

## 安全研究成果報告（案）

安全研究プロジェクトの中間評価用資料  
(シビアアクシデント技術評価検討会資料)

重大事故時における重要物理化学現象の不  
確実さ低減に係る実験(案)

Experimental Research for Reducing Uncertainties in Important  
Physicochemical Phenomena During Severe Accidents

金子 順一 平等 雅巳 菊池 航 堀田 亮年  
秋葉 美幸 阿部 豊

KANEKO Junichi, TAIRA Masami, KIKUCHI Wataru, HOTTA Akitoshi, AKIBA Miyuki,  
and ABE Yutaka

シビアアクシデント研究部門

Division of Research for Severe Accident

原子力規制庁

長官官房技術基盤グループ

Regulatory Standard and Research Department,

Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

本資料は、原子力規制庁長官官房技術基盤グループで実施している安全研究プロジェクトの中間評価で使用するため、安全研究プロジェクトの活動内容、途中段階における成果等を取りまとめたものです。このため、今後の研究進捗によって、考察、結論等が変更となる可能性があります。なお、最終的な成果報告書は、プロジェクト終了後に別途取りまとめて公表する予定です。

本報告の内容に関するご質問は、下記にお問い合わせください。

原子力規制庁 長官官房 技術基盤グループ シビアアクシデント研究部門  
〒106-8450 東京都港区六本木 1-9-9 六本木ファーストビル  
電 話：03-5114-2224  
ファックス：03-5114-2234

# 重大事故時における重要物理化学現象の不確実さ低減に係る実験

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ

シビアアクシデント研究部門

金子 順一、平等 雅巳、菊池 航、堀田 亮年、秋葉美幸、  
阿部 豊

## 要 旨

重大事故に対する安全性を向上させるためには、重大事故の緩和策を踏まえて事象進展やソースタームを現実的に評価することが重要である。一方、重大事故時の格納容器機能維持や事象進展に影響する物理化学現象を評価する上で大きな不確実さが存在する。本プロジェクトは、これらの物理化学現象に関する不確実さ低減のための知見を拡充することを目的として、令和2年度から令和7年度までの6か年度計画で実施するものである。本技術報告は令和3年度までに実施した研究の進捗、研究成果、今後の計画等を中間的にとりまとめたものであり、その概要を以下に示す。

プールスクラビングについて、そのモデルの不確実さ低減に資する知見を拡充することを目的として、国立大学法人筑波大学及び国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(JAEA)への委託事業により小規模及び中規模の実験を実施した。単一気泡及び気泡群におけるエアロゾル輸送の促進等のメカニズムを明らかにするとともに、改良した実験装置を用いて前プロジェクトで観察されたプール水温の除染係数への影響を再調査した。

ソースターム評価に係る不確実さ低減に資する知見を拡充することを目的として、JAEAへの委託事業及びJAEAや国立大学法人福井大学との共同研究により実験を実施した。化学反応、再移行挙動、気相化学・物質移行及びペレットからの放出の各現象に着目した基礎実験によって、測定技術を確立するとともに現象の支配因子等を明らかにすることができた。

超高温状態を含む様々な重大事故条件で格納容器内の熱流動挙動について不確実さ低減に資する知見を取得することを目的に、JAEAへの委託事業により、外面冷却や格納容器スプレイ、格納容器ベント時の格納容器内熱流動現象について実験を実施した。格納容器上部フランジ部における高温の噴流による壁面熱伝達や外面冷却時の自然循環による密度成層の解消、ベント時のスプレイの水素濃度分布への影響等に関する知見を取得した。

粒子状デブリの冷却性について不確実さ低減に資する知見を拡充することを目的として、一般財団法人電力中央研究所への委託により実験技術の構築及び個別効果実験を実施

した。接触熱抵抗実験及び流動可視化実験により、粒子状デブリの伝熱特性を明らかにするとともに、粒子層と壁面接触領域及び粒子層内の流動特性を明らかにした。

# Experimental Research to Reduce Uncertainties for Important Physicochemical Phenomena during Severe Accidents

KANEKO Junichi, TAIRA Masami, KIKUCHI Wataru, HOTTA Akitoshi, AKIBA Miyuki, and  
ABE Yutaka

Division of Research for Severe Accident,  
Regulatory Standard and Research Department,  
Secretariat of Nuclear Regulation Authority (S/NRA/R)

## Abstract

It is important to realistically evaluate the progression of events and source terms during severe accidents, taking the mitigation measures into account, to improve reactor safety against the severe accidents. There are, however, large uncertainties in evaluating physicochemical phenomena that affect the containment vessel functions and progression of events during the severe accidents. This project is to be carried out as a six-year program from FY2020 to FY2025 for the purpose of expanding the knowledge for reducing the uncertainties in evaluating physicochemical phenomena. This technical report intermediately summarizes the progress of research conducted by the end of FY2021, research results, future plans, etc. as outlined below.

For pool scrubbing, small- and medium-scale experiments have been conducted by the University of Tsukuba and the Japan Atomic Energy Agency (JAEA) under the auspices of the Nuclear Regulatory Authority (NRA) to expand the knowledge that contributes to reducing the uncertainty of the models. The mechanism of the enhancement of aerosol transport in a single bubble and in a group of bubbles was clarified, and the effects of pool water temperature on the decontamination coefficients observed in the previous project was reexamined using the improved experimental apparatus.

Experiments have been conducted with the purpose of reducing uncertainties related to source term evaluation, by JAEA under the auspices of the NRA and in the joint research projects with JAEA and with the University of Fukui. Measurement techniques were established and the dominant factors of the phenomena were clarified by basic experiments conducted focusing on each phenomenon of chemical reaction, re-mobilization behaviors, gas phase chemistry/substance transfers, and releases of fission products from fuel pellets.

For the purpose of obtaining knowledge for reducing uncertainties related to thermal hydraulics in the containment vessel under various severe accident conditions including very high

temperatures conditions, experiments have been conducted by JAEA under the auspices of the NRA on thermal hydraulic phenomena during the external cooling, the containment spray and the containment vent. Knowledge was obtained on wall heat transfers with high temperature jets at the upper flange of containment vessel, the elimination of density stratification due to natural circulation at the external cooling, and the effect of spray on the hydrogen concentration distribution during the venting operation.

For the purpose of expanding knowledge on the particulate debris cooling, development of experimental techniques and separate effect experiments have been conducted by the Central Research Institute of Electric Power Industry under the auspices of the NRA. The heat transfer characteristics of the particulate debris and the flow characteristics were clarified for the contact region between the particle layer and the wall surface and inside the particle layer by the contact thermal resistance experiments and flow visualization experiments.

## 目次

|                             |     |
|-----------------------------|-----|
| 1. 序論 .....                 | 1   |
| 1.1 背景 .....                | 1   |
| 1.2 目的 .....                | 4   |
| 1.3 全体行程 .....              | 4   |
| 2. 本論 .....                 | 7   |
| 2.1 プールスクラビング実験 .....       | 7   |
| 2.1.1 知見の調査及び実験範囲の検討 .....  | 7   |
| 2.1.2 研究の進め方 .....          | 10  |
| 2.1.3 小規模実験 .....           | 12  |
| 2.1.4 中規模実験 .....           | 29  |
| 2.1.5 まとめ .....             | 37  |
| 2.2 ソースターム実験 .....          | 38  |
| 2.2.1 知見の調査及び実験範囲の検討 .....  | 38  |
| 2.2.2 研究の進め方 .....          | 41  |
| 2.2.3 化学反応実験 .....          | 44  |
| 2.2.4 再移行挙動実験 .....         | 56  |
| 2.2.5 気相化学・物質移行実験 .....     | 57  |
| 2.2.6 CsI 放出実験 .....        | 63  |
| 2.2.7 まとめ .....             | 68  |
| 2.3 重大事故時格納容器熱流動実験 .....    | 69  |
| 2.3.1 知見の調査及び実験範囲の検討 .....  | 69  |
| 2.3.2 研究の進め方 .....          | 71  |
| 2.3.3 格納容器上部フランジ加熱実験 .....  | 73  |
| 2.3.4 外面冷却自然循環実験 .....      | 77  |
| 2.3.5 熱及び物質移行に関する基礎実験 ..... | 85  |
| 2.3.6 スプレイ実験及びベント実験 .....   | 88  |
| 2.3.7 まとめ .....             | 102 |
| 2.4 粒子状デブリ冷却性実験 .....       | 103 |
| 2.4.1 知見の調査及び実験範囲の検討 .....  | 103 |
| 2.4.2 研究の進め方 .....          | 106 |
| 2.4.3 成立性確認基礎実験 .....       | 107 |
| 2.4.4 個別効果実験 .....          | 115 |
| 2.4.5 総合効果実験 .....          | 129 |
| 2.4.6 まとめ .....             | 129 |



|                                 |     |
|---------------------------------|-----|
| 3. 結論 .....                     | 131 |
| 3.1 成果の要点 .....                 | 131 |
| 3.2 目的の達成状況 .....               | 132 |
| 3.3 成果の公表等 .....                | 133 |
| 3.3.1 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表 ..... | 133 |
| 3.3.2 委託先による公表 .....            | 134 |
| 3.4 成果の活用等 .....                | 136 |
| 3.5 今後の課題等 .....                | 136 |
| 参考文献一覧 .....                    | 137 |
| 執筆者一覧 .....                     | 144 |

## 表 目 次

|         |  |     |
|---------|--|-----|
| 表 2.2.1 | CsI と MoO <sub>3</sub> の化学反応に係る加熱実験条件.....   | 47  |
| 表 2.2.2 | 水蒸気雰囲気及び水蒸気 - 酸素雰囲気における CsI 蒸気種と MoO <sub>3</sub> 蒸気種の<br>高温化学反応を想定した加熱実験における沈着割合..... | 51  |
| 表 2.3.1 | 格納容器上部フランジ加熱実験の実験条件 .....  | 74  |
| 表 2.3.2 | 外面冷却実験の実験条件.....   | 79  |
| 表 2.3.3 | 外面冷却自然循環実験の実験条件 .....  | 87  |
| 表 2.3.4 | 実機と CIGMA のスケーリング.....   | 93  |
| 表 2.3.5 | ベント実験の実験パラメータ .....  | 94  |
| 表 2.4.1 | 粒子層-構造壁熱伝達に関する影響因子同定 .....   | 105 |
| 表 2.4.2 | 接触熱抵抗実験の構成要素 .....   | 116 |
| 表 2.4.3 | 接触熱抵抗実験の実験条件 .....   | 118 |
| 表 2.4.4 | 流動可視化実験装置の構成要素 .....   | 122 |
| 表 2.4.5 | 流動可視化実験の実験条件 .....   | 124 |

## 目 次

|          |   |    |
|----------|---|----|
| 図 1.3.1  | 本プロジェクトで対象とする物理化学現象とその知見の活用先                      | 5  |
| 図 1.3.2  | 全体行程  | 6  |
| 図 2.1.1  | SPARC-90 モデルにおけるエアロゾル除去メカニズム                      | 9  |
| 図 2.1.2  | プールスクラビング実験と SPARC-90 モデルの改良                      | 10 |
| 図 2.1.3  | プールスクラビング実験の計画                                    | 11 |
| 図 2.1.4  | 気泡群計測実験装置の模式図                                     | 13 |
| 図 2.1.5  | WMS による SMD の計測、気液界面総表面積の取得結果及び気泡噴流の可視化結果         | 14 |
| 図 2.1.6  | DF 計測結果と MELCOR 計算結果の比較                           | 15 |
| 図 2.1.7  | 単一気泡計測実験装置の模式図                                    | 16 |
| 図 2.1.8  | 水位ごとのエアロゾル粒径分布計測結果の例                              | 17 |
| 図 2.1.9  | エアロゾル濃度分布の気泡径依存性                                  | 18 |
| 図 2.1.10 | 予備解析結果  | 19 |
| 図 2.1.11 | 気泡挙動に関する解析結果と既存相関式の予測結果の比較                        | 20 |
| 図 2.1.12 | Eulerian-Lagrangian モデルを用いた解析における粒子解析結果           | 22 |
| 図 2.1.13 | Eulerian-Eulerian モデルを用いた解析における粒子解析結果             | 22 |
| 図 2.1.14 | 物質輸送解析結果  | 24 |
| 図 2.1.15 | 気泡径ごとの物質輸送解析結果と、SPARC-90 解析結果の比較                  | 25 |
| 図 2.1.16 | 気泡径をパラメータとした気泡形状の評価                               | 26 |
| 図 2.1.17 | 気泡径ごとの物質輸送解析結果と改良 SPARC-90 解析結果の比較                | 27 |
| 図 2.1.18 | 気泡径ごとの物質輸送解析の詳細評価                                 | 28 |
| 図 2.1.19 | プールスクラビング実験装置 PONTUS の模式図                         | 33 |
| 図 2.1.20 | 改良前と改良後の水温依存性調査実験装置                               | 34 |
| 図 2.1.21 | 水温と同じガス温度条件における水温依存性調査実験の結果                       | 34 |
| 図 2.1.22 | 水温とガス温度が異なる条件における水温依存性調査実験の結果                     | 35 |
| 図 2.1.23 | 注入ガス流量が異なる条件における水温依存性調査実験の結果                      | 35 |
| 図 2.1.24 | ガスジェットスクラビング実験装置                                  | 36 |
| 図 2.1.25 | ガスジェットスクラビング実験に関する実験結果と相関式 <sup>35</sup> の予測結果の比較 | 36 |
| 図 2.2.1  | ソースタームの現象とそれに対応する国際実験及びモデルの整理                     | 40 |
| 図 2.2.2  | FP 再移行挙動  | 42 |
| 図 2.2.3  | ソースターム実験の計画                                       | 43 |
| 図 2.2.4  | FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 模式図                       | 45 |
| 図 2.2.5  | TeRRa 装置外観写真                                      | 45 |
| 図 2.2.6  | CsI-H <sub>2</sub> O 実験における温度勾配管のセシウム及びヨウ素分布      | 52 |

|          |   |    |
|----------|---|----|
| 図 2.2.7  | CsI+Mo <sub>2</sub> O <sub>7</sub> _H <sub>2</sub> O 実験後に温度勾配管で計測したセシウム、ヨウ素及びモリブデンの分布 | 52 |
| 図 2.2.8  | CsI+Mo <sub>2</sub> O <sub>7</sub> _O <sub>2</sub> 実験における温度勾配管のセシウム、ヨウ素及びモリブデン分布      | 53 |
| 図 2.2.9  | CsI+Mo <sub>2</sub> O <sub>7</sub> _O <sub>2</sub> 実験の温度勾配管における SEM 像及び EDS マッピング像    | 53 |
| 図 2.2.10 | CsI+Mo <sub>2</sub> O <sub>7</sub> _O <sub>2</sub> 実験の金属フィルタにおける SEM 像及び EDS マッピング像   | 54 |
| 図 2.2.11 | CsI+Mo <sub>2</sub> O <sub>7</sub> _O <sub>2</sub> 実験における XRD スペクトル                   | 54 |
| 図 2.2.12 | CsI+Mo <sub>2</sub> O <sub>7</sub> _O <sub>2</sub> 実験におけるラマン分光スペクトル                   | 55 |
| 図 2.2.13 | TG/DTA-GC/MS 実験装置の概略図   | 58 |
| 図 2.2.14 | CsI 粉末の加熱時の TG/DTA-GC/MS データ  | 59 |
| 図 2.2.15 | 気泡塔実験装置の概略図   | 62 |
| 図 2.2.16 | 窒素フロー時の溶存酸素濃度の変化  | 62 |
| 図 2.2.17 | 燃料ペレット内の微細構造と FP 放出   | 64 |
| 図 2.2.18 | SEM/EDS による作製試料内の Cs 分布   | 64 |
| 図 2.2.19 | 四重極型質量分析器の模式図   | 65 |
| 図 2.3.1  | 重大事故時の格納容器破損防止に関する主要な格納容器内重要現象  | 70 |
| 図 2.3.2  | 重大事故時格納容器熱流動実験の概要   | 71 |
| 図 2.3.3  | 重大事故時格納容器熱流動実験の計画   | 72 |
| 図 2.3.4  | 格納容器上部フランジ加熱実験の模式図  | 75 |
| 図 2.3.5  | 実験部の圧力変化  | 75 |
| 図 2.3.6  | フランジ内表面温度 (DTWX2R053) 変化  | 76 |
| 図 2.3.7  | ガスカート容器内側 (DTWX2Q075) と容器外側 (DTWX2Q081) の温度変化   | 76 |
| 図 2.3.8  | 原子炉ウェル注水  | 80 |
| 図 2.3.9  | 外面冷却実験の模式図 (左: 令和 2 年度、右: 令和 3 年度)  | 80 |
| 図 2.3.10 | 閉じた系でのヘリウム濃度分布の時間変化(左: 蒸気-He、右: 蒸気-空気-He)   | 81 |
| 図 2.3.11 | 鉛直上向気体注入体系でのヘリウム濃度分布の時間変化 (左: 蒸気-He、右: 蒸気-空気-He)                                      | 82 |
| 図 2.3.12 | 水平方向気体注入体系でのヘリウム濃度分布の時間変化   | 83 |
| 図 2.3.13 | 実験容器圧力の時間変化   | 84 |
| 図 2.3.14 | 外面冷却自然循環実験の模式図  | 87 |
| 図 2.3.15 | ヘリウム濃度の時間変化:( 上段: 冷却領域が狭い条件、下段: 広い条件)   | 88 |
| 図 2.3.16 | 気体注入位置とベント位置  | 95 |
| 図 2.3.17 | 実験容器圧力の時間変化 (VT-LV-13: スプレー後直ちにベント)   | 95 |

|          |   |     |
|----------|---|-----|
| 図 2.3.18 | 注入蒸気流量の時間変化 (VT-LV-13: スプレイ後直ちにベント)   | 96  |
| 図 2.3.19 | 実験容器内温度コンターの時間変化 (VT-LV-13)   | 96  |
| 図 2.3.20 | ベント流量の時間変化 (VT-LV-13: スプレイ後直ちにベント)  | 97  |
| 図 2.3.21 | 容器内の各ガス種濃度分布の時間変化   | 98  |
| 図 2.3.22 | 実験容器圧力の時間変化 (VT-LV-14: スプレイ後 2400 s でベント)   | 99  |
| 図 2.3.23 | 注入蒸気流量の時間変化 (VT-LV-14: スプレイ後 2400 s でベント)   | 99  |
| 図 2.3.24 | 実験容器内の温度コンターの時間変化 (VT-LV-14)  | 100 |
| 図 2.3.25 | ベント流量の時間変化 (VT-LV-14: スプレイ終了後 2400 s でベント)  | 100 |
| 図 2.3.26 | 容器内の各ガス種濃度分布の時間変化   | 101 |
| 図 2.4.1  | デブリベッド内の粒子状デブリと壁面/床面接触熱伝達   | 105 |
| 図 2.4.2  | 壁面に押圧された部分固化粒子状デブリの変形   | 106 |
| 図 2.4.3  | 事故進展において重要な粒子状デブリと金属表面の接触熱伝達  | 106 |
| 図 2.4.4  | 粒子状デブリ冷却性実験の計画  | 107 |
| 図 2.4.5  | 粒子層造形パラメータ限界確認実験造形物   | 109 |
| 図 2.4.6  | 接触熱抵抗基礎実験装置の概略図   | 111 |
| 図 2.4.7  | 接触熱抵抗基礎実験温度計測結果(アルミブロック + ステンレス板、熱伝導<br>グリス有り)                                      | 111 |
| 図 2.4.8  | 粒子材料の屈折率及び透過率の比較  | 113 |
| 図 2.4.9  | 粒子層における停滞水中の気液二相流可視化基礎実験装置  | 114 |
| 図 2.4.10 | ガラスビーズ粒子層と THV 粒子層における二相流観察結果の比較  | 114 |
| 図 2.4.11 | WMS によって取得されたボイド率分布   | 115 |
| 図 2.4.12 | 接触熱抵抗実験装置の概念図   | 117 |
| 図 2.4.13 | 接触熱抵抗実験における接触部をまたぐ温度分布  | 119 |
| 図 2.4.14 | 接触熱抵抗実験における有効熱伝達係数の測定結果   | 121 |
| 図 2.4.15 | 流動可視化実験装置の概念図   | 123 |
| 図 2.4.16 | WMS 計測位置/ボイド率時系列空間分布図/差圧計   | 126 |
| 図 2.4.17 | 直径 10 mm の場合の粒子層-壁面接触部二相構造可視化例  | 127 |
| 図 2.4.18 | 粒子層内の二相流動構造分類の概念図   | 127 |
| 図 2.4.19 | WMS により計測された粒子層内のボイド率分布の時刻歴 (粒子径 10 mm<br>/ $j_g=0.055$ m/s / $j_l=0.028$ m/s)      | 128 |
| 図 2.4.20 | シャドウグラフ法による CYTOP 粒子層内二相構造可視化 (粒子径 5 mm /<br>$j_g = 0.004$ m/s / $j_l = 0.055$ m/s) | 129 |

## 略 語 表

|                                  |   |
|----------------------------------|---|
| AM                               | Accident Management ( 事故対応 )  |
| BWR                              | Boiling Water Reactor ( 沸騰水型原子炉 )   |
| CFD                              | Computational Fluid Dynamics ( 数値流体力学 )   |
| CIGMA                            | Containment InteGral Measurement Apparatus ( 大型格納容器実験装置 )                                       |
| CsI                              | Cesium Iodine ( ヨウ化セシウム )   |
| Cs <sub>2</sub> MoO <sub>4</sub> | Cesium Molybdate ( モリブデン酸セシウム )   |
| DEP                              | Direct Exposure Probe ( 直接導入プローブ )  |
| DF                               | Decontamination Factor ( 除染係数 )   |
| D/W                              | Drywell ( ドライウェル )  |
| ESTER                            | Experiments on Source Term for Delayed Releases ( 遅延放出のソースタームに関する実験 )                           |
| FP                               | Fission Products ( 核分裂生成物 )   |
| GC/MS                            | Gas Chromatograph / Mass Spectrometer ( ガスクロマトグラフ質量分析計 )  |
| ICP-MS                           | Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer ( 誘導結合プラズマ質量分析計 )                                  |
| MoO <sub>2</sub>                 | Molybdenum diOxide ( 二酸化モリブデン )   |
| MoO <sub>3</sub>                 | Molybdenum triOxide ( 三酸化モリブデン )  |
| OECD/NEA                         | Organization for Economic Co-operation and Development/Nuclear Energy Agency ( 経済協力開発機構原子力機関 )  |
| PIRT                             | Phenomena Identification and Ranking Table ( 現象識別とランキング表 )                                      |
| PRA                              | Probabilistic Risk Assessment ( 確率論的リスク評価 )   |
| PWR                              | Pressurized Water Reactor ( 加圧水型原子炉 )   |
| RuO <sub>4</sub>                 | Ruthenium tetrOxide ( 四酸化ルテニウム )  |
| SA                               | Severe Accident ( 重大事故 )  |
| SBO                              | Station Blackout ( 全交流動力電源喪失 )  |
| SEM/EDS                          | Scanning Electron Microscope / Energy Dispersive X-ray Spectroscopy ( 走査型電子顕微鏡/エネルギー分散型 X 線分析 ) |
| SMD                              | Sauter Mean Diameter ( ザウター平均径 )  |
| STEM                             | Source Term Evaluation and Mitigation ( ソースタームの評価と緩和 )  |
| TeRRa                            | Test bench for FP Release and tRansport ( FP 放出移行挙動再現装置 )                                       |
| TG/DTA                           | Thermogravimetry / Differential Thermal Analyzer ( 熱重量/示差熱同時分析計 )                               |
| THAI                             | Thermal-hydraulics, Hydrogen, Aerosols and Iodine ( 熱水力、水素、エアロゾル )                              |

|                 |  |
|-----------------|--|
|                 | ル及びヨウ素)  |
| UO <sub>2</sub> | Uranium diOxide (二酸化ウラン)   |
| WGAMA           | Working Group on the Analysis and Management of Accidents (事故分析・管理ワーキンググループ) |
| WMS             | Wire Mesh Sensor (ワイヤーメッシュセンサ)   |
| XRD             | X-ray Diffraction (X線回折)   |

## 用語の定義

|                  |  |
|------------------|--|
| 解析上の不確かさ         | 原子力施設の安全評価で使用されるパラメータ、データ及びモデルは本質的に不確かさを持っている。これらを積み重ねた定量評価の結果は、確率分布の平均値とばらつきとして表現される。このばらつきを不確かさと呼ぶ。              |
| プールスクラビング        | 放射性物質などの汚染物質を含有する気体が、プール水中を通過する際に、放射性物質がプール水中に捕獲され除染される現象。   |
| ソースターム           | 環境へ放出される放射性物質の核種や量、それらの放出タイミングのこと。   |
| 重大事故時格納容器熱流動     | 重大事故時の格納容器内では、高温の水蒸気や放射性物質さらには水素や可燃性ガスが発生し流動する。発生する熱と流体の流れにより、格納容器内の雰囲気圧力や温度や気体成分の分布などが様々に変化すること。                  |
| 粒子状デブリ冷却性        | 炉心燃料が損傷して粒子状の溶融物となったものを冷却するときの特性。崩壊熱により発熱しているため、温度上昇を防ぐために冷却する必要がある。   |
| 溶融燃料 冷却材相互作用     | 高温の溶融燃料が冷却材と接する状況において両者が相互に影響を及ぼすこと。大量の熱が短い時間に冷却材に伝わるため水蒸気爆発などの急激な現象が引き起こされることがある。                                 |
| 溶融炉心 コンクリート相互作用  | 炉心が溶融してできた高温デブリが格納容器に落下し十分な冷却ができないと、格納容器下部のキャビティ又はペDESTALを形成するコンクリートが、溶融炉心によって侵食される現象。                             |
| キャビティ注水時のデブリ冷却性  | 高温の溶融デブリがキャビティ又はペDESTALに落下した際、プール水や注入水による冷却がどの程度あるかという度合い。十分ではない場合、床面のコンクリートに侵食が発生し、ベースマットやライナ金属等の溶融貫通が発生する可能性がある。 |
| 放射性物質生成・移行・保持・除去 | 重大事故により発生した放射性物質は、気体状、揮発性、難揮発性などで、多くはエアロゾル等の粒子状となり移行する。その過程で、フィルタやプール水中でのスクラビング等があれば、放射                            |



|              |                            |
|--------------|----------------------------|
|              | 性物質はそこで保持され、最終的に除去される。     |
| We (ウェーバー) 数 | 流体力学において慣性力と表面張力の比を表す無次元量。 |
| Re (レイノルズ) 数 | 流体力学において慣性力と粘性力の比を表す無次元量。  |
| Eo (エトベス) 数  | 流体力学において浮力と表面張力の比を表す無次元量。  |
| St (ストークス) 数 | 流体中を移動する粒子の流体への追従性を表す無次元量。 |

## 1. 序論

### 1.1 背景

「実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則」<sup>1</sup>では、重大事故時の原子炉格納容器の破損防止や放射性物質の放出抑制のための対策を要求するとともに、その解釈<sup>1</sup>において格納容器破損防止対策の有効性を確認することを要求している。また、「実用発電用原子炉に係る炉心損傷防止対策及び格納容器破損防止対策の有効性評価に関する審査ガイド」<sup>2</sup>では、その有効性の評価手法の妥当性を判断する上で参考となる留意事項が示されている。さらに、「実用発電用原子炉の安全性向上評価に関する運用ガイド」<sup>3</sup>では、発電用原子炉設置者が最新の知見を踏まえて実施する安全性の継続的な改善に対する評価について具体的な実施内容を示している。重大事故等対処設備の有効性評価に係る適合性審査やそのガイド、安全性向上評価の運用ガイドの改訂等の要否検討等を通して重大事故に対する安全性を向上させるためには、重大事故時の緩和策を考慮して事象進展や放射性物質の移行挙動（ソースターム）を現実的に評価することが重要である。

重大事故時に発生する現象には、そのメカニズムが十分に把握できていないこと、実験計測手法の限界により実験データの解像度や信頼性が低いこと、実験データが取得された条件範囲が限定的であること、メカニズムは理解されているが物理モデルに反映されていないこと、重大事故の進展に応じた種々の熱水力的及び化学的条件等、様々な要因に起因する不確実さが存在する。このような不確実さは、その範囲や程度が認識されない場合にはその後の重大事故の進展予測や評価の結果にも影響を及ぼす。このため、重大事故時の格納容器機能維持や事象進展に影響する物理化学現象に関する実験研究は国内外において継続的に進められている。また、原子力規制庁でも「軽水炉の重大事故時の重要物理化学現象に係る実験（平成26年度～令和元年度）」（以下「前プロジェクト」という。）において格納容器機能維持に係る重要現象について実験データを取得した<sup>4</sup>。

このように取得された実験的知見は、実験データの詳細な分析に基づき現象をモデル化することにより、重大事故総合解析コード（以下「SA 総合解析コード」という。）による事象進展解析や重大事故に関わる個別現象の解析手法において最新知見として考慮される。また、PRA等から得られる知見も踏まえて、現象把握ができていない領域を特定し実験的知見を獲得することを繰り返すことにより、重大事故に関わる現象の不確実な部分に対して知見を拡充することができ、その結果として解析結果が内包する不確実さを低減することが期待される。

本プロジェクトにおいては、重大事故時に発生する現象の中でも、特に知見が欠如していると考えられる現象について、上述の国内外の既往知見及び前プロジェクトで取得した最新知見も踏まえて、未だ大きな不確実さが残されている物理化学現象として以下の四つの現象を特定し、実験的知見を取得することとした。

## (1) プールスクラビング

東京電力福島第一原子力発電所事故では、各号機の格納容器ベント時点での圧力抑制プールの水温や減圧沸騰に伴うプールスクラビングによるエアロゾル状放射性物質の保持性能の違いが着目された。プールスクラビングに関する実験は 1980-1990 年代に実施されたものの減圧沸騰は考慮されておらず、また大規模スケールでの総合効果実験であったため十分な解像度の実験データが不足している<sup>5</sup>。そのため、前プロジェクトでは既往知見を基に各種実験を行い、減圧沸騰、水温等のプールスクラビングの効果に関する不確かさの大きなパラメータを特定した。

SA 総合解析コード MELCOR2(以下「MELCOR」という。)に組み込まれている SPARC-90 モデルは、単一気泡のエアロゾル除去を積分することで複数の気泡群によるエアロゾル除去を評価している<sup>6</sup>。しかしながら、上記の不確かさを低減するには単一気泡の気液界面の変形等のメカニズムを新たにモデル化する必要がある。そのため、プールスクラビングの個別効果に着目し、気泡群又は単一気泡挙動及び気泡内外のエアロゾルの挙動に関する実験を行うとともに、プールスクラビング現象のメカニズムに則したモデルを開発して、実機のプールスクラビング現象を評価する解析コードに導入していくことが必要である。本研究では、そのための実験データの取得を行うこととした。

## (2) ソースターム

東京電力福島第一原子力発電所事故では、事故に伴う放射性物質の環境放出が発生した。ソースタームは格納容器機能喪失時における環境への放射性物質放出を評価する観点から重要であるが、原子炉冷却系内や格納容器内における炉心熔融進展、熱水力挙動及び燃料からの放射性物質の放出とその後の移行挙動には大きな不確かさがある。例えば、気体状ヨウ素の移行挙動については、過去にフランスで実施された PHEBUS-FP 計画においてホウ素の影響により想定以上の気体状ヨウ素やモリブデンとセシウムの化合物  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  の生成・移行が示唆されている<sup>7,8</sup>ものの、その詳細な生成機構、生成割合及び移行挙動について十分な知見は得られておらず、ソースターム評価における不確かさの要因となっている。SA 総合解析コードは、これらの現象のモデル欠如等に由来する不確かさを含有するため、モデルを構築することによってその不確かさの低減を図ることが重要である。

既往の重大事故に関する国内外専門家による PIRT<sup>9,10</sup>において、レベル 2PRA 及びレベル 3PRA 並びに原子力災害対策の観点などから、ソースターム評価への影響が大きいと予想される項目が抽出されている。前プロジェクトや近年の既往研究では、ソースターム評価に係る個別現象について以下の知見が得られている。制御棒等の構造材の影響や放射性物質同士の化学反応については、速度論を含めた放射性物質化学反応モデルによる検討の必要性が示された<sup>11</sup>。再移行挙動については、放射性物質の化学形態等に係る成果が従来モデルに十分に反映されていない<sup>11</sup>。燃料からの放射性物質の放出挙動については、化学形態を考慮したモデルの高度化が必要である<sup>12</sup>。気体状放射性物質の気液間移行について

は、物質移行モデルの改良による予測精度向上が必要である<sup>13</sup>。これらを踏まえて、本研究では上記の個別現象について実験データの取得及びモデル開発を行うこととした。

### (3) 重大事故時格納容器熱流動

東京電力福島第一原子力発電所事故では、格納容器上部フランジの過温破損により放射性物質や水素の漏洩が発生したと考えられている。重大事故時の格納容器熱流動は、原子炉設置事業者が格納容器上部フランジの過温破損への対策として実施しているフランジシール材の改良や格納容器外面冷却を評価する上で重要な物理現象である。前プロジェクトでは格納容器外面冷却によるフランジの冷却及び外面冷却時の格納容器熱流動に関する知見を取得したが<sup>4</sup>、実験装置の運転における安全性を考慮して低温の条件から段階的に温度範囲を広げたため、重大事故時に格納容器の冷却機能を喪失した場合に想定される雰囲気温度については、依然知見が少ない状況にある。そのため、実機において想定される超高温条件下での様々な重大事故条件で格納容器上部フランジの冷却特性や水素に代表される軽密度気体による熱伝達特性の劣化、非常に高い温度条件から冷却した場合の悪影響の把握といった格納容器内部の熱流動挙動について不確実さ低減のための実験データベースを拡充することとした。

### (4) 粒子状デブリ冷却

東京電力福島第一原子力発電所事故では、压力容器から格納容器下部へ溶融デブリが放出された。格納容器機能喪失へとつながる溶融炉心 - コンクリート相互反応を評価する上では、溶融デブリのプール水中での挙動は重要な物理現象であるが、放出される溶融デブリの質量流束や組成、溶融デブリのプール水中での落下挙動とこれによる微粒化の過程など極めて不確実さが大きい。その不確実さの低減のため、現象を把握するとともに信頼性の高い測定により取得された実験データに基づく詳細デブリ解析コード開発を行っている。その解析コード開発のため、前プロジェクトでは压力容器からのデブリの放出における微粒化粒子の集積挙動やその水中床面での広がり、溶融物とデブリベッドの相互作用について知見を拡充した<sup>4</sup>。しかしながら、周囲流体を含めた伝熱流動については依然実験データが不足しているため、粒子状デブリが格納容器ライナ等の構造物に接触している状態を対象に実験を行うことで、デブリ冷却に関する不確実さ低減のための知見の拡充を行うこととした。

上記の不確実さの大きい物理化学現象とその知見の活用先を図 1.3.1 に示す。ソースターム実験により放射性物質の移行挙動についての実験データを、プールスクラビング実験により粒子状放射性物質の除去についての実験データを得ることにより、放射性物質の発生・移行・保持・除去についての知見を得る。また、重大事故時格納容器熱流動実験により格納容器の熱流動についての実験データを、粒子状デブリ冷却実験により压力容器内外

での伝熱挙動に関する実験データを得ることにより、それらの現象に係る不確実さ低減に貢献できる。得られた各物理化学現象に係る知見は、現実的な重大事故の事象進展やソースターム挙動評価に活用できる。また、原子力規制庁では、安全研究プロジェクト「軽水炉の重大事故時における不確実さの大きな物理化学現象に係る解析コードの開発（平成 29 年度～令和 4 年度）」において、詳細デブリ解析コード等の開発や SA 総合解析コード等のモデル改良・組み込みを実施している。さらに、安全研究プロジェクト「軽水炉の重大事故における格納容器機能喪失及び確率論的リスク評価に係る解析手法の整備（平成 29 年度～令和 4 年度）」では、それらの解析コードを用いた SA の事象進展解析等を実施している。上記の物理化学現象の詳細なメカニズムに係る知見は、これらのモデル開発等に活用する計画であり、一部は既に活用している。

## 1.2 目的

重大事故の発生防止、拡大防止及び環境影響緩和の各段階において生じる重大事故時の物理化学現象及び SA 総合解析コード等でモデルの高度化が必要な個別現象について、その不確実さ低減のための実験データ及び知見を拡充する。

## 1.3 全体行程

全体行程を図 1.3.2 に示す。本研究の実施期間は令和 2 年度から令和 7 年度までの 6 年度であり、令和 3 年度までは計画どおり進んでいる。本中間報告書は主に令和 2 年度及び令和 3 年度に実施した研究成果をまとめたものである。ここでは、(1)プールスクラビング実験については、小規模実験を国立大学法人筑波大学への委託事業、中規模実験を国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下「JAEA」という。）への委託事業で行った。(2)ソースターム実験については、化学反応実験及び再移行挙動を JAEA への委託事業、気相化学実験・物質移行を JAEA との共同研究、CsI 放出実験を国立大学法人福井大学との共同研究で行った。(3)重大事故時格納容器熱流動挙動実験を JAEA への委託事業で行った。(4)燃料デブリ冷却性実験については一般財団法人電力中央研究所への委託事業で行った。

### 本プロジェクトの範囲

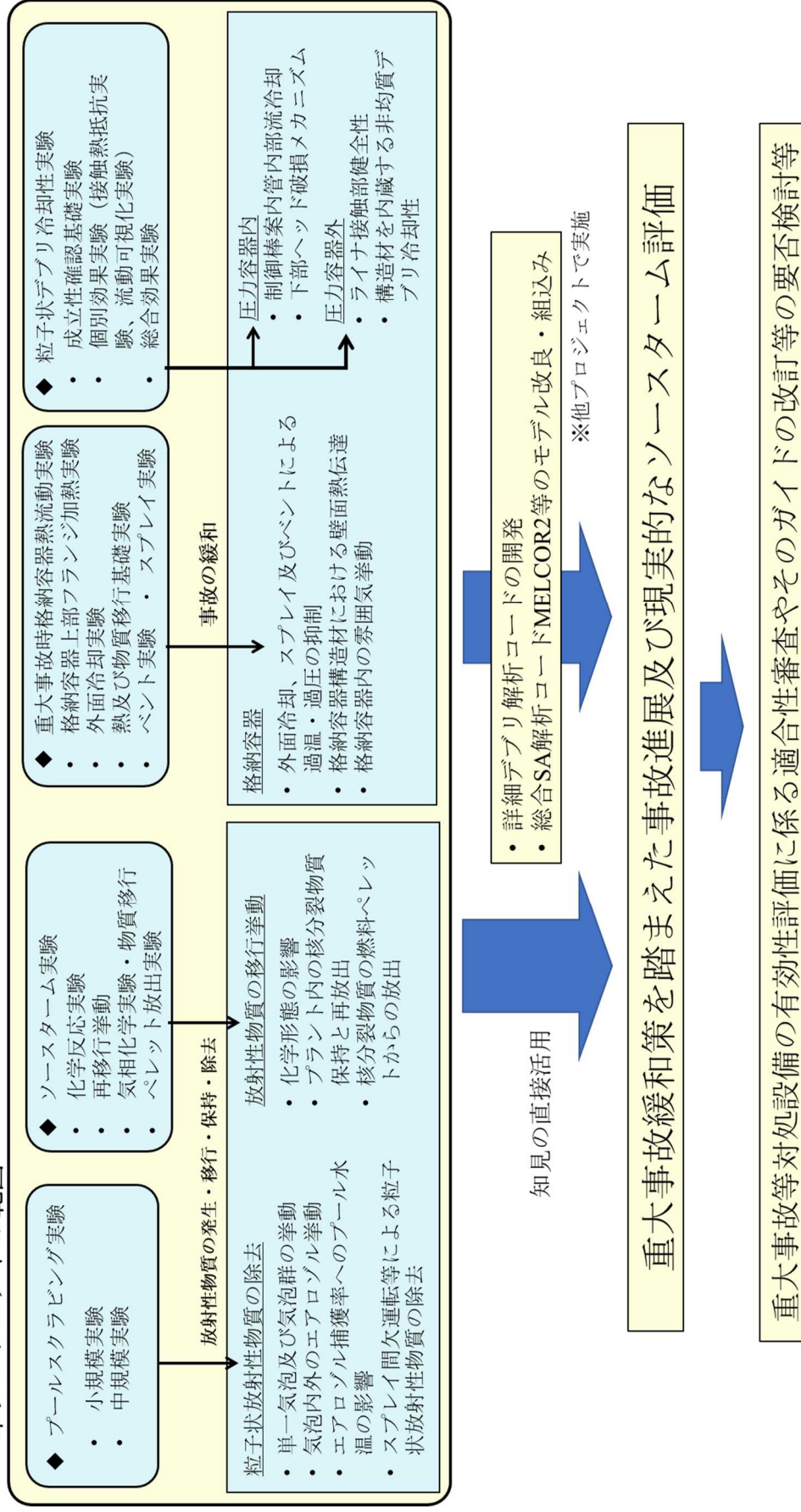


図 1.3.1 本プロジェクトで対象とする物理化学現象とその知見の活用先

Figure 1.3.1 Scope of this project and utilization of the knowledge

| 年度<br>(令和)         | 2                           | 3 | 4                          | 5                         | 6 | 7    |
|--------------------|-----------------------------|---|----------------------------|---------------------------|---|------|
| プールスクラビング<br>実験    | 小規模実験<br>(筑波大学に委託)          |   |                            |                           |   |      |
|                    | 中規模実験 (JAEA に委託)            |   |                            |                           |   |      |
|                    |                             |   | スプレースクラビング実験<br>(JAEA に委託) |                           |   |      |
|                    |                             |   |                            |                           |   | 総合評価 |
| ソースターム実験           | 化学反応実験 (JAEA に委託)           |   |                            |                           |   |      |
|                    | 再移行挙動実験 (JAEA に委託)          |   |                            |                           |   |      |
|                    | CsI 放出実験 (福井大学との共同研究)       |   |                            |                           |   |      |
|                    | 気相化学・物質移行実験 (JAEA との共同研究)   |   |                            |                           |   |      |
|                    |                             |   |                            |                           |   | 総合評価 |
|                    |                             |   |                            |                           |   |      |
| 重大事故時格納容器<br>熱流動実験 | 格納容器上部フランジ冷却実験 (JAEA に委託)   |   |                            |                           |   |      |
|                    | 外面冷却時熱流動実験 (JAEA に委託)       |   |                            |                           |   |      |
|                    |                             |   |                            | 熱及び物質移行基礎実験<br>(JAEA に委託) |   |      |
|                    | ベント時熱流動実験 (JAEA に委託)        |   |                            |                           |   |      |
|                    | スプレイ時熱流動実験 (JAEA に委託)       |   |                            |                           |   |      |
|                    |                             |   |                            |                           |   | 総合評価 |
| 粒子状デブリ冷却性<br>実験    | 粒子状デブリ冷却性実験<br>(電力中央研究所に委託) |   |                            |                           |   |      |
|                    |                             |   |                            |                           |   | 総合評価 |

図 1.3.2 全体行程

Figure 1.3.2 Overall schedule

## 2. 本論

### 2.1 プールスクラビング実験

#### 2.1.1 知見の調査及び実験範囲の検討

2011年3月11日に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故では、格納容器減圧のために圧力抑制室を通じて排出するウェットウェルベントが実施された。この手順では、ドライウェルの気相に含まれる、大きさが数  $\mu\text{m}$  程度以下の粒子（エアロゾル）状放射性物質がプールスクラビングにより気相から液相に移行し、圧力抑制プール内に保持されることを期待している。1号機では津波襲来直後に全電源喪失に見舞われ、短期間のうちに事故が進展したため、格納容器ベントが実施された時点での圧力抑制プール水温はさほど上昇していなかったと考えられる。一方で、2号機及び3号機では津波襲来後も蒸気駆動の炉心注水系が作動し続けたため、ベントに成功した時点での圧力抑制プール水温は相当上昇していた可能性が高い。そのため、ベントにより圧力抑制プールでは減圧沸騰が発生し、プールスクラビングによるエアロゾル状放射性物質の保持性能が低下した可能性が考えられた。既往実験では、プール水の飽和温度近傍までの条件をカバーした実験も限られており、かつ格納容器ベント時における減圧沸騰のように著しい非平衡状態を模擬したものはない。

プールスクラビングの代表的な解析モデルとして、米国 Pacific Northwest Laboratory (PNL)が開発した SPARC-90<sup>6</sup> 等があり、MELCOR の RN (Radio Nuclide) パッケージ等の一部として組み込まれている。図 2.1.1 に SPARC-90 のモデル概念図を示す。本モデルは、主として気泡塊が形成されるような低注入流速を対象としている。ここでは、注入口近傍を不安定な気泡塊領域（以下「グロービュール不安定領域」という。）、気泡塊が小気泡に分裂する領域（以下「グロービュール分裂領域」という。）及び気泡群が上昇する領域（以下「スウォーム上昇領域」という。）の三つに分類し、注入口近傍では、衝突による慣性沈着、水蒸気の凝縮、遠心力による慣性沈着及び拡散沈着、上昇気泡内では、重力沈降、遠心力による慣性沈着、ブラウン拡散、蒸発又は凝縮によるエアロゾル除去メカニズムがモデルとして組み込まれている。グロービュール不安定領域における初期体積は、ベント管、クエンチャ及び水平管について Weber 数のべき乗により与えられている。プール水面における液滴同伴によるエアロゾル再放出は無視されている。

このモデルの開発と同時期の 1980 年代から 1990 年代までを中心に ACE、POSEIDON-II)、LACE 等の複数のプールスクラビングに関する実験が行われている<sup>14, 15, 16</sup>。しかし、プール内の二相流動様式遷移や気泡内のエアロゾル飛跡のような詳細プロセスに関するモデルには、その当時の技術に基づく目視観察や理想的な流れ場の想定に基づく仮定が多く含まれるため、大きな不確かさが存在している。そのため、近年、最新の二相流動計測技術、画像解析技術、エアロゾル発生・計数装置等を活用することによって、プールスクラビングモデルの改良を目的とした研究が行われている<sup>4, 17</sup>。

そこで、SA 時におけるプールスクラビングの重要性と既存評価コードの評価精度不足

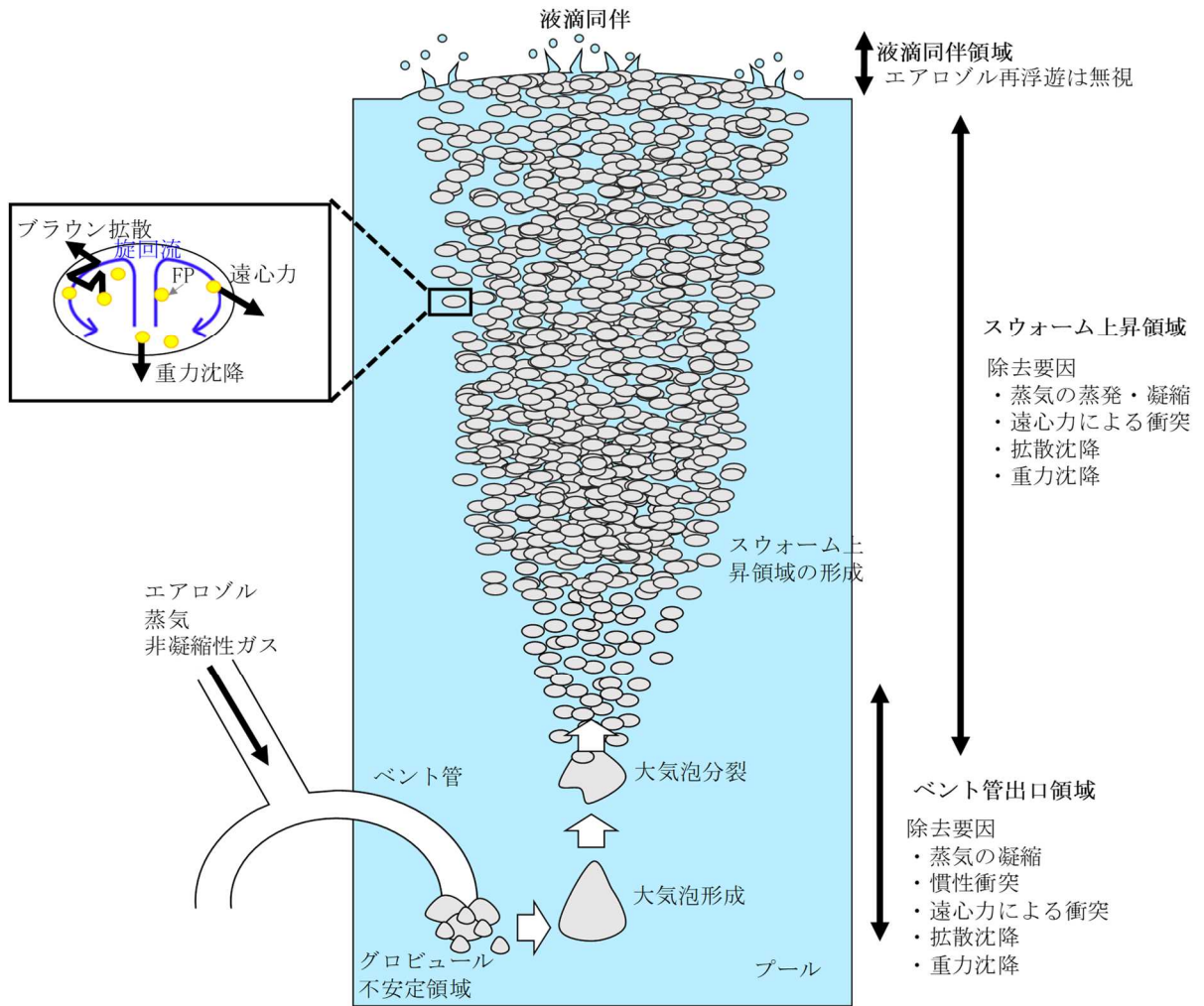


を踏まえ、本事業では SA 時の広範囲な条件において支配的なスクラビングメカニズムの同定と、スクラビングモデル SPARC-90 の改良を目的とする。

前プロジェクトでは、前述のドライウェルベントに伴う圧力抑制プールの減圧沸騰がスクラビング効果へ及ぼす影響を評価することを目的として、実機スケール相当の現象を模擬できる大規模装置を用いて実験を行った<sup>4</sup>。大規模実験では、減圧時の DF が定圧時とほぼ同等であることや DF のプール水温依存性が示された。この要因を分析するため、プールスクラビング現象のスケールに合わせて図 2.1.2 に示す小規模及び中規模の 2 段階スケールの実験を委託事業により系統的に実施することで、プールスクラビングの現象理解及びモデル改良に関する実験データベースを拡充する<sup>5</sup>。

本プロジェクトでは、小規模個別効果については、筑波大学に委託し実験及び数値解析を行った。本実験では、複数の小規模実験装置を用い、プールスクラビングに含まれる重要な現象の影響を個別に評価できる実験を段階的に実施した。主な注目点は、プール内に注入された後の単一気泡及び気泡群の挙動、注入から水面到達までの二相流動様式の発展、気泡内流れ場及びエアロゾル速度場及びこれらに対するエアロゾル模擬物質の材料特性の影響等である。これらのデータから新たに考慮すべき解析モデルや現行モデルの改良を行うことで、SPARC-90 の改良につなげることも期待できる。

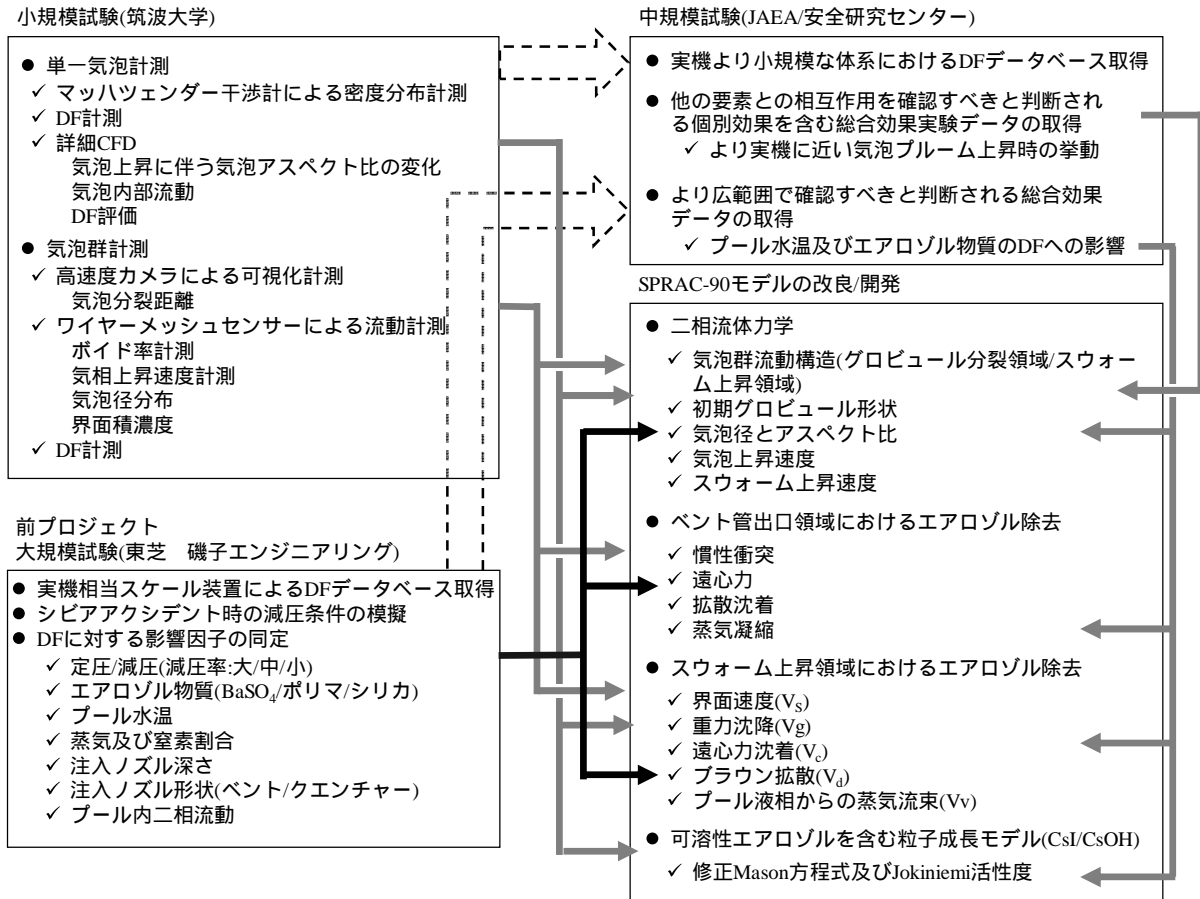
中規模総合効果については、JAEA に委託し実験を行った。本実験の特徴は、二相流動と DF の関係に注目した実験データベースを系統的に構築するところにある。本実験体系は、大規模装置と同様の複数現象の相互作用を再現しつつ、これよりも容量が小さいことから、クエンチャやベント管等のノズル形状等、パラメータ選定の自由度が増す。また、詳細な二相流計測が可能であり、大規模装置と同等のエアロゾル発生・計数装置を備えていることから、系統的な粒径依存 DF の測定が可能である。本実験では、小規模実験や前プロジェクトにおいて実施した大規模実験において重要と判断された現象や現象間の相互作用の把握を重視している。



出典 ) P.C. Owczarski, K.W. Burk, "SPARC-90: A Code for Calculating Fission Product Capture in Suppression Pools", NUREG/CR-5765, 1991.<sup>6</sup>

図 2.1.1 SPARC-90 モデルにおけるエアロゾル除去メカニズム

Figure 2.1.1 Aerosol removal mechanisms modeled in SPARC-90



出典) 秋葉美幸、堀田亮年、阿部豊、孫昊旻、「粒子状放射性物質のプールスクラビングに関する実験的研究」、日本原子力学会和文誌、2020.<sup>5</sup>

図 2.1.2 プールスクラビング実験と SPARC-90 モデルの改良

Figure 2.1.2 Relation of pool scrubbing experiments and SPARC-90 Models

### 2.1.2 研究の進め方

前プロジェクトでは、大規模実験において減圧時の DF が定圧時とほぼ同等であることや DF のプール水温依存性が確認された。本プロジェクトでは、大規模実験で得た知見を踏まえ、大規模実験とは異なるスケールで DF のプール水温依存性を確認するとともに、SPARC-90 モデルのモデル改良に関する知見を拡充するため、小規模及び中規模の 2 段階スケールの実験を系統的に実施する 3 か年度の計画を立て、主要現象の効果に関して階層化された複数の実験の中で、新規に実験技術を構築しつつ目的を実現することとした(図 2.1.3)。図 2.1.1 に示すとおりベント管等から放出されたエアロゾルを含む蒸気、非凝縮性ガスはある領域で分裂し複数の気泡群となる。SPARC-90 モデルでは、複数の気泡群はある直径、アスペクト比等の単一気泡の集合体として扱っている。そのため、本研究では複数の気泡群による総合評価と気泡群の中から単一気泡を抜き出した個別効果の二つで進め、最終的に、気泡群と単一気泡を包括的に捉えモデルの改良を行う。

- (1) 実験データの取得・技術開発(令和2年度実施): 単一気泡では干渉計による気泡外部のエアロゾル密度計測、DF計測及びCFDコードの開発準備を行った。気泡群については小規模実験でグローブール分裂長さ、気泡直径といった流動構造及びDFの計測を行うとともに令和3年度に向けて計測手法の開発を実施した。中規模実験では、実験装置を改良して前プロジェクトで実施したDFの水温依存性に係る実験結果について再確認した。
- (2) 計測・解析結果の評価(令和3年度実施): 令和2年度に得られた知見を反映し、単一気泡と気泡群について各々に計測を実施し、DFに影響を与えるパラメータ及びSPARC-90モデルの改良に向けた知見を拡充した。
- (3) 総合評価(令和4年度実施中): 単一気泡と気泡群における計測データを踏まえSPARC-90モデルにおけるグローブール領域及びスウォーム上昇領域におけるDFの評価、DFに影響を与えるパラメータ等、モデル改良に資する知見のための実験及び解析を実施中である。

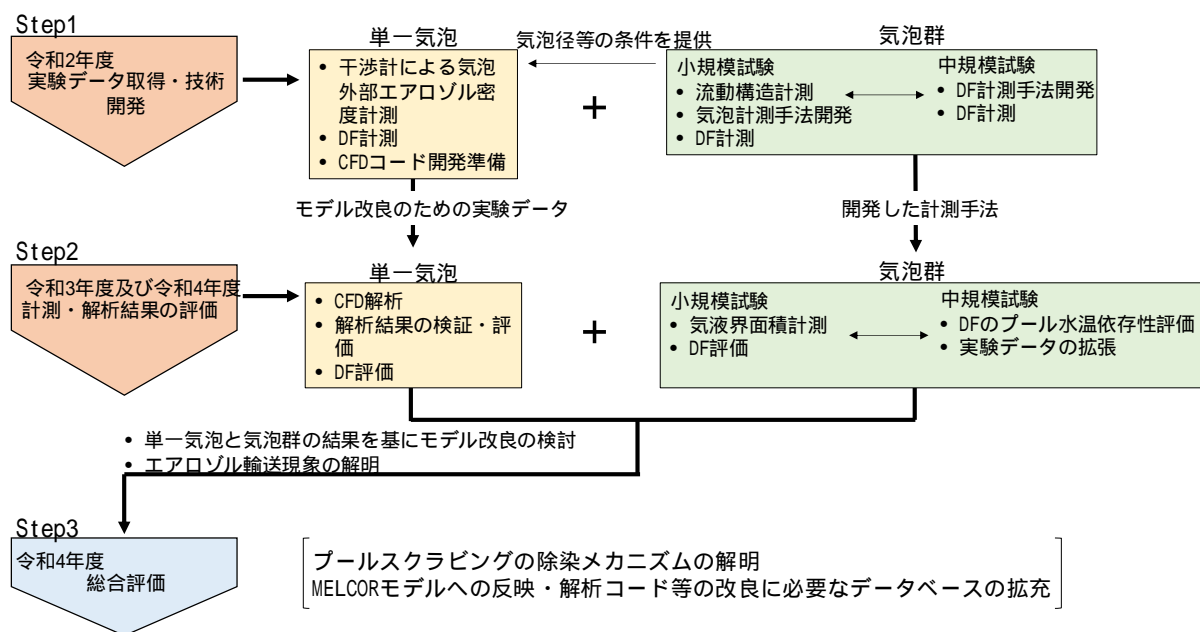


図 2.1.3 プールスクラビング実験の計画

Figure 2.1.3 Plan for pool scrubbing test

### 2.1.3 小規模実験

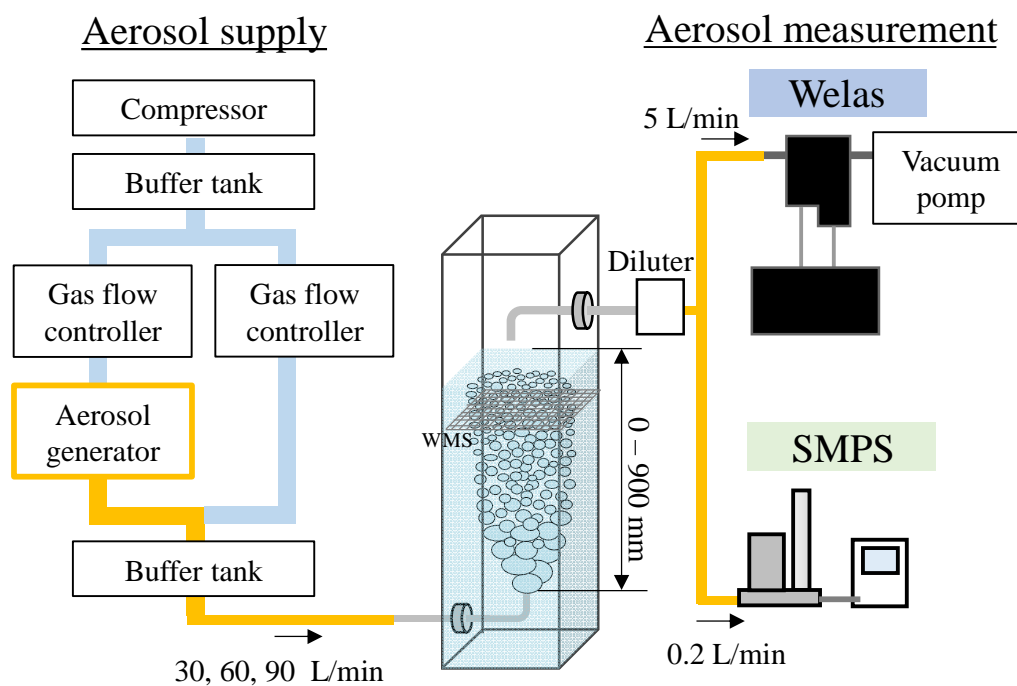
小規模実験では、国立大学法人筑波大学への委託事業により、最新の可視化及び二相流計測技術や数値解析技術等を用いて、SPARC-90 モデルで使用されている単一気泡中エアロゾル挙動モデル及び二相流挙動モデルに対応する物理現象を実際に計測し、SPARC-90 モデル改良の検討を行った。具体的には、エアロゾルを含む気泡の内外に生じる現象を明らかにするため、(1) 気泡群実験、(2) 単一気泡実験、(3) CFD コードによる単一気泡挙動解析、(4) CFD 解析結果に基づく改良 SPARC-90 モデルの提案及び(5)改良 SPARC-90 モデルの課題の抽出の 5 点に着目して実験を行った<sup>18,19</sup>。以下に筑波大学が実施した知見を述べる。

#### (1) 気泡群実験

プールのスクラビングによるエアロゾル除去メカニズムの解明において気液界面積を評価することが重要である。しかしながら、これまでプールのスクラビングが想定する気液二相流挙動に対して詳細に気液界面積を評価した例は極めて少ない。そこで本研究では、WMS により計測した瞬時ボイド率を分析することで気泡を識別し、気液界面積及び速度を算出する手法を開発した<sup>18,19</sup>。開発した手法を用いて図 2.1.4 に示す実験装置体系において内径 10 mm の L 字ノズルから流路断面 0.5 m×0.5 m の矩形水槽にノズル直上 1 m まで水を溜め、気相を注入することで気泡噴流を形成し、WMS で計測を行った。注入するガス流量は実機のクエンチャを模擬するために 30、60、90 L/min とした。計測した気泡径分布から SMD を算出した結果を図 2.1.5(a)に示す。ノズルからの相対距離の増加に伴い気泡の分裂が進み SMD が減少する傾向が確認できる。また、ノズルからの相対距離 100 mm においてはガス流量が高いほど SMD が高い傾向にあるが、ノズルからの相対距離の増加に伴い流量依存性が減少し、同一の SMD に収束していく傾向が確認された。図 2.1.5(b)に WMS で 15 秒間計測した気泡径分布と気泡径と気液界面積の関係の積算で求めた気液界面総表面積を示す。プロットで実験結果を示しており、破線で SPARC-90 モデル に用いて 15 秒間の気相体積から算出した気液界面総表面積を示している。実験結果と SPARC-90 モデルはノズルからの相対距離の増加に伴う界面積の増大傾向が大きく異なり、SPARC-90 モデルは気液界面積を過大評価していることが示された。図 2.1.5(c)に気泡噴流の可視化結果を示しているが、SPARC-90 モデルにおいてはノズルからの相対距離約 500 mm 付近にて大気泡の完全分裂を仮定しているが、可視化結果からも明白なように大気泡が下流においても残存していることが確認できる。したがって、SPARC-90 モデルは大気泡の完全分裂は過大評価しており、この大気泡の分裂仮定と実現象の差異が気液界面総表面積の傾向の違いであることが示された。

詳細な二相流挙動の計測に加えて DF の計測を行うことで、二相流挙動とエアロゾル物質輸送の相互評価を行った。二相流計測実験と同様のガス流量及びサブマージンス（注入ノズルからの水面までの距離）の条件において、噴霧式のエアロゾル発生器を用いてセ

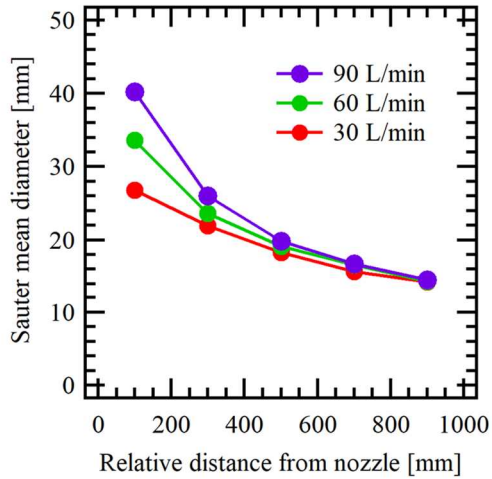
バシン酸ビスの液滴エアロゾルを含む気相をノズルから注入し、水面上部にてノズルからサンプリングし、走査式エアロゾルパーティクルサイザーにてエアロゾルの計測を行った。取得したエアロゾル粒径分布に基づいて水位 0 mm の計測結果を基準として DF を算出した。また、同条件において MELCOR による解析を実施した。結果を図 2.1.6 に示す。DF はガス流量に対する依存性は確認されず、既存知見<sup>20</sup>と同様にサブマージエンスの増加に伴い増加していく傾向が確認できる。また、MELCOR の計算結果は DF を過小評価していることが確認できる。MELCOR は気液界面積を過大評価する一方で DF を過小評価しており、これらの要因は MELCOR では物質輸送係数を過小評価しているためであると考えられる。



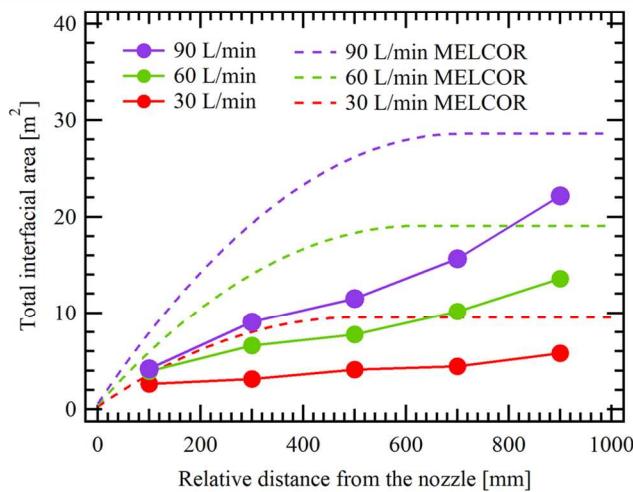
出典) 国立大学法人筑波大学、「令和 3 年度原子力施設等防災対策等委託費 (スクラビング個別効果試験) 事業に関する報告書」、2021.<sup>19</sup>

図 2.1.4 気泡群計測実験装置の模式図

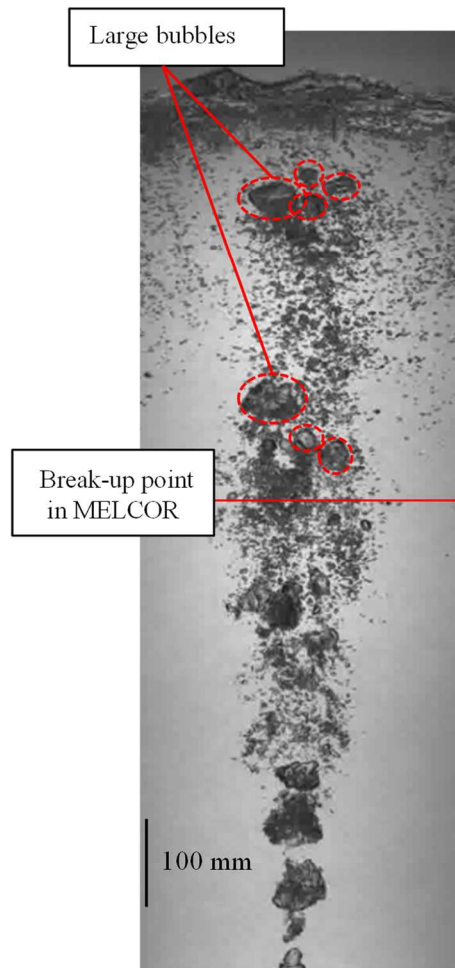
Figure 2.1.4 Schematic view of bubble group measurement experiment equipment



(a) SMD measurement result



(b) Total interfacial area measurement result with MELCOR assumption

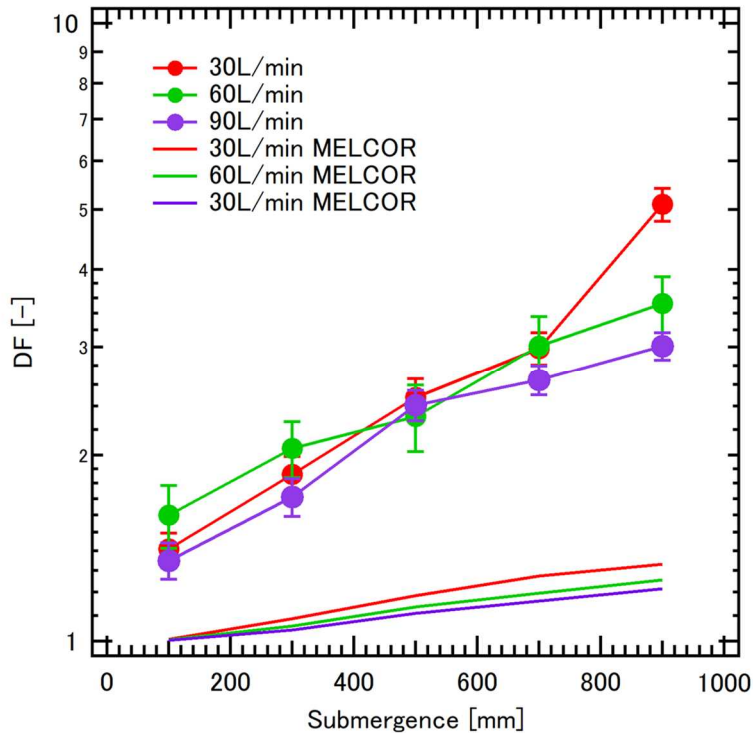


(c) Visualization result of bubble plume

出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」, 2021.<sup>19</sup>

図 2.1.5 WMS による SMD の計測、気液界面総表面積の取得結果及び気泡噴流の可視化結果

Figure 2.1.5 Measurement of Sauter mean diameter by wore mesh sensors, results of total gas-liquid interfacial area and visualization results of bubble plume



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2020.<sup>18</sup>

図 2.1.6 DF 計測結果と MELCOR 計算結果の比較

Figure 2.1.6 Comparison between measurement results and calculated results of MELCOR for DF

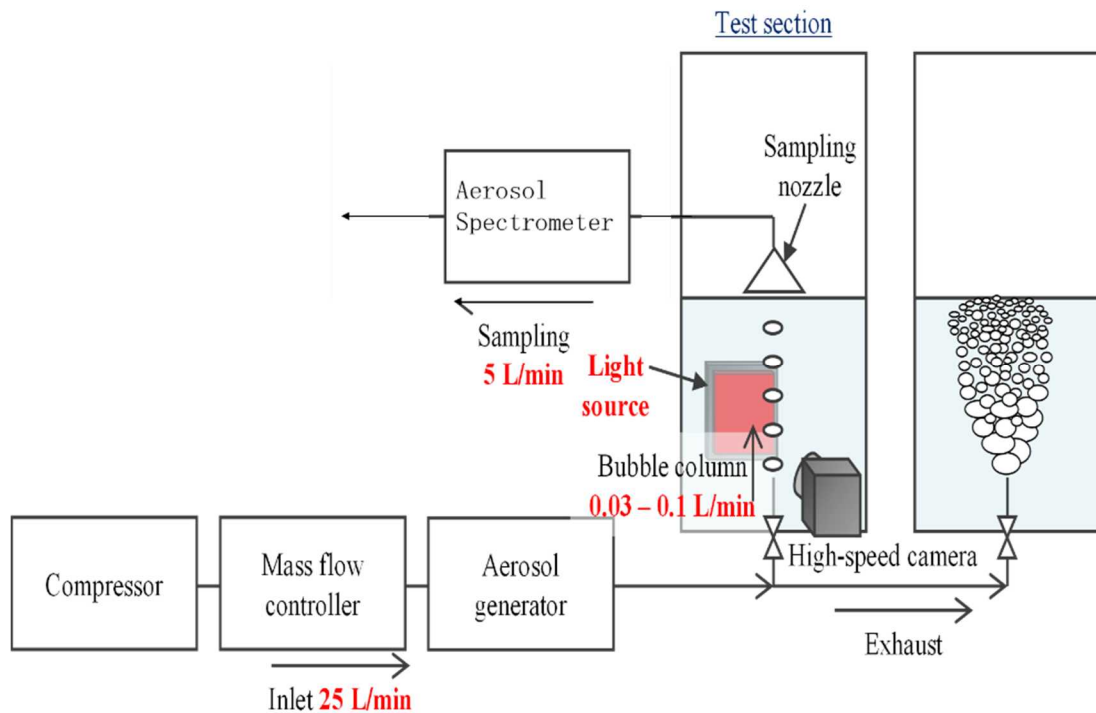
## (2) 単一気泡実験

前述の気液二相流動と物質輸送の相互評価を踏まえ、エアロゾルの気泡内から液相への輸送現象についても評価していく必要があると明らかになった。そこで、エアロゾル輸送に寄与するかを明らかにするため、気泡からエアロゾルが除染される際の現象として、エアロゾルの輸送性能及び除染が生じる際の気泡周囲濃度場について計測を実施した<sup>18, 19</sup>。

単一気泡における DF 計測実験においては、図 2.1.7 に示す実験装置体系を用いて気泡の持つエアロゾル輸送性能を計測するため、気泡を水中に投入した際の初期エアロゾル濃度と、気泡内に水面まで保持されていたエアロゾルの量を計測し、それらの比である DF を計測した。実験に際しては Glycerin 及び CsI 水溶液からなるエアロゾルを気泡の内部に投入し、初期エアロゾル濃度については気泡を透過する光の輝度に基づき計測する。残存エアロゾル濃度については、任意の水位において水面でエアロゾルのサンプリングを行い、その粒径ごとの濃度比を計測することで、エアロゾル輸送性能を評価した。図 2.1.8 に 0.2 m–0.6 m の 4 条件で各十回ずつ計測したエアロゾルの粒径分布を示す。計測結果より、単一気泡の持つエアロゾル輸送性能については粒径依存性が大きいことを明らかにした。特に 0.8  $\mu\text{m}$  を超える大径粒子については、水中に投入された直後にほぼ全量が除染された。一方で、0.3  $\mu\text{m}$  の小径粒子については、1.0 m の水頭を通過してもなお気泡内に多くの粒



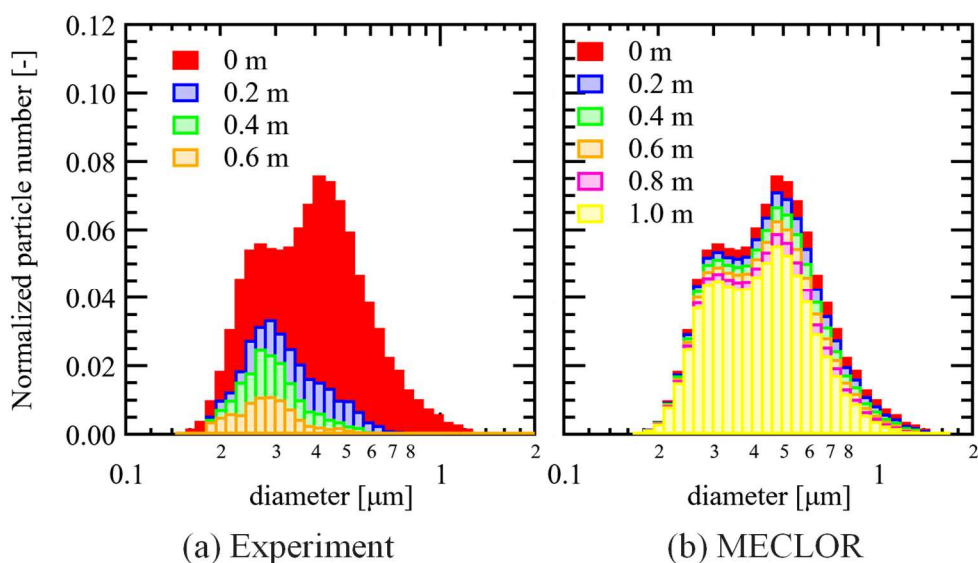
子が残存していることが示された。図 2.1.8(b)に同一条件において SPARC-90 モデルで解析されるエアロゾルの残存数を示す。解析結果から、全ての粒径において SPARC-90 モデルは実現象よりエアロゾルの除染性能を大幅に過小評価していることが明らかとなった。



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2021.<sup>19</sup>

図 2.1.7 単一気泡計測実験装置の模式図

Figure 2.1.7 Schematic view of single bubble measurement experiment apparatus

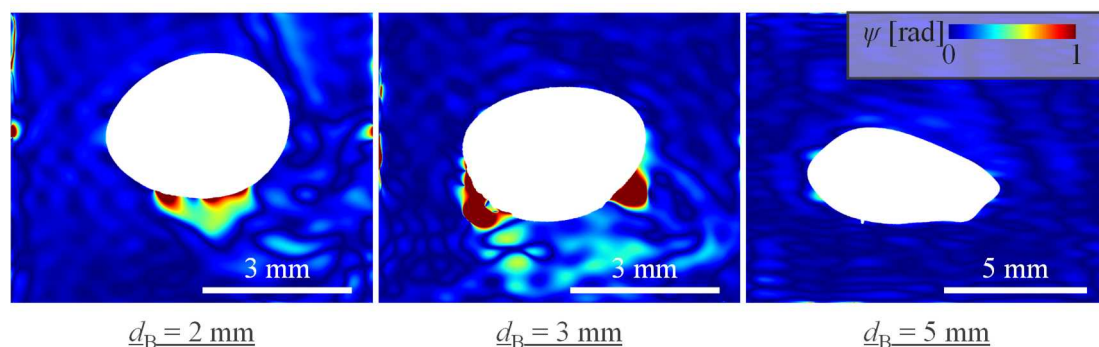


出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2021.<sup>19</sup>

図 2.1.8 水位ごとのエアロゾル粒径分布計測結果の例

Figure 2.1.8 Examples of measurement results of aerosol grain diameter distribution for each water level

除染性能の計測から、単一気泡のエアロゾル輸送性能について SPARC-90 モデルと実現象の間で乖離が生じることを示したが、実際にエアロゾルがどのように輸送されて、モデルと実現象の乖離に至ったかについては明らかでない。そこで、エアロゾルが除染される際の挙動を実験的に取得することを目指し、新たに干渉縞計測を用いた気泡周囲におけるエアロゾル濃度場の計測手法を開発した。計測に際してはマッハツェンダー干渉計を作成し、テストセクション内に水槽を設置した。水槽の下部から干渉計の計測領域にかけてエアロゾルを含む気泡を射出し、気泡周囲より液相中に形成される濃度場に伴う光路差を干渉縞として計測した。図 2.1.9 に、エアロゾル濃度場分布の気泡径依存性を示す。計測結果から、小気泡ではエアロゾル濃度場が高い位置が気泡の下面にみられた一方で、気泡径が増大するにつれて濃度の高い位置が気泡の側方に移動した。計測結果より、単一気泡におけるエアロゾル輸送現象が気泡径や形状への依存性を持つことを示唆した。なお、干渉計による計測原理上、屈折率の差により気泡内部の計測がエラーとなることと本計測では、気泡内部が計測対象領域外であることから、気泡内部での計測値を白抜きとして示している。



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2020.<sup>18</sup>

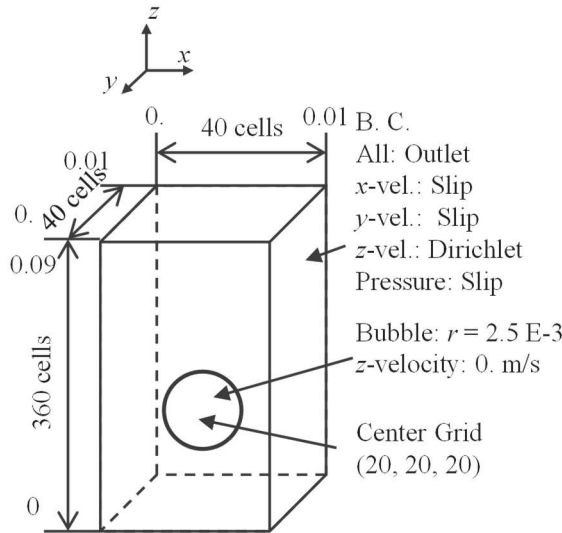
図 2.1.9 エアロゾル濃度分布の気泡径依存性

Figure 2.1.9 Dependence of aerosol concentration distribution on bubble diameter

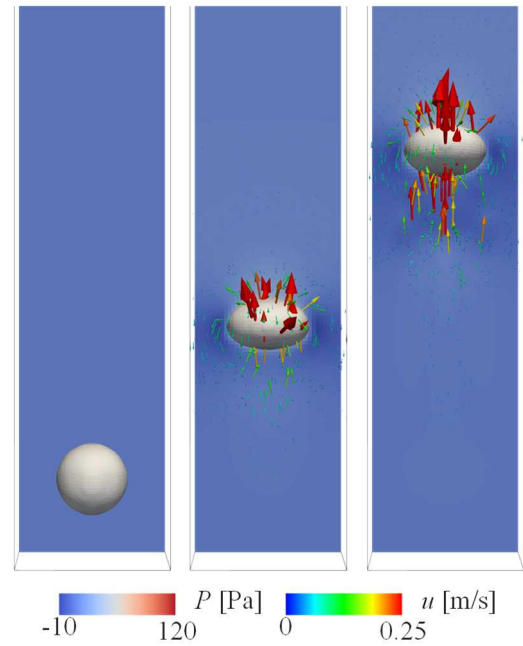
### (3) CFD コードによる単一気泡挙動解析

干渉計を用いた気泡外濃度場計測結果から、気泡周囲のエアロゾル濃度場の非定常な濃度を計測することには成功したものの、気泡外からの計測だけでは、気泡内のエアロゾルにどのような駆動力が生じて除染に至るかについては明らかでない。そのため、気泡内のエアロゾルに生じる駆動力を評価し、加えて実験では実現できない広範なパラメータでエアロゾル輸送現象を評価するためには、単一気泡におけるエアロゾルの物質輸送性能を解析する固気液三相流解析コードを新規に開発する必要がある。

そこで、Olsson ら<sup>21,22</sup>の改良 Conservative Level-set (CLS)法に加えて独自の三次元非定常数値流体解析モデルを開発し、気泡内における微粒子を解析した。微粒子モデルを検討する前段階として、気液二相流モデルの妥当性を確認するための予備解析を実施した。検討に用いた解析の条件を図 2.1.10(a)に示す。本研究においては  $0.01 \times 0.01 \times 0.09$  m のドメインを設定し、中心に等価直径 5 mm の球形気泡を設定して解析を行った。境界条件としては  $x$ - $z$  平面、 $y$ - $z$  平面についてはフリースリップ、法線方向の速度を 0 と定義した。また、 $x$ - $y$  平面についてはともに流出境界とした。予備解析の結果を図 2.1.10(b)に示す。予備解析結果から、気泡が上昇し、扁平に至るまでの一連の形状変化を取得することに成功した。



(a) 予備解析のドメイン



(b)  $d_B = 5.0$  mmの解析結果

出典) 国立大学法人筑波大学、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2020.<sup>18</sup>

図 2.1.10 予備解析結果

Figure 2.1.10 Results of preliminary analyses

上昇速度を求める上で、各時刻における気泡の中心座標  $z_g$  は以下のように求めた。

$$z_g = \frac{\sum(\phi(x,y,z)z) dx^3}{V} \dots \dots \dots (2.1.1)$$

また、気泡のアスペクト比は解析結果より得られた表面積  $A$  と、任意の  $a$ 、 $b$  から計算される表面積を探索し、その差が最も小さい組合せを以下の式から探索した。

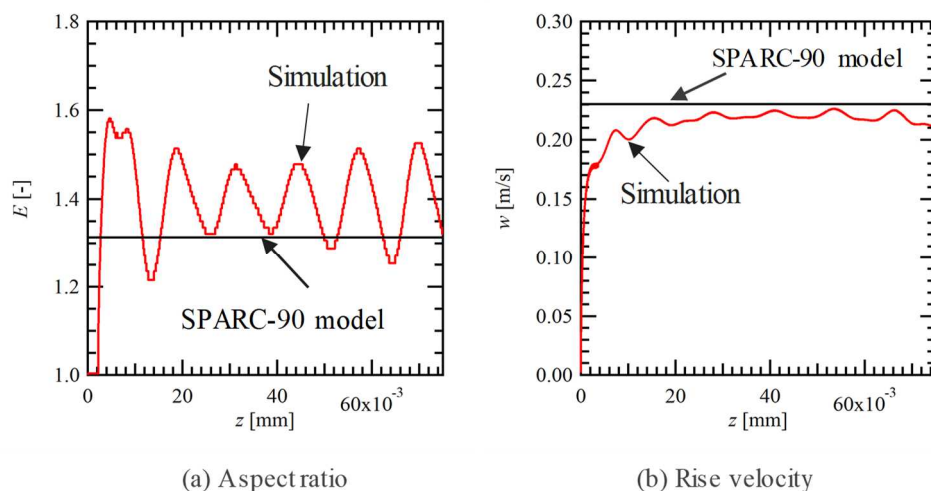
$$\operatorname{argmin} f(a,b) : f(a,b) = \left( A - 2\pi \left( a^2 + \frac{b^2 \tanh^{-1} \sqrt{1-(b/a)^2}}{\sqrt{1-(b/a)^2}} \right) \right) \dots \dots (2.1.2)$$

なお、 $a$ 、 $b$  の探索を行う際、拘束条件として、体積が保存されることを用いて以下のように設定した。

$$V = \frac{4}{3} \pi a^2 b \dots \dots \dots (2.1.3)$$

気泡の解析結果より得られた気泡アスペクト比及び上昇速度をそれぞれ SPARC-90 モデルと比較した結果を図 2.1.11 に示す。解析結果から得られたアスペクト比の最小値は、SPARC-90 モデルと一致をする傾向が確認された。これは、既存の実験<sup>23</sup>において計測されたアスペクト比が SPARC-90 モデルの下限と良好に一致することと同様の傾向を示す。また、解析結果から得られた気泡上昇速度は SPARC-90 モデルを若干下回る傾向が見られ

た。これは、解析ドメインが気泡のサイズに対して十分広くないことが原因と考えられるものの、全体として解析結果は既存の実験相関式と良好な一致を示した。



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2020<sup>18</sup>

図 2.1.11 気泡挙動に関する解析結果と既存相関式の予測結果の比較

Figure 2.1.11 Comparison between the analytical results and those predicted with existing correlation for air bubble behaviors

気泡内に投入する微粒子の運動方程式として2通りの手法を用いて解析を実施した。粒子と流体の連成解析を行う際の主要な手法は、Eulerian-Lagrangian アプローチ<sup>24</sup>と Eulerian-Eulerian アプローチ<sup>25</sup>に大別される<sup>26</sup>。Eulerian-Lagrangian アプローチでは Eulerian アプローチで解析した流体場に対して Lagrangian な手法で粒子を追跡する手法である。粒子を陰的に取り扱うことで抗力項などの表現が簡易である一方で、陽解法で解くことによる数値不安定性や、Eulerian な手法で解く流体パートとの兼ね合いで負荷調節が難しいなどの問題がある。一方で、Eulerian-Eulerian アプローチは流体のみならず粒子についても連続体として取り扱う。流体と粒子スケールを同等とすることで計算効率を実現できるものの、粒子個数を表現できないことから抗力など流体-粒子間の運動量のやり取りを適切に表現できない可能性がある。そのため、本研究においては Eulerian-Lagrangian 及び Eulerian-Eulerian の両手法を用いて解析を実施し、結果を比較、検討した。

Eulerian-Lagrangian の解析で用いた粒子パートの運動方程式は以下のとおりである<sup>26</sup>。

$$\frac{du_p}{dt} = F_D(u - u_p) + g(\rho_p - \rho)\rho_p + F_B \dots \dots \dots (2.1.4)$$

ここで、粒子速度  $u_p$  に対して抗力項  $F_D$ 、ブラウン拡散項  $F_B$  をそれぞれ定義した。抗力項は粒子にかかる抗力をストークス抵抗として、粒径  $d_p$ 、粒子密度  $\rho_p$ 、Cunningham スリップ定数  $C_c$ 、流体の粘性係数  $\mu$  を用いて以下のように表される。

$$F_D = \frac{18\mu}{d_p^2 \rho_p C_c} \dots \dots \dots (2.1.5)$$

また、抗力係数  $D$  は Stokes-Einstein の式を用いて以下のように表される。

$$D = \frac{k_B T}{3\pi\mu d_p} \dots \dots \dots (2.1.6)$$

ここで、 $k_B$  はボルツマン定数 ( $1.38 \times 10^{-23}$  J/K)、 $T$  は周囲温度である。

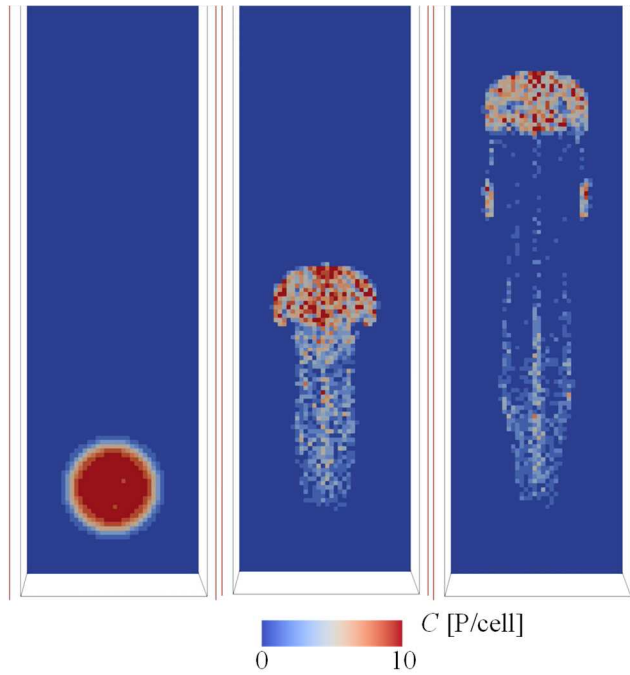
Eulerian-Eulerian の解析で用いた粒子パートの運動方程式は以下のとおりである。

$$\frac{\partial n_k}{\partial t} + \int_{S_k} C_k \mathbf{v}_i \cdot dS = \int_{S_k} D_k \nabla C_k \cdot dS \pm j \cdot \mathbf{n}|_{\Gamma} \dots \dots \dots (2.1.7)$$

ここで、移流速度にエアロゾルの周囲流体からのスリップを考慮した速度  $v$  を使用した。エアロゾルと周囲流体の間にスリップ速度が生じる原因として、エアロゾルの抗力によるものが挙げられる。本研究では、エアロゾルのスリップ速度を算出する際の抗力モデルとして、Manninen's reduced Stokes model<sup>27</sup> を用いて以下のように表した。

$$\frac{\partial n_k}{\partial t} + \int_{S_k} C_k \mathbf{v}_i \cdot dS = \int_{S_k} D_k \nabla C_k \cdot dS \pm j \cdot \mathbf{n}|_{\Gamma} \dots \dots \dots (2.1.8)$$

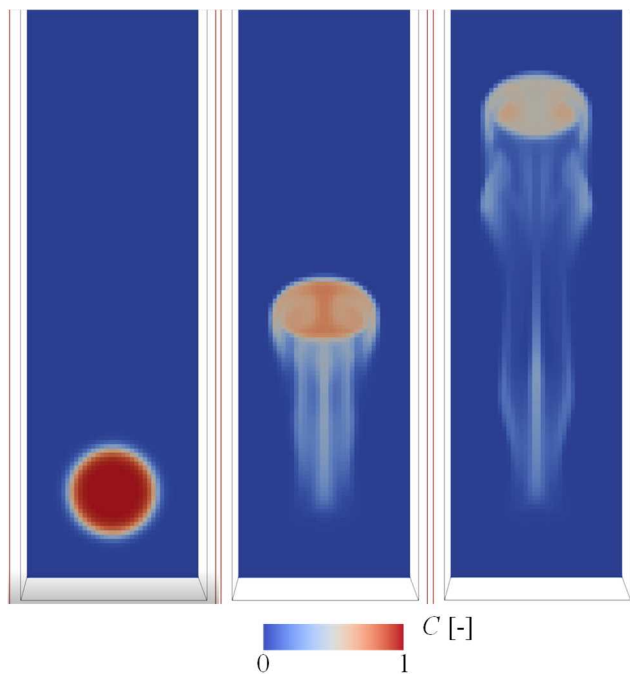
それぞれ Eulerian-Lagrangian モデルと Eulerian-Eulerian モデルを用いた場合の解析結果を図 2.1.12 及び図 2.1.13 に示す。図 2.1.12 においては気相中における初期粒子数が 10 P/cell で、液相中には 0 P/cell、図 2.1.13 においては粒子の濃度が 1 P/cell で、液相中には 0 P/cell として解析を行った。解析結果から、いずれの条件においても気泡から微粒子が除染された後に後流に滞留する挙動が確認できた。



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2020.<sup>18</sup>

図 2.1.12 Eulerian-Lagrangian モデルを用いた解析における粒子解析結果

Figure 2.1.12 Analytical results of particles in analyses using Eulerian-Lagrangian model



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2020.<sup>18</sup>

図 2.1.13 Eulerian-Eulerian モデルを用いた解析における粒子解析結果

Figure 2.1.13 Analytical results of particles in analyses using Eulerian-Eulerian model

気泡の界面におけるエアロゾル濃度場の情報から、エアロゾル粒径ごとの物質輸送係数のモデルを開発した。以下に開発したモデルに組み込まれている物質輸送係数の定義式を示す。

$$-k_d(t)(C_\Gamma - C_\infty) = \frac{\dot{n}}{A} \dots \dots \dots (2.1.9)$$

ここで、 $C_\Gamma$  は界面におけるエアロゾル濃度、 $C_\infty$  は遠方場におけるエアロゾル濃度であり、 $n$  は界面における質量流束を示す。本研究においては界面における流束は以下のように定義する。

$$j \cdot n|_\Gamma = \left[ C_{d, int} (v_i - u) \cdot \vec{n} + \frac{D_d(C_d - C_{d, int})}{h} \right] \cdot \Delta A \dots \dots \dots (2.1.10)$$

このことから、物質輸送係数  $k_d$  は以下のように求められる。

$$k_d = \sum -j \cdot n|_\Gamma / \sum C_\Gamma dA \dots \dots \dots (2.1.11)$$

本解析から得られたエアロゾル粒径ごとの物質輸送係数の時間推移を図 2.1.14(a)に示す。解析結果から、物質輸送係数は気泡が定常に至るまでのごく短い時間で急速に上昇するものの、実空間スケールで数 10 mm 程度上昇して以降は一定の値に収束することが分かった。以上の結果から、実験結果との比較を実施する上では、エアロゾル粒径ごとの物質移動係数が一定値に収束した値を用いることが望ましいと考えられる。

物質輸送解析の結果を基に DF の解析を実施することとした。仮に、界面におけるエアロゾル濃度  $C_\Gamma$  が任意の時間における気泡内のエアロゾル濃度  $C(t)$  と等しいと考えると、式(2.1.10)は以下のように変形できる。

$$C(t) = C_0 \exp(-\int A k_d / V_B dt) \dots \dots \dots (2.1.12)$$

ここで、 $C_0$  は気泡内におけるエアロゾル濃度の初期値、 $V_B$  は気泡体積である。DF はある位置におけるエアロゾル濃度と、初期エアロゾル濃度の比であるため、以下のように表される。

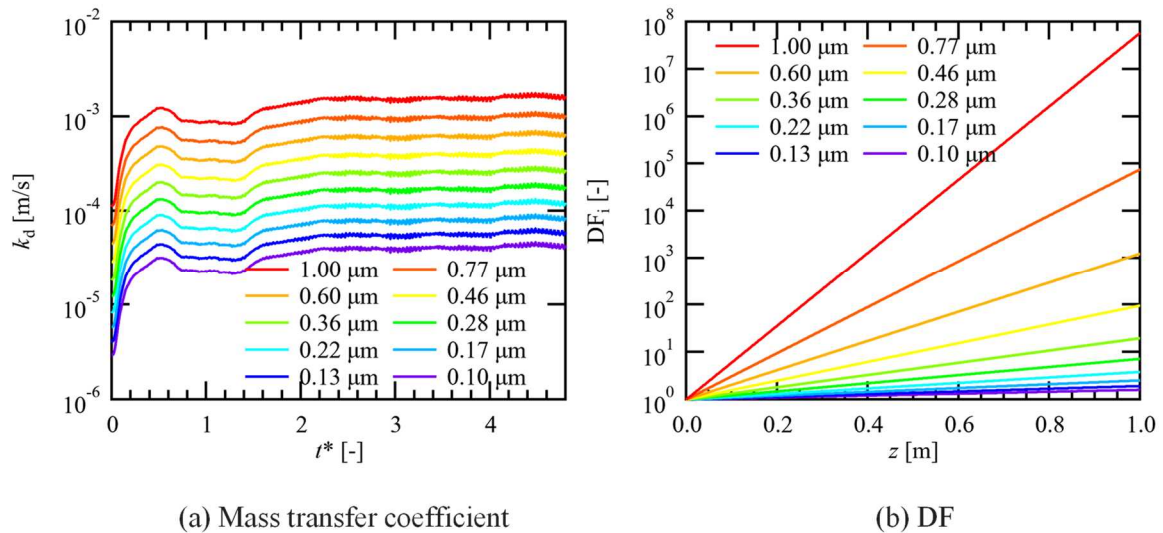
$$DF_i = \frac{C_0}{C(t)} = \exp(\int k_d(t) A(t) / V_B dt) \dots \dots \dots (2.1.13)$$

ここでさらに、 $k_d$  は十分に時間が経過した場所では一定値に収束することから、DF は以下のように表される。

$$DF_i = \exp(\overline{A k_d} / V_B t) \dots \dots \dots (2.1.14)$$

実際に、各粒径において DF を解析した結果を図 2.1.14(b)に示す。解析結果から、図 2.1.8 でも見られた DF の粒径依存性が確認できた。





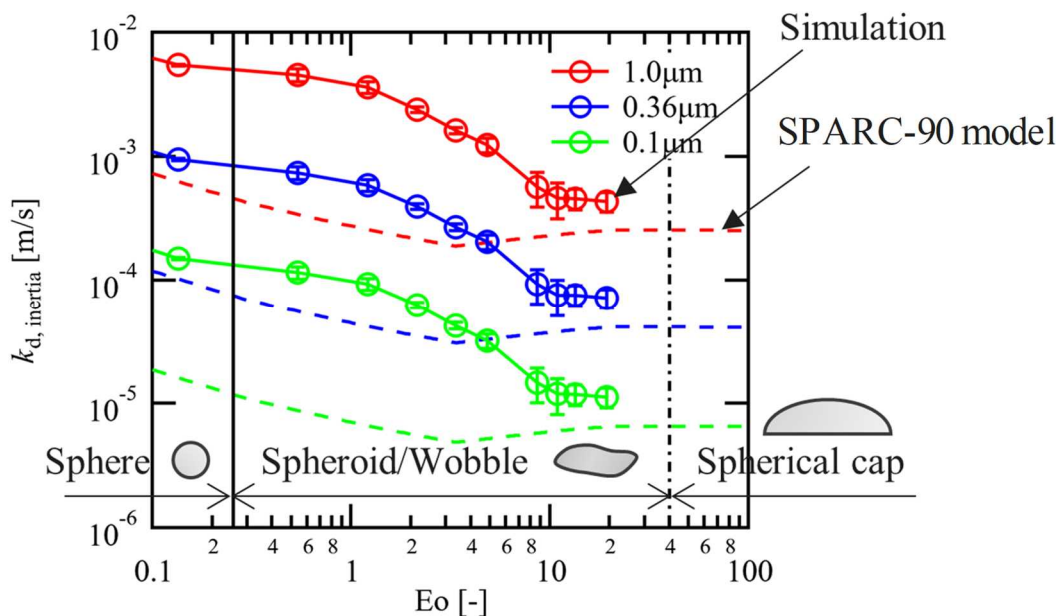
出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2021.<sup>19</sup>

図 2.1.14 物質輸送解析結果

Figure 2.1.14 Calculated results of material transport analyses

#### (4) CFD 解析結果に基づく改良 SPARC-90 モデルの提案

実際の気泡流で想定される  $d_B = 1.0 \text{ mm} \sim 12.0 \text{ mm}$  にかけての 10 条件の気泡に対して上記のモデルを用いて CFD 解析を実施し、気泡径が物質輸送係数  $k_d$  に与える影響を評価するとともに SPARC-90 のモデルによる評価結果と比較した。CFD 解析結果と SPARC-90 モデルにおける物質輸送係数をプロットした結果を図 2.1.17 に示す。物質輸送係数についてプロットで示される CFD 解析結果と点線で示される SPARC-90 モデルを比較すると、SPARC-90 モデルは、全気泡径、粒径の範囲で CFD 解析結果を下回る傾向が確認された。加えて、CFD 解析結果はエアロゾル粒径と気泡径の両方に対して強い相関が見られた。SPARC-90 モデルは、エアロゾル粒径に対しては CFD 解析と同様に相関が見られた一方で、気泡径については強い相関が見られなかった。そのため、CFD 解析結果コードに基づく SPARC-90 モデルの改良の必要性が示された。



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」, 2021.<sup>19</sup>

図 2.1.15 気泡径ごとの物質輸送解析結果と、SPARC-90 解析結果の比較

Figure 2.1.15 Comparison between calculated results of material transport analyses and those of SPARC-90 analyses for each bubble diameter

これまでの研究<sup>18, 19</sup>で示したように、SPARC-90 モデルと実現象の乖離要因として、内部流動と気泡形状の二つが挙げられる。そこで、初めに気泡の界面形状について CFD 解析コードによる解析結果を基に評価を行った。図 2.1.16 に解析結果から得られた気泡アスペクト比と SPARC-90 モデルによるアスペクト比を比較した結果を示す。解析結果は SPARC-90 モデルを全体的に大きく上回る傾向が得られた。この気泡形状の差異が物質輸送に与える影響を調べるため、CFD 解析結果から得られたアスペクト比を、Re 数と Eo 数の関数として以下のように定式化した。

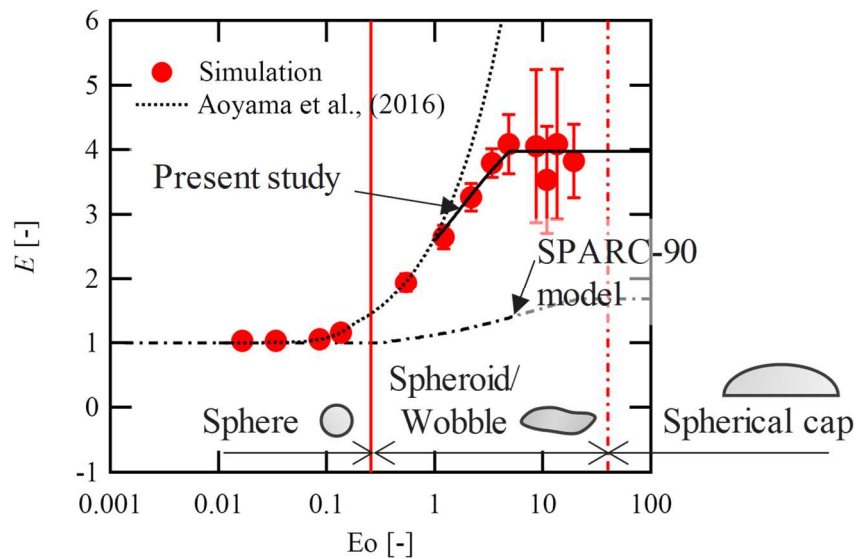
$$\begin{aligned}
 E &= \{1 + 0.016(Eo^{1.12} Re)\}^{0.388} \text{ for } Eo \leq 0 \\
 E &= \{1 + 1.59391/Eo\}^{Eo} \text{ for } 1.0 < Eo \leq 5.0 \dots \dots \dots (2.1.15) \\
 E &= 3.98 \text{ for } Eo > 5.0
 \end{aligned}$$

加えて、定式化したモデルを用いて SPARC-90 モデルで想定される気泡の物質輸送係数について、アスペクト比が関係する界面速度  $v_s$ 、地心緯度  $\beta$  及び表面積  $A$  を補正し、以下のように改良 SPARC-90 モデルを定義する。

$$k_{d, inertia} = \frac{v_{g, i}}{g} \left( \frac{v_s^2(a, b)}{\gamma_c} \right) - v_{g, i} \cos \beta(E) \dots \dots \dots (2.1.16)$$

$$DF_{BB, i} = \exp\left(\frac{\Delta t}{V_B} \int_{A(a, b)} (k_{d, inertia} + v_{D, i}) dA(a, b)\right) \cdots \cdots \quad (2.1.17)$$

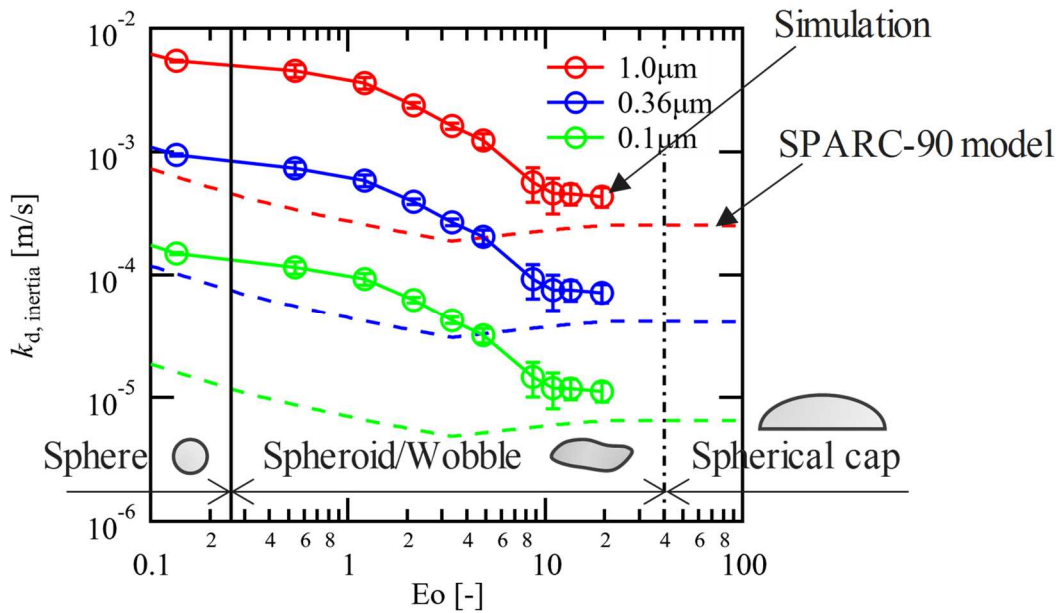
改良 SPARC-90 モデルと CFD 解析結果による解析結果を図 2.1.17 に示す。Eo > 10 においては改良 SPARC-90 モデルと CFD 解析結果は良好に一致した。一方で、Eo < 10 については依然改良 SPARC-90 モデルは、CFD 解析結果を大幅に下回る傾向が得られた。



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2021.<sup>19</sup>

図 2.1.16 気泡径をパラメータとした気泡形状の評価

Figure 2.1.16 Evaluation of bubble shape with bubble diameter as a parameter



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」、2021.<sup>19</sup>

図 2.1.17 気泡径ごとの物質輸送解析結果と改良 SPARC-90 解析結果の比較

Figure 2.1.17 Comparison between calculated results of material transport analyses and those of SPARC-90 analyses for each bubble diameter

#### (5) 改良 SPARC-90 モデルの課題の抽出

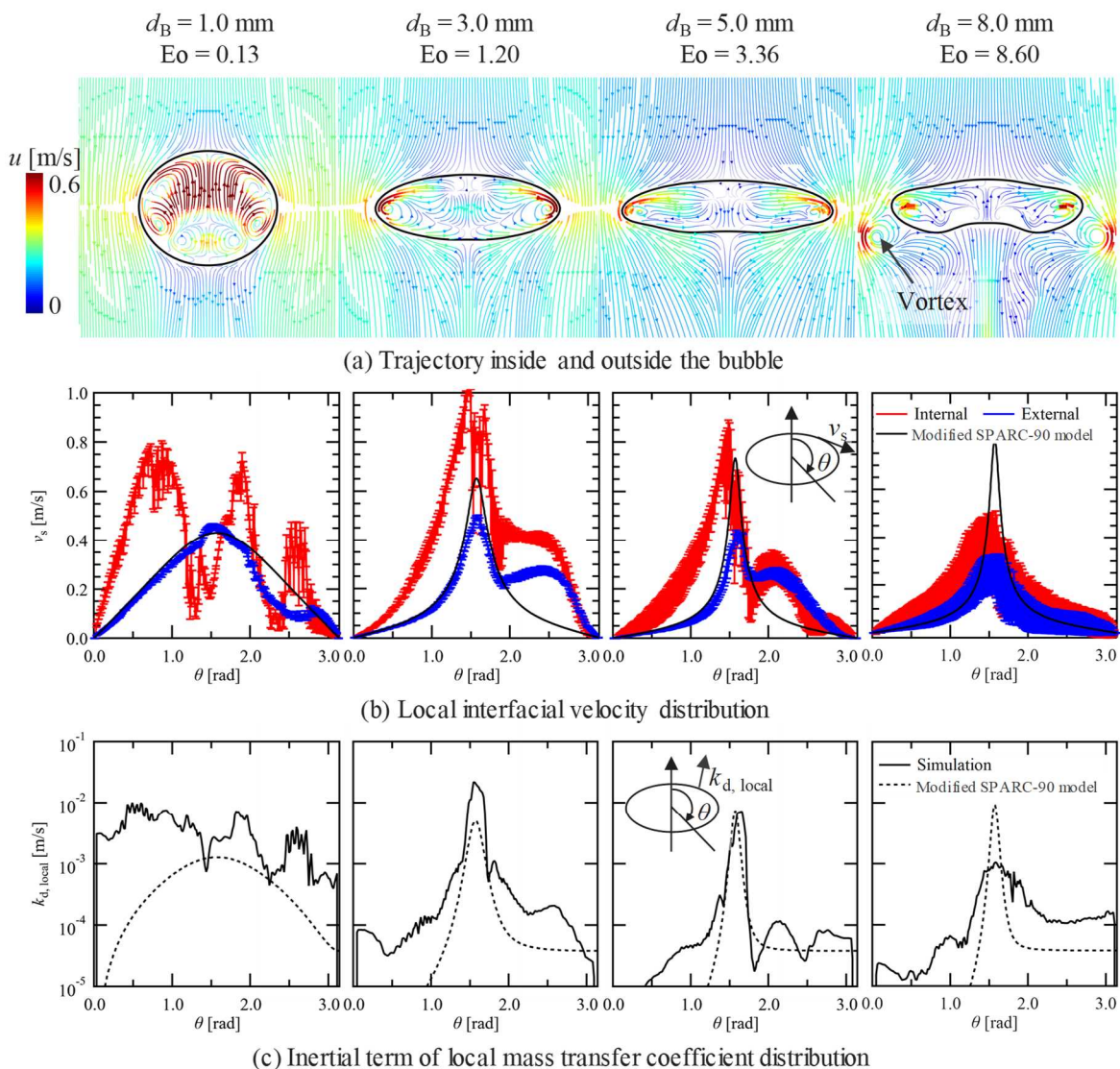
以上の結果を踏まえて、改良 SPARC-90 モデルと実現象のもう一つの乖離要因を評価するため、上記の CFD 解析結果のうち、代表的な気泡径に対して、気泡中心断面における内部流動場の流跡線をプロットした結果を図 2.1.18 (a)に示す。CFD 解析結果から、小気泡においては MELCOR が想定するトロイダル渦構造が確認できた一方で、気泡径が増大するとともに渦構造が見られなくなり、最終的には気泡端部から渦が放出されることで、気泡変形が支配的となる様子が確認された。

続いて、図 2.1.18 (b)では気泡界面における接線方向流速に着目し、気泡内気相側の速度、液相側の速度を SPARC-90 モデルで想定されるトロイダル渦構造を前提とした界面速度と比較した。改良 SPARC-90 は、小気泡では 5.0 mm より小さい気泡では気泡外部で CFD 解析結果とよい一致を示した。一方で、気泡内部は気泡径が小さくなるに従って速度はより大きく、 $d_B = 1.0$  mm に至っては定性的にも大きく異なる速度場が得られた。また、界面変形が卓越する  $d_B = 8.0$  mm においては気泡変形によって、改良 SPARC-90 は CFD 解析における気泡長辺付近の速度場が下回る傾向が得られた。

最後に、気泡界面における局所物質輸送係数の CFD 解析結果と改良 SPARC-90 モデルを比較した結果を図 2.1.18(c)に示す。物質輸送係数について、 $d_B = 3.0$ 、 $5.0$  mm では、改良 SPARC-90 モデルと CFD 解析結果が良好に一致した。一方、 $d_B = 1.0$  mm において改良

SPARC-90 モデルは気泡全体で CFD 解析結果を過大評価する傾向が確認された。最後に、 $d_B = 8.0 \text{ mm}$  では気泡の長辺では改良 SPARC-90 モデルを下回ったものの、気泡下部では揺動により、改良 SPARC-90 モデルを上回る物質輸送係数が見られた。これにより、 $Eo > 10$  では CFD 解析と改良 SPARC-90 モデルが良好に一致したと考えられる。

以上を踏まえて、改良 SPARC-90 モデルが気泡形状を考慮してもなお CFD 解析結果を過小評価する原因として、改良 SPARC-90 モデルは気泡内外における流動の不連続性及び界面揺動により、単一気泡でエアロゾル輸送の促進や抑制が行われる現象を考慮できていないためであることが示された。



出典) 国立大学法人筑波大学、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業に関する報告書」, 2021.<sup>19</sup>

図 2.1.18 気泡径ごとの物質輸送解析の詳細評価

Figure 2.1.18 Derailed evaluation of material transport analyses for each bubble diameter

#### 2.1.4 中規模実験

中規模実験では、大規模積分実験で得られた DF のプール水温への依存性の結果について、異なるスケールで確認することを目的とし、JAEA への委託事業により、プールスクラビング実験装置 PONTUS を用いた実験を実施した<sup>28,29</sup>。また、不確かさが大きいとして抽出された現象<sup>30,31,32,33</sup> と国際共通認識されている重要度の高い課題を踏まえて、JAEA が実施した高速ガスジェット注入時のスクラビング効果の検討についても示す。

プールスクラビング実験装置 PONTUS の模式図を図 2.1.19 に示す。PONTUS は 3 種類の内径 (0.2、0.5、1 m)、長さ 0.5 m 又は 1 m の同内径 SUS 製パイプを高さ方向に組み立てることによって構築される。エアロゾル発生器では、粒子保存容器に装填される実験粒子がピストンで連続的に供給され、回転ブラシとガス流によって分散されてエアロゾルとなる。発生したエアロゾルは、内径 10 mm の注入ノズルから実験部に注入され、実験部通過後に大気に放出される。実験では、実験部入口と出口の粒子数濃度をエアロゾルスペクトロメータ (WELAS) で計測し、DF を評価した。

##### (1) DF のプール水温依存性

前プロジェクトでは、PONTUS を用いて、30 °C (常温)、50 °C 及び 75 °C の三つのプール水温に対して DF のプール水温依存性 (プール水温の上昇に伴う DF の増加) を明らかにした<sup>33</sup>。除染に対するプール水温の依存性は、東京電力福島第一原子力発電所の事故調査においても注目されているところであるが<sup>34</sup>、既往研究では、この依存性は測定結果や測定結果に対する物理機構の説明が明確に整理されていない。

本プロジェクトでは、まず本実験装置における DF 計測の誤差要因を検討するための実験を実施した。これまでの検討の結果、本実験装置では環境温度 (常温) に対してプール水温が高い場合に、プール水面から上部の空間で粒子周りに凝縮が発生して大きな計測誤差が生じる可能性があることが分かっている。プール水より下流を含む実験部容器が十分に加熱されない場合、プール水面上のガスが温度低下して過冷却となり、エアロゾル粒子が凝縮核となって粒子表面に結露が生じる。その結果、エアロゾル粒子が成長して重くなり水面に沈降しやすくなり、上向き搬送ガスによって上部出口サンプリングに一部の粒子が輸送されず、計測上 DF が増加した可能性がある。そこで、前プロジェクトでの実験の境界条件を再度設定して (図 2.1.20 左図)、プール上部空間のガス温度を計測した。プール水面上のガス温度の計測結果は、水温が 50 °C と 75 °C のいずれの場合においても水温より 3、4 °C 低かった。このわずかな温度低下は凝縮による粒子成長を考える上で無視できず、ガスが水面上実験部内約 0.4 m 高さの区間を通過するよりも短い時間に、粒子は実験部断面平均ガス上昇速度 (上向き粒子輸送速度) 0.01 m/s よりも大きな (下向き) 重力沈降速度を持つ粒子径 13 mm から 16 mm まで成長できると試算される。そこで、本研究では、プール水面上ガスを過熱状態にして表面結露による粒子径成長を防ぐために、シースヒーターで加熱可能な高温傘構造ガス収集機構を水面上に導入し、装置改良を実施した (図

2.1.20 右図)。また、断面積が広い実験部の水面上空間でガス速度が低下することも、粒子の搬送不足により計測上 DF の増加を助長する一因と考えられるため、水面上空間を小さくできるよう傘構造下端を水面近傍に設けられるようにした。

つぎに、改良後の装置を用いて、プール水温に対する DF の依存性の調査実験を再度実施した。図 2.1.20 に示すように、高温傘構造ガス収集機構（120 °C設定）と出口サンプリングパイプまでの下流側エアロゾル助走部（120 °C設定）を除き、他の実験条件は装置改良前の実験と同じに設定した。具体的には、内径 0.5 m、全高 2 m の実験部に 1.6 m のプール水深を設け、実験部底部中心にある内径 10 mm の注入ノズルから、0.5 mm の単分散 SiO<sub>2</sub> 粒子（実験粒子）を含む空気を実験部底部から上向きにプール水に注入した。注入ガス流量は 80 L/min（We 数 $\approx 5 \times 10^1$ ）一定に固定し、注入ガス温度はプール水温と等しく設定し、30 °C（常温）、50 °C、75 °C 程度の三つの水温条件で実験を行った。ここで、 $We = \rho_g v_g^2 d_{nozzle} / \sigma$  で定義され、 $\rho_g$ 、 $v_g$ 、 $d_{nozzle}$ 、 $\sigma$  はそれぞれガス密度、注入ガス速度、注入ノズル径、表面張力である。各水温において、実験部入口・出口のエアロゾル粒子数濃度を WELAS で計測し DF を評価した。図 2.1.21 に示すように、改良後装置において実施した実験（「本事業（令和 2 年度）1 回目」及び「本事業（令和 2 年度）2 回目」）では、DF は水温に依らずほぼ同じであった。これらの結果から、改良前装置で実施した実験（「前事業（平成 31 年度）」<sup>33</sup> で取得したプール水温に対する DF の依存性は、水温が高い条件において水面上装置の加熱不足によるプール水面上ガスの温度低下、表面結露した粒子の一部が沈降して上部出口サンプリングまで輸送されないことに起因する計測上の DF 増加であることが示された。これを踏まえて、以降の実験は改良後の装置で実施した。

## (2) DF プール水温依存性に関する追加実験

DF に対する水温依存性が現れる条件を調査する目的で、二つの追加実験を実施した。まず、気泡内の熱・物質バランスの非平衡に伴って粒子表面結露、粒子径成長が生じることで DF が変化する可能性を考慮し、注入ガス温度をプール水温と異なる熱的非平衡条件を設定した水温依存性調査実験を実施した。プール水温 30 °C の条件に対して注入ガス温度 50 °C 又は 75 °C とした場合と、水温 75 °C の条件に対して注入ガス温度 30 °C 又は 50 °C とした場合の合計 4 ケース実施した。水温と注入ガス温度を除き、実験粒子、水深、注入ガス組成や流量、実験部ヒーター温度設定等の境界条件は全て前述のプール水・注入ガス同温条件の実験と同じにした。その結果、図 2.1.22 に示すように、注入ガス温度がプール水温と異なる条件でも、DF に対する水温依存性は現れなかった。なお、比較のため、同図にはプール水・注入ガス同温条件の実験結果も示す。

つぎに、注入ガス流量の効果を調査する実験を実施した。本実験装置はプール底面から単一ノズルにより搬送ガスを注入しており、プール内には有意な内部循環が形成され、注入ガスの体積流量によって循環流量やそれに伴う気泡上昇速度が変化する可能性がある。気泡上昇速度・気泡膨張仕事率が変化する場合には、それによって気泡内の温度低下、過

飽和度や粒子結露成長挙動が変化し<sup>35</sup>、DF に影響を与える可能性も考えられる。既往実験で設定したプール水・注入ガス同温条件での注入ガス流量 80 L/min (We 数 $\approx 5 \times 10^1$ ) をベースケースとし、これに対して、注入ガス流量を 135 L/min (We 数 $\approx 1.5 \times 10^2$ ) と 270 L/min (We 数 $\approx 6.1 \times 10^2$ ) にそれぞれ設定して同様な水温依存性調査実験を改良後装置で実施した。遷移臨界 We 数 $\approx 3 \times 10^2$ <sup>36</sup> から判断すると、80 L/min と 135 L/min はグロビュール注入条件であり、270 L/min はジェット注入条件である。注入ガス流量を除き、注入粒子、水深、注入ガスとプール水の温度、実験部ヒーター温度設定等は全て上述の改良後装置におけるプール水・注入ガス同温条件の実験と同じに設定した。その結果、図 2.1.23 に示すように、同じプール水温において、特に注入条件がグロビュールからガスジェットへの遷移に伴って注入ガス流量の増加に伴う顕著な DF の増加が得られたものの、全ての注入ガス流量条件に関して、同じ流量におけるプール水温間の DF の差 (水温依存性) は示されなかった。

DF のプール水温依存性を調査したこれらの実験結果から、前プロジェクトにおいて改良前の実験装置で観測された依存性は、水面上空間ガスの過冷却に伴う粒子成長によって、一部の粒子が上部出口サンプリングまで輸送されないことに起因する計測上の DF 増加であり、装置改良によって計測誤差が低減された結果、DF のプール水温依存性は有意ではないことが示された。

### (3) 高速ガスジェット注入時のスクラビング効果

初期蒸気凝縮を伴わない高速ガスジェット注入条件でも 0.3 m 程度の低水深で 90 % 程度の粒子が除去されることが報告されており<sup>36</sup>、そのスクラビング効果はプールスクラビングにおける支配因子の一つである。注入気体の慣性と水の表面張力の比である We 数が遷移臨界 We 数 (約 300) を超えると、初期注入気泡がグロビュール (低速ガス注入) からジェットへ遷移する。SPARC-90 等の代表的なプールスクラビングの DF 評価コードは、主にグロビュールを対象に構築されており、ガスジェット注入条件に対する評価が困難である。近年、限定的な条件におけるガスジェット注入時のスクラビングモデル<sup>36,37</sup> がいくつか提案されているものの、信頼性が高い実験データベースによる予測精度の妥当性確認や適用条件の拡張等のモデル高度化は未だ重要度の高い最新の研究トピックとして共通認識されている。これらを踏まえ、ガスジェット注入時の DF 計測実験を実施し、これを用いて式 (2.1.18) で示される DF 相関式<sup>36</sup> の妥当性を確認した。

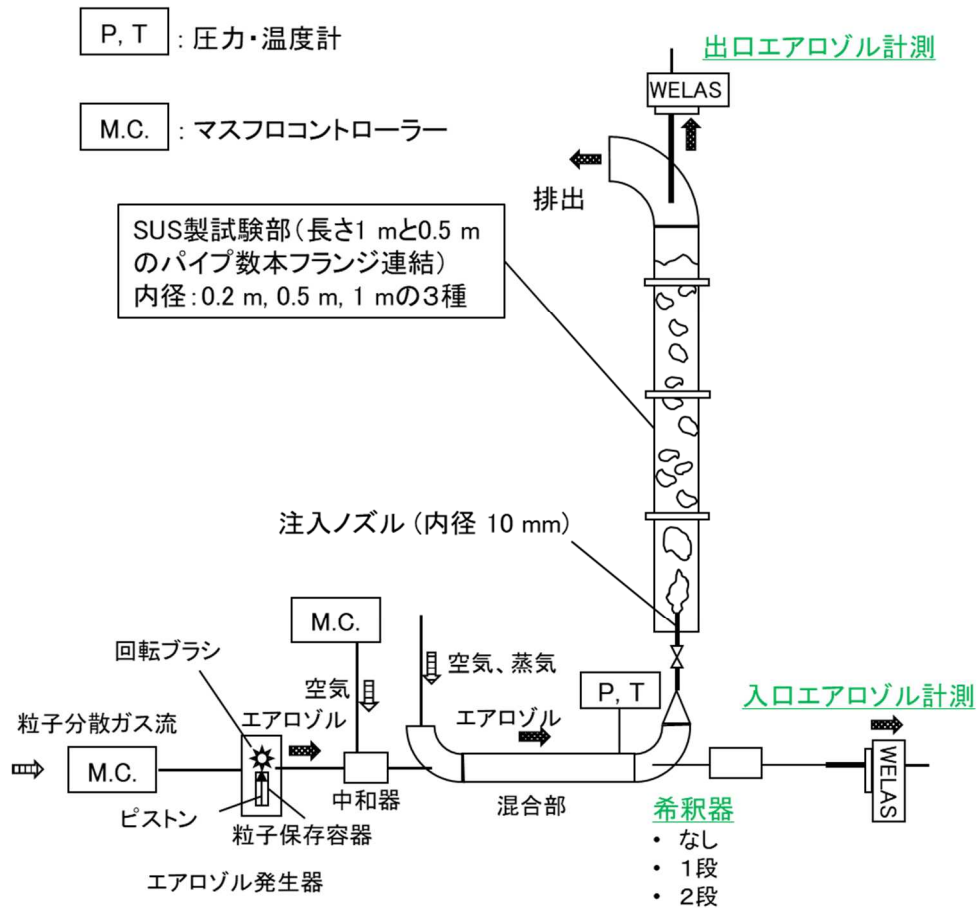
$$DF = \left( 1 - \frac{0.98}{1 + 1.0847 \exp(-1.0528 \times 10^8 St^{3.7885} - 0.7257S)} \right)^{-1} \dots \dots \dots (2.1.18)$$

ここで、St と S はそれぞれ注入粒子のストークス数とプールに対する注入ガスの飽和度 (S > 0 で凝縮条件) である。

実験は、図 2.1.24 に示すように、内径 1.0 m、全高 1.5 m の実験部で実施した。エアロゾルは、実験部側面に設置した内径 10 mm の注入ノズルから、横向きにプール水に注入され、初期ガスジェットから分裂した気泡が上昇する過程のスクラビング効果を極力排除するた



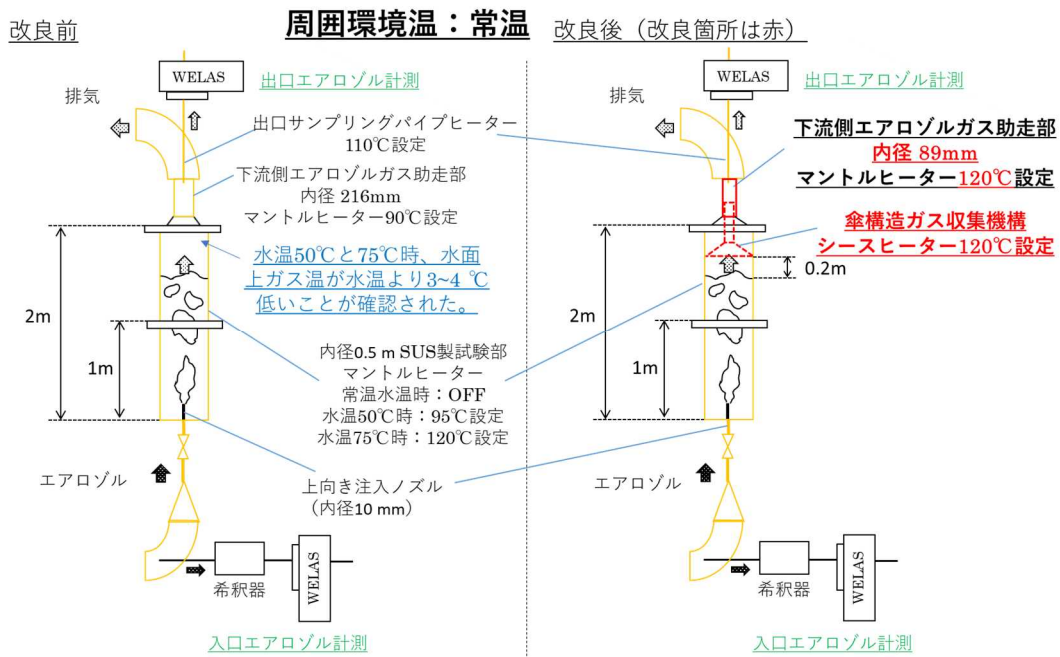
めに、水深(注入ノズルから水面までの距離)は浅い0.3 mに設定した。実験は、常温(15℃~25℃)のプール水温で実施され、注入ガス(空気)温度はプール水温とほぼ同じとした。プール水面上空間の温度低下を防ぐために、傘構造ガス収集機構を含む水面上部配管は加熱され、傘構造ガス収集機構の下端はプール水面から0.05 m上に設置した。粒子径が0.5 μmと1.0 μmの2種類の単分散SiO<sub>2</sub>粒子に対して、注入ガス流量を300, 450, 600, 750 L/min (We数 $\approx 6.5 \times 10^2, 1.5 \times 10^3, 2.6 \times 10^3, 4.1 \times 10^3$ に相当)に変え、各ガスジェット注入条件におけるDFをWELASの粒子計測に基づいて評価した。本実験では、We数の定義式における流体の密度や表面張力、代表長さはケースごとに変化しないため、We数は注入ガス流量によって決定する。図 2.1.25 に DF の実験結果及び比較のために注入ガスが蒸気をほぼ含まない乾燥空気条件であることを考慮して  $S \approx 0$  として予測した DF を示す。実験結果から、各粒子に対して、We 数(注入ガス速度)の増加に伴って DF は単調増加し、特に1.0 μm 粒子の DF 増加が顕著で、最高で  $DF > 100$  と高いスクラビング効果が観測された。DF の増加傾向の要因として、注入ガス速度の増加に伴う気液界面への粒子の慣性衝突確率の増加が考えられる。一方、相関式で予測した DF は、ほぼ全ての実験条件で相関式の DF 上限値  $50 (= (1 - 0.98)^{-1})$  に漸近し、実験結果と大きく乖離した。特に0.5 μm 粒子に対する予測精度が低く、1.0 μm 粒子を用いた実験結果で構築された相関式<sup>36</sup>の他の粒子径への適用性が課題として示された。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「平成 28 年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」, 2017.<sup>30</sup>

図 2.1.19 プールスクラビング実験装置 PONTUS の模式図

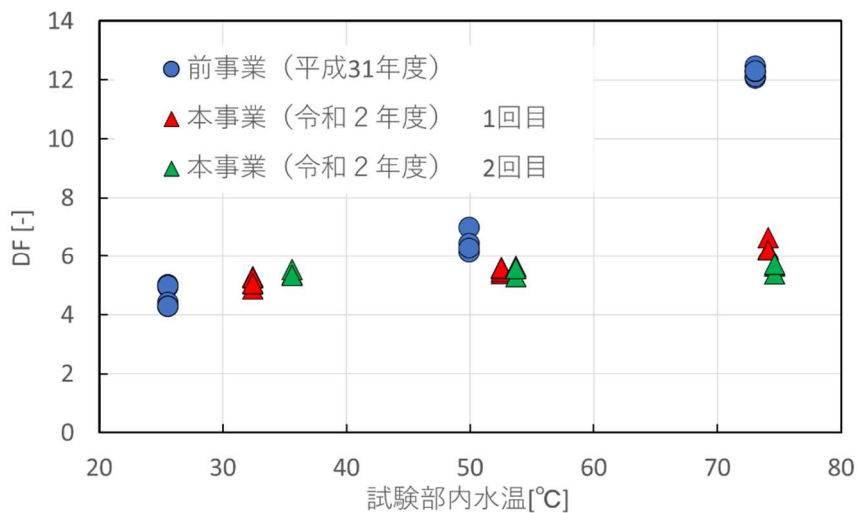
Figure 2.1.19 Schematic view of pool scrubbing experiment facility PONTUS



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 年度度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査）事業に関する報告書」、2022.<sup>29</sup>

図 2.1.20 改良前と改良後の水温依存性調査実験装置

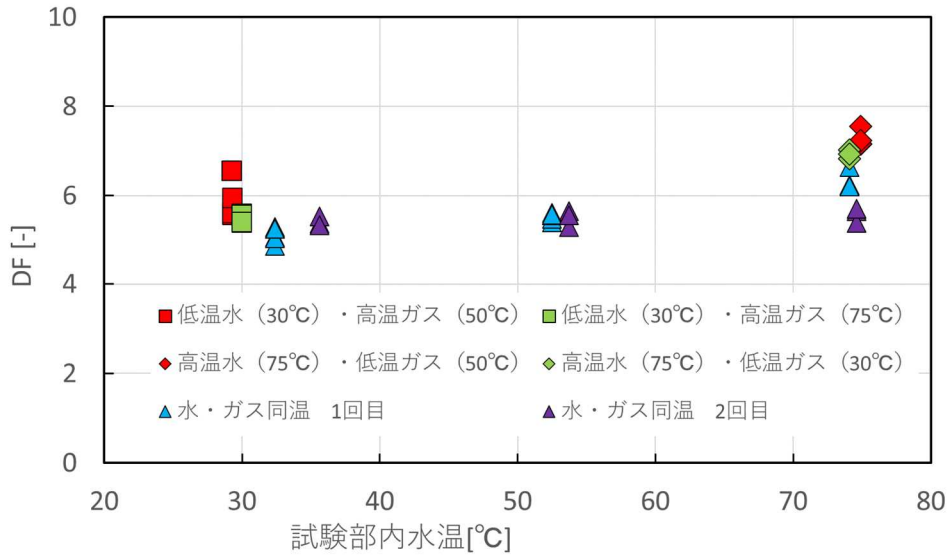
Figure 2.1.20 Experimental facility of water temperature dependency investigation before and after improvement



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査事業）に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

図 2.1.21 水温と同じガス温度条件における水温依存性調査実験の結果

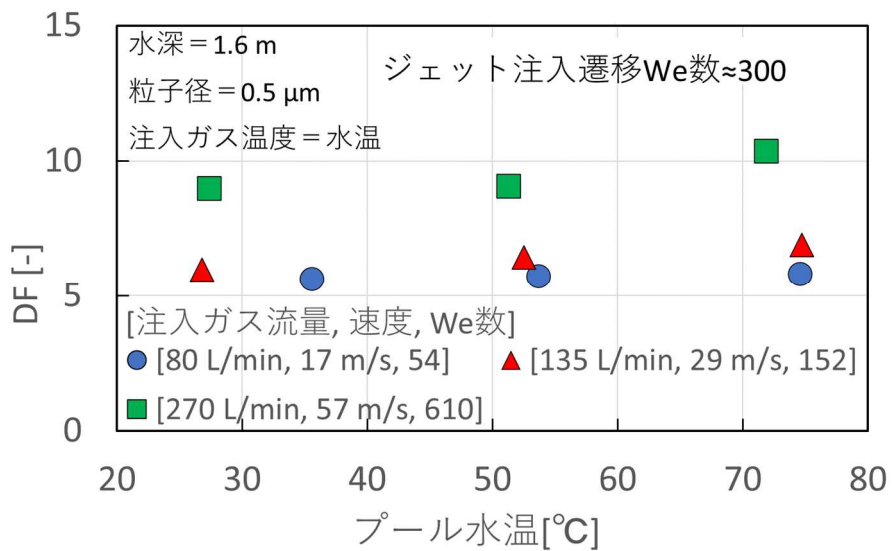
Figure 2.1.21 Experimental results of water temperature dependency investigation under the same gas temperature conditions as the water temperature



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和2年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

図 2.1.22 水温とガス温度が異なる条件における水温依存性調査実験の結果

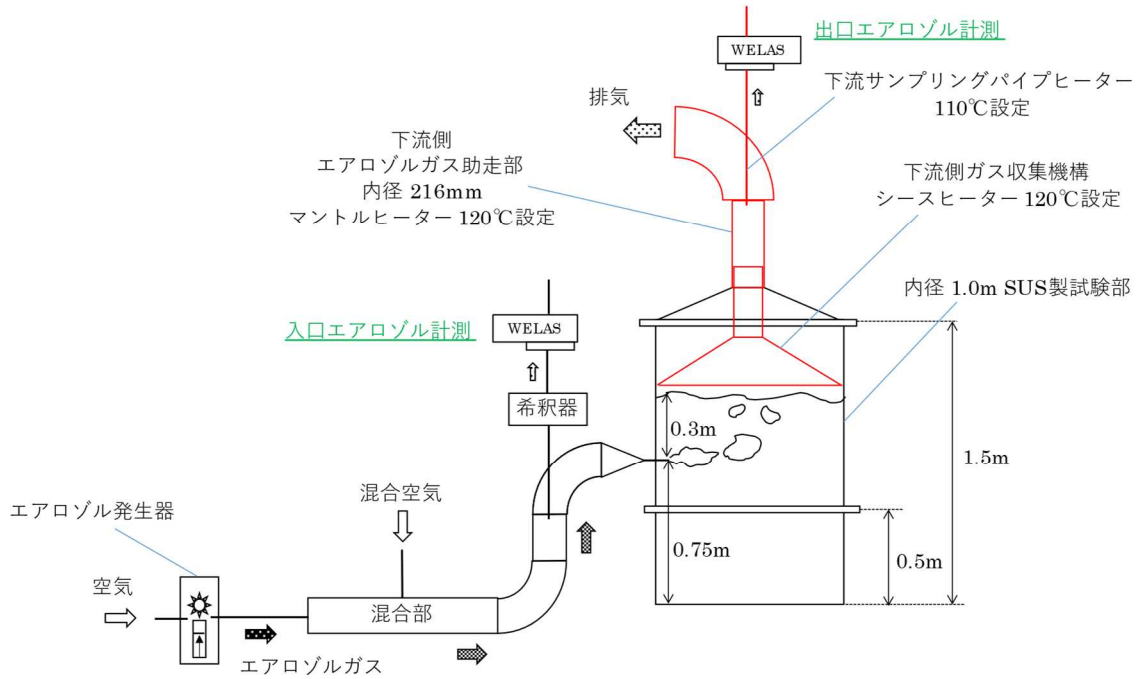
Figure 2.1.22 Experimental results of water temperature dependency investigation under the different gas temperature conditions with the water temperature



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」、2022.<sup>29</sup>

図 2.1.23 注入ガス流量が異なる条件における水温依存性調査実験の結果

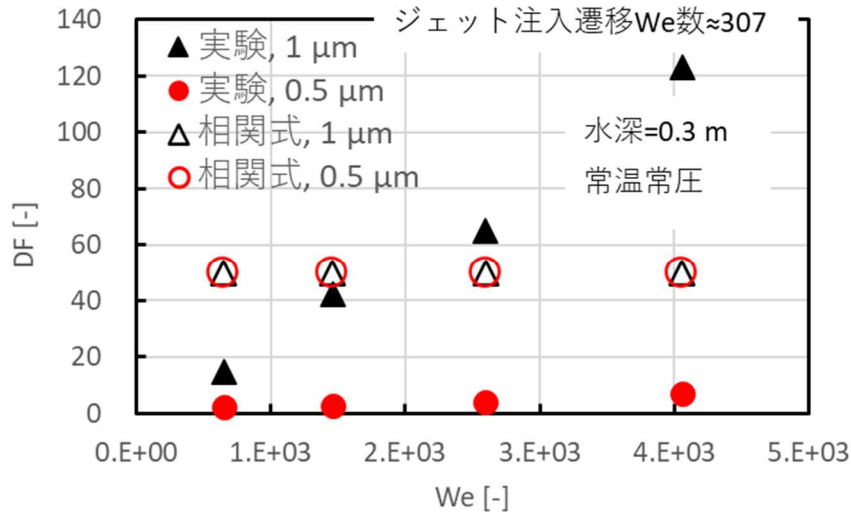
Figure 2.1.23 Experimental results of water temperature dependency investigation under the conditions with the different injection gas flow rate



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」, 2022.<sup>29</sup>

図 2.1.24 ガスジェットスクラビング実験装置

Figure 2.1.24 Gas jet scrubbing experimental facility



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構「令和3年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」2022.<sup>29</sup>

図 2.1.25 ガスジェットスクラビング実験に関する実験結果と相関式の予測結果の比較

Figure 2.1.25 Comparison of the experimental results with predictive results of correlation on gas jet scrubbing experiments

### 2.1.5 まとめ

前プロジェクトでは、減圧時の DF が定圧時とほぼ同等であることや DF のプール水温依存性が示されたことから、本プロジェクトではこれらを詳細に評価するための小規模及び中規模実験を実施した。以下に本プロジェクトにおけるプールスクラビング実験について得られた結果をまとめる<sup>18, 19, 28, 29</sup>。

小規模実験では、プールスクラビングについて個別効果試験を行うことでモデルの改良の検討を行った。気泡流における DF の計測結果から、MELCOR が概して DF を過小評価しているという傾向が得られた<sup>18, 19</sup>。この結果は、MELCOR のプールスクラビングモデルが実条件に対して保守的であるという既存の解析結果と整合するものであった。一方で、WMS を用いた気液二相流の解析結果からは、SPARC-90 モデルが気液界面積を過大評価しているという結果が得られた。この結果から SPARC-90 モデルが気泡の分裂を過小に評価している結果につながり、それ単体で見るとむしろ実現象を過大に評価しかねない事象である。この相反する結果がなぜ得られたかを評価するため、気泡流を構成する個々の単一気泡に着目し、気泡の持つ物質輸送係数を実験及び CFD 解析を用いて評価した。その結果、実現象では、気泡の増大に伴う界面形状の増大や変形、気泡内外における流動の不連続性により、単一気泡でエアロゾル輸送の促進や抑制が行われるものの、SPARC-90 モデルではこれらの現象をモデル化していない。そのため、SPARC-90 モデルは単一気泡の持つ物質輸送係数を大幅に過小評価することが示された。以上の解析結果から、MELCOR が実現象の DF を保守的に評価している要因は、気泡分裂の過大評価と、単一気泡からのエアロゾル輸送の過小評価の重畳によるものだということが確認できた。今後、これらの物理現象の影響を SPARC-90 モデルに組み込むことが必要であることが示された。

中規模実験では、前プロジェクトの大規模実験で確認された DF のプール水温依存性の要因を詳細に確認するための実験を行い、プール水温度と搬送気体の温度を基本パラメータとして、さらに搬送気体の注入流量や水蒸気濃度も変更し、プール水温を中心とした気泡ダイナミクスや粒子挙動に影響を与える各要素の DF への依存性を調査した<sup>28, 29</sup>。その結果、既往研究の知見として知られていた入口部での蒸気凝縮効果やプール水面上での粒子周りの凝縮の影響を除外すれば、現時点までにプール水温の DF への影響は小さいことが示された。

原子力規制庁は、令和 4 年度に粒子の親水/疎水性状の違いや入口部で蒸気凝縮が無い条件での水温効果の実験を追加で行うことで実験データを拡充することを計画している。また、前プロジェクトの大規模実験で確認された DF が減圧時と定圧時とほぼ同等であることや DF のプール水温依存性等の実験結果と上記の小規模及び中規模試験において得られた実験結果を統合し包括的に SPARC-90 の改良を行う方針である。なお、本報告書では詳細に記載しないが、格納容器スプレイによる放射性物質除去効果についても JAEA に委託してスプレイスクラビング実験により知見の拡充を行った。

## 2.2 ソースターム実験

### 2.2.1 知見の調査及び実験範囲の検討

SAにおけるソースターム(環境中に放出されるFPの量や化学形、放出のタイミング等)情報は、SAの影響評価、レベル2PRA、レベル3PRA、緊急時防護対策の検討等において不可欠な情報である。このソースタームの評価では、原子炉冷却系内や格納容器内における炉心溶融進展、熱水力挙動及び燃料からのFP放出とその後の移行挙動を考慮する必要があり、一般にそれらをモデル化した数値解析コード(SA総合解析コード)を用いる。SA総合解析コードを利用したソースターム情報の活用には、主な現象間の競合や未解明の現象(特に化学反応)のモデル欠如等からくる不確かさを含有するため、それらの不確かさを踏まえた評価を行うとともにその低減を図ることが重要である。図2.2.1は事故進展に伴い、FPが発生源から環境に移行するまでにソースタームに影響を与える現象を図示し、それらを解明するために国内外で実施された又は実施中の実験との対応を示したものである。また、これらの現象を評価するためにMELCORに実装されているモデルも図中に記載した<sup>14-17, 38-46</sup>。

燃料棒内の燃料ペレット内においてFPは核分裂により発生し、燃料ペレットと被覆管の間の空間(ギャップ)に放出される。通常運転時には燃料ペレット及び被覆管のギャップを含む燃料棒内にてFPは保持されているが、事故時に燃料被覆管が破損するとギャップに滞留していた気体状のFPはただちに圧力容器内に放出される。また、被覆管の破損により露出した燃料ペレットは接する雰囲気や燃料温度に依存した時間スケールにおいてFPを放出する。MELCORによる現状のプラント解析では、ペレット結晶粒内拡散をベースとするモデルにより燃料からのFP放出を模擬している。

燃料から圧力容器内へ放出したFPは、FP同士や原子炉構造材との相互作用を経て、気体状のものと粒子状(エアロゾル)のものに大別される。気体状FPの代表例は希ガスのキセノン及び分子状ヨウ素である。また、ヨウ化メチルをはじめとする低分子有機ヨウ素も本技術報告書では気体状FPとして扱う。希ガスについては化学的活性が低く原子力施設内での保持効果が小さいため格納容器が破損した場合にはほぼ全量が環境へ放出される。分子状ヨウ素は化学的活性が高いため、水を接することにより水に溶解し、pH条件が管理されれば水中に保持される。一方で、ヨウ化メチルのような揮発性物質となった場合には保持されにくくなる。

大部分のFPは他のFPや水酸基等と結び付き原子力施設内でエアロゾル粒子化として振る舞うと考えられる。粒子状FPは、環境へ放出されるまでの間に重力沈降や拡散泳動等の物理的除去過程の影響を受け、さらに水中を通過する場合にはスクラビング及び格納容器スプレイや冷却系等の安全設備による水蒸気凝縮によって気相から液相へ移行することにより、かなりの量がプラント内に保持される。さらに、ヨウ素及びセシウムを含む化合物(CsI、CsOH)や分子上ヨウ素はステンレスやインコネル表見に化学吸着を経て保持される。また、これらにより保持されたエアロゾルは安定して保持され続けるとは限らない。

例えば、物理的除去過程により構造表面に沈着したある程度大きなエアロゾル粒子は、系内の気流場によって再度霧困気中に巻き上げられる（再浮遊）可能性があり、また、同伴する水分を失ったエアロゾルは霧困気中の飽和濃度の変化により再蒸発する可能性がある。プールスクラビング等で水中に移行した水溶性のヨウ素は、pH、水温、圧力等の変化によっては再度揮発する可能性がある。さらに、スクラビング時の気泡内にあるエアロゾルが水面に上昇し気泡内で十分に水中に移行しなかった場合、気泡が割れた際に液滴として気相に放出される可能性もある。

上述の通り、再移行を伴う様々な沈着・除去挙動は、エアロゾル粒子サイズのみならず相変化や化学形態によって異なり、そこには多数の物理化学現象が含まれる。SA 総合解析コードではこれらのモデルを完全に扱うことは困難であるため、過去にフランスで実施された PHEBUS-FP 計画の実験のように、重要な現象に関する個別効果実験に基づいて個々のモデルを確認し、十分な数の現象を含む積分効果実験に基づいたモデル及びモデルパラメータの組みあわせの妥当性を確認するというアプローチにより、ソースターム評価の不確かさが評価されている。



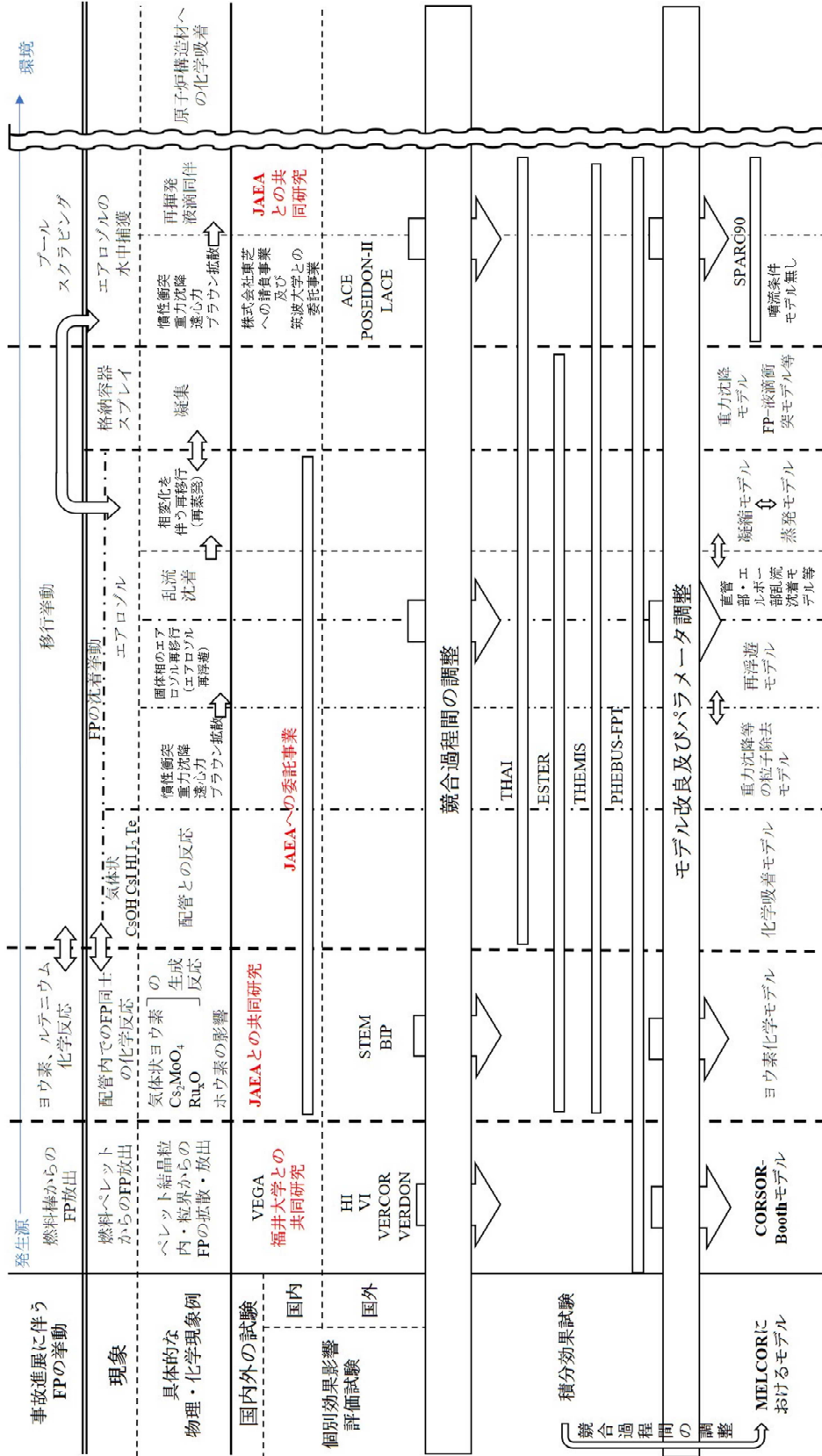


図 2.2.1 ソースタームの現象とそれに対応する国際実験及びモデルの整理

Figure 2.2.1 Phenomenon of source term and arrangement of corresponding international experiments and models

## 2.2.2 研究の進め方

従来の個別効果実験の積み重ねでは予測できなかった現象が、実機プラントにおける事故後の分析や積分効果実験において観察されている。例えば PHEBUS-FP 計画の試験及びその解析等では、 $B_4C$  制御棒を供することで燃料単体から放出される気体状ヨウ素の発生量が多くなる、 $Cs_2MoO_4$  や有機ヨウ素の生成が示唆される<sup>7, 47</sup>等の結果が得られた。これらの現象は環境に放出されるセシウム-137 やヨウ素-131 の量に関わってくることから、これらの詳細な生成機構や生成割合について十分な知見を得られていないことも、ソースターム評価における不確実さを拡大させる要因となっている。

OECD/NEA の WGAMA が 2019 年 1 月に開催したソースタームワークショップでは、東京電力福島第一原子力発電所事故の分析から得られた知見<sup>39, 49</sup> や OECD/NEA の THAI、STEM 等のプロジェクト成果に基づき、今後のソースタームの研究の中で再移行挙動が重要な研究課題と位置付けられた。また、このような議論を経て、OECD/NEA はソースタームにおける遅延放出メカニズムに関する実験プロジェクト ESTER を計画し、2020 年に開始した<sup>38</sup>。シビアアクシデント晩期で重要となる再移行挙動としては、前項で説明したエアロゾルの再蒸発及び再浮遊、スクラビング時の液滴同伴によるエアロゾル生成、冷却水中の溶存気体の再揮発等が挙げられる（図 2.2.2）。

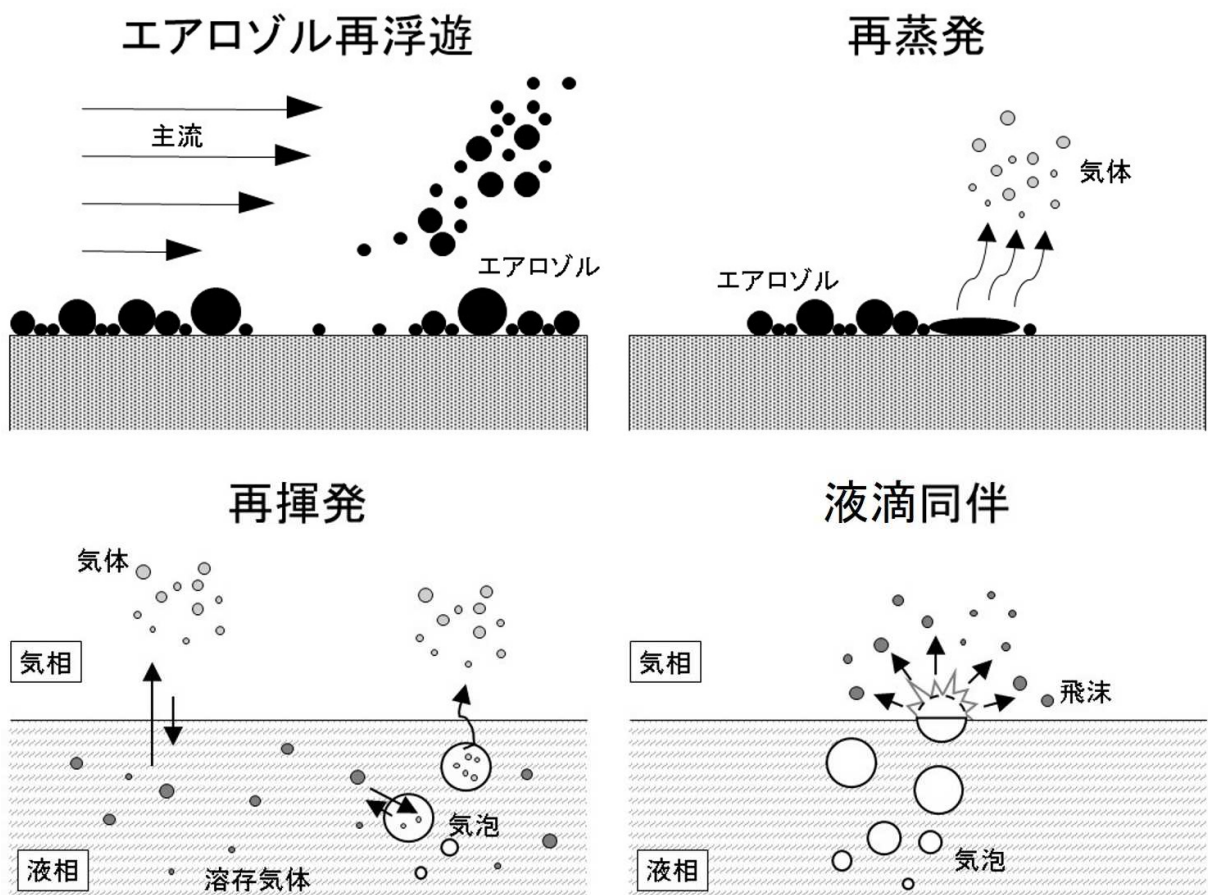
これらの一部については既往研究により得られた知見に基づきモデルが開発されているものの、個々のモデルは開発途上であり、SA 総合解析コードに組み込む場合の競合過程の扱いについて確立した手法はない。また、ペレットから放出する FP の放出モデル構築には、主に 1980 年代から 2000 年代に実施した実験結果から得られたデータを用いてモデルが構築されており、PHEBUS-FP 計画のような積分効果実験との関係性を説明するには多くの仮定が介在する。これを解決するためには、 $CsI$  や  $Cs_2MoO_4$  等の化学物がペレットから直接放出する際のデータを拡充することが有効である。

原子力規制庁は上述の国際的な実施状況や取得する情報の分類を行い、ソースタームに関する不確実さ低減を目的として、図 2.2.3 に示す四つのテーマ、すなわち「化学反応実験」、「気相化学・物質移行実験」、「再移行挙動実験」及び「 $CsI$  放出実験」を選定した。

これら四つの実験において、令和 2 年度及び令和 3 年度に実施した内容を以下にまとめる。なお、以下で説明する内容のうち、「化学反応実験」及び「再移行挙動」に係る調査については JAEA への委託事業にて実施し、その成果をまとめたものである<sup>50, 51</sup>。「気相化学実験・物質移行」については、JAEA との共同研究にて実施し、その成果をまとめたものである<sup>13, 53</sup>。また、ペレット放出実験については、国立大学法人福井大学との共同研究にて実施し、その成果をまとめたものである<sup>12, 54</sup>。

- ・ 化学反応実験： $Cs_2MoO_4$  に注目して、気相中の化学反応を含むエアロゾル再浮遊及び再蒸発に係る配管等への沈着に係る実験を実施した<sup>50, 51</sup>。

- ・ 再移行挙動：FP 再移行挙動に係る研究では、文献調査及び感度解析を実施し、図 2.2.3 で示す現象のうち、再移行挙動に影響を与える重要な現象について検討した<sup>50, 51</sup>。
- ・ 気相化学実験・物質移行：化学反応挙動として幅広い気体状 FP の気相での反応現象の解明のほか、気液二相流条件における冷却水中の溶存気体の再揮発現象について、文献調査によるモデルの作成と並行してパラメータ取得のための実験装置の整備を進めた<sup>13</sup>。
- ・ CsI 放出実験：FP としては化学量論比として簡素かつ環境放出の際に重要な核種であるセシウムを含んだ CsI に注目し、試料として供する模擬燃料を作成する際は実燃料において想定される結晶粒径の模擬を重視して実験を実施した<sup>12</sup>。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」

2022.<sup>50</sup>

図 2.2.2 FP 再移行挙動

Figure 2.2.2 Re-mobilization phenomena of fission products

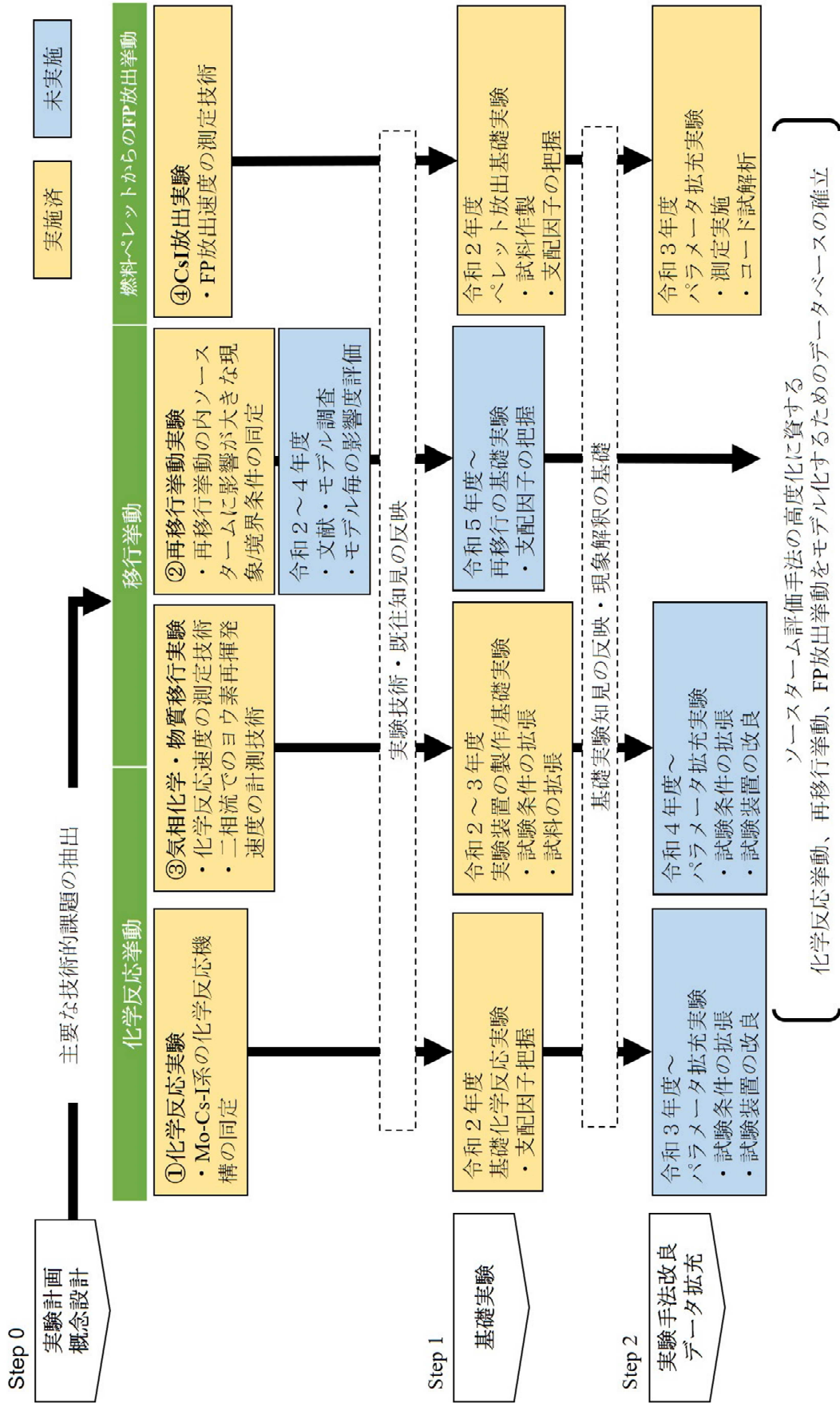


図 2.2.3 ソースターム実験の計画

Figure 2.2.3 Plan for source term test

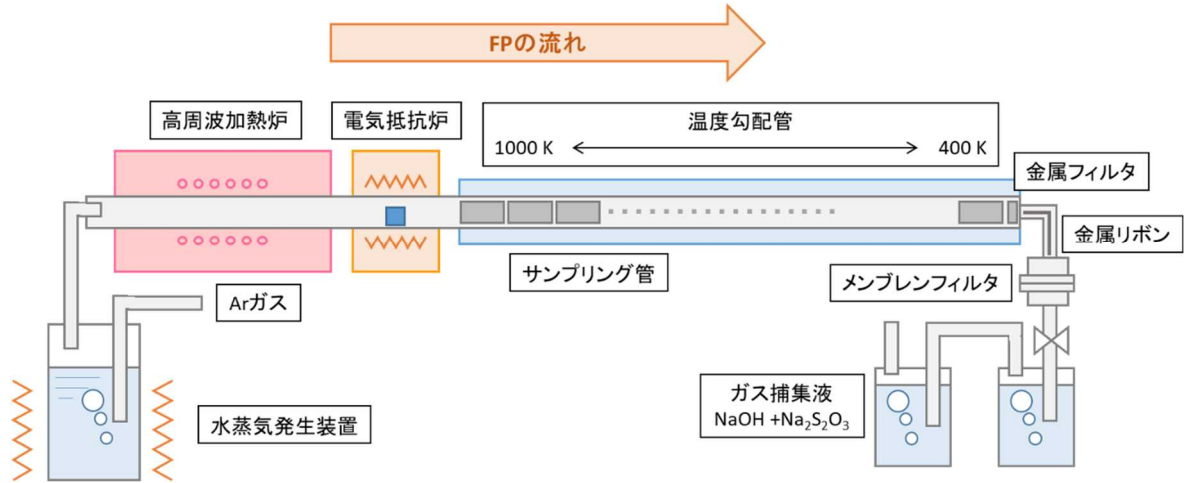
### 2.2.3 化学反応実験

化学反応実験は、JAEA への委託事業にて実施し、本項はその成果をまとめたものである<sup>50, 51</sup>。本実験では、放出時のセシウムとヨウ素の化学形の一つとして考えられている CsI<sup>56</sup> と FP の中で生成量が多くセシウムと化合物を形成する可能性が示されているモリブデン<sup>56</sup> の酸化物 MoO<sub>3</sub> を供試材とした。CsI と MoO<sub>3</sub> の各蒸気種を反応させ、温度勾配管中のサンプリング管や焼結金属フィルタ等に付着した生成物等を対象に化学分析、X 線回折、ラマン分光計測等を実施し、化合物の化学形態や結晶構造等に関する基礎データを取得した。

また、雰囲気酸素ポテンシャルを変化させた実験も実施し、セシウムやヨウ素の移行挙動やセシウムの化学反応に与えるモリブデン及び雰囲気の影響を評価した。

#### (1) 実験装置

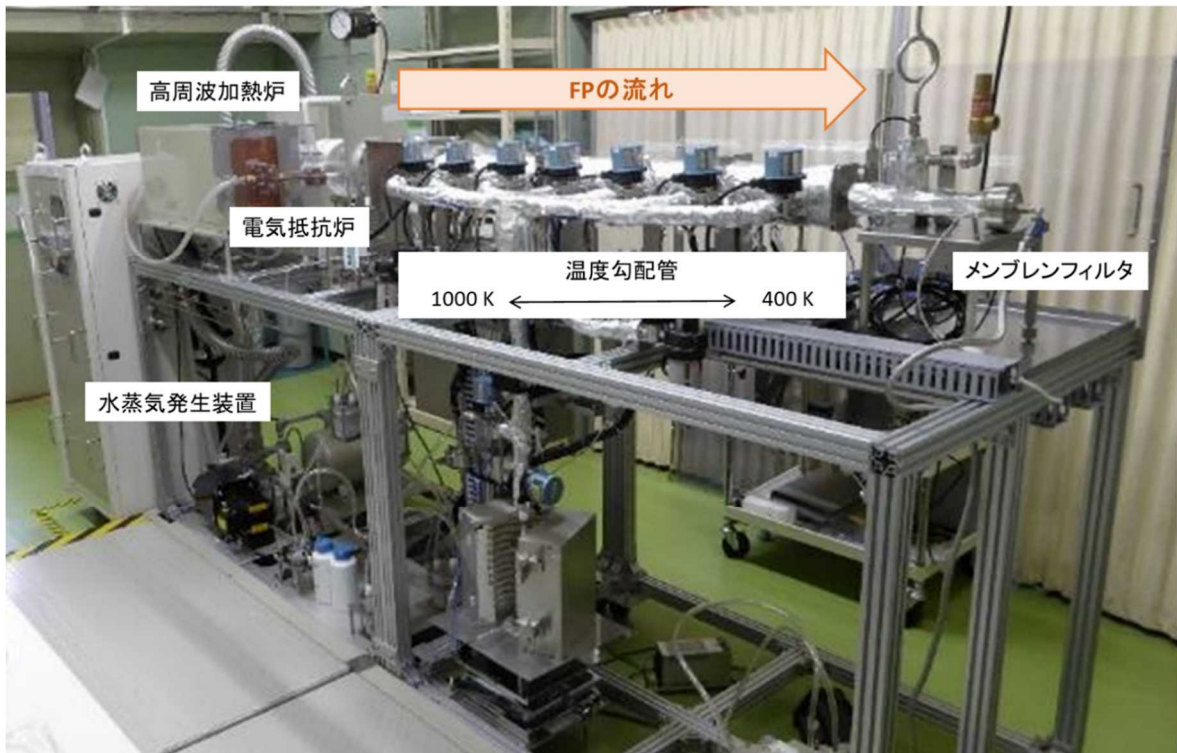
本実験では、JAEA が整備する TeRRa を用いた<sup>57, 58</sup>。同装置の模式図及び外観をそれぞれ図 2.2.4 及び図 2.2.5 に示す。本装置は、試料を蒸発させる加熱炉と放出された FP 等を捕集する温度勾配管等から構成される。試料の加熱は高周波誘導加熱又は電気抵抗炉により行い、最高温度はそれぞれ 2500 K 及び 1273 K である。加熱炉の下流に接続された温度勾配管には 1000 K (上流) ~ 400 K (下流) の間で線形的に温度分布を付けており、充填された SS 製のサンプリング管 (内径 39.4 mm×100 mm : 13 本) により FP の沈着物を捕集できる。この温度勾配管のほか、温度勾配管の出口に配置されている SS 製焼結金属フィルタ (公称ろ過精度 : 0.8 μm) PTFE メンブレンフィルタ (公称ろ過精度 : 0.3 μm) によりエアロゾル粒子状の試料を捕集する。また、これらの下流側に設置されたガス捕集瓶中の水酸化ナトリウム及びチオ硫酸ナトリウム溶液 (0.2 mol/L NaOH + 0.02 mol/L Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) によりガス状の試料を捕集する。さらに本実験では、焼結金属フィルタを通過した微小エアロゾル粒子を捕集するために、焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタの間に金属リボンを設置している。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」, 2022.<sup>51</sup>

図 2.2.4 FP 放出移行挙動再現実験装置 (TeRRa) 模式図

Figure 2.2.4 Schematic view for the test bench for FP release and transport (TeRRa)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」, 2022.<sup>51</sup>

図 2.2.5 TeRRa 装置外観写真

Figure 2.2.5 Appearance for TeRRa

## (2) 実験条件

加熱実験の条件を表 2.2.1 に示す。実験パラメータは、モリブデンの有無及びガスフロー雰囲気（水蒸気条件、酸素含有水蒸気条件）である。以降では、モリブデンの有無・ガスフロー雰囲気を変えた実験名をそれぞれ CsI\_H<sub>2</sub>O、CsI+Mo\_H<sub>2</sub>O、CsI\_O<sub>2</sub> 及び CsI+Mo\_O<sub>2</sub> と称する。実験試薬は、セシウム及びヨウ素の化合物として高純度の CsI 粉末（純度 99.9 %）を、モリブデンの化合物として MoO<sub>3</sub> 粉末（純度 99.9999 %）を供した。モリブデンを含む実験（CsI+Mo\_H<sub>2</sub>O 及び CsI+Mo\_O<sub>2</sub>）では、両粉末はそれぞれ約 1.3 g を秤量し白金製るつぼに入れて、電気炉内に装荷した。装荷位置は、CsI 粉末と MoO<sub>3</sub> 粉末で異なり、温度勾配入口から -226 mm と -239 mm の位置である。これは、電気抵抗炉を 1273 K まで加熱した場合のそれぞれ約 1050 K 及び約 1020 K に対応する。試料装荷後、電気抵抗炉の温度を 1273 K まで昇温速度 10 K/min で加熱して 60 分間温度を保持した。なお、温度勾配管の温度は実験中常に一定とし、流動方向に対して上流 1023 K~下流 400 K の線形の温度勾配を保持した。また、電気炉の加熱により蒸発した試料は、ガスフローにより下流へ移行し、温度勾配管に充填されている SS 製のサンプリング管、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタ等に沈着する。ここで、ガスフロー流量は 2 L/min であり、ガスフロー雰囲気組成は露点 60 °C の水蒸気を含む Ar、又は 1 % O<sub>2</sub> 及び露点 60 °C の水蒸気を含む Ar である。モリブデンを含まない実験（CsI\_H<sub>2</sub>O 及び CsI\_O<sub>2</sub>）についても同様の条件で実施した。

加熱後、白金製るつぼ、サンプリング管、焼結金属フィルタ等の重量を電子天秤により測定し、加熱前後の重量変化からセシウム、ヨウ素及びモリブデン化合物の沈着量とその分布を確認した。また、サンプリング管、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタ、下流側の配管内に沈着した試料やガス捕集液を ICP-MS 分析に供し、沈着物中に含まれる元素量を定量した。さらに、サンプリング管中に設置したクーポン（約 10 mm<sup>2</sup>）及び焼結金属フィルタと PTFE メンブレンフィルタの間に設置した金属リボンにより捕集した沈着物を SEM/EDS、XRD 及びラマン分光計測に供することにより、微細組織、元素分布、結晶構造、分子構造等に関するデータを取得し、元素分析の結果と合わせて化学形態を評価した。

ICP-MS 分析では、セシウム-133、ヨウ素-127 及びモリブデン-95 を対象とした。沈着したセシウム、ヨウ素及びモリブデンの化合物を溶解させるため、サンプリング管等を室温で 0.04 mol/L 水酸化ナトリウム溶液に 24 時間浸漬した後、室温で 3 mol/L 硝酸溶液に 3 時間浸漬し、さらに約 343 K で 0.15 mol/L 硝酸と 0.25 mol/L 硫酸の混合溶液に 3 時間浸漬した。沈着物の溶解後、溶液をそれぞれメスフラスコに回収し、イオン交換水を添加しメスアップを行って分析サンプルとした。SEM/EDS については加速電圧を 15 kV に設定し実施した。XRD については Cu-K $\alpha$  線を用いて、加速電圧 40 kV、電流 15 mA の設定で実施した。ラマン分光計測については、不活性雰囲気において、レーザー波長 532 nm の設定で実施した。測定温度はいずれも室温とした。

表 2.2.1 CsI と MoO<sub>3</sub> の化学反応に係る加熱実験条件

Table 2.2.1 Heating test conditions for gaseous chemical reaction between CsI and MoO<sub>3</sub> vapors

| 実験名        |              | CsI_H <sub>2</sub> O   | CsI+Mo_H <sub>2</sub> O   | CsI_O <sub>2</sub> * <sup>2</sup> | CsI+Mo_O <sub>2</sub>   |
|------------|--------------|--|---|-----------------------------------|---|
| 試料         | 化合物          | CsI 1.3 g  | CsI 1.3 g   | CsI 1.3 g                         | CsI 1.3 g   |
|            | 装荷重量         | -  | MoO <sub>3</sub> 1.3 g  | -                                 | MoO <sub>3</sub> 1.3 g  |
| 試料装荷位置     |              | CsI : -226 mm、MoO <sub>3</sub> : -239 mm<br>(温度勾配管入口からの距離)     |   |                                   |   |
| 加熱温度       |              | 1273 K<br>(試料装荷位置の温度 : CsI : 1050 K、MoO <sub>3</sub> : 1020 K) |   |                                   |   |
| 昇温速度       |              | 10 K/min   |   |                                   |   |
| 保持時間       |              | 60 min   |   |                                   |   |
| 試料加熱       | ガスフロー<br>雰囲気 | Ar + 露点 60°C   |   | Ar-1%O <sub>2</sub> + 露点 60°C     |   |
|            | ガスフロー<br>流量  | 2 L/min  |   |                                   |   |
| 蒸発速度*      |              | CsI<br>1.1 × 10 <sup>-7</sup> mol/s                            | CsI<br>2.9 × 10 <sup>-7</sup> mol/s<br>MoO <sub>3</sub><br>8.8 × 10 <sup>-8</sup> mol/s | (実施予定)                            | CsI<br>2.7 × 10 <sup>-7</sup> mol/s<br>MoO <sub>3</sub><br>3.5 × 10 <sup>-7</sup> mol/s |
| Mo/Cs モル比* |              | -  | 0.3   | -                                 | 1.3   |
| 温度勾配管加熱    | サンプリング管寸法    | 内径 39.4 × 100 mm : 13 本  |   |                                   |   |
|            | 最高温度         | 1000 K   |   |                                   |   |
|            | 最低温度         | 400 K  |   |                                   |   |
|            | 温度分布         | 線形   |   |                                   |   |

\*実験結果からの推定値、\*<sup>2</sup> 令和 4 年度に実施予定

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度原子力施設等防災対策等委託費 (シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化) 事業 成果報告書」、2021.<sup>50</sup>

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 年度原子力施設等防災対策等委託費 (シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化) 事業 成果報告書」、2022.<sup>51</sup>

### (3) 実験結果

各実験において、サンプリング管、焼結金属フィルタ及びメンブレンフィルタへの沈着物の ICP-MS 分析により得られたセシウム、ヨウ素及びモリブデンの存在割合をそれぞれ表 2.2.2 にまとめた。ここで示す存在割合は、試料を装荷したるつぼの実験前後の重量変



化から算出した蒸発量を 1.0 としている。また、焼結金属フィルタ等は焼結金属フィルタとメンブレンフィルタの測定値、配管内とはこれらのフィルタとガス捕集瓶を接続する配管内に沈着した試料の測定値を基に算出した値を、それぞれ示している。SEM/EDS で分析及び撮影した温度勾配管内でのセシウム、ヨウ素及びモリブデンの元素分布を図 2.2.6 から図 2.2.8 に示す。

#### CsI\_H<sub>2</sub>O 実験

CsI\_H<sub>2</sub>O 実験では、電気抵抗炉、温度勾配管及び配管における沈着物の ICP-MS 分析により、セシウム及びヨウ素ともに装置内の温度勾配管へ沈着が最も大きくなることが示された(表 2.2.2)。また、全ての装置領域の沈着物において、ヨウ素とセシウムの元素量は等しいことが示された。さらに、電気抵抗炉から温度勾配管内の詳細な元素分布(図 2.2.6)に着目すると、約 1100 K 及び 750~900 K 付近にセシウム、ヨウ素が沈着しており、これらの沈着物中のセシウムとヨウ素の元素量はほぼ同じであった。また、各領域の沈着物の XRD 及びラマン分光分析において、CsI に起因するスペクトルが見られた。したがって、CsI のみの実験では、化学反応の影響はほとんどなく CsI 粉末試料の蒸発、蒸気種の移行及びそれらの凝縮挙動を反映した結果が得られたと考えられる。

#### CsI+Mo\_H<sub>2</sub>O 実験

CsI+Mo\_H<sub>2</sub>O 実験では、沈着物(電気抵抗炉、温度勾配管、配管内)の ICP-MS 分析により、セシウム及びヨウ素ともに装置内の温度勾配管へ沈着が最も大きくなることが示された(表 2.2.2)。一方、焼結金属フィルタ、メンブレンフィルタの下流に位置するガス捕集瓶では、セシウムに比べてヨウ素の割合が高くなった。モリブデンについては、電気抵抗炉のサンプリング管及び焼結金属フィルタ等に多量に分布した。また、電気抵抗炉から温度勾配管内の詳細な元素分布(図 2.2.7)に着目すると、約 1100 K 及び 750~900 K 付近にセシウム、ヨウ素が沈着しており、これらの沈着物中のセシウムとヨウ素の元素量はほぼ同じであった。またモリブデンについては、約 1100 K 以上で多量の沈着が見られた。

沈着物の SEM/EDS 分析では、1100 K でモリブデンのみで構成される球状の沈着物が見られた。温度勾配管の 840 K、700 K 及び 400 K の温度領域、金属フィルタの分析では、セシウム及びヨウ素を含む球状の沈着物が見られた。一方、セシウムとヨウ素を含む球状の沈着物と別に、モリブデンのみの球状沈着物が少量見られた。これらの傾向は、サンプリング管への沈着物及び金属フィルタでの捕集物については CsI\_H<sub>2</sub>O 実験の結果と傾向が似ていることから、CsI のエアロゾル粒子の沈着に起因しているものと考えられる。このように、サンプリング管及び金属フィルタまでの沈着物の分析では、CsI と MoO<sub>3</sub> との反応が生じたことを示す傾向は見られなかった。しかしながら、金属リボン及びメンブレンフィルタでは、セシウムとモリブデンを含む微細な粒子が沈着又は捕集しており、同沈着物にはヨウ素が含まれないことが示されている。これは、少量ではあるが MoO<sub>3</sub> と CsI との反

応によりごく微細な  $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$  エアロゾル粒子が生成し、金属フィルタを通過し下流側へ移行した可能性を示している。しかしながら、沈着物の XRD やラマン分光分析では  $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$  に起因するピークが検出できなかったことから、 $\text{MoO}_3$  と  $\text{CsI}$  の反応による  $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$  生成は少量であったと考えられる。

#### CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験

CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験での沈着物の ICP/MS 分析の結果、セシウムとモリブデンの分布傾向が類似しており、電気抵抗炉と焼結金属フィルタでの分布が多いことが示された。一方、ヨウ素については、焼結金属フィルタまでの分布は微量であるが、ガス捕集瓶におけるヨウ素の割合は約 0.44 と高い値を示した(表 2.2.2)。また温度勾配管内の元素分布(図 2.2.8) について、セシウム及びモリブデンは、約 1100 K 以上の温度勾配管内及びフィルタに多く沈着した。一方で、ヨウ素については、フィルタで沈着が見られたもののサンプリング管への沈着は微量であった。また、CsI-H<sub>2</sub>O 及び CsI+Mo-H<sub>2</sub>O 実験で得られた温度勾配管内での CsI に起因する 750 ~ 900 K 付近の沈着ピークは検出されていないため、本実験では優位に  $\text{MoO}_3$  と  $\text{CsI}$  の反応が進行したと考えられる。

沈着物の SEM/EDS 分析(図 2.2.9 及び図 2.2.10) においては、1100 K、400 K でセシウムとモリブデンを含む数 10  $\mu\text{m}$  の沈着物、針状の沈着物、球状の沈着物が見られたが、全ての温度でヨウ素はほとんど見られなかった。また、金属フィルタ及びメンブレンフィルタでもサンプリング管と同様にセシウムとヨウ素を含む微細な粒子が見られた。一方、金属リボンではヨウ素を含む数 10  $\mu\text{m}$  の沈着物が見られた。これらの様相は、CsI+Mo-H<sub>2</sub>O 実験とは異なる結果であり、1100 K より高温での  $\text{MoO}_3$  と  $\text{CsI}$  の反応により  $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$  及びヨウ素化合物が生成して、下流側への移行に伴って発生した  $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$  蒸気種の SS への凝縮、エアロゾル粒子の生成とその沈着、さらにヨウ素化合物蒸気種の 400 K 未満での金属リボンへの凝縮に起因すると考えられる。

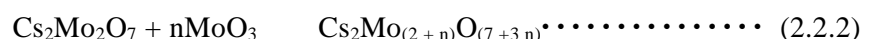
沈着物の XRD 分析(図 2.2.11) においては、サンプリング管材料である SS に起因するピークのほか、840 K 以上では酸化鉄 ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) に起因するピーク、700 K では  $\text{MoO}_3$  に起因するピークが得られた。また、微小なピークではあるが、640 K で  $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$  に起因するピークが見られた。沈着物のラマン分光分析では、1100 K 及び 840 K で二モリブデン酸セシウム ( $\text{Cs}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ ) に起因するピークが見られた(図 2.2.12)。さらに、下流側への移行に伴い、三モリブデン酸セシウム ( $\text{Cs}_2\text{Mo}_3\text{O}_{10}$ )、四モリブデン酸セシウム ( $\text{Cs}_2\text{Mo}_4\text{O}_{13}$ )、五モリブデン酸セシウム ( $\text{Cs}_2\text{Mo}_5\text{O}_{16}$ ) に起因するピークが得られた。このように下流側への移行に伴いモリブデンが高次となるモリブデン酸セシウム化合物が生成することは、既往研究における同様の実験においても確認されている<sup>47</sup>。これは、CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験は酸素ポテンシャルが高く  $\text{MoO}_2$  より  $\text{MoO}_3$  の方が安定であることから、 $\text{MoO}_3$  蒸気種のまま下流側(低温側)へ移行することにより CsI 蒸気種やモリブデン酸セシウム蒸気種との反応が生じやすいことに起因すると考えられる。一方、CsI+Mo-H<sub>2</sub>O 実験の雰囲気は酸素ポテンシ

ヤルが低く MoO<sub>2</sub>の方が安定であることから、平衡状態では CsI との反応は生じないと考えられる。しかしながら、上記の二次電子像観察及びエネルギー分散型 X 線分析では、Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub>の生成が確認されている。これは、本実験においては加熱試料に MoO<sub>3</sub>を供しており、MoO<sub>3</sub>蒸気種から MoO<sub>2</sub>蒸気種への変化は実際には速度論に則ると考えられることから、一部の MoO<sub>3</sub>蒸気種と CsI の蒸気種が反応したことに起因すると考えられる。

#### (4) 考察

モリブデンとヨウ素及びセシウムとの気相化学実験から以下の結論を得た<sup>30</sup>。

- ・ CsI が温度勾配管内を移行中に MoO<sub>3</sub> 蒸気種との化学反応により Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 及び揮発性のヨウ素化合物を生成し、それぞれ CsI よりも微細なエアロゾル粒子及び蒸気種のまま下流側へ移行する。
- ・ 酸素ポテンシャルが高い雰囲気においては、MoO<sub>3</sub> 蒸気種のまま下流側へ移行することにより、以下の式で示されるような CsI 及び Cs<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> との反応が生じ、揮発性のヨウ素化合物がより生成及び下流側へ移行しやすくなる。



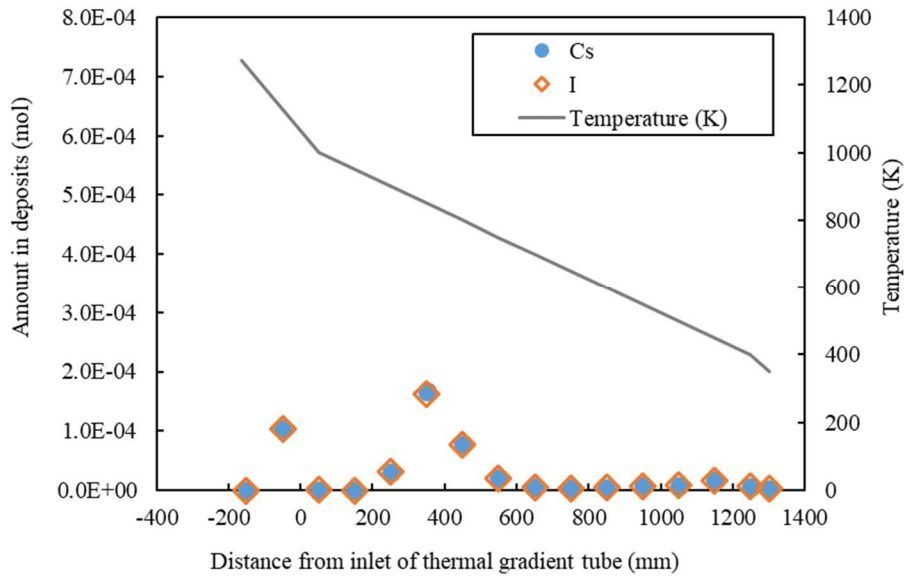
以上に示すとおり、モリブデンの影響によるヨウ素の移行促進に係る反応機構を明らかとした。また、モリブデン存在下では、酸素が存在しない水蒸気雰囲気よりも酸素を含有した水蒸気雰囲気において、式(2.2.1)による反応が促進されて揮発性ヨウ素の生成量が有意に増加することが示された。すなわち、本現象のモデル化及びその妥当性確認を実施する上で、酸素ポテンシャルを考慮することが重要であると考えられる。一方、モリブデン非含有かつ高酸素ポテンシャル雰囲気での実験結果は未取得であることから、高酸素ポテンシャルにおいてモリブデンの有無による揮発性ヨウ素の生成量がどの程度定量的に増加するかは不明である。エアロゾルの微細化についても同様である。これらの定量的な実験的知見は機構論的な数値解析コードの妥当性を確認する上で重要な情報であることから、今後はモリブデン非含有かつ高酸素ポテンシャル雰囲気等の参照条件におけるヨウ素の生成量に関する実験データの拡充が必要であると考えられる。

表 2.2.2 水蒸気雰囲気及び水蒸気 - 酸素雰囲気における CsI 蒸気種と MoO<sub>3</sub> 蒸気種の高  
温化学反応を想定した加熱実験における沈着割合

Table 2.2.2 Distribution of Cs, I and Mo in the heating test for gaseous chemical reaction between  
CsI and MoO<sub>3</sub> vapors

|    | 分析箇所                | CsI_H <sub>2</sub> O | CsI+Mo_H <sub>2</sub> O | CsI_O <sub>2</sub> | CsI+Mo_O <sub>2</sub> |
|----|---------------------|----------------------|-------------------------|--------------------|-----------------------|
| Cs | サンプリング管<br>(電気抵抗炉)  | 0.15                 | 0.08                    |                    | 0.27                  |
|    | サンプリング管<br>(温度勾配管)  | 0.50                 | 0.28                    |                    | 0.10                  |
|    | 焼結金属フィルタ等<br>配管内    | 0.00                 | 0.12                    | (令和4年度<br>実施予定)    | 0.34                  |
|    | (金属フィルタ・ガ<br>ス捕集瓶間) | 0.05                 | 0.13                    |                    | 0.21                  |
|    | ガス捕集瓶               | 0.00                 | 0.14                    |                    | 0.06                  |
| I  | サンプリング管<br>(電気抵抗炉)  | 0.15                 | 0.07                    |                    | 0.00                  |
|    | サンプリング管<br>(温度勾配管)  | 0.50                 | 0.28                    |                    | 0.01                  |
|    | 焼結金属フィルタ等<br>配管内    | 0.00                 | 0.08                    | (令和4年度<br>実施予定)    | 0.05                  |
|    | (金属フィルタ・ガ<br>ス捕集瓶間) | 0.06                 | 0.12                    |                    | 0.29                  |
|    | ガス捕集瓶               | 0.00                 | 0.26                    |                    | 0.44                  |
| Mo | サンプリング管<br>(電気抵抗炉)  | /                    | 0.18                    | /                  | 0.41                  |
|    | サンプリング管<br>(温度勾配管)  | /                    | 0.03                    | /                  | 0.11                  |
|    | 焼結金属フィルタ等<br>配管内    | /                    | 0.10                    | /                  | 0.34                  |
|    | (金属フィルタ・ガ<br>ス捕集瓶間) | /                    | 0.02                    | /                  | 0.02                  |
|    | ガス捕集瓶               | /                    | 0.02                    | /                  | 0.02                  |

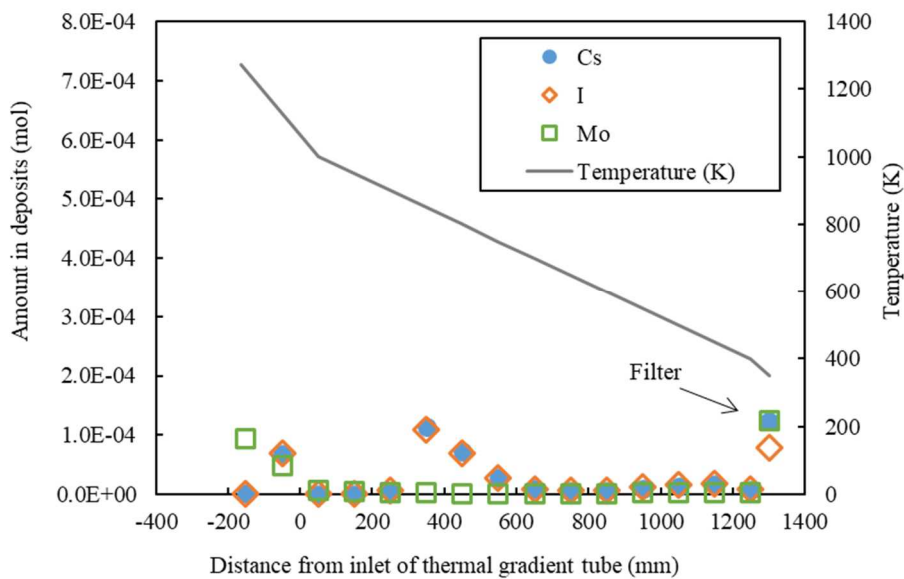
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」, 2021.<sup>50</sup>  
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」, 2022.<sup>51</sup>



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和2年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」、2022.<sup>50</sup>

図 2.2.6 CsI-H<sub>2</sub>O 実験における温度勾配管のセシウム及びヨウ素分布

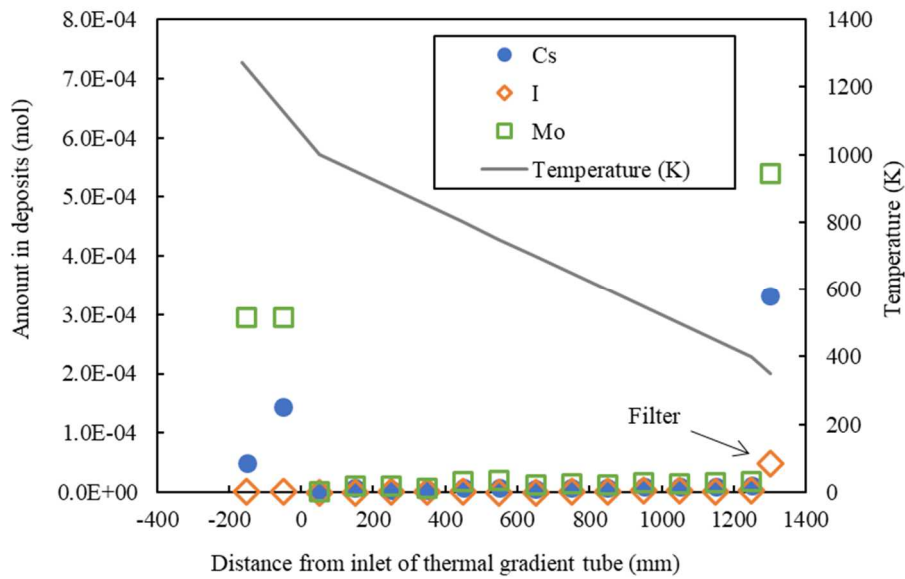
Figure 2.2.6 Distribution of Cs and I in the thermal gradient tube after the CsI-H<sub>2</sub>O experiment



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」、2022.<sup>51</sup>

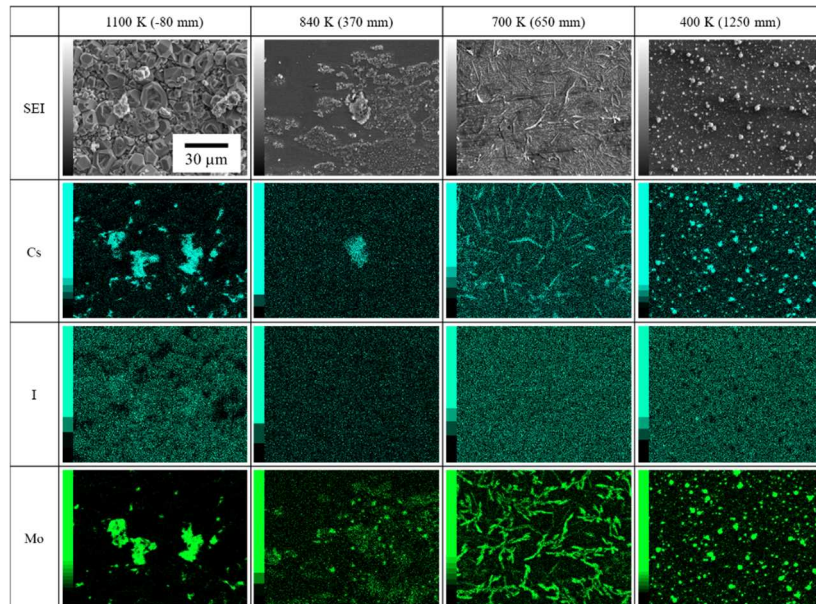
図 2.2.7 CsI+Mo-H<sub>2</sub>O 実験後に温度勾配管で計測したセシウム、ヨウ素及びモリブデンの分布

Figure 2.2.7 Distributions of Cs and I and Mo in the thermal gradient tube measured after the CsI+Mo-H<sub>2</sub>O experiment



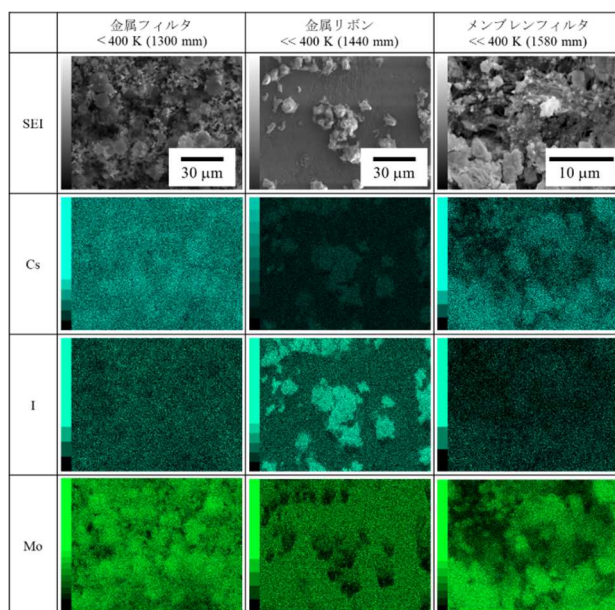
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」、2022.<sup>51</sup>

図 2.2.8 CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験における温度勾配管のセシウム、ヨウ素及びモリブデン分布  
Figure 2.2.8 Distribution of Cs, I and Mo in the thermal gradient tube after the CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> experiment



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」、2022.<sup>51</sup>

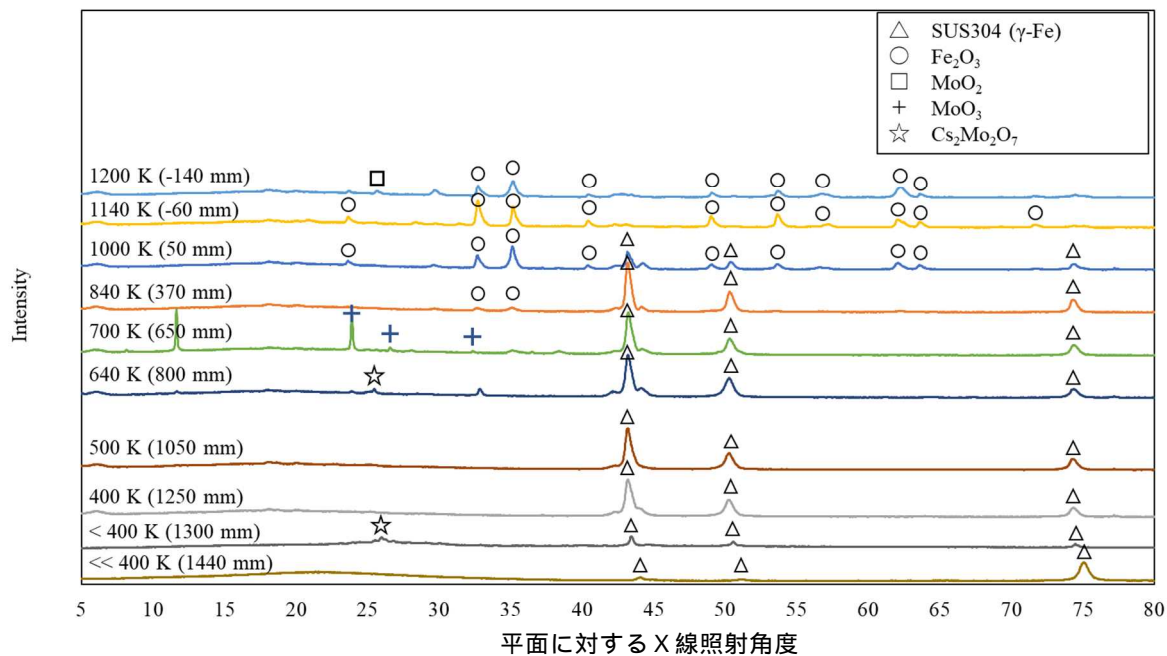
図 2.2.9 CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験の温度勾配管における SEM 像及び EDS マッピング像  
Figure 2.2.9 SEM and EDS mapping image for the thermal gradient tube in the CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> experiment



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」、2022.<sup>51</sup>

図 2.2.10 CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験の金属フィルタにおける SEM 像及び EDS マッピング像

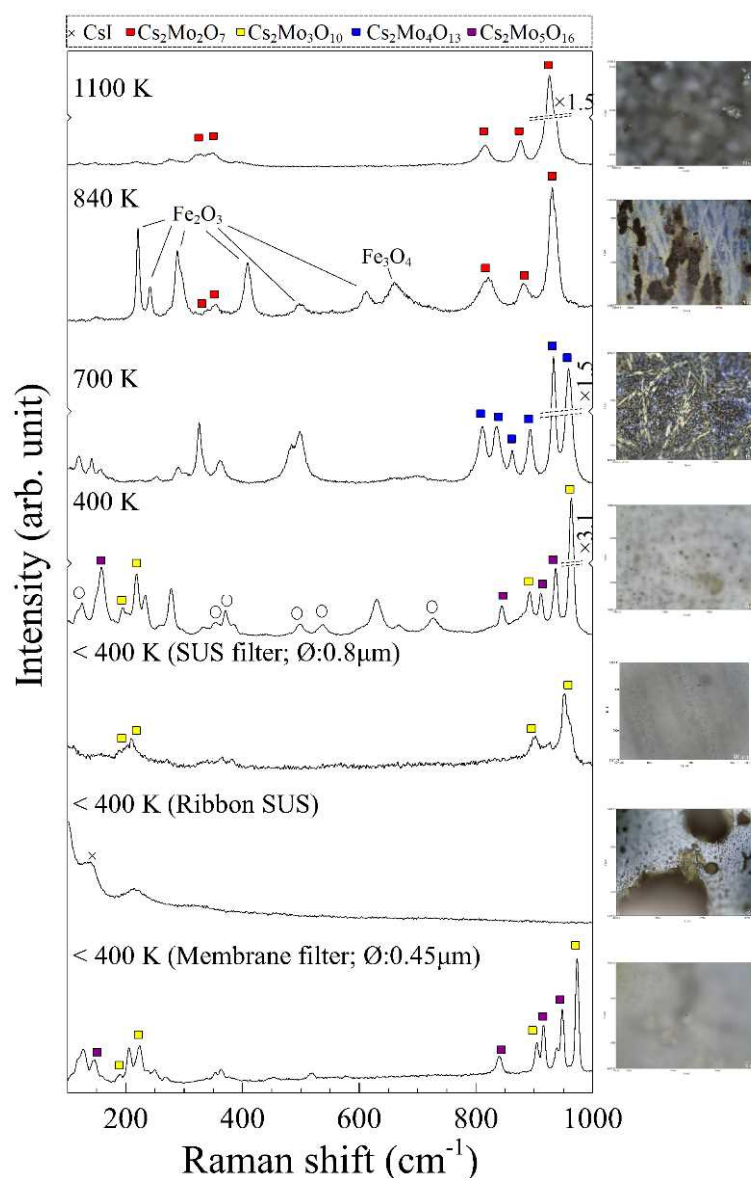
Figure 2.2.10 SEM and EDS mapping image for the metallic filter in the CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> experiment



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」、2022.<sup>51</sup>

図 2.2.11 CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験における XRD スペクトル

Figure 2.2.11 XRD spectra for each substrate including deposits in the CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> experiment



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化)事業 成果報告書」、

2022.<sup>51</sup>

図 2.2.12 CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 実験におけるラマン分光スペクトル  
 Figure 2.2.12 Raman spectra for each substrate including deposits  
 in the CsI+Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> experiment



#### 2.2.4 再移行挙動実験

「再移行挙動」に係る調査については、JAEA への委託事業によって実施し、その成果を本項でまとめた<sup>50, 51</sup>。再移行モデルとして挙げられる四つのモデル（冷却水中に溶解した FP の再揮発、液・気二相流における液滴同伴、沈着エアロゾルの気流による再浮遊及び沈着エアロゾルの再蒸発）について、既往研究を基に令和 3 年度までに調査し知見を以下の項に整理した。なお、知見を整理するにあたり、MELCOR<sup>60</sup> 等で代表される SA 総合解析コードにおいて使用されるモデルを重点的に調査している。また、SA 総合解析コードでモデル化されていない場合についても一部検討を行った<sup>50, 51</sup>。加えて、再移行挙動を含む放射性物質の移行モデルに着目し、BWR 事故におけるその影響度を評価し、支配的な物質移行現象を解析的に検討した。以下のその検討結果の概要を示す。

再移行挙動に係る既往文献の調査の結果、一般的な SA 総合解析コードでは二相流における FP 再揮発の促進、液滴同伴によるエアロゾル生成がモデル化されていないことが分かった。沈着エアロゾルの再蒸発現象については、モデルが確立しているものの化学反応駆動による再蒸発を考慮するにはその化学反応機構や速度の情報が必要であることが課題として挙げられた。

再移行挙動を含む放射性物質の移行モデルに着目し、BWR 事故におけるその影響度解析により支配的な物質移行現象を検討した結果、高圧・低圧注水失敗事故シーケンスのドライウェル過圧破損ケースでは、拡散泳動等のエアロゾルに関するモデルが環境放出量に対して高い影響度があること及びその他モデルとの相関があることが示された。再移行挙動に関するモデルの影響は十分に特定できなかったが、気体状 FP に対しては二相流条件での再揮発効果が比較的高いと考えられる<sup>50</sup>。また、FP 放出経路の異なる事故シーケンス（格納容器ベント、D/W 破損）の影響度解析により、原子力施設から環境放出に至るまでの経路のうち最も出口に近い解析ノード（場所）で支配的な移行現象が、環境放出量に対して高い影響度を持つことが示された。具体的には、セシウムは移行経路に依らず液滴同伴が再移行挙動の中で比較的重要であることが示された。ヨウ素については、格納容器ベントケースでは液滴同伴、D/W 破損ケースでは再蒸発の影響度が高いことが示唆された<sup>51</sup>。ソースターム評価の観点で重要度の高い現象（特にモデル開発や妥当性確認に向けて実験的な研究が必要なもの）を検討する上で、既往研究の知見に基づく現象の理解度やその実験データの豊富さを考慮する必要がある。二相流条件での再揮発については、酸素について十分な知見があるが、SA 特有のヨウ素等について実験データが少ない。液滴同伴については、気泡流等に関する実験データ及び既往知見は十分にある。再蒸発については、熱的メカニズムは良く理解されているものの、SA 特有の CsI 等についての実験データは限られる。同様に化学的メカニズムによる再蒸発の妥当性確認やモデル開発に資する実験データも限られる。以上を踏まえて、優先的に実験データの拡充が必要な再移行挙動は、二相流条件下の再揮発現象及び再蒸発（特に化学的な再蒸発）であると考えられる。

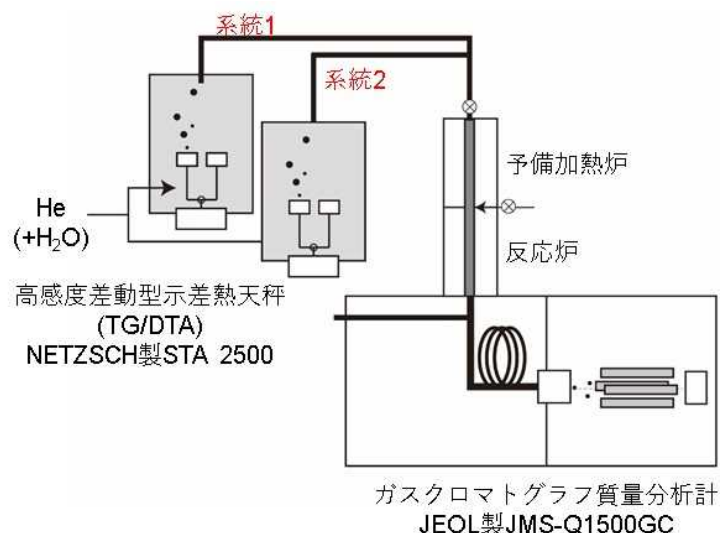
## 2.2.5 気相化学・物質移行実験

気相化学実験・物質移行については、JAEA との共同研究によって実施した<sup>13,53</sup>。以下、項目ごとに成果をまとめる。

### (1) 気体状 FP 生成反応の解明に向けた実験装置の整備<sup>13</sup>

ソースタームの評価で使用される SA 総合解析コードでは放射性物質の多様な移行挙動がモデル化されている。特に、希ガスやヨウ素に代表される気体状放射性物質の移行挙動は環境放出に大きく影響するため重要である。しかしながら、気体状 FP の生成量は、事故条件やプラントに依存することが明らかになっている。例えば、気体状のヨウ素の生成割合を調査した実験である PHEBUS-FP 計画の実験では、Ag-In-Cd 制御棒が共存する場合は 0.1~1% であるが、B<sub>4</sub>C 制御材が共存する場合は~27% であることが解析的に示されている<sup>8</sup>。また、同影響についての実験データが乏しいことからその反応機構が十分に理解されていないため、SA 総合解析コードへの知見の反映は限定的である。また、化学反応の中にはそれらの反応速度を考慮した評価が必要であることが示されているが<sup>11, 59</sup>、反応物及び生成物に係る化学種濃度の経時変化データは取得が難しく特に知見が少ない。そこで、SA 条件下 (~1000 K) で想定される気相化学反応について、反応物の蒸発量と生成した気体の化学種ごとの生成量をオンラインで測定可能な実験装置を検討し、設計・整備した。

図 2.2.13 に整備した装置概略図を示す。本装置は、固体試料気化部(2系統)、気化試料混合/反応部及び測定部から構成される。本装置の特徴は、2系統の固体試料気化部と測定部の間に“反応部”を有する体系であり、複数の反応気体の導入、反応、測定までを同時に実施できることにある。なお、固体試料気化部分については TG/DTA を採用しており、数 mg の固体サンプルを昇温/気化するとともに、昇温時の重量変化と示差熱をオンラインで測定することが可能である。本実験装置の測定温度範囲は 25~1100 °C、加熱速度は 1 °C/h~100 °C/min であり、水蒸気雰囲気に対応することが可能である。気化試料混合/反応部では、固体試料気化部のそれぞれの系統で気化した気体を混合して反応させる。反応管は石英製(φ3 mm、長さ 78 mm)であり、設定可能温度は 40~700 °C である。測定部には、GC/MS を採用しており、反応した気体を分子量 ( $m/z= 10\sim600$ ) ごとに分類して測定することが可能である。チャンバーの測定温度範囲は、100~300 °C である。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、原子力規制庁、「共同研究報告書 ソースターム評価における FP 移行挙動モデルの不確かさ低減に関する研究」、2022。(公表準備中)<sup>13</sup>

図 2.2.13 TG/DTA-GC/MS 実験装置の概略図

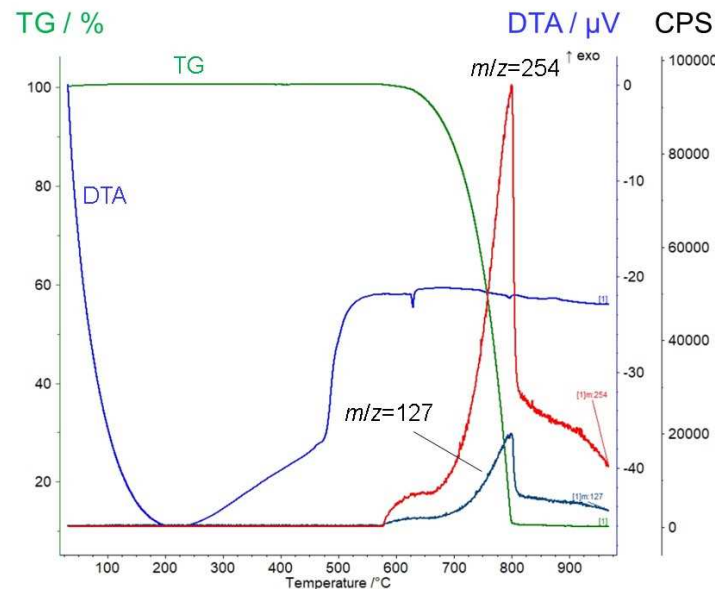
Figure 2.2.13 Schematic view of TG/DTA-GC/MS

整備した実験装置において揮発性の異なる気体化学種 ( $\text{RuO}_4$ 、 $\text{CsI}$ ) を用いて装置特性データを取得した。ここで、 $\text{RuO}_4$  及び  $\text{CsI}$  は、SA における Ru 及び I 元素の主要な化学種である。

使用済み燃料の再処理施設の重大事故時に重要な現象である硝酸廃液からの  $\text{RuO}_4$  放出について、実験を実施し、同装置による  $\text{RuO}_4$  の測定可能性を確認した。ここでは、既往知見と同様に硝酸水溶液の沸騰に伴い発生する  $\text{RuO}_4$  ( $m/z=166$ ) が検出できることを確認した。一方、本実験では、既往研究と同様に  $\text{RuO}_4$  をイオン化した際に断片化した  $\text{Ru}$  ( $m/z=102$ )、 $\text{RuO}$  ( $m/z=118$ )、 $\text{RuO}_2$  ( $m/z=134$ )、 $\text{RuO}_3$  ( $m/z=150$ ) が多く検出された。したがって、同装置を用いて化学形を同定する際には、結合が弱い分子について断片化の影響に留意する必要がある。

また、同装置で  $\text{CsI}$  粉末の昇温した際の測定データを図 2.2.14 に示す。ここで  $\text{CsI}$  を加熱した際に理論的に生成が予想される化学種は、 $\text{I}$  ( $m/z=127$ )、 $\text{Cs}$  ( $m/z=133$ )、 $\text{I}_2$  ( $m/z=254$ )、 $\text{CsI}$  ( $m/z=260$ )、 $(\text{CsI})_2$  ( $m/z=520$ ) である。本実験では、 $\text{CsI}$  の重量減少に伴って常温や高温で安定な気体 (揮発性の高い)  $\text{I}_2$  や  $\text{I}$  が検出できることを確認した。一方、凝縮しやすいその他の化学種 ( $\text{Cs}$ 、 $\text{CsI}$  等) は検出されなかった。未検出の要因として、検出器の測定限界又は検出器までの配管での沈着等による目的気体化学種の損失が挙げられる。また、検出器での  $\text{CsI}$  測定可能性について、DEP と呼ばれる検出器の直前で粉末試料を蒸発する方法で測定を実施した。DEP を用いた測定では、理論的に生成される全ての化学種を測定できることを確認した。さらに、本装置において凝縮しやすいその他の化学種 ( $\text{Cs}$ 、 $\text{CsI}$

等)が未検出だったもう一つの要因である配管内での損失について、配管内の可視的な調査を行った。ここでは、装置配管のコールドスポットに析出物が見られたことから、凝縮しやすい化学種の検出には更なる装置改良が必要である。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、原子力規制庁、「共同研究報告書 ソースターム評価におけるFP移行挙動モデルの不確かさ低減に関する研究」、2022。(公表準備中)<sup>13</sup>

図 2.2.14 CsI 粉末の加熱時の TG/DTA-GC/MS データ

Figure 2.2.14 TG/DTA-GC/MS result during the heating of CsI powder

## (2) 再揮発現象における物質移行係数の評価実験<sup>13, 53</sup>

希ガスやヨウ素に代表されるように気体状 FP の移行挙動は環境放出に大きく影響するため、ソースターム評価において特に重要である。気体状 FP の移行モデルの不確かさを含む現象の一つとして、圧力抑制室等の液相での放射線分解によって生成する気体状ヨウ素の気相への移行(再揮発現象)が挙げられる。再揮発現象は、静水面からの移行について既存のソースターム解析コードで既に考慮されているが、減圧沸騰やスクラビングによって発生する気泡(二相流条件)の影響が十分に考慮されていない。一般に、流れのない等温系の場合、気体の気相-液相間の物質伝達は、二重境膜モデルが採用される<sup>52</sup>。二重境膜モデルとは、気液界面の両側に濃度勾配を持つ境膜を仮定するモデルであり、最終的に二相間の濃度勾配の駆動力により気液平衡に到達する。二重境膜モデルに基づく液相の溶存気体の濃度変化式は以下で表される。

$$\frac{dC_{l,a}}{dt} = \frac{K_a A}{V_l} (H_a C_{g,a}(t) - C_{l,a}(t)) \dots \dots \dots (2.2.3)$$

- $C_{l,a}$  Concentration of component a in liquid [mol/m<sup>3</sup>]
- $K_a$  Mass transfer coefficient of a [m/s]
- $A$  Gas-liquid interfacial area [m<sup>2</sup>]
- $V_l$  Liquid phase volume [m<sup>3</sup>]
- $H_a$  Partition coefficient of a [-]
- $C_{g,a}$  Concentration of component a in gas [mol/m<sup>3</sup>]

式(2.2.3)の二重境膜モデルに基づけば、気体の気相 - 液相間の物質伝達は、気液界面積と対象となる気体の濃度勾配により評価可能であるため、気泡 - 液相間にも十分に適応可能であると考えられる。そこで、JAEA が開発を進める SA 総合解析コード THALES<sup>61</sup> において二重境膜モデルを二相流(気泡 - 液相)へ拡張し、二相流条件における気体状 FP の物質移行促進(再揮発現象)の影響を評価した。なお、本解析では BWR-4 Mark-I プラントにおけるベント操作を伴う SBO 事故を対象とした。本解析では、ベント操作によってヨウ素化学種の環境放出が開始される。その際、CsI はエアロゾル状であるため、再揮発モデルの有無にかかわらず、環境放出量に変化はなかった。一方、分子状ヨウ素、高揮発性ヨウ素及び低揮発性ヨウ素は、気泡流中における再揮発現象の影響を考慮することで、同影響を考慮しない解析と比較して、特にベント操作直後における放出量が増加することを確認した<sup>62</sup>。

また、二相流条件下では気体状 FP の気液物質伝達が促進する可能性が解析的に示されたが、気液物質移動速度の支配要因の一つである物質移動係数  $K$  については、複雑な二相流条件における測定データが酸素等の基本的な気体に限られており、ヨウ素等のソースターム評価において二重境膜モデルを二相流条件に拡張した際の不確かさの要因の一つである。加えて、二相条件下における気液間の物質移動係数  $K$  について異なる気体化学種間の関係は不明である。そこで、二重境膜モデル式を再度見直すことで異なる気体化学種間での物質移動係数  $K_a$  に関する相関式を導出し、物質移動係数  $K$  が豊富な酸素等の知見をシビアアクシデント条件で想定されるヨウ素等への反映させる方法を検討した。本検討では、異なる気体化学種 a と b について、二重境膜モデルに基づきその濃度変化式を書き下し、異なる気体化学種は次の関係にあることを推定した。ここで、気液界面積  $A(t)$  は二相流条件の場合時々刻々と変化するため、時間依存項を含んでいる。

$$\frac{K_b A(t)}{K_a A(t)} = constant \dots \dots \dots (2.2.4)$$

また、物質移動係数  $K$  は拡散支配の場合、液相での溶存気体の拡散速度で評価できることが知られている。

$$K_a \approx \frac{D_{l,a}}{\delta_l} \dots \dots \dots (2.2.5)$$

$D_{l,a}$  Diffusion coefficient a in liquid [ $m^2/s$ ]

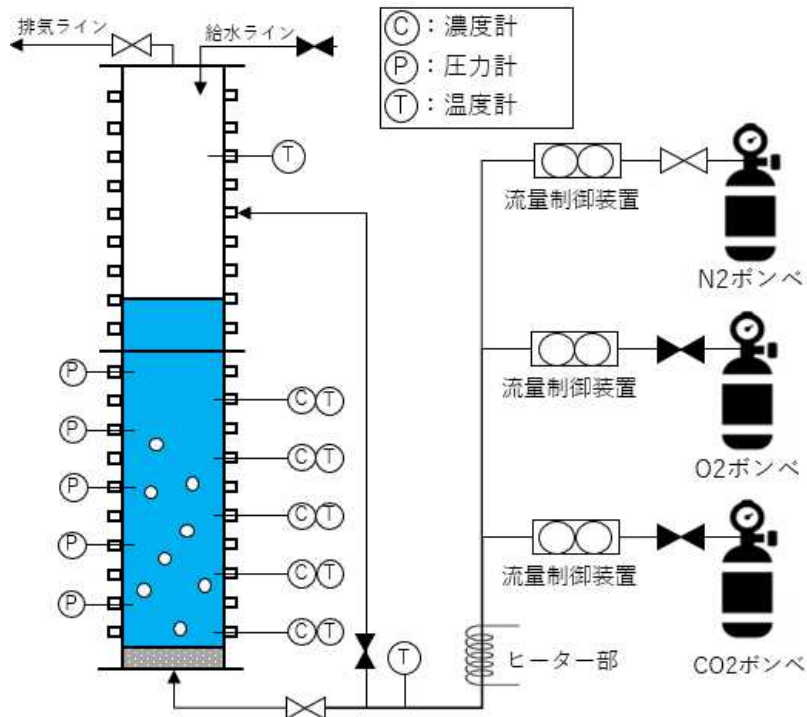
$\delta_l$  Thickness of boundary layer in liquid [m]

したがって、式(2.2.4)は、式(2.2.5)を用いると次式のとおり変形することができる。つまり、拡散支配の場合、異なる気体化学種の気液間物質移動係数  $K$  は、液相の拡散係数の比の関係にある可能性がある。

$$\frac{K_b A(t)}{K_a A(t)} \approx \frac{D_{l,b} \delta_l}{D_{l,a} \delta_l} \approx \frac{D_{l,b}}{D_{l,a}} = constant \dots \dots \dots (2.2.6)$$

複数の気体化学種を用いた気液間物質移動係数測定の実験装置(以下「気泡塔実験装置」という。)を整備して同装置を用いた実験を実施し、同モデルの適応可能性について確認した。整備した実験装置の概略図を図 2.2.15 に示す。本装置は、水槽部(アクリル製、直径 15 cm、高さ 2 m)であり、実験可能な条件として温度範囲：常温 ~ 60 °C、圧力範囲：大気圧のみ、窒素ガス流量：1~20 L/min とした。同装置を用いた実験では、まず酸素及び二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)を溶存させた溶液に対して気泡塔底部から純度 99.99%の N<sub>2</sub> ガスを 2.0 L/min で注入し脱気した。脱気中は光学式酸素プローブ及び二酸化炭素用隔膜式ガラス電極を用いオンラインで溶存酸素及び二酸化炭素の液相濃度変化を測定した。

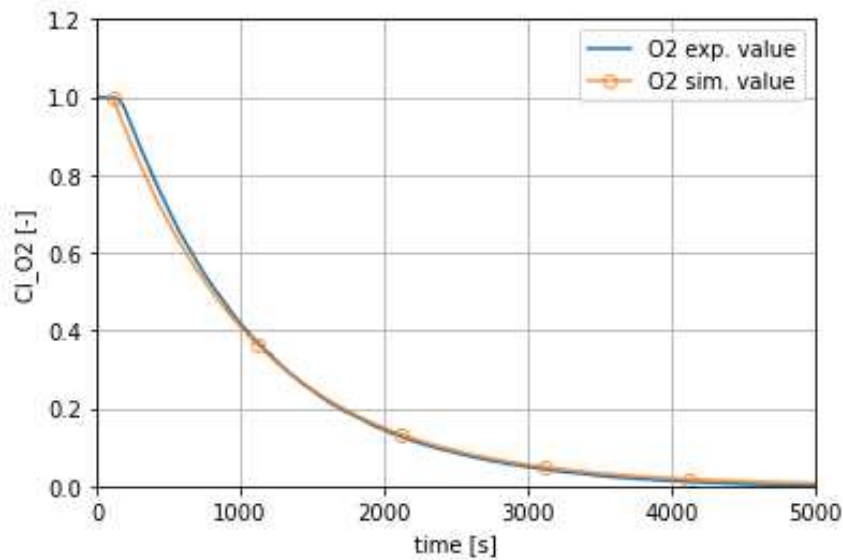
図 2.2.16 に実験で得られた液相の酸素濃度変化を示す。得られた酸素濃度変化が、二重境界膜モデルの式(2.2.3)及び既知の  $K_a$  を用いて推定される濃度変化と一致することを確認した。これは、同実験装置で得られた結果が妥当であることを示している。さらに、実験結果から算出した  $K_b/K_a$  は予測される  $D_{l,CO_2}/D_{l,O_2}$  とおおむね一致し、式(2.2.6)が成立する可能性が示された(投稿中の雑誌に掲載予定図のため未掲載)。一方、同確認では流動条件の影響等を十分に考慮できたとは言えないため、更に継続した確認が必要である。



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、原子力規制庁、「共同研究報告書 ソースターム評価における FP 移行挙動モデルの不確かさ低減に関する研究」、2022。(公表準備中)<sup>13</sup>

図 2.2.15 気泡塔実験装置の概略図

Figure 2.2.15 Schematic view of bubble column reactor



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、原子力規制庁、「共同研究報告書 ソースターム評価における FP 移行挙動モデルの不確かさ低減に関する研究」、2022。(公表準備中)<sup>13</sup>

図 2.2.16 窒素フロー時の溶存酸素濃度の変化

Figure 2.2.16 Dissolved oxygen history during a N<sub>2</sub> flow

## 2.2.6 CsI 放出実験

CsI 放出実験については、福井大学との共同研究によって実施した。以下にその成果をまとめる<sup>12,54</sup>。本研究の目的は MELCOR 等の SA 総合解析コードにおいて CsI の化学種に関する放出速度のデータ（放出速度係数）を算出することである。

MELCOR では FP が燃料より放出する際に CORSOR モデル等の放出モデル（後述）が使用されているが、MELCOR マニュアルでは一部モデルにおける CsI 等分子化合物の係数が 0、すなわちモデルにおいてこれら分子化合物が考慮されていない設定となっている。このため、本研究では分子化合物の代表として CsI を選択して、当該係数を導出する手法の検討のため、試料作製、分子化合物の測定手法、データ解析による係数導出、そして得られた係数を用いて MELCOR による試解析を実施した。本研究では以下の 4 項目で説明する。

- (1) 分子化合物を混合した模擬燃料試料の作製及び妥当性確認
- (2) 質量分析装置によるデータの測定
- (3) 化学種の放出速度に関する係数の導出
- (4) MELCOR コードを用いた評価

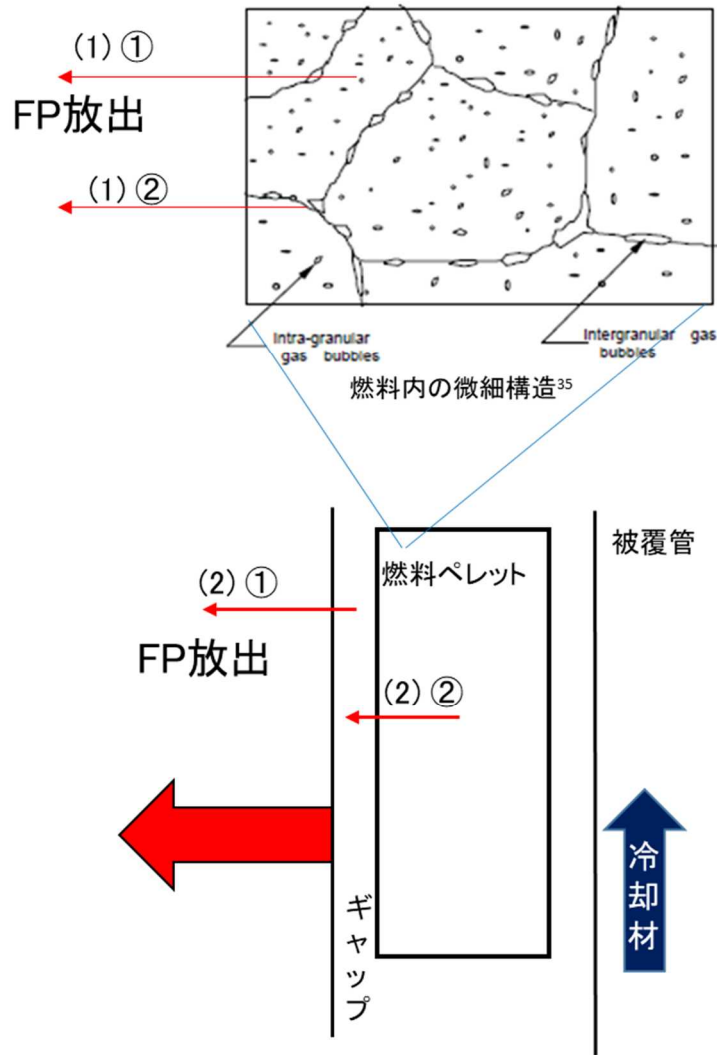
### (1) 分子化合物を混合した模擬燃料試料の作製及び妥当性確認

本研究の目的のためには、CsI の化学系を考慮した FP 放出実験を実施する必要がある。しかしながら、実燃料を用いた実験は実施できる環境・条件が限られること及び測定対象以外の FP の混入は測定時のノイズ軽減のため望ましくないことから、「CsI を混合させた模擬燃料」の作製を行った。

まず、試料作製に当たって燃料から炉内に放出される FP の発生経路を図 2.2.17 を用いて説明する。FP は燃料であるウラン-235 が原子力発電所が運転する際の核分裂により発生するが、これらは焼結されセラミックとなっている  $UO_2$  の粒内で発生すると考えられる（(1)）。発生した FP は、時間をかけて  $UO_2$  粒同士との境界面（結晶粒界）に移行していく（(1)）。結晶粒界に移行した FP は、燃料と被覆管の間にある空間（ギャップ）へ放出・蓄積される（(2)）。原子力発電所でシビアアクシデントが発生した際には、この被覆管が破損することでギャップに蓄積された FP が放出し（(2)）、シビアアクシデントの進行度合いに伴って様々な物理現象の影響を受けて炉内を移行し、最終的に環境に放出される。

試料作製に当たっては、この燃料ペレットをミクロの視点で見た際の結晶粒界から放出される FP、特に環境放出された際に空間線量等の評価で重要とされる CsI を対象としている。そのため、実燃料相当の結晶構造や粒径を得るため模擬物質の選定や試料作成による検討を行った。

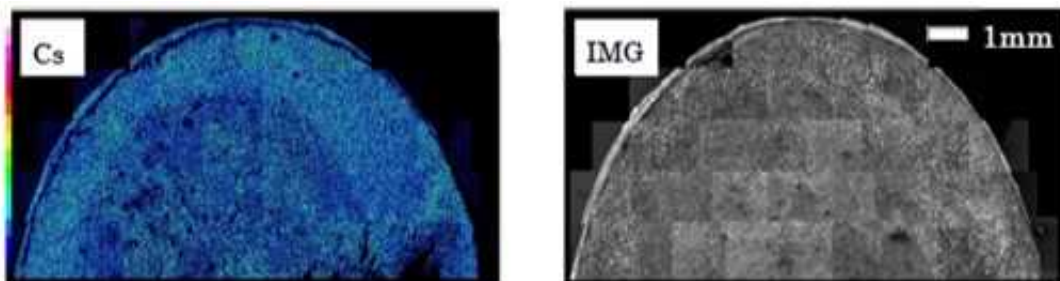




出典) 国立大学法人福井大学、原子力規制庁、「共同研究報告書 ソースターム評価におけるFPの化学種毎における放出速度の導出及び新規モデルに関する研究」、2022。(公表準備中)<sup>12</sup>

図 2.2.17 燃料ペレット内の微細構造とFP放出

Figure 2.2.17 Microstructure in fuel pellets and FP release



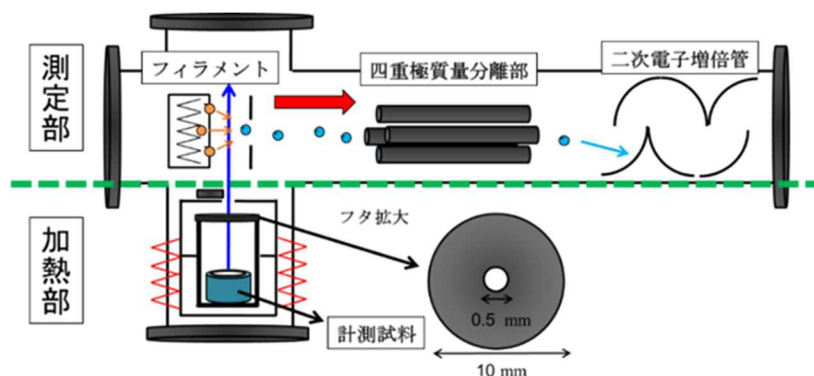
出典) 藤原卓真、有田裕二、「模擬燃料ペレットからのCs化合物放出に関する基礎的評価」、一般社団法人日本原子力学会 2020年秋の大会、2E18、2022.<sup>54</sup>

図 2.2.18 SEM/EDS による作製試料内のCs分布

Figure 2.2.18 Cs distribution in the production sample by SEM/EDS

## (2) 質量分析装置によるデータの測定

四重極型質量分析器と加熱炉を組み合わせた測定装置を用いて、(1)で作製した試料を加熱し、放出される CsI ガスを質量分析器を用いて測定した。測定の際の対象ガスのイオン化に電子衝撃法を用いていることから、測定されるデータは CsI だけでなく、Cs や I 等のフラグメントと呼ばれるものまで観測された。



出典) 国立大学法人福井大学、原子力規制庁、「共同研究報告書 ソースターム評価における FP の化学種毎における放出速度の導出及び新規モデルに関する研究」、2022。(公表準備中)<sup>12</sup>

図 2.2.19 四重極型質量分析器の模式図

Figure 2.2.19 Schematic diagram of quadrupole mass spectrometer

## (3) 化学種の放出速度に関する係数の導出<sup>46</sup>

燃料から放出する FP の量は、燃料に内蔵されるインベントリがある時間においてどの程度放出されたかの割合で計算される。したがって、ある時間における FP の放出量は以下の式で表される。

$$\text{放出量} = \text{初期インベントリ} \cdot F_i \cdots \cdots \cdots \quad (2.2.7)$$

ここで  $F_i$  は、ある時間における燃料から放出される放射性核種  $i$  の放出割合である。この式から特定の時間における各 FP の放出量を求める。MELCOR ではこの  $F_i$  を求める際に用いるモデルとして、CORSOR モデル、CORSOR-M モデル及び CORSOR-Booth モデルの三つがあり、使用するモデルはユーザーが選択することができる。この中で MELCOR1.8.5 以前に MELCOR マニュアルでデフォルトとして設定されているものが CORSOR-M モデル、MELCOR2 以降のデフォルトは CORSOR-Booth モデルである。これらは FP のクラスごと、すなわち希ガス、ハロゲン、アルカリ金属等、特定の元素という形ではなく特性が似ているものをグループ分けし、それらについて放出に係る係数が設定されている。これらは基本的には元素で放出されるものとしているが、CsI と  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  等一部の分子化合物については特に着目してクラスが設定されている。これらの放出に係る係数は、クラスごと、そして使用するモデルごとに異なる。

しかしながら、これら分子化合物の係数はクラスを設定しているにもかかわらず、CORSOR モデル及び CORSOR-M モデルにおいては係数が 0 となっており、化学形態を考慮していない。CORSOR-Booth に関しては、MELCOR2 で CsI 等に対する係数が設定されているが、CORSOR-Booth モデルが半理論式であり燃料から放出する CsI をリアルタイムで測定したわけではない。このため(2)で CsI をリアルタイムで測定したデータから、CORSOR モデル等における CsI の放出に係る係数を導出した。

CORSOR モデル等については本項で以下のとおり紹介する。本研究で導出したのは、下記における  $Q$  と  $k_0$  及び  $D_0$  である。

### CORSOR モデル

CORSOR モデル及び CORSOR-M モデルにおいては、 $F_i$  は以下の式で表される。

$$F_i = 1 - \exp(-k_i \cdot t) \dots \dots \dots (2.2.8)$$

ここで  $k_i$  は放射性核種  $i$  のある温度における放出速度係数 ( $\text{min}^{-1}$ )、 $t$  は時間 ( $\text{min}$ ) である。この放出速度係数を求めるためのモデルが、前章で実施された実燃料を用いた実験より、いくつか考案された。本章ではそのモデル及びこれらのモデルの MELCOR での実装状況を説明する。

過去に実施した数々の FP 放出実験の結果から、放出速度係数を求めるために最初に考案されたモデルが CORSOR モデルである。このモデルは核種  $i$  それぞれに対して特定の係数を指定することで放出速度係数を算出している。この CORSOR モデルは以下の式で表される。

$$k = A \cdot \exp(B \cdot T) \dots \dots \dots (2.2.9)$$

ここで  $A$  及び  $B$  はクラスごとに固定の係数、 $T$  は温度 (K) を表す。この式が示すとおり、温度  $T$  を上昇させるに従い放出速度係数は無限に上昇していく。そのため、最終的に放出速度係数は発散してしまう式となっている。この対策のために、CORSOR モデルは温度ごとに各係数を設定している。具体的には、900 ~ 1400 °C、1400 °C ~ 2400 °C、2400 °C ~ という三つの温度領域で係数が決定されている。この三つの領域で放出割合の係数が異なるため、温度領域ごとに係数を決定する手間がかかることと、温度領域の境目で不連続性が出てしまう。

### CORSOR-M モデル

CORSOR モデルは三つの温度領域ごとに係数  $A$  及び  $B$  を決定しなければならず、また温度領域の境目で不連続性が生じることから、放出速度係数  $k$  を求めるために CORSOR-M モデルというものも考案された。CORSOR-M モデルは次の式で表される。

$$k = k_0 \cdot \exp\left(-\frac{Q}{R \cdot T}\right) \dots \dots \dots (2.2.10)$$

ここで  $k_0$  は頻度因子係数( $\text{min}^{-1}$ )、 $Q$  は活性化エネルギー ( kcal )、 $R$  は気体定数( $\text{K/kcal}$ )、 $T$  は温度 ( K ) である。この式のとおり、温度を上げるほど  $k$  は一定の値 ( $k_0$ ) に近づく式となっている。このため、 $k$  は温度に対して収束する式となっており、そのため核種ごとに設定する係数が一つでよいという利点がある。また前節の CORSOR モデルでは温度領域ごとの不連続性があったが、本モデルではそれも解消されている。

#### CORSOR-Booth モデル

FP は  $\text{UO}_2$  粒内を拡散して結晶粒界に移行するという現象であることから、Fick の拡散理論を用いて考案されたモデルが CORSOR-Booth モデルである。

本モデルは前節までの二つのモデルの放出量である式(2.2.8)を用いず、条件によって式を使い分けるモデルとなっている。

$$F = 6 \cdot \sqrt{\frac{D \cdot t}{\pi a^2}} - 3 \frac{D \cdot t}{a^2} \quad \left( \frac{D \cdot t}{a^2} \leq \frac{1}{\pi^2} \right) \dots \dots \dots (2.2.11)$$

$$F = 1 - \frac{6}{\pi^2} \cdot \exp\left(\frac{\pi^2 \cdot D \cdot t}{a^2}\right) \quad \left( \frac{D \cdot t}{a^2} > \frac{1}{\pi^2} \right) \dots \dots \dots (2.2.12)$$

ここで  $F$  は Cs の放出割合、 $D$  は Cs の拡散係数( $\text{m}^2/\text{sec}$ )、 $t$  は時間 ( sec )、 $a$  は  $\text{UO}_2$  の結晶粒径( $\text{m}$ )である。上述のとおり、本モデルはまず Cs の放出量を求めることから始める。

また、この拡散係数  $D$  は Fick の拡散理論式を用いて算出しているが、その際にいくつかの仮定をおいている。その仮定は  $\text{UO}_2$  粒は球形であること 結晶粒界には FP が存在しないことである。この仮定から、

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \cdot \nabla^2 \cdot C \dots \dots \dots (2.2.13)$$

ここで FP 濃度の時間変化を放出量  $F$  と仮定すると

$$F = D \cdot \nabla^2 \cdot C \dots \dots \dots (2.2.14)$$

上式を解くことで、 $D$  に対する以下の式が得られる。

$$D = D_0 \cdot \exp\left(-\frac{Q}{R \cdot T}\right) \dots \dots \dots (2.2.15)$$

ここで  $C$  はある燃料内の箇所の FP の濃度、 $t$  は時間 ( sec )、 $D$  は拡散係数( $\text{m}^2/\text{sec}$ )、 $\nabla^2$  は演算子、 $D_0$  は頻度因子係数( $\text{m}^2/\text{sec}$ )、 $Q$  は活性化エネルギー (  $\text{J}/(\text{kg} \cdot \text{mol})$  )、 $R$  は気体定数、 $T$  は温度 ( K ) である。またこの式が示すとおり、CORSOR-Booth モデルも温度に対して  $D_0$  に収束するモデルとなっている。

しかしながら、放出量を算出するまでには、クラスごとの放出量から更にスケールングファクターを掛けて算出するモデルとなっている。このスケールングファクターは既存の実験により決定されている。

#### (4) MELCOR コードを用いた評価

MELCOR に設定されている CORSOR 等三つのモデルにおける CsI の係数を、(3)で導出した係数にそれぞれ変更して解析を実施した。使用したモデルは PWR を模擬した試験炉であり、炉内から放出した FP の放出割合も測定されていることから、比較し評価を行った。この結果から、CsI の放出に対して、モデルごとに PHEBUS-FP 計画の試験データをより再現するものとし、しないものとの差が現れることを示した。

### 2.2.7 まとめ

以下、ソースタームに係る四つの実験について得られた成果をまとめる<sup>13, 12, 50, 51</sup>。

- ・ 「化学反応実験」については、実験装置 TeRRa を用いて、CsI と MoO<sub>3</sub> を試供材として化学反応実験を実施した。この実験結果から、CsI と MoO<sub>3</sub> が反応して Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> が生成することを確認した。また CsI と MoO<sub>3</sub> が反応するには、雰囲気中の酸素濃度が大きく影響することも確認した。この反応により、CsI のヨウ素が単離することも示唆された。今後はこの反応に影響を及ぼす雰囲気条件（参照条件）について実施し、データ拡充を図る。
- ・ 「再移行挙動実験」については、文献調査を実施し、移行挙動の四つの現象を SA 総合解析コードで扱う場合のモデルを整理して移行挙動において重要度の高い現象を評価した。
- ・ 「気相化学・物質移行実験」については、再揮発現象について文献調査を実施し、気泡塔実験装置及び TG/DTA-GC/MS 実験装置を整備して実験を実施した。また、二酸化炭素と気泡塔実験装置を用いた実験を実施し、再揮発現象に係るモデルの妥当性を確認した。さらに、TG/DTA-GC/MS 実験装置の性能確認を、CsI を用いて行い確認した。
- ・ 「CsI 放出実験」については、MELCOR 等で使用される燃料からの放出挙動を対象に、CsI についてのモデル式の調査や質量分析器を用いて実験を実施した。また、測定データから CsI の係数を評価して MELCOR による試解析を実施し、放出挙動の違いについて既往試験のデータと比較し評価した。

## 2.3 重大事故時格納容器熱流動実験

### 2.3.1 知見の調査及び実験範囲の検討

東京電力福島第一原子力発電所の事故において格納容器上部フランジの過温破損により格納容器外へ水素や放射性物質を含む気体が漏えいしたと考えられることから、フランジシール材が改良されるとともに、ウェル注水によって格納容器上部を外側から冷却する対策が取り入れられている。この対策による緩和効果や時間的余裕への影響を調査し、他の対策への影響等を評価することが重要であるが、特に重大事故時に想定される 300 °C 超の高温雰囲気条件での格納容器上部フランジ周囲の熱伝達に着目した大規模実験は実施された例がほとんどない。

重大事故時の格納容器の過温・過圧破損や水素等の成層化を防止する対策としては、上記の外面冷却の他、格納容器スプレイ及び格納容器ベントがあり、このときの主要な格納容器内重要現象は図 2.3.1 に示される。本実験開始に当たって、この中で知見の拡充が必要な格納容器内の熱流動現象は以下の四つにまとめられる。

- ① 多次元的な格納容器上部フランジ部の壁面熱伝達
- ② 多成分気体で構成される格納容器雰囲気の熱流動挙動
- ③ 格納容器ベントによる減圧及び雰囲気挙動
- ④ 格納容器スプレイによる冷却効果及び気体混合効果

ここで の重大事故時の格納容器過温破損に影響する高温気体とトップフランジの熱伝達については、外面冷却には良好な除熱効果が期待されているものの、その実機での効果を確認する必要があるため、実機相当の高温気体と格納容器構造（フランジ形状やフランジ合わせ面隙間）を考慮した定量的な壁面熱伝達に係る知見が必要である。 については、水素等が成層化した場合に、その成層化が下部に存在する熱源や格納容器外表面からの放熱による自然循環や高温気体のプリュームによって解消されることが期待される。しかし、駆動力が小さい自然循環による成層浸食及びその時の水素移行や混合の機構については知見が不足している。また、噴流やプリュームによる成層化の浸食については多くの既往研究<sup>63</sup>があるが、その浸食機構には浮力効果を考慮して定量的に評価することが重要であり、例えば横向き噴流では浮力効果が噴流の位置によって異なる非対称性があることが指摘されている<sup>64</sup>。さらに、 及び に関連して、格納容器外面冷却では格納容器内温度が高いほど自然循環が促進されることが期待され、その挙動は集中定数系コードを用いて簡易的に評価されているものの<sup>65</sup>、水素等が格納容器上部に成層化した場合の対流熱伝達や凝縮熱伝達への影響について知見が不足している。 及び については、ベント時の減圧に伴うサンプ水及び格納容器壁面上の液膜の蒸発やスプレイ液滴の蒸発による減圧及び水素排出への影響が指摘されており<sup>66, 67</sup>、それらに関連する知見が必要である。また、

スプレイについては、事故時にはその利用設備が制限される可能性があることから、スプレイの到達範囲が一部だった場合の水素希釈効果について知見を拡充する必要がある。

図 2.3.2 に重大事故時格納容器熱流動実験の概要を示す。上記で抽出された ~ の不確かさの大きい物理化学現象やスプレイ及びベントの効果について、特に重大事故時に想定される 300 °C超の高温雰囲気条件での知見を取得すること目的として、JAEA への委託により CIGMA を用いた以下の実験を実施する。

- ・ 格納容器上部フランジ冷却実験（及び に対応）
- ・ 外面冷却時熱流動実験（及び に対応）
- ・ 熱及び物質移行に関する基礎実験（ に対応）
- ・ 格納容器スプレイ時熱流動実験（ に対応）
- ・ 格納容器ベント時熱流動実験（ に対応）

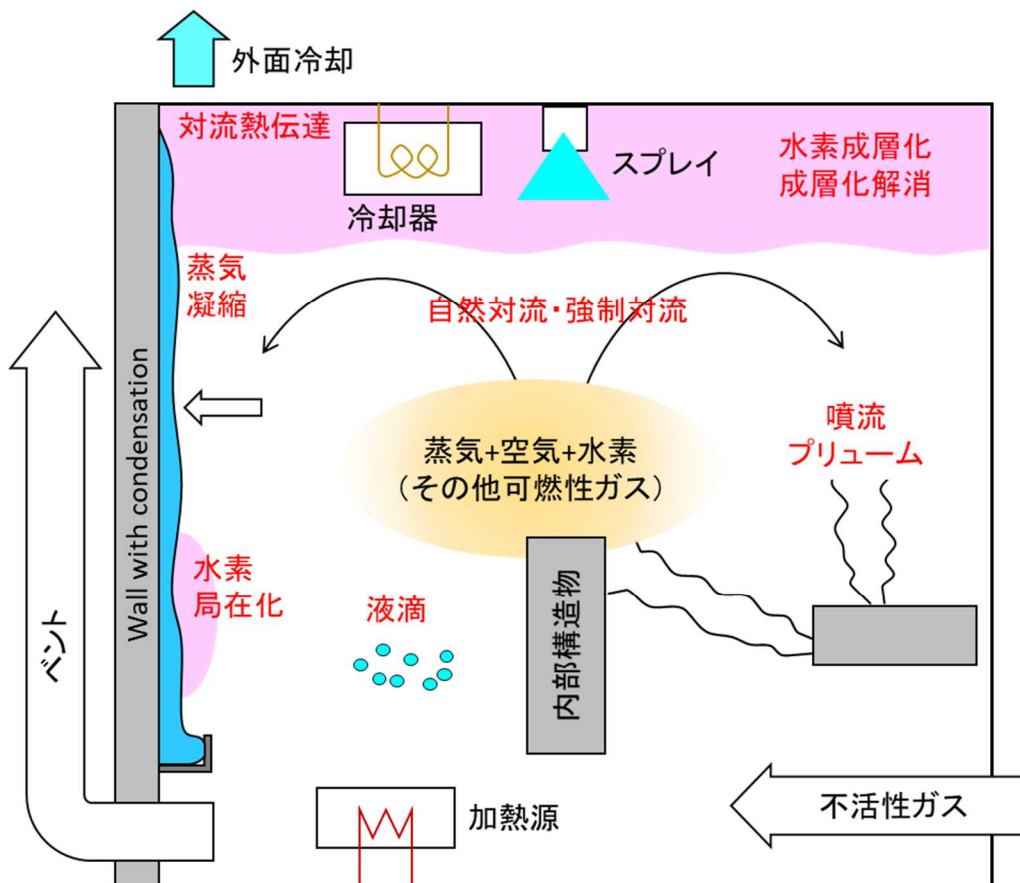


図 2.3.1 重大事故時の格納容器破損防止に関する主要な格納容器内重要現象

Figure 2.3.1 Important phenomenon related to prevention of the containment failure under severe accidents

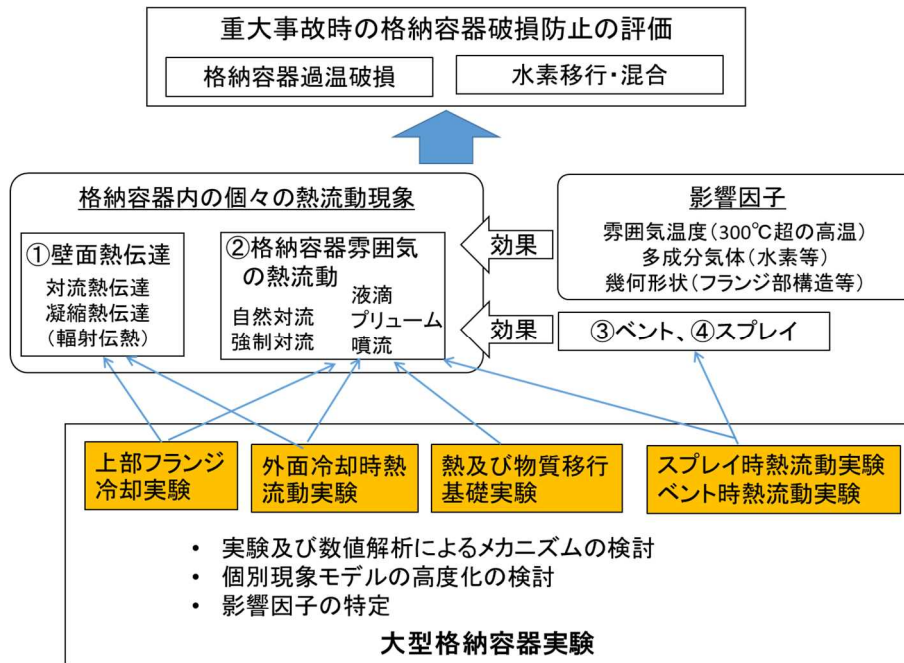


図 2.3.2 重大事故時格納容器熱流動実験の概要

Figure 2.3.2 Outline of experiments on thermal hydraulics inside the containment vessel under severe accidents

### 2.3.2 研究の進め方

前節で抽出した重大事故時の格納容器破損防止対策において想定される格納容器内の重要化学現象について知見を取得するため、図 2.3.3 のとおり令和 2 年度から令和 7 年度までの計画を立てて、個々の物理化学現象に関する実験を実施する。以下に 3 段階の実験計画について簡潔にまとめる。

- (1) 令和 2～3 年度：個々の物理化学現象に関する実験において、基本的な条件における実験を実施して、着目する物理現象を把握するとともに実験データベースを構築した。
- (2) 令和 4 年度：個々の物理化学現象に関する実験において、前ステップよりも高温条件や異なる事象シナリオを想定した条件等で実験を実施し、実験データを拡充する。ここでは前ステップ及び本ステップの実験結果から定量的な分析を行い、その機構を評価する。
- (3) 令和 5～6 年度：前ステップに引き続き実験条件を拡張して実験データベースを拡充するとともに、CFD 解析やモデルの高度化等を行い、重大事故時の格納容器破損防止対策の評価を検討する。

令和 7 年度に総合評価を行い取りまとめた知見を重大事故時の格納容器破損防止対策の評価に活用する。

本章の内容は、令和 2 年度及び令和 3 年度に実施した JAEA への委託による成果をまとめたものである<sup>20, 29</sup>。



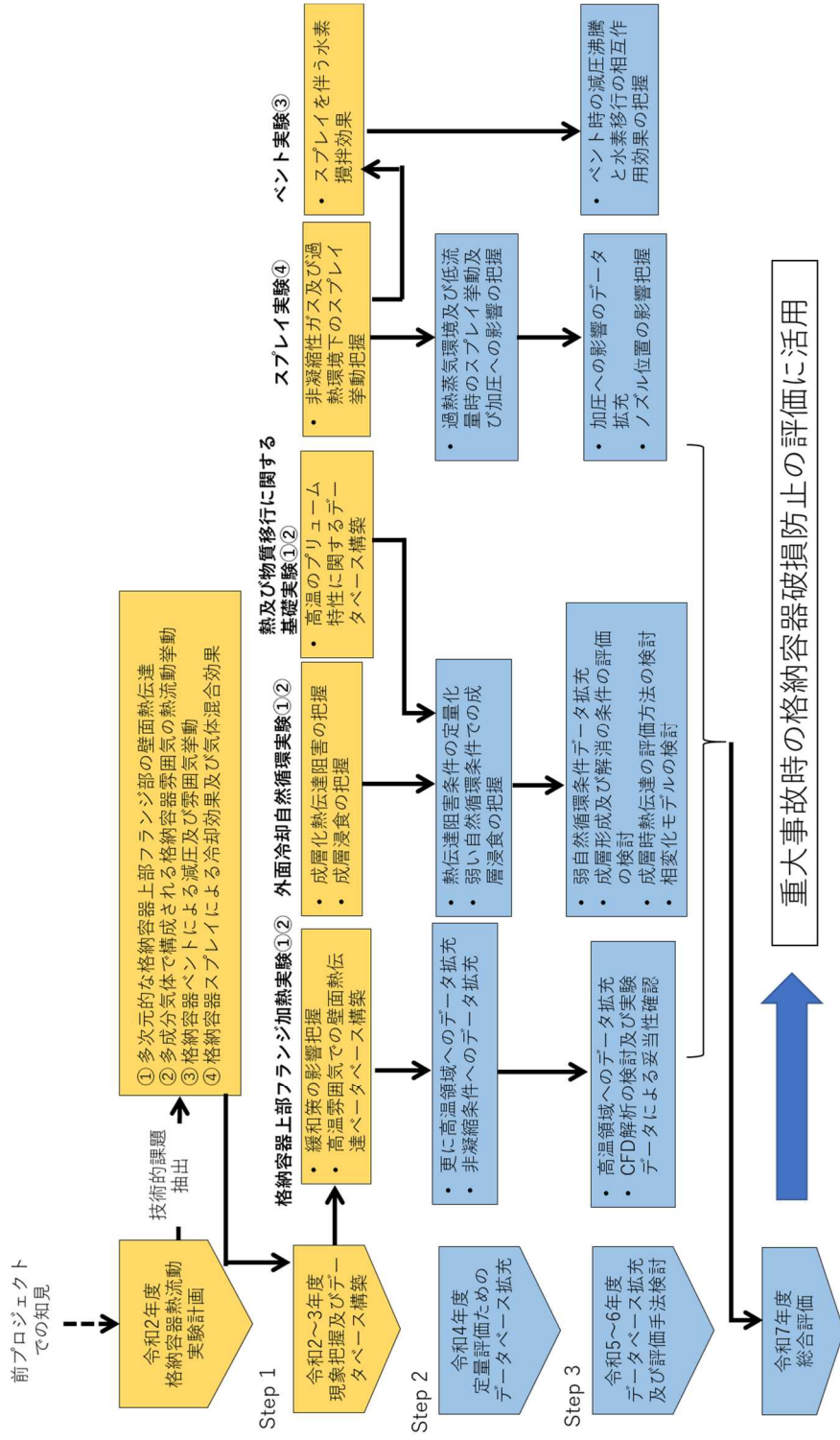


図 2.3.3 重大事故時格納容器熱流動実験の計画

Figure 2.3.3 Plan for experiments of thermal hydraulics inside the containment vessel under severe accident

### 2.3.3 格納容器上部フランジ冷却実験

JAEA への委託事業により、格納容器上部フランジ加熱時における高温気体とトップフランジの熱伝達及び種々の AM 策による冷却効果を把握するための実験を実施した<sup>5,6</sup>。重大事故時に原子炉一次系から格納容器に噴出した蒸気により、格納容器壁が直接加熱されることで、原子炉格納容器の閉じ込め機能が喪失する可能性がある。例えば、事故時に発生する高温蒸気で格納容器上部や圧力境界であるフランジが過熱されてフランジを緊結するボルトが高温及び格納容器内圧によって熱伸びし、フランジ面に有意な隙間が生じることが閉じ込め機能の低下の原因になると指摘されており<sup>68</sup>、東京電力福島第一原子力発電所事故においても同様のメカニズムが指摘されている。本実験では、この現象に関連して CIGMA 装置の上部フランジに高温の気体を噴射し、衝突領域及びフランジ面やフランジの間に挿入されたガスケット付近の温度上昇を測定した。CIGMA 装置の上部フランジはその隙間を制御できる仕様ではないが、隙間部分の温度上昇は、フランジの熱容量や隙間流路幅、衝突する噴流の速度や温度によって決まり、隙間部の温度上昇を数値解析で評価する上で有用なデータとなる。CIGMA 装置は最高 600 °C 以上の高温蒸気を生成する能力を有し、高い温度での実験データを取得することが可能である。

本実験は、容器内初期雰囲気は大気圧空気とし、衝突させる蒸気流量は CIGMA 装置の最大容量である 70 g/s (ボイラー出力 200 kW 相当)、最高温度は 570 °C としてフランジ面に垂直に衝突させた<sup>28,29</sup>。実験の模式図と熱電対の位置を図 2.3.4 に示す。実験条件は、表 2.3.1 のとおり、下部排気ライン (底部バルブ) を開放し容器内を大気圧に維持したケース (JT-SJ10 及び JT-SJ11) と下部排気ラインを閉じて加圧条件になるケース (JT-SJ-12) (ベースケース) さらに閉じた体系において、格納容器減圧、原子炉ウェル冷却 (上部フランジ外面冷却) 格納容器スプレイの 3 通りの冷却操作の AM 策を模擬した運転を行い、フランジ部分の昇温挙動への影響を定性的に調査したケース (JT-SJ-13~ JT-SJ-15) にまとめられる。

図 2.3.5 に AM 策を実施しない条件 (JT-SJ-12) とその後に AM 策を施した条件 (JT-SJ-13~ JT-SJ-15) の圧力変化を示す。図 2.3.6 には、噴流がフランジ面に衝突する付近のフランジ内面温度、図 2.3.7 にはフランジのガスケット内外に挿入した熱電対温度の時系列変化をそれぞれ示す。衝突するプレュームの蒸気温度は時刻 2000 秒付近では 500 °C を超え、その後 570 °C の一定値に漸近する。容器を閉じた条件 (ベースケース: JT-SJ-12) では、実験の期間中に圧力が上昇し、フランジ面温度及びガスケット内外面温度も上昇し続ける。ガスケット内部へは熱伝導や熱伝達及び衝突ジェットの高温度の蒸気の侵入し温度が上昇するが、フランジ面との温度差を保持して推移し、本実験体系ではその差は 40 °C 程度であった。時刻約 2000 秒付近でフランジ面温度が階段状に昇温するのは、フランジ面温度が蒸気の飽和温度を超えて過熱するからであり、この期間は蒸気温度が 570 °C の一定値に向かって昇温する。容器最上部の加熱により上部には温度成層が形成され、噴流の注入が継続す

る間、温度成層形成が持続する。一方、このベースケースに対して、排気（時刻約 11000 秒）原子炉ウェル冷却とスプレイ（いずれも時刻約 3200 秒）の AM 操作を施したケース（JT-SJ-13~ JT-SJ-15）では、減圧の効果は排気が大きく（図 2.3.5）フランジ及びガスケット付近の冷却効果は原子炉ウェル冷却によるものが大きいことが分かる（図 2.3.6 及び図 2.3.7）。それぞれの操作のタイミングを表 2.3.1 に示す。図 2.3.7 に示すように、原子炉ウェル冷却（JT-SJ-14）時のガスケットの外側は注水時に室温付近まで下がった後も 100 °C 以下に抑制され、ガスケットの容器内側温度も最大で 130 °C より下に留まる。ガスケット内外の最終的な温度差は約 50 °C 程度である。一方でスプレイ冷却（JT-SJ-15）ではスプレイ水はフランジ面に直接接触しないので、容器内の対流や蒸気凝縮に伴う減圧による冷却効果に留まり、何も対策を施さない JT-SJ-12 と比較して温度差は 30 °C 程度である。フランジ部への高温ガスの侵入やそれに伴う温度上昇は体系の熱容量だけでなく幾何学形状にも強く依存する結果となった。

表 2.3.1 格納容器上部フランジ冷却実験の実験条件

Table 2.3.1 Experimental conditions on containment top head flange heating experiments

|       |       | JT-SJ-10,11 | JT-SJ-12  | JT-SJ-13 | JT-SJ-14 | JT-SJ-15      |
|-------|-------|-------------|-----------|----------|----------|---------------|
| 初期条件  | 容器内圧力 | 大気圧         |           |          |          |               |
|       | 容器内温度 | 室温（約 25 °C） |           |          |          |               |
| 境界条件  | 蒸気流量  | 70 g/s      |           |          |          |               |
|       | 蒸気温度  | 570 °C      |           |          |          |               |
|       | 容器下部弁 | 開           | 閉         | 閉        | 閉        | 閉             |
| 事故緩和策 |       | 無           | 無         | 排気       | 外面冷却     | スプレイ          |
| 備考    |       |             | ベースケ<br>ス |          |          | サンプル満<br>水で終了 |

排気：ベント弁開（容器内圧力 0.6 MPa）閉（同 0.3 MPa）

外面冷却：上部フランジ温度 180 °C で開始

スプレイ：上部フランジ温度 181 °C で開始、流量 0.19 kg/s（BWR 定格の 1 / 10 程度）

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 年度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査）事業 成果報告書」、2022.<sup>29</sup>

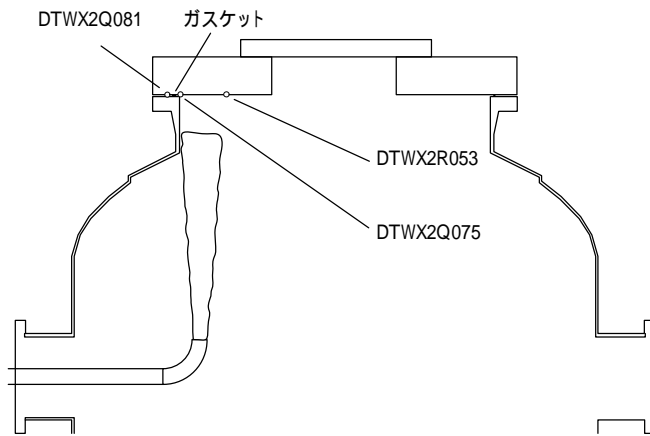
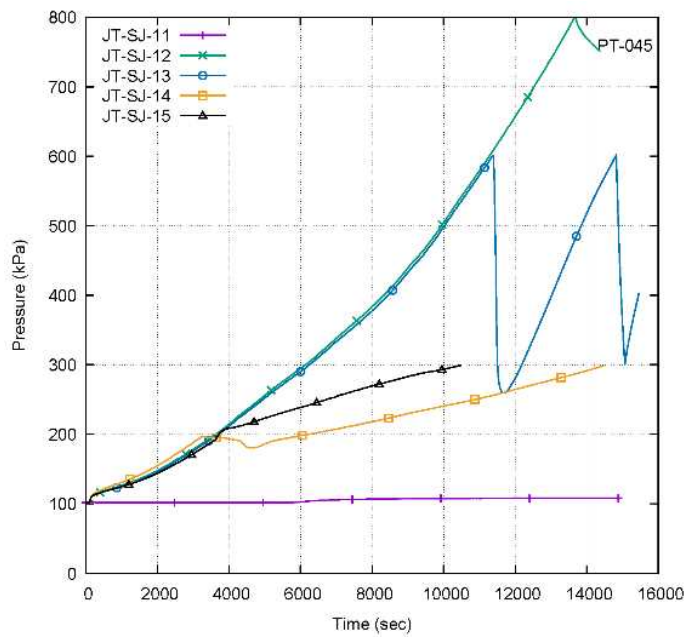


図 2.3.4 格納容器上部フランジ冷却実験の模式図

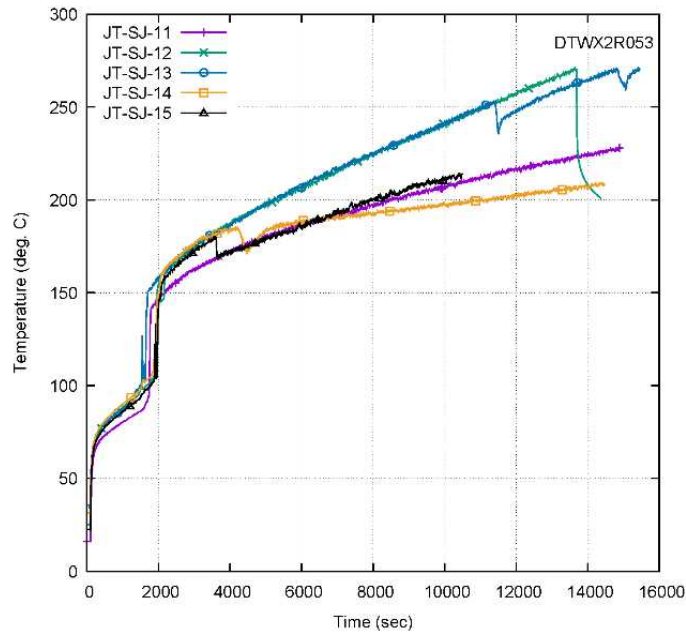
Figure 2.3.4 Schematic view of containment top head flange cooling experiments



出典)国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業 成果報告書」, 2022.<sup>29</sup>

図 2.3.5 実験部の圧力変化

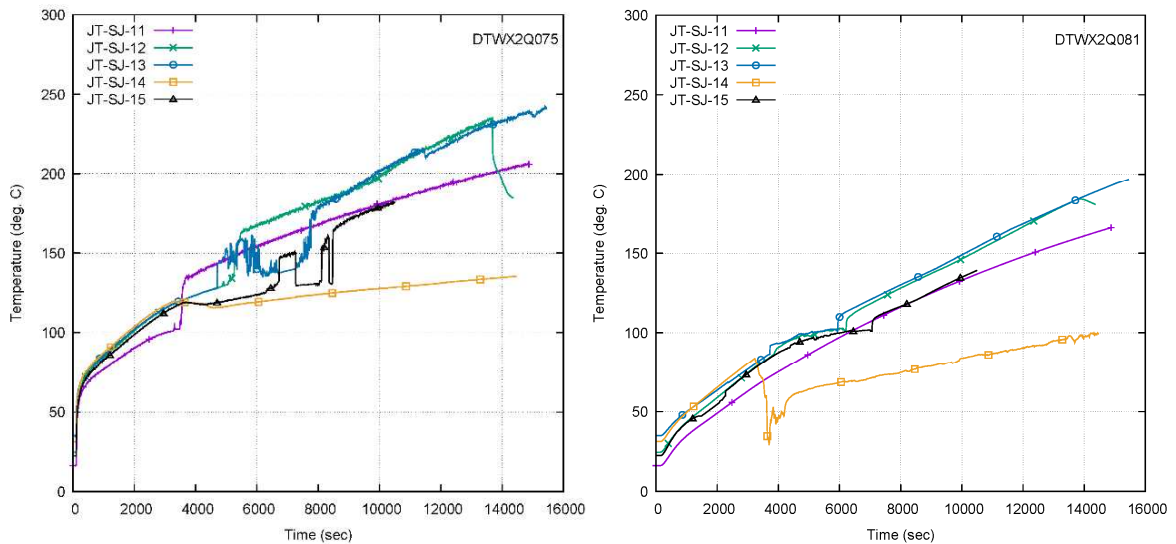
Figure 2.3.5 Pressure changes at the test section



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業 成果報告書」、2022.<sup>29</sup>

図 2.3.6 フランジ内表面温度 (DTWX2R053) 変化

Figure 2.3.6 Flange surface temperature (DTWX2R035) changes



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業 成果報告書」、2022.<sup>29</sup>

図 2.3.7 ガasket容器内側 (DTWX2Q075) と容器外側 (DTWX2Q081) の温度変化  
Figure 2.3.7 Gasket container inner (DTWX2Q075) and outer surface temperature (DTWX2Q081) changes

#### 2.3.4 外面冷却時熱流動実験

JAEA への委託事業により、外面冷却時の多次元的な格納容器上部フランジ部の壁面熱伝達並びに多成分気体で構成される格納容器雰囲気内の熱流動挙動を把握するため、外面冷却自然循環実験を実施した<sup>5,6</sup>。原子炉ウエルの水張りによる外面冷却はBWRの重大事故の緩和策の一つとして採用されている。対策は本来、格納容器上部フランジのシール材の過温を防ぐことを目的としたものであるが(図 2.3.8)、格納容器上部ヘッド全体を冠水することで格納容器内部気体の冷却にも寄与することも期待できる<sup>65</sup>。この際、格納容器内に水素等の密度の小さい非凝縮性気体が伝熱面(凝縮面)に蓄積して伝熱阻害になることが懸念される。本実験では、CIGMA装置を用いた模擬実験を実施し、外面冷却の成立性検討や熱伝達の予測性能の向上に資する実験データベースの構築を行った<sup>28,29</sup>。

外面冷却を模擬した実験は前プロジェクトでも実施しており、実験容器内を蒸気や空気、ヘリウムの混合気体であらかじめ加圧し、容器を隔離した状態で容器に接する外側のプールに注水して外面冷却を実施し、閉じた系において容器内の気体挙動や冷却挙動との関係を調査した<sup>69,70</sup>。これに対して、本プロジェクトでは実際の条件を考慮して実験容器内に蒸気やヘリウムが継続して注入される体系での実験を行った。実験の様子を図 2.3.9 に示す。令和2年度は凝縮面に向けて垂直上向きにヘリウムを含む蒸気を注入し、令和3年度は後述するように容器の横からプルームを注入した。実験条件を表 2.3.2 に示す。注入される蒸気やヘリウムの流量は事故状況を考察して検討し、格納容器体積で規格化した値を用いた。蒸気流量範囲は、格納容器体積比でスクラム後24時間頃の蒸気流量(25~36 g/s)程度に相当し、ヘリウムは蒸気と混合して注入し、注入流量の2 g/s × 1000 秒は格納容器体積当たり換算で全炉心のジルカロイの10~15%が酸化して生成した水素質量に相当する。また、上部プールの冷却条件として、平成28年度及び令和2年度の実験ではプールに冷却水を溜める方法を採用したが、令和3年度はプールに水を溜めずに格納容器上部フランジに室温の冷却水をかけ続ける方法を採用した。ただし、この際にプール内の水位調整をしなかったため、上部フランジは冠水しておらず、冷却水の温度にも違いがあり、冷却条件は年度によって多少異なる。以下の実験結果の説明には前プロジェクトで実施した閉じた系の結果も用いる。

閉じた系と注入体系では気体の注入条件やその結果としての凝縮面での流れの乱れによってヘリウム成層の蓄積に違いが見られた。図 2.3.10 に過年度に実施された閉じた系でのヘリウムの容器鉛直方向の濃度分布、図 2.3.11 には令和2年度に実施した注入体系での同図を示す。図中ではそれぞれ左に蒸気-ヘリウム2成分系、右に蒸気-ヘリウム-空気3成分系での結果を示す。閉じた系では外面冷却の開始とともに容器天井の凝縮面に高濃度のヘリウム成層が形成される。ここで、ヘリウムが天井面に蓄積する理由は、冷却によって水蒸気が凝縮した後に残されるヘリウムを含む成層の密度が周囲気体の密度よりも小さいためと考えられる<sup>69,70</sup>。3成分系では冷却開始直後にヘリウム高濃度成層が形成されるが、その後の冷却の進展によって、空気とヘリウムの混合が進み(単体気体の密度は空気 > 水

蒸気 > ヘリウムの順番で軽い) 成層密度が周囲気体より大きくなることで成層が解消される。一方で、蒸気-ヘリウム 2 成分系では非凝縮ガスがヘリウムのみであるため、凝縮面に形成される成層は常に周囲気体よりも小さい条件が持続され、成層形成は解消されない。これに対し、図 2.3.11 に示す実験容器内に気体を注入する実験では、2 成分系と 3 成分系いずれにおいても凝縮面でのヘリウム高濃度成層は観察されなかった。特に、蒸気-ヘリウム 2 成分系では水蒸気凝縮後に形成される成層の密度は周囲気体よりも確実に小さくなるのが予想されるが、実験では成層形成は無く、気体放出高さより上部では高さ方向に均質な濃度勾配となった。ただし、冷却面の熱伝達効果には両者で違いが現れ、後述するように、空気相が存在する 3 成分系の CC-PL-39 のほうが、2 成分系条件の CC-PL-38 よりも冷却効果が低く、同じ蒸気注入条件に対して最終的な系圧力の漸近値が高くなった。これは、冷却面の熱伝達機構や水蒸気移行が冷却面付近の蒸気分圧に影響されることも一因と考えられる。なお、実機では格納容器の上部ヘッドに高濃度の水蒸気が蓄積されることが予想されることから、水蒸気-ヘリウム 2 成分体系の条件に近くなると考えられる。この条件では、蒸気凝縮によってヘリウムが冷却面に残り残されることが予想されるが、図 2.3.11 ではそのような結果にならず、ヘリウムの蓄積は伝熱面近傍の局所的な気体組成だけでなく、気相流れによる攪拌等にも影響を受けたことが予想される。このことを更に調査するために、令和 3 年度には凝縮面の乱れが緩和されるように、容器の側面から蒸気とヘリウムの混合気体を注入することで上向き流れを浮力によるものに制限するとともに、蒸気流量も令和 2 年度の 35 g/s から 15 g/s へと減少させた実験を実施した(表 2.3.2 : CC-PL-43 ~ CC-PL-49)。図 2.3.12 に蒸気-ヘリウムの 2 成分系条件での各実験の鉛直方向のヘリウム濃度分布の時間変化を示す。表 2.3.2 に示されるように、各実験条件は、CC-PL-44 (蒸気流量 15 g/s、実験開始直後に外面冷却開始) をベースケースとして、CC-PL-43 (実験開始後 1000 秒で外面冷却を開始)、CC-PL-45 (5000 秒で外面冷却開始)、CC-PL-46 (実験開始後 1000 秒で外面冷却を開始かつ蒸気注入流量を 30 g/s) である。本実験では、いずれの場合も、冷却・凝縮面でヘリウムの蓄積が観察され、最上部(高さ 10 m)のヘリウム成層の濃度は 90%以上と高い。しかし、その直下の高さ 9.7 m 地点の濃度計測結果は 50%程度に下がり、蒸気流量が大きい条件(CC-PL-46)では高さ 9.7 m 地点のヘリウム濃度も 10%程度まで低下した。すなわち、形成されたヘリウム成層は、濃度が高いものの厚さは薄いことが分かる。これはヘリウムの注入量にも依存する。図 2.3.13 には、表 2.3.2 に示した全てのケースの実験容器の圧力時間変化を示す。閉じた系(CC-PL-09 及び CC-PL-12)ではヘリウム成層が形成され、両者の比較では CC-PL-09 で圧力低下速度が極端に遅くなり、成層による伝熱障害が確認された。一方、同じくヘリウム高濃度成層が形成された横向き注入条件である CC-PL-43 ~ 46 の結果を見ると、空気が混入した条件(ここでは示さないが空気混入条件ではヘリウム成層が形成されていない)と比較して減圧が緩慢であるものの、その差はさほど大きくないことが分かる。すなわち、高濃度ヘリウム成層が形成されるものの、成層の厚さが薄いために伝熱の障害については大きな差が出ていないと推測さ

れる。CC-PL-43 及び CC-PL-46 の比較においてその差が顕著に表れており、図 2.3.12 に示されるように両者ともヘリウム成層が形成されるが、高さ 9.7 m でのヘリウム濃度は CC-PL-43 では 50 % 程度に保たれるのに対し、CC-PL-46 では 10 % 程度の低下している。この差が圧力挙動の特徴にも現れ、両者は蒸気注入量が 2 倍違うにもかかわらず減圧速度にはほとんど差がなく（図 2.3.13 の左下図）成層の僅かな厚さの差が圧力挙動に大きく影響することが分かる。なお、令和 3 年度の実験でヘリウム成層が厚くならなかった原因としては、ヘリウムの注入流量が少ないこと（全炉心の 10～15 % のジルカロイ酸化を想定）や、上部プールにおいてフランジが冠水せずにフランジの一部が冷却不足となっていた可能性もある。

表 2.3.2 外面冷却時熱流動実験の実験条件

Table 2.3.2 Experimental conditions on external cooling thermal hydraulics experiments

|          | CC-PL-09    | CC-PL-12 | CC-PL-38 | CC-PL-39 | CC-PL-43 | CC-PL-44             | CC-PL-45 | CC-PL-46 | CC-PL-47 | CC-PL-48 | CC-PL-49 |        |
|----------|-------------|----------|----------|----------|----------|----------------------|----------|----------|----------|----------|----------|--------|
| 実施年度     | H28         |          | R2       |          | R3       |                      |          |          |          |          |          |        |
| 初期条件     | 圧力 (kpa)    | 450      |          | 150      |          | 150                  |          |          |          |          |          |        |
|          | 温度 (°C)     | 150      |          | ~150     |          | 160                  |          |          |          |          |          |        |
| ガス組成 (%) | 蒸気          | 84       | 70       | 100      | 10       | 100                  | 100      | 100      | 100      | 52       | 76       | 84     |
|          | 空気          | 0        | 15       | 0        | 90       | 0                    | 0        | 0        | 0        | 48       | 24       | 16     |
|          | He          | 16       | 15       | 0        | 0        | 0                    | 0        | 0        | 0        | 0        | 0        | 0      |
|          | He 流量 (g/s) | 0        | 0        | 35       | 35       | 15                   | 15       | 15       | 30       | 15       | 15       | 15     |
| 注入条件     | 蒸気注入時間      | -        | -        | 連続       | 連続       | 連続                   | 連続       | 連続       | 連続       | 連続       | 連続       | 連続     |
|          | He 流量 (g/s) | 0        | 0        | 2        | 2        | 2                    | 2        | 2        | 2        | 2        | 2        | 2      |
|          | He 注入時間 (s) | -        | -        | 0-1000   | 0-1000   | 0-1000               | 0-1000   | 0-1000   | 0-1000   | 0-1000   | 0-1000   | 0-1000 |
|          | 注入の向き       | -        | -        | 鉛直上向     | 鉛直上向     | 水平                   | 水平       | 水平       | 水平       | 水平       | 水平       | 水平     |
| 外面冷却     | 位置と状況       | 上部プール冠水  |          | 上部プール冠水  |          | 上部プールに連続注水し、溜めずに流下する |          |          |          |          |          |        |
|          | 注水温度 (°C)   | 室温       |          | 95       | 95       | 室温                   |          |          |          |          |          |        |
|          | 注水時間 (s)    | 0 1000   | 0 1000   | 0 950    | 0 950    | 1000                 | 0        | 5000     | 1000     | 1000     | 1000     | 1000   |
| 備考       |             | 閉じた系     | 閉じた系     | 垂直注入     | 垂直注入     | 水平注入                 | 水平注入     | 水平注入     | 水平注入     | 水平注入     | 水平注入     | 水平注入   |
|          |             | 2成分      | 3成分      | 2成分      | 3成分      | 2成分                  | 2成分      | 2成分      | 2成分      | 3成分      | 3成分      | 3成分    |
|          |             | -        | -        | -        | -        | 冷却時刻                 | -        | 冷却時刻     | 蒸気流量     | -        | -        | -      |

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「平成 28 年度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査）事業に関する報告書」、

2017.<sup>30</sup>

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査）事業に関する報告書」、2021.<sup>20</sup>

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 年度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査）事業 成果報告書」、2022.<sup>29</sup>



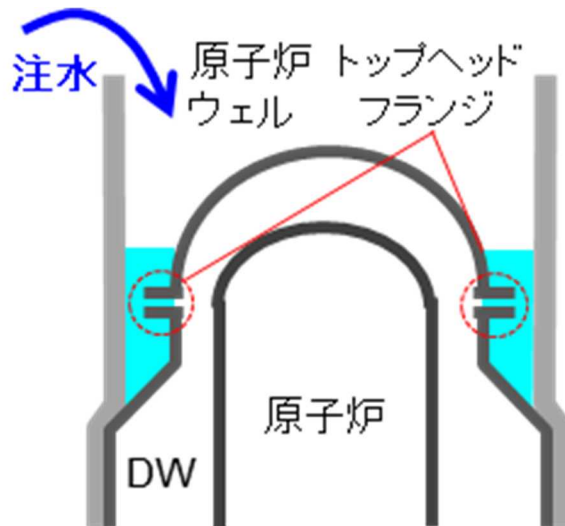
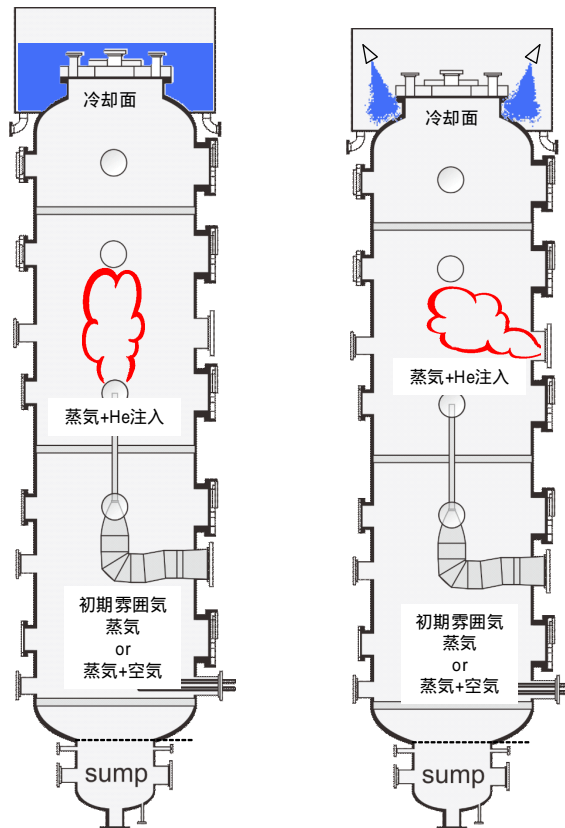


図 2.3.8 原子炉ウェル注水

Figure 2.3.8 Water injection into the reactor well

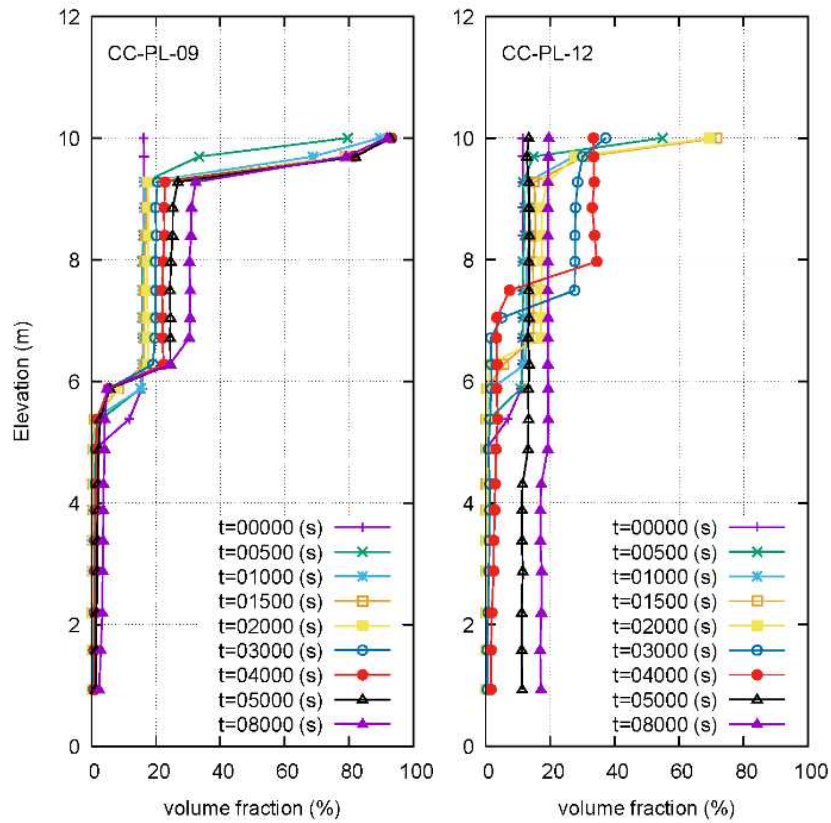


出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業 成果報告書」、2022.<sup>29</sup>

図 2.3.9 外面冷却時熱流動実験の模式図 (左: 令和 2 年度、右: 令和 3 年度)

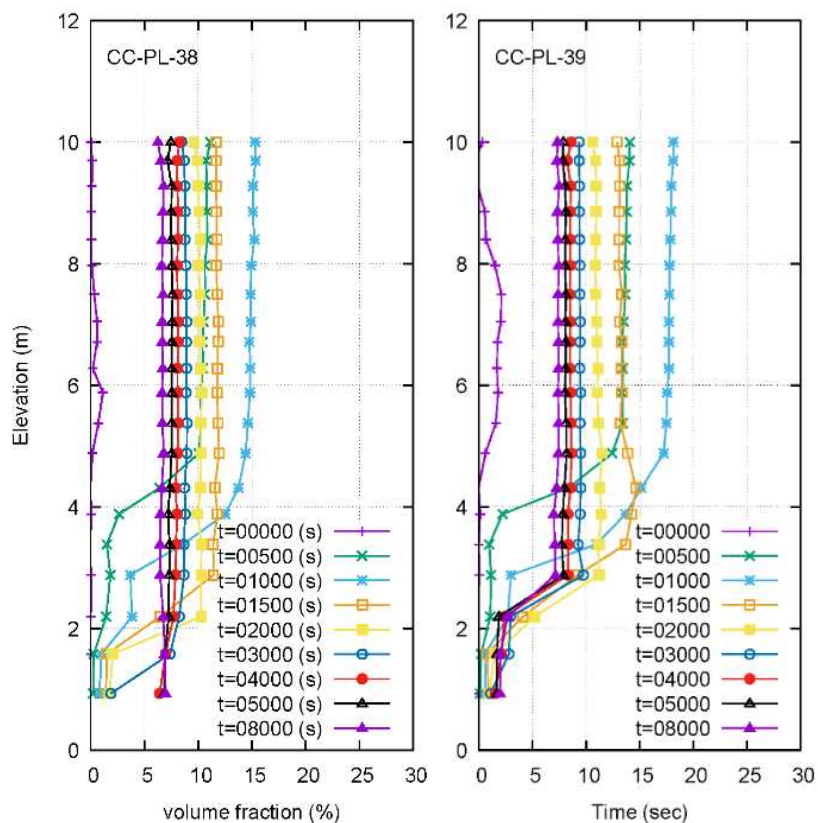
Figure 2.3.9 Schematic view of external cooling thermal hydraulics experiments



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「平成 28 年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」, 2017.<sup>30</sup>

図 2.3.10 閉じた系でのヘリウム濃度分布の時間変化(左:蒸気-He、右:蒸気-空気-He)

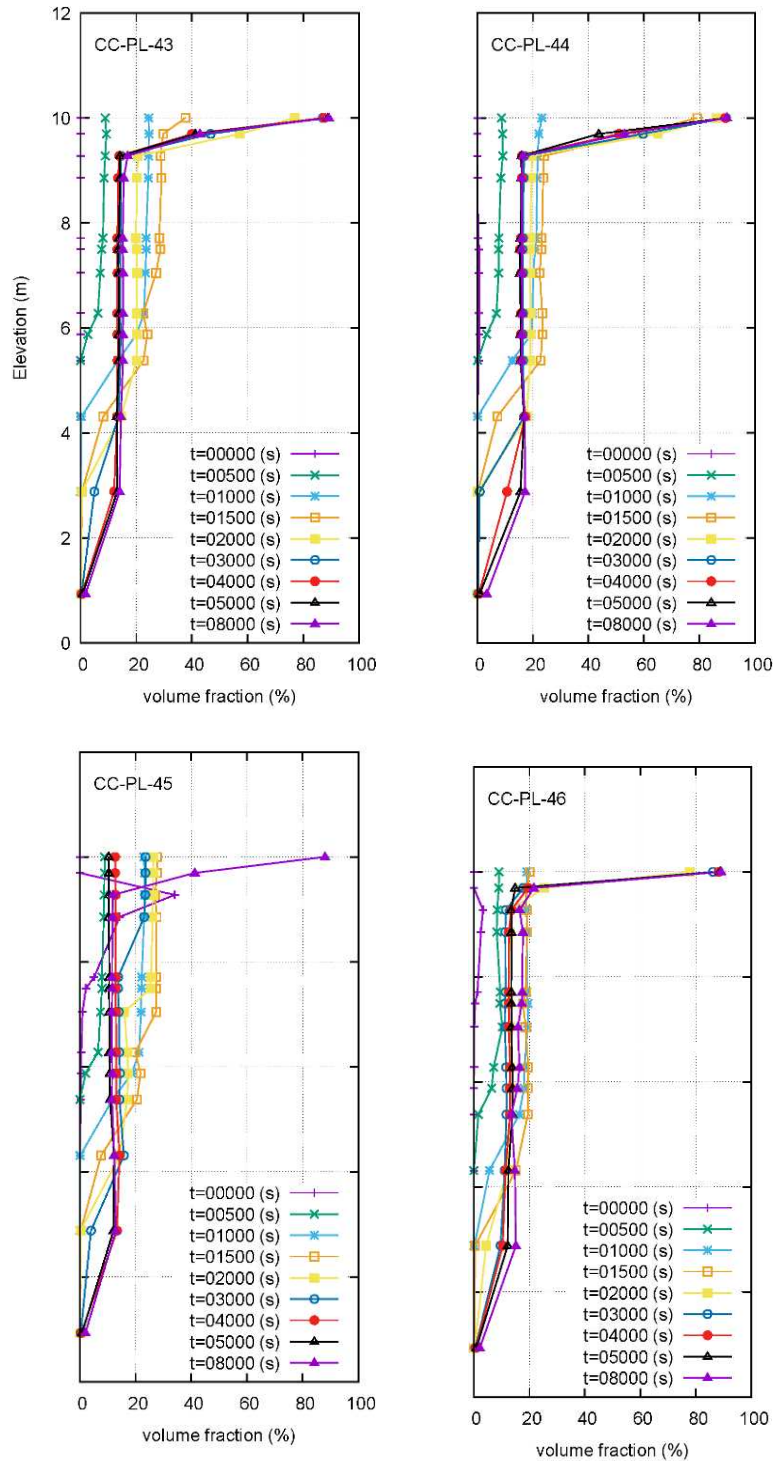
Figure 2.3.10 Time changes of helium concentration distribution in the closure systems



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

図 2.3.11 鉛直上向気体注入体系でのヘリウム濃度分布の時間変化 (左: 蒸気-He、右: 蒸気-空気-He)

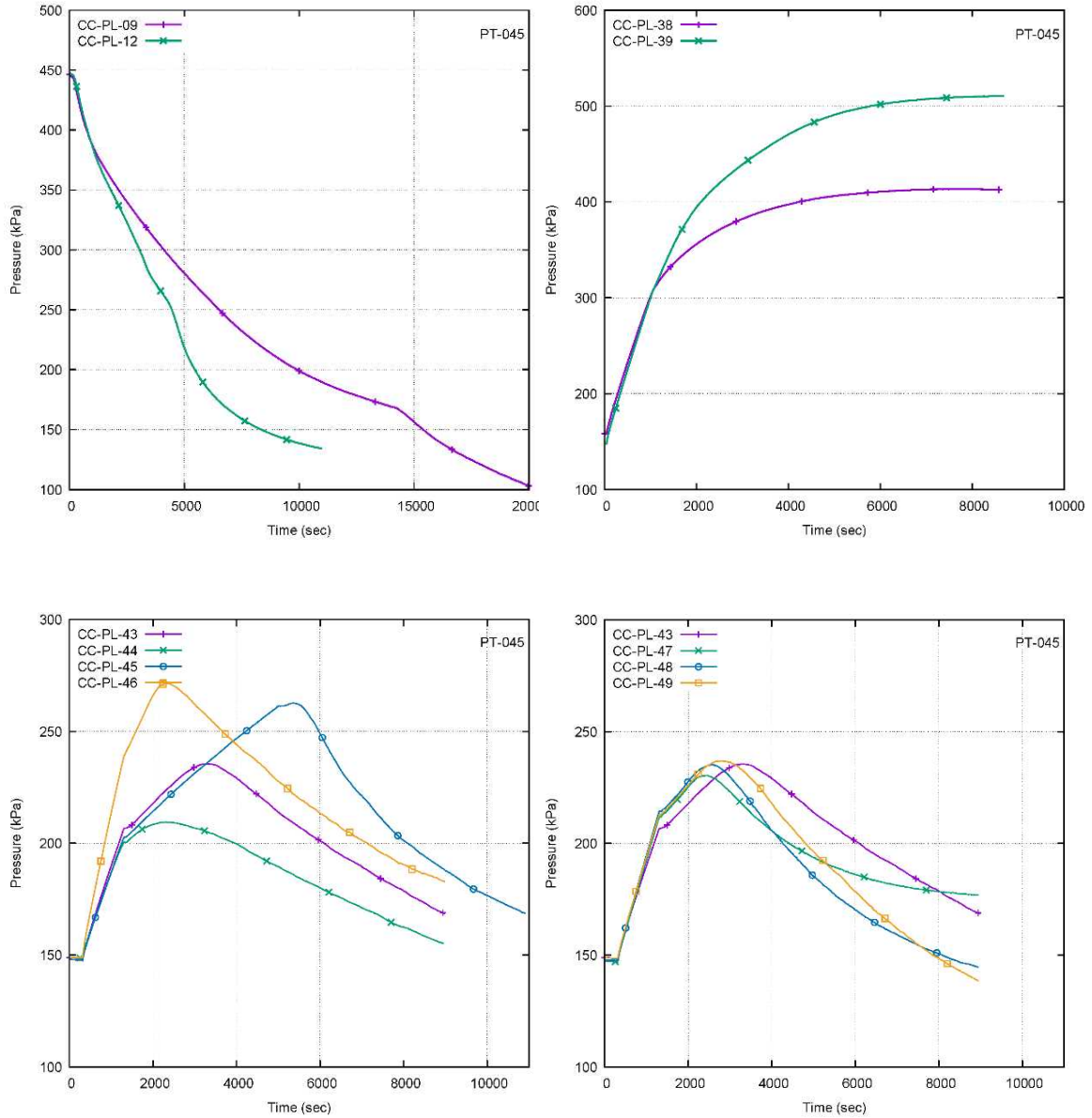
Figure 2.3.11 Time changes of helium concentration distribution in the vertical upward gas injection systems (Left: steam-He, Right: steam-air-He)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和3年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業成果報告書」、2022.<sup>29</sup>

図 2.3.12 水平方向気体注入体系でのヘリウム濃度分布の時間変化

Figure 2.3.12 Time change of helium concentration distribution in the horizontal gas injection systems



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「平成 28 年度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」、

2017.<sup>30</sup>

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 3 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業 成果報告書」、2022.<sup>29</sup>

図 2.3.13 実験容器圧力の時間変化

Figure 2.3.13 Time changes of test container pressure

### 2.3.5 熱及び物質移行に関する基礎実験

JAEA への委託事業により、多成分気体で構成される格納容器雰囲気中の熱流動挙動を把握するため、熱及び物質移行に関する基礎実験を実施した<sup>5,6</sup>。格納容器内では、PWR のように外表面を積極的に冷却しない場合においても、自然放熱や再循環ユニットによる冷却及び格納容器下部の溶融炉心や一次冷却系から蒸気放出などの熱源の存在により格納容器内に自然循環が生じ、仮に格納容器内に水素の密度成層が生じて、循環による混合によって均質化することが主張されている<sup>71</sup>。混合の程度は自然循環流の強さに依存し、その駆動力は冷却や加熱によって生じる気体の密度差であり、その密度差は容器内に形成される密度成層によっても影響を受ける。そこで、容器冷却によって生じる自然対流とそれによる気体混合現象を基礎的なデータの取得を目的として、自然対流による物質移行実験を行った<sup>28,29</sup>。ここでは、凝縮（相変化）の無い空気-ヘリウムの2成分系において、容器の外壁面を冷却して自然対流を誘起し、ヘリウム成層移行挙動との関係を調査した<sup>72</sup>。

ヘリウム成層の形成やその後の浸食挙動は、水素移行を議論する上でのベンチマーク実験として様々な機関や国際共同プロジェクトで実験及び解析が実施されてきた<sup>73,74</sup>。これらの実験の多くは、あらかじめ形成されたヘリウム密度成層の下部から噴流やプリューム状の気体を衝突させ混合挙動を観察するものである。これに対して本実験は、容器内の流れを自然循環によって駆動させ、その流れによる成層崩壊を観察する。事故時の現実的な現象としては、格納容器の大空間における自然循環は流速が小さく不安定であることが予想される。そのため、成層位置や密度差、冷却領域等を系統的に変化させたパラメータ実験を実施し、自然循環が及ぼすヘリウム成層移行の特性を調査する。

前プロジェクトでは、空気単体および空気-ヘリウム2成分系での外面冷却実験を実施した<sup>33</sup>。これをベースケースとして、令和2年度は成層の強さ（成層内外の密度差）、初期温度及び冷却領域等をパラメータとした実験を複数回実施した。ここでは、一連の実験結果のうち、冷却領域の違いによって生じたヘリウム移行の特徴的な結果について紹介する。

実験条件を表 2.3.3 に示す。主な実験パラメータは、初期のヘリウム密度成層の強さ（厚さ及びヘリウム濃度）と容器外壁面の冷却領域面積である。実験の様子を図 2.3.14 に示す。外面冷却を開始する前に、容器の頂部に濃度約 15～50% のヘリウム成層を厚さ約 3 m（容器高さ 10 m に対し、高さ 7 m 以上）で形成する。その成層に対し、冷却領域を高さ 8.2 m 以上の狭領域（左）と高さ 4.1 m 以上の広領域（右）として外面冷却を開始する。自然循環の駆動力は密度差とその密度差を生じさせる高さに比例するため、冷却面積により駆動される自然循環の強さも異なる。冷却領域以外の初期成層の温度や濃度も実験パラメータとして変更した。

図 2.3.15 にヘリウム濃度の時間変化を示す。冷却領域の狭い CC-PL-27 では、実験容器上部ではヘリウム濃度が単調に低下し、高さ 7.5 m（冷却領域より下に位置）では、外面冷却開始直後から 300 秒程度は初期値の 40% を維持し、その後上部の計測点のヘリウム濃度と同じ値にまで上昇する。さらに、成層下端の高さ 7.1 m では、ヘリウム濃度は冷却開始

から最初の 500 秒間は直線的に減少し、その後急激に上昇する。冷却開始から 2000 秒程度で全ての計測点でヘリウム濃度は 13 % 程度になる。このように、初期密度成層が冷却位置よりも狭い場合、ある計測点の濃度はそれよりも上部に位置する計測点の濃度と同じになり、最終的には実験容器内でヘリウム濃度は一様化する。これは、既往研究でよく観察された成層へのプリューム衝突による密度成層の浸食・崩壊挙動とは異なる挙動であり、初期に形成された密度成層が自然循環による混合とともに濃度を低下させながら下部へ成層領域を拡大させていると解釈できる。一方、冷却領域の広い CC-PL-28 では、実験容器の上部でヘリウム濃度は約 1000 秒程度まで緩やかに減少し、その後急激に低下する。高さ 7.5 m 地点の濃度時間変化も同様の傾向となった。このようなヘリウム濃度変化の挙動は、既往研究における初期密度成層へのプリューム衝突実験と同様の変化となった<sup>75</sup>。すなわち、初期密度成層はその下端から対流によって浸食されることで成層厚さが徐々に薄くなり、成層下端より下ではエントレインメントされたヘリウムが混入することにより濃度が徐々に上昇する。成層界面下端は時間とともに上方に移動し、計測点を成層界面が通りすぎるとその位置でのヘリウム濃度は急低下する。

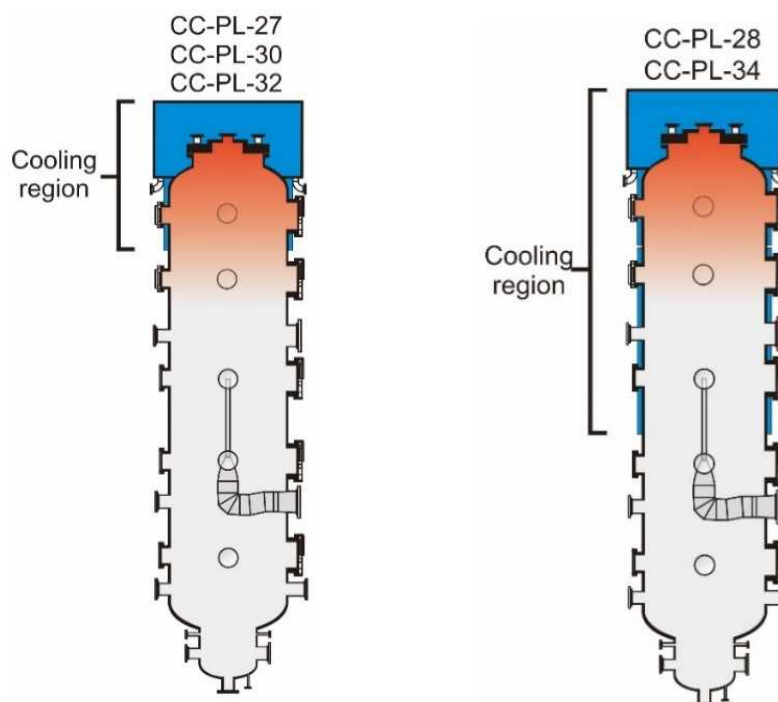
冷却面が初期成層より狭い条件については、初期温度が低い CC-PL-30 では CC-PL-27 と比較すると、時間変化は緩やかになり成層が消失するまでにおよそ 7000 秒の長時間を要した。初期温度が低い場合は、同じ冷却条件であっても自然循環駆動力は低下するため、混合能力が弱くなり、均質化まで長い時間を要する。これは、冷却領域が広い条件でも同様である。ただし、冷却領域の広さと初期密度成層厚さの位置関係により混合のモードは温度条件に左右されずに同じメカニズムであり、CC-PL-30 及び CC-PL-34 は時間スケールに違いはあるものの、それぞれ CC-PL-27 及び CC-PL-28 と同様の傾向を示した。ここでは示していないが、冷却領域が狭い条件で、成層が弱い（初期ヘリウム濃度が低い）CC-PL-32 では時間変化は早く、約 1000 秒で容器頂部の濃度は下方の濃度と同程度にまで低下した。以上より、冷却領域と自然循環及び成層浸食の関係について、冷却領域の面積が小さい場合は密度成層が成層内の混合によって濃度を減少しながら下部へ拡大し、一方、面積が大きい場合に成層は高濃度を保ったまま成層下部の循環による下部からの浸食によってその厚さが減少することが明らかになった。

表 2.3.3 外面冷却自然循実験の実験条件

Table 2.3.3 Experimental conditions on external cooling natural circulation experiments

|               | CC-PL-27 | CC-PL-30 | CC-PL-32 | CC-PL-28 | CC-PL-34 |
|---------------|----------|----------|----------|----------|----------|
| 初期成層厚(m)      | >高さ 6m   | >高さ 7m   | >高さ 8m   | >高さ 9m   | >高さ 10m  |
| 初期成層 He 濃度(%) | 50       | 48       | 16       | 50       | 48       |
| 初期気体温度(°C)    | 167      | 72       | 163      | 168      | 74       |
| 初期容器内圧力(kPa)  | 185      | 175      | 180      | 185      | 174      |
| 外面冷却位置(m)     | EL>8.2   | EL>8.2   | EL>8.2   | EL>4.2   | EL>4.2   |

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>



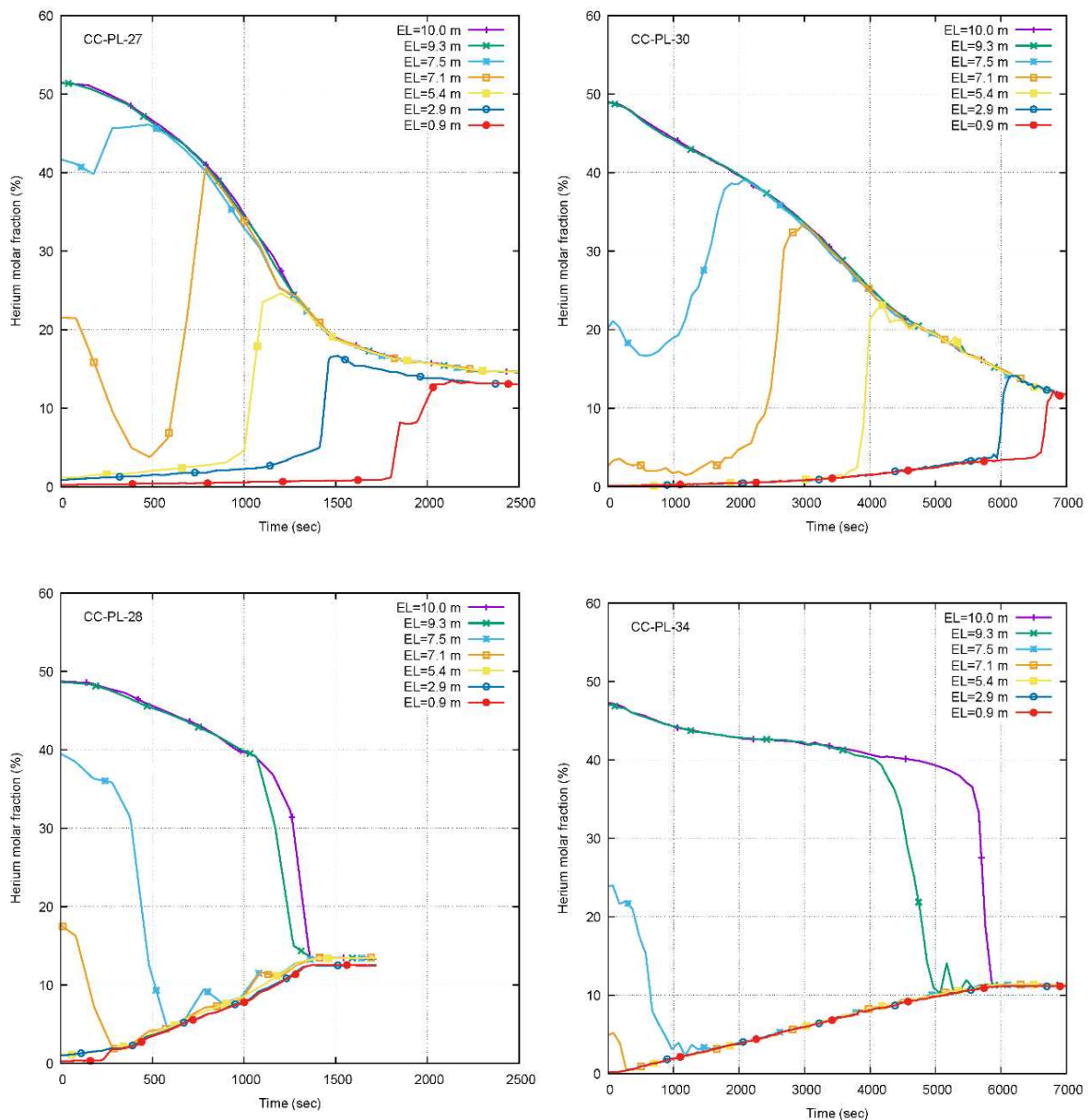
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

図 2.3.14 外面冷却自然循実験の模式図

(左: 外面冷却領域が初期成層より狭い条件、右: 広い条件)

Figure 2.3.14 Schematic view of experiments on external cooling natural circulation experiments (Left: Conditions where the outer cooling region is narrower than the initial stratification, Right: wider than the initial stratification)





出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

図 2.3.15 ヘリウム濃度の時間変化 : (上段 : 冷却領域が狭い条件、下段 : 広い条件)  
 Figure 2.3.15 Time changes of helium concentration (Left: Conditions where the outer cooling region is narrow, Right: wide)

### 2.3.6 スプレイ及びベント時熱流動実験

JAEA への委託事業により、雰囲気挙動格納容器スプレイによる冷却効果及び気体混合効果並びに格納容器ベントによる減圧挙動を把握するため、格納容器スプレイ実験並びに格納容器ベント実験を実施した<sup>28, 29</sup>。格納容器スプレイ及び格納容器ベント時の格納容器

熱流動に関する知見を取得するために、CIGMA 装置を用いて、操作手順や実験条件をパラメータとした実験を行った<sup>29, 29</sup>。特に、格納容器内に水素が存在する状況において、容器内での水素の混合や系外への排出に注目した実験を行い、水素の移行や混合挙動の詳細解析手法の高度化に資するデータを取得した。

ベントにおいては考慮すべき様々なパラメータがあり、その中でも起動のタイミングが重要となる。また、ベントを起動する前に行われるスプレーは、格納容器の減圧や放射性物質の除染に有用であるとされている<sup>76</sup>。スプレーは容器内の水蒸気を凝縮させることによって圧力を低減できると同時に水素の濃度を向上させる効果もあり、一方でその強い攪拌効果によって水素濃度を均質化し濃度を低減する効果もある。一方、シビアアクシデント条件でスプレー流量が定格流量以下に制限されてしまう場合には、スプレー水の蒸発により格納容器が加圧される場合もある。これらの点に注目し、容器内に障害物やプール水が無く蒸気及び非凝縮ガスで加圧された体系において、ヘリウム発生タイミングに対するスプレーとベントの開始時刻を実験パラメータとして容器内の水素濃度の変化を観察する実験を行った。

実験の設計に当たっては、実機条件や過去の解析研究例<sup>76, 77</sup>を参考にして、実験装置実験部体積とのスケールリングを考慮して決定した。例えばベント流量については定格出力の1～数%の熱除去若しくは当該時間の崩壊熱を放出できる流量が設定される<sup>76</sup>。また、ベント流量やスプレー流量の設計の一例が示されている<sup>77</sup>。表 2.3.4 に実機と CIGMA 装置のスケールリングの概要を示す。崩壊熱及び炉心ジルコニウム量の想定は 2.3.4 で説明した考え方と同様である。表に示したベント及びスプレーの特性値とは、ベントとスプレーの定格流量を格納容器体積除して規格化した値であり、時間の逆数の単位を持つ。この値が大きいほど格納容器単位体積当たりの体積流量が大きいことを意味する。この特性値の実機定格値は類型炉の代表値<sup>76</sup>を採用して計算した。本実験は PWR を対象とし、境界条件は Fernando-Cosial らの解析条件<sup>78</sup>も参考にして決定した。以下に概要をまとめる。

・ 境界条件（流入及び流出条件）

- 蒸気発生量：スクラム 24 時間後の崩壊熱相当とする。CIGMA 装置条件では PWR 体積換算で 10 kW(蒸気発生量 3.5 g/s)に相当するが、CIGMA の蒸気流量計( FE007 )の計測下限値は 4 g/s であるため、余裕を見て 5 g/s に設定する。
- ヘリウム発生量：表 2.3.4 から求められる水素の発生量対し、密度換算で約 2 倍の 1.2 kg のヘリウムを発生総量とし、3 g/s×400 秒で注入する。注入によるヘリウム分圧上昇で実験容器の圧力は 14 kPa 程度上昇する。
- スプレー流量：攪拌効果が高いため体積規格した実機定格流量の 1/10( 0.015 kg/s、CIGMA の流量計測下限値に相当 )とする。特性値が  $3.0 \times 10^{-7}(1/s)$ に相当し Fernandez-Cosial らの解析<sup>78</sup>と同等の値である。注入時間は過去の CIGMA 実験<sup>33</sup>においてヘリウム成層が均質になりきらない 800 秒とした。これは Fernandez らの解析 1/2 程度の注入量に相当する。

- ▶ ベント流量：文献値<sup>76, 77</sup>ではPWR定格ベント流量が質量流量で与えられている。ベントを開始する格納容器圧力での飽和蒸気密度を用いて体積流量を換算すると、格納容器体積の特性値は  $2.0 \times 10^{-5} \sim 4.0 \times 10^{-5}$  (1/s)の範囲となる。このような低い流量では系変化が準定常となることが前プロジェクトでの調査によって示された。本実験では特性値を約 10 倍の  $4.0 \times 10^{-4}$  (1/s)とする。これはBWR体系での特性値に近く、Fernandez-Cosialらの解析条件<sup>78</sup>にも近い。実際の実験では大気圧飽和蒸気質量換算で 12.5 g/s (体積流量 0.021 m<sup>3</sup>/s) に流量を設定した。容器内の圧力が高く臨界条件を満たす場合はこの体積流量は維持される。このときの実際の質量流量は容器内 1 次系圧力及び排出される気体組成に依存する。飽和蒸気圧換算ではベントが開始される約 350 kPa では 40 g/s になり、本実験の蒸気注入量の 8 倍の大きさである。実際は格納容器の減圧とともに排出流量(質量流量)も徐々に低下していくことになる。
- ・ 初期条件:PWR 格納容器の設計圧が 3.5 ~ 5.5 bar 絶対圧であるため初期圧力を 300 ~ 350 kPa 絶対圧とする。このうち空気分圧を 100 kPa で設定とし、不足分を蒸気で加圧する。

以上のようにして設計した実験条件を表 2.3.5 に示す。設計の際に参照した Fernandez-Cosial ら<sup>78</sup>の解析での設定値も併せて示した。これらを共通の実験条件として、スプレイのタイミングをパラメータとした二つの実験を実施した。実験手順を以下に記述する。

- ・ 実験容器を所定の圧力まで上昇させる。蒸気で 250 kPa まで加圧したところに加熱した空気をメインノズルから注入し、350 kPa とする。
- ・ 時刻 0 秒でヘリウムと蒸気の注入を開始する。ヘリウムは 400 秒で注入終了し、蒸気は実験の間注入を継続する。
- ・ ヘリウム注入終了後、約 130 ~ 140 秒でスプレイ注入を開始し、800 秒間継続する。スプレイ終了後、VT-LV-13 では即座(約 70 秒後)にベント開始、一方、VT-LV-14 と 2400 秒後にベント開始とする。
- ・ 系圧力が大気圧付近まで下がったところで実験終了とする。

CIGMA 装置ではベントのサクシヨン位置の高さを変更できる。本年度は容器底部の高さ 0.93 m に設定した。図 2.3.16 にベント位置と気体注入ノズルの位置を示した。

#### (1) VT-LV-13 の結果

図 2.3.17 に実験容器の圧力履歴を示す。図内の破線で示した垂直線は実験容器へアクセスする動作の時間を表す。注入蒸気流量は図 2.3.18 に示すように実験開始後から継続して注入される。時刻 0 ~ 400 秒のヘリウム注入により圧力が 20 kPa 程度上昇し、スプレイ注入によって更に圧力上昇する。実験容器内の温度コンター図の履歴を図 2.3.19 に示す。初期温度は約 165 °C でほぼ均質に分布しており、初期水蒸気 350 kPa の飽和温度が約 139 °C であるため過熱状態である。スプレイ冷却水温度は室温(約 24 °C)で低流量であることが

ら、注入後にスプレー水が蒸発して圧力が上昇した。蒸気のみ熱収支のオーダーを比較すると、容器内を一点集中系として考えた場合、容器内初期の蒸気の過熱度エンタルピが約 4800 kJ (容積 50 m<sup>3</sup> 分) に対してスプレー水を 800 秒間注入した水量の過冷度が約 3200 kJ であることから、初期過熱蒸気は注入されたスプレー水全量を蒸発させる以上の過熱度を有し、圧力が上昇したことは妥当である。実際は、容器内の気体エンタルピに容器壁や内部構造物の熱容量及び注入蒸気エンタルピも加わることから、低流量スプレーではその初期段階において注入による圧力上昇が考えられる。

スプレー注入が終了した後の 14 秒程度 (実験開始から約 1500 秒程度) でベントが開始され系圧力は低下する。ベント時の排出される気体の体積流量を図 2.3.20 に示す。実験では初期に設定体積流量 (約 0.021 m<sup>3</sup>/s 76 m<sup>3</sup>/h) に流量調節弁の開度設定した後は弁開度を固定した。時刻約 3000 秒付近までは臨界状態を保つため、ベント流量は設定値のままほぼ一定で推移し、その後実験容器内外の差圧の減少とともにベント流量は低下する。図 2.3.21 に容器内の各ガス種の鉛直方向濃度分布の時間変化を示す。ここでは、ヘリウムが注入される期間を含む 0-600 秒の各分布を左に、スプレーが開始された 700 秒以降の各分布を右に記載する。ヘリウム注入後には高さ 9 m 以上に薄いヘリウム成層が形成されるが (0-600 秒) その後のスプレー注入により実験容器内は強く攪拌され、800 秒間のスプレー注入が終了する 1400 秒付近ではほぼ均質な気体分布となる。水蒸気の濃度はヘリウムの注入時に上層部でいったん大きく下がるが、スプレー注水とその蒸発によって回復し、容器全体の濃度はスプレー前後でほとんど差がない。ベント後は減圧とともに気体は空間的に均質のまま排気される。一方で蒸気は注入し続けるため、排気に従ってヘリウムと空気の濃度が徐々に低下し、水蒸気濃度が徐々に増加する結果となる。注入される蒸気は、実験容器内の混合気体よりも密度が軽いため、ノズルから上向きに注入された蒸気と下部からのベントにより、実験容器内が蒸気により徐々に置換される結果となる。これは、図 2.3.21 から確認でき、ベント開始後は容器内気体がほぼ均質に推移するが、時刻 3500 秒頃から容器上部の蒸気密度が下部よりも徐々に高くなり、逆に空気とヘリウムの濃度は上部領域で徐々に低下する。このような気体の置換は、気体が注入されるノズル位置、注入方向、注入速度、容器内の気体と注入気体の相対的な密度差等に強く影響を受けることが推察される。本実験条件では容器の中央部に蒸気注入ノズルが上向きに位置するため、この高さを境界として、容器の上部領域から蒸気による気体置換が徐々に進行したと結論付けられる。

## (2) VT-LV-14 の結果

本実験は、前節の VT-LV-13 とベント開始のタイミングだけが異なり、その他の初期・境界条件は同一に設定した実験である。VT-LV-13 ではスプレー注入終了後 70 秒でベントを開始したが、VT-LV-14 では 2400 秒と時間をおいてからベント弁を開いた。前節と同様に、図 2.3.22 に圧力履歴、図 2.3.23 に注入蒸気流量、図 2.3.24 に実験容器内温度分布コンタ

一図の時間変化、図 2.3.25 にベント流量、図 2.3.26 に各ガス種の鉛直方向濃度の時間変化を表す。図 2.3.26 の描画方法は図 2.3.21 と同様である。

スプレー終了までの挙動は両者でほぼ同じであり、実験容器内の圧力はスプレー注入終了後も高圧のまま推移し、ベント開始時の圧力は 400 kPa 弱でほぼ同じであった。境界条件である蒸気注入流量も設定値を維持し、スプレー後の容器内温度分布やベンチ流量も両実験でほとんど差がない。ベント前のスプレーによる実験容器内気体の攪拌は十分になされ、容器下部高さ 2 m 以下を除いてほぼ均質分布である。スプレー後容器下部はヘリウムが行き渡らず蒸気濃度が高いが、ベントによる容器内の熱流動挙動に大きな影響を及ぼすものではない。蒸気注入が継続されることで、ベント前までにヘリウムと空気の濃度は全体的に低下していくが、これも熱流動挙動に大きな影響を及ぼすものではない。ベント開始後は VT-LV-13 と同様に推移し、蒸気注入による上下二層の気体濃度の分離も同様に観察された。

以上の比較から、ヘリウム（水素）が発生した後のベントでは、極低流量であってもスプレー注入後においては実験容器内の気体の攪拌混合が十分に達成され、ベントの開始時刻に 2400 秒の遅れがあったとしてもヘリウムの分布や実験容器内に残存する濃度にはほとんど差が表れない。Fernandez-Cosial らによれば、水素が発生した後の数千秒がスプレーとの時間差によらず水素の排出が一番効率的であるとされており<sup>78</sup>、本実験結果と整合する。ただし、水素発生からベント開始までが 5000 秒以上遅れると、蒸気による水素希釈が進行することと、水素が実験容器内に滞在する時間が長引くことが示されている。

表 2.3.4 実機と CIGMA のスケーリング

Table 2.3.4 Scaling between actual reactor and CIGMA

|                |                   | BWR3/<br>Mark I         | BWR4/<br>Mark I         | PWR                     | CIGMA<br>(BWR)          | CIGMA<br>(PWR)          |
|----------------|-------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| 自由空間体積 (DW)    | m <sup>3</sup>    | 3410                    | 4240                    | 73700                   | 50                      | 50                      |
| 定格出力           | W                 | 1.380E+09               | 2.381E+09               | 3.423E+09               | 200000                  | 200000                  |
| 運転時間           | day               | 365                     | 365                     | 365                     |                         |                         |
| 崩壊熱 (24 時間後) * | W                 | 6.124 × 10 <sup>6</sup> | 1.057 × 10 <sup>7</sup> | 1.519 × 10 <sup>7</sup> | 1.00 × 10 <sup>5</sup>  | 1.00 × 10 <sup>4</sup>  |
| 体積当たりの発熱量      | W/m <sup>3</sup>  | 1.796 × 10 <sup>3</sup> | 2.492 × 10 <sup>3</sup> | 2.061 × 10 <sup>2</sup> | 2.00 × 10 <sup>3</sup>  | 2.00 × 10 <sup>2</sup>  |
| 炉心ジルコニウム量:     | mol               | 1.808 × 10 <sup>5</sup> | 2.477 × 10 <sup>5</sup> | 2.236 × 10 <sup>5</sup> |                         |                         |
| Zr 反応時の水素発生量   | kg                | 723                     | 991                     | 894                     | 10                      | 0.6                     |
| 体積当たりの水素量      | kg/m <sup>3</sup> | 0.212                   | 0.234                   | 0.012                   | 0.2                     | 0.012                   |
| スプレイ特性*        | 1/s               | 5.77 × 10 <sup>-5</sup> | 9.56 × 10 <sup>-6</sup> | 3.85 × 10 <sup>-6</sup> | 3.00 × 10 <sup>-6</sup> | 3.00 × 10 <sup>-7</sup> |
| スプレイ流量         | kg/s              |                         |                         |                         | 1.50 × 10 <sup>-1</sup> | 1.50 × 10 <sup>-2</sup> |
| ベント特性*         | 1/s               |                         | 2.93 × 10 <sup>-4</sup> | 1.80 × 10 <sup>-5</sup> | 2.00 × 10 <sup>-4</sup> | 4.00 × 10 <sup>-5</sup> |
| ベント流量          | m <sup>3</sup> /s |                         |                         |                         | 1.00 × 10 <sup>-2</sup> | 2.00 × 10 <sup>-3</sup> |

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」

2021.<sup>20</sup>

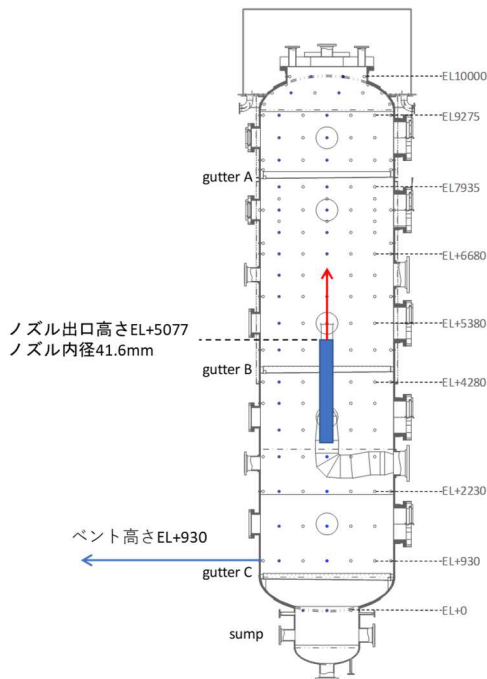
表 2.3.5 スpray及びベント時熱流動実験の実験パラメータ

Table 2.3.5 Experimental parameters of spray and venting thermal hydraulics experiments

|               |          |                      | Fernandez-Cosials        | CIGMA                    |
|---------------|----------|----------------------|--------------------------|--------------------------|
| 格納容器体積        |          | m <sup>3</sup>       | 61100                    | 50                       |
| 蒸気生成<br>(崩壊熱) | 流量       | kg/s                 | 6                        | 0.005                    |
|               | 体積当たり    | kg/m <sup>3</sup> /s | 9.820 × 10 <sup>-5</sup> | 1.000 × 10 <sup>-4</sup> |
| 水素            | 発生量      | Kg                   | 550                      | 1.2                      |
|               | 体積当たり    | kg/m <sup>3</sup>    | 0.009                    | 0.024                    |
|               | 流量       | g/s                  | -                        | 3                        |
|               | 注入時間     | S                    | -                        | 400                      |
| スプレイ          | 流量       | kg/s                 | 15                       | 0.015                    |
|               | 体積当たり流量  | 1/s                  | 2.45 × 10 <sup>-7</sup>  | 3.00 × 10 <sup>-7</sup>  |
|               | 注入時間     | S                    | 2000                     | 800                      |
|               | 体積当たり注入量 | kg/m <sup>3</sup>    | 0.49                     | 0.24                     |
| ベント           | 流量       | kg/s                 | 70                       | 0.0125                   |
|               | 蒸気密度     | kg/m <sup>3</sup>    | 0.75                     | 0.5977                   |
|               | 空気密度     | kg/m <sup>3</sup>    | 1.38                     | -                        |
|               | 流量       | m <sup>3</sup> /s    | 50.6                     | 0.02091                  |
|               | 体積当たり    | 1/s                  | 8.29 × 10 <sup>-4</sup>  | 4.18 × 10 <sup>-4</sup>  |
|               | 時間       | S                    | 1000 ~ 3600              | -                        |

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和2年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」、

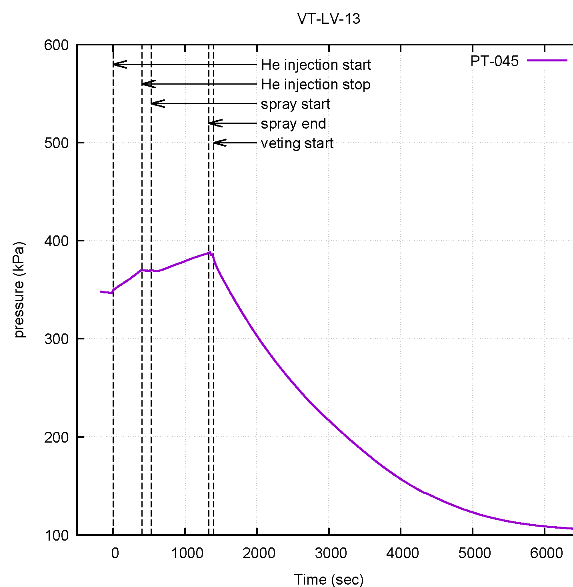
2021.<sup>28</sup>



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」, 2021.<sup>28</sup>

図 2.3.16 気体注入位置とベント位置

Figure 2.3.16 Locations of the gas injections and venting

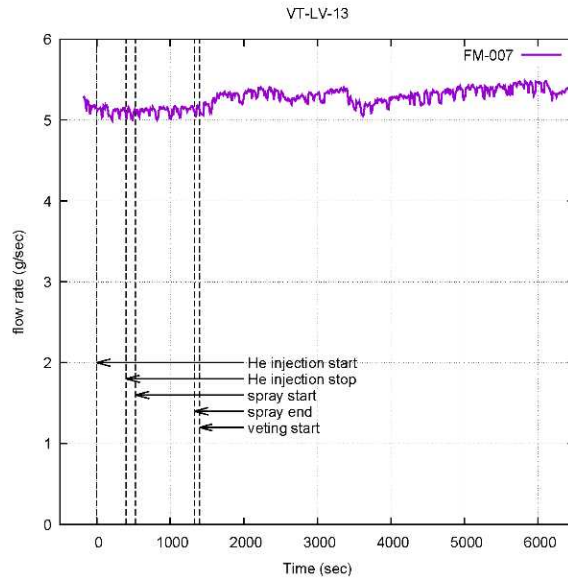


出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」, 2021.<sup>28</sup>

図 2.3.17 実験容器圧力の時間変化 (VT-LV-13: スプレー後直ちにベント)

Figure 2.3.17 Time changes of test container pressure (VT-LV-13: Venting immediately after spray)

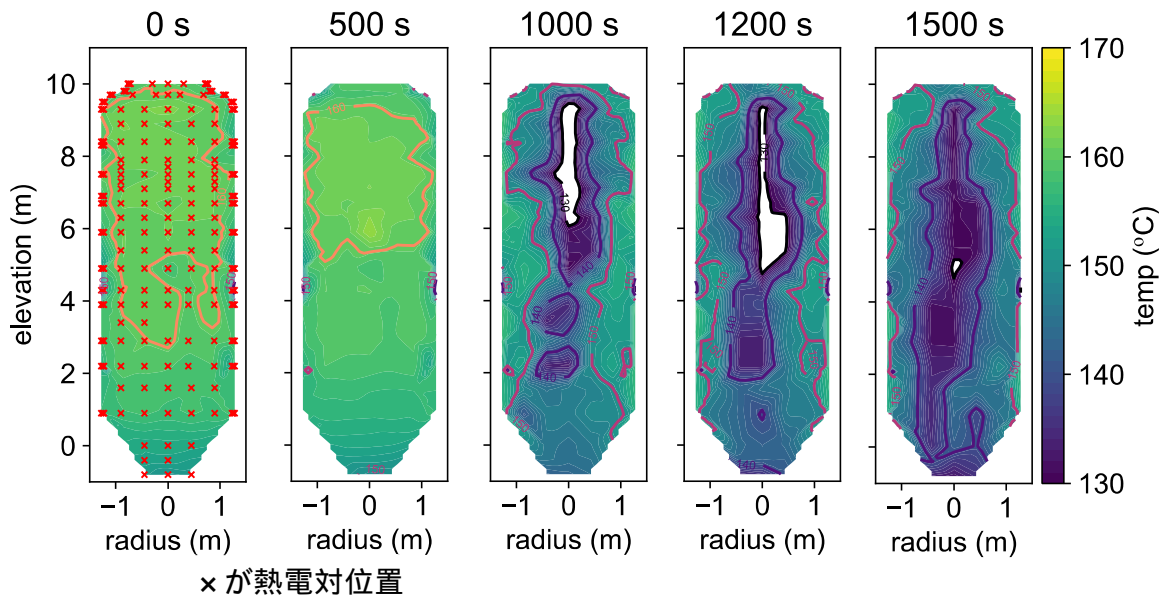




出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和2年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

図 2.3.18 注入蒸気流量の時間変化 (VT-LV-13: スプレー後直ちにベント)

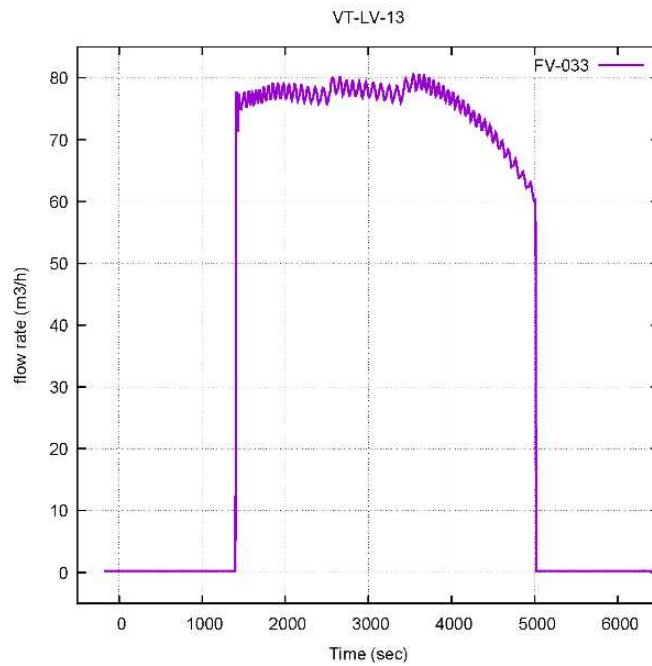
Figure 2.3.18 Time changes of injected steam flow rate (VT-LV-13: Venting immediately after spray)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和2年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

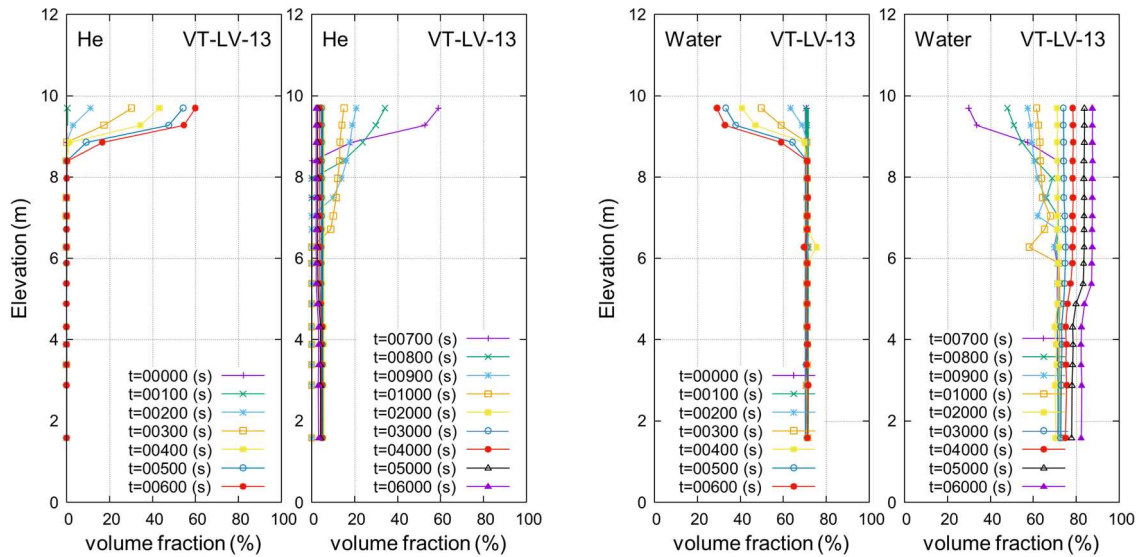
図 2.3.19 実験容器内温度コンターの時間変化 (VT-LV-13)

Figure 2.3.19 Time changes of temperature contour in test container pressure (VT-LV-13)



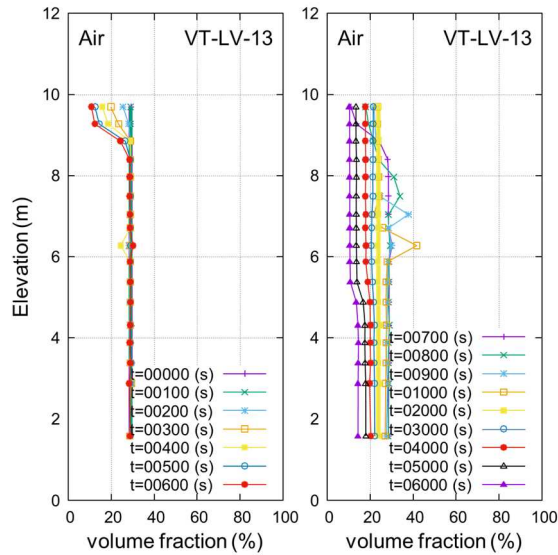
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」、2021.<sup>28</sup>

図 2.3.20 ベント流量の時間変化 (VT-LV-13: スプレイ後直ちにベント)  
 Figure 2.3.20 Time changes of venting flow rate (VT-LV-13: Venting immediately after spray)



ヘリウム体積率

蒸気体積率



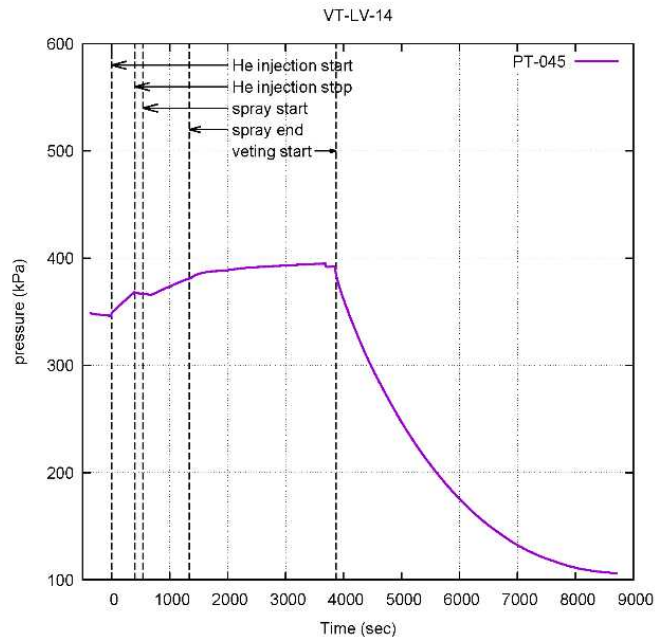
空気体積率

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和2年度度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書」

2021.<sup>28</sup>

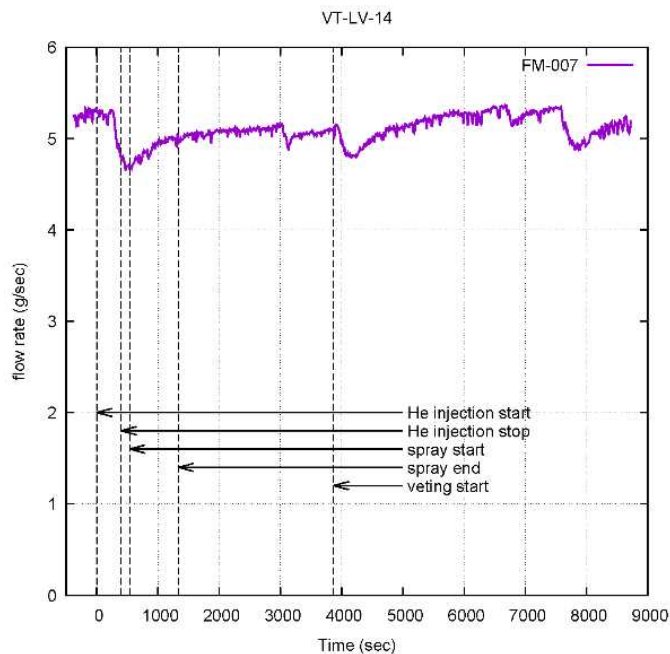
図 2.3.21 容器内の各ガス種濃度分布の時間変化  
(VT-LV-13: スプレー後直ちにベント)

Figure 2.3.21 Time changes of concentration distribution of each gas  
(VT-LV-13: Venting immediately after spray)



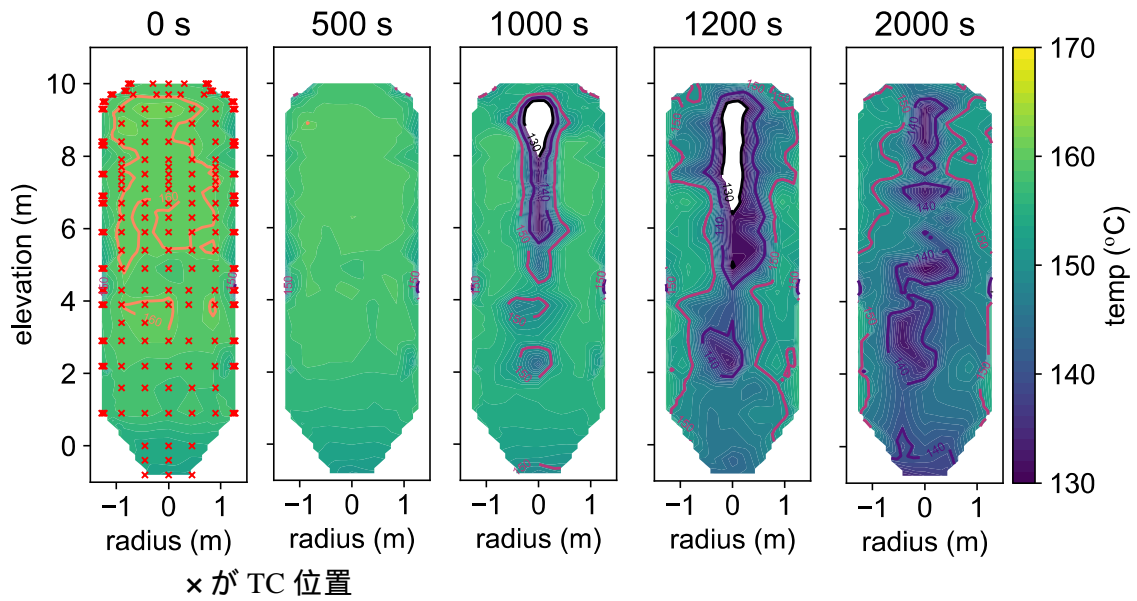
出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」, 2021.<sup>28</sup>

図 2.3.22 実験容器圧力の時間変化 (VT-LV-14: スプレイ後 2400 s でベント)  
Figure 2.3.22 Time changes of test container pressure (VT-LV-14: Venting 2400 s after spray)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」, 2021.<sup>28</sup>

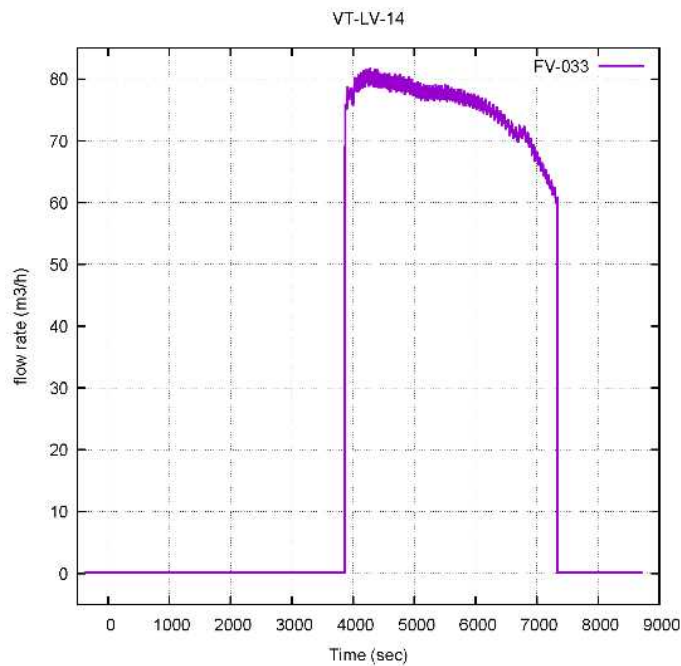
図 2.3.23 注入蒸気流量の時間変化 (VT-LV-14: スプレイ後 2400 s でベント)  
Figure 2.3.23 Time changes of injected steam flow rate (VT-LV-14: Venting 2400 s after spray)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」, 2021.<sup>28</sup>

図 2.3.24 実験容器内の温度コンターの時間変化 (VT-LV-14)

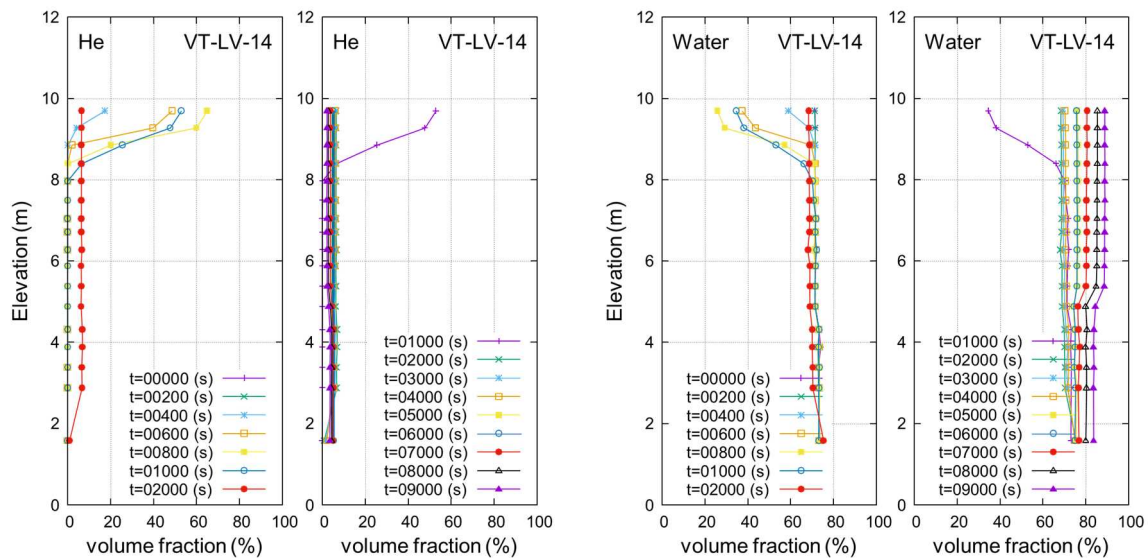
Figure 2.3.24 Time changes of temperature contour in test container pressure (VT-LV-14)



出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」, 2021.<sup>28</sup>

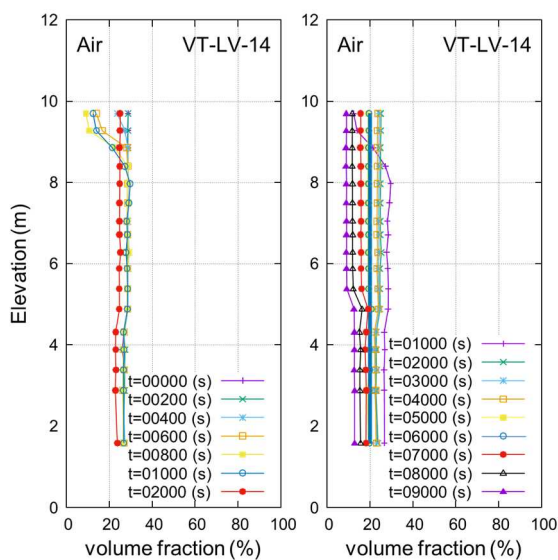
図 2.3.25 ベント流量の時間変化 (VT-LV-14: スプレー終了後 2400 s でベント)

Figure 2.3.25 Time changes of venting flow rate (VT-LV-14: Venting 2400 s after spray)



ヘリウム体積率

蒸気体積率



空気体積率

出典) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、「令和 2 年度度原子力施設等防災対策等委託費 (軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査) 事業に関する報告書」

2021.<sup>28</sup>

図 2.3.26 容器内の各ガス種濃度分布の時間変化  
(VT-LV-14: スプレー終了後 2400 秒でベント)

Figure 2.3.26 Time changes of concentration distribution of each gas  
(VT-LV-14: Venting 2400 seconds after spray)

### 2.3.7 まとめ

以下、重大事故時格納容器熱流動実験について得られた結果をまとめる<sup>20,29</sup>。

本実験は、重大事故時の圧力容器破損防止対策として実施される外面冷却や格納容器スプレイ、格納容器ベント時における格納容器内の熱流動現象について実験データベースを拡充することを目的とする。令和2年度及び令和3年度は、以下のとおり個々の現象について基本的な条件における実験を実施して、着目する物理現象を把握するとともに実験データベースを構築した。

格納容器上部フランジ冷却実験については、令和3年度までに500℃以上の高温噴流の衝突熱伝達と隙間部を含むフランジの温度上昇について実験データベースを構築するとともに、外面冷却やスプレイ等の一部の事故の緩和策によるフランジ温度上昇への影響について知見を取得した。令和4年度以降は、更に高温条件や緩和策をパラメータとした実験データベースの拡充を行うとともにCFDでの検討を段階的に行うために非凝縮条件にデータを拡充すべく、初期にフランジ面を過熱して衝突蒸気ブリュームの凝縮を防止した条件での実験データを拡充する予定である。

外面冷却時熱流動実験については、原子炉ウェル注水による格納容器冷却の成立性を確認するため、主として伝熱面近傍での成層化の形成及び解消の条件や成層化による熱伝達阻害について調査した。実験では伝熱面で流れが乱される注入条件でも高濃度ヘリウムの蓄積が認められるものの、熱伝達に甚大な影響を及ぼすほどではないことが定量的に示された。ヘリウム密度成層のわずかな厚さの差によって減圧挙動に違いが見られたことから、令和4年度以降はヘリウムの注入量を数倍大きくした実験条件について実験データを拡充して、成層化の形成及び解消の条件や凝縮熱伝達への影響について定量的に評価する。また、本実験では外面冷却時の自然循環に関する実験データベースを構築し、自然循環と密度成層の浸食について特徴的な相互関係を見出した。令和4年度以降は水蒸気の凝縮を伴う条件や壁面からの環境への自然放熱で駆動される弱い自然循環条件へ実験データベースを拡充する予定である。

熱及び物質移行に関する基礎実験では、格納容器内の気体挙動において支配的な役割を果たす浮力の機構を検討するために、最大500℃程度の空気・ヘリウム混合気体によるブリューム挙動を観察する実験を実施した。成層の形成に関して、気体の温度や注入に依らず気体の放出位置より上部で濃度は一様化することが示された。

スプレイ及びベント時熱流動実験については、過熱された非凝縮ガス条件でスプレイ水の蒸発による圧力上昇挙動を確認した。また、ベント時のスプレイと水素移行の関係に着目したところ、スプレイによる強い攪拌効果でほぼ水素の濃度分布が決まり、ベントによる慣性の影響はほとんどないことが示された。今後は過熱・高圧水蒸気雰囲気及び低流量のスプレイ注水条件等の実験データベースを拡充するとともに、スプレイによる攪拌効果を定量的に評価する。また、ベント時の減圧沸騰によるサンプル水や壁面凝縮水の蒸発との関係について実験データを拡充する予定である。

## 2.4 粒子状デブリ冷却性実験

### 2.4.1 知見の調査及び実験範囲の検討

新規規制基準の要求に適合するため、国内軽水プラントでは、炉心注水及び格納容器スプレイの手段が多様化されており、水源を共有しつつ両者を実施するための設備増強及び手順書の整備がなされている。圧力容器下部ヘッド又はキャビティ床面上において、図 2.4.1 に示すようにデブリベッドの少なくとも一部が冠水していると仮定するならば、デブリベッドから発する崩壊熱は、空隙部分を流れる冷却水だけではなく、これらと接する構造体表面や壁面を覆う金属ライナ等にも伝わる。粒子状デブリが十分に固化していれば、粒子を壁面に押す荷重が多少大きいとしても金属平面との接触面積は大きくなり、金属側への伝熱量はそれらを溶融するほどにはならないと考えられるが、十分に固化していない半溶融状態の高温デブリが金属表面に押し当てられる場合には、図 2.4.2 に示すように、半固化状態の粒子状デブリのみならず、融点及び硬度ともに低い金属表面が変形し接触面積が大きくなる可能性が高い。このようなモルフォロジ的な接触状態変化に伴う粒子状デブリと金属表面の接触熱伝達による構造健全性の問題は、例えば、図 2.4.3 に示す事故進展の局面で存在する。

- (1) 圧力容器下部ヘッド貫通口接続部の破損：デブリが下部ヘッドに落下した直後においては、金属を主体とする溶融デブリと高融点の酸化物を主体とする粒子状デブリが共存し、それぞれが核計装や制御棒などの貫通口の溶接部等と接触する。MELCOR のような SA 総合解析コードでは、両者の接触熱伝達係数を区別して入力できるが<sup>60</sup>、特に、粒子状デブリによる貫通口接続部への熱伝達係数については、貫通口からのデブリ放出挙動への影響が大きいため、高温デブリ-構造表面の接触条件と冷却水流動に関する実験的知見に基づく熱伝達係数を与える必要がある。
- (2) キャビティ側面/床面ライナの健全性：一部のプラントでは、格納容器には鋼製ライナが内張され、圧力バウンダリとなっている。また、格納容器のコンクリート壁面表面の一部は金属ライナにより保護されており、特にガス状の放射性物質に対する障壁の役割を果たしている。粒子状放射性物質に関しては、ライナの破損が即座に環境への大量放出につながるものではないが、高温デブリに対するライナの密封性は、長期間の事故進展におけるソースターム評価において重要である。
- (3) 内部流を有する管構造の形状維持：BWR では、炉心損傷が発生した後、制御棒駆動系による原子炉容器への注水を行い、下部ヘッド貫通による溶融炉心の格納容器下部への落下を遅延する手段を用意している<sup>81</sup>。また、一部のコアキャッチャ設計ではデブリ内にダウンカマ流路を設置し、これにより自然循環による冷却材流れを促進するコンセプトがある<sup>82</sup>。こうした冷却手段が成立するには、高温デブリとの熱伝達により



管構造が降伏、座屈及びクリープ破損しないことが必要である。

原子力規制庁の安全研究プロジェクト「軽水炉の国産シビアアクシデント解析コードの開発（平成 26 年度から平成 28 年度）」では、压力容器内外におけるデブリベッド形成及び冷却性において空間-時間依存性が高く、事故の緩和策を検討し環境に放出される放射性物質量を評価する上で実験的知見を拡充すべき課題を整理した<sup>83</sup>。本整理のベースとなった情報は、既往の重大事故に関する国内外専門家による PIRT<sup>9</sup>、<sup>84</sup>、そして本研究期間において実施した安全研究センター及びスウェーデン王立工科大学における専門家との議論<sup>10</sup>である。特に、粒子層-構造壁熱伝達に関しては、緩和策の有効性や環境へ放射性物質の放出を評価する観点から知見を拡充すべき個別効果とこれらに関する影響因子として、表 2.4.1 に示す項目を同定し、これに基づいて電力中央研究所において粒子状デブリ冷却性実験を実施している。

本研究の一環として約 40 件の文献を調査し、これらの先行研究について調査した。その結果、本研究において更に拡充すべき具体的な技術要素を以下のように抽出することができた。

- (1) 異物質間の接触熱伝達に関する研究としては、原子力分野では核燃料におけるギャップコンダクタンス<sup>85, 86</sup>、より広範囲には福岡ら<sup>87</sup>、佐野川<sup>88</sup>等が存在する。これらの先行研究において提案されたモデルでは、各物質の熱伝導率、接触境界における微視的表面粗さ、そして接触面圧による表面の変形（硬度に依存）に依存する形で熱伝達係数が表され、安全解析や設計解析等、実用レベルの定量評価において用いられている。一方で、これらのモデルでは、各物質が安定した固体であり、ここで注目しているように高温物質との接触面圧により双方の物質が変形し、接触状態が大きく変化するということを前提としていない。
- (2) 高温デブリの崩壊熱は、接触面積に応じて壁面と冷却水に分配され、冷却水は気液二相流であることから、接触面積のみならず二相流動構造により分配率が変化する<sup>89</sup>。発熱粒子層内の二相流動構造については、Tung & Dhir<sup>90</sup>、Schmidt<sup>91</sup>、Haga<sup>92</sup>等の先行研究例があり、粒径 1 mm 程度の小粒子に至る粒子層バルク領域に関しては実用レベルの流動様式マップが提案されている。その一方で、壁面近傍の二相流動構造については調査した範囲では先行研究は存在しなかった。

表 2.4.1 粒子層-構造壁熱伝達に関する影響因子同定

Table 2.4.1 Identification of influential factors for particle layer-structural wall heat transfer

| 個別現象                                     | 影響因子   |
|--|--|
| 粒子状デブリと構造物間の接触熱抵抗                        | 表面性状（酸化状態を含む）  |
| 粒子状デブリの有効熱伝導率                            | 接触面圧   |
| 配管接触条件における粒子状デブリと配管の自然循環流発生及びそれによる冷却促進効果 | 粒子状デブリと構造物壁面の接触面積<br>粒子形状（サイズ、形状）  |
| 粒子状デブリ堆積層中の二相流動                          | 粒子配置、空隙率<br>接触物体の物性値（硬度、熱伝導率）<br>周囲流体性状<br>液相流速 $j_l$ , 気相流速 $j_g$ バルク領域、及び壁面近傍二相流動構造を含む）<br>粒子表面熱流束 |

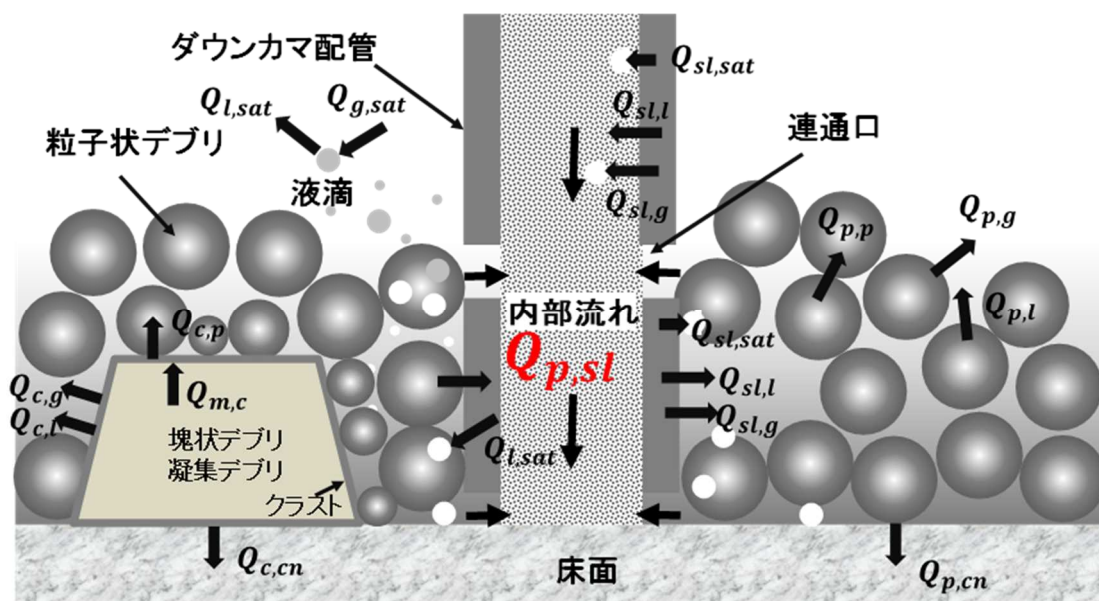


図 2.4.1 デブリベッド内の粒子状デブリと壁面/床面接触熱伝達

Figure 2.4.1 Particulate debris and wall / floor contact heat transfer in the debris bed

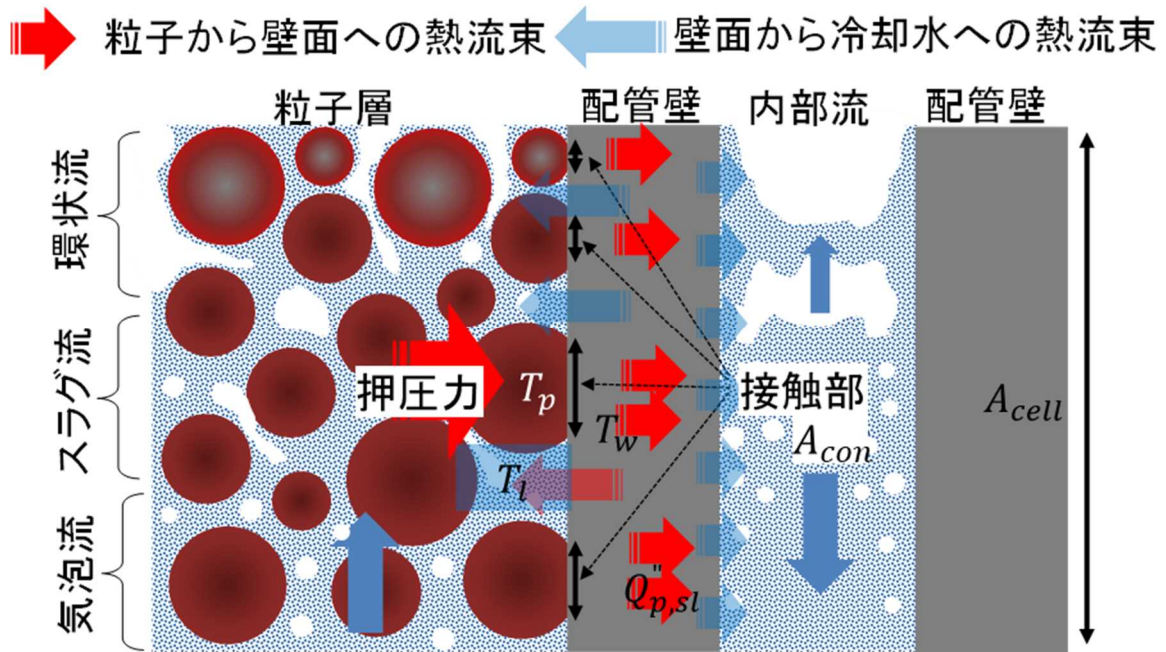
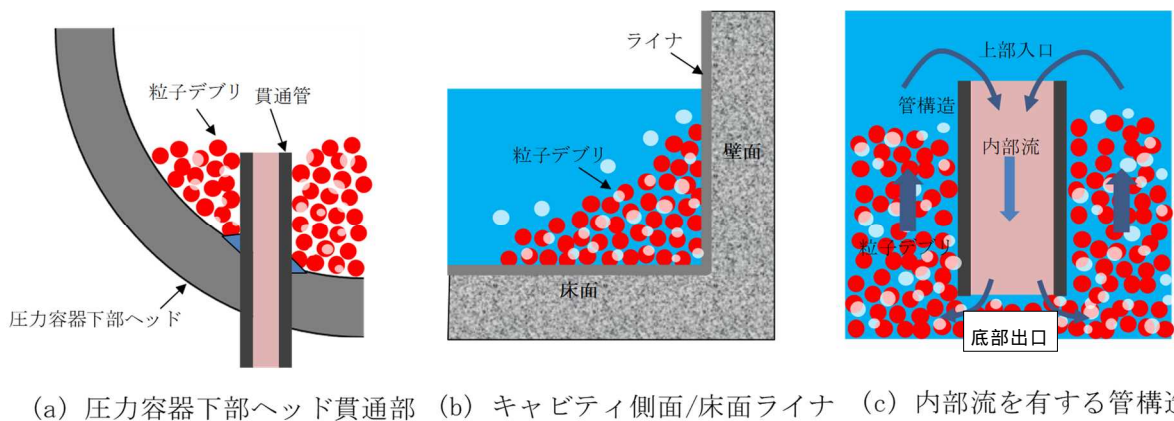


図 2.4.2 壁面に押圧された部分固化粒子状デブリの変形

Figure 2.4.2 Deformation of partially solidified particulate debris pressed against the wall



(a) 圧力容器下部ヘッド貫通部 (b) キャビティ側面/床面ライナ (c) 内部流を有する管構造

図 2.4.3 事故進展において重要な粒子状デブリと金属表面の接触熱伝達

Figure 2.4.3 Contact heat transfer between particulate debris and metal surface, which is important in the progress of an accident

## 2.4.2 研究の進め方

粒子状デブリの変形を考慮した壁面近傍の粒子層内部流動構造を把握しつつ接触熱伝達係数に関して表 2.4.1 に示す知見を拡充するために図 2.4.4 に示す 3 か年の計画を立て、主要現象の効果に関して階層化された複数の実験の中で、新規に実験技術を構築しつつ目的を実現することとした。以下に 3 階層の実験について簡潔にまとめる。

- (1) 成立性確認基礎実験 (令和 2 年度実施): 既往知見整理をベースとし、実験計画を立案

するとともに、新規に確立すべき実験技術課題を抽出し、実験体の構造及び製作技術、接触熱抵抗計測技術及び粒子層内部の流動構造同定技術に関する成立性確認基礎実験を実施した。

- (2) 個別効果実験(令和3年度実施): 成立性確認基礎実験により得られた実験技術を反映し、接触熱伝達と粒子層可視化について各々個別に計測を実施し、総合効果実験に適用すべき計測技術を確立するとともに、総合効果実験データを解釈するための基礎的知見を拡充した。
- (3) 総合効果実験(令和4年度実施中): 接触熱伝達及び冷却水対流熱伝達を総合的に捉えるデータを取得するための実験を実施中である。

本章の内容は、令和2年度及び令和3年度に実施した一般財団法人電力中央研究所への委託による成果をまとめたものである<sup>79, 80</sup>。

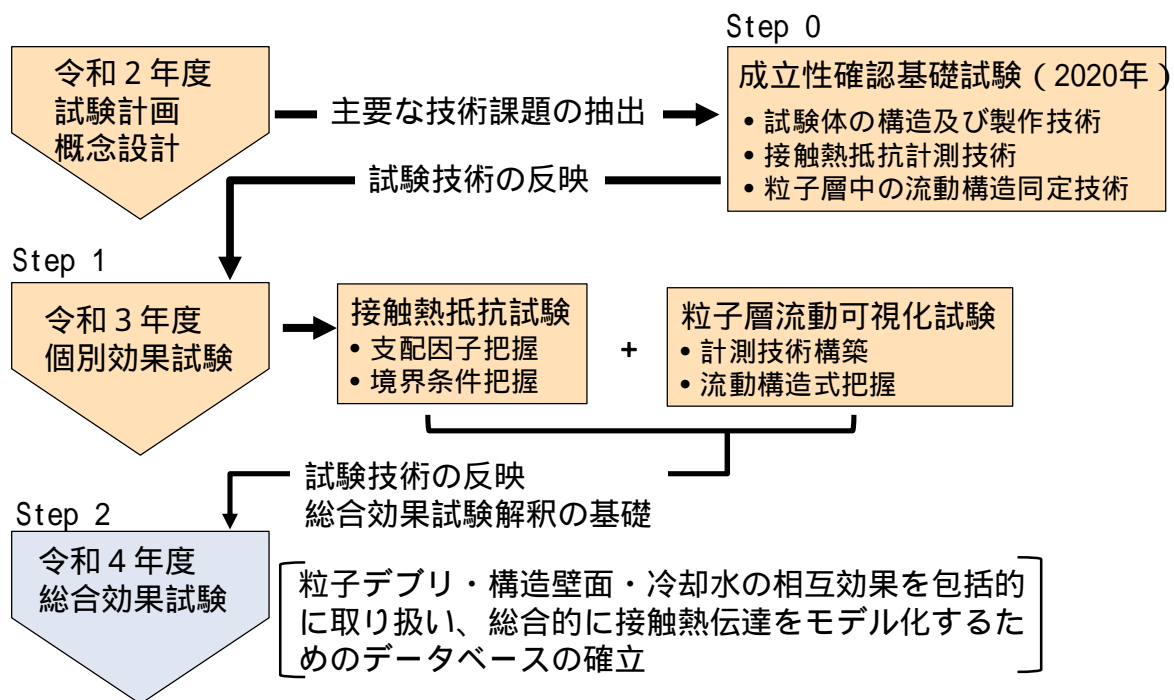


図 2.4.4 粒子状デブリ冷却性実験の計画

Figure 2.4.4 Plan for particulate debris cooling experiments

### 2.4.3 成立性確認基礎実験

令和2年度においては、成立性確認基礎実験として主要な実験技術に焦点を当て、電力中央研究所への委託事業により実施した。具体的には、実験体の構造及び製作技術、接触熱抵抗・有効熱伝導率測定技術及び周囲流体の流動計測に関する基礎技術構築のための実験を実施した<sup>79</sup>。

## (1) 実験体の構造及び製作技術

総合実験では、表 2.4.1 に示す粒子層における影響因子である粒子形状(サイズ、形状)及び粒子配置について、精度良く製作するため金属 3D プリンタ(3D Systems 社の ProX200)を使用する。以下の3実験の実施を通じて粒子層製造技術を構築した。

- ① ポロシティ制御に向けた基礎実験
- ② 基本形状パラメータ(スリット形状、横穴造形、粒子間隙間)限界確認実験
- ③ 粒子層造形パラメータ(粒子間オーバーラップ)限界確認実験

ここで用いる標準材料は、金属 3D プリンタ(3D Systems 社の ProX200)による製造技術及び粒子層の加熱の選択肢確保を考慮した上で、SUS630 造形粉末とした。

### ① ポロシティ制御に向けた基礎実験

粒子層の有効熱伝導率は粒子層内の沸騰に影響を与えるため、金属 3D プリンタによって空隙率(以下「ポロシティ」という。)を制御できることを確認した。積層造形を行う上で条件を定量的に評価するためにエネルギー密度という指標が用いられている。エネルギー密度  $E$  は単位体積あたりに与えられる全エネルギー量であり、レーザー出力[W]、走査速度[mm/s]、走査間隔[ $\mu\text{m}$ ]、積層厚さ[ $\mu\text{m}$ ]により与えられる。ポロシティ制御検討のために九つの立方体、また球状確認のために三つの実験体を造形し、ポロシティが 10% ~ 35% の範囲でエネルギー密度によってポロシティを制御できることを確認した。一般的にはポロシティが大きいほど造形が困難であり、10% よりもポロシティが小さい範囲については造形実験を実施していないものの、ポロシティ 1% まで密に造形することができると考えている。粒子層の造形では、一様に加熱するためにできるだけポロシティを抑制する方針である。

### ② 基本形状パラメータ(スリット形状、横穴造形及び粒子間隙間)限界確認実験

粒子層と壁面の接触部分の精度を確認するために、様々な形状のスリット(矩形、半円形及びV字形)のスリットを造形した。粒子層には、熱電対等の計測用の横穴を設ける必要があり、半円形スリット実験ではその点を確認するために全円形の横穴も造形している。矩形スリットの深さは 1.5 mm であり、凸部ピッチは、0.1 から 0.5 mm の範囲を 0.1 mm 刻みとし、凹部幅は 1 mm とした。半円形(及び全円形横穴)の直径は、凹凸スリットと同様に 0.1 mm から 0.5 mm の範囲を 0.1 mm 刻みとした。そして、V字形スリットのアスペクト比は、幅:深さ=1:3 とし、矩形スリットの深さは 1.5 mm とした。さらに、粒子間隙間形状の精度を確認するため、2×2 配列の粒子層を造形し、隙間直径を 0.3/0.5/1.0 mm の3段階とした。

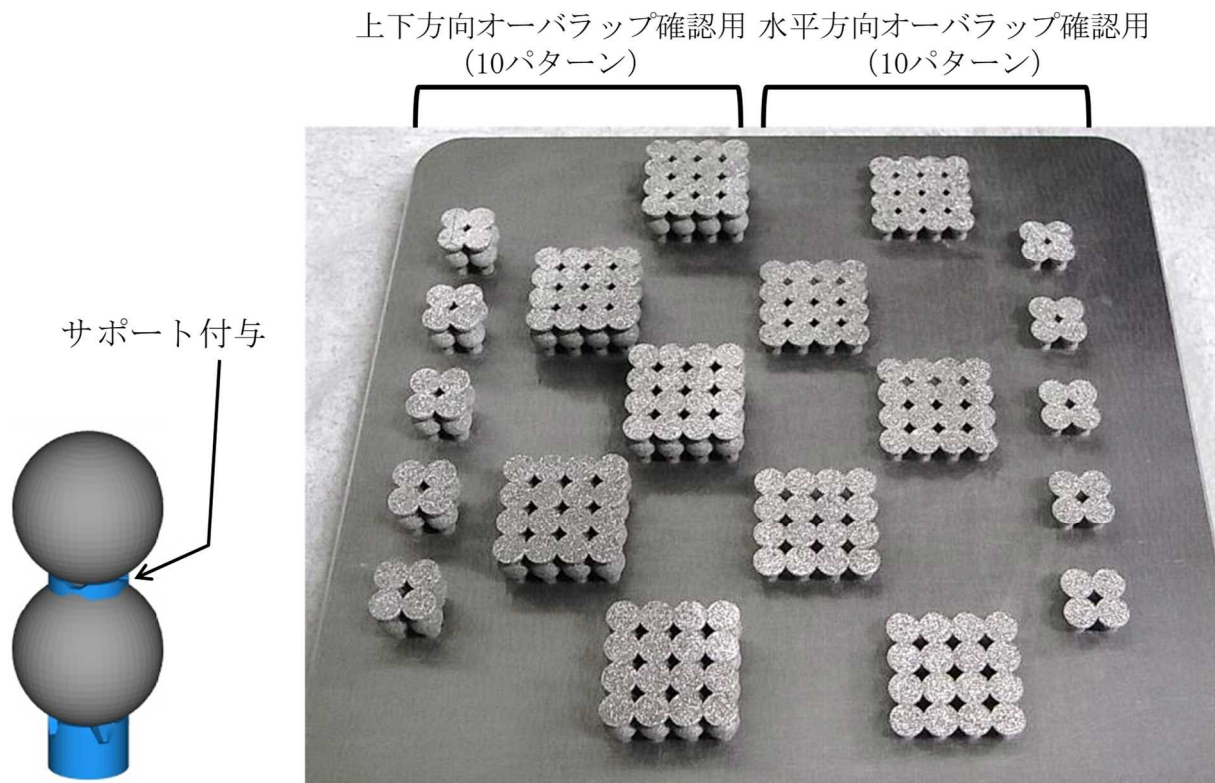
以上の造形物について、白色 LED 式のワンショット 3D 形状測定機による非接触測定を実施した。スリットについては、計測された形状プロファイルを三次元形状計測結果と CAD(STL 形式)と比較したところ、数ミクロンオーダーの造形精度が得られることが分かった。また、隙間については、直径 0.5 mm 以上であれば再現が可能であることを確認し

た。

### ③ 粒子層造形パラメータ（粒子間オーバーラップ）限界確認実験

粒子層内の粒子同士は点接触をしているが、3D プリンタによる造形では粒子同士は接合することにより粒子層を一体構造となる。造形アルゴリズム上、粒子間オーバーラップが小さいと、一体性を維持するために粒子間接合部に図 2.4.5 に示すようなサポートが付与され、目標とする粒子層構造からの逸脱が発生することとなる。

図 2.4.5 に示すように、球体は直径 5.0mm とし 2×2 若しくは 4×4 の配置とし、上下方向のオーバーラップを確認する 10 パターン及び水平方向のオーバーラップを確認する 10 パターンを造形した。その結果、オーバーラップを変化させつつ粒子接続部にサポートが付与されるかを確認すると、0.1mm ではサポートが付与され、造形上二つの球が別造形物として認識されることが分かった。また、表面粗さ計測により、平均的な表面粗さは 11 ~ 15 μm の間であることが分かった。



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和 2 年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2021.<sup>79</sup>

図 2.4.5 粒子層造形パラメータ限界確認実験造形物

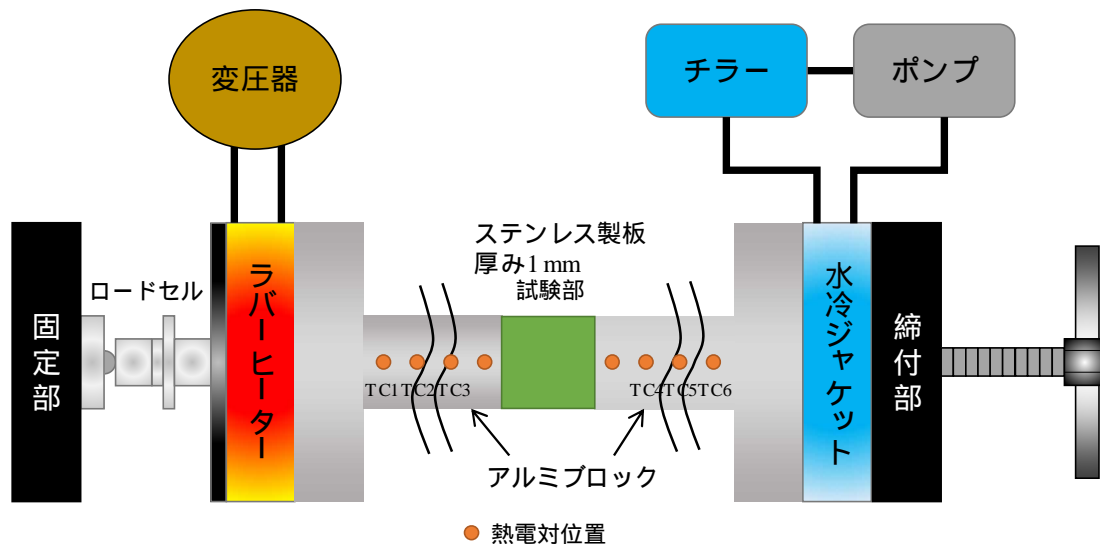
Figure 2.4.5 Objects produced in the particle layer modeling parameter limit confirmation test

## (2) 接触熱抵抗及び有効熱伝導率計測技術

総合効果実験において粒子層内の熱伝導挙動の把握に活用する予定である光ファイバセンサの温度計測性能を、電気炉内に光ファイバセンサと熱電対を設置し計測温度の比較を行うことにより確認した。光ファイバセンサは SUS 製極細ワイヤに挿入し、膨張を妨げない形でワイヤを SUS 板上に設置した。また、光ファイバ上の二か所に熱電対を設置した。非定常に温度を変化させた場合の熱電対と光ファイバセンサの比較では、いずれの時間帯においても両者の相違は $\pm 5\%$ 以内であり、実用上満足できる範囲であった。この誤差は炉内及びステンレス板の温度分布が非均一となりやすい温度上昇勾配が急激な時間帯で比較的大きくなっていることも分かった。

個別効果の一つである模擬デブリ 壁面接触部のモルフォロジ的変形が伝熱特性に与える影響の把握のための実験装置製作に向けた接触熱抵抗基礎実験を実施した。図 2.4.6 は、接触熱抵抗基礎実験装置の概略図である。実験部をアルミブロックで挟み込み、片端をラバーヒーターによって加熱し、反対側を水冷ジャケットにより冷却し温度を一定に保つ。実験部にはダミーとして、寸法が  $30 \times 30$  mm、厚さ 1 mm のステンレス製板を使用した。板材アルミブロックには熱電対を 8 か所取り付けており、実験部から最も近い 3 か所 (TC1-TC6) の応答により温度分布を計測した。右端の締結部によって実験部に加わる面圧を制御する。面圧の測定には左端のロードセルを用いた。この実験装置により、面圧印加・計測方法、加熱部構造、冷却部構造、実験体固縛方法等を検討した。

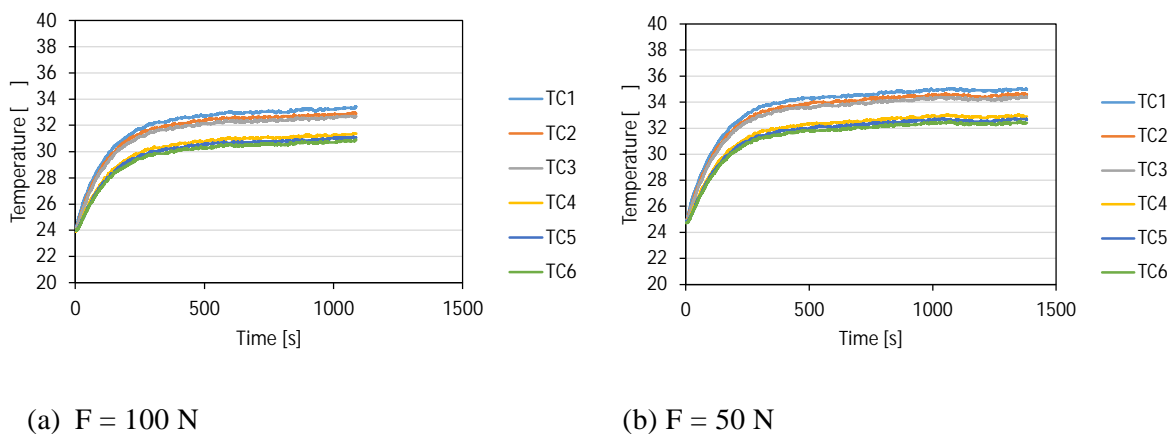
また、個別効果実験では、荷重印加による履歴効果を排除するために実験部とアルミブロックの間に金属犠牲板を挟んだ実験を行う予定である。個別効果実験において、実験部以外の接触部の影響を排除する技術として、実験部であるステンレス板と伝熱部であるアルミブロックの間に熱伝導グリスを塗布し、金属間の接触熱抵抗をどの程度排除できるかを確認した。図 2.4.7 の(a)及び(b)には、印加される荷重が 100 N と 50 N の場合の熱電対応答を示している。これらの図より、荷重印加による熱抵抗の差異がほとんどなくなっており、熱伝導グリスが界面に存在することで、計測される温度ギャップが実験体であるステンレス板の熱伝導により支配されると定性的に判断できる。



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和2年度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2021.<sup>79</sup>

図 2.4.6 接触熱抵抗基礎実験装置の概略図

Figure 2.4.6 Conceptual diagram of contact heat resistance basic test apparatus



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和2年度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2021.<sup>79</sup>

図 2.4.7 接触熱抵抗基礎実験温度計測結果 (アルミブロック + ステンレス板、熱伝導グリス有り)

Figure 2.4.7 Temperature measurement results in the contact heat resistance basic test (aluminum block + stainless steel plate, with heat conduction grease)

### (3) 周囲流体の流動計測に係る基礎実験

個別効果の一つである粒子層内における気液二相流流動構造の把握に活用する技術である屈折率マッチング Index Matching (以下「IM」という。)法及び WMS についての基礎実験を実施した。

有望な IM 材料の候補として、THV(屈折率 1.36/透過率 85%)、MEXFLON(屈折率 1.33/



透過率 95 %) 及び CYTOP ( 屈折率 1.34/透過率 95 %) について比較検討を実施した。THV は熱可塑性フッ素樹脂であり、従来のフッ素樹脂と比較して透明性が高いが、屈折率が 1.36 と純水の屈折率 1.33 と比べるとやや高いため、純水に溶質を混合することで屈折率を調整する必要がある。融点は 115 °C でありやや低い。MEXFLON はフッ素系モノマーとその重合によって得られる樹脂である。水と全く同じ屈折率を持ち透明性が非常に高いが、加工が難しく脆性が高いため扱いにくい材料である。融点は 156 °C でありやや高い。CYTOP は、ペルフルオロ(4-ビニルオキシ-1-ブテン)(BVE)を環化重合させることにより得られる非結晶フッ素樹脂である。屈折率が 1.34 であり水とほぼ同じ値を示し、広範囲の波長を有する光に対する透明性が非常に高い。しかし、材料費用が高価であり、溶液の状態で提供され、そこから意図する形状に焼成する必要がある。

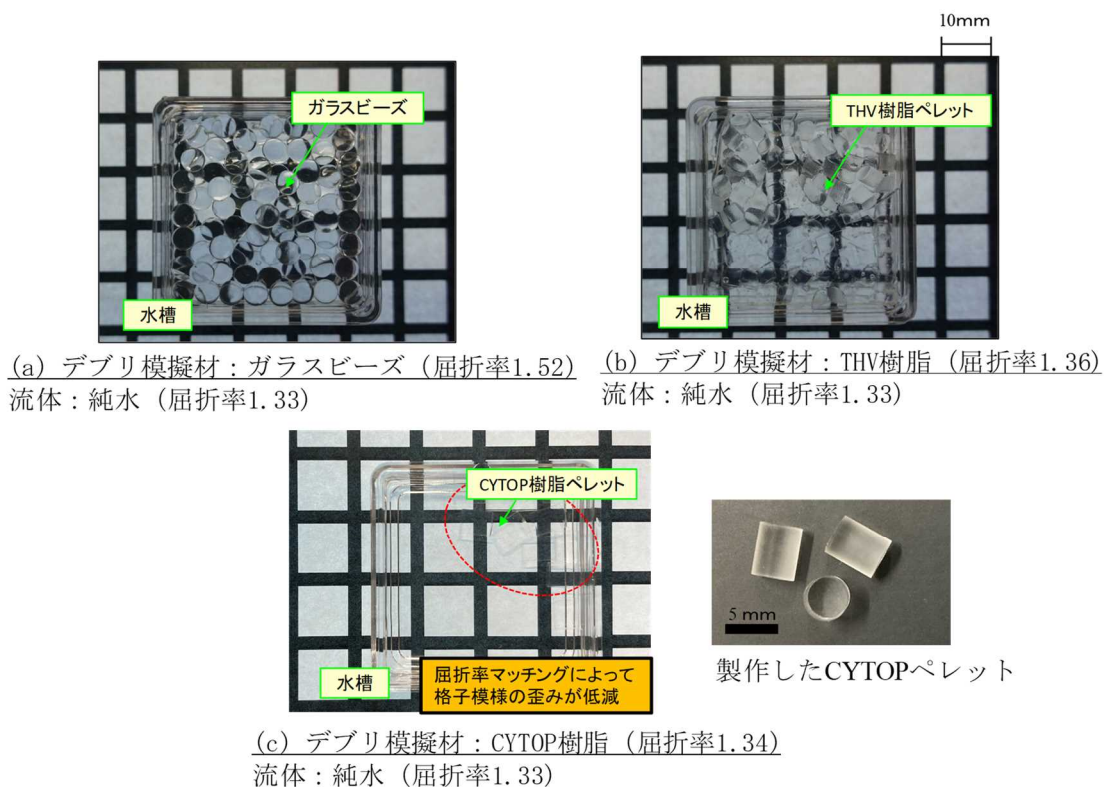
ここでは、入手が困難であり加工しにくい MEXFLON を選択せず、CYTOP を第一候補材料とし、かつ屈折率がやや高く透過率の低い THV を補助材料として、粒子層内流動構造の可視化技術構築について検討した。ただし、基礎実験実施期間において、CYTOP についてはペレット及び平板の焼成技術を確立し、焼成後の外観、透過率等の確認を実施した。図 2.4.8 は、純水を入れた容器の底に格子パターンを配置して、その上にガラスビーズ、THV ペレット及び CYTOP ペレットを配置して上方から撮影した画像である。これらの画像から、純水と屈折率がほぼ一致する CYTOP を通した格子の歪みは格段に小さく、また透過率が優れていることが分かる。令和 3 年度においては、CYTOP により直径 5 mm の球形粒子を精度数%の範囲にて焼成する技術を確立した。

図 2.4.9 は、THV 粒子層における停滞水中の気液二相流可視化実験装置の概略図である。粒子材料としては、実施時点で粒子として用意可能な THV を用いることとした。粒径 5 mm の THV 粒子をアクリル円筒内に約 15 mm の厚みで充填し、その際のポロシティは 0.61 となった。WMS( Teletronic、SGITT100 )は粒子層の下端から約 15 cm の位置に設置した。流体には純水を用いており、流路下部に設置したノズルから空気コンプレッサによって空気を導入した。粒子の材質は、ガラスビーズ若しくは THV 樹脂とした。ガラスビーズの粒子層は純水に対して屈折率が大きく二相流を観察することは困難なために、照明方法として同軸落射法を採用した。THV 粒子層では、屈折の影響を十分に低減できることから気泡輪郭を鮮明に撮影できるバックライト法を採用した。照明光源には、High-Intensity discharge (HID)ライト ( RAYGEARS、SL35100 )を用いた。気液二相流動構造の撮影には、高速度カメラ ( Photron、AX mini 100 )を用いて 1000 fps の撮影速度で撮影した。

図 2.4.10 は、ガラスビーズ粒子層と THV 粒子層における二相流観察結果の比較結果である。ガラスビーズ粒子層では、容器壁面付近を流れる小気泡を観察することはできるが、全体としては気泡の輪郭を捉えることは難しい。これに対して、THV 粒子層では、光源とカメラの間に存在する気泡界面での屈折により透過光が減少することにより気泡の射影画像が観察されており、スラグが下方から上方へ流れていく様子を観察することができる。より屈折率が純水に近く、透過率の高い CYTOP を用いれば、更に鮮明な画像が得られる

と期待できる。

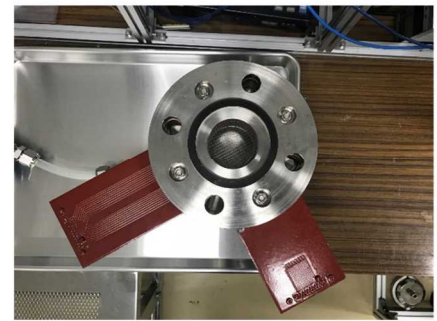
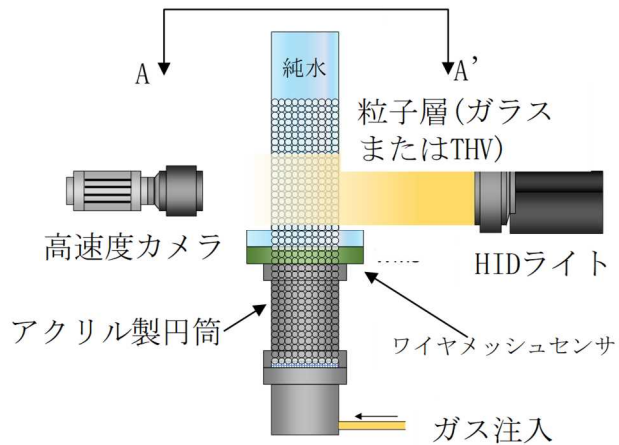
WMS によって計測されたボイド率分布の時系列を図 2.4.11 に示す。粒子層に直接接触するように WMS を設置する場合には、局所における電気伝導率のダイナミックレンジにばらつきが生じるため計測の際は注意が必要である。今回は、励起ワイヤ電極群と受信ワイヤ電極群を 1 組とする WMS が 2 組重ねられたいわゆる Dual WMS を使用したが、1 組のみの WMS を粒子層と直接接触ないように設置することで上記の課題は解決される。



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和 2 年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2021.<sup>79</sup>

図 2.4.8 粒子材料の屈折率及び透過率の比較

Figure 2.4.8 Comparison of refractive index and transmittance of particle materials

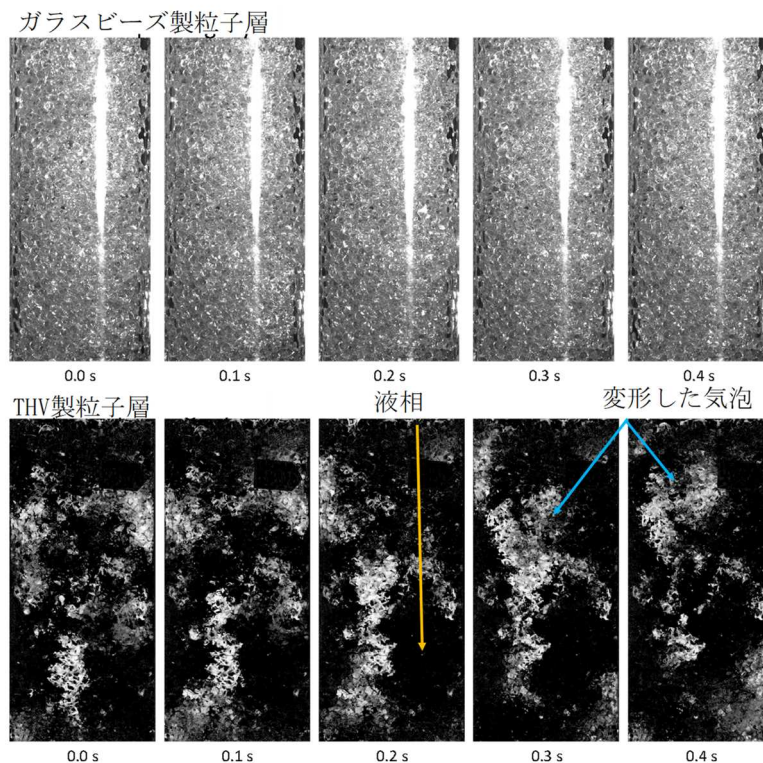


A-A' 矢視 ワイヤメッシュセンサ

出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和2年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2021.<sup>79</sup>

図 2.4.9 粒子層における停滞水中の気液二相流可視化基礎実験装置

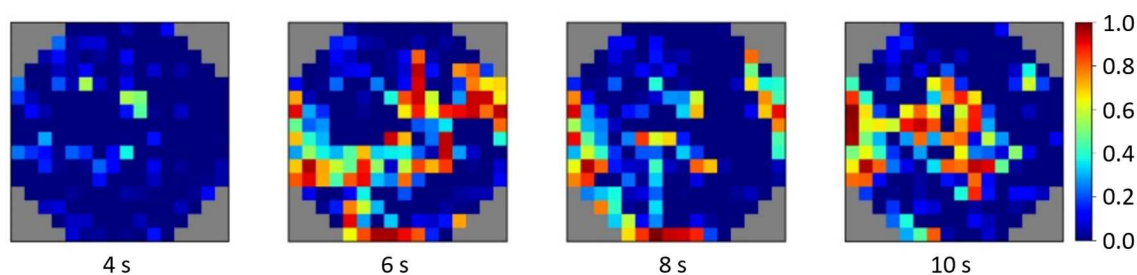
Figure 2.4.9 Basic test apparatus for visualization of gas-liquid two-phase flow in stagnant water in the particle layer



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和2年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2021.<sup>79</sup>

図 2.4.10 ガラスビーズ粒子層と THV 粒子層における二相流観察結果の比較

Figure 2.4.10 Two-phase flow observation results in the particle layers of glass bead THV



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和2年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」、2021.<sup>79</sup>

図 2.4.11 WMS によって取得されたボイド率分布

Figure 2.4.11 Void fraction distributions obtained by the wire mesh sensor

## 2.4.4 個別効果実験

令和3年度においては、個別効果実験として、接触抵抗実験及び流動可視化実験を、電力中央研究所への委託事業により実施した<sup>80</sup>。

### (1) 接触熱抵抗実験

#### ① 実験装置の詳細設計と構築

表面粗さは実験体の特性であることから実験前に計測する。そのため、接触熱抵抗実験では、主に実験部内温度分布(熱流束)、接触面圧、実接触面積(面圧分布測定に基づき均一な接触状態を確認した面積)が計測できることを目的とした。これらの要求を満たすため、図 2.4.12 に示す実験装置を設計し組み立てた。粒子状デブリの模擬は、デブリ粒子径や配置を模擬して基礎実験で用いた金属 3D プリンタ等を活用して製作する。

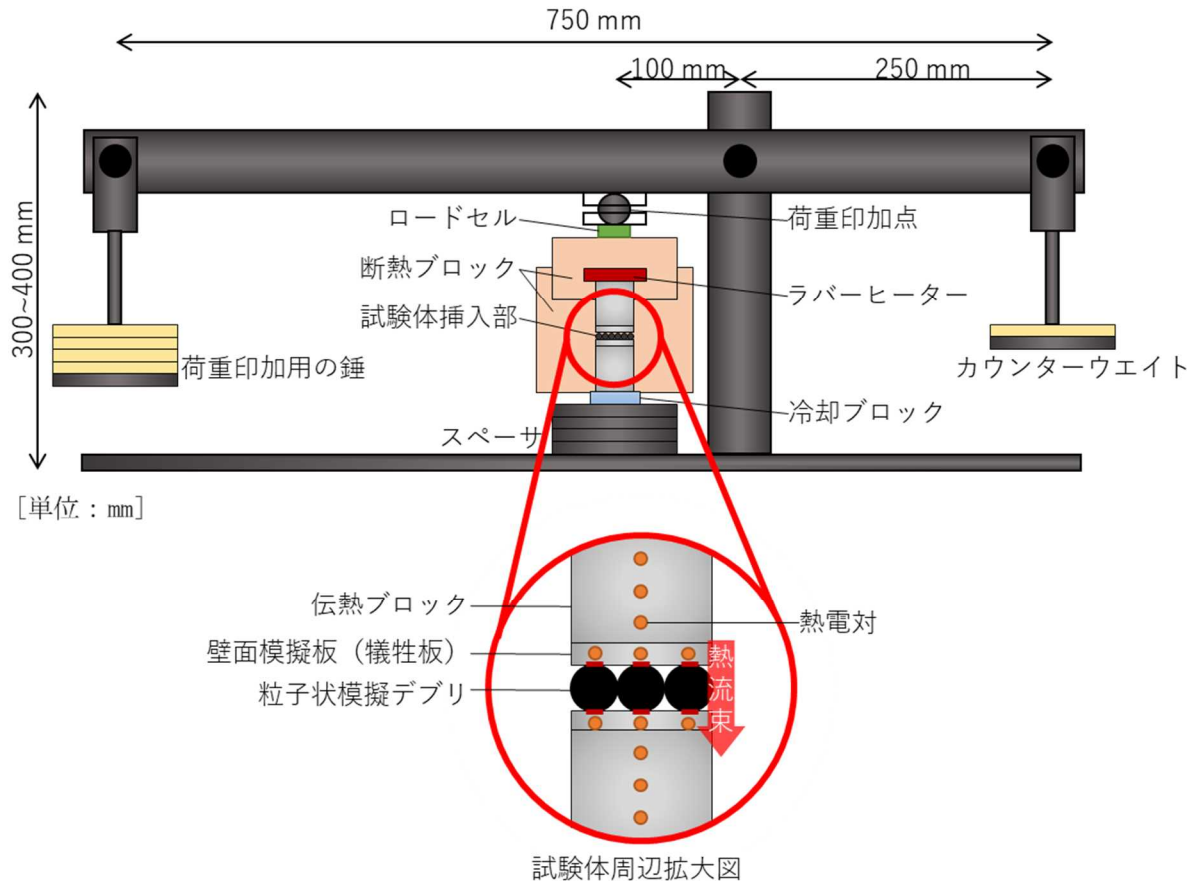
実験装置は、主に接触熱抵抗を計測する実験部と実験部に荷重を印加する梃子機構から構成される。この梃子機構によって、小さな錘で大きな荷重を実験部に印加できる。また、実験部上端を自由端とすることで、実験部加熱に伴う実験部の熱膨張に起因する面圧条件のばらつきを除去し、高精度な計測が可能となる。主な構成要素を表 2.4.2 にまとめる。

実接触面積の計測は、圧力分布・面圧測定フィルムであるプレスケール(富士フィルム)を使用した。このシートによる圧力測定では、シートに塗布された発色剤層のマイクロカプセルが圧力によって破壊され、その中の無色染料が顕色剤に吸着して、化学反応で赤く発色することを利用する。発色剤のマイクロカプセルは、様々な大きさ・強度に調整され、均一に塗布されているため、圧力に応じた発色濃度が得られる。測定に当たっては、実験部に取り付けている断熱ブロックを取り外して実施している。

表 2.4.2 接触熱抵抗実験の構成要素

Table 2.4.2 Components of contact heat resistance test

|           |  |
|-----------|--|
| ラバーヒーター   | 柔軟性をもったシリコンラバーヒーターを使用した。実験部で得られる最大熱流束は 50 kW/m <sup>2</sup> 。                      |
| 伝熱ブロック    | 材質はアルミ合金 (JIS 規格 A5052) を使用した。上面下面の粗さは R <sub>max</sub> 1.6-S で加工。                 |
| 壁面模擬板     | 伝熱ブロックと同じ材料。直径 0.5 mm の T 型熱電対を埋め込むための穴を設けている。上面下面の粗さは R <sub>max</sub> 1.6-S で加工。 |
| 冷却ブロック    | 水冷式の冷却ブロックにより実験部下端の温度を制御する。上面下面の粗さは R <sub>max</sub> 1.6-S で加工。                    |
| 梃子機構および土台 | 実験部に垂直荷重のみが加わるよう、土台に垂直な方向のみに実験部が移動するようにガイドを設ける。                                    |
| 荷重印加用の錘   | 錘は円板形状を基本とし、合計で 20 kg とすべく複数枚製作。   |
| 熱電対       | タイプ T シングル非接地型クラス 1 (JIS) 直径 0.5 mm (常用温度 300 °C)                                  |
| ロードセル     | ロードセル (定格容量 : 1 kN、総合誤差 : 0.5% of R.O.) は、梃子の力点と実験部上端の間に設置した。                      |



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」、2022.<sup>80</sup>

図 2.4.12 接触熱抵抗実験装置の概念図

Figure 2.4.12 Conceptual diagram of contact heat resistance test apparatus

## ② 実験条件

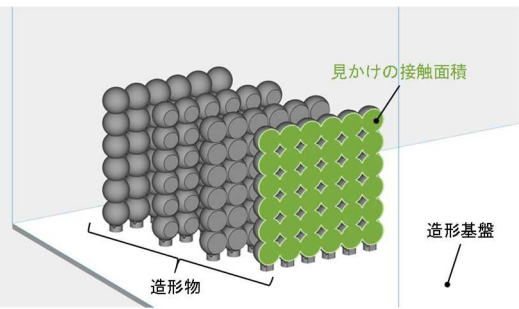
本実験の目的は、軽水炉の重大事故時に生じ得る高温溶融物が半固化状態で粒子化し堆積した場合を想定して、高温粒子デブリ 金属壁面接触部のモルフォロジ的変形が粒子壁面間の伝熱特性に与える影響を接触熱抵抗の計測によって把握し、デブリ冷却に関する解析コードの開発において、粒子状デブリから構造物への伝熱に関するモデル開発に必要なデータを取得することである。表 2.4.3 に示す実験条件範囲はこの目的に対応したものである。

実機において炉心溶融物が半溶融状態で伝熱壁面に接触し、壁面になじむようにして接触界面が広がる場合を想定して、複数粒子で形成される板の接触部の大円を切り落とした実験体を複数用意し、接触面積の拡大を再現する。そこで、実験パラメータには、粒子状デブリの配置、材質、実験部熱流束、接触面圧、設計（見かけの）接触面積及び表面粗さを選んだ。

- a 粒子状デブリ直径である 5 mm は、後述する流動可視化実験のベースケースと対応している。粒子の配置については単純立方と六方最密を選んでおり、流動可視化実験における壁面付近の粒子配列を模擬しつつ、堆積した粒子状デブリ内の沸騰二相流で重要となる充填率に対応する形でかつ理論的に分析しやすい配列を選択している。
- b 実験部材質の組合せとしては、金属 3D プリントによる造形実績が豊富であり、加熱による温度条件を設定しやすいステンレス (SUS630) 及び実機のデブリが高温で長時間かけて変形することを考慮して比較的柔らかい金属であるアルミニウムを選んだ。
- c 実験部熱流束は崩壊熱程度としている。
- d デブリと構造物壁面の間における密着度合いについては、接触面圧と表面粗さを制御することによって模擬する。アルミニウム板の表面粗さは、算術平均粗さ Ra1.0[ $\mu\text{m}$ ]として実験条件を固定している。

表 2.4.3 接触熱抵抗実験の実験条件

Table 2.4.3 Test condition of the contact heat resistance test

| 項目            | 条件   |
|---------------|--|
| 粒子状デブリの粒子径、配置 | 直径 5 mm、単純立方と六方最密  |
| 材質            | 粒子 (SUS630) -アルミニウム  |
| 実験部熱流束        | 5 - 25 kW/m <sup>2</sup>   |
| 接触面圧          | 0.5 - 2.5 MPa  |
| 設計接触面積        | 球の大円に対して、1% - 100%<br> |
| 粒子状デブリの表面粗さ   | Ra3、Ra5 $\mu\text{m}$  |
| アルミニウム板の表面粗さ  | Ra1 $\mu\text{m}$  |

出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和 3 年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」、2022.<sup>80</sup>

③ 温度計測結果に基づく実験部熱流束と実験体両端温度差の評価方法

図 2.4.13 は、実験部に取り付けられた熱電対によって測定した接触部を跨ぐ温度分布の例である。得られた温度分布からフーリエの法則を用いて式(2.4.1)によって実験部熱流束を評価した。

$$q = -k_{Al} \frac{dT}{dx} \dots \dots \dots (2.4.1)$$

ここで、 $k_{Al}$ は加熱部・冷却部から実験体までの伝熱部材の熱伝導率である。実験部加熱端側の温度勾配から求めた熱流束を $q_{hot}$ とし、実験部冷却端側の温度勾配から求めた熱流束を $q_{cold}$ として、熱抵抗の評価で基準とする熱流束は式(2.4.2)で得られる $q_{ave}$ を用いた。

$$q_{ave} = \frac{1}{2}(q_{hot} + q_{cold}) \dots \dots \dots (2.4.2)$$

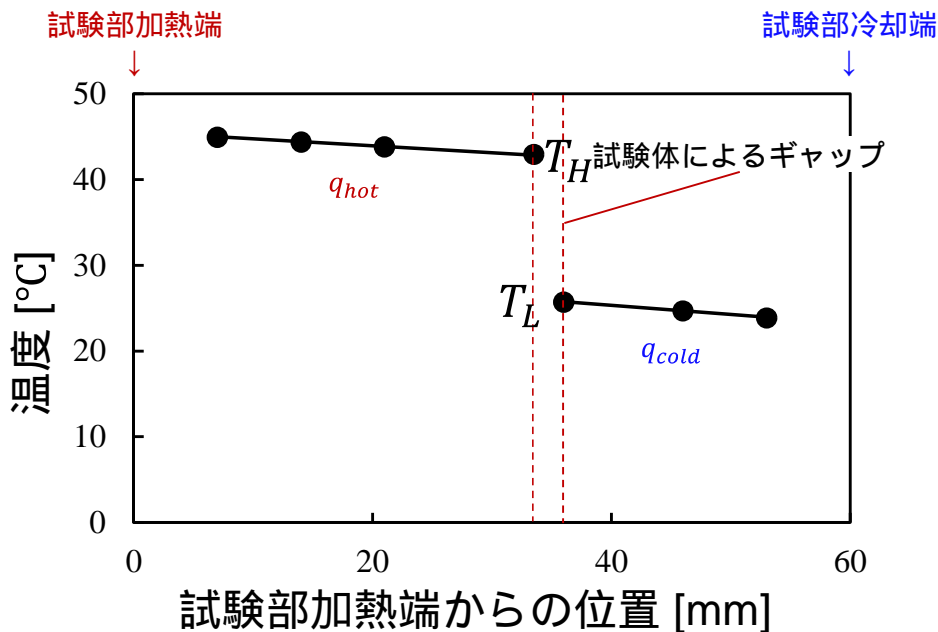
実験体両端温度差は、実験部加熱端・冷却端からの温度計測結果から線形外挿によって推定した実験体両端温度 $T_L$ 及び $T_H$  ( $T_L < T_H$ ) に基づき、式(2.4.3)を用いて計算した。

$$\Delta T = T_H - T_L \dots \dots \dots (2.4.3)$$

単位面積当たり接触熱抵抗は式(2.4.4)により、また接触熱抵抗は式(2.4.5)により計算した。ここで、断面積 $A_0$ は実験体伝熱面における設計接触面積とした。金属 3D プリントにより造形した後に実験体表面に面出し処理と研磨処理を施した場合、実接触面積と見かけ接触面積は十分に近い値となることを確認しており、接触面の平滑化により面圧分布もほぼ均一であることを確認した。

$$r = \frac{\Delta T}{q_{ave}} \dots \dots \dots (2.4.4)$$

$$R_0 = \frac{\Delta T}{Q} = \frac{\Delta T}{A_0 q_{ave}} \dots \dots \dots (2.4.5)$$



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2022.<sup>80</sup>

図 2.4.13 接触熱抵抗実験における接触部をまたぐ温度分布

Figure 2.4.13 Temperature distribution across contact zone in the contact heat resistance test



#### ④ 実験結果

実験部への接触面圧、実験部熱流束、実験体の粒子配列パターン及び接触部面積を変化させ、合計 63 ケースの組み合わせにて計測を実施した。各実験ケースにおいて計測された温度分布から求められる接触熱抵抗と、その逆数である有効熱伝達率のパラメータ依存性を整理している。図 2.4.14 (a)は、接触面圧と有効熱伝達率の関係と表面粗さの影響を示している。既往研究と同様に、接触面圧の上昇とともに有効熱伝達率が増加していくのが分かる。

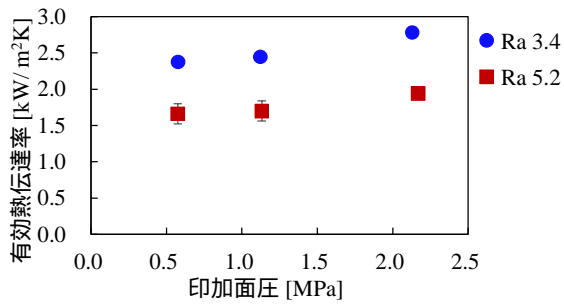
また、図 2.4.14 (b)に示す粒子配列パターンが有効熱伝達率に及ぼす影響については、最も小さな面圧 0.5 MPa では配列パターンによる影響は見られないが、接触面圧が増加すると、単純立方格子<六方最密格子となる傾向が見られた。

粒子状模擬デブリの単位面積当たりの接触面積は単純立方格子<六方最密格子である。接触面圧が低い場合にはほとんど点接触であり、両格子の差異は顕著ではない。一方で、接触面圧が大きくなるにつれて接触界面が噛み合い、接触面がミクロに塑性変形することにより実接触面積がわずかながら増加することが考えられるが、それによる両格子の接触面積の差異は拡大すると考えられる。一方で、修正橘・佐野川の式<sup>88</sup>では、接触部に流れ込む熱流が縮流し、ここから流れ出す熱流が急拡大することと面圧の関係に着目し、接触圧力が極端に大きい場合には、接触部に流れ込む熱の割合は熱伝導率にある係数を乗じた定数で加味することができるとしている。同時に、接触圧力が小さい場合には、この熱の縮流・急拡大による熱抵抗は無視することができるとしている。以上のような考察をベースに、接触熱伝達係数モデルの開発を進めていく予定である。

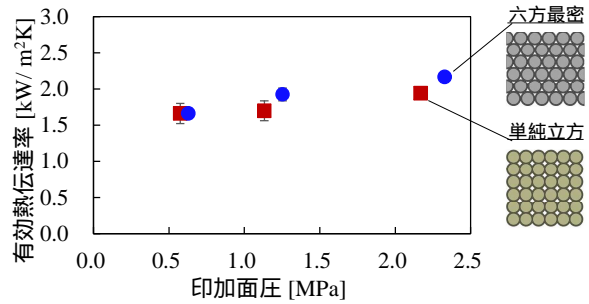
図 2.4.14 (c)では、接触圧力が $p_m = 1.0$  MPaの時にける設計接触面積比率と有効熱伝達率比率の関係を示している。基準ケースには設計接触面積が  $451.67 \text{ mm}^2$ の実験ケースを用いている。縦軸について左軸と右軸は、それぞれ有効熱伝達率の比率と設計接触面積の比率を表しており、横軸は接触面積の比率である。接触面積が大きくなるほど有効熱伝達率が大きくなっていることが分かる。

接触する材料の硬度が高いほど面圧の影響は生じにくいだが、本実験のようにアルミニウム合金のような硬度の小さな金属を用いた場合でも、接触面圧による有効熱伝達率への影響は表面粗さや設計接触面積による有効熱伝達率への影響に対して小さいことが分かった。

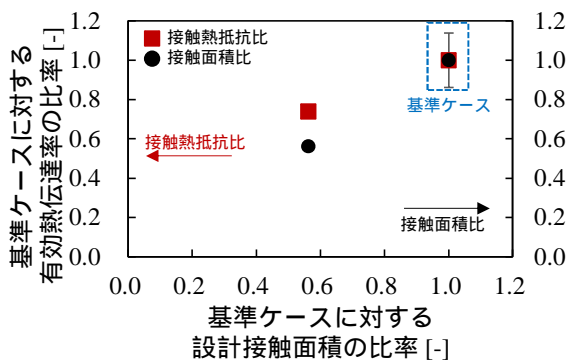
図 2.4.14 (d)では、実測値と福岡の式<sup>87</sup>及び橘・佐野川の式<sup>88</sup>の比較を示すが、実測値の傾向はばらつきの範囲で両モデルによって近似できることが分かる。



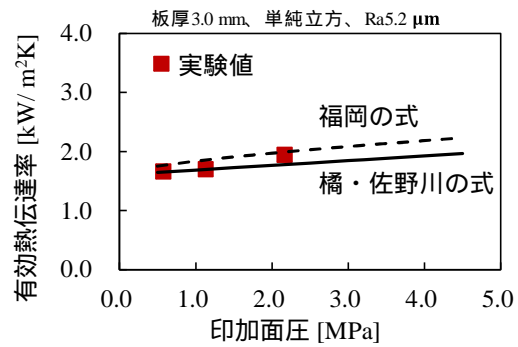
(a) 印加面圧と表面粗さの影響



(b) 印加面圧と配列パターンの影響



(c) 設計接触面積比率の影響



(d) 実測値と理論値の比較

出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」、2022.<sup>80</sup>

図 2.4.14 接触熱抵抗実験における有効熱伝達係数の測定結果

Figure 2.4.14 Results of the effective heat transfer coefficient in the contact heat resistance test

## (2) 流動可視化実験

### ① 実験装置の詳細設計と構築

本実験では、基礎実験において構築した、粒子層内における計測技術である IM 法及び WMS を活用し、粒子層と壁面接触領域及び粒子層内の二相流動構造を計測した。また、粒子層構造と二相流動構造の双方に関連する圧力損失等を計測した。図 2.4.15 に装置及び実験部の構成並びに計測系を含む実験体系の概念図を示す。

実験装置は、循環系統、冷却系統、及び補機系統により構成される。循環系統は、循環系ポンプ、流量調整機器、気水分離機、実験容器及びバイパス流路から構成され、実験部に所定の条件(温度、流量)の循環水を供給する。流路側面には、差圧計測又は熱電対による温度計測用のポートを設けている。実験装置の主要な構成要素について表 2.4.4 にまとめる。

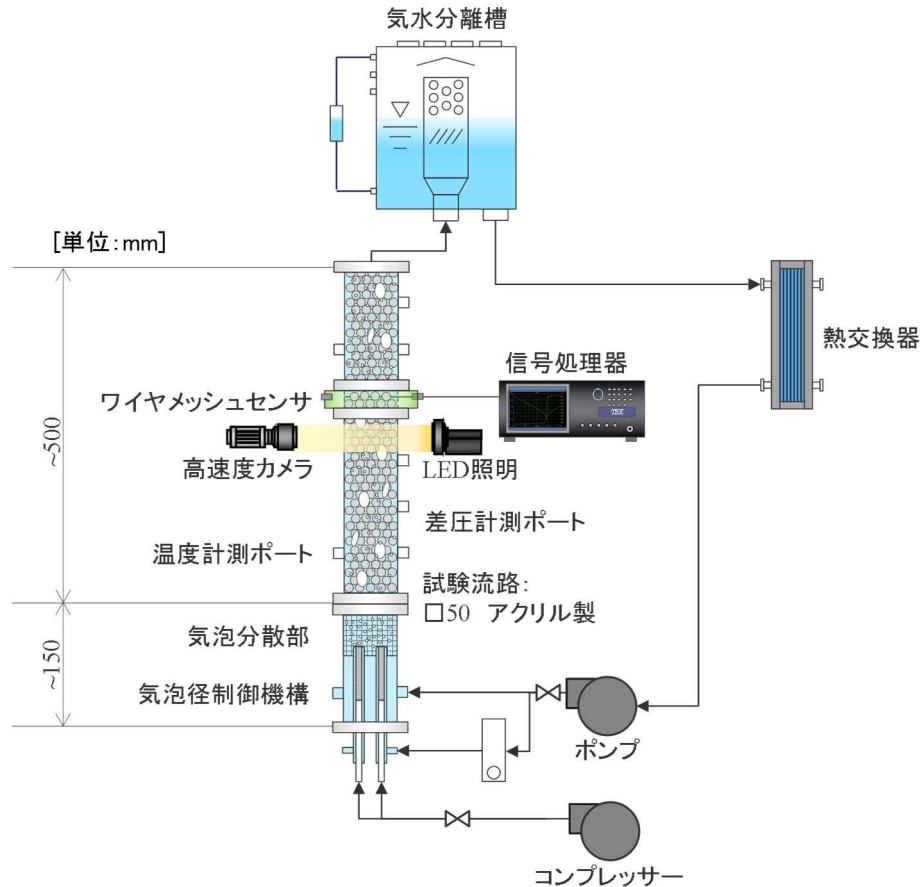
実験は、非透明粒子を用いた粒子層-壁面接触部及び透明粒子を用いた粒子層内の二相構造可視化の2分野に分けて実施した。可視化法として、前者については近赤外光源を用いたフロントライト法、また後者については背面に LED 照明を配置しバックライト法によ

って充填層内部の気液二相流動を可視化した。撮影には高速度カメラ（Photron、AX mini 100）を用い速度は 1000 fps とした。

表 2.4.4 流動可視化実験装置の構成要素

Table 2.4.4 Components of the flow visualization test apparatus

|                 |  |
|-----------------|--|
| 粒子充填用アクリル可視化流路  | 高透明なアクリル。流路断面寸法は、50 mm × 50 mm とし、500 mm の可視化区間を高さ方向に設置。   |
| 高速度カメラ及び照明      | 粒子層-壁面接触部二相構造可視化<br>フロントライト法(近赤外光源)、高速度カメラ(Photron、AX mini 100) @1000 fps<br>粒子層内二相構造可視化<br>バックライト法によるシャドウグラフ撮影(LED光源)、高速度カメラ(Photron、AX mini 100) @1000 fps |
| 温度及び差圧測定        | 差圧計測(5カ所)若しくは熱電対による温度計測用(2カ所)のポートを設置。  |
| 水空気二相流用多分岐気泡生成部 | 9本の二重管ノズルを設け、二重管の内側には空気を流し、外側には水を所望の流量で安定して流す。内管の先端部は焼結体とし、実験流量と独立に気泡径を制御できる構造とした。   |
| WMS             | WMS計測ユニットの流路断面寸法は、50 mm × 50 mm とし、流路方向高さは45 mm程度とした。印加(5本)と受信(5本)のワイヤを交差させて合計25点の計測点を有する構造を一段とした二段構造としている。  |



出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」、2022.<sup>80</sup>

図 2.4.15 流動可視化実験装置の概念図

Figure 2.4.15 Conceptual diagram of flow visualization test apparatus

## ② 実験条件

粒子層-壁面接触部二相構造可視化のためには粒子材料として窒化ケイ素を用い、粒子層内二相構造可視化のためには CYTOP を用いた。

粒子層-壁面接触部二相構造可視化の実験パラメータは、粒子状デブリの粒子径、液相流及び気相流の流量とした。窒化ケイ素製粒子の粒子径は、基礎実験における接触熱抵抗実験と一部を対応させている。粒子径 3-5 mm 以下では、環状流へと遷移するポイド率が小さくなるため、大幅に界面面積が低下し、これにより摩擦力が低下することに注目する。実験条件マトリクスでは、粒子径 5 mm をベースケースとして、粒子径 3、5 及び 10 mm について実験を実施した。また、流量範囲については過酷事故時に生じる自然対流状態を想定した流量を含む範囲とした。

粒子層内二相構造可視化では、ベースケースである粒子径 5 mm のみについて、純水と同じ屈折率を持ちガラス以上の透明度を持つ CYTOP 製粒子を用いた実験を実施した。また、粒子層内のバルク領域での気相流れは、粒子層-壁面接触部のそれに比べて相対的に小

さいことが予想されるため、断面平均ボイド率が 0.1 以下となる気泡流領域となる流速条件にて実験を実施した。

表 2.4.5 流動可視化実験の実験条件

Table 2.4-5 Test conditions for flow visualization test

| 項目      |           | 条件                                 |
|---------|-----------|------------------------------------|
| 圧力      |           | 大気圧                                |
| 粒子材料    | 粒子層-壁面接触部 | 窒化ケイ素                              |
|         | 粒子層内      | CYTOP                              |
| 粒子径     | 粒子層-壁面接触部 | $\phi 3$ 、 $\phi 5$ 、 $\phi 10$ mm |
|         | 粒子層内      |                                    |
| 液相見かけ流速 | 粒子層-壁面接触部 | $j_L = 0.0 - 75$ mm/s              |
|         | 粒子層内      | $j_L = 0.0 - 53$ mm/s              |
| 気相見かけ流速 | 粒子層-壁面接触部 | $j_g = 0.03q - 1.95$ mm/s          |
|         | 粒子層内      | $j_g = 0.004$ m/s                  |

出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和 3 年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」、2022.<sup>80</sup>

### ③ WMS 測定結果処理法

WMS で得られる計測電位時系列データ  $U(t)$  から局所ボイド率  $\alpha(t)$  への換算は、液相单相及び気相单相時の電位に基づき、以下の式を用いた。

$$\alpha(t) = \frac{U_{water} - U(t)}{U_{water} - U_{air}} = 1 - \frac{U(t)}{U_{water}} \dots \dots \dots (2.4.6)$$

ここで、 $\alpha(t)$  は局所ボイド率、 $U_{water}$  は液相单相での計測電位、 $U_{air}$  は気相单相での計測電位、そして  $U(t)$  は二相流での計測電位を示す。気相单相時に計測電位は 0 と見なせることから、更に式を簡略化できる。

流速分布を求める。2 組の WMS を流れ方向に近接配置した場合、気泡が通過するとき両者のセンサで時間差が生じる。このときの流れ方向の一次元界面移動速度  $u_g$  を次式により求める。

$$u_g = \frac{s}{\tau} \dots \dots \dots (2.4.7)$$

ここで、 $s$  は近接配置した 2 組の WMS 間距離であり、本実験では 30 mm である。 $\tau$  は近接配置した 2 組の WMS 間を気泡が通過するときの時間差である。時間差  $\tau$  は、2 組の WMS で得られた時系列の計測波形に対して相互相関解析を行い、相互相関係数が最大値をとるときの時間差とした。

#### ④ 実験結果

粒子層と壁面接触領域の二相構造可視化では、3種類の粒子径について、液相見かけ流速と気相見かけ流速を変化させることにより、合計119ケースの条件下において実験を実施した。一方、粒子層内の二相構造可視化では、1種類の粒子径について7ケースの条件下において実験を実施した。

図 2.4.16(a)に WMS の計測位置とボイド率時系列の空間分布図の対応関係を示した。また、図 2.4.16 (b)に差圧計測区間の名称を示した。

##### a 粒子層-壁面接触部二相構造可視化

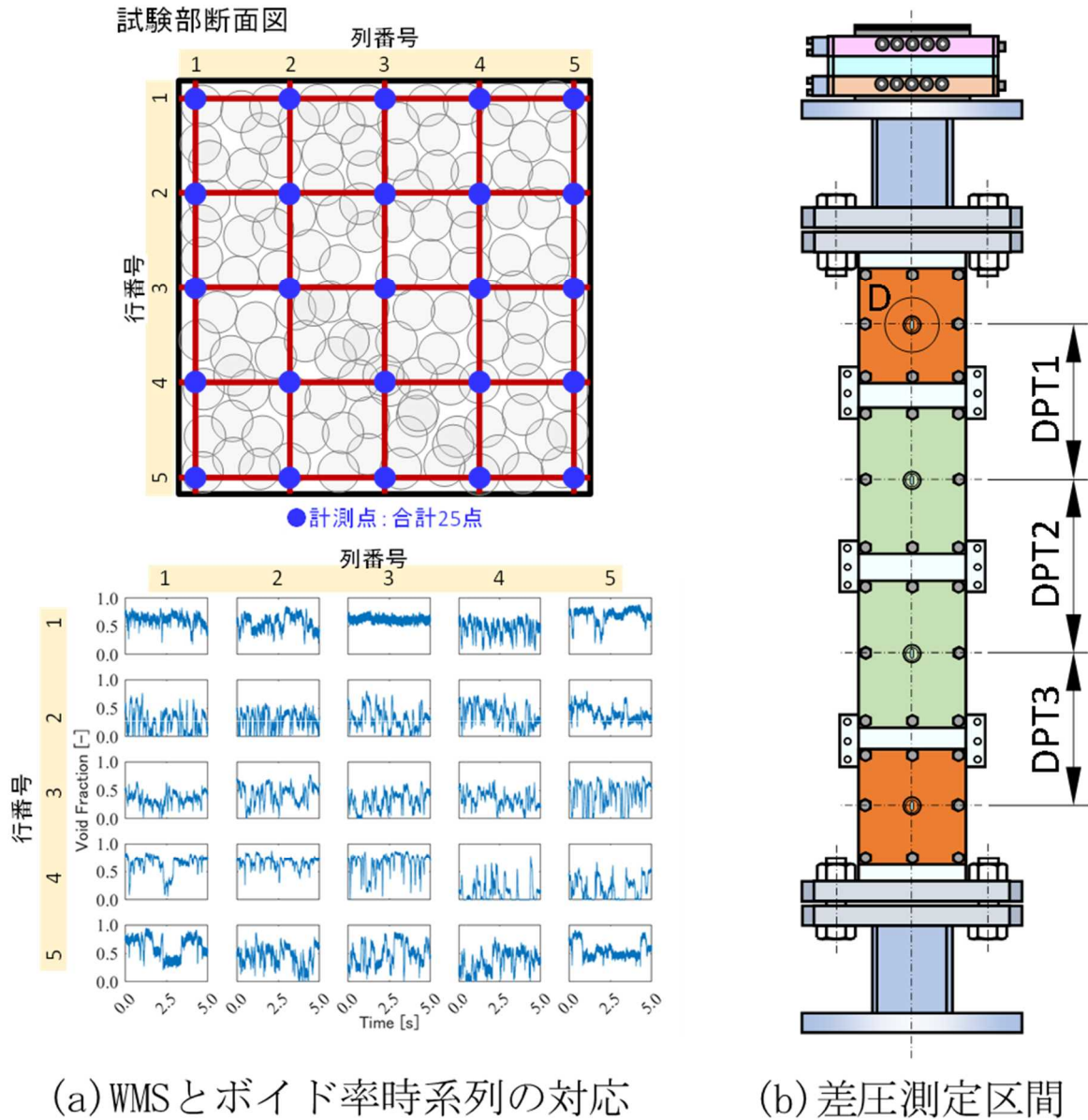
非透明な窒化ケイ素製粒子を用いた可視観察結果を見ると、ボイド率時系列の空間分布から異なる二相構造に起因する特徴が見て取れる図 2.4.17 には、二相構造の遷移を観察しやすい直径 10 mm の場合について、気泡流(a)から気泡-スラグ流の遷移領域にかけての観察例を示している。粒子層内の二相構造については、図 2.4.18 に示す概念図に従って判定している。一方で、ボイド率時系列の空間分布では、流路中央（バルク領域）と流路壁面近傍でボイド率時系列の振幅や波形パターンが異なる場合が見られた。このような、流路中央と流路壁面近傍での差異は、開孔の空間的繋がりが大きい粒子径 10 mm のときが最も顕著であった。図 2.4.19 には、流路壁面近傍が気泡流-スラグ流遷移領域となるが、流路中央には気泡流領域が存在しており、気相が中央から壁面領域により多く流れると考えられる。

全てのケースを通じて、球形気泡のみが見られるような気泡流が観察される条件は非常に限られており、液相見かけ速度が大きく、気相見かけ速度が極端に小さい場合のみで確認された。球形気泡と気泡スラグが入り混じった様相を呈するケースが広い実験条件範囲で確認された。さらに、ボイド率が大きくなると脈動をもつチャーン流が生じはじめ、やがて環状流となった。粒子径 3 mm の場合が最も環状流へ遷移する気相見かけ速度とボイド率が小さかった。全体的な傾向としては、粒子径が小さいほど環状流へ遷移しやすい結果となり、先行研究例と整合する結果となった。

##### b 粒子層内二相構造可視化

透明な CYTOP 製粒子層において、見かけ気相速度を 4.0 mm/s、見かけ液相速度を 55 mm/s とした時の可視化結果を図 2.4.20 に示す。IM によって正面第 1 層から第 4 層の粒子層を流れる気泡の変形状況が鮮明に撮影できており、充填層内部の流動状況が可視化された。壁面近傍では流れの淀み部は存在せずに連続的に気泡が上流から下流へ流れていく様子が確認され、粒子で形成される狭隘流路のうちY字の流路で気泡が分裂・合体し、逆Y字の流路では合体する傾向が見られた。また、気相・液相流速ともに低い一部の流動条件では粒子層内に淀み部が存在し、気泡がトラップされる様子が確認された。

今回の個別効果試験では、粒子径が 5 mm の場合において気泡流領域に絞って高品位の画像データを取得した。こうした IM 法による粒子層内二相流動構造の客観データの取得は、本研究において構築した試験技術によってはじめてもたらされたものであり、デブリベッドの冷却性評価モデル開発にとって大きな成果である。将来的にはこれを更に活用し、複数の粒子径に対して見かけの気相流速が更に高く、スラグ流から環状流へと発達していく領域において画像データを拡充することにより、信頼性の高い流動構造マップを提案することが期待される。



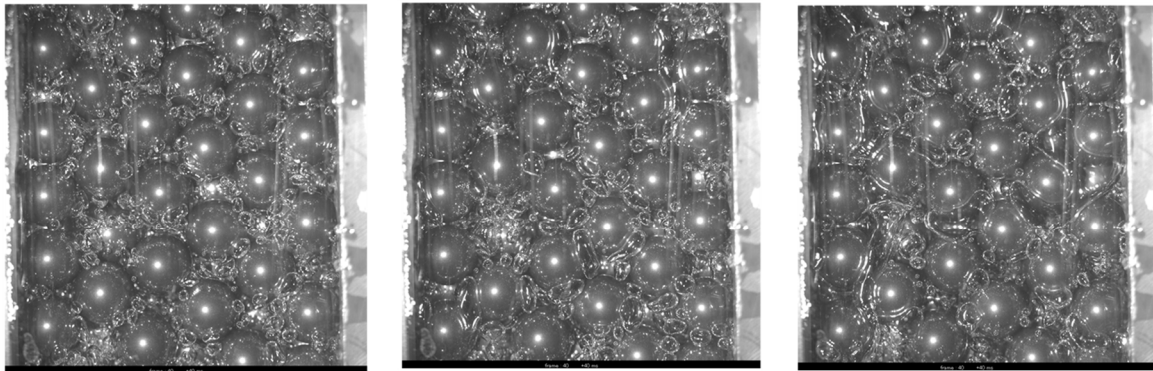
(a) WMSとボイド率時系列の対応

(b) 差圧測定区間

出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2022.<sup>80</sup>

図 2.4.16 WMS 計測位置/ボイド率時系列空間分布図/差圧計

Figure 2.4.16 A mapping between the wire mesh sensor measurement sections and void fraction time series spatial distribution / pressure gauge arrangements

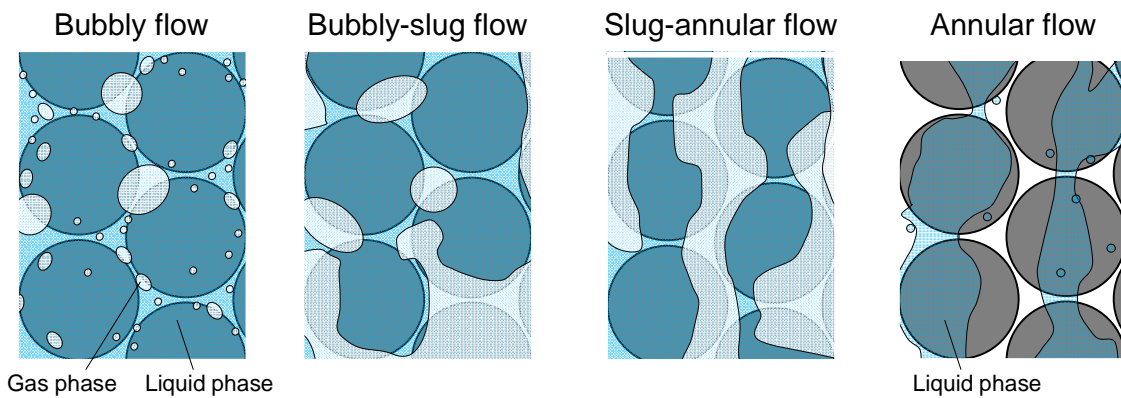


(a)  $j_g=0.055 / j_l=0.075$  (m/s) (b)  $j_g=0.055 / j_l=0.047$  (m/s) (c)  $j_g=0.055 / j_l=0.028$  (m/s)

出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2022.<sup>80</sup>

図 2.4.17 直径 10 mm の場合の粒子層-壁面接触部二相構造可視化例

Figure 2.4.17 Examples of visualization of two-phase flow structure at particle - wall surface contact with a particle diameter of 10 mm

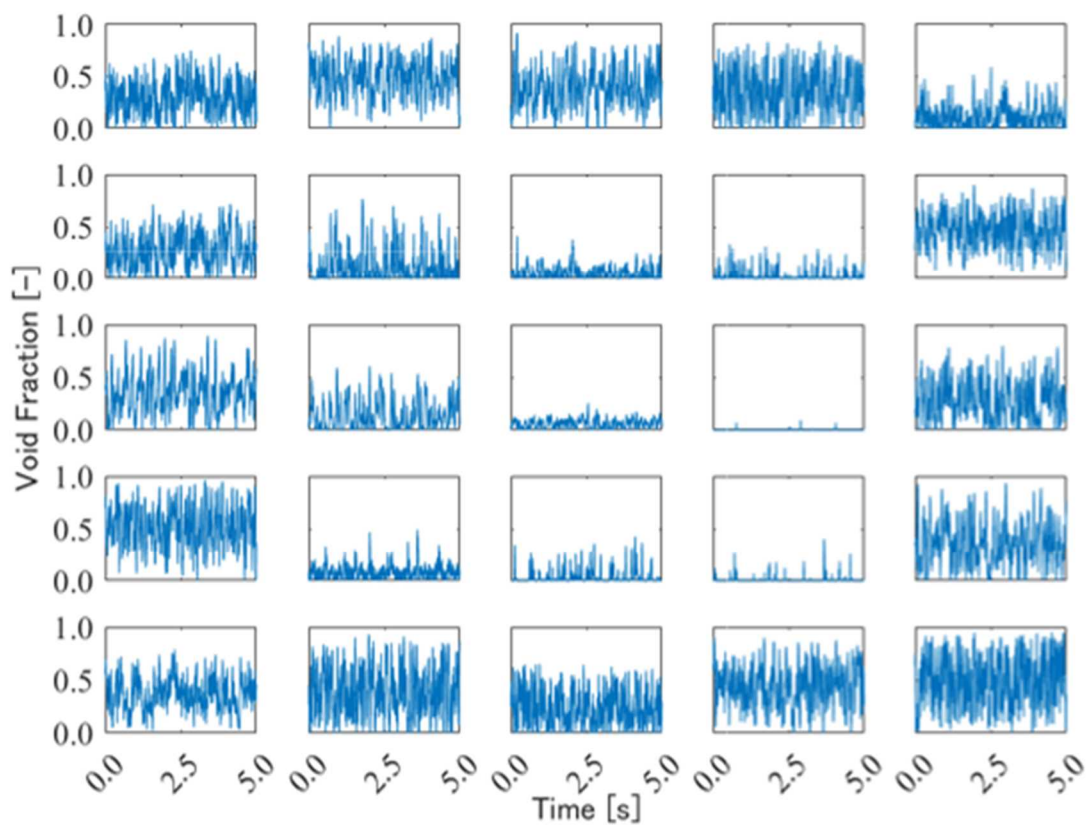


出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」, 2022.<sup>80</sup>

図 2.4.18 粒子層内の二相流動構造分類の概念図

Figure 2.4.18 Conceptual diagram of two-phase flow structure classification in the particle layer

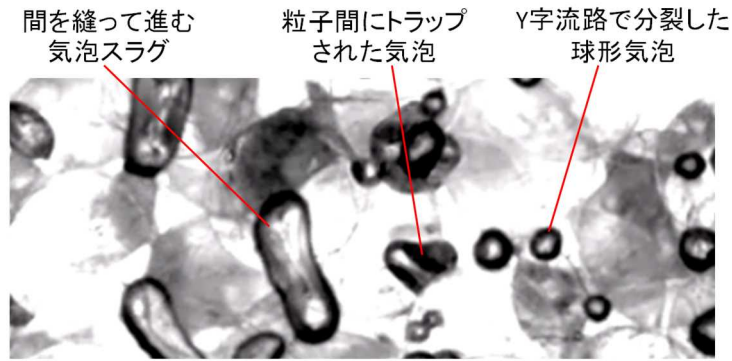




出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度度原子力規制庁委託報告書 粒子状デ  
ブリ冷却性実験」, 2022.<sup>80</sup>

図 2.4.19 WMS により計測された粒子層内のポイド率分布の時刻歴 (粒子径 10 mm /  
 $j_g=0.055$  m/s /  $j_l=0.028$  m/s )

Figure 2.4.19 Time history of void ratio distribution in the particle layer measured by the wire  
mesh sensor (Particle diameter 10 mm /  $j_g=0.055$  m/s /  $j_l=0.028$  m/s)



Flow regime: Bubbly-slug

出典) 一般財団法人電力中央研究所、「令和3年度原子力規制庁委託報告書 粒子状デブリ冷却性実験」、2022.<sup>79</sup>

図 2.4.20 シャドウグラフ法による CYTOP 粒子層内二相構造可視化 (粒子径 5 mm /  $j_g = 0.004$  m/s /  $j_l = 0.055$  m/s)

Figure 2.4.20 Visualization of two-phase structure in CYTOP particle layer by shadow graph method (Particle diameter 5 mm /  $j_g = 0.004$  m/s /  $j_l = 0.055$  m/s)

#### 2.4.5 総合効果実験

本実験は令和4年度において実施中であり、粒子状デブリ-構造壁面接触状態を模擬し、接触熱抵抗と粒子層内二層構造による総合効果に関する知見を得るための令和2年度に策定された実験計画及び概念設計並びに令和3年度成果に基づき、実験装置の詳細設計を具体化し、製作してデータを取得する。

#### 2.4.6 まとめ

以下、粒子状デブリ冷却性実験について得られた結果をまとめる<sup>79, 80</sup>。

本実験は、圧力容器内外における粒子状デブリについて、その形状変化を考慮した壁面近傍の粒子層内部流動構造を把握しつつ、その熱伝達のモデル開発に資する知見を拡充することを目的とする。

令和2年度は成立性確認基礎実験として、実験体の構造及び製作技術、接触熱抵抗計測技術及び粒子層内部の流動構造同定技術についてその精度を確認した。実験体の製作技術については、金属3Dプリンタによって構造体のポロシティを制御できることを確認するとともに、粒子層と壁面の接触部分に関してスリット形状、横穴造形及び粒子間隙間の構造物を高精度に製造できることを確認した。また、接触熱抵抗計測技術については、光ファイバセンサの温度計測性能を熱電対との比較によりその精度を確認した。流動構造同定技術については、有望なIM材料の候補の比較検討を実施するとともに、WMSによるボイド率分布の計測の留意点を確認した。

令和3年度は個別効果実験として、接触抵抗実験及び流動可視化実験を実施した。接触

熱抵抗実験については、実験装置を製作するとともに、金属 3D プリンタ等を用いて製作した模擬粒子状デブリについて、実験部内温度分布、接触面圧、実接触面積等を計測し、高温粒子デブリ 金属壁面接触部のモルフォロジ的変形が粒子壁面間の伝熱特性に与える影響を把握した。ここでは、接触面圧による有効熱伝達率への影響は表面粗さや設計接触面積による有効熱伝達率への影響に対して小さいことが明らかになった。また、設計接触面積比率と有効熱伝達率比率の関係について、実験結果の傾向は既往の相関式によってばらつきの範囲で近似できることが分かった。流動可視化実験では、粒子層と壁面接触領域及び粒子層内の二相流動構造を計測した。粒子層と壁面接触領域については、粒子径等に応じて気泡流からチェーン流、環状流へと遷移する様子が観察された。粒子層内二相構造については、粒子層を流れる気泡の変形状況を撮影して充填層内部の流動状況を確認した。令和 4 年度は前述の総合効果実験を実施していく予定である。

### 3. 結論

#### 3.1 成果の要点

重大事故時の物理化学現象及び SA 総合解析コード等でモデルの高度化が必要な個別現象について、その不確かさ低減のための実験データ及び知見を拡充するため、委託又は共同研究の一環として実験を実施して知見を拡充した。

##### (1) プールスクラビング実験

本実験は、プールスクラビングモデルの不確かさ低減に資する知見を拡充するため、小規模及び中規模の 2 段階スケールの実験を別々の機関に委託して系統的に実施した。小規模実験としては国立大学法人筑波大学に委託して、プールスクラビング時における気泡放出からその上昇、液面到達までにおける気泡群又は単一気泡挙動及び気泡内外の詳細なエアロゾルの挙動を高い時空間解像度で把握するための実験を実施した<sup>18, 19</sup>。また中規模実験は、JAEA へ委託し、高い信頼性のエアロゾル計測手法の確立やプールスクラビング実験装置 PONTUS を用いて、プール水温に対する DF の依存性を調査する実験を実施した<sup>20, 29</sup>。小規模実験では、単一気泡及び気泡群を対象とする詳細計測や数値解析により、気泡内外における流動の不連続性及び界面揺動によってエアロゾル輸送の促進や抑制が行われることを明らかにした。中規模実験では、前プロジェクトから改良した装置を用いた DF のプール水温への依存性について再調査したところ、入口部での蒸気凝縮効果やプール水面上での粒子周りの凝縮の影響を除外すれば、水温の DF への影響は小さい結果となった。

##### (2) ソースターム実験

ソースターム評価に係る不確かさ低減に資する知見を拡充するため、4 種の実験及び調査を実施した。化学反応実験及び再移行挙動に係る調査は JAEA へ委託して実施し<sup>50, 51</sup>、気相化学実験・物質移行については、JAEA との共同研究の一環として実施した<sup>13, 53</sup>。さらに、CsI 放出実験については、福井大学との共同研究の一環として実施した<sup>12, 54</sup>。化学反応実験については、CsI と  $\text{MoO}_3$  が反応して  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  が生成すること及び CsI と  $\text{MoO}_3$  が反応するには雰囲気中の酸素濃度が大きく影響することを確認した。再移行挙動については移行挙動を SA 総合解析コードで扱う場合のモデルを整理して、重要度の高い現象を抽出した。気相化学・物質移行については、気泡塔実験装置を用いた実験を実施して再揮発現象に係るモデルの評価を行うとともに、TG/DTA-GC/MS 実験装置の性能確認を行った。ペレット放出については、燃料から放出される分子化合物としての CsI の挙動に係るモデル式の調査や質量分析器を用いた実験を実施し、これまで得られていなかった分子化合物としての CsI の放出係数の実験データを取得した。

##### (3) 重大事故時格納容器熱流動実験

実機において想定される超高温状態を含む様々な重大事故条件で格納容器内の熱流動

挙動について不確実さ低減に資する知見を取得するため、JAEA への委託事業により、以下の実験を実施して個々の現象を把握するとともに実験データベースを構築した<sup>5,6</sup>。

- ・ 格納容器上部フランジ加熱時における高温気体とトップフランジの熱伝達を把握するための実験
- ・ 多次元的な格納容器上部フランジ部の壁面熱伝達並びに多成分気体で構成される格納容器雰囲気熱流動挙動を把握するための外面冷却自然循環実験
- ・ 多成分気体で構成される格納容器雰囲気熱流動挙動を把握するための熱及び物質移行に関する基礎実験
- ・ 雰囲気熱流動格納容器スプレイによる冷却効果並びに格納容器ベントによる減圧挙動を把握するための実験

格納容器上部フランジの壁面熱伝達については 500 °C 以上の高温噴流の衝突熱伝達や緩和策の影響について、体系の熱容量だけでなく幾何学形状にも強く依存して温度上昇する等の知見を取得した。外面冷却時の熱流動については、密度成層の形成及び解消の条件や成層化による熱伝達阻害について知見を取得した。格納容器スプレイについては、過熱された非凝縮ガス条件でスプレイ水の蒸発による圧力上昇挙動やベント時の水素濃度への影響について、2400 秒程度のベント開始の時刻の違いは水素の分布や残存する水素濃度にはほとんど差が表れないことを確認した。

#### (4) 粒子状デブリ冷却性実験

粒子状デブリの冷却性について不確実さ低減に資する知見を拡充することを目的として、電力中央研究所への委託事業により実験を実施した。まず、主要な実験技術に焦点を当て、実験体の構造及び製作技術、接触熱抵抗・有効熱伝導率測定技術及び周囲流体の流動計測に関する基礎技術構築のための実験を実施した<sup>79</sup>。また、個別効果実験として、接触抵抗実験及び流動可視化実験を実施した<sup>80</sup>。接触熱抵抗実験では、接触面圧による有効熱伝達率への影響は表面粗さや設計接触面積による有効熱伝達率への影響に対して小さいことが明らかになった。また、設計接触面積比率と有効熱伝達率比率の関係について、実験結果の傾向は既往の相関式によってばらつきの範囲で近似できることが分かった。流動可視化実験では、粒子層と壁面接触領域での粒子径等に応じて気泡流からチャーン流、環状流へと遷移する様子や粒子層内を流れる気泡の変形状況を撮影して充填層内部の二相流動状況を確認した。

### 3.2 目的の達成状況

本研究は、令和 2 年度から令和 7 年度までの 6 箇年度の実施工程に基づき進めており、令和 3 年度終了時点で予定していた項目について、以下のとおりおおむね計画どおりに進んでいる。

#### (1) プールスクラビング実験

プールスクラビングに係る小規模実験(単一気泡及び気泡群)及び中規模実験(気泡群)を進めており、小規模実験では、詳細計測や数値解析によりエアロゾル輸送の促進や抑制のメカニズムを明らかにした。中規模実験では、実験装置を改良して前プロジェクトで実施した DF の水温依存性に係る実験結果を再調査した。本実験の最終年度である令和 4 年度は、実験を計測するとともに、これらの知見を踏まえて総合評価を行う予定であり、目的に対して順調に進捗している。

#### (2) ソースターム実験

ソースタームに係る化学反応、再移行挙動、気相化学・物質移行及びペレット放出の四つに着目して、これまでに各テーマにおいて文献調査や基礎実験を実施しており、測定技術の確立や支配因子等の現象把握をおおむね完了している。これらの知見を踏まえて、令和 4 年度以降に実験手法の改良及び実験データの拡充を進める予定であり、目的に対して順調に進捗している。

#### (3) 重大事故時格納容器熱流動実験

重大事故時の個々の物理化学現象を対象とした格納容器上部フランジ冷却実験、外面冷却熱流動実験、熱及び物質移行に関する実験、スプレー及びベント時熱流動実験において、第 1 ステップとしてそれらの現象を把握するとともに、300 °C 超の雰囲気温度条件を含む実験データベースを構築した。令和 7 年度までに、この実験データベースを拡充する予定であり、目的に対して順調に進捗している。

#### (4) 粒子状デブリ冷却性実験

粒子状デブリ冷却性実験では、第 0 ステップとして基礎技術の構築及び第 1 ステップとして構築した技術を用いて個別効果実験を実施して、粒子状デブリの伝熱特性並びに粒子層と壁面接触領域及び粒子層内の流動特性を把握した。本実験の最終年度である令和 4 年度は得られた知見に基づき総合評価を行うとともに接触熱伝達のモデル化に向けた実験データベースを拡充する予定であり、目的に対して順調に進捗している。

### 3.3 成果の公表等

#### 3.3.1 原子力規制庁の職員が著者に含まれる公表

##### (1) NRA 技術報告

なし

##### (2) 論文(査読付)

###### ① プールスクラビング実験

a 秋葉美幸、堀田亮年、阿部豊、孫昊旻、“粒子状放射性物質のプールスクラビングに

関する実験的研究 ”、日本原子力学会和文論文集、J18-042、2020 .

(3) 国際会議のプロシーディング (査読付)

なし

(4) 表彰・受賞

なし

### 3.3.2 委託先による公表

(1) 論文 (査読付)

① プールスクラビング実験

- a K. Fujiwara, K. Yoshida, A. Kaneko, and Y. Abe, “Experimental and numerical investigations of aerosol transportation phenomena from single bubbles”, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol.195, 123160, 2022.
- b K. Yoshida, K. Fujiwara, Y. Nakamura, A. Kaneko and Y. Abe, “Experimental Study of Interfacial Area of Bubble Plume Based on Bubble Tracking by Wire-Mesh Sensor,” *Nuclear Engineering and Design*, Vol.388, 111645, 2022.
- c K. Fujiwara, Y. Nakamura, W. Kikuchi, A. Kaneko and Y. Abe, “Measurement of Particle Decontamination Behavior using Interferometer”, *Experiments in Fluids*, Vol.61, 37, 2020.
- d K. Fujiwara, K. Yoshida, Y. Nakamura, S. Kadoma, A. Kaneko, and Y. Abe, “Investigation of aerosol transportation phenomena in pool scrubbing by combining bubble plume measurements and single-bubble mass transfer analysis”, *Nuclear Engineering and Design*, submitted in June 2022.

② ソースターム実験

- a Kotaro Nanjo, Jun Ishikawa, Tomoyuki Sugiyama, Marco Pellegrini and Koji Okamoto, “Revolatilization of iodine by bubbly flow in the suppression pool during an accident”, *JOURNAL OF NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY*, 2022, accepted in March 2022.

③ 重大事故時格納容器熱流動実験

- a A. Hamdani, S. Abe, M. Ishigaki, Y. Sibamoto and T. Yonomoto, “Unsteady Natural Convection in a Cylindrical Containment Vessel (CIGMA) With External Wall Cooling”: Numerical CFD Simulation, *Energies*, Vol.13, 3652, 2020.
- b M. Ishigaki, S. Abe, Y. Sibamoto and T. Yonomoto, “Experimental investigation of density stratification behavior during outer surface cooling of a containment vessel with the CIGMA facility”, *Nuclear Engineering and Design*, Vol.367, 110790, 2020.
- c S. Abe, E. Studer, M. Ishigaki, Y. Sibamoto and T. Yonomoto, “Density Stratification Breakup by a Vertical Jet: Experimental and Numerical Investigation on the Effect of Dynamic Change of Turbulent Schmidt Number”, *Nuclear Engineering and Design*, Vol.368, 110785, 2020.
- d H. Sun, Y. Sibamoto, Y. Hirose and Y. Kukita, “The dependence of pool scrubbing

- decontamination factor on particle number density: modeling based on bubble mass and energy balances”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.58, pp.1048-1057, 2021.
- e S. Abe, A. Hamdani, M. Ishigaki and Y. Sibamoto, “Experimental investigation of natural convection and gas mixing behaviors driven by outer surface cooling with and without density stratification consisting of an air-helium gas mixture in a large-scale enclosed vessel”, Annals of Nuclear Energy, Vol.166, 108791, 2022.
  - f H. Sun, Y. Leblois, T. Gelain, and E. Porcheron, “Experimental and analytical investigations on aerosol washout in a large vessel with high spray coverage ratio simulating PWR containment spray”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.257, 2055673, 2022.

## (2) 国際会議のプロシーディング（査読付）

### ① プールスクラビング実験

- a S. Kadoma, K. Fujiwara, K. Yoshida and A. Kaneko, “Measurement of Gas-Liquid Interfacial Area Concentration and its Effect on Aerosol Behavior in Pool Scrubbing”, 90448, 29th International Conference on Nuclear Engineering, Online, August 8-12, 2022.
- b K. Yoshida, K. Fujiwara, A. Kaneko and Y. Abe, “Experimental Study on Bubble and Aerosol Behavior During Pool Scrubbing”, 61490, 28th International Conference on Nuclear Engineering, Online, August 4-6, 2021.
- c K. Fujiwara, K. Yoshida, Y. Nakamura, A. Kaneko and Y. Abe, “Experimental Investigation of Particle Decontamination Efficiency in a Single-bubble by Pool Scrubbing”, 16173, 28th Conference on Nuclear Engineering Joint with the ASME 2020 Power Conference, Online, August 2-6, 2020.

### ② 重大事故時格納容器熱流動実験

- a S. Abe, A. Hamdani, M. Ishigaki and Y. Sibamoto, “CIGMA experimental investigation on heat and mass transfer phenomena induced by natural convection with density stratification in the enclosure vessel”, Proc. of Advances in Thermal Hydraulics (ATH’20), pp.258-268, Online, October 20-23, 2020.
- b Y. Hirose, M. Ishigaki, S. Abe and Y. Sibamoto, “Application of immersed boundary method for jet flow in grating type structure”, Proc. of Advances in Thermal Hydraulics (ATH’20), Online, October 20-23, 2020.
- c S. Soma, M. Ishigaki, S. Abe and Y. Sibamoto, “Measurement of velocity and temperature profiles in boundary layer with steam condensation”, Proc. of the 19th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-19), 35503, Online, March 6 - 11, 2022.



### (3) その他（学会表彰等）

#### ① プールスクラビング実験

- a 門間彩介（筑波大学），日本原子力学会，フェロー賞，March, 2022 .
- b 吉田滉平（筑波大学），日本原子力学会熱流動部会，優秀講演賞，September, 2021.
- c 中村優樹（筑波大学），日本原子力学会熱流動部会，優秀講演賞，March, 2020.
- d 藤原広太（筑波大学），日本原子力学会熱流動部会，奨励賞，March, 2020.
- e Kohei Yoshida (University of Tsukuba), ICONE-power 2020, best video presentation award, August, 2020.

### 3.4 成果の活用等

1.1 で記載したとおり、本プロジェクトで取得した重大事故時の物理化学現象に関わる不確かさ低減のための知見は、格納容器破損防止対策の有効性評価に係る適合性審査及びそのガイドの記載拡充の検討への活用の他、実用発電用原子炉の安全性向上評価に関する運用ガイドの記載拡充の検討等への活用も考えられる。

### 3.5 今後の課題等

本プロジェクトでは、重大事故時に重要な四つの物理化学現象について実験を実施しているが、残りのプロジェクト期間において、更に重大事故時の物理化学現象に関わる不確かさを低減するには以下の課題がある。

プールスクラビング実験については、小規模実験において単一気泡でエアロゾル輸送の促進や抑制が行われるメカニズムを解明したが、この知見の気泡群への適用等について引き続き知見を拡充する必要がある。また、中規模実験では改良した実験装置を用いた結果、プール水温の DF への影響は小さいことが明らかになったが、他の条件等でも実験を実施し知見を精査する必要がある。

重大事故時格納容器熱流動実験では、300 °C超の高温雰囲気による格納容器上部フランジ部の壁面熱伝達に係る実験を実施した。更に高温雰囲気での実験を実施するには、運転装置の安全性を考慮して慎重に計画を立案し実行する必要がある。

粒子状デブリ冷却性実験については、これまでに実験体の製作技術や計測技術を確認するとともに、個別効果実験により粒子状デブリの壁面熱伝達や粒子層内の流動状況等を確認した。しかし、実際のデブリの冷却性を検討するには総合効果実験を実施して熱伝達と流動の相互作用について知見を取得する必要がある。

## 参考文献一覧

- 1 原子力規制委員会、“ 実用発電用原子炉及びその附属施設の位置、構造及び設備の基準に関する規則 ”、平成 25 年原子力規制委員会規則第五号、2013 .
- 2 原子力規制委員会、“ 実用発電用原子炉に係る炉心損傷防止対策及び格納容器破損防止対策の有効性評価に関する審査ガイド ”、原規技発第 13061915 号、2013 .
- 3 原子力規制委員会、“ 実用発電用原子炉の安全性向上評価に関する運用ガイド ”、原規技発第 1311273 号、2013 .
- 4 秋葉美幸、堀田亮年、西村健、森田彰伸、“ 安全研究成果報告 軽水炉の重大事故の重要物理化学現象に係る実験 ”、原子力規制庁長官官房技術基盤グループ、令和 2 年 6 月 .
- 5 秋葉美幸、堀田亮年、阿部豊、孫昊旻、“ 粒子状放射性物質のプールのスクラビングに関する実験的研究 ”、日本原子力学会和文誌、DOI:10.3327/taesj.J18.042、2020 .
- 6 P.C. Owczarski, K.W. Burk, “SPARC-90: A Code for Calculating Fission Product Capture in Suppression Pools”, NUREG/CR-5765, 1991.
- 7 N. Girault, C. Fiche, A. Bujan and J. Dienstbier, “Towards a Better Understanding of Iodine Chemistry in RCS of Nuclear Reactors”, Nuclear Engineering and Design, Vol.239, pp.1162–1170, 2009.
- 8 L. E. Herranz and B. Clement, “In-containment source term: Key insights gained from a comparison between”, Progress in Nuclear Energy, Vol.52, pp.481-486, 2010.
- 9 S. Suehiro, J. Sugimoto, A. Hidaka, H. Okada, S. Mizokami and K. Okamoto, “Development of the source term PIRT based on findings during Fukushima Daiichi NPPs accident”, Nuclear Engineering and Design, Vol.286, pp.163-174, 2015.
- 10 A. Hotta, M. Akiba, A. Konovalenko, W. Villanueva, S. Bechta, T. Matsumoto, T. Sugiyama and M. Buck, “Experimental and Analytical Investigation of Formation and Cooling Phenomena”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.57(4), pp.353-369, 2019.
- 11 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“ 平成 31 年度原子力施設等防災対策等委託費（シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化）事業成果報告書 ”、令和 2 年 3 月 .
- 12 国立大学法人福井大学、原子力規制庁、“ 共同研究報告書ソースターム評価における FP の化学種毎における放出速度の導出及び新規モデルに関する研究 ”、2022。（公表準備中）
- 13 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構及び原子力規制庁、“ 共同研究報告書 ソースターム評価における FP 移行挙動モデルの不確かさ低減に関する研究 ”、2022。（公表準備中）
- 14 J. D. McCormack, D. R. Dickinson, R. T. Allmann, “Experimental Results of ACE Vent Filtration, Pool Scrubber Tests AA1-AA4 and DOP1-DOP5”, ACE-TR-A1, January, 1989.
- 15 A. Dehbi, D. Suckow, S. Guentay, H. Schutt, H. Leute, “Aerosol Retention in Hot Pools under

- Realistic Accident Conditions, Paul Scherrer Institute Scientific Report”, Vol. IV, Nuclear Energy and Safety, 1998.
- 16 M. J. Marcos Crespo, F. J. Gomez Moreno, I. Melches Serrano, M. Martine Espigares, J. LopezJimenez, “LACEEspana Experimental Programme on the Retention of Aerosol in Submerged Beds, Final report”, CIEMAT-740, 1994.
  - 17 OECD/NEA, THEMIS Project, [https://www.oecd-nea.org/jcms/pl\\_58863/thai-experiments-on-mitigation-measures-and-source-term-issues-to-support-analysis-and-further-improvement-of-severe-accident-management-measures-themis-project](https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_58863/thai-experiments-on-mitigation-measures-and-source-term-issues-to-support-analysis-and-further-improvement-of-severe-accident-management-measures-themis-project) (2022年9月2日確認)。
  - 18 国立大学法人筑波大学、“令和2年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業”、令和3年3月。
  - 19 国立大学法人筑波大学、“令和3年度原子力規制庁委託成果報告書 原子力施設等防災対策等委託費(スクラビング個別効果試験)事業”、令和4年3月。
  - 20 A. Dehbi, D. Suckow and S. Guentay, “Aerosol retention in low-subcooling pools under realistic accident conditions”, Nuclear Engineering and Design, Vol. 203, pp.229-241, 2001.
  - 21 E. Olsson and G. Kreiss, “A conservative level set method for two phase flow”, Journal of Computational Physics, Vol. 210(1), pp.225-246, 2005.
  - 22 E. Olsson, G. Kreiss and S. Zahedi, “A conservative level set method for two phase flow II”, Journal of Computational Physics, Vol.225(1), pp.785-807, 2007.
  - 23 Y. Abe, K. Fujiwara, S. Saito, T. Yuasa and A. Kaneko, “Bubble dynamics with aerosol during pool scrubbing”, Nuclear Engineering and Design, Vol.337, pp.96-107, 2018.
  - 24 D. M. Snider, “An incompressible three-dimensional multiphase particle-in-cell model for dense particle flows”, Journal of Computational Physics, Vol.170(2), pp.523-549, 2001.
  - 25 R. Jackson, “The dynamics of fluidized particles”, Cambridge University Press, 2000.
  - 26 G. Pozzetti and B. Peters, “A multiscale DEM-VOF method for the simulation of three-phase flows”, International Journal of Multiphase Flow, Vol.99, pp.186-204, 2018.
  - 27 M. Manninen, V. Taivassalo and S. Kallio, “On the mixture model for multiphase flow”, VTT-PUB-288, 1996.
  - 28 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“令和2年度 原子力発電施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業”、令和3年3月。
  - 29 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“令和3年度 原子力発電施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業”、令和4年3月。
  - 30 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“平成28年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書”、平成29年3月。
  - 31 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“平成29年度原子力施設等防災対策等委託費(軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査)事業に関する報告書”、平

- 成 30 年 3 月 .
- 32 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“平成 30 年度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査）事業に関する報告書”、平成 31 年 3 月 .
- 33 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“平成 31 年度原子力施設等防災対策等委託費（軽水炉のシビアアクシデント時格納容器熱流動調査）事業に関する報告書”、令和 2 年 3 月 .
- 34 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会、“東京電力福島第一原子力発電所事故の調査・分析に係る中間取りまとめ”、令和 3 年 3 月 5 日、<https://www.nra.go.jp/data/000345595.pdf>（2022 年 9 月 2 日確認）.
- 35 H. Sun, Y. Sibamoto, Y. Hirose and Y. Kukita, “The dependence of pool scrubbing decontamination factor on particle number density: modeling based on bubble mass and energy balances”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.58, pp.1048-1057, 2021.
- 36 L.E. Herranz, C. Lopez and J. Penalva, “Investigation on jet scrubbing in nuclear reactor accidents: From experimental data to an empirical correlation”, Progress in Nuclear Energy, Vol.107, pp.72–82, 2018.
- 37 C. Berna, A. Escrivá, J.L. Munõz-Cobo, L.E. Herranz, “Enhancement of the SPARC90 code to pool scrubbing events under jet injection regime” Nuclear Engineering and Design, Vol.300, pp.563–577, 2016.
- 38 OECD/NEA, ESTER Project, [https://www.oecd-nea.org/jcms/pl\\_58926/experiments-on-source-term-for-delayed-releases-ester-project](https://www.oecd-nea.org/jcms/pl_58926/experiments-on-source-term-for-delayed-releases-ester-project)（2022 年 9 月 2 日確認）.
- 39 S. Suehiro, J. Sugimoto, A. Hidaka, H. Okada, S. Mizokami and K. Okamoto, “Development of the source term PIRT based on findings during Fukushima Daiichi NPPs accident”, Nuclear Engineering and Design, Vol.286, pp.163-174, 2015.
- 40 M.F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, “Experimental Studies of Fission Product, Release from Commercial Light Water Reactor Fuel Under Accident Conditions”, Nuclear Technology, Vol.78, 1987, p.157-169.
- 41 Lorenz, R. A. et al., “A Summary of ORNL Fission Product Release Tests With Recommended Release Rates and Diffusion Coefficients”, NUREGCR-6261, 1995.
- 42 B. André, G. Ducros, J.P. Lévêque, D. Maro, M.F. Osborne, R.A. Lorenz,” Fission Product Releases at Severe Light Water Reactor Accident Conditions: ORNL/CEA Measurements Versus Calculations”, Nuclear Technology, Vol.114 ,1996, p.23.
- 43 T. Kudo, A. Hidaka, T. Nakamura, H. Uetsuka,” Influence of Pressure on Cesium Release from Irradiated Fuel at Temperatures up to 2,773K”, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.38, 2001, p.910.
- 44 L.Soffer. et al.,”Accident Source Terms for Light-Water Nuclear Power Plants”, NUREG-1465,

- 2003, 13.
- 45 Kyle Ross, Jesse Phillips, Randall O. Gauntt, Kenneth C. Wagner, “MELCOR Best Practices as Applied in the State-of-the-Art Reactor Consequence Analyses (SOARCA) Project”, NUREG/CR-7008, 2014
  - 46 L.L. Humphries et al., “MELCOR Computer Code Manuals Vol. 1: Primer and Users’ Guide Version 2.2.9541 2017”, SAND2017-0455 O, 2017.
  - 47 M. Gouello, H. Mutelle, F. Cousin, S. Sobanska and E. Blanquet, “Analysis of the iodine gas phase produced by interaction of CsI and MoO<sub>3</sub> vapours in flowing steam”, Nuclear Engineering and Design, Vol.263, pp.462–472, 2013.
  - 48 古田定昭ら、“福島第一原子力発電所事故に係る特別環境放射線モニタリング結果 - 中間報告 (空間線量率, 空气中放射性物質濃度, 降下じん中放射性物質濃度) - ”、JAEA-Review 2011-035、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、2011年8月。
  - 49 T. Ohkura, T. Oishi, M. Taki et al., “Emergency Monitoring of Environmental Radiation and Atmospheric Radionuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant,” JAEA-Data/Code 2012-010, Japan Atomic Energy Agency, 2012.
  - 50 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“令和2年度原子力施設等防災対策等委託費 (シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化) 事業成果報告書 ”、令和3年3月。
  - 51 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構、“令和3年度原子力施設等防災対策等委託費 (シビアアクシデント時ソースターム評価技術高度化) 事業成果報告書 ”、令和4年3月。
  - 52 Whitman WG, “The two-film theory of gas absorption”, Chemical and Metallurgical Engineering. Vol.29(4), pp.146–148, 1923.
  - 53 Kotaro Nanjo, Jun Ishikawa, Tomoyuki Sugiyama, Marco Pellegrini and Koji Okamoto, ”Revolatilization of iodine by bubbly flow in the suppression pool during an accident”, JOURNAL OF NUCLEAR SCIENCE AND TECHNOLOGY, <https://doi.org/10.1080/00223131.2022.2062065>, 2022,(in press).
  - 54 藤原卓真、有田裕二、“模擬燃料ペレットからのCs化合物放出に関する基礎的評価 ”、一般社団法人日本原子力学会 2020年秋の大会、2E18、2022.
  - 55 鈴木元衛、斎藤裕明、宇田川豊、天谷政樹、“軽水炉燃料解析コード FEMAXI-7 のモデルと構造[改訂版]”、JAEA-Data/Code 2013-014、2014.
  - 56 N. Girault and F. Payot, “Insights into iodine behaviour and speciation in the Phébus primary circuit” Annals of Nuclear Energy, Vol.61, pp.143–156, 2013.
  - 57 S. Miwa, G. Takase, J. Imoto, S. Nishioka, N. Miyahara and M. Osaka, “Boron chemistry during transportation in the high temperature region of a boiling water reactor under severe accident

- conditions”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol.57(3), pp.291–300, 2020.
- 58 N. Miyahara, S. Miwa, M. Gouello, J. Imoto, N. Horiguchi and I. Sato, “Experimental study on transport behavior of cesium iodide in the reactor coolant system under LWR severe accident conditions”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol.57(12), pp.1287–1296, 2020.
- 59 L. E. Herranz and B. Clement, “Study of the iodine kinetics in thermal conditions of a RCS in nuclear severe accident”, *Annals of Nuclear Energy*, Vol.101, pp.69-82, 2017.
- 60 L.L. Humphries, B.A. Beeny, F. Gelbard, D.L. Louie and J. Phillips, “MELCOR Computer code manuals vol. 2: Reference Manual version 2.2.9541 2017,” SAND2017-0876 O, 2017.
- 61 M. Kajimoto, K. Kuramatsu, N. Watanabe, M. Funasako and T. Noguchi T,”Development of THALES-2, A computer code for coupled thermal–hydraulics and radionuclides transport analyses for severe accident at LWRs and its application to analysis of radionuclides revaporization phenomena”, *Proceedings of international topical meeting on safety of thermal reactors*, Portland, Oregon, Jul 21-25, 1991.
- 62 K. Nanjo, J. Ishikawa, T. Sugiyama, M. Pellegrini and K. Okamoto, “Revolatilization of iodine by bubbly flow in the suppression pool during an accident”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 112, 2022.
- 63 S. Abe, M. Ishigaki, Y. Sibamoto and T. Yonomoto, “RANS analyses on erosion behavior of density stratification consisted of helium–air mixture gas by a low momentum vertical buoyant jet in the PANDA test facility, the third international benchmark exercise (IBE-3)”, *Nuclear Engineering and Design*, Vol.289, pp.231-239, 2015.
- 64 S. Kelm, H. Huller and H.J Allelein, “A review of the CFD modeling progress triggered by the ISP-47 on containment thermal hydraulics”, *Nuclear Science and Engineering*, Vol.193, pp.63-80, 2019.
- 65 K.R. Robb, “External Cooling of the BWR Mark I and II Drywell Head as a Potential Accident Mitigation Measure - Scoping Assessment”, ORNL/TM-2017/457, 2017.
- 66 S. Wang, H.S. Park, J. Kim, “In-depth analysis of mixing characteristics of stratified gases during spray operation in the TOSQAN Test 113 using OpenFOAM”, *Nuclear Engineering and Design*, Vol.373, 2021.
- 67 E. Porcheron, P. Lemaitre and A. Nuboer, “Influence of sump on containment thermal hydraulics: synthesis of the TOSQAN Tests”, *J. Nucl. Eng. Rad. Sci.*, Vol.1(4), 2015.
- 68 US.NRC, “State-Of-the-Art-Reactor Consequence Analyses Project, Volume 1, Peach Bottom Integrated Analysis”, NUREG/CR-7110, 2012 .
- 69 M. Sibamoto, S. Ishigaki, S. Abe and T. Yonomoto, “Experimental Study on Outer Surface Cooling of Containment Vessel by using CIGMA, Proceeding of NURET-17, Xi’an, China, 2017.
- 70 M. Ishigaki, S. Abe, Y. Sibamoto and T. Yonomoto, “Experimental investigation of density

- stratification behavior during outer surface cooling of a containment vessel with the CIGMA facility”, Nuclear Engineering and Design, Vol.367, 2020.
- 71 原子力発電技術機構, “重要構造物安全評価(原子炉格納容器信頼性実証事業)に関する総括報告書”, 2003年3月.
  - 72 S. Abe, A. Hamdani, M. Ishigaki and Y. Sibamoto, “Experimental investigation of natural convection and gas mixing behaviors driven by outer surface cooling with and without density stratification consisting of an air-helium gas mixture in a large-scale enclosed vessel”, Annals of Nuclear Energy, Vol.166, 2022.
  - 73 OECD/NEA/CSNI, “OECD/SETH-2 Project PANDA and MISTRA Experiments Final Summary Report -Investigation of Key Issues for the Simulation of Thermal-Hydraulic Conditions in Water Reactor Containments”, NEA/CSNI/R(2012)5, 2012.
  - 74 H. Allelein, K. Fischer, J. Vendel, J. Malet, E. Studer, S. Schwarz, M. Houkema, H. Paillere, A. Bentaib, “International standard problem (ISP-47) on containment thermal hydraulics”, NEA/CSNI/R(2007)10, 2007.
  - 75 S. Abe, E. Studer, M. Ishigaki, Y. Sibamoto and T. Yonomoto, “Density Stratification Breakup by a Vertical Jet: Experimental and Numerical Investigation on the Effect of Dynamic Change of Turbulent Schmidt Number”, Nuclear Engineering and Design, Vol.368, 2020.
  - 76 OECD/NEA/CSNI, “Status Report on Filtered Containment Venting”, NEA/CSNI/R(2014)7, 2014.
  - 77 OECD/NEA/CSNI, “Status Report on Hydrogen Management and Related Computer Code”, NEA/CSNI/R(2014)8, 2014.
  - 78 K. Fernandez-Cosial, G. Jimenez, R. Bocanegra and C. Queral, “Study on hydrogen risk in a PWR-W containment during a SBO scenario; Tau parameter definition and application on venting strategy analysis”, Nuclear Engineering and Design, Vol.325, pp.164-177, 2014.
  - 79 一般財団法人電力中央研究所, “令和2年度原子力規制庁委託成果報告書 粒子状デブリ冷却性実験”, 令和3年3月.
  - 80 一般財団法人電力中央研究所, “令和3年度原子力規制庁委託成果報告書 粒子状デブリ冷却性実験”, 令和4年3月.
  - 81 東京電力, 2013. 原子炉格納容器下部の溶融炉心を冷却するための手順書. 平成25年.
  - 82 H. Alsmeyer and W. Tromm, “The COMET Concept for Cooling Core Melts: Evaluation of the Experimental Studies and Use in the EPR”, FZKA 6186, October, 1999.
  - 83 堀田亮年、秋葉美幸、大川剛, “安全研究成果報告 軽水炉の国産シビアアクシデント解析コードの開発”, 原子力規制庁長官官房技術基盤グループ, 2018年11月.
  - 84 D. Magallon, A. Mailliat, J.M. Seiler, K. Atkhen, H. Sjovall et al., “European expert network for the reduction of uncertainties in severe accident safety issues (EURSAFE)”, Nuclear Engineering and Design, Vol.235, pp.309-346, 2005.

- 85 A.M. Ross and R.L. Stoute, "Heat transfer coefficient between UO<sub>2</sub> and Zircaloy-2", AECL-1152, Atomic Energy of Canada Limited, 1962.
- 86 A.C. Rapier, T.M. Jones and J.E. McIntosh, "The thermal conductance of UO<sub>2</sub>/Stainless Steel Surface", *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol.6, 1963.
- 87 T. Fukuoka, M. Nomura and A. Yamada, "Evaluation of Thermal Contact Resistance at the Interface Composed of Dissimilar Materials", *Trans. Japan Soc. Mech. Eng. Ser. A* Vol.76(763), pp. 344–350, Japan Society of Mechanical Engineers, 2010.
- 88 K. Sanokawa, "Heat Transfer between Metallic Surfaces in Contact : 4th Report, The Effect of Both the Shape of Surface Roughness and Waviness, and the Approximate Method of Calculating Thermal Contact Resistance", *Trans. Japan Soc. Mech. Eng. Ser. A* Vol. 33(251), pp.1131–1137, Japan Society of Mechanical Engineers, 1967.
- 89 A. Hotta and W. Kikuchi, "Extension of Debris Bed Cooling Evaluation Code DPCOOL for Evaluating Uncertainties in Long-term Debris Coolability", *RCCS-2021-OECD/NEA Specialist Workshop*, Paper No. = RCCS-2021–1240, October 18th -20th, Online meeting, 2021.
- 90 V.X. Tung and V.K. Dhir, "A Hydrodynamic Model for Two-Phase Flow through Porous Media", *International Journal of Multiphase Flow*, Vol.14(1), pp.47–65, 1988.
- 91 W. Schmidt, "Influence of Multidimensionality and Interfacial Friction on the Coolability of Fragmented Corium", *Doctoral Thesis*, Institut für Kernenergetik und Energiesysteme, Germany, IKE 2-149, ISSN-0173-6892, 2004.
- 92 D. Haga, Y. Niibori and T. Chida, "Hydrodynamic Dispersion and Mass Transfer in Unsaturated Flow", *Water Resources Research*, Vol.35(4), pp.1065–1077, John Wiley & Sons, Ltd., 1999.
- 93 S. Ueda, T. Arai, M. Furuya and R. Okawa, "Visualization of two-phase flow in particulate bed of CYTOP as refractive index matching material", *The Japan Society for Multiphase Flow Symposium*, Online meeting, Aug.19-Aug.21, 2022.
- 94 S. Ueda, T. Arai, R. Okawa, and M. Furuya, "Multi-dimensional two-phase flow measurements in simulated particle debris", *Atomic Energy Society of Japan Fall Meeting*, Online meeting, Sept. 7-Sept. 9, Ibaraki Univ., 2022.



## 執筆者一覧

原子力規制庁 長官官房技術基盤グループ

シビアアクシデント研究部門

金子 順一 主任技術研究調査官

平等 雅巳 技術研究調査官

菊池 航 技術研究調査官

堀田 亮年 技術参与

阿部 豊 総括技術研究調査官

システム安全研究部門

秋葉 美幸 上席技術研究調査官