

平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書

海水及びホウ酸注入影響評価試験

一般財団法人電力中央研究所
平成 29 年 3 月

本報告書は、原子力規制委員会原子力規制庁からの委託により実施した業務の成果をとりまとめたものです。

本報告書に関する問い合わせは、原子力規制庁までお願いします。

1. 目次

1. 緒言	5
2. 燃料バンドル除熱性能	6
2.1. 実長バンドル試験装置	6
2.1.1. 基本仕様	6
2.1.2. 装置概要	6
2.1.3. 装置詳細仕様	7
2.1.4. 試験条件及び試験手順	16
2.1.5. 試験溶液の調整法	16
2.1.6. 沸騰濃縮試験パラメータ	19
2.2. 実長バンドル沸騰試験結果	20
2.2.1. 人工海水（2.5 倍濃縮）のプール沸騰試験	20
2.2.2. まとめ	28
3. クラスト冷却特性	29
3.1. クラスト中クラック伝熱特性試験装置	29
3.1.1. 装置構成	29
3.1.2. 補給水供給機器	30
3.1.3. 水槽	30
3.1.4. 模擬クラスト多孔質体	36
3.1.5. 透水試験	41
3.1.6. 伝熱面の構造	44
3.1.7. 計測条件	47
3.1.8. 試験溶液	47
3.1.9. プール沸騰試験パラメータ	47
3.2. 試験手順	49
3.3. プール沸騰伝熱試験	50
3.3.1. プール沸騰伝熱試験結果	50
3.3.2. クラスト試験体上に析出した塩堆積物の元素分析	53
4. まとめ	92

表目次

表 2-1	人工海水の成分	18
表 3-1	定水位透水試験データ	43
表 3-2	プール沸騰試験条件	48
表 3-3	プール沸騰試験番号命名法	48
表 3-4	ICP-MS 分析条件（クラック無平坦面中央／クラック有平坦面）	61
表 3-5	ICP-MS 分析条件（クラック有試験体クラック内横断面）	64
表 3-6	顕微ラマン分光分析条件	82

図目次

図 2-1	実長バンドル試験装置概要.....	10
図 2-2	実長バンドル試験体のロッド配列、概略形状.....	11
図 2-3	実長バンドル試験体の立面図と諸元.....	12
図 2-4	5×5 バンドル試験体のスペーサ形状寸法.....	13
図 2-5	実長バンドル試験体の差圧計測及び局所温度計測領域.....	14
図 2-6	実長バンドルヒータロッドの表面温度計測位置.....	15
図 2-7	人工海水プール沸騰試験結果（第 1 スペーサ近傍）.....	22
図 2-8	人工海水プール沸騰試験結果（第 2 スペーサ近傍）.....	23
図 2-9	人工海水プール沸騰試験結果（第 3 スペーサ近傍）.....	24
図 2-10	人工海水プール沸騰試験結果（第 4 スペーサ近傍）.....	25
図 2-11	中央ロッドのヒータ表面温度.....	26
図 2-12	第 1 スペーサ内ロッドの表面温度.....	27
図 3-1	クラスト中クラック伝熱特性試験装置の概念図.....	31
図 3-2	試験装置の外観写真.....	32
図 3-3	伝熱面と水槽の概念図.....	33
図 3-4	伝熱面の組立図（側面）.....	34
図 3-5	伝熱面の組立図（上面）.....	35
図 3-6	多孔質体三次元造型機.....	38
図 3-7	多孔質体三次元造型中の様子.....	39
図 3-8	使用粉末と造形物の X 線回折結果.....	40
図 3-9	定水位透水試験装置の概要.....	42
図 3-10	製作した定水位透水試験装置.....	43
図 3-11	クラスト中クラック試験体の三次元造形.....	45
図 3-12	ヒータ兼温度計測薄膜の製作.....	46
図 3-13	析出塩の観察.....	51
図 3-14	クラスト中クラックのプール沸騰伝熱試験結果.....	52
図 3-15	沸騰試験直後のクラスト試験体上に析出した塩堆積物の様子....	54
図 3-16	試験装置より取り出したクラスト試験体発熱部上部の塩堆積物の様子.....	54

図 3-17	厚さ方向に 2 分割した試験済みクラスト試験体（クラック無試験体）	55
図 3-18	レーザーアブレーション装置付 ICP-MS 装置外観.....	57
図 3-19	分析箇所 の概略図	57
図 3-20	クラック無試験体の分析箇所（発熱部平坦面中央）	58
図 3-21	クラック有試験体の分析箇所（発熱部平坦部）	59
図 3-22	クラック有試験体の分析箇所（発熱部クラック内横断面）	60
図 3-23	分析範囲（クラック無試験体発熱部平坦面中央）	62
図 3-24	分析範囲（クラック有試験体発熱部平坦面）	63
図 3-25	分析範囲（クラック有試験体クラック内横断面）	65
図 3-26	クラック無試験体と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果 （1/3）	70
図 3-27	クラック無試験体と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果 （2/3）	71
図 3-28	クラック無試験体と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果 （3/3）	72
図 3-29	クラック無試験体と塩堆積物境界部の面分析結果.....	73
図 3-30	クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積物境界部の厚み方向 の組成分析結果（1/3）	74
図 3-31	クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積物境界部の厚み方向 の組成分析結果（2/3）	75
図 3-32	クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積物境界部の厚み方向 の組成分析結果（3/3）	76
図 3-33	クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積境界部の面分析結果	77
図 3-34	クラック有試験体（クラック内横断面）と塩堆積物境界部の厚み 方向の組成分析結果（1/2）	78
図 3-35	クラック有試験体（クラック内横断面）と塩堆積物境界部の厚み 方向の組成分析結果（2/2）	79
図 3-36	クラック有試験体（クラック内横断面）と塩堆積物境界部の面分 析結果	80

図 3-37	使用した顕微ラマン分光分析装置.....	81
図 3-38	塩堆積物のラマンスペクトル（クラック無試験体）	86
図 3-39	塩堆積物のラマンスペクトル（クラック有試験体）	87
図 3-40	塩堆積物のラマンスペクトル（クラック有試験体クラック内）	88
図 3-41	試験体境界付近の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な CaSO_4 のラマンスペクトルとの比較	89
図 3-42	試験体上層の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な NaCl のラマ ンスペクトルとの比較	90
図 3-43	クラック内の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な CaSO_4 およ び NaCl のラマンスペクトルとの比較	91

1. 緒言

原子炉施設における過酷事故発生時の事故緩和策として、水源が枯渇した後、海水が原子炉や使用済み燃料ピットに注入される状況において、海水やホウ酸水またはそれらの混合液に曝された燃料の除熱特性を適切に把握し、対策に活用することは重要である。また、燃料が溶融して、クラストやデブリベッド状に堆積した際の除熱特性を適切に把握して安全評価の精度を向上させる必要がある。

本研究は、独立行政法人 原子力安全基盤機構殿からの委託研究「平成28年度海水及びホウ酸注入影響評価試験」において、昨年度に引き続き海水及びホウ酸水との混合液が注入される場合を対象に、加熱部長さを実機燃料と同じ3.7mにした燃料棒に模擬スペーサを7体設置した実長模擬炉心である燃料バンドル体系および模擬クラスト・デブリベッドである多孔質体を対象に除熱性能を明らかにすることである。

2. 燃料バンドル除熱性能

本章では実長さバンドルを用いた沸騰濃縮試験について述べる。スペーサ間隔 512 mm の模擬スペーサを 7 体設置した加熱部長さ 3.7m、5 本×5 本の実長バンドルを用いて、水（イオン交換水）及び人工海水を 2.5 倍に濃縮した溶液での沸騰濃縮試験を行う。水の場合と人工海水の沸騰様相を対比し、塩の析出場所や量の予測手法の確立に向けた、沸騰挙動データを採取することが目的である。

2.1. 実長バンドル試験装置

昨年度は、短尺バンドルを用いた沸騰濃縮試験を実施し、塩水沸騰中のボイド率分布を X 線 CT 撮影した。本年度は平成 24 年度と平成 25 年度に製作した製作した実長バンドル装置及び試験体について改造を行い、水及び海水を対象としたプール沸騰試験を実施する。試験設備の仕様を以下に記載する。

2.1.1. 基本仕様

実長バンドル沸騰濃縮試験装置は、平成 24 年度と平成 25 年度と同様な設備構成である。本試験におけるヒータバンドルの基本仕様は以下の通りである。

- 設計圧力 0.2 (MPa)
- 設計温度 200(°C) (ロッド表面温度)
- 最高温度 400 (°C) (ロッド表面温度)
- 主要材質 耐腐食材(被覆管材は NCF600 相当品)
- 使用流体 水(イオン交換水)及び人工海水(2.5 倍濃縮)

2.1.2. 装置概要

試験装置は、可視化容器に(5×5)バンドルが組み込まれた実長バンドル試験体、貯槽タンク及び廃液タンク、溶液タンク等から構成される。

図 2-1 に装置の概略構成図を示した。今年度は人工海水のプール沸騰試験を実施するために、実長バンドル試験体の下部から人工海水を供給して水位を一定に保つための溶液供給配管（口径 10A）及び発生蒸気の放出管（口径 25A）を追加するための改造を実施した。改造配管系統を図 2-1 に赤い線で示した。試験体への人工海水の供給は、架台 3F に設置された溶液タンクからの水頭差とポンプによる動力とを併用して実施した。試験体に供給する人工海水を 90℃ 程度に加熱するために投込みヒータを設置した簡易的な熱交換器を溶液供給配管系統に設置した。ポンプの起動停止は試験体の全体差圧計測値の目視により手動で起動・停止操作を実施した。

2.1.3. 装置詳細仕様

1) バンドル仕様

試験に用いる実長燃料バンドルの仕様を下記に示した。図 2-2 に実長バンドルのロッド配列、概略形状を示した。また、図 2-3 に実長バンドルの立面図と諸言を示した。図 2-4 に 5×5 バンドル試験スペーサの形状寸法を示した。

- バンドル構成 5×5 正方格子配列
- バンドル出力 最大 200 kW（単相 AC500V 印加時）
- ロッド形状寸法 外径； $\phi 10\text{mm}$ 、発熱長；3710mm
- 出力分布 軸方向；一様分布
- 模擬チャンネル 矩形チャンネル($\square 68.3\text{mm}$ /コーナー R8mm)
- スペーサ 丸セルスペーサ模擬(有効発熱部 7 個) 図 2-4 参照

2) バンドル内計測仕様

図 2-5 にバンドル試験体における差圧計測及び局所温度計測領域を示す。バンドル試験のチャンネルボックスは透明ポリカーボネイトであり、外部からの可視観測が可能になっている。チャンネルボックスは高さ方向に分断され、フランジ取り合いとした。スペーサを高さ方向に中央に配置する寸法である。上方のスペーサでは塩析出による流路狭窄や閉塞により差圧が増大する現象を把握するため、上方のスペーサの損失を計測すべく差圧計を配置している。また、バンドル全体の差圧を計測するため、上下プレナム間の差圧を計測する。さらに、バンドル内溶液の局所温度を計測した。

図 2-6 にバンドル試験体の各高さにおける表面温度計測位置を示す。外径 10 mm の本ヒータロッドには、埋め込み可能な最大数である 8 本の熱電対が設置されている。右図には高さ方向各段面(A-F 断面)の熱電対表面埋め込み位置を記載した。断面図は 5 つであるが、最下図の断面図は下から 2 箇所 (E, F 断面) が共通であるために 1 つの図とした。上方の B 断面と D 断面においては、ヒータロッド当たり 2 箇所の熱電対が埋め込まれている。それ以外の 4 断面 (A, C, E, F 断面) ではヒータロッド当たり 1 箇所の熱電対が埋め込まれている。図中には埋め込まれた熱電対の周方向位置も表している。

3) 可視化容器

- 設計圧力 0.2MPa.G
- 設計温度 120 °C
- 形 式 縦型矩形管
- 内幅寸法 68x68 +0.5/-0.0mm

- コーナー形状 約 R9mm +0/-1mm
- 長さ 全 長 ; 4096mm/8 分割(長さ 512mm/1 体;抽出板含む)
- 抽出板 形 状 ; 外径 φ 145mmx 内径 φ 68mmx 厚さ 32mm)
計測孔 ; PT1/4 ネジ穴 × 4 カ所
製作数 ; 容器分割数(8 個)
- 流路管接続 JIS5K 異型フランジ接続 (芯出し構造)
フランジ間シールは O リングシール構造
- スペーサ止 スペーサ止ネジは対面にて 2 カ所(シール構造のこと)
両端接続容器とはスペーサ止めの位相を互い違いにしている。
- 計測孔 ボス形状 穴径 2mm/PT1/8 ボス取付(外径 φ 25mm)
個数 差圧 ; ×1 カ所(250mm 間隔)/1 ブロック

4) 貯槽/廃液タンク、容液タンク

① 貯槽タンク

- ・ 使用条件 大気圧、最大 40 °C
- ・ 型 式 PVC タンク/500ℓ 相当品
- ・ 形状寸法 850×850×H1150mm / 重量 110kg
- ・ 貯蔵液 塩水、ホウ酸水溶液
- ・ 付属機器 簡易型攪拌機、水位計
- ・ 接続ノズル 薬剤挿入孔(φ 200)×1 カ所、純水給水孔(15A)×1 カ所、
供給孔(32A) ×1 カ所、ドレン孔(10A)1 カ所
- ・ 計測孔 温度計測孔 8A(PT ネジ込)/温度計取付 2 カ所
- ・ 材 質 PVC(ポリ塩化ビニル)
- ・ 製作数 2 基

② 廃液タンク

- ・ 使用条件 大気圧、最大 40 °C
- ・ 型 式 密閉丸型タンク(鉄枠付)/MC1 型-1500ℓ 相当品
- ・ 形状寸法 約 φ 1100×H1600mm /約 1500ℓ
- ・ 貯蔵液 海水、ホウ酸水溶液等の混合水
- ・ 付属品 水位計
- ・ 接続ノズル 廃液挿入孔(φ 380mm)×1 カ所、給水孔(15A) 1 カ所
廃液孔(50A) 1 カ所
- ・ 計測孔 温度/採取孔 8A(PT ネジ込)/温度指示計付 2 カ所
- ・ 材 質 PVC(ポリ塩化ビニル)
- ・ 製作数 1 基

③ 容液タンク

- ・ 使用条件 大気圧、最大 80℃
- ・ 使用流体 人口海水、ホウ酸水、及び混合水
- ・ 形 式 縦型円筒容器 (材料;SUS304/内壁テフロンコーティング)
- ・ 形状寸法 $\phi 600\text{mm} \times \text{H}900\text{mm} / 250\text{l}$ 相当
- ・ 上端部 JIS2K フランジ相当
- ・ 内蔵機器 攪拌機 (回転調整器付/上蓋に取付台設置)
予熱ヒータ 5kw $\times$ 1/3kW $\times$ 1/AC200V 単相
- ・ 接続ノズル 溶液流入孔 20A(ネジ込ボス取付) 2カ所
給水ノズル 15A(ネジ込ボス取付) 1カ所
排水/開放ノズル 15A ネジ込ボス2カ所
- ・ 計測孔 温度計測孔 8A(ネジ込ボス)2カ所
水位計測孔 8A(ネジ込ボス)2カ所
濃度採取孔($\phi 1\text{mm}$) 8A(ネジ込ボス)1カ所
- ・ 計装品 温度センサ K型熱電対 1カ所
現場指示温度計 1カ所
水位指示計 耐熱管($\phi 16\text{mm}$) 1カ所
水位検出器取付 1箇所
水位警報取付 2箇所
- ・ 弁類 給水ノズル 電磁弁取付(15A)1台
排水ノズル 手動弁(15A/黄銅) 1台
計装止弁 ボール弁(8A./黄銅)4台
- ・ 製作数 2基

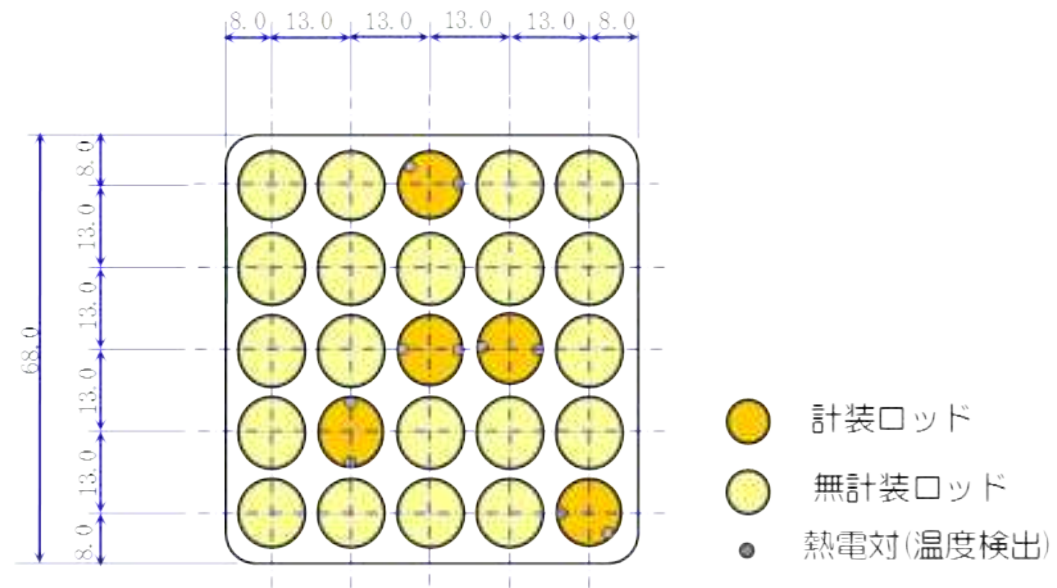


図 2-2 実長バンドル試験体のロッド配列、概略形状

試験体仕様

- バンドル構成 : 5 X 5 正方格子配列
- 発熱方法 : 間接通電加熱（非接地型）
- ロッド形状 : 有効発熱長 3710mm、
外径 $\phi 10\text{mm}$
- 発熱分布 : 軸方向 一様分布
径方向 一様分布
- スペーサ : 丸セルスペーサ形状模擬
- ロッド温度計装 : 軸方向 8カ所/ロッド
ロッド数 5本

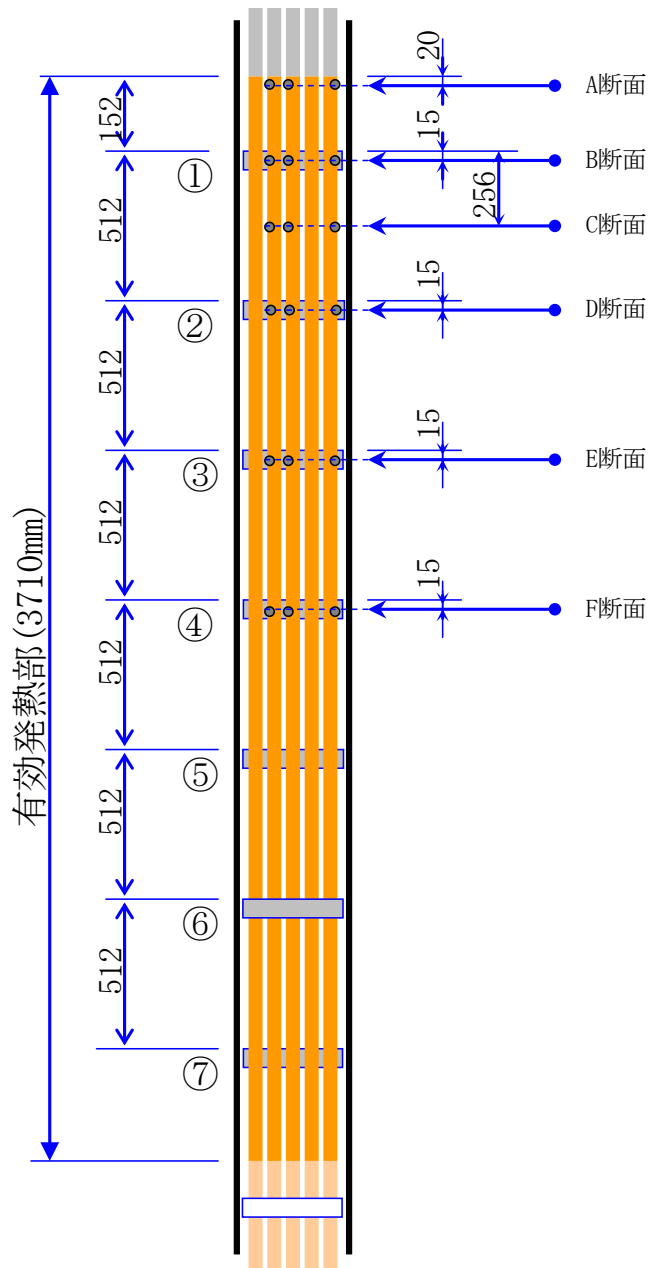


図 2-3 実長バンドル試験体の立面図と諸元

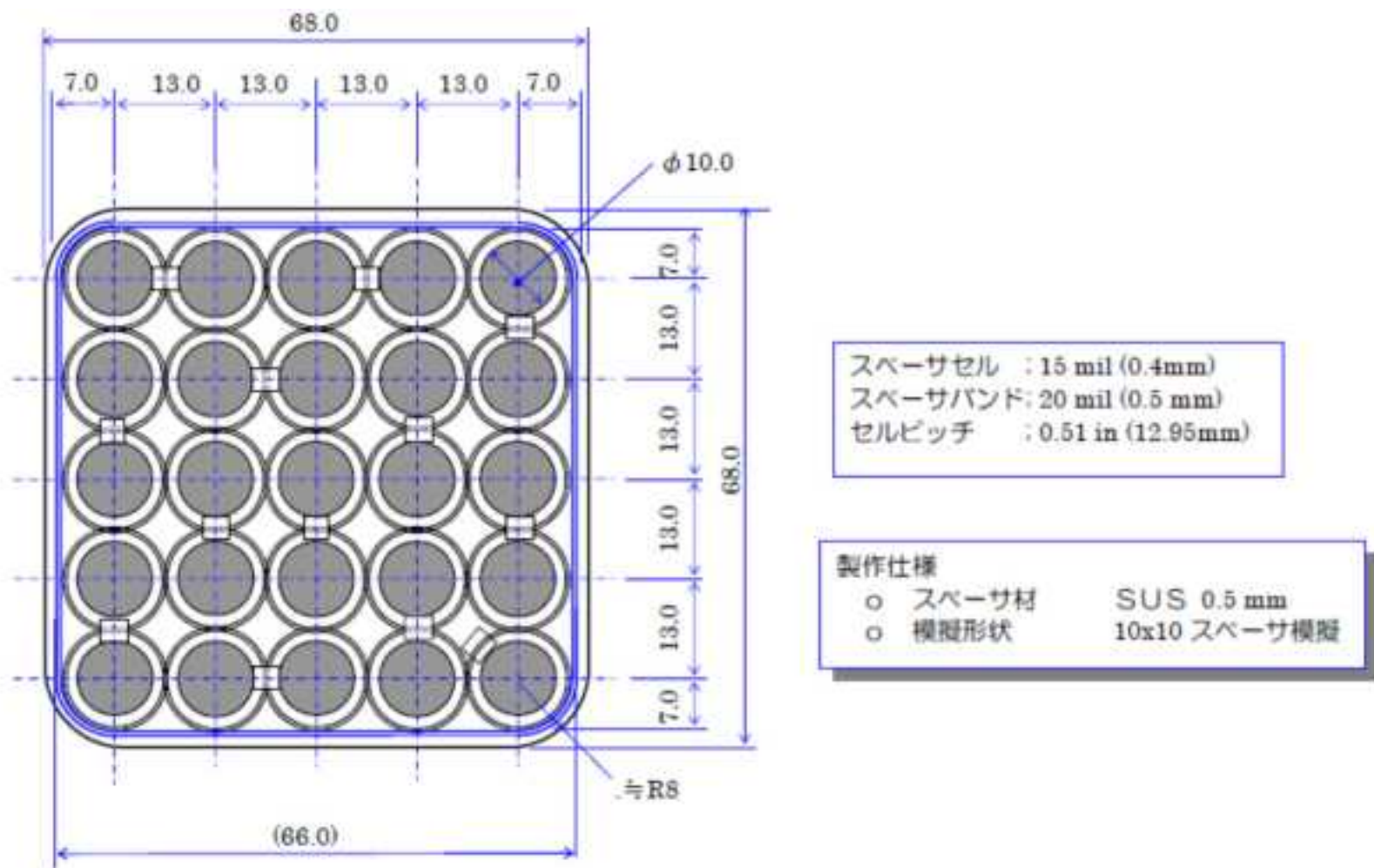


図 2-4 5×5 バンドル試験体のスペーサ形状寸法

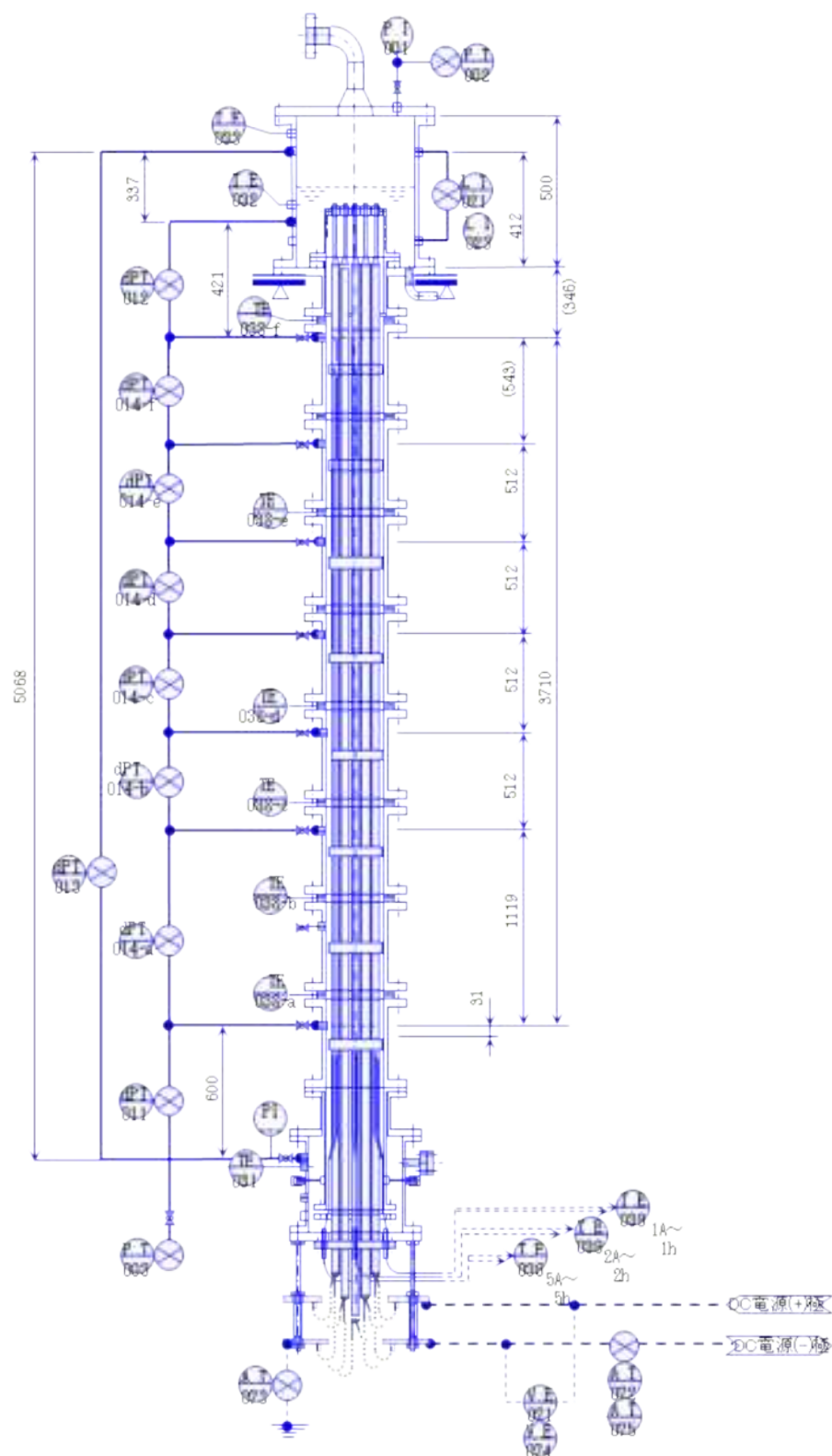


図 2-5 実長バンドル試験体の差圧計測及び局所温度計測領域

2.1.4. 試験条件及び試験手順

架台 2F に設置された貯槽タンクにイオン交換水を充填貯蔵した後、移送ポンプで 3F の溶液タンクに移送した。試験溶液が人工海水の場合は、下記の試験溶液調整法に基づき割合のマリンアート SF-1 を溶液タンクに注入して、溶液タンク内蔵の攪拌機で十分に攪拌して試験溶液を作製した。試験中は溶液タンク内の溶液は常温とした。しかし、試験中はバンドル試験体の下部から供給される試験溶液は入口に設置した熱交換器により、約 90℃ に加熱された試験溶液が供給されるようにした。

本装置は循環系の予熱ループを設置していないので、沸騰濃縮試験開始前には、バンドル試験体内に TAF 位置高さまで試験溶液を充填して、ロードヒータへの通電発熱で溶液温度が飽和温度未満まで予熱した。予熱完了後は速やかに試験液位設定位置まで液位を下げて、試験電力値に設定して沸騰濃縮試験を開始した。

試験中は液位が一定となるように全体差圧（dPT013）の値を監視して試験溶液を供給した。試験溶液が水試験の時は溶液タンク水位とバンドル試験体内水位の水頭差を利用して弁の開閉操作で実施した。人工海水試験の場合は水位制御のやり易さを考慮してポンプを追加して水頭差とポンプ動力による供給を併用した。

試験中は、前記ロードヒータ表面温度、局所差圧、局所温度計測の他に、4 台のビデオカメラを設置して沸騰状況を動画撮影した。ビデオカメラの設置位置は、上部から 4 個分のスペーサ設置位置近傍が撮影可能な位置に設置した。試験時間は水試験の場合は沸騰状況が安定するまでとし、人工海水の場合は塩析出によるロード表面温度が 150℃ を超えるまでとした。

尚、前記試験水位は、本試験前の予備試験で水による沸騰予備試験を実施して沸騰による液面上昇での吹き上がりで液喪失が無くて、設定液位が低く過ぎてロード温度がドライアウトにならないような液位を探索した結果、TAF-1.2m 位置とした。

2.1.5. 試験溶液の調整法

表 2-1 に、人工海水の組成を示す。昨年度析出塩の X 線 CT 撮影に使用した人工海水と同様にマリンアート SF-1 である。本試験では、初期および沸騰濃縮中

に注液する溶液は共に人工海水の 2.5 倍濃縮とした。飽和温度における人工海水は 3 倍濃縮で硫酸カルシウムが析出するため、それより十分低い濃度として 2.5 倍濃縮とした。10 kg のイオン交換水に、マリンアート 950 g を溶解させた溶液である。

表 2-1 人工海水の成分

原料名	構造式	マリンアート	ダイゴ人工海水
塩化ナトリウム	NaCl	22.1 g	20.747 g
塩化マグネシウム	MgCl ₂ ・6H ₂ O	9.9 g	9.474 g
塩化カルシウム	CaCl ₂ ・2H ₂ O	1.5 g	1.326 g
無水硫酸ナトリウム	Na ₂ SO ₄	3.9 g	3.505 g
塩化カリウム	KCl	0.61 g	0.597 g
炭酸水素ナトリウム	NaHCO ₃	0.19 g	0.171 g
臭化カリウム	KBr	96 mg	85 mg
ホウ砂	Na ₂ B ₄ O ₇ ・10H ₂ O	78 mg	34 mg
無水塩化ストロンチウム	SrCl ₂	13 mg	12 mg
フッ化ナトリウム	NaF	3 mg	3 mg
塩化リチウム	LiCl	1 mg	1 mg
ヨウ化カリウム	KI	81 µg	70 µg
塩化マンガン	MnCl ₂ ・4H ₂ O	0.6 µg	0.8 µg
塩化コバルト	CoCl ₂ ・6H ₂ O	2 µg	0.2 µg
塩化アルミニウム	AlCl ₃ ・6H ₂ O	8 µg	8 µg
塩化第二鉄	FeCl ₃ ・6H ₂ O	5 µg	5 µg
タングステン酸ナトリウム	Na ₂ WO ₄ ・2H ₂ O	2 µg	0.2 µg
モリブデン酸アンモニウム	(NH) ₆ Mo ₇ O ₂₄ ・4H ₂ O	18 µg	20 µg

2.1.6. 沸騰濃縮試験パラメータ

試験溶液は、水（イオン交換水）と人工海水（2.5 倍濃縮）とで 2 ケースとした。水位は 1 ケースとし、コラプスト水位は TAF-1.2m とした。熱流束は 1 ケースとし、 3kw/m^2 とした。

2.2. 実長バンドル沸騰試験結果

2.2.1. 人工海水（2.5 倍濃縮）のプール沸騰試験

有効発熱部 3.7m の 5×5 バンドルを用いて、人工海水を 2.5 倍濃縮した溶液中で定格出力の約 0.5% 程度の発熱量で 7 時間の沸騰試験を行なった。液位は発熱部上端から 1.2m 低い位置で維持した。

実長バンドルにおける人工海水のプール沸騰試験結果を図 2-7、図 2-8、図 2-9、図 2-10 に示す。図中の試験直後の写真は、試験体に人工海水を充填後、温調ヒータにより 98℃ に加熱し、沸騰状態が定常になったことを目視で確認した直後に撮影したものである。洗浄後の写真は、試験直後の写真撮影後、洗浄液による充填排水を行い、さらにイオン交換水の充填、排水を 3 回繰返しによる洗浄を終了した後に撮影したものである。写真はそれぞれ試験体の第 1 スペーサから第 4 スペーサ（配置は図 2-3 を参照）の各スペーサ近傍を四方（東側、西側、南側、北側）から撮影した。

図 2-7 では、各側面とも第 1 スペーサ近傍に析出した塩が確認できる。また、スペーサを挟んで上側、下側ともに塩が析出している。特に、西側、南側、北側では洗浄後と比較して、内部のバンドルが見え難くなっており、多くの塩が析出しているのが分かる。

図 2-8 では、各側面とも第 2 スペーサの上側で析出した塩が顕著に見られる。特に北側については、スペーサから少し距離を置いた上側で塩が顕著に析出し、他はスペーサ直上から塩の析出が確認できる。特に、西側、南側、北側では洗浄後と比較して、内部のバンドルが見え難くなっており、多くの塩が析出しているのが分かる。

図 2-9 では、東側、西側、北側の第 3 スペーサの近傍に析出した塩が確認できる。南側においては、洗浄後とほとんど見分けがつかないくらい塩が析出していない。また、西側と北側では洗浄後と比較して、内部のバンドルが見え難くなっており、多くの塩が析出しているのが分かる。

図 2-10 では、各側面とも第 4 スペーサ近傍に析出した塩が確認できる。洗浄後と比較しても内部のバンドルが見え難くなっており、多くの塩が析出しているのが分かる。

図 2-11 は、中央ロッドのヒータ表面温度を経過時間でグラフ化したものであ

る。336分後に第1スぺーサ内で沸騰濃縮した析出塩による温度上昇が観測された。392分後に同スぺーサ内で完全閉塞して蒸気が蓄積し、同スぺーサ以下の領域をドライアウトさせている。

一方、第1スぺーサ内のヒータ表面温度の推移を図2-12に示す。第1スぺーサ上部は閉塞後もプール沸騰により冷却が継続されている。第1スぺーサ内温度分布から、析出による閉塞は中央で始まり、周辺に拡大したと考えられる。

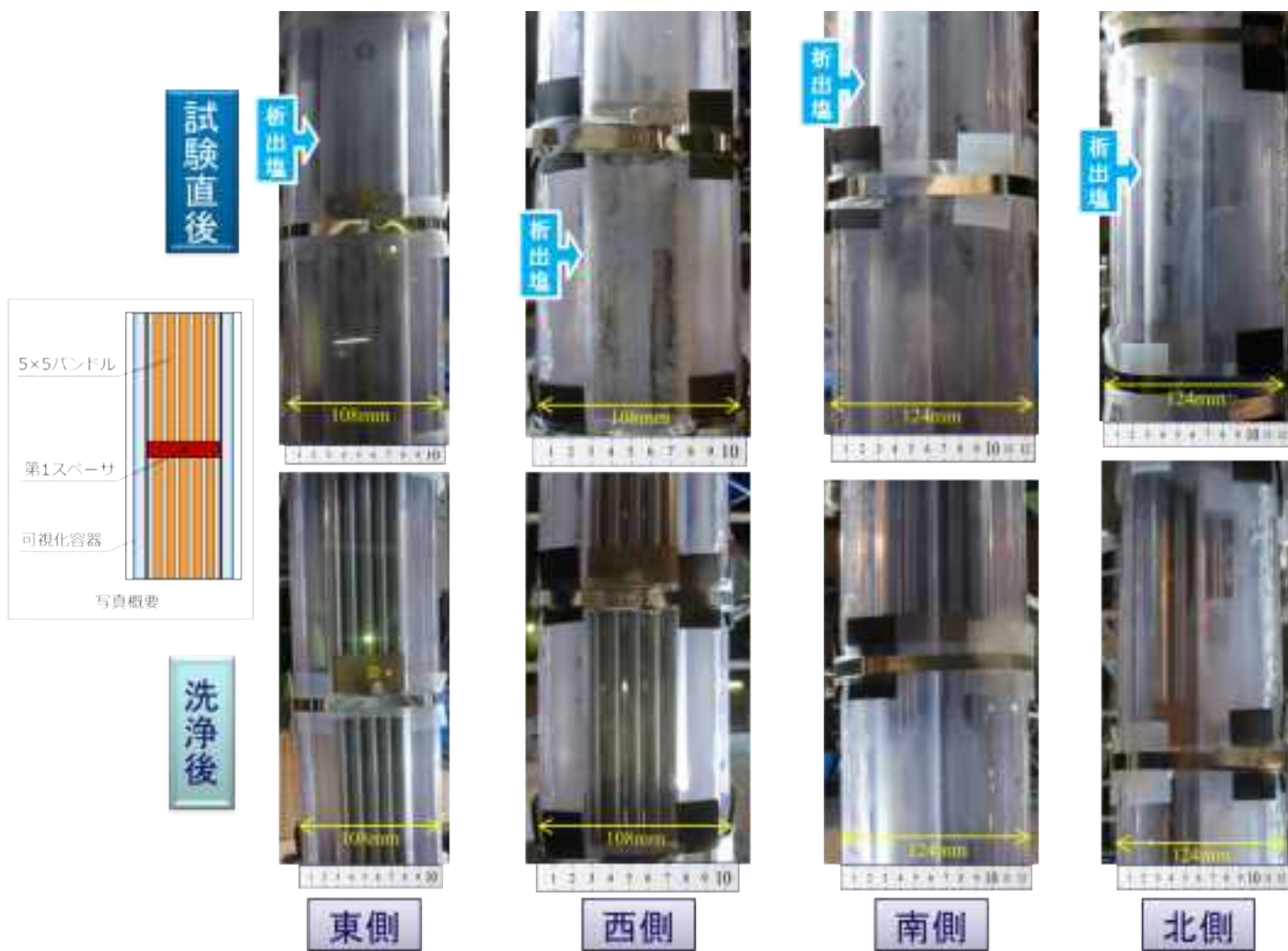


図 2-7 人工海水プール沸騰試験結果（第 1 スぺーサ近傍）

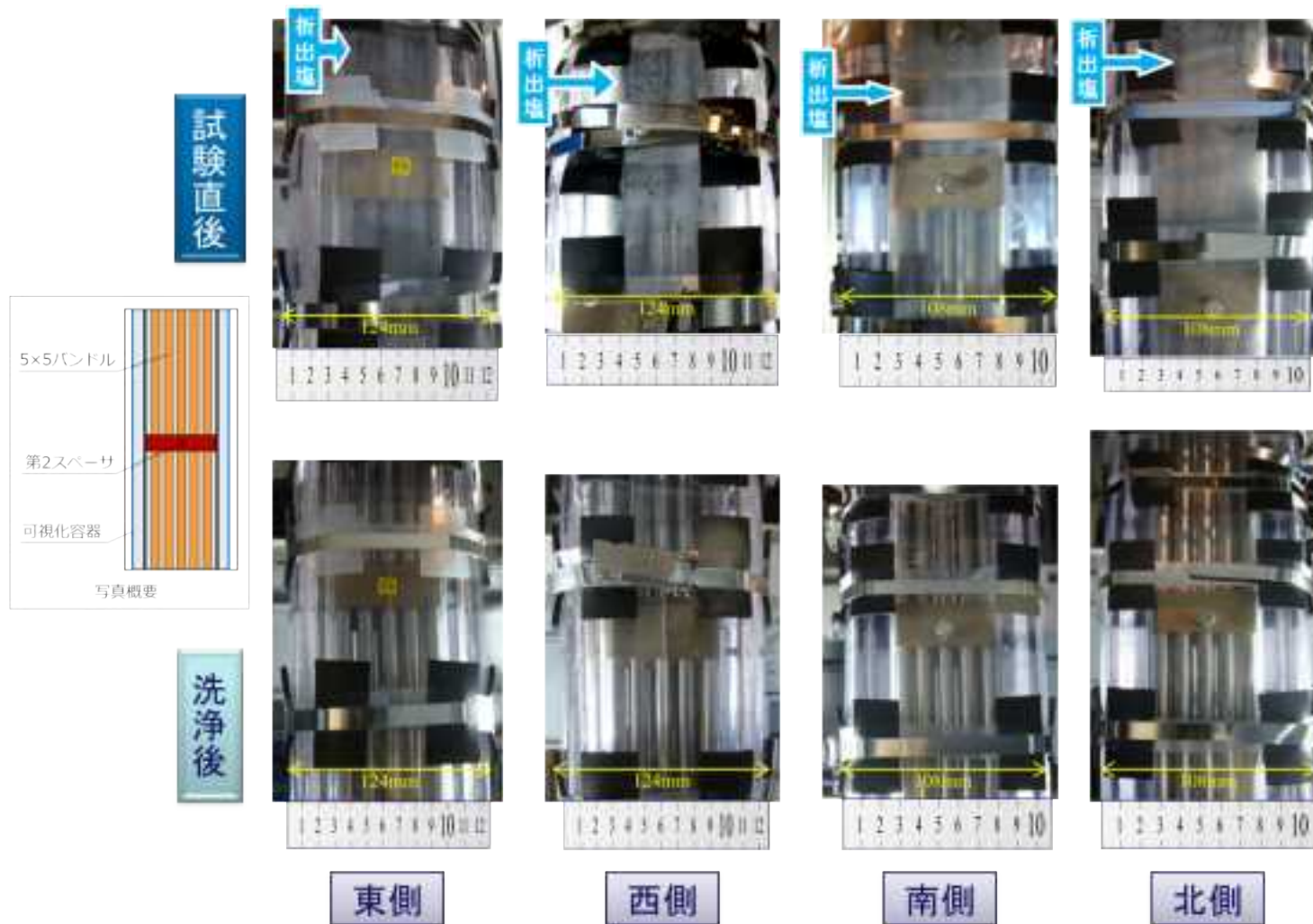


図 2-8 人工海水プール沸騰試験結果（第 2 スぺーサ近傍）

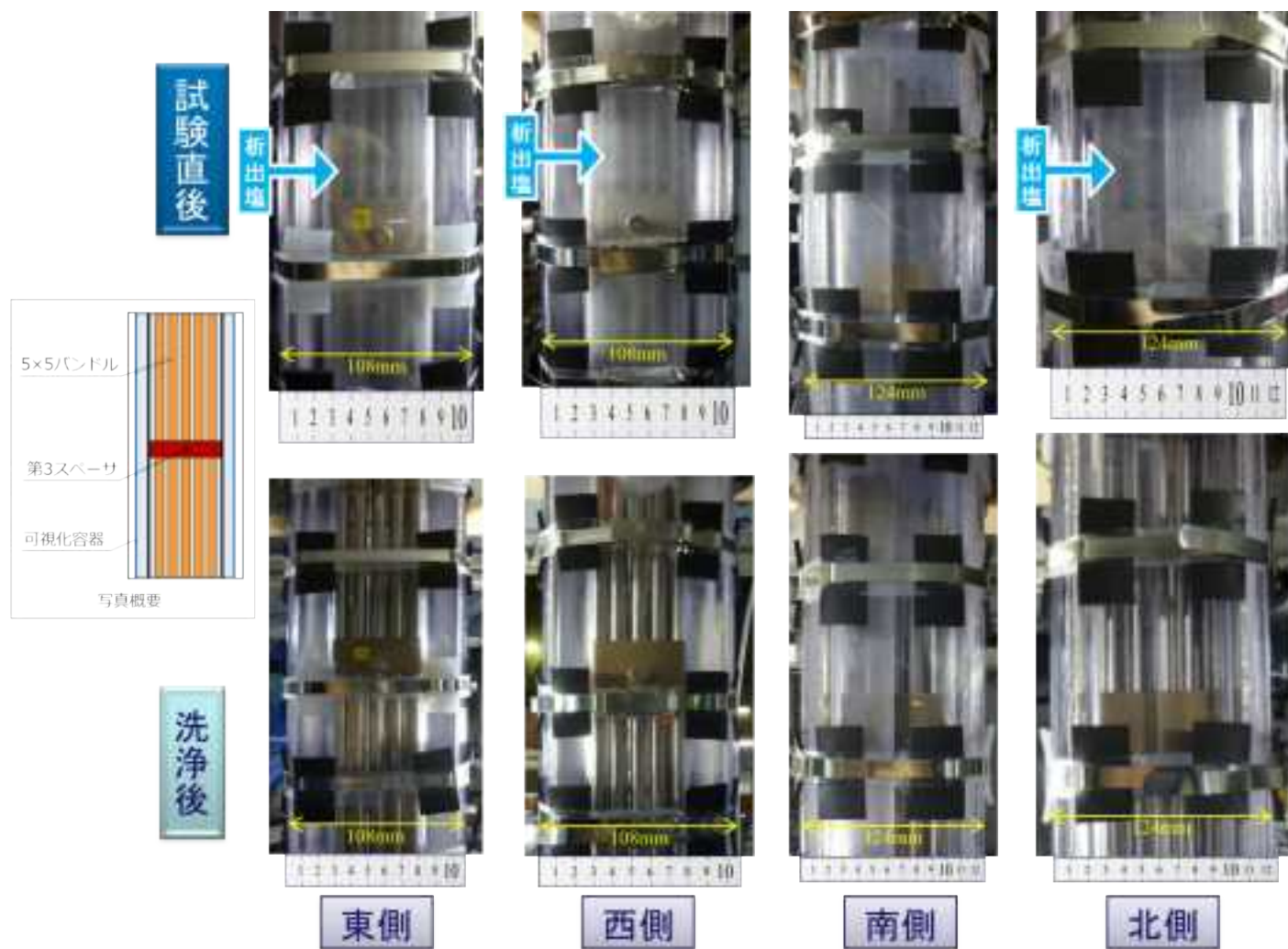


図 2-9 人工海水プール沸騰試験結果（第 3 スぺーサ近傍）

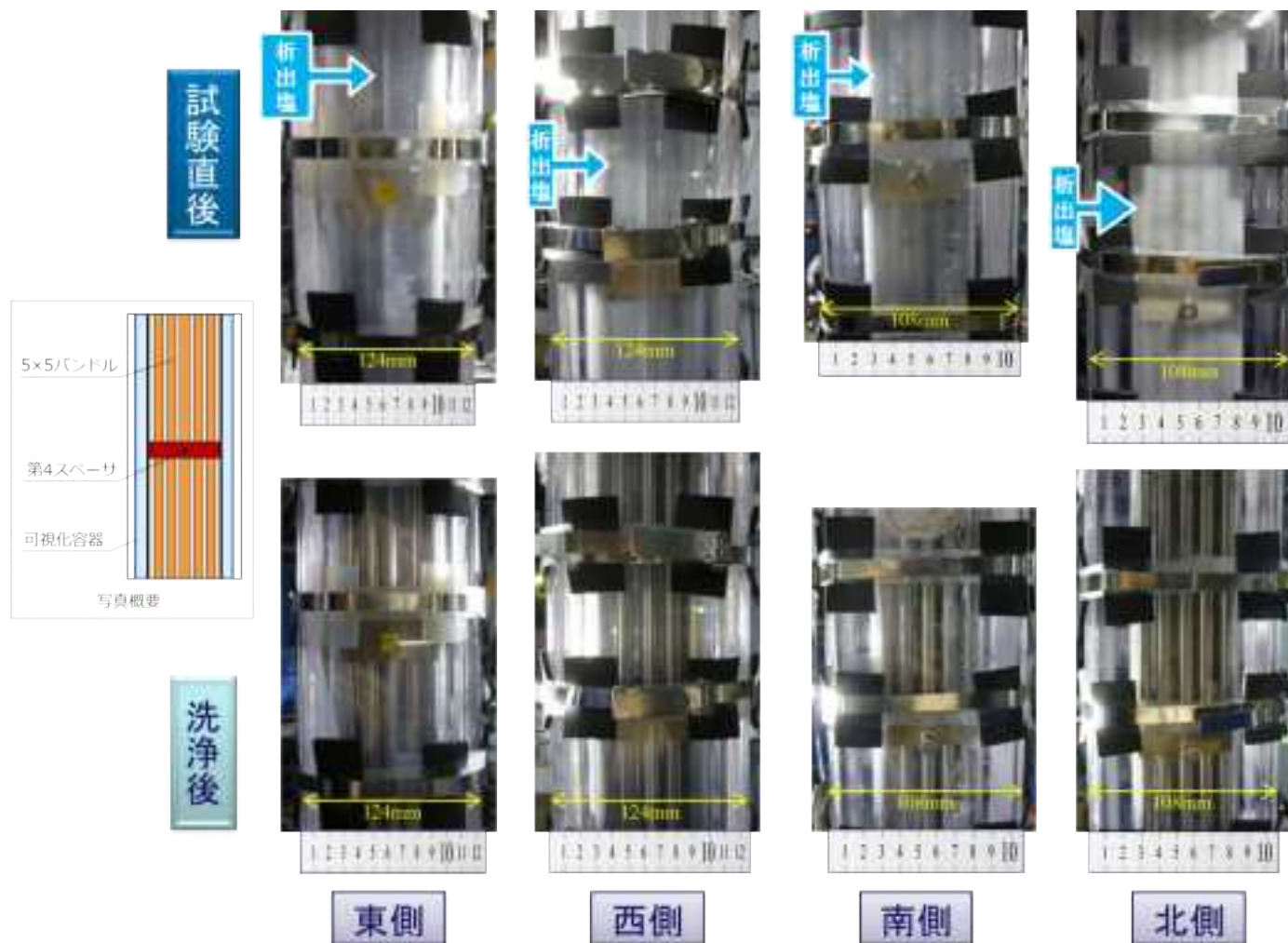


図 2-10 人工海水プール沸騰試験結果（第 4 スペーサ近傍）

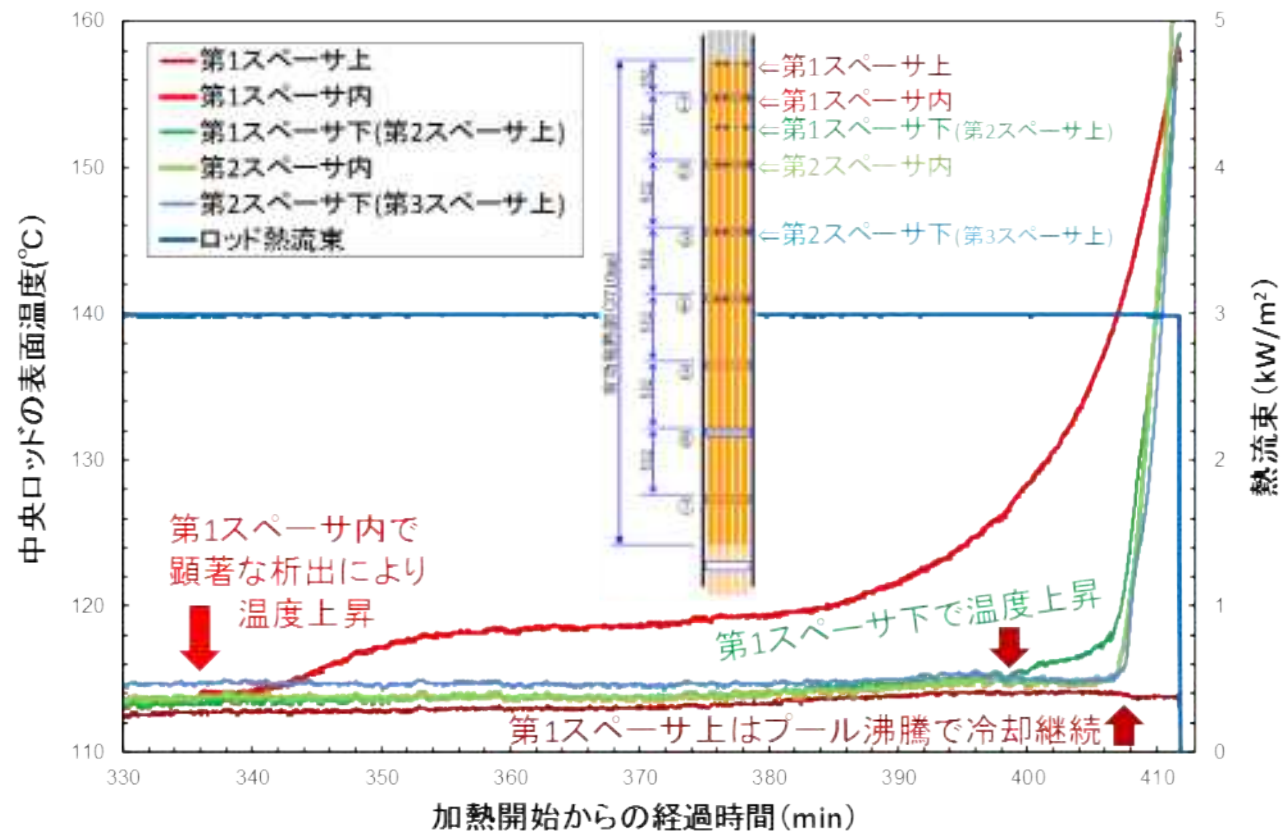


図 2-11 中央ロッドのヒータ表面温度

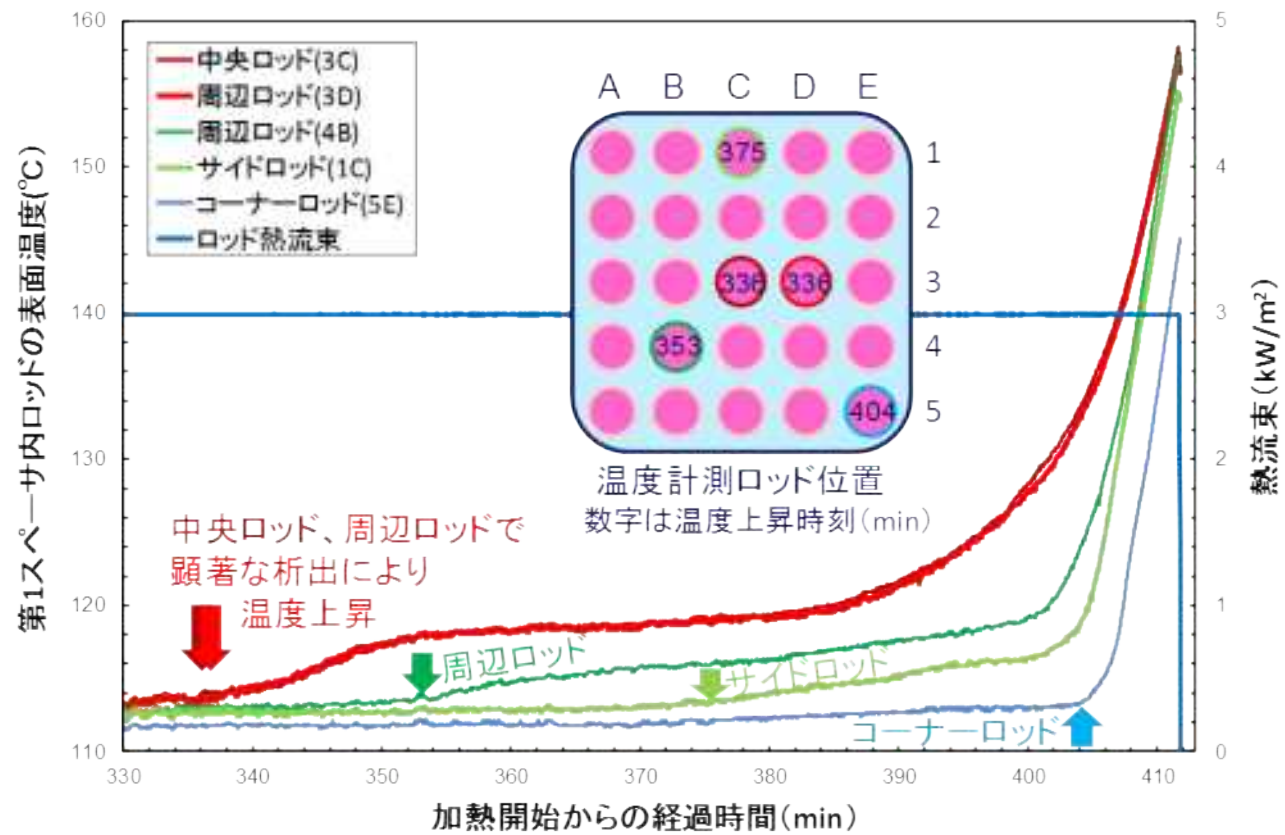


図 2-12 第 1 スぺーサ内ロッドの表面温度

2.2.2. まとめ

有効発熱部 3710mm の 5×5 バンドルを用いて、2.5 倍濃縮した人工海水を定格出力の約 0.5%程度の発熱量で 7 時間の沸騰試験を行なった。液位は発熱部上端から 1.2m 低い位置で維持した。336 分後に第 1 スペーサ内で沸騰濃縮した析出塩による温度上昇が観測された。392 分後に同スペーサ内で完全閉塞して蒸気が蓄積し、同スペーサ以下の領域をドライアウトさせた。一方、第 1 スペーサ上部は閉塞後もプール沸騰により冷却が継続されている。第 1 スペーサ内温度分布から、析出による閉塞は中央で始まり、周辺に拡大したと考えられる。また、実験では析出様相を四方から観察し、析出位置を同定することができた。

3. クラスト冷却特性

本章ではクラスト中のクラックが冷却特性に及ぼす影響を把握するため、人工海水のプール沸騰伝熱試験を実施し、熔融炉心またはデブリを模擬した、水平上向きの伝熱面上にクラスト中クラック試験体を設置して、プール沸騰時の経時変化を観察し、伝熱面温度の上昇速度を明らかにする。

3.1. クラスト中クラック伝熱特性試験装置

本試験におけるクラスト中のクラック伝熱影響試験装置（以下、本試験装置という）の基本仕様は以下の通りである。

- 設計圧力 大気圧（水槽圧力）
- 設計温度 120 °C（水槽温度）
- ヒータ温度 700 °C（ステンレス鋼最高温度）
- ヒータ容量 12kW（電源容量 30V, 400A）
- 主要材質 SUS304（供給水ポンプ、ステンレス薄板、水槽中段部、計装品、ポンプ等）
ポリカーボネイト（水槽可視化部）
- 使用流体 人工海水（2.5 倍濃縮）

3.1.1. 装置構成

図 3-1 に試験装置の概略構成を示す。図 3-2 に試験装置の外観写真を示す。試験装置は、沸騰試験を行う水槽と、それに所定温度の液を供給する給水タンク、また蒸発した蒸気を凝縮する冷水タンクとスクラバーから構成される。

図 3-3 に多孔質試験体と水槽の概念図を示す。水槽底面中央部にクラストを模擬した試験体を設置している。図 3-4 及び図 3-5 にクラスト試験体を伝熱面とした組み立て図をそれぞれ側面と上面からとして示す。金属箔を直接通電加熱するために大電流を流すことができる電極を配置しているため、強固なボルト締結構造となっている。それ以外の部分を押さえるために H 型（図中では 90 度回転させた角度）の試験体押さえがある。複雑な構造ではあるが、上面は図 3-4 に示されているとおり、平滑である。

クラスト中のクラックの影響を把握するため、多孔質体内にスリット上のク

ラック（溝）を設けたセラミック製も使用する。多孔質体の試験体を水槽底部に設置し、多孔質試験体をその下面の金属箔ヒータで加熱することで、セラミック試験体の沸騰伝熱特性を測定する。

3.1.2. 補給水供給機器

補給水供給機器は、図 3-1 に示した補給水タンク、補給ポンプから構成される。試験に用いる液は、人工海水（2.5 倍濃縮）を使用する。本試験は、液補給に際して、タンク入口のボール弁を使用し、液位を一定に保つことができる。本年度の試験は、人工海水の沸騰濃縮による塩析出を強制的に行わせるために、プール沸騰試験中の液位補給は行わない。

人工海水は、別のステンレスタンクで溶解、濃度調整、攪拌をおこなった上で、市販の投込みヒータで 60℃程度に加熱してポンプで水槽に充填する。

3.1.3. 水槽

図 3-3 に水槽の構造を示す。水槽底部には、セラミックス多孔質体とヒータが一体で組み込まれている。水槽は立方体計上で、その内寸は幅 210 mm、奥行き 210 mm、高さ 500 mm である。本試験の液位は沸騰濃縮時間を短縮するために初期設定値は 80mm とし、試験中の補給は行わない。水槽は試験体での沸騰が観察できるように透明なポリカーボネイトで製作されている。

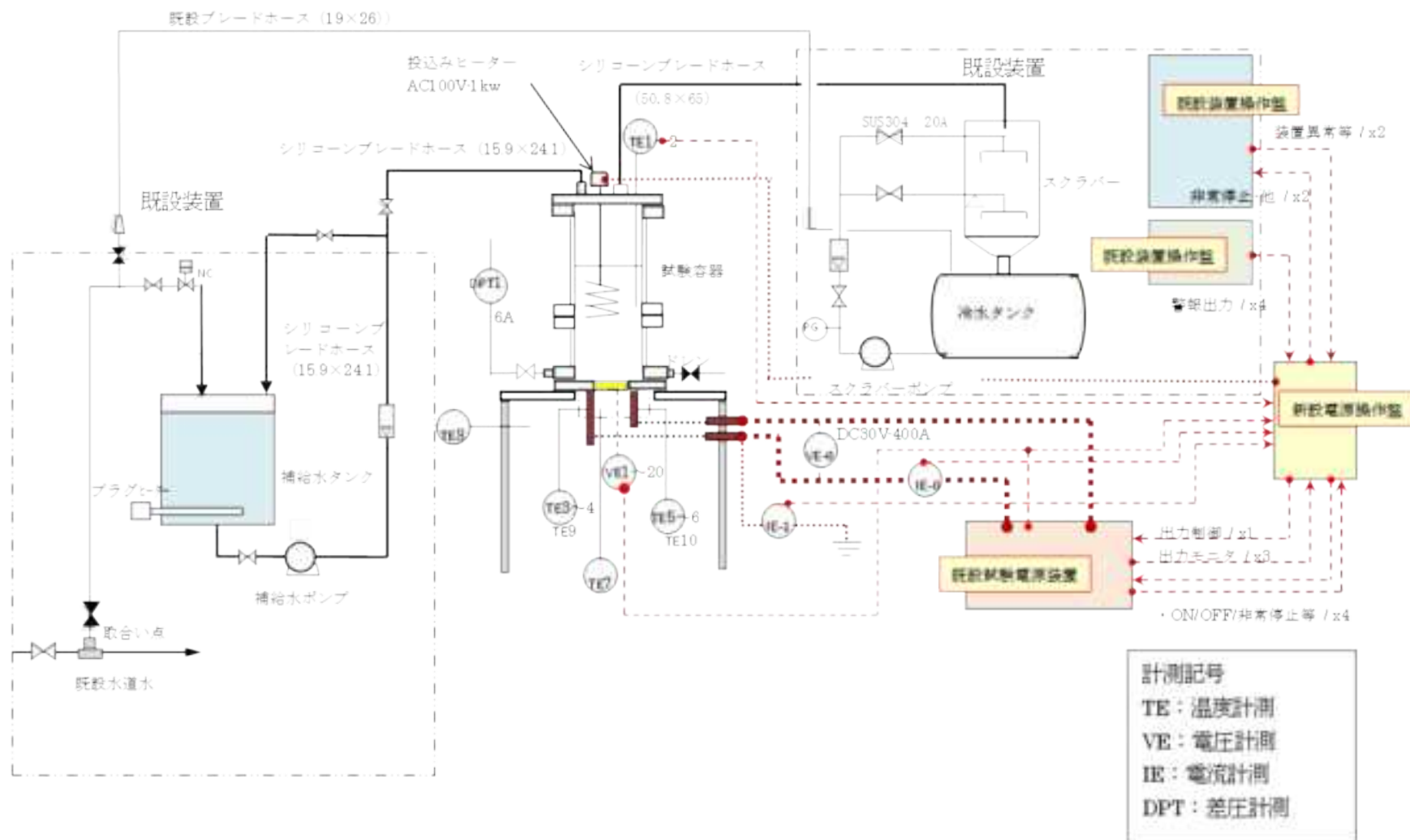


図 3-1 クラスタ中クラック伝熱特性試験装置の概念図



図 3-2 試験装置の外観写真

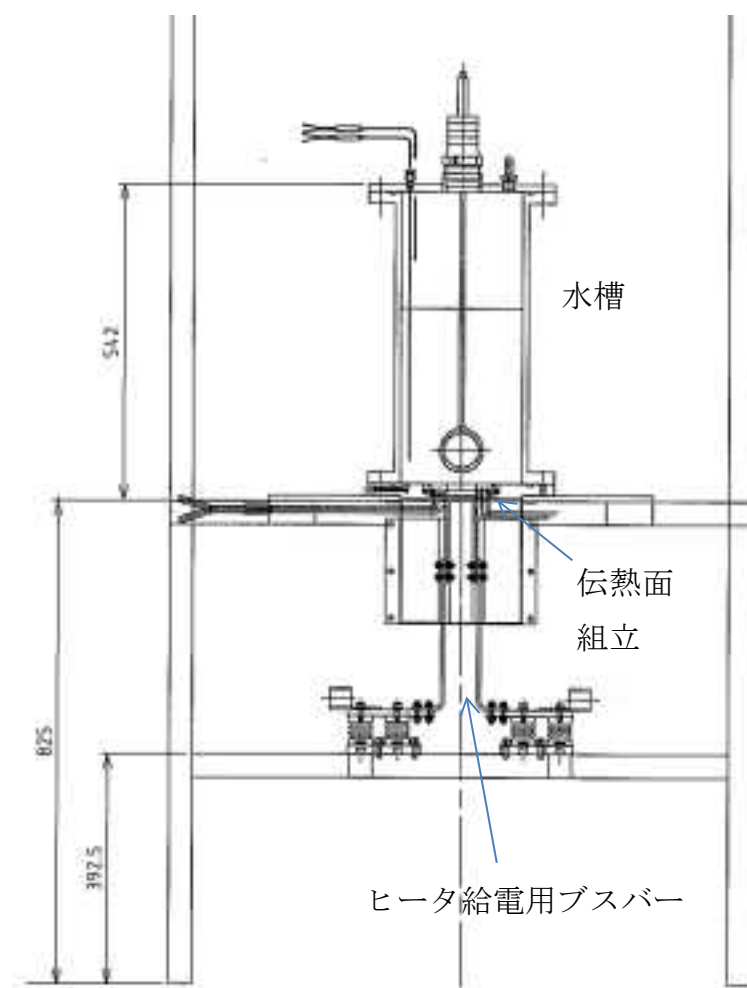


図 3-3 伝熱面と水槽の概念図

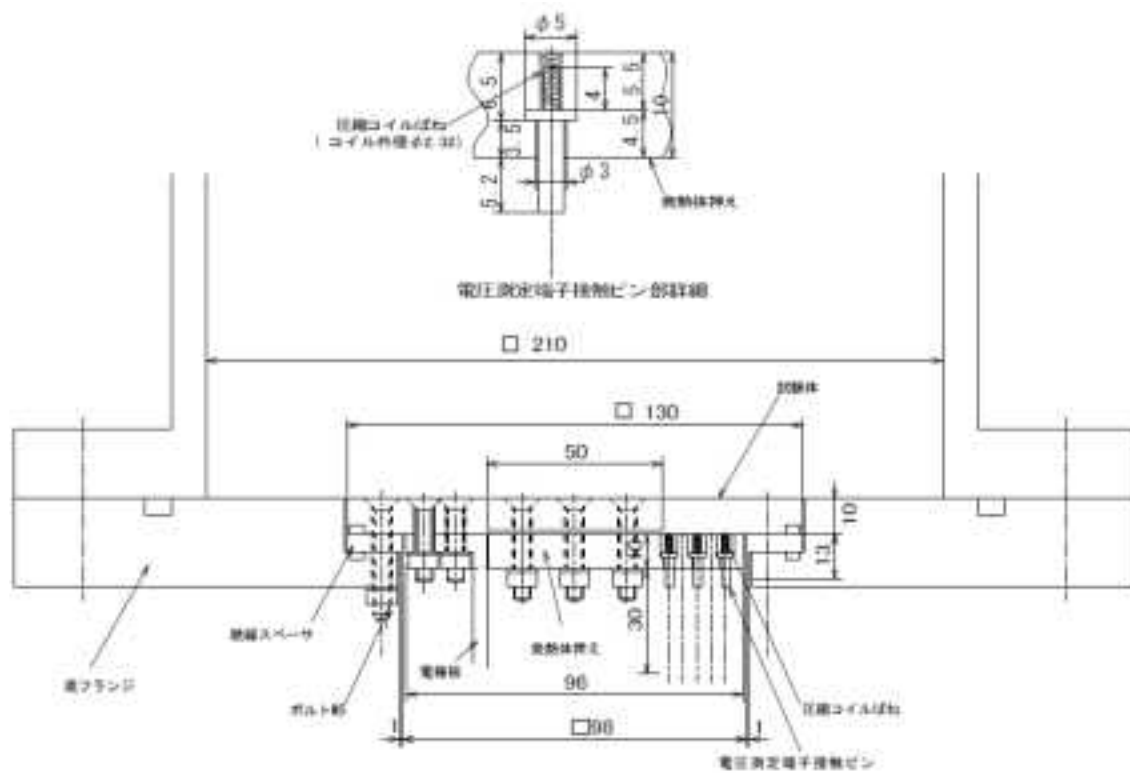


図 3-4 伝熱面の組立図（側面）

3.1.4. 模擬クラスト多孔質体

多孔質体中である模擬クラスト試験体を伝熱面上に配置するためには、周囲に隙間無く固定されていることが重要である。本年度は三次元加工機を用いて、粉末をレーザーで焼結しながら固化形成した。本加工法では、クラストのポロシティやクラックなどを自在に配置できる利点がある。なお、本試験の試験体はクラックの有無の2種類であり、クラック有りの場合は、幅 2mm のクラックを配置した。

図 3-6 に、本試験で用いた多孔質体三次元造型機を示す。写真左側は 3D Systems 社の金属用三次元造型機で製品名は ProX200 である。現時点では三次元造型機としては、樹脂か金属を対象とした製品が存在するのみである。対象とするアルミナを形成するため、金属が造形できる三次元造型機として、本製品を選定した。

3D Systems 社の ProX200 の造形方式は、金属粉末をレーザーで焼結する粉末焼結積層法である。造形寸法は幅 100mm、奥行き 100mm、高さ 80mm が推奨されているが、沸騰伝熱面の面積を大きくすることから、造形プレートとほぼ同じ面積の幅 130 mm、奥行き 130 mm とした。多孔質体の高さは 10 mm であるが、形成後の多孔質体を造形プレートから切り離すために、2 mm の切り代を考慮し、高さは 12 mm とした。積層ピッチは 40 μm である。使用したアルミナ粉末粒径は 5 μm である。図 3-6 写真右側はエアードライヤ（フクハラ製 N2M4-85HXIII-8K）及び窒素発生器（日立産機システム製 HDN-25BF）である。既存のコンプレッサ（アネスト岩田製 SLP-75ED）からの圧縮空気は、エアードライヤで乾燥空気とし、窒素発生器により酸素を分離して窒素を三次元造型機に供給することで、レーザー照射により高温になった熔融物の酸化を抑制する方式である。金属用造型機の特徴であり、セラミックス造形に際しては不要であるが、安全機能の一部であることから購入際して除外不能であったため、窒素発生器を使用して造形を行った。

図 3-7 に三次元造型機を用いてクラスト試験体を造形している様子を示す。アルミナ粉末ベッドのうち、約 130 mm 四方が対応する造形領域である。写真中の左上の明るい部分は、レーザーが照射され、アルミナ粉末が熔融・凝固している場所である。中央部の 50 mm 四方はクラスト模擬試験体の多孔質部分である。写真は中央部の造形前に、周辺部を造形している。図示されているよう

に造形は六角形を最小単位としている。これは収縮時の圧縮応力になるべく分散されるように小さな領域毎に分けて造形するためである。

図 3-8 に、使用した原材料粉末と造形物、対照として用いたアルミナ粉末の三種類の粉末 X 線回折結果を示す。三種類の粉末はいずれも主要ピークが同じ回折角に出現し、既知の単斜晶アルミナの X 線回折結果(PDF)と一致している。図 3-7 に示されるとおり、白色のアルミナ粉末はレーザー照射により溶融・凝固した後に灰色を呈する。しかしながらその組成は単斜晶アルミナのままであることが確認された。



(a) 三次元造型機



(b) エアードライヤ窒素発生器

図 3-6 多孔質体三次元造型機



図 3-7 多孔質体三次元造型中の様子

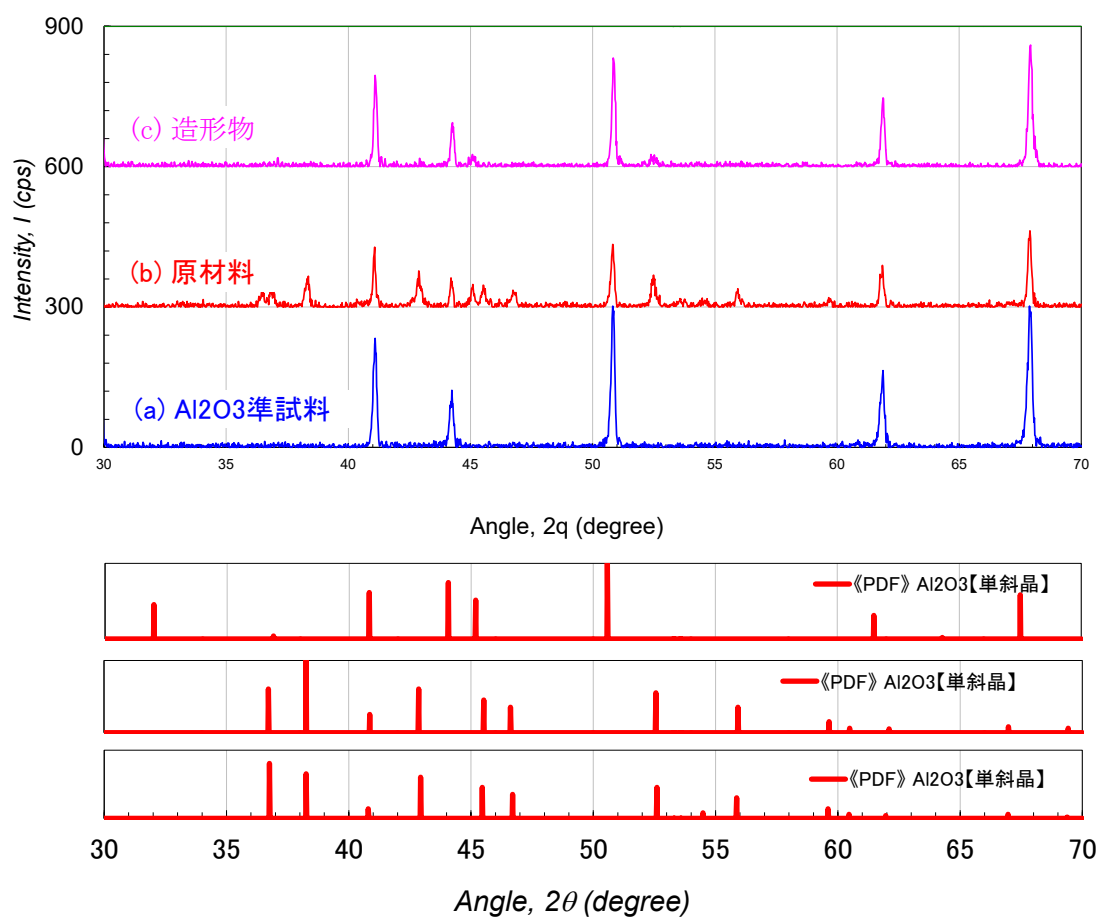


図 3-8 使用粉末と造形物の X 線回折結果

3.1.5. 透水試験

本試験では、クラスト試験体を海水中に浸漬させて行なうため、クラスト多孔質体について透水試験を行い、透水性を評価した。透水試験で評価した模擬クラスト試験体の寸法は、直径 50mm、厚さ 10mm とし、3D Systems 社の ProX200 を使用して造形した。室内試験として定水位透水試験装置の概要を図 3-9 に示す。試験装置は、内径 50mm の塩ビ管を使用して U 字型に製作した。試験は、注水側の塩ビ管に造形した模擬クラスト試験体を取り付けて注水する。このとき塩ビ管にはオーバーフローを設けているため、もう一方の塩ビ管との水頭差を定水位にすることで透水係数を求めている。透水係数 k はダルシーの法則から次式で求められる。

$$k = \frac{Q}{t \cdot A \cdot i} = \frac{QL}{t \cdot A \cdot h} \quad (\text{式 3-1})$$

Q : t 時間内 (秒) の透水量 (cm^3)

A : 試験体の断面積 (cm^2)

i : 動水こう配

h : 試験体の厚さ L (cm) における水頭差 (cm)

製作した試験装置を図 3-10 に示す。模擬クラスト試験体は目が粗い/細かいの 2 種類を評価した。実施した定水位透水試験のデータを表 3-1 に示す。試験結果より模擬クラスト試験体の透水係数 k は、目が粗いものが 1.43×10^{-5} 、目が細かいものが 4.99×10^{-6} であった。粘土 (不透水) の透水係数が 10^{-8} オーダーあることから、本試験で使用するクラスト多孔質体は、透水性が確保できている。

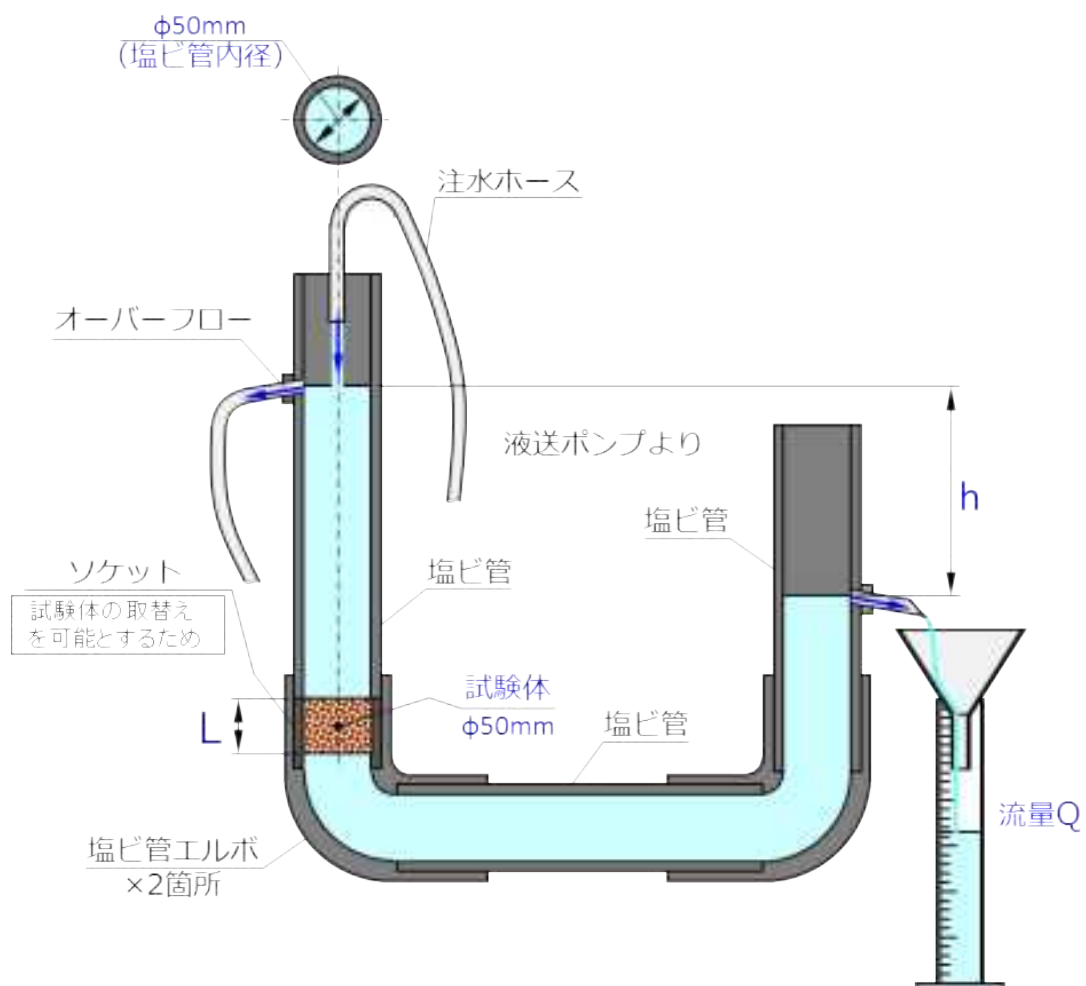


図 3-9 定水位透水試験装置の概要

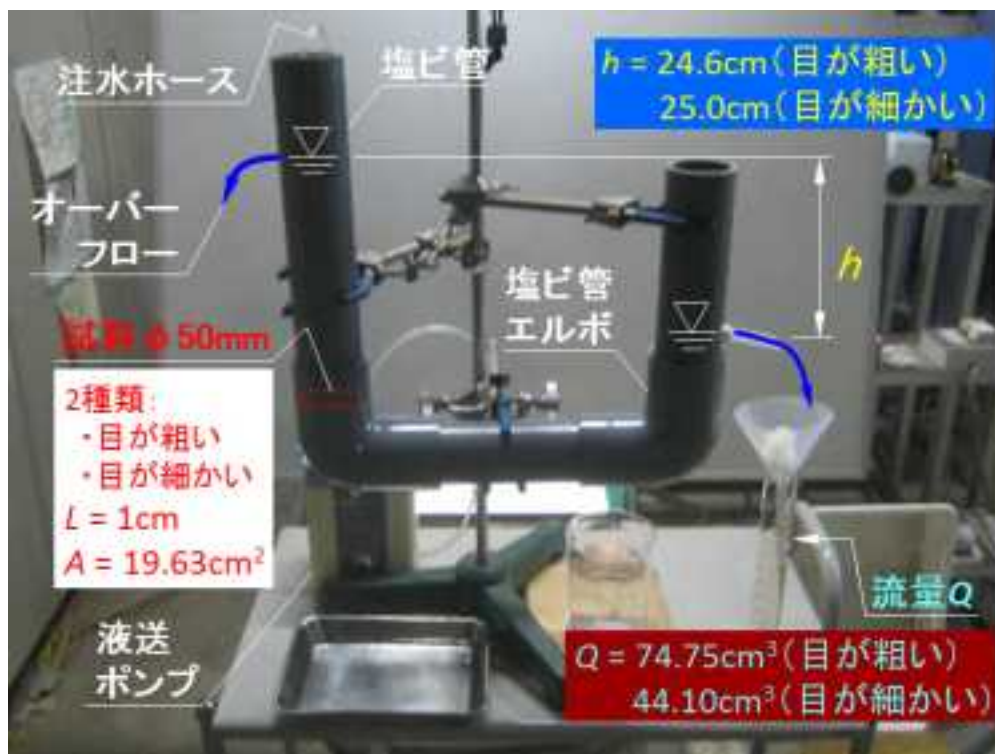


図 3-10 製作した定水位透水試験装置

表 3-1 定水位透水試験データ

項目			試料の種類	
			目が粗い	目が細かい
試料	厚さ L	cm	1	
	断面積 A	cm ²	19.63	
流量 Q		cm ³	74.75	44.10
水頭差 h		cm	24.6	25.0
測定時間 t		s	10800	18000
透水係数 k		cm/s	1.43E-05	4.99E-06

3.1.6. 伝熱面の構造

前述のクラスト多孔質体を伝熱面とするために、クラスト中央に 2mm のクラックを配置した模擬クラスト試験体（幅 50 mm×奥行 50 mm×厚さ 10 mm）を三次元造形し（図 3-11）、抵抗変化から温度分布を推定するヒータ（図 3-12）を模擬クラスト裏面に形成した独自の伝熱面を製作した。図 3-12 に示すヒータ兼温度計測薄膜は、金属箔として Type 316 オーステナイト系ステンレス鋼を用いた。幅と長さは共に 100 mm で、厚さは 20 μm である。この金属箔を図中赤線部分にレーザーを照射し、切断する。その結果、中央部に有効発熱長 50 mm、幅 50 mm のヒータと、図中左右に電極部、上下に 24 本の電位計測リードを有する一枚の箔が形成されている。

この金属箔をセメダイン社製の耐火パテを用いてクラスト多孔質体の下面に接着した。

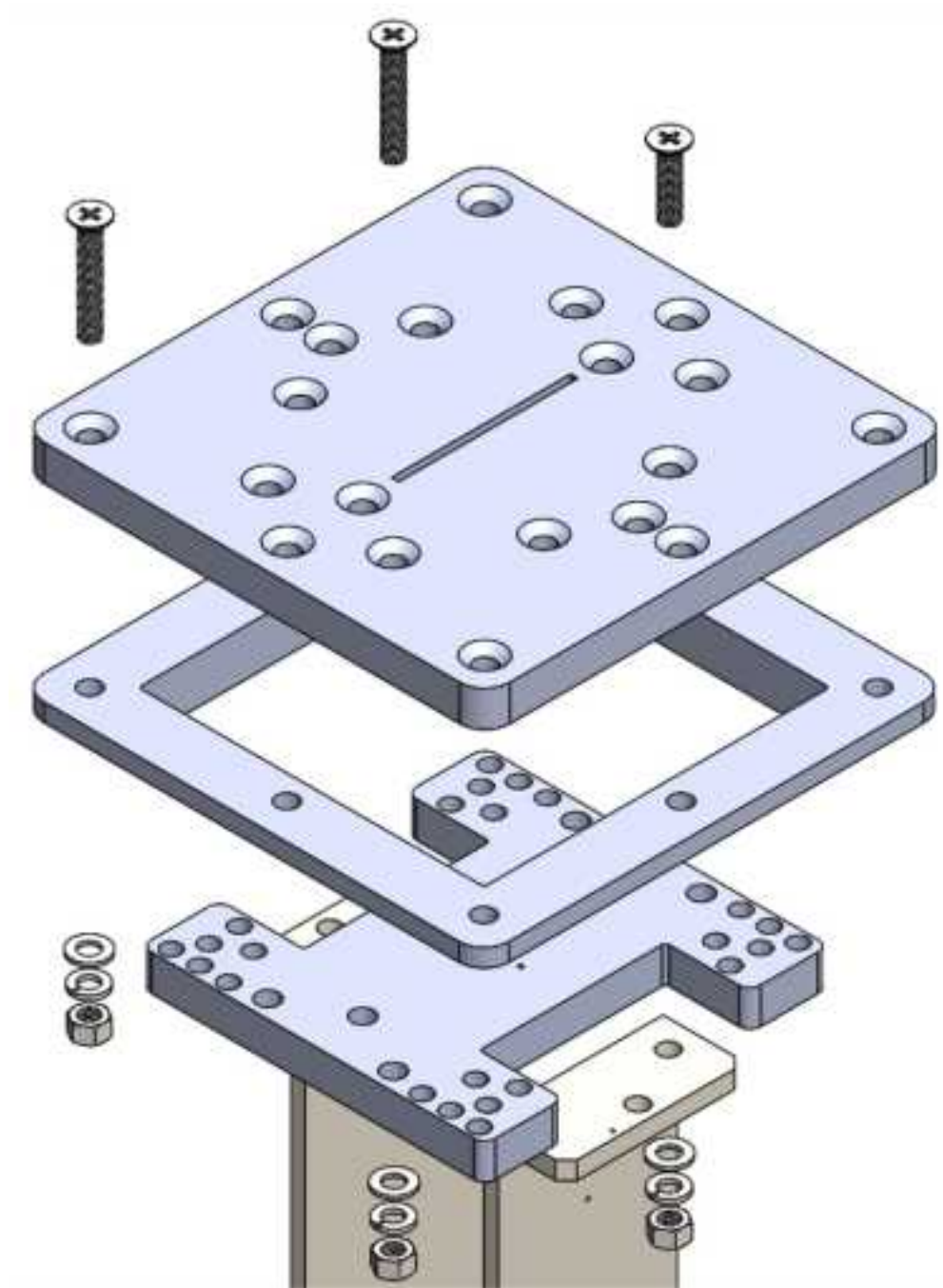


図 3-11 クラスト中クラック試験体の三次元造形

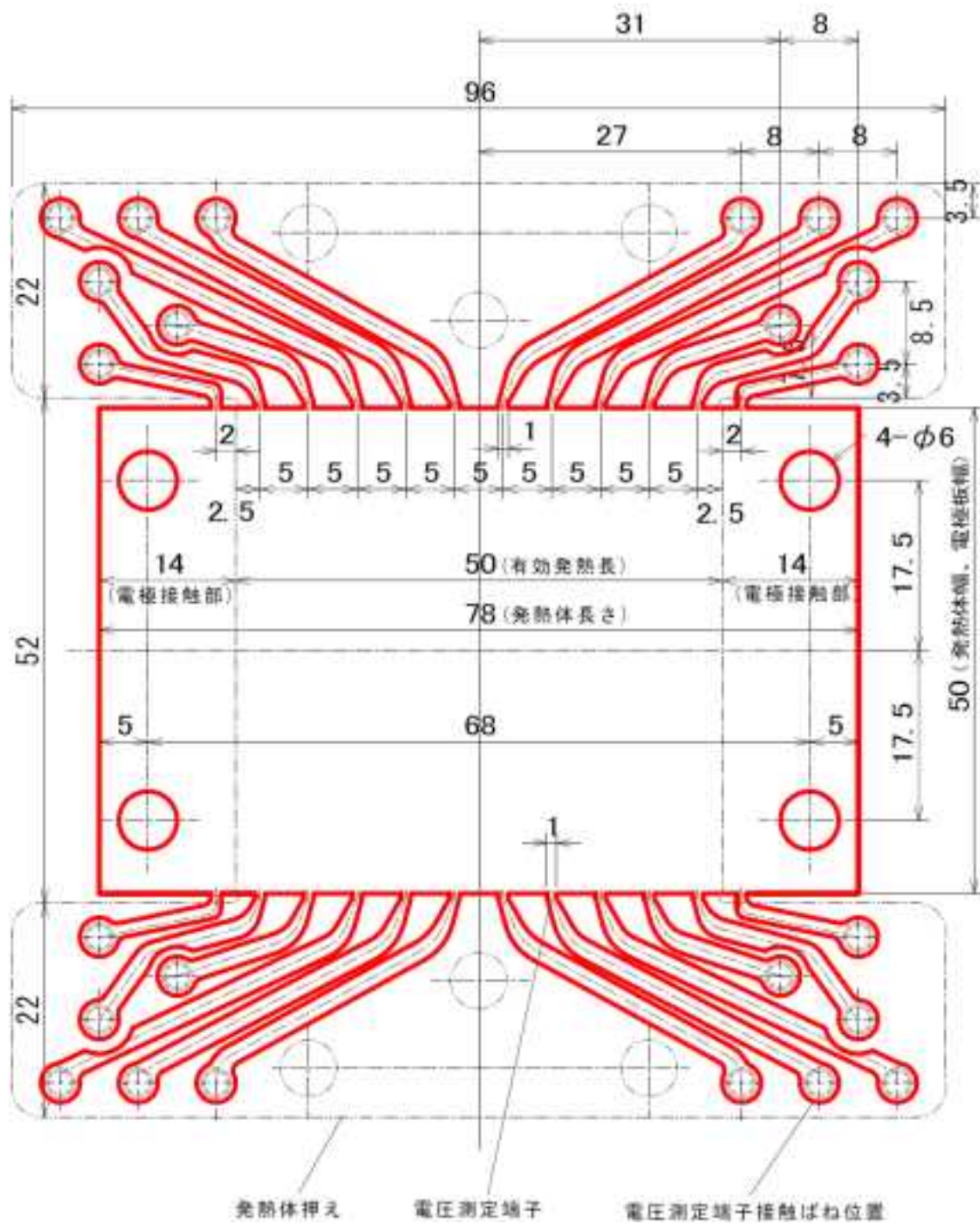


図 3-12 ヒータ兼温度計測薄膜の製作

3.1.7. 計測条件

センサで計測した温度をや流体温度、電源電流やヒータ各部の電位、液位などを1秒間隔で行った。

沸騰曲線に必要とされる熱流束は、金属箔端部の計測リードの電位差に電流値を乗して、伝熱面積で除した値とした。伝熱面温度は、中央部に配置した熱電対指示値を用いた。プール沸騰試験のプール液が飽和であることを確認するために、プール底面の多孔質体近傍に Type K 熱電対を設置して溶液温度を計測し、98℃以上であることを確認した。液位は 80 mm であることを確認して実験を開始した。

3.1.8. 試験溶液

本試験の人工海水は 2.5 倍濃縮であり、マリンアート SF-1（富田製薬株式会社製）をイオン交換水へ溶解させた溶液である。具体的には、イオン交換水 17kg にマリンアート SF-1 1615g を溶解した。

3.1.9. プール沸騰試験パラメータ

表 3-2 に、プール沸騰試験条件を示す。溶液は人工海水の 1 種類である。クラックは有無の 2 水準とし、有の場合にはクラック幅を 2 mm とした。クラスト粒径は小粒径である。小粒径の場合には多孔質体は緻密でポロシティ（空孔率）は約 30%である。

表 3-3 に、プール沸騰試験番号の命名法を示す。最初の記号は流体種類を示し、人工海水では S である。続いてクラック幅であり、0 はクラック無しを、2 は多孔質体の中央に幅が 2 mm のクラックが存在する。続く記号がクラスト粒度を示しており、S は小粒径を示している。続く 4 桁の数字は MMDD 形式の日付で、実験日を示している。

表 3-2 プール沸騰試験条件

試験パラメータ	水準数	範囲
溶液	1	人工海水
クラック幅	2	0 mm（クラック無）、2 mm
クラスト粒径	1	小

表 3-3 プール沸騰試験番号命名法

試験体		人工海水 s	日付
クラック 有 2mm	粒度小	S2S	MMDD 月日の 4 桁
クラック 無 0mm	粒度小	S0S	

3.2. 試験手順

試験手順は以下の通りである。

- (1) 試験溶液（人工海水）をタンク中で指定濃度に溶解させる。
- (2) 加熱して所定の温度に維持する。
- (3) ポンプにより、水槽に溶液を移送する。
- (4) 水槽内の溶液に補助ヒータを浸漬し、水槽内の溶液温度を沸点近傍に予熱する。
- (5) 金属箔ヒータに 2 V を印加して、ヒータ及び伝熱面を予熱する。
- (6) 水槽内溶液温度が沸点近傍に到達後、金属箔ヒータで試験体の加熱を開始する。加熱速度は 10 mV/s とする。
- (7) 金属箔ヒータ温度が 650°C を超えるまで沸騰試験を継続して伝熱面温度を計測し、試験を終了する。
- (8) 試験終了後、溶液を排出し、装置内を洗浄する。

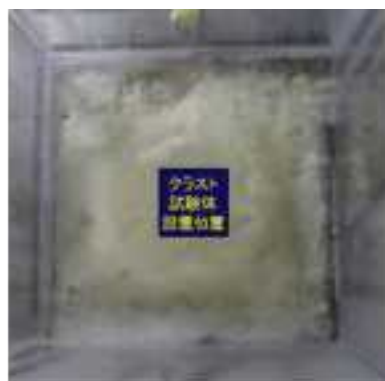
3.3. プール沸騰伝熱試験

炉心溶融時のデブリベッドで発生するクラストに対して、その伝熱特性を測定するとともに、海水が注入されたことでクラストに発生するクラックの伝熱促進効果、および塩析出による伝熱劣化効果を明らかにする。

3.3.1. プール沸騰伝熱試験結果

クラスト中クラック試験体（多孔質体）を 2.5 倍濃縮人工海水プールに浸漬し、下から加熱したプール沸騰伝熱試験結果について、図 3-13 にクラスト試験体について、試験後に観察した析出塩の写真を示す。図 3-14 に析出塩時間経過による発熱体温度、熱流速及びクラック有／無試験体の状態を示す。

図 3-13 では、クラック有／無試験体とのプール底面に塩が析出しているのが見られた。プール底面の塩については、みかけ密度の低い堆積塩を除去し、クラスト試験体上面に析出した塩を観察すると、クラック有／無試験体ともクラスト上面を覆うように固着した析出塩が見られた。図 3-14 の試験結果のグラフでは、沸騰開始後よりクラックが海水供給を促進して発熱体温度を低下させる効果が確認された。時間経過と共に伝熱面温度は連続的に上昇し、約 230 分後にクラックの有無で温度の差がなくなったことからクラックが析出塩で閉塞したと考えられる。約 290 分後には双方共に温度が急上昇したことから、クラストのポロシティも閉塞したと推定される。

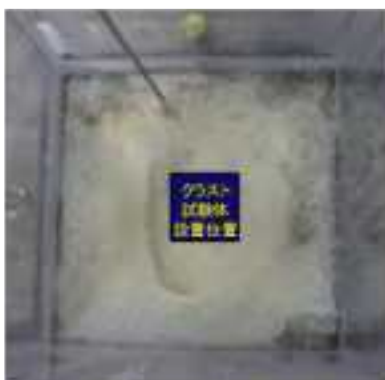


(a) クラック無



(a) クラック無

みかけ密度の低い
堆積塩を除去



(b) クラック有

プール底面の観察



(b) クラック有

クラスト上面に固着した析出塩

図 3-13 析出塩の観察

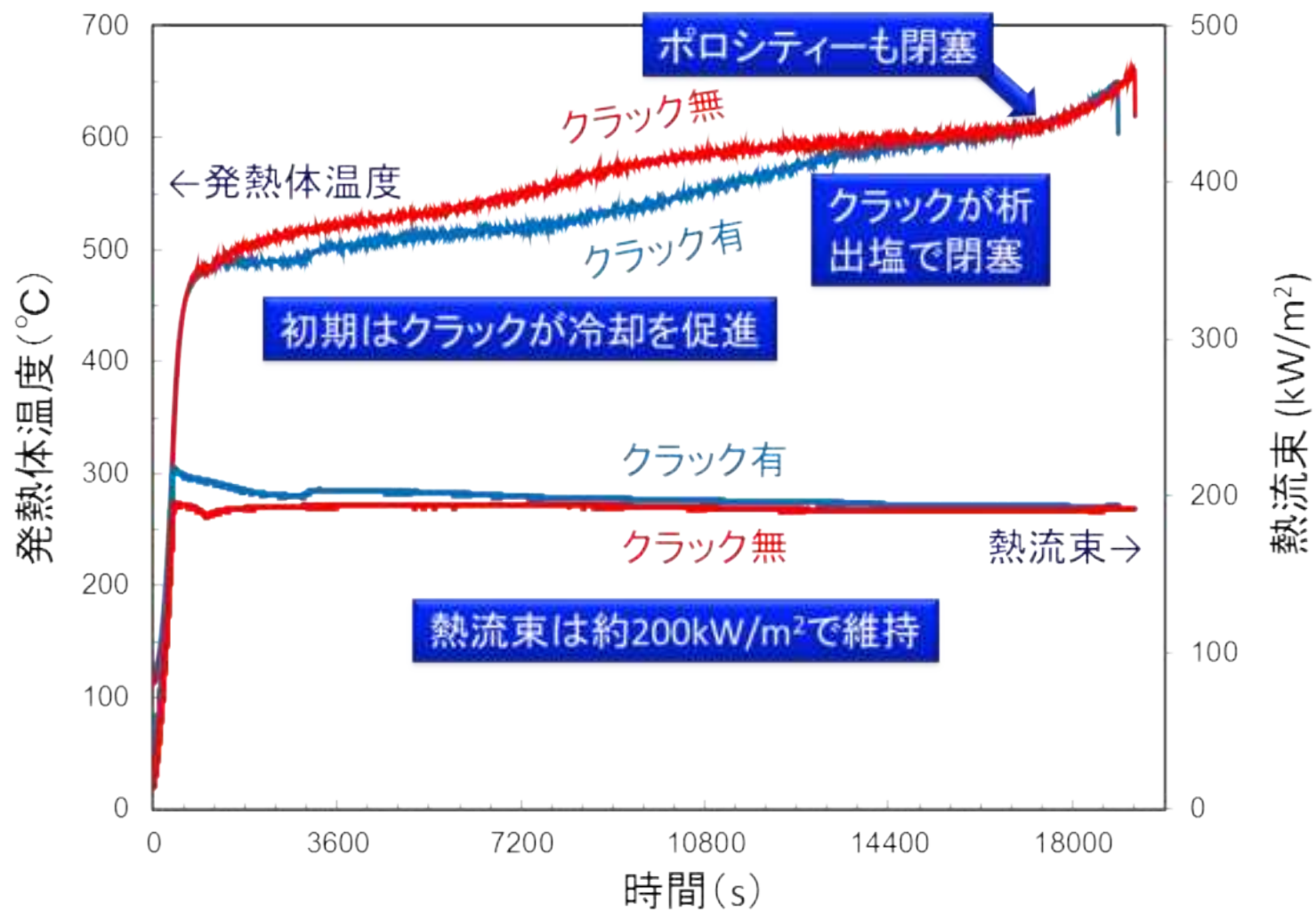


図 3-14 クラスト中クラックのプール沸騰伝熱試験結果

3.3.2. クラスト試験体上に析出した塩堆積物の元素分析

図 3-15、図 3-16、図 3-17 は沸騰試験後のクラスト試験体試験面に析出した塩堆積物の様子を示す。

図 3-15 はクラスト試験体が試験装置に装着された状態であるが、塩堆積物は試験体の試験面全体を覆うほど、析出している。図 3-16 は試験装置より取り外したクラスト試験体を示しているが、試験体中央の発熱部以外の塩堆積物は脆く、簡単に除去可能なため、試験装置から取り外したクラスト試験体には発熱部直上にしか、塩堆積物は残留していない。図 3-17 は発熱部塩堆積物内部の様子を観察するため、試験体を厚さ方向に 2 分割した様子であるが、その断面を光学顕微鏡で観察してみると、塩堆積物が色合いの異なる 2 層構造である事が判る。

そこで、これらの層がどのような元素で構成されており、その含有元素からどのような化合物が形成されているかを知るため、ICP-MS 分析および顕微ラマン分光分析を行った。

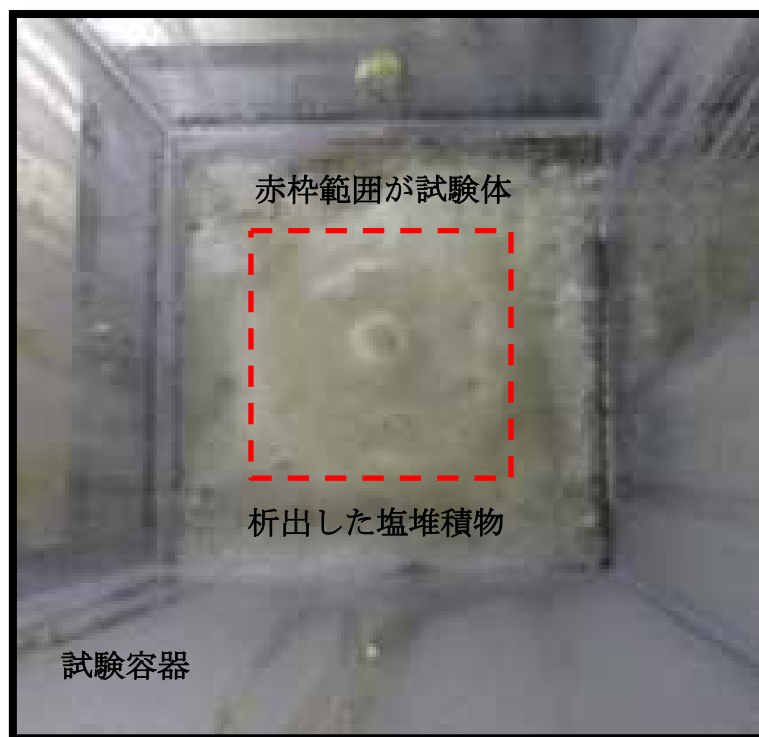


図 3-15 沸騰試験直後のクラスト試験体上に析出した塩堆積物の様子

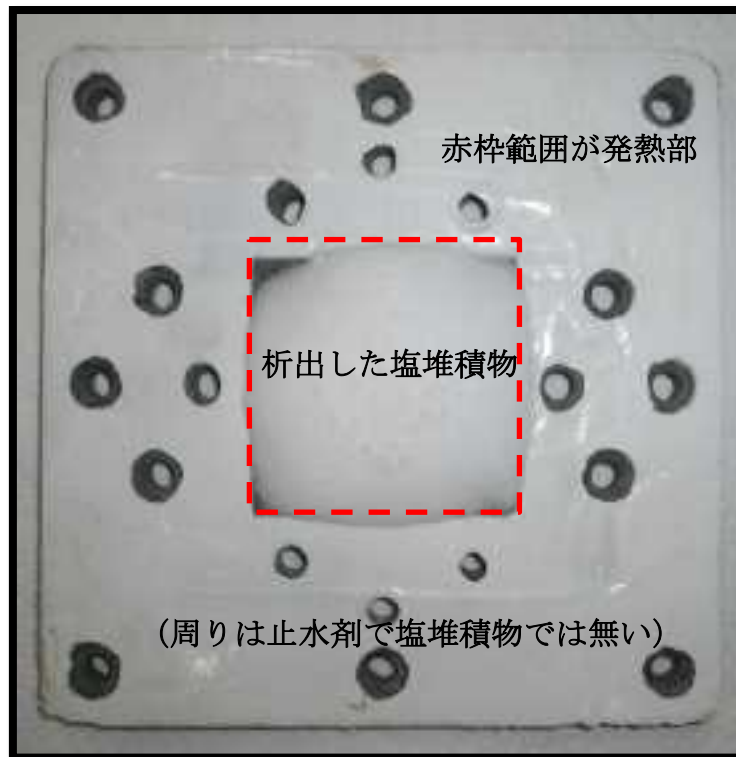


図 3-16 試験装置より取り出したクラスト試験体発熱部上部の塩堆積物の様子

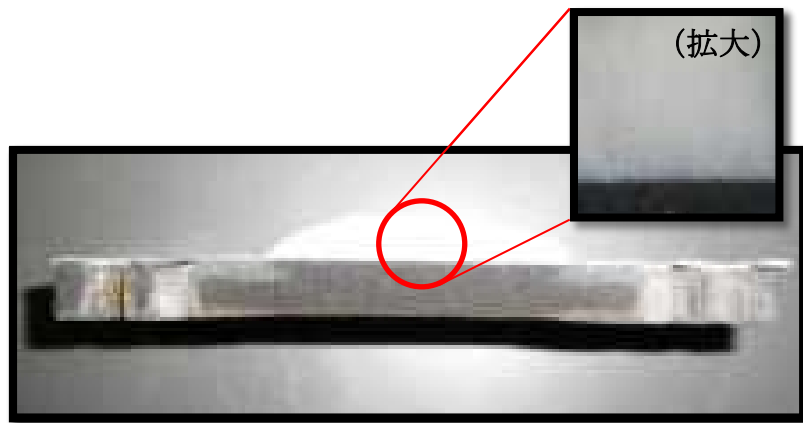


図 3-17 厚さ方向に 2 分割した試験済みクラスト試験体（クラック無試験体）

(1) ICP-MS 分析

ICP-MS 分析とは試料のイオン化に ICP (Inductive Coupled Plasma, 誘導結合プラズマ) を使った MS (Mass Spectrometer、質量分析器) である。当所に設置されている装置にはレーザーアブレーション装置 (Laser Ablation) が付属している。レーザーアブレーション装置は試料に紫外線レーザー (波長 213nm) を照射、試料表面で発生した熱により照射面の物質を急速に分解気化する事が可能なため、水溶液化が困難な試料や通常取り扱いが困難な程、微量な試料を効率良く、ICP-MS 装置へ導入する事ができる。

1) 分析方法

分析は図 3-18 に示すレーザーアブレーション装置付 ICP-MS 装置 (アジレント製、モデル名 7700X) を使い、図 3-19 に示す様、厚み方向に 2 分割したクラスト試験体断面について、クラック無試験体の場合は発熱部平坦面中央を分析した。クラック無試験体の分析箇所を図 3-20 に示す。また、クラック有試験体の場合は発熱部平坦面に加えて、発熱部のクラック内横断面も分析した。クラック有試験体の平発熱部平坦面分析箇所を図 3-21 、発熱部クラック内横断面の分析箇所を図 3-22 に示す。分析対象元素は人工海水中に含まれている代表的な 9 元素 (Na, Cl, Ca, S, Sr, K, Mg, Al, Br) とし、クラック無/有それぞれで分析条件、分析範囲を設定し分析を行なった。クラック無試験体の分析条件を表 3-4、分析範囲を図 3-23 に示す。クラック有試験体については、発熱部平坦面の分析条件を表 3-4、分析範囲を図 3-24、発熱部クラック内横断面の分析条件を表 3-5、分析範囲を図 3-25 に示す。



図 3-18 レーザーアブレーション装置付 ICP-MS 装置外観

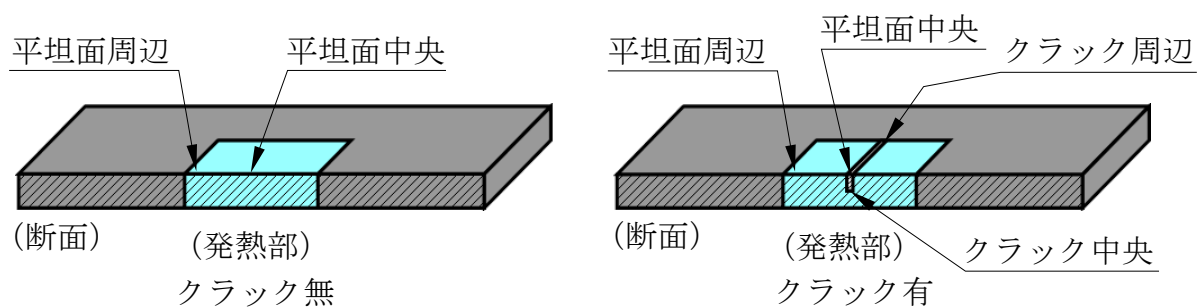
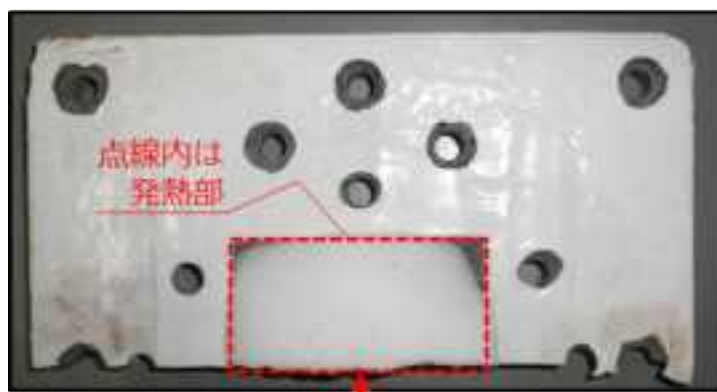
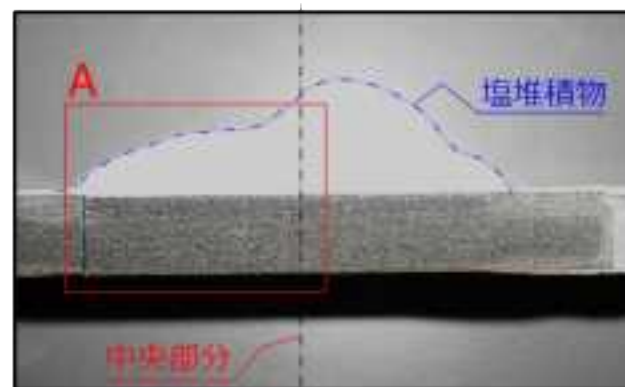


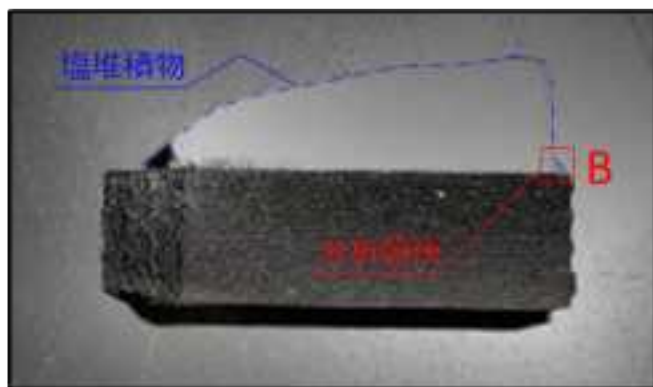
図 3-19 分析箇所の概略図



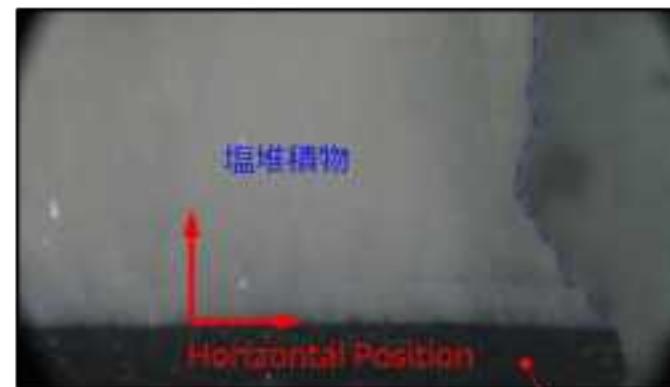
P
試験体を中央部で分割



分割した試験体断面(Pより見る)



A部拡大



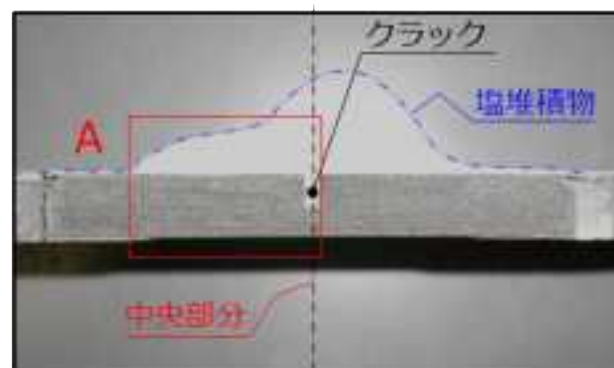
B部拡大 (分析箇所)

クラスト試験体

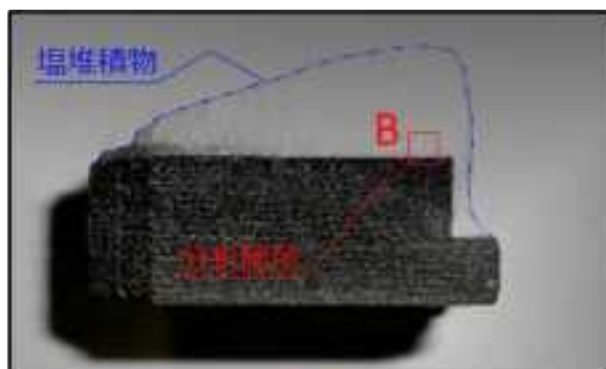
図 3-20 クラック無試験体の分析箇所 (発熱部平坦面中央)



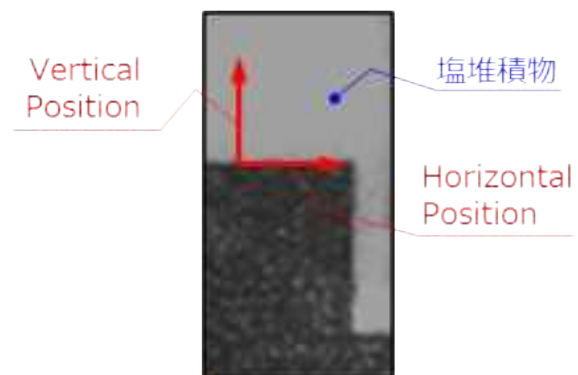
P
試験体を中央部で分割



分割した試験体断面(Pより見る)



A部拡大

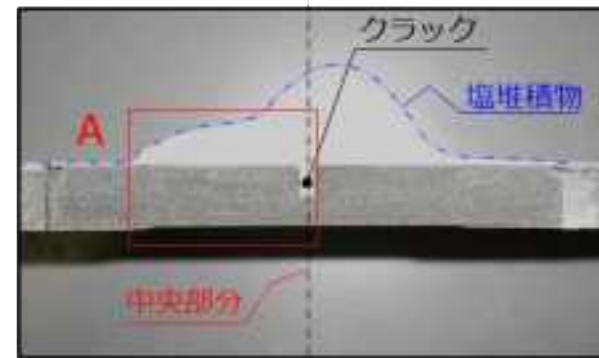


B部拡大 (分析箇所)

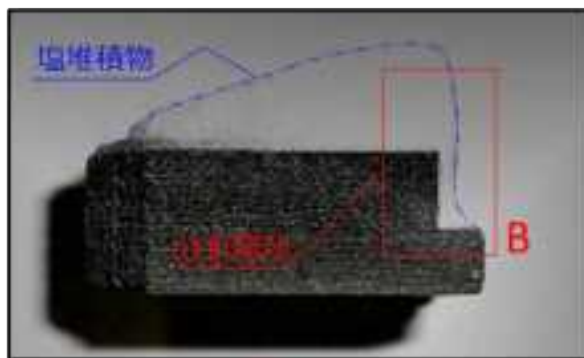
図 3-21 クラック有試験体の分析箇所 (発熱部平坦部)



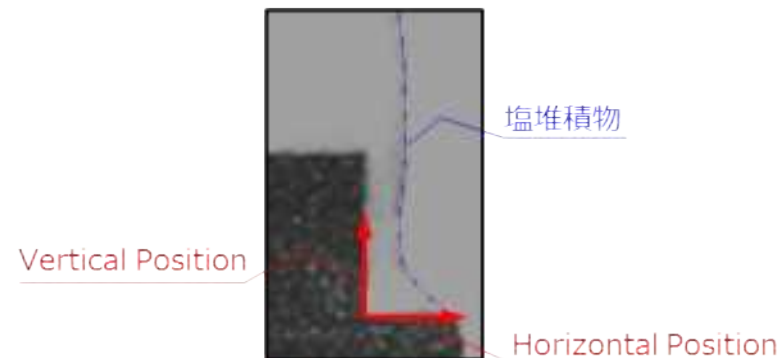
P
試験体を中央部で分割



分割した試験体断面(Pより見る)



A部拡大



B部拡大 (分析箇所)

図 3-22 クラック有試験体の分析箇所 (発熱部クラック内横断面)

表 3-4 ICP-MS 分析条件（クラック無平坦面中央／クラック有平坦面）

装置名	パラメータ	設定値
レーザアブレーション装置	レーザ波長	213nm
	発振モード	Burst(自動設定)
	パワー	20%
	繰返し周波数	10Hz
	スポット径	110 μ m
	照射時間	20秒
	ピッチ	100 μ m
ICP-MS装置	測定モード	He+H ₂
	スイープ回数	100回
	データ収集回数	3回

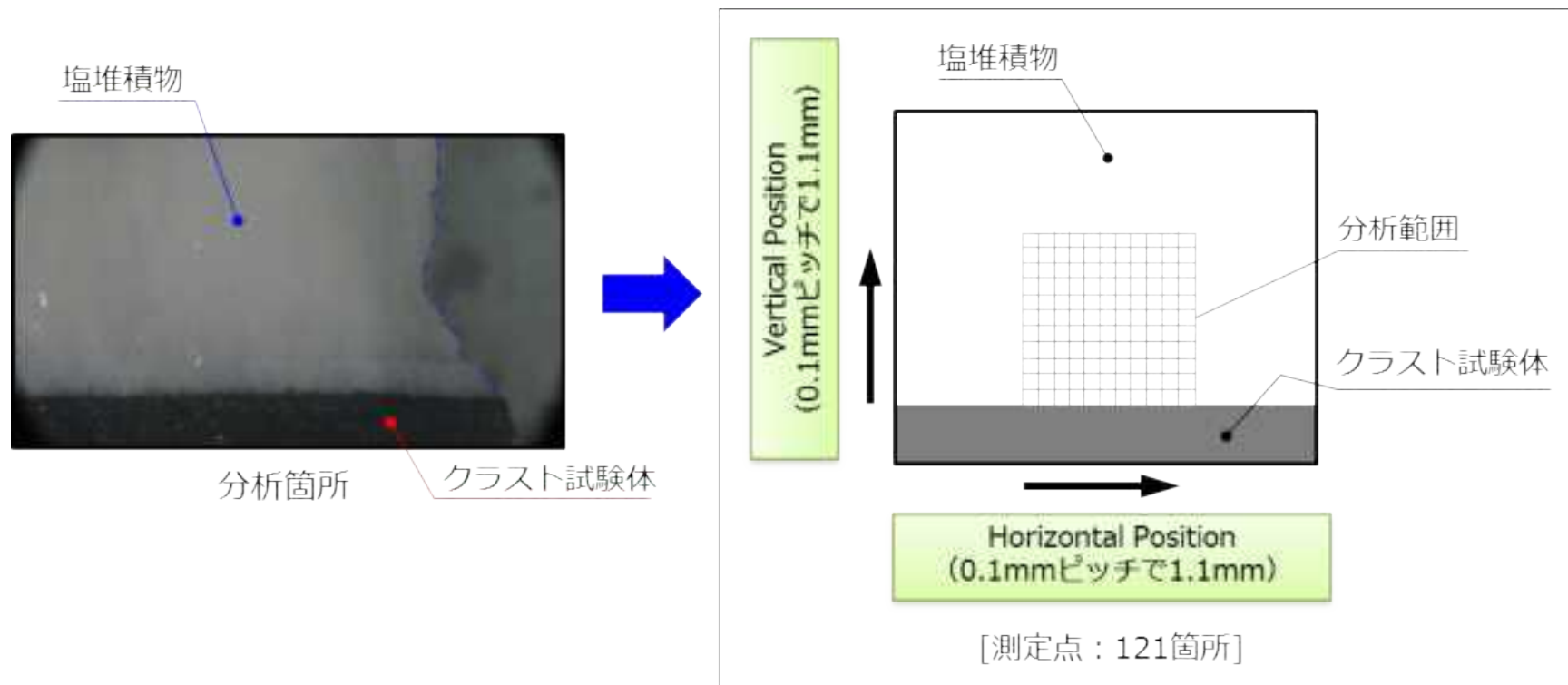


図 3-23 分析範囲（クラック無試験体発熱部平坦面中央）

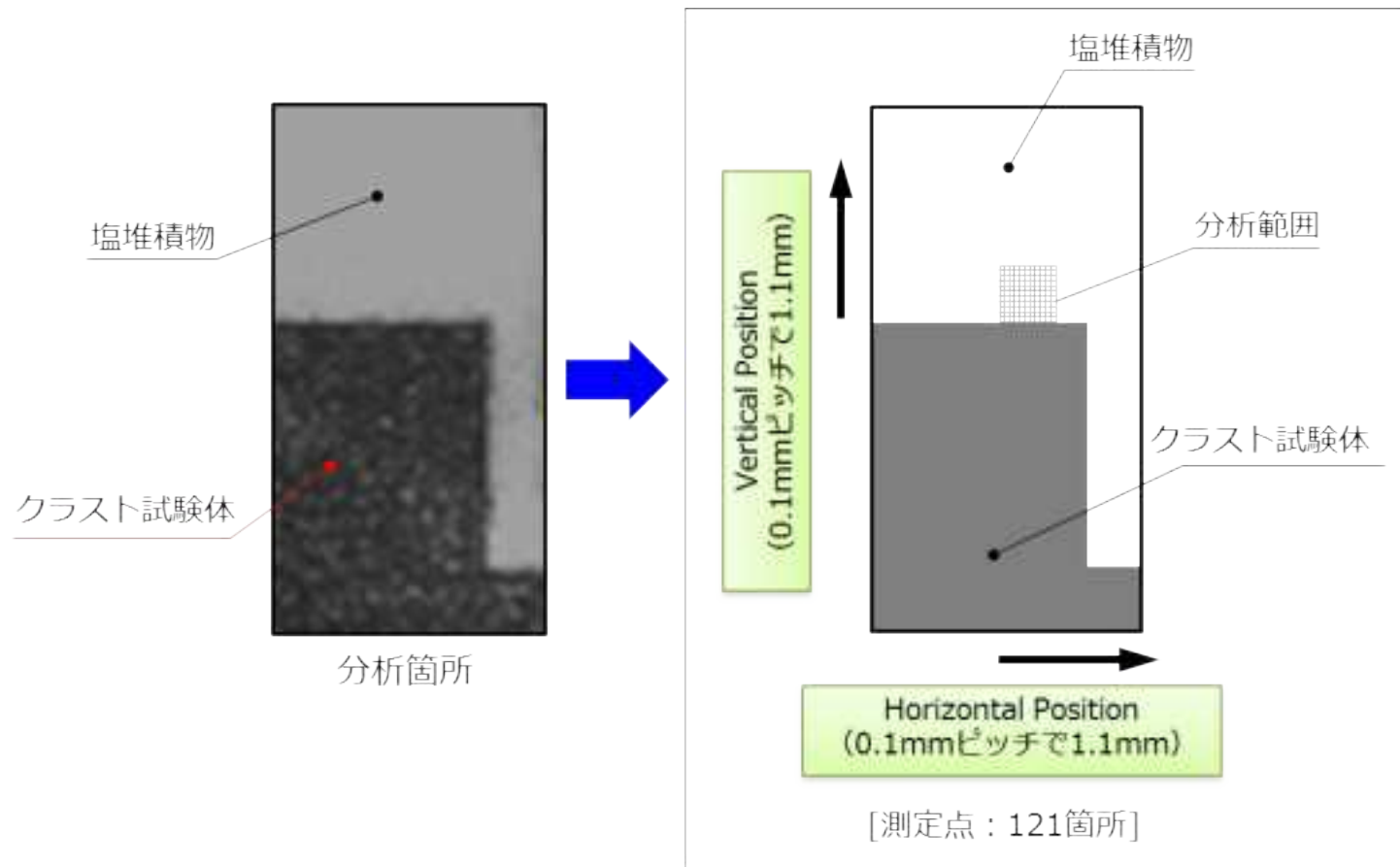


図 3-24 分析範囲（クラック有試験体発熱部平坦面）

表 3-5 ICP-MS 分析条件（クラック有試験体クラック内横断面）

装置名	パラメータ	設定値
レーザアブレーション装置	レーザ波長	213nm
	発振モード	Burst(自動設定)
	パワー	20%
	繰返し周波数	10Hz
	スポット径	110 μ m
	照射時間	20秒
	ピッチ	150 μ m
ICP-MS装置	測定モード	He+H ₂
	スイープ回数	100回
	データ収集回数	3回

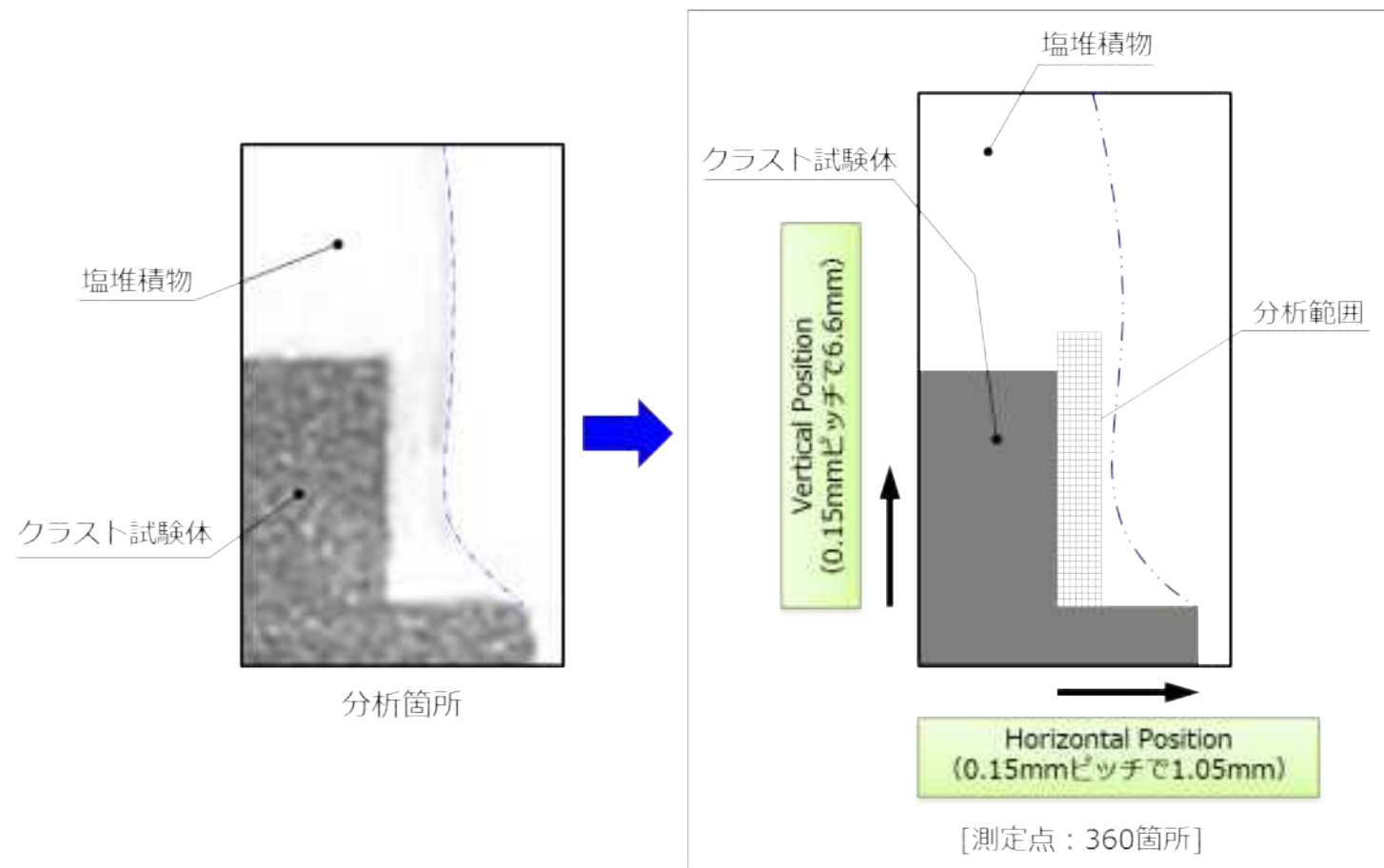


図 3-25 分析範囲（クラック有試験体クラック内横断面）

2) 分析結果

ア) クラック無試験体の場合

図 3-26、図 3-27、図 3-28 は、クラック無試験体と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果を示している。試験体／塩堆積物境界付近では、Na, Sr が高濃度を示している。試験体／塩堆積物境界から離れるに従って Sr の濃度が下がる傾向にあり、境界部から約 0.7mm の高さから Sr の他、Ca, S の濃度が急激に下がっている。それに対し Na, Cl が境界部から約 0.7mm の高さから濃度が高くなっている。一方、Mg, K, Br は塩堆積物全体に一樣に検出され、濃度に大きな隔たりは見られない。なお、クラスト試験体を構成する Al_2O_3 に含まれる Al は検出されていない。また、各元素のグラフの様子は分析箇所（発熱部中央と周辺）が違っていても、差は無い。

図 3-29 はクラック無試験体と塩堆積物境界部の面分析結果を示す。試験体／塩堆積物境界から約 0.8mm の高さを境に、Na, Cl が上層で分析箇所の発熱部中央や周辺でも高濃度を示し、Ca, S, Sr, K がその下の層で同様に高濃度を示している。Br, Mg は境界部からの高さ、分析箇所に係わりなく一樣な濃度が検出されている。

イ) クラック有試験体の場合

・クラスト試験体発熱部平坦面

図 3-30、図 3-31、図 3-32 はクラック有試験体発熱部平坦面と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果を示している。試験体／塩堆積物境界付近にはクラック無試験体の平坦面と同様に Na, Sr が高濃度を示しており、試験体／塩堆積物境界から離れるに従って Sr の濃度が下がる傾向にある。また、境界部から約 0.6mm の高さから Sr の他、Ca, S の濃度が急激に下がっており、分析箇所（クラック傍の平坦面）がクラックに近づくにつれて Ca, S がほと境界部からの高さ約 0.8mm より上ではほとんど検出されない箇所が見られる。Br においても、分析箇所によっては境界部から高さ 0.2mm～1.0mm の範囲でほとんど検出されない箇所が見られる。一方 Na, Cl は境界部からの高さ約 0.6mm あたりから濃度が高くなっている。Mg, K は塩堆積物全体に一樣に検出され、濃度に大きな隔たりは見られない。

図 3-33 はクラック有試験体（発熱部平坦部）と塩堆積物境界部の面分析結果

を示す。クラック有の場合、試験体／塩堆積物境界から約 0.6mm の高さを境に、Na, Cl が上層で分析箇所が発熱部中央や周辺でも高濃度を示し、Ca, S, Sr, K, Mg がその下の層で同様に高濃度を示している。Br は境界部からの高さ、分析箇所に係わりなく一様な濃度が検出されている。

・クラスト試験体クラック内断面

図 3-34、図 3-35 はクラック有試験体クラック内横断面と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果を示している。グラフは、平坦部と同様に Na, Sr が高濃度を示しており、クラック側壁から離れるに従って Sr, Ca, S の濃度が下がり、Na, Cl の濃度が高くなっている。また、Mg, K は塩堆積物全体に一様に検出され、濃度に大きな隔たりは見られない。しかし、クラック内横断面では分析箇所によってグラフの様子が大きく変わってきている。分析箇所がクラック側壁面に近いところでは Na, Sr はクラック底面から約 5mm で急激に変化（Na は濃度低下、Sr は濃度上昇）しているが、クラック中心に近い 0.90mm（Horizontal Position）では、クラック底面から約 3.3mm で濃度が変化している。また、Ca については

分析箇所がクラック側壁面に近い場合、クラック底面から約 5.5mm 以上の高さで検出されなくなっているが、クラック中心に近い 0.9mm ではクラック底面から約 4mm の高さで濃度が検出されていない。

図 3-36 はクラック有試験体（クラック内横断面部）と塩堆積物境界部の面分析結果を示している。平坦部と同様に Na, Cl が上層で高濃度を示し、Ca, S, Sr がその下の層で高濃度を示している。しかし、分析箇所がクラック側壁面からクラック中心方向に行くに連れて Na, Cl と Ca, S, Sr との濃度の境（クラック底面からの高さ）が低くなってきている。上述した厚み方向の組成分析結果のグラフと同様、分析箇所によって濃度が変わってきていることを示している。なお、

Br, K, Mg については境界部からの高さ、分析箇所によって大きな濃度の差は見られない。

3) 考察

ア) クラスト面上元素分布について

試験体／塩堆積物境界から塩内部へ向かって、まず Ca、S、Sr、K が検出さ

れ、その上層に Na、Cl が検出された。この事は最初に Ca、Sr、K などと S が化学結合した硫酸塩が試験体表面に析出し、その上に Na と Cl が結合した塩化ナトリウムが析出したと考えられる。

一般的に硫酸塩は塩化物よりも水への溶解度が低い（例えば $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$: 0.205g (100℃の値)、 SrSO_4 : 0.015g (90℃の値)、 NaCl : 38.99g (100℃の値)、いずれも水 100g 中)。硫酸塩が先に析出し、その後塩化物が析出、お互いが層状構造を形成したと考えられる。しかしながら、K の硫酸塩、 K_2SO_4 の溶解度は 24.1g (100℃の値) と $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ や SrSO_4 に比べて、大きい。それにも拘らず、Ca、Sr などと同じ範囲に偏析している理由は不明である。

今回、発熱部の中央と外周の間を分析範囲とした 0.1mm ピッチで分析を行った。これは発熱部の表面温度に差があった場合、その温度の影響で堆積物の成分や分布に違いが出るのでは無いかと予想したためであるが、両者に違いは見られなかった。この理由は測定箇所による温度差はあったとしても、いずれも水の沸点 100℃を超えており、溶解度に影響を与える程の温度差では無かったと予想している。同様の事がクラック無及びクラック有試験体平坦面の分析結果にも言える。

イ) クラック内部の元素分布について

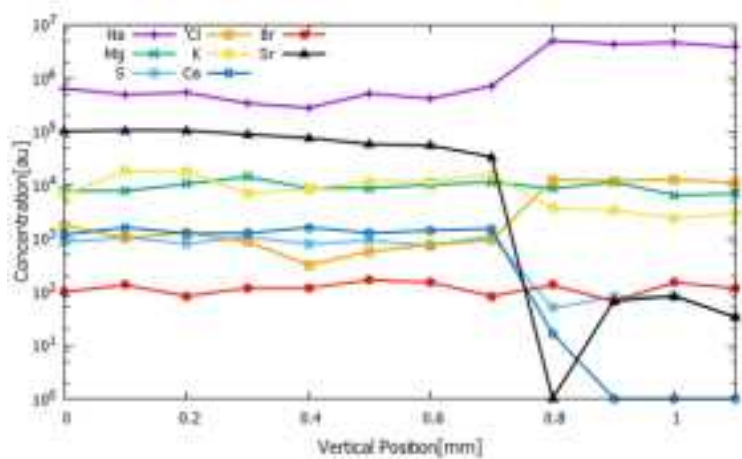
平坦面と同様な元素分布が見られ、試験体／塩堆積物境界付近に Ca、S、Sr その上層に Na、Cl が検出された。これらの境界はクラック側面からクラック幅中央方向に向かうにつれ、クラック底面へ移動する。平坦面の元素分布の様に境界線が上下に分離していない。これはクラック側面及び底面の温度が試験溶液（人工海水）より高温であり、海水の濃縮がこれらの表面から始まり、堆積物が形成されたためと予想される。（クラック側面、底面からの試験溶液中への熱流束量が多いため）

4) 結論

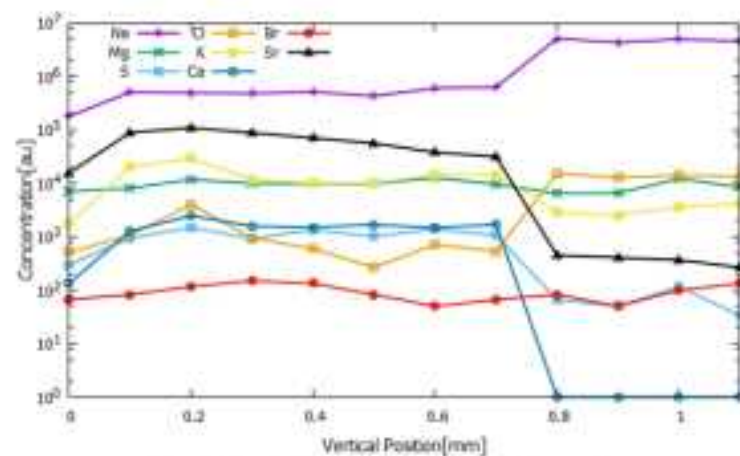
試験済クラスト試験体の発熱部直上に析出した塩堆積物を ICP-MS 装置により分析し、以下の事が判った。

- ①平坦面に析出している塩堆積物は試験体表面に近い方に Ca、S、Sr、K が存在し、これらの上層に Na、Cl を含む層が存在する 2 層構造である。

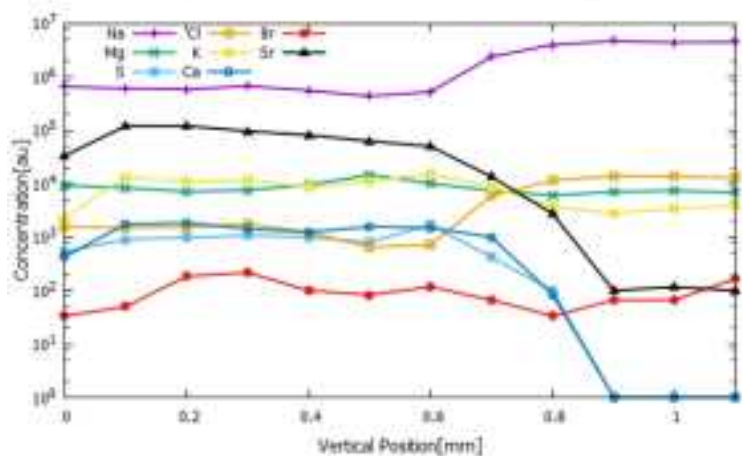
- ②平坦面に析出している塩堆積物の元素分布は測定箇所（平坦面中央と周辺）による差は無い。また、試験体のクラックの有無による違いも無い。
- ③クラック内に析出している塩堆積物はクラック側面及び底面に近い方から Ca、S、Sr が存在し、これらの上層に Na, Cl を含む層が存在する 2 層構造である。
- ④クラック内に析出している塩堆積物に含まれる Ca、S、Sr が存在する層とこれら層の上に存在する Na, Cl の境界はクラック側面からクラック幅中央方向へ向かうにつれ、クラック底面に移動する。これら境界線の形は播鉢状である。



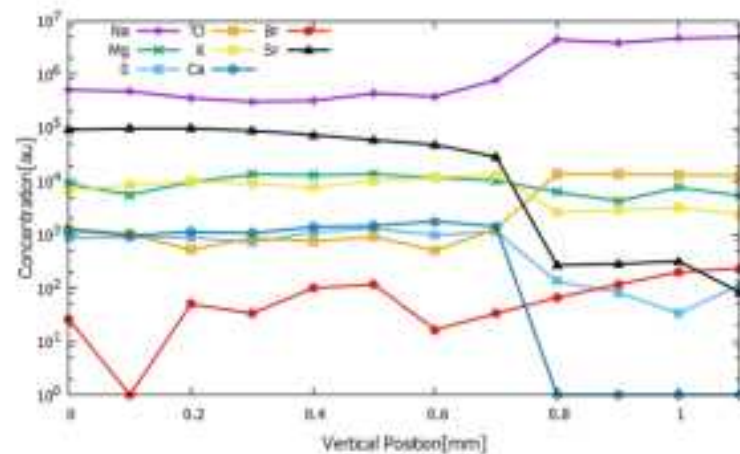
[Horizontal Position : 0.00mm]



[Horizontal Position : 0.10mm]

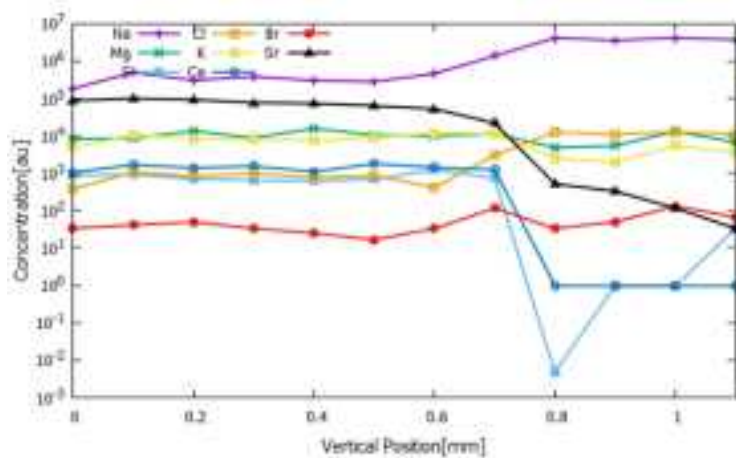


[Horizontal Position : 0.20mm]

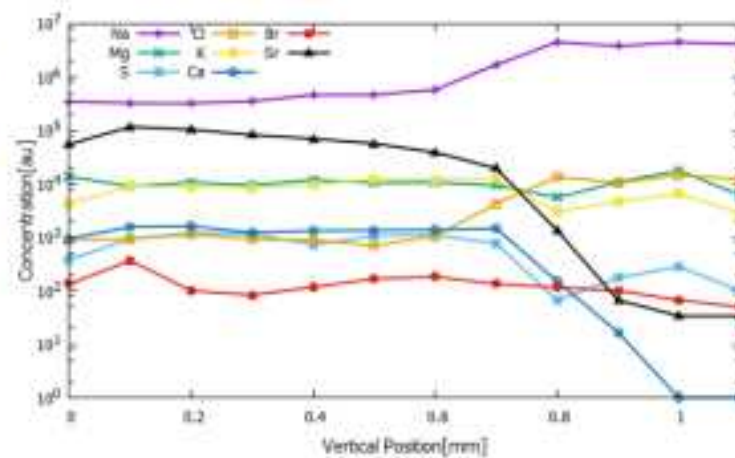


[Horizontal Position : 0.30mm]

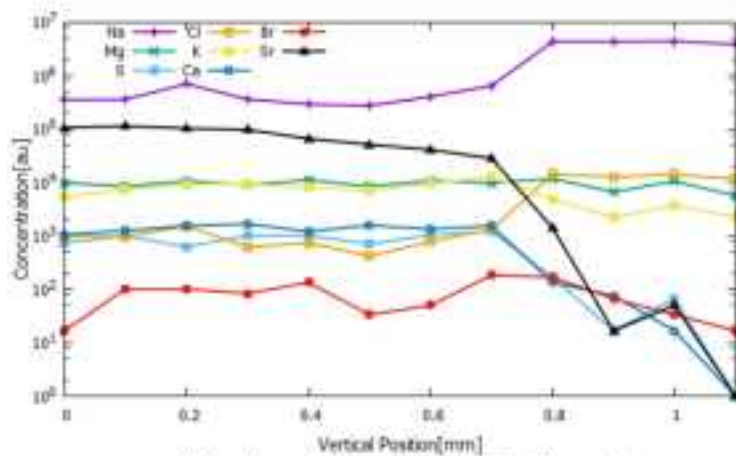
図 3-26 クラック無試験体と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果 (1/3)



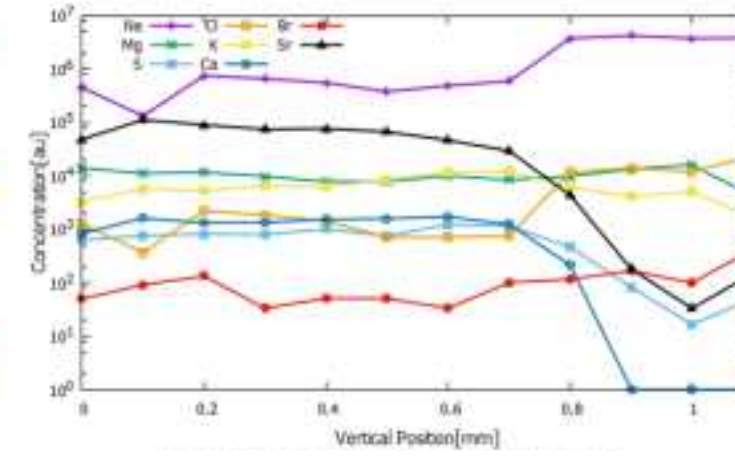
[Horizontal Position : 0.40mm]



[Horizontal Position : 0.50mm]

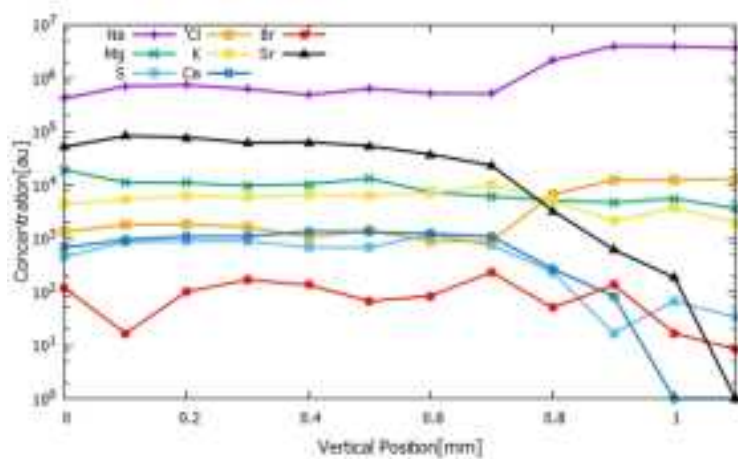


[Horizontal Position : 0.60mm]

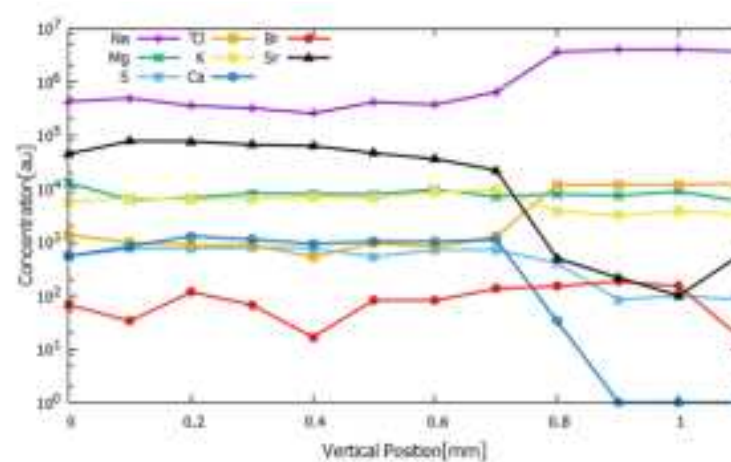


[Horizontal Position : 0.70mm]

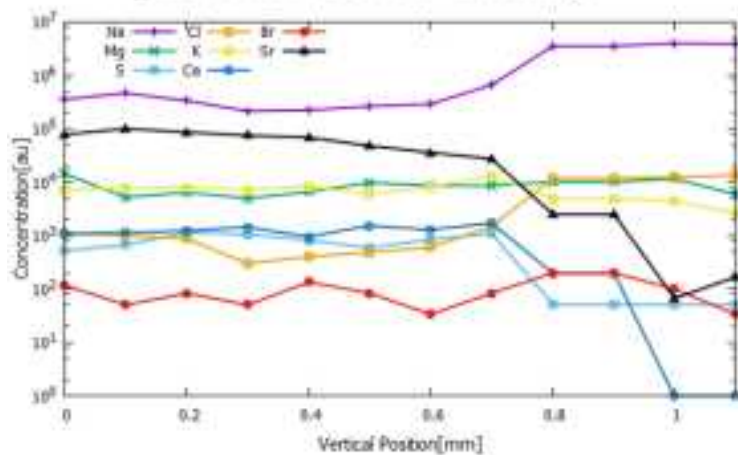
図 3-27 クラック無試験体と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果 (2/3)



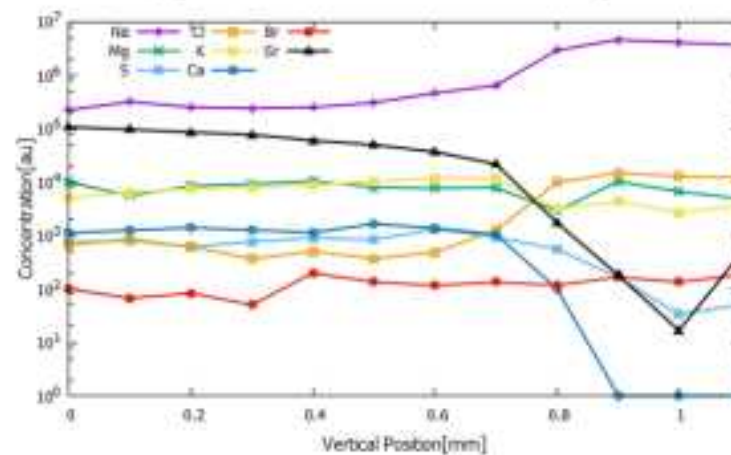
[Horizontal Position : 0.80mm]



[Horizontal Position : 0.90mm]



[Horizontal Position : 1.00mm]



[Horizontal Position : 1.10mm]

図 3-28 クラック無試験体と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果 (3/3)

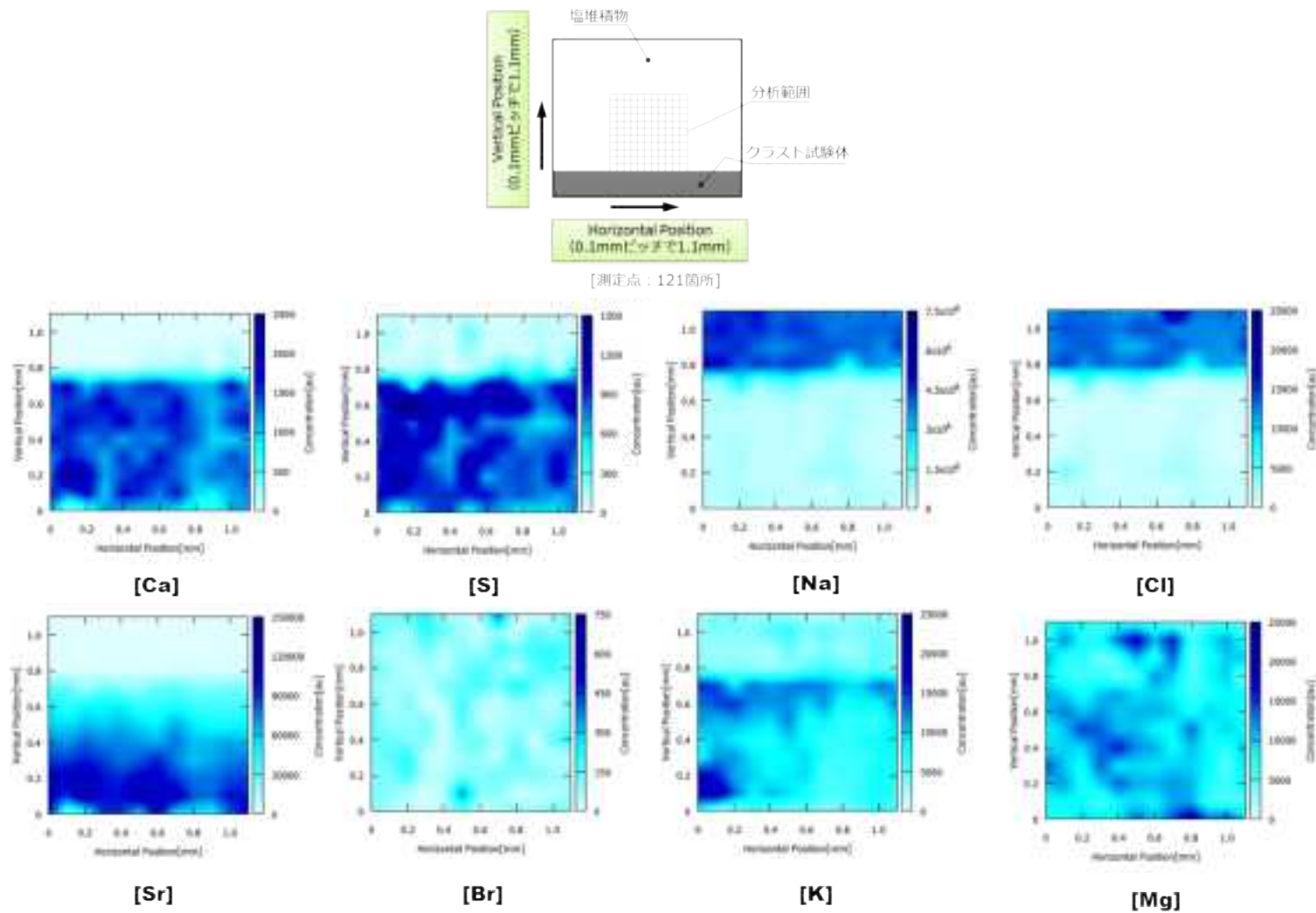
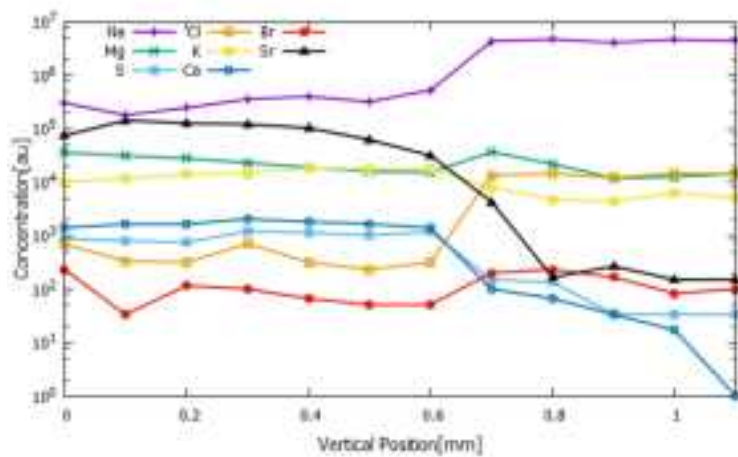
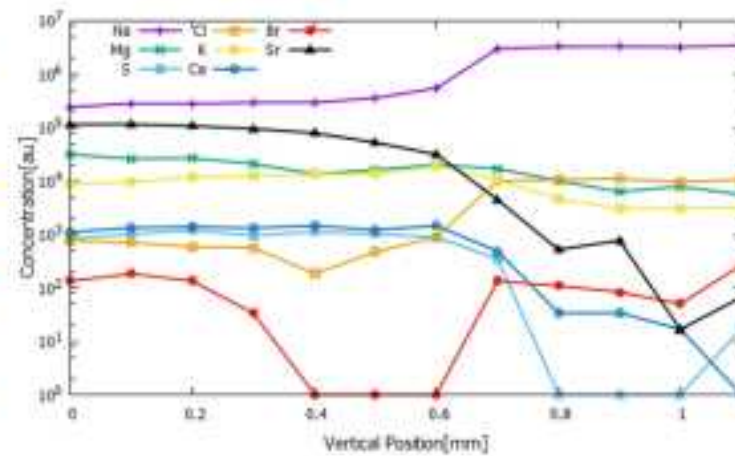


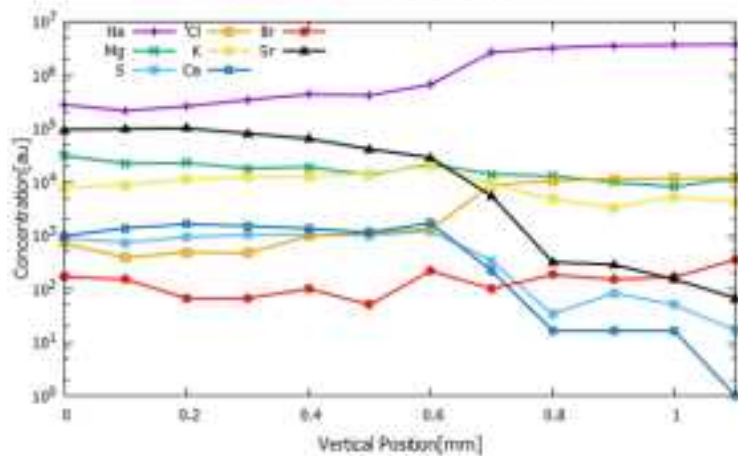
図 3-29 クラック無試験体と塩堆積物境界部の面分析結果



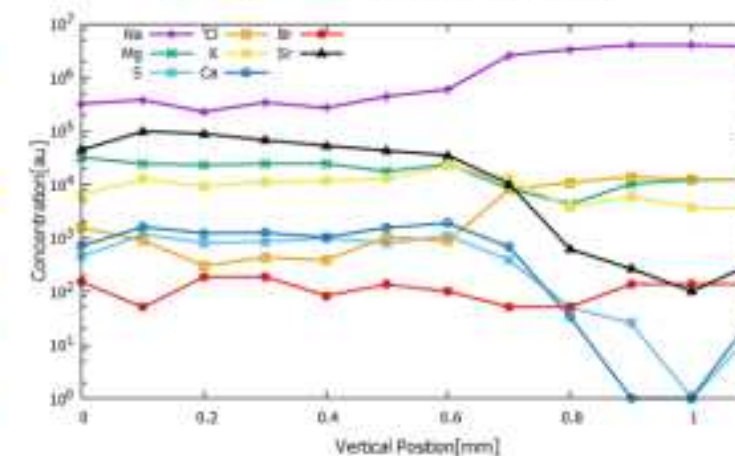
[Horizontal Position : 0.00mm]



[Horizontal Position : 0.10mm]

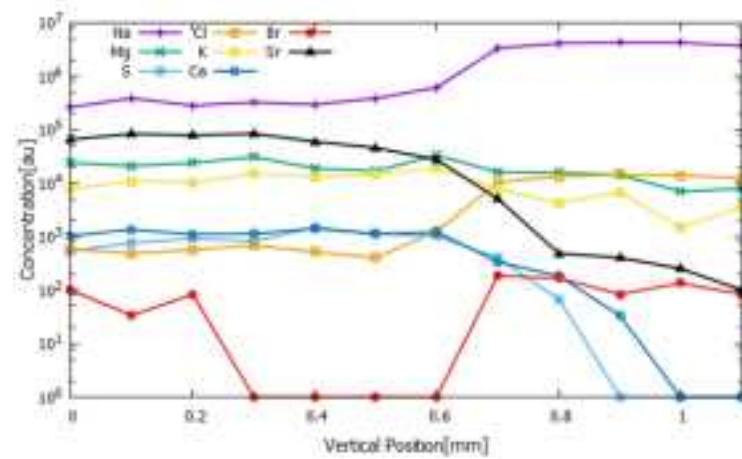


[Horizontal Position : 0.20mm]

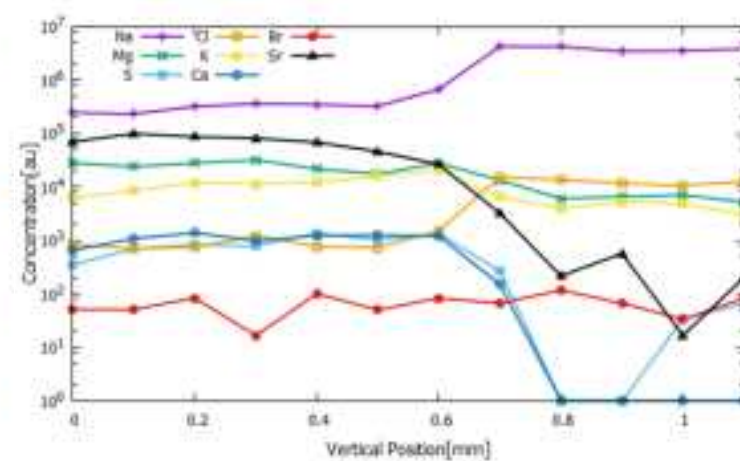


[Horizontal Position : 0.30mm]

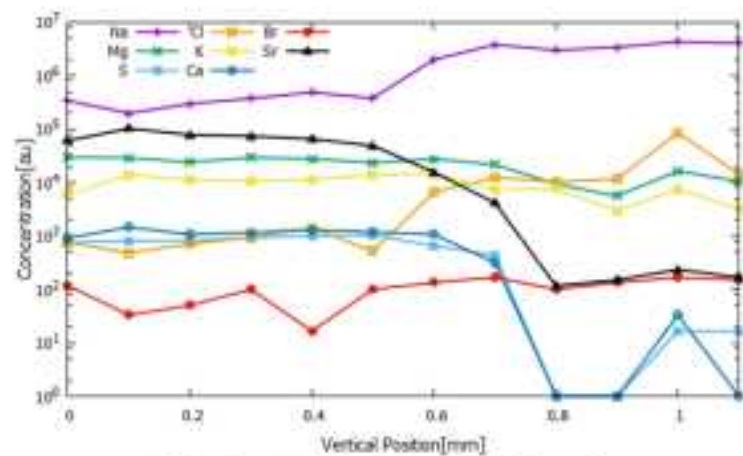
図 3-30 クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果（1/3）



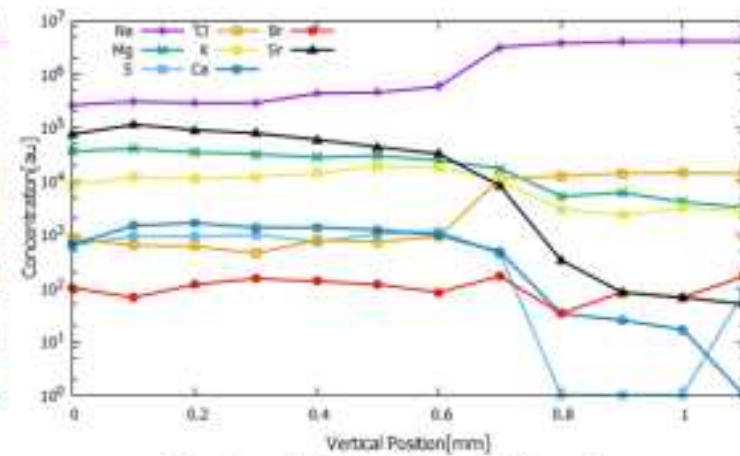
[Horizontal Position : 0.40mm]



[Horizontal Position : 0.50mm]

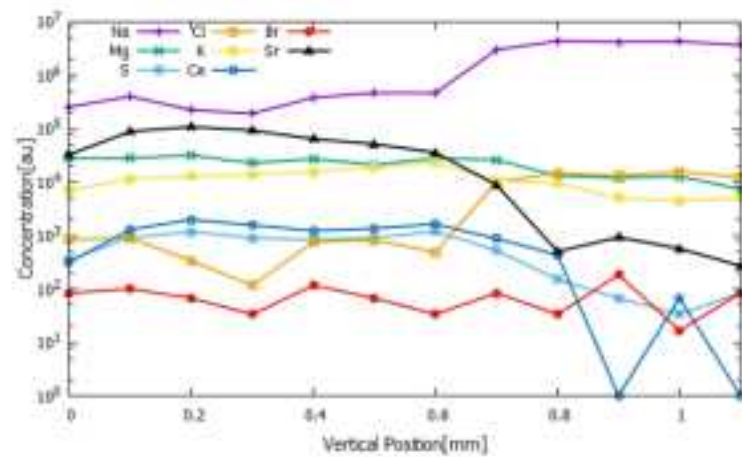


[Horizontal Position : 0.60mm]

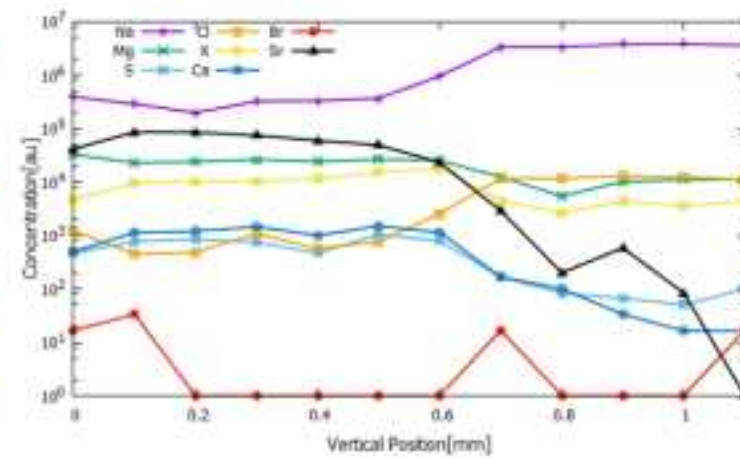


[Horizontal Position : 0.70mm]

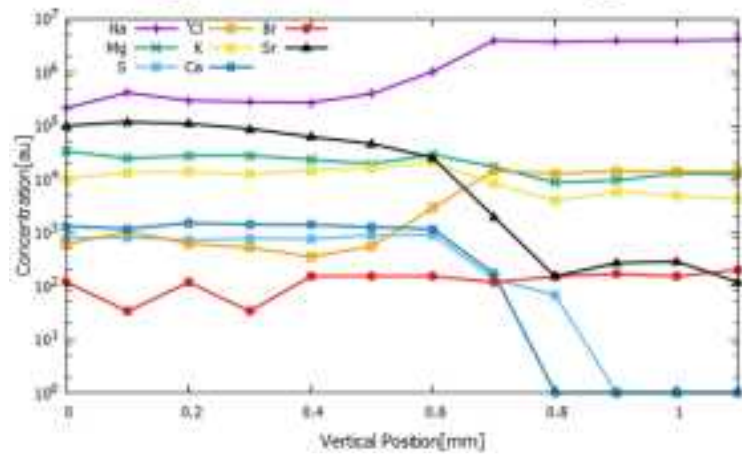
図 3-31 クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果（2/3）



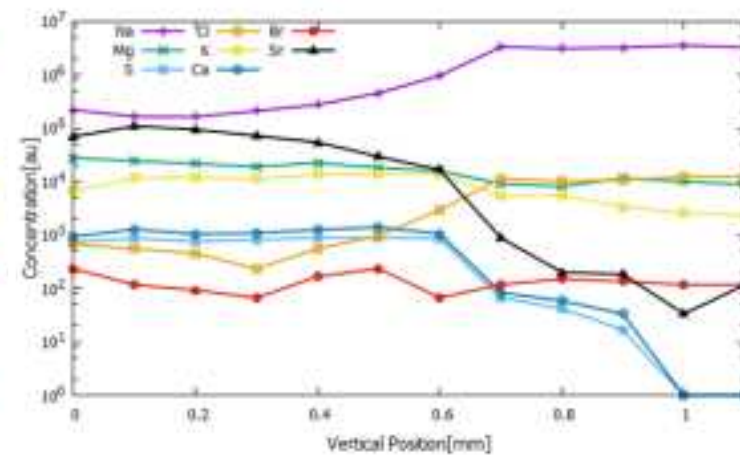
[Horizontal Position : 0.80mm]



[Horizontal Position : 0.90mm]



[Horizontal Position : 1.00mm]



[Horizontal Position : 1.10mm]

図 3-32 クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果（3/3）

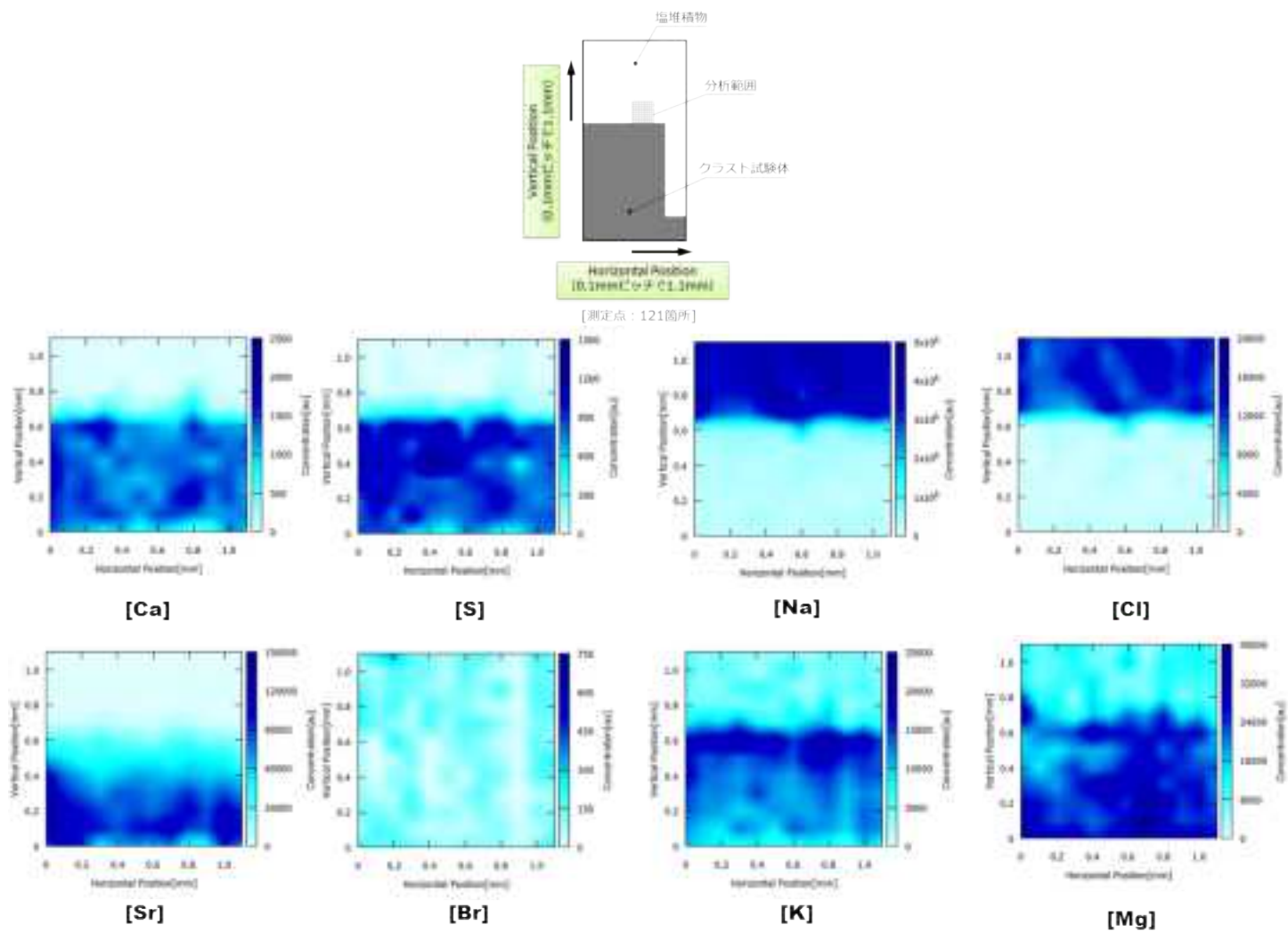
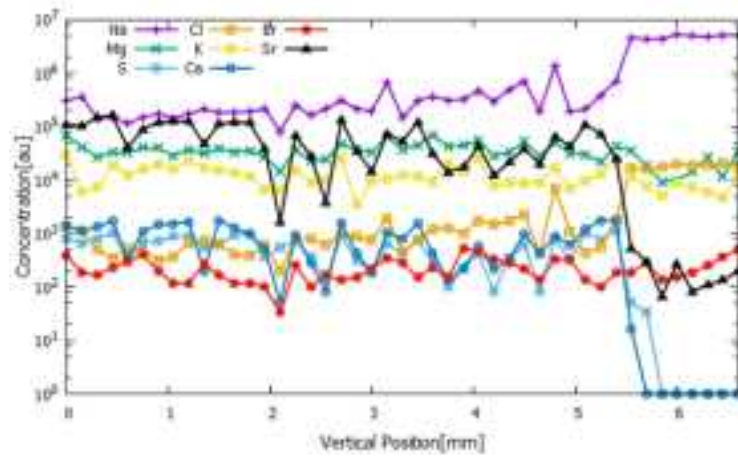
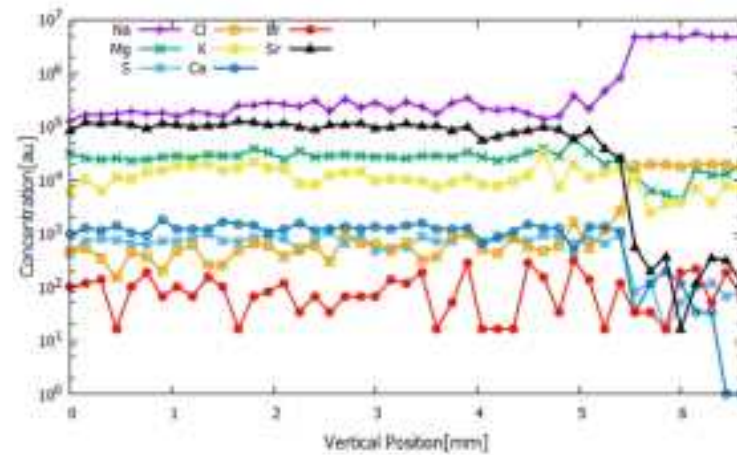


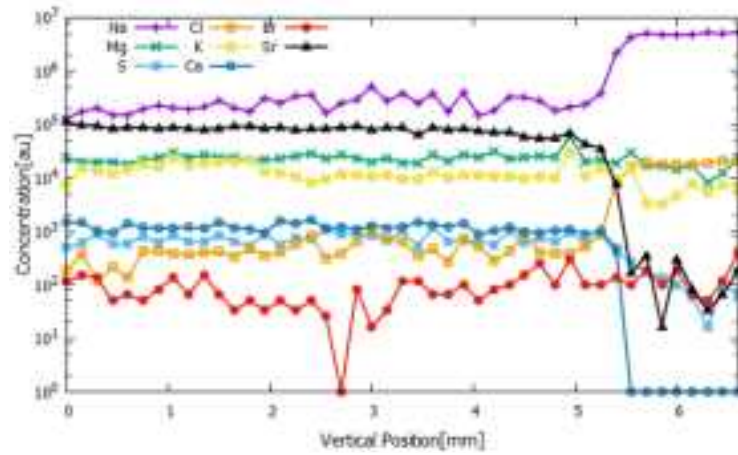
図 3-33 クラック有試験体（発熱部平坦面）と塩堆積境界部の面分析結果



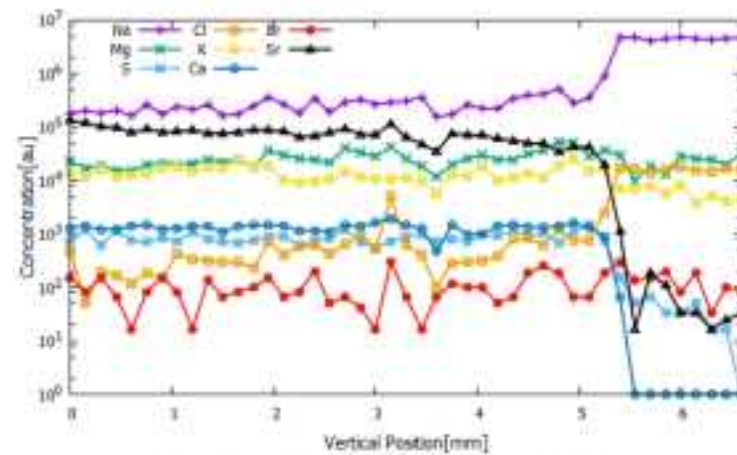
[Horizontal Position : 0.00mm]



[Horizontal Position : 0.15mm]



[Horizontal Position : 0.30mm]



[Horizontal Position : 0.45mm]

図 3-34 クラック有試験体（クラック内横断面）と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果（1/2）

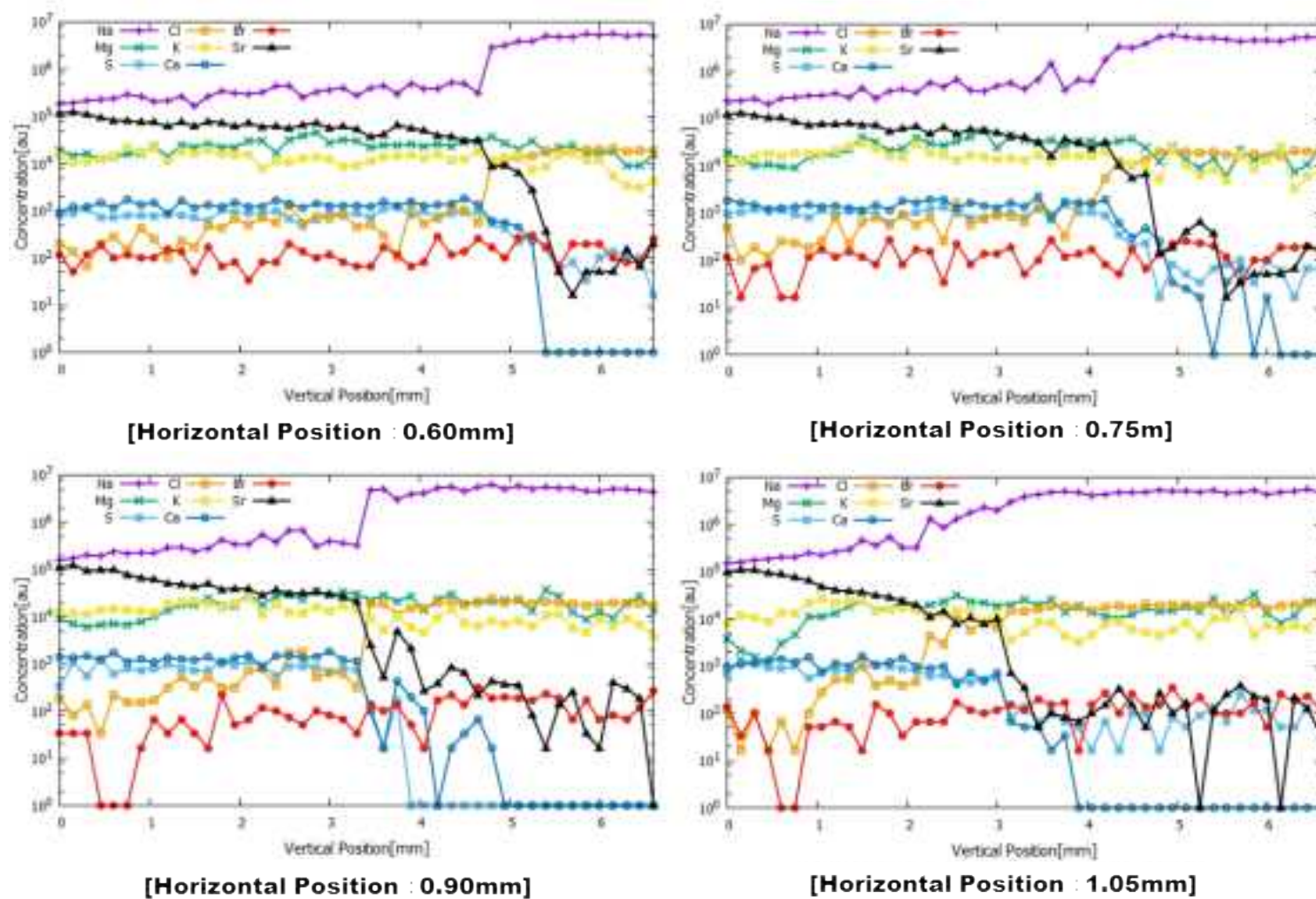


図 3-35 クラック有試験体（クラック内横断面）と塩堆積物境界部の厚み方向の組成分析結果（2/2）

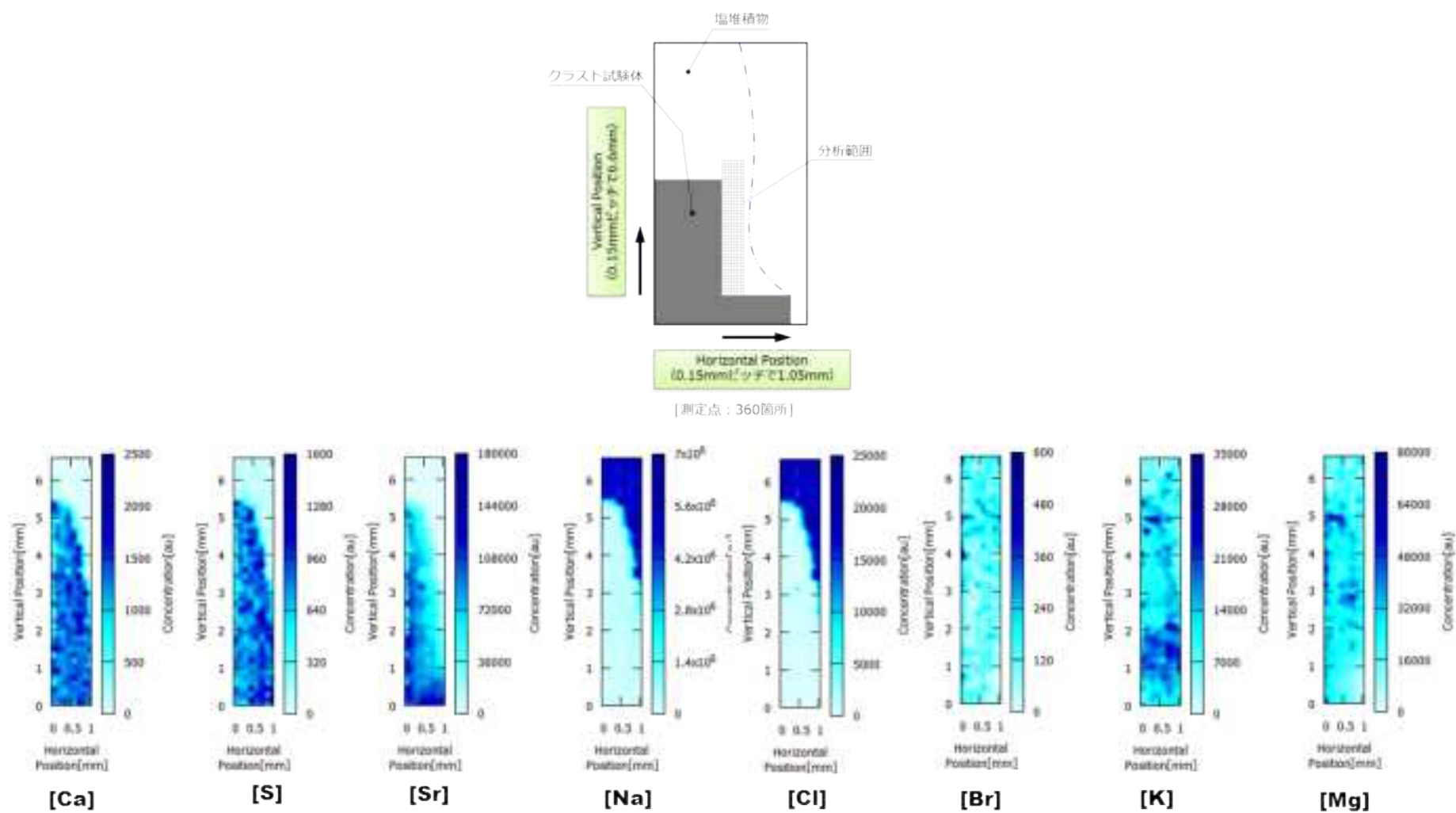


図 3-36 クラック有試験体（クラック内横断面）と塩堆積物境界部の面分析結果

(2) 顕微ラマン分光分析

ラマン分光分析（Raman spectroscopic analysis）とは物質に入射光としてレーザーを照射し、分子振動によって入射光とは異なる波長に散乱されるラマン散乱光を分光し、得られたラマンスペクトルから化合物の同定、分子レベル構造解析を行う手法である。今回、本手法を使い、ICP-MS分析により判明した試験体／塩堆積物境界付近に存在する化合物の同定を行った。

1) 分析方法

分析は図 3-37 に示す顕微ラマン分光分析装置（日本分光製、モデル名 NRS-5100）を使い、平坦面試験体／塩堆積物境界付近を試験体断面側から行った。また、クラック有試験体は平坦面に加えて、クラック内塩堆積物も同様に分析した。分析条件は表 3-7 に示す。



図 3-37 使用した顕微ラマン分光分析装置

表 3-6 顕微ラマン分光分析条件

パラメータ	設定値
露光時間	1秒
積算回数	2回
中心波数	680.34cm ⁻¹
励起波長	532.3nm
グレーティング	1800l/m
スリット幅	100 × 1000μm
対物レンズ	×20

2) 分析結果

ア) クラック無試験体の場合

図 3-38 は発熱部平坦面中央及び周辺の塩堆積物の試験体境界付近と上層のラマンスペクトルである。試験体境界付近のラマンスペクトルは中央及び周辺、どちらにも複数のピークが観察されるが、両者のピーク数やピーク波数は異なる。一方、塩堆積物上部のラマンスペクトルには測定箇所に関わらず、ピークが観察されず、同様なスペクトル形状をしている。また、試験体境界付近と塩堆積物上層のラマンスペクトル形状は異なる。

イ) クラック有試験体の場合

図 3-39 は発熱部平坦面中央及び周辺の塩堆積物の試験体境界付近と上層のラマンスペクトルである。試験体境界付近及び塩堆積物上層のラマンスペクトルはクラック無試験体の結果と同様である。

図 3-40 はクラック内断面中央及び周辺の塩堆積物のラマンスペクトルである。クラック上層のラマンスペクトルにはピークは見られないが、底部のラマンスペクトルには複数のピークが観察される。これらの様子は発熱部外周、中央いずれでも同様である。

3) 考察

ア) 塩堆積物の構成物質

ICP-MS による塩堆積物の分析結果から、試験体境界付近には Ca、S の他に Sr、K が検出され、この上層からは Na、Cl が検出されている。これらのことから、試験体境界付近には硫酸カルシウム (CaSO_4)、上層は塩化ナトリウム (NaCl) を主成分とする物質が存在すると予想される。そこで、既知の CaSO_4 、 $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ および NaCl のラマンスペクトルと測定結果との比較を行った。なお、 CaSO_4 、 $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ および NaCl の標準的なスペクトルは the RRUFF Project website (<http://rruff.info/>) より入手した。

図 3-41 は試験体境界付近の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な CaSO_4 および $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ のラマンスペクトルとの比較である。塩堆積物から得られたラマンスペクトルの形状は発熱部周辺と中央とで、若干異なっており、標準的なスペクトルと比較すると、周辺が $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、中央が CaSO_4 で形成されていると推測される。これらの様子はクラック無試験体とクラック有試験体において、違いは無い。

図 3-42 は試験体上層の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な NaCl のラマンスペクトルとの比較である。塩堆積物から得られたラマンスペクトルは発熱部周辺、中央いずれもピークが全く見られず、標準的な NaCl のラマンスペクトルと同様である。よって、試験体上層の塩堆積物は発熱部周辺、中央いずれにおいても NaCl で形成されていると推測される。また、これらの様子はクラック無試験体とクラック有試験体の両方で違いは無い。

図 3-43 はクラック内塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な CaSO_4 、 NaCl のラマンスペクトルとの比較である。クラック内底部の塩堆積物は CaSO_4 のスペクトルのピーク位置と一致しており、上層は NaCl のスペクトルと同様にピークが観察されない。よって、クラック内底部の塩堆積物は CaSO_4 、上層は NaCl と推測される。

イ) 塩堆積物中の硫酸カルシウム含有結晶水の違いについて

試験体境界付近の塩堆積物はラマンスペクトルより発熱体周辺が $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、中央が CaSO_4 で形成されている事がわかった。

一般的には CaSO_4 は析出温度により配位する結晶水が異なる事が知られてい

る。 CaSO_4 は析出温度が高温になるにつれて、2 水塩 ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) $\rightarrow$ 0.5 水塩 ($\text{CaSO}_4 \cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$) $\rightarrow$ 無水塩 (CaSO_4) と変化する。発熱体周辺と中央で検出された CaSO_4 のラマンスペクトルを見ると、発熱体周辺は $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、中央は CaSO_4 と推測されることから、これらの析出温度は発熱体周辺に比べて、中央の方が高かったと推測される。

一方、クラック内底部の塩堆積物から、2 水塩 ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) のラマンスペクトルは観察されず、無水塩 (CaSO_4) のラマンスペクトルのみ、観察される。これはクラック内底部の温度は発熱部周辺および中央、いずれも無水塩形成の温度を超えるほどの高温であった事を意味しており、平坦面試験体境界付近の塩堆積物の分析結果とは異なる。

4) 析出物分析のまとめ

クラスト試験体発熱部直上に析出した塩堆積物を顕微ラマン分光分析装置により分析し、以下の事がわかった。

- ①試験体境界付近の塩堆積物のラマンスペクトルは発熱部周辺と中央とでピーク数が異なっている。これらのラマンスペクトルを既知の $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ および CaSO_4 のラマンスペクトルと比較した所、発熱部周辺のラマンスペクトルは $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、中央は CaSO_4 と一致した。よって、発熱部周辺は $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 、中央は CaSO_4 により形成されていると推測される。
- ②試験体上層の塩堆積物のラマンスペクトルは発熱部周辺と中央、どちらも同じ形態を示し、ピークは全く見られない。既知の NaCl のラマンスペクトルも同様である事、ICP-MS 分析結果から Na 及び Cl のみ検出されることから、この部分の塩堆積物は NaCl で形成されていると推測される。
- ③上記①②はクラック無試験体およびクラック有試験体による違いは無い。
- ④クラック内の塩堆積物のラマンスペクトルはクラック底部と上部で異なり、底部のラマンスペクトルにはピークが観測されるが上部のラマンスペクトルにはピークが観測されない。これらのラマンスペクトルを既知の CaSO_4 および NaCl のラマンスペクトルと比較した所、底部は CaSO_4 、上部は NaCl のラマンスペクトルと一致した。よって、クラック内塩堆積物は底部が CaSO_4 、上部が NaCl で形成されていると推測される。
- ⑤試験体境界付近の塩堆積物中の見られる硫酸カルシウムに含まれる結晶水は

析出温度により異なり、低温では 2 水塩 ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)、高温では無水塩 (CaSO_4) が析出する事から、2 水塩 ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) が検出された発熱部平坦面周辺は無水塩 (CaSO_4) が検出された中央やクラック内底部より温度が低いと推測される。



(塩堆積物断面)

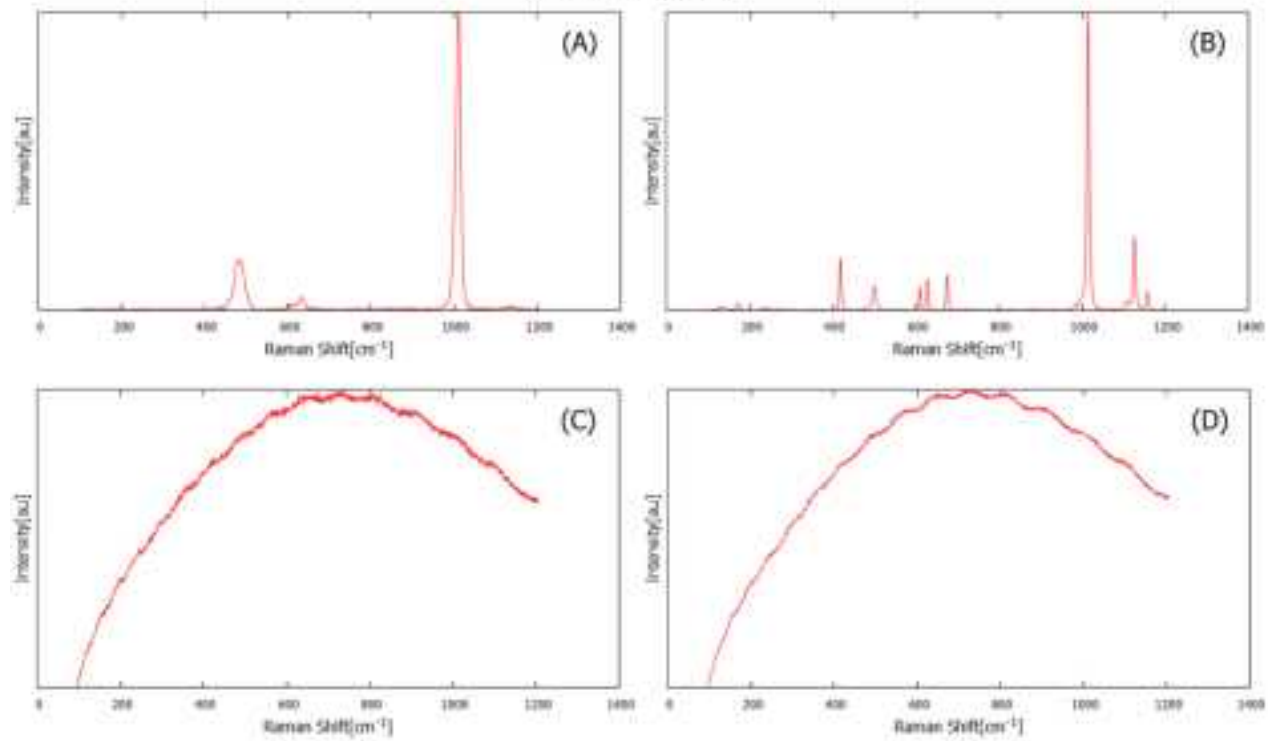
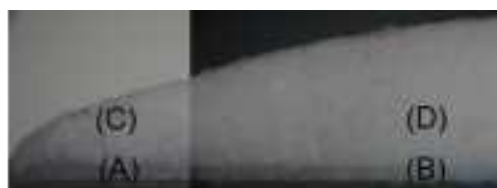


図 3-38 塩堆積物のラマンスペクトル (クラック無試験体)



(塩堆積物断面)

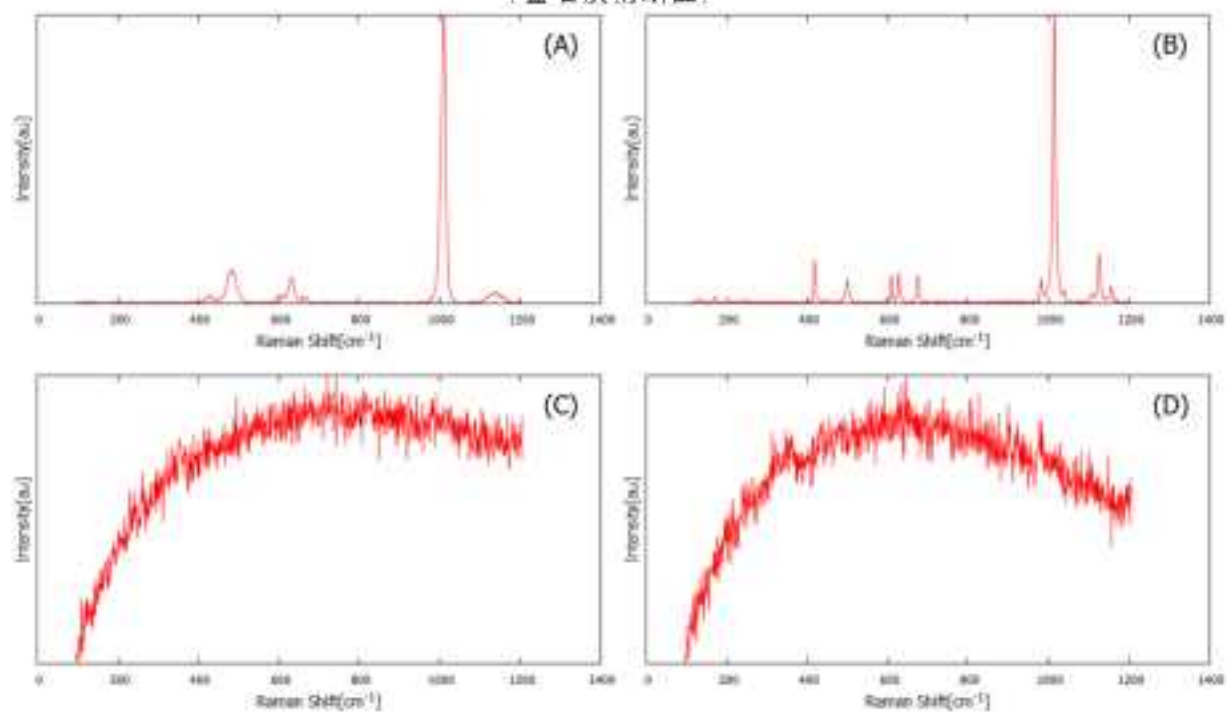
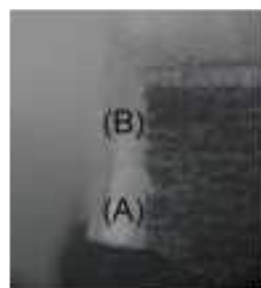
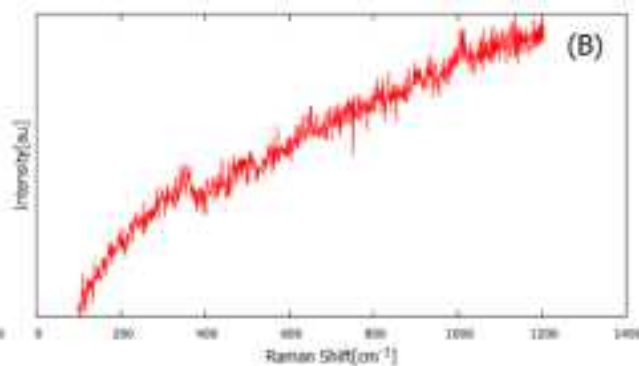
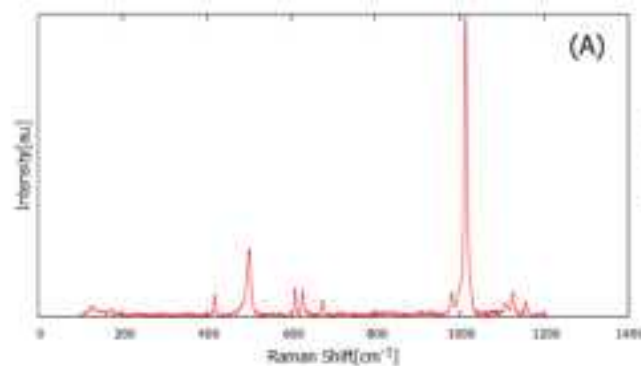


図 3-39 塩堆積物のラマンスペクトル (クラック有試験体)

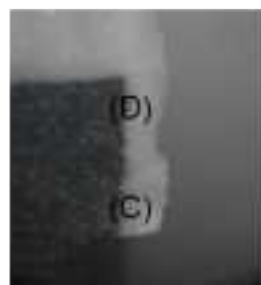
発熱部外周



(クラック断面)



発熱部中心



(クラック断面)

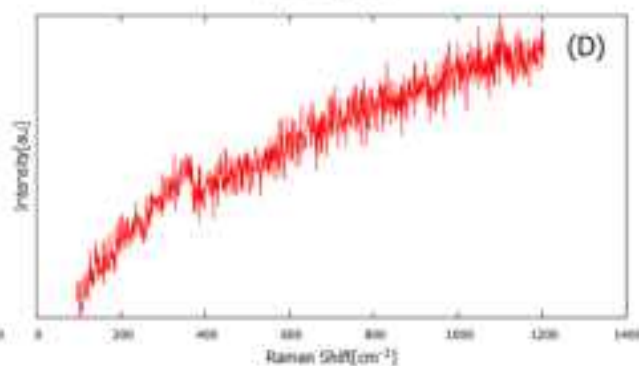
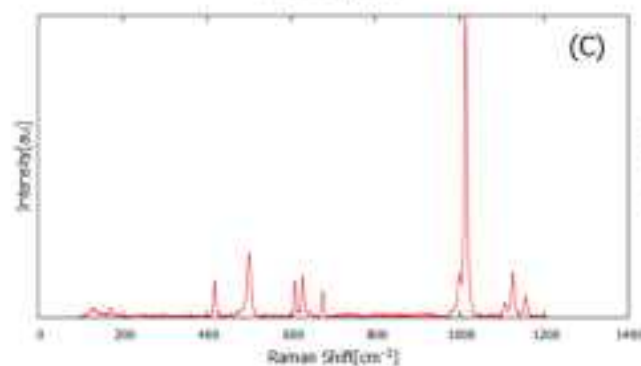


図 3-40 塩堆積物のラマンスペクトル (クラック有試験体クラック内)

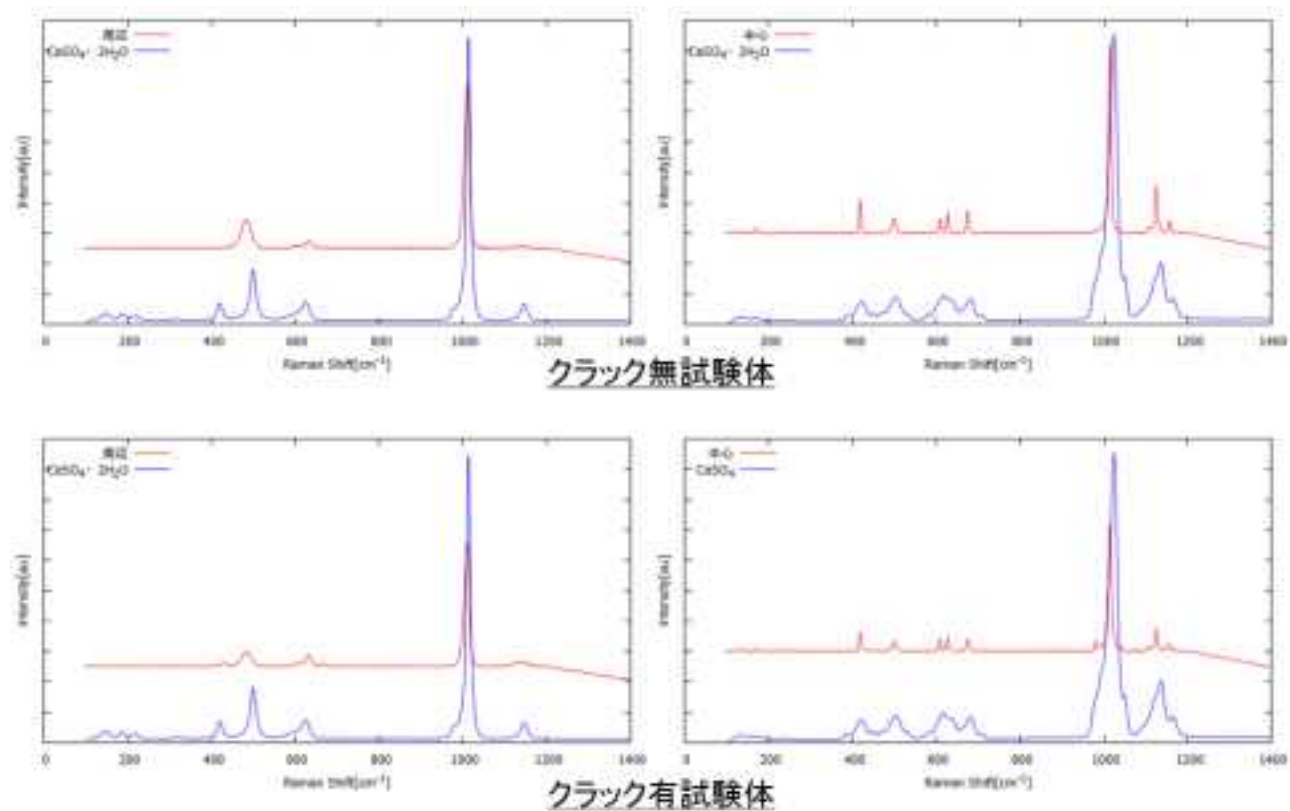


図 3-41 試験体境界付近の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な CaSO_4 のラマンスペクトルとの比較

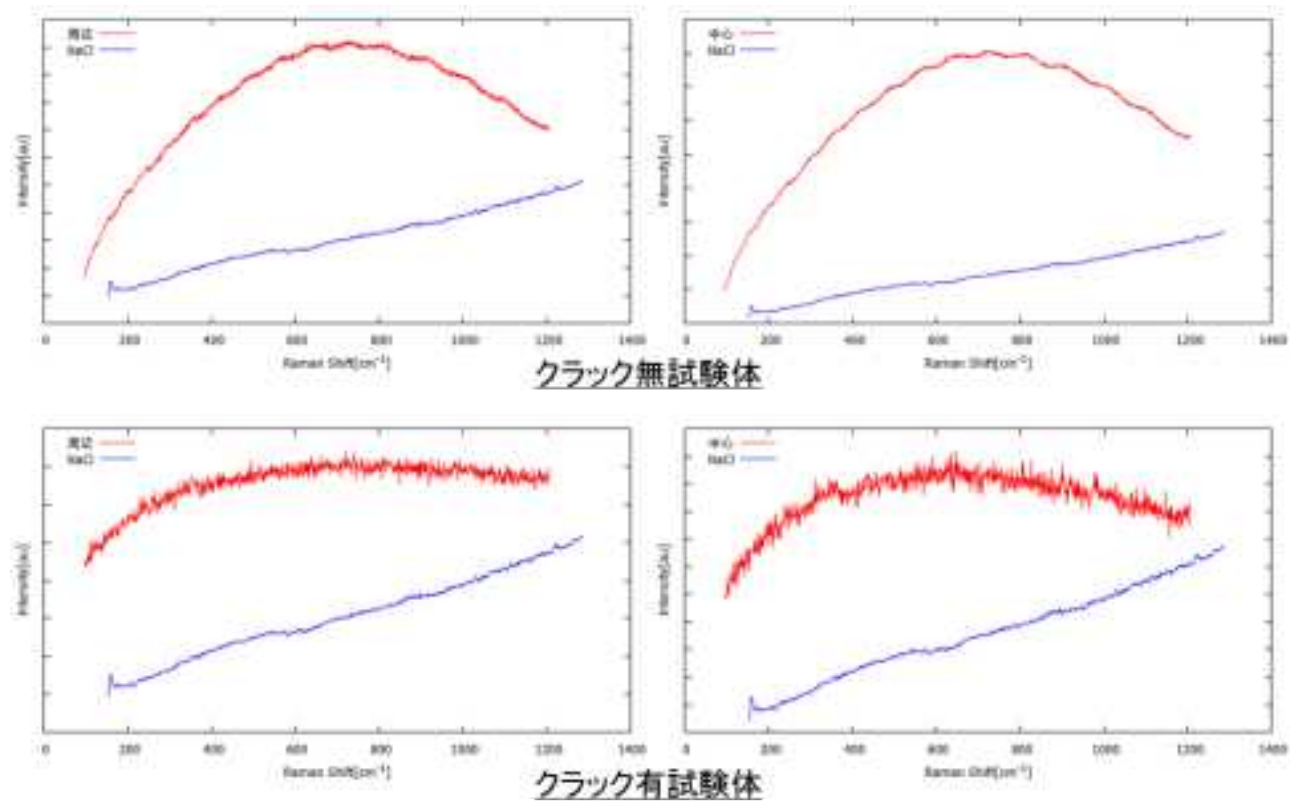


図 3-42 試験体上層の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な NaCl のラマンスペクトルとの比較

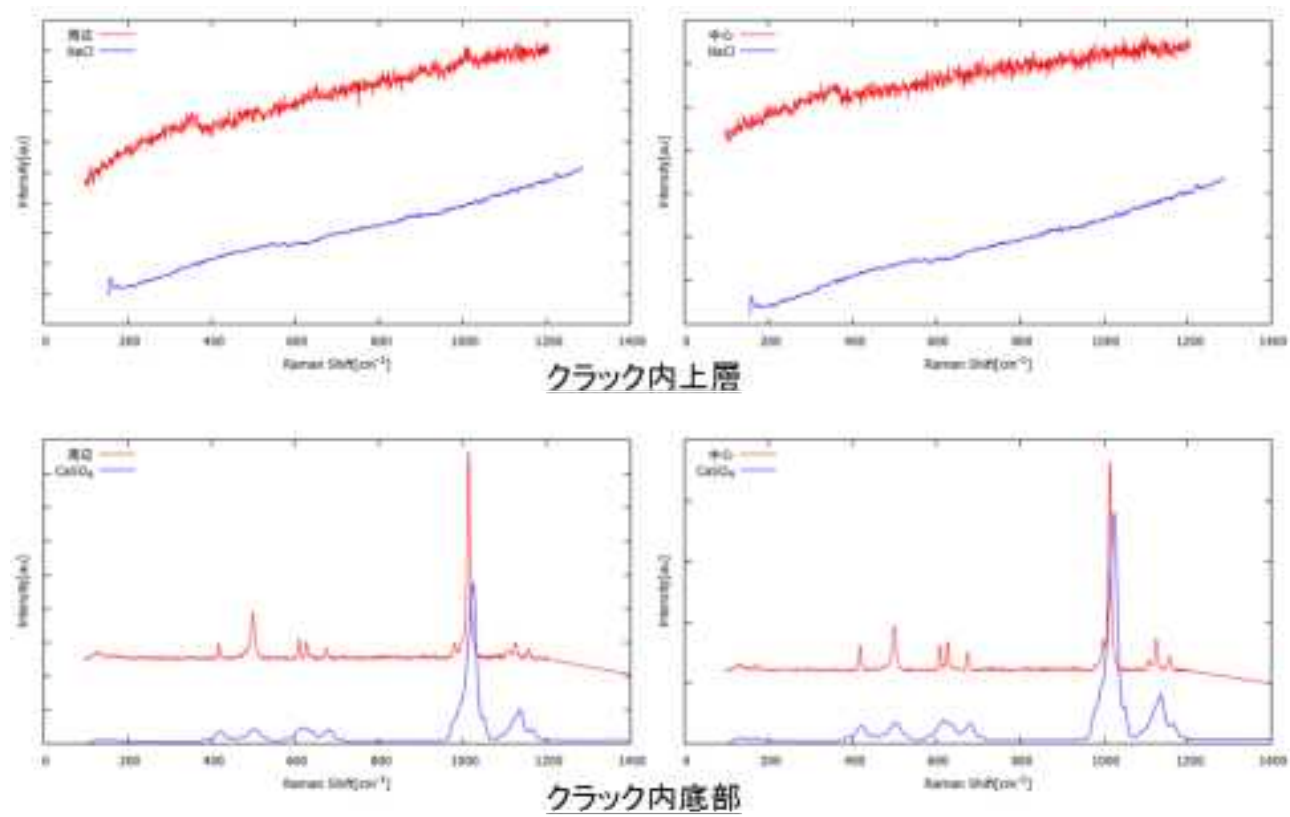


図 3-43 クラック内の塩堆積物のラマンスペクトルと標準的な CaSO_4 および NaCl のラマンスペクトルとの比較

4. まとめ

実長 5×5 バンドル内で 2.5 倍濃縮した人工海水の沸騰濃縮試験を行い、塩析出挙動を把握した。また、クラックを有するクラスト伝熱面の塩水沸騰熱伝達試験でのクラックの伝熱促進効果、及び塩析出による伝熱劣化効果を明らかにし、析出した塩の積層厚さの元素分布の分析をおこなった。

(1) 実長バンドル内での塩水沸騰濃縮試験

有効発熱部 3.7m の 5×5 バンドルを用いて、2.5 倍濃縮した人工海水を定格出力の約 0.5%程度の発熱量で 7 時間の沸騰試験を行なった。液位は発熱部上端から 1.2m 低い位置で維持した。336 分後に第 1 スペーサ内で沸騰濃縮した析出塩による温度上昇が観測された。392 分後には同スペーサ内で完全閉塞して蒸気が蓄積し、同スペーサ以下の領域をドライアウトさせた。一方、第 1 スペーサ上部は閉塞後もプール沸騰により冷却が継続されている。また、第 1 スペーサ内温度分布から、析出による閉塞は中央で始まり、周辺に拡大したと考えられる。さらに、沸騰試験においては析出様相を四方から観察し、析出位置を同定した。

(2) クラスト中クラックの塩水プール沸騰試験

クラスト中央に幅 2 mm のクラックを有する模擬クラスト試験体（幅 50 mm ×奥行 50 mm×厚さ 10 mm）を三次元造形した。その裏面に金属箔を貼り付け、抵抗変化から温度分布を推定したヒータを形成し独自の伝熱面を製作した。2.5 倍濃縮海水をプールに浸漬して、下から加熱したプール沸騰伝熱試験を行なった。沸騰開始後よりクラックが海水供給を促進して発熱体温度を低下させる効果が確認された。時間経過と共に伝熱面温度は連続的に上昇し、約 230 分後にクラックの有無で温度差が小さくなりクラックが析出塩で閉塞したと考えられる。さらに約 290 分後には双方共に温度が急上昇したことから、クラストのポロシティも閉塞したと推定される。析出塩については、レーザーアブレーションしながら ICP-MS 分析することにより断面元素分析を行った。表面には Ca や S が濃化していることから、溶解度が低い CaSO_4 が早期に伝熱面上に析出し、その後に NaCl などの塩が析出すると考えられる。

紙へリサイクル可