

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

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構
(IRID)

構 成

第一部

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)
2021年度実施分 成果 …………… 1-1～1-92

第二部

平成30年度補正 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 …………… 2-1～2-207

第二部の参考資料 …………… 2-208～2-261

第一部

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)

2021年度実施分成果

2022年11月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構
(IRID)

目次

1. 研究の背景・目的	1-2
2. 目標	1-3
3. 実施項目とその関連、他事業との関連	1-4
4. 実施スケジュール	1-9
5. 実施体制	1-10
6. 実施内容	1-11
(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等	1-11
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析	1-12
② 燃料デブリの性状推定の高度化	1-43
③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力	1-78
2021年度実施内容のまとめ	1-88

1. 研究の背景・目的

1F※の廃止措置に向けた燃料デブリの取り出し、収納・保管、処理・処分等の検討には、燃料デブリのデータや関連する情報の取得・整備が不可欠である。

※東京電力ホールディングス(株) 福島第一原子力発電所

燃料デブリの特性リスト (～2018年度)

模擬燃料デブリ等を用いた試験研究の成果

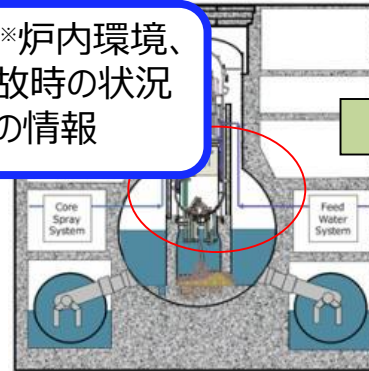
ウランの特性等 (既往文献)

TMI-2等の過酷事故の知見

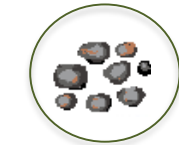
SA研究の知見

等

1F※炉内環境、事故時の状況等の情報



採取



微量燃料デブリ
あるいは
PCV内堆積物等



回収燃料デブリ
のうち
分析試料

輸送

既存分析施設



分析結果

総合的評価

燃料デブリの生成プロセス、号機/領域ごとの燃料デブリや構成材料の堆積・破損状態等を考慮した評価を行うことにより、限定的な分析サンプルから最大限の情報を取得する。

⇒ 燃料デブリ特性リストの更新

提供

情報利用側である各PJ (収納移送保管PJ*1、取り出しPJ*2、廃棄物PJ*3) 及び東京電力ホールディングス(株) (以下、「東京電力」) に利用しやすい形で成果を提供することにより、1Fの廃炉・汚染水対策を円滑に進めるとともに、我が国の科学技術の向上を図る。

分析項目のレビューに活用

国際会議等の知見 (例 PreADES、ARC-F、TCOFF)

*1 燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発PJ、*2燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発PJ、*3固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発PJ

2. 目標

- 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
 - 1FのPCV内外で採取された新たなサンプル（燃料デブリ、堆積物等）を受入れて分析データを取得し、「燃料デブリ特性リスト」に体系的に整理することで、廃炉計画に資する。
 - 新たなサンプルの分析、評価を、過年度の関連事業の成果を反映しつつ実施することにより、1Fサンプルの分析経験や知見を蓄積し、試験的取り出しで得られる燃料デブリの分析に備える。
 - 燃料デブリの分析や性状推定等において国際的な知見を活用する。

3. 実施項目とその関連

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

実施内容

- 1FのPCV内外で採取された新たなサンプル（燃料デブリ、堆積物等）を受入れて分析データを取得する。

実施方法

- 分析サンプルを茨城地区に輸送する。（サンプルが燃料デブリの場合は東京電力が輸送を実施する。）
- 受入れたサンプルの分析をJAEAとNFD（㈱日本核燃料開発）が協力して実施する。
 - JAEA：比較的広範囲の分析、分析項目の拡充、新規分析項目検討
(FE-SEM/WDS, ICP-MS, TIMS, SIMS等)
 - NFD：より細かい特異点の分析（FE-SEM/EDS, FE-TEM/EDS）

主要成果

- 内部詳細調査を通してPCV内から得られる燃料デブリ及び堆積物等のサンプルの分析データ
- 小規模取り出し段階に受け入れる燃料デブリを想定した分析技術の拡充と高度化

廃炉作業への貢献

- 取得した分析データを本事業②「燃料デブリの性状推定の高度化」で評価検討し、廃炉計画に資する「燃料デブリ特性リスト」に体系的に整理する。

3. 実施項目とその関連

② 燃料デブリの性状推定の高度化

実施内容

- ①で得た分析データの評価を行う。また、その結果を「燃料デブリ特性リスト」に体系的に整理する。

実施方法

- 既往文献の知見や内部調査の結果等と合わせて分析データを検討し、サンプルの履歴等の評価する。
- 国内の有識者による専門家会議（1F試料評価委員会）に上記の分析データや評価結果を共有し、レビューを受ける。
- 上記の成果を「燃料デブリ特性リスト」に反映し、データベースの充実化を図る。

主要成果

- ①の分析データの評価結果
- 前項の成果の反映による「燃料デブリ特性リスト」のアップデート

廃炉作業への貢献

- 「燃料デブリ特性リスト」に整理した情報は、燃料デブリ取り出しを含む多くの廃炉作業の基礎情報として活用される。

3. 実施項目とその関連

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

実施内容

- 燃料デブリの分析や性状推定等において国際的な知見を活用するための取り組みを行う。

実施方法

- 燃料デブリに関する文献等、国内外の新たな知見を収集しレビューする。
- 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場について、OECD/NEA*及び国内外の機関と検討を行い、その設置に貢献する。

*経済協力開発機構／原子力機関

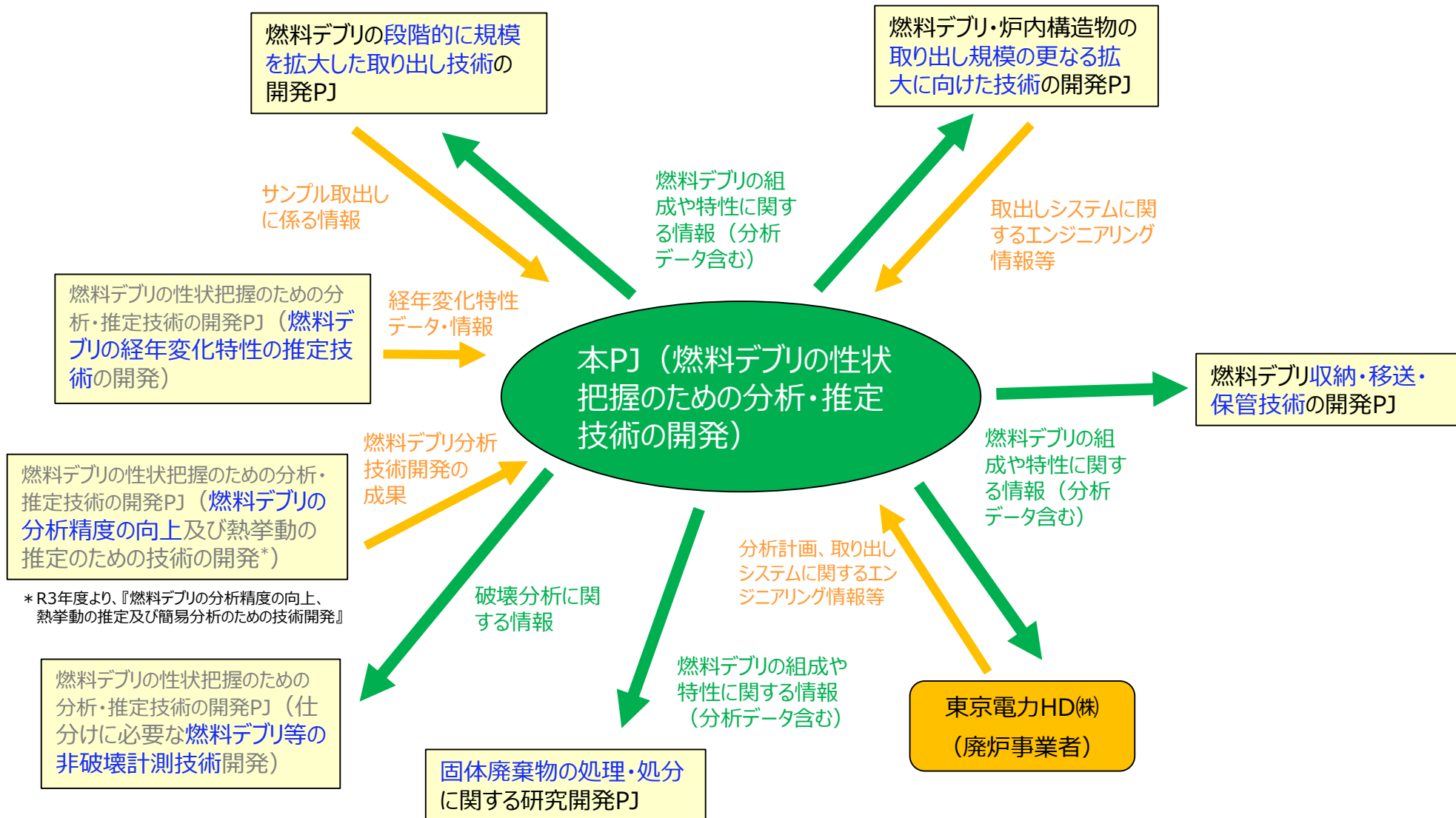
主要成果

- 燃料デブリに関する新たな知見のレビュー結果
- 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討結果

廃炉作業への貢献

- 燃料デブリの分析等に係る議論の場を通じて、我が国の最新の分析情報等を海外の専門家に共有することにより国際社会に対する情報公開の責務を果たすと同時に、1 Fの廃炉計画に対する理解を得る。

3. 他事業との関連（2020~22年度）



3. 他事業との関連（2020～22年度）

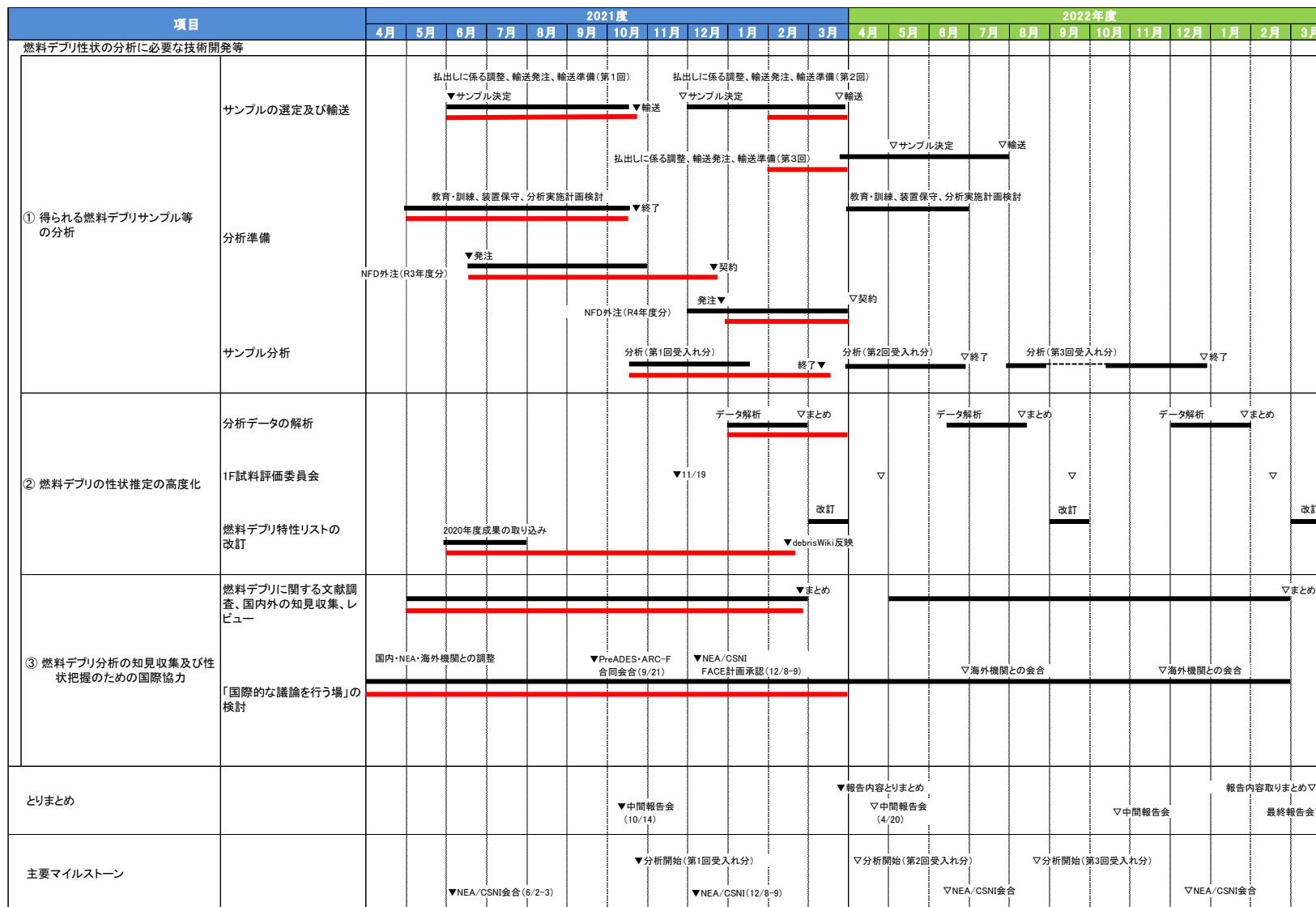
(1) 当事業の要求インプット

ID	要求側事業	提供側事業	内容（概要）	必要となる時期	情報の用途
I-1	(本事業)	廃炉・汚染水・処理水対策事業事務局	以下の研究成果等の情報 ① 燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（燃料デブリの経年変化特性の推定技術の開発）』（2019-2020年度）事業 ② 燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発（燃料デブリの分析精度の向上及び熱挙動の推定のための技術の開発）』（2020年度）事業	適宜	②で実施する燃料デブリ特性リストへの反映
I-2	(本事業)	NDF, 東京電力によるエンジニアリング	現場調査の情報	適宜	③で実施する国際的な協力の取り組みに用いる。

(2) 当事業からの提供アウトプット

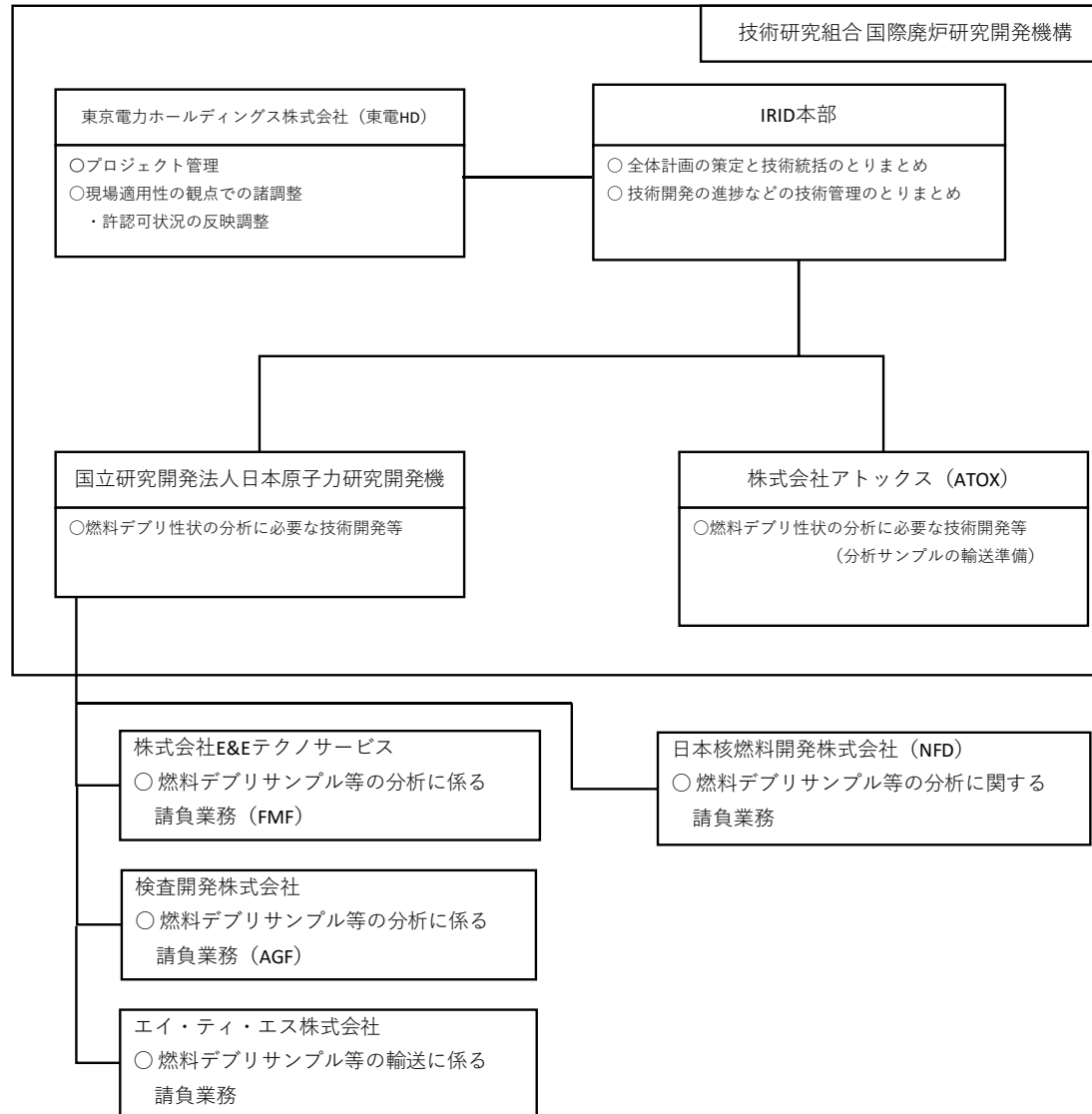
ID	要求側事業	提供側事業	内容（概要）	必要となる時期	情報の用途
O-1	東電HDによるエンジニアリング	(本事業)	燃料デブリ特性リスト（燃料デブリ、堆積物等のサンプルの分析データを含む。）	適宜	燃料デブリの取り出し検討他

4. 実施スケジュール



※ 黒線: 計画、赤線: 実績

5. 実施体制 (2021年度)



6. 実施内容

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

- ① **得られる燃料デブリサンプル等の分析** 1-12
 - (a) 2021年度受入れサンプルの分析 1-12
 - (b) 2022年度用のサンプル選定 1-40

- ② **燃料デブリの性状推定の高度化** 1-43
 - (a) 分析計画の策定 1-43
 - (b) 取得した分析データの評価 1-51
 - (c) 実施成果の燃料デブリ特性リストへの取込み 1-73
 - (d) 燃料デブリ特性リスト(debrisWiki)の改良・改善 1-76

- ③ **燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力** 1-78
 - (a) 燃料デブリに関する文献等、国内外の新たな知見の収集、レビュー 1-79
 - (b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討 1-80

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
 - ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析
 - (a) 2021年度受入れサンプルの分析

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析

ID	サンプル	サンプル状態
2PEN2101	2号機 X-6ベネ調査装置 付着物 1-1	スミアろ紙
2102	同 付着物 2-1	〃
2103	同 付着物 3-1	〃
2WEL2101A	2号機 原子炉ウェル内調査 ウェル差圧調整ライン堆積物 1	固体試料
2101B	同 ウェル差圧調整ライン堆積物 2	〃
2101C	同 ウェル差圧調整ライン堆積物 3	〃
2102A	同 排気ダクト劣化部 1	金属部
2102B	同 排気ダクト劣化部 2	〃
2103A	同 点検口表面部 1	ゴムパッキン
2103B	同 点検口表面部 2	〃

表. 2021年度受入れサンプルの内訳

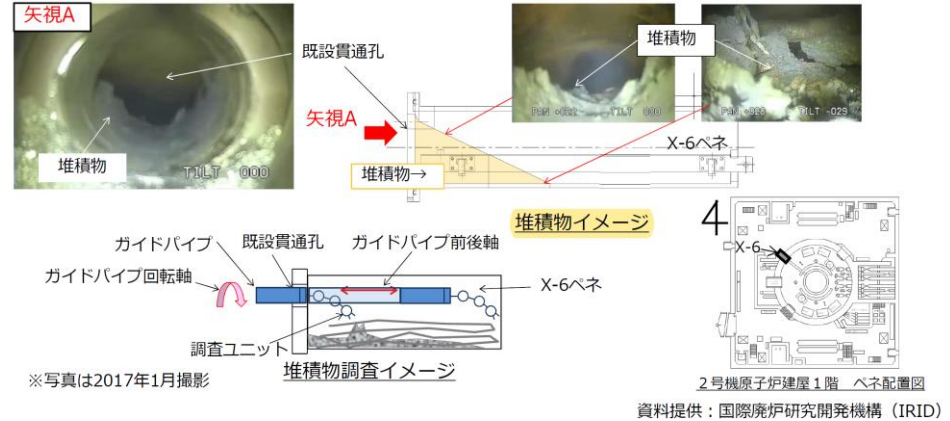


図. 2号機X-6ベネ調査装置付着物の採取状況

JAEA大洗研FMF*1にサンプルを受入れて分析を開始した。
(2021年10月)

分取したサンプルを大洗研AGF*2及び日本核燃料開発(株) (NFD)に輸送し、各施設における分析を実施した。

*1 照射燃料集合体試験施設: Fuels Monitoring Facility
*2 照射燃料試験施設: Alfa-Gamma Facility

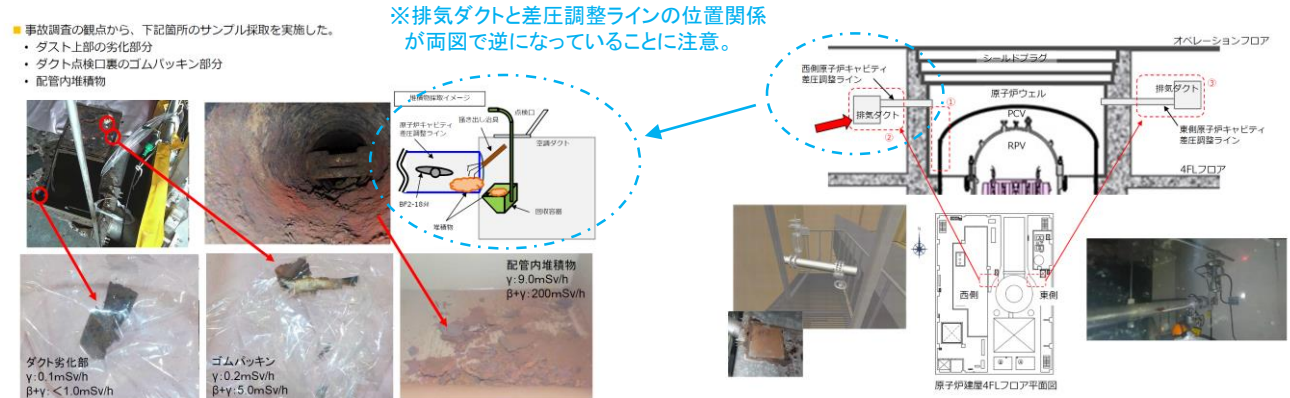


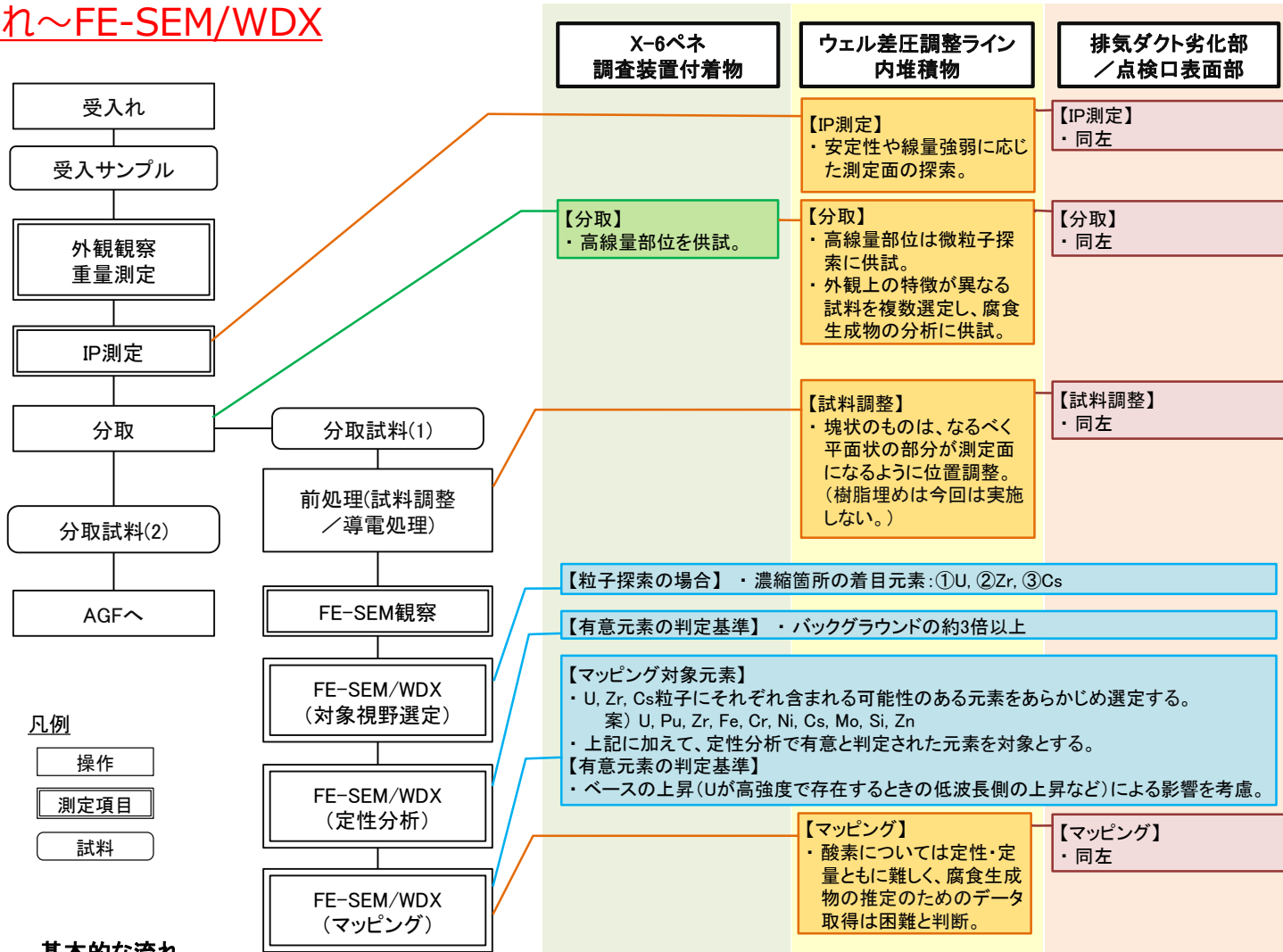
図. 2号機ウェル内調査における堆積物等の採取状況

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析フロー (JAEA FMF*)

* 照射燃料集合体試験施設
: Fuels Monitoring Facility

受入れ～FE-SEM/WDX



基本的な流れ

(試料の状態や分析項目に応じて省略・追加あり)

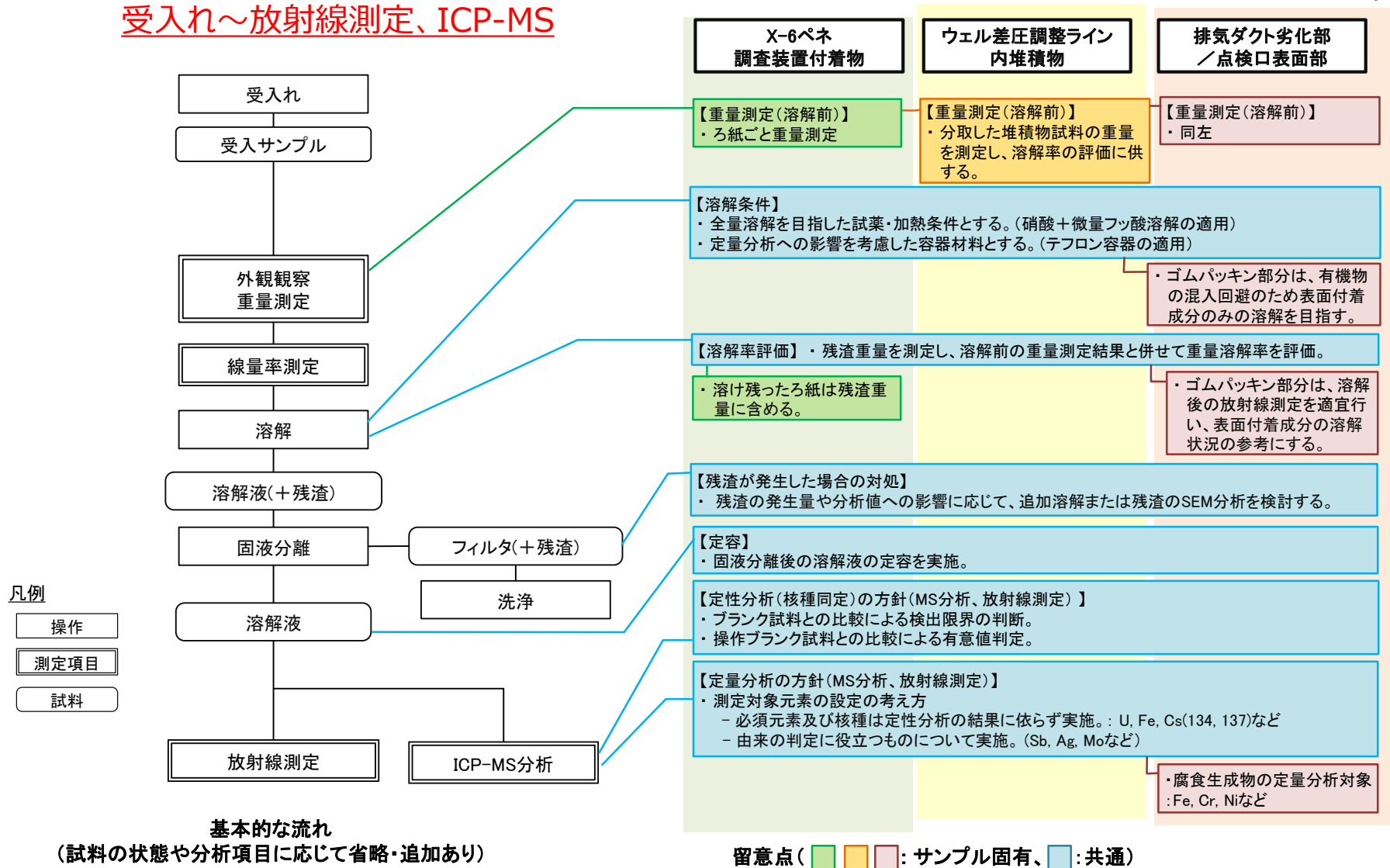
留意点 (■ ■ ■ : サンプル固有、■ : 共通)

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析フロー (JAEA AGF*)

* 照射燃料試験施設
: Alfa-Gamma Facility

受入れ～放射線測定、ICP-MS

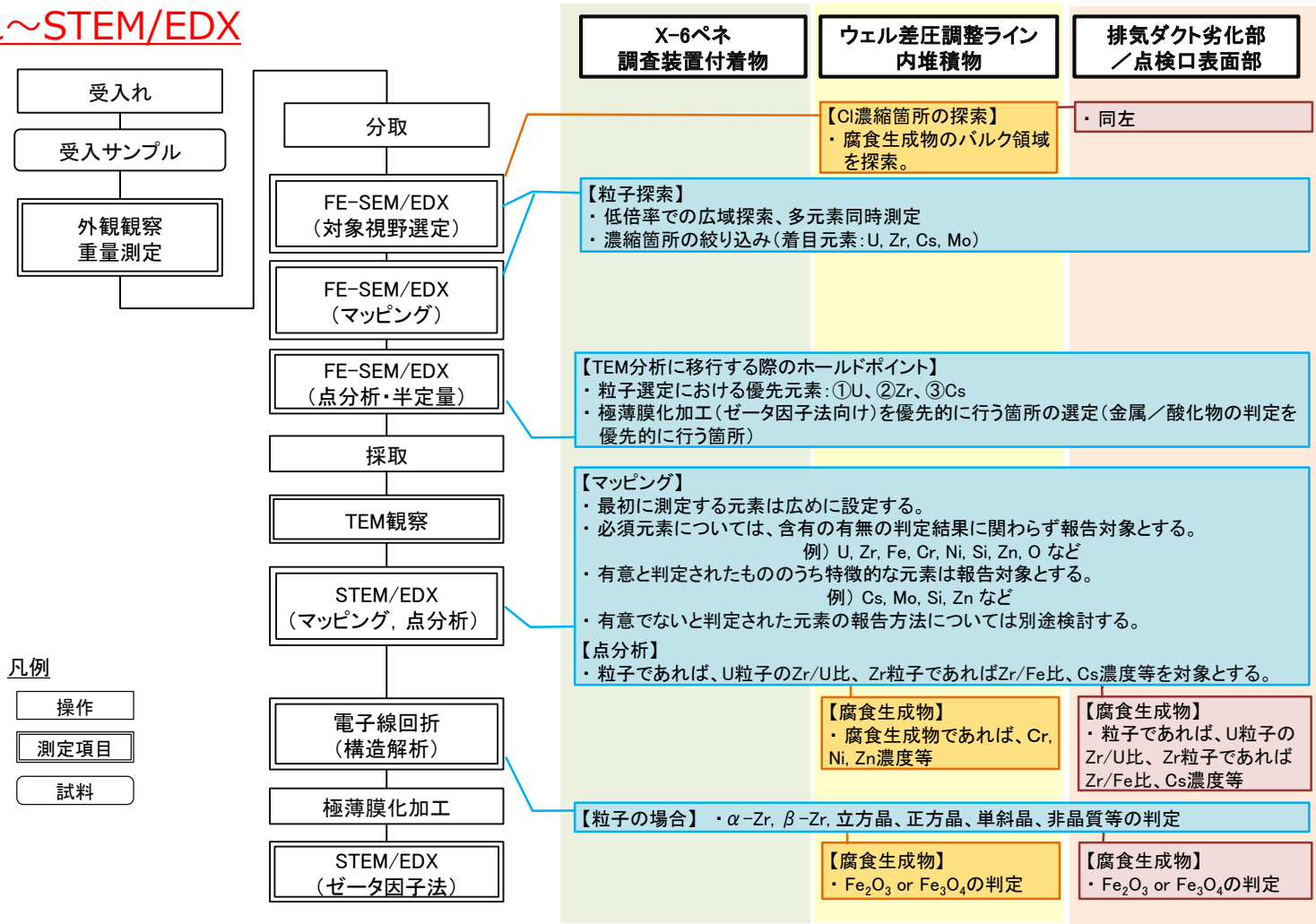


① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析フロー (NFD*)

* 日本核燃料開発(株)

受入れ～STEM/EDX



基本的な流れ
(試料の状態や分析項目に応じて省略・追加あり)

留意点 (■ ■ ■ : サンプル固有、■ : 共通)

(参考) 各分析項目と用途の整理表

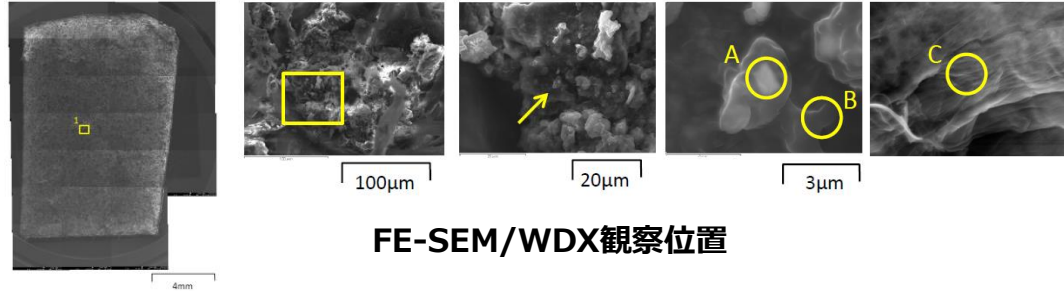
分析項目	得られる情報	主な用途	備考
外観観察	呈色状況、形状、光沢の有無等	他の定性／定量分析により得られる性状データを解釈する際の参考情報	
IP測定	汚染分布	後段の定性／定量分析に供する部位の選定	IP: imaging plate
FE-SEM/WDX	着目元素の濃集領域およびその近傍での元素分布（表面の不定形性のため定量性は期待できない。）	本事業では、Uに着目した探索におけるU濃集領域の形状や帯同する元素の情報取得	FE-SEM: 電界放出形走査電子顕微鏡; Field Emission Scanning Electron Microscope WDX: 波長分散分光法; Wavelength-dispersive X-ray Spectroscopy
FE-SEM/EDX	比較的広範囲における着目元素の検出、および局所的な元素分布（表面の不定形性のため定量性は期待できない。）	検出された元素の種類およびその元素分布からの当該サンプルの由来・起源の概略推定。TEM分析における着目領域の選定	FE-SEM: 同上 EDX: エネルギー分散型X線分光法; Energy dispersive X-ray Spectroscopy
TEM/STEM/EDX	粒子内部の微細構造、および当該粒子の構成相と各相の元素組成	粒子の生成過程（反応に寄与した材料、到達温度、雰囲気）の推定	TEM: 透過型電子顕微鏡/走査型透過型電子顕微鏡分析; Transmission Electron Microscope STEM: 走査型透過型電子顕微鏡分析; Scanning transmission electron microscope
ICP-MS	【定性分析】サンプルに含まれる元素・核種 【定量分析】検量線法により得られる対象元素の同位体比および元素組成	【定性分析】当該サンプルの由来・起源に係る推論・評価 【定量分析】比較的高精度での同位体比や元素組成の算出によるサンプルの由来・起源の推定。平均的な元素比を用いた採取箇所間の比較、SEMなどで得られる局所的な組成との整合性の確認	ICP-MS: ICP質量分析; Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry
放射線測定	【定性分析】当該サンプルに含まれる核種 【定量分析】溶解液のカウント数と標準線源からの放射エネルギー	ICP-MSと同様	

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析 (a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

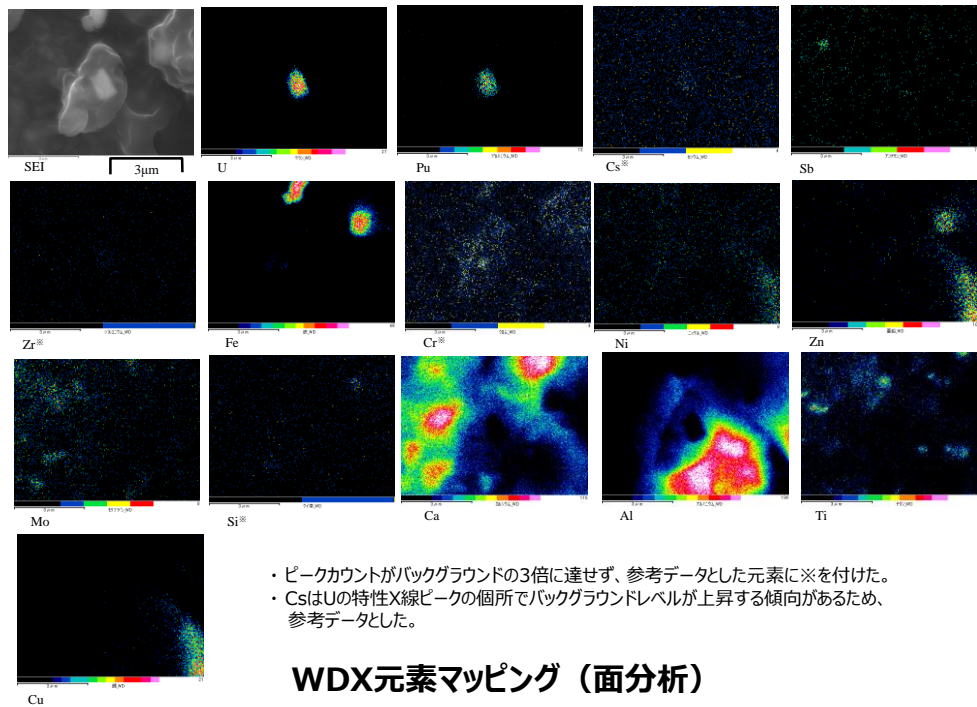
X-6ペネ調査装置付着物1

付着物1 (2PEN2101)

A: U粒子上
B: U粒子以外の粒子上
C: カーボンテープ上

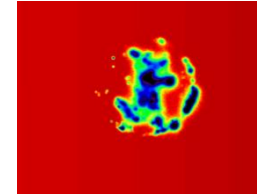


FE-SEM/WDX観察位置



- ・ピークカウントがバックグラウンドの3倍に達せず、参考データとした元素に※を付けた。
- ・CsはUの特性X線ピークの個所でバックグラウンドレベルが上昇する傾向があるため、参考データとした。

WDX元素マッピング (面分析)

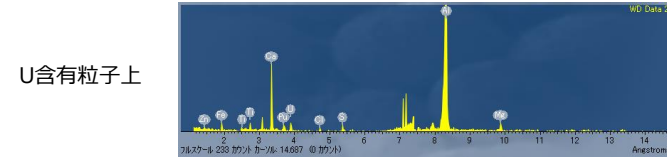


IP像 (露出10分)

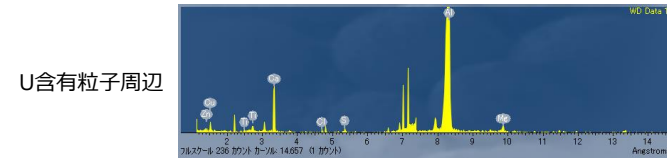


外観写真

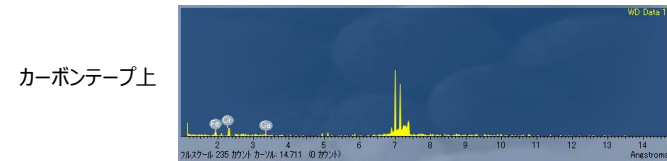
イメージングプレート



U含有粒子上



U含有粒子周辺



カーボンテープ上

WDX定性分析 (点分析)

各元素のマッピングに用いた特性X線のピーク位置：

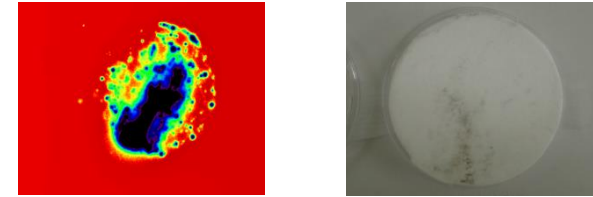
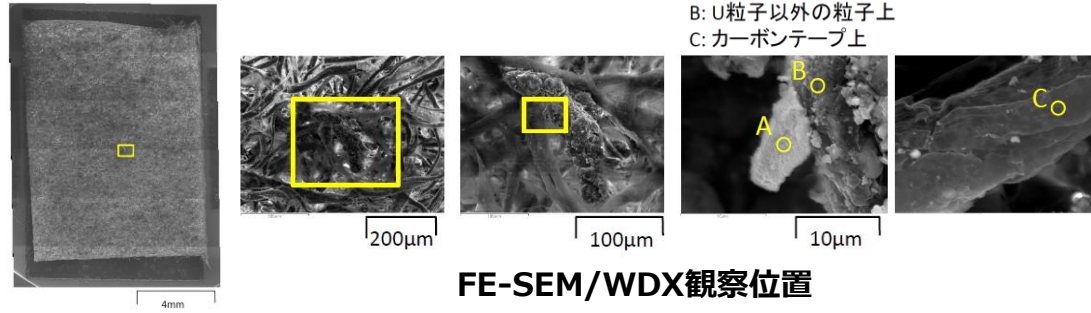
U : 3.907 Å (Ma)	Pu : 3.505 Å (MB)	Cs : 2.892 Å (La)	Sb : 3.439 Å (La)
Zr : 6.073 Å (La)	Fe : 1.937 Å (Ka)	Cr : 2.291 Å (Ka)	Ni : 1.657 Å (Ka)
Zn : 1.436 Å (Ka)	Mo : 5.409 Å (La)	Si : 7.127 Å (Ka)	
Ca : 3.355 Å (Ka)	Al : 8.312 Å (Ka)	Ti : 2.741 Å (Ka)	Cu : 1.542 Å (Ka)

⇒ 分析データの評価結果は、p.1-53以降に示す。

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析 (a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

X-6ペネ調査装置付着物2

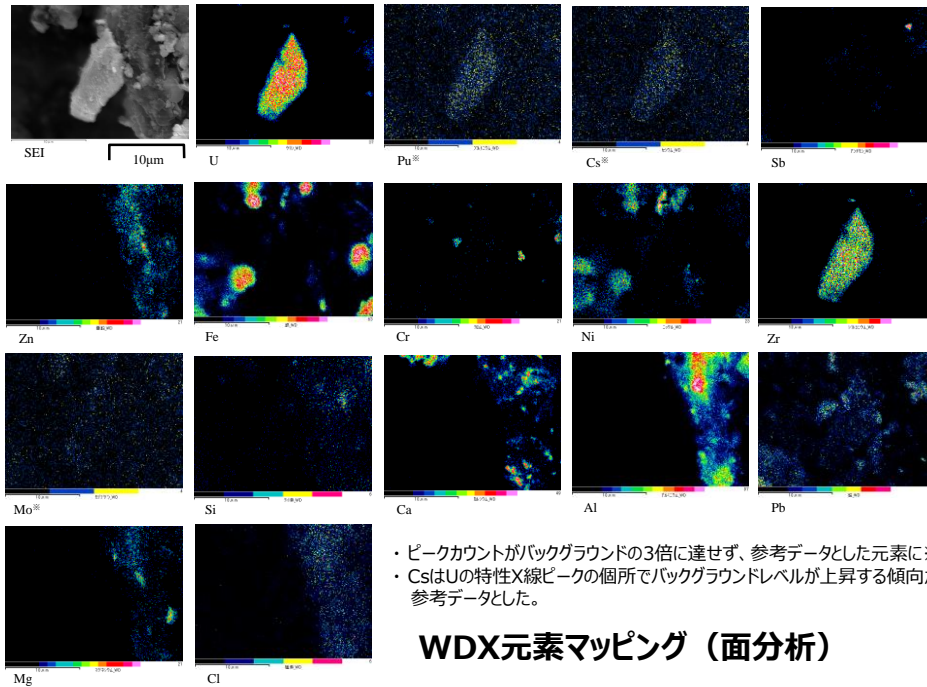
付着物2 (2PEN2102)



IP像 (露出3分)

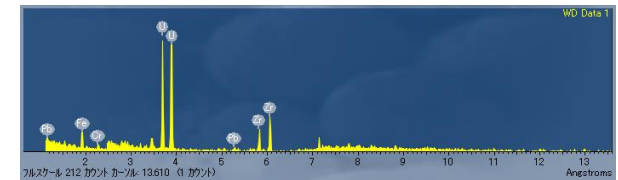
外観写真

イメージングプレート

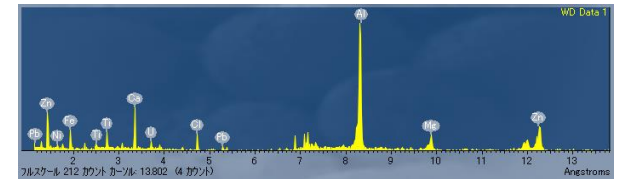


- ピークカウントがバックグラウンドの3倍に達せず、参考データとした元素に※を付けた。
- CsはUの特性X線ピークの個所でバックグラウンドレベルが上昇する傾向があるため、参考データとした。

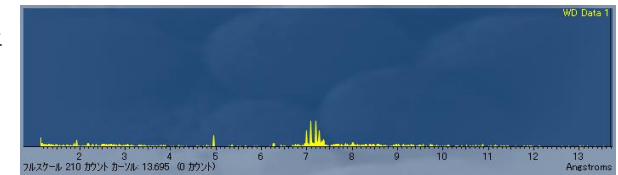
U含有粒子上



U含有粒子周辺



カーボンテープ上



WDX定性分析 (点分析)

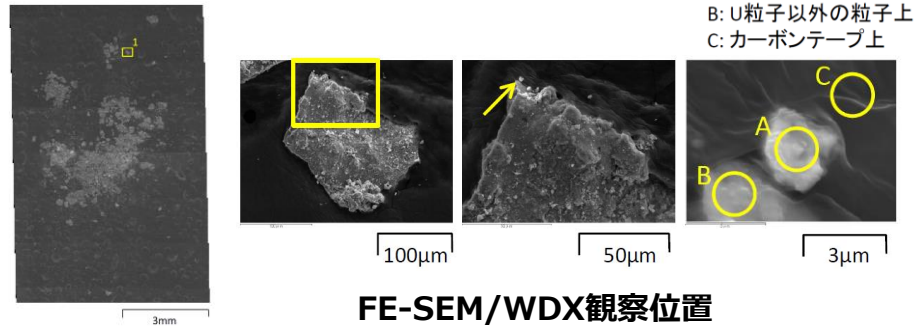
各元素のマッピングに用いた特性X線のピーク位置：
 U, Pu, Cs, Sb, Zr, Fe, Cr, Ni, Zn, Mo, Si: 2PEN2101に同じ。
 Ca: 3.355 Å (Ka) Al: 8.312 Å (Ka) Pb: 1.173 Å (La) Mg: 9.875 Å (Ka)
 Cl: 4.729 Å (Ka)

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

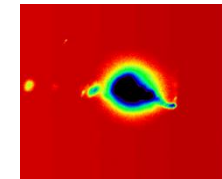
(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

ウェル差圧調整ライン内堆積物A

堆積物A (2WEL2101A)



試料外観

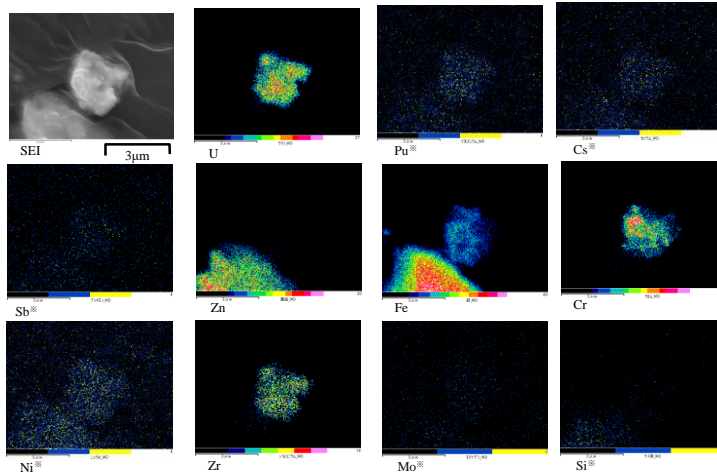


IP像 (露出10秒)



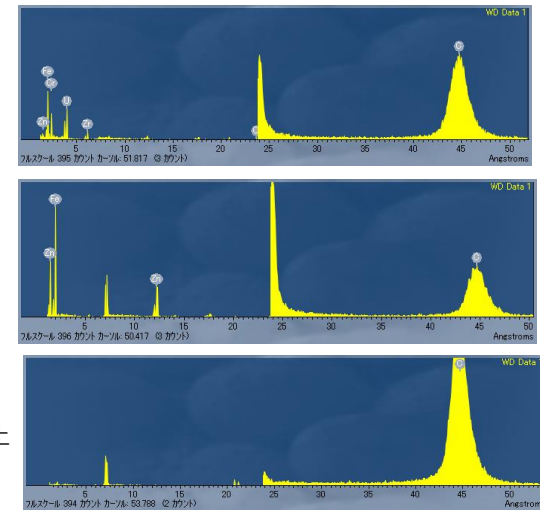
外観写真

イメージングプレート



- ・ピークカウントがバックグラウンドの3倍に達せず、参考データとした元素に※を付けた。
- ・CsはUの特性X線ピークの個所でバックグラウンドレベルが上昇する傾向があるため、参考データとした。

WDX元素マッピング (面分析)



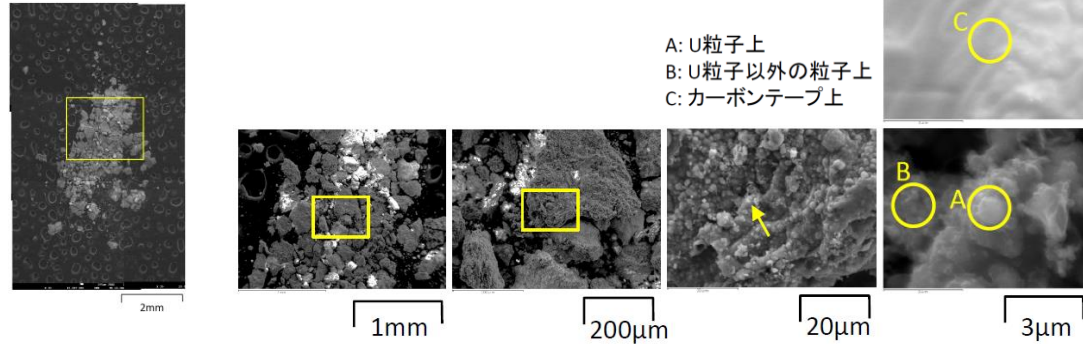
WDX定性分析 (点分析)

各元素のマッピングに用いた特性X線のピーク位置：
 U, Pu, Cs, Sb, Zr, Fe, Cr, Ni, Zn, Mo, Si: 2PEN2101に同じ。

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析 (a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

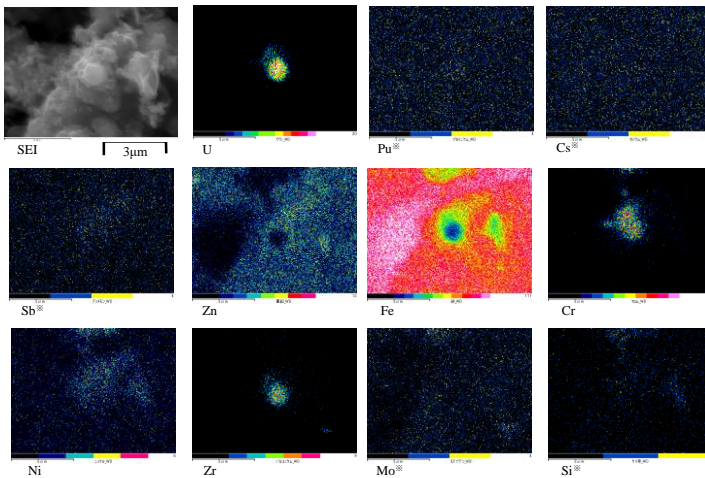
ウェル差圧調整ライン内堆積物C

堆積物C (2WEL2101C)



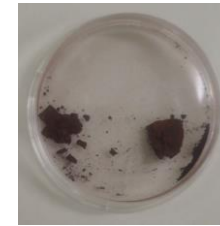
A: U粒子上
B: U粒子以外の粒子上
C: カーボンテープ上

FE-SEM/WDX観察位置

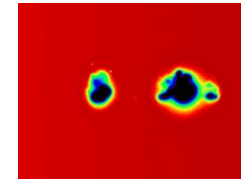


- ・ピークカウントがバックグラウンドの3倍に達せず、参考データとした元素に※を付けた。
- ・CsはUの特性X線ピークの個所でバックグラウンドレベルが上昇する傾向があるため、参考データとした。

WDX元素マッピング (面分析)



試料外観

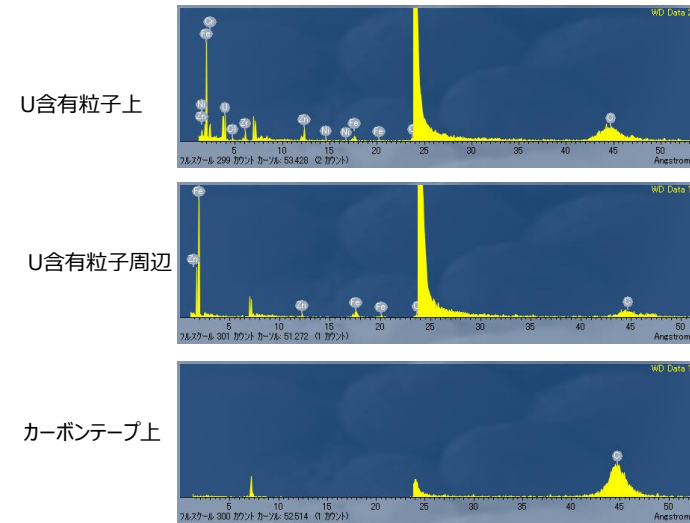


IP像 (露出10秒)



外観写真

イメージングプレート



WDX定性分析 (点分析)

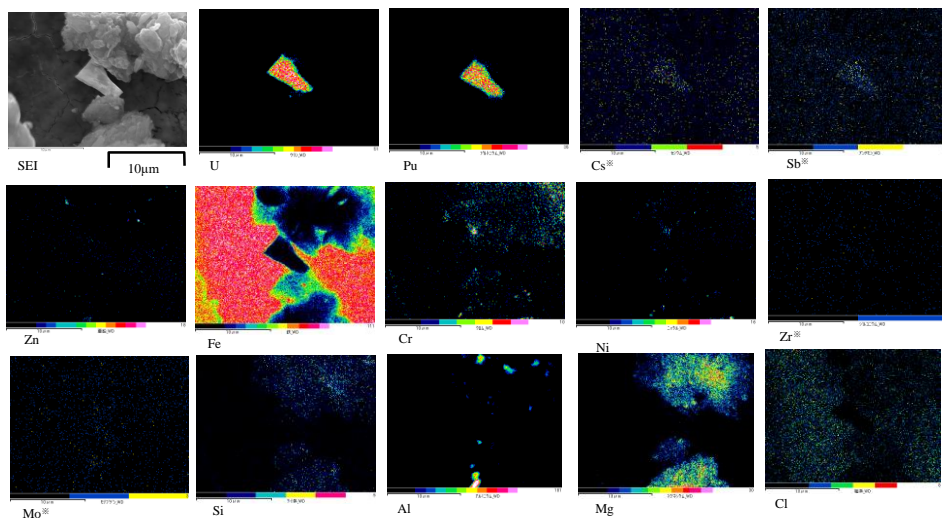
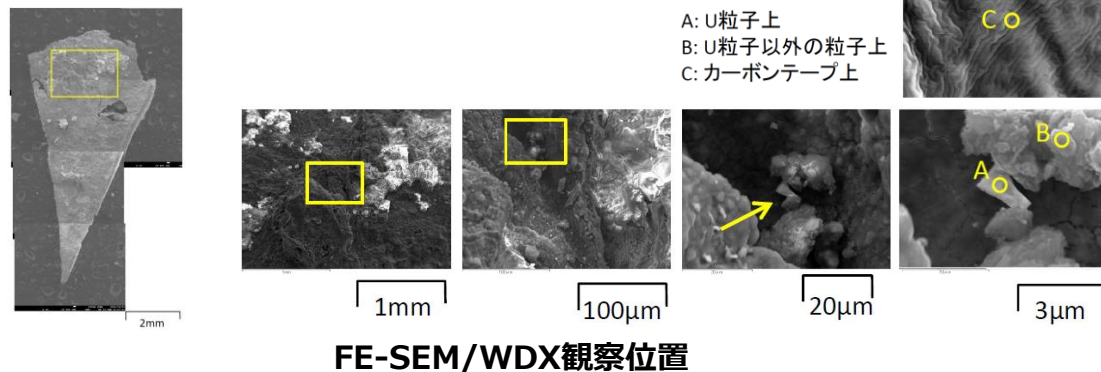
各元素のマッピングに用いた特性X線のピーク位置：
U, Pu, Cs, Sb, Zr, Fe, Cr, Ni, Zn, Mo, Si: 2PEN2101に同じ。

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

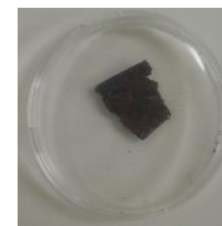
排気ダクト劣化部A (金属部)

劣化部A (2WEL2102A)



- ・ピークカウントがバックグラウンドの3倍に達せず、参考データとした元素に※を付けた。
- ・CsはUの特性X線ピークの個所でバックグラウンドレベルが上昇する傾向があるため、参考データとした。

WDX元素マッピング (面分析)



試料外観



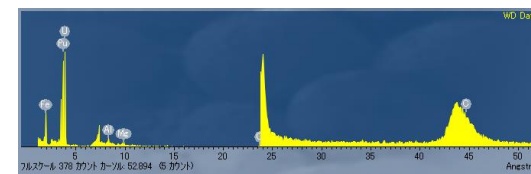
IP像 (露出3分)



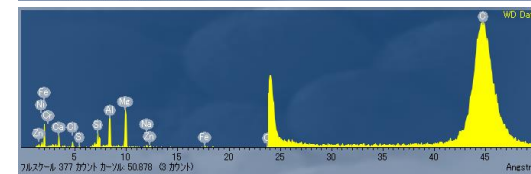
外観写真

イメージングプレート

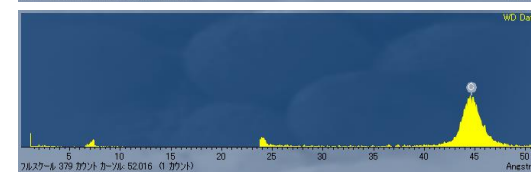
U含有粒子上



U含有粒子周辺



カーボンテープ上



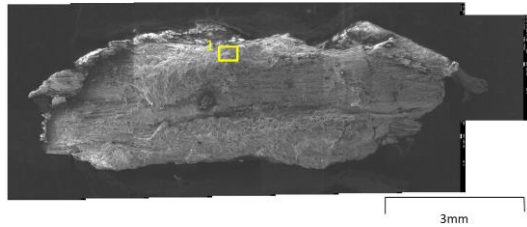
WDX定性分析 (点分析)

各元素のマッピングに用いた特性X線のピーク位置：
 U, Pu, Cs, Sb, Zr, Fe, Cr, Ni, Zn, Mo, Si: 2PEN2101に同じ。
 Al: 8.312 Å (Ka) Mg: 9.875 Å (Ka) Cl: 4.729 Å (Ka)

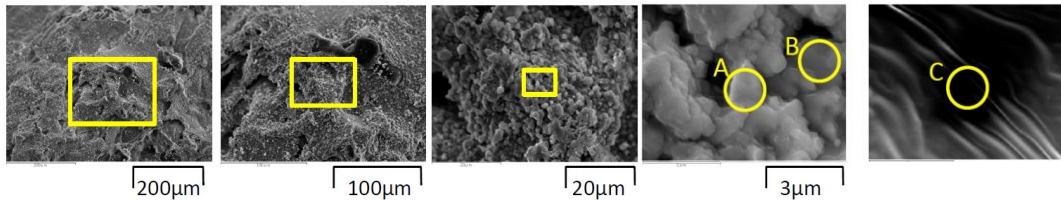
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析 (a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

排気ダクト点検口表面部A (ゴムパッキン)

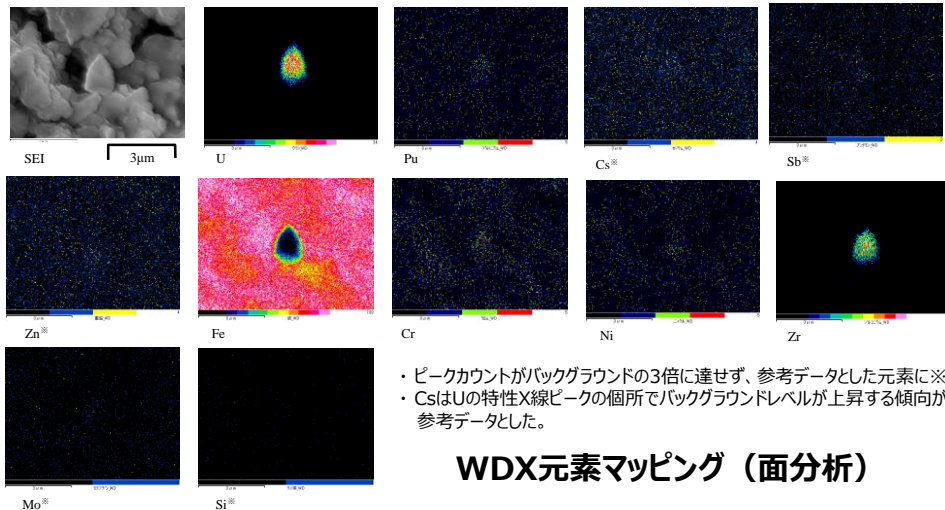
表面部A (2WEL2103A)



A: U粒子上
B: U粒子以外の粒子上
C: カーボンテープ上

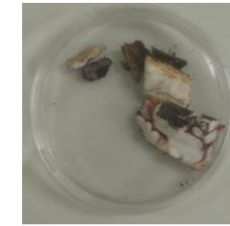


FE-SEM/WDX観察位置

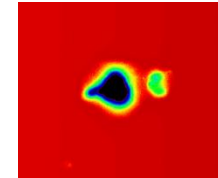


- ・ピークカウントがバックグラウンドの3倍に達せず、参考データとした元素に※を付けた。
- ・CsはUの特性X線ピークの個所でバックグラウンドレベルが上昇する傾向があるため、参考データとした。

WDX元素マッピング (面分析)



試料外観



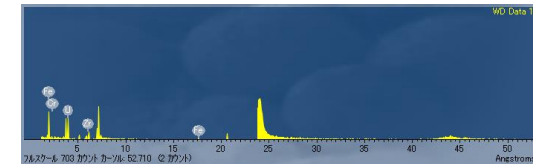
IP像 (露出3分)



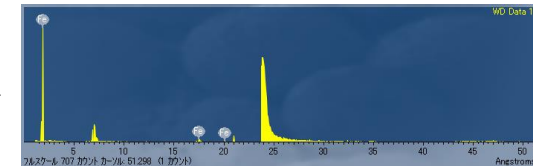
外観写真

イメージングプレート

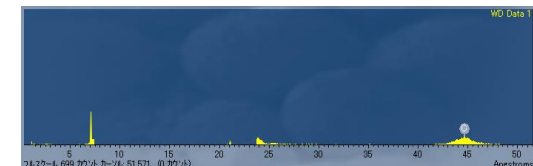
U含有粒子上



U含有粒子周辺



カーボンテープ上



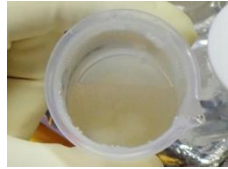
WDX定性分析 (点分析)

各元素のマッピングに用いた特性X線のピーク位置：
U, Pu, Cs, Sb, Zr, Fe, Cr, Ni, Zn, Mo, Si: 2PEN2101に同じ。

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

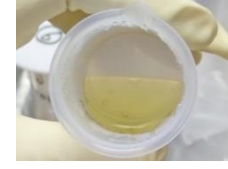
化学分析のための溶解結果



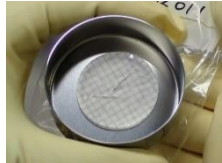
硝酸溶解(6時間加熱後) 硝酸+フッ酸溶解(18時間加熱後)
溶解結果



硝酸溶解(6時間加熱後) 硝酸+フッ酸溶解(18時間加熱後)
溶解結果



硝酸溶解(6時間加熱後) 硝酸+フッ酸溶解(6時間加熱後)
溶解結果

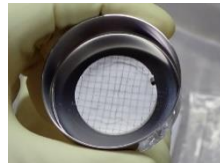


溶解後残渣外観

付着物1 (2PEN2101)

試料重量

溶解前	0.15363 g
溶解後	0.09671 g



溶解後残渣外観

付着物2 (2PEN2102)

試料重量

溶解前	0.10053 g
溶解後	0.06617 g



溶解後残渣外観

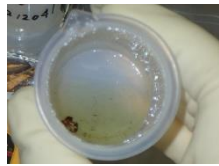
劣化部A (2WEL2102A)

試料重量

溶解前	0.06243 g
溶解後	0.00008 g

(1) X-6ペネ調査装置付着物

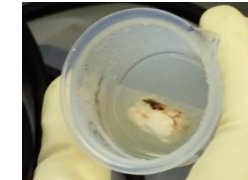
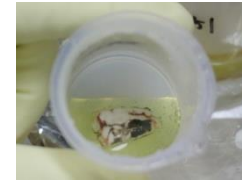
(3) 排気ダクト劣化部 (金属部)



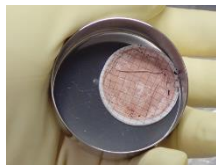
硝酸溶解(6時間加熱後) 硝酸+フッ酸溶解(18時間加熱後)
溶解結果



硝酸溶解(6時間加熱後) 硝酸+フッ酸溶解(18時間加熱後)
溶解結果



硝酸溶解(6時間加熱後) 硝酸+フッ酸溶解(6時間加熱後)
溶解結果



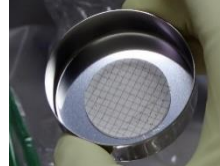
溶解後残渣外観

堆積物A (2WEL2101A)

(2) ウェル差圧調整ライン内堆積物

試料重量

溶解前	0.04150 g
溶解後	0.00653 g



溶解後残渣外観

堆積物C (2WEL2101C)

試料重量

溶解前	0.00691 g
溶解後	0.00123 g



溶解後残渣外観

表面部A (2WEL2103A)

(4) 排気ダクト点検口表面部 (ゴムパッキン)

試料重量

溶解前	0.03517 g
溶解後	0.02068 g

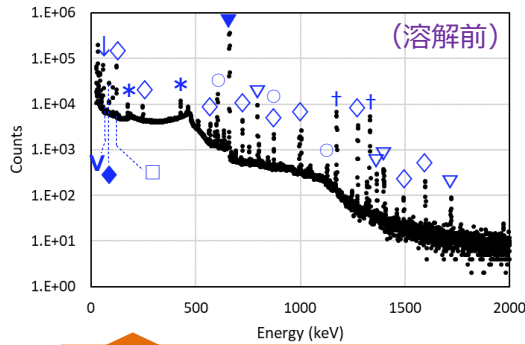
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

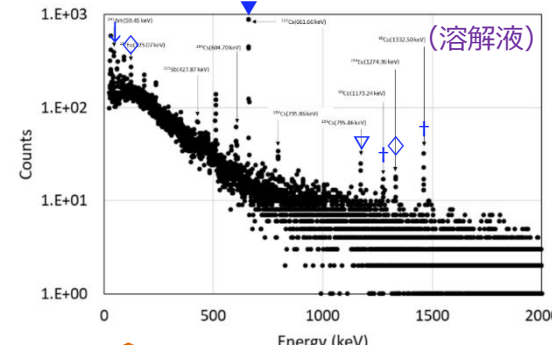
γ線スペクトル分析 (1/3)

【図中における検出核種の表示】
 ^{60}Co (+), ^{106}Rh (○), ^{125}Sb (*), ^{134}Cs (▽), ^{137}Cs (▼), ^{144}Ce (□),
 ^{154}Eu (◇), ^{155}Eu (◆), ^{241}Am (↓), ^{243}Am (∇)

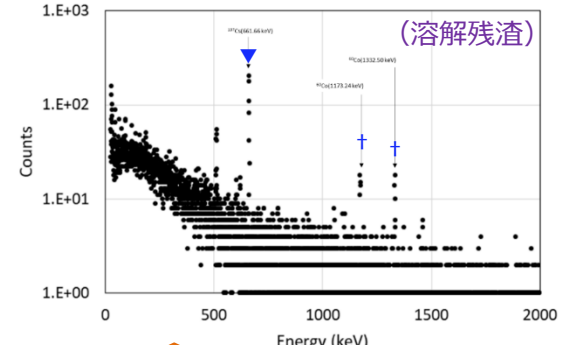
付着物1
(2PEN2101)



^{60}Co , ^{106}Rh , ^{125}Sb , ^{134}Cs ,
 ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{155}Eu ,
 ^{241}Am , ^{243}Am を検出

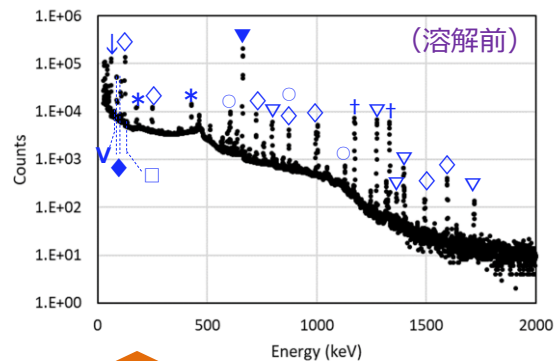


^{60}Co , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{241}Am
 を検出

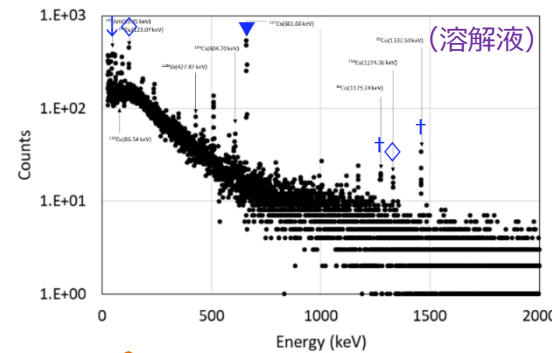


^{60}Co , ^{137}Cs を検出

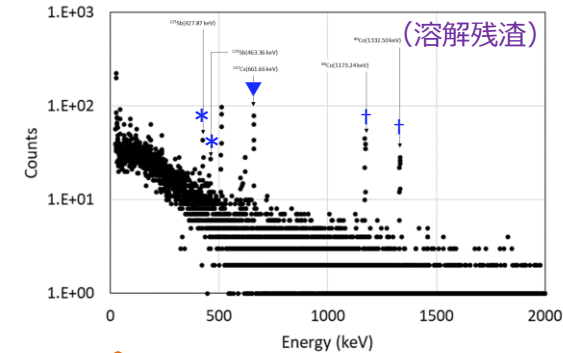
付着物2
(2PEN2102)



^{60}Co , ^{106}Rh , ^{125}Sb , ^{134}Cs ,
 ^{137}Cs , ^{144}Ce , ^{154}Eu , ^{155}Eu ,
 ^{241}Am , ^{243}Am を検出



^{60}Co , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{155}Eu ,
 ^{241}Am を検出



^{60}Co , ^{125}Sb , ^{137}Cs を検出

(1) X-6ペネ調査装置付着物

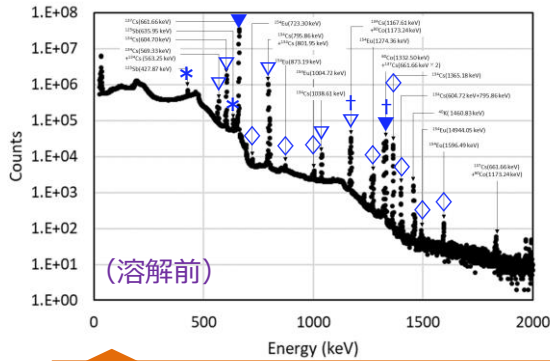
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

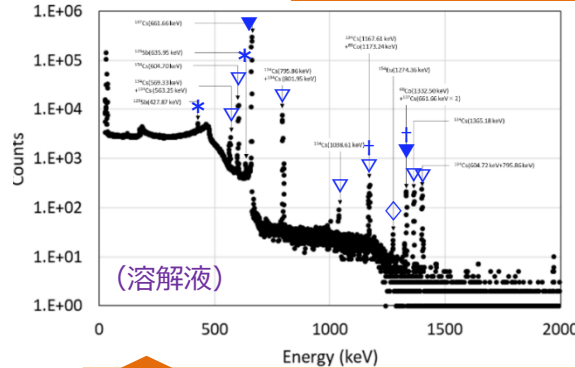
γ線スペクトル分析 (2/3)

【図中における検出核種の表示】
 ^{60}Co (+), ^{106}Rh (○), ^{125}Sb (*), ^{134}Cs (▽), ^{137}Cs (▼), ^{144}Ce (□),
 ^{154}Eu (◇), ^{155}Eu (◆), ^{241}Am (↓), ^{243}Am (∇)

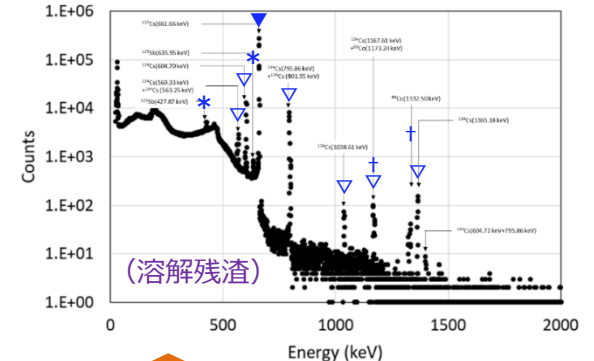
堆積物A
(2WEL2101A)



(溶解前)
 ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs ,
 ^{154}Eu を検出

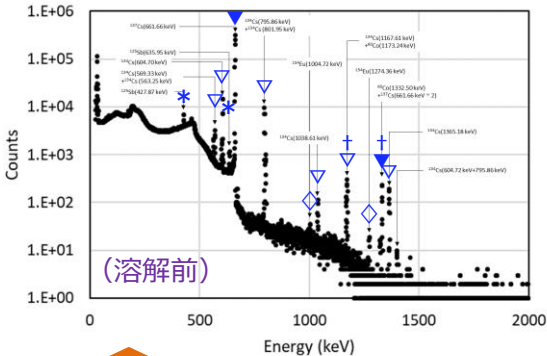


(溶解液)
 ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs ,
 ^{154}Eu を検出

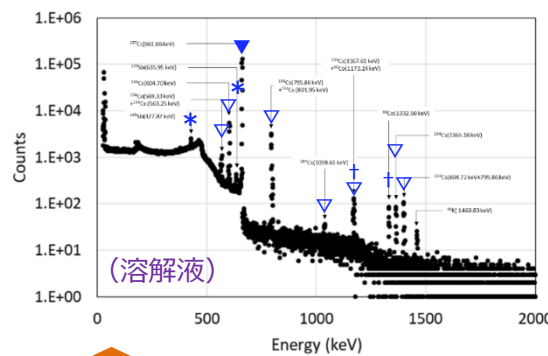


(溶解残渣)
 ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs を
 検出

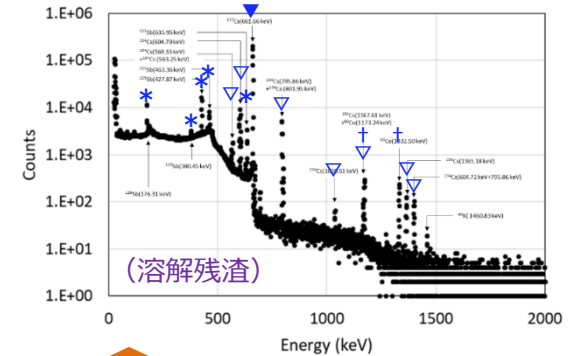
堆積物C
(2WEL2101C)



(溶解前)
 ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs ,
 ^{154}Eu を検出



(溶解液)
 ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs を
 検出



(溶解残渣)
 ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{134}Cs , ^{137}Cs を
 検出

(2) ウェル差圧調整ライン内堆積物

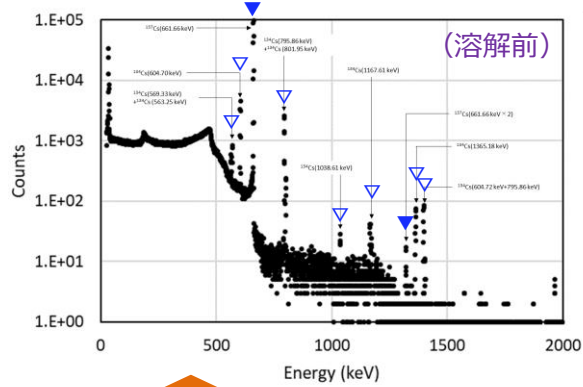
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果

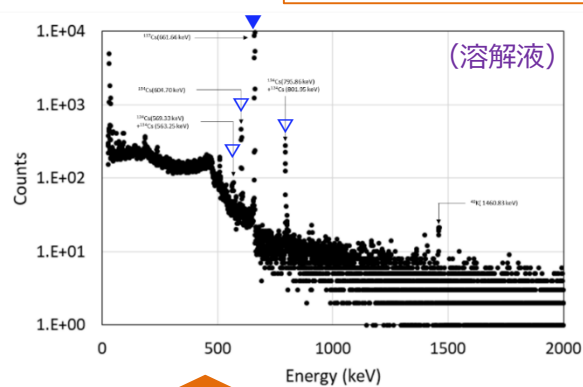
γ線スペクトル分析 (3/3)

【図中における検出核種の表示】
 ^{60}Co (+), ^{106}Rh (○), ^{125}Sb (*), ^{134}Cs (▽), ^{137}Cs (▼), ^{144}Ce (□),
 ^{154}Eu (◇), ^{155}Eu (◆), ^{241}Am (↓), ^{243}Am (▼)

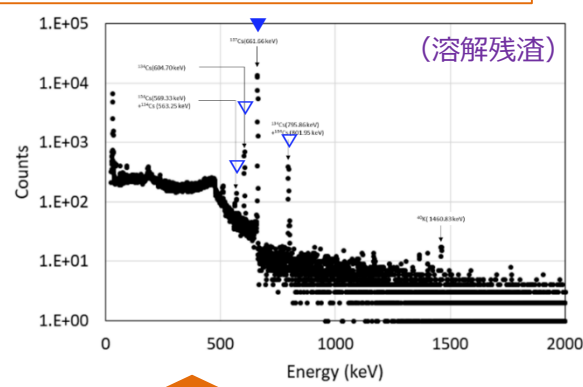
劣化部A
(2WEL2102A)



134Cs, 137Csを検出



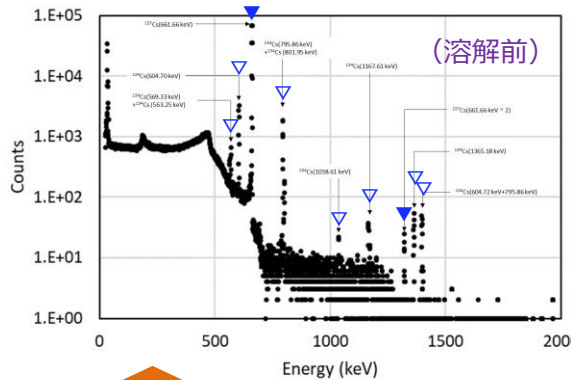
134Cs, 137Csを検出



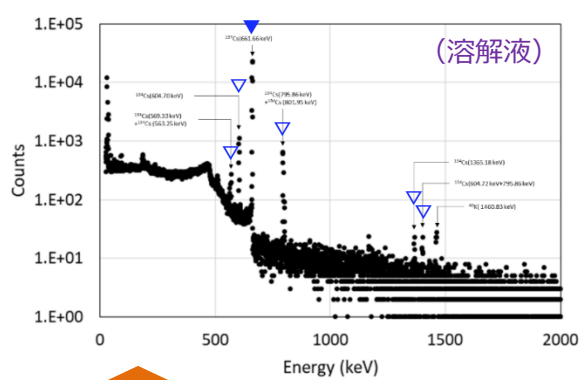
134Cs, 137Csを検出

(3) 排気ダクト劣化部 (金属部)

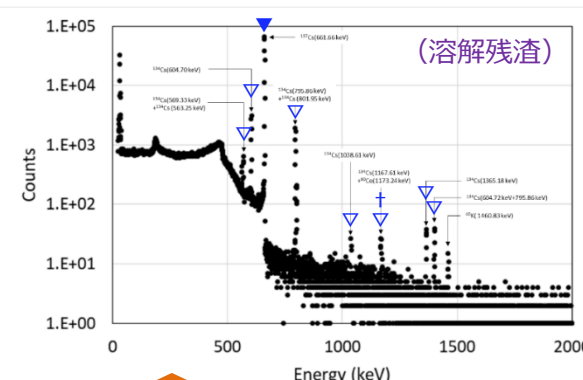
表面部A
(2WEL2103A)



134Cs, 137Csを検出



134Cs, 137Csを検出



60Co, 134Cs, 137Csを検出

(4) 排気ダクト点検口表面部 (ゴムパッキン)

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析

ICP-MS 定量分析 (1)

〈溶解した試料中の核種重量※1〉

試料	Li-6 (ng)	Li-7 (ng)
2PEN2101	<LOQ	<LOQ
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	<LOQ	3.31E+02 ± 2E+00
2WEL2101C	<LOQ	<LOQ
2WEL2102A	<LOQ	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ

試料	B-10 (ng)	B-11 (ng)
2PEN2101	<LOQ	<LOQ
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	1.04E+03 ± 1E+01	4.0E+03 ± 1E+02
2WEL2101C	3.28E+02 ± 1E+00	1.4E+03 ± 1E+02
2WEL2102A	7.35E+02 ± 1E+00	2.9E+03 ± 1E+02
2WEL2103A	2.87E+02 ± 1E+00	1.1E+03 ± 1E+02

試料	Cr-52 (ng)	Cr-53 (ng)
2PEN2101	5E+02 ± 1E+02	5.1E+01 ± 2E+00
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	3.42E+03 ± 6E+01	3.79E+02 ± 1E+00
2WEL2101C	6.3E+02 ± 6E+01	7.2E+01 ± 1E+00
2WEL2102A	7.57E+03 ± 6E+01	8.30E+02 ± 1E+00
2WEL2103A	5.2E+02 ± 6E+01	6.4E+01 ± 1E+00

試料	Fe-56 (ng)	Fe-57 (ng)
2PEN2101	1.10E+04 ± 3E+02	2.4E+02 ± 1E+01
2PEN2102	6.9E+03 ± 3E+02	1.4E+02 ± 1E+01
2WEL2101A	2.35E+07 ± 1E+05	5.23E+05 ± 1E+03
2WEL2101C	1.93E+06 ± 1E+04	4.35E+04 ± 1E+02
2WEL2102A	5.27E+07 ± 1E+05	1.17E+06 ± 1E+04
2WEL2103A	1.07E+07 ± 1E+05	2.31E+05 ± 3E+03

試料	Ni-60 (ng)	Ni-61 (ng)	Ni-62 (ng)
2PEN2101	1.08E+02 ± 1E+00	5.3E+00 ± 8E-01	1.35E+01 ± 8E-01
2PEN2102	3.98E+01 ± 8E-01	1.1E+00 ± 8E-01	3.7E+00 ± 8E-01
2WEL2101A	5.00E+03 ± 1E+01	2.11E+02 ± 1E+00	6.91E+02 ± 1E+00
2WEL2101C	6.4E+02 ± 1E+01	3.2E+01 ± 1E+00	9.08E+01 ± 3E-01
2WEL2102A	4.28E+03 ± 1E+01	1.75E+02 ± 1E+00	5.71E+02 ± 1E+00
2WEL2103A	1.54E+02 ± 1E+00	6.6E+00 ± 8E-01	2.24E+01 ± 8E-01

試料	Mo-95 (ng)	Mo-97 (ng)	Mo-98 (ng)
2PEN2101	4.3E+00 ± 5E-01	3.17E+00 ± 7E-02	7.2E+00 ± 2E-01
2PEN2102	5.4E+00 ± 5E-01	3.93E+00 ± 7E-02	7.7E+00 ± 2E-01
2WEL2101A	6.8E+03 ± 1E+02	6.73E+03 ± 8E+01	8.70E+03 ± 1E+02
2WEL2101C	4.1E+02 ± 1E+01	3.62E+02 ± 8E+00	5.3E+02 ± 1E+01
2WEL2102A	1.5E+02 ± 1E+01	9.6E+01 ± 8E+00	2.4E+02 ± 1E+01
2WEL2103A	6.8E+00 ± 5E-01	3.52E+00 ± 7E-02	1.10E+01 ± 2E-01

試料	Ag-107 (ng)	Ag-109 (ng)
2PEN2101	<LOQ	<LOQ
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	2.94E+01 ± 3E-01	2.7E+02 ± 2E+01
2WEL2101C	5.0E+00 ± 3E-01	9.33E+01 ± 1E-01
2WEL2102A	1.30E+01 ± 3E-01	1.24E+01 ± 1E-01
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ

試料	Cs-133 (ng)
2PEN2101	<LOQ
2PEN2102	<LOQ
2WEL2101A	4.58E+02 ± 5E+00
2WEL2101C	5.8E+01 ± 5E+00
2WEL2102A	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ

試料	Nd-143 (ng)	Nd-145 (ng)	Nd-146 (ng)
2PEN2101	5.7E-01 ± 9E-02	4E-01 ± 3E-01	9E-01 ± 1E-01
2PEN2102	1.12E+00 ± 9E-02	5E-01 ± 3E-01	9E-01 ± 1E-01
2WEL2101A	5.47E+00 ± 9E-02	4.0E+00 ± 3E-01	5.8E+00 ± 1E-01
2WEL2101C	5.4E-01 ± 9E-02	4E-01 ± 3E-01	1.2E+00 ± 1E-01
2WEL2102A	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ	4E-01 ± 1E-01

試料	U-234 (ng)	U-235 (ng)	U-236 (ng)	U-238 (ng)
2PEN2101	2E-01 ± 2E-01	1.49E+01 ± 2.E-01	2.7E+00 ± 2E-01	7.45E+02 ± 6E+00
2PEN2102	4E-01 ± 2E-01	2.56E+01 ± 2E-01	4.5E+00 ± 2E-01	1.33E+03 ± 1E+01
2WEL2101A	2E+00 ± 2E+00	1.68E+02 ± 2E+00	2.6E+01 ± 2E+00	8.05E+03 ± 6E+01
2WEL2101C	<LOQ	1.22E+01 ± 2E-01	2.0E+00 ± 2E-01	5.92E+02 ± 6E+00
2WEL2102A	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

※1 試料全量を溶解し、溶解液中（残渣除く）に含まれる各核種の重量

※2 <LOQ：定量下限(Limit of quantitation)未満

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析

ICP-MS 定量分析 (2)

〈溶解した試料重量あたりの核種重量※1〉

試料	Li-6 (ng/g)	Li-7 (ng/g)
2PEN2101	<LOQ	<LOQ
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	<LOQ	9.45E+03 ± 7E+01
2WEL2101C	<LOQ	<LOQ
2WEL2102A	<LOQ	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ

試料	B-10 (ng/g)	B-11 (ng/g)
2PEN2101	<LOQ	<LOQ
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	2.97E+04 ± 1E+02	1.13E+05 ± 3E+03
2WEL2101C	5.78E+04 ± 1E+02	2.5E+05 ± 2E+04
2WEL2102A	1.18E+04 ± 1E+02	4.7E+04 ± 2E+03
2WEL2103A	1.98E+04 ± 1E+02	7.8E+04 ± 7E+03

試料	Cr-52 (ng/g)	Cr-53 (ng/g)
2PEN2101	8E+03 ± 2E+03	8.9E+02 ± 4E+01
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	9.8E+04 ± 2E+03	1.08E+04 ± 1E+02
2WEL2101C	1.1E+05 ± 1E+04	1.28E+04 ± 2E+02
2WEL2102A	1.21E+05 ± 1E+03	1.33E+04 ± 1E+02
2WEL2103A	3.6E+04 ± 4E+03	4.38E+03 ± 7E+01

試料	Fe-56 (ng/g)	Fe-57 (ng/g)
2PEN2101	1.93E+05 ± 5E+03	4.2E+03 ± 2E+02
2PEN2102	2.00E+05 ± 8E+03	4.2E+03 ± 3E+02
2WEL2101A	6.71E+08 ± 1E+06	1.50E+07 ± 1E+05
2WEL2101C	3.40E+08 ± 1E+06	7.66E+06 ± 2E+04
2WEL2102A	8.45E+08 ± 2E+06	1.88E+07 ± 1E+05
2WEL2103A	7.36E+08 ± 9E+06	1.59E+07 ± 2E+05

試料	Ni-60 (ng/g)	Ni-61 (ng/g)	Ni-62 (ng/g)
2PEN2101	1.90E+03 ± 1E+01	9E+01 ± 1E+01	2.4E+02 ± 1E+01
2PEN2102	1.16E+03 ± 2E+01	3E+01 ± 2E+01	1.1E+02 ± 2E+01
2WEL2101A	1.43E+05 ± 1E+03	6.04E+03 ± 3E+01	1.98E+04 ± 1E+02
2WEL2101C	1.13E+05 ± 3E+03	5.6E+03 ± 2E+02	1.60E+04 ± 1E+02
2WEL2102A	6.87E+04 ± 2E+02	2.80E+03 ± 2E+01	9.16E+03 ± 1E+01
2WEL2103A	1.06E+04 ± 1E+02	4.6E+02 ± 6E+01	1.55E+03 ± 5E+01

試料	Mo-95 (ng/g)	Mo-97 (ng/g)	Mo-98 (ng/g)
2PEN2101	7.6E+01 ± 8E+00	5.6E+01 ± 1E+00	1.26E+02 ± 3E+00
2PEN2102	1.6E+02 ± 1E+01	1.14E+02 ± 2E+00	2.24E+02 ± 5E+00
2WEL2101A	1.95E+05 ± 3E+03	1.92E+05 ± 2E+03	2.49E+05 ± 4E+03
2WEL2101C	7.2E+04 ± 2E+03	6.4E+04 ± 1E+03	9.3E+04 ± 2E+03
2WEL2102A	2.4E+03 ± 2E+02	1.5E+03 ± 1E+02	3.8E+03 ± 2E+02
2WEL2103A	4.7E+02 ± 3E+01	2.43E+02 ± 4E+00	7.6E+02 ± 1E+01

試料	Ag-107 (ng/g)	Ag-109 (ng/g)
2PEN2101	<LOQ	<LOQ
2PEN2102	<LOQ	<LOQ
2WEL2101A	8.40E+02 ± 8E+00	7.7E+03 ± 6.E+02
2WEL2101C	8.9E+02 ± 5E+01	1.64E+04 ± 1E+02
2WEL2102A	2.08E+02 ± 5E+00	1.99E+02 ± 1E+00
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ

試料	Cs-133 (ng/g)
2PEN2101	<LOQ
2PEN2102	<LOQ
2WEL2101A	1.31E+04 ± 1E+02
2WEL2101C	1.02E+04 ± 9E+02
2WEL2102A	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ

試料	Nd-143 (ng/g)	Nd-145 (ng/g)	Nd-146 (ng/g)
2PEN2101	1.0E+01 ± 2E+00	6E+00 ± 5E+00	1.6E+01 ± 2E+00
2PEN2102	3.3E+01 ± 3E+00	1.4E+01 ± 8E+00	2.6E+01 ± 3E+00
2WEL2101A	1.56E+02 ± 3E+00	1.16E+02 ± 8E+00	1.67E+02 ± 3E+00
2WEL2101C	1.0E+02 ± 2E+01	7E+01 ± 5E+01	2.0E+02 ± 2E+01
2WEL2102A	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ	2.4E+01 ± 8E+00

試料	U-234 (ng/g)	U-235 (ng/g)	U-236 (ng/g)	U-238 (ng/g)
2PEN2101	4E+00 ± 3E+00	2.62E+02 ± 3E+00	4.7E+01 ± 3E+00	1.31E+04 ± 1E+02
2PEN2102	1.2E+01 ± 5E+00	7.46E+02 ± 5E+00	1.32E+02 ± 5E+00	3.86E+04 ± 2E+02
2WEL2101A	6E+01 ± 5E+01	4.81E+03 ± 5E+01	7.6E+02 ± 5E+01	2.30E+05 ± 2E+03
2WEL2101C	<LOQ	2.15E+03 ± 3E+01	3.6E+02 ± 3E+01	1.04E+05 ± 1E+03
2WEL2102A	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ
2WEL2103A	<LOQ	<LOQ	<LOQ	<LOQ

※1 試料全量を溶解し、溶解液中（残渣を除く）に含まれる各核種の重量を溶解した試料重量（溶解前重量 - 溶解後重量）で除した値

※2 <LOQ：定量下限(Limit of quantitation)未満

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

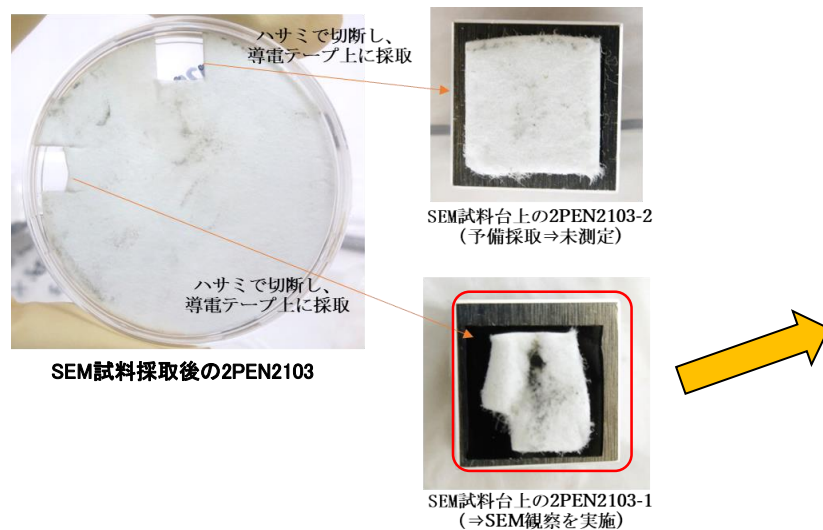
(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

FE-SEM/EDX : X-6ペネ調査装置付着物 (2PEN2103)

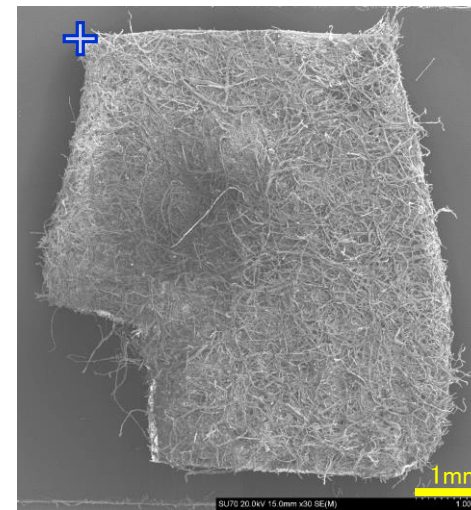
FE-SEM/EDXの結果から着目領域23ヶ所*を抽出し、TEM分析対象として以下を選定

- ⇒ 高酸素濃度U-Zrとして、領域No.6, 14 } 計4ヶ所
 ⇒ 低酸素濃度U-Zrとして、領域No.5, 12 }

- *
 ・ U濃縮部分に着目:14ヶ所
 (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 ⇒ 他の2号機試料と同傾向)
 ・ Zr濃縮個所に着目:4ヶ所
 ・ 特異元素濃縮部分 : 9ヶ所 (Pb,Ti,Cu;各1ヶ所、Ni;2ヶ所)



SEM観察試料の採取位置



各領域の位置(+からの距離) mm

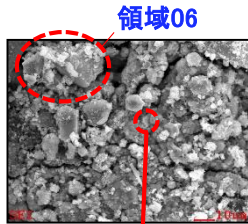
領域No.	右方向へ	下方向へ
1	3.025	1.554
2	3.072	1.602
3	2.727	1.152
4	2.716	1.134
5	2.741	1.147
6	2.689	1.223
7	2.730	1.255
8	2.755	1.239
9	2.734	1.297
10	2.714	1.332
11	2.738	1.339
12	2.730	1.452
13	2.767	1.456
14	2.514	1.397
15	2.552	1.343
16	2.596	1.370
17	2.395	1.430
18	2.469	1.467
19	2.576	0.876
20	2.630	0.977
21	2.550	0.911
22	2.566	0.971
23	2.552	0.947

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

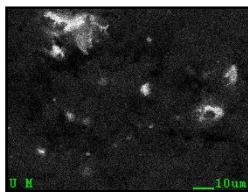
(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

FE-SEM/EDX : X-6ペネ調査装置付着物 (2PEN2103) (1/2)

領域No.6

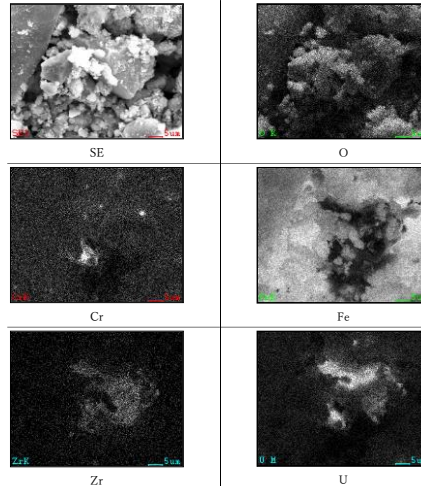


領域06

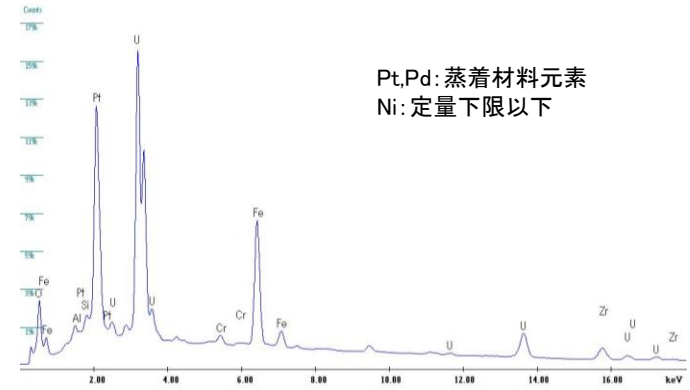


領域07

着目領域の設定



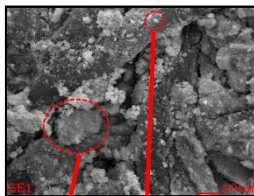
FE-SEM/EDXマッピング



Pt,Pd: 蒸着材料元素
Ni: 定量下限以下

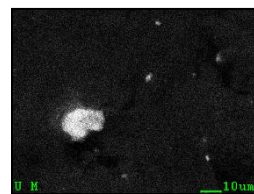
EDX点分析のスペクトル

領域No.14

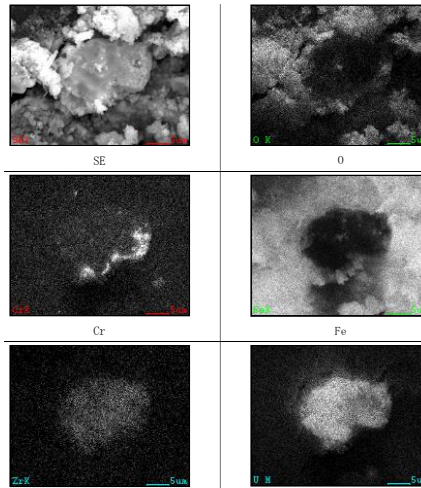


領域14

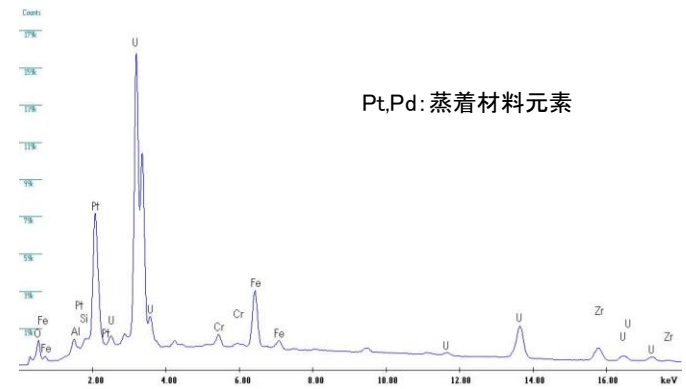
領域15



着目領域の設定



FE-SEM/EDXマッピング



Pt,Pd: 蒸着材料元素

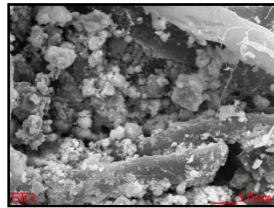
EDX点分析のスペクトル

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

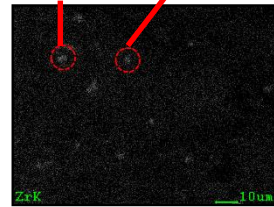
(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

FE-SEM/EDX : X-6ペネ調査装置付着物 (2PEN2103) (2/2)

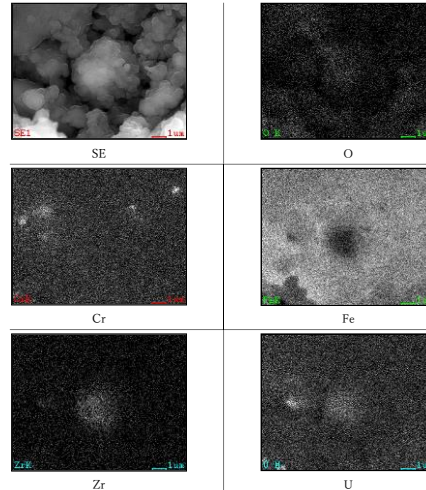
領域No.5



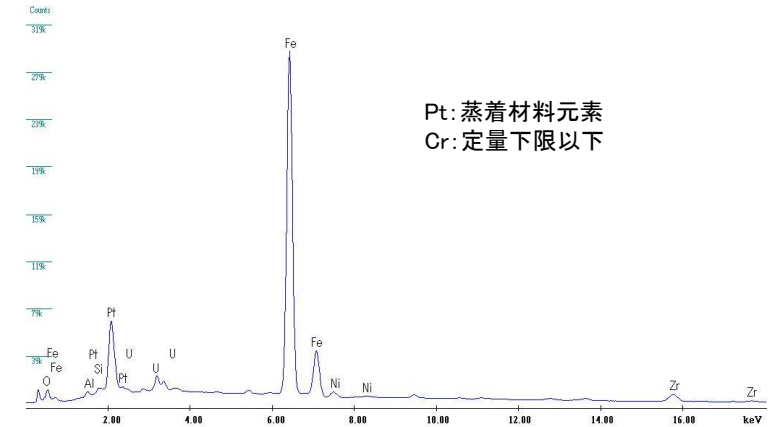
領域04 領域05



着目領域の設定



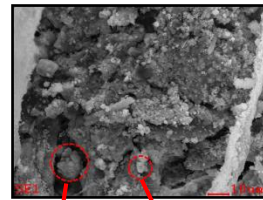
FE-SEM/EDXマッピング



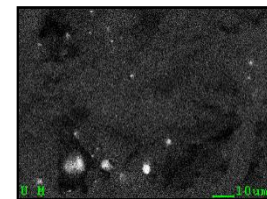
Pt: 蒸着材料元素
Cr: 定量下限以下

EDX点分析のスペクトル

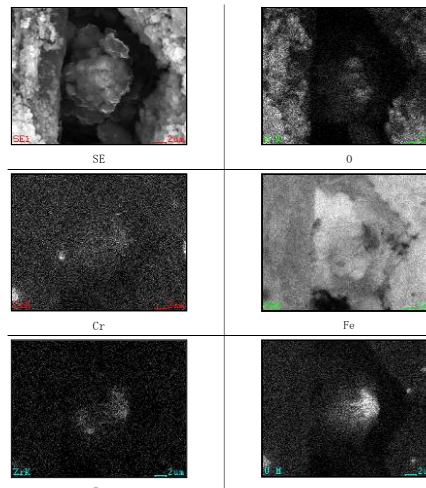
領域No.12



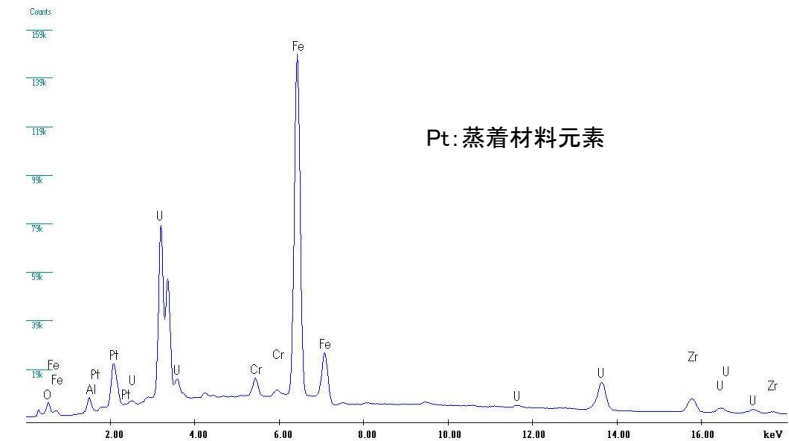
領域12 領域13



着目領域の設定



FE-SEM/EDXマッピング



Pt: 蒸着材料元素

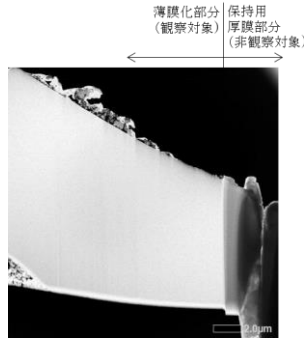
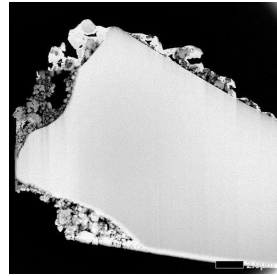
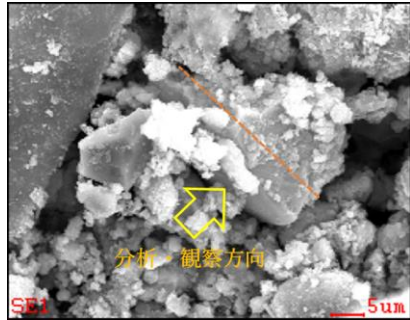
EDX点分析のスペクトル

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

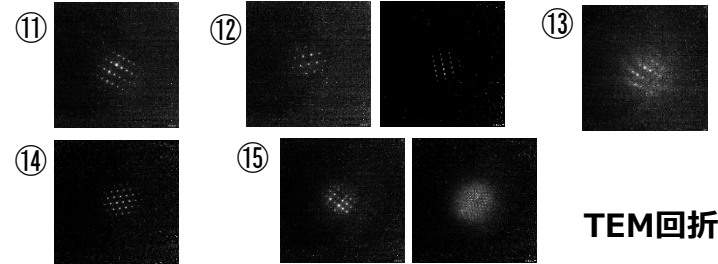
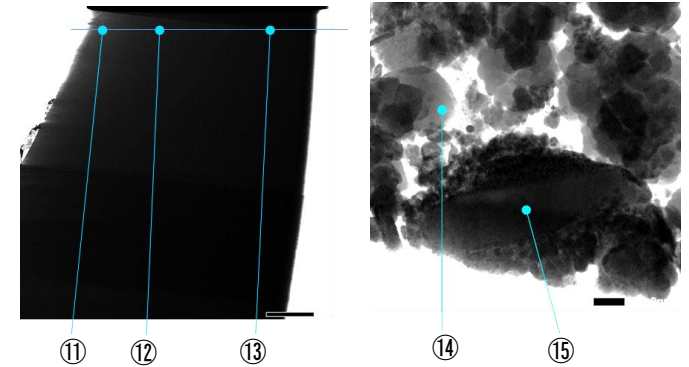
(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

STEM/EDX : X-6ペネ調査装置付着物 (2PEN2103) (1/4)

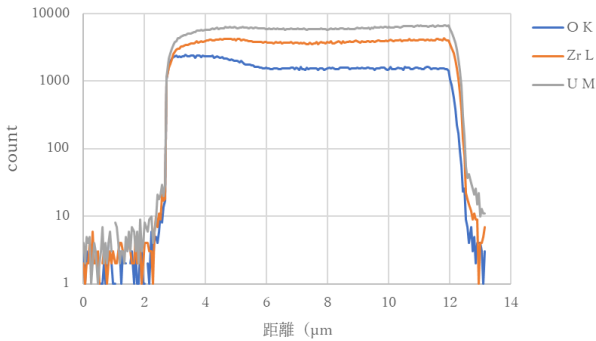
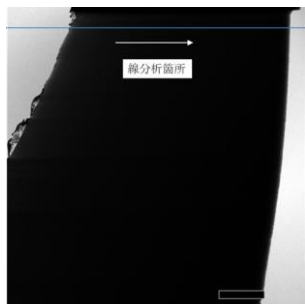
領域No.6



採取箇所・分析/観察方向



TEM回折図形



U含有粒子のSTEM/EDX線分析結果

c : 立方晶

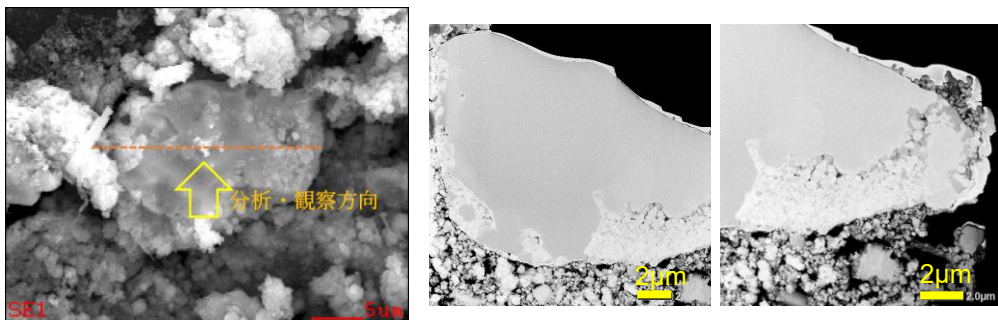
位置	TEM構造解析結果	TEM構造解析所見		EDS結果を含めた主要化学組成の推定
		方位	所見	
⑪	c-UO ₂ (注)	方位[0 $\bar{1}$ 3]	ほぼ同方向から測定した⑪と⑬は、離れた位置で同方位であり、同一結晶粒と見られる。	c-(U,Zr)O ₂
⑫	c-UO ₂	方位[$\bar{4}$ 11], [121]		
⑬	c-UO ₂ (注)	方位[0 $\bar{1}$ 3]		
⑭	c-FeO(注)	方位[1 $\bar{1}$ 0]		c-FeO
⑮	c-FeCr ₂ O ₄	c-FeCr ₂ O ₄ の方位[3 $\bar{3}$ 2], [10 $\bar{1}$]		c-FeCr ₂ O ₄

(注) 1方位のディフラクションからの推定結果

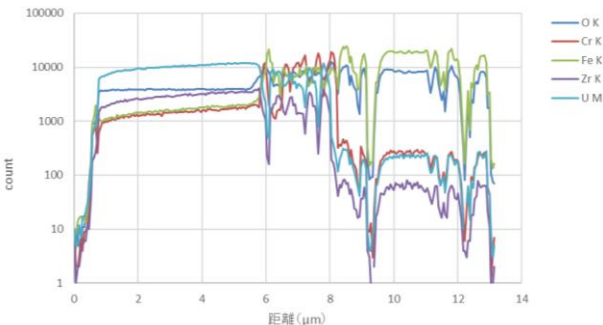
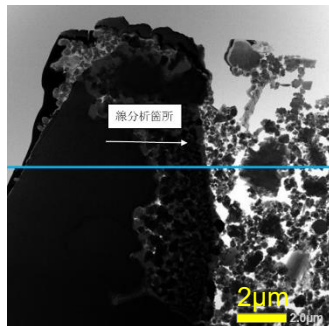
構造解析・主要化学形態の推定結果

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析
 (a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)
 STEM/EDX : X-6ペネ調査装置付着物 (2PEN2103) (2/4)

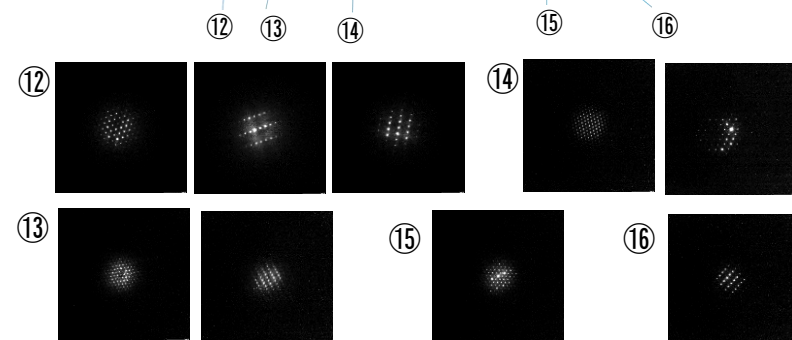
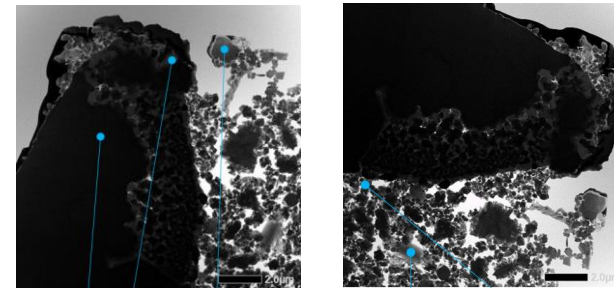
領域No.14



採取箇所・分析/観察方向



U含有粒子のSTEM/EDX 線分析結果



TEM回折図形

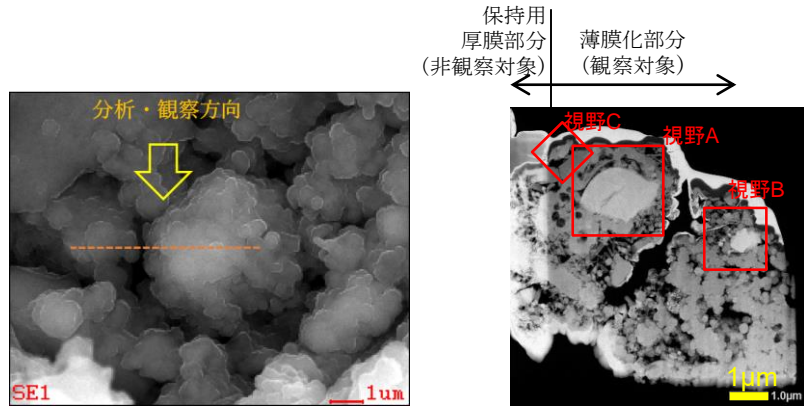
c : 立方晶

位置	TEM 構造解析結果	TEM構造解析所見	EDS結果を含めた 主要化学組成の推定
⑫	c-UO ₂	方位[101], [312̄], [031̄]	c-(U,Zr)O ₂
⑬	c-FeCr ₂ O ₄	方位[101̄], [112̄]	c-FeCr ₂ O ₄
⑭	c-Fe ₃ O ₄	方位[011], [1̄41]	c-Fe ₃ O ₄
⑮	不明	—	SiO ₂ 及びFe ₃ O ₄ /Si-Fe-O
⑯	不明	—	Ca(OH) ₂ /CaCO ₃

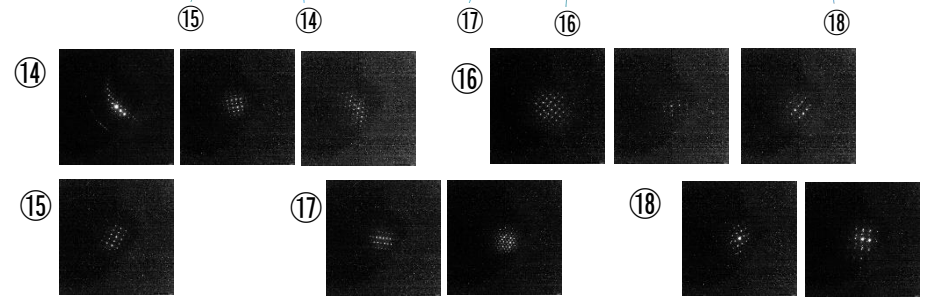
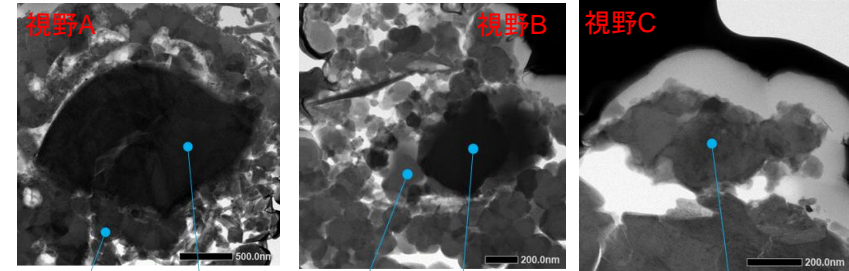
構造解析・主要化学形態の推定結果

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析
 (a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)
 STEM/EDX : X-6ペネ調査装置付着物 (2PEN2103) (3/4)

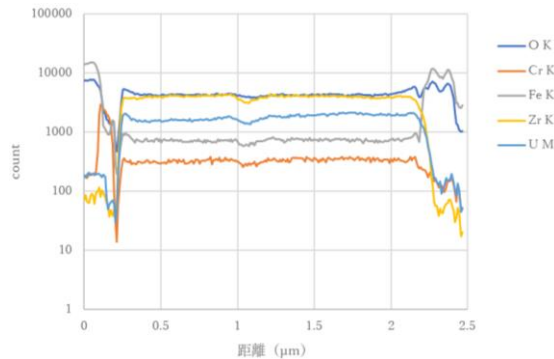
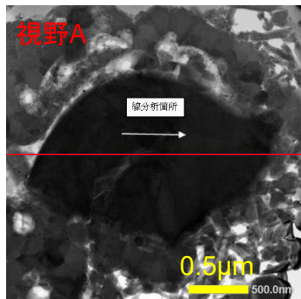
領域No.5



採取箇所・分析/観察方向



TEM回折図形



U含有粒子のSTEM/EDX 線分析結果

c: 立方晶, t: 正方晶

位置	TEM 構造解析結果	TEM構造解析所見	EDS結果を含めた主要化学組成の推定
⑭	t-ZrO ₂	方位[010], [0 9 19], [7 7 15]	t-(Zr,U)O ₂
⑮	c-Fe ₃ O ₄ (注)	方位[233̄]	c-Fe ₃ O ₄
⑯	c-UO ₂	方位[001], [1̄12], [013]	c-(U,Zr)O ₂
⑰	c-FeCr ₂ O ₄	方位[301], [101̄]	c-FeCr ₂ O ₄
⑱	不明	—	Ni ₃ S ₂

(注) 1方位のディフラクションからの推定結果

構造解析・主要化学形態の推定結果

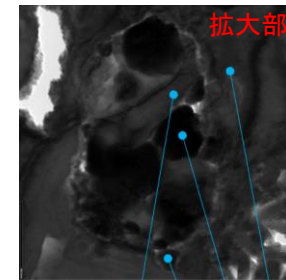
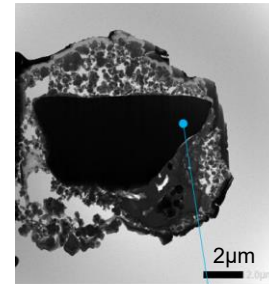
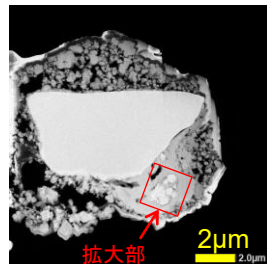
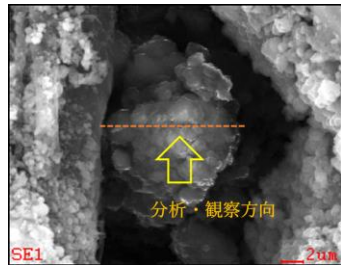
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

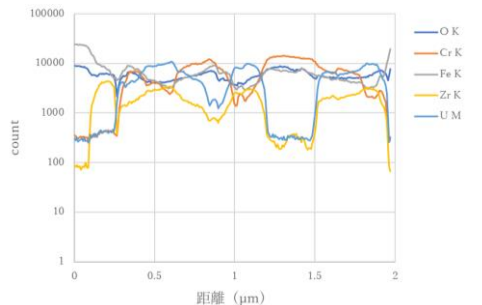
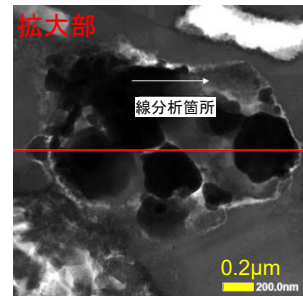
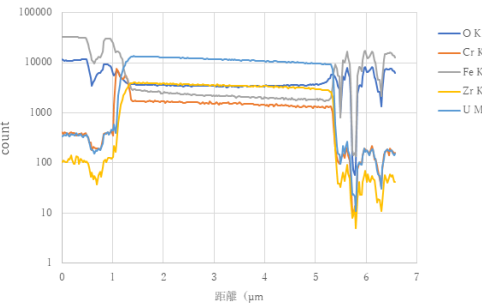
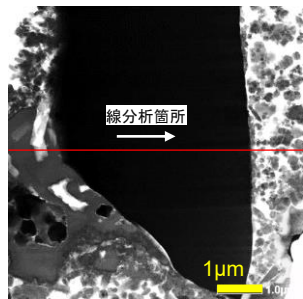
STEM/EDX : X-6ペネ調査装置付着物

(2PEN2103) (4/4)

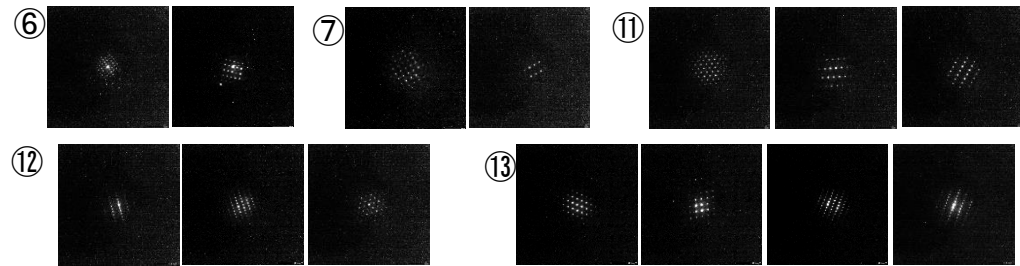
領域No.12



採取箇所・分析/観察方向



U含有粒子のSTEM/EDX 線分析結果



TEM回折図形

c : 立方晶, m : 単斜晶

位置	TEM 構造解析結果	TEM構造解析所見	EDS結果を含めた主要化学組成の推定
⑥	m-ZrO ₂	方位 $[\bar{2}013]$, $[13\bar{7}5]$	m-ZrO ₂
⑦	c-UO ₂	方位 $[100]$, $[3\bar{1}0]$	c-(U,Zr)O ₂
⑪	c-UO ₂	方位 $[101]$, $[031]$, $[12\bar{1}]$	c-(U,Zr)O ₂
⑫	c-FeCr ₂ O ₄	方位 $[312]$, $[211]$, $[11\bar{1}]$	c-FeCr ₂ O ₄
⑬	c-Fe ₃ O ₄	方位 $[\bar{1}41]$, $[\bar{5}21]$, $[\bar{2}11]$, $[3\bar{1}2]$	c-Fe ₃ O ₄

構造解析・主要化学形態の推定結果

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

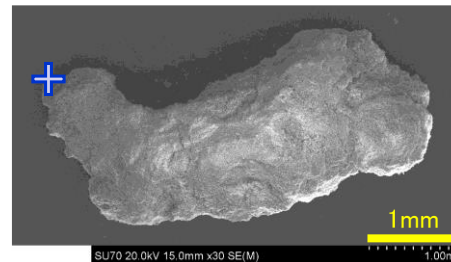
(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

FE-SEM/EDX:ウェル差圧調整ライン内堆積物 (2WEL2101B)

FE-SEM/EDXの結果から着目領域1ヶ所を設定した。

U濃縮部分：4ヶ所、特異元素濃縮部分 (Ti)：1ヶ所、Fe-Oの濃淡差への着目部分：6ヶ所

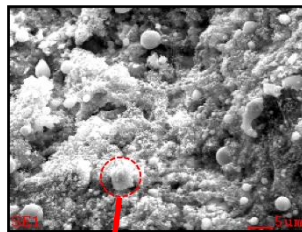
⇒ 領域No.1 (1ヶ所) をTEM分析対象に選定



SEM像

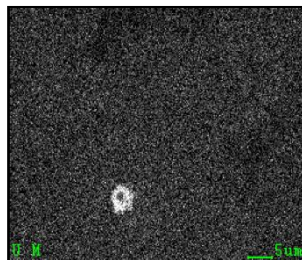
各領域の位置(+からの距離) mm

領域No.	右方向へ	下方向へ
1	3.646	0.884
2	3.655	0.861
3	3.390	0.037
4	3.069	0.747
5	1.167	1.156
6-8	2.232	0.722
9-11	2.276	0.727

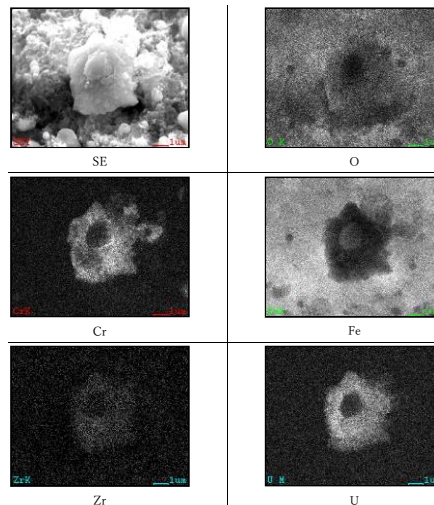


領域01

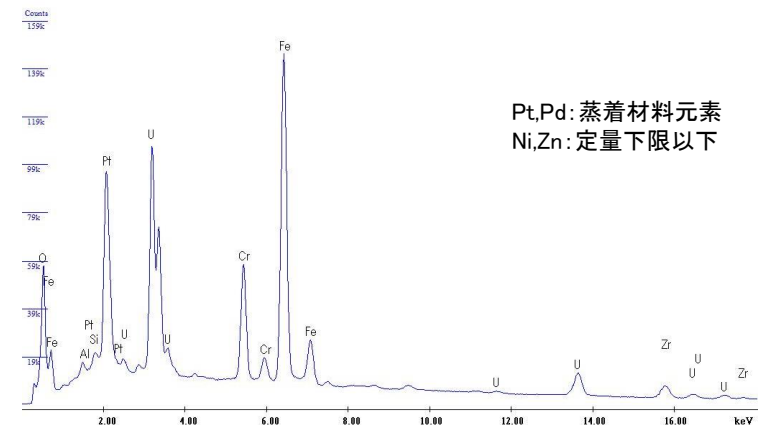
領域No.1



着目領域の設定



FE-SEM/EDXマッピング

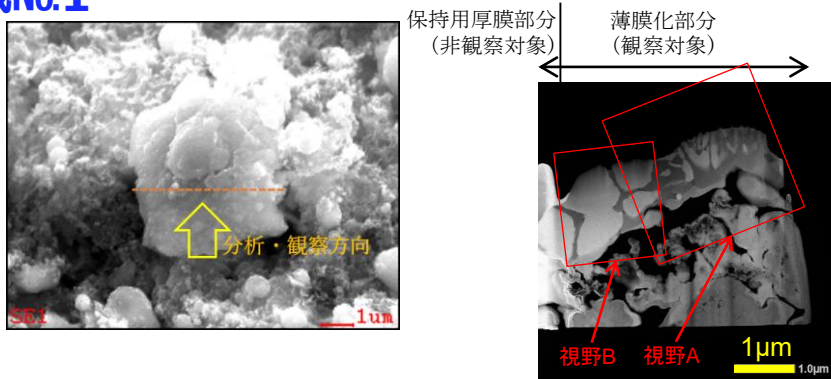


EDX点分析のスペクトル

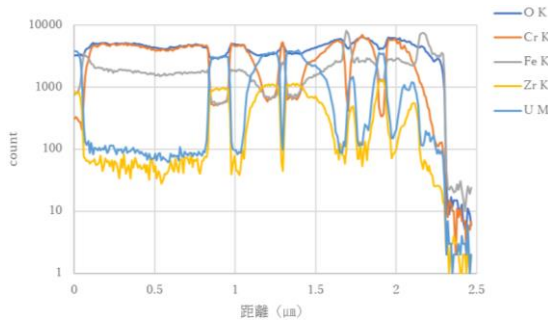
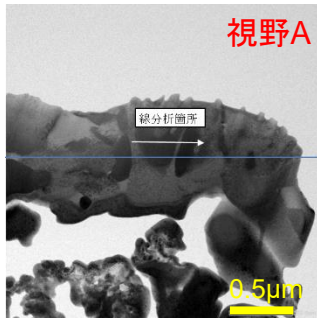
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析 (a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

STEM/EDX: ウェル差圧調整ライン内堆積物 (2WEL2101B)

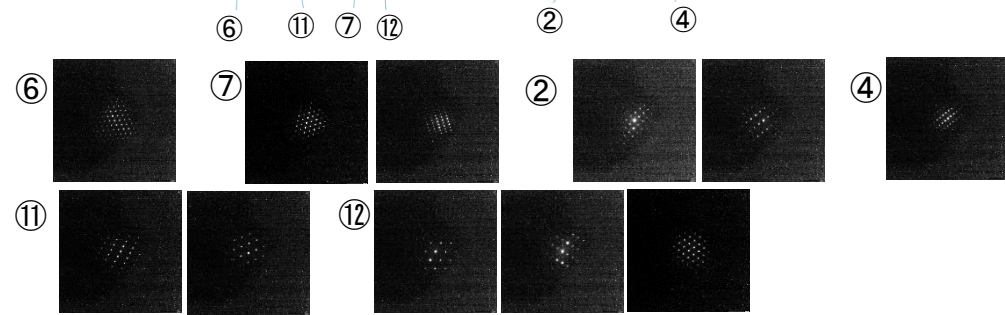
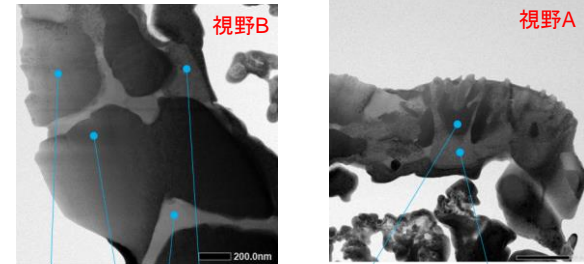
領域No.1



採取箇所・分析/観察方向



U含有粒子のSTEM/EDX線分析結果



TEM回折図形

c: 立方晶

位置	TEM 構造解析結果	TEM構造解析所見	EDS結果を含めた主要化学組成の推定
②	c-UO ₂	方位[001], [0 $\bar{1}$ 3]	c-(U,Zr)O ₂
④	c-FeCr ₂ O ₄ (注)	方位[013]	c-FeCr ₂ O ₄
⑥	c-UO ₂ (注)	方位[0 $\bar{1}$ 1]	c-(U,Zr)O ₂
⑦	c-FeCr ₂ O ₄	方位[1 $\bar{1}$ 1], [1 $\bar{1}$ 2]	c-FeCr ₂ O ₄
⑪	c-UO ₂	方位[0 $\bar{3}$ 1], [0 $\bar{4}$ 1]	c-(U,Zr)O ₂
⑫	c-FeO + c-Fe ₃ O ₄	c-FeO[1 $\bar{1}$ 1], c-FeO[101], c-FeO[112], c-Fe ₃ O ₄ [112]	c-FeO + c-Fe ₃ O ₄

(注) 1方位のディフラクションからの推定結果

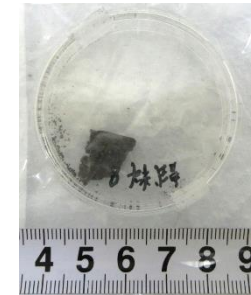
構造解析・主要化学形態の推定結果

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(a) 2021年度受入れサンプルの分析 分析結果 (NFD)

○ 排気ダクト劣化部 (金属部:2WEL2102B)

線量当量率が低く燃料成分や注目FP元素を検出できる見通しが低かったため、FE-SEM/EDX及びTEM分析の対象としなかった。



試料外観
(2WEL2102B)

○ 排気ダクト点検口表面部 (ゴムパッキン:2WEL2103B)

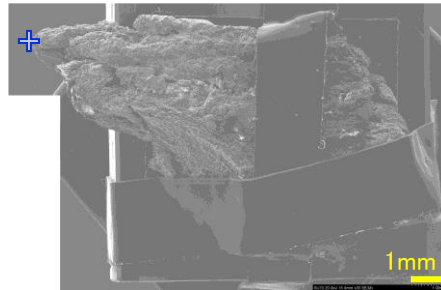
FE-SEM/EDXの結果から着目領域6ヶ所を設定した。

特異元素濃縮部分：6ヶ所 (Ca, Zn, Cd, Mn;各1、Cr;2)

⇒ 燃料成分、注目FP元素を含まなかったことから、TEM分析の領域は設定しなかった。



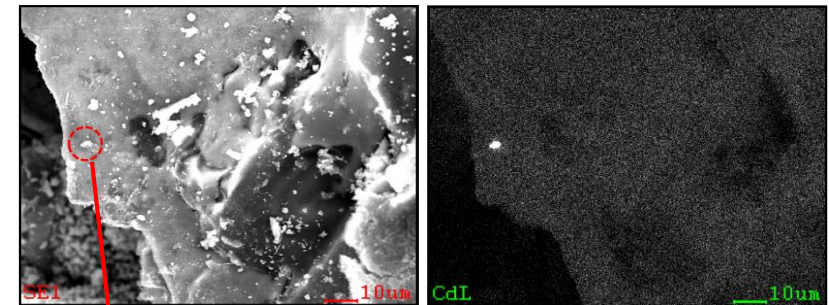
試料外観
(2WEL2103B)



SEM像
(例)

2WEL2103B-2に設定した
各領域の位置(十からの距離) mm

領域No.	右方向へ	下方向へ
3	1.872	0.820
4	9.872	-0.014
5	9.785	-0.013



領域03

特異元素濃縮部分の観察 (Cdの例)

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
 - ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析
 - (b) 2022年度用のサンプル選定

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(b) 2022年度用のサンプル選定

- 2022年度に受入れるサンプルについて、1F内部調査の見通し、分析に必要な期間等を勘案して検討した。結果を以下に示す。

(1) 2号機の試験的取り出し燃料デブリ

- 試験的取り出しは2022年12月開始の計画となっております、現状、スケジュールが前倒しされる可能性は低く、サンプルの輸送時期は2023年になると考えられる*。
- ⇒ **本事業の枠内での分析実施は困難であると判断される。**

*記載は 2021年時点の見通しであり、2022年8月25日の「廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合／事務局会議（第105回）」において、試験的取り出し作業の着手は2023年度後半目途に見直された。

(2) 1号機の水中ROV調査サンプル

- 水中ROV調査では、ペDESTAL下部付近の燃料デブリに近い組成や性状のサンプルが採取される可能性があり、2号機の試験的取り出しサンプルに次ぐ分析意義がある。
- 一方、2022年頭に想定されたスケジュール（7月サンプル採取）でも、受入れ後の分析期間はタイトであったが、3月の地震の影響も見られており、今後調査が本格化しサンプルの採取に至るまでの不確実性が少ない。
- しかしながら、2023年の春以降は試験的取り出し燃料デブリの分析が最優先課題となり、結果的に水中ROV採取サンプルの分析が後回しになる可能性があることから、限定された分析項目であっても2022年度中に実施しておくことが望ましい。
- ⇒ **2022年度の分析対象とし、分析計画（試料数、分析項目）をサンプル輸送時期に応じてフレキシブルに調整して実施する。**

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

(b) 2022年度用のサンプル選定

(3) 年度上期のサンプル分析

- 2021年度に分析したサンプル以降に採取された試料は限られていることから、水中ROV調査サンプルの分析までの期間を利用して、1Fサイト等に保管されている既存サンプルの中から適切なものを選定して分析を実施する。これにより、性状や履歴が不明な1Fサンプルの分析経験を重ねノウハウの蓄積や人材育成並びに燃料デブリの生成過程や性状の推定に寄与するデータの充実化を図る。
- なお、TEM分析については、各年度とも分析点数の制約から優先度の高い領域のみを分析していることから、2021年度以前に受け入れたサンプルの別領域の分析ニーズについても検討する。

⇒ **対象サンプルの選定を行う**。

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化
 - (a) 分析計画の策定

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(a) 分析計画の策定

➤ 2021年度輸送サンプルの分析における関心事項

- **燃料デブリの生成過程**の推定（経験温度、雰囲気、周辺材料との反応など）
 - ⇒ ✓ サンプル中の**U含有粒子（Uを含む微粒子や微小領域）の生成過程**の推定
- **放射性物質の移行挙動**の解明、**現場情報**の把握（ α 粒子の拡がり含む）
 - ⇒ ✓ サンプルの**構成成分（核種・元素）の由来・起源**の推定，
 - ✓ ウェル差圧調整ラインでのCsと腐食生成物との反応の痕跡調査
- **2号機特有の事故進展事象**の解明
- **従来よりもサイズの大きい試料（剥離片）の分析**及び**性状評価手法**の予備的検討

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(a) 分析計画の策定

➤ 分析実施前の検討事項

- 各サンプルの起源、生成過程などに係る仮説の設定

[検討材料]

- PCV内部調査で得られた現場情報（サンプリング場所付近の堆積物・構造材の外観情報、線量など）
- 先行事業のサンプル分析で確認された相状態、検出元素・核種の傾向
- プラントデータなどの既往知見

- 前項による着眼点と分析計画への反映事項の整理 ⇒ **分析実施計画書に反映**
- TEM分析において対象領域を選定する際の優先付け
- サンプル中に存在する可能性がある元素の起源の整理

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(a) 分析計画の策定

2021年度受入れサンプルの分析の着眼点

サンプル名	主な関心事項	分析の着眼点
X-6ペネ調査装置 付着物	<ul style="list-style-type: none"> これまでの2号機のサンプル分析^[1]では(オペフロ、PCV内、TIP管等)、<u>SUS-Zry反応、熔融燃料の急冷過程、水蒸気雰囲気</u>の存在を示唆するなど、<u>事故進展での各反応過程の推定に資する知見が得られているが、PCV領域のサンプル数は限られている。</u>X-6ペネは放射性物質の放出経路のひとつと考えられることから、<u>堆積物中のU、Zr、SUS成分を含む微粒子を分析し、上記の過年度の2号機の分析結果と比較することは有用と考えられる。</u> X-6ペネ内の堆積物は、<u>内部のケーブル被覆の分解のみに由来すると考えると存在量が多いため、多種多様な起源を有すると考えられる(ケーブル銅線、塗料、断熱材、燃料、FP等)。</u>これらの由来を把握することにより、<u>PCV内の雰囲気や経験温度、PCV内からの放出経路の推定に活用できると考えられる。</u> 	<ul style="list-style-type: none"> Zr含有粒子の構成元素、組成、構成相： <ul style="list-style-type: none"> ✓ 酸化物-金属の判定、結晶構造 U含有粒子の構成元素、組成、構成相： <ul style="list-style-type: none"> ✓ Zr/U比、結晶構造 燃料、FP、構造材、PCV内の各種構成材に由来する核種・元素の存在状況 粒子形状、含有元素 ケーブル材成分(Cu)の存在状況
ウェル差圧調整ライン 堆積物	<ul style="list-style-type: none"> 2号機のオペフロサンプルの分析^[1]では、<u>ウラン含有粒子が生成過程の異なる二種類(熔融・凝固、蒸発・凝縮)に大別されている。</u><u>ウェル差圧調整ラインも放射性物質の放出経路のひとつと考えられることから、堆積物中に同様のU、Zr、SUS成分を含む微粒子が含まれる可能性がある。</u>上記のオペフロサンプルの分析結果と比較することは有用と考えられる。 サンプルが塊状である場合、<u>従前の粒子状のサンプルと異なる評価が可能になることが期待され、分析技術開発の観点からも意義がある。</u> 差圧調整ラインからダクトにかけて認められる腐食にはCsの水酸化物や塩素が寄与した可能性があり、<u>堆積物が腐食生成物を含む場合、Csの移行挙動や、ウェルプラグの高汚染をもたらした放射性物質の移行挙動の解明に繋がる</u>ことが期待される。 	<ul style="list-style-type: none"> Zr含有粒子の構成元素、組成、構成相：Zrと構造材成分の同伴性確認、酸化物-金属の判定、結晶構造 U含有粒子の構成元素、組成、構成相：Zr/U比、結晶構造、U-Pu-Zrの同伴性、粒子形状、粒子内部の微細組織 腐食生成物中のCr/Fe比、Ni/Fe比、Fe₂O₃ or Fe₃O₄の判定、Clの有無 Cs含有粒子の構成元素、組成、構成相 U同位体比、TRU核種含有の判定 塊状サンプルの分析、評価手法 堆積物成分の由来判定 表面形状(剥離の痕跡) 粒子形状、含有元素 ケーブル材成分(Cu)の存在状況
排気ダクト劣化部等 (金属部、ゴムパッキン)	「ウェル差圧調整ライン堆積物」と共通	同左

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(a) 分析計画の策定

TEM分析の優先付けに係る検討結果 (1/3)

サンプル	TEM 分析対象 領域候補	優先度 (案) [※]	TEM分析項目	用途	主要な関心事項、コメント	「優先度」 分類理由
X-6ペネ 調査装置 付着物 ID:「2PEN2103」	U濃縮 箇所	◎	粒子中のZr/U比測定	UO ₂ -ZrO ₂ 系の"高温相" の確認	<ul style="list-style-type: none"> 組成・温度に応じた凝固パスの検討(酸化物系)。ひとつの粒子内で相分離したタイプに関心あり。U-Zrが同程度の濃度の粒子から多くの情報が拾える可能性。 RPV内やそれに近い領域の状態推定。PCV外よりはPCV内、FP等マイナー元素よりはUを含む主要元素のふるまいに関心あり。 U粒子内あるいは粒子周囲のFeの分布から、構造材がU粒子生成にどのような役割を果たしたかの評価に使える可能性。 	<ul style="list-style-type: none"> PCV内での燃料由来の主要元素(U,Zr)が含まれる期待大。 評価に際して粒子内部の組成・組織の情報が必要であり、TEMが必須。
			結晶構造(c, t, or m)			
			粒子の形状			
			粒子内部の微細組織(単相or共晶)			
	Zr濃縮 箇所	◎	酸化物/金属の判定(O濃度の高精度測定)	金属デブリの確認	<ul style="list-style-type: none"> 組成・温度に応じた凝固パスの検討。(構造材系、合金系のもの)⇒まずはU,Zrを探したうえで、Fe, Cr, Ni等の主要元素との帯同性を確認。 	<ul style="list-style-type: none"> PCV内での燃料由来の主要元素(U,Zr)が含まれる期待大。 評価に際して粒子内部の組成・組織の情報が必要であり、TEMが必須。
			Zrとその他元素の比率(SUS系:Fe,Cr,Ni)			
			結晶構造(α-Zr, β-Zr, 正方晶, 単斜晶, 非晶質)			
			粒子の形状			
	Cs濃縮 箇所	△	Csとその他元素の比率	Cs移行形態の解明	<ul style="list-style-type: none"> 各所で見つかったSi-Cs球状粒子と同様の性状のものがPCV内で見つかれば、Cs粒子の由来推定に役立てられる可能性。 	<ul style="list-style-type: none"> PCV内での燃料由来のFP成分(Cs)が含まれる期待大。 高精度を要求しない場合はSEMで代用できる可能性あり。
粒子の形状						

※凡例

◎: 必須。積極的に探索をかけ、検出された場合、1領域は必ず測定。

○: FE-SEM (WDX, EDX) のデータがある程度揃った段階で選定。

△: 他のサンプルで「○」に該当するものがなかった場合に選定。

□ FE-SEMの結果からTEM分析の対象領域を選定する際の基準(優先順位)を定めた。

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(a) 分析計画の策定

TEM分析の優先付けに係る検討結果 (2/3)

サンプル	TEM 分析対象 領域候補	優先度 (案)*	TEM分析項目	用途	主要な関心事項	「優先度」 分類理由
ウェル差圧ライン 堆積物 ID:「2WEL2101B」	U濃縮 箇所	○+	粒子中のZr/U比測定	U粒子の移行過程（溶 融・凝固／揮発・凝縮／ 燃料片飛散）の解明、 拡がりの確認	・組成・温度に応じた凝固バスの検討。 （ UO_2 - ZrO_2 系）	・PCV内での燃料由来の主要元素（U,Zr）が含まれる期待 大。ただし長期間の大気露出による変質の可能性あり。 ・評価に際して粒子内部の組成・組織の情報が必要であり、 TEMが必須。 ・X-6ベネ調査装置付着物（2PEN2103）でU粒子が認められ ない場合は優先的に選定。
			結晶構造（c, t, or m）			
			粒子の形状			
			粒子内部の微細組織 （単相or共晶）			
	Zr濃縮 箇所	○+	酸化物／金属の判定 （O濃度の高精度測定）	U粒子の移行過程との差 異	・組成・温度に応じた凝固バスの検討。 （構造材系、合金系）	・PCV内での燃料由来の主要元素（U,Zr）が含まれる期待 大。ただし長期間の大気露出による変質の可能性あり。 ・評価に際し粒子内部の組成・組織の情報が必要であり、 TEMが必須。 ・X-6ベネ調査装置付着物（2PEN2103）でZr粒子が認めら れない場合は優先的に選定。
			Zrとその他元素の比率			
			結晶構造（ α -Zr, β -Zr, 正方晶, 単斜晶, 非晶質）			
			粒子の形状			
	Cs含有領域	◎	Csとその他元素の比率	Csの移行形態の解明（Si 系粒子の生成、または鋼 材や腐食生成物との相 互作用の確認）	・各所で見つかっているSi-Cs球状粒子と同 様の性状のものがPCV内で見つかれば、 Cs粒子の由来推定に役立てられる可能性 ・腐食生成物表面のCs態様と環境条件との 相関。 ・塊全体での性状を把握するうえでの、 TEMの特長の活用（電子線回折による化 合物同定など）。	・高線量であり、Cs濃縮箇所が含まれる期待大。Csの様 態に応じて、評価の観点を柔軟に設定可能。ただし長期 間の大気露出による変質の可能性あり。 ・Si系の粒子が検出できれば、詳細分析によりオベフロサン プル ^[1] との比較が可能。 ・鋼材や腐食生成物との相互作用が疑われる場合、詳細 分析により模擬サンプルとの比較が可能。
粒子の形状						
Fe_3O_4/Fe_2O_3 の判定（Cs含有 領域の周囲に鋼材成分が密 着している場合）						
Cr/Fe比, Ni/Fe比						
Cl有無（SEMで実施）						

※凡例

- ◎: 必須。積極的に探索をかけ、検出された場合、1領域は必ず測定。
- : FE-SEM (WDX, EDX) のデータがある程度揃った段階で選定。
- △: 他のサンプルで「○」に該当するものがなかった場合に選定。

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(a) 分析計画の策定

TEM分析の優先付けに係る検討結果 (3/3)

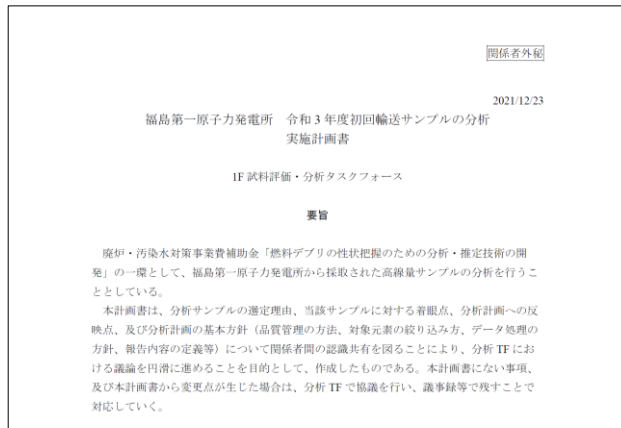
	TEM 分析対象 領域候補	優先度 (案)*	TEM分析項目	用途	主要な関心事項、コメント	「優先度」 分類理由
排気ダクト 劣化部 ID:「2WEL2102B」 (パッキン部とバーター)	U粒子	△	粒子中のZr/U比測定 結晶構造 (c, t, or m) 粒子の形状 粒子内部の微細組織 (単相or共晶)	U粒子の移行過程 (溶融・凝固／揮発・凝縮／燃料片飛散)の解明、拡がりの確認	・組成・温度に応じた凝固パスの検討。 (UO_2 - ZrO_2 系)	・サンプルの位置づけはパッキン部(2WEL2103B)と同様。ただしパッキン部よりも線量が低いため、予備扱いとなる公算大。
	Zr粒子	△	酸化物／金属の判定 (O濃度の高精度測定) Zrとその他元素の比率 結晶構造 (α -Zr, β -Zr, 正方晶, 単斜晶, 非晶質) 粒子の形状	U粒子の移行過程との差異	・組成・温度に応じた凝固パスの検討。 (構造材系、合金系)	・サンプルの位置づけはパッキン部(2WEL2103B)と同様。ただしパッキン部よりも線量が低いため、予備扱いとなる公算大。
	Cs含有領域	○	Csとその他元素の比率 粒子の形状 Fe_3O_4/Fe_2O_3 の判定 (Cs含有領域の周囲に鋼材成分が密着している場合) Cr/Fe比, Ni/Fe比, Zn/Fe比 Cl有無 (SEMで実施)	Csの移行形態の解明 (Si系粒子の生成、または鋼材や腐食生成物との相互作用の確認)	・各所で見つかっているSi-Ce球状粒子と同様の性状のものがPCV内で見つければ、Cs粒子の由来推定に役立てられる可能性。 ・腐食生成物表面のCs態様と環境条件との相関。 ・塊全体での性状を把握するうえでの、TEMの特長の活用 (電子線回折による化合物同定など)。	・サンプルの位置づけはパッキン部(2WEL2103B)と同様。ただしパッキン部よりも線量が低いため、予備扱いとなる公算大。
排気ダクト 点検口表面部 ID:「2WEL2103B」 (劣化部とバーター)	U粒子	○	排気ダクト劣化部と同じ	排気ダクト劣化部と同じ	排気ダクト劣化部と同じ	・堆積物(2WEL2101B)でU粒子が認められない場合の代替として設定。ただし長期間の大気露出による変質の可能性あり。 ・劣化部(2WEL2102B)よりも線量が高く、燃料由来元素の特徴箇所検出への期待は比較的大きい。
	Zr粒子	○	〃	〃	〃	〃
	Cs含有領域	○+	〃	〃	〃	・堆積物(2WEL2101B)でCsの特徴箇所が認められない場合に優先的に設定。ただし長期間の大気露出による変質の可能性あり。 ・劣化部(2WEL2102B)よりも線量が高く、燃料由来元素の特徴箇所検出への期待は比較的大きい。

※優先度欄の◎○△の意味は、前ページの凡例を参照のこと

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(a) 分析計画の策定

関係者間で共有した『分析実施計画書』の概要



- 構成 -

1. 緒言
 - 従来成果と課題、目的
2. 分析サンプルの基本情報
 - 採取、保管時の状態、外観・線量等
3. 分析の着眼点及び分析計画への反映点
4. 分析計画の基本方針
 - 各施設（JAEA大洗、NFD）での分析フローの設定方針、報告する分析データの種類と報告様式、個々の分析方法及びデータ処理の考え方
5. 実施体制
6. 実施時期

データ品質管理に係る留意事項の例

- WDXによる元素マップ
 - 他元素とのピーク干渉（サブピーク、マイナーピークの影響）による影響
 - ベースの上昇（Uが存在するときの低波長側での上昇など）による影響
- EDSによる元素マップ・半定量分析
 - 周囲/表面の影響、システムからの影響
 - 他元素とのピーク干渉と除去
 - 半定量時の各元素に対するベースライン（バックグラウンド）の取り方
- ICP-MSによる定性分析
 - 操作ブランク測定とブランク測定の位置づけ
 - 同一の質量数の影響
 - 最終的には、質量数ではなく核種の存在として提示
 - 定性分析の結果の使い方（概数として使えるものと、数値的に取り扱ってはいけないものの区別等）
- ICP-MSによる定量分析
 - 検量線の作成法（濃度領域、ばらつき等）
 - 誤差（確からしさ）の評価結果と確からしさの種類に沿った表記

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化
 - (b) 取得した分析データの評価

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

分析データの取得及び評価状況（2022年3月末時点）

	試料ID	分析機関	外観・IP	FE-SEM EDX or WDX	TEM	ICP 定性／定量	放射線 定性／定量
X-6ペネ	2PEN2101	JAEA	●	● (WDX)	—	○／●	●／●
	2PEN2102	JAEA	●	● (WDX)	—	○／●	●／●
	2PEN2103	NFD	○ (外観のみ)	○ (EDX)	○	—	—
ライン堆積物	2WEL2101A	JAEA	●	● (WDX)	—	○／●	●／●
	2WEL2101B	NFD	○ (外観のみ)	○ (EDX)	○	—	—
	2WEL2101C	JAEA	●	● (WDX)	—	○／●	●／●
金属片	2WEL2102A	JAEA	●	● (WDX)	—	○／●	●／●
	2WEL2102B	NFD	○ (外観のみ)	—	—	—	—
パッキン	2WEL2103A	JAEA	●	● (WDX)	—	○／●	●／●
	2WEL2103B	NFD	○ (外観のみ)	○ (EDX)	—	—	—

- : 分析データ取得・評価済み
- : 分析データ取得済み(次年度に評価)
- : 計画無し

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

分析結果の整理とサンプルに含まれる成分の由来候補・生成過程の推定結果 (1/4)

・2号機X-6ペネ調査装置付着物

分析項目	サンプル名	分析結果	成分由来の推定	生成過程の推定
FE-SEM/WDX	2PEN2101	U-Puの粒子が存在	ウラン燃料由来	ウラン燃料起源(Zrは含まないか限りなく低い)。燃料片の飛散または溶融・凝固過程を経た可能性あり。
		観察領域の大部分はAlおよびCaを主成分とする粒子	Siが含まれないことから、コンクリート以外の材料(海水、保温材、計装材)を由来とする可能性あり。	—
		Fe-Zn粒子, Ni-Cu-Zn粒子, およびTi粒子が存在	Crが含まれないことから、健全な状態のSUSやインコネルではなく、構造材の腐食生成物、計装材料、塗料に由来	—
	2PEN2102	U-Zrの粒子が存在	UとZrが共存していることから、ウラン燃料とジルカロイの溶融物由来	Zrを含むことから、気相からの凝縮で生成したものではなく、溶融・凝固、またはUO ₂ やZrを起源とした微細粒子の凝集を経た可能性。(TEM/EDXの結果に基づく考察要)
		U粒子の近傍にAl, Ca, Mg, Znを含む粒子が存在	Siが含まれないことから、コンクリート以外の成分由来(海水、保温材、計装材)	—
		U粒子の周囲にFe-Ni, Cr, Pb粒子が存在	構造材(ステンレス鋼やインコネル)の腐食生成物、遮蔽材や計装材料および塗料由来	—
ICP-MS (定量分析)	2PEN2101 2PEN2102	Cr(^{52, 53} Cr), Fe(^{56, 57} Fe), Ni(^{60, 61, 62} Ni), Mo(^{95, 97, 98} Mo), Nd(^{143, 145, 146} Nd), U(^{234, 235, 236, 238} U)を同定	ウラン燃料, Moグリス, 構造材(ステンレス鋼, インコネル, 炭素鋼など), 計装材など(同位体比やSEM観察結果から判断)	—
放射線測定 (γ線測定)	〃	⁶⁰ Co, ¹⁰⁶ Rh, ¹²⁵ Sb, ¹³⁴ Cs, ¹³⁷ Cs, ¹⁴⁴ Ce, ¹⁵⁴ Eu, ¹⁵⁵ Eu, ²⁴¹ Am, ²⁴³ Amを同定	放射化生成物, 燃料中のFP・TRU核種	—

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

分析結果の整理とサンプルに含まれる成分の由来候補・生成過程の推定結果 (2/4)

・2号機ウェル差圧調整ライン堆積物

分析項目	サンプル名	分析結果	成分由来の推定	生成過程の推定
FE-SEM/WDX	2WEL2101A 2WEL2101C	U-Zr粒子が腐食生成物の表面またはその近傍に存在	UとZrが共存していることから、ウラン燃料とジルカロイの熔融物由来	Zrを含むことから、気相からの凝縮により生成したものではなく、熔融・凝固、またはUO ₂ やZrを起源とした微細粒子の凝集を経た可能性。(TEM/EDXの結果に基づく考察要)
		Fe-Crの存在箇所はU-Zrの存在箇所に隣接。(2WEL2101A)	SUSが部分的に酸化されFe-Cr酸化物となり、U粒子生成に寄与した可能性	U-Zr-Fe-Cr-O系の融体から凝固する過程、またはFe-Cr-O系の融体に比較的高融点のUO ₂ -ZrO ₂ 系の粒子が接触する過程を経た可能性。(TEM/EDXの結果に基づく考察要)
		U-Zrの存在箇所にCrが存在。同じ箇所にFeの明確な輝点は認められないが帯同の可能性もある。(2WEL2101C)		
		Feを主成分とする領域には、部分的にZnが帯同しているが、Crの帯同は明確でない。	Crが含まれないことから、健全な状態のSUSやインコネルではなく、Znを含む塗料や炭素鋼(メッキ加工)の腐食生成物由来	—
		腐食生成物表面にCsの濃集領域は認められない。(SEM/EDXでも同様)	—	Csは微粒子として付着しているのではなく、腐食生成物の表面に分布している可能性(CsFeO ₂ のような複合酸化物の生成との判別は困難)
放射線測定(γ線測定)	2WEL2101A 2WEL2101C	¹²⁵ Sb, ¹³⁴ Cs, ¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co, ¹⁵⁴ Euを同定。	燃料中のFP核種	—
ICP-MS(定量分析)	2WEL2101A 2WEL2101C	Li(⁷ Li), B(^{10, 11} B), Cr(^{52, 53} Cr), Fe(^{56, 57} Fe), Ni(^{60, 61, 62} Ni), Mo(^{95, 97, 98} Mo), U(^{234, 235, 236, 238} U), Cs(¹³³ Cs), Ag(^{107, 109} Ag), Nd(^{143, 145, 146} Nd)を同定。当該サンプルの大部分は、Feで構成	炭素鋼(腐食生成物)を主成分とし、ごく少量のSUSやインコネル成分を含む可能性あり。 その他、ウラン燃料(U、Mo、Ag)、Moグリス、中性子吸収材、海水(Li、B)(同位体比やSEM観察結果から判断)	—

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

分析結果の整理とサンプルに含まれる成分の由来候補・生成過程の推定結果 (3/4)

・2号機排気ダクト劣化部 (金属部)

分析項目	サンプル名	分析結果	成分由来の推定	生成過程の推定
FE-SEM/WDX	2WEL2102A	Feを主成分とする面の上に、 U-Pu 粒子、およびMg-Siの粒子が存在	ウラン燃料由来	U粒子はPuを帯同する一方で、Zr, Cr, Fe, Niのいずれも含まないことから、ウラン燃料がジルカロイやSUSなどの構造材を巻き込んで生成したものではない。
		Feを主成分とする領域にはZnやCrの帯同は認められない。 Feを主成分とする面上にClが分布。	点検口構成材料の腐食生成物	—
		Mg-Si粒子上には、Al, Cr, Ni, Znが点在	コンクリート、計装材料、保温材、塗料、構造材など様々な材料に由来	—
		腐食生成物表面にCsの濃集領域は認められない。	—	Csは微粒子として付着しているのではなく、腐食生成物の表面に分布している可能性 (CsFeO ₂ のような複合酸化物の生成との判別は困難)
放射線測定 (γ線測定)	2WEL2102A	¹³⁴ Cs, ¹³⁷ Csを同定	燃料中のFP核種	—
ICP-MS (定量分析)	2WEL2102A	B (^{10, 11} B), Cr (^{52, 53} Cr), Fe (^{56, 57} Fe), Ni (^{60, 61, 62} Ni), Mo (^{95, 97, 98} Mo), Ag (^{107, 109} Ag)を同定。サンプル重量の大部分をFeが占める。	点検口構成材料の腐食生成物を主成分とし、ごく少量のSUSやインコネル成分を含む可能性あり。その他、Moグリス、中性子吸収材、海水(B)など。 (同位体比やSEM観察結果から判断)	—

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

分析結果の整理とサンプルに含まれる成分の由来候補・生成過程の推定結果 (4/4)

・2号機点検口表面部 (パッキン部)

分析項目	サンプル名	分析結果	成分由来の推定	生成過程の推定
FE-SEM/WDX	2WEL2103A	長径2 μ m程度のU-Zr粒子を確認。	UとZrが共存していることから、ウラン燃料とジルカロイの溶融物由来	Zrを含むことから、気相からの凝縮により生成したものではなく、溶融・凝固、または UO_2 やZrを起源とした微細粒子の凝集を経た可能性。(TEM/EDXの結果に基づく考察要)
		周辺広範囲にFeが分布	Feを主成分とする領域ではCrの帯同が明確でないことから、炭素鋼の腐食生成物またはSUS由来のFeリッチな腐食生成物の可能性。	—
		表面にCsの濃集領域は認められない。	—	Csは、微粒子として付着しているのではなく、腐食生成物の表面に分布している可能性($CsFeO_2$ のような複合酸化物の生成との判別は困難)
放射線測定 (γ 線測定)	2WEL2103A	^{134}Cs , ^{137}Cs を同定。	燃料中のFP核種	—
ICP-MS (定量分析)	2WEL2103A	B ($^{10, 11}B$), Cr ($^{52, 53}Cr$), Fe ($^{56, 57}Fe$), Ni ($^{60, 61, 62}Ni$), Mo ($^{95, 97, 98}Mo$), Nd (^{146}Nd)を同定	点検口構成材料の腐食生成物を主成分とし、ごく少量のSUSやインコネル成分を含む可能性あり。その他、Moグリズ、中性子吸収材、海水(B)など。(同位体比やSEM観察結果から判断)	—

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(b) 取得した分析データの評価

サンプル構成成分の由来・起源の推定（2021年度 実施結果）

- PCV内サンプル（X-6ペネ調査装置付着物）は、燃料成分のほか、構造材、塗料・計装材料・保温材を由来の候補とする幅広い範囲の元素を含んでいる。
- PCV外サンプル（ウェル差圧ライン堆積物、排気ダクト部）は、鋼材あるいはその腐食生成物を主成分とし、その表面に、燃料成分のほか、構造材、塗料・計装材料・保温材など、PCV内に由来を持つと考えられる元素を含んでいる。

活用したデータ：SEM/WDS, ICP-MS(定量分析), γ線分析

主要な同定元素と材料との対応(サンプルごとの詳細はp.1-61～65の表に示す。)

主要同定元素	材料候補
U, Pu, Am, Cs, Ce, Eu, Rh, Sb	燃料(U, TRU, FP)
Zr	被覆管・チャンネルボックス
Fe, Cr, Ni	構造材(SUS, 炭素鋼, インコネルなど)
Ti, Zn, Cu, Ni, Mg [※] , Sb, Ca [※] , Al [※] , Pb	塗料・計装材料・保温材・遮蔽材
Mo	グリス, 構造材(SUS316, 炭素鋼など)

※海水中にも微量に存在

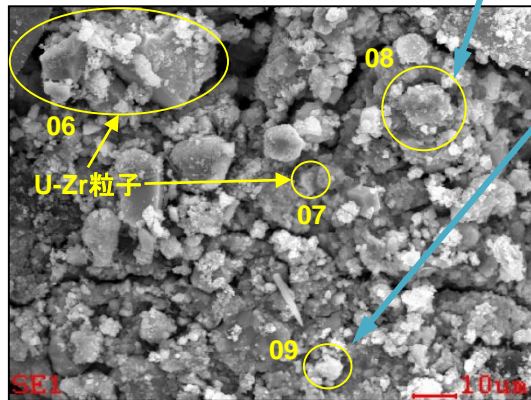
② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプル構成成分の由来・起源の推定 (2022年度に実施する内容)

- 2021年度内に精査が未了であった分析データの評価を進め、検討対象の元素範囲を拡張して、これらの評価結果の補強を行う。

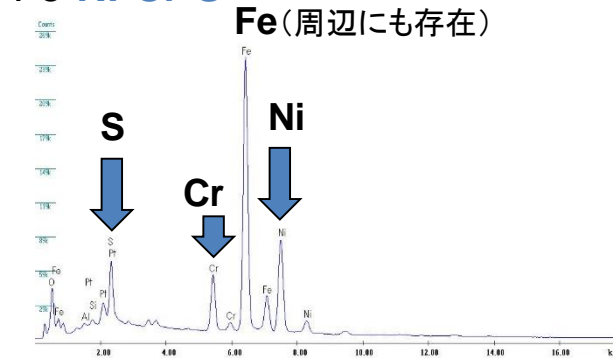
SEM/EDS結果の活用

⇒ SEM/WDSよりも広範囲の元素をカバーできるため、燃料成分(UやZr)以外の様々な成分由来を評価する。

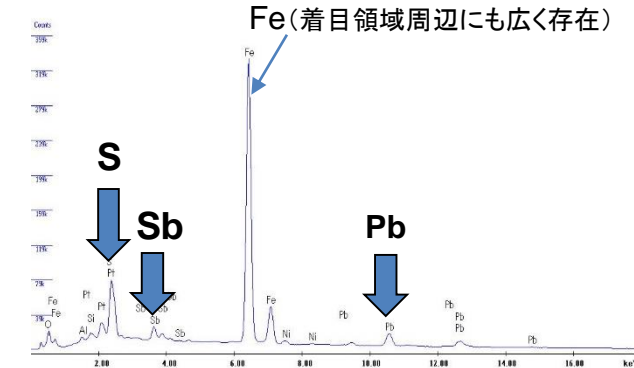


U-Zr粒子周辺のSEM画像(例)
(図中の番号は着目領域の附番)

Fe-Ni-Cr-S



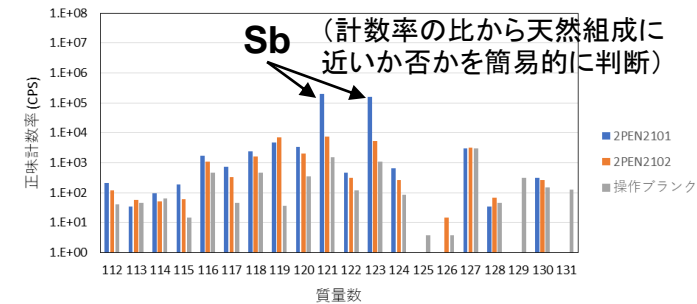
Pb-S(+少量のSb)



着目領域でのEDS点分析スペクトル

ICP-MS定性分析結果の活用

⇒ 定量分析での着目元素以外の微量元素を確認し、SEM観察での考察を補強する。



ICP-MS定性分析結果(例)
(質量数112~131)

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

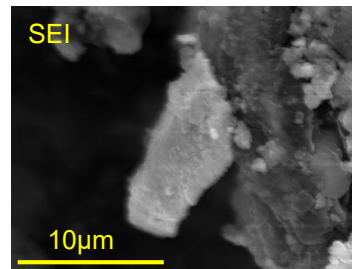
U含有粒子の生成過程の推定 (2021年度 実施結果)

U含有粒子のSEM/WDSの元素マッピングから、粒子の成り立ちを大まかに推定した。

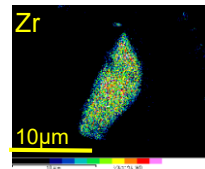
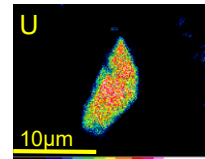
- ✓ 元素間の同伴性については、粒子表面上での傾向である点に留意
- ✓ 粒子断面(本頁とは異なる粒子)のTEM分析データを用いた詳細評価を令和4年度に実施(次頁参照)

U-Zr粒子

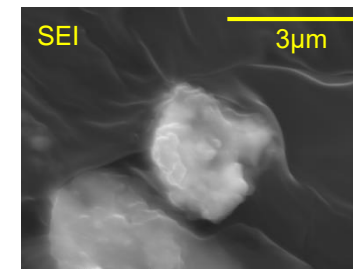
- ✓ 気相からの凝縮で生成したものではなく、熔融・凝固、または UO_2 やZrを起源とした微細粒子の凝集を経た可能性



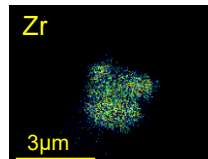
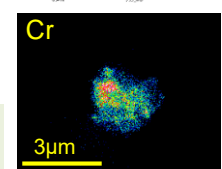
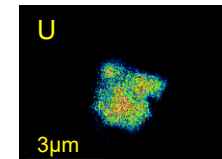
X-6ペネ調査装置付着物
2PEN2102



周辺のFeリッチな粒子との関連は不明



ウェル差圧調整ライン堆積物
2WEL2102A

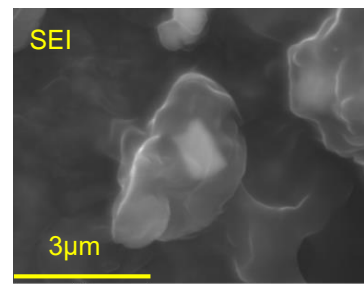


U-Zrを高濃度に含む領域とFe-Crを高濃度に含む領域から構成されている可能性

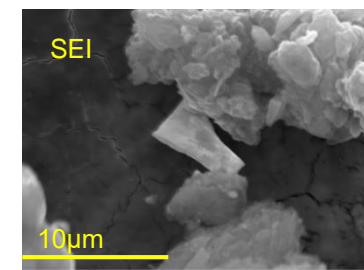
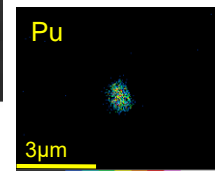
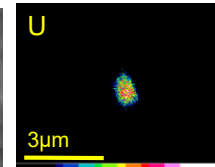
U-Pu粒子

- ✓ ウラン燃料起源(Zrは含まないか限りなく低い)。現時点では、燃料片の飛散、熔融・凝固過程のいずれの可能性も考えられる。(TEMの追加分析により詳細を明らかにできる可能性あり)

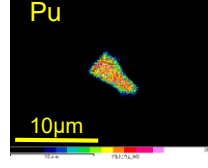
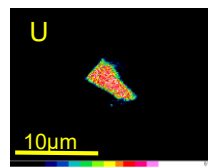
- ※ 不定形な形状や大きさ($\geq 1 \mu m$)から、蒸発・凝縮で生成した粒子の単体である見込みは薄い。



X-6ペネ調査装置付着物
2PEN2101



排気ダクト劣化部
2WEL2102A



② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

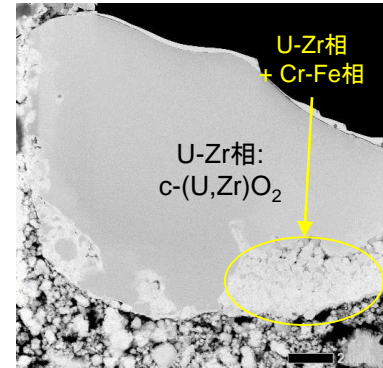
U含有粒子の生成過程の推定 (2022年度に実施する内容)

- U含有粒子のTEM分析データ(令和3年度に取得)の精査を進め、その生成に関与した材料、経験温度、雰囲気条件など、粒子生成に至る条件を推定する。

□ TEM分析データの大まかな傾向(生データに基づく)

U-Zr相

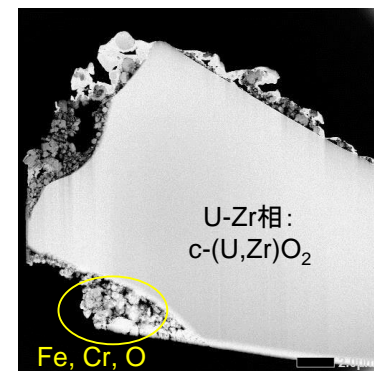
- ✓ UとZrがほぼ均質に分布した立方晶相(U:Zr~6:4から5:5)が生成
(最大10~20 μm 程度の長さ)
- ✓ 正方晶相(U:Zr~1:9)及び単斜晶相(U:Zr~0:10)の単体粒子も存在
- ✓ $\alpha\text{-Zr(O)}$ は同定されていない。



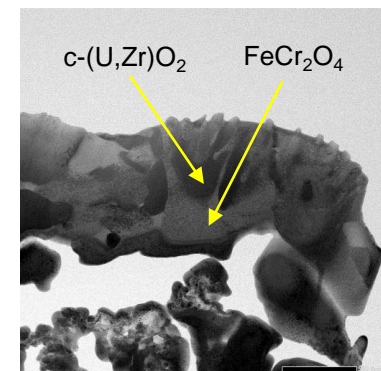
TEM2
(2PEN2103, 領域14)

Cr-Fe相(またはFe相)

- ✓ 電子線回折及びTEM/EDSにより、 FeCr_2O_4 (立方晶), Fe_3O_4 (立方晶), FeO (立方晶)として存在していることを確認
- ✓ U-Zr相の周辺に存在(右図TEM3), またはU-Zr相と入り混じった組織を生成(右図TEM2, TEM5)
⇒ 後者は、構造材成分が混ざった融体(U-Zr-Fe-Cr-O)となっていた可能性



TEM3
(2PEN2103, 領域6)



TEM5
(2WEL2101B, 領域1)

図 TEMで観察されたU-Zr相とCr-Fe相の位置関係の例

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプル中の含有元素の由来・起源の評価結果 (1/6)

X-6ペネ調査装置付着物 (1/2)

元素	当該元素を含む材料の候補	分析結果の特徴	由来・起源の評価結果
Mg	海水 ^[1] , コンクリート ^[2] , ケーブル絶縁体 ^[3] , etc.	【WDX】 粒子状および Al, Ca, Mg, Zn で共存	海水, 計装材料(ケーブル絶縁体など)
Al	海水 ^[1] , コンクリート ^[2] , 保温材 ^[3] , etc.	【WDX】 粒子状および Al, Ca, Mg, Zn で共存	海水, 保温材など
Ca	海水 ^[1] , コンクリート ^[2] , ケーブルシース ^[3] , etc.	【WDX】 粒子状および Al, Ca, Mg, Zn で共存	海水, 計装材料(ケーブルシースなど)
Ti	塗料 ^[3] , インコネル ^[2] , コンクリート ^[2] , etc.	【WDX】 Ti 粒子	塗料
Cr	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{52, 53} Cr 検出(天然同位体比に近い) 【WDX】 Cr 粒子	構造材(SUS, インコネルなど)
Fe	炭素鋼 ^[2] , SUS ^[2] , インコネル ^[2] , コンクリート ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{56, 57} Fe 検出(天然同位体比に近い) 【WDX】 Fe-Zn, Fe-Ni 粒子	構造材(炭素鋼, SUS, インコネルなど)
Co	放射化生成物, 炭素鋼 ^[2] , SUS ^[2] , etc.	【γ線測定】 ⁶⁰ Co 検出	放射化生成物を含む。
Ni	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , ケーブル(Cu-Ni) ^[3] , etc.	【ICP-MS】 ^{60, 61, 62} Ni 検出(天然同位体比に近い) 【WDX】 Fe-Ni 粒子, Cu-Ni-Zn 粒子	構造材(SUS, インコネルなど), 計装材料(ケーブルなど)
Cu	ケーブル(銅, Cu-Ni) ^[3] , Cu-Zn(検出機器の構成材料) ^[3] , SUS ^[2] , etc.	【WDX】 Cu-Ni-Zn を同位置に検出	計装材料(ケーブル, 検出機器など)
Zn	塗料 ^[3] , ケーブル絶縁体 ^[3] , Cu-Zn(検出機器の構成材料) ^[3] , etc.	【WDX】 Cu-Ni-Zn 粒子および Al, Ca, Mg, Zn で共存	塗料, 計装材料(ケーブル絶縁体, 検出機器など)
Zr	ジルカロイ(被覆管, チャンネルボックス), etc.	【WDX】 U-Zr 粒子	ジルカロイ(被覆管, チャンネルボックス)
Mo	核分裂生成物(^{95-98, 100} Mo) ^[4] , グリス ^[3] , SUS316 ^[2] , 炭素鋼 ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{95, 97, 98} Mo 検出(天然同位体比に近い)	グリス, 構造材(SUS316, 炭素鋼 ^[2] など)
Rh	核分裂生成物(¹⁰⁶ Rh) ^[4] , etc.	【γ線測定】 ¹⁰⁶ Rh 検出	核分裂生成物を含む。
Pb	遮蔽材, ケーブルシース ^[3] , etc.	【WDX】 Pb 粒子	遮蔽材, 計装材料(ケーブルシースなど)
Sb	核分裂生成物(^{121, 123, 125} Sb) ^[4] , ケーブル絶縁体 ^[3] , etc.	【γ線測定】 ¹²⁵ Sb 検出 【WDX】 Sb 粒子	核分裂生成物を含む。

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプル中の含有元素の由来・起源の評価結果 (2/6)

X-6ペネ調査装置付着物 (2/2)

元素	当該元素を含む材料の候補	分析結果の特徴	由来・起源の評価結果
Cs	核分裂生成物 ($^{133}, ^{134}, ^{135}, ^{137}\text{Cs}$) ^[4] , 海水 ^[1] , etc.	【γ線測定】 $^{134}, ^{137}\text{Cs}$ 検出	核分裂生成物を含む。
Ce	核分裂生成物 ($^{140}, ^{142}, ^{144}\text{Ce}$) ^[4] , etc.	【γ線測定】 ^{144}Ce 検出	核分裂生成物を含む。
Nd	核分裂生成物 ($^{142-146}, ^{148}, ^{150}\text{Nd}$) ^[4] , etc.	【ICP-MS】 $^{143}, ^{145}, ^{146}\text{Nd}$ 検出(天然同位体比に近い)	判定不可
Eu	核分裂生成物 ($^{153-155}\text{Eu}$) ^[4] , etc.	【γ線測定】 $^{154}\text{Eu}, ^{155}\text{Eu}$ 検出	核分裂生成物を含む。
U	燃料 ($^{234-236}, ^{238}\text{U}$), 海水 ^[1] , etc.	【ICP-MS】 $^{234-236}, ^{238}\text{U}$ 検出 ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比は 燃焼組成の炉心平均値 ^[4] に近い) 【WDX】 U-Pu 粒子, U-Zr 粒子	燃料
Pu	燃料 ($^{238-242}\text{Pu}$), etc.	【WDX】 U-Pu 粒子	燃料
Am	燃料 ($^{241}, ^{243}\text{Am}$), etc.	【γ線測定】 $^{241}, ^{243}\text{Am}$ 検出	燃料

参照情報

- [1] 海水組成: 文献(日本海水学会, 1994)の表 2-1 および表 2-2, 文献(野崎, 1997)の表 1, 文献(国立天文台, 2011)の p.963~964.
- [2] 構造材, コンクリート組成: 文献(原子力安全技術センターHP)の Table 4~14, プラント仕様(fdada HP), 文献(小野寺, 1981)の表 1, 各種ミルシート, 金属材料特性データベース(KEY to METALS®).
- 参照した材料中の含有率が 1wt% (10,000 ppm) 未満のものは † を付した。
- [3] 計装系の構成元素: 文献(東京電力, 2013; 東京電力 HD, 2021c; 2021d; 2021e; 2021f)に掲載の概略仕様および SEM/EDX 測定結果.
- [4] 核分裂生成物(FP), 放射化生成物の種類: ORIGIN による炉心平均燃焼組成(西原ほか, 2012)や廃棄物試料の分析結果(IRID, 2019b).

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプル中の含有元素の由来・起源の評価結果 (3/6)

ウェル差圧調整ライン堆積物

元素	当該元素を含む材料の候補	分析結果の特徴	由来・起源の評価結果
Li	海水 ^[1] , 核反応 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ による生成, etc.	【ICP-MS】 ^7Li 検出	いずれの可能性も否定できない。
B	中性子吸収材 (B_4C), 海水 ^[1] , 大気粉塵 ^[1] , etc.	【ICP-MS】 $^{10,11}\text{B}$ 検出 (天然同位体比に近い)	いずれの可能性も否定できない。
Cr	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , etc.	【ICP-MS】 $^{52,53}\text{Cr}$ 検出 (天然同位体比に近い) 【WDX】 U-Zr 粒子 (粒子上または近傍に Cr-Fe)	構造材 (SUS, インコネルなど)
Fe	炭素鋼 ^[2] , SUS ^[2] , インコネル ^[2] , etc.	【ICP-MS】 $^{56,57}\text{Fe}$ 検出 (天然同位体比に近い。最も多い金属元素) 【WDX】 Fe-Zn 粒子, U-Zr 粒子 (粒子上または近傍に Cr-Fe)	炭素鋼 (腐食生成物) が主。ごく少量の SUS やインコネルの成分を含む可能性あり。
Co	放射化生成物, 炭素鋼 ^[2] , SUS ^[2] , etc.	【 γ 線測定】 ^{60}Co 検出	放射化生成物を含む。
Ni	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , ケーブル (Cu-Ni) ^[3] , etc.	【ICP-MS】 $^{60,61,62}\text{Ni}$ 検出 (天然同位体比に近い)	いずれの可能性も否定できない。
Zn	塗料 ^[3] , メッキ ^[3] , ケーブル絶縁体 ^[3] , Cu-Zn (検出機器の構成材料) ^[3] , etc.	【WDX】 Fe-Zn 粒子	炭素鋼 (腐食生成物) が主
Zr	ジルカロイ (被覆管, チャンネルボックス), etc.	【WDX】 U-Zr 粒子 (粒子上または近傍に Cr-Fe)	ジルカロイ (被覆管, チャンネルボックス)
Mo	核分裂生成物 ($^{95-98,100}\text{Mo}$) ^[4] , グリス ^[3] , SUS316 ^[2] , 炭素鋼 ^[2] , etc.	【ICP-MS】 $^{95,97,99}\text{Mo}$ 検出 (天然と異なる同位体比)	核分裂生成物を含む可能性あり
Ag	核分裂生成物 ($^{109,110\text{m}}\text{Ag}$) ^[4] , etc.	【ICP-MS】 $^{107,109}\text{Ag}$ 検出 (天然と異なる同位体比)	核分裂生成物を含む可能性あり
Sb	核分裂生成物 ($^{121,123,125}\text{Sb}$) ^[4] , ケーブル絶縁体 ^[3] , etc.	【 γ 線測定】 ^{125}Sb 検出	核分裂生成物を含む。
Cs	核分裂生成物 ($^{133,134,135,137}\text{Cs}$) ^[4] , 海水 ^[1] , etc.	【 γ 線測定】 ^{134}Cs , ^{137}Cs 検出 【ICP-MS】 ^{133}Cs 検出	核分裂生成物を含む。
Nd	核分裂生成物 ($^{142-146,148,150}\text{Nd}$) ^[4] , etc.	【ICP-MS】 $^{143,145,146}\text{Nd}$ 検出 (天然と異なる同位体比)	核分裂生成物を含む可能性あり
Eu	核分裂生成物 ($^{153-155}\text{Eu}$) ^[4] , etc.	【 γ 線測定】 ^{154}Eu 検出	核分裂生成物を含む。
U	燃料 ($^{234,235,236,238}\text{U}$), 海水 ^[1] , etc.	【ICP-MS】 $^{234-236,238}\text{U}$ 検出 ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比は 燃焼組成の炉心平均値 ^[4] に近い) 【WDX】 U-Zr 粒子 (粒子上または近傍に Cr-Fe)	燃料

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(b) 取得した分析データの評価

サンプル中の含有元素の由来・起源の評価結果 (4/6)

排気ダクト劣化部 金属片

元素	当該元素を含む材料の候補	分析結果の特徴	由来・起源の評価結果
B	中性子吸収材 (B ₄ C), 海水 ^[1] , 大気粉塵 ^[1] , etc.	【ICP-MS】 ^{10, 11} B 検出 (天然同位体比に近い)	いずれの可能性も否定できない。
Mg	海水 ^[1] , コンクリート ^[2] , ケーブル絶縁体 ^[3] , etc.	【WDX】 Mg-Si 粒子 (粒子上に Al, Zn, Cr, Fe, Ni が点在)	いずれの可能性も否定できない。
Al	海水 ^[1] , コンクリート ^[2] , 保温材 ^[3] , etc.	【WDX】 Mg-Si 粒子 (粒子上に Al, Zn, Cr, Fe, Ni が点在)	いずれの可能性も否定できない。
Si	コンクリート ^[2] , フランジシール ^[3] , 保温材 ^[3] , ケーブル絶縁体 ^[3] , ケーブルシース ^[3] , SUS ^[2] , 炭素鋼 ^[2] , etc.	【WDX】 Mg-Si 粒子 (粒子上に Al, Zn, Cr, Fe, Ni が点在)	いずれの可能性も否定できない。
Cl	海水 ^[1] , ケーブルシース ^[3] , etc.	【WDX】 Fe を主成分とする面上に分布	いずれの可能性も否定できない。
Cr	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{52, 53} Cr 検出 (天然同位体比に近い) 【WDX】 Mg-Si 粒子 (粒子上に Al, Zn, Cr, Fe, Ni が点在)	いずれの可能性も否定できない。
Fe	鉄鋼材料 (点検口構成材料として), 炭素鋼 ^[2] , SUS ^[2] , インコネル ^[2] , コンクリート ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{56, 57} Fe 検出 (天然同位体比に近い。最も多い金属元素) 【WDX】 平面状に分布 (他の元素を含まない), Mg-Si 粒子 (粒子上に Al, Zn, Cr, Fe, Ni が点在)	平面状の Fe は点検口構成材料の腐食生成物が主。Mg-Si 粒子上の Fe はいずれの可能性も否定できない。
Ni	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , ケーブル (Cu-Ni) ^[3] , etc.	【ICP-MS】 ^{60, 61, 62} Ni 検出 (天然同位体比に近い) 【WDX】 Mg-Si 粒子 (粒子上に Al, Zn, Cr, Fe, Ni が点在)	いずれの可能性も否定できない。
Zn	塗料 ^[3] , メッキ ^[3] , ケーブル絶縁体 ^[3] , Cu-Zn (検出機器の構成材料) ^[3] , etc.	【WDX】 Mg-Si 粒子 (粒子上に Al, Zn, Cr, Fe, Ni が点在)	いずれの可能性も否定できない。
Mo	核分裂生成物 (^{95-98, 100} Mo) ^[4] , グリス ^[3] , SUS316 ^[2] , 炭素鋼 ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{95, 97, 98} Mo 検出 (天然同位体比に近い)	グリス, 構造材 (SUS316, 炭素鋼 ^[2] など)
Ag	核分裂生成物 (^{109, 110m} Ag) ^[4] , etc.	【ICP-MS】 ^{107, 109} Ag 検出 (天然同位体比に近い)	判定不可
Cs	核分裂生成物 (^{133, 134, 135, 137} Cs) ^[4] , 海水 ^[1] , etc.	【γ線測定】 ¹³⁴ Cs, ¹³⁷ Cs 検出	核分裂生成物を含む。
U	燃料 (^{234, 235, 236, 238} U), 海水 ^[1] , etc.	【WDX】 U-Pu 粒子	燃料
Pu	燃料 (²³⁸⁻²⁴² Pu), etc.	【WDX】 U-Pu 粒子	燃料

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプル中の含有元素の由来・起源の評価結果 (5/6)

排気ダクト点検口表面部 パッキン部

元素	当該元素を含む材料の候補	分析結果の特徴	由来・起源の評価結果
B	中性子吸収材(B ₄ C), 海水 ^[1] , 大気粉塵 ^[1] , etc.	【ICP-MS】 ^{10, 11} B 検出(天然同位体比に近い)	いずれの可能性も否定できない。
Cr	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{52, 53} Cr 検出(天然同位体比に近い)	いずれの可能性も否定できない。
Fe	鉄鋼材料(点検口構成材料として), 炭素鋼 ^[2] , SUS ^[2] , インコネル ^[2] , コンクリート ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{56, 57} Fe 検出(天然同位体比に近い。最も多い金属元素) 【WDX】U 粒子周辺に分布	点検口構成材料, 炭素鋼, SUSの腐食生成物(Feリッチなもの)
Ni	SUS ^[2] , インコネル ^[2] , ケーブル(Cu-Ni) ^[3] , etc.	【ICP-MS】 ^{60, 61, 62} Ni 検出(天然同位体比に近い)	いずれの可能性も否定できない。
Zr	ジルカロイ(被覆管, チャンネルボックス) ^[1] , etc...	【WDX】U-Zr 粒子	ジルカロイ(被覆管, チャンネルボックス)等
Mo	核分裂生成物(^{95-98, 100} Mo) ^[4] , グリス ^[3] , SUS316 ^[2] , 炭素鋼 ^[2] , etc.	【ICP-MS】 ^{95, 97, 98} Mo 検出(天然同位体比に近い)	グリス, 構造材(SUS316, 炭素鋼 [†] など)
Cs	核分裂生成物(^{133, 134, 135, 137} Cs) ^[4] , 海水 ^[1] , etc.	【γ線測定】 ^{134, 137} Cs 検出	核分裂生成物を含む。
Nd	核分裂生成物(^{142-146, 148, 150} Nd) ^[4] , etc.	【ICP-MS】 ¹⁴⁶ Nd 検出	判定不可
U	燃料(^{234, 235, 236, 238} U), 海水 ^[1] , etc.	【WDX】U-Zr 粒子	燃料

参照情報

- [1] 海水組成: 文献(日本海水学会, 1994)の表 2-1 および表 2-2, 文献(野崎, 1997)の表 1, 文献(国立天文台, 2011)の p.963~964.
大気粉塵(B): 文献(新エネルギー・産業技術総合開発機構, 2008)の 5.2 節.
- [2] 構造材, コンクリート組成: 文献(原子力安全技術センターHP)の Table 4~14, プラント仕様(fdada HP), 文献(小野寺, 1981)の表 1, 各種ミルシート, 金属材料特性データベース(KEY to METALS®).
参照した材料中の含有率が 1wt%(10,000 ppm)未満のものは † を付した。
- [3] 計装系(ダクト含む)の構成元素: 文献(東京電力, 2013; 東京電力 HD, 2021a; 2021c; 2021d; 2021e)に掲載の概略仕様および SEM/EDX 測定結果.
- [4] 核分裂生成物(FP), 放射化生成物の種類: ORIGIN による炉心平均燃焼組成(西原ほか, 2012)や廃棄物試料の分析結果(IRID, 2019b).

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプル中の含有元素の由来・起源の評価結果 (6/6)

材料候補の選定に際しての引用文献

fdada HP : <https://fdada.info/docs/pdf/PS-Unit2-01.pdf>

原子力安全技術センターHP : https://www.nustec.or.jp/anzenjisho/introduction/ga1_4.html#t2

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>

国立天文台 編 (2011) : “理科年表 平成24年 (机上版)”, 丸善出版.

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.

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.

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.

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.

新エネルギー・産業技術総合開発機構 (2008) : “ほう素及びその化合物”, 有害性評価書 Ver 1.0, No. 127. 化学物質排出把握管理促進法政令番号 1-304. https://www.nite.go.jp/chem/chrip/chrip_search/dt/pdf/CI_02_001/hazard/hyokasyo/No-127.pdf (2022年3月19日現在)

東京電力株式会社 (2013) : “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

東京電力HD (2021a) : “2号機シールドプラグ高濃度汚染への対応状況および今後の計画について”, 特定原子力施設監視・評価検討会 (第90回), 資料3, 2021年4月19日. 東京電力ホールディングス株式会社 <https://www.nsr.go.jp/data/000349463.pdf>

東京電力HD (2021c) : “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22回), 2021年9月14日. 東京電力ホールディングス株式会社 <https://www.nsr.go.jp/data/000364992.pdf>

東京電力HD (2021d) : “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23回), 2021年10月19日. 東京電力ホールディングス株式会社 <https://www.nsr.go.jp/data/000367851.pdf>

東京電力HD (2021e) : “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27回), 2021年12月21日. 東京電力ホールディングス株式会社 <https://www.nsr.go.jp/data/000376559.pdf>

東京電力HD (2021f) : “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28回), 2022年2月28日. 東京電力ホールディングス株式会社 <https://www.nsr.go.jp/data/000382270.pdf>

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプル中の含有元素の由来・起源の評価結果

(1) 2号機X-6ペネ調査装置付着物

- ・ サンプル2PEN2101にU-Puの粒子を確認した。Zrを含まないことから、燃料片の飛散または溶融・凝固過程により生成されたものと推定された。
- ・ 2PEN2102にはU-Zrの粒子が確認され、ウラン燃料とジルカロイ部材の溶融物由来と推定された。

(2) 2号機ウェル差圧調整ライン堆積物

- ・ サンプル2WEL2101A及び2WEL2101Cともに、腐食生成物の表面またはその近傍にU粒子の存在を確認した。Zrを含むことから、気相からの凝縮によるものではなく、溶融・凝固、または UO_2 やZrを起源とする微細粒子の凝集の可能性が推定された。
- ・ γ 線測定でCsが確認されたが、SEM観察（WDXまたはEDX）では腐食生成物表面にCsの濃集領域は認められず、Csは微粒子として付着しているのではなく腐食物や生成物の表面に分布していることが示唆された。

(3) 2号機排気ダクト劣化部（金属部）

- ・ Feを主成分とする面の上にUを含む粒子を確認した。Uを含む粒子はPuを帯同したが、Zr, Cr, Fe, Niのいずれも伴わなかったことから、ウラン燃料がジルカロイやSUSなどの構造材を巻き込んで生成したものではないと推定された。Csについては、上記(2)と同様であった。

(4) 2号機点検口表面部（パッキン部）

- ・ Uを含む粒子が認められ、Zrが確認された。Zrを含むことから、気相からの凝縮により生成したものではなく、溶融・凝固、または UO_2 やZrを起源とした微細粒子の凝集の可能性が推定された。Csについては、上記(2)、(3)と同様であった。

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

サンプルの採取箇所に応じた特徴の検討

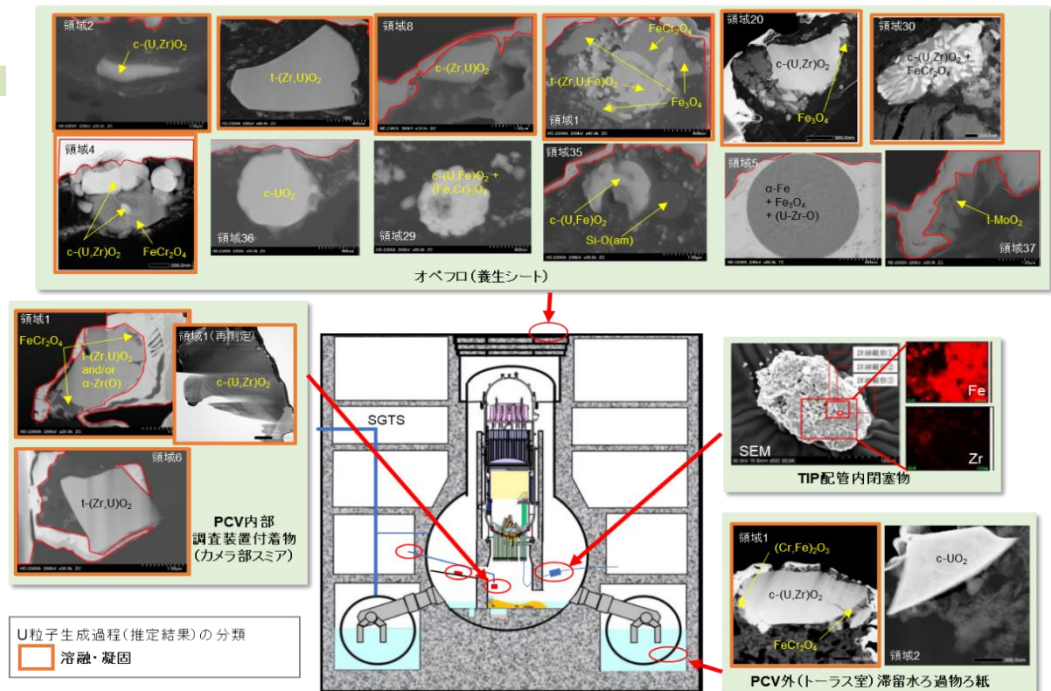
- 2021年度に取得したサンプルの特徴（U含有粒子の微細構造、局所組成が示す傾向）を2020年度以前に分析した2号機のサンプルと比較する。
⇒ 両者の相違点と、放射性物質の移行挙動や燃料デブリの生成条件の相関関係を調べる。
- ただし、2021年度のTEM分析の評価が未了であるため、具体的な作業は2022年度に実施することとし、2020年度以前のサンプルの傾向と評価の着眼点の整理を実施した。

PCV外サンプル同士の比較：

- ウェル差圧調整ライン堆積物や排気ダクト点検口サンプルでは、Fe系の腐食生成物上に、PCV内から運搬されたU-Zr粒子が付着していると考えられる。粒子内部でのU, Zr, Fe, Crなどの炉内構成材成分の位置関係を把握し、オペロサンプルの傾向（U-Zrの領域とFe-Crの領域が混在または隣接）^[1]と比較することにより、冷却条件の違いや反応に関与した材料の違いについての検討が可能と考えられる。

PCV内サンプル同士の比較：

- X-6ペネ調査装置付着物サンプルには炉心由来の元素・核種が含まれていたことから、X-6ペネ配管内を何らかの気流がPCV内から通過したと考えられる。当該サンプルに2020年度以前のサンプル^[2]と同様にUO₂-ZrO₂系における高温側の特徴が表れている場合、RPV内で急冷を経たとの仮説への傍証になると考えられる。



2号機の過年度サンプル中のU粒子の微細組織・相状態
および生成過程に係る推定結果のまとめ

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(b) 取得した分析データの評価

塊状物質の分析・性状評価手法に係る予備的検討

- ・ 従前の燃料デブリ性状把握プロジェクトでは、微粒子が付着したろ紙サンプルなどを対象に分析してきたが、今後はよりサイズの大きいサンプルの分析が必要になることから、その際における従来の分析手法の適用性や課題を検討し、改善を図っていくことが必要である。
- ・ このため、2021年度に受入れた塊状のサンプル（差圧ライン堆積物、ダクト劣化部、パッキン部）を実例として、現状の分析手法の適用性や課題点について検討した。
- ・ 各分析項目の要求とそれについての検討結果を以下に示す。

【イメージングプレート測定】高線量のサンプルの場合、適切な解像度を得るための測定時間の設定が必要

⇒測定時間を1sから10minに変化させ、画像情報の変化を把握した。対象物に合わせて測定時間を短縮した場合に、標準試料の像が得られないケースがあることがわかった。

【SEM観察】表面観察に適するように、サンプルの寸法や形状を調整することが必要

⇒曲率の小さい観察位置の選定や、母材(パッキン)からの表面部位の切り出し(ホルダへの貼り付け)を行った。

【ICP-MS、放射線測定】サンプルの溶解が必要

⇒評価対象外となるパッキン部母材を溶け残す溶解条件や、堆積物や金属片を全量溶解するための溶解条件の選定を行った。

【分析全体】

- ・ 燃料デブリの分析では、サンプル全体の特徴の把握が求められるため、複数の分析項目の情報を総合して、サンプルの情報（核種や元素量、相状態など）を最大限引き出すことが重要となる。
- ・ 以下のフロー及び役割分担に基づく分析計画を策定し、2021年度に受入れたサンプルの分析を進めることで、燃料デブリ分析のステップの確立を図った。
 - ①汚染箇所の探索 (IP測定), ②着目元素の濃集箇所の集中的な探索 (FE-SEM/WDX), ③サンプル中に含まれる核種/元素の同定/定量 (ICP-MS, 放射線測定), ④多元素の広域探索 (FE-SEM/EDX), ⑤着目元素を含んだ粒子内部の詳細測定 (TEM/STEM-EDX)

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(b) 取得した分析データの評価

過年度サンプルに対する関心事項の整理

- 2022年度のサンプルの入手時期によっては、2020年度以前に受入れたサンプルの未探査領域を、最新の視点から追加分析する選択肢も考え得る。
- このため、2020年度以前のサンプルの分析データと当該サンプルの起源や生成過程に係る推論・評価結果を再整理し、それらのサンプルに対する着眼点や期待をまとめた。サンプル全体の共通事項を次表に示す。

関心事項	先行事業での考え方	追加の観点	例, 課題 など
着目元素	・ Uを中心とした探索	【燃料デブリの生成過程】 ・ 左記に加えて、Uに限らず、 <u>着目粒子の生成に寄与した材料、到達温度、酸素ポテンシャルの推定指標となる元素の探索、定性、および定量</u>	【U以外の着目元素と指標の例】 ・ Zr： SUSとの反応の有無、酸素ポテンシャル ・ Mo, Ni, Sn： 酸素ポテンシャル ・ B, C： B ₄ Cと構造材との反応の有無、到達温度 【分析上の課題】 ・ 同位体比測定における分析精度の把握（湿式分析、SIMS）。 ・ 分析対象元素の探索に適したTEM測定系（メッシュ材など）の選定。
		【α粒子の性状・分布】 ・ α線放出核種（特にPu）の濃縮箇所の探索、採取箇所間でのPu/U比の変化の傾向の把握	【分析上の課題】 ・ 広域でのPu濃縮箇所の検知 ・ 分析精度を評価可能な手法でのPuの定量分析
着目する相／プロセス	・ UO ₂ 燃料と周辺材料またはその酸化生成物（腐食生成物含む）との反応（UO ₂ -ZrO ₂ -FeO _x 系）	【燃料デブリの生成過程】 ・ 左記に加えて、Uを含む相に限らず、 <u>着目粒子の生成に寄与した材料、及び材料間反応の到達温度や酸素ポテンシャルの推定指標となる相の同定</u>	【着目相と指標の例】 ・ Fe(Cr,Ni)-Zr系の金属間化合物またはその酸化物： SUS-ジルカロイ反応（到達温度） ・ α-Zr(O)： 酸素ポテンシャル ・ Mo, Ni, Snの酸化物： 酸素ポテンシャル ・ ホウ化物、炭化物： SUS-ジルカロイ-B ₄ C反応（到達温度）
採取箇所	・ PCV内外問わず、PCV内からの放射性物質の移行ルート（想定）上と期待される箇所から採取。	【燃料デブリの生成過程】 ・ PCV外よりもPCV内から採取されたサンプルの方が、移行ルート上の構造材からの混入や、大気雰囲気下での変質の影響が小さく、燃料デブリ生成時の雰囲気、材料、到達温度などの情報が色濃く反映されていることが期待される。	-

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(b) 取得した分析データの評価

過年度サンプルに対する関心事項の整理

- また、個々のサンプルに対する追加の関心事項を既得の知見と合わせて整理した例を次表に示す。

採取箇所	過年度の主な推定・評価	関心事項（サンプル特有）
1号機 格納容器底部 堆積物	<ul style="list-style-type: none"> Te, Moは天然同位体比と異なり、FP混入の可能性を示唆 低温相の特徴があり、<u>熔融状態からの徐冷の過程で生成された粒子である可能性が示唆された。</u> 粒子近傍でのAl, Si, Naの検出などから、1号機でのMCCIが進展した可能性、RPV下部の大規模破損、高温状態が長時間継続した可能性のいずれとも整合した。 	<ul style="list-style-type: none"> MCCIの痕跡探索 <ul style="list-style-type: none"> - Si-Al-Ca-Uが共存する粒子の探索 <u>熔融状態からの冷却条件の推定に資するデータの集積</u> <ul style="list-style-type: none"> - U含有粒子の追加探索及びU/Zr比や結晶構造の把握
2号機 TIP配管内 閉塞物	<ul style="list-style-type: none"> 放射化物由来の核種の検出, Fe, Cr, Ni, Mnなどの構造材由来の元素の検出とその共存傾向, およびZrの検出から、<u>構造材とジルカロイの双方がこのサンプルの生成に寄与したと推定。</u> 粒子表面においてFeとZrの存在部位が異なっており、<u>金属デブリが凝固する際に成分偏析した可能性, あるいは、熔融・凝固過程でZrが選択的に酸化して析出した可能性を示唆。</u> TEM分析は行われていない。 	<ul style="list-style-type: none"> <u>SUS-ジルカロイ反応の痕跡の探索及び粒子生成時の環境推定</u> <ul style="list-style-type: none"> - Zr濃縮箇所の追加探索、及びZr-Fe-Cr-Niが共存する粒子内部の詳細分析 - 粒子内部のZr, Fe, Cr, Ni, Moの帯同性の把握、金属/酸化物の判定
3号機 格納容器内部 調査装置付着物	<ul style="list-style-type: none"> 立方晶（蛍石型構造）中にFe, Cr, Zrが固溶されていたことより、<u>液相から凝固して生成した粒子と推定される。</u> 正方晶が析出した粒子については、<u>正方晶から単斜晶への変態が生じない冷却速度で急冷された粒子と推定される。</u>（急冷過程を経たことの根拠となる可能性あり） 	<ul style="list-style-type: none"> <u>熔融状態からの冷却条件の推定に資するデータの集積</u> <ul style="list-style-type: none"> - U含有粒子（Type-I）の追加探索及びU/Zr比や結晶構造の把握 <u>RPV内雰囲気の推定に資するデータの集積</u> <ul style="list-style-type: none"> - α-Zr(O)の探索、金属/酸化物の判定

② 燃料デブリの性状推定の高度化 (b) 取得した分析データの評価

1 F 試料評価委員会

- 新たに取得したサンプル分析及び評価の結果について、国内有識者から構成される1F試料評価委員会に諮り、レビューを受ける。
- 1F試料評価委員会の設置及び委員への委嘱を行った。(2021, 22年度分)
 - 外部委員14名(大学:6名、メーカー:4名、東電HD:4名)、IRID:2名、JAEA:5名
- 第1回会合を2021年11月に開催し、本事業期間中の全体計画、2021年度の受入れサンプルの概要及びその分析に際しての着眼点等の情報を共有し、ご意見をいただいた。
- 2021年度のサンプル分析結果の評価が終了次第、第2回会合を開催しレビューを受ける*。

* 2022年5月に開催した。

第1回会合における主なご意見

- ✓ サンプルの代表性は非常に重要であり、用語の定義があいまいにならないようにする必要がある。
 - ⇒ 1個のサンプルから採取元の代表性を求めるのは無理で、まずは分析結果がそのサンプルの特性を十分に代表していることが大事。そのようなサンプルが複数得られた際に、それらの特徴がどこまで適用できるのかといった議論を経て、採取元の領域に対する議論になる。
- ✓ 燃料デブリの非均質性の問題は鉄スクラップの分析上の課題とも共通する。後者ではバルクを溶解して均質化する手法が用いられている。
- ✓ その他、堆積物の移行時期、差圧調整ラインの配管腐食の材質による違い、Cs移行時の化学形態、2号機内の酸素分圧との関連等への関心が示された。

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化
- (C) 実施成果の燃料デブリ特性リストへの取込み

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(c) 実施成果の燃料デブリ特性リストへの取込み

1-74

《実施状況》

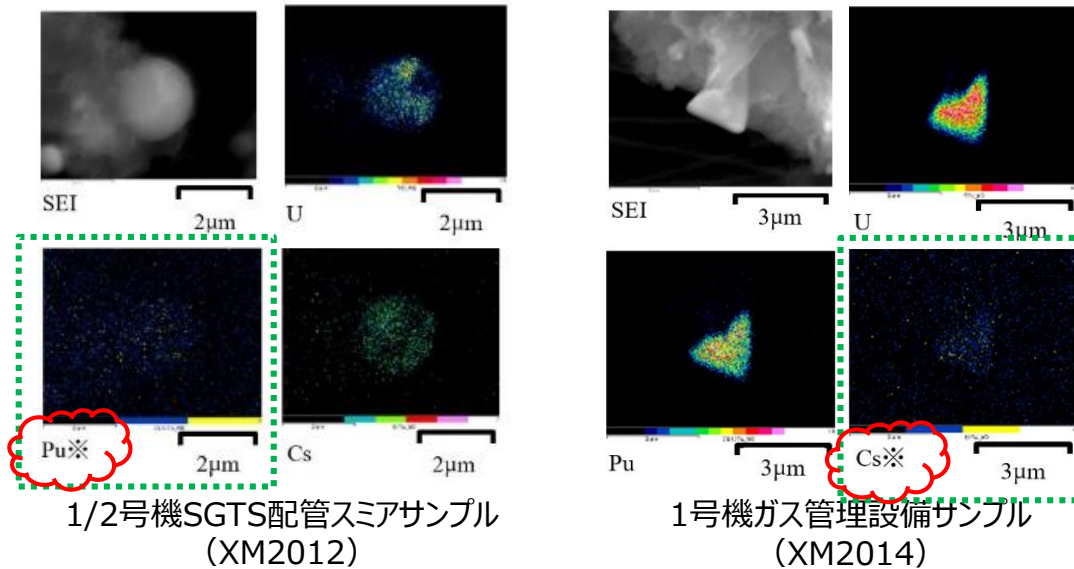
- 2020年度に取得した分析及び評価結果について、燃料デブリ特性リスト (debrisWiki*) のユーザーを念頭に、記載内容の再チェックと改善を行った。

*debrisWikiについては、p.78で説明する。

- **チェックの目的**：データの誤った解釈や誤用の回避
- **実施方法**：誤認、誤用が懸念される箇所のチェック。本文中での明記、個々のデータへの注釈付記
- **主な改善点**
 - ✓ **全般**：分析データの説明（事実を表す記述）と分析データを用いた推論に係る記述の明確な区別
 - ✓ **FE-SEM/WDXにおける元素マッピング**：他元素のサブピークやマイナーピークとの干渉による影響、ベースの上昇による影響の確認
 - ✓ **FE-SEM/EDX、TEM/STEM-EDXにおける元素マッピングおよび半定量分析**：他元素のサブピークやマイナーピークとの干渉による影響、各元素の有無を判定する際のベースライン（バックグラウンド）の取り方の妥当性、測定システム材料からの影響の評価
 - ✓ **ICP-MS（定性分析）**：各種ブランク測定に係る用語の定義の区別化（操作ブランク測定、ブランク測定）、同一質量数の影響評価、報告値の様式（質量数でなく核種の存在として示す）、定性分析の結果の使い方（概数として使えるものと、数値的に取り扱ってはいけないものの区別等）
 - ✓ **ICP-MS（定量分析）**：検量線の作成法（濃度領域、ばらつき等）、誤差（確からしさ）の評価結果と確からしさの種類に沿った表記

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(c) 実施成果の燃料デブリ特性リストへの取込み



特性X線のピークカウントがバックグラウンドの3倍に満たない元素は有意でないとしたが、画像情報では当該元素が僅かに存在するように見えることから、※印で注釈を付した。

元素の面分析結果の例 (FE-SEM/WDX)

《実施状況》

- 記載方法等の見直しを行った2020年度取得データをdebrisWikiに反映した。
- 他事業（燃料デブリの経年変化特性の推定技術）の情報の debrisWikiへの取込み方法について関係者間で協議を行い、品質管理基準が燃料デブリ性状把握プロジェクトと異なるデータは直接取り込まず、関連情報として参照先を掲載する方式とすることにした。

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化
- (d) 燃料デブリ特性リスト (debrisWiki) の改良・改善

② 燃料デブリの性状推定の高度化

1-77

(d) 燃料デブリ特性リスト (debrisWiki) の改良・改善

《背景》

- 燃料デブリのデータの蓄積が進むと情報量が膨大になり利用しづらくなることから、関連情報の相互比較を容易にするウィキペディア方式のデータベースシステムを開発し、これをdebrisWikiと名付けた。(ユーザーが意識することはないが、debrisWikiと燃料デブリ特性リストは、debrisWiki = 書棚、特性リスト = コンテンツ、の関係にある。)

《実施方針》

- debrisWikiについて、廃炉関係者はもとより研究者や学生等、より広範囲の利用に資するための改善を図る。

《実施状況》

- debrisWikiの格納情報は、公知化前の情報等も含まれていることから、アクセス許可の要望を受けた際の判断や承認処理に係る統一的なルールを定めた。
- また、東電HDとJAEAの共同管理となっているが、システムの維持管理や前記のアクセス管理の観点から一元化することが合理的であることからその検討を行った。
- debrisWikiのプラットフォームの改良・改善について引き続き検討する。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

- (a) 燃料デブリに関する文献等、国内外の新たな知見の収集、レビュー
- (b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(a) 燃料デブリに関する文献等、国内外の新たな知見の収集、レビュー

《実施方法と状況》

- 二つの検索エンジン (Science Direct, Google Scholar) を用いて、2019~21年に出版された文献の検索を行った。 【キーワード】: Fukushima, TMI-2, Chernobyl, fuel debris, -JAEA
- 12月時点で約260件がヒットし、そのうち109件を、燃料デブリの性状(37件)、事故進展(36件)、放射性微粒子挙動(29件)、その他(18件)に分類してリスト化した。
- その他の約150件は、計測-分析技術、再臨界、廃炉ツール(遠隔技術他)、廃炉戦略等、燃料デブリ性状との関連が薄いものであった。
- 2022年度も引き続き作業を継続する。

分類	件数	関連分野	まとめ方	
燃料デブリの性状、内部調査	12	燃料デブリの性状	リスト化 (文献情報、要旨)	
燃料デブリの変化(腐食、溶出、経年他)	7			
物性・熱力学	18			
事故進展、シビアアクシデント	36	36		事故進展
環境モニタリング、エアロゾル	29	29		放射性微粒子挙動
燃料デブリ回収技術(工法)	6	18		燃料デブリその他
水素の生成・反応	12			
計測・分析技術	53	147	その他1F	
再臨界(解析他)	16			
廃炉ツール(遠隔技術他)	27			
廃炉戦略	33			
その他	18			

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

《目的・期待》

- OECD/NEA^{*1}の国際協力プロジェクトは、これまでに大きな成果を上げており、今後も廃炉プロジェクトへの貢献が期待される。
- このため、新たな国際協力として、今後、我が国で取得される分析データや炉内調査結果を用いた国際共同解析の枠組みを目指す。

《これまでの経緯》

- NEAのプロジェクトであるPreADES^{*2}とARC-F^{*3}は、目的を異にする一方で（前者＝廃炉推進、後者＝安全研究）、検討対象は1Fの炉内状況や燃料デブリの性状など共通しており、メンバーも両方に参画している者が多数であったことから、別プロジェクトであることの非効率性が指摘されていた。

*1 経済協力開発機構/原子力機関（Organisation for Economic Co-operation and Development/Nuclear Energy Agency）

*2 Preparatory Study on Analysis of Fuel Debris

*3 Analysis of Information from Reactor Building and Containment Vessel and Water Sampling in Fukushima Daiichi NPS

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

《2021年度の実施結果》

- 後継プロジェクトの立ち上げにあたり、NEA、国内ステークホルダー（NRA, METI, TEPCO, JAEA）の間でプロジェクトの一本化に向けた調整を進め、各国の参加機関との協議を経て、NRAの全体統括の下にJAEAが実施機関として入る体制とすることが合意された。
- その後、計画の具体化を図り、プロジェクトの名称をFACE*¹とすること、主要スコープ、主要タスク案、スケジュール及び資金計画について合意した。
- 前項の計画案を10/26-27のCSNI*²のPRG*³会合を経て、12/8-9のCSNI会合に諮り、承認を受けた。
- 2022年7月のキックオフ会合に向けて、タスクの詳細検討等、計画の具体化を進めた。

*1 Fukushima Daiichi NPS Accident Information Collection and Evaluation

*2 原子力施設安全委員会 (Committee on the Safety of Nuclear Installations)

*3 Programme Review Group

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

FACEプロジェクトの概要

目的

- FACEプロジェクトは、BSAF*、BSAF2、PreADES、ARC-F の建設的な拡張を考慮したものとする。主要目的を以下に示す。
 - 事故シナリオの精緻化
 - 1F事故関連の先行プロジェクトにおける未解明事項のアップデート
 - 過酷事故進展に係るモデリング技術の改良に向けた現行技術の特定
 - U含有粒子の分析結果の理解、国内ホットセル施設の分析能力の確認
 - 国内機関と海外パートナーとのコミュニケーションチャンネルの維持による、廃炉に向けた課題解決や原子炉安全技術改良のためのデータ、情報、専門知識の多国間での共有

* Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

FACEプロジェクトの概要

主要スコープ

- **スコープ1：事故進展と関連するFPの挙動、水素燃焼に係る議論の掘り下げ**
 - 最近の1F現場調査で特定され、従前の理解との乖離が大きい技術課題の考察
 - 過酷事故モデリングの不確からしさの低減化（溶融進展, MCCI, FP及び水素問題）
 - 実施中及び将来のプラント調査で得られる新たな知見に基づく柔軟なタスク選定
- **スコープ2：U含有粒子の性状評価と廃炉に向けた燃料デブリ分析技術の確立**
 - U含有粒子の生成メカニズムの検討
 - 燃料デブリの分析及び評価手法
 - 模擬燃料デブリを用いた国際共同分析（Round-robin analysis）
 - 事故進展の理解への貢献
- **スコープ3：データ・情報の収集及び共有**
 - ARC-F タスク2の発展的継続（U含有粒子）

PreADESの後継タスク

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

FACEプロジェクトの概要

タスク候補 (1/2)

・ タスク1

- 1a : 従来の過酷事故解析において未検討もしくは十分にモデル化されていなかったソースタームやFP分布に係る最近の重要知見についての検討
- 1b : 予防措置や活動に資するための原子炉建屋内における水素燃焼についての更なる理解促進
- 1c : 感度解析やベンチマークスタディを通じた過酷事故シナリオやその現象の解析における不確実さの定量化及び低減化
- 1d : 主要FPの放出タイミングについて、遅発放出 (数週間) を含めた予測精度の向上

PreADESの後継タスク

・ タスク2

- 2a : 事故進展及び燃料デブリの性状推定に向けた1 F サンプル中に確認されたU含有粒子の生成メカニズムの評価
- 2b : 燃料デブリの分析の標準化及び評価手法の確立
- 2c : 燃料デブリの取り出し時に発生する放射性微粒子の挙動評価

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

FACEプロジェクトの概要

タスク候補 (2/2)

・ タスク3

- 3a : スコープ1, 2のタスク等に提供するものを含む、主に日本国内機関のアクティビティで得られたデータや情報の整理
- 3b : 事故シナリオや廃炉関連課題に必要なデータや情報についての追加議論

PreADESの後継タスク

・ 模擬燃料デブリを用いた国際共同分析オプション (Round-robin analysis)

○狙い

- 燃料デブリ分析における不確からしさの理解と能力向上
- サンプル取扱いの訓練と共通サンプルを用いた参画機関の分析能力評価の機会の設定
- 燃料デブリ分析に係る知見の充実化

○実施タスク

- 過酷事故に係る試験で得たサンプルを用いた国際共同分析
- 燃料デブリ分析に係る情報交換のためのシンポジウム開催

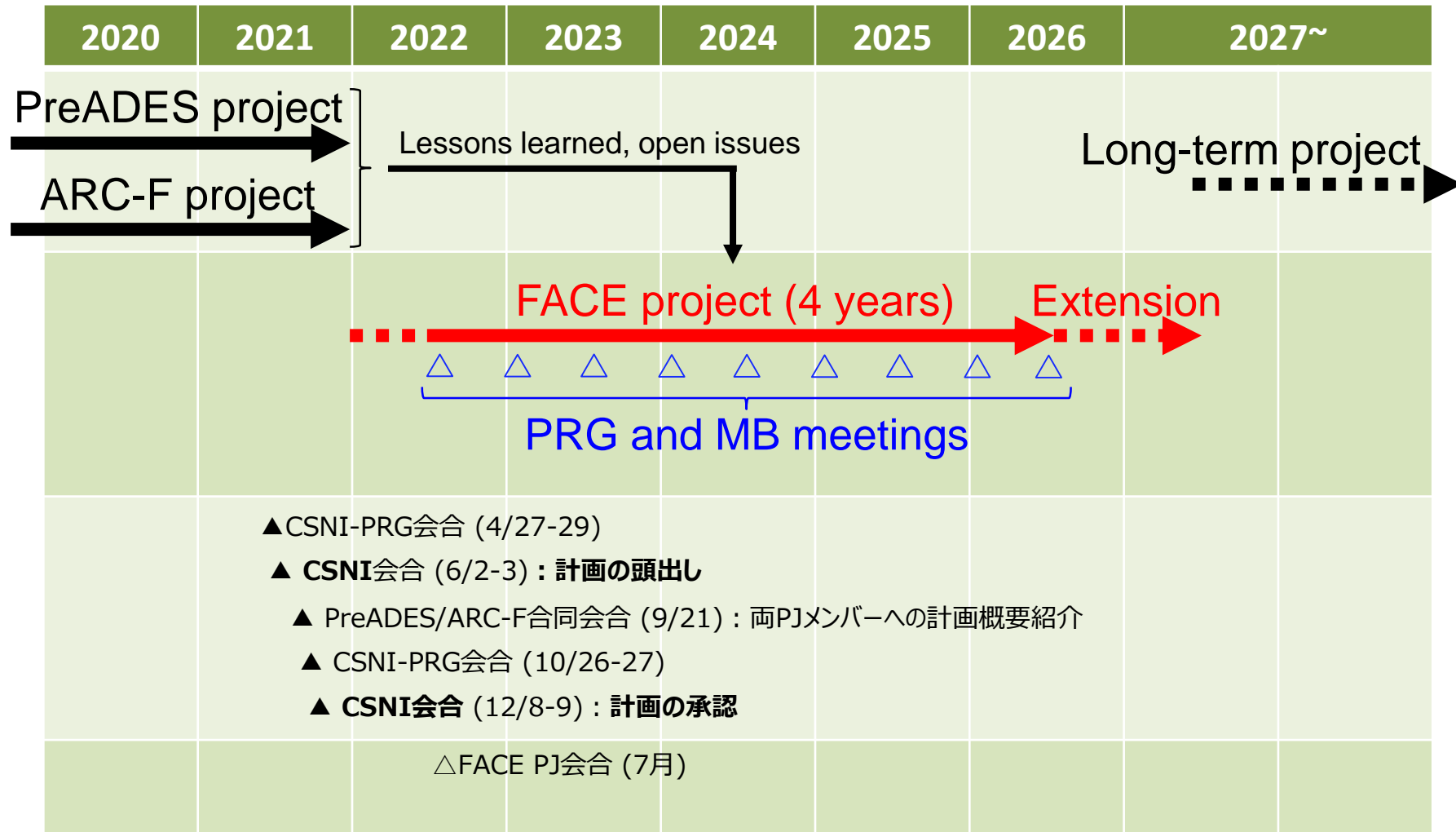
③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

FACEプロジェクトの概要

スケジュール案

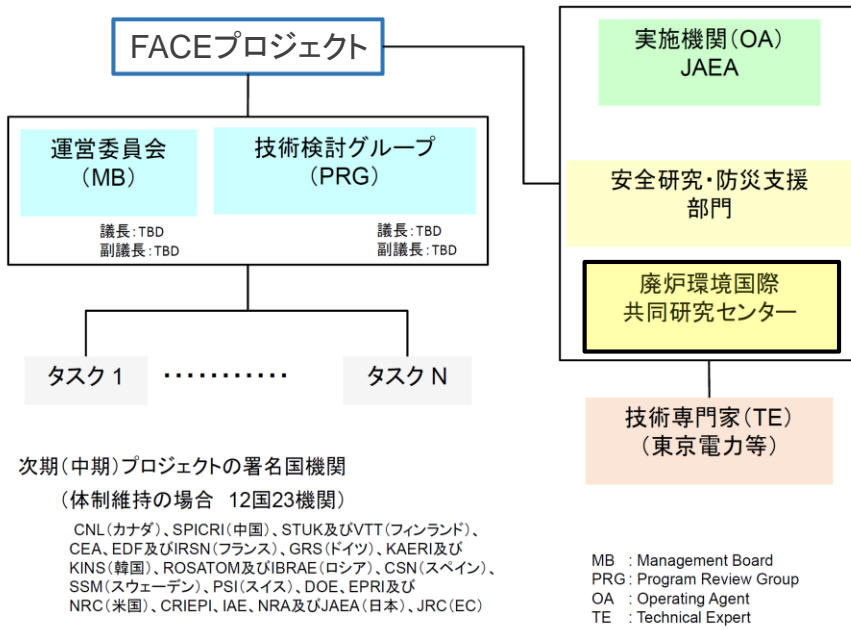
(暦年)



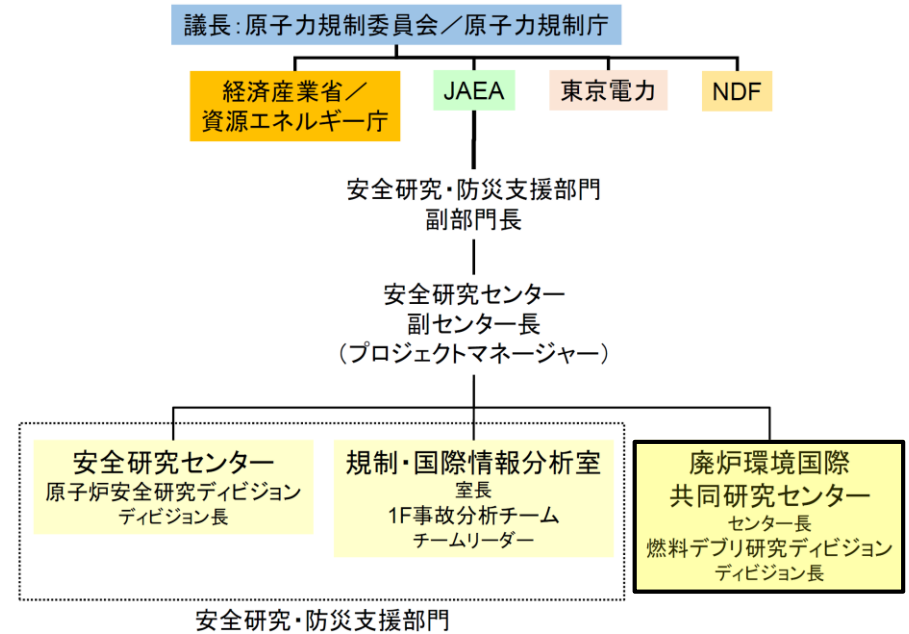
③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

(b) 燃料デブリの分析及び性状推定に係る国際的な議論の場についての検討

FACEプロジェクトの概要



プロジェクト実施体制



国内支援体制 (国内調整会議)

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
2021年度実施内容のまとめ

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析

- 初回輸送分として、2号機のX-6ペネ調査及び原子炉ウェル内調査で得た4種類のサンプル（調査装置付着物、ウェル差圧調整ライン堆積物、排気ダクト劣化部、点検口表面部）を大洗の分析施設（JAEA, NFD）に受入れて分析を実施した。

② 燃料デブリの性状推定の高度化

- ①のサンプル分析に向け、着眼点等の予備的な検討を経て分析実施計画書を策定し、同計画書に基づき取得した分析データの評価を実施した。
- これらの作業を通して、1Fサンプルのデータの充実化、及び分析、評価の経験の蓄積を図ることができた。
- 2020年度に取得した分析及び評価結果について、記載内容の再チェックと改善を図り、燃料デブリ特性リスト（debrisWiki）に反映した。

③ 燃料デブリ分析の知見収集のための国際協力

- 2019～21年に出版された関連文献の検索を行い、結果をカテゴリ分けしてリスト化した。
- OECD/NEAのPreADESとARC-Fの後継プロジェクト（FACE）の立ち上げに向けた国内外の調整を進め、2021/12/8-9のCSNIにおいてFACEプロジェクトの計画が承認されたことにより、燃料デブリの分析等に係る新たな国際的な枠組みが構築された。

第二部

平成30年度補正予算廃炉・汚染水対策事業補助金
(燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発)

2021年度最終報告

2022年 11 月

技術研究組合 国際廃炉研究開発機構
(IRID)

目次

1. 研究の背景・目的	2-2
2. 目標	2-5
3. 実施項目と他事業との関連	2-7
4. 実施スケジュール	2-8
5. 実施体制	2-10
6. 実施内容	2-12
(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度)	2-13
(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 (同上、一部2021年度まで延長)	2-85
7. 全体まとめ	2-202
参考資料	2-208

注：平成29・30年度補正予算（廃炉・汚染水対策事業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））（以下、H29・30補正性状把握PJと略す。）は、当初、2019～2020年度に実施する計画であった。しかし、コロナウィルスの影響により、一部の実施項目は2021年度まで延長された。本報告は、2021年度におけるH29・30補正性状把握PJの最終報告である。

なお、期間が延長されなかった実施項目は計画通り2020年度で完了しており、報告済みであるため、これらの実施項目については、2020年度の報告*の関連部分を一部修正して再掲する。

* 平成29・30年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業」に関する補助事業（第一次公募、燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発）の成果の概要（令和2年度分） <https://dccc-program.jp/3905>

1. 研究の背景・目的

研究の背景

福島第一原子力発電所（1F）事故後、スリーマイル島原子力発電所2号機（TMI-2）事故情報、シビアアクシデント（SA）研究情報等の知見および1F事故情報の調査、整理

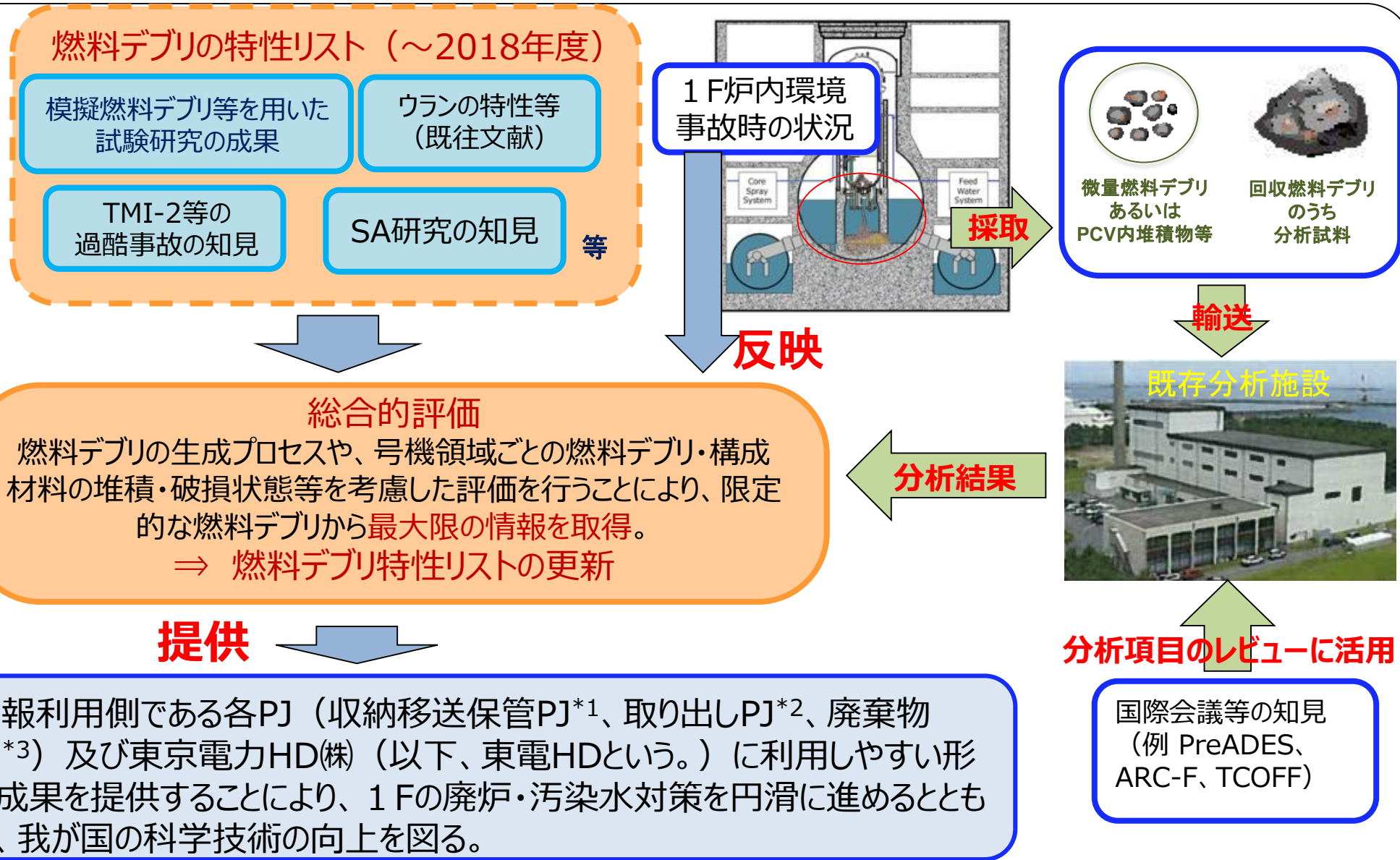
- ✓ TMI-2事件事例や海外のSA研究では沸騰水型原子炉（BWR）に関する知見が少ない。
- ✓ 海水の影響や溶融炉心・コンクリート反応等の1F特有事象に関する燃料デブリ情報が少ない。



- 廃炉（取り出し、臨界管理、収納・移送・保管、計量管理、最終的取扱）を安全・着実、かつ迅速に実施するためには、廃炉作業の技術開発に利用できる燃料デブリ情報の拡充が必要。
- 従来、既存の国内外の知見や模擬物質等を用いた研究開発を基に、燃料デブリ情報を推定。
⇒今後、燃料デブリの取り出しが開始されれば、実際の燃料デブリから情報が得られる見込み。
- 1Fの格納容器の内部調査において採取された堆積物や調査装置の付着物などの分析を行った結果、これらの分析から燃料デブリの性状を推定できる可能性があることがわかってきた。
- 初期に得られる燃料デブリ試料は量的な観点や採取場所的な観点において極めて限定的。
⇒そこから如何にして有効な情報を引き出すかが、今後の廃炉作業を進めるにあたり重要。
- 段階的に燃料デブリ取り出しの規模が拡大され、取り出す燃料デブリの量が多くなれば、取り出しによって発生する微粒子によって作業員や一般公衆の被ばく量が増加するリスクがある。
⇒微粒子の挙動を把握し、推定する技術の開発が必要。

1. 研究の背景・目的

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等



*1 燃料デブリ収納・移送・保管技術の開発PJ、*2燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発PJ、*3固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発PJ

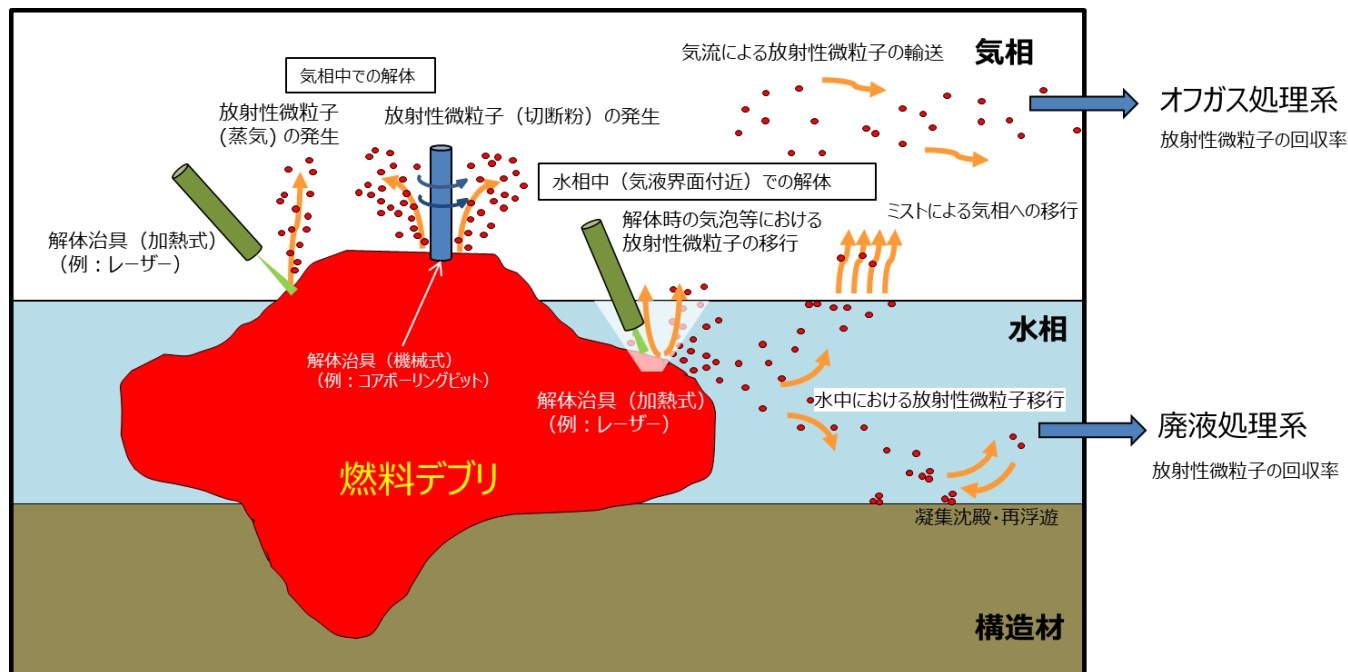
1. 研究の背景・目的

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

2022年より初号機の燃料デブリ取り出しが開始される見込み。初期は小規模であると想定されるが、徐々に規模を拡大し燃料デブリの取り出し作業が行われていくものと考えられる。

本格的な燃料デブリの取り出し作業において、多量の燃料デブリを扱う際に発生する微粒子によって、作業環境が悪化したり、閉じ込め対策が十分ではなく環境へ漏えいしたりすることで**作業員や一般公衆の被ばく量が著しく増加するリスク**がある。

適切な閉じ込め方法や、作業環境管理の方法を検討するにあたり、燃料デブリを由来とする**微粒子の挙動を推定することが重要**である。



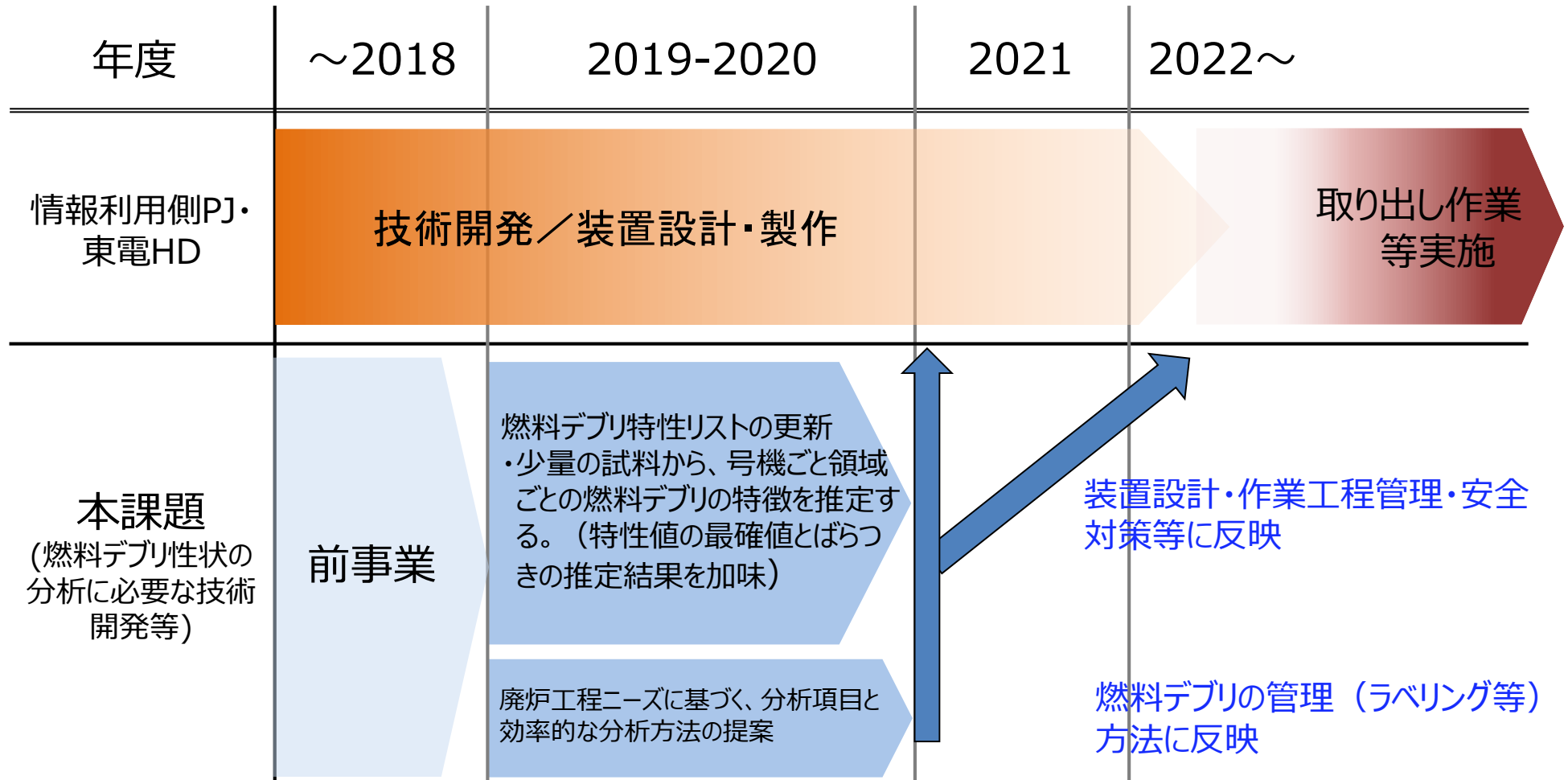
1Fにおける燃料デブリ取り出しによる放射線微粒子の発生・移行経路想定図

模擬燃料デブリの加工試験を実施し、結果を解析することにより、微粒子挙動の推定技術を開発。

- ・1Fの廃炉・汚染水対策の円滑化
- ・我が国の科学技術の向上

燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

“廃炉に向けたロードマップ”と本課題の関係*

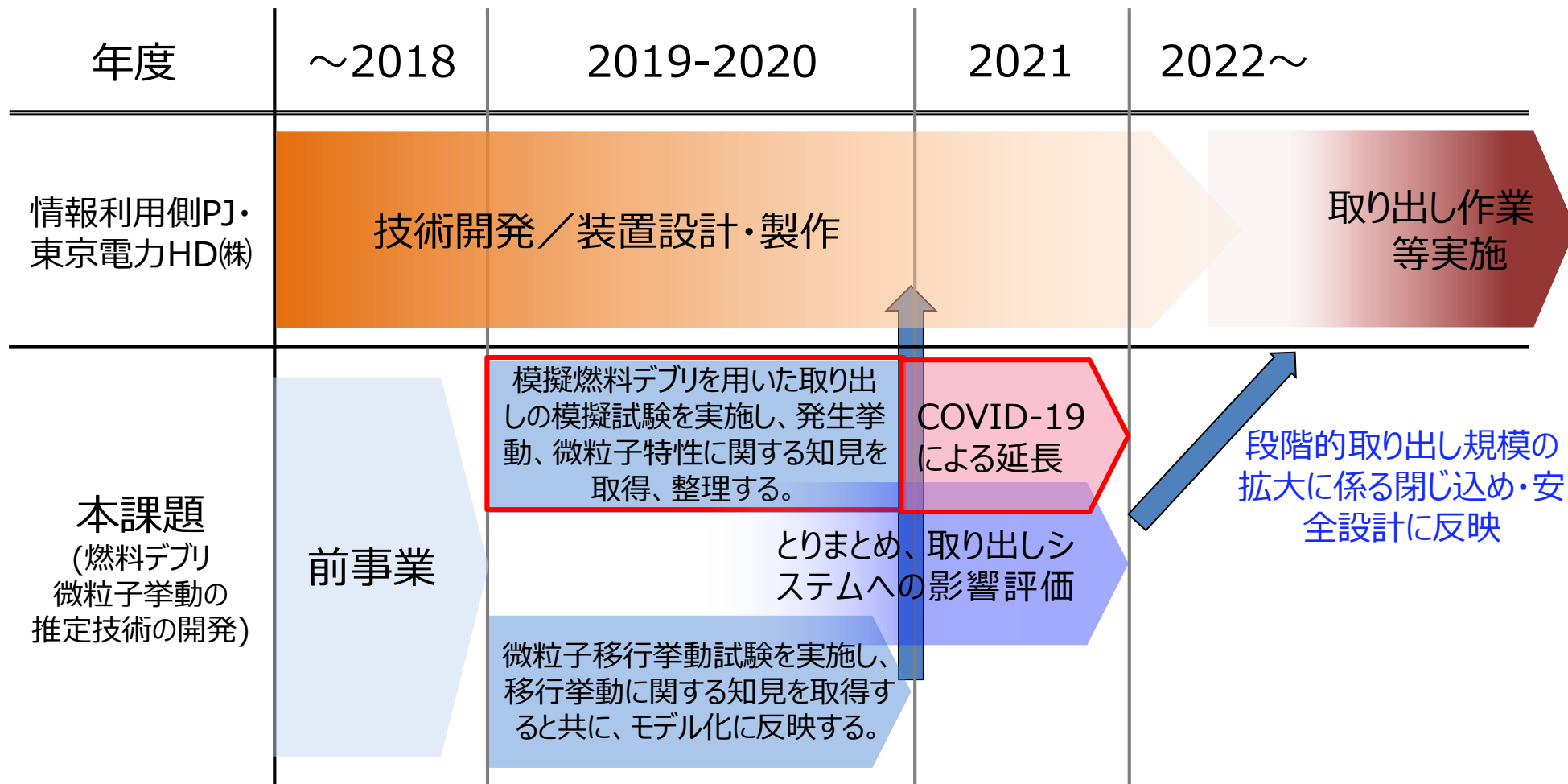


* 2021年度末の情報に基づく

2. 目標

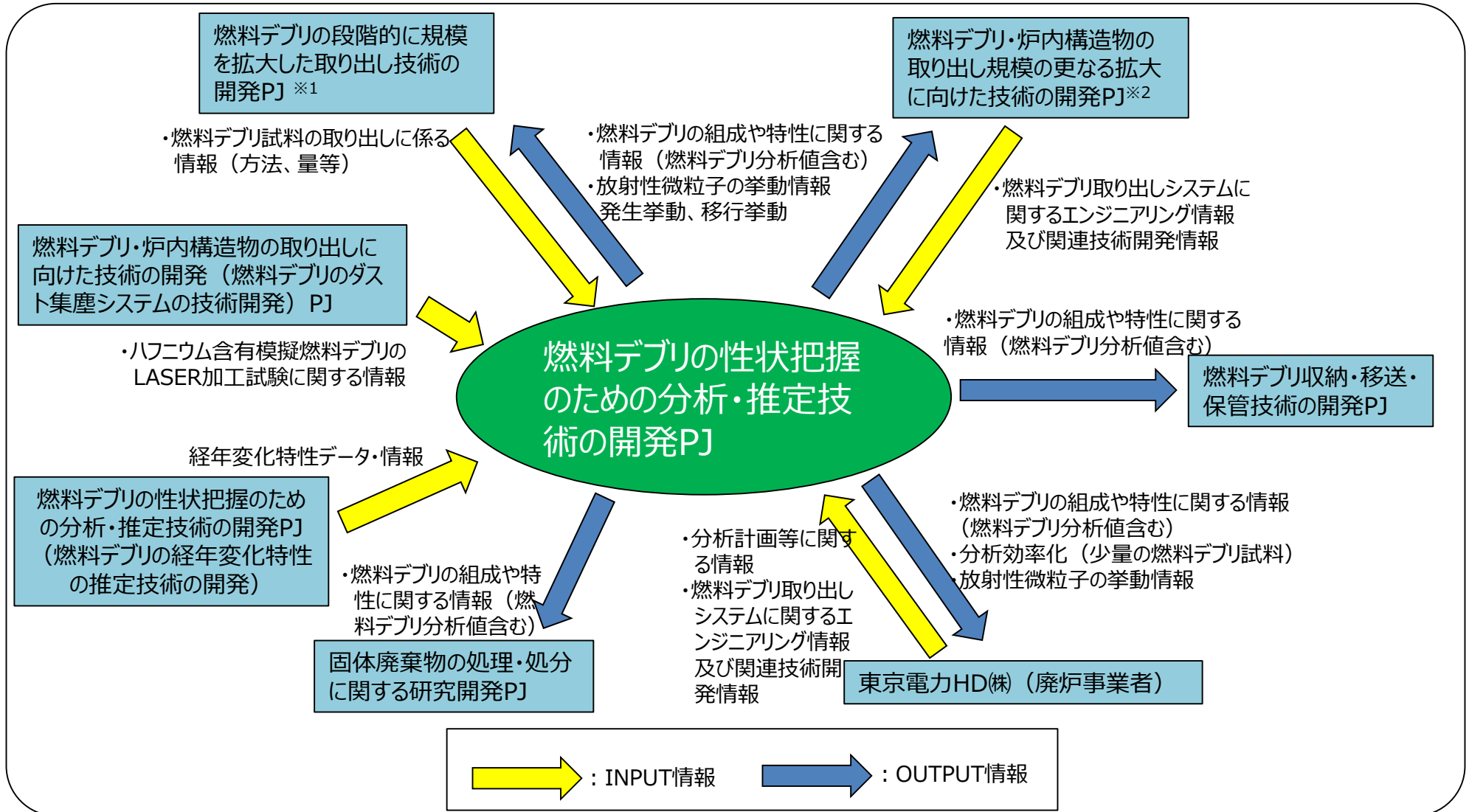
燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

“廃炉に向けたロードマップ”と本課題の関係*



* 2021年度末の情報に基づく

3. 実施項目と他事業との関連 (2019~2021年度)

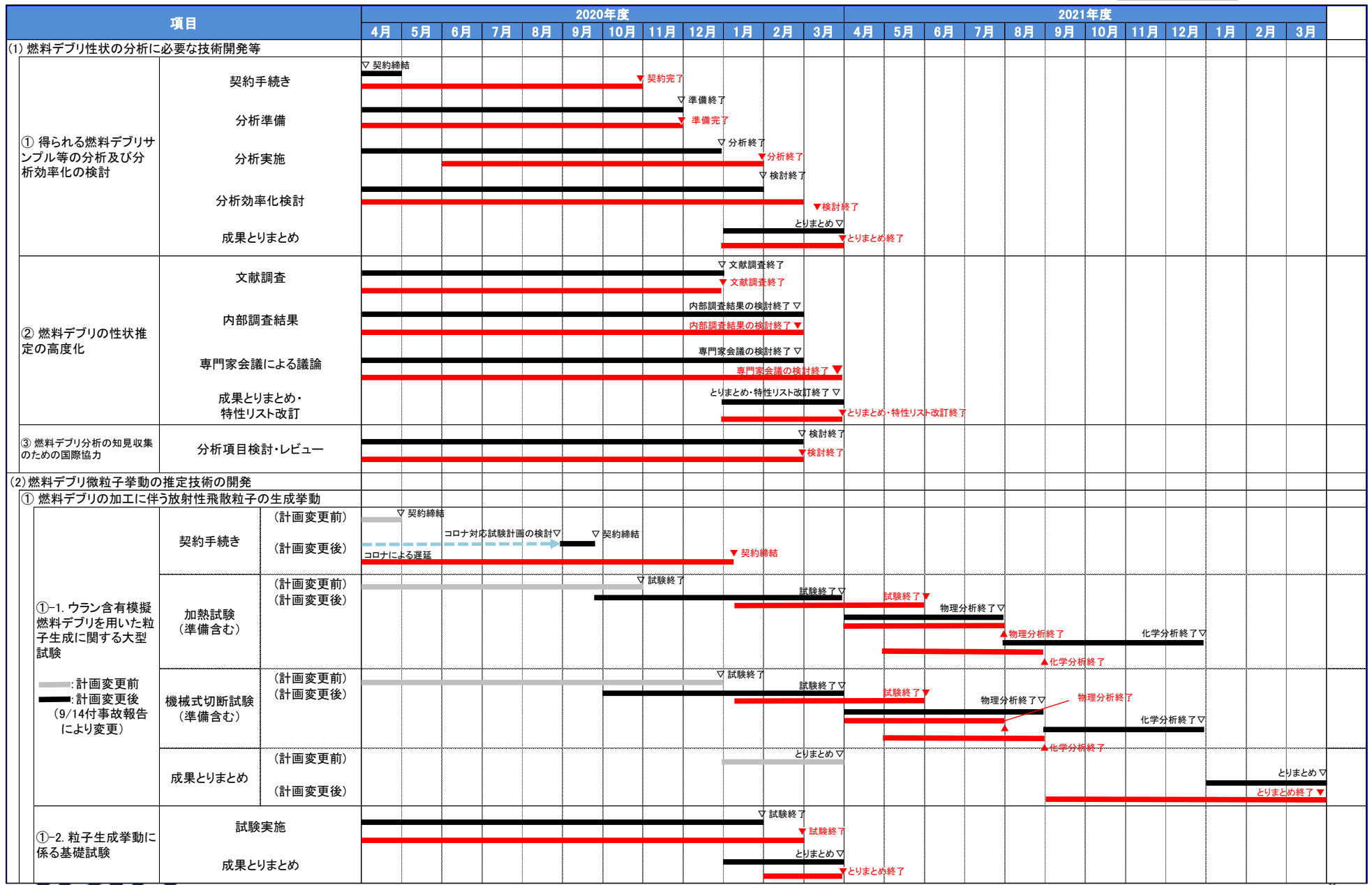


※1事業開始時の事業名称は「燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けたサンプリング技術の開発」であるが、廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第75回) において公開された2020年度廃炉研究開発計画に合わせ、「燃料デブリの段階的に規模を拡大した取り出し技術の開発」と変更した。

※2事業開始時の事業名称は「燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けた技術の開発」であるが、廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議 (第75回) において公開された2020年度廃炉研究開発計画に合わせ、「燃料デブリ・炉内構造物の取り出し規模の更なる拡大に向けた技術の開発」と変更した。

4. 実施スケジュール (2020~2021年度) (その1)

— 計画
— 実績

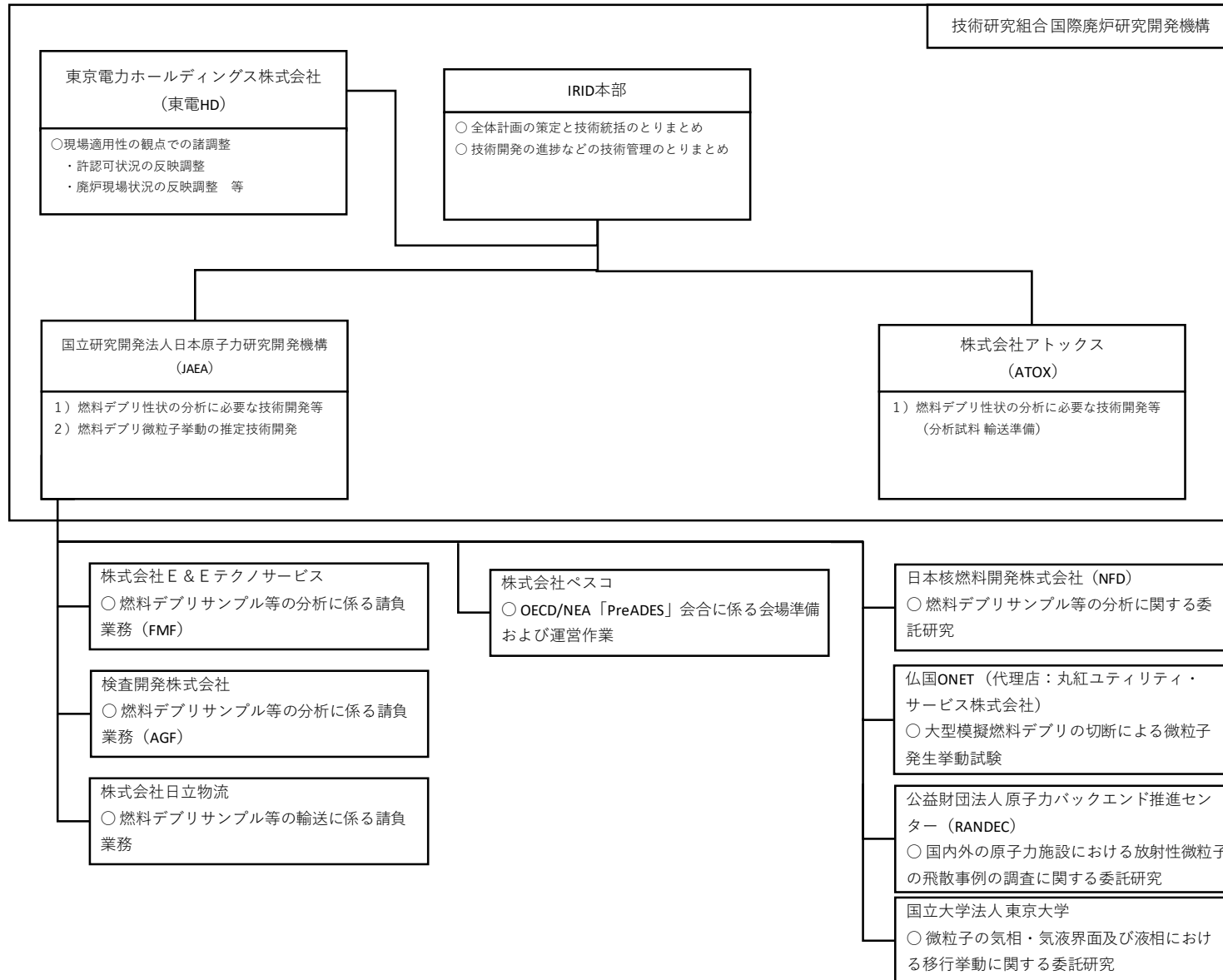


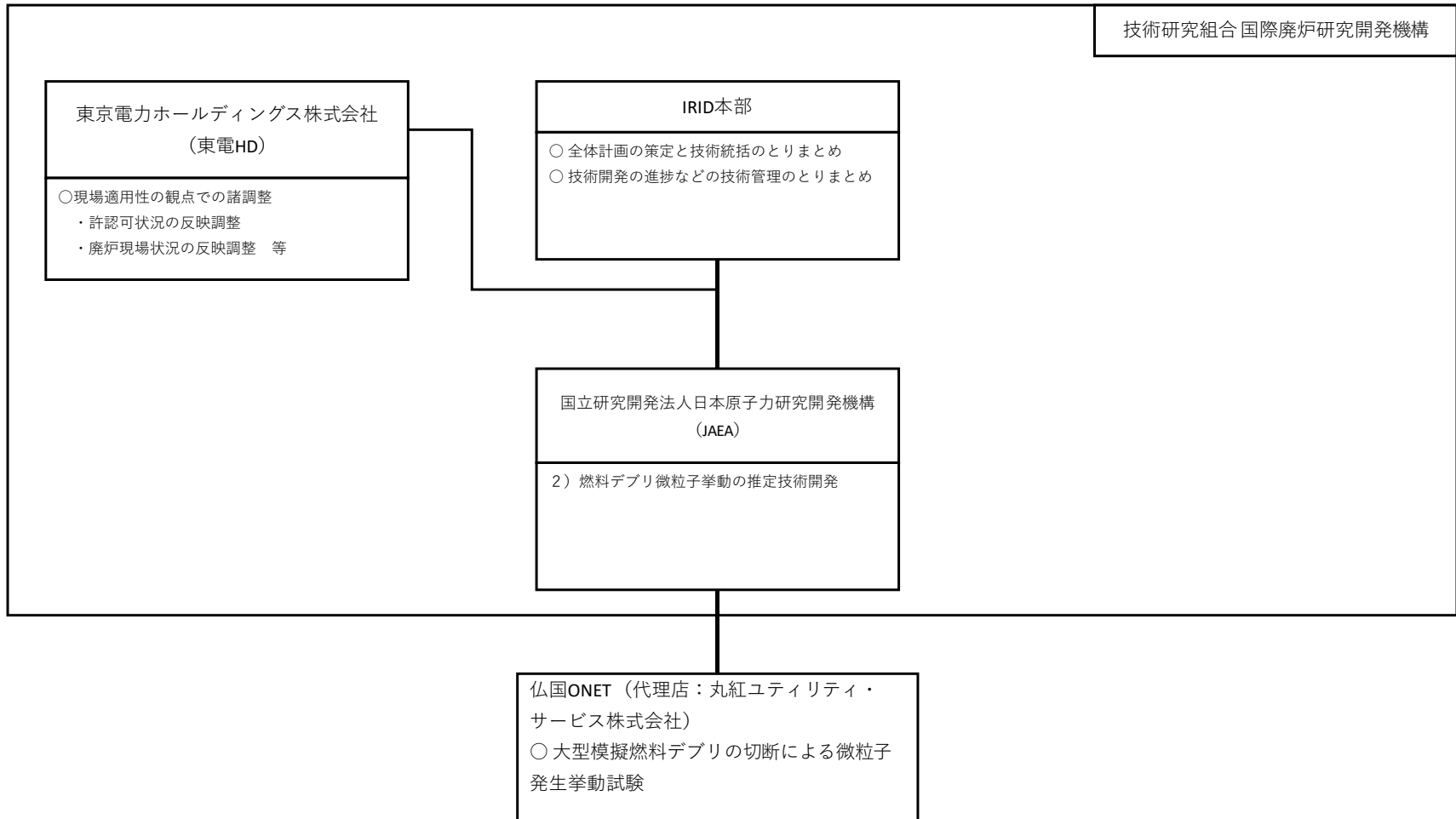
4. 実施スケジュール (2020~2021年度) (その2)

— 計画
— 実績

項目	2020年度												2021年度													
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月		
(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発																										
①-3 国内外の原子力施設における放射性粒子の飛散事例の調査	契約手続き	▽契約																								
	国内調査	—										▽調査終了														
	海外調査	—										▽調査終了														
	成果とりまとめ	—										とりまとめ▽														
		—										とりまとめ終了▽														
② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動																										
②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価	準備(試験条件の設定)	▽試験条件の設定終了▽																								
	試験実施(移行率測定)	—		—										▽試験終了												
	CFDシミュレーション	—		—										▽シミュレーション終了												
	成果とりまとめ	—		—										とりまとめ▽												
		—		—										とりまとめ終了▽												
②-2 液相における微粒子挙動評価	準備(試験条件の設定)	▽試験条件の設定終了▽																								
	試験実施(沈降率測定)	—		—										▽試験終了												
	CFDシミュレーション	—		—										▽シミュレーション終了												
	成果とりまとめ	—		—										とりまとめ▽												
		—		—										とりまとめ終了▽												
とりまとめ																										
—										とりまとめ▽													とりまとめ▽			
—										とりまとめ終了▽													とりまとめ終了▽			
主要なマイルストーン 第3回中間報告会▲ 第4回中間報告会(年度末報告会)▲ 第5回中間報告会▲ 最終報告会(4/20)▲																										

5. 実施体制（2020年度）





6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-12

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等	(2019～2020年度*1)	
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討		P2-15
② 燃料デブリの性状推定の高度化		P2-54
(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発		
① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動		
①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験	(2019～2021年度*2)	P2-87
1) 試験の概要	6) 粒子分析結果(切削試験)	
2) 試験に供する模擬燃料デブリ	7) 粒子分析結果(加熱試験)	
3) 試験方法	8) 分析結果のまとめ	
4) 切削試験結果	9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較	
5) 加熱試験結果		
①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験	(2019～2020年度*1)	P2-140
①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査	(2019～2020年度*1)	P2-150
② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動	(2019～2020年度*1)	
②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価		P2-156
②-2 液相における微粒子挙動評価		P2-166
③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 –	(2021年度*2)	
③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討		P2-178
③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測)		P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-13

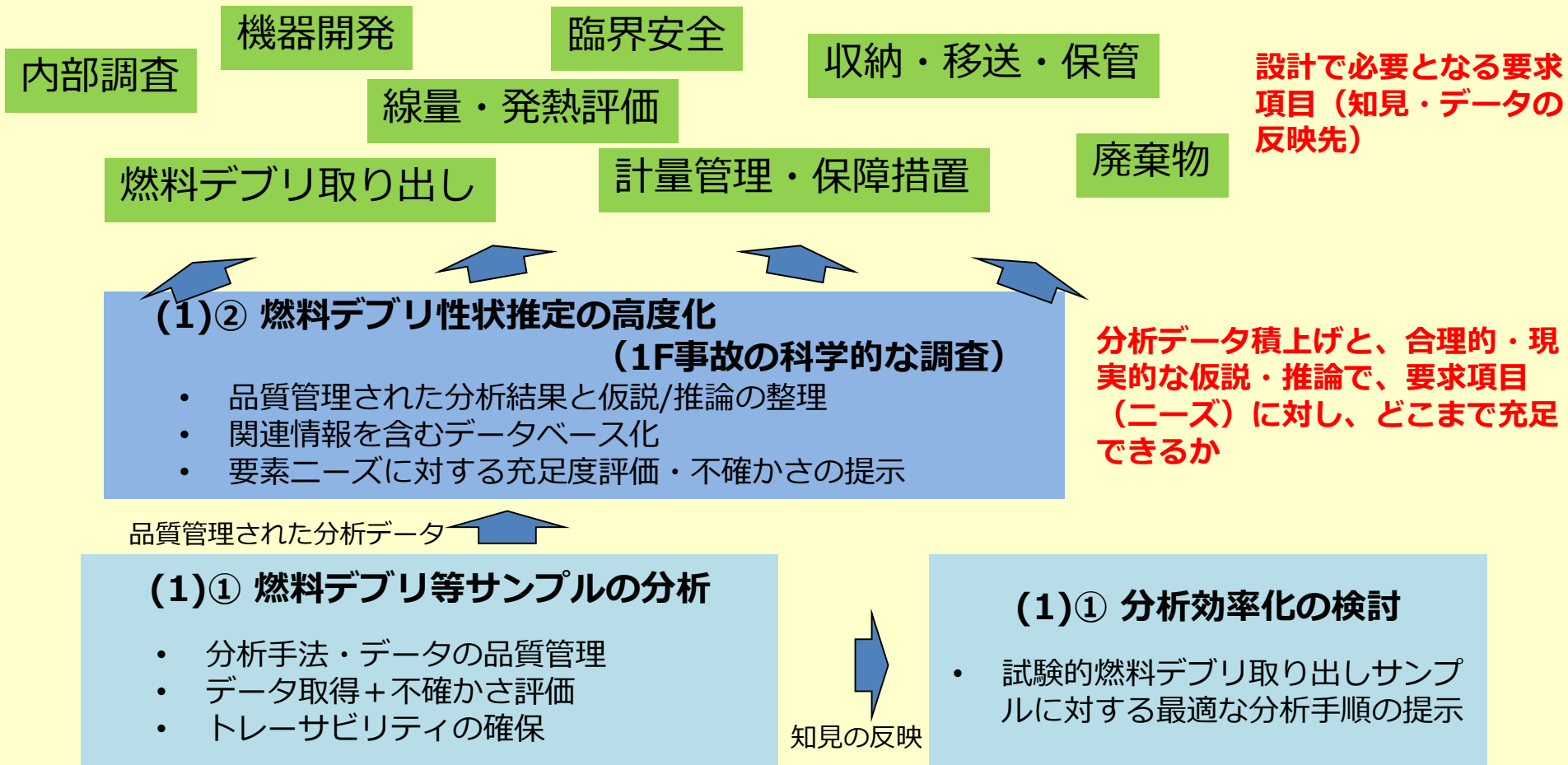
(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等	(2019～2020年度*1)	
① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討		P2-15
② 燃料デブリの性状推定の高度化		P2-54
(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発		
① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動		
①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験	(2019～2021年度*2)	P2-87
1) 試験の概要	6) 粒子分析結果(切削試験)	
2) 試験に供する模擬燃料デブリ	7) 粒子分析結果(加熱試験)	
3) 試験方法	8) 分析結果のまとめ	
4) 切削試験結果	9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較	
5) 加熱試験結果		
①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験	(2019～2020年度*1)	P2-140
①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査	(2019～2020年度*1)	P2-150
② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動	(2019～2020年度*1)	
②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価		P2-156
②-2 液相における微粒子挙動評価		P2-166
③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 –	(2021年度*2)	
③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討		P2-178
③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測)		P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

燃料デブリ・周辺物質サンプルの分析の役割とは？ … 1F事故の科学的な調査

- 未知物質(燃料デブリ)を対象とする、廃炉工程設計(目的)において、必要となるニーズ(知見・データの反映先)に対し、(1)品質管理されたサンプル分析結果のデータベース化、(2)関連情報との総合評価による仮説・推論の提案、および、(3)これら評価結果のニーズに対する充足度・不確かさの提示



6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-15

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 P2-15

② 燃料デブリの性状推定の高度化 P2-54

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2) P2-87

1) 試験の概要

6) 粒子分析結果(切削試験)

2) 試験に供する模擬燃料デブリ

7) 粒子分析結果(加熱試験)

3) 試験方法

8) 分析結果のまとめ

4) 切削試験結果

9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較

5) 加熱試験結果

①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 (2019～2020年度*1) P2-140

①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (2019～2020年度*1) P2-150

② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019～2020年度*1)

②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 P2-156

②-2 液相における微粒子挙動評価 P2-166

③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ

– 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – (2021年度*2)

③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 P2-178

③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析 -2020年度実施概要-

1) 2019年度搬入試料の再分析・・・ a～c項目について、2020年度に追加分析

サンプル番号リスト(P.2-58)

a. U粒子の追加探索(JAEA)・・・ 1u-3、2u-5、2u-6、3u-2試料

→ サンプル中の広範囲を(例:8mm²(1u-3))再度走査 (P.2-17)

b. 難溶性燃料デブリの分析前処理技術の開発(JAEA)・・・ 1u-4試料

→ 実サンプル(1u-4)を用いた、アルカリ融解技術の検証 (P.2-17, 18)

c. U粒子の再分析(NFD)・・・ 1u-2、2u-4試料

→ ゼータ因子法を用いた、重要データである酸素含有量の定量 (P.2-17, 19)

2) 2020年度搬入試料の分析

a. 2020年度搬入試料の選定・・・

→ 東電HDとの情報交換により、2試料選定 (P.2-20)

b. 分析データの品質管理(分析TF*)・・・ 分析目的に照し合せた、分析手順・データ評価手法の検討

→ 物理分析法(外観、IP、SEM/WDX、SEM/EDX、TEM/EDX)

→ 化学分析法(液調製、放射線測定、ICP-MS) (P.2-21～25)

* 分析TF(タスクフォース)の目的、構成等についてはp.56に示す。

c. 2020年度搬入試料の分析・・・ #品質管理の方法に基づく (P.2-26～35)

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 1) a. U粒子の追加探索

-実施内容まとめ-

分析対象	分析項目	分析目的	
2019年度までの輸送サンプル	1号機 X-2ペネスミヤサンプル(1u-3) 2号機 シールリングスミヤサンプル(2u-5)	FE-SEM/WDX (U粒子の追加探索)→ 検出できず	U粒子を広範囲で探索し、分析データを拡充
	2号機 トーラス室滞留水ろ紙(2u-6)		
	3号機 トーラス室滞留水ろ紙(3u-2)		
(再分析)	1号機 ウェルプラグスミア(1u-4)	アルカリ融解技術確認	実サンプルでの全量溶融確認(適用性検証)
	1号機 PCV底部堆積物(1u-2)	TEM (FIB薄膜化、酸素定量法の高度化)	従来分析で不確かさが大きかった酸素の定量について、最新の分析法を導入し、高精度化
	2号機 内部調査カメラスミア(2u-4)		
2020年度輸送サンプル	1/2号機 SGTS配管内部拭き取りスミア 1号機 PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル(ガス管理設備) 1号機 PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル(AWJ装置)	外観測定 イメージングプレート測定 FE-SEM/WDX SEM/EDXおよび TEM ICP-MS (品質管理を反映)	1号機事故途中の燃料デブリ状態に係る知見(1号機ベント時のガスがSGTS配管を通過) 1号機PCV内壁へのU粒子やその他元素の付着に関わる知見

① 1) b. 難溶性燃料デブリの分析前処理技術の開発 -2020年度成果の概要-

○ アルカリ融解技術開発のねらい

- 化学分析法の品質管理（分析TF）
 - サンプルは、原則、全量溶解を目指す
- 従来の実績
 - 王水+フッ酸処理でほぼ全量溶解（NFD）
 - 8N硝酸で、溶解率50%程度（2019年度まで、JAEA）
 - 8N硝酸+フッ酸処理でほぼ全量溶解（2020年度、JAEA）
- 残された課題
 - コンクリート成分が多い試料は、フッ酸難溶性の可能性（過去の分析経験） → **アルカリ融解法**

○ 本事業での成果

- 実サンプル（1u-4）を、FPの蒸発を抑制できる条件（過去経験から選定）により、ほぼ全量融解できることを検証
 - アルカリ融解条件の選定（右図）
 - 目視で残渣がないことを確認
 - ろ過後のγ線測定で、 ^{137}Cs が1/100以下に低下したことを確認
- ⇒ アルカリ融解の残渣は融解条件を調整することで少なくなり、ICP-MSによる核種分析が可能になる見通しを得た。

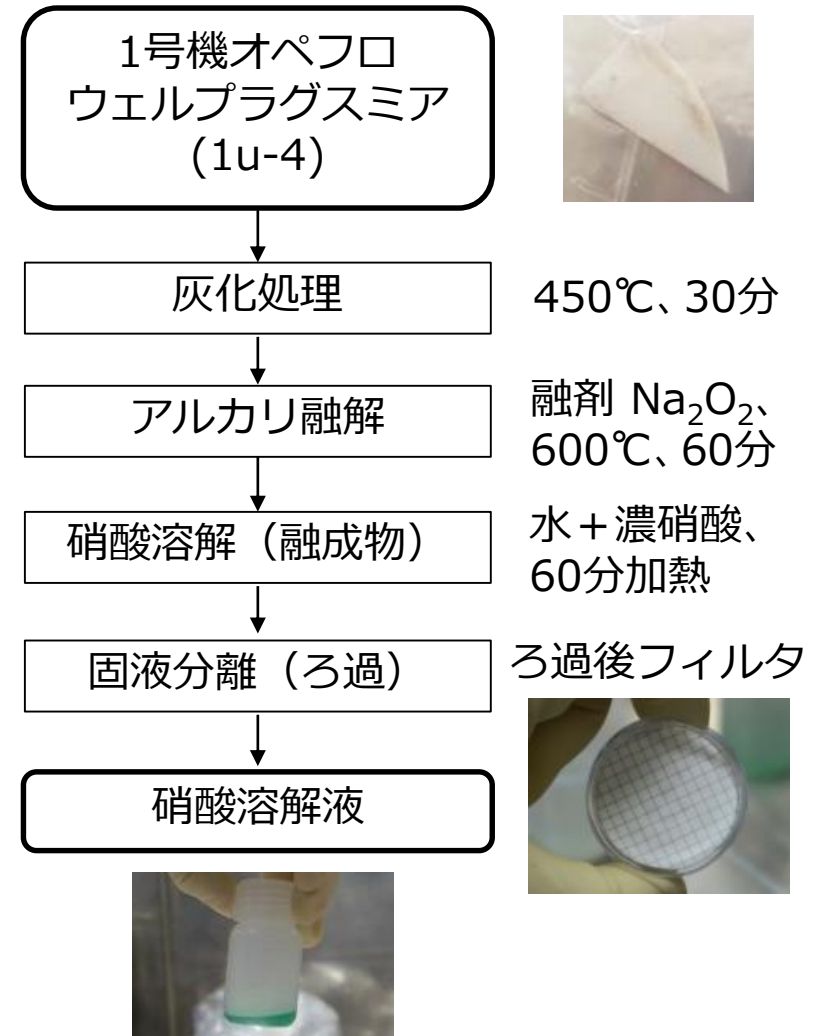
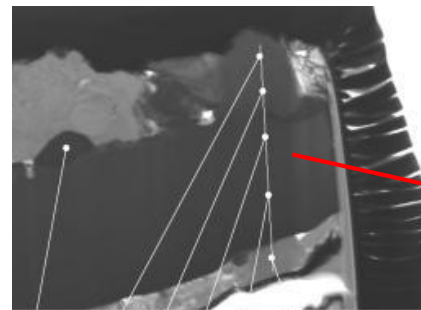
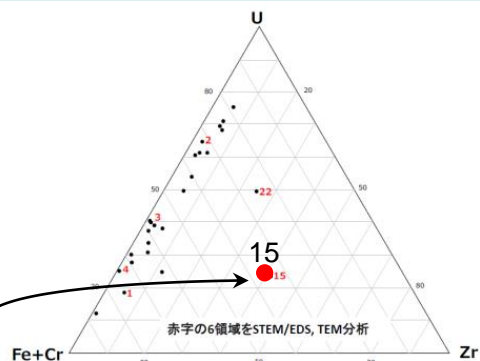


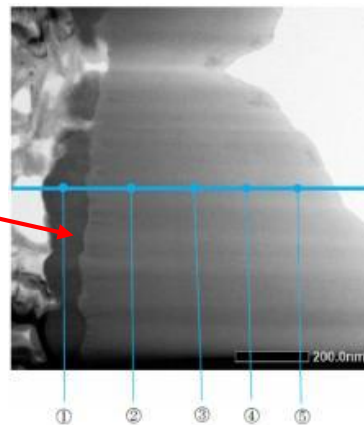
図 アルカリ融解試験の手順

○ TEM分析の課題 (分析TF)

- TEMは、U粒子の化学的特性 (相状態、組成) の詳細分析手段 → 燃料デブリ形成メカニズム評価
 - しかし、高精度分析にむけた、適切な薄膜化技術 (FIB) と、定量性高度化技術 (ゼータ因子法) が必要
- 従来の実績
 - いくつかのサンプルで、**金属Zr相 (α-Zr(O)) を同定** (例: 1u-2、2u-4) → 分析精度の確認が課題 (# 原理的には、金属Zr相中に金属Uが少量混入する可能性) → 廃炉ニーズにおける検討課題 (前述)



ほぼ同一部位を再研磨



再分析結果のまとめ

- U:Zrモル比 = およそ1:1
- 酸素濃度: およそ60~70at%
- 高温安定相 (fcc-(U, Zr)O₂) のみを同定 (2019年度に同定した低温安定相は、高度化分析では同定されず、推定内容を改訂)

粒子の平均組成 (SEM/EDX) 相状態、組成の点分析 (TEM)
2019年度分析結果 (例: 1u-2、U粒子no.15)

2019年度のTEM分析における課題

- 平均組成に比べ、Zrリッチな分析結果 (U:Zrモル比=7:12)
- 酸素濃度が約40~70%にバラつき、金属Zr混入の可能性示唆 (#酸化物の場合、酸素濃度約67%)
- 酸化物燃料デブリの低温安定相 (α-Zr(O) or tet-ZrO₂) 等を同定 → 燃料デブリ形成メカニズム推定の重要情報であり、分析精度の確認を実施

2020年度再分析結果 (薄膜化調製+ゼータ因子法)

○ TEM分析技術の高度化

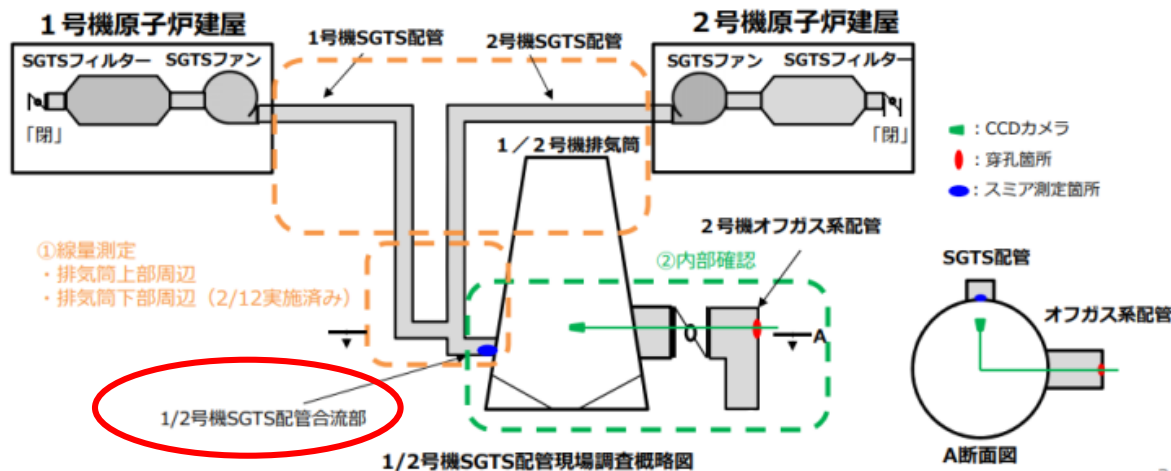
- U粒子中の酸素濃度、U:Zr比、相状態について、より信頼性の高いデータ取得できるように高度化
- 現状の分析では、1、2号機PCV内サンプル中に、**金属Zrの残留可能性はほぼ排除できる見通し**

○ 東電HDとの認識共有 (分析TF)

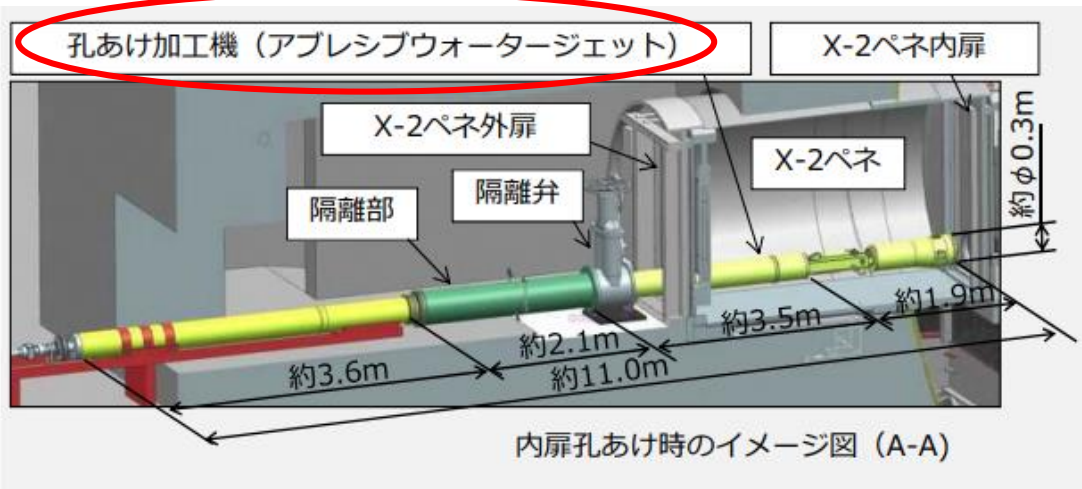
- 1/2号機SGTS配管内部ふき取りスミアサンプル
 - 1号機ベント時のPCV内雰囲気通過
 - **事故進展途中のPCV内汚染物**が付着している可能性
- 1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル
 - アクセスルート構築時にガス管理設備フィルタとAWJ(孔あけ加工機、アブレシブウォータージェット) から採取
 - **PCV内壁面の汚染**を拾っている可能性

参考 (1号機最確シナリオ)

- 高温の燃料デブリが短時間でPCVに移行
- 約1週間、ペDESTAL内デブリが冠水せず、高温を維持
- PCV内壁温度も高温 (約400℃、東電HD測定) を維持



1/2号機SGTS 配管内部拭き取りスミアサンプル



1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル

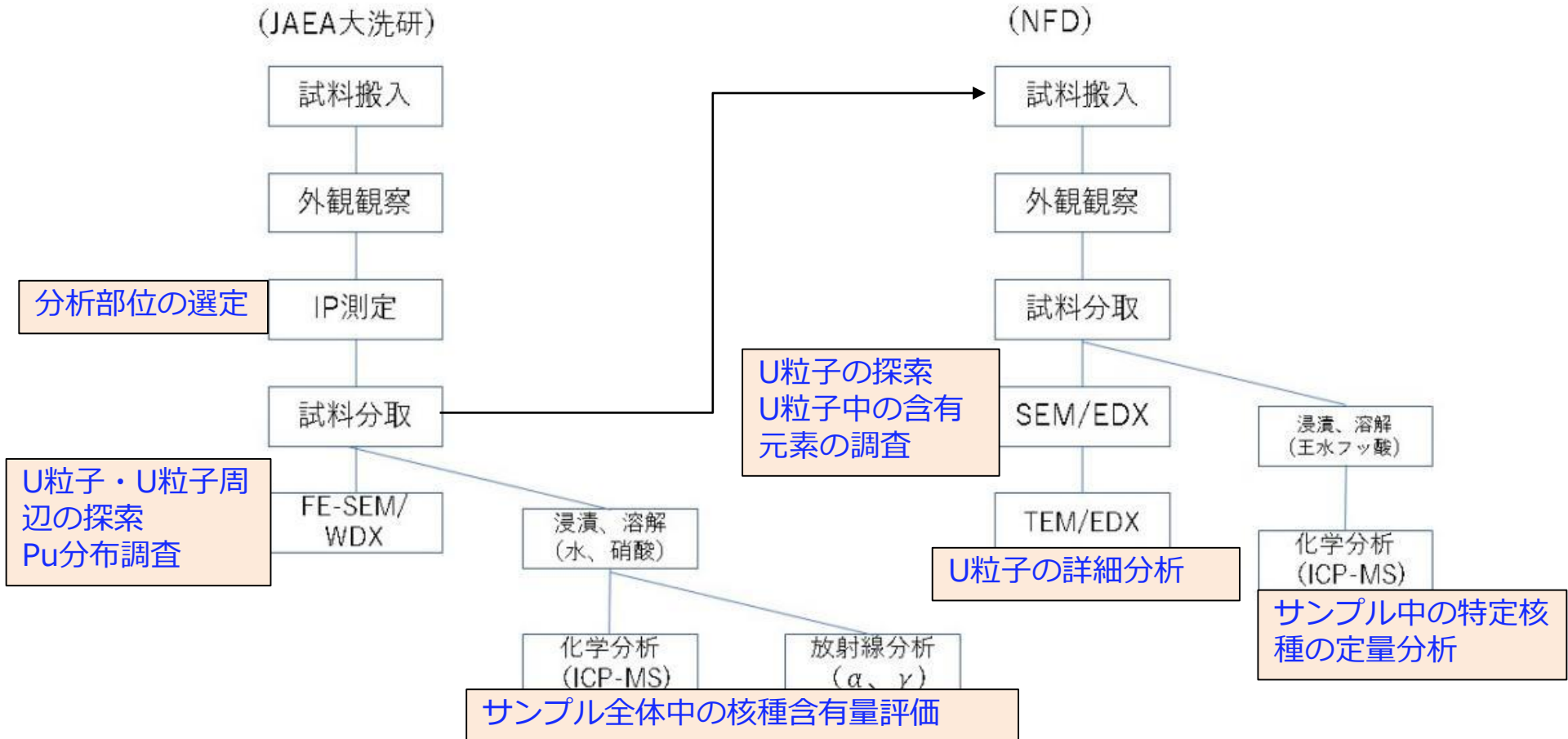
○ 1Fサンプル分析では、多元素・核種が混合した未知試料を扱う

- ・どの元素が、どのような濃度・組成で、どのような化合・混合状態で存在しているか不明
- 分析者は、**分析手法の原理に立ち戻り**、実際には、何の信号をどのような精度・範囲で測定し、どのように物性値に換算しているかを確認・理解した上で、分析を行い、分析値を評価することが不可欠
- ・照射済み燃料などの既知サンプルでの経験(例:〇〇分析では、UによるPuへの干渉は無視できる)のみに基づいて、効率化した分析手順やデータ評価方法を用いることは適切でない
- 分析者は、**【先入観を持たない定性分析】**による元素・核種の同定 → **【同定結果に適した定量分析の具体化】** → 分析目的に整合する**【不確かさ範囲の確認】**、を愚直に実施することが必要

○ 1Fサンプル分析データは、廃炉工程の設計に活用するものである

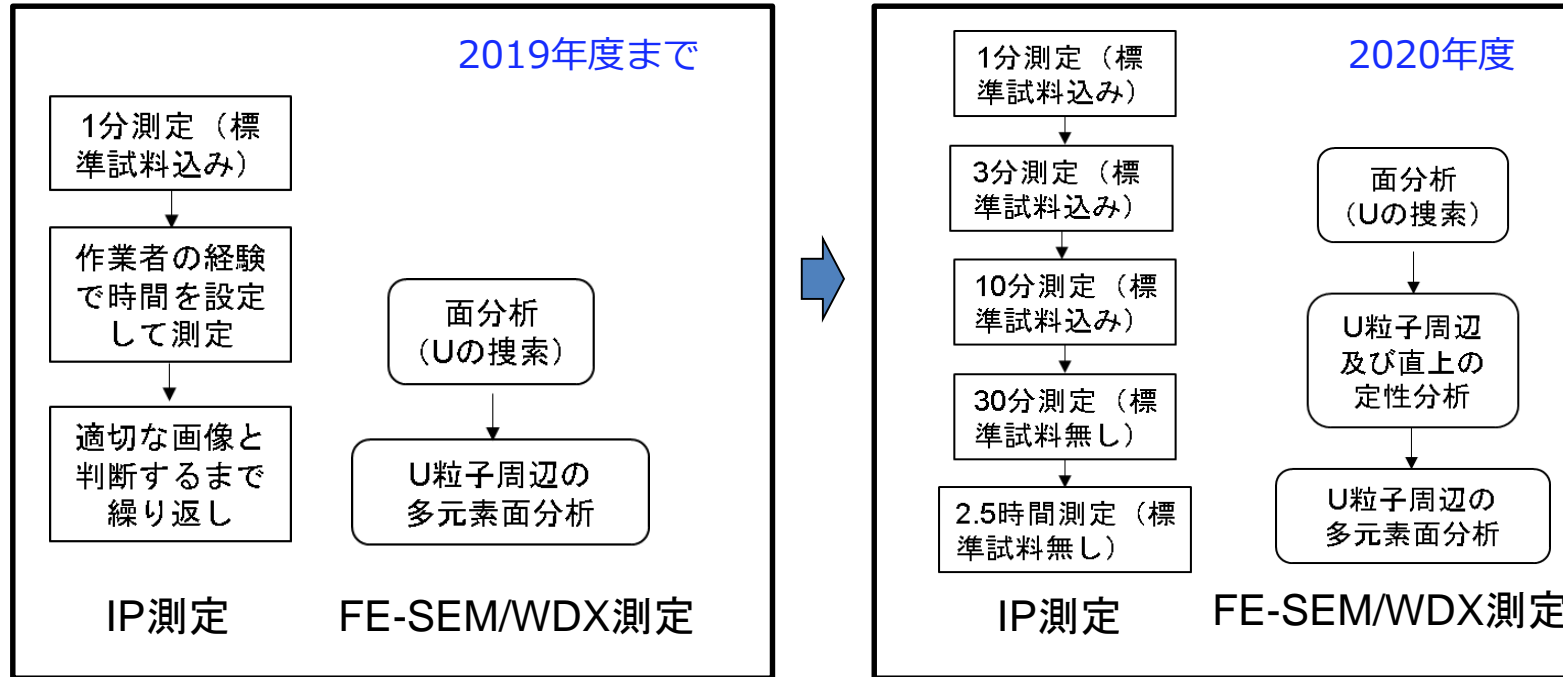
- ・今後、数10年にわたり、過去データにさかのぼって検索・利用される。
 - ・設計根拠データ・エビデンスとして利用されることも想定される。
 - 分析者は、**現在及び将来の分析データ評価者・利用者**が、一定水準の品質を持つデータとして閲覧・利用できるように、同定・定量の判断根拠や誤差評価の方法を明示する必要がある。
 - 分析者は、**【品質管理された分析結果】**を全て記載 → **【同定過程の明記】**(判断根拠、未同定の理由を含む) → **【品質管理された分析結果】**と**【仮説・推論】**を明確に区別して記載
- 大洗地区既存設備での分析について、分析品質管理の方法を具体化
 - 改訂した分析フローを【燃料デブリの分析精度の向上、熱挙動の推定及び簡易分析のための技術開発PJ】と情報共有

① 2) b. 分析データの品質管理 -各分析手法のねらいの再確認(分析TF)-



1 Fサンプルの分析フロー（大洗地区、全体）

- 各分析手法について、全体分析フローにおけるねらい（青字）を再確認
- ねらいに照し合せて、分析手順の詳細を改定（詳細：P.2-23～25）

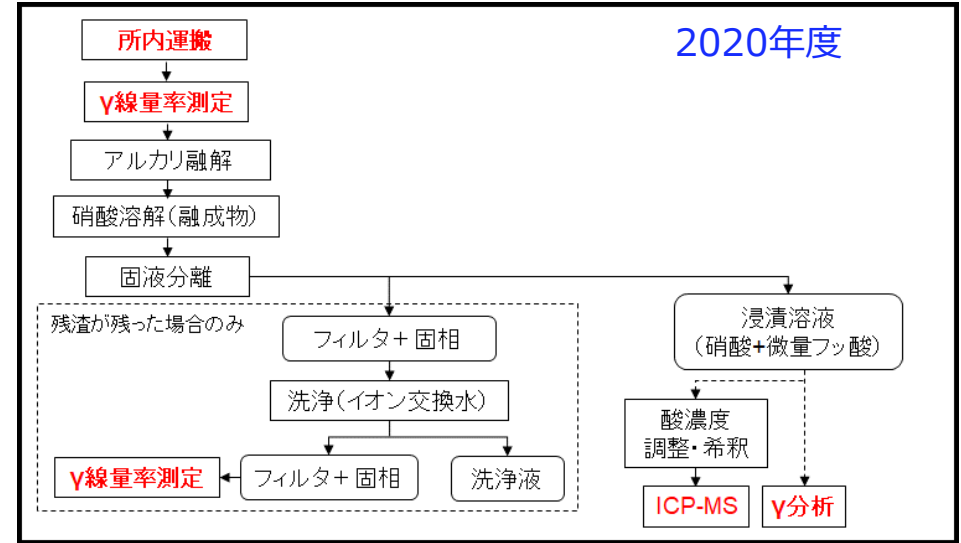
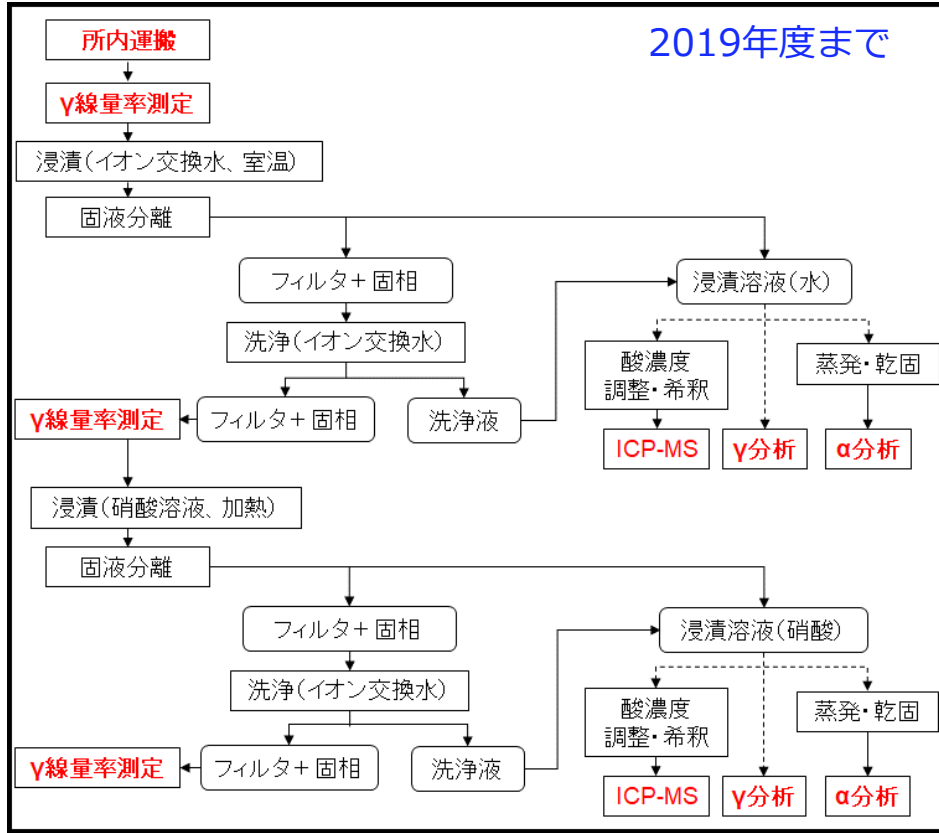


◆ IP測定

- ・ 注目箇所の選定過程を明記 するため、サンプルサイズと暴露時間の選定方法を記載
- ・ 全サンプルで線量値を比較・定量 できるように、コンター図を全て掲載、標準線源情報を記載

◆ FE-SEM/WDX測定

- ・ 同定・定量根拠を判断できるように、主要な特性X線のオーバーラップについて付表掲載
- ・ 全波長走査での定性分析を実施 し、含有元素を同定
- ・ 同定根拠について、特性X線マップと波長チャートと対応させて明記

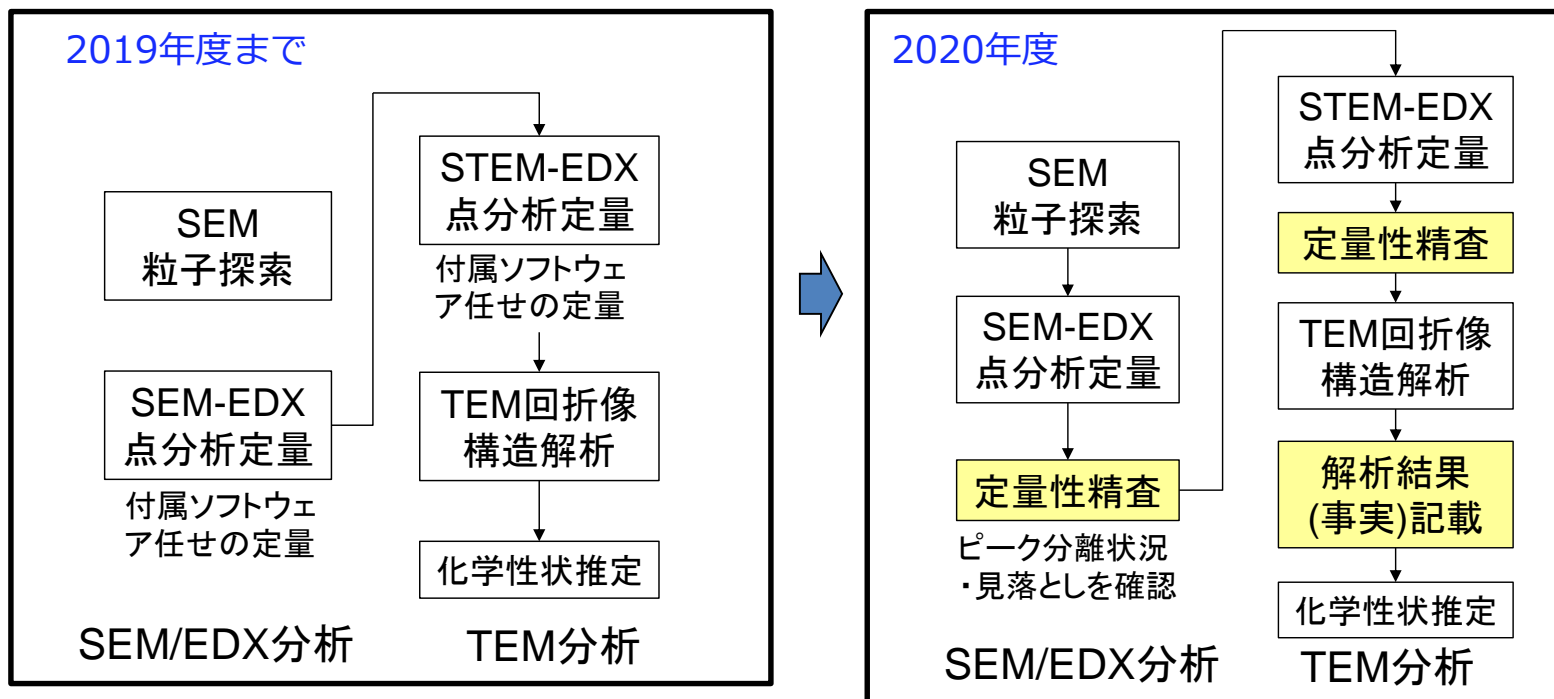


◆ 液調製

- 水溶と酸溶の区別を廃止（# 微粉末含有の可能性があり、あまり意味がないと判断）
- 全量溶解するため、**8N硝酸に少量フッ酸を添加した溶解処理法**に改訂

◆ ICP-MS測定

- **定性分析（全質量数）データ**をブランクデータと共に全掲載し、同定結果と判断根拠を明記（未同定質量数についても示す）
- 定量分析は、原則、**検量線溶液の濃度範囲内で実施**し、検量線範囲を外れる場合（# 特に低濃度側に外れる場合は、そのことを明記）
- 定量結果は、**FeおよびUに対し規格化**し、濃度比として整理（# 多核種・元素混入サンプルでは、比の値が重要と判断）
- 重要核種については、同位体比を評価



◆ SEM/EDX

- 点分析・ZAF較正による定量値の妥当性・判定根拠・有効数字・オーバーラップを明示

◆ TEM

- 結晶構造解析の妥当性・確からしさを明示
- 品質管理された分析結果と推定を分けて記載
- 重要測定項目である酸素の定量のため、**ゼータ因子法を導入**、その基本原理・測定手順を記載

ゼータ因子法：質量膜厚とX線強度の間の比例因子であるゼータ因子を用いる方法。特性X線強度とともに照射電流量を測定することで組成と質量膜厚を決定することができるため、位置によって試料密度が大きく異なり、膜厚が決定しにくい試料における定量値の補正に有効。

① 2) c. 2020年度搬入試料の分析 -分析データの品質管理と、分析データのまとめ-

1/2号機SGTS配管内部拭き取りスミアサンプル

- 分析品質管理 (P.2-27～29)
- 品質管理された分析結果のまとめ (P.2-30)

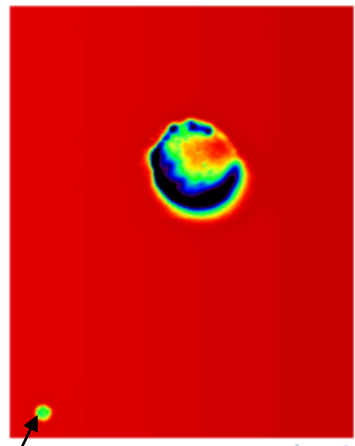
1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル

- 分析品質管理 (P.2-31～35)
- 品質管理された分析結果のまとめ (P.2-36)

COVID-19の影響で分析データとりまとめが遅延したため、2020年度は、品質管理法に基づく『品質管理された分析結果』のまとめに注力した。このため、品質管理された分析結果に基づく仮説・推論については、予備的検討に留まっており、精査が必要である。

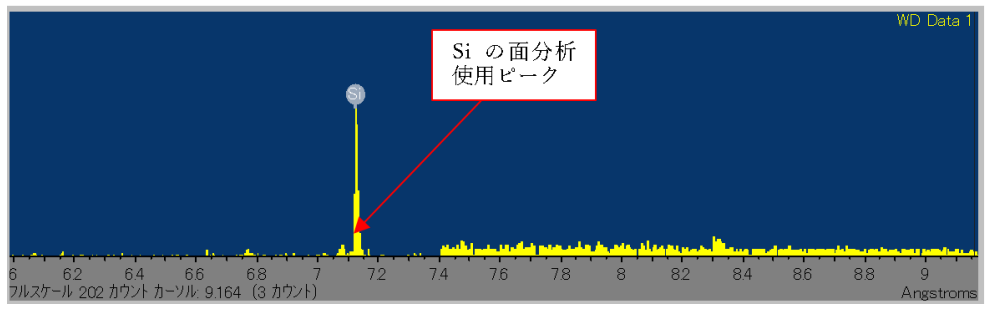
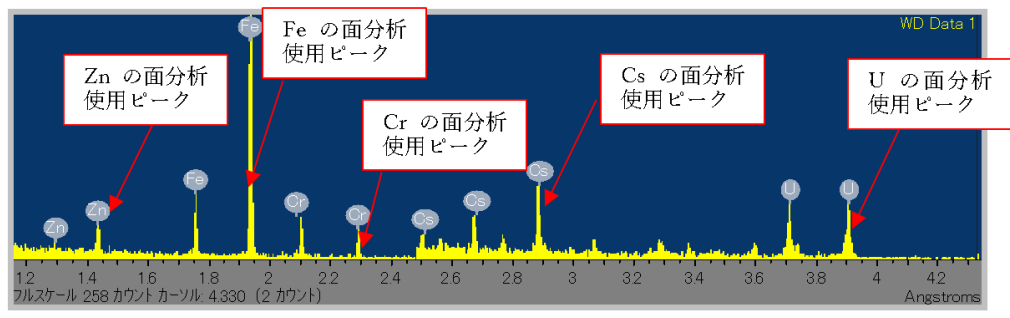


外観



標準線源 (10min)
(約48kBq) IP

測定例 (XM2012)



SEM/WDX測定例 (XM2012)

◆ 外観・IP

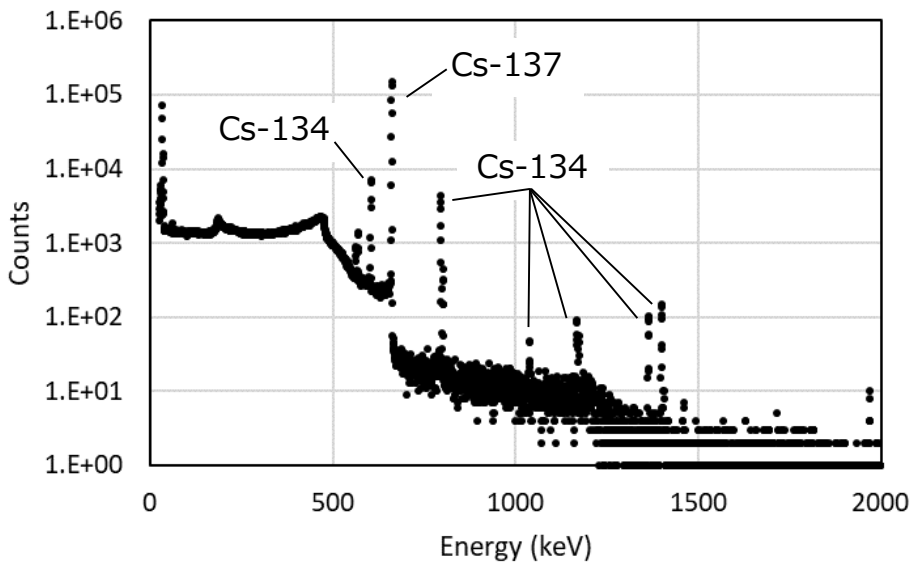
- 品質管理方法に従って、スケール、暴露時間、コンター、標準線源等の情報を記載
- 高線量部位を同定、サンプル分取

◆ SEM/WDX

- 品質管理方法に従って、定性分析、特性X線ピーク同定
 - Zn、Fe、Cr、Cs、U、Siを同定し、面分析（マッピング）
 - Puは未検出

1/2号機SGTS配管内部拭取りスミアサンプル -ICP-MS、放射能データの品質管理-

ICP-MSによる定量結果



γ線測定例 (XM20111 (2020年12月15日測定))

元素	重量 (単位: ng)※		Feとの重量比		
	XM20111	XM20121	元素	XM20111	XM20121
Cr	5.19×10^2	5.41×10^2	Cr	1.2×10^{-2}	4.2×10^{-3}
Fe	4.43×10^4	1.30×10^5	Fe	1	1
Mo	1.66×10^1	9.18×10^2	Mo	3.8×10^{-4}	7.1×10^{-3}
U	1.04×10^1	5.10×10^0	U	2.3×10^{-4}	3.9×10^{-5}

※Cr、Mo(XM20121のみ)の元素量は、Cr-52、Mo-95の重量に天然同位体組成を乗じて算出した。Mo(XM20111のみ)には、FPの混入が認められたため、天然同位体と核分裂生成物でMo中の同位体組成として近い値をもつMo-98に着目し、Mo-98の重量に天然同位体組成を乗じて算出した。Feの元素量は、Fe-56、57の重量の和である。Uの元素量は、U-234、235、236、238の重量の和である。

U同位体比

	XM20111	XM20121
U235/U238	1.65×10^{-2}	1.9×10^{-2}
U236/U238	2.53×10^{-3}	1.9×10^{-3}

◆ 液調製・放射線

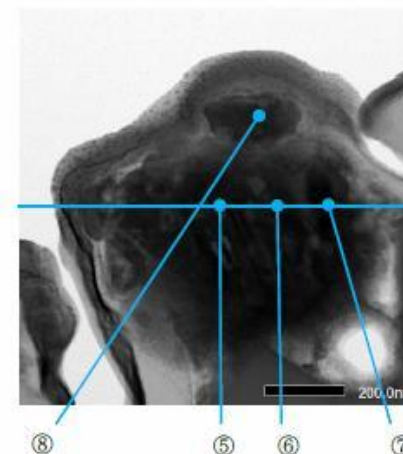
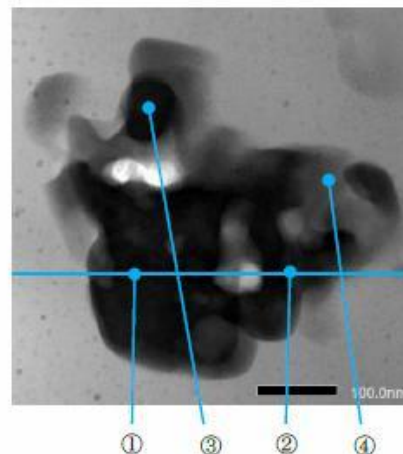
- 品質管理方法に従って、8N硝酸+フッ酸で液調製、残渣をγ測定し、¹³⁷Csの放射線エネルギーが、100分の1以下となることを確認
- 溶液のγ線測定で、¹³⁴Cs、¹³⁷Csを検出
- 測定日の情報を記入してデータ格納

◆ ICP-MS

- 品質管理方法に従って、定性分析、データ格納
- 検量線濃度範囲で定量分析し、Feに対して規格化
- 検量線範囲で測定された核種について、同位体比を評価
- 不確かさ評価を実施

1/2号機 SGTS 配管内部拭き取りスミア①-1 領域 04~13(2)

 Mo or S (強い Tc,Ru,Pd,Ag,Pb の信号に影響される)	 Mo(K線)	 Tc (強い Mo,Ru,Pd,Ag,Pb の信号に影響される)	 Ru (強い Mo,S,Cl,Tc, Rh,Pd,Ag,Pb の信号に影響される)
 Rh (強い Cl,Ru,Mo, S,Pd,Ag,Pb,Tc の信号に影響される)	 Pd (強い Rh,Ag,Ru,Cl, Mo, S,Pb,Tc の信号に影響される)	 Ag (強い Pd,Sn,U の信号に影響される)	 Cd
 Sn (U の信号の影響が含まれる)	 Te (Ca の信号の影響が含まれる)	 I (Ca,Te,Cs,Ba,Ti の信号の影響が含まれる)	 Cs (U 及び強い Te,Ba, Ti の信号の影響が含まれる)
 Sm (強い Ba,Ti,W の信号の影響が含まれる)	 W (強い Zn,Ni の信号の影響が含まれる)	 Pb	 U (Ag の信号の影響が含まれる)



	O	Na	Mg	Al	Si	S	Ca	Cr	Fe	Ni	Zn	at%
①	約70	0.0	0.2	0.3	0.2	0.0	0.0	0.1	3.0	0.0	0.3	
②	約70	0.0	0.1	0.3	0.2	0.0	0.0	0.2	8.5	0.0	0.3	
③	約70	0.0	0.0	0.4	0.0	0.0	0.0	0.1	3.0	0.0	0.2	
④	約70	0.0	0.1	0.3	0.0	0.0	0.0	0.2	12.1	0.0	0.2	
⑤	約30	0.0	0.5	0.4	0.1	1.1	0.0	0.1	2.1	18.8	1.2	
⑥	約50	0.0	0.4	0.5	0.4	0.7	0.0	0.1	2.0	11.0	1.1	
⑦	約60	0.0	0.2	0.6	0.2	0.0	0.0	0.3	2.9	3.3	0.4	
⑧	約0	0.0	1.3	0.6	0.5	6.1	0.0	0.2	3.8	29.4	0.6	

Se	Zr	Mo	Ag	Sn	Sb	Te	Cs	Pb	U
0.0	0.1	0.0	0.7	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	24.7
0.1	0.1	0.0	0.7	0.3	0.0	0.2	0.1	0.0	21.1
0.0	0.1	0.0	0.7	0.0	0.0	0.2	0.0	0.0	23.1
0.0	0.0	0.1	0.5	0.4	0.0	0.1	0.0	0.0	14.7
5.8	0.1	0.0	1.1	9.5	0.0	25.3	0.0	0.2	0.2
3.4	0.1	0.0	2.8	13.9	0.0	17.2	0.0	0.2	0.1
0.9	0.1	0.0	1.4	1.1	0.0	8.0	0.1	0.1	23.6
20.1	0.4	0.0	0.2	0.0	1.5	35.0	0.0	0.2	0.0

◆ SEM/EDX

- 同定根拠、オーバーラップを記載
- TEM分析対象領域の選定根拠を記載

◆ TEM

- ゼータ因子法を導入、薄膜化を調製
- EDXチャートにより、同定根拠および定量分析範囲を記載（元素オーバーラップは現在評価中、表中の数字は暫定値）

① 2) c. 2020年度搬入試料の分析 -分析結果のまとめ- -1/2号機SGTS配管内部拭き取りスミアサンプル-

◆ 分析データの特徴・傾向

□ 核種・元素分析 (ICP-MS) :

同位体分で、由来を推定

- U : 燃料由来 (海水由来混入の可能性)
- B, Cr, Fe, Zr, Mo : 天然同位体比に近い。
(MoはFP由来を含んでいる可能性あり)

U同位体比の分析結果

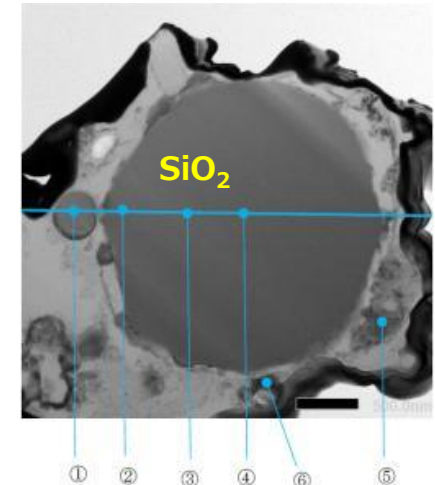
	XM20111	XM20121
U235/ U238	1.65×10^{-2}	1.9×10^{-2}
U236/ U238	2.53×10^{-3}	1.9×10^{-3}

□ 粒子の分析 (SEM/EDX, TEM-EDX) :

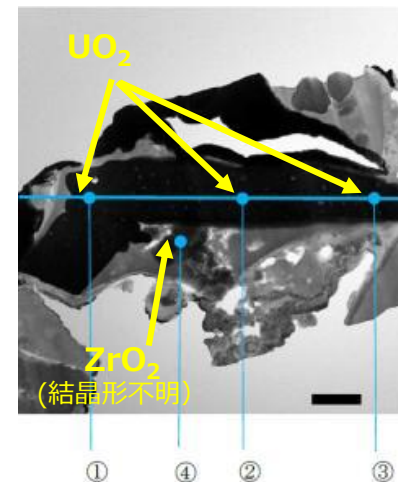
- **U含有粒子 (複数の種類を同定)**
 1. UO_2 、 ZrO_2 、 FeO_x 混合する粒子
 2. UO_2 と ZrO_2 が同伴しない粒子
(2は、照射燃料の破碎片の可能性)
- **Ag-Te-Pbなど、金属主体と思われる元素を多く含む粒子**
⇒ Ag-Te、Ag-Te-Pbなど
(揮発性* FPが主成分と推定)
- **Cs-Siを多く含む領域**
⇒ ガラス質の SiO_2 粒子を形成
(Cs含有粒子の可能性)
- Moを多く含む領域 (TEM分析なし)

* 以降、本報告書では事故時の高温過程において蒸発し易い性質を揮発性、蒸発し難い性質を難揮発性と呼ぶ。

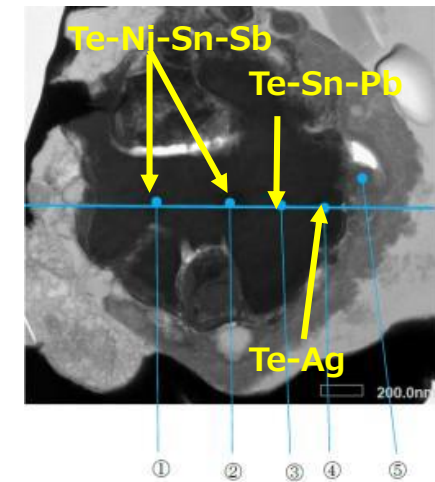
Si-Cs含有粒子



U含有粒子



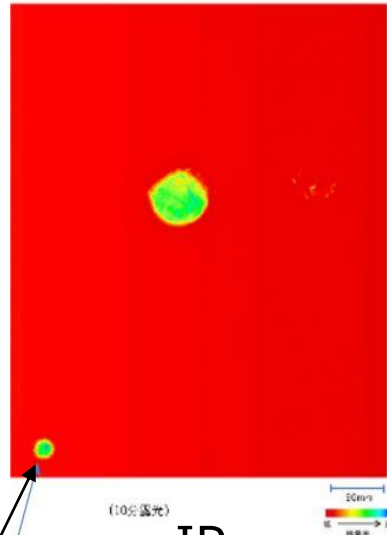
Ag-Te-Pb含有粒子



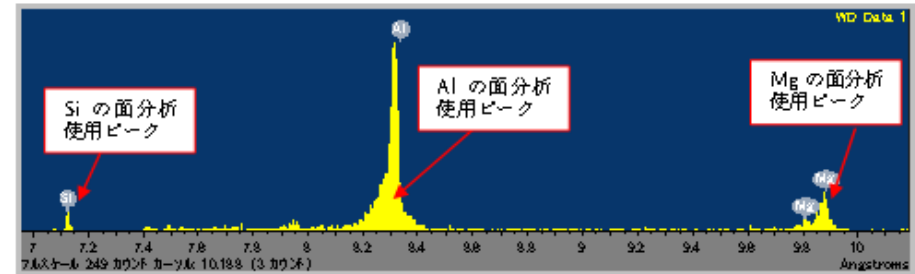
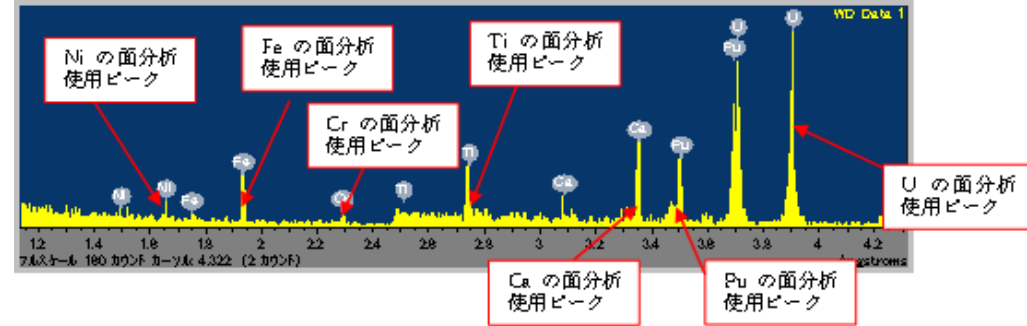
TEMによる粒子の微細分析 (一例)



外観



標準線源 (約48kBq)
IP (10min)



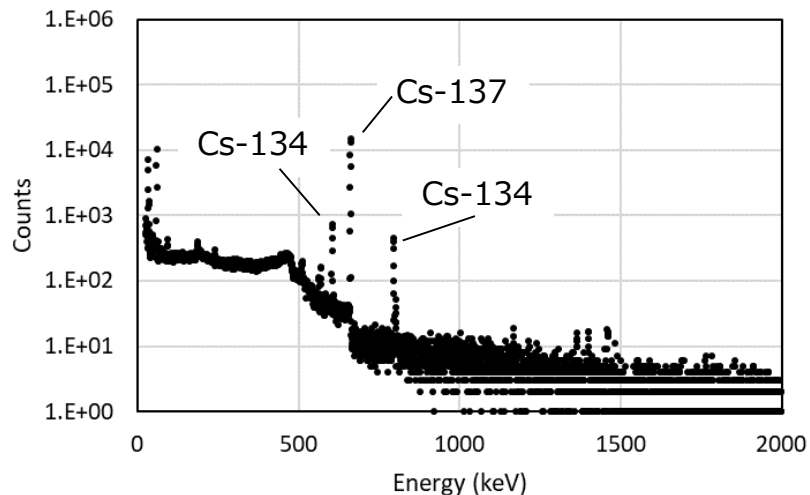
測定例 (XM2014)

SEM/WDX測定例 (XM2014)

◆ SEM/WDX

- 品質管理方法に従って、定性分析、特性X線ピーク同定
 →Ni、Fe、Cr、Ti、U、Pu、Si、Ca、Al、Mgを同定し、面分析 (マッピング)
 →Pu、UはU粒子内で同伴、
 →それ以外の元素はU粒子の周辺で検出
 →Al定量法はさらに検討が必要 (オーバーラップ)

1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル (ガス管理設備) -ICP-MS、放射能データの品質管理- ICP-MSによる定量結果



γ線測定例 (XM20131 (2020年12月15日測定))

◆ 液調製・放射線

- 品質管理方法に従って、8N硝酸+フッ酸で液調製、残渣をγ測定し、¹³⁷Csの放射エネルギーが、100分の1以下となることを確認
- 溶液のγ線測定で、¹³⁴Cs、¹³⁷Csを検出
- 測定日の情報を記入してデータ格納

重量 (単位: ng)※

元素	XM20131	XM20141
Cr	4.79×10^2	8.39×10^2
Fe	2.30×10^3	3.30×10^3
Mo	< LOQ	6.57×10^1
U	3.46×10^0	5.66×10^0

Feとの重量比

元素	XM20131	XM20141
Cr	2.1×10^{-1}	2.5×10^{-1}
Fe	1	1
Mo	-	2.0×10^{-2}
U	1.5×10^{-3}	1.7×10^{-3}

※Cr、Moの元素量は、Cr-52、Mo-95の重量に天然同位体組成を乗じて算出した。Feの元素量は、Fe-56、57の重量の和である。Uの元素量は、U-234、235、236、238の重量の和である。

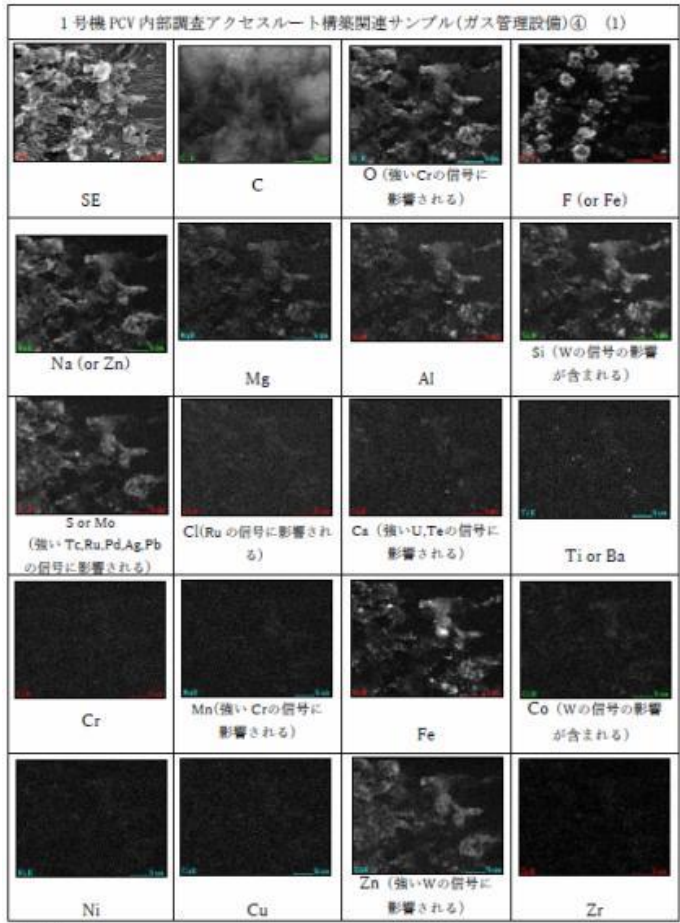
U同位体比

	XM20131	XM20141
U235/U238	1.78×10^{-2}	1.72×10^{-2}
U236/U238	<LOQ	1.2×10^{-3}

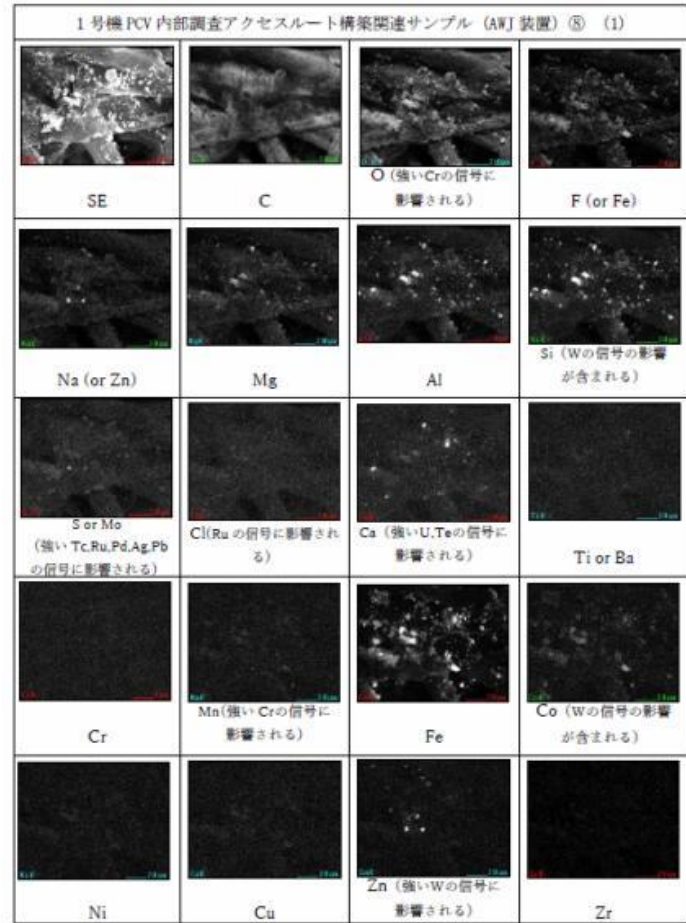
◆ ICP-MS

- 品質管理方法に従って、定性分析、データ格納
- 検量線濃度範囲で定量分析し、Feに対して規格化
- 検量線範囲で測定された核種について、同位体比を評価
- 不確かさ評価を実施

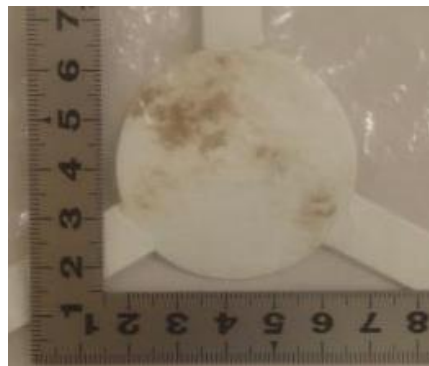
1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル (ガス管理設備、AWJ) -SEM/EDXデータの品質管理-



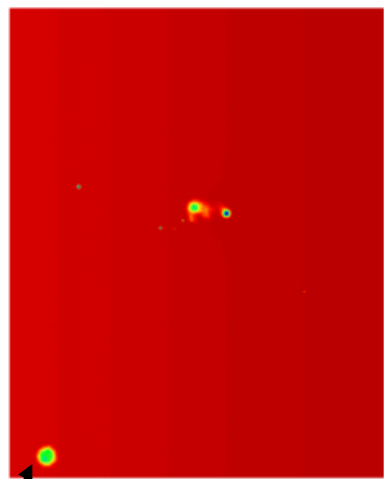
- ◆ SEM/EDX (ガス管理設備)
- ・ 同定根拠、オーバーラップを記載
- ・ ウラン粒子検出できず



- ◆ SEM/EDX (AWJ)
- ・ 同左

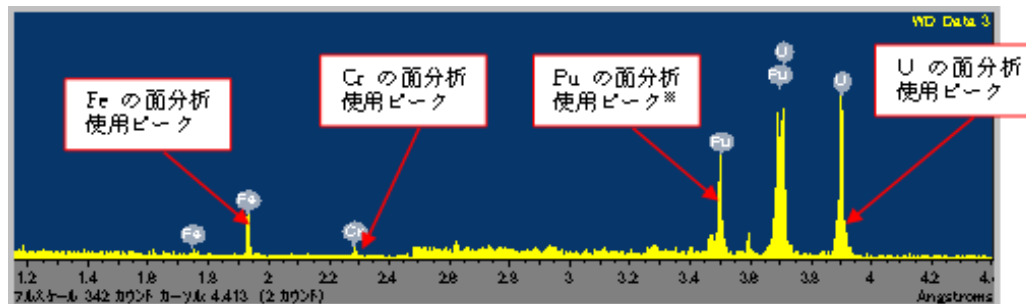


外観

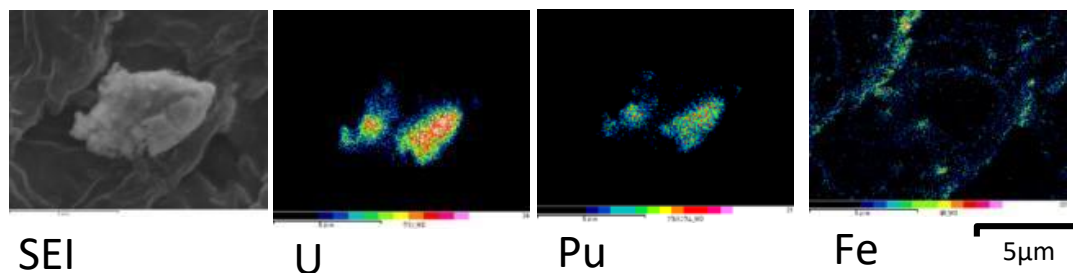


標準線源 (約48kBq) IP (10min)

測定例 (XM2015)



SEM/WDX測定例 (XM2015)、特性X線チャート



SEM/WDX測定例 (XM2015)、特性X線マップ

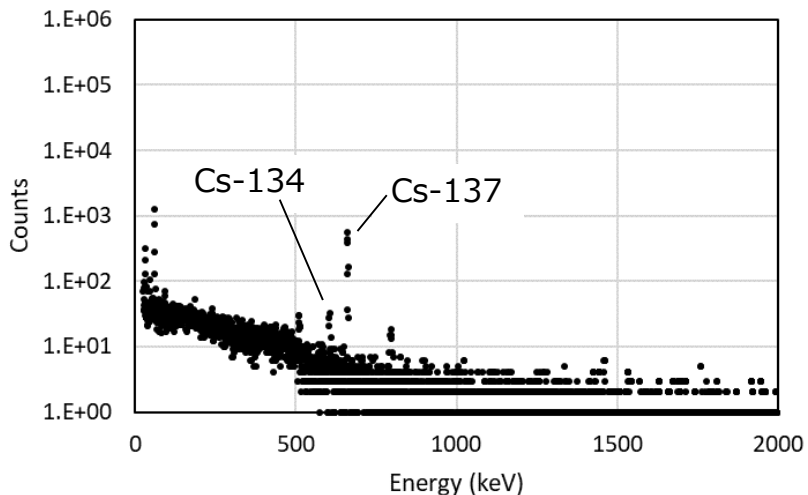
◆ 外観・IP

- 品質管理方法に従って、スケール、暴露時間、コンター、標準線源等の情報を記載
- 高線量部位を同定、サンプル分取

◆ SEM/WDX

- 品質管理方法に従って、定性分析、特性X線ピーク同定
 - Fe、Cr、U、Puを同定し、面分析 (マッピング)
 - Pu、UはU粒子内で同伴
 - Fe、CrはU粒子の周辺で検出

ICP-MSによる定量結果



γ線測定例 (XM20151 (2020年12月17日測定))

重量 (単位: ng)※

Feとの重量比

元素	XM20151	XM20161
Cr	7.76×10^2	5.60×10^2
Fe	2.01×10^4	7.11×10^4
Mo	1.35×10^2	2.69×10^4
U	6.44×10^0	5.03×10^0

元素	XM20151	XM20161
Cr	3.8×10^{-2}	7.9×10^{-3}
Fe	1	1
Mo	6.7×10^{-3}	3.8×10^{-1}
U	3.2×10^{-4}	7.1×10^{-5}

※Cr、Moの元素量は、Cr-52、Mo-95の重量に天然同位体組成を乗じて算出した。Feの元素量は、Fe-56、57の重量の和である。Uの元素量は、U-234、235、236、238の重量の和である。

U同位体比

	XM20151	XM20161
U235/U238	1.33×10^{-2}	1.29×10^{-2}
U236/U238	<LOQ	<LOQ

◆ 液調製・放射線

- 品質管理方法に従って、8N硝酸+フッ酸で液調製、残渣をγ測定し、¹³⁷Csの放射線量が、100分の1以下となることを確認
- 溶液のγ線測定で、¹³⁴Cs、¹³⁷Csを検出
- 測定日の情報を記入してデータ格納

◆ ICP-MS

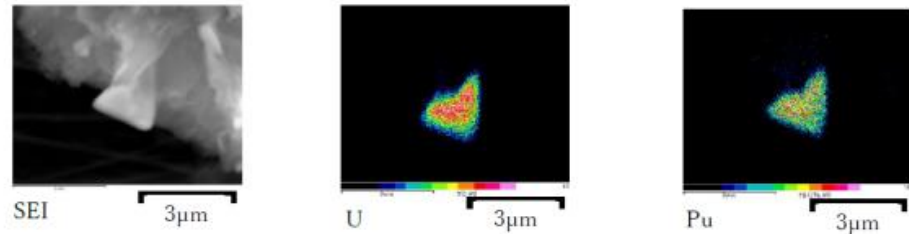
- 品質管理方法に従って、定性分析、データ格納
- 検量線濃度範囲で定量分析し、Feに対して規格化
- 検量線範囲で測定された核種について、同位体比を評価
- 不確かさ評価を実施

① 2) c. 2020年度搬入試料の分析 -1号機PCV内部調査アクセスルート構築関連サンプル-

❖ 分析データの特徴・傾向（ガス管理設備サンプル）

- ICP-MS分析: Mo、Zr、Cr、Fe、B、Uを主たる元素として検出
- 放射能分析: ^{134}Cs 、 ^{137}Cs を検出
- SEM/WDX分析:
 (XM2013) U粒子は未検出、Feが主成分として検出された。Cr、Niも周囲に存在
 (XM2014) ~3 μm サイズのU粒子を検出。同部位に Puを検出。周囲に Fe、Cr、Ni が存在

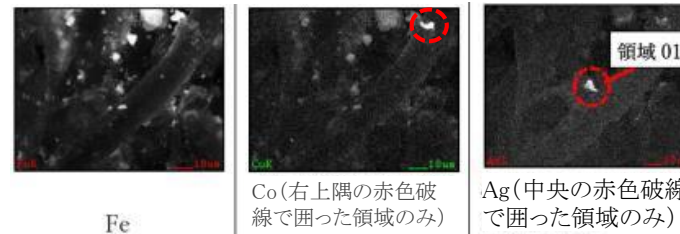
- TEM分析: U粒子未検出



U粒子を検出 (SEM/WDX)

❖ 分析データの特徴・傾向（AWJ 装置サンプル）

- ICP-MS分析: Mo、Zr、Cr、Fe、B、Uを主たる元素として検出
- 放射能分析: ^{134}Cs 、 ^{137}Cs を検出
- SEM/WDX分析:
 (XM2015) ~5 μm サイズのU粒子を検出。同部位にCu、Al、Pu を検出。周囲に Fe、Cr、Ni、Znが存在。
 (XM2016) ~4 μm サイズのU粒子を検出。同部位にPu、Fe、Cr、Ni、Znが存在。
- SEM/EDX分析: Fe、Co、Agを多く検出。それぞれ独立して存在している可能性。
- TEM分析: U粒子未検出



SEM/EDX分析結果

いずれのサンプルも、SEM/WDXでのみU粒子検出
TEM分析ができていないため、燃料デブリ特性に関
する推定は十分にできていない。⇒今後の課題

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-37

- | | | |
|---|----------------------------|--------|
| (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 | (2019～2020年度*1) | |
| ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び 分析効率化の検討 | | P2-15 |
| ② 燃料デブリの性状推定の高度化 | | P2-54 |
| (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 | | |
| ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 | | |
| ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 | (2019～2021年度*2) | P2-87 |
| 1) 試験の概要 | 6) 粒子分析結果(切削試験) | |
| 2) 試験に供する模擬燃料デブリ | 7) 粒子分析結果(加熱試験) | |
| 3) 試験方法 | 8) 分析結果のまとめ | |
| 4) 切削試験結果 | 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較 | |
| 5) 加熱試験結果 | | |
| ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 | (2019～2020年度*1) | P2-140 |
| ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 | (2019～2020年度*1) | P2-150 |
| ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 | (2019～2020年度*1) | |
| ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 | | P2-156 |
| ②-2 液相における微粒子挙動評価 | | P2-166 |
| ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ
– 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – | (2021年度*2) | |
| ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 | | P2-178 |
| ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) | | P2-194 |

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

- ・ 2019年度 NDF、東電HD、MRI、JAEAによる分析効率化に関する事務局連絡会を開催し、試験的燃料デブリ取り出しで予想される少量の燃料デブリサンプルを対象に、ケーススタディを実施した。

⇒この結果（分析フロー及び分析項目）について、関係者より以下の意見が得られた。

○ケーススタディの成果について得られた意見(2019年度事務局連絡会)

- ・PuとUを分析し、分析物が燃料デブリであることを特定・宣言した後で、深い分析に入っていくべきではないか。そういうオプションを加えてほしい。
- ・試料はワイヤブラシに付着したものを直接輸送容器に入れて払い出す可能性があるので、その手順を考慮して欲しい。

○関連する意見（分析項目に関して得られた意見(2019年度 第2回 1F試料評価委員会)

- ・輸送されてくる試料の性状として、U-Zr-Oを主成分とする燃料デブリ、金属部材を主成分とする燃料デブリ等に分類して、カテゴリー毎に分析項目を設定しているが、異なったカテゴリーで分析を行わないように、分析フローのどの段階でカテゴリーが明らかになるか、明確にしておく必要がある。
- ・どの情報が重要なのかをはっきりさせて対応すべきである。その中で、分析に必要な試料の量と測定精度についてできるだけ定量的に示し、所望の情報が得られるかどうかの検討をしておく必要がある。検出感度や精度を示した上で、十分使えそうな項目や参考情報程度のものしか得られないものという様に区別して評価するのが良い。
- ・含水率、空隙率、表層ダスト層の厚みなど、0.5g程度あれば分析可能と思われる項目も挙げた方がよい。

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等
- ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
分析効率化の検討

分析効率化に関する2020年度の検討方針

2020年9月17日の事務局連絡会において、2019年度のケーススタディにおける分析フロー、分析項目に対する意見を反映し、以下の方針で、分析効率化の検討を行い、分析フローを構築することで合意した。

- (a) 分析の初期段階でUとPuの定性分析を実施し、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフローを作成
- (b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順を追記
- (c) 燃料デブリ試料の量について受入れ重量の範囲を拡大した時に分析フローにどのような影響がでるかを検討
- (d) 今期事業で実施している品質管理の検討結果など、新たな知見・成果の取り込み

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(a) 分析の初期段階でUとPuの定性分析を実施し、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフロー

○ 検討の要点

- ✓ 燃料デブリの試験的取り出しでは、採取されたサンプルが燃料デブリであるか否かをまず確認することが必須（核燃料物質含有の判定）次に、含有される主成分によって、その後の分析評価項目の要否を判断すると想定

核燃料物質の分析項目の抽出⇒全分析項目（次ページ参照）の中から抽出

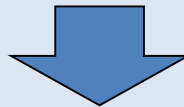
- ・物性測定・機器分析：「B-3 構成元素・不純物の分析(SEM/ EPMA)」
- ・化学分析：「C-1 元素分析 (ICP-AES)」、「C-2 核種分析 (ICP-MS)」

- ✓ 定性分析方法の具体化（非破壊分析を優先、また、簡易な定性分析法を採用）

「B-3 構成元素・不純物の分析 (SEM/EPMA)」 (非破壊的な分析として使用)

SEM/EPMA定性分析方法：

定量分析での樹脂埋め・平滑研磨面の分析ではなく、分取したサンプルの一部をそのまま測定、表面にある構成元素を同定



「B-3 構成元素・不純物の分析 (SEM/EPMA)」を先行実施するフローを作成する。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

燃料デブリの試験的取り出しの燃料デブリサンプルに対する分析項目

- ・少量の燃料デブリサンプル（A型輸送容器）を想定、A) 受入時分析・非破壊分析、B) 物性測定・機器分析、C) 化学分析の各段階で、既存施設（JAEA+NFD）の分析設備において実施可能な分析項目を抽出 ⇒ 燃料デブリ分析ニーズに反映可能

A 受入時分析・非破壊分析

- A-1 外観観察（ペリスコープ）
- A-2 重量測定
- A-3 線量測定
- A-4 イメージングプレート
- A-5 γ 線測定（スキャン）
- A-6 X線CT*

B 物性測定・機器分析

- B-1 金相観察（光学顕微鏡）
- B-2 結晶構造・相同定（XRD）
- B-3 構成元素・不純物（SEM/EPMA）
- B-4 結晶構造・相同定（TEM）

B-5 密度測定（液浸型天秤）

B-6 硬さ・靱性（ビッカース硬さ計）

B-7 水分測定（カールフィッシャー水分計）

C 化学分析

C-1 元素分析（ICP-AES）

C-2 核種分析（ICP-MS）

C-3 α 線放出核種分析（ α 線スペクトロメーター）

C-4 β 線放出核種分析（液体シンチレーション）

C-5 γ 線放出核種分析（ γ 線スペクトロメーター）

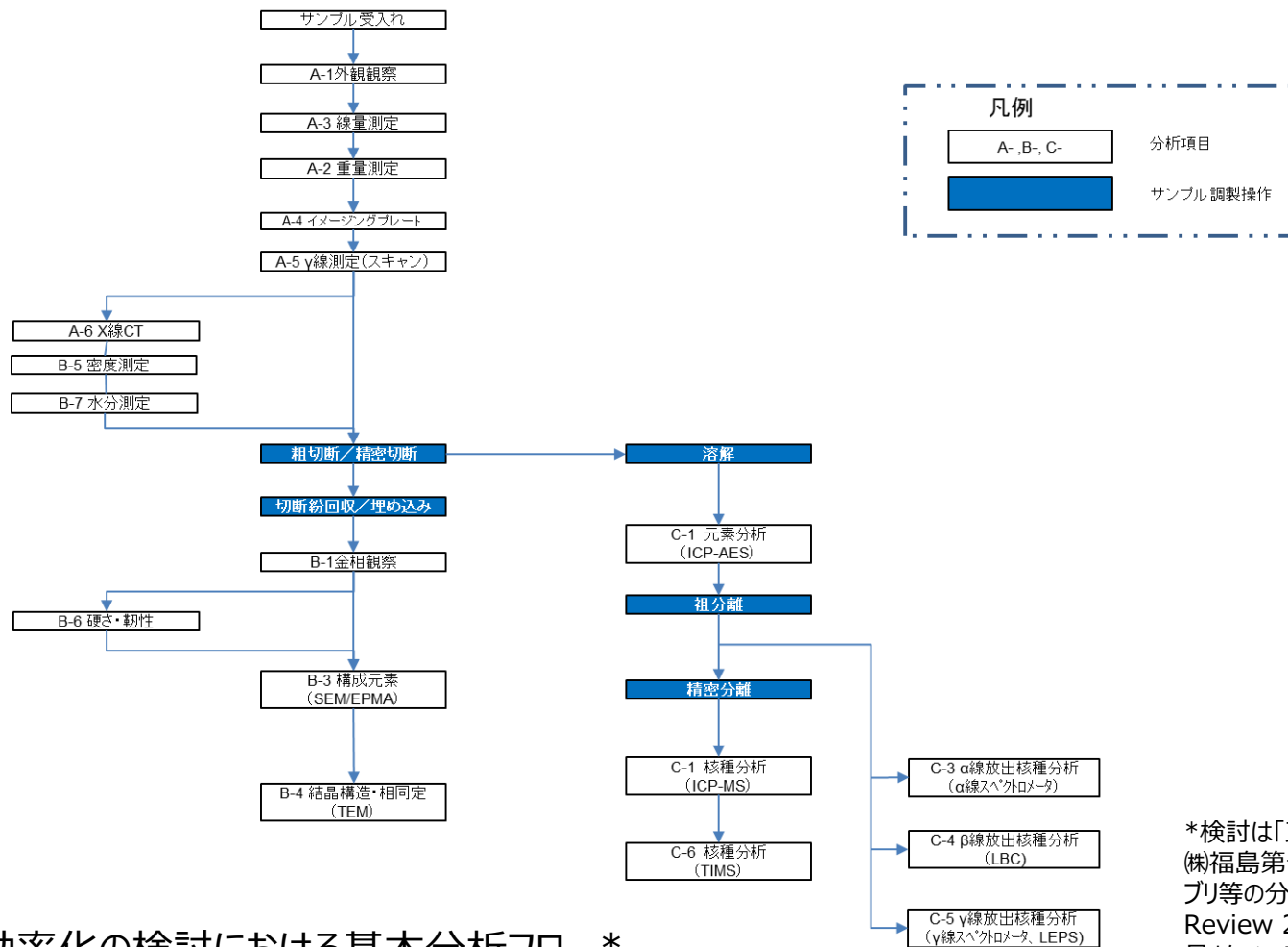
C-6 核種分析（TIMS）*

*option : 必須ではないがより高度なデータ等取得が望める項目

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
分析効率化の検討

(a) 分析の初期段階でUとPuの定性分析を実施し、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフロー



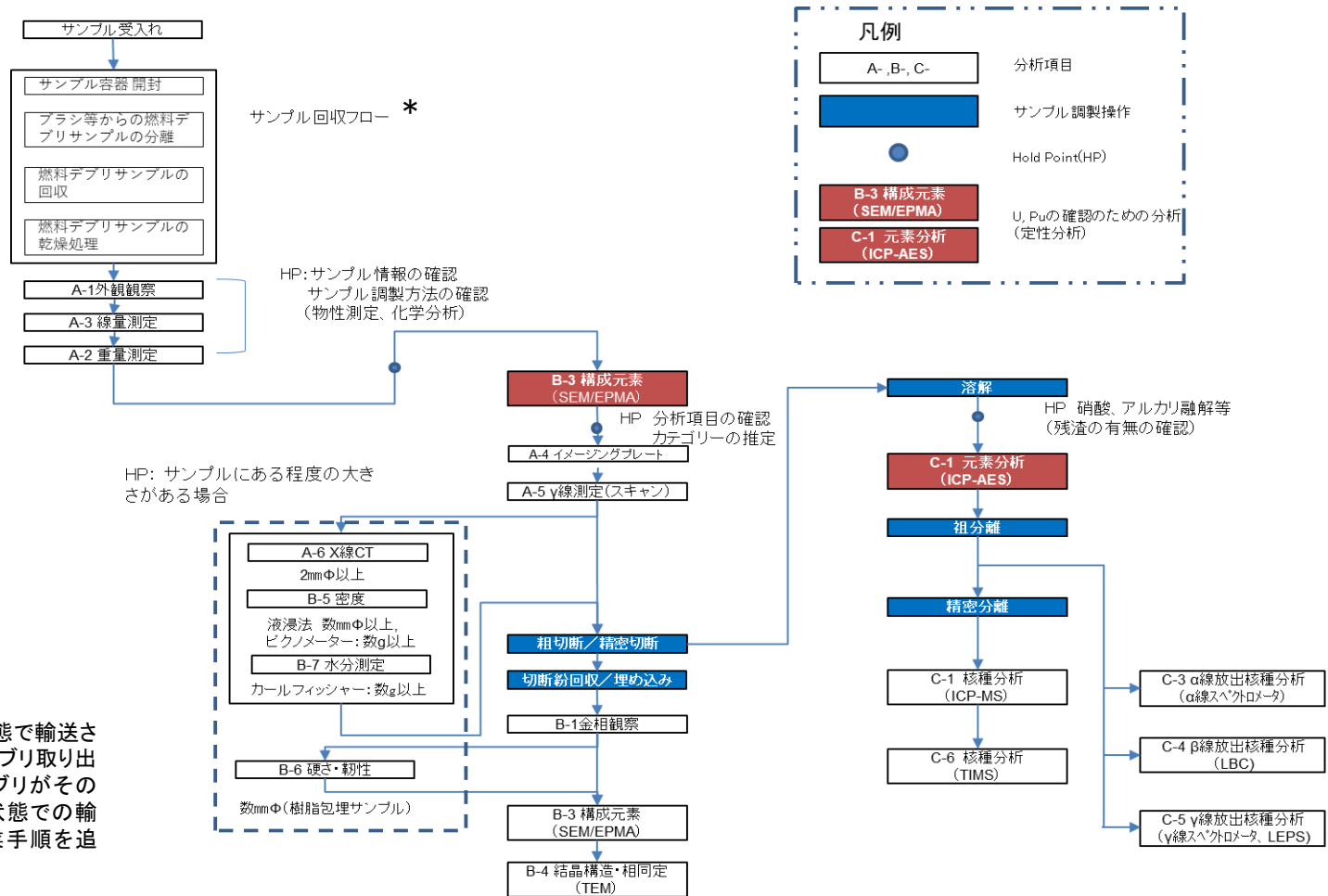
分析効率化の検討における基本分析フロー*

*検討は「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所燃料デブリ等の分析について (JAEA-Review 2020-004) 2020年5月」をベースにしている。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
分析効率化の検討

(a) 分析の初期段階でUとPuの定性分析を実施して、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフロー



* 「(b) 特別な形態で輸送された場合(燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送)における作業手順を追記」にて検討

分析物が燃料デブリであることをSEM/EPMAを用いて早期に特定するフロー

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順

「燃料デブリの段階的に規模を拡大した取り出し技術の開発」PJにおいて試験的取り出しにおける少量の燃料デブリの取り出し方式として検討されている方式は以下の方式である。

・極細線金ブラシ方式（⇒P.2-45）

極細線の金属ブラシを対象となる燃料デブリの表面に押し付けることにより、ブラシに絡められた粒子を回収する。ブラシにて採取するために、原則として固体状のサンプルとなる。過去の模擬試験においては、2mm径の鉛玉も採取されている。

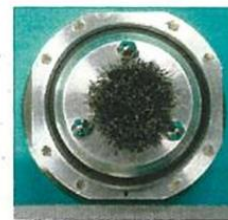
・真空容器方式（⇒P.2-49）

真空引きした容器とニードルの組み合わせで、対象となる燃料デブリの表面にニードルを押し付け、真空容器の密封を破り管内に燃料デブリサンプルを採取する。この方法では、真空により吸引するために、気中ではなく、水中において周囲の液体とともに粒子を吸引して燃料デブリを採取する。そのため真空容器には液体が混入している。また、ニードル径の関係上粒径の大きなものは採取できないため、極細線金ブラシ方式に比べて小径の粒子やスラッジ状の燃料デブリが採取されるものとする。

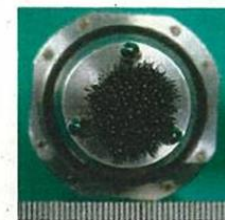
(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
分析効率化の検討

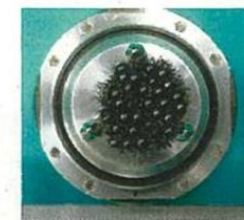
(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（極細線金ブラシ方式）

サンプル容器*
(極細線金ブラシ方式)ブラシアダプタ*
(ブラシSUS304)

0.35mm鉛玉



1.0mm鉛玉



2.0mm鉛玉

*極細線金ブラシによる模擬粒子採取状況

「燃料デブリの段階的に規模を拡大した取り出し技術の開発PJ」打合資料

極細線金ブラシ方式による燃料デブリサンプル採取

*「燃料デブリの段階的に規模を拡大した取り出し技術の開発PJ」提供

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（極細線金ブラシ方式）

・極細線金ブラシ方式（P.2-48に分離回収フロー（案）を示す）

極細線金ブラシ方式の燃料デブリ取り出し治具は炉内で燃料デブリサンプルを採取した後、その場でフォルダ内に格納される。このブラシアダプタとブラシフォルダが一体となったサンプル容器の形態にて分析施設に輸送される。

サンプル容器は、遠隔操作により開封される。この時は、容器からのサンプルからの落下、飛散に対応するために、受け皿等準備した上で、適切なサンプル容器の固定治具を用いることが必要となる。

ブラシからのサンプルの回収については、以下の3つの方法が考えられる。

- ① ピンセットあるいは細い櫛状の治具により、ブラシからサンプルを回収する方法
- ② 水を張ったビーカーに浸し、超音波洗浄機にて水中に回収する方法
- ③ サンプルが付着したブラシーワイヤーを切断し、その後サンプルとブラシを回収する方法

①の方法では、ピンセットや櫛状の治具を準備することで、大きな粒子の燃料デブリの回収は可能であると考えられる。一方、ブラシ部の周囲にあるガイド部のピンが障害となる恐れがある。また、櫛状の治具を用いた際にブラシの一部が折損して燃料デブリに混入する可能性がある。

②超音波洗浄方式においては、ブラシ内部にからめとられた粒子の回収率が低い恐れがある。①を実施後、②の超音波洗浄を行うことも可能である。

ただし、①、②いずれもブラシ内に絡めとられた燃料デブリの粒子が一部残留する恐れがある。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（極細線金ブラシ方式）

・極細線金ブラシ方式（続き）

③においてサンプルが付着したブラシごと切断することで、ブラシアダプタからはサンプルを除去することが可能である。切断に当たっては、遠隔で操作できるハサミ等を用意し、ガイド部のピンを避けながらブラシ部を切断することになるが、切断時にサンプルの飛散防止措置（例えば先端部分に粘着テープ等を貼り付けての切断）が必要である。

切断後、燃料デブリの粒子とブラシの毛を遠隔操作で分別することが必要である。

セル内において比較的大きな粒子以外は完全に分離させることは困難であると思われる。

ブラシをマニプレータで取り外せるようにしておくと、切断の必要が無く、セル内での作業が容易になるが、そのような構造の取り出し治具が製作可能か、取り出しPJと協議する必要がある。

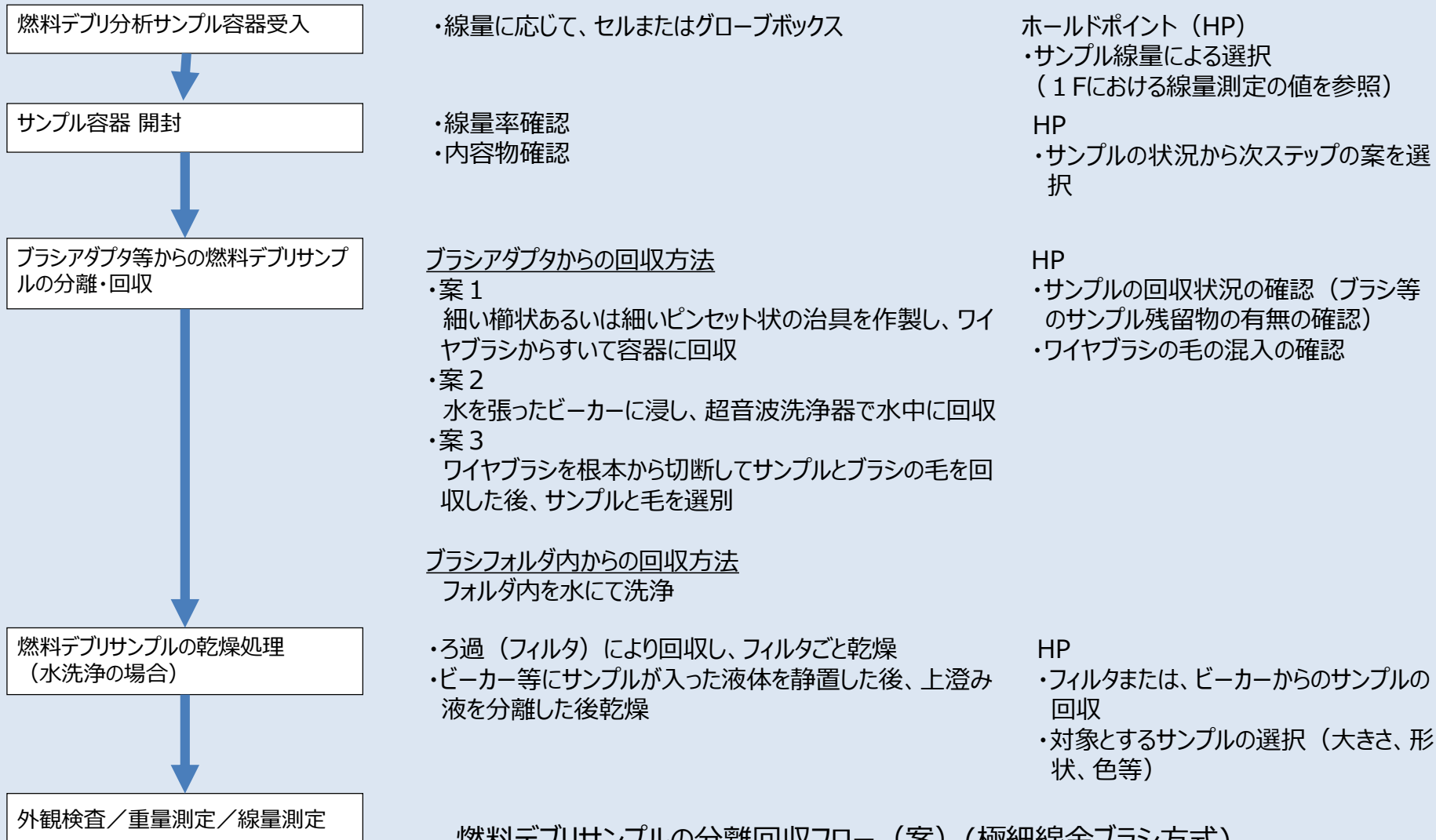
ブラシの毛ごと溶解させる方法はあるが、この場合は、毛の成分も一部溶解するため、化学分析の結果に対し影響がでるため、予め成分情報を取り出し側より入手しておくことが必要となる。

なお、ブラシアダプタを格納していたブラシフォルダ内においても燃料デブリの粒子が残っている可能性があるため、目視での確認し、必要であればフォルダ内の水洗浄を行い、サンプルを回収しておくことが必要である。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（極細線金ブラシ方式）

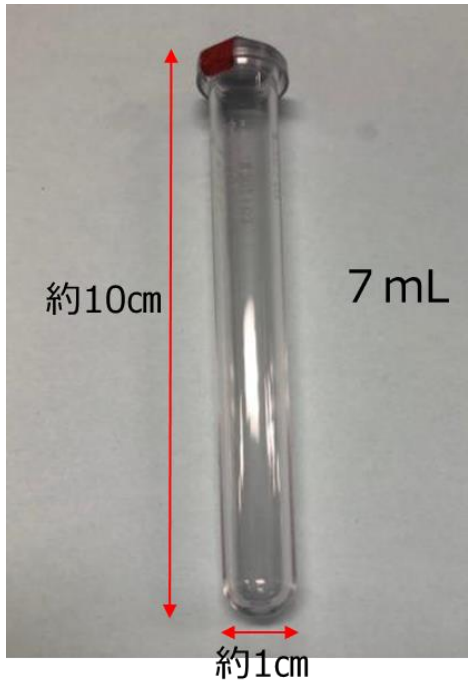
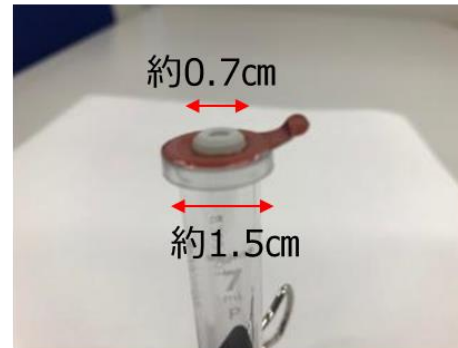


燃料デブリサンプルの分離回収フロー（案）（極細線金ブラシ方式）

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（真空容器方式）

サンプル容器 *
(真空容器方式)

採血管上部（フィルムシールを剥がして開封）



採取用ニードル



真空容器方式による模擬粒子(1.0mm鉛玉)採取

真空容器方式による燃料デブリサンプル採取

*「燃料デブリの段階的に規模を拡大した取り出し技術の開発PJ」提供

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（真空容器方式）

真空容器方式（P.2-51 分離回収フロー（案））

真空容器方式においては、燃料デブリは液体とともに容器内に封入された状態で分析施設に輸送される。分析施設においては、サンプルの線量によってセル内または、グローブボックス内を選択する。分析施設においては、サンプルの線量率によってセル内または、グローブボックス内を選択する。ここではセル内を基に記述する。

サンプル容器は、遠隔操作により開封される。この時は、容器からのサンプルからの落下、飛散に対応するために、受け皿等準備した上で、適切なサンプル容器の固定治具を用いることが必要となる。

① 真空容器の開封

真空容器の上部はフィルムシートにて密封されているため、このフィルムを剥がす。粒子の飛散等を防止するために、受け皿を準備するとともに、必要に応じてフィルムを遠隔で剥がし操作ができるようにつまみ治具等を考慮する。

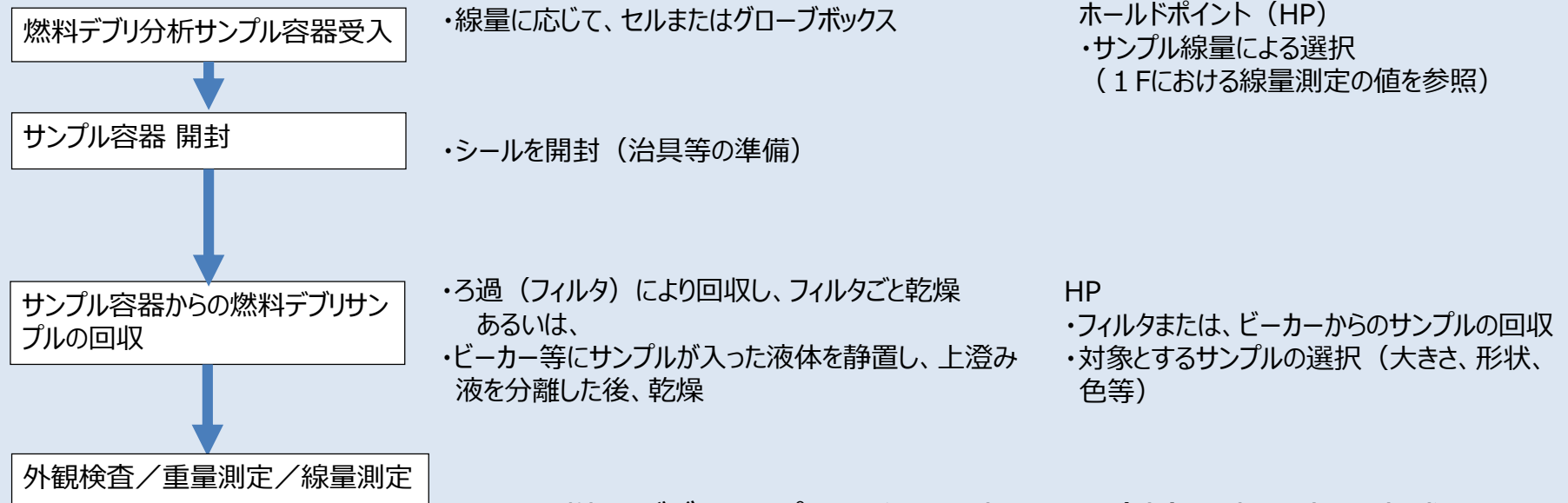
② 真空容器からの粒子の回収

真空容器より、内容物を水で洗い出し、フィルタ等に回収する。または、真空容器よりビーカーなどに回収し、静置後に上澄み液を回収するとともにビーカーに残った固体成分を乾燥させた後、ピンセット等で回収する。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討
分析効率化の検討

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（真空容器方式）



燃料デブリサンプルの分離回収フロー（案）（真空容器方式）

(b) 特別な形態で輸送された場合（燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送）における作業手順（まとめ）

極細金ブラシ方式及び真空容器方式でのサンプル回収の手順を分析実務者と検討した。サンプリング治具からのサンプルの回収について可能性のある手順があることは判った。ただし、いずれの場合もサンプルの放射線線量率が高い場合は、マニプレータでの遠隔操作になるため、必要に応じた治具を準備するとともに、モックアップ等により操作の習熟を図ることが重要である。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(c)燃料デブリ試料の量について想定を拡大した時の効果

各分析装置が、分析に必要とする燃料デブリ試料の量に関し、2019年度のケーススタディにおいては、「B-5 密度測定」ピクノメーターおよび「B-7 水分測定」カールフィッシャーについて、想定試料量の0.447gでは、分析できないと判断した。2020年度は、実際に測定を行った実績を基に、最小の燃料デブリ試料量を検討した。

その結果、

「B-5 密度測定」ピクノメーター：約3g以上
(直径 7mm × 高さ 8 mm、重量 約 3g)

「B-7 水分測定」カールフィッシャー：約3g以上
であれば測定は可能であることが判った。

なお、サンプルの重量や大きさに関係するのは、上記の他に「A-6 X線CT」や「B-5 密度測定」(液浸法：数mmΦ以上)がある。これらについては2019年度の評価において、0.447g(約4mmΦ)のサンプルでも実施可としているが、この重量や大きさはスペックの下限に近い場合、サンプルが大きくなれば、より測定や取り扱いが容易となる。

一方、化学分析においては、サンプル量が多ければ、溶解液の量や濃度が大きくなるため、分析装置のスペックに応じての量、濃度に調整することが可能であり、また測定回数も増やせることから、精度の向上につながるものとする。

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 分析効率化の検討

(d) 今期事業で実施している品質管理の検討結果など、新たな知見・成果の取り込み

2020年度の新たな知見として、各施設における分析装置の最新の整備状況について確認を行った結果、JAEA大洗研究所（FMF）においてTEM、FIBが整備され「B-4 結晶構造・相同定」が可能となることが明らかになった。今後の活用が期待される。

また、「(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化」においては、サンプル分析データの品質管理に重点をおき、分析手順、評価方法についての検討を実施した。従って、今後、各分析施設における分析フローを構築する際は、この検討結果を踏まえ、期間やサンプル量について評価を行うことが必要である。

分析効率化の検討 まとめ

以上の検討により、試験的燃料デブリ取り出しサンプルに対応可能な基本フロー及びケーススタディが準備できた。最終的には、実際のサンプルの情報を詳細に検討し、これらのフローを適切に選択して分析を行うことが重要である。

また、燃料デブリの取り出し治具の開発状況については、今後も情報を収集し、必要に応じて検討の見直しを行うことが望ましい。

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-54

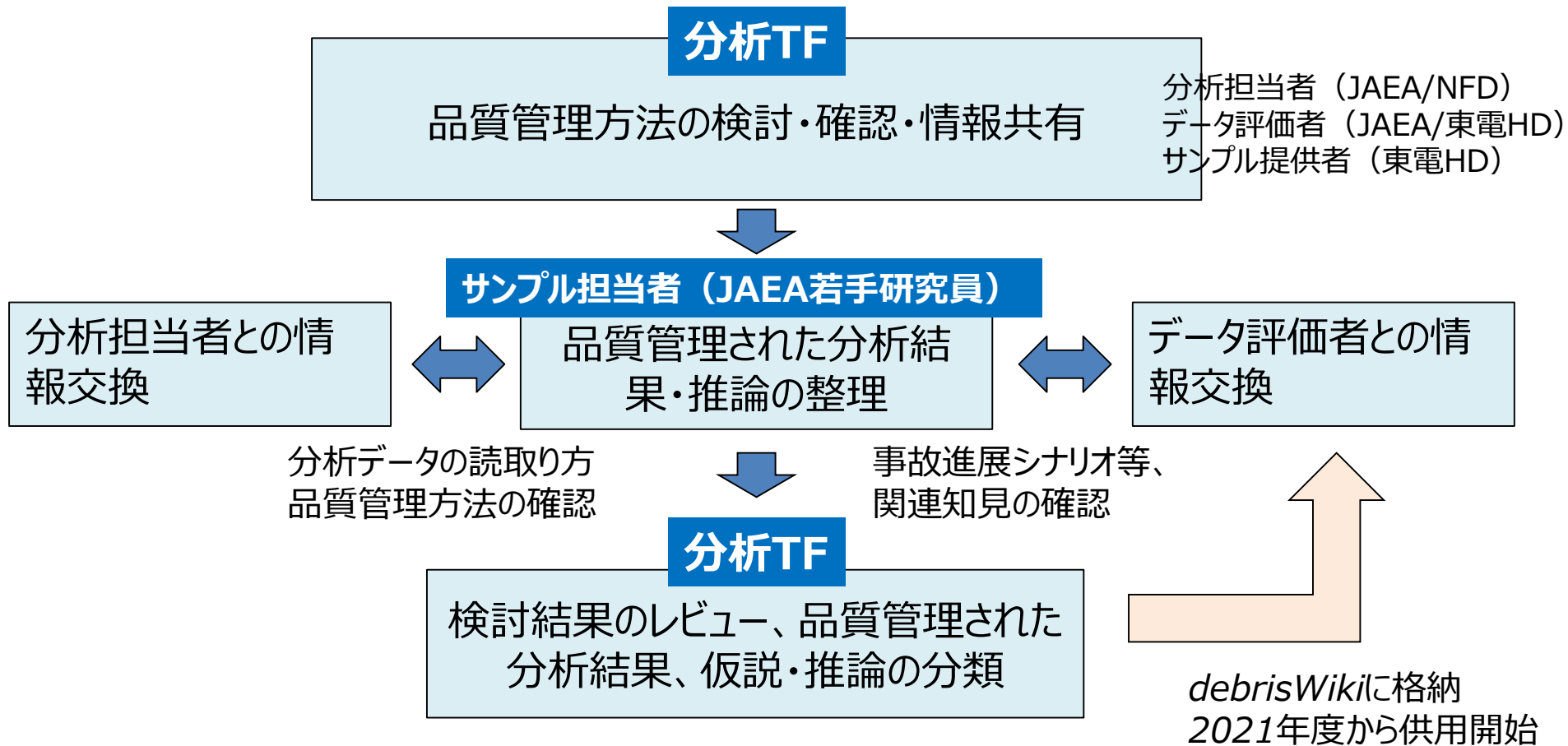
- | | | |
|---|----------------------------|--------|
| (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 | (2019～2020年度*1) | |
| ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 | | P2-15 |
| ② 燃料デブリの性状推定の高度化 | | P2-54 |
| (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 | | |
| ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 | | |
| ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 | (2019～2021年度*2) | P2-87 |
| 1) 試験の概要 | 6) 粒子分析結果(切削試験) | |
| 2) 試験に供する模擬燃料デブリ | 7) 粒子分析結果(加熱試験) | |
| 3) 試験方法 | 8) 分析結果のまとめ | |
| 4) 切削試験結果 | 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較 | |
| 5) 加熱試験結果 | | |
| ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 | (2019～2020年度*1) | P2-140 |
| ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 | (2019～2020年度*1) | P2-150 |
| ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 | (2019～2020年度*1) | |
| ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 | | P2-156 |
| ②-2 液相における微粒子挙動評価 | | P2-166 |
| ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ
– 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – | (2021年度*2) | |
| ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 | | P2-178 |
| ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) | | P2-194 |

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化

- 評価の進め方（分析タスクフォース（TF）） -



品質管理された分析結果とは

: 分析の結果得られた生データについて、品質管理の観点から十分に検討されたデータ処理手順に基づき、処理し、整理された結果（濃度比、同位体比、元素分布等）

仮説・推論とは

: 上述の分析結果に基づく、検出した核種・元素の由来の推定、仮説
関連知見を含む総合評価による、燃料デブリ形成メカニズム等の推論

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化

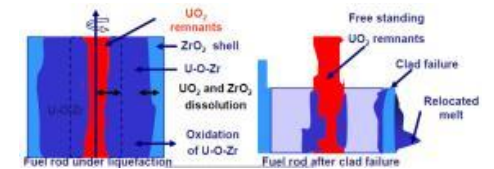
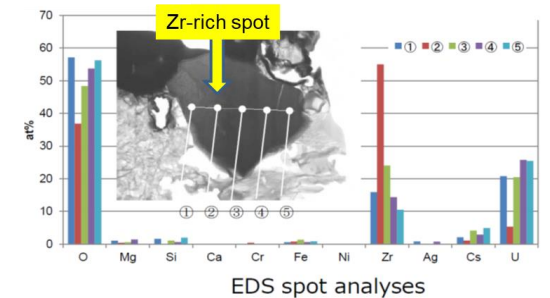
- 燃料デブリ特性のデータベース化 ⇒ debrisWikiへの格納 -

燃料デブリ特性リスト： TMI-2事故等の**典型条件で形成される燃料デブリ**について、物理化学的な**マイクロ特性**と堆積状態等の**マクロ特性**に分けて整理した図表データベース（前事業で整備）

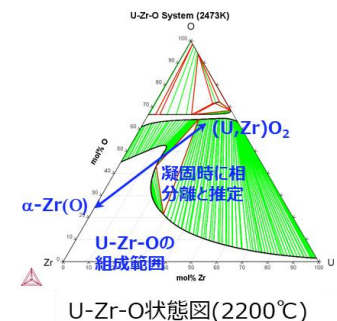
データベース高度化： 1F内部調査、事故進展解析、1Fサンプル分析データに基づいて、**号機・領域ごとに燃料デブリ特性（品質管理された分析結果、仮説・推論）**についてとりまとめ（本事業）

debrisWikiに格納・一部供用開始： 関連知見と重層化、データベース化（JAEA/東電HD共研）

サンプル分析データ・推論を分けて記載



燃料デブリの形成メカニズム

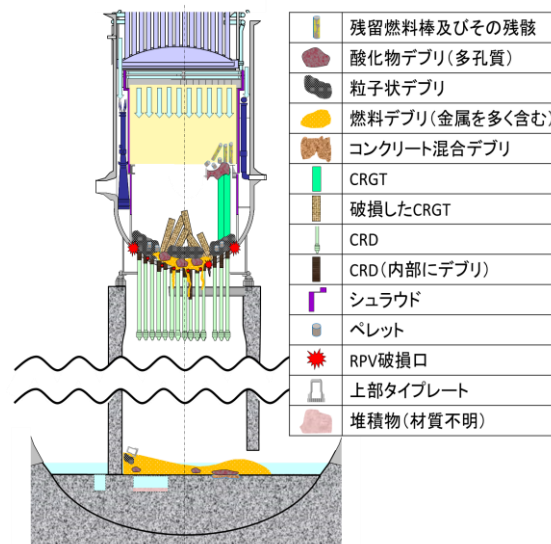


現行の燃料デブリ特性リスト（図表）



- 文献値（ウラン等既知物質）
- TMI-2や、TMI-2事故を参考にしたシビアアクシデント研究等による知見
- 模擬物質（MCCI生成物など）による試験データに基づく推定

号機・領域ごとの最新知見を反映（炉内状況把握、内部調査）



- 現場状況に基づく、1F事故進展解析による号機毎の炉内状況の推定

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 -2020年度の計画と実施概要-

【分析TF】 本事業、及び先行事業で取得した分析データから、**品質管理された分析結果**と、**仮説・推論**をとりまとめ

- 1号機サンプル (1u-1～1u-4) (P.2-59～62)
- 2号機サンプル (2u-1～2u-5) (P.2-63～69)
- 3号機サンプル (3u-1) (P.2-70～73)
- 2、3号機トラス室滞留水ろ過物 (2u-6、3u-2) (P.2-74～77)
- 2020年度サンプル (SGTS配管、PCVアクセスルート構築関連) (P.2-27～)

【1F試料評価委員会】 外部有識者によるTF検討結果のレビュー (8/18、3/4開催)

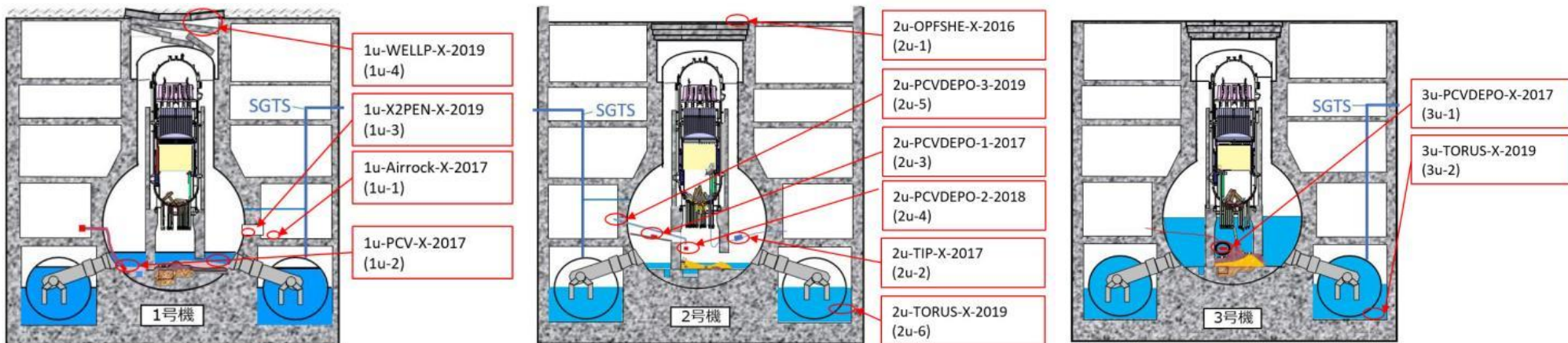
【情報利用側(廃炉事業者など)への効果的な情報提供・・・ 1F事故の科学的な調査の活用】

- 廃炉ニーズの再検討、**分析必要項目と分析成果の反映先を再度整理** (P.2-79～82)
- 燃料デブリ・周辺物質サンプル等の、**分析によるニーズ充足度**を検討 (P.2-83～84)

● 概略スケジュール

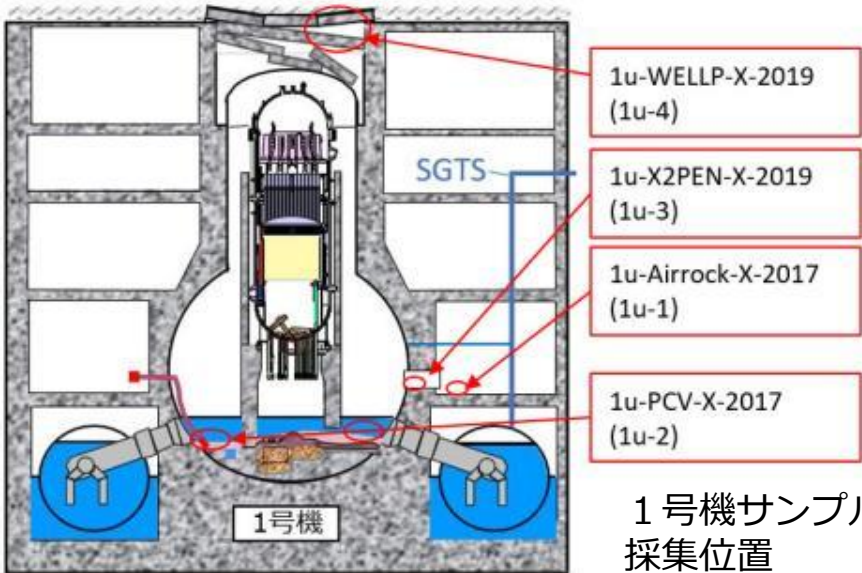
	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3	
文献調査等	文献等調査												
情報利用側PJ等との打合せ				▼								▼	
分析TF	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	▼	
1F試料評価委員会				▼2019年度成果に関する議論				2020年度成果に関する議論▼					
特性リストの高度化			2019年度データ、及び先行事業データの精査							2020年度分反映			
廃炉ニーズ検討、まとめ											報告書		

サンプル番号と採取位置 (2019年度まで)



号機	試料番号		採取位置	採取時期
	debrisWiki	東電HD		
1号機	1u-Airrock-X-2017	1u-1	原子炉建屋エアロック室堆積物	2015/12/1
	1u-PCV-X-2017	1u-2	格納容器底部堆積物	2017/4/1
	1u-X2PEN-X-2019	1u-3	X-2ペネ堆積物除去治具 (チャンバー)	2019/5/1
	1u-WELLP-X-2019	1u-4	ウェルプラグ	2019/7~8
2号機	2u-OPFSHE-X-2014	2u-1	原子炉建屋オペレーティングフロア養生シート	2014/3/1
	2u-TIP-X-2017	2u-2	TIP配管内閉塞物	2013/7/1
	2u-PCVDEPO-1-2017	2u-3	格納容器内部調査装置付着物 (堆積物除去装置付着物)	2017/2/1
	2u-PCVDEPO-2-2018	2u-4	格納容器内部調査装置付着物 (カメラ部スミア)	2017/1/1
	2u-PCVDEPO-3-2019	2u-5	格納容器内部調査装置付着物 (シールリングスミア)	2019/2/1
	2u-TORUS-X-2019	2u-6	PCV外 (トラス室) 滞留水ろ過物ろ紙	2019/3/1
3号機	3u-PCVDEPO-X-2017	3u-1	格納容器内部調査装置付着物	2017/7/1
	3u-TORUS-X-2019	3u-2	PCV外 (トラス室) 滞留水ろ過物ろ紙	2019/3/1

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 - 1号機分析結果のまとめ -

- U・・・燃料由来、天然由来混入の可能性 (同位体比より)
 - Mo・・・Moグリス由来 (同位体比より)
 - Zr・・・燃料被覆管など、Zn・・・塗料、Pb・・・遮蔽体、Si、Al・・・保温材、Fe、Ni、Cr・・・鋼材、B・・・中性子吸収材、と推定 (RPV/PCV内装荷物質からの推定)
- 

1u-WELLP-X-2019 (1u-4)

1u-X2PEN-X-2019 (1u-3)

1u-Airrock-X-2017 (1u-1)

1u-PCV-X-2017 (1u-2)

1号機サンプル
採集位置
- ウラン粒子の化学特性・・・Na(海水)、Zn(塗料)、Mo(グリス)、Al(保温材)などの含有量が、他号機サンプルより大きい
 - ➔ ペDESTALに移行した燃料デブリ中に、コンクリートや鋼材(従来推定)の他に、**海水、塗料、グリス、保温材、遮蔽材、などが混入している可能性**
 - ウラン粒子の化学特性の違い・・・
 - PCV堆積物(1u-2)：低温安定相を多く検出、**溶融した燃料デブリが徐冷された可能性** (Type-I粒子)
 - ウェルプラグ(1u-4)：粒子の丸みを帯びた形状が、**蒸発・凝縮過程のU粒子形成を示唆** (Type-II粒子)
 - U/Pu相対濃度・・・**Pu相対濃度が高い**(1u-3、1u-4)
 - ➔ α粒子の移行経路と特性に係る知見が得られる可能性 (検討継続中)
 - 金属Zr残留可能性・・・現状サンプル中には未検出

Type-I、Type-II粒子についてはP2-67参照

1u-1 (エアロック室)

- α核種 (U, Pu, Am)
- 軽元素 (B, Na, Mg, Al, Ca)
- 鋼材 (Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Mo)
- 塗料、遮蔽 (Zn, Al, Pb)
- FP (Sr, Rb, Y, Sn, Sb, Te, Cs, Ba, RE*)
- その他 (Bi) * Rare Earth
- U粒子、Zr未検出

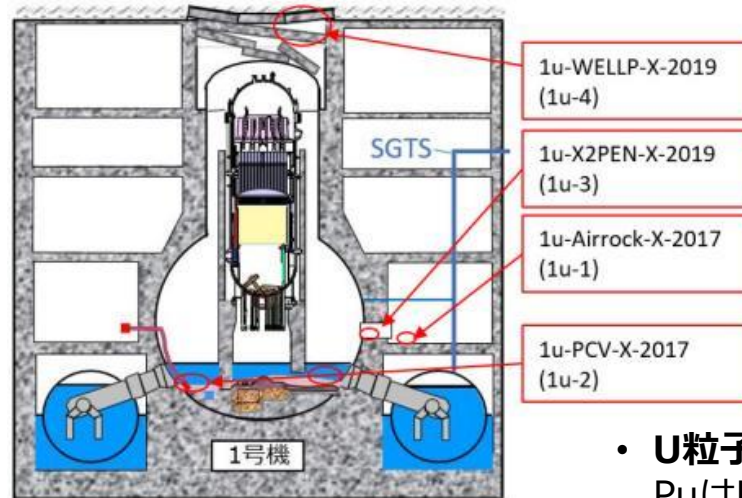
1u-3 (X-2ペネ堆積物)

- α核種 (U, Pu)
- 軽元素 (B, Na, Mg, Al, Ca)
- 鋼材 (Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, W)
- 被覆管 (Zr)
- 塗料、遮蔽 (Zn, Al, Pb)
- FP (Sr, Rb, Sn, Sb, Cs, Ba, RE)
- **Mo未検出**

- **U粒子を検出 (次頁、組成三角図)**
PuはUと同一部位 (**Pu濃度高**)
U粒子の周辺物はFe, Ni, Crなど
U:Zr=約90:10 (モル比)
蛍石相 (Fe固溶) を同定
mono-ZrO₂の析出を同定

1u-2 (PCV底部堆積物)

- α核種 (U, Pu, Am, Cm)
- 軽元素 (B, Si, K, Mg, Al, Ca)
- 鋼材 (Ti, Cr, Fe, Co, Ni, Cu, Mo)
- 被覆管 (Zr)
- 塗料、遮蔽 (Zn, Al, Pb)
- FP (Sr, Sn, Sb, Te, Cs, Ba)
- **RE系FP (難揮発性) を未検出**
- **U粒子を検出 (次頁、組成三角図)**



1u-4 (ウェルプラグスミア)

- α核種 (U, Pu)
- 軽元素 (B, Na, Mg, Al, Ca)
- 鋼材 (Ti, Cr, Fe, Ni, Cu, Mo, W)
- 被覆管 (Zr)
- 塗料、遮蔽 (Zn, Al, Pb)
- FP (Sr, Rb, Sb, Te, Cs, Ba)
- **RE系FP (難揮発性) を未検出**

- **U粒子を検出 (次頁、組成三角図)**
PuはUと同一部位 (**Pu濃度高**)
U粒子の周辺物はFe, Ni, Crなど
U:Zr=約98:2 (モル比) の粒子を多く検出
Na混入濃度が、1u-2より有意に少ない
蛍石相 (Fe固溶) を同定
mono-ZrO₂、スピネルの析出を同定

蛍石相、tet-ZrO₂相、α-Zr(O)相、スピネルを同定 (2019年度)

#同定結果改定：蛍石相のみ (2020年度再分析、前述)

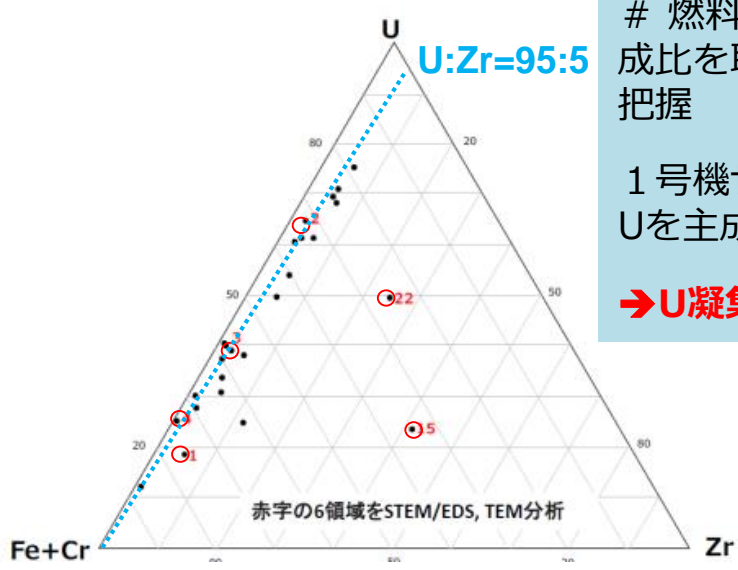
U粒子中のNa, Mo, Zn, Al濃度が2、3号機サンプルより高い

U粒子中の主成分組成比三角図 (1号機)

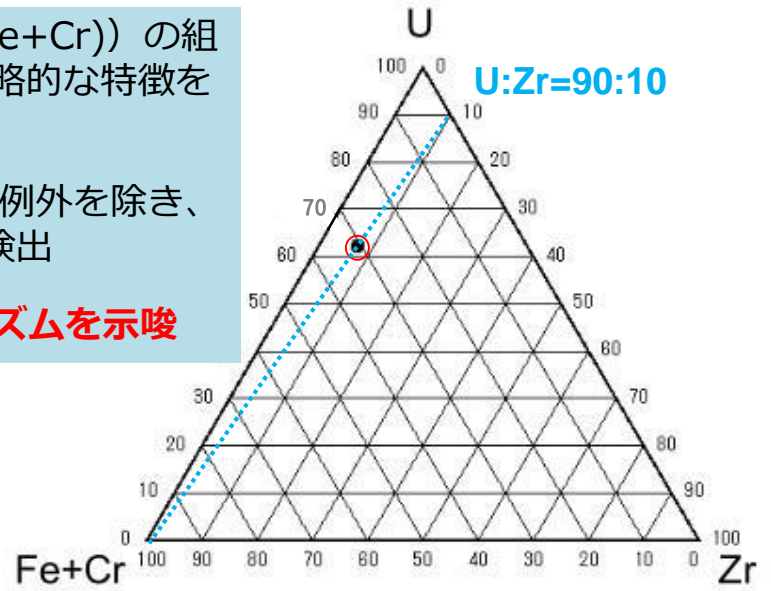
燃料デブリ主成分 (U:Zr:(Fe+Cr)) の組成比を取ることで、U粒子の概略的な特徴を把握

1号機サンプルは、いくつかの例外を除き、Uを主成分とするU粒子を多く検出

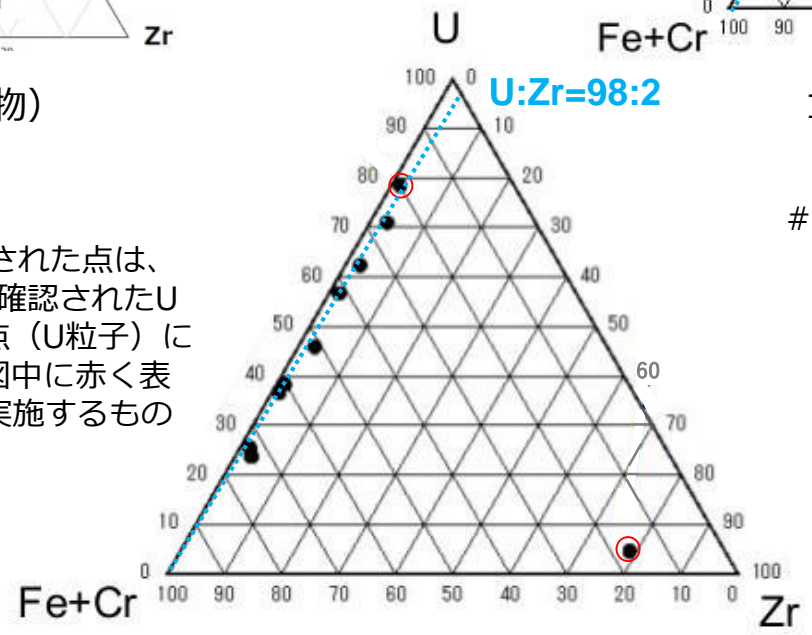
→U凝集 or Zr分離するメカニズムを示唆



1u-2 (エアロック室堆積物)



1u-3 (X-2ペネ堆積物)



1u-4 (ウェルプラグスミア)

注：主成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成比を表す。これらの点 (U粒子) には全て番号が付されているが、図中に赤く表記された番号や点はTEM分析を実施するものとして選定したU粒子を示す。

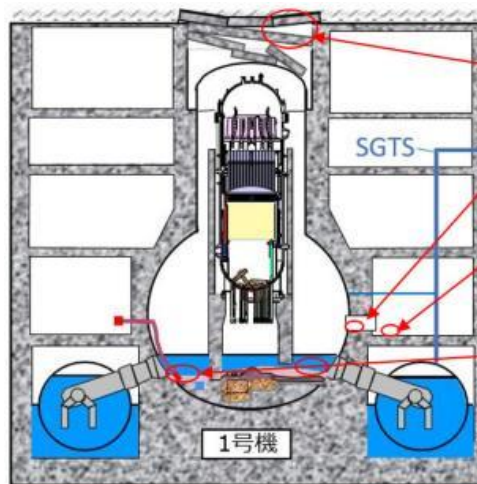
U:Zrモル比は、U粒子 (数μmサイズ) のEDX点分析+ZAF補正での評価値から、U、Zr、Fe+Crの分析値のみ抜き出し、比を取って評価したもの。従って、粒子の平均組成そのものを示していないことに留意

1u-1 (エアロック室)

- α核種：燃料由来
(#同位体比から、**海水成分混入の可能性**)
- Pb：生体遮蔽由来
- Zn：塗料由来
- Mo：**Moグリス由来**
(#天然同位体比)

1u-2 (PCV底部堆積物)

- α核種：燃料由来 (**海水成分混入の可能性**)
- Pb：生体遮蔽由来
- Zn：塗料由来
- Mo：**Moグリス由来**
- U粒子中に、酸化物燃料デブリ**低温安定相を同定**
- **U粒子中のNa、Mo、Zn、Al濃度が2、3号機サンプルより高い**



1u-3 (X-2ペネ堆積物)

- α核種：燃料由来の可能性大 (分析精度に課題)
- Pb：生体遮蔽由来
- Zn：塗料由来
- U粒子中にFe固溶、Zrが別相析出 (**1u-2と異なる傾向**)

→いったん蒸発・凝縮したU粒子が、溶融・再凝固・さらにX-2ペネまで飛散した可能性 (Type-II粒子)

1u-4 (ウェルプラグスミア)

- α核種：燃料由来の可能性大
- Pb：生体遮蔽由来
- Zn：塗料由来
- Feに対するCr、Ni相対濃度が低い
- **1u-3、1u-4で同定元素がほぼ一致**

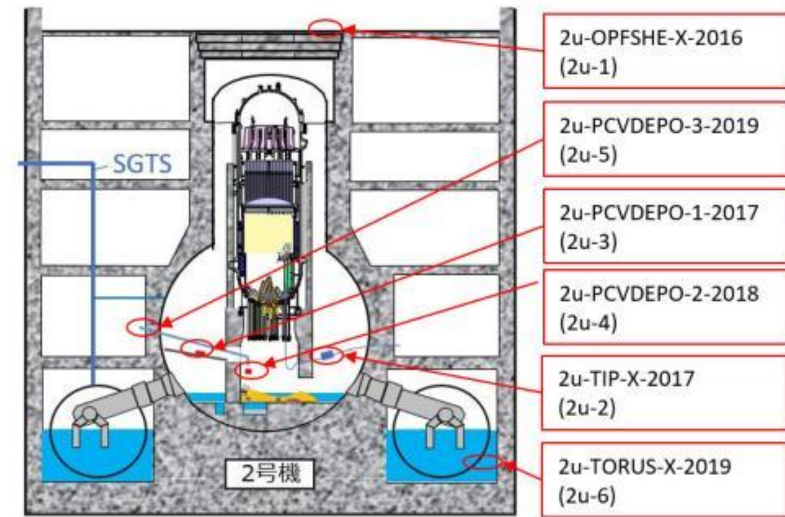
→いったん蒸発・凝縮したU粒子が、溶融・再凝固・さらにXウェルプラグまで飛散した可能性 (1u-3と同様、Type-II粒子)

- 燃料デブリが溶融状態から徐冷された可能性を示唆 (Type-I粒子)
- 燃料デブリ中に、様々な成分が混入している可能性を示唆

赤字は、本事業で新たに得た評価・推定結果を示す。

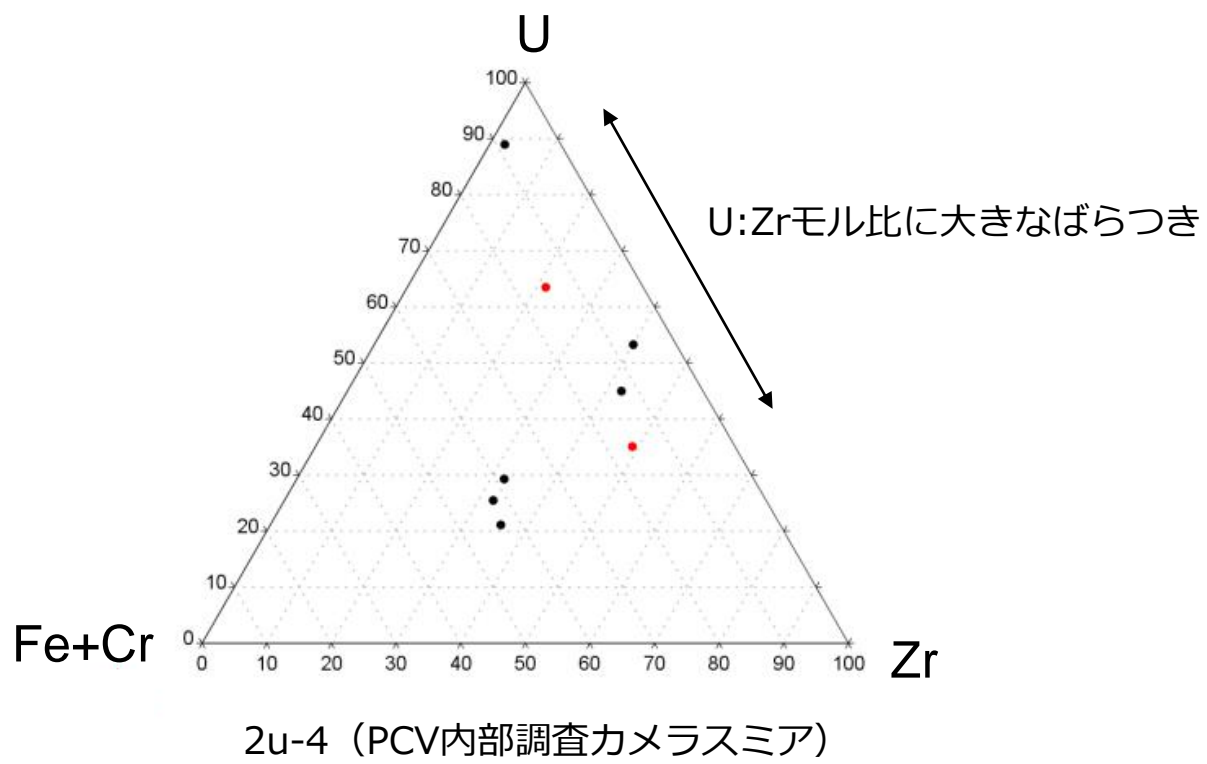
(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 -2号機分析結果のまとめ-

- U・・・燃料由来(オペフロ：2u-1、堆積物除去スミア：2u-3)、天然由来混入の可能性(シーリングスミア：2u-5)
- Mo・・・FP由来(オペフロ：2u-1)、Moグリス由来(TIP配管：2u-2、堆積物除去スミア2u-3)
- Zr・・・燃料被覆管など、Zn・・・塗料、Pb・・・遮蔽体、Si、Al・・・保温材、Fe、Ni、Cr・・・鋼材、B・・・中性子吸収材、と推定 (RPV/PCV内装荷物質からの推定)
- ウラン粒子の化学特性(オペフロ：2u-1)・・・Type-I粒子、Type-II粒子ともに検出
→ ウラン粒子移行ルート・メカニズムが複数ある可能性 (**ウェルプラグ高線量の原因と関連している可能性**、重要課題として検討継続中)
- ウラン粒子化学特性の違い(内部調査カメラスミア：2u-4)・・・他号機・部位サンプルに比べ、U:Zr比のばらつきが大きい (**RPV内燃料デブリの情報を拾っている可能性**)
- 金属相中のFeとZrの相分離(TIP配管：2u-2)・・・**金属デブリが相分離している可能性を示唆**
- 金属Zr残留可能性・・・現状サンプル中には未検出



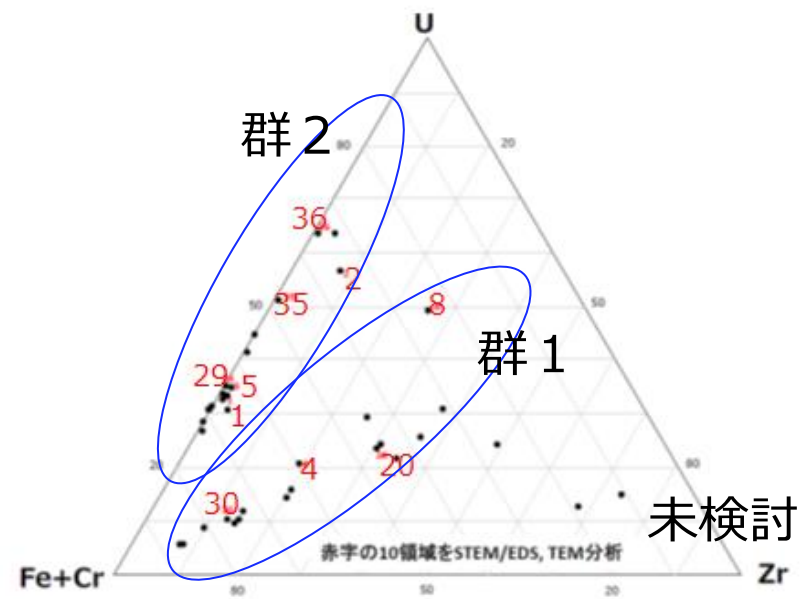
2号機サンプル採集位置

主成分組成比三角図 (内部調査カメラスミア : 2u-4)



注：主成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成比を表す。図中の赤い点はTEM分析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。

Type-I、Type-II粒子について (オペフロ養生シート：2u-1)



2u-1 (オペフロ養生シート)

注：主成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成比を表す。これらの点（U粒子）には全て番号が付されているが、図中に赤く表記された番号はTEM分析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。

U:Zrモル比が、2群に大別

- 群1： 溶融・凝固 (Type-I)
 UとZrが相互固溶
 蛍石相 (低温相、Zr固溶限)
 Zrリッチ正方相 (U固溶限)
PCV移行以降の溶融した燃料デブリ由来？

- 群2： 蒸発・凝縮 (Type-II)
 UとFeが均質に固溶
 蛍石相 (高温相)
RPV内の高温化炉心由来？

専門家の意見が集約されておらず、検討を継続する必要がある。

2号機サンプル分析結果（1）

2u-1（オペフロ養生シート）

- α核種（U、Pu、Am）
- 軽元素（B、Si、Na、Mg、Al、Ca）
- 鋼材（Ti、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Mo、W）
- 被覆管（Zr）
- 塗料、遮蔽（Zn、Al、Pb）
- FP（Sc、Sr、Rb、Y、Pd、Cd、Sn、Sb、Te、Cs、Ba、RE）
- その他（Li、Tl、Bi、Hf）

- 揮発性・難揮発性の多様な物質を検出

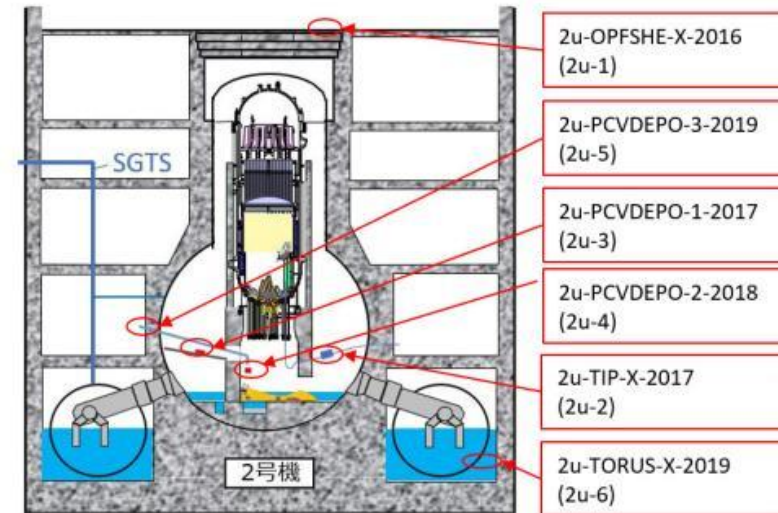
- 多様なU粒子を検出（次頁、組成三角図）

PuはUと同一部位、周辺物はFe、Cr、Si、Zn、Moなど

U:Zr比に基づきおよそ2群に分類

群1：U:Zr=約1:1（モル比）、U-Zr-Fe-Cr酸化物固溶、スピネル共存、tet-ZrO₂相同定

群2：Zrをほとんど含有しない、UとFe酸化物固溶、スピネル共存

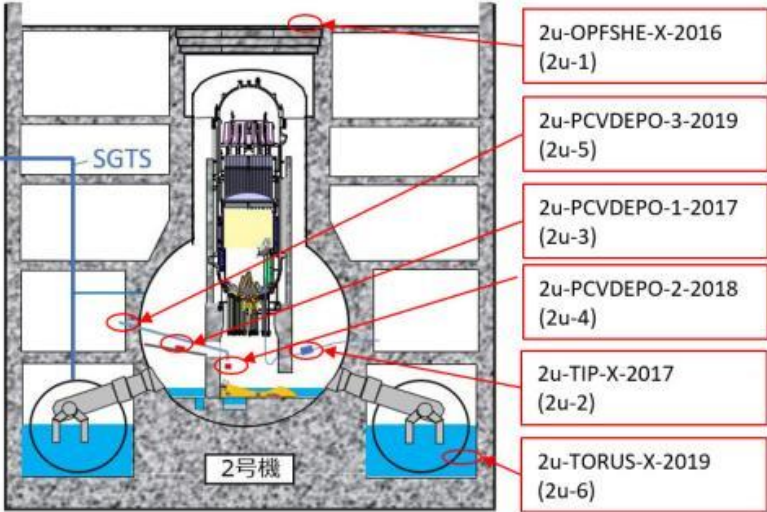


赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。

2号機サンプル分析からの 仮説・推論（1）

2u-1（オペフロ養生シート）

- α核種（U、Pu、Am）：燃料由来（海水の影響ほぼなし）
- Zr：燃料集合体部材
- Pb：生体遮蔽 • Zn：塗料 • Al：保温材
- Mo：FP由来（1号機と相違）
- Fe、Ni、Crなど：鋼材由来（Ni、Cr相対濃度が低い）
- B：中性子吸収材
- U粒子をおよそ2群に大別



→Type-I粒子（溶融・凝固）生成・・・事故進展最確シナリオにおける、炉心溶融・移行（RPV内部）時の液状飛沫の冷却物、安全弁（SRV）経由 or PCV経由でオペフロに移行し、冷却時にZrリッチ相とUリッチ相に分離すると推定（前頁、群2）

→Type-II粒子（蒸発・凝縮）生成・・・事故進展最確シナリオにおける、金属デブリの先行移行（RPV⇒PCV）、酸化物燃料デブリの高温化（主にRPV内部）時に、燃料デブリから蒸発した成分、PCV経由でオペフロに移行・凝縮と推定、蒸気圧の低いZrをほとんど含まない（前頁、群1）

赤字は、本事業で新たに得た評価・推定結果を示す。

2u-2（TIP配管堆積物）

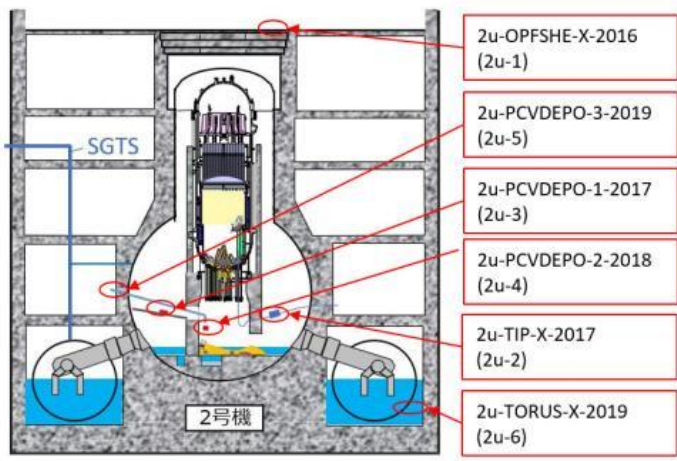
- α核種（U、Pu、Am）
- 軽元素（Li、B、Na、Mg、Al、Ca）
- 被覆管（Zr）
- 鋼材（Ti、Li、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Mo）
- 塗料、遮蔽（Zn、Al、Pb）
- FP（Sr、Rb、Y、Pd、Ag、Cd、Sn、Sb、Te、Cs、Ba、RE）
- Cr-Mn、Fe-Ni、Si-Al-Naに同伴性
- Fe-Zrは別相形成

2u-3（配管堆積物除去装置スミア）

- α核種（U、Pu）
- 軽元素（Li、B、Na、Mg、Al、Ca）
- 鋼材（Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Mo）
- 被覆管（Zr）
- 塗料、遮蔽（Zn、Al、Pb）
- FP（Ru、Rh、Pd、Cd、Sr、Sn、Sb、Te、Cs、Ba、RE）
- その他（Ga、Bi）
- 揮発性・難揮発性FPを多く含む
- U粒子を検出（TEM未実施）
PuはUと同一部位
U粒子の周辺物はFe、Ni、Crなど

2u-4（PCV内部調査カメラスミア）

- α核種（U、Pu、Am）
- ICP-MS未実施、放射線検出器でCo-60、Cs-134、Cs-137、Eu-154検出
- **U粒子を検出（次頁、組成三角図）**
PuはUと同一部位
Ca-Al-Si、U-Zr、Fe-Ni-Crに同伴性
U:Zrモル比はばらつきが大きい（2u-4に固有の特徴）



U粒子中にZr固溶 or α-Zr(O)析出スピネル、tet-ZrO₂相を同定（2019年度）
#同定結果改定：蛍石相のみ（2020年度再分析、前述）

2u-5（PCV内部調査シーリングスミア）

- ICP-MS分析のみ実施
- α核種（U）
- 被覆管（Zr）
- 軽元素（Li、B、Na、Mg、Al、Ca）
- 鋼材：Mn、Fe、Ni、Cu
- 塗料、遮蔽：Zn、Pb
- FP：Sr、Sn、Ba、Sb、Ce

赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。

2号機サンプル分析からの 仮説・推論（2）

2u-2（TIP配管堆積物）

- α核種：同定できていない
- Zr：ジルカロイ由来
- Pb、Zn、Mo：生体遮蔽、塗料、Moグリス由来
- Co-60、Mn-54：放射化物、冷却水中の腐食生成物
- FeとZrが別相

→金属デブリの凝固時偏析、選択酸化の可能性

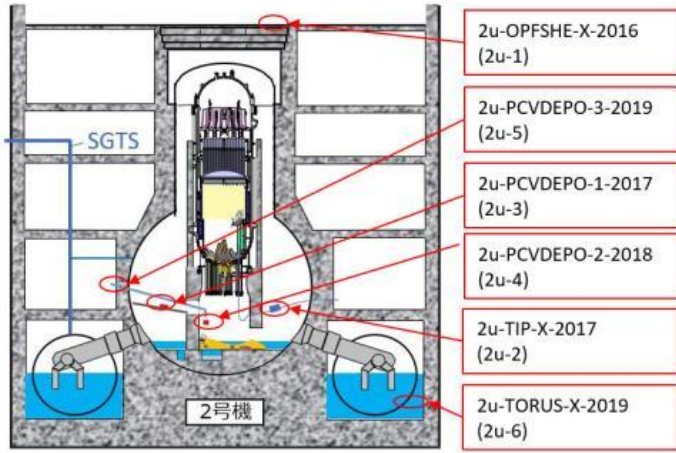
2u-4（PCV内部調査カメラスミア）

- RPVからの移行物質である可能性が高い
- U粒子中にα-Zr(O) は同定されていない

→RPVからの移行物質中に活性金属成分は検出されていない

2u-3（堆積物除去装置スミア）

- α核種：燃料由来
- Fe、Ni、Cr：鋼材由来
- Al：保温材、コンクリート
- Zn：塗料由来
- Mo：Moグリス由来
- Pb：生体遮蔽由来
- Co：放射化物
- Al、Mg、Na、Ca：コンクリート、海水
- FP：揮発性、難揮発性を含む



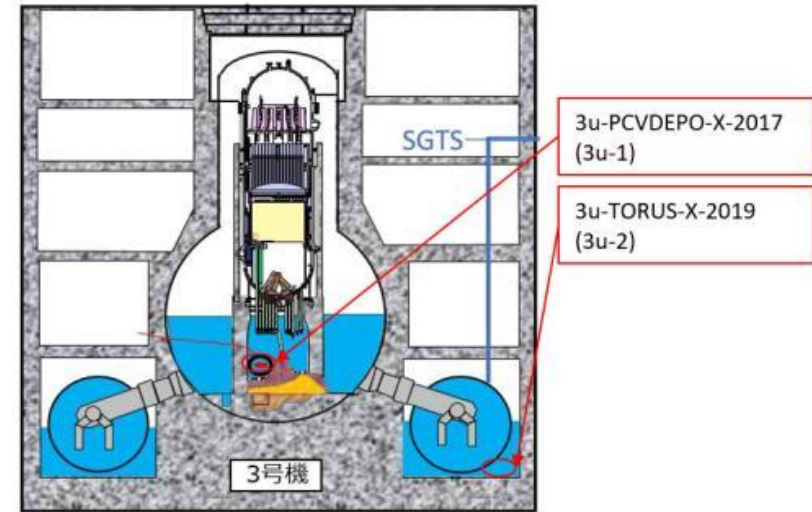
2u-5（PCV内部調査シーリングスミア）

- α核種（U）：海水由来の影響
- Zr：ジルカロイ由来
- Mn、Fe、Ni：鋼材由来、放射化物
- Zn：塗料由来
- Pb：生体遮蔽由来
- FP：揮発性・難揮発性を含む

→サンプル中に多くの成分が混入される（燃料・被覆管、鋼材、揮発性・難揮発性FP、遮蔽材、放射化物など）

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 - 3号機分析結果のまとめ -

- U・・・ほぼ燃料由来
- Mo・・・未確定
- Zr・・・燃料被覆管など、Zn・・・塗料、Si、Al・・・
保温材、Fe、Ni、Cr・・・鋼材、B・・・中性子吸収材、
と推定（RPV/PCV内装荷物質からの推定） **Pb**
含有量が小さい



3号機サンプル採集位置

- ウラン粒子の化学特性(PCV内部調査スミア：3u-1)・・・**相状態・結晶構造が多様化・複雑化**
➔ 3号機最確事故シナリオに整合【従来予測(>2550℃で完全溶融)より低い温度(2000～2200℃程度)で、**固液混合状態の燃料デブリが、数時間かけて、RPVからPCVペDESTALに移行**】 **燃料デブリ中の相や成分偏析が示唆される**
- ウラン粒子中に多様な物質が混入・・・**燃料デブリ中にも混入している可能性**
- 金属Zr残留可能性・・・ウラン粒子中にわずかに残留

3u-1 (PCV調査装置スミア)

- α核種 (U, Pu, Am, Cm)
- 軽元素 (Li, B, Si, Na, Mg, Al, Ca)
- 鋼材 (Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu)
- 被覆管 (Zr)
- 塗料、遮蔽 (Zn, Al, Pb) 、 **Pbは他号機より濃度が低い**
- FP (Rb, Sr, Sn, Y, Mo, Sb, Sn, Cs, Ag, Cd, Ba, RE)
- その他 (Bi, W)

• U粒子を検出 (次頁、組成三角図)

PuはUと同一部位

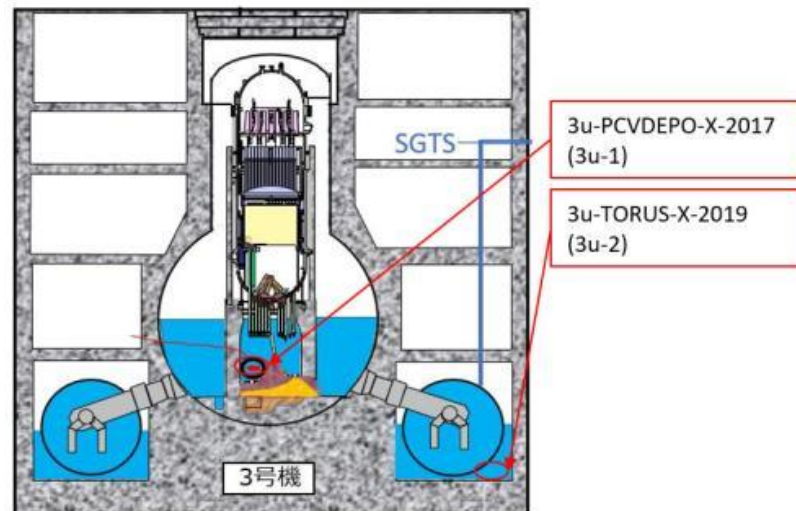
U粒子の周辺物はFe、Ni、Crなど

U:Zr=約98:2 (モル比) の粒子を多く検出

異なったモル比のU粒子も多く検出

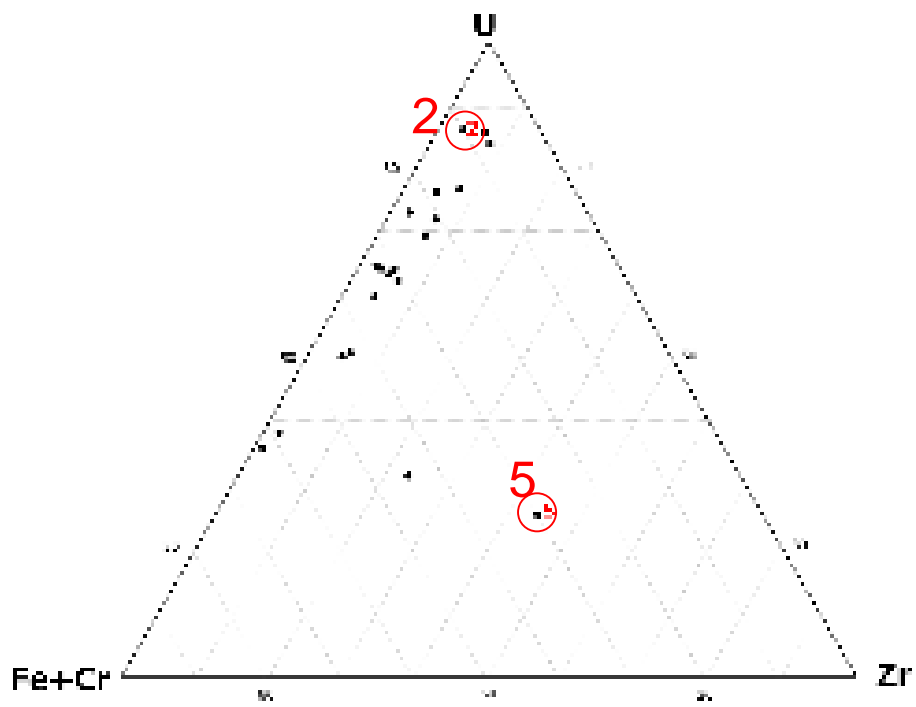
Fe固溶した蛍石相 (Zrほとんど固溶なし) 、 tet-ZO₂相、 α-Zr(O)相、スピネルを同定

他号機サンプルに比べ、ウラン粒子中の相状態が多様

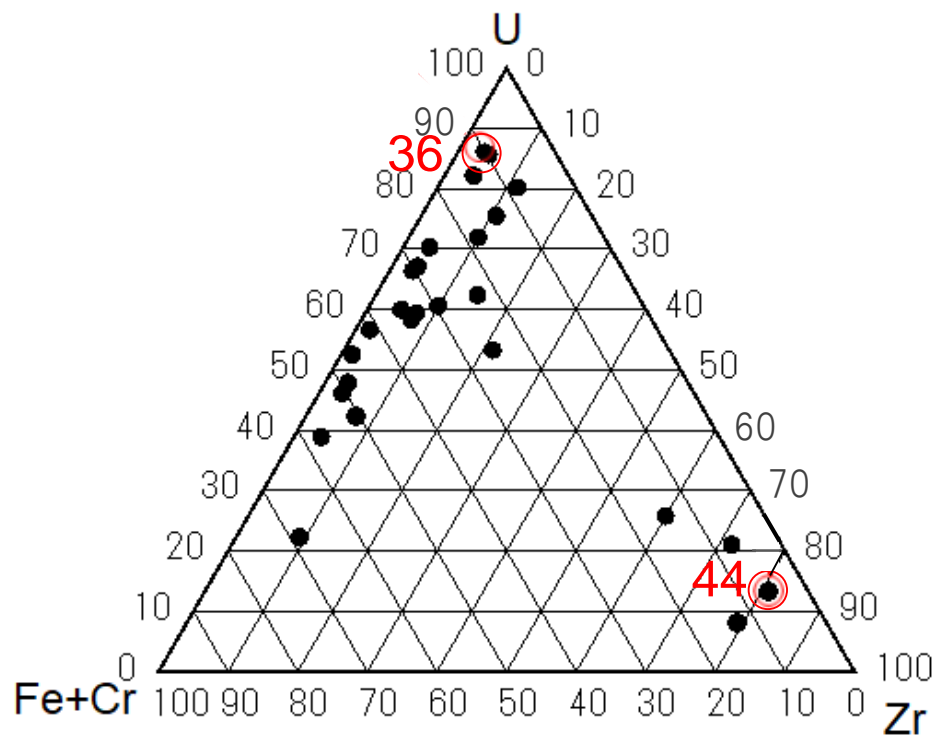


赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。

U粒子中の主成分組成比三角図（3号機）



3u-1 (PCV内部調査装置付着物)



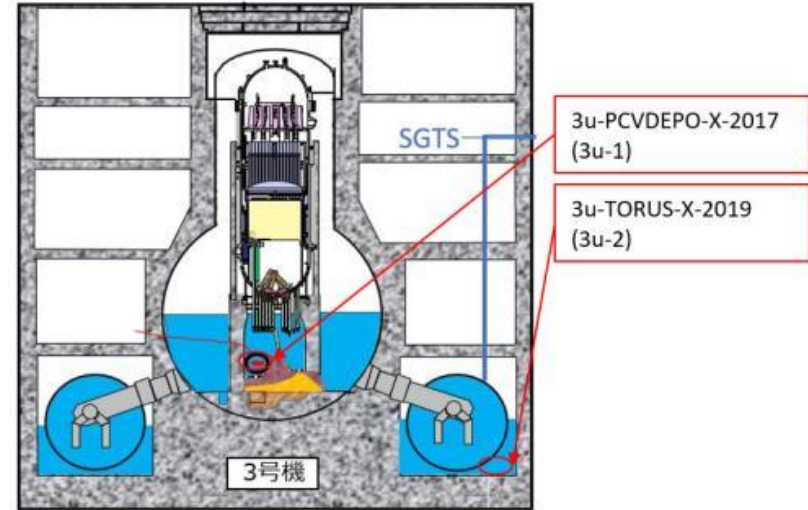
3u-1 (PCV内部調査装置付着物)

注：主成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成比を表す。これらの点（U粒子）には全て番号が付されているが、図中に赤く表記された番号はTEM分析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。

#：U:Zrモル比は、U粒子（数μmサイズ）のEDX点分析+ZAF補正での評価値から、U、Zr、Fe+Crの分析値のみ抜き出し、比を取って評価したもの。従って、粒子の平均組成そのものを示していないことに留意。

3u-1 (PCV調査装置スミア)

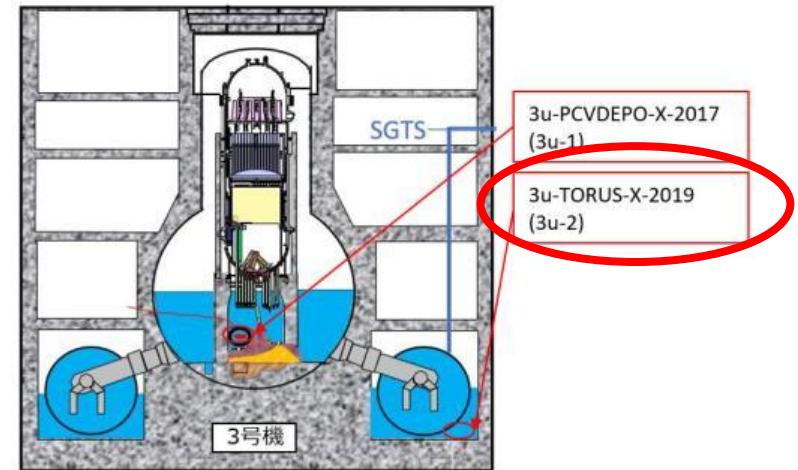
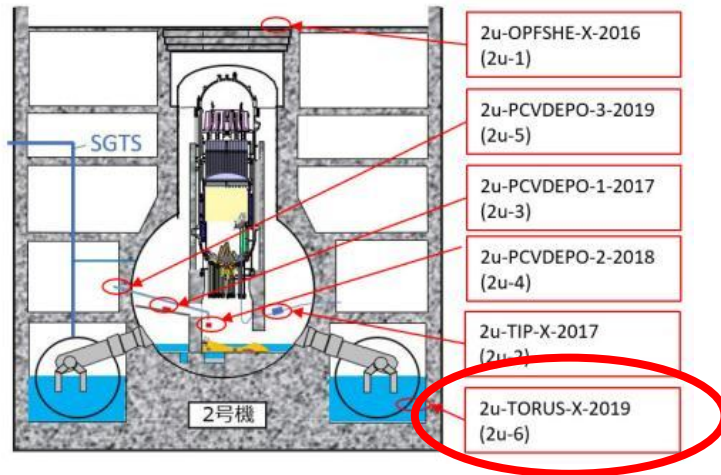
- α 核種：燃料由来 (海水の影響をあまり受けていない)
- Pb：生体遮蔽由来と推定
- Zn：塗料由来と推定
- Fe、Ni、Cr：鋼材由来と推定、CrとNiが分離
- Ca、Si、Al：コンクリート、またAl及びSiは保温材の可能性も
- FP：揮発性・難揮発性を含む



- 燃料デブリ中に、様々な物質が混在している可能性
- U粒子は、Type-Iと推定。相状態が複雑・多様なことから、最高到達温度が低く、徐冷された可能性を示唆 (最確シナリオと整合)
- α -Zr(O)が残留し、燃料デブリの一部で、酸化度が高くない可能性を示唆

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化

-2、3号機トラス室サンプル分析結果のまとめ-

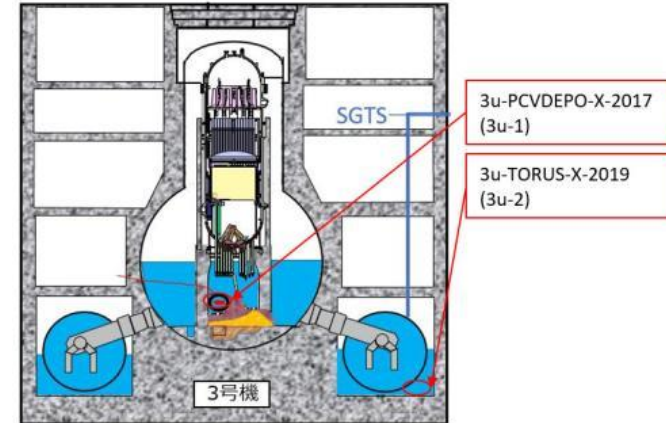
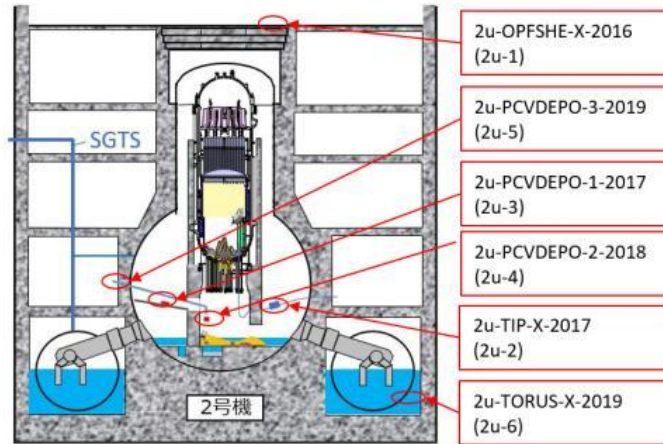


○他の領域と異なる特徴

- U/Pu相対濃度・・・Pu相対濃度が高い
- RE系FPのうちCeのみを検出
- Moを未検出
- 蛍石相中にU、Zr、Fe、Crが固溶（Type-I粒子：溶融・凝固）、酸化度が高い可能性
- UO₂粒子を検出（Type-II粒子：蒸発・凝縮？ペレット破砕片？）

➔ **PCV内からの移行過程で、水相を介してウラン粒子が変質した可能性を示唆**

α粒子の移行メカニズムの可能性を検討継続中



2u-6 (トーラス室滞留水ろ過物)

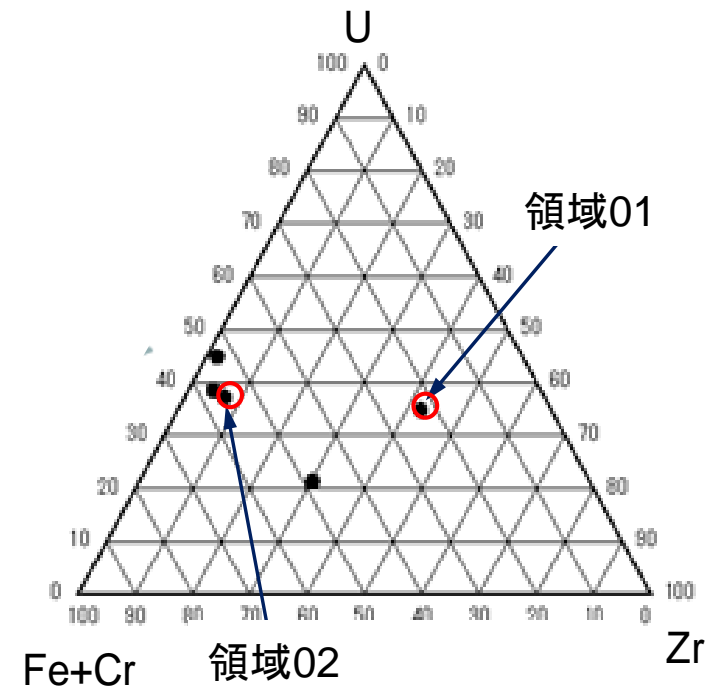
- α核種 (U, Pu)
 - 軽元素 (Li, B, Si, Na, Mg, Al, Ca)
 - 鋼材 (Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu)
 - 被覆管 (Zr微量)
 - 塗料、遮蔽 (Zn, Al, Pb)
 - FP (Sr, Pd, Rb, Cd, Sn, Sb, Cs, Ba, Ce)
 - Moを含有しない (トーラス室サンプルの特徴)
 - REはCeのみ検出 (同上)
- **U粒子を検出 (次頁、組成三角図)**
 PuはUと同一部位 (Pu相対濃度が高い)
 U粒子の周辺物はFe (Ni, Crが少ない)
蛍石相 (U, Zr, Fe, Cr固溶)、UO₂、スピネル同定

3u-2 (トーラス室滞留水ろ過物)

- α核種 (U, Pu)
- 軽元素 (Li, B, Si, Na, Mg, Al, Ca)
- 鋼材 (Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu)
- 被覆管 (Zr)
- 塗料、遮蔽 (Zn, Al)
- FP (Sr, Sn, Sb, Cs, Ba, Ce)
- Moを含有しない (トーラス室サンプルの特徴)
- REはCeのみ検出 (同上)

赤字は各サンプルに固有の特徴を示す。

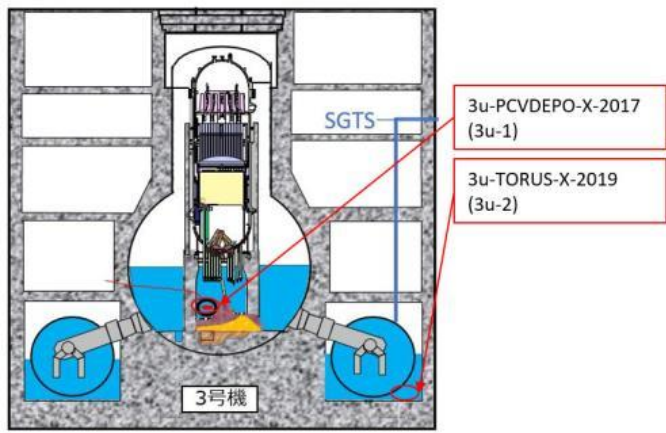
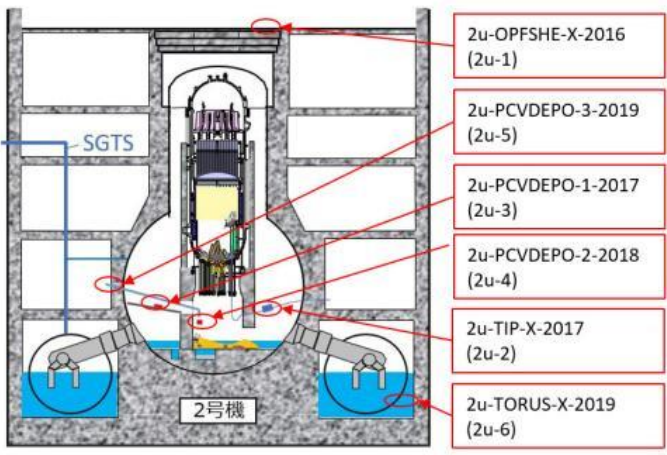
U粒子中の主成分組成比三角図 (2号機トーラス室サンプル)



2u-6 (トーラス室滞留水ろ過物)

注：主成分組成比三角図にプロットされた点は、同一試料のSEM/EDS分析により確認されたU粒子の組成比を表す。図中に赤く示された点はTEM分析を実施するものとして選定されたU粒子を示す。

2、3号機トーラス室サンプル分析からの仮説・推論



2u-6 (トーラス室滞留水ろ過物)

- α核種：燃料由来 (海水成分の混入は見られない)
 - Fe：錆成分由来 (Cr、Niの相対濃度が極めて低い)
 - Cr：試料全体での存在量は少ないが、ウラン粒子中に検出
 - Ca、Si、Al：コンクリート、保温材
 - Zn、Pb：塗料、生体遮蔽
 - FP：難揮発性FPを多く検出
 - 特性が異なるU粒子を検出
- (U, Zr, Fe, Cr)O₂：Type-I粒子と推定
UO₂：Type-II粒子の可能性 or ペレット破砕片の可能性

3u-2 (トーラス室滞留水ろ過物)

- α核種：燃料由来 (海水成分の混入は見られない)
- Fe：錆成分由来 (Cr、Niの相対濃度が極めて低い)
- Ca、Si、Al：コンクリート、保温材
- Zn：塗料由来
- Pb検出量が小さい (3号機はPb装荷量が少ない?)
- FP：ほぼ揮発性FPのみ検出

➤ S/C付近にリークの可能性 (2、3号機共)
 ➤ ペDESTAL堆積物と含有成分が異なる可能性 → **水相を介したα粒子の移行メカニズムを示唆**

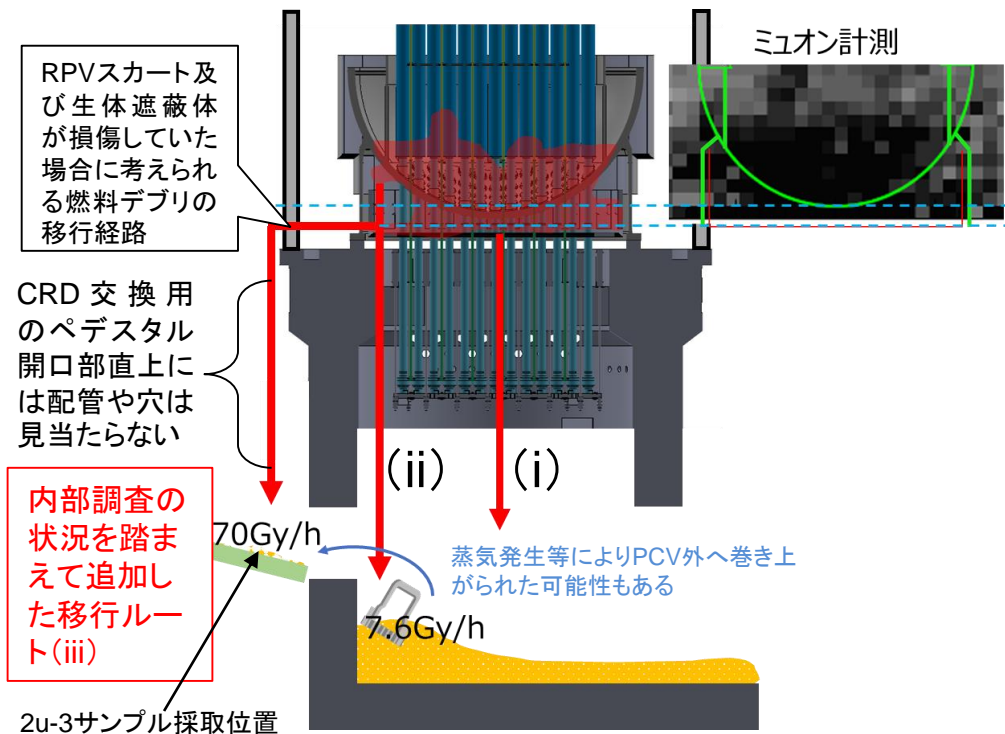
2号機燃料デブリ移行ルートに関する推論

BWRにおける燃料デブリ移行ルートの検討

- ▶ プラント設計情報を取入れた総合評価に基づき、事故進展解析で追いつけない、**三つの燃料デブリ移行ルート(i)~(iii)の可能性**を抽出
- ▶ 実プラントの幾何形状を考慮して、2号機での移行ルート解明のための実験的研究が必要

2u-3サンプルの分析結果

- ▶ **炉心物質**（燃料成分、揮発性・難揮発性FP、等）、**ペDESTAL内の物質**（鋼材、保温材、等）、**ペDESTAL外の物質**（内壁塗料、生体遮蔽、放射化物質、等）、を由来とする物質が混合して存在



- 2号機の燃料デブリ移行ルートの推定
- (i) RPV下部ヘッド底部脆弱部の局所破損（ペDESTAL内部調査で付着物を観測）
 - (ii) 同じく側面の破損（破損孔があるとみられる真下に未溶融の集合体部材を観測）
 - (iii) 一部燃料デブリのペDESTAL外への移行（プラント設計情報（構造、材料、配置など）や金属デブリの特性（模擬試験）を取入れた総合評価に基づく予測）

- ✓ **プラント情報、内部調査の結果、等を把握した上で、サンプル分析データを活用する、総合的評価の良好事例**
- ✓ **今後の調査時に確認すべき項目を提示できる可能性**

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 -廃炉ニーズへの反映-
-検討の進め方-

分析データの廃炉ニーズへの反映について、現状と経緯を整理 (P.81以降)

【本来構想】・ 廃炉工程設計に直接利用できる燃料デブリデータベースの整備を目指した。

【廃炉ニーズ調査】 廃炉事業者のニーズ調査(2014年度)、臨界管理、収納・移送・保管の観点での燃料デブリ分析ニーズリストとしてとりまとめ、JAEAでも、燃料デブリ分析ニーズに基づく分析方法について検討(2019年度)

【燃料デブリ周辺サンプル分析のねらい】 燃料デブリ分析の前に予備的に実施、燃料デブリ本体の特性予測・評価が主目的 (#技術的な知見は、シームレスに燃料デブリ分析に繋がる)

【最近の情勢】・ (1)燃料デブリ取り出しの遅延、一方、(2)1F内部調査や事故解析の進展

【燃料デブリ特性・堆積状態】 従来予測(PWR典型的事故シナリオ(TMI-2知見)に基づく)に比べ、号機・領域ごとに、複雑で多様な特徴を有していることが明らかに。

【情報利用者と分析・解析側での認識共有の必要性】・ 燃料デブリ多様性をどこまでどのように設計に反映するかの合意形成するプロセスが必要ではないか？

【廃炉工程設計(現状)】 実際の燃料デブリの系統的データが得られないため、PWR典型シナリオで生成される燃料デブリをイメージし、安全裕度を大きくとって設計 (#サンプル分析データは、必ずしも直接設計に役立てられていない？)

【燃料デブリ分析・事故解析】 号機・領域ごとの知見の精緻化・高度化が、どのように工程設計に貢献できるのか認識共有が必要 (#工程設計はできるだけロバストがベター、燃料デブリ多様性を、廃炉ニーズにどう反映するか？)

担当者間の情報共有に向け、廃炉ニーズに対し、分析データで得られる知見の充足度を再検討した。

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 -廃炉ニーズへの反映-

-2014年度のニーズ調査-

表 第2棟運用前の燃料デブリ分析のニーズ【1】
(廃炉作業の反映先の観点から優先度高と判断した分析項目)

分野	分析項目	分析装置【分析項目】	反映先※1
臨界管理	U、Pu濃度	ICP-AES(ICP-MS)、TIMS【C-1、2、6】 注	臨界評価の確認 (U、Puの分離がないこと)
	Gd、Fe、Cr濃度	ICP-AES(ICP-MS) 【C-1、2】注	臨界評価の確認 (Gdの偏在がないこと、Fe、Crの混合率)
	U濃縮度	TIMS 【C-2、6】注	臨界評価の確認 (U濃縮度に偏在が無いこと)
	化学形態	WDX、XRD 【B-2、3】注	臨界評価の確認 (Gd、Fe、Crなどの分布状況把握：偏在が無いこと)
	Pu、 ²⁴¹ Am	αスペクトル測定装置 (Si半導体)【C-3】 注	臨界評価の確認 (Pu+Am合計値必要)
収納・移送・保管	U、Pu濃度	ICP-AES(ICP-MS)、TIMS【C-1、2、6】注	収納缶設計の確認 (収納物の想定の確認)
	Fe、Cr濃度	ICP-AES(ICP-MS) 【C-1、2】注	収納缶設計の確認 (収納物の想定の確認)
	Cl濃度 (水中)	イオンクロマトグラフ	収納缶設計の確認 (水素発生量評価、腐食評価)
	化学形態	WDX、XRD 【B-2、3】注	収納缶設計の確認 (収納物の想定の確認)、Puなどの確認
	気孔率、含水率	X線CT(非破壊測定) 【A-6、B-5、7】	収納缶内の水素発生量推定の確認
	γ核種分布 (+密度分布) ※2	γスキャン装置 (+X線CT)【A-5、6】注	収納缶設計の確認 (収納物の推定の確認)

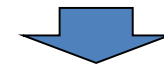
※1) 許認可申請前、申請中は参考データとして利用

※2) 分析項目を決定するために、非破壊測定により分析サンプルの全体の把握に利用

- 従来調査では、臨界管理と収納・移送・保管について、設計側から『反映先』が提案された。(本質的なニーズ)
- 反映先項目を評価できるように、分析・解析側で『分析項目・装置』にブレークダウンした。

○ 課題

- ブレークダウンした『分析項目』は、分析実施側の観点で整理されており、必ずしも、廃炉ニーズそのものではない！！



本質的な『反映先』に対し、燃料デブリ分析データがどこまで充足できるのかを再度検討

【1】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 より

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 - 廃炉ニーズへの反映-
 - 廃炉PJからの燃料デブリ分析ニーズ (先行事業での調査まとめ) -

- 燃料デブリ取り出し・・・ 燃料デブリ分布・物量、侵食範囲、化学特性#、機械特性、熱特性、線量・発熱
高温反応性#、乾燥特性、水素発生特性、リスク#、装置検証・モックアップ#
- 計量管理・保障措置・・・燃料デブリ中のU、Pu濃度、UとPuの同位体組成
- 臨界管理・・・ UとPuの帯同性、UとGdの帯同性、Fe、Crの混合率、
燃料デブリ中のGd、Fe、Cr濃度と分布、Gd-155濃度、U同位体組成、
(Pu+Am-241)/U組成、Cm-244濃度
- 線量評価・・・ Cs-137線量 (濃度)、Sr-90線量 (濃度)
- 収納・移送・保管・・・ 臨界管理に係る項目 (上述)
腐食・長期安定性に係る項目 (燃料デブリ化学形#、塩素濃度)
水素発生に係る項目 (気孔率、含水率、塩素濃度)
燃料デブリ物量の指標 (Eu-154の物量及びU帯同性)
- 廃棄物・・・ 処分安全評価に係る38核種インベントリ

1F堆積物サンプルから、現有施設
で取得可能なデータを青字で、本
事業での分析項目を下線で示す。

メカニズムの理解により、一部評価
が可能となる項目を緑字で示す。

- 従来は、廃炉ニーズとして示された個別の分析項目 (右側の一覧) に対し、分析・解析側が
分析方法を技術的に選定し、分析データの積み上げでデータベース化を進めてきている。
- 従って、そもそも分析データの積上げでは評価しきれない項目、設計裕度に影響が小さくロ
バストな評価で十分な項目、分析データ積上げて精緻化が必要な項目、臨界や保障措置など
の前提となる議論が必要な項目、などを区別し、分析データの優先度・充実度を整理するの
が現実的ではないか？ (関連知見が次第に拡充され、ある程度の整理ができる状況)
- 以下で、現状での充足度の評価結果を示す。

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 -廃炉ニーズへの反映-

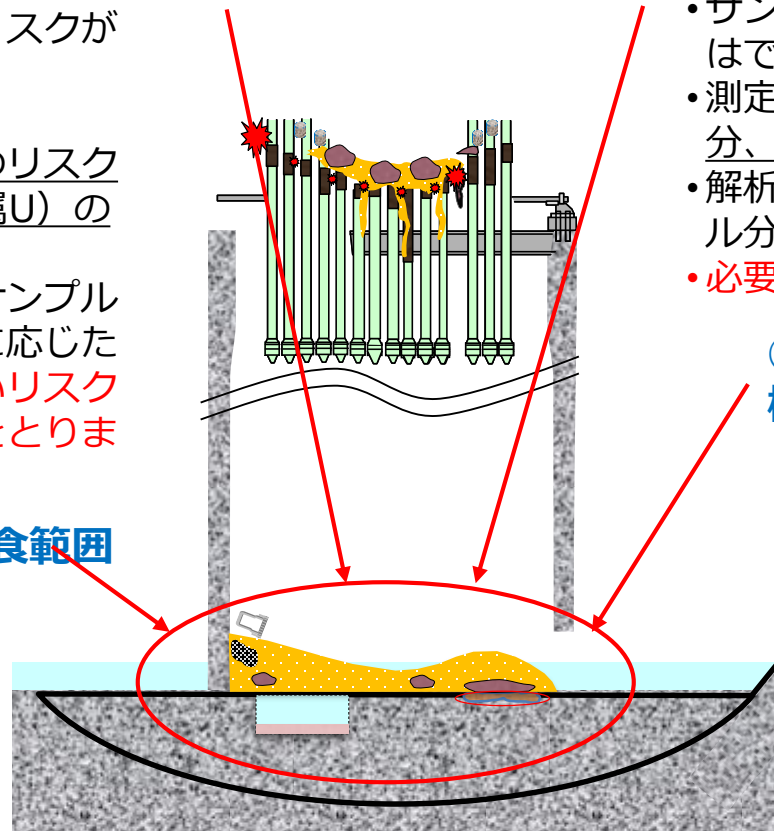
-廃炉ニーズに対する分析データの充足度、燃料デブリ取り出し工法について-

④ 発生確率が低いリスク（水素発生、金属火災等）の排除

- 分析・解析側からは、様々なリスクが指摘できる
- 規制がどこまで要求するか？
- 測定可能なのは、サンプル中のリスク要因成分（例えば金属Zrや金属U）の含有量とバラつき
- 事故進展解析の高精度化と、サンプル分析データによる検証（必要に応じた模擬試験）で、**発生確率が低いリスクを合理的に排除する理論体系をとりまとめるのが合理的**

① 燃料デブリ分布・物量・侵食範囲

- サンプル分析積み上げで評価することはできない
- 測定可能なのは、サンプル中の含有量・組成とバラつき
- 内部観察、事故進展解析による推定を、サンプル分析で少しずつ検証・高精度化するしかない**
- 深さ方向の知見（MCCI可能性）等は、模擬試験による知見拡充が有力となる可能性



2号機炉内状況推定図（抜粋）

③ 燃料デブリの線量・発熱

- サンプル分析積み上げで評価することはできない
- 測定可能なのは、サンプル中の発熱成分、FP成分の濃度とバラつき
- 解析コードによる評価結果を、サンプル分析で検証すると考えられる
- 必要な分析精度は未検討**

② 燃料デブリ特性（化学、熱、機械的、乾燥、等）

- サンプル分析積み上げで、『**際限なく**』高精度化でき、設計に必要な評価式・評価値を整備できる
- サンプル代表性の評価が重要
- 現状は、全ての特性を高精度化することを念頭に分析手法が選定されている**
- 特性ごとの重要度分類が必要ではないか？精緻化が必要な特性、現状知見で十分な特性、サンプル分析より模擬試験での知見拡充が適切な特性、等

(1) ② 燃料デブリの性状推定の高度化 -廃炉ニーズへの反映-

-廃炉ニーズに対する分析データの充足度、臨界安全・計量・保障措置について-**U/Pu、中性子吸収物質帯同性（臨界）**

- 号機・領域ごとのマクロな帯同性は、分析で直接得ることはできない
- 測定可能なのは、サンプル中のU/Pu比、U/中性子吸収物質の比、など
- **技術検討の前に基本となる考え方の合意形成が必要**
- 技術的には、U/Pu帯同性が維持される条件の解明、事故シナリオを反映したUと中性子吸収物質の帯同性の傾向評価、などが可能

燃料デブリ中の核物質総重量（計量・保障）

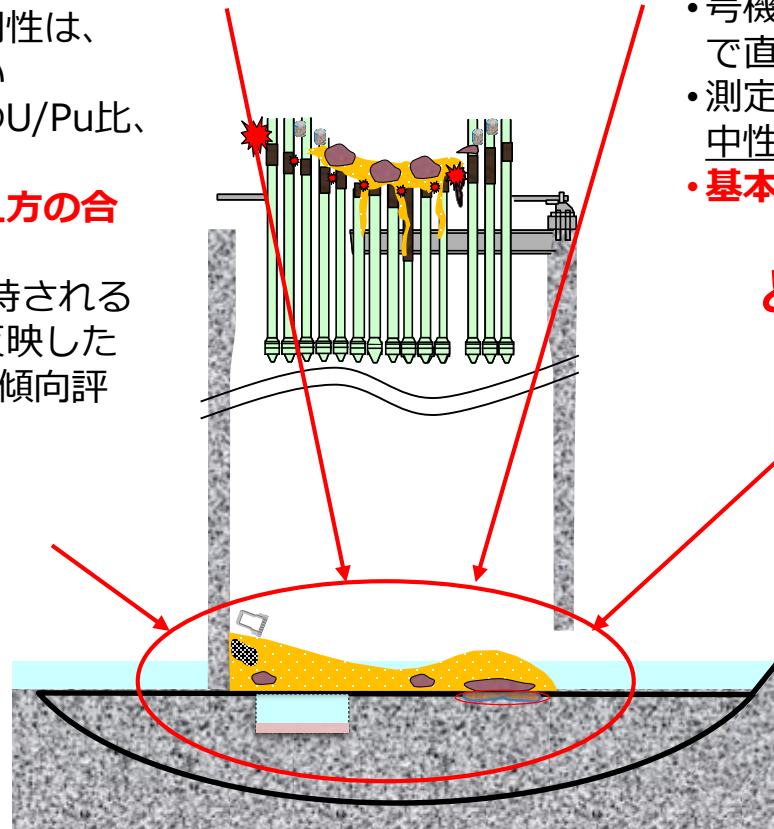
- サンプル分析積み上げで評価することはできない
- 測定可能なのは、サンプル中の核物質重量とバラつき
- **技術検討の前に、基本となる考え方の合意形成が必要**
- サンプル分析に基づいて評価できる核物質重量を、少しずつ検証・高精度化するしかない

核物質、中性子吸収物質の濃度（臨界）

- 号機・領域ごとのマクロな濃度は分析で直接得ることはできない
- 測定可能なのは、サンプル中の核物質、中性子吸収物質の濃度とばらつき
- **基本となる考え方の合意形成が必要**

どこまで精緻にやるか？**同位体比（計量・保障）**

- サンプル分析積み上げで評価することはできない
- 測定可能なのは、局所的なサンプル中の同位体比とばらつき
- **基本となる考え方の合意形成が必要**
- 1Fでは、燃料デブリが均質に溶融した過程を経ていない可能性、炉心での同位体比情報が維持されている可能性
- 分析・解析で燃料デブリ非均質程度の情報は得られると見込まれる。



2号機炉内状況推定図（抜粋）

- **サンプル分析データの廃炉ニーズへの反映...** 廃炉ニーズ調査結果を再検討し、知見の『**反映先**』=**本質的なニーズを整理**し、それに対し、これまでに取得された1Fサンプルの分析データや将来の実際の燃料デブリ分析データが、どこまで充足するかを検討した。
- **最新知見を工程設計にどのように反映するか？...** 他方、最近の現場観測や事故進展解析の結果から、1F燃料デブリが号機・領域ごとに、事故直後の想定よりずいぶん多様化していることがわかってきている。技術的には、大量（数、量とも）の燃料デブリサンプルを分析しないと燃料デブリ特性データベースは精緻化できない。**一方で、本質的なニーズに対して、どこまでどうやって精緻化するかの議論が必要**となってきた。
- 廃炉設計で必要となる項目ごとに、1F燃料デブリの多様性をどのようにとらえ、分析・解析で得られる知見・データをどのように拡充し、設計に反映していくのか、担当者レベルでの合意形成が必要と認識している（大前提として、工程設計はできるだけロバストにしたい）。
- 確率の低いリスクについて（研究開発の観点では、現状想起されない課題の先取りともいえるが...）、どこまでどのように扱っておくかの合意形成も必要ではないか？（例えば、現状では、ある項目については基礎研究にとどめることを認識共有するなど）
- **計量管理・保障措置、臨界安全、廃棄物...** 燃料デブリデータベース拡充・精緻化の前に、最新知見に基づいて、**ある程度の合意形成を行うタイミングではないか？**

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-85

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)
- ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 P2-15
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化 P2-54
- (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発
- ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
- ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2) P2-87
 - 1) 試験の概要
 - 2) 試験に供する模擬燃料デブリ
 - 3) 試験方法
 - 4) 切削試験結果
 - 5) 加熱試験結果
 - 6) 粒子分析結果(切削試験)
 - 7) 粒子分析結果(加熱試験)
 - 8) 分析結果のまとめ
 - 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較
 - ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 (2019～2020年度*1) P2-140
 - ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (2019～2020年度*1) P2-150
 - ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019～2020年度*1)
 - ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 P2-156
 - ②-2 液相における微粒子挙動評価 P2-166
 - ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – (2021年度*2)
 - ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 P2-178
 - ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

【各課題の相補関係】

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動<発生挙動の理解>

①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

Pu情報の補完

①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験

- ・ 模擬燃料デブリ由来のウラン含有微粒子について、発生時の性状（発生量・粒子特性）を示す。

- ・ ウランと共存するプルトニウムの挙動（帯同性）を推定する。

② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動<移行挙動の理解>

②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価

②-2 液相における微粒子挙動評価

- ・ 数値流体力学（CFD）シミュレーション等を用いて、微粒子の移行を推定する技術を開発する。

③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ

情報補完

①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査

- ・ 国内外飛散事例等の文献調査

- ・ 燃料デブリ由来微粒子の発生・移行挙動の推定・評価技術を提案する。
- ・ 燃料デブリ取り出しシステムへの影響を評価、検討する。
- ・ 他PJ（取出PJ等）にわかりやすい形で提供する。（成果を反映）

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-87

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

P2-15

② 燃料デブリの性状推定の高度化

P2-54

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2)

P2-87

1) 試験の概要

6) 粒子分析結果(切削試験)

2) 試験に供する模擬燃料デブリ

7) 粒子分析結果(加熱試験)

3) 試験方法

8) 分析結果のまとめ

4) 切削試験結果

9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較

5) 加熱試験結果

①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験

(2019～2020年度*1)

P2-140

①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査

(2019～2020年度*1)

P2-150

② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

(2019～2020年度*1)

②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価

P2-156

②-2 液相における微粒子挙動評価

P2-166

③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ

– 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 –

(2021年度*2)

③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討

P2-178

③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測)

P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

1) 試験の概要 (その1)

目的：ウラン含有模擬燃料デブリの加熱並びに機械的切断に伴い発生する放射性微粒子を捕集・分析することにより、気相における放射性微粒子の生成・移行挙動に関する情報を取得し、燃料デブリ取り出しシステムへの影響を評価、検討する。

実施方法（公募要領記載内容）：燃料デブリの取り出し時の加工に伴い発生する放射性微粒子の生成挙動に関する情報を取得し、燃料デブリ取り出しシステムへの影響を検討・評価する。試験では、取り扱いに注意を要する燃料成分の実データの取得を図る。具体的には、ウランを含む模擬燃料デブリを対象試料として用い、機械的加工及び熱的加工を行った際に発生する放射性微粒子を収集し、加工法に応じた微粒子挙動を評価する。これらの検討・評価については、燃料デブリ取り出しシステムの検討に資するように関連事業と連携を取りながら進める。

目標達成の指標：

- ・仏において、機械加工および加熱時に発生する微粒子のデータが取得されていること。
- ・燃料デブリ取り出しシステムへの影響が評価されていること。

主要成果：

- ・ウラン含有材料の切断によって生成するエアロゾル粒子の生成挙動に関するデータ（粒径分布/質量濃度・数密度/放射能の推定値）を取得。
- ・上記取得データや、過去にONET/CEA/IRSNがコールド環境で取得したLASER切断時の微粒子挙動データを踏まえた、コンクリート成分の有無(MCCIの影響)による生成・移行挙動の違いや、ウラン・ハフニウム気相におけるエアロゾル挙動の違いに関する知見。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

1) 試験の概要 (その2)

【本試験の全体構成】

Hf-含有模擬燃料デブリのLASER切断に伴う粒子生成挙動

(燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けた技術の開発
(燃料デブリのダスト集塵システムの技術開発) PJ情報)

本試験の実施範囲

機械切削試験

VITAE加熱試験

熱力学的な考察*1
から条件設定

*1 Journeau, C et al.,
ERMSAR2019, 2019.

Hf/U-含有模擬燃料デブリ
加熱に伴う粒子生成試験
(高周波誘導加熱炉による加熱)

Hf-/Uでの粒
子挙動の差異

Hf/U-含有模擬燃料デブリ
機械切削に伴う粒子生成試験
(コアボーリングによる機械切削)

- ・Hf試料の組成は上記LASER切断と同一
- ・U試料の組成はHf : U = 1 : 1とし、他の元素はHf試料と同一
- ・LASER切断の温度条件を誘導加熱で模擬 (P2-97右欄参照)

・供試材は左記加熱試験と同じ

U-含有模擬燃料デブリのLASER切断に伴う
粒子生成挙動 (推定)

U-含有模擬燃料デブリの機械切削に伴う
粒子生成挙動

・微粒子発生挙動の加工法別の傾向を総合的に検討

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
2) 試験に供する模擬燃料デブリ

【表：本事業試験に供した模擬燃料デブリの仕様、製造法、及び組成決定の根拠等】

試料番号	試料名	試験体の量	Pu/FP模擬体*の有無	製造法	試験項目	試料製造	組成決定の根拠
1	UO ₂ _MCCI	5 kg	×	実MCCI反応	加熱 / 切断	済 (2017年1月)	1F(1号機)の炉心溶融物・コンクリート成分のMCCI反応
2	HfO ₂ _MCCI	0.1 kg	×	るつぼ内加熱	加熱	本事業で製造	試料1の組成を参照 (1F・1号機のMCCI)
3	HfO ₂ _In-vessel	2-3 kg	○	るつぼ内加熱	加熱 / 切断	済 (2016年以前)	BSAF計算による1F・2号機の炉心溶融物の平均組成
4	HfO ₂ _Ex-vessel	2-3 kg	○	るつぼ内加熱	加熱 / 切断	済 (2016年以前)	BSAF計算+US-DOE/NRCのMCCI計算 (2号機)
5	UO ₂ _In-vessel	0.1 kg	○	るつぼ内加熱	加熱	本事業で製造	BSAF計算による1F・2号機の炉心溶融物の平均組成
6	UO ₂ _In-vessel	10 kg	○	るつぼ内加熱	切断	本事業で製造	BSAF計算による1F・2号機の炉心溶融物の平均組成
7	UO ₂ _Ex-vessel	0.1 kg	○	るつぼ内加熱	加熱	本事業で製造	BSAF計算+US-DOE/NRCのMCCI計算 (2号機)
8	UO ₂ _Ex-vessel	10 kg	○	るつぼ内加熱	切断	本事業で製造	BSAF計算+US-DOE/NRCのMCCI計算 (2号機)

* PuはCeで模擬、FP組成は1Fの燃料組成評価値 (ORIGEN2コードを用いた2011年3月11日時点での燃料組成(JAEA-Data/Code 2012-018)) を基に、1 - 3号機平均値の10年経過・壊変を想定した計算値を基に組成を決定した。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

2) 試験に供する模擬燃料デブリ

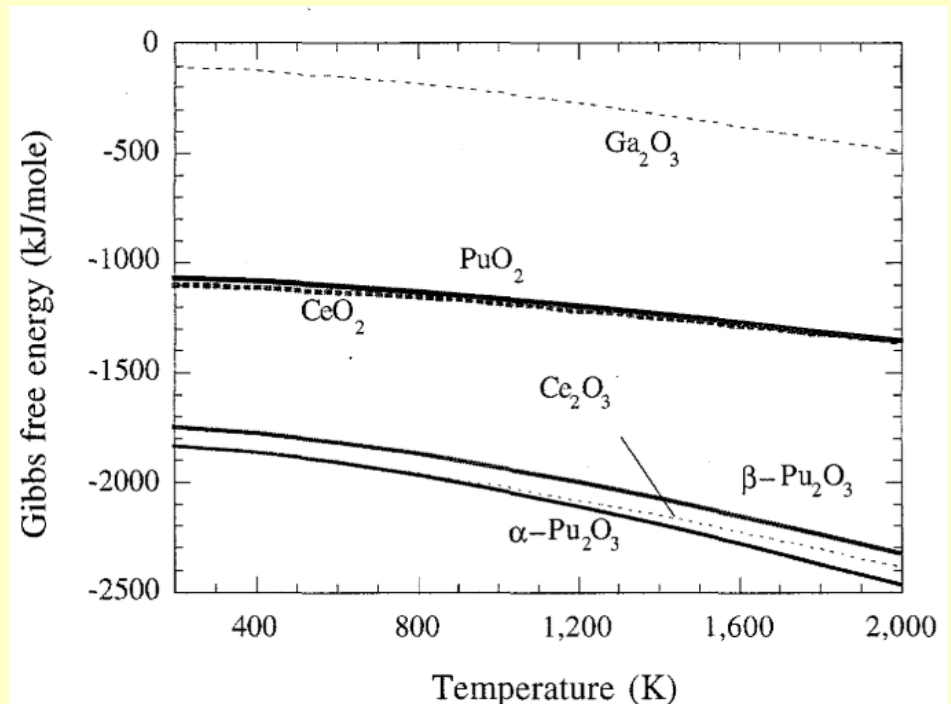
【HfによるU模擬の背景】

- 本試験の基となったLASER切断試験 (90ページ参照) において、LASERの切削性能を調べる目的で、Uの代替元素としてHfを選定。本試験ではその結果とUの結果を比較するために同じ組成を選定。
 - 酸化物に融点が近似(HfO_2 :3063K、 UO_2 :3033K)
 - 酸化物の熱伝導率が近似(両者とも約2W/mK)
 - 酸化物の密度が近似 (HfO_2 :9680 kg/m³、 UO_2 :10500 kg/m³)
 - HfO_2 - ZrO_2 系は、 UO_2 - ZrO_2 と同様に(ほぼ)全率固溶
 - × 相の安定性(特に UO_3 の蒸気圧は HfO_2 で近似不可能)
- 本試験で両者の比較を実施。

【CeによるPu模擬の背景】

- Hfと同様、LASER切断試験で選択
 - 酸化物に融点が近似(両者とも2673K付近)
 - 両者のGibbs自由エネルギーが近似 (右図*)

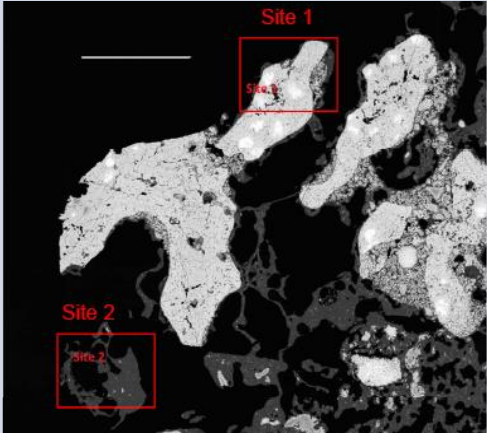
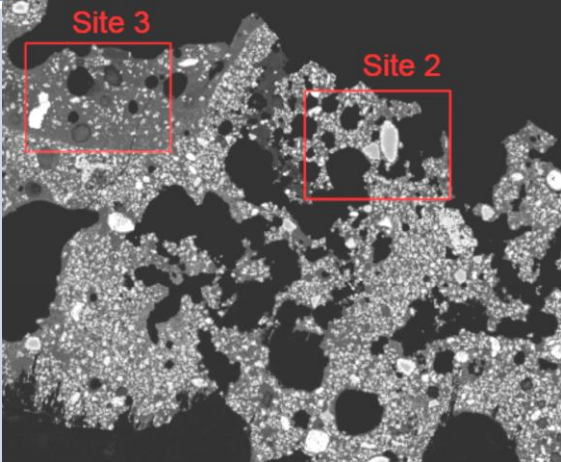
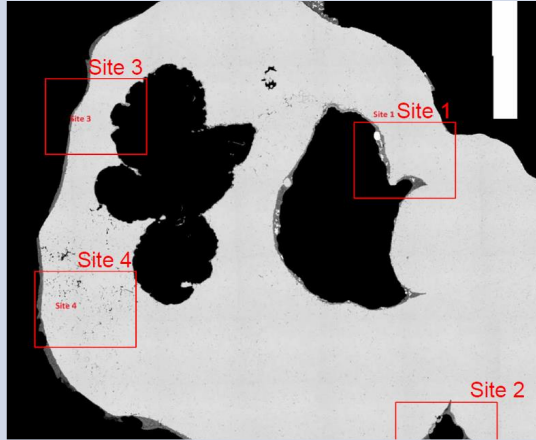
* D.G. Kolman, et.al., An assessment of the validity of cerium oxide as a surrogate for plutonium oxide gallium removal studies, (1999).



(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

2) 試験に供する模擬燃料デブリ

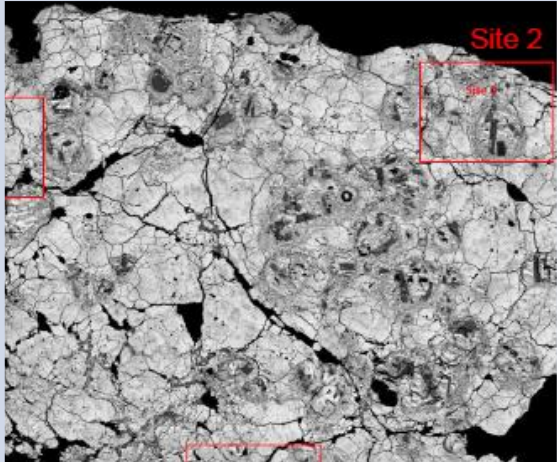
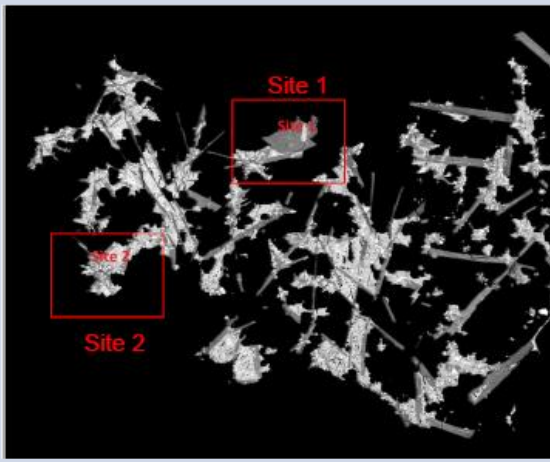
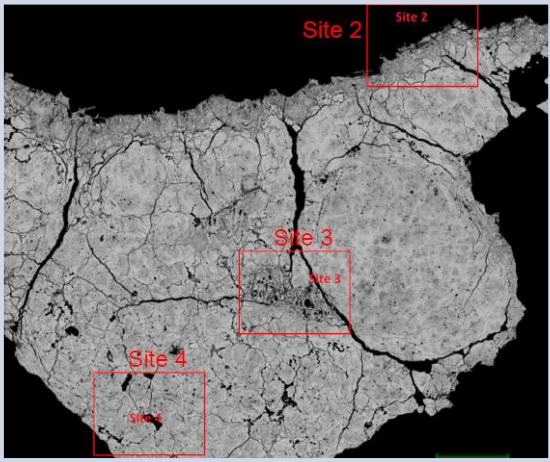
【U含有模擬燃料デブリサンプル(試験前) MCCI酸化物および金属相 (#1) VF-U1】

	VF-U1b (oxide)	VF-U1c (oxide)	VF-U1a (metal)
試料断面のSEM写真 (反射電子像)			
特徴	<ul style="list-style-type: none"> ・非均質性が強く、多孔質 ・U、Zr酸化物相に富む ・Si、Ca、Al、Na、Mgの酸化物を含むケイ酸塩相が存在 	<ul style="list-style-type: none"> ・左のVF-U1bに近い 	<ul style="list-style-type: none"> ・金属の凝固組織状。 ・多孔質ではない。 ・金属部の外側にU、Zr等を含む酸化物相が僅かに存在。
主な検出相 (XRD等による)	<ul style="list-style-type: none"> ・Uリッチな酸化物 ($U_{0.8}Zr_{0.2}O_2$) ・Zrリッチな酸化物 ($U_{0.1}Zr_{0.9}O_2$) ・クロム鉄酸化物 (斜方晶系の $FeCr_2O_4$) ・ガラス状と推定されるケイ酸塩 	<ul style="list-style-type: none"> ・左のVF-U1bと同様、ただし、クロム鉄酸化物の割合が少し高い。 	<ul style="list-style-type: none"> ・カマサイト ($bcc-Fe_{0.94}Ni_{0.06}$)

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

2) 試験に供する模擬燃料デブリ

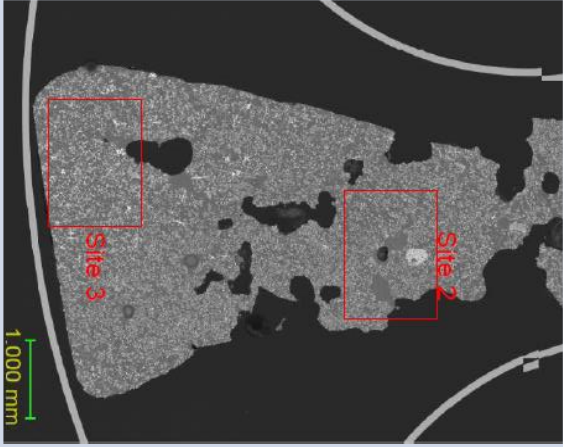
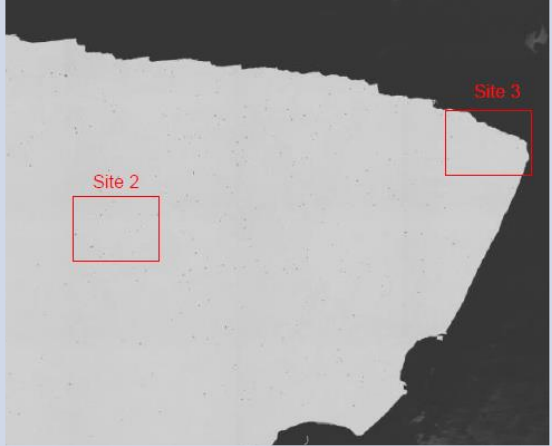
【U含有模擬燃料デブリサンプル(試験前) In-Vessel (#5、#6) VF-U2】

	VF-U2a	VF-U2b	VF-U2c
試料断面のSEM写真 (反射電子像)			
特徴	<ul style="list-style-type: none"> 全体に白みがかっており、U、Zrが多く存在する。 多様な合金相が認められる。 	<ul style="list-style-type: none"> 大きな空隙 複雑な針状組織 形状は異なっても左記に類似 Zr、Uの酸化物、およびZr、Fe、Cr等の複雑な金属合金相 	<ul style="list-style-type: none"> VF-U2aに類似 二ホウ化ジルコニウムZrB_2の存在割合は低い
主な検出相 (XRD等による)	<ul style="list-style-type: none"> Zr、Uの酸化物 ($U_{0.18}Zr_{0.82}O_2$) ジルコニウム-ホウ窒化物 ($ZrB_{0.4}N_{0.6}$) 二酸化ウラン$UO_{2.11}$ 二ホウ化ジルコニウムZrB_2 	<ul style="list-style-type: none"> 左記同様 	<ul style="list-style-type: none"> Zr、Uの酸化物 ($U_{0.18}Zr_{0.82}O_2$) ジルコニウム-ホウ窒化物 ($ZrB_{0.4}N_{0.6}$) 二酸化ウラン$UO_{2.11}$

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

2) 試験に供する模擬燃料デブリ

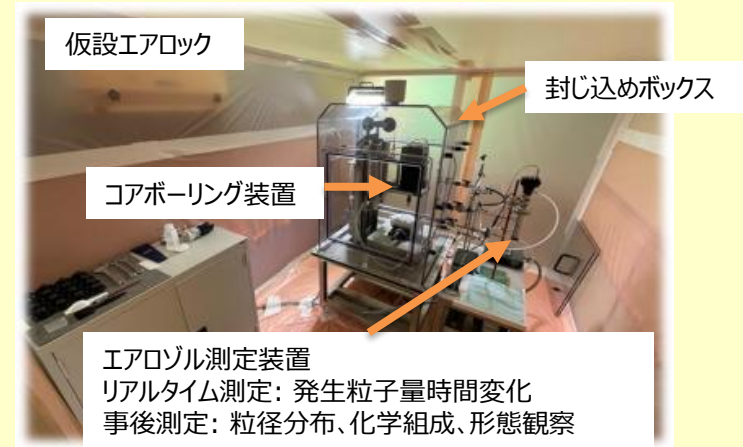
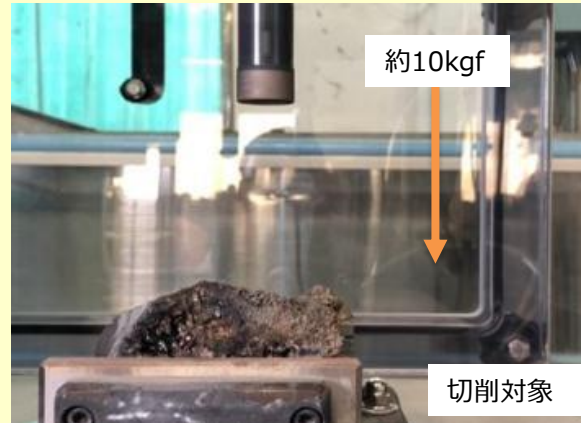
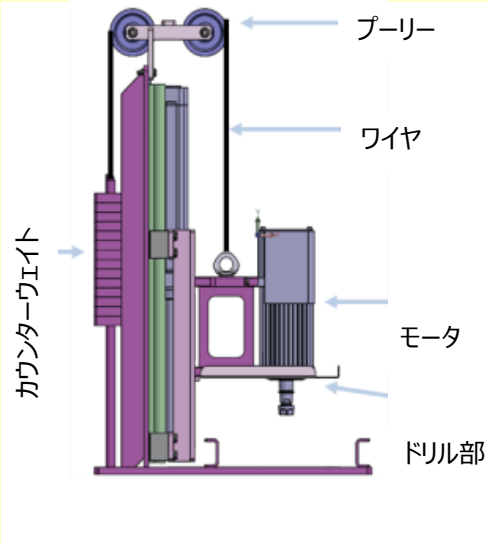
【U含有模擬燃料デブリサンプル(試験前) Ex-Vessel 酸化物および金属相(#7、#8) VF-U3】

	VF-U3c (酸化物)	VF-U3e (metal)
試料断面のSEM写真 (反射電子像)		
特徴	<ul style="list-style-type: none"> ・相対的に空隙が少ない。 ・コンクリートの元素を多く含むケイ酸塩が主 (ガラス状) ・酸化ウランと酸化ジルコニウムが存在 	<ul style="list-style-type: none"> ・ほとんどが金属相で、非常に均質であるが、周辺部には酸化物層が存在する部分がある。 ・ほとんどカマサイト単相。微量酸化物はケイ酸塩。
主な検出相 (XRD等による)	<ul style="list-style-type: none"> ・ウランリッチ酸化物($U_{0.9}Zr_{0.1}O_2$) ・正方晶ジルコニウム酸化物(ZrO_2) ・ヘマタイト($\gamma-Fe_2O_3$) (Crを多く含む) 	<ul style="list-style-type: none"> ・カマサイト ($bcc-Fe_{0.94}Ni_{0.06}$)

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

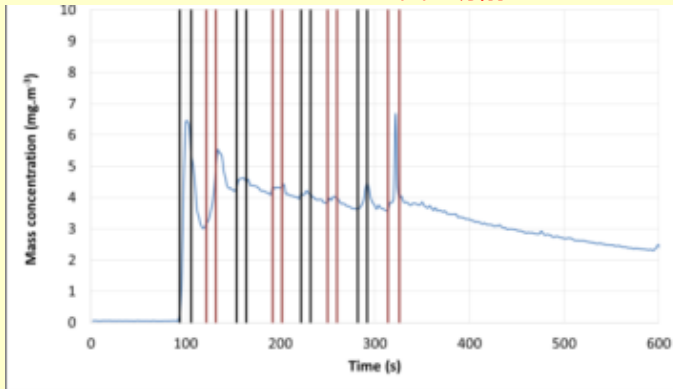
3) 試験方法（機械的切削試験）

【模擬燃料デブリの機械的切削試験概要】



エアロゾル測定装置
リアルタイム測定: 発生粒子量時間変化
事後測定: 粒径分布、化学組成、形態観察

1 2 3... 8回の切削



- 封じ込めボックス内にコアボーリング装置を設置。ボックス壁面のサンプリングポートからエアロゾルをサンプリング。
- ドリルは2種類(ϕ 15mm、4428rpmおよび ϕ 25mm、2655rpm)、接線速度一定条件。10kgfの力を加えて切削。
- 粒子濃度をモニタリングしながら、複数回の切削を実施。
(インパクター-DLPI+の捕集量を確保するため)

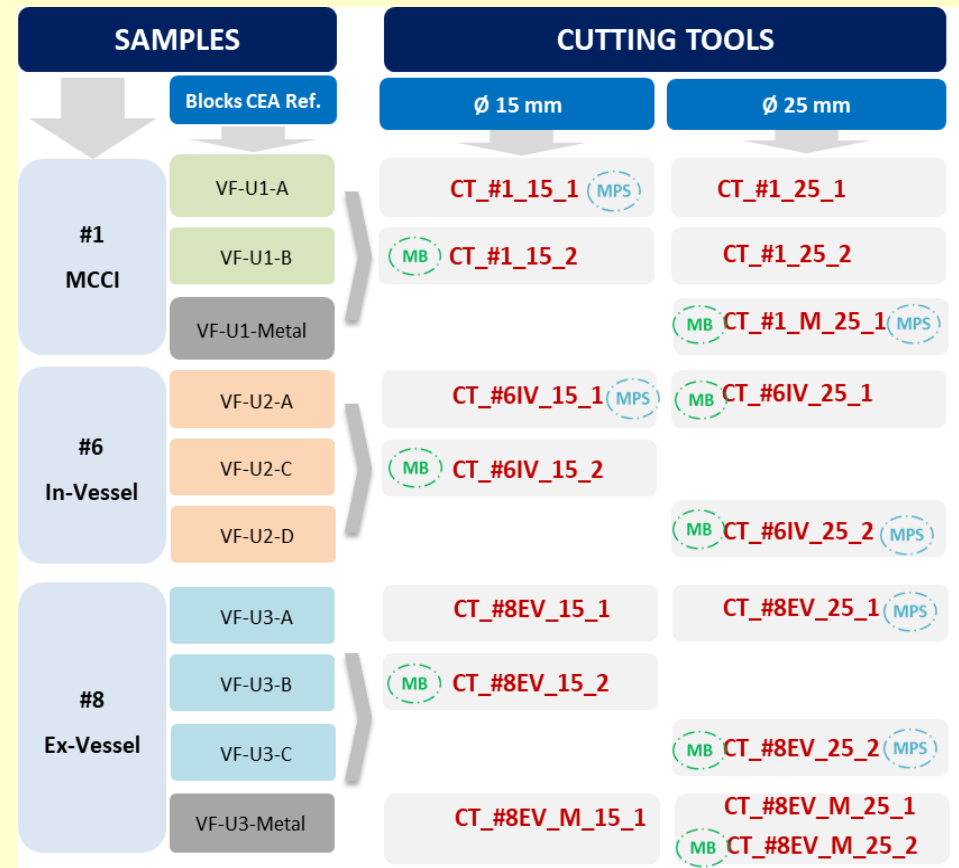
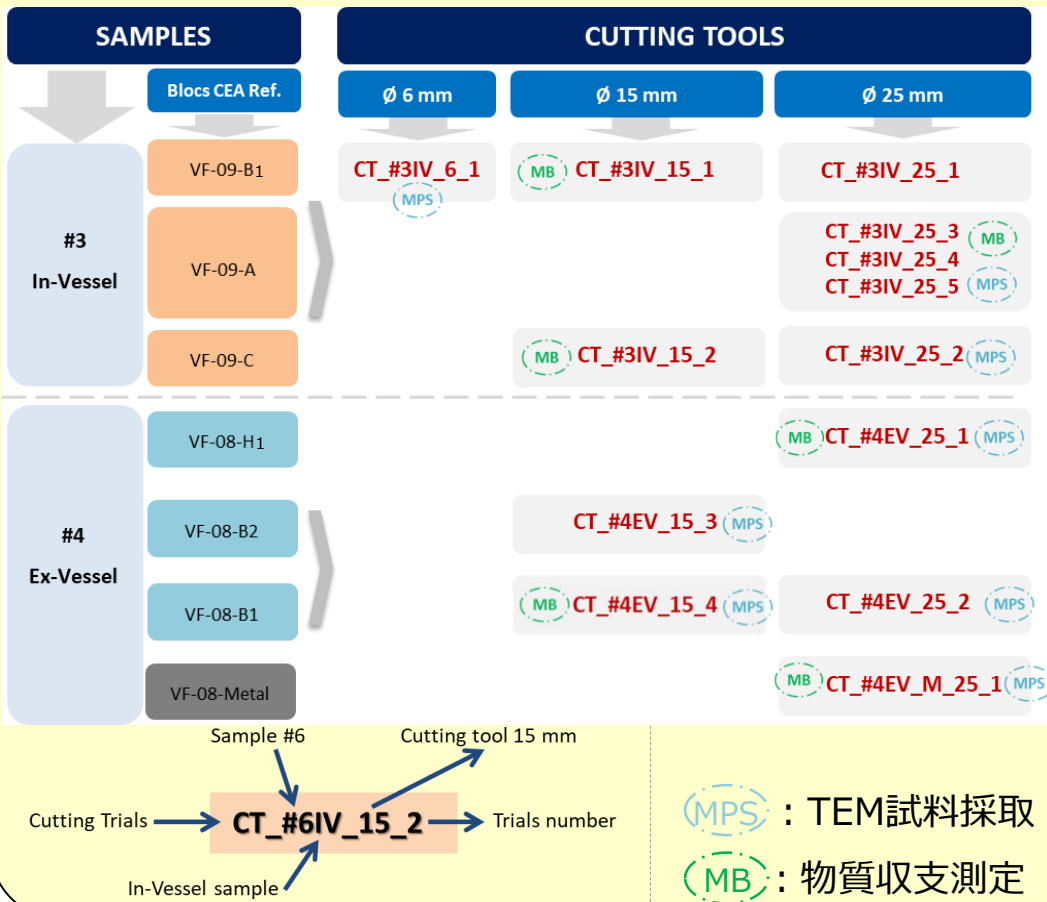
粒子量を確保するため、複数回に分けて切削・休止を繰り返し、捕集

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
 3) 試験方法 (機械的切削試験)

【機械的切削試験マトリックス】

Hf含有模擬燃料デブリ試料 (非放射性)

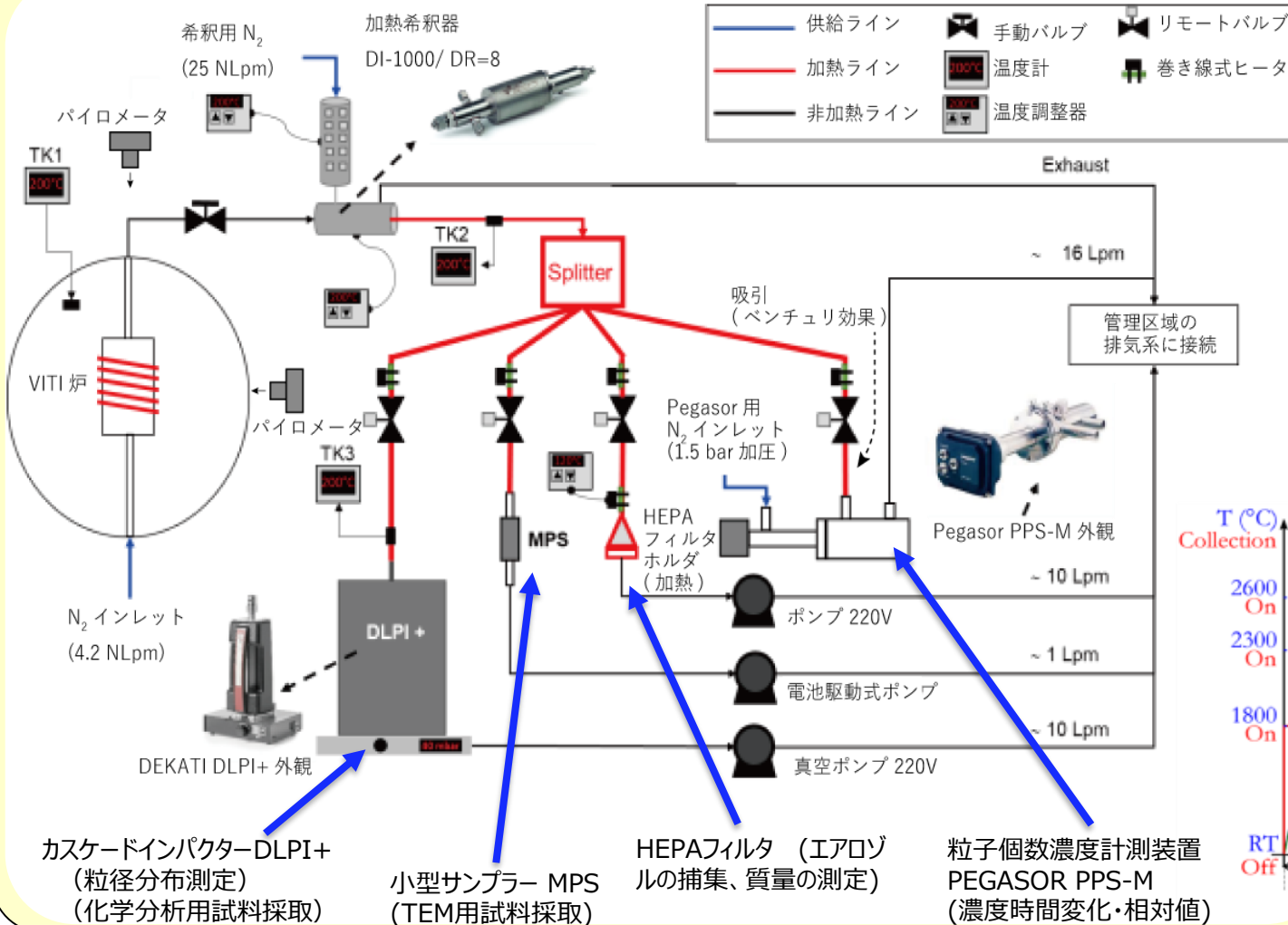
U含有模擬燃料デブリ試料



(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

3) 試験方法 (加熱試験)

【模擬燃料デブリの加熱試験概要】



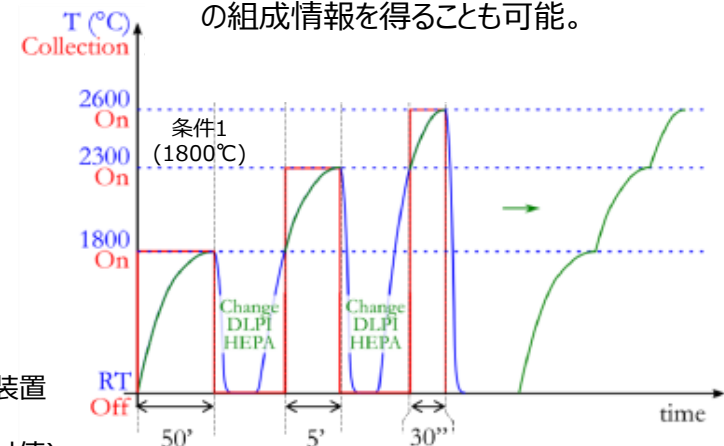
加熱試験の試験条件

LASER切断試験を模擬するため、加熱試験の最高温度は、試験によって得られるエアロゾルの組成がLASER切断試験のものと同整合するよう、エアロゾル組成の熱力学的検討結果*1を参考に2600°Cに設定。

*1 Journeau, C et al., ERMSAR2019, 2019.

加熱試験における昇温手順

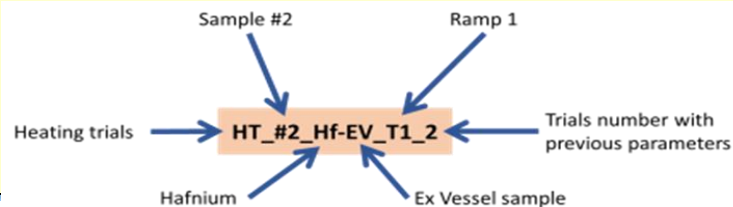
- 最高温度 (2600°C) までの温度域を3分割し、同一試料について、それぞれの温度域で発生する微粒子を収集 (Piecewise collection)
- これにより、温度ごとに生成する微粒子の組成情報を得ることも可能。



(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
3) 試験方法 (加熱試験)

【加熱試験マトリックス (Hf含有模擬燃料デブリ試料 (非放射性))】

Sample Number	Trial reference	Temperature range
Sample #2 - MCCI 模擬 (試料として原料粉混合物を使用)	HT_#2_Hf-EV_T1_1	[室温 ; 1800° C]
	HT_#2_Hf-EV_T2_1	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#2_Hf-EV_T3_2	[2300° C ; 2600° C]
Sample #3 - In-vessel	HT_#3_Hf-IV_T1_1	[室温 ; 1800° C]
	HT_#3_Hf-IV_T2_1	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#3_Hf-IV_T3_1	[2300° C ; 2600° C]
Sample #4 - Ex-vessel Oxide	HT_#4a_Hf-EV-OX_T1_3	[室温 ; 1800° C]
	HT_#4a_Hf-EV-OX_T2_3	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#4a_Hf-EV-OX_T3_3	[2300° C ; 2600° C]
Sample #4 - Ex-vessel Metal	HT_#4b_Hf-EV-MET_T1_1	[室温 ; 1800° C]
	HT_#4b_Hf-EV-MET_T2_1	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#4b_Hf-EV-MET_T3_1	[2300° C ; 2600° C]
Sample #3 - In-vessel 再現性確認用	HT_#3_Hf-IV_T2_2	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#3_Hf-IV_T3_2	[2300° C ; 2600° C]
Sample #4 - Ex-vessel Oxide 再現性確認用	HT_#4a_Hf-EV-OX_T1_2	[室温 ; 1800° C]
	HT_#4a_Hf-EV-OX_T2_1	[1800° C ; 2300° C]



(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
3) 試験方法 (加熱試験)

【加熱試験マトリックス (U含有模擬燃料デブリ試料 (放射性))】

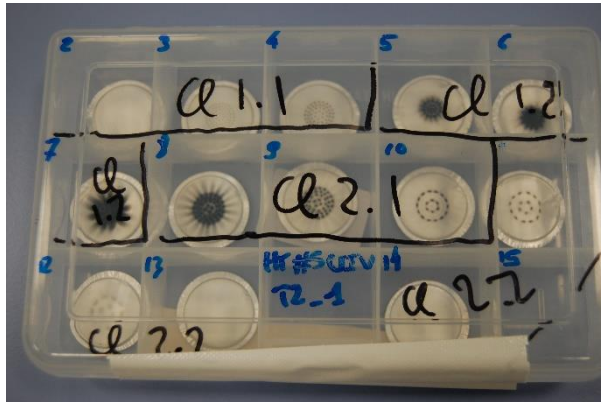
Sample Number	Trial reference	Temperature range
Sample #1 - MCCI	HT_#1_U-MCCI_T1_1	[室温 ; 1800° C]
	HT_#1_U-MCCI_T1_2	[室温 ; 1800° C]
	HT_#1_U-MCCI_T2_2	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#1_U-MCCI_T3_1	[2300° C ; 2600° C]
	HT_#1_U-MCCI_T3_2	[2300° C ; 2600° C]
Sample #5 - In-vessel	HT_#5_U-IV_T1_1	[室温 ; 1800° C]
	HT_#5_U-IV_T2_1	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#5_U-IV_T3_1	[2300° C ; 2600° C]
	HT_#5_U-IV_T3_2	[2300° C ; 2600° C]
Sample #7a - Ex-vessel Oxide	HT_#7a_U-EV-OX_T1_1	[室温 ; 1800° C]
	HT_#7a_U-EV-OX_T2_1	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#7a_U-EV-OX_T3_1	[2300° C ; 2600° C]
	HT_#7a_U-EV-OX_T3_2	[2300° C ; 2600° C]
Sample #7b - Ex-vessel Metal	HT_#7b_U-EV-MET_T1_1	[室温 ; 1800° C]
	HT_#7b_U-EV-MET_T2_1	[1800° C ; 2300° C]
	HT_#7b_U-EV-MET_T3_1	[2300° C ; 2600° C]

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

3) 試験方法（生成した微粒子の分析）

生成微粒子分析の概略（CEAマルクール研究所のLMAT*にて実施）

- DLPI（低圧インパクター）に捕集した微粒子は、Al製インパクタープレートごと酸で溶解し、ICP-MS及びICP-AESにて化学分析を実施
- MPS（Mini-Particle Sampler）で捕集した微粒子は、TEM観察、TEM-EDS分析を実施



粒径毎に分類したインパクタープレート



ホットプレート上で溶解中



溶解後

注意点

- 捕集できた模擬燃料デブリの重量が僅かであるため、検出下限が高い。
- 微粒子の分析に先立ち、未使用のインパクトプレート进行分析し（ブランク分析）、得られたブランク測定値を実試料の分析値から差し引き、分析値とすることを原則とした。
- 化学分析において、インパクタープレートがAl製であるため、Alは分析対象に含めない。
- インパクトプレートには微粒子捕集のために、グリースを薄く塗布している。このグリースはSi等を含むため、特にSiの分析感度が低い。

* Laboratoire d'analyse chimique et de caractérisation des matériaux

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

4) 機械切削試験結果

機械切断試験におけるHf含有模擬燃料デブリ試料の主な結果

Cutting trial	Block	空気動学的中央径		粒子質量 濃度 ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)	切削深さ (mm)		切削時間 (s)	平均切削速度 ($\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$)
		Dg (μm)	σ		60秒後	合計値		
CT_#3IV_15_1	VF-09-B1	3.6	1.6	14.2	10	10.4	720	0.9
CT_#3IV_15_2	VF-09-C	3.7	1.7	35.4	5	7	540	0.8
CT_#3IV_25_1	VF-09-B1	3.8	1.6	72	13	14.4	1440	0.6
CT_#3IV_25_2	VF-09-C	3.7	1.6	101	10	10	480	1.3
CT_#3IV_25_3	VF-09-A	3.6	1.6	12.9	10	12.5	1320	0.6
CT_#3IV_25_4	VF-09-A	4.2	1.6	-	-	-	-	-
CT_#3IV_25_5	VF-09-A	3.9	1.9	-	-	-	-	-
CT_#4EV_15_3	VF-08-B2	4.1	1.7	7.9	-	28.3	480	3.5
					-	19	480	2.4
CT_#4EV_15_4	VF-08-B1	4.0	1.7	16.2	15	15	60	15
					-	17	360	2.8
CT_#4EV_25_1	VF-08-H1	4.7	1.9	16.1	-	16	75	12.8
					-	21.5	60	21.5
					-	26	180	8.7
CT_#4EV_25_2	VF-08-B1	3.9	1.7	17	-	34	600	3.4
					-	34	240	8.5
CT_#4EV_M_25_1	VF-08-M	3.0	2.8	0.7	-	3.5	480	0.4
					-	3.1	600	0.3

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

4) 機械切削試験結果

機械切断試験におけるU含有模擬燃料デブリ試料の主な結果

Cutting trial	Block	空気動学的中央径		粒子質量 濃度 ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)	切削深さ (mm)		切削時間 (s)	平均切削速度 ($\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$)
		Dg (μm)	σ		60秒後	合計値		
CT_#1_15_1	VF-U1-A	3.8	1.6	110.3	33	33	60	33
					17	35	480	4.4
CT_#1_25_1	VF-U1-A	3.7	1.6	84	13	31	900	2.1
CT_#1_15_2	VF-U1-B	3.6	1.5	118.8	23	35	480	4.4
CT_#1_25_2	VF-U1-B	3.8	1.6	277.9	10	31	600	3.1
CT_#1_M_25_1	VF-U1-Metal	3.7	1.9	7.2	-	15	440	2.0
CT_#6IV_15_1	VF-U2-A	3.97 ^{*1}	1.6	180.9	24	31	75	24.8
		0.41 ^{*1}	1.8					
CT_#6IV_25_1	VF-U2-A	3.94 ^{*1}	1.6	100.8	12	15	150	6.0
		0.42 ^{*1}	1.8					
CT_#6IV_15_2	VF-U2-C	-	-	36.8	25	(28) ^{*2}	390	(4.3) ^{*2}
CT_#6IV_25_2	VF-U2-D	3.8	1.8	102.6	5	6	420	0.9
CT_#8EV_15_1	VF-U3-A	3.9	1.7	35.2	22	33	420	4.7
CT_#8EV_25_1	VF-U3-A	4.1	1.6	84.6	12	31	420	5.0
CT_#8EV_15_2	VF-U3-B	-	-	42.4	13	32	300	6.4
CT_#8EV_25_2	VF-U3-C	4.4	1.7	88	(33) ^{*2}	-	60	(33) ^{*2}
					-		80	
CT_#8EV_M_15_1	VF-U3-Metal	-	-	2.3	-	4	900	0.3
CT_#8EV_M_25_1	VF-U3-Metal	-	-	2.8	-	6	480	0.8
CT_#8EV_M_25_2	VF-U3-Metal	3.7	1.8	13.1	-	5	840	0.4

*1：粒径分布はBimodal

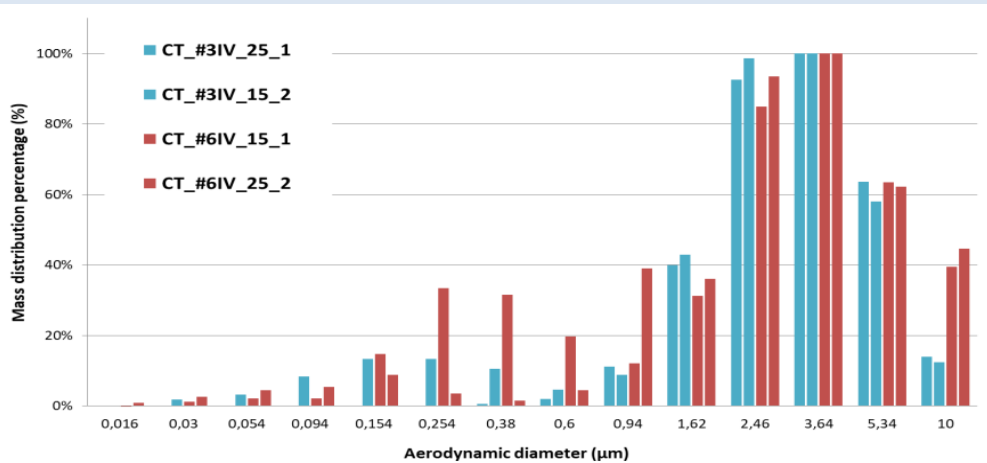
*2：カッコ書き数値は参考値（ブロック破損のため）

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

4) 機械切削試験結果

2021年度成果（模擬燃料デブリの機械切削試験結果：Hf-、U-模擬燃料デブリの粒径分布比較）

In-Vessel
samples

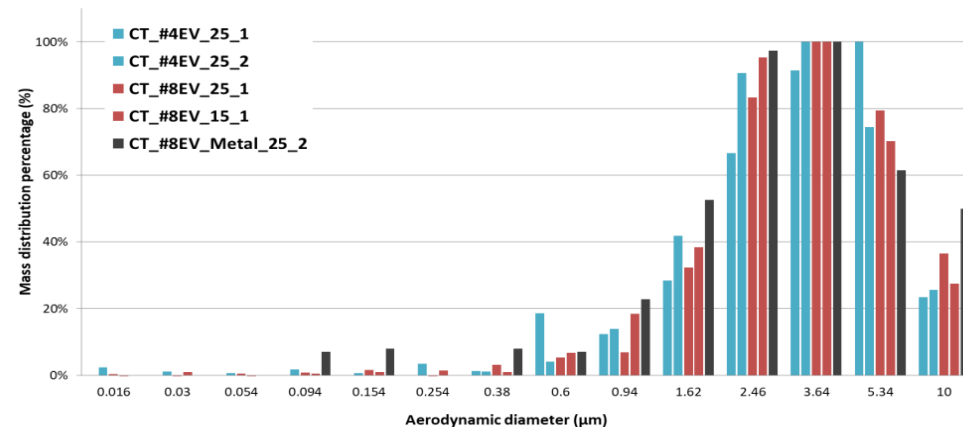


- Hf、Uとも粒径分布の全体形状はおおむね類似。
- 対数正規分布関数のフィッティングの結果、中央径は3.7 ~ 4.4 μm程度。

- In-Vessel試料ではHf、Uともにバイモーダルな粒径分布を確認(0.42 / 3.77 μm)

- 発生する粒径は工具径(15 mm、25mm)や試料の性状(ポーラス度合い・化学的性質)にはほとんど依存しない。

Ex-Vessel
samples

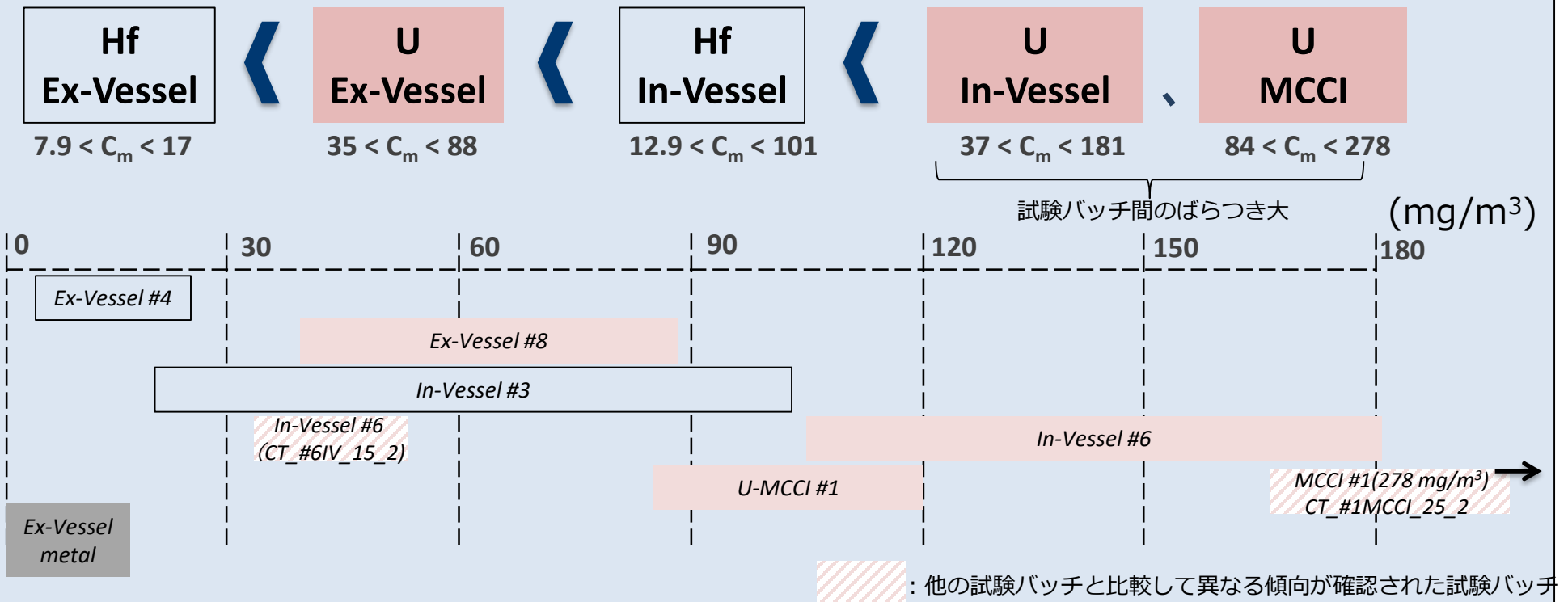


(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

4) 機械切削試験結果

2021年度成果（模擬燃料デブリの機械切削試験結果：エアロゾル濃度の比較）

Aerosol Mass Concentration ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)



- ・ 機械的切断試験で生成するエアロゾル濃度は加熱試験($100\sim 4700\text{mg}/\text{m}^3$)と比較して少ない。
- ・ UO_2 模擬燃料デブリの方が HfO_2 模擬燃料デブリよりもエアロゾル濃度が高い傾向にある。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

4) 機械切削試験結果

機械切削の形状、放出等に関する結果のまとめ表

	種類の違い (In-Vessel、Ex-Vessel、MCCI)	U含有／Hf含有模擬燃料デブリの比較
形状	典型的な機械的加工によって生じた幾何学的直径約3～4[μm]の粒子の形状を示している。	同左
粒径	切削された粒子の空気動学的質量中央径は、試料の性質（多孔性や化学組成）には依存せず、ほぼ、3.6[μm]～4.2[μm]の範囲。	同左
数密度・質量濃度	Ex-Vessel試料の粒子質量濃度は、Hf含有およびU含有試料ともにIn-Vessel試料で得られた質量濃度よりも低い傾向を示した。	Hf含有試料の切削試験で得られた粒子数密度は、U含有試料よりも低い傾向。 U含有In-Vessel試料での測定のばらつきが大きいものの、U含有試料はHf含有試料より質量濃度が高いと言える。
切削面積あたりの粒子質量濃度	Ex-Vessel試料の切削面積あたりの粒子質量濃度は、In-Vessel試料やMCCI試料よりも低い。 なお、Ex-Vessel (Metal)試料は切削が困難であったが、その切削時に発生するエアロゾルの切削面積あたりの粒子質量濃度は、Ex-Vessel酸化物試料やIn-Vessel試料と同程度であった。	切削面積あたりの粒子質量濃度は、試験したすべての試料で大きな違いはなく（ただし、U含有Ex-Vessel試料の粒子質量濃度が105.8 [$\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$]に達した例を除く）、その範囲は1～15 [$\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$]であった。その中でU含有試料とHf含有試料を比較すると、U含有試料はHf含有試料より大きい傾向。
飛散率	In-Vessel試料の飛散率は、Ex-Vessel試料（酸化物）に比べて大きい。	In-Vessel試料、Ex-Vessel試料ともにほぼ同等の飛散率であった。
平均切削進行速度	切削工具の進行は多様であり、試験結果を明確に分類することは困難であった。これは主に試料の不均一性によるものであると考えられる。	同左

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

5) 加熱試験結果

加熱試験におけるHf含有模擬燃料デブリ試料の結果概要

Sample Number	Trial reference	試験温度範囲	空気動力学的質量中央径		Sample Number	試験温度範囲	粒子質量濃度 [mg.m ⁻³]
			Dg[μ m]	σ_{GSD}			
Sample #2 - MCCI模擬 (試料として原料粉混合物を使用)	HT_#2_Hf-EV_T1_1	[RT ;1800°C]	0.053	>0.54	Sample #2 - MCCI模擬 (試料として原料粉混合物を使用) HT_#2_Hf-EV	[RT ;1800°C]	-
	HT_#2_Hf-EV_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.067	>0.57		[1800°C ; 2300°C]	36.7
	HT_#2_Hf-EV_T3_2	[2300°C ; 2600°C]	0.424	>0.45		[2300°C ; 2600°C]	1173.9
Sample #3 - In-vessel	HT_#3_Hf-IV_T1_1	[RT ;1800°C]	0.167	>0.55	Sample #3 - In-vessel HT_#3_Hf-IV	[RT ;1800°C]	11.5
	HT_#3_Hf-IV_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.363	>0.49		[1800°C ; 2300°C]	255.3
	HT_#3_Hf-IV_T3_1	[2300°C ; 2600°C]	0.714	>0.72		[2300°C ; 2600°C]	2148.3
Sample #4 - Ex-vessel Oxide	HT_#4a_Hf-EV-OX_T1_3	[RT ;1800°C]	0.081	>0.57	Sample #4 - Ex-vessel Oxide HT_#4a_Hf-EV-OX	[RT ;1800°C]	4.1
	HT_#4a_Hf-EV-OX_T2_3	[1800°C ; 2300°C]	0.104	>0.37		[1800°C ; 2300°C]	75.4
	HT_#4a_Hf-EV-OX_T3_3	[2300°C ; 2600°C]	0.076 0.56	>0.56		[2300°C ; 2600°C]	410.9
Sample #4 - Ex-vessel Metal	HT_#4b_Hf-EV-MET_T1_1	[RT ;1800°C]	0.061	>0.59	Sample #4 - Ex-vessel Metal HT_#4b_Hf-EV-MET	[RT ;1800°C]	-
	HT_#4b_Hf-EV-MET_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.08	>0.37		[1800°C ; 2300°C]	14.9
	HT_#4b_Hf-EV-MET_T3_1	[2300°C ; 2600°C]	0.204	>0.55		[2300°C ; 2600°C]	110.5
Sample #3 - In-vessel (再現性確認用)	HT_#3_Hf-IV_T2_2	[1800°C ; 2300°C]	0.259	>0.60			
	HT_#3_Hf-IV_T3_2	[2300°C ; 2600°C]	0.448	>0.72			
Sample #4 - Ex-vessel Oxide (再現性確認用)	HT_#4a_Hf-EV-OX_T1_2	[RT ;1800°C]	0.063	>0.40			
	HT_#4a_Hf-EV-OX_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.109	>0.33			

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

5) 加熱試験結果

加熱試験におけるU含有模擬燃料デブリ試料の結果概要

Sample Number	Trial reference	試験温度範囲	空気動力学的質量 中央径		Sample Number	試験温度範囲	粒子質量濃度 [mg.m ⁻³]
			Dg[μ m]	σ_{GSD}			
Sample #1 - MCCI	HT_#1_U-MCCI_T1_1	[RT ;1800°C]	0.075	>0.49	Sample #1 - MCCI HT_#1_U-MCCI	[RT ;1800°C]	2,1
	HT_#1_U-MCCI_T1_2	[RT ;1800°C]	0.084	>0.52		[1800°C ; 2300°C]	113.3
	HT_#1_U-MCCI_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.252	>0.50		[2300°C ; 2600°C]	4704.7
	HT_#1_U-MCCI_T3_1	[2300°C ; 2600°C]	0.788	>0.43			
	HT_#1_U-MCCI_T3_2	[2300°C ; 2600°C]	0.825	>0.40			
Sample #5 - In-vessel	HT_#5_U-IV_T1_1	[RT ;1800°C]	0.117	>0.61	Sample #5 - In-vessel HT_#5_U-IV	[RT ;1800°C]	1.7
	HT_#5_U-IV_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.27	>0.59		[1800°C ; 2300°C]	57.3
	HT_#5_U-IV_T3_1	[2300°C ; 2600°C]	0.379	>0.72		[2300°C ; 2600°C]	755.7
	HT_#5_U-IV_T3_2	[2300°C ; 2600°C]	0.373	>0.72			
Sample #7a - Ex- vessel Oxide	HT_#7a_U-EV-OX_T1_1	[RT ;1800°C]	0.13	>0.32	Sample #7a - Ex- vessel Oxide HT_#7a_U-EV-OX	[RT ;1800°C]	2.5
	HT_#7a_U-EV-OX_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.118	>0.52		[1800°C ; 2300°C]	48.7
	HT_#7a_U-EV-OX_T3_1	[2300°C ; 2600°C]	0.188	>0.49		[2300°C ; 2600°C]	381.8
	HT_#7a_U-EV-OX_T3_2	[2300°C ; 2600°C]	0.221	>0.32			
Sample #7b - Ex- vessel Metal	HT_#7b_U-EV-MET_T1_1	[RT ;1800°C]	0.085	>0.57	Sample #7b - Ex- vessel Metal HT_#7b_U-EV-MET	[RT ;1800°C]	4
	HT_#7b_U-EV-MET_T2_1	[1800°C ; 2300°C]	0.11	>0.56		[1800°C ; 2300°C]	17.1
	HT_#7b_U-EV-MET_T3_1	[2300°C ; 2600°C]	0.213	>0.59		[2300°C ; 2600°C]	188

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

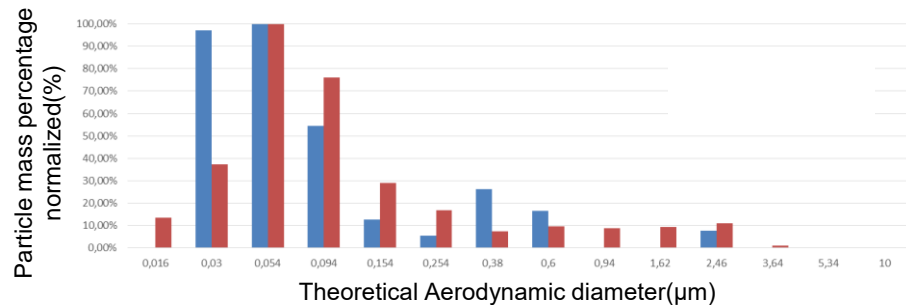
5) 加熱試験結果

2021年度進捗 (模擬燃料デブリの加熱試験結果:粒径比較)

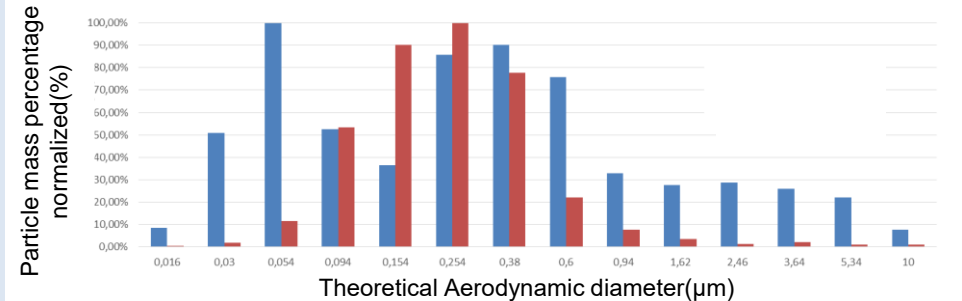
MCCI模擬燃料デブリの加熱試験(HT_#2_Hf-EV_T1~T3、HT_#1_U-MCCI_T1~T3)

※粒径は空気力学的質量中央径(MMAD)を記載

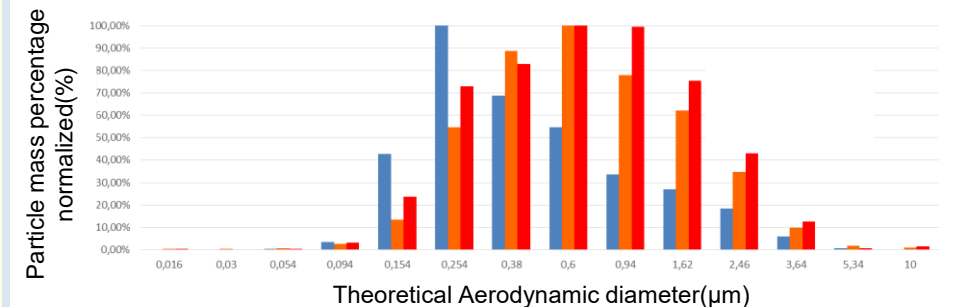
条件1 (1800℃)



条件2 (2300℃)



条件3 (2600℃)



条件1 (1800℃):

#2_Hf-EV: 単峰性分布(シングルモード)、粒径53nm

#1_U-MCCI: シングルモード、粒径75nm。

(わずかなサブモード、粒径350nm)

条件2 (2300℃):

#2_Hf-EV: バイモーダル、粒径 67nm、570nm

#1_U-MCCI: シングルモード、粒径252nm

条件3 (2600℃):

#2_Hf-EV: シングルモード、粒径424nm

#1_U-MCCI: シングルモード、粒径788nm

#2_Hf-EV

#1_U-MCCI

(2600℃では
再現性試験を実施)

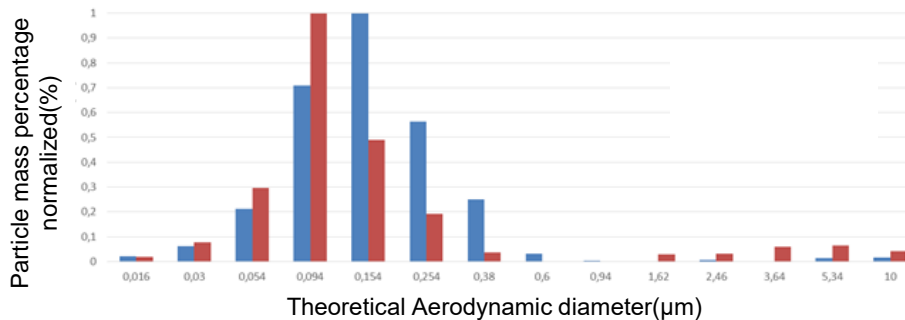
(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 5) 加熱試験結果

2021年度進捗 (模擬燃料デブリの加熱試験結果:粒径比較)

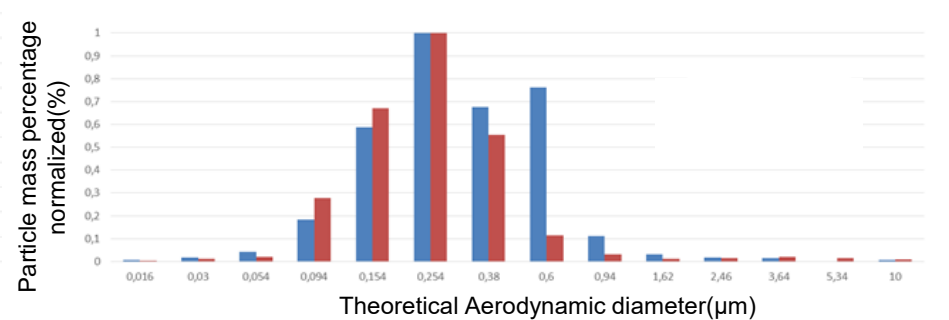
※粒径は空気力学的質量中央径(MMAD)を記載

In-vessel模擬燃料デブリの加熱試験(HT_#3_Hf-IV_T1~T3、HT_#5_U-IV_T1~T3)

条件1 (1800°C)



条件2 (2300°C)



条件1 (1800°C):

#3_Hf-IV : シングルモード、粒径167nm

#5_U-IV : シングルモード、粒径117nm

条件2 (2300°C):

#3_Hf-IV : シングルモード、粒径363nm

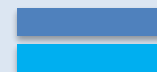
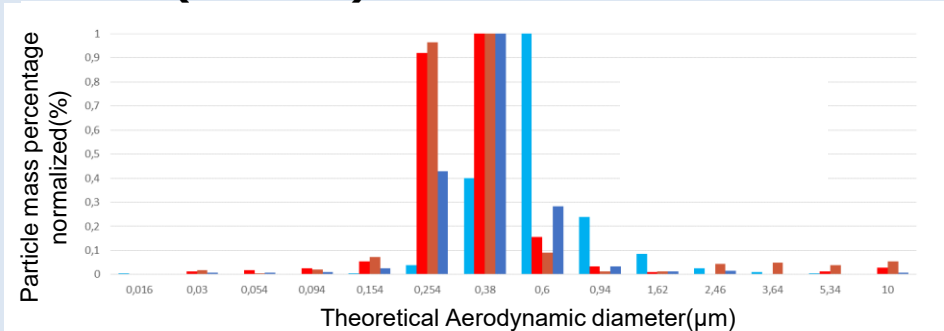
#5_U-IV : シングルモード、粒径270nm

条件3 (2600°C):

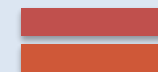
#3_Hf-IV : シングルモード、粒径448、714nm (2回試験)

#5_U-IV : シングルモード、粒径373、379nm (2回試験)

条件3 (2600°C)



#3_Hf-IV



#5_U-IV

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

5) 加熱試験結果

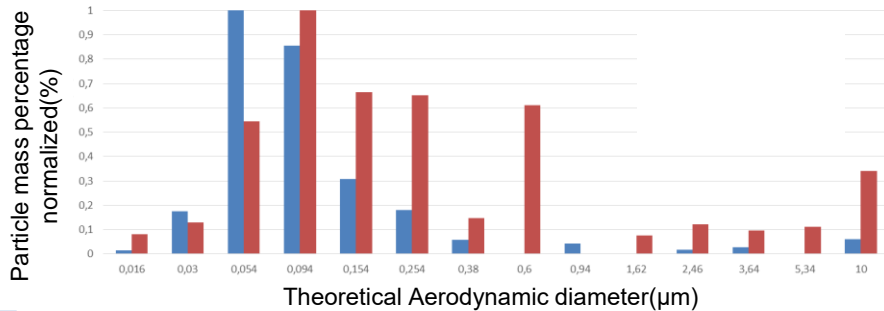
2021年度進捗（模擬燃料デブリの加熱試験結果:粒径比較）

Ex-Vessel模擬燃料デブリ（酸化物）の加熱試験

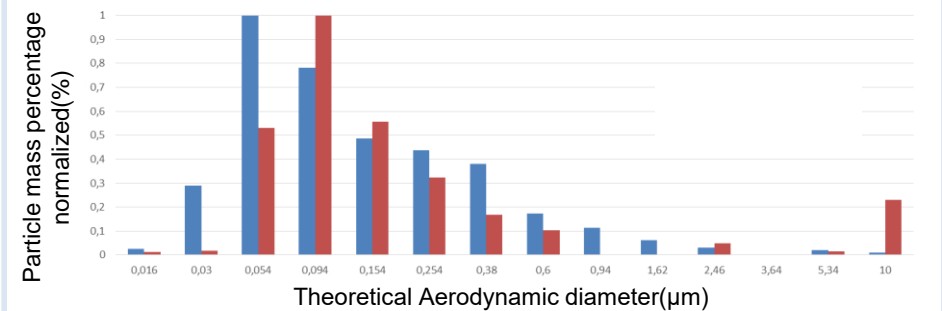
※粒径は空気力学的質量中央径(MMAD)を記載

(HT_#4a_Hf-EV-OX_T1~T3、HT_#7a_U-EV-OX_T1~T3)

条件1 (1800℃)



条件2 (2300℃)



条件1 (1800℃):

#4a_Hf-EV-OX : シングルモード、粒径81 nm
 #7a_U-EV-OX : シングルモード、粒径130nm
 (わずかなサブモード、粒径1000nm付近)

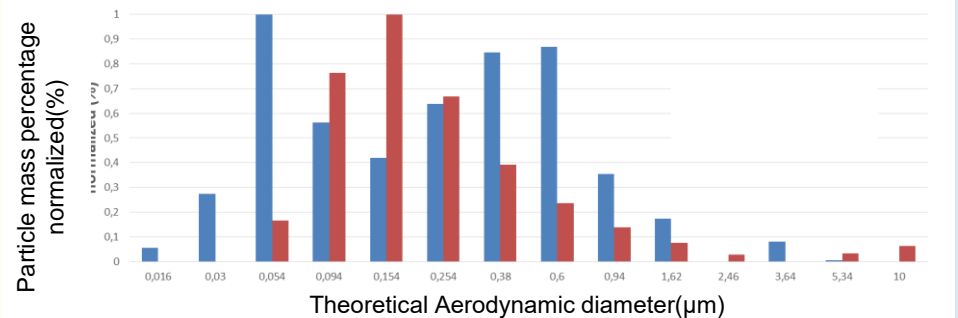
条件2 (2300℃):

#4a_Hf-EV-OX : シングルモード、粒径104nm
 #7a_U-EV-OX : シングルモード、粒径118nm

条件3 (2600℃):

#4a_Hf-EV-OX : バイモーダル、粒径76nm、560nm
 #7a_U-EV-OX : シングルモード、粒径188nm

条件3 (2600℃)



#4a_Hf-EV-OX

#7a_U-EV-OX

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 5) 加熱試験結果

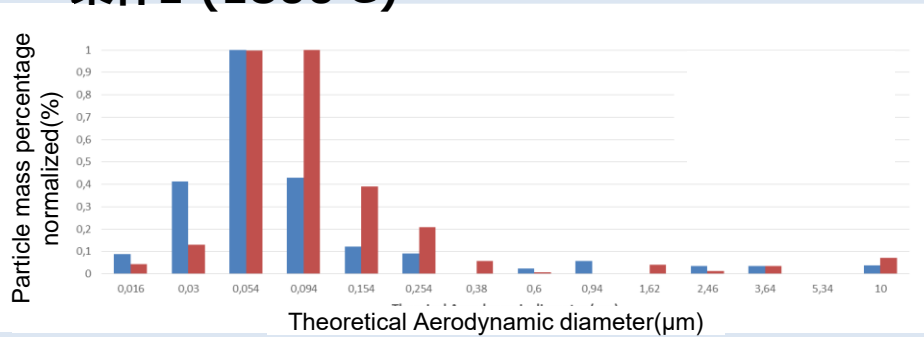
2021年度進捗（模擬燃料デブリの加熱試験結果:粒径比較）

Ex-vessel模擬燃料デブリ（金属相）の加熱試験

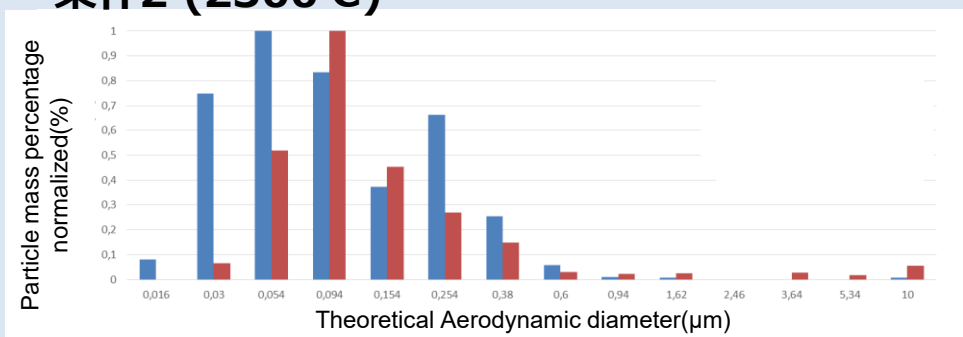
※粒径は空気力学的質量中央径(MMAD)を記載

(HT_#4b_Hf-EV-MET_T1~T3、HT_#7b_U-EV-MET_T1~T3)

条件1 (1800℃)



条件2 (2300℃)



条件1 (1800℃):

#4b_Hf-EV-MET: シングルモード、粒径61 nm

#7b_U-EV-MET: シングルモード、粒径85 nm

条件2 (2300℃):

#4b_Hf-EV-MET: シングルモード、粒径80 nm

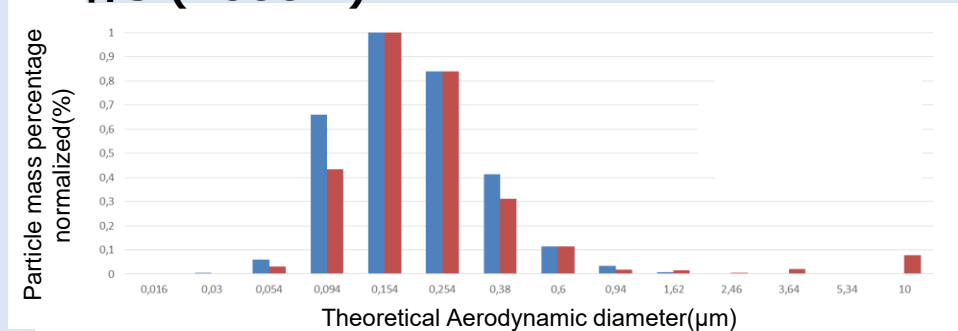
#7b_U-EV-MET: シングルモード、粒径110 nm

条件3 (2600℃):

#4b_Hf-EV-MET: シングルモード、粒径204 nm

#7b_U-EV-MET: シングルモード、粒径213 nm

条件3 (2600℃)



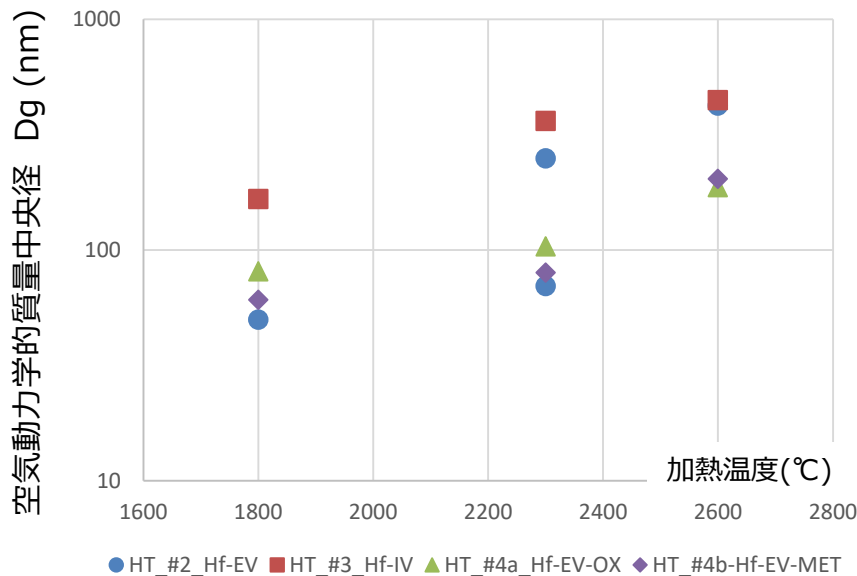
#4b_Hf-EV-MET #7b_U-EV-MET

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

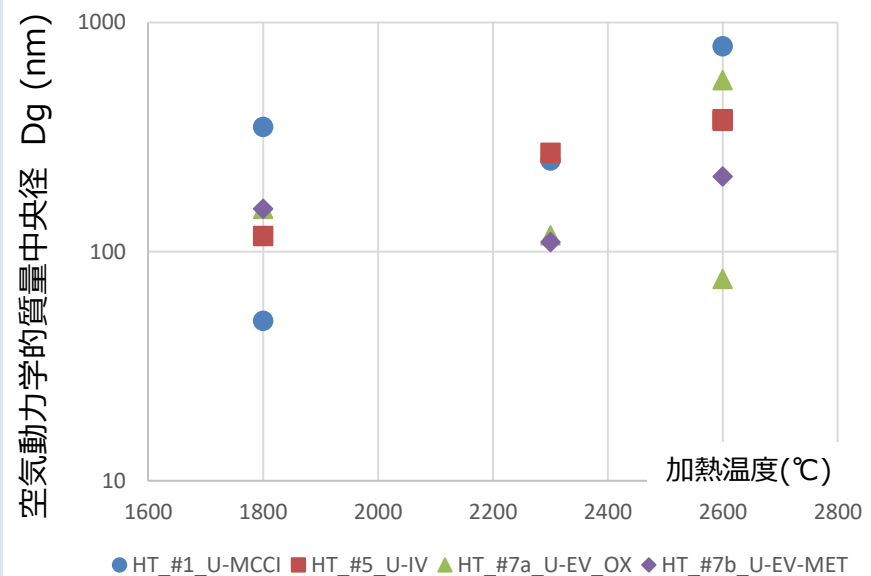
5) 加熱試験結果

2021年度進捗（模擬燃料デブリの加熱試験結果:粒径の温度依存性）

HfO₂ 模擬燃料デブリの加熱試験



UO₂ 模擬燃料デブリの加熱試験

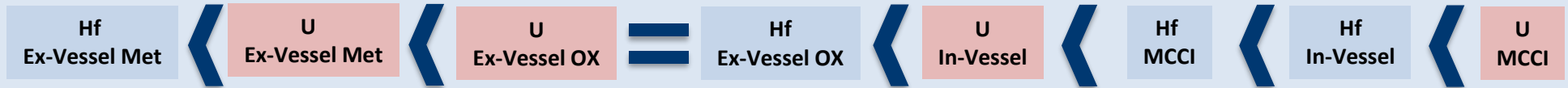


ほとんどのサンプルで、空気動力学的質量中央径は温度上昇に伴い増加。
(例外：HT_#7a_EV-OX)

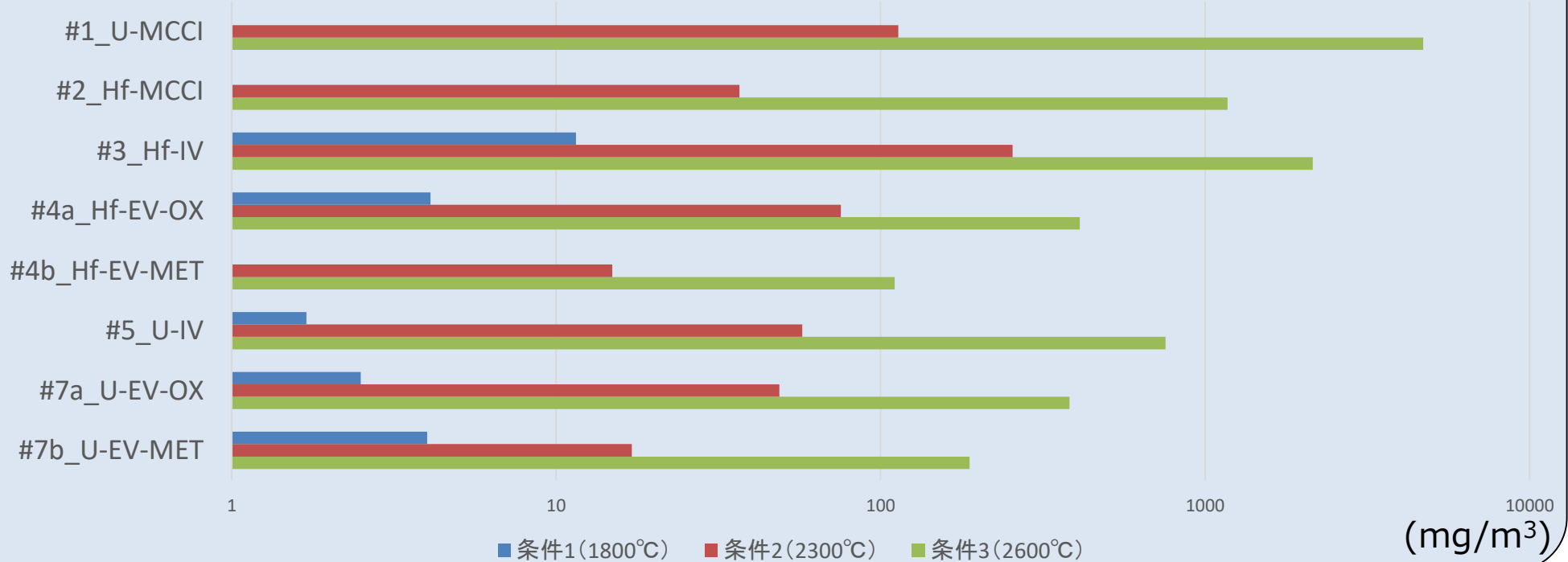
(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
 5) 加熱試験結果

2021年度進捗 (模擬燃料デブリの加熱試験結果:エアロゾル濃度の比較)

条件3 (2600°C) でのエアロゾル濃度で比較



条件 1 ~ 3 で生成するエアロゾル濃度比較(PEGASORにて測定)



(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

5) 加熱試験結果

加熱試験の形状、放出等に関する結果のまとめ表

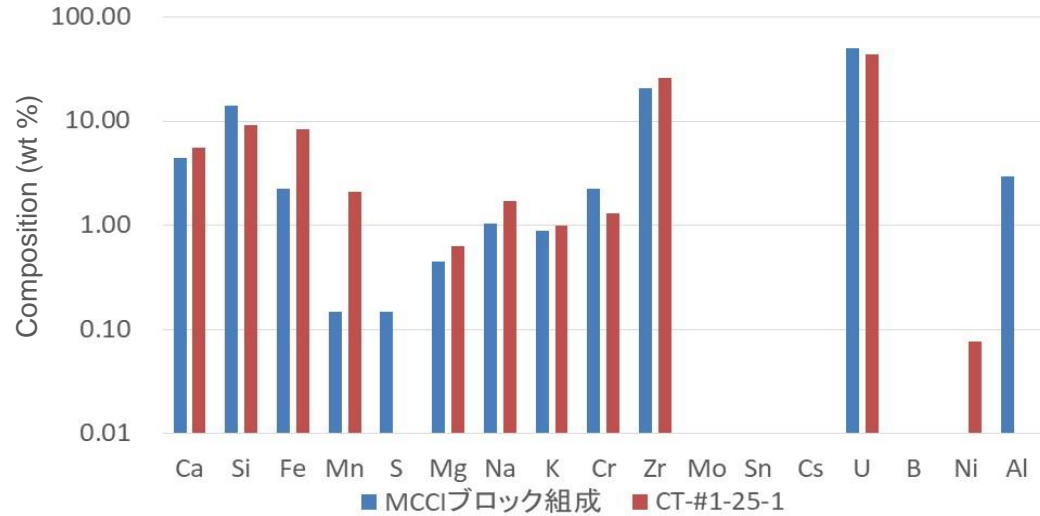
	種類の違い (In-Vessel、Ex-Vessel、MCCI)	U含有/Hf含有模擬燃料デブリの比較	VITAE ^{※1} 加熱試験 / LASER ^{※2} 切断試験の比較
形状	類似したフラクタル形態のサブミクロン粒子を生成する。	同左	同左
粒径	空気力学的質量中央径 (Dg) は、試験温度の上昇とともに増加する傾向。In-Vessel試料はEx-Vessel試料よりも全体的に大きな粒子を生成する傾向。	空気力学的質量中央径 (Dg) は、試験温度の上昇とともに増加する傾向。Ex-VesselおよびMCCIのU含有試料は、同種のHf含有試料と比較して、大きい。In-VesselのU含有試料は、Hf含有試料よりも小さい。	VITAE加熱試験で発生する粒子の大きさは、LASER切断で発生する粒子とほぼ同様であるが、幾分大きい。
数密度・質量濃度	粒子数密度と質量濃度は、In-Vessel試料、Ex-Vessel試料に係わらず、VITAE炉の温度とともに増大。Ex-Vessel試料は、他の試料に比べ数密度・質量濃度ともに低い。	In-VesselおよびEx-VesselのU含有試料では、同種のHf含有試料と比較して、粒子数密度および質量濃度はほぼ同等かあるいは低い。U-MCCIのU含有試料の質量濃度は、Hf含有試料の最大5倍であった。この増加の要因として、両者の試料調製の相違、MCCIのU含有試料試験時のタングステン (サセプタの材料) による汚染等が考えられる。	VITAE加熱試験とLASER切断試験では、微粒子発生原理は同様であるものの、気体流量等の条件が大きく異なるため、直接の比較は困難。しかし、左記のU/Hfの比較から、LASER切断試験におけるU含有試料から生じる微粒子の数密度および質量濃度はHf試料に比べ、ほぼ同等かあるいは低いと推定される。

※1: 本試験。仏国CEAカダラッシュ研究所のVITAE施設を用いて実施。サセプタを高周波誘導加熱で加熱し、試料を間接的に加熱。

※2: 仏国CEAサクレー研究所のDELIA施設を用いて行われたHf模擬燃料デブリのレーザー切断試験 (E. Porcheron, et.al., J. Nucl. Sci. Technol. (2020))。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

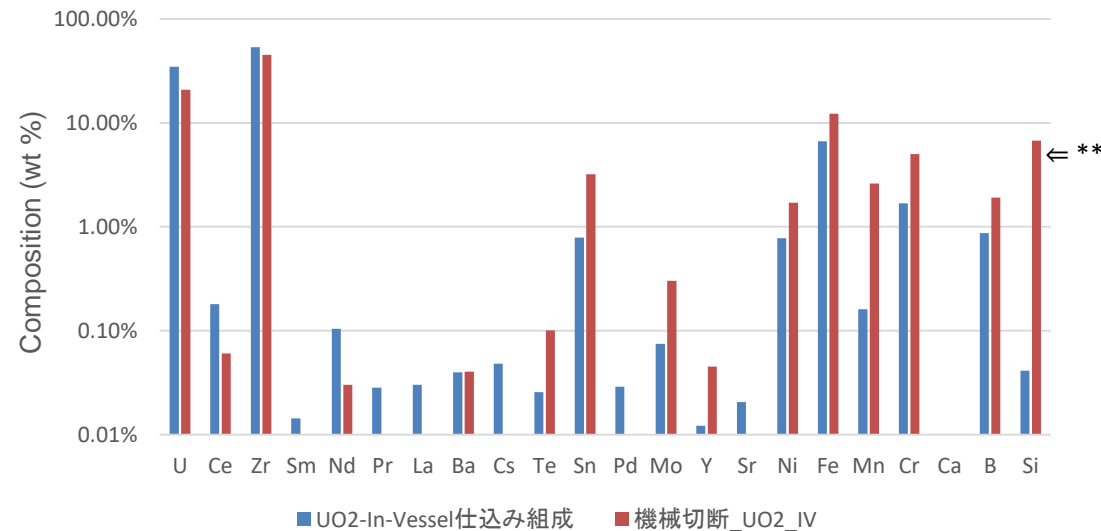
6) 粒子分析結果(切削試験) i) 組成分析結果 (1/2)



MCCI oxidic sample #1

- 微粒子の主な成分はU(44%)、Zr(26%)であり、ブロック組成*とほぼ一致している。
- 一方、Mn、Feはブロック組成を上回る。(なお、Ni、Alは比較できる分析値が得られていない。)

* L. Brissonneau et.al. Journal of Nuclear Materials 528 (2020) 151860

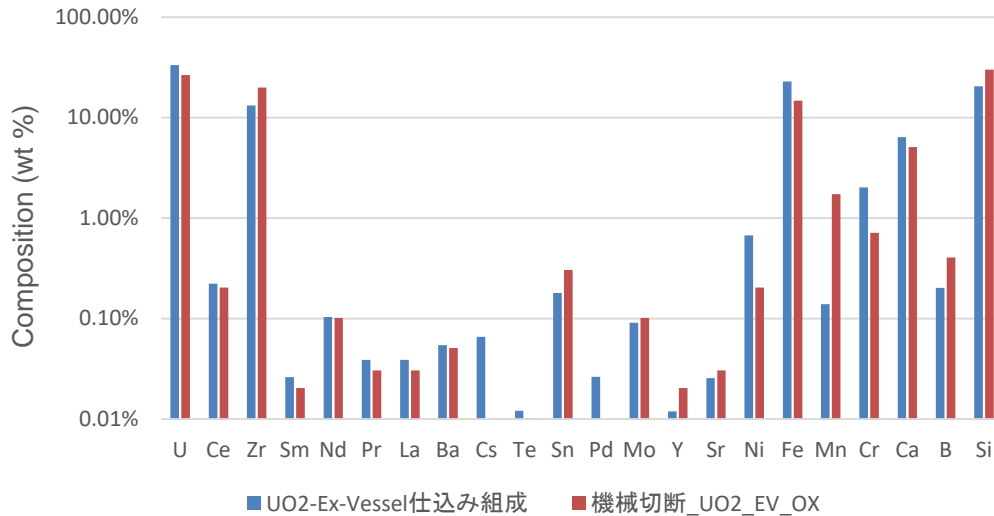


In-vessel sample #6

- Zr、Uが主要な元素であり、Feが続く。これらの元素は仕込み組成とほぼ一致している。
- Si^{**}、Cr、Sn、B、Niは数%の放出があり、それぞれ仕込み組成を上回っている。
- Te、Yは仕込み組成では微量であるが、微粒子中では仕込み組成を上回る。

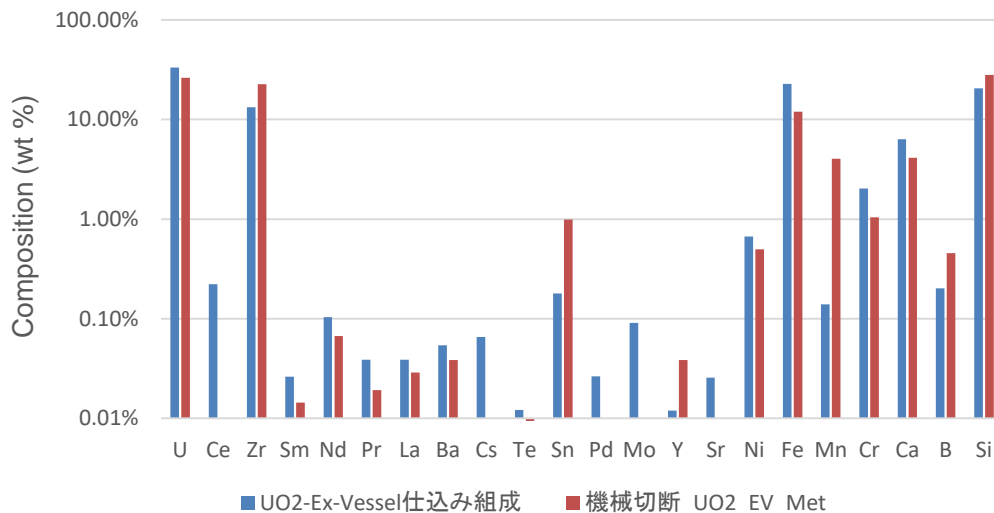
** : 微粒子捕集用グリース中のSiの影響を受けた可能性がある。P2-100参照。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 6) 粒子分析結果(切削試験) i) 組成分析結果 (2/2)



Ex-vessel oxidic sample #8

- 主要な元素はSi (約30%)、U (約27%) であり、続いてZr、Fe (15~20%程度) が続く。これらの元素は仕込み組成とほぼ一致している。



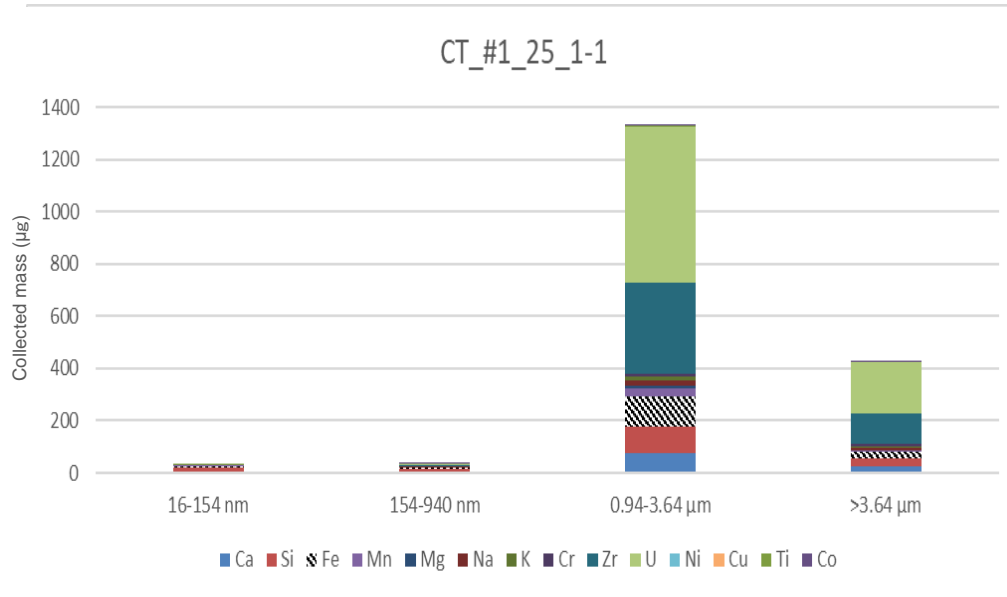
Ex-vessel metallic sample #8M

- Si、Zr、U (23~28%) が主要な元素であり、Fe (12%) が続く。これらは、仕込み組成とほぼ一致しているが、模擬燃料デブリから選択して試料として取り出した金属相ブロック (93%Fe、5%Ni、2%Crのカマサイト単相であり、他の物質はXRDで不検出) の組成とは異なる。

⇒P95表右列参照

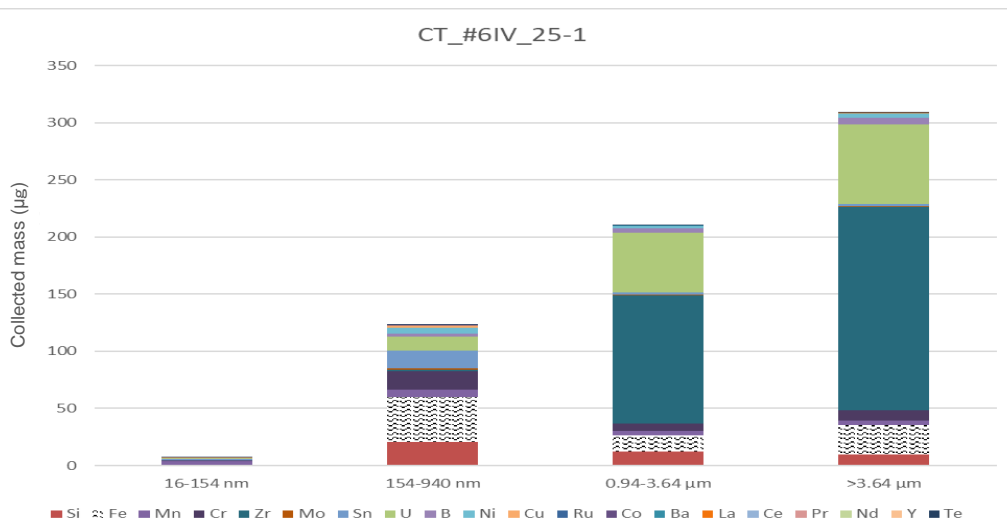
(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

6) 粒子分析結果(切削試験) ii) 粒径領域による比較 (1/2)



MCCI oxidic sample #1

- 0.94 µm以上の微粒子領域が微粒子のほとんどを占め、その中でも0.94 ~ 3.64 µmの領域が主体的である。径の大きい2つの領域はほとんど同様の組成である。



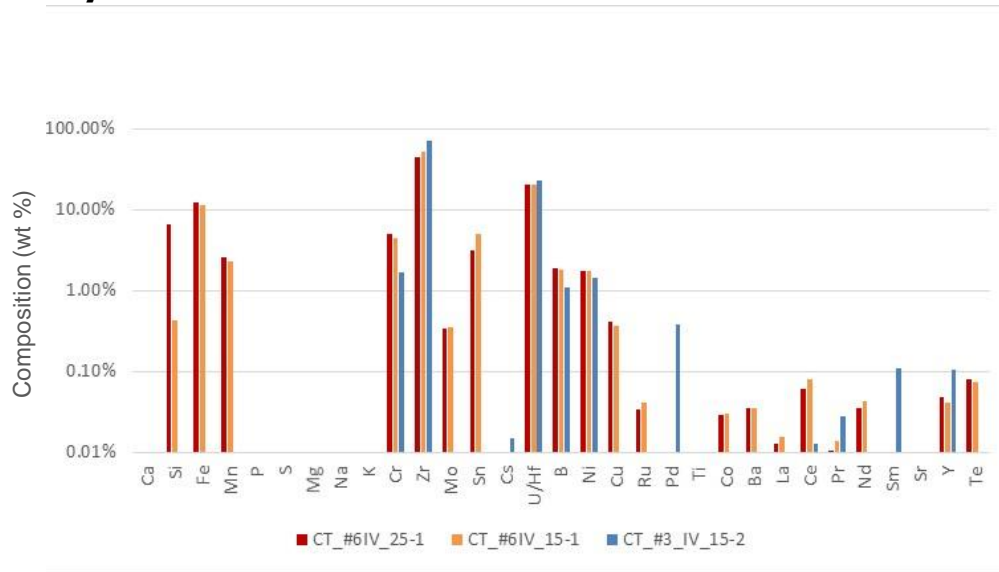
In-vessel sample #6

- 捕集された質量が最も多いのは最大粒径領域であり、ここではZr, Uの存在量が多く、Feが続く。
- 次に大きい粒径領域は質量も2番目に多く、組成は最大の領域とほぼ同一。
- 3番目の粒径領域では上記と異なり、Zr, Uは少なく、Feが主体であった。この領域の微粒子は茶色を呈しており、切削中に火花が生じていたことから、Feの酸化が示唆される。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

6) 粒子分析結果(切削試験) iii) U含有試料とHf含有試料の比較

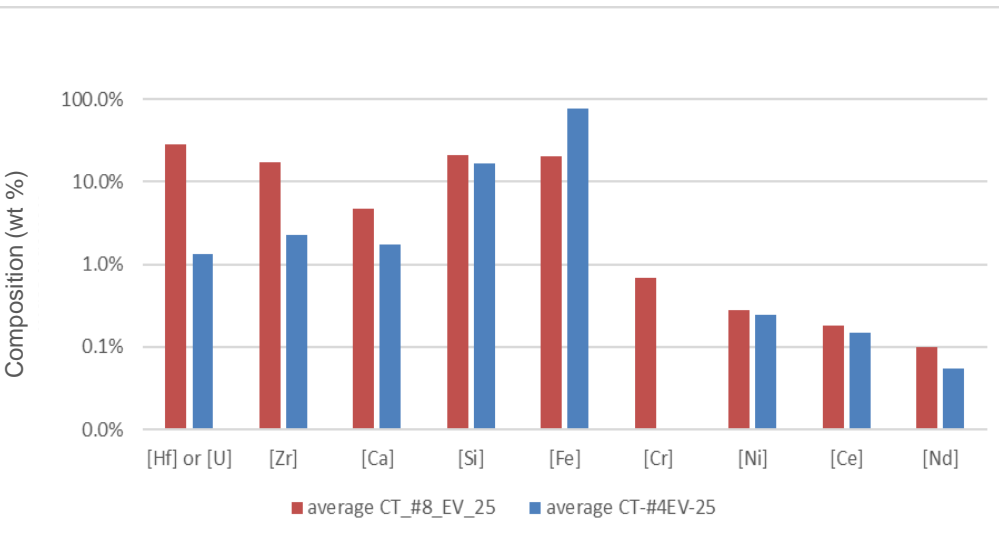
(1/2)



In-vessel sample #6

- 主要な元素であるZrとU/Hfについてはほぼ一致している。
- しかしながらFe、Si*、Mn、SnについてはHf試料においては有意な放出はなく、U試料のみで検出された。

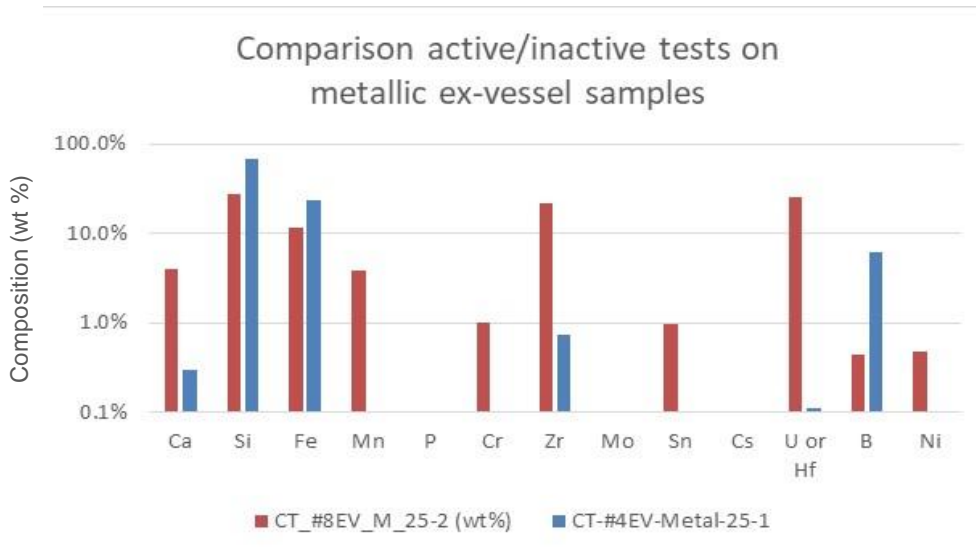
* : 微粒子捕集用グリース中のSiの影響を受けた可能性がある。P101参照。



Ex-vessel oxidic sample #8

- 両者とも2試料の平均値。
- FeはHf試料において77%を占めるが、U試料では20%に低下する。Uは30%に達するがHfは1%にとどまる。
- Hf試料ではFeが微粒子のほとんどを占めた。一方、U試料ではU-Zr-Oやシリケートが微粒子を占めた。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
 6) 粒子分析結果(切削試験) iii) U含有試料とHf含有試料の比較
 (2/2)

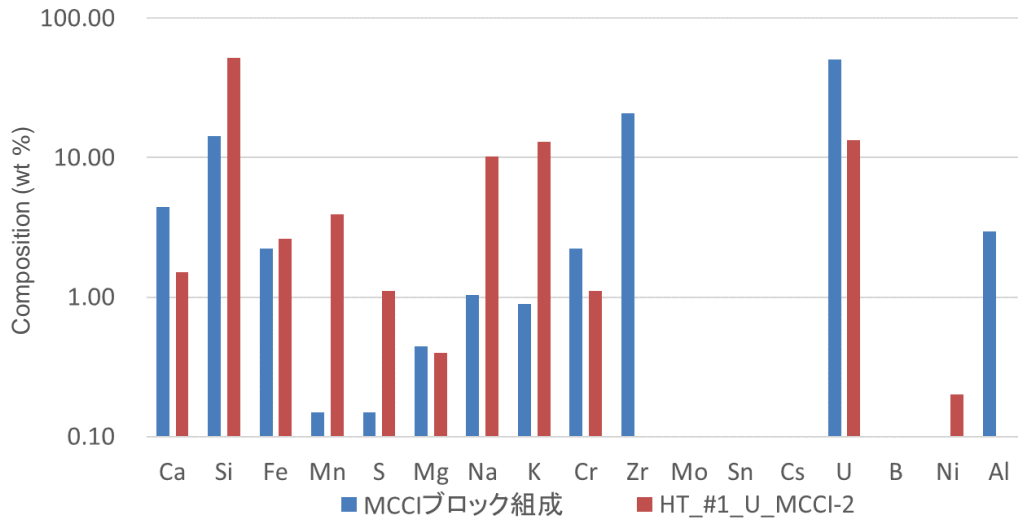


Ex-vessel metallic sample #8M

- Hf試料の分析では全てのインパクトプレートと一緒に溶解しており、微量元素の分析感度が低い。
- Hf試料ではSiが69 %で最も多いが、U試料では27%である。同様にFeは24%から12%へ、Bは6%から0.4%へ低下している。
- 逆に、U、Zrは（試料ブロック中では介在物中に酸化物として存在するにすぎないが）両者の合計値はHf試料では1%以下だがU試料では48%と大きい。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

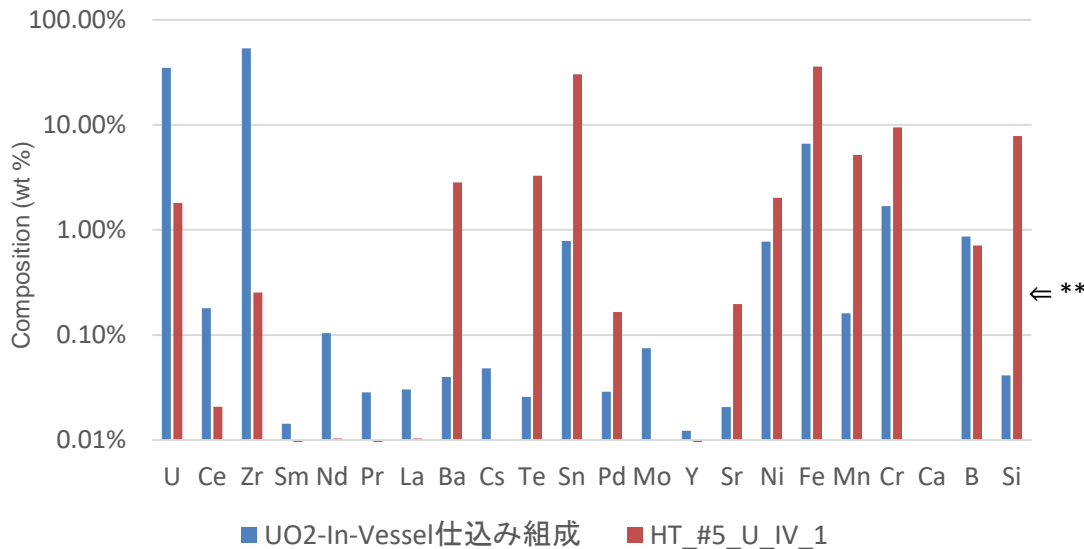
7) 粒子分析結果(加熱試験) i) 組成分析結果 (1/2)



MCCI oxidic sample #1

- 主要な元素はSi(52%)であり、捕集した微粒子のほぼ1/2を占める。
- 続いて、U(13%)、K(13%)、Na(10%) (K、Naはコンクリートの成分)、Mn(4%) (ステンレス鋼の成分) が多い。
- ブロック組成*に比べ、Uは約1/4、Zrは1/200。一方、Siは4倍、Mnは20倍多い。

* L. Brissonneau et.al. Journal of Nuclear Materials 528 (2020) 151860

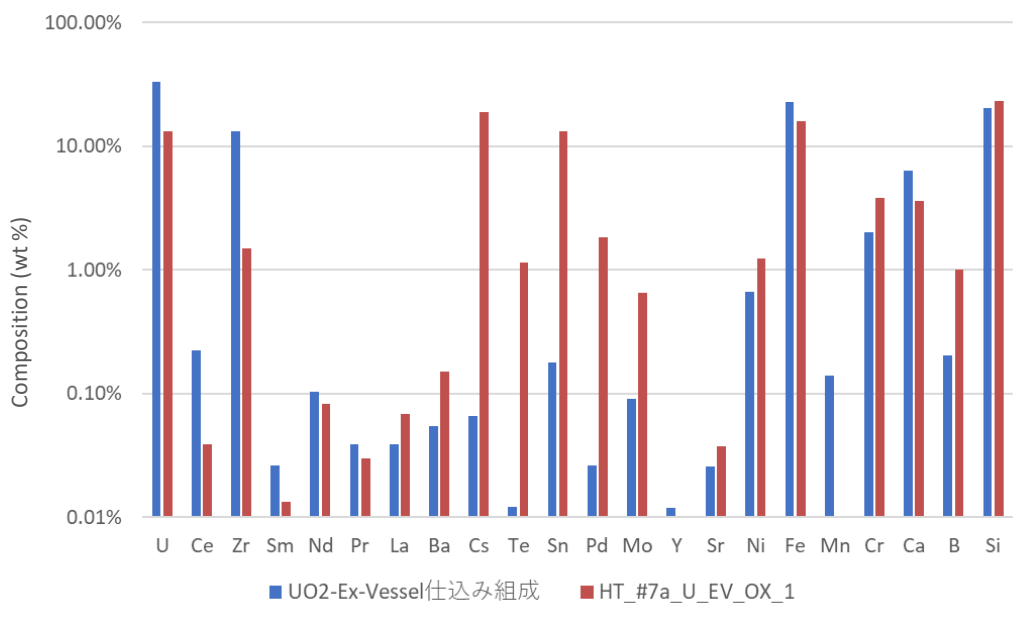


In-vessel sample #5

- 微粒子の主要な元素としては、Fe(35%)とSn(30%)、続いてCr、Siが続き、これらの元素はFeを除き、仕込み組成よりかなり多い。
- 一方、Uは1.8%、Zrは0.3%であり、仕込み組成より低い (Uで約1/20)。
- FPは仕込み組成では微量であるが、TeとBaについては微粒子中で相対的に大きい。

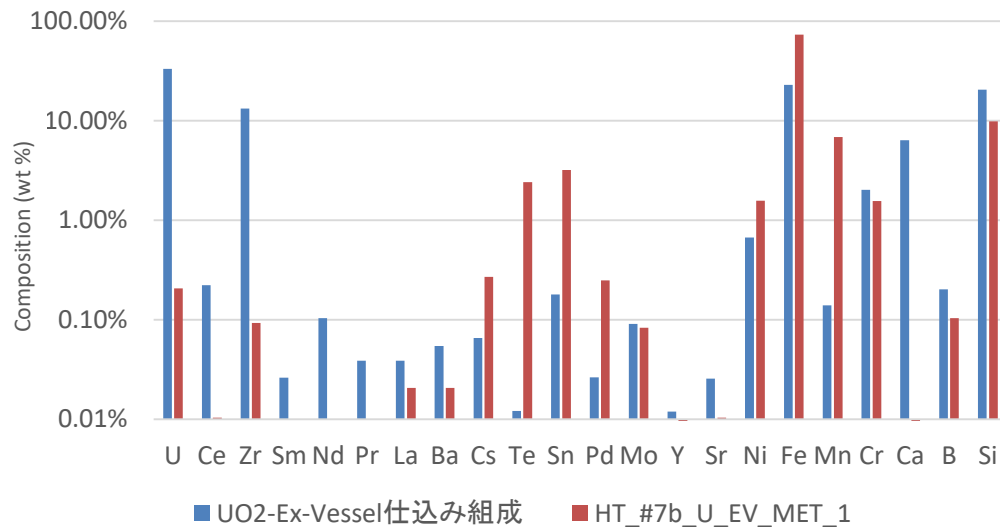
** : 微粒子捕集用グリース中のSiの影響を受けた可能性がある。P101参照。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 7) 粒子分析結果(加熱試験) i) 組成分析結果 (2/2)



Ex-vessel oxidic sample #7a

- 微粒子の主要な元素としては、Si(23%)、Cs(19%)、Fe(16%)であり、続いてSnとUが続く。Uは仕込み組成の約1/3である。
- FPも多くの元素が検出された。Cs、Teは仕込み組成では微量であるが、エアロゾル中では相対的に大きい。

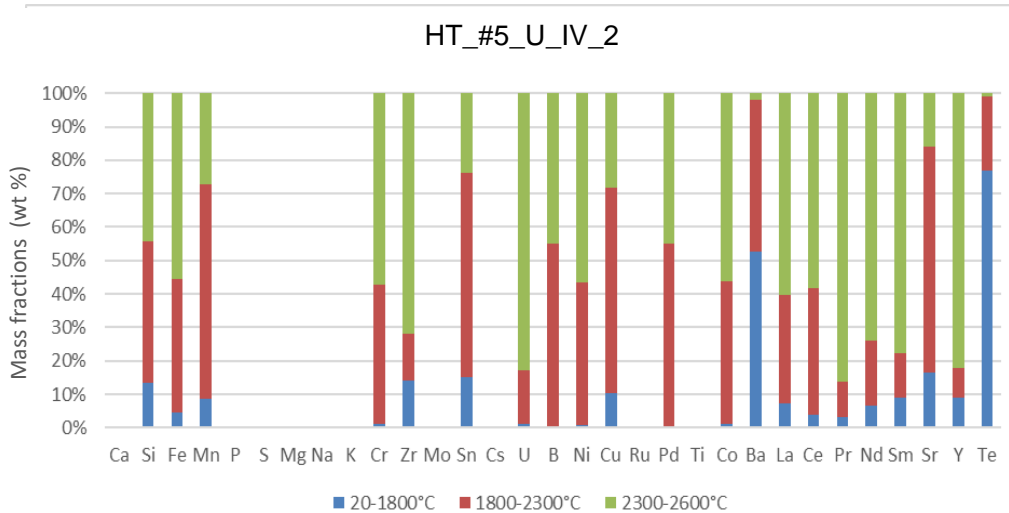
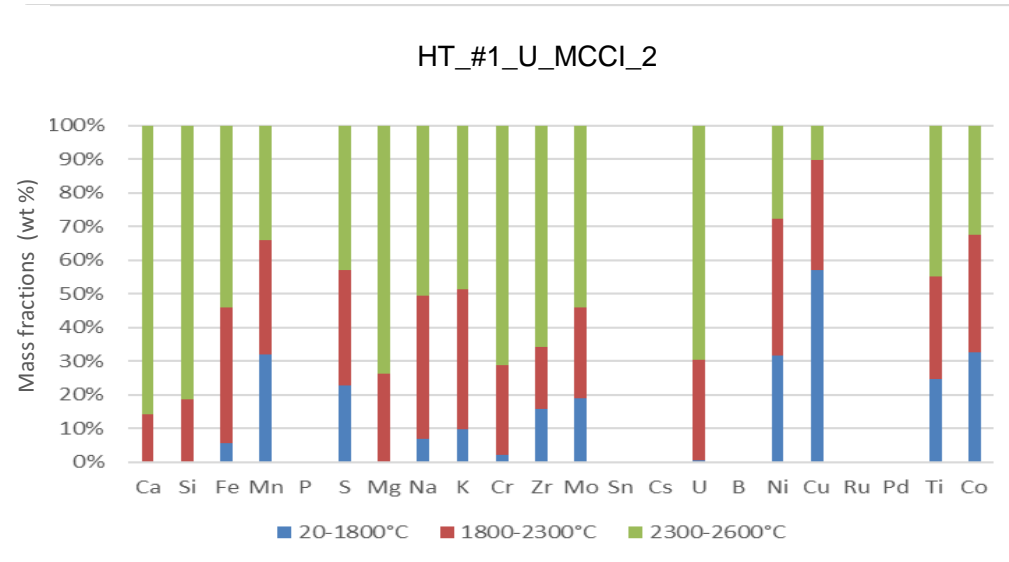


Ex-vessel metallic sample #7b

- 主な検出元素はFe (約73%)、Si(約10 wt%)であり、Mn、Sn、Te、Crも数%検出された。Mn、Sn、Teは仕込み組成では微量であるが、エアロゾル中では有意に大きい。
- Uは僅か(0.21%)であり、仕込み組成の1/100以下であった。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

7) 粒子分析結果(加熱試験) ii) 試験温度領域による比較 (1/2)



MCCI oxidic sample #1

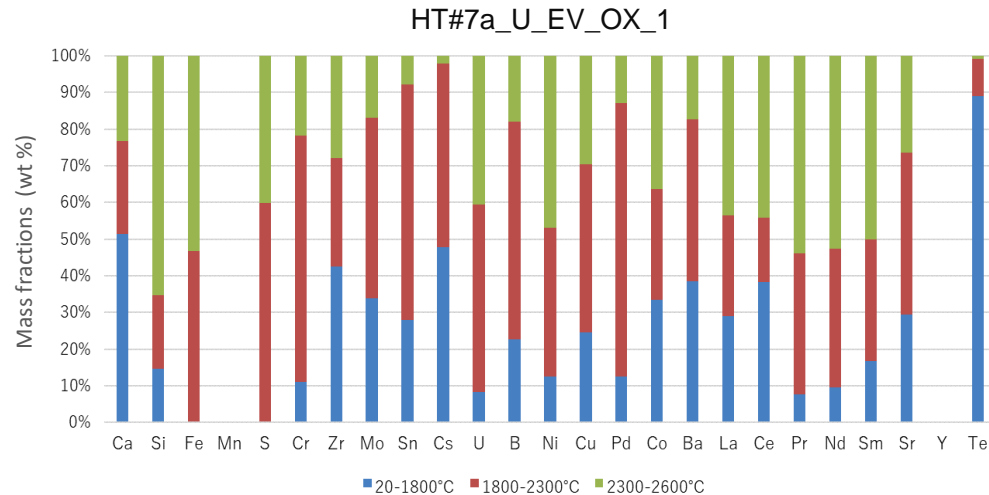
- T1 (1800 °C以下) で最も多く検出された元素はKとMnであり、T3 (2300-2600 °C) ではSi、U、Ca、Zrが多く検出された。
- 元素ごとの比較では、CuはT1で多く放出され、Ca、Si、UはT2 (1800-2300d °C) 及びT3でのみ放出される。Mn、Ni、Tiは3温度領域とも放出された。

In-vessel sample #5

- 元素ごとの比較では、Te、BaはT1で多く放出され、U、Zr、Pr、Nd、Sm、Yは主にT3で放出される。B、Sr、Sn、Mnは3温度領域とも放出された。

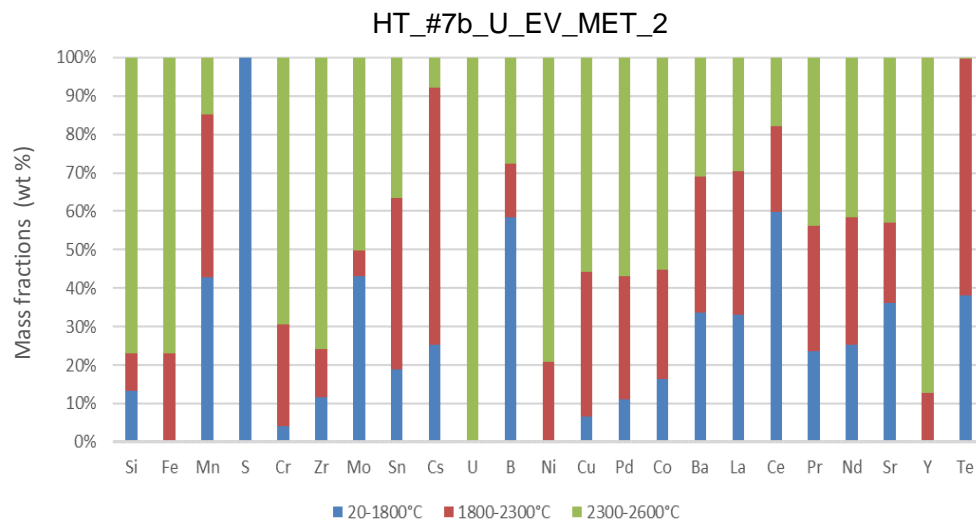
* : 微粒子捕集用グリース中のSiの影響を受けた可能性がある。P101参照。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 7) 粒子分析結果(加熱試験) ii) 試験温度領域による比較 (2/2)



Ex-vessel oxidic sample #7a

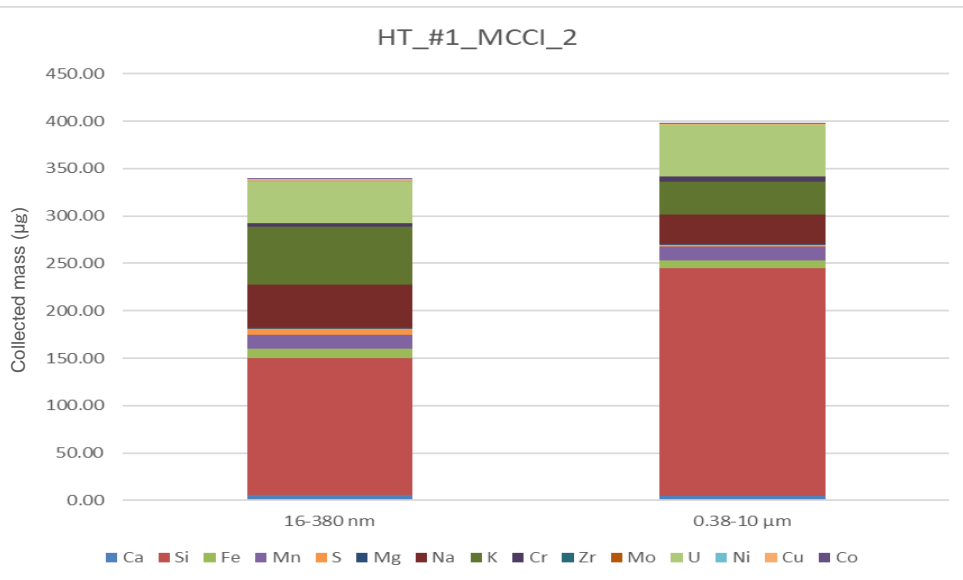
- 元素ごとの比較では、TeはT1でほとんど放出され、S、Cr、Pdは主にT2で、U、Fe、Niは主にT2とT3で、Si、Pr、SmはT3で放出される。



Ex-vessel metallic sample #7b

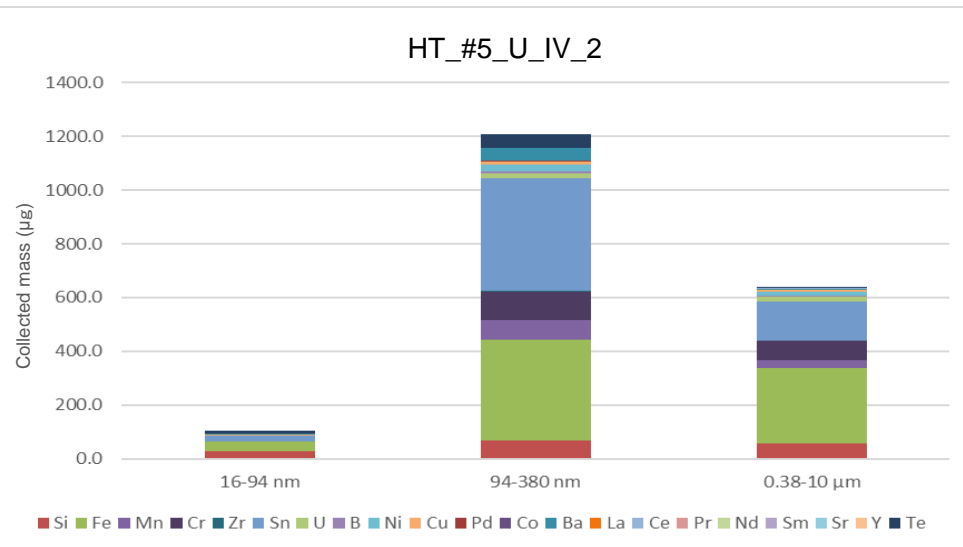
- 元素ごとの比較では、SはT1ですべて放出され、B、CeもT1での放出が多い。Cs、Teは主としてT2で放出される。Si、Fe、Cr、Zr、Ni、Yは主にT3で、UはT3でのみ放出された。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 7) 粒子分析結果(加熱試験) iii) 粒径領域による比較* (1/2)



MCCI oxidic sample #1

- 捕集した微粒子の粒径を2つの領域に分け、それぞれの組成を比較した。
- 2つの領域の組成はほぼ一致している。
- 細かく見ると、大粒径領域ではSiの割合が大きく、Kの割合が少ない。



In-vessel sample #5

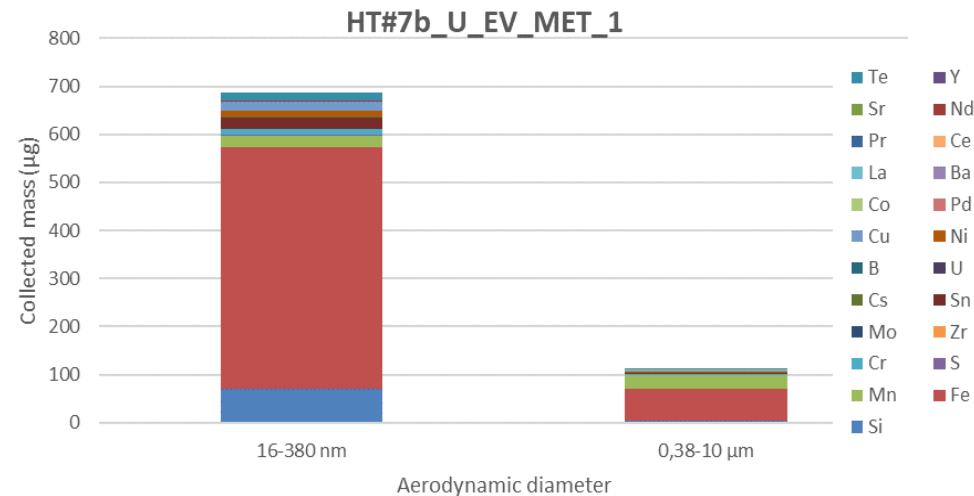
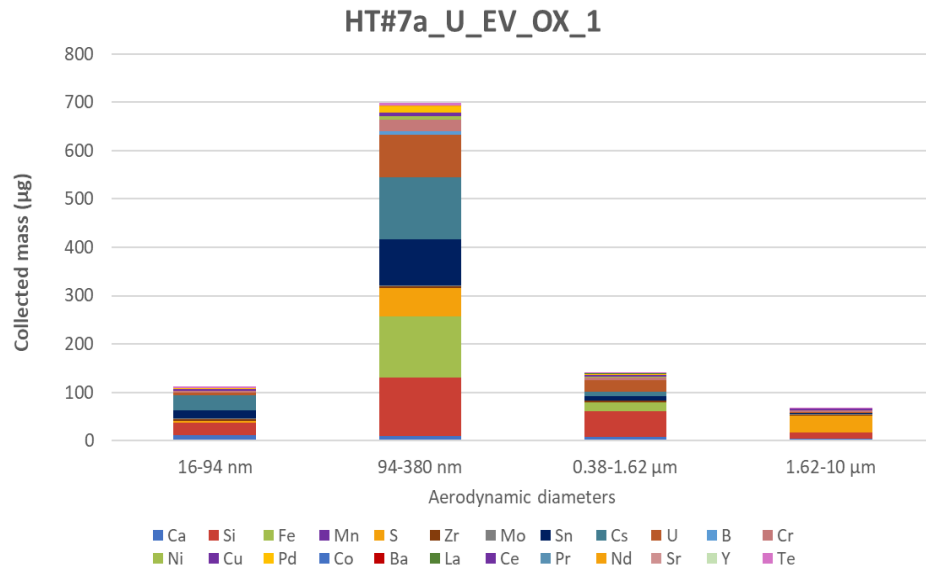
- 捕集した微粒子の粒径を3つの領域に分け、それぞれの組成を比較した。
- 粒径の領域によって組成が異なっている。
- 最大粒径領域ではFeが多く(44%)、Sn、Crが続く。2番目に小さい領域は、捕集された微粒子重量が最も大きい。Sn(35%)、Fe(31%)が多く、Cr、Uが続く。最小径領域では、Fe、Si**が主でUは0.4%と少ない。

* : 全昇温領域を考慮するため、3温度領域の測定値を合算して比較した。

** : 微粒子捕集用グリース中のSiの影響を受けた可能性がある。P101参照。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

7) 粒子分析結果(加熱試験) iii) 粒径領域による比較* (2/2)



Ex-vessel oxidic sample #7a

- 捕集した微粒子の粒径を4つの領域に分け、それぞれの組成を比較した。
- 粒径の領域によって組成が異なっている。
- 2番目に小さい領域は、捕集された微粒子重量が最も大きく、主としてCs、Fe、Si、Sn、Uが18～12 %存在する。最小径領域では、Cs、Si、Snが主要な元素である。最大粒径領域では、S (SUSの微量成分) が50 %以上を占め、Si (20 %)が続く。2番目に大きい粒径領域は、Si (36 %)が多い。

Ex-vessel metallic sample #7b

- 捕集した微粒子の粒径を2つの領域に分け、それぞれの組成を比較した。
- 粒径の領域に大きな組成の違いはない。
- Feはどちらの領域でも主要な元素である。Si、Csは小粒径領域で多い。

* : 全昇温領域を考慮するため、3温度領域の測定値を合算して比較した。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

7) 粒子分析結果(加熱試験) iv) U含有試料とHf含有試料の比較* (1/2)

MCCI oxidic sample #1

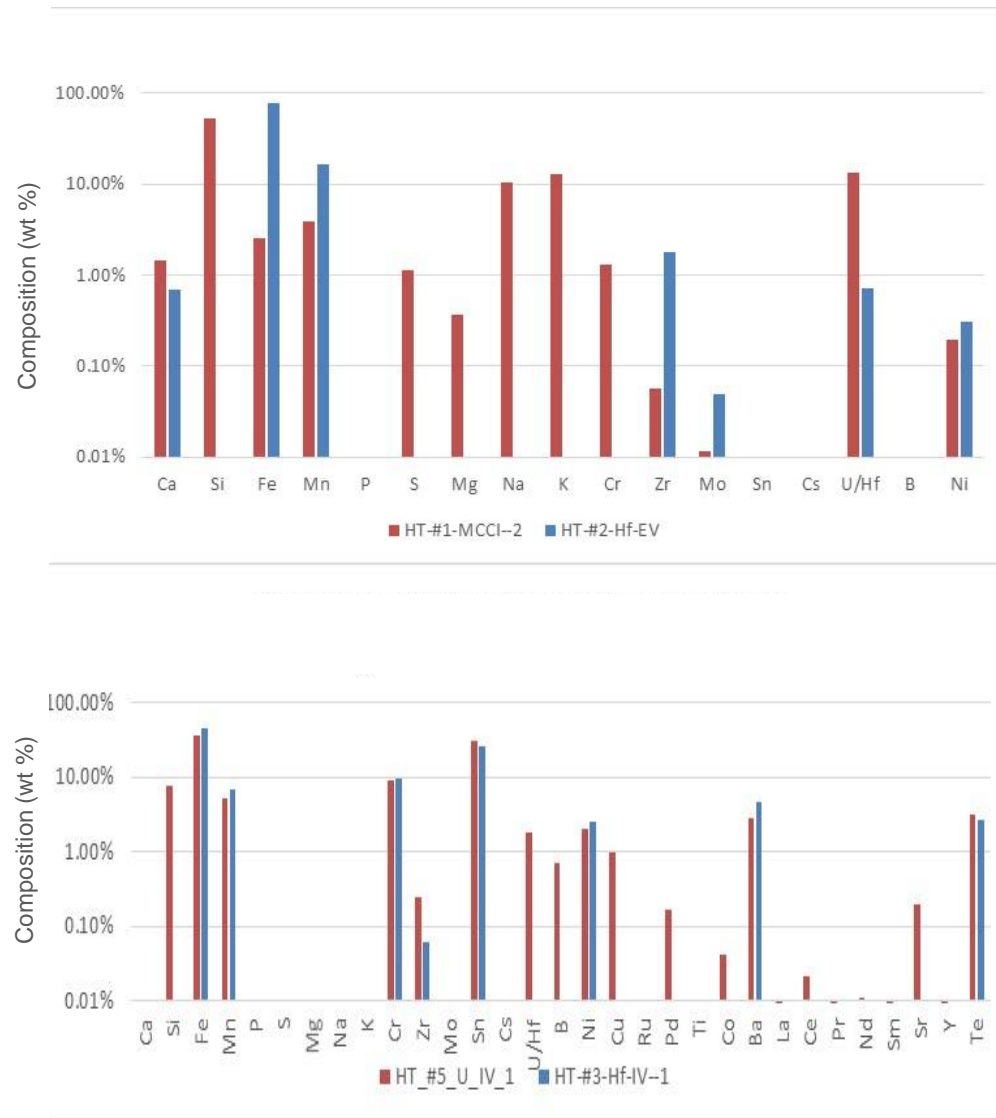
- 両者の組成の違いは顕著である。
- U試料の主要元素はSi(52%)、U、K、Naであり、Hf試料ではFeとMnで約95%を占める。
- Hf試料中のHfは1%に満たないが、この理由の一つとして、FeとMnの放出が多く、その分、Hfの割合が下がっているとも考えられる。

In-vessel sample #5

- 主要な元素であるFe、Sn、Crについては、両者でほぼ一致している。
- Uは2%程度検出されたが、Hfは検出下限以下であった。

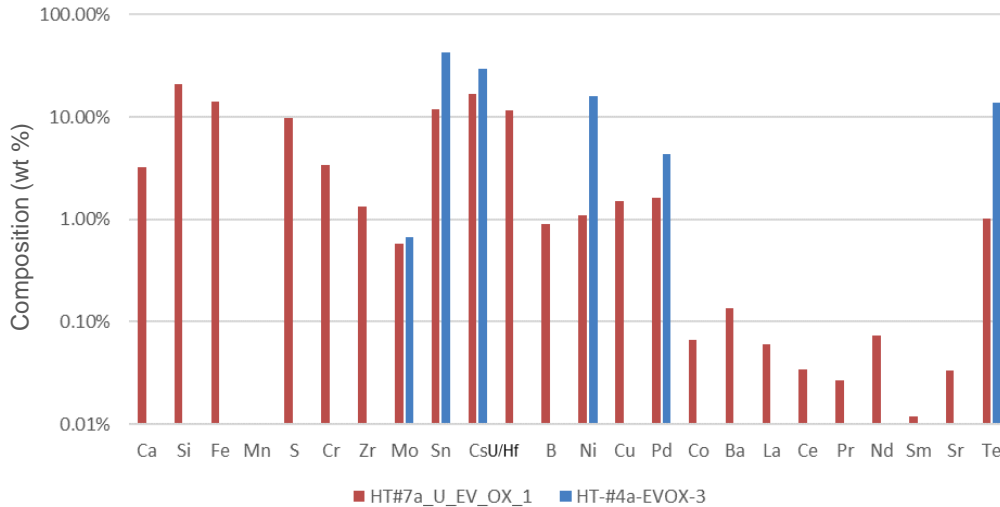
* : 全昇温領域を考慮するため、3温度領域の測定値を合算して比較した。

** : 微粒子捕集用グリース中のSiの影響を受けた可能性がある。P101参照。



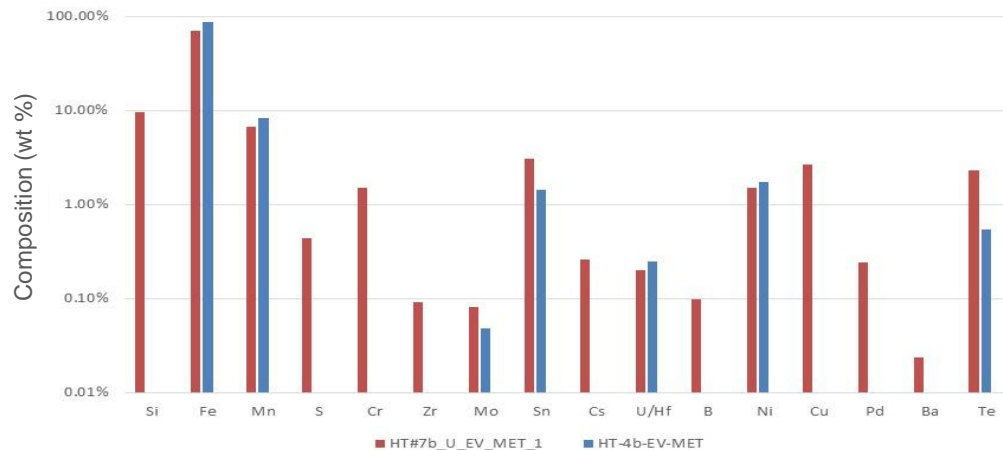
(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

7) 粒子分析結果(加熱試験) iv) U含有試料とHf含有試料の比較* (2/2)



Ex-vessel oxidic sample #7a

- Hf試料の主要な元素であるSn、Cs、TeについてはU試料でも検出されており、Sn、Csについてはほぼ一致している。
- 一方、U試料で主要なSi、Fe、UについてはHf試料において検出されていない。
- また、Uは10 %程度掲出されているが、Hfは検出されていない。



Ex-vessel metallic sample #7b

- 主要な元素として、Fe、Mn、Snについては両者でほぼ一致している。
- Uは少量検出されており、Hfとも同程度である。
- U試料で検出されているSi、Cu、CrはHf試料では検出されない。

* : 全昇温領域を考慮するため、3温度領域の測定値を合算して比較した。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

8) 分析結果のまとめ i) 切削試験

- 機械切削試験では、U含有模擬燃料デブリから生成した微粒子の主要な元素に関して、仕込み組成と生成する微粒子の組成はほぼ一致している。
 - Uについては試料仕込み組成と同等であるものの、詳細に見れば、すべての模擬燃料デブリタイプの微粒子中で仕込み組成より幾分少ない。
 - Mn、Sn、Te、Y、Moに関しては、仕込み組成を上回っている。これは、ブロック中に含まれている様々な相が切削される際、微粒子になりやすい相（介在物中に含まれる相等）が優先的に飛散し、検出系に捕捉されるためと考えられる。
- 機械的切削試験で生成する微粒子の粒径は1 μm 以上のものが主体であり、より小径の微粒子は少ない。また、小径の微粒子の主要な元素はSi、Feであり、Uの比率は1 μm 以上の粒子に比べ小さい。
 - ⇒⇒ 放射能評価へ反映
 - ⇒⇒ コアボーリングによるU含有模擬燃料デブリの加工に伴い生成する微粒子に関するデータベースを提供
 - ⇒⇒ 上述の現象は、Uを含有した模擬燃料デブリを用いて微粒子生成試験を行うことの重要性を明示

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

8) 分析結果のまとめ ii) 加熱試験

- VITAEを用いた加熱試験において、エアロゾルの組成は仕込み組成と大きく異なっていた。これは、蒸発／凝縮がエアロゾル形成の主たる機構であるためと考えられる。
 - これにより、模擬燃料デブリに含まれる揮発性元素は、それが仕込み組成では少量であっても、エアロゾルでは相対的に大きな割合を占め得ることが観察された。例、In-Vessel試料ではSnやBa、Te、Ex-Vessel（酸化物相）試料ではCsやSn、Ex-Vessel（メタル相）試料ではMnやTeなど。
 - 逆に、Uは仕込み組成に比べてエアロゾル中では低く、In-Vessel試料では約1/20、Ex-Vessel（酸化物相）試料では約1/3、Ex-Vessel（メタル相）試料では1/100以下であった。
 - ⇒⇒ 放射能評価へ反映
 - ⇒⇒ ウランを含有した模擬燃料デブリを用い、1 Fの環境条件に近い雰囲気での微粒子生成試験を行うことの重要性を示唆
- 加熱試験では昇温が3回に分けて行なったため、温度域によって生成の様子を分けて観察できる。揮発性が低い元素（U、Zr、Ce、La、Pr、Y）は2300℃以上の高温で生成する。揮発性元素（S、K、Mn、Cu、Te）はほとんどが1800℃以下で生成する。揮発性元素の生成が高温度域で少ないのは、低中温度域でほとんど放出してしまった結果であると解釈できる。また、今回の誘導加熱とより速い昇温速を有するLASER加熱とで挙動が異なると推測される。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較 ー試験方法による主な相違点ー

➤ 加熱方式：

- VITAE加熱試験は誘導加熱方式であることから、LASER切断試験に比して昇温に時間がかかる。
- 到達温度は熱力学的な検討から2600℃に設定。（このことにより、昇温が3回に分けて行なったため、温度域によって生成の様子を分けて観察できる。）
- LASER切断試験は瞬時に温度が上昇する。（⇒加熱時間が短い）

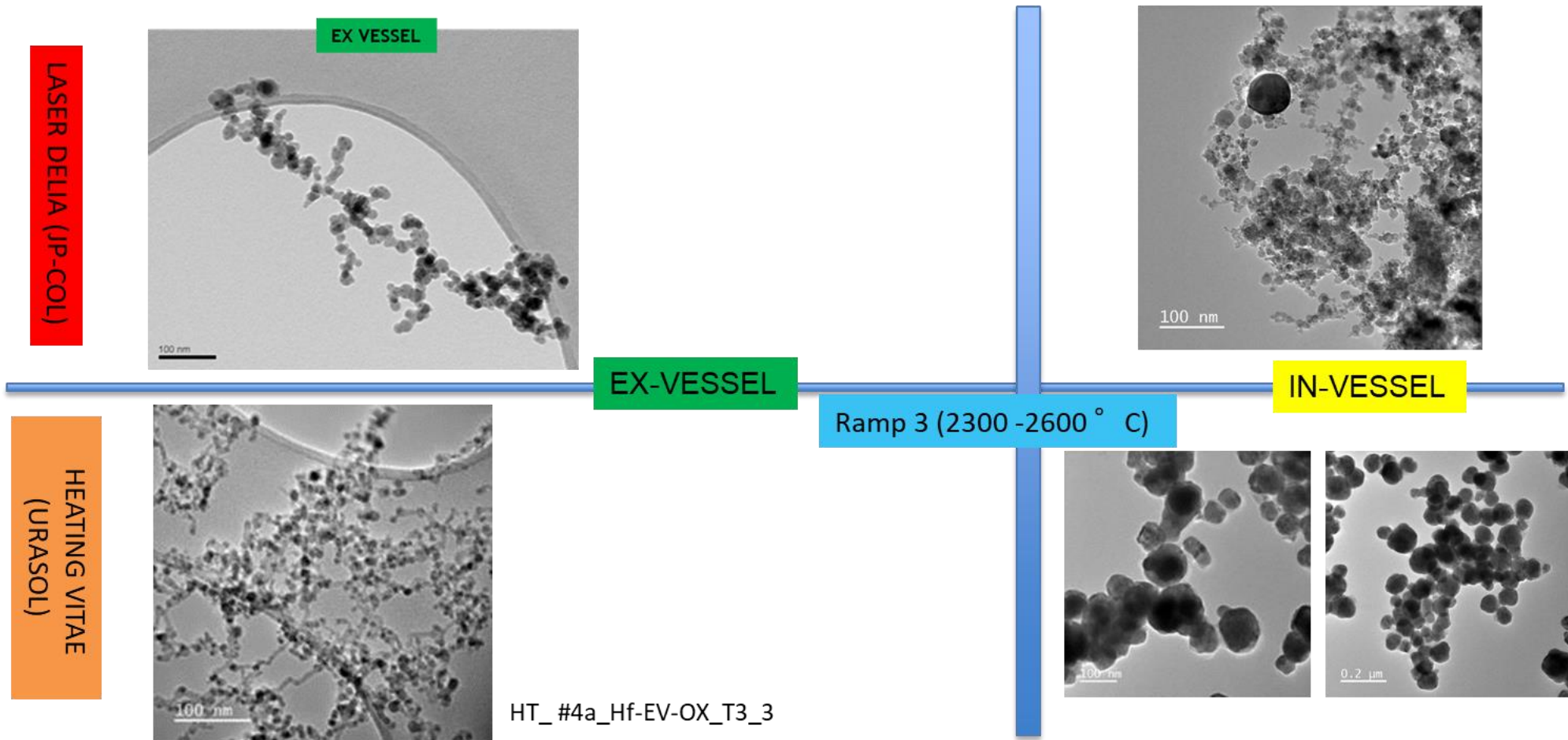
➤ 雰囲気

- VITAE加熱試験は窒素ガス雰囲気
- LASER切断試験は空気雰囲気＋カバーガス（空気）

• 模擬燃料デブリ

- LASER切断試験は1Fを模擬したHf含有燃料デブリ
- VITAE加熱試験は上記と同じ組成のHf含有燃料デブリ、及びHfをUに置き換えたU含有模擬燃料デブリ

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験
 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較 **—生成する微粒子の形状—**

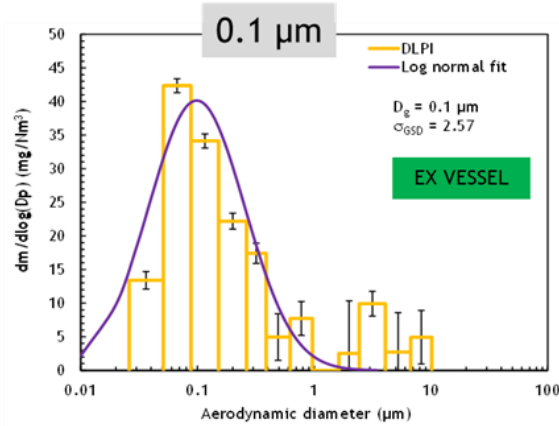


- LASER切断試験もVITAE加熱試験もサブミクロンの微粒子が発生し、フラクタル定数は共に1.8。
- Ex-Vesselに関しては、両方法について、一次粒子の粒子径はほぼ20 nmで同様。In-Vesselでは、一次粒子径はVITAE加熱試験の方がLASER切断試験より大きく、50 - 100 nm

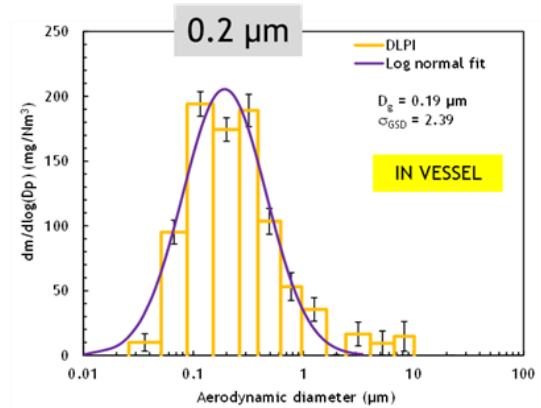
(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較 -生成する微粒子の粒径分布-

LASER DELIA (JP-COL)



DELIA facility (CEA Saclay)

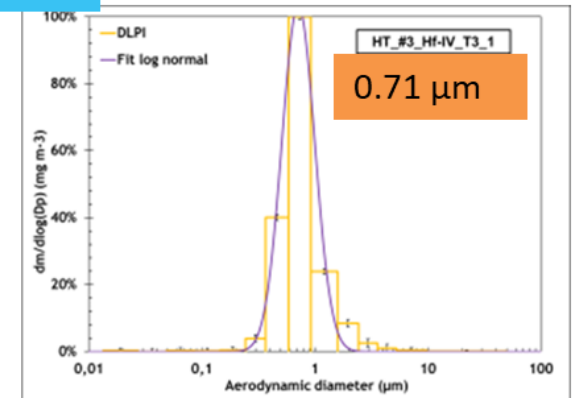
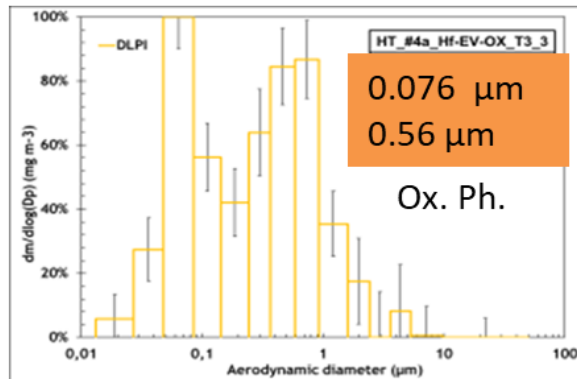
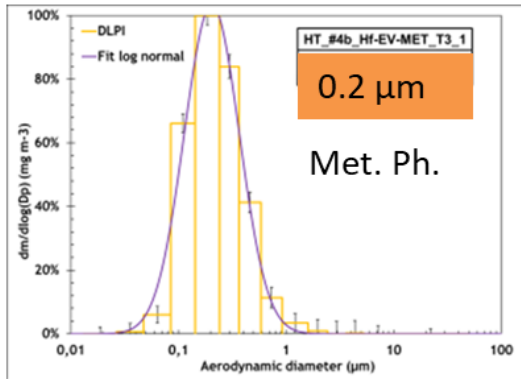


EX-VESSEL

Ramp 3 (2300 -2600 ° C)

IN-VESSEL

HEATING VITAE (URASOL)

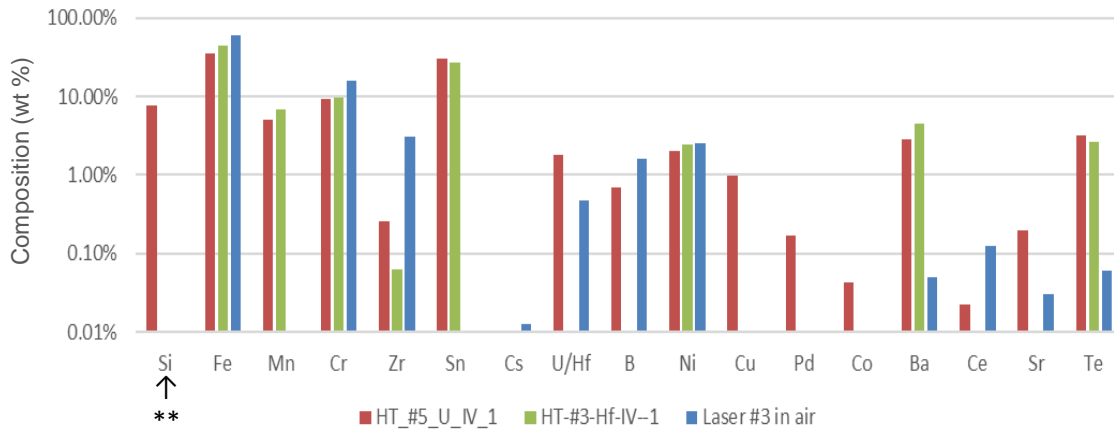


- 粒径分布に及ぼす模擬燃料デブリのタイプの影響はLASER切断と誘導加熱でほぼ同様であり、In-VesselはEx-Vesselより粒径が大きい

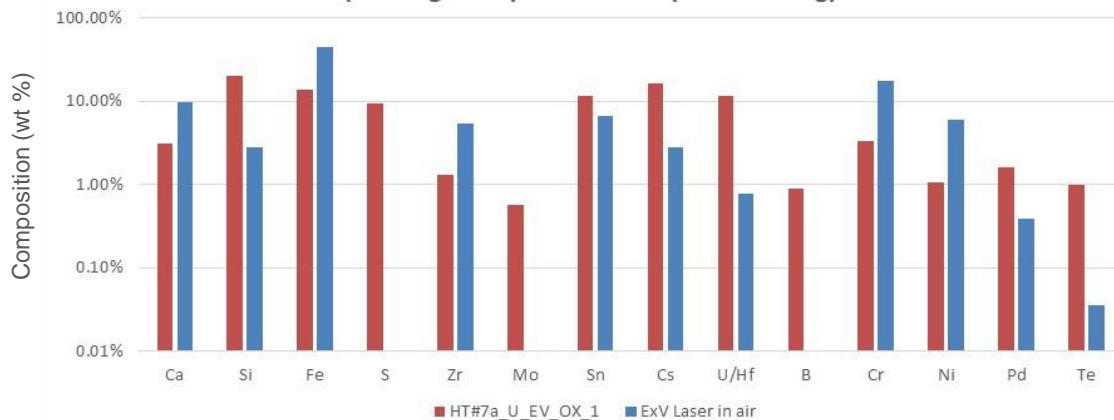
(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較 —生成する微粒子の組成—

Comparison of in-vessel laser cutting aerosols with heating aerosols with and without uranium



Ex Vessel oxidic sample
Uranium (heating trials) vs Hafnium (laser cutting) fuel debris



- In-Vessel試料では、主要な元素であるFeはLASER切断試験が少し多いもののほぼ同一。Cr、Niも同様。一方、SnはVITAE加熱試験では主要な元素であるが、LASER切断試験では検出下限以下。Zrも1/10程度。
- UはLASER切断試験におけるHfの約4倍。フランスの熱力学的解析によれば、LASER切断試験に於けるU含有模擬燃料デブリ中のUの放出はHf試料中のHfの放出の3倍であると推定されている*。

- Ex-Vessel試料では、LASER切断試験において主要な元素であるFeはVITAE加熱試験では1/3程度である。
- UはLASER切断試験におけるHfの約15倍である。フランスの熱力学的解析によれば、LASER切断試験に於けるU含有模擬燃料デブリ中のUの放出はHf試料中のHfの放出の50倍であると推定されている*。

* C. Dazon, et.al. ; J of Environ. Chemi. Engi., 8, 103872, 2020.

** : 微粒子捕集用グリース中のSiの影響を受けた可能性がある。P101参照。

▶ 今後、燃料デブリ取り出し中のエアロゾルの挙動をより詳細に調べるためには、①熱力学的な検討による試験雰囲気の違いの補正、②U含有模擬燃料デブリを用いた1F雰囲気でのLASER切断試験の実施等が望まれる。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

試験結果のまとめ（機械的切削法-1）

- コアボーリング法を用いて、模擬燃料デブリ試料の切削試験を行い、生成したエアロゾルの物理分析(粒径、形態観察)、化学分析 (ICP-MS分析等)を実施した。これにより、エアロゾル生成挙動に関する粒径分布、質量濃度・数密度、組成、切削性等のデータを取りまとめた。
- エアロゾル中の粒径はサンプルの性質（多孔性や化学組成）に依存せず、空気力学的質量中央径は、U含有、Hf含有に係わらず、ほぼ3.6～4.2 [μm]の範囲であった。
- U含有模擬燃料デブリから生成するエアロゾル中の主要な元素の組成はほぼ模擬燃料デブリ仕込み組成と同等であったが、FP元素等の微量元素については、仕込み組成を大きく超える元素が確認された。これは、ブロック中に存在する相の微粒子化し易さが、相によって異なるためと考えられる。一方、U含有模擬燃料デブリとHf含有模擬燃料デブリの比較では、生成するエアロゾルの組成は異なる結果であった。

(次ページに続く。)

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

試験結果のまとめ（機械的切削法-2）

- 1 Fの燃料デブリ取り出しに関する種々の検討に適用する際の考え方

本試験で得られた試験結果は、基本的に、実機における微粒子挙動評価にそのまま適用可能と考えるが、以下の点について注意が必要である。

- 本試験は直径25 mm（最大）のコアドリルを用いているが、その切削能力（深さ方向）は毎分1 mm未満～30 mm程度の範囲である。燃料デブリの取り出しが本格的になる際には、より効率的な切削方法が求められると考えられ、その場合、切削条件が大きく変わる際には、適用の可否を検討する必要がある。
- 本試験は乾燥した空気雰囲気で行われており、1 Fの湿潤窒素雰囲気とは異なっている。機械切削試験では熱加工法に比べ、加工温度は低いものの、今回の試験において切削中に火花が発生した例もあり、その程度の温度には上昇している。この点は1 F環境では幾分温度が下がると考えられ、また、火花も発生しにくいと考えられる。この相違の影響との例として、本試験では、切削試験中の酸化反応により、発生した微粒子が幾分細粒化した可能性が考えられ、実際、火花が発生した試験では微粒子の粒径分布において細粒側に小さなモードが観察されたが、全体的な挙動への影響は小さいと考えられる。

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

試験結果のまとめ（加熱法-1）

- 機械切削法同様、高周波誘導加熱を用いて、模擬燃料デブリ試料の加熱試験（以下、VITAE加熱試験）を行い、生成したエアロゾルの物理分析、化学分析を実施し、これにより、エアロゾル生成挙動に関するデータを取りまとめた。
- VITAE加熱試験で生成するエアロゾルの形状をLASER法で得られたものと比較すると、両者とも同様のフラクタルを示しており、両者の生成過程は同様であると考えられる。
- VITAE加熱試験により生成するエアロゾルの組成は供試体の仕込み組成と大きく異なっていたが、これは、蒸発／凝縮がエアロゾル形成の主たる機構であるためと考えられ、LASER法でも同様である。
- この機構により、揮発性を有する元素は、仕込み組成では少量であってもエアロゾルでは相対的に大きな割合を占め得ることが観察された。
- 一方、Uは仕込み組成に比べてエアロゾル中の組成は低く、In-Vessel試料では約1/20、Ex-Vessel（酸化物相）試料では約1/3、Ex-Vessel（メタル相）試料では1/100以下であった。

試験結果のまとめ（加熱法-2）

- 1 Fの燃料デブリ取り出しに関する種々の検討に適用する際の考え方
本試験で得られた試験結果の適用に関する考え方は以下の通り。
 - a)形状
 - LASER法で生じる微粒子の形状と誘導加熱で生じる微粒子の形状は類似しており、フラクタルを示している。よって、これらの微粒子は同じ過程で発生すると考えられる。
 - b) 粒径
 - 幾分誘導加熱法で生じた微粒子の粒径はLASER法で生じた粒径より幾分大きい、ほぼ同様である。よって、今回、誘導加熱法で取得したU含有燃料デブリの粒径データをそのまま適用する。

（次ページに続く。）

(2) ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

試験結果のまとめ（加熱法-3）

- 1 Fの燃料デブリ取り出しに関する種々の検討に適用する際の考え方（続き）
 - c) 数密度、質量濃度
 - 誘導加熱法とLASER切断法では、微粒子発生 の原理は同様であるものの、気体流量等の条件が大きく異なるため、直接の比較は困難である。一方、誘導加熱試験におけるHf含有試料とU含有試料の比較から、U含有試料の数密度および質量濃度はHf含有試料とほぼ同等かあるいは幾分低いと考えられる。よって、LASER切断法で取得したHf含有模擬燃料デブリの値を適用する。
 - d) 組成
 - 今回誘導加熱法で取得したU含有燃料デブリの粒径データをそのまま適用する。但し、以下の点に留意する。
 - 今回の試験の雰囲気は乾燥した窒素雰囲気であるが、1 Fの燃料デブリ取り出し環境は湿潤窒素雰囲気であり、また、酸素が混入する可能性も考えられる。このような雰囲気においては組成が変化 する可能性が考えられることから、信頼性が高いデータが必要な場合は、熱力学的な検討や新たな実験により、これらの効果を把握する必要がある。

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

- | | | |
|---|----------------------------|---------------|
| (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 | (2019～2020年度*1) | |
| ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 | | P2-15 |
| ② 燃料デブリの性状推定の高度化 | | P2-54 |
| (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発 | | |
| ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動 | | |
| ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 | (2019～2021年度*2) | P2-87 |
| 1) 試験の概要 | 6) 粒子分析結果(切削試験) | |
| 2) 試験に供する模擬燃料デブリ | 7) 粒子分析結果(加熱試験) | |
| 3) 試験方法 | 8) 分析結果のまとめ | |
| 4) 切削試験結果 | 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較 | |
| 5) 加熱試験結果 | | |
| ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 | (2019～2020年度*1) | P2-140 |
| ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 | (2019～2020年度*1) | P2-150 |
| ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 | (2019～2020年度*1) | |
| ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 | | P2-156 |
| ②-2 液相における微粒子挙動評価 | | P2-166 |
| ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ
– 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – | (2021年度*2) | |
| ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 | | P2-178 |
| ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) | | P2-194 |

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

【実施計画】

目的：

燃料デブリ切断工程での放射性飛散粒子生成において、**内部被ばく評価上重要なPuの挙動を調査**する。本調査では集光加熱による局所溶融と低速切断機による機械切断の2種類の加工方法を対象とする。

実施方法：

- ・Pu含有模擬燃料デブリ試料（(U、Pu、Zr)O₂系固溶体）に対し、集光加熱による局所溶融と低速切断機を用いた機械切断を行い、それによって発生する微粒子を捕集する。
- ・捕集した微粒子について、EPMAによる元素分析を行う。Puが検出された微粒子に対しては、さらにFE-SEMによる粒径・形状観察を行い、Pu系微粒子の外観的特徴を把握する。

主要成果：

集光加熱による局所溶融や低速切断機による機械切断のための実験・捕集系の確立

→ 高濃度Pu含有模擬燃料デブリ試料を用い、両加工手法によって発生する微粒子がPuを含んでいるかを確認する。

上記実験・捕集系を用いた、微粒子生成におけるUに対するPu随伴性評価

→ U及びPuの組成を変化させた試料を用い、両加工手法によって**生成する微粒子を分析する。初期組成と微粒子中での組成を比較することで、Uに対するPu随伴性を評価する。**

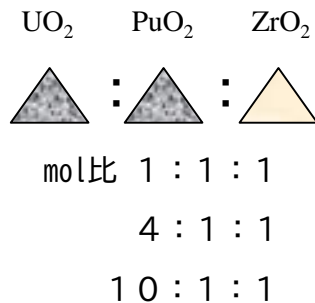
(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

【模擬燃料デブリの製作と試験フローの概要】

試料調整 (原料粉末)



(U、Pu、Zr)O_{2-x} 模
擬燃料デブリ



混合+成型
+焼結

模擬試料 (試験試料)

× 2 個 × 3 組成

模擬試料 低速切断

× 1 個



残存部
(母材)

× 1 個

+

切粉



分析項目

- XRD
- EPMA

- XRD
- SEM
- EPMA

分割

模擬試料 集光加熱

× 1 個



ヒューム



分析項目

- SEM
- EPMA

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

【試験方法】

熱的加工試験



集光加熱装置
(熱的加工試験)

ハロゲンランプ加熱
最大：3000W

機械的加工試験



低速切断機 (機械的加工試験)

切断刃：ダイヤモンド切断砥石
ビュラー製 刃厚：0.3mm

回転速度：0～150rpm

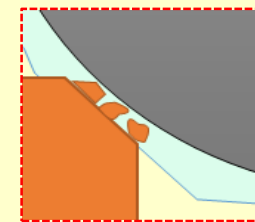
生成した微粒子の回収

集光加熱試験



カーボンテープに付着させ、回収

低速切断試験



冷却水とともに切粉を回収

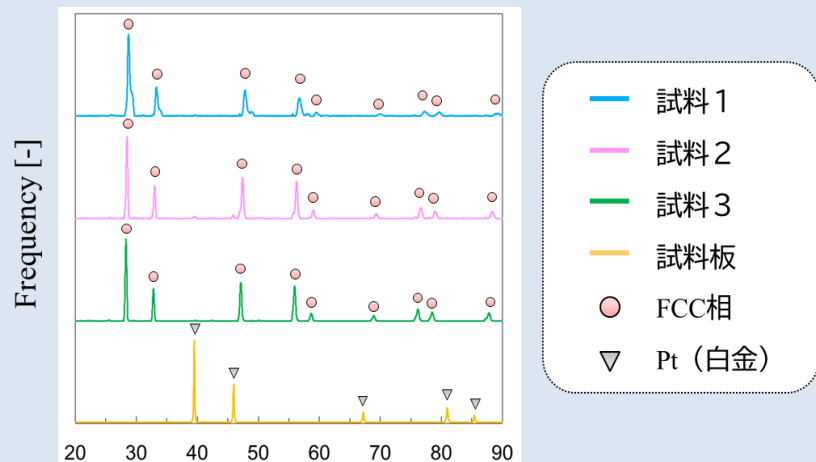
- ・SEM、EPMA、粉末XRDで分析
- ・生成した微粒子の性状（元素組成、形態等）を把握

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

【試験結果（機械切断試験、X線回折）】

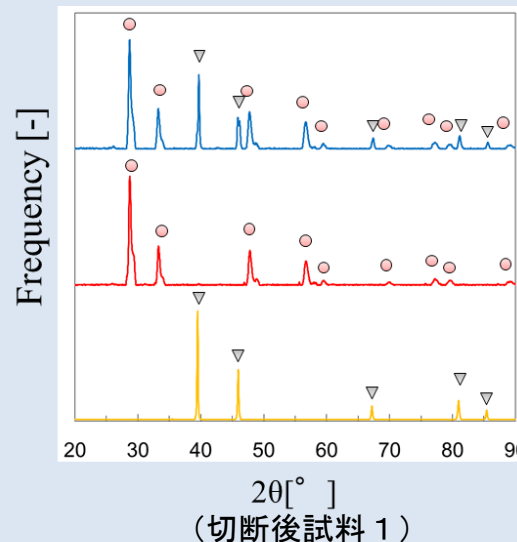


20 [°] 模擬燃料デブリ試料作成時

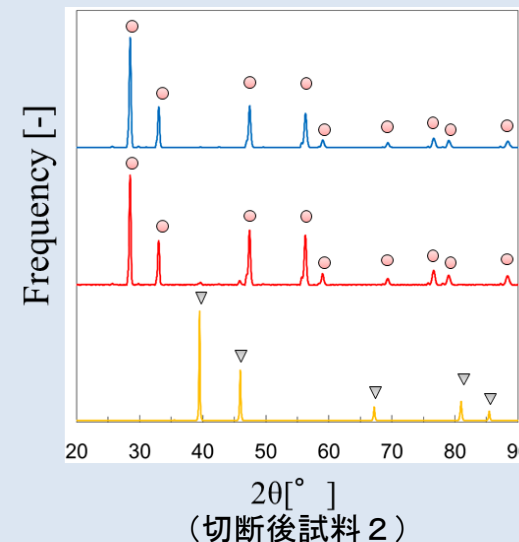
試料ID	模擬試料組成比
試料1	UO ₂ :PuO ₂ :ZrO ₂ = 1:1:1
試料2	UO ₂ :PuO ₂ :ZrO ₂ = 4:1:1
試料3	UO ₂ :PuO ₂ :ZrO ₂ = 10:1:1

機械切断微粒子のX線回折結果

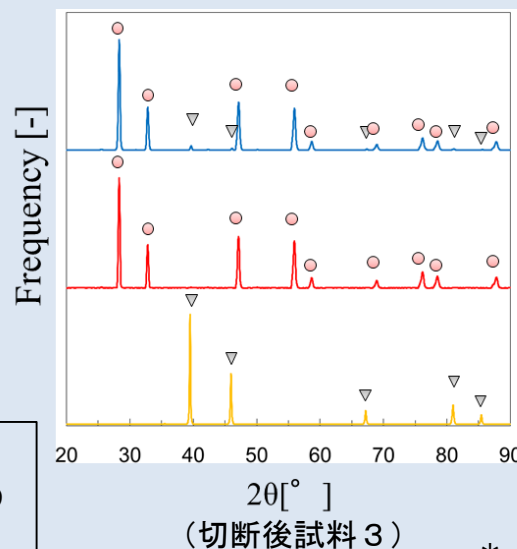
⇒ 3 試料ともFCC*相のみが検出され、(U、Pu、Zr)酸化物の固溶体であるとともに、切断前後で変化が無いことを確認



20 [°] (切断後試料 1)



20 [°] (切断後試料 2)



20 [°] (切断後試料 3)



模擬燃料デブリ試料切断後のX線回折結果

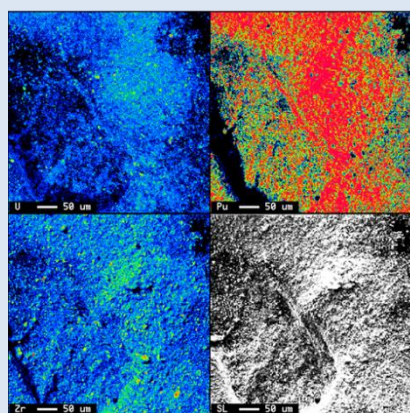
* FCC : 面心立方格子構造

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

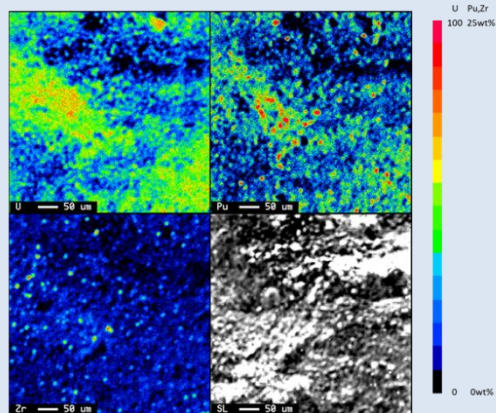
① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

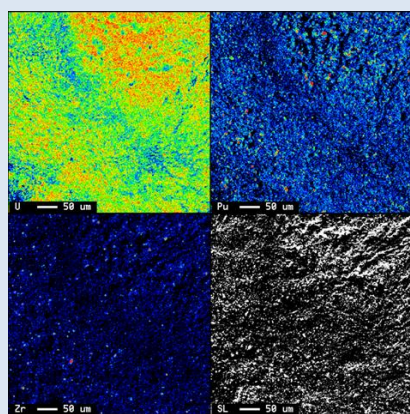
【試験結果（機械切断試験、EPMA及びSEM）】



(切断後試料 1)



(切断後試料 2)



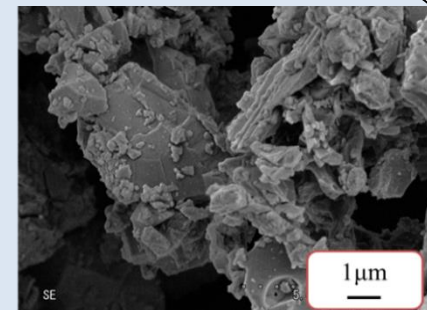
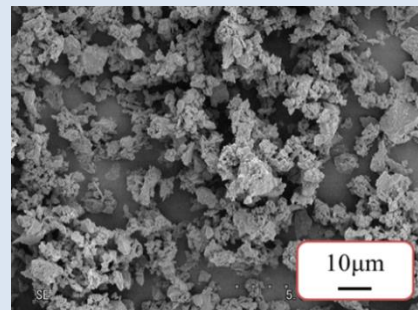
(切断後試料 3)

EPMA分析結果

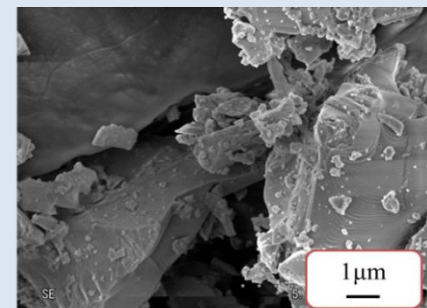
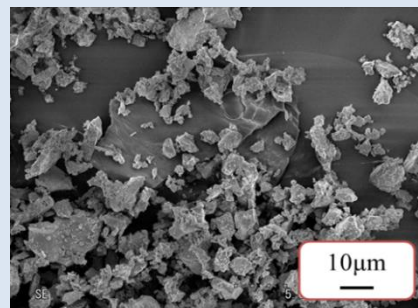
写真の左上:U、右上:Pu、
左下:Zr、右下:SEI
倍率:約1000倍(カーソル長さ:50 μm)
濃度目安色の最大値(wt%)
U:100、Pu:25、Zr:25

機械切断微粒子のEPMA及びSEM
結果 ⇒

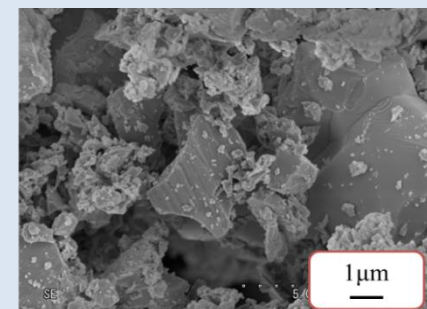
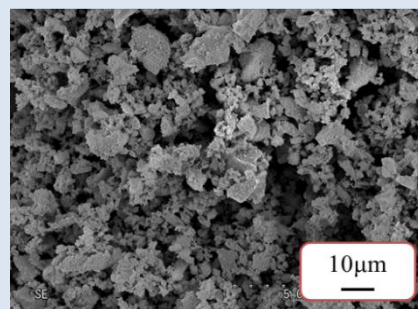
Uが最も多く検出され、次いで Pu、Zrを検出。その程度は加工前の元素濃度に従う。微粒子はμmオーダーの小粒子表面に1 μm未満の微小粒子が付着



(切断後試料 1)



(切断後試料 2)



(切断後試料 3)

SEM観察結果

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

【試験結果（加熱試験、EPMA及びSEM）】

(試料 1、窒素雰囲気)

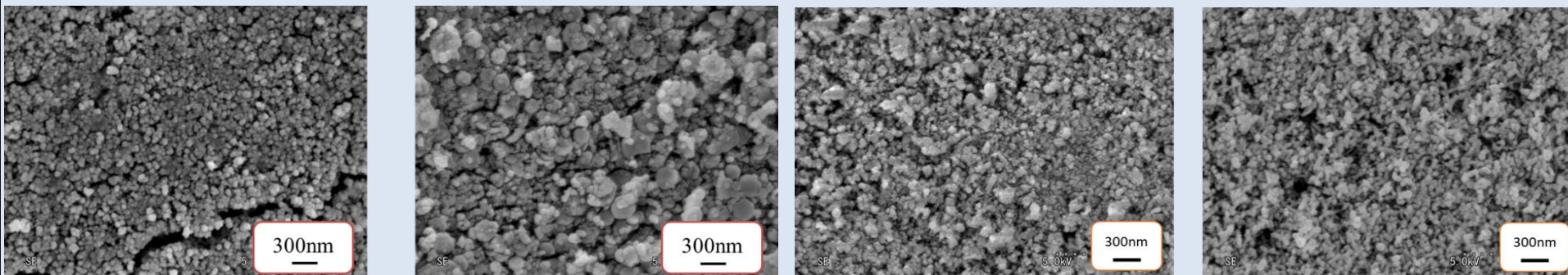
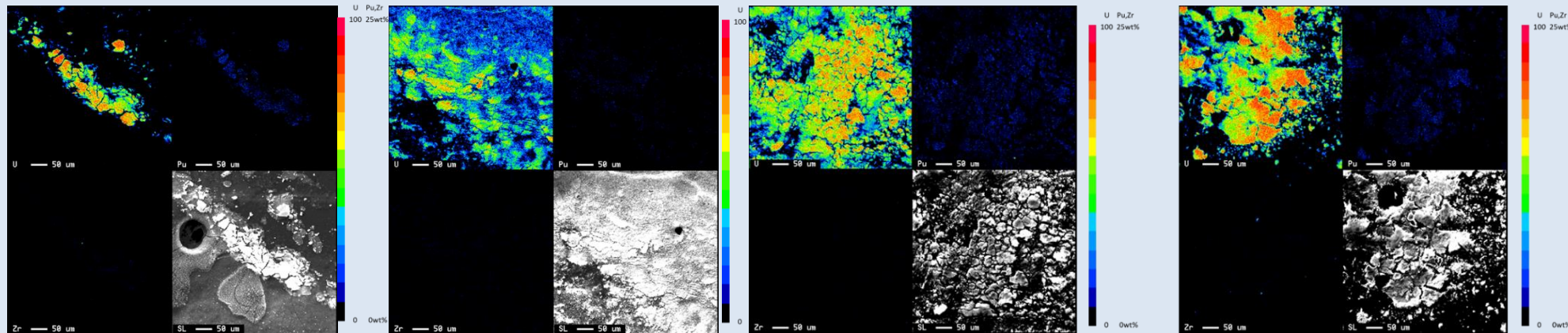
(試料 1、大気雰囲気)

(試料 2、窒素雰囲気)

(試料 3、窒素雰囲気)

写真上段はEPMA測定結果

写真左上:U、右上:Pu、左下:Zr、右下:SEI、倍率:約1000倍(カーソル長さ:50 μm)、
濃度目安色の最大値 U:100 wt%、Pu:25 wt%、Zr:25 wt%



写真下段はSEM観察結果

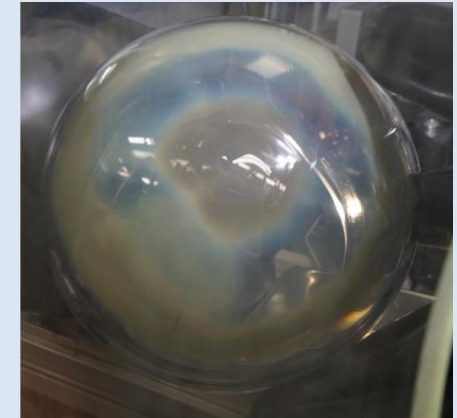
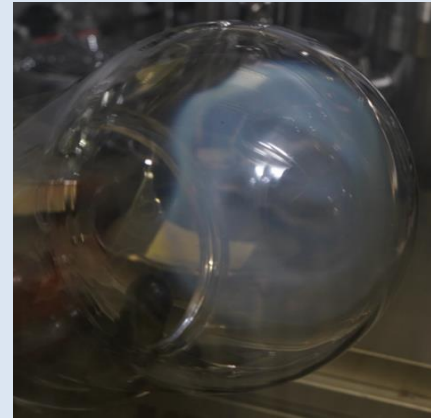
(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

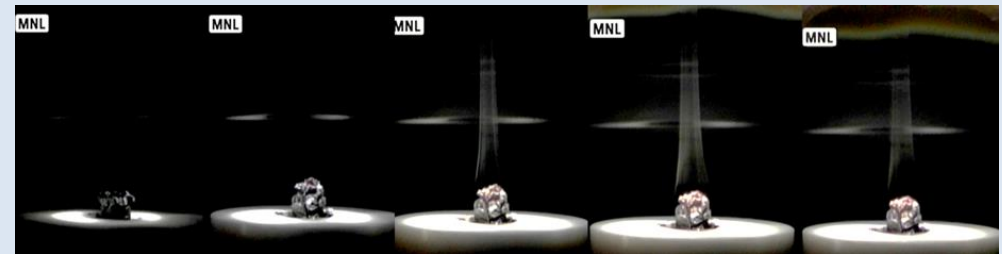
①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

【試験結果（加熱試験、EPMA及びSEM）】

- ・加熱により、微粒子が飛散し、ベルジャーに付着。これに伴い、ベルジャーに曇りが発生。集光加熱を行った模擬試料は、試料にクラックが生じ、見かけ体積が膨張した状態となった。
- ・昇温の雰囲気別では、大気雰囲気ではベルジャーへの付着量が多く、また、昇温中に試料の変形や割れも大きい。
- ・付着物の組成は、Uが主体であり、Puがわずかであり、Zrはほとんど検出されない。機械切断の微粒子の分析結果に比して、かなり小さい。
- ・付着物の組成の特徴として、Puは窒素雰囲気ではわずかに検出されたが、大気雰囲気では検出されなかった。
- ・付着した微粒子の大きさは、窒素雰囲気では100 nmオーダーであり、機械的切断に比べて丸い形状の粒子が多い。一方、大気雰囲気では粒子径が窒素雰囲気より大きく300 nm程度であった。



加熱試験後のベルジャーの比較
左窒素雰囲気、右大気雰囲気



加熱試験における模擬燃料デブリの経時変化（大気雰囲気）

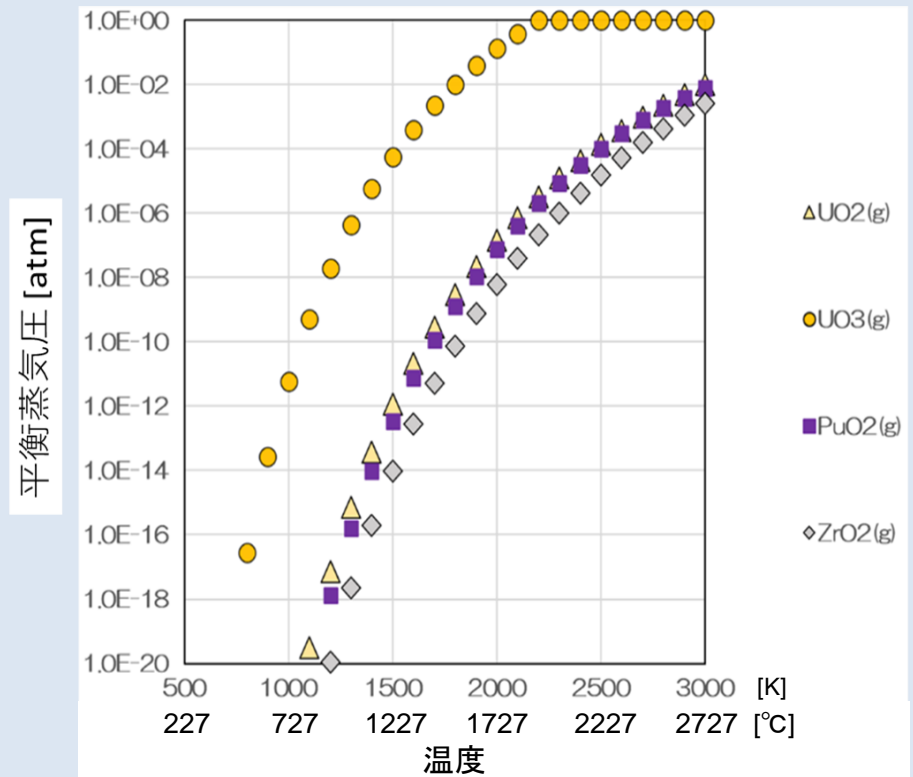
(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

【試験結果の検討】

- ・集光加熱を行った模擬試料は、試料にクラックが生じ、見かけ体積が膨張した状態となった。
- ・この現象は UO_2 の酸化破砕と呼ばれる U_3O_8 への結晶構造変化による体積膨張現象と類似しており、U成分が雰囲気中の酸素と反応したために生じた可能性があると考えられる。
- ・機械的切断で生じた微粒子に比べ、集光加熱で生じた微粒子のPu及Zr濃度が低いことについて、以下の通り検討した。
- ・模擬試料の出発物質である UO_2 、 PuO_2 、 ZrO_2 に加え、Uの最終酸化物である UO_3 の蒸気圧について算出した。右図に示すように UO_3 が最も高く、 ZrO_2 が最も低い結果となった。
- ・このことから、集光加熱試験において生じた微粒子中にPu及びZrが少ないのは、昇温雰囲気中の酸素とUが反応し、蒸気圧の高いU酸化物が生成したからである可能性が考えられる。



蒸気圧計算結果 (FactSage 6.3、Database ELEM 6.3)

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2. 粒子生成挙動に係る基礎試験

粒子生成挙動に係る基礎試験のまとめ

- 低速切断試験（機械的加工）では、X線回折及びEPMAの定性分析の結果から、PuとUの組成や結晶構造に変化は認められないことから、PuはUに随伴すると考えられる。
- また、低速切断に伴い発生する微粒子のサイズは μm オーダーであった。
- 集光加熱試験（熱的加工）では、EPMAによる定性分析の結果から、PuはUとともに検出されることから随伴するものと考えられるものの、Puの濃度は低速切断試験の微粒子に比べ低い。これは、昇温された試験体中のUが雰囲気中の酸素と反応し、蒸気圧の高いU酸化物を形成し、このU酸化物が主体となって蒸発したため、相対的にPuの濃度が下がった可能性があると考えられる。
- ただし、今回の試験においては、回収できた微粒子の量がごく微量であったため、定量分析には至らなかった。このため、微粒子中のPu濃度減少幅についてはデータが得られなかった。また、LASER切断のようにごく短時間で加熱する加工法と、集光加熱試験のように長時間かけて昇温する試験法とでは酸素との反応の程度が異なると考えられるため、この点に留意する必要がある。
- 集光加熱に伴い発生する微粒子のサイズは100 nmオーダーであった。

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-150

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)
 - ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 P2-15
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化 P2-54
- (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発
 - ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 - ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2) P2-87
 - 1) 試験の概要
 - 2) 試験に供する模擬燃料デブリ
 - 3) 試験方法
 - 4) 切削試験結果
 - 5) 加熱試験結果
 - 6) 粒子分析結果(切削試験)
 - 7) 粒子分析結果(加熱試験)
 - 8) 分析結果のまとめ
 - 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較
 - ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 (2019～2020年度*1) P2-140
 - ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (2019～2020年度*1) P2-150
 - ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019～2020年度*1)
 - ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 P2-156
 - ②-2 液相における微粒子挙動評価 P2-166
 - ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – (2021年度*2)
 - ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 P2-178
 - ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-3.国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査

目的：

原子炉や核燃料施設等の運転又は廃止措置で発生した放射性微粒子の飛散事例についての情報（性状や挙動）を収集し、飛散物質（放射化金属や核燃料）及び発生条件等との関連性を纏めて評価するとともに、TMI-2、ChNPP-4における燃料デブリの飛散事例等とも比較評価することにより、1F燃料デブリ取り出し作業時の微粒子挙動の推定に資する。

実施方法：

- ・ 国内施設（「ふげん」、JPDR*、MOX燃料製造、ホットラボ、再処理）等の事例情報を、当該施設の文献・資料及び聞き取りにより収集・調査する。
- ・ 欧米施設（TMI-2、ChNPP-4**、廃止措置施設）に関する事例情報・内容の事前予備調査、及び本調査を行う。

主要成果：

(1) 情報取得：

異なる切断工法（機械的、熱的）及び作業条件・環境において発生した微粒子の性状（発生量、粒径/分布、形態、等）及び挙動（気中飛散、空間線量、汚染濃度、水中移行、捕集性、封じ込め性、等）に関して、施設・条件・環境特有の情報・データを取得。

(2) 取得情報の評価

* : Japan Power Demonstration Reactor 動力試験炉。日本最初の発電用原子炉。

** : Chernobyl Nuclear Power Plant Unit No.4 チェルノブイリ原子力発電所4号機。

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-3.国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (RANDEC)

【成果の取りまとめ方針】

2. 国内外事例調査結果の各粒子性状を包括的に取り纏め、工法・加工条件・対象材料等の観点から、放射性微粒子発生挙動を抽出するとともに、1F条件下での挙動を予測

2019-20年度情報調査より

- ・原子炉施設の放射性微粒子
RPV、炉内構造物の金属切断片
- ・核燃料施設の放射性微粒子
照射燃料の切断・研磨
- ・燃料製造施設の放射性微粒子
U及びMOX燃料の加工調製
- ・再処理施設の放射性微粒子
使用済燃料の切断/せん断/溶解

熱的切断法
・
機械的切断法

気中切断 水中切断

微粒子飛散割合
核種飛散割合
微粒子化学組成/変化
微粒子粒径 (分布)
気中移行割合 (水中)
再浮遊係数

- 様々な切断条件・環境における放射性微粒子発生挙動に関する一般的な傾向の抽出
- 抽出された傾向を踏まえ、1F燃料デブリ取り出し時に想定される条件・環境における放射性微粒子発生挙動を予測

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-3. 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (RANDEC)

国内外の原子力施設における放射性微粒子飛散事例調査一覧表 (その1)

施設分類	組織、施設名	調査の視点
原子力発電所	<ul style="list-style-type: none"> ・JAEA/JPDR、ふげん ・ドイツRWE / Gundremmingen 	<p>廃止措置の実績として原子力発電所の放射化した炉内構造物の気中及び水中切断で発生する放射性微粒子の性状と挙動、その除去方策について情報を収集・整理する。また、水中切断における放射性微粒子の挙動、特に水中浮遊物、ドロス、気中移行の比率、回収方法等の情報を収集した。</p>
燃料製造施設	<ul style="list-style-type: none"> ・スウェーデンW.H Vasteras 施設 ・JAEA/核燃料サイクル工学研究所Pu燃施設 ・JAEA/核燃料サイクル工学研究所混合転換施設 	<p>軽水炉燃料(MOX燃料含む)の製造時、切断時の粒径分布と製造施設における飛散挙動に関して1Fの放射性微粒子性状の理想的形態(乾式及び環境影響無)として理解・把握した。</p>
照射後試験施設(PIE施設)	<ul style="list-style-type: none"> ・JAEA/大洗研究所5施設 (FMF、AGF、MMF、WDF、JMTRホットラボ) ・JAEA/原子力科学研究所2施設 ・ドイツFRM/RCM施設 ・米国DOE/HFEF施設 	<p>PIE施設は、高燃焼度燃料(U/TRU)、放射化金属材料、FP、CP(腐食生成物)等を扱うことから高放射能濃度の放射性微粒子が多量に発生する。燃料の比放射能も燃料デブリを遥かに超えるものもある。これらの放射性微粒子の性状と挙動、セルの閉鎖空間における飛散状況の調査結果は1Fの燃料デブリ切断・取扱い、換気及び放射性廃棄物に係る安全対策の基礎情報として整理・評価した。</p>

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-3.国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (RANDEC)

国内外の原子力施設における放射性微粒子飛散事例調査一覧表 (その2)

施設分類	組織、施設名	調査の視点
再処理施設	<ul style="list-style-type: none"> ・ドイツZFK WAK施設 ・JAEA再処理特研 (JRTR) 	<p>照射燃料の機械的切断(せん断工法)及び燃料溶解や精製過程で発生する放射性微粒子の性状と挙動把握から1F燃料デブリ切断工法と放射性微粒子の回収方策の検討に資する。</p>
事故炉	<ul style="list-style-type: none"> ・ウクライナ SSE ChNPP-4 	<p>ChNPP-4の燃料とジルカロイの相互作用を含む燃料溶融の事故の初期段階は、TMI-2事故及び1F事故、炉外模擬実験とほぼ同じである。ChNPP-4とTMI-2の重要な違いは、後者ではコリウム-コンクリート相互作用が無いことであり、前者は、1Fの事故との関連性がより高いと考えられる。</p> <p>この観点で従来の国内外の文献を見直し、かつウクライナの最新情報を入手し、ChNPP-4内のLFCM*形態の確認、プラント内外のエアロゾル発生状況に関して、1F燃料デブリ性状の類推に資することとした。</p> <p>* : Lava-like Fuel-Containing Material 溶岩状燃料含有物質。燃料デブリの一形態。</p>

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-3. 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (RANDEC)

【重要な微粒子挙動の抽出とその検討 (例)】

抽出課題：難捕集性微粒子の捕集効率改善

把握の課題	改善策の検討
<p>微粒子の生成挙動</p> <ul style="list-style-type: none"> 燃料デブリ取り出しで生ずる微粒子の内、比較的粒径の大きな微粒子は、水スプレーによって除去されるが、ある粒径範囲の微粒子はHEPAに捕集されにくい。 その粒径範囲は概ね0.03 μm～0.4 μmであり、Greenfield Gap (GFG) とも呼ばれる。 LASER切断によって発生した微粒子の粒径は0.04 μm～10 μmの範囲であり、GFGを考慮すると、水スプレーだけで低減させることは困難 	<ul style="list-style-type: none"> 燃料デブリのLASER切断時に発生する微粒子が、HEPAフィルタで捕集しにくい粒径範囲であることを考慮すると、LASER切断オフガスを環境に放出するときは、HEPAだけではなく適切な補完設備を併用することが望ましい。 HEPAの補完設備としては、別途研究されている水スプレーの他に、TVF*¹で使用されているデミスタや電気集塵器が利用できる。 0.1 μmの粒子に対するDF*² <ul style="list-style-type: none"> 1)デミスタ 300 2)電気集塵器 電位4 kVで約250、電位55 kVで約5000 <p>(電気集塵機の電極に付着した微粒子は、電極上部からの注水によって洗浄できるので、遠隔保守性にも優れている。)</p>
<p>HEPAフィルタの捕集特性</p> <ul style="list-style-type: none"> HEPA フィルタの捕集効率は、粒子径0.1 μm付近でDFが最低値を示しており、この場合もGFG領域で効率が低い。 従って、GFG領域粒径の微粒子捕集を補助するシステムの追加が有効。 	<p>*1 : JAEA再処理工場ガラス固化処理施設 (TVF) *2 : 米谷ら、(1991) PNC TN8410 91-026</p>

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-156

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)
 - ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 P2-15
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化 P2-54
- (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発
 - ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 - ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2) P2-87
 - 1) 試験の概要
 - 2) 試験に供する模擬燃料デブリ
 - 3) 試験方法
 - 4) 切削試験結果
 - 5) 加熱試験結果
 - 6) 粒子分析結果(切削試験)
 - 7) 粒子分析結果(加熱試験)
 - 8) 分析結果のまとめ
 - 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較
 - ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 (2019～2020年度*1) P2-140
 - ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (2019～2020年度*1) P2-150
 - ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019～2020年度*1)
 - ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 P2-156
 - ②-2 液相における微粒子挙動評価 P2-166
 - ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – (2021年度*2)
 - ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 P2-178
 - ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【実施計画】

目的：

燃料デブリ取り出し作業時に発生する微粒子のエアロゾル化評価、及び輸送挙動を想定するため、気液界面における微粒子の移行率（②-1）及び微粒子の液相における沈降率（②-2）を、想定される1F環境条件下で幅広く評価する。

また、液相での評価（②-2）においては、流れ中での微粒子輸送挙動（移行距離）についても評価する。

実験方法：

燃料デブリを想定したモデル粒子を用い、現在検討されている燃料デブリ取り出し工法を踏まえたpH、電解質濃度を有する水槽において、プールスクライビング実験（②-1）、及びビーカーを用いた沈降試験（②-2）を行う。

主要成果：

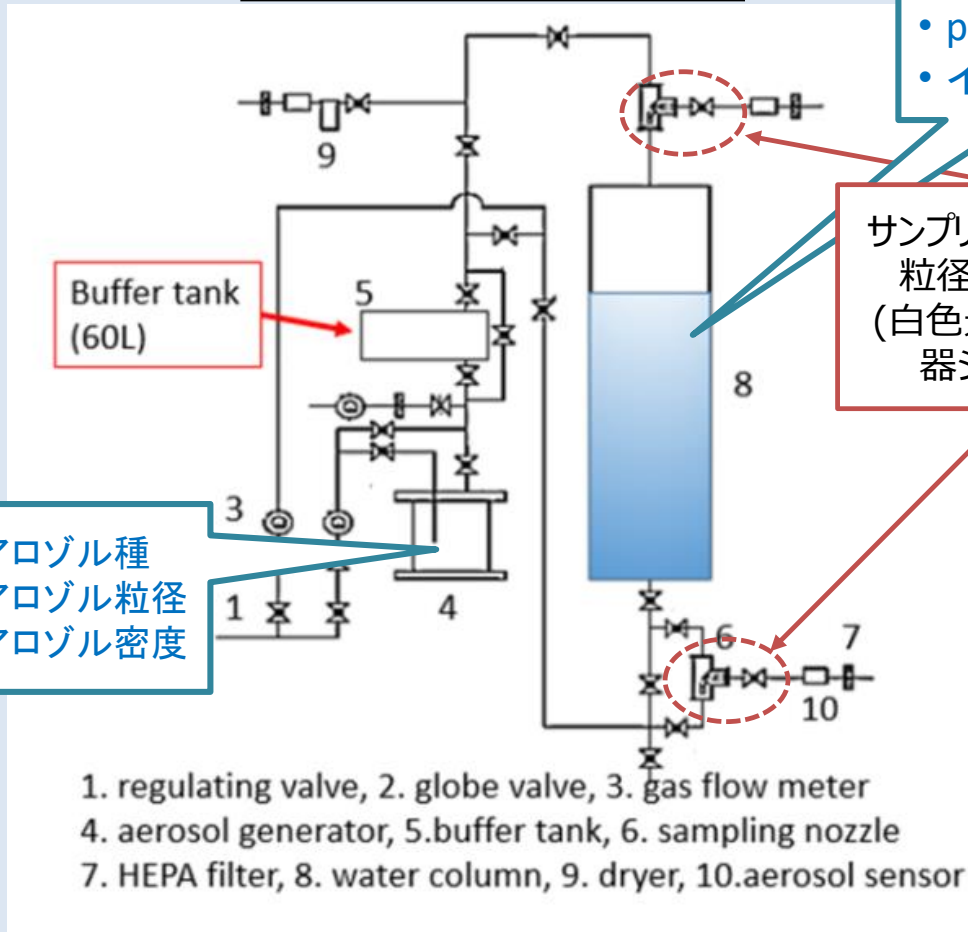
- 移行挙動を推定するための基礎試験データとして、各種条件における、粒径分布、移行率（②-1）、沈降率（②-2）の取得
- 実験データから移行挙動を推定するための評価モデル（CFDシミュレーション等）の提示

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

【実験装置概要】

エアロゾル気液移行試験装置



環境条件

- pH
- イオン強度

サンプリングノズル→
粒径分布測定
(白色光散乱分光
器システム)

- エアロゾル種
- エアロゾル粒径
- エアロゾル密度



気液界面における微粒子移行試験の例

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

【モデル粒子選定】

本研究では、被覆材、あるいは、核分裂生成物に由来し、燃料デブリを構成する元素であるZrに着目し、その酸化物である酸化ジルコニウム (ZrO_2) を採用した。また、比較のために、 ZrO_2 より、密度・硬度が小さい酸化チタン (TiO_2) も使用した。

モデル粒子の粒径としては、Porcheron ら(Porcheron et al., 2018)の気中で模擬燃料デブリのLASER切断試験で得られたエアロゾル粒子の粒径 (100、190 nm) に関する報告を参考に、粒径100 nm及び粒径200 nmの粒子を使用した。

【水質設定】

現在検討されている燃料デブリ取り出し工法を踏まえ、pH、電解質濃度を变化させた電解質溶液をプール内に作成し、スクライビング実験を行った。

バブルの影響を調べる試験では、マイクロバブルはAURS TEC製OM4-MDG-045 (加圧溶解式) を、ナノバブルはAcniti®製超微細GaLF標準-モデルFZ1N-05Sw (静的ミキサー式) を用いて水相中にバブルを発生させた。

ZrO_2	
カタログ粒径	100、200 nm
結晶相	単斜晶
密度	5.89 g/cm ³
モース硬度	6 ~ 7
融点	2,715° C
TiO_2	
カタログ粒径	100、200 nm
結晶相	正方晶ルチル型
密度	4.23 g/cm ³
モース硬度	5 ~ 66
融点	1,870° C

ケース	pH	水相組成	備考
1	7 (5.8 ⁽¹⁾)	蒸留水	標準ケース
2	4 (HCl)	蒸留水 ⁽²⁾	
3	10 (NaOH)	蒸留水 ⁽²⁾	セメントの影響
4	7	蒸留水 + 0.1 mol/L NaCl	高濃度電解質 (海水、ホウ酸水等)
5	-	蒸留水 + バブル	バブルの影響
6	-	蒸留水 + 5 wt%エタノール	表面張力の影響 ⁽³⁾

(1) 微粒子の添加によりpHが5.8に変化した。

(2) pH調整のために、イオン交換水に少量の酸、塩基試薬を添加した。

(3) 0.072 N/m (蒸留水) ⇒0.05641 N/m (エタノール添加)

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

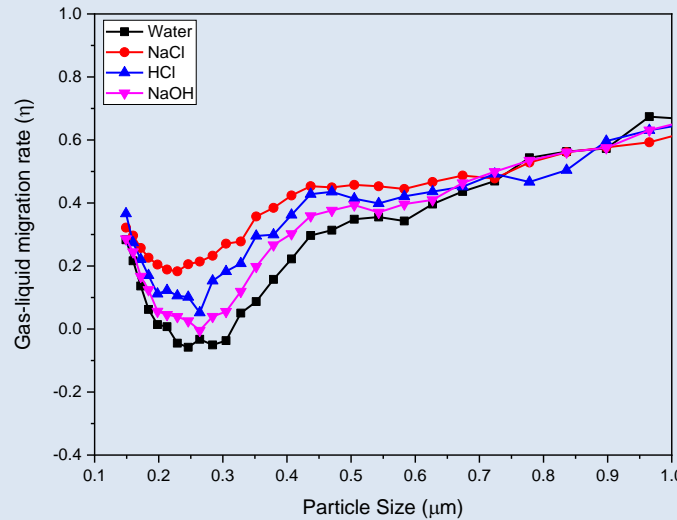
②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

【試験結果】

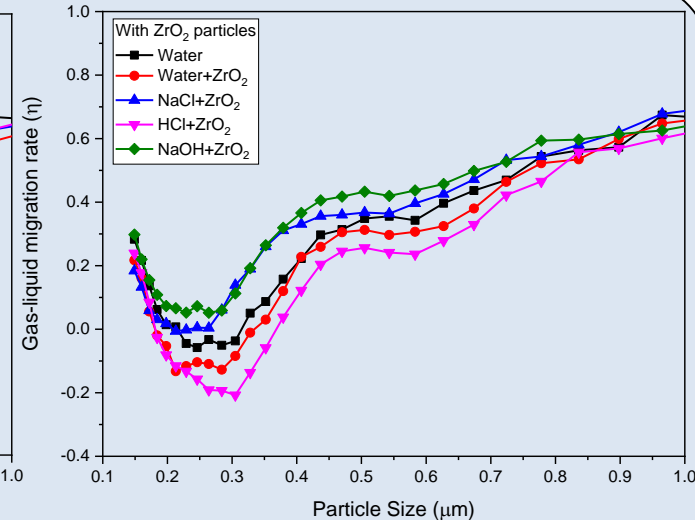
ZrO₂粒子の気液移行率のサイズ依存性

$$\text{気液移行率 } \eta_i = \frac{C_{in,i} - C_{out,i}}{C_{in,i}}$$

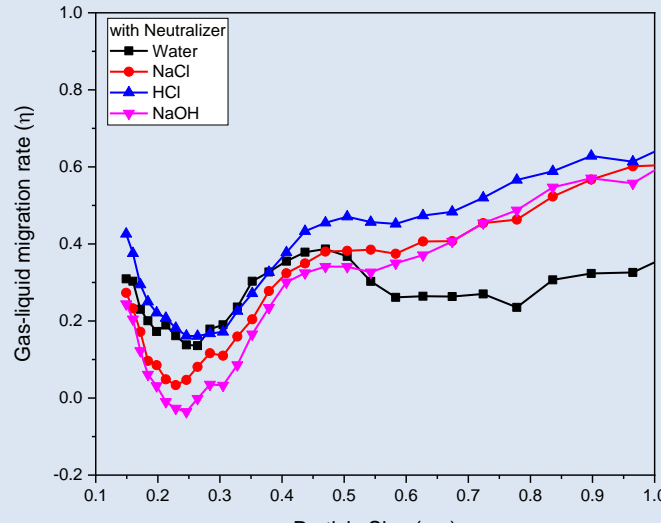
i : 粒子径パラメーター、
 η_i : 気液移行率、
 C_{in, i} : 入口での粒子濃度
 C_{out, i} : 出口での粒子濃度



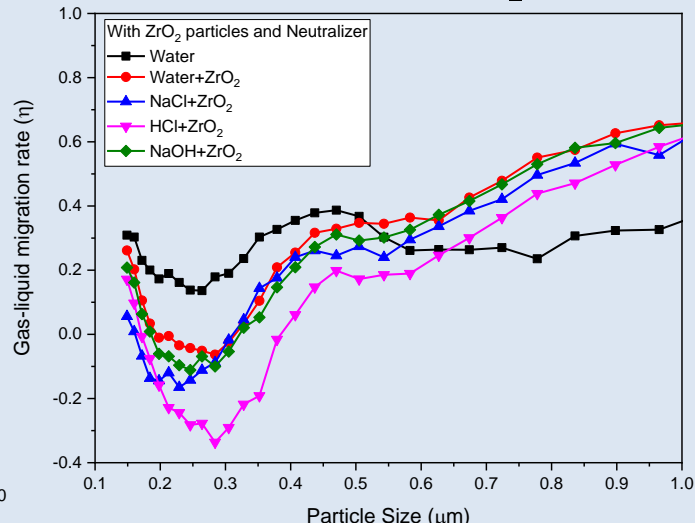
中和器注1の使用無し



中和器注1の使用無し、水相へのZrO₂粒子添加有り



中和器注1の使用有り



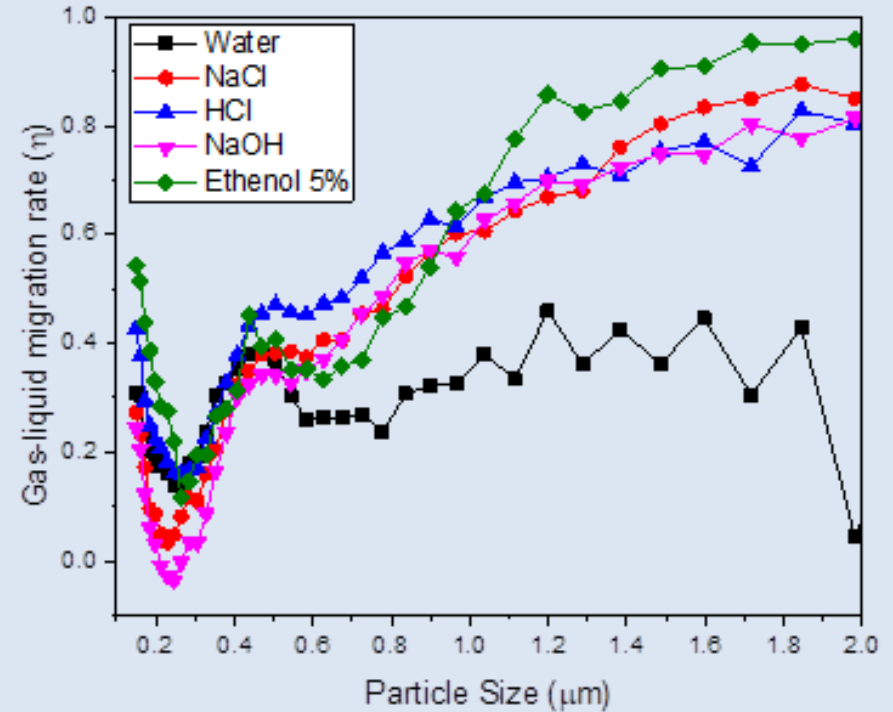
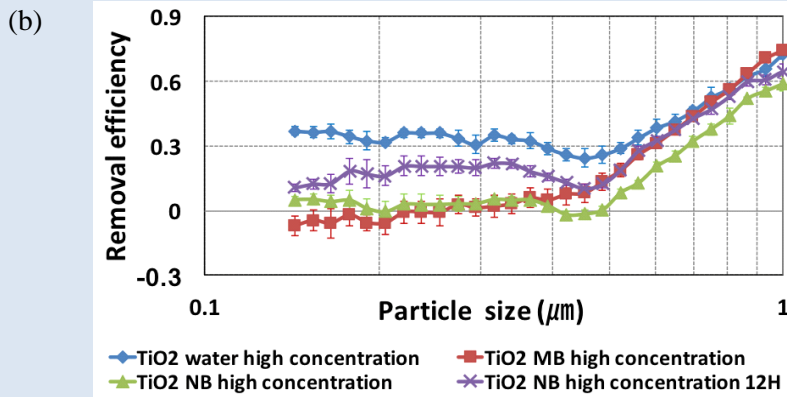
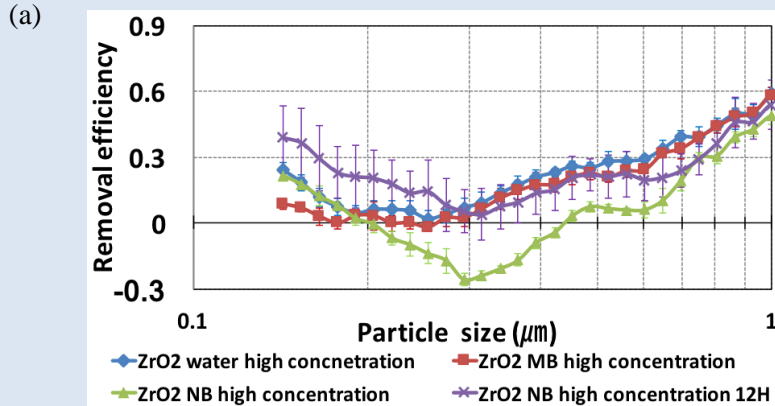
中和器注1の使用有り、水相へのZrO₂粒子添加有り

注1 : 中和器としてバイポーラコロナ放電型中和器を使用し微粒子の電荷を中和した。

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

【試験結果】



ZrO₂粒子とTiO₂粒子の気液移行率のサイズ依存性に対する
 気泡影響（中和器の使用無し、水相へのZrO₂粒子添加無し）：
 (a) ZrO₂粒子、(b) TiO₂粒子。

粒径200 nmのZrO₂粒子の気液移行率の比較

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

【試験結果のまとめ】

水相条件等	移行率の違い
全体的傾向：ZrO ₂	0.2 μmから0.3 μmのサイズ範囲で移行率が最小
全体的傾向：TiO ₂	0.15 μm～0.5 μmのサイズ域でフラット、且つ、0.6 μm以上でサイズに対して単調増加
予めZrO ₂ 粒子を水相に分散	イオン交換水を除き、全サイズ域で移行率を増加させる傾向はない
水相の気泡	ナノバブルでは、移行率が全サイズ域によって減少 マイクロバブルでは、0.5 μm以下のサイズ域で移行率が低下
中和器	HCl添加の場合は、他の液相条件と比べて移行率が大きくなる傾向
エタノールの添加	移行率が全サイズ域で増加。特に、イオン交換水に対し、最大で4割程度増加。特にその傾向は0.6 μm以上の比較的大きなサイズ域で顕著。

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

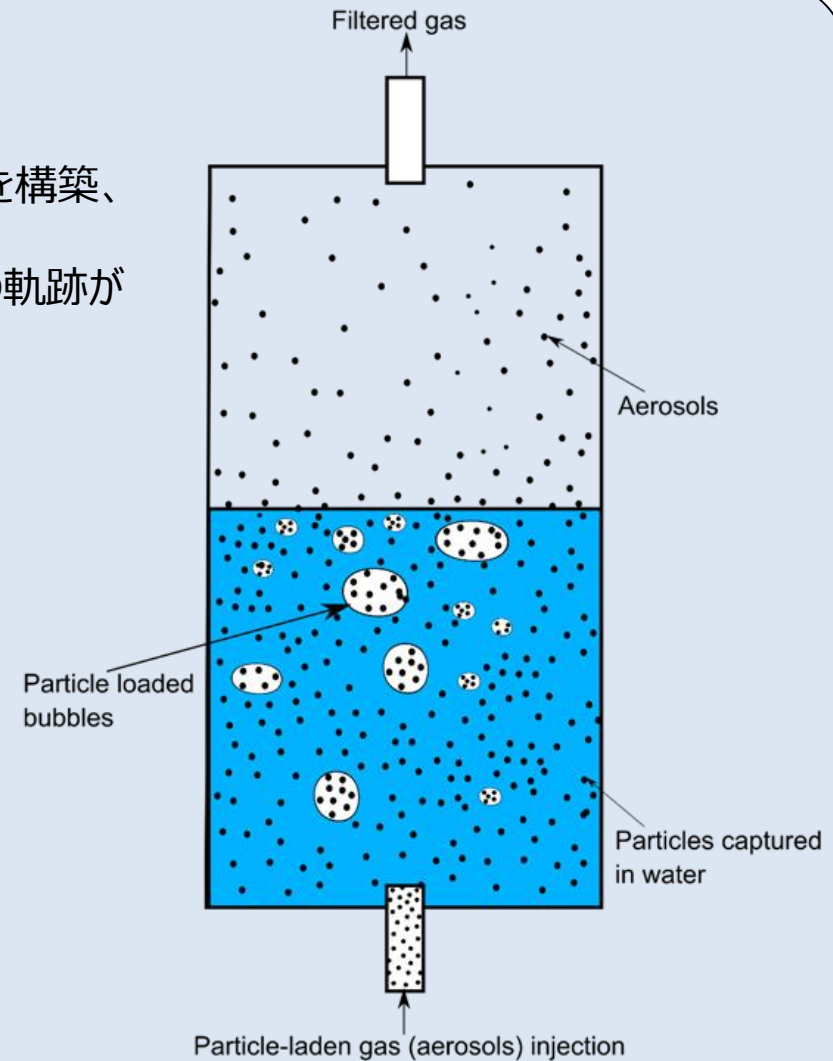
【CFDシミュレーション】

Star-CCM+を用いたCFDシミュレーション

- Volume of Fluid (VOF)-Lagrangian法を使用してソルバーを構築、
- オイラーの連続方程式が流体相に対して解かれ、
- ニュートンの運動方程式が粒子相に対して解かれ、個々の粒子の軌跡が決定される。

Star-CCM+を用いたCFDシミュレーションのパラメータ

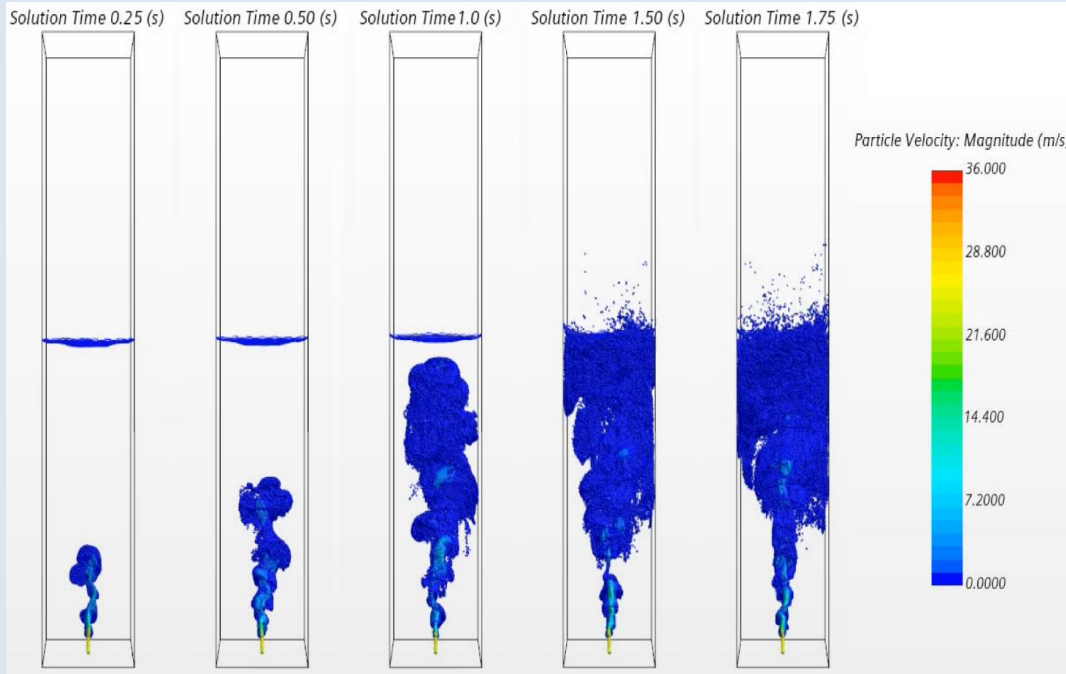
Parameter	Value
粒子濃度	10^5 粒子/mL
粒子密度	1 g/cm^3 ; 5.86 g/cm^3
入口での気相速度	22.55 m/s
粒子径	$1 \mu\text{m}$; $0.5 \mu\text{m}$
表面張力	0.072 N/m ; 0.05641 N/m
計算体系	$200 \times 200 \times 1100 \text{ mm}^3$ (水柱高さは 550 mm)
ノズル半径	4.85 mm (試験で使用した 0.7 mm 径の 48 穴のノズルと等価)



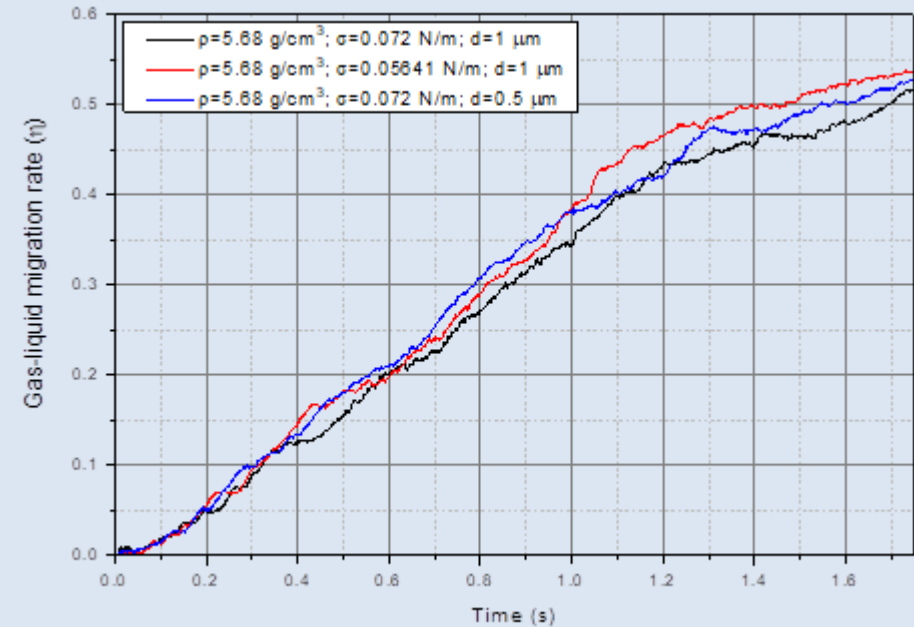
(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

【CFDシミュレーション】



異なる時間における粒子速度のカラーマップ



異なる粒子径、表面張力を用いた高さ0.55 mの水柱での粒子移行率の時間変化

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-1. 気相・気液界面における微粒子挙動評価

【CFDシミュレーション結果のまとめ】

試験条件等	シミュレーション結果
結果の概要	全てのケースで、移行率の計算結果が0.5を超えており、試験結果と一致した結果が得られた。
表面張力の模擬	エタノールの添加を模擬した、より低い表面張力でのシミュレーション結果は比較的大きな気液移行率を示しており、試験結果と対応する結果が得られた。
水相から直接気相に移行する粒子の寄与	水相から気相に輸送される微粒子の大部分が気泡を介しての輸送によるもので、水相から直接気相に移行する粒子の寄与は小さい(0.42%)

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-166

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)
 - ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 P2-15
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化 P2-54
- (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発
 - ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 - ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2) P2-87
 - 1) 試験の概要
 - 2) 試験に供する模擬燃料デブリ
 - 3) 試験方法
 - 4) 切削試験結果
 - 5) 加熱試験結果
 - 6) 粒子分析結果(切削試験)
 - 7) 粒子分析結果(加熱試験)
 - 8) 分析結果のまとめ
 - 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較
 - ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 (2019～2020年度*1) P2-140
 - ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (2019～2020年度*1) P2-150
 - ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019～2020年度*1)
 - ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 P2-156
 - ②-2 液相における微粒子挙動評価 P2-166
 - ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – (2021年度*2)
 - ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 P2-178
 - ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【実験装置概要】

沈降試験方法：

- ・250 mLのビーカーに濃度1 g/Lの微粒子を分散
- ・試験期間：ZrO₂：2週間、TiO₂：2時間
- ・サンプリング位置：
 - 水面から2 mmと50 mmの2箇所を複数回
- ・サンプル中の粒子濃度測定：紫外可視吸光光度計
(島津製作所社製UV-2700)
- ・試料中の沈降していない粒子の平均濃度 (C*)：

$$C^* = \frac{C_1(h_{total} - h_z) + C_2 h_z}{h_{total}}$$

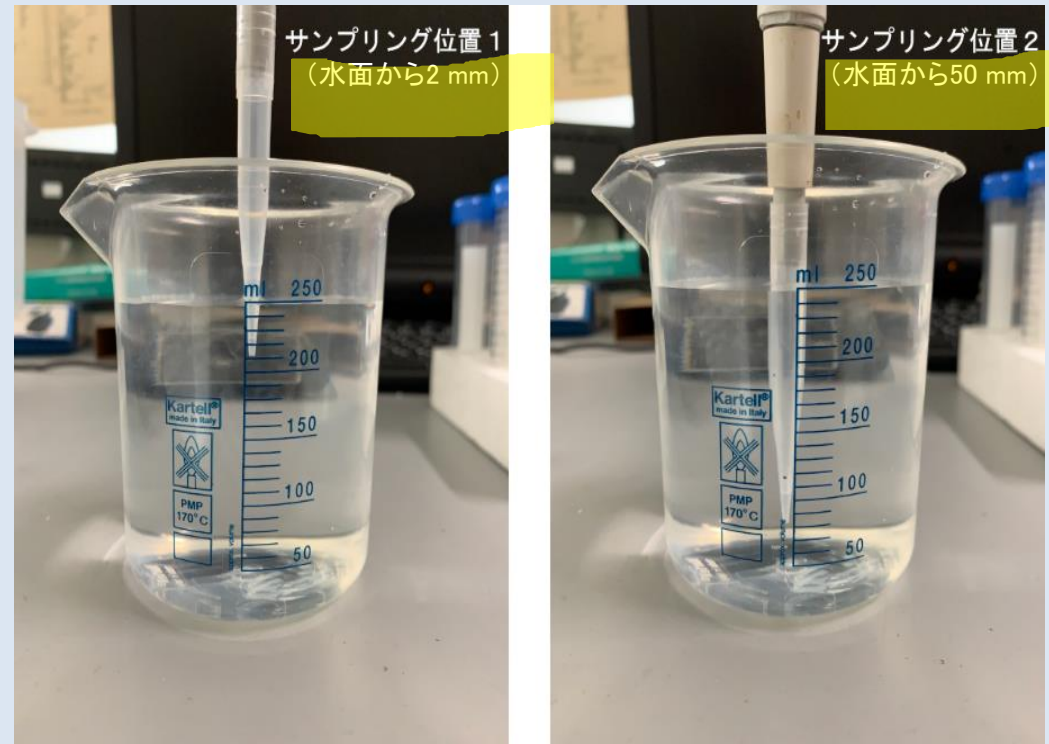
C₁、C₂：サンプリング位置1 (水面から2 mm) 及び
位置2 (同じく50 mm) における粒子濃度

h_z：位置2の高さ (= 20 mm)

h_{total}：全試料高さ (= 70 mm)

・沈降率φ_t (%)

$$\varphi_t = \frac{C^*}{C_0} \times 100$$



沈降試験状況とサンプリング状況

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【モデル粒子選定（②-1と同様）】

本研究では、被覆材、あるいは、核分裂生成物に由来し、燃料デブリを構成する元素であるZrに着目し、その酸化物である酸化ジルコニウム (ZrO_2) を採用した。また、比較のために、 ZrO_2 より、密度・硬度が小さい二酸化チタン (TiO_2) も使用した。

モデル粒子の粒径としては、Porcheron ら(Porcheron et al., 2018)の気中で模擬燃料デブリのLASER切断試験で得られたエアロゾル粒子の粒径 (100、190 nm) に関する報告を参考にした。

【水質設定】

現在検討されている燃料デブリ取り出し工法を踏まえ、pH、電解質濃度を変化させた電解質溶液にモデル粒子を分散させた。

ケース No.	pH	電解質濃度	気泡影響 (ナノバブル添加)
1	7 (5.8 ⁽¹⁾)	イオン交換水	無し
2	4 (HNO_3)	イオン交換水 ⁽²⁾	無し
3	10 ($NaOH$)	イオン交換水 ⁽²⁾	無し
4	7	0.1 mol/l $NaNO_3$	無し
5	調整なし	イオン交換水	有り

(1) 微粒子の添加によりpHが5.8に変化した。

(2) pH調整のために、イオン交換水に少量の酸、塩基試薬を添加した。

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【試験結果】



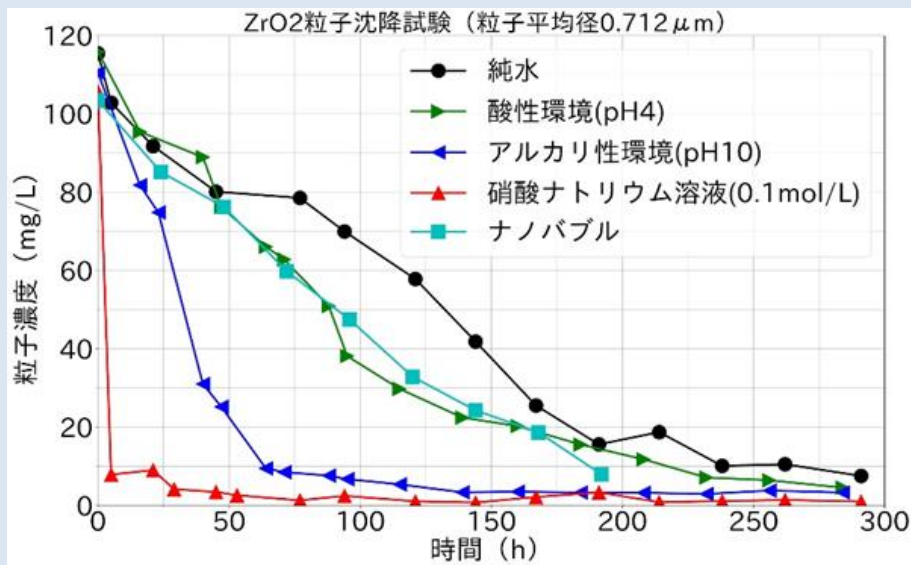
ケース 1及び4の沈降試験におけるサンプルの経時変化

- ・各写真において、左ビーカーがケース 1、右ビーカーがケース 4に対応。
- ・各写真下部の秒数は、沈降試験開始後の経過時間。

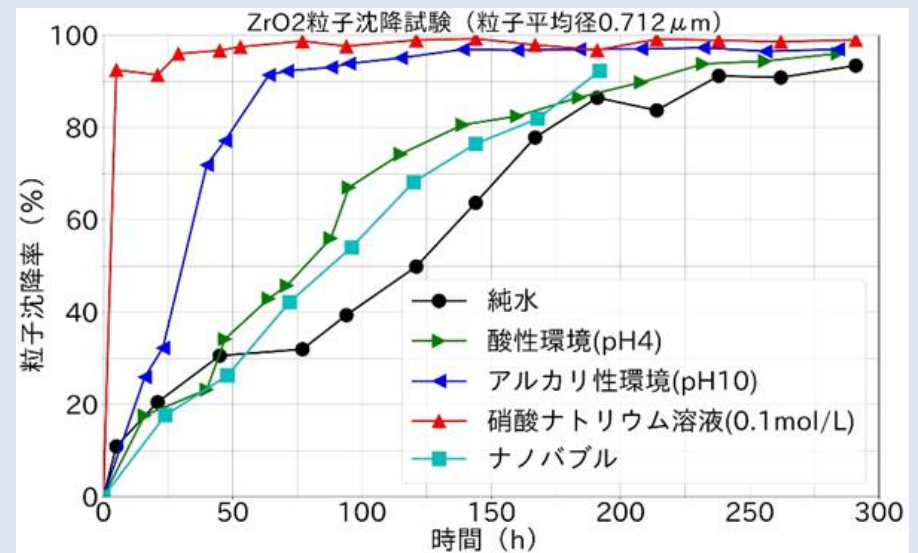
(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【試験結果】



異なる水質条件でのZrO₂粒子沈降試験における液相濃度の時間変化

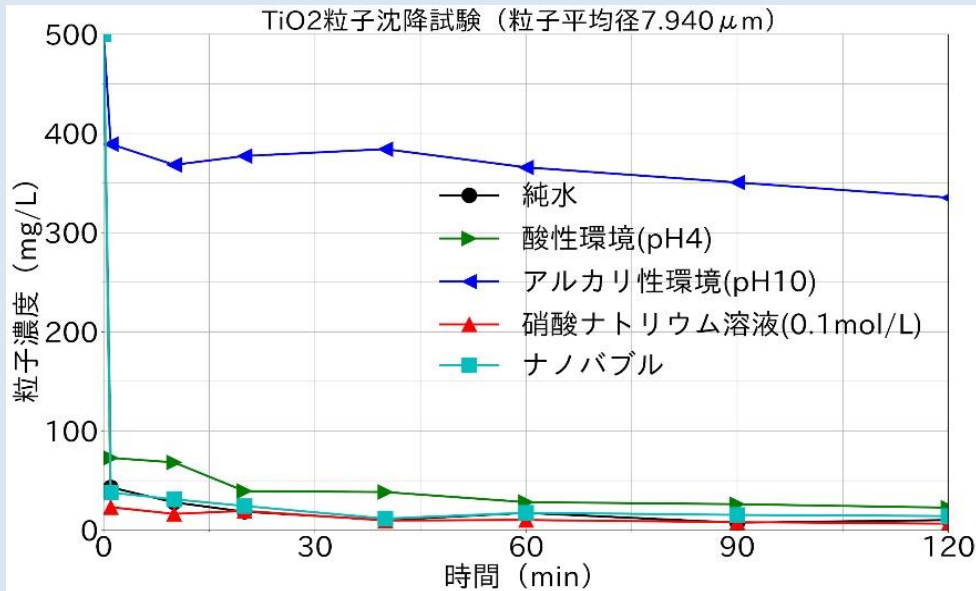


異なる水質条件でのZrO₂粒子沈降試験における液相濃度の時間変化

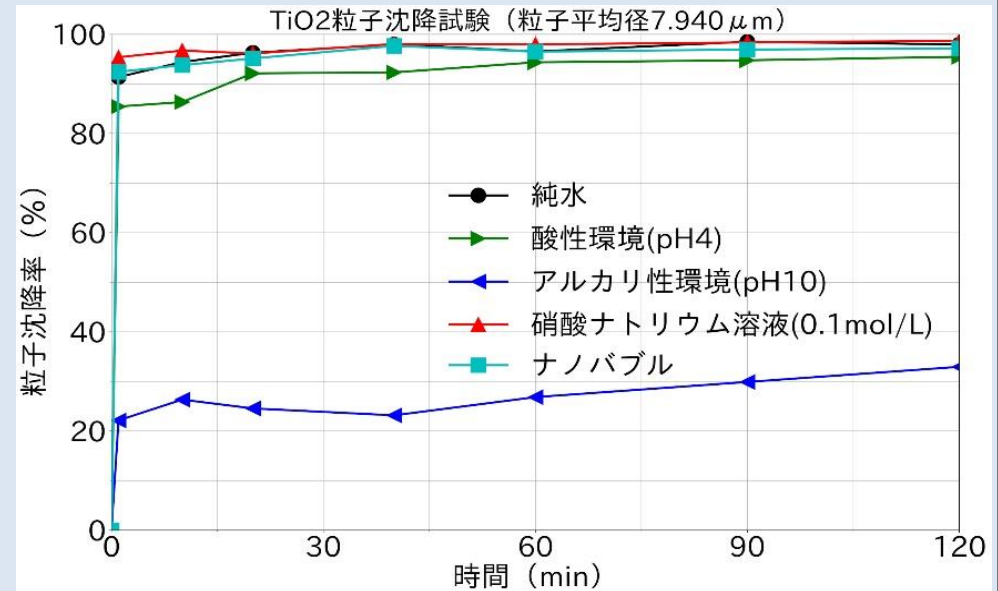
(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【実験装置概要】



異なる水質条件でのTiO₂粒子沈降試験における液相濃度の時間変化



異なる水質条件でのTiO₂粒子沈降率の時間変化

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【試験結果のまとめ】

水相条件等	移行率の違い
全体的傾向：ZrO ₂	ZrO ₂ 粒子沈降は水相の条件に大きく依存する。 イオン交換水に分散させたZrO ₂ 微粒子は粒子間の静電的な反発のため安定で、2週間の試験期間では完全には沈降せず、90%程度の沈降率に留まった。
全体的傾向：TiO ₂	pH 10（条件3）の場合を除いて、全ての条件で沈降率は1分以内に約80%に達した。
pHや電解質濃度	pHや電解質濃度は沈降挙動に大きな影響を与え、特に、0.1 M NaNO ₃ 存在下では、体系上部でのサンプリング位置において、実験開始から5時間後には90%以上の沈降率に到達し、50時間経過後には100%沈降率、つまり、沈降が完了していた。

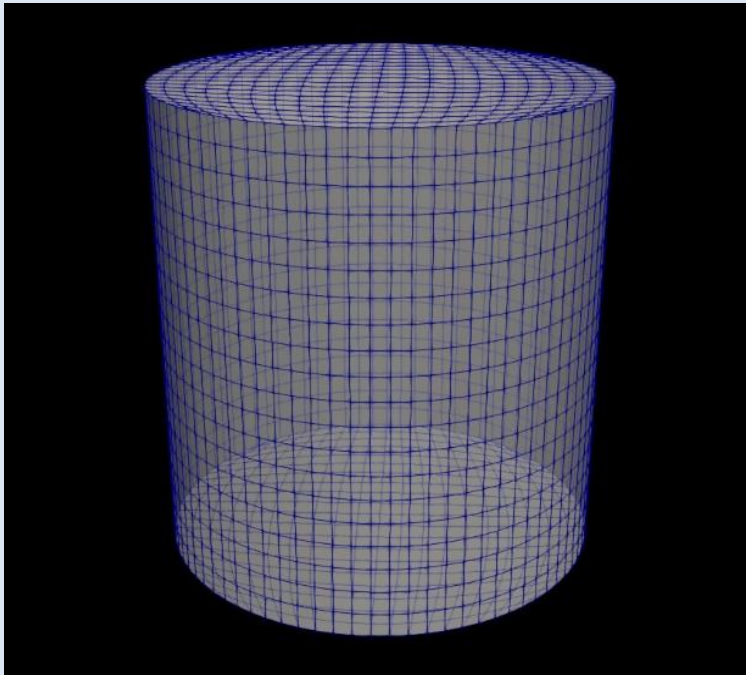
(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

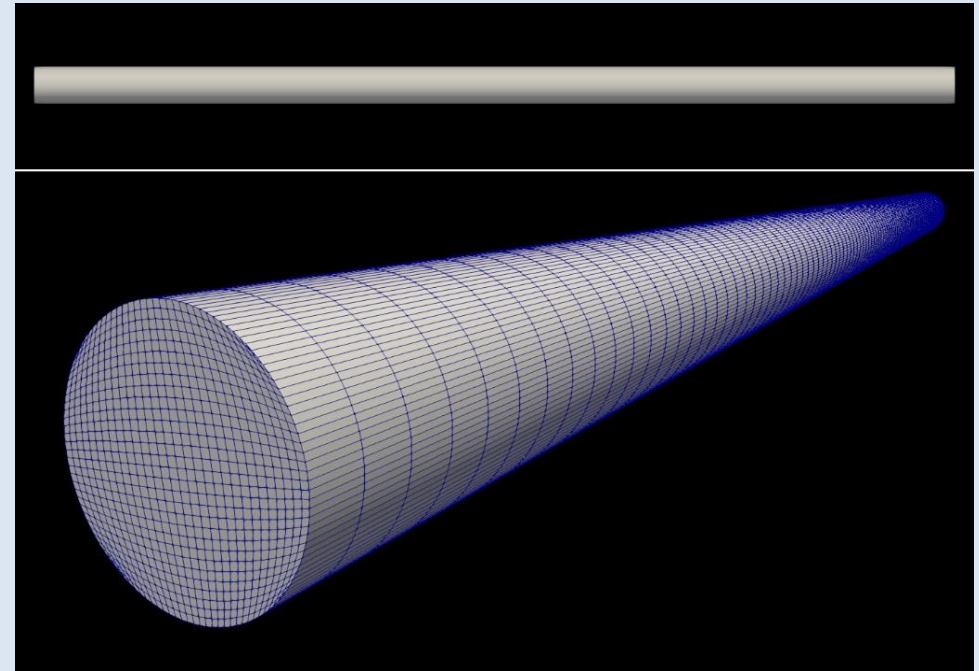
【CFDシミュレーション】

OpenFOAMを用いたCFDシミュレーションの概要

- ・モデリングには、OpenFOAMソルバーMPPICFoamを使用
- ・MP-PIC法（MultiPhase Particle-In-Cell法）：
高密度粒子流の数値オイラー/ラグランジュモデリング手法



微粒子沈降挙動シミュレーションの計算体系とメッシュ分割



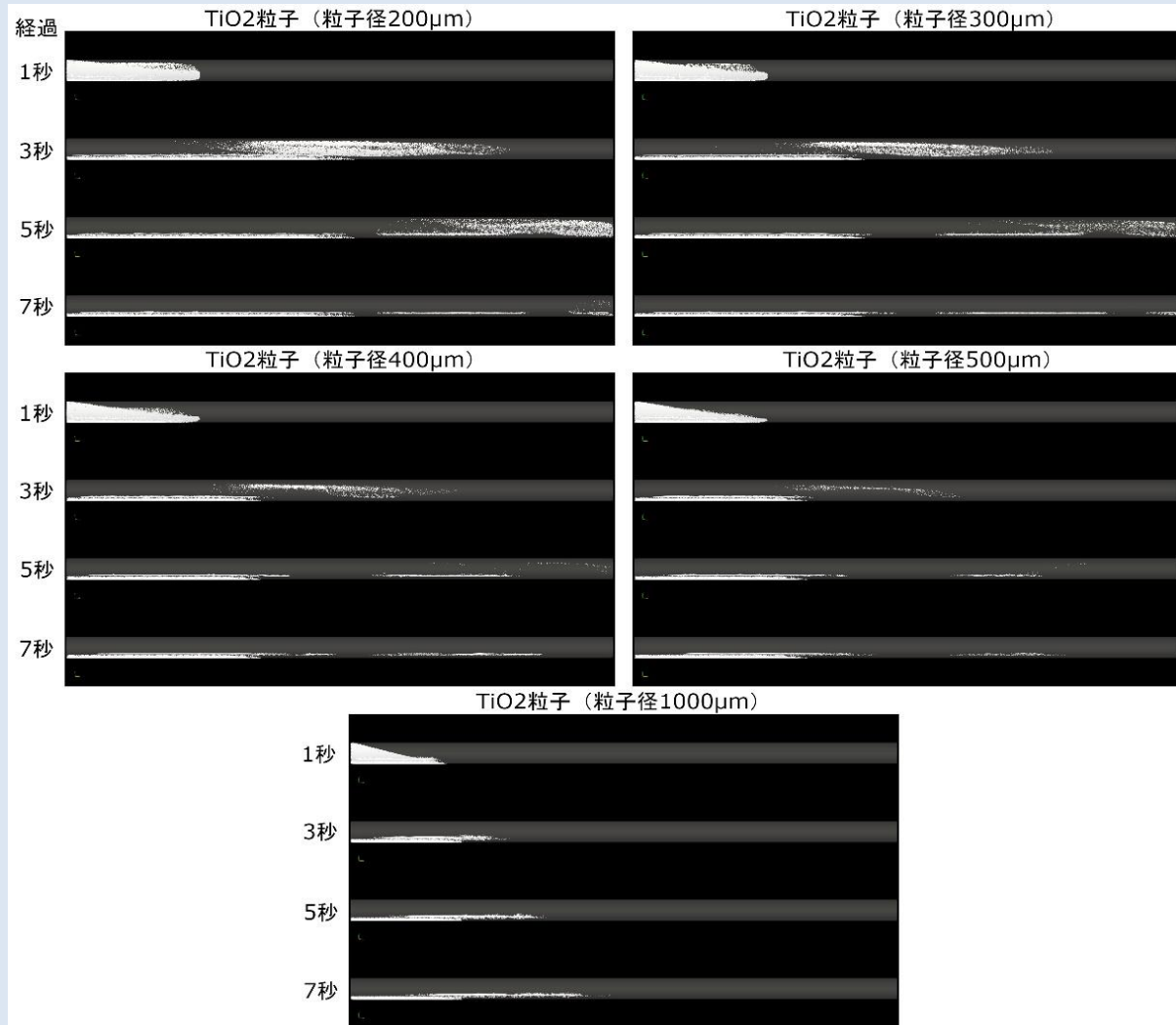
微粒子沈降挙動シミュレーションの計算体系（上）とメッシュ分割（下）

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【CFDシミュレーション結果】

円管内微粒子輸送シミュレーション結果のイメージ



3、5、7秒後の異なる粒子径（200、300、400、500、1000 μm）のTiO₂を表すパーセルの分布（流体速度1 m/s）

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【CFD シミュレーション結果】

円管内微粒子輸送シミュレーションにおける粒子移行率と移行距離(流速1 m/s)

粒子種と径	粒子移行率 (%) ⁽¹⁾			移行距離 (m) ⁽²⁾
	5秒後	10秒後	15秒後	
ZrO ₂ (MD 0.712 μm)	34.2	89.7	90.1	n/a
TiO ₂ (MD 7.940 μm)	35.9	88.0	88.6	n/a
TiO ₂ (1μm)	31.3	91.5	91.8	n/a
TiO ₂ (10μm)	36.1	89.0	89.5	n/a
TiO ₂ (50μm)	33.7	80.4	80.4	n/a
TiO ₂ (100μm)	27.0	60.7	60.8	n/a
TiO ₂ (200μm)	13.5	26.6	26.8	n/a
TiO ₂ (300μm)	3.9	7.7	7.7	3.9983
TiO ₂ (400μm)	0.2	0.4	1.2	1.6761
TiO ₂ (500μm)	0	0	0%	1.4552
TiO ₂ (1000μm)	0	0	0%	1.3984

(1) 5 mの円管流路を通過した粒子の割合。

(2) 計算開始から7秒後における90%の粒子が到達した距離。n/aは90%以上の粒子が管を通過した場合に相当する。

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【CFDシミュレーション結果】

円管内微粒子輸送シミュレーションにおける粒子移行率と移行距離（流速0.5 m/s）

粒子種と径	粒子移行率 (%) ⁽¹⁾			移行距離 (m) (2)
	10秒後	20秒後	30秒後	
ZrO ₂ (MD 0.712μm)	45.1	79.0	79.1	n/a
TiO ₂ (MD 7.940μm)	42.1	74.9	75.2	n/a
TiO ₂ (1μm)	60.3	82.5	82.6	n/a
TiO ₂ (10μm)	41.6	75.7	76.2	n/a
TiO ₂ (50μm)	36.2	65.8	66.1	n/a
TiO ₂ (100μm)	26.6	41.1	41.6	n/a
TiO ₂ (500μm)	0	0	0	1.0456
TiO ₂ (1000μm)	0	0	0	1.2498

(1) 5 mの円管流路を通過した粒子の割合。

(2) 計算開始から7秒後における90%の粒子が到達した距離。n/aは90%以上の粒子が管を通過した場合に相当する。

(2) ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

②-2. 液相における微粒子挙動評価

【CFDシミュレーション結果のまとめ】

水相条件等	シミュレーション結果
沈降試験体系での適用性確認	<p>沈降試験と同様のサイズ分布、濃度を有する粒子を用い、同じ体系でシミュレーションを行ったところ、TiO₂粒子の場合は、実験と同等の早い沈降が再現できた。</p> <p>粒径の小さなZrO₂粒子の場合は、沈降率を過大評価しており、粒子間の静電反発による粒子分散構造の安定化の影響が示唆された。</p> <p>ただ、MP-PICシミュレーションにおいて、粒子間の静電的相互作用を導入することは、計算機時間の観点で困難であり、効率的かつ適切な計算方法を実現するための研究が望まれる。</p>
円管体系における粒子の輸送挙動	<p>1 m/sの流速で、大部分の粒子が流れとともに配管を通過しており、9秒時点での粒子移行率はほぼ90%近い。1 m/sの流体速度では、10 μm程度までの粒子において、重力の影響が無視でき、粒子径がそれ以上大きくなると、輸送中に重力によって沈降し、管の底面に付着した粒子が現れ、数百 μm以上では、移行率がさらに減少し、5 mの円管を通過できる粒子の量が少なくなることが分かった。</p>

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

2-178

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)
- ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 P2-15
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化 P2-54
- (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発
- ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 - ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2) P2-87
 - 1) 試験の概要
 - 2) 試験に供する模擬燃料デブリ
 - 3) 試験方法
 - 4) 切削試験結果
 - 5) 加熱試験結果
 - 6) 粒子分析結果(切削試験)
 - 7) 粒子分析結果(加熱試験)
 - 8) 分析結果のまとめ
 - 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較
 - ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 (2019～2020年度*1) P2-140
 - ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (2019～2020年度*1) P2-150
 - ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019～2020年度*1)
 - ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 P2-156
 - ②-2 液相における微粒子挙動評価 P2-166
 - ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – (2021年度*2)
 - ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 P2-178
 - ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

* 2:本報告の主な報告事項

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ

－燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価－

概要：

本事業では、ウラン等を含有した模擬燃料デブリを用い、加熱法並びに機械的切削法により生成した微粒子を捕集・分析することにより、気相における放射性微粒子の生成・移行挙動に関する情報を取得してきた。また、これらを補完するため、プルトニウムの帯同性に着目した基礎試験や、国内外における放射性微粒子の飛散事例の調査も実施してきた。

ここでは、P87にも図示したように、燃料デブリ取り出しシステムへの影響の評価・検討として、上述の取得情報に基づき、燃料デブリ由来のエアロゾル(ダスト)の飛散抑制や閉じ込め設計を行う上でのインプット情報を提供する観点で、1Fの燃料デブリの取り出し時に生成する微粒子による放射能および吸入時被ばくについて検討を行う。

また、燃料デブリの取り出し方法の一つとして、LASERによる水中切断が考えられており、この時、切断によって生ずるエアロゾルが気相と液相の間でどのような移行挙動を示すかについて、本事業では、2021年度までZrO₂等の標準試料微粉末を用いたスクラビング試験を実施し、その結果に基づきSTAR-CCM+を用いたCFDシミュレーションを実施してきた。

この技術は、燃料デブリ取り出し時の条件により近い微粒子に適用することが重要であることから、2022年度に取得したU含有燃料デブリの生成挙動データに本シミュレーションを適用し、気液移行率の推定を試みる。

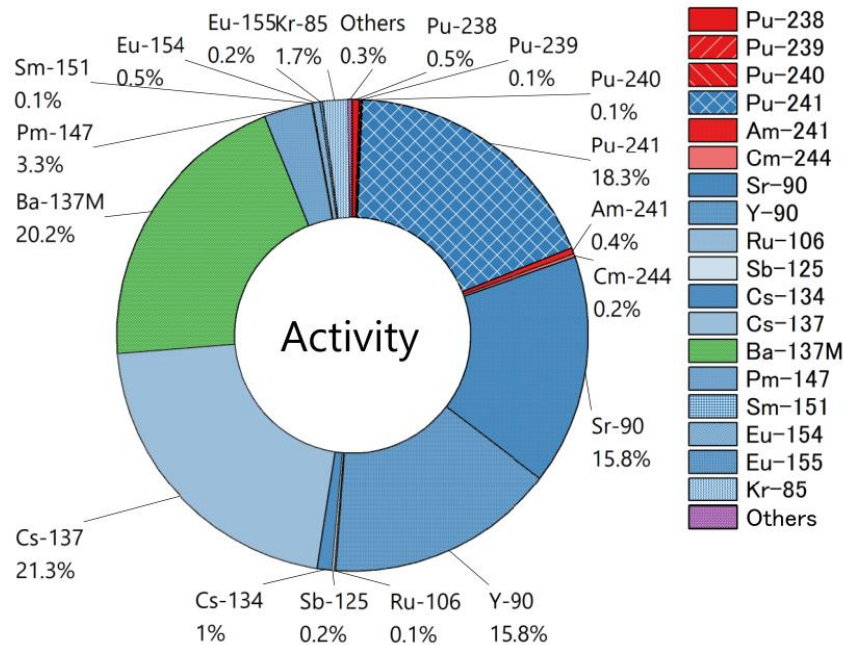
- ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討
- ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率（シミュレーションによる予測）

U含有模擬燃料デブリを用いたVITAE加熱試験は、過去に行われたHf含有模擬燃料デブリのLASER切断試験の模擬として実施されたものである。本タスクの最終目標はU含有模擬燃料デブリのLASER切断によるエアロゾル生成挙動を推定することであるため、以下の手順でU含有模擬燃料デブリの気相中LASER切断によるエアロゾル組成や放射能を推定した。合わせて、機械切削についても同様の検討を実施した。

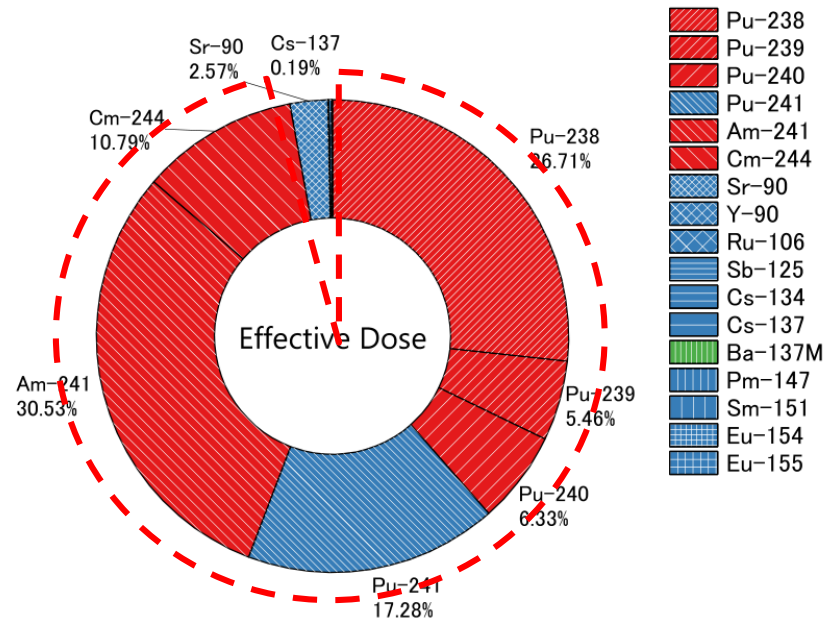
- ・ VITAE加熱試験で発生した**エアロゾル組成**を**仕込み組成**と比較し、「**エアロゾル組成/仕込み組成**」や「**試料間でのエアロゾル組成の比**」等の利用可能性を検討する。
- ・ 特に被ばく評価上重要な**U/Hf**や**Ce**(Puの模擬)に着目して、加熱試験結果を基にLASER切断時のエアロゾル組成を補正する方法を検討する。
- ・ U/HfやCe(Puの模擬)の組成比の考察を基に、**加熱試験**の結果からU含有模擬燃料デブリの**LASER切断**によるエアロゾル組成や放射能を推定。試験的に吸入時の実効線量率のソースタームを推定。
- ・ 機械切削試験については、本試験結果を基に放射能や実効線量率のソースタームを推定。(LASER切断・機械切削の比較を行う上での注意点を併記。)

**【VITAE加熱試験結果を基にLASER切断時のエアロゾル組成を補正する方法の検討】
- U/Hf及びCe(Puの模擬)に着目する根拠 -**

【1F-U2事故後10年経過時の「放射能」インベントリの構成比】
(西原、2012*1より計算)



【1F-U2事故後10年経過時の「吸入時の実効線量」の構成比】
(坪田、2022*2)



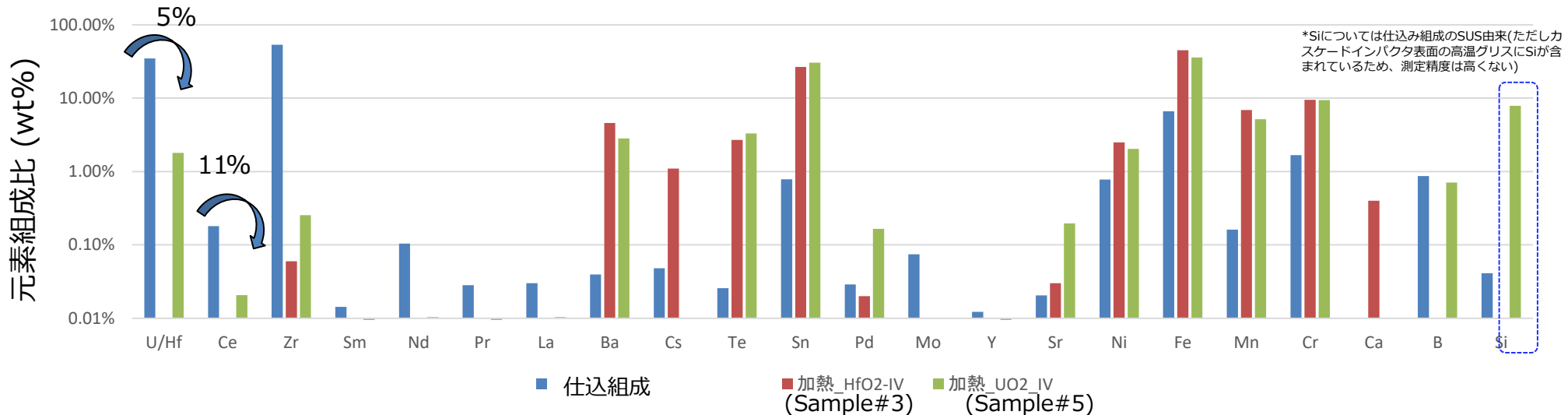
【エアロゾル吸入による内部被ばくに着目】

- ・ 吸入時の実効線量は、Pu、Am、Cmによるものが大半(～97%)。
- ・ U/Hf(U、Am、Cmの模擬)及び Ce(Puの模擬)に着目することで吸入時の実効線量の大半を説明可能

*1 K. Nishihara et al, JAEA-Data/Code 2012-018.

*2 Y.Tsubota et al, NIM-A, 1030 (2022) 166475.

【VITAE加熱試験におけるエアロゾル組成(In-Vessel) の比較】

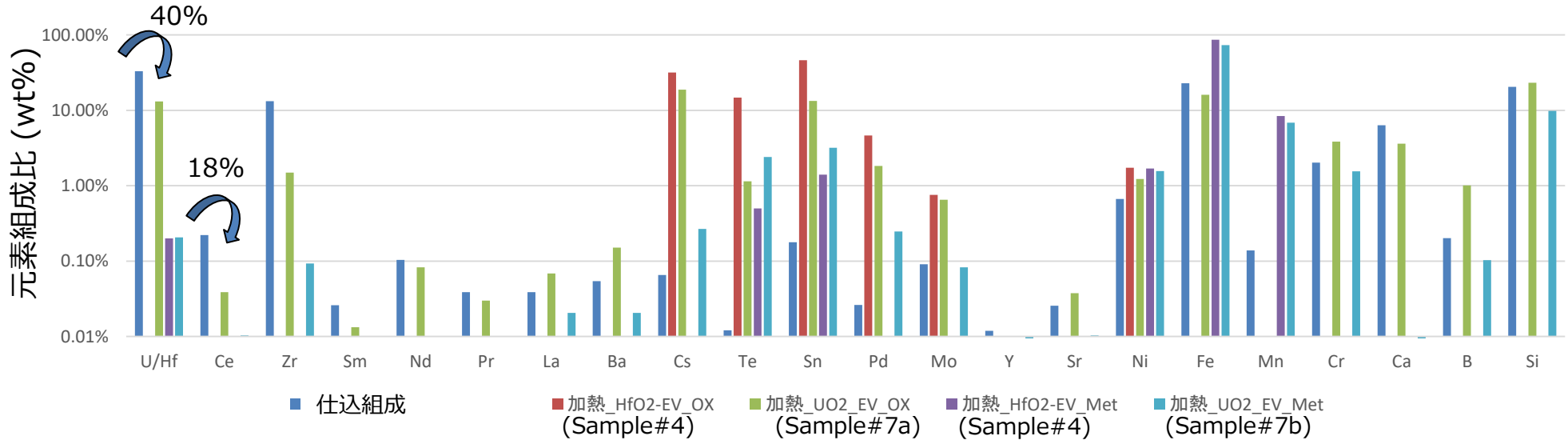


- U/Hf: UO₂模擬燃料デブリではU検出(仕込み組成の5%)、HfO₂模擬燃料デブリでは**Hf不検出**。
- Ce(Puの模擬): UO₂模擬燃料デブリではCe検出(仕込み組成の11%)、HfO₂模擬燃料デブリでは**Ce不検出**。
- その他: Zrについて、UO₂模擬燃料デブリでは仕込み組成の0.5%検出、HfO₂模擬燃料デブリでは仕込み組成の0.1%検出。
CsはHfO₂模擬燃料デブリでのみ検出。仕込み組成よりもエアロゾルの方が高割合。

【UとCeに着目】

In-Vessel: UO₂ / HfO₂模擬燃料デブリのエアロゾル組成間での比をとることが困難

【VITAE加熱試験におけるエアロゾル組成 (Ex-Vessel) の比較】



U/Hf: **UO₂模擬燃料デブリではU検出**(特に酸化物試料では仕込み組成の40%)、**HfO₂模擬燃料デブリ(酸化物)ではHf不検出**。金属相の試料の加熱時にはU/Hfともに検出、ともに仕込み組成の0.5%程度。

Ce(Puの模擬): **UO₂模擬燃料デブリではCe検出**(仕込み組成の18%)、**HfO₂模擬燃料デブリではCe不検出**。

その他: Zrに関し、UO₂模擬燃料デブリでは、仕込み組成の最大11%検出(酸化物試料)。HfO₂模擬燃料デブリでは不検出。Csに関し、HfO₂模擬燃料デブリ(金属相)では不検出。それ以外では仕込み組成よりもエアロゾルの方が高割合。

【UとCeに着目】

Ex-Vessel: UO₂ / HfO₂ 模擬燃料デブリのエアロゾル組成間での比をとることが困難

【VITAE加熱試験結果を基にUO₂模擬燃料デブリのLASER切断時のエアロゾル組成を補正する方法の検討】

【In-Vessel模擬燃料デブリのVITAE加熱試験結果】

U/Hf: UO₂模擬燃料デブリではU検出(仕込み組成比5%)、HfO₂模擬燃料デブリではHf不検出。
Ce(Puの模擬): UO₂模擬燃料デブリではCe検出(仕込み組成比11%)、HfO₂模擬燃料デブリではCe不検出。

【Ex-Vessel模擬燃料デブリのVITAE加熱試験結果】

U/Hf: UO₂模擬燃料デブリではU検出(特に酸化物試料では仕込み組成の40%)、HfO₂模擬燃料デブリ(酸化物)ではHf不検出。金属相の試料の加熱時にはU/Hfともに検出、ともに仕込み組成の0.5%程度。
Ce(Puの模擬): UO₂模擬燃料デブリではCe検出(仕込み組成比18%)、HfO₂模擬燃料デブリではCe不検出。

【HfO₂模擬燃料デブリのLASER切断試験のエアロゾル組成をVITAE加熱試験結果から補正】

A. LASER切断のHf量からU量推定について：

- ・UO₂模擬燃料デブリの加熱試験におけるUの元素放出率(エアロゾル組成/仕込み組成)の比をとり、HfO₂模擬燃料デブリのLASER切断におけるHfからU量を補正計算することで、被ばく評価上「安全側」の評価が可能。(Ex-Vesselについてはエアロゾル中のU量が最も高い、UO₂-Ex-Vessel-Oxideの比を用いる。)

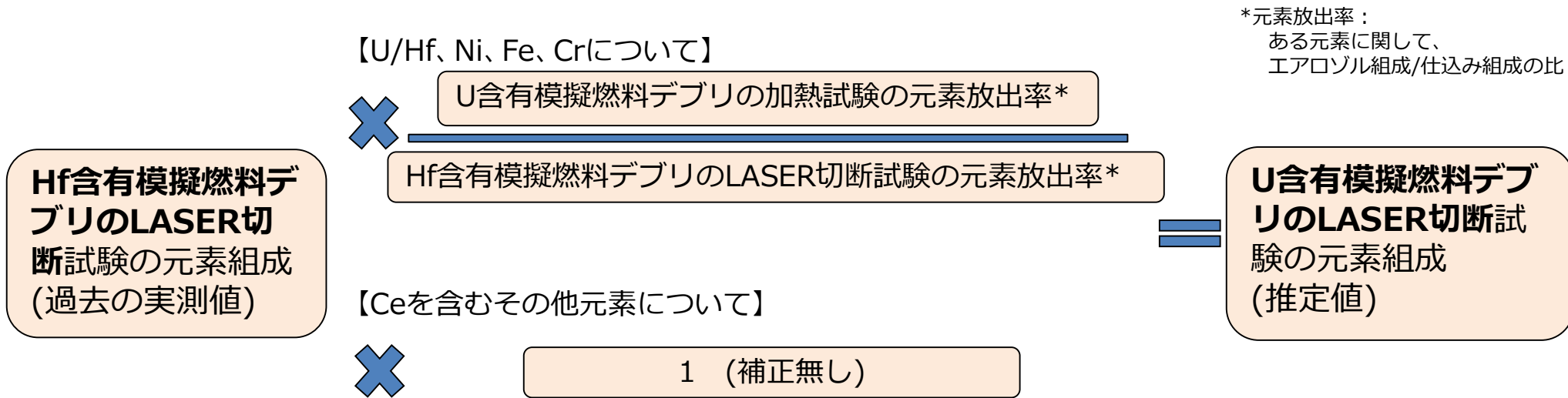
B. LASER切断のCe量推定について：

- ・Ceの元素放出率(エアロゾル組成/仕込み組成)に着目すると、LASER切断試験(最大75%、文献値*1) > 加熱試験(最大18%)であるため、過去のLASER切断の放出率をそのまま採用するのが「安全側」の評価である。

*1 C. Dazon, et.al., J. Environ. Chem. Eng. 8 (2020) 103872.

補足：U含有模擬燃料デブリのLASER切断時のU量・Pu(Ce)発生量の推定においては、VITAE加熱試験データのばらつきを考慮し、空气中濃度や放射能等の量的な解釈を行う上で最大限安全側となるよう評価した。

【U含有模擬燃料デブリのLASER切断によるエアロゾル組成を推定する方法の提案】



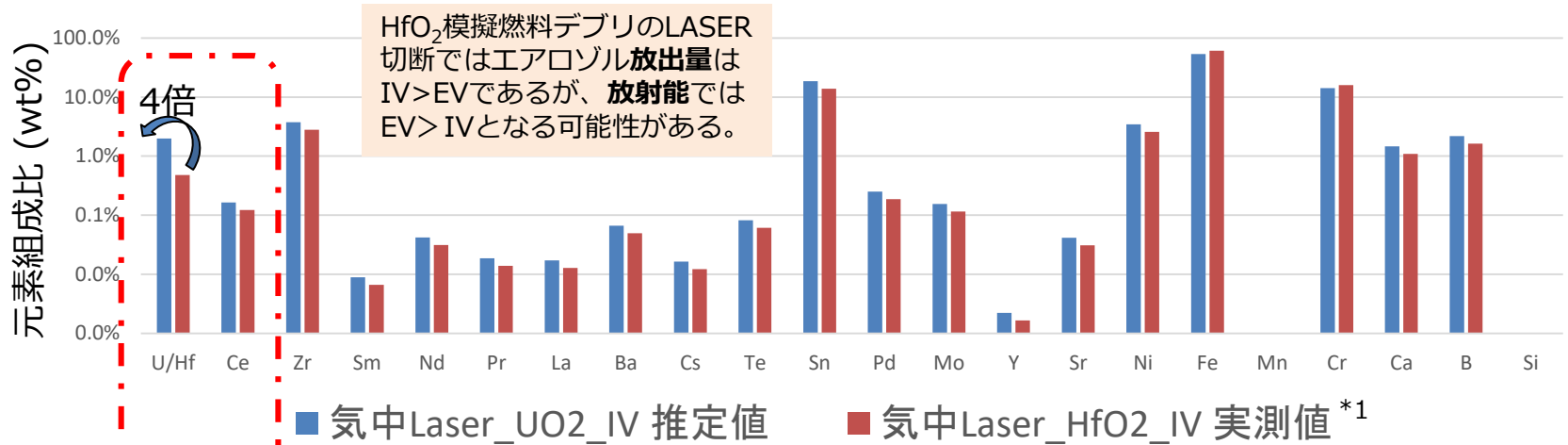
*元素放出率：
ある元素に関して、
エアロゾル組成/仕込み組成の比

UO₂含有模擬燃料デブリのLASER切断時のエアロゾル組成を推定するにあたり、

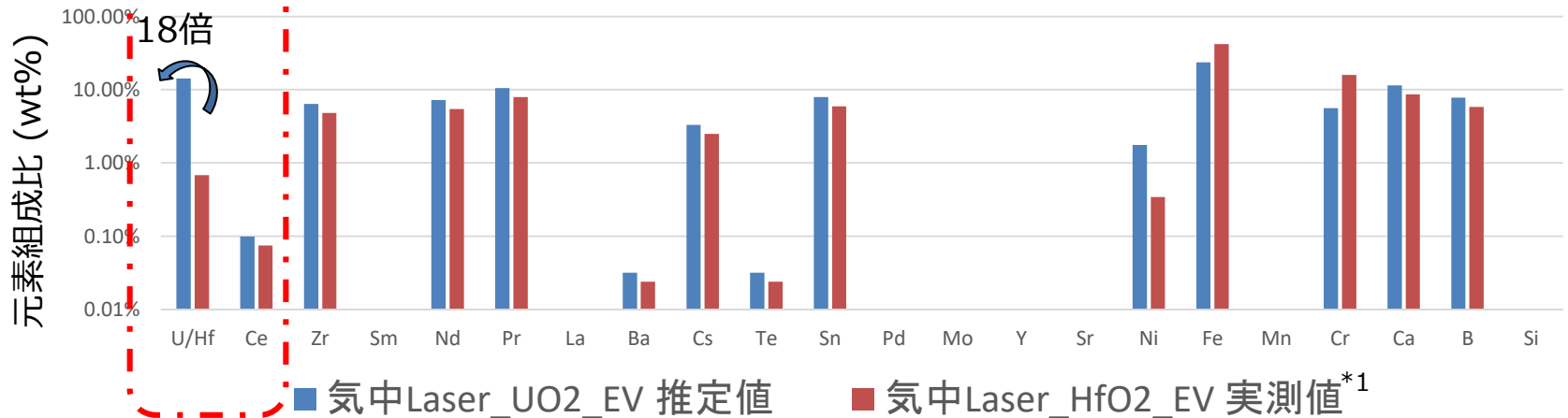
- ・ **U**に関してはVITAE加熱試験のエアロゾル組成/仕込み組成の比(元素放出率)を用いて補正する。
- ・ **Ni, Fe, Cr**に関しては、仕込組成より(おおむね)エアロゾル組成に占める量が多く、LASER切断試験で検出下限より十分多く検出されている元素については、Uと同様に加熱試験のエアロゾル組成/仕込み組成(元素放出率)の比を用いて補正する。
- ・ **Ceを含むその他の元素**については、過去のHf含有模擬燃料デブリのLASER切断のエアロゾル発生量を**補正無し**でそのまま用いる。

【 U含有模擬燃料デブリのLASER切断によるエアロゾル組成の推定例】

【 In-Vessel】



【 Ex-Vessel】

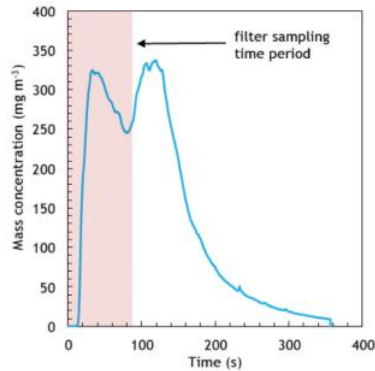


*1 C. Dazon, et.al., J. Environ. Chem. Eng. 8 (2020) 103872.

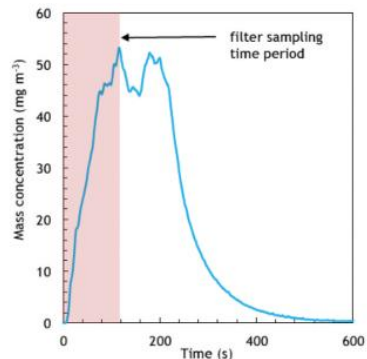
**【U含有模擬燃料デブリのLASER切断時のエアロゾルによる放射能と吸入時実効線量率評価の試み】
(手順の例)**

Hf含有模擬燃料デブリのLASER切断時の濃度(過去の実測値*1、流量率:120 m³/h)

In-Vessel: 約300 mg/m³



Ex-Vessel: 約50 mg/m³



✕ エアロゾルの元素組成の推定値(前ページ)*2 ✕

*2: 本組成比ではSi、O、Al等は分析(推定)対象外であるが、これらの元素は(ほぼ)非放射性である。ゆえにエアロゾル中の放射性物質量を推定するうえでは、同組成を用いるのが「安全側」。

質量→放射能の換算表

Surrogated Element(s)	Original Isotope	conversion ratio(Bq/μg)
Hf/U	Am-241	5.8.E+01
	Cm-244	3.2.E+01
	U-237	7.6.E-02
Ce	Pu-238	7.3.E+03
	Pu-239	1.4.E+03
	Pu-240	1.6.E+03
	Pu-241	2.7.E+05
Zr	Zr-93	2.7.E-01
Sm	Sm-151	1.5.E+04
Nd	Nd-144	1.3.E-08
Pr	Pr-144	4.3.E+03
La	La-138	1.1.E-08
Ba	Ba-137m	1.7.E+06
Cs	Cs-137	1.2.E+06
Te	Te-125m	1.4.E+04
Sn	Sn-121m	4.5.E+01
Pd	Pd-107	3.0.E+00
Mo	Mo-93	2.2.E-09
Y	Y-90	4.7.E+06
Sr	Sr-90	2.8.E+06

換算表は、文献値*2を基に、模擬燃料デブリで代替した元素と、代替前の核種の質量・放射能インベントリより計算されたもの。

空气中放射性物質濃度の推定値 (Bq/cm³)

✕ 人間の呼吸率 (1.2 m³/h)

✕ 実効線量係数*3 (AMAD:1μmの値)

↓
模擬燃料デブリのLASER切断時エアロゾルを吸入した際の実効線量率を推定 (1分当たり、mSv/min)

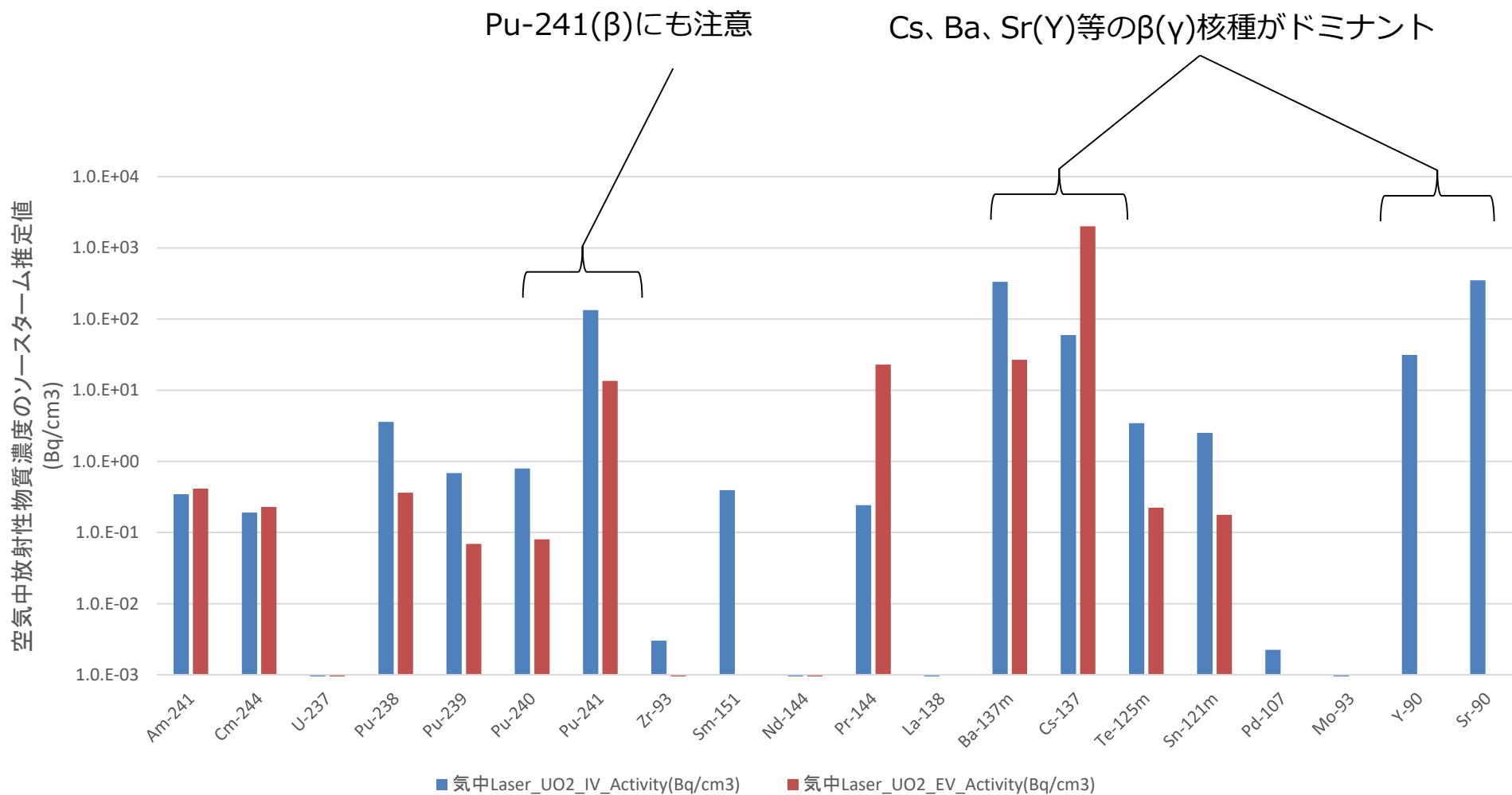
発生箇所の「その場」で吸入した時の被ばくに相当。この値に飛散抑制やHEPAのDF等を乗することで、PCV外作業員の被ばく量推定が可能。

*1 E. Porcheron, et.al., J. Nucl. Sci. Technol. (2020) 1–13

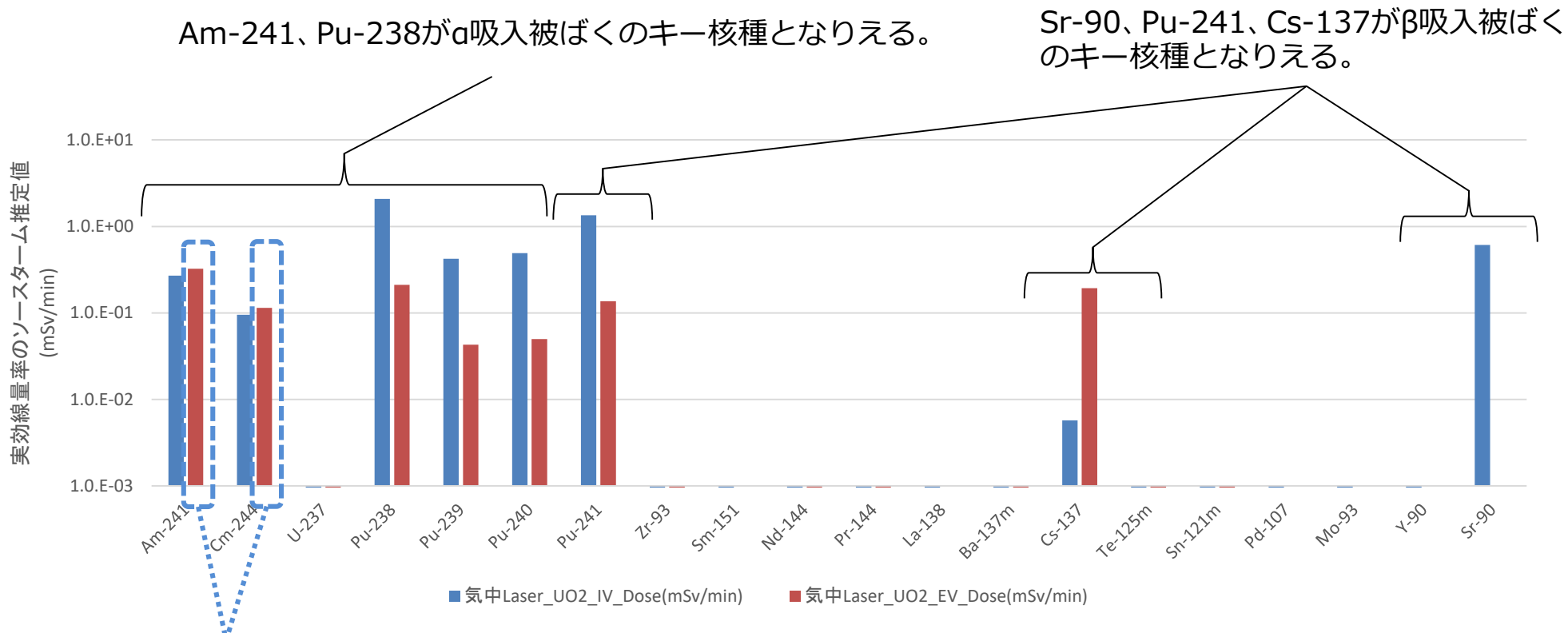
*2 K. Nishihara et al, JAEA-Data/Code 2012-018.

*3 ICRP Publication 68, (1994).

【U含有模擬燃料デブリのLASER切断時のエアロゾルによる放射能評価の例】



【U含有模擬燃料デブリのLASER切断時のエアロゾルによる吸入時の実効線量率評価の例】



α核種に関する補足：

- Am-241、Cm-244については前述の評価の結果、Ex-Vessel > In-Vessel。
- しかしながらPu系核種についてはIn-Vessel > Ex-Vessel。
- 今回の推定値は仕込み組成から実効線量率を評価する場合よりも低い。

【機械切削時のエアロゾルによる放射能と吸入時の実効線量率評価の試み (手順の例)】

Hf含有模擬燃料デブリの機械切削時の濃度(本試験の実測値、流量率:0.6 m³/h、LASER切断*1の1/200の流量。)

【例として以下の値を採用】
In-Vessel : 180.9 mg/m³
Ex-Vessel: 88 mg/m³



機械切削試験のエアロゾルの元素組成



上記組成ではSi、O、Al等は分析(推定)対象外であるが、これらの元素は(ほぼ)非放射性である。ゆえにエアロゾル中の放射性物質量を推定するうえでは、同組成を用いるのが「安全側」。

質量→放射能の換算表

Surrogated Element(s)	Original Isotope	conversion ratio(Bq/μg)
Hf/U	Am-241	5.8.E+01
	Cm-244	3.2.E+01
	U-237	7.6.E-02
Ce	Pu-238	7.3.E+03
	Pu-239	1.4.E+03
	Pu-240	1.6.E+03
	Pu-241	2.7.E+05
Zr	Zr-93	2.7.E-01
Sm	Sm-151	1.5.E+04
Nd	Nd-144	1.3.E-08
Pr	Pr-144	4.3.E+03
La	La-138	1.1.E-08
Ba	Ba-137m	1.7.E+06
Cs	Cs-137	1.2.E+06
Te	Te-125m	1.4.E+04
Sn	Sn-121m	4.5.E+01
Pd	Pd-107	3.0.E+00
Mo	Mo-93	2.2.E-09
Y	Y-90	4.7.E+06
Sr	Sr-90	2.8.E+06



空气中放射性物質濃度の推定値 (Bq/cm³)



人間の呼吸率 (1.2 m³/h)



実効線量係数*3 (AMAD:1μmの値)



模擬燃料デブリの機械的切削時のエアロゾルを吸入した際の実効線量率を推定 (1分当たり、mSv/min)

換算表は、文献値*2を基に、模擬燃料デブリで代替した元素と、代替前の核種の質量・放射能インベントリより計算されたもの。

発生箇所の「その場」で吸入した時の被ばくに相当。この値に飛散抑制やHEPAのDF等に乗ずることで、PCV外作業員の被ばく量推定が可能。

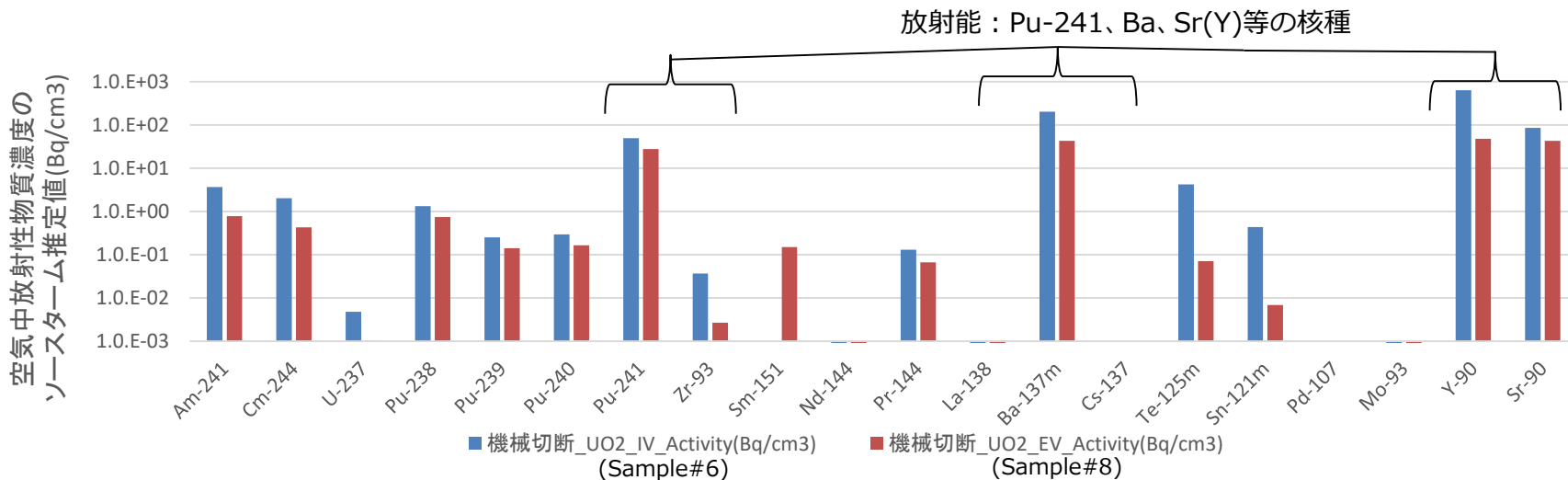
*1 E. Porcheron, et.al., J. Nucl. Sci. Technol. (2020) 1-13

*2 K. Nishihara et al, JAEA-Data/Code 2012-018.

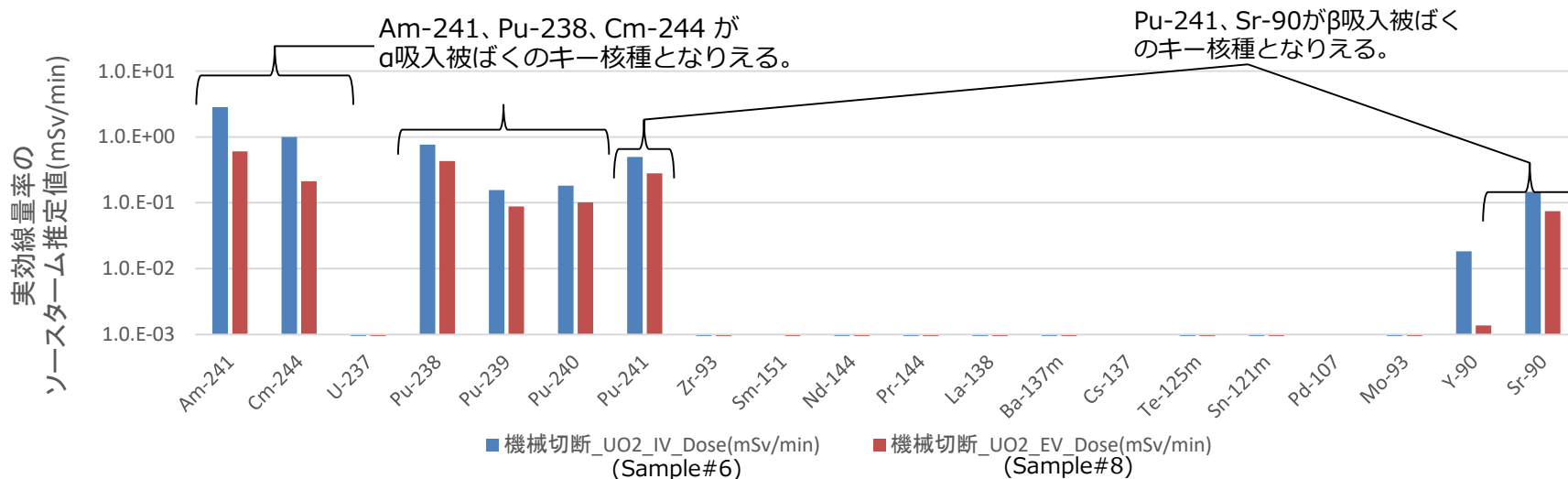
*3 ICRP Publication 68, (1994).

【U含有模擬燃料デブリの機械切削時のエアロゾル放射能と実効線量率の推定例】

【Activity】



【Dose】



【機械切削とLASER切断を比較する際の留意点】

エアロゾル量を議論するうえでの留意点：

- ・前頁までは「濃度」を基に議論を進めたが、捕集フィルターが目詰まり等、「量」(Airborne mass)を議論するうえでは、下記の試験流量や切削・切削速度等、比較条件をそろえて議論する必要がある。

試験流量：

- ・LASER切断では約120 m³/h*¹、機械切削では約0.6 m³/hである(約200倍の開き)。

切断・切削速度と切削性：

- ・LASER切断の走査速度はIn-Vessel試料(試料厚 約30mm)：約60 mm/min、Ex-Vessel試料(試料厚：約20mm)：約100 mm/min*²、機械切削(ビット径 約15-25mm)では掘削速度約0.3～33 mm/min (平均値：8 mm/min、標準偏差：10 mm/min)である。
- ・機械切削(コアボーリング)ではすべての試料で与荷重を一定(約10kgf)で切削したが、**金属相試料は難削**であり、0.3mm/min程度の速度でしか切削できない例もあった(Ex-vesselの金属相試料)。

*1 E. Porcheron, et.al., J. Nucl. Sci. Technol. (2020) 1–13

*2 C. Dazon, et.al., J. Environ. Chem. Eng. 8 (2020) 103872.

【検討結果のまとめ】

【U含有模擬燃料デブリのLASER切断時のエアロゾル組成推定】

- ・ UとCeに関して、 UO_2/HfO_2 模擬燃料デブリのVITAE加熱試験で発生したエアロゾル組成間での比をとることは困難。
- ・ Uについては、加熱試験の**エアロゾル組成/仕込み組成**の比をとることで、被ばく評価上「安全側」の評価が可能。
- ・ Ceの**放出率(エアロゾル組成/仕込み組成)**に着目すると、**過去のLASER切断の放出率をそのまま採用**するのが「安全側」の評価である。

【U含有模擬燃料デブリのLASER・機械切削時のエアロゾルによる放射能と被ばく評価の試み】

- ・ エアロゾル組成の推定値を算出し、組成→エアロゾル質量→放射能の換算を行うことで、実効線量率を推定可能。さらにICRPの実効線量係数を乗ずることで、吸入時の実効線量率(その場の量：ソースターム)を推定可能。
- ・ 放射能についてはPu-241、Sr(Y)-90、Cs-137等のβ核種が支配的、吸入時の実効線量率(ソースターム)についてはPu-238、Am-241、Cm-244等のα核種が支配的だが、β核種のPu-241、Sr(Y)-90、Cs-137にも注意が必要。LASER切断、機械切削の両方式とも、α線、β線両方への注意が必要。
- ・ LASER切断について：エアロゾル組成を基に評価した実効線量率推定値は、仕込み組成から評価する場合よりも低い。

【留意事項】

- ・ 加熱試験は窒素雰囲気。LASER切断は大気雰囲気で行われたものなので、今後は雰囲気条件をそろえた系統的試験を行うことが望ましい。
- ・ LASER切断時のCe量に関しては補正無しとしたが、過年度実施したUに対するPuの随伴性試験結果を用いて評価する方法もある。

6. 実施内容 – 2019～2021年度詳細実施内容 –

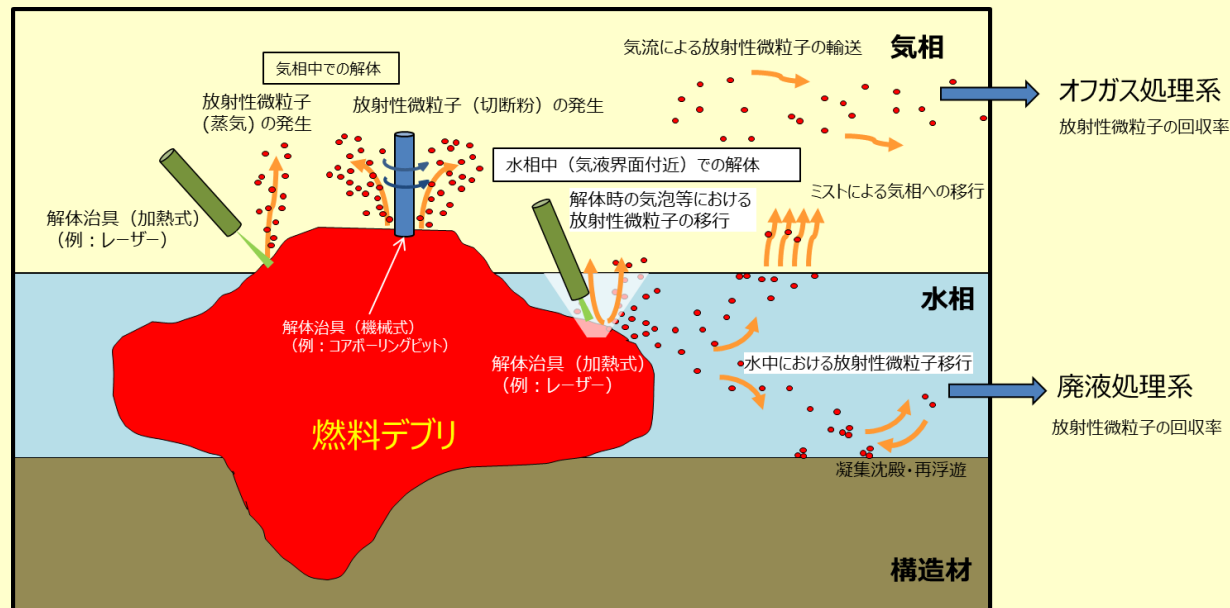
2-194

- (1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等 (2019～2020年度*1)
- ① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討 P2-15
 - ② 燃料デブリの性状推定の高度化 P2-54
- (2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発
- ① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動
 - ①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験 (2019～2021年度*2) P2-87
 - 1) 試験の概要
 - 2) 試験に供する模擬燃料デブリ
 - 3) 試験方法
 - 4) 切削試験結果
 - 5) 加熱試験結果
 - 6) 粒子分析結果(切削試験)
 - 7) 粒子分析結果(加熱試験)
 - 8) 分析結果のまとめ
 - 9) VITAE加熱試験とLASER切断試験との比較
 - ①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験 (2019～2020年度*1) P2-140
 - ①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査 (2019～2020年度*1) P2-150
 - ② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動 (2019～2020年度*1)
 - ②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価 P2-156
 - ②-2 液相における微粒子挙動評価 P2-166
 - ③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ – 燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価 – (2021年度*2)
 - ③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討 P2-178
 - ③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率 (シミュレーションによる予測) P2-194

* 1:2020年度で終了し、報告済みであることから、2020年度報告内容を再掲する。

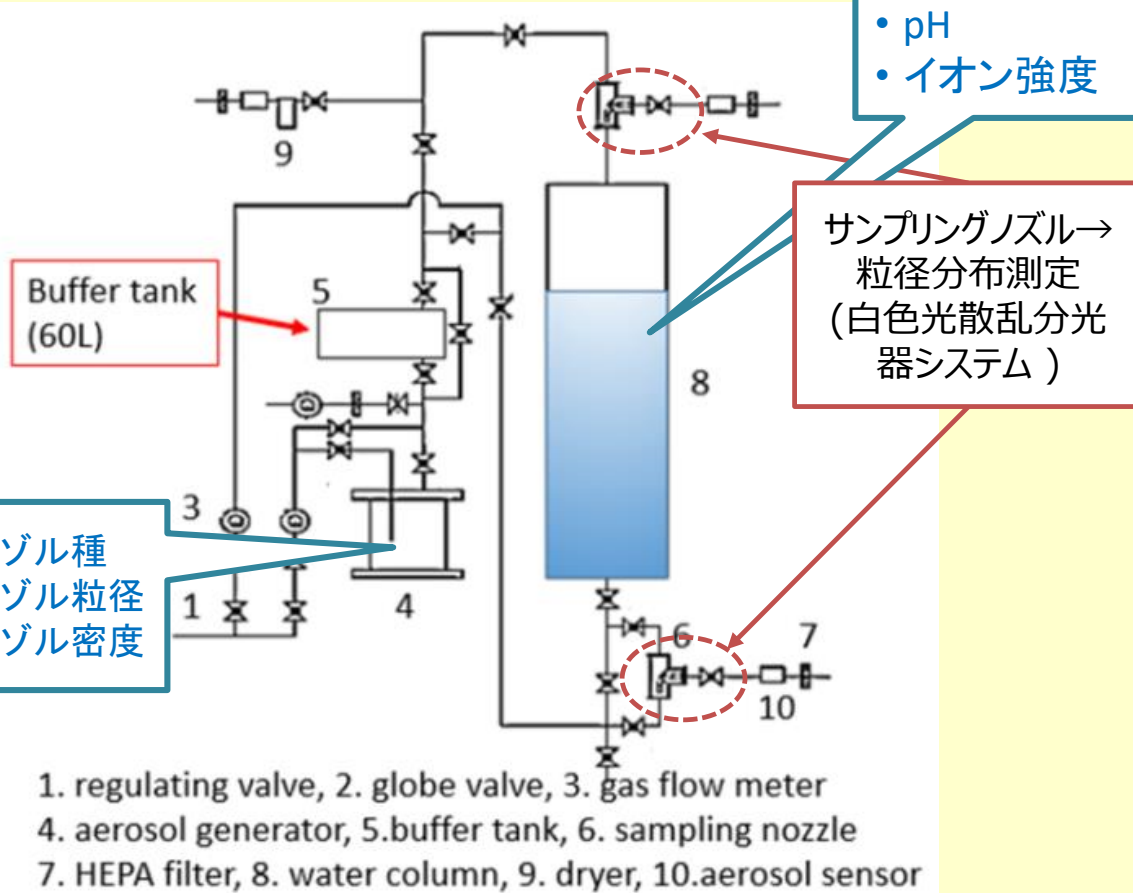
* 2:本報告の主な報告事項

- ・燃料デブリの取り出し方法のうち、水中における熱的加工法（LASER法）では、気相（吹付ガス中）において生成した燃料デブリ粒子が水中を經由し、上面の気相に放出される経路が考えられ、この時、微粒子の気液移行が生じる。
- ・この移行挙動を調べるため、2019～2020年度に東京大学において気液移行挙動を模擬する基礎実験を行うとともに、CFDコードによるシミュレーションを実施した。
- ・2021年度は得られたシミュレーションに、前述の「ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験」で得られたVITAE加熱試験データを適用し、VITAE加熱試験で生成した1Fを模擬した燃料デブリ微粒子の気液移行率を推定した。



【実験装置概要】

エアロゾル気液移行試験装置



気液界面における微粒子移行試験の例

【モデル粒子選定】

本研究では、被覆材、あるいは、核分裂生成物に由来し、燃料デブリを構成する元素であるZrに着目し、その酸化物である酸化ジルコニウム (ZrO_2) を採用した。また、比較のために、 ZrO_2 より、密度・硬度が小さい二酸化チタン (TiO_2) も使用した。

モデル粒子の粒径としては、Porcheron ら^{*1}が気中における模擬燃料デブリのLASER切断試験で得たエアロゾル粒子の粒径 (100、190 nm) を参考に、粒径100 nm及び粒径200 nmの粒子を使用した。

*1 : Porcheron, E. et. al., (2018) ICONE26, London, England

ZrO_2	
カタログ粒径	100、200 nm
結晶相	単斜晶
密度	5.89 g/cm ³
モース硬度	6 ~ 7
融点	2,715° C
TiO_2	
カタログ粒径	100、200 nm
結晶相	正方晶ルチル型
密度	4.23 g/cm ³
モース硬度	5 ~ 66
融点	1,870° C

【水質設定】

現在検討されている燃料デブリ取り出し工法を踏まえ、pH、電解質濃度を変化させた電解質溶液をプール内に作成し、スクライビング実験を行った。

バブルの影響を調べる試験では、マイクロバブルはAURS TEC製OM4-MDG-045 (加圧溶解式) を、ナノバブルはAcniti®製超微細GaLF標準-モデルFZ1N-05Sw (静的ミキサー式) を用いて水相中にバブルを発生させた。

ケース	pH	水相組成	備考
1	7 (5.8 ⁽¹⁾)	蒸留水	標準ケース
2	4 (HCl)	蒸留水 ⁽²⁾	
3	10 (NaOH)	蒸留水 ⁽²⁾	セメントの影響
4	7	蒸留水 + 0.1 mol/L NaCl	高濃度電解質 (海水、ホウ酸水等)
5	-	蒸留水 + バブル	バブルの影響
6	-	蒸留水 + 5 wt%エタノール	表面張力の影響 ⁽³⁾

(1) 微粒子の添加によりpHが5.8に変化した。

(2) pH調整のために、イオン交換水に少量の酸、塩基試薬を添加した。

(3) 0.072 N/m (蒸留水) ⇒0.05641 N/m (エタノール添加)

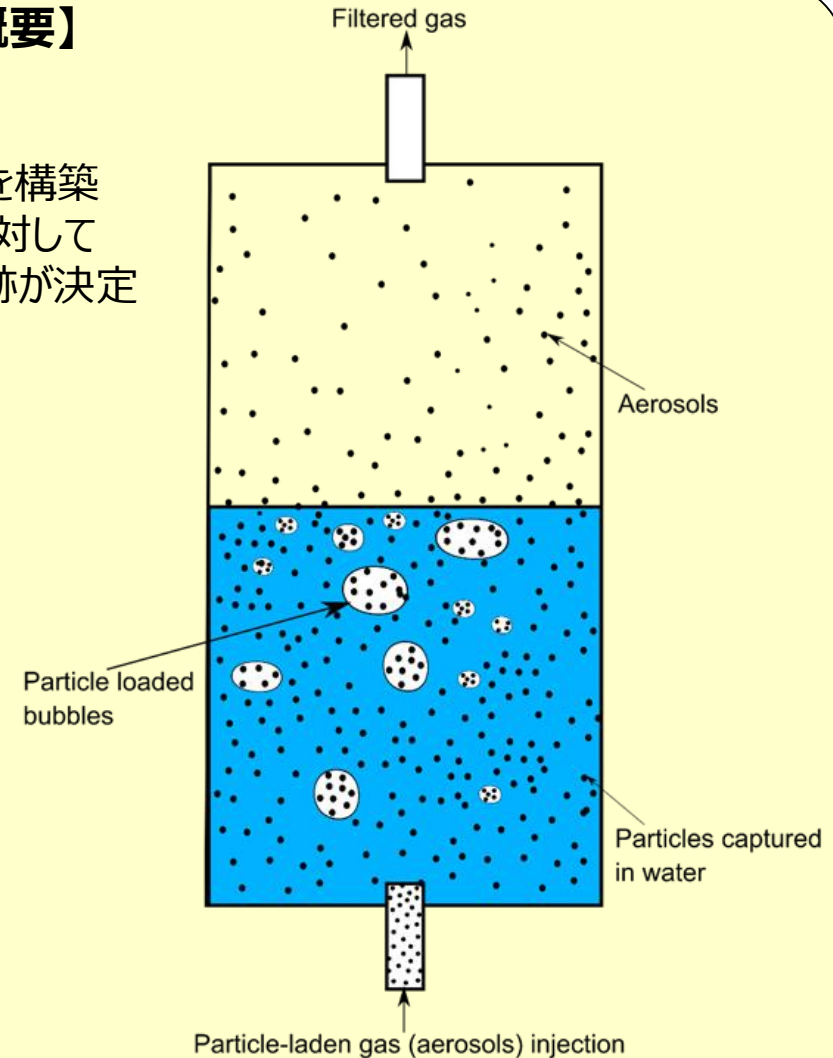
【CFDシミュレーションの概要】

Star-CCM+を用いたCFDシミュレーション

- Volume of Fluid (VOF)-Lagrangian法を使用してソルバーを構築
- 流体相に対してオイラーの連続方程式が解かれ、また、粒子相に対してニュートンの運動方程式が解かれることにより、個々の粒子の軌跡が決定される。

Star-CCM+を用いたCFDシミュレーションのパラメータ

Parameter	Value
粒子濃度	10^5 [粒子/mL]
粒子密度	4.7 [g/cm ³] (注1)
入口での気相速度	22.55 [m/s]
粒子径	$D_g:0.175$ [μm]、 $\sigma_{GSD}:0.72$ [μm]
表面張力	0.072 [N/m]
計算体系	200 × 200 × 1100 [mm ³] (水柱高さは550 [mm])
ノズル半径	4.85 [mm] (試験で使用した0.7 [mm] 径の48穴のノズルと等価)

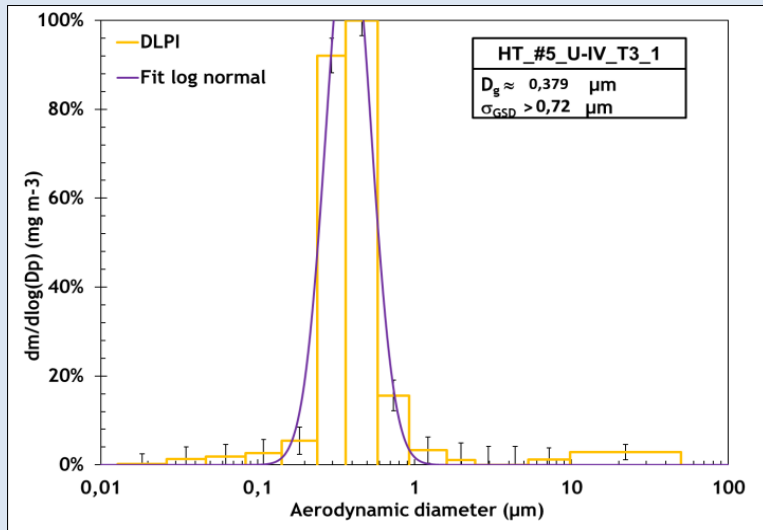


注1 : Hf含有模擬サンプル) の密度*を近似値として使用。本サンプルはUをHfで代替していること以外、U含有サンプルと同様の仕込み組成、方法、条件で作製されたもの。

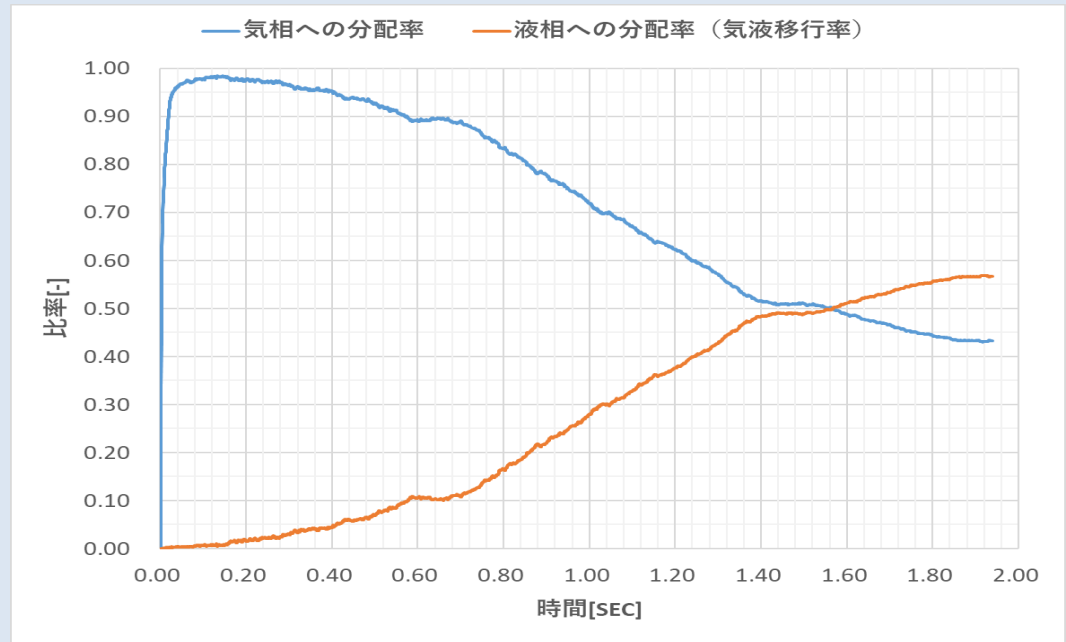
* : ONET (2022) : <https://dccc-program.jp/files/20220114ONET.pdf>

【CFDシミュレーションの結果】

シミュレーションに用いた試験データ



気液移行挙動のシミュレーション結果例



・試験名：HT_#5-U-IN-T3_1 (U含有In-Vessel 模擬燃料デブリサンプルのVITAE加熱試験 (2300～2600℃) で得られた粒径分布、但し試験値は空気動学的質量径)

・計算においては、下式により、粒径の換算を行った。その際、体積形状係数、抵抗形状係数は1と仮定した。

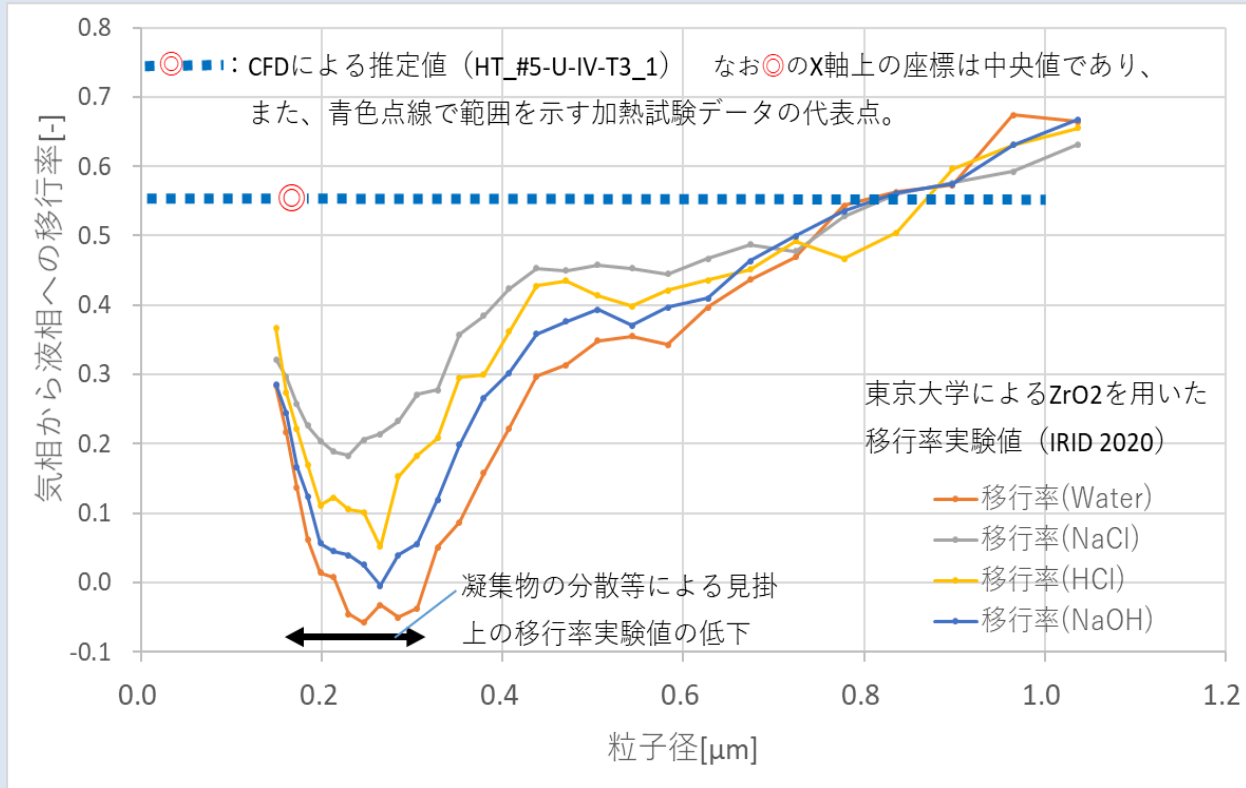
$$d_{ae} = \sqrt{\frac{6 \rho_p \alpha_e}{\pi \rho_0 K_R}} d_e$$

ρ_p : 粒子の密度、 $\rho_0 = 1$ [g/cm³]
 α_e : 体積形状係数、 K_R : 抵抗形状係数
 d_{ae} : 空気動学的質量径
 d_e : 粒子の大きさ

$$n = \frac{M_{water}}{M_{inlet}}$$

n : 気液移行率
 M_{inlet} : 水柱に注入されたラグランジアン粒子の質量
 M_{water} : 水に捕捉されたラグランジアン粒子の質量

【CFDシミュレーション】



留意事項

左図に示したCFDによる移行率推定値と実験値は以下の違いがある点を留意願いたい。

- ・移行率実験値は、実験の都合上、粒径分布毎に移行率を求めている。
- ・一方、CDF計算では、計算の都合により、生成試験で得られた粒径分布（対数正規分布で近似したもの、P.116左図）を有する微粒子全体について移行率を求めているため、粒径毎の移行率は得られていない。

CDFコードによるシミュレーション（東京大学）を用いた予測計算結果（JAEA計算値）

1 Fの条件を想定したU含有模擬燃料デブリの気・液移行率は0.6程度

【検討結果のまとめ】

- 2021年度に取得したU含有模擬燃料デブリから生成した放射性微粒子の粒径分布情報を用い、2020年度に東京大学が構築した数値流体力学シミュレーションにより、水中における燃料デブリ取り出しを想定した微粒子の気液移行挙動の予測を試みた。
- 1 Fの条件を想定したU含有模擬燃料デブリの気・液移行率予測値は0.6程度であり、幾分、水中への移行が大きいことを示した。
- この結果を、2020年度までに取得したZrO₂等の模擬試料を用いたプールスクラビング試験結果と比較すると、予測値は高めであった。この要因として、以下の点が挙げられる。
 - 定性的に0.1 [μm] 以下の微粒子は、ブラウン拡散の効果により液相との相互作用が大きくなり、移行率が高まる可能性が考えられるが、プールスクラビング試験の粒径測定装置は測定下限が0.2 μmであり、ブラウン拡散の効果が現れる領域のデータが取得できていないこと。
 - プールスクラビング試験では0.18~0.32 μmの範囲で模擬試料微粒子の凝集の影響で、見かけ上、移行率が低下する現象が生じていること。
 - 微粒子の密度など微粒子径の換算に必要な諸物性値が得られていないため、シミュレーションにあたっては近似値を用いていること。
- したがって、今後、これらのデータが拡充されることが期待される。

全体まとめ –その1–

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

① 得られる燃料デブリサンプル等の分析及び分析効率化の検討

- 2020年度は、1、2号機のSGTS配管に関するスミアサンプルや1号機の内部調査アクセスルート構築関連サンプル、計3種類のサンプルを輸送し、これらを中心に2019年度輸送分を一部含めて分析を実施し、多くの分析データを取得した。
- また、分析効率化の効率化に関して、分析物が燃料デブリであることを早期に特定するフローや燃料デブリ取り出し治具に燃料デブリがそのまま収納された状態での輸送等について検討し、試験的燃料デブリ取り出しサンプルに対応可能な基本フロー及びケーススタディが準備できた。

② 燃料デブリの性状推定の高度化

上述の分析結果、及び既に1F各号機の様々な領域から取得されたサンプルの分析結果について、廃炉工程に適切に活用していくために、以下を実施した。

- 分析データの品質管理の手順や方法の明確化
 - 本研究で取得する分析データは、様々な専門性を有する技術者や研究者が長期にわたって様々なに利用することを想定し、分析手順とデータ評価の方法について、品質管理の検討を行った。検討では、本事業内に、東電HDの専門家を交えた分析タスクフォースを設置し、JAEA大洗地区およびNFDの施設・設備で現状用いている分析手法を対象とした。

⇒ 次ページに続く

全体まとめ –その2–

(1) 燃料デブリ性状の分析に必要な技術開発等

② 燃料デブリの性状推定の高度化

(前ページからの続き)

- 分析データの系統的な整理、特徴・傾向の抽出、特性の推定
 - 前記で検討した品質管理の方法に基づいて、先行事業および本事業で取得・分析した結果について、系統的な整理を行った。
 - 整理においては、これまでのJAEAの評価で得られている号機ごとの最確シナリオと対照づけながら推論することで、事故進展過程のどこに関係する議論なのかを示すようにした。
- 分析ニーズに関する検討
 - 分析ニーズについては、従来調査に基づいて抽出した分析データの『反映先』を分析項目ごとに再検討した結果をまとめた。また、実際の燃料デブリや周辺堆積物の分析データが、『反映先』に対して現在どこまで充足するかについて考察した。

全体まとめ –その3–

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-1 ウラン含有模擬燃料デブリを用いた粒子生成に関する大型試験

- 1 Fで生成した燃料デブリを模擬した模擬燃料デブリを用いて、燃料デブリの取り出し時に発生する放射性微粒子の性状並びにその挙動の把握を目的に、微粒子生成試験を実施し、以下の成果を得た。
 - 模擬燃料デブリとして、In-Vessel模擬燃料デブリ、EX-Vessel酸化物模擬燃料デブリ、EX-Vessel金属相模擬燃料デブリ、およびMCCI模擬燃料デブリの4種類を選定し、さらに模擬燃料デブリの主体となる物質としてU、及びUの代替としてHfを使用し、合計8種類の模擬燃料デブリを作製した。
 - これらの模擬燃料デブリに対し、熱的加工法としてLASER切断法を模擬した高周波誘導加熱法を用いた加熱試験、また、機械的加工法としてコアドリルを用いた機械切削試験を実施し、微粒子の粒径分布、質量濃度、数密度等の生成挙動データを取得した。
 - 両加工法とも、Uを含有した模擬燃料デブリを用いたことにより、より実機における燃料取り出し時に近い条件での生成データが取得できた。
 - 熱的加工法では、本事業によって得られたデータに、既に公開されているHf含有模擬燃料デブリを用いたLASER切断によるデータを加えることにより、1 Fにおける放射性微粒子の生成挙動データが推定可能であり、その考え方を示した。

全体まとめ –その4–

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

① 燃料デブリの加工に伴う放射性飛散粒子の生成挙動

①-2 粒子生成挙動に係る基礎試験

- UおよびPuを含有する模擬燃料デブリの加工の際に発生する放射性微粒子について、その性状をUおよびPuの挙動の類似性/相違性の観点から検討することを目的として、機械加工試験及び熱加工試験を実施した。
- その結果、機械的加工試験では、X線回折及びEPMAの定性分析の結果から、PuとUの組成や結晶構造に変化は認められないことから、PuはUに随伴すると考えられる。
- 一方、熱的加工試験では、EPMAによる定性分析の結果から、PuはUとともに検出されることから、随伴するものと考えられるものの、Puの濃度は低速切断試験の微粒子に比べ低い結果が得られた。

①-3 国内外の原子力施設における放射性微粒子の飛散事例の調査

- 国内外の原子力関連施設の運転又は廃止措置作業時に発生した放射性微粒子の飛散事例についての情報（発生微粒子の物理・化学特性・性状や発生・飛散挙動）を収集した。
- 2019年度は国内の施設を中心として、また、2020年度は海外の施設を中心として、原子力発電所、核燃料製造加工施設、照射後試験施設、再処理プラントなど国内外の多数の施設における放射性微粒子の発生、飛散、性状、挙動を調査した。

全体まとめ –その5–

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

② 微粒子の気相・気液界面及び液相における移行挙動

- 燃料デブリ取り出し作業時に発生する微粒子の移行挙動を把握するため、プールスクラビング試験による気液界面の微粒子移行挙動評価、およびビーカーを用いた沈降試験による液相中の移行挙動評価を実施し、以下の成果を得た。

②-1 気相・気液界面における微粒子挙動評価

- 気液界面の移行挙動については、1Fを模擬した種々の水質のプール中にエアロゾルを注入するプールスクラビング試験を実施し、微粒子の気液移行率の粒径依存性データを取得した。
- これらのデータを基にStar-CCM+を用いたCFDシミュレーションを実施し、上記プールスクラビング試験結果を模擬できていることを確認した。

②-2 液相における微粒子挙動評価

- 液相中の移行挙動については、上記と同様の水中に微粒子を懸濁させ、沈降する様子から沈降挙動データを取得した。
- また、この挙動について、OpenFOAMによるCFDシミュレーションを実施した。その結果、粒径が小さい粒子の場合は粒子間の静電反発効果の模擬に計算能力上の課題があるものの、粒径の大きな粒子に対しては沈降現象の再現が十分可能であった。

全体まとめ –その6–

(2) 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発

③ 燃料デブリ微粒子挙動の推定技術の開発の全体とりまとめ –燃料デブリ取り出しシステムへの影響の検討・評価–

- 1 Fにおける燃料デブリ取り出し時に生ずる放射性微粒子が取り出しシステムに与える影響の検討・評価として、①本事業で取得した微粒子生成挙動データを用いた放射性微粒子の放射能と吸入による実効線量の推定、および②LASER法による燃料デブリの水中切断における気液移行率の推定を実施した。

③-1 試験結果に基づく生成微粒子による放射能および吸入時被ばくの検討

- U含有模擬燃料デブリのLASER切断および機械切削による燃料デブリ取り出し時の放射能および被ばくについて試算した結果、放射能についてはPu-241、Sr(Y)-90、Cs-137等のβ核種が支配的であった。
- また、吸入時の実効線量率(ソースターム)についてはPu-238、Am-241、Cm-244等のα核種が支配的だが、β核種のPu-241、Sr(Y)-90、Cs-137にも注意が必要であることが明らかになった。

③-2 U含有模擬燃料デブリの気・液移行率（シミュレーションによる予測）

- Star-CCM+を用いたCFDシミュレーションを（2）①-1の試験結果に適用し、ウラン含有模擬燃料デブリを水中でLASER切断する際に生成する微粒子の気液移行率の推定を試みた。
- 得られた結果は、ZrO₂等の模擬試料を用いたプールスクラビング試験結果と比較すると、予測値は高めであった。この違いは粒径測定方法や測定範囲の違いや、シミュレーションに必要な燃料デブリ微粒子の密度等諸物性値が十分でないことによると考えられるが、本事業のシミュレーションが1 Fの微粒子挙動の評価に適用できる可能性を示したものとする。

参考資料

目次

- U含有模擬燃料デブリ試料調製データ
 - [SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – VF-U1](#) 2-209 ページ
 - [SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – VF-U2](#) 2-224 ページ
 - [SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – VF-U3](#) 2-245 ページ

- [主な専門用語、略語等の説明](#) 2-259 ページ



VF-U1 試験部の断面写真*

- ・酸化物サンプルはテストセクションの中央部から採取
- ・金属相サンプルは下部の析出部から採取

VF-U1 コンクリート組成

Compounds	Al ₂ O ₃	CaO	SiO ₂	H ₂ O	Fe ₂ O ₃
Weight (%)	12.2	11.8	66.9	3.3	5.8

VF-U1コリウム仕込み組成

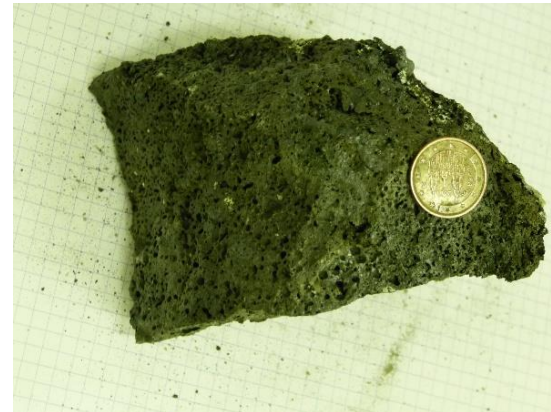
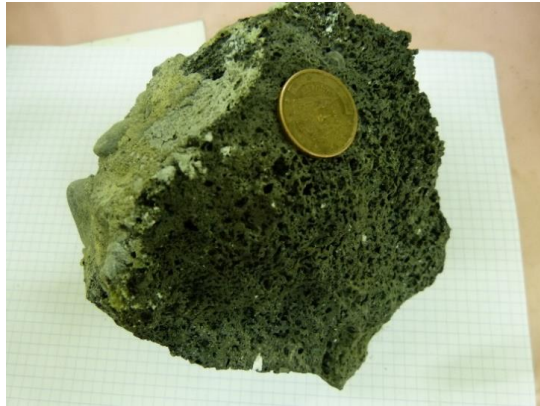
Compounds	UO ₂	CaO stabilized ZrO ₂	Zr	Stainless Steel balls
Weight (%)	58.8	16.2	11.8	13.2
Weight (kg)	27.3	7.5	5.5	6.1

* V. Bouyer, et.al., 9th European Review Meeting on Severe Accident Research (ERMSAR2019), Prague, Czech Republic, March 18-20, 2019.

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 (2)

2-210

SAMPLE #1 BLOCKS (MCCI) FROM VF-U1 TEST

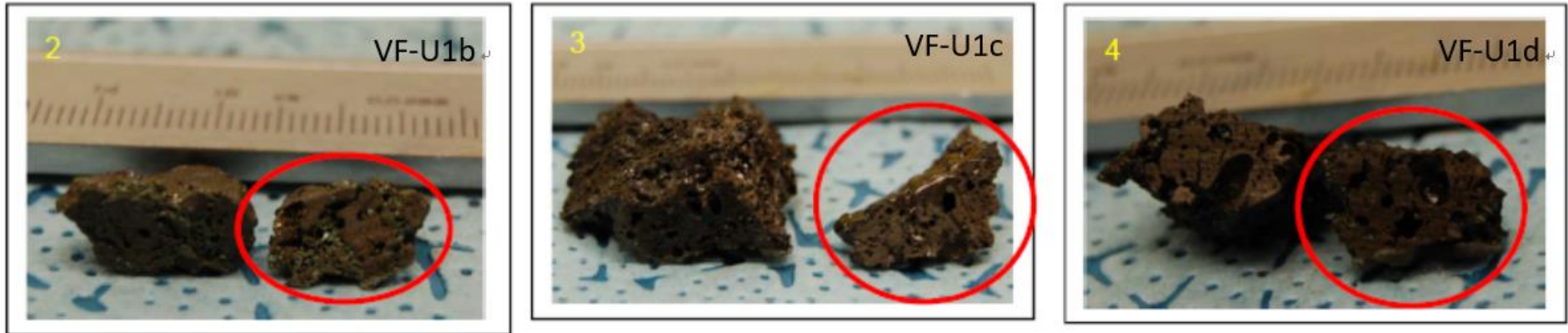


機械切削試験に供する4個のMCCIブロック試料*
比較用の5サンチムコインの直径は21-mm。台紙の方眼は5 mm。

* : 2017年度の事業において保管していた試料

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1
MCCI酸化物相試料 #1 (1) – 分析用サンプル

2-211



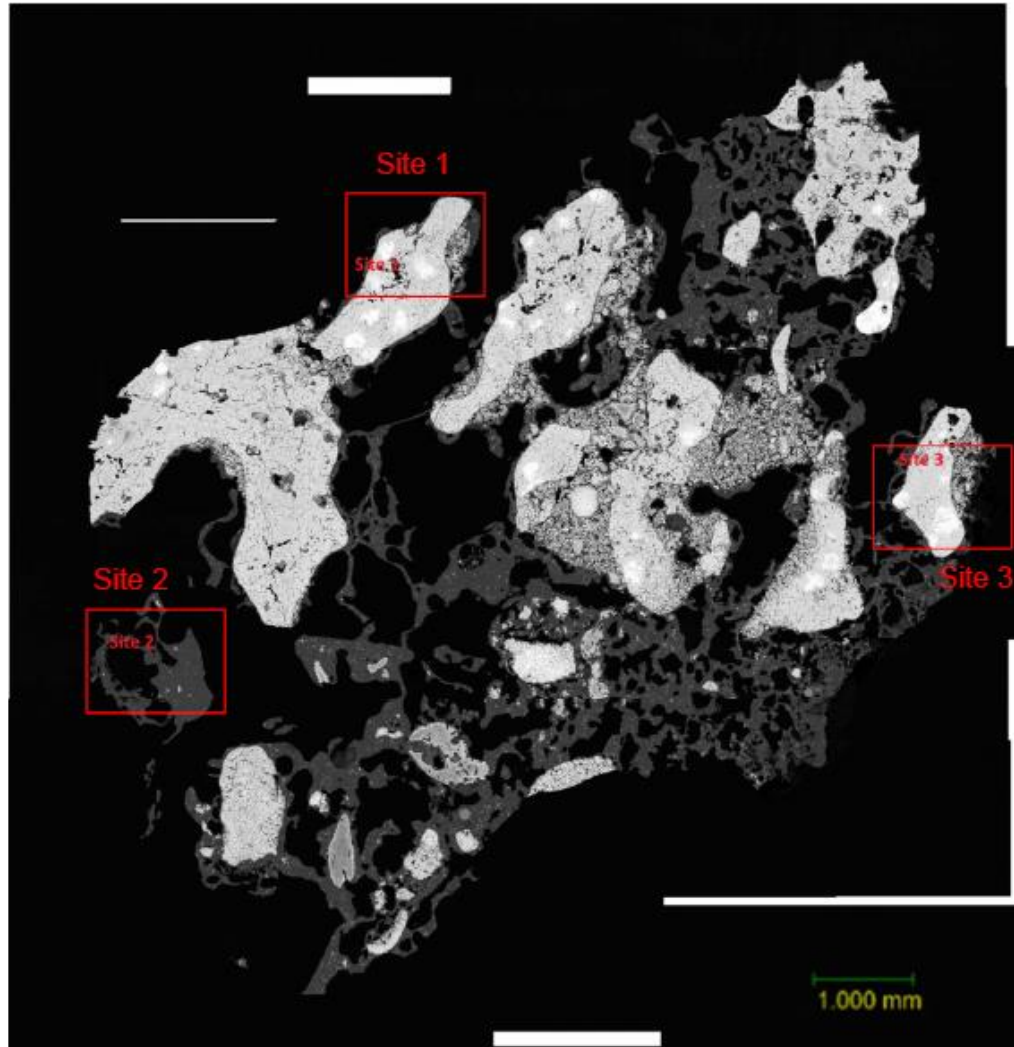
VF-U1から採取した試料VF-U1 b、VF-U1 c、およびVF-U1 dのマクロ写真

- VF-U1 b : テストセクションの中央部から採取
- VF-U1 c : テストセクションの中央部、コンクリートの近傍から採取
- VF-U1 d : テストセクション下部、金属析出層の近傍から採取

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1
MCCI酸化物相試料 #1 (2)

2-212

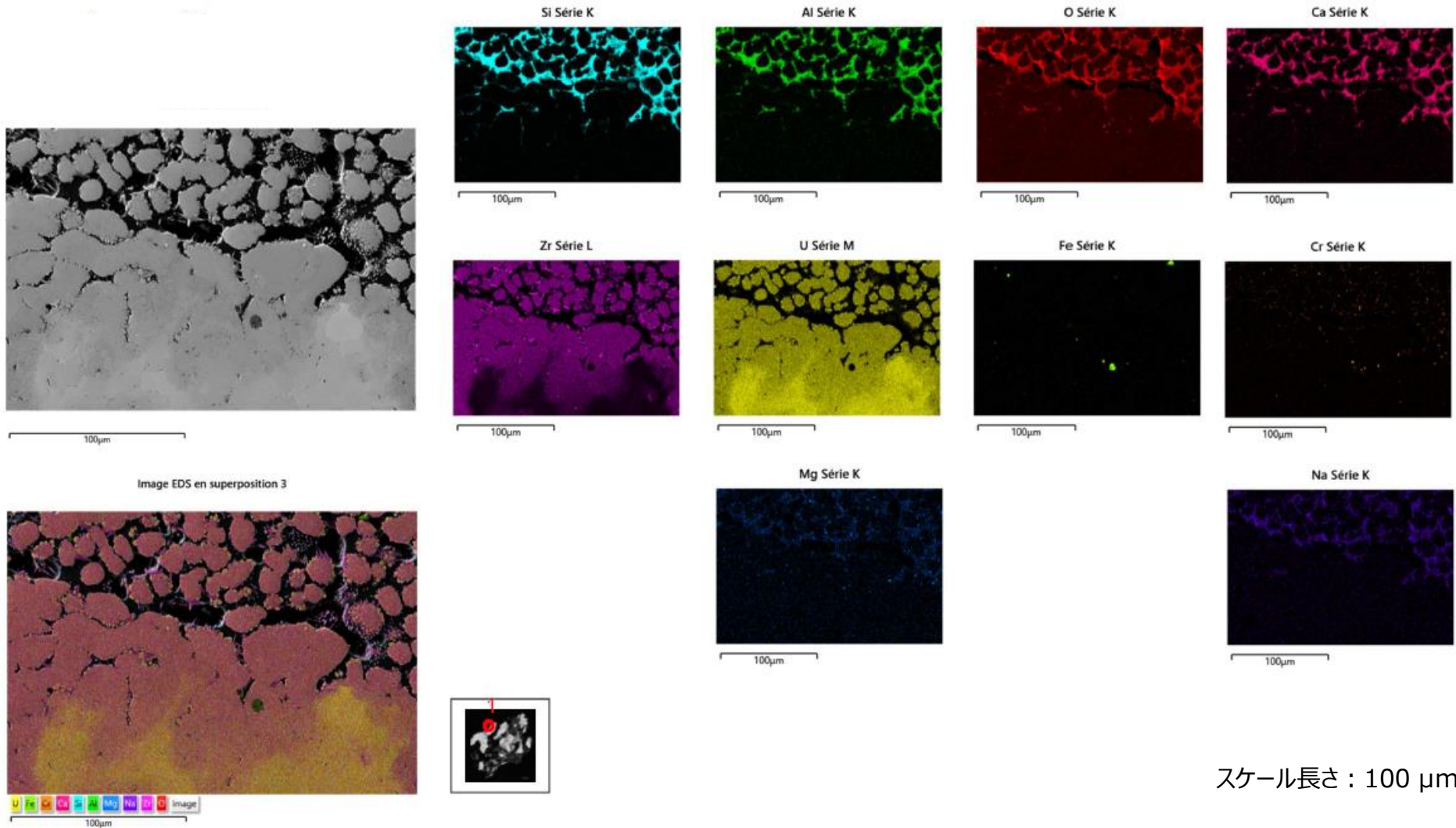
試料VF-U1bのSEM写真



SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 MCCI酸化物相試料 #1 (3)

2-213

EDX分析による VF-U1b Site 1の特性X線マップ (典型的なコリウムリッチな領域)

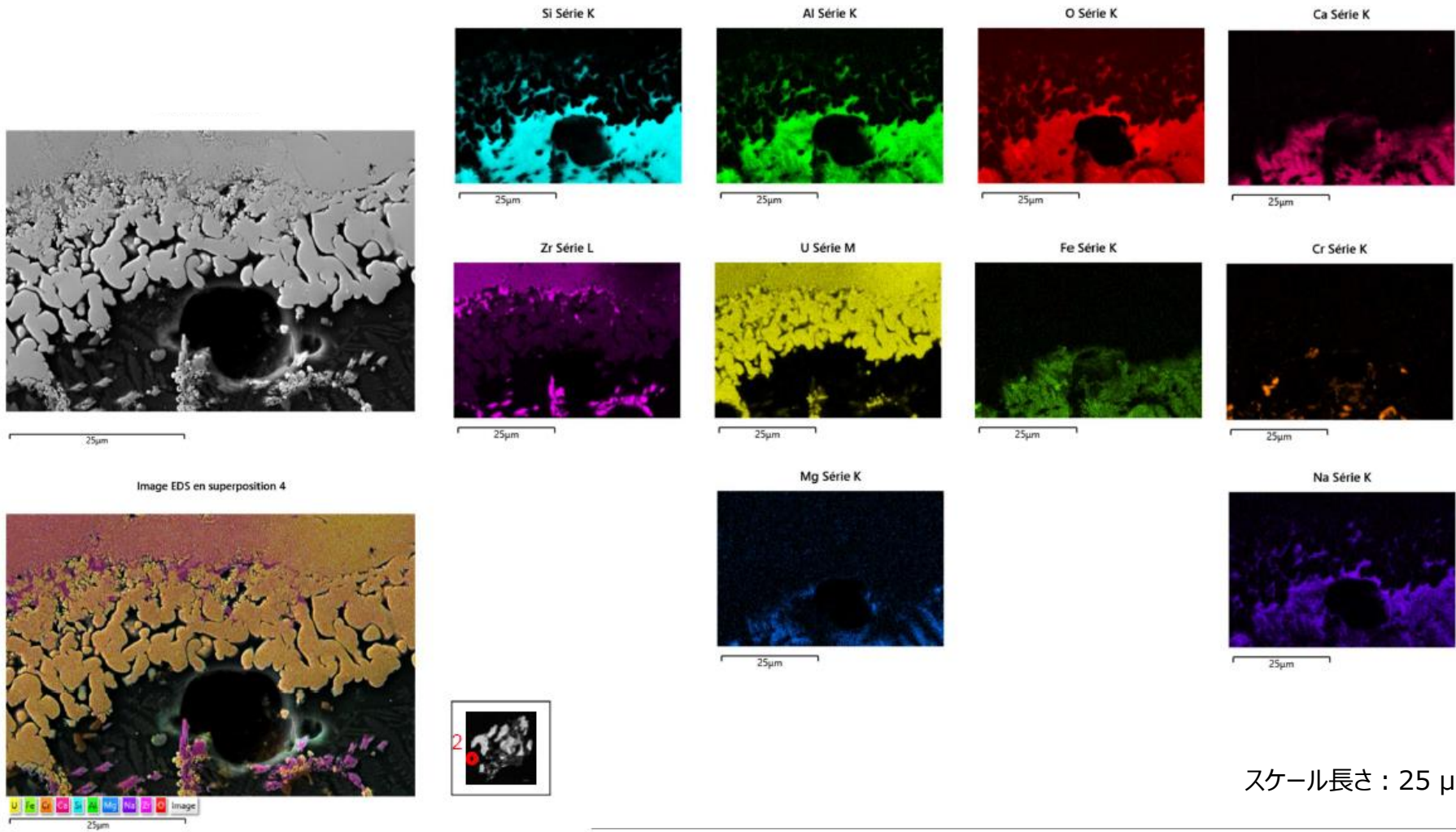


スケール長さ : 100 µm

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 MCCI酸化物相試料 #1 (4)

2-214

EDX分析によるVF-U1b Site 2の特性X線マップ (コンクリート構成元素に富む領域)

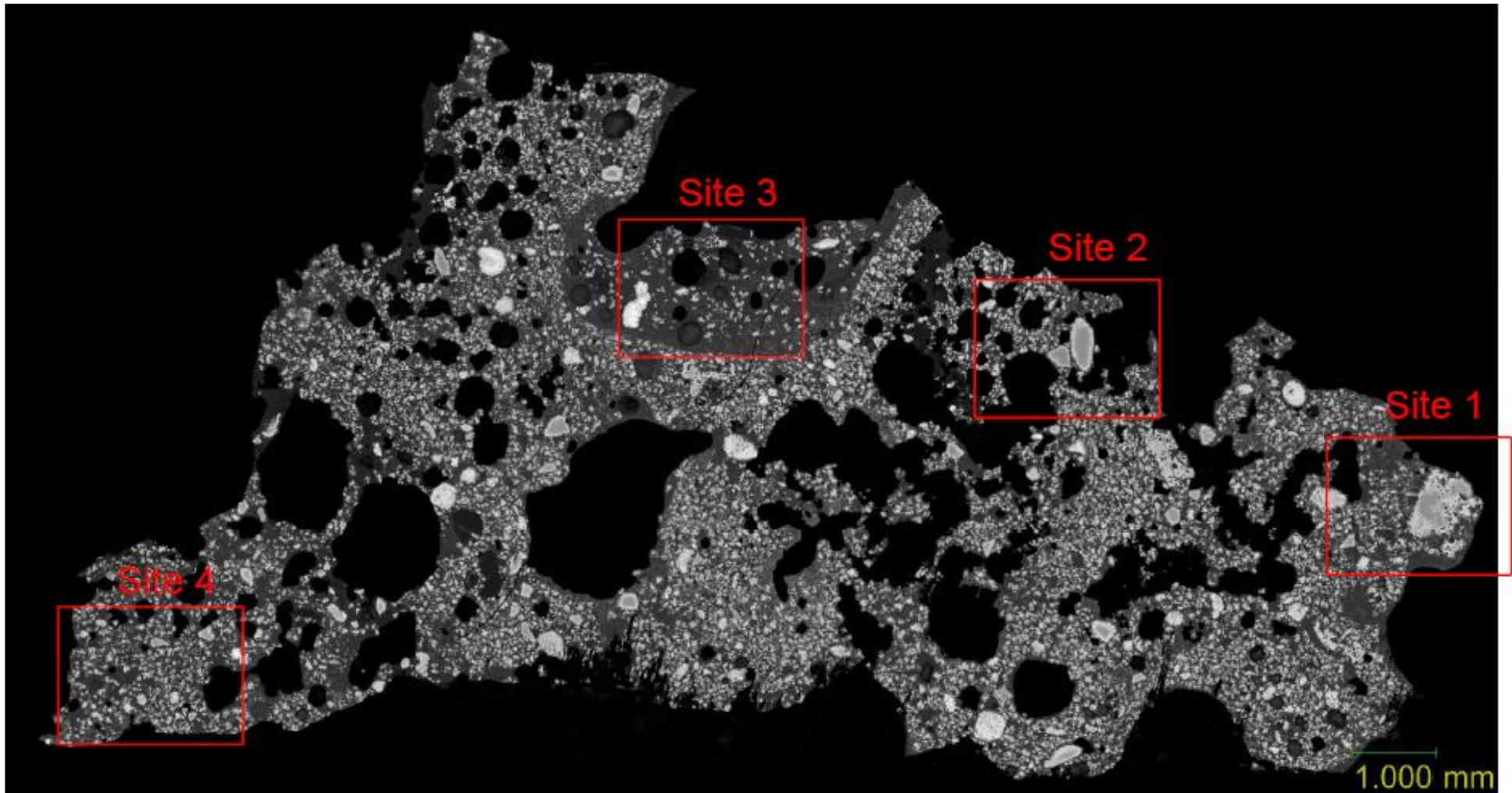


スケール長さ : 25 µm

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1
MCCI酸化物相試料 #1 (5)

2-215

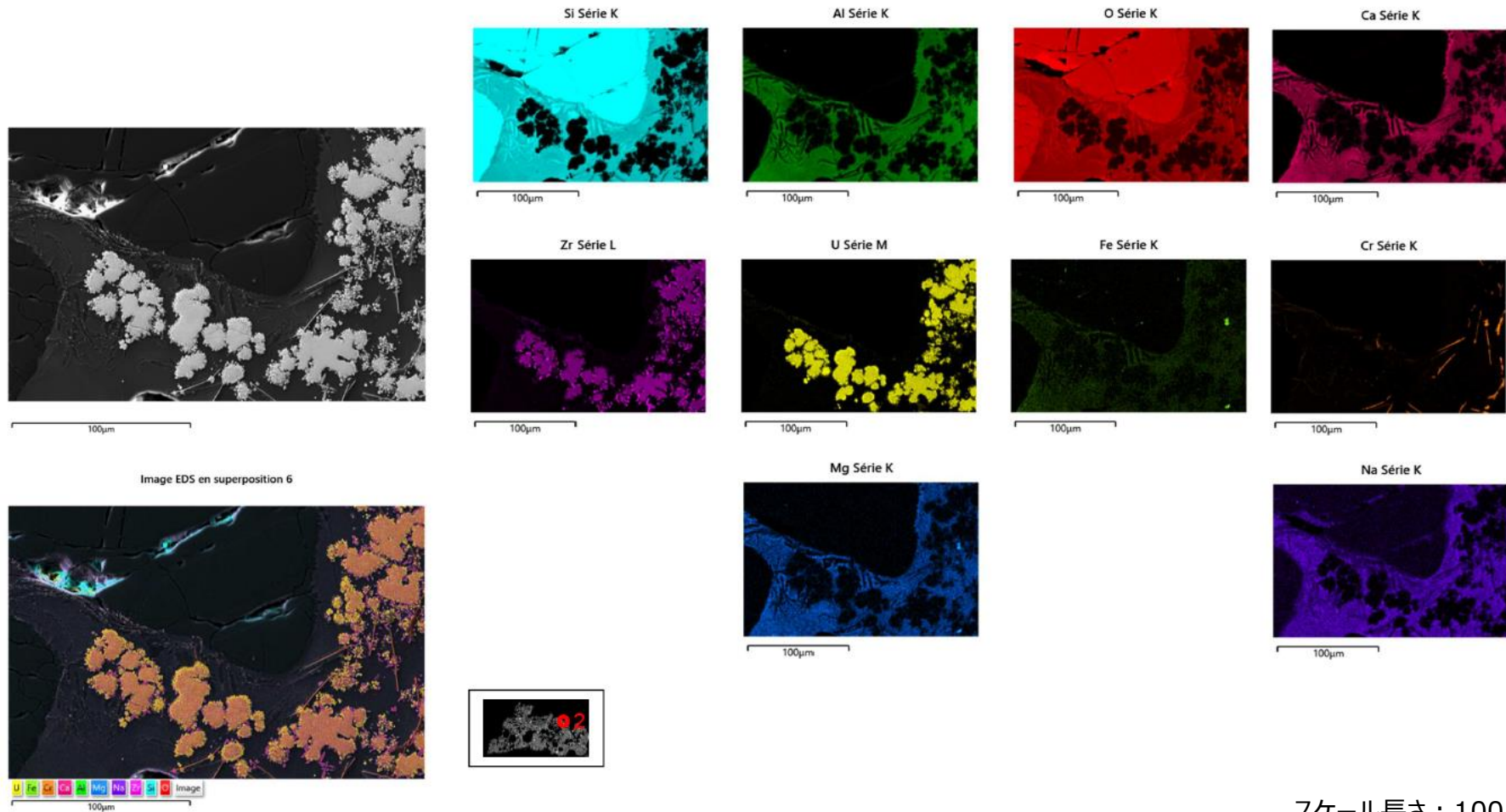
試料VF-U1cのSEM写真



SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 MCCI酸化物相試料 #1 (6)

2-216

EDX によるVF-U1c Site 2の特性X線マップ

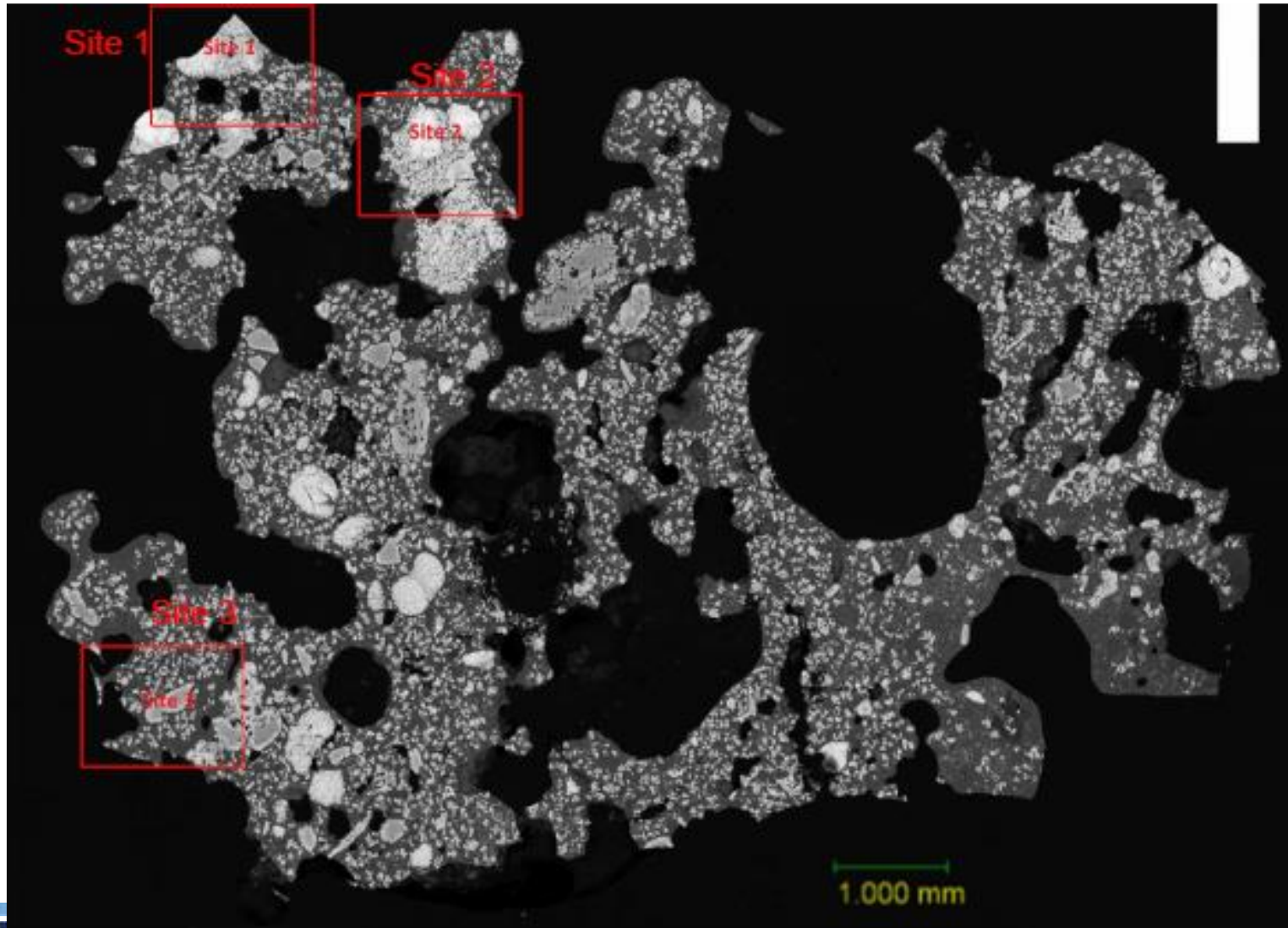


スケール長さ : 100 µm

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1
MCCI酸化物相試料 #1 (7)

2-217

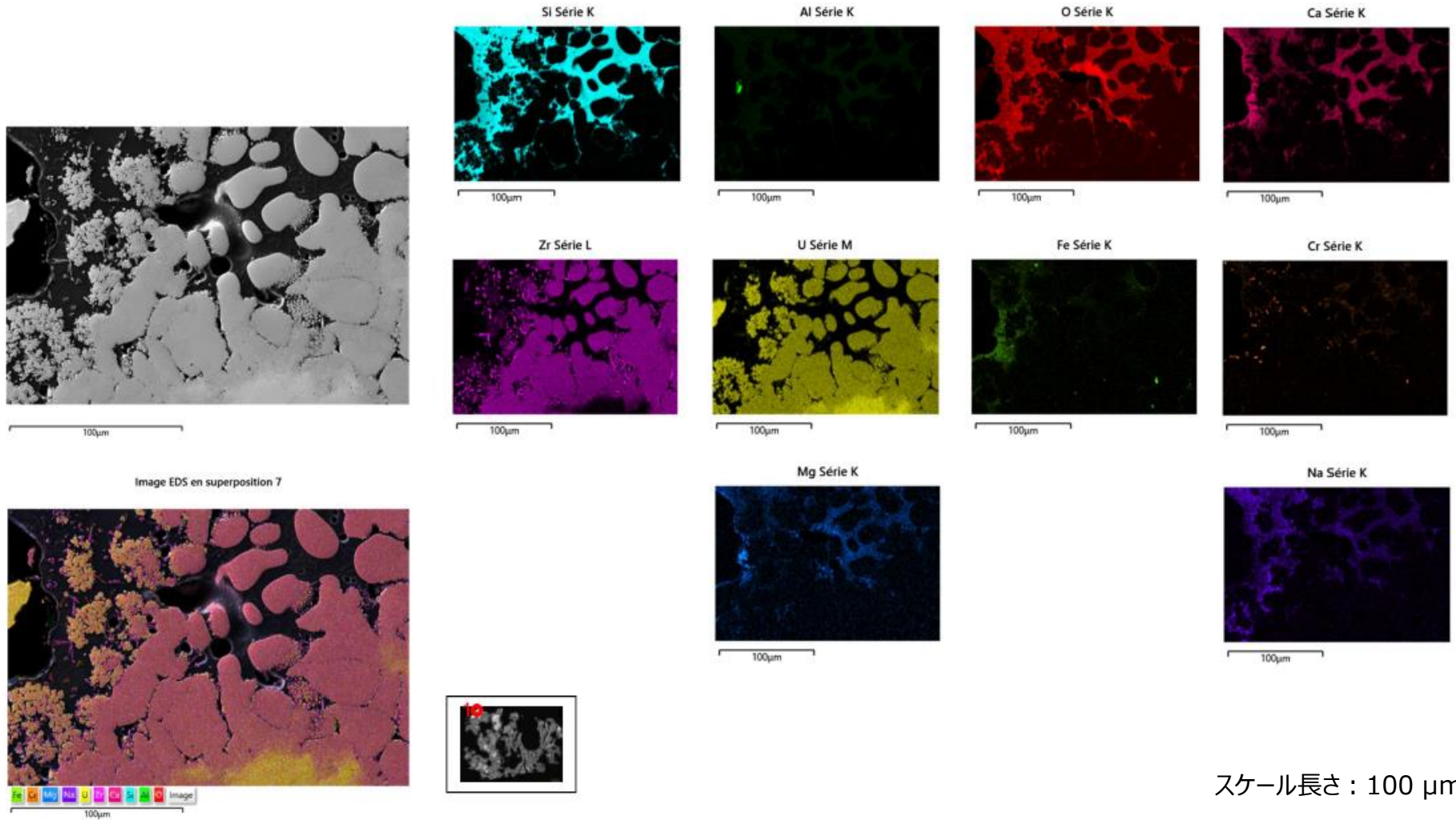
試料VF-U1dのSEM写真



SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 MCCI酸化物相試料 #1 (8)

2-218

SEM-EDX分析によるVF-U1d Site 1の特性X線マップ



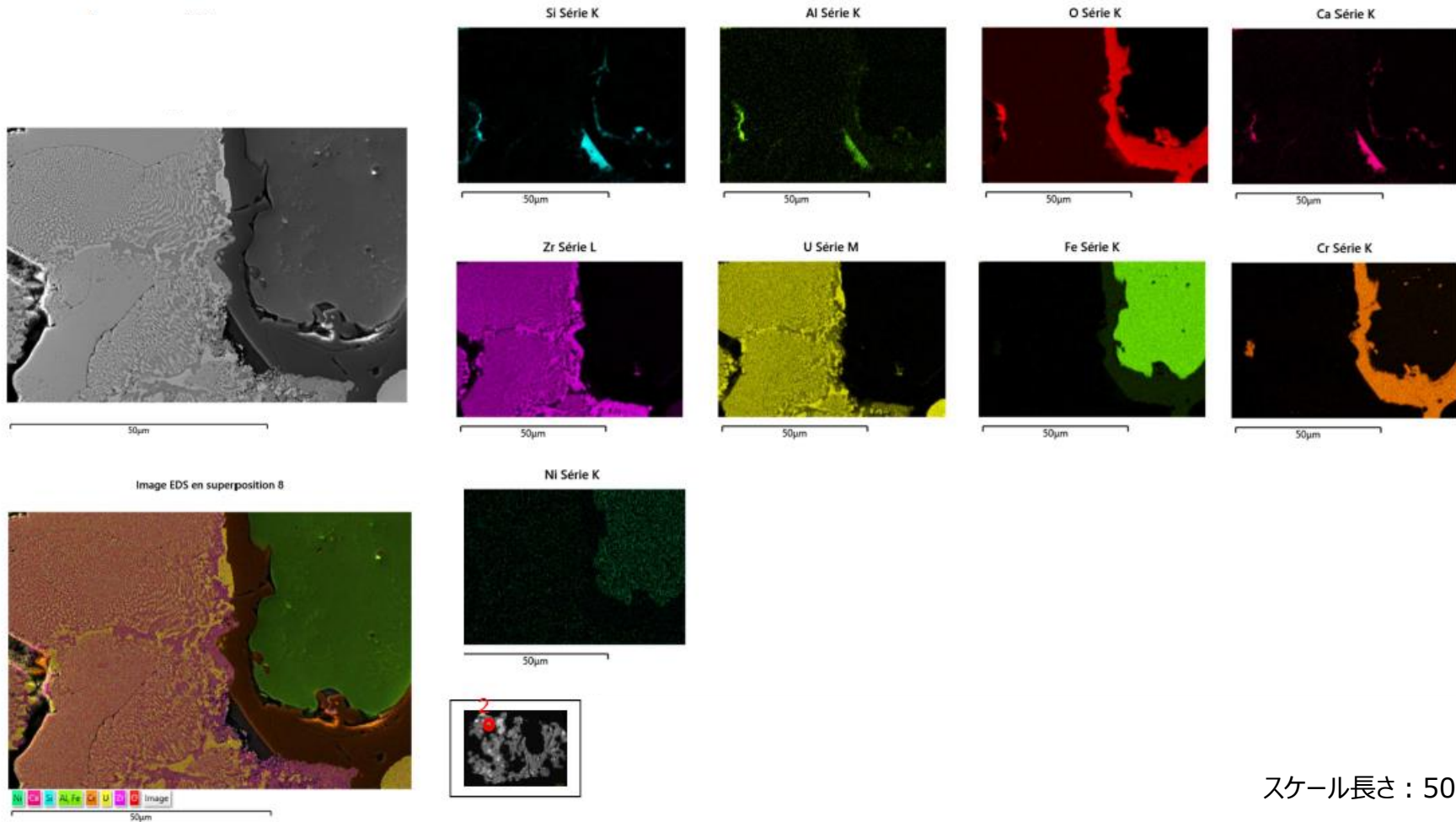
スケール長さ : 100 µm

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1

MCCI酸化物相試料 #1 (9)

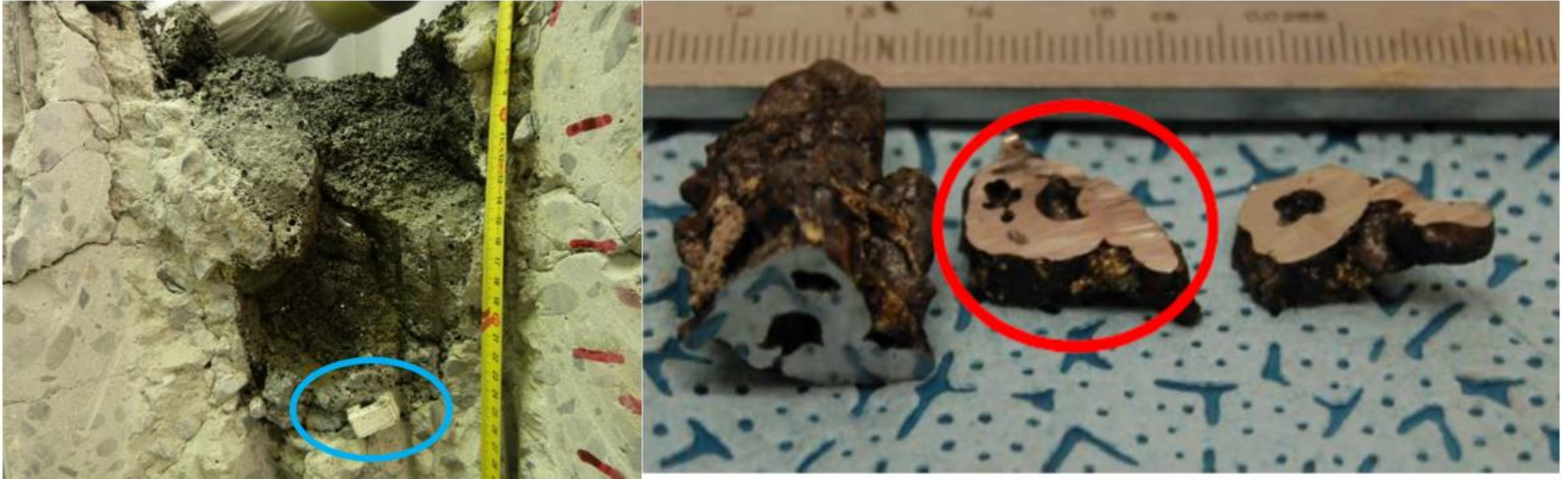
2-219

SEM-EDX分析によるVF-U1d Site 2の特性X線マップ (塊状の金属相が生成している領域)



SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 (2)
MCCI 金属相試料 #1 (1) –分析用サンプル

2-220



写真左：VF-U1模擬燃料デブリの断面。底部に析出した金属相を青枠で示す。

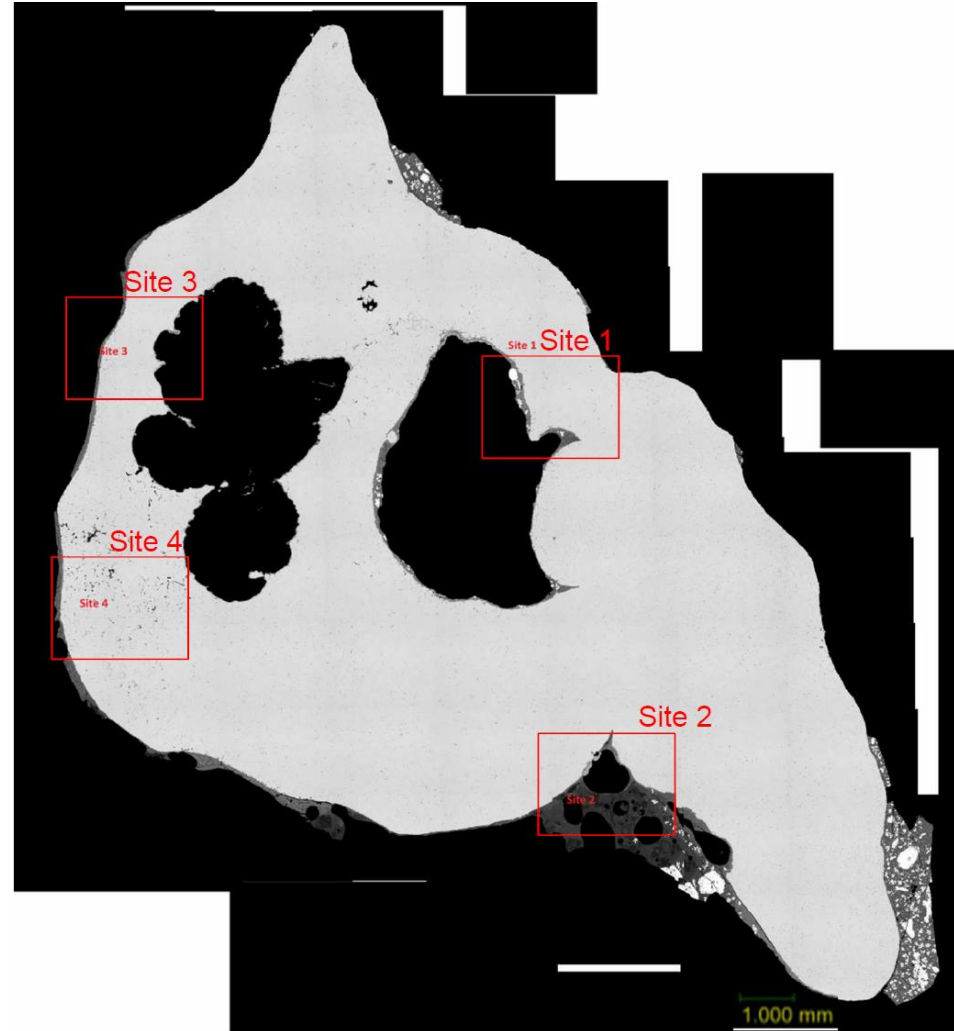
写真右：VF-U1a 分析用に切断した試料のマクロ写真

・分析用金属相サンプルは下部の析出部の外辺部から採取

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 (2)
MCCI 金属相試料 #1 (2)

2-221

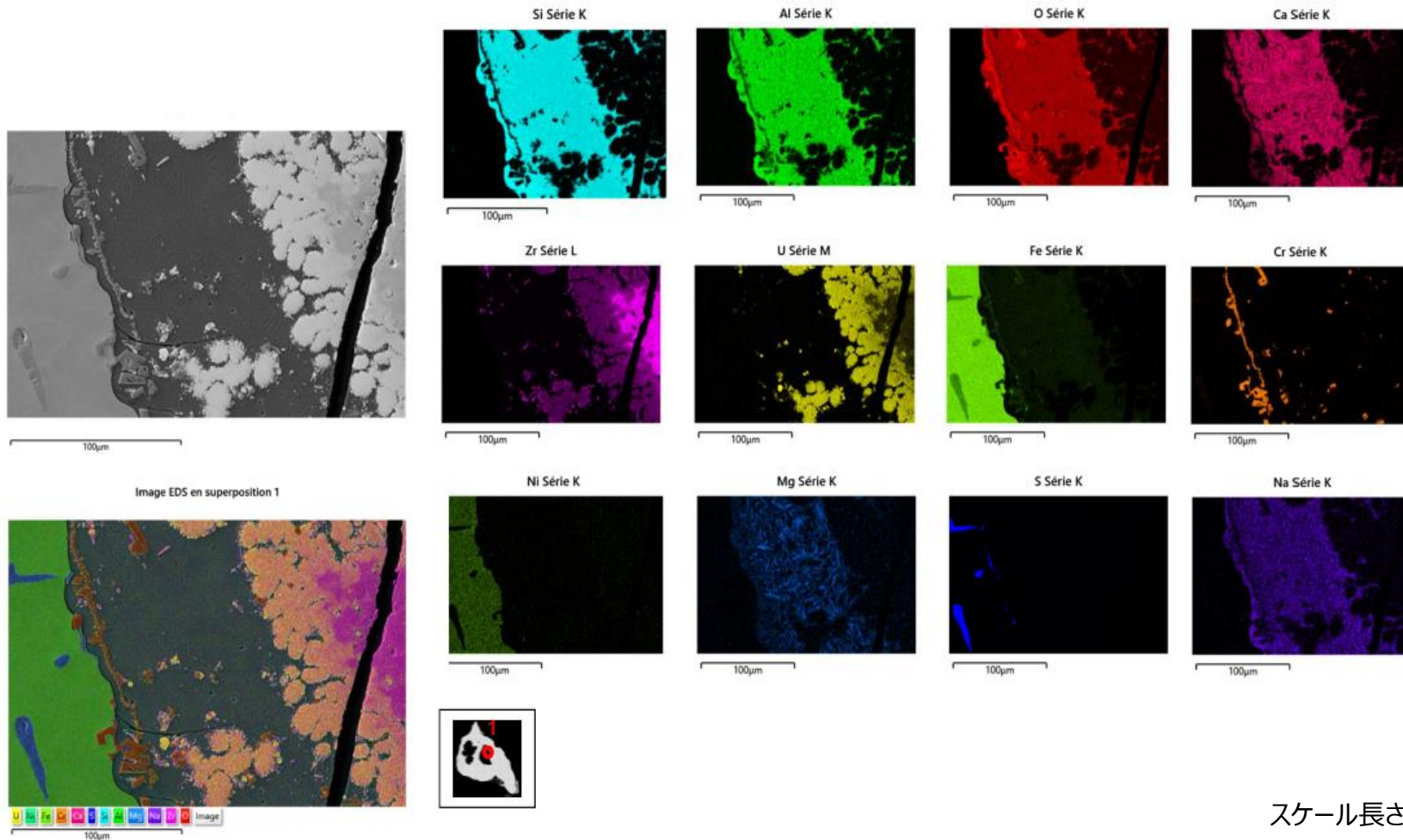
試料VF-U1aのSEM写真



SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 (2) MCCI 金属相試料 #1 (3)

2-222

EDX分析によるVF-U1a Site 1の特性X線マップ



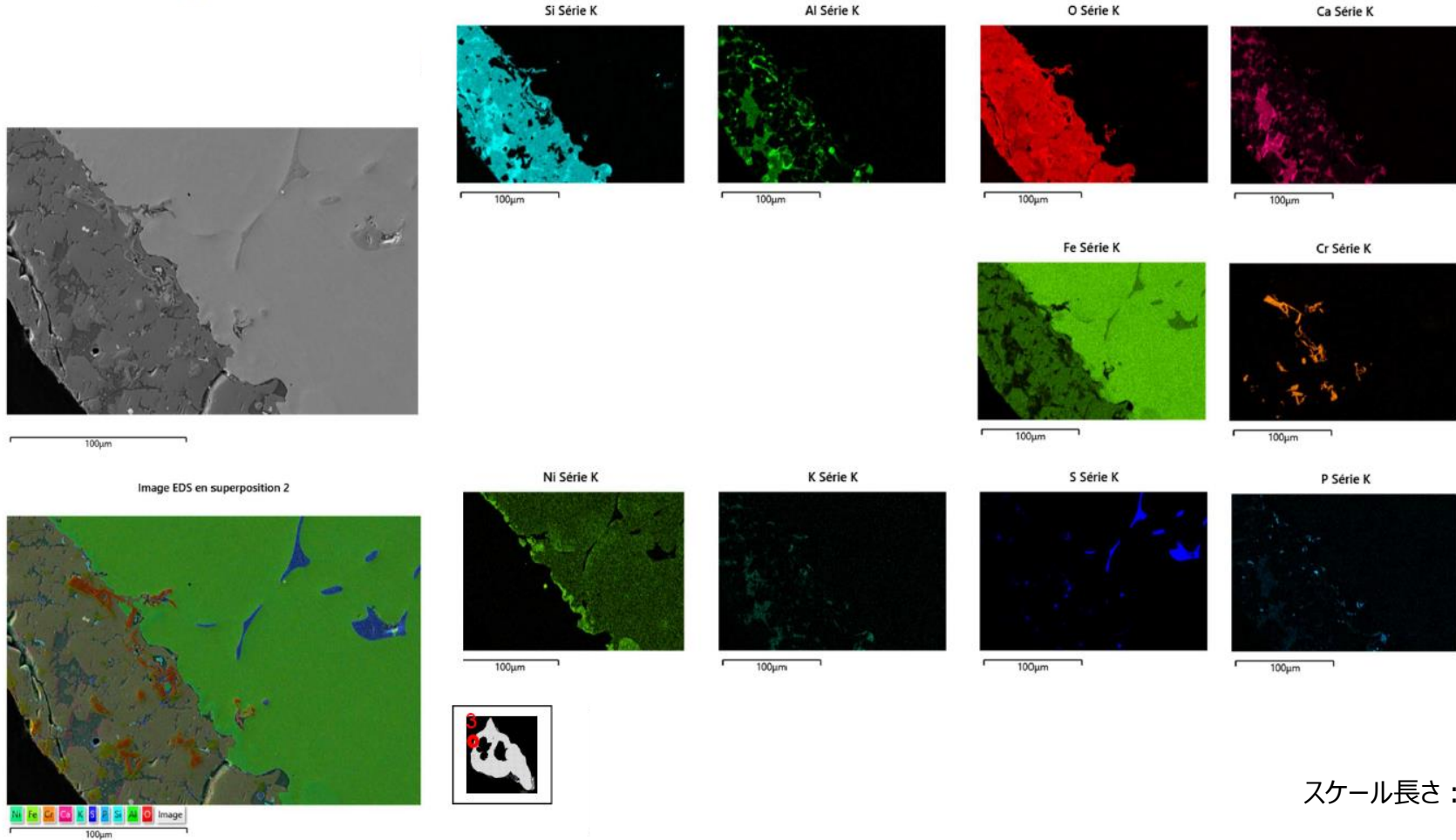
スケール長さ : 100 µm

SAMPLES #1 MCCI U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U1 (2)

MCCI 金属相試料 #1 (4)

2-223

EDX分析によるVF-U1a Site 3の特性X線マップ (コンクリートおよび鉄材の多い領域)

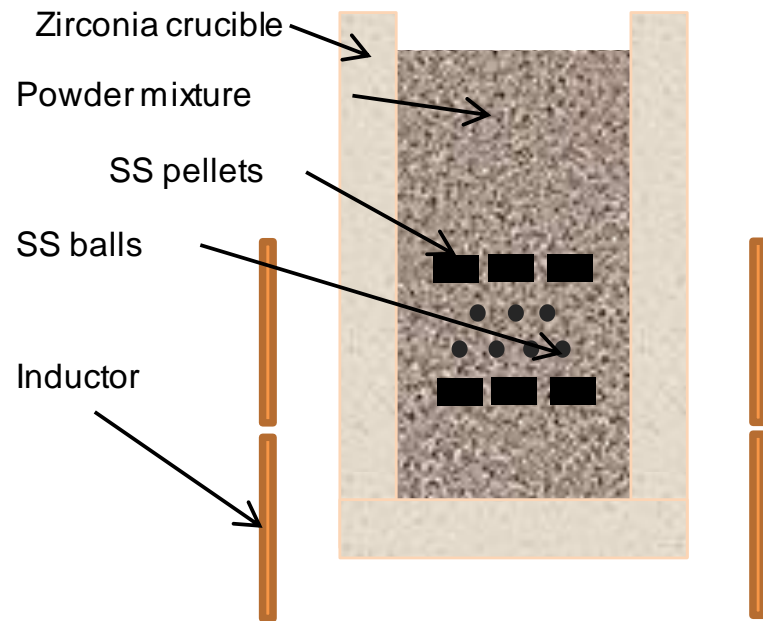


スケール長さ : 100 µm

VF-U2 (In-Vessel) 仕込み組成

原料	組成	原料	組成
UO ₂	35.7%	CsOH.H ₂ O	0.06%
Zr	34.5%	BaO	0.04%
ZrO ₂	18.8%	La ₂ O ₃	0.032%
CeO ₂	0.2%	PdO	0.030%
SnO ₂	0.9%	Pr ₂ O ₃	0.030%
B ₄ C	1.0%	Sm ₂ O ₃	0.015%
Stainless steel 304L	8.4%	SrO	0.022%
RuO ₂	0.06%	Y ₂ O ₃	0.014%
Nd ₂ O ₃	0.11%	TeO ₂	0.029%
MoO ₂	0.09%		

模擬燃料デブリ試料調製準備 (原料の装荷状況)



加熱前の装荷された原材料の構成図



加熱前のVF-U2試験の状況

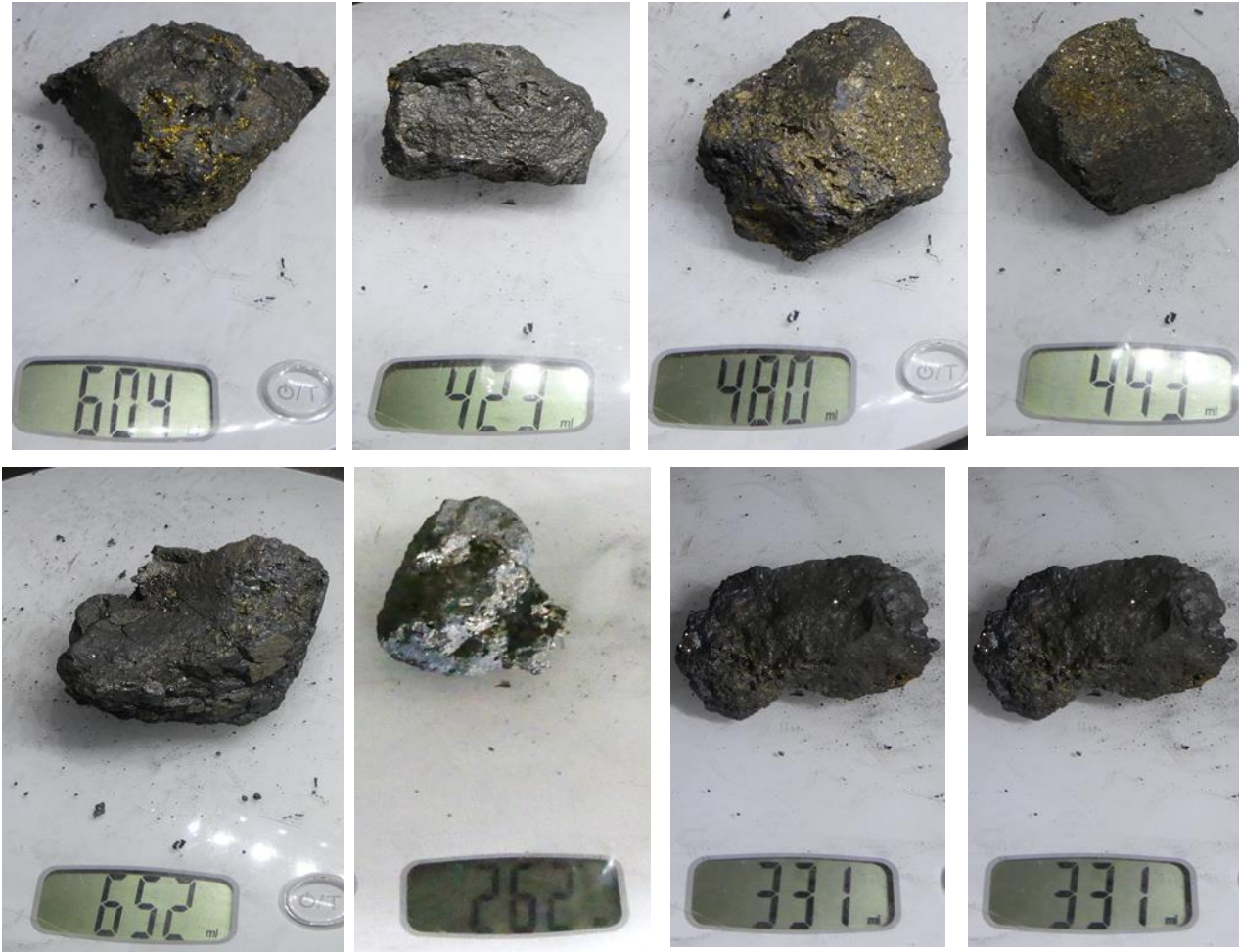
加熱中のVF-U2の状況



SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2 (4)

2-227

VF-U2から採取したIn-Vessel模擬燃料デブリ試料の一部



重量計上で撮影
数値の単位はg

冷却後、るつぼ内の模擬燃料デブリは割れて大小のブロックや小片になっていたことから、それぞれの位置関係は明確になっていない。

VF-U2から採取したIn-Vessel模擬燃料デブリ試料（前ページの残り）



重量計上で撮影
数値の単位はg

冷却後、るつぼ内の模擬燃料デブリは割れて大小のブロックや小片になっていたことから、それぞれの位置関係は明確になっていない。

VF-U2から採取した試料（写真の左から右へ）VF-U2a、VF-U2b、VF-U2c、VF-U2dのマクロ写真

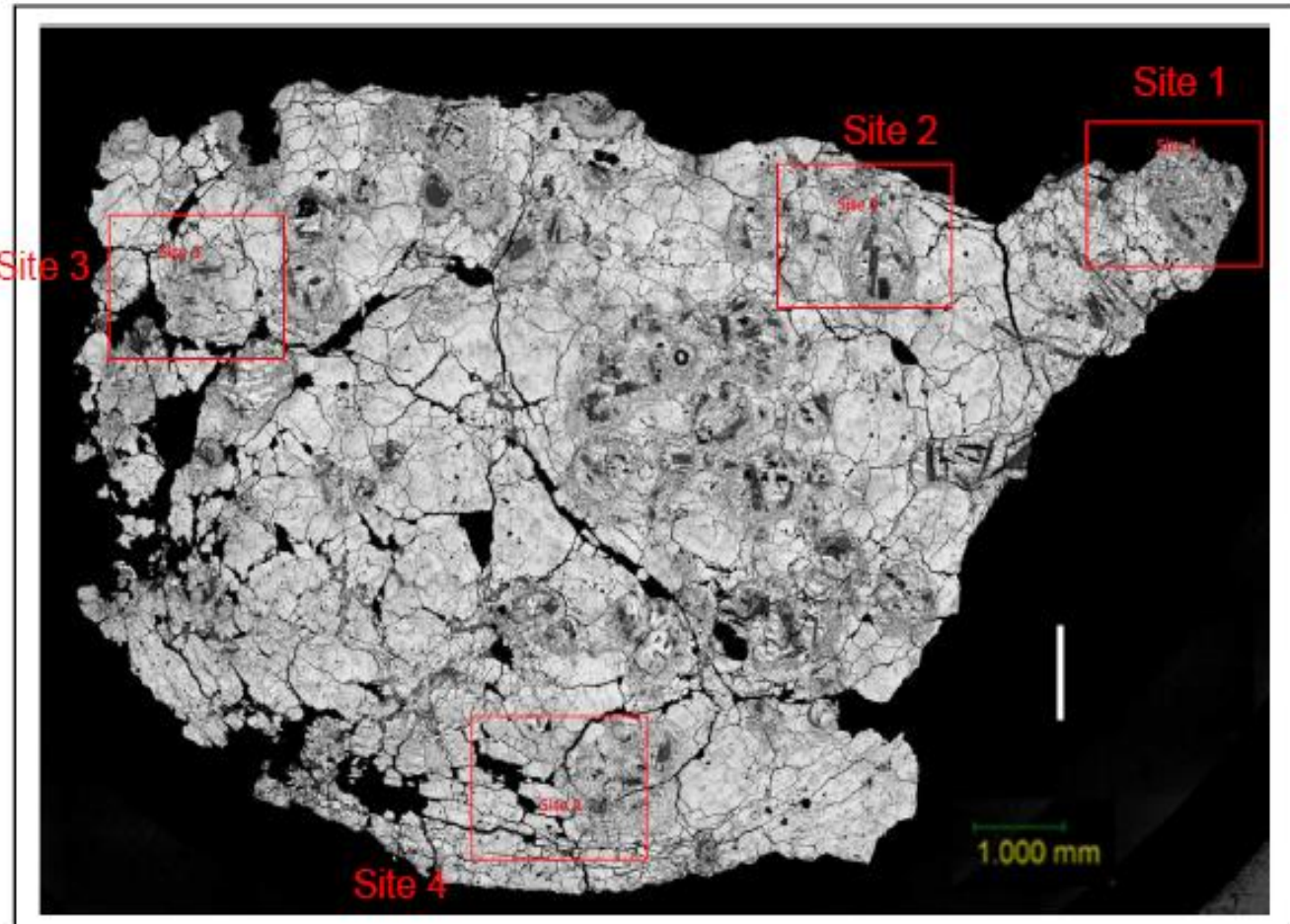


冷却後、るつぼ内の模擬燃料デブリは割れて大小のブロックや小片になっていたことから、それぞれの位置関係は明確になっていない。

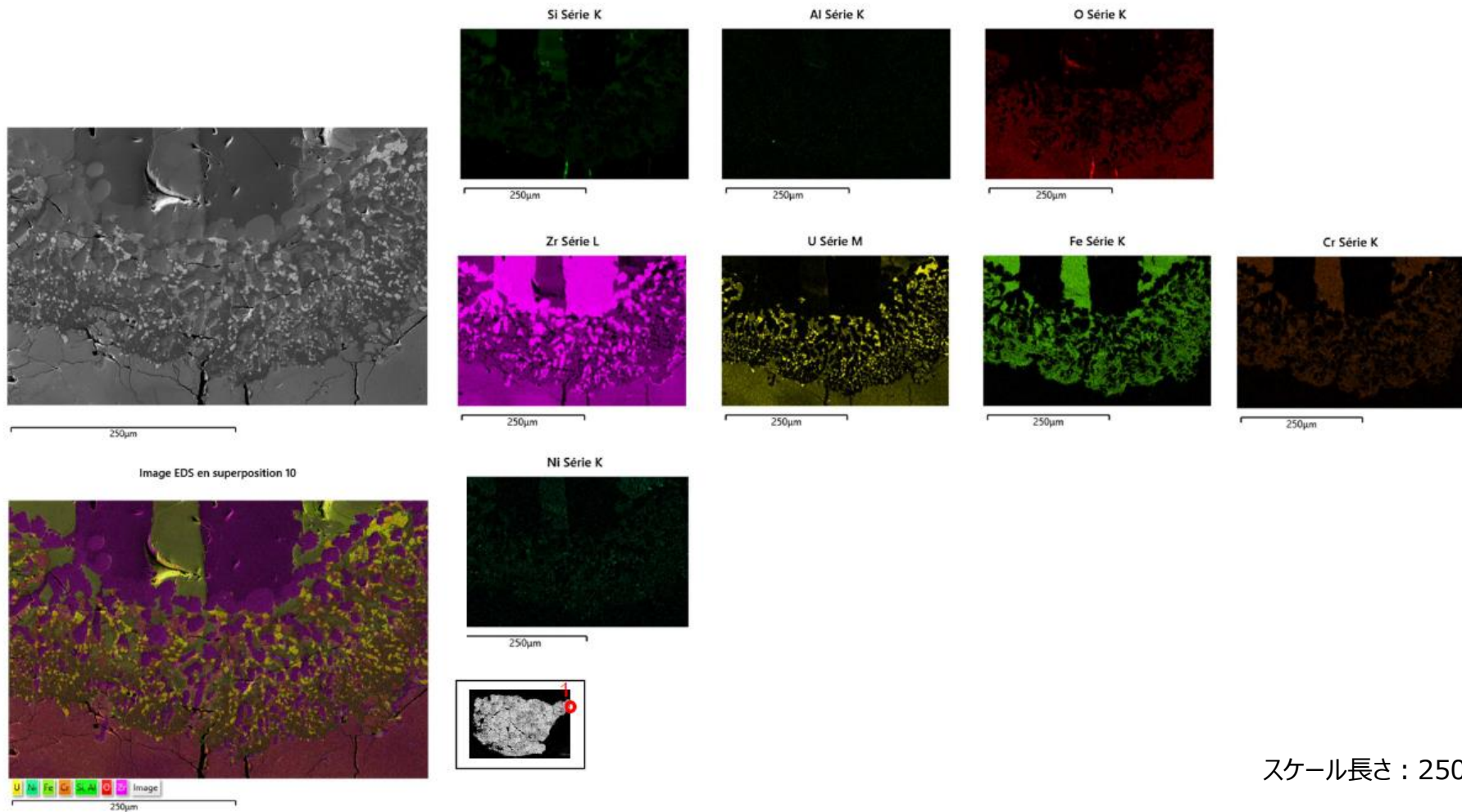
SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2
VF-U2a(1)

2-230

試料VF-U2aのマクロ写真（左）およびSEM写真（右）



EDX分析によるVF-U2a Site 1の特性X線マップ

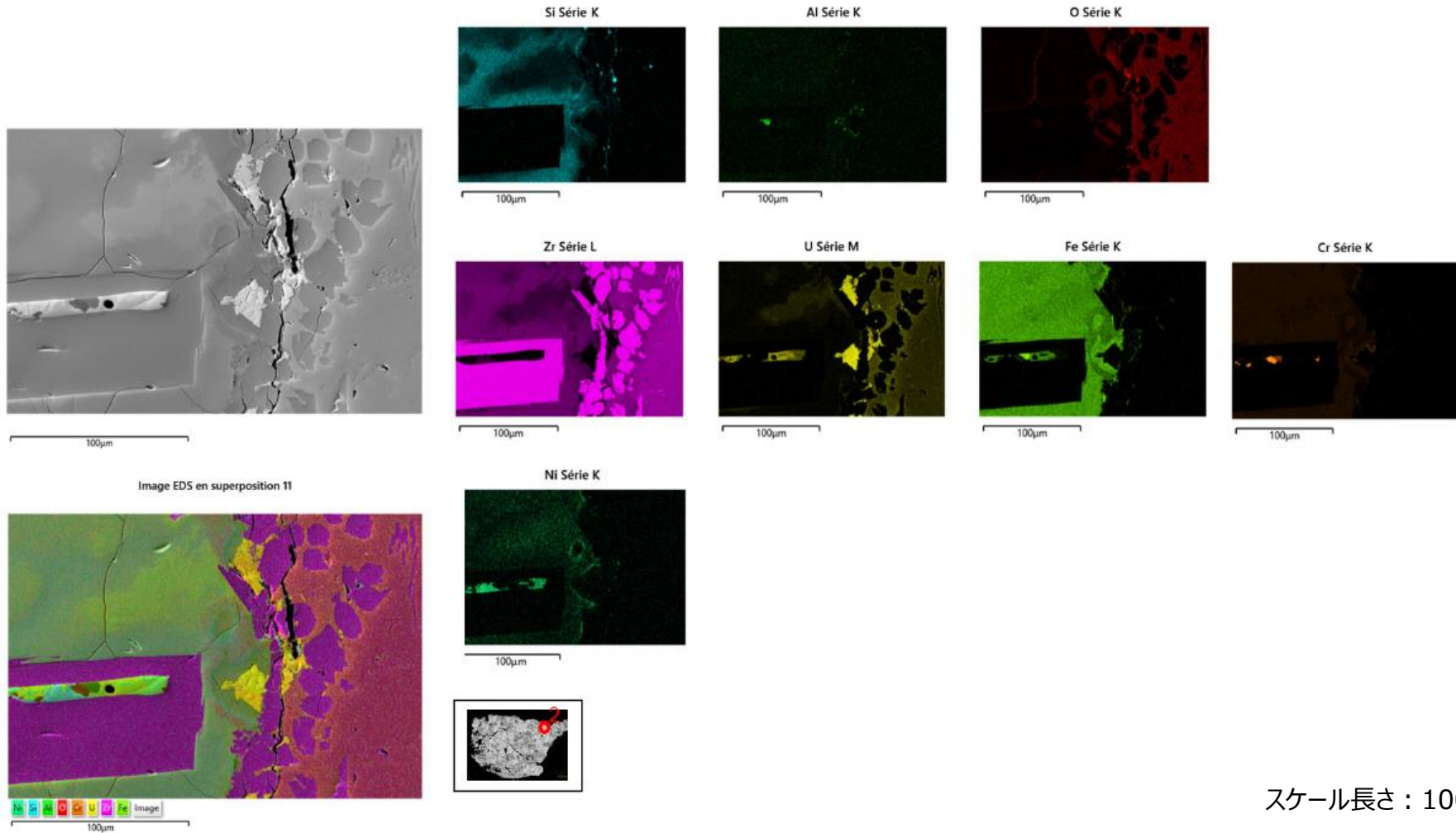


スケール長さ : 250 µm

SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2 VF-U2a(3)

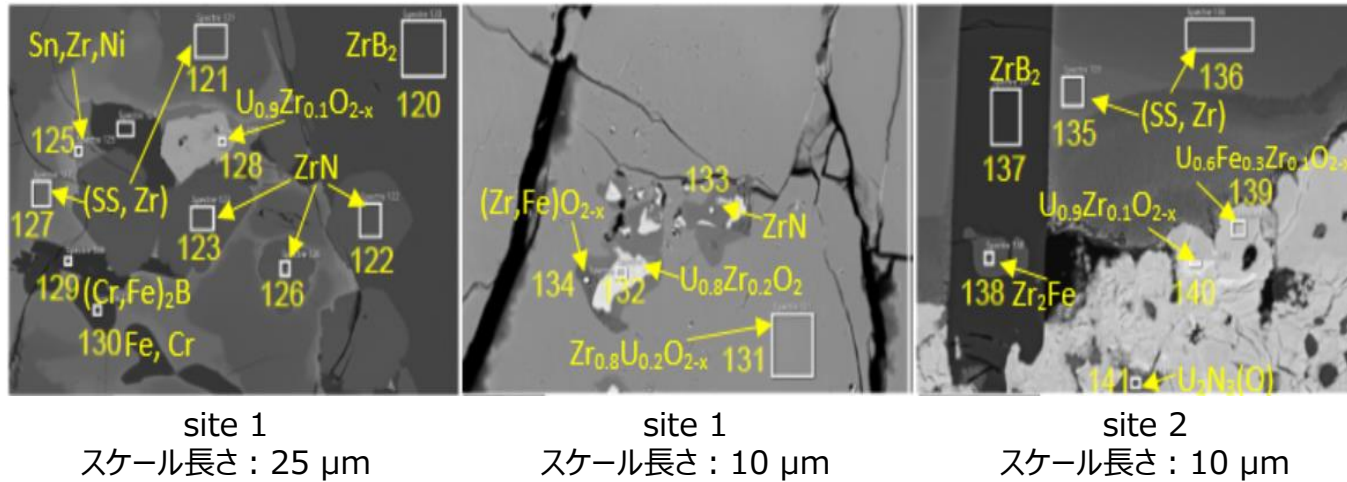
2-232

EDX分析によるVF-U2a Site 2の特性X線マップ



スケール長さ : 100 µm

EDXによるVF-U2aの定性分析結果



EDXによる定性分析で同定された相の例

(U、Zr) 酸化物相

$U_{0.9}Zr_{0.1}O_{2-x}$ タイプ：Point 128、140

$U_{0.8}Zr_{0.2}O_2$ タイプ：Point 132

$Zr_{0.8}U_{0.2}O_{2±x}$ ：Point 131

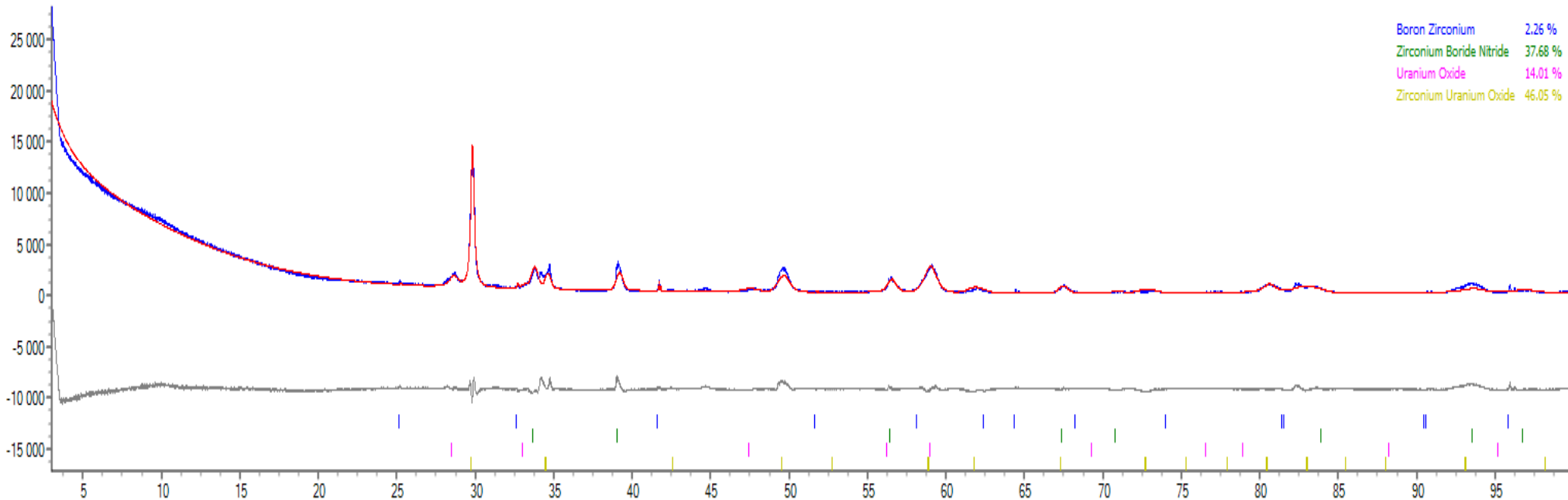
金属相

ZrおよびUを含む鉄鋼タイプの相：point 127、135、136

窒化物相

僅かに酸化されたZrN相：Point 122、123、126、133

XRD pattern of sample 試料VF-U2aのX線回折測定結果 (Cu K α 線使用)



VF-U2c の測定結果(赤色)、リートベルト法による解析結果 (青色)、残余部 (灰色)

参考として、以下の標準X線回折パターンを測定結果の下部に短い縦線で示す。

zirconium diboride (ZrB_2 青色)、zirconium boro-nitride ($ZrB_{0.4}N_{0.6}$ 緑色)、
uranium oxide ($UO_{2.11}$ 紫色)、zirconium-uranium oxide ($U_{0.18}Zr_{0.82}O_2$ 黄色)

* 粉末試料に対するX線回折測定を行い、得られた回折パターンについて最小二乗法で解析することにより、格子定数や組成など、X線回折によって得られる情報を精密化する手法。

SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2 VF-U2a(6)

2-235

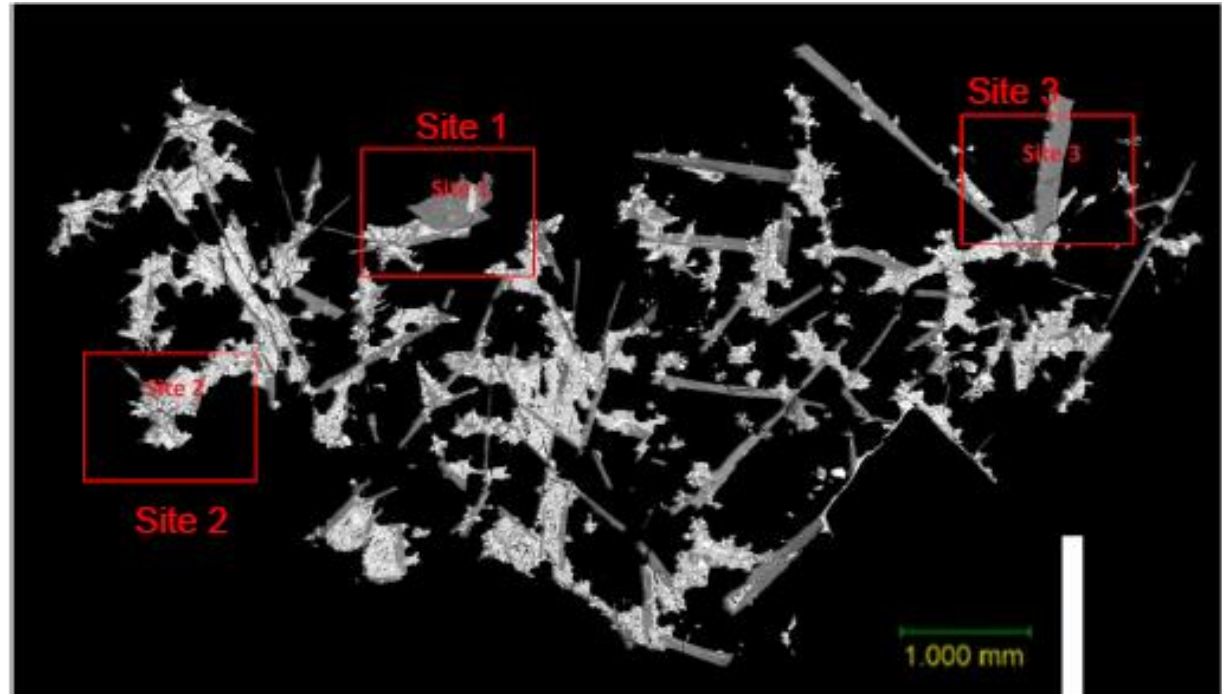
VF-U2から採取した4試料についてX線回折のリートベルト解析により得た組成

Phases (wt%)	VF-U2a	VF-U2b	VF-U2c	VF-U2d
zirconium diboride (ZrB_2)	2.3	2.8	0.01	-
zirconium boro-nitride ($ZrB_{0.4}N_{0.6}$)	38	39	26	28
uranium oxide ($UO_{2.11}$)	14	13	7	6
zirconium-uranium oxide ($U_{0.18}Zr_{0.82}O_2$)	46	45	66	64
Uranium nitride (UN_2)	-	-	1	2

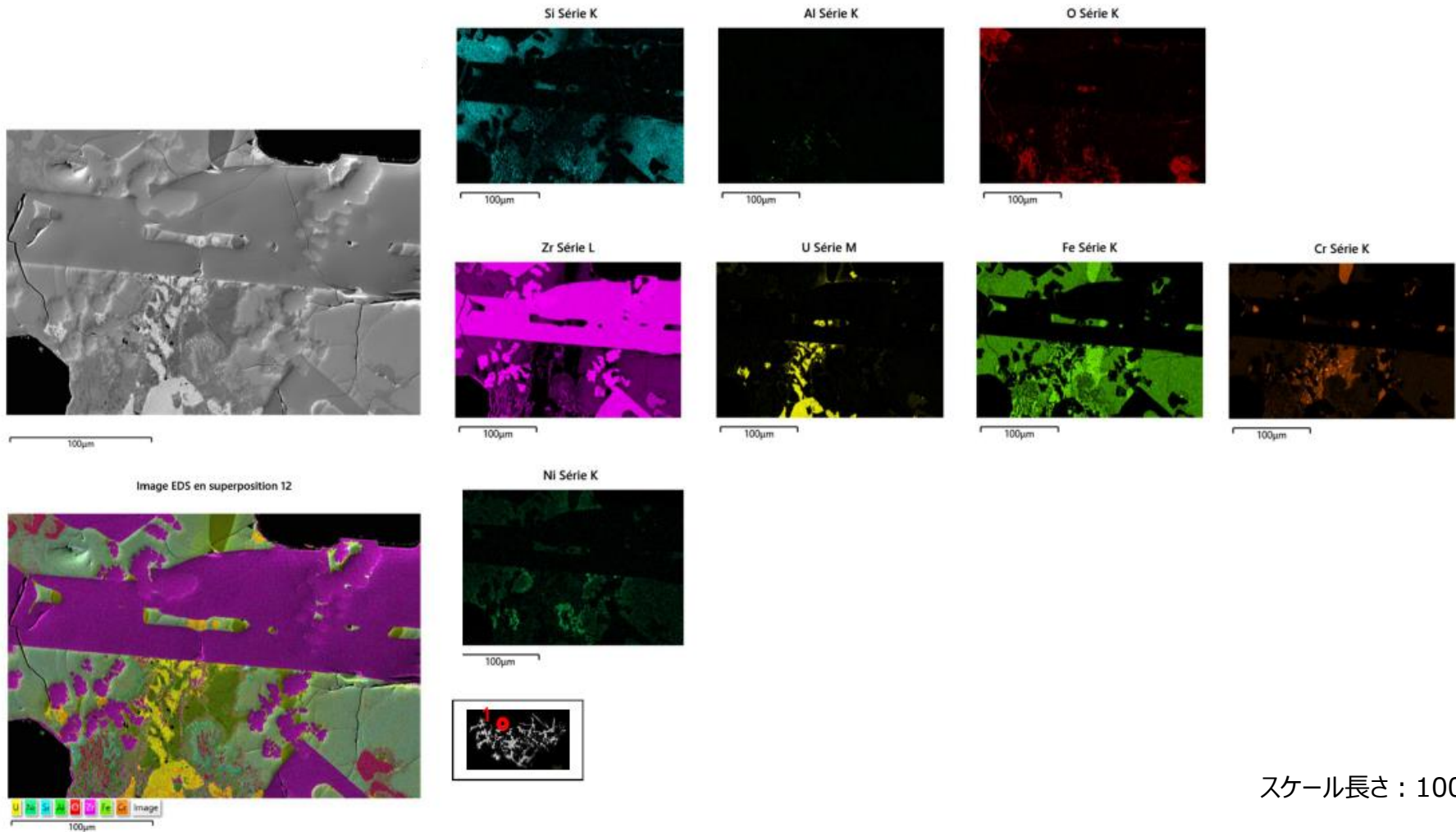
SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2
VF-U2b(1)

2-236

試料VF-U2bのマクロ写真（左）およびSEM写真（右）

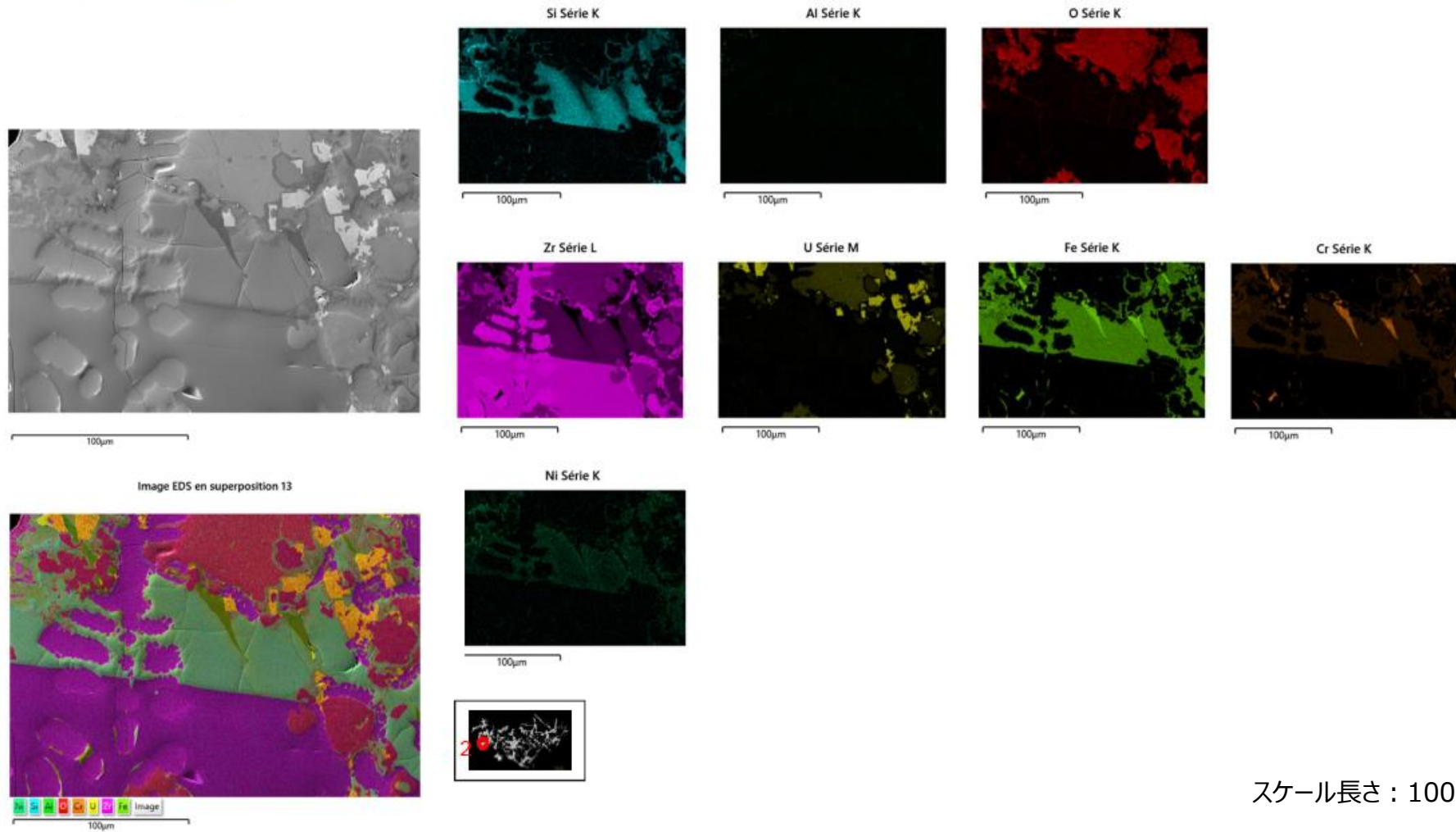


EDX分析によるVF-U2b Site 1の特性X線マップ



スケール長さ : 100 µm

EDX分析によるVF-U2b Site 2の特性X線マップ

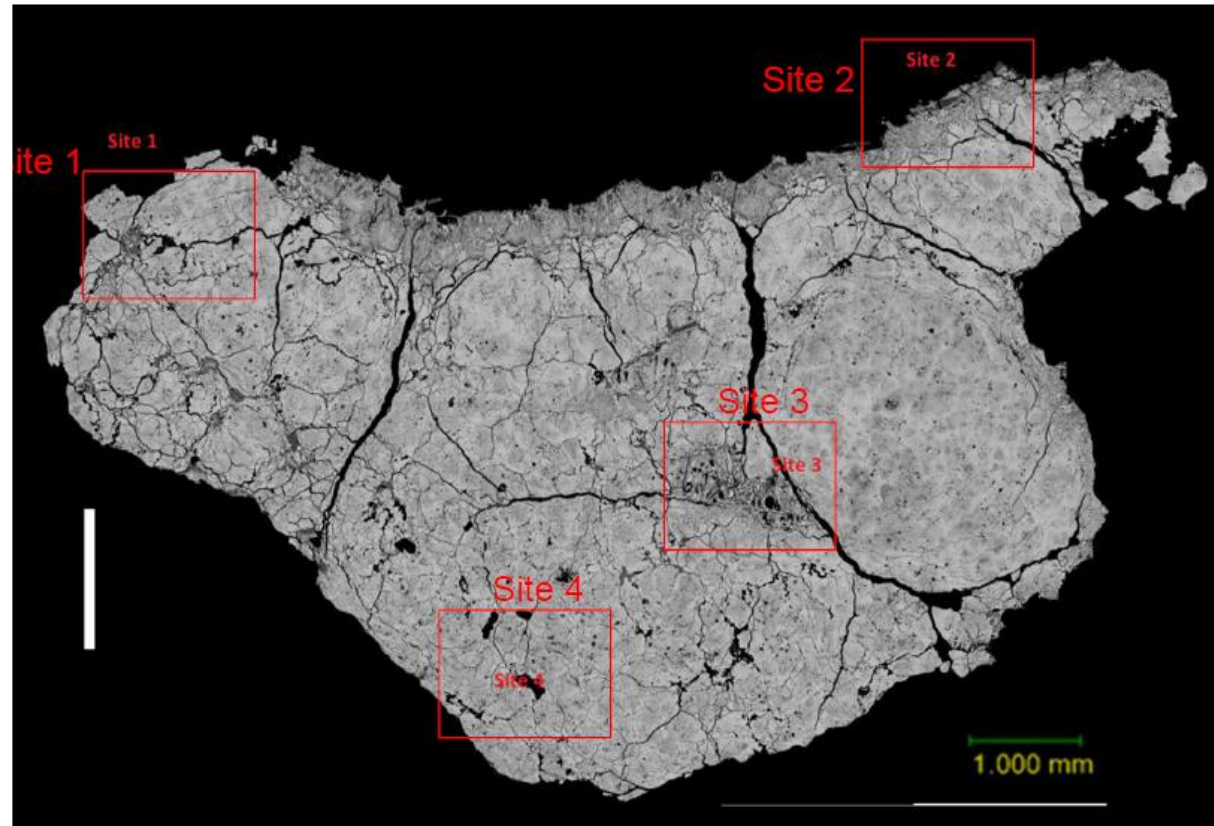
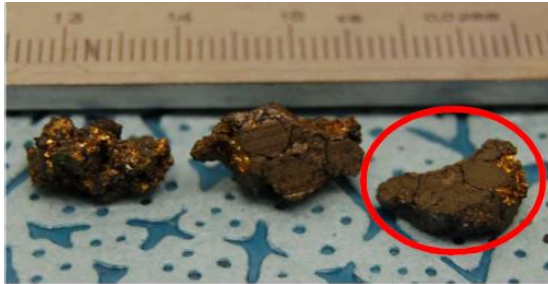


スケール長さ : 100 µm

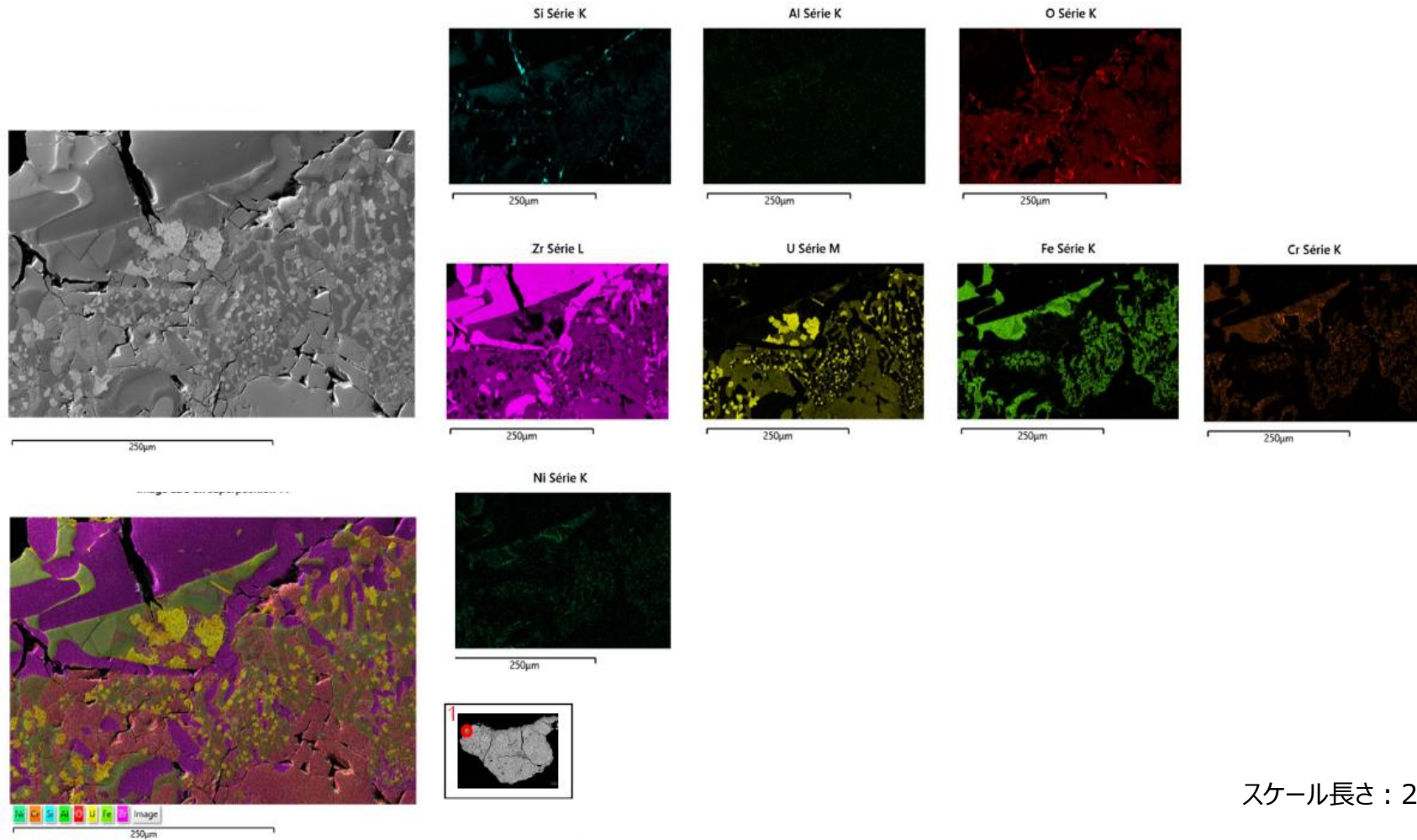
SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2 VF-U2c(1)

2-239

試料VF-U2cのマクロ写真（左）およびSEM写真（右）



EDX分析によるVF-U2c Site 1の特性X線マップ

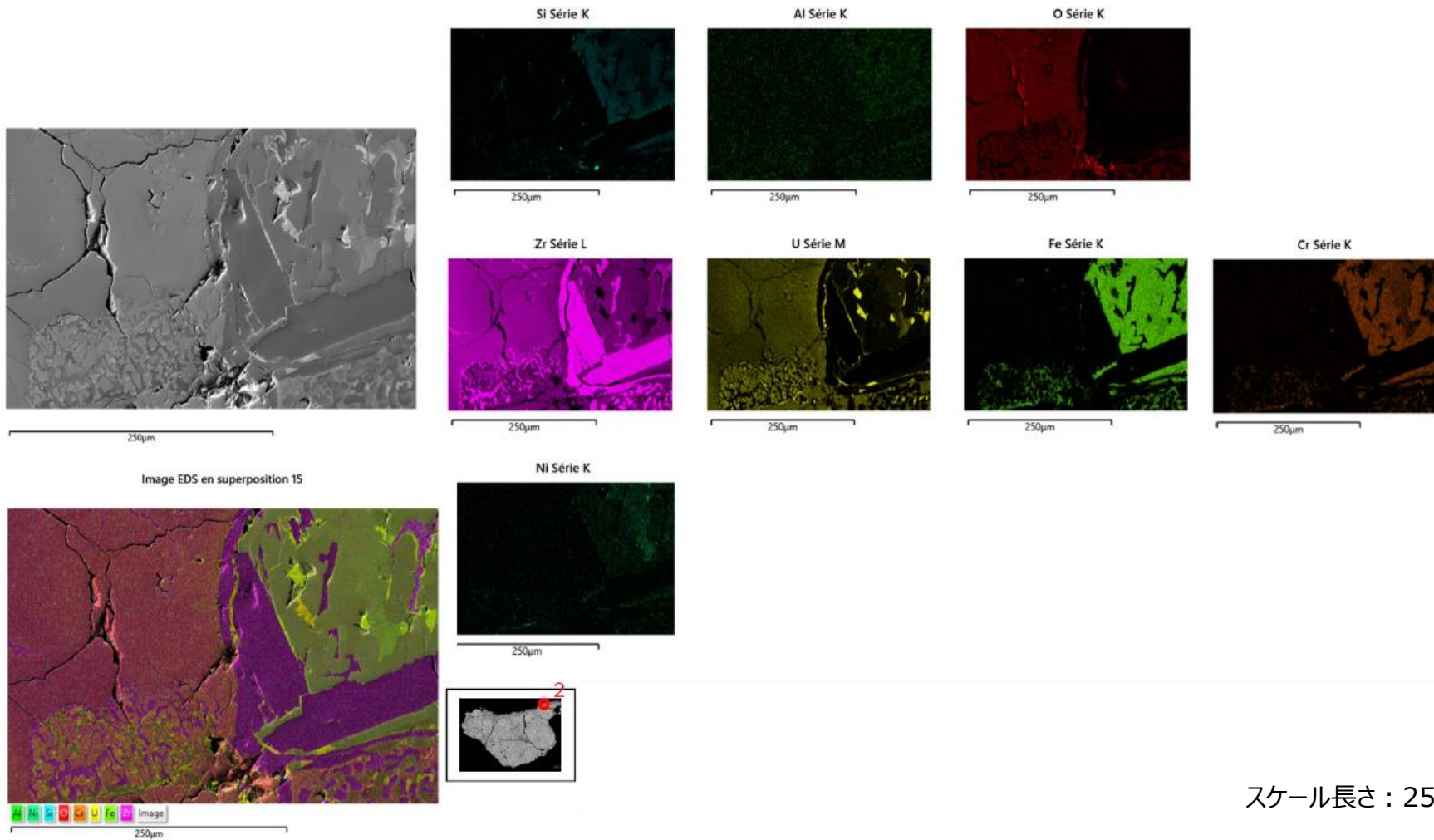


スケール長さ : 250 µm

SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2 VF-U2c(3)

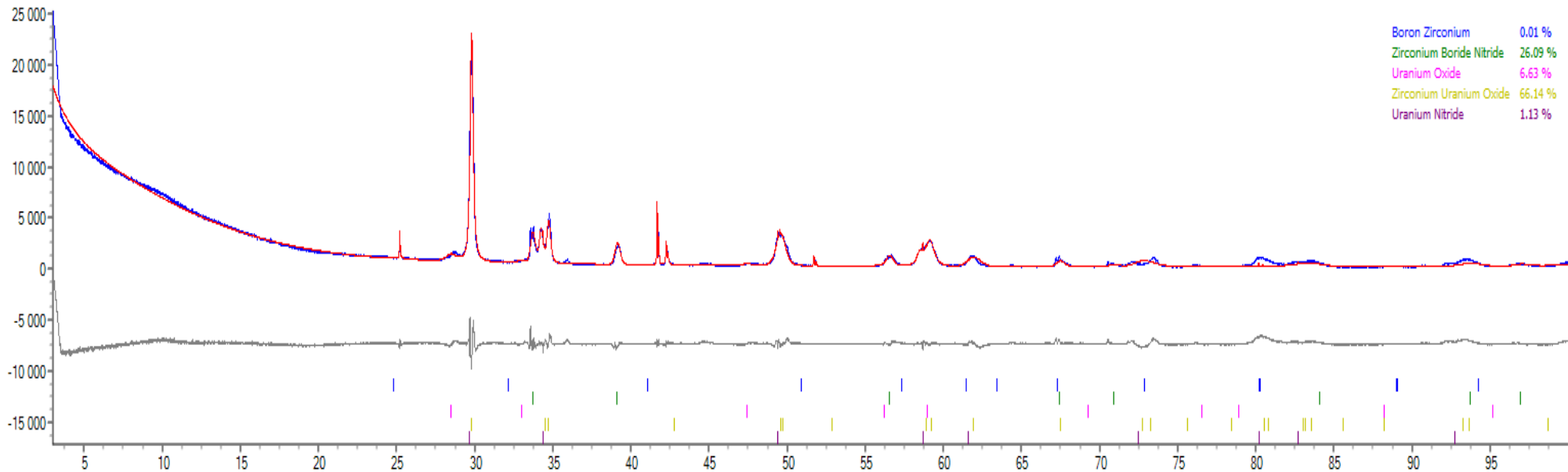
2-241

EDX分析によるVF-U2c Site 2の特性X線マップ



スケール長さ : 250 µm

試料VF-U2cのX線回折測定結果 (Cu K α 線使用)

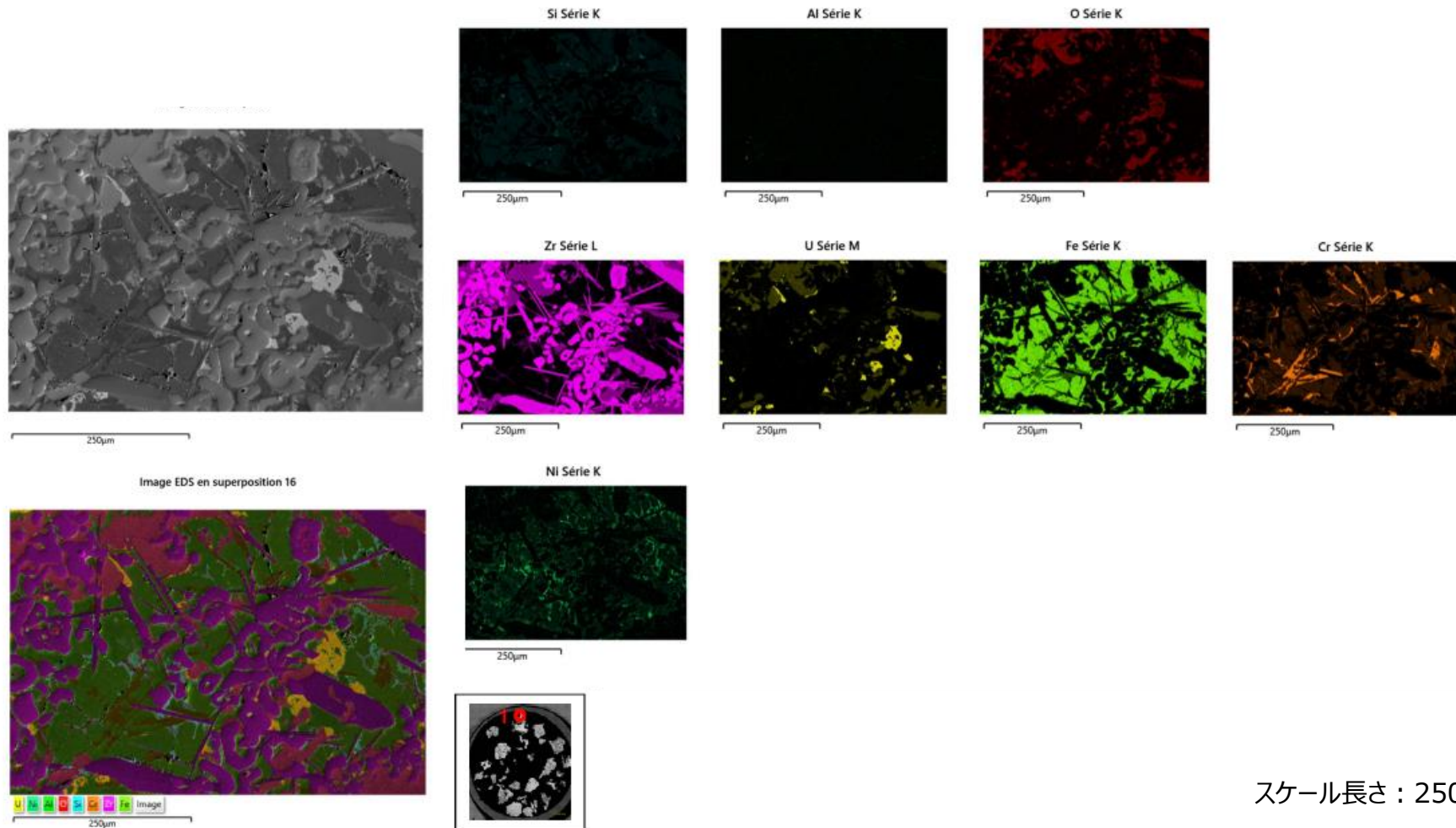


VF-U2c の測定結果(赤色)、リートベルト法による解析結果 (青色)、残余部 (灰色)

参考として、以下の標準X線回折パターンを測定結果の下部に短い縦線で示す。

zirconium diboride (ZrB_2 青色)、zirconium boro-nitride ($ZrB_{0.4}N_{0.6}$ 緑色)、
uranium oxide ($UO_{2.11}$ 明紫色)、zirconium-uranium oxide ($U_{0.18}Zr_{0.82}O_2$ 黄色)、
uranium nitride (UN_2 濃紫色)

EDX分析によるVF-U2d Site 1の特性X線マップ

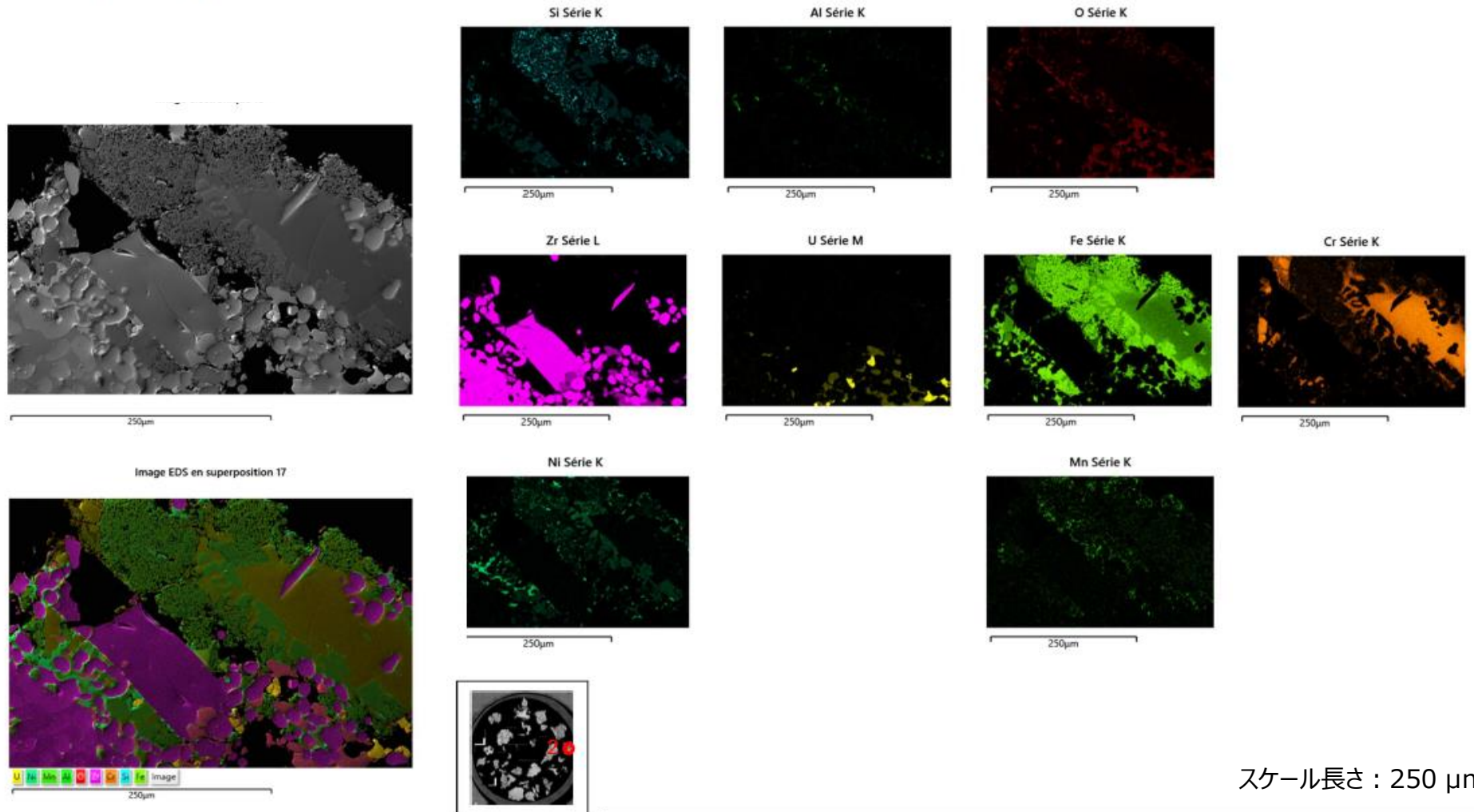


スケール長さ : 250 µm

SAMPLES #5、#6 In-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U2 VF-U2d(2)

2-244

EDX分析によるVF-U2d Site 2の特性X線マップ



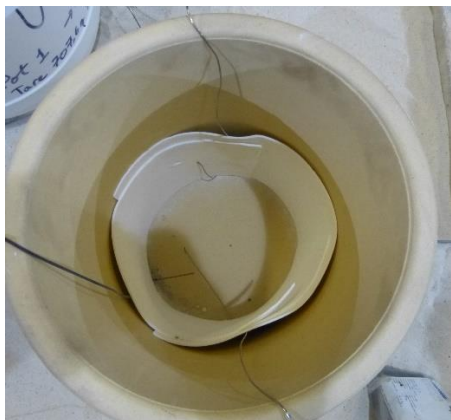
スケール長さ : 250 µm

VF-U3 (Ex-Vessel) 仕込み組成

	Loaded mass	Wt%		Loaded mass	Wt%
UO ₂	10 050.1	24.84%	RuO ₂	16.2	0.04%
Zr	-	0.00%	Nd ₂ O ₃	34.3	0.08%
ZrO ₂	4 771.4	11.79%	MoO ₂	32.5	0.08%
CeO ₂	71.0	0.18%	CsOH.H ₂ O	23.1	0.06%
SnO ₂	61.0	0.15%	BaO	14.7	0.04%
B ₄ C	66.8	0.17%	La ₂ O ₃	10.3	0.03%
Stainless steel	2 146.3	5.30%	PdO	10.0	0.02%
Cr ₂ O ₃	224.0	0.55%	Pr ₂ O ₃	10.2	0.03%
Fe	1 450.6	3.59%	Sm ₂ O ₃	7.2	0.02%
SiO ₂	11 692.9	28.90%	SrO	7.1	0.02%
Al ₂ O ₃	2 918.2	7.21%	Y ₂ O ₃	4.3	0.01%
CaO	2 373.2	5.87%	TeO ₂	4.6	0.01%
Fe ₂ O ₃	4 459.0	11.02%			

模擬燃料デブリ試料調製準備手順 (原料の装荷状況)

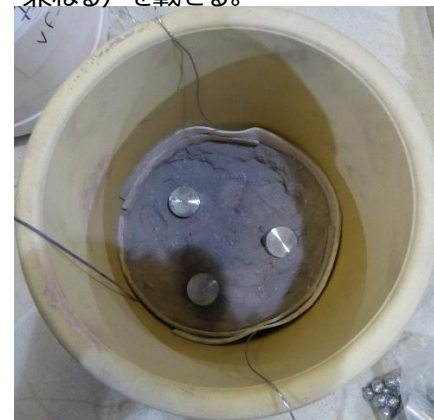
① りつぽ底部に断熱材 (ジルコニア製フェルト) を敷く。



② 原料粉を入れ、その上に鉄製ロッド (誘導加熱のサセプタを兼ねる) を載せる。



③ さらに原料粉を入れ、その上にステンレス製ロッド (誘導加熱のサセプタを兼ねる) を載せる。



④ 同様に原料粉を入れ、鉄製小球を載せる。



⑤ さらに重ねて、原料粉を入れ、その上にステンレス製ロッドを載せる。



⑥ すべての原料粉を投入して準備終了。この後、加熱される。

VF-U3から採取したEx-Vessel模擬燃料デブリ試料



• 模擬燃料デブリは上下2層に分かれている。上部はスラスト部であり、下部はさらに酸化物相（写真下左）、金属相（写真下右の中央部）に分かれている。

上部クラスト部

左：るつぼ内での状況
右：取出し後

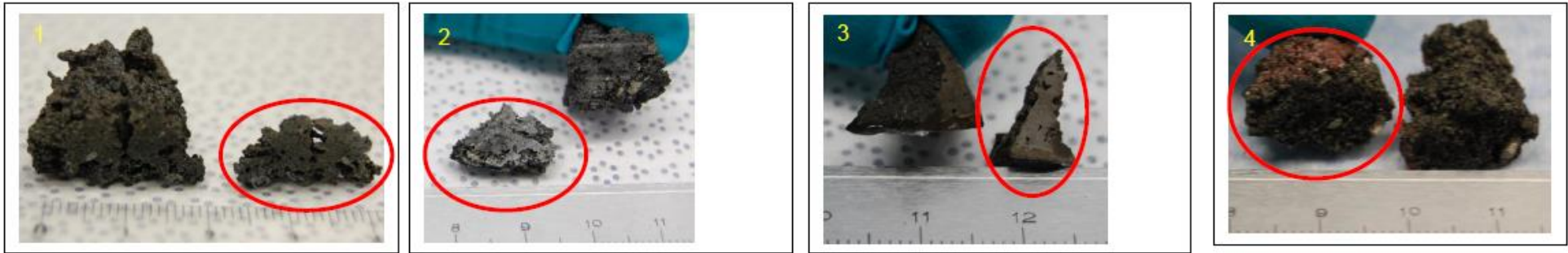


底部ブロック部

左：上面
右：下面

SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3 Ex-Vessel 酸化物相試料

2-248



VF-U3から採取した酸化物相試料（写真の左から右へ） VF-U3a*、VF-U3b*、VF-U3c、VF-U3d*のマクロ写真

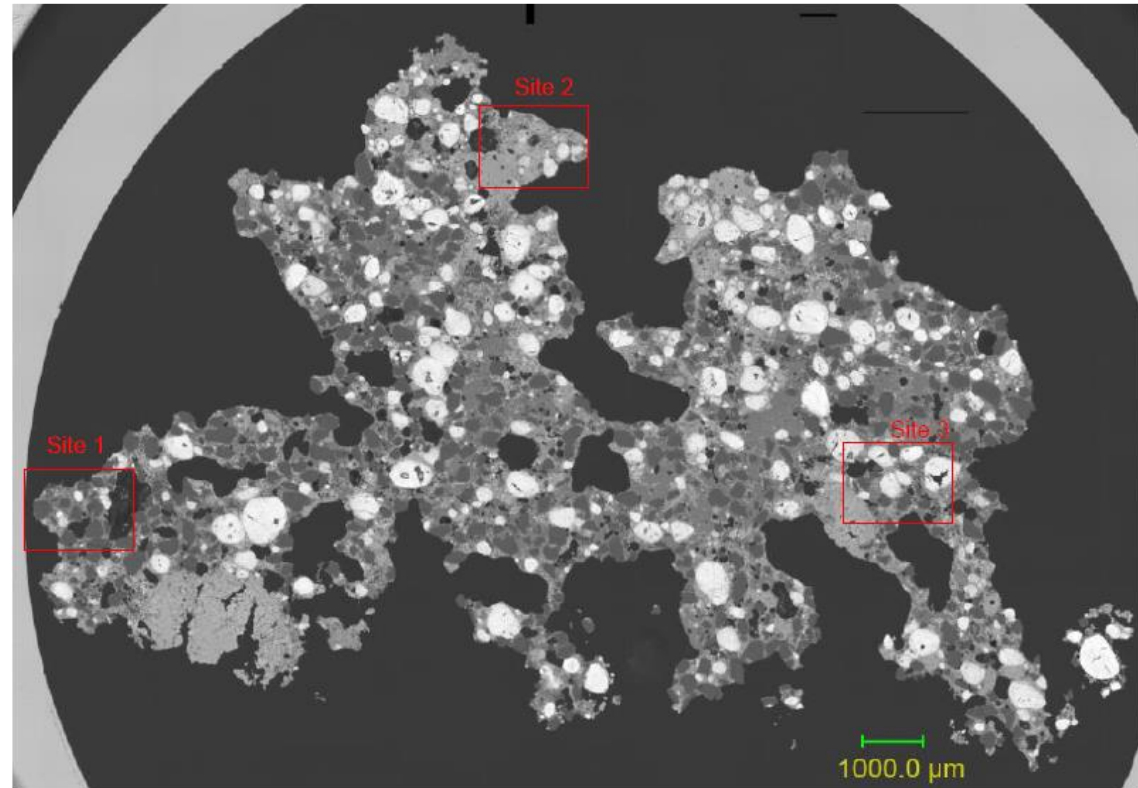
- ・VF-U3a：上部ブロック周辺部から採取
- ・VF-U3b：上部ブロックの下面から採取
- ・VF-U3c：下部ブロックの中央部から採取
- ・VF-U3d：下部ブロックの周辺部から採取

*：VF-U3a、VF-U3b、VF-U3dは一部未溶融であることが判明したことから分析結果から除外した。

SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3
Ex-Vessel 酸化物相試料 VF-U3a(1)

2-249

試料VF-U3a*のマクロ写真（左）およびSEM写真（右）

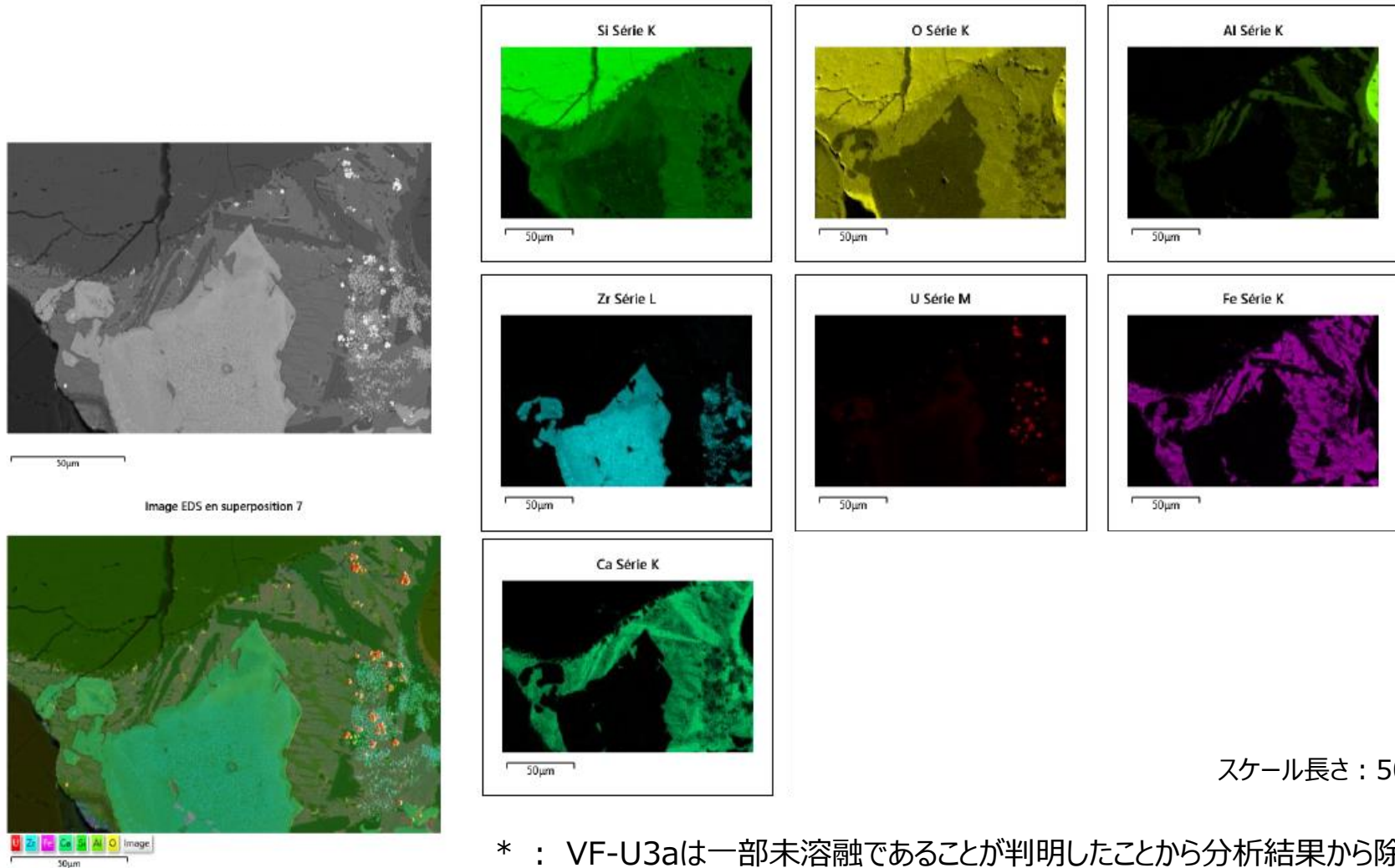


* : VF-U3aは一部未熔融であることが判明したことから分析結果から除外した。

SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3 Ex-Vessel 酸化物相試料 VF-U3a(2)

2-250

EDX分析によるVF-U3aの特性X線マップ (その1)

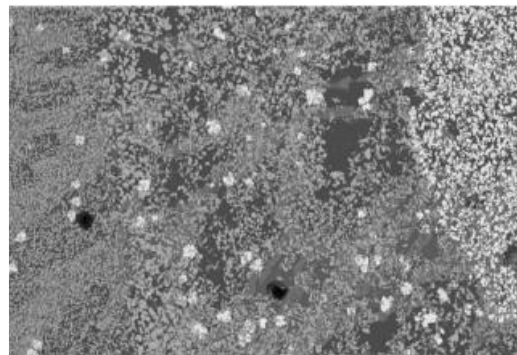


スケール長さ : 50 µm

* : VF-U3aは一部未溶融であることが判明したことから分析結果から除外した。

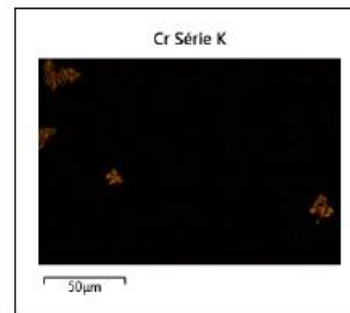
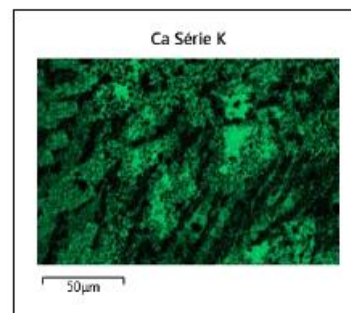
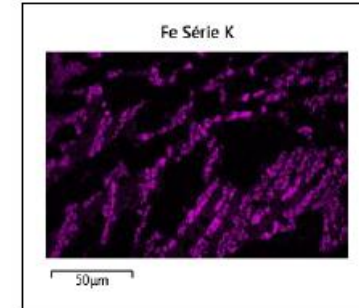
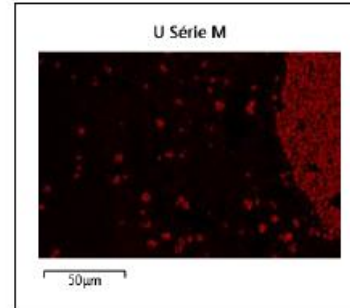
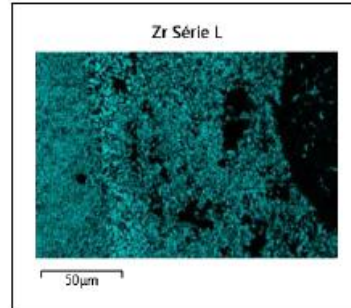
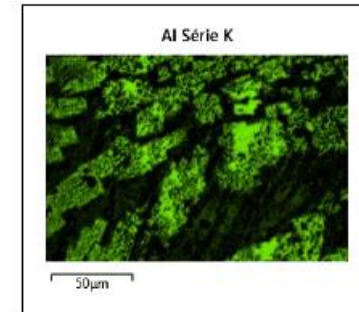
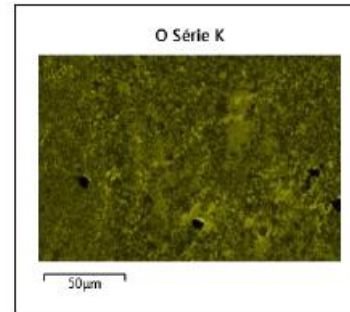
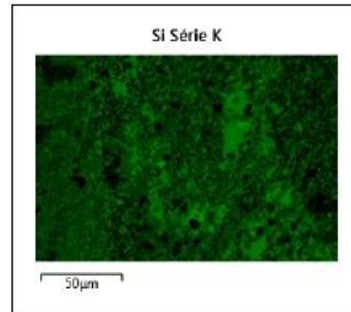
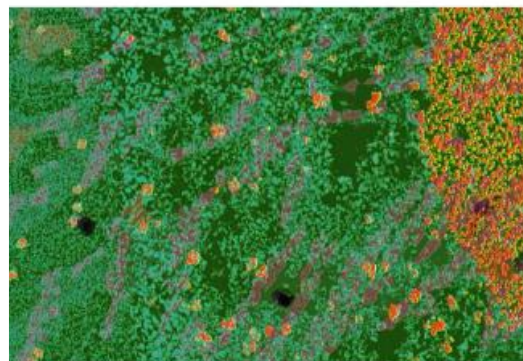
SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3 Ex-Vessel 酸化物相試料 VF-U3a(3)

EDX分析によるVF-U3aの特性X線マップ (その2)



50µm

Image EDS en superposition 8



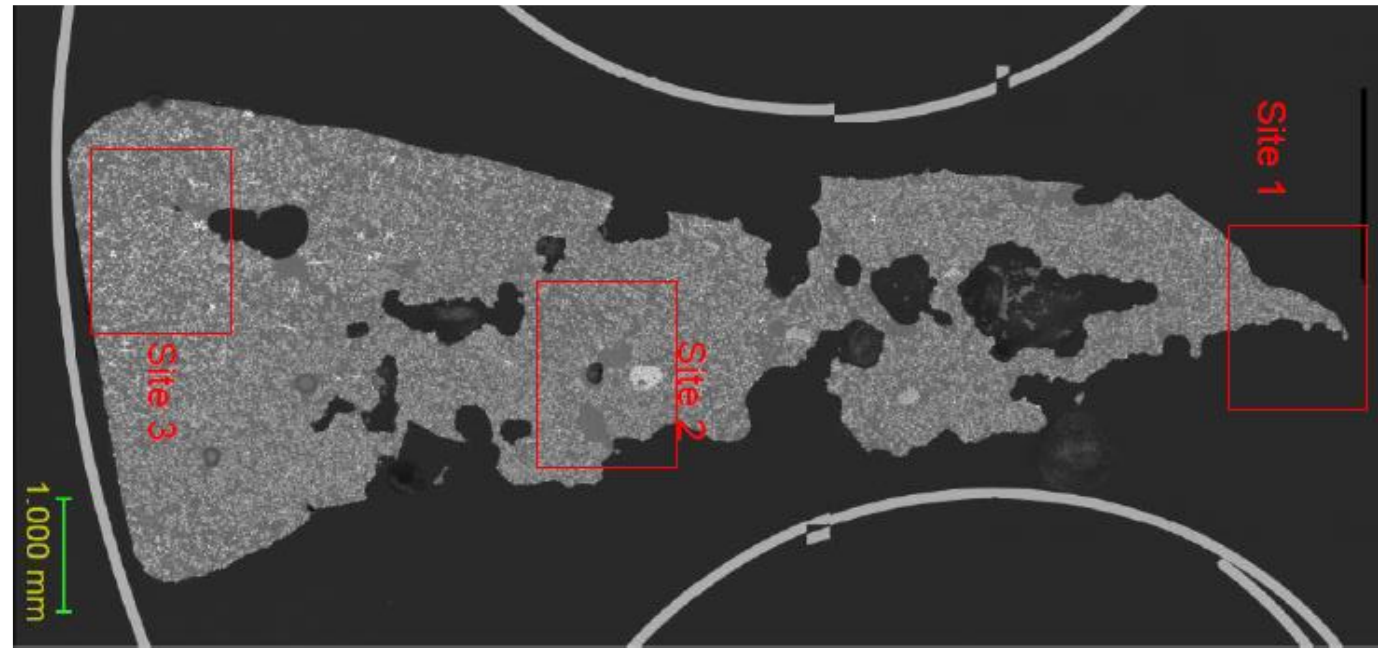
スケール長さ : 50 µm

* : VF-U3aは一部未溶融であることが判明したことから分析結果から除外した。

SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3
Ex-Vessel 酸化物相試料 VF-U3c(1)

2-252

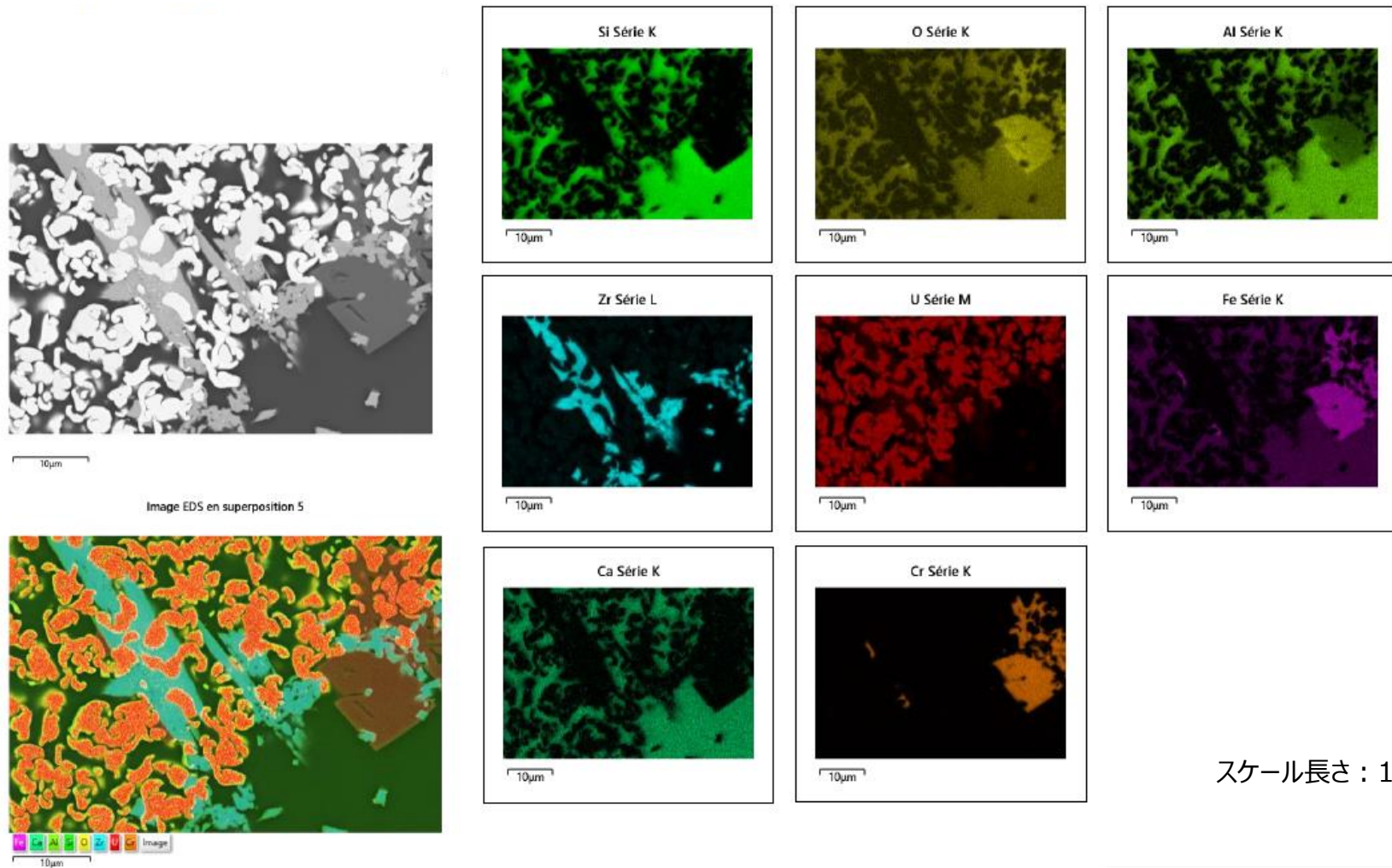
試料VF-U3cのマクロ写真（左）およびSEM写真（右）



SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3 Ex-Vessel 酸化物相試料 VF-U3c(2)

2-253

EDX分析によるVF-U3cの特性X線マップ (その1)

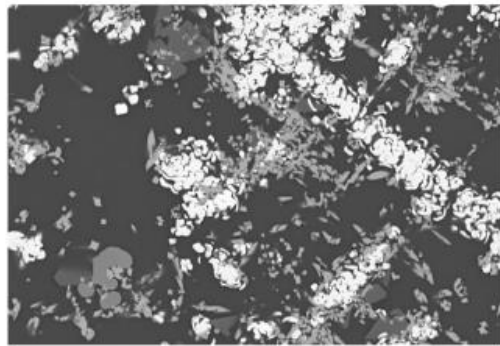


スケール長さ : 10 μm

SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3 Ex-Vessel 酸化物相試料 VF-U3c(3)

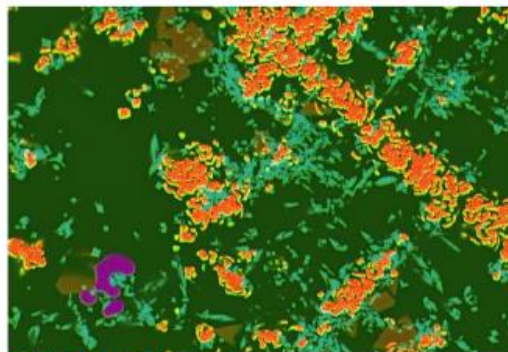
2-254

EDX分析によるVF-U3cの特性X線マップ (その2)

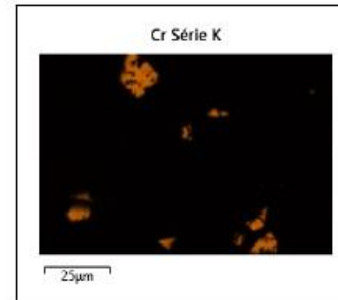
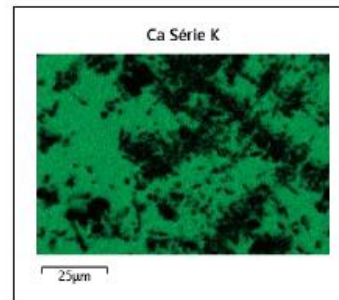
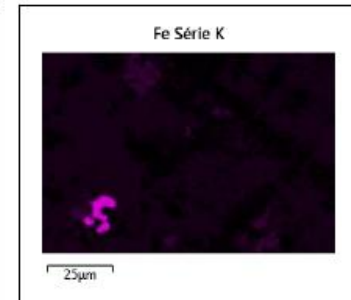
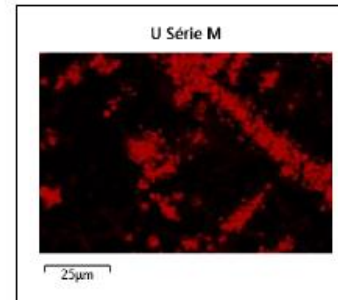
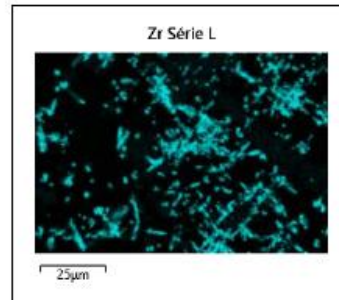
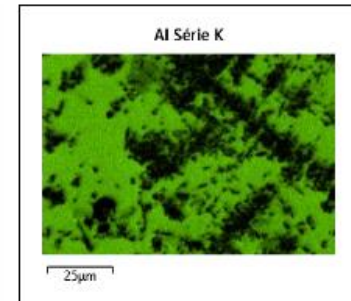
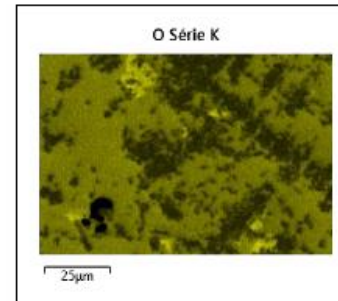
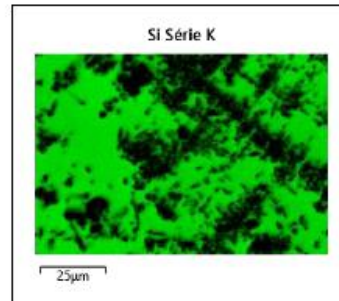


25µm

Image EDS en superposition 6



25µm



スケール長さ : 25 µm

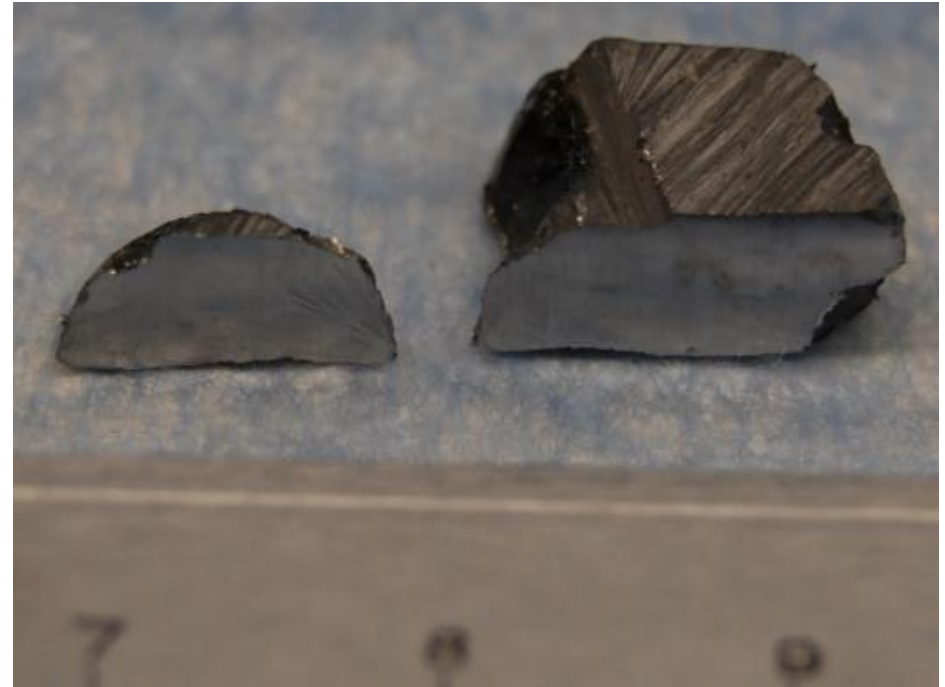
SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ - TEST VF-U3
Ex-Vessel 金属相試料 (1)

2-255

VF-U3から採取した金属相試料のマクロ写真



写真左：全体写真

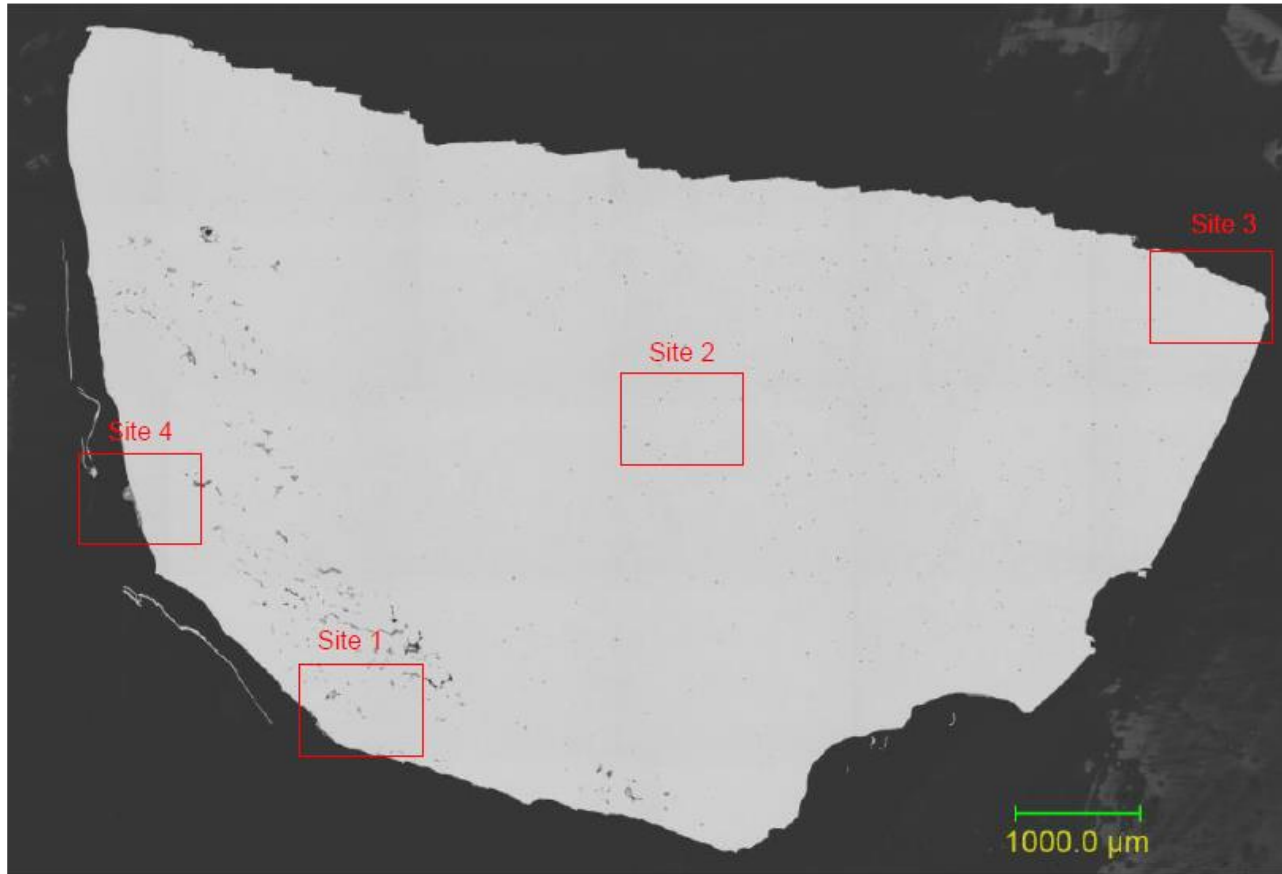


写真右：分析用試料VF-U3e

SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3
Ex-Vessel 金属相試料 (2)

2-256

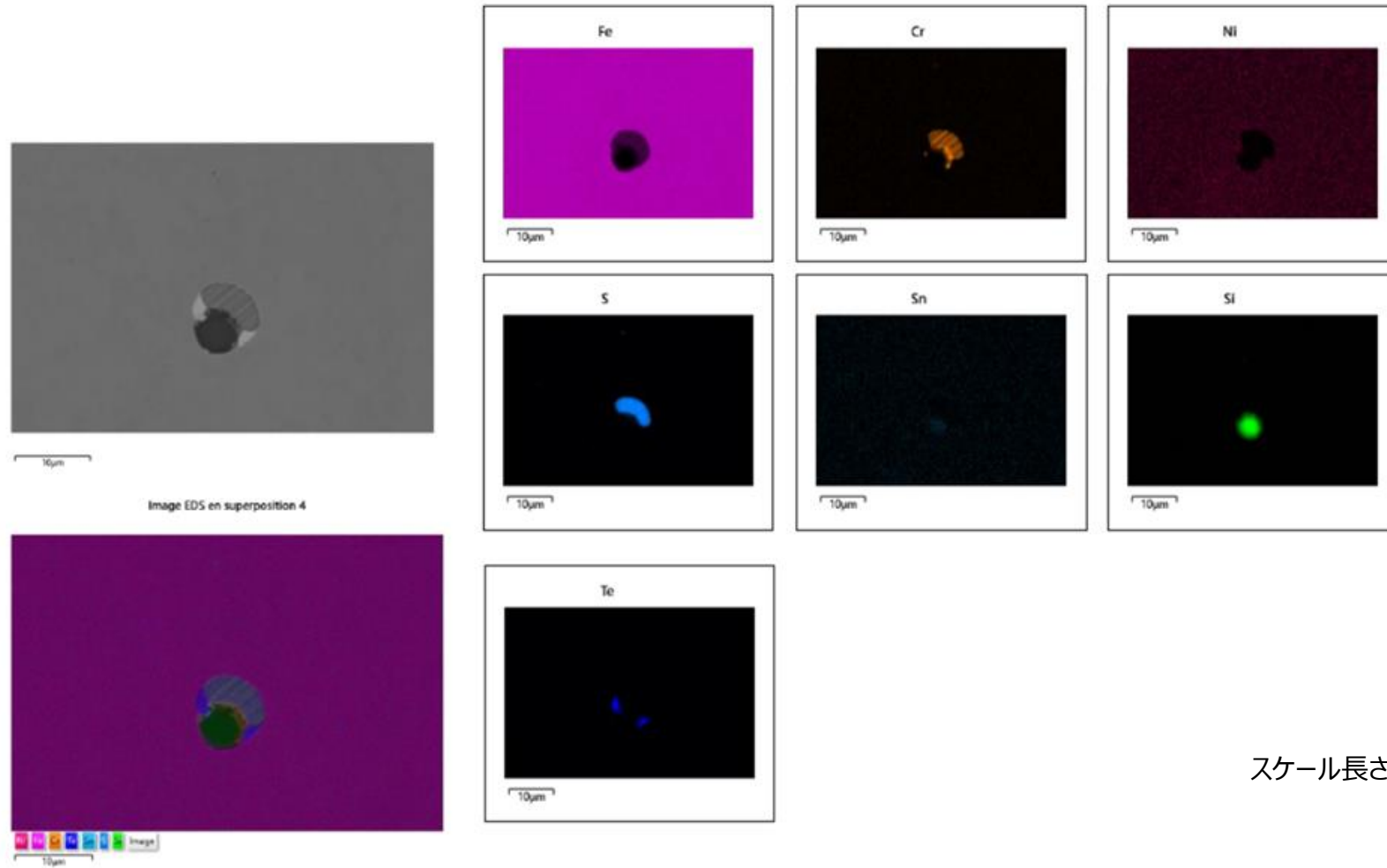
試料VF-U3eのSEM写真



SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3 Ex-Vessel 金属相試料 (3)

2-257

EDX分析によるVF-U3eの特性X線マップ (試料中央部)

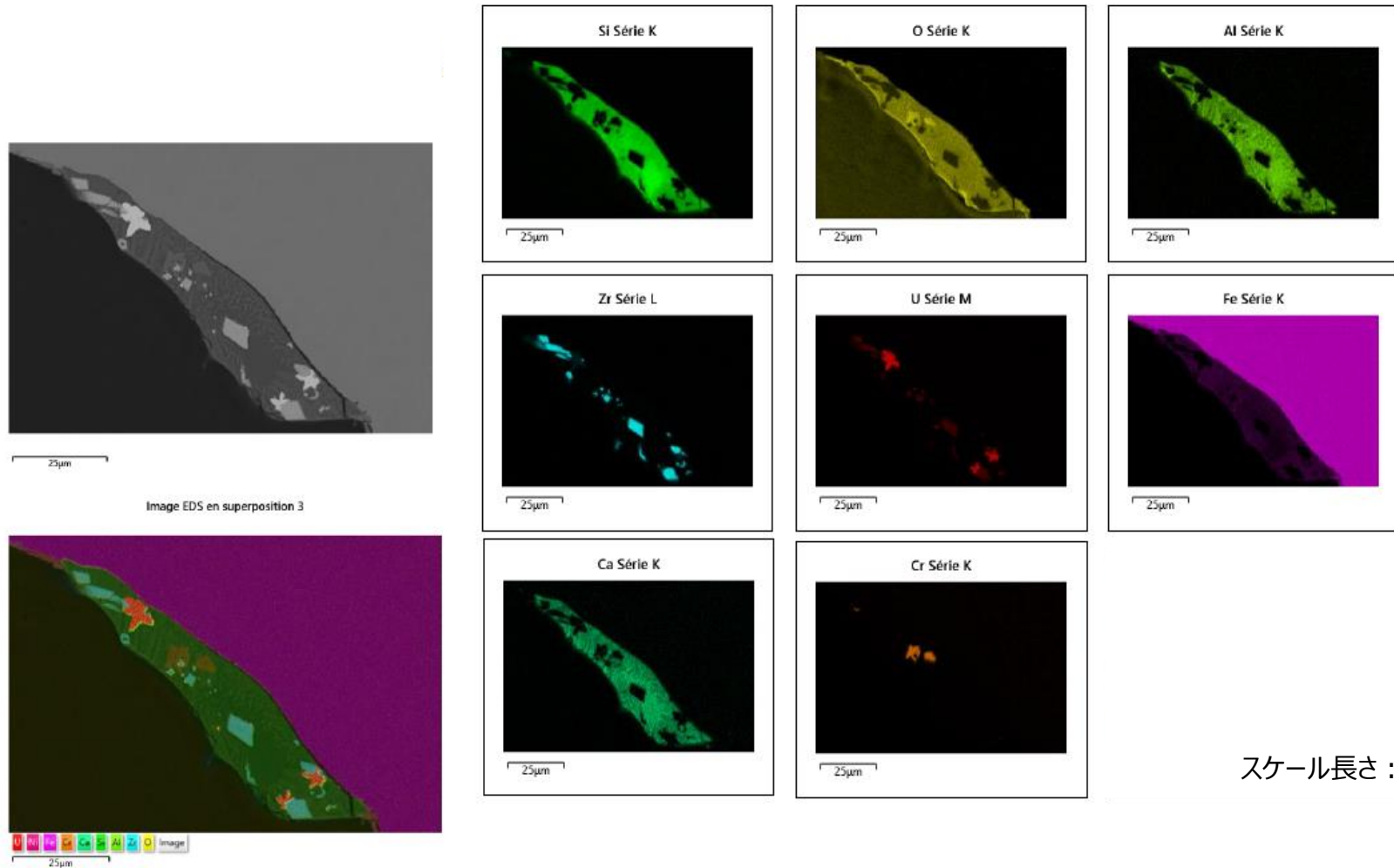


スケール長さ : 10 µm

SAMPLES #7、#8 Ex-Vessel U含有模擬燃料デブリ – TEST VF-U3 Ex-Vessel 金属相試料 (4)

2-258

EDX分析によるVF-U3eの特性X線マップ (試料外辺部)



主な専門用語、略語等の説明(1)

専門用語/略語	説明
1F	福島第一原子力発電所
AMAD	Activity Median Aerodynamic Diameter: 空気動学的放射能中央径
AWJ	Abrasive Water Jet: 切断加工能力を高めるために、ウォータージェットに研磨材(アブレシブ)を混入させて、噴射・加工を行う工法
BSAF	The Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station(2012年11月～2014年3月): OECD/NEAのプロジェクトの一つ
CFDシミュレーション	Computational Fluid Dynamics: 数値流体解析(流体现象の基礎方程式を数値的に解くことで、さまざまな流れの性質や、流体中での物質輸送、熱輸送などの現象を解析する手法)
ChNPP-4	Chernobyl Nuclear Power Plant Unit No.4: ウクライナ チェルノブイリ原子力発電所4号機
CRD	Control Rod Drive: 制御棒駆動機構
D/W	Dry Well: 原子炉格納容器のうち、原子炉圧力容器等を格納するフラスコ型容器
DF	Decontamination Factor: 放射能除染係数
EPMA	Electron Probe Micro Analyzer: 電子線マイクロアナライザ
Ex-Vessel	原子炉圧力容器外。(Ex-Vessel Fuel Debris: 原子炉圧力容器外(例、ペDESTAL部)に存在する燃料デブリ)
FE-SEM	Field Emission (Type) Scanning Electron Microscope: 電界放出型(電子銃を伴った)走査型電子顕微鏡
FE-SEM/WDX	FE-SEM Field Emission (Type) Scanning Electron Microscope: 電界放出型(電子銃を伴った)走査型電子顕微鏡 WDX Wave-length Dispersive X-ray Spectroscopy: 波長分散型X線分光法(WDSと略す場合もある)
FE-TEM/EDX TEM-EDX	FE-TEM Field Emission (Type) Transmission Electron Microscopy: 電界放出型(電子銃を伴った)透過型電子顕微鏡 EDX Energy Dispersive X-ray Spectroscopy: エネルギー分散型X線分光法(EDSと略す場合もある) Transmission Electron Microscopy Energy Dispersive X-ray Spectroscopy: エネルギー分散型X線分析装置付き透過型電子顕微鏡
FP	Fission Products: 核分裂によって生じた核種、またはそのような核種(核分裂片)から放射性崩壊によって生じた核種
HEPAフィルタ	High Efficiency Particulate Air Filter: 高性能粒子フィルタ、高性能エアフィルタ

主な専門用語、略語等の説明(2)

専門用語/略語	説明
ICP-AES	Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry: 誘導結合高周波プラズマ発光分光分析法
ICP-MS	Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy: 誘導結合高周波プラズマ質量分析法
In-Vessel	原子炉圧力容器内。(In-Vessel Fuel Debris: 原子炉圧力容器内に存在する燃料デブリ)
JPDR	Japan Power Demonstration Reactor: 動力試験炉。日本最初の発電用原子炉。
MCCI	Molten Core -Concrete Interaction: 溶融炉心・コンクリート相互作用
MMAD	Mass Median Aerodynamic Diameter: 空気動力学的質量中央径
ORIGEN2	放射生同位元素生成・減衰計算コード
PCV	Primary Containment Vessel: 原子炉格納容器
PIE	Post Irradiation Examination: 照射後試験
RE	rare earth elements (Sc, Y, La, Ce, Pr, Nd, Tc, Sm, Gdなど)
RPV	Reactor Pressure Vessel: 原子炉圧力容器
S/C	Suppression Chamber: 圧力抑制室。原子炉建屋の地下階にあるドーナツ型容器
SA研究	Study of a Severe Accident: シビアアクシデント研究
SEM/EDX	Scanning Electrode Microscope/Energy Dispersive X-ray Spectrometer: エネルギー分散型X線分析装置付き走査型電子顕微鏡
TEM	Transmission Electron Microscope: 透過電子顕微鏡
TIMS	Thermal Ionization Mass Spectrometry: 表面電離質量分析法
TIP	Traversing Incore Probe, or Transverse Incore Probe: 移動式炉心内計装、移動式炉心内較正装置、又は、走行型炉内検出器
TMI-2	Three Mile Island Nuclear Power Station Unit No.2: 米国スリーマイルアイランド原子力発電所2号機
VITI	Viscosity Temperature Installation: 仏国CEA カダラッシュ研究所に設置された高温粘性試験装置
VITAE	VITI AErosols: 仏国CEA カダラッシュ研究所に設置されたVITIを改造した微粒子生成試験装置
VULCANO試験	France CEA Versatile UO ₂ Lab for Corium ANalysis and Observation: CEA VULCANO施設における大型 MCCI (Molten Core - Concrete Interaction) 試験

主な専門用語、略語等の説明(3)

専門用語/略語	説明
XRD	X-ray Diffraction: X線回折、又はX線回折装置
X線CT	X-ray Computed Tomography: X線を用いたコンピュータ断層撮影法
α 線スペクトロメーター	α -ray spectrometer: アルファ(α)線のエネルギースペクトルを測定する装置
γ 線スペクトロメーター	γ -ray spectrometer: ガンマ(γ)線のエネルギースペクトルを測定する装置
オペフロ	オペレーションフロアの略。原子炉建屋オペフロは、原子炉建屋の最上階で、ここで定期検査時には燃料交換作業などが行われる。
カスケード インパクト	Cascade Impactor: ノズルと衝突板を組み合わせた粒子捕集器(インパクト)を数段直列に組み合わせ、一段ごとに分離粒子径が小さくなるようにノズル径を順次小さくすることにより、エアロゾル中の粒子の粒子径分布を測定する装置
トラス室	原子炉建屋の地下階に、トラス形状(ドーナツ状)の圧力抑制室(S/C)が配置されている部屋
ペDESTAL	原子炉本体を支える基礎のことをいう。鋼板円筒殻の内部にコンクリートを充填した構造となっている
揮発性、難揮発性	本報告では、事故時の高温過程(およそ700°Cから2550°C、圧力0.1MPa~80MPa)において、物質の蒸発し易い性質を揮発性と呼び、同様の条件で、蒸発し難い性質を難揮発性と呼ぶ。
燃料デブリ	一般には高温となった燃料が、制御棒や原子炉圧力容器内及び格納の構造物等とともに溶け、冷えて再び固まった物質をいうが、多種多様であり、本報告では基本的に、日本原子力学会核燃料部会が2018年11月に発表したポジションステートメントや、NDFの「廃炉のため技術戦略プラン 2019」の中の整理を当PJでは当面踏襲する。 なお、炉心構造物材(Zircaloyやステンレス鋼等)が溶融凝固したものも、燃料デブリと容易に分離できないものは燃料デブリに含めるものとするが、単独で存在する場合は、本報告においては金属デブリと呼ぶ。
品質管理	本報告書では、1Fサンプル分析の「品質管理」とは以下のとおり。 ○ 分析手法の品質管理: 分析フローで示したそれぞれの分析手法について、サンプル処理(ID振付、外観観察、試料分取、溶融処理、残渣処理、など)、定性分析の手順(質量走査、領域走査、ピーク同定方法、など)、定量分析の手順(検量線、ピーク、バックグラウンド、ブランク、誤差評価方法、など)、定量分析結果のまとめかた、データ技術レビューの方法、これらの承認体制、を示したもの。 ○ 分析データの品質管理: 上の品質管理方法に則って、実施した分析データを系統的に格納すること。測定日、評価結果確定にかかわる経緯、残された課題の状況も含めて記述。将来の分析者・評価者に対するトレーサビリティを持った分析データ一覧。

END