

# X-6ペネ調査装置付着物サンプルの分析結果 (2021年度)

2023年12月25日

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構  
技術研究組合 国際廃炉研究開発機構

※ 分析結果の詳細については、参考文献[1]から[3]を参照。

# 報告内容

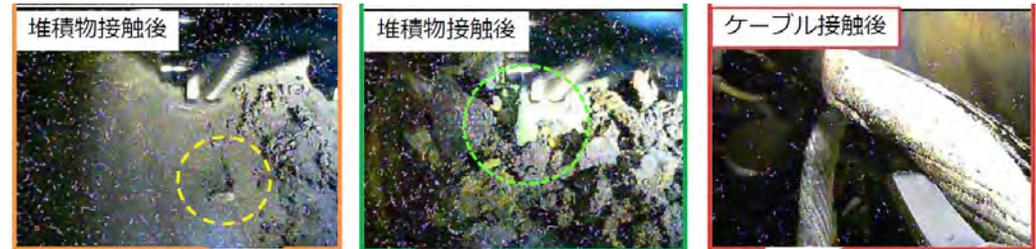
分析対象サンプル .....	p.3
2021年度の分析のねらい .....	p.4
分析方法 .....	p.5
分析結果 .....	p.6
付着物の特徴 .....	p.9
まとめ .....	p.12
補足資料A X-6ペネ調査装置付着物 分析結果の概要 .....	p.13
補足資料B 2号機のサンプル分析結果（他採取箇所との比較） .....	p.26
参考文献 .....	p.35
略語 .....	p.36

# 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<sup>[4]</sup>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



X-6ペネ内堆積物接触調査  
(参考文献[4]に追記)

付着物1

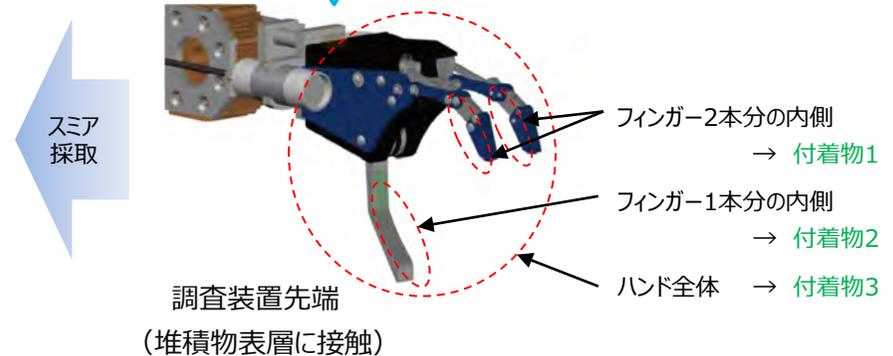
付着物2

付着物3



※ 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：  
 $\gamma$  : 0.006~0.008mSv  
 $\beta$  : 3.0~5.0mSv

# 2021年度の分析のねらい

## X-6ペネ調査装置付着物

PCV内／RPV内での雰囲気条件や経験温度など、事故進展に係る情報を得るための分析を実施。

1) 付着物に含まれる成分の由来を調べる。

⇒ 付着物中の元素・核種を広く把握するため、**化学分析**（酸溶解させてICP-MS分析、放射線分析）による元素・核種の同定とともに、**固体分析**（SEM、TEM）によるマイクロスケールでの元素分布を確認

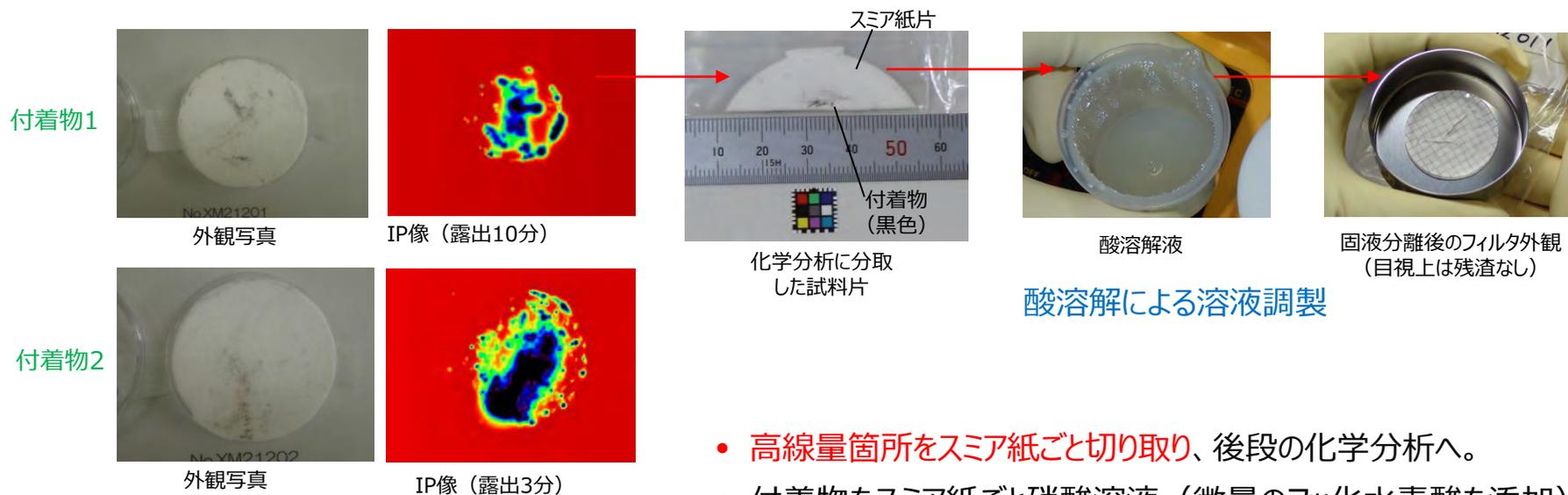
堆積物に含まれ得る材料候補と主要構成元素・核種組合せ（例） [5]

- |                               |                   |                         |                     |
|-------------------------------|-------------------|-------------------------|---------------------|
| ・ 燃料                          | : U、Zr、FP核種       |                         |                     |
| ・ 構造材料（炭素鋼、ステンレス鋼、高Ni鋼など）     |                   | : Fe、Cr、Ni、Mo、…         |                     |
| ・ 計装材料（ケーブル材、被覆材、絶縁体、各種計測器など） |                   | : Cu、Ni、C、Cl、Zn、Pb、Sb、… |                     |
| ・ グリス                         | : Mo、S            | ・ 塗料                    | : Zn、Ti、…           |
| ・ 保温材                         | : Al、Ca、…         | ・ 遮蔽材                   | : Pb                |
| ・ コンクリート                      | : Si、Ca、Al、Mg、C、… | ・ 海水                    | : Na、Mg、Cl、S、… etc. |

2) 微粒子の生成条件（到達温度、雰囲気など）を調べる。

⇒ 燃料由来のウランを含む微粒子（U粒子）の生成条件検討のため、**付着物中のU粒子の詳細分析**（TEM）により、微細構造や構成相を把握する。

# 分析方法 サンプルの分取、溶液調製



外観・IP測定結果 (高線量箇所を確認)

酸溶解による溶液調製

- 高線量箇所をスミア紙ごと切り取り、後段の化学分析へ。
- 付着物をスミア紙ごと硝酸溶液（微量のフッ化水素酸を添加）中で加熱・溶解させ、ICP-MSにより溶解液中の元素・核種を同定。
- 試料の大部分を占めるスミア紙からの溶出量把握のため、スミア紙のみを同条件で溶解させた溶液（操作ブランク試料）も調製し、同様の測定を実施。
- 操作ブランク試料の測定値との比較により、付着物由来の元素・核種を同定。

分析フロー／分析項目の詳細については <補足A1> 参照。

- ◆ 調製した溶液に対し、定性分析として、測定可能な質量数範囲（6～250）での信号強度のスキャンを行い、**付着物由来の元素を同定（下表参照）** ⇒ 定性分析結果の詳細は <補足A2> を参照。
- ◆ 定量分析では、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が天然同位体比よりも有意に高いことを確認（**Uは燃料由来**） ⇒ 定量分析結果の詳細は <補足A3> を参照。

### 定性分析結果：

付着物由来として同定された元素と主要候補材料の組み合わせ

同定された元素	主要候補材料
U、Zr、Pu、Np	燃料、燃料集合体
Fe、Ni	構造材
Mo	構造材、グリス
Zn	塗料、計装材
Al、Ca	保温材
Pb	遮蔽材、計装材
Sb、Cu	計装材

このほか、Mn、Sn、V、Y、Gd、Sr、Pr、Ag、Nd、Pd、Tc、Rh、Bi、As、Sm、Cdを同定

燃料成分、構造材、塗料、計装材等に含まれる元素を検出

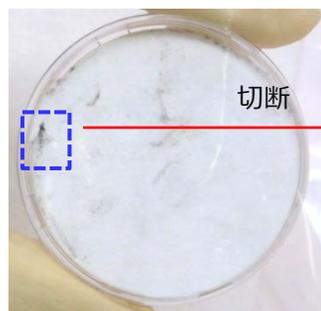
(参考)  $\gamma$ 線計測においては、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{106}\text{Rh}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ 、 $^{154}\text{Eu}$ 、 $^{155}\text{Eu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ を検出

# 分析結果 ミクロスケールでの元素分布

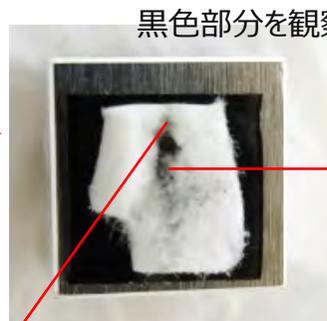
## SEM観察

詳細は<補足A4>参照。

付着物3

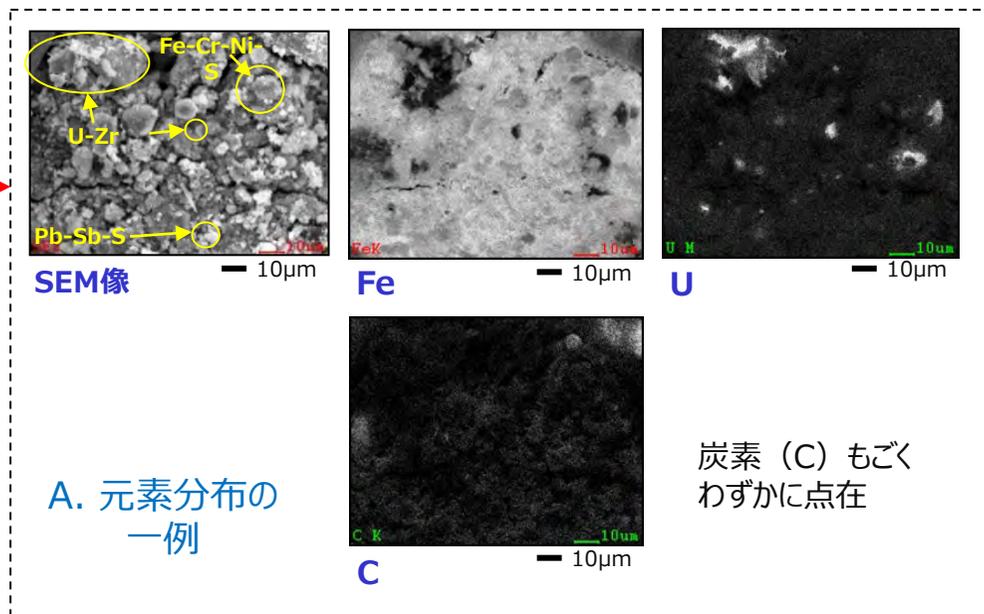


外観写真



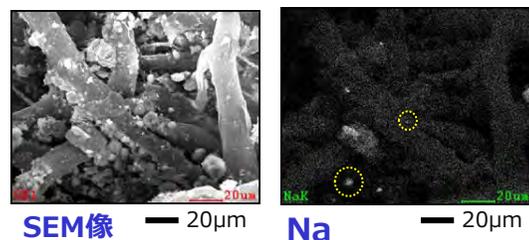
SEM観察用試料

黒色部分を観察



A. 元素分布の一例

炭素 (C) もごくわずかに点在



SEM像

Na



Mg

Na、Mgを含む粒子もごくわずかに点在

B. その他、様々な元素を含む粒子の一例

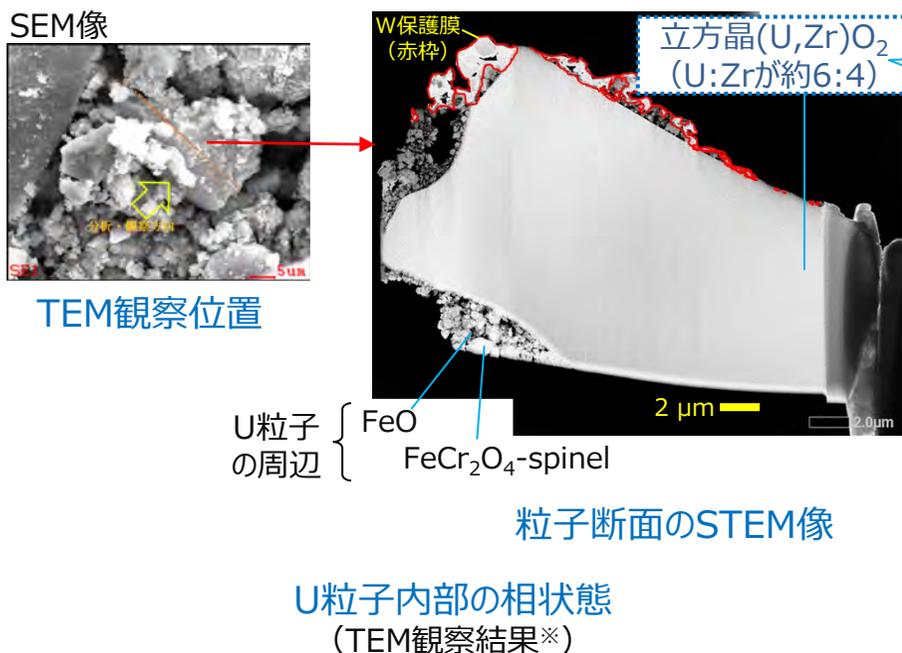
- ✓ スミア繊維上に**大量のFe、O**が存在。その中に、**大きさ数百nm ~ 数十µmのU及びZrを含む粒子**が点在 (上図A.参照)
- ✓ このほか、C、Na、Mg、Al、Si、S、Cl、Ca、Ti、Cr、Ni、Cu、Zn、Sn、Pb を含む粒子がわずかに点在 (例：上図A、左図B.)

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

# 分析結果 U粒子の生成過程

## TEM観察

### ◆ 例. 幅約20 $\mu\text{m}$ の(U,Zr)O<sub>2</sub>粒子



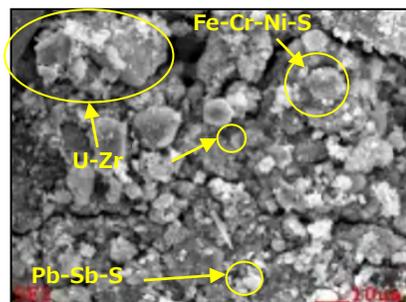
- ✓ 約2800K以上で溶融を経たものと推定。
- ✓ 約1900K以上の高温域でのみ安定な結晶構造・組成を有しており、相分離が生じない程度の速い冷却過程※を経て生成したものと推定。 ※冷却水との接触、溶融物の飛散・微粒子化など

RPV内／PCV内で生成したU粒子が、X-6ペネに運ばれてきたものと推定

※ その他の領域のTEM分析結果は <補足A5> を参照 (2021年度は計4領域実施)

# 付着物の特徴

## X-6ペネ調査装置付着物



SEM像

図1 付着物粒子

SEM観察：<補足A4> 参照

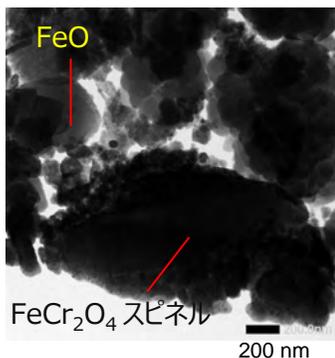


図2 Fe系酸化物の断面

TEM観察：<補足A5> 参照

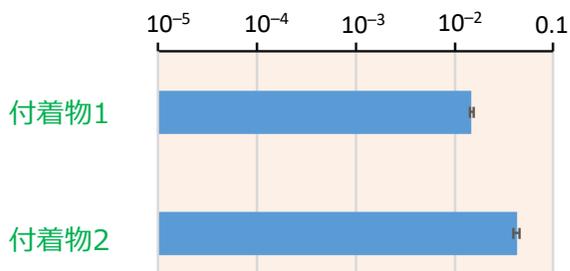


図3 U/Fe原子比

ICP-MS：<補足A3> 参照

### • 主にFe酸化物の微粒子より構成

- ✓ 検出元素のうち、Feが最も高い信号強度（詳細は<補足A2> 参照）
- ✓ Feが広く分布し、大きさ 十数 $\mu\text{m}$  以下の粒子として存在（図1参照）
- ✓ Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>、FeO、FeCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>を検出（図2参照）  
⇒ 鋼材の腐食生成物と推定

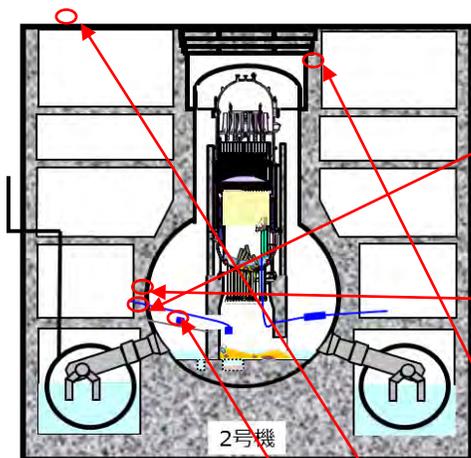
### • 燃料由来のU、Zrを含む粒子が混入

- ✓ Feに対し約10<sup>-2</sup>～10<sup>-1</sup>オーダーの原子比で存在（図3参照）
- ✓ 大きさ数百nm～数十 $\mu\text{m}$ の(U,Zr)O<sub>2</sub>粒子として点在（図1参照）

### • そのほか、塗料（Zn）、遮蔽材（Pb）、ケーブル・被覆材（Cu、Sb等）等由来の成分も混入と推定

# 付着物の特徴

# 他サンプルとの比較



サンプル取得箇所  
(2号機)

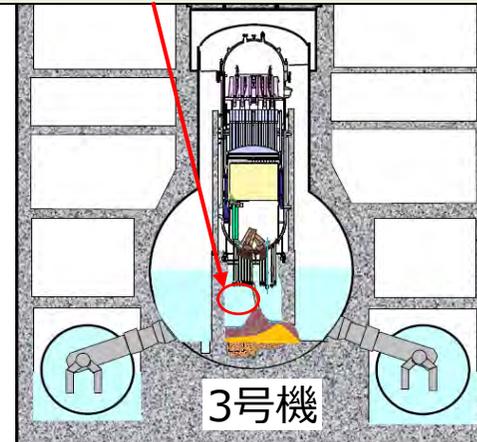
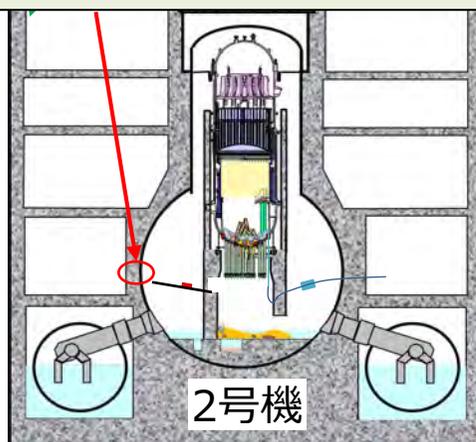
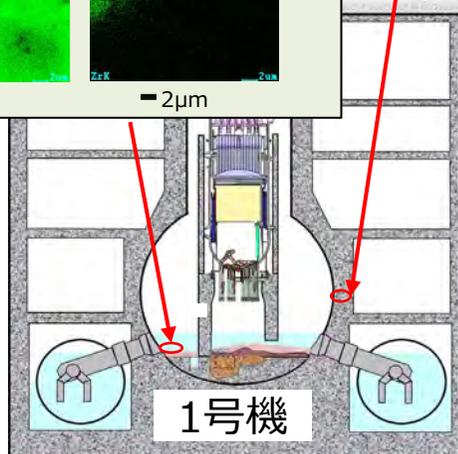
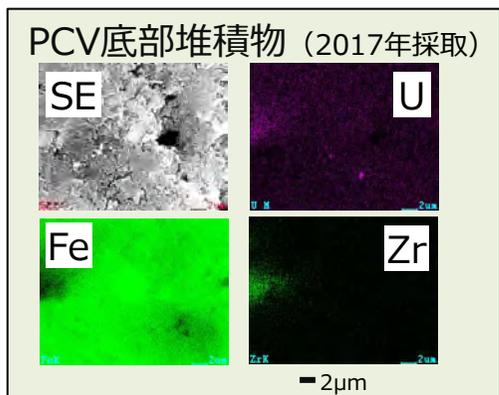
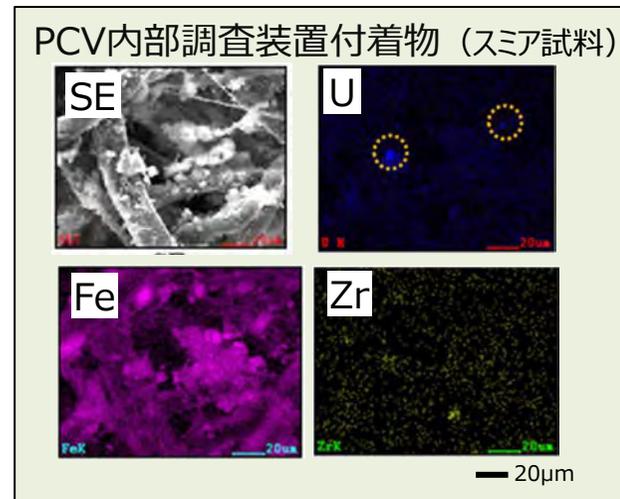
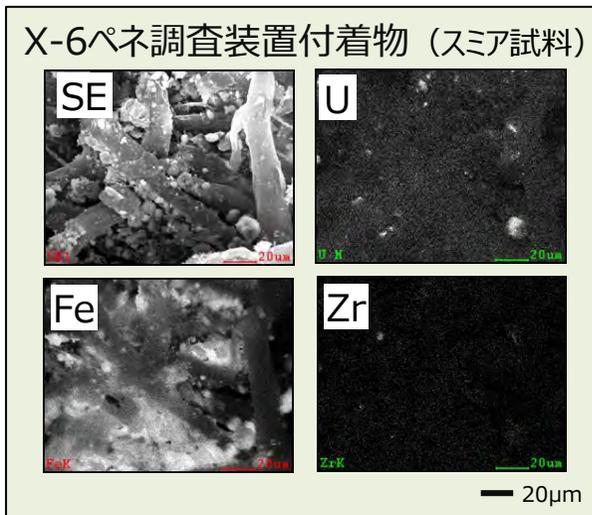
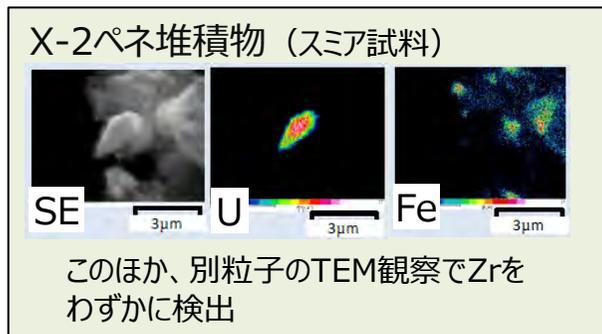
検出元素に係る特徴 (Feが主成分のひとつであり、燃料由来のU、Zrが混在) は採取箇所概ね共通

詳細は <補足B1> 参照

サンプル	分析結果 (ICP-MS、SEM) を踏まえたサンプルの特徴 (推定)
X-6ペネ調査装置付着物 (スミア) 	<ul style="list-style-type: none"> <li>主にFe酸化物の粒子からなる。</li> <li>燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> <li>そのほか、塗料 (Zn)、遮蔽材 (Pb)、ケーブル・被覆材 (Cu、Sb等) 等由来の成分も混入と推定。</li> </ul>
X-53ペネ (フランジ面付着物) 	<ul style="list-style-type: none"> <li>主にFe酸化物の粒子からなる。</li> <li>燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> <li>そのほか、塗料 (Zn)、遮蔽材 (Pb)、ケーブル・被覆材 (Cu、Sb等)、海水 (Na、Mg) 等由来の成分も混入と推定。</li> <li>コンクリート成分 (Si) も混入の可能性あり。</li> </ul>
ウェル差圧調整ライン内堆積物 	<ul style="list-style-type: none"> <li>主にFe酸化物の粒子や破片からなる。</li> <li>燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> </ul>
FHM遠隔操作室スミア 	<ul style="list-style-type: none"> <li>FeやAlを含む粒子上に、燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> </ul>
参考) 格納容器内部調査装置付着物 (制御棒交換レール領域アクセス時) 	<ul style="list-style-type: none"> <li>Feを含む粒子上に、燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> </ul>

# 参考) 1~3号機での比較 (SEM観察結果)

Feを含む粒子に加えて、燃料由来のUやZrを含む粒子が混在  
(このほかZn、Al、Si、Ca等を含む粒子を検出)



# まとめ

◆ X-6ペネ内堆積物表層に含まれる成分の由来やU粒子の生成過程についての知見を得た。

1) 付着物は鋼材の腐食生成物を主成分とし、その中に燃料、鋼材（ステンレス鋼含む）、塗料、計装材料（ケーブルとその被覆材、検出機器等）由来の成分が混入と推定。

- PCV側からX-6ペネ内部に燃料由来成分、鋼材由来成分、塗料由来成分などの混入があったことを示唆。
- 検出元素の大まかな特徴（Feが主成分のひとつであり、U、Zrが混在）は、2号機の他の採取箇所でのサンプルと類似。

2) 付着物に含まれるU粒子は、高温側で安定な立方晶(U,Zr)O<sub>2</sub>相を有しており、約1900Kを超える温度から急冷されたと推定。

- PCV内部またはRPV内部での温度条件を反映したものと考えられる。



◆ 堆積物表層に存在する成分に関する知見を得るとともに、燃料デブリ生成に影響するPCV内またはRPV内条件の一端を解明できた。

## 補足資料A X-6ペネ調査装置付着物 分析結果の概要

<補足A1> 分析フロー／分析項目

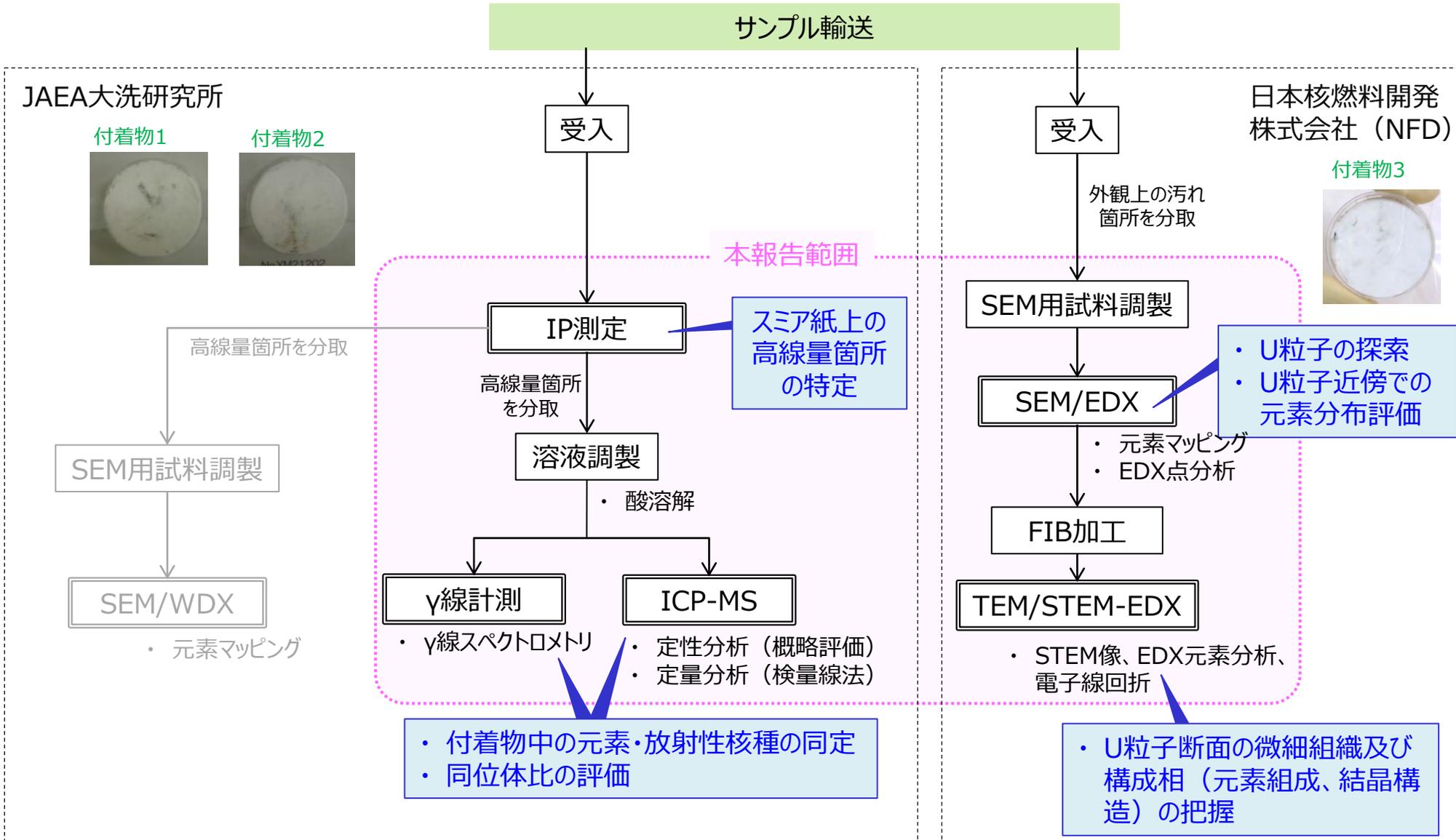
<補足A2> ICP-MS定性分析結果

<補足A3> ICP-MS定量分析結果

<補足A4> SEM/EDXによる元素分析結果

<補足A5> TEM/STEM-EDXによるU粒子の詳細分析結果

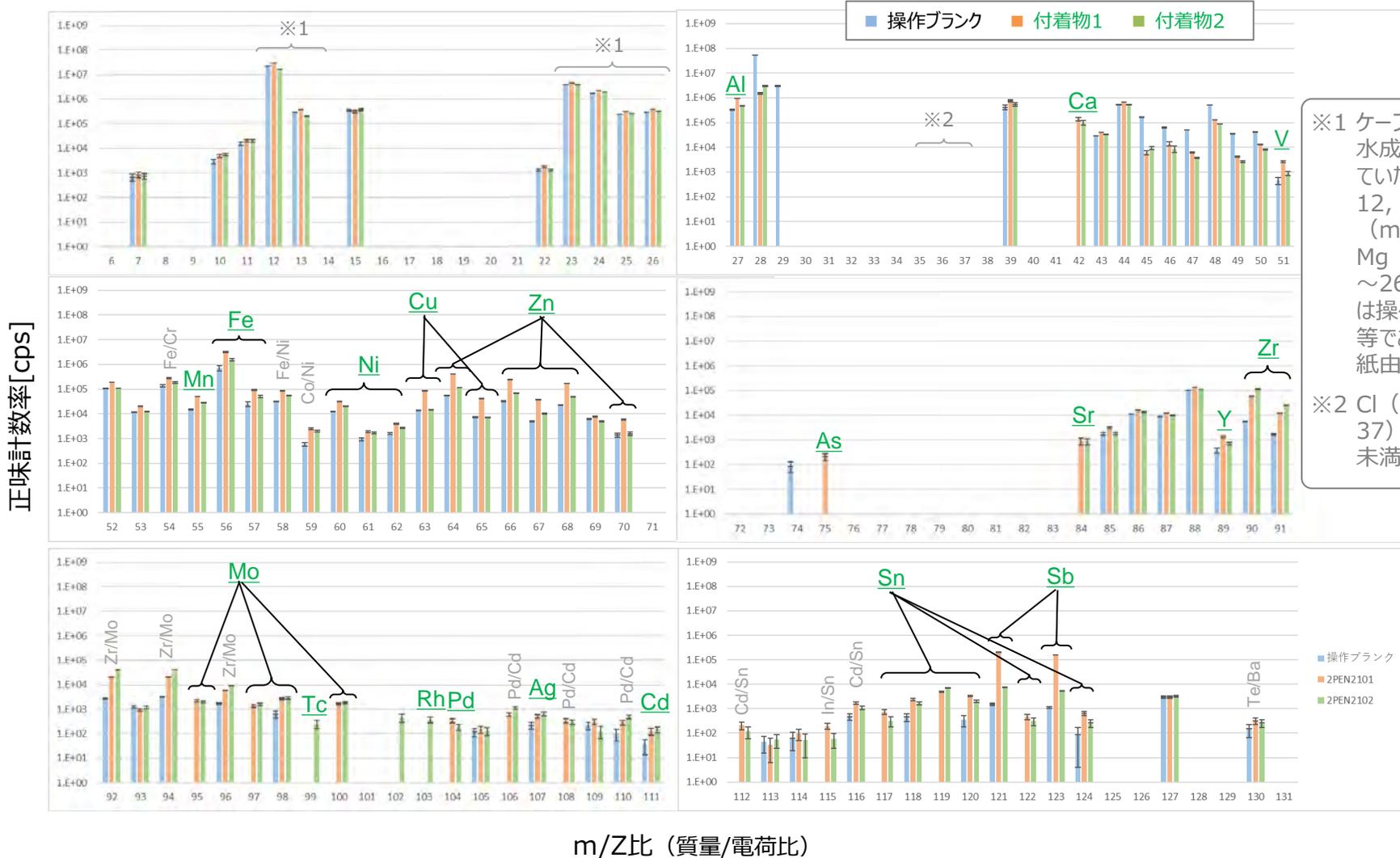
# <補足A1> 分析フロー／分析項目



# <補足A2> ICP-MS定性分析結果 (1/2)

## 質量数チャート及び元素同定結果 (m/Z=6~131)

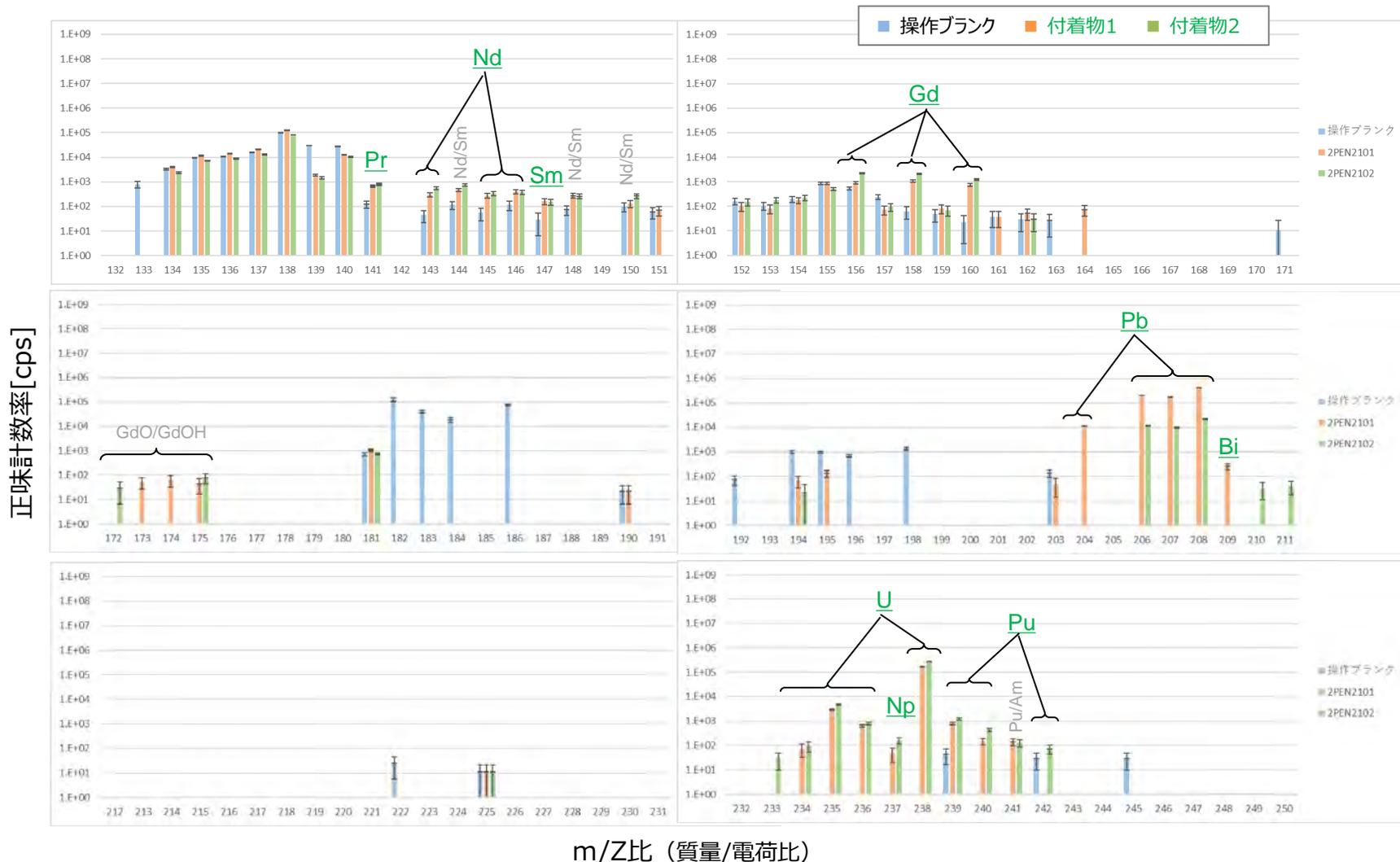
- 1質量数あたりの測定時間は0.09 s
- エラーは計数誤差を推定 (カウント数の平方根から) して表示。
- 計数率が検出限界未満の場合は空欄表示。
- 同重体や妨害イオンの影響が排除できない質量数については、それらを並列表示 (例 Fe/Ni など)



# <補足A2> ICP-MS定性分析結果 (2/2)

## 質量数チャート及び元素同定結果 (m/Z=132~250)

- 1質量数あたりの測定時間は0.09 s
- エラーバーは計数誤差を推定 (カウント数の平方根から) して表示。
- 計数率が検出限界未満の場合は空欄表示。
- 同重体や妨害イオンの影響が排除できない質量数については、それらを並列表示 (例 Fe/Ni など)



# <補足A3> ICP-MS定量分析結果 (1/3)

## ◆ 核種重量

定量分析対象とした核種は表A3-1の通り。

⇒ 下記着目元素の同位体のうち、同重体や分子イオンによる影響のない核種を選定。

【着目元素】

- U、Zr：燃料
- Fe、Cr、Ni：RPV内部の構造材
- Mo、Ag、Cs、Nd：FP（Moについては構造材やグリスも想定）
- Li、B：中性子吸収材（Liは $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ による生成を想定していたもの）

表A3-1 溶解液中の核種重量測定結果

試料	U-234 [ng]	U-235 [ng]	U-236 [ng]	U-238 [ng]	Zr-90 [ng]	Zr-91 [ng]
付着物1	2E-01 ± 2E-01	1.49E+01 ± 2.E-01	2.7E+00 ± 2E-01	7.45E+02 ± 6E+00	1.38E+02 ± 1E+00	3.4E+01 ± 3E+00
付着物2	4E-01 ± 2E-01	2.56E+01 ± 2E-01	4.5E+00 ± 2E-01	1.33E+03 ± 1E+01	2.75E+02 ± 1E+00	6.3E+01 ± 3E+00

試料	Fe-56 [ng]	Fe-57 [ng]	Cr-52 [ng]	Cr-53 [ng]	Ni-60 [ng]	Ni-61 [ng]	Ni-62 [ng]
付着物1	1.10E+04 ± 3E+02	2.4E+02 ± 1E+01	5E+02 ± 1E+02	5.1E+01 ± 2E+00	1.08E+02 ± 1E+00	5.3E+00 ± 8E-01	1.35E+01 ± 8E-01
付着物2	6.9E+03 ± 3E+02	1.4E+02 ± 1E+01	<LOQ	<LOQ	3.98E+01 ± 8E-01	1.1E+00 ± 8E-01	3.7E+00 ± 8E-01

試料	Mo-95 [ng]	Mo-97 [ng]	Mo-98 [ng]	Ag-107 [ng]	Ag-109 [ng]	Cs-133 [ng]
付着物1	4.3E+00 ± 5E-01	3.17E+00 ± 7E-02	7.2E+00 ± 2E-01	<LOQ	<LOQ	<LOQ
付着物2	5.4E+00 ± 5E-01	3.93E+00 ± 7E-02	7.7E+00 ± 2E-01	<LOQ	<LOQ	<LOQ

試料	Nd-143 [ng]	Nd-145 [ng]	Nd-146 [ng]	Li-6 [ng]	Li-7 [ng]	B-10 [ng]	B-11 [ng]
付着物1	5.7E-01 ± 9E-02	4E-01 ± 3.E-01	9E-01 ± 1E-01	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
付着物2	1.12E+00 ± 9E-02	5E-01 ± 3E-01	9E-01 ± 1E-01	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

注) 溶解液中（残渣除く）に含まれる各核種の重量を表す。（操作ブランクの値を差し引いた値）  
 検量線不確かさを計算し、未知試料から操作ブランクを差し引きによる合成不確かさを1σで表示した。  
 <LOQ：定量下限（Limit of Quantification）未満

## <補足A3> ICP-MS定量分析結果 (2/3)

### ◆ 同位体比

核種重量（表A3-1：前頁参照）の重量比として算出。

表A3-2 定量分析対象核種の同位体比

試料	Cr	Fe	Ni		Zr
	(Cr-53/Cr-52)	(Fe-57/Fe-56)	(Ni-61/Ni-60)	(Ni-62/Ni-60)	(Zr-91/Zr-90)
付着物1	0.11±0.06	0.022±0.002	0.05±0.02	0.13±0.01	0.25±0.02
付着物2	-	0.021±0.004	0.03±0.04	0.09±0.04	0.23±0.01
参考：天然同位体比 <sup>※1</sup>	0.116	0.0235	0.044	0.143	0.221

試料	Mo		Nd		U
	(Mo-97/Mo-95)	(Mo-98/Mo-95)	(Nd-143/Nd-146)	(Nd-145/Nd-146)	(U-235/U-238)
付着物1	0.7±0.2	1.7±0.4	0.6±0.3	0.4±0.6	0.0200±0.0006
付着物2	0.7±0.1	1.4±0.2	1.3±0.4	0.5±0.6	0.0193±0.0003
参考：天然同位体比 <sup>※1</sup>	0.62	1.52	0.71	0.48	0.0072
参考：2号機炉心平均 <sup>※2</sup>	1.0	1.06	1.3	1.0	0.0191

注) 同位体比の分子および分母の核種重量における検量線不確かさを計算し、重量比の算出による合成不確かさを2σで表示した。  
 - はいずれの核種も <LOQ のため重量比の算出を行わなかった。

※1 『日本化学会 原子量専門委員会「原子量表（2022）」について』に記載の同位体存在比をもとに算出した。  
[https://www.chemistry.or.jp/know/atom\\_2022.pdf](https://www.chemistry.or.jp/know/atom_2022.pdf)

※2 『福島第一原子力発電所の燃料組成評価』（JAEA-Data/Code 2012-018）に記載のORIGEN計算値（冷却期間：10年の値）から比を算出した。

# <補足A3> ICP-MS定量分析結果 (3/3)

## ◆ 元素比

核種重量（表A3-1：前々頁参照）を元素重量に換算して、元素比を算出。

【核種重量から元素重量への換算方法】

- U：U-234、U-235、U-236、U-238の核種重量の合計として算出。
- Zr、Fe、Cr、Ni、Mo：それぞれ、Zr-90、Fe-56、Cr-52、Ni-60、Mo-98の核種重量を、それぞれの核種の天然同位体存在度で割り戻して算出。

表A3-3 元素比の評価結果（燃料由来元素、構造材由来元素）

単位：重量比

試料	Zr/U	U/Fe	Zr/Fe	Cr/Fe	Ni/Fe	Mo/Fe
付着物1	0.353 ± 0.007	0.064 ± 0.003	0.022 ± 0.001	0.05 ± 0.03	0.034 ± 0.002	0.0025 ± 0.0002
付着物2	0.394 ± 0.006	0.18 ± 0.02	0.071 ± 0.004	-	0.020 ± 0.002	0.0042 ± 0.0004

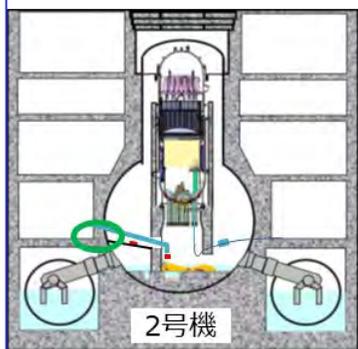
単位：原子比

試料	Zr/U	U/Fe	Zr/Fe	Cr/Fe	Ni/Fe	Mo/Fe
付着物1	0.92 ± 0.02	0.015 ± 0.001	0.014 ± 0.001	0.05 ± 0.03	0.033 ± 0.002	0.0014 ± 0.0001
付着物2	1.03 ± 0.02	0.043 ± 0.004	0.044 ± 0.004	-	0.019 ± 0.002	0.0025 ± 0.0002

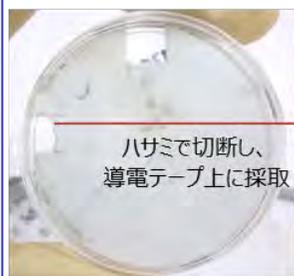
注) 誤差は、換算に用いた核種重量に付随する検量線の標準不確かさを合成し、2σで表示した。  
- はいずれの核種も <LOQ のため元素重量への換算を行わなかった。

# <補足A4> SEM/EDXによる元素分析結果 (1/2)

## ◆ TEM観察対象の選定



付着物3



ハサミで切断し、  
導電テープ上に採取

付着物 (スミア) 外観  
SEM試料採取後



SEM観察試料  
<2PEN2103-1>  
(⇒SEM観察を実施)

### SEM観察用試料の採取

## ◆ FE-SEM/EDX

• FE-SEM/EDXの結果から着目領域23ヶ所\*を抽出し、**TEM分析対象**として以下を選定

- 高酸素濃度U-Zrとして、領域6、14
- 低酸素濃度U-Zrとして、領域5、12

} 計4箇所

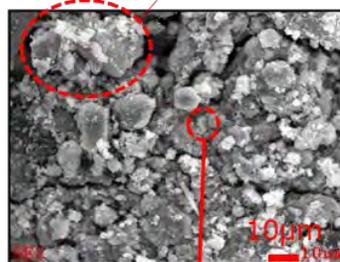


詳細は  
<補足A5>  
参照

⇒ U-Zr-O系または $UO_2$ - $ZrO_2$ 系での相状態の解釈から、粒子の到達温度や冷却過程の理解に資する。

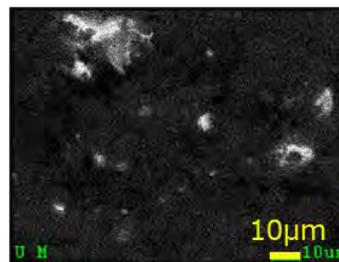
- \* • **U**濃縮部分に着目：14箇所  
(UとZrの両方を含むもの13領域、Zrをほとんど含まないもの1領域)
- **Zr**濃縮個所に着目：4箇所
- 特異元素濃縮部分：5箇所 (**Pb-S**、**Ti**、**Cu-Zn**各1箇所、**Ni**;2箇所)

領域6



SEM像

領域7



元素分布：U

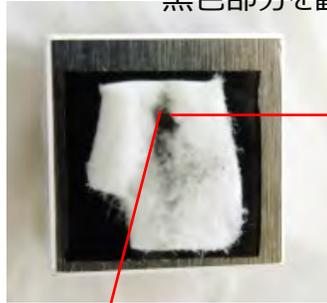
### U粒子の探索結果の一例

# <補足A4> SEM/EDXによる元素分析結果 (2/2)

◆ Fe、U、Zrのほか、わずかに点在していた元素のマッピング結果

付着物3

黒色部分を観察

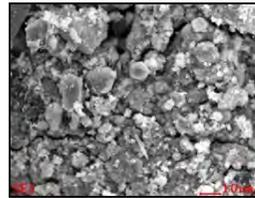


SEM観察用試料

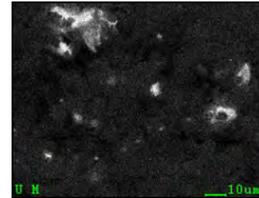
領域06~09

燃料成分 (U, Zr)

その他マイナー元素



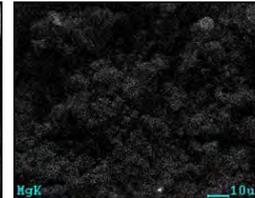
SEM像 10µm



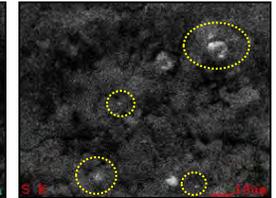
U 10µm



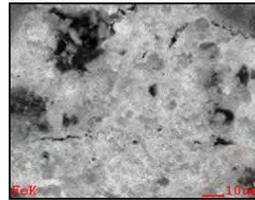
C 10µm



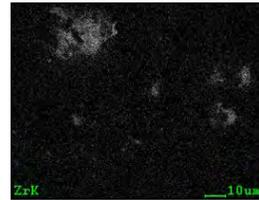
Mg 10µm



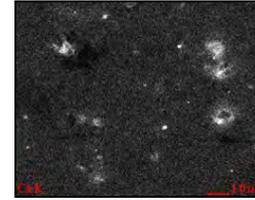
S 10µm



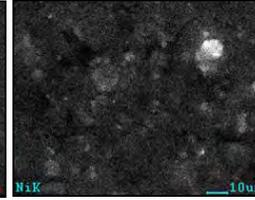
Fe 10µm



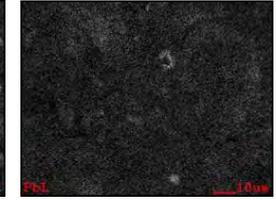
Zr 10µm



Cr 10µm



Ni 10µm



Pb 10µm

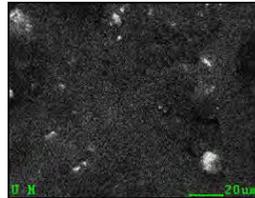
領域19~23

燃料成分 (U, Zr)

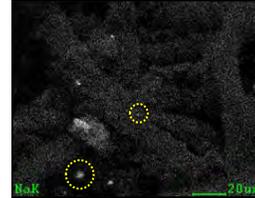
その他マイナー元素



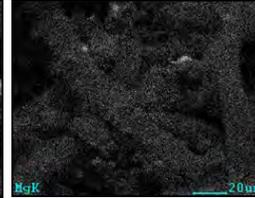
SEM像 20µm



U 20µm



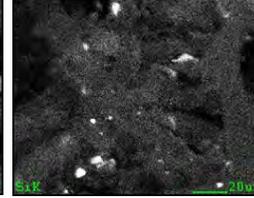
Na 20µm



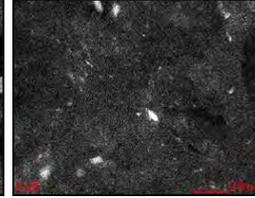
Mg 20µm



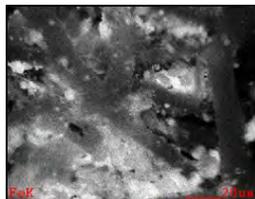
Al 20µm



Si 20µm



Ca 20µm



Fe 20µm



Zr 20µm



Zn 20µm



Cu 20µm



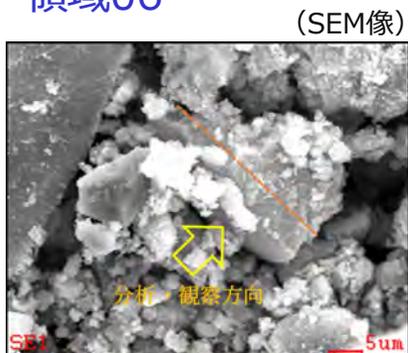
Cl 20µm



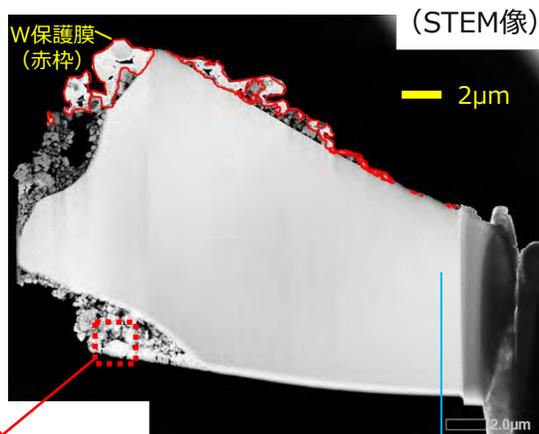
Ti 20µm

# <補足A5> TEM/STEM-EDXによるU粒子の詳細分析結果 (1/4)

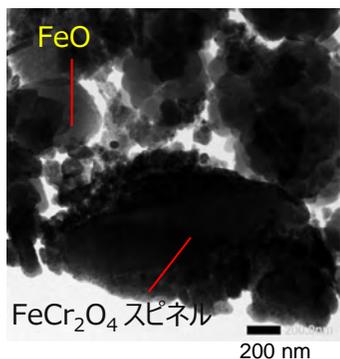
## 領域06



TEM観察用試料の  
採取位置・観察方向



U粒子：  
立方晶(U,Zr)O<sub>2</sub>  
(U:Zr~6:4)



U粒子の周辺

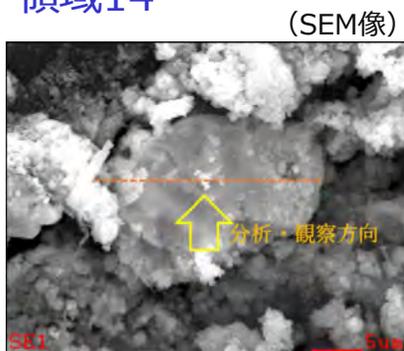
粒子断面の微細組織

- ✓ 幅約20μmの不定形粒子
- ✓ U粒子断面には、UとZrが概ね均一に分布しており、立方晶(U,Zr)O<sub>2</sub> (U:Zr原子比が約6:4)を検出
- ✓ U粒子の周辺には、Fe、Cr、Niを含む微粒子が密集 (FeO、FeCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>を検出)

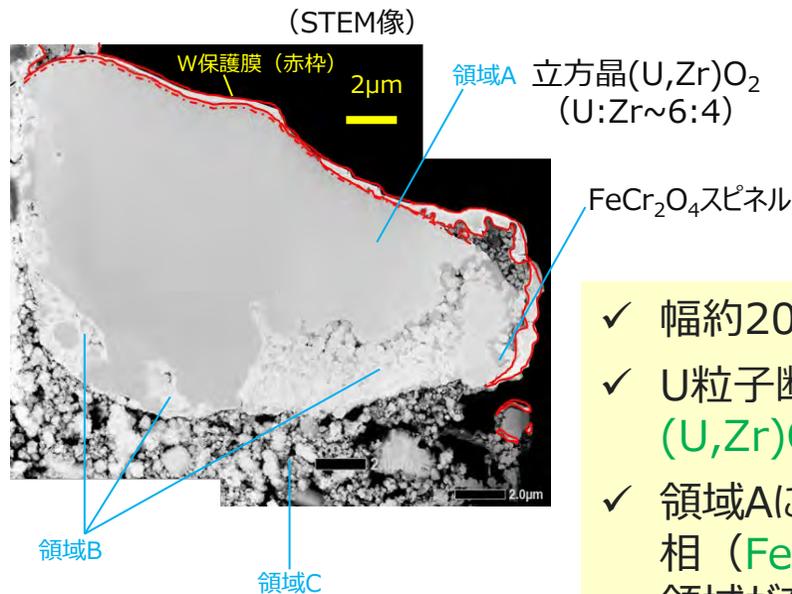
- (U,Zr)O<sub>2</sub>相は約1900K以上の高温域でのみ安定な組成を有しており、熔融物の飛散や冷却水との接触などの急冷過程を経て生成したものと推定。

# <補足A5> TEM/STEM-EDXによるU粒子の詳細分析結果 (2/4)

## 領域14



TEM観察用試料の  
採取位置・観察方向



粒子断面の微細組織

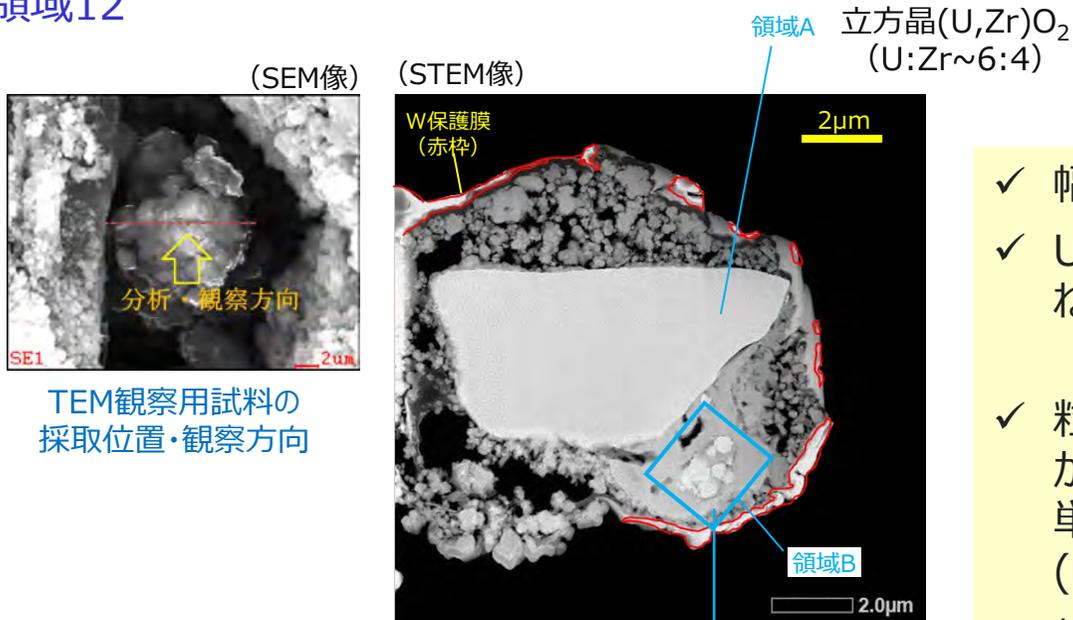
- ✓ 幅約20μmの不定形粒子
- ✓ U粒子断面の大部分 (領域A) では立方晶 (U,Zr)O<sub>2</sub> (U:Zr原子比が約6:4) を検出
- ✓ 領域Aに隣接して (領域B)、Fe/Crを含む相 (FeCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>含む) とU/Zrを含む相の混合領域が存在
- ✓ U粒子の周辺 (領域C) には、Fe、Niを含む微粒子 (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>含む)、Si-Fe酸化物※、Ca水酸化物／炭酸塩※が密集

※EDX点分析結果のみに基づく推定

- 領域BはU-Zrを含む相とFe-Cr相が混在しており、これらの成分を含む酸化物融体 (U-Zr-Fe-Cr-O系) が凝固して生成した可能性あり。

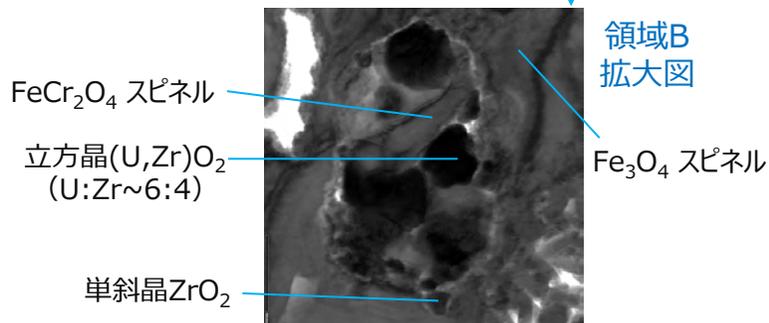
# <補足A5> TEM/STEM-EDXによるU粒子の詳細分析結果 (3/4)

## 領域12



TEM観察用試料の  
採取位置・観察方向

粒子断面の微細組織

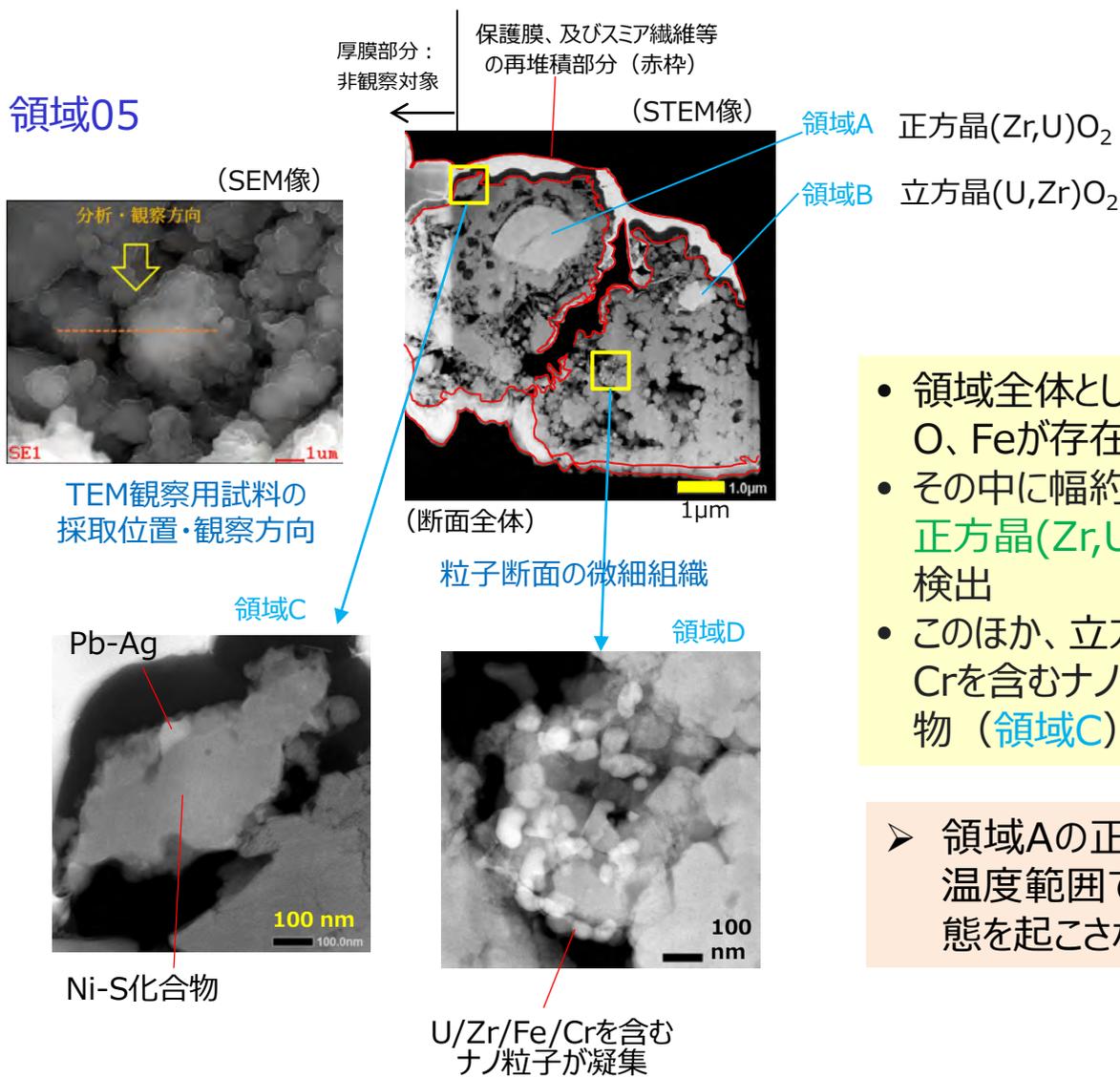


(上図と明暗反転)

- ✓ 幅約10µmの不定形粒子
- ✓ U粒子断面の大部分（領域A）は、UとZrが概ね均一に分布しており、立方晶(U,Zr)O<sub>2</sub>（U:Zr原子比が約6:4）を検出
- ✓ 粒子右下部（領域B）では、Fe-O（Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>）からなる領域中に、FeCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、直径約100nmの単斜晶ZrO<sub>2</sub>、大きさ数百nmの立方晶(U,Zr)O<sub>2</sub>（U:Zr~6:4）が混在
- ✓ 粒子周辺（外周部）は、Fe、Cr、Niを含む微粒子が密集

➤ (U,Zr)O<sub>2</sub>相は約1900K以上の高温域でのみ安定な組成を有しており、溶融物の飛散や冷却水との接触などの急冷過程を経て生成したものと推定。

# <補足A5> TEM/STEM-EDXによるU粒子の詳細分析結果 (4/4)



- 領域全体としては、数十nm～数μmの微粒子（主にO、Feが存在）が密集
- その中に幅約2μmの不定形粒子が存在（領域A）。  
正方晶(Zr,U)O<sub>2</sub>相（U:Zr原子比が1:9から2:8）を検出
- このほか、立方晶(U,Zr)O<sub>2</sub>相（領域B）、U/Zr/Fe/Crを含むナノ粒子の凝集箇所（領域D）、Ni-S化合物（領域C）が存在

➤ 領域Aの正方晶(Zr,U)O<sub>2</sub>相は約1600～2400Kの温度範囲で安定であり、正方晶から単斜晶への相変態を起こさない程度に速い冷却過程を経たものと推定。

## 補足資料B 2号機のサンプル分析結果（他採取箇所との比較）

<補足B1> サンプル分析結果の比較

<補足B2> サンプル採取時の状況

# <補足B1> サンプル分析結果の比較

## ◆ 各サンプルの取得箇所

PCV貫通部 (X-53ペネ)  
(2021年度取得)



PCV側のフランジ表面の付着物を採取

FHM遠隔操作室スミア  
(2022年度取得)

操作室内、屋上からスミア採取



ウェル差圧調整ライン内  
堆積物 (2021年度取得)



配管内部の堆積物を採取

X-6ペネ調査装置付着物  
(2020年度取得)

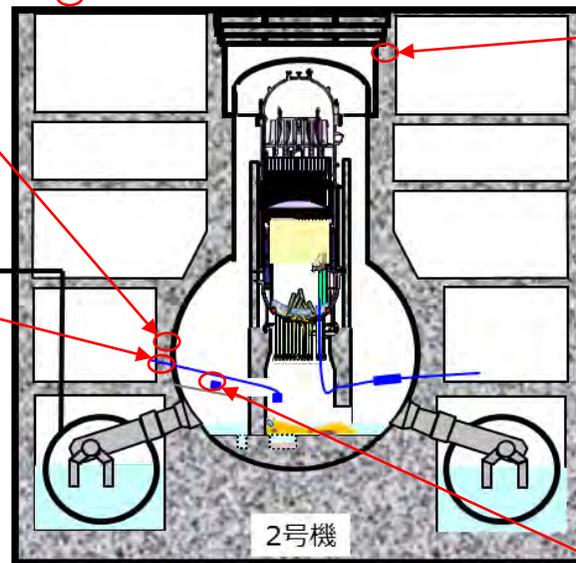


調査装置先端  
表面からスミア  
採取

参考) 格納容器内部調査装置付着物  
(制御棒交換レール領域アクセス時)



調査装置が通過  
した配管下部か  
ら拭き取り採取



2号機サンプル取得箇所

詳細は <補足B2> 参照

# <補足B1> サンプル分析結果の比較

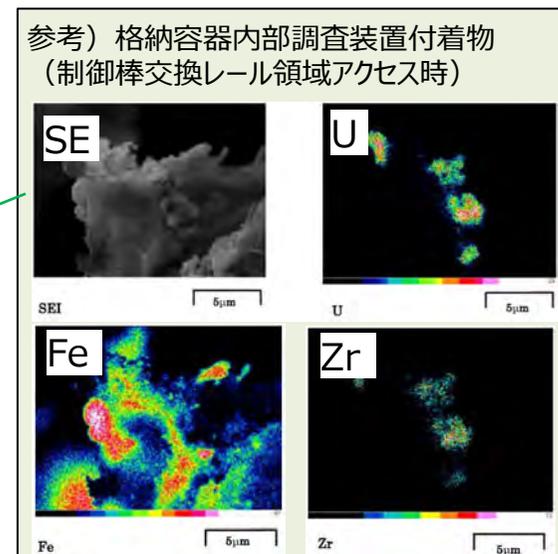
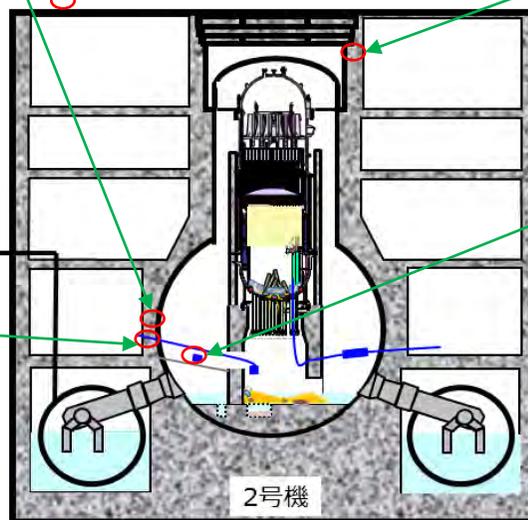
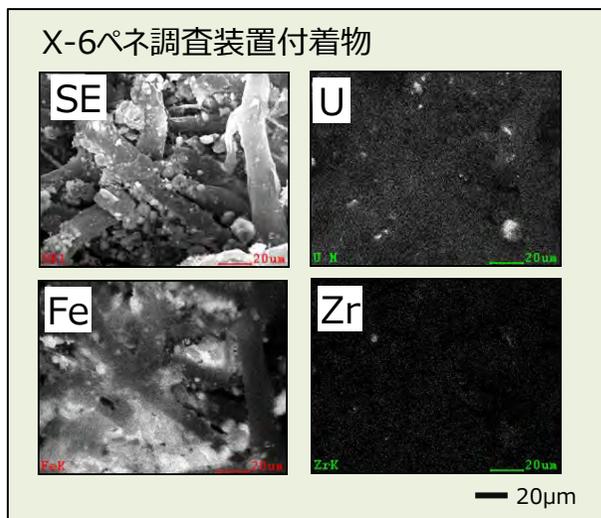
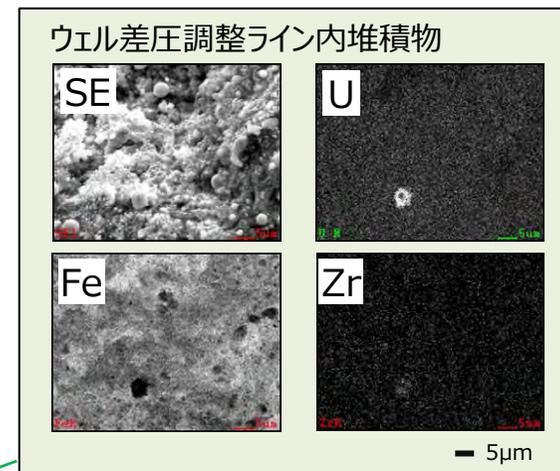
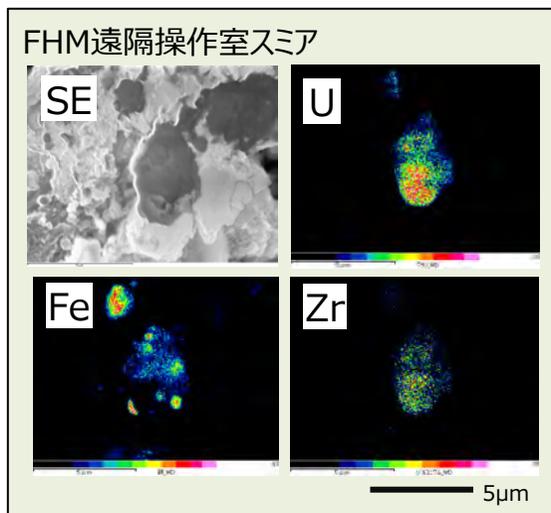
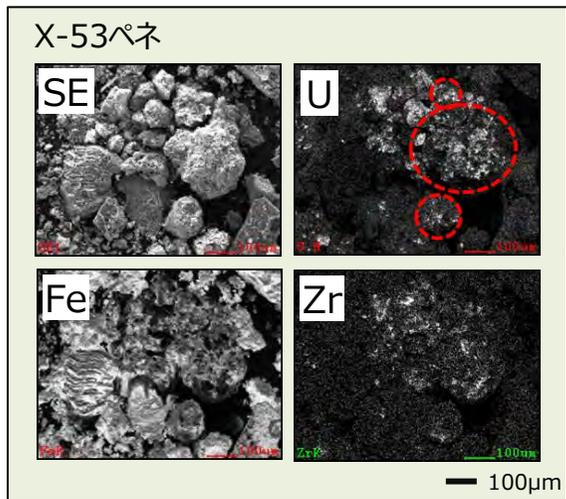
サンプル	元素の検出状況 (ICP-MS定性分析結果)		マイクロ元素分布 (SEM) も踏まえた サンプルの特徴 (推定)
	主成分	その他の主な元素※	
X-6ペネ調査装置 付着物 	Fe	<ul style="list-style-type: none"> <li><u>Pb</u>, <u>Zn</u>, <u>Al</u>, <u>Sb</u>, <u>U</u>, <u>Cu</u>, <u>Zr</u>, <u>Ni</u> (Feに対し約<math>10^{-2}</math>~<math>10^{-1}</math>のオーダー)</li> <li><u>Mo</u>, <u>Sn</u> (Feに対し約<math>10^{-3}</math>~<math>10^{-2}</math>のオーダー)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>主にFe酸化物の粒子からなる。</li> <li>燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> <li>そのほか、塗料 (Zn)、遮蔽材 (Pb)、ケーブル・被覆材 (Cu、Sb等) 等由来の成分も混入と推定。</li> </ul>
X-53ペネ 	Fe、Si (同程度 のオー ダー)	<ul style="list-style-type: none"> <li>C、Na、<u>U</u>、Mg、<u>Zr</u>、Ca (Feに対し約<math>10^{-2}</math>のオーダー)</li> <li><u>Mo</u>、<u>Ni</u>、<u>Cu</u>、<u>Sn</u>、<u>Pb</u>、Cr、<u>Al</u>、<u>Zn</u>、<u>Sb</u> (Feに対し約<math>10^{-4}</math>~<math>10^{-3}</math>のオーダー)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>主にFe酸化物の粒子からなる。</li> <li>燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> <li>そのほか、塗料 (Zn)、遮蔽材 (Pb)、ケーブル・被覆材 (Cu、Sb等)、海水 (Na、Mg) 等由来の成分も混入と推定。</li> <li>コンクリート成分 (Si) も混入の可能性あり。</li> </ul>
ウェル差圧調整ライン内 堆積物 	Fe	<ul style="list-style-type: none"> <li><u>Zn</u> (Feに対し約<math>10^{-2}</math>のオーダー)</li> <li>Ca、<u>Mo</u>、<u>Pb</u>、Na、<u>Ni</u>、Mg、<u>Cu</u>、C、<u>U</u>、<u>Zr</u>、<u>Sn</u>、<u>Al</u>、Cr、<u>Sb</u> (Feに対し約<math>10^{-5}</math>~<math>10^{-3}</math>のオーダー)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>主にFe酸化物の粒子や破片からなる。</li> <li>燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> </ul>
FHM遠隔操作室スミア 	Fe、Al (同程度 のオー ダー)	<ul style="list-style-type: none"> <li><u>Pb</u>、<u>Zn</u>、<u>Mo</u>、<u>Sn</u>、<u>Cu</u> (Feに対し約<math>10^{-2}</math>~<math>10^{-1}</math>のオーダー)</li> <li><u>Zr</u>、<u>U</u>、<u>Sb</u> (Feに対し約<math>10^{-3}</math>~<math>10^{-2}</math>のオーダー)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>FeやAlを含む粒子上に、燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。</li> </ul>
参考) 2号機格納容器内部調査装置付着物 (制御棒交換レール領域アクセス時) 	硝酸溶成分について、Feが主。 (溶解方法が上4つのサンプルと異なるため参考扱い)		<ul style="list-style-type: none"> <li>Feを含む粒子上に、燃料由来のU/Zrを含む粒子が混在。(主にWDXから推定：次頁参照)</li> </ul>

※ 主成分 (Fe) に対する原子比のオーダーを、計数率比から概略評価した。  
 また、ICP-MS定性分析でのX-6ペネでの主な検出元素を下線で表示した。

# <補足B1> サンプル分析結果の比較

◆ SEM観察結果：マイクロスケールでの元素分布を評価。

格納容器内、格納容器近傍で採取されるサンプルはFeを多く含む。SEMスケールで観察するとU、Zrの粒子が点在。



# <補足B1> サンプル分析結果の比較

◆ ICP-MS定量分析：核種重量からU同位体比を算出。また、核種重量を元素重量に換算し元素比を算出。

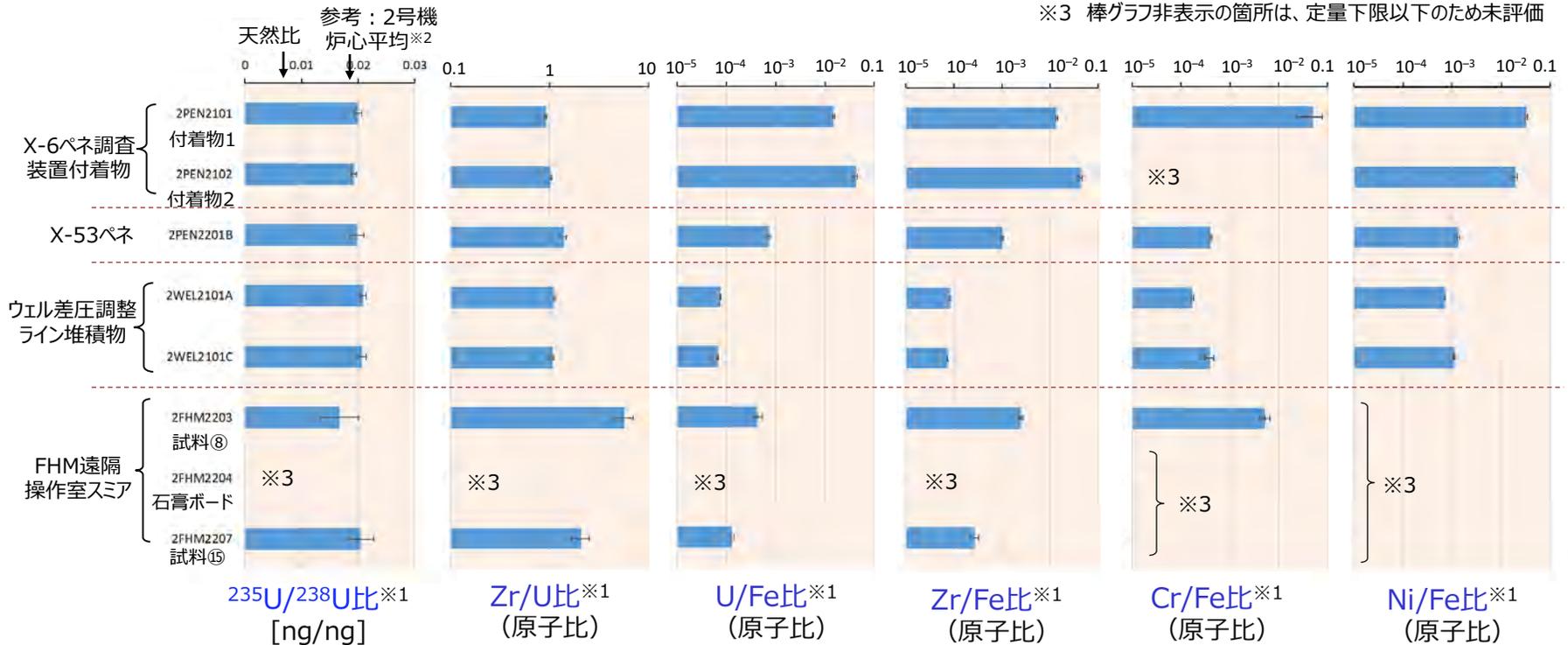
【核種重量から元素重量への換算方法】

- U：U-234、U-235、U-236、U-238の核種重量の合計として算出。
- Zr、Fe、Cr、Ni：それぞれ、Zr-90、Fe-56、Cr-52、Ni-60の核種重量を、それぞれの核種の天然同位体存在度で割り戻して算出。

※1 誤差表示は、各比の分子及び分母のそれぞれの不確かさを合成し、 $2\sigma$ として表示。

※2 『福島第一原子力発電所の燃料組成評価』（JAEA-Data/Code 2012-018）に記載のORIGEN計算値（冷却期間：10年の値）から比を算出した。

※3 棒グラフ非表示の箇所は、定量下限以下のため未評価



燃料由来のUが存在

ZrもUと同程度かそれ以上存在

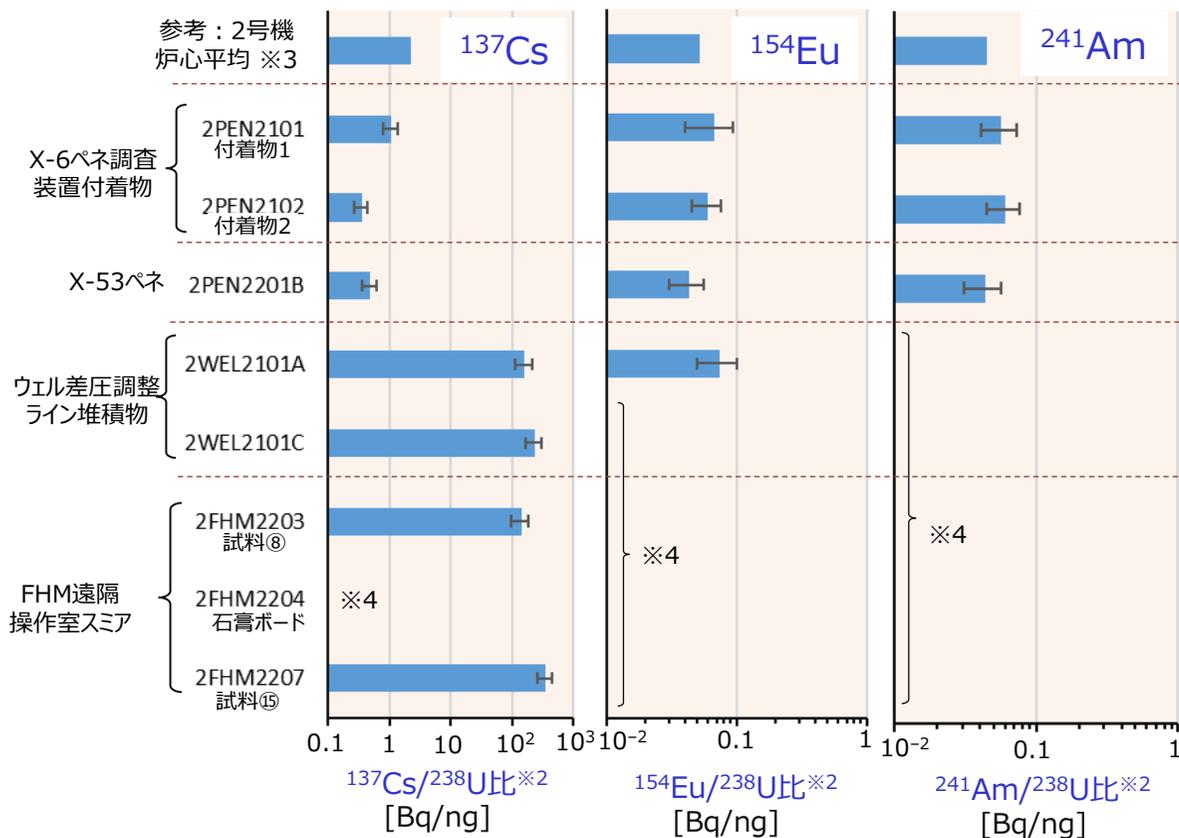
U、Zr、Cr、Ni は Fe に対して5%程度以下

# <補足B1> サンプル分析結果の比較

- ◆ **γ線計測結果**：ゲルマニウム半導体検出器により溶解液中のγ線放出核種の放射能を求め、Uとの帯同性を評価。

Uとの帯同性を表す指標（<sup>238</sup>Uとの比）： $A_N$ ：γ線放出核種 N の放射能 [Bq] ※1

$A_N / W_{U-238}$  単位：[Bq/ng]  $W_{U-238}$ ：<sup>238</sup>Uの質量 [ng] (ICP-MS測定値)



PCV貫通部のサンプル (X-6、X-53) では、互いに同程度の値

γ線計測日

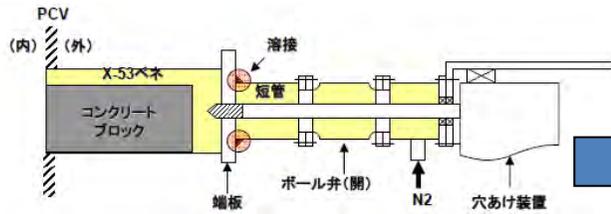
サンプルID	測定日
2PEN2101	2021/12/27
2PEN2102	2022/1/4
2PEN2201B	2023/1/18
2WEL2101A	2022/1/13
2WEL2101C	2021/12/27
2FHM2203	2023/1/12
2FHM2204	2023/1/30
2FHM2207	2023/1/13

- ※1 γ核種放射能の減衰補正は行っていない。
- ※2 誤差表示は、各比の分子及び分母のそれぞれの不確かさを合成し、2σとして表示。
- ※3 『福島第一原子力発電所の燃料組成評価』（JAEA-Data/Code 2012-018）に記載のORIGEN計算値（冷却期間：10年の値）から比を算出した。
- ※4 棒グラフ非表示の箇所は、定量下限以下のため未評価

γ線放出核種放射能と<sup>238</sup>Uとの比の評価結果 (例)

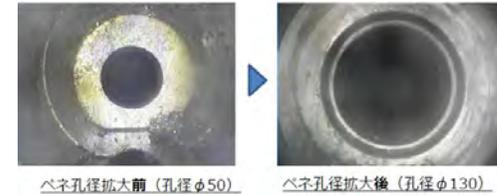
# <補足B2> サンプル採取時の状況

## 2号機 PCV貫通部 (X-53ペネ)



参考図) X-53ペネ  
初回穴あけ加工時  
(2012年1月)

図出典：文献※1

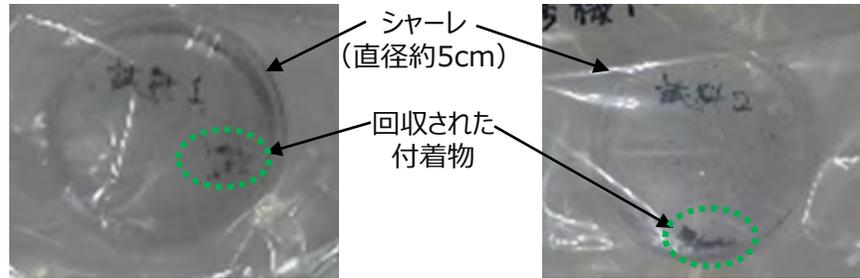


図出典：文献※2

X-53ペネ既設孔拡大時  
(作業時期：2021年9～10月)

コア表面から回収された  
付着物サンプルの外観  
(採取時期：2022年8月)

ビニル袋に入れた状態で撮影



(付着物A：NFDで分析)

(付着物B：JAEA大洗で分析)

スプレイ治具挿入のためX-53ペネ内扉既設孔をコア抜きし、PCV側コア表面の付着物（錆のような外観）を回収したものを。

図の出典 ※1： [https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts\\_120724\\_05-j.pdf](https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_120724_05-j.pdf)

※2： <https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2021/10/95-3-3-3.pdf>

# <補足B2> サンプル採取時の状況

## 2号機 ウェル差圧調整ライン内堆積物

■ 事故調査の観点から、下記箇所のサンプル採取を実施した。

- ダスト上部の劣化部分
- ダクト点検口裏のゴムパッキン部分
- 配管内堆積物

※排気ダクトと差圧調整ラインの位置関係が両図で逆になっていることに注意。

堆積物採取イメージ

原子炉キャビティ差圧調整ライン

点検口

空調ダクト

回収容器

BF2-18弁

堆積物

ダクト劣化部  
γ: 0.1mSv/h  
β+γ: <1.0mSv/h

ゴムパッキン  
γ: 0.2mSv/h  
β+γ: 5.0mSv/h

配管内堆積物  
γ: 9.0mSv/h  
β+γ: 200mSv/h

排気ダクト劣化部 (金属片)

点検口表面部 (パッキン部)

堆積物

西側原子炉キャビティ差圧調整ライン

排気ダクト

原子炉ウエル

PCV

RPV

東側原子炉キャビティ差圧調整ライン

4FLフロア

オペレーションフロア

シールドプラグ

西側

東側

原子炉建屋4FLフロア平面図

2号機原子炉ウエル内調査における堆積物等の採取状況 ※1

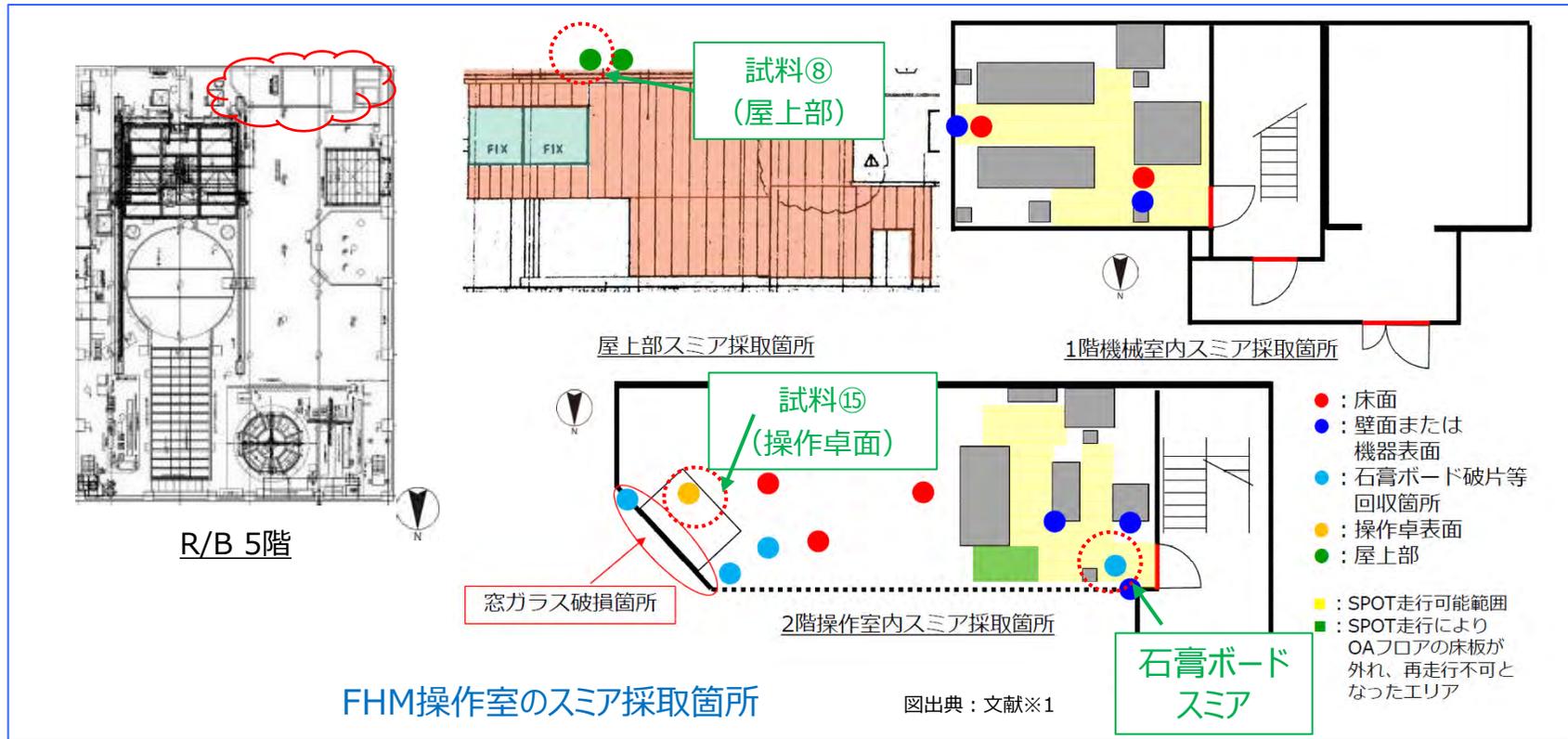
差圧調整ライン配管内部の堆積物を採取。

※1 図の出典 : 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2 1回)

<https://www.nsr.go.jp/data/000358693.pdf>

# <補足B2> サンプル採取時の状況

## 2号機 FHM遠隔操作室スミア



燃料交換機（FHM）操作室内の操作桌面、石膏ボード、屋上部から採取されたスミア試料。（2022年7～8月採取）

※1 図の出典：2号機燃料取扱機操作室調査について，東京電力ホールディングス株式会社 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合／事務局会議（第106回）  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2022/09/09/3-3-4.pdf>

# 参考文献

- [1] 令和3年度開始 廃炉・汚染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）2022年度最終報告，2023年6月，  
<https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2023/06/2022001seijyouhaaku202306F.pdf>
- [2] 廃炉・汚染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）2021年度実施分成果，2022年11月，  
<https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2022/12/2022001seijyouhaakuPJ.pdf>
- [3] 令和3年度福島第一原子力発電所の炉内付着物サンプル等の分析 JAEA-Data/Code 2023-005
- [4] 2号機 PCV内部調査及び試験的取り出しの準備状況 X-6ベネ内堆積物調査の結果  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/11/3-3-3.pdf>
- [5] 燃料、構造材、計装材料、コンクリート、海水成分等の参考文献
- 【燃料】
- 西原 健司，岩元 大樹，須山 賢也（2012）：“福島第一原子力発電所の燃料組成評価”，JAEA-Data/Code 2012-018.
- IRID（2019b）：“廃棄物試料の分析結果（1～3号機原子炉建屋内瓦礫）”，廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議（第65回）資料3-4-3，平成31年4月25日。  
<https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2019/04/index.html>
- 【海水】
- 日本海水学会，日本ソルト・サイエンス研究財団 編（1994）：“海水の科学と工業”，東海大学出版会，pp.27-44.
- 野崎 義行（1997）：“5. 最新の海水の元素組成表（1996年版）とその解説”，日本海水学会誌，第51巻，第5号，pp.302-308.
- 国立天文台 編（2011）：“理科年表 平成24年（机上版）”，丸善出版.
- 【構造材、コンクリート組成】
- 原子力安全技術センターHP：[https://www.nustec.or.jp/anzenjissho/introduction/ga1\\_4.html#t2](https://www.nustec.or.jp/anzenjissho/introduction/ga1_4.html#t2)
- fdada HP：<https://fdada.info/docs/pdf/PS-Unit2-01.pdf>
- 小野寺 真作（1981）：“原子力圧力容器用鋼材”，鉄と鋼，第67巻，第7号，pp.880-890.
- 【計装材】
- 2号機TIP案内管付着物の簡易金属分析結果について，東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議／事務局会議（第10回）資料3-1，2013年11月28日。  
[https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/20131128\\_01.html](https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/20131128_01.html)
- 有機化合物を含む可燃性ガスの発生源に関する過去の調査結果から得られた情報について，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2回），2021年9月14日。  
<https://www.nsr.go.jp/data/000364992.pdf>
- ケーブル及び塗料の可燃性有機ガス発生量評価計画，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3回），2021年10月19日。  
<https://www.nsr.go.jp/data/000367851.pdf>
- ケーブル及び保温材の可燃性ガス発生量評価予備試験速報，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7回），2021年12月21日。  
<https://www.nsr.go.jp/data/000376559.pdf>
- ケーブル・塗料・保温材の可燃性ガス発生量評価試験結果，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8回），2022年2月28日。  
<https://www.nsr.go.jp/data/000382270.pdf>

# 略語

略語	説明
EDX	エネルギー分散型X線分析 (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)
FHM	燃料交換機 (Fuel Handling Machine)
FP	核分裂生成物 (Fission Product)
ICP-MS	誘導結合プラズマ質量分析装置 (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)
IP	イメージングプレート (Imaging Plate)
NFD	日本核燃料開発株式会社 (Nippon Nuclear Fuel Development Co., Ltd.)
PCV	原子炉格納容器 (Primary Containment Vessel)
R/B	原子炉建屋 (Reactor Building)
RPV	原子炉圧力容器 (Reactor Pressure Vessel)
SEM	走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope)
STEM	走査型透過電子顕微鏡 (Scanning Transmission Electron Microscope)
TEM	透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope)
WDX	波長分散型X線分析 (Wavelength Dispersive X-ray Spectrometry)
ペネ	ペネトレーション (原子炉格納容器の貫通部)