「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリの分析精度の向上及び熱挙動の推定のための技術開発）」に係る補助事業

2020年度最終報告

2021年8月

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構

報告内容

1．事業の背景･目的 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3

2．事業内容 ・・・ 6

2.1　目標 ・・ 7

2.2　実施項目とその関連、他研究との関連 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 11

2.3　実施スケジュール ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 12

2.4　実施体制 ・・ 14

3．実施結果 分析精度の向上のための技術開発 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 15

3.1　模擬燃料デブリ試料の調製 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 16

3.2　溶解試験の結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 27

3.3　分析及び不確かさ評価の結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 47

4．実施結果 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 78

4.1　燃料デブリ模擬流動試験 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 82

4.2　空冷時を含む燃料デブリ詳細熱挙動解析手法の開発 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 99

4.3　空冷時の温度分布評価 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 119

5．まとめ ・・・ 143

JAEA

1. 事業の背景・目的

廃炉・汚染水対策事業費補助金事業の目的

本事業は、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃炉・汚染水対策に資する技術の開発を支援する事業を、「東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」及び「2020年度廃炉研究開発計画」（廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議（第75回））に基づき行うことで、福島第一原子力発電所の廃炉・汚染水対策を円滑に進めるとともに、我が国の科学技術水準の向上を図ることを目的とする。

なお、本事業は、東京電力ホールディングス(株)（以下「東京電力」という。）が行うエンジニアリングやプロジェクト管理の下で実施され、本事業の成果は東京電力が行うエンジニアリングに活用される。

背景

- 福島第一原子力発電所の事故は、BWRにおける世界初の炉心溶融事故である。BWRは、原子炉圧力容器内にステンレス鋼製の炉心シュラウド等の炉内構造物を多く含む上、中性子吸収材として炭化ホウ素を用いている特徴がある。
- 核燃料であるUO_2及び核分裂生成物は、これらの材料と反応して融点よりも低い温度で溶融し、合金、酸化物やホウ化物のようなセラミックスを形成し、それらを含む燃料デブリになっているとみられている。
- 燃料デブリの分析項目の中には、前処理として燃料デブリの溶解が必要なものがあり、その場合、燃料デブリを完全溶解し、均一な溶液とすることが分析精度の確保上重要である。
- 上記のように、福島第一原子力発電所の燃料デブリはセラミックスを含み、化学的安定性が高く、難溶性のものが多いため、溶解できない可能性があることから、溶解技術の開発が必要である。

1. 事業の背景・目的

背景（続き）

- 先行事業の「燃料デブリの性状把握・分析技術の開発」（2017、2018年度）では以下の点が明らかになっている。
  - ✓ 溶解技術として酸による溶解技術を活用する場合、燃料デブリを完全に溶解させることが難しく、不溶解性残渣が残る可能性が高いこと。
  - ✓ 溶解技術としてアルカリ融解技術、あるいは王水・フッ酸による溶解技術を活用する場合、試料が極微量であれば、福島第一原子力発電所の燃料デブリを溶解できる可能性が高いこと。

目的

本事業では、燃料デブリ分析における分析精度を確保し、より向上させるために以下の取り組みを行う。

① 2021年内に開始される試験的取り出しに向けた、酸による溶解技術・アルカリ融解技術の溶解性の検証

② 不溶解性残渣の生成量をより抑えた溶解方法（溶解に用いる溶液、浸漬温度や時間等の条件の見直し）、不溶解性残渣が生じる場合の分析精度の補完方法の開発

③ 燃料デブリの性状は不確実性が高く、複数の溶解技術・分析方法を活用することが想定される。そのための溶解技術・分析方法の違いに起因する分析値のばらつきの範囲・原因を把握し、それらを考慮して分析精度を確保する手法の開発

また、2020年2月までに1、2、3号機において行われた原子炉注水を停止する試験の結果*等を活用した、燃料デブリの熱挙動をより精度良く推定する技術の開発を行う。

*https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/08/index.html

1. 事業の背景・目的

廃炉に向けたロードマップと本事業の関係

年度	～2018	2019-2020	2021	2022～
情報利用側PJ・東京電力HD㈱	技術開発／装置設計・製作 燃料デブリの段階的に規模を拡大した取り出し技術の開発PJ 燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発PJ 燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発PJ 固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発PJ			取り出し作業等実施 △初号機取り出し開始
燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術開発PJ	前事業	廃炉工程ニーズに基づく、分析項目と効率的な分析方法の提案		• 装置設計・作業工程管理・安全対策等 • に反映 • 燃料デブリの管理（ラベリング等）方法 • に反映
本事業 (燃料デブリの分析精度の向上及び熱挙動の推定のための技術開発)		「核種・元素量」に焦点を当てた分析技術の標準化 推定される炉内状況を反映した熱挙動推定技術		• 酸による溶解技術・アルカリ融解技術の溶解性の検証 • 溶解技術・分析方法の違いに起因する分析値のばらつきの範囲・原因を把握し、分析手法の標準化 • 炉内状況の検討の進捗、注水停止試験の結果などを反映させた解析条件、モデルの最適化 • パラメータサーベイによる各種パラメータの影響の検討

2. 事業内容

(1) 分析精度の向上のための技術開発

① 燃料デブリの分析精度向上に係る模擬サンプル調製及び試験方法の検討

② 模擬燃料デブリの調製

③ 模擬燃料デブリの溶解及び組成分析

a) 硝酸を用いた模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得

b) 王水・フッ酸溶解法による模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得

c) アルカリ融解・硝酸溶解法による模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得

④ 分析結果の評価

(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリ模擬流動試験

② 空冷時を含む燃料デブリ詳細熱挙動解析手法の開発

③ 空冷時の温度分布評価

2.1 目標

(1) 分析精度の向上のための技術開発

事業の狙い

性状が不明、分析が容易ではない燃料デブリの受入れに際し、我が国の総力をあげてその特徴を評価できる技術・体制を構築するため、燃料デブリの試験的取出しから将来にわたる本格的な取出しに至る分析を担う代表的な我が国の（ホットラボを有する）分析機関に対し、それとは独立した機関によって調製された模擬燃料デブリを支給し、各分析機関が保有する設備、溶解及び分析技術を用いてその模擬燃料デブリの元素組成を評価する。

これらの一連の作業と各機関の専門家による議論を通じ、以下の点を明らかにする。

- 現状得られている分析技術を用いた測定における課題・困難さの理解とその対応
- 想定外の分析結果、分析作業における困難さが発生した際のタイムリーな評価、対応体制の構築
- 得られた結果の「確からしさ」のレベルに関して、その評価方法の共有

分析技術の標準化とは？

- 燃料デブリ分析項目として重要な4つの基本量（分析試料の形態、核種・元素量、相状態・分布、密度・空孔分布）に対する分析技術*が定義され、関係者間の共通認識となること。

  *分析手法、手順、誤差、課題

- 各ホットラボの分析技術を適切に組み合わせることにより、燃料デブリ分析評価者のニーズに対応できる状態とすること。

2.1 目標

(1) 分析精度の向上のための技術開発

「燃料デブリの分析精度の向上」の意図

本事業では、「10ppmの精度を1ppmに高める」といった、いわゆる“精度向上”ではなく、組成や性状が未知の試料の分析結果がどのような性格のものになるのかの把握を目指した。

このため、あらかじめ目標とする分析精度を設定するのではなく、組成等の情報をブラインドにした試料を複数機関で分析し、その精度や限界、課題を明らかにするアプローチを行った。

「模擬燃料デブリ」が具備すべき要件

複数機関の分析結果を比較する際には、試料組成の「真値」が必要になるが、それを分析によって特定することは矛盾する。したがって、組成については試料調製時の混合比によって担保しなければならず、そのためには調製過程における成分の逸失の回避が必要になる。溶融凝固による試料調製はその点において問題があることから、本事業においては焼成により試料調製を行うことにした。

2.1 目標

(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発

事業の狙い

福島第一原子力発電所2号機を対象に、燃料デブリの熱挙動をより精緻に推定するため、PCV内の状態を摸擬した発熱挙動と冷却状態を計算評価する手法を開発する。開発にあたっては、今後の内部調査において得られる詳細な燃料デブリ分布などの評価の更新に合わせ、これを反映できる構成とする。

発熱状態と冷却状態を計算評価するためのポイント

燃料デブリの発熱量及び分布については、各々JAEA-Data/Code 2012-018「福島第一原子力発電所の燃料組成評価」中のインベントリの崩壊熱、「2号機のデブリ分布・RPV・PCV状態の推定図」に整合させるなど、最新の知見を反映する。しかし、デブリの分布、気孔率などの性状、構造物の破損の程度など、現状の評価には大きな不確かさがあり、今後も更新されることが想定される。これらの情報の更新に合わせ、その影響を反映できる技術を開発するためのポイントは、(1) 燃料デブリの位置・分布の違いによる発熱の変化の影響を受ける自然対流による放熱、(2) 気孔率などの違いによる熱物性の影響、(3) 流れや放熱に与える構造物の影響を反映できることである。

計算評価においては、様々な条件設定を行う必要がある。これら設定すべき条件の多くに対して確定した情報は得られていないため、計算結果と実機のプラントデータとの比較よりこれを設定する必要がある。従って、(4) 計算時間は十分に短い必要がある。

2.1 目標

(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発（続き）

計算評価するためのポイントへの対応

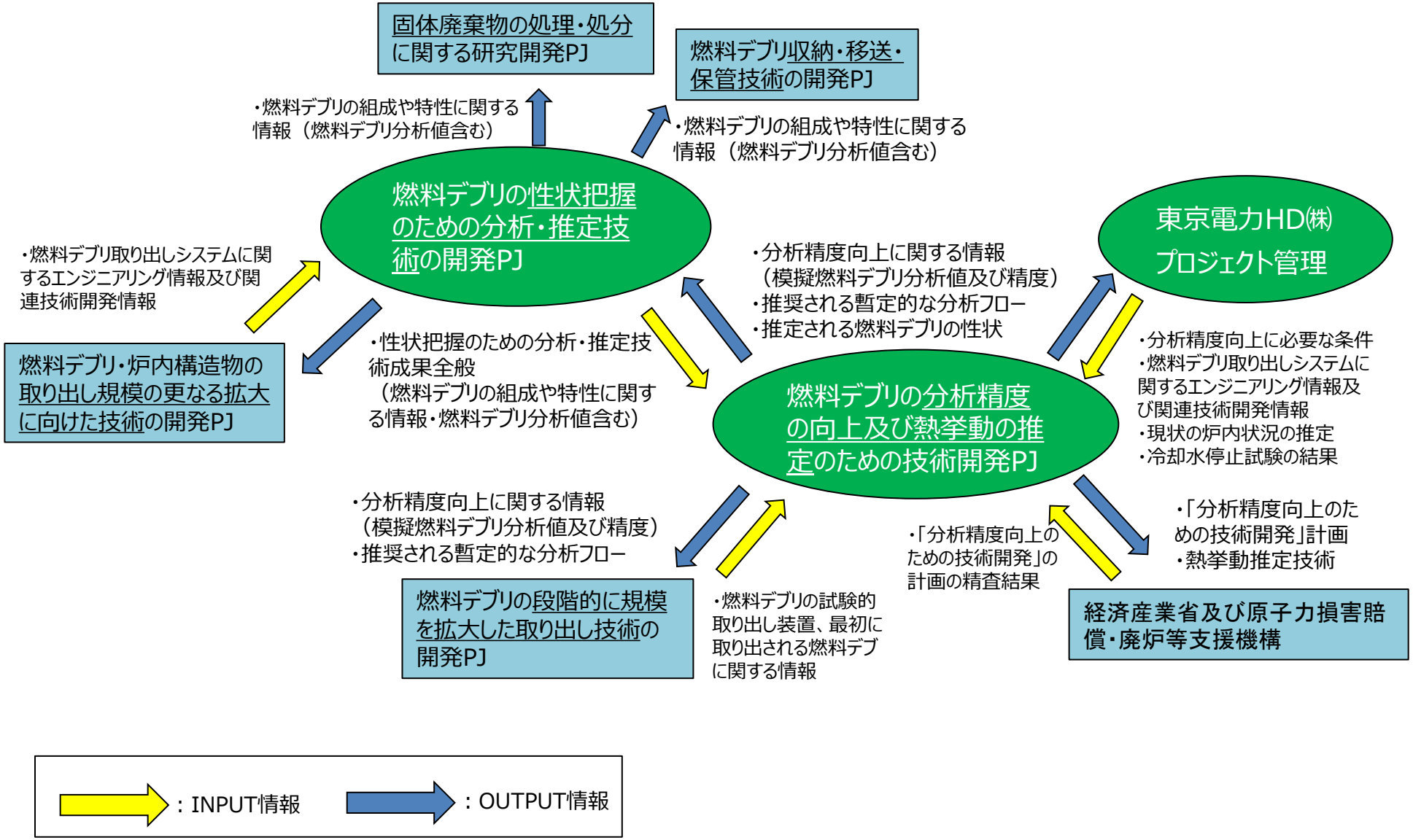
発熱する燃料デブリの位置、分布などの違いを反映して自然対流の影響を計算評価するためには、自然対流を現象論的に評価できる手法である数値流体力学(CFD)に基づく手法を採用する。CFDに基づく手法を採用することで、構造物の違いの影響についても反映した計算が可能となる。気孔率などの違いによる熱物性の影響については、実験などによりデータを取得するとともに、CFDに基づく手法に対して反映できる機能を導入する。

CFDは一般に多くの計算時間を必要とする手法である。計算結果と実機のプラントデータとの比較を繰り返し行うため、統計平均モデルを用いることで計算時間を節約できる手法を採用することで対応する。

精緻な推定を実現するための対応

目標とする精緻な熱挙動の推定を実現するためには、可能な範囲で精緻な手法・モデルを用いるとともに、手法・技術の妥当性について示す必要がある。様々な状況が複合した実機条件との比較のみではこれを示すことはできないため、個々の状況・現象に対する妥当性を示した上で、実機条件との比較を行う。自然対流に対する適用性を示すため、燃料デブリ模擬流動試験によりデータを取得する。合わせて、気孔率などの違いによる熱物性の影響についてのデータの取得も行う。構造物の影響については、より詳細なCFDに基づく手法によるデータと比較することで、妥当性を確認する。これらの影響を評価できることを確認した手法の妥当性を最終的に確認するため、継続して記録されている2号機の温度データ、注水データと照合し、過去の温度履歴を再現する。過去の温度履歴が再現できた上で、注水量をゼロとして空冷状態の温度分布、空冷での燃料デブリの温度等を検討する。

2.2 実施項目とその関連、他研究との関連



2.3 実施スケジュール

実施項目	担当機関	2020年 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	2021年 1月	2月	3月
プロジェクトステアリング会議（旧名称：事務局連絡会議）等	METI、NDF、MRI、東電HD、JAEA		▼	▼	▼			▼				▼	(▼) 最終報告会 (4/15)
(1) 分析精度の向上のための技術開発													
① 燃料デブリの精度向上に係る模擬サンプル調整及び試験方法の検討	全機関	関係者打合せ ▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼
			試験方法検討・定期会合			▲分析・評価計画立案	適宜関係機関の会合を開催し進捗確認・懸案事項検討を実施						
② 模擬燃料デブリの調製	東北大学			資材調達・試験準備		模擬燃料サンプル調製		▼サンプル輸送	模擬燃料デブリ評価		▼成果見通し	報告書作成	
③ 模擬燃料デブリの溶解及び組成データの取得													
a 硝酸を用いた模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得													
JAEA大洗	JAEA大洗				資材調達・試験準備				▼サンプル輸送	溶解試験・組成分析	▼成果見通し	報告書作成	
請負契約（A社）	NFD				資材調達・試験準備			▼サンプル輸送	溶解試験・組成分析		▼成果見通し	報告書作成	
b 王水フッ酸法による模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得													
請負契約（B社）	NDC				資材調達・試験準備			▼サンプル輸送	溶解試験・組成分析		▼成果見通し	報告書作成	
c アルカリ融解法による模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取	JAEA原科研				資材調達・試験準備			▼サンプル輸送	溶解試験・組成分析		▼成果見通し	報告書作成	

2.3 実施スケジュール

実施項目	担当機関	2020年 4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	2021年 1月	2月	3月
④分析結果の評価	全機関								定期会合		▼成果見通し 分析結果の評価		(▼) 最終報告会 (4/15)
(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発													
東電HD-JAEA打合せ	東電HD、JAEA					▼		▼				▼	
①燃料デブリ模擬流動試験	JAEA原科研			装置設計・ポーラス体試作	装置製作・試運転		既存小型装置を用いた測定、評価手法確認試験				試験実施・データ取得		▼ 成果見通し
②空冷時燃料デブリ詳細熱挙動解析													
解析条件の検討・試解析	JAEA原科研			解析条件の検討・試解析									
ポーラスモデルの導入	請負契約（C社）					ポーラスモデルの導入							
既往試験・燃料デブリ模擬流動試験解析・実機解析	請負契約（D社）					既往試験・燃料デブリ模擬流動試験解析・実機解析						▼成果見通し	
③空冷時熱挙動評価													
解析条件の検討・試解析	JAEA原科研			解析条件の検討・試解析									
注水条件における実炉解析・試験解析、空冷時の熱挙動の推定	請負契約（E社）					注水条件における実炉解析・試験解析なと空冷時の熱挙動の推定				▼成果見通し			▼成果見通し
主なマイルストーン						▼分析・評価計画立案（プロジェクトステアリング会議で審議）		▼サンプル輸送	▼サンプル輸送 ▼中間報告会（分析精度向上）		▼成果見通し ▼ 中間報告会（熱挙動）		(▼) 最終報告会 (4/15)

2.4 実施体制

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）

〇研究開発実施
(1) 分析精度の向上のための技術開発
① 燃料デブリの分析精度向上に係る模擬サンプル調製及び試験方法の検討
② 模擬燃料デブリの調製
③ 模擬デブリの溶解及び組成分析
a 硝酸を用いた模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得
b 王水フッ酸法による模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得
c アルカリ融解法による模擬燃料デブリ溶解による模模擬燃料デブリ組成データの取得
④ 分析結果の評価

(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発
① 燃料デブリ模擬流動試験
② 空冷時を含む燃料デブリ詳細熱挙動解析手法開発
③ 空冷時の温度分布評価

東京電力ホールディングス株式会社
〇プロジェクト管理

● 状況報告

● プロジェクト管理

委託先A：国立大学法人東北大学

〇 研究開発実施
(1) 分析精度の向上のための技術開発
① 燃料デブリの分析精度向上に係る模擬サンプル調製及び試験方法の検討
② 模擬燃料デブリの調製
④ 分析結果の評価

請負先A：ニュークリア・デベロップメント株式会社（NDC）

〇 研究開発実施
(1) 分析精度の向上のための技術開発
① 燃料デブリの分析精度向上に係る模擬サンプル調製及び試験方法の検討
③ 模擬デブリの溶解及び組成分析
a 硝酸を用いた模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得
④ 分析結果の評価

請負先B：日本核燃料開発株式会社（NFD）

〇 研究開発実施
(1) 分析精度の向上のための技術開発
① 燃料デブリの分析精度向上に係る模擬サンプル調製及び試験方法の検討
③ 模擬デブリの溶解及び組成分析
b 王水フッ酸法による模擬燃料デブリ溶解による模擬燃料デブリ組成データの取得
④ 分析結果の評価

請負先C：大和システムエンジニア株式会社

〇 研究開発実施
(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発
② 空冷時燃料デブリ詳細熱挙動解析（ポーラス体解析機能の導入）

請負先D：株式会社エヌデーデー（NDD）

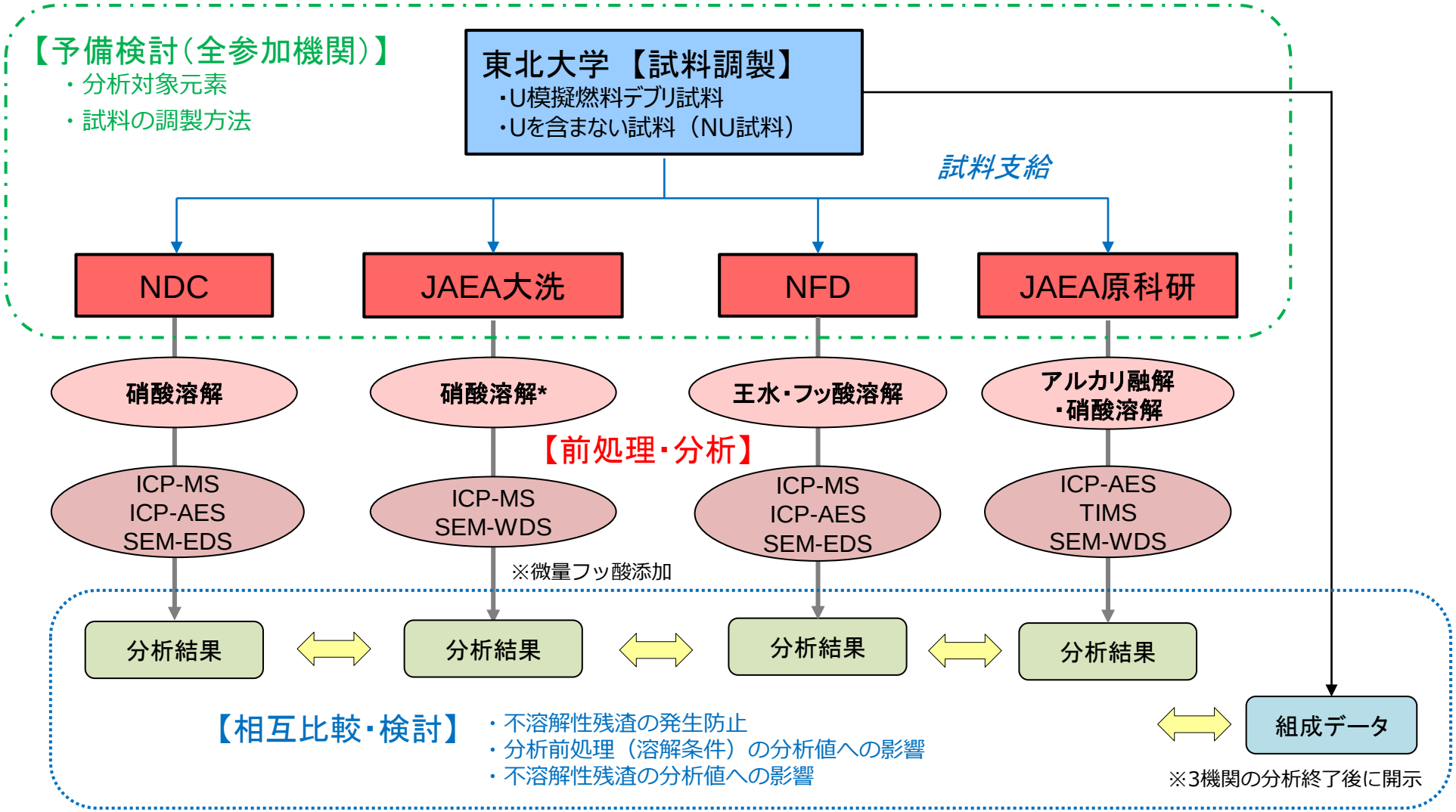
〇 研究開発実施
(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発
② 空冷時燃料デブリ詳細熱挙動解析（実機形状模擬解析）

請負先E：大和システムエンジニア株式会社

〇 研究開発実施
(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発
③ 空冷時熱挙動評価

3. 実施方法・結果　分析精度の向上のための技術開発

事業の全体像及び担当機関



3.1　模擬燃料デブリ試料の調製

分析対象とする元素

下記8元素を選定

- U, Zr, Gd
- Fe, B
- Cr, Ni
- Si

《選定理由》

U, Zr：燃料デブリの主成分であり、不溶解性残渣の生成に影響
Gd　：臨界評価に影響する中性子毒の成分
Fe　：燃料デブリの主成分
B　：臨界評価に影響する制御棒成分
Cr, Ni：SUSのメジャー成分であり、事故進展の観点においても重要。
組成既知のSUS粉末として添加し、P、Sn等は評価対象としない。
Si　：コンクリートや断熱材等の成分であり、不溶解性残渣の生成に影響。
組成既知とするためSiO_2として添加

試料の調製方法

(1) 模擬燃料デブリ（以下、「U模擬燃料デブリ試料」）

以下の粉末を混合して調製

・酸化物固溶体*1の粉末　【成分A】
・ホウ化鉄FeBの粉末　【成分B】
・SUS304粉末及びSiO_2粉末　【成分C】

《決定理由》

模擬燃料デブリ試料が具備すべき要件

- 燃料デブリの模擬性、再現性
- 溶解性 (難溶性)*1、測定性
- 製作性、均質性
- 組成の担保性*2

(2) Uを含まない模擬燃料デブリ*3（以下、「NU試料」）

【成分B】と【成分C】を混合して調製

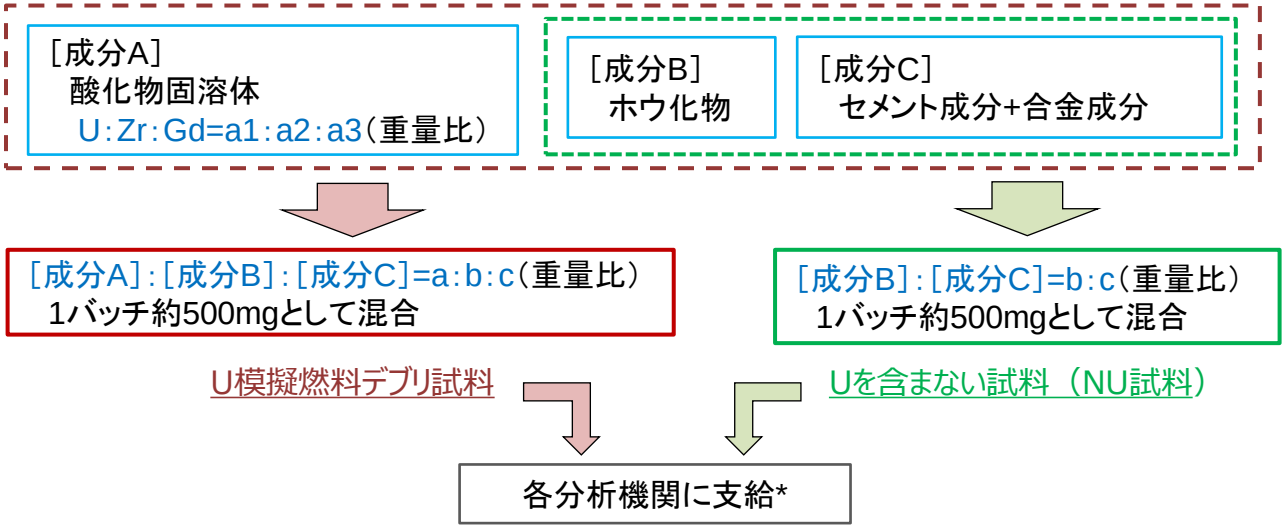
＊1 UO_2, ZrO_2, Gd_2O_3の混合圧粉体を高温加熱処理することにより、溶解性が比較的高い立方晶固溶体と難溶性の正方晶固溶体の二相が含まれる試料を合成

＊2 組成を分析以外の方法で担保するためには、試料調製時の組成の維持が必要

＊3 許認可上ウランを含む模擬燃料デブリをホットセル内で分析できない（NFD）ため、ホットセル内での放射性物質の取扱いを検証するために調製して用いる。

3.1　模擬燃料デブリ試料の調製

概略フロー



＊a1:a2:a3, a:b:c, b:cの値は各分析機関に対しブラインドとし、
分析結果が概ね出揃った2月中旬に開示した。

原料試薬

[成分A]

酸化ジルコニウム(ZrO_2)
和光純薬社製
特級試薬 99%

酸化ガドリニウム(Gd_2O_3)
関東化学社製
> 99.5%

二酸化ウラン(UO_2)
東北大学多元物質科学研究所在庫

[成分B]

ホウ化鉄(FeB)
高純度化学研究所製
99%

ステンレス鋼(SUS304、Fe-Cr-Ni)
ニラコ社製

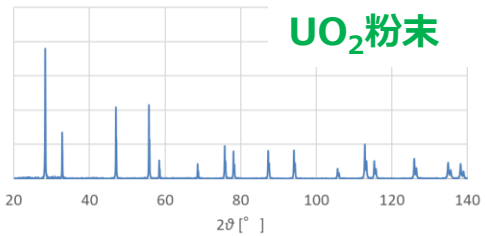
[成分C]

二酸化ケイ素(SiO_2)
和光純薬社製
99.5%

＊いずれも分析表を入手、確認

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

試薬等の測定結果（XRD）：原料粉の確認

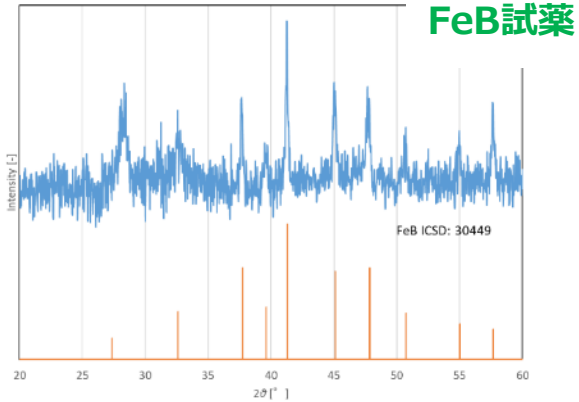


U_3O_8の還元によって得たUO_2粉末

- 格子定数5.471 Å が得られ、$UO_{2.00}$に還元されていることを確認した。

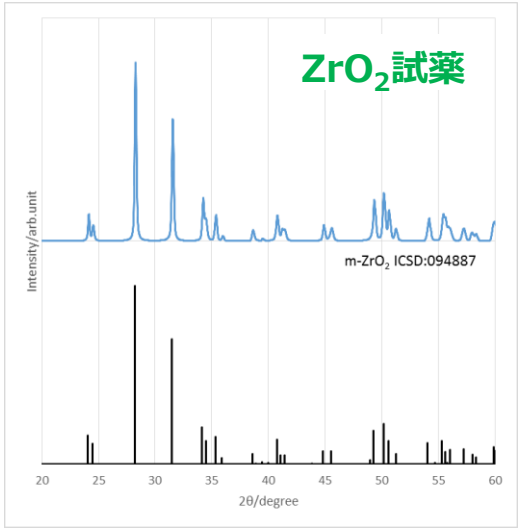
Gd_2O_3試薬

- 単斜晶の文献値とよく一致し、不純物は確認されなかった。



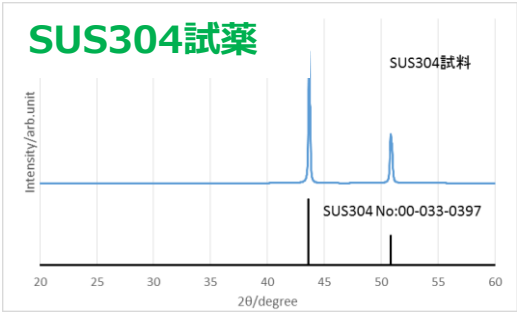
FeB試薬

- FeBの文献値とよく一致した。Fe_2BやFeB_4はほとんど含有しないと判断した。



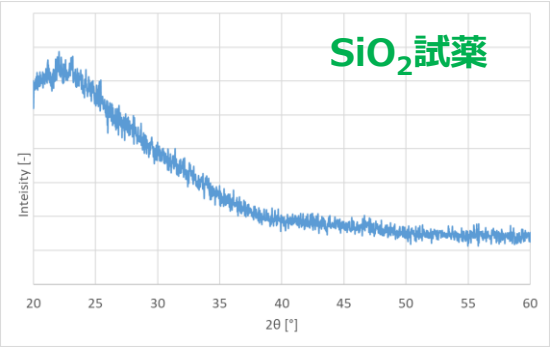
ZrO_2試薬

- 文献値とよく一致し、ZrO_2以外のピークは検出されなかった。



SUS304試薬

- SUS304のパターン以外のピークは検出されなかったことから、SUS304以外の成分は含まないと判断した。

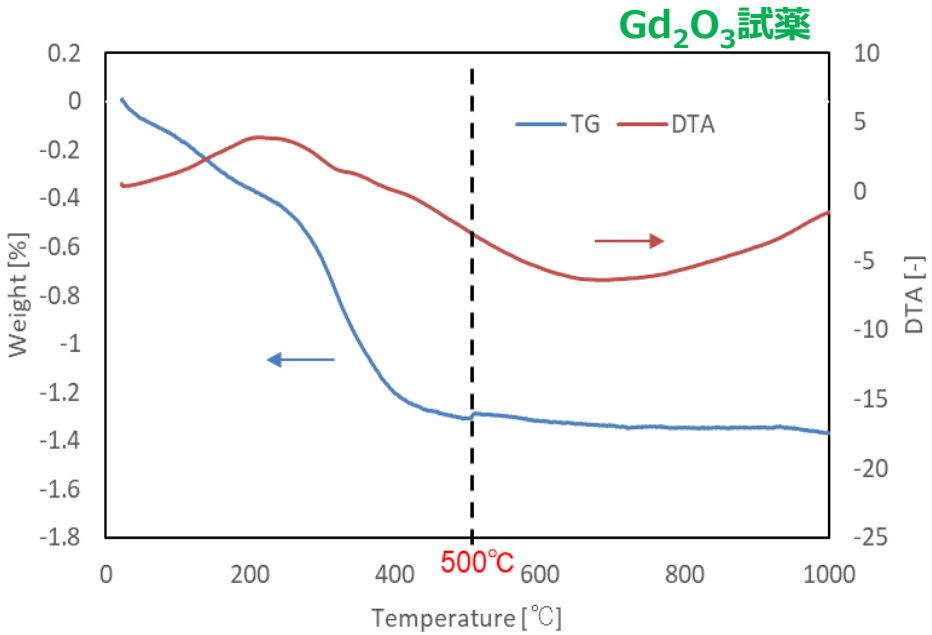


SiO_2試薬

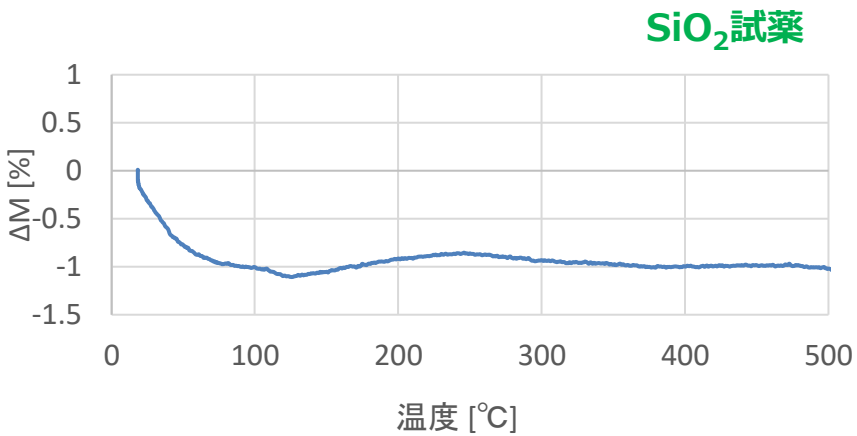
- ピークは検出されず、結晶質の成分は含有しないと判断した。

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

試薬等の測定結果（熱重量・示差熱同時測定：TG-DTA）



Gd_2O_3試薬の熱曲線



SiO_2試薬の熱曲線

Gd_2O_3試薬

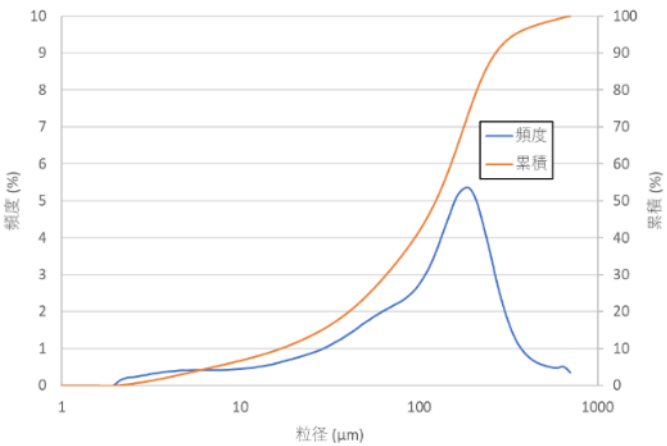
- 250~450℃における重量減少と300℃付近の小さい吸熱ピークが確認された。水酸化物の分解と水分の揮発によるものと推定されたことから、使用前に加熱処理を実施し100℃の乾燥炉で保管することとした。

SiO_2試薬

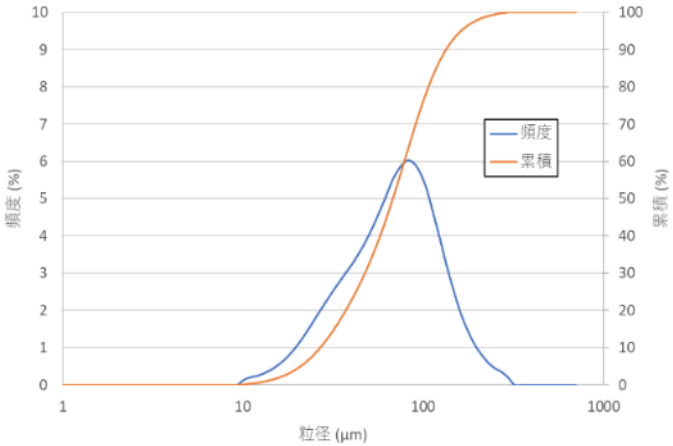
- 80℃までに約1%の重量減少を示した。吸着水分の揮発によるものと判断した。

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

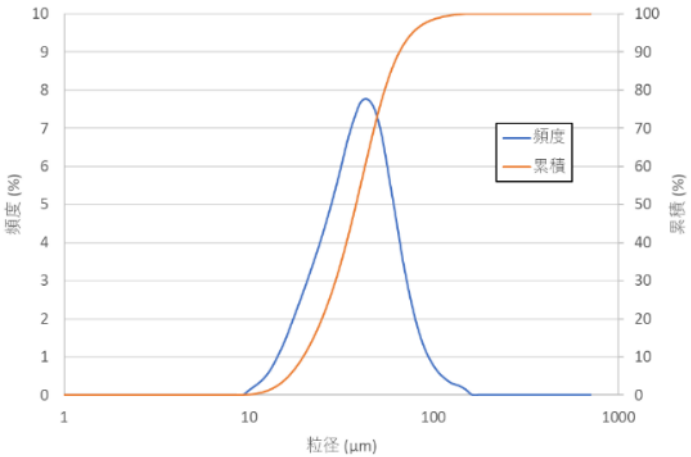
試薬等の測定結果（粒度分布）



FeB試薬（粉砕処理後）の粒度分布



SUS304試薬の粒度分分布



SiO_2試薬の粒度分布

FeB試薬

- 試薬の仕様で粒径が<850μmと大であったことから、乳鉢粉砕を行った。粉砕後の粒度は100~200μmが最多で、全体の80%程度は200μm以下になっていることが確認された。

SUS304試薬

- 粒度は100μmの粒子が最多で、全体の80%程度は100μm以下になっていることが確認された。

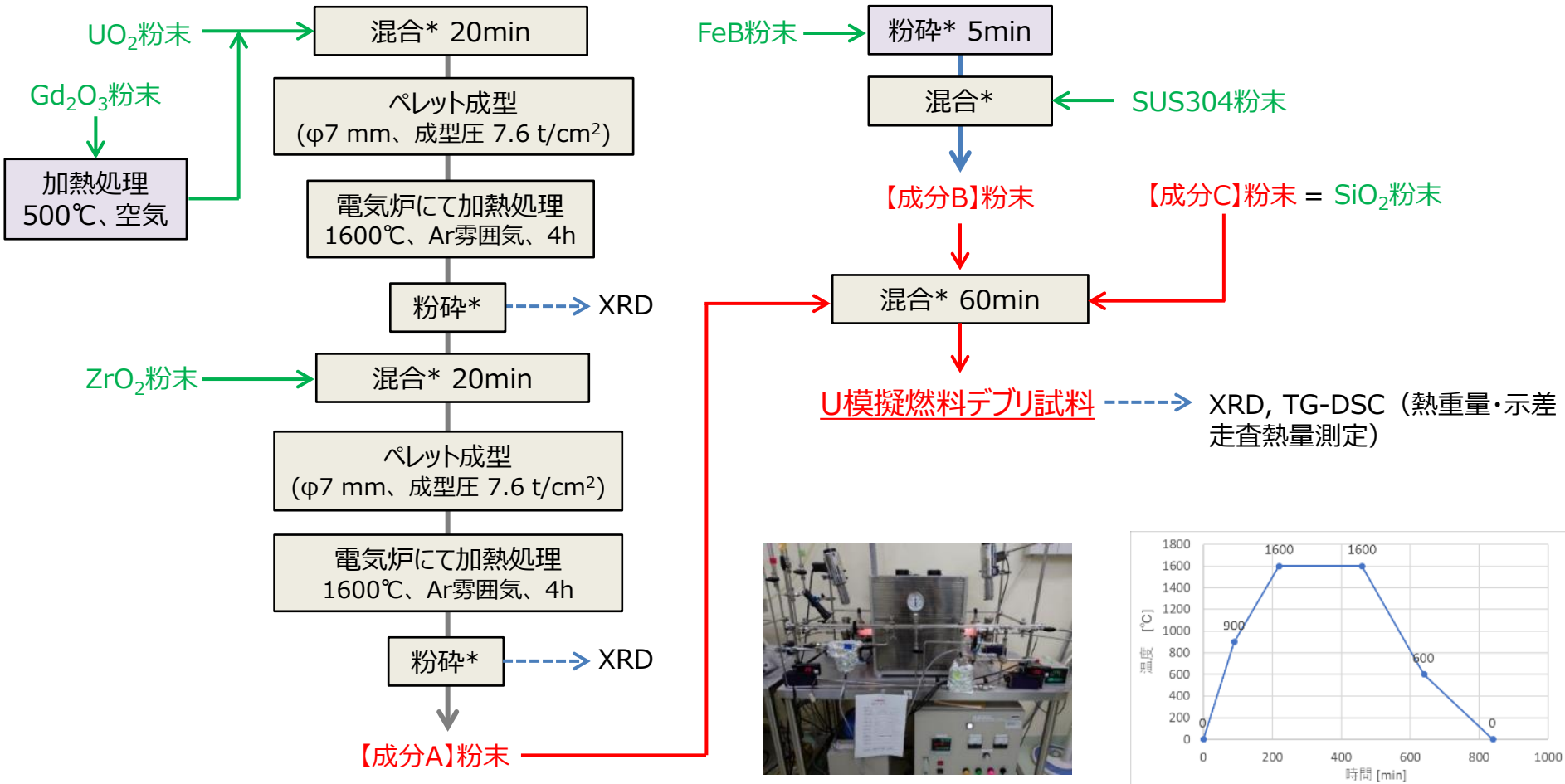
SiO_2試薬

- 粒度は45μmが最多で、全体の80%程度は50μm以下になっていることが確認された。

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

U模擬燃料デブリ試料の調製フロー

＊タングステンカーバイド製乳鉢を使用



高温型ガス置換式横管状炉外観

【成分A】合成時の加熱プログラム

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

模擬燃料デブリ試料の調製

混合比の決定値

(1) U模擬燃料デブリ試料

a1:a2:a3 ＝ 40 : 55 : 5

[成分A] : [成分B] : [成分C]

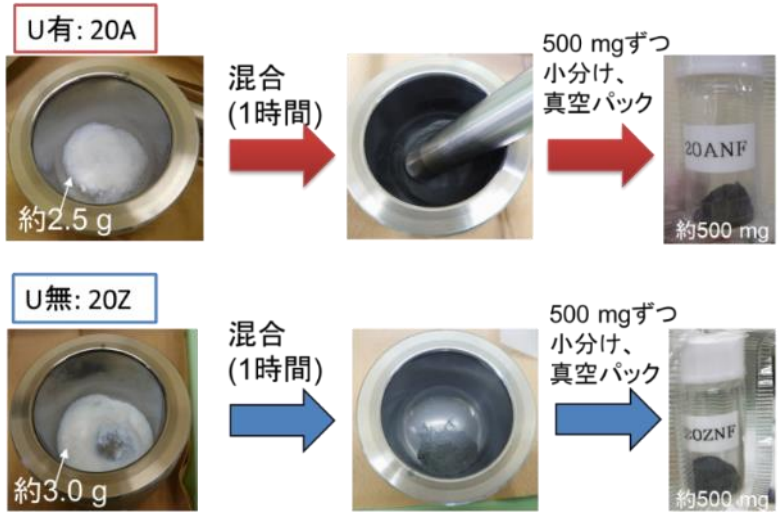
＝ 40 : 30 : 30

(2) Uを含まない試料（NU試料）

[成分B] : [成分C] ＝ 50 : 50

各成分の重量

		20A	20Z
【成分A】	(U, Zr, Gd)O_2	1.0022 g	-
【成分B】	FeB	0.7544 g	1.5002 g
【成分C】	SiO_2	0.2512 g	0.5048 g
	SUS304	0.5002 g	1.0019 g



粉末混合の状況

調製した試料の組成

U模擬燃料デブリ試料

元素名	含有量（mg/100mg)
U	20.5 ± 0.1
Gd	1.7
Zr	10.8
B	4.9
Fe	39.0
Cr	3.7
Ni	2.2
Mn（分析対象外）	(0.04)
Si	4.9
O	12.2 ± 0.1

＊誤差は±0.1mg/100mg未満と評価される。(誤差表記のない元素)

（NU試料）

元素名	含有量（mg/100mg)
U	無添加
Gd	無添加
Zr	無添加
B	8.1
Fe	64.9
Cr	6.2
Ni	3.7
Mn（分析対象外）	(0.06)
Si	8.1
O	8.9

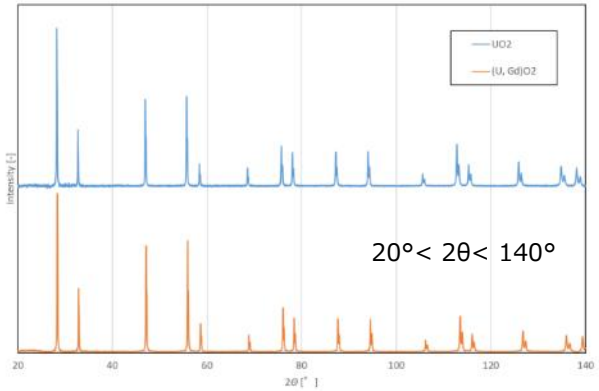
＊誤差は±0.1mg/100mg未満と評価される。

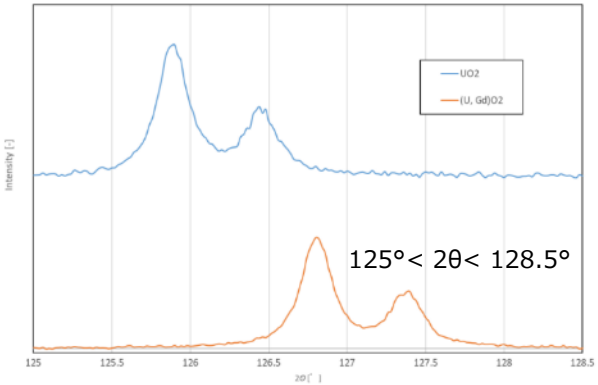
3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

試料の測定結果

① $(U,Gd)O_2$ペレット

加熱後のペレット外観



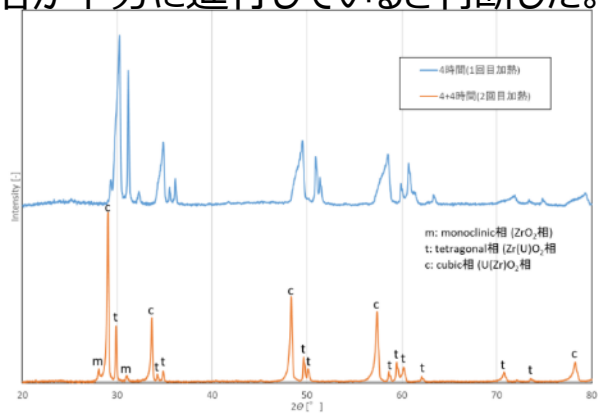


UO_2と$(U,Gd)O_2$のXRDパターンの比較

- 加熱後のピーク位置がUO_2に比べて広角側にシフトしており、Gdの固溶によるUO_2の格子定数の低下を示すものと判断した。
- (620)面の半値幅の変化が少ないことから、固溶が十分に進行していると判断した。

② 【成分A】=$(U,Gd)O_2$+ZrO_2のペレット

図 加熱後のペレット外観



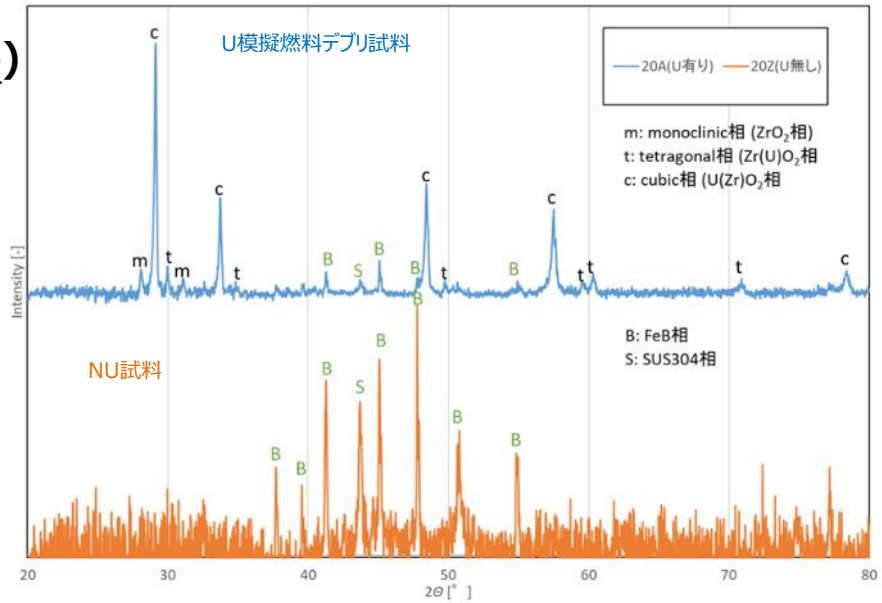
$(U,Gd)O_2$+ZrO_2混合物のXRDパターン (4時間加熱1回目と2回目)

- 立方晶の相（$U(Zr)O_2$）と正方晶の相（$Zr(U)O_2$）、単斜晶の相（ZrO_2）の存在を確認した。

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

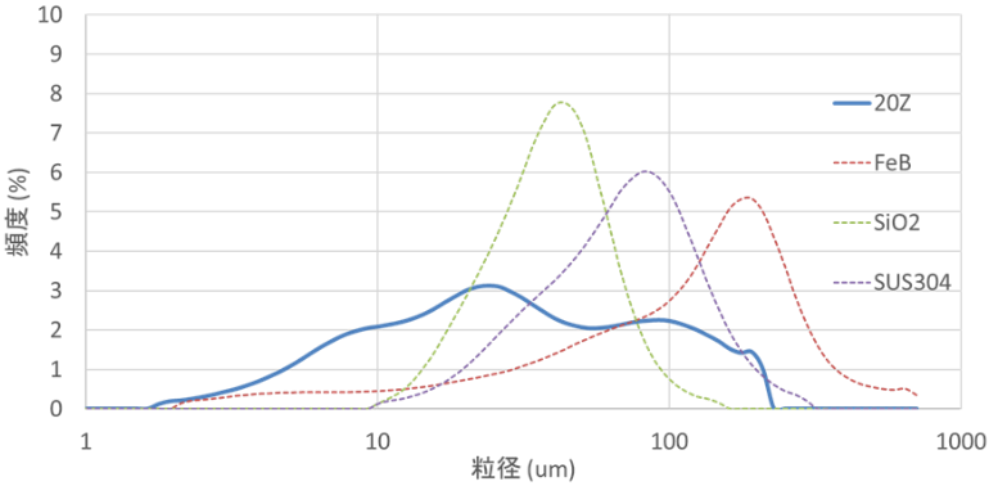
③ U模擬燃料デブリ試料、NUデブリ試料

（XRD）



模擬燃料デブリ、NU試料のXRD回折パターン

（粒度分布）



Uを含まない試模擬料（NU試料）の粒度分布

(a) U模擬燃料デブリ試料

- [成分A]由来のピーク強度が強く、相対的に[成分B]及び[成分C]由来のピーク強度が小さかった。
- [成分A]の合成時に確認された立方晶の相($U(Zr)O_2$相)、正方晶の相($Zr(U)O_2$相) 、単斜晶の相(ZrO_2相)が確認できた。
- [成分B]及び[成分C]由来のFeB及びSUS304のピークが確認された。SiO_2は非晶質のためピークが確認できなかった。

(b) NU試料

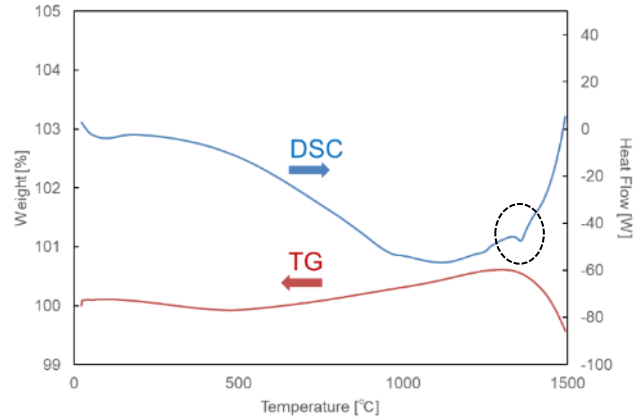
- [成分B]及び[成分C]由来のFeB及びSUS304のピークが確認された。
- 粒度分布〔管理区域外設備のためNU試料のみ測定を行った。〕：
  - ⇒ 200μm以上の粒子はほとんど存在しなかった。このことから、混合過程でFeBとSiO_2の粉砕が進んだと考えられる。
  - ⇒ SUS304は延性を有するため、粉砕されなかったと考えられる。

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製

（熱重量・示差走査熱量測定：TG-DSC）

(a) U模擬燃料デブリ試料

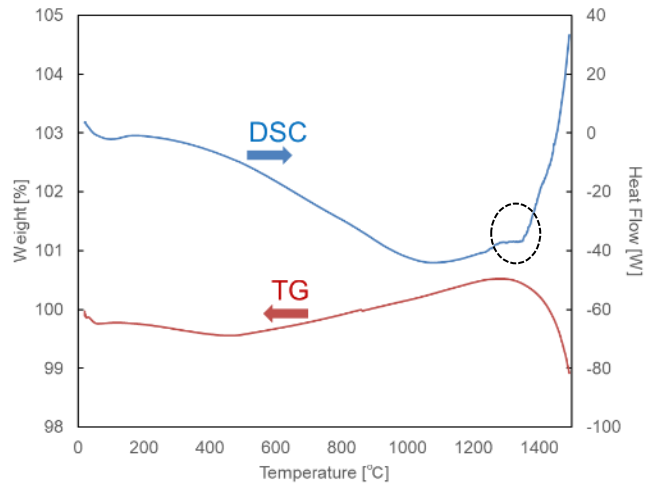
- 1300℃までほぼ重量変化はなく、その後、初期重量に対して99.6%まで重量が減少した。
- DSCにおいて1360℃で吸熱ピークが確認され、【成分B】のFeBと【成分C】のSUS304が反応したと考えられる。
- 1300℃以上の重量減少はSiO_2の揮発によるものと考えられる。



U模擬燃料デブリ試料

(b) NU試料

- 500℃で重量が99.6%まで減少した後、1300℃で重量が100.5%まで増加、その後1500℃で99%まで重量が減少した。
- 1360℃付近で小さな吸熱ピークが見られ、【成分B】のFeBと【成分C】のSUS304とFeBが反応したと考えられる。
- 1300℃以上の重量減少はSiO_2の揮発によるものと考えられる。

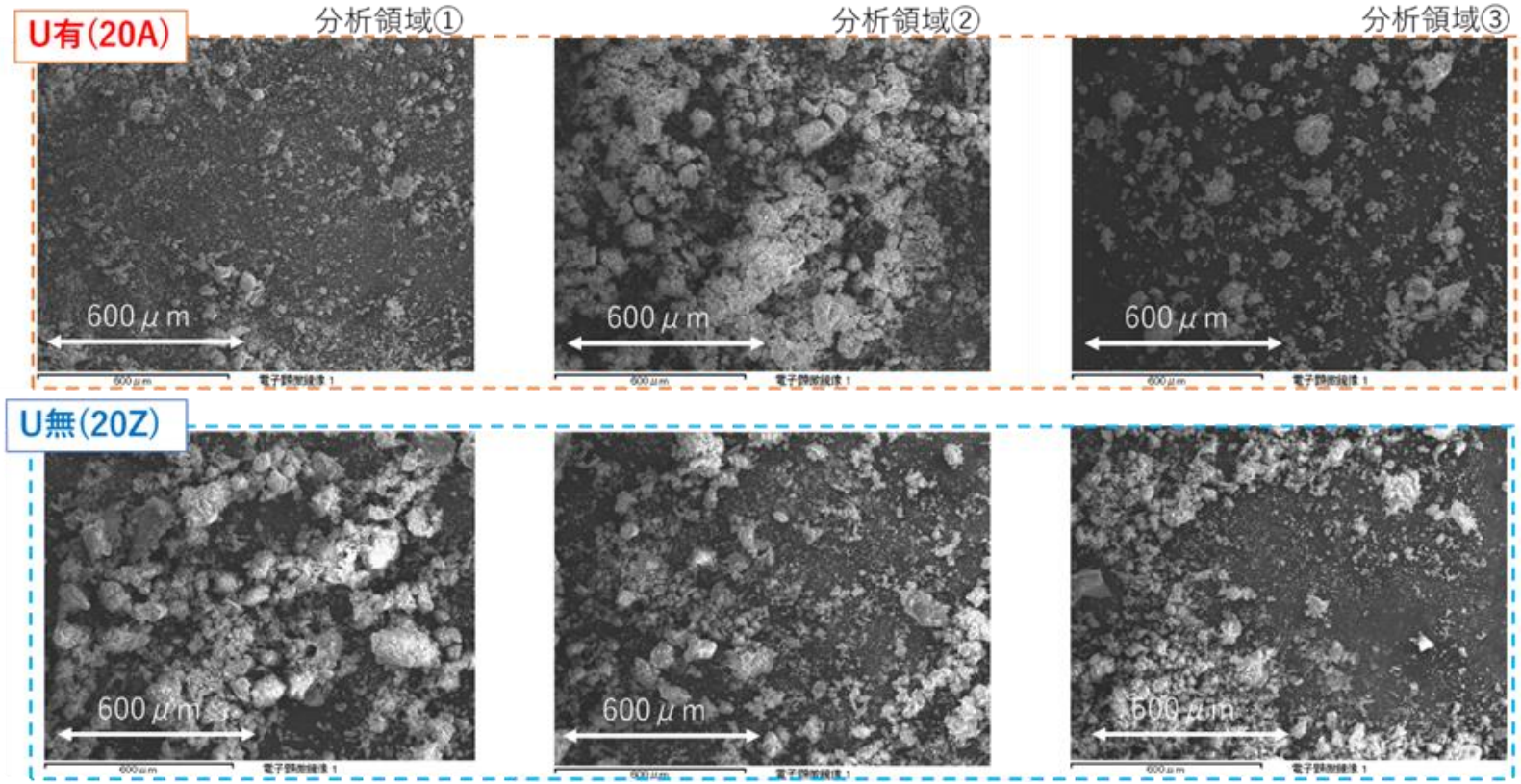


Uを含まない試料（NU試料）

③ U模擬燃料デブリ試料、NUデブリ試料

これらの結果から、作製した模擬燃料デブリは1300℃以下で安定であることが確認された。

3.1 模擬燃料デブリ試料の調製



模擬デブリ試料のSEM分析
（試料の粉体をカーボンテープに塗布して、反射電子像(BSE)を各試料３視野（領域①、②、③）撮影）

- 分析視野毎の組成比のばらつきは小さい。
- 20A、20Zどちらも200 μm程度の粒子が確認された。
- 粒度分布測定より、粒度100 ～ 200μmの粒子はFeBの粒子と考えられる。

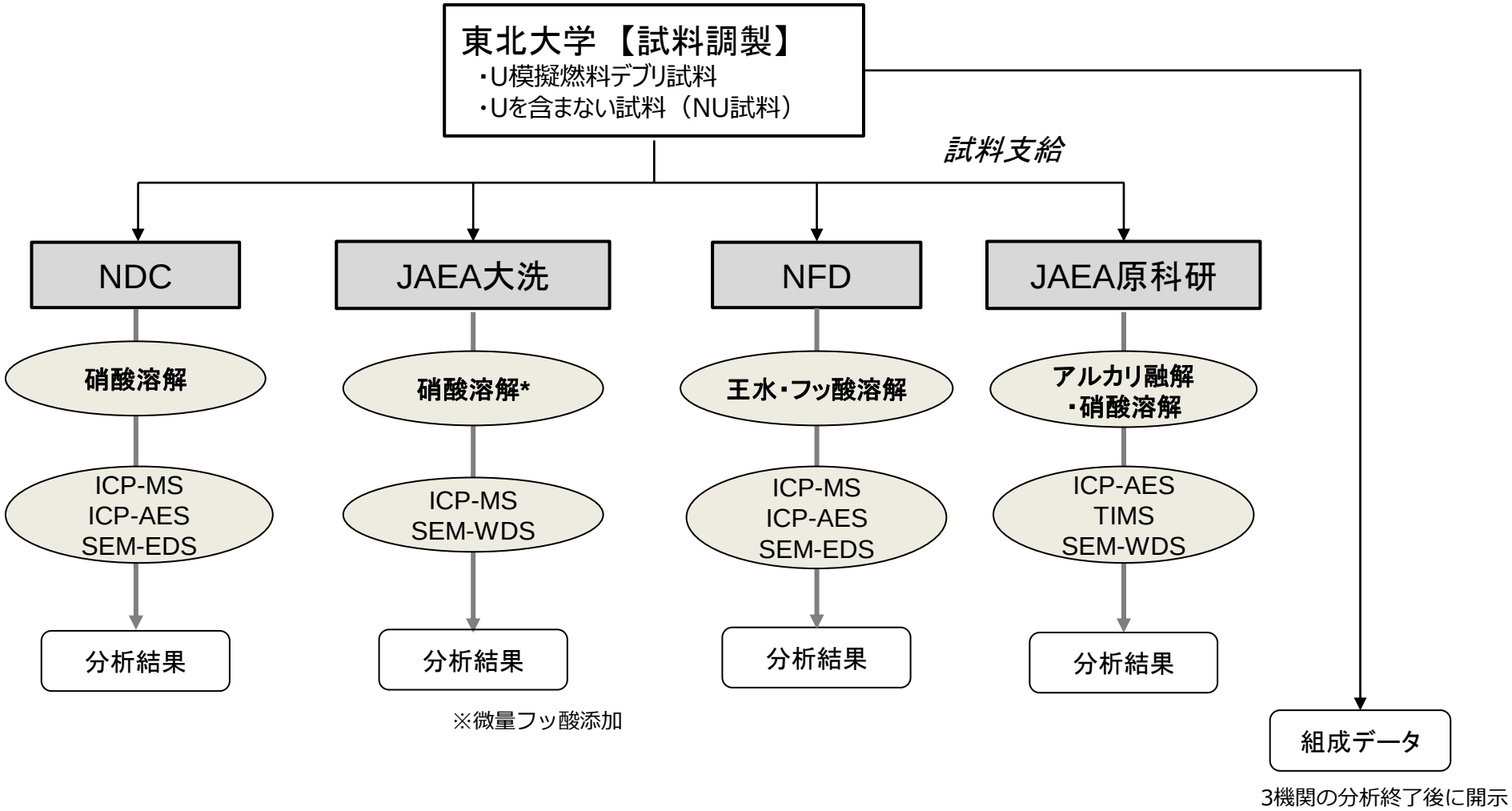
よって東北大学が作製した模擬デブリ試料(U有、U無)はいずれも均一に混合できていると考えられる。

3.2 溶解試験の結果

(1) 受入れ試料の確認結果
(2) 硝酸溶解試験の結果（NDC）
(3) 硝酸溶解試験の結果（大洗研）
(4) 王水・フッ酸溶解試験の結果（NFD）
(5) アルカリ融解・硝酸溶解試験の結果（原科研）
(6) 不溶解性残渣の発生状況
(7) セル内外における操作の比較

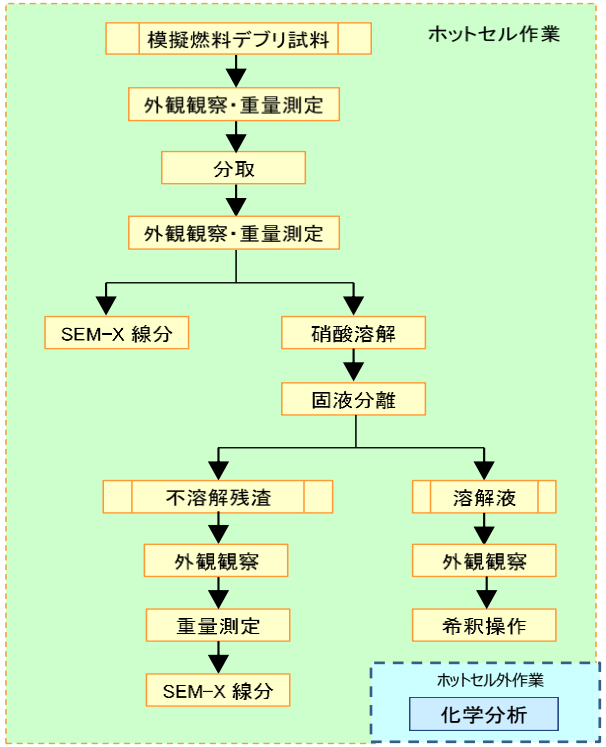
3.2 溶解試験の結果

<u>事業の全体像及び担当機関</u>（再掲）

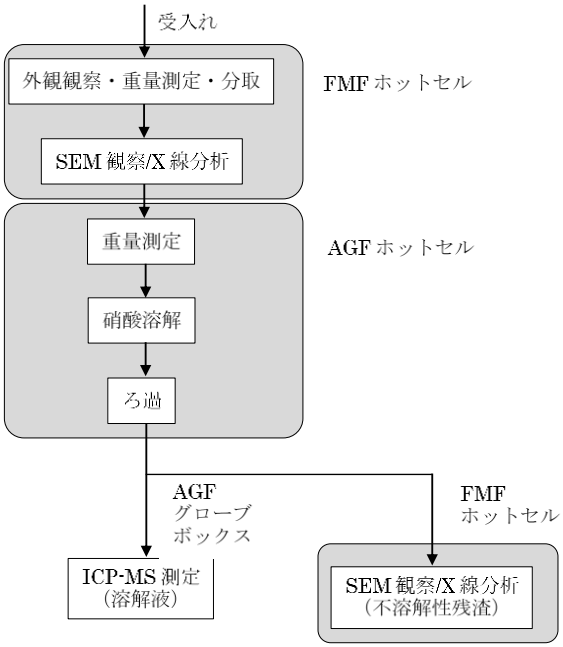


3.2 溶解試験の結果

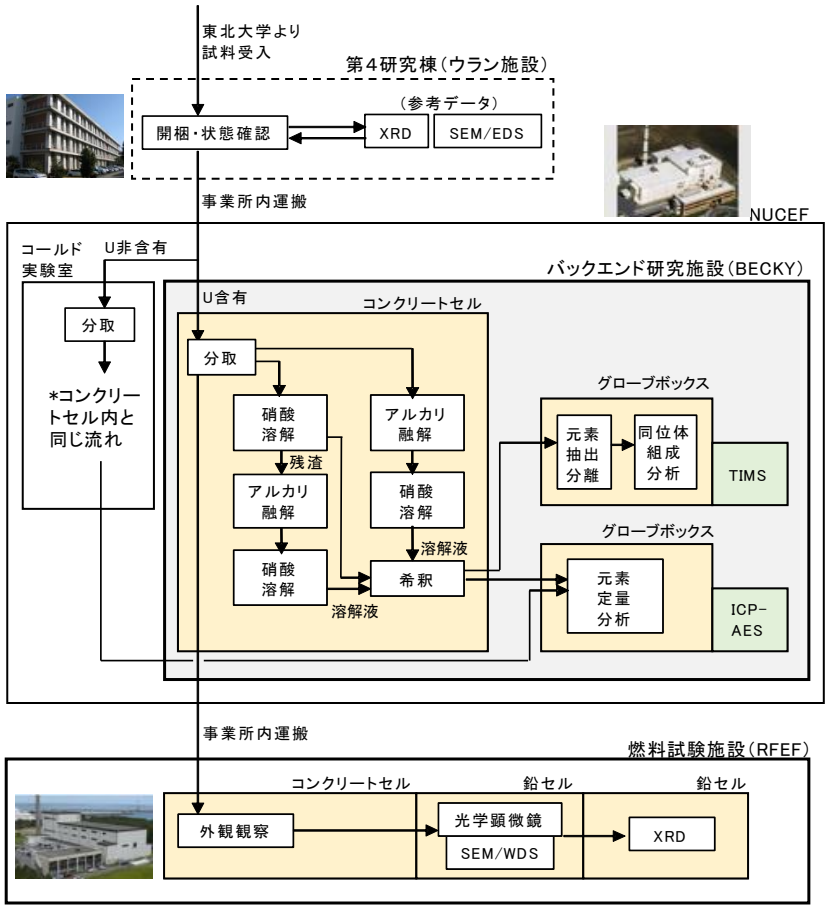
本事業における各機関での分析フロー



NDC（硝酸溶解法）



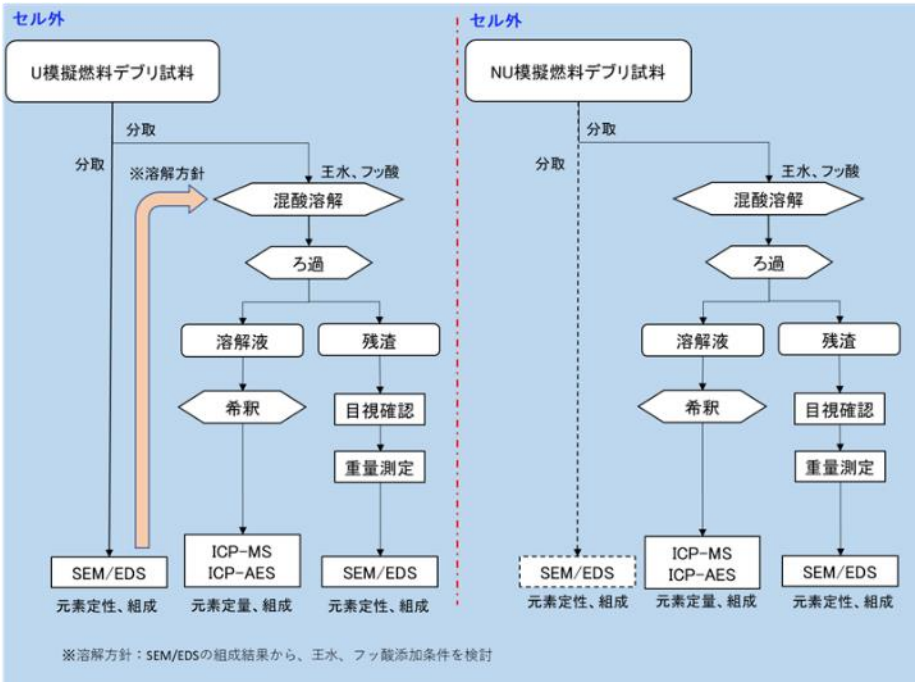
JAEA大洗研
（硝酸溶解法）



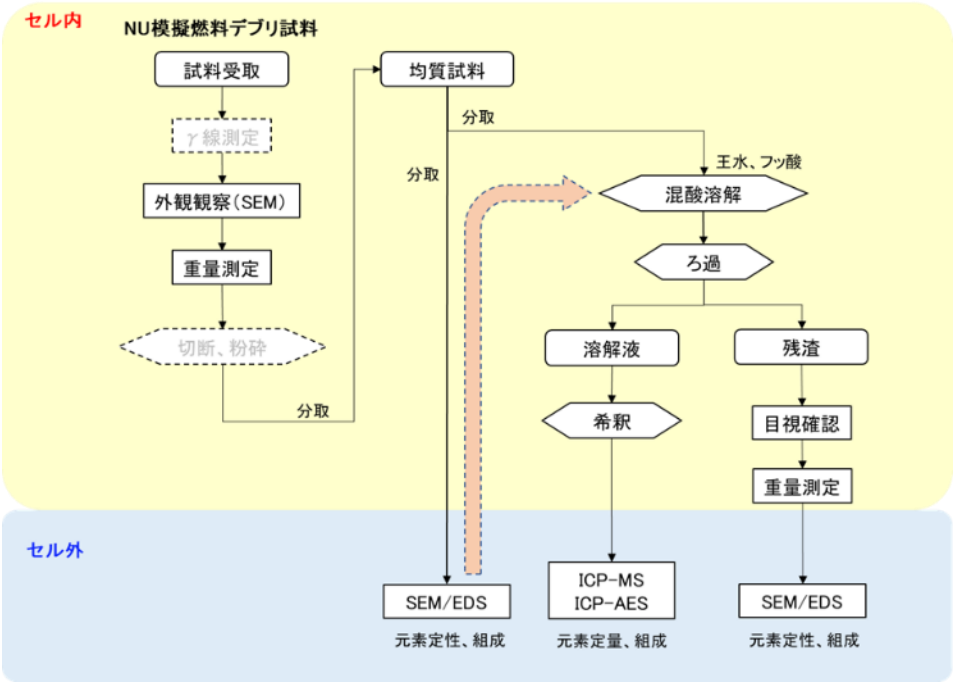
JAEA原科研
（アルカリ融解・硝酸溶解法）

3.2 溶解試験の結果

本事業における各機関での分析フロー



セル外におけるU模擬燃料デブリ試料と
NU試料の分析フロー

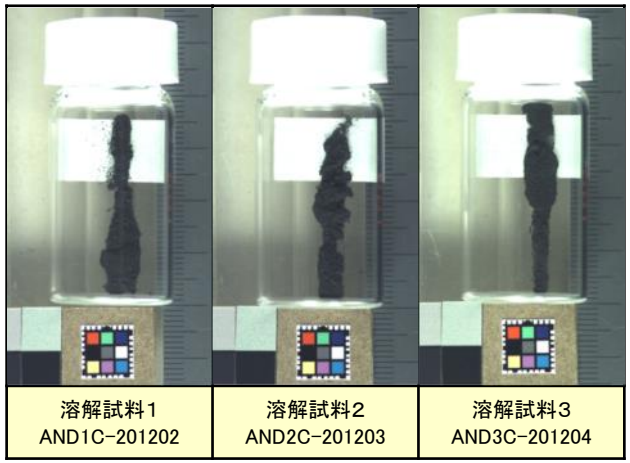


セル内外におけるNU試料の分析フロー

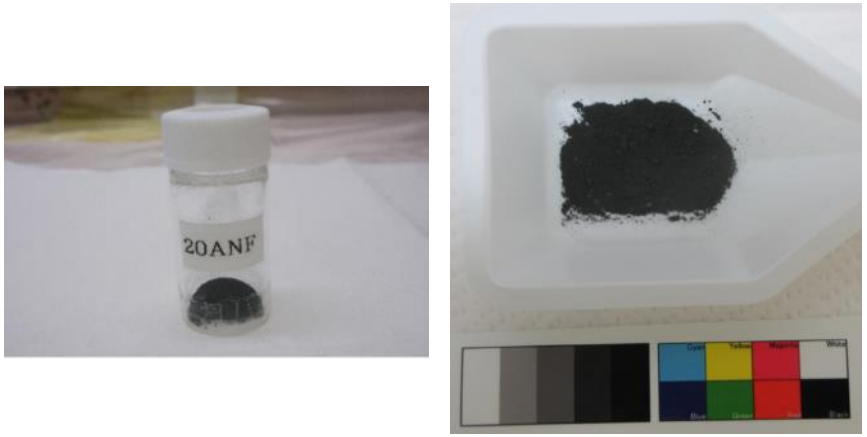
NFD（王水・フッ酸溶解法）

(1) 受入れ試料の確認結果

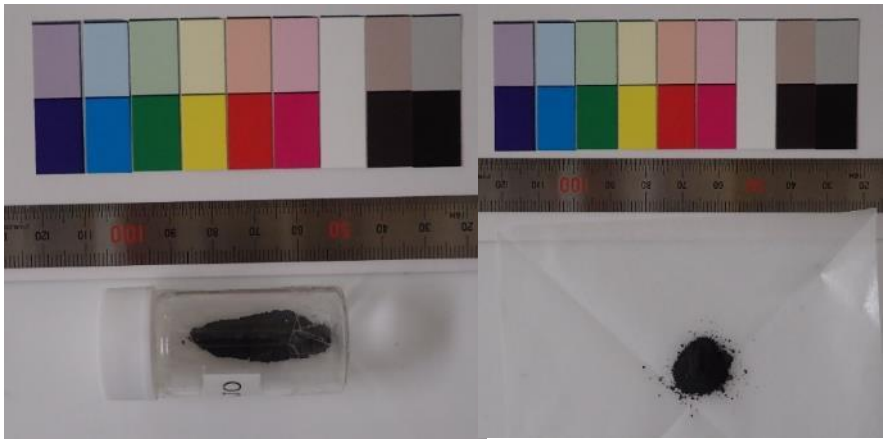
外観観察（U模擬燃料デブリ試料）



分取後の試料外観（NDC）



分取後の試料外観（NFD）

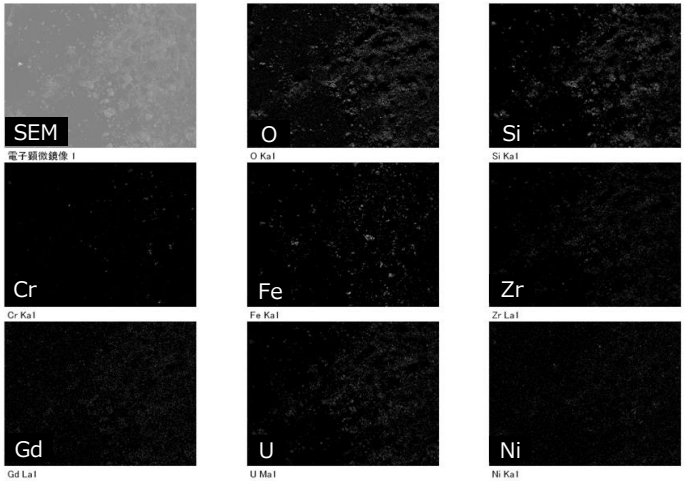


分取後の試料外観（JAEA大洗）

輸送試料外観（JAEA原科研）

(1) 受入れ試料の確認結果

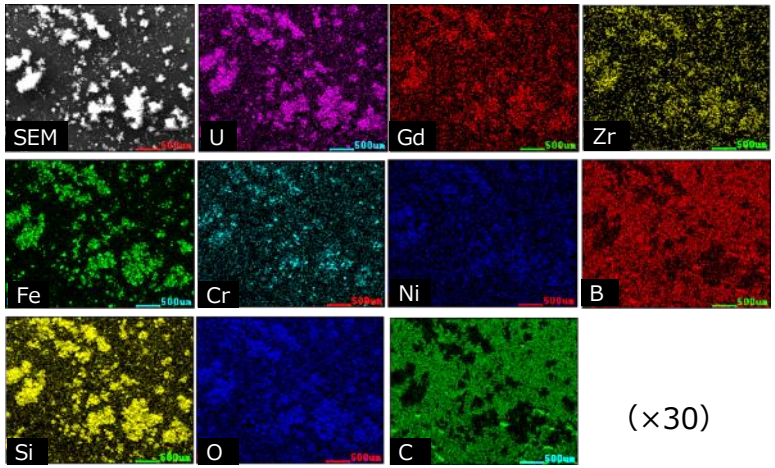
SEM観察（U模擬燃料デブリ試料:低倍率）



（×50）

溶解前試料SEM-EDS観察結果（NDC）

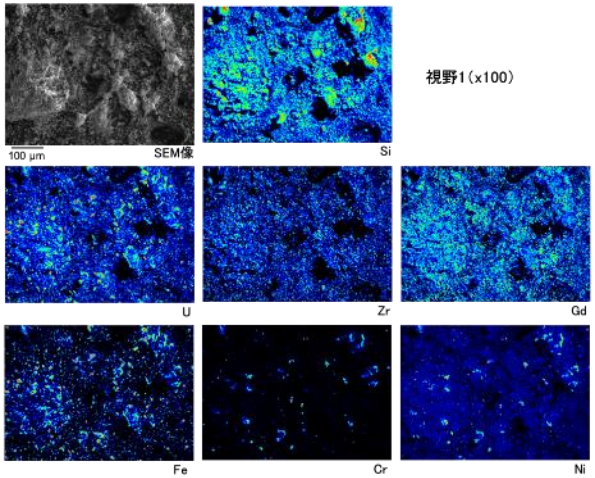
- Cr、FeおよびNiは比較的大きな粒子の位置に共存、同位置ではOは観察されない。
- Feは単体でも存在する。
- Zr、GdおよびUは共存し、同位置ではOが観察された。
- Siは試料粉末が観察される位置全体に観察され、同位置ではOが観察された。



（×30）

SEM観察とEDの元素マッピング（NFD）

- U、Fe、Siが同一粒子上に存在した。
- Gd、Zr、Cr、Niの存在も確認した。
- BはCの影響により存在位置の判別が困難であった。
- U、Zr、Fe、Siの割合は同程度
- Feに対し、Cr、Niは一桁程度低いと推定された。
- Uに対し、Gdは一桁程度低いと推定される。



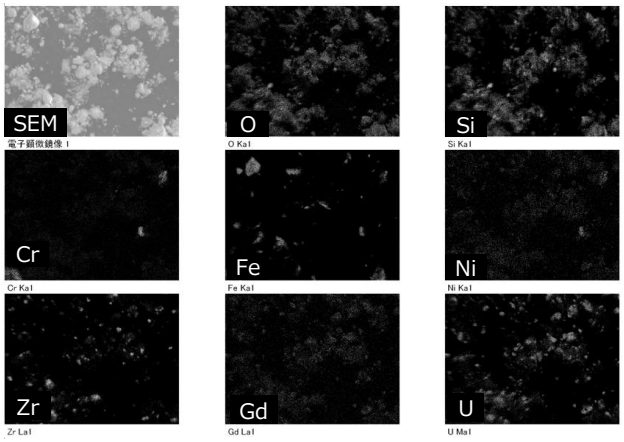
（×100）

- Bについては有意な信号強度なし。
- 粒子は、1 μmを下回る微細なものから100 μmを超える破片あるいは凝集体と推定される。
- U、Zr、Gdの分布は比較的一致
- Feが視野に広く分布しているのに対して、CrとNiは非常にまばらである。
- 数十μmから100 μm前後の大きなかけら状の粒子はFeBであると推測される。
- 微細なSiO_2の粉末がFeBの粗大な粒子表面にも密に付着している状態。

セル内SEM/WDSによる元素マップ像（JAEA原科研）

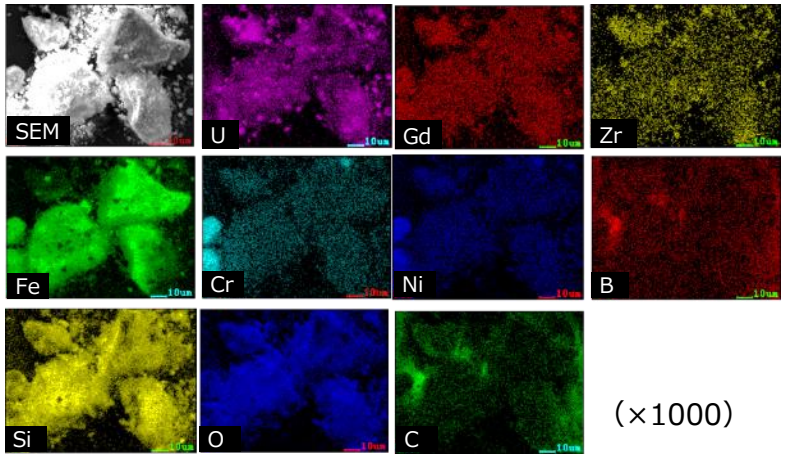
(1) 受入れ試料の確認結果

SEM観察（U模擬燃料デブリ試料:高倍率）



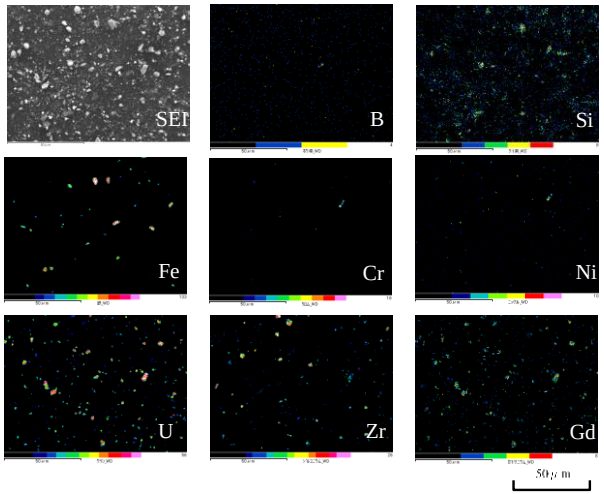
（×1000）

溶解前試料SEM-EDS観察結果（NDC）



（×1000）

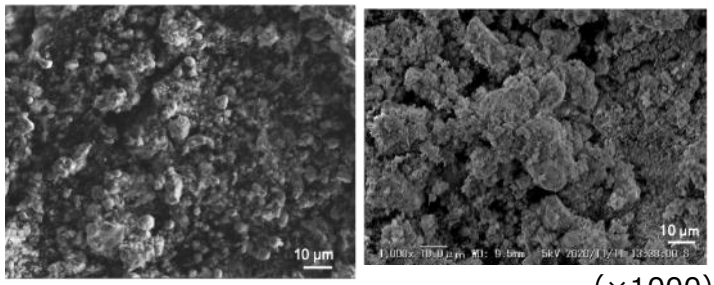
SEM観察とEDの元素マッピング（NFD）



（×1000）

SEM-X線による元素マッピング（JAEA大洗）

・Cr、Niは1か所の同じ粒の位置で観察
・同じ個所ではFeもカウントが高い点があった。
Feは単体でも複数の粒が観察された。
・Zr、GdおよびUはそれぞれ共存が観察。
・Siは試料粉末が観察される位置全体に観察。
・Bは1か所で観察され、同じ粒ではFeが観察。



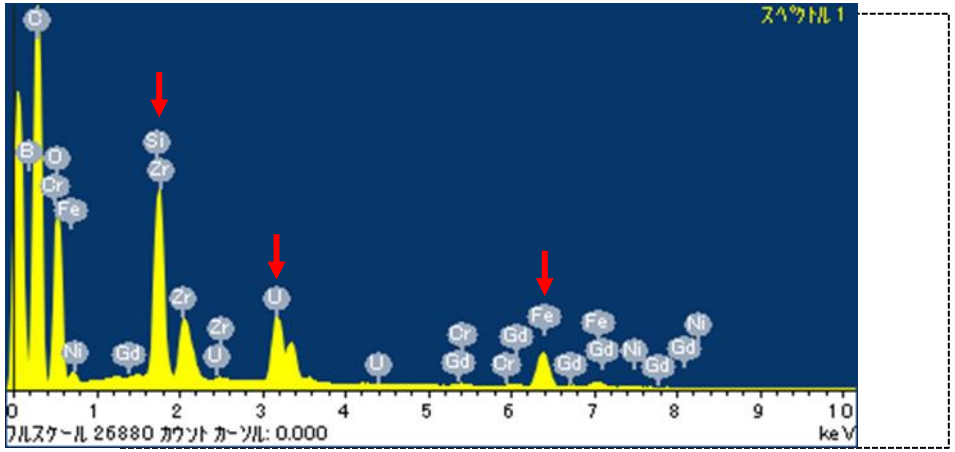
（×1000）

（セル内SEM/WDS）　（汎用SEM-EDS）

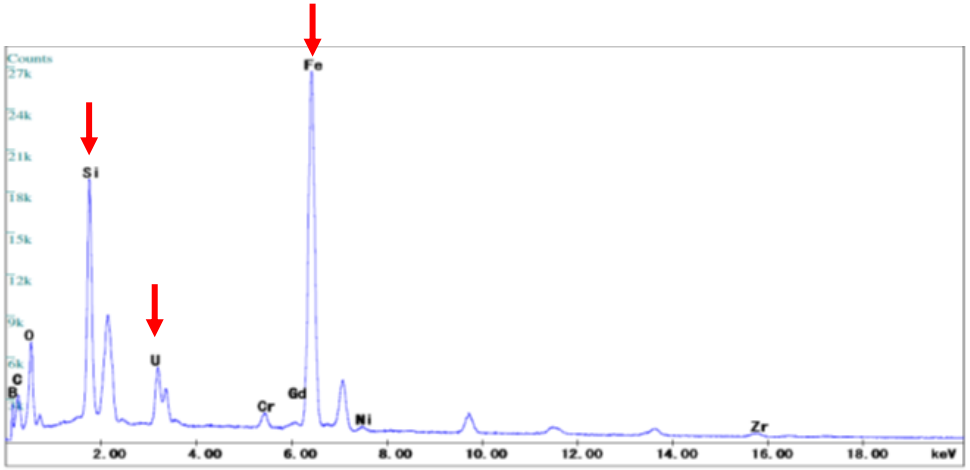
SEMによる二次電子像（JAEA原科研）

(1) 受入れ試料の確認結果

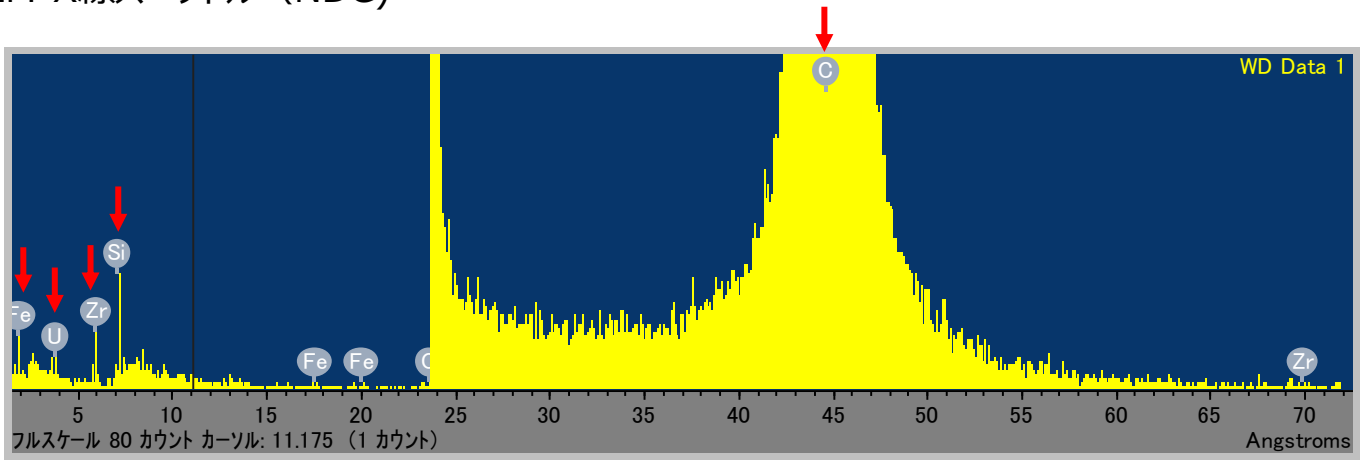
SEM観察（U模擬燃料デブリ試料）



溶解前試料のSEM-X線スペクトル（NDC）



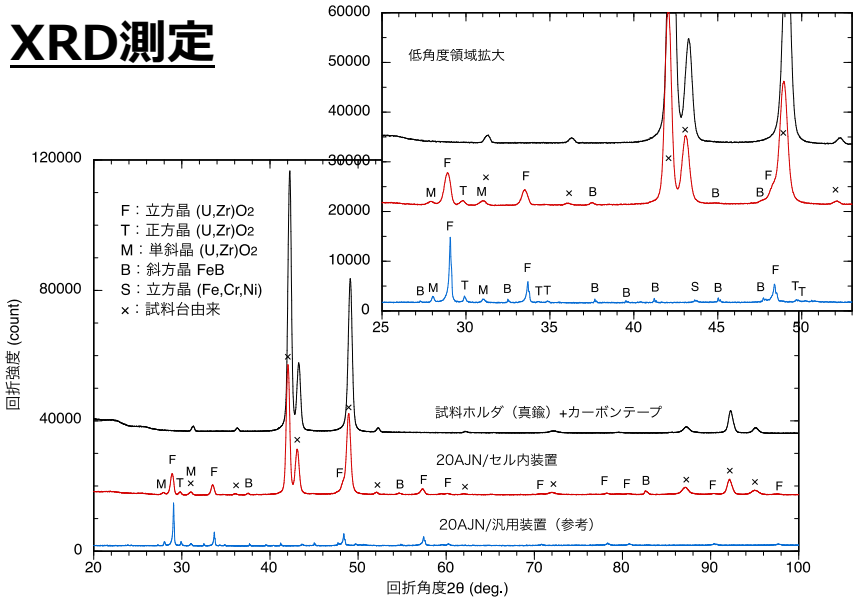
SEM-EDS測定結果（NFD）



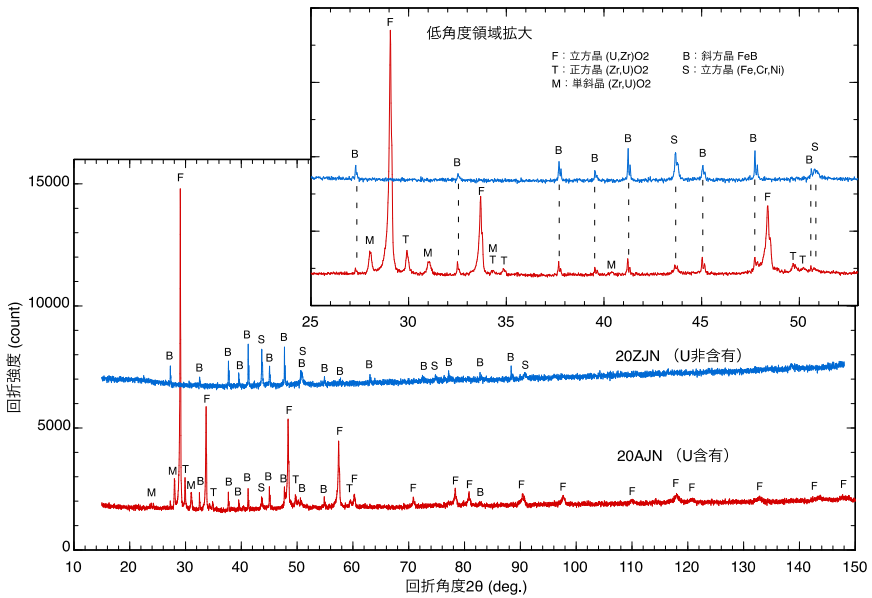
SEM-X線スペクトル例（JAEA大洗）

(1) 受入れ試料の確認結果

XRD測定



セル内装置と汎用装置のXRD結果の比較
（U模擬燃料デブリ試料）



汎用装置によるXRD結果
（U模擬燃料デブリ試料とNU試料の比較）

- 立方晶、正方晶、単斜晶からなる$(U,Zr)O_2$の他、斜方晶のFeBと立方晶の(Fe,Cr,Ni)合金（ステンレス鋼）に由来する回折ピークを検出した。
- Gd酸化物に由来するピークは見られないことから、Gdは$(U,Zr)O_2$中に固溶していると判断できる。
- セル内装置の特殊な光学系の都合上、汎用装置で取得したプロファイルに比べて回折ピークの半値幅が広いことに加えて、微小なピークが検出されにくい傾向にあり、測定精度においては汎用装置に劣ることを確認した。
- 試料台の真鍮由来の2相（面心立方晶および体心立方晶のCu-Zn合金）の回折ピークが試料の一部のピークと重なった。

※いずれもJAEA原科研の結果

(1) 受入れ試料の確認結果

U模擬燃料デブリ試料

外観

- 分析4機関の間で、試料の外観、性状、均一性、粒度等の違いは見られなかった。

試料重量（風袋込み）

- 4機関とも同程度の重量増加が見られ、容器表面に貼られたテープの吸湿が原因と推定された。

	NDC	JAEA大洗研	NFD	JAEA原科研
払出重量*（g）	15.2515	15.1317	15.1944	15.4721
受入重量（g）	15.2674	15.1417	15.2151	15.4854
重量差（g）	**+0.0159**	**+0.0100**	**+0.0207**	**+0.0133**

＊東北大学における測定値（試料+容器風袋）

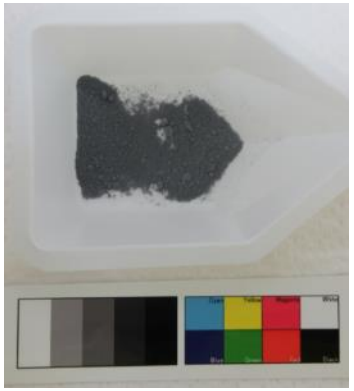
元素の存在と半定量結果

- 以下の所見が得られた。

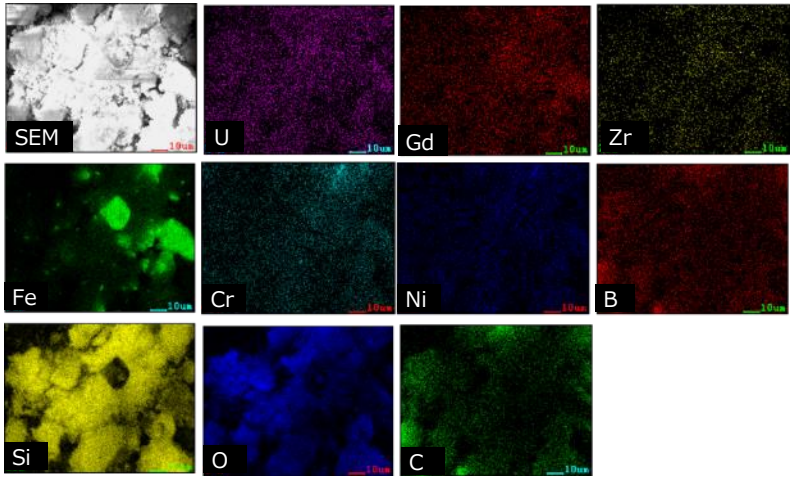
	低倍像	高倍像
マッピングの結果	• U, Fe, Siが同一粒子上に存在 • Gd, Zr, Cr, Niを確認 • Cの影響によりBの存在位置の判別は困難	• 主な粒子はFe, Si, U • Fe, Siは粗大な粒子が存在 • UとGdが共存 • 同左
半定量の結果	• U, Zr, Fe, Siの割合は同程度 • Feに対しCr, Niは一桁低い • Uに対しGdは一桁程度低い • Bの評価は困難	• 同左 • 同左 • 同左 • 同左

(1) 受入れ試料の確認結果

外観・SEM観察（NU試料）

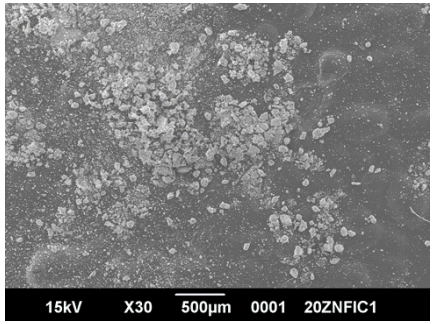


NU試料外観

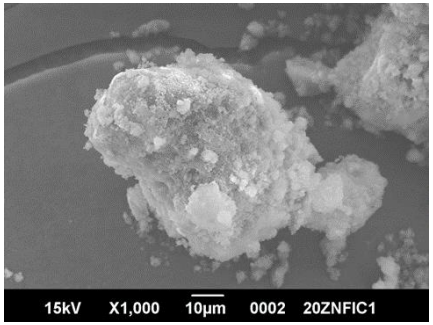


（×1000）

SEM-EDS像



×30



SEM二次電子像

（×1000）

- Fe、Siが同一粒子上に存在していることを確認した。
- Feと同じ個所にCrを確認した。
- また、U、Gd、Zrは混在しないことを確認した。
- BはCの影響により存在位置の判別が困難であった。
- Fe、Siの割合は同程度であった。
- Feに対し、Cr、Niは一桁程度低いと推察される。
- Bの割合について評価することは困難であった。

※いずれもNFDの結果

(1) 受入れ試料の確認結果

NU試料

外観

- 粉末状で、セル内外での観察結果はいずれも白に近い灰色であった。

試料重量（風袋込み）

- U含有模擬燃料デブリと同程度の試料重量の増加が見られ、同様にテープの吸湿が原因と推定された。

	NFD	JAEA原科研
払出重量*（g）	15.5911	15.1073
受入重量（g）	15.6059	15.1198
重量差（g）	**+0.0148**	**+0.0125**

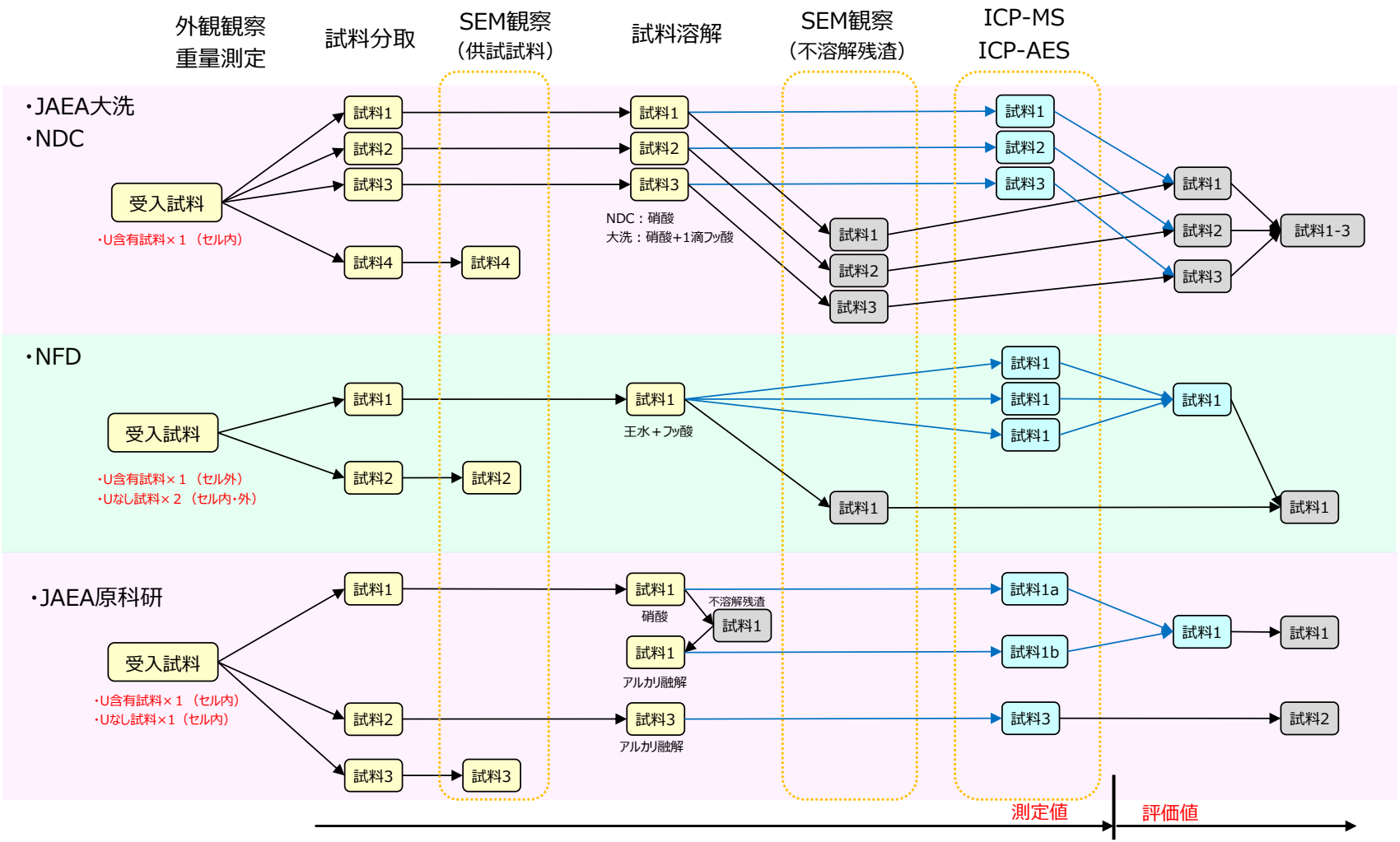
＊東北大学における測定値（試料+容器風袋）

元素の存在と半定量結果

- 以下の所見が得られた。

	30倍像	1000倍像
マッピングの結果	• Fe, Siが同一粒子上に存在 • Feと同じ箇所にCrを確認 • U, Gd, Zrの非存在を確認 • Cの影響によりBの存在位置の判別は困難	• 主な粒子はFeとSi • 同左 • 同左 • 同左
半定量の結果	• Fe, Siの割合は同程度 • Feに対しCr, Niは一桁低い • Bの評価は困難	• 同左 • 同左 • 同左

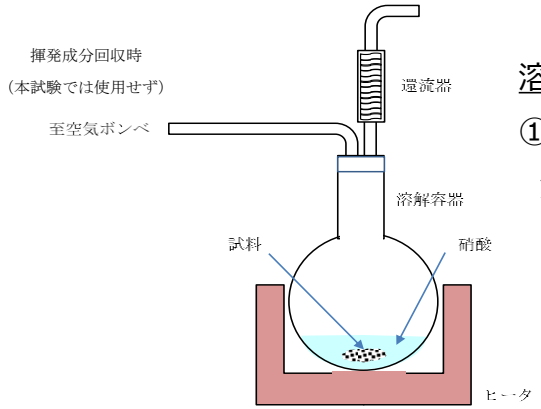
(2)～(5)溶解試験



各分析機関の試料採取、測定値及び評価値の関係

(2) 硝酸溶解試験の結果（NDC）

U模擬燃料デブリ試料



硝酸溶解装置の概念図

溶解条件

① 8M 硝酸 20mL中
沸騰状態×60min加熱

フラスコ移送後　硝酸添加後　加熱溶解後　固液分離後

試料溶解作業の状況

不溶解性残渣１
AND1CR-201218

不溶解性残渣２
AND2CR-201218

不溶解性残渣３
AND3CR-201218

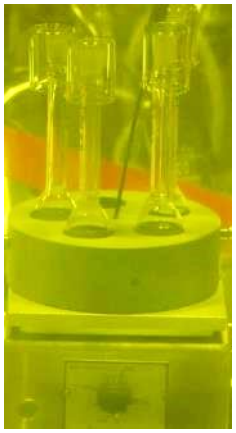
不溶解性残渣の外観

溶解試験の結果

試料No.	溶解試料量 (g)	不溶解性残渣量 (g)	実質溶解量 (g)	**重量溶解率**
AND1C	0.1004	0.0407	0.0597	**0.595**
AND2C	0.1007	0.0380	0.0627	**0.623**
AND3C	0.1000	0.0409	0.0591	**0.591**

(3) 硝酸溶解試験の結果（JAEA大洗研）

U模擬燃料デブリ試料



溶解条件

① 8M 硝酸 20mLで100℃×6h加熱

② フッ酸を1滴添加

③ 再度100℃×6h加熱

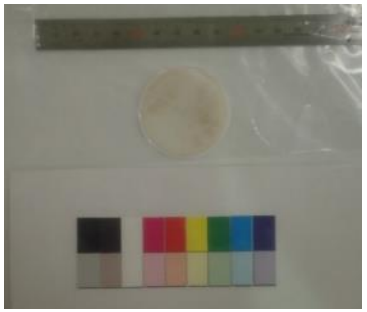
試料溶解作業の状況

試料投入後

硝酸添加後

加熱溶解後

溶解液の外観



不溶解性残渣をろ過したフィルタの外観

溶解試験の結果

試料No.	溶解試料量 (g)	不溶解性残渣量 (g)	実質溶解量 (g)	**重量溶解率**
AJO1C	0.0998	0.0057	0.0941	**0.943**
AJO2C	0.0995	0.0158	0.0837	**0.841**
AJO3C	0.0975	0.0065	0.0910	**0.934**

(4) 王水・フッ酸溶解試験の結果（NFD）

U模擬燃料デブリ試料〈セル外〉

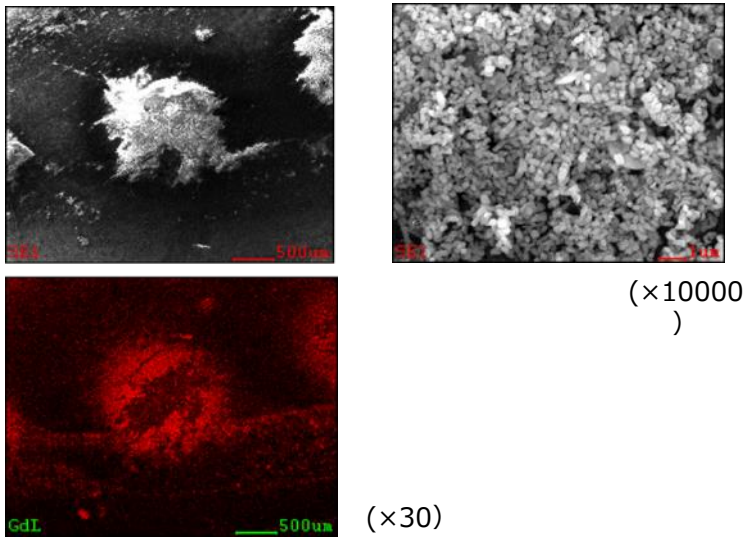
溶解条件
水 10mL, 王水 8mL, フッ酸 2mL

王水添加後
90℃加熱　1時間

フッ酸添加後
90℃加熱2時間

90℃加熱
2時間経過後
目視で溶解を確認

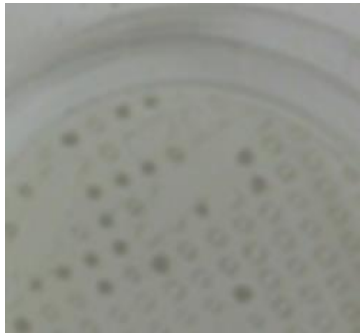
溶液外観の変化



（×10000）

（×30）

不溶解性残渣のSEM-EDS像



ろ過残渣の外観

溶解試験の結果

条　件		試料No.	溶解試料量（g）	不溶解性残渣量（g）	実質溶解量（g）	**重量溶解率**
U模擬燃料デブリ試料	セル外	20ANF0C2	0.0925	0.002	0.0905	**0.98**

(5) アルカリ融解・硝酸溶解試験の結果（JAEA原科研）

U模擬燃料デブリ試料

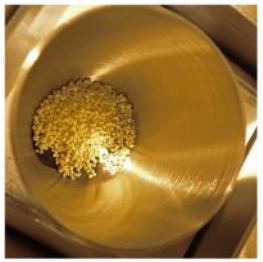
模擬デブリ粉末の硝酸溶解

乾燥させた
フィルタ上の残渣

フィルタ灰化後の残渣

硝酸溶解とフィルタ灰化

Niるつぼ内の
模擬デブリ粉末



融剤を加えた状態

融解処理後の融成物

硝酸追加

加熱溶解中

放冷後の溶解液

定容・分取後
グローブボックスへ

アルカリ溶解の概要

溶解条件

① 13M 硝酸 100mL×4h加熱
② 乾燥
③ 300℃で加熱・灰化
④ 過酸化ナトリウム添加、650℃×1h
⑤ 融成物を純水、１M硝酸で洗浄
⑥ 6M硝酸で沸騰しない程度に加熱
⑦ 13M硝酸で洗い出し

硝酸溶解～アルカリ融解の試験ステップ

溶解試験の結果

溶解条件	条　件	溶解試料量 (g)	不溶解性残渣量 (g)	実質溶解量 (g)	**重量溶解率**
①～⑦	硝酸溶解+アルカリ融解	0.1007	0	0.1007	**1.00**
④～⑦	全量アルカリ融解	0.1440	0	0.1440	**1.00**

(6) 不溶解性残渣の発生状況（まとめ）

溶解率の比較結果

重量溶解率と不溶解性残渣発生状況のまとめ（U模擬燃料デブリ試料）

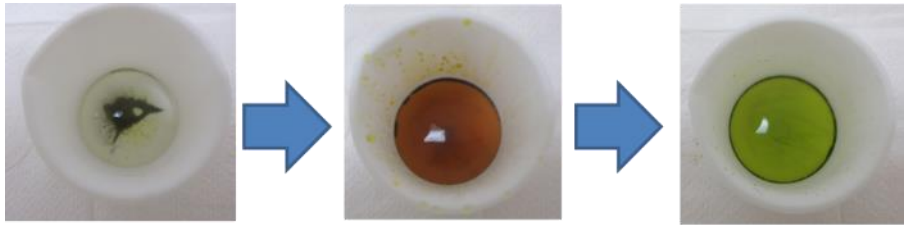
実施機関（溶解法）	試料No.	溶解試料量（g）	不溶解性残渣量（g）	実質溶解量（g）	重量溶解率		備 考
NDC（硝酸溶解法）	AND1C	0.1004	0.0407	0.0597	0.5946	**0.60**	
	AND2C	0.1007	0.0380	0.0627	0.6226		
	AND3C	0.1000	0.0409	0.0591	0.5910		
JAEA大洗研（硝酸溶解法）	AJO1C	0.0998	0.0057	0.0941	0.943	**0.91**	硝酸溶解後、1滴フッ酸を添加し再溶解を実施
	AJO2C	0.0995	0.0158	0.0837	0.841		
	AJO3C	0.0975	0.0065	0.0910	0.934		
NFD（王水・フッ酸溶解法）	20ANF0C2	0.0925	0.002	0.0905	**0.98**		溶解操作はn=1
JAEA原科研（硝酸溶解+アルカリ融解法）	AJN1C	0.1007	0	0.1007	**1.00**		〃
JAEA原科研（全量アルカリ融解法）	AJN2C	0.1440	0	0.1440	**1.00**		〃

- 硝酸溶解法では、NDCの条件（8M 硝酸沸騰中60min加熱）に比べて、JAEA大洗の条件（8M 硝酸中で100℃×6h加熱、フッ酸 1滴添加後、再度100℃×6h加熱）で高い溶解率が得られた。
- 王水-フッ酸溶解法またはアルカリ融解-硝酸溶解法では、ほぼ完全に溶解することができた。

(7) セル内外における操作の比較

王水・フッ酸溶解（NFD）

NU試料〈セル外〉



王水添加後
90℃加熱　1時間

フッ酸添加後
90℃加熱2時間

90℃加熱
2時間経過後
目視で溶解を確認

溶液外観の変化

NU試料〈セル内〉

王水添加後
90℃加熱　1時間

フッ酸添加後
90℃加熱2時間

90℃加熱
2時間経過後
目視で溶解を確認

図溶液外観の変化

溶解試験の結果

条　件		試料No.	溶解試料量 (g)	不溶解性残渣量 (g)	実質溶解量 (g)	**重量溶解率**
NU試料	セル外	20ZNF0C2	0.1035	0.0000	0.1035	**1.00**
	セル内	20ZFIC1	0.101	0.0061	0.0949	**0.94**
	〃	20ZFIC 2	0.102	0.0000	0.1020	**1.00**
U模擬燃料デブリ試料	セル外	20ANF0C2	0.0925	0.002	0.0905	**0.98**

溶解条件（共通）
水 10mL
王水 8mL
フッ酸 2mL

(7)セル内外における操作の比較

試験結果

〈セル外/U模擬燃料デブリ試料〉

- 目視では認められなかったが、吸引ろ過後のフィルタ上に不溶解性残渣が確認された。
- 不溶解性残渣は溶解成分中のGdが沈殿したフッ化ガドリニウム（GdF_3）が主成分と推定される。
  （その他にU, Cr, Fe, Niのピークを確認）

〈セル外/NU試料〉

- 吸引ろ過後のフィルタ上に不溶解性残渣は認められなかった。
- 王水-フッ酸溶解時のSiの揮発損失がないことを確認した。

〈セル内/NU試料〉

- セル内では重量溶解率が94%となり、セル外で実施したものよりわずかに低い値となった。
- セル内の天秤秤量の不確かさがセル外よりも高かったため、ろ過残渣のフィルターをセル外に持ち出して得た天秤測定値から溶解残渣量を算出した結果、不溶解性残渣は0.000gとなった。

以上のことから、セル外とセル内の操作において、溶解性の差がないことを確認できた。

3.3 分析及び不確かさ評価の結果

(1) 分析誤差、不確かさに係る事前検討

(2) 各機関の分析結果の比較

(3) 供試試料の組成と分析値の比較

(4) 元素毎の不確かさの比較

(5) 分析誤差の要因評価

(6) 結論

(1) 分析誤差、不確かさに係る事前検討

分析精度向上における精度の考え方

- 燃料デブリ分析における要求精度は、分析依頼者と実施者間が、前者のニーズと後者において達成可能な分析精度をマッチングさせて決定すべきものである。

  (例1) 回収した物質が燃料デブリであるか否かの判断 ⇒ 核物質の有無が分かればよいレベル

  (例2) 臨界管理に資するデータ ⇒ 相応の精度を有するフィッサイル濃度が必要

- 現時点においては定量的な目標値が示されていないことから、分析精度の定量的な目標値を定めた技術開発ではなく、現状の分析精度を明確にすることにより今後のニーズベースマッチングに資することが適切である。

各分析機関における分析関連の情報集約

- 本事業のポイント：共通の均質サンプルを、各機関の固有の手法を用いて元素分析を実施し、統一された「物差し」で不確かさを評価すること。
- このため、各機関の分析手法、手順、誤差に係る情報を集約し、相互比較を行った。

  ⇒ 4機関に共通している点と各機関固有の点があることを確認

  【共通点】 溶解液の化学分析に付随する不確かさ評価の方法（秤量誤差、定容操作用のフラスコの検定値、検量線の直進性等）

  【差異】 測定ｎ数の考え方（分取・溶解操作を3回実施してバッチ間の差異を確認するケース、SEM/EDSによる均質性の確認を経て1バッチで代表性があると判断するケース等）

- 4機関の間で本質的な違いはなかったが、横並びを取るなどにより、不確からしさについての議論が同一の定義、考え方でできるようにした。

(1) 分析誤差、不確かさに係る事前検討

「基準値」の定義とその評価方法に係る検討

- 本事業においては、各分析機関の分析値を評価するための「基準値」が必要であり、分析実施機関と独立した組織が、分析以外の方法で設定することが望ましい。
- 本事業の試料調製は、分析を担当しない東北大が、均質な焼結体粉末及び組成既知の原料粉末の混合、焼成により行ったことから、試料調製時の原料組成比から算出した値を「基準値」とするのが妥当である。
- その際は、酸化物のO/M比の変動、秤量誤差や調製中の粉末ロス、粒径の比較的大きい粒子の偏在等の影響も考慮する必要があるが、分析そのもので想定される偏りや誤差に対して十分小さい範囲に抑えられていると考えられる。ただし、各組成の粉末の試験器具表面への移行率（残留率）は同一とみなしたが、選択的な移行が生じた可能性も否定はできない。

各機関の分析精度の現状把握

- 各機関が得た分析値と「基準値」との比較に先立ち、各分析機関における現状の分析精度を評価した。その際、「基準値からの乖離」を、(分析値-基準値)／基準値として定義した。

(1) 分析誤差、不確かさに係る事前検討

各分析機関における不確かさ要因及び誤差値の検討結果(1/2)

作業項目	不確かさ要因	誤差値
分析供試量の測定	供試量 = 溶解フラスコ重量(試料入り)-溶解フラスコ重量(空)	タイプA：標準分銅によるばらつき タイプB：タイプB：電子天秤メモリ由来の不確かさ、直線性
溶解液量測定	溶解液量 = 溶解液フラスコ重量(溶解・定容後）-溶解フラスコ重量（空）（NFD） = 溶解液フラスコ容量（NDC）	タイプA：標準分銅によるばらつき（NFD） タイプB：電子天秤メモリ由来の不確かさ、直線性（NFD） タイプB：メスフラスコ検定料（NDC、大洗、原科研） タイプB：溶解液密度（NFD） タイプB：温度変化（℃）（NDC）
測定試料の調製（溶解液希釈）	希釈倍率（分取液重量/溶解液重量） 分取液重量 = メスフラスコ重量(分取後）-メスフラスコ重量(空)	タイプA：標準分銅によるばらつき（NFD） タイプB：電子天秤メモリ由来の不確かさ、直線性（NFD） タイプB：溶解液密度（NFD） タイプB：メスフラスコ検定値（体積許容誤差）（NDC、大洗、原科研） タイプB：室温変化（℃）（NDC）
不溶解残渣の測定	不溶解残渣量 = 不溶解残渣重量(ろ紙）-ろ紙重量	タイプA：標準分銅によるばらつき タイプB：電子天秤メモリ由来の不確かさ、直線性
標準液の調製	標準液濃度 = 溶解液重量×希釈倍率/標準液密度 溶解液量 = 溶解液フラスコ重量(溶解・定容後）-溶解フラスコ重量（空） 希釈倍率（分取液重量/溶解液重量） 分取液重量 = メスフラスコ重量(分取後）-メスフラスコ重量(空)	タイプA：標準分銅によるばらつき（NFD） タイプB：電子天秤メモリ由来の不確かさ、直線性（NFD） タイプB：溶解液密度（NFD） タイプB：メスフラスコ検定値（体積許容誤差）（NDC、大洗、原科研） タイプB：室温変化（℃）（NDC） タイプＢ：検定書（各標準液）（原科研は最大誤差の標準液）

※ タイプA：繰り返し同じ操作を行った際のばらつき、タイプB：測定器の許容誤差に起因する不確かさ

(1) 分析誤差、不確かさに係る事前検討

各分析機関における不確かさ要因及び誤差値の検討結果(2/2)

作業項目	不確かさ要因	誤差値
検量線用標準液の調製（標準液の希釈）	検量線用標準液濃度 ＝ 標準液濃度×希釈倍率（分取液重量/溶解液重量）	タイプA：標準分銅によるばらつき（NFD） タイプB：タイプB：電子天秤メモリ由来の不確かさ、直線性(NFD) タイプB：溶解液密度（NFD） タイプB：メスフラスコ検定値（体積許容誤差）（NDC、大洗、原科研）） タイプB：室温変化（℃）（NDC、大洗）
検量線の作成	標準液信号（高） 標準液信号（低）	タイプA：内標準添加量 タイプA：信号強度 タイプA：繰り返し誤差
測定試料の元素濃度測定（ICP-MS/ICP-AES）	測定試料中元素濃度	検量線から求めた濃度誤差 検量線の縦軸のばらつきの標準偏差 検量線の傾き 検量線の切片 検量線用標準液の測定回数 試料の測定回数（繰り返し数）（原科研） 測定試料の測定地 検量線用標準液の各測定値 検量線用標準液の測定値の平均値 検量線用標準液の各濃度 検量線用標準液の濃度の平均値

※ タイプA：繰り返し同じ操作を行った際のばらつき、タイプB：測定器の許容誤差に起因する不確かさ

(1) 分析誤差、不確かさに係る事前検討

分析データの評価において整理・共有しておくべき事項

均質サンプルを用いた分析精度の検討

項目
[a-1]　装置校正・定量分析における標準試料の選択方針・条件
[a-2]　装置校正の方法
[a-4]　トレーサビリティ
[a-5]　検出限界や閾値設定の考え方
[a-6]　特異なデータや異常値の検出・除外方法
[a-7]　「溶解率」の定義
[a-8]　測定n数（試料の取回し）の設定の考え方
[a-9]　誤差要因の設定方法
[a-10]　誤差評価方法の標準化の可能性
[a-11]　包含係数の設定
[a-12]　不溶解性残渣の評価値への反映の考え方
[a-13]　有効数字の考え方

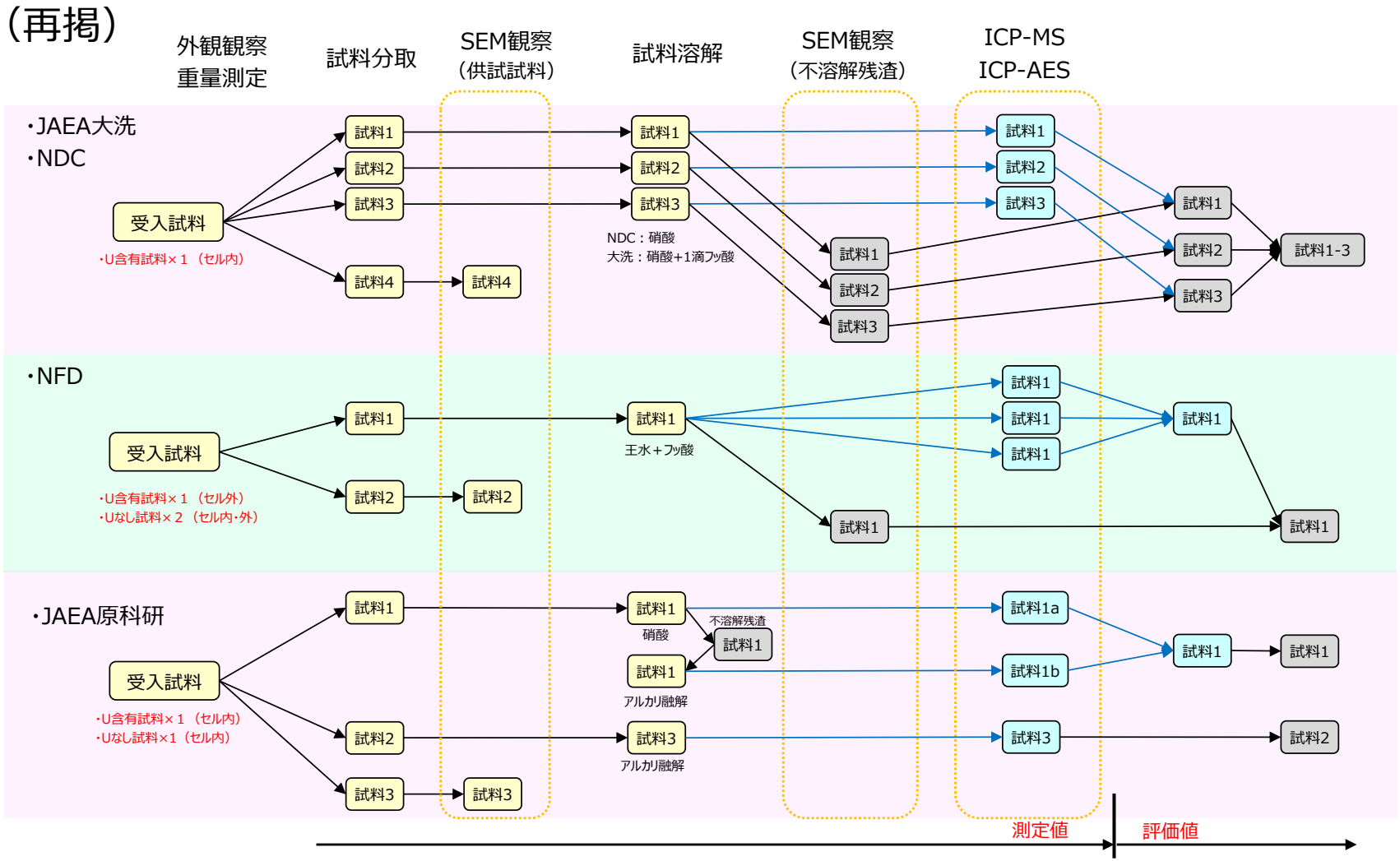
多元素・非均質な燃料デブリを対象とする場合の改良点

項目
[b-1]　妨害元素の影響を考慮した分析フローの設定方法
[b-2]　検量線から外れる測定値の考え方
[b-3]　データ品質の確保に必要な手順、考え方（分析QA）

各分析機関で共通認識が図られている考え方と、分析機関ごとに異なる考え方を区別して整理した。

(2) 各機関の分析結果の比較

（再掲）



各分析機関の試料採取、測定値及び評価値の関係

(2) 各機関の分析結果の比較

溶解率の比較結果（再掲）

重量溶解率と不溶解性残渣発生状況のまとめ（U模擬燃料デブリ試料）

実施機関（溶解法）	試料No.	溶解試料量（g）	不溶解性残渣量（g）	実質溶解量（g）	重量溶解率		備 考
NDC（硝酸溶解法）	AND1C	0.1004	0.0407	0.0597	0.5946	0.60	
	AND2C	0.1007	0.0380	0.0627	0.6226		
	AND3C	0.1000	0.0409	0.0591	0.5910		
JAEA大洗研（硝酸溶解法）	AJO1C	0.0998	0.0057	0.0941	0.943	0.91	硝酸溶解後、1滴フッ酸を添加し再溶解を実施
	AJO2C	0.0995	0.0158	0.0837	0.841		
	AJO3C	0.0975	0.0065	0.0910	0.934		
NFD（王水・フッ酸溶解法）	20ANF0C2	0.0925	0.002	0.0905	0.98		溶解操作はn=1
JAEA原科研（硝酸溶解+アルカリ融解法）	AJN1C	0.1007	0	0.1007	1.00		〃
JAEA原科研（全量アルカリ融解法）	AJN2C	0.1440	0	0.1440	1.00		〃

- 硝酸溶解法では、NDCの条件（沸騰硝酸中60min加熱）に比べて、大洗研の条件（8M 硝酸中で100℃×6h加熱、フッ酸 1滴添加後、再度100℃×6h加熱）で高い溶解率が得られた。
- 王水-フッ酸溶解法またはアルカリ融解-硝酸溶解法では、ほぼ完全に溶解することができた。

(2) 各機関の分析結果の比較

硝酸溶解時の不溶解性残渣（NDC, JAEA大洗研）

- SEM-X線分析の結果から以下のように推定された。
  - Fe, CrおよびNiが共存している不溶解性残渣は、その元素比（Fe:Cr:Ni＝72:19:9）よりステンレス（SUS304相当）と推定された。
  - 溶解前に認められたFe単体の成分は大部分が溶解した（FeBの溶解によるものと推定された）。
  - Zr, GdおよびUが共存した残渣物は、溶解前試料中の2種類のZr-Gd-U酸化物のうち、硝酸易溶性のUリッチな立方晶系が溶解することにより難溶性の正方晶系が残ったものと推定された。
  - Siは、硝酸溶解を経ても試料中の濃度が減少せずイオン成分への移行も少ないことから、SiO_2と推定された。

王水・フッ酸溶解時の不溶解性残渣（NFD）

- SEM/EDSの結果から以下のように推定された。
  - 元素マッピング結果 ⇒ Gdが主成分であった。
  - SEM測定（10000倍）の結果 ⇒ 1μm以下の粒子状の集合体。
  - EDS（10000倍）による半定量結果 ⇒ 70%以上がGd。その他にU, Cr, Fe, Niが確認された。
- 不溶解性残渣は、王水、フッ酸によって溶解した成分の中から主にGdが沈殿することで生じたものと推察。成分としては未確認であるが、フッ酸により希土類がフッ化物として沈殿しやすいことから、フッ化ガドリニウム（GdF_3）が主成分と推定された。

(2) 各機関の分析結果の比較

溶解液の分析値（U模擬燃料デブリ試料）

元素名	含有量（mg/100mg）					
	東北大	NDC	JAEA大洗研	NFD	JAEA原科研	
	【基準値】	硝酸溶解	硝酸溶解	王水・フッ酸溶解	硝酸溶解＋残渣アルカリ融解	全量アルカリ融解
U	20.5 ±0.1	17 ±0.4	21 ±0.3	17.3 ±0.22	16.5 ±0.8	17.3 ±2.0
Gd	1.7	1.1 ±0.1	1.5 ±0.01	<0.3	1.56 ±0.11	1.59 ±0.08
Zr	10.8	3.7 ±0.1	9.7 ±0.6	11.2 ±1.09	8.48 ±0.71	10.2 ±0.5
B	4.9	5.6 ±0.5	4.7 ±0.1	4.3 ±0.25	4.63 ±0.50	4.44 ±0.20
Fe	39.0	21 ±3.1	34 ±2.1	34.7 ±0.40	33.8 ±1.6	35.6 ±1.6
Cr	3.7	0.04 ±0.02	2.7 ±0.03	3.5 ±0.15	2.75 ±0.10	3.57 ±0.15
Ni	2.2	0.03 ±0.01	1.5 ±0.2	2.0 ±0.14	180 ±10	31.0 ±1.4
Si	4.9	0.2 ±0.2	1.6 ±2.1	5.4 ±0.37	3.40 ±0.17	3.22 ±0.16
O	12.2 ±0.1	-	-	-	-	-
不溶解性残渣	-	あり（溶解率60%）	あり（溶解率91%）	あり（溶解率98%）	なし	なし

繰返し数	東北大	NDC	JAEA大洗研	NFD	JAEA原科研	
溶解	-	3回	3回	1回	1回	←
分取・希釈	-	1回	1回	3回	1回	←
測定	-	複数回	3回	複数回	3回	←

(2) 各機関の分析結果の比較

*残渣成分のEDS半定量値を加えた評価値

不溶解性残渣成分を合算*した評価値（U模擬燃料デブリ試料）

元素名	含有量（mg/100mg）					
	東北大	NDC	JAEA大洗研	NFD	JAEA原科研	
	【基準値】	硝酸溶解	硝酸溶解	王水・フッ酸溶解	硝酸溶解＋残渣アルカリ融解	全量アルカリ融解
U	20.5 ±0.1	20.0 ±0.6	21.9 ±1.0	17.5 ±0.2	16.5 ±0.8	17.3 ±2.0
Gd	1.7	1.3 ±0.2	1.9 ±0.1	1.5 ±0.2	1.56 ±0.11	1.59 ±0.08
Zr	10.8	11 ±1.4	12 ±1.7	11.3 ±1.1	8.48 ±0.71	10.2 ±0.5
B	4.9	5.6 ±0.5	4.7 ±0.2	4.3 ±0.2	4.63 ±0.50	4.44 ±0.20
Fe	39.0	22.0 ±4.8	34.6 ±3.9	34.7 ±0.4	33.8 ±1.6	35.6 ±1.6
Cr	3.7	0.7 ±0.9	2.8 ±0.6	3.5 ±0.1	2.75 ±0.10	3.57 ±0.15
Ni	2.2	0.3 ±0.4	1.6 ±0.3	2.0 ±0.1	180 ±10	31.0 ±1.4
Si	4.9	12.0 ±2.4	3.6 ±4.5	5.4 ±0.4	3.40 ±0.17	3.22 ±0.16
O	12.2 ±0.1	-	-	-	-	-
不溶解性残渣	-	あり（溶解率60%）	あり（溶解率91%）	あり（溶解率98%）	なし	なし

注）不溶解性残渣が生じた場合は、溶解成分に残渣成分のEDS半定量値を加えた評価値を示す。

繰返し数	東北大	NDC	JAEA大洗研	NFD	JAEA原科研	
溶解	-	3回	3回	1回	1回	←
分取・希釈	-	1回	1回	3回	1回	←
測定	-	複数回	3回	複数回	3回	←

(2) 各機関の分析結果の比較

溶解液の分析値（NU試料）

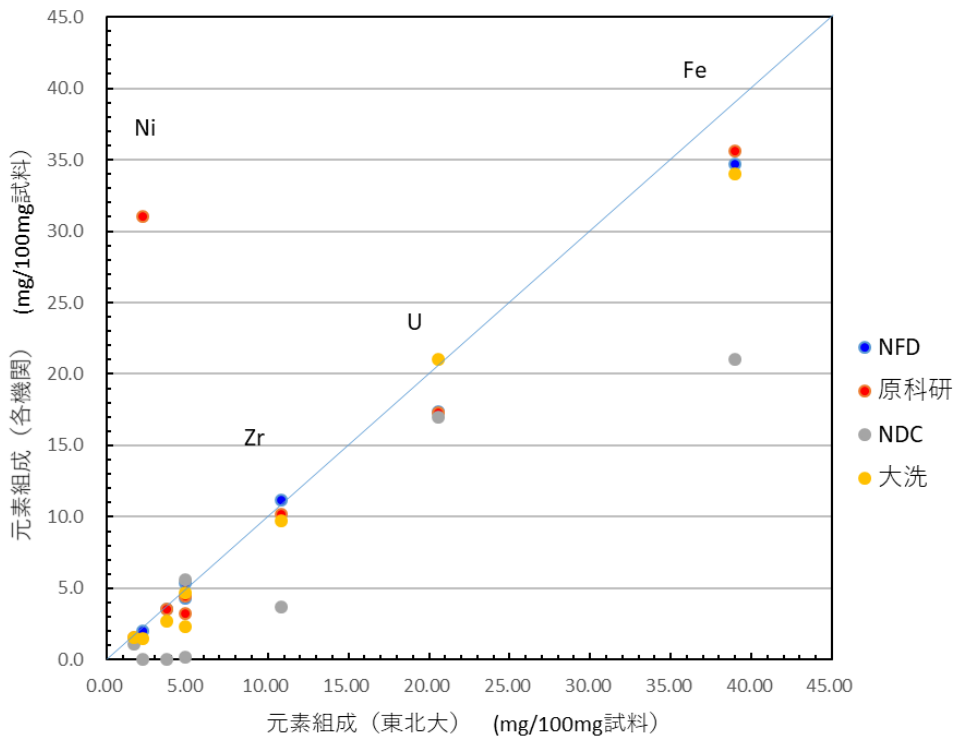
元素名	含有量（mg/100mg）					
	東北大	NFD			JAEA原科研	
	【基準値】	セル外(溶解液)	セル内1(溶解液)	セル内2(溶解液)	硝酸溶解＋残渣アルカリ融解	全量アルカリ融解
B	8.1	8.1 ±0.2	6.1 ±0.1	7.8 ±0.2	7.89 ±0.51	7.49 ±0.45
Fe	64.9	59.7 ±2.8	48.6 ±1.2	62.0 ±1.5	63.5 ±4.1	63.5 ±4.2
Cr	6.2	6.1 ±0.2	5.0 ±0.2	6.5 ±0.2	5.27 ±0.33	5.77 ±0.35
Ni	3.7	3.6 ±0.1	2.9 ±0.2	3.7 ±0.1	77.6 ±4.8	66.5 ±4.3
Si	8.1	8.7 ± 0.3	6.1 ±0.3	8.2 ± 0.2	5.75 ±0.41	6.54 ±0.39
O	8.9	-	-		-	-
不溶解性残渣	-	なし	あり	なし	なし	なし

繰返し数	東北大	NFD			JAEA原科研	
溶解	-	1回	1回	-	1回	←
分取・希釈	-	3回	3回	-	1回	←
測定	-	複数回	複数回	-	3回	←

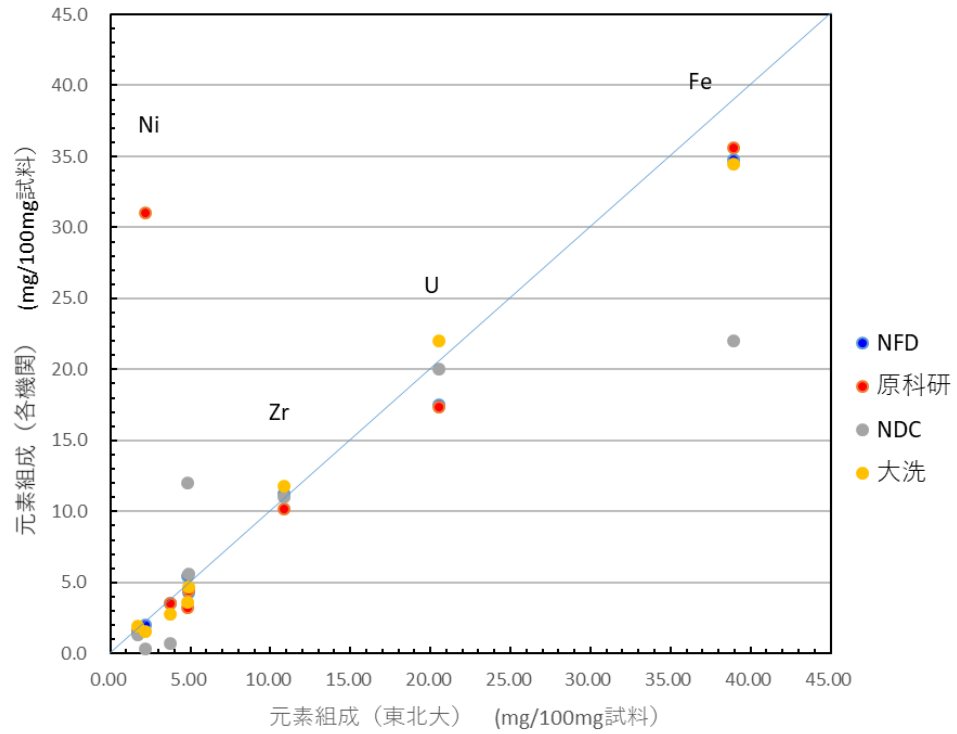
注）セル内①は一回目の結果、セル内②は操作手順の見直し後の結果を示す。

(3) 供試試料の組成と分析値の比較（高濃度側）

- 高濃度側のFe, Uは、分析機関側の評価データが低めの傾向がある。
- Zrには同様の傾向はみられない。
- U-Gd-Zrは固溶体を形成していることから、試料調製時と比べて共通的に低めに出る原因は現時点で特定できない。
- アルカリ融解では、使用するるつぼ材質（Ni）の溶け出しによる影響があり、Niの評価ができない。



元素組成（溶解液中）の比較（0～45mg/100mg範囲）

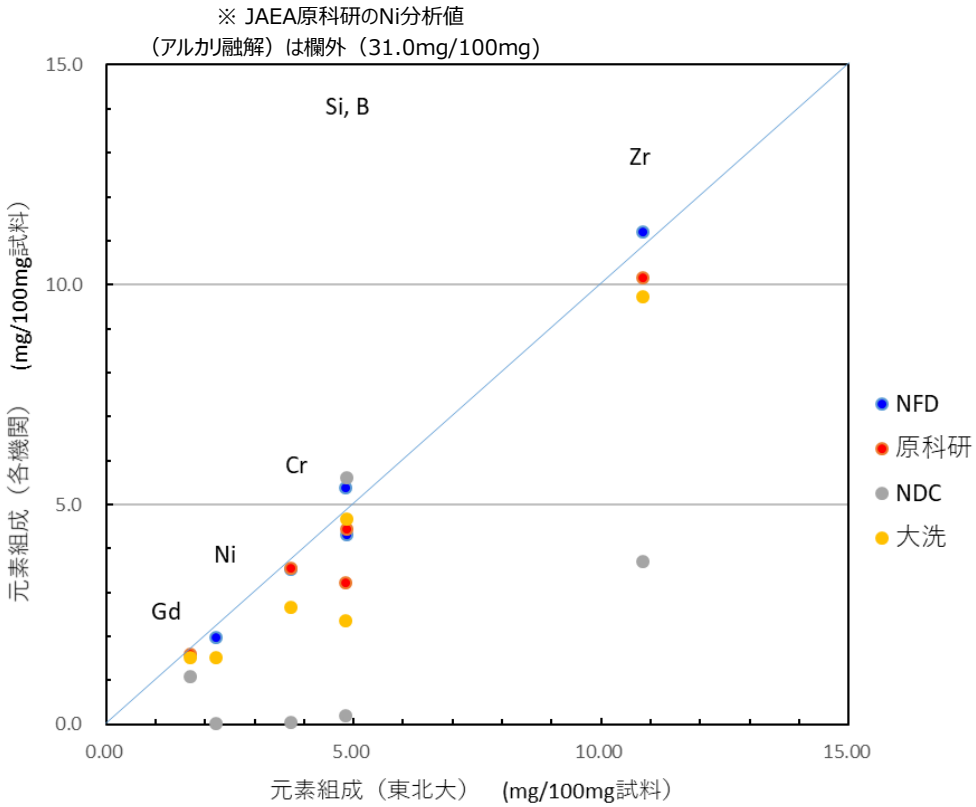


元素組成（最終評価値）の比較（0～45mg/100mg範囲）

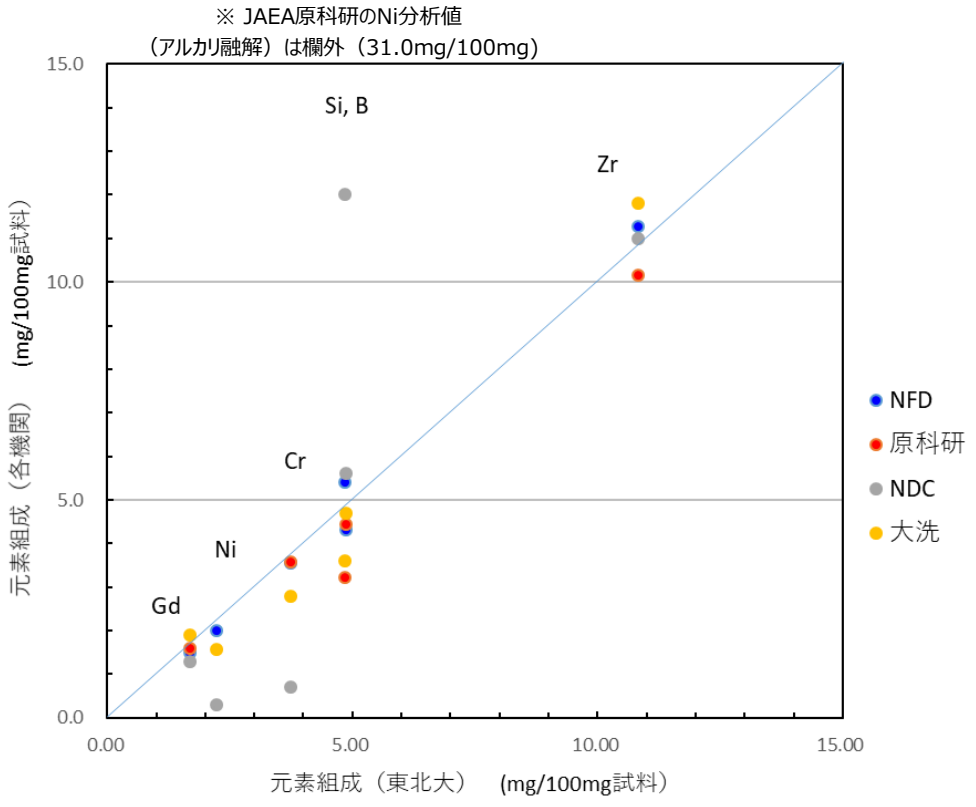
U模擬燃料デブリ試料の組成と分析値の比較（0～45mg/100mg）

(3) 供試試料の組成と分析値の比較（低濃度側）

- 硝酸に溶けにくいZr, Si, SUS成分（Cr, Ni）は、溶解液からの組成評価は困難。
- ただし、硝酸にフッ酸を添加したケースでは、溶解率が上がる効果がみられている。
- 不溶解性残渣が多いほど、SEMによる半定量結果の影響を受ける。特にSi, Bはその影響が大きい。
- 王水+フッ酸では、Gdの定量値が得られなかった（フッ化物の影響と推測）。



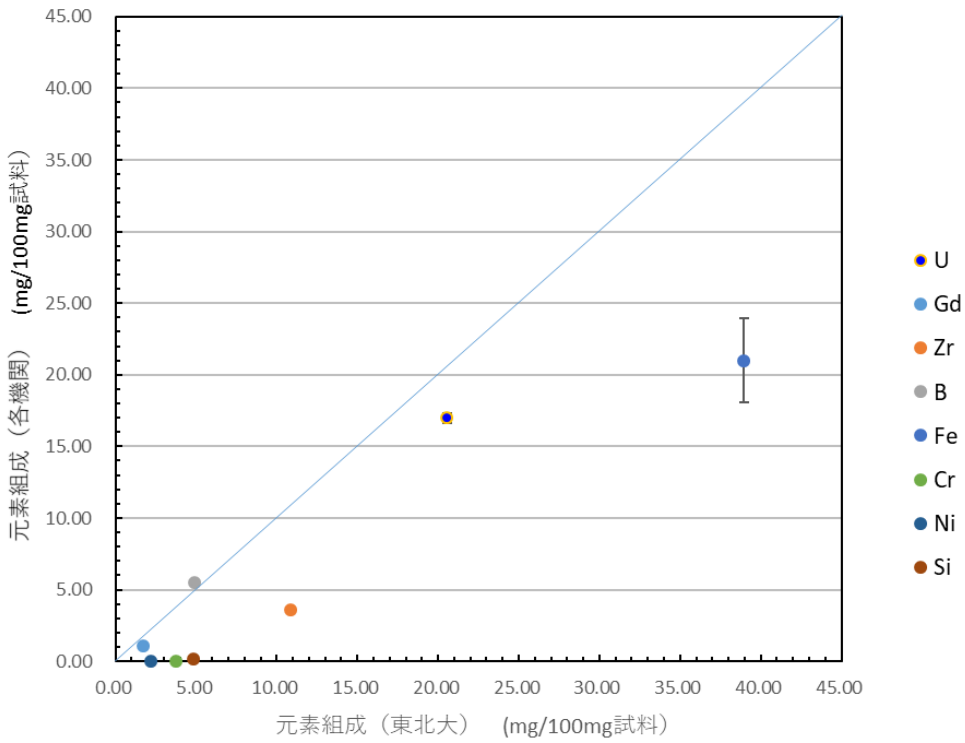
元素組成（溶解液中）の比較（0～15mg/100mg範囲）



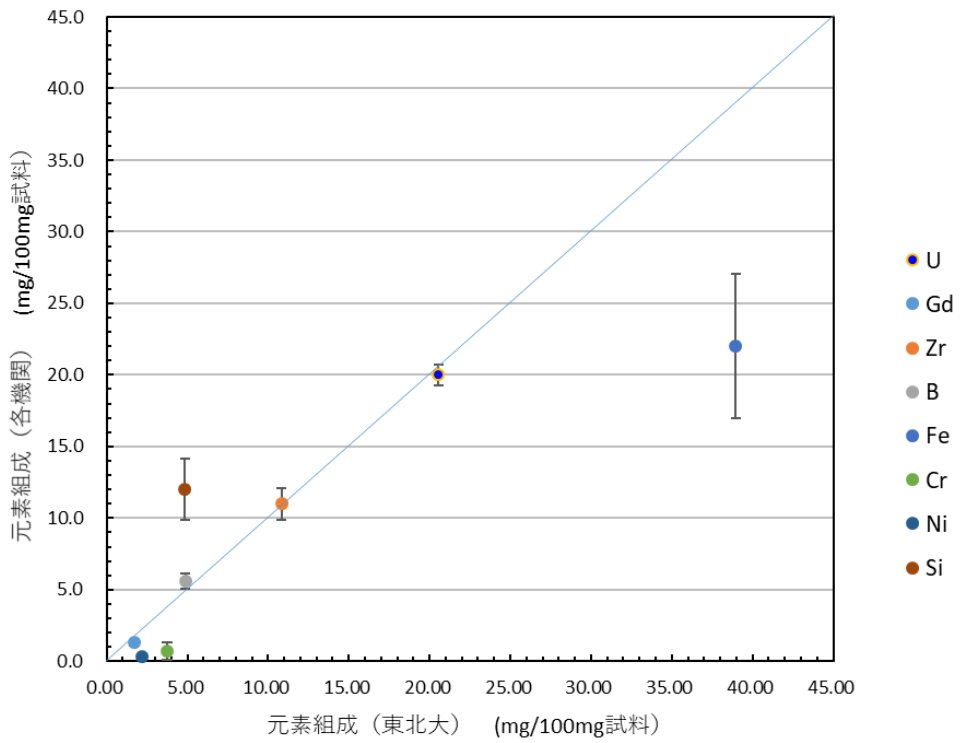
元素組成（最終評価値）の比較（0～15mg/100mg範囲）

U模擬燃料デブリ試料の組成と分析値の比較（0～15 mg/100mg）

(3) 供試試料の組成と分析(評価)値の比較（NDC）



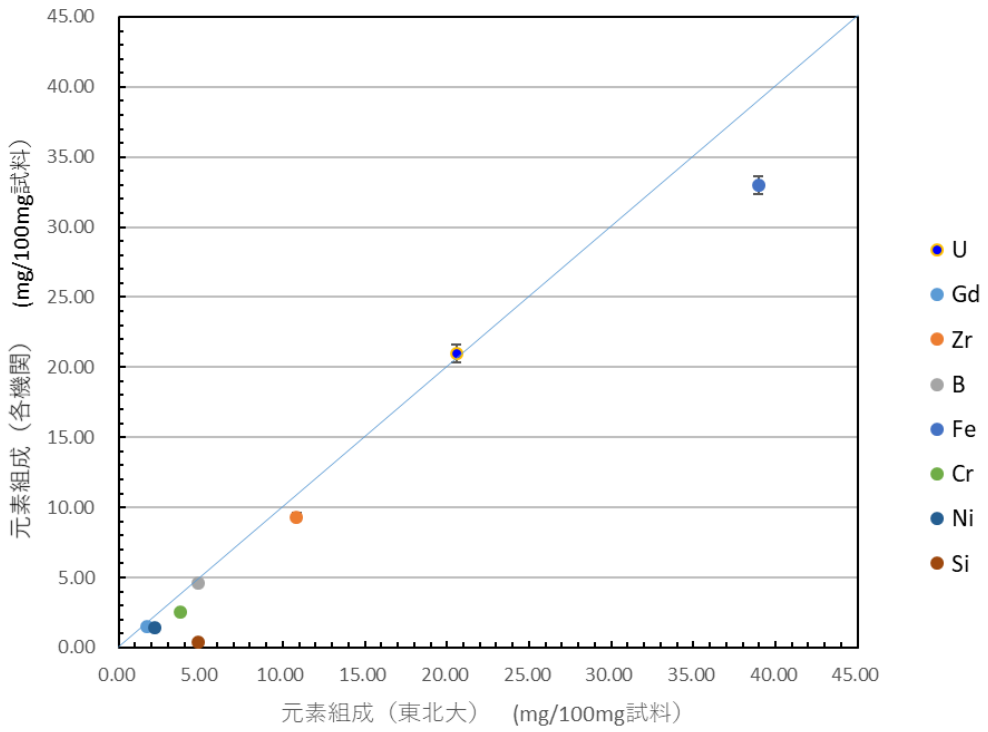
元素組成（溶解液1中）の比較（0～45mg/100mg範囲）



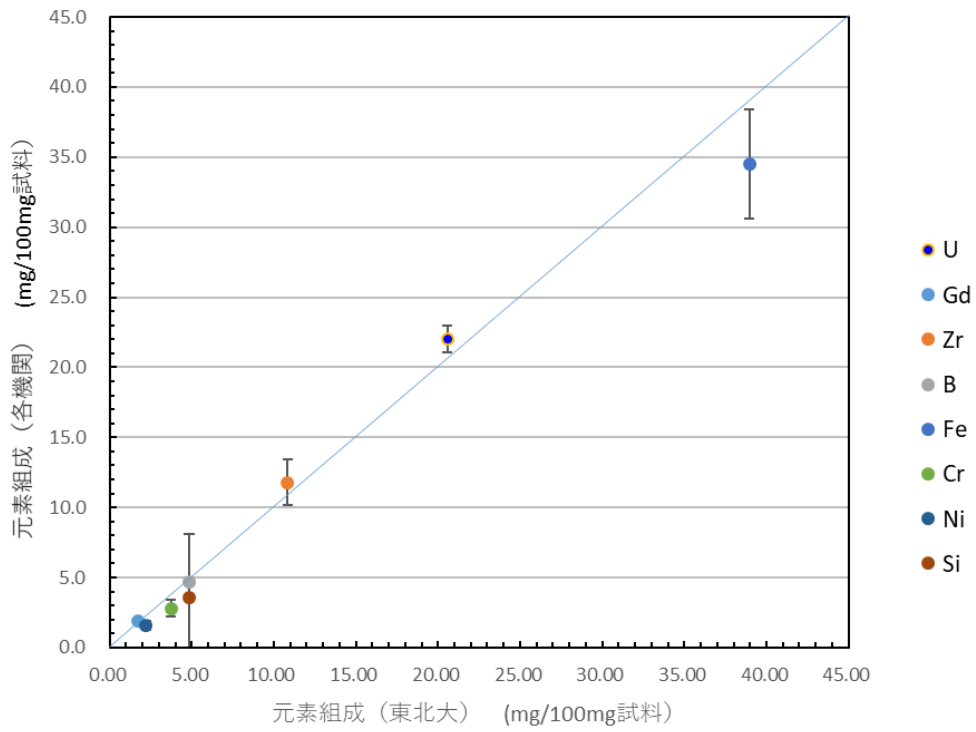
元素組成（最終評価値）の比較（0～45mg/100mg範囲）

U模擬燃料デブリ試料の組成と分析値の比較（NDC）

(3) 供試試料の組成と分析(評価)値の比較（JAEA大洗）



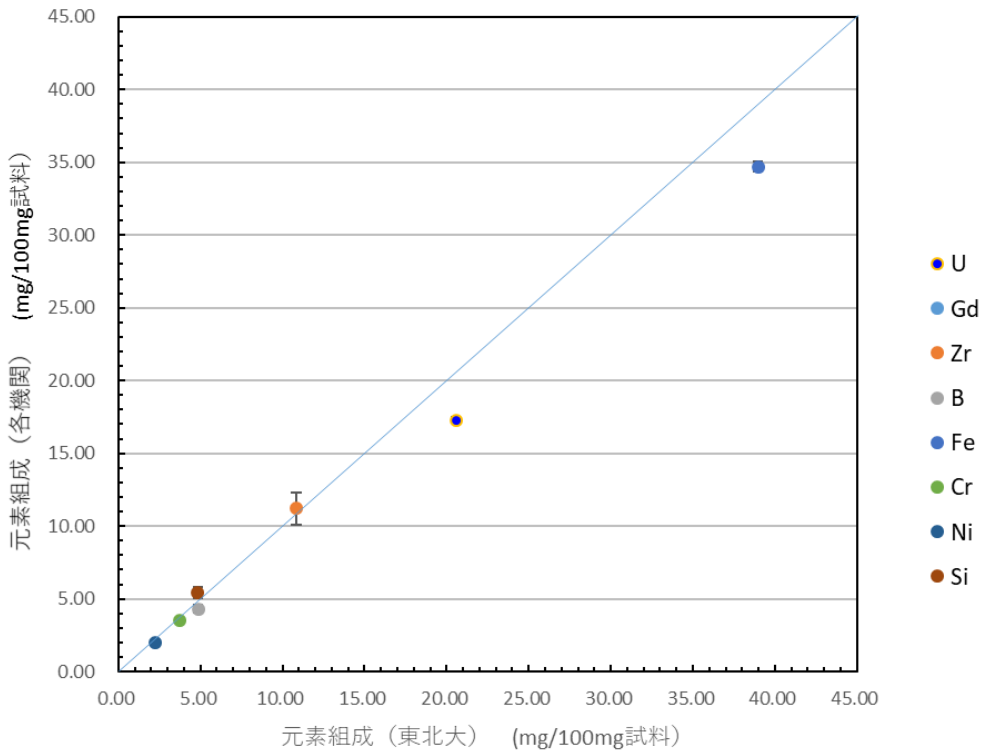
元素組成（溶解液1中）の比較（0～45mg/100mg範囲）



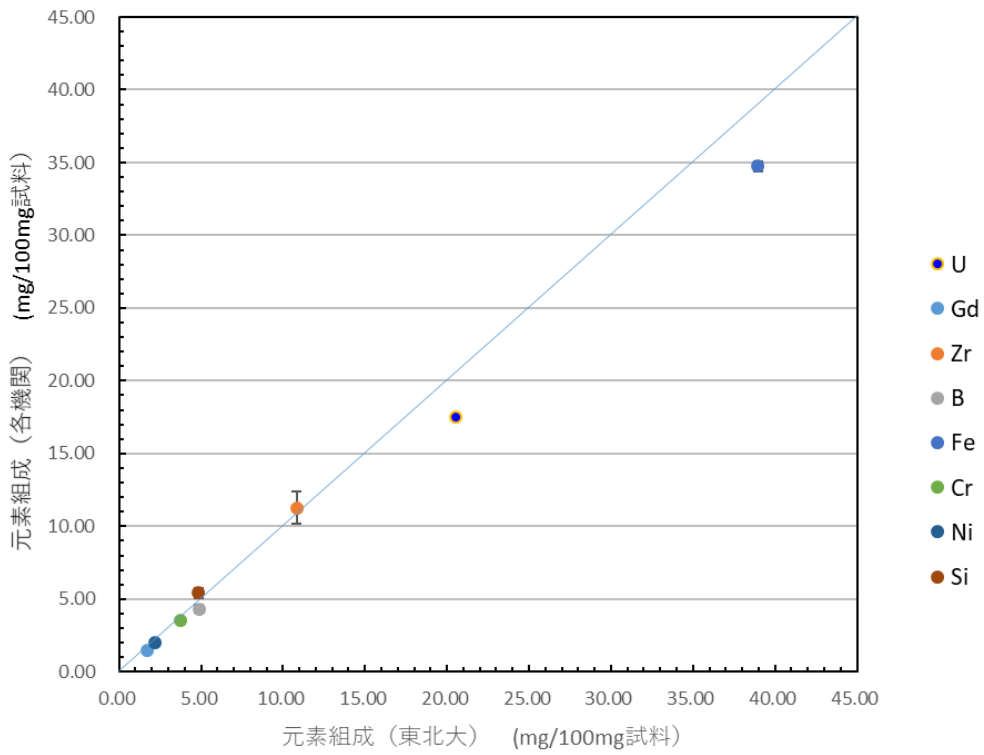
元素組成（最終評価値）の比較（0～45mg/100mg範囲）

U模擬燃料デブリ試料の組成と分析値の比較（JAEA大洗）

(3) 供試試料の組成と分析値の比較（NFD）



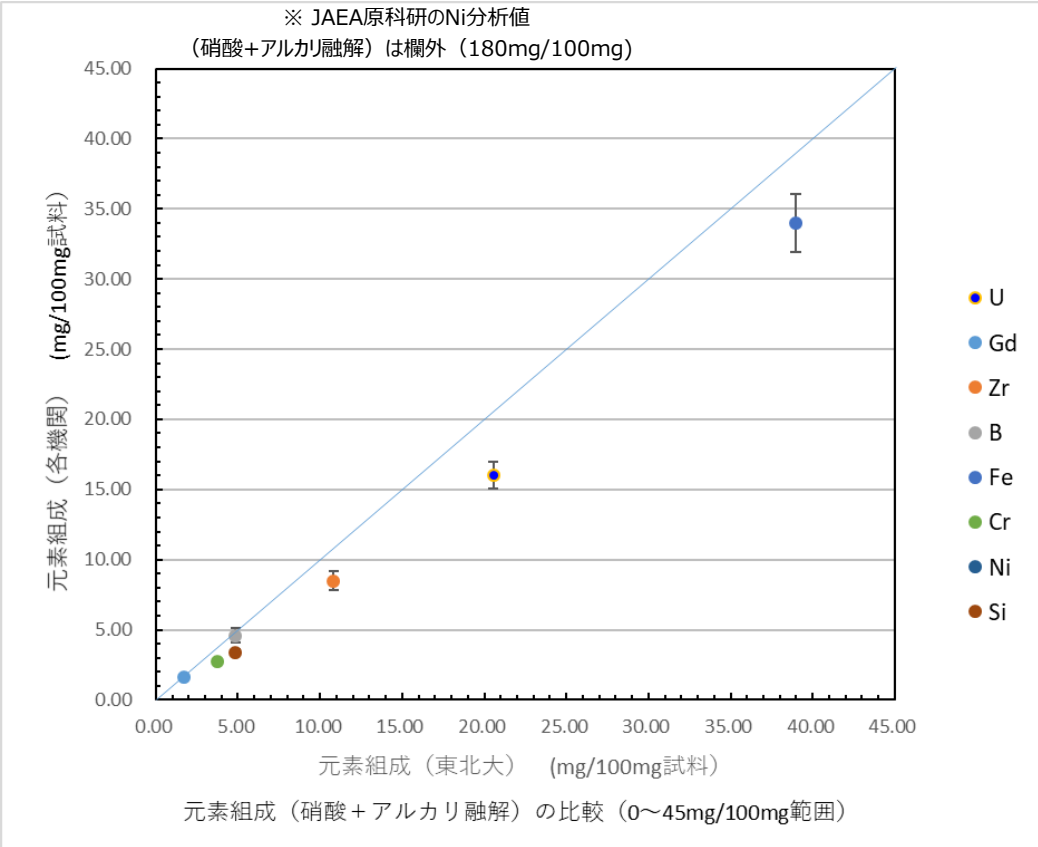
元素組成（溶解液中）の比較（0～45mg/100mg範囲）



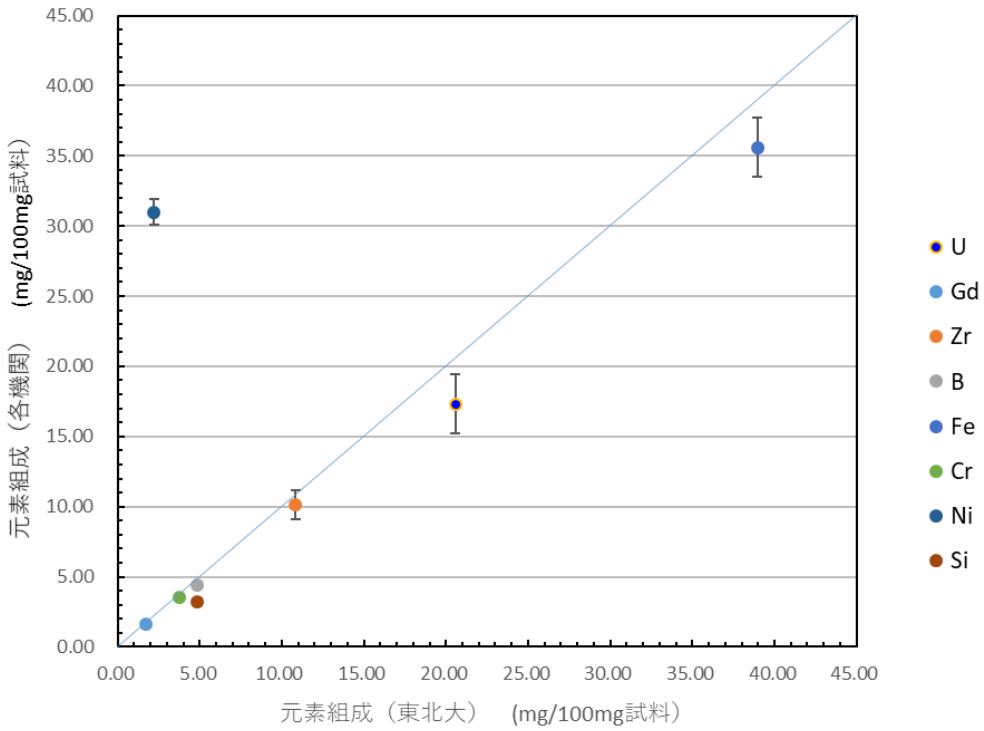
元素組成（最終評価値）の比較（0～45mg/100mg範囲）

U模擬燃料デブリ試料の組成と分析値の比較（NFD）

(3) 供試試料の組成と分析値の比較（JAEA原科研）



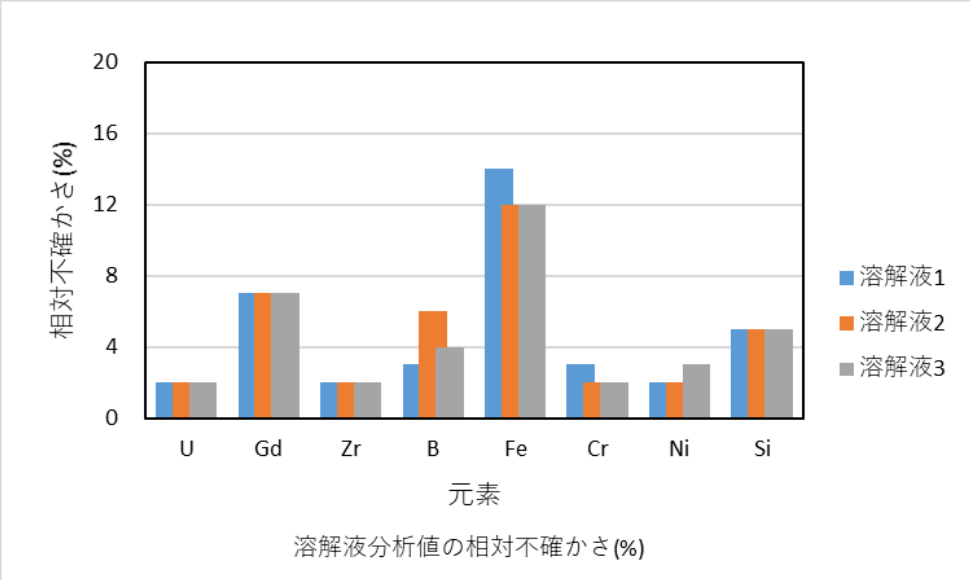
元素組成（硝酸＋アルカリ融解）の比較（0～45mg/100mg範囲）

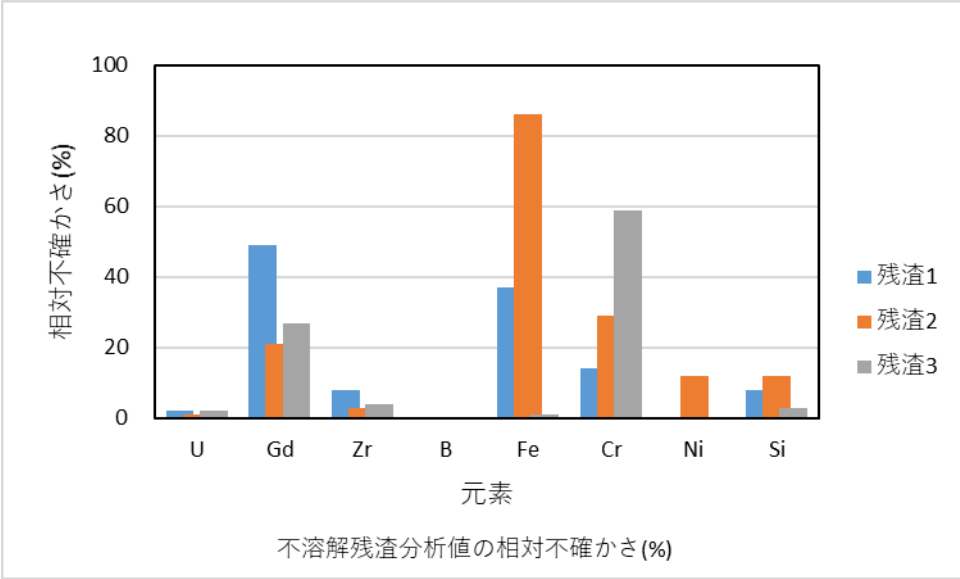


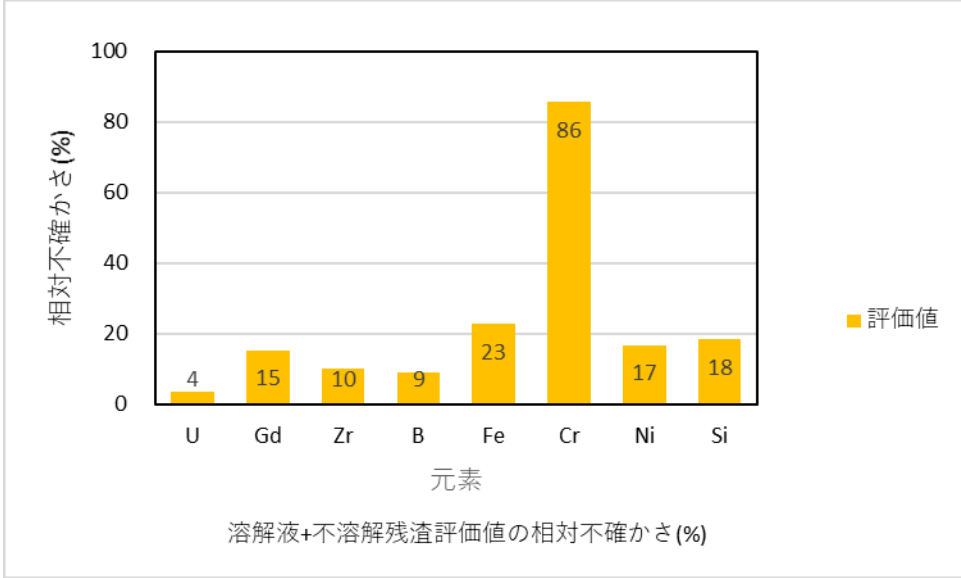
元素組成（アルカリ融解）の比較（0～45mg/100mg範囲）

U模擬燃料デブリ試料の組成と分析値の比較（JAEA原科研）

(4) 元素毎の不確かさの比較（NDC）

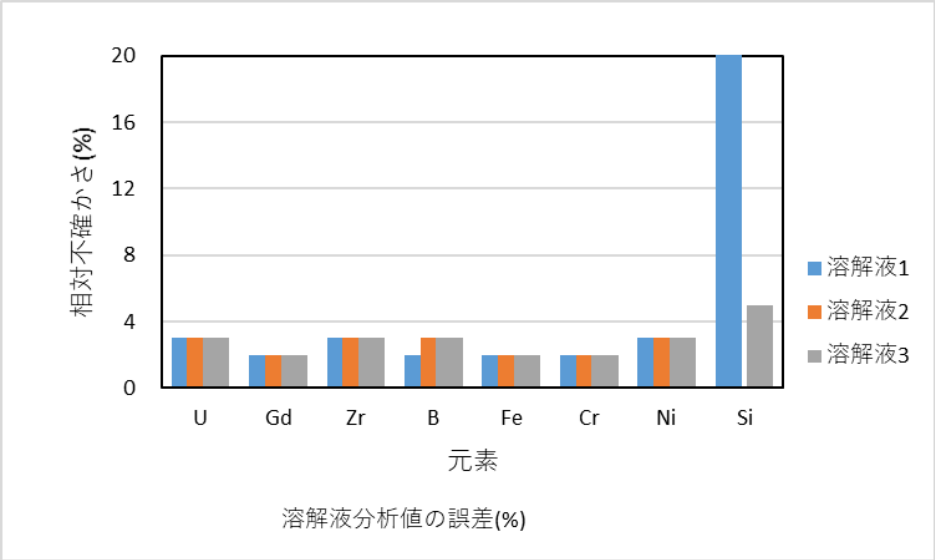


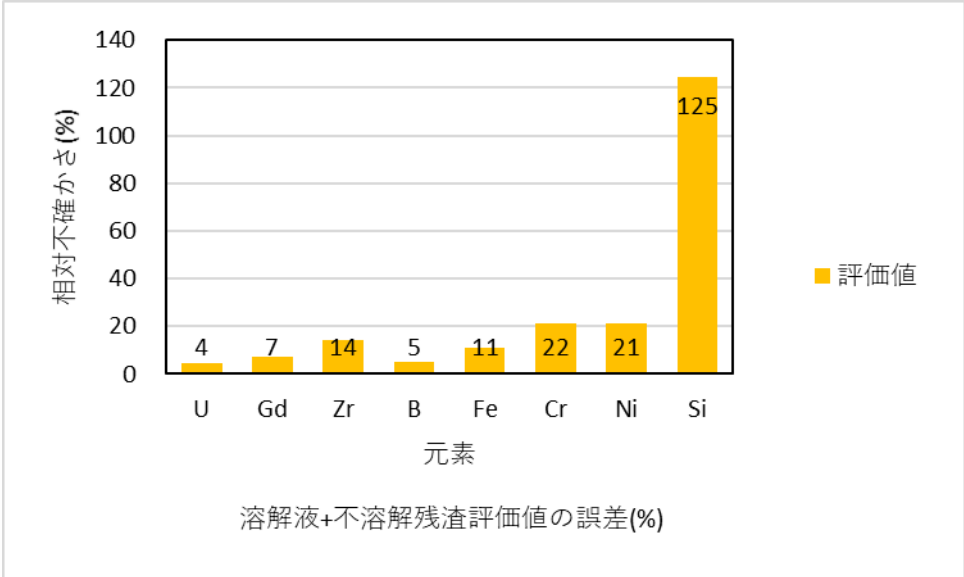


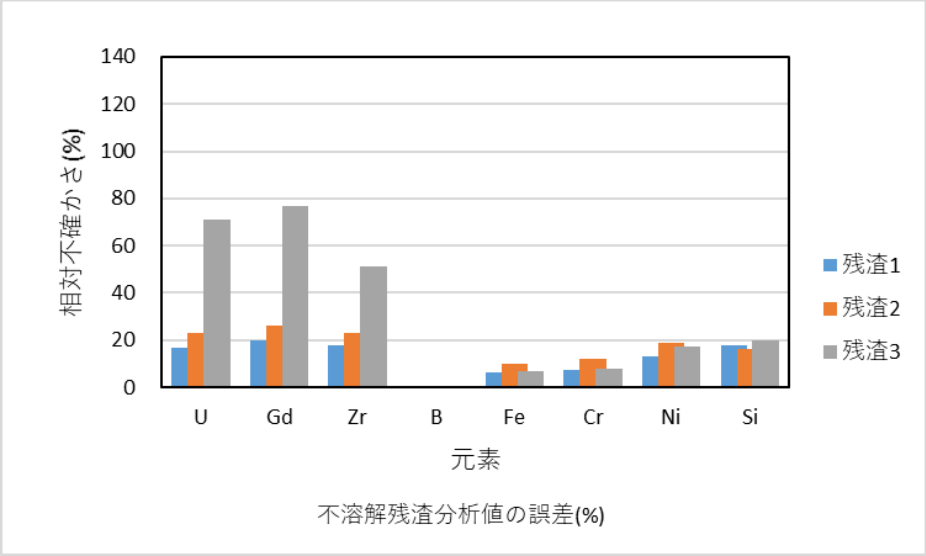


元素毎の相対不確かさの比較（NDC）

(4) 元素毎の不確かさの比較（JAEA大洗）

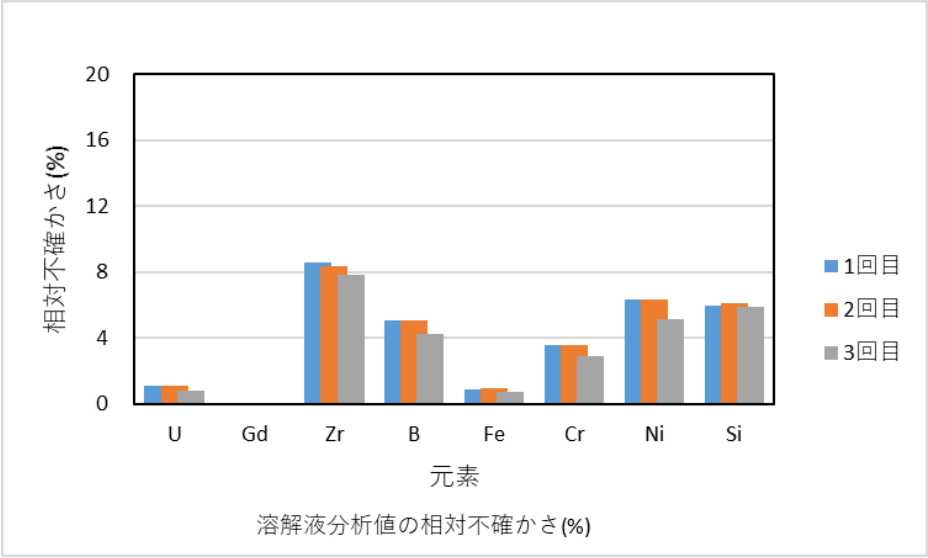


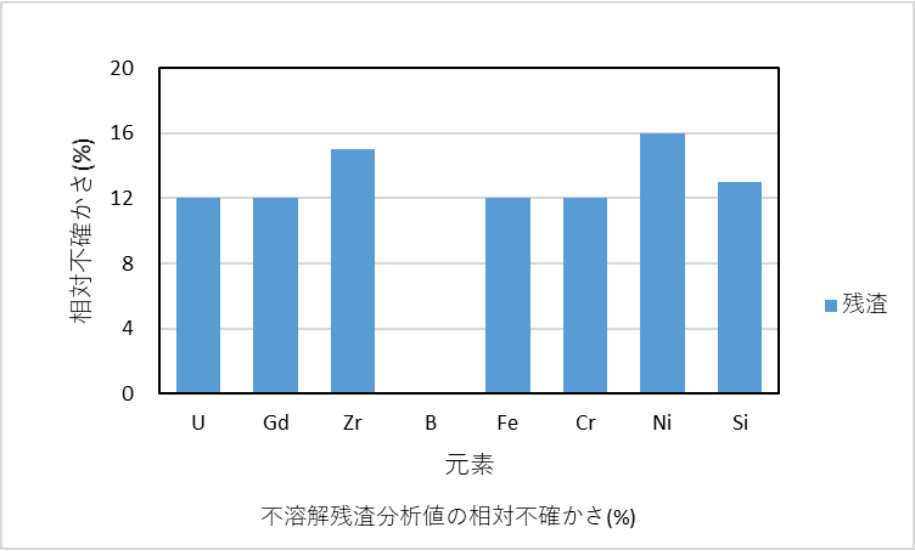


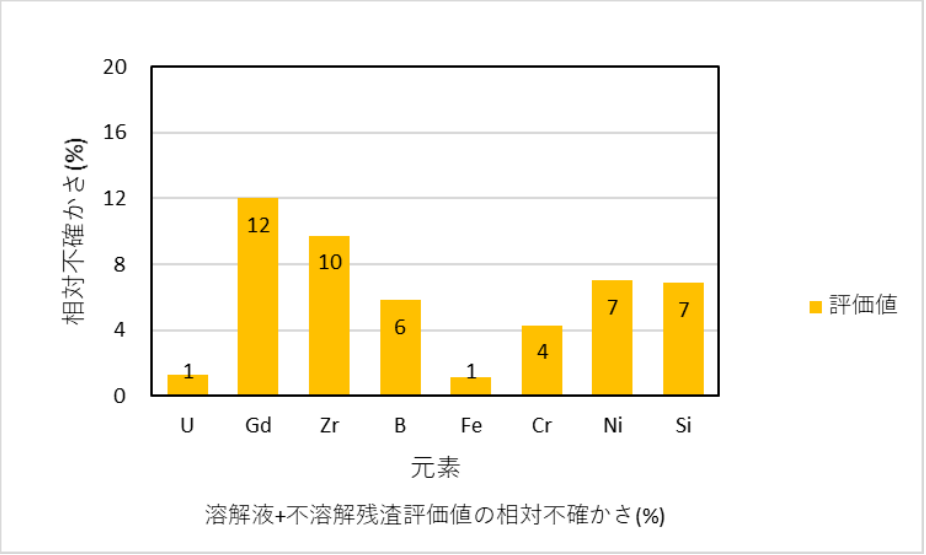


元素毎の相対不確かさの比較（JAEA大洗）

(4) 元素毎の不確かさの比較（NFD）

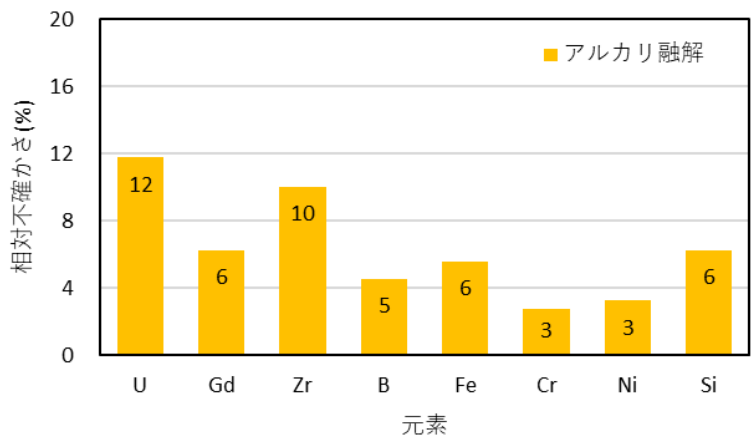




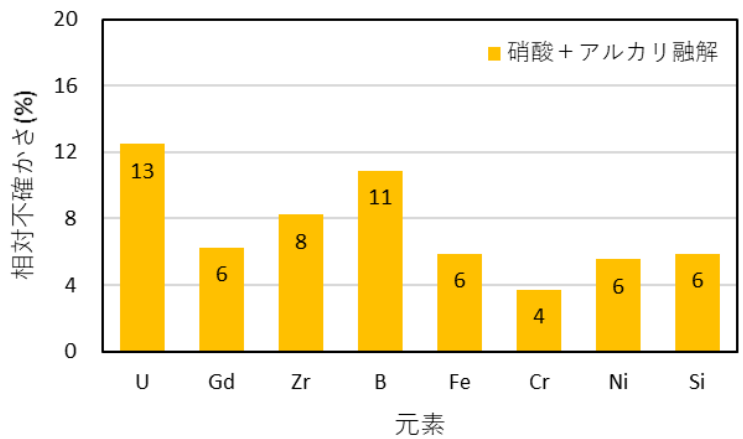


元素毎の相対不確かさの比較（NFD）

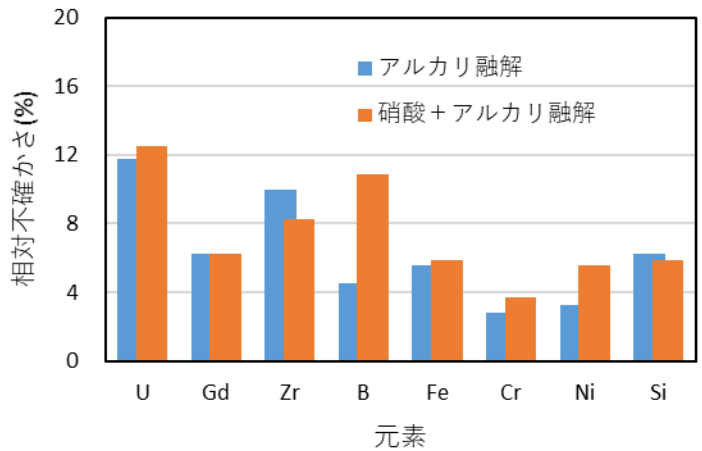
(4) 元素毎の不確かさの比較（JAEA原科研）



溶解液分析値の相対不確かさ(%)



不溶解残渣分析値の相対不確かさ(%)



溶解液+不溶解残渣評価値の相対不確かさ(%)

元素毎の相対不確かさの比較（原科研）

(5) 分析誤差の要因評価

結果のまとめ

外観観察

- 試料外観の有意な差異、特定物質の偏在は観察されず、マクロ的には均一であったと考えられる。

重量測定

- ホットセル内での重量測定について予備評価を実施し、重量測定（mg）の整数値が有効数字として使用できることを確認した。

溶液の希釈操作

- 分注機及び全量フラスコを用いた希釈操作の繰返し誤差から不確かさを評価した。
- 得られた不確かさは、SEM-X線分析及び化学分析試料間の差異による不確かさよりも小さな値を示した。

搬出した溶解液の化学分析

- 取得した化学分析結果に対して元素間の相関性を求めたが、Cr-Fe-Niのように溶解液に移行しにくい元素については不確かさが大きくなり、元素間の組成比は模擬燃料デブリ試料の組成と必ずしも一致しなかった。

(5) 分析誤差の要因評価

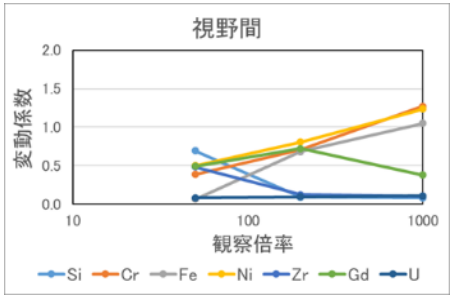
結果のまとめ

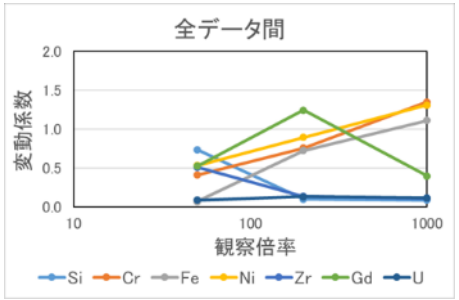
SEM-X線分析

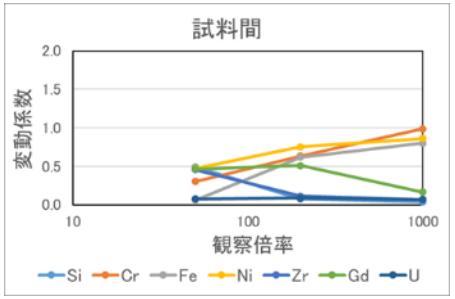
- 低倍率視野での元素マッピングにおいて、試料中の元素の偏在をミクロ的に評価した。
  - 50倍、200倍は同程度の重量濃度
  - 1000倍ではCr, Fe及びNiが低い値を、Si及びZrは高い値を示した。Gd, Uは変化を示さなかった。
- Cr, Fe及びNiは、観察倍率が高くなるにつれて変動係数が大きくなる傾向が見られた。

  ⇒ 倍率が高くなると、粒子径が大きく不均一に分布している元素（Cr, Fe, Ni）の検出確率が変動し、これらの検出確率が低下した分、相対的にSi, Zrの濃度が上昇したことが考えられる。

元素	重量濃度		
	50倍	200倍	1000倍
	wt%	wt%	wt%
Si	49	49	51
Cr	3	3	1
Fe	8	8	3
Ni	1	1	<1
Zr	30	30	34
Gd	1	1	1
U	9	9	9







- SEM-X線分析における分析精度の向上方策
  - 分析視野を大きく取るために、定量測定は低倍率で行う。
  - 粒径が異なる粒子が混在する場合は、観察視野数を増やすことで平均化する。

- 元素マッピングデータを基に作成した元素の散布図から、Zr-U-Gd、Cr-Fe-Niの元素分布を得ることで、これら元素が構成する化合物を推定することができた。

(5) 分析誤差の要因評価

分析前処理までの影響

- 受入れまでの試料の変化や、各機関が受け入れた試料の差異は認められなかった。（容器に貼られたテープの吸湿に起因すると推定される僅かな重量増加が共通的に確認された。）
- 試料溶解工程においては、溶解液の回収ロスの影響に留意する必要性が認められた。
- SEM観察では、以下の影響や課題が認識された。
  - 試料ホルダ上の粉末の分布状態の影響
  - 観察視野に大径粒子が存在する影響（FeBの大粒子にSiの小粒子が付着することでSiが過大評価される傾向が認められた。）
  - 視野を逸脱するような大粒子や、内部が測定できない塊状部分を避けることによる測定部位のバイアス
  - EDS（特性X線を直接取り込み）に対しWDS（分光結晶による波長分別を行う）は低倍率で視野上の不確かさが大きくなる。
- SEM観察、化学分析（ICP-MS/AES, TIMS）においては、含有する8元素以外の検出（コンタミ）は認められなかった。（NDCにおいて、定常的なBの測定によるメモリー効果が見られたが、補正により影響を除去できた。）

(5) 分析誤差の要因評価

溶解条件の影響

○硝酸溶解法

- 重量溶解率60%または90% ⇒ 加熱時間やﾌｯ酸添加の有無により差が生じる。
- ﾌｯ化物生成の影響は十分小。ﾌｯ酸添加量が微量（一滴）であるため、溶解率の変動に注意が必要である。

○アルカリ融解法

- 重量溶解率は100% ⇒ 硝酸難溶性の金属、コンクリート成分が溶解することを確認した。
- るつぼ成分（Ni）の溶込み、Naの大量混入を確認した。（今回の分析対象元素のICP-AESへの影響はなし）
- TIMSによる溶解液のU, Gd同位体組成評価を実施し、再臨界評価等への適用可能性を確認した。

○王水・ﾌｯ酸溶解法

- 重量溶解率98% ⇒ 王水中に溶解したGdの一部が、ﾌｯ酸添加によりGdﾌｯ化物となり沈殿したと考えられたが、その影響は不確かさの範囲内と考えられた。（Gdを含まないNU試料は100%溶解した。） ﾌｯ化物と微量金属（Cr, Ni）の共沈も示唆された。
- 容器成分（テフロン）の溶込みは認められなかった。

不溶解性残渣の影響

- 不溶解性残渣粒子が ろ紙上に点在する場合や塊状である場合、前述したSEM観察における課題が生じる。

セル内操作の影響

- 外観観察、重量測定、溶解作業における操作上の問題はなく、コンタミも認められなかった。
- セル内外における元素組成分析の結果は、相対誤差7%以内であった。（Bの分析値の不確かさが19%と大であったが、ICP-MS分析における試料の液性変動の影響と推定）
- 以上のことから、セル内外での操作による影響は小さく、本事業で実施したように、セル外で得た分析値とセル内で得た分析値を比較することは可能であると判断される。

(6) 結論

まとめ及び課題　**〈分析技術の適用範囲と課題：均質サンプルの場合〉**

組成や性状が未知の試料の分析を行うにあたり、組成既知の試料を作製し、基本量として核種・元素量の標準化を目指した分析を行った。それぞれの分析手法において、未知試料の分析を行う際のその特徴と課題と明らかにした。

○硝酸溶解法

- 溶解が見込まれる相は、Uリッチな$(U, Zr)O_2$やホウ化物に限られる。
- しかし、同位体比の評価のみでよい場合や、一部の元素や核種の存在の有無が把握できればよい場合は、迅速かつ簡便な溶解法となり得る。
- 定量性を担保する上では溶解率の向上が必要になるが、溶解前の機械粉砕による比表面積の増加等の対策が考えられる。微量なフッ酸の添加は溶解率の向上に顕著な効果がある。

○王水・フッ酸溶解法

- ほぼ全溶解が見込まれるため、高い精度での核種、元素量の定量が可能と考えられる。
- ただし、サンプル中の希土類がフッ化物と共沈する可能性があり、沈殿物に対し再溶解の検討が必要と考えられる。

○アルカリ融解法

- 全量溶解が可能であり、高い精度での定量分析に適している。
- ただし、アルカリ試薬のNa成分や、るつぼのNi成分が混入するため、測定対象元素によっては材料選定の検討が必要。

〈多元素系、非均質系への適用性〉

- 本事業では、約0.1gの均質サンプルについて検討を実施したが、実際の燃料デブリは、より大きなサイズで1個のサンプルの中に多くの元素が非均質に分布していることが想定される。
- そのようなサンプルについては、初めにXRF, SEM, XRDによって、含有組成や偏在の状態を把握し、詳細に調査すべき部位を選定する手法や、機械粉砕による均質化等の手法が提案される。
- 一方、極めて多様な元素を含むことにより、ICP-AESにおける発光強度の重畳や、ICP-MSにおける同重体干渉など、妨害元素/核種の影響が懸念される。

(6) 結論

反映先及び課題

〈暫定的な「推奨」フロー〉

- 本事業で明らかになった各分析技術の精度や適用範囲、課題を踏まえて、現時点における推奨フローを検討した。
- ただし、推奨フローは本来、廃炉計画側の要求精度に応じて策定すべきものであり、現時点で定量的な要求が示されていないことから、ここでは各分析技術の特徴と廃炉作業で見込まれる分析ニーズの対応性から検討を行った。

○硝酸溶解法

- 相当割合の不溶解性残渣の発生が見込まれるが、Uリッチな$(U, Zr)O_2$は溶解液側に回収でき、フローも簡便である。このため、取り出し段階における燃料デブリと廃棄物の分別のように、高頻度に発生する作業において、UやPuの有無、U同位体比の粗々の判定を迅速に行う場合に適用できる可能性がある。

○王水・フッ酸溶解法

- ほぼ全量溶解が可能であり、フローも比較的シンプルであることから、希土類を除く元素や核種の高精度な定量分析方法として期待される。⇒　臨界管理等で必要となる、ウラン同位体比の高精度評価等

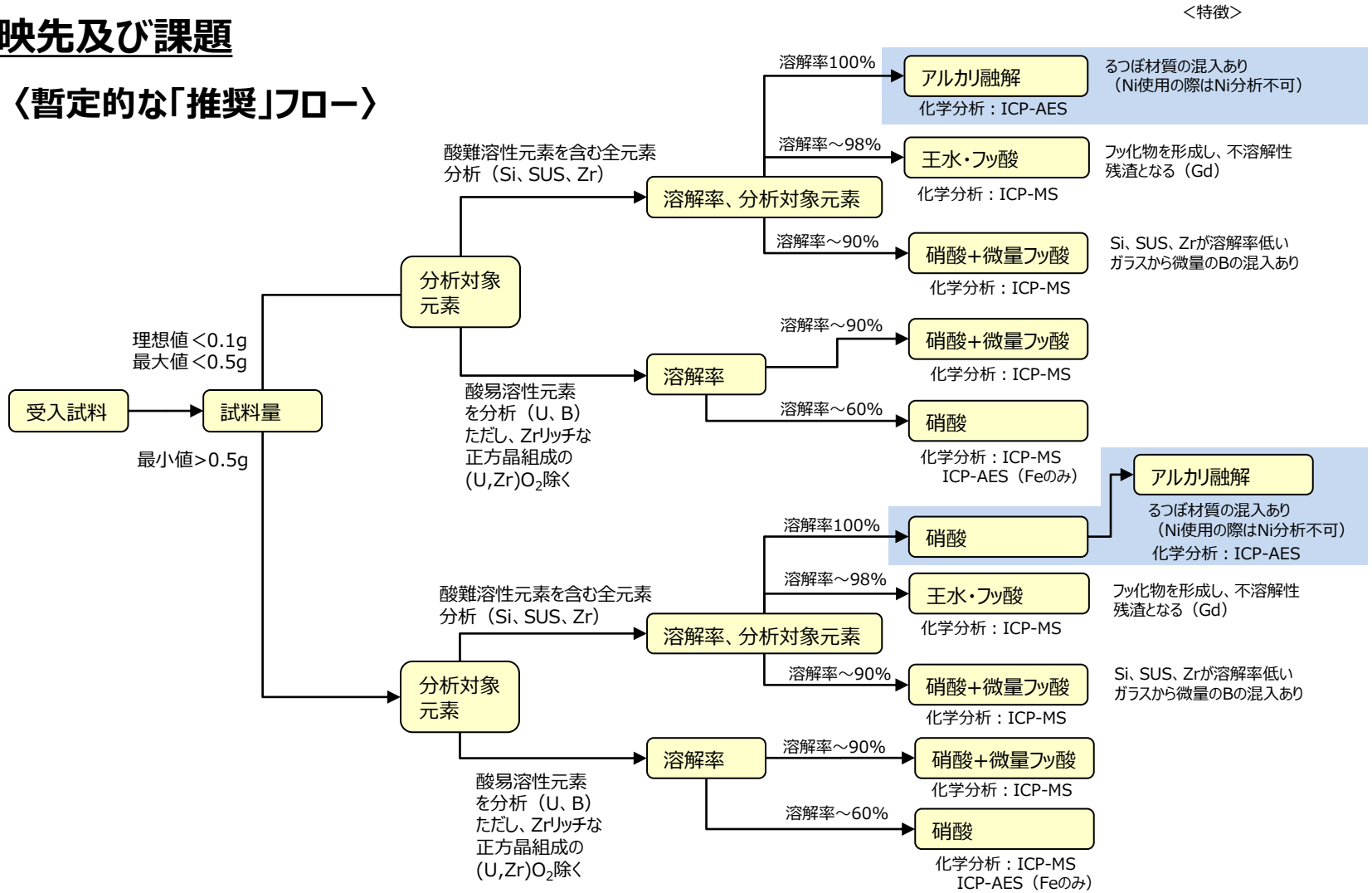
○アルカリ融解法

- 全量溶解が可能であり、高い精度での定量分析に適している。
- るつぼ成分の混入が不可避であるため、サンプル中の全元素を確実に定量分析するためには、2種類の材質のるつぼを用いた分析結果を比較するなどのデータの相互補完が必要。
- また、融剤のアルカリ試薬（Na）が大量に混入するため、TIMSを用いた核種分析の際には、分離する工程の追加が必要。加える融剤は試料重量の20倍量となる。

(6) 結論

反映先及び課題

〈暫定的な「推奨」フロー〉



注）実際の分析においては、試料の状況、分析目的に応じて変更することが適当である。
注）　：相違点

化学分析による元素組成評価に係る暫定的な「推奨フロー」

(6) 結論

反映先及び課題

〈次ステップに向けた課題〉

- 本事業では、組成既知で均質な模擬燃料デブリの粉末を用いて「核種・元素量」の分析技術の標準化を図った。

  ⇒ 実際の燃料デブリは、酸化物や金属などの複数の層が巨視的・微視的に入り混じった非均質なものと予想される。

- このような不均質サンプルに対しては、外観・組織観察によって部位ごとの概略の特徴を掴んだ上で、より詳細な微細構造、局所組成、物性を確認する対象領域を絞り込んでいくアプローチが予想される。

  ⇒ すなわち、「核種・元素量」のほか、サンプルの特徴を概略把握するための外観情報を含む「形態」、局所分析等でサンプルのミクロな情報を得るための「相状態・分布」、廃炉ニーズそのものである「密度等」といった物性情報について、これらを適切に組み合わせてサンプルの特徴を効果的に把握するような手順の構築が望まれる。

- このため、将来にむけては、非均質な模擬試料を用いて、「核種・元素量」のほか、「形態」、「相状態・分布」、「密度等」を標準化していくことが重要である。

- このような狙いに適した模擬試料としては、実際の事故進展で生成した可能性があり、複数の相が微視的に入り混じり、あるいは巨視的に分離するような系であることが望ましい。例として、高温反応による溶融固化体や、半溶融体（比較的低温での過程での生成が予想される、低融点の液相と高融点のセラミック相の混合物）等が挙げられる。

4. 実施結果 熱挙動の推定のための技術開発

✓ 3つのサブタスクの実施により熱挙動推定技術を開発

4.1 燃料デブリ模擬流動試験

- 実機での自然対流を想定したデータの取得
- 気孔率などをパラメータとしたデータの取得

4.2 空冷時を含む燃料デブリ詳細熱挙動解析手法開発

- より詳細なCFDに基づく手法(JUPITER)によりデータを取得

4.3 空冷時の温度分布評価

- 統計平均モデルを用いるACE-3Dをもとに評価できる手法の構築
- 2号機温度履歴を再現できることを確認した上で空冷時の熱挙動を評価

数値解析に求められる機能

- 乱流状態を含む流動、熱伝達評価機能
  - 気体が崩壊熱で温められることにより発生する自然対流と温められる過程(熱伝達)についてシミュレーションするため
- 気孔率などの違いによる熱物性の影響の評価
  - 気孔率についてはオープンポアとクローズドポアの双方に対応
- 流れや放熱に与える構造物の影響を評価
- 詳細熱挙動解析
  - 統計平均モデルを用いずに評価ができること
- 空冷時の温度分布評価
  - 2号機温度履歴(注水状態)を含めて評価できること
  - 統計平均モデルを用いることで計算時間を節約できる手法に対応できること

JUPITERの特徴と求められる機能の関係

詳細熱挙動解析に対し一部を除き求められる機能を有するJUPITERを利用

求められる機能		JUPITERの特徴・機能	本事業による実施内容/参考情報
乱流状態を含む流動、熱伝達評価機能		• 非圧縮性流体解析手法＋LES （コヒーレント構造関数モデル） • 自然対流乱流に対しての検証実績あり	多孔質体＋自然対流乱流条件での評価を実施
気孔率などの違いによる熱物性の影響の評価	オープンポア	• 機能未実装	多孔質体を含む熱挙動を計算できる「ポーラス体解析機能」を導入
	クローズドポア	• 固体物性値指定機能 • 多成分解析機能(異なる物質の存在割合と指定できる機能)	固体物性値の変更/物質の存在割合の指定により対応
構造物の影響評価		• 埋め込み境界法による評価＋3D-CADデータによる入力作成	実機構造を模擬・想定した入力を作成し解析を実施
統計平均モデルを用いない評価		• LESの採用と超大規模・超並列解析への対応	ー

ACE-3Dの特徴と求められる機能の関係

空冷時の温度分布評価に対し一部を除き求められる機能を有するACE-3Dを利用する

求められる機能		対応するACE-3Dの特徴・機能	本事業による実施内容/参考情報
乱流状態を含む流動、熱伝達評価機能		• 圧縮性流体解析手法＋k-e乱流モデル＋壁関数	多孔質体、自然対流乱流、多孔質体＋自然対流乱流条件での評価を実施
気孔率などの違いによる熱物性の影響の評価	オープンポア	• ポーラス体解析機能	パラメータの設定 一部機能の改良
	クローズドポア	• 機能未実装	多成分解析機能の追加
構造物の影響評価		• ポーラス体解析機能	一部パラメータ設定について詳細解析の結果を利用
注水状態を含めた評価		• 二流体モデル(二相流に対する統計平均モデル)	–
統計平均モデルを用いた手法*		• k-e乱流モデル＋壁関数(乱流) • 二流体モデル(二相流)	–

*その他、円筒2次元座標系などに対応し、計算量の削減が可能

3つのサブタスクの関係

①燃料デブリ模擬流動試験
実機での自然対流を想定したデータの取得
気孔率などをパラメータとしたデータの取得

流動試験

a c

②空冷時燃料デブリ詳細熱挙動解析
(JUPITER)により形状の影響などを評価

JUPITER

a c

b

ACE-3D

③ 空冷時熱挙動評価

(I) 2号機温度履歴評価
ACE-3Dによる注水時温度履歴評価

(II) 燃料デブリ熱挙動の推定
✓ 2号機温度履歴の再現した解析条件での空冷時熱挙動評価

a 実機サイズ(高さ) を模擬した検証データ

b 形状・条件を模擬した検証データ

c 気孔率を変更した試験データ

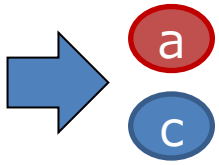
4.1

4.1 燃料デブリ模擬流動試験

- 目的
  - 解析コードの検証に必要なデータを提供
- 実施内容

4.1-1
  - 実機相当の自然対流条件を達成できる装置の製作
  - 3Dプリンタ製のポーラス(多孔質)体や金属球などを利用し気孔率を変化させた試験の実施

4.1-2
4.1-3
    - 燃料デブリ空冷試験(既存小型装置)
    - 燃料デブリ模擬流動試験
- アウトプット
  - 解析コード検証データ
    - 実機での自然対流を想定したデータ
    - 気孔率などをパラメータとしたデータ



燃料デブリ模擬流動試験装置の検討

燃料デブリの発熱量*

経過年数	原子炉圧力容器内				廃棄体容器		
	1号機 (1)	2号機 (1)	3号機 (1)	炉内合計 (W)	移行率	最大U装荷 (kg)	1基当り (W)
0	8.67E+07	1.50E+08	1.49E+08	3.86E+08	1.00	114.9	1.72E+05
10	5.50E+04	6.86E+04	6.68E+04	1.90E+05	1.00	114.9	85
20	4.40E+04	5.44E+04	5.37E+04	1.52E+05	1.00	114.9	68
50	**2.70E+04**	**3.30E+04**	**3.38E+04**	**9.38E+04**	**1.00**	**114.9**	**42**
100	1.46E+04	1.77E+04	1.91E+04	5.14E+04	1.00	114.9	23

*平成27年度燃料デブリの処理・処分に関する予察的調査報告書(https://www.nsr.go.jp/data/000186558.pdf)

燃料デブリ全量がペデスタル底部全面に広がった場合かつ
全ての熱が自然対流（空気）で除熱される場合

除熱量と修正レイリー数の関係

修正レイリー数Ra* = 10^{16}までを対象

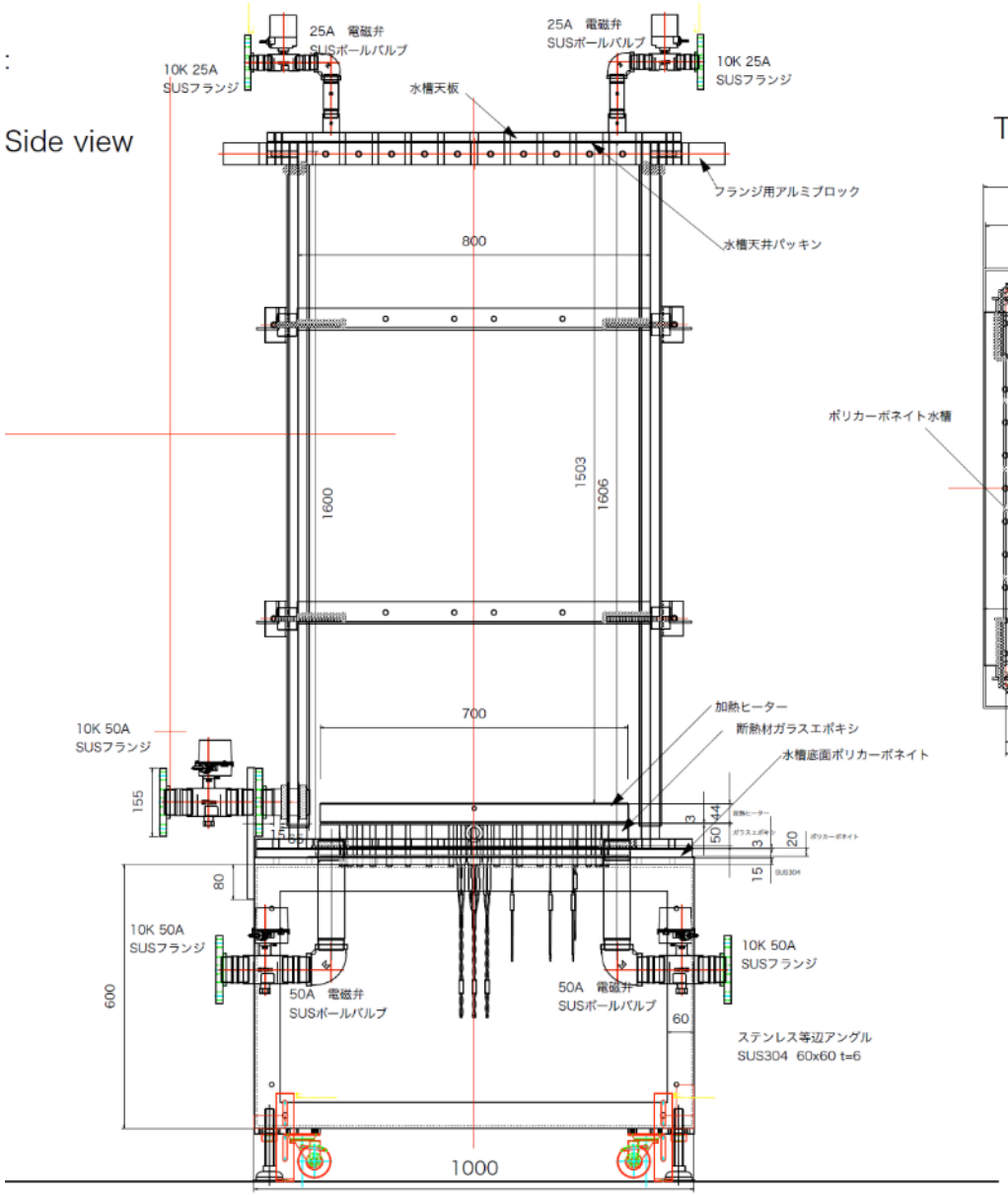
$$\mathrm{Ra}^* = \frac{g\rho^2\beta q c_p}{\mu\kappa^2} L^4$$

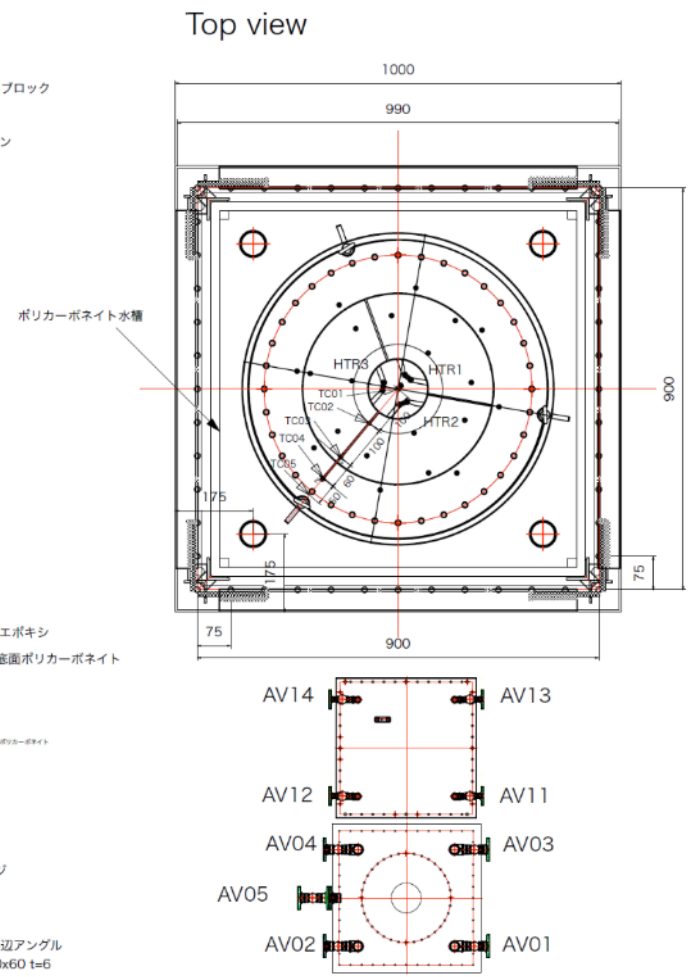
L:高さ

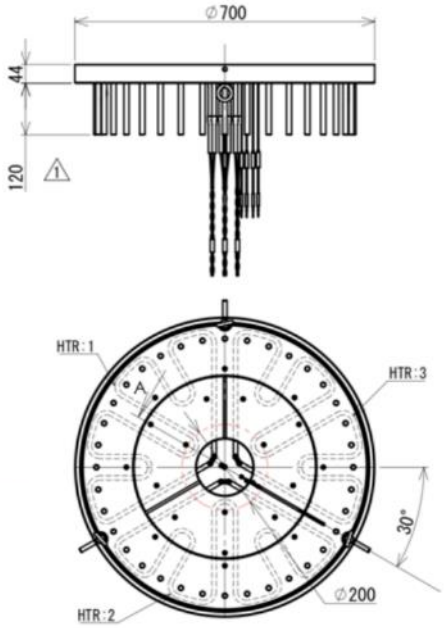
実機：空気、ペデスタル高さ約8m

作動流体:水、装置高さ1.6 m

4.1-1試験装置製作　燃料デブリ模擬流動試験装置

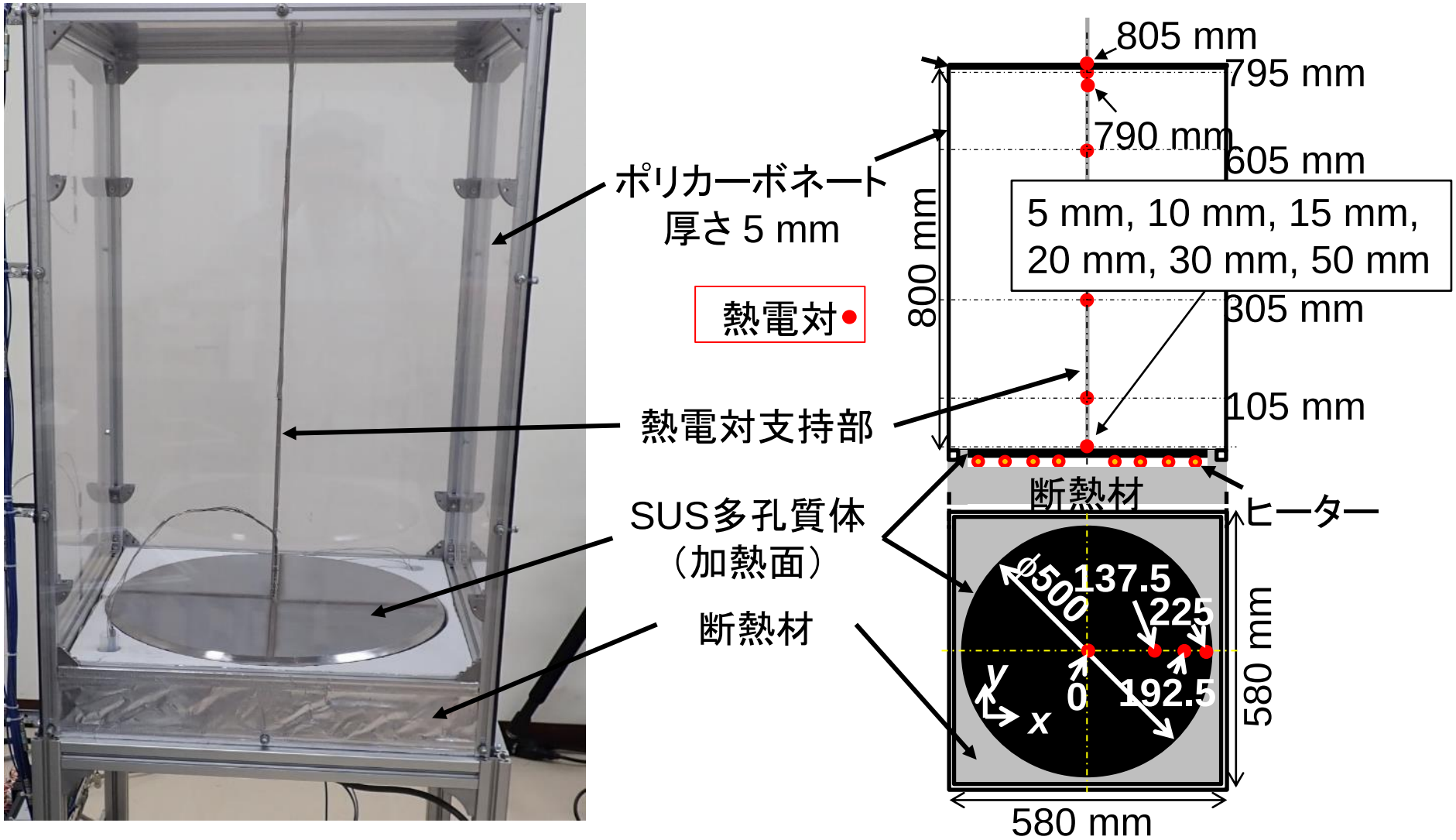




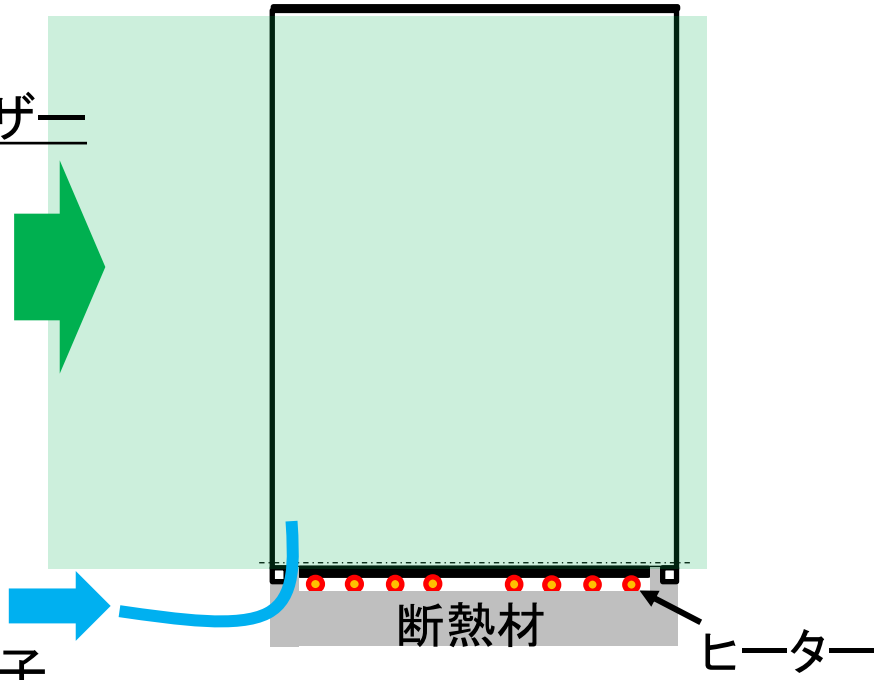


燃料デブリ空冷試験装置

確認内容：多孔質体を設置した状態に対しての温度計測、速度場計測の確認



燃料デブリ空冷試験の速度計測



SHG-YAG シートレーザー
λ = 532 nm
シート厚さ: 3mm

追跡用粒子
F-80ED (松本油脂製薬)
径 : D = 90-130 μm
密度 : ρ = 20±5 kg/m^3

高速度カメラ
撮影速度:250 fps
シャッタースピード:0.004 s
解像度: 0.36 mm/pixel

燃料デブリ空冷試験の実験条件

Ex. No.	発熱量	多孔質体（空隙率）	備考
180604	391 W	なし	
200908	391 W	なし	上記の再現実験
200910	391 W	SUS多孔質(0.83)	
201005	391 W	SUS多孔質(0.83)	上記の再現実験
201014	391 W	SUS球体(0.4)	球径は10 mm
201020	391 W	SUS多孔質(0.4)	
201125	96 W	3Dプリンタ球体(0.4)	耐熱100℃の球体なので設定発熱量は小さい
201222	391 W	SUS球体、円柱(0.35)	直径185mm高さ100mmの円柱型

多孔質体無し

SUS多孔質体

厚さ:10 mm

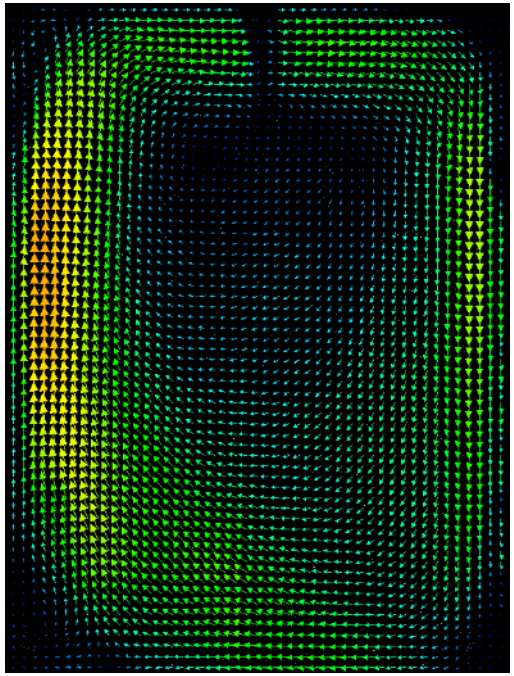
SUS球体

SUS球体、円柱

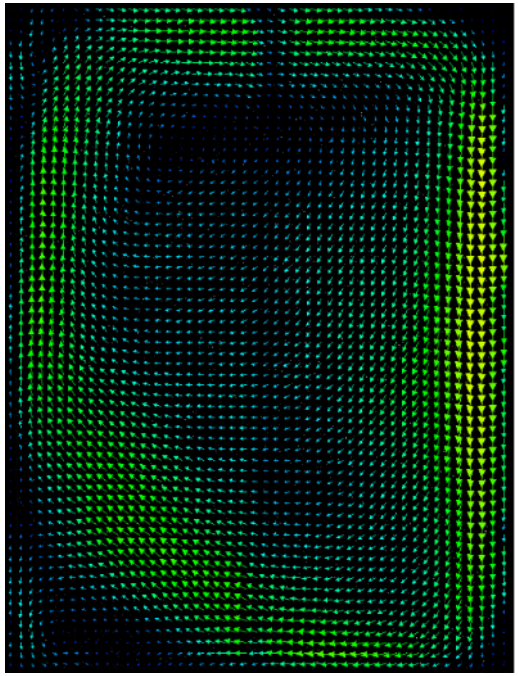
金網で保持

速度分布

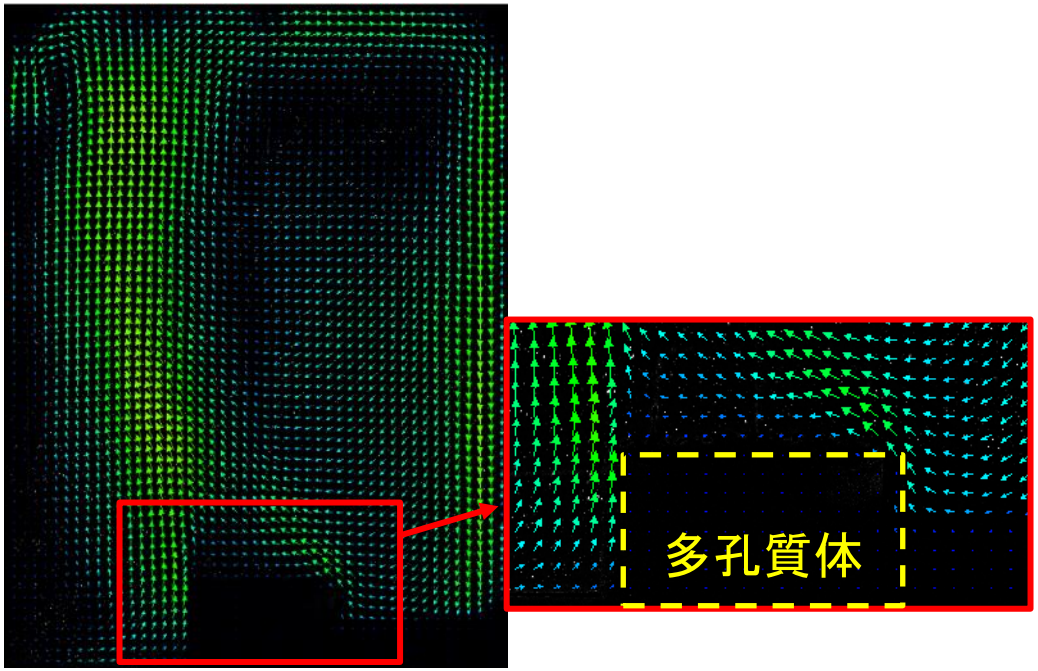
0.0 0.4 m/s



多孔質体なし
(Ex.180604)

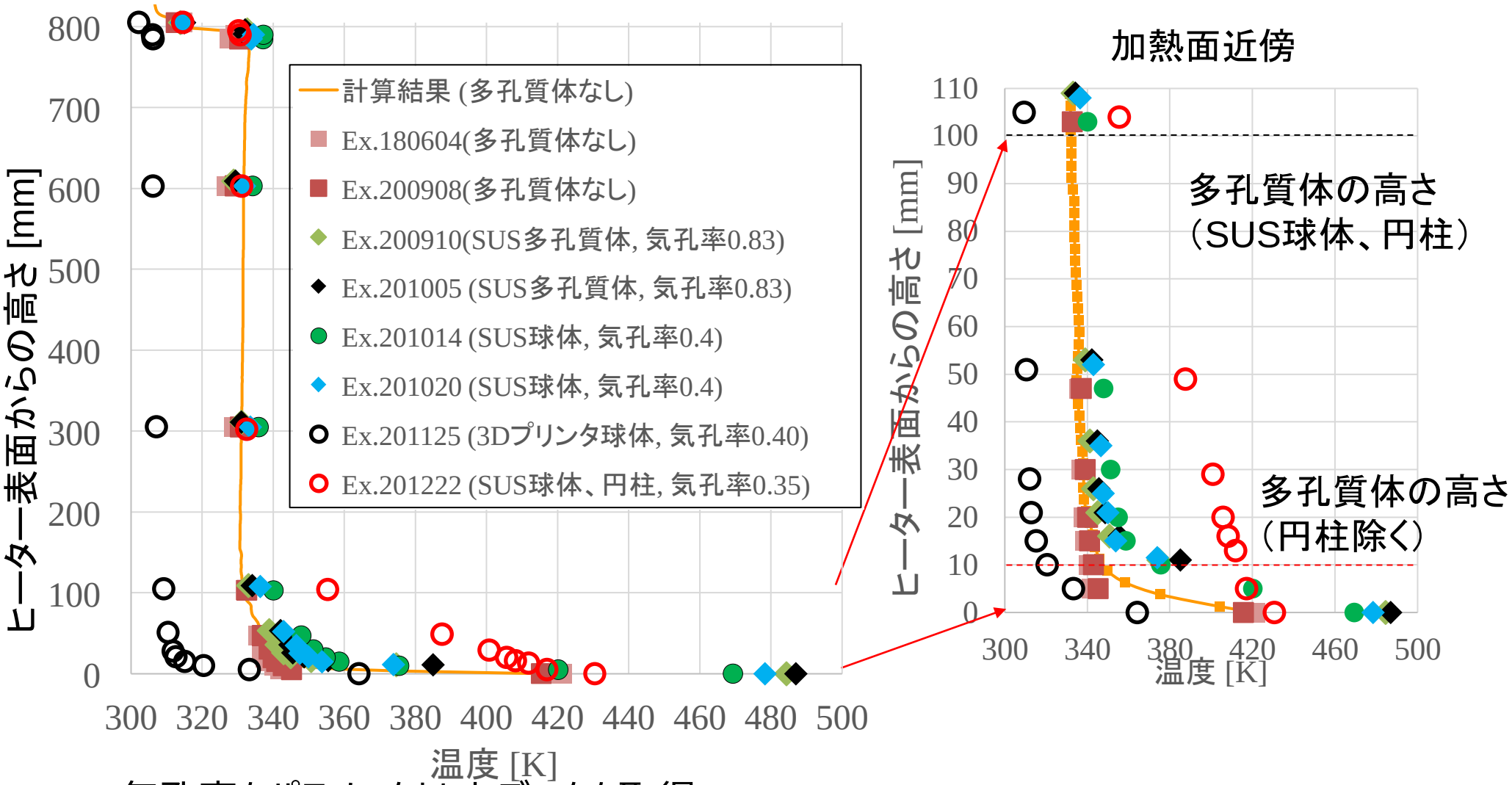


SUS球体
空隙率0.41
(Ex.201014)



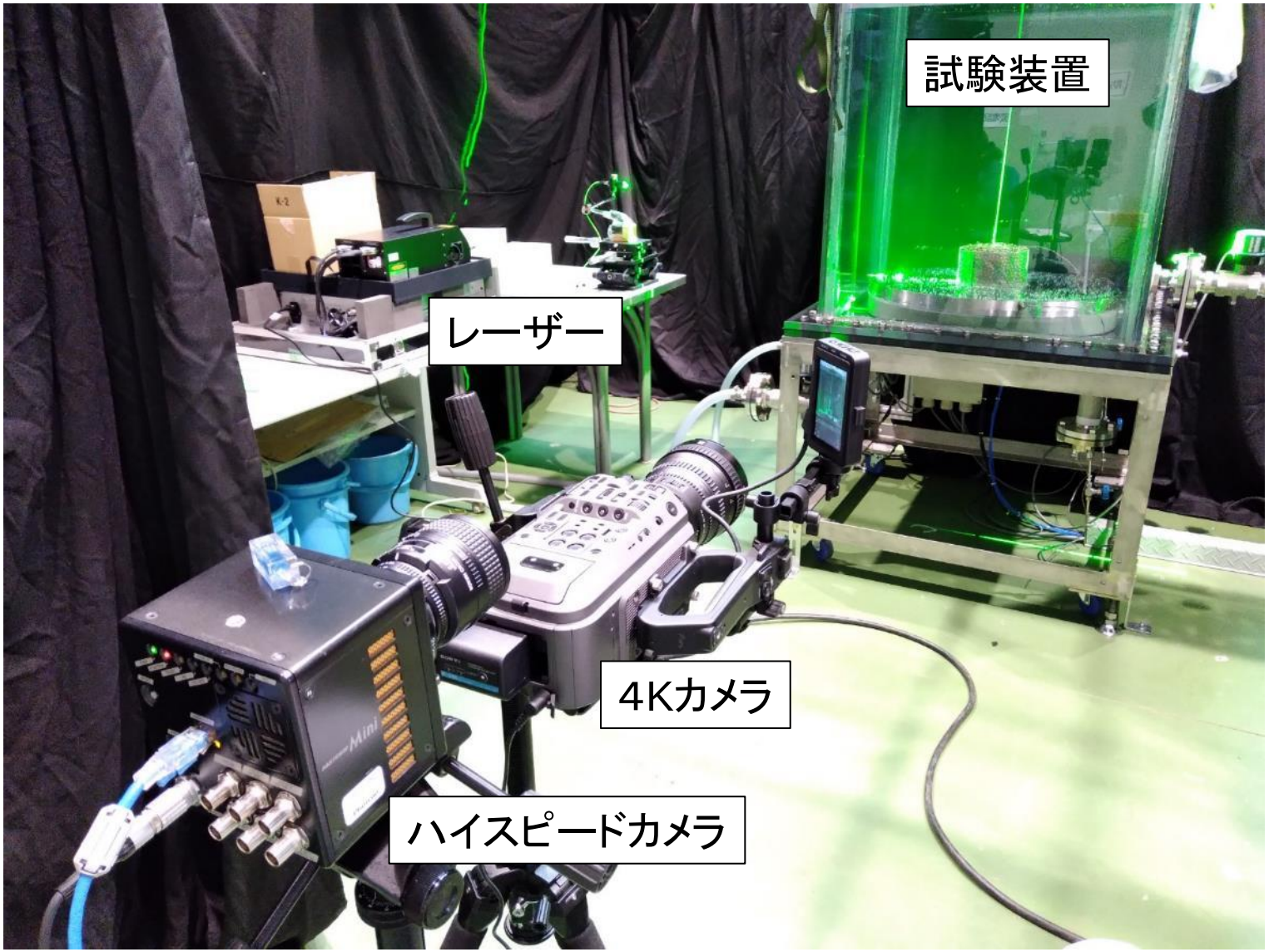
SUS球体、円柱
空隙率0.35
(Ex.201222)

垂直方向温度分布

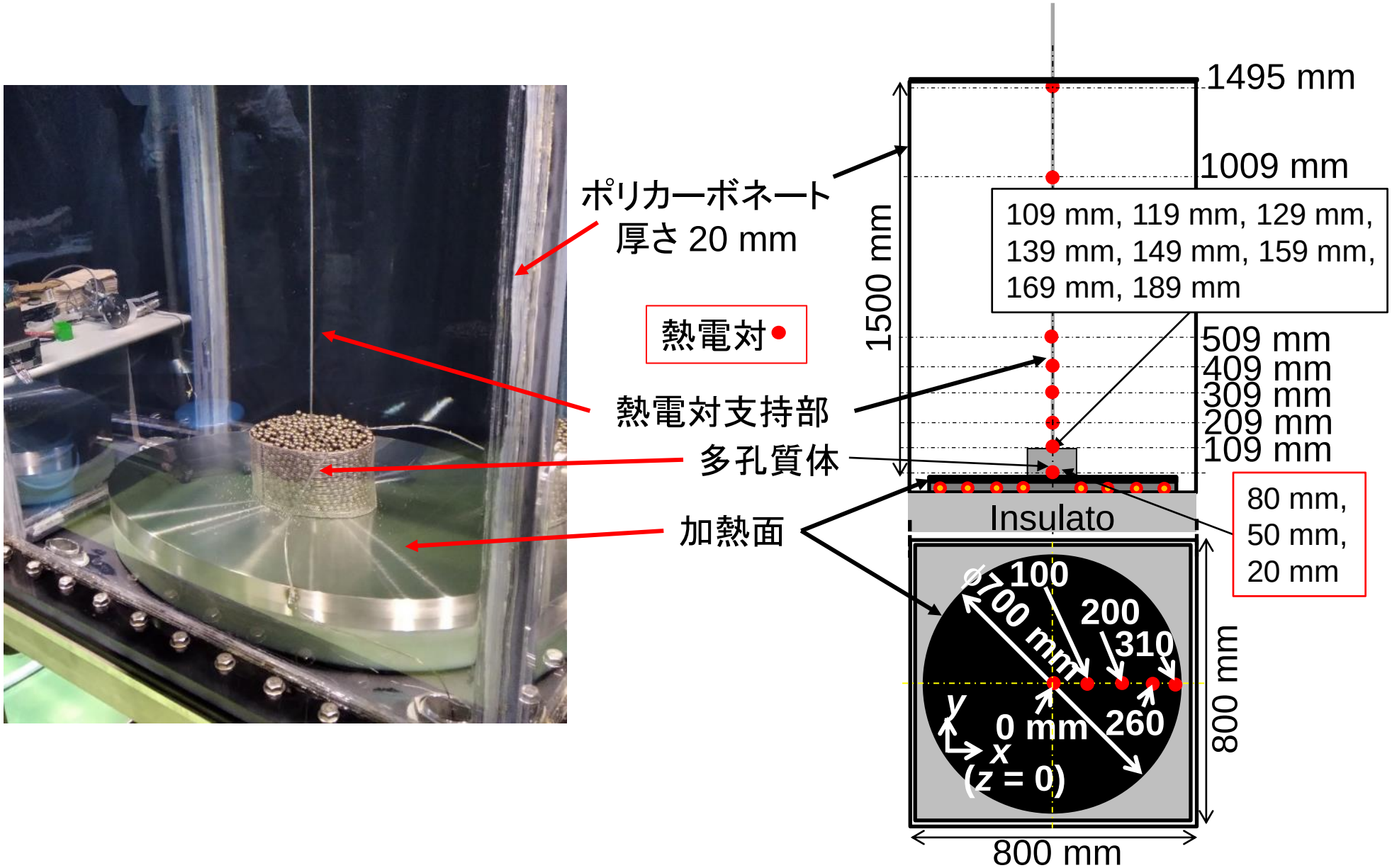


- 気孔率をパラメータとしたデータを取得
  - 薄い多孔質体の場合、気孔率による差異は小さい。
  - 円柱形の多孔質体を用いた場合、壁面近傍に向かって温度が上昇する。

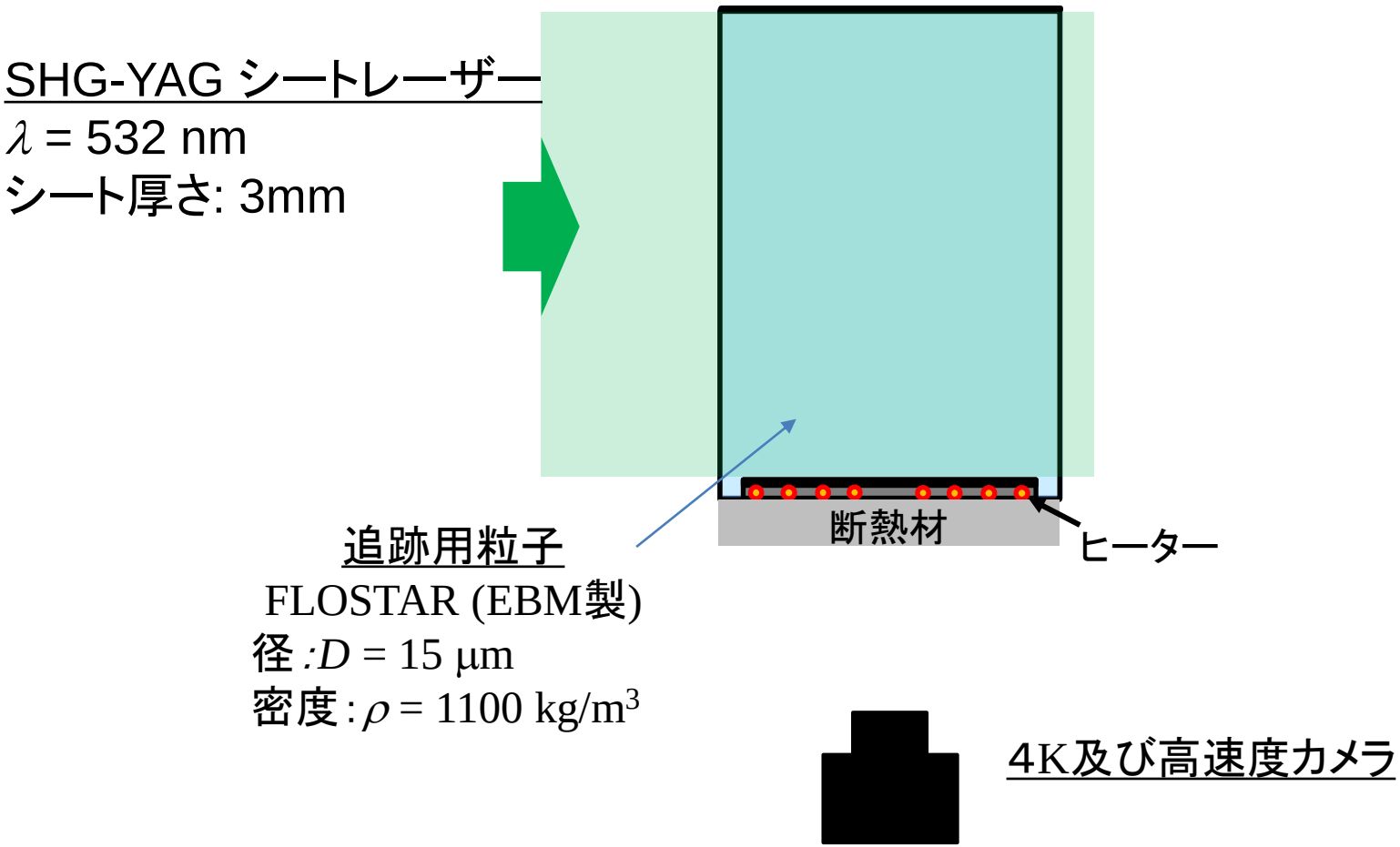
燃料デブリ模擬流動試験



試験の概要


ポリカーボネート
厚さ 20 mm
熱電対
熱電対支持部
多孔質体
加熱面
1495 mm
1009 mm
1500 mm
109 mm, 119 mm, 129 mm,
139 mm, 149 mm, 159 mm,
169 mm, 189 mm
509 mm
409 mm
309 mm
209 mm
109 mm
80 mm,
50 mm,
20 mm
Insulato
ø700 mm
100
200
310
260
0 mm
y
x
(z = 0)
800 mm
800 mm

速度計測方法


SHG-YAG シートレーザー
λ = 532 nm
シート厚さ: 3mm
断熱材
ヒーター
追跡用粒子
FLOSTAR (EBM製)
径 :D = 15 μm
密度 : ρ = 1100 kg/m3
4K及び高速度カメラ

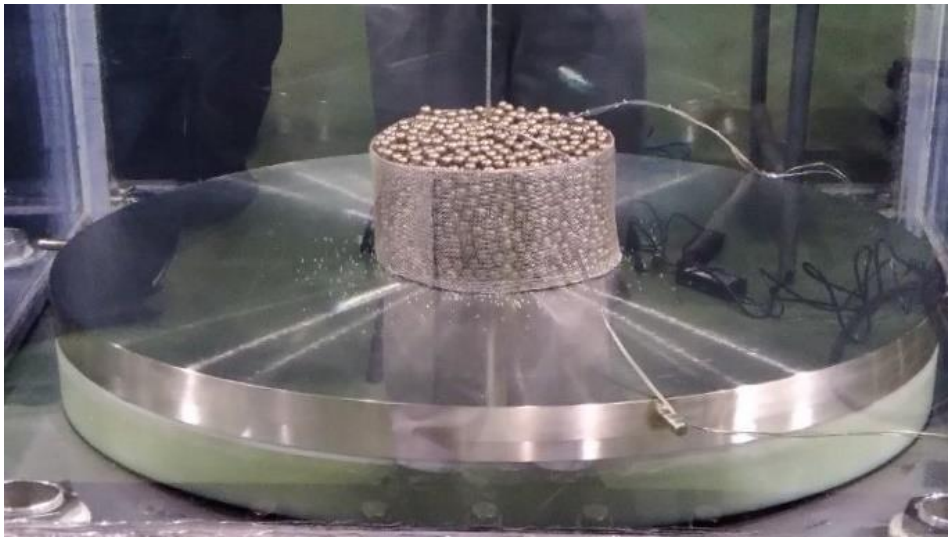
実験条件

Ex. No.	発熱量	水位	多孔質体（空隙率）	備考
210201	1.5 kW	710 mm	なし	
210204	1.5 kW		なし	上記の再現実験
210217_1.5	1.5 kW		SUSφ10mm球体、円柱形 (0.35)	直径185mm 高さ100mmの円柱型
210217_3.0	3.0 kW			
210217_5.0	5.0 kW			
210316_1.5	1.5 kW	1500 mm	SUSφ10mm球体、円柱形 (0.35)	
210316_5.0	5.0 kW			
210317	10.0 kW			
210319_1.5	1.5 kW		SUSφ5mm球体、円柱形 (0.35)	
210319_5.0	5.0 kW			
210322	10.0 kW			
210325_1.5	1.5 kW		なし	
210325_5.0	5.0 kW			
210326	10.0 kW			

多孔質体の設置状況

加熱面上部に設置
例では球径は10 mm

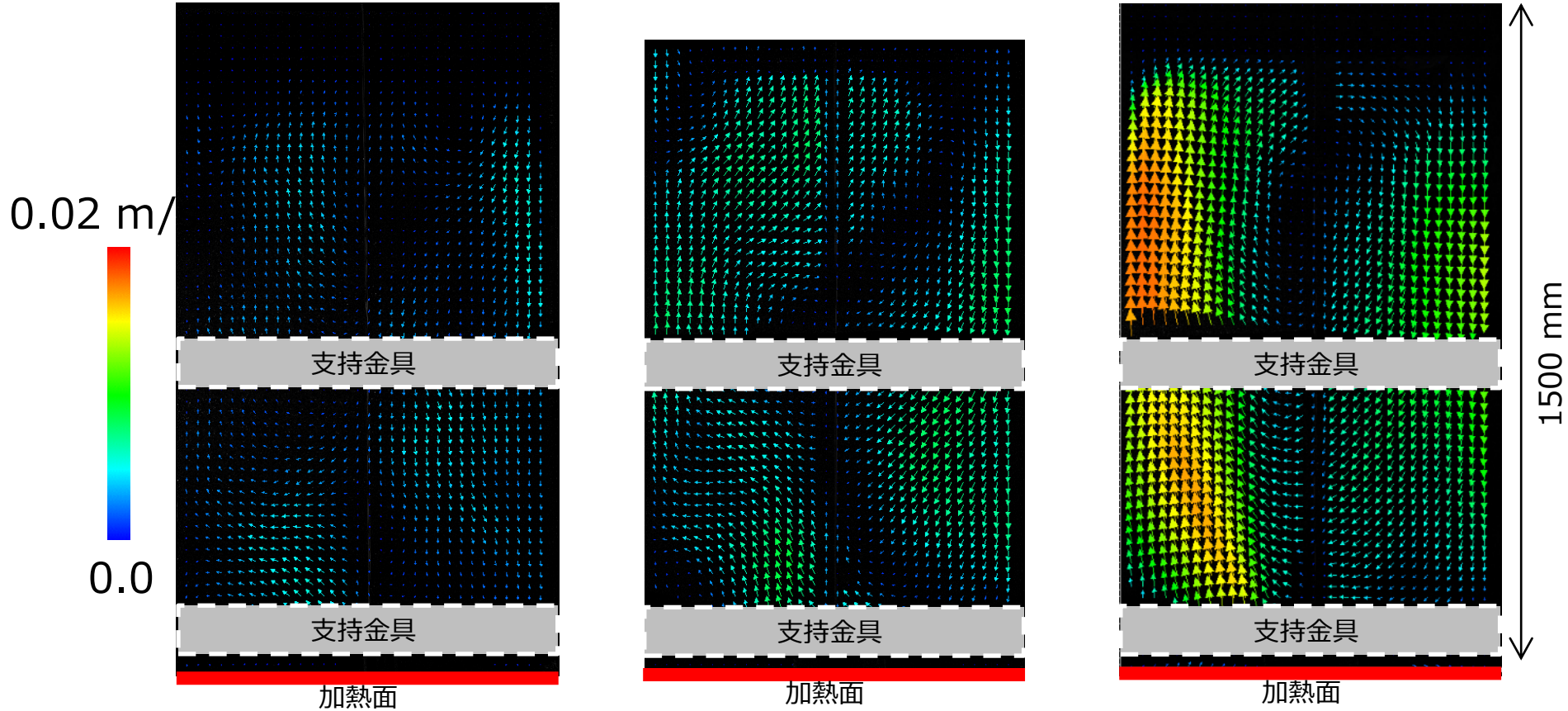
多孔質体無し



SUS球体、円柱

容器中心断面の流速分布

時間平均値

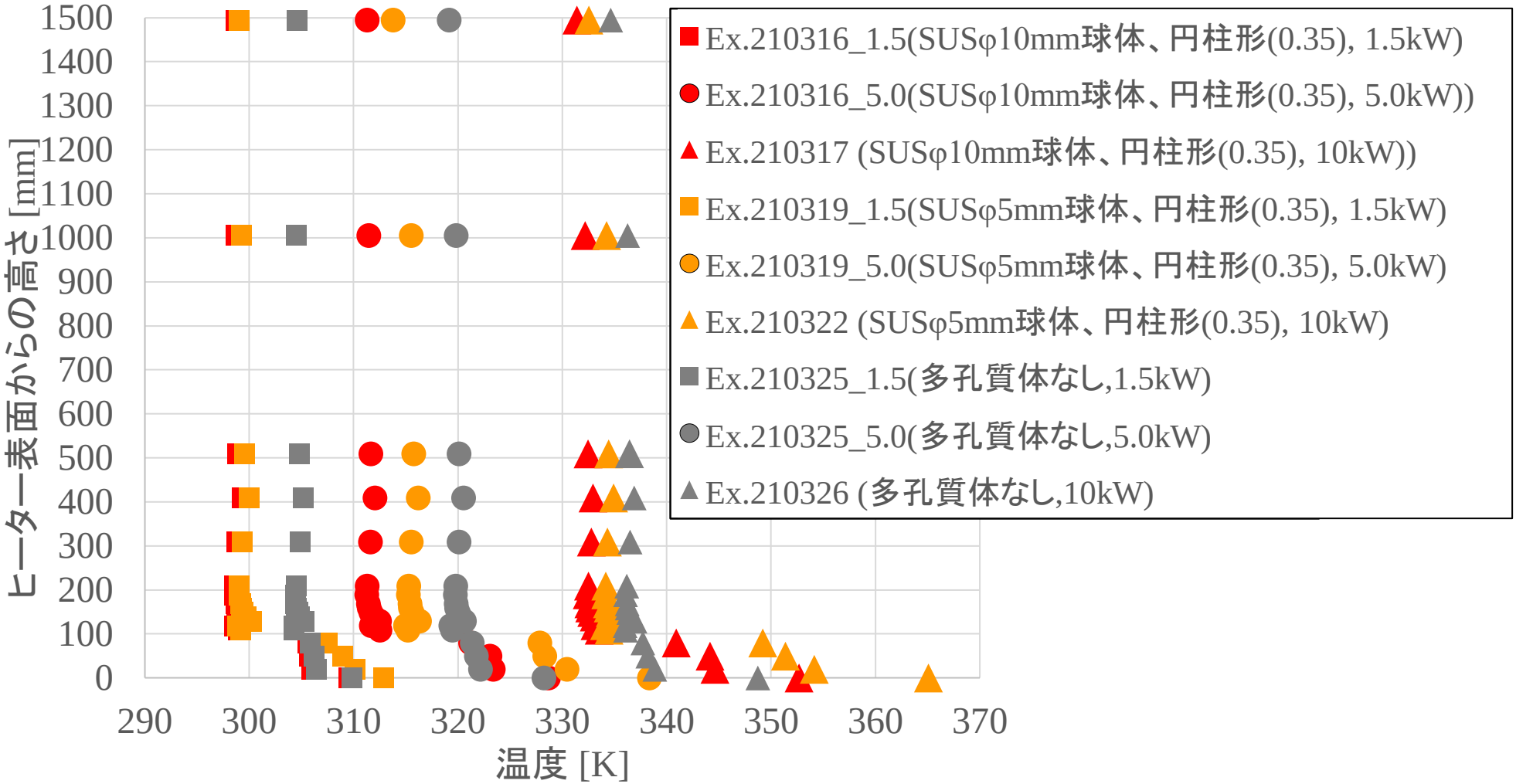


多孔質体なし
(Ex.210325_1.5)

多孔質体SUS球径10 mm
(Ex.210316_1.5)

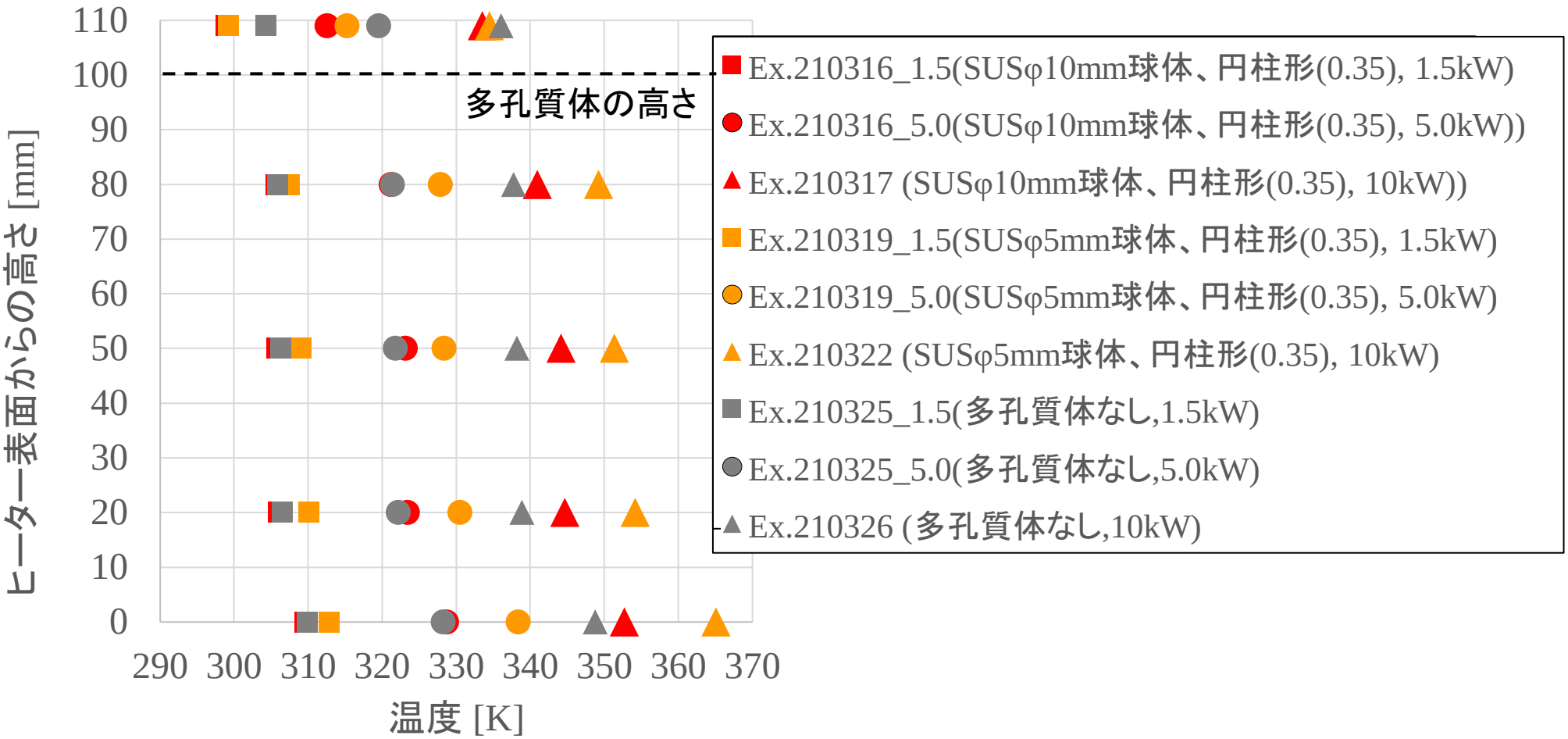
多孔質体SUS球径5 mm
(Ex.210319_1.5)

垂直方向温度分布



- 実機条件に対応した模擬デブリを含む自然対流に関するデータを取得。
  - 模擬デブリを構成する球径が小さい場合に温度が上昇。

垂直方向温度分布(加熱面近傍)



- 燃料デブリ空冷試験と比較すると、壁面上を除き明確な温度上昇は確認できない。

4.1 燃料デブリ模擬流動試験のまとめ

- 自然対流＋気孔を有する構造体(多孔質体)が存在する条件での試験を実施した。
  - 燃料デブリ空冷試験装置(既設)と燃料デブリ模擬流動試験(新設)
  - 乱流まで含む自然対流への適合性の確認
  - 気孔率を変化させた場合の流動特性を含む熱物性のデータ整備
  - 熱電対を用いた温度計測とPIVを用いた速度場計測を同時に実施
- 得られたデータは、4.2及び4.3において、JUPITER及びACE-3Dの妥当性検討やパラメータの選定に利用する。
- 模擬デブリについて、物性(物質の違い)の影響を含めたデータの取得が必要。

4.2 空冷時燃料デブリ詳細熱挙動解析

- 目的
  - ACE-3Dの検証に必要なデータを提供
- 主な実施内容
  - 4.2-1 ポーラス体解析機能導入
  - 4.2-2 4.1 燃料デブリ模擬流動試験による検証 ← a c
  - 4.2-3 実機形状を模擬した解析の実施により検証に必要なデータを取得
- アウトプット
  - ACE-3D検証データ
    - 実機を模擬したデータ
    - 実機の一部を模擬したデータ

→ b

JUPITERへのポーラス体解析機能の導入

支配方程式

$$\frac{\partial u_j}{\partial x_j} = 0$$ 連続の式

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_i} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial x_i} + \nu \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_j} + F_i$$ Navier-Stokes方程式

$$\frac{\partial T}{\partial t} + u_j \frac{\partial T}{\partial x_j} = -\frac{\lambda}{\rho C_v}\frac{\partial^2 T}{\partial x_j \partial x_j} + \frac{Q}{\rho C_v}$$ エネルギー方程式

ポーラス体解析機能として、Darcy-Brinkman-Forchheimerモデルに基づき空隙率（ε）、固有透過係数（κ）及び非線形項をNavier-Stokes方程式に導入した：

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial}{\partial x_j}\left(\frac{u_i}{\varepsilon}\right) = -\frac{\varepsilon}{\rho}\frac{\partial p}{\partial x_i} + \nu \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_j} - \frac{\nu\varepsilon}{\kappa}u_i - b\sqrt{u_j u_j}u_i + \varepsilon F_i$$

ポーラス体解析機能を考慮したエネルギー方程式は次式となる：

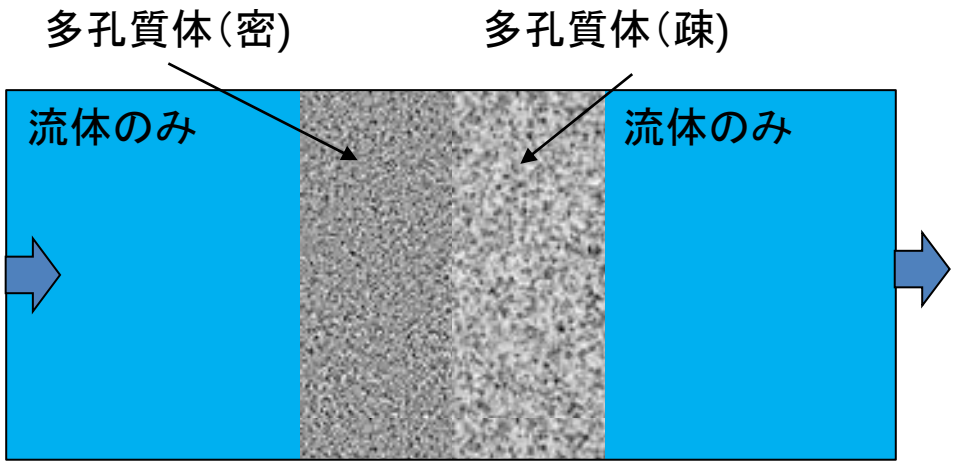
$$\frac{\partial T}{\partial t} + u_j \frac{\partial T}{\partial x_j} = -\frac{\lambda_{\mathrm{eq}}}{(\rho C_v)_{\mathrm{eq}}}\frac{\partial^2 T}{\partial x_j \partial x_j} + \frac{Q}{(\rho C_v)_{\mathrm{eq}}}$$

$$(\lambda_{eq} = \varepsilon\lambda_f + (1-\varepsilon)\lambda_s)$$

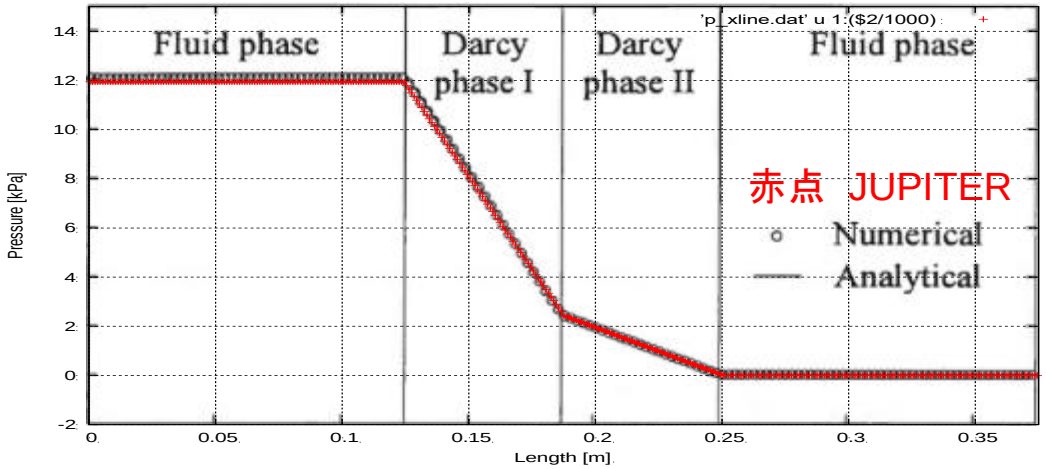
液相　固相

検証解析の一例: 解析解*との比較

- 領域長：0.375 (x_1), 0.025 (x_2) m
- 格子点数： 375 x 25 = 9375
- 流入速度：0.0016 m/s（左境界）
- 流出境界（右境界）
- 流体：水
- 時間刻み：1e-6 s



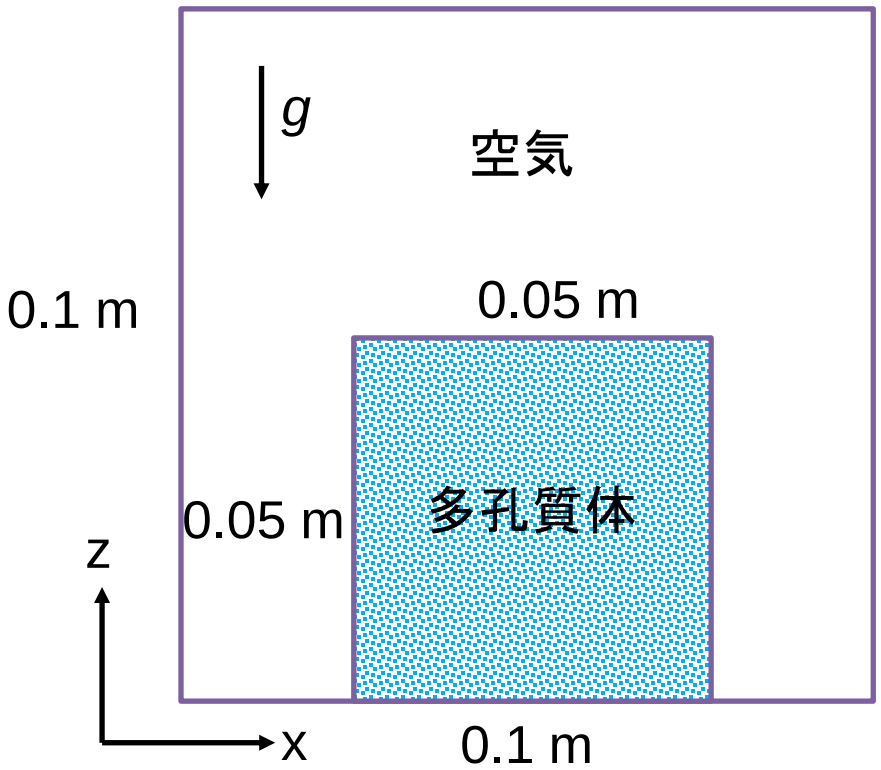
解析体系

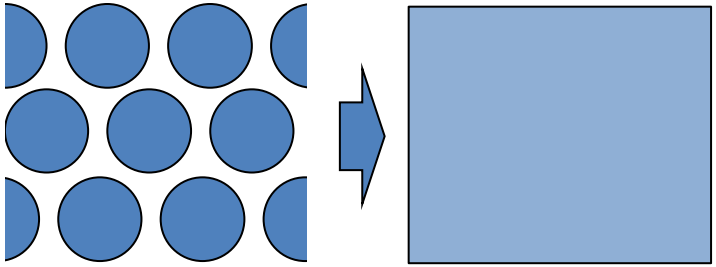


解析結果の一例(圧力分布)

*藤澤他, 農業農村工学会論文集, No.287, pp.35～44 (2013)

直接計算とポーラス体解析機能を用いた計算





直接計算　ポーラス体解析機能を使用

- 50mm四方の領域に、直径 1 mmの球を625個配置
- 発熱総量50W (球一つにつき1.7e+8 W/m^3)付与
- 格子点数： 1000 x 1000

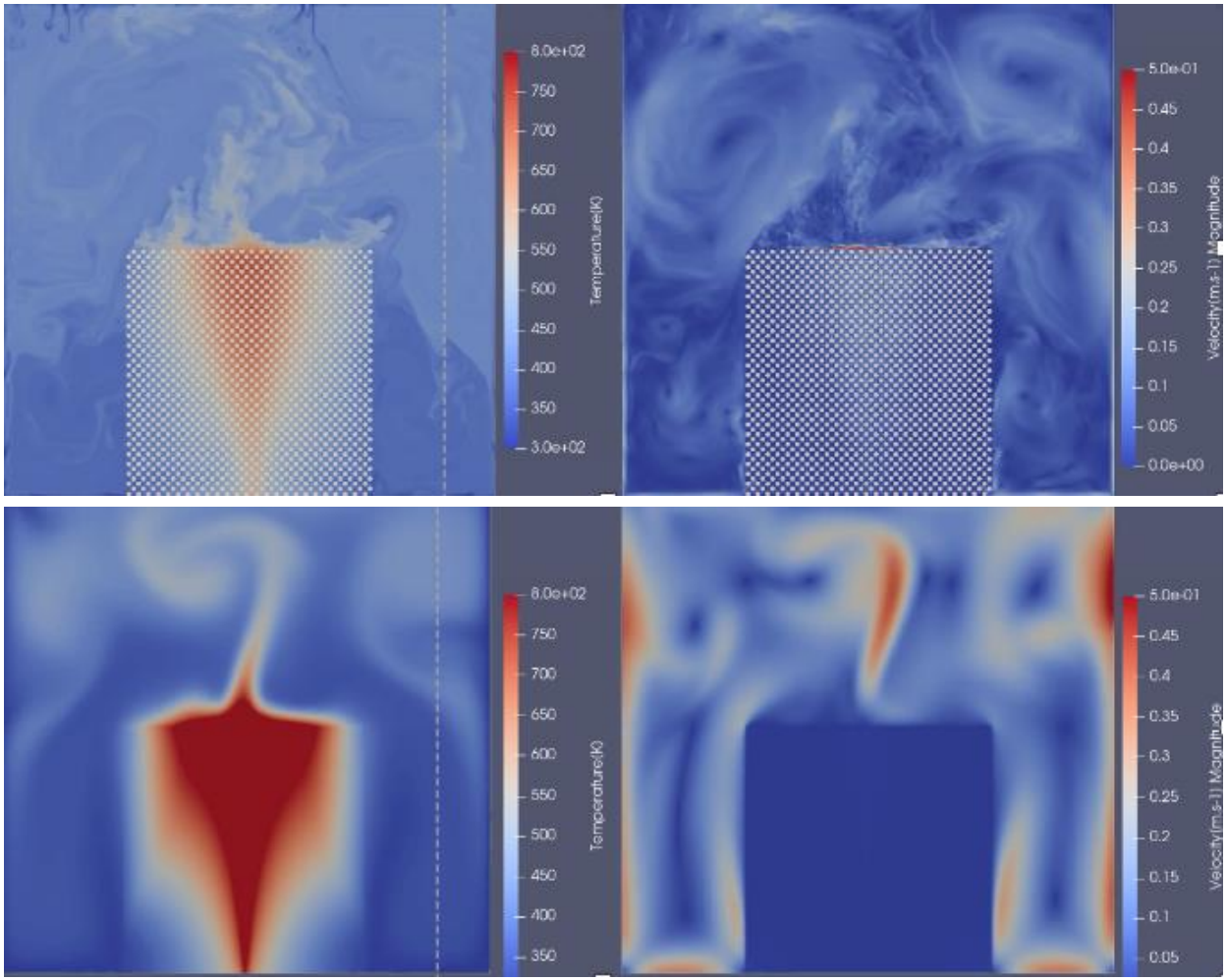
- 直接計算
  - 直径 1 mmの球の形状をそのまま入力
- ポーラス体解析機能を使用
  - 直径 1 mmの球で構成される多孔質体を空隙率を有する領域として表現

直接計算とポーラス体解析機能を用いた計算

t = 0～50での平均値

直接計算

ポーラス体解析機能を使用



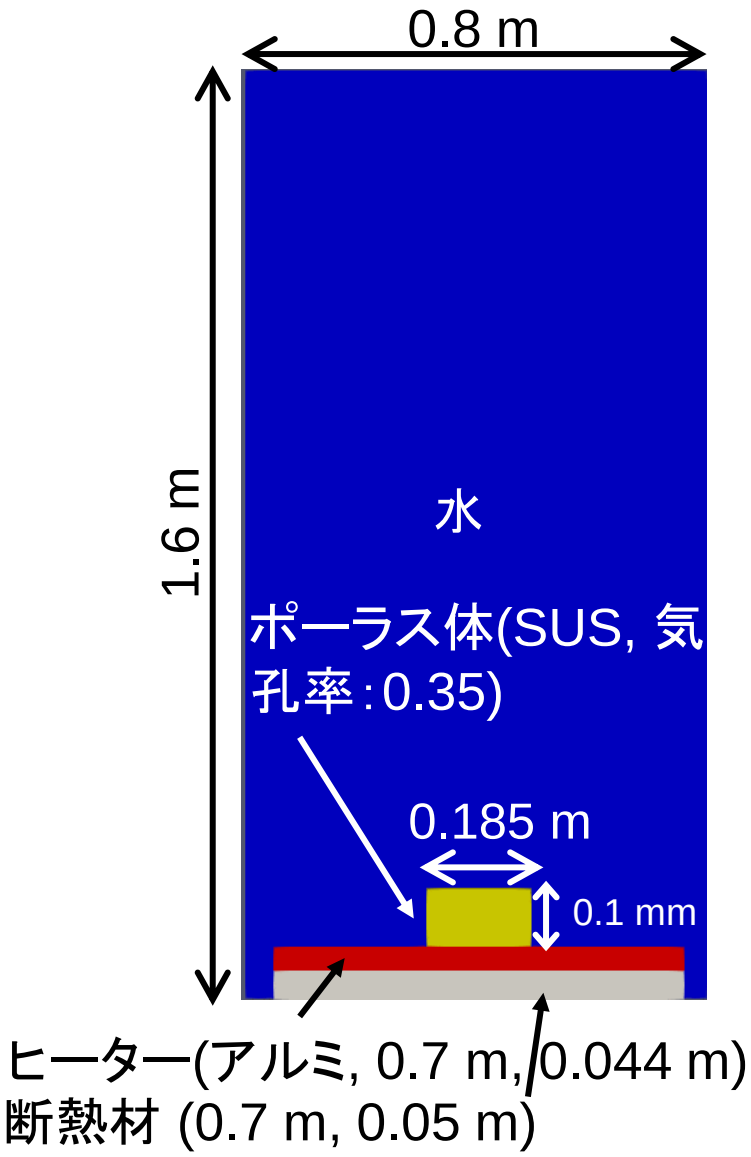
温度　　速度

自然対流＋多孔質体の条件でポーラス体解析機能を用いた解析による温度分布が直接計算と最高温度、分布とも一致しており、当該条件に対する基本的な適用性を確認。

燃料デブリ模擬流動試験による検証

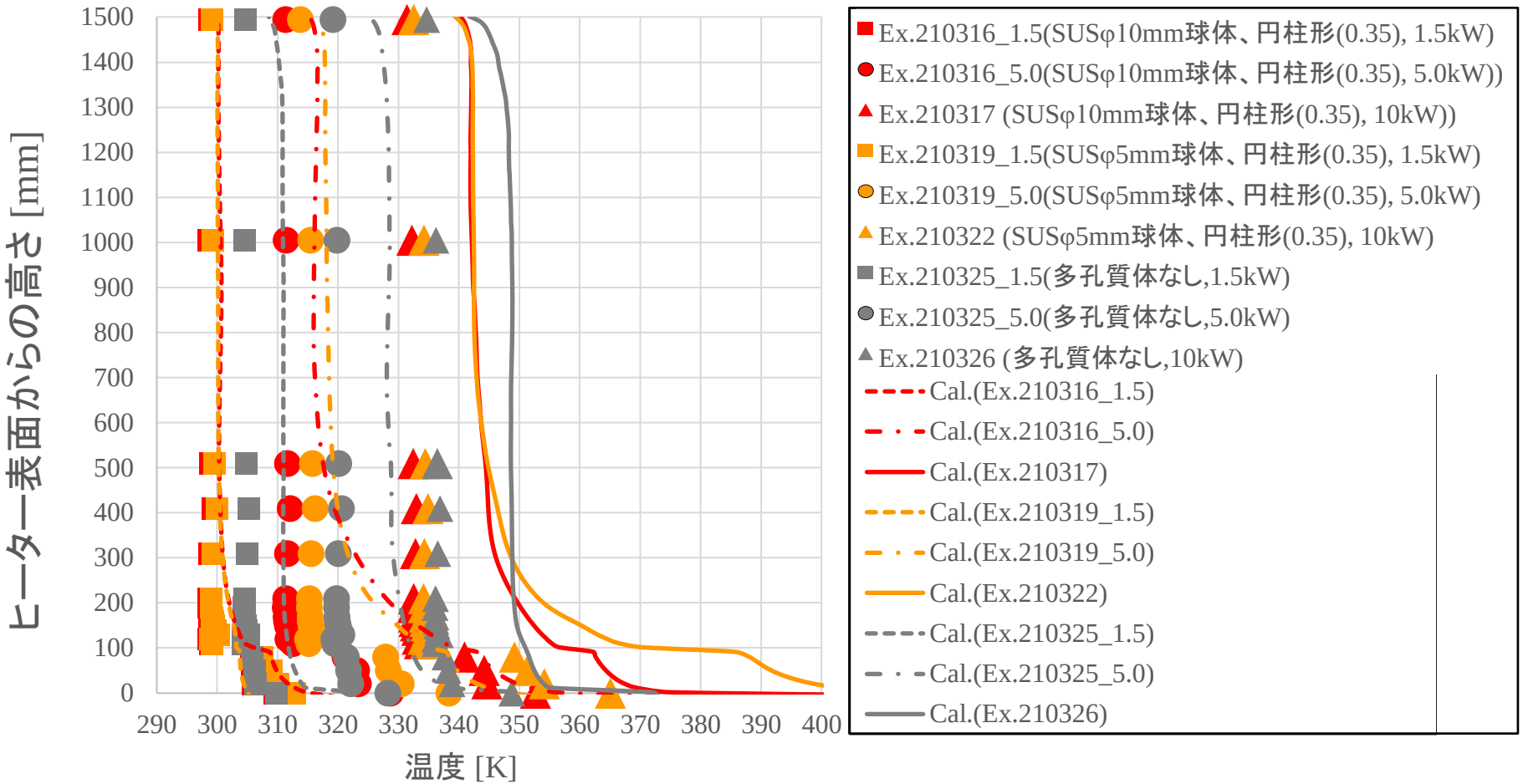
計算条件
領域長： 1.6 m×0.030 mm×0.8 m
解像度： 10 mm

境界条件
壁面:滑りなし壁, 一定温度
（奥行方向は滑りあり壁、断熱境界）



計算体系

試験結果との温度分布の比較

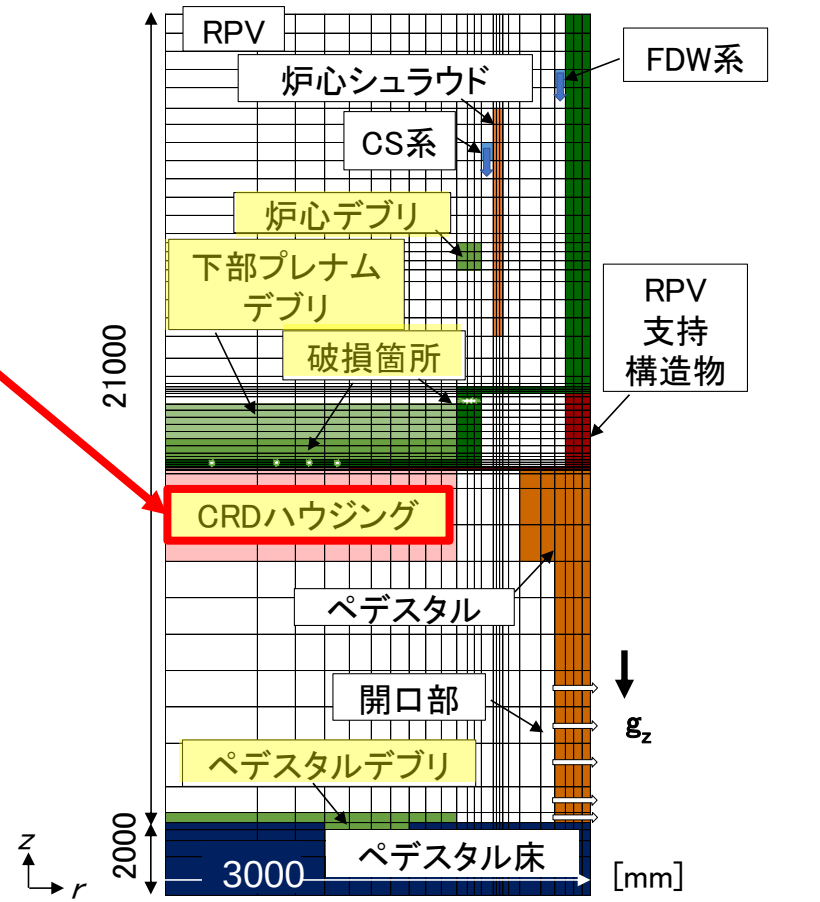


- 多孔質体内での温度の上昇、SUS球の径が小さい場合の温度の上昇などを定性的に再現し適用性を確認。
- 定量的には、多孔質体がない場合を含めて過大評価の傾向がある。 2次元解析としたこと、ポーラス体解析機能のパラメータの設定の問題に加え、加熱量の増加により差異が拡大することから境界条件の設定が影響したものと考えられる。

実機形状模擬解析

- 部分形状模擬解析
  - 実機解析でポーラス体解析機能で構造を表現する部分(CRDハウジング)を対象に、複雑な形状を抽出した解析により、ACE-3D解析におけるパラメータ設定に利用

- 実機模擬解析
  - ２号機の空冷状態を対象とした大規模熱流動解析



格子数：25×60=1,500

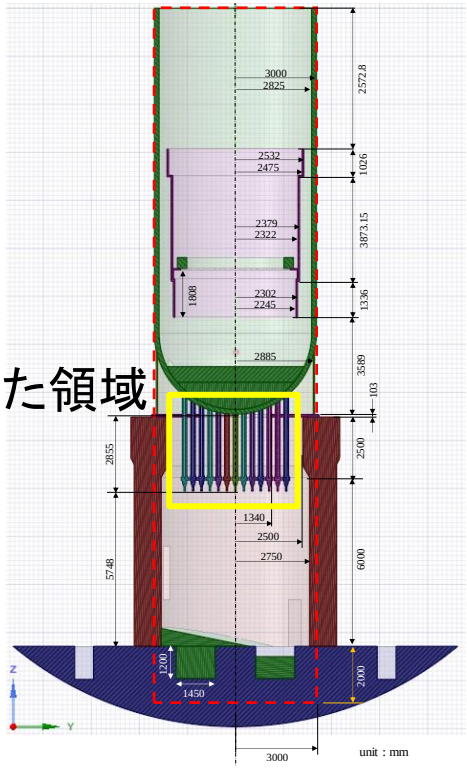
ポーラス体解析機能で表現した部分・領域

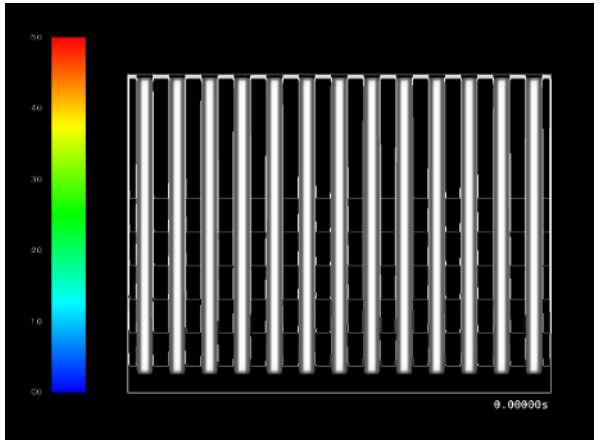
ポーラス体解析機能で構造を表現した部分

解析対象

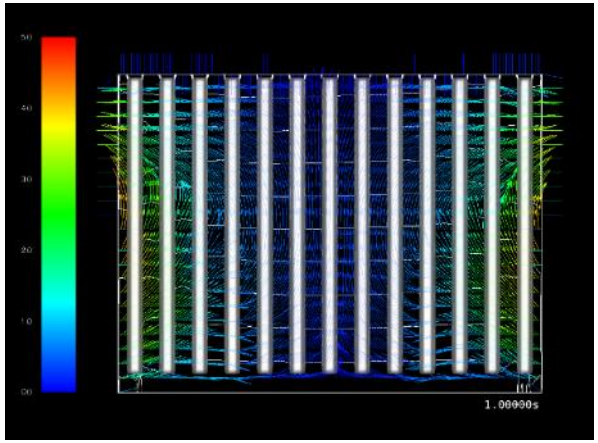
部分形状模擬解析結果

対象とした領域

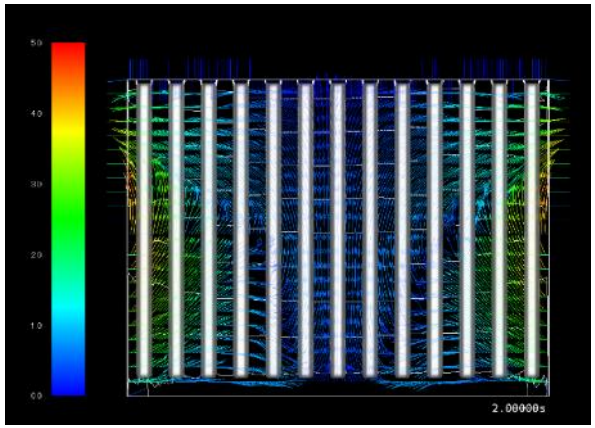




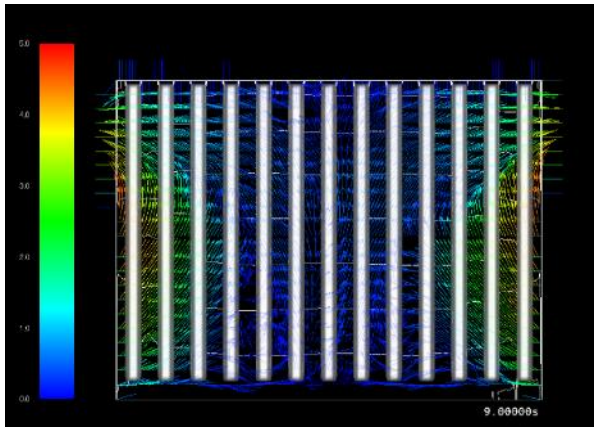
0.0s



1.0s



2.0s



9.0s

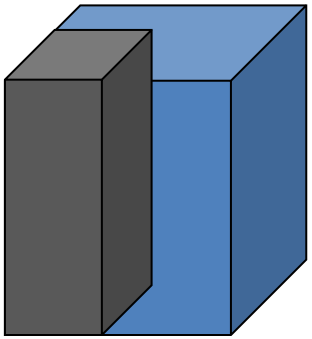
- JUPITERによりCRDハウジングを簡易に模擬した体系の解析を実施し流動場に関する情報を取得。
- CRDハウジング内部で速度が小さく、圧力分布も小さいことを確認。

ACE-3D解析条件

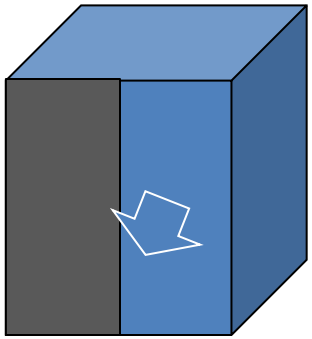
格子数13×15＝195

Case	空隙率	X方向開口率	Z方向開口率	乱流モデル	付加損失
0	0.766	1.0	0.766	Off	Off
1	0.766	1.0	0.766	Off	On
2	0.766	0.545	0.766	Off	Off
3	0.766	1.0	0.766	On	Off
4	0.766	0.545	0.766	On	Off
5	0.766	0.545	0.766	On	On

当初設定

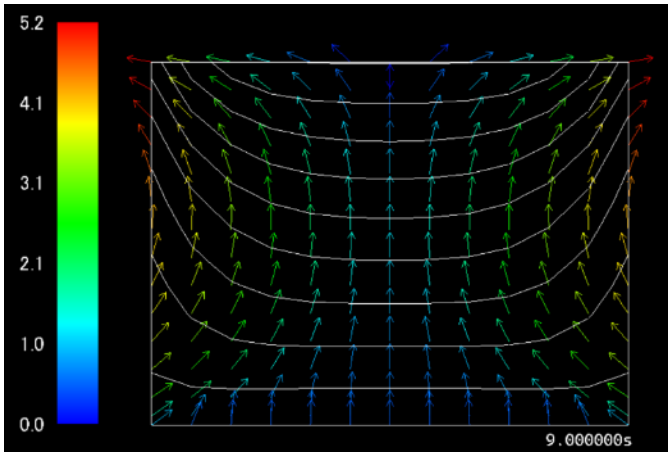


空隙率(セル体積中の流体の割合)

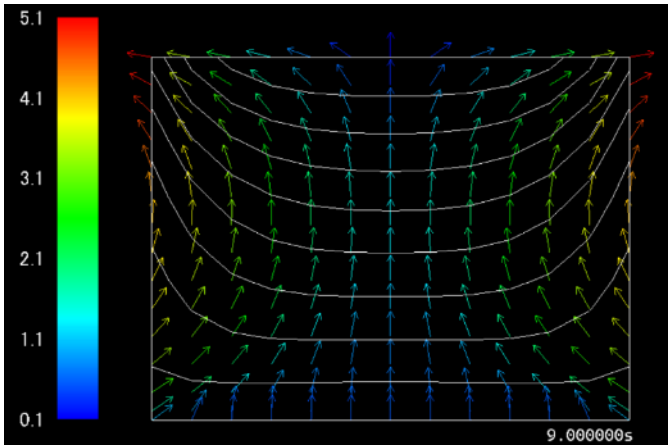


開口率(セル間で流体が通過できる面積の割合)

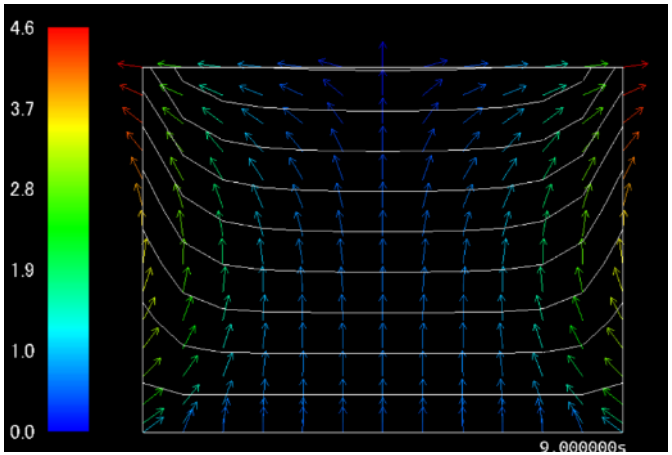
ACE-3D解析結果



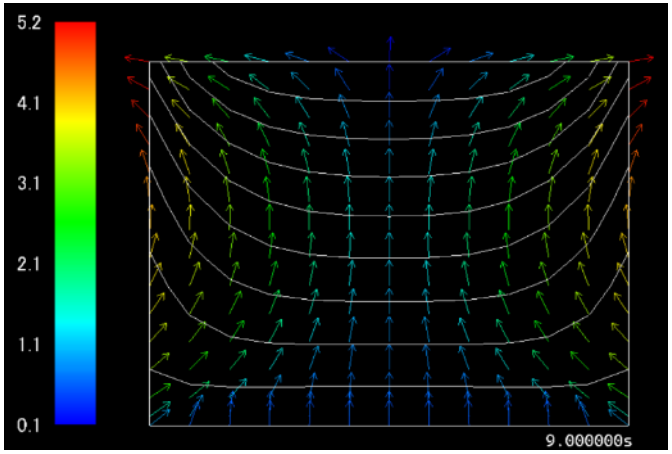
Case 0



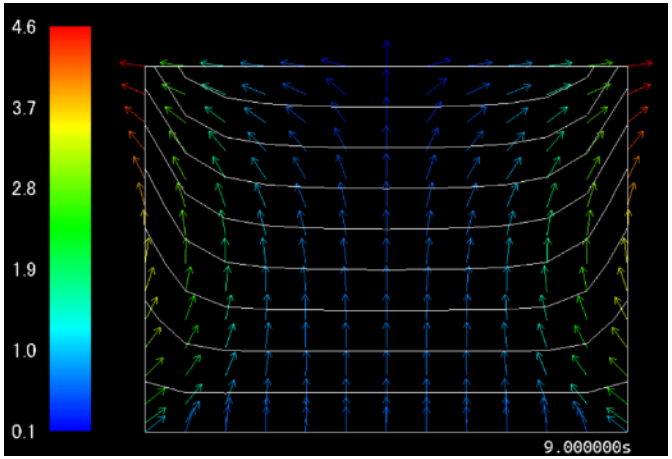
Case 1



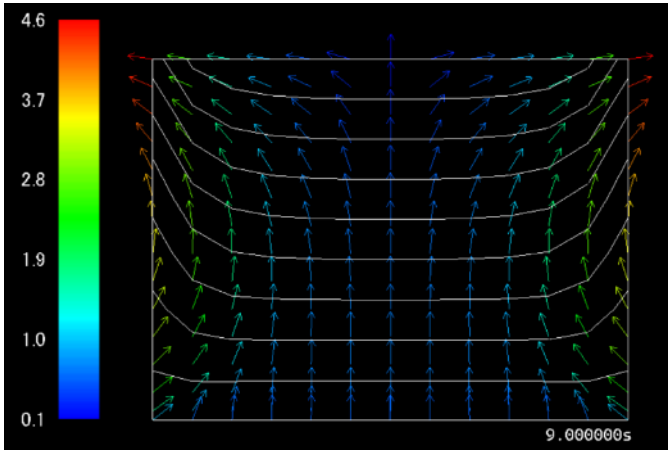
Case 2



Case 3



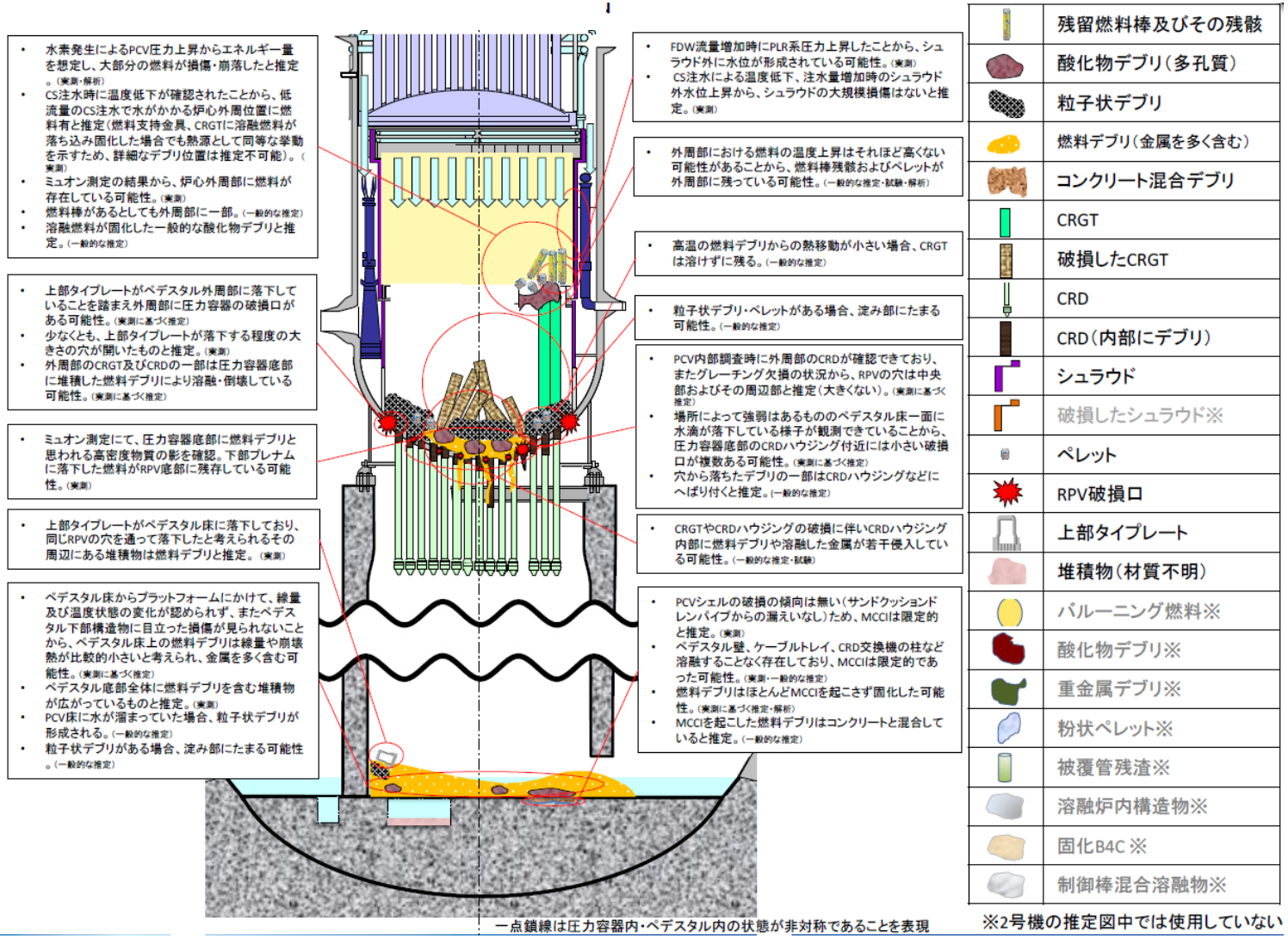
Case 4



Case 5

- Case 2, 4, 5(X方向の開口率を最小値とする)→詳細解析の結果をおおよそ再現できる。
- 解析の安定性なども考慮し、Case 4のパラーメータをACE-3Dによる実機解析に適用。

実機解析条件の検討

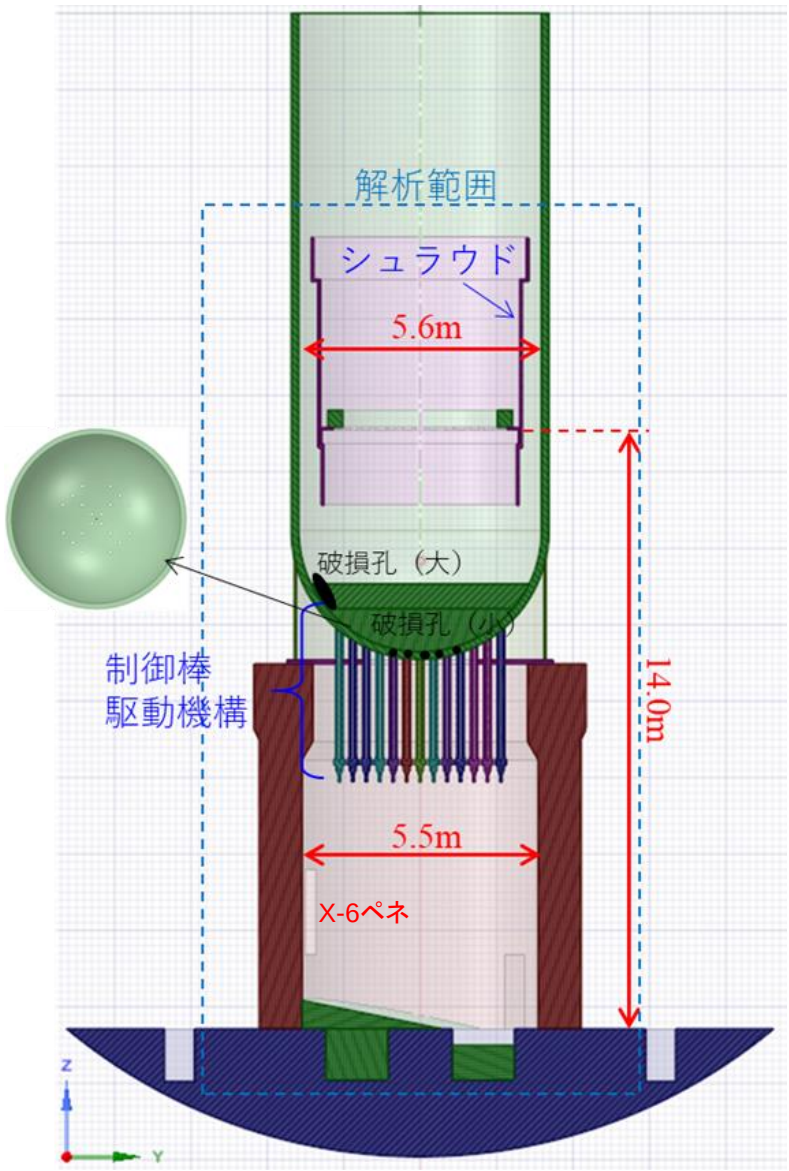


参考資料：

◆ 「廃炉・汚染水対策補助事業（総合的な炉内状況把握の高度化）」平成29年度成果報告　p.18

⇒ 炉心下部の外周部、圧力容器下部、ペデスタル床面にそれぞれ燃料デブリが存在すると考えた。

解析体系



➢ **福島第一原子力発電所２号機の寸法**

東京電力ホールディングスのホームページ情報（https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/outline_f1/）に基づき設定

➢ **制御棒駆動機構**

炉容器下部から下にある制御棒駆動機構について再現。燃料集合体数548本であることから、駆動機構は137本を設定。（「廃炉・汚染水対策補助事業（総合的な炉内状況の高度化）」平成29年度成果報告p.18における２号機の燃料デブリ分布・RPV・PCV状態の推定図を参照）

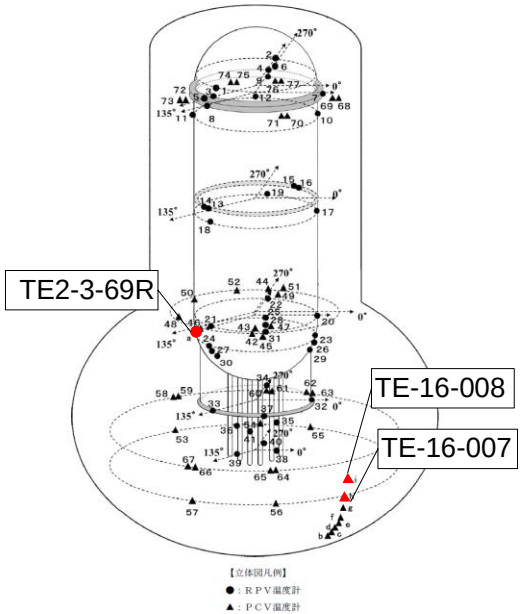
➢ **破損口の模擬**

内部調査結果を参考に、タイプレートが通過できるほどの穴を設置。場所は、ペデスタル内で一番燃料デブリ堆積高さが高いと思われる内部監察用カメラの釣りおろし位置（X-6ペネ）の上方に直径500mm程度の穴を設けた。また、炉容器下部にもクラックを模した小孔を数か所設置した。（「福島第一原子力発電所２号機原子炉格納容器内部調査結果について（2018年4月26日）」）

➢ **解析範囲**

炉容器、ペデスタルおよび格納容器の一部を含む10.24m×10.24m×20.48mの矩形領域とした。解析メッシュ幅は、制御棒駆動機構を解像できるように40mmと設定。解析格子数は、33,554,432。

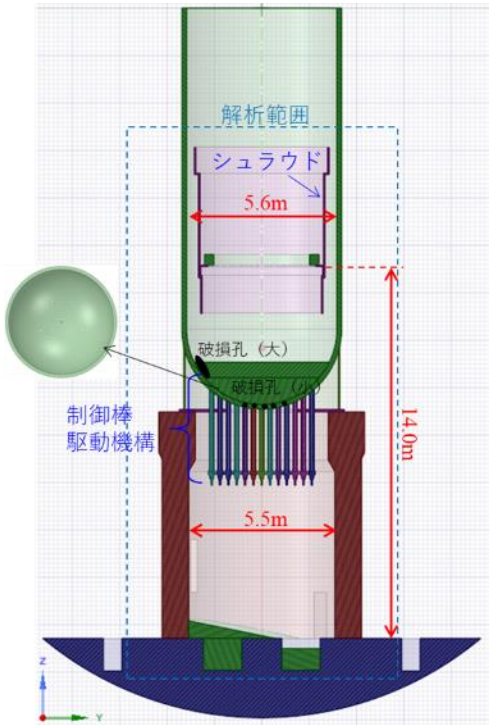
解析条件



参照温度計測点位置*3

炉内各所の初期温度条件*1

部位	参照温度計測点	値
RPV	TE-2-3-69R	初期温度：34.8℃
シュラウド	〃	同上
炉心支持板	〃	同上
RPV支持構造物	TE-16-008/007	初期温度：31.95℃ 008：31.8℃、 007：32.1℃　の平均
制御棒支持板	TE-16-008/007	同上
ペデスタル	TE-16-008/007	同上
制御棒	TE-16-008/007	同上
ペデスタル下部	TE-16-008/007	同上
炉心部 燃料デブリ	TE-2-3-69R	初期温度：34.8℃
下部プレナム 燃料デブリ	TE-2-3-69R	同上
ペデスタル 燃料デブリ	TE-16-008/007	初期温度：31.95℃
雰囲気	気体温度 TE-16-008/007	初期温度：31.95℃
炉外	TE-16-008/007 境界温度	31.95℃



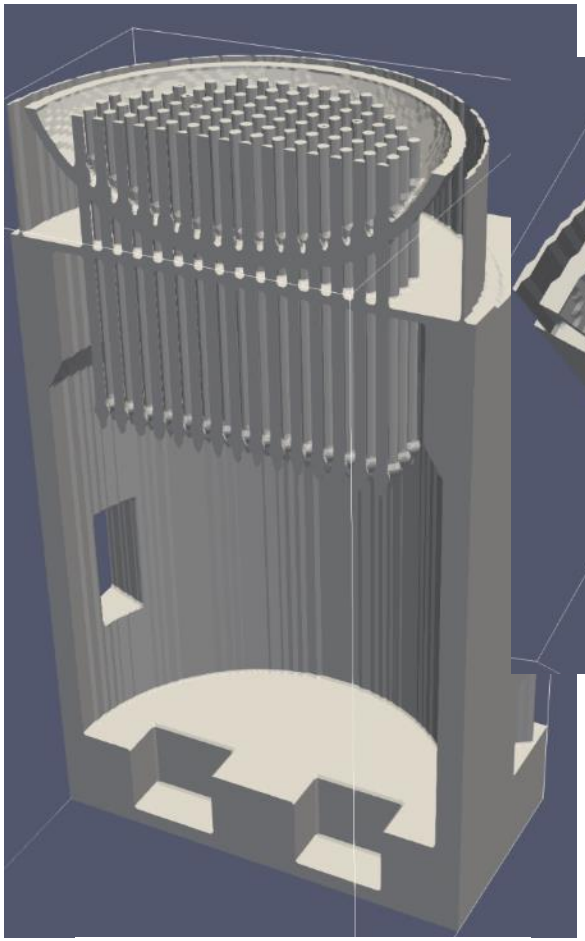
解析体系

解析領域の境界条件*2

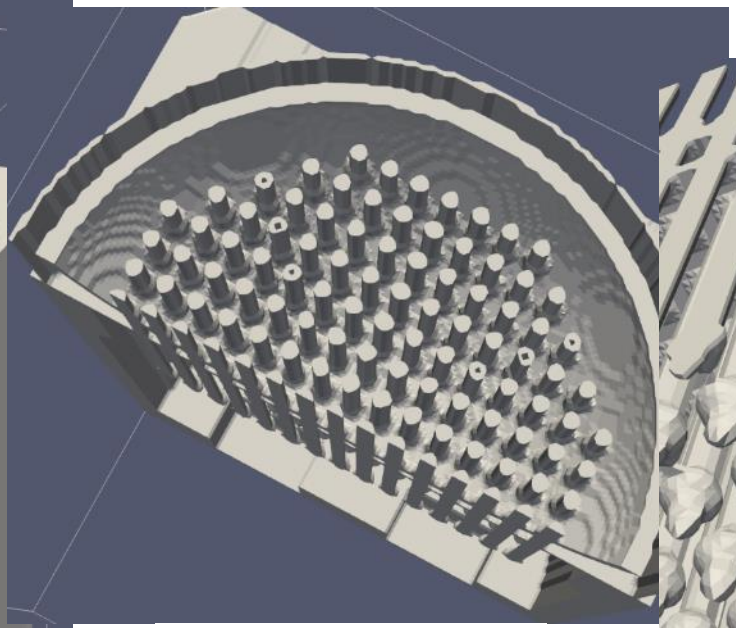
位置	流動境界	温度境界
X-方向	SLIP	ISOTHERMAL
X+方向	SLIP	ISOTHERMAL
Y-方向	SLIP	ISOTHERMAL
Y+方向	SLIP	ISOTHERMAL
Z-方向	WALL	INSULATION
Z+方向	OUT	ISOTHERMAL

*1) 速度場、圧力場については、速度0、圧力均一の条件を付加
*2) 解析には直交格子を用いており、X、Y方向には同一の条件を付加
*3) https://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/thermometer/pdf/2020/thermometer_20200501-j.pdf

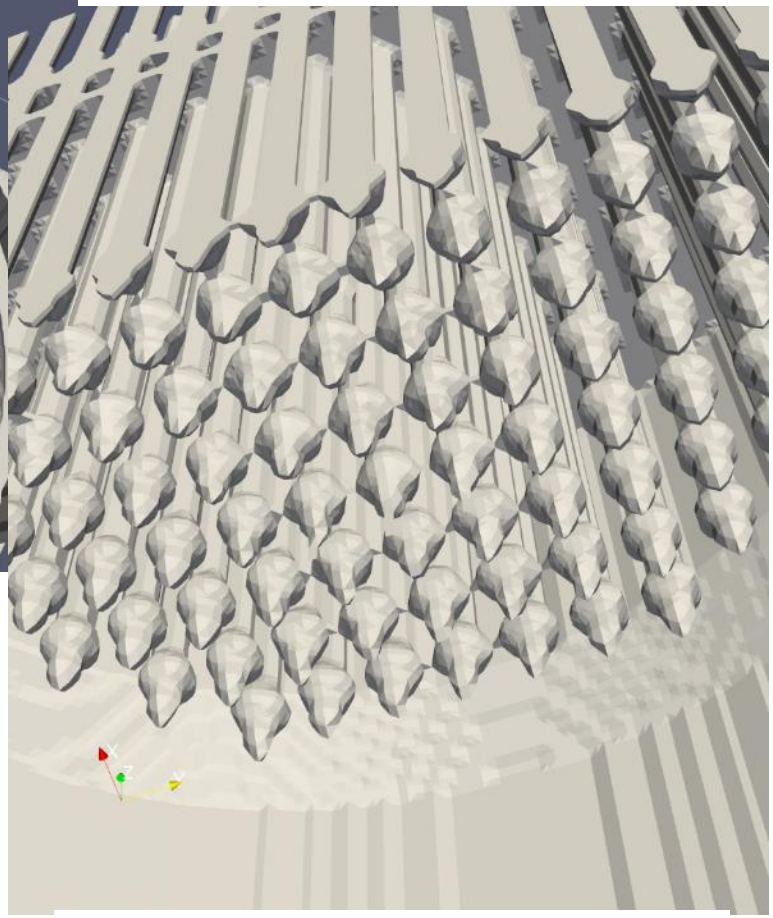
解析で用いた実機形状



圧力容器下部＋ペデスタル全景

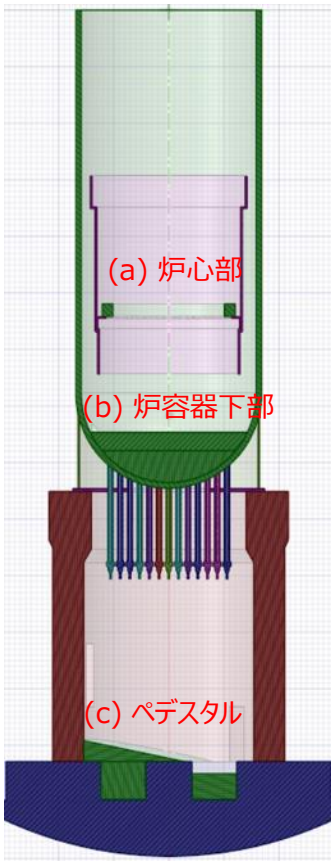


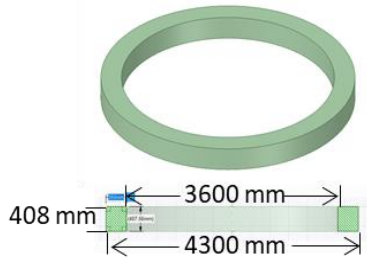
圧力容器を上方より見た図



圧力容器を下方より制御棒駆動機構見上げた図
（水平断面：x-y平面、高さ方向：z）

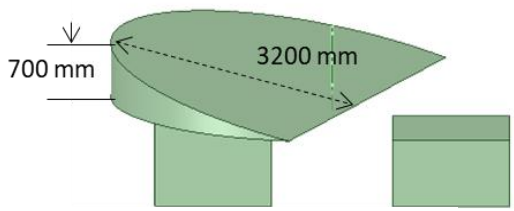
燃料デブリ分布の設定





(a) 炉心部燃料デブリ

(b) 炉容器下部燃料デブリ



(c) ペデスタル内燃料デブリ

設定した燃料デブリ形状・位置

- ✓ 初期炉心部質量：164,400 kg、初期UO_2質量: 94,000 kgと設定。

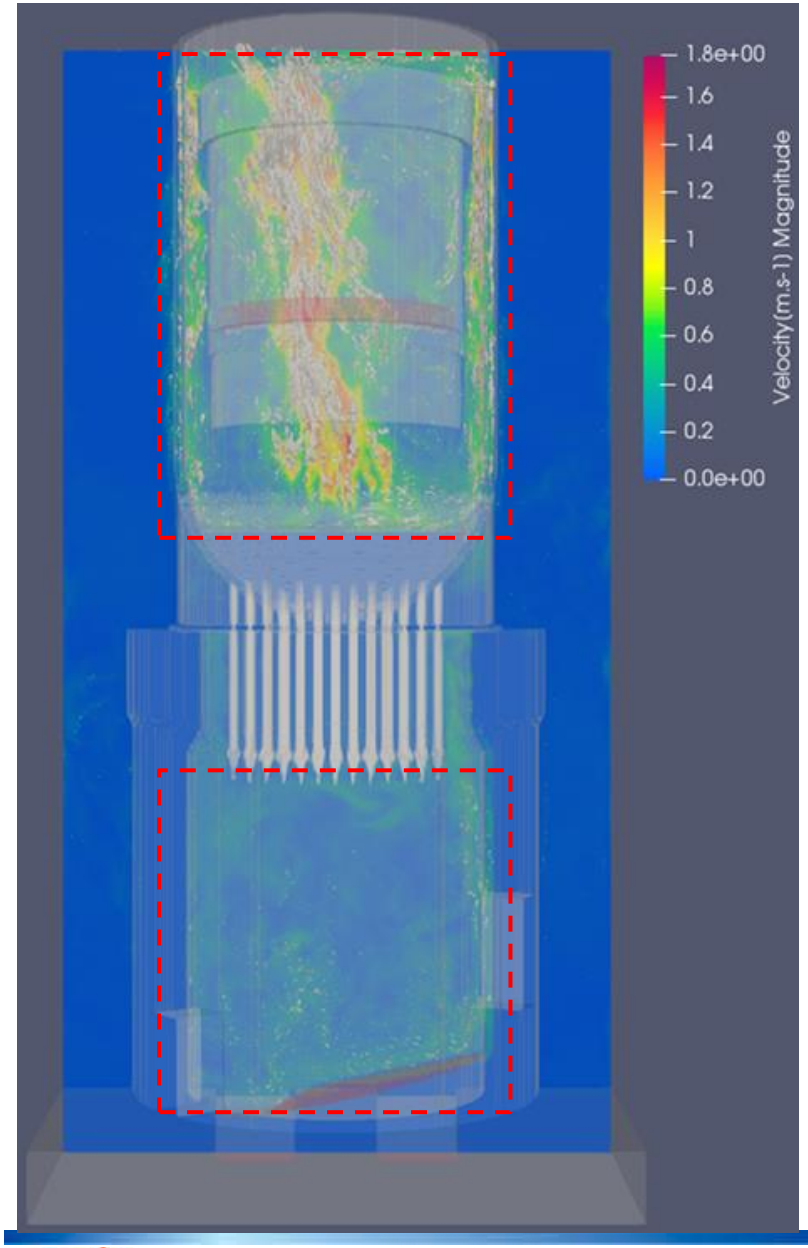
*燃料集合体１体あたりの重さは300 kgとし、装荷された集合体集が548体であることから設定。
（東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン2019 p.149および東京電力ホールディングスのホームページ情報（https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/outline_f1/））

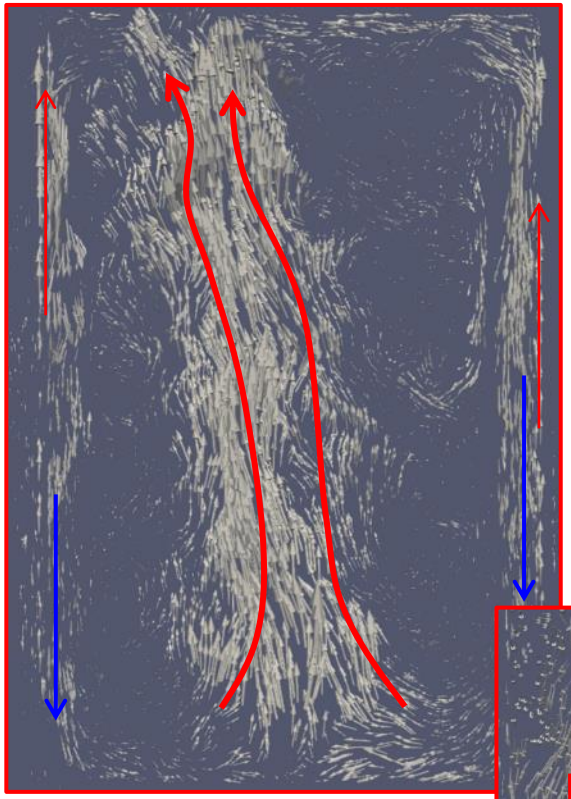
- ✓ MAAP解析結果およびバーチャル原子炉による逆問題解析の知見、公開資料である「２号機のデブリ分布・RPV・PCV状態の推定図」、「福島第一原子力発電所２号機原子炉格納容器内部調査結果」から、炉心部、炉容器下部、ペデスタル内の燃料デブリの体積および発熱量を算出（下部表参照）。
- ✓ 全体の崩壊熱80kWにて熱バランス解析を実施し、炉内温度を過大評価する結果になったことから、10年間におけるFPの放出等を仮定し、全体の崩壊熱総量を35kWに設定。
- ✓ 炉心部は、ミュオンの計測結果より炉心外周部に燃料デブリが堆積しているとの推測により形状を仮定。
- ✓ 炉容器下部では、金属層とUO_2が密度比により分離して2層となっていることを仮定。
- ✓ ペデスタル内の燃料デブリは、格納容器内部調査結果を参照に0.7m～0.4mの範囲で堆積することを仮定。

設定した燃料デブリの量・発熱量など

場所	UO_2[kg]	構造物[kg]	体積[m^3]	空隙率	発熱量（25日後）[kW]	発熱量（2020年）[kW]	発熱量（2020年）放射性物質の流出を考慮[kW]
炉心部	13,630	0	1.77	0.3	400	10	4.79
炉容器下部	61,100	56,790	18.2	0.3	2000	50	21.5
ペデスタル	19,270	13,610	8.7	0.6	800	20	8.75
合計	94,000	70,400	28.7	-	3200	80	35.0

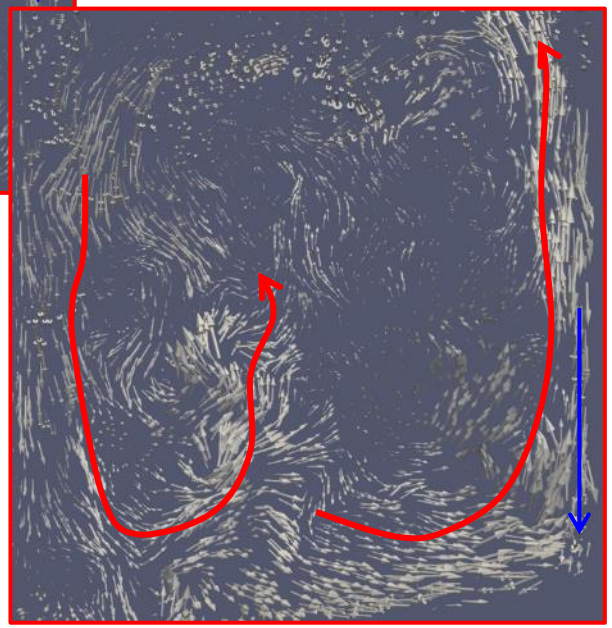
炉容器および格納容器内自然対流





＜炉容器内の流動＞

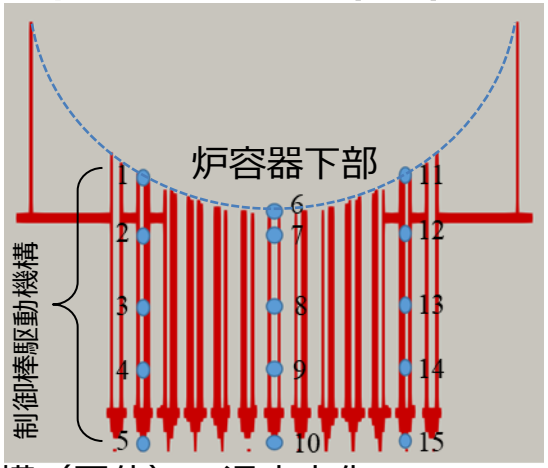
- ✓ 炉容器下部燃料デブリにより熱せられるため強い上昇流が生じる。
- ✓ シュラウド-炉容器外壁のアニュラス部で下降流が生じる。
- ✓ シュラウド-炉容器外壁間では下降流も見られることから複雑な流動が形成される。

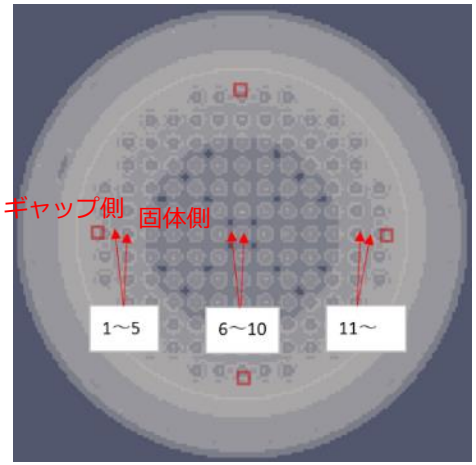


＜ペデスタル内の流動＞

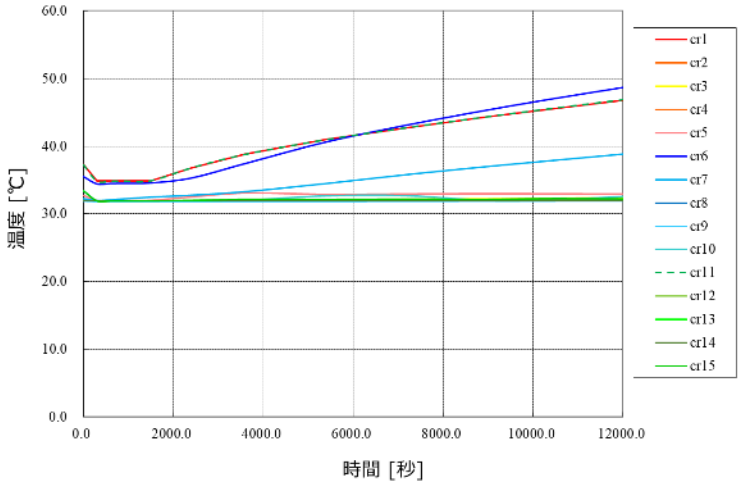
- ✓ ペデスタル内の燃料デブリの発熱により温められた空気の上昇流が発生するものの、発熱量が小さいために強い流れは生じない。

制御棒駆動機構周辺の温度変化

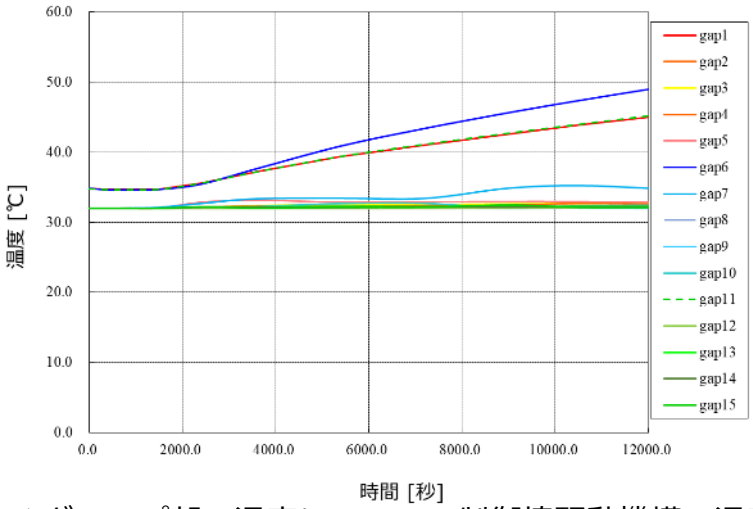




▼制御棒駆動機構（固体）の温度変化



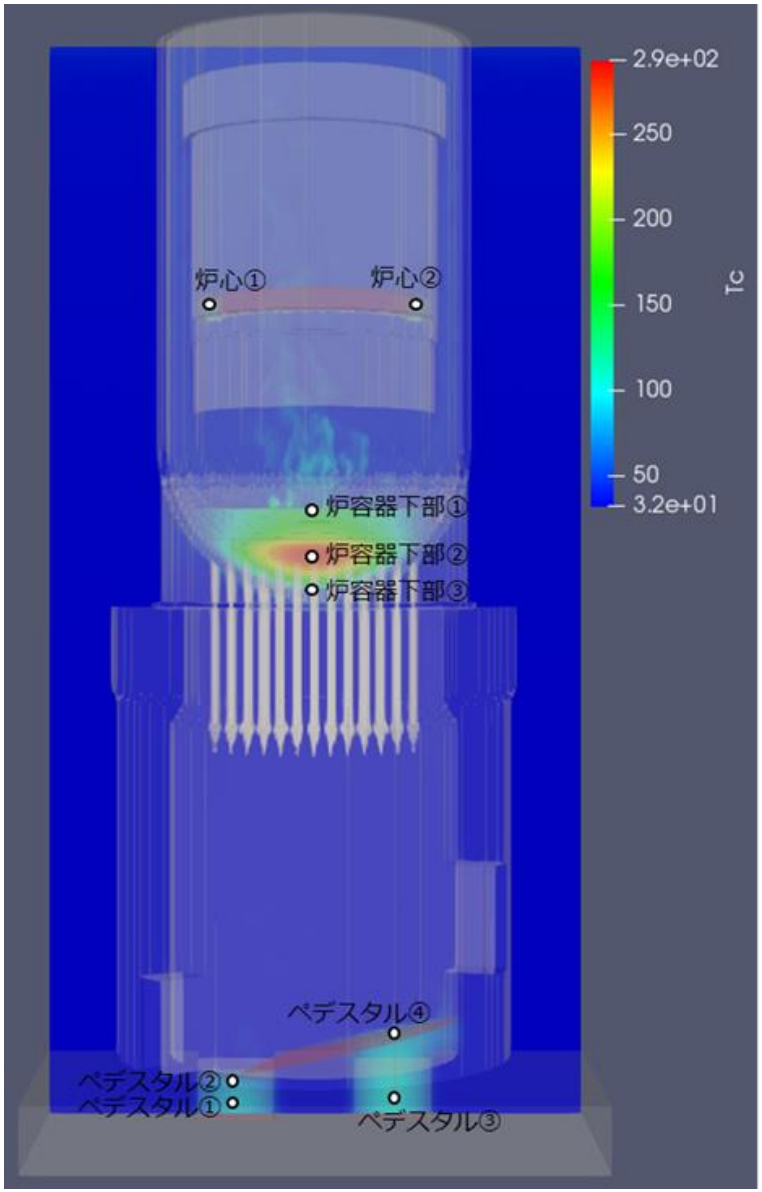
▼制御棒駆動機構（ギャップ）の温度変化



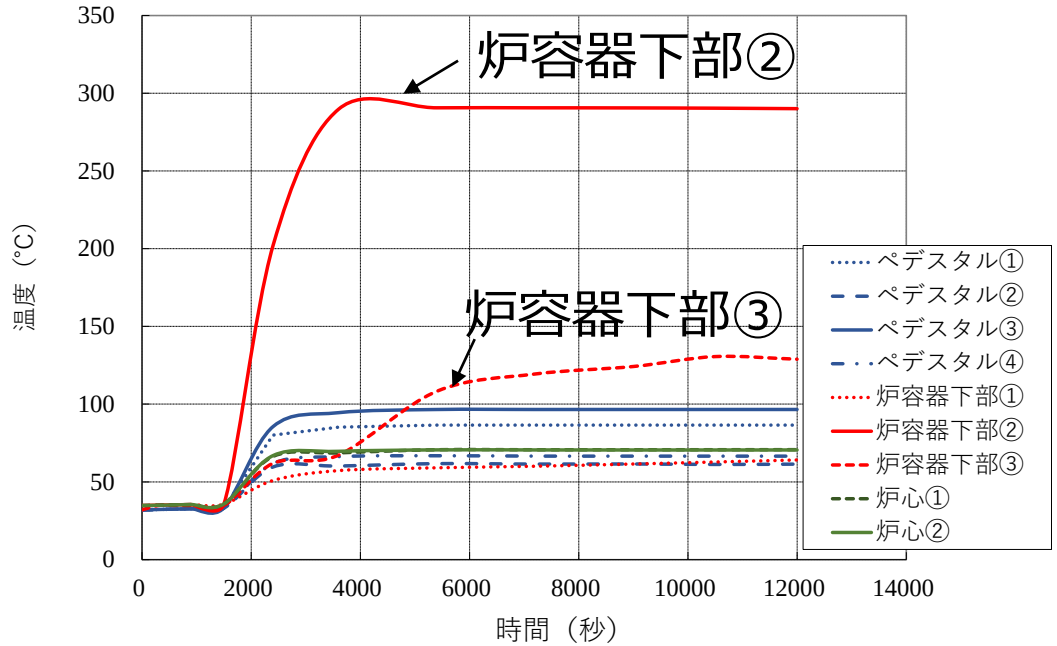
- ✓ 炉容器に接続している部分では温度が上昇傾向にあるが、炉容器下部燃料デブリ温度はほぼ一定値になっているため、時間の経過とともに一定値に漸近すると考えられる。
- ✓ 炉容器下部での燃料デブリは発熱しているものの、制御棒駆動機構の固体内の軸方向温度分布のため、熱は制御棒駆動機構先端に向けて流れていることが考えられる。
- ✓ ギャップ部の温度について、制御棒駆動機構の温度に追随して上昇し、駆動機構とギャップ部の温度差も大きくないことから、制御棒駆動機構自体から大気への放熱も起こっていることが示唆される。

制御棒駆動機構がフィンのような働きをして、燃料デブリで温められた炉容器下部の熱を放出をしていることが考えられる。

空冷時の温度変化



12,000秒後の炉内温度分布



空冷による自然循環冷却開始後の燃料デブリ温度変化

- ✓ 炉容器下部のウラン堆積層の中心部で高温となっているが、ペデスタル部および炉心部の溶融燃料では目立ったホットスポットはない。
- ✓ 高温点となっている炉容器下部②では、比較的安定し一定値を保つことや、炉容器底部と接する炉容器下部③においても12000秒後ではほぼ一定値となり安定に冷却されている。
- ✓ 炉心部、ペデスタル部の各所温度についても50～100℃の間で安定した冷却が継続されている。
- ✓ 炉容器下部のUO_2層内部の温度は高くなる結果となったが、炉容器下部に堆積した燃料デブリの空隙率が大きく影響をしていると考えられるため、パラメータサーベイを含め検討が必要。

4.2 空冷時燃料デブリ詳細熱挙動解析のまとめ

- ACE-3Dによる評価手法に対する比較データの提供のため、JUPITERへのポーラス体解析機能の導入、試験との比較による検証、実機を模擬した詳細解析を実施した。
  - 一部に試験結果との差異が見られた。この原因としては、本解析が2次元体系によること、ポーラス体解析機能に対するパラメータの設定の問題、境界条件設定の影響が考えられる。
  - CRDハウジングを模擬した解析を実施し、ACE-3Dの解析結果との比較により、CRDハウジングをポーラス体解析機能で模擬する場合のパラメータを決定した。
  - 福島第一原子力発電所２号機をモデルとした３次元熱流動解析用モデルを構築した。本モデルの設定情報はACE-3Dによる実機解析にも適用された。
  - 空冷時の解析を実施した結果、各燃料デブリ温度は一定値に漸近し、空気冷却によって安定的に冷却されることが分かった。

4.3 空冷時熱挙動評価

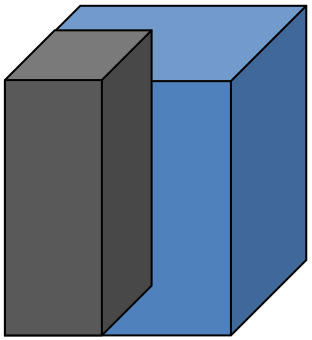
- 目的
  - 空冷時における燃料デブリ熱挙動の推定
- 実施方法
  - 注水時(二相流時)＋空冷時の熱挙動に対しての数値シミュレーションに、統計平均モデルを用いた二相CFDコードACE-3Dを適用
  - 4.3-1 ACE-3Dへの熱物性の影響を反映できる機能の追加
  - 4.3-2 4.1 の試験結果による検証 ← a c
  - 4.2-3 4.2 の結果を利用し解析条件の検討、パラメータの設定を実施 ← b
  - 4.3-3 2号機の温度履歴の再現
  - 4.3-4 4.3-4の境界条件、燃料デブリ位置を用いて空冷時挙動を解析
- アウトプット
  - 空冷時の熱挙動評価結果
  - 熱挙動評価手法

ACE-3Dのポーラス体解析機能について

質量保存式(差分表現):

例えば、FA_xが小さくなると質量保存のため$u_k^{(n+1)}$が増加

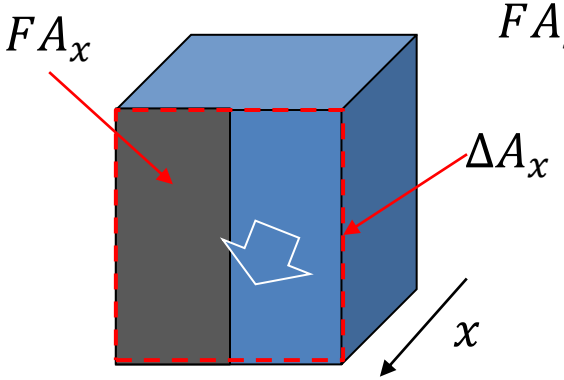
$$
\begin{aligned}
&M_{k,i,j,k} \\
&\equiv (\alpha_k\rho_k)_{i,j,k}^{(n+1)} - (\alpha_k\rho_k)_{i,j,k}^{(n)} \\
&+\frac{\Delta t}{vol}\left\{\left(FA_x u_k^{(n+1)}\langle\alpha_k\rho_k\rangle\right)_{i+1/2,j,k} - \left(FA_x u_k^{(n+1)}\langle\alpha_k\rho_k\rangle\right)_{i-1/2,j,k}\right\} \\
&+\frac{\Delta t}{vol}\left\{\left(FA_y v_k^{(n+1)}\langle\alpha_k\rho_k\rangle\right)_{i,j+1/2,k} - \left(FA_y v_k^{(n+1)}\langle\alpha_k\rho_k\rangle\right)_{i,j-1/2,k}\right\} \\
&+\frac{\Delta t}{vol}\left\{\left(FA_z w_k^{(n+1)}\langle\alpha_k\rho_k\rangle\right)_{i,j,k+1/2} - \left(FA_z w_k^{(n+1)}\langle\alpha_k\rho_k\rangle\right)_{i,j,k-1/2}\right\} - \Delta t\Gamma_{k,i,j,k}^{(n+1)} = 0
\end{aligned}
$$



$vol = \phi\Delta V$

ΔV:セル体積
vol:流体体積

$FA_x = Fa_x\,\Delta A_x$



空隙率ϕ(セル体積中の流体の割合) 開口率Fa_x (セル間で流体が通過できる面積の割合)

ACE-3Dの改良（機能追加）項目

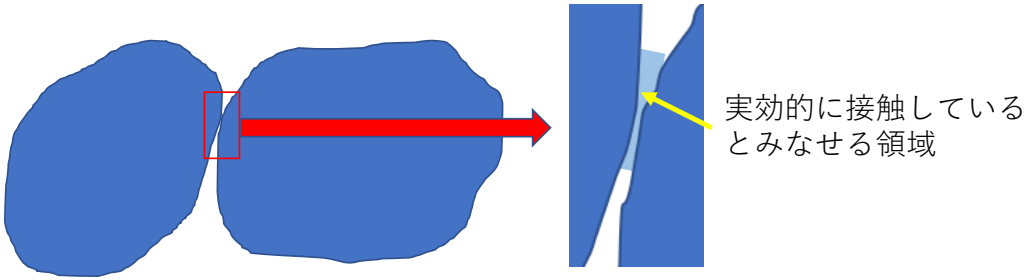
- クローズドポアへの対応

物性値の評価方法（熱伝導率で例示）

$$\lambda_C = \phi_C \lambda_S$$

計算で用いる固体の物性値を、クローズドポアの割合に従って減ずる。

- 燃料デブリ間の熱伝導に関する実効接触面積比の導入



- 燃料デブリ間の接触面積は $(1 - Fa_x)\,\Delta A_x$ で評価。
- 実際の接触面積は微小。

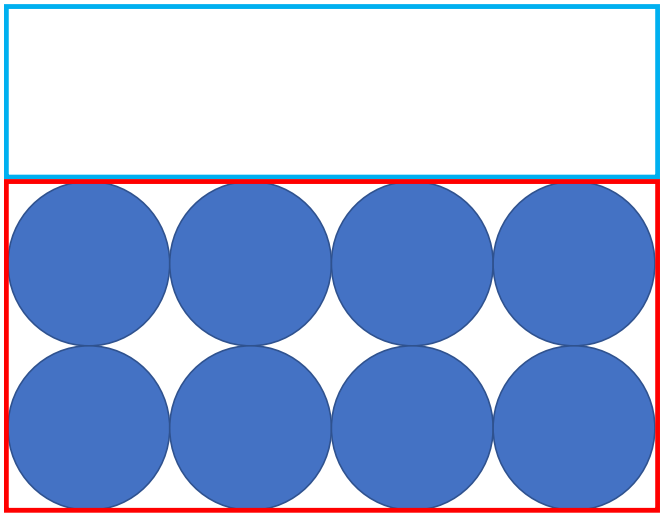
燃料デブリ間の微小な間隙では、熱伝導において実効的に接触しているとみなせる。

↓

実行接触面積比をパラメータとして導入。

ACE-3Dの改良（機能追加）項目

- 燃料デブリを含む領域と流体間の面積



燃料デブリ（多孔質体）の表面が凸凹していることによる伝熱面積の増加を考慮

- 燃料デブリ－流体間の熱伝達

Ranzの式を導入

燃料デブリ内の速度、燃料デブリを構成する物体の大きさ(流路の大きさ)を含む

$$Nu = a + cRe^{m}Pr^{n}$$

$a = 2.0$、$c = 1.8$、$m = 0.5$、$n = 0.33$

ACE-3Dの改良（機能追加）項目

- 燃料デブリ内の乱流の影響について
  - 燃料デブリ内は流体の移動が制限され乱流の影響が減少あるいは無視できることが考えられる。
  - 燃料デブリ内の乱流の影響を無視できるオプションを追加。

$$\mu_{eff} = \mu + \mu_t$$

$$\lambda_{eff} = \lambda + \lambda_t$$

流体物性値

計算で用いる粘性係数

乱流の寄与

＝0として取り扱う

計算で用いる熱伝導率

流体物性値

乱流の寄与

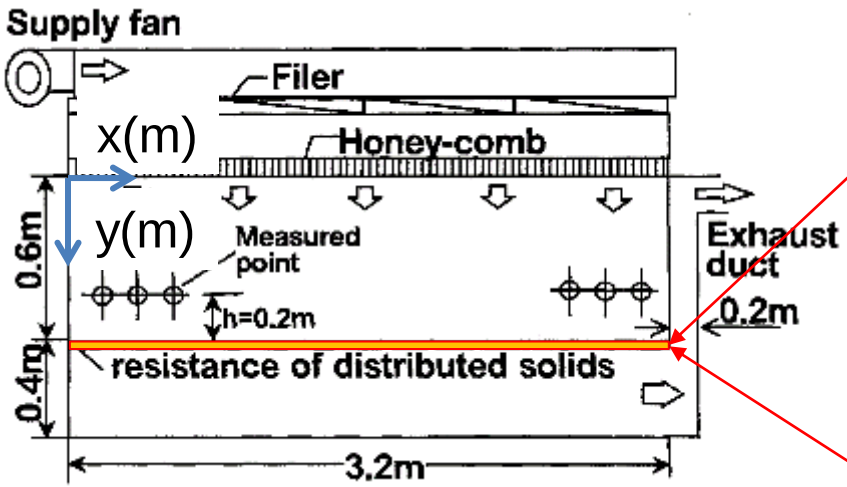
＝0として取り扱う

4.3 ACE-3Dコードの検証

- 多孔質体、自然対流乱流、多孔質体＋自然対流乱流条件での評価を実施

- 多孔質体(ポーラス体解析機能)の評価
  - 気孔率分布の影響評価解析
  - 流出模擬解析
- 自然対流乱流
  - 自然対流に対する既存結果との比較
- 多孔質体＋自然対流乱流条件
  - 燃料デブリ空冷試験解析(パラメータの設定)
  - 燃料デブリ模擬流動試験解析(適応性の確認)

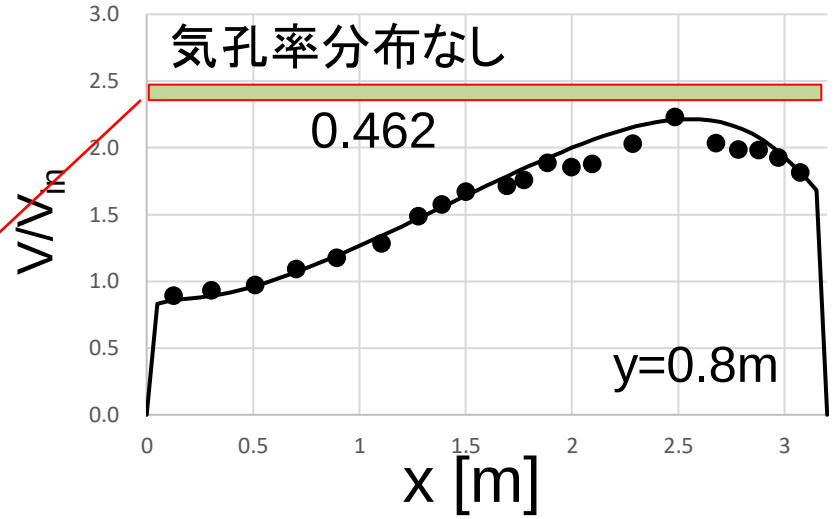
気孔率分布の影響評価解析

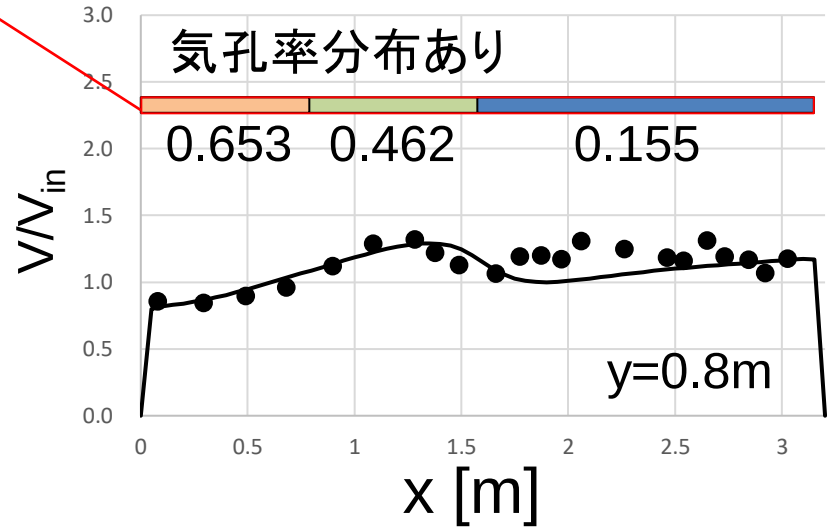


計算・実験*体系

格子数：20×64=1280

*田中ら、多孔質モデルを用いた流路抵抗を有する施設内気流の解析、農業機械学会誌63(4):73～79 (2001)

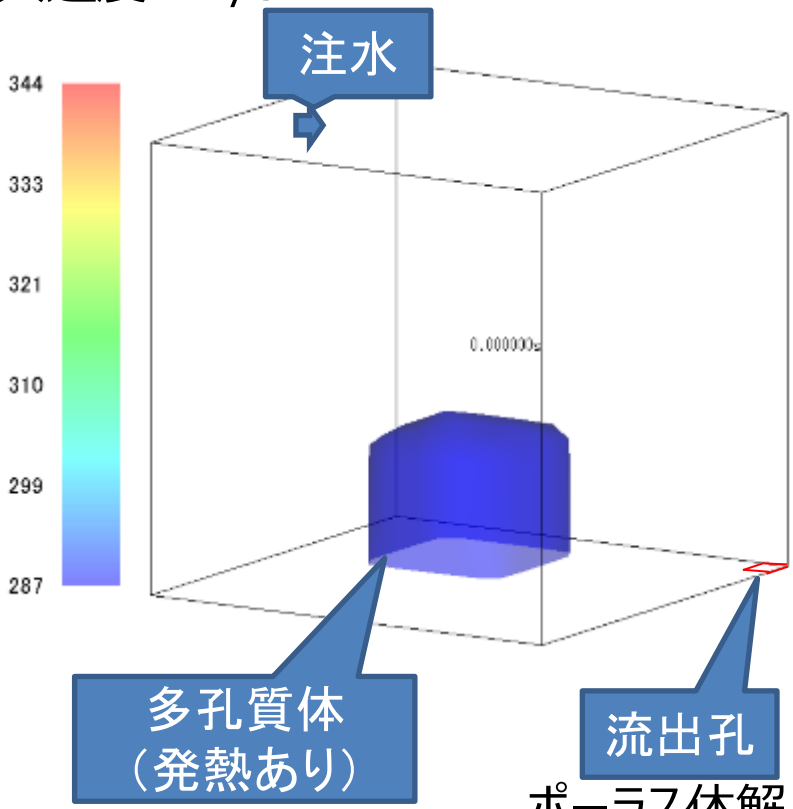




気孔率分布を有する多孔質体を含む流動解析へのACE-3Dの適用性を確認。

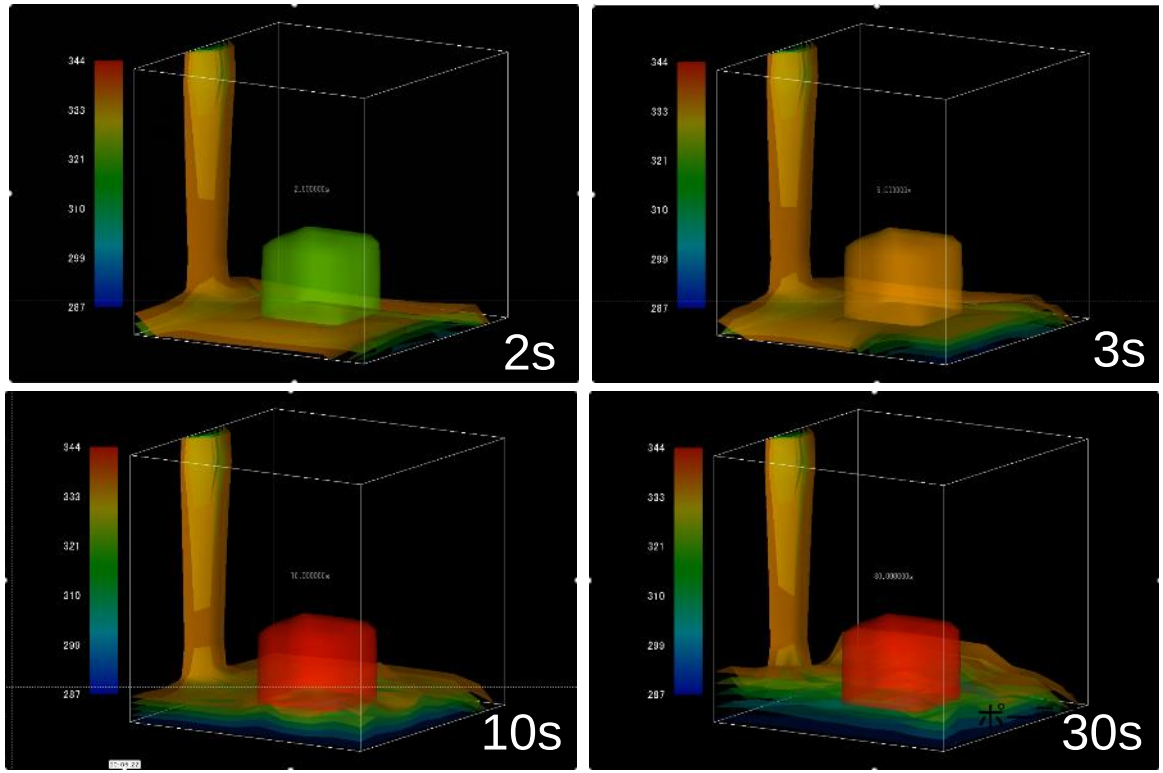
流出模擬解析

流入速度1m/s



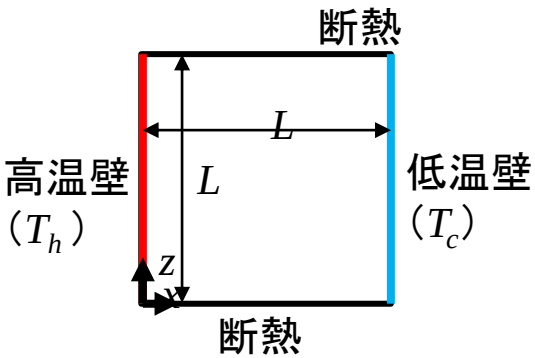
ポーラス体解析機能を適用

1m×1m×1m
流入・流出孔(0.1m×0.1m)
格子数(10×10×10)

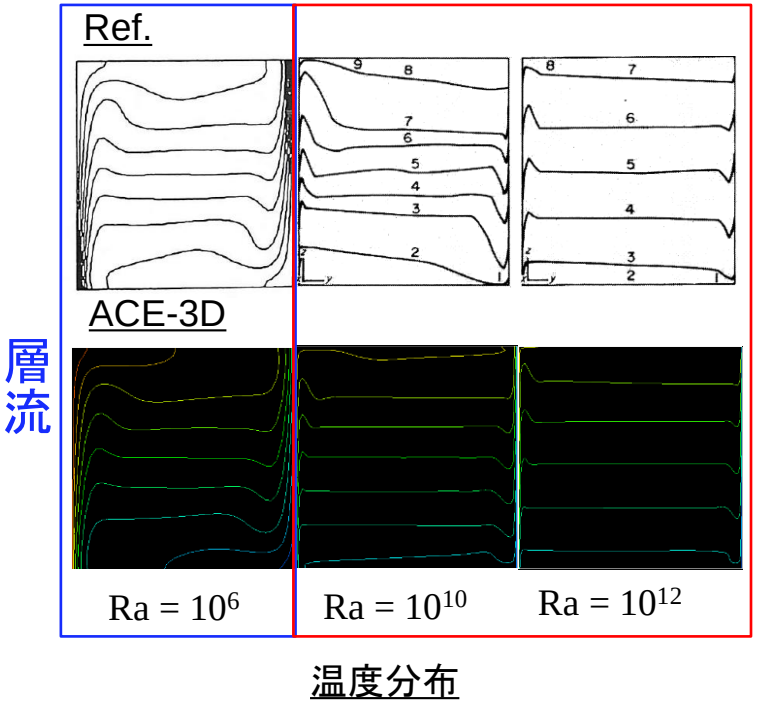


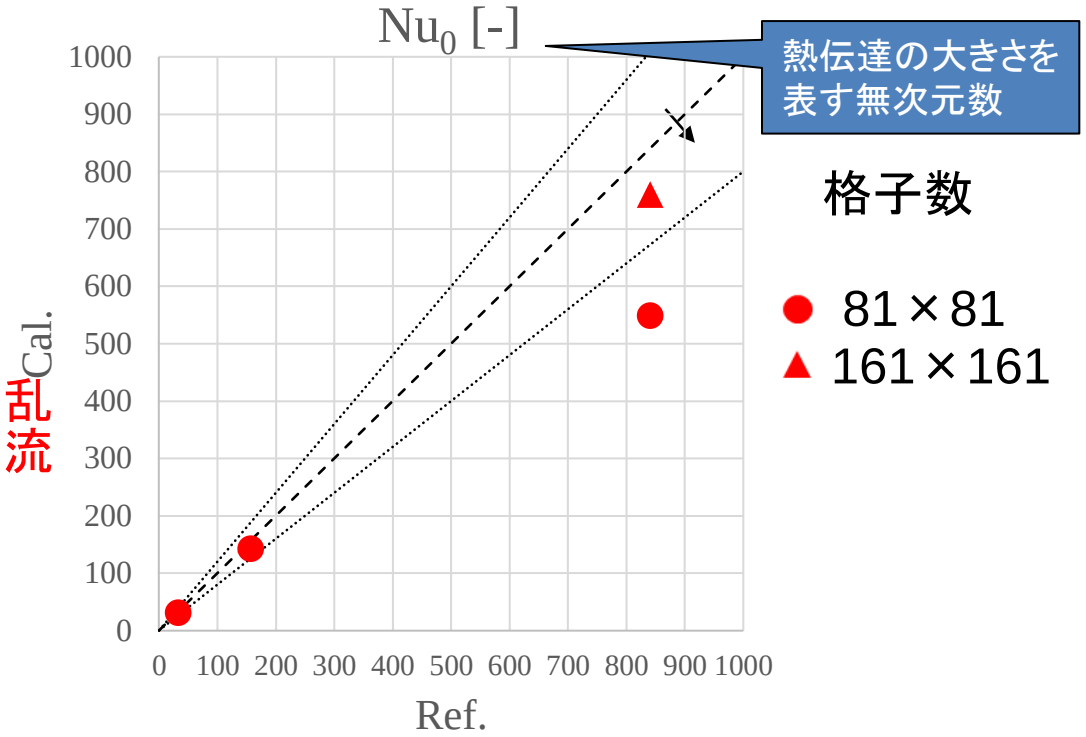
- 水の注入に伴う二相流の形成、ポーラス体解析機能を用いて流出孔がACE-3Dにより表現できることを確認。
- 注入と流出のバランスにより水位が形成され多孔質体が冷却。
- 多孔質体を含む熱流動計算が実施できることを確認。

自然対流に対する既存結果との比較



	Ref.	ACE-3D
セル数	-	最大161 x 1 x 161
レイリー数 Ra [-]	10^{3-16}	10^{4-16}
乱流モデル	k-ε(Ra = 10^8以上)	k-ε(Ra = 10^8以上)





乱流自然対流(層流含む)に対して、既存結果との一致を確認したことで適用性を確認。

Ra = 10^6以下 : G. De Vahl Davis, Natural convection of air in a square cavity: A bench mark numerical solution, Int. J. for Numerical Methods in Fluids, 3, 3, 1983, pp. 249-264. Citations: 1,670
Ra = 10^8以上 : N. C. Markatos and K. A. Pericleous, Laminar and turbulent natural convection in an enclosed cavity, Int. J. of Heat and Mass Transfer, 27, 5, 1984, pp. 755-772. Citations: 489

燃料デブリ空冷試験解析

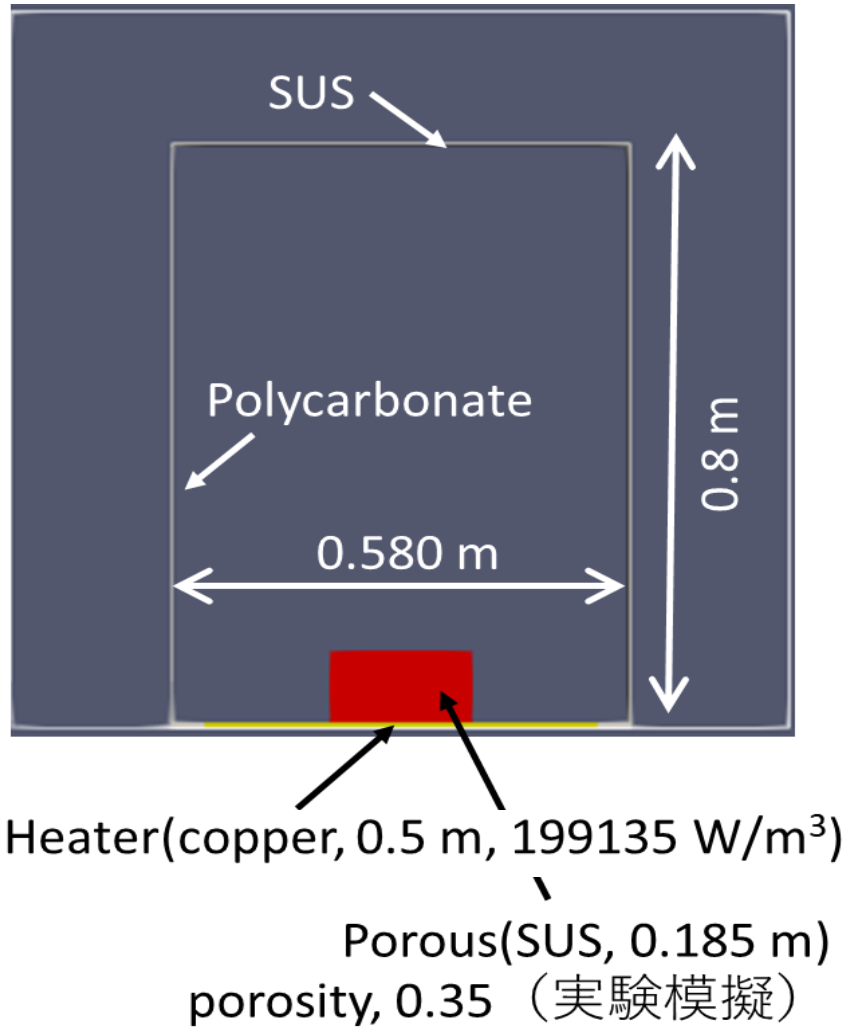
- 燃料デブリ空冷試験解析
  - 解析結果と試験データを比較することで、4.3-4及び5で利用するパラメータ・計算条件の選定を行った。

Case	同一セル内の燃料デブリー流体間の熱伝導	Fax, Faz	Sax, Saz
A	無視	0.215	0.025
B	無視	0.215	0.150
C	無視	0.350	0.050
D	無視	0.100	0.050
E	Ranzの式	0.215	0.050
F	無視	0.350	0.025
G	無視	0.100	0.025
H	無視	0.167	0.025

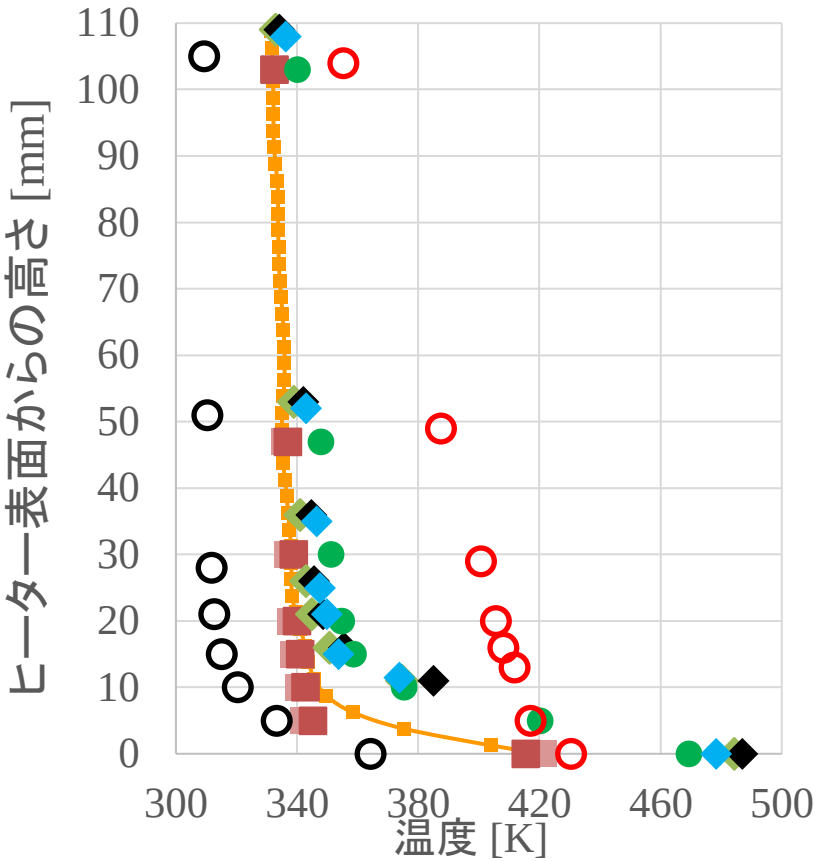
気孔率は試験結果0.35を適用

$FA_x = Fa_x \, \Delta A_x$　Sa_x 実行接触面積比

燃料デブリ空冷試験解析

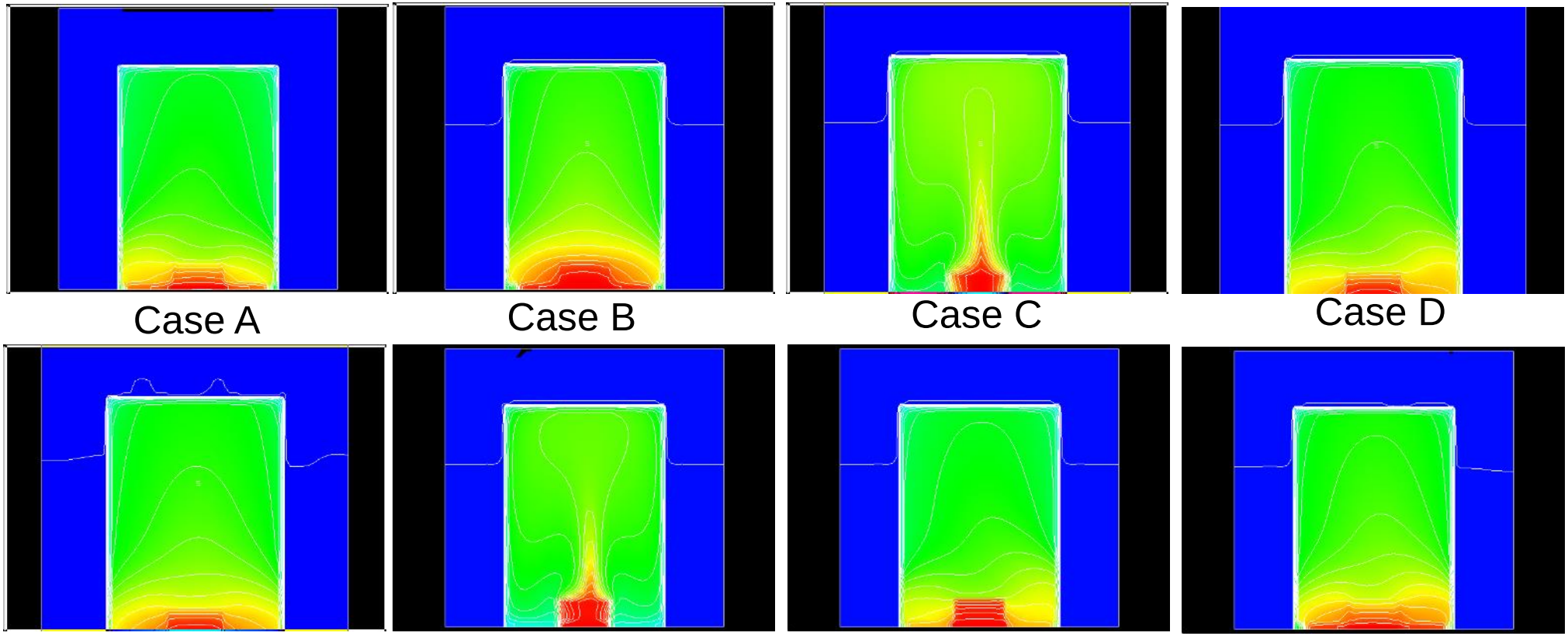


体型サイズ：1m×1m （二次元）
格子数：60(x)×52(z) (=3,120)



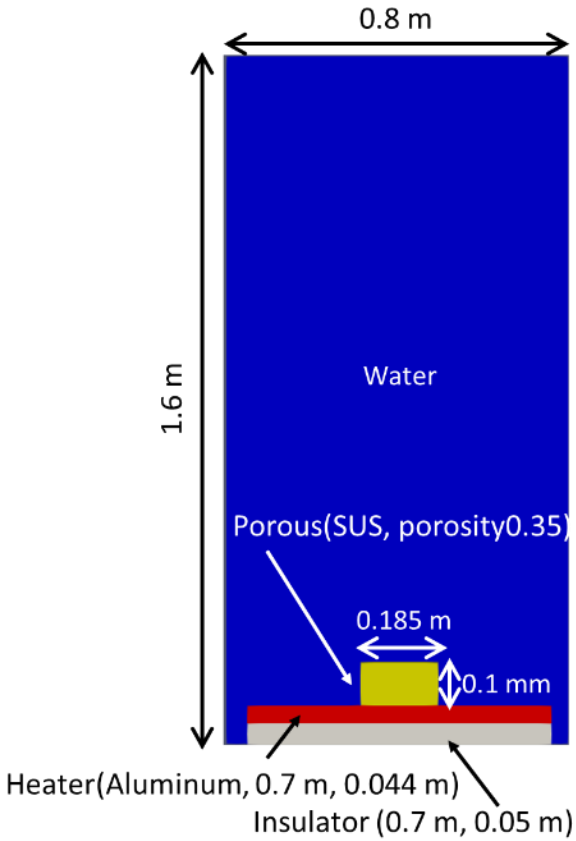
- 比較のポイント
  - 円柱形の多孔質体を用いた場合(○)、壁面近傍に向かってほぼ線形に温度が上昇。

燃料デブリ空冷試験解析結果

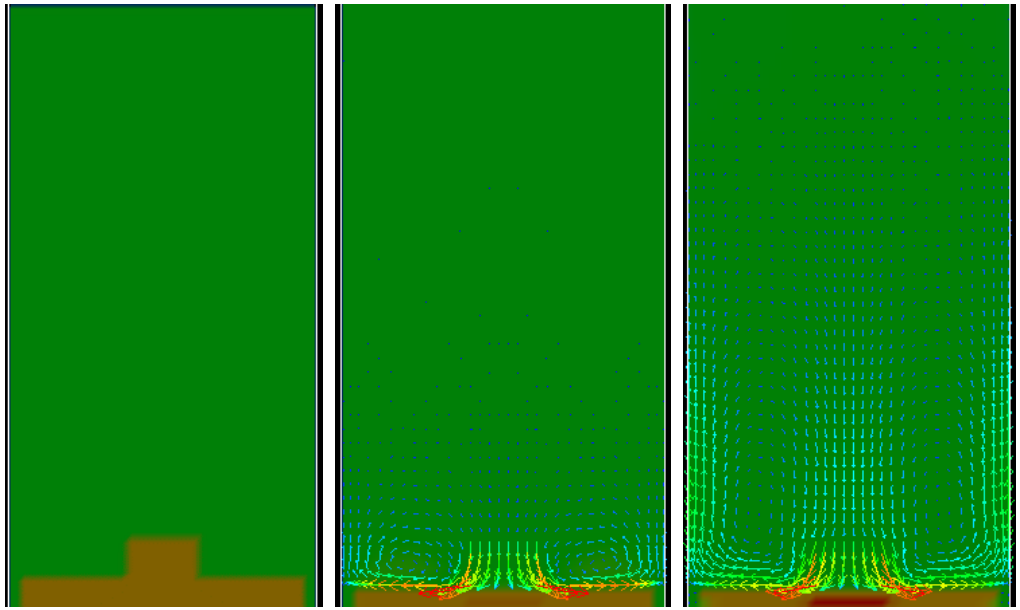


- 流体通過率が大きい場合(Case C, F)、垂直方向の温度分布がほぼ一様となり試験結果の傾向が再現できない。
- 実行接触面積比が大きい場合(Case B)、特に壁面近傍で模擬デブリ内の温度分布が鈍る。
- Ranzの式の影響は大きくなく、今後の検討が必要。
- Case Hは特徴的な温度分布（勾配）について最も試験の傾向を再現しているおり、用いたパラメータをACE-3Dによる実機解析などに適用。

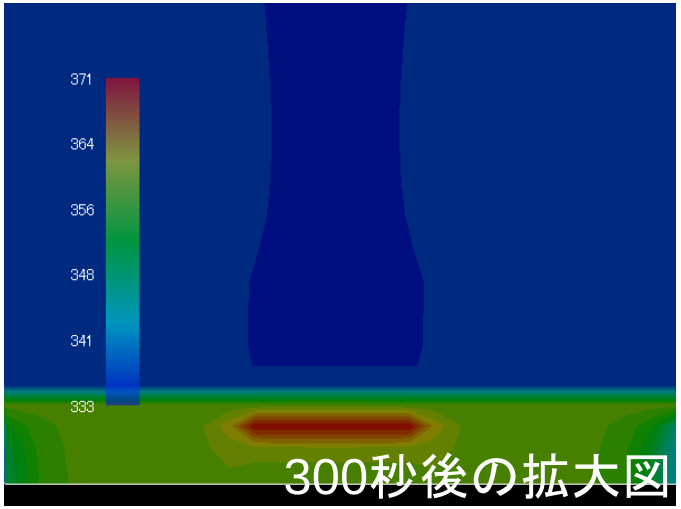
燃料デブリ模擬流動試験解析



解析体系



0秒　　1秒　　50秒



300秒後の拡大図

壁面近傍で温度上昇が見られ、壁面近傍を除きほぼ一様な温度分布

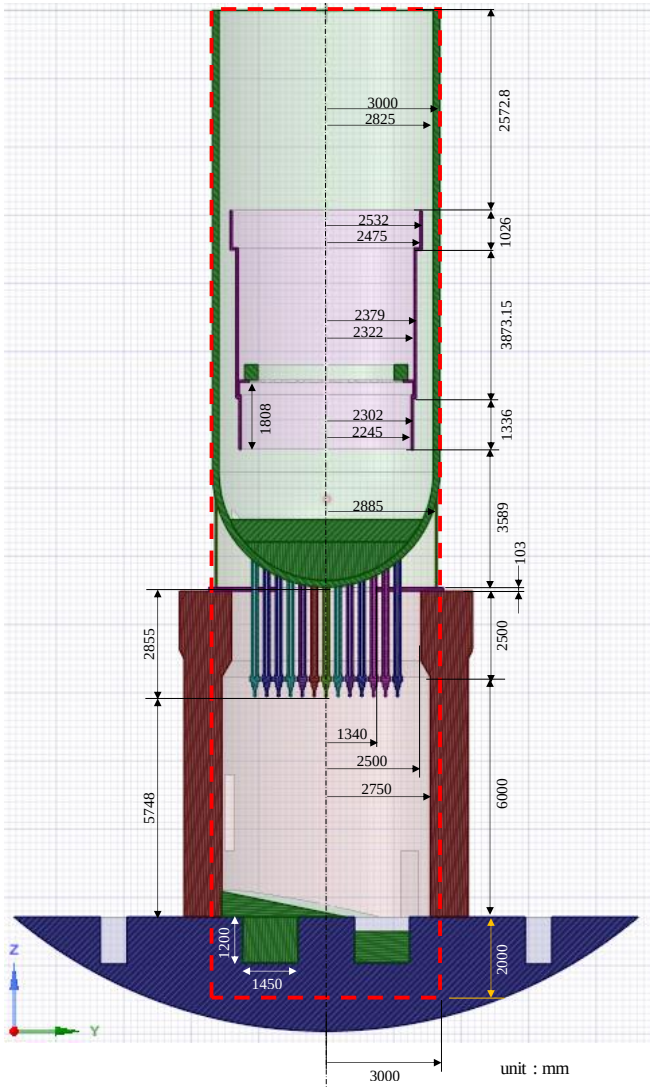
- 試験結果と定性的に一致し妥当性を確認。
- 二次元解析としたこと、境界条件の設定の影響から定量的な一致は不十分。

各種パラメータについては、燃料デブリ空冷試験解析でのCase Hの結果を利用。

温度履歴再現解析

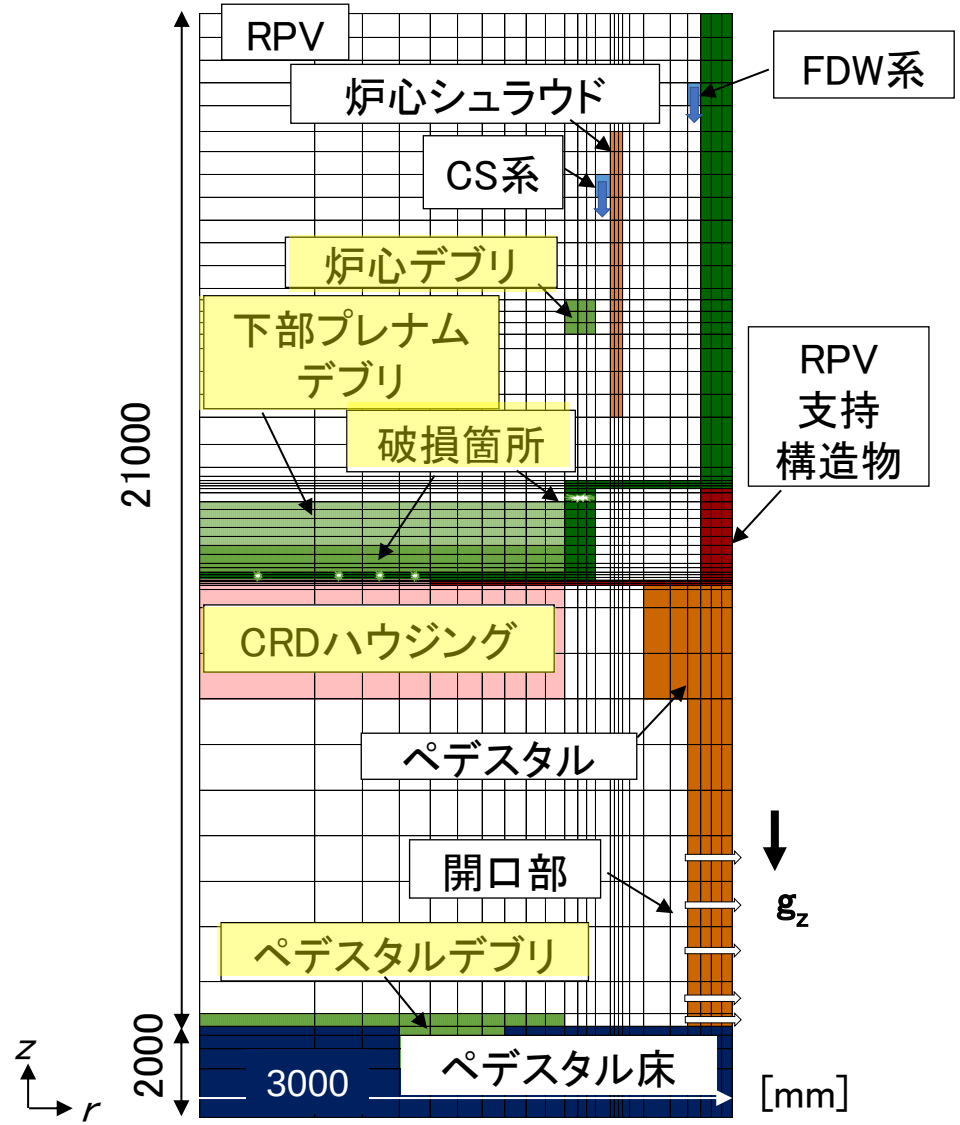
- 解析条件の策定
  - 空冷時燃料デブリ詳細熱挙動解析と同等に設定
- 各種パラメータの設定
  - 4.2-3及び4.3-2で評価した設定を適用

実機解析の体系



燃料デブリの分布、注水条件などは
実機詳細解析の設定を適用

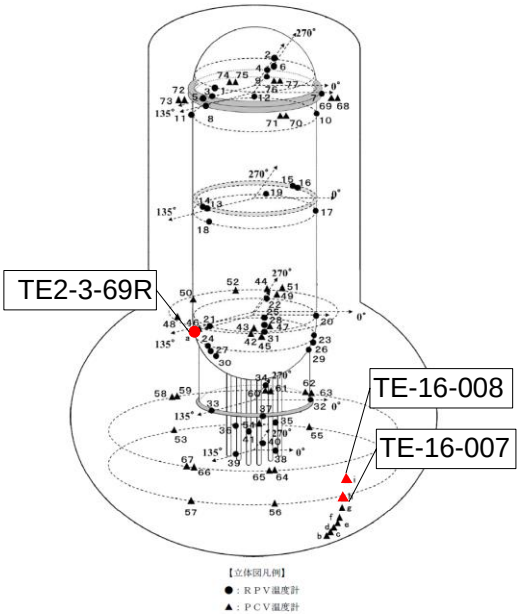
2次元化
簡易化



格子数：25×60=1,500

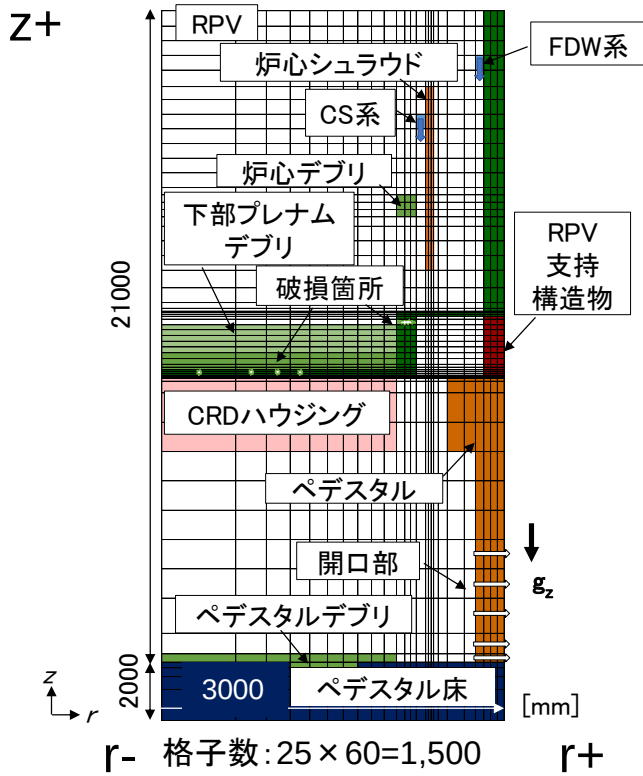
ポーラス体解析機能で表現した部分・領域

解析条件



炉内各所の初期温度条件*1

部位	参照温度計測点	値
RPV	TE-2-3-69R	初期温度：34.8℃
シュラウド	〃	同上
炉心支持板	〃	同上
RPV支持構造物	TE-16-008/007	初期温度：31.95℃ 008：31.8℃、 007：32.1℃ の平均
制御棒支持板	TE-16-008/007	同上
ペデスタル	TE-16-008/007	同上
制御棒	TE-16-008/007	同上
ペデスタル下部	TE-16-008/007	同上
炉心部 燃料デブリ	TE-2-3-69R	初期温度：34.8℃
下部プレナム 燃料デブリ	TE-2-3-69R	同上
ペデスタル 燃料デブリ	TE-16-008/007	初期温度：31.95℃
雰囲気	気体温度 TE-16-008/007	初期温度：31.95℃
炉外	TE-16-008/007 境界温度	31.95℃



解析領域の境界条件*2

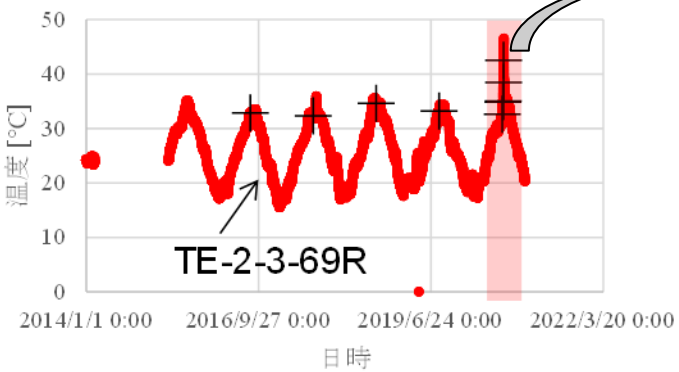
位置	流動境界	温度境界
r-方向	対称条件	対称条件
r+方向開口部	流出条件	流出条件
r+方向開口部以外	- (壁面)	等温
Z-方向	- (壁面)	等温
Z+方向	流入出条件	等温

*1) 速度場、圧力場については、速度0、圧力均一の条件を付加。注水条件の場合は、ノズル出口部で設定流量を注入(ボイド率=0)
*2) 解析には円筒座標系(r-z直交格子)を使用
*3) https://www.tepco.co.jp/decommission/information/newsrelease/thermometer/pdf/2020/thermometer_20200501-j.pdf

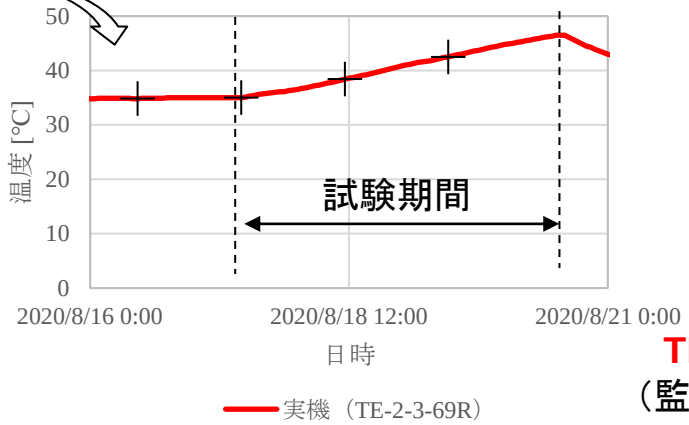
実機解析ケース

実機データから過去数年および注水停止試験（2020年8月実施）の代表点を抽出し、ACE-3Dを用いた解析を実施。温度変化量を比較して解析の適用性を確認。

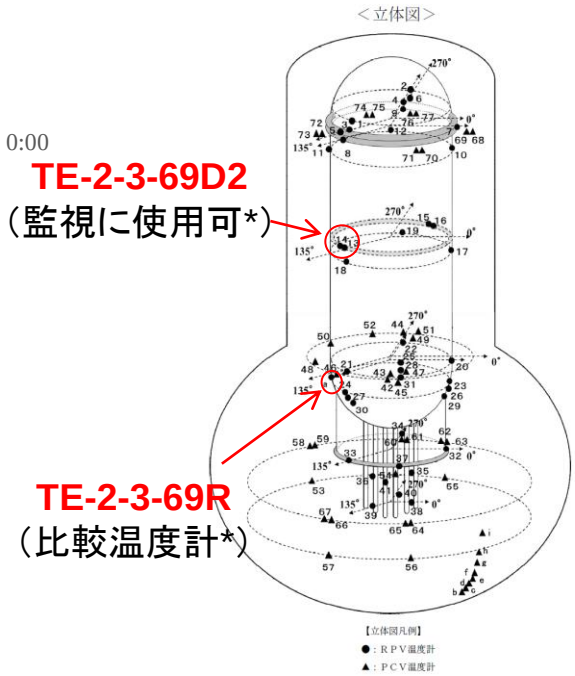
2014-2020年



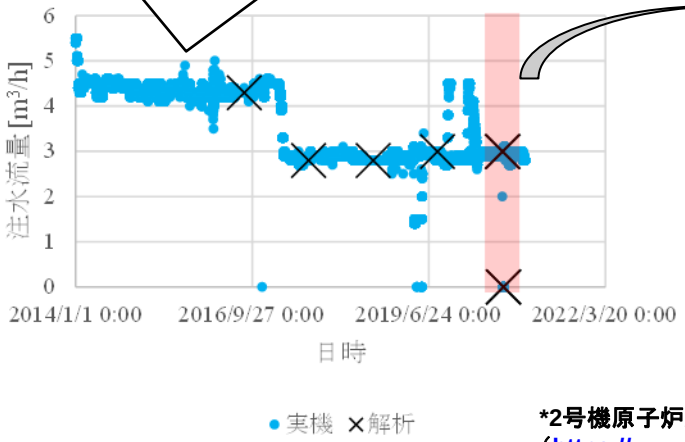
注水停止試験（2020年8月17-20日）

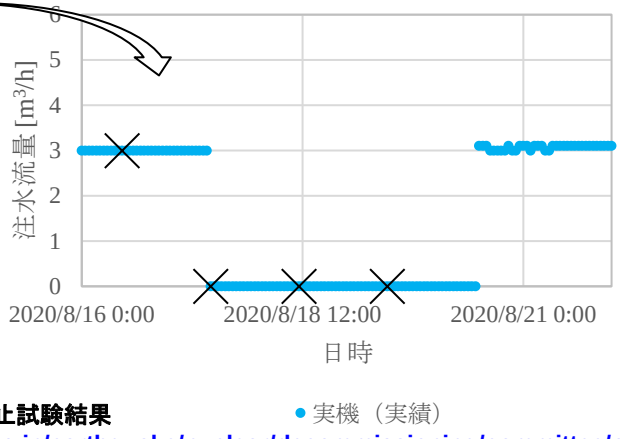


適用性確認にて比較対象とする熱電対位置
2号機



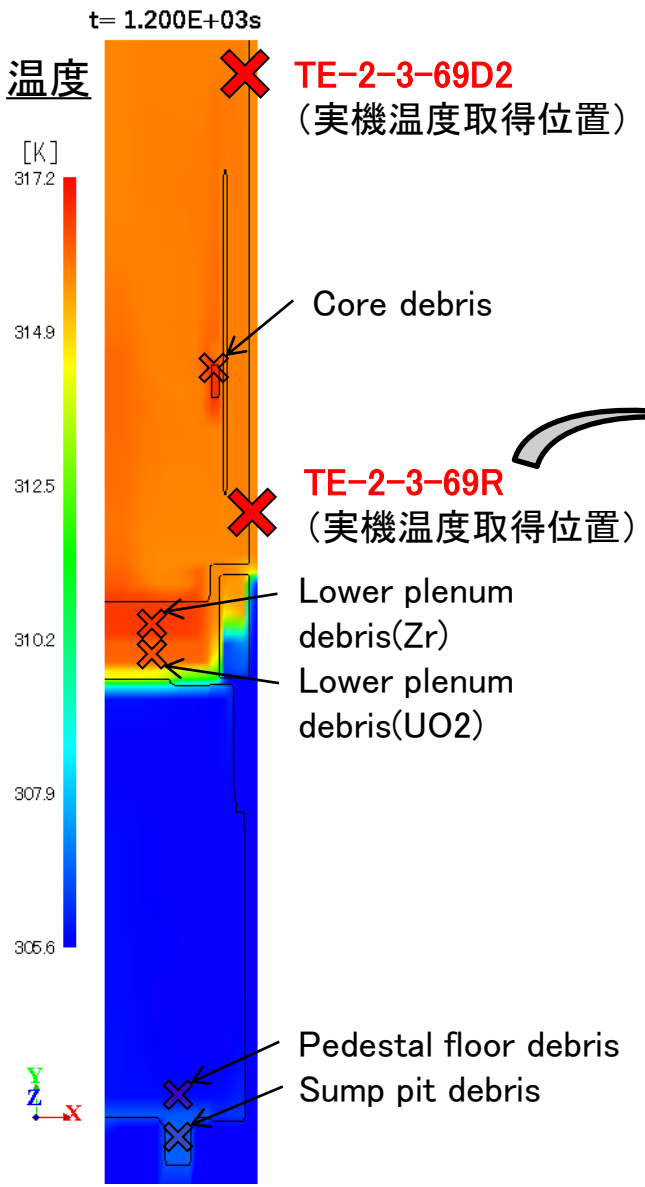
FDW（給水スパージャ）系とCS（コアスプレースパージャ）系の合計





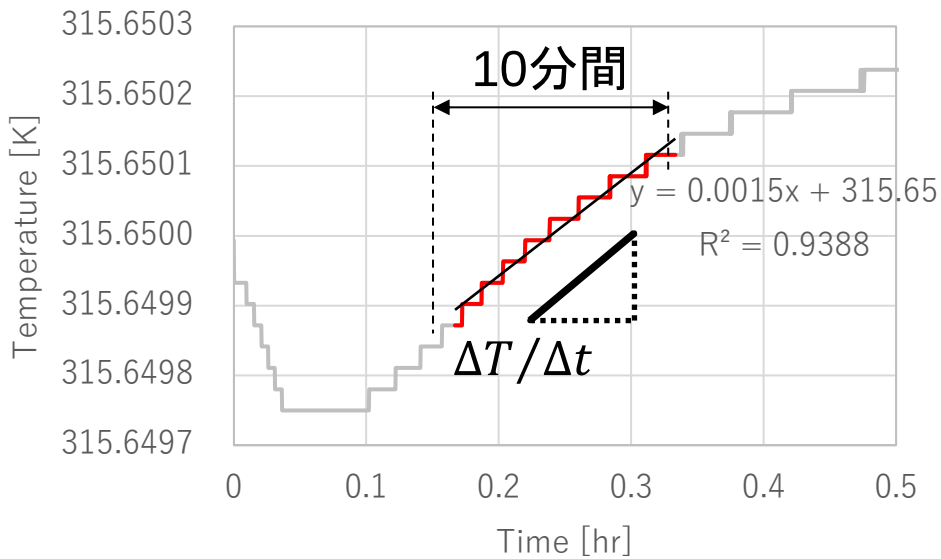
*2号機原子炉注水停止試験結果
（https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/10/3-5-2.pdf）

温度変化量の計算方法

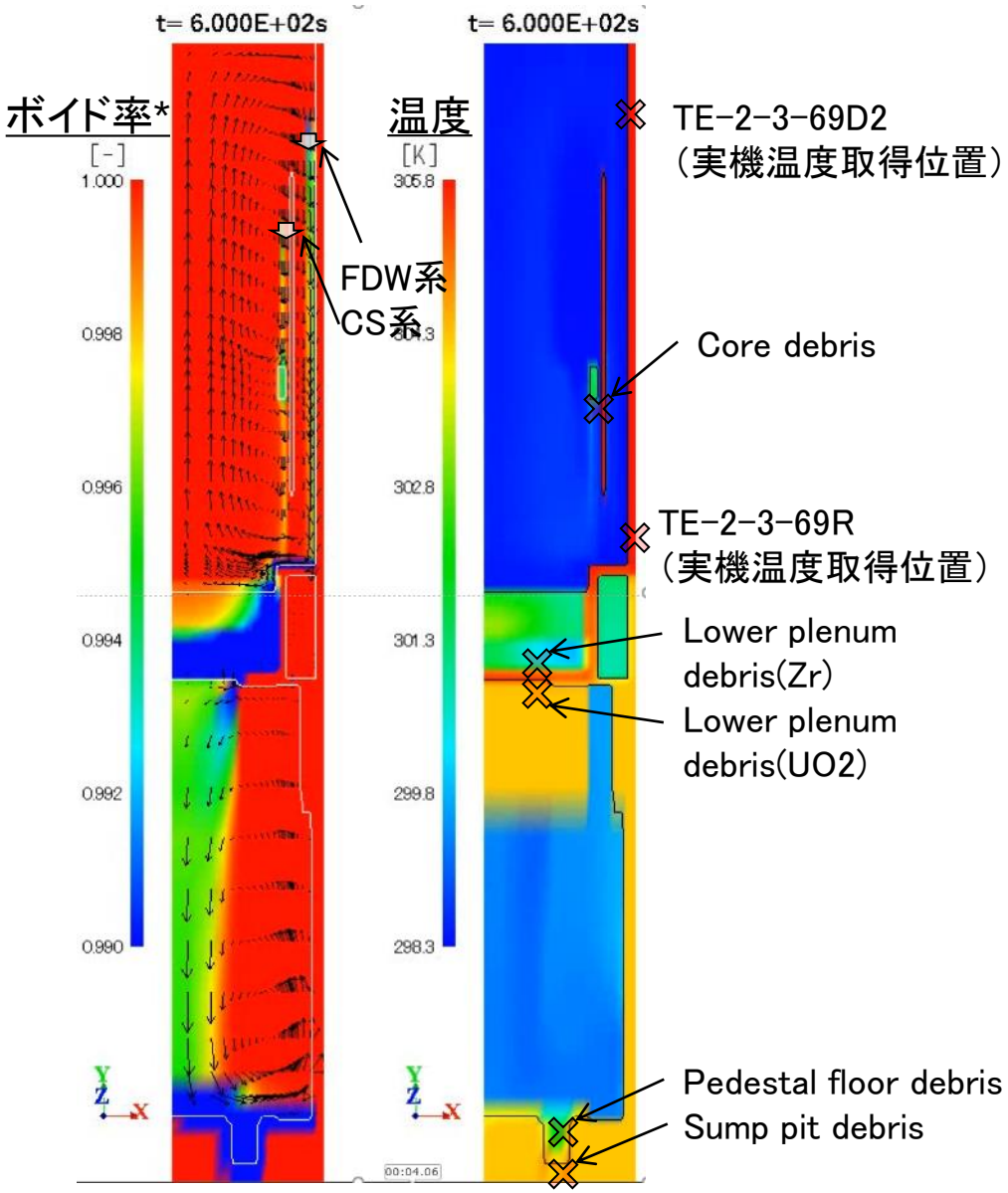


- 解析時間の不足から、絶対値を比較できる状況まで温度が上昇しなかった。
- 全9ケースに対して数十分間～1時間の解析を実施。
- 流れ場が落ち着いた時間の温度データを線形近似して温度変化量D*T*/D*t* [K/時間]を取得。
- 実機データは1時間又は6時間置きに取得されるため、温度変化量を前後6時間分（計13時間分）のデータから計算して解析結果と比較。

ACE-3D温度データ（TE-2-3-69R）



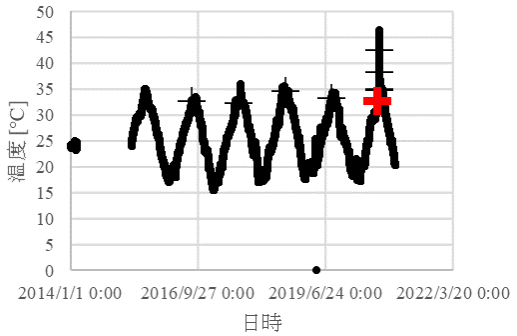
注水時の実機解析結果例

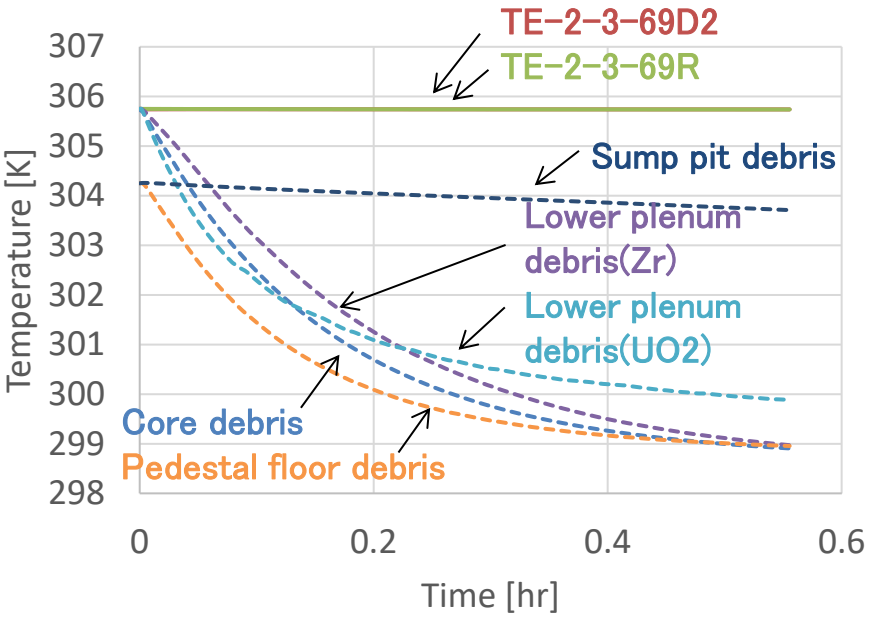


＊:気相の体積割合

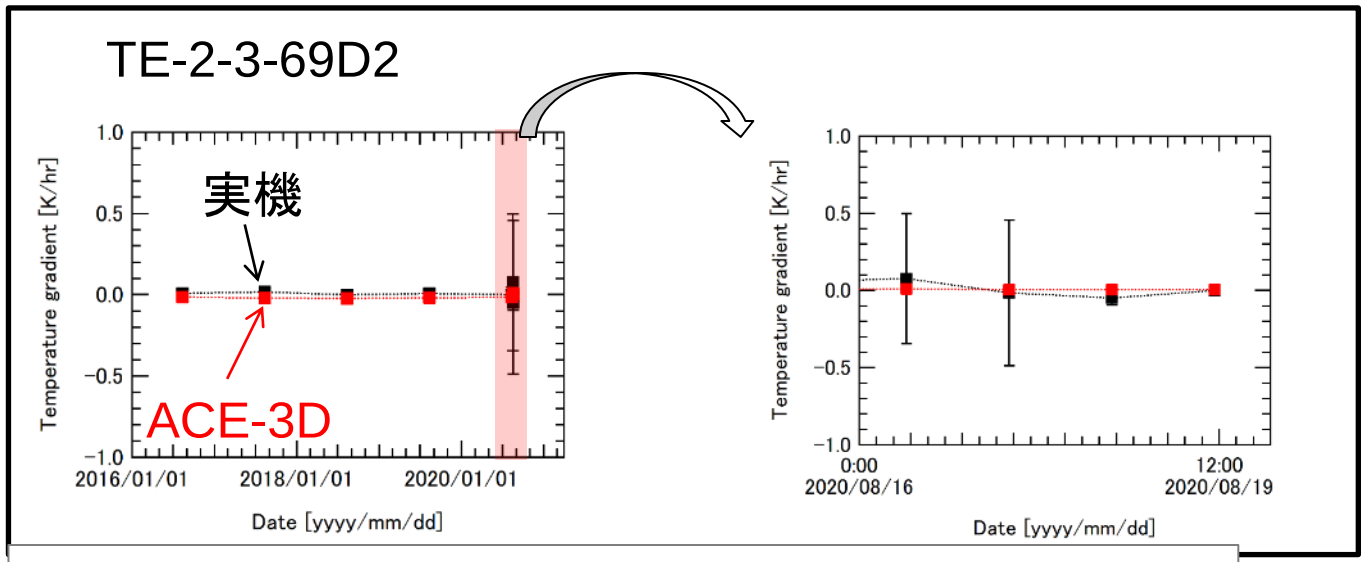
ケース5

- 日時：2020年8月11日 11:00
- 注水：有（FDW系とCS系両方）

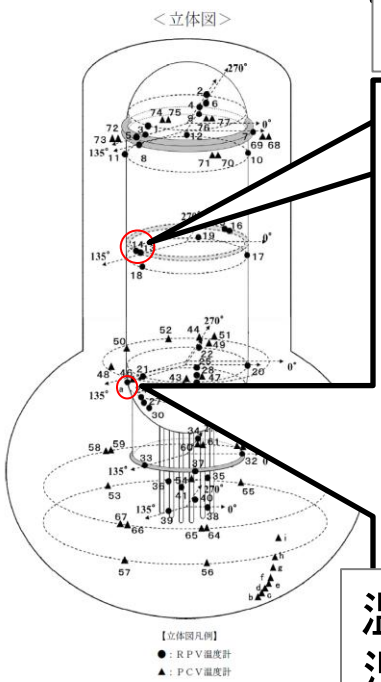


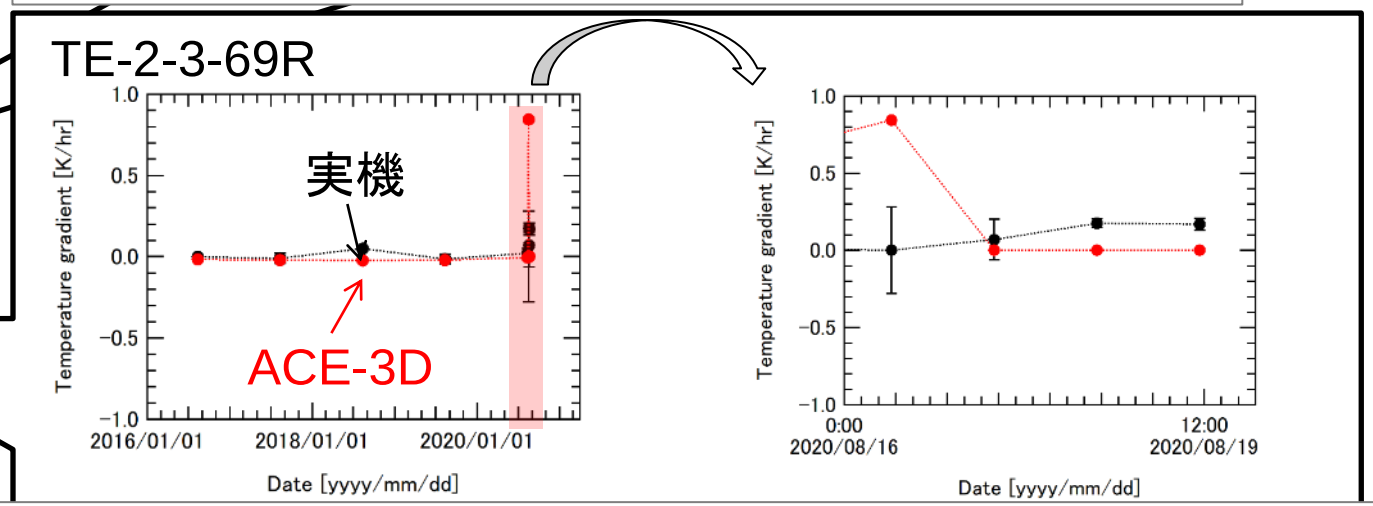


実機解析の適用性確認



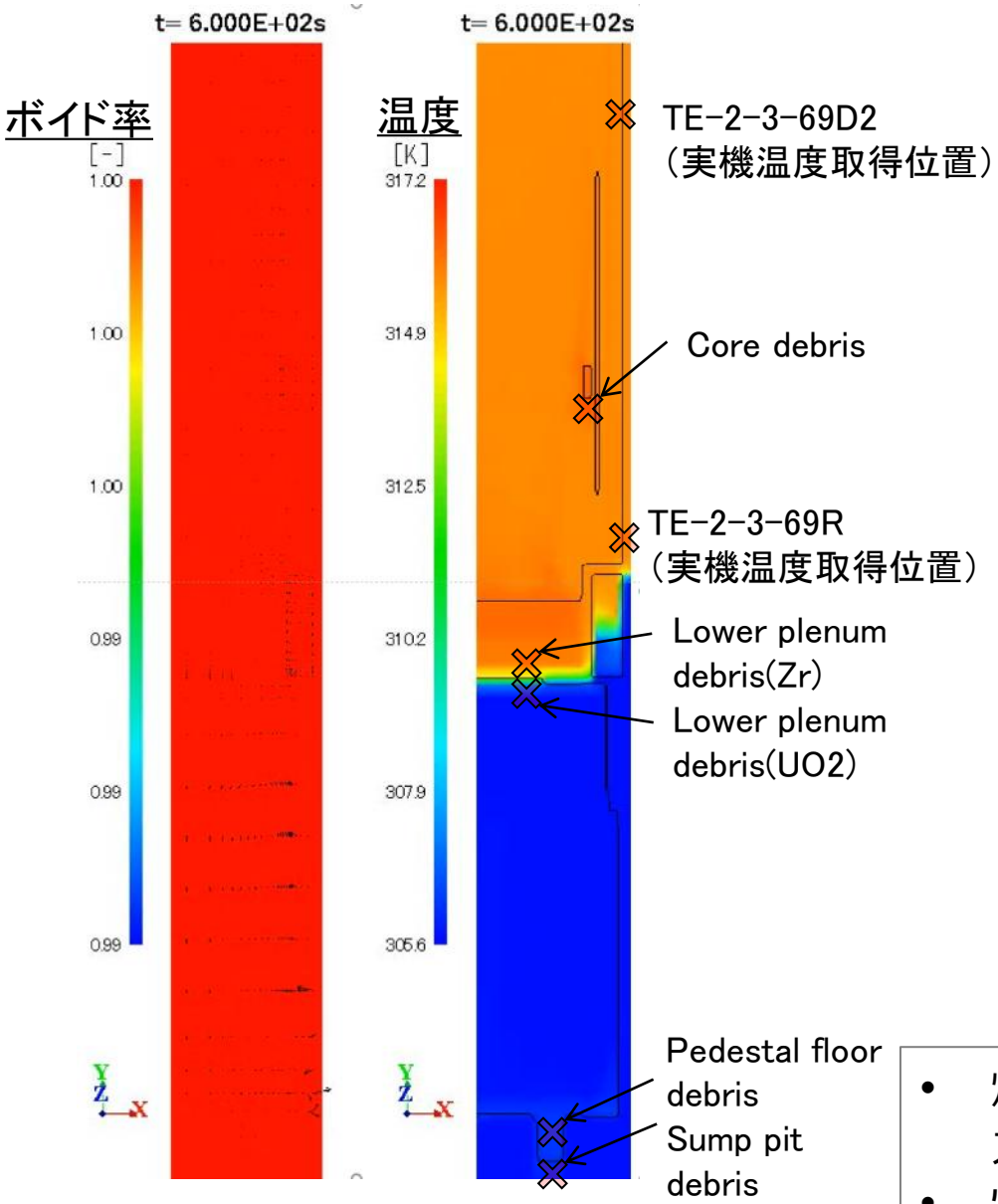
実機と温度変化量の差異は小さく、ACE-3Dを適用可能。





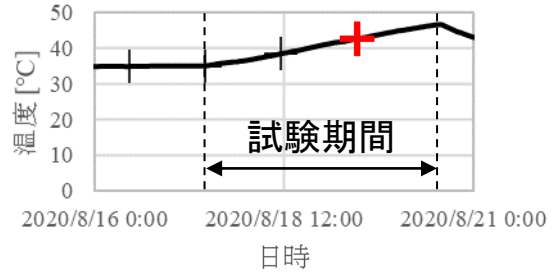
温度勾配が大きくなる時点で実機との差異が拡大。熱電対取付け部の状況に実機と差異があったためと想定。適切な解析モデルの検討が必要。

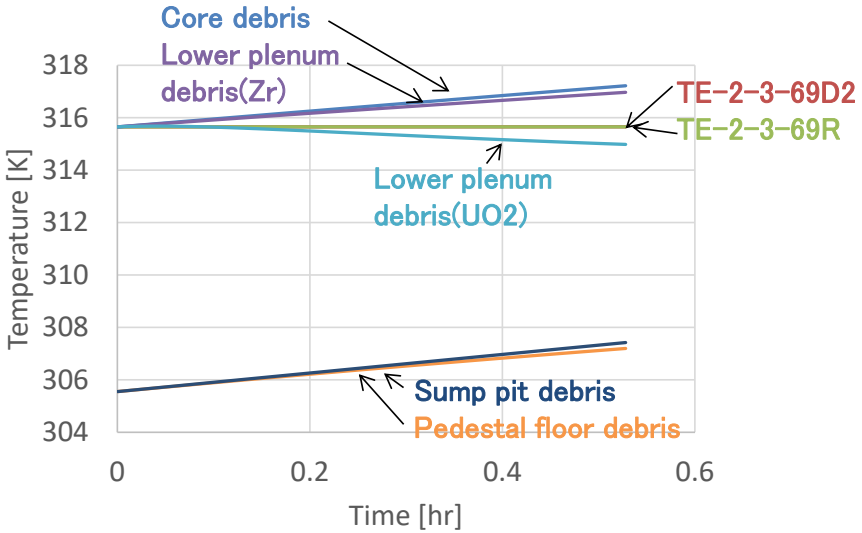
③-3空冷時評価 空冷時の実機解析結果例



ケース9

- 日時：2020年8月19日 11:00
（注水停止試験中）
- 注水：無

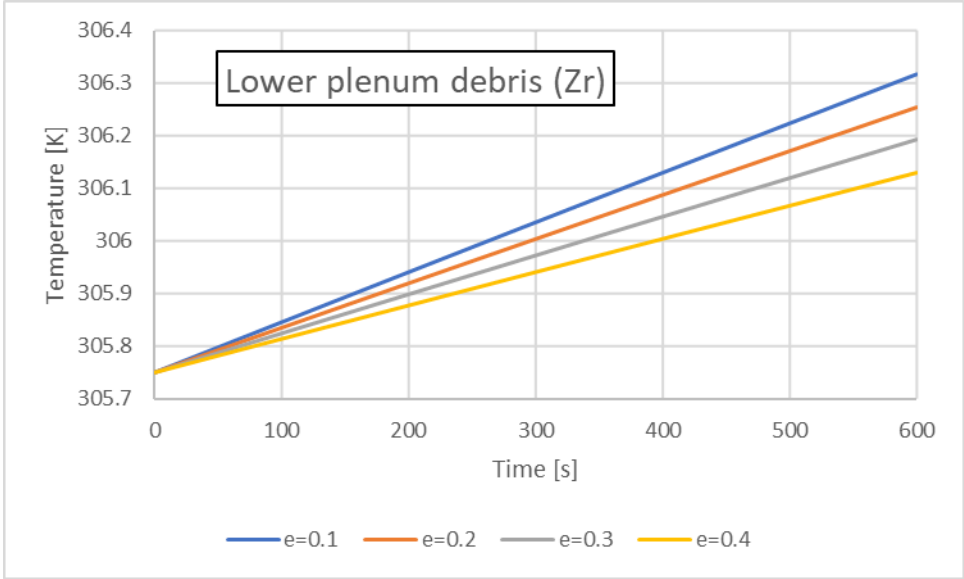


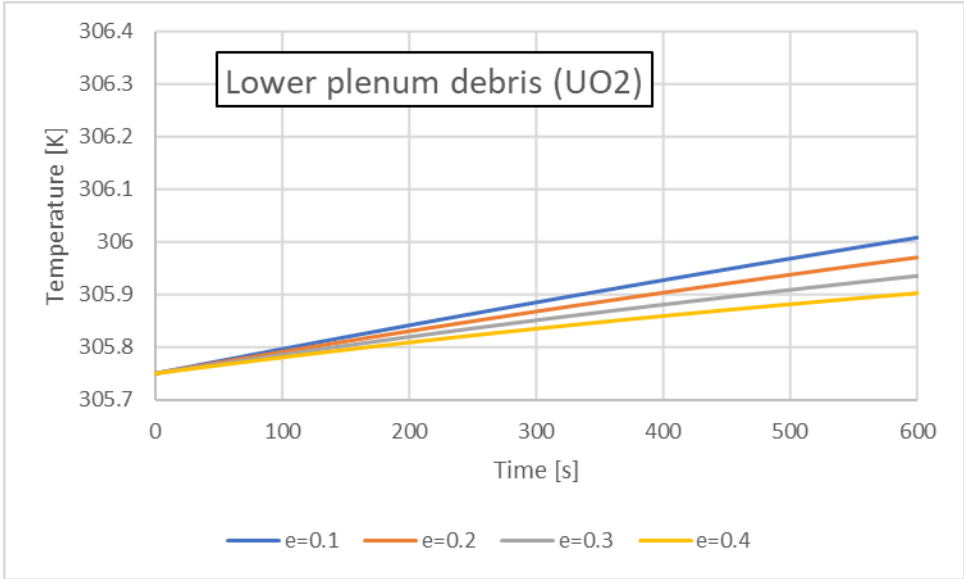


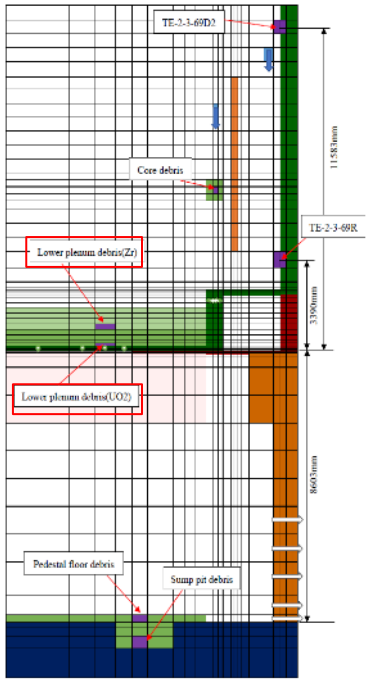
- 燃料デブリの存在位置における温度上昇は、圧力容器燃料デブリ下部を除いてほぼ同一。
- 炉心部・ペデスタル部についてJUPITER解析との差異が見られるためモデルの検討要。

気孔率の影響(パラメータ解析)

- 燃料デブリの気孔率を変化させることでの燃料デブリの時間変化を反映した。
- 実機情報が少なく不確定性の大きい燃料デブリの時間変化について、パラメータ解析により影響を検討可能。
- 空冷時の燃料デブリ温度上昇はおよそ2.8±0.5 [K/時]（下部プレナムZr）であり、気孔率の影響は±0.5 [K/時]で比較的小さい。







温度評価位置

4.3 空冷時熱挙動評価のまとめ

- 燃料デブリ熱挙動の評価に対して、ACE-3Dを用いて評価手法を構築した。4.1の試験、4.2の詳細解析との比較により、パラメータの設定を行うとともに妥当性を確認した。
- 構築した手法と検討したパラメータを用いて、実機の挙動を評価する解析を実施した。
  - 簡単化した形状、粗い計算セルを使用しても、上部からの注水により下部にある燃料デブリが冷却される過程について、物理的に妥当な結果が得られた。
  - 計測速度の問題により解析できる時間が想定よりも短く、このため温度上昇率について実機と比較した。
  - 実機との相違が確認された。モデルやパラメータの影響に加え、解析条件、解像度、2次元解析の影響について検討する必要がある。

4.3 空冷時熱挙動評価のまとめ

- 空冷条件への適用を行い、熱挙動の評価を行った。JUPITER解析との差異が確認されたため、解析条件、解像度、2次元解析の影響について検討する必要がある。
- 気孔率をパラメータとした解析を行い、気孔率の変化に対して解析結果が変化することを確認した。
- 必要とする計算時間は十分に短いとは言い難く、計算時間の短縮化が望まれる。

5. まとめ

(1) 分析精度の向上のための技術開発

事業開始時に設定した目標に対する進捗

- アルカリ融解技術や王水・フッ酸溶解法により、難溶性成分を含む燃料デブリの溶解が可能であることを確認できた。
- 組成が既知の均質な模擬燃料デブリ試料について、不溶解性残渣が生じる場合を含む分析精度を明らかにすることができた。また、各機関の分析操作の詳細比較により、分析機関の手法、不確かさ要因の定義及び評価方法に関して大きな差がないことを確認できた。
- 参画機関の間で、燃料デブリ分析における課題認識の共有化を図ることができた。
- 上記により、組成既知の均質な模擬燃料デブリ試料について、4つの分析基本量のうち「核種・元素量」に対する分析技術の標準化を図ることができたと考える。

成果の適用性や現場への反映

- データ評価方法、データ品質の確認・運用管理について、性状把握PJにおける「1Fサンプル（堆積物、スミヤ等）の分析」におけるデータ取得方法、データ検証について議論するとともに、随時、検討状況を共有してその結果を可能な範囲で反映することができた。

将来に向けた課題

- 溶融凝固させた非均質の模擬燃料デブリを用い、残る3つの分析基本量*に対する標準化を狙い、今後の試験的取出しで回収される燃料デブリの分析に備える必要がある。

* 分析試料の形態、相状態・分布、密度等

5. まとめ

(2) 燃料デブリ熱挙動の推定技術の開発

事業開始時に設定した目標に対する進捗

- 福島第一原子力発電所PCV内の燃料デブリ熱挙動を推定する技術開発を実施した。
- 燃料デブリの熱挙動を評価するための機能追加をACE-3Dに対して行うとともに、知見の不足している情報について、詳細な熱流動試験や熱流動解析により情報を取得した。
- 開発した手法、情報を集約したACE-3Dを用いて、福島第一原子力発電所2号機を対象とした数値シミュレーションを行った。その上で、実機空冷状態の解析に適用し、熱挙動を推定するとともに気孔率の影響についてパラメータ解析を行った。

将来に向けた課題

- 計算時間が十分には短くなく、より適切にプラントデータなどとの整合を図るためには解析コードの高速化を行う必要がある。
- パラメータの設定では、試験結果をリファレンスとしたチューニングに依存する割合が大きく、より物理現象に基づいた評価や、一般性を有する設定方法が求められる。
- モデルやパラメータの影響に加え、解析条件、解像度、二次元解析の影響について検討する必要がある。