

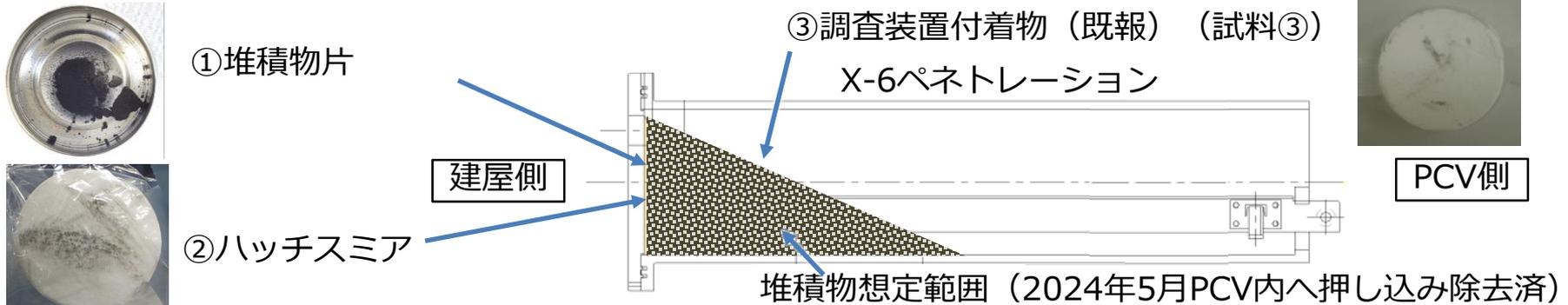
2号機X-6ペネトレーション関連試料の分析

2025/2/27

東京電力ホールディングス株式会社

1. 概要

- 事故進展や格納容器内の状態推定、間接的に燃料デブリの性状の推定につながる情報を得る目的で様々な箇所から試料を採取し分析を進めている。
- 2023年に2号機PCV貫通部（X-6ペネトレーション）のハッチ開放作業の際、新たな試料堆積物片（試料①）、ハッチスミア（試料②）が採取できたことから、知見を拡充するため分析した。
- 既報の結果も踏まえ、RPVからの溶融物がPCV内に落下した際に気中に舞上げられた粒子等が堆積しケーブルを巻き込んで形成されたと推定した。

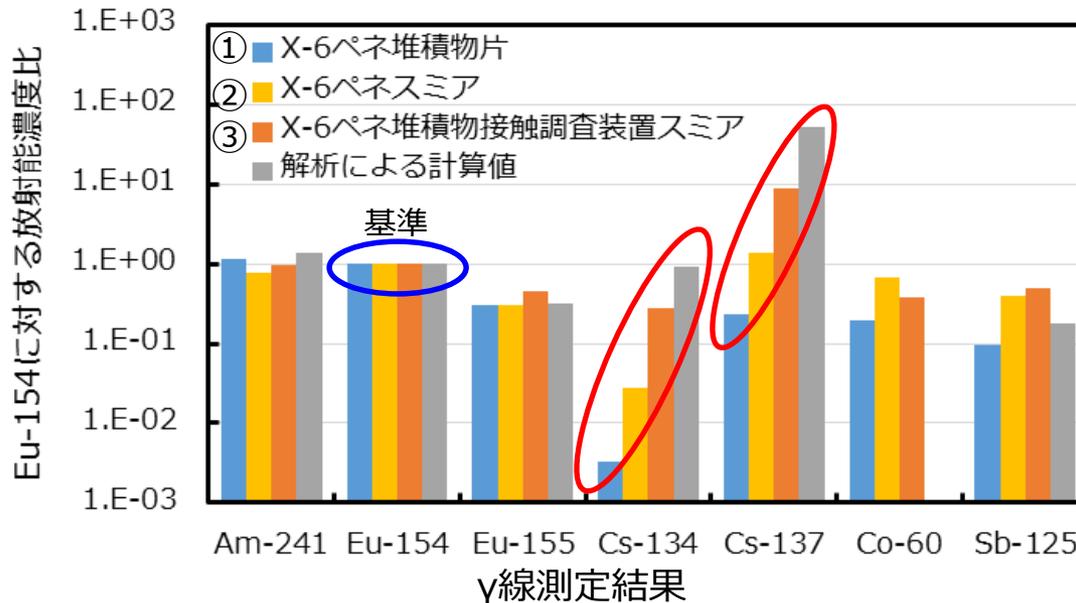


試料番号	名称	概要	分析機関
①	堆積物片	2023年10月に実施したX-6ペネハッチを開放時にハッチ蓋部から落下した堆積物片	日本核燃料開発株式会社
②	ハッチスミア	X-6ペネハッチ開放後に蓋部をスクレーパでかきとった。このスクレーパを拭き取り採取したスミアろ紙	JAEA 大熊・分析研究センター
③ (既報)	調査装置付着物	2020年10月に実施したX-6ペネ内堆積物調査時に調査装置に付着したものを拭き取ったスミアろ紙	JAEA大洗原子力工学研究所 日本核燃料開発株式会社

2. 放射線測定結果

ガンマ線スペクトル分析（試料①、②、③について実施）

- Am-241、Sb-125、Cs-134、Cs-137、Eu-154、Eu-155、Co-60を検出
- Am-241、Eu-154の放射能濃度が高い
- Eu-154を基準に各γ線放出核種の放射能濃度比を整理（2号機炉心平均を並記）
 - ①～③いずれも、Cs-134、Cs-137の存在割合の測定値が計算値に比べて低い傾向
 - 燃料溶融時の高温によりCsが揮発後、燃料由来粒子がX-6ペネに移行と推定
 - また、長期にわたる水蒸気の結露により、水溶性のCs濃度が低下と推定
 - 水蒸気凝縮に伴う気相の流れの仮定（後述）を支持する傍証



- ※ JAEA-Data-Code-2012-018に基づき1F2について算出した結果"
- ※ それぞれのEu-154の放射能濃度に対する比として表したものの
- ※ 2021年度測定値はスミア紙を含む試料重量に対する値で、JAEA-Data-Code-2012-018に基づき1F2について2024年6月10日現在に補正したものの

α放射能分析（試料②について実施）

- Pu-238、Pu-239+240、Am-241、Cm-244、U-238、U-235
（長半減期核種のU-238、U-235については質量分析で確認）

β放射能分析（試料②について実施）

- Sr-90を検出

3. 組成分析（元素分析）

- 定性分析で検出された元素（①～③それぞれの分析手法は異なる）
 - ケーブル被覆材に含まれる成分であるCは検出されなかった

○：検出
 ×：検出下限値以下
 -：対象外

組成分析（定性）結果の比較

	C	O	Mg	Al	Si	S	Cl	Ca	Ti	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	Zr	Mo	Pb	U	Pu
試料①	×	○	○	○	○	○	×	○	○	○	○	○	○	×	×	○	○	○	○	-
試料②	-	○	×	(○)	○	×	×	(○)	○	○	×	○	○	×	×	○	×	×	○	-
試料③	-	-	○	○	×	×	○	○	○	○	×	○	○	○	○	○	○	○	○	○

- 定量分析（試料①で実施）

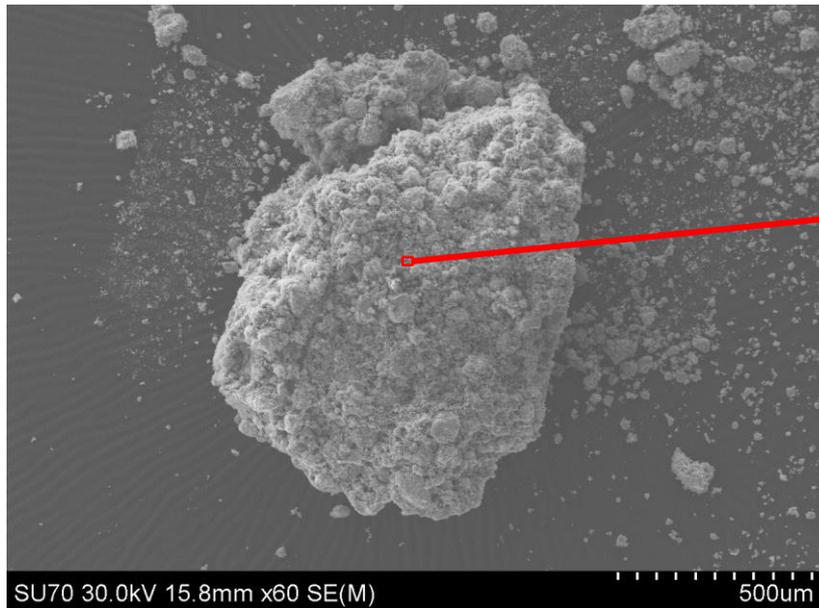
- 試料表面付近の元素組成について、SEM-EDSで定量する「表面分析」と、試料を溶解しICP-MSで分析し残渣についてSEM-EDSで測定し補正する「バルク分析」の2種類を実施
- 主要な5つの金属元素U、Fe、Zr、Cr、Niについて比較（下表）
 - 表面付近と、バルク（試料全体）の分析結果では異なる傾向
 - Feに対するZrやUの割合が表面に比べて内部（バルク）の方が高く、後述の微粒子分析の結果も踏まえると、数十～百 μm 程度のZrやUを含む粒子を核として、その表層にFeが蒸着・付着した可能性がある

主要元素のバルク濃度（ICP-MS）と表面濃度（SEM-EDS）の比較

元素	O	U	Fe	Zr	Cr	Ni
ICP-MS+SEM-EDS(バルク) (at%)	68	6	13	7	3	2
SEM-EDS(表面) (at%)	47	2	39	5	2	4

- 成分分析と表面分析による主要6元素の濃度を抽出し、100at%に規格化
- Oの値は参考値（ICP-MSにおけるO量は、検出元素量及び僅かな残渣量と分析に供した試料量の差をOによるものと仮定して評価。SEM-EDSによるOの定量値には大きな不確かさを含む。）

4. 1 SEM-EDSによる固体分析（試料① ハッチ堆積物片）

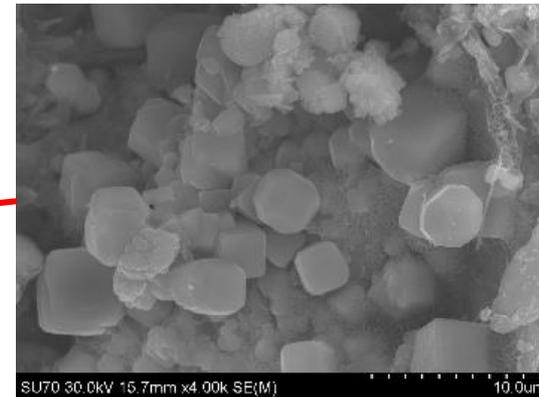


試料①に含まれていた粒子の表面

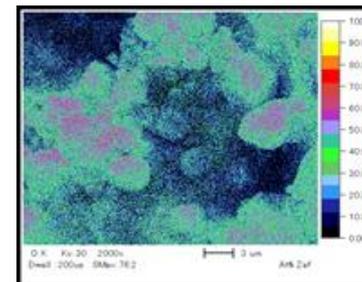
- 約1mmの大きな凝集粒子で、表面に1~5 μ mの微小なFe酸化物の粒子が存在
- 僅かに、ZrやUも存在

評価

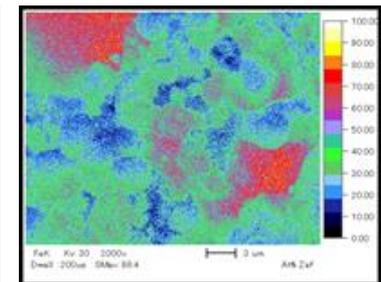
- X-6ペネ堆積物接触調査スミア試料と同様
- Fe酸化物の微小粒子は蒸発凝縮により形成したものと推定され、粒子の小ささから、長期にわたり気相に浮遊して水蒸気とともにX-6ペネに移流したと推定される



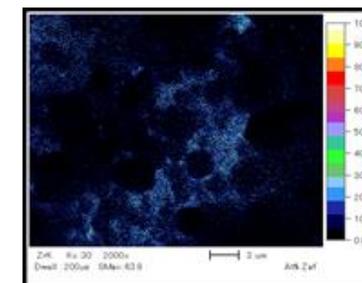
SEM像



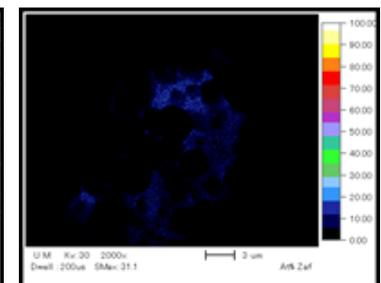
O



Fe

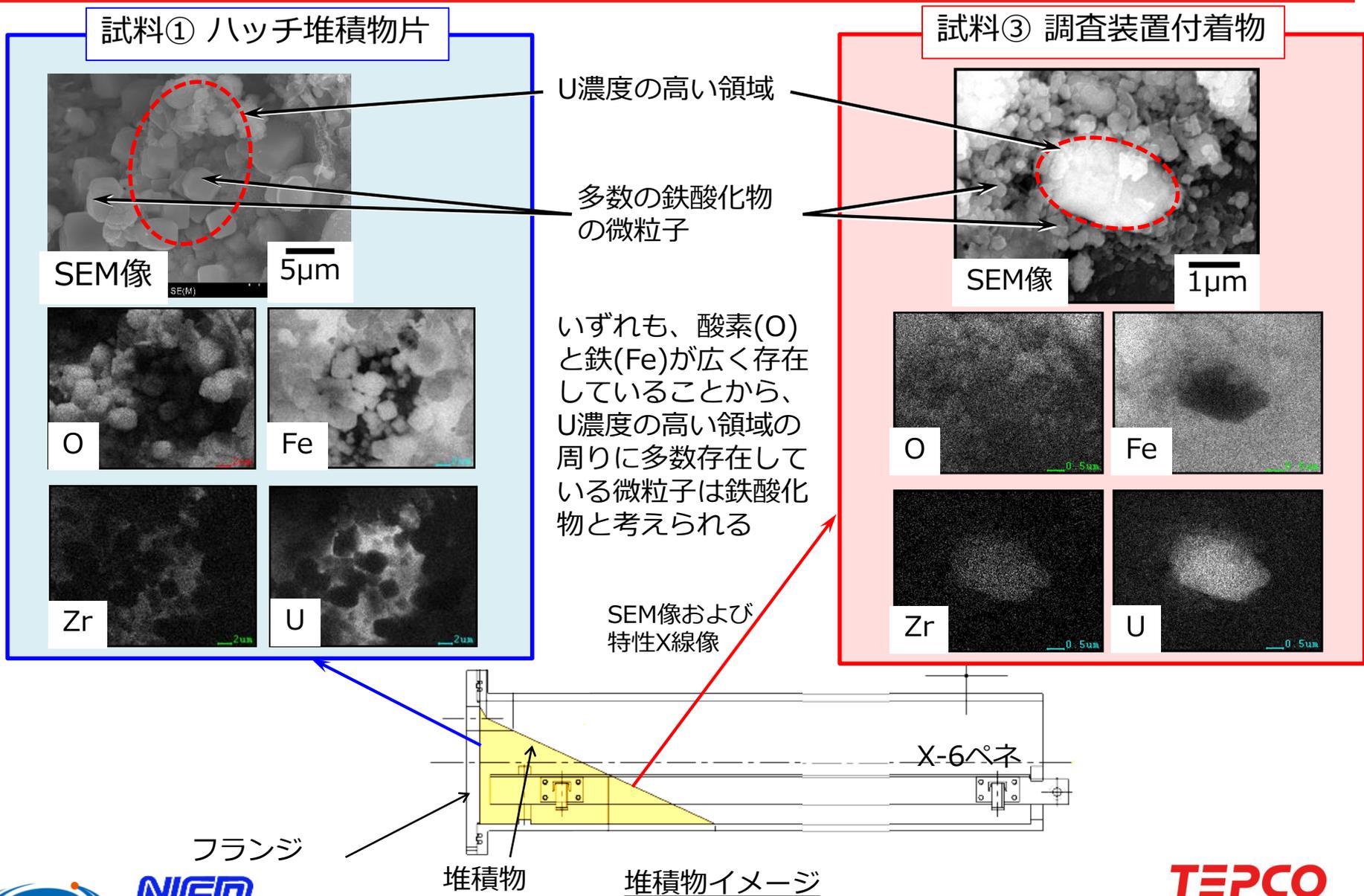


Zr



U **TEPCO**

4. 2 X-6ペネ内から採取した粒子の概要比較

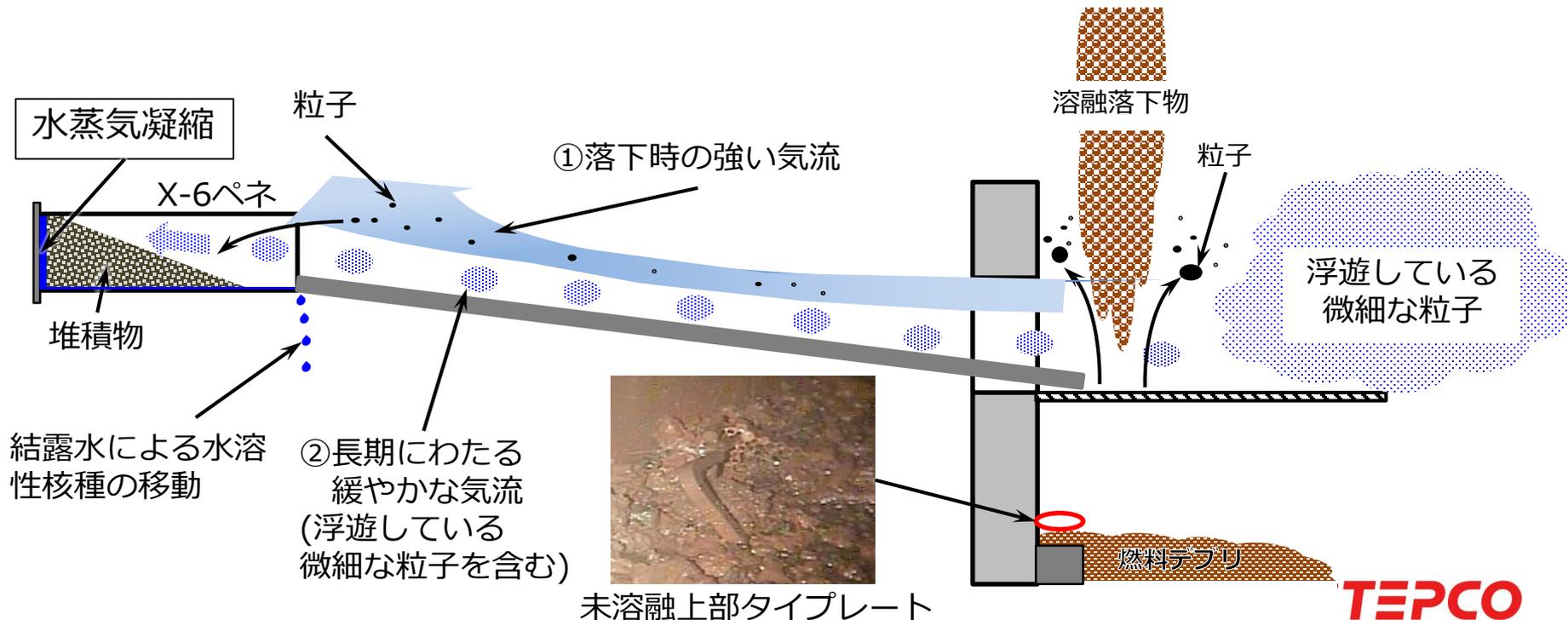


5. 堆積メカニズムの推定

X-6ペネトレーション内の堆積物は以下の2つのメカニズムが複合して、保管していたケーブルを巻き込んで生じたと推定

- ① RPV破損に伴い溶融物等が落下した際に生じた粒子が強い気流に乗って運ばれ、流線の変化に伴い堆積（40 μm を超えるU-Zr-O粒子の存在）
- ② 低温のX-6ペネフランジにおけるPCV内水蒸気凝縮に伴う圧力差により生じる比較的緩やかな、しかし長期にわたる気流に乗ってペDESTAL内等に浮遊している微細な粒子が運ばれ堆積する過程（多量の1~2 μm 以下のFe酸化物粒子の存在）

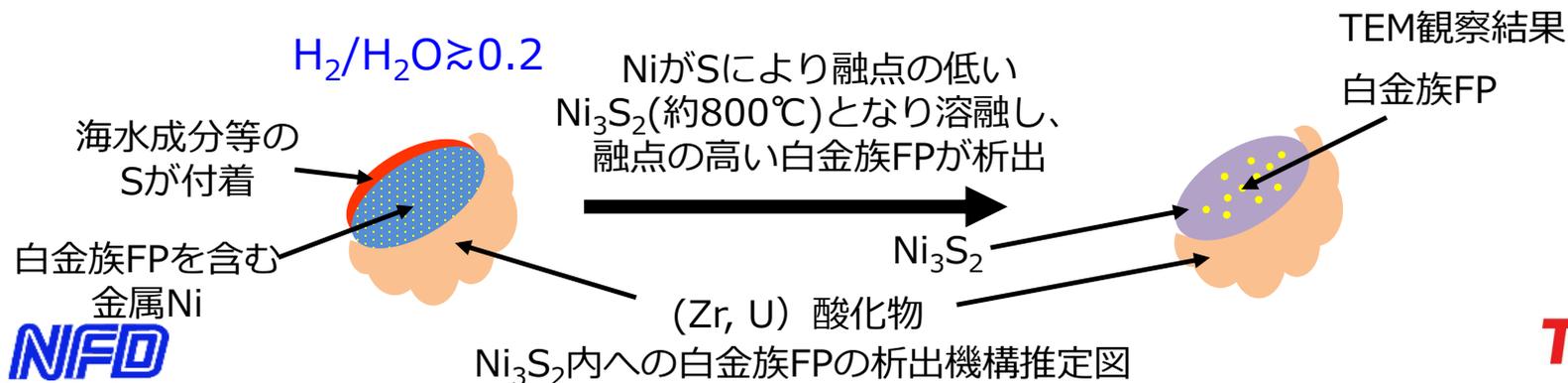
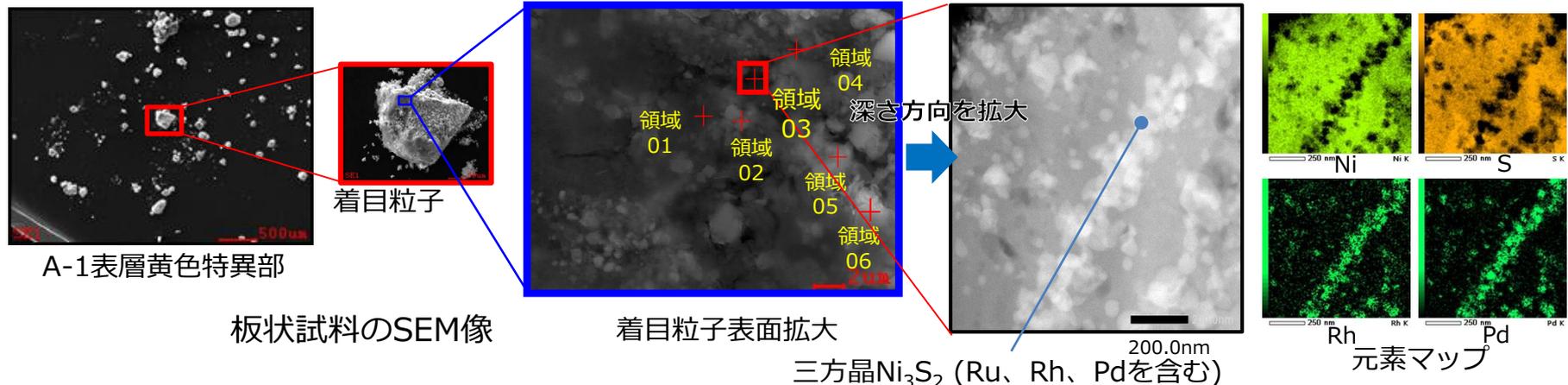
水蒸気凝縮に関しては、フランジ解放時に水滴が流れ出すことが確認されている



6. 事故進展の推定に関連する粒子の確認

(Ni₃S₂中に白金族FPが点在する領域が存在)

- 試料の表面の一部に見られた黄色部から試料を採取した粒子（A-1表層黄色特異部の着目粒子）から、Ni濃度の高い領域（領域03）を中心にTEM-EDS試料を調製
 - Ni濃度の高い領域（領域03）には、Ni₃S₂中にRu、Rh、Pdが析出した粒子が存在
 - 燃焼の進んだUO₂ペレットとジルカロイ（被覆管やチャンネルボックス）およびSUS（制御棒等）あるいはNi基合金との反応、並びに海水等由来のSとの反応を示す
- RPV内の高温状態でSと反応したと考えられ、RPV内に海水が注入されていたことを示す傍証

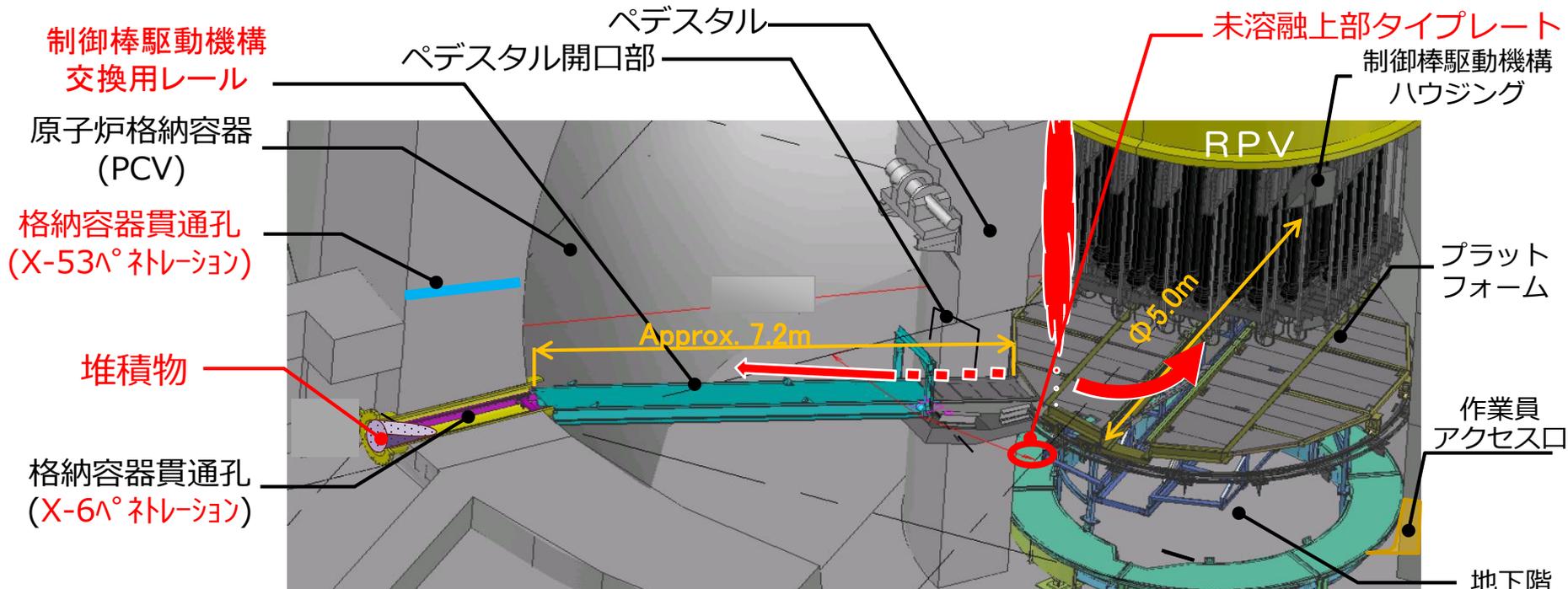


まとめ

- ①堆積物片、②ハッチスミア、③調査装置付着物（既報）について放射線分析、組成分析、固体分析（SEM-EDS、TEM-EDS）を実施。
- 堆積物中の放射能濃度は、揮発性核分裂生成物であるCs-134、Cs-137の存在割合が少なく、Am-241、Eu-154の存在割合が多かった。
- 堆積物の主な成分はFe、Cr、Niの構造材由来成分が多く、UやZrの燃料由来成分が混在しており、Cは検出されなかった。また、主に、1~3 μ m以下のFe酸化物の微粒子と、Uを含む数十~100 μ m程度の粒子から構成されていた。
- 堆積物中のケーブル被覆材溶融成分はほとんど残って無いことが確認された。
- RPVからの溶融物（あるいは、溶融固化物）がPCV内に落下した際に、落下物の一部が気中に舞い上げられ、X-6ペネトレーションに移流するとともに、長時間にわたってFe酸化物の微小粒子が供給されたことにより多量の堆積物が形成された可能性が示唆された。

【参考】 試料採取場所

- X-6ペネには制御棒駆動機構交換用レールが敷設されており、ペDESTAL開口部に対向している。
- この開口部近傍のペDESTAL内壁近くに、未熔融上部タイププレートが落下していることが確認されており、この上部のRPV底部側面に比較的大きな欠損が存在すると想定される。
- X-6ペネ内には、多量の堆積物が存在すると評価されており、ペDESTAL内から運ばれて堆積したものが含まれると推定される。



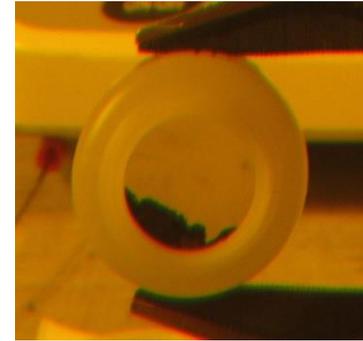
2号機X-6ペネトレーションの位置関係

【参考】 試料① X-6ペネトレーションの堆積物片

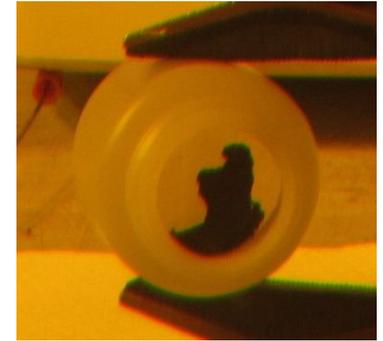
- X-6ペネトレーションのフランジを開放した際に吸水マット上に破片が落下
- 破片を二つの容器に回収
- 破片は非常に脆く、容易に破砕
- 二つの容器に収納された試料は茨城県にある日本核燃料開発(株) (NFD) のホットラボに輸送し、分析を実施



ホットラボへ輸送



試料A



試料B



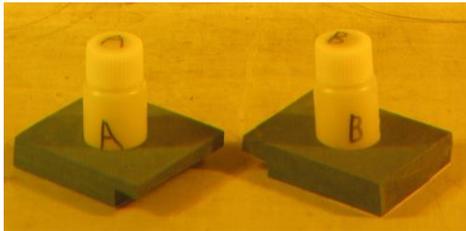
試料A



試料B

受入時の試料外観

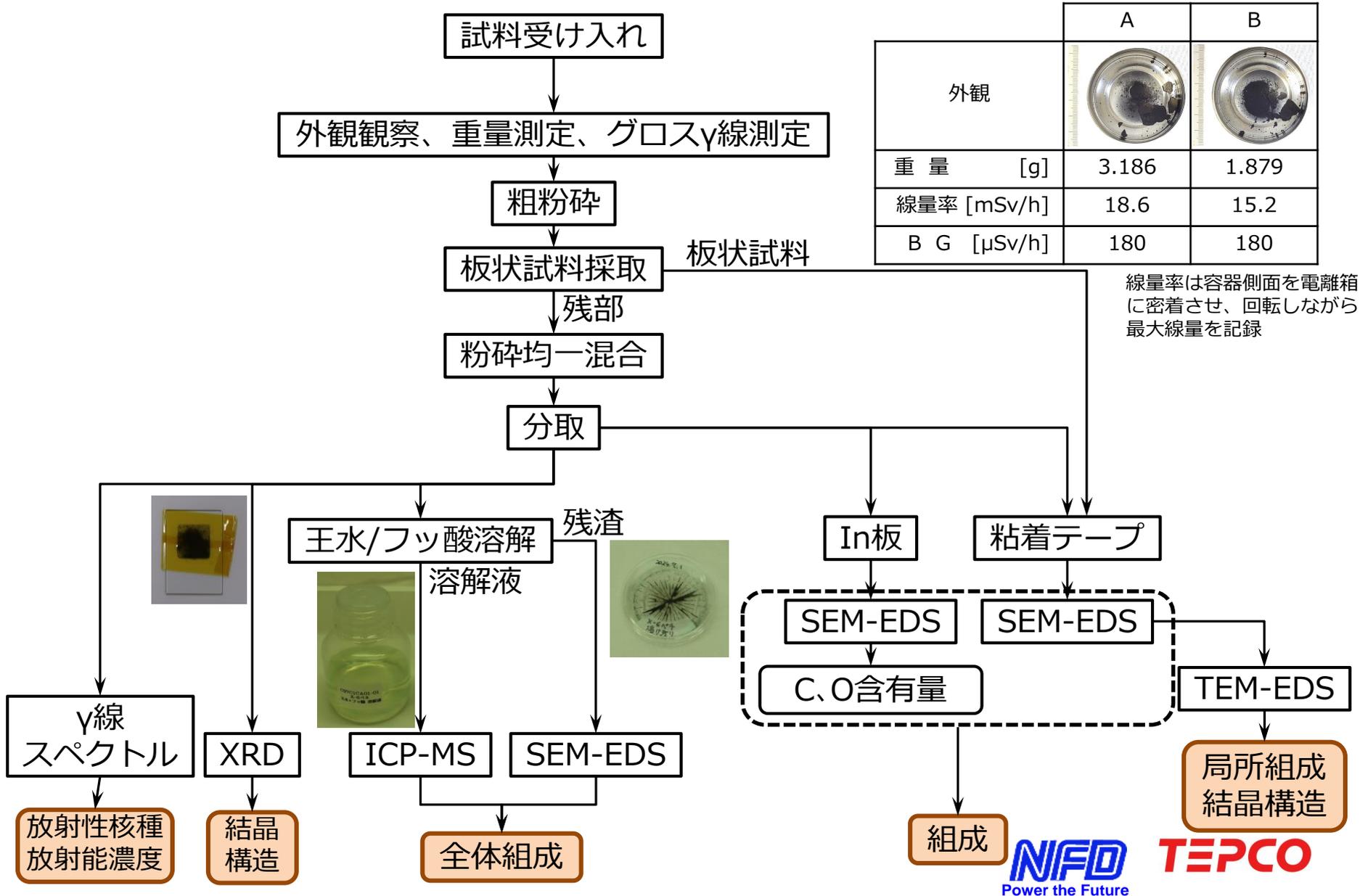
TEPCO



試料	B.G.	線量率(γ)
A	180 [μ Sv/h]	18.6 [mSv/h]
B	180 [μ Sv/h]	15.2 [mSv/h]

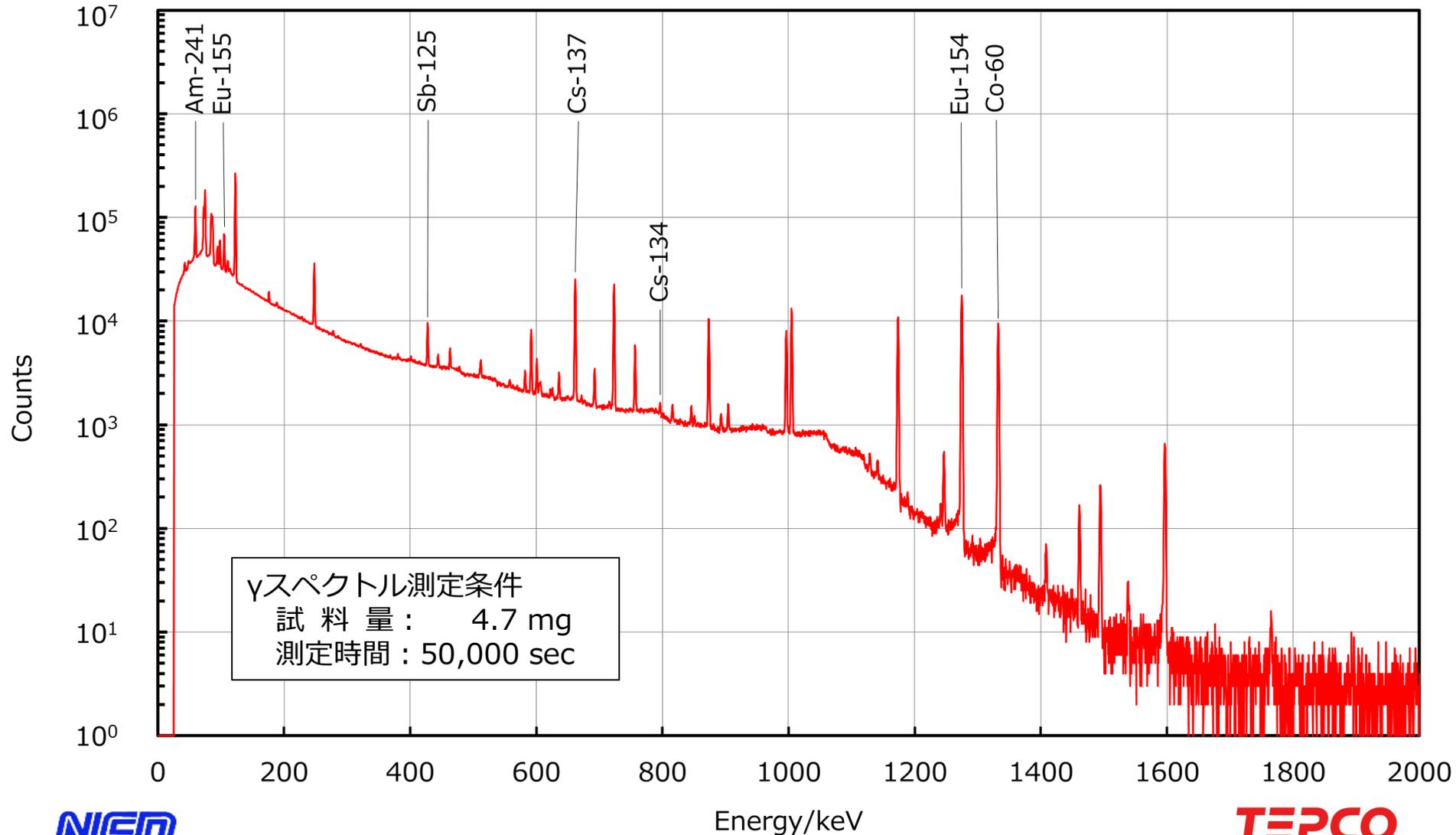
容器側面を電離箱に密着させ、
回転しながら最大線量を記録

【参考】 試料① 分析フロー



【参考】 試料① γ 線スペクトル測定結果

- 主な検出核種： Am-241、 Eu-154、 Eu-155、 Cs-134、 Cs-137、 Co-60、 及びSb-125



【参考】 試料① γ 線測定結果

- 粉碎均一混合後分取した粉末試料について γ 線スペクトル測定を実施
- Am-241、Sb-125、Cs-134、Cs-137、Eu-154、Eu-155、Co-60について定量
- 2021年度測定値はX-6ペネ堆積物接触調査装置スミアから採取した試料で、スミア紙を含む重量に対する放射エネルギーで表したものの
- 経時変化が単純で、放射能濃度の高い核種であるEu-154に対する放射能比を評価（Co-60を除く）
- 水溶性のCsを除き、今回分析値も2021年度測定値もEu-154に対する放射能比は解析による結果と同等

核種	放射能濃度(Bq/g)		Eu-154に対する放射能濃度比 ^{※2}			
	今回分析値	2021年度測定値 ^{※3}	今回分析値	X-6ペネスミア	2021年度測定値 ^{※3}	解析による計算値 ^{※1}
Am-241	2.8E+07	2.0E+03	1.137	0.755	0.963	1.339
Eu-154	2.5E+07	2.1E+03	1.000	1.000	1.000	1.000
Eu-155	7.6E+06	9.3E+02	0.308	0.298	0.452	0.318
Cs-134	8.1E+04	5.8E+02	0.003	0.027	0.282	0.900
Cs-137	5.8E+06	1.8E+04	0.235	1.366	8.936	52.511
Co-60	4.7E+06	7.9E+02	0.192	0.676	0.383	—
Sb-125	2.4E+06	1.0E+03	0.098	0.390	0.484	0.180

※1：JAEA-Data-Code-2012-018に基づき1F2について算出した結果

2024年6月10日に規格化

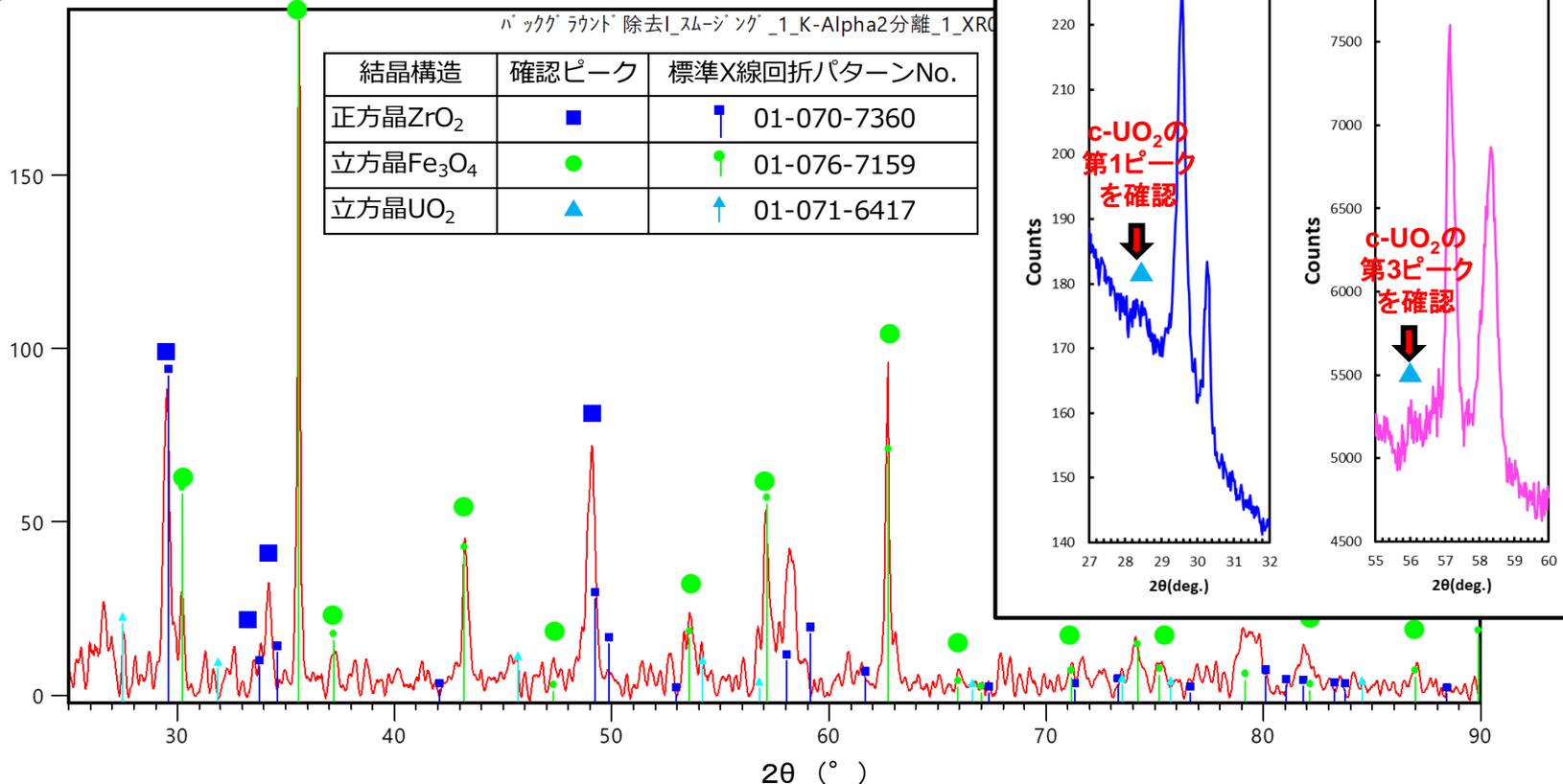
※2：それぞれのEu-154の放射能濃度に対する比として表したものの

※3：2021年度測定値はスミア紙を含む重量を試料重量に対する値で、1F2のORIGEN解析結果に基づき2024年6月10日現在に補正したものの

【参考】 試料① 一様粉末試料の結晶構造 (XRD)

- 立方晶 Fe_3O_4 のピークと正方晶 ZrO_2 のピークを確認
- 極めて弱い立方晶 UO_2 のピークと思われるピークを確認 (右拡大図参照)
- 正方晶の ZrO_2 は低角側にピークシフトしており、他元素の固溶を示唆

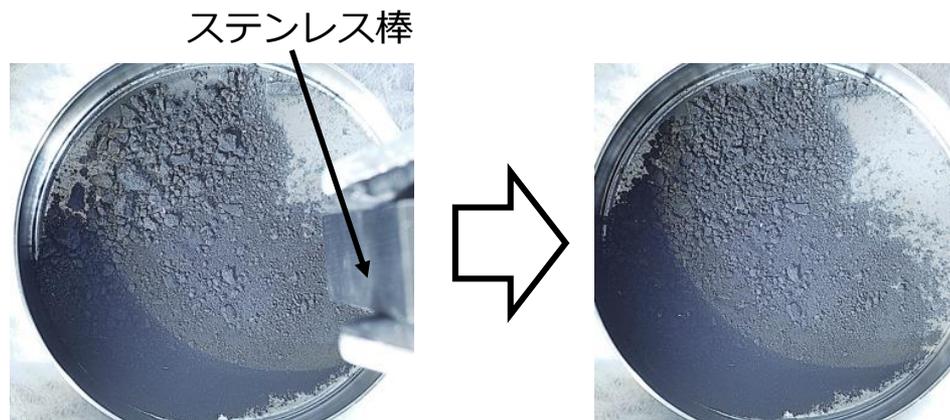
カウント



【参考】 試料① 組成分析結果 (ICP-MS + SEM-EDS)

■ 試料調製

- 試料A、Bをそれぞれ粗粉碎後、板状の塊を採取
- 残りの部分にステンレス棒を数十回押し付けて粉碎混合
- 試料A、Bは等価と判断し、均一になるように混合して一様粉末を調製



試料調製 (粉碎均一混合)

■ ICP-MS + SEM-EDS (バルク)

- 109.5 mgの試料を王水 + フッ酸で溶解
 - 不溶解残渣 : 6.4 mg
 - 溶解率 : 約 94%
 - 全体組成 = 溶解液組成(ICP-MS) + 不溶解残渣組成(SEM-EDS)

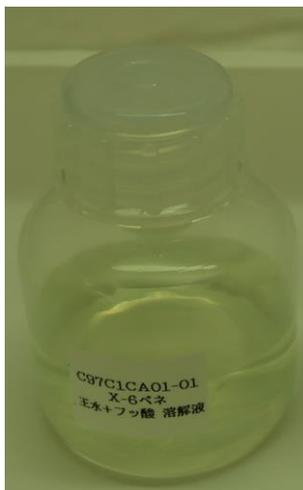
■ SEM-EDSによる半定量分析 (試料表面)

- 一様粉末を粘着テープ上に採取し、粘着テープに含まれるC、及びO以外の元素について分析
- C、及びOを含まないIn板上に試料を採取し、C、及びO並びにInのピークの影響を受けず存在量の多いFeに着目して存在量を分析

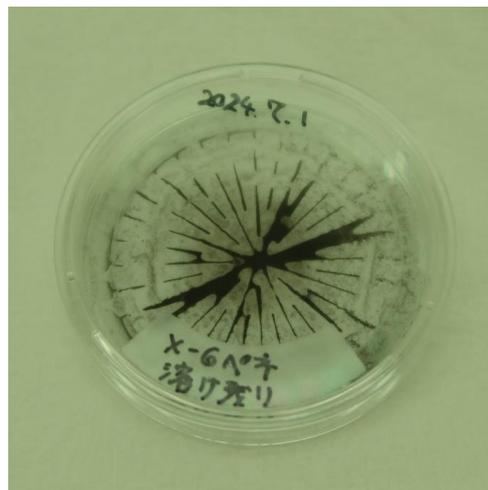
(一様粉末に対するICP-MS+SEM-EDS分析結果)

- 一様粉末 (109.5 mg) を王水+フッ酸により溶解
- 不溶解残渣が生じたため、ろ過して溶解液と不溶解残渣 (6.4mg) に分離
- 溶解率 ((溶解供試試料量 - 不溶解残渣量)/溶解供試試料量) は約94%
- 溶解液をICP-MSで、不溶解残渣をSEM-EDSで成分分析
- Fe、Cr、Ni等の構造材成分元素にU、Zr等の燃料由来の元素が混在
- 検出U量は38.8 mg

元素	ICP-MS+SEM-EDS 試料組成 (at%)	
B	<	1.5
Na	<	1.4
Mg	<	1.3
Al		0.16 ± 0.04
Si	<	1.1
Ca		0.025 ± 0.003
Ti	<	0.2
Cr		2.7 ± 0.1
Mn		0.18 ± 0.02
Fe		12.9 ± 0.7
Ni		2.12 ± 0.03
Cu	<	0.2
Zn	<	0.5
Zr		7.3 ± 0.1
Mo		0.079 ± 0.001
Ba	<	0.1
Pb		0.06 ± 0.01
U		6.4 ± 0.1
O		68



溶解液
(液の色：薄黄色)



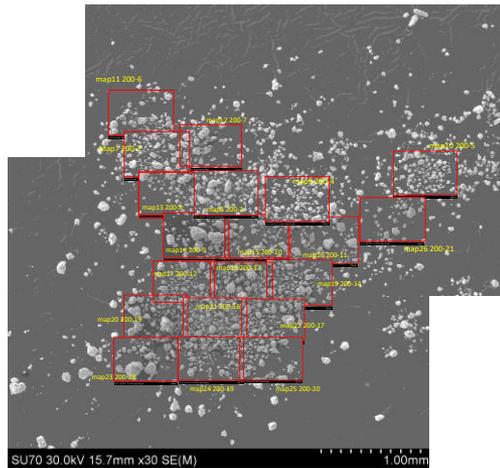
不溶解残渣
(残渣量：0.0064g)

※ UはU-238のみを対象とした定量値 (U-235等は含めず)

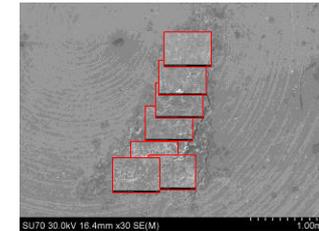
※ 「±」の後の数値は、不確かさ (包含係数k=1) を示す

【参考】 試料① 試料全体の表面組成分析（一様粉末に対するSEM-EDS分析位置）

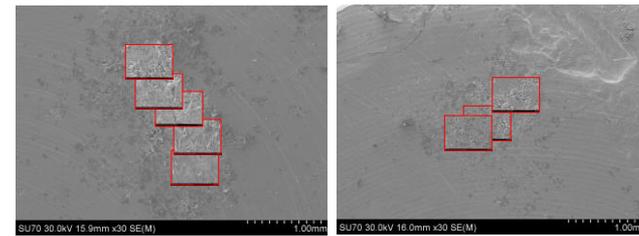
- 一様粉末を粘着テープ上、及びIn板上に採取し、それぞれ20か所、15か所で面分析
- Cは検出されず、X-6ペネ内の堆積物へのケーブル被覆材溶融物の寄与は低いと評価
- 主要な成分元素であるFeは約38at%で、構造材等由来成分は合計約45at%
- Uの含有率は約2at%で、燃料由来成分は合計約7at%



一様粉末（粘着テープ上）



一様粉末（In板上）



SEM-EDSによる試料全体の表面組成分析結果

	C	O	Mg	Al	Si	S	U	Ti	Cr	Fe	Ni	Zr
平均	n.d.	46.0	0.1	0.1	1.7	0.2	2.1	0.2	2.4	37.8	4.4	5.0
σ	0.0	1.0	0.2	0.2	0.3	0.2	0.3	1.0	0.2	1.1	0.2	0.6

at%

- σ は各領域間の分析結果のばらつき（C、Oについては15領域、その他は20領域の結果の標準偏差）
- C、OについてはIn板上の試料について測定した15領域の平均値を用い、その他の元素については粘着テープ上の試料について測定した20領域の平均値を用いて全体の合計が100at%となるように規格化したもの
- 統合に当たっては、Feの平均値が等しくなるようにIn板上の試料の結果を補正

【参考】 試料① 一様粉末の成分分析結果と表面組成分析結果の比較

- ICP-MS+SEM-EDSによる成分分析結果とSEM-EDSによる粉末表面組成分析結果に関し、主要な5つの金属元素U、Fe、Zr、Cr、Niについて比較
- 試料を溶解して分析するICP-MS+SEM-EDSは試料の全体（バルク）の情報を、粉末のまま測定するSEM-EDSは試料表層の情報を示していると考えられる
- 一様粉末の表層にFeが多く、内部にUやZrが多い傾向を示唆
 - 数十～百 μm 程度のUやZrを含む粒子を核としてその表層にFeが蒸着・付着したものが多く堆積している可能性が考えられる
- U/Fe比はバルクで約50at%、表面で約5at%
 - X-6ペネ堆積物接触調査スミア試料（2～4at%）に比べて高い

主要元素のバルク濃度（ICP-MS）と表面濃度（SEM-EDS）の比較

元素	O	U	Fe	Zr	Cr	Ni
ICP-MS+SEM-EDS(バルク) (at%)	68	6.4	12.9	7.3	2.7	2.1
SEM-EDS(表面) (at%)	47	2	39	5	2	4

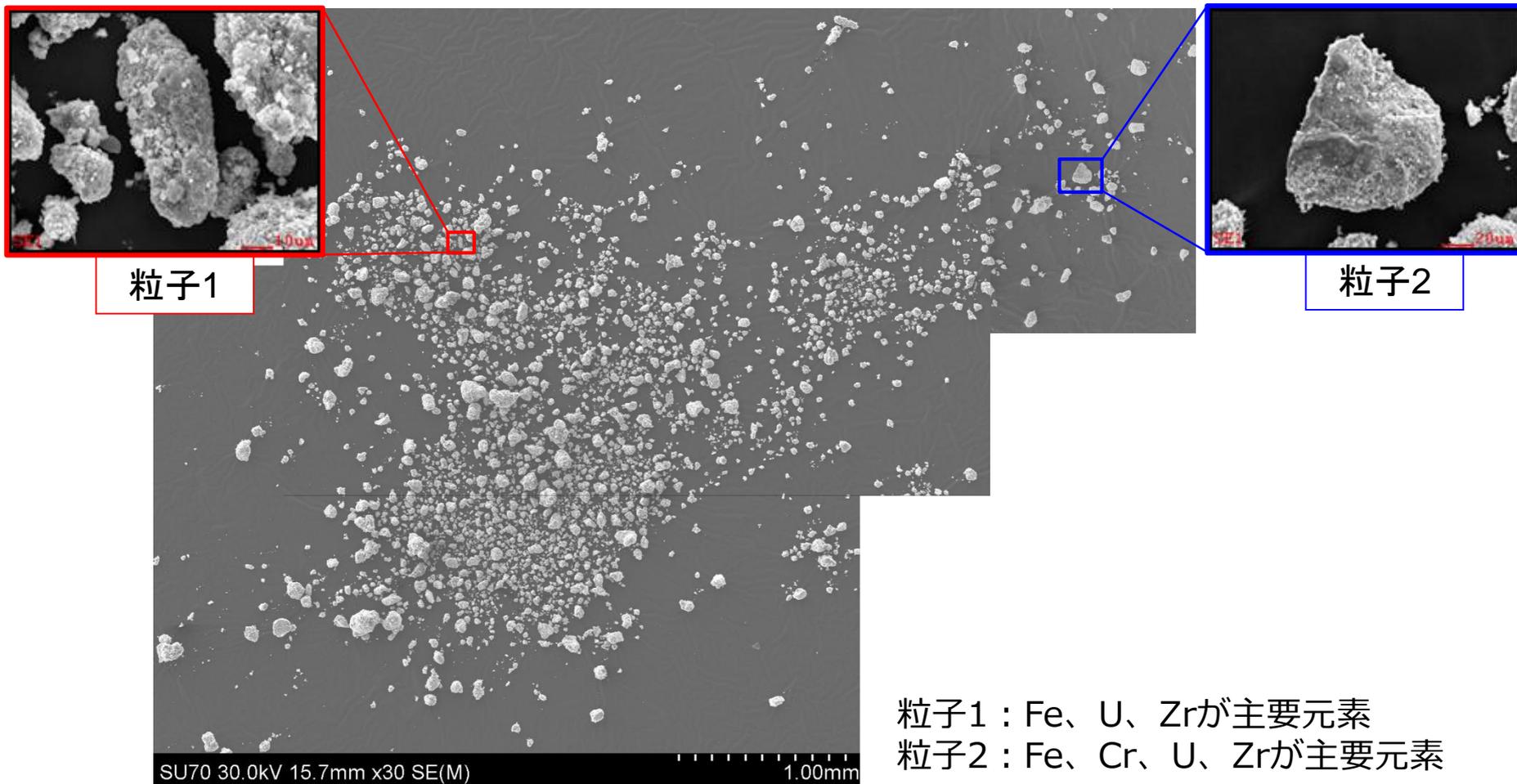
- 成分分析と表面分析による主要6元素の濃度を抽出し、100at%に規格化
- Oの値は参考値（ICP-MSにおけるO量は、検出元素量及び僅かな残渣量と分析に供した試料量の差をOによるものと仮定して評価。SEM-EDSによるOの定量値には大きな不確かさを含む。）

U重量に対する主要核種の放射能の比

核種	Am-241	Eu-154	Eu-155	Cs-134	Cs-137	Co-60	Sb-125
U重量に対する放射能の比 (Bq/ng-U)	7.92E-02	6.97E-02	2.15E-02	2.28E-04	1.64E-02	1.34E-02	6.80E-03

【参考】 試料① 一様粉末（2PEN2301-2）の外観とTEM着目粒子

- 数十 μm ～100 μm の粒子で、殆どの粒子にFe、U、Zrが存在
- 一様粉末の粒子の中からFe、U、Zrを主要元素とする粒子1とFe、Cr、U、Zrを主要元素とする粒子2に着目し、TEM-EDS試料とする



粒子1

粒子2

粒子1 : Fe、U、Zrが主要元素

粒子2 : Fe、Cr、U、Zrが主要元素

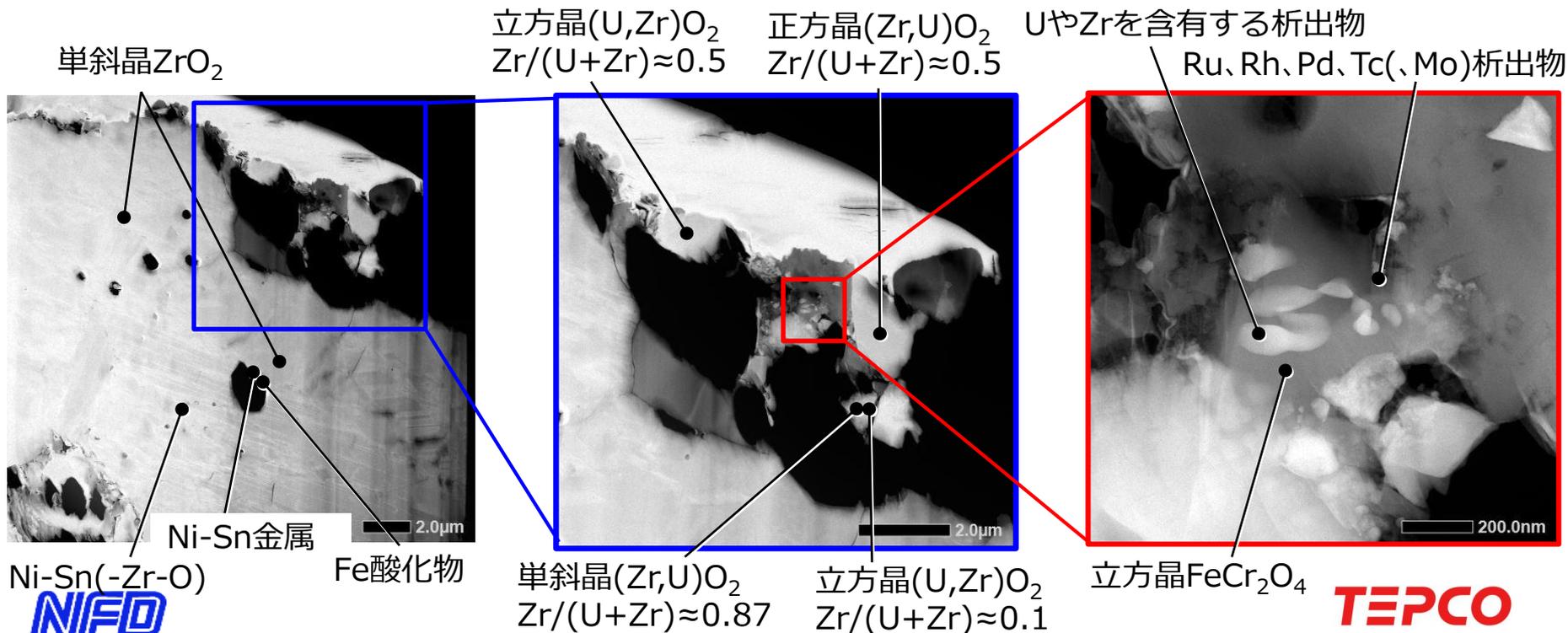
着目粒子のSEM像

【参考】 試料① TEM-EDS結果（一様粉末粒子1 領域01）

- Uを含まない大きな単斜晶の ZrO_2 中に小さなFe酸化物や金属性のNiやSn析出物が存在
- 青枠内に示す複数種の微粒子が付着
- 赤枠内には立方晶 $FeCr_2O_4$ 内にUやZrを含有する微粒子が分散しており、Fe-Cr-U-Zr-O溶解物から微粒子が析出するのとほぼ同時に立方晶 $FeCr_2O_4$ が凝固したことを示唆
- Ru-Rh-Pd-Tc(-Mo)からなる微粒子が存在

評価

- Uを含まないことからジルカロイ材単体での熔融凝固体に他の微粒子が付着したと考えられる
- 付着粒子は1800℃程度から急速に冷却されたものと推定される

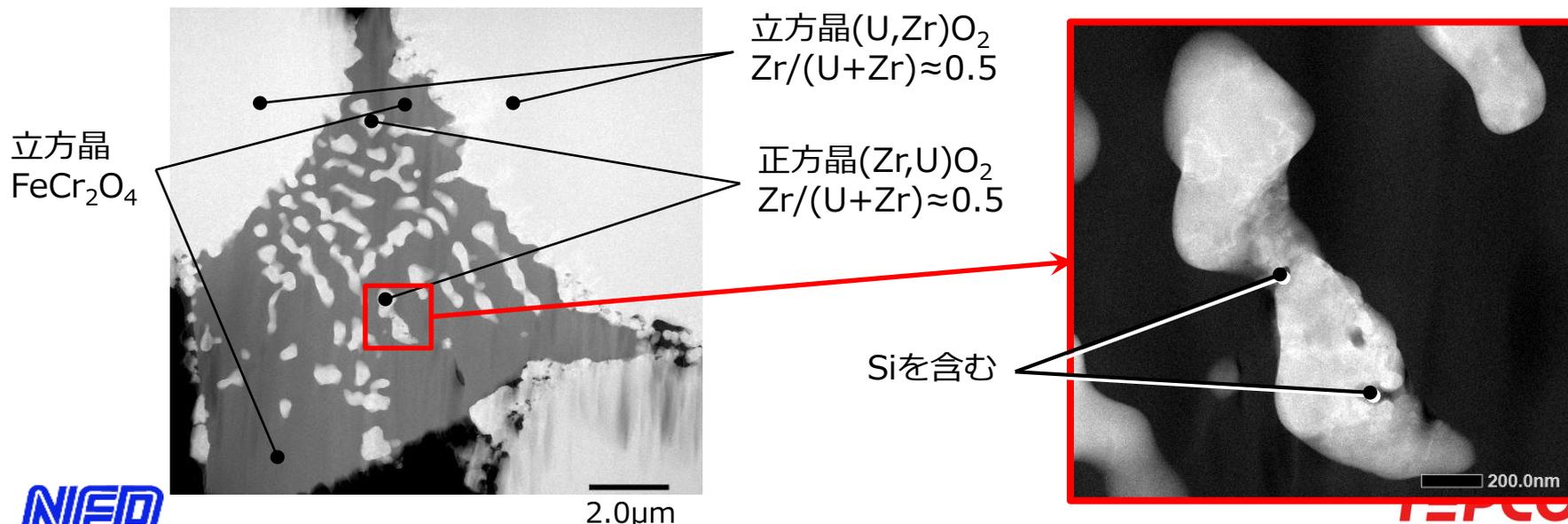


【参考】 試料① TEM-EDS結果（一様粉末粒子2 領域05）

- 析出物界面が滑らかではない立方晶 $(U,Zr)O_2$ （高温安定相）の大きな析出物の間に、正方晶 $(Zr,U)O_2$ （高温安定相）の微細析出物を含む立方晶 $FeCr_2O_4$ が存在
- 正方晶 $(Zr,U)O_2$ を拡大すると、界面に微小なSi析出（赤枠内）

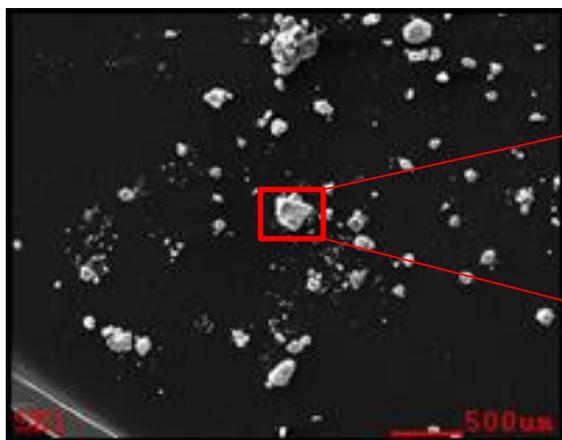
評価

- 燃料と構造材とが反応し、U-Zr-Fe-Cr-O溶融体を形成（1900℃以上、組成に依存）し、凝固
- Siはタイプレートや構造材、並びにS/C内面塗膜由来と推定
- 冷却過程において立方晶 $(U,Zr)O_2$ の微小な析出物が晶出
- 微小析出物が液相を介して凝集することにより①、②を形成
- 十分に滑らかな界面を形成するだけの十分な平衡を達成する前に $FeCr_2O_4$ 相が凝固する直前に正方晶 $(Zr,U)O_2$ が晶出したものと推察される

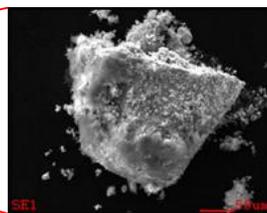


【参考】 試料① 板状試料（A-1表層）黄色特異部から採取した試料の外観

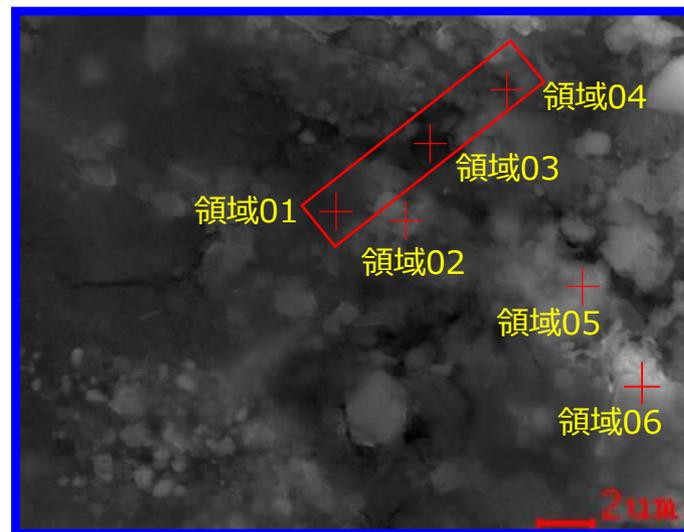
- 試料粉碎均一混合前に採取した板状試料の表面黄色部から試料を採取し、Ni濃度に分布のある粒子に着目
- Ni濃度の高い領域（領域03）を中心に異なる濃度領域を跨ぐように（右SEM像赤枠内）TEM-EDS試料を調製



A-1表層黄色特異部



着目粒子



着目粒子表面拡大

板状試料のSEM像

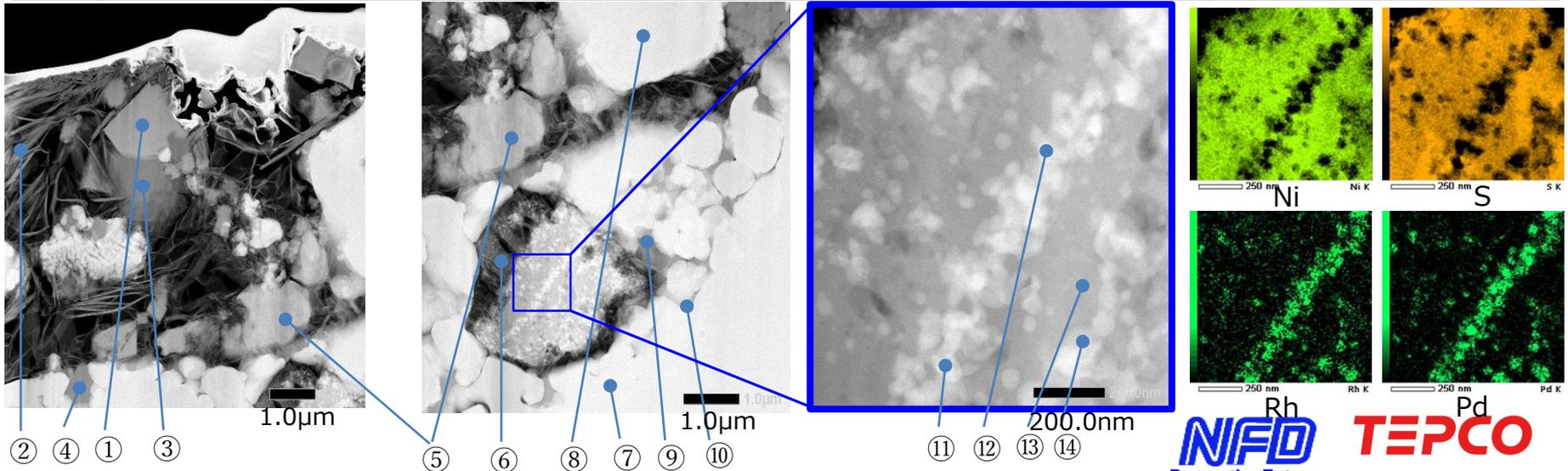
【参考】 試料① TEM-EDS結果 (A-1表層黄色特異部 領域03)

- 様々な組成・結晶構造の微粒子が凝集
- 中央写真青枠部を含む粒子は、 Ni_3S_2 中にRu、Rh、Pdが析出 (右写真⑪~⑫)

評価

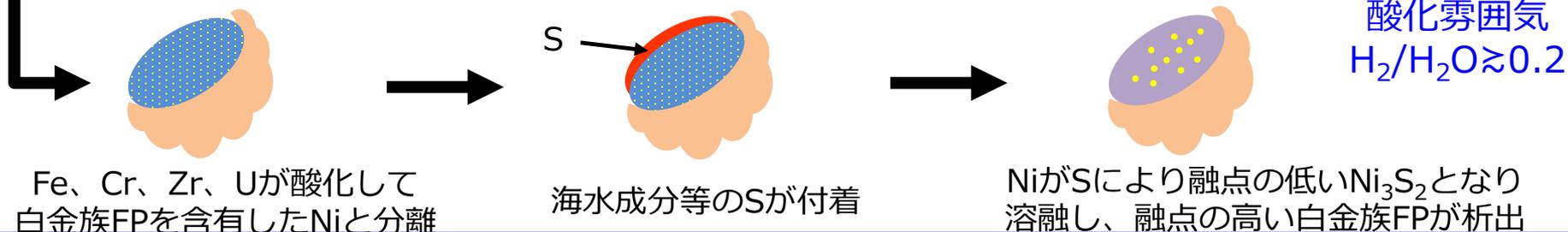
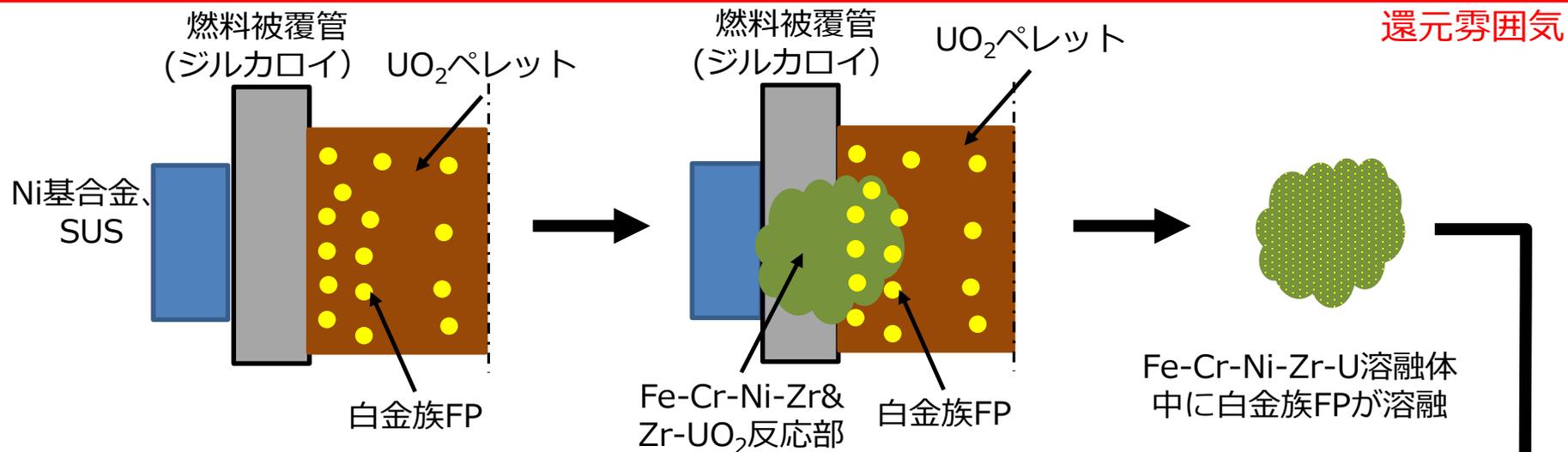
- 異なった過程で形成された微粒子が堆積したものと推定される
- Ru、Rh、Pdが析出を含む Ni_3S_2 粒子の推定形成過程：還元雰囲気下でNi含有合金と被覆管が接触。Zr中にNiが侵入し液相を形成し、またZrと UO_2 とが反応してU-Zr液相となりNi-Zr-U合金を形成。これに伴い、ペレット内の金属FP(Ru、Rh、Pd)が取り込まれる
- 海水等由来のSと反応し Ni_3S_2 を形成し、冷却に伴い金属FPが析出し、約 800°C で Ni_3S_2 部が凝固したものと推定される

位置	化学形態	位置	化学形態	位置	化学形態	位置	化学形態
①	立方晶 Fe_3O_4 (含む、Ni)	②	立方晶 $(\text{Fe},\text{Ni})\text{O}$	③	Fe_2SiO_4	④	立方晶 FeCr_2O_4
⑥	Ni-Fe-O化合物	⑦	立方晶 $(\text{Zr},\text{U})\text{O}_2$	⑧	正方晶 $(\text{Zr},\text{U})\text{O}_2$	⑫	三方晶 Ni_3S_2 (Ru、Rh、Pd)



【参考】 試料① Ru、Rh、Pdを含有するNi₃S₂粒形成過程の推定

- SUSやインコネルなどNiを含む合金がジルコニウムを含む合金と接触すると共晶熔融反応により熔融
- 一方、ジルカロイとUO₂が接触し約1200℃を超えると金属FPを含むU-Zrの液相を形成し、Ni-Zr-U-金属FPの熔融体を形成
- H₂/H₂O比が約1以上の時、Zrは酸化され、NiやSが酸化されないため、ZrO₂が形成され、Niと分離
- NiとSが反応して、融点の低いNi₃S₂を形成し、冷却に伴い金属FPが析出



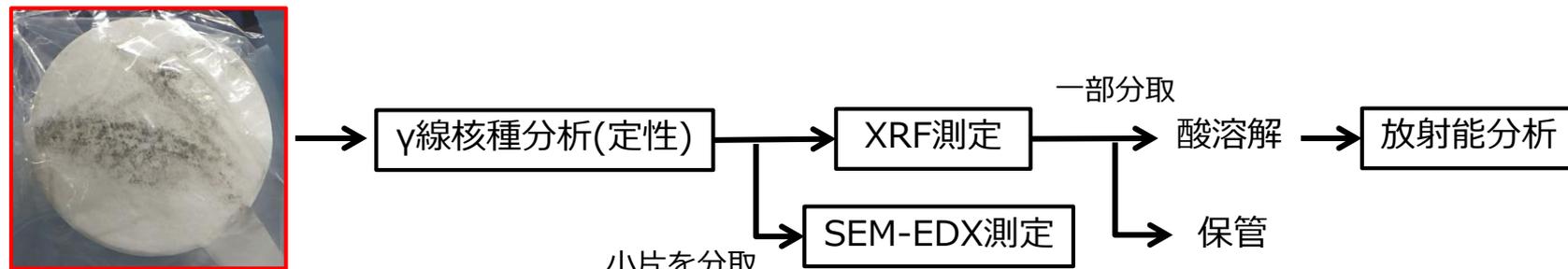
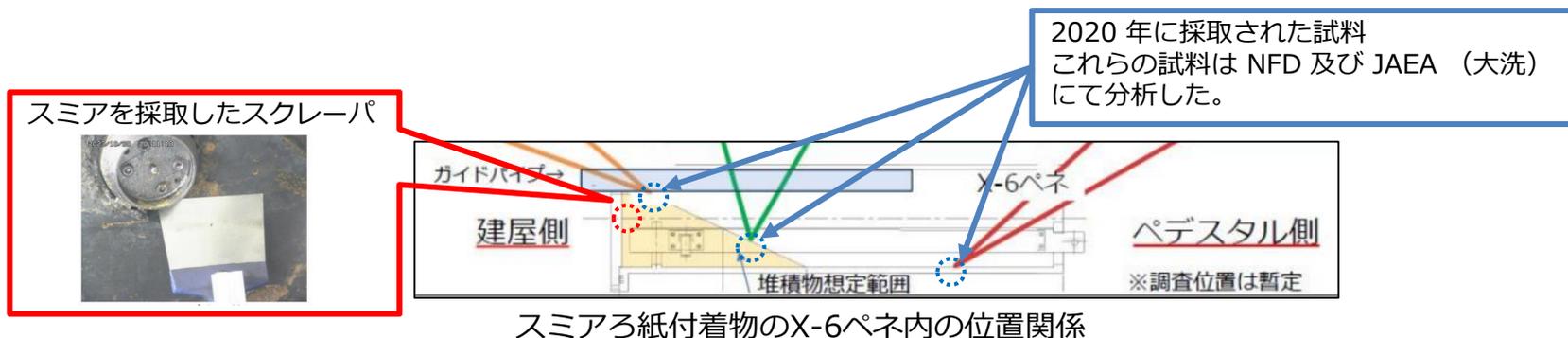
【参考】 試料①まとめ

2号機X-6ペネのフランジを開放時に紙ウエス上に落下した堆積物片について、放射線分析、ICP-MS、XRD、SEM-EDS、TEM-EDSを行い、堆積物片の性状を詳細に分析した。

- 堆積物中の放射能濃度は、揮発性核分裂生成物であるCs-134、Cs-137の存在割合が少なく、Am-241、Eu-154の存在割合が多かった。
- 堆積物の主な成分はFe、Cr、Niの構造材成分が多く、UやZrの燃料由来成分が混在しており、Cは検出されなかった。また、主に、1~3 μ m以下のFe酸化物の微粒子とUを含有する数十~100 μ m程度の粒子から構成されていた。
- ICP-MS並びに不溶解残渣に対するSEM-EDSによる組成分析の結果、分析に供した試料から定量されたU量は38.8 mgであった。
- 堆積物中のケーブル被覆材溶融成分はほとんど残って無いことが確認された。
- U含有粒子のU : Zr比及び結晶構造は高温において安定な相の特徴を示しており、高温から急冷されたものと評価された。
- RPVからの溶融物（あるいは、溶融固化物）がPCV内に落下した際に、落下物の一部が気中に舞上がり、X-6ペネに移流するとともに、長時間にわたってFe酸化物の微小粒子が供給されたことにより多量の堆積物が形成された可能性が示唆された。

【参考】 試料② 概要・分析フロー

- 2号機X-6ペネのハッチ開放作業時に、ハッチ裏側を引っ掻いたスクレーパの拭き取りスミアを9点採取し、JAEA第1棟において分析した。
- スミアに対し表面線量率測定、 γ 線核種分析、XRFおよびSEM-EDSによる成分分析を行った後、酸溶解して放射能分析も行った。



【参考】 試料② スミアの表面線量率

- 黒い汚れの多いスミアにおいて表面線量率が高い。また、 γ (1 cm線量等量率) よりも、 $\beta\gamma$ (70 μm 線量当量率) が高い傾向がある。

スミアの線量率



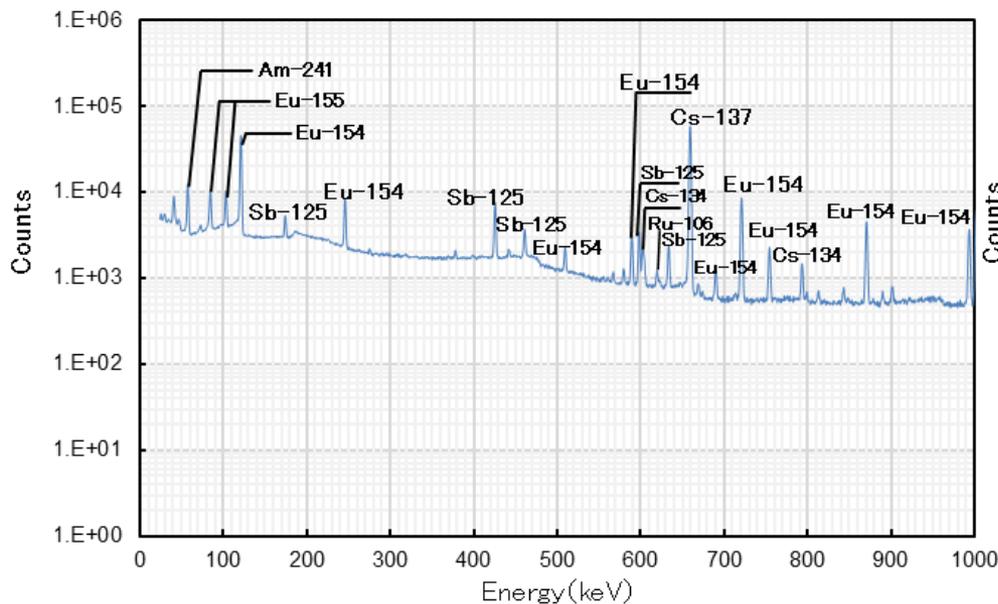
スミアの外観

試料番号 (JAEA)	γ [$\mu\text{Sv/h}$]	$\beta\gamma$ [$\mu\text{Sv/h}$]
23P-1	180	3,000
23P-2	60	790
23P-3	190	3,500
23P-4	9	170
23P-5	4	73
23P-6	3	40
23P-7	2	40
23P-8	7	110
23P-9	1	20

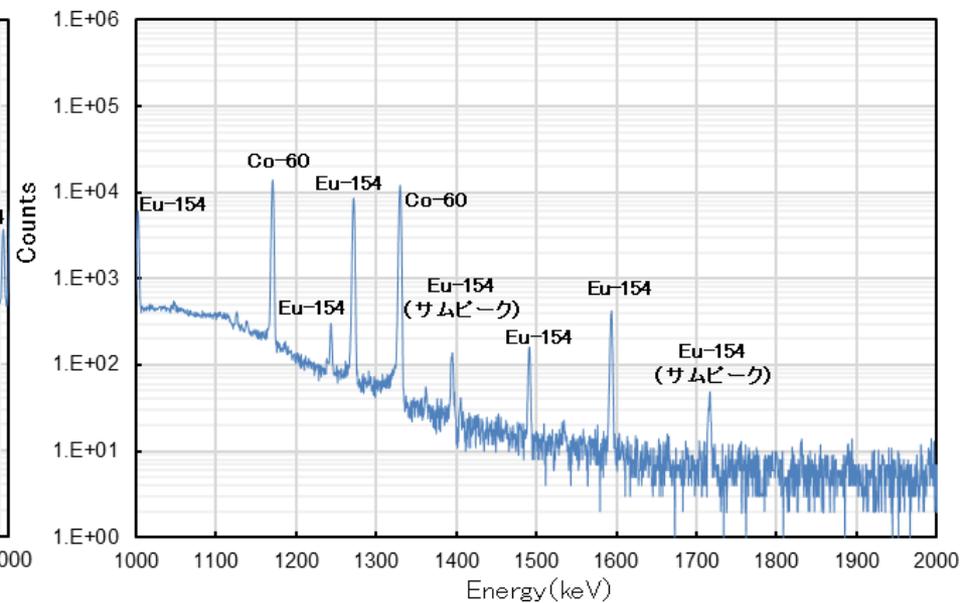
ビニール袋養生越しに電離箱サーベイメータにて測定。BG (γ 、 $\beta\gamma$) : 0.00 $\mu\text{Sv/h}$

【参考】 試料② γ 線核種分析結果

- γ 線核種分析では、Co-60、Sb-125、Cs-134、Cs-137、Eu-154、Eu-155、Am-241を検出した。なお、スミアの採取効率や採取量を定量できていないため、放射エネルギーの定量評価は行っていない。
- 9試料のスミアから検出した γ 線核種は同等であったことから、付着した黒い汚れが明確だった23P-1～3のうち、作業者の被ばく低減の観点から、比較的線量率の低い23P-2について以降の分析を行った。



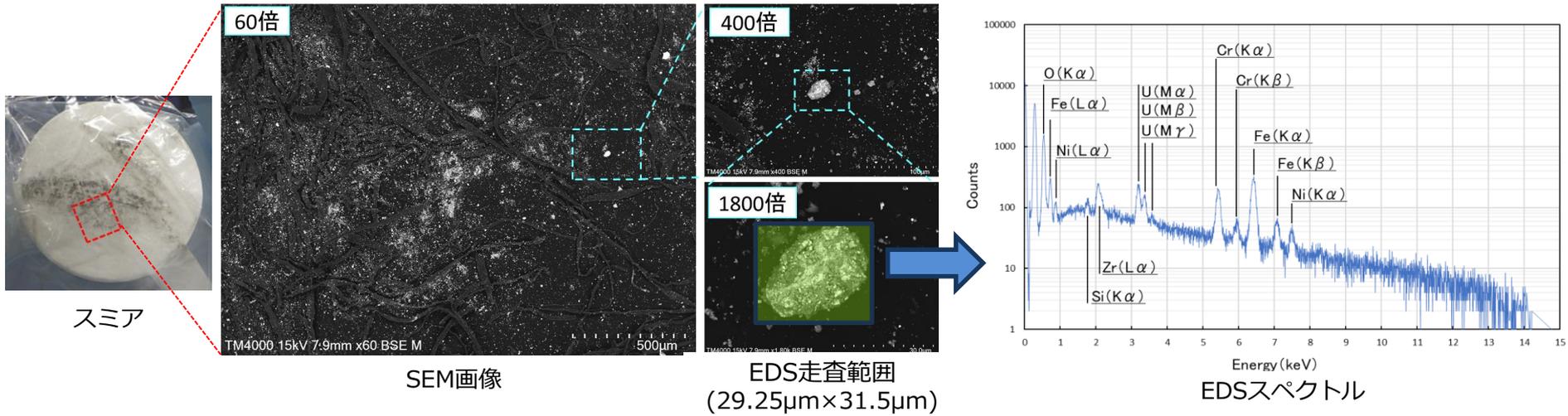
スミア (23P-2) の γ 線スペクトル (0 ~ 1,000 keV)



スミア (23P-2) の γ 線スペクトル (1,000 ~ 2,000 keV)

【参考】 試料② XRF、SEM-EDS結果

- 23P-2の試料について、XRFとSEM-EDSによる定性的な成分分析を行った。



スミアのSEM-EDSとXRFの成分分析結果

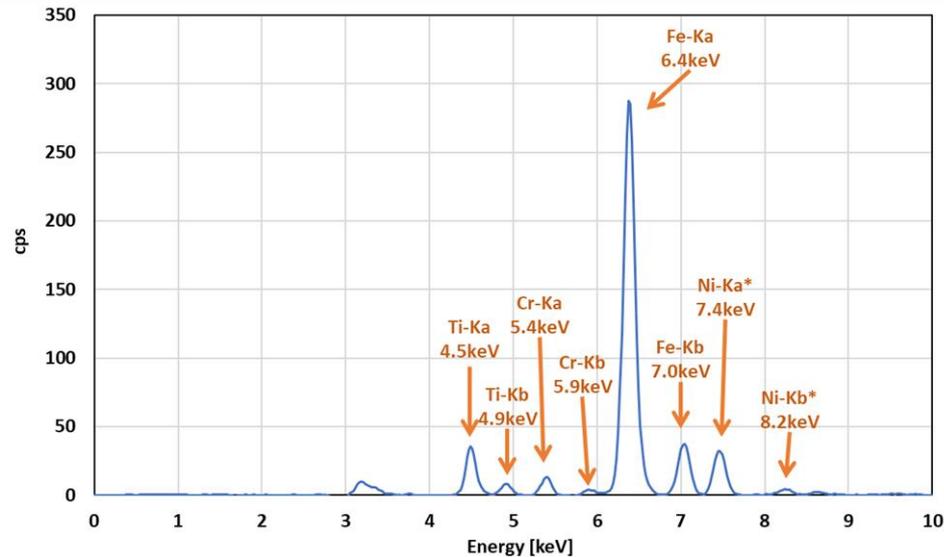
分析方法	O	Na	Mg	Al	Si	S	Cl	Ca	Ti
SEM-EDS	○			(○) ※	○			(○) ※	
XRF	対象外	対象外	対象外	対象外					○

分析方法	Cr	Fe	Ni	Cu	Zn	Zr	Mo	Sn	Pb	U
SEM-EDS	○	○	○			○				○
XRF	○	○	○			○				○

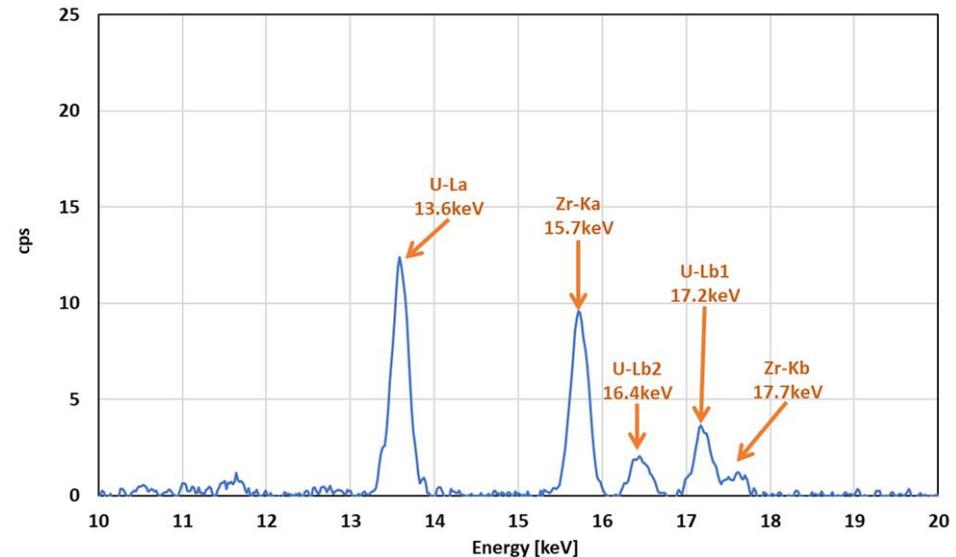
※ピークが見られたが、他の元素と比べ信号強度が低い

【参考】 試料② XRF結果

- 23P-2の試料について、XRFによる定性的な成分分析を行った。
- 0~10 keVで主要なピークとしてFeを検出し、その他にTi、Cr、Niが検出された。Fe、Cr、Niは炉内構造材由来と考えられる。
- 10~20 keVではU、Zrを検出したことから、Uは燃料由来、Zrはチャンネルボックスや被覆管由来であると考えられる。



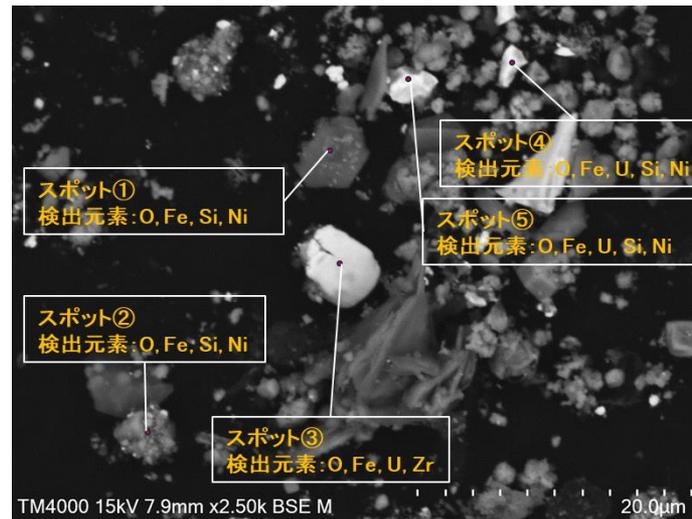
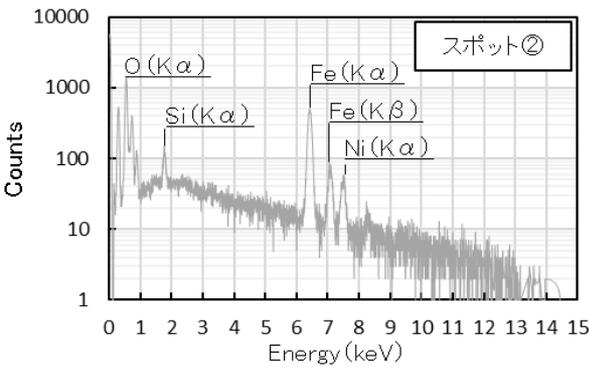
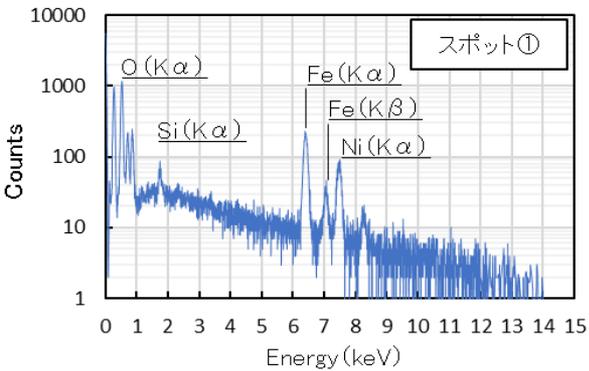
0~10 keVのXRFスペクトル



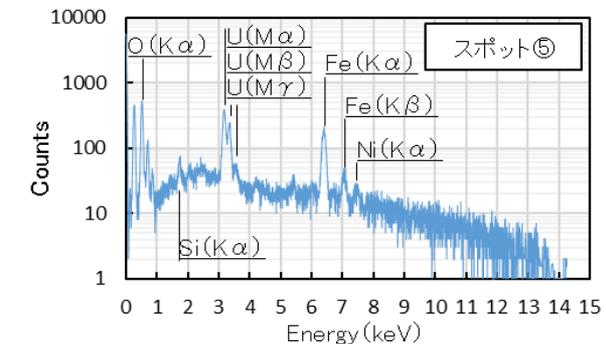
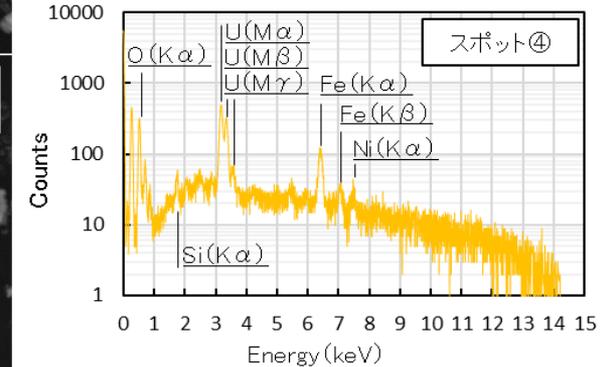
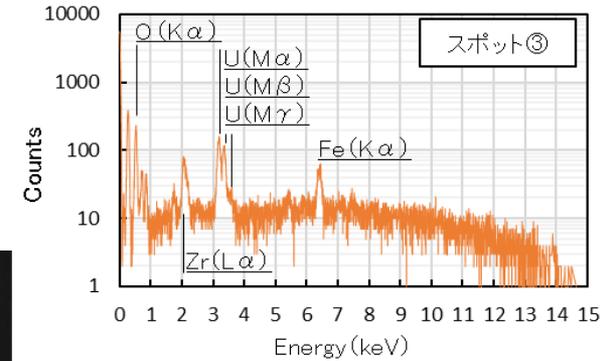
10~20 keVのXRFスペクトル

【参考】 試料② SEM-EDS結果

- スミアのSEM-EDS分析では主にO、Fe、Uが共通して検出され、スポットごとにZr、Cr、Ni、Siを検出した。



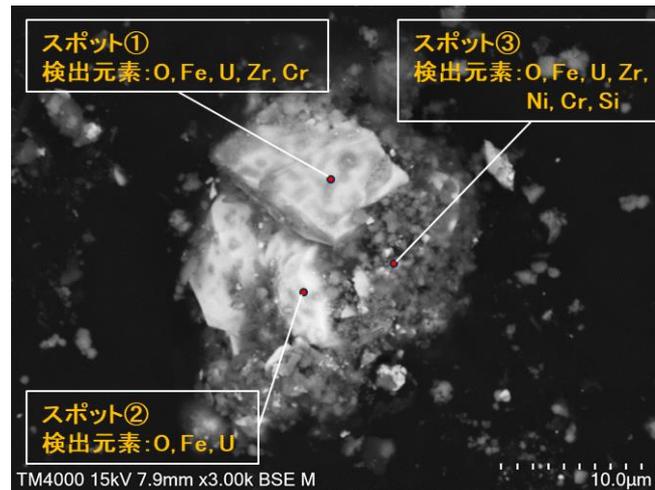
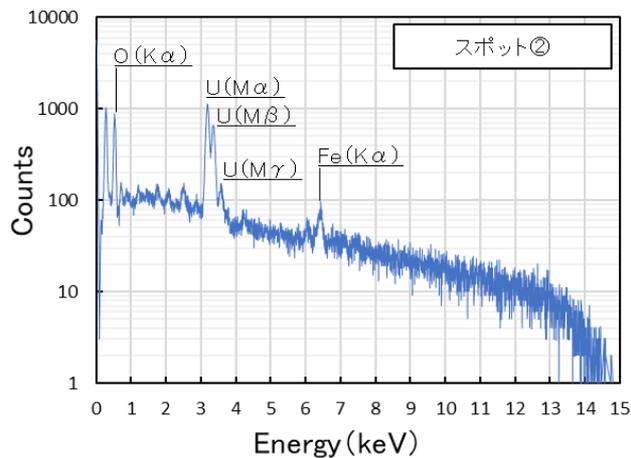
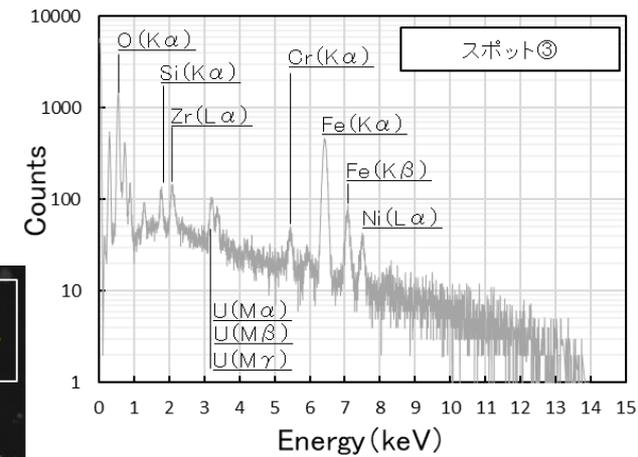
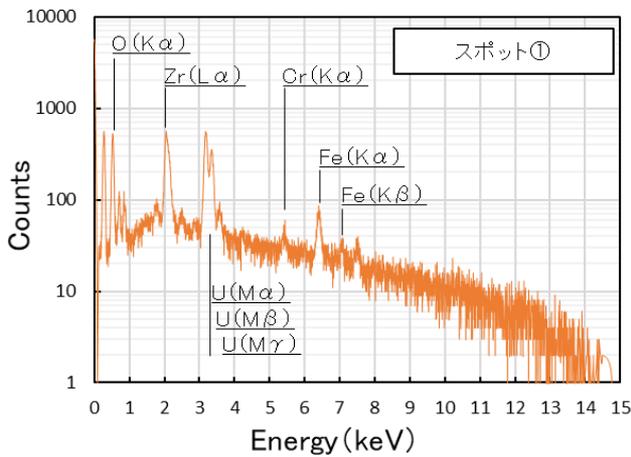
解像度 : 1,048×786 [pix]
1pixのサイズ : 47.6 [nm]
画像サイズ : 50×37 [μm]



SEM画像とEDX測定の結果

【参考】 試料② SEM-EDS結果

- 同じスミアに付着していた他の粒子においても、主にO、Fe、Uを検出した。



解像度 : 1,048×786 [pix]
1pixのサイズ : 39.7 [nm]
画像サイズ : 42×31 [μm]

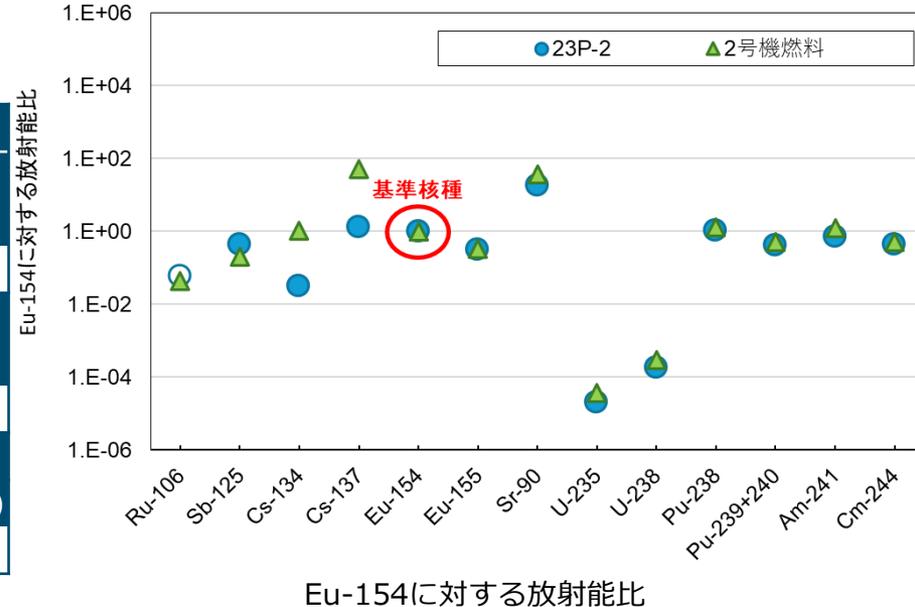
SEM画像とEDX測定の結果

【参考】 試料② 放射能分析結果

- スミアを酸溶解して放射能分析を行い、下表の通り各核種の放射能量を定量した。
- 23P-2におけるCs-134、Cs-137のEu-154に対する放射能比は2号機燃料組成よりも低い。

放射能分析結果

試料	放射能量[Bq/試料]			
	⁶⁰ Co (約5.3年)	¹³⁷ Cs (約30年)	¹⁰⁶ Ru (約1年)	¹²⁵ Sb (約2.8年)
23P-2	2.97×10^2	5.65×10^2	$< 2.58 \times 10^1$	1.83×10^2
	¹³⁴ Cs (約2.1年)	¹⁵⁴ Eu (約8.6年)	¹⁵⁵ Eu (約4.8年)	⁹⁰ Sr (約29年)
	1.35×10^1	4.27×10^2	1.32×10^2	7.60×10^3
	²³⁵ U (約 7.0×10^8 年)	²³⁸ U (約 4.5×10^9 年)	²³⁸ Pu (約88年)	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (約 6.6×10^3 年)
	8.67×10^{-3}	7.58×10^{-2}	4.36×10^2	1.73×10^2
	²⁴¹ Am (約 4.3×10^2 年)	²⁴⁴ Cm (約18年)		
	3.00×10^2	1.88×10^2		



*Ru-106は不検出だったことから、検出下限値に基づいて放射能比を算出し、プロットした。

*半減期はEvaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF) を参照 (<https://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>)

【参考】 試料② まとめ

2号機X-6ペネのハッチ開放作業時に、ハッチ裏側を引っ掻いたスクレーパから採取したスミアをJAEA第1棟へ搬入し、スミアの表面線量率測定、 γ 線核種分析、XRF及びSEM-EDSによる成分分析を行った後、酸溶解して放射能分析した。

- スミアの表面線量率測定では、黒い汚れの多いスミアにおいて表面線量率が高く、 γ よりも $\beta\gamma$ の線量率が高い傾向であった。
- γ 線核種分析では、Co-60、Sb-125、Cs-134、Cs-137、Eu-154、Eu-155、Am-241が検出された。
- XRF測定では、主要な元素としてFeを検出し、その他にNi、Cr、Tiを検出したことから、炉内構造材由来の成分と考えられる。また、U、Zrを検出したことから、燃料や被覆管の成分を含んでいると考えられる。
- SEM-EDS測定では、スミア全体で主にO、Fe、Uが検出されており、スポットごとにZr、Cr、Ni、Siが検出された。
- 放射能分析では、Cs-134、Cs-137、Co-60、Sr-90、Pu-238、Pu-239+240、U-235、U-238、Am-241、Cm-244を検出した。また、Co-60、Cs-134、Cs-137以外については、U-238との放射能比が2号機燃料組成と近い値であった。

【参考】 試料③ X-6内堆積物接触調査装置スミア試料分析結果

- 幅約20 μm の(U,Zr)O₂粒子の周囲に微細なFe酸化物が存在
- 鋼材由来の成分が広く分布し、その中に燃料成分、構造材、塗料、計装材等に由来する粒子が混入しており、U/Fe比は約2~4at%

分析対象サンプル

X-6ペネ調査装置付着物

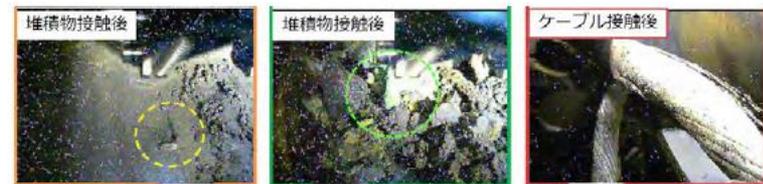
- ◆ X-6ペネ内堆積物の接触調査[4]に使用された調査装置先端の付着物として、スミアが3種類*採取され、これらを分析サンプルとした。

※スミア採取位置は右下図参照

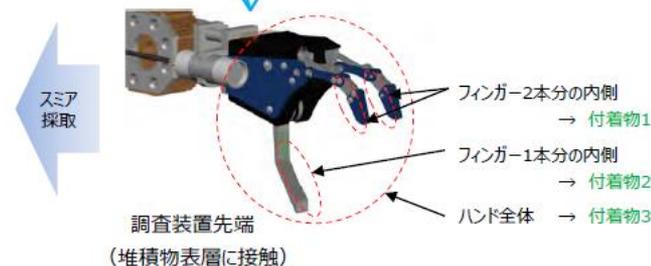


※ スミア紙の直径はいずれも約5cm

採取された付着物サンプルの外観
(分析機関受入れ後に撮影)



X-6ペネ内堆積物接触調査
(参考文献[4]に追記)



(参考) 採取されたスミアの線量:
γ: 0.006~0.008mSv
β: 3.0~5.0mSv