

本報告は、令和5年度開始 廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金に係る補助事業
（燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発）の成果に関するものである。

燃料デブリサンプル（1回目）の 分析結果について（続報）

2025年 11月 27日

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
東京電力ホールディングス株式会社

- 試験的取り出し作業により採取された1回目の燃料デブリサンプルについて、2024年11月12日に、JAEA大洗原子力工学研究所照射燃料集合体試験施設（FMF）に燃料デブリサンプルを受入れた。
- これまでに2024年12月26日、2025年1月30日及び2025年7月31日の廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合／事務局会議において、主要な分析結果について報告した^{[1][2][3]}。
- 本会議では、それ以降に実施した分析結果（燃料デブリの生成過程の推定の続報）について報告する。

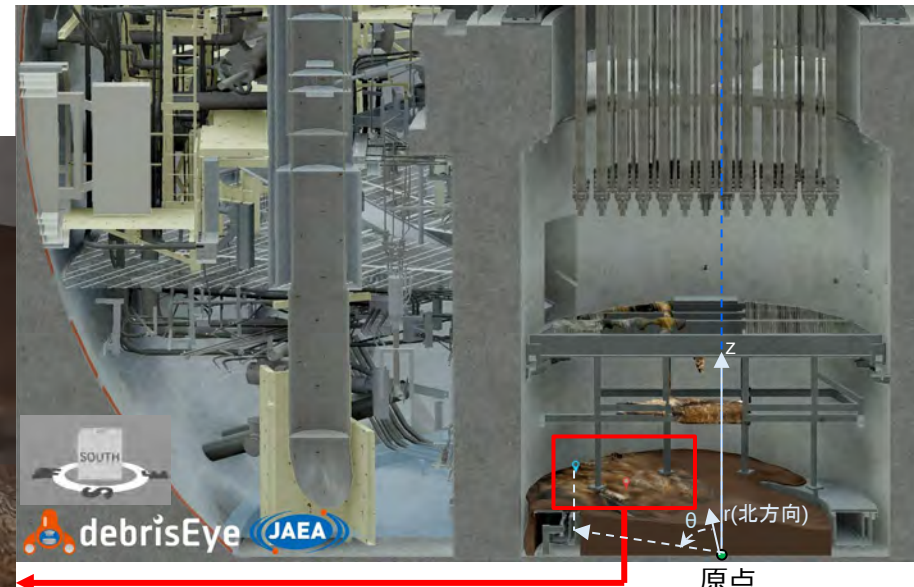
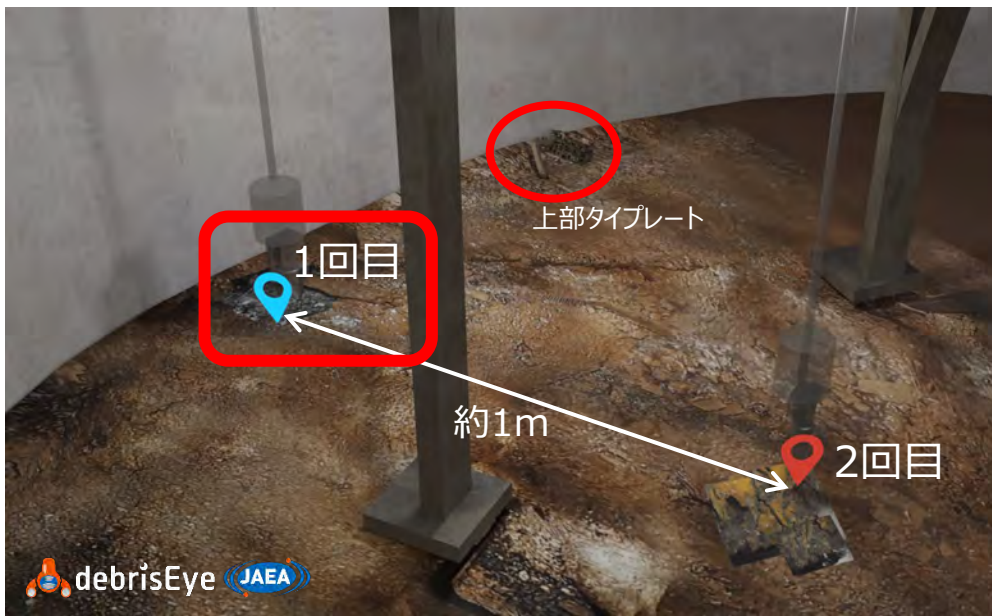


表 サンプル採取位置の推定結果

	r (中心からの 水平距離)	θ (北方向から の角度)	z (床面からの 高さ)
1回目	約2.4 m	約54°	約0.9 m
2回目	約1.4 m	約42°	約0.8 m

※ペDESTAL床中心を原点とする円筒座標系にて表示。
 ※燃料デブリ堆積高さはプラットフォームの足の隠れ具合等から形状を作成しており、計測されたものではないため、ズレがある。

図 2号機ペDESTAL内床面 燃料デブリの採取位置

[1] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合事務局会議（第133回）資料3-3

[2] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合事務局会議（第134回）資料3-3

[3] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合事務局会議（第140回）資料3-3

- 得られたサンプルの分析を通じて、サンプル取得箇所の状況を把握するとともに、燃料デブリの生成過程を推定する。

⇒ 炉内状況の推定をより精緻にすることで、燃料デブリを安全に回収し十分に管理された安定保管の実現に向けて、燃料デブリ取り出し本格化に向けた検討の基礎とする。

＜「炉内状況の推定」から「燃料デブリ取り出し方策検討」への反映例＞

- 燃料デブリの硬さの推定→取り出し工法・工具の選定
- 燃料デブリの臨界の可能性→安全対策、保管方法の検討

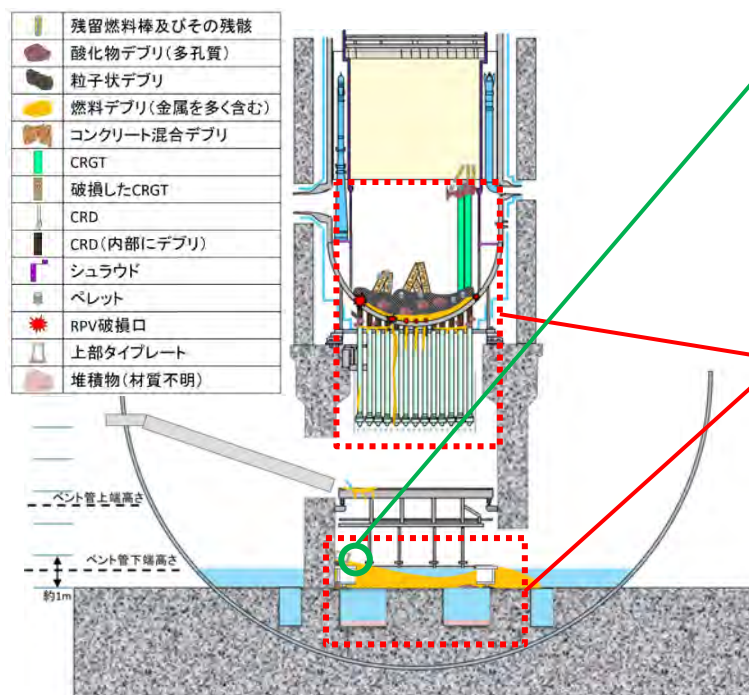


図 2号機の炉内状況推定図 [1]
(南西方向から北東方向を見た図)

1. サンプル取得箇所の状況の把握 (燃料デブリサンプルの状況の把握)

● 廃炉ニーズに即した情報の取得

- ✓ サンプル中の主要構成成分（核種・元素）の種類・濃度等を把握し、各成分の由来を検討
- ✓ サンプル中の燃料成分の含有率・分布を把握

2. 燃料デブリ生成過程の推定

● 事故時の炉内環境の検討を通じた、燃料デブリ性状の推定

- ✓ サンプル中でUを含む相の微細構造、構成相の組成や結晶構造等から、サンプルの生成条件を推定
- ✓ 既存の事故シナリオや内部調査結果との比較から、サンプル取得箇所の周辺を評価（今後採取される複数のサンプル分析結果を踏まえて評価）

1. サンプル取得箇所状況の把握（燃料デブリサンプルの状況の把握）

分析項目	分析方法	評価内容	廃炉への主な活用例
基本情報 ・外観、重量、線量率、密度分布	・外観、重量、線量率測定 ・イメージングプレート (IP) ・X線CT	基本情報の整理	取り出し検討のための基本情報（空隙の有無や多さなど）
元素含有率	・ICP-MS、ICP-AES	燃料成分の含有率 主要成分の由来	臨界評価などの取り出し時の安全対策や、保管方法の検討のための基本情報
同位体比	・TIMS ・SIMS	U同位体比	
放射能濃度	・γ線スペクトロメトリ ・α線スペクトロメトリ	注目核種とUとの帯同性	燃料デブリ取り出し時の非破壊測定技術開発の検討のための情報
元素、化合物分布	・SEM-EDX、SEM-WDX ・TEM-EDX	元素、化合物（空隙含む）の分布評価	取り出し工法・工具の検討のための基本情報（硬さ、じん性の推定など）

2. 燃料デブリ生成過程の推定

分析項目	分析方法	評価内容	廃炉への主な活用例
Uを含む相等の結晶構造、組成	・SEM-EDX、SEM-WDX ・TEM-EDX ・ラマン分光 ・μ-XAFS μ-XRF ・μ-XRD	Uを含む相等の生成時の温度、雰囲気等の推定 U等の酸化状態	炉内状況推定図の精緻化による取り出し工法の検討や内部調査の検討

- 継続していたSEM-EDX、TEM-EDX及びラマン分光分析の結果（組成及び結晶構造の推定）と、これまでの分析結果から燃料デブリの生成過程を推定した結果について報告する。

【福島第一原子力発電所 2 号機】

↓ 燃料デブリ輸送

【JAEA大洗研】

X線CT
外観、重量、線量率、IP
γ線スペクトロメトリ
SEM-WDX

大洗研：大洗原子力工学研究所
原科研：原子力科学研究所
NDC：MHI原子力研究開発株式会社
NFD：日本核燃料開発株式会社

非破壊分析※1

【JAEA播磨】
(SPring-8)
1/22 受入終了

固体分析※1
(機械分析)

μ-XAFS
μ-XRF
μ-XRD

SEM-WDX
TEM-EDX
SIMS

溶液分析※1
(化学分析)

ICP-MS
放射能分析

【JAEA原科研】
1/22 受入終了

ICP-AES
TIMS
放射能分析

【NDC】
1/10 受入終了

ICP-MS
ICP-AES

【NFD】
1/31 受入終了

SEM-EDX
TEM-EDX
ラマン分光

主要な
分析結果

微小結晶
構造
U等の価数

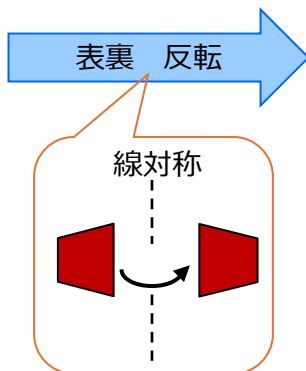
燃料成分元素組成
U同位体比
元素、化合物分布
放射能濃度

主要元素組成
U同位体比
放射能濃度

主要元素組成
微量元素組成
U同位体比

U結晶構造、
組成、
元素分布

燃料デブリサンプルの外観写真



半球状部分

エリア1



約3mm

エリア1



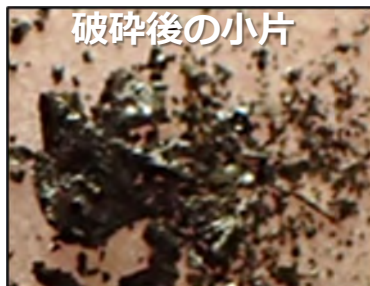
約7mm

塊, 大洗研用
サンプル【A-1】

エリア2


塊, NDC用
サンプル【D】

破碎後の小片


塊+粒, 原科研用
サンプル【B】

エリア3

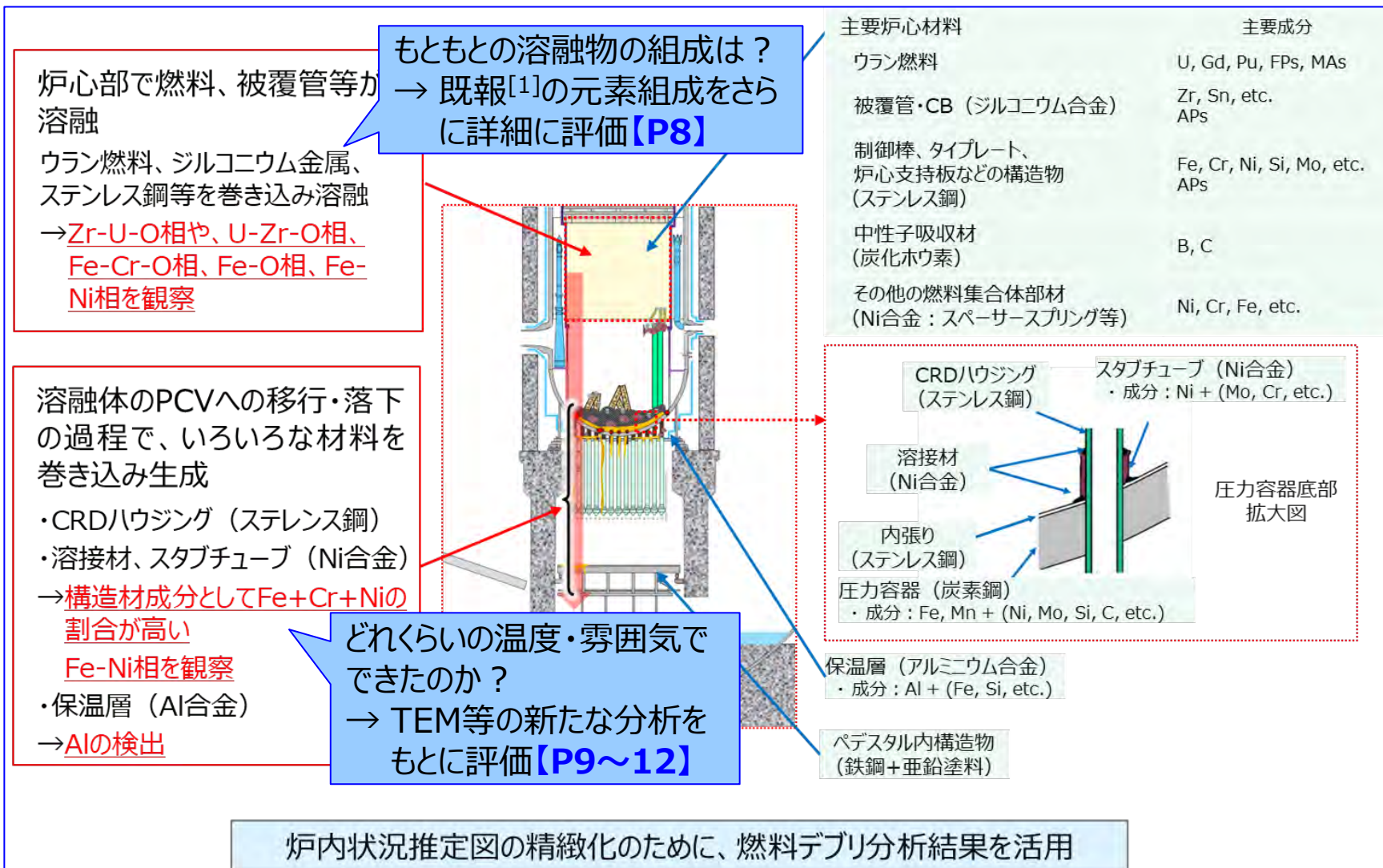

塊, NFD用
サンプル【C】

破碎後の小片


塊+粒,
大洗研+SPring-8用
サンプル【A-2】

- 受け入れたサンプルは全体的に赤褐色で不定形。表面の一部に黒色、光沢の領域あり。
- 重量：0.693g, 線量率（ γ 線）：約8mSv/h。
- 棒状のステンレス（約250 g）で打撃し破碎し、分取。

● 既報における推定状況^[1]及び今回の着目点



略語） FPs：核分裂生成物（Fission Products） MAs：マイナーアクチノイド（Minor Actinides） APs：放射化生成物（Activation Products）

塊状であるため、サンプルを形成したもとの溶融物に比較的近い組成を持つと考えられる【D】について、主要5元素（U, Zr, Fe, Cr, Ni）間の比率（図1^[1]）と、炉内構造物の組成を比較し、由来を推定した。

- **構造物成分の割合**：主要5元素に対するFe+Cr+Niの比率は、炉心下部構造物まで含めた平均組成とほぼ一致している。（図1破線枠及び図2参照）

⇒ 溶融物がPCVに移行していく過程で、**炉心下部の構造物成分を巻き込んだ**ものと推定

- **ZrとUの内訳**：サンプルのZr/U原子数比は、炉心の被覆管やCB等を考慮したZr/U比に近い（図3）

⇒ RPV内で被覆管に加えてCB等由来のZrも巻き込み、**UよりもZr濃度が高い溶融物を生成**したと推定

【想定される過程】

- ・ RPV内でCB等も巻き込んだZr濃度の高い溶融物を生成し、PCVへの移行途中で、炉心下部の構造物成分を巻き込んだものと推定

溶液分析対象の分取片

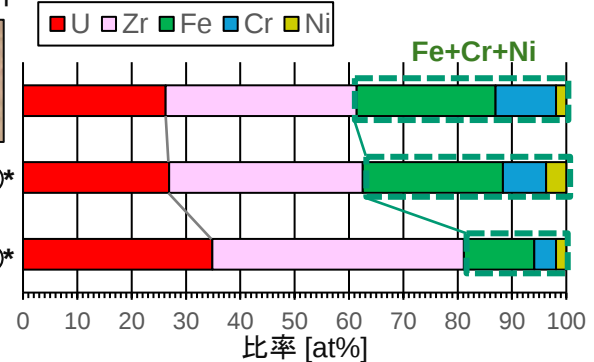
塊【D】

@NDC
約0.1g



参考) 平均組成①*

参考) 平均組成②*



* 平均組成① = ② + 炉心下部のSUS(下部タイプレート, 炉心支持板, 速度リミッタ等) ^[2]
平均組成② = UO_2 + Zr(被覆管, CB, WR) + SUS(制御棒ブレード) ^[2]

図1 塊【D】の溶液分析による主要5元素間の比率^[1]

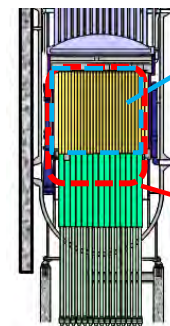


図2 平均組成の
対象範囲
(イメージ図)

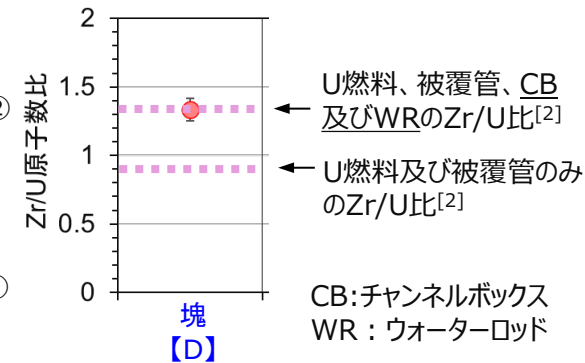


図3 塊【D】のZr/U比の比較^[1]

CB: チャンネルボックス
WR: ウォーターロッド

[1] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合事務局会議（第140回）資料3-3 のデータをもとに作成

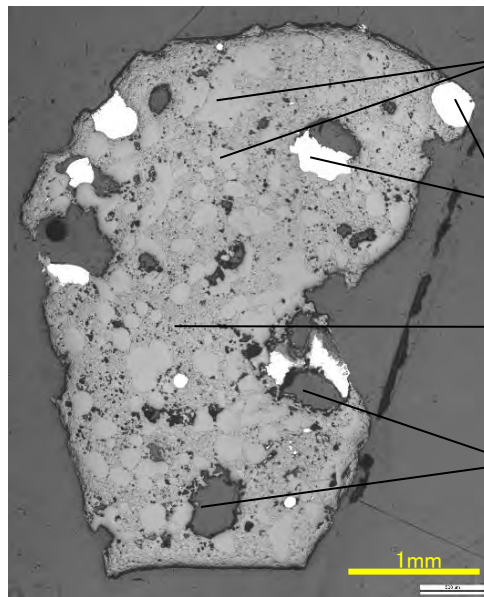
[2] Sato et al., Nucl.Eng.Des., 404, 112205. Table1 をもとに計算

- サンプル内部の大部分は、U-Zr酸化物、Fe-Cr酸化物、Fe-Ni金属等から構成されており（下図断面観察結果参照）、ジルコニウム合金やステンレス鋼などの構造材の酸化、及び燃料との溶融・混合を経て生成されたものと推定。^[1]
- 断面観察で認められた特徴的な微細構造や元素分布を示す箇所をSEM-EDX及びTEM-EDX分析により、酸化物相 ((A)と(C))の組成や結晶構造を同定し、各箇所の生成過程を考察した（次頁以降）。

【C】 NFD



切断面の外観
(切断面は参考資料参照)



切断・研磨後の断面の
光学顕微鏡画像

図 断面観察結果^[1]

[構成相の分類・概略] ※ 各相に含まれる元素は、SEM-EDXの分析結果に基づく

(A)Zr-U-O相 (数十～数百 μm)

- ・ Zr/U原子数比は約2 (粒によらずほぼ一定)

(B)Fe-Ni金属相 (数～数百 μm)

- ・ Fe/Ni原子数比は約1～3 (粒によって異なる)

(C)微細混合相

- ・ U-Zr-O、Zr-U-O、Fe-Cr-O、Fe-Oの混相

(D)空隙 (数 μm ～数百 μm)

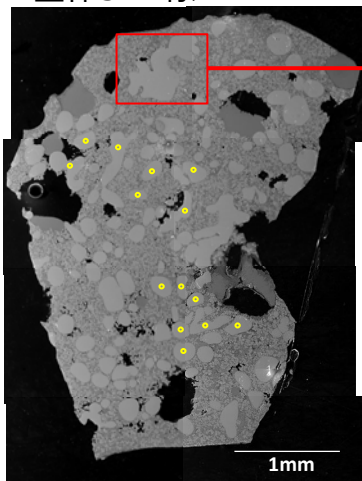
- ・ 切断面面積に対して約2割

表 各部の面積比率 [%]

(A)Zr-U-O	(B)Fe-Ni	(C)微細相	(D)空隙
20	4.4	56	19

(A)Zr-U-O相 (数十～数百μm)

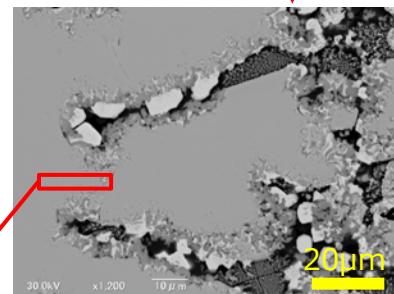
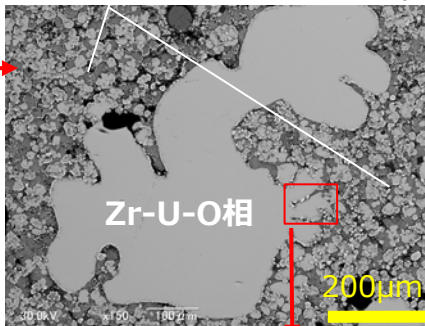
a. 塊【C】断面の
全体SEM像^[1] BSE像



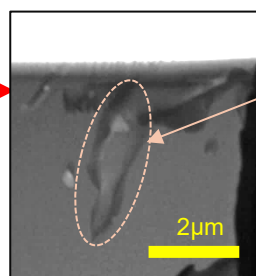
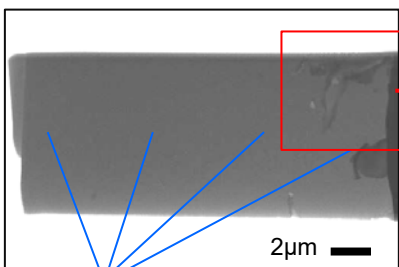
黄色プロット箇所にてEDX点分析を
実施（計14箇所、図2参照）

b. Zr-U-O相の例^[1]

微細混合相（Zr-U-O相の周囲）



c. TEM観察像

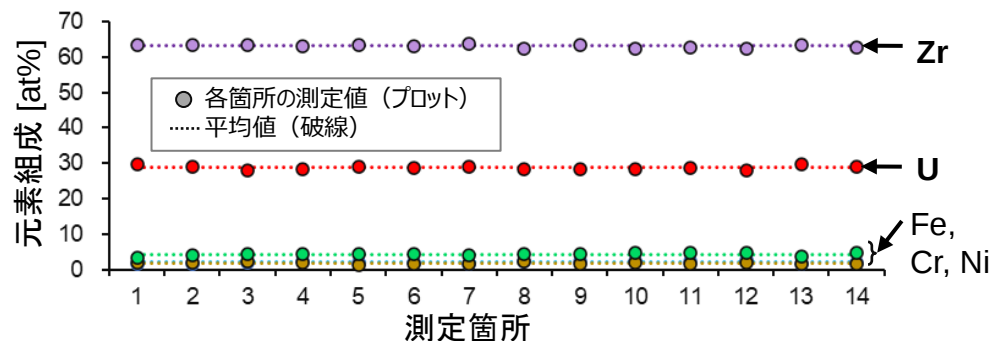


Fe濃度が
やや高い
領域

立方晶(Zr,U)O₂

Zr/(U+Zr) ~ 0.56-0.66

図1 Zr-U-O相のSEM及びTEM分析結果



注) 測定箇所1～14は、それぞれ異なるZr-U-O相の中央付近のEDX点分析結果（図1a参照）。検出元素のうちOを除いたCr, Fe, Ni, Zr, Uの合計を100at%として表記

図2 Zr-U-O相の主要金属元素の内訳（SEM-EDX）^[1]

【Zr-U-O相の特徴】

- さまざまな形状の粗大な粒子として断面全体に分散（図1a）。また、複数の粒子間での組成の差は極めて小さい（図2）^[1]。
⇒ ほぼ同じ温度域で析出し、成長した可能性がある。
- Zr-U-O相は、Fe・Cr濃度が高い微細混合相に取り囲まれている（図1b）。
⇒ Zr-U-O相の方が融点が高く熔融・凝固時に先に固体になる。その結果、液体部分（Zr-U-Fe-Cr-Oが混合）の中のZr-U-Oが減少し、Fe及びCrが濃くなったと考えられる。
- 相内部の大部分は立方晶(Zr,U)O₂であり、外側に近い箇所ではFe濃度がやや高い領域が存在（図1c）。
⇒ 大きな立方晶（固相）の周囲にFe・Cr濃度の高い溶融物（微細混合相の元となる液相）が存在し、固相と液相とが界面で反応した可能性がある。（固液混合の状態であったと推定）

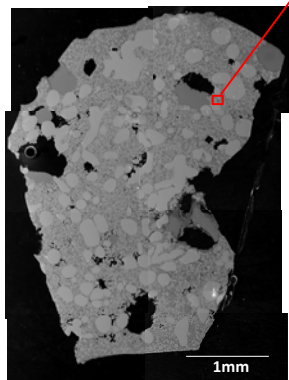
【想定される過程】

- 溶融物からZr-U-O相が初晶として析出・成長してFe・Cr濃度の高い液相と共存し、固液混合となったと推定。

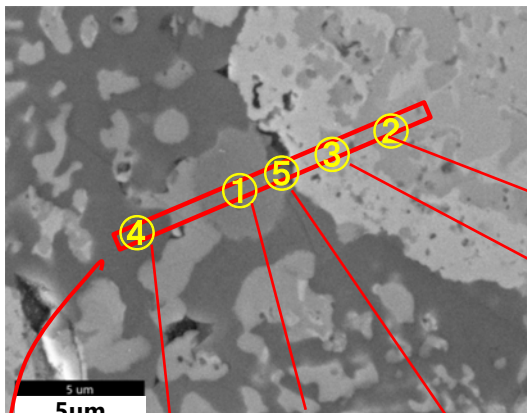
(B)Fe-Ni相

(C)微細混合相

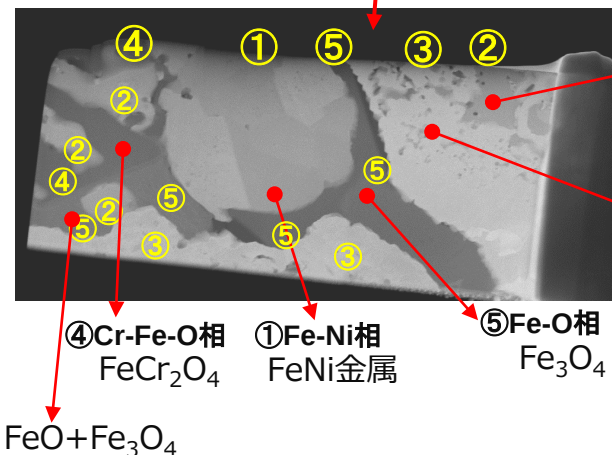
全体SEM像 (BSE像)



微細なFe-Ni金属相を含む例



Cr-Fe-O相 Fe-Ni相 Fe-O相



②Zr-U-O相
立方晶 $(\text{Zr,U})\text{O}_2^*$
Zr:U = 58:42

③U-Zr-O相
立方晶 $(\text{U,Zr})\text{O}_2^*$
Zr:U = 14:86

④Cr-Fe-O相
 FeCr_2O_4

①Fe-Ni相
FeNi金属

⑤Fe-O相
 Fe_3O_4

FeO+ Fe_3O_4

図1 微細混合相のSEM及びTEM分析結果

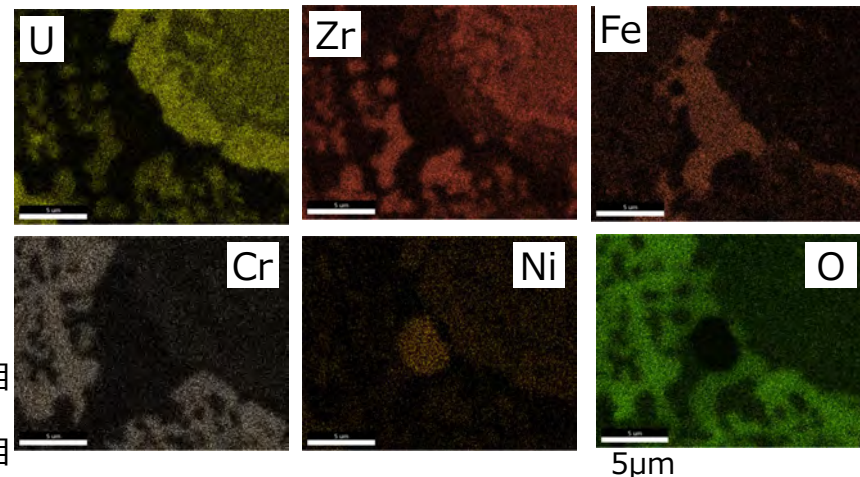


図2 微細混合相のSEM-EDXマッピング

【微細混合相の特徴】

- 小さいサイズ（～数 μm ）の $(\text{Zr,U})\text{O}_2$ 、 $(\text{U,Zr})\text{O}_2$ 、FeNi金属、 Fe_3O_4 及び FeCr_2O_4 が入り混じって存在（図1及び図2参照）。

⇒ (A)が析出した後、Fe・Cr濃度の高い液相【P37】からこれら複数の固相が析出したと推定される。また、 Fe_3O_4 や FeCr_2O_4 の融点（約1600–2100℃^[1,2]）より低い温度で凝固が完了したと考えられる。

⇒ TMI-2燃料デブリ（下部ヘッド）においても、粒界にFe等を多く含む酸化物相が析出している。【P22,23】

【想定される過程】

- (A)Zr-U-O相よりも低い温度でZr,U,Fe,Cr酸化物相及びFe-Ni金属相が同時に生成し、微細混合相を形成したと推定。

[1] Darken and Gurry, J.Am.Chem.Soc. 68, (1946), 798-816.

[2] Kjellqvist et al., Calphad, 32, (2008), 577-592.

- 分析結果で見られた各相の生成温度を、簡略化した $\text{UO}_2\text{-FeO}$ 系状態図※を用いて簡易的に評価した。

※ 状態図…様々な温度や組成における材料中の安定な相を表した図

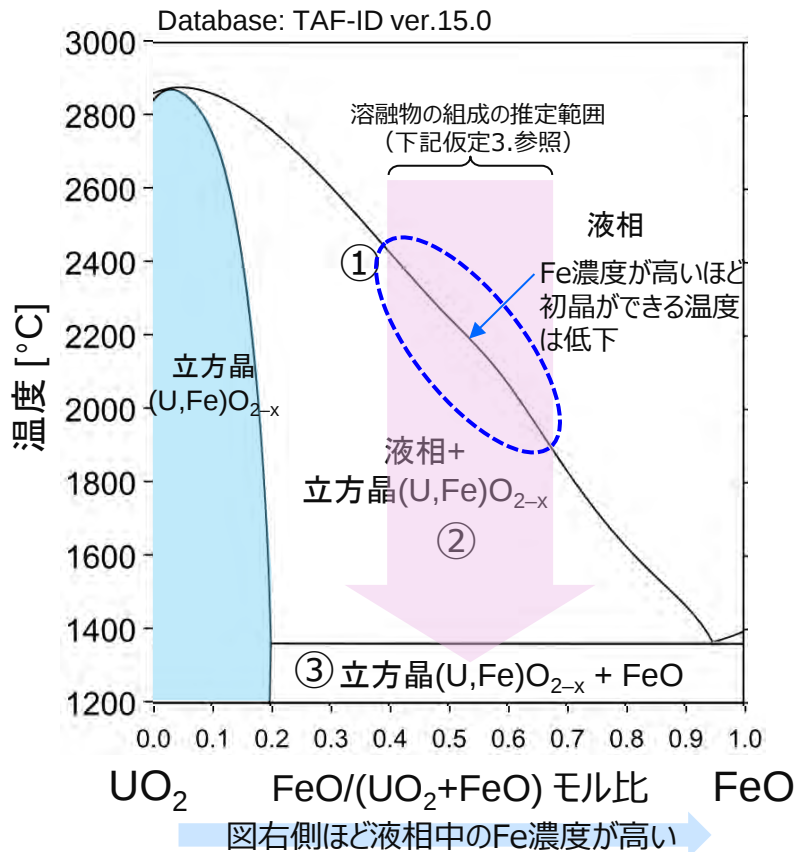
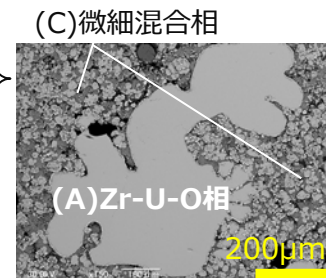


図 $\text{UO}_2\text{-FeO}$ 擬似二元系状態図

- 約1900～2400℃
液相から初晶として立方晶が生成
⇒ (A)Zr-U-O相 (立方晶 $(\text{Zr,U})\text{O}_2$) の析出に対応
- 約1350℃までは固相と液相が共存
⇒ (A)Zr-U-O相の成長及び固液混合
⇒ (C)微細混合相のU-Zr-Oや
Zr-U-O (立方晶 $(\text{Zr,U})\text{O}_2$ 、
立方晶 $(\text{U,Zr})\text{O}_2$) に対応
- 約1350℃以下でFeO生成
⇒ (C)微細混合相のFe-Cr-OやFe-O
(FeCr_2O_4 , Fe_3O_4 , FeNi)に対応



Zr-U-O相とその周囲
の微細混合相の例

サンプル内部の相状態を定性的に説明可能

- ✓ 上記評価は暫定的なものであり、 UO_2 への ZrO_2 の固溶やFeの酸化状態等を踏まえた精査を実施していく。

【簡略化の仮定】

- ZrはUで置き換え、 UO_2 として存在と仮定
- Cr及びNiはFeで置き換え、FeOとして存在と仮定 (状態図上のFeOの生成を、金属Feと Fe_3O_4 (FeCr_2O_4 含む)の生成とみなす)
- FeOの割合としては、サンプル中の主要5元素中のFe+Cr+Niの割合が示す範囲として約40～70 at%を想定。

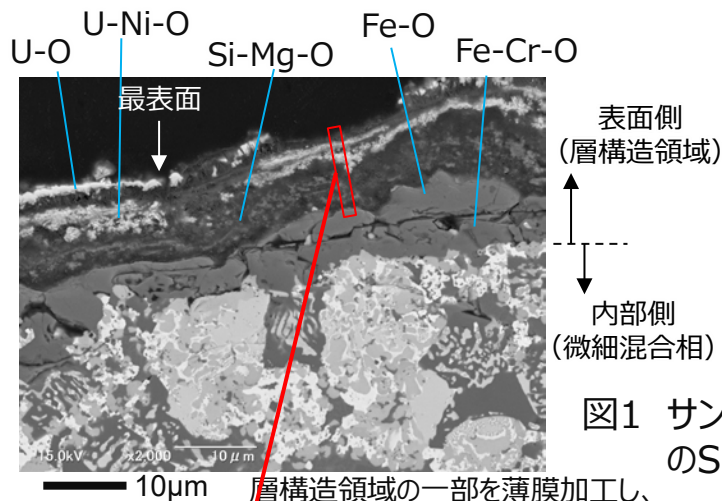


図1 サンプル表面近傍のSEM像^[1]

層構造領域の一部を薄膜加工し、TEMにより詳細観察

前処理・加工に用いた樹脂や保護材（観察対象外）

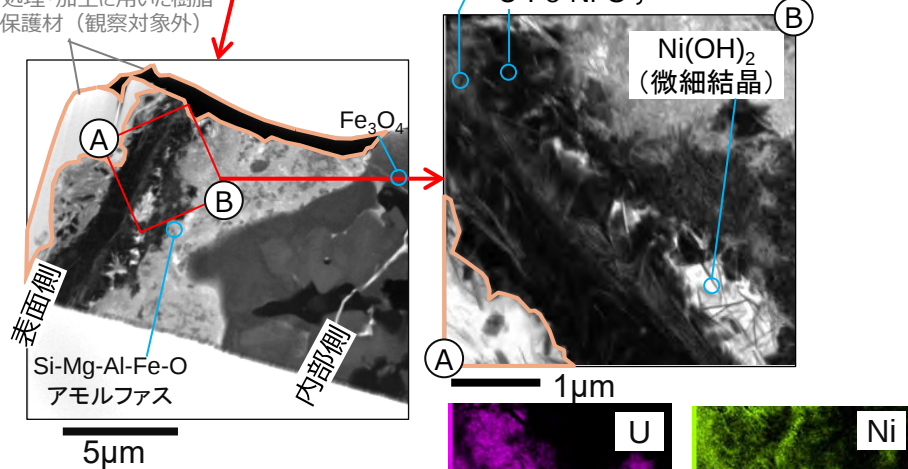


図2 表面近傍の層構造のTEM分析結果

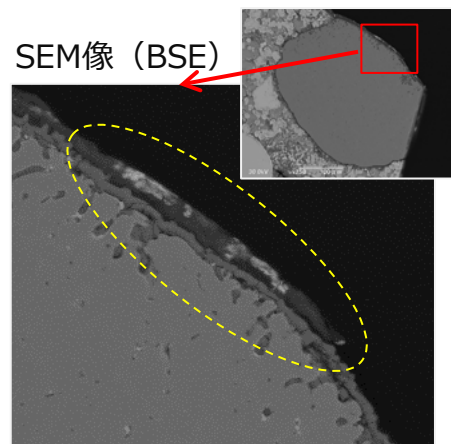


図3 Fe-Ni金属相表面の層構造 (SEM観察結果)

- ・ サンプル表面の層構造領域では、主に、様々な組成のアモルファス相や微細結晶の集合体を形成 (図1, 2)。
- ・ Uをほとんど含まないFe-Ni金属相の表面にも同様の層構造が認められた (図3)。一方で、破面 (元のサンプルの内部) には同様の構造が見られない。

溶融・凝固によってサンプルの大部分が生成された後に、表面の層構造領域がさまざまな過程で生成された可能性が考えられる。

①炉心部での燃料の溶融・混合（約1900℃以上）

- Zr/U比の高い組成 **[p.8]**
→ 被覆管に加えて、チャンネルボックス等も巻き込んだと推定。
- 燃料成分(U, Pu, Nd, Gd)の同位体組成や¹⁵⁴Eu、²⁴¹Am、²⁴⁴Cmの対U比は、炉心平均と同程度 **[p.33,34]**
→ ある程度広い範囲の燃料が混合した可能性を示唆。
- サンプルの化学組成では、溶融には少なくとも約1900℃以上が必要 **[p.8,12]**

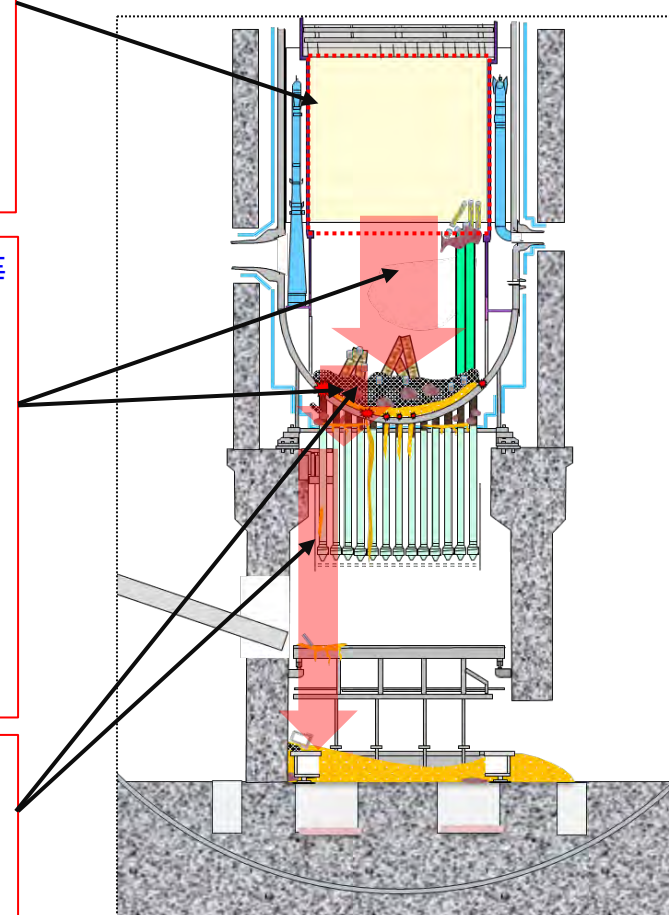
②溶融物移行時に炉心下部や下部プレナム構造物等の取り込み／構造材成分の酸化

- (構造物等の取り込み) 構造材成分(Fe+Cr+Ni)が多い **[p.8,32]**。Alの検出 **[p.36]**
→ CRDハウジング（ステンレス鋼）、溶接材、スタブチューブ（Ni合金）、保温層（Al合金）等の巻き込みの可能性を示唆。
- (構造材成分の酸化) Fe-Ni金属相と、その周囲にFe酸化物やFe-Cr酸化物が存在。 **[p.11]**
→ 発生した水蒸気によりステンレス鋼などの構造材成分が酸化され、比較的酸化されやすいCr、Feが順次酸化された可能性。

③固液混合の状態（約1350℃以上）

- (固液混合の状態) 大きな立方晶（Zr-U-O相）の周囲にFe濃度の高い領域が存在。 **[p.10]**
→ Fe・Cr濃度の高い液相中にU-Zr酸化物粒子が分散した状態であった可能性を示唆。
- (微細混合相の形成) 立方晶(Zr,U)O₂、立方晶(U,Zr)O₂、FeNi金属、Fe₃O₄及びFeCr₂O₄が微細に入り混じって存在。 **[p.11]**
→ (A)Zr-U-O相よりも低い温度で析出がはじまり、約1350℃でFe酸化物の凝固が終了したものと推定

➡ 想定される1回目サンプル移行経路の概略



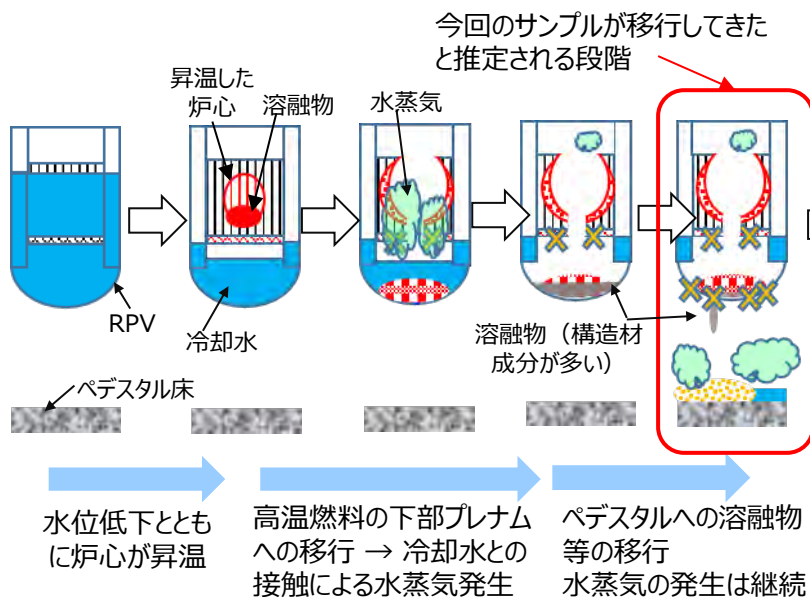
④サンプル表面の層形成

- Fe-Ni金属相の表面にも同様の層構造を観察。サンプル内部には同様の構造が見られない。 **[p.13]**
→ 溶融・凝固によってサンプルの大部分が生成された後に、表面の層構造が生成されたと推定

これまでの検討と組み合わせ、事故がどのように進展したかの推定を進めることで、燃料デブリ分布等の炉内状況の把握に努め、燃料デブリ取り出しや内部調査の検討等に活用する。

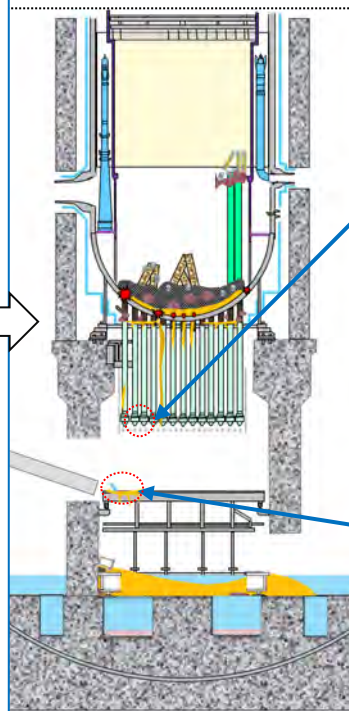
【サンプル分析結果の位置づけ】

今回の燃料デブリサンプル（1回目）は、ペDESTALに移行するまでの間、圧力容器内での水蒸気発生による構造材成分等の酸化を経て生成されたものと推定。



2号機事故進展時の推定^[1]

【内部調査結果からの知見】

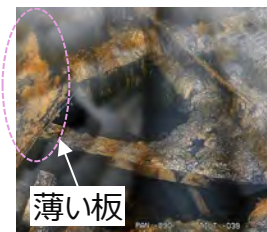


2号機の炉内状況推定図^[2]



CRDハウジングサポートに大きな損傷は確認されず
⇒燃料デブリのペDESTALへの移行時、ステンレス鋼の融点（約1450℃）を大きく超える条件ではなかったと推定される。

CRDハウジングサポートの外観^[3]
（調査時期：2018年1月）



プラットフォーム上に薄い板を確認。設計図面との比較から、RPV直下にあった保温層（アルミニウム合金製：融点約660℃）が落下してきた可能性を示唆^[5]。
⇒燃料デブリのペDESTALへの移行時に保温層も巻き込んだと推定される。

CRDレール近傍のプラットフォームの外観^[4]
（調査時期：2017年2月）

[1]図出典：Yamashita et al. Annals of Nuclear Energy, 173 (2022) 109129. より抜粋・加筆

[2]JAEA, 令和5年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（RPV損傷状況及び燃料デブリのPCV内移行挙動等の推定のための技術開発）」）令和6年度最終報告書 2025年10月。

[3]東電HD, IRID, 2号機 原子炉格納容器内部調査 実施結果。廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議（第50回）資料3-3。

[4]東電HD, IRID, 2号機原子炉格納容器内部調査について。廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議（第39回）資料3-3。

[5]JAEA, 令和4年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（原子炉圧力容器の損傷状況等の推定のための技術開発）」）2022年度最終報告。2023年9月。

1. サンプル取得箇所の状況の把握（燃料デブリサンプルの状況の把握）【既報^[1] [2]】

必要な情報	評価結果
取り出し検討のための基本情報 （線量率、密度分布）	燃料デブリサンプルは全体的に不均一で、空隙も広く分散していた。
臨界評価などの取り出し時の安全対策や、保管方法の検討のための基本情報（元素含有率、同位体比）	<u>サンプル重量に対して燃料成分（U）が最も多かった。</u> 但し、炉心組成と比較すると、燃料成分（U）よりも構造材成分（Zr、Fe、Cr、Ni）の物質量が多かったため、PCVへの移行中に、いろいろな材料を巻き込み、生成した可能性が考えられる。
	U濃縮度は ²³⁵ U/U比で約1.9wt%であり、サンプル間の偏りもなく、炉心平均値に近い値であった。
燃料デブリ取り出し時の非破壊測定技術開発の検討のための情報 （放射能濃度）	<u>γ線放出核種としてはCs濃度が低く、EuやCoの濃度が高い。</u> 燃料デブリ生成の高温時に放射性Csが揮発した可能性が高い。また、 ¹⁵⁴ Eu及び ²⁴⁴ Cmについて、Uとの帯同性を確認した。
取り出し工法・工具の検討のための基本情報（元素、化合物分布）	<u>主に、Zr-U-O相、Fe-Ni金属相、微細混合相及び空隙で構成されていた。</u> 比較的破碎しやすい状態であったと考えられる。

[1] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合事務局会議（第133回）資料3-3

[2] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合事務局会議（第140回）資料3-3

2. 燃料デブリ生成過程の推定

必要な情報	評価結果
炉内状況推定図の精緻化のための燃料デブリの生成情報（Uを含む相等の結晶構造、組成）	<u>RPV内での溶融物の形成（約1900℃以上）</u> 及び下部構造物の巻き込みを経て、ペDESTALに移行していく過程で凝固が進み、 <u>FeOが析出する約1350℃近傍で微細混合相が形成</u> されたと推定した。

【今後の予定】

- 1 回目のサンプルについては当初計画の分析を終了した。計画している追加分析（XRD、放射能分析など）の結果を踏まえ、必要に応じて評価を見直していく。
- 2 回目のサンプルについては、詳細分析を継続し、1 回目のサンプルとの比較を進める。

- ◆ 少量の燃料デブリ分析から貴重なデータを得られたと考えており、知見を今後の燃料デブリ取り出しに活用していく。
- ◆ 今回は少量の分析結果による評価であり、今後も分析で得られる知見を基に継続的に見直す。

1. サンプル取得箇所状況の把握【既報^[1]】

■ 取り出し時の安全対策や、保管方法の検討

（ウラン濃縮度の範囲）

- ウラン濃縮度は炉心の平均値に近い値であった。事故前の2号機炉心には濃縮度の分布（1%以下～4%程度）があるなか、燃料デブリでは平均値に近いことから、溶融凝固の過程で混合し濃縮度がならされた可能性がある。
- 濃縮度は、取り出し時の安全対策や保管方法の検討における臨界評価のパラメータであり、実際の分析結果をもとに想定する幅を狭くすることができれば、合理的な設計ができる可能性がある。

（被ばく評価時に考慮すべき線源）

- 燃料デブリでは、事故時に燃料が過熱・溶融に伴いCsが揮発したと見られ、¹³⁷Csは炉心平均（使用済燃料）の1/1000程度の濃度であった。
- 一方で、¹³⁷Csが少ないことにより、相対的に¹⁵⁴Euや⁶⁰Coの影響が強くなっていることから、被ばく対策に得られた知見を活用していく。

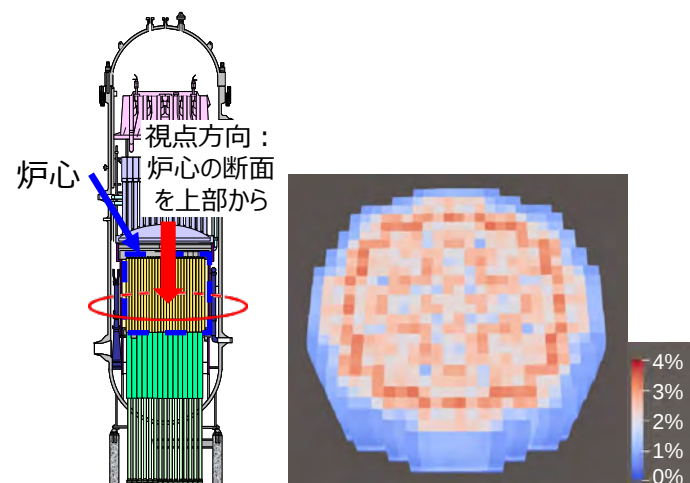


図 BWR炉心の濃縮度分布の例
（赤色が濃い程、高濃縮度を示す）

1. サンプル取得箇所の状況の把握 (続き) 【既報^[1]】

■ 燃料デブリ取り出し時の非破壊測定技術開発の検討ための情報

- これまでも、揮発しづらい ^{154}Eu 、 ^{244}Cm はUに帯同するとされていた。今回、実際の燃料デブリに含まれる ^{154}Eu 、 ^{244}Cm 及びUの存在量を分析することで、帯同性がよいことを定量的に確認できた。
- 比較的測定が難しいUの代わりに、ガンマ線、中性子線を放出する ^{154}Eu 、 ^{244}Cm を指標として用いる非破壊分析手法が開発されており、帯同性に関するデータはこうした手法の検討に活用できる。

■ 取り出し工法・工具の検討のための基本情報

- 切断面の観察で空隙が多く、分析施設において分取する際に人力で破碎することができた。
- 同様の組織を持った燃料デブリは破碎での加工が可能と考えられ、加工治具の検討に情報を活用する。

2. 燃料デブリ生成過程の推定 【更新】

■ 炉内状況推定図の精緻化による取り出し工法の検討や内部調査の検討

【更新】

- 炉心部で燃料、被覆管等が溶融しある程度広い範囲で混合し、ペDESTAL床面へ移行する経路の材料を巻き込んだと推定した。
- 結晶構造等の分析結果から、既往の知見を踏まえて生成過程を評価すると、約1900~2400℃の温度からの溶融凝固でも説明が可能であり、必ずしも(U,Zr)O₂の融点(約2500℃)ほどの高温が必要ではないと推定した。
- Fe、Cr濃度が高い液相とU-Zr-O固相の混合状態を経て形成したと推定した。固液状態では流動性があるため、サンプル採取箇所の近傍にも同様の燃料デブリが存在する可能性がある。
- これまでの検討と組み合わせ、事故がどのように進展したかの推定を進めることで、燃料デブリ分布等の炉内状況の把握に努め、燃料デブリ取り出しや内部調査の検討等に活用する。

参考) U、Pu、Nd、Gd同位体の組成 (質量分析)

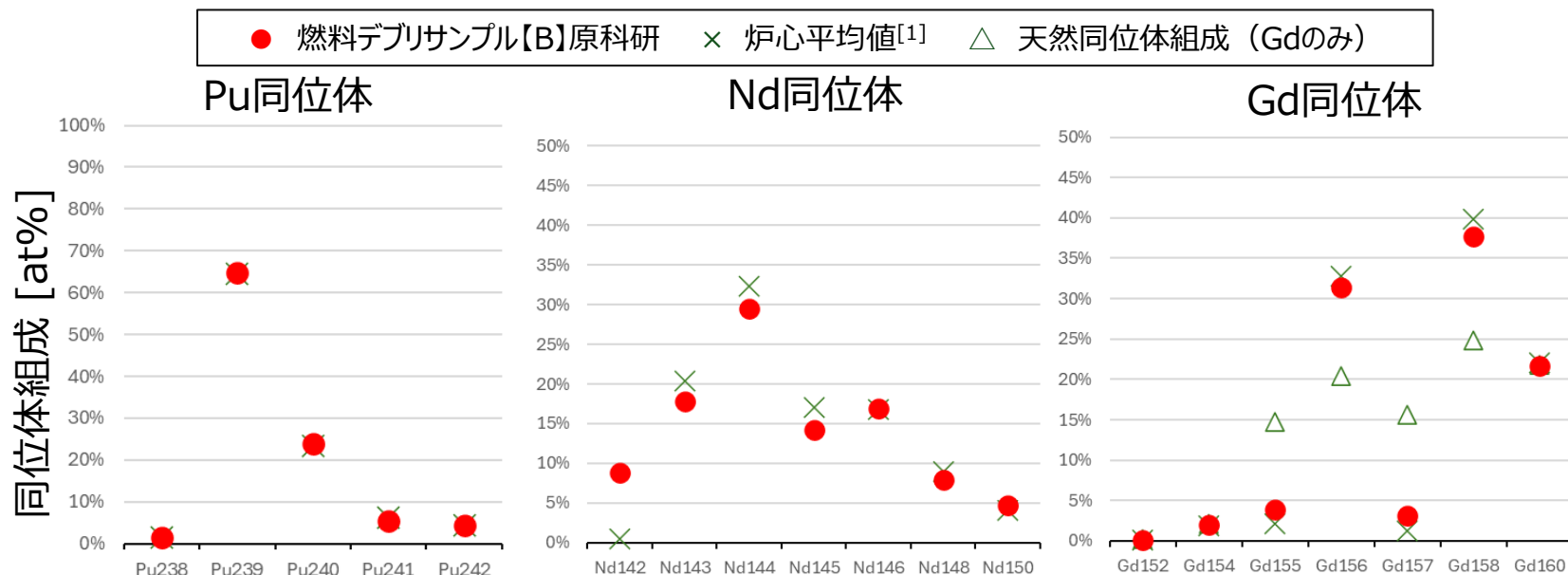
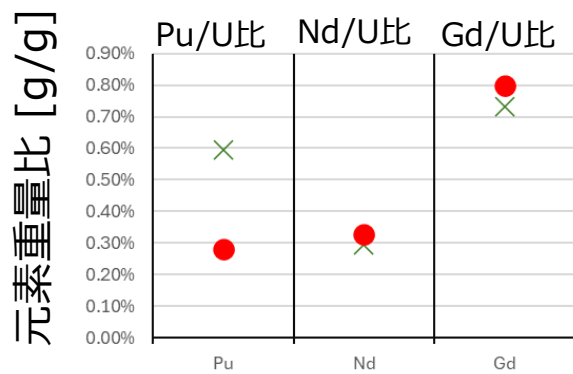
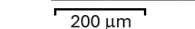
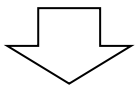


図1 TIMSによる同位体組成の分析結果 (Uは省略)



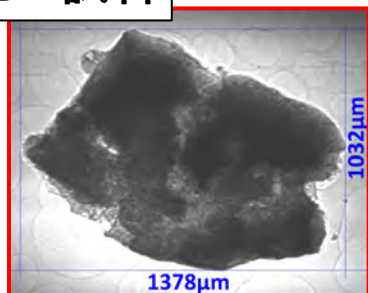
IDMSによる元素重量の分析結果 (対U比)

- 同位体組成は、U、Pu、Nd、Gdいずれも平均値と整合。
- Uとの元素重量比は、Gd/U及びNd/Uの値は平均と同程度であったが、Pu/Uのみ平均値の半分程度であった。
- Puの化学的なふるまいは酸化還元環境に大きく依存することから、燃料デブリサンプル生成時の環境を知る手掛かりになる。
- Puの分析値の精度を改めて確認するため、IDMSに用いた標準溶液のPu濃度の再測定を実施中。

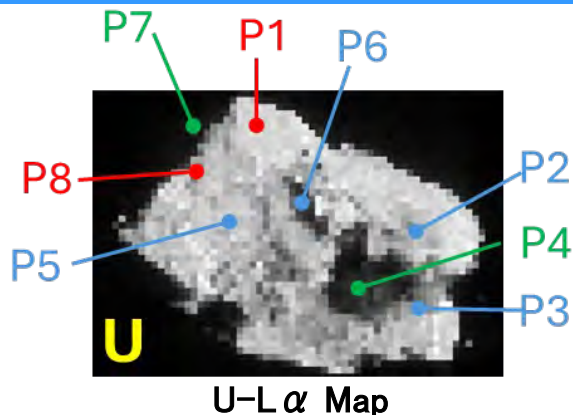


Uが含まれる「U-rich」相で、立方晶の他、正方晶も観察。

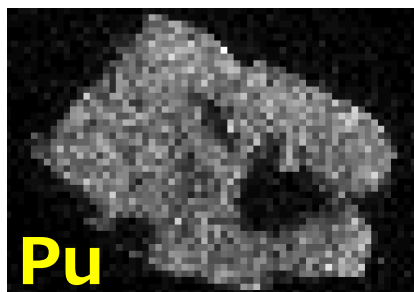
S-1試料



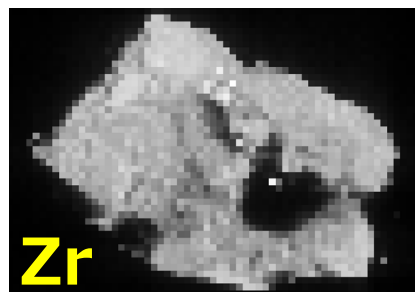
X線透過像



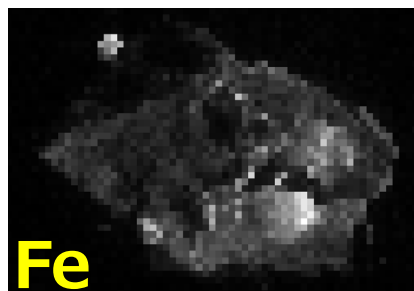
U-L α Map



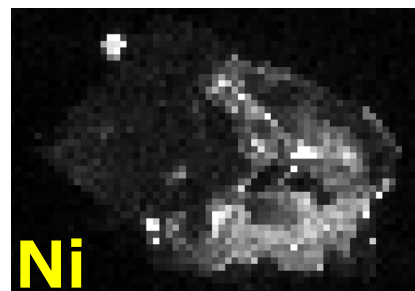
Pu-L α Map



Zr-K α Map

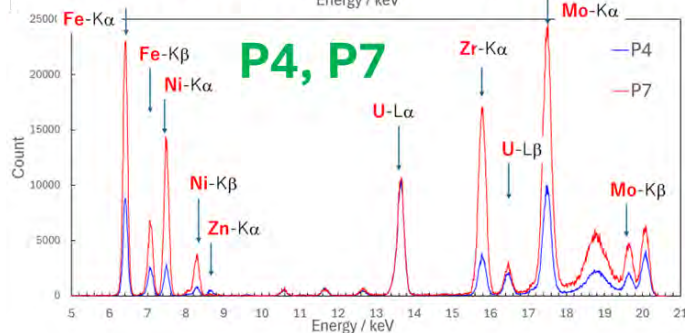
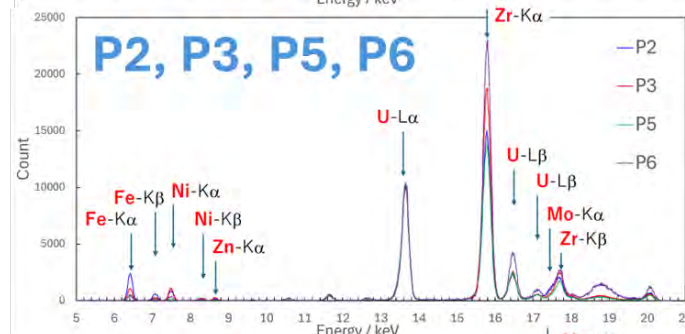
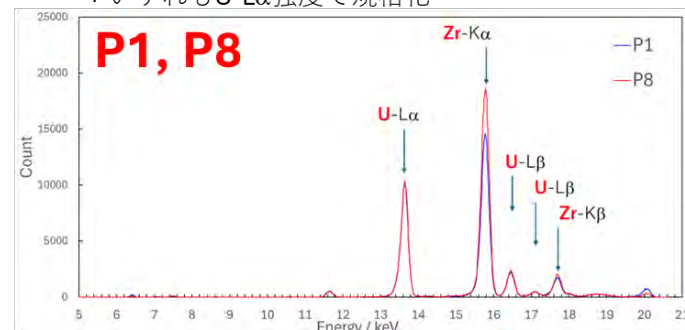


Fe-K α Map



Ni-K α Map

* いずれもU-L α 強度で規格化



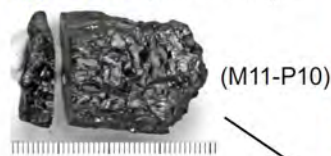
P1, P8はUとZrが主成分。

P2, P3, P5, P6ではFe, Ni, Moなども確認。

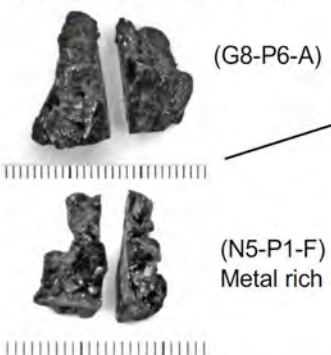
P4, P7はFe, Ni, Moを多く含む。

U, Zr及びPuの分布がおおよそ一致している。
Fe, Niは一部偏在する場所がある。

Upper crust (fast cooling)



Molten pool (slow cooling)

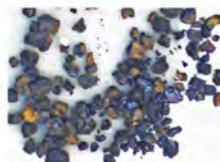


Upper core debris bed

(E9-4)
Loose


Lower head debris

(VIP-9D)
Hard

(VIP-9H)
Loose


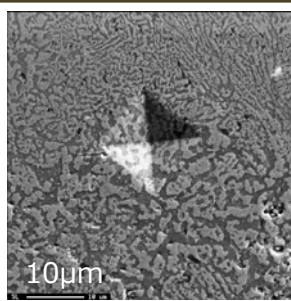
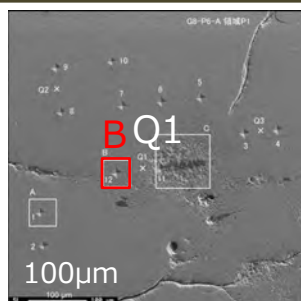
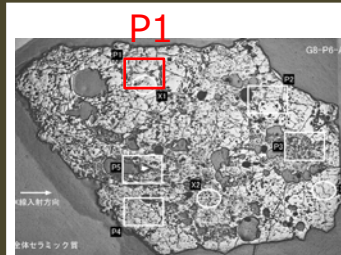
TMI-2 damaged core

溶融プール

G8-P6-A

P1

B



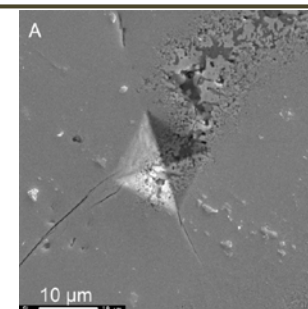
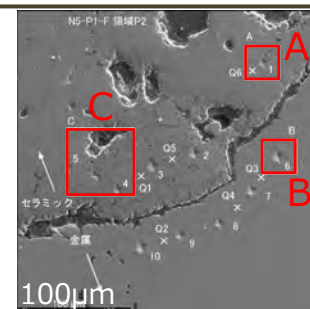
溶融プール

N5-P1-F



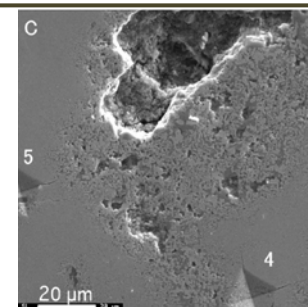
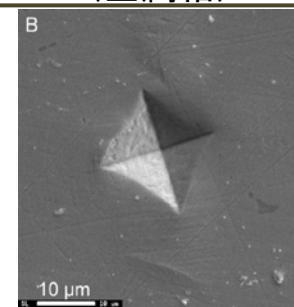
P2

A



B(金属相)

C

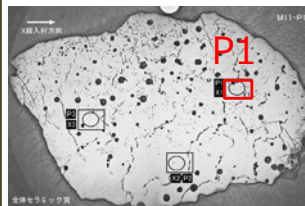


立方晶(U,Zr)O₂母相に正方晶(Zr,U)O₂が入り混じり
Fe-Cr-Niが極微量析出

酸化物相と金属相で構成、金属相母相はAg-In-Sn
酸化物相母相は立方晶(U,Zr)O₂

上部クラスト

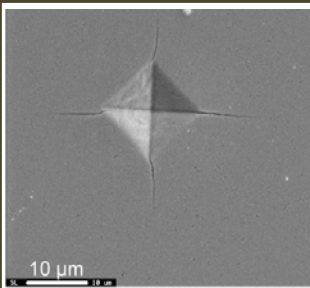
M11-P10



P1



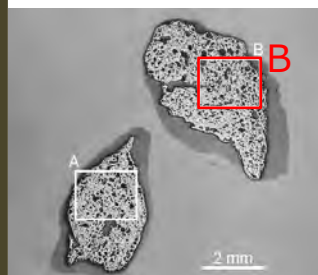
A



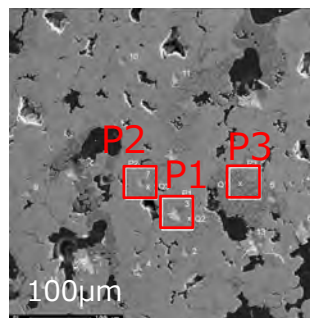
立方晶 (U,Zr)O₂
(単相)

下部ヘッドルーズデブリ

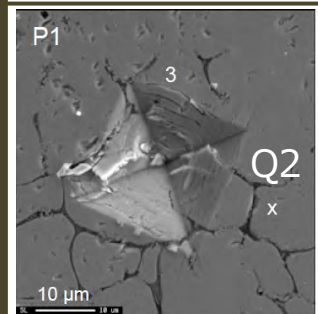
VIP-9H



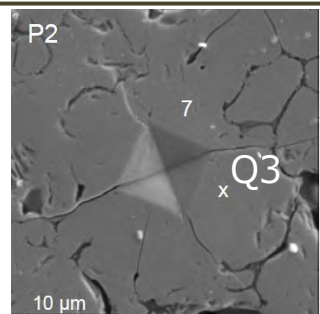
B



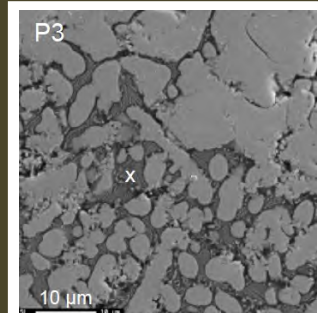
P1



P2



P3



母相
立方晶 (U,Zr)O₂
析出相
Fe-Cr-Ni-Al-O

表 各相のビッカース硬さ

試料	測定箇所	硬さ [GPa]	備考
VIP-9H	P1	3.4	粒界析出相含む
	P2	12.8	立方晶(母相)
M11-P10	P1 A	13.3	立方晶(母相)
G8-P6-A	P1 B	11.3	立方晶(母相)+ 正方晶(入り混じり)
N5-P1-F	P2 A	11.2	立方晶 (母相) + 正方晶(析出)
	P2 B	0.8	Ag-In-Sn(母相)

(参考) 金属材料やセラミック材料のビッカース硬さ^[2]

ステンレス鋼：約2 GPa (SUS304)

アルミナ：約15 GPa (Al₂O₃)

- どのサンプルも立方晶(U,Zr)O₂が母相として存在
- 上部クラスト及び溶融プールのサンプルのFe, Cr, Niの含有量は少ない。
- 下部ヘッドルーズデブリのサンプルでは、U-Zr-O相の粒界に析出物が多くみられる。析出物はFe, Crを多く含む酸化物相である。
- 析出相を含んだ箇所の硬さは、低い値を示す。

[1] 平成25年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリ性状把握・処置技術の開発）」及び平成26年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握）」にて取得（2014～2015年度実施）

[2] IRID, 平成26年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握）」2015年度成果報告, 2016年4月。

状態図とは…様々な温度や組成における材料中の安定な相を表した図。

- UO_2 、Zr、Feなどを溶融させた実験結果をもとに、状態図作成のための様々なデータベースがある。
- 状態図を用いた検討では、主要成分のみを想定するなど、ある程度簡略化※して考える場合が多い。

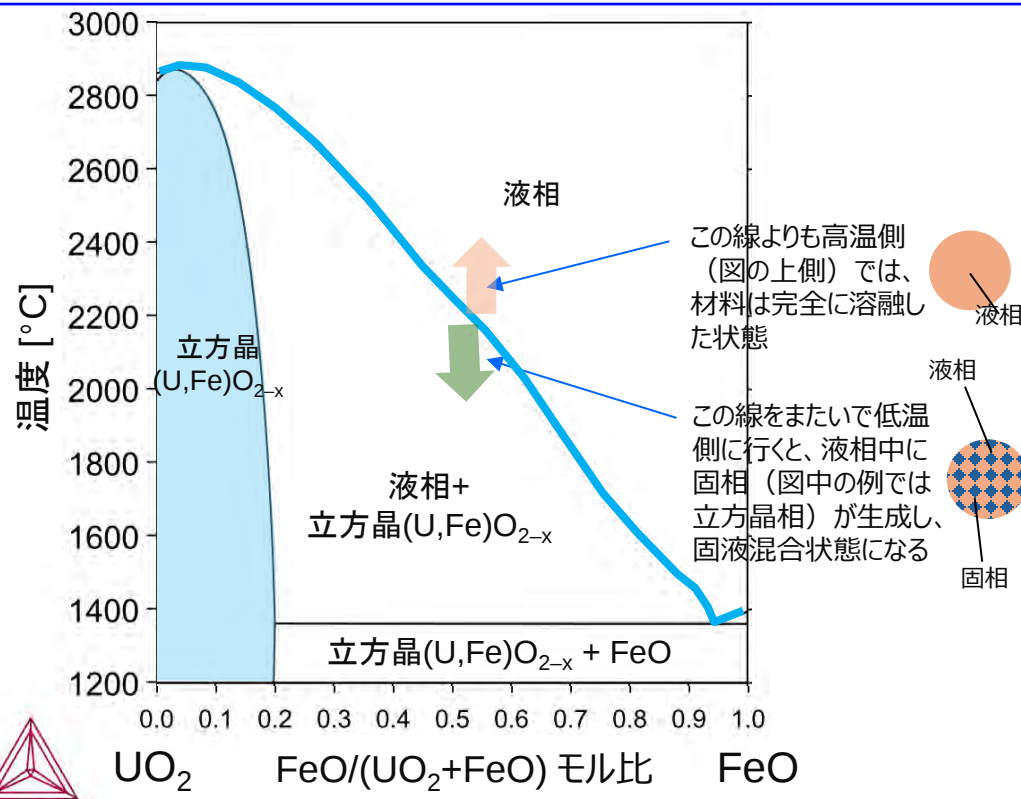
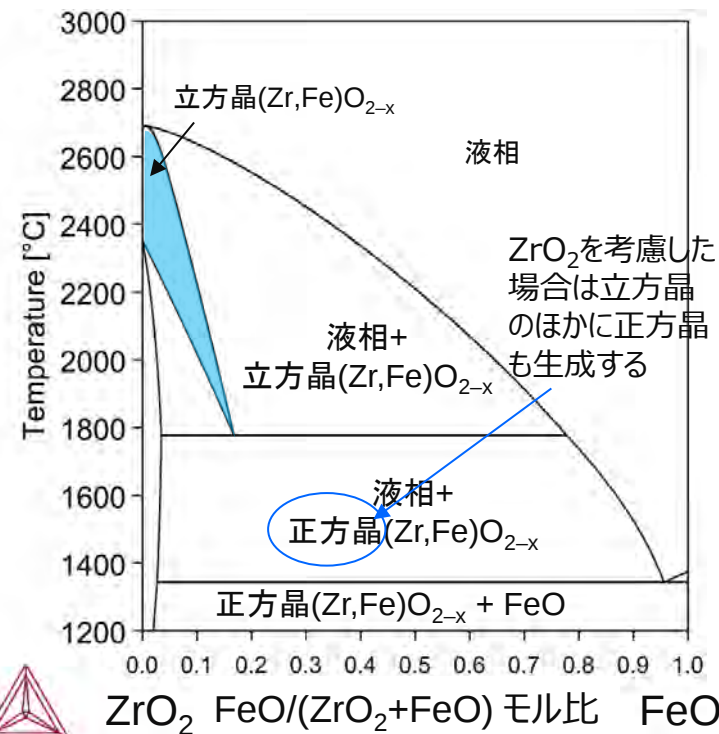


図 UO_2 -FeO擬似二元系状態図【P11】



参考) ZrO_2 -FeO擬似二元系の計算状態図

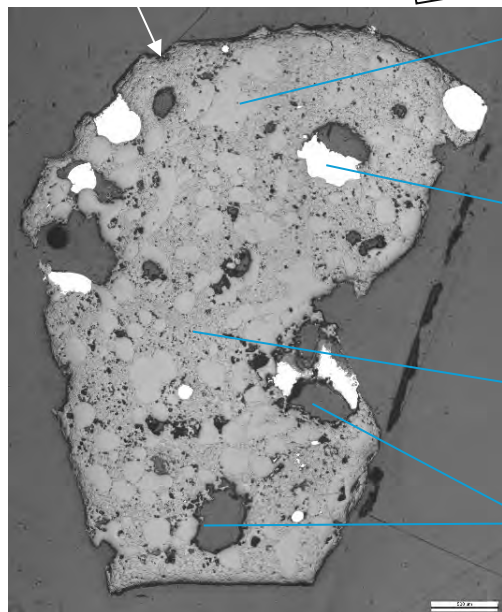
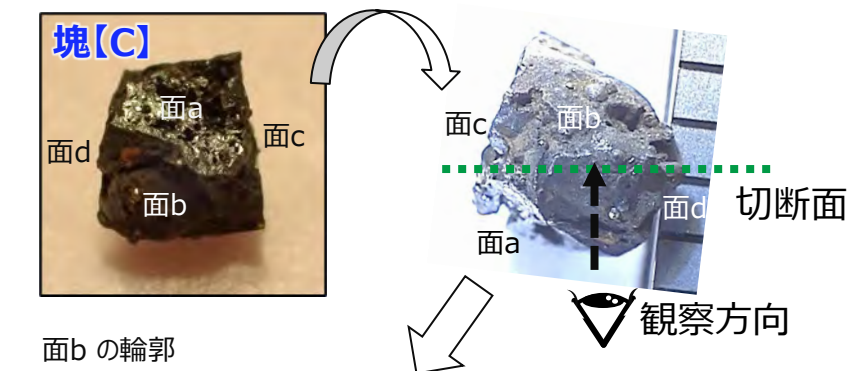
使用したデータベース: TAF-ID ver.15.0

※簡略化の考え方の例：U-Zr-Fe-Cr-Ni-O系を ZrO_2 -FeO系に簡略化する場合

- ✓ UはZrで置き換え、 ZrO_2 として存在と仮定 # 各分取片の組成が $\text{Zr} > \text{U}$ であり、主に二酸化物で存在したため。
- ✓ Cr及びNiはFeで置き換え、FeOとして存在と仮定 # 各分取片の組成が $\text{Fe} > \text{Cr}$, Ni であり、Feは金属相(Fe-Ni)と酸化物相(Fe_3O_4 , FeCr_2O_4)の双方に認められたため（状態図上のFeOの生成を、金属Feと Fe_3O_4 (FeCr_2O_4 含む)の生成とみなす)
- ✓ FeOの割合としては約0.4-0.7を仮定 # 溶融物が移行する過程で様々な構造材成分を巻き込んだ可能性を踏まえ、特定の値を仮定せず、サンプル中の主要5元素中の $\text{Fe}+\text{Cr}+\text{Ni}$ の割合が示す範囲（約40-70 mol%）を想定

塊【C】：NFD

- ・ X線CT撮像面に合わせ込むように塊【C】を切断して断面像を取得し（図1）、空隙率及び微細組織の評価を行った。
- ・ 断面の画像解析により空隙率及び各部の構成割合を概略評価した（図2）



光学顕微鏡像

図1 燃料デブリの切断及び断面観察

(A)Zr-U-O相（数十～数百 μm ）

- ・ Zr/U比が約2（粒によらずほぼ一定）
- ・ その他、微量のFe、Cr、Niを含む

(B)Fe-Ni金属相（数～数百 μm ）

- ・ Fe/Ni比が約1～3（粒によって異なる）

(C)微細混合相

- ・ U-Zr-O、Zr-U-O、Fe-Cr-O、Fe-Oの混相

(D)空隙（数 μm ～数百 μm ）

- ・ 切断面面積に対して約2割。



画像解析の例：
空隙の面積比率
の評価

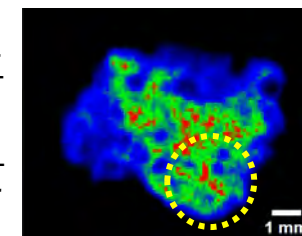
赤く塗られた箇所
以外を空隙として
評価

(A) Zr-U-O	(B) Fe-Ni	(C) 微細相	(D) 空隙
20	4.4	56	19

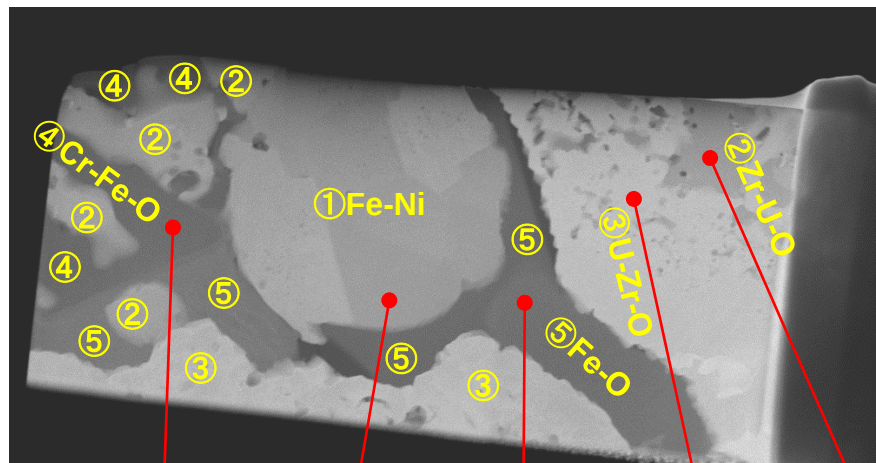
(A)Zr-U-O相は100-(B)-(C)-(D)として算出

図2 各部の面積比率の評価結果 [%]

今後、これら4つの部分とCTスキャンの対応を検討し、燃料デブリサンプル全体の相の割合を検討していく。



(C) 微細混合相



単位: at%

元素	④Cr-Fe-O	①Fe-Ni	⑤Fe-O	③U-Zr-O	②Zr-U-O
O	45	n.d.	39	32	38
Cr	32	n.d.	1	n.d.	L.O.Q.
Fe	22	56	59	n.d.	6
Ni	n.d.	43	n.d.	n.d.	n.d.
Zr	1	n.d.	n.d.	9	32
U	n.d.	n.d.	n.d.	59	23
その他	n.d.	Sn	Mn	Si	Mn

注) 表示した元素のうち、n.d.及びLOQを除いた元素を100%として表記した。

- ・ n.d.: スペクトル上で有意に検出されなかったことを示す。(not detected)
- ・ L.O.Q.: 定量下限以下。(Lower limit of quantification) スペクトルにわずかなピークが認められるものの、0.5at%未満であり定量下限以下と判断したもの。

右上部分:

②Zr-U-O相と③U-Zr-O相があり、境界では、それぞれの微細な相が入り組んでいる。

左端部分:

④Cr-Fe-O相、②Zr-U-O相、及び⑤Fe-O相の小さな相が入り組んでいる。

中央のFe-Ni相近傍:

①Fe-Niは多結晶体であり、周囲を⑤FeOに覆われている。

各分析位置のSTEM-EDX点分析結果

TEM分析結果及びラマン分光分析結果

- 5つの相に対する点分析位置にて、TEMによる電子線回折図形を取得し、結晶系の同定を行った。また、前頁に示す各位置の組成分析結果を踏まえ、結晶構造の推定を行った。(図1)
- Zr濃度が高いにもかかわらず立方晶相を示した箇所②c-(Zr,U)O₂については、ラマン分光分析による結晶構造の再確認を行い、立方晶相であることを確認した。(図2)

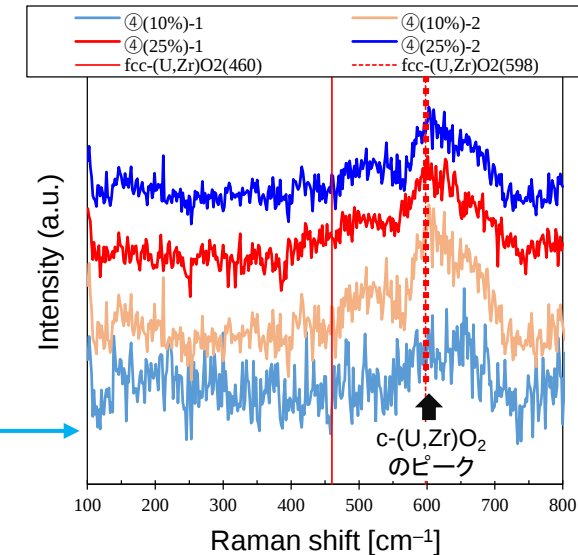
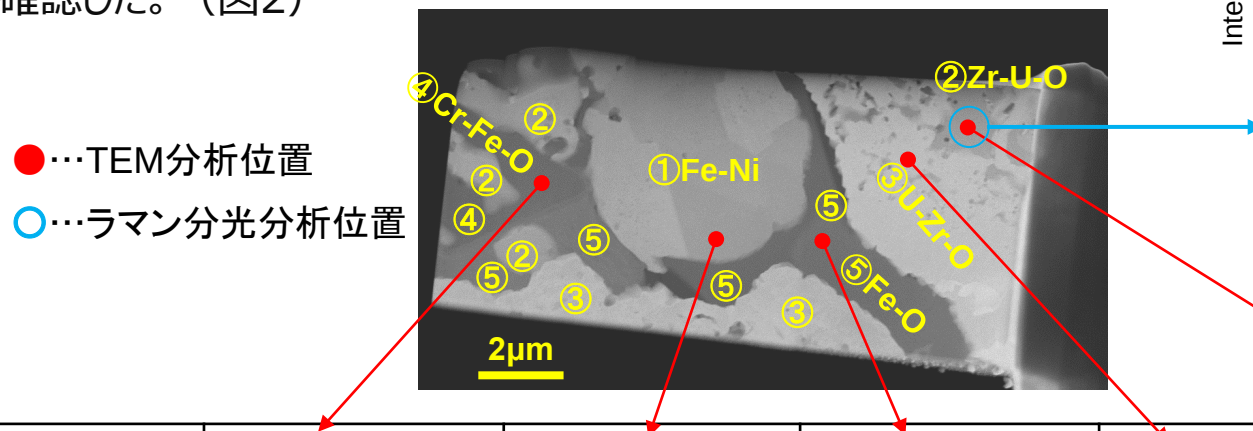


図2 ②Zr-U-O相のラマン分光分析結果

位置	④Cr-Fe-O	①Fe-Ni	⑤Fe-O	③U-Zr-O	②Zr-U-O
TEM 電子線回折図形					
結晶系同定結果	スピネル [136]	fcc-FeNi [112]	スピネル [111]	c-UO ₂ [101]	c-ZrO ₂ [101]
組成分析を踏まえた 各結晶の推定結果	c-FeCr ₂ O ₄	fcc-FeNi	c-Fe ₃ O ₄	c-(U,Zr)O ₂	c-(Zr,U)O ₂

図1 各分析位置の結晶構造の推定結果

c:cubic (立方晶)

- 事故時の高温反応やデブリの移行過程において、サンプルの生成に巻き込まれた可能性のある材料をピックアップし、生成過程の推定に役立てている。

薄緑： もともとRPV内・PCV内にあった材料
薄橙： 地震後に投入された材料

海水
・成分：Cl, Na, Mg, S, K, Ca, etc. ¹⁾

ホウ酸※（5ホウ酸Na、ホウ酸）
※ 2012年に投入。投入後、PCV滞留水中にホウ素が検出されていない（ $B < 5\text{mg/L}^{(4)}$ ）ことから、現在は制御棒由来のホウ素がメインと考えられる。



主要炉心材料	主要成分	単独の融点
ウラン燃料	U, Gd, Pu, FPs, MAs	約2800℃
被覆管・CB（ジルコニウム合金）	Zr, Sn, etc. APs	約1760℃
制御棒、タイプレート、炉心支持板などの構造物（ステンレス鋼）	Fe, Cr, Ni, Si, Mo, etc. APs	約1450℃
中性子吸収材（炭化ホウ素）	B, C	約2450℃
その他の燃料集合体部材（Ni合金：スパーサースプリング等）	Ni, Cr, Fe, etc.	約1450℃

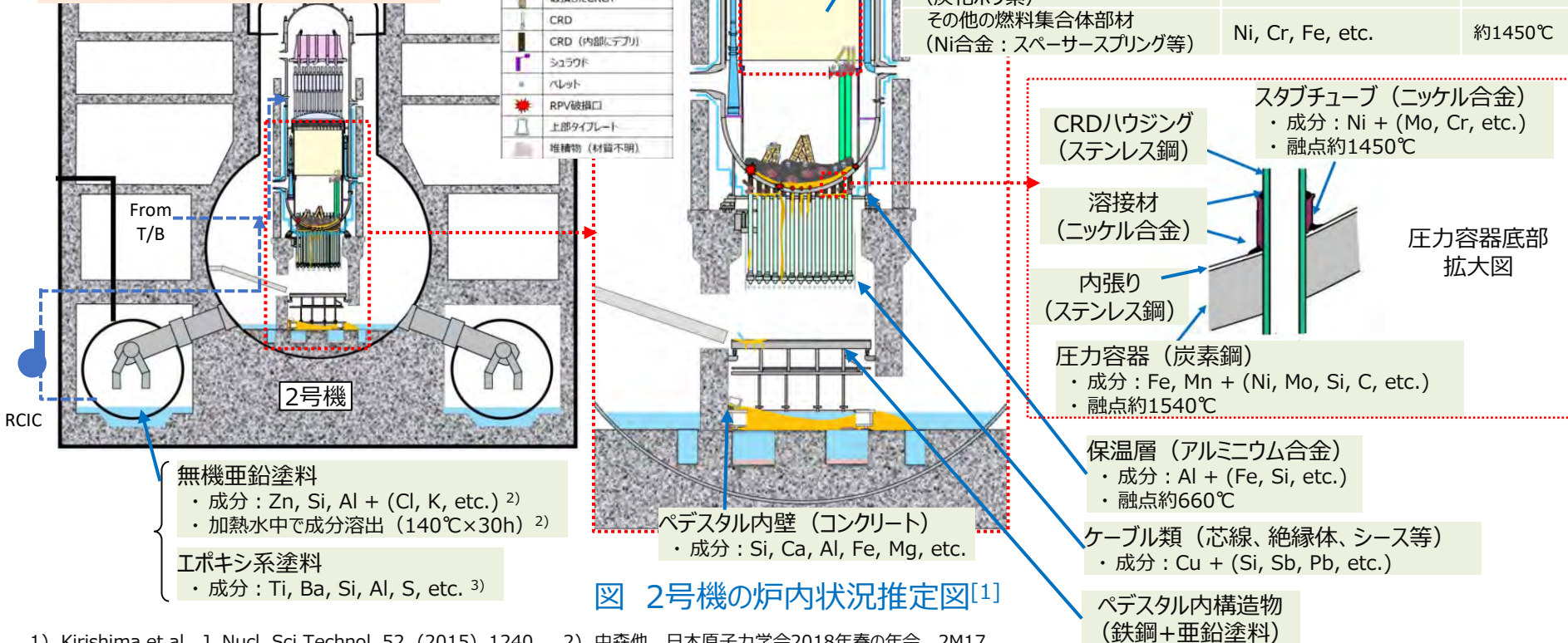


図 2号機の炉内状況推定図^[1]

- 1) Kirishima et al., J. Nucl. Sci. Technol. 52, (2015), 1240.
- 2) 中森他, 日本原子力学会2018年春の年会, 2M17.
- 3) 東電HD, 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28回）資料4-1. 2022年2月28日. (SEM-EDX結果)
- 4) IRID, JAEA, 廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議（第39回）資料3-4-4. 2017年2月23日. (PCV滞留水の分析結果)

[1]JAEA, 令和5年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金（燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（RPV損傷状況及び燃料デブリのPCV内移行挙動等の推定のための技術開発））－令和6年度最終報告－

分析方法略称	分析方法名	分析方法概要
ICP-AES	誘導結合プラズマ発光分光分析	高温プラズマ中に霧状の試料を導入し、発行する光を分光することにより元素特有のスペクトルを得て、元素の定性、定量分析を行う方法。
ICP-MS	誘導結合プラズマ質量分析	高温プラズマ中に霧状の試料を導入し、試料中の元素をイオン化し、質量分析によりイオンの質量/電荷比(m/z)におけるイオン数を測定することにより、元素および、その同位体の濃度を測定する方法。
TIMS	表面電離型質量分析	金属フィラメント上に試料を塗布し、真空下で加熱することにより原子をイオン化し、質量分析によりイオンの質量/電荷比(m/z)におけるイオン数を測定することにより、元素および、その同位体の濃度を測定する方法。
IDMS	同位体希釈質量分析	分析対象試料に、その試料とは大きく異なる同位体組成の標準試料を既知量添加し、添加前後の試料の同位体組成の変化量及び標準試料の添加量から、試料中の元素量(濃度)を定量する方法。同位体組成の測定は質量分析により行う。
SEM	走査型電子顕微鏡	試料表面に電子線を照射し、表面を観察する装置で、X線分析装置を付帯させることにより、元素分析を行うこともできる。
EDX	エネルギー分散型X線分析	電子線照射により発生する特性X線を検出し、特性X線のエネルギーで分類し、元素分析や組成分析を行う方法。
WDX	波長分散型X線分析	電子線照射により発生する特性X線を検出し、特性X線の波長で分光して元素分析や組成分析を行う方法。
TEM	透過型電子顕微鏡	薄片化した試料に電子線を照射し、試料を透過した電子や散乱した電子を結像して高倍率で観察する方法で、X線分析装置を付帯させることにより元素分析を行うこともできる。また、回折像から結晶構造を得ることができる。
SIMS	二次イオン質量分析	試料表面にビーム状のイオンを照射し発生した二次イオンを質量分析計で測定することにより、イオンの質量/電荷比(m/z)におけるイオン数を測定することにより、元素および、その同位体の濃度を測定する方法。
ラマン分光	顕微ラマン分光分析	試料表面に光を照射し、ラマン散乱光を分光して、分子構造、温度、応力、電気的特性、配向・結晶性等の物性を得る方法。従来の光学顕微鏡とラマン分光法とを組み合わせ、 μm オーダーの微小領域の化学形態に関する情報を得ることができる。

分析方法略称	分析方法名	分析方法概要
X線CT	X線コンピュータ断層撮影	試料にX線を照射し、透過してくるX線強度をコンピュータに取り込み、三次元的にスキャンすることにより、試料の内部の密度分布を得る方法。異なる密度の相の分布が得られる。
XAFS	X線吸収微細構造解析	試料にX線を照射し吸収されるX線のエネルギーを精密に観察し物質の内部構造を分子、原子レベルで分析を行う方法
XRF	蛍光X線分析	試料にX線を照射して発生する、物質に応じて発生するX線（蛍光X線）の波長やエネルギーを測定して構成する元素の含有量を定量分析する方法
XRD	X線回折法	試料にX線を照射して、得られるX線（回折X線）を測定し対象物の結晶構造、結晶方位、結晶格子サイズなどを解析する方法
IP	イメージングプレート	放射線エネルギーを輝尽発光として検出する放射線画像測定器。サンプルの線量分布が取得可能

燃料デブリサンプルの分析では、次の3種類の分析を活用して、サンプルの特徴や成り立ちを明らかにする。

● 非破壊分析

【概要】 受け入れたサンプルの状態をなるべく変えずに空隙や高密度物質の分布、含まれる成分などの情報を大雑把に把握する。

【目的】 サンプルの基本情報を取得するとともに、核燃料に由来する成分（ウランや放射性核種など）の有無を早期に確認する。また、後段の固体分析や溶液分析においてどの部位に注目するか、分取後のサンプルの位置情報は取得できているかといった、分析の具体的な進め方を検討する。

【分析方法】 外観、重量、線量率、IP、X線CT、 γ 線スペクトロメトリ、SEM-WDX（表面）

● 固体分析

【概要】 サンプルの一部を分取してその断面を詳細観察することにより、ウランやジルコニウムなど原子炉からきた成分が、サンプル中でどのような状態にあるか（共存元素は何か、事故前の状態を留めているか、酸化されているか、等）を確認する。

【目的】 どの材料が、どのような温度・雰囲気のもとで反応してサンプル形成に至ったかといった、サンプルの「成り立ち」に関わる情報を得る。

【分析方法】 SEM-EDX、SEM-WDX、TEM-EDX、SIMS、ラマン分光、 μ -XAFS、 μ -XRF、 μ -XRD

● 溶液分析

【概要】 サンプルの一部を分取して酸等に溶解させ、得られた溶解液中の元素や核種量を測定する。

【目的】 ウランの同位体比や放射性核種濃度といった、燃料デブリを安全に取り出す／安定に保管するための工程検討に必要な情報を得る。

【分析方法】 ICP-MS、ICP-AES、TIMS、 γ 線スペクトロメトリ、 α 線スペクトロメトリ

一連の分析の取り組みを継続し、炉内に堆積する燃料デブリの特徴を徐々に明らかにすることで、燃料デブリの取り出しや保管における安全評価・合理化に貢献する。

◆ 燃料デブリサンプルに含まれる元素の同定及び定量のため、破碎で得られた **塊【D】** 及び **粉末【B】** の分取試料（それぞれ約0.1g）を溶解して分析。

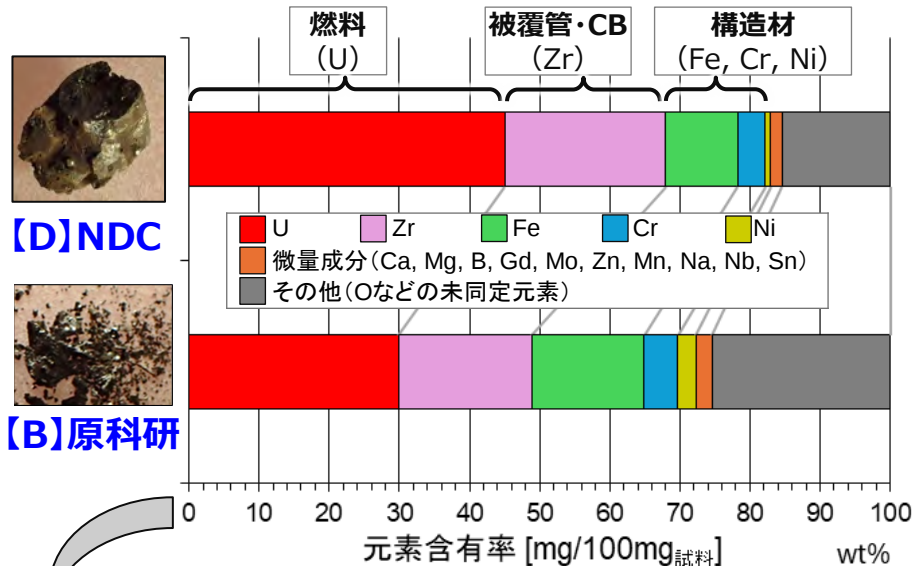


図1 サンプルの元素組成
(ICP-AES及びICP-MSによる分析結果)

主要元素間の
モル比に換算

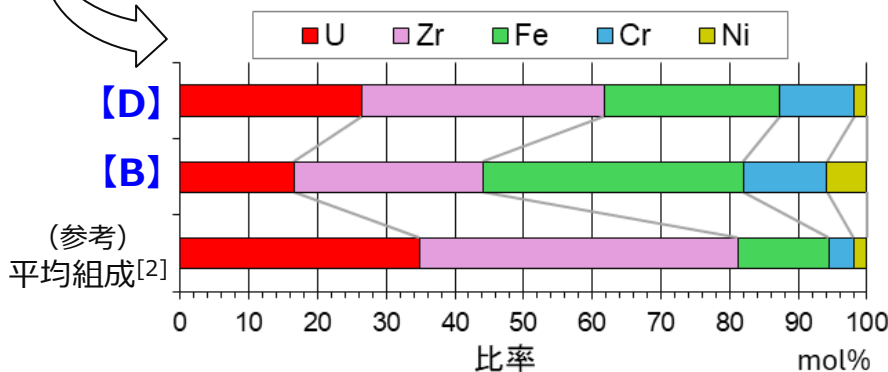


図2 主要元素 (U, Zr, Fe, Cr, Ni) 間の比率

- いずれも **U、Zr、Fe、Cr及びNiが主成分**。サンプル重量に対してUの割合が最も高い（図1）。
- 2号機の初期の燃料、被覆管・CB及び制御棒ブレードの平均組成よりも**構造材成分（Fe+Cr+Ni）の割合が高い**（図2）。

⇒ 炉心部で燃料、被覆管等が溶融した後に、PCVへの移行中に、いろいろな材料を巻き込み、生成した可能性が考えられる。

- このほか微量成分として、Ca、Mg、B、Gd、Mo、Zn、Mn、Na、Nb、Snを確認。（いずれも、サンプル重量に対して 1 wt% 未満）

⇒ PCV内やRPV内の構成材料や事故時の状況を踏まえると、海水成分や、構造材とその塗料等に由来する可能性あり。

- 破碎時に塊状を維持した**【D】**と粉末になった**【B】**では、燃料成分(U)の割合が異なる（図2）。

⇒ **【B】**では微細混合相の割合が多いことが示唆される（「④元素、化合物の分布」で考察）。

◆ サンプル中での差を把握するため、破碎で得られた **塊**【D】及び **粉末**【A-2】【B】の各分取試料を溶解し、溶解液中のU同位体（²³⁴U、²³⁵U、²³⁶U 及び ²³⁸U）を、TIMSまたはICP-MSにより定量。

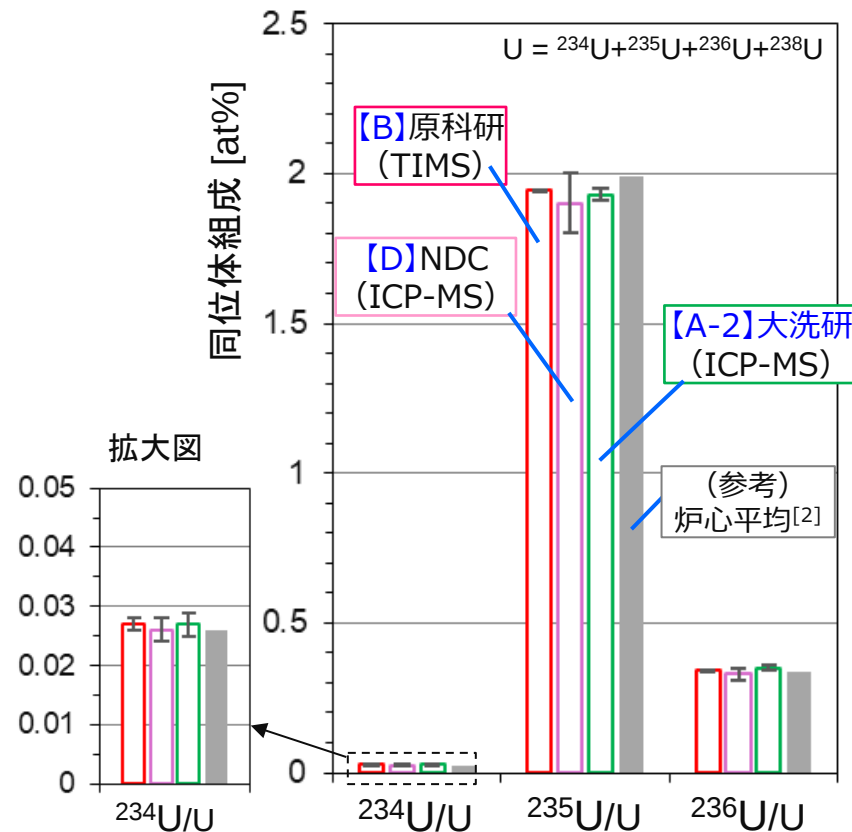


図1 溶解液の分析によるU同位体組成

○ ウラン濃縮度（²³⁵U/U比）

- いずれの試料も²³⁵U/U比は約1.9at%（約1.9wt%）であり、分取試料間の差は極めて小さいことを確認。（図1）

➤ サンプル中に²³⁵U/U比のばらつきはほとんど認められず、炉心平均に近い値。

⇒ サンプルの²³⁵U/U比は、溶融・混合を経たことにより、事故前の状態※から平均化された可能性がある。今後もU同位体比の分析を継続し、溶融・混合状態の程度の推定を進める。

※ 事故直前の炉心では、²³⁵U/U比は1%以下から約4%の範囲で分布

燃料デブリ全体で濃縮度が平均化されているかどうかについては、今後、広い範囲で採取された燃料デブリサンプルを分析し考察していく。

[1] 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合事務局会議（第140回）資料3-3

[2] 奥村ほか，日本原子力学会2021年春の年会，3B01.

◆ 主要な放射性核種の把握のため、破碎で得られた **粉末【B】** の分取試料を溶解し、溶解液中の放射能濃度をγ線スペクトロメトリ、α線スペクトロメトリ等により測定。燃料の主成分であるUとの帯同性評価のため、各核種の放射能とU重量との比率を求め、過去サンプルや炉心平均値の傾向と比較。

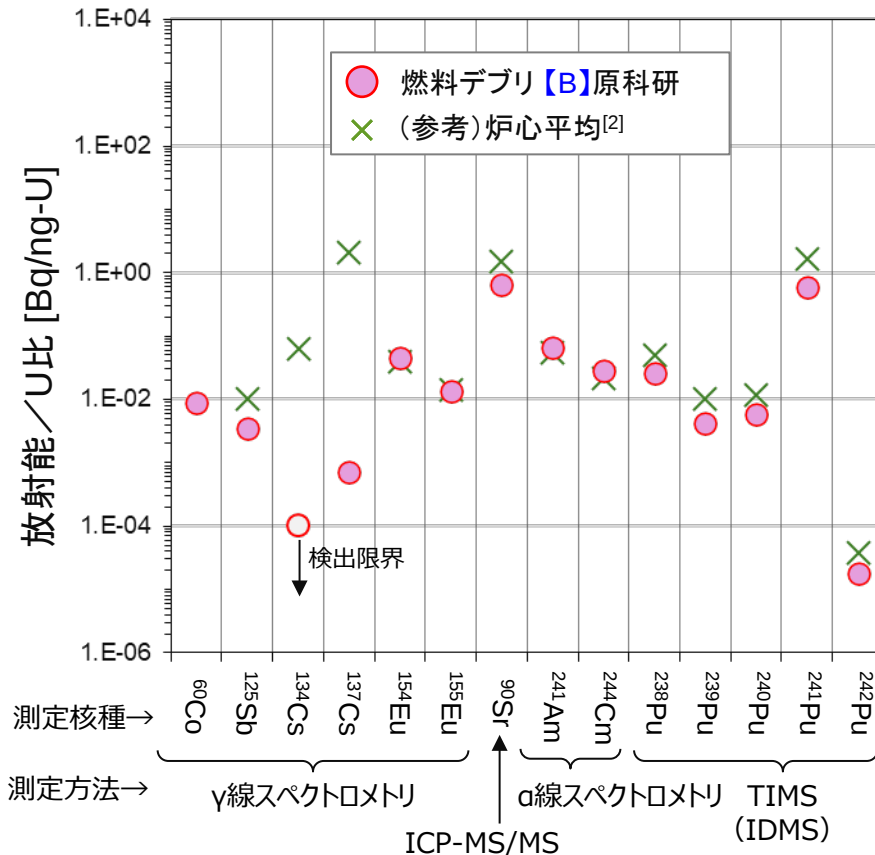


図 各核種の放射能とU重量との比率

注. 放射能は、文献[1]に基づき、2025年5月31日時点に補正した。
Pu同位体の放射能は、TIMS（表面電離型質量分析）で求めた同位体組成及びIDMS（同位体希釈質量分析法）で測定されたPu元素量から評価した。

○ 主要放射性核種

- 燃料デブリサンプル中の放射能の内訳は、 ^{90}Sr 、α核種（ ^{241}Am 、 ^{244}Cm 及び Pu 同位体）、 ^{154}Eu 及び ^{60}Co からの寄与が大きい。（左図）
- ^{134}Cs 及び ^{137}Cs からの寄与は小さく、炉心平均と比較しても小さい。

⇒ 事故時の高温により放射性Csが揮発し、γ線量率の低いサンプルを形成した可能性あり。

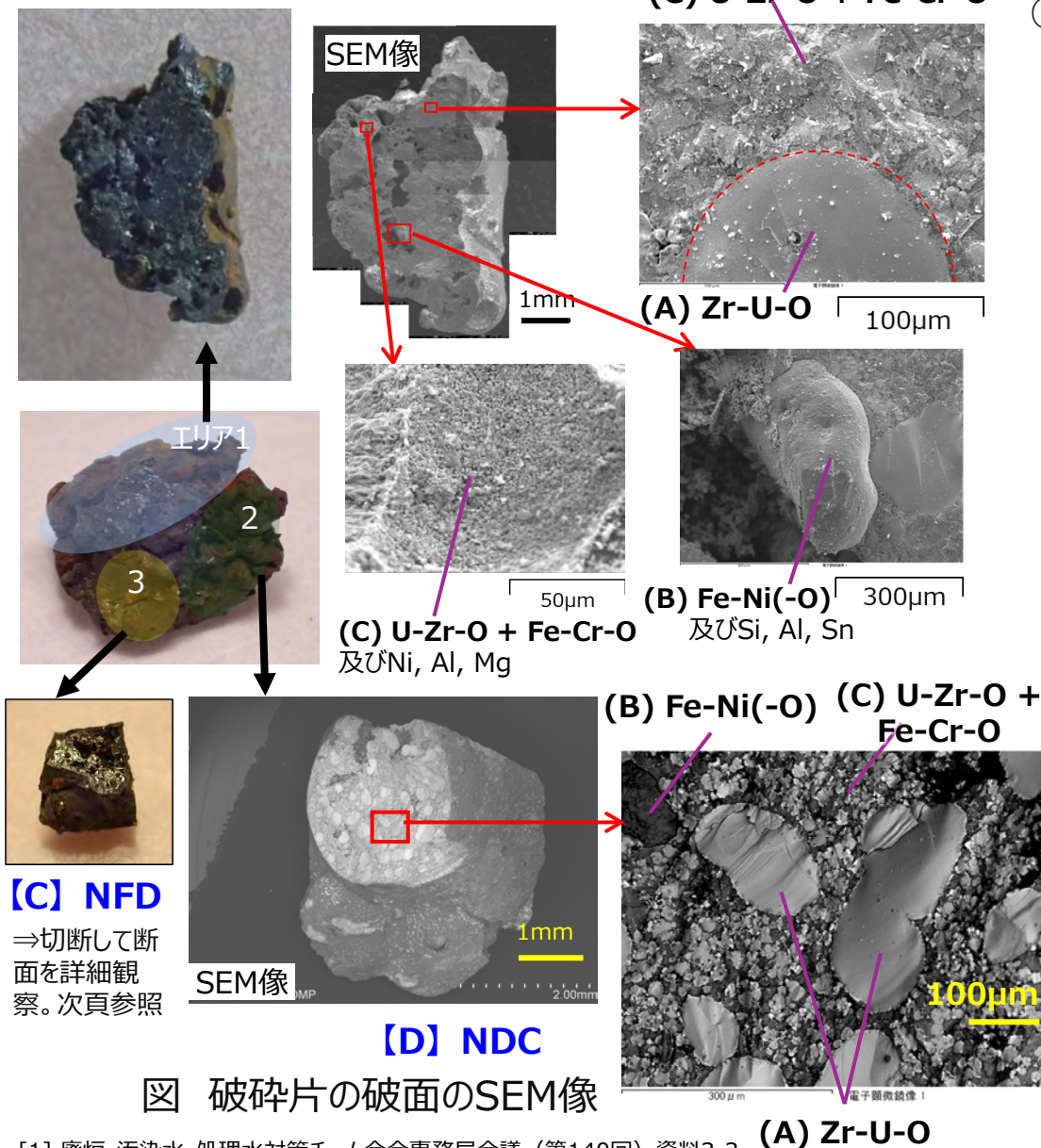
○ Uとの帯同性

- Sr、Eu、Pu、Am、CmとUとの比率は炉心平均での値に近い傾向あり。

⇒ 燃料デブリ検知のための指標核種として着目※される ^{154}Eu 及び ^{244}Cm について、Uとの帯同性を確認

※通常の原子炉運転後、Uと帯同することが知られている

【A-1】大洗研



○ サンプル内部の微細組織：破碎部表面のSEM-EDX/WDX観察結果

- ・ 観察面は全体的に、U-Zr-Fe-Cr-Ni-O系の複合相で構成。

(A) Zr-U-O系の粗大粒子（数十～約200μm）

(B) Fe-Ni(-O)系の粒子（≦数百μm）

(C) U-Zr-OとFe-Cr-Oの微細混合領域

⇒ ジルコニウム合金やステンレス鋼などの構造材の酸化、及び燃料との熔融・混合を経て燃料デブリが生成されたものと推定。

- ・ 局所的に、Mg、Al、Si、Sn等も存在。

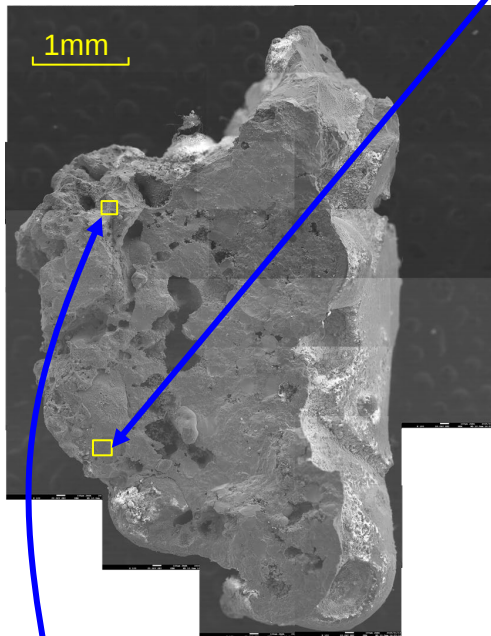
⇒ 海水、保温層、塗料などを少量巻き込んでいる可能性あり。

図 破碎片の破面のSEM像

－各破碎片の破面観察・組織評価－

塊【A-1】：JAEA大洗研

破碎片の全体SEM像



カーボンテープ上に張り付けた状態で、蒸着処理を実施せずに測定

微細混合相（その1）

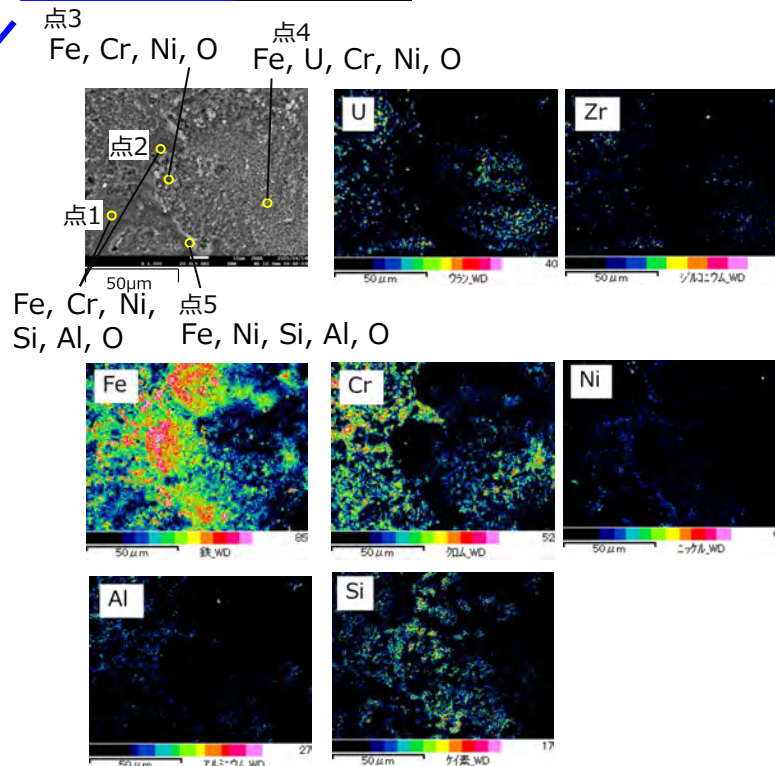


図1 SEM像及び元素マッピング

- ・ 大きさ1～10 μm ほどの微細な相が密集。主にU、Zr、Fe、Cr及びNiが存在（図1）
- ・ Al及びSiもわずかに検出。（図2）

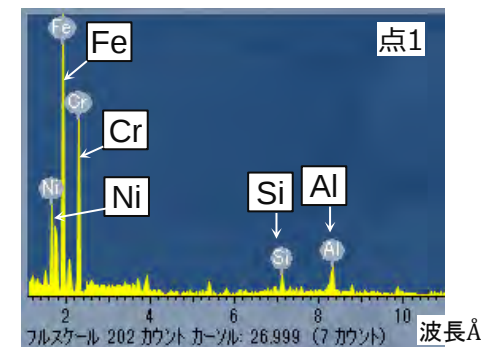
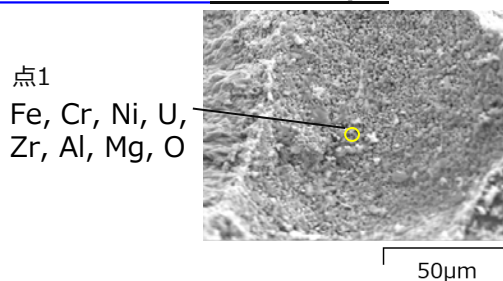
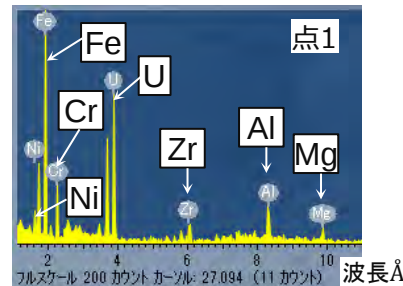


図2 微細混合相のWDX点分析スペクトル

微細混合相（その2）



点1
Fe, Cr, Ni, U,
Zr, Al, Mg, O

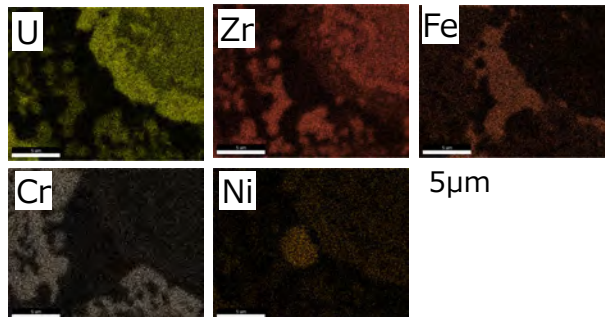
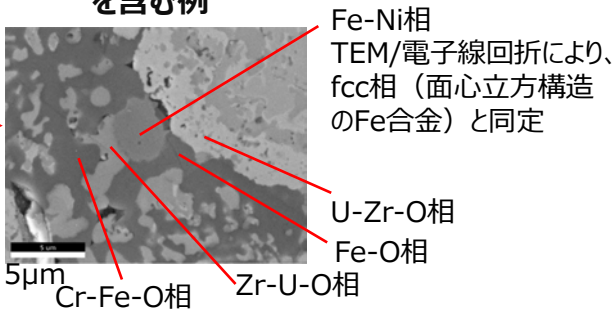


- ・ その1（図1・2）と同様に大きさ1～10 μm ほどの微細な相が密集しており、Mgもわずかに存在。（図3）

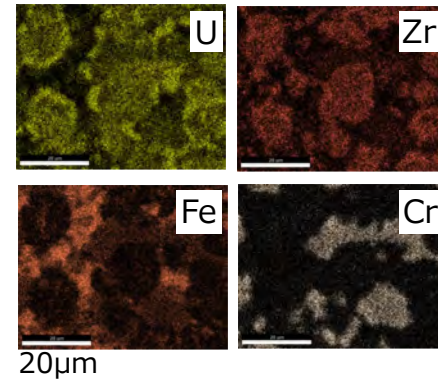
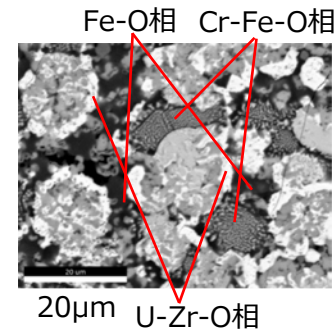
図3 微細混合相のSEM像及びWDX点分析スペクトル

塊[C] : NFD (C)微細混合相

微小なFe-Ni金属相
を含む例



微小な酸化物相の例



- 微細混合相では、小さいサイズ（～数μm）のZr-U-O相、Fe-Ni相に加えて、U-Zr-O相、Cr-Fe-O相、Fe-O相が入り混じって存在。

⇒Zr-U-O相の析出が進みFe及びCr濃度の高い酸化物系の融体となった状態から、各相に分かれて冷却固化したものと推定。

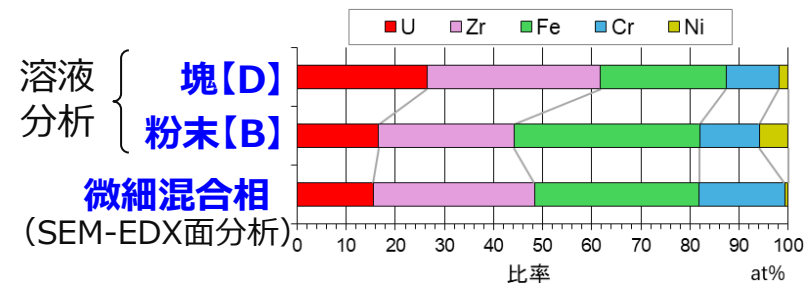
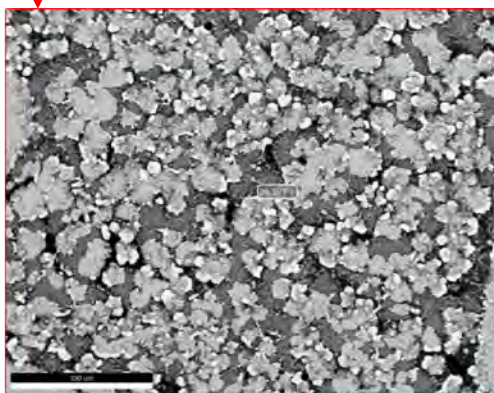


図 主要元素間の比率の比較

- 微細混合相のU:Zr:Fe:Cr:Ni比は、破碎で生じた粉末【B】の組成に近く、破碎により粉末化されやすかった可能性



100μm 図 微細混合相のSEM-EDX分析結果

主要元素	面分析 at%
O	48
Cr	10
Fe	18
Ni	1
Zr	15
U	8

－元素含有率・同位体比・放射能濃度－

◆ NDCにおける溶液分析

○ 元素含有率 → 表1

- 塊【D】をさらに破碎し、得られた粉末約0.1gを、加熱した混酸中で加圧溶解。
- 得られた溶解液中の元素量を、ICP-AES及びICP-MSにより測定。
- 投入重量に対して約5%の不溶解残渣（主にFe-Cr酸化物）が発生したことから、SEM-EDXにより含有元素を評価し、不溶解残渣に含まれる元素量を推定。
- 溶解液中の元素量の分析値と、不溶解残渣の元素量の推定値と合わせて、サンプル中の元素含有率を評価。

○ 同位体比（U） → 表2

- 溶解液中の²³⁴U、²³⁵U、²³⁶U 及び ²³⁸Uの核種量を、ICP-MSにより測定。

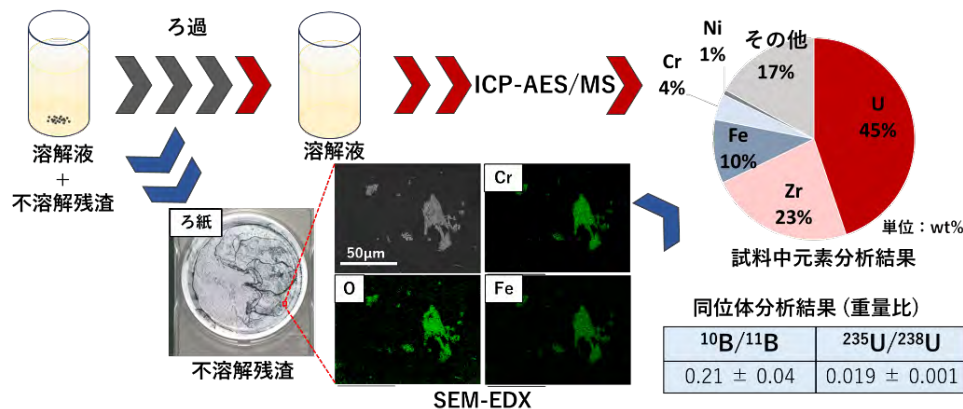


図1 NDCにおける元素含有率評価の流れ

表1 元素含有率の評価結果

k=2とした拡張不確かさ

元素	元素含有率 [mg/100mg試料]
U	45 ± 2
Zr	23 ± 1
Fe	10.2 ± 0.8
Cr	4 ± 1
Ni	0.79 ± 0.03
Si	<0.9
Ca	0.22 ± 0.02
Al	<0.3
Mg	0.098 ± 0.005
B	0.049 ± 0.004
Gd	0.39 ± 0.05
Mo	0.123 ± 0.007
Sb	<0.003
Pb	<0.006
Zn	0.062 ± 0.003
Ti	<0.03
Mn	0.42 ± 0.02
Na	0.087 ± 0.006
Nb	0.090 ± 0.008
Sn	0.033 ± 0.001

表2 U同位体比の分析結果

k=2とした拡張不確かさ

核種	同位体比 ^{※1} [at%]
²³⁴ U/U	0.026 ± 0.002
²³⁵ U/U	1.9 ± 0.1
²³⁶ U/U	0.33 ± 0.02
²³⁸ U/U	97.7 ± 0.2

※1 U = ²³⁴U + ²³⁵U + ²³⁶U + ²³⁸U に対する比