JAEA-Technology
2015-043
DOI:10.11484/jaea-technology-2015-043

JAEA-Technology

蒸気種遷移挙動評価手法の開発 ーFP蒸気種及びエアロゾルの化学形やエアロゾルの物理的パラメータの評価に適用可能な測定技術の調査及び試計測に基づく適用可能性評価ー

Development of Evaluation Procedure of Vapor Species Transition Behavior - Investigation of Applicable Measurement Technology for Estimation of Chemical Form and Physical Parameters, and Validity Verification -

高井 俊秀　佐藤 勇　山下 真一郎　古川 智弘

Toshihide TAKAI, Isamu SATO, Shinichiro YAMASHITA and Tomohiro FURUKAWA

高速炉研究開発部門
大洗研究開発センター
高速炉技術開発部

Fast Reactor Technology Development Department
Oarai Research and Development Center
Sector of Fast Reactor Research and Development

February 2016

Japan Atomic Energy Agency　日本原子力研究開発機構

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

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

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

© Japan Atomic Energy Agency, 2016

JAEA-Technology 2015-043

蒸気種遷移挙動評価手法の開発
－FP 蒸気種及びエアロゾルの化学形やエアロゾルの物理的パラメータの評価に適用可能な測定技術の調査及び試計測に基づく適用可能性評価－

日本原子力研究開発機構 高速炉研究開発部門 大洗研究開発センター
高速炉技術開発部
高井　俊秀、佐藤　勇+、山下　真一郎、古川　智弘

(2015 年 12 月 7 日　受理)

ソースターム評価手法の高度化及び福島第一原子力発電所廃止措置に係る研究開発として、シビアアクシデント時に溶融燃料から放出される核分裂生成物（FP）の移行モデルの改良・高度化への適用に向けて、FP の化学挙動解明に向けた基礎基盤研究が実施されている。本研究では、FP 移行モデルの改良に向けて必要となる、(1)放出直後からエアロゾル化するまでの FP の化学的な挙動や、(2)その後の化学挙動に影響を与えうるエアロゾル形状等の物理的パラメータの評価に適用可能な測定技術について広範に調査するとともに、有望と考えられた分析手法については試計測により適用可能性を調べた。

その結果、(1)FP 蒸気種及びエアロゾルの化学形の評価については、(a)ラマン分光法が有望であり、室温同様、500℃に加熱した状態でも化学形の識別が可能であることが確認された。また、エアロゾルの化学形については、(b)高温 X 線回折法も活用可能であることが確認された。(2)エアロゾルの物理的パラメータの評価については、カスケードインパクタで採取した試料を、透過型電子顕微鏡（SEM)、エネルギー分散型 X 線分光法（EDX)を用いて、観察・分析することが有望であることが確認された。

大洗研究開発センター：〒311-1393　茨城県東茨城郡大洗町成田町 4002 番地
+ 福島燃料材料試験部（現東京工業大学）

JAEA-Technology 2015-043

Development of Evaluation Procedure of Vapor Species Transition Behavior - Investigation of Applicable Measurement Technology for Estimation of Chemical Form and Physical Parameters, and Validity Verification -

Toshihide TAKAI, Isamu SATO+, Shinichiro YAMASHITA and Tomohiro FURUKAWA

Fast Reactor Technology Development Department,
Oarai Research and Development Center,
Sector of Fast Reactor Research and Development,
Japan Atomic Energy Agency
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received December 7, 2015)

Fundamental research on FP-chemistry for fission product release behaviors under severe accident was carried out for reinforcement of source term evaluation, and implementation of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station decommissioning R&D project.

There were subjects to clarified (1) FP chemistry behavior between vapor species release and aerosol formation and (2) physical parameters which would be affect subsequent aerosol's chemical behavior, for improvement of FP transport model. Applicability of measuring and analyzing techniques presently used was studied for evaluating foregoing properties. And the validity was verified against extracted methods by trial measurements. As a results, (1) Raman spectrometry and high temperature X-ray diffraction were hopeful to determine FP-chemical form against vapor/aerosol species and aerosol species, respectively. (2) Combination use of cascade impactor and scanning type electron microscope with energy-dispersive X-ray spectrometry was hopeful to determine physical parameters of aerosol.

Keywords: FP-chemistry, Severe Accident, Aerosol, Chemical Form, Physical Parameters, Feasibility Study

---

+ Fukushima Fuel and Materials Department (Present affiliation Tokyo Institute of Technology)

目次

1. はじめに ---------- 1
2. 蒸気種及びエアロゾル化学形評価に関する検討---------- 2
2.1 蒸気種及びエアロゾル化学形評価手法の選定---------- 2
2.2 ラマン分光法による試計測---------- 3
2.2.1 目的---------- 3
2.2.2 試計測に使用する試料及び測定条件---------- 3
2.2.3 分析装置---------- 3
2.2.4 化学種の特定可能性評価結果---------- 4
2.2.5 温度依存性評価結果---------- 4
2.2.6 雰囲気依存性評価結果---------- 4
2.3 高温 X 線回折による試計測---------- 4
2.3.1 目的---------- 4
2.3.2 試計測に使用する試料及び測定条件---------- 4
2.3.3 分析装置---------- 5
2.3.4 分析結果---------- 5
3. エアロゾルの物理的パラメータ評価に関する検討---------- 6
3.1 エアロゾル粒径分布等測定手法の検討---------- 6
3.2 カスケードインパクタを用いた試計測---------- 7
3.2.1 カスケードインパクタ---------- 7
3.2.2 試計測に使用するカスケードインパクタの機種選定---------- 8
3.2.3 エアロゾル発生源の選定---------- 8
3.2.4 FP移行挙動模擬試験装置へのカスケードインパクタの設置---------- 9
3.2.5 カスケードインパクタで回収したエアロゾル試料の分析・評価手順---------- 9
3.3 カスケードインパクタ機能確認試験---------- 10
3.3.1 試験条件---------- 10
3.3.2 試験結果---------- 10
3.4 アルゴン雰囲気試験（Run1）の試験後分析結果---------- 11
3.4.1 カスケードインパクタからの試料の取出し---------- 11
3.4.2 カスケードインパクタで捕集したエアロゾル試料の SEM-EDX 観察結果---------- 11
3.4.3 カスケードインパクタで捕集したエアロゾル試料の X 線回折結果---------- 13
3.4.4 温度勾配管に付着した蒸気種の沈着プロファイル---------- 13
3.4.5 アルゴン雰囲気試験のまとめ---------- 13
3.5 空気雰囲気試験（Run2）の試験後分析結果---------- 14
3.5.1 カスケードインパクタからの試料の取出し---------- 14
3.5.2 捕集したエアロゾル試料の SEM による観察結果---------- 14

3.5.3 カスケードインパクタで捕集したエアロゾル試料の X 線回折結果---------- 16
3.5.4 空気雰囲気試験のまとめ---------- 16
4. まとめ---------- 17
謝辞 ---------- 18
参考文献 ---------- 18

Contents

1. Introduction ---- 1
2. Investigation for estimation methods of vapor/aerosol's chemical forms ---- 2
2.1 Selection of estimation methods of vapor/aerosol's chemical forms ---- 2
2.2 Trial measurement using a Raman spectroscopy ---- 3
2.2.1 Objective ---- 3
2.2.2 Test sample and condition for trial measurement ---- 3
2.2.3 Analyzer ---- 3
2.2.4 Evaluation results of availability for estimation of chemical forms ---- 4
2.2.5 Evaluation result of temperature dependency ---- 4
2.2.6 Evaluation result of atmosphere dependency ---- 4
2.3 Trial measurement using a high temperature X-ray diffraction method ---- 4
2.3.1 Objective ---- 4
2.3.2 Test sample and condition for trial measurement ---- 4
2.3.3 Analyzer ---- 5
2.3.4 Evaluation results ---- 5
3. Investigation for estimation method of aerosol physical parameters ---- 6
3.1 Selection of estimation method of aerosol physical forms ---- 6
3.2 Trial measurement using a cascade impactor ---- 7
3.2.1 Cascade impactor ---- 7
3.2.2 Model selection for a trial measurement ---- 8
3.2.3 Selection of aerosol generator ---- 8
3.2.4 Installation of a cascade impactor to the aerosol generator ---- 9
3.2.5 Analyzing and estimation method for collected aerosol using cascade impactor --- 9
3.3 Performance confirmation test of an installed cascade impactor ---- 10
3.3.1 Test condition ---- 10
3.3.2 Test results ---- 10
3.4 Post-test analysis results of argon atmosphere test (Run 1) ---- 11
3.4.1 Sample collection from a cascade impactor ---- 11
3.4.2 Observation results using SEM-EDX ---- 11
3.4.3 Analyzing results of X-ray diffraction ---- 13
3.4.4 Aerosol's adhering condition to a thermal gradient tube ---- 13
3.4.5 Conclusion of argon atmosphere test ---- 13
3.5 Post-test analysis results of air atmosphere test (Run 2) ---- 14
3.5.1 Sample collection from a cascade impactor ---- 14
3.5.2 Observation results using SEM-EDX ---- 14

3.5.3 Analyzing results of X-ray diffraction ---------- 16
3.5.4 Conclusion of argon atmosphere test ---------- 16
4. Summary ---------- 17
Acknowledgements ---------- 18
References ---------- 18

図リスト

図 2.1　CsI のラマンスペクトル（室温、窒素雰囲気）---------- 26
図 2.2　CsOH－水和物のラマンスペクトル（室温、窒素雰囲気）---------- 26
図 2.3　CsB_3O_5 水酸化セシウムのラマンスペクトル（室温、窒素雰囲気）---------- 27
図 2.4　CsOH－水和物のラマンスペクトル（500℃、窒素雰囲気）---------- 27
図 2.5　試計測に使用した Cs 化合物のラマンスペクトル(窒素雰囲気)---------- 28
図 2.6　CsOH－水和物のラマンスペクトル（室温、大気雰囲気）---------- 28
図 2.7　X 線回折結果（2 次元画像）---------- 29
図 2.8　1 次元に変換した X 線回折パターン（室温→1300℃→室温）---------- 30
図 3.1　カスケードインパクタ概要---------- 31
図 3.2　FP 移行挙動模擬試験装置の概要---------- 32
図 3.3　改造後の FP 移行挙動模擬試験装置のフローシート---------- 32
図 3.4　ステージ 1 粒径測定結果(Run1、サンプル数：81)---------- 33
図 3.5　ステージ 2 粒径測定結果(Run1、サンプル数：44)---------- 33
図 3.6　ステージ 3 粒径分布測定結果(Run1、サンプル数：91)---------- 34
図 3.7　捕集板 1 の EDX による面分析結果（Run1）---------- 34
図 3.8　捕集板 2 の EDX による面分析結果（Run1）---------- 35
図 3.9　捕集板 3 の EDX による面分析結果（Run1）---------- 35
図 3.10　捕集板 1 の EDX による点分析結果（Run1）---------- 36
図 3.11　各捕集板の X 線回折結果（Run1）---------- 37
図 3.12　サンプリング管内面の X 線回折結果（Run1）---------- 37
図 3.13　温度勾配管への蒸気種の沈着プロファイル（Run1）---------- 38
図 3.14　アルゴン雰囲気試験時のエアロゾルの粒径分布(Run1、サンプル数：計 216)----- 38
図 3.15　ステージ 1 測定結果(Run2、サンプル数：79)---------- 39
図 3.16　ステージ 2 測定結果(Run2、サンプル数：154)---------- 39
図 3.17　ステージ 3 測定結果(Run2、サンプル数：48)---------- 40
図 3.18　捕集板 1 の EDX による面分析結果（Run2、破片状物質が主体の視野）---------- 40
図 3.19　捕集板 1 の EDX による面分析結果(Run2、粒状物質が主体の視野)---------- 41
図 3.20　捕集板 2 の EDX による面分析結果（Run2）---------- 42
図 3.21　捕集板 3 の EDX による面分析結果（Run2）---------- 43
図 3.22　捕集板の X 線回折結果（Run2）---------- 44
図 3.23　空気雰囲気試験時のエアロゾルの粒径分布(Run2、サンプル数：281)---------- 44

写真リスト

写真 3.1　選定したカスケードインパクタ外観---------- 45
写真 3.2　カスケードインパクタのステージ分解図---------- 45
写真 3.3　FP 移行挙動模擬試験装置の概要(改造前)---------- 46
写真 3.4　カスケードインパクタ設置後の試験装置の概要(改造後)---------- 46
写真 3.5　内部が黄色に変色したバイパス側タイゴンチューブ---------- 47
写真 3.6　試験中の温度勾配管及びカスケードインパクタの表面温度----------47
写真 3.7　グローブボックス内に搬入した様子---------- 48
写真 3.8　各ステージを取り外した状態---------- 48
写真 3.9　各ステージにおける分級ノズルの閉塞状況と捕集板への試料の付着状況(Run1)--- 49
写真 3.10　1000 倍観察図（Run1、ステージ 1）---------- 50
写真 3.11　3000 倍観察図（Run1、ステージ 1）---------- 50
写真 3.12　10000 倍観察図（Run1、ステージ 1）---------- 50
写真 3.13　1000 倍観察図（Run1、ステージ 2）---------- 50
写真 3.14　3000 倍観察図（Run1、ステージ 2）---------- 50
写真 3.15　10000 倍観察図（Run1、ステージ 2）---------- 51
写真 3.16　1000 倍観察図（Run1、ステージ 3）---------- 51
写真 3.17　3000 倍観察図（Run1、ステージ 3）---------- 51
写真 3.18　10000 倍観察図（Run1、ステージ 3）---------- 51
写真 3.19　捕集板固定治具への捕集板のセット状況---------- 52
写真 3.20　気密試料台への捕集板の組み込み状況---------- 52
写真 3.21　各ステージにおける分級ノズルの閉塞状況と捕集板への試料の付着状況(Run2)-- 53
写真 3.22　1000 倍観察図（Run2、ステージ 1）---------- 54
写真 3.23　3000 倍観察図（Run2、ステージ 1、多面形）---------- 54
写真 3.24　10000 倍観察図（Run2、ステージ 1、多面形）---------- 54
写真 3.25　3000 倍観察図（Run2、ステージ 1、粒子状）---------- 54
写真 3.26　10000 倍観察図（Run2、ステージ 1、粒子状）---------- 54
写真 3.27　1000 倍観察図（Run2、ステージ 2）---------- 55
写真 3.28　3000 倍観察図（Run2、ステージ 2）---------- 55
写真 3.29　10000 倍観察図（Run2、ステージ 2）---------- 55
写真 3.30　1000 倍観察図（Run2、ステージ 3）---------- 55
写真 3.31　3000 倍観察図（Run2、ステージ 3）---------- 55
写真 3.32　10000 倍観察図（Run2、ステージ 3）---------- 56

表リスト

表 2.1　エアロゾル化学形評価手段---------- 19
表 2.2　ラマンスペクトル測定条件---------- 20
表 2.3　測定方法---------- 20
表 2.4　Cs 化合物の主な観測ピーク---------- 20
表 2.5　高温 X 線回折測定条件---------- 20
表 2.6　高温 X 線回折測定方法---------- 21
表 3.1　エアロゾル粒径分布等測定手段---------- 22
表 3.2　カスケードインパクタの各ステージにおけるカットオフ径と分級値---------- 23
表 3.3　測定評価方法の概要---------- 23
表 3.4　試験条件概要---------- 24
表 3.5　各分級ノズルの試験後の閉塞状況（Run1）---------- 24
表 3.6　試験前後におけるサンプリング管の重量変化（Run1）---------- 25
表 3.7　各分級ノズルの試験後の閉塞状況（Run2）---------- 25

This is a blank page.

1. はじめに

ソースターム評価手法の高度化及び福島第一原子力発電所廃止措置に係る研究開発として、シビアアクシデント時の溶融燃料から放出される核分裂生成物（FP）の移行モデルの改良・高度化への適用に向けて、FP の化学挙動解明に向けた基礎基盤研究が実施されている[1)]。

事故時に溶融燃料から放出された高温の FP 蒸気種は、周辺雰囲気（水蒸気、空気、水素等）の状態及び被覆管・制御棒等との高温化学反応などにより、逐次その化学形を変化させながら、原子炉冷却系へ移行して行くと考えられる。そして、比較的低温な領域において冷却され、一旦エアロゾル化した FP については、ほぼその化学形を保ったまま移行して行くと考えられる。

THALES-2 のようなシビアアクシデント進展解析コードでは、溶融燃料からの FP 蒸気種の放出挙動や、移行過程におけるガス状 FP の凝縮・蒸発、化学吸着、エアロゾルへの遷移（エアロゾル形成）及び成長・沈着等の移行挙動について、主に物理モデルに基づく解析が実施されている[2)]。この際に、既往研究において、FP 放出・移行挙動はγ線計測や化学分析結果を用いて元素（核種）ごとに評価されており、その化学形を直接測定したデータが皆無に近いことから、シビアアクシデント進展解析コードでは、蒸気種の化学形とその成分比をあらかじめ設定する、あるいは化学平衡計算に基づいた推定値が使用されており、これらがソースターム評価における不確かさの一因となっている。

FP 移行モデルの改良に向けては、FP 蒸気種の放出からエアロゾルに遷移していく際の一連の化学挙動に係る実験データを採取し、FP 化学反応が優勢となる温度領域を明らかにすることが必要となる。このためには、様々な条件において放出直後やエアロゾルに遷移した際の化学形を評価するだけでなく、その後の化学反応性や反応速度に影響を与えるエアロゾルの形状や粒径分布等の物理的パラメータの相関も評価する必要があり、現在、日本原子力研究開発機構（原子力機構）では、(a)溶融燃料からの FP 蒸気種の放出、(b)FP 蒸気種のエアロゾルへの遷移、(c)構造材等へのエアロゾルの沈着、という各段階に対して、FP の移行挙動に係る実験研究が実施されている。

このうち (a)に係る FP 蒸気種の放出直後の化学形直接測定技術については、示差熱天秤 - 質量分析装置（TG-DTA-MS）やレーザー共鳴イオン化質量分析法（RIMS）を用いたオンライン直接測定技術の開発が進められている[3-4)]。また、(c)に係る沈着エアロゾルの化学形については、照射済み燃料を高周波誘導加熱により 2100℃まで加熱して FP 蒸気種を放出させ、凝縮した蒸気種や、エアロゾルを回収する試験が実施されている[3)]。

これらを踏まえ、本研究では、放出された FP 蒸気種がエアロゾルに遷移していく際、つまり(b)に近い段階での(1) 蒸気種及びエアロゾルの化学形や、(2) その後の化学挙動に影響を与えうるエアロゾル形状等の物理的パラメータの評価に向けて、適用可能な測定技術について広範に調査した。そして、それを踏まえたフィージビリティスタディとして、エアロゾルの性状評価に適用できうる測定技術について試計測を行い、その適用可能性を確認した。

2. 蒸気種及びエアロゾル化学形評価に関する検討

2.1 蒸気種及びエアロゾル化学形評価手法の選定

別途実施されているレーザー共鳴イオン化質量分析法（RIMS）を除いて、現在用いられている測定技術について検討した結果、蒸気種及びエアロゾルの化学形評価手法として、① レーザーブレークダウン法（LIBS)、② ラマン分光法、③ X 線吸収微細構造解析（XAFS)、エアロゾルの化学形評価手法として、④ エアロゾル質量分析法、⑤ X 線光電子分光分析（XPS)、⑥ 高温 X 線回折、が適用できる可能性がある。以下にそれぞれの分析手法の原理や特徴を述べる。

① レーザーブレークダウン法（LIBS)

高出力のレーザー光パルスを集光し、集光位置付近で試料をプラズマ化して試料を励起し、基底準位に戻る際に放射される原子固有の波長の光を測定する技術であり、微量 Na 漏えい検知器への適用が検討されている。本法は、気相に適用でき、特定の成分を選択的に高感度に検出しうると考えられる。

② ラマン分光法

レーザー照射をした際に、分子振動によって入射光とは異なる波長に散乱されるラマン散乱光を分光し、得られるスペクトルから分子レベルの構造を解析する。本法では、固体、液体、気体試料をガラス越しに測定できる可能性がある。しかしながら、ラマンスペクトルのデータベース数が限られていることから、事前に、模擬 FP 物質のラマンスペクトルのデータベースを整備する必要があると考えられる。

③ X 線吸収微細構造解析（XAFS)

X 線照射により、内殻電子の励起に起因する吸収スペクトルから、X 線吸収原子付近の局所構造（原子間距離、配位数、配位原子種など）や、電子状態の分析を行う方法である。非晶質など、X 線回折では検知できない短距離秩序に依存した試料の測定が可能である。

④ エアロゾル質量分析法

キャピラリーチューブでエアロゾルを吸引し、真空中における粒子の飛行時間(TOF)より粒径を、四重極質量分析計により化学組成を調べる方法である。本法では、エアロゾルの化学形と試料の粒径分布を同時に測定できると考えられる。

⑤ X 線光電子分光分析（XPS)

超高真空下で試料に X 線を照射し、光電効果により表面から放出される光電子の運動エネルギーを測定し、そのエネルギーから元素を同定する方法である。本方法では、化学結合状態の違いにより、電子の状態が変わることを利用し、ピーク位置のシフトにより、隣接原子との結合状態を評価できる。

⑥ 高温 X 線回折

高温に保持(最高 1200℃程度)した状態で X 線回折測定を行い、加熱や冷却によって結晶構造に変化があるかを調べる方法であり、結晶性物質の化学形を同定するのに有効である。雰囲気についても、腐食性ガスなどを除き、空気、不活性雰囲気などを選定できる。

それぞれの分析方法の名称、長所、短所、In-situ 測定の可能性及び本評価への適用可能性の総合判定結果をまとめたものを表 2.1 に示す。これらの方法の中で、レーザーブレークダウン法（LIBS)、ラマン分光法及びエアロゾル質量分析法については、In-situ 測定に適用できる可能性が高いと考えられる。このうちレーザーブレークダウン法（LIBS）については、試料をプラズマ化するため、複数の化合物の混合物を測定する場合、どの物質同士が結合していたかという化学形態の情報が失われると考えられるため、本試験に適用できないと判断した。一方、X 線吸収微細構造解析（XAFS)、エアロゾル質量分析及び X 線光電子分光分析（XPS）を実施するためには、大規模な実験環境整備が必要であり、模擬 FP 等の高温域での化学形が全く分からない状況下で設備投資を行うことは費用対効果比の観点でリスクがある。

これらの検討を踏まえ、既存分析装置をそのまま活用でき、① 蒸気種及びエアロゾルについて in-situ 測定ができる可能性があるラマン分光法、② 結晶性物質の化学形の特定に有効な高温 X 線回折を用いて試計測を行い、その妥当性を確認することとした。

2.2 ラマン分光法による試計測

2.2.1 目的

ラマン分光法は、物質に光を照射すると、ごく少量（1×10^{-6} 程度）の光が入射光と異なる波長に散乱される現象（ラマン効果）を利用し、物質の分子構造を調べる方法である。ラマン分光法では容器越しに試料を測定できるので、将来的に、蒸気種や、飛来するエアロゾルを高温のまま in-situ 測定できる可能性がある。

本年度は、その適用可能性を検討するため、代表的な模擬 FP についてラマンスペクトルを測定し、ピークの出現位置の違いにより、化学形を特定できるか確認した。また、高温下においては、試料の赤外線発光によるラマンスペクトルへの影響が考えられたため、1 試料について 500℃まで加熱した試計測を行い、室温同様に化学形を特定可能か、確認を行った。

2.2.2 試計測に使用する試料及び測定条件

試計測に使用する試料としては、原子炉事故時にさまざまな化学形をとると推定されるセシウム化合物（3 種類）を使用した。測定試料及び測定条件は、表 2.2 に示すとおりである。

なお、測定に使用する試料粉末については、リガク（株）製 SmartLab 型 X 線回折装置を用いて不活性雰囲気下で X 線回折を実施し、その化学形に問題のないことを確認した。

2.2.3 分析装置

日本分光（株）製 NRS-7100 型レーザーラマン分光光度計を使用し、表 2.3 に示す測定方法で試計測を実施した。

測定時間については、試料のダメージの有無、蛍光の影響、信号の飽和を観察しながら、試料由来のピークを確認できるレベルで、且つ時間が短い条件を選定したところ、CsI、CsOH、CsB_3O_5の各試料について、それぞれ 90 秒、10 秒、5 秒となった。

2.2.4　化学種の特定可能性評価結果

リファレンスとして測定した CsI、CsOH-水和物、CsB_3O_5 のラマンスペクトル測定結果を図 2.1～2.3 に示し、各試料の主な観測ピークを表 2.4 に示す。

表 2.4 において、試料間の観測ピークの中で、ピーク強度が強く、比較的離れた位置に検出されたピークを指標ピークとして選定した。本結果より、Cs 系化合物のラマンスペクトルは、それぞれ特有の位置にピークを示すことから、化合物の識別が可能であることが分かった(後述図 2.5 参照)。

2.2.5　温度依存性評価結果

500℃で測定した CsI のラマンスペクトル測定結果を図 2.4 に示す。500℃の測定データには、試料の加熱に起因する蛍光による影響がなく、かつ図 2.1 に示す室温測定時のスペクトルとほぼ一致することから、500℃までの加熱による影響はなく、化学形を識別可能であることが明らかとなった。

図 2.1～2.3 に示した室温で測定した Cs 系化合物のラマンスペクトルと、図 2.4 に示した 500℃において測定した CsI のラマンスペクトルを、図 2.5 に合わせて示す。

2.2.6　雰囲気依存性評価結果

今回使用した Cs 系試料の中で、最も潮解性が高い CsOH について、大気雰囲気下でラマンスペクトルを測定した結果を図 2.6 に示す。

測定の結果、試料の吸湿により、指標としていた 3500cm^{-1} 付近の OH のピークが消失しその場所に H_2O 由来のブロードなピークが広がるとともに、1060cm^{-1} 付近に大気中の二酸化炭素との反応により生成した CO_3 塩由来のシャープなピークの増大が確認された。このことより、湿分との接触による試料の潮解の程度を確認できることが示された。

2.3　高温 X 線回折による試計測

2.3.1　目的

高温 X 線回折は、高温に保持した状態で X 線回折を行う手法であり、加熱・冷却により結晶構造が変化するかどうかを調べる方法である。

今回、代表的な模擬 FP について高温 X 線回折を実施し、その適用可能性を検討した。

2.3.2　試計測に使用する試料及び測定条件

試計測に使用する試料としてルテニウムを選定した。従来、ルテニウムは中・低揮発性 FP と考えられてきた [1),5),6)]が、空気混入条件下で高温にさらされた場合、蒸気圧の高い高次酸化物（約 40℃でガス状である RuO_4 など）が生成される可能性が示唆されている [7),8)]だけでなく、チェルノ

ブイリ事故時においては、実際に放射性ルテニウムが他国まで飛来していることが確認されている[9]。一方、ルテニウムを1000℃まで加熱したり、酸素プラズマ中で酸化したりしても、あまり酸化されないという報告もあり[10]、詳細はよく分っていない。

これを踏まえ本試計測では、ルテニウムを空気雰囲気中で加熱し、その結晶構造の変化過程を調べた。試計測条件を表2.5に示す。

2.3.3 分析装置

リガク（株）製RINT TTRⅢ型高温X線回折装置を使用し、表2.6に示す測定方法で試計測を実施した。X線回折では、測定範囲（$2\theta-\theta$）を広範囲に設定する必要があり、必然的に測定時間も長くなる（測定範囲にもよるが、1測定で数分～2時間程度）ため、どの温度において結晶構造が変化したのかを見逃す可能性がある。これを踏まえ、今回の試計測では、2次元検出器（約20degの同時計測可能）を用い、ルテニウム及び二酸化ルテニウムの主要回折ピークが出現する $2\theta-\theta$ ＝約30～50degの範囲を常に観測できるように2次元検出器を42degに固定し、10秒毎に連続測定した。

2.3.4 分析結果

2次元検出器によるX線回折像（2次元画像）を図2.7に示すとともに、2次元画像を1次元画像に変換したX線回折像を図2.8に示す。これらの図において、図中の温度は測定開始時の温度である。

これらの図より、Ruの回折ピークは800℃付近から減少し始め、1300℃でほぼ消失したこと、RuO_2の回折ピークは700℃付近から出現し始め、1300℃付近まで、温度上昇に伴いピーク強度が増大する傾向があることから、Ruが酸化されRuO_2が生成していることがわかる。また、試料の昇降温時において、温度上昇とともにRuの回折ピークが低角度側にシフトし、約1200℃から試料を室温まで降温していくとRuO_2の回折ピークが高角度側にシフトする傾向が見られているが、これらのピークシフトについては温度変化に追従しているように見えることから、試料の熱膨張・熱収縮による格子定数の変化に起因すると考えられる。RuO_2の回折パターン出現後、さらに温度を上げた状態（図2.8の0799.5℃～1300℃）でRuO_2回折ピークの出現位置の明確なシフトが確認されないことから、Ru高次酸化物（約40℃でガス状であるRuO_4など）の生成はないものと推定される。

本試計測の結果から、測定対象とする複数の化合物の主要回折ピークが隣接した位置（$2\theta-\theta$ ＝約20degの範囲）に出る場合、2次元検出器をその位置に合わせて固定しておくことで、非常に短時間でX線回折スペクトルが測定でき、化学形の変化をほぼリアルタイムで観察することができることを確認した。

3. エアロゾルの物理的パラメータ評価に関する検討

3.1 エアロゾル粒径分布等測定手法の検討

現在用いられている測定技術について検討した結果、エアロゾル粒径分布等（粒径分布や、形状）の評価には、① カスケードインパクタ、② エアロゾル質量分析法、③ レーザー回折粒度分布計、④ 光散乱式粒子計測器（OPC）、⑤ 凝縮核計数器（CNC）、⑥ エアロゾル・エレクトロメータ（AE）を適用できる可能性がある。以下にそれぞれの分析手法の原理や特徴を述べる。

① カスケードインパクタ

直線的な空気の流れに対して垂直に捕集板を設置し、慣性衝突を使用してエアロゾルを採取するインパクタを直列に多数重ねた装置である。吸引する空気の流量やノズルの直径を換えることで、捕集できるエアロゾルの大きさを調整できる。また、回収したエアロゾルを化学分析する等して、その化学形を推定できる。

② エアロゾル質量分析法

キャピラリーチューブでエアロゾルを吸引し、真空中における粒子の飛行時間(TOF)より粒径を、四重極質量分析計により化学組成を調べる方法である。本法では、エアロゾルの粒径分布とその化学形を同時に測定できると考えられる。

③ レーザー回折粒度分布計

粒子群にレーザー光を当て、回折・散乱光の強度分布パターンより、粒度分布を求める方法である。本法は、測定できる粒径範囲が 10nm～5000μm 程度と広い特徴がある。

④ 光散乱式粒子計測器（OPC）[11)]

エアロゾル流に強い光を照射し、個々の粒子が発するパルス状散乱光を検出し、パルス数から粒子数を、パルス高さから粒径を得る方法である。測定可能な粒子は概ね 0.1μm 以上であり、粒径の小さなエアロゾルは測定できない。

⑤ 凝縮核計数器（CNC）[11)]

凝縮により粒子を成長させて検出することにより、光散乱法による粒子検出をより小さな粒子まで適用できるようにしたもの。数 nm 以上の粒子の粒径分布を測定できると考えられる。

⑥ エアロゾル・エレクトロメータ（AE）[11)]

エアロゾル気体中の荷電粒子をフィルタで捕集し、捉えられた電荷量を測定することにより粒径を求める方法である。

それぞれの測定装置の名称、長所、短所、In-situ 測定の可能性及び、本評価への適用可能性の総合判定結果をまとめたものを表 3.1 に示す。これらの方法の中で、凝縮核計数器（CNC）につ

いては、粒子の凝縮過程で粒径の情報が失われること、エアロゾル・エレクトロメータ（AE）についてはエアロゾルの帯電量、極性が既知でなければならないことから、本試験に適用できないと考えられる。また、光散乱式粒子計測器（OPC）については、in-situ 測定に利用できる可能性はあるが、粒径の小さな粒子の測定には不向きである。さらに、エアロゾル質量分析計、レーザー回折粒度分布計を導入するためには、大規模な実験環境整備が必要であり、模擬 FP 等の高温域での化学形が全く分からない状況下で設備投資を行うことは費用対効果比の観点でリスクがある。

ところで、シビアアクシデント時に溶融燃料から放出される FP 等の蒸気種については、化学形によってその蒸気圧が異なるため、凝集しエアロゾル化（成長）した際の粒径等の物理形が異なると考えられる。化学形・物理形の異なる粒子をあらかじめに分別して捕集することができれば、その後の観察・分析等も有効かつ効率的に実施できると考えられる。

これらの検討を踏まえ、エアロゾルを粒径別に分離して捕集でき、その粒径分布や化学形等を評価できる可能性のあるカスケードインパクタを用いて試計測を行い、その妥当性を確認することとした。なお、将来的には高温のままサンプリングを目指すが、現在のフィージビリティスタディ段階では取り扱いが容易な室温でサンプリングを行うこととした。

3.2　カスケードインパクタを用いた試計測

3.2.1　カスケードインパクタ

カスケードインパクタは、図 3.1 に示すようにエアロゾル捕集用のインパクタを直列に多段設置した装置である。個々のインパクタは、インパクタ本体、分級ノズル、分級ノズルと直角に置かれた捕集板から構成される。インパクタは、エアロゾル粒子を含むサンプリングガスを分級ノズルに通して高流速化し、捕集板に向けて直線的に放出させ、エアロゾル粒子の大きさに基づく慣性力の差異を利用してエアロゾルを分別・捕集する装置である。インパクタにおいて捕集効率が 50%になるときの粒子の粒径（D_{p50}）はカットオフ径と呼ばれ、下式(1)で表される。

$$D_{p50} = \sqrt{\frac{9\mu \mathrm{W} Stk_{50}}{\mathrm{C_c}\rho_p V}} \quad \cdots\cdots\cdots\cdots\cdots\cdots (1)$$

ここで、μ はサンプリングガスの粘性計数、W は分級ノズル直径、Stk_{50} は Stokes 数、Cc はカニンガムのスリップ補正係数、ρ_p はエアロゾルの密度、V は分級ノズル通過時の流速である。なお、カットオフ径（D_{p50}）は空気動力学径[1]で表される。(1)式よりインパクタで捕集できるエアロゾルの粒径は、供給するサンプリングガスの流量や分級ノズル径（つまり分級ノズル通過時のガスの流速）を変えることにより調整できる。

1　空気動力学径

大気中を浮遊する粒子はさまざまな形をしているため、その幾何学的なサイズを定義することは難しいため、ある粒子が密度 1g/ cm^3 の球形粒子と同じ空気力学的挙動をする場合、そのサイズを密度 1g/ cm^3 の球形粒子の直径で代表させて表し、空気動力学径と呼ぶ。

カスケードインパクタでは、上流側のステージから下流側のステージに向けて順番にインパクタの分級ノズル穴径が小さくなるように設計されており、上流側から順に大きな粒子を捕集し、粒径ごとに粒子を分離可能な装置である。

ただ、前述のとおり、分級ノズル通過時のサンプリングガスの流速が変化した場合、捕集できるエアロゾルの粒径が変わってくるため、カスケードインパクタの運転にあたっては、常に設計流量のサンプリングガスをカスケードインパクタに供給できるよう正確に制御する必要がある。

3.2.2 試計測に使用するカスケードインパクタの機種選定

後述のエアロゾル発生源となる試験装置との適合性を勘案の上、試計測に使用するカスケードインパクタとして、東京ダイレック（株）製パーティクルサンプラ―MPS-3L を選定した（写真 3.1 参照)。本カスケードインパクタのステージ（インパクタ）数は 3 段であり、回収したエアロゾルは粒径ごとに最大で 3 段階にしか分離できないが、①サンプリングガス流量が 0.24NL/min と低流量で設計されており(大半の製品は 10～28NL/min と高流量向け)、エアロゾル発生源となる試験装置への接続が容易であること、また最大の特徴として、②回収した試料が走査型電子顕微鏡－エネルギー分散型 X 線分光法（SEM-EDX）での分析に適していること、から選定した。

SEM-EDX では、走査型電子顕微鏡（SEM）として粒子の形状・粒径を観察できるだけでなく、エネルギー分散型 X 線分光法（EDX）の機能を用いて各元素組成の分布を測定できる。つまり、本カスケードインパクタと SEM-EDX を組み合わせて使用することにより、第 1 章で重要項目に挙げた 3 項目（化学形、粒径（分布)、形状）の全てについて基礎的知見を得られる可能性がある。

本カスケードインパクタには、SEM-EDX での観察・分析に適するよう、試料の帯電による観察像のゆがみを防止するため、平滑で伝導性に優れ、かつ EDX に対しバックグラウンドの低い黒鉛（高純度カーボン）製両面テープを貼り付けたアルミ捕集板が採用されている（写真 3.2 参照)。また、試験後、回収した捕集板をそのまま支持台に乗せるだけで、前処理等無しに SEM-EDX で観察できる点は、試料の損失・変質防止に適している。

エアロゾル密度を 1g/cm^3 と仮定すると、規定流量で本カスケードインパクタを使用した際の各ステージにおけるカットオフ径、分級値（つまり各ステージで捕集される粒径の範囲）は、表 3.2 に示すようになる。

3.2.3 エアロゾル発生源の選定

本試験の実施にあたり、エアロゾル発生源として、シビアアクシデント環境を模擬した条件下においてFP移行挙動に係るデータを効率的に取得できるよう、非放射性試料（模擬FP等）を用いた試験を実施するために整備された、福島燃料材料開発部燃料試験課（AGS）所掌のFP移行挙動模擬試験装置(FP-Chem)[3)]を使用することとした。FP移行挙動模擬試験装置の概要を写真3.3に示す。本装置は試料を加熱するための加熱炉、シビアアクシデント時の一次冷却系から格納容器までの温度条件を模擬した温度勾配管、生成したエアロゾルを捕集するための焼結金属フィルタからなる。

加熱炉内のルツボに充填された試料は、高周波誘導加熱により最高2000℃まで加熱され、蒸気種となり放出される。放出された蒸気種は、キャリアガスとともに750～150℃の温度勾配をもつ

温度勾配管内を通る際にエアロゾル化し、一部は温度勾配管内部に設置されたサンプリング管内面に沈着する。一方、沈着しなかったエアロゾルは、後段に設置された焼結金属フィルタで捕集される(図3.2参照)。

3.2.4　FP移行挙動模擬試験装置へのカスケードインパクタの設置

FP移行挙動模擬試験装置の温度勾配管直上に設置される焼結金属フィルタを取り外し、そこにカスケードインパクタを設置した。ガス流路の屈曲によるエアロゾルの沈着・損失を防止するため、温度勾配管の直上にカスケードインパクタを設置した（写真3.4参照）。なお、この方法ではカスケードインパクタを天地逆に設置することとなり、通常の捕集板ではエアロゾルを捕集板上に保持できない。このため、今回、SEM-EDXによる観察・分析では黒鉛（高純度カーボン）製両面テープをアルミ捕集板（写真3.2参照)に貼付し、捕集板に衝突したエアロゾルをテープの粘着力で保持させることとした。

エアロゾルの生成・成長挙動は、蒸気種が移行して行く経路の雰囲気、温度、流量等の熱流動条件により決まると考えられる。このため、カスケードインパクタを用いたエアロゾル捕集試験結果と焼結金属フィルタを用いた過去の試験結果を比較する場合、エアロゾル捕集にあたっては装置経路における熱流動条件を変化させないことが前提となる。また、第3.2.1項で述べたように、カスケードインパクタで捕集できるエアロゾルの粒径は、サンプリングガス流量により決まるため、カスケードインパクタに供給するキャリアガス流量をカスケードインパクタの設計値に合うように正確に制御する必要がある。

これらを踏まえ、装置経路の熱流動条件を変化させず、カスケードインパクタ内に規定流量のサンプリングガスを流入させるため、温度勾配管直上にバイパスラインを設けて、2台のマスフローコントローラーを有するサンプリング流量制御ユニットを取り付けることとした。これにより、FP移行挙動模擬試験装置のキャリアガス流量（1NL/min）を変えることなく、カスケードインパクタ内に供給されるサンプリングガス流量が規定値となるよう制御可能となった(図3.3参照)。また、本サンプリング流量調整ユニットの採用により、熱流動条件を変えた試験を行う（過去の試験結果と直接比較しない）場合には、カスケードインパクタ内に供給されるサンプリングガス流量を規定値に保ったまま、バイパスラインに流すサンプリングガス流量を制御することにより、サンプリングガス流量を0.24(カスケードインパクタの設計流量)～2.24L/minの範囲で設定でき、様々な流量での試験が可能となった。

試験終了後からエアロゾルの観察・分析を行うまでの間、捕集したエアロゾルの組成等を変化させないようにするため、カスケードインパクタの前後にボールバルブを設置し、カスケードインパクタ内を不活性雰囲気に保てるようにした。

3.2.5　カスケードインパクタで回収したエアロゾル試料の分析・評価手順

試験実施後、カスケードインパクタ内部を不活性雰囲気に保ったまま試験装置より取り外し、グローブボックス（窒素雰囲気、酸素・湿分濃度とも＜0.5ppm)、内に運搬する。グローブボックス内で、カスケードインパクタの各ステージから捕集板を取出し、重量を測定し、試験前後の重量変化より各階層におけるエアロゾル付着量を求めた。捕集板上には、分級されたエアロゾル試

料が粉末状で堆積していると期待されることから、各捕集板を SEM-EDX で観察し、各ステージにおけるエアロゾルの粒径や形状、エアロゾル構成元素の定性分析を行った。SEM 観察後、不活性雰囲気下で X 線回折（XRD）を実施しその結晶構造を確認した(表 3.3 参照)。

3.3 カスケードインパクタ機能確認試験

3.3.1 試験条件

カスケードインパクタを用いた試料捕集、SEM-EDX を用いたエアロゾル性状評価の適用性を確認するため、アルゴン雰囲気と乾燥空気雰囲気下で計 2 回機能確認試験を実施した。その試験条件を表 3.4 に示す。

アルゴン雰囲気試験（Run1）では、前述の試験目的に加え、カスケードインパクタを設置したことによる試験装置におけるエアロゾル生成・成長挙動への影響を調査した。このエアロゾルの生成･成長挙動は､加熱により放出された蒸気種が移行していく場の熱流動条件に影響を受ける。もし、蒸気種の通路となる温度勾配管内の熱流動に変化があれば、温度勾配管内で試料が沈着する温度とその沈着量の分布状況（以下、付着プロファイルと呼ぶ）に変化が生じるはずである。これを踏まえ、本試験では、従来、FP 等放出移行模擬実験装置を用いて実施された試験条件と同一条件(最高加熱温度・昇温速度、キャリアガスの種類・流量、試料の材質)で試験を実施し、カスケードインパクタ設置による試験装置内熱流動条件への影響の有無を調べることとした。

なお､試験時に生成されたエアロゾルによるカスケードインパクタの分級ノズルの閉塞を防止するため、試験装置に充填する試料量は少なく（約 65mg）した。機能確認試験では、キャリアガスを 1NL/min で供給し、3℃/min の速度で昇温を行なった。そして、温度勾配管上部から排出されるキャリアガスの一部（0.24NL/min）をカスケードインパクタに通して、そこに含まれるエアロゾルの捕集を試みた。

乾燥空気雰囲気試験（Run2）では、CsI 等の蒸発物質の沈着時の組成の変化を確認するため、乾燥空気雰囲気下、最高加熱温度 1900℃の試験を実施した。なお、本試験装置の加熱炉内に設置される加熱容器とルツボの材質はいずれもタングステン製であり、空気雰囲気での使用によるタングステンの酸化・破損を防止するため、今回の試験では、タングステン製加熱容器内部にアルミナ製内容器を設置するとともに、アルミナ製るつぼを使用した。

3.3.2 試験結果

アルゴン雰囲気試験(Run1)では、加熱炉内温度が 1700℃に到達した約 3 分後に、カスケードインパクタ内キャリアガス流量がほぼ 0 となり、サンプリング流量調整ユニットで制御不可能となったことから、この時点でエアロゾル回収を終了した。

カスケードインパクタについては、各ステージ（インパクタ）間を O リングでシールしているため、試験運転時にその使用温度を 40℃程度以下にする必要がある。また、試験時においてバイパスラインに使用しているタイゴンチューブの内側が黄色に変色する現象が見られた(写真 3.5 参照)。この原因を調べるため、試験時の温度勾配管及びカスケードインパクタ付近の表面温度をサーモグラフィで計測したが、カスケードインパクタ、タイゴンチューブの温度に有意な上昇は見られなかった（写真 3.6 参照)。

空気雰囲気試験(Run2)では、昇温途中の加熱炉内温度が 1050℃となった段階で、カスケードインパクタ内キャリアガス流量が 0.1NL/min 以下となったため、その時点でエアロゾルの回収を終了した。

3.4 アルゴン雰囲気試験（Run1）の試験後分析結果

3.4.1 カスケードインパクタからの試料の取出し

試験後、カスケードインパクタ内を不活性雰囲気（アルゴン）に保ったまま、FP 移行挙動模擬試験装置から取り外し、グローブボックス内に搬入した。この際、グローブボックス前段の導入チャンバー内で、カスケードインパクタ内を真空引きし、グローブボックス内の酸素・湿分濃度が大きく変動しないようにした。続いて、グローブボックス内でカスケードインパクタを分解し、各ステージを取り外した（写真 3.7、3.8 参照)。

ステージ１から順番に捕集板を取り外し、捕集板へのエアロゾルの付着状況、各ステージに設置されている分級ノズルの閉塞状況を目視確認した。

各捕集板への試料の付着状況と分級ノズルの閉塞状況を表 3.5 及び写真 3.9 に示す。観察の結果、ステージ 2 の分級ノズル（1 穴）と、ステージ 3 の分級ノズル（4 穴）のうち 1 つに閉塞が確認された。また、取り外した捕集板の重量を測定したが、エアロゾル回収量が少なく、試験前後の有意な重量変化は認められなかった。

3.4.2 カスケードインパクタで捕集したエアロゾル試料の SEM-EDX 観察結果

カスケードインパクタに捕集したエアロゾル試料について、SEM を用いて二次電子像観察を行うとともに、EDX にて元素分析を行った。使用機器と、測定条件は以下のとおりである。

使用機器	：日本電子（株）製　JSM-6010PLUS/LA
加速電圧	：15kV
ワーキングディスタンス（WD）	：10ｍｍ
スポットサイズ（SS）	：40

観察にあたって、エアロゾル試料の酸化・潮解等の影響を可能な限り減らすため、カスケードインパクタの取り外しから、SEM-EDX へ試料（捕集板）をセットする直前まで、グローブボックス内で取り扱うことにより、SEM-EDX への試料セット時以外、エアロゾル試料（捕集板）が大気に曝されないようにした。SEM-EDX 観察後、X 線回折を実施することを踏まえ、捕集板表面への導電性膜（Pt-Pd）のコーティングは実施しなかった。

(1) SEM 観察結果

捕集板上には回収されたエアロゾルが山状に堆積しているため、観察にあたっては、高低差の影響でピントの合う領域が少なくならないようにするため、エアロゾル堆積部の裾野付近の平坦な箇所を視野として選択し、1000 倍、3000 倍、10000 倍で観察した。

今回の試験では、エアロゾルの捕集量が多く、エアロゾルが堆積した状態であるため正確に把

握することはできないが、10000 倍で観察した視野を対象に、その領域内に含まれるエアロゾルの一部について、粒径測定を行ない、大まかな粒径分布を求めた。

なお、今回の観察は前述のとおり、捕集板表面への導電性膜のコーティングを行わずに実施したが、懸念されたチャージアップの影響は見られなかった。

① ステージ 1 観察結果

ステージ 1 の 1 視野について 1000 倍、3000 倍、10000 倍での観察結果をそれぞれ写真 3.10～3.12 に、エアロゾルの粒径分布を図 3.4 に示す。観察の結果、エアロゾルの形状は、ほぼ球形で、大きな粒子とともに、小さな粒子、微少な粒子の集合体と考えられる胞子状の物質が多量に捕集されていることがわかる。また、エアロゾルの粒径分布から、大きな粒子の粒径は、2.5～3.2μm 程度で、小さな粒子は、0.2～1.2μm 程度であることがわかった。

② ステージ 2 観察結果

ステージ 2 の 1 視野について 1000 倍、3000 倍、10000 倍での観察結果をそれぞれ写真 3.13～3.15 に、エアロゾルの粒径分布を図 3.5 に示す。観察の結果、エアロゾルが隙間なく堆積していること、堆積状態は完全に平らではなく、一部エアロゾル同士が融着して樹状に成長している様子が確認できた。写真 3.15 よりエアロゾルの形状は、球が押しつぶされたような形状であり、粒径は 0.2～0.9μm 程度の範囲に分布していることがわかった。

③ ステージ 3 観察結果

ステージ 3 の 1 視野について 1000 倍、3000 倍、10000 倍での観察結果をそれぞれ写真 3.16～3.18 に、エアロゾルの粒径分布を図 3.6 に示す。観察の結果、ほぼ球形のエアロゾル粒子の間に微粒状のエアロゾルが多量に捕集されていることがわかる。また、エアロゾルの粒径分布から、粒子の粒径は、0.1～0.9μm 程度であることがわかった。

(2) EDX によるマッピング結果

① 面分析結果

各ステージに回収したエアロゾル試料について、組成のばらつきを確認するため、10000 倍の観察像について、EDX による面分析を行った。その結果を図 3.7～3.9 に示す。

これらの図から、いずれの場所においてもセシウムとヨウ素は同様に分布しており、場所による組成の違いは見られなかった。また、ヨウ素とセシウムの原子比はいずれの箇所においても試料として使用した試薬と同等であったことから、エアロゾルの化学形は加熱により変化せず CsI のままであった。

② 点分析結果

写真 3.12 に示す捕集板 1 について、SEM 像を観察した結果、捕集されている粒子径に違いがあり、またスポンジ状の物質も見られることから、大粒子、小粒子、スポンジ状物質の 3 種類について点分析を行い、組成の差異を調べた。その結果を図 3.10 に示す。本結果より、形状の違いに

よる組成の違いは確認されなかった。

3.4.3　カスケードインパクタで捕集したエアロゾル試料のX線回折結果

SEM観察後、各捕集板を不活性雰囲気に保持できる気密試料台を用いてX線回折を行い、化学形の特定を試みた。X線回折には、リガク(株)製　RINT-2500型X線回折装置を用いた。

試料のセットは、X線回折装置から気密試料台を取り外してグローブボックス中に搬入し、今回製作した捕集板固定治具に捕集板をセットし、これを気密試料台に固定したのち気密試料台を密閉した。このため、測定準備から測定終了までの期間にわたり、エアロゾル試料が大気に触れることはない（写真3.19、3.20参照)。

今回、補集したエアロゾルは非常に量が少なく、捕集板上面に貼られたカーボンテープに起因するハローの影響が強く表れると考えられた。この影響を把握するため、未使用の捕集板についてもX線回折を実施し、バックグラウンドのデータを取得した。バックグラウンド以外の回折ピークが低かったため、高い回折ピークの頭を85%カットした結果を図3.11に示す。本図より、各ステージからCsIの他、同定できないピークが検知された。

3.4.4　温度勾配管に付着した蒸気種の沈着プロファイル

試験後、温度勾配管内にセットしてあるサンプリング管を取出して重量を測定し、試験前後の重量変化（蒸気種の沈着量）を求めた結果を表3.6に示す。また、最も重量変化の大きかった下から5番目のサンプリング管を縦に切断し、サンプリング管内面（蒸気種の沈着部）のX線回折を行った結果を図3.12に示す。本図より沈着物はCsIであることが確認できた。また、各サンプリング管の重量変化の全サンプリング管の重量変化に対する割合の温度履歴（温度勾配管への蒸気種の付着プロファイル）と、カスケードインパクタ設置の有無以外、同様の条件で実施されたCsIを用いた従来の試験結果（最高加熱温度：1700℃、昇温速度3℃/s、温度勾配管温度分布：750～150℃、キャリアガス：Ar-1NL/min）を図3.13に合わせて示す。本図より、従来の試験結果（焼結金属フィルタを使用）、カスケードインパクタを設置した今回の試験結果ともCsIの沈着プロファイルは600～550℃付近に鋭いピークを持ち、その後温度の降下とともに漸減していく同様の傾向を示していることから、カスケードインパクタを設置したことによる試験装置内の熱流動条件への有意な影響がないことを確認した。

3.4.5　アルゴン雰囲気試験のまとめ

今回、カスケードインパクタを用いたエアロゾル捕集試験を実施したところ、カスケードインパクタ（分級ノズル）の閉塞により、試験途中でサンプリングガス流量が低下する現象が見られた。今後試験を実施する際には、カスケードインパクタの閉塞を避けるため、試験時間を短くする、あるいはキャリアガス流量を増やしてエアロゾルを希釈するといった点に留意する必要がある。また、試験途中にバイパスラインのタイゴンチューブが変色した点については、試料以外の蒸気種が沈着している可能性があるため、評価上注意が必要である。

カスケードインパクタを用いて回収したエアロゾルについて、SEMで二次電子像を観察した結果、エアロゾルの形状はほぼ球形であることが分かった。また、EDX分析やX線回折の結果から、

いずれのステージから回収されたエアロゾルについても化学形は CsI であると推定される。この結果を踏まえ、図 3.4～3.6 に示す各ステージから回収されたエアロゾルの粒径分布を合算し、本試験で回収されたエアロゾルの粒径分布をまとめたものを図 3.14 に示す。本図より、CsI エアロゾルの粒径分布は、0.5～0.6μm、2.8～2.9μm あたりにピークを持つ 2 山型分布であることが分かった。

3.5　空気雰囲気試験（Run2）の試験後分析結果

3.5.1　カスケードインパクタからの試料の取出し

試験後、カスケードインパクタを FP 移行挙動模擬試験装置から取外し、Run1 同様にグローブボックス内でカスケードインパクタを分解した。

取り出した捕集板へのエアロゾルの付着状況、各ステージに設置されている分級ノズルの閉塞状況を目視確認した結果を表 3.7 及び写真 3.21 に示す。観察の結果、ステージ 3 の分級ノズル（4 穴）のうち 1 つに閉塞が確認されるとともに、捕集板に貼られたカーボンテープが付着していることが確認された。

分級ノズルと、捕集板の間には、分級粒子径に応じた隙間が設けられていることから、カーボンテープが分級ノズル背面に付着した原因としては、捕集板へのカーボンテープの貼付が平坦でなく、しわ等があったことが原因として推察される。

なお、本試験後においても、取り外した捕集板の重量を測定したが、エアロゾル回収量が少なく、試験前後の有意な重量変化は認められなかった。

3.5.2　捕集したエアロゾル試料の SEM による観察結果

第 3.4.2 項で述べた方法と同一の方法で観察を行った。

(1) SEM 観察結果

① ステージ 1 観察結果

ステージ 1 の状況をまず 1000 倍で観察したところ、破片状物質が多く散乱している中に、少量の粒子状物質が確認されたため、1000 倍に加えて、3000 倍、10000 倍で観察を行った。その観察結果を写真 3.22～3.26 に示す。観察の結果、破片状物質を拡大してみると、表面の一部に粒子状物質が付着していることがわかる。これらの組織写真から計測した結果を踏まえ、粒子状物質のみの粒径分布を求めた結果を図 3.15 に示す。本図より粒子状物質の粒径分布は、0.1～1.7μm 程度であることがわかった。

② ステージ 2 観察結果

ステージ 2 の 1000 倍、3000 倍、10000 倍での観察結果をそれぞれ写真 3.27～3.29 に、エアロゾルの粒径分布を図 3.16 に示す。観察の結果、エアロゾルが隙間なく堆積していること、小さなエアロゾル同士が融着してスポンジ状に成長している様子(写真 3.28 参照)が確認できた。また、その粒径は 0.1～1.5μm 程度の範囲に分布していることがわかった。

③ ステージ 3 観察結果

ステージ 2 の 1000 倍、3000 倍、10000 倍での観察結果をそれぞれ写真 3.30～3.32 に、エアロゾルの粒径分布を図 3.17 に示す。写真 3.32 よりエアロゾルの形状は、球が押しつぶされたような形状であり、大部分の箇所でエアロゾル同士が融着しているように見受けられる。粒の形状がある程度はっきりしている個所において、エアロゾルの粒径を測定したところ、粒径は 0.1～0.7 μm 程度の範囲に分布していることがわかった。

(2) EDX による元素マッピングの結果

各ステージに回収したエアロゾル試料について、組成のばらつきを確認するため、10000 倍の観察像について、EDX による面分析を行った。

① ステージ 1 面分析結果

ステージ 1 については、破片状物質が主体の視野と、エアロゾルが存在する視野の 2 カ所について EDX による面分析を行い、その組成を調べた。その結果を図 3.18～3.19 に示す。

図 3.18 より、破片状物質はアルミニウム、鉄、クロム、酸素から構成されていることがわかる。今回、空気雰囲気下での試験を可能とするため、タングステン製加熱容器の内側にアルミナ製内容器を設置したため、この成分が捕集されたものと推定される。一方、鉄、クロムの由来としては試験装置に使用されているステンレスに起因すると考えられる。ステンレスがキャリアガス（空気）に触れる状態で設置されている個所は、温度勾配管のキャリアガス供給側と、温度勾配管を出てカスケードインパクタに入るまでの配管の 2 箇所であるが、温度勾配管を出てカスケードインパクタに入るまでの配管部の温度は高い所でも数十℃程度であることから、キャリアガスが温度勾配管で加熱され、加熱容器まで供給される際に、ステンレスの酸化によって生じたと推定される。

図 3.19 より、破片状物質はマグネシウム、アルミニウム、酸素から構成されていることがわかる。一方、球状物質（エアロゾル）の組成は、CsI であると考えられる。

② ステージ 2 面分析結果

図 3.20 にステージ 2 の面分析結果を示す。本図より、いずれの場所においてもセシウムとヨウ素は同様に分布しており、場所による組成の違いは見られない。また、セシウムとヨウ素の元素比より、エアロゾルの組成は CsI と考えられる。

③ ステージ 3 面分析結果

図 3.21 にステージ 3 の面分析結果を示す。本図より、いずれの場所においてもセシウムとヨウ素は同様に分布しており、場所による組成の違いは見られない。また、セシウムとヨウ素の元素比より、エアロゾルの組成は CsI と考えられる。

また、その他の成分として塩素が検出されているが、試験装置の構成部材に塩素を含有する材料は使用されていないため、近接する他の元素が誤って検知された可能性がある。塩素の特性 X 線（K 線）の励起電圧は、2.621eV、2.815eV であり、これに近似する励起電圧を持つ元素として、

ルテニウム（L 線 2.558eV、2.683eV)、ロジウム(L 線、2.696eV、2.834eV)があるが、これらの元素が試験中に誤って混入した可能性は低いことから、試験準備から分析に至るまでの期間において、塩素が混入したものと推定される。

3.5.3　カスケードインパクタで捕集したエアロゾル試料の X 線回折結果

Run1 と同様、SEM 観察後に各捕集板について X 線回折を実施した。バックグラウンド以外の回折ピークが低かったため、高い回折ピークの頭を 90%カットした結果を図 3.22 に示す。今回、試料捕集量が少なく、同定できない微少な回折ピークが検知されたものの、CsI は同定されなかった。

3.5.4　空気雰囲気試験のまとめ

今回、カスケードインパクタを用いて回収した試料について、SEM で二次電子像を観察した結果、ほぼ球形のエアロゾルとともに、ステージ 1 において破片状物質が回収されていることが分かった。

EDX 分析の結果、破片状物質の成分はアルミニウム、鉄、クロム、酸素で、試験装置の構成材によると推定されることから、今後、空気雰囲気試験を行う際は試験装置構成材の酸化や、セラミック粉の混入について注意を払う必要がある。また、いずれのステージから回収されたエアロゾルについても EDX の結果から化学形は CsI であると推定された。回収したエアロゾルが単一の化学形であったことから、図 3.15～3.17 に示す各ステージから回収されたエアロゾルの粒径分布を合算し、本試験で回収されたエアロゾルの粒径分布をまとめたものを図 3.23 に示す。

本図より、エアロゾルの粒径分布が、図 3.14 に示すアルゴン雰囲気試験の結果と比べ小さい側に寄っていることがわかる。この原因としては、アルゴン雰囲気試験 1700℃に対し、空気雰囲気試験 1050℃（試験中止時）と加熱温度が低いことから、試料の蒸発量が少なく、結果としてエアロゾルが十分成長しないままカスケードインパクタまで到達したと考えられる。

4．まとめ

シビアアクシデント時に溶融燃料から放出される FP の移行モデルの改良・高度化に資することを目的に、(1) FP 蒸気種及びエアロゾルの化学形や、(2) エアロゾルの物理的パラメータの評価に適用可能な測定技術について調査を実施した。

(1) FP 蒸気種及びエアロゾルの化学形評価に関する検討結果

FP 蒸気種及びエアロゾルの化学形の評価については、(a)ラマン分光法が有望であることがわかった。また、エアロゾルの化学形については(b)高温 X 線回折法も活用できることが確認された。

以下に両分析法の適用可能性評価結果を以下に示す。

(a)ラマン分光法

① 代表的な FP であり、原子炉事故時にさまざまな化学形をとると推定されるセシウム化合物を試料として用い、CsI、CsOH、CsB_3O_5 の 3 種類の化合物について室温で、CsI については室温以外に 500℃に加熱した状態でもラマン分光法による試計測を実施し、これら化合物の化学形を識別可能であることが確認された。

(b)高温 X 線回折

① 高温時の挙動が不明確なルテニウムを試料として用い、空気雰囲気下で高温 X 線回折スペクトル測定を実施するため（最高加熱温度は 1300℃）、加熱試験を行い化学形の変化挙動を調べた。その結果、試料の酸化挙動をうまくとらえられることが確認された。

② 測定対象とする複数の化合物の主要回折ピークが隣接した位置（$2\theta - \theta$ ＝約 20deg の範囲）に存在する場合、2 次元検出器を利用し、検出器を任意の位置に合わせて固定しておくことで、非常に短時間で X 線回折スペクトル測定が実施でき、化学形の変化をほぼリアルタイムで観察することができることが確認された。

(2) エアロゾルの物理的パラメータ評価に関する検討結果

エアロゾルの物理的パラメータ評価に向けては、カスケードインパクタと SEM-EDX の併用が有望であることが確認された。本手法の適用可能性評価結果を以下に示す。

① カスケードインパクタと SEM-EDX を用いて、捕集したエアロゾルの形状・粒径分布、元素組成を確認できる見通しが得られた。

② 今回の試験では、捕集板上にエアロゾルが堆積しており、表層のエアロゾルしか観察できなかったため、正確に粒径分布を把握できなかった。正確に粒径を求めるためには、キャリアガスでエアロゾルを希釈する、測定時間を短くするなどしてカスケードインパクタ内で捕集するエアロゾル量を減らす必要がある。

③ 捕集板上に回収した試料量では、X 線回折、重量測定にはやや不足気味であることが分かった。

謝辞

本研究を行う上で、石ヶ森　俊夫氏にはカスケードインパクタを利用したエアロゾル捕集実験の実施について多大なご協力をいただいた。また、報告書のとりまとめにあたっては、三輪　周平氏に有益な助言をいただいた。ここに感謝の意を表する。

参考文献

1)　三輪周平他：化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチニドの放出挙動評価のための研究, JAEA-Review 2013-034, (2013), pp.12-14.
2) 石川淳他：THALES-2コードによるBWR Mark-IIを対象としたレベル3PSAのための系統的なソースターム解析, JAERI-Research 2005-021, (2005), pp.13-21.
3) 大洗研福島技術開発特別チーム他: BWRシビアアクシデント時のソースターム評価手法高度化のための核分裂生成物化学形評価に関する研究　－平成25年度成果－, JAEA-Technology 2014-014, (2014), pp.13-17, 21.
4) Y. Iwata et al.: A Study on Resonance Ionization Mass Spectrometry of Fission Products Released from Molten Fuel, ANFC2014, (2014), p.31.
5) T. Haste et al.: Transport and deposition in the Phébus FP circuit, Annals of Nuclear Energy, Vol. 61, (2013), pp.102-121.
6) Y. Pontillon et al.: Behaviour of fission products under severe PWR accident conditions VERCORS experimental programme—Part 1: General description of the programme, Nuclear Engineering and Design, Vol. 240, (2010), pp.1843-1852.
7) Vér, N. et al.: Influence of fission products on ruthenium oxidation and transport in air ingress nuclear accidents, Journal of Nuclear Materials, vol. 396, (2010), pp.208-217.
8) C. Ronneau et al. : Oxidation-Enhanced Emission of Ruthenium from Nuclear Fuel, Journal of Environment Radioactivity, vol. 26, (1995) , pp.63-70.
9)　古賀妙子他：チェルノブイリ原子力発電所事故による琵琶湖生態圏における放射性核種の挙動と分布, 近畿大学原子力研究所年報, Vol.44, (2007), pp.7-20.
10)　田辺哲朗：酸化蒸発法による使用済み燃料からの Ru および Mo の回収に係る研究, PNC TJ1605 91-002, (1991), pp.6-8.
11）櫻井博: 粒子の気中個数濃度と粒径分布の計測技術と標準, 産総研計量標準報告 Vol.4, No.1, (2005) , pp.53-63.

表 2.1　エアロゾル化学形評価手段

評価		原理など	長所	短所	総合判定結果	in-situ
外	レーザー共鳴イオン化質量分析法(RIMS)	波長可変のレーザーを用いて、特定の原子・分子のエネルギー準位幅に相当する波長の光子を気体化された試料に照射し、それらを共鳴的に選択励起・イオン化することで、超高感度な元素（あるいは同位体）分析を可能とする(FP ガスモニタリングへの適用検討中)。			高速実験炉部で実施する予定であり、本検討の対象外。	○
×	レーザーブレークダウン(LIBS)	高出力のレーザー光パルスを集光し、集光位置付近で試料をプラズマ化して試料を励起し、基底順位に戻る際に放射される原子に固有の波長の光を測定する（微量 Na 漏えい検知器として適用可能性を検討中)。	・固相、液相、気相に適用できる。 ・特定の微量成分を選択的に高感度に検出しうる。	・測定対象元素と他元素との結合状態（化合物の性状）が分離できない。	× 本試験に適用できないと思われる。	○
○	ラマン分光	レーザー照射をした際に、分子振動によって入射光とは異なる波長に散乱されるラマン散乱光を分光し、得られるスペクトルから分子レベルの構造を解析する。	・溶液、粉末、結晶、気体状態での測定が可能。 ・レーザー光を絞って照射すると、局所的な測定が可能。 ・共焦点光学系を使用すると、埋没した異物や深さ方向の分析が非破壊で可能。	・ラマンスペクトルのデータベース数が限られている。 ・試料により生じた蛍光により妨害を受ける。 ・レーザー照射により試料がダメージを受ける場合がある。	○ ラマンスペクトルのデータ整備から実施することになると想定され、基礎研究的要素が強いが、実施してみる価値がある。	△ 流れるガスへの適用性不明。
×	XAFS	X 線照射により、内殻電子の励起に起因する吸収スペクトルから、X 線吸収原子付近の局所構造（原子間距離、配位数、配位原子種など）や、電子状態の分析が可能。短距離秩序に依存するため、規則相と不規則相の信号を相応に含む。	・固相、液相、気相に適用できる。 ・高温、高圧雰囲気も設定可。 ・感度が高い。	・強い X 線源を必要とする(シンクロトロン放射光施設など)。 ・同種原子からなる混合物は平均的な情報となる。 ・測定は単純だが、解析は複雑。	△ 適用可能性は高いと思われる、実験環境の整備が必要。また、同種原子混合物の影響がどの程度あるか不明。	×
○	エアロゾル質量分析計	真空中における粒子飛行時間(TOF)により粒径を計測し、四重極質量分析計により化学組成を調べる。	・粒径分布測定と、化学形を同時に計測できる。		○ エアロゾル組成と、粒径分布を同時に計測できる。	○
×	X 線光電子分光分析(XPS)	超高真空下で試料表面に X 線を照射し、光電効果により表面から放出される光電子の運動エネルギーを観測し、表面の元素組成や化学状態に関する情報を調べる。	・隣接元素との結合状態を知ることができる。 ・ごく表面（数 nm)の情報を得ることができる。	・液体、揮発性成分を含むものは測定できない。 ・ごく表面を測定するため、汚染の影響を受けやすい。	× 気相には適用できないと思われる。	×
○	高温X線回折装置	試料を加熱した状態でX線回折測定を行い、加熱した際の化合形態や結晶構造の変化を観察する。	・温度を変化させた際（室温～1200℃程度）の化合形態の変化を調べられる。 ・ある程度雰囲気が選べる（空気、不活性雰囲気)。 ・試料が溶融すると XAFS 適用可。	・結晶性のない試料、JPCDS カードが整備されていない試料は特定できない。 ・XAFS 分析を実施する場合、X 線が弱いと時間がかかる。	○ 試料を加熱・冷却した際の化合形態の変化を調べられる。	×

表 2.2　ラマンスペクトル測定条件

調査内容		試料	測定温度（℃）	雰囲気
化学種の特定 可能性評価	Ref	CsI	室温	窒素
	Ref	CsOH		
	Ref	CsB_3O_5		
温度依存性評価	case1	CsI	500	
雰囲気依存性評価	case2	CsOH	室温	大気

表 2.3　測定方法

レーザー波長	532nm
レーザー出力	12.0mW
スリット	100μmφ
対物レンズ	×50
スポット径	2μm
観測領域	4000～145cm^{-1}

表 2.4　Cs 化合物の主な観測ピーク

試料名	観測ピーク（cm^{-1}）	指標
CsI	2614、1342	1342
CsOH－水和物	3490、2835、1053、322	3490
CsB_3O_5	988、953、756、703、658、534、481、399、373、264、197	756、373

表 2.5　高温 X 線回折測定条件

試料	雰囲気	高温測定		
		初期温度（℃）	最高加熱温度（℃）	昇温ステップ（℃）
Ru	空気	室温	1300	30

＊：1300℃でのオーバーシュート防止のため、1280～1300℃は 2℃/min とした。

表 2.6　高温 X 線回折測定方法

X 線源	コバルト（波長 $\lambda_{K\alpha}$＝1.79Å）
X 線管出力	9kW
スリット	発散スリット：0.5mm 発散縦制限スリット：2mm 受光側スリット：なし
θ - 2θ	42deg 固定
検出器	高速半導体 2 次元検出器 (PILATUS)
検出 2θ 範囲	31～53deg
測定時間	10s

表 3.1　エアロゾル粒径分布等測定手段

評価		原理など	長所	短所	総合判定結果	in-situ
◎	カスケードインパクタ	まっすぐな空気の流れに対して垂直に捕集板を設置し、慣性衝突を使用してエアロゾルを採取するインパクターを直列に多数重ねた装置。吸引する空気の流量やノズルの直径を換えることで、捕集できるエアロゾルの大きさを調整。測定可能範囲は 0.03～9μm 程度（製品により異なる）。	・多段化によりエアロゾル径ごとに分取できる。 ・回収したエアロゾルを分析し化学形を推定できうる。	・高温で使用できる製品は、サンプリング流量が高い(10～28L/min 程度。製品により異なる)。	○　エアロゾルの粒径分布を求められる。また、捕集板に付着したエアロゾルの X 線回折分析、化学分析により、化学組成を求められる可能性もあり。	×
○	エアロゾル質量分析計	真空中における粒子飛行時間(TOF)により粒径を計測し、四重極質量分析計により化学組成を調べる。	・粒径分布測定と、化学形を同時に計測できる。		○　エアロゾル組成と、粒径分布を同時に計測できる。	×
○	レーザー回折粒度分布計	粒子群にレーザー光を当て、回折・散乱光の強度分布パターンより、粒度分布を求める。測定可能範囲は 0.01～5000μm 程度。		・媒体中の粒子濃度が高すぎると、多重散乱により信頼性が低下する。	△　実験体系整備して測定まで、時間と多額の予算が必要。	○
○	光散乱式粒子計測器（OPC）	エアロゾル流に強い光を照射し、個々の粒子が発するパルス状散乱光を検出し、パルス数から粒子数を、パルス高さから粒径を得る。測定可能範囲は、0.1～10μm 超。		・粒径の小さい試料は測れない。	△　ＡＧＳのコールド試験の結果を踏まえると測定範囲的に厳しい。	○
×	凝縮核計数器(CPC)	凝縮により粒子を成長させて検出することにより、光散乱法による粒子検出をより小さな粒子まで適用できるようにしたもの。測定可能範囲は 0.003～数μm。		・粒子を成長させて検出するため、粒子の大きさに関する情報が失われる。	×　本試験に適用できないと思われる。	
×	凝縮核計数器(CNC)＋微分型移動度分級装置(DMA)	上記方式に DMA を付加することにより、粒径分布が測定可能になる。			×　一旦凝縮させた粒子から、元の粒径を推定することになるため、検証が困難と思われる。	
×	エアロゾル・エレクトロメータ（AE）	エアロゾル気体中の荷電粒子をフィルターで捕集し、捉えられた電荷量を測定する。測定範囲は 0.001～0.1μm。		・エアロゾルの帯電量、極性が既知でなければならない。	×　本試験に適用できないと思われる。	

表 3.2　カスケードインパクタの各ステージにおけるカットオフ径と分級値

	アルゴン雰囲気		空気雰囲気	
	カットオフ径（μm）	分級値（μm）	カットオフ径（μm）	分級値（μm）
ステージ 1	2.2	＞2.2	2.0	＞2.0
ステージ 2	0.44	0.44～2.2	0.40	0.40～2.0
ステージ 3	0.11	0.11～0.44	0.10	0.10～0.40

表 3.3　測定評価方法の概要

調査項目		捕集板の階層	重量測定	SEM	EDX	XRD
物理形	粒径	○		○		
	形状			○		
	粒径分布	○				
化学形	構成元素・比率				○	
	結晶構造					○

表 3.4　試験条件概要

	アルゴン雰囲気試験 (Run1)	乾燥空気雰囲気試験 (Run2)
試験雰囲気 (キャリアガス)	アルゴン	乾燥空気
最高加熱温度(℃)	1700	1900
昇温速度(℃/min)	3	
模擬 FP 試料	CsI	
試料充填量(mg)	約 65	
キャリアガス流量 (L/min)	1.0	
試験時間 (min)	30	10
加熱容器材質	タングステン	タングステン製加熱容器 ＋アルミナ内容器
ルツボ材質	タングステン	アルミナ

表 3.5　各分級ノズルの試験後の閉塞状況 (Run1)

ステージ	分級粒子径*1 (μm)	分級ノズル		試験後の分級ノズル の閉塞状況
		穴径(mm)	穴数	
1	＞2.2	0.094	1	閉塞無し
2	0.44～2.2	0.031	1	閉塞
3	0.11～0.44	0.012	4	1 カ所閉塞

*1:アルゴンガス中で、サンプリング流量 0.24L/min 時に捕集効率が 50%となる
エアロゾルの大きさ(空気動力学径)。

表 3.6　試験前後におけるサンプリング管の重量変化（Run1）

管番号（上から）	サンプリング管重量（g）		試験前後の重量変化（g）
	試験前	試験後	
1	1.81823	1.81834	0.00011
2	1.81931	1.81948	0.00017
3	1.80299	1.80317	0.00018
4	1.81960	1.82009	0.00049
5	1.81851	1.81931	0.00080
6	1.81775	1.81824	0.00049
7	1.81751	1.81864	0.00113
8	1.80564	1.80813	0.00249
9	1.80528	1.81125	0.00597
10	1.81758	1.82639	0.00881
11	1.80269	1.80323	0.00054
12	1.81799	1.81813	0.00014
13	1.80484	1.80488	0.00004
14	1.80348	1.80351	0.00003
総重量変化（蒸気種沈着量）（g）			0.02139

表 3.7　各分級ノズルの試験後の閉塞状況（Run2）

ステージ	分級粒子径*1（μm）	分級ノズル		試験後の分級ノズルの閉塞状況
		穴径(mm)	穴数	
1	＞2.0	0.094	1	閉塞無し
2	0.40～2.0	0.031	1	閉塞無し
3	0.10～0.40	0.012	4	1カ所閉塞、カーボンテープが一部付着

*1:アルゴンガス中で、サンプリング流量 0.24L/min 時に捕集効率が 50%となるエアロゾルの大きさ(空気動力学径)。

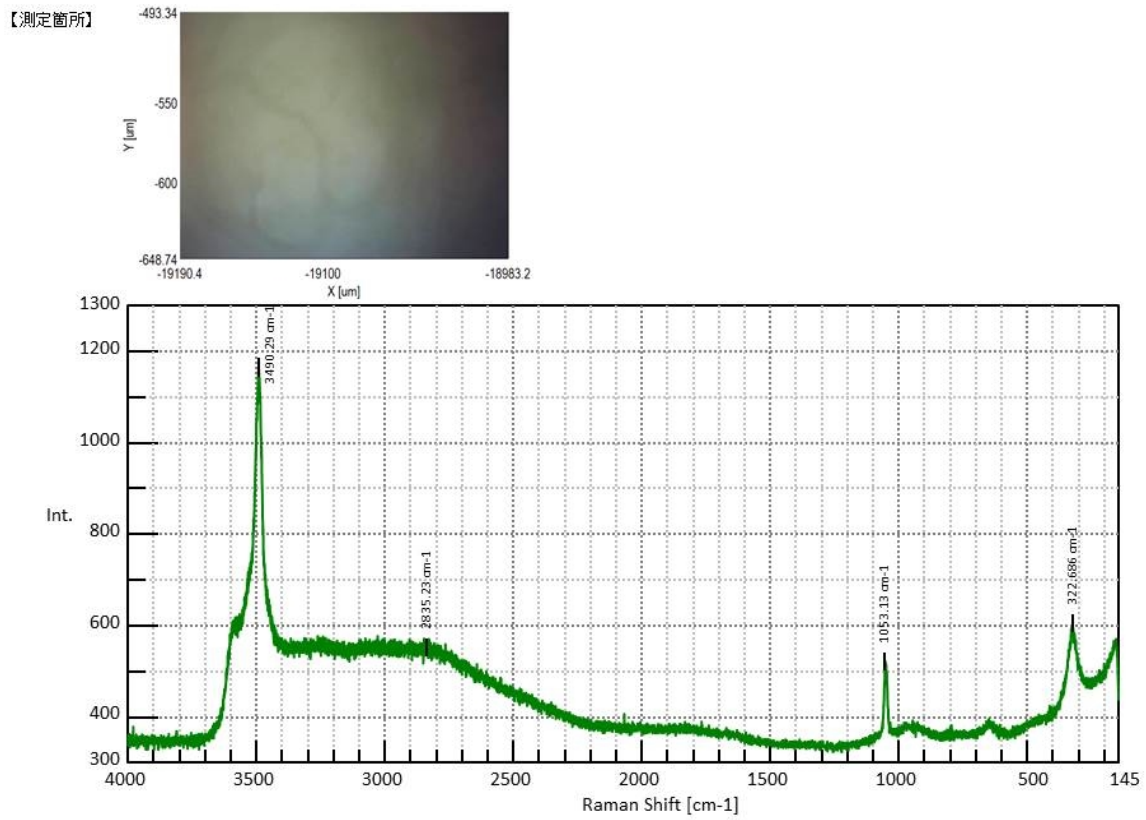


図 2.1　CsI のラマンスペクトル（室温、窒素雰囲気）

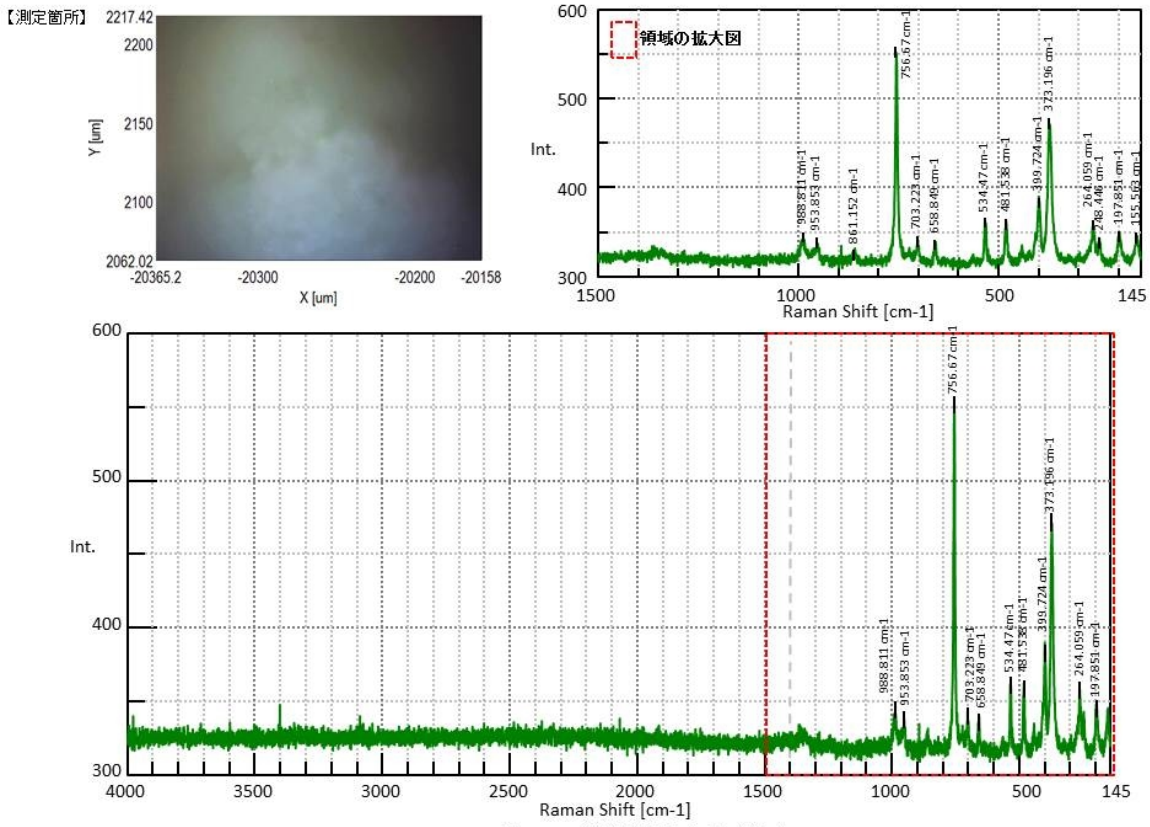


図 2.2　CsOH－水和物のラマンスペクトル（室温、窒素雰囲気）

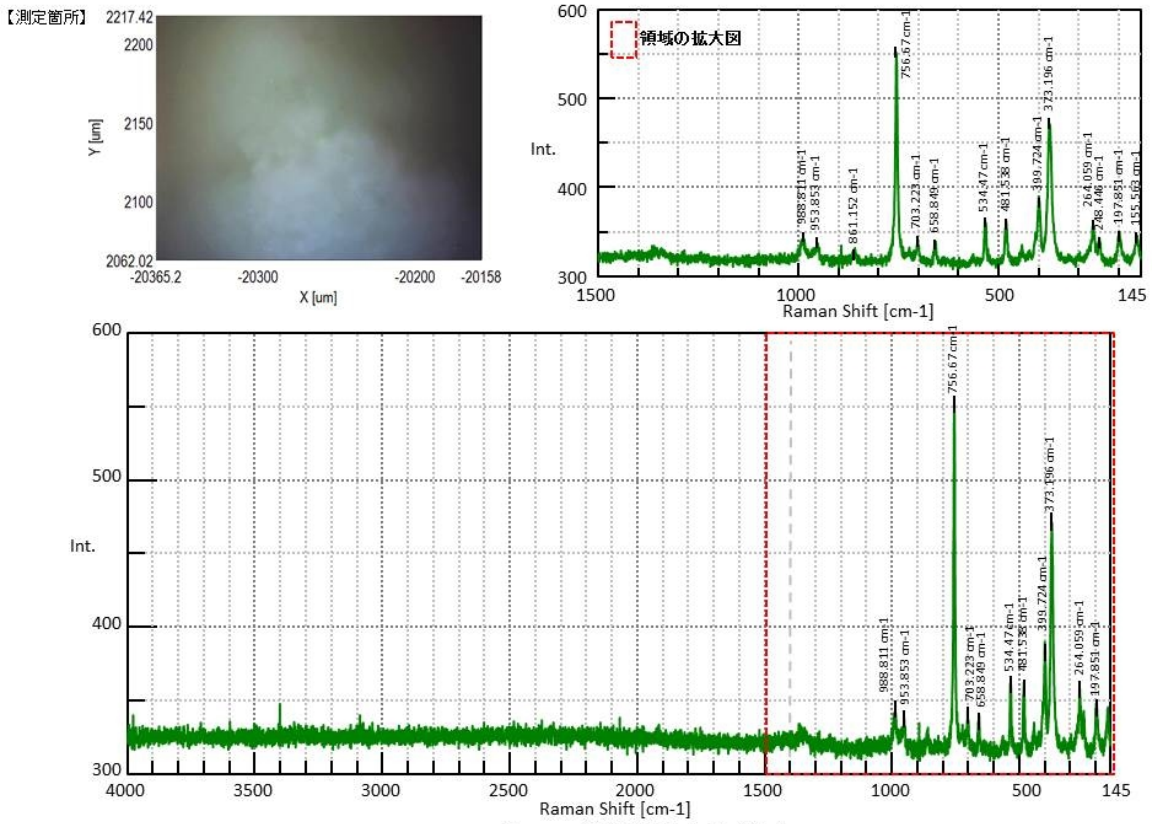


図 2.3　CsB_3O_5 水酸化セシウムのラマンスペクトル（室温、窒素雰囲気）

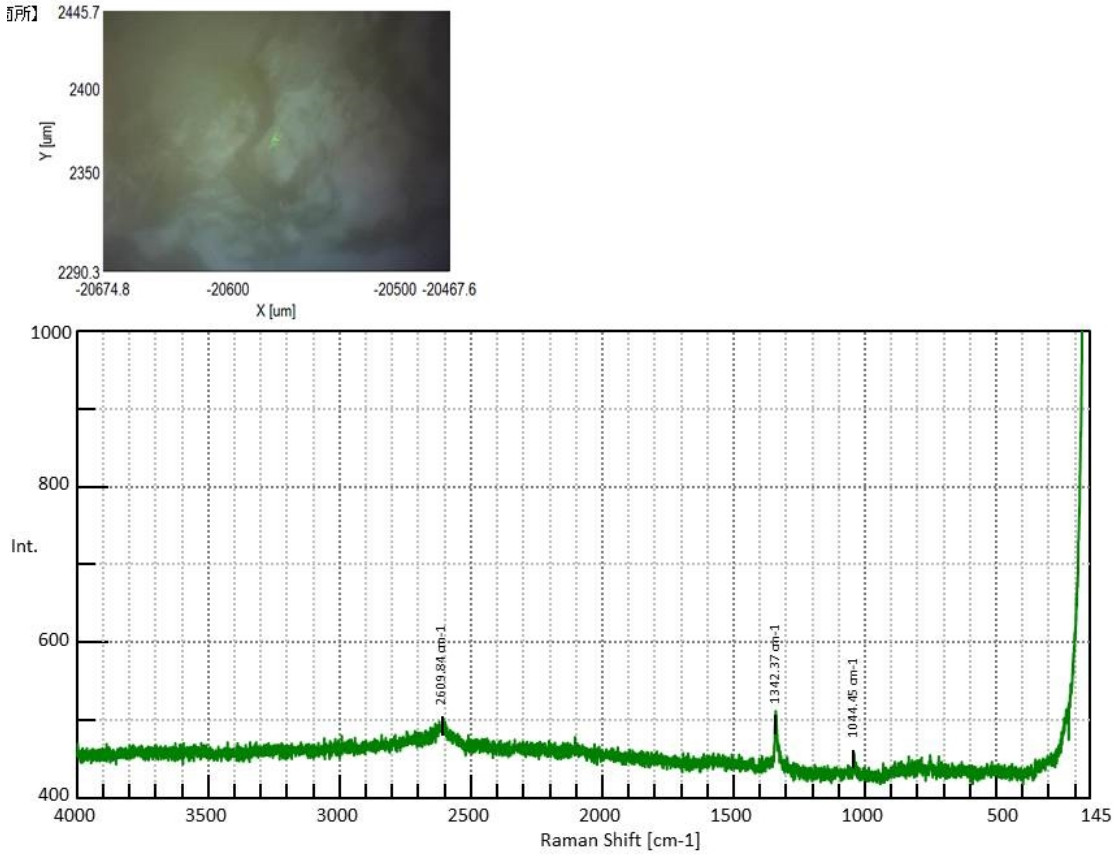


図 2.4　CsOH－水和物のラマンスペクトル（500℃、窒素雰囲気）

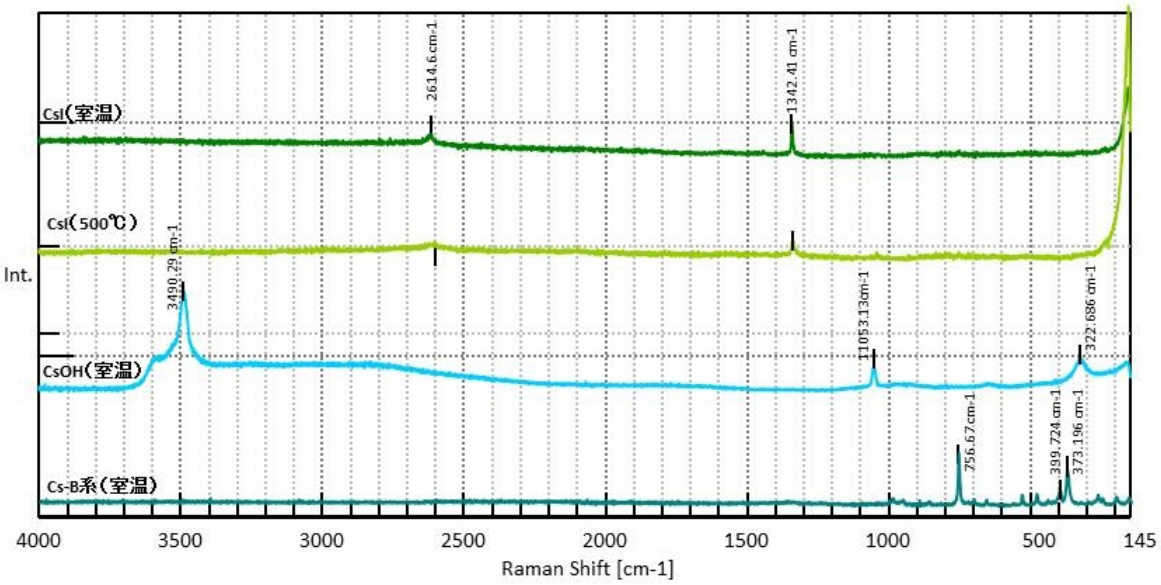


図 2.5　試計測に使用した Cs 化合物のラマンスペクトル（窒素雰囲気）

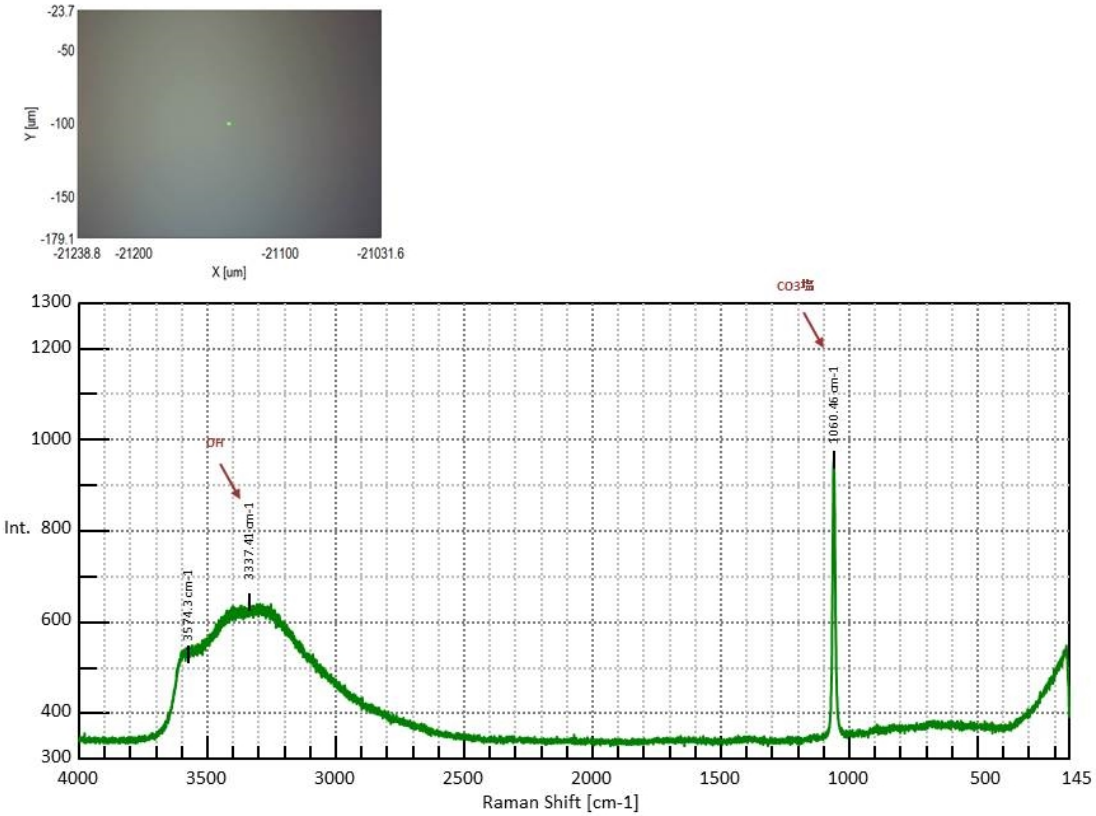


図 2.6　CsOH－水和物のラマンスペクトル（室温、大気雰囲気）

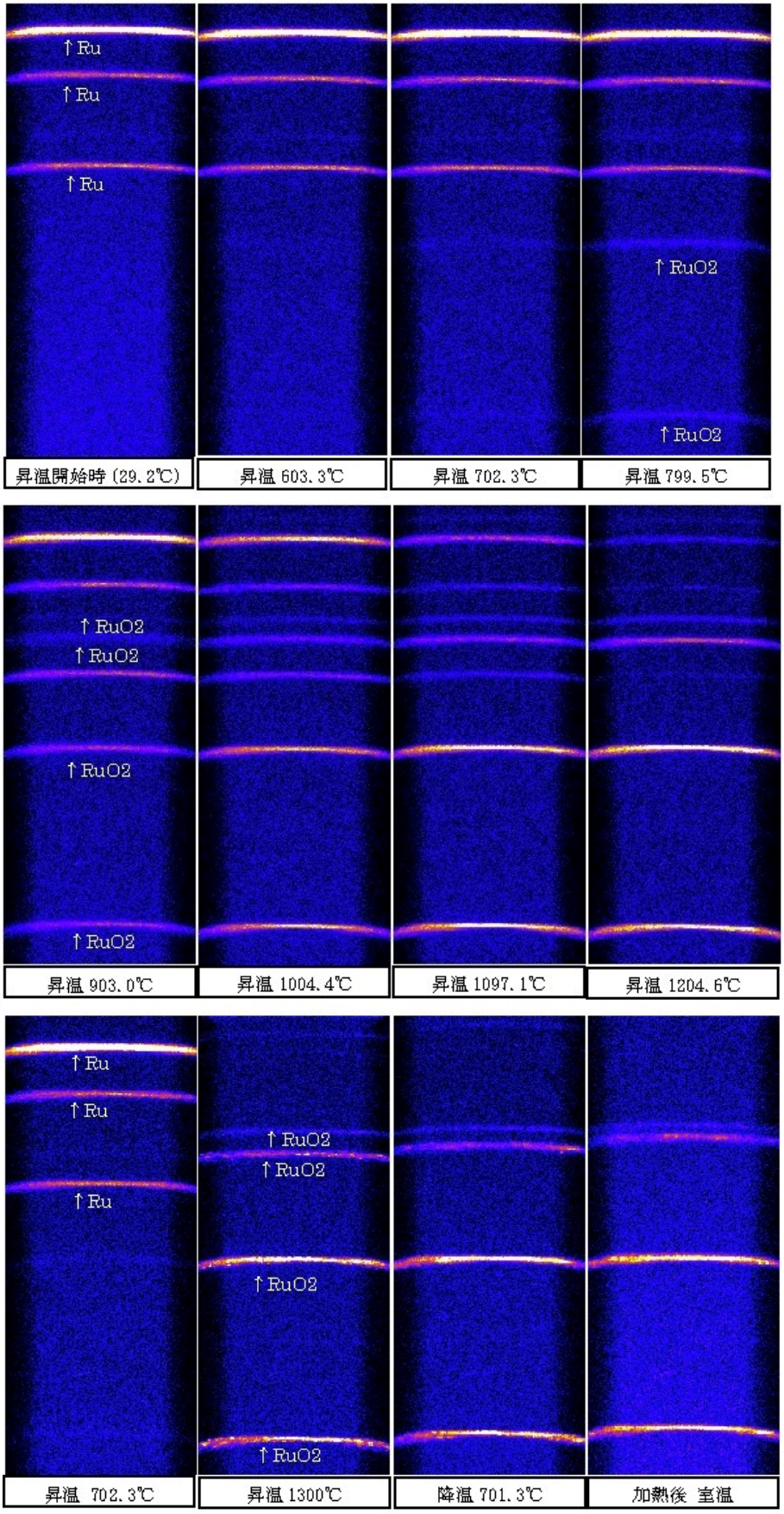


図 2.7　X 線回折結果（2 次元画像）

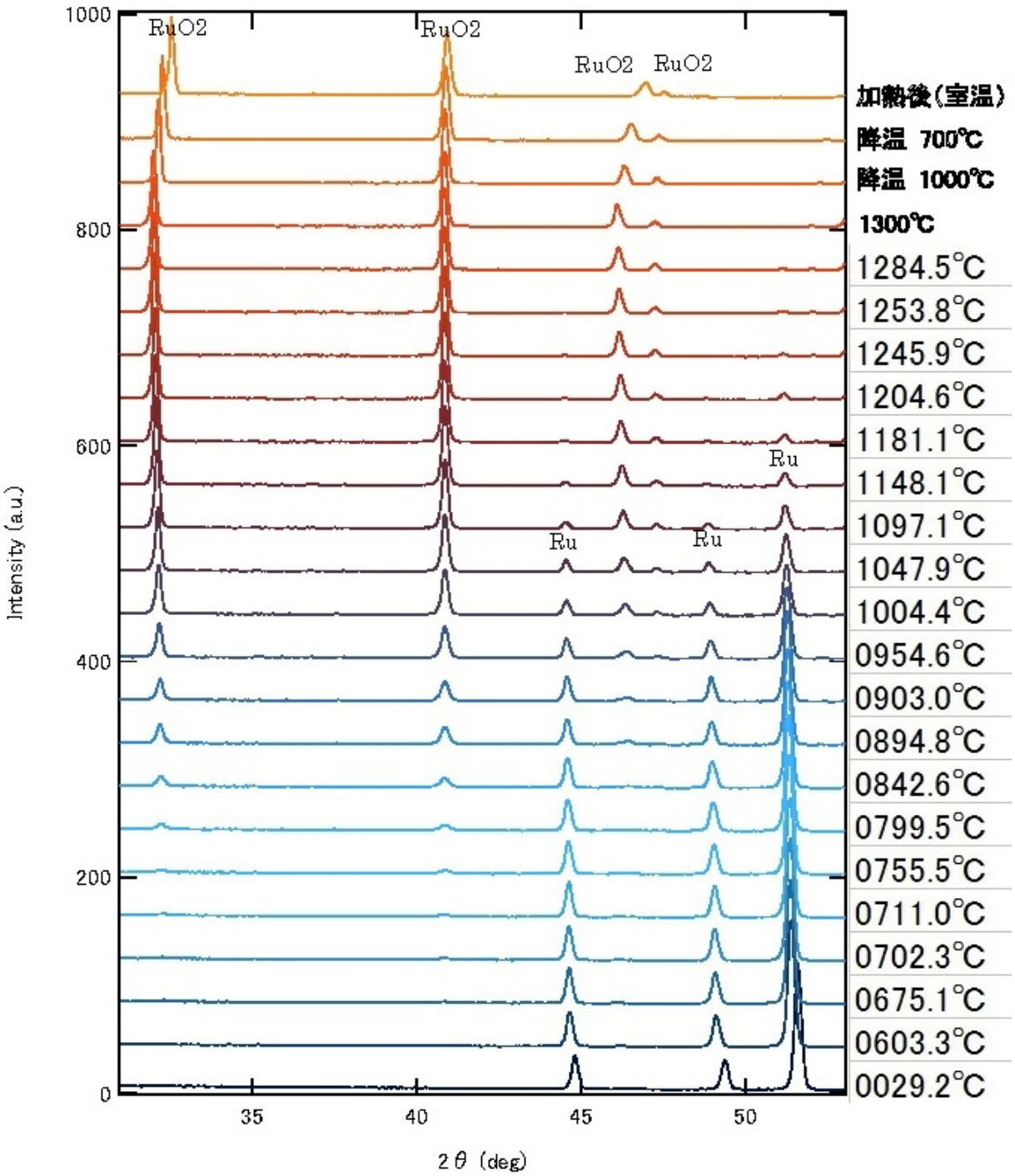


図 2.8　1 次元に変換した X 線回折パターン（室温→1300℃→室温）

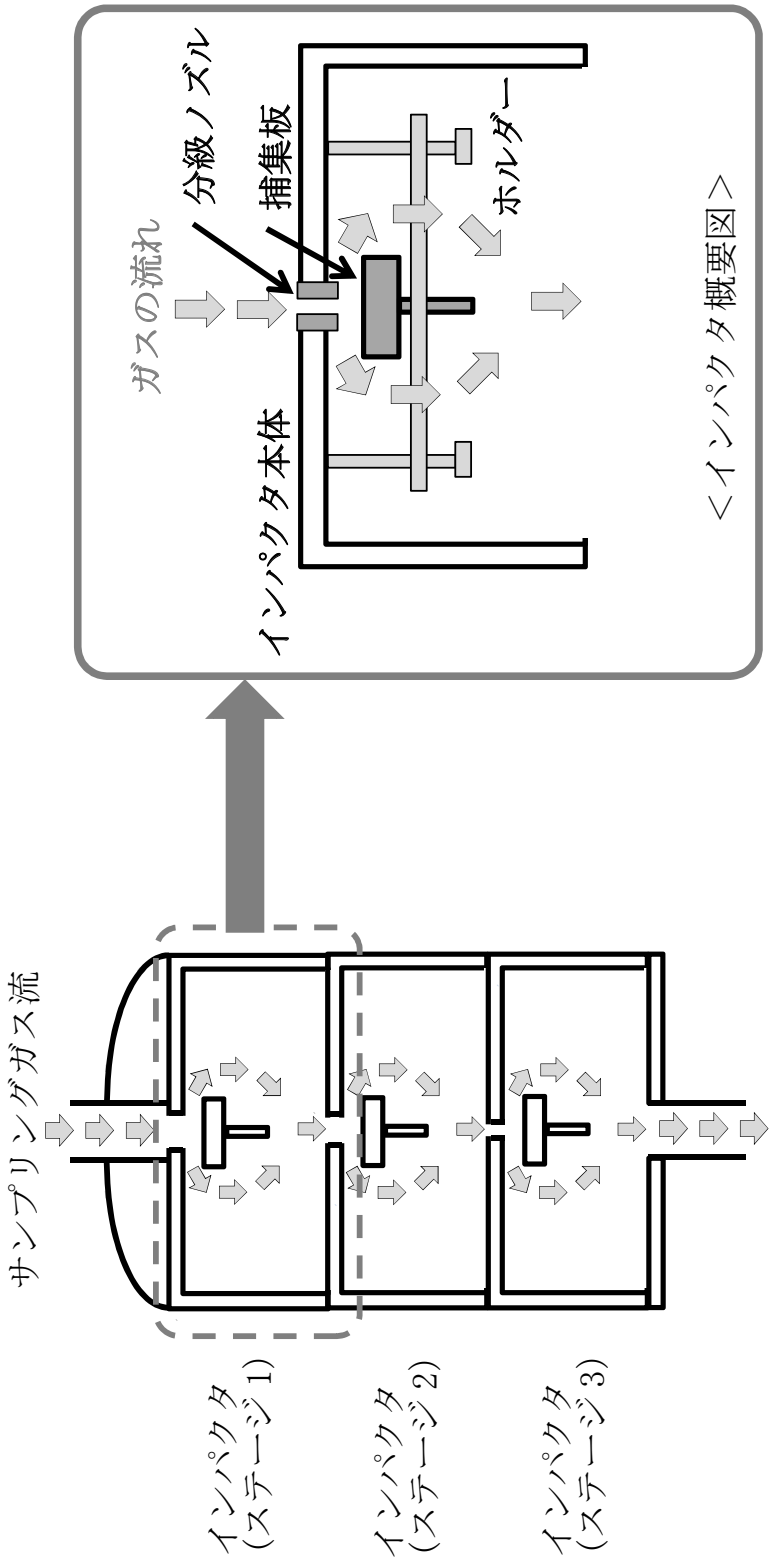


図3.1　カスケードインパクタ概要

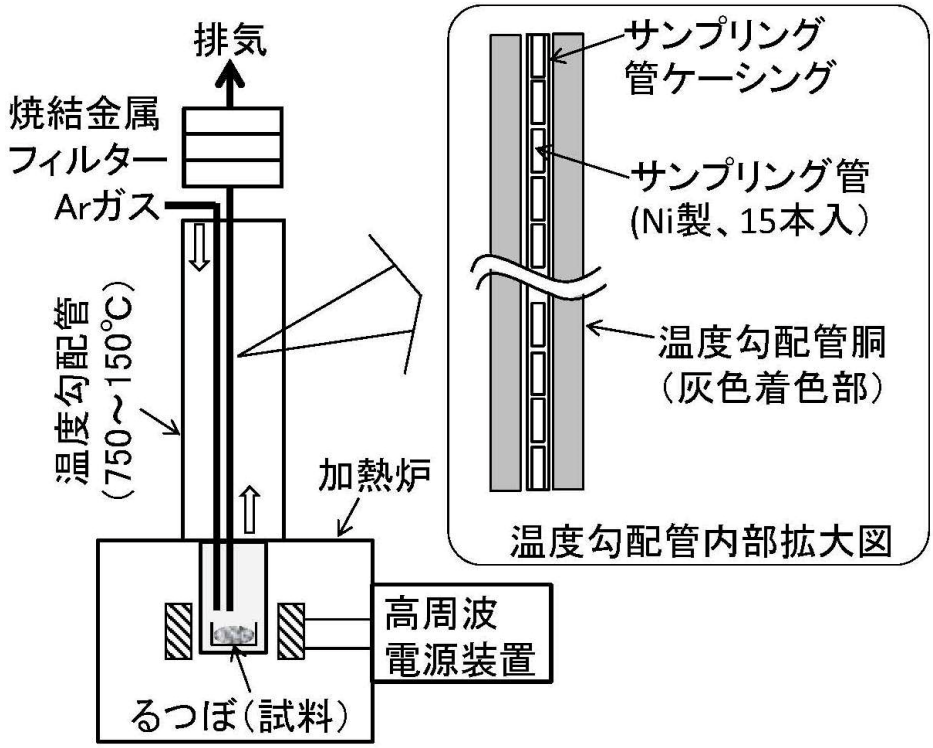


図 3.2　FP 移行挙動模擬試験装置の概要

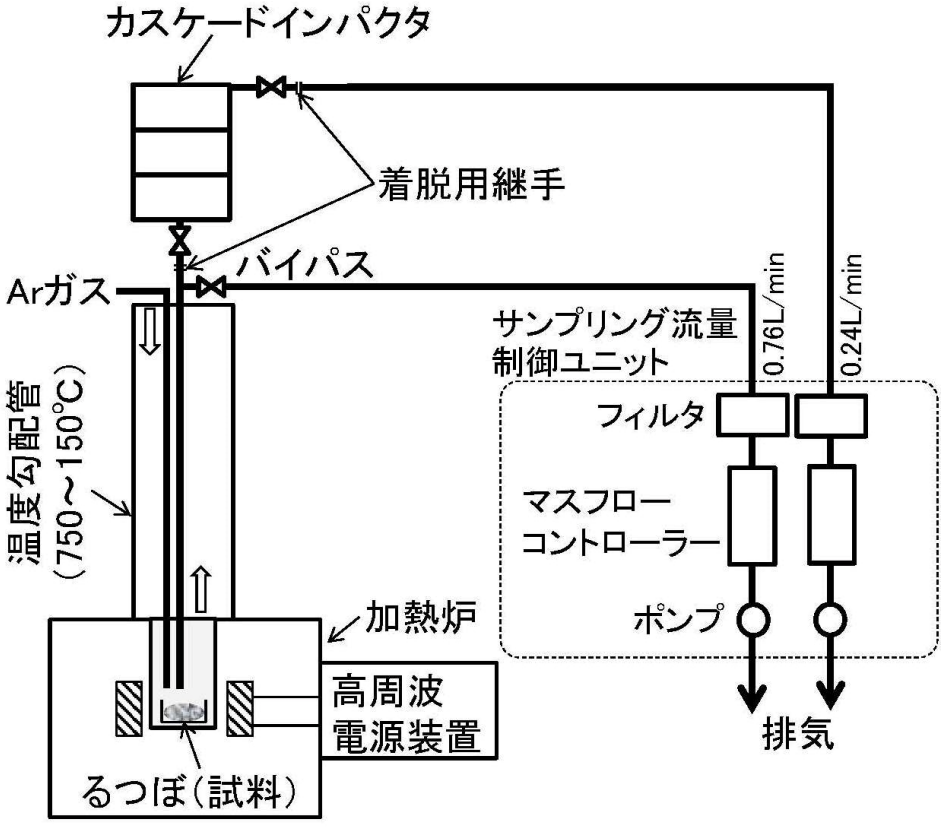


図 3.3 改造後の FP 移行挙動模擬試験装置のフローシート

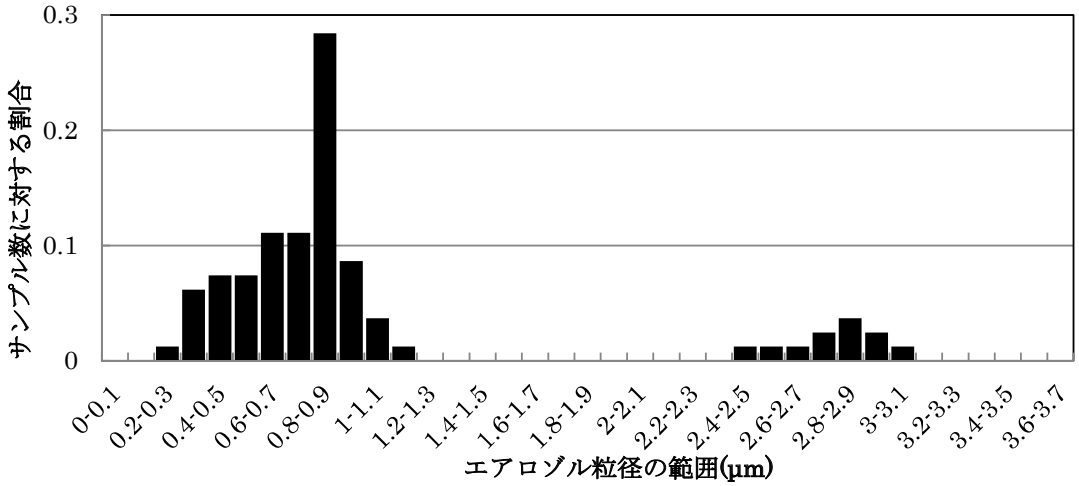


図3.4　ステージ１粒径測定結果(Run1、サンプル数：81)

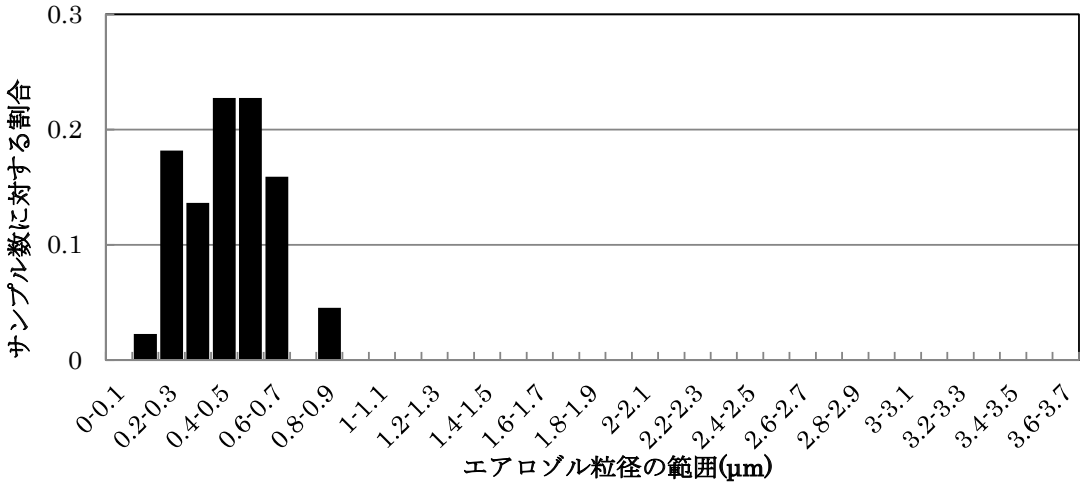


図3.5　ステージ2粒径測定結果(Run1、サンプル数：44)

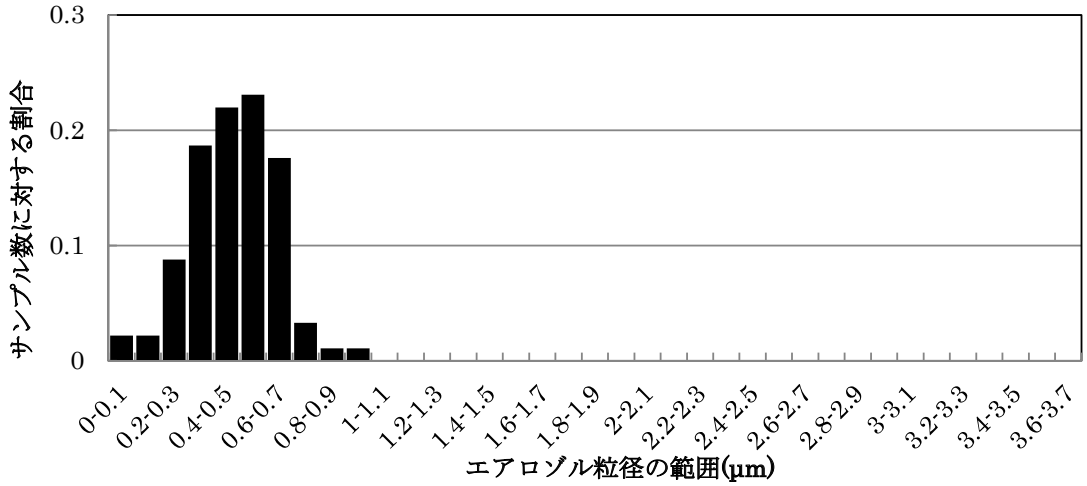
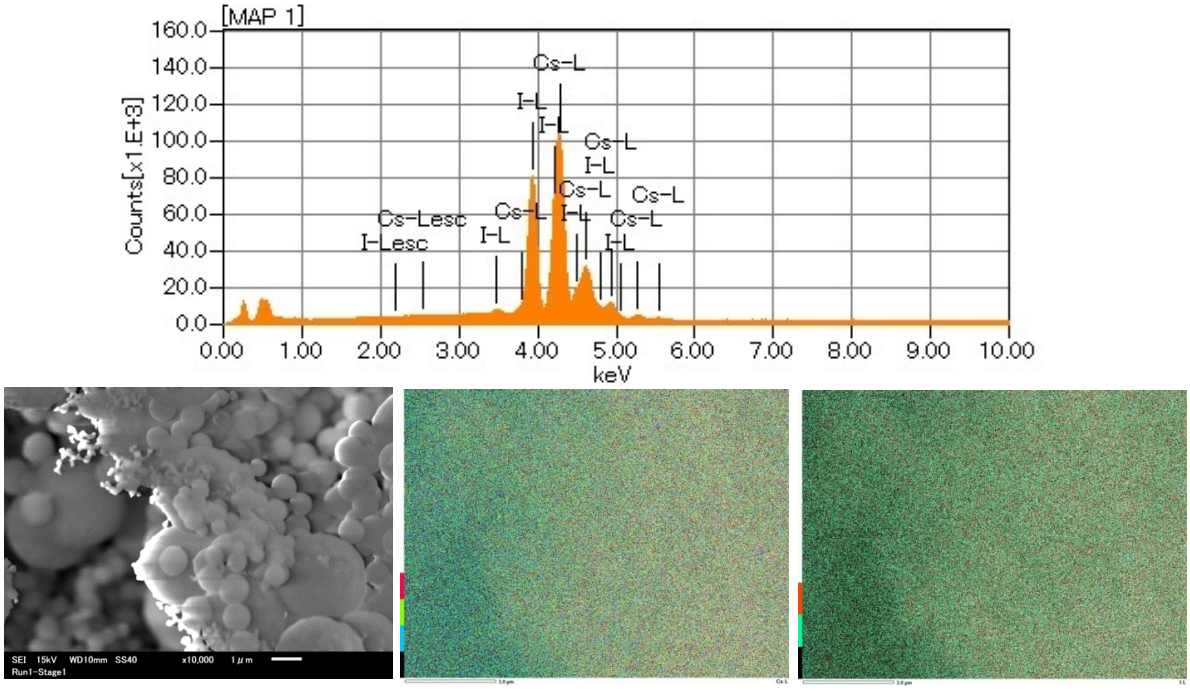
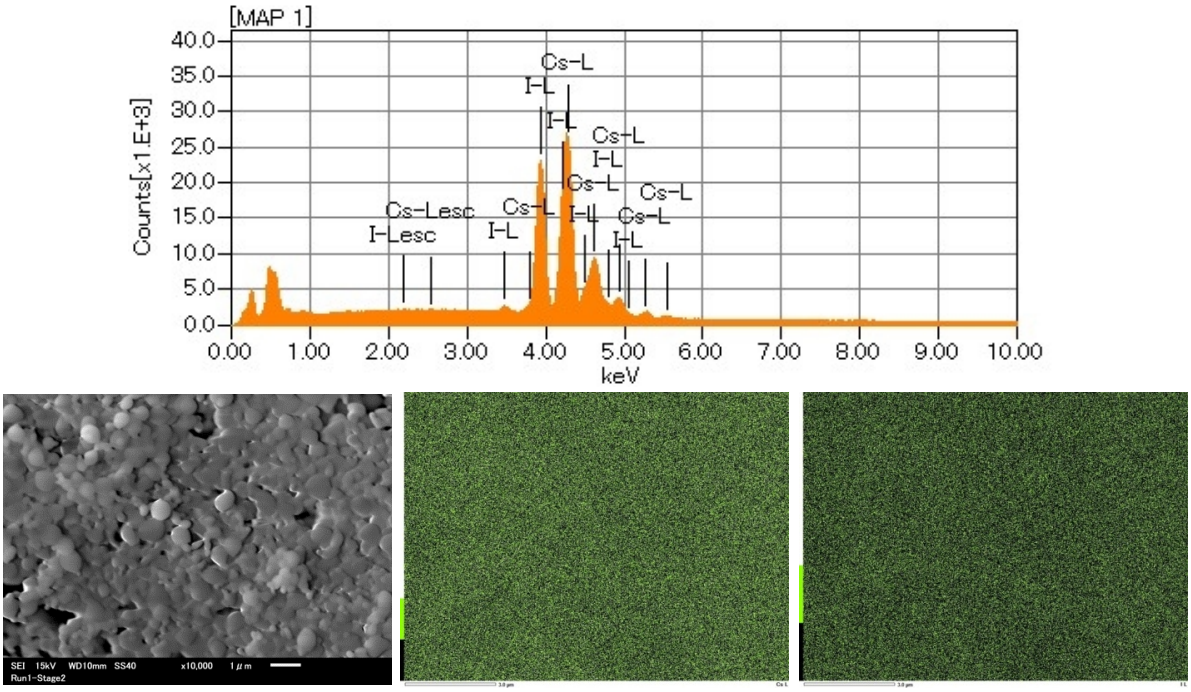


図3.6　ステージ3粒径分布測定結果(Run1、サンプル数：91)



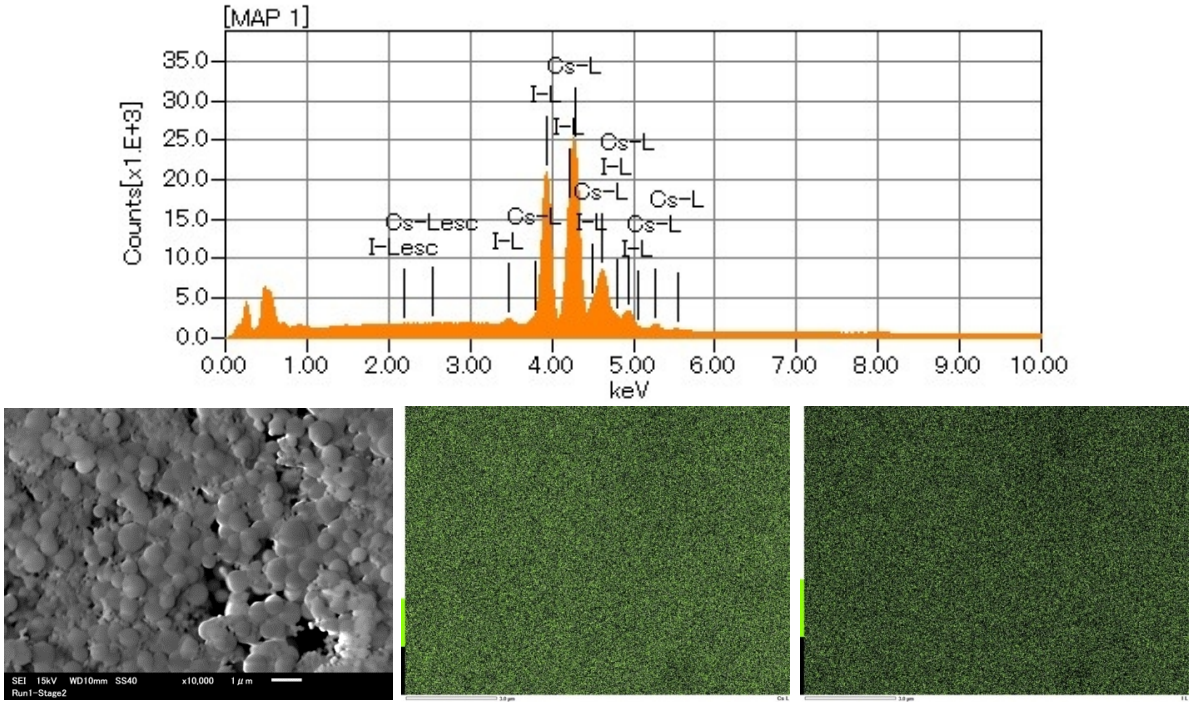
＜観察箇所＞　　＜セシウム＞　　＜ヨウ素＞

図 3.7　捕集板 1 の EDX による面分析結果（Run1）



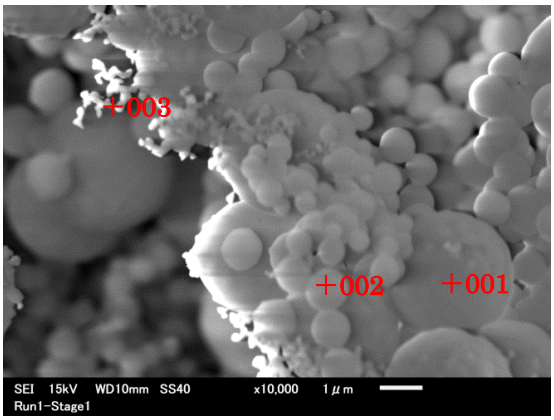
＜観察箇所＞　　＜セシウム＞　　＜ヨウ素＞

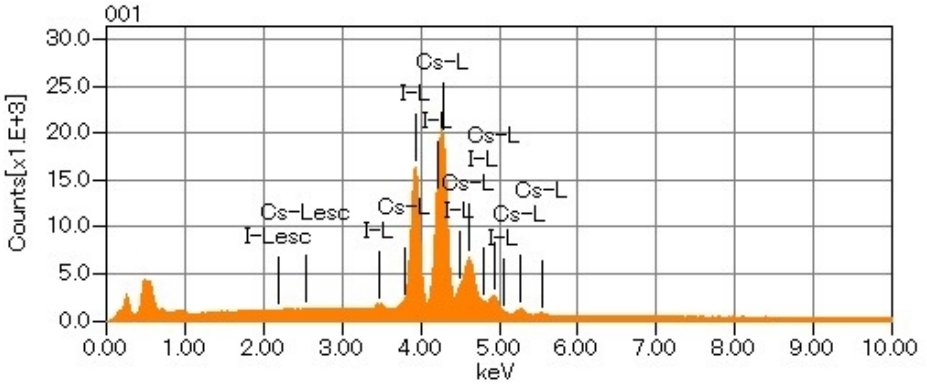
図 3.8　捕集板 2 の EDX による面分析結果（Run1）



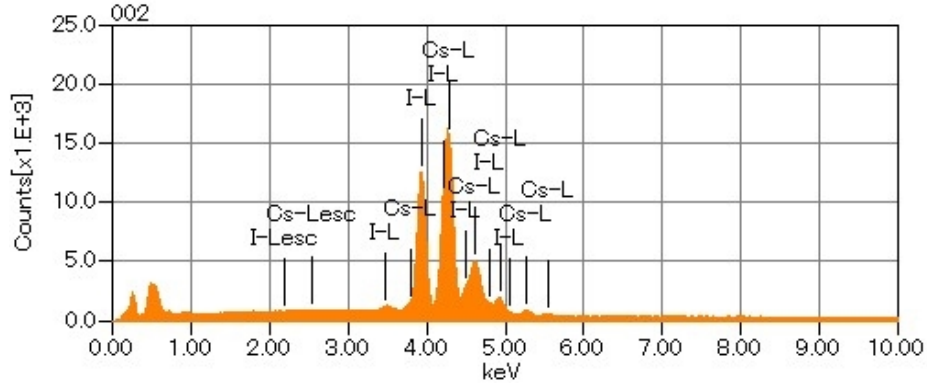
＜観察箇所＞　　＜セシウム＞　　＜ヨウ素＞

図 3.9　捕集板 3 の EDX による面分析結果（Run1）

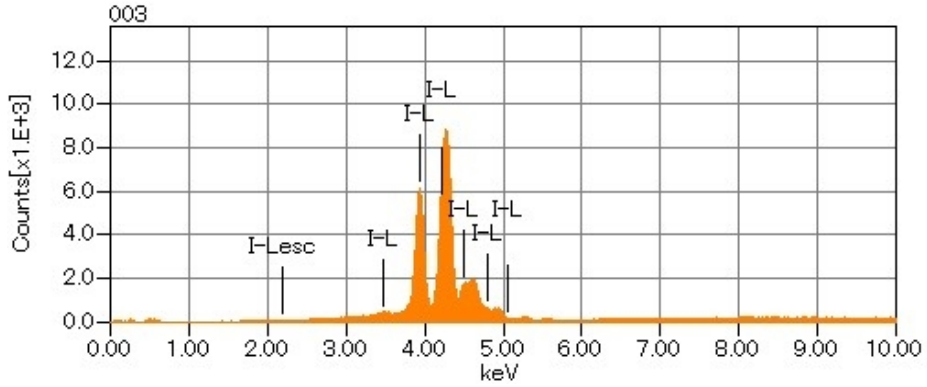




場所 001：大粒子（粒径：約 2.9μm）



場所 002：小粒子（粒径：約 0.9μm）



場所 003：メッシュ状部

図 3.10　捕集板 1 の EDX による点分析結果（Run1）

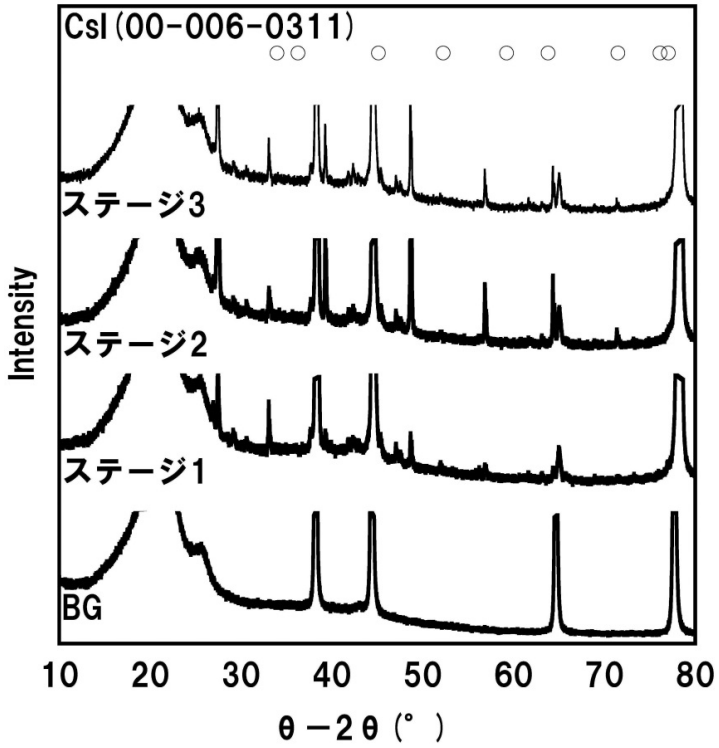


図 3.11　各捕集板の X 線回折結果（Run1）

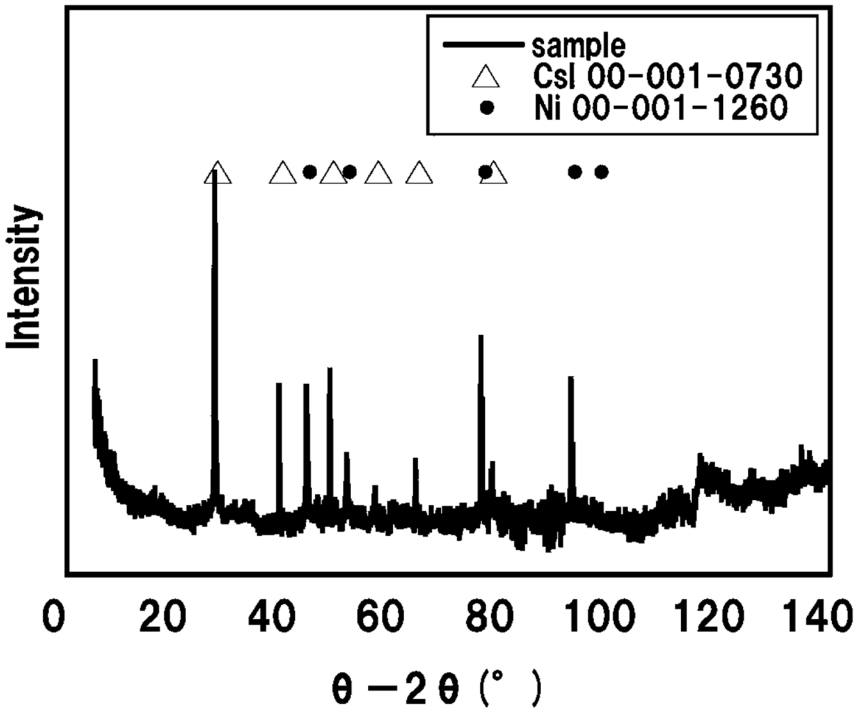


図 3.12　サンプリング管内面の X 線回折結果（Run1）

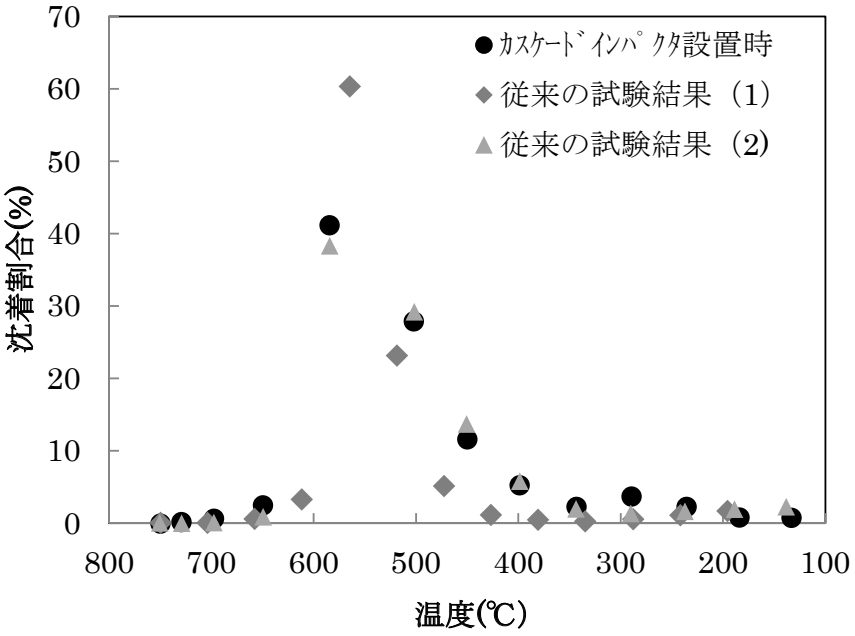


図 3.13　温度勾配管への蒸気種の沈着プロファイル（Run1）

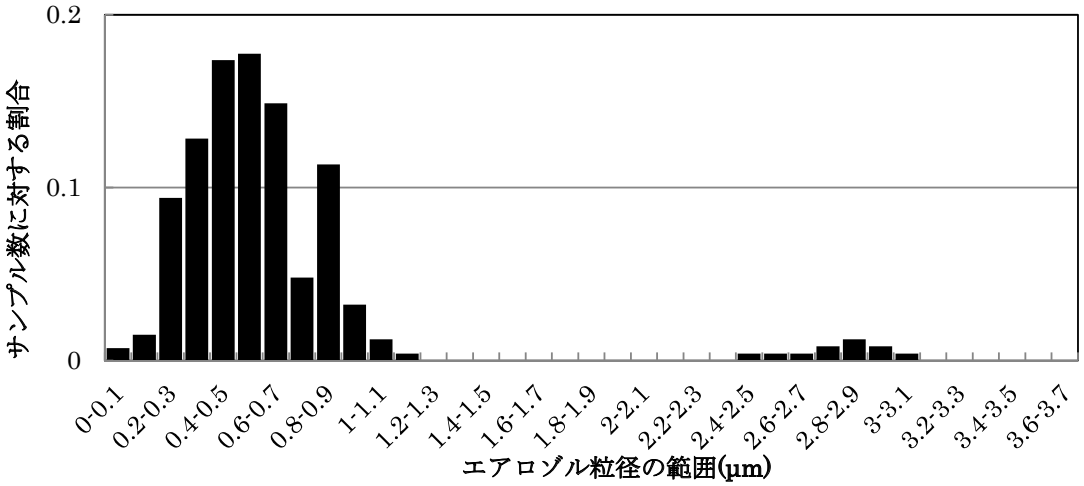


図3.14　アルゴン雰囲気試験時のエアロゾルの粒径分布
（Run1、サンプル数：計216）

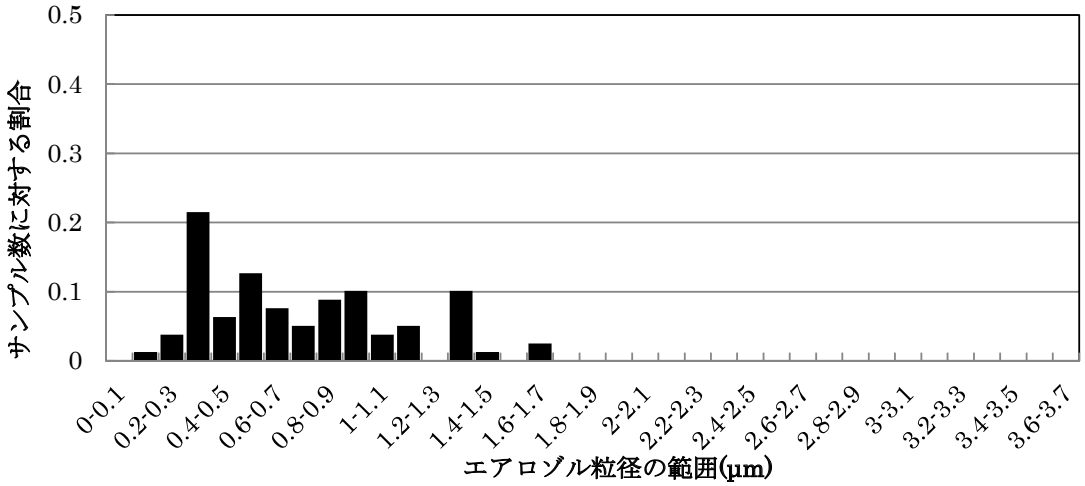


図3.15　ステージ1測定結果(Run2、サンプル数：79)

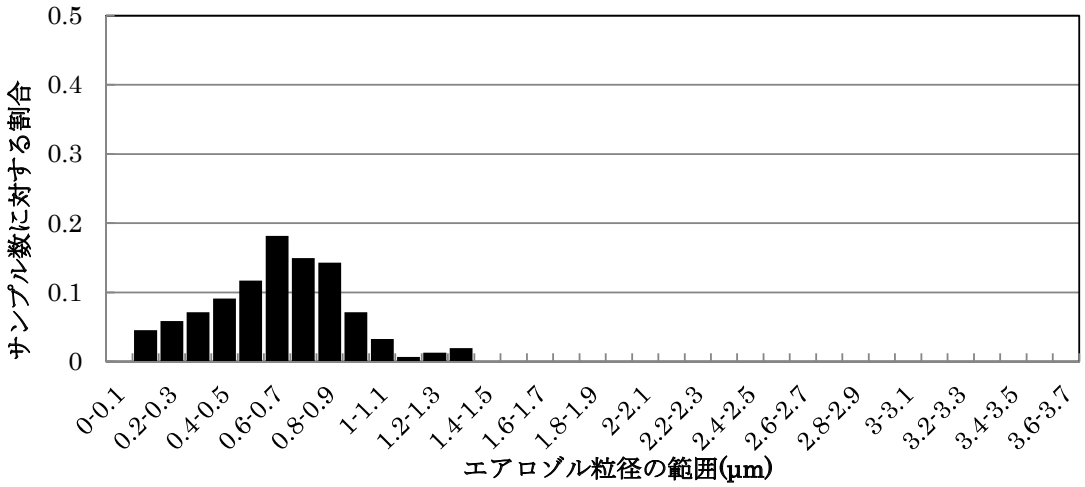


図3.16　ステージ2測定結果(Run2、サンプル数：154)

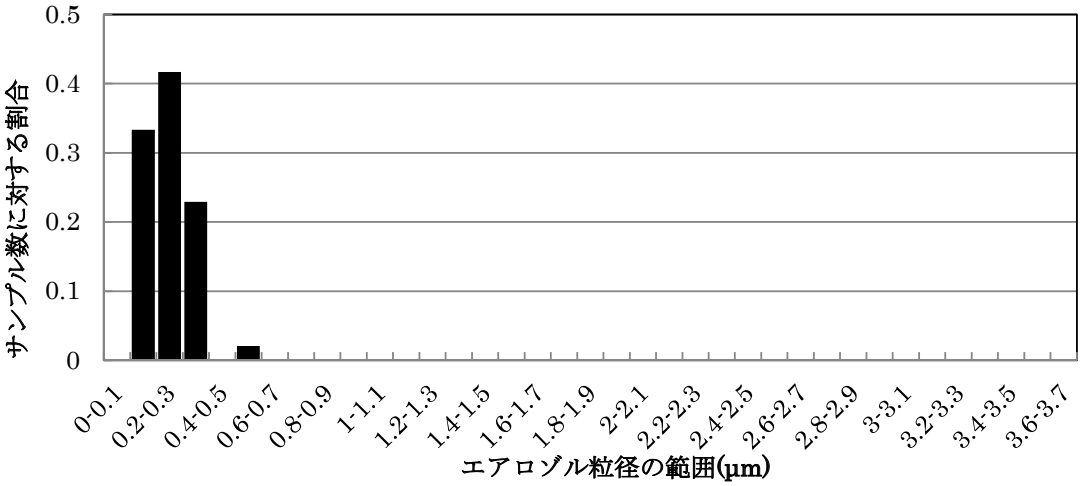


図3. 17　ステージ3測定結果(Run2、サンプル数：48)

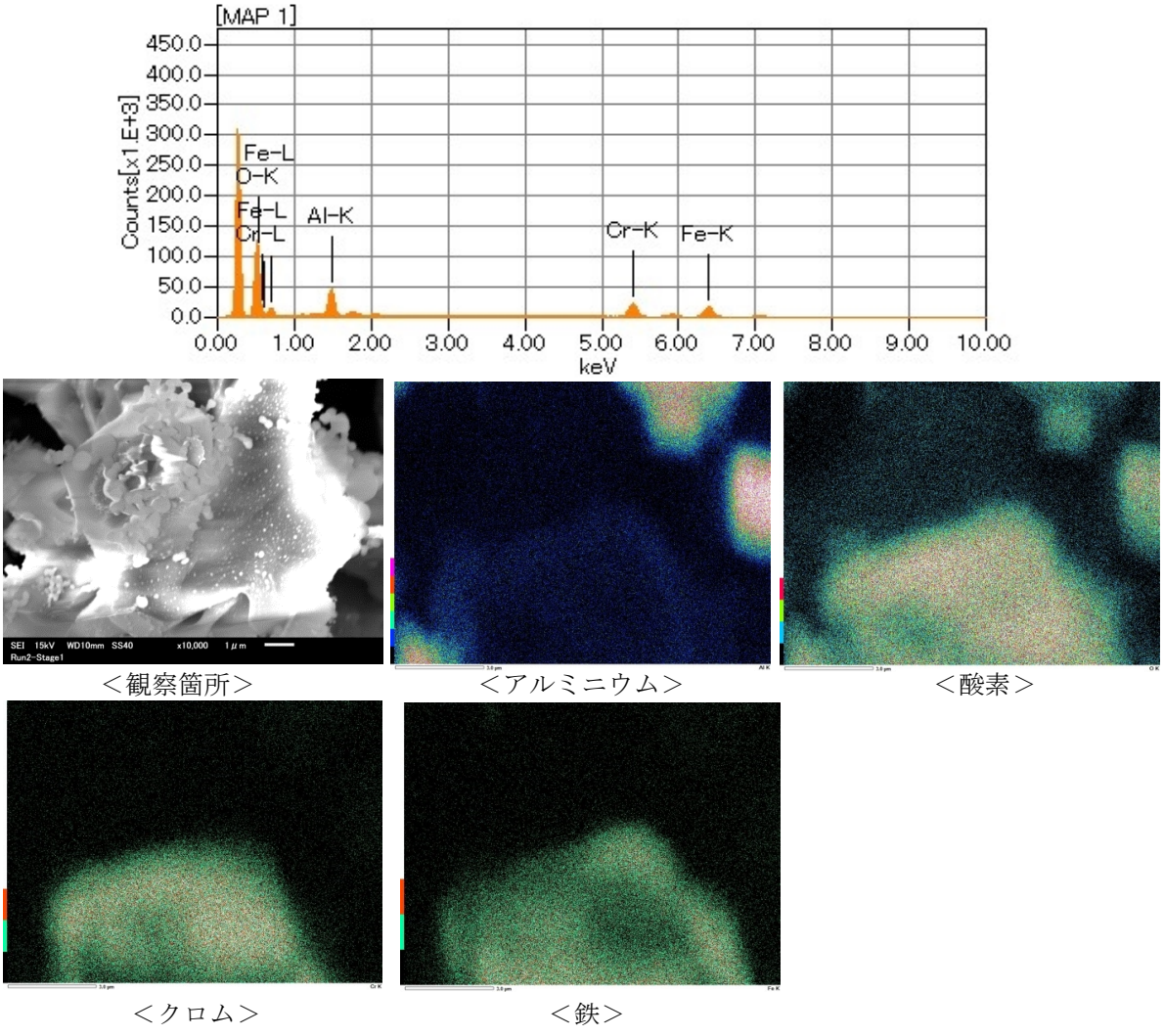


図 3. 18　捕集板 1 の EDX による面分析結果（Run2、破片状物質が主体の視野）

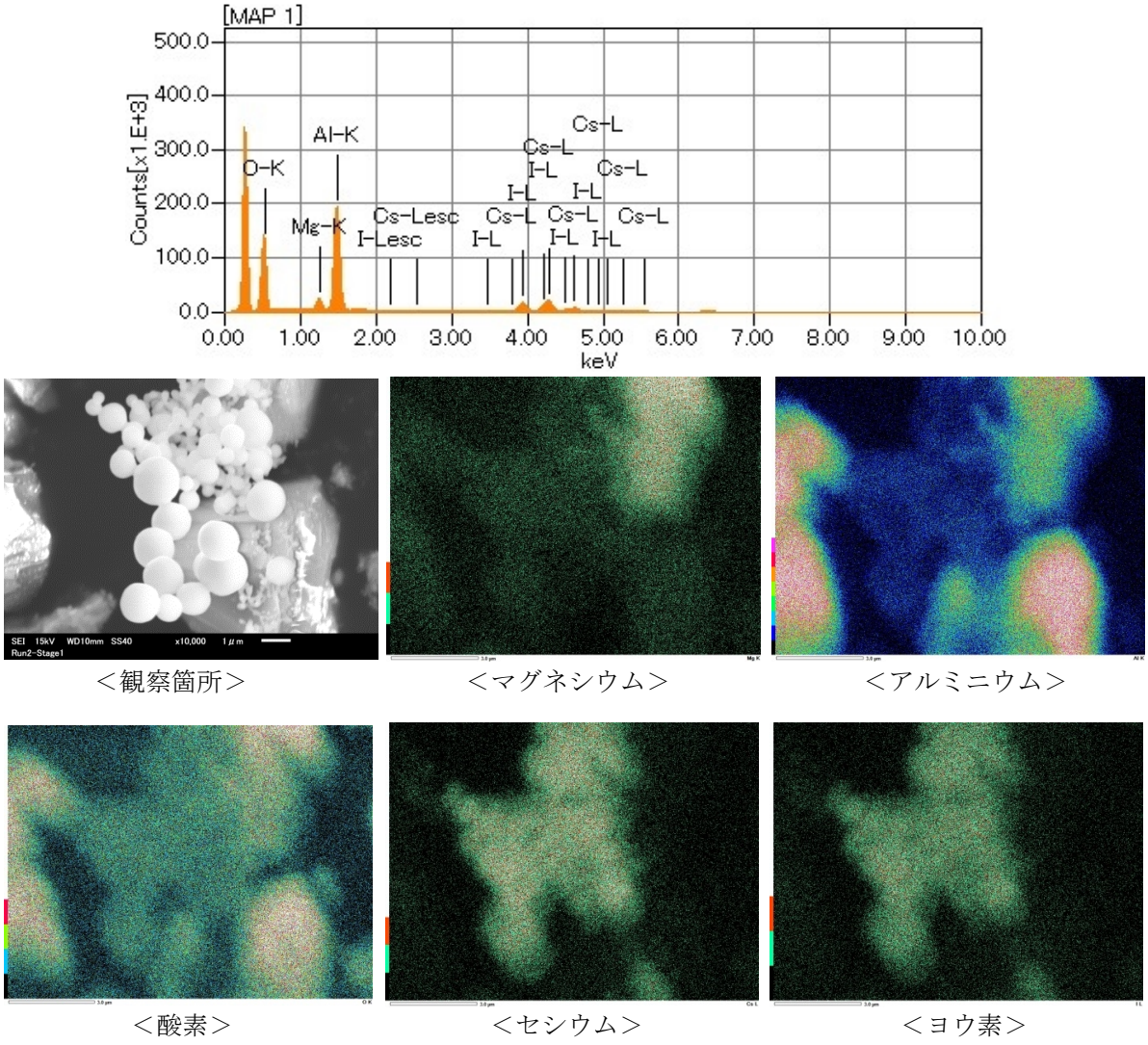
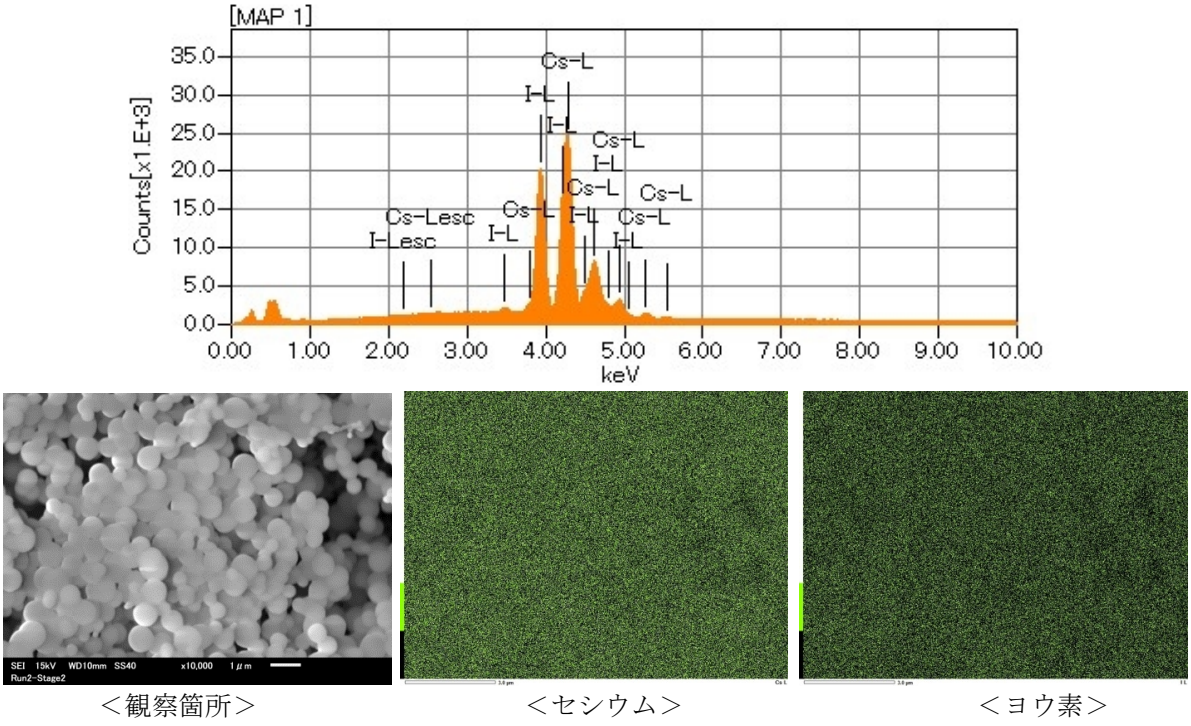
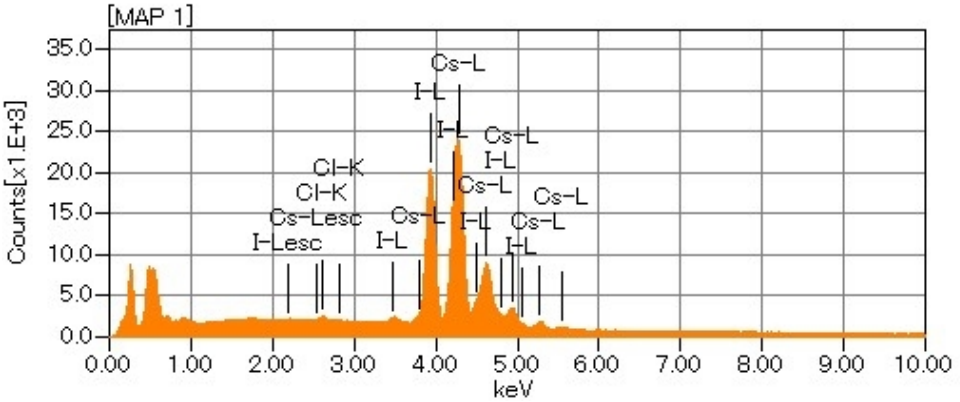


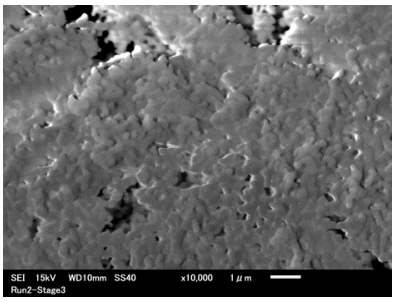
図 3.19　捕集板 1 の EDX による面分析結果(Run2、粒状物質が主体の視野)



＜観察箇所＞　　＜セシウム＞　　＜ヨウ素＞

図 3.20　捕集板 2 の EDX による面分析結果（Run2）





＜観察箇所＞

＜塩素＞

＜セシウム＞

＜ヨウ素＞

図 3.21　捕集板 3 の EDX による面分析結果（Run2）

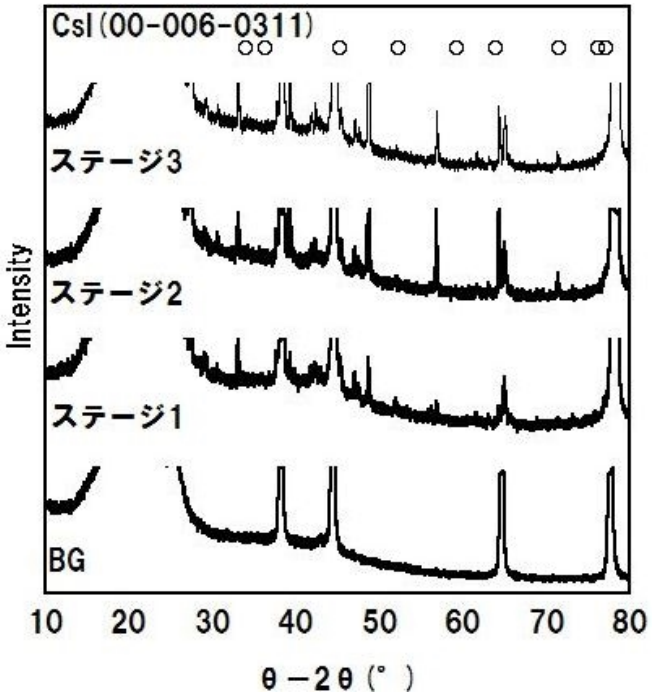


図 3.22　捕集板の X 線回折結果（Run2）

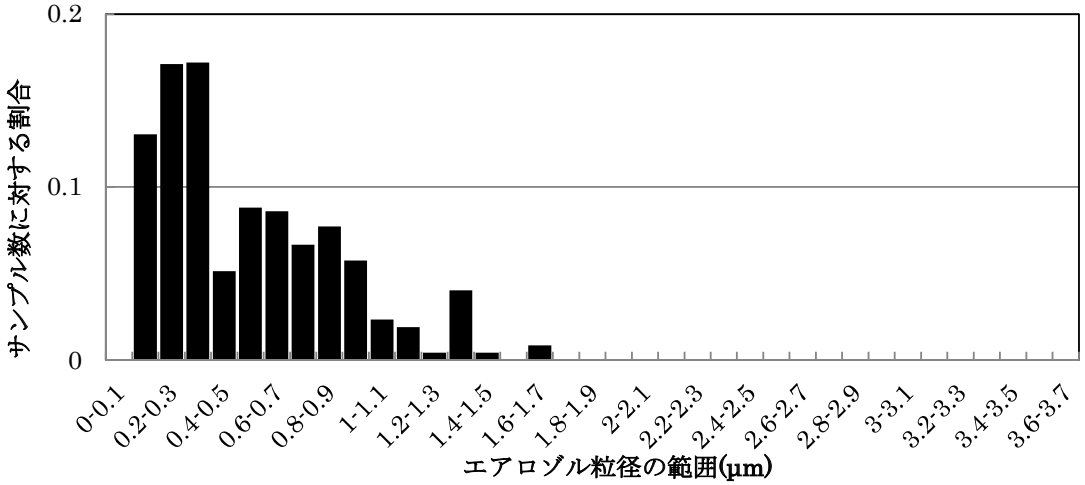


図3.23　空気雰囲気試験時のエアロゾルの粒径分布
（Run2、サンプル数：281）

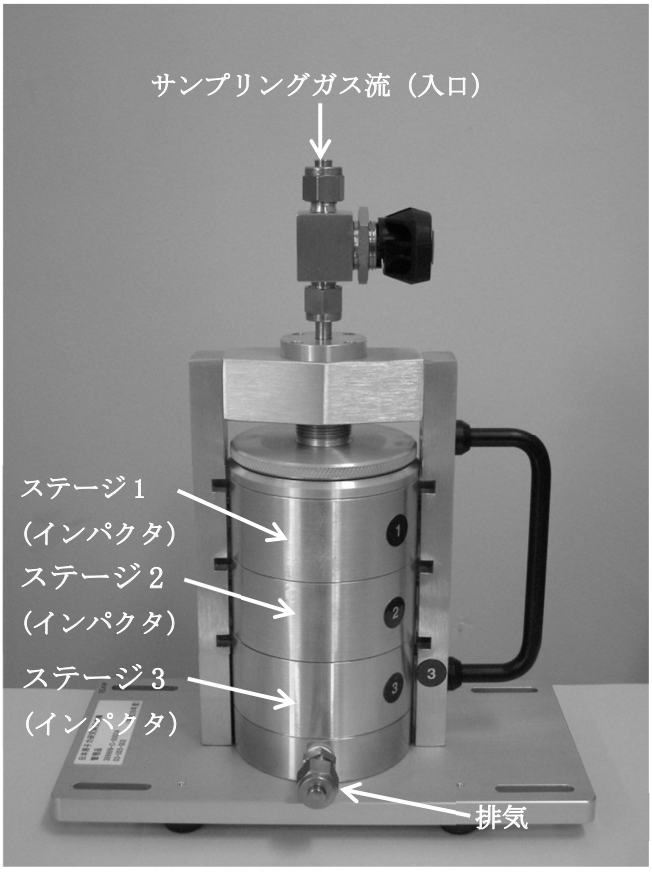


写真 3.1　選定したカスケードインパクタ外観

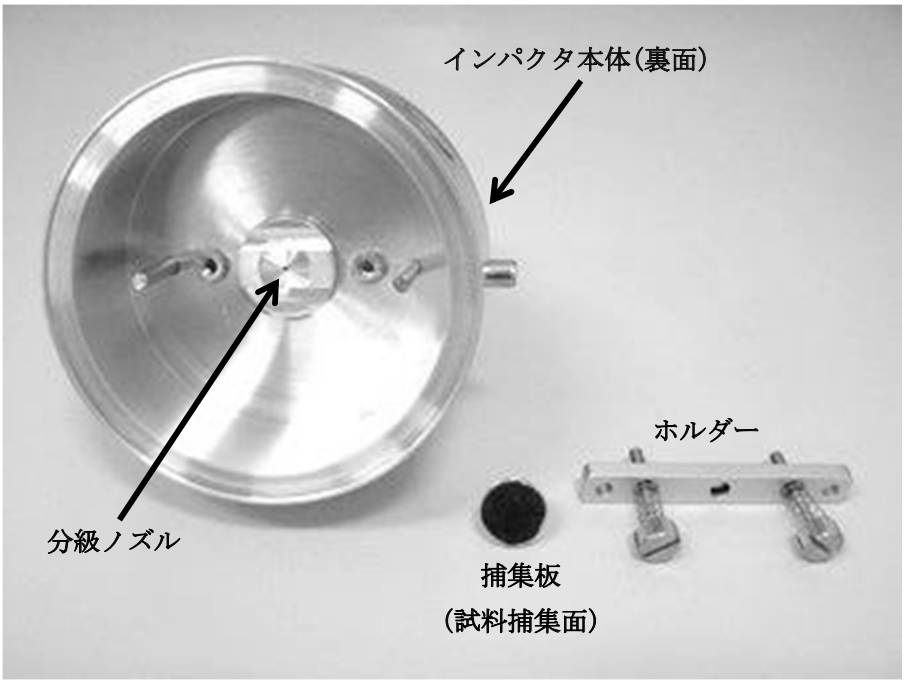


写真 3.2　カスケードインパクタのステージ分解図

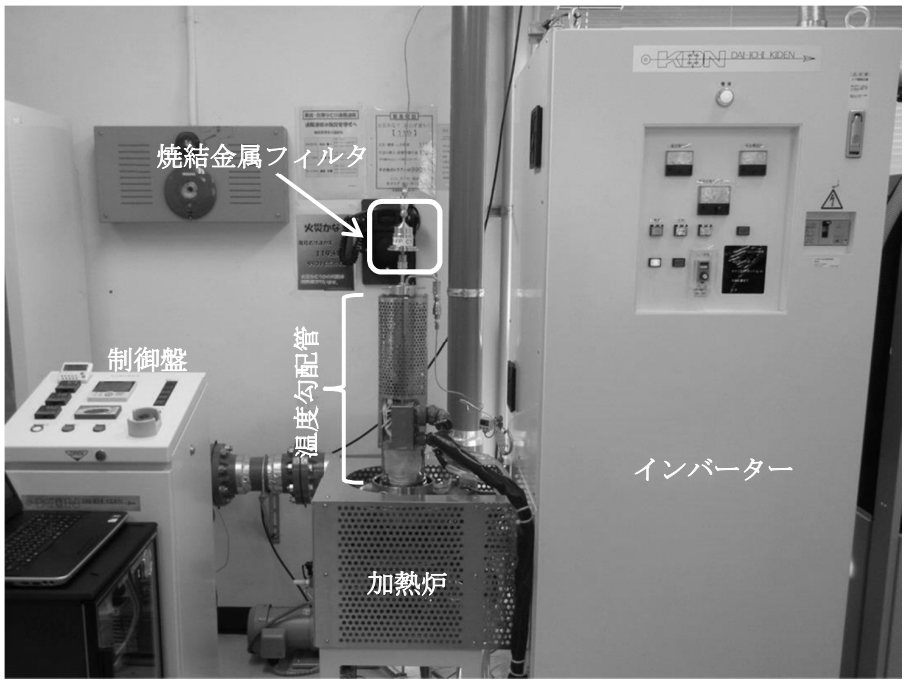


写真 3.3　FP 移行挙動模擬試験装置の概要（改造前）

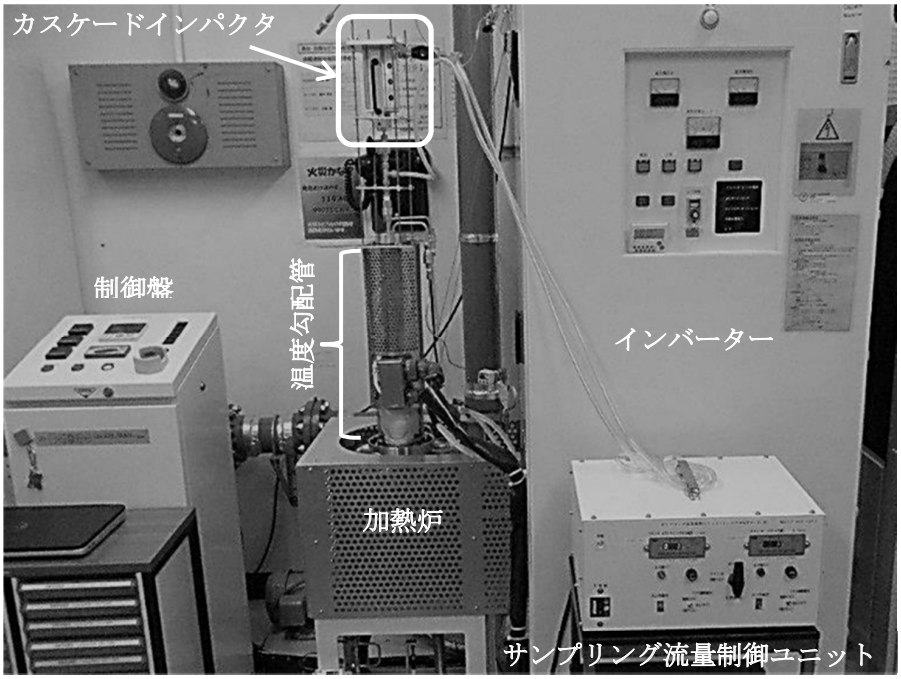


写真 3.4　カスケードインパクタ設置後の試験装置の概要（改造後）

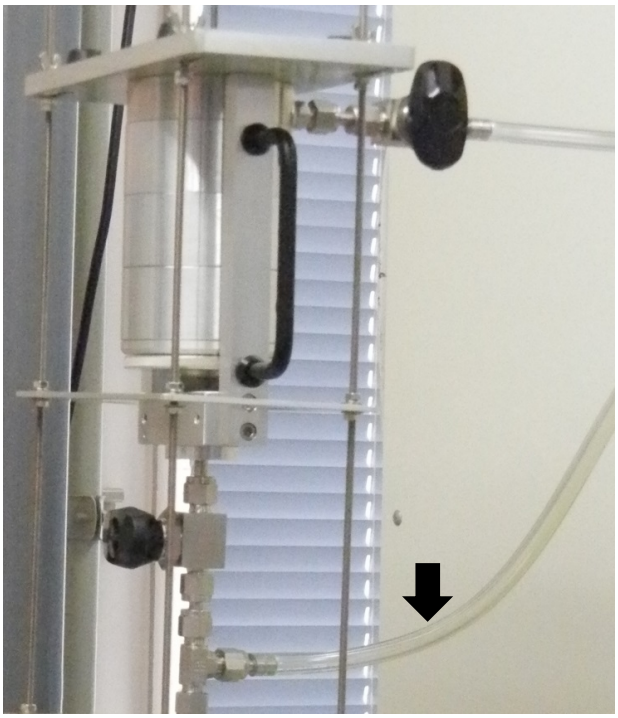
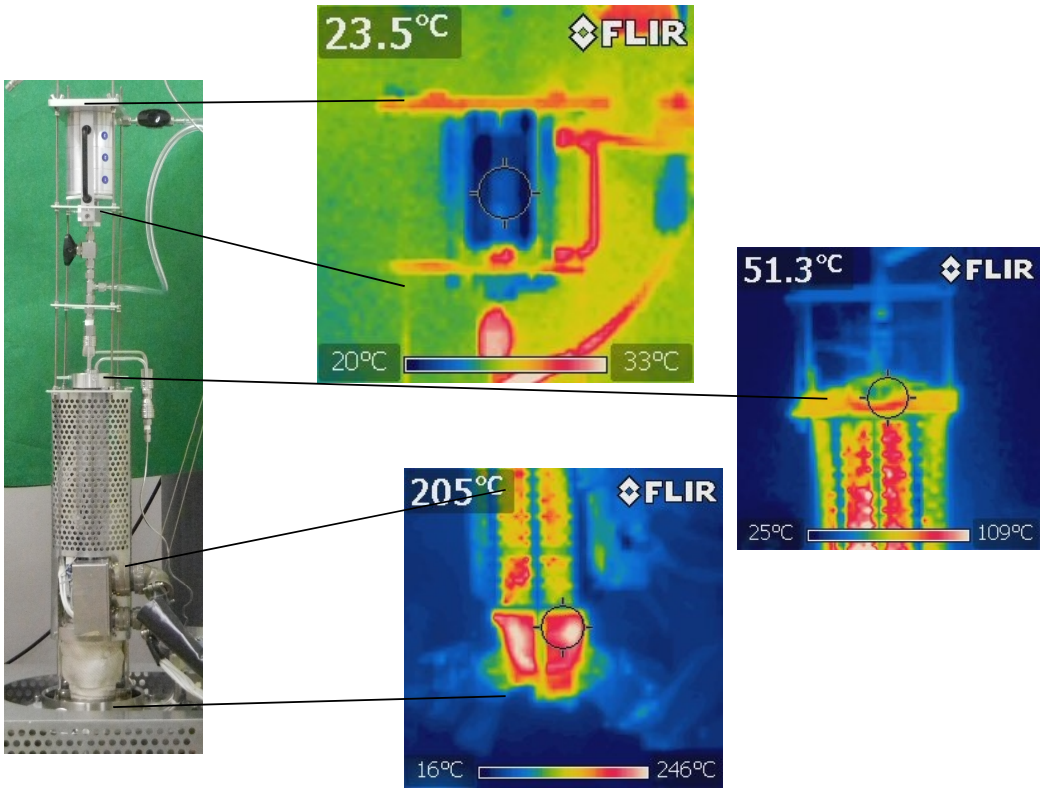


写真 3.5　内部が黄色に変色したバイパス側タイゴンチューブ



注）温度表示値は、中央の円形部分の温度

写真 3.6　試験中の温度勾配管及びカスケードインパクタの表面温度

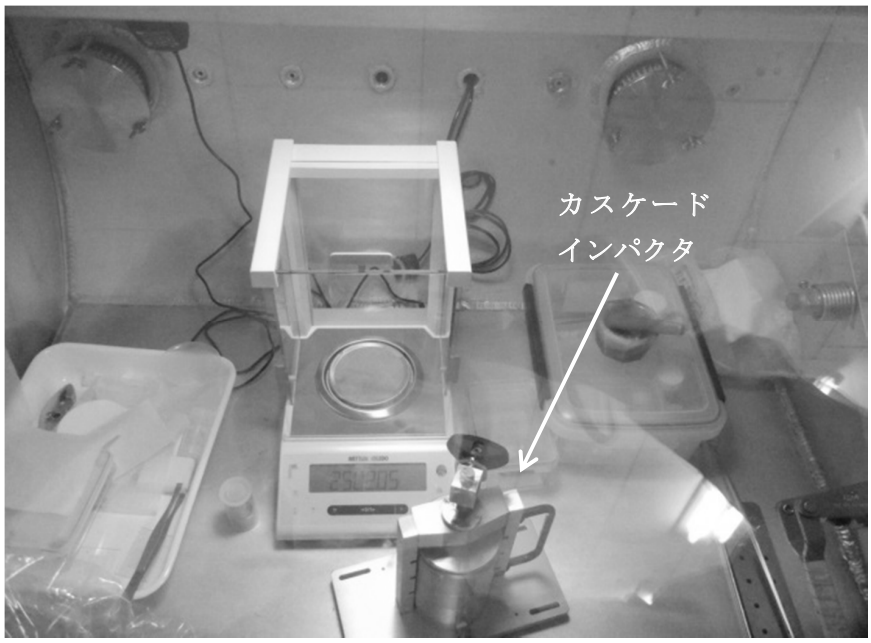


写真 3.7　グローブボックス内に搬入した様子

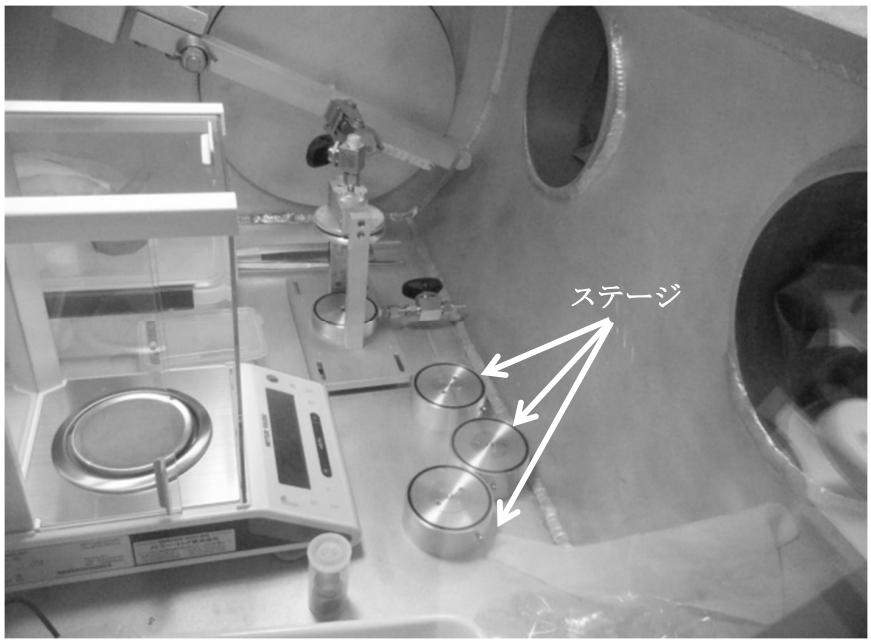
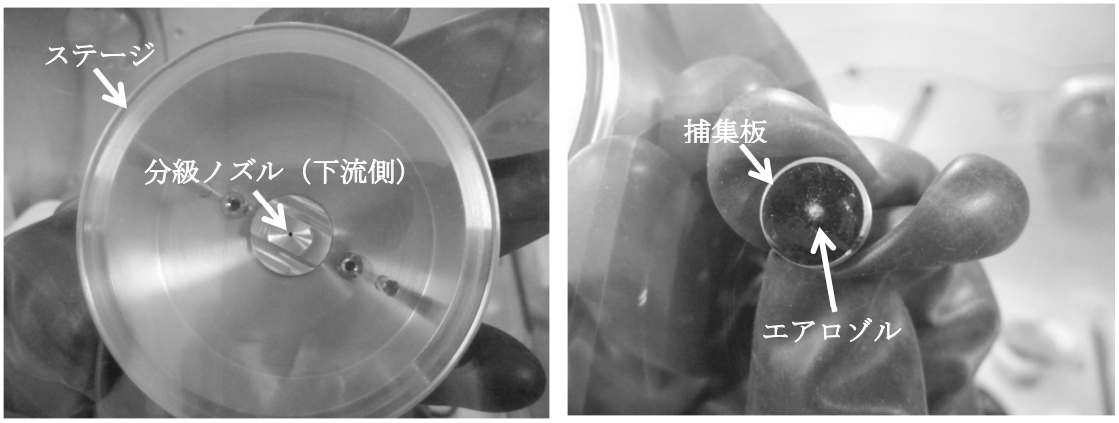
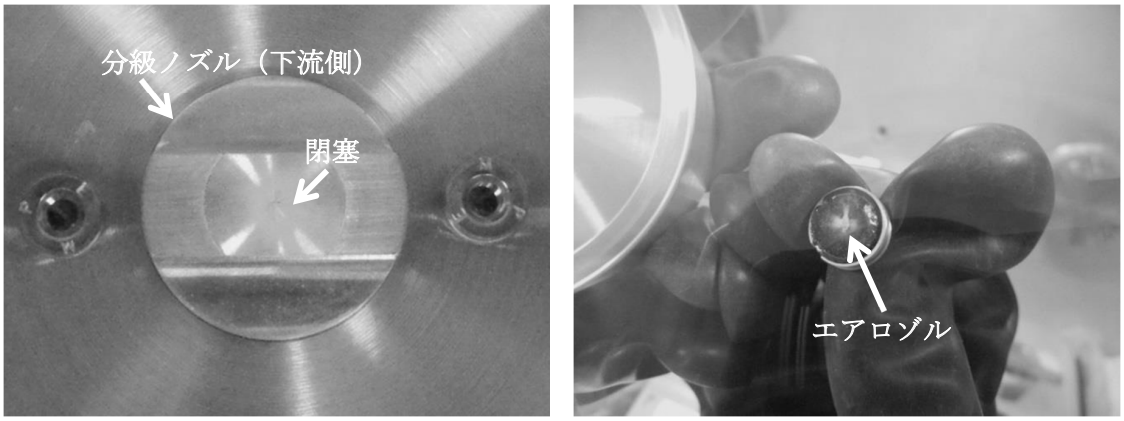


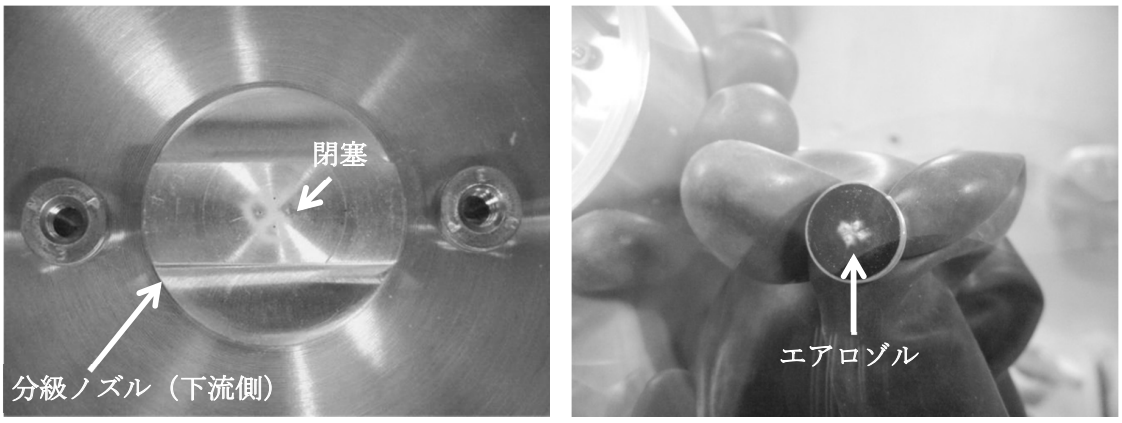
写真 3.8　各ステージを取り外した状態



＜ステージ１＞



＜ステージ２＞



＜ステージ３＞

写真 3.9　各ステージにおける分級ノズルの閉塞状況と捕集板への試料の付着状況(Run1)

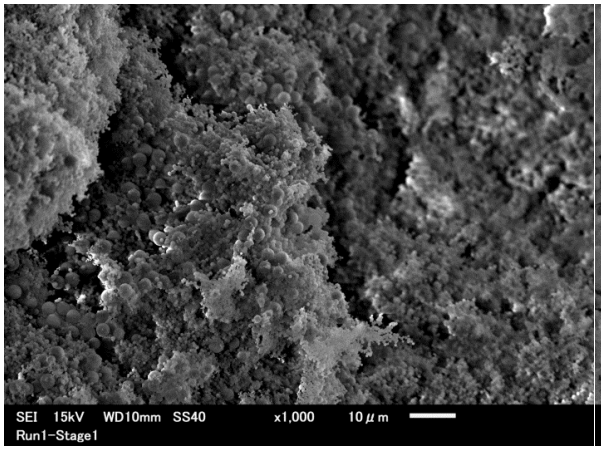


写真 3.10　1000 倍観察図（Run1、ステージ 1）

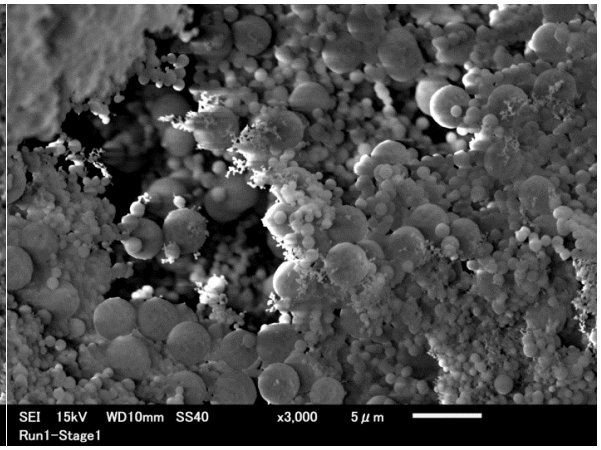


写真 3.11　3000 倍観察図（Run1、ステージ 1）

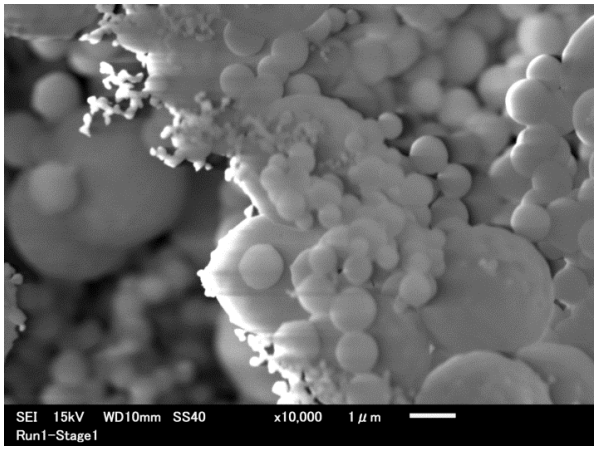


写真 3.12　10000 倍観察図（Run1、ステージ 1）

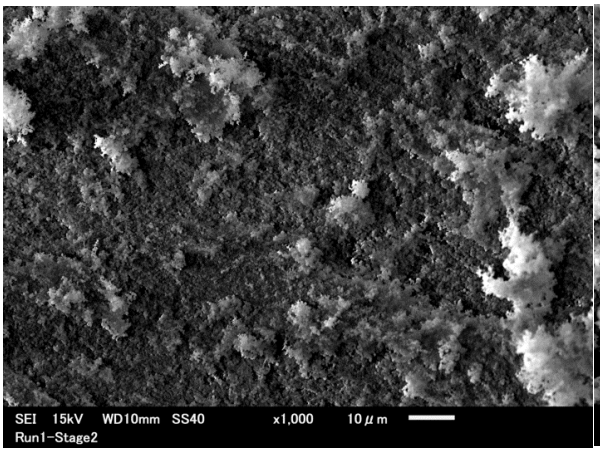


写真 3.13　1000 倍観察図（Run1、ステージ 2）

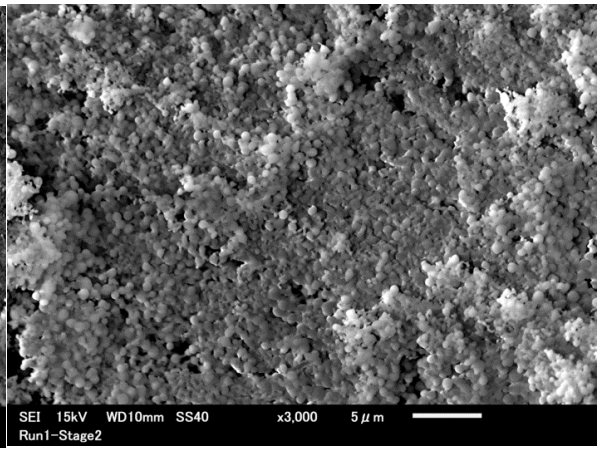


写真 3.14　3000 倍観察図（Run1、ステージ 2）

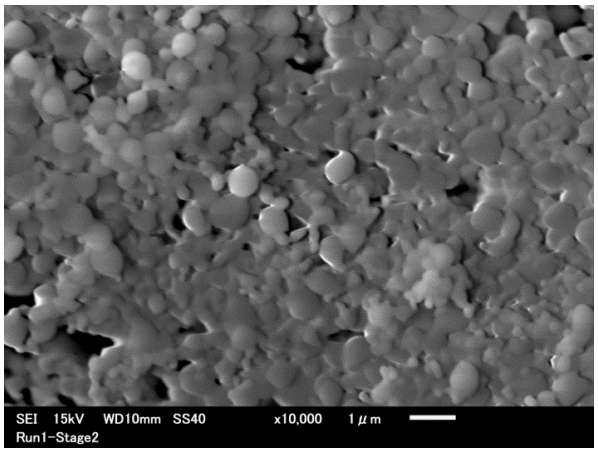


写真 3.15　10000 倍観察図（Run1、ステージ 2）

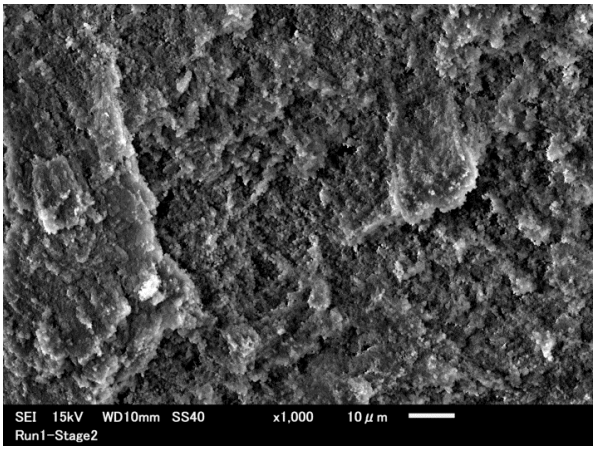


写真 3.16　1000 倍観察図（Run1、ステージ 3）

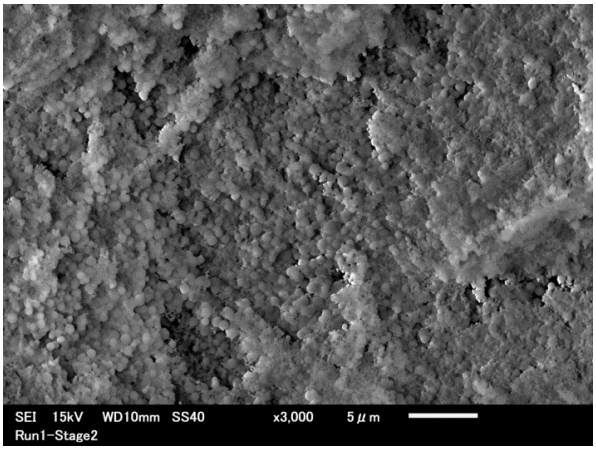


写真 3.17　3000 倍観察図（Run1、ステージ 3）

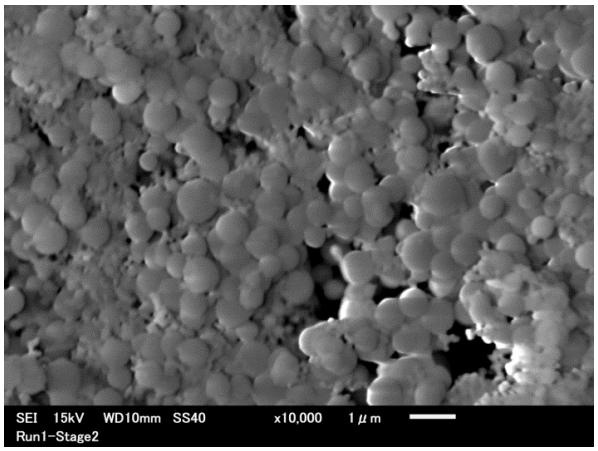


写真 3.18　10000 倍観察図（Run1、ステージ 3）

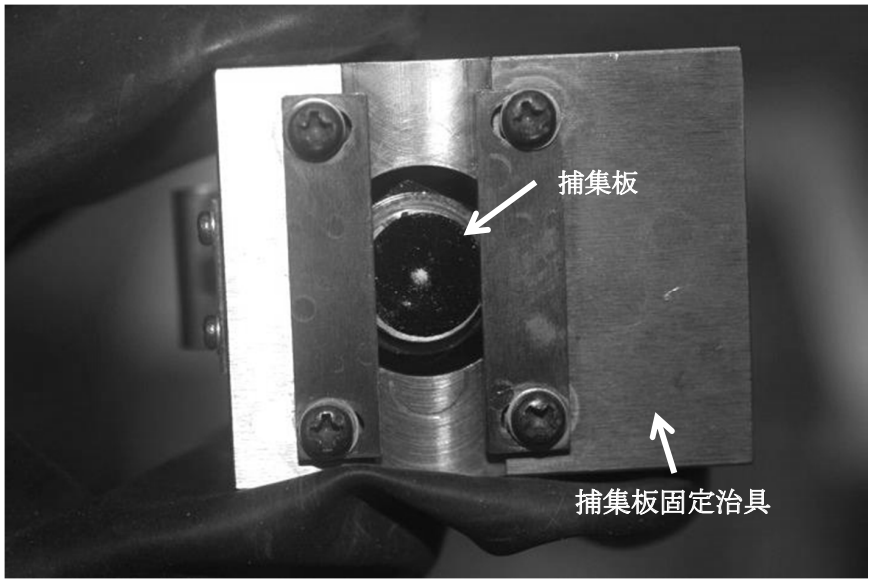


写真 3.19　捕集板固定治具への捕集板のセット状況

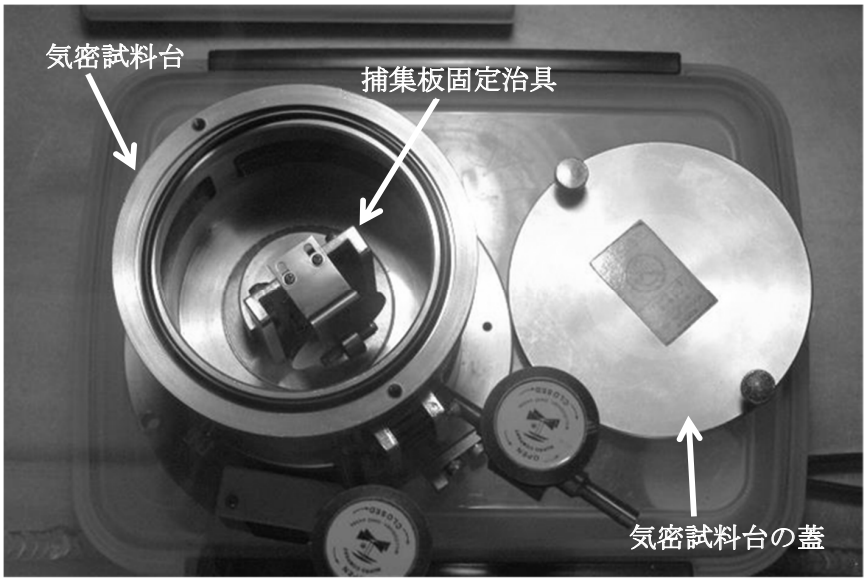
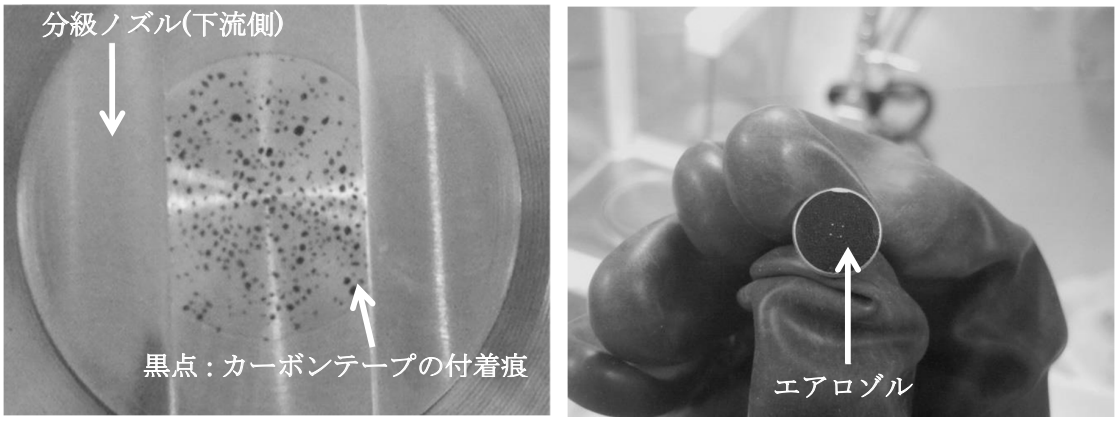


写真 3.20　気密試料台への捕集板の組み込み状況

＜ステージ１＞

＜ステージ２＞



＜ステージ３＞

写真 3.21　各ステージにおける分級ノズルの閉塞状況と捕集板への試料の付着状況（Run2）

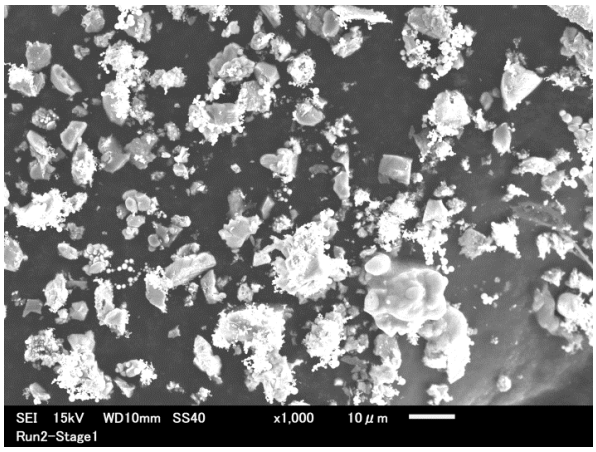


写真 3.22　1000 倍観察図（Run2、ステージ 1）

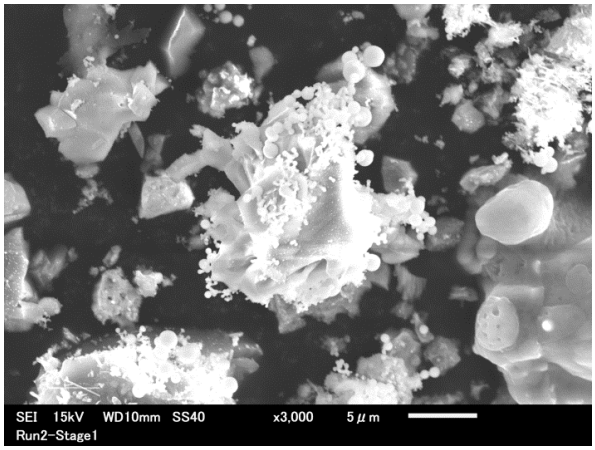


写真 3.23　3000 倍観察図（Run2、ステージ 1、多面形）

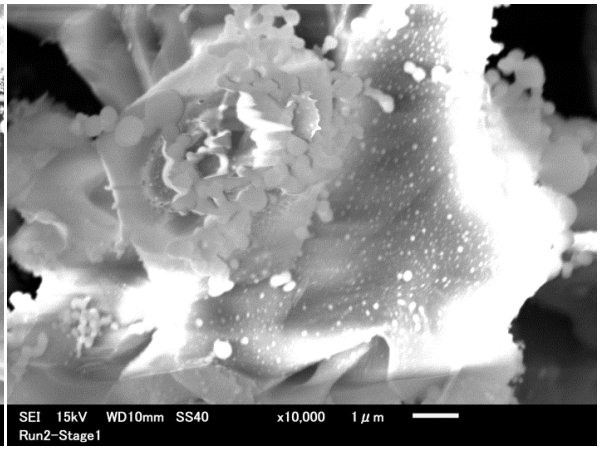


写真 3.24　10000 倍観察図（Run2、ステージ 1、多面形）

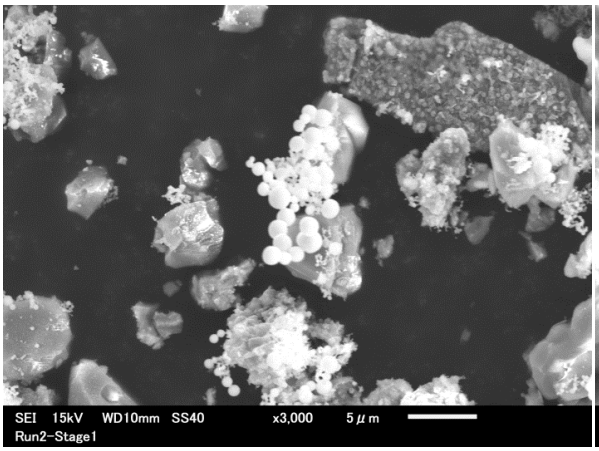


写真 3.25　3000 倍観察図（Run2、ステージ 1、粒子状）

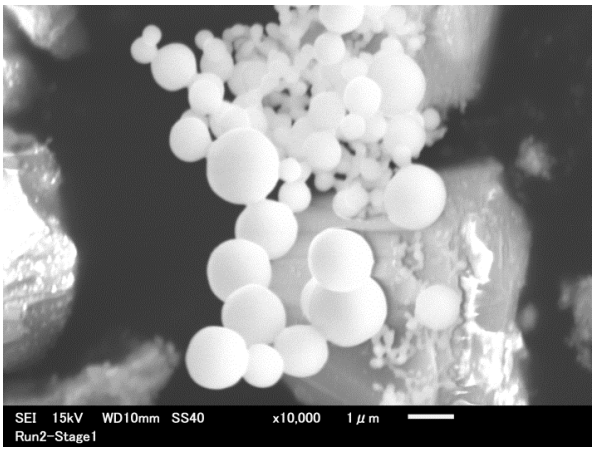
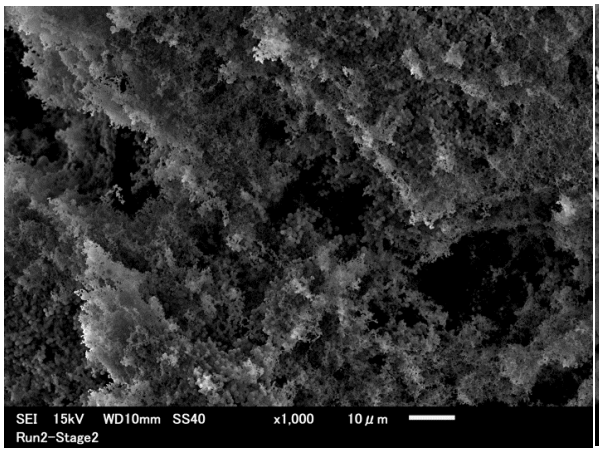


写真 3.26　10000 倍観察図（Run2、ステージ 1、粒子状）



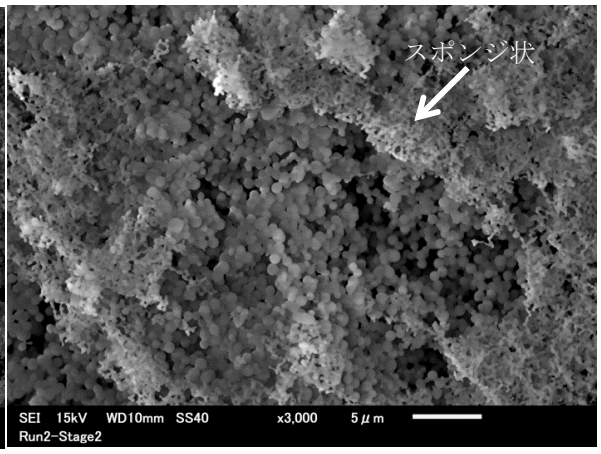


写真 3.27　1000 倍観察図（Run2、ステージ 2）　写真 3.28　3000 倍観察図（Run2、ステージ 2）

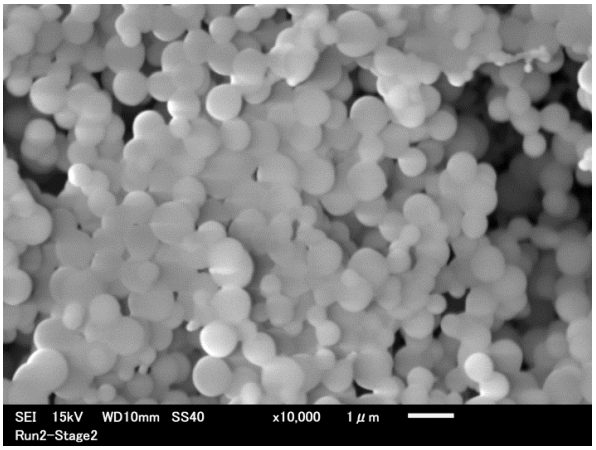
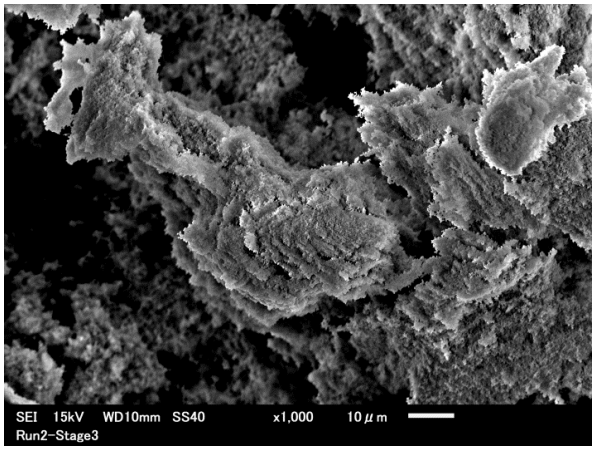


写真 3.29　10000 倍観察図（Run2、ステージ 2）



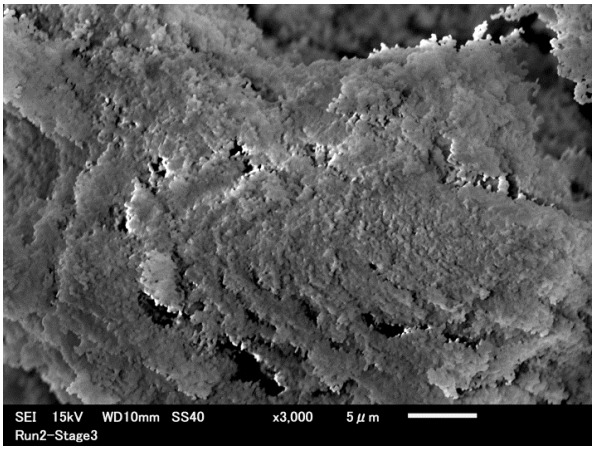


写真 3.30　1000 倍観察図（Run2、ステージ 3）　写真 3.31　3000 倍観察図（Run2、ステージ 3）

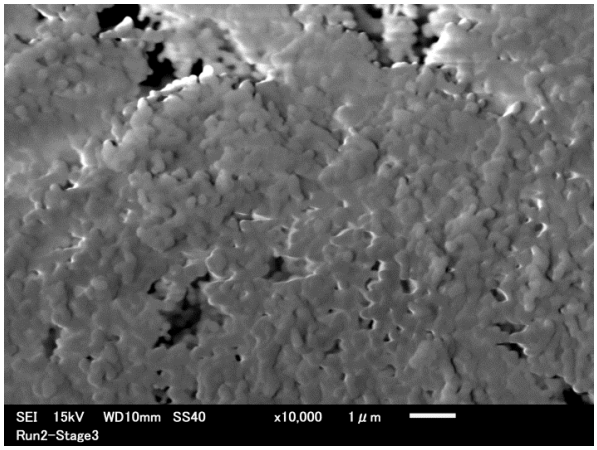


写真 3.32　10000 倍観察図（Run2、ステージ 3）

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

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

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

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

(a) 量濃度（amount concentration）は臨床化学の分野では物質濃度（substance concentration）ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元１をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の１は通常は表記しない。

表３．固有の名称と記号で表されるSI組立単位

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

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号radおよびsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の１は明示されない。
(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f)放射性核種の放射能（activity referred to a radionuclide）は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g)単位シーベルト（PV,2002,70,205）についてはCIPM勧告2（CI-2002）を参照。

表４．単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

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

表５．SI 接頭語

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

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm^2=10^4m^2
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm^3=10^3cm^3=$10^{-3}m^3$
トン	t	1 t=10^3 kg

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

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

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

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

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10^{-7} J
ダイン	dyn	1 dyn=10^{-5}N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm^{-2}=0.1Pa s
ストークス	St	1 St =1cm^2 s^{-1}=$10^{-4}m^2$ s^{-1}
スチルブ	sb	1 sb =1cd cm^{-2}=10^4cd m^{-2}
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm^{-2} =10^4lx
ガル	Gal	1 Gal =1cm s^{-2}=$10^{-2}ms^{-2}$
マクスウエル	Mx	1 Mx = 1G cm^2=10^{-8}Wb
ガウス	G	1 G =1Mx cm^{-2} =10^{-4}T
エルステッド(a)	Oe	1 Oe ≙ (10^3/4π)A m^{-1}

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

表10．SIに属さないその他の単位の例

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

（第8版，2006年）