成果公開資料

令和5年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金 (燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発 (粉状及びスラリー・スラッジ状燃料デブリの取り扱い技術の開発))

2024年度最終報告

Decom, Tech

2025年10月

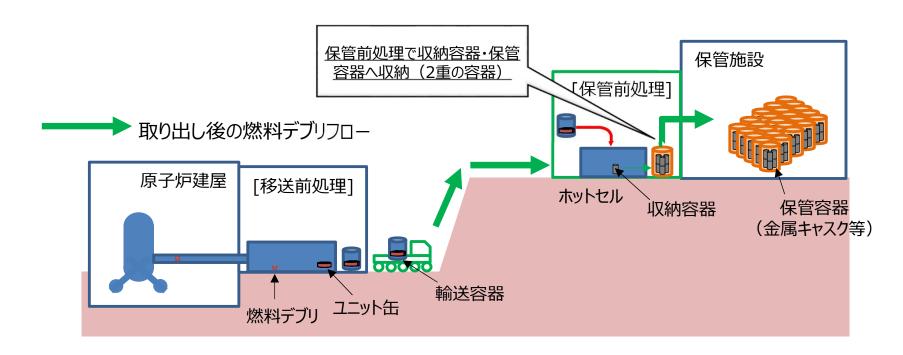
東双みらいテクノロジー株式会社

目次

- 1.本事業の概要
- 2.実施スケジュール
- 3.実施体制
- 4.報告内容
 - 4.1燃料デブリの粒径に起因した影響
 - 4.1.1(1) 水素発生量の検証
 - 4.1.1 (2) 水素ガスだまりに関する検討
 - 4.1.2 収納容器設置フィルタの性能検証
 - 4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化
 - 4.3 収納方式・収納容器の再評価
- 5.まとめと今後の課題
- 6.本事業の目標と達成度

1.本事業の概要

- 燃料デブリは原子炉建屋から取り出した後,構内で一時保管する方針(50年と仮設定)
- 取り出した燃料デブリは収納容器と保管容器の2重の容器を使用し、保管施設にて保管することを想定している。
- 既に検討された収納容器(小規模取り出し用収納容器)では,粉状燃料デブリ(粒径 0.1mm以下)を保管することを想定していない。
- 本事業では、粉状燃料デブリを保管する場合の課題について取り組み、粉状を含む燃料デブリの 収納容器について適用性評価を実施した。

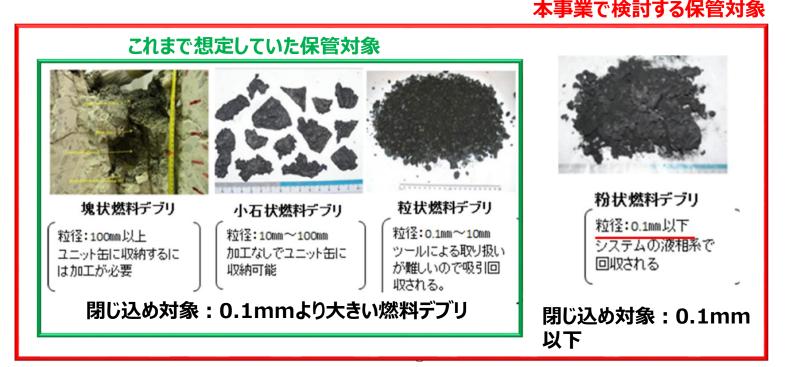


1.本事業の概要

■ 燃料デブリの粒径に起因した影響

- ▶ 小規模取り出し用収納容器は燃料デブリ取り出しの初期向けに, 0.1mmより大きな燃料デブリ(緑枠内)を 閉じ込め対象として考案された。
- ▶ 本事業ではこれまで検討されていない, 0.1mm以下の燃料デブリを保管する場合の課題について取り組んだ。
- ▶ 粉状燃料デブリの場合,粒状・塊状燃料デブリに比べて水素発生量が想定より多く発生する可能性があることが 文献※により示されていた。
- ▶ 粉状燃料デブリを収納容器に収納する場合,収納容器のフィルタは粒径が0.1mm以下の燃料デブリを閉じ込めかつ水素を透過する機能が必要と考えられた。

粒径: 大



**LaVerne,J.A., and Tandon,L.,(2003)," Ha Production in the Radiolysis of Water on UOand Other Oxides", J. Phys. Chem. B, 107, p.13623-13628 他

■ 粉状燃料デブリの保管における課題と本事業の実施内容

前回※の補助事業において、粉状燃料デブリ保管の課題として、粒径が小さくなることの影響や、長期保管時のフィルタ性能評価等が挙げられており、本事業では当該課題について取り組んだ。

※令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金 燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発(粉状、スラリー・スラッジ状燃料デブリの保管までに必要な技術の開発)

課題1 燃料デブリの粒径に起因した影響

> 1-① 水素発生量の検証

収納容器設計の説明性向上のため、粉状燃料デブリについて水素発生量検証試験を行い、水素発生量の評価式を精緻化した。

また,スラリー・スラッジ状の燃料デブリで発生することが懸念される水素ガスだまりについても,基礎的な試験により発生条件等を整理した。

▶ 1-② 収納容器設置フィルタの性能検証

収納容器のフィルタに求められる機能(閉じ込め・水素透過)について,粉状燃料デブリを保管する場合の性能評価が必要。検証試験により,粉状燃料デブリの閉じ込め性能および水素透過性能を評価するとともに,同評価に基づき容器内水素濃度を試算した。

課題2 フィルタの性能劣化

▶ 長期使用時のフィルタ劣化事象を模擬し、性能評価試験を行うことで適用寿命を評価した。

課題3 収納方法・収納容器の再評価

▶ 上記の課題1, 2の評価結果を踏まえ、収納容器の粉状燃料デブリ保管への適用性を再評価した。

2. 実施スケジュール

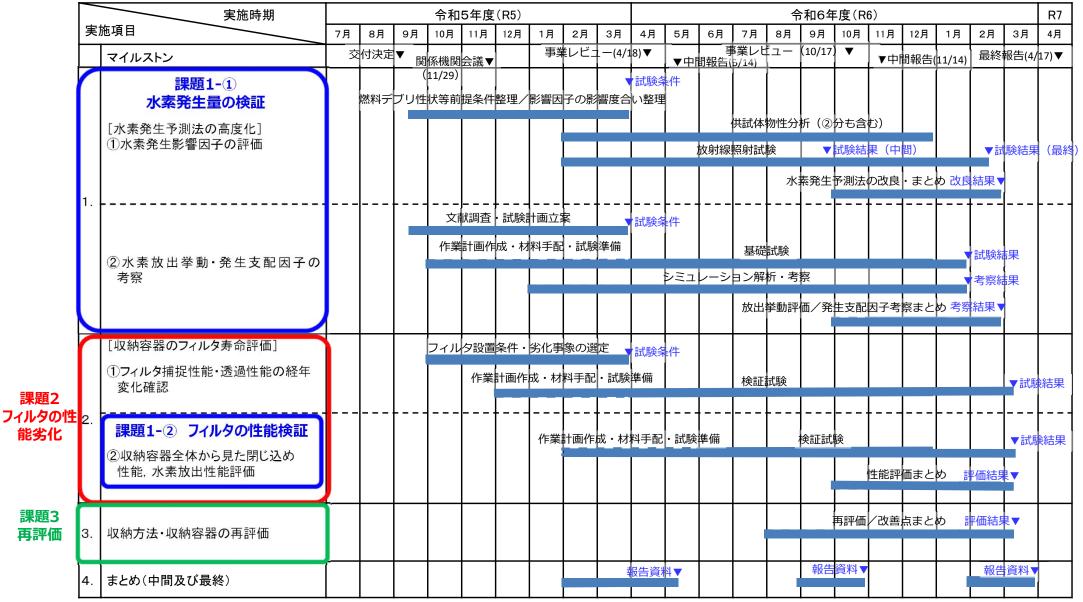
Decom, Tech

■ 実施項目および実施スケジュール

課題1 燃料デブリの粒径に起因した影響

課題2 フィルタの性能劣化

課題3 収納方法・収納容器の再評価



■ 事業執行のための体制

東京電力ホールディングス株式会社

- 現場適用に向けた要求事項抽出等
- 現場適用/ユーザー視点から見た技術レビュー

(連名申請)

東双みらいテクノロジー株式会社

- 全体計画策定と技術統括取り纏め
- 技術開発の進捗確認など技術管理取り纏め
- 現場適用に向けた要求事項の整理
- 右記の結果を踏まえた,収納方法・収納容器の再評価

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構(JAEA)

- ①水素発生予測法の高度化
 - ・水素発生の包括的な解明・評価
 - ・水素ガスだまり発生・放出のモデル化

日立GEニュークリア・エナジー株式会社

X

- ①水素発生予測法の高度化
 - ・水素発生予測の基礎試験
- ②収納容器のフィルタ寿命評価
- ③収納方法・収納容器の再評価補助

※2025年6月1日付で社名が「日立GEベルノバニュークリアエナジー株式会社」に変更されました

4. 報告内容

4.1 燃料デブリの粒径に起因した影響

■4.1.1(1) 水素発生量の検証

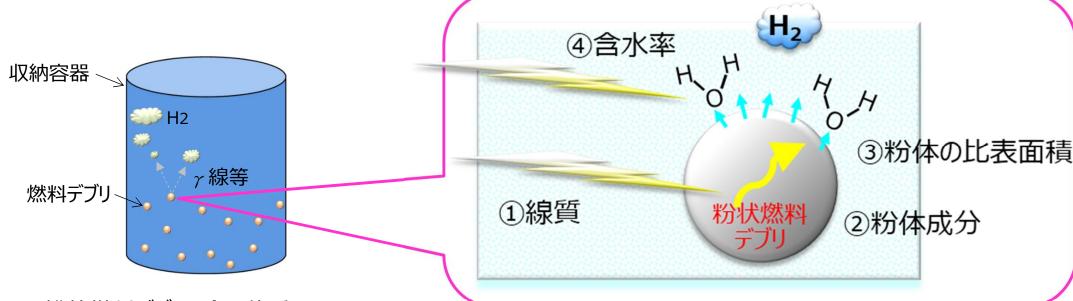
- ▶ 水素発生量への影響因子の抽出(粉状燃料デブリを含む体系)
- ➤ 水素発生量検証の試験方法
- > 水素発生量検証の試験結果
- > 考察·評価

■ 4.1.1 (2) 水素ガスだまりに関する検討

- ▶ 水素ガスだまり生成条件の調査
- ▶ 水素ガスだまり生成検証のための試験条件・試験方法
- ▶ 水素ガスだまり生成検証の試験結果
- > 考察·評価

Decom, Tech

■ 水素発生量の影響因子の抽出(粉状燃料デブリを含む体系)



粉状燃料デブリを含む体系における 放射線分解による水素発生のイメージ

水素発生量への影響因子として,以下の4項目 を抽出

水に与える放射線エネルギー量

(粉状燃料デブリを含む)体系が 吸収した放射線のエネルギー量

× 水が吸収した エネルギーの割合 × G値

水素発生量

- ① 線質 (LET:線エネルギー付与)
- ② 粉体成分(水へのエネルギー伝播のし易さ)
- ③ 比表面積 (単位重量あたりの表面積)
- ④ 含水率 (吸収・伝播先の水分量)

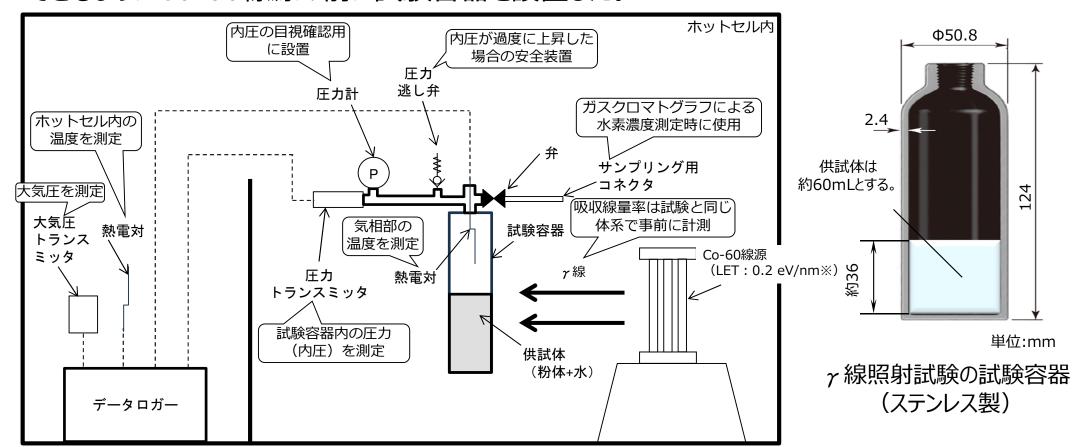
水素発生量評価式

→これらの影響度合いについて、検証試験により評価した。

Decom, Tech

■ 水素発生量検証の試験方法(γ線照射試験)

γ線照射試験における容器の寸法と供試体の量を以下に示す。試験容器全体に照射できるようにCo-60線源の前に試験容器を設置した。



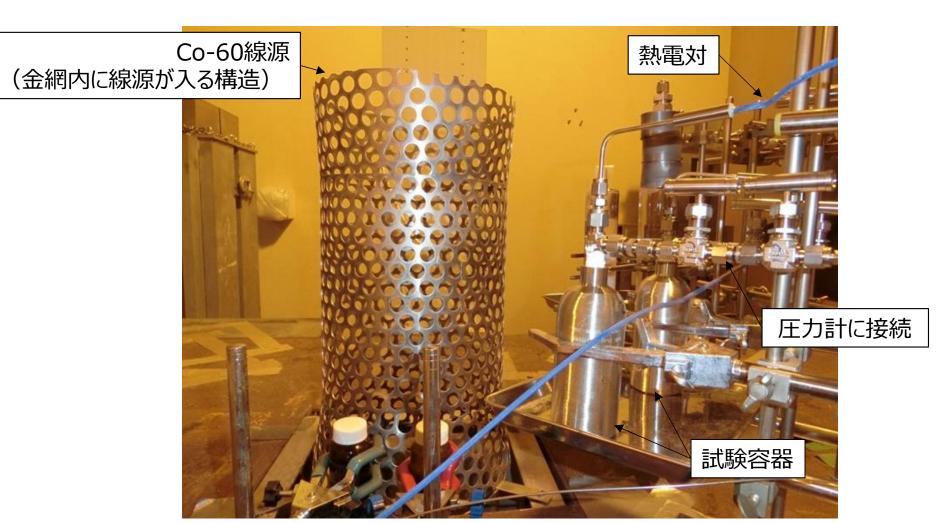
※参照元: J.W.T.Spinks, R.J.Woods, "An Introduction to Radiation Chemistry Third ed.", John Wiley and Sons, Inc. NY(1990)

本試験は大気環境で行うため、8ppm程度の酸素が溶存していると想定される。照射試験では水素再結合を抑制するために試験水にNaIを添加(10mmol/L)しており、ヨウ化物イオンとOHラジカルとの反応速度のほうが十分大きいため、酸素の影響は軽微と考えられる。

4.1.1(1) 水素発生量の検証

■ 水素発生量検証の試験方法(γ線照射試験)

安全性に配慮しステンレス製の容器により試験を実施した。

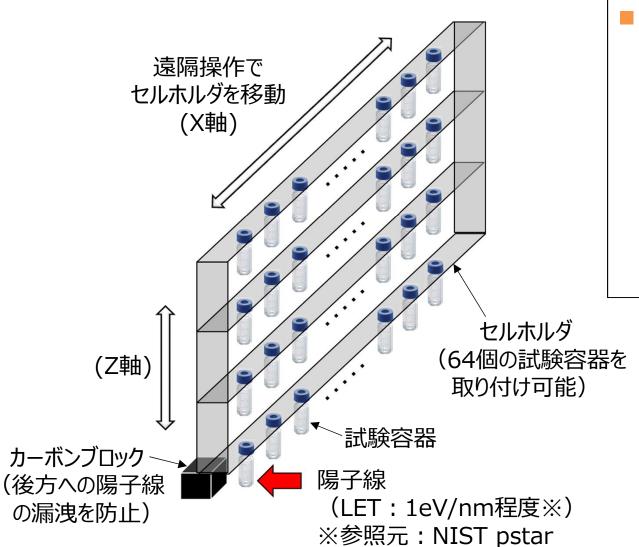


照射中は圧力計により水素の発生状況を監視し、照射後にガスクロマトグラフで水素濃度を測定した。

4.1.1(1) 水素発生量の検証

■ 水素発生量検証の試験方法(陽子線照射試験)

陽子線照射試験における試験体系を以下に示す。



© Decom.Tech

■ 陽子線ビームの情報

施設名称:国立大学法人大阪大学 核物理研究センター

➤ 照射線源 : AVFサイクロトロン

▶ 入射エネルギー:約65[MeV]

ビーム径 : 約15[mmΦ]

▶ 照射時間 :最大100[s]



陽子線照射試験の試験容器

4.1.1 (1) 水素発生量の検証

■ 水素発生量検証の試験方法(陽子線照射試験)

光学ステージの遠隔操作により作業を効率化した。



照射後に容器内のガスを抽気し、ガスクロマトグラフにより水素濃度を測定した。

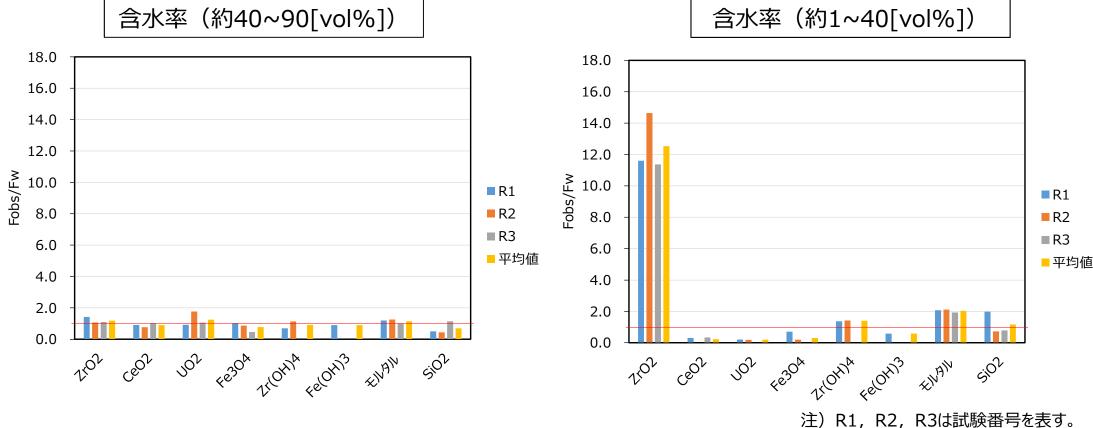
Decom, Tech

■水素発生量検証の試験結果

①粉体成分の影響について

F_w:試験水のみの場合の、水のエネルギーの吸収割合

Fobs: 試験で観測された, 水のエネルギーの吸収割合



<結果>含水率が約1~40[vol%]のZrO2で, Fobs/Fwが顕著に大きくなった。

<考察>ZrO2の場合,粉体の影響により,粉体が直接吸収したエネルギーから間接的に水にエネルギーが付与され,水のエネルギー吸収割合が大きくなったものと考えられる。

© Decom.Tech

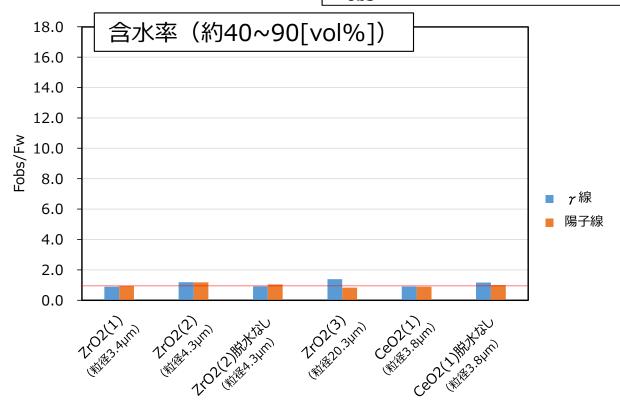
Decom, Tech

■水素発生量検証の試験結果

②線質(LET)の影響について

Fw:試験水のみの場合の, 水のエネルギーの吸収割合

Fobs: 試験で観測された, 水のエネルギーの吸収割合



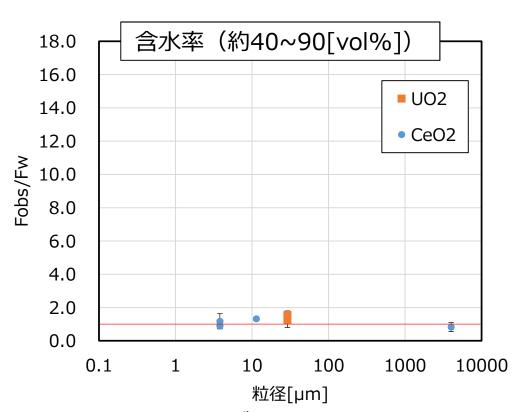
<結果 $> \gamma$ 線と陽子線の F_{obs}/F_{w} は同等程度となった。

<考察> ただし, α 線の場合,陽子線と同様の結果となるとは限らないため, α 線の影響を確認する試験が 今後必要になる可能性がある。

Decom, Tech

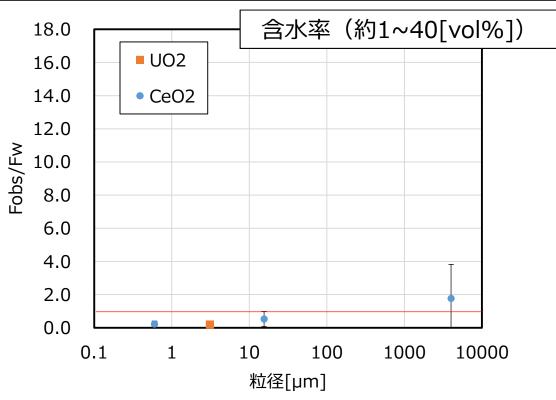
■水素発生量検証の試験結果

③比表面積(粒径)の影響について



 F_w :試験水のみの場合の,水のエネルギーの吸収割合

Fobs:試験で観測された、水のエネルギーの吸収割合



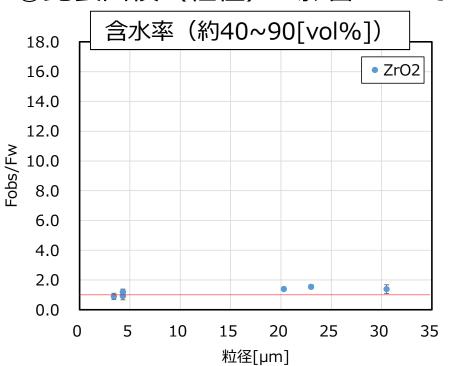
く結果>粒径によらず F_{obs}/F_{w} が概ね一定となった。また、 UO_{2} の F_{obs}/F_{w} は CeO_{2} と同程度となった。

<考察> CeO_2 は UO_2 と同じ結晶構造であり、化学的および物理的性質が類似していることから、 UO_2 の F_{obs}/F_w は CeO_2 と同程度となったと考えられる。

Decom, Tech

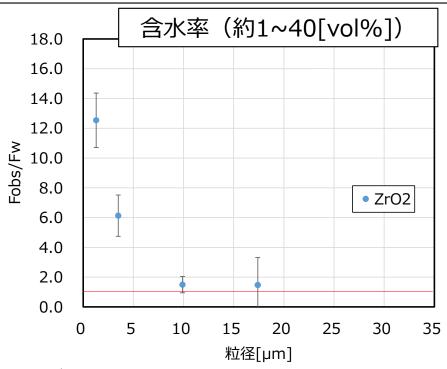
■水素発生量検証の試験結果

③比表面積(粒径)の影響について



F_w:試験水のみの場合の, 水のエネルギーの吸収割合

Fobs: 試験で観測された, 水のエネルギーの吸収割合



<結果> 含水率が約40~90[vol%]の場合,粒径によらずF_{obs}/F_wが概ね一定となった。含水率が 約1~40[vol%]の場合,粒径が小さくなるにつれてF_{obs}/F_wが大きくなった。

<考察>文献(N. G. Petrik, et al., 2001%)では、比表面積が大きくなる場合(すなわち粒径が 小さい場合)に水素発生のG値が増加する傾向が報告されており、ZrO2はその傾向と一致する。

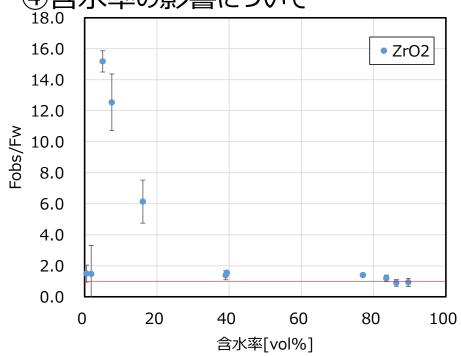
一方、CeOっとUOっでは、このような傾向は見られなかった。

※Petrik, N.G., Alexandrov, A.B., Vall, A.I., (2001), "Interfacial Energy Transfer during Gamma Radiolysis of Water on the Surface of ZrO2 and Some Other Oxides", J. Phys. Chem. B, 105, p.5935-5944

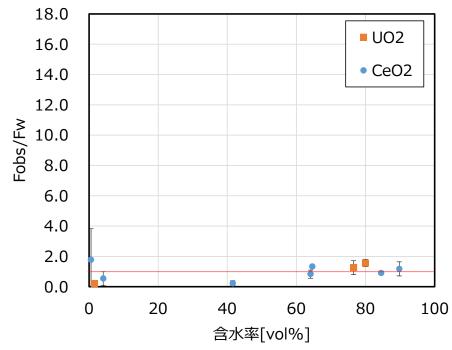
Decom, Tech

水素発生量検証の試験結果

④含水率の影響について



 F_w :試験水のみの場合の,水のエネルギーの吸収割合 Fobs:試験で観測された,水のエネルギーの吸収割合



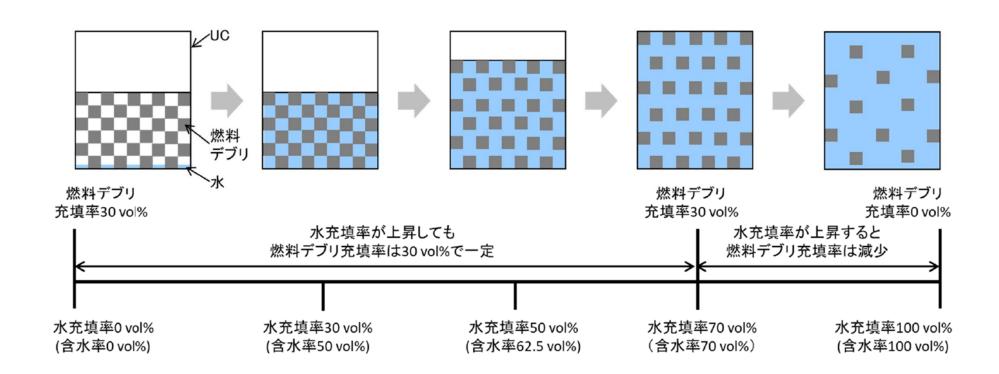
<結果>ZrO₂の場合,含水率が小さくなるにつれてF_{obs}/F_wが大きくなった。また含水率が0付近で Fobs/Fwが小さくなった。

<考察>文献(Yuta Kumagai, et al.,2013※)では,含水率の減少により,水素分子の観測G値 が増加し、含水率がゼロ付近の一番小さい条件で一気に低下した。ZrO2では文献の傾向と一致 することを確認した。水がなければ水の放射線分解が生じなくなることは自明であるが、今回の試験 でも確認できた。

■ 考察·評価

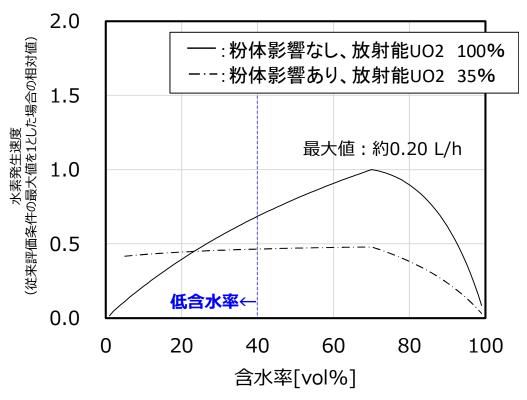
影響因子	まとめ
①粉体成分	ZrO_2 の場合,粉体の影響により,粉体が直接吸収したエネルギーから間接的に水にエネルギーが付与され,水のエネルギー吸収割合が大きくなったものと考えられる。
②線質	陽子線と γ 線の結果を比較すると、LETが約 5 倍程度の差異では、結果として、水のエネルギー吸収割合は 2 倍にも至らず、水のエネルギー吸収割合は同程度となった。ただし、 α 線の場合、陽子線と同様の結果となるとは限らないため、 α 線の影響を確認する試験が今後必要になる可能性がある。
③比表面積(粒径)	結晶構造が同じある CeO_2 と UO_2 について F_{obs}/F_w を比較すると同程度であった。 比表面積が大きくなる場合(すなわち粒径が小さい場合), ZrO_2 の水のエネルギー 吸収割合は,文献(N. G. Petrik, et al., 2001)の傾向と合致した。
④含水率	文献(Yuta Kumagai, et al., 2013)では,含水率の減少により,水素分子の観測G値が増加し,含水率がゼロ付近の一番小さい条件で一気に低下した。 ZrO_2 では文献の傾向と一致することを確認した。水がなければ水の放射線分解が生じなくなることは自明であるが,今回の試験でも確認できた。

- 考察・評価(水素発生速度の試算)
 - ▶水素発生速度の試算において、燃料デブリの充填率は以下のように定義した。



■ 考察・評価(水素発生速度の試算)

》粉体影響を考慮しない場合を「 UO_2 :100vol%(以下,従来評価条件という)とし,粉体影響が最も大きい結果が得られたケースである「 UO_2 :35vol% + ZrO_2 :65vol%」の水素発生速度と比較した結果(相対値)を示した。



く結果>

- ・低含水率領域のうち、含水率20%以下の領域において、「 ZrO_2 : 65vol%, UO_2 :35vol%]の水素発生速度は従来評価条件より大きくなった。これは、 ZrO_2 の粉体影響によるものと考えられる。
- ・「 ZrO_2 : 65vol%, UO_2 :35vol%」の水素発生速度の最大値は,従来評価条件の約0.5倍であった。これは放射線源となる UO_2 が少ないためと考えられる。

く考察>

・粉体の影響を考慮した場合,水素発生速度の最大値が大きくなることが懸念されたが,今回の試算結果より,従来評価における水素発生速度の最大値は十分保守的であることが示された。

■まとめと今後の課題

- ▶粉状燃料デブリを含む体系における水素発生量の影響因子(線質(LET),粉体成分,比表面積,含水率)を抽出し、それらの影響程度を試験で確認した。
- ▶試験結果に基づき、水素発生速度を試算した結果、低含水率領域においては水のエネルギー吸収割合が増加するZrO₂の影響で従来評価(UO₂:100%)より水素発生速度が大きくなったものの、従来評価における水素発生速度の最大値は十分保守的であることが示された。
- >線質の影響確認においては, 実施が容易ではないα線の影響確認試験に有益な情報を見出す目的で陽子線照射試験を実施し,試験における確認事項(供試体の適切な量,試験容器,水素発生量の測定方法等)や外部照射の適用性等の情報が得られた。
- ightharpoonup線質の影響について,lpha線の影響確認が未実施であるため,照射試験等によるlpha線の影響検証が今後の課題である。

4. 報告内容

4.1 燃料デブリの粒径に起因した影響

■ 4.1.1(1) 水素発生量の検証

- ▶ 水素発生量への影響因子の抽出(粉状燃料デブリを含む体系)
- > 水素発生量検証の試験条件・試験方法
- ▶ 水素発生量検証の試験結果
- > 考察·評価

■ 4.1.1 (2) 水素ガスだまりに関する検討

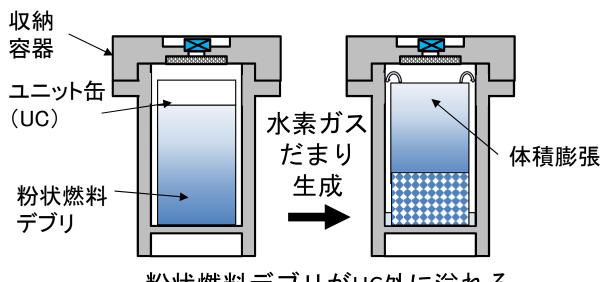
- ▶ 水素ガスだまり生成条件の調査
- ▶ 水素ガスだまり生成検証のための試験方法
- ▶ 水素ガスだまり生成検証の試験結果
- > 考察·評価

Decom Tech

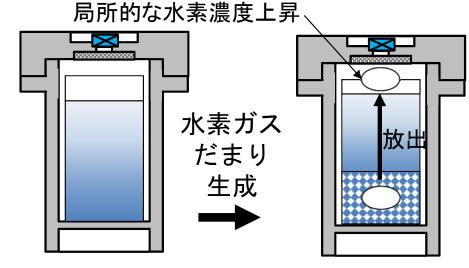
水素ガスだまり生成条件の調査(背景)

スラリー・スラッジ化した粉状燃料デブリは粘性を有し、発生した水素はスラリー内に 保持され易く、"水素ガスだまり"状態になり易いことから、水素の突発的な放出による 濃度上昇や, ガスだまりの結果, 時には溢水に至る等が懸念される。 そこで、当該水素ガスだまりを再現できるか、如何なる条件下で生成されるかなど、

基礎的知見が必要と考えられ、文献調査及び再現試験を行った。



粉状燃料デブリがUC外に溢れる



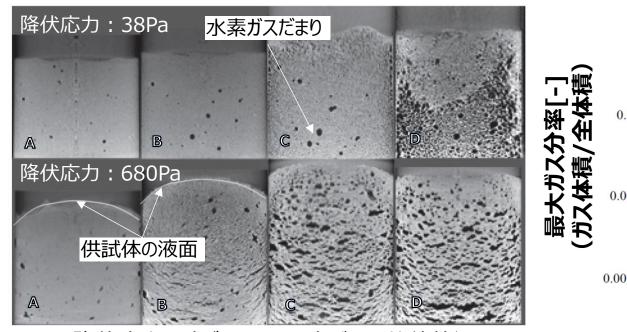
水素濃度が局所的に上昇する現象

水素ガスだまりの生成(イメージ)

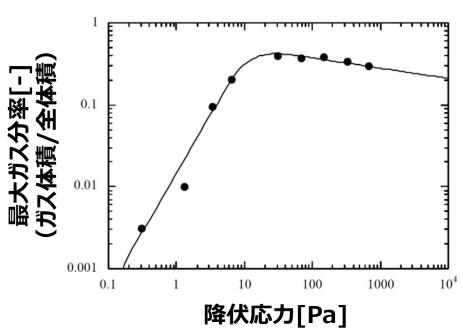
Decom Tech

■ 水素ガスだまり生成条件の調査(文献調査結果)

・スラッジの降伏応力に応じて、最大ガス分率、即ち、スラッジ中のガスの蓄積量に大きな変化が見られる。



降伏応力に応じたスラッジ内ガスの蓄積状況 各写真の経過時間: A:Oh, B:6h後, C:24h後, D:48h後



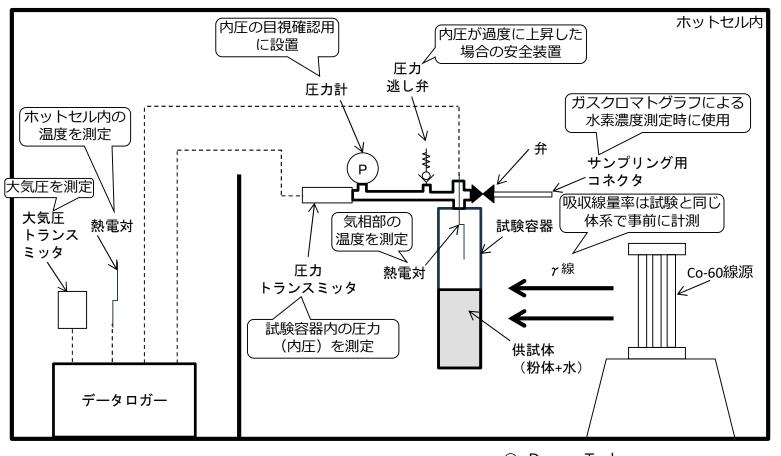
→水素ガスだまりの生成に対し、スラッジの降伏応力が重要な影響因子であると考えられる。 したがって、同応力に応じたガスだまり状況(蓄積量)を確認/再現した。

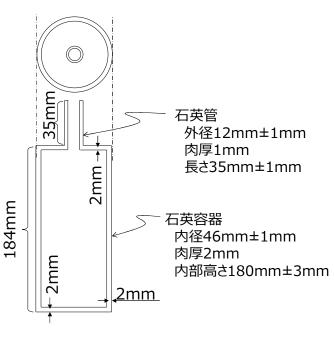
出典: P.A. Gauglitz and G. Terrones, Estimated Maximum Gas Retention from Uniformly Dispersed Bubbles in K Basin Sludge Stored in Large-Diameter Containers, PNNL-13893(2002)

Decom, Tech

■ 水素ガスだまり生成検証のための試験方法

- ★ 試験容器と圧力計を接続した密封系の試験と、圧力計を接続せず試験容器単独で試験する開放系の 試験を行った。
- ▶ 供試体の状態を目視確認するために、試験容器は石英ガラス製とした。
- 密封系の試験では、真空引きにより水素ガスだまりを破壊して抽気を実施した。



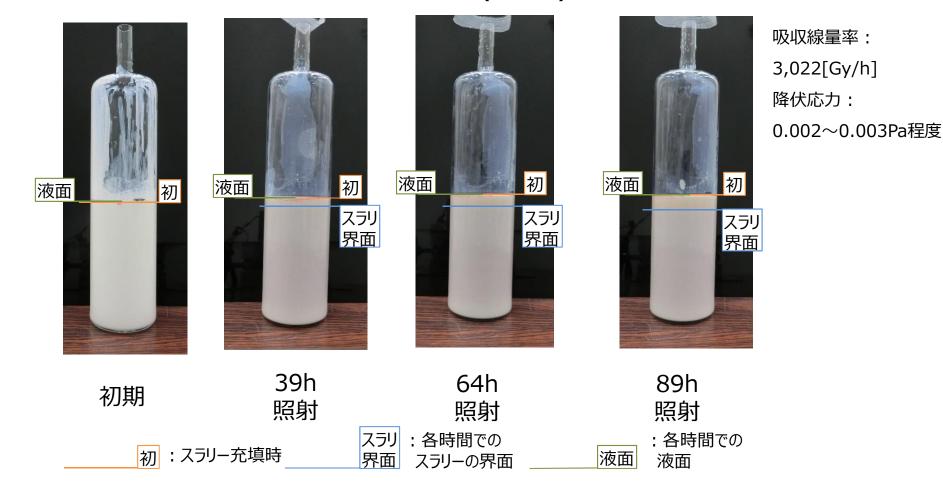


試験容器(石英ガラス製)

Decom, Tech

■ 水素ガスだまり生成検証の試験結果

試験容器(石英ガラス製)に充填した供試体(No.1)の照射による変化



く結果>

- $oldsymbol{\cdot}_{\gamma}$ 線照射による液面の変化は観測されなかった。
- ・供試体は,上部にスラリー濃度の低い層(懸濁状態の層),下部にスラリー濃度の高い層の二層に分離した。

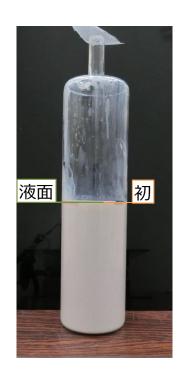
© Decom.Tech

Decom, Tech

■ 水素ガスだまり生成検証の試験結果

試験容器(石英ガラス製)に充填した供試体(No.2)の照射による変化









吸収線量率: 2,718[Gy/h] 降伏応力:

0.12~0.13Pa程度

初期

39h 照射

初 : スラリー充填時

64h 照射

89h 照射

液面

: 各時間での

スラリ:各時間での 液面 スラリーの界面

く結果>

γ線照射による液面の変化は観測されなかった。

・供試体は,上部にスラリー濃度の低い層(懸濁状態の層),下部にスラリー濃度の高い層の二層に分離した。

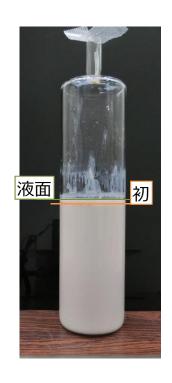
界面

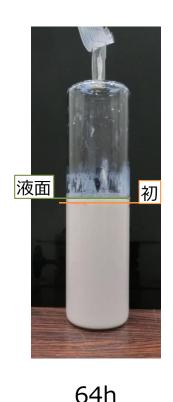
Decom, Tech

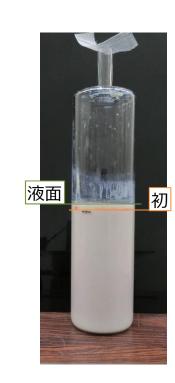
■水素ガスだまり生成検証の試験結果

試験容器(石英ガラス製)に充填した供試体(No.3)の照射による変化









吸収線量率: 3,082[Gy/h] 降伏応力: 0.7~1.1Pa程度

初期

39h 照射

照射

液面

89h 照射

: 各時間での

液面

初:スラリー充填時

スラリ: 各時間での 界面 スラリーの界面

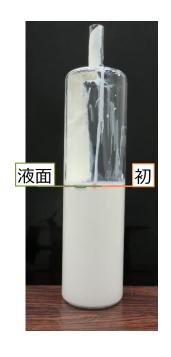
く結果>

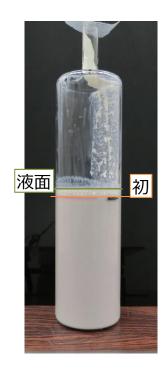
・ γ 線照射により液面の上昇が観測された。上昇した液は,懸濁状態であった。

Decom Tech

■ 水素ガスだまり生成検証の試験結果

試験容器(石英ガラス製)に充填した供試体(No.4)の照射による変化









吸収線量率:

2,807[Gy/h]

降伏応力:

1.6~4.0Pa程度

39h照射の

拡大図

初期

39h 照射

界面

64h 照射 スラリ: 各時間での

スラリーの界面

89h 照射

: 各時間での

液面

液面

<結果>

 \cdot_{γ} 線照射により液面の上昇が観測された。

初 : スラリー充填時

・気相とスラリーの界面に気泡(泡)がたまっていた。

© Decom.Tech

Decom, Tech

水素ガスだまり生成検証の試験結果

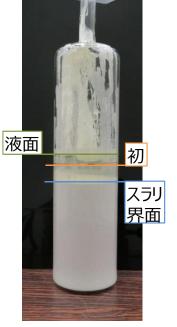
試験容器(石英ガラス製)に充填した供試体(No.5)の照射による変化

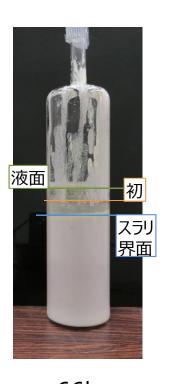
吸収線量率:3,022[Gy/h]

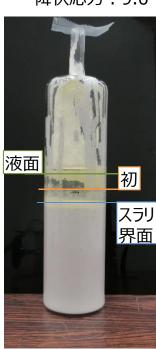
降伏応力: 9.0~18Pa程度



液面 初 スラリ 界面







初期

19h 照射

初 : スラリー充填時

42h 照射

スラリ:各時間での 界面 スラリーの界面

66h 照射

: 各時間での

95h 照射

液面

液面

く結果>

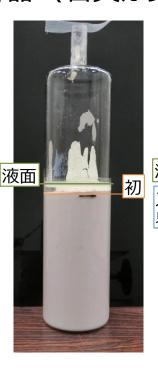
・初期からスラリーに上澄みがあったが, γ 線照射によって液面は有意に上昇した。また,上澄みは透明であった。 Decom.Tech

Decom, Tech

■ 水素ガスだまり生成検証の試験結果

試験容器(石英ガラス製)に充填した供試体(No.6)の照射による変化



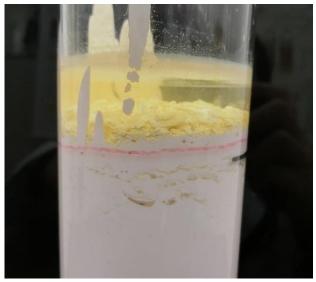








吸収線量率: 2,718[Gy/h] 降伏応力: 220~460Pa程度



初期

19h 照射

42h 照射

66h 照射

95h 照射

: 各時間での

初:スラリー充填時

スラリ: 各時間での 界面 スラリーの界面

液面

液面

95h照射 拡大図

く結果>

- ・初期からスラリーに上澄みがあったが, γ 線照射によって液面は有意に上昇した。また,上澄みは透明であった。
- ・スラリーがドーム状に盛り上がり、粉体と水分が上下に分離しており、照射後、有意な時間をおいても、分離 されたものが元のスラリーに戻ることは無かった。

Decom. Tech

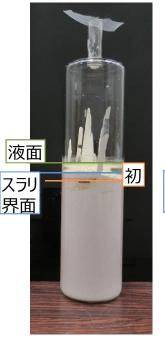
■ 水素ガスだまり生成検証の試験結果

試験容器(石英ガラス製)に充填した供試体(No.7)の照射による変化

液面









吸収線量率:3,082[Gy/h] 降伏応力: 480~850Pa程度



初期

19h 照射

初 : スラリー充填時

照射 スラリ:各時間での 界面

スラリーの界面

66h 照射

液面

95h 照射

: 各時間での

液面

95h照射 拡大図

く結果>

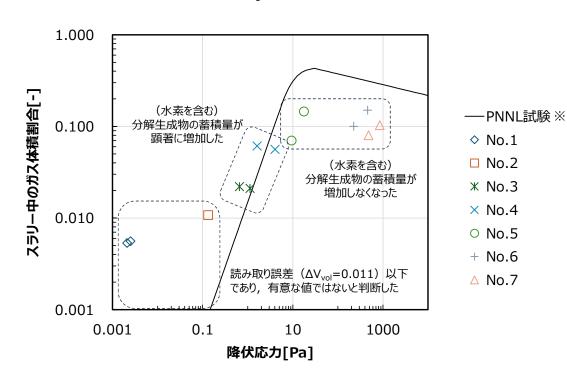
- ・初期からスラリーに上澄みがあったが, γ 線照射によって液面は有意に上昇した。また,上澄みは透明であった。
- ・スラリーがドーム状に盛り上がり、粉体と水分が上下に分離しており、照射後、有意な時間をおいても、分離 されたものが元のスラリーに戻ることは無かった。

Decom, Tech

■ 考察·評価

スラリー充填時の液面高さ L_0 と照射後の液面高さ L_t から,スラリー中のガス体積割合 ΔV_{vol} を次式で計算した。

$$\Delta V_{vol} = \frac{L_t - L_0}{L_t}$$



<結果>

降伏応力に応じて「水素ガスだまりがほとんど生成されない領域」「(水素を含む)分解生成物の蓄積量が顕著に増加する領域」「(水素を含む)分解生成物の蓄積量が増加しなくなる領域」があった。これは文献(PNNL試験※)と同様の傾向を示した。

く考察>

計画時の予想通りの結果が得られた。降伏応力は水素ガスだまりの発生状況確認の指標のひとつと言える。なお水素ガスだまりの生成は確認できたものの、水素ガスだまりの影響因子を全て解明できたわけではない。今後も更なる検討が必要と考える。

※出典: P.A. Gauglitz and G. Terrones, Estimated Maximum Gas Retention from Uniformly Dispersed Bubbles in K Basin Sludge Stored in Large-Diameter Containers, PNNL-13893(2002)

Decom, Tech

■ 考察・評価(水素放出の挙動評価に向けた解析ツールの開発)

容器内の水素気泡(H2だまり)の過渡挙動を予測

- 固体粒子の移動(・沈降)
- 水素気泡(H2だまり)の発生・成長・移動
- 崩壊熱による状態変化(温度分布,流動特性,蒸発,凝縮等)
- 水分,混合ガス(水素,水蒸気他)の移動

混合ガス(空気、水素、水蒸気等)

- ①気液固の混相流シミュレーションの現状: CFD(VOF)-DEM(離散要素法), 多流体モデル
- -課題
- ·VOF法: 気泡界面を解像する計算格子が必要
- ・DEM法:充填,流動状況を再現する粒子数が必要
- ・多流体モデル:各相,及び各相間についての多くの相互作用モデルが必要
- ②粒子や気泡径, その数密度に応じて, 解析手法を組み合わせる等の 検討が必要
- ③固液, 気液等の2相系から, 段階的に気液固の3相系に拡張
- ④実験分析等とあわせた各相の物性や相互作用モデルの改良に自由度 が必要

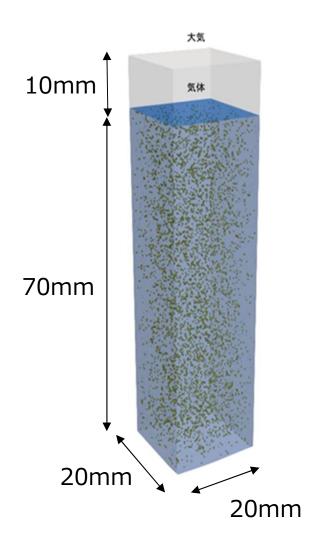
計算モデルの概要

© Decom.Tech

Decom, Tech

■ 考察・評価(水素放出の挙動評価に向けた解析ツールの開発)

固体粒子の沈降シミュレーション:3次元モデル図



● 固体粒子 (微細ジルコニア粒子)

·形状:直径50~250[µm](球形)

·密度:5600[kg/m³]

·粒子数:100,000[個]

・初期位置:液体領域全体に

一様分布

・粒子間相互パラメータ

ヤング率: 5.0e6[Pa]

ポアソン比: 0.45

反発係数: 0.3

摩擦係数:0.5

液体

·動粘性係数:1.0e-6[m²/s]

(水粘度相当)

·密度:998.2[kg/m³]

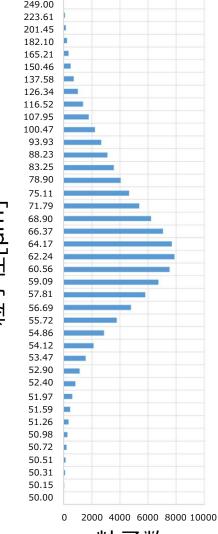
□ 気体

·動粘性係数:1.5e-5[m²/s]

·密度:1.2[kg/m³]

© Decom.Tech

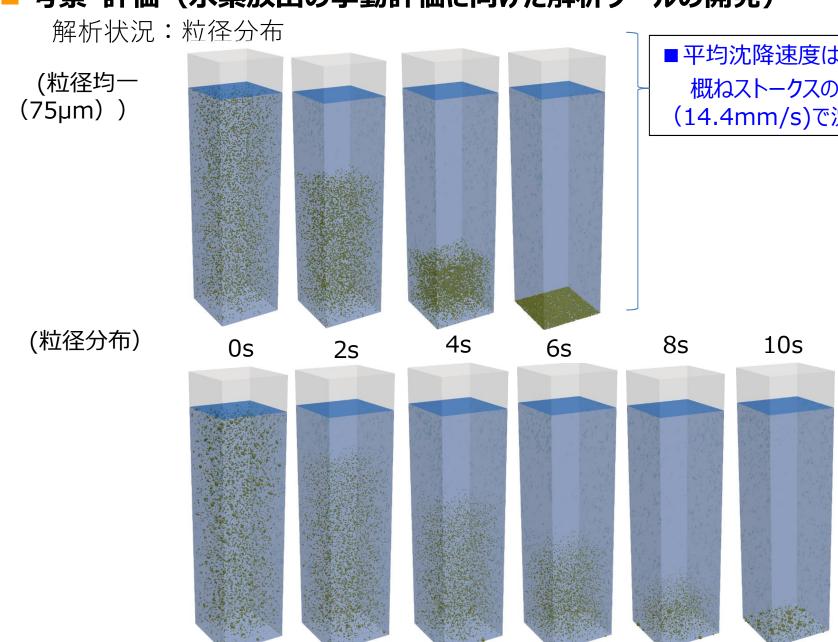
粒子径別の粒子数



粒子数

Decom, Tech

■ 考察・評価(水素放出の挙動評価に向けた解析ツールの開発)



■平均沈降速度は13mm/sで, 概ねストークスの終端速度 (14.4mm/s)で沈降している様相を確認。

$$v_{s} = \frac{d^{2}(\rho_{p} - \rho_{f})g}{18\eta}$$

v_s:粒子速度

d: 気泡直径

ρ。: 粒子密度

 $\rho_{\rm f}$:流体密度

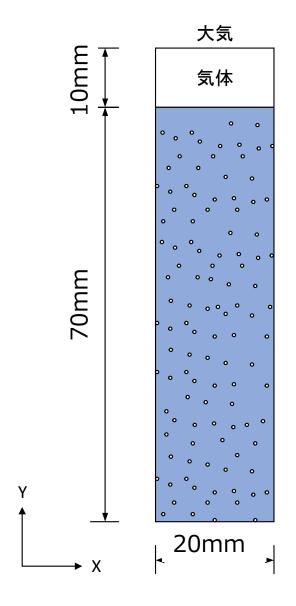
g:重力加速度

η:流体粘度

Decom, Tech

■ 考察・評価(水素放出の挙動評価に向けた解析ツールの開発)

気泡の成長・上昇シミュレーション:2次元モデル図



液体

·動粘性係数:1.0e-6[m²/s] (水粘度相当)

·密度:998.2[kg/m³]

·表面張力: 0.072[N/m]

□ 気体

·動粘性係数:9.8e-5[m²/s]

·密度: 0.0899[kg/m³]

気泡

·動粘性係数:9.8e-5[m²/s]

·密度: 0.0899[kg/m³]

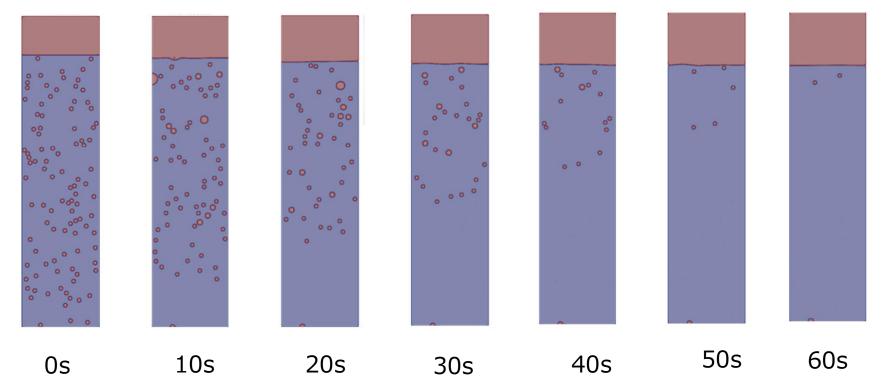
Decom, Tech

■ 考察・評価(水素放出の挙動評価に向けた解析ツールの開発)

解析状況:流体粘度(水相当×1000)

・流体中の単一気泡の速度を表す式で得られた気泡速度:0.27mm/s

解析によって得られた気泡速度: 1.09mm/s



現解析では、流体中の単一気泡の速度を表す式※と比較すると、解析の方が気泡の速度が大きい結果となった。これは、大きな動粘度で上昇速度が遅くなると、複数の気泡の合一(粒径成長)による速度の増加が無視できなくなることを示している。

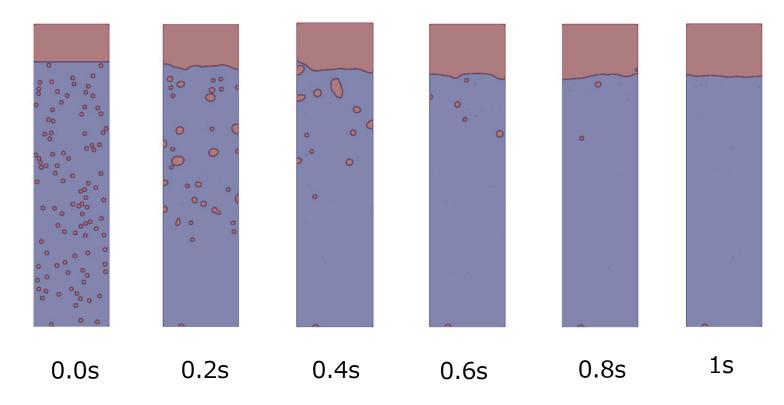
※松野儀三(1974): "液中を上昇する単一気泡に関する研究", 九州工業大学研究報告(工学) No.29, 1974.

Decom, Tech

■ 考察・評価(水素放出の挙動評価に向けた解析ツールの開発)

[参考] 解析状況:流体粘度(水相当)

- ・流体中の単一気泡の速度を表す式で得られた気泡速度:270mm/s
- 解析によって得られた気泡速度:70mm/s



Decom, Tech

■まとめと今後の課題

- 降伏応力が比較的大きな供試体でγ線照射により液位の上昇が確認された。水素ガスだまりの生成により供試体の液位が上昇したと判断した。
- ▶また、液位上昇の結果上昇した液位は、照射終了後、時間経過しても元には戻らなかった。
- ▶スラリー中のガス体積割合と降伏応力の関係として、降伏応力に応じて「(水素を含む)分解生成物がほとんど生成されない領域」「(水素を含む)分解生成物の蓄積量が顕著に増加する領域」「(水素を含む)分解生成物の蓄積量が増加しなくなる領域」があることを確認した。
- ▶水素発生予測法の高度化における水素ガスだまりは基礎的な検討である。水素ガスだまりの生成は確認できたものの、水素ガスだまりの影響因子を未だ洗い出せたわけではない。
- ▶今後さらなる検討により水素ガスだまりの影響因子を特定するとともに、実機においては、如何なる対策を講じ、ガスだまりを回避できるかについて、実機で測定し得るパラメータを踏まえて検討する必要がある。

4. 報告内容

4.1 燃料デブリの粒径に起因した影響

- 4.1.2 収納容器設置フィルタの性能検証
 - ① 前提条件の整理
 - ② 使用環境を踏まえたフィルタ候補の選定
 - ③ フィルタ性能試験の試験方法
 - ④ フィルタ性能試験の結果
 - ⑤ 考察•評価

Decom, Tech

■ 前提条件の整理

▶ 収納・移送・保管のプロセスフローを踏まえ、保管時の環境条件および保管期間については、 これまでの検討結果から以下の通り設定した。

前提条件および設定理由

項目	設定条件	設定理由
収納容器 保管環境	屋内	収納容器,保管容器,保管施設による保管を想定した。
上限温度	300℃	TMI-2における実績や燃料デブリ性状(核分裂生成物の揮発等)に基づき、上限温度を設定した。
雰囲気	大気 (建屋空調 有り)	当該フィルタを介したベント機構により,容器内水素を放出することを想定し,容器内は移送または保管時雰囲気(大気)と同等とした。
湿分	95~100%	現状では、保管状況が未確定であり、最も厳しい条件として設定した。
想定保管 期間	50年	本事業では、保管期間を50年と仮設定した。

Decom, Tech

■ 使用環境を踏まえたフィルタ候補の選定

供試するフィルタは, 前提条件等を踏まえて<u>金属製フィルタ</u>とした。

供試するフィルタ候補

用途	特徴	フィルタ性能検証への適用	検討した候補 フィルタ	使用環境
金属製フィルタ	・一般的に原子力分野で採用されている材質。・収納容器環境下での耐放射線性については有機材を含まない場合は確認不要。・収納容器環境下での耐食性は確認が必要。	原子力分野で実績のあるものを主案として検討する。	・金網積層焼結 ・金属繊維焼結 ・焼結金属粉	・復水器・固化されたスラッジ移送容器等
セラミック 製フィルタ	・耐熱性が高く,熱変形や酸化膜発生等の可能性は低い。 ・塩化物による減肉腐食発生の可能性は低い。 ・収納容器の環境下での耐放射線性は確認が必要。	着剤(耐熱温度80℃)が使用されており、接合部の破損による閉じ込め性能の低下等が懸念される。	ハ ー ド セ ラミック ディスク	工場排ガスの集塵や 医薬品製造における 低分子分離など
ガラス製 フィルタ	・耐熱温度が300℃未満の材質がある。 ・酸化被膜発生は想定されない。 ・塩化物による減肉腐食発生の可能性は低い。 ・収納容器の環境下での耐放射線性は確認が必要。	・ガラスの成分によっては乾燥と結露を繰り返した場合変質して脆くなる可能性がある。 ・ろ材に樹脂が10%含まれており長期間の運用には適さないと判断される。	a.	原子力向けには,施設 の排気系や換気空調 系統等
樹脂製 フィルタ	・塩水に対する耐食性が高い。 ・常用耐熱温度が300℃未満である。	耐熱性の観点から長期間の高温環境下でフィルタ性能を発揮することは難しいと判断される。	_	

Decom, Tech

■ 使用環境を踏まえたフィルタ候補の選定(金属製フィルタの種類と材質)

供試体フィルタ	金属フィルタ			
1六政14ノイルツ	金網積層焼結	金属繊維焼結	焼結金属粉	
ろ過精度	0.3µm, 20µm (公称ろ過精度※1)	3µm (絶対ろ過精度※2)	0.3µm (絶対ろ過精度※2)	
材質	SUS316L	SUS316L	SUS316L	
備考	・既製品で最もろ過精度の高いもの(0.3µm)を選定・比較対象として、より水素透過性の良いもの(20µm)を選定	・既製品で最もろ過精度の 高いもの(3µm)を選定	・既製品で最もろ過精度の 高いもの(0.3µm)を 選定	
イメージ	保護層 - 7.過制御層 - 分散・支持層 - 補強層 - 補強層 - 基面	断面表面	拡大 表面	

- ※1 表示精度の粒子を確実に除去することを表す値ではなく、フィルタメーカー独自の基準の値
- ※2 表示孔径以上の大きさの粒子を99.9%以上除去可能な値
- © Decom.Tech

Decom, Tech

■ フィルタ性能(閉じ込め)試験の試験方法

閉じ込め性能を考察・評価するデータを以下の試験装置構成で計測する。フィルタ有りとフィルタ無しの状態でパーティクルカウンターにより粒径毎の粒子数を測定し、その比率から粒径毎の粒子捕捉効率を算出する。

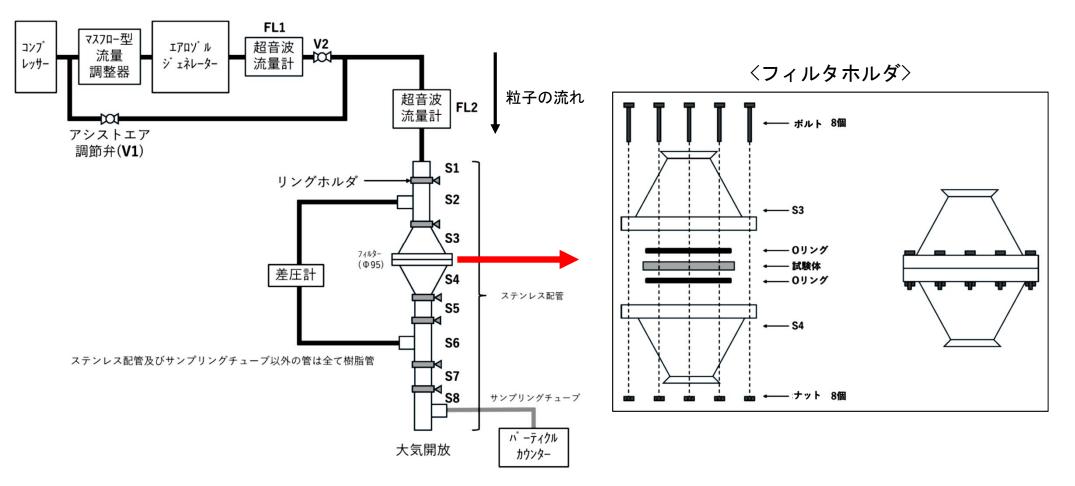


図 フィルタ性能試験 試験装置全体

■ フィルタ性能(水素透過)試験の試験方法

水素透過性能を考察・評価するデータ計測を左図の試験装置構成で実施する。上部の蓋を開放すると、水素がフィルタを通って容器外に拡散で流出するので、容器内の水素濃度の変化(右図)を測定する。この濃度変化の勾配からフィルタの拡散性能を算出する。

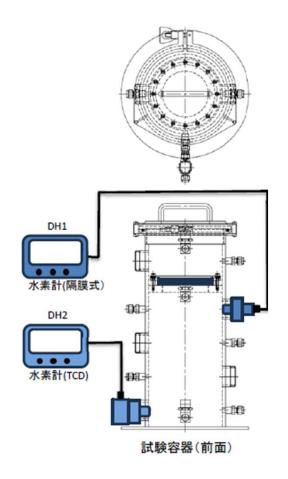


図 水素透過試験 試験装置全体

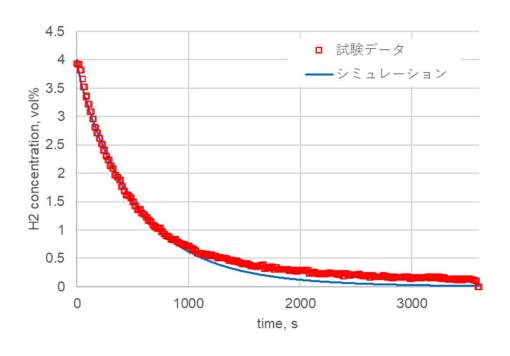


図 水素透過試験結果およびシミュレーション結果の比較

■フィルタ性能(閉じ込め)試験の結果

閉じ込め性能試験結果(新品)

金網積層焼結フィルタのろ過精度20µmについて、試験粒子の径2µm以下で明らかな捕捉効率の低下が見られた。

これまで想定していた保管対象は0.1mm(100μm)以上の粒子の閉じ込めであることから,当該フィルタでも性能は満たすことは可能と考える。

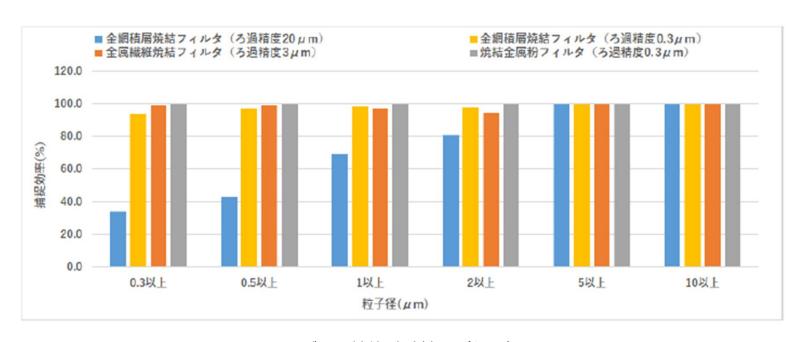


図 閉じ込め性能試験結果(新品)

■フィルタ性能(水素透過)試験の結果

水素透過性能試験結果(新品)

焼結金属粉フィルタについて、水素透過性が最も低い結果となった。

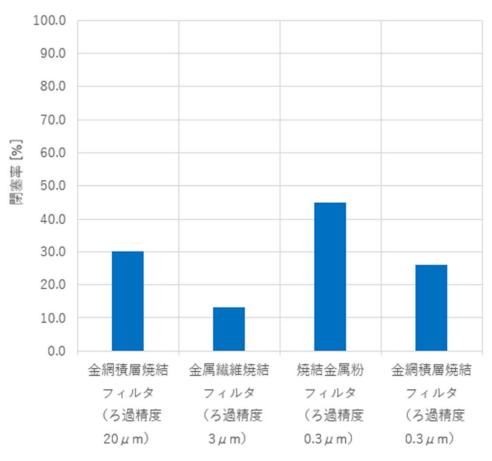


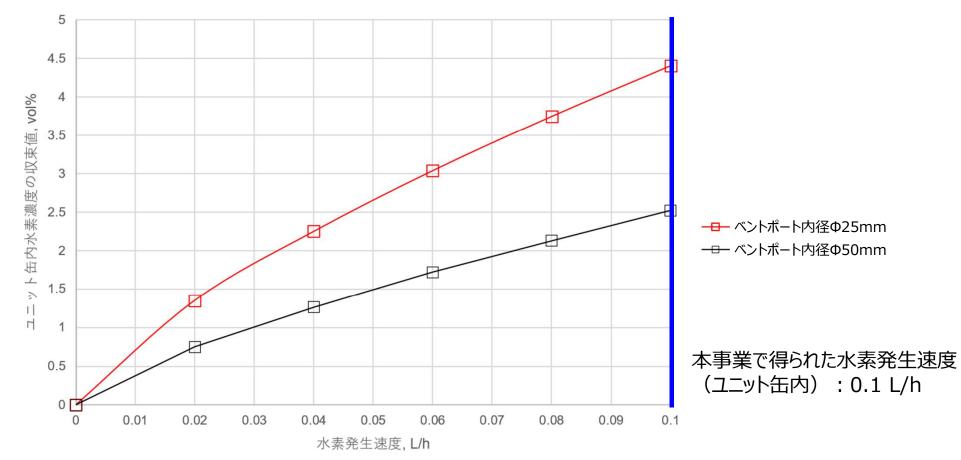
図 水素透過性能試験結果(新品)

Decom, Tech

■ 考察·評価(収納容器内の水素濃度評価)

- ▶ 水素透過性が最も低い焼結金属粉フィルタの場合の、ユニット缶内の水素濃度の収束値を試算した。
- ▶ 現在の収納容器のベント径Φ25では水素濃度4%を超過したが、ベント径を拡大する等により、収納容器内の水素濃度が4%を超過しない管理が可能





Decom, Tech

■ まとめ

- ▶試験用粉体を用いてフィルタの性能試験 (閉じ込め・水素透過)を実施した。
- ▶フィルタの評価にあたって0.3µm以上(HEPA相当)の粒子捕捉性能を一つの指標とした。
- ➤閉じ込め性能試験においては、金網積層焼結フィルタのろ過精度20µm以外のフィルタについては0.3µm以上の粒子を90%以上、5µm以上の粒子を100%程度閉じ込めることが分かった。
- ➤金網積層焼結フィルタのろ過精度20µmについては,試験粒子径2µm以下で明らかな 捕捉効率の低下がみられた。
- ▶水素透過試験においては、水素透過性の低い焼結金属粉フィルタで容器内の水素濃度4%を超過する評価となったが、ベント径を拡大する等により容器内の水素濃度を4%未満で管理することが可能であることが分かった。
- ▶実機エンジニアリングにおけるフィルタの選定基準として,本評価を活用できると考えられる。

4. 報告内容

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

- ① フィルタの寿命評価方法の検討
- ② フィルタ劣化事象の抽出
- ③ フィルタの劣化付与方法
- ④ フィルタ性能劣化の試験結果
- ⑤ 考察•評価

Decom, Tech

■フィルタの寿命評価方法の検討

- ▶ 燃料デブリ保管時の課題として、長期保管時の容器(フィルタ)の劣化評価が挙げられる。
- ▶ フィルタの経年変化やその他劣化事象(落下等)に対し、粉状燃料デブリ閉じ込め性能や水素ガスの放出性能を検証試験により評価した。

寿命評価の流れ

前提条件の整理



劣化付与試験



性能評価試験

・劣化シナリオの整理

収納容器の収納・移送・保管プロセスで想定される劣化シナリオを過去の検討や他PJ※を参考に整理した

・フィルタ選定

既製フィルタを調査し,収納容器に用いるフィルタの候補を 選定した 劣化シナリオのうちフィルタの性能に 影響する下記の劣化を選定し, 燃料デブリ保管期間相当の劣化を フィルタに付与して影響を確認した ・熱

- ・腐食
- ・(落下による)衝撃
- ・ (粉体付着による) 閉塞

劣化なし(新品)のフィルタと 保管期間相当の劣化を付与した フィルタに対し下記の性能試験を 実施し、フィルタの種類による 性能の差異、および劣化付与に よる性能への影響を確認した

- ・閉じ込め性能
- ·水素透過性能

※例:安全システムの開発(液体系・気体系システム, 臨界管理技術)等

Decom, Tech

■フィルタ劣化事象の抽出

- ▶ 原子力施設での使用実績等をもとに金属フィルタを適用候補として選定した。
- 想定劣化事象をフィルタに付与した上で、性能評価試験を実施した。

収納容器設置フィルタに発生する劣化事象と検証要否

分類	劣化要因	検証要否	事象詳細
	熱変形・熱変質		燃料デブリの崩壊熱により,フィルタに熱膨張による応力や熱変質が発生する
熱	酸化膜発生		燃料デブリの崩壊熱で高温環境になり,酸化被膜が成長し,フィルタが目詰まりする
	熱対流	×	熱対流により舞い上がる微粒子がフィルタに到達しないため,目詰まりに至らない
	局部腐食		塩化物などの腐食生成物によって金属フィルタが減肉する
腐食	応力腐食割れ		金属フィルタの溶接部での残留応力により塩化物腐食割れが発生する
	電食	×	フィルタと周辺部材の材質を同一にするため電位差による電食は発生しない
衝撃	衝撃		収納容器取り扱い中の落下などでフィルタが変形・破損する
	微粒子の飛散に よる <mark>閉塞</mark>	\circ	運搬・地震などの振動により燃料デブリ微粒子が舞いフィルタが目詰まりする
その他	水膜	×	結露などでフィルタに水膜が付着する可能性はあるが,フィルタから流れ落ちると 考えられるためフィルタ性能を損なう要因とはなりにくい
	水素脆化	×	収納容器はベント機構にて収納容器内外が開放されており,高圧状態とならないた め水素脆化は発生しない
	放射線劣化	×	金属フィルタに有機材料が含まれていないため放射線劣化は発生しない

Decom, Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■フィルタの劣化付与方法(熱劣化付与試験)

熱劣化試験を下図に示す熱劣化試験 供試体配置で試験実施した。

試験装置内の供試体の温度は303±3℃に保たれており、予備試験で設定した300℃以上で10時間保持するという条件を満足している。

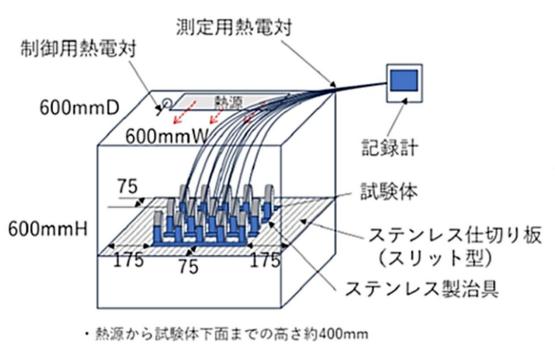


図. 熱劣化試験 供試体配置

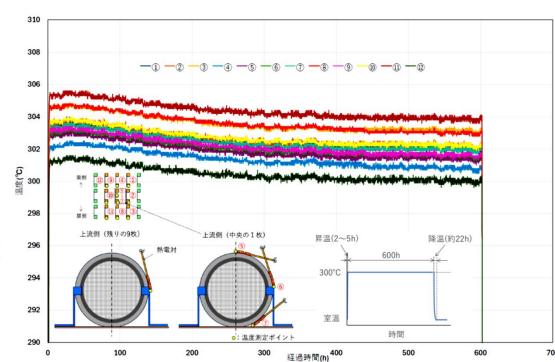


図. 熱劣化試験 試験装置 温度状態

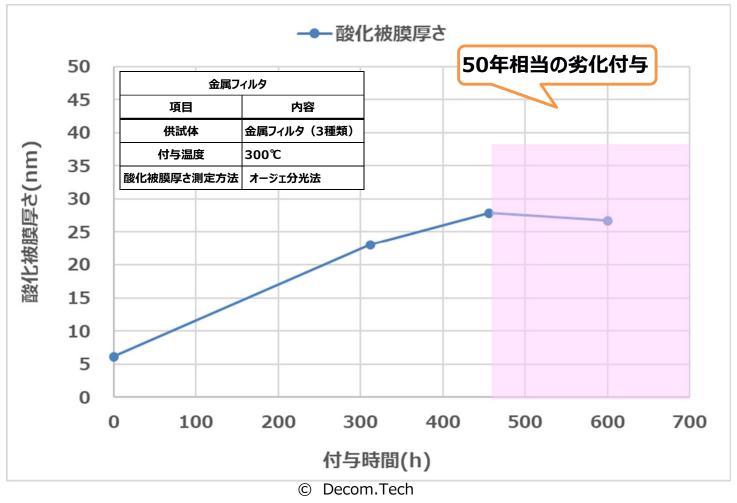
■フィルタの劣化付与方法(熱劣化付与試験)

劣化付与相当期間の考え方

熱劣化による酸化皮膜の成長は、およそ450h以上で飽和した。

保守的に考え、付与時間:600 h を実施すれば酸化皮膜の成長が飽和し、50年相当の熱劣化付与が

可能と考える。



Decom, Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■ フィルタの劣化付与方法 (腐食劣化付与試験)

腐食付与を確認する方法として以下の腐食試験方法で試験片を用いて,劣化付与確認を行った。 噴霧する塩水は,人工海水の2倍濃度を使用した。

腐食試験の前後に採取容器を10個設置し,噴霧量が規格値(JISZ2371)を満足することで試験装置内の噴霧量分布が均一になっていることを確認した。

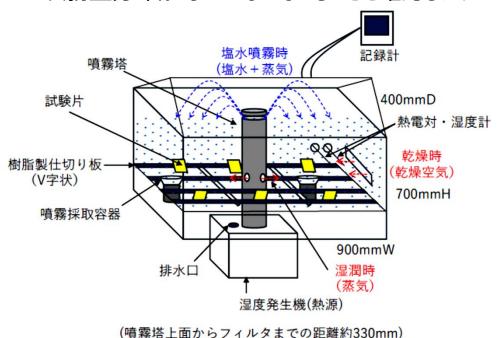


図 腐食試験 試験片配置

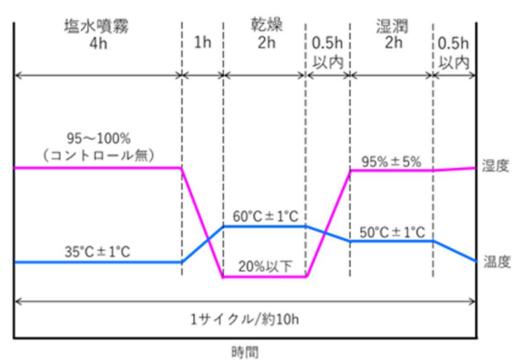


図 腐食試験サイクル図

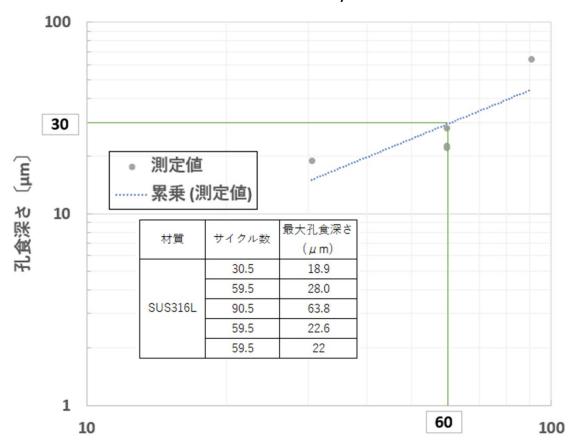
Decom. Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■ フィルタの劣化付与方法(腐食劣化付与試験)

劣化付与相当期間について

- ・試験のサイクル数と試験片の孔食深さの相関を調査した。
- ・1サイクルあたりの孔食深さと、文献値*1(大気ばく露試験の経過時間当たり孔食深さ)を比較した。



腐食試験の60サイクルで30µmの深さ の孔食が発生すると評価した。

項目	劣化付与概要
供試体	平板試験片
噴霧溶液	人工海水(金属腐食試験用 アクアマリン/八洲薬品(株) 2倍濃度
付与 サイクル数	30, 60, 90サイクル
付与方法	武藤論文に準ずる

サイクル数〔回〕

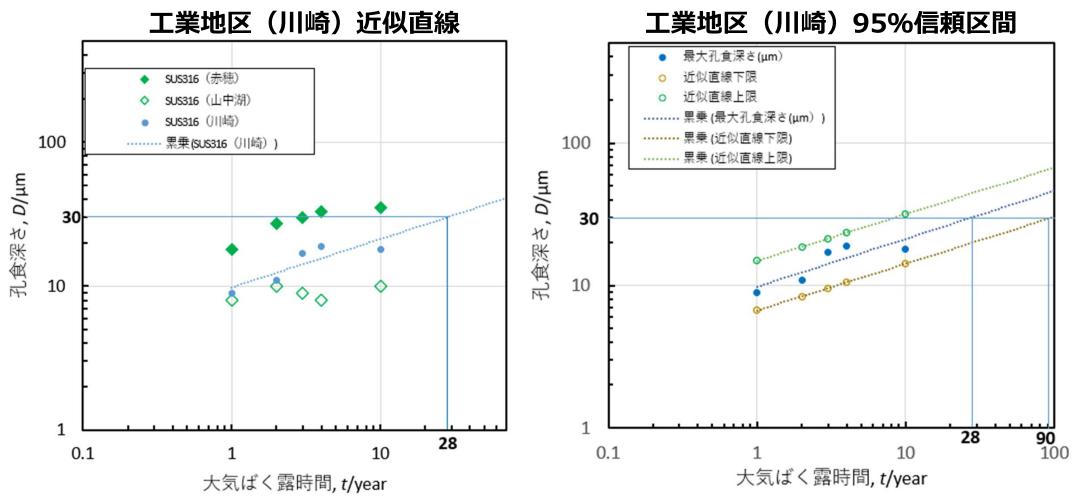
^{*1}武藤泉, 佐藤栄次, 伊藤諭, 海浜環境におけるステンレス鋼の孔食進展挙動と耐穴あき性評価法, Zairyo-to-kankyo, 42, 714-720 (1993)

Decom, Tech

■ フィルタの劣化付与方法 (腐食劣化付与試験) 劣化付与相当期間について

孔食深さと大気ばく露時間の関係

(1)論文 *1 の大気ば〈露試験データを用いて, 30μ mに相当する等価ば〈露年数を評価した(図は工業地区(川崎) の例)近似直線では30サイクルの相当期間28年,95%信頼区間($\pm 2\sigma$)では ~ 90 年となった。



^{*1:}武藤泉,海浜大気環境におけるステンレス鋼の腐食機構と耐食性向上に関する研究,東北大学博士学位論文,(1998) © Decom.Tech

Decom, Tech

■ フィルタの劣化付与方法 (腐食劣化付与試験)

劣化付与相当期間について

○1~3号機のPCV内滞留水に含まれる塩化物イオン濃度は、これまでのサンプリング結果によると約20ppm*¹程度。燃料デブリ保管時の含水率が50~95%程度*²の場合、

ユニット缶1個あたりの水量[g]=

密度1.0g/cm³×内容積*311085 cm³×水比率0.5~0.95=5542~10531 g

ユニット缶1個あたりの塩分量[g]=

ユニット缶1個あたりの水量g×塩分濃度20 ppm =0.1108~0.2106 g

収納容器内部の塩分量[g]=

ユニット缶1個あたりの塩分量g× 2個=0.2217~0.4212 g

収納容器内部の塩分量[g]は保守的に水比率最大値の0.4212[g]と仮定する。

|燃料テフリの充填率を最大充填率の30%とした場合,水の充填率は70 vol%である。また,水処埋PJか想定する燃料テフリの含水率90〜95 vol%の場合,水の充填率は 90〜95 vol%,燃料デブリの充填率は5〜10 vol%である。上述のことから,水切り,乾燥前のユニット缶内の水充填率は,50〜95 vol%とみなすのが妥当と考えた。

^{*1:「}平成28年度補正予算廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金 燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発」4.1.2(2)(i)(b)塩分濃度より

^{*2:「}令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金 (燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発 (粉状,スラリー・スラッジ状燃料デブリの保管までに必要な技術の開発)) 2022年度最終報告」 No.45より 燃料デブリの充填率を最大充填率の30%とした場合,水の充填率は70 vol%である。また,水処理PJが想定する燃料デブリの含水率90~95 vol%の場合,水の充填率は

^{*3:「}令和4年度開始廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金 (燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発 (粉状, スラリー・スラッジ状燃料デブリの 保管までに必要な技術の開発)) 2022年度最終報告」No.45より UCの内径は198mm,内部高さ360mmから内容積を算出

Decom, Tech

■ フィルタの劣化付与方法 (腐食劣化付与試験) 劣化付与相当期間について

○実機におけるフィルタの有効径(最小値)を140mmと想定した場合表面積は15393.8mmである。

近年の1Fの滞留水の塩分濃度の計測実績*¹から塩化物イオン濃度を20ppmとした場合単位面積当たりの付着量は2.736×10-5g/mm² \Rightarrow **2.74mg/cm²**【ケース1】となる。

- 〇保守的な評価として,塩化物イオン濃度を130ppm*2を使った場合, 単位面積当たりの付着量はケース1の6.5倍で \Rightarrow **17.8mg/cm**2【ケース2】となる。
- ○ただし、収納容器は保管施設内に縦置きで静置すると想定されるため、塩分のフィルタへの飛来は少なく、収納容器が落下・転倒して舞い上がったとしてもフィルタへ到達する量は容器内の塩分総量と比べて少量(多くても数%以下)と考えられる。
- ○塩分飛来率を保守的に10%と仮定した場合の、フィルタへ到達する塩分量の計算結果を下表に示す。

想定する塩化物濃度	(a) 塩分飛来率10%	(b) 塩分飛来率100%
20ppm(ケース1)	0.27 mg/cm ²	2.74 mg/cm ²
130ppm(ケース2)	1.78 mg/cm ²	17.8 mg/cm ²

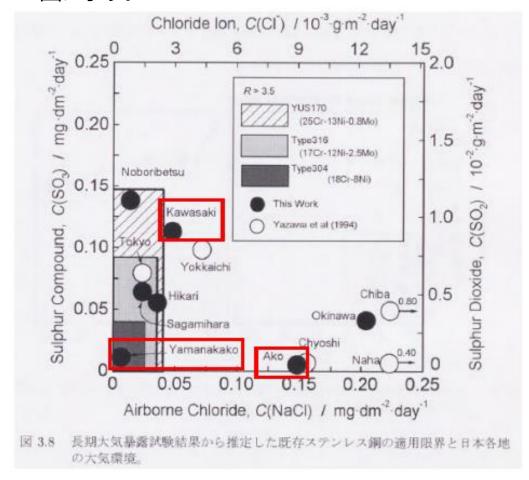
表 フィルタへ到達する塩分量の試算

- ○上記の塩分量について、次ページで文献値(大気ばく露試験)の飛来塩分量と比較した。
- *1:「平成28年度補正予算廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発」4.1.2(2)(i)(b)塩分濃度より
- *2:第一保管施設の検討で想定している値。「東京電力ホールディングス(株), 1F2 号機原子炉建屋滞留水の分析データ,東京電力ホームページ,2021 年度」より https://www.tepco.co.jp/decommission/data/daily_analysis/retained_water/2021-j.html

Decom, Tech

■ フィルタの劣化付与方法(腐食劣化付与試験) 劣化付与相当期間について

▶ 田園地区(山中湖),工業地区(川崎),海浜地区(赤穂)の飛来塩分量の比較データ*¹を下図に示す。



地域	飛来塩分量 [mg/dm²/day]	塩分量50年換算 [mg/cm²]
田園 (山中湖)	0.01	1.83
工業 (川崎)	0.05	9.13
海浜 (赤穂)	0.15	27.4

表 大気ばく露試験の飛来塩分量(文献値)

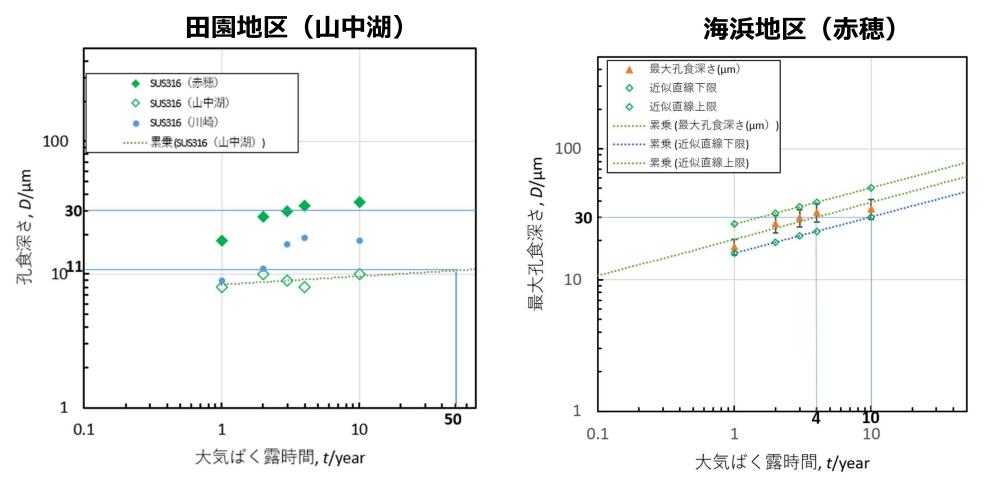
想定する塩化物濃度	(a) 塩分飛来率10%
20ppm(ケース1)	0.27 mg/cm ²
130ppm(ケース2)	1.78 mg/cm ²

表 フィルタへ到達する塩分量の試算結果

^{*1:「}武藤泉,海浜大気環境におけるステンレス鋼の腐食機構と耐食性向上に関する研究,東北大学博士学位論文,(1998)」より

■ 参考:田園地域および海浜地域の大気ばく露試験

試験で付与した孔食深さ(30µm)が文献データ*1の何年分の大気ばく露に相当するかを評価する。文献値の近似直線から 田園地域であれば孔食深さ11µm程度で大気ばく露50年に相当し、海浜地域であれば30µm孔食深さは大気ばく露4年 に相当する。文献値のばらつきをもとに95%信頼度(2σ)の幅を考慮し、海浜地区の場合~10年程度相当と評価した。



^{*1:}武藤泉,海浜大気環境におけるステンレス鋼の腐食機構と耐食性向上に関する研究,東北大学博士学位論文,(1998)

- フィルタの劣化付与方法 (腐食劣化付与試験) 劣化付与相当期間について
- ○以上の結果をまとめ、田園地区(山中湖)、工業地区(川崎)、海浜地区(赤穂)を想定した場合に、60サイクルの腐食試験がそれぞれの環境下での何年の大気ばく露に等価であるかをまとめた結果を下表に示す。

想定する地区	95%信頼区間 (±2σ範囲) [年]
田園 (山中湖)	50以上
工業 (川崎)	50以上
海浜 (赤穂)	~10

今回実施した試験は、収納容器内の腐食環境として想定される田園地区および、さらに腐食環境が厳しい工業地区において、大気ばく露50年以上相当の腐食劣化を付与していると評価した。

Decom, Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■ フィルタ性能劣化の試験結果

衝擊劣化 (変形) 付与試験結果

く結果>

- ・金網積層焼結フィルタ(ろ過精度0.3µmおよび20µm)と金属繊維焼結フィルタ(ろ過精度3µm)では,衝撃劣化(変形)付与により,フィルタろ材が荷重と垂直な方向に波打って変形した。
- ・金属繊維焼結フィルタ(ろ過精度3µm)に腐食劣化後および熱劣化+腐食劣化後に衝撃劣化(変形)を付与した場合、フィルタのろ材の一部(荷重と垂直の位置)が破損した。

く考察>

- ・破損したフィルタは、腐食によりろ材の劣化が進行した後で、衝撃劣化(変形)の付与によりろ材が付与した荷重と垂直方向の引張荷重を受けて破損したと考えられる。
- ・変形を付与する過程で荷重の低下および乱れが観察された。フィルタろ材が破損することで, 圧縮荷重に影響が生じたと考えられる。

Decom, Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■ フィルタ性能劣化の試験結果

閉じ込め性能試験結果:劣化の影響確認

結果のまとめおよび考察について、P67に示す。

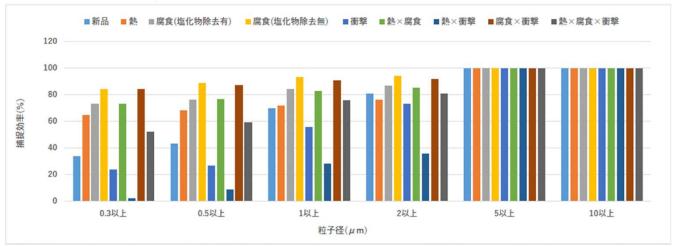


図 フィルタ性能試験結果(金網積層焼結フィルタ(ろ過精度20µm))

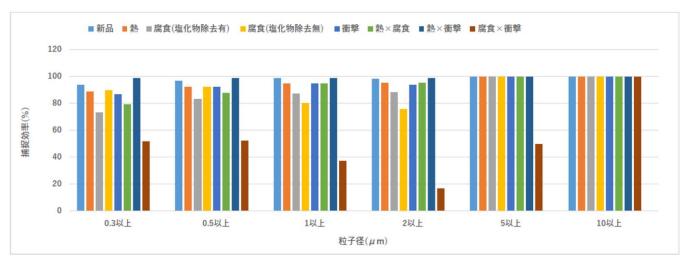


図 フィルタ性能試験結果(金網積層焼結フィルタ(ろ過精度0.3µm)) © Decom.Tech

Decom. Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■ フィルタ性能劣化の試験結果

閉じ込め性能試験結果:劣化の影響確認

結果のまとめおよび考察について、P67に示す。

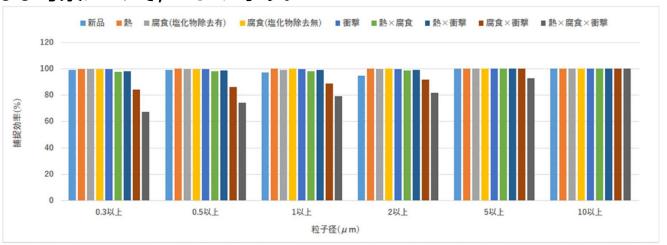


図 フィルタ性能試験結果(金属繊維焼結フィルタ(ろ過精度3µm))

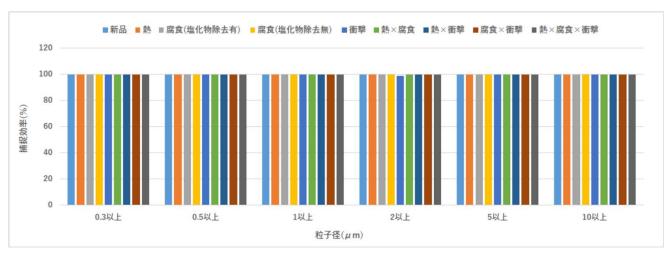


図 フィルタ性能試験結果(焼結金属粉フィルタ(ろ過精度0.3µm))

■フィルタ性能劣化の試験結果

【閉じ込め性能試験結果】

く結果>

- ・劣化なし状態(新品)の4種類のフィルタは全て,5µm以上の粒子をほぼ100%捕捉する。
- ・金網積層焼結フィルタ(ろ過精度20µm)は劣化なし/劣化付与後とも他の3種類と比較し細かい 粒子の捕捉性能が劣る。
- ・金網積層焼結フィルタ(ろ過精度0.3µm)は,腐食劣化と衝撃劣化を組合わせて付与した場合, 10µm未満の粒子に対して粒子捕捉効率が悪化する。
- ・金属繊維焼結フィルタ(ろ過精度3µm)は、腐食劣化と衝撃劣化、および熱劣化と腐食劣化と衝撃 劣化を組合わせて付与した場合、5µm未満の粒子に対し、粒子捕捉効率が悪化する。

く考察>

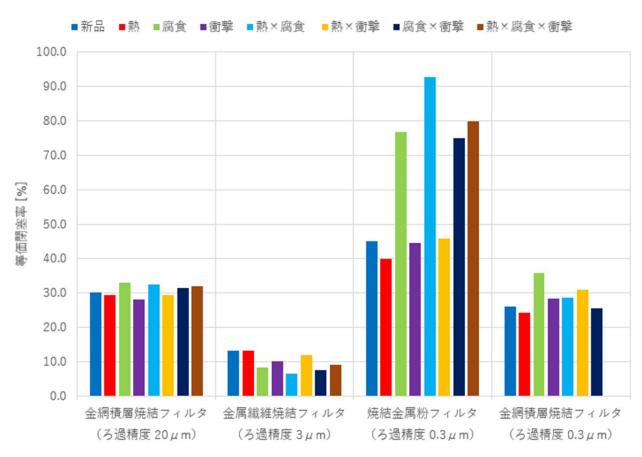
- ・粒子捕捉性能の観点では,金網積層焼結フィルタ(ろ過精度20µm)以外の3種はほぼ同等な性能を有する。
- ・金属繊維焼結フィルタ(ろ過精度3µm)の上記の粒子捕捉性能の悪化は,衝撃劣化試験で見られたフィルタろ材の破損が原因と考えられる。
- ・金網積層焼結フィルタ(ろ過精度0.3µm)の上記の粒子捕捉性能の悪化も, 衝撃劣化試験でフィルタろ材が破損したことが原因と考えられる。衝撃劣化試験の外観観察では破損は確認できなかったが, フィルタ内部でろ材の破損が生じていると推定される。

Decom Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■フィルタ性能劣化の試験結果

水素透過性能試験結果(閉塞プレートなし)



焼結金属粉フィルタ(ろ過精度0.3µm)以外の3種のフィルタでは、熱劣化、腐食劣化、衝撃劣化およびその組合せの劣化を付与したフィルタの水素透過性能は、新品のフィルタと同等となり、今回付与した範囲の劣化では水素透過性能への影響が小さいことが判明した。

Decom, Tech

4.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

■フィルタ性能劣化の試験結果

水素透過性能試験結果(閉塞プレートあり。グラフ横軸は閉塞プレートが流路面積を塞ぐ面積割合を表す。)

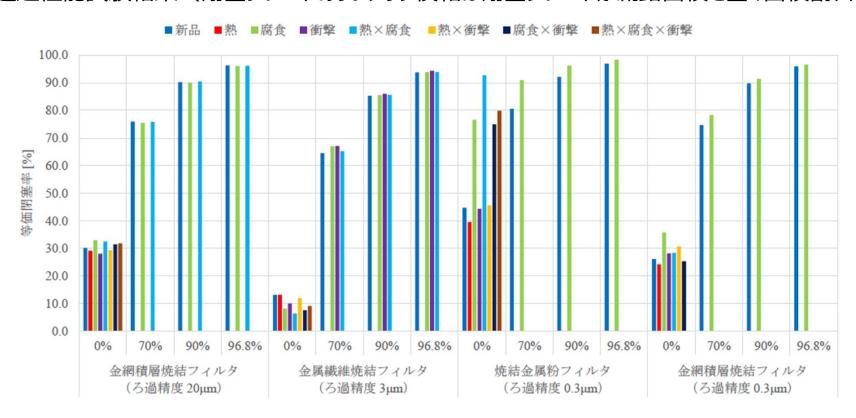
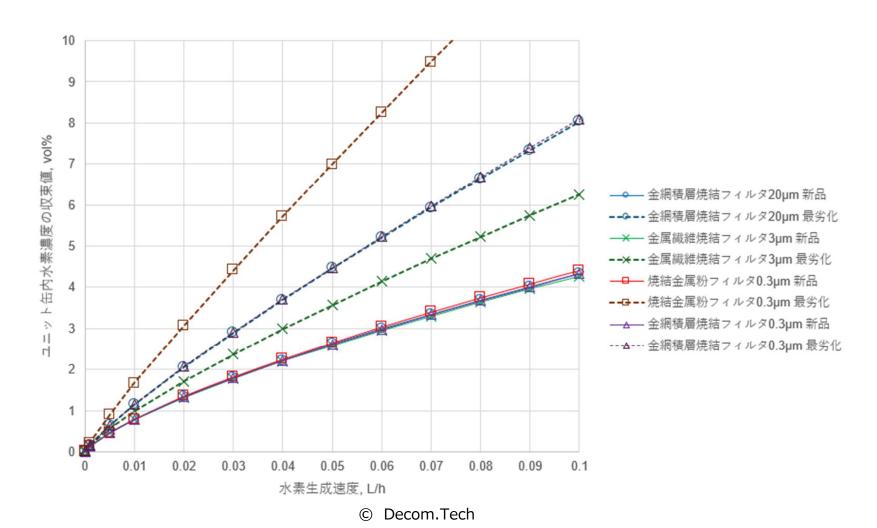


図 水素透過性能試験によるフィルタごとの等価閉塞率の比較

焼結金属粉フィルタ(ろ過精度0.3µm)については、腐食劣化や組合せの劣化を付与したフィルタの水素透過性能は、流路を閉塞プレートで塞いだ場合と同程度となり、今回付与した劣化の範囲においては水素透過性能への影響があることが分かった。

- 考察・評価(容器内の水素濃度評価)
- フィルタが90%以上閉塞した場合,容器内の水素濃度が4%を超過する可能性はあるが,閉塞が起きるのは相応の劣化事象(容器の落下や,横倒し等)が生じた場合と想定される。そのような事象が生じた際には、容器・フィルタの状態を確認することが望ましい。



■まとめと今後の課題

- ▶ フィルタを長期使用した場合の影響について、検証試験により劣化後の性能評価を 実施した。
- ▶ 50年相当の経年劣化を付与した収納容器フィルタについて、性能試験を行った結果 、著しい劣化に至らなければ所定のフィルタ性能(粒子捕捉および水素透過)を維持できることが確認できた。
- ▶ ただし、腐食劣化については、今回の試験の範囲において性能を維持することが確認できたが、既往の加速試験では評価精度に限界がある(=付与した経年劣化には大きな幅がある)こと、かつ、熱負荷環境下における腐食試験においては、性能低下の兆候が見られたことから、実機においては、燃料デブリを収納後、一定期間後にフィルタの状態を確認する等が望ましいと考えられる。

4. 報告内容

4.3 収納方式・収納容器の再評価

■ご報告内容

- ① 再評価の検討概要
- ② 再評価の検討フロー
- ③ 再評価結果・考察

Decom, Tech

4.3 収納方式・収納容器の再評価

■ 再評価の検討概要

保管対象の粒径が小さくなることによって影響を受ける項目 (青枠) について, 粉状燃料 デブリへの適用可否を評価した。

機能要求	キャスク	収納容器	ユニット缶
閉じ込め		△ 0.1mm以上	<u>—</u>
臨界防止	\bigcirc	\bigcirc	<u>—</u>
遮蔽	0	_	<u>—</u>
除熱			_
水素爆発防止		0	

Decom, Tech

■ 再評価の検討フロー

再評価の検討フロー(全体)を以下に示した。

① これまでに検討されてきた燃料デブリの収納方法・収納容器の整理

アウトプット①-1 小規模取り出し用収納容器の設計条件の整理結果まとめ

アウトプット①-2 粉状燃料デブリの保管様式の絞込み結果まとめ

検討フロー①

② 粉状燃料デブリ用収納容器の設計条件の検討

アウトプット②粉状燃料デブリ用収納容器の設計条件の検討結果まとめ

検討フロー②

③設計条件に対する小規模取り出し用収納容器適合性の評価アウトプット③設計条件の比較結果まとめ

検討フロー③

包絡する

小規模取り出し用収納容器の設計条件は, 粉状燃料デブリ収納容器の設計条件を包絡するか

包絡しない

粉状燃料デブリも,小規模取り出 し用収納容器を使用可能

⇒検討完了

④ 粉状燃料デブリ用収納容器の実機適用に向けた課題の抽出

アウトプット④ 小規模取り出し用収納容器の再評価/改善案まとめ

検討フロー④

Decom, Tech

■ **再評価結果・考察**(安全機能:閉じ込め)

主な検討結果である「閉じ込め」に関する再評価結果を以下に示した。

安全機能 または 取扱い機能	小規模取り出し用 収納容器 設計条件	粉状燃料デブリ用 収納容器 設計条件	根拠 (考え方)	「フィルタ性能劣化」の 結果	再評価結果
閉じ込め			粒径は0.1mm未満 であるため, 閉じ込め 対象とする粒径の見	フィルタの評価にあたって 0.3µm 以 上 (HEPA相当)の粒子捕捉性能を一つの指標とした。 候補とするフィルタは, 0.3µm以上の粒子を 90%以上, 5µm以上の物子を 100%	デブリの微細粉末を閉じ込め可能なものを採用し、粒状、塊状燃料デブリ用と粉状燃料デブリ用のフィルタは同じものを用いる。これにより、粒状、
	期間中に想定される 腐食,放射線による 経年劣化に対して 強度部材の健全性が	移送期間および保管期間中に想定される腐食,放射線による経年劣化に対して強度部材の健全性が維持できること。	おいて,容器の腐食が課題として抽出されており,暫定的に		容器の腐食に関して 今回の事業では対応 していないものの, 今後 SUS 以外の 材料(炭素鋼等) も含めた容器の腐食 評価が必要と考える。

[©] Decom.Tech

Decom, Tech

■ **再評価結果・考察**(安全機能:水素爆発防止)

主な検討結果である「水素爆発防止」に関する再評価結果を以下に示した。

安全機能 または 取扱い機能	小規模取り出し用 収納容器 設計条件	粉状燃料デブリ用 収納容器 設計条件	根拠 (考え方)	「水素発生予測法の 高度化」の結果	再評価結果
水素爆発防止	発生する水素を適切に収納容器外部へ排出する構造とすること。また,水の放射線分解で収納容器内に蓄積される水素濃度	水発生物容器が変える場合では、大変では、大変では、大変では、大変では、大変では、大変では、大変では、大変	収納する場合であっても、水素爆発防止に対する設計条件は変わらない。ただし、水素ガスだまりに関しては継続した検討が必要。	試算した結果, 低含 水率領域においては 水のエネルギー吸収 割合が増加する ZrO_2 の影響で従来評価 (UO_2 :100%) より 水素発生速度が大き くなったものの, 水素 発生の最大値は十分	高度化」の結果を の結果を のに反及性に が を いた で きる で いた で きる で いた いた いた いた いた いた いた いた いた いた いた いた いた

Decom, Tech

■まとめと今後の課題

<まとめ>

- ▶小規模取り出し用収納容器を用いて粉状燃料デブリを保管した場合における適用性(有効性)を再評価した。 その結果、候補とするフィルタは、0.3µm以上の粒子を90%以上、5µm以上の粒子を100%程度閉じ込めることが分かった。
- ▶小規模取り出し用収納容器でも、粉状燃料デブリの微細粉末を閉じ込め可能なフィルタを採用することで粉状燃料デブリを収納・保管可能と考えられる。
- ▶ただし、閉じ込め対象の設定(本事業では0.3µmまでの粒子とした)や搬入時における操作上の工夫等について、今後のエンジニアリングの中で検討が必要と考えられる。
- ▶水素透過性能としては、焼結金属粉フィルタ以外については劣化付与後も大きな性能低下は確認されなかったが、焼結金属粉フィルタについては腐食により一部性能低下する傾向が見られた。

<今後の課題>

▶水素発生予測法の高度化における水素ガスだまりは基礎的な検討である。水素ガスだまりの生成は確認できたものの、水素ガスだまりの影響因子をすべて解明できたわけではない。今後さらなる検討により水素ガスだまりの影響因子を特定し、粉状、スラリー・スラッジ状燃料デブリの収納方法、収納容器に反映する必要がある。

5. まとめと今後の課題

■ 5.1 燃料デブリの粒径に起因した影響

- 粉体における水素発生量評価式について、水素発生メカニズムから影響4因子を抽出し、試験等により新たな評価式を検討した。同式を用いた水素発生量評価の最大値は、従来評価式を用いて得られる水素発生量以下になることが分かった。
- \blacktriangleright 線質の影響については, α 線の影響が未確認であるため,今後は α 線照射試験等により影響を検証する必要がある。
- 水素ガスだまりは、一定条件のもと降伏応力を再現すると、水素ガスだまりが発生することが確認されたしかし、保管時における影響までは確認ができなかった。保管時における影響が確認できなかったこと及び一定条件下での再現であったことから、水素ガスだまりが発生する因子等を再度整理し、発生緩和策等を検討する。

■ 5.2 収納容器設置フィルタの性能劣化

いくつかの種類のフィルタに50年相当の経年劣化を付与した結果,劣化(腐食)に至ったものが確認された。その状態における性能試験を実施した結果,金網積層焼結フィルタ、金属繊維焼結フィルタについては所定のフィルタ性能(粒子捕捉および水素透過)を維持できることが確認できた。

■ 5.3 収納方式・収納容器の再評価

- ▶ 小規模取り出し用の収納容器を用いて、粉状燃料デブリを保管した場合の適用性(有効性)を再評価した。その結果、 HEPAフィルタ相当のフィルタを用いることで、粉状燃料デブリを収納可能と評価した。
- ▶ 今回評価した容器はステンレス鋼を使用しているが、収納容器や保管容器は大量に必要なことが想定されることから、 ステンレス鋼以外の材料についても劣化評価等を実施することで、使用材料の多様性を検討するのが望ましい。

Decom, Tech

5. まとめと今後の課題

■ 課題リスト

No	項目	課題
1	水素発生量評価 (LET影響)	γ 線と異なるLETを有する陽子線による照射試験を実施したが、LETが約5倍程度の差異では、水のエネルギー吸収割合は2倍にも至らなかった。ただし、 α 線の場合、必ずしも陽子線と同様の結果となるとは限らないことから、改めて α 線照射による確認が必要と考える。
2	水素ガスだまり	水素発生予測法の高度化における水素ガスだまりは基礎的な検討である。 水素ガスだまりの生成は確認できたものの、水素ガスだまりの影響因子を全て 解明できたわけではない。 今後さらなる検討により水素ガスだまりの影響因子を特定するとともに、 実機においては、どのようなガスだまり対策を講ずることが効果的かなど、 測定し得るパラメータをもとに検討する必要がある。
3	収納方法・収納 容器の再評価	容器の腐食に関して今回の事業では対応していないものの, 今後, ステンレス 鋼以外の材料 (炭素鋼等) も含めた容器の腐食評価が必要と考えられる。

6. 本事業の目標と達成度

2023/2024年度事業完了時の達成目標	技術成熟度 (TRL)	目標達成の有無
実施項目(1) 水素発生予測法の高度化 →粉状燃料デブリの場合の水素発生量に影響する因子の影響度合いを明らかにし、これまでの水素発生予測法の修正・改良に反映されていること。 →粉状燃料デブリからの水素放出挙動(例 水素だまり)やその挙動の発生を支配する因子に関する考察を深め、同挙動の発生条件等が整理されていること。	3	検証試験により粉状燃料デブリの水素発生量に影響する因子の影響度合いについて、水素発生予測法へ反映した。粉状燃料デブリからの水素放出挙動に関して再現性を確認するとともに、発生条件について降伏
実施項目(2) 収納容器設置フィルタの寿命評価 ▶収納容器に設置したフィルタ捕捉性能や透過性能に関する 経年変化や同収納容器全体から見た燃料デブリ閉じ込め 性能や水素ガスなど放出性能が評価されていること。 ▶同評価結果から経年変化緩和あるいは回避策が考察 されていること。	4	応力をもとに整理した。 収納容器設置フィルタの捕捉性能,水素透過性能について,適用候補の金属フィルタを対象に評価した。経年変化に対しても評価を行い,
実施項目(3) 収納方法・収納容器の再評価 ▶上記(1)及び(2)の結果を踏まえ、これまでに検討されてきた燃料デブリの収納方法・収納容器が再評価されていること。 ▶収納方法・収納容器の合理化にも熟慮の上、収納方法や収納容器仕様などに改良の余地があれば、改善点として導出されていること。	3	著しい性能低下は確認され なかった。 実施項目(1), (2)を踏まえて 収納方法・収納容器を再評価し, 収納容器仕様を含めた改善につ いても検討を実施した。 以上のことから, 左記の実施項 目について, 目標を達成した。

フィルタの水素透過性能を直感的に理解しやすくするために、本事業においては下記の2種類の指標を用いてフィルタの水素透過性能を定義した。

(1) 等価閉塞率

各フィルタの水素透過性能を比較するため,フィルタのろ材がない状態での水素透過量を基準とした指標で評価する。各フィルタ条件での水素透過量 W_f が,基準となるフィルタなしの状態から流路断面積を何%閉塞させた水素透過量と等しくなるかを算出し,その値を等価閉塞率 b_{eq} と定義する。

等価閉塞率 b_{eq} は次式で表される。

$$W_f = D_{bulk} \cdot \frac{\partial C_H}{\partial x} \cdot A_f = D_{AB} \cdot \frac{\partial C_H}{\partial x} \cdot (1 - b_{eq}) A_f$$

等価閉塞率 $b_{eq} = 1 - \frac{D_{bulk}}{D_{AB}}$

(2) 相対等価閉塞率

フィルタの新品状態に対する劣化後の相対的な水素透過性能を評価するため,各種類のフィルタの新品・閉塞プレートなしの水素透過量を基準とした指標で評価する。

フィルタの種類ごとに、各条件でのフィルタの水素透過量が、基準となる新品・閉塞プレートなしの状態から流路断面積を何%閉塞させた水素透過量と等しくなるかを算出し、その値を相対等価閉塞率 b_{rel} と定義する。 相対等価閉塞率 b_{rel} は下式で表される。

$$W_f = D_{bulk} \cdot \frac{\partial C_H}{\partial x} \cdot A_f = D_{bulk} \Big|_{new,no_plate} \cdot \frac{\partial C_H}{\partial x} \cdot (1 - b_{rel}) A_f$$
相対等価閉塞率 $b_{rel} = 1 - \frac{D_{bulk}}{D_{bulk}|_{new,no_plate}}$

Decom Tech

【補足】等価閉塞率について

支配方程式: 水素ガスの準一次元非定常輸送方程式 $\frac{\partial C_H}{\partial t} + \frac{\partial J_H}{\partial x} = 0$

半径方向は均一と仮定 空間離散化:

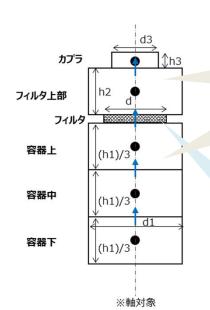
フィルタ上流: 高さ方向にセルを3分割し、容器内濃度分布を考慮

• フィルタ下流: 上部空間とカプラ部の2セルを考慮

水素輸送モデル:

容器内空間: 拡散+置換流(密度差で駆動される対流)

フィルタ部: 多孔質抵抗体(みかけ拡散係数で透過量を計算)



容器内部およびフィルタ下流空間

セル間の水素フラックスを以下の式で計算(拡散+置換流)

$$J_{H} = \underline{-D_{AB} \frac{\partial C_{H}}{\partial x}} + \frac{Q}{A} (C_{H,l} - C_{H,u})$$

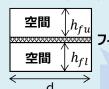
拡散項: Fickの第一法則

置換流モデル 密度差で駆動される対流項

$$\frac{Q}{A} = Fr \cdot \sqrt{\frac{gd(\rho_u - \rho_l)}{\rho_m}}$$

フィルタ部

固定フランジによる上下空間+多孔質の抵抗体としてモデル化 みかけの拡散抵抗(みかけ拡散係数)で水素透過量を計算



みかけ拡散抵抗: $R_{bulk} = \frac{h_{fl} + l_f + h_{fu}}{D_{bulk}} = \frac{h_{fl}}{D_{AB}} + \frac{l_f}{D_{filter}} + \frac{h_{fu}}{D_{AB}}$

水素フラックス: $W_f = D_{bulk} \cdot \frac{\partial C_H}{\partial x} \cdot (1 - b) A_f$

フィルタ内部

次ページに詳細説明

: 容器断面積 : フィルタ面積

: 閉塞プレートの閉塞率

: 水素濃度 : 水力直径

: 空気中の水素拡散係数

: フィルタ部のみかけ拡散係数 : フィルタ内部の拡散係数

: 密度Froude数 : 重力加速度 : 高さ方向長さ

: セル間の水素フラックス

: フィルタ厚さ : セル間の置換流量

: フィルタ部のみかけ拡散抵抗

: フィルタ透過水素フラックス

: 高さ方向の空間座標

:ガス密度

: フィルタ内部の空隙率

添え字

fl :フィルタ下部 :フィルタ上部 : セル下側 : セル中間

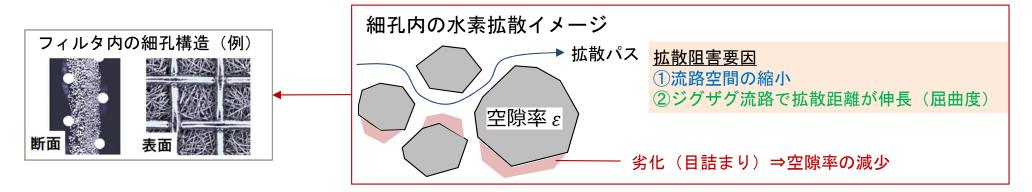
: セルト側

new,no_plate:新品・閉塞プレートなし

【補足】等価閉塞率について

Decom, Tech

· 空隙率をパラメータとした多孔質内のガス拡散モデル、Knudsen拡散モデルを使用



■多孔質内空間の拡散係数

流路縮小効果

$$D_{filter} = \frac{\varepsilon}{\tau} \cdot D_{pore}$$
 細孔空間の 拡散係数 屈曲度ファクター

屈曲度ファクターは多孔質構造により変化 μ Buckinghamの式は $\tau = 1/\epsilon$ に相当し、拡散係数を最も小さく評価(安全サイド)

表 4-2-4 拡散係数の実験式及び半理論式の事例

No.	文献筆頭著者	発表年	関係式 ※Va:空隙率	相関関係
1	Penman	1940	$\frac{D}{D_0} = 0.66V_a$	線形
2	Van Bavel	1952	$\frac{D}{D_0} = 0.61 V_a$	線形
3	Wesseling	1962	$\frac{D}{D_0} = 0.9V_a - 0.1$	線形
4	Buckingham	1904	$\frac{D}{D_0} = V_a^2$	非線形
5	Marshall	1959	$\frac{D}{D_0} = V_a^{\frac{3}{2}}$	非線形
6	Millington and Qurik (MQ)	1960	$\frac{D}{D_0} = V_a^{\frac{4}{3}}$	非線形

[出典]株式会社四国総合研究所、「平成30年度水素導管供給システムの安全性評価事業(維持管理工法の水素適用性評価(地中及び大気中の水素拡散挙動調査)) 調査報告書」、経済産業省、2019/3、http://www.meti.go.jp/meti_lib/report/H30FY/000130.pd

細孔空間の拡散係数

分子拡散とKnudsen拡散を考慮(Bosanguetの式)

$$\begin{split} D_{pore} &= \left(\frac{1}{D_{AB}} + \frac{1}{D_{i,K}}\right)^{-1} \\ D_{AB} &= \frac{1.00 \times 10^{-8} T^{1.75} (1/M_A + 1/M_B)^{1/2}}{\rho [(\Sigma_A v_i)^{1/3} + (\Sigma_B v_i)^{1/3}]^2} \\ D_{i,K} &= \frac{d_{\text{pore}}}{2} \frac{2}{3} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M_i}} \end{split}$$

[出典]E. N. Fuller, P. D. Schettler and J. C. Giddings, "New Method for Prediction of Binary Gas-Phase Diffusion Coefficients," Industrial & Engineering Chemistry, Vol. 58, No. 5, 1966, pp. 18-27

[出典]三好航太,「多孔質で構成される固体酸化物形燃料電池電極中における気体の拡散現象」,エネルギー・ 資源, Vol. 35, No. 4, 2014, pp. 61-64

> 記号 D: フィルタ内部の拡散係数

D_{i.k} : Knudsen拡散係数

M : モル重量

v : 拡散パラメータ(拡散体積)

d_{nore} : 平均空隙率

添え字

A,B :気体Aと気体B(水素と窒素)

D。 : 細孔内部拡散係数

T : 温度 p : 圧力 R : 気体定数

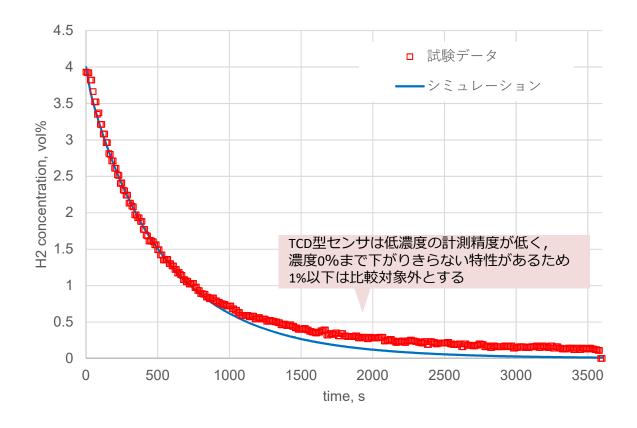
 Σ_{AVi} : 気体Aの構成要素の拡散パラメータ(拡散体積)の合計

i : 水素または窒素

© Decom.Tech

【補足】等価閉塞率について

計測値と解析モデル予測値(シミュレーション)の平均二乗誤差が最小となるよう解析モデルのパラメータをチューニングし、対象試験フィルタの空隙率、みかけ拡散係数を推定



試験データの計測値とシミュレーションの平均二乗誤差を算出し, 誤差が最小となるように解析パラメータ(空隙率)を微調整する。 このときの空隙率, および, みかけ拡散係数の値を対象試験の評価値とする。

人を大切にし, 新しい技術を創造し, 地域と共に成長する

Decom, Tech