IRID

令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金 安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術)

最終報告

(1)液体系・気体系システム(2)臨界管理技術

2023年6月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID)

無断複製·転載禁止 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 ©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金 安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術)

最終報告 (1)液体系・気体系システム

2023年6月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID)

無断複製·転載禁止 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 ©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

目 次

- 1. 補助事業の目的と目標
- 2. 補助事業の概要
- 3. 前期PJまでの開発成果と残された課題
- 4. インプット・アウトプット情報
- 5. 実施スケジュール
- 6. 実施体制
- 7. 実施内容
 - ① 溶解性α核種除去技術の開発
 - ② RO濃縮水の処理技術の開発
 - ③ 二次廃棄物処理技術の開発
 - ③-1 非溶解性核種除去技術の開発
 - ③-2 スラッジ脱水処理技術の開発
- 8. 実施目的を達成するための具体的目標



1.「安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術)」の目的と目標 No.2

【安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術)の目的】

東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所(1F)では、核燃料が炉内構造物とともに溶融し、燃料デブリとして原子炉圧力容器(RPV)内及び原子炉格納容器(PCV)内に存在していると考えられる。

RPV及びPCV内部の燃料デブリは、現在未臨界状態にあると考えられるが、事故によって原子炉建屋(R/B)、 RPV、PCV等が損傷している等、プラント自体が当初設計とは異なる不安定な状態に置かれているため、燃料デブ リを取り出して燃料デブリの未臨界状態を維持し、放射性物質の拡散を防止して安定な状態にする必要がある。

上記の背景のもと、本事業は、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた 中長期ロードマップ」(以降、中長期ロードマップ)に基づき、東京電力ホールディングス(株)(東京電力)が実施する エンジニアリングやプロジェクト管理の下で、大規模な燃料デブリ取り出し作業を実現することを目標に検討を実施 する。本事業での開発成果は、東京電力が行うエンジニアリングに活用する。

本事業は、1Fの廃炉・汚染水対策に資する技術の開発を支援する事業を、中長期ロードマップ及び「2021年度 廃炉研究開発計画」(廃炉・汚染水チーム会合/事務局連絡会議(第86回))に基づき行うことで、1Fの廃炉・汚染 水対策を円滑に進めるとともに、我が国の科学技術の水準の向上を図ることを目的とする。

具体的には、燃料デブリから循環冷却水中に溶出すると考えられる溶解性α核種除去技術、RO濃縮水(*)の処 理技術、二次廃棄物処理技術、並びに臨界近接監視技術・中性子吸収材技術の現場運用方法に関する技術につ いて、開発を実施する。 * 逆浸透膜(RO(Reverse Osmosis)膜)により不純物を含む冷却水から不純物を取り除いた 際に発生する不純物濃度が高い廃液

【 開発全体の目標】 燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けて必要なシステム及び安全確保に関 わる技術について、これまでに得られた研究開発成果に基づき、必要となる要素技術開発及び試験 を実施する。



2. 補助事業の概要

補助事業にて検討した液体系・気体系システムの系統構成図を示す。 今期補助事業では、溶解性核種除去設備およびスラッジの脱水・安定化処理設備の開発を実施した。





3. 前期PJ※までの開発成果と残された課題

①溶解性 α 核種除去技術の開発

:本PJでの検討対象

No.	項目	前期PJにおける取り組みと成果	残された課題
1	除去対象核種	U、Np、Pu、Am、Cmの5元素・15核種について、微粒子生成影響を 試験にて確認し、Uについては、大気雰囲気下でpH5~9の中性付近 の溶解度およびPCV内滞留水に含まれる濃度が告示濃度に対して2 ケタ程度低いため、吸着除去の必要性が低いことを確認した。	U、Np、Pu、Am、Cmそれぞれについて、PCV内の窒素環 境を想定した場合のα核種の溶解挙動、吸着挙動
2	処理対象水 の水質	海水成分の溶出、コンクリート成分の溶出、臨界防止剤である五ホ ウ酸ナトリウムの注入を想定した評価を行った。	油分、塗装成分、防錆剤成分、非溶解性臨界防止剤成 分の影響
3	処理流量	PCV内滞留水を循環冷却させる設備の中に吸着除去システムを設ける場合の処理流量条件や、PCV内滞留水を循環冷却させる設備の外に吸着除去システムを設ける場合の処理流量条件を仮設定した。	設備の運転スケジュールを考慮した処理流量の設定
4	想定水質 における α核種濃度	海水成分の溶出、臨界防止剤である五ホウ酸ナトリウムの注入を想定した水質にて評価を行い、各α核種の溶解挙動を把握した。コンクリート溶出影響については大気環境では炭酸カルシウムの生成に 伴いα核種が共沈するため、PCV環境に近い窒素雰囲気での評価が 必要となることを確認した。	コンクリート成分の溶出を想定した高pHでのα核種の溶 解挙動、吸着挙動
5		公衆被ばく影響低減のための目標DFを100、水処理設備に移送する	粒子状のα核種濃度を考慮した必要DFの設定
	版反因减女不	ための濃度低減目標を告示濃度とする。(進捗なし)	個別の核種の濃度低減目標の設定

前期PJ[※]で整理された課題のうち、窒素雰囲気の制御を想定した際に取り組む必要がある課題として、No.1およびNo.4を選定した。 窒素雰囲気下では除去対象である各α核種の形態が異なる可能性が示唆された。そのため、溶解度や吸着現象に影響が生じることが 考えられるため本PJにて評価し、窒素雰囲気においてもα核種を除去可能な溶解性核種除去システムを検討する。

※平成30年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けた技術の開発)」(2019, 2020年度実施)



No.5

3. 前期PJまでの開発成果と残された課題

①溶解性α核種除去技術の開発

No.	項目	前期PJにおける取り組みと成果	残された課題		
6	適用吸着材	浸漬試験によるα核種吸着性能を評価した結果、活性炭、リン酸ジ ルコニウム、チタン酸が適用候補吸着材として選定された。浸漬試 験により平衡吸着量の大きい吸着材を選定できた段階のため、通 水処理に適用した場合の性能確認が課題である。なお、ラボ試験 にて多量のα核種を取り扱う流通試験が実施できないことから、評 価方法が課題となる。	通水処理に適用した場合の吸着除去性能の評価方法		
		コロイド状のα核種を除去するための活性炭を先頭にして、Pu、Am、	複数のα核種の相互影響		
		Cm、Npを吸着するためのリン酸ジルコニウム、Np等を吸着するためのエクン酸を克利に並ぶた構成は、パリーブーニンドア用を想	吸着阻害成分の影響		
7	吸着塔構成	2007タン酸を直列に並べた塔構成とし、パーコーラント運用を認定して各塔2塔を仮定した。それぞれの核種が同時に溶液中に存在する場合の影響評価や、通水処理時の除去性能・交換頻度をもとに、塔構成は適切に見直す必要がある。	通水処理時の除去性能・交換頻度をもとにした塔構成の 見直し		
8	交換タイミング /交換頻度	適用候補として選定した吸着材はいずれもCs吸着性能が低いため、 塔表面線量の上昇による交換の発生リスクは低い。吸着性能低下 による交換頻度を求めるには、流通試験による評価を行うことが一 般的だが、ラボ試験にて多量のα核種を取り扱う流通試験が実施で きないことから、評価方法が課題となる。	吸着材交換頻度の評価方法		
		吸着塔ごと交換する場合、吸着材のみ交換する場合、いずれも使	交換時のオペレーション		
9	交換方法	用済み吸着材の処理方針(当面長期保管)に合わせて設備設計が 必要となる。	使用済み吸着材の取扱い		
10	塔サイズ	処理流量10m ³ /hの場合、多核種除去設備の吸着塔と同程度のサイズ(外形約1m、高さ約2.5m)となる。	遮蔽方針、交換方法等をインプットとした吸着塔の設計		



3. 前期PJまでの開発成果と残された課題

②RO濃縮水の処理技術の開発

③二次廃棄物処理技術の開発

No.	項目	前期PJにおける取り組みと成果	残された課題					
		燃料デブリ取り出し工法PJの要素試験結果やフィルタ試験結果を基 に、スラッジ回収システムへのインプット水である粒子除去システム	文献調査により中取りフィルタの候補機器を選定する。要素試験 により適用性を確認し、発生廃液性状を取得する。					
1	処理対象水 水質	から払い出されるトレンボ・逆洗水の想定水貨を登埋した。 しかし、粒子除去設備のうち <u>中取りフィルタが未選定</u> であるため、候 補機器を選定し、発生廃液性状を評価する必要がある。また、前年 度までの要素試験では球形粒子を通水した場合しか評価できてお らず、 <u>非球形粒子を通水した場合のフィルタ挙動、発生廃液の性状</u> 評価を実施する必要がある。	非球形粒子を処理する場合の粒子除去システムへの影響評価を 要素試験により実施する。 機器差圧の上昇挙動や回復率、発生廃液量に優位な影響がある と評価された場合は、スラッジ回収システムの想定インプット水質 へ反映する。					
2	処理流量	燃料デブリ取り出し工法の運用スケジュールおよび、フィルタ試験 結果や液体系システムの流量を基に、スラッジ回収システムの処理 流量要求を評価した。	今後の検討により、液体系システムの想定インプット水質が変更さ れた場合、スラッジ回収システムの処理流量要求に反映する。					
3	処理方法	フィルタ廃液およびRO濃縮水の処理方法として、凝集沈殿処理を選定し、使用可能な凝集剤を要素試験により選定した。また、沈降分離槽を用いた凝集沈殿処理手順のプロセスを検討した。 沈降分離槽を用いたRO濃縮水の凝集沈殿処理について、実機適 用性を検討する必要がある。また、処理手順について、発生スラッジ量低減やオペレーションの簡易化などの検討が必要である。	RO濃縮水の処理方法として、粉末吸着材を用いた吸着処理と凝 集剤を用いた凝集沈殿処理を選定し、使用可能な粉末吸着材や 凝集剤の選定を実施する。					
4	沈殿スラッ ジの性状と	凝集沈殿試験を基に沈殿スラッジの発生量を試算した。その結果、 処理流量が大きいこと、沈殿スラッジの含水率が大きいことなどが 原因で、RO 濃縮水沈殿スラッジの発生量が大きい と評価され、払出	沈殿スラッジ発生量の低減のため、RO濃縮水処理手順の各プロ セスを見直す検討を実施する。粉末吸着材添加量の低減、凝集剤 添加量の低減、撹拌条件などの適正化を要素試験により検討する。					
	ジの性状と 発生量	し処理の煩雑化や払出し先の負荷増大などが懸念されるため、 <u>沈</u> 殿スラッジの減容化を図る必要がある。	沈殿スラッジに対して脱水処理を適用することを検討し、文献調査 などにより適用可能な脱水技術を選定し、要素試験による実機適 用性を評価する。					

前期PJにおいて、RO濃縮水処理により発生する沈殿スラッジの発生量が大きい可能性が示唆された。そのため、処理方法の適正化(No.3)お よびスラッジ脱水(No.4)など、スラッジ量の低減・減容化に資する検討を本PJにおいて実施する。また、前期PJでは球形粒子を使用したフィル タ試験のみを実施しており、粒子形状のフィルタへの依存性(No.1)を未評価であったため、本PJにおいて評価する。

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

No.6

:本PJでの検討対象

3. 前期PJまでの開発成果と残された課題

②RO濃縮水の処理技術の開発

③二次廃棄物処理技術の開発

No.	項目	前期PJにおける取り組みと成果	残された課題
5	上澄液性状	固液分離後に上澄液に残留する成分やSS(suspended solids;浮遊物質)量などを整理した。	払出し先である溶解性核種除去設備や既設水処理設備の受入 要件を整理し、中和処理や中和塩除去、微量に残留するSS成分 の除去などの要否について検討する。
6	運用方法	燃料デブリ取り出し工法の運用スケジュールおよび、要 素試験結果を基に、沈降分離槽を用いたフィルタ廃液お よびRO濃縮水の凝集沈殿処理のプロセスを検討した。1 日で1バッチ処理が完了する運用サイクルを検討した。	今期実施の要素試験結果を前期PJまでに検討した凝集沈殿処 理プロセスへ反映する。
7	設備仕様	装置試験により沈降分離槽および各構成要素の動作性 について検証した。 ゲート弁の開閉の際に大粒子が噛み込む事象が発生し たため、ゲート弁の仕様について再検討が必要である。	今期以降に実施するRO濃縮水処理の試験装置を用いた要素試 験において、沈降分離槽の各機構を再度評価する。 また、沈降分離槽に適用可能な弁について調査を実施する。
8	沈殿スラッジ の払出方法	スラッジ回収容器を用いた沈殿スラッジの払出し方法を 検討し、装置試験により実機適用可能なことを確認した。 沈降分離槽上部より配管を挿入し、沈殿スラッジをポン プ吸引により抜き出すことが可能なことを確認した。 今後、沈殿スラッジ払出し先の受入要件を整理し、スラッ ジ収納容器の大きさや脱水処理の適用について検討す る。	沈殿スラッジを廃棄物として処理・処分する場合は、廃棄物ライ ンへ払い出されるため、沈殿スラッジの最終処分を考慮し、前処 理を適用する必要がある。今後スラッジの最終処分方式の方針 が示された場合、液体系システム内で必要な前処理を検討し、 沈殿スラッジの払出し方法に反映する。 沈殿スラッジを収納缶保管する場合は、収納缶ラインへ払い出さ れるため、長期保管のための要件を満足するように前処理を適 用する必要がある。沈殿スラッジの長期保管のための要件を整 理し、スラッジ回収容器の形状や含水率について検討する。
9	沈殿スラッジ の取り扱い	沈殿スラッジの想定性状、発生量を要素試験結果およ び液体系システムの要件を基に整理した。	沈殿スラッジの想定性状を廃棄物PJと収納缶PJへ共有し、それ ぞれのラインにおける課題の抽出を行う。



4. インプット・アウトプット情報

本PJは、燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発PJ、 固体廃棄物の処理・処分技術に関する研究開発PJなどの関連PJと連携して実施した。

ID	要求側事業	提供側事業	内容(概要)	情報の用途
1	安全システムの開発(液体系・気 体系システム、臨界管理技術)	燃料デブリ収納・ 移送・保管技術の開発	収納缶の受入条件	二次廃棄物の安定化処理技 術の検討
2	安全システムの開発(液体系・気 体系システム、臨界管理技術)	固体廃棄物の処理・処分技術 に関する研究開発	廃棄物保管容器の受入条件	二次廃棄物の安定化処理技 術の検討
3	安全システムの開発(液体系・気 体系システム、臨界管理技術)	燃料デブリの性状把握のための 分析・推定技術の開発	燃料デブリ微粒子の生成挙動 の検討成果	循環冷却水中に含まれる粒子 の性状の検討
4	燃料デブリ収納・ 移送・保管技術の開発	安全システムの開発(液体系・気 体系システム、臨界管理技術)	液体系システムより発生する 沈殿スラッジの性状	スラリー・スラッジ状燃料デブ リの取扱いにおける課題の抽 出
5	固体廃棄物の処理・処分技術 に関する研究開発	安全システムの開発(液体系・気 体系システム、臨界管理技術)	液体系システムより発生する 沈殿スラッジの性状	スラリー・スラッジ状放射性廃 棄物の処理・処分における課 題の抽出

5. 実施スケジュール

		実施事業者						令和	3年度											令和4	4年度							
大分類	小分類	(外注先、試験場所が ある場合は併記)	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月		
主要	なマイルストン		プロジェ	ェクトス	テアリ	▲ ング会	議	中間	報告	プ	ロジェ	クトスラ	テアリン	▲ グ会議	▲ 中間	報告	;	ブ ステア!	ロジェ ング会	▲▲ クト 中 議	間報告	Ť			最	▲終報告		
(1) 液体系・気体系 システム	a. 概念検討/試験計画	(1)日立GE 外注先:なし 計論時に ローロのの可		概念	検討/	試験言	+画 言	式 験 準	備・手酉	2																	:計画線 :実績線	
①溶解性α核種 除去技術の開発	D. 試験準備・手配 c. 予備試験	試験场册∶日立研究所					``	/ 予(韛試験															L				
	d. 要素試験														要	素試験	 ¢							. ±	- 10			
	e. まとめ												甲間	まとめ														
				概念	検討/	試験言	†画																					
	a. 概念検討/試験計画 (2)東芝ESS 外注先 : NFD b. 試驗準備 • 毛配 試驗提研 · 車芝FS			•					試験	準備・	手配																	
b. 試験準備・手配 c. 予備試験		NFD								予	備試験																	
	d. 要素試験												要素	試験										±	L Kh			
	e. まとめ													i]∓∠«.										ъ.				
②RO濃縮水の処理	a.概念検討/試験計画	(1)日文GE			概念	大 検討.	∕試験	計画																				
技術の開発	b. 試験準備 · 試験装置試作	外注先:日立プラントコンス トラクション			`						1	t験準(備・試馬	象装置	試作													
	c. 予備試験	試験場所:臨海工場(日立市						`	/		予備	献験						,	要素	試験								
	d. 要素試験 e. まとめ											,	中間	まとめ										, t	දහ			
③一次库弃协加理				概念	検討											_	_											
③一次焼果物処理 技術の開発	a. സരുത്രഖ b. 技術調査/試験計画	(1)ロンGE 外注先:日立プラントコンス トラクション	立GE :: 日立プラントコンス /ヨン				技術調	査/:	式験計证	Ð																		
	c. 試験準備/試験体製作	試験場所:臨海工場(日立市 外注先:みすず精工	テ:臨海工場(日立市) みすず精工 テ:みすず精工研究						4				試験	準備ノ	試験	表置試	作			+ = ~								
	d.要素試験 e.まとめ	試験場所:みすず精工研究 所												•	中間	まとめ					安东	11. 与灾				まと	න	



6. 実施体制					No.10
東京電カホールディングス株式会社 > 現場適用性の観点での諸調整	技術研究組 > 全体計画の策5 > 技術開発の進	1合 国際廃炉研 定と技術統括の。 捗などの技術管3	究開発機構 とりまとめ 理のとりまとめ		
日立GEニュークリア・ エナジー株式会社 【要素試験・技術開発】 (1)液体系・気体系システム開発 ① 溶解性α核種除去技術の開発 ・実液(原子炉建屋内滞留水)の 使用を想定した溶解性α核種 除去試験の検討 ・燃料デブリ取り出し作業時を 想定した要素試験 ② RO濃縮水の処理技術の開発 ・吸着材および凝集剤の選定 ・実機適用性の検討 ③ 二次廃棄物処理技術の開発 ・実機適用性の検討 ③ 二次廃棄物処理技術の開発 ・実機適用性の検討 ③ 二次廃棄物処理技術の開発 ・実機適用性の検討 ③ 二次廃棄物処理技術の開発 ・実機適用性の検討 (2)臨界近接監視技術・中性子吸収 材技術の現場運用方法 ・臨界近接監視手順の策定	ジーシステムズ (会社 開発】 系システム開発 除去技術の開発 酸本方法開発 防御 大溶解性 α 核種 記 り出し作業時を 試験 技術・中性子吸収 運用順の策定 局の未定 プロセスへの	三菱重工業 【要素試験・技術開発 (2) 臨界近接監視技 材技術の現場運 ・臨界近接監視 ・中性子検出器の 性能評価	株式会社 発】 術・中性子吸収 用方法 手順の策定 D未臨界度測定	国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 【要素試験・技術開発】 (2) 臨界近接監視技術・中性子吸収 材技術の現場運用方法 ・固化型吸収材技術の開発	連携する開発プロ ジェクトチーム 燃料デブリの取り出し 工法の開発 燃料デブリ収納・ 移送・保管技術の開発 固体廃棄物の処理・ 処分に関する研究開発 燃料デブリの性状把握 のための分析・推定 技術の開発 原子炉格納容器内部詳 細調査技術の開発
【再委託の内容】 ・未臨界度測定試験(京都大学) 【主な外注の内容】 ・非溶解性中性子吸収材の運用試験 (HPC) ・MF膜等フィルタ通水試験(みすず精工) ・カートリッジフィルタ試験(HPC)	(京都大学) 試験(NFD) EO/TENEX-J) 器(CETD)	【再委託の内容】 ・未臨界度測定試験(引 【主な外注の内容】 ・未臨界度測定試験補 ・臨界近接監視手順検 ニアリング)	京都大学) 動(IPL) 討補助(NSエンジ	【再委託の内容】 ・固化型吸収材の構造解析(静岡理工科 大学) 【主な外注の内容】 ・固化型吸収材を塗布した試験体の乾燥 試験に係る請負業務(検査開発株式会 社)	燃料デブリの性状把握 のための分析・推定 技術の開発 燃料デブリと放射性廃棄 物の仕分け技術の開発



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性α核種除去技術の開発

開発経緯

- 燃料デブリ取り出し時の安全システムとして液体系システムを構築する計画がある。暫定的な条件を用いた液体系システムの<u>被ばく線量評価</u>が行われ、通常時、事故時ともに敷地境界被ばく線量はしきい値を下回るが、 Pu系及び娘核種(Pu-238、Pu-241、Am-241)の影響が大きいという結果が得られている。
- ・既設原子力施設においてα核種は環境に放出される核種ではないことから、α核種による被ばくを合理的に達 成可能な限り低くするというALARAの観点から、燃料デブリ取り出し時に発生する汚染水に含まれるα核種除 去技術の有効性の検討・評価を2017年度より開始している。
- 溶解性α核種の除去技術としては、「吸着」と「RO膜」を適用候補技術として選定している。「吸着」はα核種を吸着材で捕捉するため二次廃棄物処理が不要となるが、「RO膜」はα核種を分離して発生する濃縮水の処理を要する。本PJでは、必要とする設備規模の小さい「吸着」を対象とした技術開発を行った。
- 2020年度までの補助事業では、候補吸着材に対し、除去対象α核種であるPu、U、Am、Cm、Npの5種類の元素を用いた吸着性能評価が行われている。この評価は、多くの吸着材を評価対象としたスクリーニングを行うために大気開放条件下での評価となっている。
- ・ <u>実機環境における吸着性能への影響の把握が未実施</u>である。また、2020年度までは浸漬試験による吸着性能
 評価を行っており、実機検討に向けた通水処理時の性能の把握が未実施である。
- そこで本PJでは、実機環境を模擬することによる吸着性能への影響把握、実機検討に向けた通水処理時の性 能を把握するための評価方法の検討を行った。

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性α核種除去技術の開発
 ・本PJの位置づけ



図 溶解性α 核種除去技術開発 全体フロー

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性 α 核種除去技術の開発

・本PJにて取り組む課題と実施内容及び目標

a.実液の使用を想定した溶解性α核種除去試験 の検討

【課題】

- 前年度(令和元年~2年度)実施した補助事業に おいて選定された α 核種吸着材について、吸着 材寿命、競合イオン影響などのデータが不足。
- 実液(原子炉建屋内滞留水)を使用した吸着材 候補の性能評価試験の方法が未確立。

【実施内容】

- 溶解性 α 核種除去設備の設計・運用に必要と なるデータの整理。
- 実液(原子炉建屋内滞留水)の使用を想定した 試験方法の検討。
- 実機においてカラム通水試験を実施することを 想定した試験装置、計画の検討。

【目標】

IRID

- 実液(原子炉建屋内滞留水)の使用を想定した
 試験方法の具体化。
- 実液(原子炉建屋内滞留水)の使用を想定した
 試験装置、試験計画の具体化。



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性 α 核種除去技術の開発

・本PJにて取り組む課題と実施内容及び目標

b.燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験

【課題】

- 燃料デブリ取り出し作業時のPCV内の環境を模擬した条件での 溶液中のα核種の挙動が未確認。
- 溶液の水質が変動した場合の溶解性α核種除去性能への影響 が未評価。

【実施内容】

- 燃料デブリ取り出し作業時の環境を模擬するための 試験装置の作製。
- 燃料デブリ取り出し作業時の環境を模擬した条件でのα核種の溶解挙動を確認するための予備試験。
- 燃料デブリ取り出し作業時の環境を模擬した条件での α 核種除去性能を確認するための吸着試験を行い、適用吸着材を選定。この際、水質変化する場合についても考慮。

【目標】

- 燃料デブリ取り出し作業時を想定した環境でのα核 種吸着性能データを取得し、候補吸着材を選定。
- 溶解性α核種除去設備の水質調整方針の設定。



No.14



簡易グローブボックス





①溶解性 α 核種除去技術の開発

・本PJの開発工程

按封西口						2	021:	年度									2	2022	2年度	E				
快討項日	4	5	6	7	ł	3 9	10	11	12	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
主要なマイルストーン					中間	『報告 [`]	•				中	間報台	₽₩				中間	報告▼	,			最終	冬報告`	▼
a.実液試験検討																								
b.要素試験 1.試験計画																								
2.試験準備 (試験用品手配)								試験装	置等の	の手配														
3.事前試験									1															
4.予備試験・吸着試験 (Am、Cm、Np) (U、Pu)					Cm 予f	、Am、 備試験 U 予	Npを月 、吸着 、Puを ・ 備試調	乳いた 試験 用いた 験、吸り	▲															
5. まとめ																								
備考																								



①溶解性α核種除去技術の開発

・前提とするシステムの設定(液体系・気体系システム)

- 液体系システムでは、PCV内に汚染水を閉じ込めるために、D/W(ドライウェル)あるいはS/C(サプレッション チェンバ)から取水を行い、水位管理を行う他、燃料デブリ冷却のためにD/WあるいはS/Cから取水した水を 冷却後に注水する循環冷却を行う。
- 燃料デブリから液相へ移行するα核種の存在範囲を極力限定するために、PCVおよび原子炉建屋地下から 取水する水に対し、α核種の存在形態に応じた除去(粒子除去フィルタ・溶解性核種除去吸着塔)を行う。
- 気体系システムでは、PCV内にダスト等を閉じ込めるための負圧管理、水素掃気等のための窒素封入を行う。
- ・ PCV内の気相部は、負圧管理により大気は流入するが、大半は窒素より構成される窒素環境となる。



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性α核種除去技術の開発

溶解性α核種除去システム構成の前提と対応方針

- 前期PJでは、吸着除去を適用した場合の溶解性α核種除去システムとして、受入タンク、吸着塔、モニタタンク、サンプリング設備等から構成される設備構成を検討した。
- また、大気雰囲気下にて除去対象核種 となる α 核種元素を用いた吸着試験を 実施し、主としてコロイド状 α 核種の除 去効果を期待した添着活性炭を先頭に 設置し、後段に溶解状態 α 核種の除去 効果を期待したジルコニウム/チタン酸、 とした吸着塔構成案をまとめた。
- 本PJでは、PCV内気相環境を模擬した 窒素雰囲気下において同様の吸着試験 を実施し、α核種の溶解度や吸着性能 への影響を評価することで、前期PJにて 設定した塔構成・適用吸着材の見直し要 否を確認する。



図 溶解性a核種除去システムの概略系統図と塔構成案※

※塔構成に関する補足

- 各吸着塔の塔数2はメリーゴーランド運用を可能とするための仮設定。各吸着塔の必要塔数については、今後評価が必要。
- 吸着塔数を可能な範囲で減らすために、溶解性α核種に加えコロイド状α核種の除去性能が高い添着活性炭の吸着塔、複数の溶解性α核種に対する吸着 性能の高いジルコニウムの吸着塔を設置する。ただし、添着活性炭とジルコニウムのNp吸着性能は比較的高い程度であり、通水処理時の濃度低減が不十分 である可能性があるため、ジルコニウムの後段にチタン酸吸着塔を設ける。





- PCVの気相部環境に係る管理方針案および管理値案について、事業者エンジニアリングにおける検討状況 を踏まえて下表に整理した。
- 大気の流入程度に係る項目としては酸素濃度があり、4%未満を管理値とすることが検討されていることから、 試験評価における条件に反映する。(ただし4%という数値は仮設定値であり、確定値ではない)
- なお、大気中の酸素濃度は約20%であることから、PCV内気相部における大気成分は、大気の1/5以下程度の濃度で存在すると推定される。

No.		環境項目	管理要求	管理方針案	管理值案	備考
1		PCV気相部圧力	気相閉じ込め (漏えい防止)	排気流量の管理により 負圧に管理	未定 ※1	※1:負圧管理が成立しない場合の選択肢として、正圧管理、均圧管理という方針がある
2		窒素濃度	なし	(窒素供給量管理)		窒素濃度自体は管理対象ではない
3	/= += ±□	水素濃度	気相閉じ込め (火災・爆発防止)	窒素供給量、排気流量 の管理により水素の爆 発下限界未満に管理	2%未満 ※2	※2:仮設定値のため、確定値ではない
4	丸 伯部 環境	酸素濃度	気相閉じ込め (火災・爆発防止)	窒素供給量、排気流量 の管理によりZr火災の 発生条件未満に管理	4%未満 ※3	負圧管理時の大気流入により濃度上昇 ※3:仮設定値のため、確定値ではない
5		二酸化炭素濃度	なし	成り行き		負圧管理時の大気流入により濃度上昇
6		ダスト濃度	気相閉じ込め (漏えい防止)	排気流量の管理により 所定の放射能濃度以 下に管理	未定 ※4	※4:全量放出時の公衆被ばく量5mSvに相当 する濃度以下を想定

表 燃料デブリ取り出し時の環境項目の管理方針案・管理値案(気体系システム)



①溶解性α核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験) ・実機想定水質条件の検討

- 燃料デブリ取り出し作業開始までには、液体系システムでの循環冷却運用、気体系システムでのPCV負圧管 理により、段階的な水質変化の発生が想定される。
- 燃料デブリ取り出し作業を開始すると、切削時のコンクリート成分の溶出によって、液相中のpH上昇が想定される。
- またpH上昇によって、気相中の二酸化炭素が、液相中に溶解する量が増えることも想定される。

表 液体系・気体系システムおよび燃料デブリ取り出しの運用状態におけるPCV内滞留水の水質とa核種吸着性能評価状況

j	星 用状態	STEP1	STEP2	STEP3	STEP4
彷	看環 冷却	×	0	0	0
PCV	/負圧管理	×	×	0	0
燃料デブリ取り出し作業		×	×	×	0
PCV内 滞留水 の水質	概要	淡水を外部から注水 し、注水した水はPCV 外に漏えいするため、 基本水質は淡水と同 等。	淡水を循環することでコン クリート成分等が溶出する 可能性がある。気相部は 窒素雰囲気のため、大気 影響はない。	PCVを負圧管理とすることで、 PCV内への大気流入により気 相部の二酸化炭素濃度が増 加し、水中の無機炭酸濃度が 増加。	燃料デブリ取り出し作業によりコンク リート成分の溶出量が増加すること で、pHが上昇。pH上昇に伴い、無機 炭酸濃度が増加。臨界発生防止の ためにホウ酸水を注入することも想 定される。
の小貞	推定pH	7程度	7~9程度	6~9程度	6~11程度
	無機炭素*濃 度(推定)	1ppm程度	1ppm程度	数ppm (大気流入影響)	数~数十ppm (大気流入+pH上昇影響)
α核種吸着性能 評価状況		(対象外)	(対象外)	2020年度までの吸着試験 により候補吸着材を選定	未評価

 ${igstyle 1}$ * 液相中に存在する ${
m CO}_2$ 、 ${
m HCO}_3^-$ 、 ${
m CO}_3^2$ の構成炭素の総称。存在比は溶液のpHによって変化する。

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性 a 核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験)

- 前期PJにて、気相中に二酸化炭素が存在する系での熱力学平衡 計算を行い、アルカリ条件では、中性条件と比較してα核種の溶 存形態として炭酸イオン配位・水酸化物イオン配位する形態の存 在割合が増加することを評価している。
- ・ 窒素環境と大気環境では、二酸化炭素濃度が変化することから、 アルカリ条件でのα核種の化学形態に影響がある可能性がある。
- また、酸性条件では、中性、アルカリ条件と比較してα核種の溶存 形態として金属イオン形態(Pu³⁺など)の存在割合が増加する可能 性がある。



(1) 気相中の二酸化炭素濃度: 3ppm (窒素環境模擬)

pH9以上で炭

酸イオンが配

位する形態の

割合が増加

--- Pu(OH)3*

--- PuSO

---- Pu(CO3)2(OH)22

--- Pu3*

100%

80%

60%

40%

20%

0%

客存種存在割合(%)

---- Pu(OH)

No.20

10

①溶解性α核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験) ・要素試験条件の設定

- ①燃料デブリ取り出し時の各環境項目の管理方針、②燃料デブリ加工により優位に変化すると考えられる水質 条件の検討結果、③現時点までに実施されたPCV内滞留水の分析結果の3つの視点で、PCV内滞留水の想定 水質条件をパターン分けし、下記表に整理した。
- コンクリート成分の溶出によるpH上昇を想定した評価として、炭酸の溶解によるpH低下影響が軽微かつ、炭酸 塩沈殿が生成しないと想定される、pH9、10程度にて実施した。
- また、実機にて処理対象水の水質変動が生じた場合、吸着性能が低下する可能性があるため、水質調整(pH調 整)を想定した評価も実施した。 本PJで実施した範囲

表 本PJにおける要素試験条件

				<u></u>						
No.	目的	液条件	pH [⋇]	気相条件	備考					
1		1000倍希釈海水	6 ~ 7	大気/	前期PJまでに実施済みの条件については、前期PJの結果を流用する方針とし、未取得					
2	200倍希釈海水		6 ~ 7	窒素	の条件を実施。					
3		1000倍希釈海水	9程度		・海水成分の溶出が少ない状態により、現在までの滞留水中の塩化物イオン濃度分析 は(10)に使ってアロナイ根へた相応					
4	実機想定	+Ca(OH)2	10程度	空主	値(T9ppm)近傍で運用する場合を想定。 ・コンクリート成分の溶出によるpHの上昇を想定。					
5	小貝宋件	200倍希釈海水	9程度	全糸	・海水成分の溶出が多い状態により、管理上限値(100ppm)近傍で運用する場合を想定。					
6		+Ca(OH)2	10程度		・コンクリート成分の溶出によるpHの上昇を想定。					
7		五ホウ酸ナトリウム水 (7000ppm as B)	8~9	大気/ 窒素	五ホウ酸ナトリウム注入時の影響評価用に実施。					
8	水質調整	1000倍希釈海水	3程度	大気/	・中性・アルカリ性・酸性のどの領域に調整するのが適切か、傾向を把握するために、これまでデータも取得の酸性条件(****2)をの評価を実施					
9	を認定した条件	+HCI	5程度	窒素	・pH調整剤としては、後段設備への影響を考慮し、暫定的に塩酸を設定。					
				Hで設定						

RID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性 α 核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験)

吸着試験手順

- PCV内環境(窒素雰囲気)を模擬した評価を行うための試験体系を図1に示す。
- ・ 放射線管理の観点より、実験室のフード内に簡易グローブボックス(簡易GB)を設け、GB内を窒素雰囲気 とするためにN2ボンベからの窒素封入ラインを接続する。定期的に簡易GB内の酸素濃度を確認し、酸素 濃度4%を超えないように適宜窒素封入操作を行う。
- 温度については簡易GB内での温度制御はスペース上の制約から難しい。そこで、試験時の温度測定・記録を行い、温度の違いによる影響が出た場合に、考察するためのデータ取得を行う。
- 吸着試験手順のイメージを図2に示す。吸着材とα核種トレーサ入りの試験液(試験容器はPP(ポリプロピレン)容器)を簡易GB内(窒素雰囲気)中で振とうさせ(21日間)、0.1μmろ過後溶液中のα核種濃度を分析することで吸着材への吸着量を評価した。





①溶解性α核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験)
 ・吸着試験結果:コンクリート溶出成分を模擬したアルカリ条件

・ジルコニウムと添着活性炭について、アルカリ条件(1000倍希釈海水に対し初期pHを9、10に調整)、窒素環境 条件にてPuを用いた浸漬試験を行った。

- ジルコニウムは比較的高い分配係数(Kd)が得られたものの、添着活性炭と比較すると低く、アルカリ性にて適用 可能な吸着材と判断が付きにくい結果である。アルカリ条件では吸着性能が低下する可能性が考えられる。
- 添着活性炭の21日浸漬後のKdは前期PJ(液相:pHを6~7程度・1000倍希釈海水、気相:大気環境)と同程度であり、pHに対するロバスト性を有すると考えられる。しかし浸漬後のpHが7程度まで低下しており、アルカリ条件液での通水処理時には吸着性能が低下する可能性がある。
- これらの結果より、実機にて処理対象水の水質が変動した場合にも安定した除去性能を発揮するための設備と するためには、吸着塔上流でpHを一定に調整するための前処理が有効となる可能性がある。



①溶解性 α 核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験)
 ・吸着試験結果:吸着塔上流でのpH調整範囲

- ・吸着塔上流でpHを一定に調整するうえで(図1)、適切なpH領域を把握するために、各pHでのPu、Cmのジルコ ニウム吸着材に対する窒素環境での分配係数(Kd)結果を図2に示す。
- 初期pH3、5の液(1000倍希釈海水に塩酸を添加)での吸着試験(浸漬試験)を行った結果、初期pH9、10とした 条件よりもKdが1桁程度低下したため、酸性側へ水質調整することで吸着性能が低下する可能性がある。
- これまでの初期pHに対する浸漬試験結果をまとめると、初期pHから浸漬後pHがpH6.5~9程度の範囲で、比較的高いKdが得られた(赤枠範囲)。pH6以下になると、Cm吸着性能が低下が懸念されるため暫定的にpH7~9程度をpH調整範囲として設定した。





①溶解性α核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験)
 ・候補吸着材の選定

- 本PJにて評価対象とした候補吸着材(チタン酸、ケイチタン酸、ジルコニウム、添着活性炭)について、窒素 雰囲気下かつ、初期pH6~9程度での、Np、Pu、Am、Cmを用いた吸着試験(浸漬試験)により得られた候補 吸着材の分配係数(Kd)を下図にまとめた。
- 実機処理対象水中に多く含まれると考えられるPu、Am、Cmについて、チタン酸やジルコニウムや添着活性 炭は高い分配係数(Kd)を示した。一方でケイチタン酸はPuの吸着性能が低い可能性があるため、候補から 外した。
- 以上から、チタン酸、ジルコニウム、添着活性炭を候補吸着材とし、処理対象水のα核種濃度を低減するために、Np、Pu、Am、Cmはチタン酸、ジルコニウム、添着活性炭の組合せにて除去する。



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

No.26

①溶解性α核種除去技術の開発(b. 燃料デブリ取り出し作業時を想定した要素試験)
 ・概略システム検討結果と実機適用に向けた課題抽出

- 従来の吸着塔方式のシステム構成の他に新たに開発目標に加えた、吸着塔上流にて水質調整を想定した 場合の概略系統構成案を下図に示す(前期PJから見直した箇所は青色で示す)。処理対象水のpH(pH5.5 ~11と想定)を事前に測定し、アルカリ性(pH10以上)に変動した場合、pH調整槽にてpH7~9に調整し、吸 着塔へ通水するシステムを想定する。
- 吸着塔上流にて水質調整を想定したシステムの実機適用までの課題を以下3点抽出した。
 課題①:pH調整剤の選定(試験上は塩酸を仮設定したが、その他手段を含め選定)
 課題②:pH調整範囲の設定(薬液注入により調整する目標pHの設定・目標pH逸脱時の対応方針設定)
 課題③:pH調整による析出物の生成有無(フィルタ要否の判断)



図 溶解性核種除去概略系統構成案(水質調整を想定した場合)



①溶解性 α 核種除去技術の開発(a. 実液の使用を想定した溶解性 α 核種除去試験の検討)
 ・実液を用いた通水試験の必要性

- 燃料デブリ取り出し時の水質変化を想定した条件にて浸漬試験を行うことで、α核種に対する平衡吸着量の大きい吸着材を評価し、添着活性炭やジルコニウムなどを候補吸着材として選定している。しかし、候補吸着材に対する通水時の性能が未評価であるため、プロセスの実機適用性評価、設計・運用に必要なデータの取得のために、通水試験が必要である(下図)。
- ・通水試験には多量のα核種が必要となるが、ラボで取り扱うことのできるα核種トレーサ量の制限より、実液(以降、実汚染水)を用いた通水試験の実施が現実的である。そこで、実汚染水を用いた通水試験を行うまでの計画を検討した。



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

IRID

No.28

- ①溶解性 α 核種除去技術の開発(a. 実液の使用を想定した溶解性 α 核種除去試験の検討)
 ・ 通水試験の進め方
- 実機運用開始までには、吸着塔通水処理時の除去性能や、吸着性能維持期間を検証する必要があり、これらの検証には、文献調査等により、実機1/10規模程度の通水試験(検証試験)が必要となることを確認した。
- 検証試験装置の仕様を設定するためには、吸着塔構成を設定する必要があるため、通水条件(SV^{*1}または LV^{*2})を実機条件と合わせた実機長カラムを用いた通水試験を行い、設定した吸着塔にて目標となる除去性能 と性能維持期間を満足する見込みを確認する。
- 実機長カラム試験は通水条件を実機と揃えられる一方、多量の試験液量を必要とするため、本PJにて選定した 吸着塔構成の成立性を確認する目的で、通水条件のうちSVを実機条件と合わせ、必要となる試験液量の少な い、ミニカラムを用いた通水試験を行う。
- ・以上より、実機適用までの通水試験の進め方として、ミニカラム通水試験、実機長カラム通水試験、1/10規模 通水試験(検証試験)という順序で進めていく計画を立案した。
- 次葉以降では、最初のステップで実施するミニカラム通水試験について、試験計画の具体化検討を行った。



※1 SV:空間速度 ※2 LV:線速度

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性 α 核種除去技術の開発(a. 実液の使用を想定した溶解性 α 核種除去試験の検討)
 ・ミニカラム通水試験装置構成・試験条件の検討

- ミニカラム通水試験の試験装置構成、試験条件について検討した。
- 入口タンクにて通水試験液を調製し、試験カラムへ通水する。カラムの前段には固形分を捕捉するためのフィルターを設置する。また、試料採取箇所を確保し、通水前後の濃度変化やpH変化などを評価可能とする。
- ある程度の通水期間を確保するために、数千BV※分の試験液として数十L程度(目標)確保する。
- 通水試験液の全α濃度として1E+03Bq/L(現在の実汚染水と同程度)、1E+05Bq/L(現在の実汚染水よりも2 桁程度濃度が上昇することを想定)の2ケースを設定し、通水試験でも同程度含まれた試験液を準備する。
- 現状、フィルターろ過後に全α濃度が1E+05Bq/Lを超える実汚染水は確認されていないことから、通水試験に適した濃度を確保するための液調製方法について検討する必要がある。



※BV:Bed Volume,吸着材充填量当たりの通水量

No.29

図 ミニカラム通水試験装置の概略系統構成(案)



①溶解性α核種除去技術の開発(a. 実液の使用を想定した溶解性α核種除去試験の検討)
 ・試験液における溶解性α核種濃度の確保方法の検討

- 公開されている実汚染水の分析結果から、汚染水に含まれるα核種の大半は非溶解性で存在し、溶解性で存 在する割合は少ないことが確認されているため、イオン状のα核種濃度を確保するには、非溶解性で存在する α核種を酸溶解する必要がある。また、実機想定水質へ調整した際の溶解挙動も確認する。(下図No.3~8)
- しかし酸溶解や水質調整を行うと、溶液中のイオン量が実機処理時の液条件と大幅に異なる可能性や、調製操作自体が困難な可能性もあるため、酸溶解および水質調整を行わない液調製方法も想定する。(下図No.1 ~2)
- 実汚染水を用いてこれらの液調製方法を試し、液中の溶解性α核種濃度を確認することで、通水試験液に適した液調製方法の設定を行う。
 濃度分析





①溶解性 α 核種除去技術の開発(a. 実液の使用を想定した溶解性 α 核種除去試験の検討)
 ・実汚染水を用いた通水試験に向けた課題の抽出

No.31

- これまでの検討結果から、吸着塔方式を想定した溶解性α核種除去システムの実機運用までの通水試験の 進め方を下図にまとめた。
- 実機運用までには模擬実証が必要であり、実機1/10規模での通水試験装置が必要である。吸着材/吸着塔構 成や吸着塔数を設定するための応用化フェーズとして、実機長カラムやミニカラム通水試験を実施するが、試 験液確保が課題であり、確保可否を確認したうえで通水試験を実施する。
- 実汚染水を用いた通水試験に関する今後の課題を以下に整理した。
 課題①:実機運用条件設定のためのデータ取得方針の設定
 課題②:実汚染水の採取仕様(対象、場所、方法など)の設定
 課題③:実汚染水の水質調製方法の具体化(サイトでの実施可否含め)
 課題④:通水試験に適したα核種濃度を安定して確保できない場合の代替手段の検討
 課題⑤:通水試験装置の具体化検討
 課題⑥:通水試験の実施エリアの選定

課題⑦:通水試験液の分析仕様(測定・分析項目、分析体制)の設定



①溶解性α核種除去技術の開発

- ・吸着塔方式による溶解性a核種除去設備の課題まとめ
- 吸着塔方式を適用した溶解性α核種除去設備の実機適用に向け、本PJ開始段階で抽出していた課題 に対する、取り組み・進捗状況、残された課題を下表に示す。(試験評価を要する課題は赤字で示す)

表 溶解性α核種吸着除去システムの実機適用に向けた課題への取り組み状況(1/3)

No.	項目	課題への取り組み・進捗状況	残された課題
1	除去対象 核種	本PJ初期の段階では、被ばく評価に用いる核種、多核種除去設備の除去対象核種に挙がってい る核種として、U、Np、Pu、Am、Cmの5元素・15核種を仮設定していた。 別PJにおける汚染水の分析結果を確認し、建屋内滞留水は溶解性a核種がほとんど存在しないこ と、PCV内滞留水には溶解性a核種が存在し、大半がPu-238、239、240、Am-241で構成さ れることが明らかとなってきた。 また、本PJにて実施した実機環境・実機水質を模擬した試験の結果、0.1µmろ過後のろ液にUは ほとんど含まれず、除去対象核種から除外できる可能性が高いことを確認した。	・U(U-234、U-235、U-236、U- 238)の除去対象元素からの除外 可否
2	処理対象水 の水質	本PJ初期の段階では、処理対象水の水質として、塩化物イオン濃度100ppm以下の範囲での海 水成分の溶出、コンクリート成分の溶出によるCa濃度およびpHの上昇を想定していた。 本PJにて実施した実機環境を模擬した試験にて、実機を想定した窒素環境では、pHがある程度 高い状態を維持すること、大気の流入によりpHが低下していく傾向にあることを確認した。また、極 端な酸化還元電位の低下は見られないことを確認した。	・これまで検討対象とされていない水 質条件(二次廃棄物処理設備から 液が返送された場合など)での影響 評価
3	処理流量	実機の運用を想定し、2~10m³/hの範囲を処理流量範囲として仮設定した。 ・2m³/h : 循環冷却設備外に設備を設置し、22m³/日の処理を行うことを想定 ・10m³/h : 循環冷却設備内への設備設置を想定	・核種除去効率を考慮した処理流 量の設定
4	想定水質 における α核種濃度	本PJの初期段階では処理対象水のa核種濃度条件は定めず、試験における分析精度の観点から 10Bq/mlの濃度条件での吸着試験を行う方針としていた。 事業者エンジニアリングにおける条件の仮定が協議され、全aにて100Bq/mlを濃度条件の最大値 とする方針が設定されたため、検討・計画に反映した。	・核種ごとの濃度条件の設定 ・通水試験液調製手順案によるa核 種濃度の確認 (実汚染水を用いた試験)



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性α核種除去技術の開発

- ・吸着塔方式による溶解性a核種除去設備の課題まとめ
- 各課題への取り組み・進捗状況、残された課題を下表に示す。(試験評価を要する課題は赤字で示す)

No.33

表 溶解性α核種吸着除去システムの実機適用に向けた課題への取り組み状況(2/3)

No.	項目	課題への取り組み・進捗状況	残された課題
5	濃度低減 要求	本PJの初期段階では、公衆被ばく影響低減のための目標DFを100、水処理設備に移送するための 濃度低減目標を告示濃度としていた。エンジニアリングにおける条件の仮定が協議され、入口条件に 応じて全αのDFを10、100、1000とする方針が設定されたため、検討・計画に反映した。また、DFの 検証のためには実汚染水を用いた通水試験を要することから、試験の計画を検討した。	・核種ごとの除去要求の設定 ・実汚染水を用いた試験計画の具体 化
6	適用吸着材	除去対象元素であるU、Np、Pu、Am、Cmを用いた浸漬試験を行い、候補吸着材における平衡吸 着量の評価を進め、平衡吸着量が大きく適用見込みの高い吸着材として、添着活性炭、ジルコニウ ム、チタン酸などを選定した。 これらの吸着材は、中性条件では平衡吸着量が大きいが、コンクリート溶出成分を想定したアルカリ条 件下では平衡吸着量は比較的低下したため、適切な水質調整が必要であると推察した。	 ・除去要求を満足する吸着材の設定 (新規候補吸着材含め) ・試験期間中の水質変動影響を低 減した試験方法の設定 ・二次廃棄物発生量の評価 ・使用済み吸着材の処分影響の調 査/評価
7	吸着塔構成	吸着塔構成を設定するためには、通水試験による確認が必要となり、ラボでの小規模な試験では十 分な確認ができないことから、実汚染水を用いた通水試験による確認方法を検討した。	・実汚染水を用いた試験計画の具体 化
8	交換タイミング /交換頻度	目標とする交換頻度を1カ月に1回と設定し、実汚染水を用いた通水試験にて1カ月の処理に相当す る通水を行った後に除去性能が維持することを確認する方針を検討した。	・除去性能維持期間の評価 ・実汚染水を用いた試験計画の具体 化
9	交換方法	閉じ込めの観点より、吸着塔ごと交換する方針が設定した。	なし
10	塔サイズ	処理流量は2~10m ³ /hを想定した吸着塔として、系統流量250m ³ /日の多核種除去設備の吸着 塔と同程度のサイズを、実汚染水を用いた通水試験の検討条件として仮設定した。	なし
	RID	©Internationa	al Research Institute for Nuclear Decommissioning

①溶解性 α 核種除去技術の開発

・吸着塔方式以外の処理プロセスを見据えた溶解性a核種除去設備の課題まとめ

本PJにおける検討結果等から、追加の課題を整理した。

表 溶解性α核種吸着除去システムの実機適用に向けた課題への取り組み状況(3/3)

No.	項目	課題への取り組み・進捗状況	残された課題
11	水質調整	前期PJまで中性での吸着性能評価を実施してきた。本PJにて窒素環境下で酸性、アルカリ性での 吸着試験を実施したところ、一部の条件にて中性条件と比較して平衡吸着量が低下傾向を示し た。中性付近で吸着塔入口水のpHを一定とするよう前処理を行うのが効果的であると推察された。 これに伴い、水質調整を前提としたシステム構成を検討した。	・pH調整剤の選定 ・pH調整範囲の設定 ・pH調整による析出物の有無確 認
12	コロイド対策	2021年7月に、3号機にてPCV滞留水由来のMSIV漏えい水の採取分析が行われており、汚染水中のa核種はイオン状の形態だけでなく、フィルタろ過後に残留する粒子・コロイド状の形態を含む ことが確認された(下図の青枠部)。量や水質次第では、吸着塔方式にてコロイド状のa核種が除 去されない可能性があるため、コロイドを除去するための対策の設定(水質調整、凝集沈殿、バッ チ処理等)が必要と判断した。	・コロイド状α核種の除去方針設 定





©International Research Institute for Nuclear Decommissioning
①溶解性α核種除去技術の開発

・まとめ

【これまでの成果】

No.	実施項目	目標	開発成果
a-1	実液の使用 を想定した 溶解性α核 種除去試験 の検討	実液(原子炉建屋 内滞留水)の使用 を想定した試験方 法の具体化	開発目標である吸着塔方式を用いた溶解性α核種除去設備について、実機適用まで にα核種の吸着除去性能および性能維持期間を評価するステップを検討し、ミニカラム 通水試験、実機長カラム通水試験、1/10規模通水試験と進めていく計画を立案した。
a-2		実液(原子炉建屋 内滞留水)の使用 を想定した試験装 置、試験計画の具 体化	実機適用までに進める通水試験のうち、ミニカラム試験について、試験装置構成を具体化するとともに、実汚染水を用いた試験液の調製方法を検討した。 通水試験に必要な溶解性α核種濃度を確保するための液調製方法は実汚染水を使 用した確認が必要となるため、実汚染水を用いた試験内容を検討し、通水試験を開始 するまでの試験計画を具体化した。
b-1	燃料デブリ 取り出し作 業時を想定 した要素試 験	燃料デブリ取り出 し作業時を想定し た環境でのα核種 吸着性能データを 取得し、候補吸着 材を選定	前期PIで抽出された候補吸着材(添着活性炭、ジルコニウム等)に対して窒素環境・ア ルカリ条件にて吸着試験(浸漬試験)を実施した。 添着活性炭はアルカリ条件においても前期PIの中性条件と同様のPu除去率となること を確認した。一方でジルコニウムはアルカリ条件においてPu、Cmの除去率がやや低 下し、一部の吸着材でアルカリ性にて吸着性能が低下する傾向を確認した。 そこで、pH調整+吸着塔システム構成を想定した吸着試験を実施し、これまで選定し ている候補吸着材と同様の吸着材を候補として選定した。
b-2		溶解性α核種除去 設備の水質調整 方針の設定	吸着塔の前段でpH調整を行うにあたり、適切なpH領域を選定するための評価として、 酸性条件での吸着試験を実施した。酸性条件ではα核種吸着性能は低くなることを確 認し、中性付近に調整する方針を暫定で設定した。



①溶解性α核種除去技術の開発

・まとめ

【今後の検討課題】

- ✓ 他PJで進めている検討をもとに、これまで十分に検討されていない水質条件(二次廃棄物処理設備からの返送水による影響評価等)での吸着評価を実施する。
- ✓ 今後通水試験にて、プロセスの実機適用性評価、設計・運用に必要なデータ(通水時の候補吸着材の除 去性能や吸着性能維持期間)を取得していく必要があり、所定のα核種濃度を確保しつつ、多量な試験液 の準備が課題である。現在の1F実汚染水を用いることで通水試験液に必要な要件を満足することができ るかを今後評価する。
- ✓ また、実汚染水を用いた試験計画の具体化検討をしていくと共に、実汚染水を使用した試験が成立しない 場合に備えて、実汚染水を使用せずに、必要なデータが取得できるかも検討する。
- ✓ これまで未評価の新規候補吸着材の評価を実施すると共に、候補吸着材について、使用済み吸着材の処 分影響を調査・評価する。
- ✓ 従来開発目標としてきた、吸着塔方式での技術開発に加えて、水質変動による処理性能低下への対策や 吸着除去では除去しきれないコロイド成分への対策として、水質調整、凝集沈殿、バッチ処理等の処理プロセスの適用可否を評価する。

【まとめ】

要素試験結果から、水質変動によって処理性能が変化する可能性が示唆されたため、水質調整設備を想定した場合の評価を行い、pH調整を行う前提での候補吸着材を選定、概略系統構成を暫定で設定した。今後プロセスの実機適用性評価、設計・運用に必要なデータの取得のために、小規模から実機検証規模への段階的な通水試験計画を具体化していく。



②RO濃縮水の処理技術の開発

▶ 検討フロー



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

②RO濃縮水の処理技術の開発

【課題】

- RO膜より発生するRO濃縮水の処理方式として、凝集沈降による核種除去が検討されており、処理 手順を確立する必要がある。
- RO濃縮水処理に使用可能な粉末吸着材および凝集剤が未選定であり、それらの核種吸着性能や 凝集沈降性能のデータが不足している。

【実施内容】

- 文献調査や既設水処理設備での使用実績などより、粉 末吸着材および凝集剤の候補を選定する。
- 吸着試験により粉末吸着材の核種除去性能を評価する。
- 凝集沈降試験により、粉末吸着材に対する凝集剤の凝 集性能を評価する。
- ビーカー規模および装置規模のRO濃縮水模擬試験に より、立案したRO濃縮水処理手順の適用性を評価する。

【目標】

- 粉末吸着材の核種除去性能および、凝集剤の凝集沈 降性能を評価する。
- 適用可能な粉末吸着材、凝集剤の候補を選定する。
- RO濃縮水の処理手順を立案する。





②RO濃縮水の処理技術の開発

> スラッジ回収システム系統構成

非溶解性核種除去設備およびRO膜設備より発生する廃液から固形成分を回収する



IRID

②RO濃縮水の処理技術の開発

> スラッジ回収システムの要件

各沈降分離設備における処理対象液と処理要求を以下に示す。

No.	項目	粗取り廃液処理設備	中取り・最終処理廃液処理設備	RO濃縮水処理設備
1	処理対象水	粗取り機器より発生する ドレン水・逆洗水	中取り機器・最終処理機器より 発生する逆洗水	RO膜装置より発生するRO濃縮水
2	含有粒子成分 (凝集沈降対象)	溶融燃料、炉心構造物、コンク リート成分、その他固形分 (粒径100~数十µm)	溶融燃料、炉心構造物、コンクリート成 分、その他固形分 (粒径数十~0.1µm)	核種吸着用の粉末吸着材
3	粒子濃度	数千~10000 ppm フィルタ要素試験結果より	数千~20000 ppm フィルタ要素試験結果より	吸着材添加時 : 数百ppm CF濃縮後 : 約10000 ppm 吸着材要素試験結果より
4	処理流量	間欠ドレン: <u>100 m3/year</u> フィルタ要素試験結果より	1.4µmMF膜 : <u>30 m3/year</u> 0.1µmUF膜 : 10 m3/year 0.05µmUF膜 : <u>50 m3/year</u> フィルタ要素試験結果より	8 ~11 m3/day デブリ取り出し作業水(22 m3/日)に RO膜濃縮倍率を2~3倍と仮定し算出
5	処理流量要求	間欠ドレン: <u>0.7 m3/day以上</u> 設備稼働率80%で処理可能とする ための流量	1.4µmMF膜: <u>0.2 m3/day以上</u> 0.1µmUF膜:0.063 m3/day以上 0.05µmUF膜: <u>0.4 m3/day以上</u> 設備稼働率80%で処理可能とするための 流量	14 m3/day以上 設備稼働率を80%で処理可能とする ための流量
6	稼働方式		バッチ処理 <u>1~数日で1バッチ処理完了を想定</u>	

※補助事業で設定している水質条件で試算。 表各沈降分離設備におけるシステム要件 下線部は今期PJ成果を反映し見直した。

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

②RO濃縮水の処理技術の開発

【課題】 沈降分離槽より発生する凝集沈殿物(以下、沈殿スラッジ)の発生量が大きい。

スラッジ回収容器をユニット缶サイズ(φ200×H400mm)と仮定した場合、 必要な払い出し回数は下表のように試算される

表 スラッジ回収容器の払い出し回数

処理対象廃液	回収容器員数	沈殿スラッジ発生量
粗取り廃液	1個/day	3m3/year
最終処理廃液	<10個/day	<30m3/year
RO濃縮水	<120個/day	<300m3/year



No.41

図 凝集沈降処理後の廃液の外観

- フィルタ廃液処理用の沈降分離槽より発生する沈殿スラッジは比較的発生量が小さく、 払い出し回数も実機適用可能なオーダーであると推定
- RO濃縮水処理用の沈降分離槽より発生する沈殿スラッジは発生量が膨大であり、 払い出し回数も膨大なため改善が必要

<u>検討項目</u>

- ① より除去性能の高い吸着材の選定
- 粉末吸着材添加量の適正化検討
- 凝集剤添加量の適正化検討
- ④ 沈降分離処理手順および装置の見直し
- ⑤ 脱水による沈殿スラッジの減容化処理の検討
- ①~④ ⇒ 要素試験により検討
- ⑤ ⇒ 文献調査・机上検討後に要素試験を実施 ※項目③にて検討



②RO濃縮水の処理技術の開発

> 吸着材試験

【目的】RO濃縮水処理に適用可能な吸着材の選定を実施する 【実施内容】撹拌式のバッチ試験にて粉末吸着材の吸着性能を評価する

<u>試験体系の検討</u>

吸着材の吸着性能を評価する場合、浸漬式のバッチ試験を実施することが一般的であるが、RO濃縮水は沈降槽にて撹拌処理されるため、実機体系を模した試験体系とした^{※1}。

粉末吸着材の選定

文献調査結果、1F使用実績、2020年度までの試験にて取得した吸着 率データなどを参考として、本試験に使用する吸着材を下表のように 選定した。除去対象であるα核種(Pu, Am等)に対して、高い除去性能 が報告されている吸着材を選定した。

図 吸着材試験(チタン酸)の様子



粉末吸着材添加

模擬廃液

(1000倍希釈海水、

図 撹拌式の吸着試験 イメージ図

No.	吸着材種類	粒径(平均)	備考
1	チタン酸	4.08 <i>µ</i> m	米国サバンナリバーサイトにて使用実績あり(バッチ処理)
2	チタンケイ酸塩	8.55 <i>µ</i> m	1Fでの使用実績あり
3	活性炭	48.5 <i>μ</i> m	1Fでの使用実績あり
4	ヘマタイト	1.32 <i>µ</i> m	鉄酸化物系の吸着材。Pu等のα核種に対して高いKdの報告がある
5	マグネイト	1.96 <i>µ</i> m	ヘマタイトと同様の鉄酸化物系の吸着材。

表 粉末吸着材の選定結果^{※2}

※1本試験方式ではHOT試験が困難なため全て COLD試験にて実施。

なお、COLDトレーサでの模擬が困難であるα 核種(Pu等)については、項目①溶解性の吸着 率データを参考とした。

※2 α 核種吸着材から選定 顆粒状に成形することができず、

吸着塔充填が困難な吸着材からも選定した。

N. I

No.42

サンプリング

&分析



②RO濃縮水の処理技術の開発

> 凝集剤試験

【目的】RO濃縮水処理に適用可能な凝集剤の選定を実施する 【実施内容】粉末吸着材を添加した模擬液を使用した凝集沈降試験を実施する





No.43

図 凝集剤試験 装置外観

※1 粉末吸着材の凝集沈降の可否が主な確認事項であるため、 トレーサー除去率は評価しない。そのためトレーサーは無添加。

※2 今回選定した凝集剤はいずれも酸性試薬であり、

添加後は中性領域に調整する必要があるため、水酸化ナトリウム溶液を使用する。

試験体系の検討

吸着材試験と同様の撹拌式のジャーテストを採用する。 実機の凝集沈降槽での処理をスケールダウンした体系を模擬する。

凝集剤の選定

文献調査結果および2020年度試験結果を基に右表のように選定した。 凝集沈降性能に加えて、廃液のイオン強度に対する冗長性も考慮した。

表 凝集剤の選定結果

No.	凝集剤	備考
1	高塩基PAC ^{※3}	低イオン強度の廃液にて高い処 理性能の報告あり
2	硫酸アルミ	ホウ酸含有廃液に対して高い処 理性能を前期PJ試験にて確認

※3 PAC:ポリ塩化アルミニウム

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

No.44

7. 実施内容

②RO濃縮水の処理技術の開発

吸着材および凝集剤の選定結果

吸着材試験および凝集剤試験の試験結果より、各試薬を選定した。 RO濃縮水処理試験では、下記の選定結果を基に使用する試薬を設定した。

<u>粉末吸着材</u>

<u>チタンケイ酸塩、添着活性炭、(チタン酸)</u>

試験する粉末吸着材は、α核種除去性能が高いと評価された材 のうちチタンケイ酸塩と活性炭とする。α核種選択除去用吸着材 と全放射能除去用吸着材より各1種類選定した。

> ※チタン酸も高いα核種除去性能が確認されたが、試験に使用可 能なサンプル量が少ないため、本試験では使用しない。

<u>凝集剤</u>

硫酸アルミニウム、(高塩基PAC)

凝集剤試験結果より、水質に対する冗長性や凝集沈殿物の発生量 が比較的少なく、良好な結果が得られた硫酸アルミニウムを選定する。 なお、高塩基PACを使用した試験も代表条件のみ実施した。





IRID

②RO濃縮水の処理技術の開発

粉末吸着材および凝集剤の選定

各粉末吸着材および凝集剤の添加量(濃度)を下記のように設定した。

<u>粉末吸着材</u>

Nia	吸着材	分	吸着材		
NO.		Cs	Sr	Eu(Am)	添加濃度
1	チタン酸	9.2.E+03	1.0.E+06	6.0.E+06	<50ppm
2	チタンケイ酸塩	1.6.E+06	1.3.E+05	1.1.E+06	50ppm
3	添着活性炭	1.2.E+03	2.6.E+02	5.9.E+04	200ppm

表 粉末吸着材の必要添加量の評価

吸着材添加濃度の設定

吸着材試験より取得した分配係数より、DF100を満足 する値を設定した。なお、試験の都合上分析において 検出下限以下とならない程度の余裕を考慮した。

<u>凝集剤</u>

表 凝集剤の必要添加量の評価

	<i>吃住</i> 刘、四辛++	凝集剤添加濃度[ppm]			
NO.	/疑果剤 \吸宿材	チタン酸	チタンケイ酸塩	活性炭	
1	高塩基PAC	100	1000	1000	
2	硫酸アルミ	20	200	50	

凝集剤添加濃度の設定

凝集剤試験において、上澄液のSS濃度を20ppm以下 まで低減可能なことを確認した添加濃度を設定した。







②RO濃縮水の処理技術の開発

➢ RO濃縮水処理手順案



②RO濃縮水の処理技術の開発

▶ RO濃縮水処理試験

沈降分離槽を使用し、RO濃縮水の模擬液の処理試験を実施した。各試験条件は、ビーカー規模試験結果 を基に設定した。本試験により、立案したRO濃縮水処理方式の成立性を確認した。

模擬対象とした処理プロセス

濃縮処理の有無を考慮し、粉末吸着材添加濃度は低濃度と高濃度の2パターンを設定した。



本処理方法による核種除去性能とともに、沈降分離槽の各機構の動作性や各プロセスに要する 処理時間などのデータも取得し、実機オペレーションの検討に反映する。



②RO濃縮水の処理技術の開発

> 試験パラメータの設定

RO濃縮水処理試験のパラメータを下記のように設定した。

表 RO濃縮水処理結果 試験パラメータ

No.		項目	Į	设定	検討方針
			Cs	0.1 ppm	循環冷却水に含まれる代表核種として、Cs, Sr, Amを選定。
1		核植濃度 (トレーサ濃度)	Sr	0.1 ppm	程度高濃度でないと安定性が低く、析出による減少が大きいため、事前試験での評価により
	水		Eu(Am)	0.5 ppm	0.5ppmと設定。 Amはα核種であり取扱いが困難であるため、化学的相似性のあるEuで代替し試験を実施。
2	〕 〔〕 【条	模擬液性	1000倍希釈海	基水相当	PCV内滞留水相当の塩素濃度を設定。
3	件	рН	7(中性領域)		初期値は中性とし、凝集沈殿処理におけるpH調整では、それぞれの凝集剤で推奨されているpHに調整(NaOH, HClを使用)。
4		水温	25°C		実機では10~40℃程度の四季変動が想定されるが、前期補助事業の予備試験結果より、 温度依存性は小さいことが確認されたため、代表条件として常温25℃で試験を実施。
5	粉末吸善	種類	 チタンケイ 活性炭(48) 	酸塩(8.55μm) 5μm)	吸着材試験よりα核種除去性能が高いと評価された吸着材を選定。 粒径はレーザー回折法により測定。 ※チタン酸は入手可能であったものが試験用の少量サンプルのみであり、多量の工業用品
6	^宿 材条件	添加濃度	50~100ppm(濃縮処理なし)、 10000ppm(濃縮処理あり)		レスチャリでのうたたの木実施。海外リイトで工業用に使用されている実績はのり。 フィルタろ過による濃縮処理を実施する場合と実施しない場合の2パターンを想定し、低濃度 と高濃度の2条件を設定。
7		種類	 高塩基PA(① 硫酸アルミ 	C	対象粒子に対する凝集性能、イオン強度に対する冗長性の観点から選定。 有機系凝集剤は、凝集沈殿物に有機物が含有した場合、処理処分のプロセスに悪影響があ ることが懸念されるため、検討対象外とし無機系凝集剤を選定。
8	凝集	添加濃度	20~1000ppm <5000ppm(湯	(濃縮処理なし)、 豊縮処理あり)	追加試験結果より、SS濃度10000ppm程度の廃液に対しては、凝集剤濃度2000~5000ppm 程度が必要と評価し設定。
9	削	搅拌速度/時間	強撹拌:157rp 弱撹拌:52rpr	om/5min n/15min	500mLビーカー規模試験の撹拌条件で得られた撹拌能力を装置規模(600L)で得るために必要な撹拌速度を換算評価し設定。撹拌翼はパドル型の2段構造を採用。
10		静置時間	60min~24h		1日で1バッチ処理を基本として検討しているため最長24hと設定

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

②RO濃縮水の処理技術の開発

➢ 吸着材性能評価結果



図 吸着性能評価結果トレーサー(除去率)

- チタンケイ酸塩はCs, Sr, Euいずれも除去可能であり、全放射能濃度の低減に優位である。
- 添着活性炭はCs,Srを除去せず、Euを選択的に除去可能であり、α放射能濃度のみの低減に優位である。
- いずれのトレーサーについても吸着速度が速く、ごく短時間の処理で所定の除去性能(DF100)を満足することが可能と考えられる。ただし、吸着材試験結果より、添加量が少なくなるほど吸着速度が遅くなる傾向があり、必要処理時間が長くなる傾向を確認した。
- 凝集沈殿処理により、吸着材粒子に吸着されたトレーサーが脱離する等の影響は確認されなかった。

吸着材の除去性能や適正添加量について、平衡吸着量や吸着等温線の観点から考察。



②RO濃縮水の処理技術の開発

➢ 平衡吸着量評価

吸着試験結果より、各吸着材のEu平衡吸着量を評価した。

なお、120min時点で吸着平衡状態に達していると仮定し、120min時点の吸着量を使用した。



(a)チタンケイ酸塩

(b)添着活性炭

図 Eu平衡吸着量の添加濃度依存性

- 各吸着材の平衡吸着量は、赤枠で示した範囲であると考えられる。しかし、本試験では、吸着速度や添加濃度などに 依存して低い値が算出された可能性がある。
- 平衡吸着量は吸着材濃度による依存性は小さく、幅広い濃度領域でほぼ一定である可能性が示唆された。
- 吸着等温線による評価結果より、核種濃度が変動した場合でも吸着性能は保たれる可能性が示された。

各吸着材の飽和吸着量は、本試験結果で確認された平衡吸着量と同程度である可能性が示唆された。

IRID

②RO濃縮水の処理技術の開発

> 吸着材性能評価結果まとめ

本試験結果より、下表のように各吸着材のEu除去性能を評価した。

表 各吸着材のEu除去性能の評価結果

吸着材	Eu分配係数 ^{※1}	必要添加濃度 ^{※2}	Eu平衡吸着量	処理時間 ^{※3}
チタンケイ酸塩	8.4E+04~3.8E+06ml/g	26mg/L (<50 mg/L)	10 ~ 8.0mg/g	<30 min
添着活性炭	2.7E+03~5.3E+05ml/g	190mg/L (<200mg/L)	2.5 ~ 2.0mg/g	<30 min

※1 下限値は吸着平衡に達していない可能性があるケースでの評価結果。

※2 上限側のKdを用いて評価。

※3 ただし、吸着材添加量が小さくなるほど処理時間は長時間必要。

- <u>Eu分配係数は、チタンケイ酸塩は1.0+E04~06、添着活性炭は1.0+E03~05と評価された</u>。Eu分配係 数より、<u>DF100を満足するためには、チタンケイ酸塩:50ppm、添着活性炭:200ppm以上の添加量が必</u> 要であると評価された。
- また、吸着材添加量が十分に大きい場合、吸着速度は非常に速く、短時間の処理でDF100以上を満たすと考えられる。その場合、吸着処理に必要な時間は30min以内であると考えられる。
- ただし、予備試験により、吸着材添加濃度が小さいほど、吸着平衡に達するまでの所要時間が長い 傾向を確認した。特に添着活性炭については、添加濃度が小さい場合、120min以上の処理時間が必 要となる可能性が示唆された。

※粒径が小さい粉末材を使用したため、表面積が大きく、吸着速度が速いと考えられる。

本試験条件の濃度範囲では、平衡吸着量はほぼ一定である可能性が示唆された。ただし、実液相当の希薄な濃度領域においては、平衡吸着量が低下する可能性があるため、別途評価が必要である。



②RO濃縮水の処理技術の開発

➢ 凝集剤性能評価結果(低SS濃度条件)

吸着処理後の廃液を凝集沈殿処理した時の凝集剤の性能評価結果を示す。

<u>試験条件(共通)</u>

試験液:1000倍希釈海水、pH:7、トレーサー:0.1ppm(Cs, Sr), 0.5ppm(Eu)、液量:600L、撹拌条件:157rpm×10~120min



表 試験条件(低SS濃度条件)

No	吸着相	オ	凝集剤	
INO.	種類	添加濃度	種類	添加濃度
4-1	チタンケイ酸塩	50ppm	硫酸アルミ	200ppm
4-2	添着活性炭	200ppm	硫酸アルミ	50ppm

表 試験結果(低SS濃度条件)

ັ	No.	処理後SS濃度	スラッジ発生量	SS除去率	スラッジ含水率
	4-1	18.1ppm	0.4 vol.%	63.8%	97.3 wt.%
	4-2	12.5ppm	0.1 vol.%	93.8%	91.1 wt.%

図 凝集剤性能評価 上澄液SS濃度の推移

※ビーカー規模試験で確認した傾向とほぼ同様

- 吸着材の<u>初期SS濃度が50~200ppm</u>の液を、<u>凝集剤を用いた処理により10~20ppmまで濃度低減</u>したことを確認した。SS濃度の減少率から、処理後の上澄中に数ppm程度粒子が残留する可能性が示唆された。
- SS濃度についてもDF100(除去率99%)以上が必要である場合、フィルトレーションなどにより上澄液中の残留粒子を除去する必要がある。
- 凝集沈殿処理により発生するスラッジ(沈殿物)は、含水率が90%以上、発生量が0.1~0.4%程度であることを 確認した。多量の水分が含まれているため、スラッジ量が増大していると考えられる。



②RO濃縮水の処理技術の開発

凝集剤性能評価結果(高SS濃度条件) \triangleright

CF濃縮処理後に高SS濃度となった廃液に対して、凝集沈殿処理した時の凝集剤の性能評価結果を示す。



図 凝集剤性能評価 上澄液SS濃度の推移

※ビーカー規模試験で確認した傾向とほぼ同様

- 吸着材の初期SS濃度が10000ppmの液を、凝集剤を用いた処理により20ppm付近まで濃度低減したことを確認し ٠ た。特に処理開始直後の沈降挙動が顕著であり、60min以内に50ppm以下まで減少した。その後は、沈降挙動が 頭打ちとなり、10ppm付近に漸近していく挙動を確認した。
- 低SS濃度条件の試験と同様に、上澄中に粒子が10~20ppm程度残留することを確認した。初期SS濃度に依存せ ٠ ず、凝集剤ではSS濃度数ppm以下まで濃度低減させることは困難である可能性が示唆された。
- 凝集沈殿処理により発生するスラッジ(沈殿物)は、含水率が80%以上、発生量が4%程度であることを確認した。圧 • 密効果が働くことにより、低SS濃度条件の処理により発生するスラッジより含水率が多少低くなったと考えられる。



②RO濃縮水の処理技術の開発

> 凝集剤の除去性能に関する考察

①初期SS濃度に依存せず、SS濃度は約10ppmまで低減可能である。

②SS濃度が高くなるほど凝集剤の沈降性能が安定し、添加濃度がある程度広い領域で適切な処理が可能である。



③凝集沈殿処理により発生するスラッジは、含水率が非常に高いことに起因し、発生量が増大する傾向にある。





②RO濃縮水の処理技術の開発

> 凝集剤の除去性能に関する考察

凝集沈降処理の結果、初期SS濃度に依存せずSS濃度10~20ppm程度に収束する原因について考察した。 なお、明確なメカニズムは不明であるため、検討した仮説を下記に示す。

<u>凝集する粒子数と自然分散する粒子数が釣り合うようになった時点で、</u> 凝集体の成長が見かけ上なくなり、凝集沈降によるSS濃度の減少が起こらなくなる。

凝集剤は粒子表面の電荷を中和し、粒子同士に働く静電的斥力をキャンセルすることにより、粒子同士を凝 集させる。しかし、一度形成された凝集体は強い力で結びついているわけではなく、時間経過とともに一定の 粒子は分散すると考えられる。すなわち、凝集作用と分散作用は並行して発生しており、凝集作用の方が寄 率が大きい場合は、凝集体が大きく成長し沈降する。

粒子の凝集は、粒子同士が液中で衝突する際に発生し、粒子同士が衝突する確率は液中に存在する粒子の個数、すなわちSS濃度に依存する。そのため、SS濃度が減少していくとともに、凝集作用の寄与率は小さくなっていき、<u>最終的には凝集作用と分散作用が釣り合う状態(平衡状態)に落ち着くと想定</u>される。

上述の凝集と分散が釣り合った状態が、本試験で確認された低減可能なSS濃度の下限値である10~20ppmであると考えられる。



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

②RO濃縮水の処理技術の開発

> 処理後の残留成分の性状分析

各試験の分析データより、RO濃縮水処理後に発生する上澄液と沈殿スラッジの想定性状を整理した。

表 RO濃縮水処理後に発生する上澄液/沈殿スラッジの想定性状	Ĵ
--------------------------------	---

	含有成分/水質項目	初期濃度[ppm]	処理後濃度[ppm]	残留率[%]	備考
	Cl	17	17	_	海水成分。試験では未測定。ほぼ全量が液中に残留すると想定。
	AI	9.21	0.067	0.7%	凝集剤成分。ほぼ全量が水酸化アルミニウムとして沈殿すると想定され、液中のAI濃度は0.1ppm以下となった。
± ¥	SO ₄	53	45	85%	凝集剤成分。硫酸成分は液中に残留する傾向にあるが、10~20%の 濃度減少が発生する。
<i>泣</i> 液	Са	2.72	2.32	85%	コンクリート溶出成分。析出や共沈により10~20%の濃度減少がある が、ほぼ初期濃度から変動しない。
	В	201	199	99%	ホウ酸水成分。ほぼ全量が液中に残留すると推定される。 (7000ppmasBの場合は最大5%が沈殿; 2019年度要素試験結果)
	SS濃度	<200	<20	<10%	初期SS濃度に依存せず、約20ppmまで濃度低減可能なことを確認した。
	рН	(5 ~ 9)	7±0.5	—	凝集沈降処理後のpH調整領域(pH7)から大きく変化しないことを確認。
£	項目		想定性状		備考
脱ス	発生量	低SS 高SS	濃度の場合:約1vol 濃度の場合:約4vol	.% .%	処理液量に対して1vol.%前後のスラッジが発生すると想定される。ただし、高SS濃度廃液の場合、約4vol.%と想定される。
、ラッジ	含水率	90~	~99% (下限值約80%	6)	処理方法や水質条件に大きく依存せず、80~90%以上の含水率となる 試験結果が多く、実機においても同様と想定される。
	含有成分	粉末吻	及着材、AI成分(凝集	剤)	粉末吸着材が支配的であり、凝集剤由来の水酸化アルミが含まれる。 処理液に含まれている共存イオンは液中に残留すると想定される。

CaやBは析出や共沈により濃度減少するが減少量は小さく、ほぼ全量が後段へ払い出される。また、凝集剤添加により、 沈殿スラッジにはAI成分、上澄液には硫酸成分が残留し、SS濃度20ppm程度は液中に残留すると想定される。

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

②RO濃縮水の処理技術の開発

> 上澄液の既設水処理設備への払出しに関する検討

既設水処理設備の受入要件について、

主に過去のプロセス主建屋(PMB)滞留水の受入れ実績を基に検討した。

※ 主に2018年度PMB滞留水受入実績から設定。 燃料デブリ取り出し作業期間における既設水処 理設備の受入要件については今後の検討課題

表 既設水処理設備受入安件の仮設定値~と上 / 2 次の想定性

項目	設定値	試験結果	備考
Cl	<700 ppm	<20 ppm	循環冷却水の各イオン濃度が想定水質条件以下であれば、上澄水は本項目以上の濃度
Са	<50 ppm	2.3 ppm	とはならないと想定。 ただし、Cl濃度については、トーラス室水などの高Cl濃度の滞留水を処理する場合があるた。
Mg	<30 ppm	—	め検討が必要。
SO ₄	<100 ppm	45 ppm	硫酸アルミを使用した場合、硫酸イオンの大部分が上澄液中に残留する。ただし、既設水処理設備は、硫酸イオンを平均約50ppm、最大約100ppmで受入実績あり。
В	_	200 ppm	受け入れ実績はなし。なお、環境放出上限値は10mg/Lである。そのため、ホウ酸水が使用 される場合、前段のホウ酸回収設備で十分な濃度低減を図る必要がある。
рН	7 ~ 8.5	7±0.5	凝集沈降処理の過程で、上澄液のpHはpH7程度に調整するため、本項目を満足すると想 定される。
SS濃度	<20 ppm	10 ~ 20 ppm	凝集沈降処理によりSS濃度は10~20ppmまで低減可能と想定されるため、SS濃度基準で は受入要件を満足すると想定されるが、保守的により数ppm程度まで除去することが望ま しい。そして、上澄液に残留する粒子は放射能量が高いため、粒子成分に対してもDF100 以上の除去が要求される。そのため、UF(Ultra-Filtration)膜などによる残留粒子の除去が 必要と想定される。
全α濃度	<7.4E+0 Bq/L	初期濃度に対して 除去率99% (0.45µmろ過後)	既設水処理設備の入口水の最大α濃度より設定。今後の検討課題として整理。 インプット水の想定全α濃度および、粉末吸着材の核種除去性能、添加量、残留量より評 価する必要がある。また、公衆被ばく量(DF100)や告示濃度の観点でも評価が必要。

<u>凝集沈降処理後の上澄水は、既設水処理設備の処理実績を考慮すると、既設水処理設備へ払出し可能と想</u> <u>定</u>される。しかし、SS濃度の既設水処理設備の受入実績および、粉末材に吸着した状態の放射能の除去という観点より、<u>フィルトレーションなどによる上澄水中の残留粒子の除去が必要</u>であると考える。



②RO濃縮水の処理技術の開発

> RO濃縮水の処理手順の検討

本開発成果を基にRO濃縮水の処理方法について検討した。

なお、下表の各処理の頻度は評価の簡易化のために仮置きした値であり、実際の処理頻度はシステム 全体の運用性を考慮して設定する必要がある。

No.	処理手順	処理頻度	発生 スラリー/スラッジ	発生量	スラッジ 含有量	備考
1	RO濃縮水受入		RO濃縮水	14 m3∕day	0%	前段の粒子除去設備により固形分はほぼ除去され、 RO膜処理時には固形分はほぼ含まれないと想定した。
2	核種吸着処理 (粉末吸着材添加)	1バッチ /1day	吸着処理液	14 m3/day	0.005% (50ppm)	今期補助事業の試験結果より、粉末吸着材添加量は 50ppm(0.005%;チタン酸やチタンケイ酸塩の場合)と想 定した。
	クロスフローろ過	1バッチ	透過液	<14m3/day	微小	濃縮倍率は100倍と仮定。クロスフローフィルタを透過 する粒子はごく微量であると想定される。
	による濃縮処理	∕1day	クロスフロー 濃縮液	0.14 m3/day	約1% (10000ppm)	クロスフローろ過により、約1%までスラッジ量を濃縮さ せると仮定した。(濃縮水が発生)
		1バッチ /1week	上澄液	<1.0 m3/week	0.002~0.005% (20~50ppm)	残留粒子濃度は凝集沈降試験結果より、20~50ppm と想定した。残留粒子はUF膜で除去する。
4	凝集沈殿処理		凝集沈殿スラッジ	0.1 m3/week	<10wt.%	前処理で発生したCF濃縮液に対して凝集沈殿処理し、 核種をスラッジ化させる。スラッジ含有率は10wt.%以下、 発生量は10vol.%以下となると想定する。
		1バッチ /1month	分離水	<0.4 m3/month	微小	カートリッジフィルタろ過を適用する場合、分離水に含まれるSS量は微量となると想定する。
5	スラッジ脱水処理 ※項目③		乾燥スラッジ	0.2 m3/month	約40wt.%	カートリッジフィルタ通水により、沈殿スラッジを目標値 である含水率60wt.%(スラッジ量40wt.%)まで脱水する。 ただし、使用する粉末吸着材によっては水分量が大き くなり、スラッジ含有量は約20~30wt.%程度となる。
6	長期保管		乾燥スラッジ	0.2 m3/month	約40wt.%	スラッジ含有量が40wt.%以上の状態で長期保管する。 ただし、固化等の安定化処理についても別途検討要。



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

②RO濃縮水の処理技術の開発

▶ RO濃縮水処理フローの検討

本開発成果を基に検討したRO濃縮水の処理フローを示す。



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



②RO濃縮水の処理技術の開発

【これまでの成果】

- ✓ α核種除去用の粉末吸着材候補として、α核種を選択的に除去する場合は添着活性炭、α核種を含む全放射能を除去する場合はチタン酸やチタンケイ酸塩を選定した。
- ✓ 粉末吸着材を凝集沈降するための凝集剤として硫酸アルミを選定した。また、凝集沈殿処理の結果発生する上澄液や沈殿スラッジの発生量や性状のデータを取得した。また、高SS濃度廃液に対する凝集沈殿処理の有効性から、CF濃縮処理を適用したシステムを立案した。
- ✓ 試験成果を基に、RO濃縮水の処理手順および処理プロセスを立案した。また、装置規模試験により、立案した処理手順の成立性を確認した。

【今後の検討課題】

- ✓ 今期PJでは、Cs/Sr/EuのCOLDトレーサーを用いて除去性能を評価した。他の除去対象核種についても、立案した処理方法で所定の除去性能を満足するかを評価する必要がある(実液水質における全放射能および全α放射能の除去性能の評価)。
- ✓ CF濃縮処理について、今期PJでは開発対象とはせず、事例調査や文献値などを参考としてシステム を検討した。CFフィルタ試験を実施し、濃縮倍率等が所定の要求性能を満足するかを評価することが 今後の課題である。

【まとめ】

吸着材と凝集剤を用いた処理により、RO濃縮水中の核種をスラッジ化し分離する手法について検討した。 要素試験により各試薬の選定、必要添加量などを評価し、RO濃縮水の処理手順を立案した。そして、本処 理方式の成立性を確認し、処理プロセスについて概念検討を実施した。



No.61

7. 実施内容

③二次廃棄物処理技術の開発

▶ 検討フロー





③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> 粒子除去システムのインプット水質条件

粒子除去設備に移送・処理される滞留水の性状を下表のように想定した。

表 粒子除去システム インプット水の想定水質

No.	項目	条件	検討状況
1	温度	常温	0~40℃程度の四季変動範囲と想定。
2	рН	5~9	中性範囲と想定。液相系システムの基本水質条件。
3	イオン強度	海水成分、ホウ酸、その他	基本的にはイオン強度は低いと想定。しかし、海水成分の混入がある場合、ホウ酸水を使 用する場合などは相対的にイオン強度が高くなると想定される。
4	粒子成分	燃料デブリ、 炉心構造物、 コンクリート	現時点ではPCV内の存在量が大きい左記の3成分が支配的であると想定。ただし、それ ぞれの含有割合は不明。また、堆積物(土砂等)、析出物が微量に含まれる可能性がある。
5	SS濃度	<100ppm	取り出し工法PJにて実施した模擬燃料デブリの加工試験や目標スループットの評価結果 から、PCVから液相系システムまで移行する微粒子のSS濃度は100ppm以下と評価した。
6	粒子径	0.1 ~ 100μm	自然沈降速度やポンプの吸い込み能力から、PCVから液相系システムまで移行する粒子 は100μm以下の粒径のものであると評価した。
7	粒径分布	不明	現時点では不明であるため100~0.1μmにかけてブロードな分布であると仮定。 なお、性状把握PJの模擬燃料デブリ加工試験結果から、ダブルピークの分布である可能 性が示唆された。
8	粒子形状	球形、非球形	 ・入熱加工される場合、球状に近い粒子が発生 ・機械加工される場合、薄片やブロック状のような粒子が発生 2020年度までの補助事業で球形粒子を使用した試験を実施。 今期PJで非球形粒子を用いたフィルタ通水試験を実施し、粒子形状の影響を評価。
9	処理流量	52 m³/day(補助事業)、 22 m³/day(エンジニアリング)	デブリ加工作業水2.2m3/hおよび炉注水3m3/hの水量で、10h/dayで作業が行われる。エ ンジニアリングにて検討されている系統構成では、デブリ加工作業水分のみを処理する。



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> 粒子除去システムの構成に関する検討

非溶解性α核種除去設備(粒子除去システム)



> 粒子捕集機器候補の選定結果

2022年度までの文献調査結果、試験結果を基に各系統の粒子捕集機器について適用性を評価した

系統 フィルタメッシュサイズ 適用性評価 備者 粒子捕集機器 No. ドレン操作により差圧を適宜回復させることにより、長時間 オートストレーナ 高 50 µm の運用が可能である 粗取り 1 除去精度、廃液発生量の観点からオートストレーナより適 液体サイクロン 中 _ 用性は低いと判断 5,10,20 μm オートストレーナ 低 除去精度は高いが、いずれも目詰まりによる差圧上昇が 金属焼結フィルタ 2, 5, 10, 20 µm 低 顕著であり、適用性が低いと判断 2 中取り バグフィルタ 中 3 µm MF膜(セラミックフィルタ)※ 今期PJで試験実施。本資料にて結果報告。 1.4 μm 中~高 3 最終処理 UF膜(セラミックフィルタ)※ 20、50、100 nm 高 適用性は高いと評価。適切な目開きの選定が必要。

表 粒子捕集機器候補の適用性評価結果

※MF膜:Micro-Filtration、UF膜:Ultra-Filtration



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> 粒子除去システムに関する開発課題

中取り系統の候補機器の選定

• 各フィルタ機器の試験結果(前期補助事業)より、下表の通りフィルタ性能を評価した。

系統	粒子捕集機器		ろ過精度	除去効率	交換頻度 (寿命)	2次廃棄物 発生量	ドレン・ 逆洗回数	廃液発生量
			µm以上	%以上	回/year	kg/year	回/day	m3/year
	 ++	間欠ドレン	50	99	2	11	2.5	167
粗取り		常時ドレン	50	99	2	11	常時ドレン	1300
	液体サイクロン		40	80	-	-	常時ドレン	2000
	オートストレーナ	間欠ドレン	20	96	2	11	502	33500
ㅎ᠇ᠥ᠐		常時ドレン	20	96	2	11	118	9200
甲取り	金属焼結フィルタ		2	99	18300	146500	25.1	815
	バグフィルタ		3	99	5	, 440	-	-
最終	UF膜	0.1µm	0.1	99	8	314	0.17	5.5
処理	UF膜	0.05µm	0.05	99	3	152	0.11	48.2

表 フィルタ性能評価結果まとめ(2019-2020年度補助事業成果)

廃液発生量や2次廃棄物発生量が非常に大きいと評価

- 粒子除去率はいずれの機器も非常に高く、各系統の捕集範囲の粒子を適切に除去可能と評価された。
- ・ 粗取り系統と最終処理系統は、目詰まりによる差圧上昇が緩やかであり、選定した各フィルタ機器の実機適用性が高いと評価された。
- <u>中取り機器として選定したフィルタ機器はいずれも目詰まりによる差圧上昇が顕著</u>であり、逆洗廃液発生量 や2次廃棄物発生量が他系統と比較して大きい結果となった。

<u>中取り系統に適用可能なフィルタ機器が未選定</u>であるため、候補機器を選定する必要がある。





> 粒子除去システムに関する開発課題

<u>粒子形状の影響評価</u>

前期補助事業にて実施のフィルタ通水試験に使用した粒子を示す。



図 前期補助事業のフィルタ試験で使用した模擬粒子のSEM画像

- 前期補助事業では、いずれも真球に近い形状の粒子が支配的な模擬粉末を使用した試験を行った。
- しかし、AWJやボーリング加工などの機械工法が採用された場合、発生する切削紛は薄片状や針状が 支配的となることが予想される。
- 粒子が薄片状・針状などの非球形となった場合、通水時の差圧上昇や、逆洗による差圧回復率などに影響があることが懸念される。



<u>各フィルタ機器への粒子形状の影響について評価が必要</u>である。

特に前期補助事業で未検証である、非球形粒子を通水した際の各フィルタ機器の運用データを取得する必要がある。



 $(\times 1,000)$



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

- > 要素試験(フィルタ通水試験)内容
 - ・ MF膜の中取り系統への適用性評価

前期補助事業で未選定であった<u>中取りフィルタとして、1.4μmMF膜の実機適用性を評価</u>する。

<u>1.4 μ mMF膜通水試験</u>

中取り系統の想定インプット水質の模擬液を1.4 µ mMF膜で通水処理し、下記項目について評価する。

- 中取り系統の捕集範囲である数十~数µmの範囲の粒子に対する捕集性能
- 通水時の機器差圧の上昇傾向および通水可能時間
- 差圧上昇時の逆洗による差圧回復傾向
- 各フィルタ機器の粒子形状依存性の評価

前期補助事業で未評価である粒子形状が変動した際の各フィルタへの影響を評価する。

粒子形状依存性評価試験

球形粒子および非球形粒子を通水した際のフィルタ運用データ、差圧挙動、粒子捕集率、 逆洗による差圧回復率などのデータを取得する。

※試験するフィルタは、各系統で適用性が高いと評価されたフィルタを選定した。

試験により取得したフィルタ運用データより、球形/非球形粒子により形成されたケークについて、 ケーク抵抗を評価し、粒子形状に起因するフィルタへの影響評価を実施する。



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> MF膜通水試験 試験系統





> MF膜通水試験 試験ケース

表 MF膜フィルタ試験 試験ケース表

試験	*** 汉[]	流量	SS濃度	粒子	成分混合率[wt.%]	资业吐胆
ケース	™1至[µm]	[m ³ /h]	[ppm]	WC	SUS316	SiO ₂	迪 小时间
1-1	0.1~10		100	33	33	33	
1-2	0.1~10	10	100	58	30	12	許容差圧
1-3	0.1~10	10	500	33	33	33	到達まで
1-4	1		100	33	33	33	





③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> MF膜性能評価試験パラメータ

本試験パラメータは想定水質条件を基に、下表のように設定した。

表 MF膜通水試験 試験パラメータ

No.	項目	条件	備考
1	粒子捕集機器	1.4µmMF膜(セラミックフィルタ)	中取り系統の候補機器を選定
2	SS濃度	100ppm, 500ppm	液相系システムの想定条件である100ppmを基本条件,高負荷条件として 500ppmを設定
3	粒子径	0.1 ~ 10μm, 1μm	中取り系統に流入する可能性のある粒径範囲である0.1 ~ 10µmを基準条件、高負荷条件として1µm粒子のみを設定
4	粒子形状	球形粒子	2020年度までに実施した球形粒子を使用した試験と比較検討可能なよう に球形粒子を使用
5	粒子成分 (模擬対象)	炭化タングステン(燃料デブリ)、 SUS316L(炉心構造物)、 ケイ砂(コンクリート成分)	それぞれの模擬成分に対して真比重の近い粒子を選定
6	粒子混合割合	 ①3成分を重量基準で等量混合 ②3成分を体積基準で等量混合 	・2020年度までに実施した試験と比較検討可能なように①を設定 ・3成分の粒子数が等しい条件として②を設定
7	流量	10m³/h	液相系システムの基本系統流量である10m ³ /hを設定
8	通水時間	↓ ↓ 逆洗設定圧力到達まで通水する。→	

No.	項目	設定値	備考
1	逆洗流量	10 m3/h	
2	逆洗圧力	0.10 MPa	試験により適切な差圧回復傾向
3	逆洗時間	1 min/回	を確認した条件を設定
4	実施回数	初期差圧に回復するまで	

表 MF膜通水試験 逆洗条件



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

➢ MF膜通水試験 試験結果

通水時の機器差圧の上昇挙動について代表例を用いた考察を示す。



- 基本条件である試験ケース1-1では、逆洗までの通水可能時間が62minと評価された。<u>前期補助事業において 試験した中取り候補機器と比較して、差圧上昇が遅く、適用性が高いと評価される</u>。本試験ではエレメント本数 を7本と設定したが、エレメント本数を調整することにより逆洗までの通水時間は調整可能であるため、逆洗頻 度と設備規模が運用上適切な本数に設計することが望ましい。
- 試験ケース1-1は粒径分布がブロードであり、試験ケース1-4は1µmにシャープピークな粒径分布である。両者の粒径分布の差異に起因すると考えられる差圧上昇の差異が確認され、最も完全閉塞が発生しやすい条件(試験ケース1-4)では、分布がブロードな場合と比較して通水可能時間が2/3程度となると考えられる。
- 目詰まりによる差圧上昇後に逆洗操作を実施した場合、初期差圧は大きく回復し、初期値付近まで低減することが可能であることを確認した。ただし、払い出しきれない粒子がわずかに残留するため、ほぼ初期値まで回復させるには2回ないし3回の追加逆洗が必要である。実機運用では初期差圧を完全に回復させる必要性は低く、1回の逆洗により運用上十分な回復率を確保できると考える。



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

▶ 中取り系統候補フィルタの性能比較

要素試験結果を基に中取り系統候補機器の比較評価を実施した。 (2020年度以前の補助事業成果を含む)

粒子捕集機器		必要 エレメント数	ろ過精度	除去効率	交換頻度	2次廃棄物 発生量	ドレン・ 逆洗回数	廃液発生量	適用性 ^{誣価結里}
		個	μm以上	%以上	回/year	kg/year	回/day	m3/year	計Ш加木
+	間欠ドレン	1	20	96	2	11	502	33500	低
	常時ドレン	1	20	96	2	11	118	9200	低~中
金属焼結フィルタ		11	2	99	18300	146500	25.1	815	低
バグフィル	ルタ	122	3	99	5	440	-	-	Н
/ MF膜		70	1.4	99	1	77	0.05	30	高

衣 甲取り木机医開成品 住肥比料	表	中取り系統候補機器	性能比較表
------------------	---	-----------	-------

本PJ試験結果より 評価した結果を追加

※評価条件:処理流量;65m3/day、SS濃度;100ppm、粒子捕集率:各系統33% ※MF膜の交換頻度は、ガスケット等のシーリング材の耐用年数を保守的に仮定し設定

- 2次廃棄物発生量や廃液発生量(濃縮倍率)の観点では、MF膜が最も性能が良好であると評価された。
- MF膜は他の候補機器と比較して、粒子捕集による差圧の上昇速度が緩やかであり、逆洗までに捕集可能 な粒子量が大きい。他の中取りフィルタと比較して、有効ろ過面積が非常に大きいことが主な要因であると 考えられる。
- MF膜等のセラミックフィルタ類の交換頻度については、シーリング材の交換周期より設定した。通水・逆洗 を繰り返すことによる初期差圧上昇やフィルタ本体の劣化より、ガスケット等のシーリング材の劣化が速い と仮定した。

本評価結果より、中取り系統候補機器として1.4 µ mMF膜を選定した。


③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> 粒子形状依存性評価試験パラメーター

本試験の試験パラメーターは下表のように設定した。 なお、試験系統はMF膜通水試験と同様の装置を使用した。

No.	項目	条件	備考
1	粒子捕集機器	50µmオートストレーナ 1.4µmMF膜 0.05µmUF膜	各系統で適用性が高いと評価されている粒子捕集機器を選定 ※オートストレーナは差圧上昇がほぼ確認されなかった
2	SS濃度	100ppm, 500ppm	液相系システムの想定条件である100ppmを基本条件,高負荷条件と して500ppmを設定
3	粒子径	0.1 ~ 10μm, 1μm	中取り系統に流入する可能性のある粒径範囲である0.1 ~ 10μmを基 準条件、高負荷条件として1μm粒子のみを設定
4	粒子形状	<u>球形粒子, 非球形粒子</u>	球形粒子と非球形粒子を選定。 両者の試験結果から、フィルタ性能の及ぼす粒子形状の影響を評価。
5	粒径分布	1μm, 10μmのダブルピークの分布	性状把握PJ実施の模擬燃料デブリの切削試験を参考に設定。 ※次ページ参照
6	粒子成分 (模擬対象)	ケイ砂(コンクリート成分)	代表成分としてケイ砂粒子を選定。 他成分粒子は非球状の微細粒子の製造が困難。
7	流量	1m³/h, 10m³/h	液相系システムの系統流量である10m³/hを設定 →UF膜は1m³/hで試験し、比例計算などで評価。
8	通水時間	逆洗設定圧力到達まで通水する。	

表 粒子形状依存性評価試験 試験パラメータ

本試験により、差圧挙動や粒子捕集率の観点から、フィルタ性能に与える粒子形状の影響を評価する。



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

本試験で使用した模擬粒子

本フィルタ試験に使用した各粒子のSEM画像および粒径分布を掲載する



回るの<u>私住方中に差異は生しないように調整</u>した。(タノルビークの分布) その他のパラメータも同じであるため、<u>試験結果に現れた差異は粒子形状に起因するものであるとして評価</u>した。





- ③-1 非溶解性核種除去技術の開発
- > 通水粒子の形状による差圧上昇挙動の差異

球形粒子/非球形粒子を通水した時の機器差圧の上昇挙動を比較評価した。



図 フィルタ試験結果 差圧挙動

機器差圧の全体的な挙動を比較すると、"<u>球形粒子>非球形粒子</u>"という関係が読み取れる。特にMF膜では通水開始後約30min、UF膜では通水約500minから、両者に差異が生じていることが読み取れる。この原因は下記のように考察した。 ①ケーク形成段階

粒子がフィルタろ過で捕集され、ケークを形成していく段階。フィルタ抵抗が支配的であり、ケーク抵抗の影響は軽微である。そのため、粒子形状によって差圧上昇挙動に差異が生じにくい。

<u>②ケークろ過段階</u>

ケークが形成され、通水粒子がケークろ過される段階。フィルタ抵抗に加えてケーク抵抗の影響が表れる。 <u>ケークの粒子充填密度に依存してケーク抵抗が異なり</u>、球形粒子の方が充填密度が大きいためケーク抵抗は <u>大きい</u>。そのため、差圧が非球形粒子を通水した場合と比較して大きい。通水時間が経過するほどケークが厚 く成長していくため、差異が大きくなっていく。



非球形粒子の方が機器差圧の

上昇が遅いが、その差は小さい。また、

徐々に差が広がっていく傾向がある。

- ③-1 非溶解性核種除去技術の開発
- > 通水粒子の形状による逆洗性能の差異

球形粒子/非球形粒子通水による差圧上昇時の、逆洗操作による差圧回復挙動を比較評価した。



図 フィルタ試験結果 差圧挙動

<u>逆洗性能に関する考察</u>

- 球形粒子/非球形粒子のいずれを通水した場合においても、逆洗により初期差圧付近まで回復しており、
 粒子形状に依存せず逆洗性能は非常に高いと評価した。
- 比較評価した場合、非球形粒子を使用した場合の方が逆洗後の差圧が低い傾向があるが、両者の差は微小であり、粒子形状に起因する差であるかは不明である。

一般的には、球形粒子よりも繊維状に近い非球形粒子を通水した場合、逆洗による粒子の払い出しが容易となり、逆洗性能が向上することが知れらているが、数mm以上の粒径の粒子における知見である。本試験のような数 μ m才一ダーの粒子が支配的である場合でも同じ効果があるが、粒径が小さくなるほど寄与が小さくなっていくと考えられる。



逆洗時の差圧回復挙動は、<u>粒子形状に起因する差異は軽微</u>であり、

逆洗によりほぼ全ての粒子は払い出し可能であると考えられる。

IRID

③-1 非溶解性核種除去技術の開発

➢ Lewisのろ過方程式を用いた評価

平均ケーク比抵抗より、ろ過性能の粒子形状による依存性を評価した。

<u>平均ケーク比抵抗α_{av}[m/kg]</u>

表 平均ケーク比抵抗/平均ろ過抵抗の評価結果(代表ケースを比較評価)

ろ過によりフィルタ表面に形成されたケークを流体 が通過するときの抵抗を示す物理量。一般的に、 使用するフィルタのろ過対象液に対しするろ過性 能の判定に使用される。

<u>判定值基準值[m/kg]</u>

$$α_{av} ≤ 10^{11}$$
:易

$$10^{12} \le \alpha_{av} \le 10^{13}$$
: Φ

 $10^{13} \leq \alpha_{av}$:難

※判定値は一般的な経験則に基づく基準

※現象論的に負の値になることはないため、実際は0に近い値であると考えられる。 ⇒粒子非含有の液を通水したとき、機器差圧がほとんど上昇しない

- 今回の試験では、球状粒子/非球状粒子の違いに依らず、平均ケーク比抵抗は、UF膜では1.0E+12オーダー、MF膜では1.0E+11オーダーと評価された。
- 比較評価したとき、<u>球形粒子の方が平均ケーク比抵抗が大きい傾向があるが、差異は小さい</u>ため、<u>ほぼ</u> 同様の性状のケークが形成されたと考えられる。
- 粒子同士はある程度凝集し、数μm以上の凝集体を形成した状態であると想定されるため、粒子形状の 依存性が小さかった可能性も考えられる。
- より粒径が大きい(数mmオーダー)粒子が多量に含まれる液を処理する場合、粒子形状の依存性が大きく表れると考えられる。ただし、粒径が大きくなるほど、ケークの空隙率の上昇に伴いケーク抵抗が小さくなること、数mm以上の粒子は大部分がPCV内で沈降すると想定されることなどの理由から、大粒子をろ過する場合のフィルタ性能の粒子形状の影響評価は、必要性が低いと考えられる。

本試験結果より、粒子形状の変動を考慮して、粒子除去システムを設計する必要性は低いと判断した。



試験ケース	2-1	2-2	3-1	3-2
フィルタ種類	0.05µmUF膜	0.05µmUF膜	1.4µmMF膜	1.4µmMF膜
粒子形状	球形	非球形	球形	非球形
粒子捕集率[%]	99.9	99.9	69.7	71.5
平均ケーク比抵抗[m/kg]	7.9.E+12	6.9.E+12	1.4.E+12	1.2.E+12
ろ材抵抗[1/m]	-3.0.E+11	-2.2.E+11	6.4.E+10	5.1.E+10
	/			

③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> 各パラメータの粒子除去システムへの影響評価

No.	項目	粒子除去システム への影響度	試験 実績	検討内容
1	粒子成分	オートストレーナ:高 セラミックフィルタ:低	0	オートストレーナはフィルトレーションに加えて、遠心分離でも粒子を分離する機構であるため、燃料デブリ等の高比重粒子ほど分離性能が高い。ただし、コンクリート粒子のような低比 重粒子には、ほぼ遠心分離による除去効果は寄与しない。
2	SS濃度	高	0	各フィルタの差圧上昇速度に顕著な影響があるため、濃縮倍率に大きく影響する。
3	粒径範囲	吉	0	 各系統で捕集される粒子量の割合は、粒径が律速するとみなせる。そのため、各系統の粒
4	粒径分布	高	0	子捕集範囲の粒子量によって、システム全体の濃縮倍率が大きく変化する。
5	粒子形状	低	0	球形粒子/非球形粒子を使用したフィルタ試験により、粒子形状の影響は小さいと評価した。
6	粒子強度	低	×	燃料デブリ取り出し作業で発生する粒子は、基本的にはある程度の硬度を有した固形物で あると想定されるため、影響は小さいと評価した。
7	析出物	中	×	水分を多く含んだゲル状の析出物が発生すると、顕著な目詰まりが発生する。結晶度の高い 析出物であれば影響は小さい。
8	イオン強度	低	Δ	イオン強度が高い場合、塩析効果が付与されることによる見かけ上の粒径が大きくなる。実 機で考えられる水質では、ほぼ無視できる程度の凝集しか発生しないと想定される。
9	系統構成	高	0	粒径分布に応じて、設置するフィルタ種類/目開き/ろ過面積を変更することにより、システム 全体の濃縮倍率を向上させることが可能。現在は幅広い条件に対応可能であるシステムを 検討。
10	除去範囲(下限)	中	0	ろ過精度の要求値が、0.1μm程度までであれば影響は小さい。0.01μm程度から廃液発生量の増大や設備規模の増大などの影響が顕在化する。
11	濃度低減要求	 中	Δ	放射能濃度の低減要求が大きいほど、大きな除去率が必要となるため影響が大きい。

表 各パラメータの粒子除去システムへの影響度の評価

影響が大きい物理量(赤塗り)をパラメータとし、粒子除去システムの性能を評価した。

IRID

- ③-1 非溶解性核種除去技術の開発
- > 粒子除去システムの廃液発生量評価

フィルタ試験結果より、燃料デブリ取り出し期間中に発生するフィルタ廃液量を試算した。

フィルタ廃液発生量の評価式

$$V_{bw}(c_{in}, a_n) = \sum_{n=1}^{3} \left(\frac{V_{in} \times v_n \times a_n \times c_{in}}{m_n} \right)$$

- V_{bw}: 年間廃液発生量[m3/year]
- Vin: 年間処理液量[m3/year]
- *c_{in}*: インプット水のSS濃度[kg/m3]
- *v_n*: 各フィルタ機器の1回あたりの逆洗水量[m3/回]
- *a_n*: 各フィルタ機器の粒子捕集率[%](粒径分布)
- *m_n*: 各フィルタ機器の逆洗までの粒子捕集量[kg/回]

表 粒子捕集機器とエレメント数の設定条件

系統	粒子捕集機器	装填エレメント数
粗取り	50μmオートストレーナ	1本
中取り	1.4µmMF膜	70本 ^{※1}
最終処理	0.05µmUF膜	70本 ^{※1}

※1 逆洗頻度が1回/day以下となり、

なおかつフィルタ線流速が十分に小さくなる本数

- 上記パラメータは、液相系システムの検討値、要素試験結果等を境界条件として設定
- SS濃度cinと粒子捕集率an(粒径分布)は変数設定し、インプット水の水質条件を数パターン仮定

▶ 本評価の基本モデル(粒子除去システム)







※オートストレーナの遠心分離効果は、本評価では未考慮。定性的には大粒子/高比重粒子ほど遠心分離効果が大きい

インプット水の性状に応じて、適切な粒子除去システムの構成が異なる。

想定条件ごとに適切なシステム構成について検討した。



③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> 粒子除去システムの基本系統構成



表 各水質における粒子除去システム構成の検討

No.	水質条件	適切なシステム構成案	粒子除去システムの系統構成の検討
1	ブロードな粒径分布	3系統構成	各粒径範囲の粒子が高効率で捕集可能なように、3系統構成システムとする。(基本構成)
2	1μm以下粒子が多い	1系統構成	1μm以下の粒子は、ほぼ最終処理系統のみで捕集される。 <u>最終処理系統以外で捕集される粒子が</u> <u>少ない</u> ため、設備規模低減のため1系統のみのシステムが適用性が高い。
3	数μm粒子が多い	3系統構成	数μm粒子は中取り系統で捕集する構成が最も負荷が少ない。そのため3系統構成が適用性が高い。
4	高比重粒子が多い	2 or 3系統構成	<u>燃料デブリ等の高比重粒子は、粗取り系統で高効率の捕集が期待される</u> ため、2系統もしくは3系統 構成のシステムが望ましい。
5	SS濃度が低い(数ppm)	1系統構成	SS濃度が10ppm以下と十分に小さければ、いずれの系統構成でも大差ない廃液発生量となるため、 設備規模が最も小さい、1系統構成が望ましい。

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

③-1 非溶解性核種除去技術の開発

> 各粒子捕集機器の性能評価結果まとめ

各系統における候補粒子捕集機器の想定仕様を、現時点までに取得した試験結果より評価した。

系統	粒子捕集機器		必要基数	必要 エレメント数	定格 流量	ろ過 精度	除去 効率	概略寸法 (1基あたり)	必要エリア寸法 (1基あたり)	交換頻度 (寿命)	2次廃棄物 発生量	ドレン・ 逆洗回数	廃液 発生量
			基/1系統	個	m3/h	µm以上	%以上	φm×mH	mL×mW	回/year	kg/year	回/day	m3/year
	オート	間欠ドレン	1	1	10~30	50	99	ф0.5m×1.0mН	1.4mL×1.4mW	2	11	2.5	167
粗取り	ストレーナ	常時ドレン	1	1	10~30	50	99	ф0.5m×1.0mН	1.4mL×1.4mW	2	11	常時ドレン	1300
	液体サイ	イクロン	1	1	10	40	80	ф0.4m×1.1mН	1.6mL×1.6mW	-	-	常時ドレン	2000
	オート	間欠ドレン	1	1	10~30	20	96	ф0.5m×1.0mН	1.4mL×1.4mW	2	11	502	33500
	ストレーナ	常時ドレン	1	1	10~30	20	96	ф0.5m×1.0mН	1.4mL×1.4mW	2	11	118	9200
中取り	金属焼結	シィルタ	3	11	6.5	2	99	ф0.21m×1.2mН	3.0mL×1.6mW	18300	146500	25.1	815
	バグフ	ィルタ	4	122	10	3	99	ф0.7m×1.6mН	2.0mL×2.0mW	5	440	-	-
	MF	膜	4	70	10	1.4	99	ф0.3m × 1.4mН	$1.4mL \times 1.4mW$	1	77	0.05	30
最終	UF膜	0.1µm	2	33	6.5	0.1	99	ф0.21m×1.3mН	3.0mL×1.6mW	8	314	0.17	5.5
処理	UF膜	0.05µm	3	70	10	0.05	99	ф0.3m × 1.4mН	1.4mL×1.4mW	1	77	0.11	50

表 フィルタ性能評価結果まとめ(3系統通水構成)

≻ 今後の開発課題

※評価条件:処理流量;52m3/day、SS濃度;100ppm、粒子捕集率:各系統33%

①フィルタ交換方法の検討および交換周期(寿命)の評価

フィルタエレメントの遠隔交換や、遠隔交換が困難な場合の代替交換方法について検討が必要。また、交換周期設定のために必要なフィルタ寿命のデータが不足しているため、今後評価する必要がある。なおセラミックフィルタ類は、フィルタ本体の劣化に起因する交換周期より、ガスケット材の耐用年数(1~2年想定)による交換周期が律速すると想定し、類似の1Fフィルタ機器のガスケット材の運用実績から仮定することを検討。

②装填エレメント数および通水流速など適正化検討

装填するエレメント数が多いほど、または流速が遅いほど、線流速が小さくなりフィルタとケークの抵抗が軽減されるため、 逆洗差圧までに捕集可能な粒子量が大きくなる。ただし、設備規模の増大と処理時間の長時間化がトレードオフであるた め、諸要因を考慮して<u>エレメント数や流速などの処理条件を適正化する必要がある</u>。

IRID

③-1 非溶解性核種除去技術の開発

【これまでの成果】

- ✓ 中取り系統に適用可能な候補機器として、1.4 µ mMF膜を選定した。
- ✓ 各系統候補機器への粒子形状の依存性を検証した。その結果、粒子形状の影響は小さいため、粒子除 去システムの概念設計へ反映する必要性は低いことを確認した。
- ✓ 粒子除去システムの系統構成として、3系統システムを基本構成として、1系統/2系統/3系統構成の3パ ターンについて検討した。
- ✓ 粒子除去システムより発生する廃液量を概算評価し、インプット水質ごとに優位と考えられるシステム構成を整理した。

【今後の検討課題】

- ✓ 燃料デブリ取り出し工法が選定され、発生する切削紛の性状(発生量,成分,粒径分布など)が推定可能となった段階で、本検討成果を用いてより合理的なシステムを選定する。
- ✓ 溶解性核種除去システムやRO濃縮水処理システムにおいても、フィルタ機器の適用が検討されており、クロスフロー方式により粉末吸着材を濃縮処理する想定である。それらの処理を想定した際のクロスフローフィルタの適用性について検討が必要である。

【まとめ】

粒子除去システムの各系統に適用可能なフィルタ機器候補を選定し、性能評価を実施した。3系統構成の システムを基本構成とし、インプット水質性状に応じて適切なシステムを検討した。



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

> 脱水による減容効果の評価

【実施内容】脱水による沈殿スラッジの体積減少について評価した。

沈殿スラッジの想定含水率約90vol.%から、水分を除去した場合の体積減少挙動を評価した。



初期含水率が90vol.%以上の場合、含水率60vol.%までの脱水処理で体積は20vol.%近くまで減容可能。 含水率60vol.%以下の領域では体積減少が頭打ちとなるため、脱水による減容化は効果が小さい。

脱水処理後の含水率の目標値を60vol.%と仮設定※し、脱水処理技術を検討する。 ※スラッジ含有率40vol.%



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

▶ 候補技術の選定

スラッジ脱水処理システムの概念フローは下図のように仮定した。



図 粉末吸着材の固液分離システムの概念フロー

No.	候補技術	適用候補処理	考え方
1	MF、UF膜(DE)ろ過		SS濃度100ppm以下の液を数千ppmまで濃縮処理する技術として適用可能と想定。
2	クロスフロー(CF)ろ過	固形分の濃縮処理	SS濃度100ppm以下の液を数万ppmまで濃縮処理する技術として適用可能と想定。
3	凝集沈殿処理		SS濃度数百~数万ppmの液を数万ppmまで濃縮処理し、沈殿スラッジ化する技術 として適用可能と想定。ただし、残留粒子量が比較的大きく、粒子捕集率が低い。
4	RO濃縮	フィルタ透過水等	フィルタ除去が困難である微粒子、イオン状核種の除去として適用可能と想定。
5	エバポレーター	の2次核種除去処理	フィルタ除去が困難である微粒子、イオン状核種の除去として適用可能と想定。
6	カートリッジフィルタ	スラッジドボ水 処 理	吸着処理液/濃縮液/沈殿スラッジをカートリッジフィルタでろ過し、固形分濃度40% 程度まで脱水しケーキ化することが可能と想定。
7	減圧·加熱脱水	ハノノノ加水処理	濃縮液/沈殿スラッジを固形分濃度40%以上に脱水する技術として適用可能と想定。

表 各固液分離技術が適用可能な処理方法の検討

スラッジ脱水処理システムへの各候補技術の適用性について検討した。





③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

> スラッジ脱水技術の要素試験に関する検討

文献調査の結果選定された候補技術について、要素試験により適用性を検証した。

No.	必要とされる処理	候補技術	要素試験での確認事項	目標値60%まで の脱水可否	要素試験 要否
1		MF、UF膜(DE)ろ過	スラリー性状に応じた濃縮限界を評価する必要がある。前年度 フィルタ試験結果を参考に検討可能と想定。	×	×
2	固形分の 濃縮処理 クロスフロー(CF)ろ		スラリー性状に応じた濃縮限界および処理量のスループットを評価する必要がある。海外原子カサイト事例を参考に検討可能と 想定するが、スループットの評価は困難な可能性あり。	×	Δ
3		凝集沈殿処理	今期補助事業項目②にて実施。	×	O(項目②)
4	フィルタ透過水等	Bの濃縮 核種除去技術として選定したため要素試験の対象外		×	_
5	の2次核種除去処理	エバポレーター	核種除去技術として選定したため要素試験の対象外	×	_
6	スラッジ脱水処理	カートリッジフィルタ	スラッジ性状(粒径分布、含水率等)に応じて、 適切なフィルタエレメント(目開き、ろ過面積)やろ過条件など 選定する必要がある。	0	0
7		減圧·加熱脱水	スラッジ性状(粒径分布、粒子性状)に大きく依存せず、目標 値まで脱水処理可能と想定。	0	×
8	(固化処理)		固化処理はスラッジ系廃棄物の安定化という観点で有効と考え られるが、1F廃棄物の最終処分概念は未定である。固化処理は 埋設体要件に応じて実施することが望ましいため、本開発では 検討せず、脱水処理後に長期保管することを前提とする。	Δ	

<u>カートリッジフィルタについて要素試験を実施</u>し、運用データを取得した。

その他の候補技術については机上検討にて適用性を検討。



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

カートリッジフィルタ試験

実施したカートリッジフィルタ試験の試験手順を示す。



カートリッジフィルタのスラッジ脱水技術としての適用性を評価する。



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

> 供給スラリー/スラッジ性状の設定

表 カートリッジフィルタ設備で処理する可能性のあるスラリー/スラッジの整理

No.	想定スラリー/スラッジ	固形分濃度	粒子成分	含有成分	備考
1	吸着処理水	約100ppm		—	粉末吸着材により吸着処理した後に発生する廃液
2	CF濃縮水	約10000ppm		—	No.1の廃液をCFろ過により濃縮処理した濃縮水
3	凝集沈殿スラッジ	<100000ppm(10%)	粉末吸着材	短年刘武八	No.2CF濃縮水に凝集剤を添加し、凝集沈殿処理した後に 発生する沈殿スラッジ
 (追加)	凝集沈殿スラッジ (事前濃縮なし)	<100000ppm(10%)		凝集剤成分	No.1吸着処理水に凝集剤を添加し、凝集沈殿処理した後に発生する沈殿スラッジ

▶ RO濃縮水処理プロセス案

当初処理対象として想定されていたRO濃縮水沈殿スラッジ(No.3)に加えて、

スラッジ脱水処理設備で処理する可能性が高いと想定されるスラリー/スラッジを対象とした試験も実施した。

No.1 吸着処理水



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

▶ 試験パラメータ(スラリー/スラッジの条件設定)

スラリー/スラッジの調製に関するパラメータを下記に示す。

RO濃縮水処理試験結果を基に、粉末吸着材としてチタンケイ酸塩と添着活性炭、凝集剤として硫酸アルミを選定した。

No	粉末吸着材 ^{※1}		凝集剤		=+==>;本名 //-	井橋七名
NO.	種類	濃度[ppm]	種類	濃度[ppm]	1 武駛液余件	
1-1		50				No.1 吸着処理水
1-2	エクントノ酸塩	10000	硫酸アルミ			No.2 CF濃縮水/DEろ過逆洗水
1-3	「テダンクイ酸塩	約100000		5000	1000倍希釈海水	No.3 凝集沈殿スラッジ
1-4		約100000	高塩基PAC ^{※2}	2000		No.3 凝集沈殿スラッジ
1-5		200	硫酸アルミ	—		No.1 吸着処理水
1-6	法美活性出	10000		—		No.2 CF濃縮水/DEろ過逆洗水
1-7	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	約100000		1000		No.3 凝集沈殿スラッジ
1-8		約100000	高塩基PAC ^{※2}	1000		No.3 凝集沈殿スラッジ
1-9 ^{※3}	チタンケイ酸塩	50	高塩基PAC	500	1000位圣和海北	 No.4 凝集沈殿スラッジ
1-10 ^{%3}	添着活性炭	200	高塩基PAC	500	1000后布朳冲八	(事前濃縮なし)

表 スラリー/スラッジに関するパラメータ

※1 チタン酸も高いα核種除去性能が確認されたが、入手可能なサンプル量が少ないため、 本試験では使用しない。粒径や比重が近いチタンケイ酸塩の試験結果を使用して評価する。 ※2 高塩基PACも基本条件のみ実施

※3 追加試験:濃縮処理なし/凝集沈殿処理ありの場合の処理スラッジを模擬

→ゲル状物質の析出により、スラッジが難ろ過性の物質となることを確認した(後述)。



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

- ▶ カートリッジフィルタの適用性評価
 - 各スラリー/スラッジのろ過性に関して考察(平均ろ過速度) 各試験で取得した平均ろ過速度の評価結果を示す。

判定閾値を満足するろ過速度を確認

ろ過速度判定閾値:平均ろ過速度V[ml/min]

吸着処理水:V = 28[ml/min]

CF濃縮水: V = 0.56 [ml/min]

沈殿スラッジ:V = 0.11[ml/min]

※RO濃縮水14m3/davを処理可能なろ過速度

ろ過速度の全体傾向

- ・吸着処理水≧CF濃縮水>沈殿スラッジ
- ・活性炭>チタンケイ酸塩



模擬物

吸着処理水

CF濃縮水

沈殿スラッジ

沈殿スラッジ

沈殿スラッジ

吸着処理水

CF濃縮水

沈殿スラッジ

沈殿スラッジ

1-1

1-2

1-3

1-4

1-9

1-5

1-6

1-7

1-8

吸着材

チタン

ケイ酸塩

添着

活性炭

50ppm

10000ppm

約100000ppm

約100000ppm

50ppm

200ppm

10000ppm

約100000ppm

約100000ppm

図 平均ろ過速度の評価結果

- 本試験では、全ての試験で閾値を上回るろ過速度を確認した。 •
- CF濃縮処理後の高SS濃度の廃液を処理した場合でも、濃縮処理なしの廃液と比較してろ過速度の減少は小さい(1-1 と1-2の比較評価)。
- 凝集剤を添加した場合、無添加の場合と比較してろ過速度が遅くなる傾向があり、凝集剤成分によりケーク厚が大き ٠ くなたったためと考えられる。特に、追加試験1-9と1-10のように、低SS濃度条件で処理した場合に、その傾向が顕著 となった。凝集剤の過剰添加により、析出物がろ過膜を目詰まりさせているためと考えられる。
- 以上より、設定したいずれの処理パターンでも、カートリッジフィルタによるスラッジ脱水処理が成立する見込みを得た。 ٠



No.88

_

_

5000ppm

2000ppm

500ppm

_

1000ppm

1000ppm

凝集剤

硫酸アルミ

高塩基PAC

高塩基PAC

硫酸アルミ

高塩基PAC



- 本試験結果より算出した<u>平均ろ過比抵抗は、全ての試験ケースで1.0E+12m/kg以下となり、スラリー/スラッジのろ過性が良好であることが示された(1-9と1-10は除く)。</u>
- 全体的な傾向として、<u>凝集剤を添加し沈殿スラッジ化した場合、ろ過比抵抗が小さくなることを確認</u>した。ただし、 凝集剤成分によりケーク厚さ(体積)が大きくなるため、前ページに記載のようにろ過速度は遅くなる。
- また、<u>凝集剤無添加条件(1-1,1-5等)では、チタンケイ酸塩より活性炭の方がろ過比抵抗が小さい。チタンケイ酸塩は表面電荷を帯びているため、水分子を把持する静電的な力が働く分、水分の透過性が鈍化したと考えられる。</u>
 る。なお、<u>凝集剤を添加した場合、表面電荷が中和されるため、ろ過比抵抗が小さくなった</u>と考えられる。
- 吸着材低濃度条件(1-9,1-10)で凝集沈殿処理した場合は、難ろ過性のスラッジとなることを確認した。





図 ろ過残渣(ケーキ)の含水率測定結果

※減容化処理の観点から、 脱水後の含水率の目標値は60vol.%と設定

<u>チタンケイ酸塩</u>

- 凝集剤を添加せずろ過した場合、約80vol.%と高い含水率となり、凝集剤を添加しスラッジ化しろ過した場合、約50vol.%と目標値を満足する値となった。
- チタンケイ酸塩は理論的にはマイナスの表面電荷を持つため、<u>静電的な作用により水分子を保持する効果により、凝集剤無添加条件の含水率が高くなった</u>と考えられる。結晶構造は3次元的であるため、膨潤作用により内部に水を保持することは考えにくいと考察する(水和水を含む可能性はある)。
- <u>凝集剤を添加した条件では、表面電荷が中和され、前述の静電的な影響が軽減されたため、含水率</u> が相対的に小さくなったと考えられる。40~50vol.%の水分量は、ろ過による脱水が困難なケーキ中 の間隙水であると考えられる。





図 ろ過残渣(ケーキ)の含水率測定結果

※減容化処理の観点から、

脱水後の含水率の目標値は60vol.%と設定

<u>添着活性炭</u>

- 凝集剤添加の有無に依存せず、いずれの処理条件でも60~70vol.%の含水率となった。
- 目標値60vol.%までの脱水処理は困難であるが、近い水準まで脱水可能であることを確認した。
- 活性炭は理論的には表面電荷を持たないため、静電作用による水分子の保持は発生しにくく、また、膨潤作用 もないと考えられる。そのため、凝集剤添加/無添加に依らず、含水率がほぼ一定となったと考えられる。
- また、チタンケイ酸塩を沈殿スラッジ化した条件(1-3, 1-4)と比較して含水率が高い原因としては、活性炭粒子 の表面にはマイクロポアが無数に存在するため、マイクロポア中に水分が保持される可能性が考えられる。
- なお、活性炭は粒子の真密度が小さいため、ケーキ密度が小さくなるため、質量含水率はチタンケイ酸塩と比較して大きくなる傾向がある。



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

- ▶ カートリッジフィルタの適用性評価
 - ろ過残渣(ケーキ)の含水率に関する考察

試験結果より、カートリッジフィルタによる加圧ろ過後に残るろ過残渣(ケーキ)の含水率について、 寄与の大きいパラメータは下記項目であると考える。

- ・ケークの間隙率(粒子充填密度)
- ・粒子表面の静電的性状
- ・粒子の結晶構造(膨潤性の有無、微小孔の有無など)

<u>ケーク含水率は、粒子自体の表面性状・物性による影響を受け大きくなる。</u>しかし、適切な条件で凝集沈殿処理を行えば、粒子の表面 性状の影響を軽減することが可能であり、60~70vol.%まで脱水可 能である。

なお、ろ過圧力、ろ過時間、フィルタ目開き等のろ過条件による、 ケーク含水率の変化は軽微であった。

本試験結果より、<u>ケーク間隙に保持されている水分は、含水率換</u> <u>算で40~50vol.%存在する</u>可能性が示唆された。 また、<u>使用する粉末吸着材の物性に依存して、20~30%分の含水</u> 率がさらに大きくなると推定される。

※間隙水を加圧ろ過方式で除去することは困難であるため、

絶乾状態に近い水準まで脱水処理が求められる場合、加熱式の脱水処理などを適用する必要がある。 ただし、水素対策や減容化の観点では、60~70vol.%までの脱水処理で十分であると考えられる。





吸着材の性状により保持される水分。静電

作用による保持、微細孔による保持など。

吸着材性状に依存し、0~30%程度と推定

(2)その他の水分

100%

含水率[vol.%]

③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

> 沈殿スラッジ(事前濃縮なし)条件でのろ過性能低下に関する考察

追加試験1-9および1-10では、粉末吸着材による吸着処理後にCF濃縮処理を実施せず、凝集沈殿処理 を実施した場合を模擬し、数十~数百ppmのSS濃度の廃液を凝集沈殿処理した。その後、発生した沈殿 スラッジを使用して、カートリッジフィルタろ過試験を実施した。

その結果、ろ過速度の顕著な低下が確認され、ゲル状物質による目詰まりが原因であると考察した。



(加圧ろ過試験中)

含水率の高いスラッジ(ゲル状物質)が、フィルタ孔を目詰まりさせることにより、 ろ過液の透過が阻害されていると考えられる。



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

> 吸着材低濃度条件でろ過性が低下した原因に関する考察

<u>凝集剤成分のゲル化</u>

試験ケース1-9および1-10では、ろ過速度の低下および、平均ろ過比抵抗の増大より、難ろ過性のケーキが形成されたと考えられる。試験ケース1-9と1-10は、吸着材濃度が数十~数百ppmと小さいため、凝集剤が過剰添加であった可能性が考えられる。



①表面へ析出する成分

- 狭隘部や固相表面の化学的に活性な部分に析出する成分。
- 優先的に反応が進行する。
- <u>析出物の含水率は低い</u>。

<u>②ゲルを形成する成分</u>

- 上澄液中でコロイドや固相を形成する成分。
- 固相表面へ析出しきれない余剰成分が本反応で消費される。
- 析出物の含水率は高い。結晶度が小さく非晶質と想定。

※凝集剤はAI系試薬を使用しているため、 水酸化アルミニウムの形態で析出すると考えられる。

粉末吸着材量が小さくなるほど、表面への析出に消費される割合が少なくなり、ゲル形成に消費される割合が増大する。

吸着材濃度が大きい場合(試験ケース1-3等)、液相中に膨大な表面積が存在するため、凝集剤成分はほぼ全量が表面への析出に消費され、ゲルを形成する余剰成分は少ない。一方、<u>吸着材濃度が小さい場合(試験</u>ケース1-9等)、液相中に十分な表面積が存在しないため、凝集剤の余剰成分が発生する。余剰成分は上澄液中で水分を多量に含んだ状態で析出するためゲル状となると考えられる。 <u>ゲル状物質はフィルタ孔の閉塞を顕著に引き起こす</u>ため、ろ過性の優位な低下が生じたと考えられる。



③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

> 要素試験結果まとめ

- No.1~3の処理条件では、カートリッジフィルタは要求されるスループットを満足すると評価された。
- 一方、No.4の処理条件では、ゲル状物質のフィルタ孔閉塞が原因と考えられるスループットの低下が確認され、 カートリッジフィルタによる脱水処理が困難である可能性が示唆された。
- カートリッジフィルタによりスラッジの含水率は、前段処理に多少影響するが、60~70%程度まで低減可能である。

目標スループットを満足すると評価された処理プロセス。 発生するスラリー/スラッジのろ過性は良好。



IRID

③-2 スラッジ脱水処理技術の開発

【これまでの成果】

- ✓ RO濃縮水処理により発生する沈殿スラッジについて、減容化効果および水素発生量を評価し、脱水後の 目標値を60vol.%と設定した。
- ✓ スラリー/スラッジの脱水処理方法として、カートリッジフィルタを用いた技術を選定し、実機適用性を評価 するための要素試験案を立案した。
- ✓ 要素試験結果より、吸着処理水/CF濃縮水/沈殿スラッジのいずれも、カートリッジフィルタでのろ過性は 良好であり、スループットを満足すると評価された。
- ✓ 吸着処理後に、濃縮処理をせずに凝集沈殿処理するようなシステムについては、沈殿スラッジが難ろ過性のゲル状となるため、適用性が低い可能性が示された。
- ✓ ろ過後のケーキの含水率は、処理条件に依存するが60~70vol.%となり、目標設定していた程度のスラッジ 発生量の減容化が図れる可能性が示された。

【今後の検討課題】

- ✓ 立案した各処理システムにおいて、設備規模、スループット、運用パターンなどを検討し、より適切と 考えられるシステムを選定する。
- ✓ 別法の脱水技術の検討や、エア逆洗によるケークの払い出しなど、システムの合理化検討に必要と 考えられる開発課題を整理する。

【まとめ】

スラッジ脱水技術として、カートリッジフィルタによる脱水技術を選定し、要素試験により適用性を評価した。 要素試験結果より、カートリッジフィルタを用いた脱水処理が成立する処理プロセスを複数選定し、スラッ ジ回収システムの概念検討を実施した。



8. 実施目的を達成するための具体的目標

(1)液体系・気体系システム	
 ①溶解性 α 核種除去技術の開発 ・実液の使用を想定した溶解性 α 核種除 去試験の検討 	溶解性α核種除去設備の有効性及び成立性を検証するため、実液の使 用を想定した試験方法、試験装置および試験計画について具体化されて いること。 (終了時目標TRL:レベル3)
・燃料デブリ取り出し作業時を想定した要 素試験	溶解性α核種除去設備について、燃料デブリ取り出し作業時を想定した 環境でのα核種吸着性能データを取得し、候補吸着材が選定されているこ と。その際、水質調整方針の設定がなされていること。 (終了時目標TRL:レベル4)
②RO濃縮水の処理技術の開発 ・吸着材および凝縮剤の選定	RO濃縮水処理設備について、粉末吸着材の核種除去性能および凝集 剤の凝集沈降性能が評価され、粉末吸着材および凝集剤が選定されて いること。 (終了時目標TRL:レベル4)
・実機適用性の検討	RO濃縮水処理設備について、沈降分離槽を用いた試験から処理方式 および設備の概念設計が実施されていること。 (終了時目標TRL:レベル4)
 ③二次廃棄物処理技術の開発 ・前処理技術の調査 	凝集沈降槽より発生するスラッジについて、安定化処理技術候補が選定 されていること。その際、上澄水など廃液の前処理技術についても選定さ れていること。 (終了時目標TRL:レベル3)
・実機適用性の検討	前処理技術について、要素試験結果などから実機適用性の検証がなされていること。また、前処理設備の概念設計が確立されていること。 (終了時目標TRL:レベル4)

上表に記載の目標を達成した。

※TRL:技術成熟度

No.97

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金 安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術)

最終報告 (2)臨界管理技術

2023年6月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID)

無断複製·転載禁止 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構 ©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



目 次

- 1 補助事業の目的と目標
- 2 補助事業の概要
- 3 これまでに実施した事業の実績と残された課題
- 4 インプット・アウトプット情報
- 5 実施スケジュール
- 6 実施体制
- 7 実施内容
 - 7.1 現場運用手順の開発
 - 7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発
 - 7.3 臨界管理の全体まとめ
 - 7.4 今後へ向けての課題の整理
- 8 実施目的を達成するための具体的目標 参考資料



1.「安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術)」の目的と目標 ^{No.2}

【安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術)の目的】

東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所(1F)では、核燃料が炉内構造物とともに溶融し、燃料デブリとして原子炉圧力容器(RPV)内及び原子炉格納容器(PCV)内に存在していると考えられる。

RPV及びPCV内部の燃料デブリは、現在未臨界状態にあると考えられるが、事故によって原子炉建屋(R/B)、 RPV、PCV等が損傷している等、プラント自体が当初設計とは異なる不安定な状態に置かれているため、燃料デブ リを取り出して燃料デブリの未臨界状態を維持し、放射性物質の拡散を防止して安定な状態にする必要がある。

上記の背景のもと、本事業は、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた 中長期ロードマップ」(以降、中長期ロードマップ)に基づき、東京電力ホールディングス(株)(東京電力)が実施する エンジニアリングやプロジェクト管理の下で、大規模な燃料デブリ取り出し作業を実現することを目標に検討を実施 する。本事業での開発成果は、東京電力が行うエンジニアリングに活用する。

本事業は、1Fの廃炉・汚染水対策に資する技術の開発を支援する事業を、中長期ロードマップ及び「2021年度 廃炉研究開発計画」(廃炉・汚染水チーム会合/事務局連絡会議(第86回))に基づき行うことで、1Fの廃炉・汚染 水対策を円滑に進めるとともに、我が国の科学技術の水準の向上を図ることを目的とする。

具体的には、燃料デブリから循環冷却水中に溶出すると考えられる溶解性α核種除去技術、RO濃縮水の処理技術、二次廃棄物処理技術、並びに臨界近接監視技術・中性子吸収材技術の現場運用方法に関する技術について、 開発を実施する。



1.「安全システムの開発(液体系・気体系システム、<mark>臨界管理技術</mark>)」の目的と目標 ^{No.3}

【開発全体の目標】

燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けて必要なシステム及び安全確保に関わる技術について、これまでに得られた研究開発成果に基づき、必要となる要素技術開発及び試験を実施する。

【開発項目の具体的な目標】

①現場運用手順の開発

- 中性子検出器による臨界近接監視や非溶解性中性子吸収材の現場運用手順を 策定して、燃料デブリ取り出し工法チームが取り出しシステムの設計やスループットの検討に活用するための情報を提供する。
- 新型3種類の中性子検出器の未臨界度測定性能を評価して、現場運用手順に反映する。

②固化型吸収材技術の開発

● 固化型吸収材(水ガラス)が付着した燃料デブリの乾燥プロセスへの影響に関するデータを取得して、①現場運用手順の開発や燃料デブリの乾燥時間等の設備 運転検討に活用する。



2. 補助事業の概要

臨界近接監視技術・中性子吸収材技術の現場運用方法の開発

臨界管理技術については、前期PJまでに廃炉・汚染水対策事業において、臨界防止、臨界近接 監視、臨界検知、影響緩和の各要素が開発されてきた。このうち、課題が残されている臨界防止、 臨界近接監視について、これまでの技術開発成果を踏まえて、検討を具体化した。





2. 補助事業の概要 段階的な臨界管理

- 臨界管理技術は、燃料デブリの取り出し量や取り出し方法に応じた臨界発生リスクを考慮し、段階的に 適用する。
- 取り出し量や状態変化が大きくなる取り出し方になるほど相対的に臨界リスクが高まるため、多様な臨 界管理技術が選択できるようにする。

取り出し作業		古如田本	燃料デブリ取り出し				
		内部調査	段	階的に規模を拡大する取り		本格取り出し	
取り出し量		微量(数g)	少量(数kg)		少量(数kg~ 数10kg)	本格 (~数100kg/日)	
取り出し方法		把持·吸引等	把持·吸引等	コアボーリング等	コアボーリング等	コアボーリング、 チゼル等	
	作業制限	燃料デブリに変化を 与えない方法	燃料デブリに変化を与え ない方法	・1回あたりの加工 量制限 ・取り出し位置間 隔の制限	・1回あたりの加工 量制限	・1回あたりの加工 量制限(拡大)	
①臨界防止	臨界近接監視	_	_	中性子束監視	中性子東監視	中性子東監視	本事業の
②臨界近接監視		—	—	—	_	未臨界度測定*1	対象範囲
	非溶解性中性子吸収 材	-	-	_	-	非溶解性 中性子吸収材*2	
	溶解性中性子吸収材	_	_	_	_	五ホウ酸ナトリウム水*3 (6000pp)	
③臨界検知	臨界検知	PCVガス放射線モニ タ	PCVガス放射線モニタ	PCVガス放射線モニタ 中性子束モニタ	PCVガス放射線モニタ 中性子東モニタ	PCVガス放射線モニタ 中性子東モニタ	
④影響緩和 臨界終息		五ホウ酸ナトリウム 水注入	五ホウ酸ナトリウム水注 入	五ホウ酸ナトリウム水注 入	五ホウ酸ナトリウム水注 入	五ホウ酸ナトリウム水注入	

──── 小 ────── 燃料デブリの状態変化の大きさ ───────── 大 ────

*1、2、3は取り出し作業内容・現場の環境条件等を考慮した臨界リスクに依存して選択される。

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

3. これまでに実施した事業の実績と残された課題

臨界近接監視技術の開発成果と本事業の内容

最終目標	実機適用までの 達成目標	達成状況	残された課題 / 本事業の内容
	①測定手法の確立	・炉雑音法と中性子源増倍法を組み合わせた手法を選定 ・測定誤差低減のための検出器感度・配置を検討	
	②システム仕様策定	・検出器、測定回路等のシステム仕様を策定	
未臨界度	③ 中性子検出器の仕様	・中性子検出器の仕様策定と試作機用の検出器選定	
測定技術の 確立	④システム設計・試作	・試験用システムとして中性子検出器と測定回路と分析用PCで構成されるシステムを試作	
	⑤ 未臨界度測定の成立性 確認	・均一燃料デブリ模擬条件で確認(KUCA試験#1/#2) ・大型燃料デブリ模擬条件で確認(KUCA試験#3) ・不均一燃料デブリ/中性子吸収材模擬条件で確認(KUCA試験 #4)	代替中性子検出器(コロナ放電利用型、 SiC半導体型、マルチセルHe-3型)の適 用性確認試験(KUCA試験#5)(→7.1.2 項) KUCA;京都大学臨界実験装置
燃料デブリ取 り出しシステム	 ・ ・ ・	・ロボットアームで移送するための中性子検出器ユニットの仕様 項目を整理 ・ケーブルハンドリング概念を策定 ・代替中性子検出器(コロナ放電利用型、SiC半導体型、マルチセ ルHe-3型)の試作と基本性能確認 ・中性子検出器ユニットの設計試作 ・プリアンプの耐放射線性の評価	
への組み込み	② 電磁ノイズ対策	模擬ノイズによる影響を評価、対策案を整理	
	③臨界近接管理手順の検討	測定に要する時間を評価 燃料デブリ取り出し工法の各ステップでの臨界近接監視の手順	加工前後の測定手順、測定対象の判断、 測定時間、日々の未臨界維持管理の作 業手順、補修・メンテ要求、加工側への 要求整理(→7.1.1項)



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

3. これまでに実施した事業の実績と残された課題

非溶解性中性子吸収材の開発成果と本事業の内容

最終目標	実機適用までの 達成目標	達成状況	残された課題/本事業の内容		
臨界防止 技術の確立	①候補材の選定	・基礎特性、照射特性、核的特性の確認により非溶 解性中性子吸収材の候補材を選定(4種類の候補材 を選定)			
	② 施工性の確認と未臨界 維持条件の仕様	・想定した使用法による投入必要量を試算 ・チゼルによる破砕燃料デブリでの施工性確認、およ び吸収材分布確認と未臨界維持評価(固体型吸収 材)			
	③腐食影響の評価	・長期照射試験から、水素発生G値(*)は設計値未満 および吸収材成分が溶出した希釈海水はpH6以上 ・照射下での防錆剤効果に及ぼす影響の評価			
	③ 副次的影響の評価	・収納缶本数および廃棄量は固体型吸収材で最大 約10%、固化型吸収材で最大約40%増加	水ガラスによる燃料デブリ乾燥への 影響(→7.2項)		
燃料デブリ取り 出しシステムへ の組み込み	 非溶解性中性子吸収材の投入装置、運用方法の検討 	・吸収材の投入方法を策定 ・チゼル加工による影響の確認 ・水中投入できることの確認	固化型吸収材の使用量 加エシーンに対する適用条件 レベル2→レベル1復帰手順 事前投入の有効性 (→7.1.3項)		
	 ②吸収材投入装置の設計 	・吸収材投入装置の重量・寸法制約、吸収材搬送経 路制約を踏まえて吸収材投入装置概念を策定	装置の小型軽量化(→7.1.3項)		
	③取り出し装置との組み合 せ検証	・燃料デブリ位置毎の燃料デブリ加工方法に対する 適用吸収材を整理			
IKID	▶ (*)水素発生G値:100eVのエネルギーを吸収した際に発生する水素の数				

4. インプット・アウトプット情報

燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発PJ、燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発PJ、と連携して実施した。

ID	要求側事業	提供側事業	内容(概要)	時期	情報の用途
1	安全システムの開発 (液体系・気体系シス テム、臨界管理技術)	燃料デブリ・炉内構造 物の取り出し規模の 更なる拡大に向けた 技術の開発	干渉物撤去の方法、 燃料デブリへのアクセ ス方法、燃料デブリや 炉内構造物の加工・ 回収方法	2021年 6月	臨界近接監視や吸収 材散布の現場運用手 順の検討
2	燃料デブリ・炉内構 造物の取り出し規模 の更なる拡大に向け た技術の開発	安全システムの開発 (液体系・気体系シス テム、臨界管理技術)	中性子検出器による 臨界近接監視の現場 運用手順、 非溶解性中性子吸収 材の現場運用手順	2023年 3月	燃料デブリ取り出しエ 法のスループットの検 討
3	燃料デブリ収納・移 送・保管技術の開発	安全システムの開発 (液体系・気体系シス テム、臨界管理技術)	水ガラス(非溶解性中 性子吸収材)が付着し た燃料デブリの乾燥プ ロセスへの影響に関 するデータ	2023年 3月	収納缶の乾燥プロセ スの検討

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning
5. 実施スケジュール

令和3年度 令和4年度 実施事業者 大分類 小分類 (外注先、試験場所が 4月 5月 6月 7月 8月 9月 10月 11月 12月 1月 2月 3月 4月 5月 6月 7月 8月 9月 10月 11月 12月 1月 2月 3月 ある場合は併記) 主要なマイルストン プロジェクトステレ最終 プロジェクトステアリング会議 中間報告 プロジェクトステアリング会議 中間報告 中間報告 <u> プロジ</u>ョクトステ フリング会議 報告 アリング会議 前提条件の整理 (2) 臨界近接監視技術·中性 a. 前提条件の整理 (1)日立GE 子吸収材技術の現場運用 手順の検討 方法 b. 手順の検討 (2)東芝ESS 現場運用手順の開発 評価・見直し (i) 臨界近接監視の運用手 c. 評価・見直し (3) 三菱重工 順の策定 まとめ 中間まとめ d. まとめ 試験計画 a. 試験計画 (ii) 中性子検出器の未臨界 (1) 東芝ESS 試験計画 照射試験 外注先:FEO/CETD 度測定試験 試験準備・手配 b. 試験準備 • 手配 試験場所:KUCA 分析·評価 要素試験 名古屋大学 KUCA試験 要素試験 (2)三菱重工 c. 要素試験 まとめ 外注先:IPL 👽 間まとめ d. まとめ 試験場所:KUCA 前提条件の整理 (iii) 非溶解性吸収材の a. 前提条件の整理 (1)日立GE 運用手順の策定 手順の検討 b. 手順の検討 (2)東芝ESS 評価・見直し c. 評価・見直し (3) 三菱重工 まとめ d. まとめ 中間まとめ 試験計画 ②固化型吸収材技術の開 a. 試験計画 試験準備·調達 発 (1)JAEA 試験準備·調達 b. 試験準備・ 外注先:検査開発株式会社 資材調達 試験場所: JAEA パラメータ基礎試験 基礎試験 c. 要素試験 委託先:静岡理工科大学 中間まとめ まとめ d. まとめ 試験場所:静岡理工科大学

臨界管理技術



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

6. 実施体制				No.10
東京電力ホールディングス株式会社 ▶ 現場適用性の観点での諸調整	社 技術研究約 → 全体計画の策 → 技術開発の進	且合 国際廃炉研究開発機構 定と技術統括のとりまとめ 捗などの技術管理のとりまとめ		
日立GEニュークリア・ エナジー株式会社	芝エネルギーシステムズ 株式会社		国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	連携する開発プロ ジェクトチーム 燃料デブリの取り出し 工法の開発
L) シー (和 氏 云 和 (工 男 素 試験・技術開発) (1) 液体系・気体系システム開発 (1) 液体系・気体系システム開発 (1) 液体系・気体系システム開発 (1) ① 溶解性 α 核種除去技術の開発 •実液(原子炉建屋内滞留水)の 使用を想定した溶解性 α 核種 除去試験の検討 •燃料デブリ取り出し作業時を 想定した要素試験 (2) RO濃縮水の処理技術の開発 •吸着材および凝集剤の選定 •実機適用性の検討 (3) 二次廃棄物処理技術の開発 •安定化処理技術の調査 •実機適用性の検討 (2) 臨界近接監視技術・中性子吸収 材技術の現場運用方法 ·臨界近接監視手順の策定 (1) ①	 休エムエイム マホエムエイム マホエムエイム マホエムホイム マホエムホイム マホイム 	【要素試験・技術開発】 (2) 臨界近接監視技術・中性子吸収 材技術の現場運用方法 ・臨界近接監視手順の策定 ・中性子検出器の未臨界度測定 性能評価	【要素試験・技術開発】 (2)臨界近接監視技術・中性子吸収 材技術の現場運用方法 ・固化型吸収材技術の開発	燃料デブリ収納・ 移送・保管技術の開発 固体廃棄物の処理・ 処分に関する研究開発 燃料デブリの性状把握 のための分析・推定 技術の開発 原子炉格納容器内部詳 細調査技術の開発
【再委託の内容】 ・未臨界度測定試験(京都大学) 【主な外注の内容】 ・非溶解性中性子吸収材の運用試験 (HPC) ・MF膜等フィルタ通水試験(みすず精工) ・カートリッジフィルタ試験(HPC)	- - - - - - - - - - - - -	【再委託の内容】 ・未臨界度測定試験(京都大学) 【主な外注の内容】 ・未臨界度測定試験補助(IPL) ・臨界近接監視手順検討補助(NSエンジ ニアリング)	【再委託の内容】 ・固化型吸収材の構造解析(静岡理工科 大学) 【主な外注の内容】 ・固化型吸収材を塗布した試験体の乾燥 試験に係る請負業務(検査開発株式会 社)	燃料デブリの性状把握 のための分析・推定 技術の開発 燃料デブリと放射性廃棄 物の仕分け技術の開発



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

7.1 現場運用手順の開発

7.1.1 臨界近接監視の運用手順

【課題】

関連事業^(*)において、上/横アクセス工法の大まかな作業ステップにおける臨界近接監視の方法が検討されている(図1)。燃料デブリ取り出し工法チームと運用手順やスループットを協議するためには、さらに作業ステップを詳細化して臨界近接監視の手順を具体化する必要がある。

【実施内容】

- 関連事業^(*)で検討された燃料デブリ取り出し工法と加工・回 収装置に対して、中性子検出器を用いた臨界近接監視の手 順をステップ図に整理する。
- 燃料デブリ加工時に臨界近接する際の中性子応答を検討して、臨界近接と判断する対応の手順を検討する。
- 加工前後の測定手順、測定対象の判断、測定時間、日々の 未臨界維持管理の作業手順、補修・メンテ要求、加工側へ の要求整理、について検討する。

燃料デブリ加工時 加工ツール並置型検出 器を用いた、加工前臨界 近接監視および加工中 連続監視 加工ツール 加工ツール 加工ツール 加工ツール

【目標】

- 中性子検出器による臨界近接監視の現場運用手順を策定し、燃料デブリ取り出し工法チームが取り出しシステムの設図
 計やスループットの検討に活用するための情報を提供する。
 - 図1 燃料デブリ取り出し時臨界近接監視(横アク セスPLAN-Aの例)

(*)関連事業「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」(2019・2020年度)



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順
 - a.前提条件の整理

臨界近接監視を構成する機能

名 称	未臨界度測定用検出器	臨界近接監視用検出器(注1)	連続監視用検出器 ^(注1)	
使用目的	作業前状態の把握	加工着手判断	予期せぬ変化の検知	
松松 台口	未臨界度測定	加工前後の 臨界近接監視	加工中の 中性子東連続監視	
1732 HE	中性子増倍率の 絶対値測定	中性子増倍率の相対変化測定		
形態	アーム搭載型	加エツール並置型	プラットフォーム設置型 /加エツール並置型	
重量	30kg~100kg	30~50kg	30kg以下	
計測時間	数時間から1週間 (現場環境に依存)	10分程度	連続	
測定位置	取り出し位置近傍 の1点 ^(注2)	加工位置に応じて 適宜移動 ^(注2)	同左/加工位置を俯瞰でき る場所	
(注1)現場のガンマ線が弱く、燃料ラ Jの中性子が強いといった条件によ ま、「臨界近接監視用」と「連続監視 は兼用できる可能性がある。 (注2)燃料デブリに対する測定位置 固定されておらず、都度変更されるす	デブ って 用」 は 可能		プラットコ 設置型	



性がある。

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順
 - b.手順の検討

7.1.1.bの実施内容の概要



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順 b.手順の検討 ①上取り出し時の臨界監視方法

【検討成果】

上取り出し工法を代表例として燃料デブリ 取り出しステップにおける臨界近接監視の 方法を検討した。

臨界近接監視は3種類の中性子計測で構成されるが、全ての作業ステップにおいて 3種類の監視を行う必要は無い。

想定される臨界リスクに応じて必要な監視 の機能を使い分ける。

(3種類 or 2種類)



上部格子板

炉心部残存燃料





- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順 b.手順の検討 ②横取り出しPLAN-A工法の臨界監視方法

【検討成果】

横取り出しPLAN-A工法を対象 として臨界近接監視の方法を 検討した。

臨界監視の3機能のうち、未臨 界度測定をアーム搭載型検出 器で、臨界近接監視および加 工中連続監視を加エツール並 置型検出器で行うことにより、 加エツールと検出器の交換頻 度を低減し、燃料デブリ取り出 し作業スループットへの影響を 最小限とする。

横取り出しPLAN-A工法の臨界監視方法



図 燃料デブリ取り出し時臨界監視(抜粋)

図 干渉物撤去時臨界監視(抜粋)



No.16

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順 b.手順の検討 ③横取り出しPLAN-B工法/

上アクセスー体搬出工法の臨界監視方法

● 横取り出しPLAN-B工法および上アクセス一体搬出工法の概要



No.17

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順 b.手順の検討 ③横取り出しPLAN-B工法/

上アクセスー体搬出工法の臨界監視方法

● 横取り出しPLAN-B工法および上アクセス一体搬出工法の作業ステップについて、以下の装置を用いた 加工回収方法適用時の臨界近接監視手順を検討し、課題およびリスクを抽出した。



7.1 現場運用手順の開発

7.1.1 臨界近接監視の運用手順 b.手順の検討 ③横取り出しPLAN-B工法/

上アクセスー体搬出工法の臨界監視方法

No.18

【検討結果】

 ● 横取り出しPLAN-B工法および上ア クセスー体搬出工法の作業ステッ プについて、右表に課題とリスクを 抽出した。

No.	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
1	カメラ映像、中性子束分布、特性ガンマ線分布から燃料デブリの有無や量を確認できるか。
2	中性子検出器の運搬に使用する重量物運搬装置にて適切な位置関係と距離で中性子検 出器を設置できるか。
3	臨界質量以上の燃料デブリかつ数10kg程度で未臨界度を測定できるか。
4	燃料デブリに傾斜面がある場合に中性子検出器を設置できるか。
5	プラットフォーム上に中性子検出器を運搬して、適切な位置関係と距離で中性子検出器を 設置できるか。
6	燃料デブリ上に装置を直接設置することで亀裂進展、水の侵入による反応度投入されるこ とはないか。
7	水位を低下させて堆積物を加工・回収する際、回収しきれない塊や、窪みに水溜まりが生 じた場合をどのように管理するか。
8	底部コンクリート混合燃料デブリの撤去においては、切削面がペデスタル底部よりも低くな ることが予想される。このため、作業員アクセストンネルから排出されていた冷却水の滞留 対策が必要と考えられる。
9	中性子検出器をシュラウド外周部とRPVの間に運搬し、適切な位置関係と距離に設置で きるか。
10	充填固化剤の流出防止対策によって、冷却水の排出が妨げられることで、反応度投入さ れる可能性がある(固化剤注入までの過渡的な状態)。
No.	リスク
1	燃料デブリ上への機材落下、衝撃による亀裂進展、亀裂への水の侵入による反応 度投入。
2	加工中、燃料デブリ等の落下による亀裂進展、臨界質量の超過。
3	固化部分からの燃料デブリの剥離、落下、衝撃による亀裂進展、亀裂への水の侵 入による反応度投入。

IRID

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順
 - b.手順の検討 ④三種類の臨界近接監視の監視範囲

● 三種類の臨界近接監視の機能について、それぞれの監視範囲を整理した。(図は上取り出しの例)

機能:未臨界度測定 測定点:取り出し開始点近傍の1点 測定点:加工位置に応じて適宜移動 使用目的:作業前状態の把握

機能:加工前後の臨界近接監視 使用目的:加工着手判断

機能:加工中の中性子東連続監視

測定点:加工位置から離れて俯瞰で きる場所(*1) 使用目的:予期せぬ変化の検知



(*1)加工位置に応じて適宜移動する場合の連続監視のイメージは、中央の図の臨界近接監視の監視エリアと同じである。



RD

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順
 - b.手順の検討 ⑤燃料デブリ加工・取り出し作業中の測定手順の整理



未臨界度測定

No.20

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



IRID

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順

b.手順の検討 ⑦気中加工・水中加工での環境条件整理に基づく臨界監視の基本的考え方

- 臨界管理の前提となる気中加工と水中加工 の環境条件を整理した。
- 気中の臨界リスクは小さく、水中と同じ管理 は不要であるが、水溜まりなど局所的に注 意が必要となる。

気中加工	水中加工
・燃料デブリの上に水位は形成されていない。 ・燃料デブリの下方に水溜まりの可能性あり。 ・冷却水はかけ流し。 ・水滴が落下している。 ・ダスト飛散防止のために、加工箇所周辺に散水 しながら、加工が行われる。	・燃料デブリの上に水位が 形成されている。 ・加工開始から回収まで水 中で行われる。



図1 気中加工の環境条件



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順

b.手順の検討 ⑧水中加工での臨界リスクの整理

(加工作業の例)レーザーガウジング加工

【加工試験結果】 水中—水流の場合

- 加工速度 330g/min(最大)
- 切削粉の粒径分布 (表1)
 1mm以上が、70%-80%と大部分を占める。

【臨界リスク評価】

RID

- 臨界評価結果(図1)から、臨界量は40kg程度^(*3)であり、それだけの量に達するには2時間程度の加工時間を要する。
- 切削粉が水中で巻き上がっても、大部分は速やかに 沈降し(速度40-80[cm/s])、臨界量に達することはな い。
- 加工時に臨界となるリスクはほとんどないが、切削紛がまとまって蓄積しないように注意が必要

(*1) 燃料デブリ・炉内構造物取り出しの基盤技術開発 平成28年度最終報告書 IRID (*2) 燃料デブリ臨界管理技術の開発 平成26年度研究報告書 IRID (*3) 今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、制限の緩和が期待される。



レーザーガウジング加工の様子(左図)と加工後の模擬試験体(右図)

表1 沈殿物の粒径分布(割合、%)(*1)

	気中ーガス	水中-ガス	水中一水流
250µm 以上 500µm 未満	13.0	12.5	3.9
500μm以上 1mm 未満	14.2	20.4	11.8
1mm 以上 4mm 未満	64.7	63.6	83.1
4mm 以上	8.1	3.5	1.1



図1 燃料デブリ巻き上がり時の最小臨界量評価

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順
 - b.手順の検討 ⑧水中加工での臨界リスクの整理
 - 燃料デブリ加工方法と臨界評価の概要(*1)

燃料デブリ加エ方法	想定される 臨界シナリオ	事象のイメージ	臨界評価の概要
カッタ、ワイヤーソー、ア ブレイシブ・ウォーター・ ジェット(AWJ)	燃料デブリに <mark>亀裂</mark> が多 数生じて、水が浸入す る		塊状燃料デブリに構造材が20wt%含まれて いる状態から、亀裂によって1vol%程度の体 積変化が生じると、0.1%Δk ^(*2) 程度の反応度 が印加される。
チゼル	砕かれて小片化した燃 料デブリが水中に <mark>崩落</mark> する		塊状燃料デブリに構造材が20wt%含まれて いる状態から、崩落や破砕によって10vol% 程度の体積変化が生じると、1%Δk ^(*2) 程度 の反応度が印加される。
コアボーリング	<mark>穴あけ</mark> 箇所に水が浸入 する		塊状燃料デブリに構造材が20wt%含まれて いる状態から、直径7cm、深さ1m程度の穴 をあけると、0.5%Δk程度の反応度が印加さ れる。コアボーリングの加工速度は1cm/分 程度なので、0.005%Δk/分 ^(*2) 程度の反応度 が印加される。
レーザー	水中で切削された粒状 の燃料デブリが巻き上 がる		加工速度が遅く、巻き上がった燃料デブリ は臨界量40kg ^(*2) に到達する前に沈降する ため、臨界にならない。(前シートより)

(*1)平成27年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金 燃料デブリ臨界管理技術の開発 研究報告書、平成30年3月、IRID (*2)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、制限の緩和が期待される。



No.25



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

7.1 現場運用手順の開発

7.1.1 臨界近接監視の運用手順

b.手順の検討

⑧水中加工での臨界監視の必要性

- 加工方法毎の臨界監視の必要性を気中加工と水中加工の 別に整理した。(ただし、臨界リスクは加工方法だけで決まる ものでは無く、燃料デブリ性状に大きく依存するため、監視 の必要性「あり」が必ずしも臨界リスク「高い」とは限らな い。)
- 加工方法自体に臨界リスクが考えられない場合でも、予期 せぬ使い方や、加工点とは異なる場所に堆積するような、2 次的な作用について注意が必要となる。
- 「注意」の場合、万一に備えて臨界近接監視又は連続監視 を実施することを検討するが、適切な加工手順を採用するこ とで、加工範囲の制限や未臨界度測定を省略できる可能性 がある。
- チゼル加工は瞬間的に燃料デブリの形状変化が生じるため、 臨界監視の必要性「あり」とした。加工範囲の制限と未臨界 度測定+臨界近接監視+連続監視を基本とするが、燃料デブ リの状態が判明していれば未臨界度測定を省略できる可能 性がある。





表 加工方法毎の臨界監視の必要性

分類	加工方法	⊑方法 特徴・概要 ^(*)		臨界監視の必要性		
			気中加工	水中加工		
拾い	把持	燃料デブリ小片をつまむ	なし	注意		
上げ	バケット	燃料デブリ小片をすくいあげる	なし	注意		
吸引	吸引	燃料デブリ細粉の吸引・回収	なし	注意		
切削	レーザーガ ウジング	レーザーによる燃料デブリ表面の切削	なし	注意		
穿孔	コアボーリン グ	・ホールソーによる抜き取り加工 ・別途⊐アの切断が必要 ・切粉排出、刃物冷却の水が必要	水溜まりが ある場合は 注意	注意		
	超音 波コア ドリル	セラミックス、金属を同時に加工可能		注意		
切断	丸鋸	セラミックスを加工可能だが工具損傷が 激しい。刃先がギザギザになっている。		注意		
	切断砥石	セラミックス、金属を同時に加工可能		注意		
	油圧カッター	油圧駆動のハサミ		注意		
	AWJ	研磨材を混ぜた高圧水による切断 切断幅分が周辺環境へ飛散		注意		
	レーザー切 断	レーザーの熱による熱切断		注意		
破砕	ハンマ ー(チ ゼル)	チゼルを対象物に押付、ピストンの上下 運動で打撃を与えて破砕		あり		

IRID (*) 関連事業「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」(2019・2020年度) ©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順
 - b.手順の検討

⑨代表加工例(レーザー加工)での監視手順

- 燃料デブリ加工中における測定の手順について、理解しやすいレーザー切断を代表例として、検討した。(*1)
- 燃料デブリに直線状の切断線が生じて、そこに水が浸入して臨界近接する状態を仮定した。
- 加工前の燃料デブリの中性子増倍率はkeff=0.95近傍で、
 判断基準をぎりぎり超えない状態と仮定する。
- 加工前に中性子計数率を測定する。
- 加工を開始すると、10分間の加工で、△k=0.016^(*2)の反応度が加わり、燃料デブリから放出される中性子は1.5倍に増加する。(図)
- 加工後に中性子計数率を測定する。中性子計数率が1.5 倍に増加したことが観測され、中性子源増倍法により、 中性子増倍率が0.95→0.967になったと推定される。
- 中性子増倍率が判断基準を超過したと判定され、取り出し作業を中断する。加工終了とほぼ同時に中性子計数率の上昇は止まるので(図)、運転員は時間の余裕を持って判断できる。

(*1)1本の切断で臨界になるリスクは無いが、理解しやすい例として極端な条件を設定した。 (*2)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、制限の緩和が期待される。



【評価条件】

燃料デブリ組成:濃縮度4wt%ウラン^(*2) 構造材、FP、Gdなし 燃料デブリ内の気孔に水が入っており、 加工前の初期状態のkeff=0.95とする。 幅2cm、深さ~60cm、長さ~60cmの切 断線を入れる加工を想定する。^(*1) レーザー切断の加工速度は1[mm/sec] であり、10分間の加工を行うものとする。 MVPコードで実効増倍率を計算し、1点 炉動特性解析で中性子応答を計算した。 中性子源強度1[n/sec] 中性子検出器の検出効率100[%]





©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順 b.手順の検討

⑩監視システムの保守

- 臨界近接監視システムの保守について、
 日常点検、定期点検、事後保全の考え
 方を整理した(表)。
- 日常点検は、検出器ユニットを建屋内の メンテナンスエリア(SFP等を想定^(*))に移 動させて^(注1)、遠隔操作^(注2)で行う。(図)
- 定期点検の一部や不具合発生時の事後 保全は、除染して建屋外に搬出して、作 業員が作業を行う。



表 臨界近接監視システムの保守内容

	目的	頻度	点検内容	点検項目	方法
(注1)検出器ユニットを搭載した 然料デブリ取り出し装置がメンテ ナンスエリアに移動して待機する のは、日常的な動作である。 (注2)中性子線源を用いた中性	予防保 全	日常点 検	システム健全 性、ノイズ影響	中性子線源による動 作確認、バックグラウ ンド測定	検出器ユニットを遠隔メンテナンスエリアに移動させて、そこに設置 された中性子線源装置を使って、燃料デブリ加工・回収装置の遠隔 操作で間接保守を行う。(要する時間は1時間程度) 中性子線源自体も減衰するので交換が必要。
		定期点 検 1~2回/ 年	検出器/コネク ター/ケーブル の健全性、検 出器感度	ディスクリプラトー、絶 縁抵抗、静電容量、 ケーブル特性、線源校 正	メンテナンスエリアでの遠隔保守が困難な場合は、検出器ユニットを 燃料デブリ加工・回収装置から外し、PCV内から引き上げ、除染後、 直接保守を行う。(要する時間は数日程度)
子検出器の校正を遠隔操作で行 う方法についてエンジニアリング 没階での開発が必要。	事後保 全	不定期	分解点検、修 理、交換、	ガスリーク、絶縁低下、 接触不良、断線、回路 診断、他	システムに不具合が生じて、検出器がPCV内で復旧できない事態と なった場合には、検出器ユニットを燃料デブリ加工・回収装置から外 し、PCV内から引き上げ、除染後、直接保守により点検を行う。(分 解・組立が必要になる場合は1週間以上)

■
ア
■
ア
(*)
関連事業「燃料デブリ・
炉内構造物の取り出し
規模の更なる
拡大に向けた
技術の開発」(2019・2020年度)

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.1 臨界近接監視の運用手順 d. まとめ

【成果】

✓ 燃料デブリ取り出し時の臨界近接監視について、中性子検出器による監 視の範囲/測定手順/加工時の臨界リスク/システム保守、等の項目につ いて現場運用のイメージを具体化して、燃料デブリ取り出し工法チームが 取り出しシステムの設計やスループットの検討に活用するための情報を 提供した。





7.1 現場運用手順の開発

7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認

【課題】

関連事業^(*)において未臨界度測定の観点から候補となる3種類の中性子検出器(コロナ放電利用型、SiC 半導体型、マルチセルHe-3型)が開発されている(図1)。これらの検出器が現場に適用できることを確認す るために、未臨界度を測定できることを実証して、臨界近接監視の性能を評価する必要がある。

【実施内容】

京都大学臨界実験装置(KUCA)において燃料デブリを模擬した未臨界体系を構築し、開発した中性子検 出器を用いて未臨界度測定試験を行う。(図2)

また、ガンマ線環境下における中性子測 定性能を試験により評価する。

【目標】

- 中性子検出器の未臨界度測定性能の評価
- 現場を想定した中性子検出器の運 用手順への反映



図1 B-10コロナ放電利用型検出器の外観

図2 京都大学臨界実験装置

(*)関連事業「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」(2019・2020年度)



No.31

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - a. 試験計画

表 前期PJまでの関連事業で実施したKUCA試験のまとめと今回の試験内容

試験6	中性子検出器	目的	成果
KUCA試験 (1回目、2回目)	B-10比例計数管	ウラン燃料による、小型の体系で未臨 界度を測れることを確認する	・中性子増倍率=0.95の臨界近傍から、0.7の 深い未臨界まで、異なる未臨界度に対する測定 誤差(2%~10%) ・燃料デブリと水の混合状態の不確かさ(中性 子エネルギースペクトル)による測定誤差への 影響は小さい ・測定可能な燃料デブリと検出器の距離は水中 20cm以内、気中35cm以内
KUCA試験 (3回目)	B-10比例計数管	ウラン燃料による、大型(均一)の体系 で未臨界度を測れることを確認する	検出器近傍の局所的な未臨界度を監視できるこ とを確認(体系全体の監視は困難)
KUCA試験 (4回目)	B-10比例計数管	大型で不均一の体系、および中性子吸 収材の配置による影響を確認する	不均一な燃料デブリを模擬した体系で未臨界度 測定を行い、位置依存性を確認した。 非溶解性の中性子吸収材の表面塗布を模擬した 状態で試験を行い、未臨界度測定が可能である ことを確認した。(-15~+14%)
KUCA試験 (5回目)	コロナ放電利用型 SiC半導体型 マルチセルHe-3型	中性子検出器の代替候補が未臨界度測 定できることの確認	2021年6月28日~7月9日 実施済 今回の試験対象



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - a. 試験計画

表 未臨界度測定のための中性子検出器の候補

	No.	検出器名称	提供元	分類	備考
	1	核分裂電離箱	较分裂電離箱 Photonis		PCV内部調査で採用が検討されている中 燃子検出器
í	2	改良小型B-10 比例計数管	IRID∕ Hitachi-GE		(関連事業(*)で検討されているもの)
i	3 前	B-10比例計数管 記PJまでに試験実施済	CETD		臨界Pjで検討を進めてきている
今 	ー ー 回の試験 4	<mark>対象</mark> He-3比例計数管 (マルチセル型 He-3比例計数管)	<i>━ ━ ━ ━ ━ ━ ━ ━ = </i> ガス 数管 レ型 CETD 検出器 数管)	ガス 検出器	中住子検出品(ファインマン低法による木 臨界度測定に使えることが確認されてい るもの)
I	5	B-10コロナ放電利用型検出器	RosRAO		
	6	He-3コロナ放電利用型検出器	RosRAO		PCV内部調査で採用が検討されている中 サス検出器
i	7	SiC半導体型検出器	IPL	业道体	(関連事業*で検討されている、耐放射線
	8	CMOS検出器	IRID⁄ Hitachi-GE	十 等 体 検出器	性の高い中性子検出器)

IRID

(*)関連事業「燃料デブリ・炉内構造物取り出しの基盤技術開発事業(小型中性子検出器の開発)」

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - b. 試験準備 · 手配

今回のKUCA試験で性能評価した中性子検出器の外観



コロナ放電利用型 中性子検出器(B-10/He-3)



マルチセル型He-3比例計数管



 $50 \times 50 \times 540$ mm

SiC半導体型 中性子検出器



(参考;今回は試験に用いていない)



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

No.34

7.1 現場運用手順の開発

7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認

c. 要素試験

今回のKUCA試験体系

- 濃縮ウランとポリエチレン(固体減速材)を組み合わせた燃料体により、試験炉心を構成
- 試験対象の中性子検出器を燃料体に隣接して配置し、中性子カウントの時系列データを採取して、 ファインマンα法による分析を実施





実際の試験の様子

KUCA試験炉心と検出器の配置図(keff=0.95)



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - c. 要素試験





理論式でフィッテイング(赤線)してα(即発中性子減衰定数)を求める。

測定された α と事前に計算したI、 β よりkeffを求める。

上記で得られたkeffと、解析コードで計算したkeff(参照解) を比較した。



IRID

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - c. 要素試験

今回のKUCA試験結果(コロナ放電利用型、マルチセル型)

- コロナ放電利用型、マルチセルHe-3型検出器について、従来のB-10比例計数管と同程度の精度で未臨界 度測定できることを確認した(図、表)。
- マルチセルHe-3型検出器については、計数指示値が変動して動作不安定となる事象が確認された。



図 測定値と参照値の差(コロナ放電利用型、マルチセル型)

MVPコードによるKUCA試験体系のkeff計算は臨界状態で0.5%dk程度過大評価する傾向があるので、これを補正している

表 各検出器の測定結果(keff=0.95)

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - c. 要素試験

今回のKUCA試験結果(SiC半導体型)

 SiC半導体型検出器で取得されたデータをファインマンα法で処理し、未臨界度を評価した。下図表に示す 通り、keffが0.9近傍であれば、概ね1%dk程度の差で未臨界度を測定可能であることを確認した。未臨界度 が深い場合では、参照値との差が4.8%dk程度まで拡大するが、従来のB-10比例計数管と同程度の精度で 未臨界度測定できることを確認した。



表 各試験体系での測定結果

試験炉心	参照值	測定値	差(%dk)	備考
Case1-1 (keff=0.95)	0.948	0.944	-0.4	
Case1-2 (keff=0.97)	0.962	0.958	-0.4	
	0.979	0.968	-1.1	パルス弁別
$(k_{off} = 0.08)$	0.979	0.958	-2.1	パラメータを
(Kell=0.96)	0.979	0.981	0.2	変えた測定
Case1-4 (keff=0.70)	0.681	0.729	4.8	

参照値: MVPによる炉心解析値

図 測定値と参照値の差(SiC半導体型中性子検出器)



7.1 現場運用手順の開発

7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認 c. 要素試験

耐ガンマ線試験の概要

【試験目的】

- 未臨界度測定の候補となる中性子検出器について、どのくらいの強度のガンマ線量率まで中性子を弁別できるか、中性子弁別可能なガンマ線量率の上限を確認する。
- 高ガンマ線環境において、ファインマンα法による測定が可能か、確認する。



実際の試験の様子





©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - c. 要素試験

耐ガンマ線試験結果の例 (B-10コロナ放電利用型検出器の波高弁別特性)



- 左図の測定結果より、ガンマ線と中性子を分離可能なディスクリレベルとして600mVを設定。
- ガンマ線による中性子検 出感度の低下は、10Gy/h で47%であった。
- この検出器感度でファイ ンマン α 測定できるか、確 認した。(次頁)





- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - c. 要素試験

SiC半導体型検出器 耐ガンマ線性能確認試験(1/2)

試験内容	確認内容·判定基準		結果	
 ① γ 線除去の確認 1.5×10¹³Bqの⁶⁰Coを照射できる設備を有するNPL(National Physical Laboratory)にて実施。(下図参照) 100Gy/hまでの照射におけるデータを採取し、中性子とγ線に起因する 	γ線と中性子の弁別が 可能なパルス識別設定 ができること	パルス高 メータで の 行 た お ま て ら	さ、幅、立ち上が より、 γ 線と中性 ることを確認した 、 γ 線を中性子と あり、現場での使 れる。	り時間などのパラ 子のパルス識別が 。 誤認識する確率は、 用には支障がない
ノイズのパルス形状を評価した。		gamma Sa D	98.2%	1.8%
SiC detector BiC detector		neutron	6.2%	93.8%
			gamma	neutron Predicted Class



KI

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認
 - c. 要素試験

SiC坐道休刑倫出哭 耐ガンフ線性能確認試驗(2/2)

試験内容	確認内容·判定基準			結果					
②γ線積算線量の影響	照射後に問題なく動作 することを確認する。			合計63kGyの積算線量照射後も正常に動作する ことを確認した。(α線源による波形確認、計数率					
6540Gy/hまでの60Coを照射できる				の確認を実施)					
設備を有するDCF (Dalton Cumbria				昭射後でも、漏れ雷流が有音に増加する傾向け					
				応辺で=					
Facility of Univ. of Manchester)				確認できり、その増加をIMGyまで外揮して考えても十分問題なく動作できると判断できた。					
にて実施。									
センサーチップとプリアンプを含むテ	DCFにおけるv線照射試験総						补 結果		
ストボードへの照射を実施。(下図									
チャンバー内に設置)		Test No	Time	Dose (Gy/hr)	Duration (m)	Test Dose (Gy)	Accumulated Dose (Gy)		
施設利田可能範囲での積質線量を		1	12:35	60	30	30	30		
		2	13:07	114	30	57	87		
催認する。		3	13:20	27	30	13.5	100.5		
		4	13:55	275.4	30	137.7	238.2		
		5	15:16	275.4	30	137.7	375.9		
		6a-f	15:51	275.4	60	275.4	651.3		
		7	17:00	275.4	990	4544.1	5195.4		
		8	9:30	275.4	30	137.7	5333.1		
		11a-c	12:05	275.4	30	137.7	5470.8		
		12	12:50	571.8	20	190.6	5661.4		
		13	13:27	1386	20	462	6123.4		
		14	14:35	2796	20	928	7051.4		
		15	15:28	6540	20	2180	9231.4		
		16	17:00	3270	990	53955	63226.4		
		17	11:25	120	30	60	63286.4		
		18	12:55	120	30	60	63346.4		
				Time:時刻、Dose:照射時線量率、					
			Duration	Duration:照射時間、					
	Test Dose:各Test毎の積算線量								



注意)この試験は、同じSiC半導体型検出器を用いたPCV詳細調査用検出器で行われた確認試験である。

7.1 現場運用手順の開発

7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認

d. まとめ

分 類	項目	要求仕様	核分裂 電離箱	改良 B−10	B−10 比例計数 管	マルチセル He-3 比例計数管	B-10 コロナ	He-3 コロナ	SiC 検出器	CMOS 検出器
現場環境への適合性	雰囲気 環境	水中もしく は湿度 100 %	O IP68*1	O IP68*1	〇 水封ケース で担保	〇 水封ケース で担保	O IP68*1	O IP68*1	O IP68*1	O IP68*1
	ガンマ線 線量率 (平均値)	10 Gy/h	O 1 × 10 ⁴ Gy/h* ²	O 650 Gy/h	O 30 Gy∕h*³	× * ³ (30 Gy/h* ⁴)	O 10 Gy/h ^{*3} (700 Gy/h ^{*5})	∆ 0.5 Gy/h ^{*3} 遮蔽で対応 (2.5cm厚)	O 100 Gy/h	O 1000 Gy/h
	ガンマ線 線量率 (最大値)	100 Gy/h	〇 同上	〇 同上	ム 遮蔽で対応 (1cm厚)	× *3	ム 遮蔽で対応 (2cm厚)	ム 遮蔽で対応 (4.5cm厚)	〇 同上	O 同上
	積算線 量 (使用期 間)	0.6MGy以 上 (8か月間)	O 1000 MGy	〇 >1MGy (プリアンプ 込み)*6	O 1MGy* ⁷	∆* ⁸ 0.5 MGy	0.64 MGy ^{∗9}	データなし B-10コロナと 同等と推定	O 1 MGy * ¹⁰	× 0.013 MGy
	雰囲気 温度	50 °C	О 300 °С	O 100 °C	О 50 °С	О 50 °С	О 50 °С	О 50 °С	О 50 °С	∆ 40 °C

*)注記は別ページ参照



性能評価(1/3) O:適合、Δ:条件付きで適合、×:不適

7.1 現場運用手順の開発

7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認

d. まとめ

性能評価(2/3)

○:適合、△:条件付きで適合、×:不適

分 類	項目	要求 仕様	核分裂 電離箱	改良 B−10	B−10 比例計数管	マルチセル He-3 比例計数管	B-10 コロナ	He-3 コロナ	SiC 検出器	CMOS 検出器
未臨界度測定への適合性	熱中性子 感度* ¹	10 cps/nv	× (2.5本)* ¹² (5265cm3)* ¹¹	〇 (50本) (192cm3)*11	〇 (6本) (730cm3) ^{)*11}	〇 (6本) (0.5本) (642cm3)*11 (693cm3) *11		〇 (1本) (120cm3)* ¹¹	O (-)* ¹³	× (1250体)* ¹¹ (15708cm3)
	(検出器単体の熱中性子 感度)		4 cps/nv ^{*14} @100Gy/h	0.2 cps/nv @100Gy/h	1.7 cps/nv @0Gy/h 0.8 cps/nv @28.8Gy/h ^{*3}	21 cps/nv @0Gy/h ^{*4} 0.2 cps/nv @0Gy/h ^{*3}	1.9 cps/nv @0 Gy/h 0.6 cps/nv @8 Gy/h * ³	11 cps/nv @0 Gy/h 7.2 cps/nv @0.6 Gy/h ^{*3}	0.05cps/nv /チッフ [°] @70Gy/h ^{*13}	0.008 cps/nv @100Gy/h
	(検出器単体の大きさ)		Φ80mm × 419mm ^{*14}	Ф 7mm × 100mm	Ф 25.4mm × 245mm	Ф 76mm × 283mm	Ф 25.4mm × 260mm	Ф 25.4mm × 260mm	*13	Ф 20mm × 40mm
	パルス幅(検 出器)	2000 nsec 以下	0	〇 1000 nsec (プリアンプ 方式依存)	〇 400 nsec以 下	〇 800 nsec 以下	O 2000 nsec	O 1800 nsec	O ^{∗15} 4000 nsec	-
	識別可能な 隣接パルス 間隔(回路系)	100 nsec 以下	0	〇 1000 nsec (プリアンプ 方式依存)	O 100 nsec	O 100 nsec	O 100 nsec	O 100 nsec	O 100 nsec	-
	パルス出力 遅延時間のバラ つき(回路系)	10 ns 以下	0	確認中	O 10 nsec	O 10 nsec	O 10 nsec	O 10 nsec	O 10 nsec	-

*)注記は別ページ参照

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning
- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認

d. まとめ

分 類	項目	要求仕様	核分裂 電離箱	改良 B−10	B−10 比例計 数管	マルチセル He-3 比例計数管	B-10 コロナ	He-3 コロナ	SiC 検出器	CMOS 検出器
遠取いの合	ユニッ トの 大きさ	Φ700 mm × L1000 mm 未満	O 5265 * ¹⁶ cm3	O 192 * ¹⁶ cm3	O 730 * ¹⁶ cm3	O 642 * ¹⁶ cm3	O 693 * ¹⁶ cm3	O 120 * ¹⁶ cm3	O*17	O 15708 * ¹⁶ cm3
	ユニッ トの重 量	50~100 kg	〇 遮蔽不要	〇 遮蔽不要	∆ 遮蔽1cm	_	∆ 遮蔽2cm	× 遮蔽4.5cm	〇 遮蔽不要 *18	-
総合評価		<mark>適さない</mark> (熱中性子 感度が低 いため)	1F現場で の未臨界 度測定に 適している	1F現場で の未臨界 度測定に 適してい る	現状では適さ ないと評価 (動作不安定 のため)	1F現場で の未臨界 度測定に 適している	<mark>適さない</mark> (遮蔽厚さ が大きす ぎるため)	1F現場で の未臨界 度測定に 適している	<u>適さない</u> (熱中性子 感度が低く 積算線量 が低いた め)	

性能評価(3/3)

○:適合、△:条件付きで適合、×:不適

*)注記は別ページ参照

IRID

○、△のみで×が無ければ「適している」と評価

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認

d. まとめ

性能評価 注記一覧

- *1 JIS/IEC規格で防水性能をあらわす指標。IP68は水中での継続使用が可能。
- *2 MIRION社CFUG08
- *3 耐ガンマ線試験の実測値
- *4 ベンダー評価
- *5 ベンダー評価 Digital Signal Processing モード 燃料デブリのガンマ線に対して未検証
- *6 60Co線源を用いプリアンプ位置の線量率を2.3kGy/hとして照射試験を実施した。積算線量1MGyにおいて計測可能との結果を得た。 平成30年度補正予算「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模のさらなる拡大に向けた技術の開発」最終報告会 資料No.840 参照。
- *7 プリアンプは遮蔽体付きでPCV内に設置する方式のため、センサのみの評価値である。同一タイプの型式仕様に基づいた値であり、当該試作品での 照射は未実施。
- *8 プリアンプは遮蔽体付きでPCV内に設置する方式のため、センサのみの評価値である。同一タイプの型式仕様に基づいた値であり、当該試作品での 照射は未実施。
- *9 プリアンプは遮蔽体無しでPCV外に設置する方式のため、センサのみの評価値である。関連事業「燃料デブリ・炉内構造物取り出しの基盤技術開発 事業 (小型中性子 検出器の開発)」において、同一タイプ試作品の照射試験結果に基づいた値であり、当該試作品での照射は未実施。
- *10 ベンダー評価(工場検査の結果から評価)。6540Gy/hまでの60Coを照射設備で、センサーチップとプリアンプを含むテストボードへの照射を実施 (追加の遮蔽は施さず)。合計63kGyの積算線量照射後の挙動変化から1MGyまでの使用可能性を確認したもの。
- *11 検出器ユニットに組み上げた際に達成できる感度を比較するため、10cps/nvを得る検出器の本数分の体積を記載。
- *12 サイズアップには核物質規制上の制約が生じる可能性あり
- *13 複数のセンサーチップで検出器を構成するが、チップ1個当たりの感度は構成によって変化する。ここではKUCA試験に使用した検出器の典型的な値 を記載している。10cps/nvを得るための遮蔽、減速体などを含んだ全ユニット体積は4000cm3程度となる見込みである。
- *14 MIRION社CFUG08
- *15 複数検出器が独立で測定を行う構成であるとともに、パルス波形分析により重畳したパルスを分離可能であるので、パルス幅の大きさは数え落とし などの悪影響を及ぼさない
- *16 遮蔽厚さと、気中の場合は減速材ポリエチレンの大きさが加わるが、それを考慮しても要求仕様を満足すると評価
- *17 10cps/nvを達成するためには、遮蔽や減速体などを含んだ、ユニット全体の体積は、4000cm3程度となる見通し
- *18 プリアンプ部分などには必要に応じて遮蔽を行うが、それを考慮してもユニット重量は20kg未満となる見通し



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.2 中性子検出器の未臨界度測定への適用性確認 d. まとめ

【成果】

- ✓ 3種類の新型中性子検出器(コロナ放電利用型、SiC半導体型、マルチセルHe-3型)について、KUCAにて未臨界度測定試験を実施して、従来のB-10比例計数管と同程度の精度で未臨界度測定できることを確認した。
- ✓ コロナ放電利用型、マルチセルHe-3型検出器についてガンマ線環境下の中性子測定試験を行い、中性子弁別可能なガンマ線量率の上限を確認した。また、高ガンマ線環境において、ファインマンα法による測定が可能であることを確認した。
- ✓ 1F燃料デブリ取り出しの現場で未臨界度測定を行うための中性子検出器候補について、
 現場環境への適合性、未臨界度測定への適合性、遠隔取扱いへの適合性、の観点から
 試験評価を行い、以下を選定した。
 - ➢ B-10比例計数管(従来型/改良小型)
 - ▶ B-10コロナ放電利用型
 - ➢ SiC半導体型



7.1 現場運用手順の開発

7.1.3 中性子吸収材の運用手順

【課題】

関連事業^(*)において、非溶解性中性子吸収材を燃料デブリに投入する方法が検討されている。(図1)燃料 デブリ取り出し工法チームと運用手順やスループットを協議するためには、中性子吸収材散布や投入装置 運用の手順を具体化する必要がある。

【実施内容】

- 関連事業^(*)で検討された燃料デブリ取り出し工法と加工・回収装置に対して、非溶解性中性子吸収材を燃料デブリに散布する 手順をステップ図に整理する。
- 燃料デブリ加エシーンに対する適用条件、吸収材の使い分け、 事前投入の有効性、投入装置の小型軽量化、について検討する。
- 臨界近接監視の運用手順(項目7.1.1)と併せて、全体の手順の 運用性、成立性を評価する。

【目標】

非溶解性中性子吸収材の現場運用手順を策定し、燃料デブリ取り出し工法チームが取り出しシステムの設計やスループットの検討に活用するための情報を提供する。





水ガラス/ Gd2O3造粒紛

No.48



固体(粉体)向け投 入装置の例



図1 燃料デブリへの吸収材投入のイメージ

(*)関連事業「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」(2019・2020年度)



No.49

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.3 中性子吸収材の運用手順
 - a. 前提条件の整理

吸収材の使い分け方法

- 燃料デブリの形状は、棒状、粒状など、様々な形状が想定される。様々な燃料デブリ形状に対応して、中性子吸収材も最適なタイプを使い分ける方針がこれまでに示されている。
- 非溶解性中性子吸収材は、固体タイプと、時間経過により液体から固体へ固化するタイプ(水ガラスタイプ)に分けられる。水ガラスタイプは、投入直後に流動性・粘性を有するため、残存燃料(切株燃料)が垂直に林立するような場合(図5)、燃料デブリの間隙が小さい場合(図3、4)、燃料デブリ表面の凹凸が大きい場合(図6)には有効である。



図1 小石状の燃料デブリに固 体タイプの吸収材を使用



図2 岩盤状の燃料デブリに固体タイプの吸収材を使用



図3 小石状の燃料デブリに液体→固化タ イプの吸収材を使用



図4 岩盤状の燃料デブリに液体 →固化タイプの吸収材を使用



図5 棒状の燃料デブリに液体 →固化タイプの吸収材を使用



図6 凹凸の大きな燃料デブリに液体→固化タイ プの吸収材を使用

7.1 現場運用手順の開発

7.1.3 中性子吸収材の運用手順

a. 前提条件の整理

吸収材と燃料デブリが混合する効果

- ・加工によって燃料デブリと吸収材が混合する場合の吸収材の効果を解析評価した。
- ・取り出し領域は、加工によって燃料デブリ(UO2)が粒となり、隙間に水が浸入して臨界になる条件とした。
- ・中性子増倍率が最大となるのは、燃料デブリの体積占有率が20vol%で水が80vol%の条件である。(図1)
- ・吸収材(Gd2O3;粒)を混合するとわずか3vol%で未臨界になる(図2)。
- ・吸収材の粒径は1cmよりも1mmの方が有効であることが示された。





No.51

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.3 中性子吸収材の運用手順
 - a. 前提条件の整理

吸収材を燃料デブリ上に配置する効果

 ・20cm幅のリング状の吸収体を仮定して、取り出し領域を拡大する効果が得られるか、解析評価した。
 ・吸収材を燃料デブリ表面に回収可能な形で配置した場合、反応度低減効果は高々2%△k程度であり、 取り出し領域を2cm拡大できるものの(一辺16→18cm)、効果は小さい。



図1 解析モデル

(*1)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、制限の緩和が期待される)。

IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

平成29年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」燃料デブリ・炉内構造物 の取り出し工法・システムの高度化(臨界管理方法の確立に関する技術開発)より

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.3 中性子吸収材の運用手順
 - a. 前提条件の整理

燃料デブリの隙間への吸収材の侵入

- ・燃料デブリを模擬した試験体(粒状溶岩;直径数cm程度)に固化体タイプ(水ガラス/Gd2O3造粒 紛材)の吸収材を滴下して、吸収材が燃料デブリの隙間に奥深く侵入して付着することを確認し た。
- ・固体タイプ(粒状)の吸収材については、粒径が1mm以下であり、比重は3~4で水よりも十分大きいため、1mm以上の隙間に侵入すると考えられる。



粒状溶岩への付着試験の様子 平成27年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」(燃料デブリ臨界管理技術の開発)より



図1

7.1 現場運用手順の開発7.1.3 中性子吸収材の運用手順a. 前提条件の整理



(b) 試験前後外観(上面)

(*1)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、制限の緩和が期待される。

燃料デブリと吸収材の加工による混合

・燃料デブリを模擬した試験体(MCCI模擬)に固体タイプ吸収材を散布した状態で、水中チゼル加工する試験を実施。
 ・破砕後に表層の吸収材を除いて、燃料デブリ破砕片の領域に吸収材が混入していることを確認した。



平成29年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」燃料デブリ・炉内構造物の取り出し工法・システムの高度化(臨界管理方法の確立に関する技術開発)より



IRID

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.3 中性子吸収材の運用手順

b.手順の検討

7.1.3.bの実施内容の概要

燃料デブリ取り出し工法チームと運用手順やスループットを協議する中で、課題として 挙げられた6項目について、検討を実施した。

①吸収材使用の判断、レベル1への復帰手順(→No.55)

②吸収材の供給装置の仕様(→No.56~57)

③吸収材の運用プロセス(→No.58)

④吸収材の搬入出のプ ロセス(→No.59)

⑤固化型吸収材の硬化時間(→No.60)

⑥吸収材の事前散布の有効性評価(→No.61)





IRID

7.1 現場運用手順の開発

7.1.3 中性子吸収材の運用手順

b. 手順の検討 ②吸収材の供給装置の仕様(供給機構の簡素化)

- 関連事業^(*1)において見直された吸収材の 必要量(表)に基づき、吸収材の供給装置 の仕様を見直して、体積を約半分に小型 化した。(図1、2)
- 供給装置は安全系とは異なるが、燃料デ ブリを未臨界に維持するためのものである ため、燃料デブリ取り出し装置と同等の高 い信頼性が求められる。

非溶解性中性子吸収材	吸収材重量 ^{(*2)(*3)} (kg/日)	吸収材容量 ^{(*2)(*3)} (リットル/日)
Gd ₂ O ₃ 粒子	6.4	1.5
水ガラス/Gd ₂ O ₃ 造粒粉材	6.3	3.0

表吸収材の必要量

(*2)1日あたりの燃料デブリ取り出し目標を300 kgと仮定する。 投入された吸収材の50%が有効に機能するものと仮定する(安全率2倍) (*3)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、制限の緩和が期待される(No.87)。



(*1)関連事業「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」(2019・2020年度)





図2 固化体タイプ(水ガラス/Gd₂O₃造粒紛材)用の供給装置

- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.3 中性子吸収材の運用手順
 - b. 手順の検討 ②吸収材の供給装置の仕様(投入範囲の確認)
- ・固体タイプの吸収材投入装置を対象に、モータおよびスクリューを排除し、ホッパーに弁を直接取り付け ることで投入機構を簡素化しても安定的に吸収材(B・Gd入りガラス材)を投入可能か検討した。
- ・装置出口径が最も細いタイプでは、含水状態の吸収材で閉塞が発生したが、それ以外のタイプでは安定的に供給できることを確認した。また、水深が深くなる、装置出口から水面までの距離が離れるなど投入目標箇所の距離が離れるにつれて拡散範囲が広がる傾向を確認した。
- ・実運用時の過剰投入による廃棄物量増加を防止する観点から装置出口と投入箇所はなるべく近い方が 良いと考えられ、詳細設計においては装置自体が多少水没する環境でも動作することも含めた検討をす る必要があると考える。



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

7.1 現場運用手順の開発
7.1.3 中性子吸収材の運用手順
b. 手順の検討 ③吸収材の運用プロセス

- 吸収材の現場運用において想定されるプロセスを検討した(表1、2)。
- 固化体タイプ吸収材(水ガラス)の場合には、原材料の 混錬が必要になること、また、使用後の投入装置の水洗 浄が必要になるため、固体タイプよりも運用プロセスが 多くなる。

表1 固体タイプ(Gd_2O_3 粒子、B・Gd入ガラス材)の運用プロセス

No.	運用プロセス	説明
1	吸収材の保管貯 蔵	B・Gd入ガラス材、またはGd2O3粒子は、吸収材と して直ちに使用できる状態で保管されている。
2	吸収材の計量	作業に必要な吸収材の量を計量する。
3	投入装置に吸収 材を装填	吸収材を投入装置のホッパーに装填する。
4	現場へ投入装置 を移送	吸収材を装填した投入装置をマニピュレータに接 続し、燃料デブリ取り出し現場の直上まで移送す る。
5	燃料デブリへ吸 収材を投入	燃料デブリ取り出し現場の直上から吸収材を投 下し、燃料デブリ表面に散布する。
6	投入装置の帰還	投入終了後、投入装置を燃料デブリ取り出し現場 から所定位置に帰還させる。

表2 固化体タイプ(水ガラス/ Gd_2O_3 造粒紛材)の運用プロセス

No.	運用プロセス	説明
1	原材料の保管貯蔵	水ガラス中性子吸収材の原材料は、①水ガラス、②ガド リニア造粒粉、③セメント、④第一リン酸Na、⑤水の5種。 これらを作製場所に一時保管する。④と⑤は混ぜ合わ せて水溶液として保管可能。
2	原材料の計量	吸収材の塗布量に必要な原材料をそれぞれ計量する。 タンク保管する原材料を専用のスクイーズフィーダで混 錬機に所定量投入する方法もある。
3	原材料の混錬(*)	混錬機で原材料を混錬し、水ガラス中性子吸収材を作 製する。
4	投入装置に吸収材 を装填	混錬機で作製した水ガラス中性子吸収材を投入装置の ホッパーに装填する。
5	現場へ投入装置を 移送	水ガラス中性子吸収材を装填した投入装置をマニピュ レータに接続し、燃料デブリ取り出し現場の直上まで移 送する。
6	燃料デブリへ吸収材 を投入	燃料デブリ取り出し現場の直上から水ガラス吸収材を 投下し、燃料デブリ表面に塗布する。
7	投入装置の帰還	塗布終了後、投入装置を燃料デブリ取り出し現場から 所定位置に帰還させる。
8	投入装置の洗浄 ^(*)	使用した混錬機および投入装置を水で洗浄し、付着した 水ガラス吸収材を洗浄する。洗浄水を回収保管する。

(*)赤字は固化体タイプに特有のプロセスであり、固体タイプでは不要である





- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.3 中性子吸収材の運用手順
 - b. 手順の検討 ④吸収材の搬入出のプロセス
- 固体タイプ吸収材について、保管から使用、回収に至る搬送手順を検討した(図1、2)
- R/Bの限られたスペースを節約するため、吸収材は別の保守用建屋で保管、準備する。汚染された吸収材投入装置を建 屋間移送するために、関連事業^(*)で開発された搬送装置(モバイルセル)を利用する。モバイルセルは、燃料デブリを収納 したユニット缶を移送するためのものである。
- 固体タイプ吸収材を準備してから、燃料デブリに投入して、投入装置を回収するまでの搬送に要する時間は、往路1.5時間 +帰路3時間程度(洗浄、搬出エリアの空気入替のため)=合計4.5時間程度と見積もった。
- あらかじめメンテナンスエリアに投入装置を準備しておけば、1時間以内に投入可能。



■
R
I
D
(*)関連事業「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」(2019・2020年度)

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

上取り出し工法(モバイルセル方式)の固体タイプ(Gd粒子)の例

7.1 現場運用手順の開発

7.1.3 中性子吸収材の運用手順

- b. 手順の検討 ⑤固化型吸収材の硬化時間
- 搬送時間に対して、固化体タイプ吸収材(水ガラス/Gd₂O₃造粒紛材)の課題が明らかになった。
- 投入までに固まらないように水ガラス吸収材を調整する必要がある(~2時間)。また、投入後に容器内部に 残った残渣を洗浄するまでに固まらないように調整する必要がある。(ドライヤ・セパレータ・ピット(DSP)で洗 浄する場合3時間程度、保守建屋で洗浄する場合6時間程度)
- 投入および洗浄が可能な粘度の範囲は0~5000[mPa・s]である。
- 硬化遅延材(表)の濃度を変えて(0.95~1.87wt%)試験を行い、5000[mPa・s]に到達するまでの時間を測定 した。
- 試験の結果、硬化時間を5時間以上遅らせられる見通しが 得られた(図)。6時間には少し不足しているが、今後搬送 プロセスを詳細検討すれば、成立する見込みはあると考 えられる。

原料	分類
主材	1号ケイ酸ソーダ(ボーメ比重55)
硬化剤	普通ポルトランドセメント
硬化遅延材	第一リン酸ナトリウム
水	イオン交換水
中性子吸収材	酸化ガドリニウム

表 水ガラス/Gd₂O₃造粒紛材の原料



図 水ガラス/Gd₂O₃造粒紛材の混合後の 経過時間と粘度の試験結果

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



- 7.1 現場運用手順の開発
- 7.1.3 中性子吸収材の運用手順
 - b. 手順の検討 ⑥吸収材の事前散布の有効性評価
- 燃料デブリ加工箇所以外での臨界リスク対応方法としての非溶解性吸収材の 適用性を検討した。具体的な臨界リスクには、機材や燃料デブリの落下がある
- 局所の未臨界度を測定できないため事前投入が対策案となる
- 例として大型輸送容器内での燃料落下に伴う臨界リスク防止への 有効性を評価した







©International Research Institute for Nuclear Decommissioning





7.1 現場運用手順の開発7.1.3 中性子吸収材の運用手順

d. まとめ

【成果】

✓ 燃料デブリ取り出し時の臨界防止について、非溶解性吸収材の使用の判断 /使用後の復帰手順/供給装置/搬送手順/事前散布、等の項目について現 場運用のイメージを具体化して、燃料デブリ取り出し工法チームが取り出し システムの設計やスループットの検討に活用するための情報を提供した。



7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発

【課題】

関連事業^(*1)で開発された非溶解性中性子吸収材のうち、水ガラスタイプの吸収材(以下、水ガラス材)は粘 性固化体であり、<u>燃料デブリ表面を覆って付着</u>する(図1)。

燃料デブリ表面を水ガラス材が覆っているような場合(図2)、<u>燃料デブリの乾燥を阻害</u>する懸念が指摘 されている。

【実施内容】

- 関連事業^(*2)で得られた燃料デブリの乾燥プロセスにおける条件を 参考に、<u>水ガラス材を被覆した試験体の含水率変化を測定した</u>。
 - ▶ 試験体には、UO₂と同様の乾燥挙動であったAl₂O₃の多孔質セラミックスを採用。
 - 今和3年度の試験では、外気と接触する面を完全に被覆した 条件で試験を実施した。
 - ▶ 乾燥状態の<u>目標値を含水率0.5 vol%に設定</u>

(燃料デブリ0.1wt%に相当)



● 水ガラス材を被覆した燃料デブリの乾燥プロセスへの影響に関す るデータの取得

主要成果:

- 水ガラス材が付着した燃料デブリの乾燥プロセスへの影響に関する、定量的なデータを取得する。
- 現状の各PI(取り出し作業および乾燥処理関連)との調整により、取り出し作業工程の影響把握や乾燥条件の設定のために必要な、現場適用性に向けた検討に協力できる。
- ▶ 試験体の目標を「<u>含水率0.3wt%(ゼオライト換算)</u>」することで、収納缶PIで実施している燃料デブリの乾燥試験と同等の評価となり、本研究での成果のフィードバックが可能。

(*1)関連事業「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」(2019・2020年度) (*2)関連事業「燃料デブリの性状把握・処置技術の開発」(2014年度)、「燃料デブリの性状把握」(2015年度、2016年度)





図2 収納缶における燃料デブリの状態の推定と模擬試料



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning



- 7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 a.試験計画 固化型吸収材の概要
- 1号ケイ酸ソーダ(水ガラス)等に中性子吸収物質であるGd₂O₃造粒粉を混ぜたもの(表1)。
- 粘性のある液状で、時間が経過すると固化する。
- 平面と異なる凹凸表面や斜面に対して適用できる。燃料デブリに付着させることができる(図1)。
- 燃料デブリの形状は、棒状、粒状など、様々な形状が想定されており、中性子吸収材を使い分ける(図2)。

表1 水ガラスタイプの中性子吸収材の成分

201 11110 211		r i i i i i i i i i i i i i i i i i i i	水カフス材はナノリの	形状を向わり 使用 可能
成分	化学式	デブリ 吸収材 (国	(4)	
1号ケイ酸ソーダ	$Na_2O \cdot nSiO_2 \cdot xH_2O$	A C	Carriella States	
セメント	SiO ₂ , CaO, Al ₂ O ₃ , Fe ₂ O ₃ , CaSO ₄			CORLER A
第一リン酸ナトリウム	$NaH_2PO_4 \cdot 2H_2O$	小石状デブリに固体タイプ吸 収材を適用する例	小石状デブリに固化体タイプ吸 収材を適用する例	棒状デブリに固化体タイプ吸収材 を適用する例
水	H ₂ O			
酸化ガドリニウム	Gd ₂ O ₃			
		岩盤状デブリに固体タイプ吸 収材を適用する例	^{岩盤状デブリに固化体タイプ} 凹 吸収材を適用する例 2 中性子吸収材の使い分	凸の大きなデブリに固化体タイ 吸収材を適用する例 け 例
図1 凹凸表面。	を水ガラス吸収材で覆った例	燃料デブリ表面 デブリの乾燥を	面を吸収材が覆ってし <u>・阻害する</u> 懸念が指	いるような場合、 <mark>燃料</mark> 摘されている。

IRID

7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 b.試験準備 固化型中性子吸収材の燃料デブリ乾燥特性への影響評価 令和3年度試験実施概要



令和3年度の実施内容

- 水ガラス材に覆われた燃料デブリをイメージした試料を調製し、それらの評価に適した含水・乾燥試験システムを再構築
- 全体が水ガラス材に覆われた条件(最も保守的な条件)の試験を実施し、水ガラス材の影響の有無を確認
- ・ 水ガラス材の影響の定量的な評価に向けて、水ガラス材自体の性状分析を実施

IRID

- 7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 参考:過去の知見(燃料デブリの乾燥挙動の調査)(*1)
- ▶ 過去、収納保管PJと協力して、燃料デブリの乾燥挙動の評価に関する基礎研究を実施
- ▶ 燃料デブリの場合、多くのパラメータ(形状、材質、乾燥温度等)が乾燥挙動に影響すると予想されたため、独自に一元 化した表現・比較が可能な乾燥特性曲線に着目
- ▶ 比重が様々で含水率での比較ができない燃料デブリに適用するため、新たに乾燥速度と残留水の関係で評価する手 法を考案し、最適な図示方法を検討
- ▶ 水ガラス材と多孔質体の乾燥に至るまでのメカニズムは異なるが、乾燥速度への影響度合いを明確にすることで、 乾燥処理に与える影響を推察可能



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

No.66

(*1)関連事業「燃料デブリの性状把握・処置技術の開発」(2014年度)、「燃料デブリの性状把握」(2015年度、2016年度)

IRID

7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 b.試験準備 固化型中性子吸収材の燃料デブリ乾燥特性への影響評価 令和3年度試験の成果と課題

<u>成果と課題</u>

- 飽水状態の多孔質Al₂O₃(模擬燃料デブリ)は、水ガラス材が塗布された状態において も乾燥に至ることを確認
- 水ガラス材自体も、水分が放出されない状態まで乾燥に至ることを確認
- ▲ 水ガラス材の乾燥挙動は多孔質Al₂O₃単体とは異なる挙動を示しており、水ガラス材 中の結合水等の影響を示唆
- ▲ 水ガラス材の投入量(水分量)は乾燥時間にも影響を与えることを確認



令和4年度に解決すべき課題として、以下を設定

- ペレットスケールの検討だけでは、水ガラス材が燃料デブリの乾燥時間に与える具体的な影響が考察できない
- 乾燥プロセス検討に反映しやすいデータとするために、ス ケールアップの影響を調査
- 水の投入量と乾燥後重量の物質収支が一致せず、水素発生の観点からも水の存在状況の把握が必要
- 結合水等の影響評価のために、水ガラス材の乾燥後の組成の解明
- 水ガラス材の投入量(割合)の影響調査のため、乾燥時間 の定量評価に係るデータの取得



含水率の経時変化曲線

多孔質体+水ガラス材



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

No.68

- 7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 b.試験準備 スケールアップ試験概要
- 令和3年度の試験規模は、小規模スケール(10gオーダー)の試験体を対象とした乾燥試験であり、定量的なデータを得るため にはスケールアップは不可欠である。
- ラボスケールと同様の評価手法を用いてベンチスケール試験を実施することで、スケールアップ因子に対する知見を取得する。
 (実運用を見据えたパイロットスケール試験は、乾燥時間の変化に繋がる因子の特定に不向き)
 - 燃料デブリの処置技術(乾燥)開発の流れ



IRID

©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

(*1)関連事業「燃料デブリの性状把握・処置技術の開発」(2014年度)、「燃料デブリの性状把握」(2015年度、2016年度)



7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 c.要素試験 試験① 模擬燃料デブリ乾燥試験 ゼオライト+水ガラス材(5mm相当)の試験結果



7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 c.要素試験 試験① 模擬燃料デブリ乾燥試験 乾燥時間への影響評価 (注)乾燥終了時間

乾燥速度が0(mg/cm²·min)に到達するまでの時間

No.71



- ゼオライトに含水した水分と、水ガラス材に含まれる水分の総量が乾燥終了時間^(注)に影響することを 確認した。
 - ▶ 水ガラス材によるゼオライトの細孔や間隙の閉塞による乾燥処理への阻害は認められなかった。
 - 水ガラス材の投入により試験体の水分量が増大したことで、水ガラス材が無い条件と比較して乾燥終了時間が増加する傾向にあった。

(含水ゼオライトの体積の約5割が水ガラス材に置き換わった場合、100分程度)

● 試験体の乾燥速度は表面積が大きく寄与し、容器の寸法に依存する可能性が示唆された。

7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 c.要素試験 試験② 水ガラス材の結晶構造解析

X線回折法(XRD)、核磁気共鳴分析(NMR)を利用した構造解析 乾燥特性曲線の評価から、試験体は十分に乾燥状態に到達すること を示しているが、水分の残留重量が確認されている。 乾燥処理後の水ガラス材の結晶構造を明らかにすることで、水分の残 留重量の影響を考察する。

- 水ガラス材の様な非晶質領域の構造解析においては、XRD分析に よる構造解析が有効である。
 - ▶ 令和4年度の構造解析では非晶質領域の解析に適した分析装置で測定を実施。
- 分析試料表面の電気化学的特性の評価が期待できるNMRを用いて、XRDでは解析できない結晶構造(Si-Si結合のネットワーク形成状況)の違いを観測する。
- これらの構造解析により、水ガラス材中の非晶質領域を定性・定量し、水ガラス材の結合水の状態を理解する。

(静岡理工科大学に再委託の上、実施した)

⇒ 導出された水ガラス材の自由水と結合水の比率および結合水の 乾燥挙動をベンチスケール乾燥試験の結果に反映。



IRID



Quartz: シリカゲル (SiO₂·nH₂O)に類する化合物 Tobermorite: トバモライト(5CaO・6SiO₂·5H₂O)に類する化合物

- 共にセメント材やコンクリート材に存在するアモルファス(非晶質)成分として知られる、シリカゲルやトバモラ イトに類する構造を含むことを明らかにした。
 - ▶ 水ガラス材の主成分は、水中養生では強固な結晶体を形成していない様子が明らかになった。
 - ▶ 水中養生においては、水ガラス材の結晶水は非常に少ない組成であることが明らかとなった。

IRID

7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発 c.要素試験 試験② 水ガラス材の結晶構造解析 固体NMR分析 気相養生と水中養生の比較



- NMR分析の結果、Si-O₄四面体構造の高次元構造のピーク強度が増大する傾向を明らかにした。
- 中性子吸収材を含む固化体の非晶質は、細孔構造がないため、水を強く保持しない構造である。
 - ▶ 水ガラス材中に存在する水分は結晶水であり、この結晶水が水分の残留に影響していると示唆される結果を得た。
 - ▶ 結晶水は、放射線照射下で水素発生に寄与しないことが知られている^{1)、2)}。
 - 過去に実施した、水ガラス材に対するγ線照射試験の結果に同意するものである³。
- Gd₂O3の存在は結晶成長過程に影響せず、結晶構造内に保持される(中性子吸収効果を維持する)ことが示唆された。

1) 高橋賢臣,藤田智成,"水素ガス発生に及ぶセメント水和物試料中における水分の存在状態の影響",電力中央研究所報告,L11020,2013
 2) 塚本泰介,内山秀明,他, "燃料デブリ用収納缶の開発(9) γ線照射下でのコンクリート含有水の放射線分解による水素発生量の測定",原子力学会秋の大会,2D18,2017
 3) 石橋良,藤田敏之,他, "燃料デブリの臨界管理技術の開発(25) 非溶解性中性子吸収材の耐ガンマ線照射性能評価",原子力学会秋の大会,2H20,2016

7.2 固化型吸収材技術(水ガラス)の開発

d. まとめ

【成果】

試験① 模擬燃料デブリ乾燥試験(スケールアップ試験)

- ゼオライトに含水した水分と、水ガラス材に含まれる水分の総量が乾燥終了時間に影響することを確認した。
 - ▶ 水ガラス材によるゼオライトの細孔や間隙の閉塞による乾燥処理への阻害は認められなかった。
 - 水ガラス材の投入により試験体の水分量が増大したことで、水ガラス材が無い条件と比較して乾燥終了時間 が増加する傾向にあった。

試験② 水ガラス材の結晶構造解析

- XRD分析の結果、セメント材やコンクリート材に存在するアモルファス(非晶質)成分として知られる、シリカゲルやト バモライトに類する構造を含むことを明らかにした。
 - ▶ 水ガラス材の主成分は、水中養生では強固な結晶体を形成していない様子が明らかになった。
- NMR分析の結果、中性子吸収材を含む固化体の非晶質は細孔構造がないため、水を強く保持しない構造であることを明らかにした。
 - 実環境において使用する水ガラス材の結晶水に寄与する成分は微量である傾向にあり、それに含まれる結晶 水が燃料デブリの発熱で発生する水蒸気量も僅かなものであると推察する。
- 乾燥後の水ガラス材は結晶水が非常に少ない組成であり、また、水を強く保持しない構造であることを明らかにした。
 - ▶ 水ガラス材に対する放射線分解による水素発生に与える影響は限定的であることを確認した。

水ガラス材は燃料デブリの乾燥を阻害しないが、一方で、水ガラス材の存在により乾燥時間が延長となる結果が得られ たため、投入する水ガラス材量は必要最低限にするべきである。 また、乾燥処理後の水ガラス材は水素が発生しない組成であることを明らかにした。



7.3 臨界管理の全体まとめ

- ・前記7.1~7.2の検討を踏まえ、臨界管理の全体まとめとして、要求事項と監視手順を 整理した。
- ・臨界管理方法は、燃料デブリ取り出し工法に応じた手順を選定する必要があるが、
 考え方の統一を図るべく、いずれの場合にも守るべき基本的な要求事項を整理した。
 ・要求事項が適切かどうか確認するため、代表的な工法に展開した例を示した。
- ・臨界管理手順に組み込まれる臨界監視の手順を補足説明として、具体的な手順、判断基準の考え方などを整理した。

整理の項目

項目		要求
1)防用筒理の日的	・防用答理の日始と日標	臨界管理の目的
「加水日生の日内	・ 甌介官理の日的と日保	リスク特定
	・臨界近接要因の排除	未臨界の維持
		臨界到達防止
2) 臨界防止	・臨界近接が生じた場合でも、臨界に到達する前に終息させる	臨界近接監視(予測監視)
		作業中状態監視(常時監視)
	・想定される深い未臨界状態での異常の早期検知	長期的な監視
	・臨界が発生した場合でも早期検知・終息で事故レベルに至る前	臨界検知
3) 臨界検知と終息		臨界終息
	に争象で飛ぶっとる。	臨界終息後の処置
4)取り出し作業の実施条件	-	<u> </u>
5)取り出し物の収容	-	—



No.77

7.3 臨界管理の全体まとめ

構成

- ・全工法に共通の要求を整理(赤囲み)し、右側に、代表的な工法について具体的展 開を記載している(例を下表に示す)。
- ・各工法への展開は想定されるリスクごとに記載
 下(横)取り出し工法については、ホウ酸水なし、ホウ酸水常用、干渉物撤去に分けて整理している。
- ・臨界管理手順を補足説明として添付
 i)未臨界度測定、ii)予測監視、iii)常時監視、iv)臨界検知・終息

	臨界會	管理の要求事項	具体的展開:下横取り出し作業(ホウ酸水常用せず)			
項目	要求	要求(細目)	燃料デブリ過剰加エ	切削粉蓄積	(省略)	
2) 臨界防止	2-1)特定されたリスク について、未臨界維持 対策(臨界の発生防止 対策)を講じる。	2-1-1)(臨界管理担当者)臨界防止として①未 臨界の維持、②臨界到達防止の対策を講じる。 2-1-2)(臨界管理担当者)①未臨界の維持のた め、臨界近接の起因となる事象の発生防止、過 剰な臨界近接の抑制(添加反応度の抑制)、中性 子吸収材による未臨界維持などの対策を講じる。 2-1-3)(臨界管理担当者)②臨界到達防止のた め、臨界近接を監視し臨界に到達する前に作業 を停止する対策を講じる。ただし、①において、 取り出し対象物の臨界リスクが小さいと判断さ れる場合、あるいは中性子吸収材などで未臨界 維持の方法を強化する場合には、臨界監視を緩 和することも可とする。	取り出し作業が直接の起因 事象となる。よって、発生 頻度が大きと考え、①未臨 界の維持、②臨界到達防止 の対策をそれぞれ2-2)及び 2-3)にて講じる。 なお、対象物ごとの臨界管 理方法の選択を補足フロー 1に示す。	取り出し作業が起因事象 となるが、切削粉の発生 量から臨界量まで蓄積す るためには長期間を要す るとともに、特定箇所に 集中した蓄積などの、複 数の条件重畳が必要とな る。よって、発生頻度は 小さいと考えて、①未臨 界の維持対策のみ2-2)に て講じる。	(省略)	



7.3 臨界管理の全体まとめ

臨界管理の目的

- 「事故」を外部に通常レベルを超過する影響を及ぼす事象と定義
- ・臨界管理の目的を、「臨界を防止し、万一臨界が発生した場合でも臨界事故への拡 大を防止する」とする。

臨界リスクの特定

 ・各工法でリスクを分析・特定し、リスクごとの管理方法(リスクの特性・大きさ)に応じた 管理方法の選択を要求。

臨界管理の要求事項						
項目	要求	要求(細目)				
1)臨界管理の 目的	1-1) 臨界管理は、燃料デブリ取り出し作業に伴う臨 界を防止するとともに、万一、臨界が発生した場合 でもその影響を緩和し、臨界事故の発生を防止(臨 界事故への拡大を防止)する目的を持つ。地震時な ど自然災害はこの要求事項での管理対象外とする。	1-1-1) 臨界事故の定義 臨界に伴う放射性物質の追加放出により、通常レベルを超える 影響を生じる事象を臨界事故と定義する。 「通常レベル」は、敷地境界の一般公衆の被ばく量1mSv/年、 作業員の被ばく量50mSv/年とする(注1)。 1-1-2) 臨界の定義 実効増倍率(keff)=1.0をもって臨界とする。ただし、臨界事象 の不確定さを考慮し、各種対策の検討においてはkeff=0.95を 臨界の管理基準とする(注2)。				
	1-2) <mark>燃料デブリ取り出しに伴うリスクを分析し、特</mark> 定されたリスクごとに臨界を防止する対策と、万一 臨界が発生した場合の事故への拡大防止の対策を講 じる。	1-2-1)(臨界管理担当者)対象作業および工法について、臨界 リスクを特定する。 1-2-2)(臨界管理担当者)特定されたリスクに対して、独立し た臨界防止対策と臨界発生時の影響緩和(臨界事故への拡大防 止)対策を講じるものとする。				

注1) 通常レベルの定義は現在検討中の一例であり、安全の考え方の検討進捗に合わせて見直す。なお、敷地境界線量は、 1事象当たりの影響が燃料デブリ取り出しに伴う増加分を考量しても1mSv未満に収まることを目標とする。

注2) 臨界評価などでは各種不確定さを含めて、keff=0.95などを判断基準にする場合が多い。



7.3 臨界管理の全体まとめ

深層防護のレベルと対策策定の考え方

・安全管理の考え方では、「事故」を外部に通常レベルを超過する影響を及ぼす事象と定義しているのに合わせ、外部への影響でレベル分け(注1)をした。レベルを判断する手段を設けること、レベルの高い層への移行防止策、移行した場合の復帰策を設けることを対策の指針とした。注1)同じ臨界でも様々な核出力を取り得て、外部影響も変わり得るため、事故の基準を「通常を超える外部影響を生じる事象」とした(すなわち体系のkeffが1.0となることではない)。ただし、作業員の被ばくも超過しないように考慮する。

これまでの検討で、臨界発生時でも速やかに検知・終息することで、外部影響は、通常レベル を超えないことを確認している(下図)ことから、今後の設備や現場手順を考える際に、臨界時に も通常レベル未満とすることを目標としている。

レベル1: 通常状態

- レベル2: 異常な状態(物理的な臨界を生じているが、 外部影響は通常レベル未満)
- レベル3: 臨界事故状態(外部への影響が生じている 状態)
- ・なお、上記の考え方は、臨界を許容するものではない。 臨界防止のためには、後述のように、複数の手段を 講じている。



(*1)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、影響の緩和が期待される。

臨界時被ばく評価の例(平成28年度補助事業成果より)(*1)

7.3 臨界管理の会	全体まとめ 大規模取り出し	時の臨界管理方法(<mark>ホ</mark> ウ		逡水常用などのケースについ ◎考資料に示す
レ 異常	ベル1 (通常状態) 発生防止=臨界防止	レベル2(異常状態) 異常拡大防止=臨界事故防止	レベル3(事故) 事故の影響緩和	機能要求
keff	ſ	.0		
敷地境界線量		1m	Sv 5m	Sv
(未臨界維持) 取り出し作業制限	(臨界到達防止) 失敗 (臨界近接発生)	∖ Xe = 1 Bq∕cm ^{3 (} *) * 現行の実施計画で「臨界発生」	と位置付けられている状態	管理基準内に 未臨界度を維 持すること
未臨界度測定 臨界近招	加工前の予測監視、加工中の常時監視 監視(中性子検出器・ガスサンプリング系システム)	失敗(臨界発生)		想定以上の臨界 近接を検知して、 取り出し作業を 停止することで、 臨界を防止する こと
成功(中性・ 臨界近接 ** 事前にホロ	子吸収材などで未臨界度を深くし、 箇所の除去により通常状態へ復帰) (状況に応じて) ホウ酸水常用(**)へ移行)酸水を投入し、ホウ酸水中下で取り出しを行うこと	は 臨界検知 (ガスサンプリング系システム・中 性子検出器) 緊急ホウ酸水注入	」 失敗(通常レベル 超過)	臨界を検知し、 速やかに停止し、 通常レベル以上 の外部影響発生 を防止をするこ と
▲ 成功(臨界	 箇所の除去により通常状態へ復帰) 成功(臨界終息後、臨界発生箇所の除去に	こより通常状態へ復帰)	↓ ホウ酸水追加注入 給水停止による水位低下 放射性ガス放出抑制	ー般公衆・ 作業員過剰 被ば<防止
7.3 臨界管理の全体まとめ

・深層防護のレベルに対応する要求事項

レベル	要求機能	方法
レベル1 (通常状態) 異常発生防止 =臨界防止	[未臨界維持]→No.82 管理基準内に未臨界度を維持 する	[未臨界度測定]→No.84 臨界までの余裕を定量的に把握して作業着手 [取り出し作業制限] 過剰な反応度添加の抑制 [中性子吸収材による未臨界維持](オプション)→No.85 ホウ酸水、非溶解性吸収材常用
	[臨界到達防止] 臨界近接を検知し取り出し作業 を停止することで、臨界を防止す る	[臨界近接監視] (予測監視・常時監視)→参考資料 取り出し作業中の状態を監視し臨界に到達する前に 作業中断
レベル2 (異常状態) 異常拡大防止 =臨界事故防止	[臨界検知・終息] 臨界を検知し、速やかに終息さ せ、通常レベル以上の外部影響 発生を防止をする	[<mark>臨界検知・終息]</mark> 臨界検知、ホウ酸水注入での終息
レベル3 (事故) 事故影響緩和	ー般公衆・作業員過剰被ばく防 止	[臨界終息手段、外部影響緩和手段の確保] ホウ酸水注入でも臨界が終息しなかった場合の、補 完的終息手段、外部影響緩和手段の確保



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

7.3 臨界管理の全体まとめ

未臨界の維持

・未臨界の維持

現状の未臨界度を推定し、臨界までの余裕を確認したうえでの作業着手

・臨界近接要因の排除

燃料デブリ加工体積制限(4,000cm3^(*1)ごとの臨界監視の要求)

	臨身	早管理の要求事項	具体的展開:下横取り出し作業(ホウ酸水常用せず)
項目	要求	要求(細目)	燃料デブリ過剰加工
の商用たよ	2-2)未臨界の維持 臨界近接の要因を排除 し、作業中に未臨界を 維持する。	2-2-1) 未臨界の維持 実施する作業に伴う臨界近接を考慮しても未臨 界が維持されることを確認して作業に着手する。 2-2-2) 臨界近接の要因を排除する、また、過剰 な反応度添加が生じない作業方法を選択する。	作業開始前に、取り出しアームに搭載する未臨界度測定 用中性子検出器を用いて未臨界度を測定し、加工作業に 伴う反応度添加を考慮しても臨界とならないことを確認 してから作業に着手する。 →未臨界度測定手順 一定加工体積(4,000cm3) ^(*1) ごとに臨界監視(予測監視)を 実施するものとする。加工体積の不確定さは、予測監視
2)臨界防止		な反応度源加が生じない作業力法を選択する。 2-2-2-1)過剰な反応度の判断基準としては、未 臨界の維持(1回の添加で臨界に到達することの ないこと)、万一臨界となった場合でも即発臨界 とならない添加反応度量とする。	スパッ るものとする。加工体積の不確定さな、ア湖温税の判断基準に考慮するとともに、大規模取り出し前の段階で、余裕の妥当性を確認する。 臨界監視(予測監視)ごとの添加反応度を0.5%Δk/k以下とする。

その他の各要求についても同様の整理を実施。(予測監視、常時監視、長期的な監視、臨界検知と終息 手段、終息後の対応、取り出し作業の条件)

(*1)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、影響の緩和が期待される。





7.3 臨界管理の全体まとめ

・基本要求を基に、工法ごとに具体的な展開を図る。

ここでは、中性子吸収材(ホウ酸水)常用及び干渉物(非燃料デブリ)撤去時への展開

項目	要求	下横取り出し作業 (ホウ酸水常用せず)	下横取り出し作業 (ホウ酸水常時使用)	ペデスタル内干渉物撤去
1) 臨界管理 の目的	省略		共通	
	2–1) 特定されたリスクについて、未臨界 維持対策 (臨界の発生防止対策) を講じる。	主要リスク: 燃料デブリ過剰加エ/切削粉蓄 積/重量物落下/水位上昇	ホウ酸水により臨界リスクが低 減、ホウ素濃度低下が主要リス クとなる。	燃料デブリ加工量が少ないため、 リスクは低く、重量物落下が主 要リスクとなる。
2)臨界防止	2-2)未臨界の維持 臨界近接の要因を排除し、作業中に未臨 界を維持する。	未臨界度測定による余裕確認 燃料デブリ加工制限	濃度(6,000ppm) ^(*1) のホウ酸水 による未臨界維持	加工に伴う変化が小さいことか ら適用せず
	2−3)臨界到達防止 2−3−1)臨界近接監視(予測監視)	一定体積加工ごとに予測監視を 実施	ホウ素濃度モニタリング・維持	臨界リスクが小さいことから 適用せず
	2-3-2)作業中の状態監視(常時監視)	加工中の常時監視を実施	ホウ素濃度モニタリングのバッ クアップとして、中性子束の連 続監視 (常時監視) を行う。	想定外の状況も踏まえて、常時 監視を実施する。
	2-3-3)取り出し由の状能の長期的な監想	加工前後で想定以上の変化が生 じていないことの確認	_	_
		1/m、ガスモニタ指示値のトレン ド分析	同左(頻度を落として実施)	同左(頻度を落として実施)
3)臨界検知 と終息	3-1)臨界を検知し、速やかに臨界を終息 させて臨界事故への拡大を防止する。	PCVガスモニタを用いた臨界検知. 緊急ホウ酸水注入による臨界終 息	同左(臨界検知・ホウ酸水緊急 注入)	同左(臨界検知・ホウ酸水緊急 注入)
4)取り出し	4−1)上記の手段が機能していない状態で 取り出し作業を行ってはならない。	同左	同左	同左
作業の実施 条件	4−2)監視に使用する検出器は、適正に校 正され動作可能であることを確認してい ること	同左	同左	同左
5)取り出し 物の収容	取り出し物を、搬出容器(ユニット缶、廃 棄物容器)に収納する際には、特段の管理 (監視や吸収材添加などの処置)を実施し ない。	収納容器は形状管理で適切に臨 界防止が図られていることを前 提にする。	同左	同左

(*1)今後燃料デブリ性状の知見が得られれば、影響の緩和が期待される。

No.84

7.3 臨界管理の全体まとめ

未臨界度測定手順

項目	要求	考え方
1)目 的• 機能	・臨界までの余裕の定量的把握 ・予測監視の初期値設定(監視精緻化)	・十分な余裕を確認して取り出し作業に着手 ・予測監視精緻化(keff監視)により、運用可能範囲を拡大
2)測定対象	・臨界になり得る規模で水没している燃料デブリ(ペデ スタル内堆積物、RPV下部ヘッド堆積物)	・燃料デブリ加工規模が小さい場合には、予測監視and/or常時監視のみで対応可能
3)測定方法	・燃料デブリ近傍の中性子検出器により中性子パルス 時刻歴データ取得し、炉雑音法(ファインマンα法)を 適用	・ファインマン $lpha$ 法は、未臨界度測定の代表的な手法。
4)測定位置	・燃料デブリの塊の、少なくとも1点で測定 取り出し位置が別の塊に移った場合には再測定 ・10~20㎝程度掘り下げるごとに再測定	 ・燃料デブリの塊は測定位置によらず一つの未臨界度を持つ。 ・MCCI燃料デブリなど垂直方向で組成・性状が変化し得る可能性を考慮 ・中性子は全方位に等方に放出されるとは限らない。検出器がロボットアームの陰になることも考慮して、必要に応じて中性子測定シミュレーションを行い、検出器の配置を決める。
5)測定時間	・燃料デブリ状態(体系の大きさ)により1時間~数日と 想定	・現場の中性子束と検出器の感度から必要測定時間を見積り
6)測定結果に見込 む不確定さ	・未臨界度測定(即発中性子減衰係数α)の不確定さ 及びkeffへの換算の不確定さ(&*の不確定さ)を見込 んでおく。	・KUCA試験結果により不確定さを評価しておく。
7)判断基準の設定 方法	・測定されたkeffに、数回分の加工に伴う添加反応度 を加えても臨界にならないことを確認	・最初の1回の加工で臨界とならないことの確認(2回目以降は予測監視が臨界近接を監視 する)。
8)測定できない場 合の処置	・測定時間を増やして再測定 ・予測監視の監視をkeffではなく、1/mで行う。 場合により燃料デブリ加工体積を小さく制限して、予 測監視を行いながら段階的に規模を拡大していく。	 ・燃料デブリ体系の大きさ及び未臨界度の深さにより測定できないケースがある。 ・測定不能の原因を、未臨界度が深い場合(測定範囲外)とそれ以外の場合に区別する方法が必要
9)代替手段	・PCVガスモニタでのXe/Kr測定値の割合による未臨 界度推定方法	・1号機適用済み。2、3号機でも同手法による測定が望ましい。 ・中性子検出器による未臨界度推定との関係において位置付け、必要性を整理する。
IRID	予測監視手順について参考資料に示す	©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

No.85

7.3 臨界管理の全体まとめ 非溶解性中性子吸収材 投入手順

(臨界近接した燃料デブリに使用する例)

項目	要求	考え方
1) 目的·機能	 ・未臨界度測定、または予測監視によって、燃料デブリが臨界に近接したと認められた場合に、未臨界度を深くして通常状態に復帰させる。 	 ・大規模取り出し時の臨界管理方法(ホウ酸水なし)の異常発生防止に 対応している。
2)方法	 ・非溶解性吸収材を投入装置に充填して、ロボットアームで対象となる燃料デブリの上部に搬送し、上から燃料デブリ表面に散布する。 	・局所的に使用するため、対象とする燃料デブリ範囲が判明しているこ とが前提となる。
3)投入頻度	・必要が生じたとき。(不定期)	 日常的に使用するのではなく、臨界近接が認められた場合に使用する。
4)投入位置	・臨界近接していると認められた、局所的な燃料デブリ領域	・1日の燃料デブリ取り出し目標300kgに相当する範囲を目安とする。
5)投入時間	•1時間程度	・1日1回投入してから燃料デブリ取り出しを行う想定とする。 ・レベル1での運用なので、緊急性はない。
6)投入量の設定方 法	・吸収材のタイプ(固体or固化体)、投入する量、範囲を設定してから 現場投入する。 ・決められた量が決められた範囲に投入されたことを確認する。 ・投入後に未臨界度測定を行う。	・吸収材のタイプ、投入量、範囲を決める考え方と確認方法が課題。(→ 有効性評価) ・投入したことによる効果は未臨界度測定によって確認する。
7) 投入量不足の 対応	 ・決められた量と範囲が未達の場合には、満足するまで繰り返し吸収 材を投入する。 ・未臨界度測定の結果、効果が認められない場合には、吸収材のタ イプを変える。 	 ・固体タイプの吸収材が燃料デブリの隙間に入らず、効果が認められない場合には、固化体タイプの吸収材を投入することで効果が得られる可能性がある。
8) 有効性評価	 ・観測された燃料デブリ形状を模擬してシミュレーションによる臨界評価を実施して、吸収材の有効性を確認する。 	 あらかじめ想定される燃料デブリ形状の代表的なパターンを模擬して シミュレーションを実施しておくのが良い。この解析は、6)の投入量を 決める判断材料になる。
9)設備故障対応	 非溶解性吸収材投入装置がスタンバイしていることを、取り出し作業の条件として位置づける。 	・投入装置の故障自体は、臨界事象の起因とはならない。しかし通常 状態に復帰できないので、燃料デブリ取り出しは実施できない。
10)その他	 ・吸収材投入後に燃料デブリ取り出し作業を再開するための手順、 判断基準を定める。 	・未臨界度測定を行い、keffが判定基準より低いことを確認する。判定 基準は、作業による増加分を考慮して、0.95より小さい値とする。



- 7.3 臨界管理の全体まとめ まとめ
 - ・燃料デブリ大規模取り出し時臨界管理について、基本的な要求事項を整理した。
 臨界管理の目的
 未臨界維持 : 未臨界度測定、取り出し作業制限、中性子吸収材常用
 臨界到達防止 : 臨界近接監視(予測監視・常時監視)、長期的な監視
 臨界検知・終息: 臨界検知、ホウ酸水緊急注入による終息
 - ・臨界監視手順について整理した。 未臨界度測定、予測監視、常時監視、臨界検知・終息
 - ・非溶解性中性子吸収材の投入手順について整理した。

7.4 今後へ向けての課題の整理

これまでに得られた知見や課題をもとに、今後、取り出し工法の具体化や内部情報や燃料デブリ性状の新たな情報を踏まえながら、本格的な取り出しまでに実施すべき課題を以下に示す。

(表1) 工法に関する課題

● 採用される工法により解決されるべき課題の重要度が変わる点に留意が必要

項目	課題
重量物落下対策	・内部の状況確認による落下・崩落の恐れのある物体の特定。取り出し計画での配慮。 ・燃料デブリの性状分析(壊れやすさ"破壊エネルギー"の把握による、臨界リスクの評価) ・代表事象での臨界発生時の外部影響評価
切削粉対策	・加工法ごとの切削粉発生量、大規模取り出し時水位、冷却材循環量を踏まえた切削粉流動解析による蓄積可能性評価 ・(必要に応じて)ベント管、S/C、トーラス室での臨界検知方法、ホウ酸水注入方法の検討 ・切削粉蓄積臨界時の外部影響評価
スループット改善	 取得情報に基づく臨界リスクを再評価、管理方法簡素の検討 ホウ酸水常用による燃料デブリ取り出しの加速の可能性検討
その他	 ・ホウ酸水無しでの燃料デブリ取り出しに関する有識者意見の確認 ・加工制限、水位制限、最小臨界量、取り扱い量など、工法の制限の根拠となる臨界評価は、燃料デブリの不確かさを 考慮して保守的な条件で評価されている。今後の内部調査や段階的取り出しによって、燃料デブリの濃縮度、不均一 性、U含有率などの情報が得られれば、過度に保守的な条件を見直して臨界評価を再検討することによって、工法の 制限の緩和が期待される。

7.4 今後へ向けての課題の整理

(表2) 品 か 監 倪 に 関 9 る 課	趔
------------------------	---

項目	未臨界度測定	予測監視	常時監視	臨界検知・終息
目的 機能	—	—	—	—
方法	 ・未臨界度測定方法の事前検証(検 証データ追加、プラインドテスト) ・段階的取り出しでの試験的適用 による確認 ・PCVガスモニタによる推定やサンプリング 分析との照合による確認 ・ファインマンα法の適用の要否 の判断(1/mとの使い分け) 	_	_	・加工箇所以外の臨界事象を希 ガスモニタで検知した場合の場 所の同定と対策の方法案(レベ ル1への復帰策)
測定頻度	_	 ・現場での加工体積の確認方法 ・大規模取り出し前の段階での加工体積不確定さの確認 	_	_
測定位置	 ・中性子東分布測定による監視計 画策定 	 ・中性子東分布測定による監視計画策定 ・中性子東分布の高次モード変化の影響を考慮した測定位置の設定 	_	_
測定時間	 有意な測定結果を得るための必 要カウント数の設定 	_	 ・装置ノイズ影響、現場の中性 子束に応じた移動平均時間設定 	_
判断基準の設定 方法	・臨界までの余裕の妥当確認	_	 有効性評価の前提条件(加工 量、加工体積の不確定さ等)の 確認(大規模取り出し前の段階< で確認) 	 ベント管、S/Cの臨界検知性 (システム側との協力による検 討)
測定結果に見込 む不確定さ	 	・吸収材投入後の影響(KUCA 試験データの分析評価)	-	_

7.4 今後へ向けての課題の整理

(表2) 臨界監視に関する課題(続き)

項目()	未臨界度測定	予測監視	常時監視	臨界検知・終息
判断基準逸脱時 の対応	_	_	・現場の手順を整理	・停止能力要求のホウ酸水系 システム設計への反映
設備故障対応	・中性子線源を用いた遠隔校 正の方法	 ・現場での動作確認方法、感 度校正の方法検討。 ・中性子線源を用いた遠隔校 正の方法 	 ・現場での動作確認方法、感 度校正の方法検討。 ・中性子線源を用いた遠隔校 正の方法 	_
その他	 測定できない場合の処置 Y値カーブから測定の妥当 性を確認する方法 測定不能の要因が、未臨界 度の深さ(測定範囲外)か、 それ以外の原因(測定不能) かを区別する方法 以上の手順を臨界技術者が いなくても実施できるフ レームワークに落とし込む。 	・以上の手順を臨界技術者が いなくても実施できるフレー ムワークに落とし込む。	・以上の手順を臨界技術者が いなくても実施できるフレー ムワークに落とし込む。	 有効性評価 PORCAS-Fコート・妥当性説明^(*) 臨界が終息しない場合の処置 今後、仮設機器での対応も 含めて、システムや安全担 当者と検討 以上の手順を臨界技術者が いなくても実施できるフ レームワークに落とし込む。

(*) PORCAS-Fコードの妥当性を確認するため、これまでに溶液体系を模擬した臨界過渡実験(TRACY実験)や燃料棒体系を模擬した臨界過渡実験(SPERT実験)との比較が行われている。しかし、燃料デブリのような粒状あるいは塊状の形状が自然対流で冷却されている条件とは異なる。このような臨界挙動を模擬した実験の事例は見つからず、実施は困難と考えられる。実験によらず妥当性を確認する方法としては、PIRT分析に基づく感度解析を行い、解析結果に見込むべき不確定さを評価する方法が考えられる。



7.4 今後へ向けての課題の整理

(表3)中性子吸収材に関する課題

項目	ホウ酸水(常用、緊急注入)	非溶解性中性子吸収材
目的・機能	・常用及び緊急用。使用方法の策定	 ・複数の用途が考えられるため、それぞれの使用方法を策定 (以下は「臨界近接した燃料デブリに使用する場合」の例)
方法	 ・常用及び緊急注入に必要設備の具体化 ・ホウ酸水使用時の他設備影響評価、影響緩和策の検討 	 ・投入装置を試作してロボットアームとの組み合わせによる遠隔操作の確認 ・段階的取り出しでの試験的適用による確認
投入頻度	 ・(常用)運用中の濃度変化を考慮した、運用濃度の設定 ・(緊急注入)代表的な臨界事象終息に必要な濃度設定 	 吸収材の投入頻度を1日1回以下とするために、燃料デブリ 取り出しの1日の加工範囲を確認して、十分な量を投入できる ように投入装置の容量を定める。
投入位置	・冷却材のかからない位置での臨界防止策の検討	 事前に計画された1日あたりの加工範囲の燃料デブリ形状に対して、吸収材のタイプ、投入量を決める考え方 燃料デブリ加工装置と同程度の位置決め精度で吸収材を投入できることを確認する。 投入した範囲を目視等で確認する方法の確立
投入時間	 (緊急注入)臨界時影響を許容範囲に収めるための注入時間の 設定、実現するための設備検討 	 ロボットアームによる遠隔操作で投入装置を現場に搬送する までの時間の確認。また、投入後に装置を回収して、次の使用 に向けて吸収材を装填する準備が整うまでの時間の確認。
投入量の 設定方法	 (常用)ホウ素濃度モニタリング方法・間隔の設定 中性子東常時監視でのバックアップ 	 加工予定の燃料デブリ形状に対して、吸収材のタイプ、投入 量、範囲を決める考え方を準備しておく。
投入量不足 の対応	・濃度維持の方法(濃度低下時の対応検討)	特になし (決められた量と範囲が未達の場合には、満足するまで繰り返 し吸収材を投入する。)
有効性評価	 内部調査やサンプリングで得られる、燃料デブリ組成と形状の 確認、必要濃度・投入量の見直し 	の情報を適宜反映して臨界評価の解析を行い、吸収材の有効性の
設備故障対応	・代替の濃度監視手段、ホウ酸補給方法の検討	 ・現場での動作確認方法 ・故障した投入装置の回収と予備機への交換方法
その他		 ・使用後の廃棄について廃棄物PJへ情報提供 ・α線、β線の影響について評価する方法



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning

8. 実施目的を達成するための具体的目標

(2)臨界近接監視技術・中性子吸収材技術の	現場運用方法
①現場運用手順の開発	中性子検出器による臨界近接監視の現場運用手順が策定されていること。 中性子検出器の未臨界度測定性能が評価されており、現場運用手順に 反映されていること。 非溶解性中性子吸収材の現場運用手順が策定されていること。 (終了時目標TRL:レベル4)
②固化型吸収材技術の開発	固化型吸収材(水ガラス)が付着した燃料デブリの乾燥プロセスへの影響に関するデータが取得されていること。 (終了時目標TRL:レベル4)

上記実施目標を達成した。



参考資料

- 参1 大規模取り出し時の臨界管理方法
- 参2 臨界管理の基本要求事項
- 参3 用語説明



	ベル1(通堂状能)	レベル2(異党状能)	レベル3(事故)	
異常	"外心"(通常状态) 第発生防止=臨界防止	異常拡大防止=臨界事故防止	事故の影響緩和	機能要求
keff	1.0)		
敷地境界線量		1m	Sv 5m	Sv
(未臨界維持)	(臨界到達防止)			
取り出し作業制限	大幅に緩和or撤廃			管理基準内
				に未臨界の
小り酸水による木				
濃度監視				
\uparrow				想定以上の
	加工中の常時監視のみ			臨界近接を
	□ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □ □			知して、取り
		」 生敗(臨思発生)		止すること
	取り出し作業中止			臨界を防止
成功(ホウ	素濃度増加などで未臨界度を深くし、			のここ
臨界近接間	国所の除去により通常状態へ復帰)	 臨界検知		ふか を 使 れ ま や か に 何
		(ガスサンプリング系システ		止し、通常
			失敗(通常レベル	ヘル以上0 外部影響子
		- 緊急ホウ酸水注入	地理 リ	生を防止を
成功(臨界	箇所の除去により通常状態へ復帰)			ること
			 木ウ酸水追加注入	一般公衆・
			給水停止による水位低下	作業員過剰

参1 大規模取り出し時の臨界管理方法(重量物落下)

レベル1(通常状態) 異常発生防止=臨界防止	レベル2(異常状態) 異常拡大防止=臨界事故防止	レベル3(事故) 事故の影響緩和	機能要求
keff 1.	0		
敷地境界線量	1n	nSv 5n	nSv
(未臨界維持) (臨界到達防止) 落下物発生防止 (臨界利達防止) 木 小 ホウ酸水による未 (臨界維持 ・ホウ素濃度監視 (ホウション)			管理基準内 に未臨界度 を維持する こと
成功(臨界箇所の除去により通常状態へ復帰)		失敗(通常レベル 超過)	臨界を検知し、 速やかに停 止し、通常レ ベル以上の 外部影響発 生を防止をす ること
成功(臨界終息後、臨界発生箇所の除去)	こより通常状態へ復帰)	ホウ酸水追加注入 給水停止による水位低下 放射性ガス放出抑制	一般公衆・ 作業員過剰 被ばく防止

参1 大規模取り出し時の臨界管理方法(切削粉蓄積)

レベル1(通常状態) 異常発生防止=臨界防止		レベル2(異常状態) 異常拡大防止=臨界事故防止	レベル3(事故) 事故の影響緩和	機能要求
keff	1.0	þ		
敷地境界線量		1m	Sv 5m	Sv
 (未臨界維持) 切削粉回収 水位制御などでの 冷却水流出防止 ホウ酸水による未 臨界維持・ホウ素 濃度監視 	(臨界到達防止) 			管理基準内 に未臨界度 を維持する こと
(オプション) (オプション)	♥ ガスモニタ・中住子モニス(常時温税) 臨界近接監視(中性子検出器・PCVガスモニタ) ↓ 取り出し作業中止] 失敗(臨界発生)		想定以上の臨 界近接を検知し て、取り出し作 業を停止するこ とで、臨界を防 止すること
成功(不少) 臨界近接館	素濃度増加などで未臨界度を深くし、 箇所の除去により通常状態へ復帰) 箇所の除去により通常状態へ復帰)	臨界検知 (ガスサンプリング系システム) ↓ - <mark>緊急ホウ酸水注入</mark>	 失敗(通常レベル 超過)	臨界を検知し、速やかに停止し、通常レベル以上の 外部影響発生を防止をすること
			V	.
	成功(臨界終息後、臨界発生箇所の除去)	により通常状態へ復帰)	ホウ酸水追加注入 給水停止による水位低下 放射性ガス放出抑制	一般公衆・ 作業員過剰 」 被ばく防止

参1 大規模取り出し時の臨界管理方法

深層防護の補足説明

・ホウ酸水注入にもかかわらず臨界が終息しない場合の対応

- これまでの臨界管理に関する検討では、臨界防止及び臨界発生時の終息・外部影響緩和を主に検討してきたが、ホウ酸水注入にもかかわらず臨界が終息しないと想定した場合の追加の終息・外部影響緩和手段を準備しておくことが望まれる(具体的な検討は今後の課題)。
- なお、これまでの議論では、追加手段をすべて設備で対応するのではなく、機動的対応 も含めてもよいという意見があった。よって、まずレベル2までを達成する設備を検討し たうえで、臨界が終息しない可能性を分析し、仮設機器も用いた対応も含めて、対策を 検討することが望まれる(今後の課題)。

・レベル3以降の対策

ホウ酸水注入にもかかわらず臨界が終息しない場合の追加対策を、暫定的にレベル3 対策と記載しているが、本来は、レベルの定義、取り扱うべき事象は全体(臨界を含む) を対象として検討したうえで、具体的な対策の議論を進めるべきであると考える(なお、 レベル4以降は事業者の対応が主になると考えている)。



参2 臨界管理の基本要求事項

臨界到達防止

・予測監視手順の一部を抜粋して以下に示す。

加工前の中性子束測定による臨界近接の有無確認、加工着手可否判断。

臨界管理の要求事項		の要求事項	具体的展開:下横取り出し作業(ホウ酸水常用せず)
項目	要求	要求(細目)	燃料デブリ過剰加工
	2-3) 臨界到達防止 臨界近接が生じた場合でも これを監視し臨界に至る前 に事象を終結させる。	細目なし	臨界近接が生じた場合でも、これを監視し臨界に至る前に事象を終 結させる措置を講じる。具体的には2-3-1) ~2-3-3)に規定する ^(*) 。
	2−3−1) 臨界近接監視 (予測監視)	2–3–1–1) 作業中の臨界近接を監視する 手段を持つ	取り出しアームに装着する予測監視用中性子検出器を用いる。
の時田叶に		2-3-1-2) 中性子束の測定位置は臨界近 接が適切に監視できる位置とする。	加工位置と連続した燃料デブリの'島'で測定を行う。
		2−3−1−3) 燃料デブリ加工後の中性子束	燃料デブリ加工後に燃料デブリ加工位置近傍で中性子束を測定する。
		を測定し、次回加工での臨界到達がな	初期状態のkeff(未臨界度測定結果)より、加工後のkeffを求め、判
		いことを判断して作業に着手する。	断基準未満であることを確認して次回加工を実施する。keffが測定 できない場合には、逆増倍係数(1/m)にて判断を行う。
		2-3-1-4) 臨界近接監視頻度	4,000cm3の加工体積ごとに臨界近接監視を行う。
		2-2-2で規定した添加反応度の間隔で測	
		定を実施する。	
		2-3-1-5) 臨界近接判断基準の考え方	keffの臨界判断基準(0.95)から加工体積の不確定さ分として5倍程度
		臨界管理基準から少なくとも1回分の添	の添加反応度、測定の不確定さを減じたものを判断基準とする。1/m
		加反応度、余裕、測定の不確定さ、評	の場合でも、臨界の管理基準から設定する。
		1回の个確定さを減したものとする。 2011、2015日には地球またにがなって	佐田で技術が甘進に近年上で担人、七日に歩にサイトもい。
		2-3-1-0) 臨外近接判断基準に抵触する	岡岕近接判断基準に抵触する場合次回作業に有于しない。 土阪田安測中による阪田に始めた毎年70回まで、阪田士での合物を
		場合には火凹作来に有于で9、 県囚分 たたたら、 東前に毎日してわいたた巻	不斷不及測定による職不近按の有無を確認りる。職外よじの未俗を 「「「「」」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、
		竹を打つ。争削に束正ししぬいた作果	確認9 る。てい結果に奉づさ、加上14項制限を小さくした取り出し
		円冊の/このの手順を 天 施 9 る。作果再 開のための手順をサポートする。	の絶枕、または、不り酸水常用での取りഥしへの列り替えを使討す る。

■ (*)本表は一部を抜粋したものであるため、2-3-2、2-3-3の記載は省略

参2 臨界管理の基本要求事項

予測監視 監視手順

項目 要求 考え方 ・臨界近接を検知して、加工作業を中断し臨界を防止する。 ・2)は、1)をより確実なものとするため、予想以上の変化をとらえて事前に 1) 過剰な臨界近接(keff=0.95など)を検知し作業を停止 1)目的·機能 分析を行うもの。 2) 想定以上の変化をとらえて臨界近接の兆候を早期検知 ・燃料デブリ加工前に加工位置近傍の中性子検出器で中性子束を測 ・臨界近接の評価は、臨界近接監視に一般的に用いられる中性子源増倍 2)方法 定し、前回測定時からの変化量を外挿し、次回加工による臨界到達 法に基づく。 の可能性を評価し、加工着手の可否を判断する。 ・仮に初期keffが与えられていない場合、1/mによる監視を用いる。 ・添加反応度0.5%△k/kに相当する体積に相当する加工ごとに監視を ・添加反応度0.5%△k/kは、①1回の加工で臨界に到達することが無いよう 行う。(例えば燃料デブリ加工体積4,000cm3ごと)。 に十分小さなものとする。②万一臨界状態から燃料デブリ加工して反 3)測定頻度 ・加工体積は、加工に伴う不確定さを加味して設定する(見込むべき不 応度が添加された場合でも、即発臨界を防止するため設定したもの。 確定さは、事前の小規模取り出しで得られる各種の情報に基づき設 定する)。 連続した燃料デブリの塊は同じ未臨界度を持ち中性子束の相対変化も ・水平方向:燃料デブリ加工位置と同じ燃料デブリの'塊'で加工位置 共通のため、加工位置によらず測定点は固定しておいてよい。 から水平方向で50cm(気中工法の場合)の範囲内で測定する。加工 加工位置と測定点の距離50cmはKUCAなどの経験に基づく暫定値。 4)中性子測定位置 の進展に伴い測定位置からの水平方向距離が遠くなる場合には、中性子は全方位に等方に放出されるとは限らない。検出器がロボット 基準計数率を測定しなおし測定点を移動。 アームの陰になることも考慮して、必要に応じて中性子測定シミュレー ションを行い、検出器の配置を決める。 ・計測時間は、判断基準に見込むべき不確定さを満足できるように設・中性子束計数の統計的不確定さは、標準偏差σ=√(計数値)とし、基準 5)中性子測定時間 定(約10分程度と想定) 計数率との比の不確定さの許容値から設定する。 keffを用いる場合)臨界の判断基準(0.95)から次回加工に伴う添加反 6)判断基準の設定 応度(0.5%△k/k×余裕)と不確定さを減じて設定 左記参照 方法 1/mを用いる場合)1/m=0.5から不確定さを減じて設定 7) 不確定さの設定 ■計数値の統計的不確定さ、測定点の再現性(位置ずれ)、ノイズの影 ■ノイズ影響については事前の取り出し装置のモックアップ試験などで影 方法 響、検出器感度の変動・減衰等 響を確認しておく。 8)判断基準逸脱時 ・臨界近接の恐れありとして、加工作業中断。 ・結果により、加エサイズの縮小(監視間隔の短縮)、中性子吸収材の適用 の対応 計測時間を長くした再測定及び未臨界度測定 などの対策を検討 9)通常状態(深い未・通常想定される変化の大きさを超える場合に原因分析 ・想定される変化を初期keffに応じて評価しておく。 臨界)での監視方・取り出し作業は継続しつつ、臨界管理専門家を招集し、分析に着手・6)の判断基準を逸脱しない限り、臨界のリスクは生じないため、作業継続 法 する。 は可能 10)中性子検出器 ・中性子検出器が正常に動作していることを、取り出し作業の条件とし、中性子検出器の故障自体は、臨界事象の起因とはならないが、監視が 行えない状態なので、燃料デブリ取り出しは実施できない。 故障対応 て位置づける。 11)中性子吸収材 ・中性子吸収材を用いた場合の臨界近接防止(未臨界状態の維持)は、濃度監視のバックアップとして、定期的に中性子東レベル監視を行って 吸収材の濃度管理で代替できる。 おくほうが良い。 適用時予測監視



用語	説明
炉雑音法	核分裂反応による中性子を検出器で測定すると、一定の時間内における中性子の計 数率は平均値のまわりに揺らいで観測される。このような中性子数の時間的揺らぎを 原子炉雑音と称す。これを分析することにより、体系の核的な特性を得る手法が炉雑 音法である。
ファインマンα法	炉雑音法の一つであり、ある時間幅Tに起こった中性子検出数の平均と分散の比を調 べ、時間幅Tに対してプロットすることにより、即発中性子減衰定数αを得る手法である。 R.P.Feynmanが提唱した。
非溶解性中性子吸収材	中性子吸収材は、中性子を吸収することによって、臨界になりにくくする性質を持つ。 ホウ酸水のような溶解性の中性子吸収材に対して、"非溶解性"または"不溶性"の性 質を持つ中性子吸収材のことである。
中性子検出器 - コロナ放電利用型	円筒管の内側に中性子と反応するB10が塗布されており、中心線と円筒管の間に電圧 をかけて、コロナ放電が生じる高電圧領域で動作することが特徴的な検出器である。 ロシアのFEO社(旧RosRAO)が開発した技術であり、関連する補助事業で試作された。
- SiC半導体型	中性子と反応するBをドーピングした薄型半導体検出器である。ガンマ線感受性が低く, 遮蔽体を軽減できるため,小型・軽量で高感度検出器を構成可能。英国IPL社が開発し た技術であり、関連する補助事業で試作した。
- マルチセルHe-3型	He-3ガスが充てんされた円筒管の内側に複数の陽極と陰極の芯線が配置された構造 であり、高い中性子検出感度を狙った設計である。国内CETD社が関連する補助事業 で試作した。

IRID



以上



©International Research Institute for Nuclear Decommissioning