. 時間が経つにつれ脱水が進んだ不透水層が厚みを増し、濾水量が減少する。

実際の施工では、閉塞材注入に伴い底部側への圧力が増すことが想定される。よって本試験では、隙間上に注入した閉塞材に加圧を行った場合を含め閉塞性能を評価した。

② 作製条件

本試験では、閉塞材料としてジオポリマー・超重泥水を用い、表 3.2.1-5 に示す 2 条件で性能評価を行った。図 3.2.1-13、図 3.2.1-14 に、それぞれジオポリマー、超重泥水の作製状況を示す。ジオポリマーは収縮防止・粘度調整用にケイ砂 9 号を 30 wt% 添加し、50℃の恒温水槽で 1 時間攪拌加熱して粘度を高めたものを用いた。表 3.2.1-6 は超重泥水の配合組成であり、以下に作製手順を示す。

工程 1：容器に満たした水道水を攪拌機で攪拌しながら、NB クレイ、NB フローを所定量添加し、ママコがなくなるまで攪拌する。

工程 2：NB プラグ(Z)、NB ファイバーを所定量投入し、均一になるまで攪拌する。

工程 3：NB ウェイトを所定量投入し、均一になるまで攪拌する。

工程 4：1 日静置後に再攪拌して流動性を回復したものを試験用の重泥水とする。

表 3.2.1-5 実施条件（超重泥水併用試験）

No.	閉塞方法
1	ジオポリマーのみを注入
2	超重泥水層の上部からジオポリマーを注入



図 3.2.1-13 ジオポリマー作製状況（左図：混練時、右図：加熱時）



図 3.2.1-14 超重泥水作製状況

表 3.2.1-6 超重泥水配合組成

材料		配合量(g)
水道水		100
NB フロー		0.5
NB クレイ		7
閉塞材	NB プラグ(Z) 1 号	20
	NB プラグ(Z) 2 号	10
	NB プラグ(Z) 3 号	10
	NB プラグ(Z) 4 号	10
	NB プラグ(Z) 5 号	10
	NB プラグ(Z) 6 号	10
	NB ファイバー	7
NB ウェイト		100

③ 試料性状測定

作製したジオポリマー・超重泥水に対して、JHS313-1992「エアモルタル及びエアミルクの試験方法」に準拠したフロー試験・比重測定を実施した。図 3.2.1-15、図 3.2.1-16 に測定の様子を、表 3.2.1-7 に測定結果を示す。2 回の試験実施間に 15 分程度の時間経過があったため、ジオポリマーについては試験直前にそれぞれ性状把握を行った。



図 3.2.1-15 フロー試験の様子（左：ジオポリマー、右：超重泥水）



図 3.2.1-16 比重測定の様子（左：ジオポリマー、右：超重泥水）

表 3.2.1-7 性状測定結果

	No. 1	No. 2	
	ジオポリマー	ジオポリマー	超重泥水
流体温度 (°C)	50	50	20
フロー値 (mm)	289	311	180
比重	1.83	1.83	1.73

④ 閉塞性評価手順

図 3.2.1-17、図 3.2.1-18 に試験装置模式図と実際の様子を示す。アクリル円筒試験容器内にセメント円柱体を設置することで、壁面との間に幅 1 cm の中空円状の隙間が設けられている。

本容器に閉塞試料を注入し、漏出せず隙間上部に残存した量から流出・閉塞状況を測定した。大気圧下ですべて流出することなく閉塞が確認された場合には、アクリル円筒内を密閉した状態で 1.0×10^5 Pa ずつ加圧を行い、60 秒間保持した後の閉塞状況推移を確認した。以上の加圧操作を段階的に実施し、アクリル円筒内の圧力が 1.0 kPa に達するか、排出バルブから試料や空気が漏出した時点で試験を終了した。

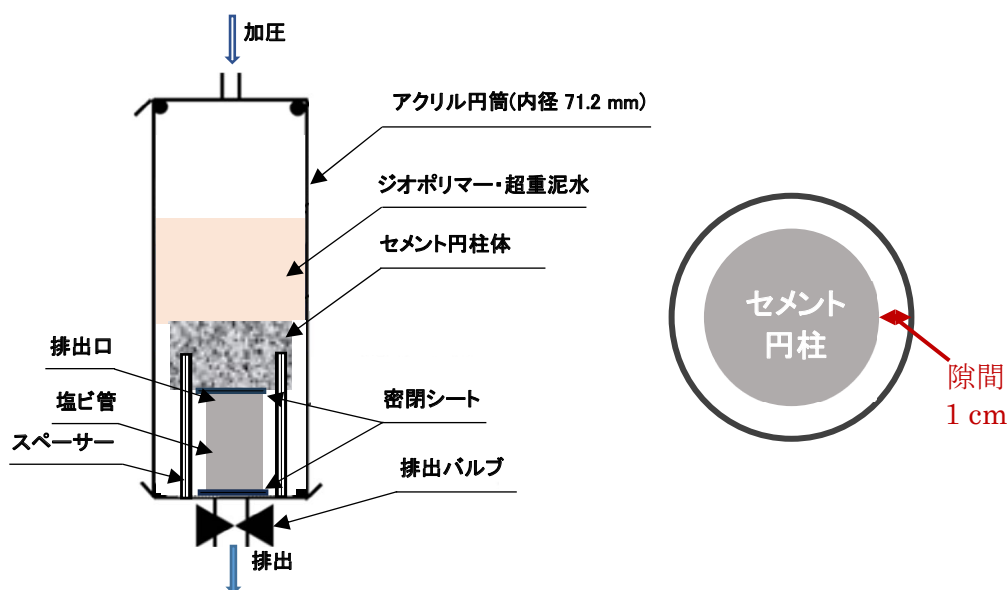


図 3.2.1-17 超重泥水併用試験装置図（左：側面図、右：上面図）



図 3.2.1-18 超重泥水併用試験装置（左図：外観、右図：上面）

⑤ 試験結果

図 3.2.1-19 は、大気圧下において試験容器内に閉塞材料を注入した様子である。加熱によって粘度を調整したジオポリマーは、幅 1 cm の隙間からすべて漏出した。(No. 1) あらかじめ超重泥水を打設した層の上部からジオポリマーを注入した場合、隙間上部に試料が維持され閉塞状態となったため、引き続いて段階的な加圧を行った。(No. 2) 図 3.2.1-20 に、ジオポリマー・超重泥水の混合液体が隙間の上部に残存した量割合を、各加圧段階毎に示す。加圧とともに下部への漏出量が増加し、 0.9 kg/cm^2 に昇圧した時点で下部バルブから空気が漏出したため試験を終了した。粘度を調整したジオポリマー単体を注入した場合に比較して、ジオポリマー注入前に超重泥水を打設することで開口部の閉塞性能が向上することが明らかになった。



図 3.2.1-19 大気圧下の試験体の状態（左：No. 1、右：No. 2）

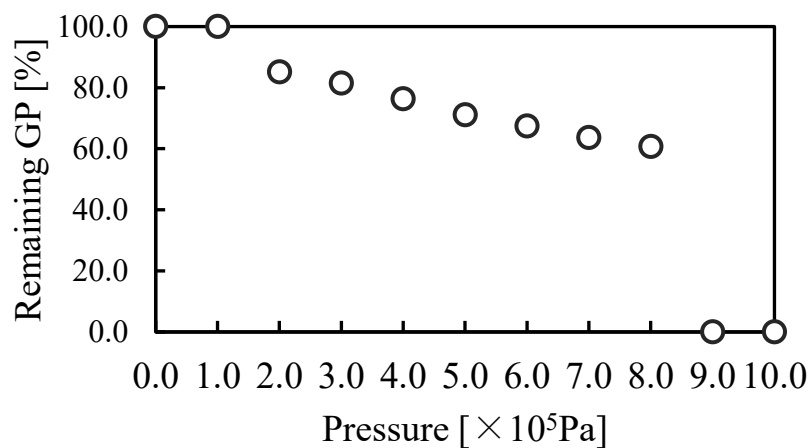


図 3.2.1-20 加圧値毎のジオポリマー・超重泥水の残存量推移 (No. 2)

(4) 1/6 模擬ジェットデフレクター止水試験

【令和 4 年度の実施内容及び成果の概要】

令和 3 年度には、規模を拡大した止水試験として、PCV 底部を簡易的に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。

令和 4 年度には、令和 3 年度と同様の PCV 底部を模擬した環境で、工学的施工とジオポリマー注入を組み合わせた模擬開口部の止水可否を確認した。その結果、開口を縮小する施工として布型枠と防水シートが有効であり、注入したジオポリマーが積み上がって対象開口部が充填し、閉塞止水が達成された。固化体を切断した結果、水道や隙間は発生せず閉塞状態への影響がないことが確認された。

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

① 背景

本試験では、水槽に実機ジェットデフレクターを 1/6 スケールで模擬した構造を設け、PCV 実環境を再現した体系において、大規模止水試験を実施した。容量を拡大した混練注入設備を使用し、令和 4 年度までの傾向を踏まえた工学的施工を実施することで、ジオポリマー注入による止水技術の実機適用性を評価した。

② 試験装置

本試験で使用した試験水槽を図 3.2.1-21 に示す。令和 4 年度よりも試験スケールが大きいため、ジオポリマー使用量の増加による混練装置の大型化、注入速度の高速化によるポンプの高性能化が必要となる。図 3.2.1-22 に試験手順模式図、図 3.2.1-23 に試験装置外観を示す。ジオポリマーを水中注入時に拡散させず継続的に安定に注入するためには、重合反応を進めつつ急激な粘度上昇を抑制するための冷却が必要となる。実機を想定した場合、ジオポリマーモルタルを冷却すると装置の大型化が懸念される。そこで、冷却はジオポリマーペースト時に行い、試験容器への注入直前にジオポリマーモルタルを作製することとした。ジオポリマーペーストの熟成時の冷却効率を上げるため小型容器に分割することとし、ハンディミキサーを用いて混練し所定粘度になるまで熟成させた。ジオポリマーモルタルの混練は連続的に行うことで装置の小型化が実現できるが、本試験では小規模のバッチ処理で連続的に実施した。混練したジオポリマーモルタルは、モルタルポンプのホッパーに投入した。モルタルポンプは、昨年度の 0.75 kW 型より出力の大きな 3.70 kW 型を選定した。

試験容器の注水と排水については、令和 4 年度と同様に試験水槽とは別のバッファタンクを設け水中ポンプで水を循環させた。ただし、ジオポリマー注入初期段階では、ジオポリマーモルタルが試験水槽から排出されることが想定されるため、試験水槽への流入を抑制するため新たにジオポリマートラップ用のバッファタンクを設けた。注水と排水のバランスは、ジェットデフレクター模擬部側の排水速度を調整した。また、オーバーフロー用排出口は試験容器上部に設けている。



図 3. 2. 1-21 1/6 模擬ジェットデフレクター止水試験水槽

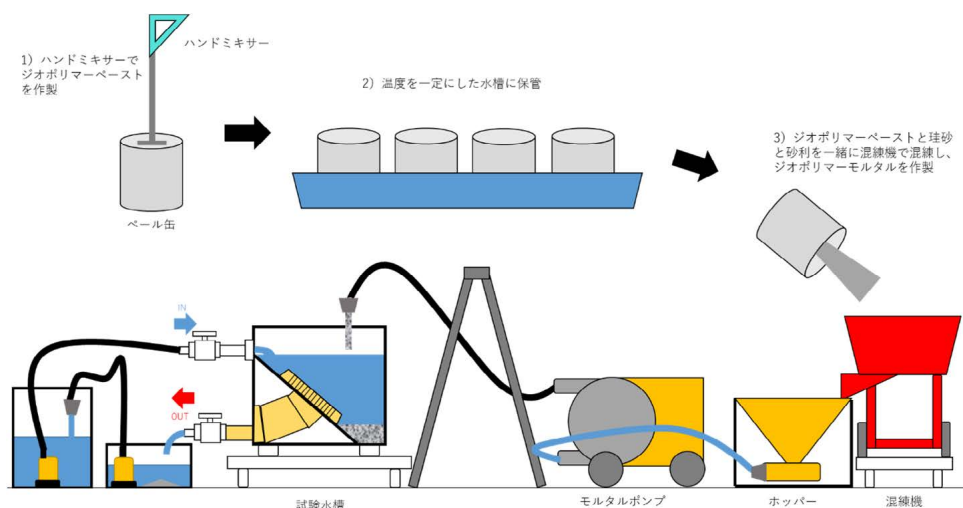


図 3. 2. 1-22 止水試験手順模式図



図 3. 2. 1-23 止水試験装置外観

③ 試験条件

試験条件を表 3.2.1-8 に示す。令和 4 年度と同様に収縮低減と中性子吸収剤を模擬して珪砂をジオポリマーペーストに加えて混練した。さらに、令和 5 年度は小さい穴を塞ぐため、珪砂よりもサイズが大きい砂利を加えることにした。砂利のサイズは、選定したモルタルポンプで吐出可能なサイズの 5 mm とした。また、止水試験時のジェットデフレクター模擬部の止水方法として、ジオポリマーモルタルを入れた土嚢を開口部に設置して覆うことにした。図 3.2.1-24 に土嚢の設置イメージ図を示す。

表 3.2.1-8 止水試験条件

ジオポリマーの種類	水中固化用 SIAL®
珪砂配合	珪砂 4 号：珪砂 8 号＝4：1
珪砂充填量[wt%]	50
砂利サイズ[mm]	2.5～5
砂利充填量[wt%]	10
ジオポリマー保管温度	15 ℃
気温[℃]	10.8
湿度[%]	89
流量[L/min]	10

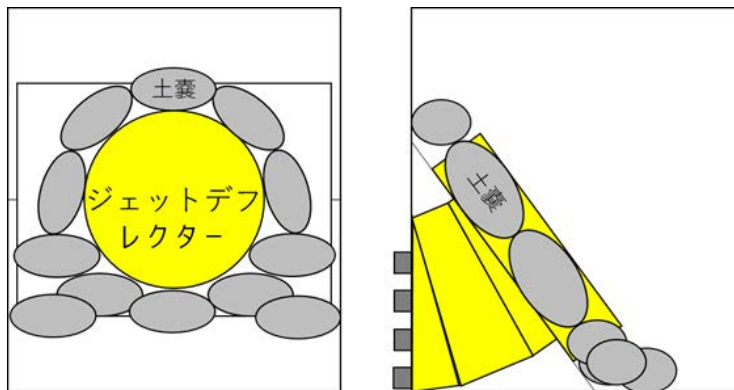


図 3.2.1-24 土嚢設置イメージ図

(左：ジェットデフレクター正面図、右：ジェットデフレクター横図)

④ 試験手順

- ジオポリマーペーストの作製と熟成：ジオポリマーペーストの混練は 10 分割して実施した。SIAL® A (アルカリ刺激剤) と SIAL® B (メタカオリン) をペール缶に秤量し、ハンドミキサーで混練を行った。その後ペール缶を 15 ℃の冷却用水槽に入れ、所定粘度になるまで熟成させた。
- ジオポリマーモルタルの作製：ジオポリマーモルタルはペール缶 1 個のジオポリマーペースト (約 36 kg) 毎に珪砂 4 号と珪砂 8 号を 4：1 の割合で充填量 50 wt%、砂利を充填量 10 wt% 加えて混練し、ホッパーに投入した。この操作を連続的に実施した。
- 止水試験：はじめに、ジオポリマーモルタルを充填した土嚢袋を複数個作製した。所定の流量で水を循環させた試験水槽に、ジオポリマーモルタルを充填した土嚢をジェットデフレクター模擬部の開口部を覆うように積み上げ後、ジオポリマーモルタルを

試験水槽へ注入した。注入中、混練したジオポリマーモルタルの流動性をテーブルフロー試験で評価した。試験中盤でジオポリマーモルタルの粘度が高くなり、モルタルポンプでの注入が困難になった。このため、ジオポリマーモルタルに水を加えて粘度を下げるとともに、手作業でジオポリマーモルタルを試験水槽に注入した。

- d. 閉止・試験終了：ジオポリマーモルタルの注入に伴い、ジェットデフレクター模擬部から排出される水量が徐々に減少し、その後水の排出が消失した。ジェットデフレクター模擬部が完全に閉塞したのを確認後、ジオポリマーモルタルの注入を停止し、試験を終了した。試験終了後、水中ポンプを停止させ、試験水槽のバルブを閉止し、配管を外し保管した。試験の様子を図 3. 2. 1-25、試験終了後の試験水槽の外観を図 3. 2. 1-26 に示す。



図 3. 2. 1-25 止水試験の様子



図 3. 2. 1-26 止水試験終了後の試験水槽（左：側面、右：ジェットデフレクター模擬部側）

⑤ 試験結果

ジオポリマーペーストの温度変化を図 3. 2. 1-27 に示す。ジオポリマー熟成温度は 15 °C に設定したが、注入開始時にはジオポリマーペースト及び冷却用水槽温度が 18 °C 以上に達した。これは冷却用水槽による冷却が不十分であったため、ジオポリマーの重合反応による発熱を抑制できなかったためである。このため、温度上昇によってジオポリマーペーストの粘度が高くなり、モルタルポンプが詰まる原因となった。この問題は、ジオポリマーペーストの熟成方法、装置の改善により対策可能と考える。

ジオポリマー注入を開始すると、模擬ジェットデフレクター周囲の土嚢の隙間から流水とともにベント管方向へ流出した。ジオポリマーの注入量が増加し、積み上がりが高くなるにつれ流出の勢いが弱まり、ジオポリマーが模擬開口の高さに近付いた段階で水・ジオポリマー流出が完全に停止し、止水状態が確認された。

止水試験後から試験水槽切断までのスケジュールを表 3.2.1-9 に示す。試験水槽は養生 28 日後にジオポリマー乾燥によるクラック有無の確認を行った。はじめに、固化体上部に貯まった水抜きを実施し、6 日間乾燥させた。クラックを介した水漏れ有無を確認するため、再度水を入れて 1 時間程水位の変化を確認したところ、水位が約 2 mm 下がったが、ジェットデフレクター模擬部から排水は確認されなかった。翌日、水位を再度確認したところ、水位が合計で約 6 mm 下がっていたが、ジェットデフレクター模擬部からの排水は確認されなかった。この水位の変化はジオポリマーへの吸水と蒸発と考えられ、ジオポリマー乾燥によるクラックはないと判断した。クラック評価後、試験水槽の切断に向けて再度水抜きを実施した。水抜き後 2 日後に切断を実施する第一カッター興業へ試験水槽を引き渡した。試験水槽 28 日後の外観を図 3.2.1-28、水抜き後を図 3.2.1-29、クラックの確認（水位の確認）を図 3.2.1-30、引き渡し前の試験水槽を図 3.2.1-31 に示す。コアボーリング体・試験水槽切断後のジェットデフレクター模擬部を図 3.2.1-32、図 3.2.1-33 に示す。コア抜きや切断の結果、水道や漏れにつながるような割れや強度低下は発生せず、閉塞状態への影響がないことが明らかになった。また、ジオポリマー固化体は土嚢袋の境界を含めて接着固化していることが確認された。ジェットデフレクター模擬部上部は 1 つ 1 つの開口部を土嚢が覆っていたが、ジェットデフレクター模擬部出口側の底部には流出したジオポリマーが確認された。ジオポリマー注入初期段階では一部のジオポリマーが土嚢を通過していたが、ジオポリマー注入に従い徐々に閉鎖したことがわかった。この結果より、土嚢を使用したジオポリマー注入による止水技術は、実機環境を想定した施工において止水効果があることを確認した。

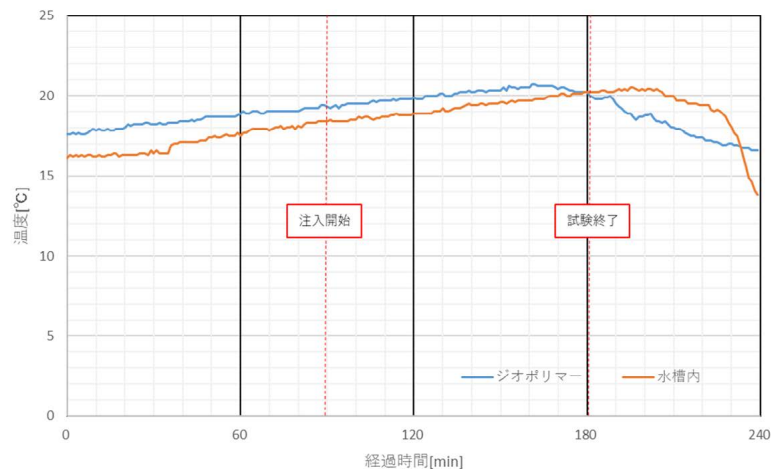


図 3.2.1-27 ジオポリマーペーストの温度変化

表 3.2.1-9 止水試験後のスケジュール

実施日	経過日数	作業内容
12 月 12 日	0 日	止水試験
1 月 9 日	28 日	試験水槽水抜き、乾燥
1 月 15 日	34 日	試験水槽水入れ
1 月 16 日	35 日	試験水槽水抜き、乾燥
1 月 18 日	37 日	試験水槽を第一カッター興行へ引き渡し
1 月 22 日	41 日	試験水槽切断



図 3. 2. 1-28 試験水槽 28 日後（左：試験水槽側面、右：試験水槽上部拡大）



図 3. 2. 1-29 試験水槽水抜き後

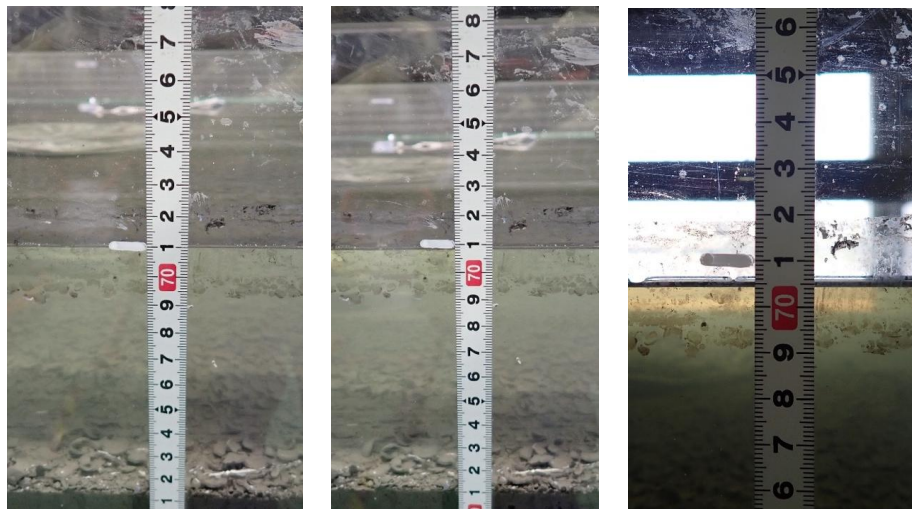


図 3. 2. 1-30 水位の確認（左：水入れ直後、中央：水入れ 1 時間後、右：水入れ 1 日後）

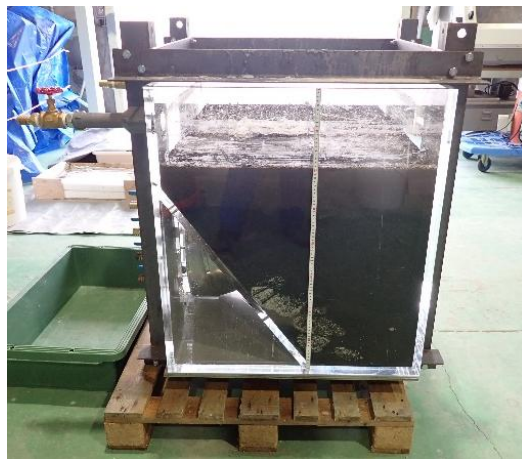


図 3.2.1-31 引き渡し前の試験水槽



図 3.2.1-32 コアボーリング体



図 3.2.1-33 試験水槽切断面

(左：ジェットデフレクター模擬部底部、右：ジェットデフレクター模擬部上部)

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5年度】

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

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 Pd 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、Pd に代わる水素低減機能材料の開発、もしくは触媒の安価な適用方法の検討が必要である。

令和3年度には、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照射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した。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通しを得た。

令和4年度には、模擬白金族合金を微粒子状に加工し、ジオポリマーへ添加し、 γ 線照射試験等を行った。その結果、水素再結合性能が確認され、それは合金に含有する Mo 濃度と関係していることを明らかにした。そのため、Mo を合金から除去することで触媒としての機能向上が見込まれる。Mo の除去方法の1つに選択的な酸化・蒸発がある。これは、加熱炉内の酸素分圧をコントロールすることで MoO_3 （融点 795 °C）を溶融・蒸発させることを検討しており、酸化加熱処理装置を構築した。加えて、Pd 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ったが、分散状況を確認したところ、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。

【令和5年度の実施内容及び成果】

(1) 模擬白金族合金試料の酸化加熱処理

令和4年度に構築した酸化加熱処理装置では、ロータリーポンプを用いて炉内を減圧（炉内圧力約 1.3 kPa）することで酸素量を低減する機構としている。炉内酸素分圧は、 2.76×10^{-3} atm であり、1000 °Cでの加熱において炉内の酸素ポテンシャル及び模擬白金族合金の各元素における酸素ポテンシャルは表 3.2.2-1 に示す通りとなる。ここで、各元素における酸素ポテンシャルは、FactSage（データベースは SGnob1 及び FactPS を使用）にて算出した^[14]。模擬白金族合金では、Mo 及び Ru は酸化物を形成し、Rh 及び Pd は金属の形状を取る。融点はそれぞれ、 MoO_3 : 795 °C、 RuO_2 : 1200 °C、Rh : 1963 °C、Pd : 1555 °C であるため、 MoO_3 を選択的に溶融・蒸発させることができると考えられる。

令和3年度と同様、アーク溶解装置を用いて模擬白金族合金試料を作製し、実験に用いた。本試験では、模擬白金族合金試料を板状に加工し、減圧下での1時間の加熱処理による各元素の詳細な挙動を冶金学的に観察した。加えて、模擬白金族合金試料の粉末特性を考慮するために、ダンシングミル（株式会社伊藤製作所製、型番：ADA-48）及び遊星ボールミル（FRITSCH 製、型番：Classic line P-6）を用いて微粒子状に加工した模擬白金族合金試料に対しても、減圧下での1時間の加熱処理を実施し、冶金学的観察を行った。

Mo の挙動を観察するために、Mo 含有量の多い模擬白金族合金（ $\text{Mo}_{40}\text{Ru}_{45}\text{Rh}_{7.5}\text{Pd}_{7.5}$ 試料）を低速カッター（Refine Tec, RCA-005, REFINE SAW Lo, Blade thickness : 0.3 mm）を用いて試料を厚さ 1.0 mm $\pm$ 0.2 mm に加工し、板状試料を得た。当該試料に対し、加熱処理を実施した。SEM-EDS（Scanning Electrode Microscope－Energy Dispersive Spectrometry：走査型電子顕微鏡－エネルギー分散型 X 線分光法）により試料表面及び試料断面を分析し、表層を研磨しつつ XRD（X-Ray Diffraction：X 線回折）により深さ位置における結晶構造変化を得た。図 3.2.2-1 に試料表面の SEM-EDS マッピングを、図 3.2.2-2

に試料断面の SEM-EDS マッピングを示す。また、表面研磨と XRD 分析を交互に行い、それぞれの深さ位置における XRD ピークパターンを得た (図 3.2.2-3)。SEM 像より加熱によって表面が多孔質に変化していることが確認された。また、EDS マッピングにより表層の Mo 濃度が減少して、Pd rich な相が析出していることが確認された。したがって、表面付近での Mo の蒸発が推察される。一方で、XRD により、ある一定の深度においては Mo がほとんど移行していないことが観察された。4 元系合金において、Mo 濃度と HCP (Hexagonal Close-Packed : 六方最密格子) 相のピーク位置は関係があり、Mo 濃度が高いほどピーク位置が低角へシフトする。これは、格子間隔とピーク位置の間にブラッグの法則が成り立つためであり、Mo は HCP 構造中に固溶し、Mo 濃度が高いほど格子間隔は広くなることを示していると考えられる。加熱前と比較して HCP 相のピークが高角にずれることから、固溶していた Mo が HCP 構造から抜けていると考えられ、加熱することにより、表面付近の Mo が酸化・蒸発していることがわかる。また、加熱後、200 μm まで HCP 相を示すピークが低角にずれており、Mo のオリジナルの HCP から、移行は多孔質を形成している相で起きていることが示される。一方、200 μm 以深は Mo の移行が生じておらず、その深さの前後では Mo 濃度の高い HCP 相と Mo 濃度の低い HCP 相が共存している。Mo の酸化・蒸発が著しい表面と 2 種の HCP 相が共存している界面付近において、Mo 濃度の減少により新たに Rh と Pd をホストとする FCC (Face-Centered Cubic : 面心立方格子) 相の出現が観測された。加えて、試料表面付近では RuO_2 を示すピークパターンが観測され、表層付近では Mo だけでなく、Ru の酸化が生じている。

段階的に整理すると、HCP 構造中に溶解した Mo は、結晶粒内を微視的に移動する。表面に到達した Mo は酸化され、結晶構造中から気相へ直接急速に蒸発する。Mo が失われることにより、表面の元の結晶 (HCP) が痩せていき、多孔質構造が形成される。しかしながら、試料表面へ到達する Mo は相対的に減っていき、多孔質の形成が一定深度に到達したら競合している Ru の酸化が始まる。一方で、HCP 相では Mo の減少により FCC 相が表面付近に析出するものと考えられる。

粉末試料において、実燃料に近い組成の模擬白金族合金 ($\text{Mo}_{15}\text{Ru}_{55}\text{Rh}_{15}\text{Pd}_{15}$ 試料) を用いて同様の加熱処理を実施し、SEM-EDS (図 3.2.2-4) 及び XRD (図 3.2.2-5) により冶金学的観察を行った。XRD の結果から、加熱後は RuO_2 を示すピーク及び FCC を示すピークが観察された。また、強度は低い HCP を示すピークも観測された。これらのピークは板状試料表面で得られたものと同様であり、Mo の除去が達成できていると考えられる。加えて、SEM 像より表面で多孔質を形成していることが観察される。したがって、当該組成の粉末試料においても Mo が酸化・蒸発により除去されていることが確認できた。

(2) 水素発生量評価

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 60 g に対し、減圧下での加熱処理を実施した模擬白金族合金 (粉末) を 0.5 wt% 添加した。表 3.2.2-2 に添加剤の詳細を示す。他の研究者の報告では、 γ 線照射中に発生した水素の一部が試料表面へ拡散する経路で再結合により消費されるとある^[15]。したがって、表面付近にのみ触媒を添加することで触媒使用量を低減させつつ、ジオポリマー外部への水素の放出が抑制できる可能性がある。本試験では、ジオポリマーペーストを段階的に注入し、分散状態を制御した。添加剤を含まないブランクジオポリマー及び Al_2O_3 -Pd 触媒を 0.5 wt% 添加したジオポリマーの 2 種を用意し、ガラスアンブル (直径 60 mm、高さ 130 mm) 内で階層構造 (例えば、上層 : 添加剤含有ジオ

ポリマー、下層：ブランクジオポリマー）として養生した。表 3.2.2-3 にジオポリマーの重量比を示す。添加剤を加えていないブランクジオポリマーペーストを樹脂製のガラスアンプルの下層に流し込み、気中で養生させた。4 時間後、上層に Al_2O_3 -Pd 触媒を添加したジオポリマーを流し込み、湿度が保たれた状態で養生した。ガラスアンプルは主管、枝管で構成されており、主管を溶接により密封し、ガラスアンプルが冷却後、枝管を閉じた。

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）を用いて水素ガス発生特性を評価した。図 3.2.2-6 にガス分析の結果を示す。模擬白金族合金試料の触媒の性能については、Mo 15 wt% の試料を比較すると、Mo を除去することで触媒機能の向上していることが示唆された。加熱した際に Mo が蒸発することで、試料表面の Mo 濃度が減少し、機能が向上したと考えられる。加えて、試料表面が多孔質に変化したことで表面積が増大し、触媒として表面積が増えたことにより水素と酸素の反応頻度が増えたものと考えられる。ここで、Mo 40 wt% の試料において加熱前では Mo の含有量が多いため加熱によってより深い部分まで多孔質の形状が広がった。そのため、結果的に水素の低減性能が良くなっていると推測される。反応自体は試料表面で起こることから、内部に Mo が残っていたとしても反応が促進されたと考えられる。また、Mo を含まない試料においても水素の低減性能は良い。この理由として、Ru が表面で蒸発したことによる（Mo が不在の場合、次に蒸発しやすい Ru の蒸発が生じると考えている。）ジオメトリの変化が性能向上に効いている可能性がある。また、相分離したことで Pd が表面に集積され、反応が起きていることも要因として考えられる。

このように、酸化加熱処理により、Mo の除去に加えて、試料表面の多孔質化や Pd の相形成によって触媒機能が向上したと考えられる。したがって、白金族合金を触媒として使用する際は、加熱による Mo の除去が有効であると確認された。

一方で、分散状態の制御においては、ブランクと比較して添加剤を封入することで、水素が低減されていることがわかる。有：無＝5：55 であっても G 値がブランク試料の半分程度にとどまり、上面全体を覆えていない場合においても水素を低減できていることが確認された。また、有：無＝20：40 では G 値がブランク試料の 36% 程度に抑制された。しかしながら、すべての添加剤含有ジオポリマーは G 値がブランク試料の 3% 程度に抑えられているため、上部添加の有用性が得られているとは言い難い。この理由としては、試料が小さいため試料表面へ移行する経路で、添加剤による再結合の影響が少なかったためと考えられる。つまり、内部から供給される H_2 が多くなり、触媒の許容量を超えてしまったことが考えられる。また、再結合後の水の流路についても考える必要があり、例えば、再結合した後の水がジオポリマー下部に移行することを考慮すると、再度放射線分解された時に下部の添加が有用ということになる。このように、ジオポリマー内部における水素の移行経路だけでなく、水の移行（または浸透）経路の把握が必要となる。なお、有：無＝30：30（下層：上層）では、G 値がブランク試料の 0.7% 程度に抑制されており、これはすべて添加剤のジオポリマーよりも一桁低い値となった。この結果に関しては、妥当性について検討する必要がある。

(3) 添加剤の適用性の評価

模擬白金族合金試料を用いた評価により、照射済燃料から回収される白金族合金を加熱することで Mo を除去し、多孔質にすることは可能であると予測でき、一定の触媒機能の向上が期待できる。また、開発に必要な要素として、加工性のさらなるメカニズムの把握がある。例として、BET 比表面積分析により多孔質形成の比表面積変化の定量化や、マイ

クロスコピックな観点から、加工による Pd の固溶状態や相形成の変化を TEM 観察により評価すること、放射線の影響により発生する欠陥状態の評価が挙げられる。放射線影響においては、Fe-Al 合金に対する電子線照射^[16]や Pd に対するイオン照射^[17]により水素吸蔵量が増加するという報告もあり、さらなる性能向上とそれに伴う経済性が見込まれる。また、網羅性の観点から材料の計算科学的を取り入れることが考えられ、密度汎関数法による第一原理計算等を用いた触媒材料の開発の報告^[18]もあることから、非実験的な観点も含めたメカニズムの評価が期待できる。

Al₂O₃-Pd 等の既存材料を使用する場合においても、触媒等の設置場所の工夫を検討し、水素酸素再結合メカニズムを十分考察した上で、設置方法を決定する必要があるとの結論に至った。

表 3.2.2-1 1000 °Cにおける炉内及び模擬白金族合金の各元素における酸素ポテンシャル

酸化反応式	炉内	Mo/MoO ₃	Ru/RuO ₂	Rh/Rh ₂ O ₃	Pd/PdO
G_{O_2} (J /mol of O ₂)	-62334.8	-286703	-97386.6	-22101.3	32976.7

表 3.2.2-2 ジオポリマーへ添加した模擬白金族合金

加工状況	Mo[wt%]	Ru[wt%]	Rh[wt%]	Pd[wt%]
加熱処理	40	40	10	10
未加熱	15	55	15	15
加熱処理	15	55	15	15
加熱処理	0	70	20	10

表 3.2.2-3 段階注入によるジオポリマーの重量比

	添加材有 [0.5 wt%] g	無添加 g
ブランク (添加剤無)	0	60
有：無=5：55 (上層：下層)	5	55
有：無=20：40 (上層：下層)	20	40
有：無=30：30 (上層：下層)	30	30
有：無=60：0 (上層：下層)	60	0
有：無=30：30 (下層：上層)	30	30

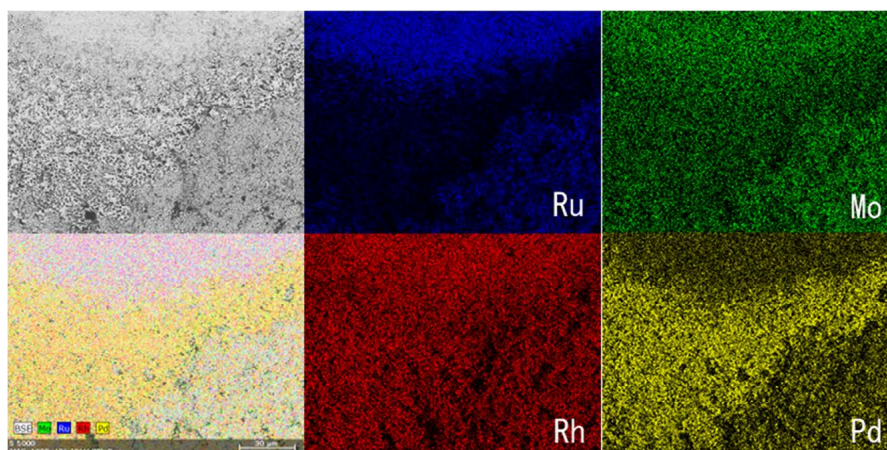


図 3.2.2-1 酸化加熱処理後における板状試料表面の SEM-EDS 像 ($\text{Mo}_{40}\text{Ru}_{45}\text{Rh}_{7.5}\text{Pd}_{7.5}$ 試料)

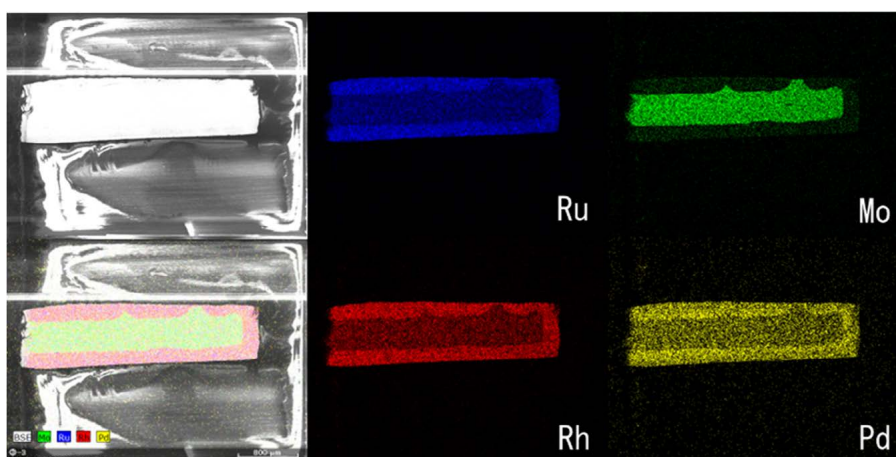


図 3.2.2-2 酸化加熱処理後における板状試料断面の SEM-EDS 像

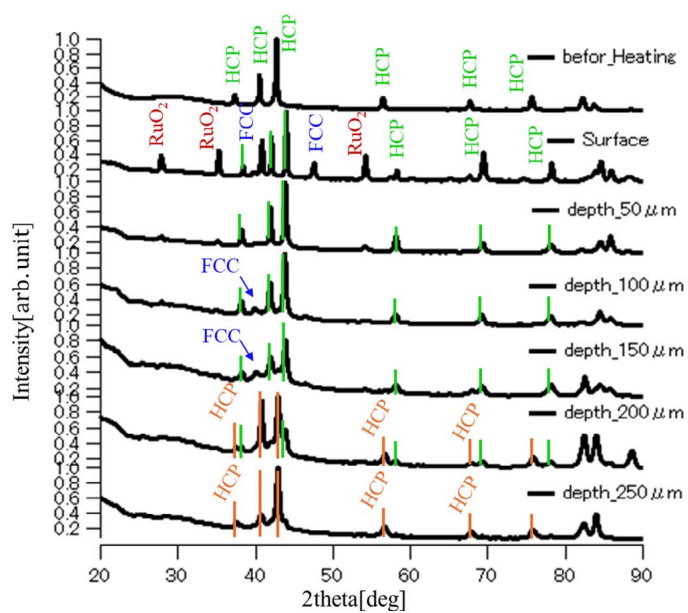


図 3.2.2-3 酸化加熱処理後における板状試料深さ位置における XRD ピーク

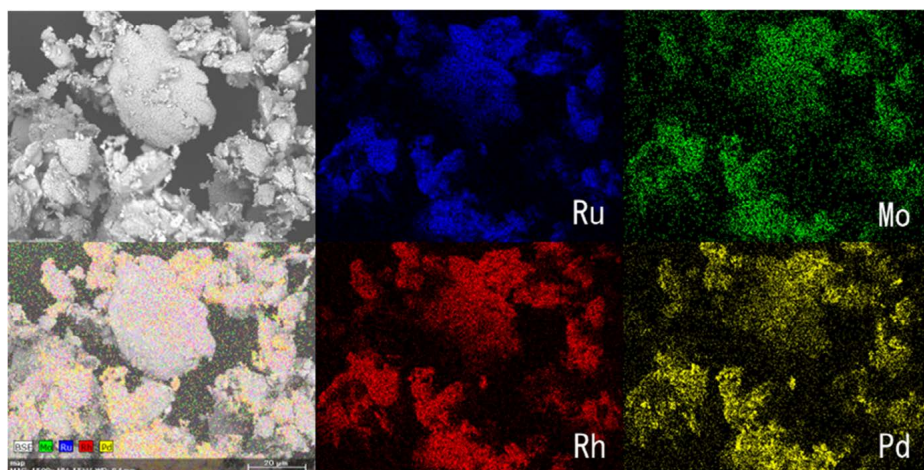


図 3. 2. 2-4 酸化加熱処理後における板状試料表面の SEM-EDS 像 ($\text{Mo}_{15}\text{Ru}_{55}\text{Rh}_{15}\text{Pd}_{15}$ 試料)

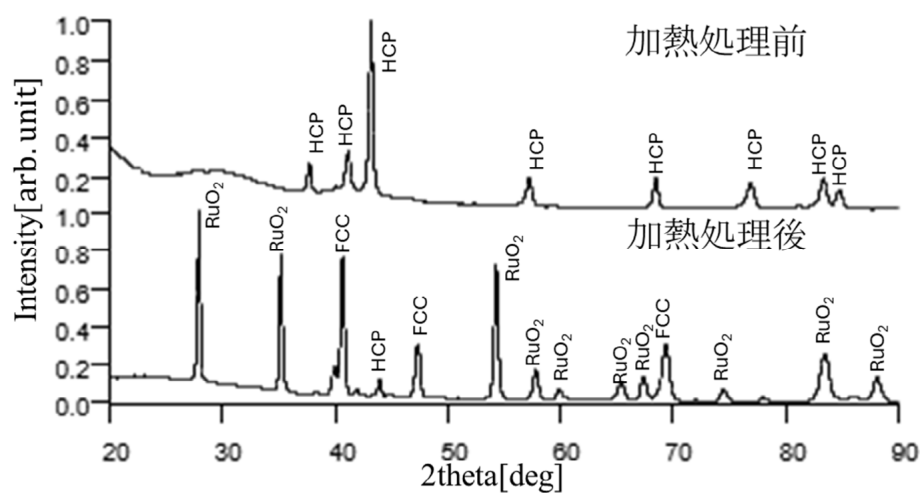


図 3. 2. 2-5 酸化加熱処理前後における粉末試料 XRD ピーク

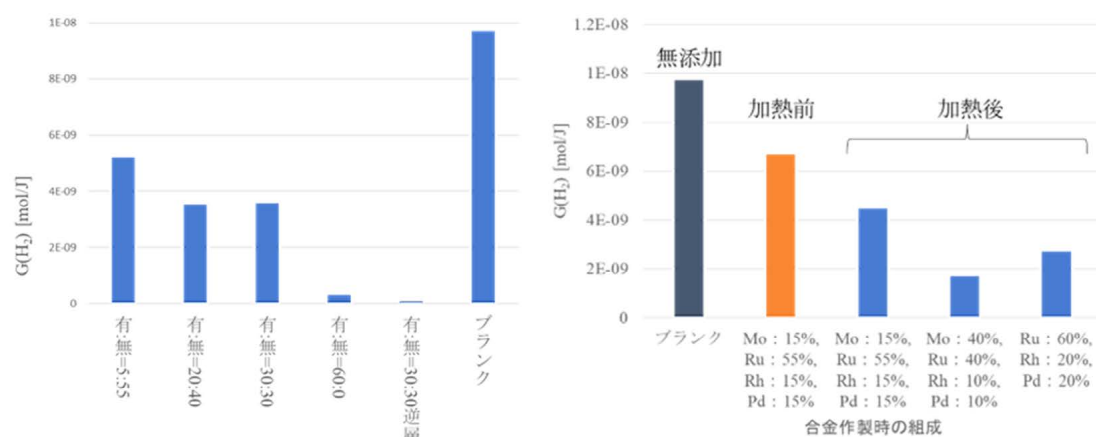


図 3. 2. 2-6 照射試験後のバイアル内ガスの分析結果

3.2.3 照射試験（再委託先：アトックス）【令和３年度～令和５年度】

【令和３年度の実施内容及び成果の概要】

(1) 実施内容

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 ^{60}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 γ 線照射試験を室温で実施した（表 3.2.3-1）。

表 3.2.3-1 γ 線照射を実施した試料条件一覧

試料 No.	評価目的	試料種類	照射開始時の材齢[日]	積算線量 [MGy]	照射時期
C-2	圧縮強度 評価	室温、ブランク	42	0.58	令和３年 10 月
C-4		室温、珪砂 9 号：30 wt%添加	42	0.69	令和３年 10 月
C-6		室温、 Gd_2O_3 ：2 wt%添加	40	0.64	令和３年 10 月
C-8		室温、Ti 粉末：10 wt%添加	42	0.66	令和３年 10 月
C-10		室温、Mg 粉末：10 wt%添加	42	0.56	令和３年 10 月
T-2	引張強度 評価	室温、ブランク	40	1.54	令和３年 10 月
T-4		室温、珪砂 9 号：10 wt%添加	40	1.68	令和３年 10 月
T-6		室温、珪砂 9 号：20 wt%添加	40	1.59	令和３年 10 月
T-8		室温、珪砂 9 号：30 wt%添加	42	1.61	令和３年 10 月
T-10		室温、 Gd_2O_3 ：2 wt%添加	42	1.80	令和３年 10 月
T-12		室温、Ti 粉末：10 wt%添加	42	1.65	令和３年 10 月
T-14		室温、Mg 粉末：10 wt%添加	42	1.22	令和３年 10 月
H-1	水素ガス 発生量 評価	室温、ブランク A	48	1.17	令和２年 10 月
H-2		室温、 Gd_2O_3 ：2 wt%添加	41	0.86	令和２年 10 月
H-3		室温、ブランク B	25	1.72	令和３年 10 月
H-4		80℃（1 週間）、ブランク B	25	1.52	令和３年 10 月
H-5		室温、珪砂 9 号：30 wt%添加	25	1.48	令和３年 10 月
H-6		室温、Pd 粉末：0.1 wt%添加	25	1.57	令和３年 10 月
H-1		室温、Pd 粉末：0.5 wt%添加	25	1.77	令和３年 10 月
H-2		室温、Pd 粉末：1.0 wt%添加	25	1.58	令和３年 10 月
H-3		室温、アドバンエンジサンプル A	38	1.88	令和３年 10 月
H-4		室温、アドバンエンジサンプル B	38	1.13	令和３年 10 月
H-5		室温、富士電機サンプル A	28	1.58	令和３年 10 月
H-6		室温、富士電機サンプル B	28	1.55	令和３年 10 月
TC-2	熱伝導率 評価	室温、ブランク A	48	1.05	令和２年 10 月
TC-3		室温、ブランク B	42	0.81	令和３年 10 月
TC-5		室温、 Gd_2O_3 ：2 wt%添加	41	0.93	令和２年 10 月
TC-6		室温、珪砂 9 号：10 wt%添加	42	0.82	令和３年 10 月
TC-7		室温、珪砂 9 号：30 wt%添加	40	0.84	令和３年 10 月

また、令和 4 年度及び令和 5 年度の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

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。さらに、転倒防止のために各種対策を講じている。また、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° ずつ試料を回転させた。

【令和 4 年度の実施内容及び成果の概要】

(1) 実施内容

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 ^{60}Co γ 線照射試験を、恒温下（80 °C 前後）及び室温下で実施した。表 3.2.3-2 に、 γ 線照射を実施した試料条件一覧を示す。

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 ^{60}Co γ 線照射試験を室温下で実施した。表 3.2.3-3 に、 γ 線照射を実施した試料条件一覧を示す。

表 3.2.3-2 恒温照射試験を実施した試料条件一覧（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 [kGy]
1025-7-2	引張強度 評価	恒温 (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
1025-8-2			水中養生、打継間隔：1 h 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	30	
1025-9-2			水中養生、打継間隔：2 h 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	30	
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
1025-5-2			気中養生、打継間隔：1 h 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	30	
1025-6-2			気中養生、打継間隔：2 h 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%	30	
超重 泥水-1	—	室温 (9.4～ 20.7 ℃)	ブランク	3	63.0
超重 泥水-2			炭化タングステン (WC) 添加：10 wt%	3	
1025-9-1	水中養生、打継間隔：2 h 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%		30		
1025-8-1	水中養生、打継間隔：1 h 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%		30		
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		
1025-6-1	気中養生、打継間隔：2 h、 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%		30		
1025-5-1	気中養生、打継間隔：1 h 通常容器、珪砂 9 号：30 wt%		30		
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. 3-3 室温照射試験を実施した試料条件一覧（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℃)	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：0.5 h 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	2.36
1013-14			水中養生、打継間隔：1 h 穴有り容器、珪砂 9 号：30 wt%	28	
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℃)	ブランク	49	2.23
②			Mo：15 wt%、Ru：65 wt% Rh：10 wt%、Pd：10 wt%	49	
③			Mo：20 wt%、Ru：60 wt% Rh：10 wt%、Pd：10 wt%	49	
④			Mo：25 wt%、Ru：55 wt% Rh：10 wt%、Pd：10 wt%	49	2.38
⑤			Mo：30 wt%、Ru：50 wt% Rh：10 wt%、Pd：10 wt%	49	
⑥			Mo：0 wt%、Ru：70 wt% Rh：20 wt%、Pd：10 wt%	49	

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

(1) 実施内容

① 恒温照射試験

令和 4 年度に引き続き、引張強度評価に供するジオポリマーに対して、積算線量 0.080 ～0.084 MGy の範囲となる ^{60}Co γ 線照射試験を恒温下 (80℃前後) 及び室温下で実施した。

② 室温照射試験

線量について高線量 (2.90 MGy 以上)、中線量 (2.0 MGy 程度)、低線量 (0.080 MGy 程度) の 3 領域で照射場を作製し、引張強度評価及び温度評価に供するジオポリマーに対して積算線量 0.077～8.81 MGy の範囲となる ^{60}Co γ 線照射試験を室温下で実施した。

令和 4 年度に引き続き、水素ガス発生量評価に供するジオポリマーに加え、触媒関連試料に対して、積算線量 3.06～3.71 MGy の範囲となる ^{60}Co γ 線照射試験を室温下で実施した。表 3.2.3-4～表 3.2.3-6 に、 γ 線照射を実施した試料条件一覧を示す。

表 3.2.3-4 照射試験を実施した試料条件一覧 I (照射時期：令和 5 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]
1	引張強度 評価	室温 (7.3～ 21 ℃)	気中養生、打継間隔：0.5 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	7.96
2			気中養生、打継間隔：1 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	8.32
3			気中養生、打継間隔：2 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	7.76
4			気中養生、打継間隔：0.5 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	2.12
5			気中養生、打継間隔：1 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	2.22
6			気中養生、打継間隔：2 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	2.17
7			気中養生、打継間隔：0.5 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.080
8			気中養生、打継間隔：1 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.082
9			気中養生、打継間隔：2 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.083

表 3.2.3-5 照射試験を実施した試料条件一覧Ⅱ（照射時期：令和 5 年 11 月）

試料 No. 等	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]
10	引張強度 評価	室温 (7.3～ 21 °C)	水中養生、打継間隔：0.5 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	8.81
11			水中養生、打継間隔：1 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	8.55
12			水中養生、打継間隔：2 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	7.60
13			水中養生、打継間隔：0.5 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	2.20
14			水中養生、打継間隔：1 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	2.11
15			水中養生、打継間隔：2 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	2.11
16			水中養生、打継間隔：0.5 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.084
17			水中養生、打継間隔：1 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.083
18			水中養生、打継間隔：2 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.080
19		恒温 (79.8～ 84.1 °C)	水中養生、打継間隔：0.5 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.080
20			水中養生、打継間隔：1 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.082
21			水中養生、打継間隔：2 h 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.080
22	温度評価	室温 (7.3～ 21 °C)	水中養生、打継間隔：なし 珪砂 9 号：30 wt%	25	6.39
23			水中養生、打継間隔：なし 珪砂 9 号：30 wt%	25	2.12
24			水中養生、打継間隔：なし 珪砂 9 号：30 wt%	25	0.077

表 3.2.3-6 照射試験を実施した試料条件一覧Ⅲ（照射時期：令和 5 年 11 月）

試料 No. 等	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]
①	水素ガス 発生量 評価	室温 (7.3 ～ 21 °C)	ブランク	17	3.21
②			層状添加 (Al ₂ O ₃ -Pd 触媒) 混合 (5 : 55)	17	3.29
③			層状添加 (Al ₂ O ₃ -Pd 触媒) 混合 (20 : 40)	17	3.22
④			層状添加 (Al ₂ O ₃ -Pd 触媒) 混合 (30 : 30)	17	3.23
⑤			層状添加 (Al ₂ O ₃ -Pd 触媒) 混合 (60 : 0)	17	3.07
⑥			層状添加 (Al ₂ O ₃ -Pd 触媒) 混合 (30:30) 逆層	17	3.53
⑦			加熱後白金族合金 (Mo : 40%、Ru : 40%、Rh : 10%、Pd : 10%)	17	3.33
⑧			加熱後白金族合金 (Mo : 15%、Ru : 55%、Rh : 15%、Pd : 5%)	17	3.71
⑨			加熱前白金族合金 (Mo : 15%、Ru : 55%、Rh : 15%、Pd : 5%)	17	3.69
⑩			加熱後白金族合金 (Ru : 60%、Rh : 20%、Pd : 20%)	17	3.3317
⑪			ブランク	17	3.35
Pd	格子評価		Pd 粉末	－	3.37
Ru			Ru 粉末	－	3.20
Mo 板			Mo 板	－	3.43
ハ			発泡スチロール	－	3.06
プラ			プラスチック片	－	3.40
Mo 粉			Mo 粉末	－	3.24

(2) 実験方法・条件

恒温照射試験の試料 6 体のうち、引張強度評価に供するジオポリマー 3 体を恒温槽内に格納し、80 °C 前後の環境及び低線量の条件で照射を実施した。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 3 体を室温環境及び低線量の条件で照射を実施した。一方、線量による影響を評価するため、引張強度評価及び温度評価に供するジオポリマー 18 体を室温環境及び高線量、中線量または低線量、いずれかの条件で照射を実施した。水素ガス発生量評価に供するジオポリマー及び格子評価に供する触媒関連試料計 17 体について、室温環境及び高線量の条件で照射を実施した。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 41 箇所測定した。線量率測定状況を図 3.2.3-1 に、 γ 線照射試験状況を図 3.2.3-2～図 3.2.3-6 に示す。

試料に対して γ 線を極力均一に照射するために、総照射時間 1030 h の約 4 分の 1 が経過する毎に、水素ガス発生量評価に供するジオポリマーを 90° ずつ回転した。照射試験の実施時期とターム毎の照射時間について、表 3.2.3-7 に示す。



図 3.2.3-1 線量率測定状況（令和 5 年度）



図 3.2.3-2 恒温照射試験状況（恒温・低線量）



図 3.2.3-3 恒温照射試験状況（室温・低線量）



図 3.2.3-4 室温照射試験状況（高線量）



図 3.2.3-5 室温照射試験状況
(奥側から 1 列目と 2 列目に並んだ試料は高線量、
手前の列に並んだ試料は中線量で照射)

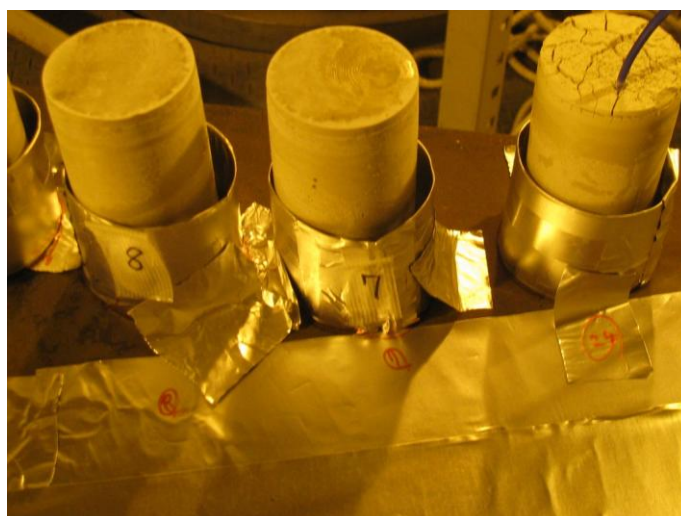


図 3.2.3-6 室温照射試験状況（室温・低線量）

表 3.2.3-7 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 2 年 10 月)	1	77
	2	88
	3	49
	4	48
	合計	262
2 回目の照射試験 (令和 3 年 10 月)	1	100
	2	137
	3	126
	4	137
	合計	500
3 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
3 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
4 回目の照射試験 (令和 5 年 11 月 : 恒温・室温照射試験)	1	266
	2	260
	3	242
	4	262
	合計	1030

3.2.4 ジオポリマーの最適化（連携先：原子力機構）【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

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。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モル配合比（ $1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-15\text{H}_2\text{O}$ ）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した。

令和4年度に、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、チューブポンプを用いて予備的な水中注入を試行した結果、砂を加えずに水分量を下げた配合比（ $1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-13\text{H}_2\text{O}$ ）が注入試験に適していることを確認した。ジェットデフレクター相当の高張力鋼（High tension steel、本項ではHTSとも称す。）で作製した容器（容量3.3 L）の底部に水を張って室温あるいは80℃に保ち、上述のジオポリマーを容器底部から層流で注入した。硬化した試料をウォータージェットで切断した際の断面写真を図3.2.4-1に示す。試料G-RTは、容器内に金属管等を設置してからジオポリマーを室温で注入・硬化したものであり、ジオポリマーとセメント片、銅管、ステンレス管の界面には隙間なくジオポリマーが充填された。ただし、アルミニウム管はアルカリ性のジオポリマーと反応して水素ガスを発生しており、施工対象の材料調査も重要であることを示している。試料G-HTは、金属管等を設置せずに80℃で注入・硬化したものであるが、熱水でジオポリマー表面が速やかに硬化するため、ジオポリマーに残存する空気が集まって表面付近に空洞を形成したと思われる。

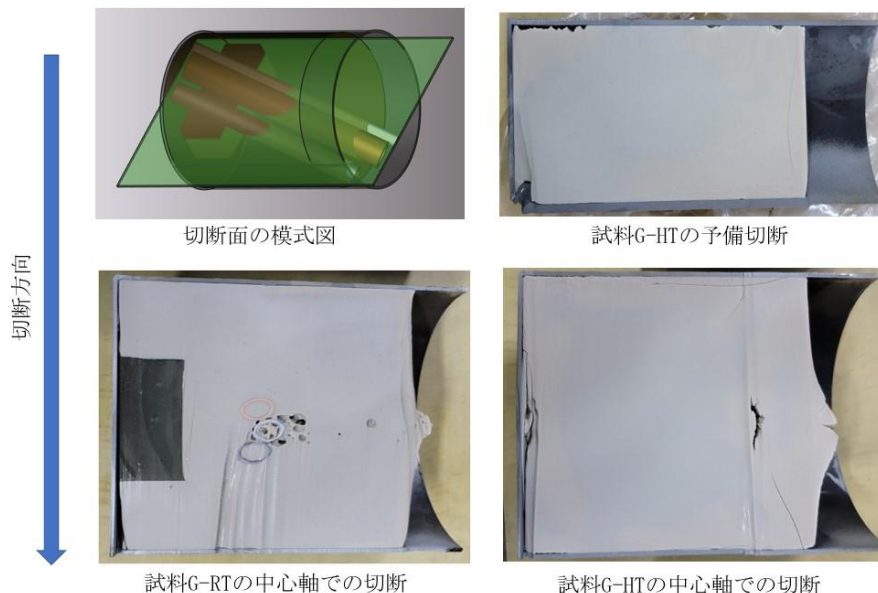


図 3.2.4-1 水中注入試験試料の切断面

硬い金属と軟らかいジオポリマーの切断時に水圧が変化するため、ジオポリマーの一部に損傷が見られたが、高張力鋼に対する接着、間隙への充填、硬化が良好であることを確認した。

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

(1) 試験方法

① 試験の概要

セメントペーストのクラックをジオポリマーで補修し、接着界面を目視やマイクロラマン分析等により観察した。ジオポリマーと金属の複合体を高温に保持し、金属からの剥離の有無を確認した。得られた結果からジオポリマーの補修性を評価した。図 3. 2. 4-2 に、主な試験の概要と目的を示す。補修対象の金属、セメントが事故時に熱損傷を受けた可能性も考慮し、試験片を 500 °C で加熱することによりこれを模擬した。

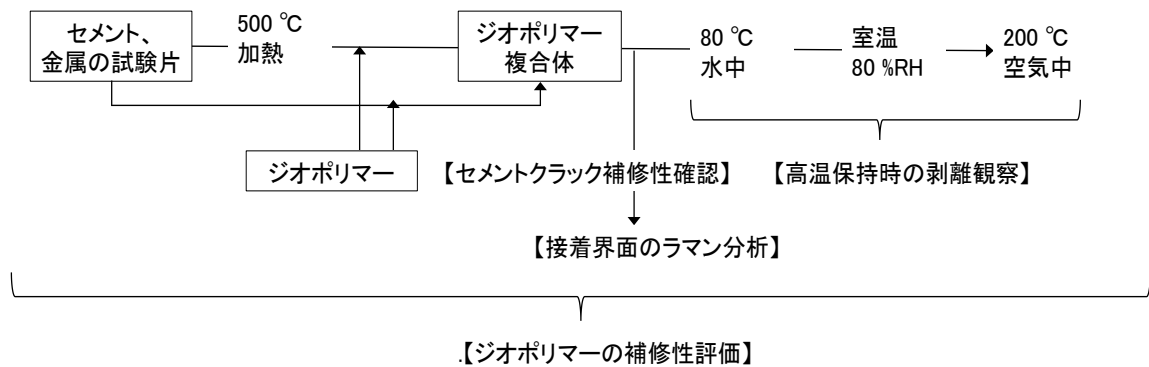


図 3. 2. 4-2 本項の試験概要と目的

② 試料の準備

ジオポリマーの合成には、2 種類のメタカオリン、NaOH（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、ケイ酸ナトリウム溶液（1 号））を精製せずに用いた。ジオポリマーの配合比は、令和 4 年度に実施した、3.3 L 規模の水中注入試験と同じモル配合比 ($1\text{Na}_2\text{O}-1\text{Al}_2\text{O}_3-3.8\text{SiO}_2-13\text{H}_2\text{O}$) とした。メタカオリンについては、令和 4 年度まで Imerys 製のメタカオリン M1000 を用いたが、メタカオリンに 1.88% 含まれる TiO_2 のラマン信号が強く、ジオポリマー自体の分析の障害となっていた。このため、令和 5 年度のラマン分析用ジオポリマー試料は、ソブエクレ株式会社から新たに提供を受けた TiO_2 含有率 0.07% のメタカオリンを用いることとし、Imerys 製 M1000 は高温保持試験用ジオポリマー合成に用いた。これらメタカオリンの組成を、蛍光 X 線分析装置（株式会社リガク製、ZSX Primus II）で分析した結果を表 3. 2. 4-1 に示す。

表 3. 2. 4-1 ジオポリマー合成に用いたメタカオリンの組成

	Imerys 製 M1000	ソブエクレ製
SiO_2	52.06%	53.82%
Al_2O_3	42.81%	42.95%
Fe_2O_3	1.61%	0.82%
TiO_2	1.88%	0.07%
その他	1.64%	2.35%

ジオポリマーに埋め込む試験片は以下の通り準備した。セメントは、セメント協会の研究用ポルトランドセメントを使用し、令和 3 年度に水とセメントの比を 0.4 で混練

し、樹脂製遠沈管に入れて硬化させた。遠沈管からセメントを取り出し、適切な大きさに破碎したものをセメント試験片とした。これを 500 °C で 2 時間加熱した後、水に 24 時間浸漬した。高張力鋼試験片（SPFC590、厚さ 2.3 mm）は、令和 4 年度の水中注入試験に用いた高張力鋼製容器から切り出したものを、セメントと同様に処理を施して整合性を取った。500 °C 加熱前後の試験片の写真を図 3.2.4-3 に示す。加熱によりセメントには微細なクラックが発生し、金属表面には酸化皮膜が形成された。

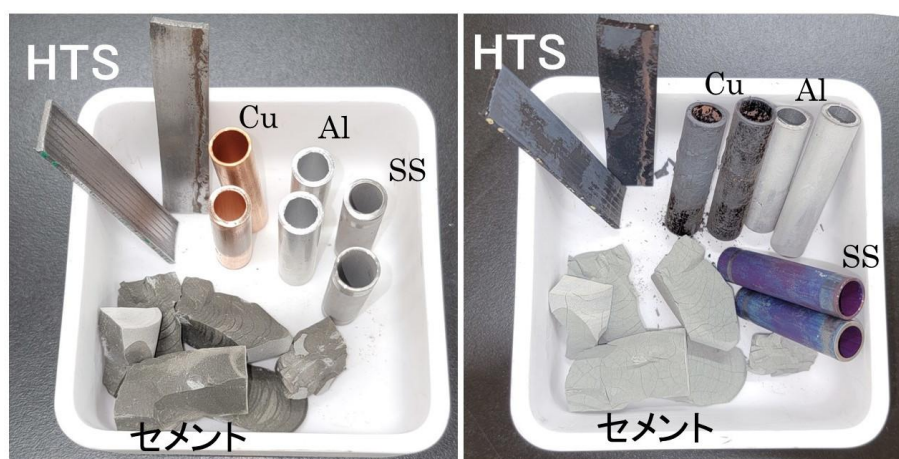


図 3.2.4-3 500 °C 加熱前後の各種試験片の外観
左：加熱前（非加熱試験片）、右：加熱後

試験片とジオポリマーとの複合体を作製した際の原料の組み合わせを表 3.2.4-2 に示す。非加熱のセメント、高張力鋼についても複合体を作製して比較検討した。水に浸漬した試験片の表面の水を拭き取り、50 mL の樹脂製遠沈管（円筒部の内径：26 mm）に設置し、ジオポリマーを注入、硬化させた。遠沈管から取り出したジオポリマー試料の外観について、一例を図 3.2.4-4 に示す。

表 3.2.4-2 複合体作製に用いたメタカオリンと試験片

複合体の用途（ジオポリマーに用いたメタカオリン）	試験片の材質、前処理、名称		
	高張力鋼	セメント	加熱の有無
ラマン分析用（ソブエクレレー製メタカオリン）	HTS-raw-R	CEM-raw-R	非加熱
	HTS-500-R	CEM-500-R	500 °C 加熱
高温保持試験用（Imerys 製 M1000）	HTS-raw-T	CEM-raw-T	非加熱
	HTS-500-T	CEM-500-T	500 °C 加熱

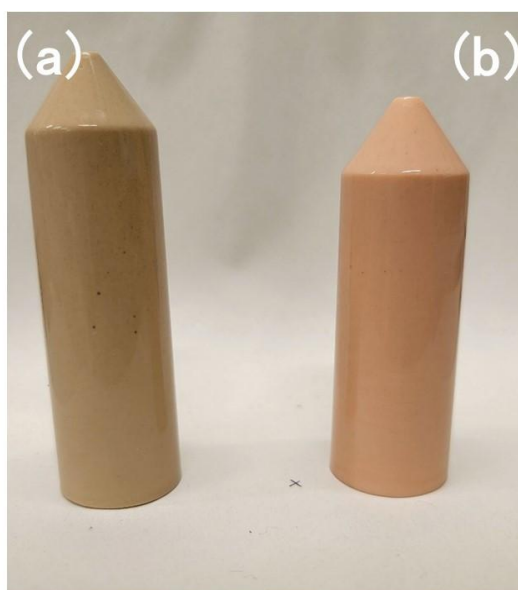


図 3.2.4-4 各メタカオリンで合成したジオポリマー試料の例
50 mL 遠沈管から型抜きした試料の外観
(a) Imerys 製 M1000 メタカオリンで合成
(b) ソブエクレレー製メタカオリンで合成

③ ラマン測定

円筒形の複合体を室温で 28 日以上硬化させた後、切断、研磨した。露出した試験片とジオポリマーとの界面をラマンイメージング顕微鏡 DXR2xi を用い、以下の条件でマッピング測定した。

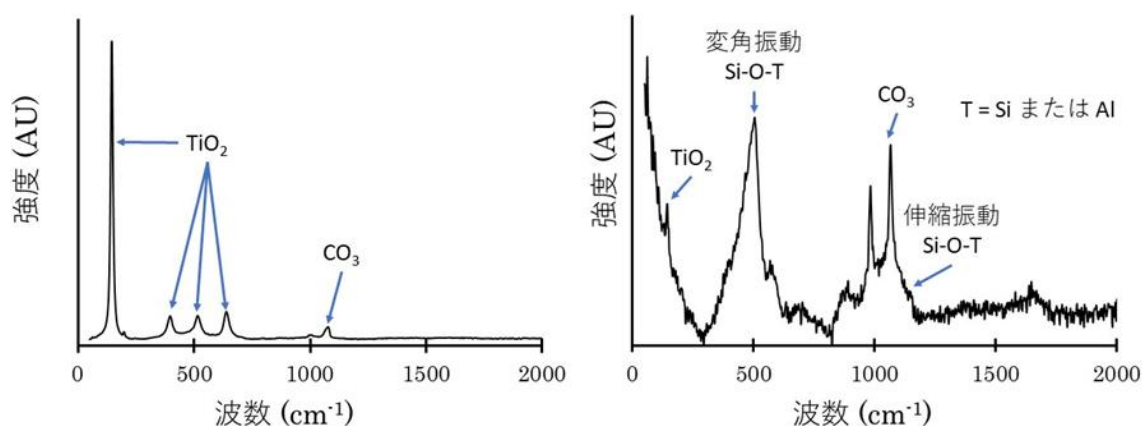
顕微鏡レンズ	: ×50
レーザー波長	: 532 nm
レーザー出力	: 5.0 Mw
露光時間	: 0.1 s
スキャン数	: 1000
ピクセルサイズ	: 10 μm

表 3.2.4-3 は、本試験に関係する化学物質を対象として、主要なラマンバンドと帰属例を調査した結果である。ジオポリマーのラマン信号では、Si-O-T (T=Si または Al) の 3 原子間に働く 2 つの結合の寄与が観察されると予想される。具体的には、400～720 cm^{-1} の間の変角振動、850～1100 cm^{-1} の間の伸縮振動である。図 3.2.4-5 に、Imerys 製 M1000 メタカオリン (TiO_2 含有率 1.88%) で合成したジオポリマーのラマンスペクトル及びソブエクレレー製メタカオリン (TiO_2 含有率 0.07%) で合成したジオポリマーについて取得したラマンスペクトルを示す。令和 4 年度までのラマン分析用ジオポリマー試料は TiO_2 の多いメタカオリンを用いたもので、アナターゼ型 (Anatase) TiO_2 のバンドが非常に強く、次いで CaCO_3 が検出されたが、ジオポリマー自体のラマン信号の分析が困難であった。一方、今回用いたソブエクレレー製メタカオリンは TiO_2 含有率が低いため、400～720 cm^{-1} の間の変角振動、850～1100 cm^{-1} の間の伸縮振動を確認することができた。

表 3.2.4-3 化合物のラマンバンドの波数と帰属の報告例

バンド波数	構造	参考文献
160 280 714 1087*	炭酸カルシウム	Black 2007 ^[19] Carteret 2009 ^[20] Leemann 2017 ^[21]
360*	ポルトランダイト	Garbev 2007 ^[22]
450 520* 980 arr. 1100	AFm または エトリンガイト	Black 2006 ^[23] Renaudin 2007 ^[24] Torrens 2013 ^[25]
400 ~ 720 850 ~ 1100	ジオポリマー	Kirkpatrick 1997 ^[26] Ortaboy 2017 ^[27]
630 660* 1010	ケイ酸カルシウム 水和物 (Calcium Silicate Hydrate : CSH)	Garbev 2007 Black 2007 Ortaboy 2017
143* 200 391 512 640	アナターゼ	Sekiya 2001 ^[28] Scepanovic 2009 ^[29]
129 206 264 465*	石英	Leemann 2017
855*	ヘマタイト	Ibanez 2007 ^[30]
258 315 736*	C4AF	Black 2006
296 530 659*	マグネタイト	RRUFF ID : R060191 ^[31]
228 295 1323*	ヘマタイト	RRUFF ID : R050300 ^[32]
1350 1600	カーボン	カーボンプラック等について 多数の報告

*:メインバンド



(a) Imerys製 M1000メタカオリン使用 (b)ソブエクレ製メタカオリン使用

図 3.2.4-5 ジオポリマーのラマンスペクトルに及ぼす不純物 TiO_2 の影響

(a) Imerys 製 M1000 メタカオリン (TiO_2 含有率 1.88%) で合成

(b) ソブエクレ製メタカオリン (TiO_2 含有率 0.07%) で合成

ラマン測定条件：露光時間のみ 0.2 s

④ 複合体の高温保持試験

メタカオリン Imerys 製 M1000 で合成したジオポリマーと試験片との複合体は、118 日に遠沈管から脱型した後、7 日間水に浸した。水温を 80°C に昇温して 6 時間保持した後、水から複合体を取り出し、相対湿度 80% の室温で 1 週間保管した。その後、オーブンに入れ、 200°C まで 1 時間かけて昇温し、5 時間保持した。各温度条件での保持が終了した時に、複合体の写真撮影と質量測定を行った。

(2) セメントクラックの補修性評価

500°C 加熱によりセメントペーストに生じたクラックにジオポリマーを充填・補修した後、切断して顕微鏡により観察した。図 3.2.4-6 と図 3.2.4-7 は、このサンプルのマクロとミクロの観察結果である。 0.1 mm 程度の微細なひび割れでも、ひび割れの規模にかかわらず、すべてのひび割れが充填され、空隙は観察されなかった。この結果から、ジオポリマーが熱により損傷したセメントのクラックを補修する能力を有することが確認された。

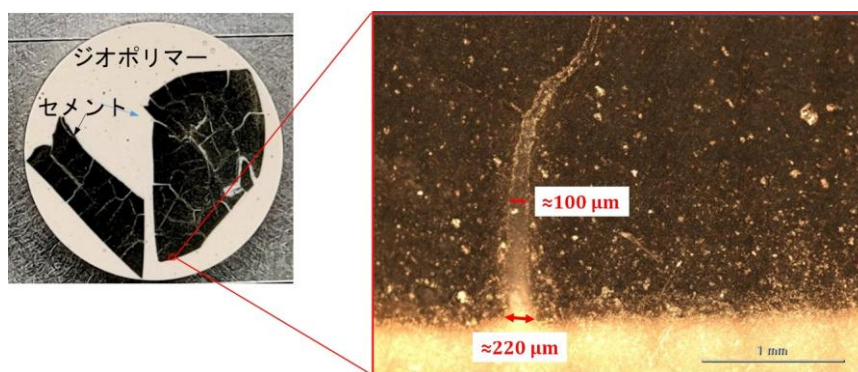


図 3.2.4-6 ジオポリマーで補修したセメントクラックの断面写真

左：複合体切断面全景、右：クラック部分を拡大

試験片：CEM-500-R

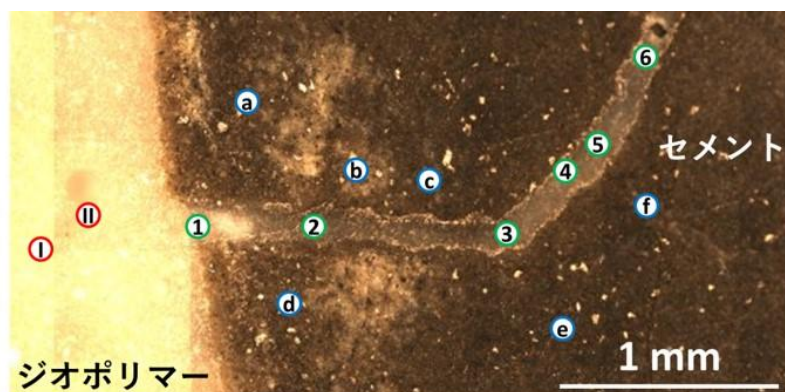


図 3.2.4-7 セメントクラック補修部分のラマン測定箇所
試験片：CEM-500-R

クラック内の材料の組成を確認するため、図 3.2.4-7 に示したクラックの内部とその周辺でラマン測定を行った。基準としてひび割れの外側で 2 つのスペクトルを取得し、続いて、ひび割れ内とその周囲のセメントで 6 つのスペクトルを測定した。これらのスペクトルを図 3.2.4-8 に示す。一般的な不純物を除き、この領域で取得されたすべてのスペクトルは、ひび割れの外側のジオポリマーと同じ信号を示している。ジオポリマーに沿ったクラックには、セメント相の主成分であるケイ酸カルシウム水和物（Calcium Silicate Hydrate : CSH）とポルトランドイトが含まれていない。

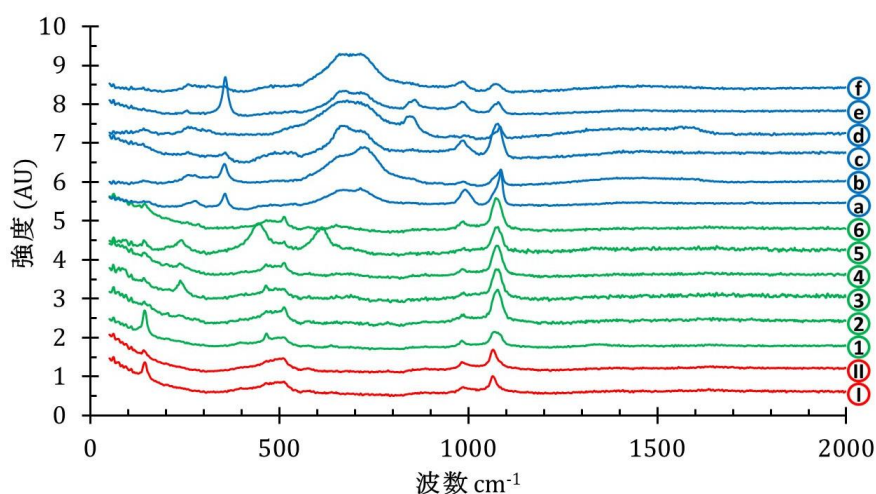


図 3.2.4-8 セメントクラック補修箇所のラマンスペクトル
試験片：CEM-500-R

(3) 接着界面のラマン分析

① 界面付近の複数スペクトルを分析する手法

上述の図 3.2.4-8 のラマンスペクトルは、着目したポイントを測定した点分析であるが、接着界面のように 2 つの相を連続して横断する範囲を観察するためには、隣接した場所で数百ものスペクトルを取得・分析することが必要となる。そこで、各測定位置のラマンデータを読み込み、ラマン信号の強弱を色彩に変換して表示するプログラムを作成した。具体的なデータ処理方法を図 3.2.4-9 に示す。

まず、上側をジオポリマー相、下側をセメント相となるように平滑な境界面を選び、距離の基準 $0 \pm 10 \mu\text{m}$ を定義し、界面を含む観察対象（ここでは、図 3.2.4-9(a)のように約 $190 \mu\text{m} \times 190 \mu\text{m}$ ）を設定する。1回の測定で $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ の区画のスペクトルが得られるので、観察対象全体では 19 列 $\times$ 19 行の 361 区画のスペクトルデータが収集される。各区画のスペクトルの相対強度を色彩に変換する。図 3.2.4-9(a)の右端の列にある 19 個の区画について、界面からの距離を縦軸、波数を横軸として着色した区画を並べることで、マッピング画像を得る（図 3.2.4-9(b)）。残りの 18 列についても同様に自動でマッピングを行い、観察範囲を代表する列のマッピング例を選んだ。マッピングの色彩範囲で特徴的な区画については、個々のラマンスペクトルのバンドから構造を帰属し（図 3.2.4-9(c)）、界面の構造について考察した。

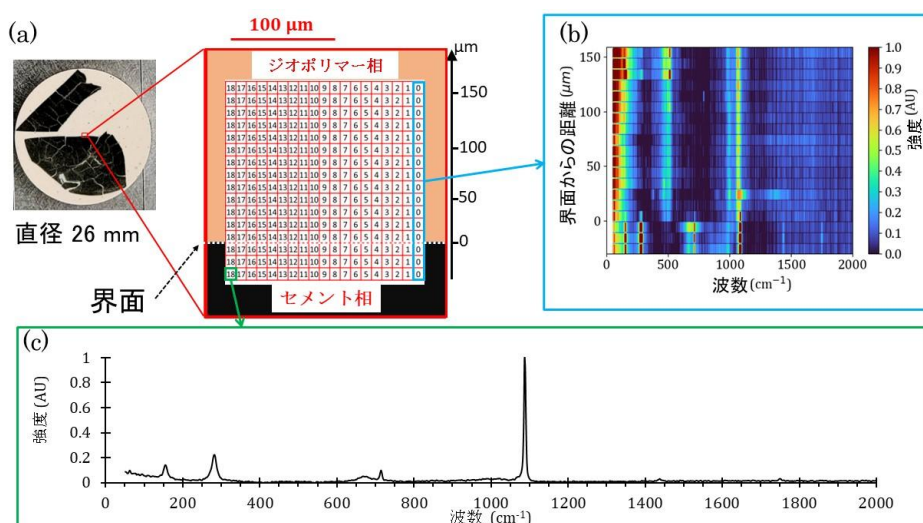


図 3.2.4-9 複数スペクトルのマッピングと個別スペクトルの帰属を併用した分析
 試験片：CEM-500-R（平滑な接着界面を測定）
 a：観察対象 $190 \mu\text{m} \times 190 \mu\text{m}$ とラマン測定区画
 b：界面からの距離（縦軸）、波数（横軸）、信号強度（色彩）によるマッピング画像
 c：個別スペクトル（構造帰属に使用）

② セメントとジオポリマーの接着界面

非加熱セメントとジオポリマーとの界面付近で得られたラマンスペクトルをマッピングした例を図 3.2.4-10 に示す。両相とも比較的多量の炭酸塩が見られた。セメントでは、ラマン分光法で観察できる主な化合物は CSH で、 660 cm^{-1} 付近に大きなバンドがあるのが特徴である。セメント界面から離れた位置にあるジオポリマーのスペクトルは、Si-O-T 結合の変角振動と伸縮振動に対応する 500 cm^{-1} と 1000 cm^{-1} 付近に大きなバンドが見られた。注目すべきは、セメント界面の近くに、 997 cm^{-1} を中心とする s バンド内の顕著な細いバンドがあることである。このバンドは、対応する変角バンドがないため、Si-O-T の 3 原子間の伸縮に起因するものではないが、その位置は Q1 の Si-O(Ca) の非対称伸縮と一致する^[27]。つまり、負の電荷を持つ Si-O 結合を Ca 陽イオンが電荷保証している可能性を示している。界面付近の構造は、Si-O-T 結合が少なく、セメントに含ま

れる Ca が界面近傍で放出され、ジオポリマーの末端にある Si-O 構造に影響を与えたと考えられる。

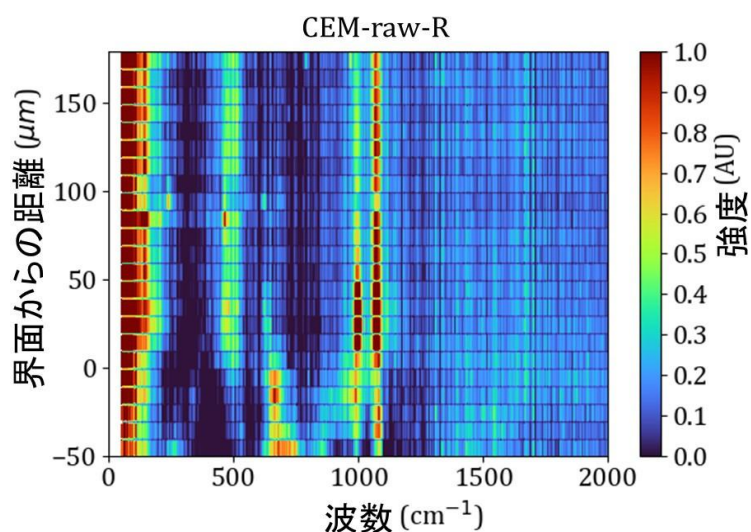


図 3.2.4-10 非加熱セメントとジオポリマーの接着界面のマッピングの一例

試験片：CEM-raw-R、観察対象：約 230 $\mu\text{m} \times 230 \mu\text{m}$

縦軸：接着界面は 0 μm 、ジオポリマー中は正值、試験片中は負値

500 $^{\circ}\text{C}$ 加熱セメントとジオポリマーの接着界面のスペクトルのマッピング例を図 3.2.4-11 に示す。上述の非加熱セメントの界面の結果とは異なる。セメントでは、 CaCO_3 がスペクトルを支配しているが、CSH バンドはまだ存在しており、熱処理後のセメントの再水和を示している。ジオポリマー構造では、界面近傍に特別なラマン信号は見られず、997 cm^{-1} のバンドも観察されなかった。加熱処理中または処理後のセメントに CaCO_3 が生成し、ジオポリマーへ放出できる Ca が減ったためと考えられる。

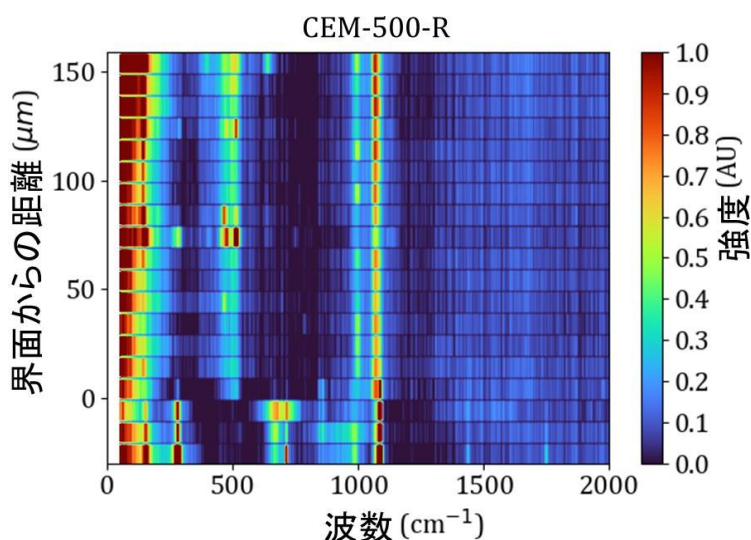


図 3.2.4-11 500 $^{\circ}\text{C}$ 加熱セメントとジオポリマーの接着界面のマッピングの一例

試験片：CEM-500-R、観察対象：約 190 $\mu\text{m} \times 190 \mu\text{m}$

縦軸：接着界面は 0 μm 、ジオポリマー中は正值、試験片中は負値

③ 高張力鋼とジオポリマーの複合材

非加熱の高張力鋼とジオポリマーの接着界面のマッピング例を図 3.2.4-12 に示す。非加熱の高張力鋼は、マグネタイトの厚い層を示し、表面近くにはヘマタイトのわずかな寄与が見られるが、ジオポリマー構造には変化は見られない。

500 °C加熱した高張力鋼との接着界面のマッピング例を図 3.2.4-13 に示す。加熱により磁鉄鉱はすべて消費され、界面に検出可能なヘマタイトの薄い層だけが残った。ヘマタイトが水和するとレピドクロサイト構造となる。ジオポリマー内では、レピドクロサイト構造とジオポリマーの信号が混合している。より高い波数には、高張力鋼由来のカーボンらしきバンドも複数見られたが、これらのバンドはレピドクロサイトであると判断した。レピドクロサイトの強度はジオポリマー内の距離によって異なり、特定の厚さを測定することはできなかった。この観察結果は、鉄を含む酸化物がジオポリマー内に広く移動している可能性を示唆しており、後述する高温保持試験で観察された試料表面の変色と矛盾しない。

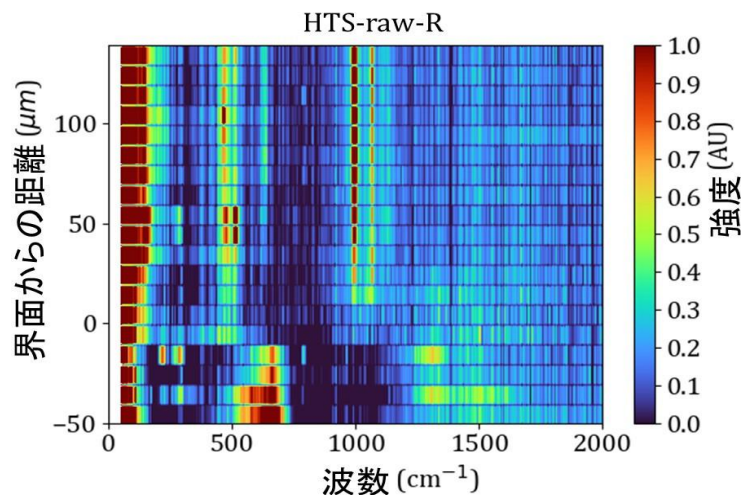


図 3.2.4-12 非加熱高張力鋼とジオポリマーの接着界面のマッピングの一例

試験片：HTS-raw-R、観察対象：約 190 μm×190 μm

縦軸：接着界面は 0 μm、ジオポリマー中は正值、試験片中は負値

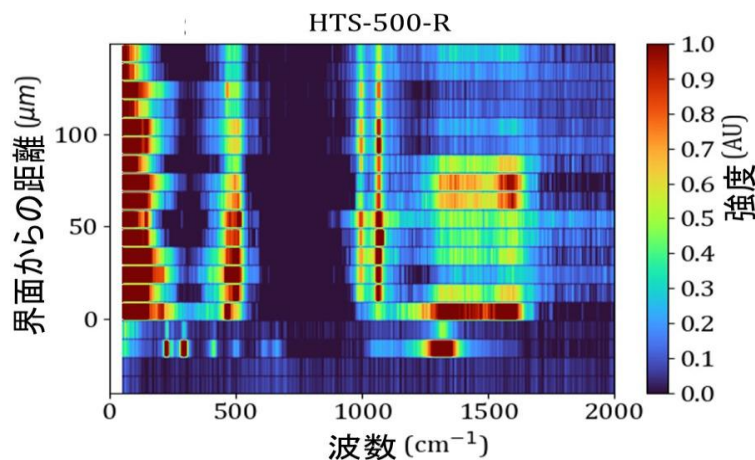


図 3.2.4-13 500 °C加熱高張力鋼とジオポリマーの接着界面のマッピングの一例

試験片：HTS-500-R、観察対象：約 190 μm×190 μm

縦軸：接着界面は 0 μm、ジオポリマー中は正值、試験片中は負値

(4) 高温保持時の剥離観察

高温保持試験の各ステップで撮影した複合体の写真を、図 3. 2. 4-14 と図 3. 2. 4-15 に示す。試験開始時の複合体には損傷はなかった。水に入れて、80 °Cで6時間保持すると、すべての複合体の表面は光沢を失い、初期の質量の約2%が失われた。セメント複合体と500 °C加熱高張力鋼の複合体は、ともに色味が増した。高張力鋼の複合体の着色については、ラマン分析で述べた酸化鉄の移動と整合する。セメントには通常、少量の鉄が含まれており、これは通常 AFm 相または C4AF 前駆体に含まれ、着色の原因となっている可能性があることは注目に値する。高張力鋼複合体では、金属介在物近傍の表面に微細なクラックも見られる。これらのクラックは、高温に曝された直後の写真でははっきりと見えなかったが、相対湿度 80%で1週間乾燥させると、よりはっきりと見えるようになった。この段階で、サンプルは質量の約2%を失った。ジオポリマーは、水分の損失と収縮が予想され、ひび割れや欠陥が目立ちやすくなる。セメントとの複合体は、この段階で損傷は見られなかった。これは、セメントの熱膨張係数がジオポリマーと同程度で、金属よりも小さいためと考えられる。金属の熱膨張率は高いため、処理中に破損が生じ、その結果、内圧が外側にかかったのかもしれない。

200 °Cの空气中で保持すると、すべての複合体に大きな亀裂が発生した。亀裂は高張力鋼またはセメント試験片の近くに位置し、ジオポリマーの他の部分に損傷はなかった。この亀裂は、ジオポリマーそのものというよりも、高張力鋼やセメントがジオポリマーの収縮に抵抗したために生じたと考えられる。その結果、ジオポリマーの大きな破片が高張力鋼から剥離し、腐食生成物がジオポリマーに付着した。

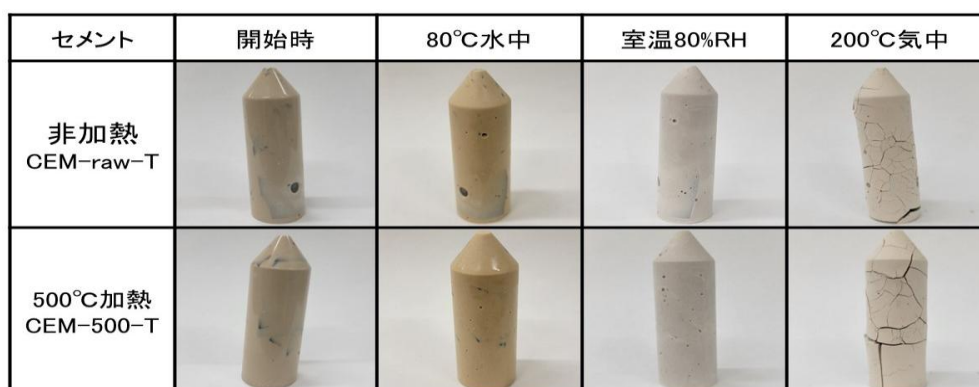


図 3. 2. 4-14 高温保持試験におけるセメントとジオポリマー複合体の外観



図 3. 2. 4-15 高温保持試験における高張力鋼とジオポリマー複合体の外観

(5) ジオポリマーの補修性評価

熱損傷で生じたセメントの微細なクラックにジオポリマーが充填されたことを顕微鏡とラマン分析により確認した。ジオポリマーは毛細管現象によって細管やクラックのような楔形の空間へ充填されると予想されるが、先端が広がった空間への充填は不明である。金属との複合体及びセメントとの複合体を高温水中で保持しても剥離は見られなかった。水中での金属、セメント、ジオポリマー材の熱膨張係数の違いだけで応力が生じる場合には、誘発される亀裂は小さいと思われる。一方、複合体を空気中で加熱しながら乾燥させると、含有物の膨張とジオポリマーの収縮によって亀裂が生じ、高張力鋼との複合体ではジオポリマーが完全に剥離した。ジオポリマー自体は 200 ℃の空气中保持に耐えることができる。しかし、ジオポリマーのマトリックス中に金属が含まれるような構成での使用を検討する場合には、含有物がマトリックス全体に及ぼす機械的圧力を考慮することが重要である。破碎のリスクを低減するために、ジオポリマーを水中に保つことで乾燥を防ぐことが推奨される。また、砂や骨材などの非反応性材料をジオポリマーに加えることで、ジオポリマーの収縮や応力を軽減することが期待される。逆に、解体後に金属回収が必要な場合は、加熱や乾燥によってジオポリマーから金属を分離する現象が利用できる。

※ 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継続実施した。また、超重泥水については、ジオポリマーとの併用について効果を確認した。さらに、実機を模擬した試験体を作製し、ジオポリマーを使用したジェットデフレクター止水試験を実施することにより、最適な止水・補修条件を選定した。

② 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学）

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した。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した。これらの結果及び添加剤の合理的適応法の検討を基に、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した。

③ 照射試験（再委託先：アトックス）

照射を受けた材料を用意するため、恒温あるいは室温に保持した改良ジオポリマーの 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：原子力機構）

セメントペーストのクラックをジオポリマーで補修し、接着界面を目視やマイクロラマン分析等により観察した。ジオポリマーと金属の複合体を高温に保持し、金属からの剥離の有無を確認した。得られた結果からジオポリマーの補修性を評価した。

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）

【令和3年度～令和5年度】

(1) 粒子法大規模高速計算技術の開発

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

令和3年度は、それまでに開発した MPH 法^{[33][34]}を基にして、3次元大規模計算に向けた計算手法を開発した。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った。また、閉じ込め材料の施工時の流動を模擬するため、MPH 法の効率化を図った。具体的には、MPH 法の GPU (Graphics Processing Unit: 画像処理装置) 化及び陰的計算アルゴリズムの改良^[35]を行い、補修材のスランプ試験を模擬した計算により計算速度の向上を確認した。

令和4年度は、令和3年度に引き続き MPH 法プログラムの高速化の検討を行った。MPH 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、MPH 法へのマルチグリッド法を試験導入し、計算効率を確認した。

【令和5年度の実施内容及び成果】

令和5年度は、令和4年度に試験適用したマルチグリッド法に関して、論文公開された技術を適用することで、計算の高速化を検討した。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つれて、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^[36]が論文公開されたことを受けて、本課題においてもマルチグリッド法を採用し、計算効率の向上を図った。図 3.3-1 は、公開されたオープンアクセス論文^[36]の図を一部加工して掲載したものである。計算の規模が大規模化した際のソルバー反復回数が抑制され、大規模計算における計算効率が向上していることが確認できる。

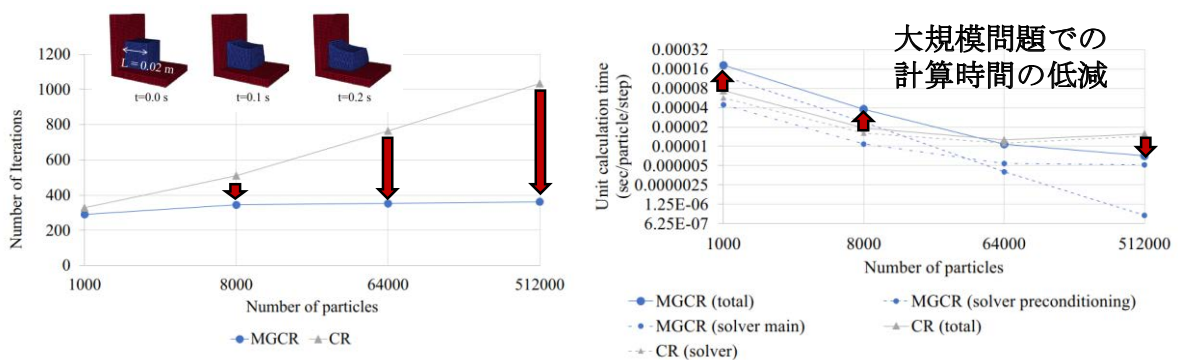


図 3.3-1 粒子法 (MPH-I 法) マルチグリッドソルバー適用による計算効率向上

(2) 閉塞材の施工流動シミュレーション【令和3年度～令和5年度】

【令和4年度までの実施内容及び成果の概要】

令和3年度は、閉じ込め材の開口部閉塞性能に関する実験の検討を行った。

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。

【令和5年度の実施内容及び成果】

令和5年度は、同年度に東京大学で実施した閉塞性能試験を模擬した閉塞施工シミュレーションを実施し、閉塞材の流動に関する材料特性の把握を行った。具体的には、降伏応力及び塑性粘度を入力パラメータとして、閉塞性能試験で得られた流動をよく再現する入力パラメータを探索することによって、流動特性を推定した。元のジオポリマーペースト質量に対して、ケイ砂を30 wt%、70 wt%、150 wt%加えた閉塞材について、閉塞性能試験を実施し、それぞれの試験における流動を再現する流動特性パラメータを探索した。それぞれの閉塞試験に対して、流動の様相をよく再現した流動特性パラメータを表3.3-1に示す。また、試験で得られた流動と計算で再現した流動の比較を、ケイ砂の添加量別にそれぞれ、図3.3-2、図3.3-3、図3.3-4に示す。これらの結果から、ジオポリマーペーストにケイ砂を添加した場合の降伏応力の上昇は限定的であるが、ケイ砂の添加により塑性粘度は大きく上昇することがわかった。これはケイ砂を添加しても閉塞材の積み上がり高さを稼ぐことはできないものの、開口部からの流出量を限定し固化までの流動距離を限定する効果はあることを示している。

表3.3-1 閉塞性能試験を再現した流動特性パラメータ（降伏応力、塑性粘度）

	降伏応力 (Pa)	塑性粘度 (Pa・s)
ケイ砂 30 wt%	10	10
ケイ砂 70 wt%	10	1000
ケイ砂 150 wt%	10	10000

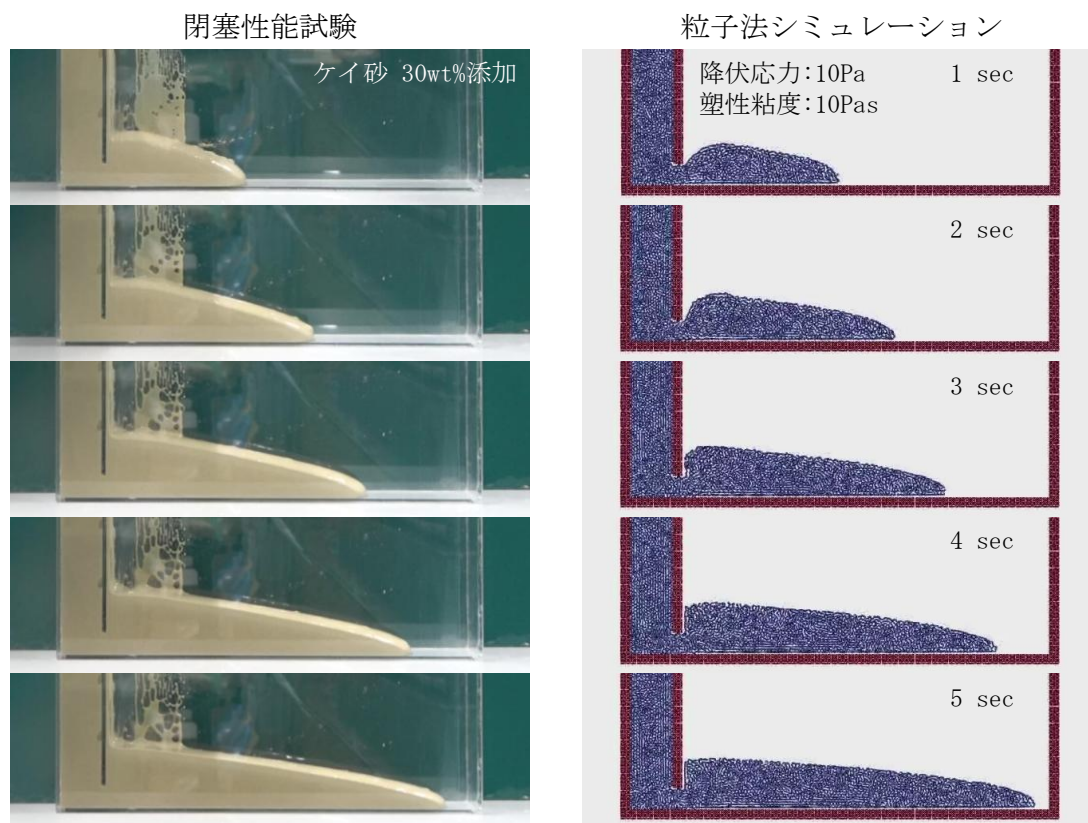


図 3.3-2 閉塞性能試験の流動再現 (ケイ砂 30 wt%添加条件)

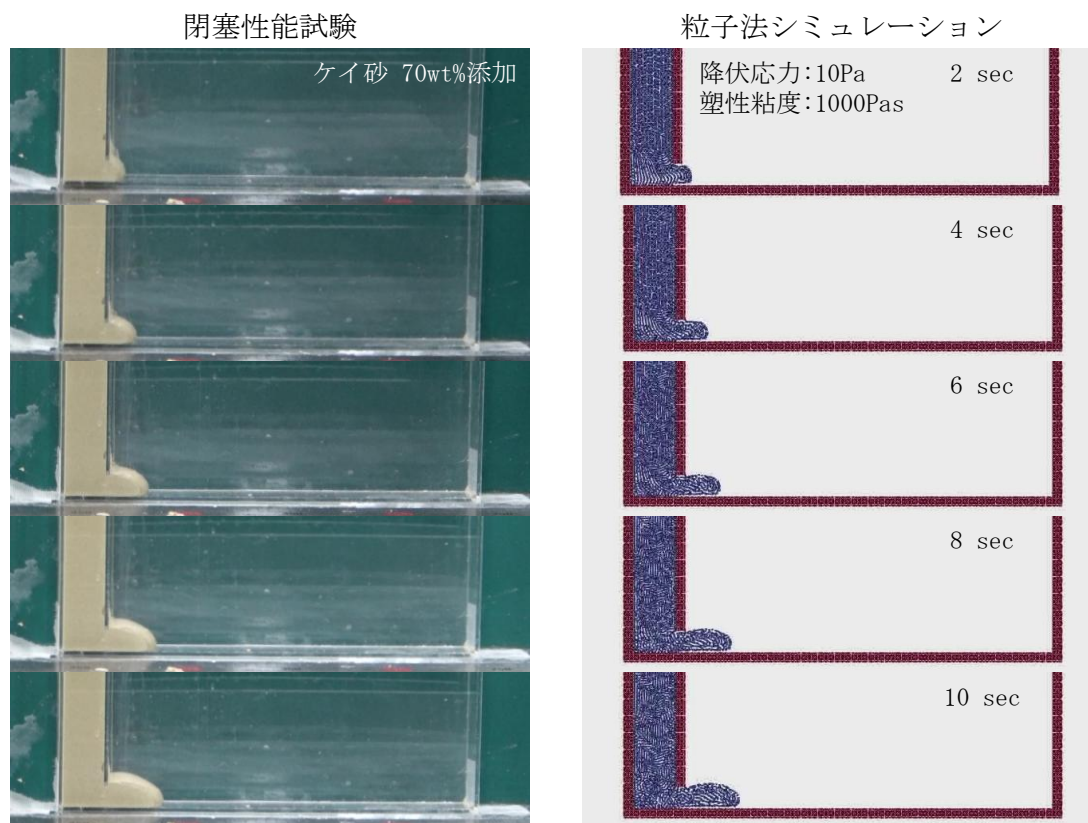


図 3.3-3 閉塞性能試験の流動再現 (ケイ砂 70 wt%添加条件)

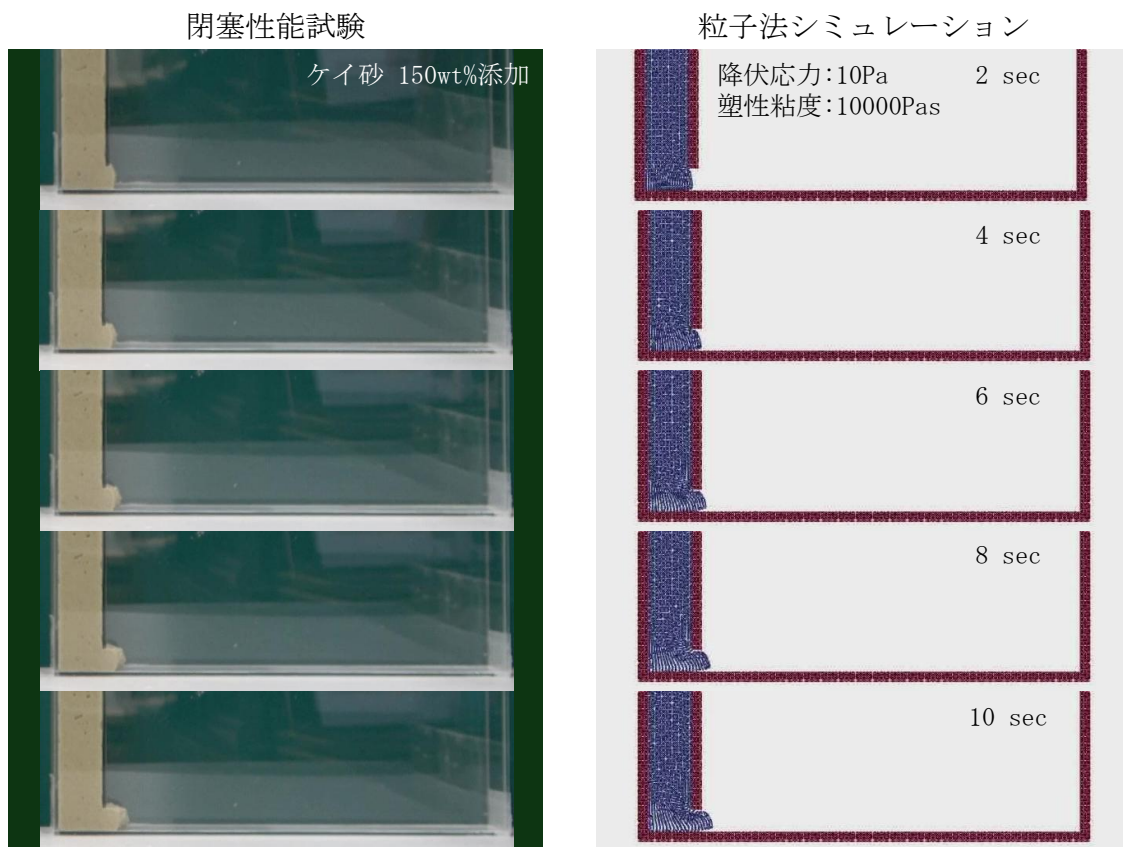


図 3.3-4 閉塞性能試験の流動再現（ケイ砂 150 wt%添加条件）

※ まとめ

閉じ込め材料（ジオポリマーなど）を模擬した粒子法シミュレーションを実施した。具体的には、実機を模擬した大規模シミュレーションのために並列化等の計算の高速化を検討するとともに、開口部閉塞のための施工方法を検討し、閉じ込め材料による閉塞施工シミュレーションを行い、開口部閉塞に必要な材料特性を把握した。

3.4 廃棄体閉じ込め性能評価（東京大学）【令和3年度～令和5年度】

本研究では、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。

(1) 収着特性【令和3年度～令和4年度】

【令和3年度の実施内容及び成果の概要】

令和3年度には、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 (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry: 誘導結合プラズマ質量分析)、ICP-AES (Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry: 誘導結合プラズマ発光分光分析) で測定することで、収着量及び収着の分配比を評価した。NaOH 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 (Si/Al モル比 2、Al/Na モル比 1) を試験に供した。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 NaOH (富士フイルム和光純薬株式会社) 1.66 g、CsCl (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 (Imerys Argical M1000) 20.80 g を、攪拌機で攪拌しながら添加した。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、洗浄した後、収着試験に供した。なお、模擬核種としては Cs^+ 、 Eu^{3+} 、 Sr^{2+} を用いた。これらの元素は燃料デブリ中の主要な核分裂生成物であり、廃棄物管理において重要な元素である。また、 Eu^{3+} は燃料デブリ中に含まれる 3 価のアクチニド元素 (Am^{3+} 、 Cm^{3+}) と類似の化学的挙動を示し、化学アナログとしての役割を果たす。

ジオポリマーの洗浄は透析法にて行った。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液を 10000 rpm で、10 分間遠心分離 (Kubota Model7000、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_4 として、0.1、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 から 10 まで変化させた。模擬核種の濃度は 1、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_4 母溶液 (Merck)、10 mM 模擬核種母溶液 (Cs: CsCl 、Eu: $\text{Eu}(\text{ClO}_4)_3$ 、Sr: $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$)、pH 調整のための 0.1 あるいは 0.01 M HClO_4 、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 Model7000、A-6512C ローター) することで固液分離をした。得られた液相を硝酸濃度 1 wt% になるように、高純度硝酸 (関東化学株式会社、Ultrapur-100)

と Milli-Q 水で希釈し、ICP-MS (Agilent 7500cx、内標元素 In)、ICP-AES (株式会社島津製作所、ICPS-7510) を用いて、液相に残存する元素濃度を測定した。また、Cs については一部試料において、液相を Milli-Q で希釈後、イオンクロマトグラフィー (Metrohm 930 IC Flex) を用いて濃度を測定した。

洗浄済みジオポリマーに対する 3 種類の模擬元素の収着量の pH 依存性を図 3.4-1、図 3.4-2、図 3.4-3 に示す。ここで、収着量は収着割合 R_s (%) とした。収着割合 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、

$$R_s = \frac{c_0 - c_a}{c_0} \times 100 \quad \text{式(3.4-1)}$$

と表される。また、収着割合 R_s は、固相単位質量あたりの収着濃度 Γ (mol/g) や収着の分配比 K_d (L/g) と以下の関係がある。

$$\Gamma = \frac{R_s c_0 V}{w} \quad \text{式(3.4-2)}$$

$$K_d = \frac{R_s c_0 V}{w c_a} \quad \text{式(3.4-3)}$$

Cs^+ のジオポリマーへの収着 (図 3.4-1) は、 $\text{pH} > 5$ において、 pH に依存せず、イオン強度とともに収着割合が減少した。このような収着の pH 、イオン強度依存性はモンモリロナイトなどの粘土鉱物やイオン交換樹脂等へのイオン交換反応に特有の傾向である。ジオポリマーでは、 SiO_4 四面体の一部を AlO_4 四面体が置換する同型置換によって、負の構造電荷 (永久電荷) が生じている。この構造電荷を中和するために、ジオポリマーは陽イオン、本試験で使用した Na 型ジオポリマーでは、 Na^+ イオンを内部に取り込んでいる。図 3.4-1 の結果から、Cs はジオポリマーに対して、主に構造内のイオン交換サイト (X) の Na^+ との交換反応によって着しているものと考えられる。



なお、 $\text{pH} < 5$ における、 pH 増加に伴う収着割合の若干の増加は、以下の H^+ のイオン交換反応との競合によるものと考えられる。

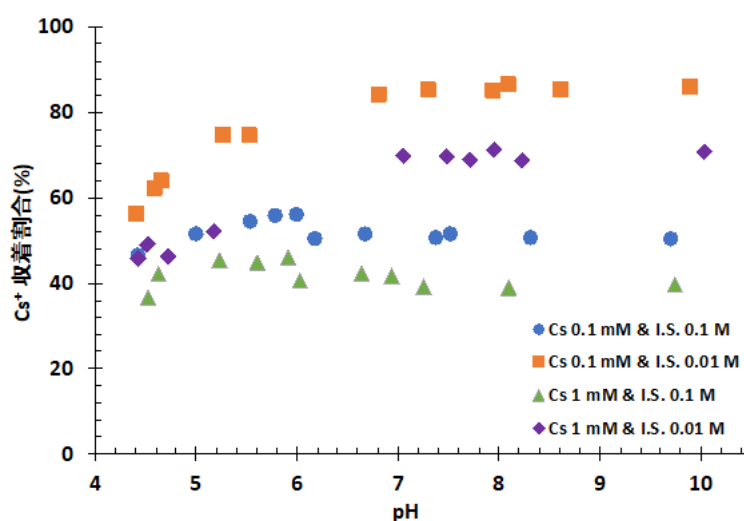
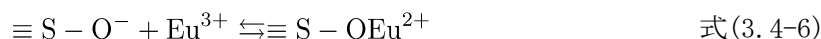


図 3.4-1 洗浄済みジオポリマーへの Cs^+ の吸着割合の pH 、イオン強度依存性

Eu^{3+} のジオポリマーへの収着（図 3.4-2）は、 Cs^+ の場合と異なり、 $\text{pH} > 4$ で収着割合が pH とともに大きく増加し、イオン強度には依存しなかった。このような収着は、鉱物一般へのイオンの収着に見られる表面錯体形成反応によるものと考えられる。ジオポリマー中には、構造末端に表面サイト $\equiv\text{S}-\text{O}^-$ が存在し、 Eu^{3+} は直接酸素サイトに配位結合を形成し、収着しているものと考えられる。



このような表面錯体形成反応は、 H^+ の表面錯体形成反応と競合することから、その収着は pH に大きく依存する。

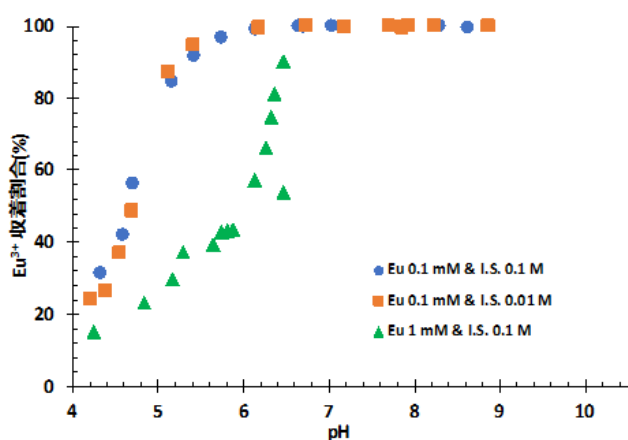


図 3.4-2 洗浄済みジオポリマーへの Eu^{3+} の吸着割合の pH 、イオン強度依存性

Sr^{2+} のジオポリマーへの収着（図 3.4-3）は、 pH 、イオン強度の両方に依存している。 $\text{pH} < 6$ では、 Eu^{3+} の場合と同様、 Sr^{2+} の収着割合は pH とともに大きく増加し、イオン強度にあまり依存していない。一方、 $\text{pH} > 6$ では Cs^+ の場合と同様、収着割合は pH に依存せず、イオン強度の増加とともに減少している。以上のことから、 Sr^{2+} はジオポリマーに対して、イオン交換反応と表面錯体形成反応の両方で収着しているものと考えられる。

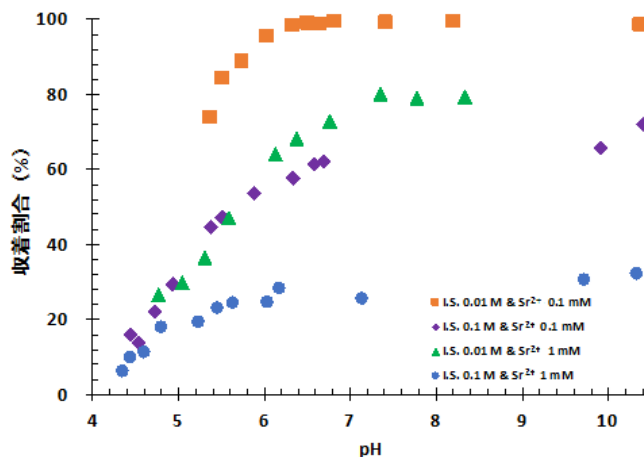


図 3.4-3 洗浄済みジオポリマーへの Sr^{2+} の吸着割合の pH 、イオン強度依存性

【令和 4 年度の実施内容及び成果の概要】

令和 4 年度には、 I^- を対象とした収着実験を実施した。ジオポリマーの作製、バッチ法による収着実験の手順は、令和 3 年度と同様である。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 $NaClO_4$ として、0.1、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 から 10 まで変化させた。模擬核種の濃度は 1、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 $NaClO_4$ 母溶液（Merck）、10 mM 模擬核種母溶液（I: NaI）、pH 調整のための 0.1 あるいは 0.01 M $HClO_4$ 、 $NaOH$ 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 Model7000、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^- 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。 I^- 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^+ 、 Sr^{2+} 、 Eu^{3+} と比べて小さく、pH にも依存しないことがわかった。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^- 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 3.4-4）。

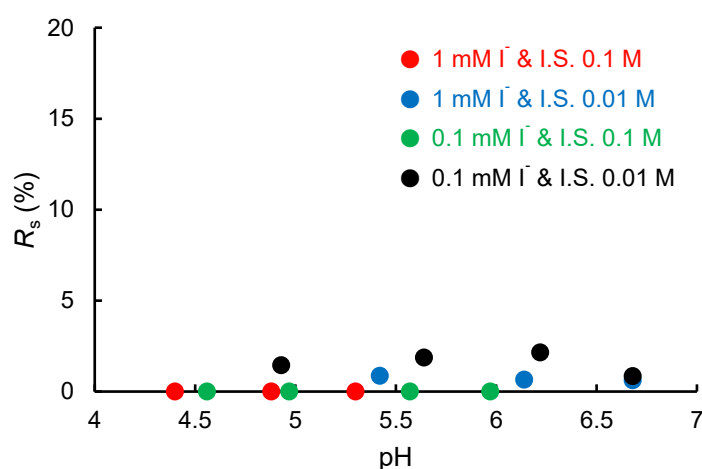


図 3.4-4 洗浄済みジオポリマーへの I^- の吸着割合の pH、イオン強度依存性

(2) 浸出性能【令和 3 年度～令和 5 年度】

【令和 4 年度までの実施内容及び成果の概要】

令和 3 年度は、模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。浸出試験開始後、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 及びレーザーラマン分光光度計で評価した。

(1) と同様に作製したメタカオリンベースのジオポリマー（Si/Al モル比 2、Al/Na モル比 1）を試験に供した。なお、Cs の添加量は活性化剤溶液中の Cs 濃度が 1（HMGP）あるいは 0.1

mM (LMGP) になるように CsCl を添加した。得られたジオポリマースラリーを、PFA 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 3 日間養生させた（図 3.4-5）。仕込み量から計算されるジオポリマー供試体中の Cs 濃度は、HMGP、LMGP に対して、それぞれ 0.397、0.041 $\mu\text{mol/g}$ であった。



図 3.4-5 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

図 3.4-6 に、浸漬試験開始から 3 日後に回収した固相試料の粉末 XRD プロファイルを示す。先行研究^[37]同様、試験体の XRD プロファイルは、 $2\theta = 30^\circ$ 付近の非晶質構造に由来するハローを含み、他に結晶相である石英 (Q)、モンモリロナイト (M)、 TiO_2 (T、アナターゼ) を含む。これらの結晶相は、出発物質として使用したメタカオリンに由来するもので、ジオポリマー化を経ても残存したものとと言える。また、試験体中の Cs の含有量及び浸漬溶液の種類（イオン交換水、人工海水）に対する明確な依存性は見られなかった。

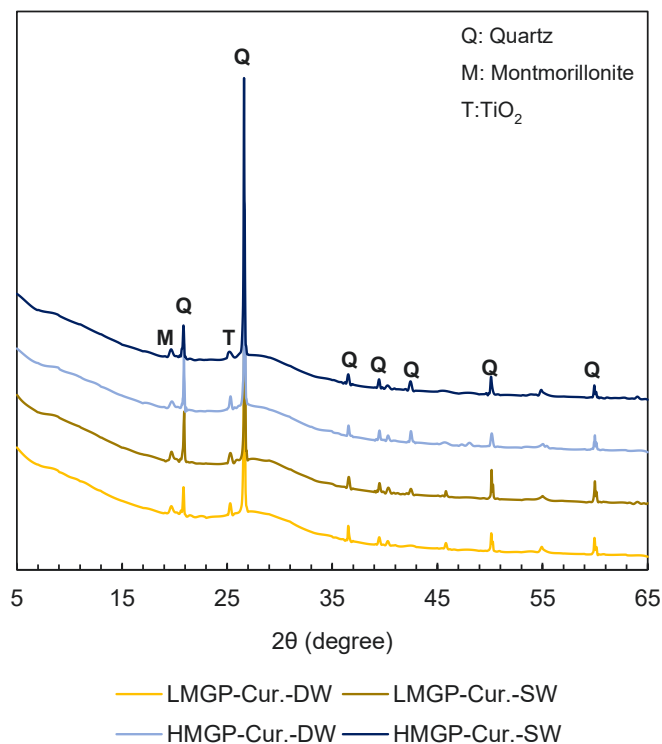


図 3.4-6 浸出試験試料の XRD 分析の結果

図 3.4-7 に、浸漬試験開始 3 日後の固相試料のラマン散乱スペクトルを示す。GP 試験体のラマン散乱スペクトルには、一貫して 392、513、636 cm^{-1} に明確なピークが見られ、また、463 cm^{-1} に弱いピークが見られた。前者は、データベースとの比較^[38]及び先行研究の報告例^[39]から、 TiO_2 （アナターゼ）に由来するものと考えられる。なお、この結果は、上述した XRD の結果（図 3.4-6）とも整合的である。また、先行研究^[37]から本試験と同様のメタカオリンを用いて、同様の作製方法で作製されたジオポリマー中の TiO_2 含有量は 1 wt% である。一方、アナターゼのラマン散乱の断面積は大きく^[39]、このように比較的低い濃度でも固相試料からのラマン散乱において、アナターゼ由来のピークが大半を占めているものと言える。一方、463 cm^{-1} に弱いピークは、石英^[40]あるいは Si-O-Si の変角振動に由来するものと考えられるが^[39]、アナターゼ由来の大きな散乱ピークの影響で、その詳細は明確ではない。なお、ラマン散乱においても、試験体中の Cs の含有量及び浸漬溶液の種類（イオン交換水、人工海水）に対する明確な依存性は見られなかった。

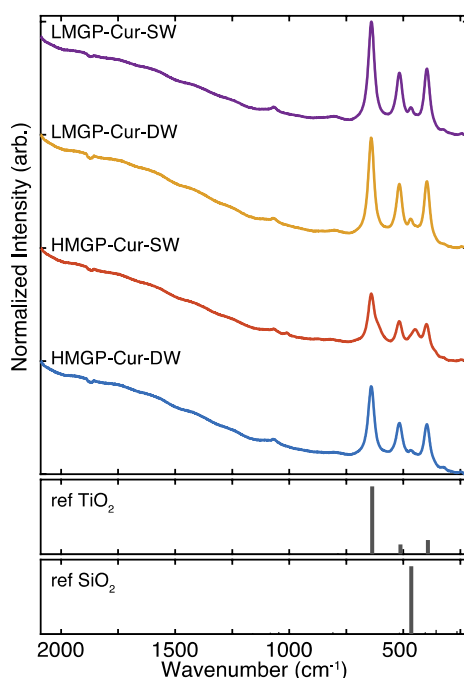


図 3.4-7 浸出試験試料のレーザーラマン散乱測定の結果
(ref TiO_2 、ref SiO_2 は、それぞれアナターゼ、石英のピーク位置文献値を示す。)

図 3.4-8 に、浸漬試験開始 3 日後の固相試料のフーリエ変換赤外吸収分光（FT-IR）スペクトルを示す。試料の FTIR スペクトルでは、3500 cm^{-1} 付近の構造水あるいは表面水酸基の OH 伸縮振動と 1000 cm^{-1} 付近の Si-O-M ($\text{M} = \text{Si}$ or Al) 変角振動が支配的である^[41]。特に、後者は少なくとも 2 つのサブピークからなっており、ジオポリマーの固化の過程で縮合反応の進展に伴い、そのピーク位置が低波数域にシフトすることが知られており、非晶質なジオポリマーの骨格構造の変化をよく表しているものと言える。図 3.4-8 で示した異なる固相試料の FT-IR スペクトルの形状は同様であり、本浸漬試験の期間では、試験体中の Cs の含有量及び浸漬溶液の種類（イオン交換水、人工海水）にかかわらず、ジオポリマーの骨格構造に変化はなかったものと言える。

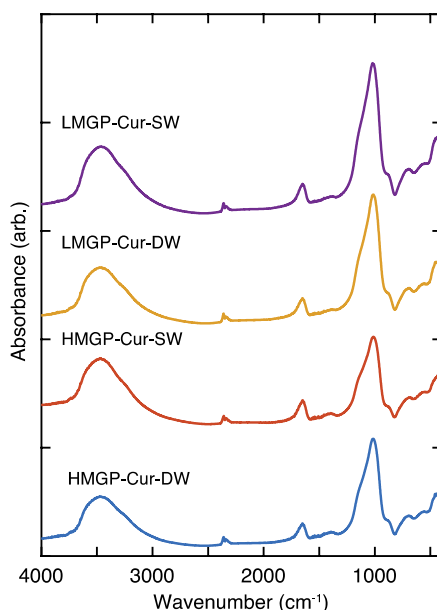


図 3.4-8 浸出試験試料の FT-IR スペクトル測定の結果

令和 4 年度は、模擬核種 (Cs、Sr、I) 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。模擬核種 (Cs、Sr、I) の 1 mM 母溶液 (CsCl、SrCl₂、NaI 溶液) を 1 mL、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 PFA (パーフルオロアルコキシアルカン：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。浸出試験の液相条件は、Milli-Q 水、模擬地下水 (0.02 M NaNO₃)、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 Cs⁺、Sr²⁺については、ICP-MS (Agilent 7500cs) を用いて、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 Sr²⁺が含まれていることから、Sr²⁺については、この条件での浸出試験を実施していない。

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

令和 5 年度は、上述の浸出試験を継続し、新たに、Eu、U の浸出性能を評価した。試験方法は令和 4 年度と同様とし、採取した液相中の模擬核種濃度を ICP-MS を用いて行った。

5 種類の模擬核種 (Cs⁺、Sr²⁺、I⁻、Eu³⁺、UO₂²⁺) 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 3.4-9～図 3.4-13 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。

$$CLF = \frac{\sum_{n=1}^{n=N} a_n}{A_0} \quad \text{式(3.4-8)}$$

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、5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）、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 程度と比較的に低く、また、その減少幅も小さい。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 1.9×10^{-3} ）に達している（図 3.4-9）。一方、模擬地下水系、Milli-Q 系では小さく、特に Milli-Q では、CLF 1×10^{-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 Cs⁺の浸出は、イオン交換反応で吸着した Cs⁺が 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。Sr²⁺の脱離は、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 3.4-10）。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吸着実験の結果において、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⁻の拡散経路の変化によるものと考えられる（図 3.4-11）。Eu³⁺の浸出量は、Cs⁺や Sr²⁺の場合とは異なり、Milli-Q 水で大きく、模擬地下水系及び模擬海水系では同等であり、浸出量は小さかった（図 3.4-12）。同様に UO₂²⁺の浸出量においても、Milli-Q 水系における高い浸出量の傾向が顕著であり、さらに、その絶対値は Eu³⁺と比べて一桁程度大きい。また、UO₂²⁺の場合は Milli-Q 水系及び模擬地下水系と比べて、有意に模擬海水系における浸出量が小さくなった（図 3.4-13）。このような、Milli-Q 水系における高い浸出量は、イオン交換などの液相中のイオンの競合による溶出メカニズムでは説明できず、異なる液相系においてジオポリマー中の Eu³⁺や UO₂²⁺の化学形が異なることによるものと考えられる。

全体的な浸出量としては、I⁻ >> Cs⁺ ~ UO₂²⁺ > Eu³⁺ > Sr²⁺ となっており、特に、陽イオンに限っては、最大の浸出量を示した Cs⁺においても、模擬海水系で CLF 0.002 (0.2%) 程度であり、1 ヶ月の浸出試験では、大部分の模擬核種がジオポリマーマトリクス中に保持されていることがわかる。

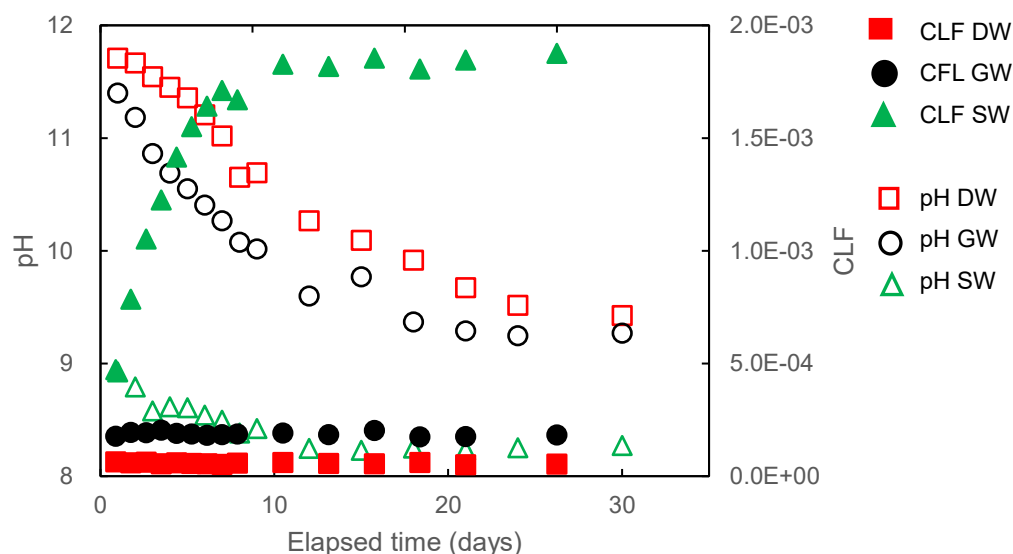
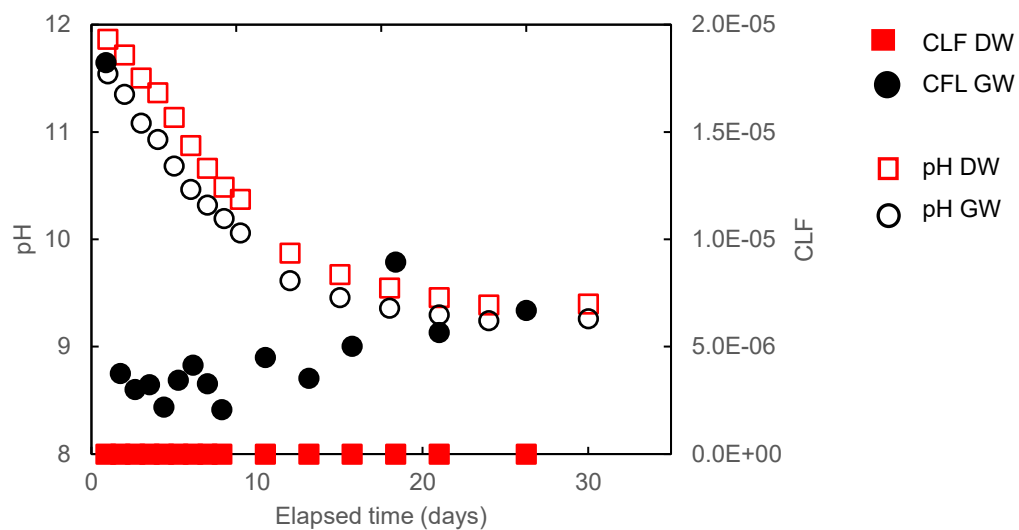
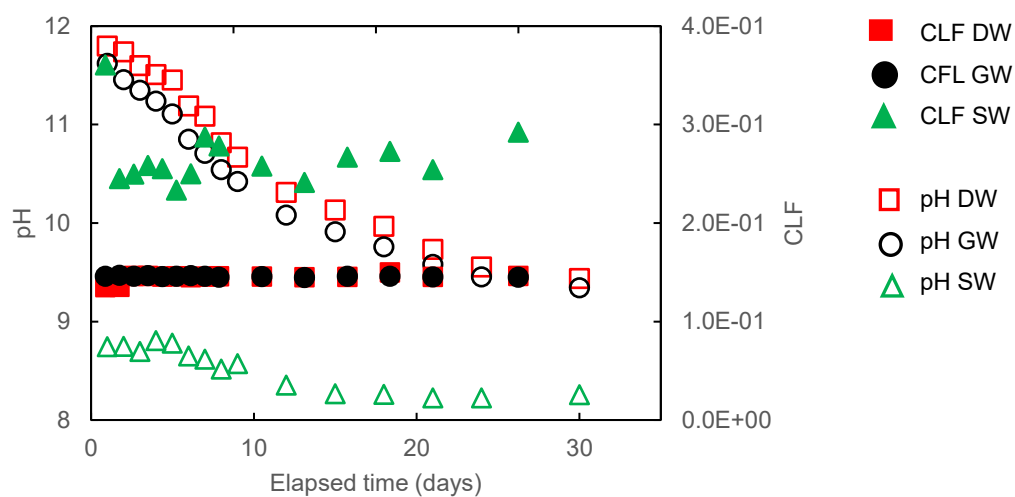
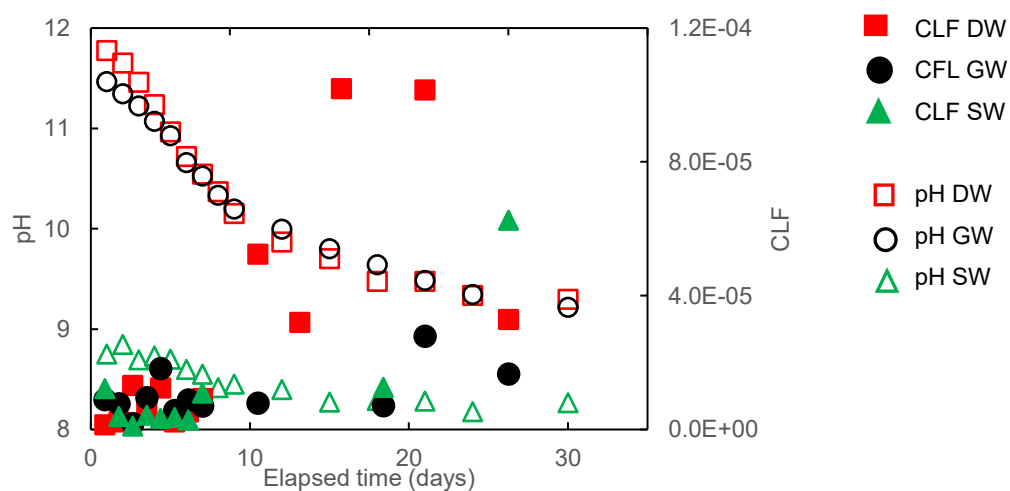


図 3.4-9 NaMKGP からの Cs⁺の浸出挙動（pH、浸出量の CLF）

図 3.4-10 NaMKGP からの Sr^{2+} の浸出挙動 (pH、浸出量の CLF)図 3.4-11 NaMKGP からの I^- の浸出挙動 (pH、浸出量の CLF)図 3.4-12 NaMKGP からの Eu^{3+} の浸出挙動 (pH、浸出量の CLF)

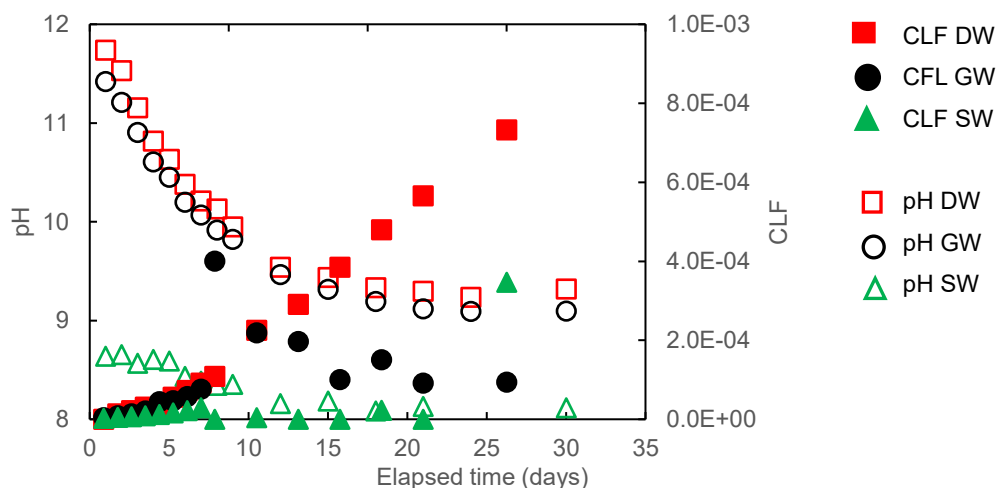


図 3.4-13 NaMKGP からの UO_2^{2+} の浸出挙動 (pH、浸出量の CLF)

(3) 拡散性能【令和 4 年度～令和 5 年度】

【令和 4 年度の実施内容及び成果の概要】

ジオポリマーのバリア性能の評価の一環として Cs、Sr、I を対象に、透過拡散 (Through-diffusion) 試験を実施した。令和 4 年度は、予察的に I を用いた 1 ヶ月までの拡散試験を実施した。

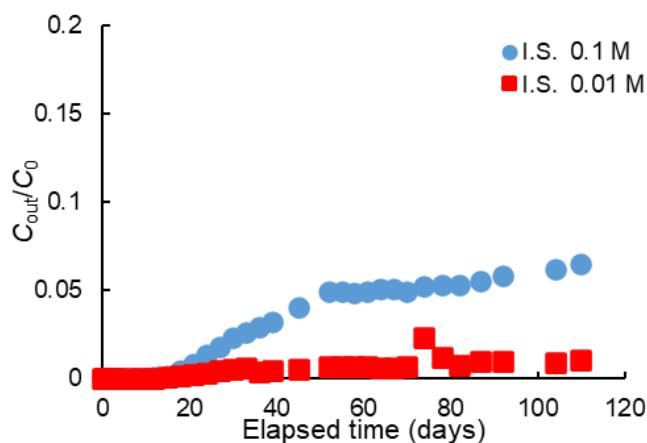
【令和 5 年度の実施内容及び成果】

令和 5 年度には、Cs、Sr を加え、最長 3 ヶ月間の拡散試験を実施した。拡散実験では、(1) 収着性能、(2) 浸出性能と同様に、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。固化したジオポリマー試料を、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。透過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。透過拡散実験では、試料をエポキシ樹脂でサンプルホルダーに取り付け、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、2 つの区画 (タンク) に同濃度の NaNO_3 溶液を添加し拡散実験を行った。高濃度コンパートメントには、対象模擬核種である Cs、Sr、I を、それぞれ 2.7、2.7、1.2 mM となるよう添加した (図 3.4-14)。支持電解質となる NaCl 濃度 (つまり、イオン強度) は、Cs、Sr の透過拡散試験では、0.1 あるいは 0.01 M とし、I の透過拡散試験では 0.01 M とした。1 ヶ月間 (I)、3 ヶ月 (Cs、Sr) の試験期間中、断続的に複合 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 Cs^+ 、 Sr^{2+} を ICP-MS で、I 濃度をイオンクロマトグラフィーで測定した。なお、比較のために u 同様の試験を高濃度側タンクに水のトレーサーとして重水 (D_2O) を 5 wt% となるよう添加した。低濃度側タンク中の H_2O 濃度の測定には、全反射 (Attenuated Total Reflection : 以下、ATR と略記。) 法による赤外吸収分光測定を用いた。



図 3.4-14 透過拡散試験の様子

透過拡散試験において、低濃度タンクの対象イオン濃度 (C_{out}) を経過時間に対してプロットしたものを破過曲線と呼ぶ。初期濃度 (C_0) で規格化した破過曲線を図 3.4-15 (Cs^+)、図 3.4-16 (Sr^{2+})、図 3.4-17 (I^-)、図 3.4-18 (HDO) に示す。 Cs 、 Sr の破過量は支持電解質濃度に大きく依存し、電解質濃度の増加に伴い破過量が増加することが見て取れる。なお、 Sr^{2+} については、0.01 M の支持電解質存在下では3ヵ月の期間で有意な破過が見られなかった。なお、破過量の絶対値は、高電解質濃度の場合においても $C_{out}/C_0=0.065$ (Cs^+)、0.007 (Sr^{2+}) であり、いずれの場合でも、ごく一部のイオンのみが破過していることがわかる。特に、 Cs^+ では低い C_{out}/C_0 でプラトーとなっており、大部分の Cs^+ がジオポリマーマトリクスに保持され、一部が拡散によって破過している、つまり、収着と脱離に大きなヒステリシスがある可能性が示唆される。また、破過曲線の立ち上がりのタイミングは、マトリクスによる遅延の効果を表し、収着の分配比 (K_d) に依存する。 Cs 、 Sr の破過曲線では、立ち上がり時間が、 Cs^+ (0.1 M) > Cs^+ (0.01 M) > Sr^{2+} (0.1 M) となり、概ね(1)で述べた収着特性の結果と対応する。 I^- の破過量は Cs^+ や Sr^{2+} と比べて大きく、時間とともに連続的に増加し、1ヵ月後には $C_{out}/C_0=0.07$ となった。図 3.4-19 に、支持電解質濃度 0.1 M における Cs^+ 、 Sr^{2+} 、 I^- 、 HDO の破過曲線を比較した。 HDO の破過曲線は、他のイオンの破過曲線と比べて上に位置する、つまり、 I^- と比べて破過量が多い。この点は(1)で述べたように、水のトレーサーである HDO 同様、 I^- はジオポリマーマトリクスに有意に収着しないことから、このような I^- と HDO 破過曲線の関係は、陰イオン排除効果、つまり、一部のサイズの小さなジオポリマー空隙において、負の電位が発生し、 I^- が侵入できないことよると考えられる。

図 3.4-15 NaMKGP ディスクに対する Cs^+ の破過曲線

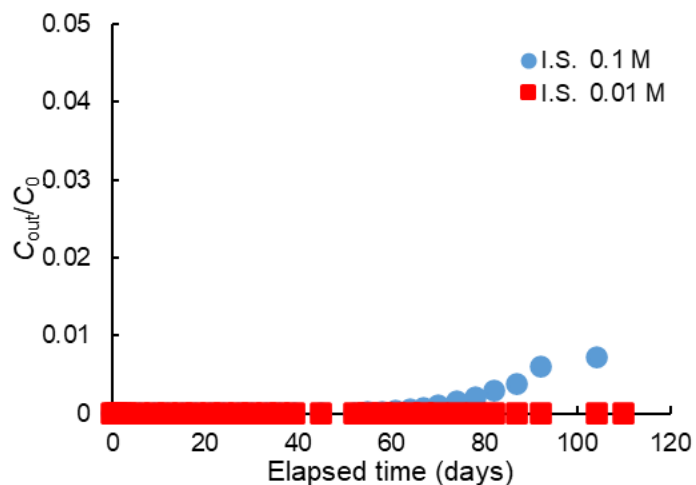
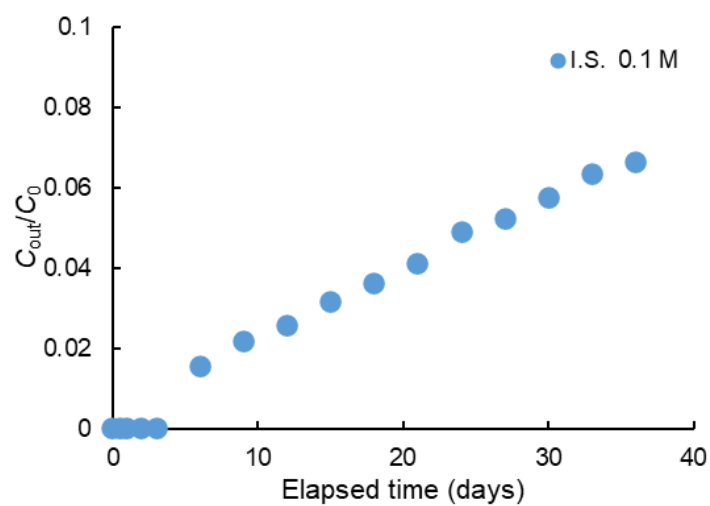
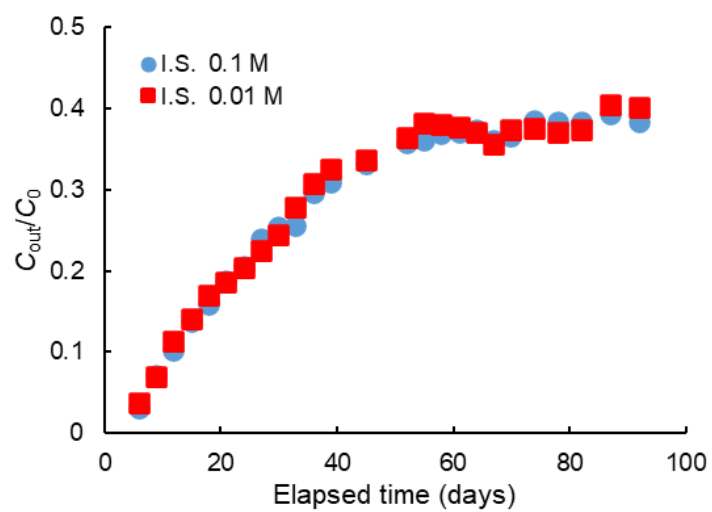
図 3.4-16 NaMKGP ディスクに対する Sr^{2+} の破過曲線図 3.4-17 NaMKGP ディスクに対する I^- の破過曲線

図 3.4-18 NaMKGP ディスクに対する HDO の破過曲線

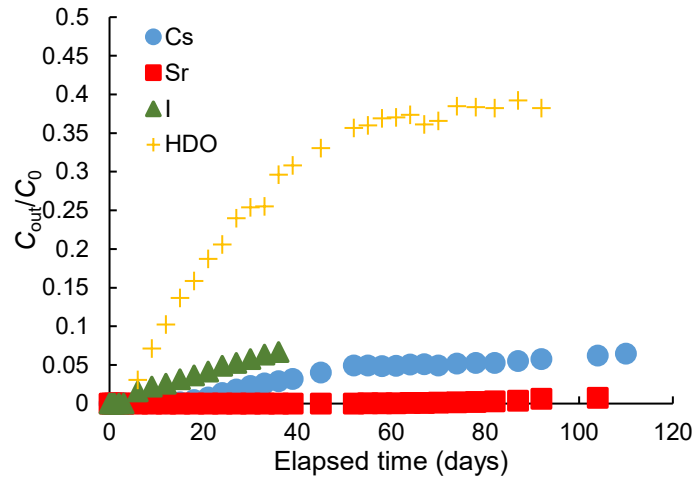


図 3.4-19 I. S. 0.1 M における NaMKGP ディスクに対する HDO の破過曲線の比較

(4) 予察的な安全評価【令和 5 年度】

【令和 5 年度の実施内容及び成果】

令和 5 年度には、 ^{137}Cs （半減期 30.17 年）を対象核種として、ジオポリマー固化体を用いた際の簡易的な安全評価を行い、セメント固化体との比較を行った。図 3.4-20 に、評価の体系を示す。評価は、L2 低レベル放射性廃棄物の処分で用いられるピット処分体系とし、1 GBq の ^{137}Cs を含む、厚さ 1 m、断面積 1 m² のジオポリマーあるいはセメント固化体から、降雨（10 m/yr）によって、廃棄体中の ^{137}Cs が溶出し、帯水層中を 50 m 移行するものとした。評価に使用したパラメータを表 3.4-1 にまとめた。固化体からの ^{137}Cs の溶出は K_d モデルに従うとして、ジオポリマーについては、(1) 収着特性で求めた K_d 値及び空隙率を用いたセメントについては、参考文献^{[42][43]}の値を採用した。また、帯水層（土壌）の K_d は参考文献^[44]の値を採用した。評価の結果は、廃棄体下部及び 50 m の帯水層出口での ^{137}Cs の放出率 (Bq/yr) とした。

図 3.4-21、図 3.4-22 に、廃棄体下部及び 50 m の帯水層出口での ^{137}Cs の放出率 (Bq/yr) の時間変化を示す。セメント廃棄体と比べて、ジオポリマー廃棄体 (GP) への K_d が大きく、溶出量が小さいため、後者からの ^{137}Cs の溶出が緩慢となり、溶出が完了するまで 1000 年程度を要していることが見て取れる（図 3.4-21）。そして、帯水層出口での放出率は、ジオポリマー廃棄体からの緩慢な放出を経た ^{137}Cs が放射性崩壊により減衰することから、セメント廃棄体と比較して、大きく減少することがわかった（図 3.4-22）。

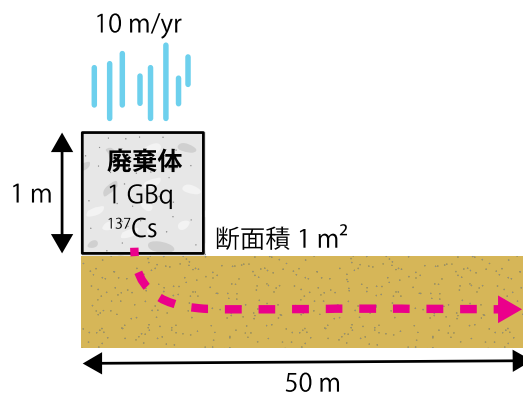
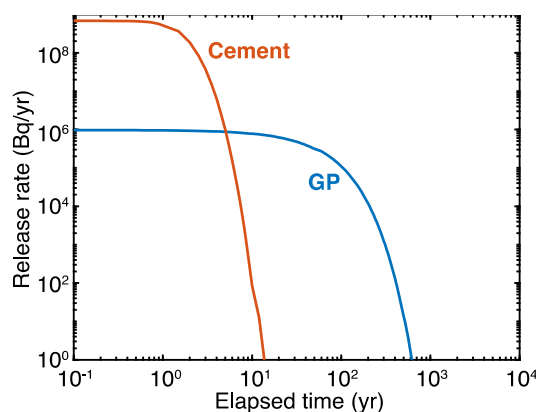
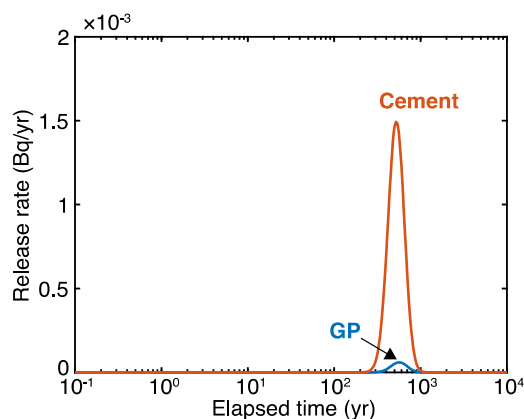


図 3.4-20 予察的な安全評価の計算体系

表 3.4-1 予察的安全評価に用いたパラメータ

パラメータ		GP	Cement	Soil
K_d	(m^3/Kg)	5.6 ¹⁾	0.01 ²⁾	0.36 ³⁾
Density, ρ	(Kg/m^3)	1840	1440	1600
Porosity, ε	—	0.29	0.29 ⁴⁾	0.5
Length, L	(m)	1	1	50
Dispersivity, D_h	(m)	0.1	0.1	5
Diffusion coefficient, D_m	(m^2/s)	2.046×10^{-9}		

1) This study、2) 参考文献[6]、3) 参考文献[8]、4) 参考文献[7]

図 3.4-21 ジオポリマー (GP)、セメント (Cement) 廃棄体下部における ^{137}Cs 放出率図 3.4-22 ジオポリマー (GP)、セメント (Cement) 廃棄体から溶出した ^{137}Cs の帯水層出口における放出率

※ まとめ

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や拡散試験を継続し、浸出量が液相条件に大きく依存することがわかった。また、放射性Csを対象にした予察的な安全評価から、セメント固化体と比較して、ジオポリマー固化体における天然バリア出口における放出率が減少することが示された。

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推進した。また、研究実施計画を推進するための打ち合せや会議等を開催した。

具体的には、個別の各担当との多数の議論の他、9月11日に全体プロジェクト会議を、12月12日にP0会議を開催した。

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

4. 結言

燃料デブリ取り出しを行うためには、PCV 水位制御のためドライウェ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、併せてドライウェ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した。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の見通しを得た。

以下に、3 ヶ年の業務実績を述べる。

(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実施した。

また、実機体系でのデブリ拡散の数値解析を実施するとともに、成層化等の異種組成物質混在を初期条件とした解析も実施し、詳細なデブリ分布推定を行った。

さらに、止水材で被覆した場合における臨界評価を実施し、ジオポリマーに対して少量の Gd_2O_3 の添加で未臨界維持が可能となる見通しを得た。

(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、超重泥水については、ジオポリマーとの併用について効果を確認した。さらに、実機を模擬した試験体を作製し、ジオポリマーを使用したジェットデフレクター止水試験を実施することにより、最適な止水・補修条件を選定した。

② 水素発生対策添加材評価（再委託先：東京都市大学）

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し、冶金学的性状変化を観察評価した。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した。これらの結果及び添加剤の合理的適応法の検討を基に、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した。

③ 照射試験（再委託先：アトックス）

照射を受けた材料を用意するため、恒温あるいは室温に保持した改良ジオポリマーについて、高線量率（2.90 kGy/h 以上）、中線量率（2.00～2.30 kGy/h）及び低線量率（0.070～0.085 kGy/h）の 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：原子力機構）

セメントペーストのクラックをジオポリマーで補修し、接着界面を目視やマイクロラマン分析等により観察した。ジオポリマーと金属の複合体を高温に保持し、金属からの剥離の有無を確認するとともに、ジオポリマーの補修性を評価した。

(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）を模擬した粒子法シミュレーションを実施し、開口部閉塞のための施工方法を検討し、開口部閉塞に必要な材料特性を把握した。

(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、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を継続した。得られたパラメータに基づき、放射性Csを対象にした予察的な安全評価からセメント固化体と比較して、ジオポリマー固化体における天然バリア出口における放出率が減少することが示された。

参考文献

- [1] Fand, R. M., Heat transfer by forced convection from a cylinder to water in crossflow, *Int. J. Heat. Mass Trans.*, Vol.8, 1965, pp.995-1010.
[https://doi.org/10.1016/0017-9310\(65\)90084-0](https://doi.org/10.1016/0017-9310(65)90084-0)
- [2] Joly, P.A. and Meharbin, R., The rheology of a partially solid alloy, *J. Mater. Sci.*, Vol.11, 1976, pp.1393-1418. <https://doi.org/10.1007/BF00540873>
- [3] Yokoyama, R. et al., Simulating melt spreading into shallow water using moving particle hydrodynamics with turbulence model, *Comput. Part. Mech.*, Vol.10, 2023, pp.677-690. <https://doi.org/10.1007/s40571-022-00520-7>
- [4] Johnson, M. et al., High-temperature ex-vessel corium spreading. Part 1: Experimental investigations on ceramics and sacrificial concrete substrates, *J. Nucl. Sci. Technol.*, Vol.59, 2021, 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 ceramics and concrete substrates using a moving particle hydrodynamics, *Nucl. Eng. Des.*, Vol.399, 2022, 112029. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2022.112029>
- [6] Yokoyama, R. et al., Evaluation of Molten Corium Spreading and Sedimentation Behaviors within Primary Containment Vessel in Unit 3 of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plants towards the Best Prediction of Fuel Debris Distribution, *Nucl. Technol.*, 2023. pp.884-905. <https://doi.org/10.1080/00295450.2023.2262255>
- [7] IRID, TEPCO, 1号機 PCV 内部調査の状況について,
<https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2022/07/lgoukipcvnaibutyousa20220630.pdf>
(参照：令和5年6月13日)。
- [8] 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価,
JAEA-Data/Code 2012-018, 2012, 190p. <https://doi.org/10.11484/jaea-data-code-2012-018>
- [9] 杉暉夫, 原子炉物理演習 改訂第3版 (1997), 原子力弘済会, pp.3-8.
- [10] 三橋博三, コンクリートの強度特性が破壊力学パラメータに及ぼす影響, コンクリート工学論文集, Vol.6, No.1, 1995, pp.81-88.
- [11] N.A. Jaya, L. Yun-Ming, H. Cheng-Yong, M.M.A.B. Abdullah and K. Hussin, Correlation between pore structure, compressive strength and thermal conductivity of porous metakaolin geopolymer, *Construction and Building Materials*, Vol.247, 2020.
- [12] D. Lambertin, C. Boher, A. Dannoux-Papin, K. Galliez, A. Rooses and F. Frizon, Influence of gamma ray irradiation on metakaolin based sodium geopolymer, *Journal of Nuclear Materials*, Vol.443, Nos.1-3, 2013, pp.311-315.
- [13] M.L.Y. Yeoh, S. Ukritnukun, A. Rawal, J. Davies, B.J. Kang, K. Burrough, Z. Aly, P. Dayal, E.R. Vance, D.J. Gregg, P. Koshy and C.C. Sorrell, Mechanistic impacts of long-term gamma irradiation on physicochemical, structural, and mechanical stabilities of radiation-responsive geopolymer pastes, *Journal of Hazardous Materials*, Vol.407, 2021.
- [14] Bale, C.W. et al., FactSage thermochemical software and databases, 2010-2016, *Calphad*, Vol.55, 2016, pp.1-19.

- [15] Cantarel, V., Yamagishi, I. et al., On the Hydrogen Production of Geopolymer Wasteforms under Irradiation, *Journal of the American Ceramic Society*, Vol.102, issue12, 2019, pp.7553-7563.
- [16] 堀史説, 粒子線照射された化合物合金中の欠陥による水素捕獲, 京都大学複合原子力科学研究所「第54回学術講演会報文集」 Jan-2020.
- [17] Abe, H. et al., Improvement of hydrogen absorption rate of Pd by ion irradiation, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Vol.206, 2003, p.224.
- [18] 森川良忠, 第一原理計算による触媒研究の動向, *表面科学*, Vol.27, No.6, 2006, pp.354-359.
- [19] Black, L. et al., Structural Features of C-S-H(I) and Its Carbonation in Air - A Raman Spectroscopic Study. Part II: Carbonated Phases. *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol.90, No.3, 2007, pp.908-917.
- [20] Carteret, C. et al., Polymorphism Studied by Lattice Phonon Raman Spectroscopy and Statistical Mixture Analysis Method. Application to Calcium Carbonate Polymorphs during Batch Crystallization. *Cryst. GROWTH Des.*, Vol.9, No.2, 2009, pp.807-812.
- [21] Leemann, A., Raman Microscopy of Alkali-Silica Reaction (ASR) Products Formed in Concrete. *Cem. Concr. Res.*, Vol.102, 2017, pp.41-47.
- [22] Garbev, K., et al., Structural Features of C-S-H(I) and Its Carbonation in Air-A Raman Spectroscopic Study. Part I: Fresh Phases. *J. Am. Ceram. Soc.* Vol.90, No.3, 2007, pp.900-907.
- [23] Black, L. et al., In Situ Raman Analysis of Hydrating C(3)A and C(4)AF Pastes in Presence and Absence of Sulphate. *Adv. Appl. Ceram.*, Vol.105, No.4, 2006, pp.209-216.
- [24] Renaudin, G. et al., A Raman Study of the Sulfated Cement Hydrates: Ettringite and Monosulfoaluminate. *J. Adv. Concr. Technol.* Vol.5, No.3, 2007, pp.299-312.
- [25] Torrens-Martin, D. et al., Raman Spectroscopy of Anhydrous and Hydrated Calcium Aluminates and Sulfoaluminates. *J. Am. Ceram. Soc.*, Vol.96, No.11, 2013, pp.3589-3595.
- [26] Kirkpatrick, R. et al., Raman Spectroscopy of C-S-H, Tobermorite, and Jennite. *Adv. Cem. BASED Mater.*, Vol.5, No.3, 1997, pp.93-99.
- [27] Ortoboy, S. et al., Effects of CO₂ and Temperature on the Structure and Chemistry of C-(A-)S-H Investigated by Raman Spectroscopy. *RSC Adv.*, Vol.7, No.77, 2017, pp.48925-48933.
- [28] Sekiya, T. et al., Raman Spectroscopy and Phase Transition of Anatase TiO₂ under High Pressure. *J. Phys. Chem. SOLIDS*, Vol.62, No.4, 2001, pp.717-721.
- [29] Scepanovic, M. et al., Characterization of Anatase TiO₂ Nanopowder by Variable-Temperature Raman Spectroscopy. *Sci. Sinter.*, Vol.41, No.1, 2009, pp.67-73.
- [30] Ibanez, J. et al., Hydration and Carbonation of Monoclinic C₂S and C₃S Studied by Raman Spectroscopy. *J. RAMAN Spectrosc.*, Vol.38, No.1, 2007, pp.61-67.

- [31] RRUFF Project website containing an integrated database of Raman spectra, X-ray diffraction and chemistry data for minerals. Magnetite.
<https://rruff.info/magnetite/display=default/R060191> (参照：令和6年3月26日)。
- [32] RRUFF Project website containing an integrated database of Raman spectra, X-ray diffraction and chemistry data for minerals. Hematite.
<https://rruff.info/hematite/display=default/R050300> (参照：令和6年3月26日)。
- [33] Masahiro Kondo, A physically consistent particle method for incompressible fluid flow calculation, Computational Particle Mechanics Vol.8, 2021, pp.69-86.
<https://doi.org/10.1007/s40571-020-00313-w>
- [34] Masahiro Kondo, Takahiro Fujiwara, Issei Masaie, Junichi Matsumoto, A physically consistent particle method for high-viscous free-surface flow calculation, Computational Particle Mechanics, 2021. <https://doi.org/10.1007/s40571-021-00408-y>
- [35] 近藤雅裕, 松本純一, 高粘性非圧縮 MPH 法を高速化する圧力代入型陰解法, JSCES, Paper No.20210016. <https://doi.org/10.11421/jscs.2021.20210016>
- [36] Masahiro Kondo, Junichi Matsumoto, Tomohiro Sawada, A scalable physically consistent particle method for high-viscous incompressible flows, Computational Particle Mechanics, 2023. <https://doi.org/10.1007/s40571-023-00636-4>
- [37] A.C. Yildirim, Characterization of Sodium Activated Metakaolin Based Geopolymers for Long-Term Stability and Sorption Mechanisms, Department of Nuclear Engineering and Management, School of Engineering, The University of Tokyo, 2021.
- [38] RRUFF Project website containing an integrated database of Raman spectra, X-ray diffraction and chemistry data for minerals. Anatase.
<https://rruff.info/anatase/display=default/R120013> (参照：令和5年9月20日)。
- [39] M.C. Caggiani, A. Coccato, G. Barone, C. Finocchiaro, M. Fugazzotto, G. Lanzafame, R. Occhipinti, A. Strosio, P. Mazzoleni, Raman spectroscopy potentiality in the study of geopolymers reaction degree, J Raman Spectrosc 53(3), 2022, pp.617-629.
- [40] RRUFF Project website containing an integrated database of Raman spectra, X-ray diffraction and chemistry data for minerals. Quartz.
<https://rruff.info/quartz/display=default/X080015> (参照：令和5年9月20日)。
- [41] C. Finocchiaro, G. Barone, P. Mazzoleni, C. Leonelli, A. Gharzouni, S. Rossignol, FT-IR study of early stages of alkali activated materials based on pyroclastic deposits (Mt. Etna, Sicily, Italy) using two different alkaline solutions, Constr. Build. Mater. 262, 120095, 2020.
- [42] M. Ochs, I. Pointeau, E. Giffaut, Caesium sorption by hydrated cement as a function of degradation state: Experiments and modelling, Waste Manage, 26(7), 2006, pp.725-732.
- [43] K. Haga, S. Sutou, M. Hironaga, S. Tanaka, S. Nagasaki, Effects of porosity on leaching of Ca from hardened ordinary Portland cement paste, Cement. Concrete. Res. 35(9), 2005, pp.1764-1775.
- [44] N. Kamei-Ishikawa, S. Uchida, K. Tagami, Distribution coefficients for Sr and Cs in Japanese agricultural soils and their correlations with soil properties, J. Radioanal. Nucl. Ch. 277(2), 2008, pp.433-439.

