# 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

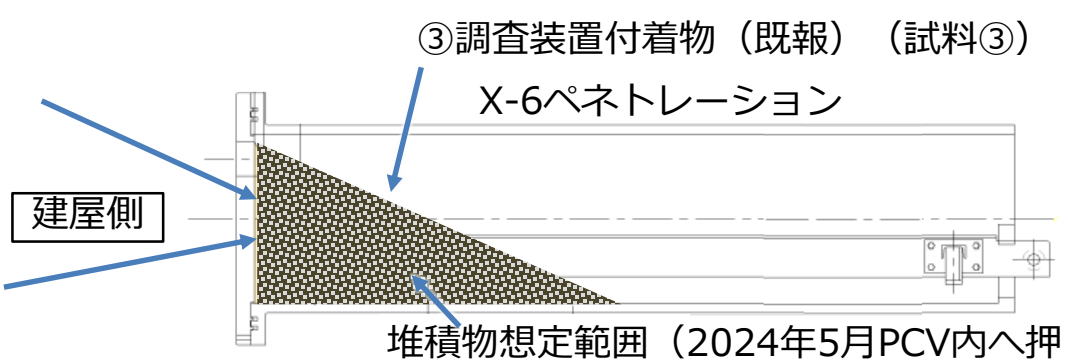
JAEA NFD Power the Future TEPCO

# 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）が採取できた事から、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。

①堆積物片

②ハッチスミア

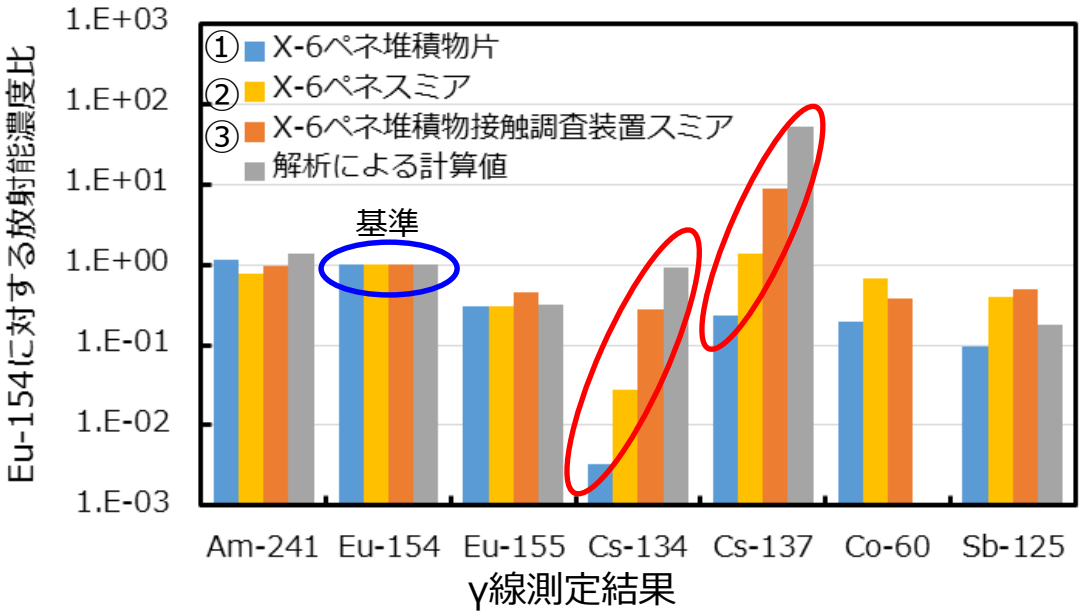


| 試料番号 | 名称 | 概要 | 分析機関 |
|---|---|---|---|
| ① | 堆積物片 | 2023年10月に実施したX-6ペネハッチを開放時にハッチ蓋部から落下した堆積物片 | 日本核燃料開発株式会社 |
| ② | ハッチスミア | X-6ペネハッチ開放後に蓋部をスクレーパでかきとった。このスクレーパを拭き取り採取したスミアろ紙 | JAEA<br>大熊・分析研究センター |
| ③<br>（既報） | 調査装置付着物 | 2020年10月に実施したX-6ペネ内堆積物調査時に調査装置に付着したものを拭き取ったスミアろ紙 | JAEA大洗原子力工学研究所<br>日本核燃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

# 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




γ線測定結果

※ 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
※ 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

αα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）

βα放射能分析（試料②について実施）

- Sr-90を検出

JAEA NFD Power the Future TEPCO

# 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 | － | － | ○ | ○ | × | × | ○ | ○ | ○ | ○ | × | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |

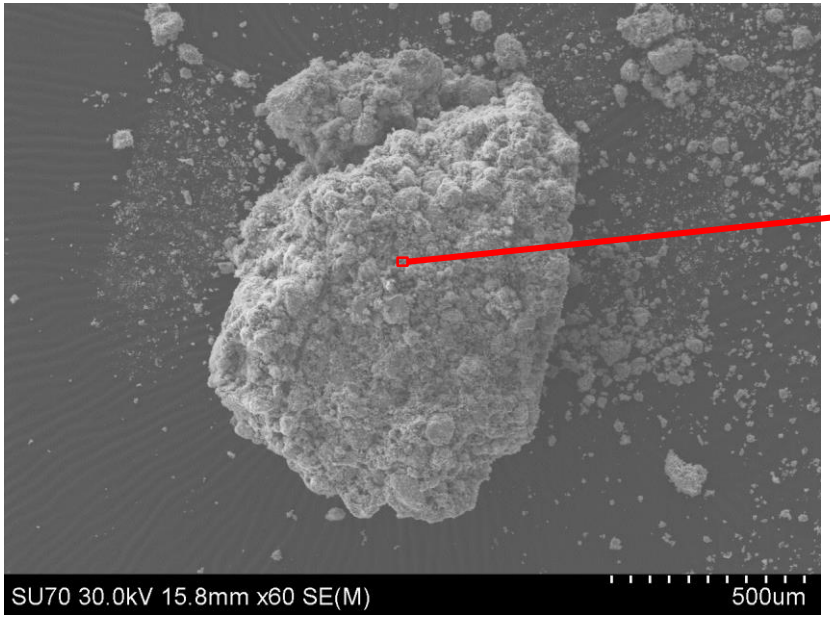
■ 定量分析（試料①で実施）
  ■ 試料表面付近の元素組成について、SEM-EDSで定量する「表面分析」と、試料を溶解しICP-MSで分析し残渣についてSEM-EDSで測定し補正する「バルク分析」の2種類を実施
  ■ 主要な5つの金属元素U、Fe、Zr、Cr、Niについて比較（下表）
    ➢ 表面付近と、バルク（試料全体）の分析結果では異なる傾向
    ➢ Feに対するZrやUの割合が表面に比べて内部（バルク）の方が高く、後述の微粒子分析の結果も踏まえると、数十～百μm程度のZrやUを含む粒子を核として、その表層にFeが蒸着・付着した可能性がある

主要元素のバルク濃度（ICP-MS）と表面濃度（SEM-EDS）の比較

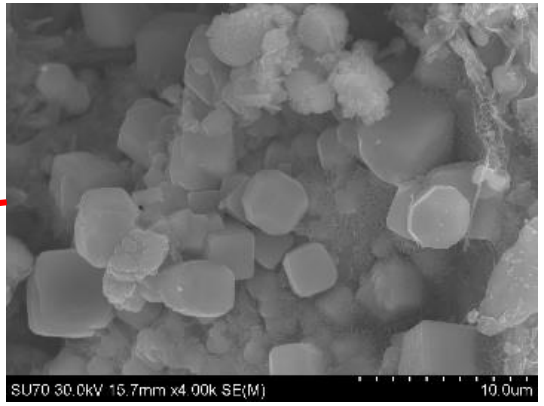
| 元素 | O | U | Fe | Zr | Cr | Ni |
|---|---|---|---|---|---|---|
| ICP-MS+SEM-EDS(バルク) (at%) | 68 | 6 | 13 | 7 | 3 | 2 |
| SEM-EDS(表面) (at%) | 47 | 2 | 39 | 5 | 2 | 4 |

- 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。）

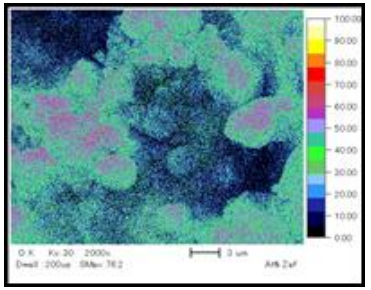
# 4．1　SEM-EDSによる固体分析（試料① ハッチ堆積物片）



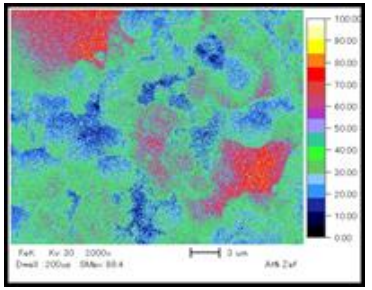

試料①に含まれていた粒子の表面



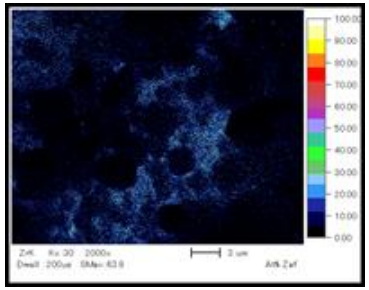

SEM像



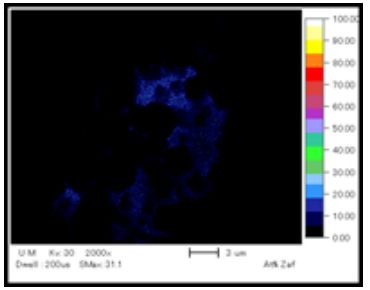
O



Fe



Zr



U

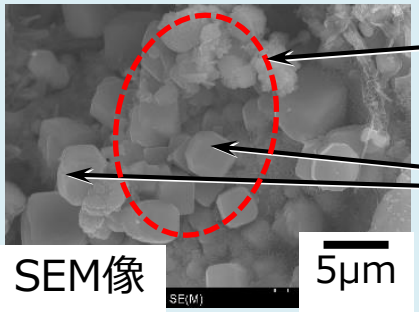
- 約1mmの大きな凝集粒子で、表面に1~5μmの微小なFe酸化物の粒子が存在
- 僅かに、ZrやUも存在

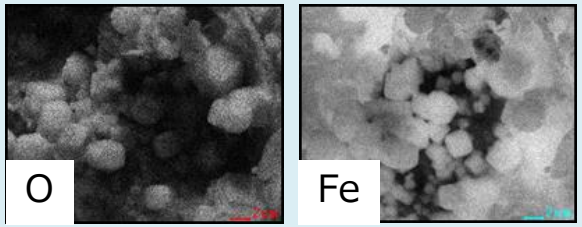
評価

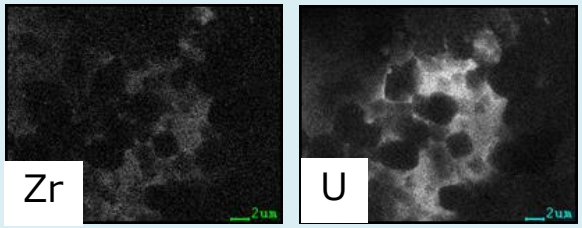
- X-6ペネ堆積物接触調査スミア試料と同様
- Fe酸化物の微小粒子は蒸発凝縮により形成したものと推定され、粒子の小ささから、長期にわたり気相に浮遊して水蒸気とともにX-6ペネに移流したと推定される

# 4．2　X-6ペネ内から採取した粒子の概要比較

## 試料① ハッチ堆積物片



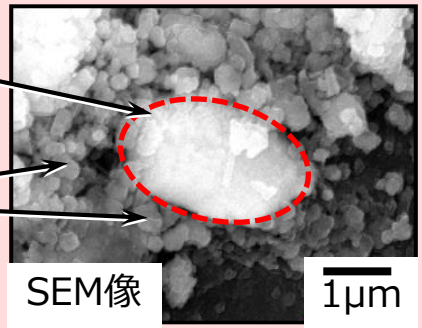



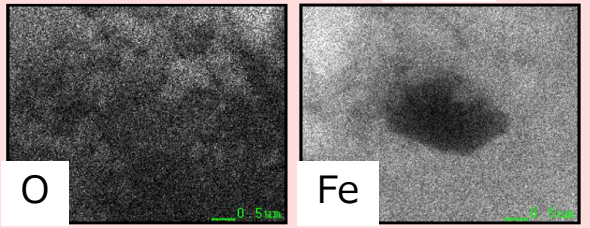

U濃度の高い領域

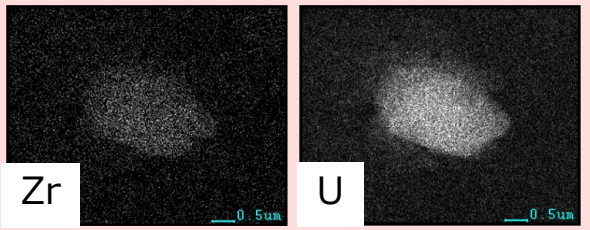
多数の鉄酸化物の微粒子

いずれも、酸素(O)と鉄(Fe)が広く存在していることから、U濃度の高い領域の周りに多数存在している微粒子は鉄酸化物と考えられる

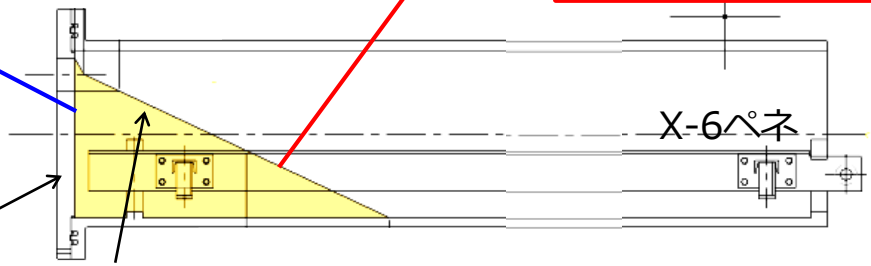
## 試料③ 調査装置付着物




SEM像および特性X線像




堆積物イメージ

JAEA　NFD Power the Future　TEPCO

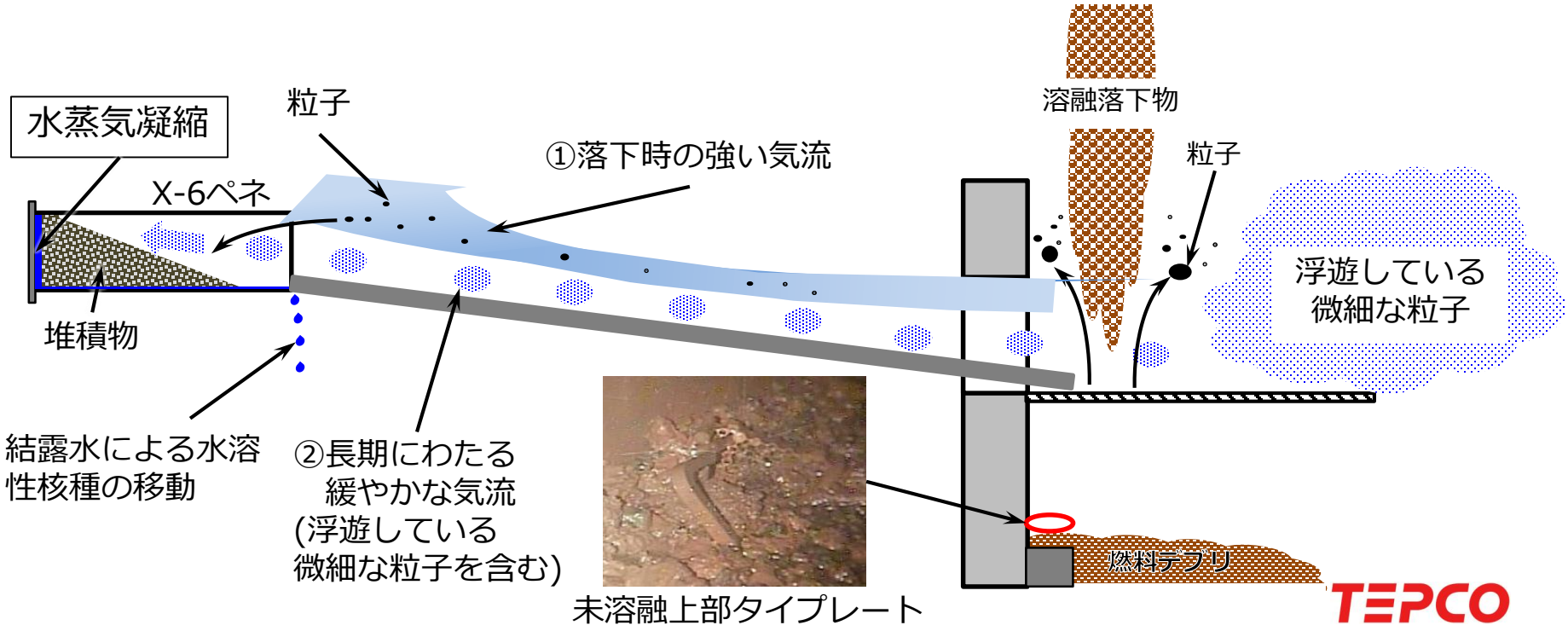
# 5．堆積メカニズムの推定

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（40μm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デスタル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1～2μm以下のFe酸化物粒子の存在）

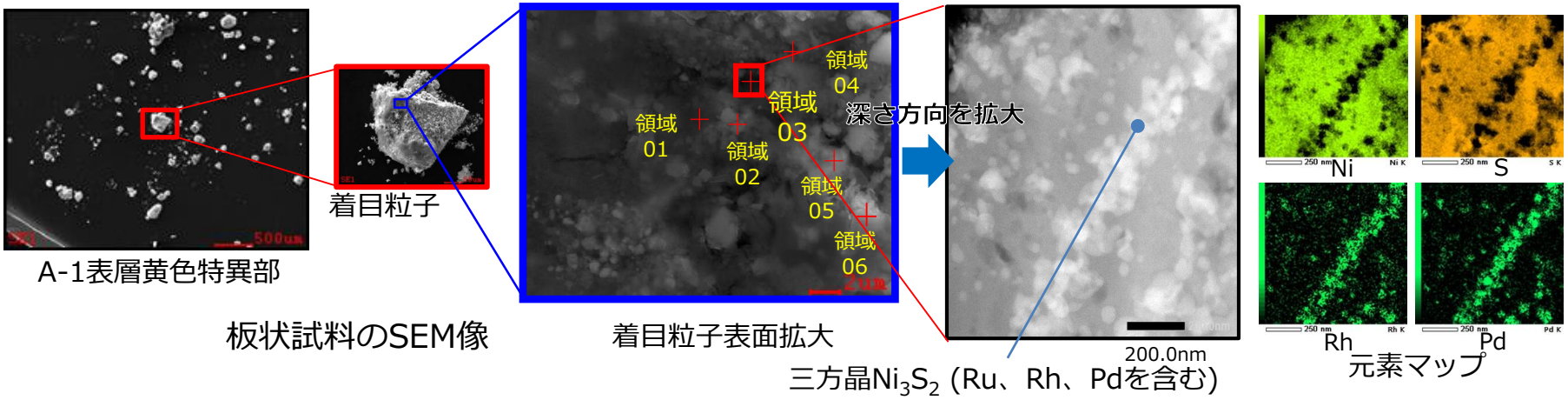
水蒸気凝縮に関しては、フランジ解放時に水滴が流れ出すことが確認されている

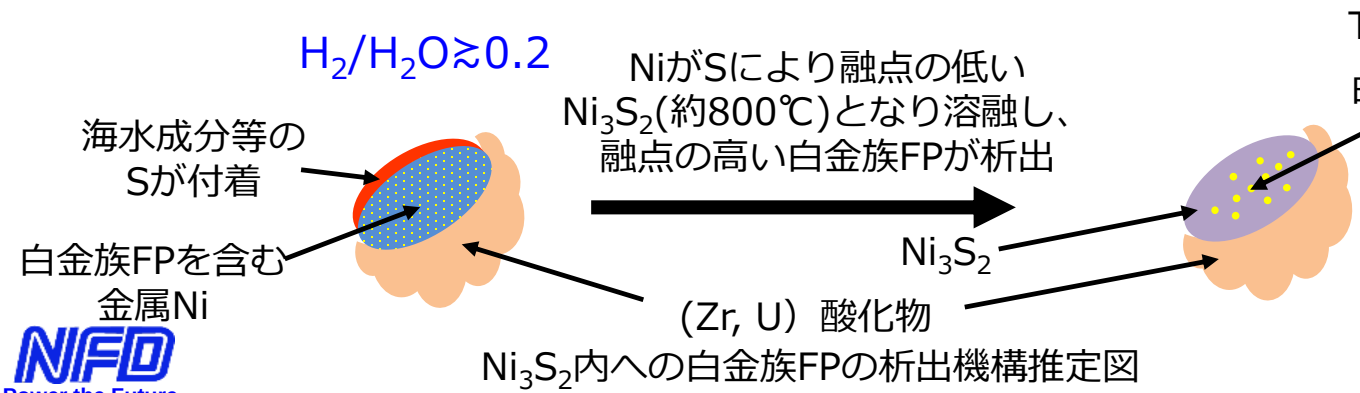


# 6．事故進展の推定に関連する粒子の確認 ($Ni_3S_2$中に白金族FPが点在する領域が存在)

- 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、$Ni_3S_2$中にRu、Rh、Pdが析出した粒子が存在
- 燃焼の進んだ$UO_2$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



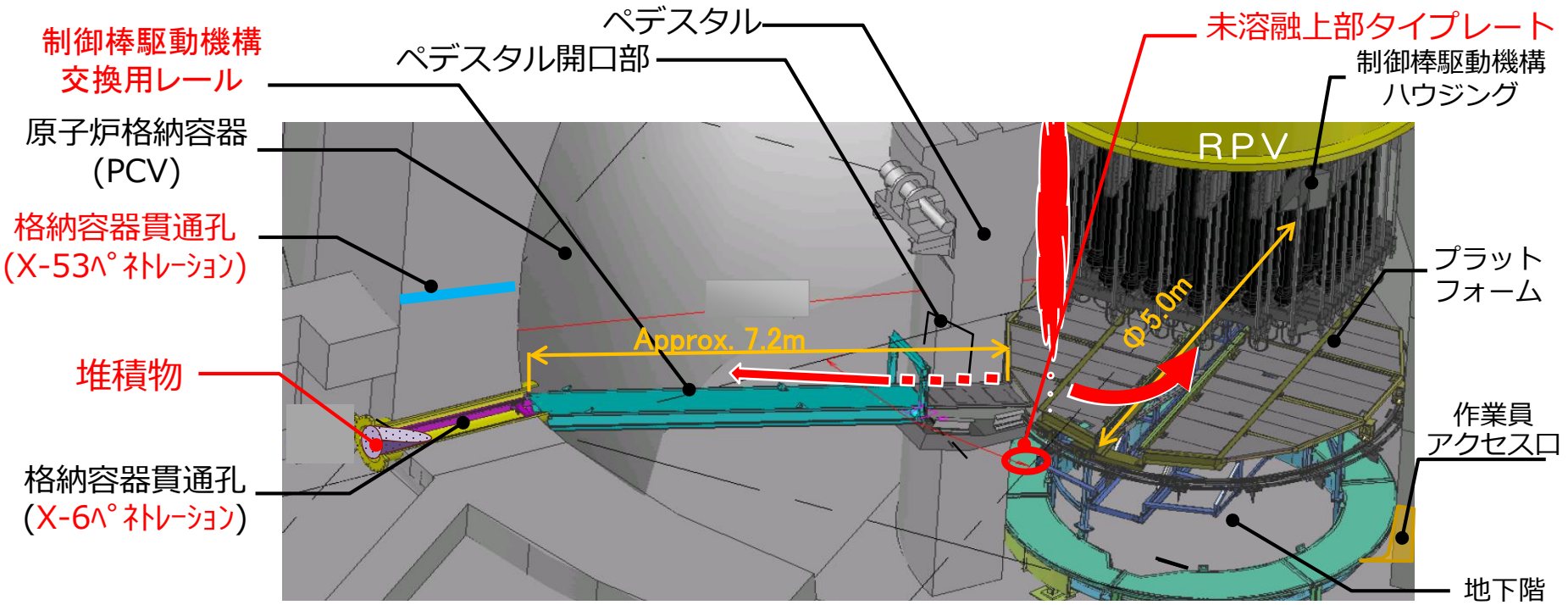

Power the Future

# 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、1~3μm以下のFe酸化物の微粒子と、Uを含む数十~100μm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、ペデスタル開口部に対向している。
- この開口部近傍のペデスタル内壁近くに、未溶融上部タイ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、ペデスタル内から運ばれて堆積したものが含まれると推定される。

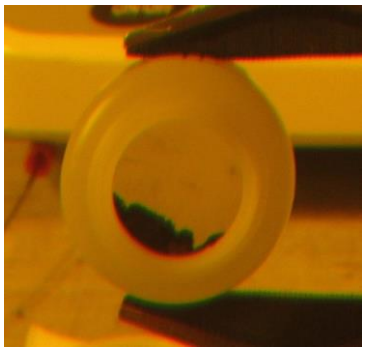



2号機X-6ペネトレーションの位置関係

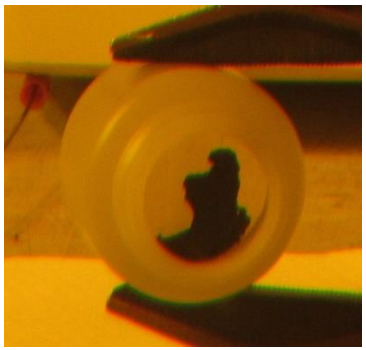
# 【参考】試料① X-6ペネトレーションの堆積物片

- 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

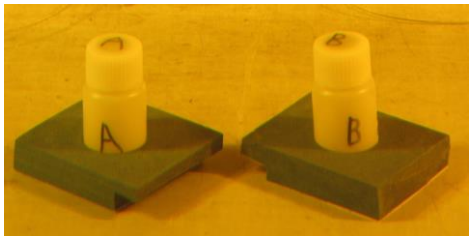
ホットラボへ輸送



試料A



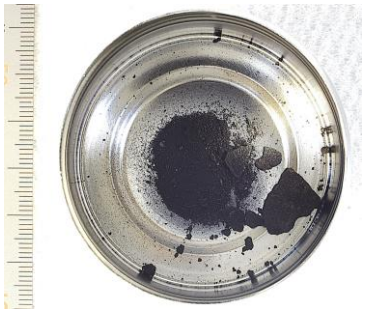
試料B




| 試料 | B.G. | 線量率(γ) |
|---|---|---|
| A | 180 [μSv/h] | 18.6 [mSv/h] |
| B | 180 [μSv/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

試料A



試料B

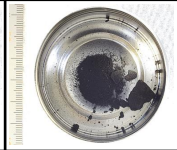
受入時の試料外観

NFD Power the Future

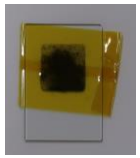
TEPCO

# 【参考】試料① 分析フロー

試料受け入れ
↓
外観観察、重量測定、グロスγ線測定
↓
粗粉砕
↓
板状試料採取 → 板状試料
↓ 残部
粉砕均一混合
↓
分取

| | A | B |
|---|---|---|
| 外観 | |  |
| 重　量　[g] | 3.186 | 1.879 |
| 線量率 [mSv/h] | 18.6 | 15.2 |
| B G [μSv/h] | 180 | 180 |

線量率は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

分取 → 
- γ線スペクトル → 放射性核種 放射能濃度
- XRD → 結晶構造

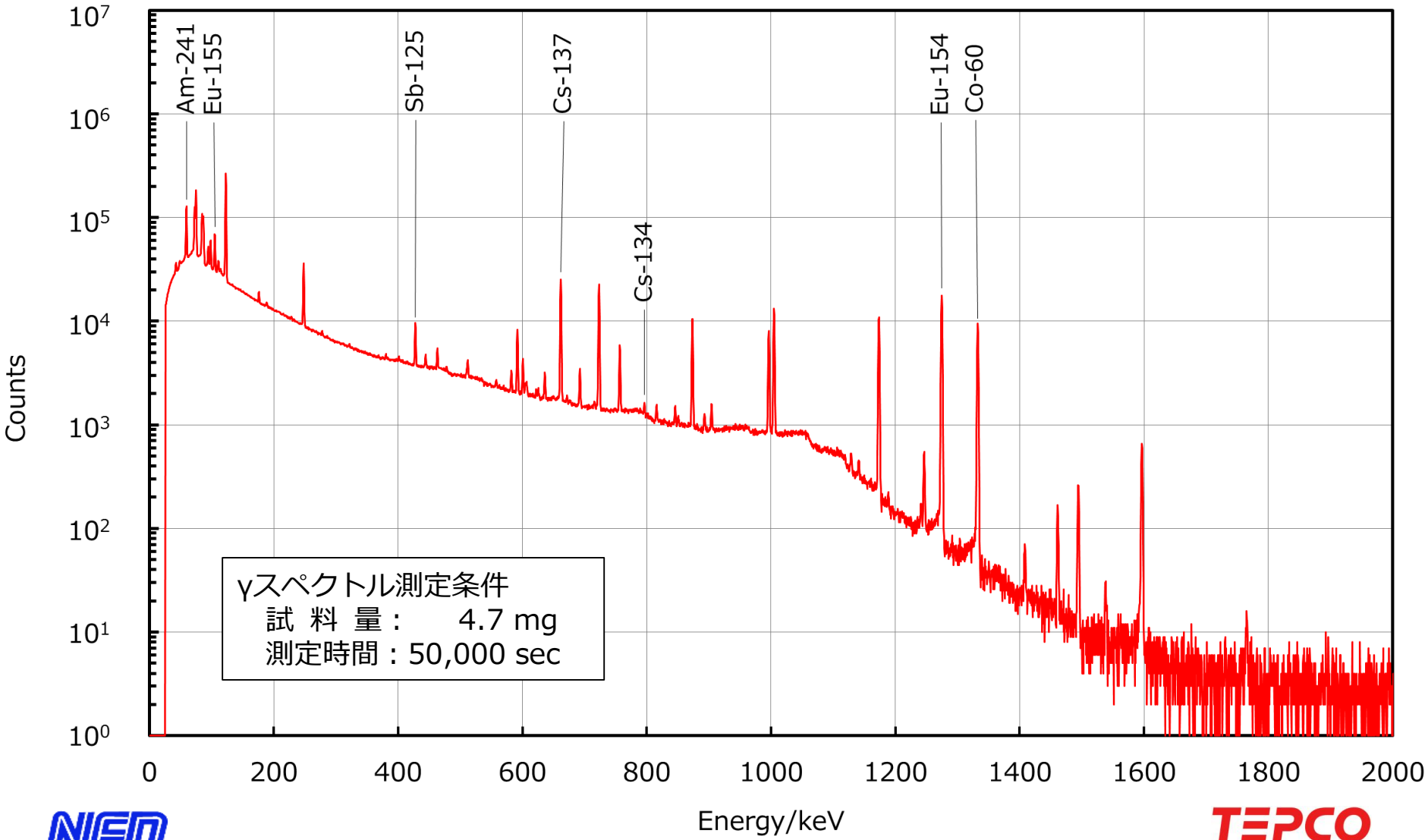
分取 → 王水/フッ酸溶解 → 残渣
溶解液
- ICP-MS
- SEM-EDS
→ 全体組成

分取 → In板 → SEM-EDS → C、O含有量 → 組成
分取 → 粘着テープ → SEM-EDS → TEM-EDS → 局所組成 結晶構造

NFD Power the Future
TEPCO

# 【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




Power the Future

# 【参考】試料① γ線測定結果

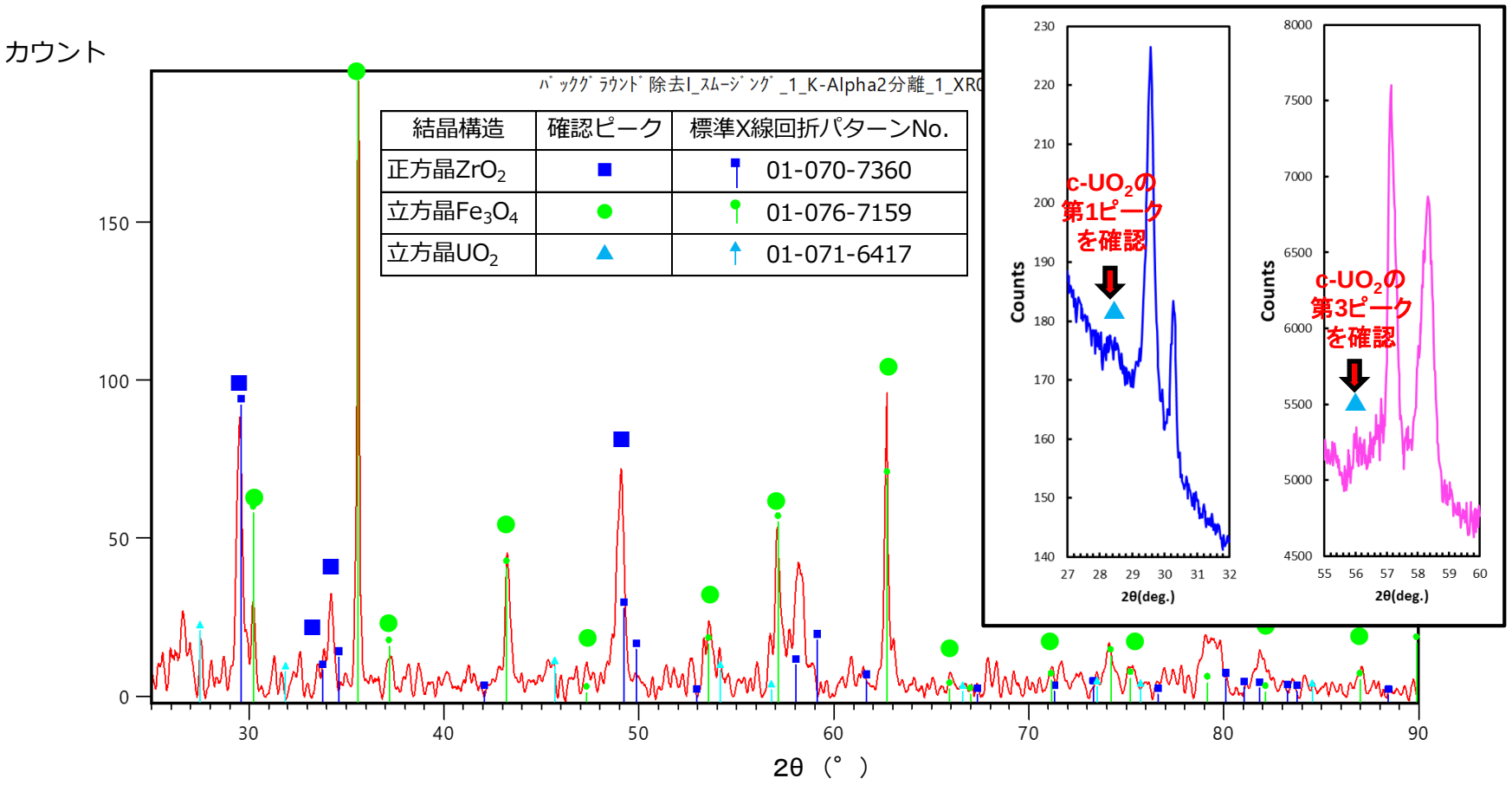
- 粉砕均一混合後分取した粉末試料についてγ線スペクトル測定を実施
- Am-241、Sb-125、Cs-134、Cs-137、Eu-154、Eu-155、Co-60について定量
- 2021年度測定値はX-6ペネ堆積物接触調査装置スミアから採取した試料で、スミア紙を含む重量に対する放射能量で表したもの
- 経時変化が単純で、放射能濃度の高い核種であるEu-154に対する放射能比を評価（Co-60を除く）
- 水溶性のCsを除き、今回分析値も2021年度測定値もEu-154に対する放射能比は解析による結果と同等

| 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
※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

# 【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

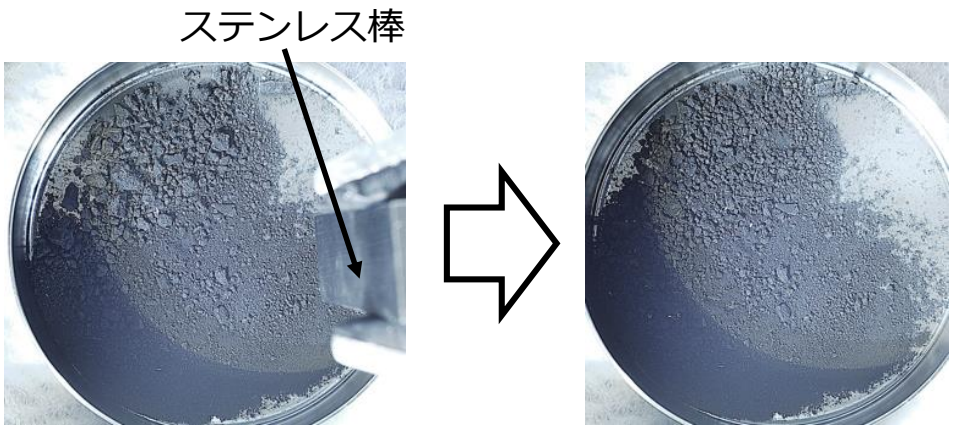



NFD Power the Future

TEPCO

# 【参考】試料① 組成分析結果（ICP-MS＋SEM-EDS）

■ 試料調製
- 試料A、Bをそれぞれ粗粉砕後、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砕混合
- 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（粉砕均一混合）

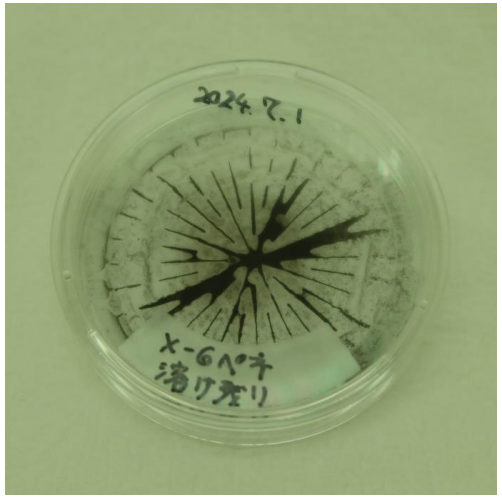
■ ICP-MS＋SEM-EDS（バルク）
- 109.5 mgの試料を王水＋フッ酸で溶解
  - 不溶解残渣：6.4 mg
  - 溶解率　　：約 94%
  - 全体組成 ＝ 溶解液組成(ICP-MS)＋不溶解残渣組成(SEM-EDS)

■ 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

# 【参考】試料① 試料全体の表面組成分析
## （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

溶解液
（液の色：薄黄色）




不溶解残渣
（残渣量：0.0064g）

| 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 |

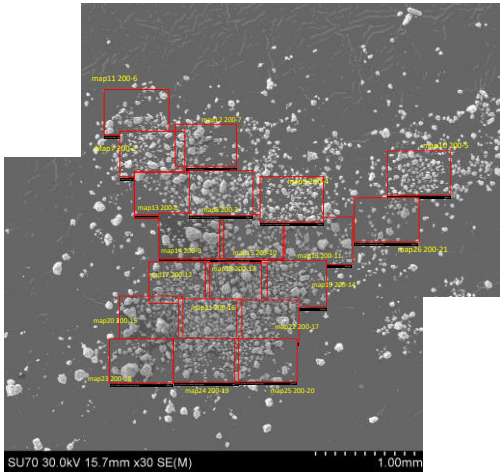
※ UはU-238のみを対象とした定量値（U-235等は含めず）
※ 「±」の後の数値は、不確かさ（包含係数k=1）を示す

NFD Power the Future

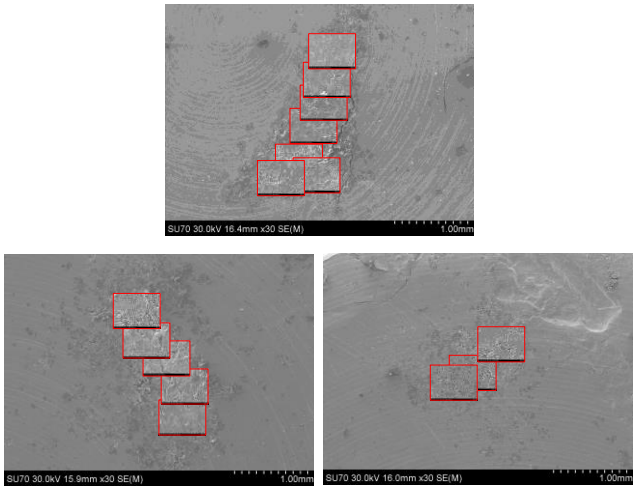
TEPCO

# 【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

at%

| | 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 |

- 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 |

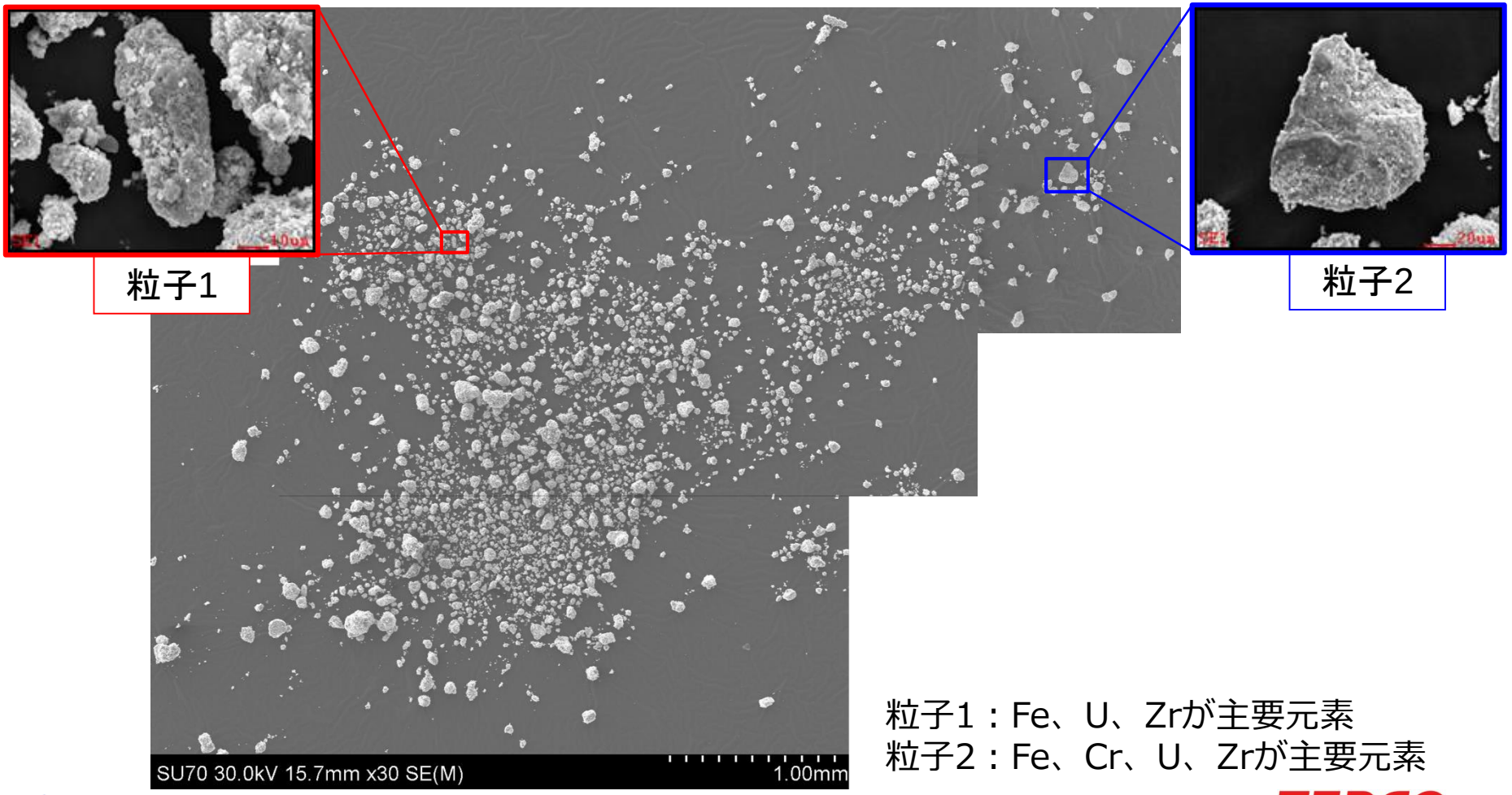
- 成分分析と表面分析による主要6元素の濃度を抽出し、100at%に規格化
- Oの値は参考値（ICP-MSにおけるO量は、検出元素量及び僅かな残渣量と分析に供した試料量の差をOによるものと仮定して評価。SEM-EDSによるOの定量値には大きな不確かさを含む。）

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～100μm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




着目粒子のSEM像

粒子1：Fe、U、Zrが主要元素
粒子2：Fe、Cr、U、Zrが主要元素

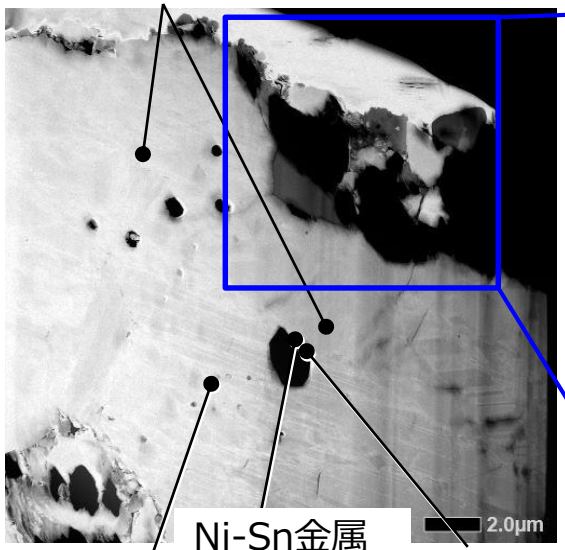
NFD Power the Future

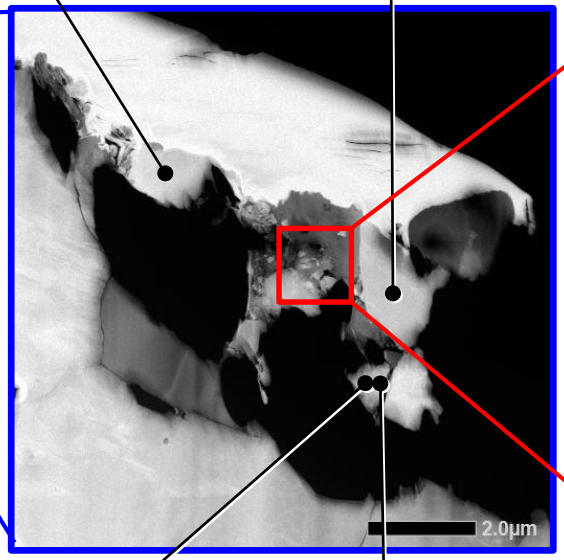
TEPCO

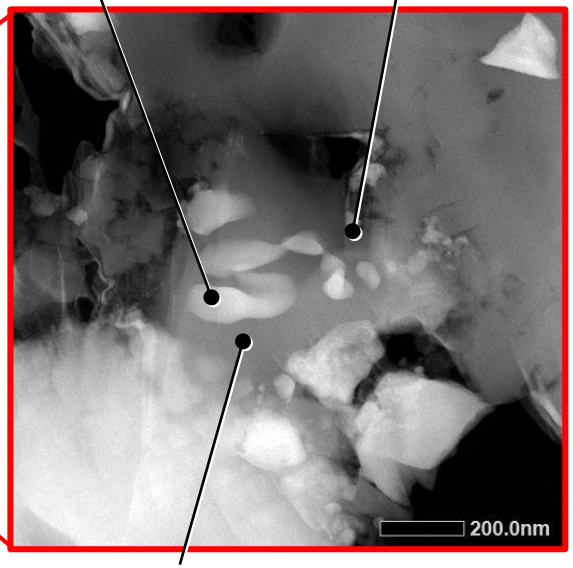
# 【参考】試料① TEM-EDS結果（一様粉末粒子1　領域01）

- 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溶融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溶融凝固体に他の微粒子が付着したと考えれる
- 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



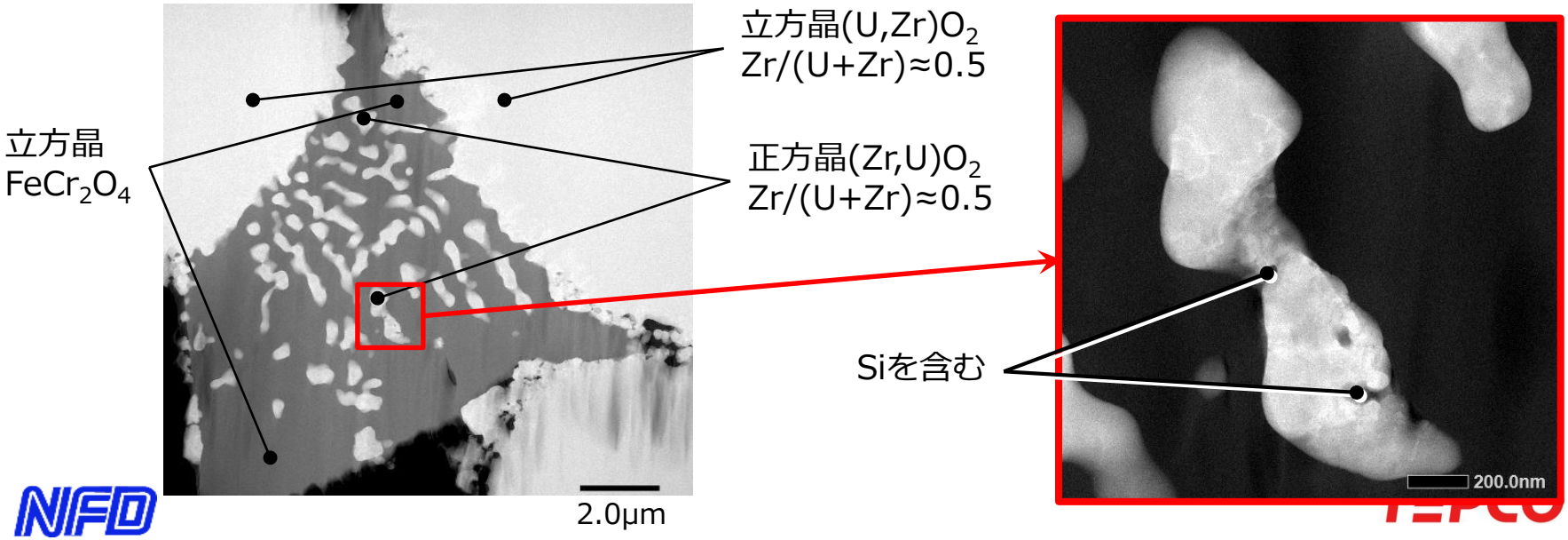

NFD Power the Future

TEPCO

# 【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）

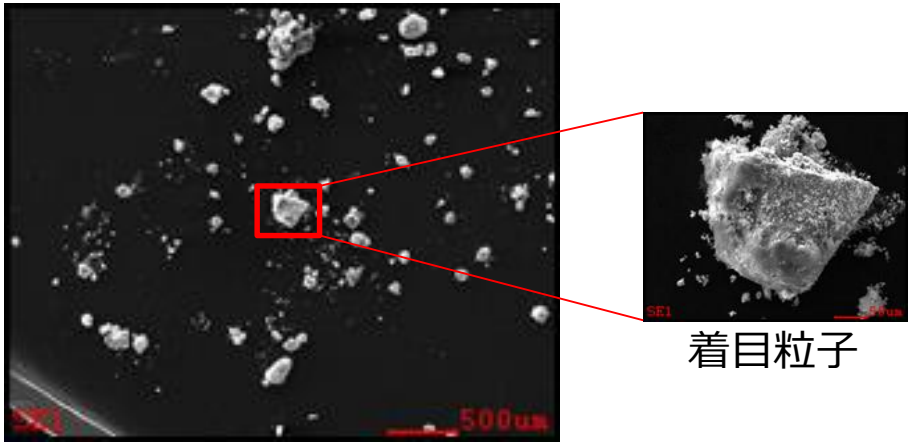
評価
- 燃料と構造材とが反応し、U-Zr-Fe-Cr-O溶融体を形成（1900℃以上、組成に依存）し、凝固
- Siはタイプレートや構造材、並びにS/C内面塗膜由来と推定
- 冷却過程において立方晶$(U,Zr)O_2$の微小な析出物が晶出
- 微小析出物が液相を介して凝集することにより①、②を形成
- 十分に滑らかな界面を形成するだけの十分な平衡を達成する前に$FeCr_2O_4$相が凝固する直前に正方晶$(Zr,U)O_2$が晶出したものと推察される




NFD Power the Future

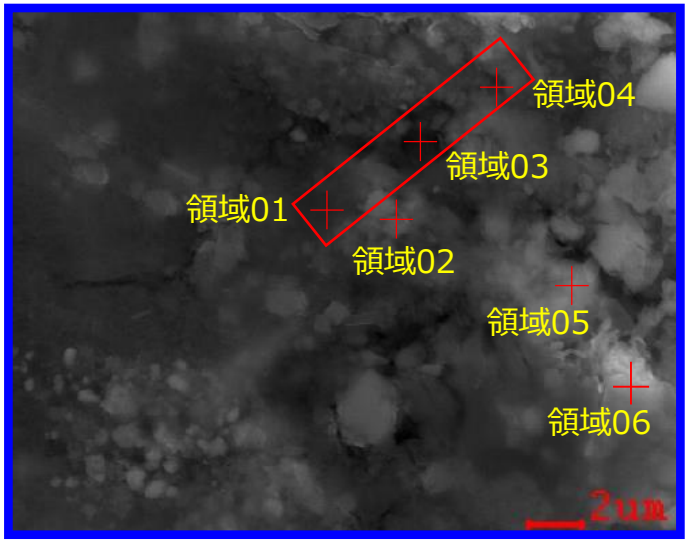
# 【参考】試料① 板状試料（A-1表層）黄色特異部から採取した試料の外観

- 試料粉砕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

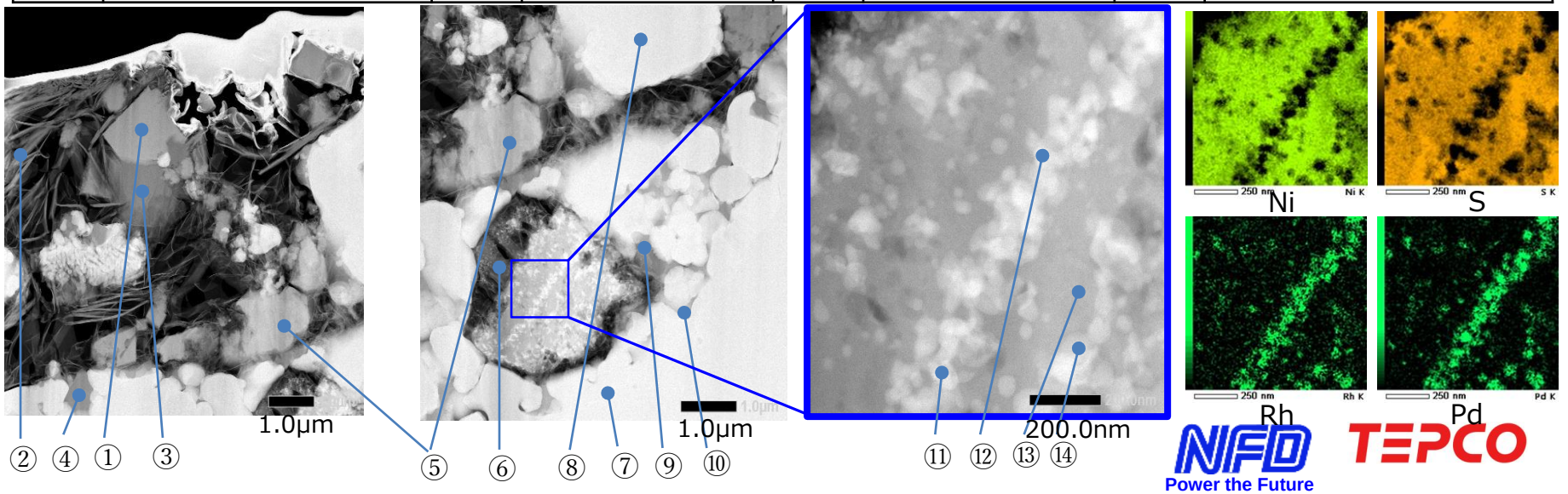
# 【参考】試料① TEM-EDS結果（A-1表層黄色特異部　領域03）

- 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℃で$Ni_3S_2$部が凝固したものと推定される

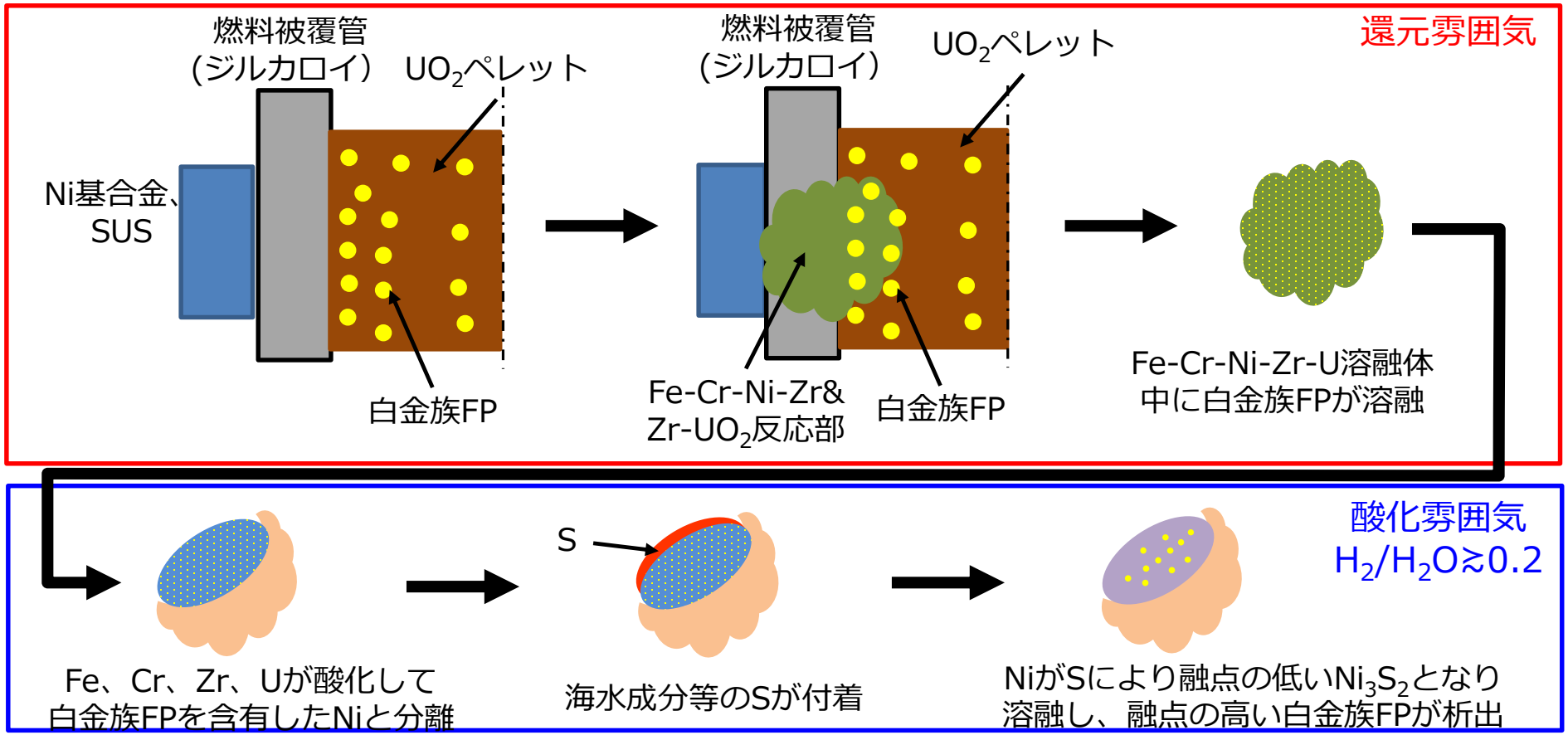
| 位置 | 化学形態 | 位置 | 化学形態 | 位置 | 化学形態 | 位置 | 化学形態 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| ① | 立方晶$Fe_3O_4$(含む、Ni) | ② | 立方晶(Fe,Ni)O | ③ | $Fe_2SiO_4$ | ④ | 立方晶$FeCr_2O_4$ |
| ⑥ | Ni-Fe-O化合物 | ⑦ | 立方晶$(Zr,U)O_2$ | ⑧ | 正方晶$(Zr,U)O_2$ | ⑫ | 三方晶$Ni_3S_2$ (Ru、Rh、Pd) |




Power the Future

# 【参考】試料① Ru、Rh、Pdを含有する$Ni_3S_2$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溶融反応により溶融
- 一方、ジルカロイと$UO_2$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の溶融体を形成
- $H_2/H_2O$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、$ZrO_2$が形成され、Niと分離
- NiとSが反応して、融点の低い$Ni_3S_2$を形成し、冷却に伴い金属FPが析出




NFD Power the Future

TEPCO

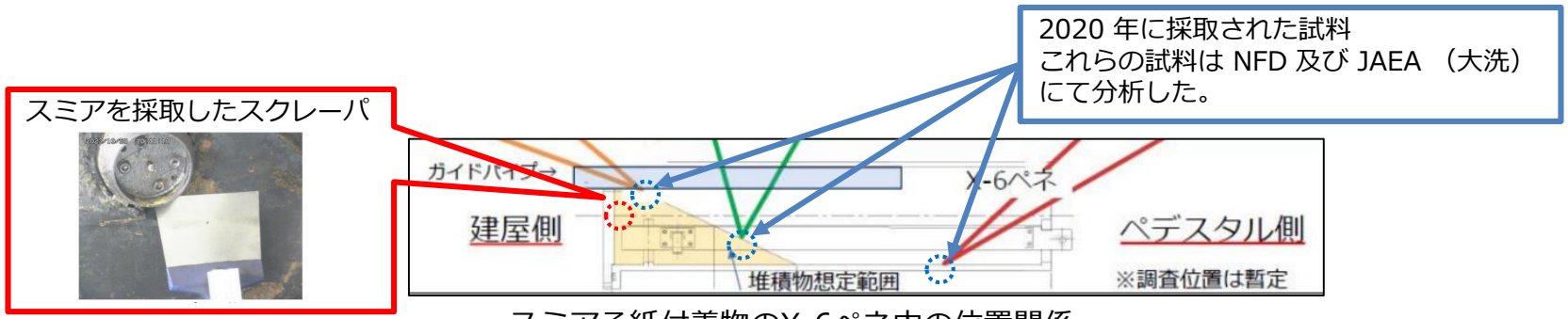
# 【参考】試料①まとめ

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。

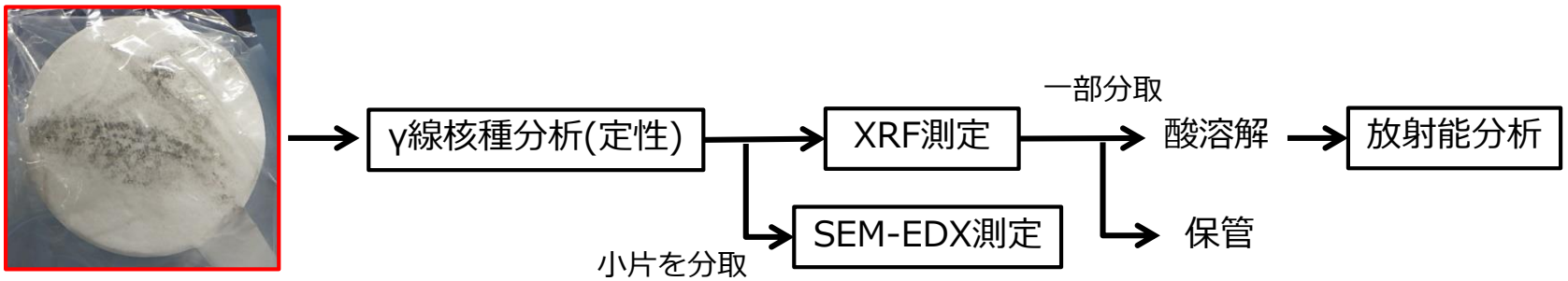
- 堆積物中の放射能濃度は、揮発性核分裂生成物であるCs-134、Cs-137の存在割合が少なく、Am-241、Eu-154の存在割合が多かった。
- 堆積物の主な成分はFe、Cr、Niの構造材成分が多く、UやZrの燃料由来成分が混在しており、Cは検出されなかった。また、主に、1~3μm以下のFe酸化物の微粒子とUを含有する数十~100μm程度の粒子から構成されていた。
- ICP-MS並びに不溶解残渣に対するSEM-EDSによる組成分析の結果、分析に供した試料から定量されたU量は38.8 mgであった。
- 堆積物中のケーブル被覆材溶融成分はほとんど残って無いことが確認された。
- U含有粒子の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。




スミアろ紙付着物のX-6ペネ内の位置関係




スミア試料の分析フロー

# 【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、βγ（70 μm線量当量率）が高い傾向がある。

スミアの外観

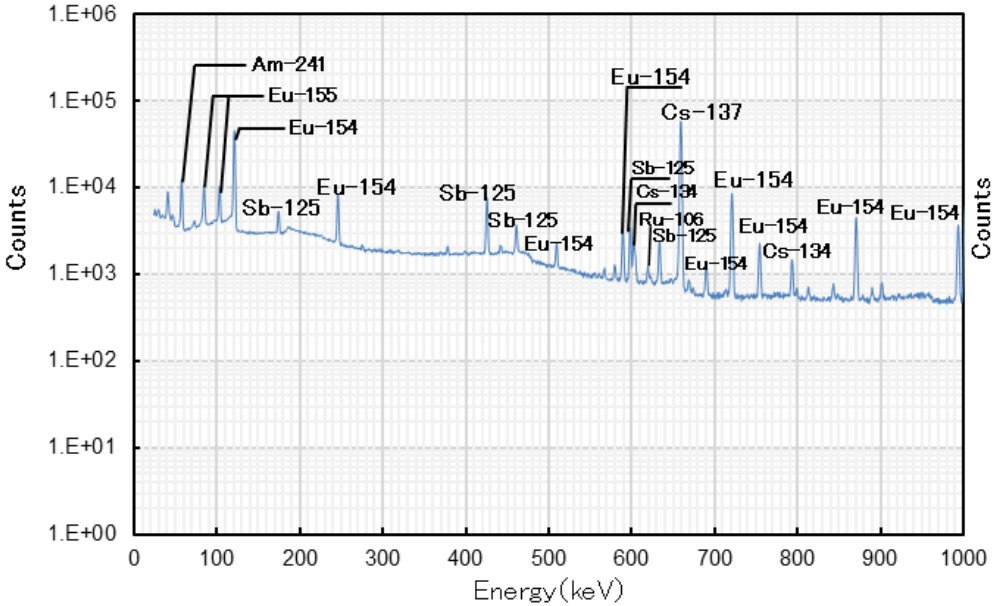
スミアの線量率

| 試料番号 (JAEA) | γ [μSv/h] | βγ [μSv/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 |

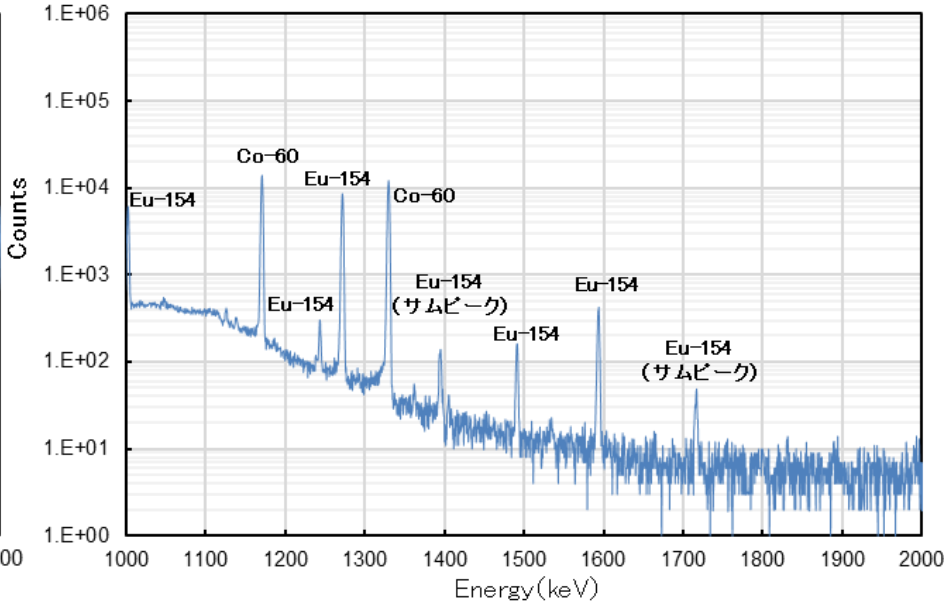
ビニール袋養生越しに電離箱サーベイメータにて測定。 BG（γ、 βγ）：0.00 μSv/h

# 【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、放射能量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。



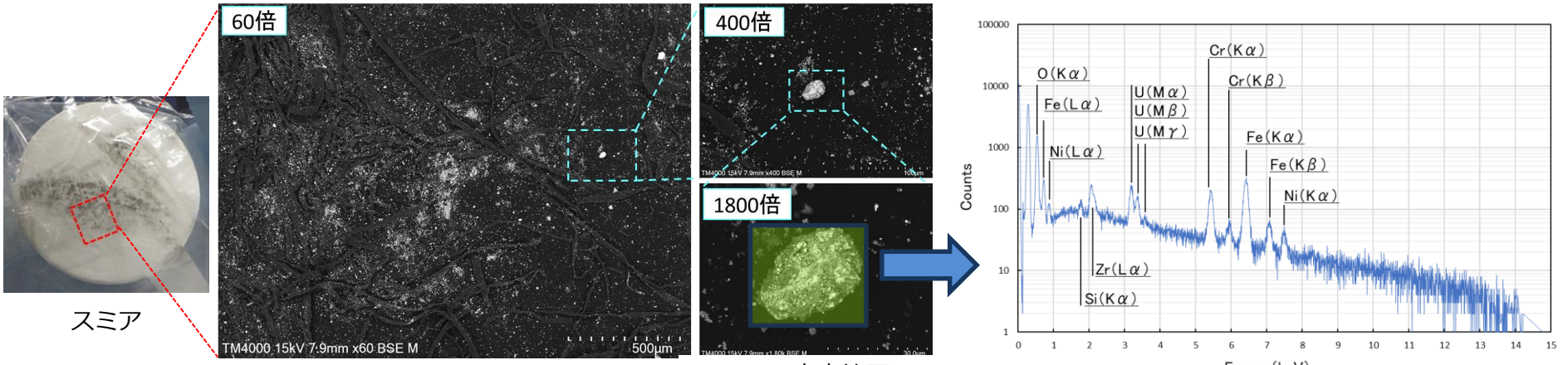

スミア（23P-2）のγ線スペクトル（0 ～ 1,000 keV）




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

SEM画像

EDS走査範囲
(29.25μm×31.5μm)

EDSスペクトル

スミアのSEM-EDSとXRFの成分分析結果

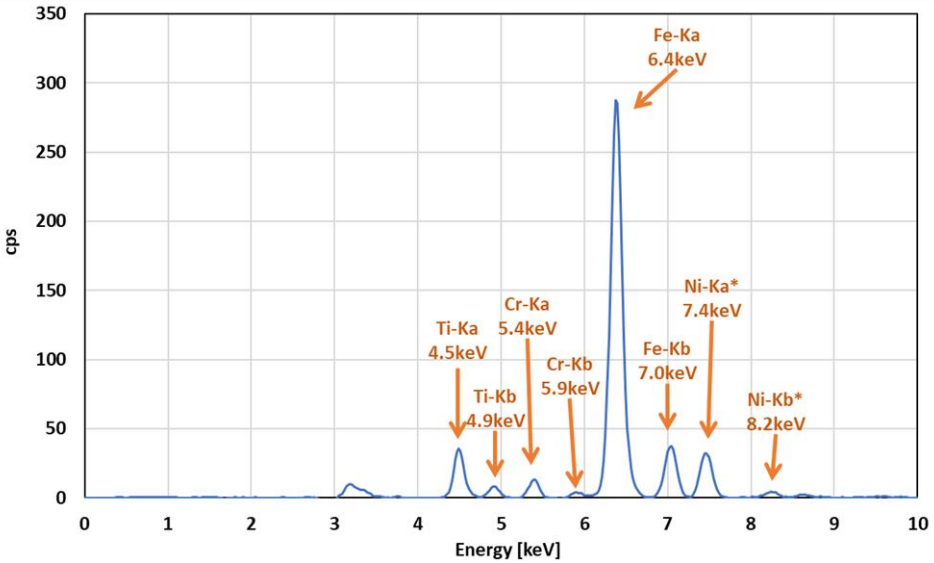
| 分析方法 | O | Na | Mg | Al | Si | S | Cl | Ca | Ti |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| SEM-EDS | ○ | | | (○) ※ | ○ | | | (○) ※ | |
| XRF | 対象外 | 対象外 | 対象外 | 対象外 | | | | | ○ |

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

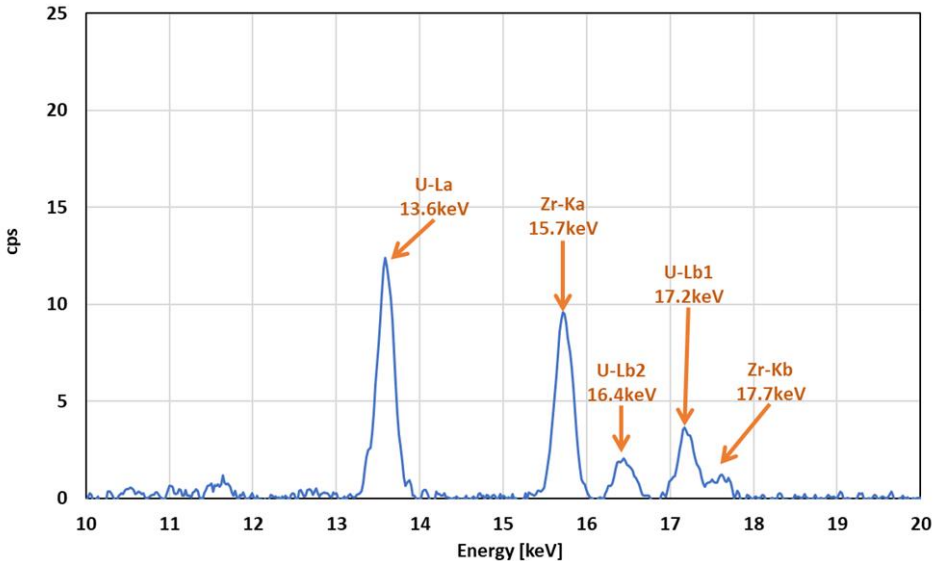
※ピークが見られたが、他の元素と比べ信号強度が低い

# 【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。



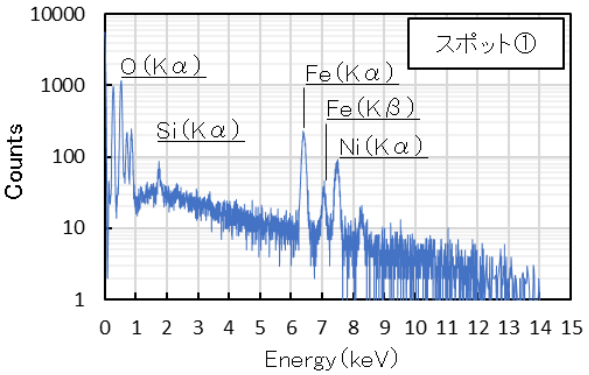

0 ~10 keVのXRFスペクトル

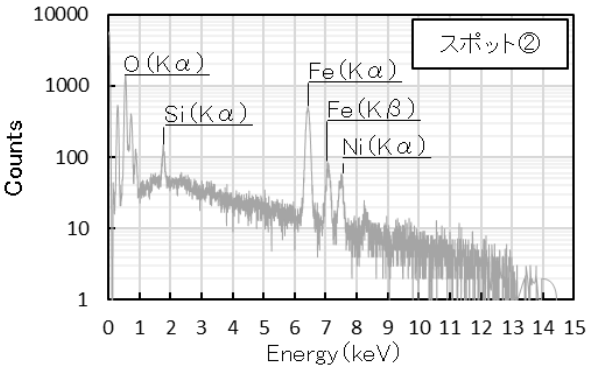


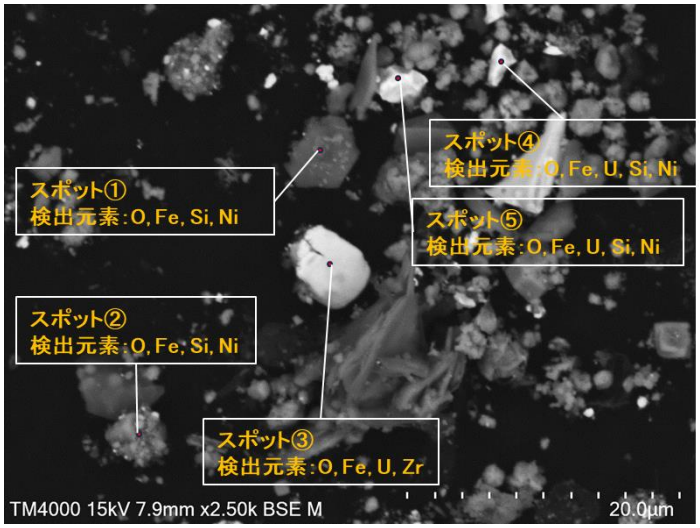

10～20 keVのXRFスペクトル

# 【参考】試料② SEM-EDS結果

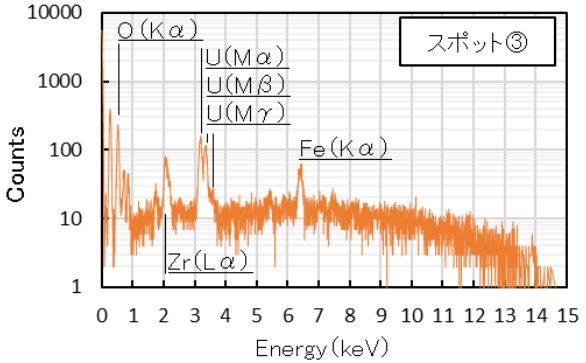
- スミアのSEM-EDS分析では主にO、Fe、Uが共通して検出され、スポットごとにZr、Cr、Ni、Siを検出した。

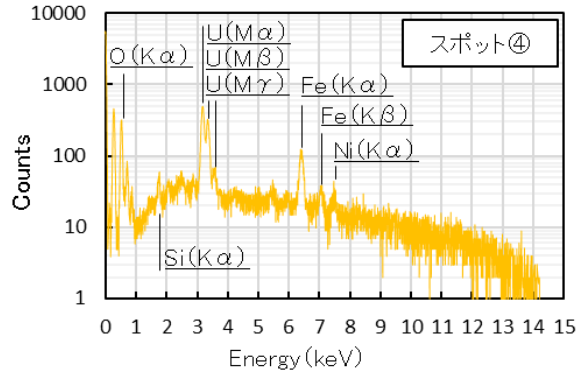


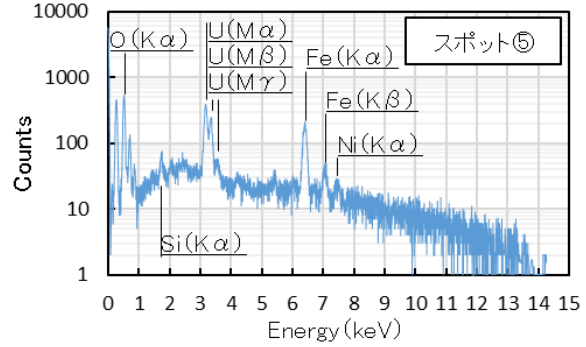




解像度　　：1,048×786 [pix]
1pixのサイズ　：47.6 [nm]
画像サイズ　　：50×37 [μm]



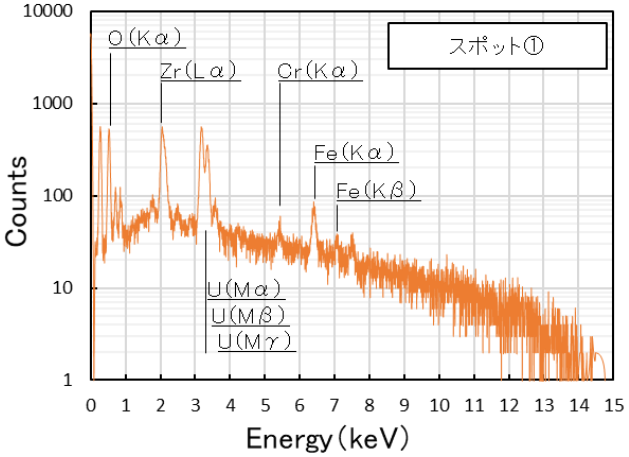



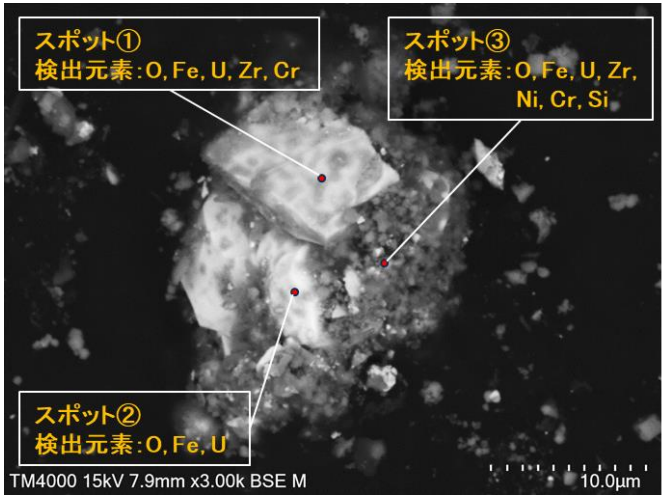



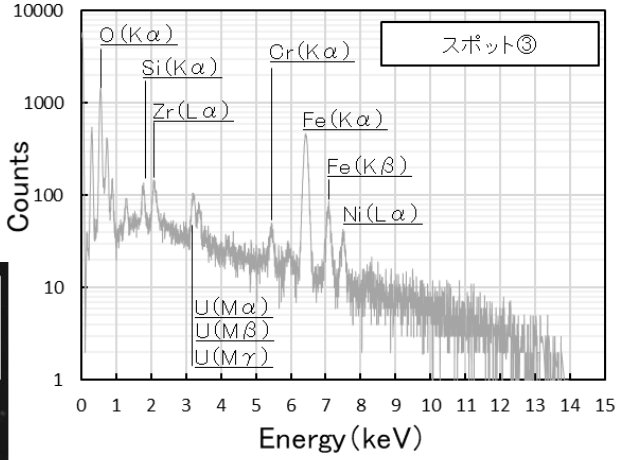

SEM画像とEDX測定の結果

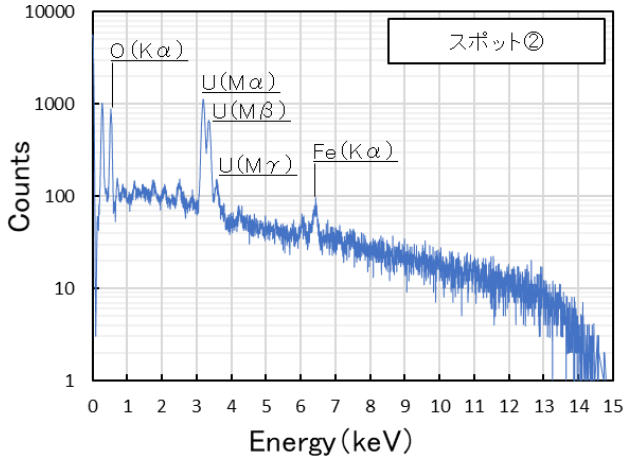
# 【参考】試料② SEM-EDS結果

■ 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]

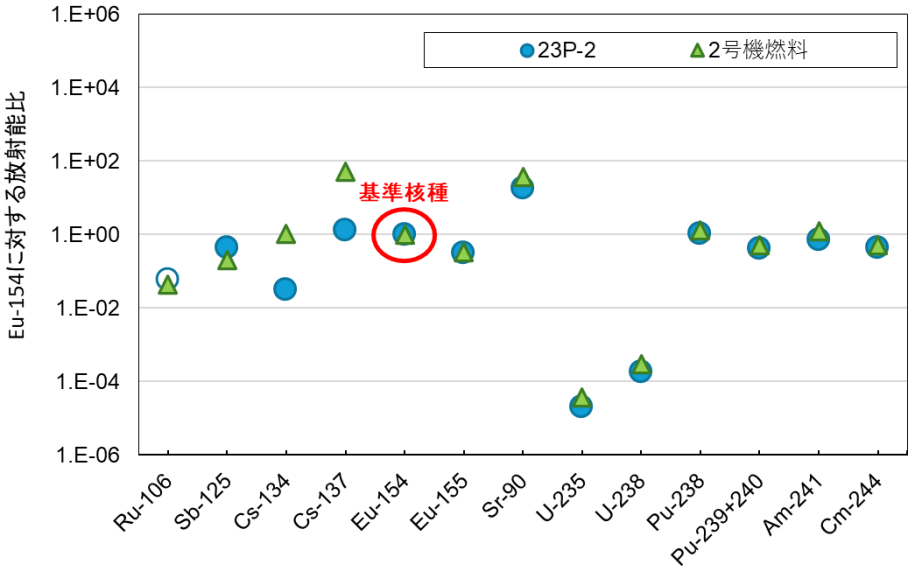
SEM画像とEDX測定の結果

# 【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 | $2.97\times10^{2}$ | $5.65\times10^{2}$ | $<2.58\times10^{1}$ | $1.83\times10^{2}$ |
| | $^{134}$Cs (約2.1年) | $^{154}$Eu (約8.6年) | $^{155}$Eu (約4.8年) | $^{90}$Sr (約29年) |
| | $1.35\times10^{1}$ | $4.27\times10^{2}$ | $1.32\times10^{2}$ | $7.60\times10^{3}$ |
| | $^{235}$U (約$7.0\times10^{8}$年) | $^{238}$U (約$4.5\times10^{9}$年) | $^{238}$Pu (約88年) | $^{239+240}$Pu (約$6.6\times10^{3}$年) |
| | $8.67\times10^{-3}$ | $7.58\times10^{-2}$ | $4.36\times10^{2}$ | $1.73\times10^{2}$ |
| | $^{241}$Am (約$4.3\times10^{2}$年) | $^{244}$Cm (約18年) | | |
| | $3.00\times10^{2}$ | $1.88\times10^{2}$ | | |




Eu-154に対する放射能比

*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βγ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。

JAEA

TEPCO

# 【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

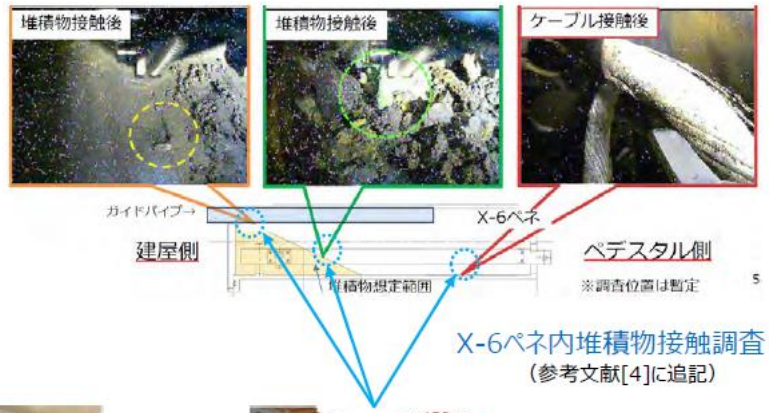
- 幅約20μmの$(U,Zr)O_2$粒子の周囲に微細なFe酸化物が存在
- 鋼材由来の成分が広く分布し、その中に燃料成分、構造材、塗料、計装材等に由来する粒子が混入しており、U/Fe比は約2~4at%

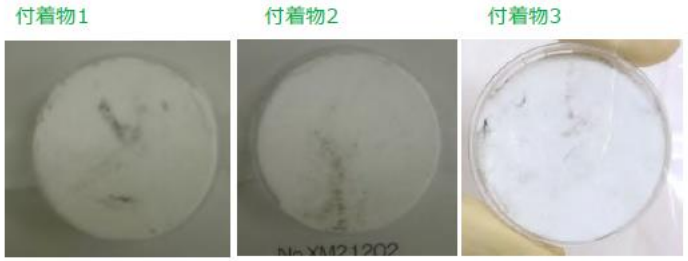
## 分析対象サンプル

### 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）

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



※「東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会第41回会合　資料３－１」より

TEPCO