JAEA-Review 2020-004 DOI:10.11484/jaea-review-2020-004



東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所 燃料デブリ等分析について

Analysis of Debris Samples of Tokyo Electric Power Company Holdings Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

燃料デブリ等研究戦略検討作業部会

Task Force on Research Strategy for Debris of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

May 2020

日本原子力研究開発機構

Japan Atomic Energy Agency

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。 なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地4 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to Institutional Repository Section,

Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2020

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分析について

日本原子力研究開発機構

燃料デブリ等研究戦略検討作業部会

(2020年3月6日 受理)

東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃炉作業を進めるにあたっては、 燃料デブリの取出し及び取出した燃料デブリの保管管理及び処理処分に係る工程設計及び工程 管理を行う必要がある。このためには、格納容器・圧力容器内の内部調査や、今後取得される 燃料デブリ等サンプルの分析を行うことにより、燃料デブリの特性や堆積状態、核分裂生成物・ 線量の分布、構造材の破損や腐食状態等の現場の状況を明らかにすることが不可欠である。さ らには、これら現場の状況に関して得られた知見や情報を用いて事故時に生じた現象を理解し、 事故原因の究明を進めていくことにより得られる知見や情報を適時適切に廃炉の工程設計及び 工程管理に反映するとともに、それらを継続的に改良していくことが重要である。廃炉に向け た中長期ロードマップでは、2021年内には初号機の燃料デブリの試験的取出しが目標とされて いる等、今後、燃料デブリを含むサンプル分析及び内部調査が本格化する。このことから、廃 炉作業を安全かつ着実に進めるニーズの観点で、燃料デブリの取出し、保管管理、処理処分及 び事故原因の究明においてどのような課題があるのか、その課題を解決するためには燃料デブ リについて何をどのように分析すればよいのかについて検討し、推奨としてまとめた。実際に、 どこの施設でどの分析をどのような順番で行うかの分析実施計画は、それぞれの目的に応じ優 先順位を付けて、本報告書の内容を参考に策定されることが望まれる。

本部:〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字舟石川 765 番地1

Analysis of Debris Samples of Tokyo Electric Power Company Holdings Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

Task Force on Research Strategy for Debris of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 6, 2020)

Design, planning and control of debris-related processes, namely retrieval, storage management, processing and disposal of the debris, are required for the safe and steady decommissioning of Tokyo Electric Power Company Holdings Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F). Status inside primary containment vessel of 1F must be known by the PCV investigation and fuel debris sample analysis. Continuous updating and improvement of the process design are important through ascertainment of the cause of the accident. The roadmap for the 1F decommissioning have shown the milestone of commencement of trial retrieval of fuels debris within 2021, which indicates the analysis of fuel debris sample begin in earnest. This report recommends required debris analysis in relation with issues for the retrieval, storage management, processing and disposal, and ascertainment of the cause of the 1F accident. Practical analysis plan is expected to be prepared based on this report.

Keywords: Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Debris, Analysis, Retrieval, Storage Management, Processing and Disposal, Ascertainment of the Cause of the Accident

目次

1. はじめ	に	-1
2. 燃料デ	ブリに係る個別課題と分析内容の検討	-4
2.1 燃料	デブリの取出し工法の設計・燃料デブリの取出し作業	-5
2.1.1 烗	然料デブリの臨界安全	-5
2.1.2 烗	然料デブリの切断時 α ダスト、Pu・Am・残留 FP	-9
2.1.3 烗	************************************	$\lfloor 2$
2.1.4 3	発熱・冷却対策1	15
2.1.5 7	k素発生対策1	6
2.1.6 F	RPV の状態評価1	17
2.1.7 烗	然料デブリ分析の評価指標(燃焼率)の考え方1	8
2.1.8 $-$	その他の課題2	21
2.2 保障	措置との関係	38
2.3 保管	管理	39
2.3.1 B	塩界安全	39
2.3.2 柞	亥種、放射能	39
2.3.3 亻	L学的安定性、経年変化	ŧ1
2.3.4 億	呆管施設の合理化	12
2.4 処理	処分4	16
2.4.1 タ	処理処分の観点からの燃料デブリの分析項目とその重要性4	16
2.4.2 5	分析項目の詳細とその取得方法、時期4	1 7
2.5 事故	原因の究明	52
2.5.1 F	RPV 内外の炉心溶融進展5	52
2.5.2	ソースターム	33
3. 燃料デ	ブリ分析フロー	39
3.1 個別	課題に対応する分析項目及び分析フロー	39
3.2 分析	項目、反映先及び主要な分析装置	<i>)</i> 1
3.3 個別	課題と分析項目、評価項目の関係 11	16
謝辞	12	21
参考文献	12	21
付録 1	燃料デブリ等研究戦略検討作業部会 構成員12	26
付録 2	略語一覧12	27
付録 3	燃料デブリ分析に向けて今後検討が必要な課題についての考察13	31

Contents

1.	Introduction	1
2.	Issues and analysis of fuel debris	4
2	2.1 Retrieval	5
	2.1.1 Criticality control	5
	2.1.2 Alpha-emitting dust, Pu/Am/residual FP	9
	2.1.3 Safety treatment, radiation dose	-12
	2.1.4 Heat, cooling	-15
	2.1.5 Hydrogen generation	-16
	2.1.6 RPV status	-17
	2.1.7 Index (burnup) for fuel debris analysis	-18
	2.1.8 Other issues	-21
2	2.2 Relation with material accountancy or safeguards	- 38
2	2.3 Storage management	- 39
	2.3.1 Criticality safe control	- 39
	2.3.2 Nuclide, radioactivity	- 39
	2.3.3 Chemical stability, degradation	-41
	2.3.4 Optimization of storage facility	- 42
2	2.4 Processing and disposal	- 46
	2.4.1 Importance of analysis	- 46
	2.4.2 Details of analysis	- 47
2	2.5 Ascertainment of the cause of the 1F accident	- 52
	2.5.1 Core relocation progression inside/outside RPV	- 52
	2.5.2 Source term	- 63
3.	Fuel debris analysis flow	- 89
3	3.1 Analysis items and flow	- 89
3	3.2 Analysis items and apparatus	-91
3	3.3 Relation to the fuel debris-related issues	116
Acl	xnowledgements	121
Ref	ferences	121
Ap	pendix 1 Member list of the task force	126
Ap	pendix 2 Glossary	127
Ap	pendix 3 Discussion on the issues toward fuel debris analysis	131

表リスト

表	1	燃料デブリ取出しに関する分析項目27
表	2	保管管理に関する分析項目43
表	3	処理処分に関する分析項目51
表	4	原子炉容器内外の炉心溶融進展に係る分析項目:燃料デブリ61
表	5	原子炉容器内外の炉心溶融進展に係る分析項目:構造材等62
表	6	ソースタームに関する分析項目83
表	7	各分析によって得られる情報と評価項目の反映先117

図リスト

义	1	燃料デブリの分析及び調査の目的	-3
义	2	燃料デブリ分析結果から課題解決に必要な知見及び情報を得るまでの流れ	-4
义	3	軽水炉燃料における ¹⁴⁸ Ndの燃焼に伴う生成量変化	20
义	4	燃料デブリ等の基本的な分析フロー	90

This is a blank page.

1. はじめに

東京電力ホールディングス(株)(TEPCO)福島第一原子力発電所(1F)の廃炉作業におい て、燃料デブリの取出しは、最難関の工程である。この作業を安全かつ着実に進めるためには、 試験的取出しによる燃料デブリの分析を含む内部調査により、燃料デブリの特性や堆積状態、 核分裂生成物(FP)・線量の分布、構造材の破損や腐食状態等の現場の状況を明らかにし、臨 界安全対策や放射性ダスト対策等の技術開発を含めて、燃料デブリの取出し工法の工程設計及 び工程管理を行う必要がある。さらには、取出した燃料デブリの保管管理及び処理処分に係る 工程設計並びに工程管理も必要である。

しかしながら、内部調査可能な部位や取得できる燃料デブリサンプル数には限界があるため、 プラント設計データや事故時/事故後のプラントデータに基づく熱履歴等の事故履歴調査が進 められており、原子炉圧力容器(RPV)内、原子炉格納容器(PCV)内の炉内状況を推定して 現象を理解するための努力がなされている。1F事故は、これまでに前例のない沸騰水型原子炉 (BWR)で起きたため、加圧水型原子炉(PWR)と異なる炉構造や事故進展を考慮する必要 がある。このため、米国スリーマイル島原子力発電所2号機(TMI-2)事故を典型例とするPWR での過酷事故の知見が必ずしも全て適用できない。また、事故収束のために、海水注入等の様々 な現場作業が行われ、それらに伴う炉内圧力変化が生じる等、その過程に特殊性があったこと、 事故進展・収束過程における各種プラント機器(安全系・計装系)の作動状況を全て把握・評 価することが困難なことなどから、今後継続的に炉内状況推定の精度を向上させることが望ま れる。以上の状況を踏まえると、現象理解に向けて現状得られている知見・情報等を参考にし つつ、必ずしも工程設計及び工程管理ニーズに即した位置・種類の情報が全てにおいて得られ るわけではないものの、今後実施される内部調査の結果や取得が見込まれる燃料デブリサンプ ルの分析結果から、燃料デブリ、FP、構造物等の現場の状態を評価していくことが現実的であ る。

燃料デブリについては、形状や組成等について明確な定義はないものの、国内では 1F 事故 以降、炉心溶融物質が固化したものに加えて、構造材やコンクリートの一部、さらには溶融に 至らなかった燃料棒の一部も含めて燃料デブリと総称されている。燃料デブリは、塊状、粒状、 殻状等様々な形態を示し、多孔質であったり緻密質であったりする。また、燃料デブリの組成 は、核燃料物質(U、Pu)、被覆管成分(Zr)、構造材成分(Fe、Ni、Crの他、コンクリート 成分、制御材成分(B)等)からなり、金属質のものや酸化質のものがあるなど、事故進展に 応じた様々な形状・組成・相状態のものがある[1]。これまでに、燃料デブリ取出し等のため の1F 各号機の内部調査が行われており、1 号機の内部調査では、アCV 底部に堆積物及び堆積 物上の浮遊物が確認されている。2 号機の内部調査では、調査ロボットのアーム(ガイドパイ プ式調査装置)による PCV ペデスタル内の堆積物の撮影及び接触調査により、その内部状態 が確認されている。3 号機の内部調査では、ペデスタル内に本来のコンクリート床面より上に 約3 m の厚さで堆積物が存在していることが確認されている。内部調査の過程で1~3 号機の PCV 内から、及び使用済み燃料プールからの燃料体取出しの過程で2 号機の原子炉建屋オペレ ーティングフロアから、微量のサンプルが採取されており、それらの詳細分析により、一部に は燃料由来の成分が含まれていること等、燃料デブリの分布や FP の挙動に関して、廃炉に役 立つ知見が得られてきている [2]。このように、まだ極々一部ではあるが、内部調査等により、 現場の状況を明らかにするために有用な、推定ではない実データが得られてきていることの意 義は大きい。

このことから、今後、燃料デブリを含む各種サンプルを計画的に取得し、サンプル分析や調 査を進めて得られる知見や情報、さらには、これらの得られた知見や情報を用いて現象を理解 し事故原因の究明を進めていくことで得られる知見や情報を適時適切に廃炉の工程設計及び工 程管理(燃料デブリの取出し工法、保管管理、処理処分、ひいては施設解体のための計画や工 法の策定等)に反映し、かつ、それらを継続的に改良していくことが不可欠であり、TEPCO 及び原子力損害賠償・廃炉等支援機構(NDF)では、PCV内部調査、試験的取出し及び分析 の検討が進められている(図1) [3]。廃炉に向けた中長期ロードマップ[4]では、2021年内 には初号機の燃料デブリの試験的取出しが目標とされている等、今後、燃料デブリを含むサン プルの分析及び調査が本格化する。このため、これらのサンプルをどのように分析し、廃炉に 必要な知見としてとりまとめるかの具体的な分析について検討を行い、それを関係者で共有す ることが必要となる。また、安全に廃炉を進めていくことを最優先としつつ、限られた情報か ら現象理解を行って事故原因を究明し、今後の軽水炉安全性向上に反映することについても検 討されることが望ましい[5]。

日本原子力研究開発機構(JAEA)は、これまで、技術研究組合国際廃炉研究開発機構(IRID) の構成員としての立場も含めて、燃料デブリ性状把握、炉内状況把握、臨界安全評価、線量評 価、廃棄物の処理処分技術開発等に係る基礎基盤から応用までの研究開発を実施してきた [2,6,7,8]。過去には、TMI-2の事故進展解明に係る国際プロジェクトに参画し、自施設におけ る燃料デブリ分析及び評価を分担した実績を有する [9]。また、それ以降もシビアアクシデン ト研究を継続して実施してきている。

本報告書は、これら JAEA の経験と実績に基づき、燃料デブリサンプルの分析について、推 奨を行うものである。廃炉作業を安全かつ着実に進めるニーズの観点で、燃料デブリの取出し、 保管管理、処理処分及び事故原因の究明においてどのような課題があるのか、その課題を解決 するためには燃料デブリについて何を分析すればよいのか(以下、「分析対象項目」という)、 について検討し、第2章にまとめた。また、第2章で抽出した分析対象項目を網羅するような 分析フローについて第3章でまとめた。

2.1~2.4節の記載については、必ずしもJAEAとして高い専門性を有していないものもある。 しかしながら、本報告書においては、想定される課題や項目をできるだけ多く列記しておき、 JAEAとしての専門性が高くない分野についても関係各所との議論や有識者からのアドバイス を受けて、項目の抜け落ちを防ぐことに努めた。また、燃料デブリの取出し、保管管理、処理 処分及び事故原因の究明の各項目に関して、今後の廃炉作業や燃料デブリ等分析の進捗に応じ て新たな課題が出てくるものと考えられる。さらには、項目間で課題を共有することにより、 合理的な課題解決方策が検討されることも予想される。これらのことから、本報告書の内容は 必要に応じてアップデートされるべきと考える。

実際に、どこの施設でどの分析をどのような順番で行うか、またどの部位から燃料デブリの

取出しを行い、その特徴を評価していくことが望まれるか等の分析実施計画は、サンプルの量 が限られることを前提として優先順位を考慮し、それぞれの目的に応じ、本報告書を参考に策 定されることが望まれる。



図1 燃料デブリの分析及び調査の目的 [3]

2. 燃料デブリに係る個別課題と分析内容の検討

本章では、廃炉作業を安全かつ着実に進めるニーズの観点で、図1に示された燃料デブリの 取出し(2.1節)、保障措置(2.2節)、保管管理(2.3節)、処理処分(2.4節)及び事故原因の 究明(2.5節)においてどのような課題があるのかを検討し、課題解決のためには燃料デブリ について何をどのように分析すればよいのか(分析対象項目)を検討・抽出した。分析対象項 目の検討・抽出にあたっては、実施可能と考え得る分析方法を網羅する観点で行った¹。すなわ ち、第1章で記載したように、分析の重要性、優先度、タイミング等、分析計画に係る事項は、 分析対象項目網羅の観点で最小限必要な部分を除き考慮していない。

なお、分析対象項目の検討・抽出にあたっては、図2に示すように、事故履歴調査結果等を 用いた分析結果の解釈・解析・評価により、課題解決のために必要な知見を得るプロセスを考 慮することが重要である。しかしながら、これらは本来的には分析結果に応じてその内容が定 まるものであるため、本検討においては、課題ごとに必要に応じて、基本的な考え方や想定に 基づいて本プロセスを考慮した。



図2 燃料デブリ分析結果から課題解決に必要な知見及び情報を得るまでの流れ

¹ このことから、例えば放射光 X 線分析(SR-XA。ミクロンサイズの集光放射光ビームを利用 したµ-XRD、µ-XAFS、µ-XCT、µ-HAXPES、STXM等)や FP 放出移行試験装置等のように、 現状において技術開発や許認可等が必要であるが、もしこれらによる分析が可能となれば、事 故原因の究明等においてより高精度なデータが得られるような分析についても合わせて記して いる。すなわち、記載した分析項目・手法・装置は、必ずしも全てが必須であるということを 意味せず、燃料デブリの取出し等に係る課題解決のための知見・情報を得られるのであれば、 代替の項目・手法・装置を用いて分析計画を立案すればよいことを示している。

2.1 燃料デブリの取出し工法の設計・燃料デブリの取出し作業

燃料デブリ取出し工法の設計及び取出し作業における課題の解決に必要な分析対象項目を抽 出するため、臨界安全、切断時のαダスト、燃料デブリの取扱安全性、発熱・冷却対策、水素 発生対策、RPVの状態評価等のほか、これらの複数にまたがって有用と考えられる指標(燃料 デブリの燃焼率)等の観点で検討を行った(表 1)。

1F 炉内に堆積している燃料デブリは、様々なメカニズムで生成された物質が混在し、かつ、 炉内の領域ごとにその堆積状態が大きく異なっていると想定されている[10,11]。従って、取得 したデブリサンプルにおけるばらつき、及びその領域における燃料デブリの特徴をどの程度表 しているかといった二段階の評価によって、各分析ニーズに答える評価結果を示すことができ ると考えられる。一つめの段階である「燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつき」の評価 については、取得された燃料デブリサンプルから実際の分析に供するサンプルを分取し、サン プル調製(溶融・溶液化・樹脂埋め・研磨など)を行ってから、その分析データを取得し、デ ータを系統的に積み重ねることにより、取得した燃料デブリサンプルにおける様々な物性・特 性の平均値とその均質・非均質の程度を評価するものである。二つめの段階である「サンプル 取得領域の燃料デブリの特徴」については、実際に炉内のある領域から取得した燃料デブリサ ンプルが、その領域における燃料デブリの特徴をどの程度表しているかを評価するものである。 これらは、実際の燃料デブリサンプルの分析結果を評価して次のサンプル取得を検討するなど 分析計画に係る手順が必要であるため、本報告書ではこれらの手法を網羅した検討を対象とし ていないが、特に喫緊の課題と考えられる燃料デブリ取出しに係る本 2.1 節では「燃料デブリ サンプルの平均的特徴とばらつき」について、ある程度具体的に検討した結果を記載した。な お、デブリ性状等の特徴把握に係り、「燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつき」の評価や 「サンプル取得領域の燃料デブリの特徴」について、より一般的な考え方の一例を付録3とし て示している。

2.1.1 燃料デブリの臨界安全

(1) 目的

燃料デブリ取出しに向けて、燃料デブリの臨界安全評価は最も重要な検討項目の一つとみな されている。現状において、保守的な仮定に基づくホウ酸水注入、不溶解性中性子吸収物質の 事前投入、中性子測定に基づく未臨界度監視作業等が臨界安全対策として検討されているとこ ろ、燃料デブリサンプルの分析とそれに基づく合理的な評価により、号機ごとや部位ごとの燃 料デブリの臨界可能性有無に係る根拠(例えば、中性子吸収物質のUとの随伴性等)を示すこ とを目的とした。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

分析対象項目(着目する現象・挙動・物理量)

燃料デブリ中の核分裂性核種の量と濃度、主な中性子吸収物質の混入程度、燃焼率、かさ密 度に係る項目として、分析対象は、以下となる。なお、主な中性子吸収物質については、ここ では、可燃性毒物または FP としての Gd、中性子吸収材の B、及び構造材主成分(Fe, Zr)で あり、中性子吸収断面積が比較的大きい Gd、B、Fe の 3 元素(核種)の影響が大きいと評価 した [12]。また、Nd は前述した燃焼率指標核種として分析対象とした。

a. 燃料デブリ中の U 及び Pu 濃度 = U 質量 または Pu 質量 / 燃料デブリ質量

b.U と Pu の同位体比

c. ¹⁵⁵Gd、¹⁵⁷Gdの対U比(可燃性毒物の残留濃度)

= ¹⁵⁵Gd もしくは ¹⁵⁷Gd 質量/燃料デブリ中の U 質量

または、Gd 元素質量の対 U 比と燃料デブリの平均燃焼率

d.構造材(Fe、Zr)等や中性子吸収材(B)の対U比

= Fe、Zr、B 等の質量/燃料デブリ中の U 質量

- e. 148Nd(あるいはそれに替わる燃焼率指標核種)の対U比(燃焼率)
 - = 148Nd 等の質量/燃料デブリ中の U 質量

f. かさ密度 = 理論密度(平均組成と相状態から評価)×(1-気孔率)

(SEM/EDX 等により組成と相状態から見かけの理論密度を算出、気孔率は金相観察から評価)

g.核分裂性物質(U、Pu)の化学形

このうち、炉内における a から d が燃料デブリ中の核分裂性核種及び主な中性子吸収物質の 混入の影響を評価するために必要な分析対象項目となる。

eは、燃焼率評価のために必要な項目である(詳細は2.1.7項に示す)。

fは、かさ密度に係る項目である。またgは、取出し時の環境変化(水環境、酸化還元性変化等)に伴うU、Puの移動性、凝集可能性を評価する上で重要であると考えられる。

② 分析方針・分析手法・得られる知見

臨界安全評価では、重要となる元素あるいは核種(U、Pu、Gd、Fe、B等)について、サン プル全体の平均的特徴(相割合、組成、空隙率)とそのばらつきの情報が重要となる。その知 見を得るには、サンプルを構成する主要相(金属、酸化物、その他化合物)の特徴をそれぞれ 調べる必要がある。その上で、工程設計に向けて、燃料デブリ取出しの対象となる領域から取 得される燃料デブリサンプル全体(数個~最大数十個と予想)の平均値とばらつきを評価する ことになると考えられる。

そのためには、専門家の意見交換により、分析に活用できる従来知見を分野横断的に予め十 分にレビューしておくことが重要である。例えば、U、Pu、Nd、Gd は相当の還元性雰囲気で ない場合、あるいは、酸化性雰囲気で事故時の高温状態が長時間維持されない場合には相互に ほぼ随伴すると予想される² こと、Nd 同位体は燃焼率に対しほぼ直線的に変化する等の知見 を踏まえ、事故進展過程において燃料溶融プールが形成されたか否かに関係せずに燃焼率のモ ニター核種に使える可能性が考えられること等である。また、例えば、燃料デブリサンプルを 構成する主要相の、サンプル中での体積割合、それぞれの平均組成、サンプルの平均的な空隙 率等の相関について、あまり予断をいれずに、分析によりこれらの相関の程度に関する知見を 積み上げていくことも重要である。その際、核燃料物質の蒸発・揮発量についても知見を蓄積 することが望まれる。

(3) 「燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつき」データの取得について

上述した a から g の項目の全てについて、サンプルの形状及び量(ここでは、最大で 5 kg 程度と想定)を考慮しつつ、SEM-EDX 等の物理分析と ICP-MS 等の化学分析を併用して、サンプル平均としての情報を評価していくのが妥当であると考えられる。その際、サンプルから分取した部位の平均的な特徴と、その部位を構成する相ごとの特徴をそれぞれ分析することが望ましい。以下には、そのための分析方法を一例として示す。

サンプルが粉末で、かつ、線量が低い場合には、まず放射線測定等により高線量部位を同定 する。次に、サンプルの質量に応じて、そこから複数個のサンプルを分取し、硝酸、王水、フ ッ化水素酸等を用いる酸分解、またはアルカリ融解等の方法で溶解して溶液とした後に、ICP-MS、ICP-AES等により、標準溶液を用いる検量線法あるいは標準添加法等を用いて、そこに 含有される対象元素(U、Pu、Fe、B、Gd)の濃度を評価する。限られたサンプル量の中では あるが、統計的に有意な数の分析を行うことができれば、平均値とばらつきを併せて評価でき る。ただし、統計的に評価するために必要なサンプル数等についての知見は、実際にある程度 分析してみないとわからないのが現状である。難溶物が残留した場合には、これをろ過し、物 理的な分析手法(SEM-EDX、XRD等)で定量する。物理的な分析手法による難溶物の定量分 析については、初期サンプル量に対する難溶物の残留量により、分析全体に対するその影響が 異なる。一般的に、物理的な分析手法での定量性は化学的な分析手法に比べて劣るため、様々 な溶融手法を駆使し、できるだけ難溶物の物量を減らすことが重要となる。B、C、O等の軽元

² 核燃料物質と希土類元素の随伴性について [15]:金属 Zr が残留するような還元性雰囲気で は、PuやU(あるいはAm)が選択的に還元され、PuOあるいはUO(一酸化物:モノオキサ イド)として一部蒸発・揮発する可能性がある。しかし、熱力学的な解析に基づくと、その蒸 発・揮発量は本来の存在量に対してきわめて小さく(Uであれば、存在量数百トンに対し、高々 数+kgのオーダーと推定)、ここでの評価にはほとんど影響しないと見込まれる。他方、酸化 物燃料が完全に溶融するような高温(約2500 ℃以上)では、ウランの一部が蒸発すると予想 される。この場合の蒸発化学種は、熱力学解析に基づくとUO、UO2、UO3、UO4等と予想さ れる。この場合も、蒸発・揮発量高々数+kgのオーダーと予想され、ここでの評価にはほとん ど影響しないと考えられる。しかし、いずれの根拠も、既存の熱力学データベースに基づく解 析結果、及び、様々な核燃料の基礎試験における実験者の経験等に基づいており、今後の炉内 各所からの燃料デブリあるいはその他の堆積物の分析により、核物質の蒸発・揮発程度の評価 精度を向上させることが望まれる。希土類元素についてはこのような蒸発・揮発現象は報告さ れていない。また、Phebus-FP 試験 [16]においては、希土類 FP の蒸発は観測されていない。

素以外については、残留する難溶物の量を初期量に対し数パーセント以下のレベルにできれば、 難溶物の物理分析により溶融物の化学分析を補完することで、十分な分析精度が得られること が見込まれる [13,14]。B、C、O等の軽元素については、難溶物中に相当量の残留が見込まれ る場合には、TEM-EDX、SEM-WDX等のより定量性の高い手法での分析が必要となると考え られる。難溶物の分析ルーチンの検討は、今後の課題の一つである。

主要元素の濃度分析に並行して、Nd と Gd の同位体比(十分な分析精度が得られる場合は Pu の同位体も)を分析し、そのサンプルの燃焼率の平均値とばらつきを求めることが望まし い。

空隙率については、乾燥させた粉体サンプルのかさ密度を測定し、サンプル質量と含有され る主要元素の相状態と濃度から概算できると考えられる。

次に、サンプルが団粒あるいは凝集物の場合には、まず、サンプルの特徴を代表する部位を 定める。サンプル全体の質量を測定した後で可能なら複数断面の切断を行い、必要に応じて樹 脂埋めを行って切断面を研磨する。切断面を低倍率で金相観察し、マクロな画像データを取得 する。金相写真の画像解析により、サンプルを構成する主要相(金属、酸化物、その他の化合 物)の体積割合及び空隙率の情報を得る。断面を複数個分析することで、主要相の分布のばら つきの情報を得ることができる。取出し初期のサンプルでこのようなデータを積み上げておく ことで、将来的に、断面の画像解析結果を指標として、デブリの特徴をある程度判断できるよ うになれば、デブリ取出し工程の効率化につながる可能性がある。ここで、デブリの凝固過程 によりデブリ中の気孔率や主要成分の分布が影響を受ける可能性が高く、データ積み上げにお いては事故進展解析の知見も有用となる[10, 11]。

次に、観測された主要相について、SEM-EDX あるいは SEM-WDX での面分析(領域分析) を行い、主要相の平均組成とばらつきのデータを取得する。これらと上述の主要相の体積割合 の情報を組み合わせることで、分析数にもよるが、サンプルの平均的な特徴を概算することが できると考えられる。しかし、この方法は、サンプル全体を直接分析しているわけではないた め、化学分析により、評価精度をクロスチェックすることが重要である。

主要構成成分(U、Zr、Fe等)については、燃料デブリサンプルから複数個のサンプルを分 取し、それを化学分析(ICP-MS及び-AES等)してサンプル全体平均の組成とばらつきのデー タを評価する。上述したように分取したサンプルの化学分析と物理分析でそれぞれ得られたデ ータから、サンプル全体に換算したデータを相互比較することで、分析精度の検証に役立てる ことが期待できる。(これは、サイズの大きいサンプルから、平均的な特徴に関する情報を得る 上で実用的な方法と考えられる。サンプル内のばらつきが大きい場合、測定点数を増やす、あ るいは、サンプルを領域ごとに分割する等の工夫が必要となろう。)

平均密度については、液浸型天秤等により評価を行うのが妥当である。サンプル内で部位ご とに平均密度が大きく異なる場合には、種類の異なる複数のサンプルとして取り扱うのが妥当 である。また、例えば酸化物相において、平均的特徴が大きく異なる複数の酸化物相が存在す る等の状況が確認された場合には、模擬サンプルを調製しコールド試験で平均的特徴の範囲を 評価することも有用となると考えられる。 Bは、硬い化合物を生成すること、複雑な化学状態である可能性が高いこと、臨界安全評価の注目元素であること等から、燃料デブリ取出しにおいて最も注目すべき元素の一つであると考えられ、その分析方法の整備は重要な開発課題である。サンプルを完全に溶融することができれば、ICP-MS等の化学分析によりB濃度を決定できる。この場合、サンプル中に存在する主要マトリクスを考慮した標準サンプルを調製し、適切な検量線を作成することで、測定精度を向上させることへの考慮も必要となろう。溶解しにくいと予想されるB化合物の分析では、Cr-B系の化合物等B濃度が既知の模擬サンプルを整備し、SEM-WDXで強度比較することで、物理分析による定量を行うことも実用的と考えられる。

Bについては、デブリ中に存在する場合、化学状態に関する様々な可能性が想定される。主 な可能性として、炭化ホウ素(B4C)として残留、金属系成分(鉄鋼、未酸化Zr)マトリクス への溶解、ホウ化物(Zr、Cr、Fe等と化合する可能性)、酸化ホウ素あるいはホウ酸形成(比 較的低温で液体として存在)、FP元素との複合酸化物(CsBO2等)として蒸発・凝縮、水酸化 物(HBO等)として蒸発・凝縮、等が挙げられる。臨界安全評価の観点では、このような化学 状態の変化に起因するBのミクロな分布変化はあまり重要ではない。しかし、実際の燃料デブ リサンプルの取出し部位や取出し個数を考慮すると、堆積している燃料デブリの全ての領域か ら、臨界安全を分析値の積み上げだけで十分に解析できる数と量のサンプルを採集することは 困難な可能性が高い。これを代替するには、取得したサンプル中のBのミクロな化学状態を、 そのサンプルが経験した事故時の化学環境の解析結果と照らし合わせて評価することで、B分 布と事故時化学環境の間の相関を評価し、サンプルが十分に取得できない領域について外挿し て評価していく方法をとることになる。したがって、Bのミクロな化学状態変化の分析は、臨 界安全評価においても、特に、実分析データに基づく、サンプルを取得できない領域への外挿 性の観点で重要と認識している。

サンプルを構成する複数の相それぞれの組成等の特徴のばらつきについては、上述した a から d、g の項目については、SEM-EDX、SEM-WDX の面分析用のサンプルを用いて、SEM-EDX、SEM-WDX 及び TEM-EDX 等の点分析を行うことでこれを取得できる。必ずしも必要ではないが、SR-XA 測定が可能であれば、化学状態や結晶構造に関する知見の取得が見込める。

サンプルが粉末状、泥状等比較的小さな粒子の場合には、サンプル内の特徴的な粒子をある 程度統計的に評価できる点数で点分析し、粒子の平均値とばらつきに関する知見を取得するこ とが望ましい。サンプルが団粒あるいは凝集物の場合には、構成相それぞれについてある程度 の点数で点分析を行い、相ごとの平均値とばらつきに関する知見を取得する。この測定は B も 対象とする。

また、面分析と点分析の結果を総合的に評価することで、対象とする部位の凝固メカニズム 等、事故進展解析に有用な知見を得ることができると考えられる。

2.1.2 燃料デブリの切断時 *α* ダスト、Pu・Am・残留 FP

(1) 目的

燃料デブリ取出し中のダスト対策は、安全な作業進展のための重要課題である。模擬デブリ

を用いた切断模擬試験及び過去のホットセルでの経験等によるダスト飛散の概略評価が進んでいる。切断方法としては、レーザー切断や機械的な切断が検討されている[17]。

レーザー切断に固有の課題として、燃料デブリが高温にさらされることによる燃料デブリ酸 化度の変化やそこに含有される蒸発・揮発性³物質がどの程度飛散するかの評価が重要となる。 燃料デブリの現状の化学状態(平均組成、化学形)を初期状態とし、高温での熱力学的評価を 行うことで、蒸発・揮発傾向を概略推定できる。これまでの1F現場データや事故進展解析の 評価結果に基づくと、1Fの燃料デブリは必ずしも酸化度が高くない可能性がある。その場合、 熱力学的に金属系デブリ中に若干量(目安として1・2 wt%あるいはそれ以下)のU金属が含有 される可能性があり、レーザー切断ではその再蒸発も懸念される。また、燃料デブリの酸化度 が低い場合には、Pu・Amの低次酸化物(PuO、AmO)が形成される可能性があり、レーザー 切断ではその再蒸発も起こりうると考えられる。さらに、揮発性 FPが燃料デブリ中に残留し ている可能性も否定できず、その蒸発・揮発の評価も課題である。レーザー切断については、 サンプル分析で蒸発性・揮発性物質の化学状態を調べ、熱力学的な解析や FP 移行モデルによ る評価、並びに必要に応じた模擬試験により、それらの燃料デブリからの蒸発・揮発性物質の 最大飛散可能量を概略的に評価できれば、ダスト対策の設計に貢献できる可能性がある。

他方、機械的な切断に関しては、燃料デブリの機械的特性(硬さ、もろさ、融点等)を把握 しておくことが望まれる。機械的特性では、燃料デブリ中の相や化合物そのものの物性として の特性だけでなく、それらの相や化合物の混合物・凝集物としての平均的・全体的な特性の把 握が望まれる。したがって、機械的特性だけでなく、化学的な特性も評価し、適切な模擬デブ リを調製して知見を拡充することで、より有用な知見を提供できる可能性がある。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

① 分析対象項目(着目する現象・挙動・物理量)

U、Pu、Am及び残留する揮発性 FP(中揮発性も含む)の燃料デブリ中の化学状態と分布に 係る項目、及び機械的特性の項目であり、分析対象は、いずれの切断方法にも共通的な以下と なる。

a. 燃料デブリ中の U・Pu・Am 濃度 = それぞれの質量/燃料デブリ質量

b.Uに対する Pu・Am の随伴性・偏在性

c. 金属系デブリ中のU(金属)濃度 = U 質量/金属デブリ質量

d.酸化物系デブリの酸化度・Zr 相状態

e. 揮発性 FP の分布、U に対する随伴性・偏在性

f. 揮発性 FP の局所濃度

³ 蒸発 = 液体から気体に相転移する現象、昇華 = 固体から気体に相転移する現象、揮発 = 常 温・常圧での蒸発を指す。揮発性 = 常温・常圧で液体からの気化しやすさを指す。一般的に FP は、常温・常圧で液体状態とは限らず、固体で存在するものもあり、蒸発のみならず、昇華に よって気化する場合も考えられる。本報告書では、元の相状態にかかわらず、気化しやすい FP について「揮発性 FP」と定義することとする。

g. 機械的特性(硬さ、ヤング率)

h.融解温度

i. もろさ(空隙率、取扱い時の経験)

いずれも、燃料デブリ中の核燃料物質や FP の化学状態と分布の評価に必要な分析対象項目 となる。これらの項目について、取得したサンプル平均の情報及び観測された相ごと(金属、 酸化物、その他化合物)に平均した情報をそれぞれ取得する。

② 分析方針・分析手法・得られる知見

U、Pu、Am 及び残留する FP の燃料デブリ中の化学状態とその分布については、i) サンプ ル全体として、蒸発・揮発挙動を支配する相の同定、ii) サンプルを構成する主要相(金属、酸 化物、その他化合物)の特徴から評価することになる。工程設計のためには、それらのばらつ き(平均値からの偏差)の評価も重要となると考えられる。工程設計においては、様々な物性 や特徴を評価式あるいは評価値等の形で整理して設計のための基本データベースとして整備す ると考えられる。ばらつきの程度により、評価式や評価値に対する安全係数(設計係数)等の エンジニアリングジャッジの根拠を提供することが期待される。

(3)「燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつき」データの取得について

本課題についても、サンプル平均としての情報と、サンプルを構成する相ごとの情報の双方 を取得することが望ましい。サンプル平均としての情報は、サンプルの形状及びサンプル量(こ こでは、最大で5kg程度と仮定して議論を行う)を考慮しつつ、臨界安全評価と同様に、物理 分析と化学分析を併用して行うことになると考えられる。

サンプルが粉末状、泥状等比較的小さな粒子の場合、分析法は臨界安全評価の項とほぼ同じとなる。核燃料物質については ICP-MS や ICP-AES、FP については放射能分析が適している。

サンプルが団粒あるいは凝集物の場合も、分析方法は臨界安全評価の項とほぼ同じになる。 すなわち、質量測定、切断・研磨、金相(低倍率)画像データの取得、主要相の面分析(高倍 率:目安 500~2000 倍)の順にすすめ、平均組成とばらつきのデータを取得する。得られた物 理分析と化学分析の結果をクロスチェックすることで、サンプル全体としての分析結果として とりまとめる。

次に、構成相ごとの特徴を取得する分析方法は、SEM-EDX、SEM-WDX 及び TEM-EDX(ま た、必須ではないが SR-XA)等の点分析となる。また、TEM による局所の結晶構造の分析も 有用である。凝集物、粉体等の扱いは、臨界安全評価の項の記載と同様である。項目fで示し た、FPやPu、Amの局所偏在については、上述のサンプル平均としての情報において示した 高倍率の SEM-EDX、SEM-WDX 面分析で、偏在の有無を調べた上で、偏在箇所の点分析を行 うことが考えられる。FP の種類によっては、物理分析で凝集部位を直接評価することは困難 と考えられる。この場合は、化学分析や放射能分析の結果から総量を評価し、熱力学解析によ る化学状態評価を併用することで、蒸発特性や相安定性、取扱い性に係る基礎的な知見が得ら れることが考えられる。

また、核燃料や含有される FP の化学特性に大きく影響する因子として、核燃料の化学量論 組成のデータが取得されることが望ましい。これにより、取得したサンプルの分析データから、 そのサンプルが事故進展時に曝された化学環境を推定できる可能性がある。これは以降の課題 においても同様である。

切断時のダスト対策では、「燃料デブリサンプルの平均的な特徴とばらつき」を評価し、ダス ト発生の支配因子となる元素・核種や相・化合物を同定できれば、その知見に基づく、「サンプ ル取得領域の燃料デブリの特徴」の評価は、それほど綿密に実施する必要がないと考えられる。 燃料デブリ取出し領域を決める観点では、2.1.1 項の臨界安全と 2.1.3 項の取扱い安全性が重要 項目であり、レーザー切断法を採用する場合には、ダスト対策は、これらの評価によって定め られた取出し対象領域の中で、最も蒸発・揮発しやすい相を同定した上で、熱力学解析や模擬 試験の結果を考慮しつつ保守的な対策を行うことが妥当と考えられる。本課題については、サ ンプルごとに非常にばらつきの大きい評価結果が得られることが予想され、エンジニアリング ジャッジにより、対象領域のダスト発生・FP 蒸発を支配する相を同定し、その物量を評価し て、設計参考値として用いるのが妥当と考えられる。他方、機械的な切断法を採用する場合に は、取出し対象領域の中で、最も粉体化しやすい相あるいは物質を同定しておくことが重要と 考えられる。これに関しては、十分な知見が得られておらず、今後の検討が重要である。

2.1.3 燃料デブリの取扱い安全性・作業性・放射線量

(1) 目的

本項については、燃料デブリの取扱い安全性・作業性と放射線量の2項目に分けて考察を試 みた。

燃料デブリの取扱い安全性・作業性

現場の状況がわかるにつれ、1F1~3 号機は TMI-2 に比べて相当に複雑な破損状態となって いること、また、号機ごとの破損状態が相当に異なっていることが明らかになってきている。 このような複雑な物質を、取扱い安全性を担保しつつ、できるだけ効率的に回収することが望 まれる。合理的な評価方法としては、分析結果に基づいて、燃料デブリの特徴をいくつかにグ ループ分けし、それぞれの取扱い上の課題を整理した上で、号機ごとの RPV/PCV 内領域ごと に、優先的に検討・評価しておく課題、副次的に見ておく課題等に分類し、その対策と紐付け する方針が考えられる。

これまでのサンプル分析・データ評価・解析等で抽出された課題としては、化学的に活性と 考えられる金属系デブリの取扱い、取出し作業における新たな燃料デブリ表面露出による局所 的な化学反応・FP 溶出、硬い物質(残留 B4C、ホウ化物)の残留・析出等が挙げられる。(燃 料デブリ取出し作業の進捗にともない、これら以外の項目も逐次挙がってくる可能性がある。) また、空冷条件でデブリ取出しを行う場合、空冷に切り替えた段階で燃料デブリ表面に付着し た微粒子等が飛散する可能性があり、グループ分けの際に、乾燥時の表面付着物も考慮してお くのが妥当と考えられる(2.1.4 項も参照)。サンプル分析に基づいて、号機ごと領域ごとに、 上述したそれぞれの課題の重要度を評価し、対策と紐付けすることで、燃料デブリ取出し工程 設計や取出し時の安全対策マニュアルの整備に貢献することが期待できる。

② 放射線量

燃料デブリの線量率は、廃炉工程での使用機器の耐放射線性や体系からの放射線の漏洩や遮 蔽等に直接関わることから、作業者の被ばく管理や使用機器の寿命評価の基礎データとなる。 さらに、今後の RPV/PCV の内部調査方法、燃料デブリ取出し工法の最適化や具体化にも必要 となる情報である。また、燃料デブリや汚染構造物の取出し段階では、合理的な収納容器への 仕分けや容器の遮蔽設計にも線量率の情報が必要となる。RPV/PCV 内の線量率は、今後の内 部調査により、より詳細に実測されることが期待されるが、経時変化、水位変化、除染、構造 物の撤去、燃料デブリ掘削等により大きく変動することが予想されるため、線量率だけではな く、時々の線量率評価に必要な線源情報を分析により把握しておくことが重要であると考えら れる。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

- ① 燃料デブリの取扱い安全性・作業性
- 1) 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

燃料デブリ中の主要成分(U、Zr、Fe等)の化学状態と分布及びBの化学状態と分布に係る 項目であり、分析対象は、以下となる。

- a.燃料デブリの主成分相状態と組成、メゾスケール4 での偏析、及びそのばらつき
- b.燃料デブリ中の析出物相状態と組成、メゾスケールでの偏析、及びそのばらつき
- c. 金属系、酸化物系等のメゾスケールでの混合性、及びそのばらつき
- d.酸化物系デブリの酸化度(Zr・Feの酸化度)、及びそのばらつき
- e.U 金属の形成有無
- f. ホウ化物の化学状態・分布、メゾスケールでの偏析、及びそのばらつき
- g. B₄C 残留程度 · 分布

2) 分析方針・分析手法・得られる知見

燃料デブリの取扱いの安全性及び作業性については、これらにおける留意が必要な相を、こ れまでのサンプル分析や炉内状況解析結果等に基づいて予め抽出し、燃料デブリの分析に基づ いてサンプル中の存在量や偏析程度を分析することが望ましい。工程設計のためには、それら のばらつき(平均値からの偏差)の評価も重要となる。これらは、以下の分析方針・手法で進 めることが妥当であると考えられる。

⁴ 本報告書では、ミクロスケール (μ m レベル) とマクロスケール (mm レベル) の中間のス ケールと定義する。

臨界安全評価等の項目と異なり、取扱い安全性の観点では、まず、メゾスケールで、どのような特殊な性質を持つ相がどの程度析出・形成されているのかを分析することが重要となる。 その上で、サンプル平均として、特殊な性質を持つ相がどの程度の割合で存在しているかを評 価するのが妥当であると考えられる。

3) 「燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつき」データの取得について

サンプル平均としての情報は、臨界安全評価の項目で示した方法で取得することができる。 安全性・作業性の観点では、まず、以下に示すサンプル中の構成相ごとに、取扱い上、安全上 の課題や懸念を抽出、検討した上で、それらの相がサンプル中にどの程度の割合と分布で存在 するかを整理し、取扱い、安全上の課題についてグループ分けして取り扱うのが合理的である と考えられる。

サンプルの構成相ごとの特徴を取得する分析方法、及び、凝集物、粉体等の扱いは、臨界安 全評価の項(2.1.1項)の記載と同様である。得られた結果に基づき、それぞれの相の取扱い上、 安全上の懸念や課題を検討する。

燃料デブリの取扱い安全性・作業性については、分析で評価する「燃料デブリの平均的な特 徴とばらつき」の情報に基づいて、いかに「サンプル取得領域の燃料デブリの特徴」を評価し、 工程設計や安全対策の基盤データとして整備するかという点が重要となる(概略的な考え方案 は付録3に記述)。取扱い安全上(例えば化学的活性)あるいは取扱い作業性上(例えば硬さ) 課題となりうる相が同定された場合には、必要に応じてそれらの模擬物質を調製し、安全対策 や取扱いのモックアップ模擬試験を行って知見を拡充することも考えられる。例えば、U金属 を含有した金属系燃料デブリの切断時の化学活性、ホウ化物が混入した硬い物質の取扱い、等 では、模擬物質を使ったモックアップ試験が有用となると考えられる。また、分析データや現 場データが蓄積されることで、次第に作業マニュアル、安全マニュアルが効率化されることが 期待される。

② 放射線量

1) 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

燃料デブリの主要な γ 線源であり、以下に示す各線源核種濃度が必要となる。

a.¹³⁷Cs(FP 起源)濃度(半減期: 30.08 y、主なγ線エネルギー: 661.66 keV)

b.¹⁵⁴Eu(FP 起源)濃度

(半減期: 8.601 y、主なγ線エネルギー: 123.07 keV, 1274.43 keV, 他)

c. 60Co(放射化起源)濃度

(半減期: 5.271 y、主なγ線エネルギー: 1173 keV 及び 1332 keV)

d. 125Sb (FP と放射化起源)濃度

(半減期: 2.75856 y、主なγ線エネルギー: 391.70 keV)

ただし、 137 Cs は厳密な意味では γ 線源ではなく、 β 壊変して 137m Ba となり、 137m Ba から γ 線が放出される。

2) 分析方針・分析手法・得られる知見

線量率については、上に挙げた各線源核種濃度を、放射線分析や化学分析で測定する。FP に ついては、燃料集合体の主要構成元素に比べて分析誤差が大きいと予想される。また、分析方 法によってはそれぞれの干渉も考慮しておく必要がある。データ整理の一つの案として、燃料 デブリ中の主成分となる U 濃度(U/燃料デブリ質量比)や平均燃焼率(148Nd/U比)等と関係 づけて FP 分析値を整理することが考えられる。これにより、取得したサンプル周辺の FP 堆 積・凝集・残留状態の特徴を把握しやすくなるとともに、不自然な分析データが得られた場合、 それが顕在化しやすくなることが見込まれる。

また、線量率については、サンプル中で線量の主要因となる核種の量と分布を特定すること が重要であり、必ずしもサンプル全体の平均的特徴とばらつきを詳細に評価する必要はないと 考えられる。

線量率についても、燃料デブリサンプルを取得した位置と、分析結果の紐付けが重要となる。 線量率データを積み重ねることで、炉内の線量分布の評価精度を向上させることができると考 えられる。

2.1.4 発熱·冷却対策

(1) 目的

燃料デブリの発熱特性については、現場での冷却水注入停止試験により温度分布の変化を評価することで解析的に評価できると考えられる。これに対し、燃料デブリの冷却対策に向けてサンプル分析が果たす役割は、冷却水注入停止試験で局所的な温度上昇が観測された領域から取得するサンプルの分析による原因究明、冷却水停止により雰囲気に直接さらされる燃料デブリ表面の変質、燃料デブリ取出し作業で新表面が露出した際の化学活性程度の予測等、冷却方法を変えたことによる化学環境変化が燃料デブリの特性に与える影響評価となる。また、空気中(あるいは窒素中)での燃料デブリ取出しの場合には、負圧管理(あるいは微正圧管理)が予想され、雰囲気への酸素混入に起因する燃料デブリ表面や堆積状態の変化を調べることが重要である。この項目についてもサンプル分析で懸念される相を同定できれば、炉外模擬試験で知見を蓄積することが可能となる。さらに、特定部位での温度上昇が見られた場合には、U同位体比やFP組成等、熱源に係る知見を取得することが重要となる。

発熱量については、当面(数十年間)の γ 線量率と崩壊熱は、主に ¹³⁷Cs (^{137m}Ba)、⁹⁰Sr (⁹⁰Y)等で決まることから、これらの核種の放射能強度測定を行う。¹³⁷Cs や ⁹⁰Sr の燃料デブ リからの放出率や溶出率が大きい場合、あるいは処理・処分を含む長期的な発熱評価の観点か らは、Pu、Am、Cm 等の超ウラン元素 (TRU) 核種の寄与が大きくなることから、燃料デブ リへの随伴性の確認は必要であるが、²³⁸Pu、²⁴⁴Cm、²⁴¹Am (²⁴¹Pu 崩壊)の燃料デブリ中の濃 度測定 (対 U 比)も重要である。構造材が主要成分のサンプルの場合は、構造材由来の ⁶⁰Co の 寄与分を評価することも必要になる可能性がある。

- (2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報
- ① 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

a.燃料デブリ主成分のメゾスケールでの化学特性に係る項目(2.1.3項に同じ)

b.FPの残留と分布、化学状態(水溶性・難溶性)

c. 密度・気孔率

d.U同位体比(事故前炉心での燃焼率の違いがどの程度保存されているかの評価)

② 分析方針・分析手法・得られる知見

本課題については、安全性・作業性の項目で述べた分析方針、分析手法と同様の進め方が妥 当であると考えられる。雰囲気変化の影響を受けやすい燃料デブリ表面、燃料デブリ取出し作 業で課題となる切断で新たに暴露された断面等の情報が特に重要となると考えられる。

また、TRU 核種は燃料デブリ中の U 濃度や平均燃焼率と相関する可能性があることから、 同じサンプルに対し、U 濃度測定、TRU 濃度測定と燃焼率測定を併せて行うことにより、発熱 量評価の精度を向上できる可能性がある。

他方、Cs や Sr については、2.1.7 項で述べる燃焼率評価や核解析による事故発生時(FP 放 出直前)の FP 濃度解析値を組み合わせることで、炉内での分散状態の評価に向けた基礎知見 が得られる可能性がある。初期のデブリ分析により、どの程度の可能性が見込まれるか検討す ることが望ましい。

この項目には、燃料デブリサンプルの特徴やばらつきの評価に係る固有の課題はない。発熱 特性ではマクロ情報が、雰囲気変化の影響等ではメゾスケール情報がより重要となるが、上で 述べてきているように、サンプルを全量溶解した分析は現実的でないため、化学分析と物理分 析、面分析と点分析を組合せて「燃料デブリサンプルの平均的な特徴とばらつき」を評価する のが妥当である。取得した燃料デブリサンプルの発熱に関する平均値とばらつきの知見が得ら れれば、1F 炉内の燃料デブリ堆積状態の画像解析等で、そのサンプルが取得された周辺の状態 を概略評価できると想定される。

2.1.5 水素発生対策

(1) 目的

燃料デブリの主な水素発生源を評価する。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

① 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

主な水素発生源としては、β、γ核種(特に低エネルギー線の影響大)による冷却水の放射 線分解 [18]、及び燃料デブリ取出し時に新たな表面が暴露されることによる未酸化物質と冷却 水との反応が考えられる。 ② 分析方針・分析手法・得られる知見

放射線分解で発生した水素の滞留については、上に示した分析で取得したβ、γ線放出核種 の濃度の情報から、放射線分解による水素発生量をある程度見積もることができると考えられ る。また、水側の状況、すなわち、水位情報や濡れたデブリ表面の水膜の厚さ、外部が乾燥し 内部に水が残留している場合の水量の計測、また、水和物からの発生理論等についても考慮す るのが望ましい。現場作業において水素が多く検出される領域が観測された場合、その部位の サンプルを詳細分析することも原因究明の役割を果たすことが期待される。

未酸化物質由来の水素発生については、取得したサンプルの金相断面を分析し、残留する活 性金属量を評価することでサンプル全体としての潜在的な水素発生量を概算できると考えられ る。本課題のみの評価項目は多岐にわたるが、上述した別項目での分析過程で得られる知見に 基づく概算で十分と考えられる。

この課題においても、分析で得られる知見に基づいて、必要に応じて模擬サンプルを調製し、 水素発生の炉外模擬試験により詳細な評価につなげることができると考えられる。

本課題のみについて、サンプル分析を行う必要はないと考えられる。別課題の分析で得られ た知見に基づき、活性金属と *β* 核種の残留量とそのばらつきを評価する。

2.1.6 RPV の状態評価

(1) 目的

RPVの状態(特に、下部プレナムの燃料デブリや構造材の堆積、下部ヘッドやCRDの破損) 評価は、特に相当量の燃料デブリが RPV内に残留すると予想されている2、3号機では、ペデ スタルからの燃料デブリ取出しの工程設計への反映において重要であると考えられる。RPVの 状態評価精度の向上は横アクセス工法の検討においては重要課題であると考えられる。

これまでの事故進展解析によると、2、3 号機の下部プレナムでは、燃料や被覆管酸化物等が 完全に溶融する温度まで温度上昇せず、固液混合状態で下部ヘッドを破損させ、ペデスタルに 一部落下した可能性が高いと考えられている。このような事故シナリオでは、RPV 内の残留物 が均質に分布していない可能性が考えられ、堆積物の重心の偏心や局所的な RPV 容器の強度 低下が起きている可能性も予想される。このため、ペデスタルからの燃料デブリ取出しの工程 設計においては、例えばペデスタル側壁の構造的な安定性についての知見となる可能性等も考 えられる。また、半溶融の酸化物や金属の残留により、様々な形態の燃料デブリや構造物が非 均質に堆積している可能性が高いと考えられる。

ペデスタル等から取得されるサンプルの分析に基づいて、事故進展逆問題解析により、RPV 下部プレナムでの燃料デブリ堆積や下部ヘッドの破損の状況の評価精度を向上することができ れば、作業の安全性に対し、重要な知見を提示できる可能性があると考えられる。また、RPV 内部の破損・堆積状態について、予めある程度の見通しを立てておくことで、今後、RPV 内部 にアクセス(内部調査、試験的取出し)する際に予備的な知見として活用することも期待でき る。 (2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

① 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

逆問題解析の観点で重要となる分析項目は、燃料デブリや堆積物の主成分(U、Zr、Fe、B等)の化学特性とその評価に係る項目となる。特に重要なのはUを含有する粒子及び相の化学特性である。

また、現状では冷却水が RPV から PCV に流れ込んでいる状況になっており、一部物質が RPV から PCV に流れ落ちている可能性がある。この観点では、SEM-EDX 等の非破壊分析で 粒子状物質を探索し、その生成メカニズムを考察することが有用となる可能性がある。燃料デ ブリの主成分だけでなく、破損した構造材の一部等が回収される場合、RPV 内部情報の検討に 有用な知見を提供できる可能性がある。

a. 燃料デブリ・堆積物の主成分(U、Zr、Fe、B等)の相状態(組成、U:Zr 比、U+Zr:Fe 比、 結晶構造(高温形成相か低温形成相か)、分布、結晶サイズ、析出状態)

b.Zr と Fe の酸化度

a及びbについて、ばらつきの評価等、統計的な整理を行うことが望ましい。

② 分析方針・分析手法・得られる知見

RPV 状態の逆問題解析点の観点では、主要成分(U、Zr、Fe、B等)のサンプル全体の平均 組成の分析と、サンプルを構成する主要相の同定・点分析が重要となる。分析方法は、上述し た方法と同様であり、化学分析と物理分析を併用して、サンプルのマクロな平均特性とサンプ ルを構成する相の特性のデータを取得する。逆問題解析においては、特に、構成相の特性デー タが重要であり、合理的な工数の範囲で、SEM-EDX、SEM-WDX 及び TEM-EDX 等の点分析 の測定点数を増やし、統計的な評価ができるようにすることが望ましい。また、炉内のできる だけ多様な部位からサンプルを取得し、燃料デブリの化学的特性のばらつき・分布を評価でき るようにすることが期待される。

「サンプル取得領域の燃料デブリの特徴」についても、他の課題とほぼ同様の方法で評価を 試みると良いと考えられる。主要成分の相状態の測定点数を、合理的な工数の範囲でできるだ け増やし、かつ、サンプルをできるだけ多様な炉内領域から取得することが要点となる。

2.1.7 燃料デブリ分析の評価指標(燃焼率)の考え方

(1) 目的

TMI-2 事故は、初装荷炉心において数ヵ月後に事故が発生したことから、燃料溶融前の燃料 の燃焼度の範囲は数 GWd/t のあたりに集中している。一方で、1F 事故の場合は、何れの号機 も平衡サイクル炉心(5~6 バッチ装荷)であったことから、炉心の径方向及び軸方向の分布ま で考慮すると、事故直前の炉内には 0~50 GWd/t 程度の広範囲な燃焼度の燃料が存在してい たと推定される。1F 事故では、これらの燃焼度が異なる燃料が溶融混合して燃料デブリを形成 したものと考えられるが、その混合状態は号機や部位に依存するものと考えられ、その詳細は 現状では不明である。U、Pu、可燃性毒物 Gd の同位体及び FP 核種のほとんどは、燃焼度に 依存して消滅または生成するため、以上のことが、TMI-2 の燃料デブリに比べて、1F1~3 号 機の燃料デブリの臨界安全、崩壊熱、線量率等の評価を難しくしている。また、燃焼度が異な る燃料の溶融混合状態が一様でなければ、多数のサンプル分析をしても評価対象とする核種量 は燃焼度の範囲で大きくばらつく可能性があり、限られた分析結果から得られる知見は乏しい ものになる可能性がある。以下では、臨界安全、崩壊熱、線量率等に直接寄与はしないが、分 析対象とすることにより、これらの評価をより効果的または合理的に実施できる可能性がある 分析項目について記載する。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

① 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

燃料デブリ中の U、Pu、可燃性毒物、FP 核種の濃度が不明である場合、燃料デブリの臨界 安全や冷却、輸送・貯蔵容器の放射線遮蔽、導入機器の耐放射線性、水素発生等の対策におい ては、最大(または最小)燃焼度仮定、可燃性 Gd なし、残存 FP なし(または全 FP 残存) 等、燃料デブリ取扱いに応じた保守的仮定を行って、安全性評価が進められると考えられる。 極端な保守的仮定は取扱い量が多くなる燃料デブリの取出しを遅延させ、新たなリスクを発生 させる可能性があるため、限られたサンプル分析により、より合理的な保守的評価を可能にす ることが望ましい。そこで、以下に述べる燃焼率指標の分析を提案する。

a. 燃料デブリ中の¹⁴⁸Nd(または代替となる核種 or 元素) 質量/U 質量

b. 燃料デブリ中の ²³⁵U 質量/U 質量

燃焼率は、%FIMA(% percentage the number of fissions per initial metallic atom)の単 位で表わされ、初期重元素数に対する核分裂数の割合を意味するものである。1 核分裂あたり 約 200 MeV の核分裂エネルギーが得られることから、燃焼率は、商用炉で良く使用される GWd/t 等を単位とする燃焼度に換算することができる(1%FIMA=約 9.6 GWd/t)。燃焼率は、 原子炉運転期間中における燃料の核分裂総数を表すものであることから、²³⁵U の消滅量、Pu 同 位体等の生成量、可燃性毒物核種である¹⁵⁵Gd や¹⁵⁷Gd の消滅量、¹³⁷Cs や⁹⁰Sr 等の FP 核種 の生成量等、臨界安全、崩壊熱、線量率等に直接的に関わる多くの核種インベントリは、燃焼 率に大きく依存して変化する[19]。このため、軽水炉の使用済み燃料の核種組成分析では、¹⁴⁸Nd を用いた燃焼率測定が行われており[20]、これをスケールとして利用することにより、他核種 のインベントリを燃焼計算の結果や比較的少ない分析値のフィッティング式等から間接的に推 定することが可能となっている。

¹⁴⁸Nd は、中性子吸収に比べて核分裂収率による生成が支配的であり、加えて ²³⁵U と ²³⁹Pu の核分裂収率がほぼ同等であることから、その生成率は、ウラン濃縮度等の燃料仕様や運転条件(ボイド率、炉停止、出力密度変化等)にはほとんど依存せず、図3に示すように燃焼率(燃焼度)のみに依存した優れた線形性を有する。

燃焼率が異なる複数の燃料が溶融混合した燃料デブリに対しては、燃焼率の概念が意味を持 たないと考えられがちであるが、図3のような線形性を有する核種は、混合系であってもその



図 3 軽水炉燃料における 148Nd の燃焼に伴う生成量変化 [19]

平均の燃焼率を与える特性を有する。実際に、JAEA ではこの特性を利用して、六ヶ所再処理 工場の高レベル廃液に対する放射能インベントリ評価[21]において、Nd 同位体の分析結果から ⁷⁹Se 等の難分析超寿命 FP 核種の濃度予測に成功した実績がある。燃料デブリにおいても燃焼 率の分析結果から、燃料デブリの取出しに重要な他核種のインベントリ推定に役立つ可能性が ある。例えば、燃料デブリ中の¹⁴⁸Nd/U 質量比と¹³⁷Cs/U 質量比の分析結果を燃焼計算の結果 と比較することにより、¹³⁷Cs の燃料デブリからの放出率を推定することができれば、燃料デブ リの線量率や崩壊熱の評価を最大保守仮定(最大燃焼度、Cs 放出率ゼロ)で行う必要はなくな るものと期待される。しかし、燃料溶融と硝酸溶解とでは燃料の混合条件が大きく異なるため、 先ずは、¹⁴⁸Nd 等の燃焼率指標核種が、マクロスケールで U や Pu と随伴し、燃料デブリの共 通スケールとして有効かどうか判断することが重要である。また、²³⁵U/U 質量比も燃焼率指標 として利用できることが期待できるが、BWR 燃料集合体では濃縮度の異なる U 燃料が装荷さ れていることと、運転中のボイド率の影響で²³⁵U/U 質量比は変動するため、燃料デブリでは正 確な燃焼率指標として利用できない可能性がある。よって、¹⁴⁸Nd/U 質量比と²³⁵U/U 質量比の 双方を分析してクロスチェックができるようにしておくことが望ましい。

¹⁴⁸Nd/²³⁵U という核種選択については、さまざまな燃料デブリ形成過程におけるランタノイ ド核種等と U との随伴性がわかっておらず、PCV 水中長期経過時のさまざまな燃料デブリ中 のランタノイド核種等や U の溶出特性の違いも定かではないので、これらを推定しておき燃料 デブリサンプルの分析によって確認するとともに、燃料デブリに対する簡便な溶解法適用時に おける溶液への抽出率や、溶液中同位体の分析精度等も考慮して検討する。その結果として、 ¹⁴⁸Nd 以外にも、U、Pu 同位体あるいは他のランタノイドの同位体比を補完的に測定すること も考えられる。 ② 分析方針・分析手法・得られる知見

¹⁴⁸Nd は安定核種であり、また、²³⁵U は半減期 7.04×10⁸ 年でほぼ安定核種とみなせること から、回収したサンプルから、特徴的な部位をいくつか分取し、これを酸等で溶融・液調製し て ICP-MS 等で質量分析を行う。¹⁴⁸Nd の質量分析では、妨害核種排除のための元素相互分離 等の前処理手法の検証が必要であり、¹⁴⁵Nd、¹⁴⁶Nd、¹⁴⁰Ce 等も ¹⁴⁸Nd の代替・バックアップと して燃焼率指標核種として考慮しておくことが望ましい。

Nd 元素も燃焼率に対する線形性を有するため、質量分析を用いないで ICP-AES 等を用いた Nd 元素分析でも代替できる可能性がある。以上のように、燃焼率指標の分析手法には様々な 選択肢があるが、分析の初期段階においては、クロスチェックの観点から複数の手法を試みて、 より簡便で有効な手法を選定しておくことが望ましい。

¹⁴⁸Nd/U 比等の燃焼率指標に対して、同じサンプルから得られる他の評価対象核種の分析結 果(例えば ²³⁵U/U、¹³⁷Cs/U、⁹⁰Sr/U 等)をプロットして整理することにより、比較的少ない サンプル分析により燃料デブリの特性(臨界安全に係る特性、崩壊熱、線量率等)に繋がる情 報が得られる可能性がある。

燃焼率評価では、燃料デブリが一旦コリウムを形成(全溶融)したかどうかの確認が重要と なる。研磨断面の微細組織(以下、金相)や、SEM でもある程度判断がつくが、235U 質量/U 質量や¹⁴⁸Nd 質量/U 質量分析を燃料デブリサンプル内の特徴的な数箇所で実施し、その偏差を 見ることでも確認できる。また、仮に、上記の同位体比にあまり偏差が見られない場合、その 場所でのコリウムの混合状態の目安になる可能性があると考えられる。例えば、2 号機では大 規模なコリウムが形成されなかった可能性もあり、ペデスタルに落ちている燃料デブリ中の同 位体比は、場所ごとに異なる可能性がある。このように、燃料デブリ中の同位体比が異なって いる場合においても、一定の偏差に入っている場合においても、RPV 内の燃料デブリ堆積状態 を評価するための手がかりになり得ると考えられる。

2.1.8 その他の課題

(1) 残留海水成分

1Fでは、炉心冷却のために海水を投入した。熱力学的な評価や基礎試験に基づくと、海水成 分の一部は、UやFPと選択的に反応し、蒸発特性等の化学的特性を変化させ、分布特性を変 化させる可能性が考えられる。また、Clイオンは構造材の腐食を促進する懸念がある。FP化 学、水中沈殿物、ガラスデブリ形成には、Na、Mg、硫酸イオン等も関わっていることが考え られるが、ここでは、過去に実施した海水成分混入時の熱力学解析[15]に基づき影響がありそ うなものとして Clを選定している。サンプル分析により、海水由来成分の残留濃度や、海水由 来成分と核燃料や構成材料成分の反応の有無を調べることで、燃料デブリ取出しに与える海水 由来成分の重要性を事前に評価することは、燃料デブリ取出し設計に向けて重要な知見となる と考えられる。

この観点での分析は、ルーチン的に行う必要はないと考えられる。比較的早い段階で取得されるサンプルの化学分析により、酸化物系デブリ、金属系デブリでのそれぞれの残留塩素濃度

を評価し、まず、本課題の燃料デブリ取出し工程設計に対する重要度を評価することが肝要で あると考えられる。

Clの特定部位への凝集、あるいは、特定元素との化合等の特徴が観測された場合には、その 形成メカニズムについて、解析的手法や模擬試験によって検討し、燃料デブリ取出しにおいて どのような課題があるかを調べておくことが重要である。凝集等が観測されない場合には、残 留塩素濃度の平均値とばらつきの概略評価は、燃料デブリ取出しではなく、燃料デブリ保管管 理や処理処分の工程設計に向けて重要な情報となると考えられる。

(2) アクセス性・被ばく低減・解体撤去に係る項目

① 線源·放射線分布

PCV内、さらには RPV内の燃料デブリにアクセスする場合には、アクセスルートや工法の 設計、作業員の被ばく低減対策の観点で、線源分布・放射線分布の情報が必要となる。現状で は、事故進展解析による FP 分布に現場情報を加味して、いくつかのケースを仮定した上で線 源(燃料デブリと FP)を仮想的に配置し、ケーススタディがなされている。燃料デブリや FP の分析によって、これらのケーススタディの中から、比較的妥当なものを随時絞り込み、評価 精度を向上させていくのが現実的であると考えられる。

燃料デブリについては、ここまでに述べてきた方法で、kg 規模で取得される燃料デブリサン プルの平均値として、FP や Pu、マイナーアクチノイドの残留量を評価することができる。並 行して、サンプルの放射線分析により、線量を評価し、対象とする燃料デブリ全体の評価につ なげることができると考えられる。ここでも、限られたサンプル数から、対象領域全体につい て評価する方法論を整備することが重要である(付録 3)。

建屋内の構造物に付着している揮発性 FP については、サンプル採取数として、工程的に合理的な範囲でできるだけ多くのスミアサンプルを、できるだけ多様な領域から取得し、それを分析することで、建屋内の線源・放射線分布マップを高度化する作業が考えられる。このサンプル分析では、取得するサンプル質量はg以下で十分であり、測定対象は FP 濃度、FP の化学形、線量率となる。これらの分析は、ここまで議論したものと同様な方法で実施できる。得られた線源・放射線分布図により、事故シナリオの逆問題解析に対し、重要知見を提示できると考えられる。化学形態を調べることで、付着部位の事故時化学状態の予測(最高到達温度、雰囲気等)及び除染や遮蔽の難易度に係る知見を提供できると考えられる。化学形を解明することで、模擬物質を使った炉外試験の条件を提示できることも重要な点である。模擬物質を使った FP 移動・付着モデルの検証試験等により、知見を拡充することが期待される。

これら線源・放射線分布の評価においては、燃料デブリや付着 FP の経年変化の影響を考慮 することが重要である。例えば、燃料デブリ表面が長期間酸化性雰囲気にさらされることによ り、表面が変質して内包する放射性物質が放出されることや、構造材等に付着している FP 化 合物が湿分の影響で変質し遊離特性が変化すること等である。 ② α 粒子の PCV からオペレーションフロアや環境への移行経路の評価

2 号機では、ウラン含有粒子がオペレーションフロアで観測されている。このため、炉内からオペレーションフロアまでの粒子の移行径路には、α ダストが堆積している可能性が大きく、その移行経路の同定は、アクセス性・被ばく低減・解体撤去に資する重要課題となっている。 また、これを解明することで事故進展解析にも繋がる。移行径路の可能性としては、以下の 2 つが考えられている。

- RPV が昇圧し、部分開となったと考えられる SRV を通じて、S/C 経由で D/W に移行。
 PCV が加圧され、PCV トップフランジの浮き上がりによってリークが生じ、蒸気流に乗ってオペレーションフロアに移行。
- RPV 破損により炉心物質の一部がペデスタルに流出。ペデスタルに存在していた冷却材が、 高温の過熱蒸気となり、PCV内に存在していた放射性物質を、トップフランジからのリー クでオペレーションフロアに移行。

オペレーションフロアやそこに繋がる移行径路から取得されるサンプルの分析は、被ばく低 減、解体撤去、αダスト対策等の重要知見となる可能性がある。分析方法は、スミアサンプル 中のウラン粒子の点分析及び形態分析(SEM-EDX、TEM-EDX、SR-XA等)が考えられる。 これらの詳細分析により、移行時あるいは形成時の化学形態や温度の評価に資するデータや知 見を取得できることが見込まれる。実際に、これらの分析を実施するかどうかについては、他 の分析との優先度の検討が必要となる。他方、将来の廃炉工程の進捗によっては、重要性がさ らに増す可能性もあり、少なくとも可能な範囲でアーカイブサンプルを残しておくことが望ま れる。

③ 建屋解体

燃料デブリ取出し以降の建屋解体段階において、①及び②で測定、評価される FP の量及び 線量分布に関わる知見及び FP と構造材の付着とその除染あるいは遮蔽性に係る知見が有用と なる。この観点でも、付着濃度及び量だけでなく、化学形態の情報が重要となると考えられる。

また、建屋解体までには数十年以上を要し、作業は原則空気雰囲気で実施されると考えられることから、FPの化学状態の変化による、二次的飛散の程度を予測しておくことも重要である。FPのスミアサンプル分析により、化学形態を明らかにすることで、FPの長期化学形態の変化の試験をコールド条件で適切に実施できる。

(3) ペデスタル掘削時の核燃料物質含有領域終了の判断

① 目的

ペデスタルからの燃料デブリ取出しに際し、燃料がどこまでコンクリート中に侵食している かは、取出し工程管理の観点からだけでなく、廃棄物処理の観点からも重要な検討項目となる と考えられる。まずは、燃料デブリサンプルの分析と解析手法により、堆積深さ方向の分布に 関する概略予測を行う。次に、U、Pu及び放射性核種濃度の堆積深さ方向の変化を定期的に調 べ、計測結果と解析結果と比較することで、解析モデルを高精度化し、解析による評価精度を 向上させていくことができると考えられる。

これまでの模擬試験や解析研究によると、溶融物と未溶融コンクリートの界面近傍では、炉 心物質の濃度が急激に変化するが、コンクリート自体の変質やコンクリートへの核燃料物質の 拡散等もあることがわかってきている。したがって、堆積物の物理的、化学的な特性の観点だ けでは、燃料デブリと残留コンクリートを明確に分離できる境界を判定できないと考えられる。 燃料デブリ表面から堆積深さ方向への濃度変化を実際の分析と解析を併用して評価し、ある段 階で、核燃料物質の濃度が極端に減少する層が見つかれば、そのあたりを燃料のコンクリート への侵食の最深地点と評価する方法も考えられる。

次に、最深地点近傍の燃料デブリサンプルを取得し、核燃料物質の侵食深さやコンクリートの変質程度を評価する。この知見を用いて、境界領域近傍の物質をどこまで燃料デブリと定義し、どこからは TRU 廃棄物等のカテゴリーに入ると定義するかを検討することが現実的であると考えられる。

その境界領域近傍でのサンプル分析により、核燃料物質残留とコンクリートの変質状態の知 見を関係づけておけば、初号機の別部位からの燃料デブリ取出しや、他号機からの燃料デブリ 取出しの効率化に貢献できる可能性がある。

② 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

1) 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

U、Pu及び放射性核種濃度の堆積深さ方向の変化を定期的に調べる。

2) 分析方針・分析手法・得られる知見

ペデスタル(場合によっては D/W)の堆積物表面近傍の分析を、当面取得される燃料デブリ サンプルを用いて実施する。この課題のみで分析を追加する必要はなく、サンプル中の平均的 な核燃料物質残留濃度とその主要な化学形態を評価することで十分であると考えられる。この 知見に基づいて、燃料デブリ表面の事故時最高到達温度等を予測し、解析的な手法で、深さ方 向の広がりについて検討を行う。

次に、定期的に(あるいは、燃料デブリの状態に大きな変化が観測された場合等に)、核燃料 物質の濃度と化学状態の変化を調べ、解析精度を向上させる。化学状態を見ることで、燃料デ ブリの凝固特性(偏析等)の知見が得られることも期待できる。

核燃料物質濃度に大きな減少が見られた段階で、境界領域については、必要点数のサンプル を取得し、界面での変化の知見を取得する。これらの知見に基づいて、どこまでを燃料デブリ と定義して取出し、どこからを TRU 廃棄物等と定義して取り出すかは、保管管理、処理処分 を考慮しつつ総合的に判断することになると考えられる。

(4) 被ばく管理、遊離・浮遊物対策管理関係

① 目的

被ばく管理や被ばく低減対策のためには、燃料デブリ取出し時の R/B 内アクセス経路、及び

PCV 内部の壁や機器表面等の放射性物質による汚染分布、並びに汚染の遊離による PCV 等バ ウンダリ内の放射性物質濃度変化等を評価することが重要である。外部被ばくの観点からは、 線量測定データの逆解析により線源分布を求める手法が重要である。一方、PCV 内等バウンダ リ管理の対象となる遊離・浮遊した粒子状放射性物質については濃度分布を評価することが重 要である。¹³⁷Cs に加えて、主な内部被ばく線源となる Sr、Pu、Am 等に係る分析が重要と考 えられる。さらには、その他の FP 核種についても可能な限り分析を行い、¹³⁷Cs との放射能比 の場所ごとの傾向等を評価することができれば、合理的な被ばく管理や廃棄物管理のためのイ ンベントリ評価のための基礎的な情報となり得る可能性が考えられる。

② 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

1) 分析対象項目(着目する現象、挙動、物理量)

燃料デブリ内や構造材等表面に含有または付着する FP 量、それらの水への浸出、長期的な 燃料デブリ表面変性等による気中への放出、付着 FP エアロゾルの再浮遊等の FP 再放出量、 構造材表面の酸化度合いや粗さ等、FP 付着・再放出に影響を与える固着性状に係る項目であ る。

a. Cs、Sr、Pu、Am 等の放射能(質量)

b.エアロゾルの形状・寸法及び組成

c. 構造材表面の酸化状態や粗さ

d. 炉外試験等による付着 FP の再放出特性

2) 分析方針・分析手法・得られる知見

これらの項目と分析対象、分析方針・分析手法・得られる知見等については、2.5.2 項に記載 した。以下概略を記載する。

γ線スペクトル分析や ICP-MS 等による FP の放射能 (質量)分析、SEM-EDX、SEM-WDX 及び TEM-EDX 等によるエアロゾル形状・寸法や構造材表面酸化状態(相状態)、表面ふき取 りや除染剤による除染試験、水への浸漬試験による FP 浸出率等の分析を行う。これら分析結 果と、結果の熱力学解析、別途評価される事故時温度・雰囲気等の事故進展条件等を合わせる ことにより、FP の分布(及び今後の長期的な変化)と汚染性状(遊離性、固着性、浸透性)、 物理化学性状に関する知見が得られることが期待される。

FP は燃料物質に比べて桁違いに量が少なく、また事故時の可動性が大きく広範に分布して おり、構造材等にµm オーダーで付着している。このため、燃料デブリ分析において重要であ る、一つのサンプルに対する平均的特徴とばらつきの考え方は適用されず、FP 性状(物理化学 形態)の建屋内・容器内の空間変化を考慮してサンプル取得を行うことが重要である。例えば、 事故進展解析や事故時プラントデータ解析、現場の線量データ等を参考に、建屋内・PCV内で、 FP 化学形やエアロゾル形成等の物理形態の変化が生じないと予想される領域を予め同定し、 それらの領域の特徴を代表するサンプル(スミアサンプル等)及び領域間で、事故時の温度・ 雰囲気等が急激にあるいはなだらかに連続的に変化する境界領域でのサンプルを、合理的な範 囲で複数取得し、分析を行うことが望ましい。

第一段階としては、特徴的な領域を代表するサンプルの分析をできるだけ優先し、建屋内・ PCV内の汚染状態分布の特徴(線量、核種、化学形等)を概略把握することを優先し、そこで いったんホールドポイントを設け、選定した領域の特徴・重要性、境界領域の再選定等を行い、 次の段階の分析に進むのが妥当と考えられる。

(5) 工程管理に係る一般的課題

工程管理について JAEA は高い専門性を有していないものの、関係者との議論を通じた本報 告書のアップデートに際して課題の拾い落としをなくす観点が重要と認識している。ここでは 一般的と考えられる課題について概略を記載した。

燃料デブリ取出し時の工程管理、つまり、作業時の安全性や稼働率を維持管理するためには、 取出し対象部位の燃料デブリ特性等が設計時の範囲に入っていることを確認することが重要で あると考えられる。現場作業への影響を考えると、工程管理のみを目的とした新たなサンプル の採取と分析は極力行わないことが望ましく、状況に応じて分析頻度を定めることが重要と考 えられる。例えば、燃料デブリ取出し作業内容に大きな変化がない場合は、サンプル分析では なく、現場映像、温度、放射線量、ダスト発生量等のモニタリング指示値等に大きな変化がな いことを継続監視するのが妥当であると考えられる。一方、燃料デブリの取出しを開始した初 期や、新たな取出し部位に移行した段階等、作業内容に変化がある場合には、ある程度高い頻 度でサンプルを採取して分析する必要があると考えられる。例えば、燃料デブリの硬さが取出 し設計時に設定した範囲から著しく外れる場合には、工具、工法等の変更の必要性が生じる可 能性があり、また適切なサンプル採取数や頻度等にも影響する可能性が考えられる。分析対象 項目としては、前述の硬さ等の燃料デブリ取出しの作業効率に係るもののほか、臨界安全管理 や水素安全管理も含まれると考えられる。

取得位置とサンプル教・サ	ンプル重量付法		(i) 様 珍 ふ 物 (i) (i) (ii) (ii) (ii) (ii) (ii) (ii) (ii) (
得される知見	サンプル構成相(金属、酸 化物、その他化合物)の情 報*2	₩** SEM-EDX(点分析) SEM-WDX(点分析) TEM-EDX SR-XA	 ・ 再踏み 中、 一、 に かし、 し かし、 事業 た う た う た の た 、 一 た の 、 一 た の 大 ノ た の 大 ノ た の 大 ノ た の 大 ン た 、 切 や し、 し、 世 が が が が が が が が が が が が が が づ た い の 一 、 じ 、 一 、 一 、 一 、 一 、 一 、 一 、 一 、 一 、
御・衆手術会	サンプル平均としての情報 *1	 断面金相 SEM-EDX (面分析) SEM- WDX (面分析) かさ密度 化学分析 (ICP-MS 等) 放射能分析 蛍光分析 (B) 	O
	分析対象項目 ※下線はオプション(技術開発 が必要)	(爱尔·co	a.
小項目	課題・ニーズ (着目する現象・ 挙動)) 夏	A A 総称 本 生 に て し て し て し る の の の の で を で を で で で の で で の で で で の で の
	サンプや分析結果とその評価に対して発酵子を	a 大 大 大 大 大 子 大 子 た て し た た て し た た 人 た で 人 た 人 人 派 御 人 大 御 子 人 大 御 人 人 御 子 人 人 人 人 人 人 人 人 人 人 人 人 人 人 人	◎粽ギブブリの「おおかな」

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (1/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 サンプル全体としての特性の分類 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、

*2:サンプルを構成する主要相・析出相の詳細分類、相ごとの平均特性と偏差の評価、結晶構造、粒子・析出相のサイズ、メゾスケールでの相状態など熱力学的知見

敢得位置とサンプル教・サ	ンプル重量/寸法							燃料デブリが存在する場所	(推定図より):	1 号機:ペデスタル (デブリ	Ø	上に厚い堆積物→取出しが	重要; MCCI、深さ方向の情	報) 異なる深さで 2~3 サン	プル以上が望ましい。	2 号機:RPV 下部ヘッド、ペ	デスタル (ペデスタルは金	属リッチ。B を多く含む可	能性)異なる場所で2~3サ	ンプル以上が望ましい。	1927年1月	3 与機:ヘナスタル。場所(浜	る)による然焼率の)違い(事せ)をにていません。	蚊庫胺にょる/ 兼ぶる休さ を 3~3 キンプルビトが望	ې ۲
得される知見	サンプル構成相(金属、酸	化物、その他化合物)の情 #**	来。2 SEM-EDX(点分析)	SEM-WDX (点分析)	TEM-EDX	SK-XA												Ι							
小手法・取	サンプル平均としての情報	*1	断面金相	SEM-EDX(面分析)SEM-	WDX(面分析)	Mac 名氏 いうかた (rep vie 年)	11-4-22 MI(NCL-1412 年) 放射能分析 蛍光分析(B)										(D							
	分析対象項目	※下線はオプション(技術開発 ※12歳日)	N-22×1					e. ¹⁴⁸ Nd (あるいはそれに替	わる燃焼率指標核種)の	対U比(燃焼率)	いったん溶融する燃料	デブリについては、然焼	率に対する組成変化(or	組成比)が直線性を有す	る核種を用いる必要があ	る。 ¹⁴⁸ Nd はその候補であ	(S	音単のパネ FIN#	= <u>nu な c v = ■</u> 燃料デブリ中の U 重量						
小項目	課題・リーズ	(着目する現象・ ※軸)	(「「「「」」					> 熟焼率																	
	サンプル分析結	果とその評価に対しての	2011年14日に11日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本では、1日本	備に向けたニー	ズを有する検討 西日	цĶ		①燃料デブリの	臨界安全	(続き)															

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (2/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 サンプル全体としての特性の分類 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、

*2:サンプルを構成する主要相・析出相の詳細分類、相ごとの平均特性と偏差の評価、結晶構造、粒子・析出相のサイズ、メゾスケールでの相状態など熱力学的知見
取得位置とサンプル教・サ	ンプル重量/寸洗			
得される知見	サンプル構成相(金属、酸 化物、その他化合物)の情 報*2	SEM-EDX(点分析) SEM-WDX(点分析) TEM-EDX SR-XA	1	1
分析手法・取	サンプル平均としての情報 *1	断面金相 SEM-EDX(面分析) SEM- WDX(面分析) かさ密度 化学分析(ICP-MS 等) 放射能分析 蛍光分析(B)	Ο	Ο
	分析対象項目 ※下線はオプション(技術開発 が必要)		 1. かさ密度 (=理論密度×(1-気孔率)) 理論密度 : 平均組成と相 状態から評価 	g. 核分裂性物質 (U、Pu) の 化学形
小項目	課題・ニーズ (着目する現象・ 挙動)		かな路	▼ 取出し時の環 境変化
	サンプル分析結果とその評価に対し工程設計や	作業スキーム 離に向けた に 一 た を 者 す る 検討 項目 通 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	 ① 燃料デブリの 臨界安全 (続き) 	

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (3/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 サンプル全体としての特性の分類 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、

取得位置とサンプル教・サ	ンプル重量/寸洗									デブリ切断機器についたサ	ンプルを採取。	最も蒸発・揮発しやすいサ	ンプル。	FP の化学形・化学状態。											
得される知見	サンプル構成相(金属、酸	化物、その他化合物)の情	報*2	SEM-EDX(点分析)	SEM-WDX(点分析)	TEM-EDX	SR-XA											0							
分析手法・取	サンプル平均としての情報	*1		断面金相	SEM-EDX(面分析)SEM-	WDX (面分析)	かさ密度	化学分析(ICP-MS 等) 故財能公标	蛍光分析(B)									0							
	分析対象項目	※下線はオプション(技術開発	が必要)							 . 燃料デブリ中のU・Pu・ 	Am濃度	/ ちさ おさ と本目 /	= <u>てれてれいり単単</u> 微約 デブリ 重量		 b. U に対する Pu・Am の値 座妹・値在妹 	(十日,雁仕日 。 令属赵元丈二由今 II (令	c. 並属ボノノリナジ O (並属) 濃度	$\left(=rac{U 重量}{金属デブリ重量} ight)$	d. 酸化物系デブリの酸化	度•Zr 相状態	e. 蒸発・揮発性 FP の分布、	Uに対する随伴性・偏在	杢		
小項目	課題・ニーズ	(着目する現象・	挙動)							▶ U・Pu・Am 及	び残留する蒸	発・揮発性 FP	(中揮発性も	含む)の燃料	デブリ中の化	字状態と分布									
	サンプル分析結	果とその評価に	対し工程設計や	作業スキーム整	備に向けたニー	ズを有する検討	項目			②燃料デブリの	切断時 α ダス	ト、Pu・Am・残	留印												

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (4/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、サンプル全体としての特性の分類

取得位置とサンプル数・サ	ンプル重量/寸法		
得される知見	サンプル構成相(金属、酸 化物、その他化合物)の情 報*2	SEM-EDX(点分析) SEM-WDX(点分析) TEM-EDX SR-XA	O ・高倍率の SEM/EDX、 SEM/WDX 面分析で、偏在 の有無を調べた上で、偏在 箇所の点分析を行う。
分析手法・取	サンプル平均としての情報 *1	断面金相 SEM-EDX(面分析)SEM- WDX(面分析) かさ密度 化学分析(ICP-MS 等) 放射能分析 蛍光分析(B)	▲
	分析対象項目 ※下線はオプション(技術開発 が必要)		f. 蒸発・揮発性 FD の局所 濃度(蒸発・揮発性 FP はおそらく局在) はおそらく局在)
小項目	課題・ニーズ (着日する現象・ 挙動)		A II・Fu- J ・ J ・ J ・ J ・ J ・ J ・ J ・ J の ひ と 強 題 か 絶 離 本 と む む む う む ぎ 子 ブ 小 子 好 寒 の 中 山 徳 続 (も 徳 系) (も 続) (も 都 然 つ つ ろ か か う て う か か う す か か う す か か う す か か う す す か か う す す か す す す す
	サンプル分析結果とその評価に対し工程設計や	弁業メネーム業 備に向けた−ム 茂を有すする検討 通田	 ◎ 熱地デブリの 切断時 a ダス ト、Pu・Am・凝 留 FP (続き)

表1 燃料デブリ取出した関する分析項目 (5/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密

サンプル全体としての特性の分類 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、

取得位置とサンプル教・サ	ンプル重量/寸法									異なる場所・深さから 2~3	サンプルが望ましい。	FP の化学形・化学状態。																
得される知見	サンプル構成相(金属、酸	化物、その他化合物)の情	報*2	SEM-EDX(点分析)	SEM-WDX(点分析)	TEM-EDX	SR-XA												C	・キポメジスケーシャ	のとうなななななない。	2.6 2.6 1.5 2.5 2.5 1.5 1.5 1.5 1.5 1.5 1.5 1.5 1.5 1.5 1	1月27日の20年代を1日・12月2日	えししいのいがをがめて				
分析手法・取	サンプル平均としての情報	*1		断面金相	SEM-EDX(面分析)SEM-	WDX (面分析)	かさ密度	化学分析(ICP-MS 等)	放射能分析 蛍光分析(B)										С)								
	分析対象項目	※下線はオプション(技術開発	が必要)							a. 燃料デブリの主成分相状	態と組成、メゾスケール	での偏析、及びその変位	b. 燃料デブリ中の析出物相	状態と組成、メゾスケー	ルでの偏析、及びその変	位	c. 金属系、酸化物系などの	メゾスケールでの混合	性、及びその変位	d. 酸化物系デブリの酸化度	(Zr・Fe の酸化度)、及び	その変位	 U 金属の形成有無 	f. ホウ化物の化学状態・分	布、メゾスケールでの偏	析、及びその変位	g. B4C 残留程度・分布	
小項目	課題・ニーズ	(着目する現象・	挙動)							▶ 燃料デブリ中	の主要成分	(U・Zr・Fe が	ど)の化学状	態と分布及び	B の化学状態	と分布												
	サンプル分析結	果とその評価に	対し工程設計や	作業スキーム整	備に向けたニー	ズを有する検討	項目			③燃料デブリの	取扱い安全性・	作業性・放射線	重															

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (6/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 サンプル全体としての特性の分類 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、

時温休暇とキンプで数・+	シンプル重量/十法									冷却水注入停止試験で局所	的な温度上昇が観測された	各領域のサンプルを採取。	各1サンプルが望ましい。	FP の化学形・化学状態。														
44 よわ. ろ知見.	サンプル構成相(金属、酸	化物、その他化合物) の情	報*2	SEM-EDX (点分析)	SEM-WDX(点分析)	TEM-EDX	SR-XA												0	三十二、三十二	・雰囲気変化の影響におい	て車要						
金・状世界や	サンプル平均としての情報	*1		断面金相	SEM-EDX(面分析)SEM-	WDX(面分析)	かさ密度	化学分析(ICP-MS 等)	放射能分析 蛍光分析(B)										0		・熱的特性において重要							
	分析対象項目	※下線はオプション(技術開発	が必要)							a. 燃料デブリ主成分のメゾ	スケールでの化学特性に	係る項目(上記「燃料デブ	リの取扱い安全性・作業	性」 (こ同じ)	b. FPの残留と分布、化学状	態 (水溶性・難溶性)	c. 密度,気孔率	d. U 同位体比(事故前炉心	での燃焼率の違いがどの	程度残留しているかの評	価)							
小項目	課題・ニーズ	(着目する現象・	挙動)							> 冷却水注入停	止試験で局所	的な温度上昇	が観測された	領域のサンプ	ルによる原因	究明	> 冷却水停止に	より雰囲気に	さらされる然	料デブリ表面	の変質	▶ 新表面が露出	した際の化学	活性程度の予	阆			
	サンプル分析結	果とその評価に	対し工程設計や	作業スキーム整	備に向けたニー	ズを有する検討	項目			④発熱・冷却対		₩																

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (7/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 サンプル全体としての特性の分類 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、

取得位置とサンプル数・サ	ンプル重量/寸法	
得される知見	サンプル構成相(金属、酸 化物、その他化合物)の情 報*2 SEM-EDX(点分析) SEM-WDX(点分析) TEM-EDX SR-XA	Ο
分析手法・取	サンプル平均としての情報 *1 断面金相 SEM-EDX(面分析) SEM-EDX(面分析) かさ密度 化学分析(ICP-MS 等) 放射能分析 蛍光分析(B)	Ο
	分析対象項目 ※下線はオプション(技術開発 が必要)	a. 活性金属量の評価 b. 放射性核種濃度
小項目	課題・ニーズ (着目する現象・ 挙動)	★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★ ★
	サイプンサ 東 女 大 子 本 本 大 子 子 本 本 か か 子 子 大 子 子 本 子 さ し 本 子 し 子 美 御 子 み て し 本 ま に む き か む ー た う か む ー た る か 雪 ー た 参 略 ー た 参 略 ー た 参 略 ー 計 都 っ う か 都 ー 計 都 ー れ か 都 ー 計 目	⑤水素発生対策

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (8/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 サンプル全体としての特性の分類 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、

	日格上			11./ 伯々とん 征 目	中、素いピントに開始を出
	小坝日		ガポナは・収	住される 功 足 し	収付仏国 C ツノノノ級・ツ
キンプや分析結 ヨー・・・言語に	課題・ニーズ(※ロナッカチ	分析対象項目 ※上絶はよし、、、、は後間は	サンプル平均としての情報	サンプル構成相(金属、酸	ンプル重量/寸法
来らその評価で対し工権設計や	(宿日する現象・ 挙動)	※「蕨はオンション(技術開発 が必要)		化物、たの他化合物)の情報*2	
作業メキーム整備で向けやに一			断面金相 serve ravy (五八年) serve	SEM-EDX(点分析) sem munv(古八44)	
<u> ごを有する検討</u>			SEWT-ELDA、国分明/ SEWT-WDX (国分析)	TEM-EDX	
項目			かさ密度	SR-XA	
			化学分析(ICP-MS 等)		
			放射能分析 蛍光分析(B)		
⑤ RPV の 状態評価	> 燃料デブリや 堆積物の主成	a. 燃料デブリ・堆積物の主成分(U・Zr・Fe)の相状			主要成分の相状態の測定点 数を、リーズナブルな工数
	分(N、Zr、 Eo) 色//琼楠	態 (組成、U:Zr 比、U+Zr:Fe			の範囲からゃるだけ増や 」 さく キンプじゃん*
	re) v)1L于行住	44、64曲冊/44 (同価//2024年)か46温形成相か)、分布、			し、ガーフ、リノノルをくるるだけ多様な炉内領域から
		結晶サイズ、析出状態) b. Zr と Fe の酸化度	0	0	取得することが望ましい。
		c. これらの変位、統計的な 整理			
		4			
団燃料デブリ分	マ 鉄焼率	a. 燃料デブリ中の ¹⁴⁸ Nd 質			
析の評価指標(衆産※)の考		量/U 質量 ト 検約アンコロの 3341 留	0	I	
、(mm/m 十) 。		b. ////////////////////////////////////			
⑧-1	> 燃料デブリ取	a. 残留塩素濃度			
残留海水成分	出しに与える				
	海水由来成分の高速を通		0	0	
	略評価				
*1: 主要構成相の同;	定、平均特性の評価(金	2属、酸化物、その他化合物の相ごと	このデータ(化学特性、機械特性	生、残留放射能など)を体積比ら	こ基づいて過重平均)、平均密

表1 燃料デブリ取出した関する分析項目 (9/11)

度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、サンプル全体としての特性の分類

取得位置とサンプル数・サ	ンプン画量/寸洗	PCV 内スミアサンプル。各サンプル重量は hg-a。できサンプル重量は hg-a。できるだけ多くの領域から探取することが望ましい。	
得される知見	サンプル構成相(金属、酸 化物、その他化合物)の情 報*2 SEM-EDX(点分析) SEM-WDX(点分析) TEM-EDX SR-XA SR-XA	0	1
分析手法・取	サンプル平均としての情報 *1 断面金相 SEM-EDX(面分析)SEM- WDX(面分析) かさ密度 化学分析(ICP-MS 等)	<u>蛍光分析 (B)</u> O	0
	分析対象項目 ※下線はオプション(技術開発 が必要)	 a. FP や Pu、マイナーアクチ ノイドの残留量 b. FP の化学状態 	 a. U・Pu・放射線放出核種濃度とその主要な化学形態 b. コンクリートの変質程度
小項目	課題・ 「 者 同 よ の 見 後 ・	▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲ ▲	 ★ ★ ※ % %
	サインシャ 東 対 学 来 対 本 か 本 本 本 本 本 本 本 本	⑧-2 メクセメ市、 ばへ伝覚・ 御存 御子に係の通目	 ⑧-3 ペデスタル 掘削時の核燃料 物質含有領域終 了の判断

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (10/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、サンプル全体としての特性の分類

取得位置とサンプル数・サ	ンプル重量/寸法	FP 性状(物理化学形態)の	FP 性状(物理化学形態)の 種屋内・容器内の空間変化 を考慮してサンプル取得。 第一段階としては、特徴的 な領域の代表サンプルの分 折をできるだけ優先し、種 屋内、PCV 内の汚染状態分 市の特徴(線壘、核確、化 学形など)を概略把握する。
得される知見	サンプル構成相(金属、酸 化物、その他化合物)の情 報*2 SEM-EDX(点分析) SEM-WDX(点分析) TEM-EDX	SR-XA	Ο
分析手法・取	サンプル平均としての情報 *1 断面金相 SEM-EDX(面分析)SEM- WDX(面分析)	かさ密度 化学分析(ICP-MS 等) 放射能分析 蛍光分析(B)	0
	分析対象項目 ※下線はオプション(技術開発 が必要)	a. Cs. Sr. Pu. Am 筆の放射	 a. Cs, Sr, Pu, Am 等の放射 能(重量) b. エアロゾルの形状・寸法 及び組成 c. 構造材表面の酸化状態や 相さ d. 炉外試験等による付着 FP の再放出特性
小項目	課題・ニーズ (着日する現象・ 挙動)	マ デブリ取出し	▲ ブ が時間をある。 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1
	サンプンサ まなシンプン まま がして を に を ま に し た で の た に し 来 に に の が が が が が が が が が が が が が が が が が	項目 ⑧-4	 8.4 後、離 御話・ 御話、 御子 御子

表1 燃料デブリ取出しに関する分析項目 (11/11)

*1:主要構成相の同定、平均特性の評価(金属、酸化物、その他化合物の相ごとのデータ(化学特性、機械特性、残留放射能など)を体積比に基づいて過重平均)、平均密 度・空隙率、サンプル全体としての元素分布、サンプル全体の平均値と偏差の評価、サンプル全体としての特性の分類

2.2 保障措置との関係

我が国における核燃料物質に係る全ての活動は、IAEA との保障措置協定のもと、核燃料物質が申告どおり平和目的だけに利用されていることを示すことが求められており、事故後の 1F での活動もその例外ではない。

通常、原子力発電所においては、核燃料物質の計量管理は「燃料体としてのアイテム管理」で 行われる。しかし、現在の1Fのように事故が発生した原子炉においては、燃料体が損壊、溶融、 混合し、燃料デブリとなって原形を留めていないものもあり、それらは、今後の取出しを想定し た際には、燃料体としてのアイテム管理は困難が予想される。1Fはこのように、通常の原子炉に おける計量管理手法の適用が困難な状況下にある。

燃料デブリは、様々な物理・化学形態の核燃料物質・核分裂生成物(FP)が非均質に混合して いることに加え、種々の構造材や制御材等と非均質な状態にあると想定される。このような非均 質物質中の核燃料物質の定量分析は極めて難易度が高い。

こうした状況を踏まえ、合理的な保障措置手段の採用が期待される。

2.3 保管管理

本節では、燃料デブリを取出した後、収納缶への収納前、収納時及び保管時における、保管管 理に係る分析として、臨界安全、核種・放射能、化学的安定性・経年変化及び保管施設の合理化 について記載する(表 2)。

2.3.1 臨界安全

(1) 目的

取出した燃料デブリを収納する収納缶の設計、許認可において、容器収納・保管時の臨界安全 を評価するための基礎データとして燃料デブリ中の核燃料物質の組成及び同位体比が必要である と考えられる。また、主な中性子吸収物質(可燃性毒物である Gd、FP として Gd 及び¹⁵⁵Eu、制 御材である B、炉内構造材料(Fe 等))の組成や同位体比、燃料デブリの密度、含水率等の基礎情 報も必要であると考えられる。さらに、燃料デブリ分析・評価の指標となり得る¹⁴⁸Nd 等の情報 も FP の寄与を評価する上で重要である。

また、これらの分析データは設計、許認可のみならず、燃料デブリの収納時において燃料デブ リが充填された収納缶の臨界安全を確認する上でも重要である。

他方、燃料デブリは多様な組成の核燃料物質が非均質に混合していることに加え、構造材や制 御材等も含んでおり、非均質な状態にあると想定されることから、臨界安全評価においてはその 非均質性についても評価する必要があると考えられる。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

① 収納缶の臨界安全設計に資する知見・情報

[分析項目]

- ICP-MS や a スペクトロメータによるアクチノイド元素組成、同位体比
- 非破壊法による U、Pu の定量(測定技術の開発が必要である。)
- SEM-EDX/WDX や ICP-MS 等による Nd、Gd、¹⁵⁵Eu、B、炉内構造材料(SUS 等)等の組成、 同位体比
- 密度測定装置による密度(真密度、かさ密度、気孔率等)
- 必須ではないが、微少サンプルを作製のもと SR-XA 等が行えればより高精度な分析データの 取得が望める。

(3) 特記事項

上記の測定においては、燃料デブリの均質性等の「燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつき」 に関する評価(2.1節)が重要である。

2.3.2 核種、放射能

- (1) 目的
- ① 水素発生量の評価

取出した燃料デブリを収納する収納缶の設計、許認可においては、水素爆発の可能性を評価す

る必要があると考えられる。これを踏まえ、水素発生に寄与しうる放射性核種の放射能/濃度、及 び収納容器内の水分量の分析を行う。

また、これらの分析は設計、許認可のみならず、燃料デブリの収納時において、収納缶に充填 された燃料デブリから発生する水素量が設計値を上回らないことを確認するうえでも有効である。

② 発熱量評価

取出した燃料デブリを収納する収納缶の設計においては、収納する燃料デブリからの崩壊熱を 考慮して、冷却設備の能力を検討する必要があると考えられる。これを踏まえ、収納容器内の放 射性核種の種類とその放射能強度を分析し、収納缶の発熱量を評価する。

また、これらの分析・評価は設計のみならず、燃料デブリの収納時において、収納缶に充填さ れた燃料デブリの発熱量が設計値を上回らないことを確認する上でも有効である。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

水素発生量の評価

収納物中に含まれる水素発生に寄与しうる核種(α線源、β線源、γ線源)とそれらの放射能 強度、及び放射線源の物理性状(粒径等)、収納物の含水率あるいは収納容器中の水分量を推定す る。含水率を直接測定することが困難な場合は、保守的に開気孔率から含水率を推定する。

なお、収納時に燃料デブリの乾燥処理を施す場合は、乾燥処理中の水分移行率を評価すること により、放射能強度や含水率等の測定に替えることができる。

[分析項目]

- α線、β線、γ線放射線計測装置を用いた放射性物質のインベントリ

- SEM 等による粒度分布

- ピクノメータ等による開気孔率

- 乾燥時のオフガスへの水分移行率(乾燥処理を行う場合)

② 発熱量評価

収納後数十年間の発熱は、主に¹³⁷Cs (¹³⁷mBa)、⁹⁰Sr (⁹⁰Y) で決まることから、これらの核種 の放射能測定を行う。また、構造材由来の⁶⁰Co の寄与分を評価することも、場合によっては必要 になる可能性がある。

¹³⁷Cs や ⁹⁰Sr の燃料デブリからの放出率や溶出率が大きい場合、あるいは処理処分を含む長期 的な発熱評価の観点からは、アクチノイド核種の寄与が大きくなることから、²³⁸Pu、²⁴⁴Cm、²⁴¹Am

(241Pu)の燃料デブリ中の濃度測定(対ウラン比)も重要である。これらの発熱寄与核種は、燃料デブリ中のウラン濃度や平均燃焼率と相関を持つ可能性もあることから、同じサンプルに対し、 ウラン濃度測定と燃焼率測定を併せて行うことにより、これらの分析結果からより精度の良い発 熱量評価に繋げることが期待される。

[分析項目]

- β線、γ線放射線計測装置を用いた¹³⁷Cs (¹³⁷mBa)、⁹⁰Sr (⁹⁰Y)、⁶⁰Co のインベントリ

- α線放射線計測装置を用いた²³⁸Pu、²⁴⁴Cm、²⁴¹Am(²⁴¹Pu)の濃度測定(対ウラン比)

2.3.3 化学的安定性、経年変化

(1) 目的

① 経年変化

燃料デブリの試験的取出し時期は、2021年以降と想定されており、燃料デブリ生成後10年経 過後となる。また、その後の燃料デブリ取出し作業はある程度の長期間を要すると予想され、燃 料デブリは炉内環境中で10年以上留まることとなる。さらに、取出した燃料デブリを安全に保管 しなければならない。燃料デブリ取出し方法の検討及び移送・保管方法を検討するうえでは、燃 料デブリの経年変化予測が必須である。

② 収納容器の腐食評価

収納容器の材質は SUS316 材を候補としているが、SUS316 材は Cl イオンによりすきま腐食 等が発生することが知られており、海水を冷却水として投入した 1F の燃料デブリを保管する場 合、燃料中の Cl イオン量を調べて腐食の評価を行う必要があると考えられる。また、水中の窒素 酸化物も収納容器の腐食に影響を与えることからこの分析を行う。

なお、FP等については腐食への影響があることを完全には否定できないが、極微量であること 等を考慮すると、腐食への影響をこの段階で論じることは困難であり、測定対象に含めない。

また、本評価は、採取・分析する水の場所を変えることで、炉内構造物の腐食評価にも応用で きる。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

① 経年変化

燃料デブリの経年変化挙動の評価は基本的に模擬燃料デブリによって進められるが、経年変化 のメカニズムがある程度推測され、経年変化予測が可能になってきた段階において、その予測を 実際の燃料デブリを用いて実証することが重要であると考えられる。

具体的には、経年変化検討のベースとなる燃料デブリの特性の確認(特にアクチノイド元素等のキーとなる元素の存在状態、化学状態)、物理的・化学的・生物学的メカニズムの検証(温度変動による風化、水との接触による溶出、微生物による分解作用等)等、実際の燃料デブリサンプルを利用して模擬燃料デブリを用いて得られた知見を確認・検証してくことが重要と考えられる。 [分析項目]

- SEM-EDX/WDX やαスペクトロメータ、あるいは ICP-AES/MS 等の破壊分析による、主要マ トリックスの同定、アクチノイド元素組成、同位体組成
- 必須ではないが、SR-XAによるアクチノイド元素等の化学状態等分析
- 密度測定装置による密度(真密度、かさ密度、気孔率等)
- ビッカース硬さ計等による機械的特性測定
- 模擬燃料デブリを用いた経年変化メカニズムの推測。その後、必要に応じて、メカニズム検証 のための燃料デブリサンプルを用いた各種試験

② 収納容器の腐食評価に資する知見、情報

燃料デブリ中、及びその周辺の液相中の pH、塩素イオン濃度、窒素酸化物濃度に関する分析 [分析項目]

- pH 電極による液相中の pH 分析
- イオンクロマトグラフ、イオン電極による液相中の塩素イオン濃度分析
- イオンクロマトグラフによる液相中の窒素酸化物濃度分析
- 溶解度測定による材料表面分析
- SEM、TEM-EDX 等を用いた燃料デブリ収納条件・環境下における容器材料の物理・化学変性 分析

(3) 特記事項

- ・経年変化については経年変化のメカニズムが推測できた段階で、燃料デブリを用いた溶出量測 定等の経年変化試験を行うことが重要である。
- **2.3.4** 保管施設の合理化
- (1) 目的
- ① 発熱量評価

取出した燃料デブリを収納する収納缶の設計において、収納する燃料デブリの核種とその放射 能強度を分析し、収納缶の発熱量を評価し、冷却能力の確認を行う。

- (2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報
- ① 発熱量評価

収納後数十年間の発熱は、主に¹³⁷Cs (¹³⁷mBa)、⁹⁰Sr (⁹⁰Y) で決まることから、これらの核種 の放射能強度測定を行う。また、構造材由来の⁶⁰Co の寄与分を評価することも、場合によっては 必要になる可能性がある。

¹³⁷Cs や ⁹⁰Sr の燃料デブリからの放出率や溶出率が大きい場合、アクチノイド核種の寄与が大 きくなることから、²³⁸Pu、²⁴⁴Cm、²⁴¹Am(²⁴¹Pu)の燃料デブリ中の濃度測定(対ウラン比)も 重要である。これらの発熱寄与核種は、燃料デブリ中のウラン濃度や平均燃焼率と相関を持つ可 能性があることから、同じサンプルに対し、ウラン濃度測定と燃焼率測定を併せて行うことによ り、これらの分析結果からより精度の良い発熱量評価に繋げることができると考えられる。 [分析項目]

- β線、γ線放射線計測装置を用いた¹³⁷Cs(¹³⁷mBa)、⁹⁰Sr(⁹⁰Y)、⁶⁰Coのインベントリ
- α線放射線計測装置を用いた²³⁸Pu、²⁴⁴Cm、²⁴¹Am(²⁴¹Pu)の濃度測定(対ウラン比)

1 -		小項目		分析項目		取得位置と試料数・試料重量/寸法
課題	- - ー バ - ー バ - ー バ	分析对象項目	機器分析	機器分析	放射能分析	
洲	盲目する現象・挙		(元素組	(同位体		
動)			成)	EC)		
			SEM/EDX/	化学分析	α , β , γ	
			WDX, μ ⁻	(ICP-	スペクトロ	
			HAXPES、	MS) 等	メータ等	
			XRF,			
			MXTS			
Σh(I)	納缶の臨界安全	●燃料デブリ中に存在するアクチノイ				
戅	計に資する知	ド元素の組成、同位体比	0	0	0	
民	• 情報					言名方と言名子と奪う[][丿] []
		●燃料デブリ中に存在する Nd 等の組				北村日に北村)の淡谷ノノリにとし、緑澤梨地中の市東のたう(まや開催なり)
		成、同位体比、(N、Bn)への随伴性	0	0	0	井政学士の元米のほのこの名字画への「五武子」、4000年11、4000~1400~1400~1400~1400~1400~1400~14
		評価				②性後──W山し・刀削を打し。I クノノ …たたりぐ手車は EV I ~臼甲
		●燃料デブリ中の炉内構造材料(SUS				ノトめにりい里里は 30 kg~1 g 住反。
		等)、中性子吸収元素(Gd、155Eu、B)	0	0		
		の組成				
		●燃料デブリの密度、気孔率				<u> 漆 </u>
Щ Д	素発生量評価	●収納物中に含まれる水素発生に寄与				収納缶に収納する燃料デブリに対し、標
		し得る核種 (α線源、β線源、γ線源)			C	準試料中の元素のばらつきを評価でき
		のインベントリ)	る程度の取出し・分析を行う。1 サンプ
						ルあたりの重量は 50 µg~1g程度。
		●粒度分布測定、開気孔率				粒度測定装置、SEM、ピクノメータ

表2 保管管理に関する分析項目 (1/3)

_	_																_			_	_			
	取得位置と試料数・試料重量/寸法									収納缶に収納する燃料デブリに対し、標	準試料中の元素のばらつきを評価でき	る程度の取出し・分析を行う。1 サンプ	ルあたりの重量は 50	なたまに、しょなたまにのこと		スムが推測できた段階で、燃料テプリ	を用いた溶出量測定等の経年変化試験	を行う。	11. 北方 パー・エリー アリー	bri 毛極、イタ ノショントッフノ、イタ	ソ電極	イオンクロマトグラフ、赤外/ラマン分	光	SEM、TEM-EDX 等
		放射能分析			α , β , γ	スペクトロ	メータ等				(C												
	分析項目	機器分析	(同位体	片()	化学分析	(ICP-	MS) 等				()												
		機器分析	(元素組	成)	SEM/EDX/	WDX, μ^{-}	HAXPES、	XRF,	STXM		()												
I F	小項目	分析対象項目								• 137 Cs (137 mBa), 90 Sr (90 Y), 60 Co	のインベントリ	● ²³⁸ Pu、 ²⁴⁴ Cm、 ²⁴¹ Am(²⁴¹ Pu)の濃	度測定 (対ウラン比)	●主要マトリックスの同定、アクチノ	イド元素組成、同位体組成	●密度(真密度、かさ密度、気孔率	⊈)	→/ ●機械的特性測定	●液相中の bH 分析、塩素イオン濃度	分析、窒素酸化物濃度分析	●材料表面分析		● 姚約デブリ収納条件・環境下におけ	る容器材料の物理・化学変性分析
		課題・ニーズ	(着目する現象・挙	動)						②発熱量評価				①経年変化					②収納容器の腐食評	田				
		事象								-				2.3.3	化学的安	定性、経	年亦小	⊑ ∦						

表2 保管管理に関する分析項目 (2/3)

取得位置と試料数・試料重量/寸法											収納缶に収納する飲料デブリに対し、種	が明白にたまし、のがとし、こことで、 準試料中の元素のばらつきを評価でき る程度の取出し・分析を行う。1 サンプ ルあたりの重量は 20 ょとく1 g 程度。	
	放射能分析			α , β , γ	スペクトロ	メータ等						0	
分析項目	機器分析	(同位体	HC)	化学分析	(ICP-	MS) 等						0	
	機器分析	(元素組	成)	SEM/EDX/	WDX, μ ⁻	HAXPES、	XRF,	MXTS				0	
小項目	分析対象項目								• ^{137}Cs (^{137m}Ba), ^{90}Sr (^{90}Y), ^{60}Co	のインベントリ	● ²³⁸ Pu、 ²⁴⁴ Cm、 ²⁴¹ Am(²⁴¹ Pu)の濃	度測定(対ウラン比)	
	課題・ニーズ	(着目する現象・挙	動)						①発熱量評価	2 ¹	~1		
	事象								2.3.4	保管施彭	の合理化		

表2 保管管理に関する分析項目 (3/3)

ſ

2.4 処理処分

1F 廃炉に伴い発生する燃料デブリの処理処分については、中長期ロードマップ [22] において 以下のように記述されている。

"取り出した燃料デブリの処理・処分方法については、現在設計を行っている放射性物質分析・ 研究施設の活用を視野に入れながら必要な技術の検討を進め、燃料デブリ取出し開始後の第3期 に決定する。"

このことは、取出した燃料デブリの処理処分方法の決定は、燃料デブリ取出し開始後になされ ることを意味するものではあるが、それまでの間の、処理処分の観点での燃料デブリに係る検討 の重要性を否定するものではない。むしろ、原子力規制庁委託事業における JAEA の「燃料デブ リの処理・処分に関する予察的調査」[23] において燃料デブリの処分の検討がなされていること や 2019 年に JAEA が公表した「基礎・基盤研究の全体マップ(2019 年度版)詳細版」[24]にお いて燃料デブリの性状把握と廃棄物の処理処分とのリンクの重要性が示されていること等、1F 廃 炉を安全に実現可能な方法で遂行するために、処理処分の観点での燃料デブリに係る検討の重要 性が認識されていると考えられる。

ここでは以下、「処理処分の観点からの燃料デブリの分析項目とその重要性」、「分析項目の詳細 とその取得方法、時期」について記述する(表 3)。なお、実際の分析項目及び内容については、 関係者間との協議に基づき、技術開発のためのニーズを踏まえて決定されていくものと認識して いる。

2.4.1 処理処分の観点からの燃料デブリの分析項目とその重要性

燃料デブリ取出しから廃棄物の処理処分等までの一連の 1F 廃炉を遂行するためには、安全性 と実現可能性の観点を踏まえた検討が必要になると考える。燃料デブリ等に含まれる放射性核種 のインベントリ、燃料デブリの臨界安全評価、燃料デブリ等からの核種の溶出特性、処分の安全 性に影響を与える燃料デブリ中の影響物質の化学組成・量、有害物質の種類・量、燃料デブリの 熱的・力学的特性、放射線影響による水素発生特性、及び放射線影響による腐食への影響は、こ れらの観点から、処理処分方法の検討に影響を与える因子である。以下、これらの因子を抽出し た理由等を示す。

現状、燃料デブリは廃棄物としては扱われていないため、その処分方法は決まっていない。しかし、燃料デブリには、Pu、U等の長半減期核種が相当量含まれることから燃料デブリ等は地層 処分対象の廃棄物であることが想定されている[23]。

燃料デブリ等を地層処分する場合、長期間にわたって安定な廃棄体に処理し、適切な人工バリ アを設置することで、その安全性を確保する必要がある。このような燃料デブリ等を地層処分す る場合の安全性は、安定な廃棄体(臨界安全の観点から安定等)であることを前提に、既存の地 層処分の安全評価の結果[22]との比較や地層処分の評価パラメータの影響特性からおおよそ推定 できる。具体的には、このような既存の評価事例等の知見から、評価条件としてインベントリを 保守的に3 炉心分の燃料とし、廃棄体からの核種溶出を瞬時全量溶解とした場合においても、代 表的な処分環境条件下では十分な安全裕度のもと安全性が確保される見通しがあることが推定さ れる。しかし、安全性に影響を及ぼす主たる要因が廃棄物中の核種濃度である別のシナリオ(人 間侵入シナリオ)の場合や処分環境条件等が変動する場合は、廃棄物が均質でないことによる不 確実性の取り扱いや核種の移行抑制機能の低減に起因した安全裕度の低下が予想される。

このような処分環境条件下においても処分の安全性が確保されることを提示するためには、非 均質な廃棄物に対しても、不確実性の低い、精度の高いインベントリ等の情報が必要となる。こ のようなインベントリ情報は、以下の観点からも精度良く把握する必要がある。

- ・通常の原子力発電所とは異なるプロセスで発生する多種多量の放射性廃棄物の量を最小限に する(放射性廃棄物として扱う必要のない廃棄物を区分する)ため
- ・放射性廃棄物の処分方法を放射能濃度等に応じて適切に選定するため
- ・現行規制において必須の要件となっている廃棄物の輸送、処理処分の実施における廃棄体中 の放射性核種のインベントリの提示(検認)のため

さらに、燃料デブリ等を地層処分する場合の前提となる廃棄体の安定性(臨界安全の観点から 安定等)を確認するため、インベントリに加えて、燃料デブリの臨界安全評価(化学特性、幾何 形状等の把握を含む)を行う必要がある。

また、処分の安全性はインベントリ以外に、廃棄体及び人工バリア、天然バリア中を移行する 核種の移行特性に依存する。この移行特性は核種移行パラメータ(燃料デブリからの核種の溶出 率、元素の溶解度、バリアの収着分配係数、拡散係数等)によって表される。そのため、燃料デブ リの分析においては、それらに関連する燃料デブリの溶出特性と核種移行パラメータの値を変化 させ、結果として安全性に影響を与える可能性のある燃料デブリに含有されている物質(影響物 質)の化学組成・量の把握が重要となる。さらに、処分の安全性の観点からは、廃棄物に含まれ る環境に影響を与える物質(有害物質)の移行を評価する必要がある。そのため、有害物質の種 類、量の把握が重要となる。

また、処分の実施においては、処分方法ごとに分類された廃棄物の処分施設を適切に合理的に 設計する必要がある。そのためには、オーバーパックによる一定期間の核種の完全閉じ込め機能 の有無の検討を含め、燃料デブリの処分施設の設計に大きな影響を与える可能性のある燃料デブ リの熱的・力学的特性、放射線分解や腐食に伴う水素発生特性、放射線影響による腐食への影響 を適切に把握することが重要となる。

燃料デブリの分析においては、これらの必要性を認識した上で分析を行うことが重要である。

2.4.2 分析項目の詳細とその取得方法、時期

(1) 燃料デブリのインベントリ

処理処分の安全性の評価においては、重要と考えられる放射性核種を抽出し、それらを対象と してインベントリや核種の安全評価に影響を及ぼす核種移行パラメータ値を取得する必要がある。 大熊の分析研究施設においては、処分において重要と考えられる 38 核種(既存の高レベル放射性 廃棄物[25]や低レベル放射性廃棄物[26-29]の処分の安全評価結果等を参照して選定)を暫定的に 分析対象核種として選定し、それらを対象とした分析計画が立てられている[30]。38 核種を以下 に示す。 ³H, ¹⁴C, ³⁶Cl, ⁴¹Ca, ⁶⁰Co, ⁵⁹Ni, ⁶³Ni, ⁷⁹Se, ⁹⁰Sr, ⁹³Zr, ⁹⁴Nb, ⁹³Mo, ⁹⁹Tc, ¹⁰⁷Pd, ¹²⁶Sn, ¹²⁹I, ¹³⁵Cs, ¹³⁷Cs, ¹⁵¹Sm, ¹⁵²Eu, ¹⁵⁴Eu, ²³³U, ²³⁴U, ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁸U, ²³⁷Np, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Am, ^{242m}Am, ²⁴³Am, ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cm, ²⁴⁶Cm

ここで、これらの 38 核種は、インベントリ(組成)が既知である既存の廃棄物と既存の処分 概念を対象に選定された核種であることに注意が必要である。インベントリが十分に把握されて いない事故廃棄物の場合、これらが変わることも想定される。そのためこの分析計画においては、 これらの 38 核種が暫定的なもので、原子力事故廃棄物の処理・処分に向けた研究開発の進展に 伴い見直しを進めることが明記されている。

一方、IRID の研究では現在、処理処分の安全評価に必要となる廃棄物ごとの核種インベントリ を解析的に設定するための検討が行われている。この検討では、瓦礫、水処理系廃棄物、一部の 建屋内で取得されたサンプルを対象として、上述の 38 核種の中の分析可能な核種の濃度が測定 され、全体で 3 炉心分となる全インベントリが水処理廃棄物、瓦礫、解体廃棄物等の個々の廃棄 物に分配される場合の分配割合(移行率)の設定に用いられている。

このような個々の廃棄物のインベントリの設定において、燃料デブリ及び RPV、PCV、R/B内の具体的な放射性核種量に関する情報は、3 炉心分となる全インベントリが水処理廃棄物、瓦礫、 解体廃棄物等に分配される場合の中間の情報となるものである。これまでの検討では、これら分 析データが得られていないことから、これらの領域に残留している放射性核種の量は文献値等を 用いて暫定的に設定されていた。そのため、分析によりこれらの情報が得られることは、燃料デ ブリを含む個々の廃棄物のインベントリをより小さな不確実性の下で設定し、個々の廃棄物の分 類の精度を高めるために極めて重要である。

ここで、燃料デブリ取出し時に、上述の 38 核種の分析を行うことは、廃炉作業を安全かつ効率 的に行う観点において、有意な影響を与える可能性がある。そのため、この分析の負担を軽減す る方策の検討が必要と考える。そのための方法の一つとして、スケーリングファクター等を利用 して当該核種以外の核種のインベントリを推定できるような代表核種を選定する方法が考えられ る。この方法を用いて他の核種のインベントリを推定するためには、発生場所に依存して異なる ことが想定される廃棄物中の代表核種とその他の核種の組成の関係の把握が必要となる。そのた めには、事故によって飛散/分散している放射性物質の分布(2.5.2 項)評価結果を反映させること により代表核種の選定を行うことが望ましい。ソースタームの評価結果の反映による燃料デブリ 及び RPV、PCV、R/B 内での核種のインベントリ分布の精度向上が可能となれば、代表核種の選 定に資する情報が整備されると共に、精度の高い移行率の設定が可能となり、燃料デブリに限ら ず、事故で発生する全ての廃棄物のインベントリの評価精度が向上する可能性がある。このよう なソースターム評価のインベントリ評価への適用については、今後研究課題として重要となると 考えられる。

(2) 燃料デブリの臨界安全評価、溶出特性、燃料デブリに含まれる影響物質、環境影響物質

1F 廃炉に伴い発生する燃料デブリを安全かつ実現可能な方法で処理処分するためには、廃棄体 が長期的に安定であること(臨界安全の観点から安定等)を前提として、処分の安全評価におい て必要となるであろう処分環境条件の変動を把握し、信頼性の高い安全性を示すことが必要とな ると考えられる。そのためには、燃料デブリの臨界安全評価、燃料デブリからの核種の溶出特性

(処理後の廃棄体を含む)、処分環境条件(核種移行パラメータ(溶解度、バリアの収着分配係数、 拡散係数等)に影響を及ぼす液性)や人工バリアの諸特性に影響を及ぼす含有物質(影響物質) の化学組成、量の把握が重要となる。さらに、これらの影響物質の把握と併せて、環境に影響を 与える有害物質の組成、量の把握も重要となる。

このような物質としては、燃料デブリに含まれる物質だけでなく、取出しに伴い添加される物 質も対象となる。

[分析項目]

- 燃料デブリの臨界安全評価(化学的、幾何学的特性を含む)、燃料デブリからの核種の溶出特性

- 燃料デブリ中の影響物質(例えば、有機物、ホウ素、酸化性物質等)の化学組成、量

- 燃料デブリ中の有害物質(環境基準が定められている物質)の種類、量

上記の物質は、これまでの検討を通じて処分に影響を及ぼす可能性のある物質として抽出され たものである。これらの物質の具体化については、今後、実際に燃料デブリに含有されている、 または、燃料デブリ取出しに伴い含有される可能性のある物質として、含有の可能性を含め関係 者と議論して検討する必要がある。また、その取得の方法や時期については、妥当性や合理性の 検討が必要であり、必要に応じて、燃料デブリ取出し時において取得する等の対応を検討する必 要がある。

(3) 燃料デブリの熱的・力学的特性、水素発生特性や腐食等への影響

適切な廃棄体や処分施設の設計を行うためには、廃棄物の特性を把握することが重要となる。 特に、燃料デブリの場合、周囲の処分環境条件に熱影響を与える可能性があることから、その影 響を評価することが重要となる。

燃料デブリがこのような影響を与える場合は、人工バリアの性能に有意な影響を与えないよう に埋設距離を確保するとともに、その有意な発熱が収束するまでの期間、核種を完全に閉じ込め るための処置(オーバーパックによる封入)が必要となる可能性が考えられる。このような処分 施設の設計を行う場合は、処分施設内の温度の時間変化の解析や施設の力学的安定性に関する解 析が必要となり、廃棄物中の核種のインベントリと合わせて、廃棄物の熱的・力学的性等も評価 していくことが重要である。

また、上記のようなオーバーパックによる閉じ込めの実現可能性を検討する際には、放射線分 解による水素発生に係わる廃棄体中の水分含有率に関する情報(含水率の算出に用いる空隙率、 放射線分解による水素発生にかかわるG値等)が必要となる。この水素発生に関する懸念は、固 化の過程で廃棄物中の水分が消失し、容器内部における腐食と水素の発生の懸念が小さいガラス 固化体とは異なる燃料デブリの特徴であり、処理処分の検討においてこれを考慮することは重要 である。また、熱解析の結果、オーバーパックによる閉じ込めが必要ない場合、燃料デブリから の放射線による廃棄体自身、またはバリア材料への腐食、変質等に関する影響把握が必要となる と考えられる。

[分析項目]

- 熱的特性: 熱伝導率
- 力学的特性: 圧縮強度等
- 水素発生特性:空隙率等
- その他、比熱や放射線分解による水素発生にかかわる G 値、放射線(α、β、γ)による腐食 等の影響についても適切な方法で取得することが重要

これらの特性の取得においては、その取得の方法や時期の妥当性や合理性の考慮が必要であり、 必要に応じて、燃料デブリ取出し時において取得する等の対応を検討する必要がある。

		小項目		分析項目		取得位置と試料数・試料重量/寸法
事象	課題・ニーズ	分析対象項目	機器分析	機器分析	放射能分析	
	(着目する現象・挙		(元素組	(同位体		
	動)		成)	EC)		
			SEM/EDX/	化学分析	α , β , γ	
			WDX, μ ⁻	(ICP-	スペクトロ	
			HAXPES,	MS) 等	メータ等	
			XRF,			
			STXM			
2.4	①燃料デブリのイン	対象核種として 38 核種が暫定的に				
処理処分	バイトリ	示されているが、原子力事故廃棄物				
		の処理・処分に向けた研究開発の進				
		展に伴い見直しを進めることになっ				
		ている。				
	②臨界安全評価、溶出	●臨界安全評価:化学的、幾何学的特				これらの物質の分析については、今後、
	特性、影響物質、環	性				含有の可能性を含め関係者と議論して
	境影響物質	●溶出特性:燃料ブリの溶出率				検討する必要がある。また、その取得の
		●影響物質:有機物、ホウ素、酸化性				方法や時期については、妥当性や合理
		物質等の化学組成、量				性の検討が必要であり、必要に応じて、
		●環境影響物質:種類、量				燃料デブリ取出し時において取得する
						等の対応を検討する必要がある。
	③熱的特性、力学的特	●熱的特性:熱伝導率等				これらの特性の取得においては、その
	性、水素発生特性、	●力学的特性:圧縮強度等				取得の方法や時期の妥当性や合理性の
	腐食等への影響	●水素発生特性:空隙率等				考慮が必要であり、必要に応じて、燃料
		●G 値、放射線(α、 β、 γ)による				デブリ取出し時において取得する等の
		腐食等の影響				対応を検討する必要がある。

表3 処理処分に関する分析項目

2.5 事故原因の究明

本節では、廃炉の完遂に向けた事故原因の究明に係わる分析について記載する。事故原因の 究明においては、炉心溶融進展及びソースタームに係わる事象全般について、現状の知見や情 報を把握し、これらを踏まえ、燃料デブリ分析により把握・評価されていく炉内状況の結果を 適宜適切に次の分析に反映するとともに、現状の知見や情報をアップデートしていくことが肝 要である。

2.5.1 RPV 内外の炉心溶融進展

(1) 目的

1Fの各号機においては、RPVの減圧や代替注水等に係わる条件に差異が生じたため、炉心溶融進展挙動が号機により異なることが予想される。事故原因の究明に向けて、各号機の炉心溶融進展挙動を合理的な根拠に基づいて評価するためには、それぞれについて、RPV内及びRPV外(PCV内)から採取される燃料デブリ等の分析及びその結果の解釈を進めることが不可欠である。

大雑把に言うと、炉心露出による炉心の過熱、炉心の溶融、下部プレナムへの溶融炉心の移 行、下部ヘッドの破損を経て、溶融炉心が PCV 内に移行する。その過程において種々の複雑 な現象が生じ、それに伴って溶融炉心の性状が変化する。そのため、各過程で生じたであろう 現象の理解を深めるためには、その現象に係わる情報を保持している可能性が高い領域からサ ンプルを採取して分析に供することが重要である。分析結果のみでは十分な解釈ができない場 合には、解析コードの併用を視野に入れる必要がある。また、場合によっては、各号機の分析 結果に基づいて模擬燃料デブリを調製して分析や試験を行い、データの補完や不確かさの低減 に取組むことも考慮する必要があると考えられる。

1Fにおける炉心溶融進展挙動を完全に解明することは極めて困難であるものの、2019年度 末より採取される予定の少量燃料デブリ等や廃炉作業の進展に伴って RPV 内外の様々な領域 から取出される多様なサンプルを用いて、必要なアウトプットを明確にした分析を進めること により、炉心溶融進展挙動の理解につながる科学的・技術的知見を取得する。これらの知見は、 長期にわたる燃料デブリ等の取出しに必要な炉内状況の把握に役立つ情報を含むと同時に、副 次的には、シビアアクシデント解析コードに反映することにより、原子炉の継続的な安全性向 上に寄与するものである。

(2) 炉心溶融進展挙動の特徴

RPV 内外における炉心溶融進展挙動の特徴について、RPV 内の早期炉心溶融進展、RPV 内の後期炉心溶融進展、RPV 外の炉心溶融進展及び RPV 内や PCV 内構造物への熱負荷に区分してそれぞれ整理するとともに、それらの理解を向上するために役立つ知見や情報を以下に示す。

① RPV 内における早期炉心溶融進展

ここでは、炉心露出の開始から下部プレナムへの溶融炉心の移行が生じるまでの挙動を早期

炉心溶融進展とする。この期間においては、崩壊熱により炉心が過熱するとともに、被覆管中の Zr を中心とした炉心構成材料の酸化に伴って水素が発生する。その際に生じる酸化熱と崩壊熱の効果により炉心が溶融し、溶融炉心が炉心の下方に移行する。

炉心構成材料の酸化は、炉心水位がどのように減少するかに影響される。意図的、偶発的に 拘わらず、RPVの減圧に伴って炉心水位が炉心下端近傍あるいはそれ以下まで急激に低下する 場合には、炉心への水蒸気流入が不十分になるため、一般的には酸化が抑制される。一方、炉 心水位が徐々に低下する場合には、十分な水蒸気が炉心に供給されるため、炉心構成材料の酸 化が顕著になる傾向を示す。また、炉心構成材料の表面における酸化物層の成長によりその機 械的強度が劣化する可能性がある。これは、燃料棒や制御板の破損・崩壊に影響を及ぼし得る。

炉心は多数の材料で構成されており、それらが接触した場合に、それぞれの成分の融点より も低い温度で溶融を開始する(この現象は、一般的には共晶反応として理解されている⁵)。溶 融炉心は下方に移行しつつ、その経路の熱的な状態や炉心構成材料との相互作用により温度や 組成に変化が生じると考えられる。先行して移行した溶融炉心に引き続いて、それとは異なる 性状の溶融炉心が生成・移行するため、炉心下部や炉心支持板上には、極めて複雑な様相を呈 する燃料デブリが堆積すると考えられる(一般的には、制御棒や未酸化被覆管等の金属系成分 が先行的に移行し、次に、燃料ペレットと被覆管の界面で形成される U/Zr/O 等の酸化物系溶 融炉心が移行すると考えられている)。また、被覆管の表面酸化膜が厚く形成されるケースでは、 溶融炉心の移行ではなく、機械的な破損による崩落が支配的になり得る。これらの移行・崩落 過程において、移行・崩落物が炉心下部をどの程度閉塞し、炉心への水蒸気流入を妨害するか が以降の事故進展に大きく影響すると考えられている。

② RPV 内における後期炉心溶融進展

炉心支持板等が破損して溶融炉心が下部プレナムに移行してから下部ヘッドが破損するまで を後期炉心溶融進展とする。下部プレナム内に制御棒案内管が多数存在する BWR の後期炉心 溶融進展挙動は、早期炉心溶融進展に比較して、未だ大きな不確かさがあると考えられている。

後期炉心溶融進展の初期においては、下部プレナム内に相当量の水が残存している可能性が 高い。このような場合、水中に落下する際に溶融炉心の粒子化が生じ、溶融炉心の移行経路や 組成、粒子化の割合や粒子の固化割合に応じて、下部ヘッド上に堆積する燃料デブリの状態に 差異が生じると考えられる。溶融炉心の全量が粒子化し、全粒子の表面が十分な厚さの固化層 に覆われて下部ヘッドに到達する場合には、いわゆる粒子状の燃料デブリベッドが形成される。 一方、粒子化が不十分な場合や表面の固化が生じない粒子が存在する場合には、塊状(連続層) や固液が凝集した状態を含む多様な形態の燃料デブリが下部ヘッド上に堆積することが想定さ れる。また、溶融炉心の下部プレナム内への移行は、段階的に生じると考えられるため、移行 経路が同じであれば、先行して形成された燃料デブリの上に、おそらく性状の異なる溶融炉心 が積み重なると推定される。また、上述したような炉心水位が急激に低下する場合においては、

⁵ UO₂ 燃料等の酸化物と Zr 被覆管等の金属との反応は、厳密には共晶ではないが、現状では 近似的に共晶とみなした液相化モデルが整備され、シビアアクシデント解析コードに組み込ま れている [31]。

溶融炉心の移行・固化による炉心下部の閉塞が起こりにくい可能性が指摘されており、この現 象も下部プレナムでの燃料デブリ堆積状態に大きく影響する可能性がある⁶。

下部プレナム内において、水の枯渇等により十分な燃料デブリの冷却が維持できない場合、 燃料デブリの再過熱及び再溶融が生じる。その際、溶融温度が低い燃料デブリ(一般的には金 属質燃料デブリ)から溶融し始め、溶融領域が徐々に拡張する。このような過程を通じて下部 ヘッドや制御棒案内管に対する熱負荷が増大し、冷却が回復しなければそれらが破損する。制 御棒案内管及び下部ヘッドのどの領域にどの程度の熱負荷が与えられるかは、下部プレナム内 における燃料デブリの堆積状態や燃料デブリの性状に強く依存すると考えられる。

溶融炉心の主要な移行経路として、炉心支持板、燃料支持金具等の破損部位や燃料支持金具 の入りロオリフィスを通じて下部プレナムに直接移行する経路(制御棒案内管外の領域に移行 する経路)がある。これに加えて、制御棒案内管内に浸入する経路も想定されるが、制御棒が 炉心に挿入されている状況下においては、制御棒案内管の上部に位置する制御棒速度リミッタ により溶融炉心の移行が制限される可能性が高いと考えられる。後者の経路を辿る場合も、初 期に水があることは前者と変わりはない。制御棒案内管や下部ヘッドに加わる熱負荷は、制御 棒案内管に浸入する溶融炉心の量や性状に影響され得る。いずれの移行経路であっても、下部 ヘッド等の破損形態や破損時期、破損面積を予測することは、現時点では極めて困難である。

さらに、BWR では、PWR に比べて、下部プレナムに CRD 等の貫通部や溶接部が多く、下 部プレナムの破損モードもより複雑になると考えられている。

③ RPV 外における炉心溶融進展

制御棒案内管の下端領域が破損する場合及び制御棒案内管が存在しない下部ヘッドの外周領 域が破損する場合を除いて、下部ヘッド等の破損口から流出した溶融炉心は、制御棒案内管の 外壁と接触しながら PCV のペデスタル領域に移行すると推定される。その際、一部の溶融炉 心は、制御棒案内管の外壁面に固着すると考えられる。

ペデスタル領域の床面に流下した溶融炉心は、その量や流下場所に応じて、ペデスタル壁の 開口部からペデスタルの外部に拡がる。溶融炉心の拡がり面積が大きければ(堆積深さが浅け れば)、代替注水による溶融炉心の冷却に有利となる一方で、PCVの壁面に接触するまで拡が ると、PCVの熱的な破損を引き起こす恐れがある。

ペデスタルの内外において MCCI が生じる場合、コンクリートの分解で発生する水蒸気や二酸化炭素による炉心構成材料(主に金属成分)の酸化や溶融炉心とコンクリート成分との混合・化学反応が生じ、時々刻々と溶融炉心の性状が変化する。未酸化の Zr が最も酸化されやすいものの、BWR の場合、溶融炉心内に大量の SUS が存在している可能性が高く、その成分の酸化は無視できないと考えられる。溶融炉心の金属成分と酸化物成分は、コンクリート分解気体による攪拌効果や両成分の密度差に依存して、混合あるいは成層化され、MCCI の進展に影響を及ぼす。このような MCCI において生じる諸々の現象は、RPV から PCV 内に移行する溶融

⁶ 炉心下部での閉塞が不十分な場合、TMI-2 事故で形成されたような溶融燃料プール(コリウムプール)が形成されにくく、下部プレナムでの燃料デブリ堆積状態が大きく異なる可能性が 指摘されている [32]。

炉心の性状に依存する。

溶融浸食に至らない領域においても、溶融炉心からの熱伝達により、コンクリートに大きな 熱負荷が与えられる可能性がある。このような熱負荷による、PCV 床面やペデスタル壁面コン クリートの性状変化は調べる価値があると考えられる。特に、RPV の支持機能を有するペデス タル壁に関して、熱負荷が与えられていない場合と比べつつ、コンクリートの性質(強度等) 変化に係わる情報を得ることが重要であると思われる。1 号機では、ペデスタルに堆積してい ると予想される燃料デブリの上に、数十 cm の厚さで砂状の堆積物が存在しており、重要な未 解明問題の一つとなっている。この形成メカニズムを解明することも重要な課題と考えられる。

MCCIの抑制という観点からは、代替注水による溶融炉心の冷却効果が重要になる。溶融炉 心の冷却を促進する現象として、溶融炉心の上面に形成されるクラスト(固化層)への浸水や コンクリート分解気体によるクラスト上への溶融炉心の噴出と粒子化が挙げられる。これらの 現象は、MCCIの発生防止あるいは影響緩和に向けたシビアアクシデント対策の有効性評価に も密接に関連する。

④ RPV 内や PCV 内構造物への熱負荷

RPV 内における炉心溶融進展過程において発生する崩壊熱や炉心構成材料の酸化熱の一部 は、輻射や対流により、RPV 内の内部構造物や RPV 自体、RPV に接続されている配管等の加 熱に消費される。評価は難しいものの、これらの構造物に対する熱負荷は、炉心の溶融進展に 寄与した正味の熱量を推定する情報になり得る。また、構造物の到達温度等に係わる知見は、 構造物の熱的な破損や溶融に至るまでの余裕を評価するうえで有用なものであると考えられる。

RPV 内と同様に、PCV 内においても、輻射や対流を通じて、溶融炉心から構造物への熱伝 達が生じ得る。代表的な PCV 内構造物として、RPV の下部ヘッド、制御棒案内管、ペデスタ ル壁、PCV 壁、PCV 貫通部、配管等がある。

(3) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

前節に述べた炉心溶融進展挙動の解明に資する知見や情報をより具体的に整理するとともに、 対応する分析内容を記載する。また、分析内容の一覧を表 4,5 に示す。

① RPV 内における早期炉心溶融進展

1) 炉心領域における未溶融燃料及び制御材の特性

号機によっては、炉心の外周領域を中心に未溶融あるいは部分的に溶融した燃料及び制御材 が残存している可能性がある。これらのサンプルについて、OM、SEM-EDX、SEM-WDX や PXRD 等を活用して、チャンネルボックスや燃料被覆管内外面の酸化状態及び残存金属層の厚 さ、燃料の酸化状態、過度の温度上昇を経験したチャンネルボックス、燃料被覆管及び燃料の 組織変化、制御材やその被覆材 (SUS)の酸化状態や組織等を分析するとともに、外観の観察、 酸化されたチャンネルボックス、燃料被覆管及び制御材被覆管の機械的強度(曲げ応力や圧縮 応力に対する強度等)を測定し、RPV 内の限定された領域内における炉心溶融進展初期段階の 挙動に関する以下の知見を得る。これらの分析では、サンプルを切断・研磨し、反応界面の情 報を得ることが最も重要となる。

- チャンネルボックスの酸化、燃料被覆管の外面酸化、被覆管の破損に伴う水蒸気の浸入による内面酸化、制御材被覆管酸化の程度及びこれらと機械的強度の関係
- 炉心構成材料の位置(高さ方向)と酸化の程度の関係
- 燃料を含めた炉心構成材料の酸化に係わる情報に基づいた各材料の酸化特性(酸化速度)及び酸化熱や水素の発生量
- 炉心構成材料が到達した温度(及び冷却速度)の範囲

2) 炉心領域内及び炉心支持板上における燃料デブリ等の特性

炉心領域内及び制御棒案内管上端や燃料支持金具領域を含めた炉心支持板上に堆積している 燃料デブリは、早期炉心溶融進展挙動を把握する上で極めて有用なサンプルになり得ると考え られる。これらの燃料デブリには、溶融炉心が固化したものと炉心の崩壊等により形成された 未溶融のものが混在している可能性が高い。未溶融であることが明確である場合には、①で述 べた分析のいくつかを当てはめることができる。炉心領域内、炉心支持板上の燃料デブリにつ いて、主に炉心構成材料間の相互作用による溶融炉心の生成、移行、酸化挙動の視点から評価 することに加え、炉心支持板の破損状況を把握することが重要である。また、燃料デブリによ る流路閉塞の程度に関する評価も重要と考えられる。

そのため、OM、SEM-EDX、SEM-WDX や PXRD、TEM 等を活用して、燃料デブリの外観、 制御棒案内管浸入経路入口の閉塞状況、燃料デブリの相状態、各相の組成(FP を含む)、熱物 性(固相線温度、液相線温度等)を観察、分析、測定するとともに、燃料デブリと接触してい る領域及び接触していない領域における炉心支持板の組織状態を明らかにする。PXRD と TEM を併用することにより、RPV 内における早期炉心溶融進展のみならず、後述の RPV 内におけ る後期炉心溶融進展や RPV 外における炉心溶融進展に関連する燃料デブリのマクロな相状態 と各相のミクロな構造に関する知見が得られる可能性があると考えられる。

燃料デブリに係わるこれらの結果から、早期炉心溶融進展挙動に関する以下の知見を得る。 なお、燃料デブリの金属/酸素比(MOx等)は、炉心溶融進展時における雰囲気条件の推定に つながる可能性があり、RPV内における後期炉心溶融進展やRPV外における炉心溶融進展を 含めて重要な情報になり得ると考えられる。

- 燃料デブリの金属/酸素比と炉心構造材料の初期割合を基にした同比を比較することによる溶融炉心の酸化の程度
- 燃料デブリ組成や相状態に基づく溶融炉心の生成過程、これらの高さ方向及び径方向分布に 基づいた溶融炉心の移行特性(移行時の組成変化等)、燃料デブリの組成や相状態と熱物性の 関連
- 制御棒案内管浸入経路入口近傍に堆積している燃料デブリの組成(制御棒案内管への浸入が 確認されたもののサンプル採取が困難な場合の備え)
- 炉心支持板の厚さ方向温度分布及びその径方向分布(炉心支持板に与えられた熱負荷の推定)

② RPV 内における後期炉心溶融進展

1) 下部プレナム内における燃料デブリ等の特性

炉心支持板の破損等により、溶融炉心は制御棒案内管外の下部プレナム内に移行する。下部 プレナム内における燃料デブリの堆積状態は、その後の炉心溶融進展や下部ヘッドへの熱負荷 に大きな影響を与える。下部プレナム内に水が存在する状況で溶融炉心が移行する場合には、 前述のとおり、粒子化等による溶融炉心の固化を伴って下部ヘッド上に堆積する。一方、下部 プレナム内に十分な水が元々存在しない場合や、先行して移行した溶融炉心によって水が蒸発 した後に新たな溶融炉心が移行する場合には、燃料デブリの堆積状況は、十分な水が存在する 場合に比べて著しく異なることが想定される(2.5.1(2)2)。燃料デブリの堆積状況は、燃料デ ブリの酸化、再溶融、燃料デブリの隙間等を経由する溶融炉心の再移行やその結果として生じ る燃料デブリ堆積状態の変化、下部ヘッドへの熱負荷や破損に影響を及ぼすと考えられる。

そのため、下部プレナム内の燃料デブリについて、OM、SEM-EDX、SEM-WDX や PXRD、 TEM 等を活用して、燃料デブリの粒子径やその分布、外観、粒子状や塊状燃料デブリの相状 態、組成、熱物性等を明らかにするとともに、熱負荷を受けた下部ヘッドの組織状態を分析し、 後期炉心溶融進展挙動に関する以下の知見を得る。下部プレナム内における溶融炉心の移行挙 動に係わる全体像を把握するという観点からは、深さ方向や径方向の位置が異なるサンプルを 系統的に採取し、各種の分析を行うことが有益であると考えられる。

- 燃料デブリの金属/酸素比と炉心構造材料の初期割合を基にした同比、炉心領域や炉心支持 板上から採取された燃料デブリの同比を比較することによる溶融炉心の酸化の程度
- 炉心支持板破損位置の下方領域における燃料デブリの堆積状態と相状態や組成との関連性、
 燃料デブリの組成や相状態と熱物性の関連
- 燃料デブリ組成や相状態の深さ方向や径方向分布に基づいた燃料デブリの再溶融や再移行 に係わる特性
- ●下部ヘッドや制御棒案内管と下部ヘッドの溶接部等に与えられた熱負荷及びそれと燃料デブリ堆積状態との関連
- 2) 制御棒案内管内における燃料デブリ等の特性

制御棒案内管内への燃料デブリの浸入が確認された場合には、それらの分析は、基本的には、 上に述べた制御棒案内管外の下部プレナム内における燃料デブリと同様と考えて良いと考えら れる。この領域における燃料デブリ等の特性把握に係わる重要な視点として、以下の点が挙げ られる。合わせて、燃料デブリと制御棒案内管との反応界面の情報も重要であり、制御棒案内 管の径方向断面を採取し、これを研磨して分析することが望ましい。

- 制御棒案内管内に浸入・堆積した燃料デブリと制御棒案内管外の下部プレナム内に堆積した
 燃料デブリの性状(両者の差異)
- 制御棒案内管にその内面及び外面から与えられた熱負荷(制御棒案内管が経験した温度の範囲)

③ RPV 外における炉心溶融進展

1) ペデスタル内における燃料デブリ等の特性

MCCIの解明に有用と考えられる情報として、コンクリートの溶融浸食量、コンクリート分 解気体による溶融炉心の酸化やコンクリートの混入等による溶融炉心の性状変化が挙げられる。 これらに加えて、MCCIの発生が抑制された要因や終息(停止)した要因、溶融炉心からコン クリートへの熱伝達特性、コンクリートの強度低下に係わる知見が重要と考えられる。

これらの知見を得るためには、ペデスタル内の燃料デブリについて、OM、SEM-EDX、 SEM-WDX や PXRD、TEM 等を活用して、粒子状燃料デブリの粒径分布や外観を調べるとと もに、燃料デブリの相状態、各相の組成(コンクリート成分の割合等)、熱物性等を明らかにす る必要がある。塊状(連続層)燃料デブリについては、金属層と酸化物層の分離状況やこれら 燃料デブリ層の組成、相状態を深さ方向及び径方向の分布を含めて明らかにすることが望まし い。また、塊状(連続層)燃料デブリの空隙率や透水性、燃料デブリとコンクリート接触面の 状態、ペデスタル壁コンクリートの機械的強度特性の分析も重要と思われる。これらの結果か ら、ペデスタル内における炉心溶融進展挙動に関する以下の評価に資する知見を得る。

- 下部プレナム内における燃料デブリ、ペデスタル内の制御棒案内管やグレーチングに固着した燃料デブリの分析に基づいた PCV 内に移行した溶融炉心の初期性状
- 炉心構造材料の初期割合を基にした金属/酸素比、炉心領域や炉心支持板上に存在する燃料 デブリの同比、下部プレナム内における燃料デブリの同比と比較することによるペデスタル 内における溶融炉心の酸化の程度
- 粒子状燃料デブリ、塊状(連続層)燃料デブリの金属層及び酸化物層に含まれるコンクリート成分の割合に基づいた溶融炉心とコンクリート成分の混合・化学反応特性、燃料デブリの相状態や組成と燃料デブリ熱物性との関連
- 粒子状燃料デブリの粒径分布、塊状(連続層)燃料デブリの空隙率や透水性、コンクリートの混合割合に基づく代替注水による溶融炉心の冷却特性
- 燃料デブリとコンクリート境界の状態(燃料デブリ下面のクラストやコンクリート骨材の状況等)やコンクリートの浸食深さを基にした溶融炉心/コンクリート熱伝達挙動の推定
- ペデスタル壁コンクリートの性状変化と機械的強度の関連(4号機等の熱負荷を受けていないコンクリートとの比較)
- 2) ペデスタル外における燃料デブリ等の特性

ペデスタル外における MCCI に関する分析は、ペデスタル内のそれとほぼ同様であると考え られる。この領域における重要な現象は、溶融炉心の拡がりと溶融炉心との直接接触による PCV 壁の破損である。溶融炉心の拡がり挙動を解明する上では、燃料デブリの拡がり形状や堆 積厚さの情報に加えて、燃料デブリ組成や相状態の厚さ方向分布が必要であると考えられる。 これは、MCCI による性状変化だけではなく、溶融炉心が段階的に PCV 内に移行した場合に は、先行した溶融炉心上に性状の異なる後発の溶融炉心が堆積する可能性があるためである。

溶融炉心の拡がり挙動は、拡がり先端部における力のバランス(重力と表面張力)や溶融炉 心の固化が影響を及ぼす。そのため、燃料デブリ先端部に着目して、固化層(クラスト)の外 観的な特徴を観察するとともに、相状態や組成を分析することが有用であると考えられる。

溶融炉心と PCV 壁との直接接触が確認された場合には、PCV 壁への熱負荷(到達温度の範囲)や PCV 壁の溶融特性に係わる知見を得るために、燃料デブリ及び PCV 壁鋼材の双方について、接触面近傍における性状や組織を分析することが望ましい。

④ RPV や PCV 内構造物への熱負荷

1) RPV 内(RCS 含む)構造物への熱負荷

RPV 内や RCS における構造物の中から、圧力バウンダリの健全性及び炉心溶融進展過程に おいて発生する崩壊熱や炉心構成材料の酸化により発生する熱の受け手という2つの観点から 重要と考えられる構造物を選定する。前者に関しては、RPV や高温気体の流入が想定される RCS 配管のフランジ部、クリープ破損の可能性がある RCS 配管、後者については、シュラウ ド、上部構造材(シュラウドヘッド、スタンドパイプ、気水分離器、蒸気乾燥器)、炉心支持板、 制御棒案内管、RPV 等が考えられる。これらの構造物からサンプルを採取できる場合、OM、 SEM-EDX、SEM-WDX や PXRD を活用して、鋼材の酸化状態や金属組織、変形状態を分析、 観察し、それらに与えられた熱負荷や機械的負荷に係わる知見を取得するとともに、フランジ 部に用いられているシール材の劣化状況を観察することが望ましい。

2) PCV 内構造物への熱負荷

前述のとおり、代表的な PCV 内構造物として、RPV の下部ヘッド、制御棒案内管、ペデス タル壁、PCV 壁、PCV 貫通部、配管等が挙げられる。これらについて、RPV 内及び RCS に おける構造物と同様に、OM、SEM-EDX、SEM-WDX や PXRD を活用して、鋼材の性状、フ ランジ部シール材や貫通部樹脂等の劣化状況を分析・観察し、PCV のリークや構造材への熱負 荷に係わる知見を収集することが望ましい。

- (4) 特記事項
- ① 炉内状況の記録

炉心溶融進展の解明という観点から燃料デブリの分析に関して留意すべき点は、燃料デブリ 等サンプルの採取位置情報の記録である。炉心溶融の進展を解析するためには、分析結果が炉 内の空間座標と紐づけてられていることが不可欠である。廃炉工程に支障を来たさない範囲で 可能な限り、燃料デブリや構造材の位置情報を記録すること、また取出しに際して切断や破砕 を行う場合には、その処置前の炉内での形状等の情報を取得しておくことが重要になる。

② 取出しまでの経年変化の影響

燃料デブリの試験的取出しが始まるまでに、既に8年が経過し、本格的な取出し開始にはさ らに準備期間を要すると予想される。この間に、特に金属材料等腐食の影響を受ける物質につ いては、その表面は既に事故直後の情報を失っている可能性が予想される。構造材等の表面近 傍について、その分析結果を解釈し、事故時の熱影響や雰囲気を検討する際には、取出しまで の経年変化の影響を材料腐食や化学の知見に基づき考慮することが重要となる。

③ SEM/EPMA-SXES 分析の導入

燃料デブリ等の性状把握において基本となる分析の一つとして、SEM-EDX, EPMA-WDX 分析が挙げられる。近年、WDX に優るエネルギー分解能を持ち、軽元素分析や化学状態分析 が可能であり、さらに多元素同時測定が可能な技術として SXES が SEM/EPMA の元素分析オ プションとして実用化された。炉心溶融進展の解明において重要となる燃料デブリ等の酸化状 態の分析について、EDX と WDX とを使い分け、必要に応じて WDX による軽元素分析を実施 することで技術的な支障はないが、SXES の導入により化学状態分析をより多くのサンプルで 実施できる可能性がある。放射性のサンプル分析における実績は不十分であるものの、模擬燃 料デブリの B 分析に利用した報告がある [33]。技術開発要素を残すものの、より詳細な分析結 果を取得する可能性が期待できることから、燃料デブリ等の分析において導入を検討する価値 があるものと考えられる。

④ 燃料デブリの熱物性に関する知見の取得

炉心溶融進展の解明に資する情報として前節に挙げた固相線温度、液相線温度等、各相及び 各相間の溶解に関わる熱物性について有効な知見を取得する上では、非均質かつ極めて高融点 の相を含む燃料デブリが対象である点に由来する技術的課題を解決する必要がある。JAEA に おいては、照射済燃料の融点測定装置開発の実績があることから、測定時のサンプルと容器と の反応等測定上の課題をクリアする必要はあるものの、燃料デブリを含む照射済燃料を取り扱 い、2000℃を上回る高温条件を達成し、加熱時におけるサンプル温度変化等のデータを取得す ることは、これら技術的蓄積に鑑みて現実的な開発項目と考えられる。燃料デブリの組成等に 係わる分析結果が蓄積された後には、模擬燃料デブリを活用することも可能になると考えられ る。

この様なデータの取得に並行して、模擬燃料デブリ等を利用した研究を通じた基礎データの 活用により、非均質な燃料デブリのマクロな特性と構成相ごとのミクロな特性を関連づける手 段として、モデル・解析手法の整備を進めることが重要である。このような解析手法を介して、 組成分析等で得られた各相の存在状態の情報に基づき上記燃料デブリの加熱試験で得られたデ ータの再現が可能となれば、他手法では困難な知見の取得や簡易的な推定モデルの検証手段と して、溶融炉心の生成や移行を含む事故進展解析への極めて重要なフィードバックとなり得る。

		格度測定																					Н												
	情報	強度試験																																	
	項目/得られる'	PXRD TEM		¢	П			D			¢	n		¢	П		D			D			D							¢	П			¢	Л
ار ۲	分析	SEM-EDX EPMA- WDX		C	<u>ن</u>			В, С			C F	р, С		C F	D Ĥ		C			C			C			в				C				τ	c
: 燃料デ		MO						A			(-	A, G		-	А		А						A, G			А				-	А			~	А
溶融進展に係る分析項目		取得すべきサンプル	・炉心支持板上	・炉心領域 (高さ方向に数サンプル)	各 0.1 g 程度	(溶融部/未溶融部それぞれ)	・閉塞した制御棒案内管	長さ~1 cm 輪切り加工		・堆積物/粒子/塊状燃料デブリ	径方向に各数サンプル	堆積物は深さ方向にも数サンプル	各 0.1 g 程度	・支持板破損箇所下方の燃料デブリ	0.1g程度	・制御棒案内管固着物	・グレーチング部固着物	各 0.1 g 程度	・堆積物/粒子/塊状燃料デブリ	径方向、深さ方向に数サンプル	各 0.1 g 程度	・粒子状/塊状燃料デブリ	冷却水との接触領域近傍	各 10 g 程度	・燃料デブリ/コンクリート境界サン	プル	5×5×5 cm ³ 程度の大きさ	・堆積燃料デブリ	径方向、梁さ方向に数サンプル	各 0.1 g 程度	・堆積燃料デブリ外周部(拡がり先	瑞)	5×5×5 cm ³ 程度の大きさ	・格納容器壁接触部の燃料デブリ	0.1 g程度
原子炉容器内外の炉心		必要となる情報	C:構成元素, D:結晶構造				A:外観・組織状態,B:微細構	造, C:構成元素, D:結晶構造		A:外観・組織状態,B:微細構	造, C:構成元素, D:結晶構造,	G:粒子径		A:外観・組織状態,B:微細構	造, C:構成元素, D:結晶構造	A:外観・組織状態, C:構成元	素, D:結晶構造		C:構成元素, D:結晶構造			A:外観・組織状態, C:構成元	素, D:結晶構造, G:粒子径, H:	空隙率	A:外観・組織状態, B 微細構造	-		A:外観・組織状態, C:構成元	素, D:結晶構造					A:外観 · 組織状態, C:構成元	素,D:結晶構造
表 4 原		解明すべき現象	・酸化の程度	・溶融炉心生成時の温度、雰囲	気条件	・生成過程、移行挙動	・閉塞状況	・溶融炉心の移行挙動への影響	・案内管内外の熟負荷	・酸化の程度	・再溶融特性	・再移行・堆積状態変化		・炉心支持板破損、移行挙動		・初期に移行した溶融炉心の性	关		・酸化の程度	・コンクリートとの反応	・崩壊熱の分布	・溶融炉心の冷却特性			・溶融炉心/コンクリート伝熱	挙動		・溶融炉心の拡がり挙動						・格納容器壁との接触状態	・格納容器との相互作用
		燃料ブノリ採取位置	炉心領域	炉心支持板上			制御棒案内管内部			下部プレナム				<u>.</u>		ペデスタル内									<u>.</u>			ペデスタル外部							

「国子信☆異内外の信心淡晶準囲に係え分析項目・検約デブⅡ

密 度 定		PXRD	B B B B B B B B B B B B B B B B B B B	20 和通 1 2 2 2 2 4 2 4 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5	政得すべきサンプル 予構成材 売心外園領域/行心支持板上 有心高さ方向に数サンプル 肉厚方向全て含む 見手方向及び幅楽とれぞれ) (溶離部/未溶離部それぞれ) (溶離部/未溶離部それぞれ) (溶離部/未溶離部それぞれ) (溶離部/未溶離部それぞれ) (空間域内容/面)に数サンプル 加一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一	 英となる 着数 総状態, ・B:微報強速 総状態, ・B:微報強速 総状態, ・B:微報強速 総状態, ・B:微載強速 総状態, ・B:微載強速 総状態, ・B:微載強速 総状態, ・B:微載強速 	A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A:外観・ A: A:外観・ A:
	E		e	A A	 5x5x5 cm³大程度の大きさ ・格納容器内の各構造物構成材 肉厚方向全て含む 	A:外観•組織状態, B:微細構造	相互作用 相互作用 ・格納容器内リーク経路 ・熱負荷
	E			Α	・溶融炉心接触部の格納容器壁 5×5×5 cm ³ 大程度の大きさ	A:外観・組織状態, B:機械強度	・溶融炉心との接触による 相互作用
				Υ	・原子炉容器内各構造物構成材 肉厚方向全て含む 1×1 cm ² 程度の大きさ	A:外観・組織状態	・熱負荷
			В	Y	・圧力バウンダリ部構成材 肉厚方向全て含む 1×1 cm ² 程度の大きさ	A:外観・組織状態, B:微細構造	 ・圧力バウンダリ健全性 ・酸化の程度 ・変形状態 ・変形状態 ・シール材の劣化
	E			Y	 ・ペデスタル壁 内面測定部付近 5x5x5 cm³ 大程度の大きさ 	A:外観・組織状態, E:機械強度	・ペデスタル壁への熱負 荷、力学的応答
			В	¥	・下部ヘッド 径方向に数サンプル 肉厚方向全てを含む 幅 1×1 cm ² 程度	A:外観•組織状態, B:微細構造	・熱負荷・破損状況
				Ą	・炉心支持板 炉心領域内径方向に数サンプ ル 径/周方向幅~1 cm	A 外観・組織状態	·熱負荷·破損状況
	E			Α	・各構成材 長手方向及び幅数 cm それ以外は同上	A:外観・組織状態, E:機械強度	・機械強度の低下
			g	Ą	・各権成材 炉心外周領域炉心支持板上 炉心高さ方向に数サンプル 肉厚方向全て含む 長手方向及び幅~1 cm (溶離部/未溶融部それぞれ)	A:外観・組織状態, B:微細構造	 酸化の程度 酸化反応の速度 ・酸化反応の速度 ・発熱量 ・水素発生量 ・到達温度、冷却速度
密度測定	強度試験	PXRD TEM	SEM-EDX EPMA-WDX	МО	取得すべきサンプル	必要となる情報	解明すべき現象
			する必要情報	分析項目/対応			

構治生材生 原子恒容器内外の恒心溶融准展に係入分析項目 2.5.2 ソースターム

(1) 目的

事故進展過程では、主な放射線源となる Cs、I等の揮発性の FP は、過熱・破損・溶融燃料 から蒸気種として放出され、事故時の温度、雰囲気等の事故進展条件に応じて様々な FP 化学 種を生成しつつ、RPV や RCS のバウンダリ等に生じたリーク経路を介して、PCV や R/B に移 行していく。この間、RPV 内等の高温部では、FP 蒸気種の化学形の変化、蒸気種間あるいは 蒸気種と構造材表面との間での化学反応が生じる。一方、温度低下に伴い大部分の FP はエア ロゾルとなって構造材表面や配管内面に沈着し、一部は FP と構造材の間で化学反応等を生じ る。その結果、FP は、Sr 等非揮発性のものは主に燃料デブリに随伴するが、Cs 等は構造材表 面等へ沈着し、炉内で広範に分布する(このような事故進展に伴う FP の分布を以下、「事故時 ソースターム」という)。

他方、廃炉までの数十年においては、FPを含有する燃料デブリや表面に FP が付着した構造 材等が冷却水や炉内雰囲気にさらされるため、その表面が変質し、これに伴い FP の化学形態 も変質し、再放出する可能性が考えられる。さらに、燃料デブリ切削等による局所的な過熱に よる内包 FP の揮発や、切削粉として発生する FP 含有微粒子の気相への再放出、あるいは、 燃料デブリ切削等による冷却水や雰囲気にさらされていない表面の出現や冷却水中の泥状の堆 積物攪拌等により、沈着 FP 周辺の物理化学状態が変化し、燃料デブリ冷却水へ FP が再放出 すること等により、内包されていた FP が再放出し、FP 分布が長期的に変化することも考えら れる(これら長期的な FP 分布の変化を以下、「長期ソースターム」という)。

事故時ソースターム及び長期ソースタームの双方を評価して事故原因の究明に資するために は、それぞれ、事故進展時及び廃炉までの長期における FP の挙動(FP 放出移行挙動)を明ら かにすることが重要である。

1Fの事故過程においては、2.5.1 項に記載の通り、RPV 及び PCV の減圧や注水等の事故収 束に向けた作業が、号機ごとに大きく異なる条件で進められたことから、上述の FP 放出移行 挙動も号機ごとに相当に異なっていた可能性が考えられる。事故収束に向けた様々な作業が行 われたため、炉心溶融進展と同じく、1F における FP 挙動の完全な解明は極めて困難である。 このため、B4C 制御材の溶融移行に伴う B 放出や RPV 内構造物への FP 化学吸着等、これま でに知見が少なく不確かさが大きいが、1F での FP 放出移行挙動評価において重要であり、事 故原因の究明に資すると考えられる挙動の解明を中心として、1F 内の FP 量や付着状態等を分 析することが重要である [34]。分析結果を温度・雰囲気等の情報や炉外試験結果等を用いて解 析して FP 放出移行挙動を評価することにより、事故原因の究明に役立つ知見や情報が得られ ると考えられる。また、これらの知見や情報は、FP 放出移行挙動のモデルや SA 解析コードの 検証及び高度化にも利用可能であり、軽水炉の継続的な安全性向上にも資するものと考える。

(2) 必要となる(あるいは期待される)知見や情報

FP 放出移行挙動を評価するための基本的な流れは以下のとおりである。

取得位置が異なる燃料デブリやFP付着構造材等のサンプルに対して、放射能分析やICP-MS 等により得られる FP の量、SEM/EDX、WDX、PXRD 等により得られる FP 付着物の化学形 及び相状態/相分布、FP エアロゾル形状等の物理状態に関する分析を行う(以下、これらを 「FP 分析」という)。これら各取得位置における FP 分析結果と、2.5.1 項において得られた情 報も反映した SA 解析やプラントデータ解析から得られる温度・雰囲気等の事故進展条件、燃 料デブリ等サンプルからの水中への FP 浸出に係る炉外試験結果等から得られる知見・情報を 総合して、FP 放出移行挙動を評価する。

FP は核燃料物質に比べて、桁違いに量が少なく、また事故時の可動性が大きいため、炉内 に広範に分布しており、燃料デブリ内及び構造材等にマイクロオーダーサイズで含有または付 着している。このため、燃料デブリ分析において重要であった、一つのサンプルに対する均質 性・代表性の考え方は適用されず、FP性状(物理化学形態)のR/B内・PCV/RPV内の空間 変化を考慮してサンプル取得を行うことが重要である。例えば、事故進展解析や事故時プラン トデータ解析、現場の線量データ等を参考に、R/B内・PCV内等で、FP化学形やエアロゾル 形成等の物理化学形態の変化が生じないと予想される領域を予め同定し、それらの領域を代表 するサンプル(スミアサンプル等)を取得する。また、領域間で、事故時の温度・雰囲気等が 急激に、あるいはなだらかに連続的に変化する境界領域において、サンプルを合理的な範囲で 複数取得して分析を行うこと等が望ましい。前者の温度・雰囲気等が急激に変化する境界領域 としては、バウンダリでのリーク部や構造物の狭隘部等が考えられる。第一段階としては、第 1 章で記載した、ペデスタル底部堆積物やオペレーションフロアの燃料成分含有粒子等、特徴 的な事象が観察された領域に関わる代表サンプルの分析を行い、R/B内、PCV内のFP分布の 特徴(線量、核種、化学形等)を概略把握することを優先し、そこで一旦ホールドポイントを 設け、選定した領域の代表性、領域間の類似性、その領域における挙動評価の重要性等を評価 し、必要に応じて境界領域の再選定を行って、次の段階の分析に進むことが考えられる。

以下に、FP 放出移行挙動評価のために必要な、あるいは期待される知見を取得するための FP 分析の概要を箇条書きで記す。

● **FP** の化学形

燃料デブリに含まれる FP、あるいは RCS を移行時の FP の化学形や化学反応は、FP 放出 移行挙動に大きく影響を与えるため、FP 放出移行挙動評価においては極めて重要な情報であ る [34,35]。このため、燃料デブリや FP 付着構造材等に対して、放射能測定や化学分析によ る FP 定量、SEM-EDX、WDX や PXRD 等による化学形や相状態等評価に係る分析を行う。

● FP 放出移行に与える物理的条件

未溶融燃料(もし取得できれば)のポア(空孔)分布、FP が付着した構造材表面の材質や 酸化状態等の物理的条件は、FP が燃料や構造材表面等から放出する、あるいは移行時に構造 材表面等に FP が付着する際に影響を与える。このため、SEM-EDX、WDX、PXRD 等により、 FP 含有/付着部位の微細構造等の分析を行う。

● ミクロ領域での FP 物理化学状態(一部技術開発が必要)

上記の 2 項目の分析によっては、FP の化学形やミクロスケールでの物理状態に関する直接 的な情報は得られない。もし、ミクロスケールで存在する構造材付着 FP 等の物理化学状態を
直接測定することができれば、FP 放出移行挙動評価のさらなる高度化に寄与することが期待 できる。このため、燃料デブリ等サンプル取扱いに係る許可取得作業を含めて、ラマン分光分 析や TEM、ミクロンサイズの集光放射光ビームを利用したμ-XRD、μ-XAFS、μ-XCT、 μ-HAXPES、STXM 等 (SR-XA) によるミクロスケールでの FP 物理化学状態測定・構造解析 技術の開発を進めることが望ましい。

● FP 放出移行挙動確認のための炉外試験(一部技術開発が必要)

FP 含有燃料デブリ、FP 付着構造材等サンプルに対して、加熱や水中への浸漬等の試験を行 い FP 再放出・再浮遊挙動等を評価することができれば、モデルの高度化等を通じて、事故時 及び長期ソースターム評価の予測精度向上に資することが期待される。特に、水への浸出挙動 は、燃料デブリ取出し時の線源分布変化を評価するために重要である。また、燃料デブリ等分 析結果を反映して模擬サンプルを作製し、FP 放出移行に係る系統的な試験を行って燃料デブ リ分析結果を補完することも、FP 放出挙動評価のために重要である。このため、必要であれ ば燃料デブリ等サンプル取り扱いに係る許可取得作業を含めて、以下の炉外試験装置の整備を 進めることが望ましい。

▶ OGA:照射済燃料を加熱して放出された FP(主にガス)を測定する装置

- ▶ FP 浸出挙動試験装置:恒温槽、ビーカー、温度計等からなる浸出試験部と、ICP-MS や液体クロマトグラフィーからなる溶液中の FP 濃度測定部から構成されるが、市販の理化学機器と既存分析装置の組み合わせであり、特段の技術開発は要しないと考えられる。
- ▶ FP 放出移行試験装置:燃料デブリ等サンプルの加熱による FP 放出部と、温度勾配管付きの FP の移行部からなり、技術開発及び許可取得が必要である。温度勾配管等に沈着したFP の各種分析を行うことにより、FP 化学形等を評価する。コールドの試験装置はあるため、 模擬サンプルを用いて補完的データを取得することは可能である。
- ▶ FP 再浮遊試験装置: FP が沈着した構造材表面に対して、風量を変化させる等により沈着 FP の再浮遊試験を行う装置であり、一般的な理化学機器あるいは簡素な製作品で構成され るため、特段の技術開発は不要と思われる。コールドの試験装置はあるため、模擬サンプル を用いて補完的データを取得することは可能である。
- FP 放出・移行時の温度、雰囲気等条件(事故進展条件)

FPを含有する燃料等、あるいは FP が付着している構造材等が経験した事故進展時の温度履 歴、雰囲気(H₂O/H₂比、酸素ポテンシャル等)等の事故進展条件は、FP 分析結果を熱力学解 析及び SA 解析コード等により解析して、FP 放出移行挙動を評価するために不可欠な情報であ る。これらの情報は、基本的には 2.1 節の燃料デブリ取出しや 2.5.1 項の炉心溶融挙動評価等 に係る分析・評価で使用するものと同一である。しかしながら、FP 含有/付着部位の構造材 や燃料デブリ等の相状態等に係る分析を行い、分析結果の解析等により、FP 放出や沈着等が 生じた位置(FP 分析を行った位置)での温度、雰囲気等の炉内条件の推測も行うことにより、 事故進展条件を補足するデータが得られることも期待される。

● **FP** リーク経路

事故時に RPV から PCV を経て R/B に至る経路、あるいは燃料デブリ冷却系を介して PCV から R/B を経て T/B に至る経路の評価は、事故進展、ひいては FP 放出移行挙動評価に不可欠

であり、このためには各バウンダリ間のリーク経路の特定が重要である。このため、PCV フラ ンジパッキンやペネ隙間部等、事故時にリークが生じたと思われる箇所に付着した FP の分析 を行い、各種の解析と合わせて、事故時の FP リーク経路の推定に資することが重要である。 また、可能であれば、燃料デブリ冷却系に係るバウンダリリーク部を模擬して、リーク前後の FP 濃度変化測定等の炉外試験を行うことにより、汚染水のリーク経路推定に資するデータ取 得を試みることも期待される。

なお、上記した分析に必要なサンプル量の目安としては、相状態/相分布評価のための SEM-EDX や PXRD 等のメゾスケール分析、及び水への浸出や再加熱による放出等の炉外試験 では、1cm×1cm 程度の測定面を有する量(燃料成分主体の燃料デブリで約 10 gに相当)が、 また ICP-MS 等による核種定量分析では 0.5 g 程度が必要となると考えられる。また、SR-XA によるミクロスケール分析では、主に構造材等に付着した µm オーダーの FP を狙った分析が 可能であるが、サンプルハンドリングの観点からは 0.5 cm×0.5 cm 程度の測定面を有するサン プルが必要となると考えられる。

ソースタームに係るこれまでの研究、現象の抽出及び重要度ランク付け(PIRT)の結果 [35,36]、被ばく影響等を考慮して、ソースタームや 1F 廃炉において重要と思われるものとし て、¹³⁷Cs、¹³⁴Cs、⁹⁰Sr、²⁴¹Am、²³⁹Pu、²³⁸U、^{125m}Te、¹²⁹I、¹⁰⁶Ru、Ba、¹⁵⁴Eu、Mo、Ce、B、 Si、Nd 等を分析対象核種とする [37]。なお、本項では、Pu、Am 等についても便宜上 FP と いう。

上記の核種以外にも、例えば 2.4.2 項に記載されているように、⁶⁰Co、²³⁷Np 等の核種の分析 及び放出移行挙動評価を行うことにより、廃棄物の処理処分に係る放射性核種インベントリの 合理的な評価等のみならず、ソースターム評価の高度化に役立つ可能性も考えられる。しかし ながら、現段階ではそれらの核種の放出移行挙動についての体系的な知見は極めて少なく、評 価手法も確立されていないことから、本項ではこれらの核種については明示的に記載していな い。これらの核種については、他章も含め、対象とした核種の分析(例えば y 線スペクトロメ トリー等)時に同時に測定できるものもあり、また分析対象サンプルを保管する等の方策によ り、分析ニーズが出てきた時に分析及び評価対象とすることが妥当と考えられる。以下に、核 種選定理由を記す。

• Cs, I

インベントリが大きく、高揮発性であるため環境に放出されやすい。Cs は長期にわたり 1F 炉内の主線源であり、また環境に放出された場合、環境汚染等へ与える影響が大きい。I のう ち、事故時の公衆被ばくの主要因となる¹³¹I は短半減期であるため、1F 燃料デブリ等分析では 対象外となるが、長寿命の¹²⁹I を分析することにより、長期ソースタームにおける移行挙動や、 事故進展ソースタームにおける Cs との化学的相互作用に係る情報を得ることも試みる。

• Sr, Pu, Am

インベントリが大きく、長半減期であり、主に内部被ばくの観点で重要である。

• Te、Ru

Te は揮発性であり、また Cs との化学反応が生じるが、その挙動がよく分かっておらず、重要な核種である。また、Ru は空気混入時の高酸化雰囲気で揮発性の高い高次の酸化物蒸気種を生成するが、Te と同じく挙動に不明な点が多く、分析・評価が望まれる。

• Ba

¹⁴⁰Ba は、炉停止後数十日の期間における主な崩壊熱源の一つであるが、温度、雰囲気等に よって揮発性が変化する(以下、このような核種を「可変揮発性核種」という。)ため、放出挙 動の不確かさが大きい。分析においては、中長半減期の Ba 核種を対象とする。

• Eu

¹⁵⁴Eu は、計量管理のための非破壊分析技術開発において指標核種として検討されている。 また、¹³⁷Cs と比べると桁オーダーで影響は小さいものの、比較的長期の間、有意な放射線源 となり得る。また、Eu は複数の原子価を取り得ることから、燃料デブリへの随伴性(放出挙 動と関係する)が他の希土類元素と異なる可能性がないとは言えない。

• Mo, B, Si

インベントリが大きいこと(特に B 及び Si は炉内構造材に含まれ、FP と比べて桁違いに量が多い)、また Cs 及び I との化学的親和性の観点から重要である。Cs 及び I の化学挙動評価に あたっては、Cs-I-Mo-B-O-H-(Si)系として、合わせて取り扱うことが重要である。

• Nd, Gd

燃料デブリ等からの FP 再放出挙動評価の際の情報として有用な燃料燃焼率測定等のために 分析することが必要な核種である。燃焼率情報を得ることにより、燃料内に含まれていた FP 量、燃料の微細組織等の情報が得られる。

以下に、事故進展及び廃炉の各フェーズの FP 挙動に関し、必要となる知見や情報、そのた めの分析内容を記載する。またそれらを一覧表としたものを表 6 に示す。これらの FP 挙動に 係り、1F のソースターム評価における重要性や課題が PIRT [35,36]等にある程度示されてお り、以下の各挙動に関しての記載において個別に一部示した。しかしながら、後述のように、 FP 挙動については未知のものが多く不確かさが大きいこと、1F は 3 つの号機では多様な事故 進展条件であったこと等から、現状において 1F のソースタームに係る重要性等を特定するこ とは困難との認識である。

なお、以下においては、SR-XA 等ミクロスケールでの分析技術や FP 放出移行試験等の炉外 試験の一部等、技術開発が必要なものによる分析・試験についても、特に断りなしに、期待さ れる知見とともに記載している。現状において、どの分析が可能であり、またどの分析・試験 に技術開発が必要かについては、第3章を参照されたい。

① 燃料破損・過熱時の FP 放出挙動

1) 燃料からの FP 放出挙動

主に、温度・雰囲気等の事故進展条件によって揮発性が変化し、Cs等との化学反応を生じる ことにより、Csの炉内分布に影響を与える可能性がある可変揮発性 FP等の放出挙動を評価す る。また、いわゆる切り株状燃料等、一部未溶融の部分が残存している燃料サンプルに対して、 再加熱試験による FP 放出挙動評価を行うことができれば、FP 放出挙動の高度化に資するデー タが得られる可能性がある。

このため、SEM・EDX、WDX や PXRD 等により、未溶融燃料の燃料マトリクス相や金属相 等の相分布や相状態(化学組成・化学形)、及び結晶粒径やポア分布等の組織を評価する。なお、 1F では大半の燃料が溶融したと思われるが、例えば2 号機外周に僅かに残存する可能性が推 定されている切り株状燃料片、スランピングによりペレットの形態を保持したまま落下したも の等を未溶融燃料として想定する。サンプルの非均質性が強く、複数の相が混合している等の 理由により SEM、PXRD のみで相状態が特定できない場合は、TEM・EDX や SR・XA を行い、 局所領域の構造・化学形をミクロレベルで明らかにすることを検討する。さらに、燃料サンプ ルの一部を溶解して核種分離を行い、ICP・MS や放射能分析等により、U、Pu、Am 等のアク チノイド核種、Nd 等の燃焼率指標核種、Ru、Rh、Mo、Sr、Cs 等の FP 核種を定量する。ま た、技術開発が必要であるが、サンプルの一部を再加熱試験等の炉外試験に供することにより、 温度・雰囲気等事故進展条件が事故時に変化した際の燃料からの FP 追加放出等に係る情報を 得ることも検討する。再加熱試験後のサンプルに対しても上述の各種分析を行うことにより、 結晶やポア構造の変化等、FP 放出メカニズムと関連する情報が得られる可能性がある。

これらの分析結果と温度・雰囲気等の事故進展条件についての情報を合わせて、燃料デブリ 中の FP 残留量、燃料デブリ取出し作業等において燃料デブリが局所的に加熱された時の FP 放出挙動等の評価、また FP 放出率(放出速度)モデルの検証・改良に役立てる。分析対象の サンプルとしては、経験温度が最高 2,000 ℃程度までで、できるだけ経験温度が低い未溶融燃 料サンプル複数個が望ましい。以下に、期待される知見・情報と分析内容を FP ごとに示す。

- 可変揮発性の FP である Sr 及び Ba の放出挙動: Sr 及び Ba は、還元雰囲気において、また Sr については海水注入による Cl との化合物生成によって揮発性が上昇することが知られている [38]。このため、燃料中の複合酸化物相(Ba-Mo-Sr-Zr-O)中の Sr と Ba 組成比、Sr 塩化物生成有無等の分析を行う。
- ●可変揮発性の FP である Moの放出挙動: Moは多価元素であり、放出時の温度や雰囲気によって、酸化状態の異なる複数の酸化物や Cs 等との複合酸化物を生成する [39]。主に産業界が使用している MAAP コードにおいては、Cs の化学形として Cs-Mo-O 化学種の存在比率をパラメータとして設定しており、その根拠データや検証データとして資することが期待される。このため、燃料中の Ru-Rh-Pd-Mo-Tc 相や複合酸化物相(Ba-Mo-Sr-Zr-O)中の各金属元素の組成比の分析や、サンプル再加熱による放出挙動評価のための炉外試験(技術開発が必要)等を行う。
- Am や Pu の放出挙動:還元条件で Pu、Am 酸化物の蒸気圧は高くなることが知られている ものの、実燃料を用いた Am、Pu 放出試験結果は皆無に近く、放出モデルはない。このため、 水蒸気枯渇雰囲気となったことが想定されている2号機等の燃料や燃料デブリ、R/Bオペレ ーティングフロア等で見つかった放射性微粒子中の Pu、Am 量(存在有無)やU/Pu/Am の 組成比等を分析する。
- Ruの放出挙動: Ruは、PWR 事故時空気混入条件や SFP-LOCA 時に揮発性が増大するこ

とが知られているが、放出挙動については未知の部分が多い [40]。このため、燃料中の Ru-Rh-Pd-Mo-Tc 相中の Ru と他元素の組成比の分析、空気雰囲気でのサンプルの再加熱試 験(技術開発が必要)等を行い、放出挙動を評価する。

2) 放出 FP の被覆管による化学トラップ挙動

一部の FP については、燃料からの放出直後に被覆管により化学的にトラップされる現象が 知られており [41]、炉内構造材や燃料デブリ内の FP 分布に影響を与える可能性があるため、 これらの化学トラップ挙動を評価する。

このため、SEM-EDX、WDX や PXRD 等により、未溶融被覆管の相状態及び相分布(Zr、 ZrO₂、Zr(O))、及び結晶粒径やポア分布等の微細組織を評価する。また、被覆管サンプルの一 部を溶解して核種分離を行い、ICP-MS や放射能分析等により、Te、Sr、Cs 等の FP 核種及び 被覆管中の Sn、Si 等のトラップ元素を定量する。さらに、必要な場合は TEM-EDX や SR-XA を行い、各種 FP 元素の物理化学状態をミクロレベルで明らかにすることを検討する。

これらの情報と温度・雰囲気等の事故進展条件についての情報を合わせて、Te、Sr、Cs 等 が燃料から放出された直後に被覆管中の Sn、Si、Zr 等と化学反応を生じてトラップされる挙 動を評価する。分析対象のサンプルとしては、未溶融被覆管複数個が望ましい。これまでに知 見が非常に少ないこれら化学トラップ挙動について、期待される知見・情報と分析内容を FP ごとに示す。

- Te の化学トラップ挙動: Te は化学的に活性であり、被膜管中の Sn 以外にも、温度雰囲気 条件によって酸化物や Cs との金属化合物が生成すると言われており[42]、Te の化学挙動解 明は重要である。このため、Te と Cs、Sn の組成比や、可能であれば被覆管中でのこれらの 化合物の化学形等を分析する。
- Sr の移行挙動に与える化学トラップ挙動の影響:Sr は Zr または Si と安定な複合酸化物を 生成することから、還元雰囲気または塩化物生成による揮発性上昇により、燃料から放出さ れた Sr 蒸気種は被覆管成分の Zr、Si と化学反応を生じることが考えられる。燃料ピン溶融 崩落において、被覆管金属相が先行して溶融崩落した場合は、燃料デブリ金属相に選択的に Sr が分布する可能性が考えられ、1F ペデスタル部の金属主成分燃料デブリ等への濃縮の可 能性を評価するための基礎データとして貢献することが期待される [43]。また、金属相と酸 化物相からの水相への核種浸出挙動が異なることが考えられ、長期ソースタームの評価に資 することが期待される。このため、Sr と Zr、Si の組成比や、可能であれば被覆管中でのこ れらの化合物の化学形等を分析する。
- Csの化学トラップ挙動:後述のように、Cs蒸気種は鋼材中のSiと安定化合物(Cs-Si-O)を生成するため、被覆管が溶融せず1,000 ℃程度まで上昇した場合は、燃料から放出されたCsが被覆管中のSiと反応してトラップされ[44]、被覆管が溶融せずにそのまま崩落した場合、想定より多くのCsが燃料デブリ内に含有する可能性が考えられる。このため、CsとSiの組成比や、可能であれば被覆管中でのこれらの化合物の化学形等を分析する。

3) 制御ブレードからのホウ素放出挙動

BWR における B の挙動については未解明の事項が多い。現状の B 放出モデルは B4C の酸 化・蒸発実験に基づいて構築されているが、これは B を含有する制御ブレード溶融物 (Fe/Co/Ni-B)は温度が低い炉心下部に迅速に移行し、その結果 B 放出が抑制されることから、 主に炉心上部に残った B4C から B が放出されることを考慮したものである。1F 後に行われた B 制御ブレードの溶融崩落試験においては、一部の溶融物(Fe/Co/Ni-B)は下部まで移行せず、 比較的高温の領域で留まる等の結果も報告されていることから [45]、このような場合は現行モ デルが B 放出量を過小評価する可能性も考えられる [46]。このため、制御ブレード溶融物の分 析により B 放出量を評価することが重要と考えられる。また、B は酸化によりホウ酸蒸気種と して放出されるが、B4C からの B 放出時には同時に CO、CO2 等のガスが放出され、これらが PCV まで移行した場合は、S/C 水の pH 等の低下をもたらし、水中に溶解している I の気相中 への再放出に影響を与える可能性も懸念される。さらに、燃料デブリに残留する B は、極めて 硬度が高いホウ化物を生成することが知られており、B 放出挙動を評価することにより残留す る B についての情報が得られるため、切削等による燃料デブリ取出しにおける基礎知見として 資することが期待される。

このため、SEM・EDX、WDX や PXRD 等により、制御ブレード溶融固化物や未溶融崩落物 の相状態(化学組成・化学形)及び相分布を評価する。非均質性が強く、SEM・PXRD 等のみ で相状態等が特定できない場合は、TEM・EDX、さらには SR・XA を行う。また、サンプルの一 部を溶解して核種分離を行い、ICP・AES/MS 等により B 残留量を定量する。これらの情報と温 度・雰囲気等の事故進展条件についての情報を合わせて、B の各相(Fe/Cr/Ni・B、Zr・B 及び B4C)への分布状況を評価する。さらに、B 等の燃料への残留量及びサンプル加熱時の放出ガ スのガスクロマトグラフ分析により得られる B4C 酸化時の CO、CO2 等放出率データ等を合わ せて、雰囲気依存の B 放出率(放出速度)モデルを検証する。制御ブレード溶融固化物や未溶 融崩落物について、各1サンプルの取得・分析が望ましい。

② RCS FP 移行举動

1) Cs 化学吸着及び再蒸発挙動

BWR RPV 内のドライヤーやセパレーター等の上部構造材は、事故時に高温(概ね 700 ℃以上)状態を経験した可能性が考えられ、Cs 蒸気種と構造材に含まれる Si 等が化学反応を生じて、安定な Cs 化学吸着生成物(Cs-Fe-Si-O系化合物)を生成した可能性が指摘されている [47]。現状の解析コードによる予測結果からは、有意な Cs 化学吸着が生じる可能性が示唆されており、事故時の環境放出量評価にも影響を与える可能性を否定できないと考えられる [48]。また、事故進展に伴う燃料からの Cs 放出及び化学吸着が一旦収束した後に、炉心への冷却水の注水等によって多量の水蒸気が発生して RPV 上部温度が再上昇した可能性も指摘されており [47]、この場合は化学吸着した Cs が再蒸発により再び移行し、後期のソースタームに影響を及ぼす可能性が懸念される。さらに、燃料デブリ取出し時には、Cs 化学吸着による上部構造材の線源化とその変化(横アクセスの場合は、構造的に不安定な高放射線源が上方に存在することになる。また、上部構造材表面への吸着湿分により、Cs 化学吸着物が溶解・落下し、バウンダリ内

の放射性物質濃度が変化することが考えられる)が、上部構造材取出し後の保管時には、保管 容器内の放射性物質濃度の変化(水中保管の場合は Cs の水への溶出、気中保管の場合は再浮 遊等)が懸念される。このため、Cs 化学吸着挙動と化学吸着生成物の再蒸発や水への溶出挙動 等を評価し、それぞれ、Cs 化学吸着モデルの検証・高度化、及び燃料デブリ取出し等廃炉作業 時の線源分布変化に関する基礎的な知見の取得に役立てる。

SEM-EDX、WDX や PXRD 等により、RPV 内ドライヤ・セパレータ・スタンドパイプ等の 構造材、未溶融チャンネルボックス上部の内側表面、さらには PCV 内で見つかった燃料集合 体ハンドルから採取した構造材試験片に化学吸着して生成した Cs 化学吸着生成物の量、化学 形を評価する。また、付着部位のステンレス構造材表面や断面を分析し、Cs 化学吸着プロセス に支配的な影響を与える鋼材の表面酸化相の化学形態(酸化状態)や分布を評価する。非均質 性等の問題で SEM-EDX で化学形態を決定できない場合は、必要に応じて TEM-EDX 分析や SR-XA を実施する。また、得られた情報から模擬 Cs 化学吸着サンプルを調製し、可能であれ ば炉内から取得したサンプルも含めて、再加熱試験や水への浸出試験等の炉外試験を行う。

これらの Cs 化学吸着生成物の化学形評価結果と構造材の表面酸化物相分布結果を温度・雰囲気等の事故進展情報を用いて解析する。さらに炉外試験結果を合わせて、Cs 化学吸着プロセスと再放出挙動に関する知見やモデルの検証・高度化に資する。700 ℃以下の低温部と 800 ℃以上の高温部で Cs 化学吸着生成物の化学形が異なり、各々の化学吸着プロセスが異なることが分かってきているため、低温部及び高温部からそれぞれ 2~3 サンプルの取得・分析が望ましい。

2) B、Moの構造材との物理的・化学的相互作用

制御材の B、FP 及び一部の鋼材に含まれる Mo は、温度・雰囲気等の事故進展条件により、 それぞれ制御材や構造材から放出されるが、移行中の雰囲気変化や温度低下等により比較的高 温で凝縮して構造材等に沈着することが知られている。沈着した B、Mo は、構造材や気相中 を移行してくる Cs 等の蒸気種やエアロゾルを物理的・化学的にトラップする等、Cs の分布に 影響を与える可能性が指摘されている [49,50]。これらトラップされた Cs の遊離性・水溶性は、 トラップ形態(物理的か、化学的か)にも依存するため、廃炉作業時の Cs 再浮遊等を考慮す る際の基礎知見として資することが期待される。このため、B、Mo の構造材との物理的・化学 的相互作用を評価する。

SEM-EDX、WDX や PXRD 等により、RPV 壁内面、チャンネルボックス内外面等から採取 した構造材試験片と化学的相互作用を生じて生成した化合物(Cs-Mo-O系化合物、Mo-O系化 合物、Fe-B-O系化合物等)の量、化学形を評価する。また、SEM-EDX、WDX及び PXRD に より、付着部位のステンレス等構造材表面や断面を分析し、B、Moと構造材の化学的相互作用 に重要な影響を及ぼすと考えられる構造材表面酸化相の化学形態や分布を評価する。必要があ る場合は TEM/EDX や SR-XA によりミクロレベルの分析を検討する。

これらの化学的相互作用による生成物の化学形評価結果と、構造材の表面酸化物相分布結果、 並びに温度・雰囲気等の事故進展情報を合わせて、B、Moの構造材との物理的・化学的相互作 用に関して、以下に示す知見を取得し、モデルの構築等に資する。Bについては鋼材との化学 反応が生じると考えられている 700 ℃以上とそれ以下、また Mo については鋼材との化学反応 が生じると言われている 1,300 ℃以上の温度領域から、それぞれサンプルを取得して分析する ことが望ましい。

- B 凝縮沈着物の FP トラップ挙動:Bは水蒸気と反応してホウ酸(メタホウ酸や酸化ホウ素 含む)として移行すると言われており、RPV内や RCS 高温部等、700 ℃以上で凝縮しやす い傾向がある [49]。これら凝縮 B 化合物は、移行してくる FP エアロゾルを物理的にトラッ プすることや、Cs 蒸気種を化学的にトラップする可能性が知られており、これら FP・エア ロゾルと構造材の相互作用を評価するため、B 沈着物の化学形態や沈着分布・形状等を分析 する。
- B 蒸気種による構造材の酸化: RPV 内や RCS 高温部(700 ℃以上)では、ホウ酸蒸気種が 構造材中の Fe と化学反応を生じ、安定な Fe-B-O 系化合物を生成して鋼材の腐食を加速する 可能性が指摘されている [49]。また、これら化合物が気相を移行してくる FP に何らかの作 用を及ぼす可能性も考えられるため、高温部での鋼材表面の酸化状態と B と Fe の化学反応 により生成した化合物の分析を行う。
- Cs-Mo-O 蒸気種の鋼材への化学吸着:「② RCS FP 移行挙動 1) Cs 化学吸着及び再蒸発挙動」で述べた、鋼材中の Si との反応による Cs 化学吸着が生じる温度域よりもさらに高い温度域において、Cs-Mo-O 蒸気種が鋼材に化学吸着する可能性が示唆されている [51]。他方、構造材表面に沈着した Cs-Mo-O は、気相中の水蒸気と反応して Mo 酸化物を遊離すること [50]、SUS316 等 Mo を含む鋼種においては、事故時の高温状態で Mo が鋼材から蒸発すること [52] 等が示唆されている。このため、これらを踏まえて、Cs-Mo-O-H 系蒸気種と構造材の化学反応の評価として、Cs が吸着した鋼材サンプルの分析に加えて、炉外試験を行って詳細な知見を取得することが望ましい。

3) Cs の気相化学反応、付着 FP の再蒸発挙動(Cs-I-Mo-B-O-H 系)

Csの移行挙動は化学形に大きな影響を受けるが、特にCsと化学的親和性が高く、構造材と して炉内に多量に存在し、事故時に有意量が放出されるB、Mo(MoはFPとしても存在)蒸 気種がCs蒸気種と生じる気相中の化学反応が重要である[53]。これら気相中の化学反応は直 接分析することができないため、気相化学反応の結果により生じた化学種が構造材等に沈着し た化合物の分析結果から各種解析等により推定することとなる。また、温度再上昇等の事故進 展条件変化により、一旦沈着したCsが化学形に応じた温度・雰囲気条件で再蒸発する現象が 考えられ、これらは燃料デブリ切削時の局所過熱や後期ソースタームの評価に資することがで きる重要な現象である。特にBは炉内に多量に存在し、過去の熱力学解析ではCsと化合物を 形成することによりCsの移行挙動に支配的な影響を及ぼすことが示唆されているにもかかわ らず[54]、これまでに炉外から取得されたサンプルからBが検出されていないことから、Cs に与える化学的影響評価のための分析データ取得は重要であると考えられる。

このため、SEM-EDX、WDX や PXRD 等により、RPV 上部プレナム内構造物、RCS 配管等から採取した構造材試験片に沈着した Cs 凝縮物やエアロゾルの量、化学形を評価する。また、 付着部位のステンレス等構造材表面や断面を分析し、表面酸化相の化学形態や分布を評価する。 さらに、必要に応じて TEM-EDX や SR-XA により、Cs 凝縮物やエアロゾルのミクロレベルの 分析を実施する。また、構造材試験片の再加熱試験(技術開発が必要)やその際に放出される ガス成分のガスクロマトグラフ分析を行い、沈着物の再蒸発挙動に関する知見を得る。これら の Cs 化合物の化学形評価結果と構造材の表面酸化物相分布評価結果、並びに温度・雰囲気等 の事故進展情報を合わせて、水蒸気含有フロー中での化学反応解析を行うことにより、Cs と Mo、B、水蒸気等とからなる Cs-I-B-Mo-O-H 系での反応速度を含めた気相化学反応に関する 知見を取得し、モデルの検証・高度化に資する。各試験片からそれぞれ経験温度(300~700 ℃ 程度)の異なるサンプルの取得・分析が望ましい。以下に期待される知見・情報と分析内容を 示す。

- 化学組成の異なる Cs-Mo-O 系化合物: Mo は多価元素であり、複数の異なる化学組成の Cs-Mo-O 沈着物が事故進展条件に応じて生成する可能性が指摘されている [39]。このため、 これら化合物の分析(化学組成の弁別)ができれば、Mo 放出移行挙動及び Cs 気相化学反応 評価の精緻化に資することが期待され、「② RCS FP 移行挙動 2) B、Mo の構造材との物理 的・化学的相互作用」で示した、構造材にトラップされた Cs の遊離性推測のための基礎知 見ともなり得ることが期待される。
- MoとBがCs気相化学反応に与える影響の定量化:B、Mo放出挙動に関する情報と合わせて、Cs-Mo-O系化合物とCs-B-O系化合物の炉内沈着分布の定量的評価が行えれば、特にBWR条件でのCs化学挙動評価の高度化に有用である。例えばMAAPコードで入力パラメータとなっているCs化学種の比率等、SA解析コードでのパラメータ設定のための根拠データを与えることが期待される。
- Cs-B-O 系化合物生成挙動:従前より実施されている化学平衡計算による評価では、B存在下では、Cs-B-O 系化合物が主要化学種として生成することが予測されているが、1F でのCs 環境放出サンプルから B が検出されていないこと等を踏まえると、その検証が重要であり、BWRにおける FP 化学挙動評価に有用な情報となる可能性がある。

4) FP エアロゾル生成・成長挙動

FP エアロゾル生成・成長挙動は、炉内構造材表面等に沈着した FP や環境に放出された FP の物理化学形態、再浮遊性/水への浸出特性等を評価するための重要な前提条件である。本挙 動は FP の化学挙動に影響を受け、これら FP 化学挙動はエアロゾルに含まれる核種組成やミクロスケールでのエアロゾル内部の構造(元素ごとに層状の構造になっていること等)等として反映されている。しかしながら、エアロゾルの挙動は、熱水力条件にも大きな影響を受けるため、その挙動評価は極めて困難である。このため、エアロゾルの化学組成等、特に Cs の移行に化学的に影響を及ぼす B、Mo 及び Si 等との化学的な相関に関する情報を中心として、なるべく数多くの分析を行ってデータを蓄積することにより、FP エアロゾル生成・成長挙動の予測に資する知見・情報を取得することを試みる。

SEM-EDX、WDX 等により、RPV 上部プレナム内構造物、RCS 配管等から採取した構造材 試験片に沈着したエアロゾルの量、形状、粒径分布を評価する。さらに、必要に応じて TEM-EDX や SR-XA により、エアロゾル微粒子の化学形をミクロスケールで直接観測する。また、エア ロゾルを溶解して元素分離を行い、ICP-AES/MSによりエアロゾル中のFP含有量を定量する。 他方、SEM-EDX、WDXにより付着部位のステンレス等構造材表面や断面を分析し、表面酸化 相の相状態や相分布を評価するとともに、必須ではないが、スクラッチ試験やレーザー計測に よる表面粗さ等、エアロゾル付着に物理的に影響を与える性状の評価ができれば有用な情報と なる可能性がある。

これらのエアロゾル性状評価結果と構造材の表面酸化物相状態・相分布結果、並びに温度・ 雰囲気等の事故進展情報、さらには「② RCS FP 移行挙動 3) Cs の気相化学反応、付着 FP の 再蒸発挙動(Cs-I-Mo-B-O-H 系)」等で得られる Cs の化学挙動に関する情報を合わせて、エア ロゾル生成・成長挙動に関する知見の蓄積を試みる。上述の通り、なるべく多くのサンプルの 取得・分析が望ましい。

5) FP エアロゾル再浮遊挙動

RPV 内等に沈着した FP エアロゾルは、廃炉のための構造物解体作業時、あるいは構造物の 落下等の際に再浮遊する可能性が考えられ、バウンダリ内での放射性物質濃度管理等において 考慮すべき重要な挙動であると考えられる。また、事故後期のソースタームに影響を与える要 因ともなり得る。FP エアロゾルの再浮遊は、エアロゾルと付着面の固着状態等に影響を受け、 それらは吸湿性や寸法等のエアロゾル性状、沈着面の表面粗さや微細孔の有無等の構造材の表 面性状に影響される。このため、エアロゾルの元素組成や形状・寸法等を分析して、エアロゾ ルの性状を評価する。また、エアロゾル再浮遊は近傍流体の流速に影響を受けるため、風量等 をパラメータとして、エアロゾル再浮遊挙動評価のための炉外試験を検討する。

SEM-EDX、WDX や PXRD、及び ICP-AES/MS により、RPV 上部プレナム内構造物、RCS 配管等から採取した構造材試験片に沈着したエアロゾルの元素組成、形状・寸法を分析する。 また、必須ではないが、スクラッチ試験やレーザー計測(技術開発が必要)が可能であれば、 エアロゾル付着構造材表面の粗さや形状に関するデータの取得が期待される。これらの情報を 用いて作成したエアロゾル沈着模擬試験片に対して、風量・雰囲気(水分含有量等)や固着状 態等をパラメータとした炉外試験を検討する。これらの結果と、温度・雰囲気等の事故進展情 報等を合わせて、事故進展時及び事故後の沈着エアロゾルの再浮遊挙動に関する知見を取得し、 現状のエアロゾル再浮遊モデルで採用されているしきい風量のみによる浮遊有無判定モデルの 検証・高度化に資する。温度領域や付着先の表面材質が異なる 2~3 サンプルの取得・分析が 望ましい。

6) 炉心溶融物等からの FP 放出挙動

主に、温度・雰囲気等の事故進展条件によって揮発性が変化し、炉心溶融物から放出される 可能性がある Sr、Ba、Am、Pu、Ru等可変揮発性 FP の放出挙動を評価する。現状、炉心溶 融物等からの FP 放出モデルは、燃料からの放出モデルが流用されている。また、燃料デブリ からの放出試験も、PHEBUS-FPT4 等により模擬燃料デブリを用いて評価されたもののみであ り [55]、知見は僅少である。知見取得とモデル検証・高度化等により、事故進展に伴う炉内温 度再上昇等、事故進展条件変化時の後期ソースターム評価や、燃料デブリに残留する FP 量の 評価のための基礎知見として役立つことが期待される。

SEM-EDX、WDX や PXRD 等により、溶融固化燃料デブリの相分布や相状態(化学組成・ 化学形)、及び結晶粒径やポア分布等の組織を分析し、加熱による FP 放出時の燃料組織の変化 と FP 放出との相関等を評価するサンプルの非均質性が強く、複数の相が混合している等の理 由により SEM-EDX、PXRD のみで相状態が特定できない場合は、TEM-EDX や SR-XA を行 い、局所領域の構造・化学形をミクロレベルで明らかにすることを検討する。さらに、燃料サ ンプルの一部を溶解して核種分離を行い、ICP-MS や放射能分析等により、U、Pu、Am 等の アクチノイド核種、Nd 等の燃焼率指標核種、Ru、Rh、Mo、Sr、Cs 等の FP 核種を定量する。 また、サンプルの一部を再加熱試験(技術開発が必要)等の炉外試験に供することにより、事 故進展時の温度・雰囲気等事故進展条件変化時の FP 追加放出等に係る情報を得る。

これらの情報と温度・雰囲気等の事故進展条件についての情報を合わせて、燃料デブリ残留 FPの評価やFP放出率(放出速度)モデルの検証・改良(FP放出挙動評価)等に役立てる。 分析対象のサンプルとしては、核分裂性物質の含有量が多いと考えられる溶融固化燃料デブリ が望ましい。

7) 配管内面への Cs 化学吸着及び再蒸発挙動、エアロゾル沈着・再浮遊挙動

RPV から PCV へ貫通する配管内は、事故進展に応じて高濃度の FP を含有した高温高圧流 体が流れた可能性が考えられる。これら配管内面に沈着して残留する FP の分析を行うことに より、例えば、SRV 開放による急激な流速増加や温度・圧力低下、配管エルボ部やレデューサ 部等の熱流動挙動の急激な変化が生じた個所の影響等、特に熱流動条件が FP 移行に与える影 響に関する情報の取得が見込める可能性がある。これらは、リーク経路の情報、あるいは R/B 内での高線源の一つと考えられている配管内蓄積(沈着) FP に関する情報として資すること も期待される。

このため、SRV につながる配管内面から採取した鋼材試験片に対して、「② RCS FP 移行挙 動」の 1)~5)で示したような、化学吸着により生成した Cs 化学吸着生成物(Cs-Fe-Si-O 系化 合物)、凝縮により沈着した FP 化合物、エアロゾル沈着物等に対しての各種分析を行う (SEM-EDX、WDX や PXRD 等による相状態評価、放射能分析等による沈着量評価等)。必要 に応じて、TEM-EDX や SR-XA を行い、エアロゾル粒子のミクロレベルの分析を実施する。 さらに、サンプルの再加熱試験(技術開発が必要)や加熱時放出ガスのガスクロマトグラフ分 析、水への浸出試験を行い、沈着物の再蒸発挙動や水への浸出挙動に関する知見を得る。

これらの分析による評価結果、並びに温度・雰囲気等の事故進展条件を合わせて、高温部から低温部までの一連の Cs 化学挙動に関する知見取得に資する。特に熱流動挙動の変化が大きい個所等を中心にして、複数サンプルの取得・分析が望ましい。

③ PCV 内移行挙動

1) 低温での Cs 物理・化学吸着挙動

PCV 内等の比較的低温領域においても、湿分等の条件によっては、Cs は鋼材中の鉄酸化物 (さび)と化学反応を生じて複合酸化物(Cs-Fe-O)を形成する可能性があることが分かって きている(以下、「低温 Cs 化学吸着」という。)[56]。また、PCV 内面ペイントは高温に曝さ れて溶融または軟化したと思われ、FP エアロゾルを物理的に取り込み、かつ再放出しにくい 形態で保持している可能性が考えられる。さらには、ペデスタル等コンクリート表面の微細孔 ヘエアロゾルが入り込む等により、再放出しにくい状態となっていることも考えられる。これ ら、PCV 内で比較的強固に固着している Cs の吸着や再浮遊に関する挙動を評価することによ り、「② RCS FP 移行挙動 1) Cs 化学吸着及び再蒸発挙動」で述べた、燃料デブリ取出し作業 時の線源とその変化、PCV 内の放射性物質濃度変化等に関する基礎知見が得られることが期待 される。また、PCV での FP 保持に関する知見取得につながることも考えられ、現状の保守的 な事故時 FP 環境放出量評価の合理化に向けた基礎知見となり得ることも期待される。このた め、Cs 化学反応生成物の化学形分析、ペイントやコンクリート等への Cs 取り込みの様子の観 察、付着した Cs の水への浸出に係る炉外試験等を行う。

SEM-EDX、WDX や PXRD 等により、PCV 内面ペイントが剥離し鋼材表面が露出した部分 等から採取した構造材試験片に化学吸着して生成した、低温 Cs 化学吸着生成物(Cs-Fe-O 系 化合物)の量、化学形を評価する。また、SEM-EDX、WDX により付着部位の鋼材表面や断面 を分析し、低温 Cs 化学吸着プロセスに支配的な影響を与える鋼材の表面酸化相の化学形態(酸 化状態)や分布を評価する。サンプル採取量が少ない、または非均質性等の問題で SEM-EDX、 WDX で化学形態を決定できない場合は、必要に応じて TEM-EDX や SR-XA を実施する。一 方、ペイントやコンクリートサンプルに対しては、SEM-EDX、WDX、SEM や OM による表 面性状観察、放射能分布測定(イメージングプレート等)等により、エアロゾル取り込みの形 態や分布等を分析する。さらに、得られた情報から模擬低温 Cs 化学吸着サンプルを調製し、 可能であれば炉内から取得したサンプルも含めて、再浮遊試験や水への浸出試験等の炉外試験 を行う。

これらの低温 Cs 化学吸着生成物の化学形評価結果、鋼材等の表面性状分析結果と温度・雰囲気等の事故進展条件を合わせて、低温における Cs 物理・化学吸着に係る知見を得る。鋼材 露出部及びペイント部からそれぞれサンプルを取得・分析することが望ましい。

2) MCCI 時/生成物からの FP 放出挙動

MCCI時には、溶融炉心とコンクリートの相互作用により、多量のコンクリート分解生成ガス(CO₂、CO、CH₄等のC-O-H系ガス)とともに、溶融炉心に残留していたFPが一部放出される等、燃料過熱・破損時とは異なるFP放出挙動を示す。過去MCCIを模擬して実施されたACE実験では、Teの顕著な放出と少量の制御材成分(Ag及びB)の放出が確認される一方、溶融炉心に随伴するBa及びSrは、Si、Zrと酸化物を生成して放出が抑制される結果が得られている[41]。しかしながら、全体として知見は僅少であり、MCCI固化物からの放出データはない。また、CO₂等の分解生成ガスがPCVに移行してS/Cに溶解した場合、S/C水のpH低下等をもたらし、溶解していたIの気相への移行挙動等に影響を与える可能性も考えられる。このため、MCCI生成物の分析や再加熱による炉外試験等により、残留FP等の放出挙動に関する知見が得られれば、MCCI時あるいは生成物からのFP放出挙動の評価に役立つ可能性がある。

SEM-EDX、WDX や PXRD 等により、MCCI 生成物の相状態及び相分布、及び結晶粒径や ポア分布等の組織を評価する。サンプルの非均質性が強く、相状態の評価が難しい場合は、 TEM-EDX や SR-XA を実施する。また、サンプルの各相(コンクリート相、ガラス相等)の 一部を溶解して核種分離を行い、ICP-MS や放射能分析等により、U、Pu、Am 等のアクチノ イド核種、Ru、Rh、Mo、Sr、Te、Cs 等の FP 核種を定量する。これらの相分布評価結果と核 種定量結果を合わせて、各相における FP の組成比を評価する。さらに、炉外試験として、サ ンプル加熱時発生ガスのガスクロマトグラフ分析(技術開発が必要)により放出されるガス成 分の測定を試みる。

これらの情報と、温度・雰囲気等の事故進展条件及び再加熱試験等により得られる FP(Te、 Sr、Ba、Cs等)や構成元素(Si)、分解生成ガス(CO₂、CO、CH₄等のC-O-H系ガス)の放 出率データを合わせて、MCCI時の FP(及び、可能であれば分解生成ガス)放出挙動に関す る知見を得る。MCCIが生じた条件の異なる複数のサンプルの取得・分析が望ましい。

3) PCV からの FP リーク経路

事故時の PCV からのリーク挙動の把握は、事故進展評価、並びに FP 移行挙動評価において クリティカルな情報である。また、リークはパッキン隙間等狭隘部で発生すると考えられるが、 狭隘部での FP 挙動については良く分かっておらず、モデルの精度も低い。このことから、リ ークが生じた個所の FP 分析を行ってその挙動を調べることは極めて重要である。

このため、リークが生じた可能性が考えられる PCV 上部フランジパッキンや PCV ペネパッ キン部等から採取したサンプルに対して、SEM/EDX、WDX 等により沈着したエアロゾルの量、 形状、粒径分布を評価する。必要に応じて、TEM/EDX や SR-XA により、エアロゾル粒子の ミクロレベルの分析を実施する。

これらのエアロゾル性状評価結果と温度・雰囲気等の事故進展情報を合わせて、PCV からの リーク経路推定に資する。パッキン等への沈着エアロゾルの粒径分布を、「② RCS FP 移行挙 動 5) FP エアロゾル再浮遊挙動」で示す PCV 内の粒径分布と比較・検討することにより、パ ッキン等によるエアロゾル除去効果に関する知見が得られることが期待される。リークが生じ たと考えられる部位からのサンプルの取得・分析が望ましい。

4) FP と PCV 内物質の相互作用

これまでの調査で、2 号機 PCV 内調査経路のレール上で不明な物質等が確認されており、ペ デスタル周辺線量が内部より高かったことから、SRV からのリーク等により RPV 内の FP を 含有した高線量流体が何らかの影響を及ぼした可能性等が考えられる [57]。これらの高線量流 体は、PCV 内の配管保温材等と反応を生じることも考えられることから、これらの PCV 内物 質の分析を行って FP の有無、化合物生成有無や形態等を調べることにより、FP リーク経路や これまでに知られていなかった Cs の化学挙動に関する現象・挙動の知見が取得されることが 期待される。

このため、調査経路レールで見つかった物質等、高線量であり Cs との相互作用を生じた結果生成したと思われる物質(以下、「高線量物質」という。)の分析を行う。SEM-EDX、WDX

や PXRD 等により、高線量物質に化学的に吸着して生成した生成物(仮に保温材がベースとした場合は Ca-Cs-Si-O 系化合物等)の量、化学形を評価する。また、高線量物質内部を分析することにより、Cs が物質内にどのように(物理的にもしくは化学的に)取り込まれたかについて分析する。非均質性等の問題で化学系の決定が難しい場合は、TEM-EDX や SR-XA を実施し、化学形をミクロスケールで直接観測する。

これらの分析結果と温度・雰囲気等の事故進展情報を合わせて、Cs と PCV 内物質の化学的 相互作用に関する知見を取得する。また、これらの情報を反映して Cs と PCV 内物質の反応に 係る炉外試験を必要に応じて実施し、生成物の性状把握等に資する。採取位置の異なる複数サ ンプルの取得・分析が望ましい。

5) ヨウ素(I)の化学挙動

PCV 内壁面(ペイント残留部及び剥離部)に付着したエアロゾルの性状、事故時状態を保持 していると考えられる滞留水等(そのようなものがあれば)の pH、水中に含まれる¹²⁹I等を 分析することができれば、事故時の PCV 内におけるヨウ素化学に関する情報の取得が期待で きる。

このため、PCV に付着したエアロゾルの各種分析に加えて、ICP-MS 等で滞留水等に含まれる ¹²⁹I を定量する。また、事故時状態を保持している滞留水の pH 等の液性、液中に含まれる B 等や有機物の濃度、微粒子(コロイド)の化学形等を電気伝導率測定、イオンクロマトグラフィー、ICP-MS 等により測定する。

これらの情報や事故時の当該箇所の線量レベルの推測値、事故進展情報を合わせて、事故時の PCV 内におけるヨウ素化学挙動の推定に資する。

④ R/B 内移行举動

1) エアロゾル移行・再浮遊挙動

廃炉作業時の機器搬入やアクセス等の影響で生じることが予想される沈着 FP の再浮遊等に よる放射性物質濃度の変化を管理するため、R/B 等に堆積・付着した FP の再浮遊挙動を評価 することは重要である。また、このような再浮遊挙動に係る情報は、軽水炉事故時の FP 環境 放出において、事業者に義務付けられた安全評価の継続的向上において重要となる、R/B での 除染効果考慮による合理的なソースターム評価手法の構築のための基礎データとして役立てら れることが期待される [58]。

このため、SEM-EDX、WDX等により、R/B壁面、床面、機器表面等から、スミア法、ある いは可能であればコア抜き等により採取したサンプルに対して、SEM-EDXやイメージングプ レート分析により、沈着したエアロゾルの量、形状、粒径分布を評価する。また、サンプルを 溶解して元素分離を行い、ICP-AES/MSによりエアロゾル中のFP含有量を定量するとともに、 OM や SEM-EDX、WDX 等により付着部位の材料表面の形状や粗さ等を分析する。他方、コ ア抜きサンプルが取得できた場合は、炉外試験として、水での洗浄試験や各種除染材による除 染試験を行い、FP の付着性状(遊離性、固着性、浸透性)を評価する。さらに、可能であれ ば、風量をパラメータとしてエアロゾルの再浮遊試験等を行い、再浮遊挙動に関するデータを 取得する。

これらのエアロゾル性状評価結果と材料表面性状、並びに「③ PCV 内移行挙動 3) PCV からの FP リーク経路」で評価したリーク経路情報、除染試験や再浮遊試験結果、R/B 内線量率分布測定結果、BOP や R/B 開口部近傍と他の領域でのエアロゾル形状等の比較検討結果等を合わせて、R/B 内でのエアロゾル移行挙動に関する各種知見を取得・蓄積する。R/B 各階、PCV からのリーク発生個所近傍、R/B 開口部近傍、R/B 内狭隘部等からのサンプル取得・分析が望ましい。

2) 配管内面やフィルター等への FP 沈着挙動

PCV ベント時に配管内を高濃度の FP を含有した流体が流れたことや、一部が逆流して SGTS フィルターに流入した可能性等が考えられている [59]。これら配管内面への沈着やフィ ルターにトラップされて残留する FP の分析を行うことは、ベント実施時の PCV 内における FP の状態を推定するために役立つと考えられる。これらは、リーク経路の情報、あるいは R/B 内での高線源の一つと考えられている配管内蓄積(沈着) FP に関する情報として資すること も期待される。

このため、SRV につながる配管内面から採取した鋼材やフィルター試験片に対して、「② RCS FP 移行挙動 7) 配管内面への Cs 化学吸着及び再蒸発挙動、エアロゾル沈着・再浮遊挙動」 で示したような、凝縮により沈着あるいはフィルターにトラップされた FP 化合物、エアロゾ ル沈着物等に対しての各種分析を行う(SEM-EDX、WDX や PXRD 等による相状態評価、放 射能分析等による沈着量評価等)。必要に応じて、TEM-EDX や SR-XA により、エアロゾル粒 子のミクロレベルの分析を実施する。

⑤ PCV、R/B、T/B 内の長期移行挙動

1) R/B 壁、T/B 壁、スラッジへの FP 沈着と再放出挙動

長期ソースタームの評価においては、燃料デブリ冷却系を介した水相における FP の放出移 行挙動を評価する必要があると考えられる。とりわけ、燃料デブリや FP 付着構造材等からの FP の水への浸出挙動、水中を移行する FP のコンクリート壁への沈着・浸透挙動等、FP のソ ースとシンクを水相でのリーク経路と合わせて評価することが重要である。これらの評価によ り、長期ソースターム評価に関する情報が得られることが期待される。また、FP のコンクリ ート浸透の情報は、解体工法や廃棄物管理のための基礎知見となり得る可能性がある。

このため、SEM-EDX、WDX、放射能分析 ($\alpha \cdot \gamma$ 測定、イメージングプレート測定等)等 により、冷却水浸漬部分の R/B や T/B のコンクリート表面や、水中から採取したスラッジ等の 試験片に吸着した FP の表面及び断面 (FP 浸透深さ)分布を評価する。また、SEM-EDX、 WDX や PXRD、TEM-EDX 等により FP 付着部位表面及び断面のコンクリート構造材やスラ ッジの化学形、相状態・相分布、表面組織や粗さ等を評価する。他方、燃料デブリを含めた各 種サンプルの水への浸漬試験を行って、溶出した FP の経時変化を評価し、水中における FP のソースに係る挙動を評価する。

これらの情報を合わせて、水相における FP のソース及びシンクに係る挙動を評価する。こ

れにより、燃料デブリからの FP 浸出挙動に関して、燃料デブリの各相(酸化物相、金属相) からの選択的な FP 浸出について情報が得られることも期待される。取得部位や材料の異なる 複数サンプルの取得・分析が望ましい。

2) 切削時等の燃料デブリからの FP 放出挙動

燃料デブリ切削時には、切削個所が局所的な高温状態となることが想定され、含有 FP の再 蒸発の可能性が懸念される。また、切削により発生する微粒子は、水中(一部は気中)に放出 される可能性も考えられる[60]。このため、これら FP やエアロゾルの切削時等の放出挙動や 放出 FP・微粒子の化学形、形状、寸法等の情報を得ておくことが望ましい。FP 再蒸発に係る 知見は、現状、燃料からの FP 放出モデルが流用されている燃料デブリからの FP 放出モデル 高度化のための補足データとなることも期待される。

SEM-EDX、WDX や PXRD、TEM-EDX 等による相状態・相分布、及び結晶粒径やポア分 布等の組織、ICP-MS や放射能分析等による核種定量により、燃料デブリ等の各相中に含まれ る FP の化学形や物理状態を評価する。また可能であれば、分析結果を基に作製した模擬燃料 デブリ等を用いて切削試験を行い、発生した FP 粒子のエアロゾルスペクトロメータやインパ クタによる粒子分級後の SEM-EDX 観察等により、粒子形状、寸法分布等に関する情報を得る ことも期待される。

これら燃料デブリ中の含有 FP、切削等による発生する微粒子の性状、及び「② RCS FP 移 行挙動 6) 炉心溶融物等からの FP 放出挙動」で得られる燃料デブリの再加熱による FP 放出 挙動に関する知見を合わせて、燃料デブリ切削時の FP 放出形態(局所加熱による蒸発と切削 による微粒子発生)・挙動に関する知見を得る。取得位置(RPV 内、PCV 内)、種類(燃料成 分含有率、金属相/酸化物相、制御材含有率等)等が異なるサンプルの取得・分析が望ましい。

3) 乾燥熱処理時における FP 放出挙動

燃料デブリを保管する際の前処理として乾燥熱処理が検討されており、熱処理時の FP の放 出挙動を評価することが重要である [60]。このため、「② RCS FP 移行挙動 6) 炉心溶融物等 からの FP 放出挙動」で示したような分析及び炉外試験を行う。主に燃料デブリ等サンプルの 加熱による炉外試験により FP 放出挙動を評価することになるが、乾燥熱処理は、不活性等、 事故進展条件とは異なる雰囲気下で行われることが予想される。不活性雰囲気とは言え、微量 の酸素等が不純物として含まれていることが考えられるため、とりわけこれらの雰囲気におい て揮発性が上昇すると思われる U、Ru、Mo 等の放出挙動に着目する。また、これらの雰囲気 下では、燃料デブリ等表面の酸化挙動は水蒸気雰囲気と異なり、酸化等による表面変性が FP 放出に影響を与える可能性も考えられることから、燃料デブリ等の加熱による表面酸化挙動評 価に係る炉外試験も合わせて検討する。

4) FP 移行、リーク経路

水相を介した長期ソースタームの評価においては、PCV・R/B・T/B 境界でのリーク経路の 特定が特に重要である。しかしながら、多くのリーク経路が考えられることから、サンプル分 析によっては、その特定は極めて困難であることが考えられる。

このため、燃料デブリ冷却系にトレーサーを注入して複数個所で収率を測定することにより、 燃料デブリ冷却系に係る経路でのバウンダリの破損に係る情報が得られる可能性がある。トレ ーサーとしては物理的・化学的に安定なものであって、1F環境には存在しないものを使用する ことが望ましい。

(3) 分析上の特記事項・留意事項

FPの生成量は燃料デブリ等に比べて桁違いに少なく、また Cs 等揮発性のものが主な分析対 象となるが、その可動性が極めて大きいため、炉内に広範に分布するという特徴を有する。こ のため、事故進展挙動評価と比べて、FP 放出移行挙動評価はさらに困難となると考えられる。 これらを踏まえた上で FP 放出移行挙動を評価するためには、燃料デブリサンプル分析結果と 事故進展情報の活用を前提として、十分な事前予測を行った上で、適切なサンプル取得と、ミ クロスケール分析や炉外試験の適切な活用を検討することが肝要である。以下に、分析上の特 記事項や留意事項を記す。

● FP 挙動に係る不確かさ

FP 挙動は、FP 蒸気種やエアロゾルの気相移行時の熱水力条件に係る不確かさが大きいこと に加えて、燃料からの FP 放出や移行中の化学反応等、燃料成分や構造材等との物理的・化学 的相互作用の不確かさが重畳するため、複雑かつ不確かさが大きい。このため、FP 挙動の評 価においては、その不確かさを踏まえて評価することが肝要である。

● 分析の重要度 · 優先度

1F 事故原因の究明における重要度や、燃料デブリ取出し等に係る優先度等を考慮して分析を 行うことが必要である。ソースタームに関しては、現象が生じる場所によらず、I、Cs、Te、 Mo や、それらと反応しえる制御材や構造材に係わる分析が重要である。一方、燃料デブリ取 出し等廃炉に資する観点からは、切削時等の微粉末生成や被ばく等を考えると、上記の FP 以 外に、中難揮発性 FP 分析の重要度が相対的に高くなると考えられる。

● ミクロスケール分析や炉外試験の重要性

FP は燃料デブリと比べて桁違いに生成量が小さい。このため、燃料デブリ等は、マクロス ケールから SEM-EDX、WDX 等のメゾスケールの分析及び熱力学解析を組み合わせることに より相状態と温度・雰囲気等をある程度評価可能であるのに対して、FP の相状態は、これら の分析及び解析では直接知ることはできない。このため、FP の相状態を直接分析することが できる TEM-EDX や集光ビームを用いた SR-XA 等のミクロスケールの分析は FP 挙動評価に 有効であり、これらの手法を有効的に組み合わせて、総合的に FP の物理化学状態を明らかに することが期待される。このようなミクロスケールの分析手法は、PCV 内等比較的低温域にお ける FP 付着物であって、十分に化学反応や結晶化が進んでおらず、事故進展条件から間接的 に相状態等を評価したとしても不確かさが極めて大きいものに対しても有効である。

● サンプル分析数及び分析内容の総合的な合理化

FP 分析結果から FP 挙動を評価するためには、温度・雰囲気等の事故進展条件が不可欠である。事故進展条件の高精度化のためには、炉心溶融挙動評価等に係る分析結果が重要となるこ

とから、燃料デブリ分析・炉心溶融挙動と FP 挙動評価に共通的に使用できる分析対象サンプルの選定と分析内容を策定することにより、サンプル分析数を全体として合理化することが重要である。

● サンプルの代表性

サンプルの代表性の担保は極めて重要である。Cs等は燃料デブリ等の主要構成元素であるU、 Zrに比べて、はるかに量が少ない上に、可動性が大きいため炉内に広範かつ低濃度で分布する。 このため、2.1節に示した燃料デブリ取出しに係る分析等、燃料デブリ構成物質を主な対象と した分析とは、代表性等担保の考え方が異なる。詳細は「(1)目的」に記載したが、事故進展 解析等の様々な情報を用いて、FPの物理化学性状に大きな変化が生じない(例えば蒸気種か らエアロゾルに変化する等)ような領域を炉内に設定し、領域内でのFP物理化学状態の代表 性を確認しながら、サンプル取得数を合理化しつつ、分析を進めることが必要である。

表6 ソースタームに関する分析項目(1/6)	〔目において実施) 取得位置及びサンプル数 (*)	サビ 化学状態、微細構造 - 燃料デブリの相状態等:10g	一子 放射光X線分析、 - 核種含有量:0.5g	エロロッフカリ エロロックカリ TEM 等 (*) 取得における各種制限に準じる	FP の化学形、 FP の化学形、 化学状態 経験温度の異なる複数の未溶 FP の存在位置 融燃料サンプル (~2,000 °C (結晶構造中 以下)。 /間、粒内/外 等)	FP の化学形、 複数の未溶融被覆管サンプ 化学状態 ル。	ホウ素の化学 制御ブレード溶融固化体及び 形、化学状態 未溶融崩落物、各1サンプル。
	は全ての項	t等 放出#	测加热、リ	ング等	0		0
	(核種分析	形状、組織	SEM, 密度	定等	0	0	0
	分析項目	相状態・分布	SEM/EDX,	PXRD 等	0	0	0
表 6 ソースターム	分析对象項目	※下線はオプション(技術開発が必要)			 <p< td=""><td> ◆未溶融被覆管中の FP 量と<u>化学状態・微</u> <u>細構造</u> トラップ元素 (Sn, Si) 量 被覆管の酸化状態や相分布 </td><td> ●制御ブレード溶融固化体及び未溶融崩 落物(再放出試験後サンプル含む)に残 留する Bの量、相状態、<u>化学状態</u> </td></p<>	 ◆未溶融被覆管中の FP 量と<u>化学状態・微</u> <u>細構造</u> トラップ元素 (Sn, Si) 量 被覆管の酸化状態や相分布 	 ●制御ブレード溶融固化体及び未溶融崩 落物(再放出試験後サンプル含む)に残 留する Bの量、相状態、<u>化学状態</u>
	課題・ニーズとしての	、着目する現象・挙動	(分析対象核種)		1) 燃料からの FP 放出 挙動評価 (Cs, I, Mo, Sr, Ba, Eu, Am, Pu, Te, Ru 箏)	 2) 放出 FP の被覆管に よる化学トラップ挙動 (Te, Sr, Cs) 	 制御ブレードからの ホウ素放出挙動 (B)
	事故進展	ノェーズ			(1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1)		

					·		
事故進展	夏 課題・ニーズとしての	分析対象項目	分析項目	(核種分析は3	全ての項目に	おいて実施)	取得位置及びサンプル数 (*)
フェース	< 着目する現象・挙動	※下線はオプション(技術開発が必要)	相状態・分布	形状、組織等	放出特性	化学状態、微細構造	サンフル車重ノτ伝は以ト: - 燃料デブリの相状態等:10g
	(分析対象核種)		SEM/EDX,	SEM, 密度測	加熱、リーチ	放射光X線分析、	- 核種含有量:0.2g *エニハト・・・・・・
			PXRD 等	定等	ング等	TEM 等	- 本回のづ竹: 1 cm×1 cm (*) 取得における各種制限に準じる
	1) Cs化学吸着及び再蒸	●構造材高温部試験片(再放出試験後サン					PRV 内ドライヤ、セパレータ、
	発挙動	プル含む)に化学吸着した Cs について、					スタンドパイプ、未溶融チャ
	(Cs, Fe, Si)	量、化学形、化学形態・ミクロ存在位置					ンネルボックス、PCV 内で発
		●構造村の酸化状態及び相分布	(((Cs の化学形、	見された燃料集合体バンドル
)	C	C	化学状態	等について、取得位置ごとに
							経験温度(700℃以下、800℃
							以上) の異なる 2~3 サンプ
							j√₀
	2) B,Mo の構造材との	●構造村高温部試験片(再放出試験後サン					PRV 壁内面、チャンネルボッ
2) RC	S 物理的 · 化学的相互作	プル含む)に化学吸着した B, Mo につ				D MC 分子	クス内外面等について、経験
FP 移行	ゴ用	いて、量、 <u>化学形</u> 、化学形態・ミクロ存	0	0	0	B, IMO 0715 中財, 17点,中等	温度の異なるサンプル (B は
挙動	(B, Mo)	在位置				12、15十个题	700℃以下及び 800℃以上、
		●構造材の酸化状態及び相分布					Mo は 1,300℃以上)。
	3) Cs の気相化学反応、	●構造材への凝縮やエアロゾル沈着によ					
	付着 FP の再蒸発挙動	り付着した FP(再放出試験後含む)の					
	(Cs-I-Mo-B-O-H 系)	量、相状態、化学状態					RPV 上部プレナム内構造物、
		▶ Cs化合物の化学形と存在比:CsOH、	C	(C	FP の化学形、	RCS 配管等について、取得位
		Cs-Mo-O、Cs-B-O)))	化学状態	置ごとに経験温度(300~
		▶ Cs を含まない FP の化学形と存在					700℃)の異なるサンプル。
		比:Mo-O、B-O-H 元素組成					
		●構造材の酸化状態及び相分布					

表 6 ソースタームに関する分析項目 (2/6)

		表 6 ソースターム	に関する分析	庁項目(3/6 〕	(
事故進風	言課題・ニーズとしての	分析対象項目	分析項目	(核種分析は 4	きての項目に	おいて実施)	取得位置及びサンプル数(*) サンプニチョノナナルロロエ・
フェース	、着目する現象・挙動	※下線はオプション(技術開発が必要)	相状態・分布	形状、組織等	放出特性	化学状態、微細構造	サンノル里車/ リだはめじ: - 燃料デブリの相状態等:10g
	(分析対象核種)		SEM/EDX,	SEM, 密度測	加熱、リーチ	放射光X線分析、	- 核種含有量:0.5g
			PXRD 等	定等	ング等	TEM 等	- 衣山の万切: 1 cm < 1 cm (*) 取得における各種制限に準じる
	4) FP エアロゾル生	●構造材等へ付着したエアロゾルの形					
	成・成長挙動	状・粒形、化学組成、 <u>相状態、層構造</u>				四日 クレジョン	RPV 上部プレナム内構造物、
	(Cs, I, Mo, Sr, Ba,	▶ 共存する元素群:Cs-I-Mo-B、Sr-Ba、	C	C	C	LL OVILLHIS、	RCS 配管等について、なるべ
	Eu, Am, Pu, Te, Ru 等)	Am-Pu-Eu、他)))	10.十 公 陨、眉佛 清	く多くのサンプル。
		▶ 粒形分布 ▶ 内側と外側での FP 組成の違い				Ų	
	5) FP エアロゾル再浮	●構造材等へ付着したエアロゾルの再浮					RPV 上部プレナム内構造物、
	遊挙動	遊試験における浮遊しきい風量	(((BCS 配管等について、温度領
	(FP エアロゾル)	●構造材表面材質、粗さ等	C	C	С		域や付着先の表面材質の異な
							る 2~3 サンプル。
	6) 炉心溶融物等からの	●溶融固化燃料デブリ(再放出試験後含					
2 RC	S FP 放出挙動	む) 中に残留する FP の量、FP の各相					
FP 移行	F (Sr, Ba, Am, Pu, Ru)	への分布、 <u>FP</u> の化学状態				FP の化学形、	
挙動		▶ Cs,Iの残留量				化学状態	
		▶ 金属相の化学組成 (Ru-Rh-Pd-Mo)。	C	C	C	FP の存在位置	溶融固化燃料デブリサンプ
		特に Mo と Ru の組成変化。)))	(結晶構造中)V.o
		▶ 複合酸化物の化学組成(Sr, Ba, Mo,				/間、粒内/外	
		U)。特に Mo の組成変化。				等)	
		▶ 燃料マトリクス相の化学組成 (Sr,					
		Am, Pu, U)。特に Pu/Am/U 比。					
	7) 配管内面への Cs 化	●構造材(SRV につながる配管内面から					
	学吸着及び再蒸発挙	採取)試験片に化学吸着した Cs 化学吸				FP の化学形、	SRV に繋がる配管内面等につ
	動、エアロゾル沈着・	着生成物、FP 化合物、エアロゾル吸着	0	0	0	化学状態	いて、熱流動挙動の変化が大
	再浮遊挙動	物について、量、化学形、化学形態・ミ					きい箇所で複数サンプル。
	(C_{S}, F_{e}, S_{i})	クロ存在位置					

0
(3)
関する分析項目
NJ
2
ĸ
Ĵ
\geq

事故進風	§ 課題・ニーズとしての	分析対象項目	分析項目	(核種分析は5	らての項目に:	おいて実施)	取得位置及びサンプル数(*) ** 、 ・
レート	《 着目する現象・挙動	※下線はオプション(技術開発が必要)	相状態・分布	形状、組織等	放出特性	化学状態、微細構造	サンフル車重ノマ缶は以ト: - 燃料デブリの相状態等:10g
	(分析対象核種)		SEM/EDX,	SEM, 密度測	加熱、リーチ	放射光X線分析、	- 核種含有量:0.5 g - 主西の公転・1 cm / 1 cm
			PXRD 等	定等	ング等	TEM 等	- 衣山の万切: 1 cm < 1 cm (*) 取得における各種制限に準じる
	1) 低温での Cs 物理・	●構造材低温部片に低温化学吸着した Cs					
	化学吸着举動	について、量、化学形、化学形態・ミク					
	(Cs, Fe)	口存在位置					
		▶ ペイントとの相互作用				FP の化学形、	PCV 内面ペイント、ペイント
		▶ BCV 鋼(ペイント剥離部)となび部	0	0	0	化学状態	剥離部等について、取得位置
		への低温化学吸着					ہ۔ ریڈ
		● ペイントや PCV 鋼(ペイント剥離部、					
		さび部分含む)の物理状態(劣化度合い、					
		表面粗さなど)					
е (2) MCCI 時/生成物か	●MCCI 生成物 (再放出試験後含む) 中に					
③ FC 古義谷素	V らの FP 放出挙動	残留する FP の量、FP の各相への分布、					
ドリ1~11~ 動	(Cs, I, Mo, Sr, Ba,	FP の化学状態				FP の化学形、	
na.	Eu, Am, Pu, Te, Ru 等)	▶ Cs,Iの残留量				化学状態	
		▶ MCCI 生成物中に含まれる FP 含有	(((FP の存在位置	MCCI 生成物サレノルについ ノ サナタ 中で用さて活教中
		${ m \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \ \$	C	C)	(結晶構造中	し、生成米件の共よる(数サ)
		▶ MCCI 生成物構成元素組成 (Si, Zn				/間、粒内/外	ノノレ。
		等)。				等)	
		●MCCI 生成物 (再放出試験後サンプル含					
		む)の相状態・分布					
	3) PCV からの FP リー	●パッキンや隙間(ペネ、バルブシール、				FP の化学形、	PCV 上部パッキンや PCV ペ
	ク経路	フランジパッキン)に付着した FP の量、	0	0		化学状態	ネペッキン等について、リー
	$(FP \perp \mathcal{T} \sqcup \swarrow \mathcal{N})$	物理形態(エアロゾルの粒形、形状)					ク発生個所の各部位。

表 6 ソースタームに関する分析項目 (4/6)

JAEA-Review 2020-004

		表 6 ソースターム	に関する分析	項目 (5/6			
事故進展	課題・ニーズとしての	分析对象項目	分析項目	(核種分析は∮	きての項目に対	おいて実施)	取得位置及びサンプル数(*) 。 チョノールホロロー
フェーズ	着目する現象・挙動	※下線はオプション(技術開発が必要)	相状態・分布	形状、組織等	放出特性	化学状態、微細構造	サンフル里重/ 寸法は以下: - 燃料デブリの相状態等:10g
	(分析対象核種)		SEM/EDX,	SEM, 密度測	加熱、リーチ	放射光X線分析、	- 核種含有量:0.5 g - 素而の分析・1 cm×1 cm
			PXRD 等	定等	ング等	TEM 等	& 曲ジンが : ・ 1 0 m × 1 0 m (*) 取得における各種制限に準じる
	4) FP と PCV 内物質の	●高温漏洩蒸気と相互作用を生じた SRV					
	相互作用	配管等保温材に化学的・物理的に吸着し					
	(Cs)	た Cs について、量、 <u>化学形、化学形態・</u>	((Cs の化学形、	SRV 配管等の保温材につい
		ミクロ存在位置	C)		化学状態	て、複数サンプル。
		●高温蒸気との相互作用前後の保温材の					
③ PCV		化学形、相状態					
内移行挙	5) ヨウ素 (I) の化学挙	●格納容器内面壁(ペイント残留部及び剥				1291、B 濃度定	
動	動	<u>離部)</u> に付着したエアロゾル、事故時状				量(ICP-MS	
	(I)	態を保持している滞留水等について				等)、液性 (pH	PCV 内面ペイント、ペイント
		I-129 の量。				測定、イオンク	剥離部等、及び滞留水につい
		●滞留水の bH 等の液性、B 濃度、微粒子				ロマトグラフ	て、複数サンプル。
		の化学形				ィー、電気伝導	
						率測定)	
	1) エアロゾル移行・再	●R/B 壁面、床面、機器表面等に付着した					R/B 各階の床・壁、狭隘部、
	浮遊挙動	FP の量、化学形、相状態、物理形態(エ				日のの記述	PCV からのリーク発生箇所、
	(FPエアロゾル)	アロゾルの粒形、形状)、 <u>化学状態</u>	0	0	0	FF 07日十//2、	R/B 開口部等から取得したス
(●表面材質及び粗さ				化子小匙	ミヤサンプルやコンクリート
(4) R/E							コアサンプル。
内移付争 動	2) 配管内面やフィルタ	●構造材(SRV につながる配管内面や					
	ー等への FP 沈着挙動	SGTS フィルターから採取)試験片に				FP の化学形、	SRV に繋がる配管内面、
		沈着・トラップされた FP 化合物、エア	0	0		化学状態	SGTS フィルター等サンプ
		ロゾル吸着物について、量、 <u>化学形、化</u>					ノレ _o
		学形態・ミクロ存在位置					

9
~
\sim
\sim
ΠΠ
шш
1-1
ншк
H,
11
Ē
+
1
12
~ `
~
Nd
/ \-
1
40
)
illar.
₩Ж
<u> </u>
N I
12
.1
\sim
1
1
.N
\sim
N
~ \
1
1
~
~
~ \

JAEA-Review 2020-004

いて実施) 取得位置及びサンプル数 (*)	サンプル重量/寸法は以下: 芝状態、微細構造 - 燃料デブリの相状態等:10g	<u>村光 X 線分析</u> 、 - 核種含有量:0.5 g - ま 赤 か く 5 m × 1 m × 1 m	 - 死回のフカリ: 1 cm < 1 cm M 等 (*) 取得における各種制限に準じる 	後くを掛ける ちょうちょう ちょう	IND、IND UIAI小伎俱前方寺	から取得したコンクリートサ・の少学	シュロナル、 ンプルや水中から採取したス	→水幣 ラッジについて、取得部位・		を這して。	PCV 内、PRV 内から取得した	▶ の化学形、 	学状態 について、取得位置や種類ご	₹ °	• の化学形、	学状態	●の存在位置 溶融固化燃料デブリサンプル	結晶構造中の乾燥熱処理後のサンプル。	間、粒内/外		(燃料デブリ冷却系へのトレ	
ミての項目におい	放出特性	加熱、リーチ 放け	ング等 TE			цч	0	1				E) 分		FI	1) FI)	<u> </u>	姜	()
事故進展課題・ニーズとしての分析対象項目 のののののでは、 が、 ののでは、 ののではにおいて実施 の 、 の 、 、 ・ 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	形状、組織等	SEM, 密度測	定等				0					(D				(C				
分析項目	相状態・分布	SEM/EDX,	PXRD 等				0					(C				(C			()
分析対象項目	※下線はオプション(技術開発が必要)			●壁採取サンプル(再放出試験後サンプル	含む) やスラッジに吸着した FP につい	1 単一小学形 小学形能・ハクロた在	い、 <u>単、」山ナル、山ナルが、 ~~ サルト</u> 4 岡	<u>111</u> 直	●サンプル材質や表面状態	● 水流による再放出、リーチング	● 燃料デブリ表面の相状態、FP 含有量等	●切削試験により発生した微粒子中に含	まれる FP について、量、形状・寸法		●溶融固化燃料デブリ(乾燥熱処理後)中	に残留する FP の量、FP の各相への分	布、 <u>FP</u> の化学状態	▶ Cs,Iの残留量	▶ FP 含有量(Ru, Rh, Pd, Mo, Sr, Ba,	$Mo, U)_{\circ}$	 トレーサーを用いた水の移流経路評価 	
課題・ニーズとしての	着目する現象・挙動	(分析対象核種)		1) R/B, T/B 壁、スラッ	ジへの FP 沈着と再放	王淡雪	岡士田				2) 切削時等の燃料デブ	リからの FP 放出挙動			3) 乾燥熱処理時におけ	る FP 放出挙動	(U, Ru, Mo)				4) FP 移行、リーク経路	<u> 当</u> 7 (五)
事故進展	ノェーズ										-	⑤ PCV、	R/B、T/B	内の長期	移行举動							

表 6 ソースタームに関する分析項目 (6/6)

JAEA-Review 2020-004

3. 燃料デブリ分析フロー

3.1 個別課題に対応する分析項目及び分析フロー

第2章に示された燃料デブリの分析ニーズに対して、具体的な分析項目、その分析を実施す るための基本的(理想的)かつ包括的な分析フローを図4に示す。分析フロー作成上の前提を 以下に示す。

- 設定した分析項目については、基本的には JAEA 既存施設における経験及び知見等の情報 に基づいて記載している。ただし、未知の試料である燃料デブリサンプルを取り扱うため、 懸念される事項についても併せて言及した。
- 特定の施設を想定せずに、分析ニーズを満たすことが可能と考えられるフローを構築した。
 このため、単一の施設で分析フローに示す全ての項目をカバーできる訳ではない。また、必須ではないが詳細なデータ等取得が望める分析項目について、図4中に*印にて記した。
- 分析装置を用いた測定に先立ち、燃料デブリサンプルの切断、溶解、元素分離等のサンプル 調製が不可欠であるため、これら試料調製工程を含めた。
- サンプル調製に伴う燃料デブリの物理的状態変化を考慮して、固体及び液体に分類した。また、その取扱量に応じて、一般的なホットラボにおけるコンクリートセル、鉄セル、GB・フード及び測定室レベルの4つの区分とした。
- 化学分離(粗分離・精密分離)は、フローの上では単一工程で書かれているが、目的とする 核種、測定法及び求める精度により様々な方法がある。
- 炉外試験等、本文中にオプションとして言及されているもの、現時点において、分析装置本体を含む測定系全体の仕様確定が困難な分析装置については、分析フローには記載していない。



3.2 分析項目、反映先及び主要な分析装置

第2章の燃料デブリの分析ニーズにて言及された分析項目を中心に、その詳細及び想定される一般的分析装置を示す。

(1) 燃料デブリ分析に係わるサンプル調製作業

燃料デブリの分析においては、それぞれの分析で使用する手法・装置にあわせ、サンプル調 製が必要となる。燃料デブリのサンプル調製については、これまでのTMI-2燃料デブリの分析 経験・実績に加え、模擬燃料デブリを用いた確証試験が既に行われている。一方、1Fで発生し た燃料デブリは、燃料と被覆管成分に加えて、制御材である B₄C、チャンネルボックス等の一 般構造材のほか、CRD のケーブル類の有機材料等、非常に多様な成分が混在していることが予 想される。従って、TMI-2 や模擬燃料デブリの経験・実績で得られている知見だけでは予測・ 推測できない挙動を示す可能性があることに留意すべきである。

そこで本節では、特に留意すべき主要なサンプル調製工程として、切断・粉砕、樹脂埋め・ 研磨、溶解工程に関し、JAEA ではこれまで IRID における研究開発を通じ、分析に係る一般 的情報やJAEA既存施設における経験及び知見等の情報をもとに分析方法について検討してき たところ、今回改めて現時点で適用可能と考えられる手法について情報を整理し、併せて不確 定要因とされる懸念事項についても言及する。

燃料デブリ切断、粉砕

物性測定、核種定量のための分析を行うためには、塊状の燃料デブリを切断・粉砕等によっ て分析に適した形状にする必要がある。

燃料デブリは、照射済燃料要素のように形状が一定ではなく、またその組成も非均質である。 燃料デブリは一般には硬いことが知られているが、1F由来の燃料デブリは、構造材や有機物、 MCCI生成物等の混入により、その硬さにばらつきがあることも予想される。これらを踏まえ ると、燃料デブリの切断・粉砕作業においては、燃料デブリそのものをしっかり保持できる固 定用の機構(治具等)が必要となる。

TMI-2 燃料デブリの切断の際には、不規則な形状の燃料デブリを全方位から固定できる治具 を用いた。円筒状のケース外面に穴をあけ、切断したい部分を円筒ケース端部からはみ出させ る形で、燃料デブリを円筒内にセットする。その後、円筒の外面からボルトを差し込み、全方 位から固定した上で、円筒の端部に沿って切断する。切断にはダイヤモンドカッターを用いる。 切断粉を極力少なくするため、1 mm 程度の刃厚のダイヤモンドカッターを使用し、低速にて 切断する。

上述のように、ある程度取扱いが容易な寸法にサンプルを切断(粗切断)した後、最終的な 分析箇所を特定し、分析対象となるサンプルを得るための切断を行う(詳細切断)。この場合、 ダイヤモンドカッターを用いると良い。なお、切断作業に伴うサンプルの汚染(他のサンプル 成分の混入等)を防ぐため、切断刃はその都度交換するといった注意が必要である。

切断作業は、(放射性) 切断粉の飛散を考慮して、コンクリートセルのような遮蔽、閉じ込め 機能のある空間で行わなければならない。そのため、遠隔操作が可能であり、かつ切断粉の回 収や飛散防止の処置(局所的な閉空間と排気設備を設けた設備等)に対応できる環境・設備が 必要となる。

以下、調製作業時に留意すべき点を示す。

- ・化学的に活性な金属相を有する燃料デブリやジルカロイ含有サンプル等は、切断時に火花が 発生、あるいは発火する可能性がある。従って、切断用セル内、あるいは切断箇所周辺を不 活性な雰囲気にすることが望ましい。オイル等を用いる湿式切断も考えられるが、廃棄物の 処理負担や、定常的な作業期間長期化の可能性を十分考慮する必要がある。例えば、工程分 析の場合には、処理時間や処理数を制御する仕組み(複数ラインにする等)を考慮する必要 もある。
- ・分析のためにサンプルを粉末化・溶液化する場合は、分析サンプルの粉砕等の処理が必要となる。この粉砕処理には、セル内での取り扱いを考慮し、粉砕機が用いられる。粉砕機には、打撃式と回転式がある。打撃式は、乳鉢をイメージするとわかりやすい。微細な粉末が得られる反面、装置が大型となる。一方、回転式は回転刃による切断のため、打撃式に比べると粉末が荒くなるものの、装置が小型である。いずれも、粉砕・粉末化後の除染、粉末の飛散防止策を講じる必要がある。
- ・燃料デブリは非均質であることは既に述べたが、燃料デブリの組成や箇所により、そのサン プル・部位の硬さは異なると考えられる。非常に硬い組成・部位のサンプルを切断・粉砕加 工する際には、その硬さを事前測定で把握し、当該硬さに十分耐えられる加工装置・工具を 選定する必要がある。逆に、堆積物、腐食生成物、有機物、コンクリートやガラス状物質を 含む燃料デブリサンプル等、様々な硬さを有する燃料デブリを扱うことを考慮し、その性状 に応じた切断、固定のための工具、治具を整備することも考慮する必要がある。

燃料デブリ樹脂埋め・研磨

金相、硬さ測定及び SEM・EPMA による表面分析を行うためのサンプル前処理として、樹 脂埋めを行う。測定サンプルより一回り大きい筒状の容器、例えばアクリル製の埋込管(外径 30 mm、内径 25 mm 程度のリング状)内にサンプルをセットし、エポキシ樹脂を注入した後、 気泡を取り除くために真空容器内で硬化させて固める。前処理サンプルの形状は、塊状、小岩 状、粒状等様々である。

次に、樹脂埋めしたサンプルの研磨を行う。卓上研磨機(遠隔仕様)に耐水研磨紙(#180~4000)、ダイヤモンドペースト等を使用し、研磨水、バフ溶液を用いる。研磨紙は、粗仕上げ 研磨用、中仕上げ研磨用、精密仕上げ研磨用の順序で行う。精密仕上げ研磨が完了したら、研 磨装置からサンプルを取出し、洗浄する。必要に応じて鏡面仕上げ研磨を行う。

SEM 測定用サンプルでは、サンプルが非導電性の場合にチャージング(走査電子線による 静電気の蓄積)が起こり、観察像が不規則に歪んだりする。チャージングを防止するために観 察サンプルの表面を金やカーボンでコーティングして導電性を確保する必要がある。

③ 燃料デブリ溶解

硝酸に対する難溶性が知られている燃料デブリの溶解法として、アルカリ融解、アンモニウ ム塩融解、強酸(フッ酸添加や王水)による方法が考えられている。ここでは、有効な溶解法 の一つとして検討が進められている、アルカリ融解の基本プロセスを以下に示す。

始めに、100 µm 以下に分級された粉末をるつぼに入れ、サンプルに対して一定割合の融剤 (過酸化ナトリウム)を加え、電気炉にて 600~800 ℃の範囲で一定時間加熱融解する。放冷 後、融成物に純水及び硝酸を加え、ビーカーに移し、ホットプレート等で加熱溶解を行う。こ こで、サンプル量と融剤量の比、加熱温度、時間は、対象となる燃料デブリの組成によっては、 適切なパラメータ設定を行う必要がある。また、るつぼの材質としては Ni や Al₂O₃ が一般的 に用いられる。本件では Ni が有望であるが、るつぼ材のサンプルへの混入は避けられない。 分析項目に Ni が含まれる場合等、るつぼ材起源の Ni の存在が妨害となりうる分析を行う場合 は、Al₂O₃ 製るつぼを利用するといった工夫が必要となる。

なお、硫酸水素アンモニウムを用いて融解するアンモニウム塩融解法も、溶解法の候補の1 つとして検討された。この方法は、ガラスを冒さないことからアモルファスを含みうる MCCI 生成物の溶解に適さないこと、Zrの割合の多い U-Zr 混合酸化物に対する溶解力が弱いこと、 セル等での取扱いに注意を要するアンモニア/硫酸を用いること等の欠点を有するが、Uの割合 の多い TMI-2 燃料デブリサンプルを用いた試験において、アルカリ融解法より一部良好な溶解 性を示したことから[60]、補助・補完的な溶解方法として可能性を有する。

上記のいずれでも溶解できない場合があれば、フッ酸や王水(塩酸)等の強酸を用いた方法 も考える必要があるが、いずれについても、セルの構造材・配管の腐食等の観点で設備上特別 の配慮・措置を要する可能性が高いため、この方法を適用可能な施設は、比較的導入の容易な アルカリ融解法等に比して限定されるものと思われる。

(2) 元素分離プロセス

図4に示した溶液サンプルでの化学分離プロセスは、分離対象とする核種・元素、適用する 測定法及び当該測定法に求める精度により、適切な分離方法を選定する必要がある。

β線放出核種を測定する LSC や、TIMS の場合、分析目的核種・元素の高精度測定を実施 するためには、他元素から完全に単離する必要がある。このような分離・単離プロセスは非常 に時間がかかる。例えば、燃料デブリの処理処分のために分析が必要とされている核種のうち、 ⁵⁹ Ni や ⁶¹Ni を LSC で測定するために分離・単離するプロセスは、3回の共沈・ろ過プロセス、 2回のイオン交換プロセスを含み、それらの総プロセス時間は約 60時間とされており、燃料デ ブリの分析に必要と考えられる化学処理でも最長時間プロセスの一つである [61]。

一方で、α線スペクトル、γ線スペクトル、ICP-AES、ICP-MSを用いた測定の場合は、 分析対象の核種・元素の分離・単離を必ずしも必要としない場合がある。しかしながら、燃料 デブリは非常に多種多様な核種・元素・構成成分で構成されていることが予想される。従って、 例えば、測定対象外の核種・元素や高線量核種が多量に含まれる場合、調製サンプル溶液中に 多量に有機物が含まれる場合は、これらの妨害成分を除去する前段分離工程(粗分離)や、特 定の妨害核種・元素(分析対象核種の放射線エネルギーと近接したエネルギーを有する核種、 分析対象核種と同じ質量数を有する別元素核種、分析対象元素と化学特性が類似する元素、等) を除去するための分離(精製分離)の実施が必要となる。

上述の化学分離・サンプル調製プロセスの効率・回収率は、最終的な分析結果の測定精度に

大きく影響するため、当該プロセスの選定・最適化は非常に重要である。

(3) 金相観察(光学顕微鏡、デジタルスコープ)

分析項目の詳細

サンプル表面の状態を顕微鏡で観察することにより、サンプルの均質性、サンプル採取位置 から想定される状態(例えば溶融・凝固デブリや MCCI 生成物等)と実サンプルの合致性・類 似性、構造材料等混入の有無を簡便・迅速に判断、確認できる。これらの状態観察はより精緻 な機器分析や化学分析に先立って実施し、観察データを分析フローにフィードバックするため、 他分析よりも優先して実施すると良い。例えば、研磨断面の金相断面によりコリウム形成(全 溶融)の確認ができれば、燃焼率評価への反映が期待できるし、サンプルが団粒あるいは凝集 物の場合には、サンプルを代表する領域の設定に役立つと思われる。未酸化物質由来の水素発 生については、採取したサンプルの金相断面の分析により、残留する活性金属量を評価するこ とでサンプル全体としての潜在的な水素発生量の概算が可能となる。さらに、燃料被覆管、チ ャンネルボックス、制御材シース、炉心支持版、圧力容器下部ヘッド、制御棒案内管、ペデス タル内燃料デブリ境界付近のコンクリート、ペデスタル壁、格納容器内燃料デブリ付近格納容 器壁鋼材、冷却系配管及びそのフランジ部、シュラウド、原子炉容器上部構造材の観察により、 作業実施時点での各種構造材の健全性、事故進展過程における熱負荷や熱移行、酸化状態等、 原子炉容器内外の炉心溶融進展解明、ソースターム解明のための FP 放出移行挙動評価の前提 条件として寄与する情報を取得できる可能性がある。

粒子径の存在分布(粒子径分布)については、特に粒子状燃料デブリの取出し工程における 装置性能・フィルタ径の選定等に必要なデータであると考えられる。TMI-2においては、粒子 状燃料デブリの回収容器として、ノックアウトキャニスタとフィルタキャニスタの2種類が用 いられた [62]。これを踏まえ、1Fにおける粒子状燃料デブリ回収の際でも、粒径によって複 数フィルタメッシュの回収容器を用意し使い分けることが考えられる。その際は、事前に回収 場所に滞留する粒子状燃料デブリを取出しその粒径分布を測定することで、使用するフィルタ の径を事前選定、あるいは、使用中のフィルタメッシュの妥当性確認(粗すぎるものを用いて 取りこぼしが多数発生している可能性が少ない事の確認)等を行うことが考えられる。これら の寸法、粒径評価は、光学顕微鏡観察結果をもとに、画像解析による評価を行うことができる。 (μm から nm オーダーの測定精度があれば評価できる。)

サンプル表面の光学観察は、400 倍程度であれば数十 μm 以上の変化を観察できる。また、 近年、耐放射線性を維持し、800 倍程度まで観察できるレンズも市販されており、そのような 市販機器でも十分な分析感度が得られる。

表面状態(結晶粒の状態、空孔(空隙率あるいは気孔率)、クラックの状態、異種物質の含有等)の画像解析が必要な場合には、デジタルカメラ画像を用いた画像処理システムを導入する ことで対応できる。

なお、粒子径の分布評価が顕微鏡観察において困難である場合、粒子径分布が直接測定可能 な湿式レーザー回折装置の導入について、燃料デブリ等への適用性を考慮する必要があるもの のオプションの一つとして考えられる。空隙率(気孔率)の評価について、概ね 100µm 以下 の気孔については、EPMAや SEM 画像の解析結果を併用する方法も考えられる。

(4) 微細構造、構成元素 (SEM、EPMA)

分析項目の詳細

サンプル調製を行った燃料デブリサンプル表面の微細構造、構成元素分布の情報は、取出し、 臨界安全、保管管理、ソースターム評価といった幅広い分析ニーズに対応する。燃料取出し作 業においては、臨界安全、切断時の α ダスト、Pu・Am・残留 FP 評価、取扱い安全性・作業 性評価、冷却対策等、多くの評価項目において必要な分析である。核燃料物質管理、臨界安全 対策では Eu、Cm、Nd 等の U、Pu への随伴性評価、Gd、B 組成、炉内構造材料組成評価の ために必要な情報とされ、核燃料物質評価法、収納缶の臨界安全設計、保管施設の発熱評価に 用いられる。燃料デブリの化学的安定性、経年変化においては、元素組成の評価のほか、粒度 分布評価への寄与も期待される。サンプル表面の状態・微細構造の情報については、各部燃料 デブリの他チャンネルボックス、燃料被覆管、制御棒シース材、グレーチング開口部周囲の反 応物、原子炉配管フランジ部シール材、貫通部樹脂等を対象とした観察により、原子炉容器内 外の炉心溶融進展解明や及びソースターム評価のための前提条件として資する情報を取得でき る可能性がある。

組織の微細構造観察では、サンプル表面の外観、空孔、クラックの状態を観察し、燃料デブ リサンプルの形状・形態情報の一部を取得する。空隙率(気孔率)を評価する際、金相観察に おいて観察が困難である微小な空孔、クラックの観察も考慮すると、観察は10µm単位まで行 えば、微細組織としての評価は十分と考えられる。一方、元素分析では、元素分布分析(マッ ピング)により、存在する燃料成分や、FP 核種、構造物成分の有無、及びそれらの空間分布 が確認できる。また、分析結果として得られる構成元素比から、サンプルが金属相か酸化物相 か、あるいは別の化合物かの推定が可能となり、以後の詳細分析のための一次情報となる。炉 心領域内、炉心支持板上、制御棒案内管内部、下部プレナム内、グレーチング、ペデスタルよ り採取したサンプルの元素分析により得られる燃料デブリの相状態及び組成(特に U、Zr、Fe、 O)は、SA コードによる解析において、特に溶融炉心形成時の温度・雰囲気条件、溶融炉心の 酸化の程度、溶融炉心下部移行中の組成、崩壊熱、ペデスタル移行後の溶融炉心拡がり挙動等 と比較・検討することで、原子炉容器内外の炉心溶融進展解明及びソースターム解明の最も重 要な基盤となる情報が得られる。分析対象元素は、軽元素の B から、アクチノイド核種である Cm 程度までを想定する。ここで求められる分析精度は、1%程度と考えられる。

サンプル表面の観察、元素分析に用いる機器としては、SEM や EPMA が挙げられる。SEM 及び EPMA は、真空中で対象物に電子線を照射したときに生じる特性 X 線や二次電子等を測定・分析する装置であり、いずれも顕微観察と元素分析の機能を有する。特性 X 線は電子照射 によって励起された原子から放出される X 線であり、元素に固有の波長(エネルギー)をもつ ことから、元素分析に用いることができる。この特性 X 線を利用して、1 次元的な線分析、2 次元的な元素マッピング分析が可能となる。

SEM による元素分析には一般的に EDX が用いられる。EDX は半導体検出器により特性 X 線をエネルギー別に計数するものであり、観察対象の全元素を同時に分析でき、迅速性に優れ

ている。一方で、EPMAによる元素分析にはX線分光結晶を用いたWDXが用いられる。WDX はほとんどの特性X線ピークを分離できるのに対し、EDXは分解能が低いためピークが重な る場合があり、予め含有元素を想定して波形処理によりピークを分離する必要がある。

なお、電子及び X 線検出器のいずれも、燃料デブリサンプルそのものからの高い放射線の影響でノイズを生じる。WDX の X 線検出器と二次電子検出器はサンプルからの直接の放射線を 遮蔽できるが、EDX の X 線検出器と反射電子検出器はサンプルを直接見通す位置に置く必要 があり、遮蔽することができない。

SEM は、観察画質が高く、広い範囲で簡易・迅速な観察が可能であるため、燃料デブリの 非均質性を考慮した広範囲な観察、分析が可能である。また、形状・形態観察では高倍率での 観察が可能であるため、性状が明確ではない燃料デブリの初期分析には有効である。EPMA 分 析では高い真空度が必要となるが、SEM 分析では条件によっては大気圧での測定も可能であ り、蒸発性の燃料デブリ表面付着物等、前処理工程で除去されない物質が存在する場合には、 SEM は安全性・信頼性が高い測定方法であると言える。

一方、EPMA は感度が高い定量分析手法であり、特に軽元素の分析に高感度が必要となる場合には非常に有効な手法である。

SEM、EPMA とも、電子線照射による予期せぬ物質の揮発・変性を考慮し、設計時に安全 対策(汚染対策やメンテナンス方法)を検討する必要がある。また、燃料デブリは高線量(γ 線)サンプルであることが予想され、サンプルの対面に検出器が配置される SEM では、特に 検出器への遮蔽対策が必要となる。さらに耐震上、装置全体の固定が必要となる場合は、防振 構造との兼ね合いを考慮する必要がある。

電子像観察に関する SEM と EPMA の差(倍率、観察画質)を埋めることは難しい。一方、 元素分析においては、EPMA に EDX を追加することで、迅速な元素スクリーニングが可能と なり、WDX を補完する効果が期待できる。一方、SEM に WDX を用いることで、線量に対す る脆弱性の緩和、定量分析精度の向上等、EDX を保管する効果も期待できる。さらに、観察画 質を考慮し、入射電子線の輝度が高くかつエネルギー幅(変動幅)の小さい FE型の EPMA を 選択することも考えられる。

主な分析装置の概要

[EPMA-WDX]

- ・標準の画像取得範囲:約120 µm×90 µm
- · 倍率:~10万倍
- ・WDX 測定元素: B~Am (Pu, Am 分析については[63]参照)
- ・WDX 定量分析感度:100 ppm
- ・軽元素分析感度:1wt%
- ・分析精度:~1%(標準サンプル)

[SEM-EDX]

- ・標準の画像取得範囲:約120 µm×90 µm
- ・倍率:~100万倍

- ・EDX 測定元素:B~U
- ・EDX 定量分析 感度:2000 ppm
- ・軽元素分析感度:5wt%
- ・分析精度:~1%(標準サンプル)

(5) 化合物・相の定性分析(赤外分光・ラマン分光、HAXPES、STXM)

分析項目の詳細

燃料デブリを構成する物質の化学状態を評価できれば、中長期の保管方法、処理処分方法の 検討、選定において、有用な情報となる。また、付着 FP 等の化学状態の情報は、再浮遊や除 染性の評価において重要であり、ソースターム高度化のみならず燃料デブリ取出し時の放射性 物質濃度変化評価等のための基礎データとなり得る。赤外分光・ラマン分光による分析では、 SEM-EDX 等の元素分析と組み合わせ、さらに PXRD 等から得られる化合物・相情報と相補的 に用いることで、燃料デブリの化学構造を確認することができる。特に、燃料デブリは燃料や 構造材料に由来する元素を含む、様々な化合物の混合物と考えられ、マトリックスの複雑さや 非晶質相形成のため PXRD による相同定が困難な場合が考えられる。このような場合には、前 述 XAFS 法による局所構造解析に加えて、赤外分光・ラマン分光が有効と考えられる。さらに、 収納容器の腐食評価に資する知見、情報として、燃料デブリ中、及びその周辺の液相中の pH、 Cl イオン濃度、窒素酸化物濃度に関する分析のうち、赤外/ラマン分光による液相中の窒素酸 化物濃度分析が考えられる。これら燃料デブリ等の化学状態に係る情報は、基本的には SEM-EDX、TEM-EDX 及び元素分析等により評価されるため、必須ではないものの、より精 緻な情報として有用なものとなり得る。

赤外分光・ラマン分光は、分析に赤外光を用いるか、可視光を用いるかという点で異なるが、 分析サンプルの振動スペクトルを取得するという点で共通することから、まとめて記載する。 赤外分光では、サンプルに赤外光を照射した際に、サンプルに含まれる化合物の振動エネルギ ーと一致する波数の光が吸収されることを利用して、赤外領域の吸収スペクトルを測定する。 ラマン分光法では、可視光を照射し、その散乱光を測定した際に、サンプルに含まれる化合物 の振動エネルギー分だけ波長がシフトした散乱光(ラマン散乱光)が発生するため、これを分 光してラマン散乱スペクトルを測定する。これらのスペクトルは、化合物の振動に由来するた め振動スペクトルと呼ばれるが、赤外吸収とラマン散乱は発生原理が異なるため、必ずしも一 致しない。また、燃料デブリの分析に適用する場合、赤外光・可視光に対して不透明なサンプ ルと考えられるため、表面分析、断面分析として用いることになる。表面/断面分析を行う上で、 ラマン分光は散乱光の分析であるため測定上の特別な工夫は必要ないが、赤外分光では反射法 を用いる必要がある。現在ではプリズムを用いた全反射法(ATR 法)が、前処理をほとんど要 しない簡便な反射測定法として普及している。

燃料デブリの分析において赤外分光・ラマン分光を適用する利点として、PXRD では同定が 難しい非晶質相の化学形態を分析可能な点が挙げられる。これは、赤外分光・ラマン分光では、 物質の単距離秩序に由来する振動モードを検出するため、結晶性(長距離秩序)を有しないサ ンプルにも適用できるためである。また、赤外光・可視光を用いる分析であるため、顕微光学 系の導入が容易であり、複雑なマトリックスの分析にも威力を発揮する。共焦点光学系を利用 した顕微分析装置であれば、汎用装置でも空間分解能1μmを有する。これを利用して、面分 析測定を主成分分析で処理することにより混合物中に含まれる化合物の定性が可能である。

一方で、赤外分光・ラマン分光を燃料デブリの分析ルーチンとして利用する上では課題も残 されている。どちらの分析法も無機化合物の分析に一般的に利用されてきたが、燃料デブリ中 に含まれる化学形態を分析するためには、リファレンスとなるデータベースが整備されていな い。そのため、模擬デブリサンプルの分析等により、燃料デブリに含まれると想定される化合 物のスペクトルを取得し、データベースの構築を進める必要がある。

上記の赤外分光・ラマン分光と相補的な手段として、SPring-8の硬 X 線放射光を利用した HAXPES 測定がある。光電子分光は、サンプルに X 線を入射した際に放出される光電子の運 動エネルギーと信号強度から、含有元素の種類及びその原子価情報を取得できる手法として広 く用いられている。この手法は赤外分光・ラマン分光と同様、結晶性を有しないサンプルにも 適用できる。通常の光電子分光では Al、Mg 等の特性 X 線である 1 keV 付近の入射光を用いる ことから分析深さが浅く、表面から数十 nm 程度の領域の分析に限定される。一方、HAXPES では数 keV 以上の硬 X 線を用いることで数百 nm 以上のバルクの情報を取得でき、又、表面の C、H2O 等の吸着成分の影響も無視できる。燃料デブリには、燃料由来の U や Pu の他、構造 材やコンクリート壁等からの様々な元素が混入している可能性が高く、それらの存在量が微量 であったとしても、高輝度放射光 X 線を利用することで、それらの微量元素に対しても高い分 析感度で光電子分光測定が可能となる。このように、将来的には、SPring-8 の集光放射光ビー ムを利用すれば、μm レベルの空間分解能を実現する可能性が期待できる(μ-HAXPES)。

また、放射光を用いた STXM も化合物・相の定性分析のための有力な分析手法である。この 手法では、ゾーンプレートにより放射光 X 線をナノオーダーの微小サイズに集光し、サンプル を 2 次元的に走査しながら X 線吸収スペクトルを取得する。結果、数十 nm 程度の高い空間分 解能で、極微細領域の電子・化学状態を評価することができる。

以上の放射光を用いた分析に必要と考えられる試料の絶対量としては、痕跡量(~fg)オー ダーで目的元素の検出が可能である。放射光を用いた分析に至る過程において、SEM 等との 連携により測定部位を選択することが望ましい。

② 主な分析装置の概要

【ラマン分光】

・光学系 測定波数範囲:50~8000 cm⁻¹、10~8000 cm⁻¹(低周波測定ユニット)
 (532nm 励起時、ラマンシフト値)

・搭載レーザー:He-Cd レーザー (325 nm: 20 mW、442 nm: 80 mW)
 固体ブルーレーザー (488 nm: 50 mW)
 固体グリーンレーザー (532 nm: 100 mW)
 He-Ne レーザー (633 nm: 17 mW)

・分光器:f=300 nm シングルモノクロメータ

600 gr/mm、1800 gr/mm 及び 2400 gr/mm グレーチング

- ・検出器: 2048×512 ピクセル CCD 検出器
- 測定部:

顕微鏡光学系:共焦点光学系

対物レンズ:5 倍、20 倍、100 倍、250 倍、紫外用 40 倍

【FT-IR (フーリエ変換型赤外分光)】

- •SN比:60,000:1
- ・分解能:0.25 cm⁻¹
- 測定回数:20回/秒

[HAXPES]

- ・入射光エネルギー: 4~10keV (選択可能)
- ・分析範囲:1mm 角程度、集光光学系の利用により数 µm 角程度
- ・分析感度:存在比 0.02 at%程度:含有元素に依存
- ・対象元素:He以降の全ての元素

[STXM]

- ・空間分解能:25 nm
- ・画像取得範囲:100 µm×100 µm
- ・サンプル雰囲気:窒素ガス、ヘリウムガス

(6) 結晶構造・相同定 (PXRD、XAFS、TEM-EDX)

分析項目の詳細

燃料デブリ取出し及び臨界安全対策に寄与することを考慮すると、核分裂性核種(²³⁵U、 ²³⁹Pu)の非破壊同定、存在分布・密度、化学形(酸化物、金属の状態で存在しているかどうか) を確認することが重要となる。長期保管やインベントリ把握の点においても長期健全性評価に 重要となる化学形、凝集状態を把握することが必要である。併せて、燃料デブリ中の結晶性の 有無、相界面での化学結合状態、構造解析が必要となる。炉内では、領域によって存在する燃 料デブリの形態が異なることが予測される。従って、ある領域の取出しが開始された後、その 分析した結果が重要な情報として他領域の取出し作業にフィードバックできる可能性が高い。 化学形や構造解析のためのデータについては、5 mm 程度のサンプル全体を一括して分析でき ることが望ましく、その際の非破壊分析の分析精度としては数%オーダーで問題ないと考えら れる。

PXRD は、サンプルに X 線を照射した際に起こる X 線の回折現象を測定・解析することに より、サンプルを構成する結晶相(化合物)の同定、結晶構造、結晶粒分布、残留応力等の情 報を得る分析手法である。燃料デブリ取出し、保管管理及び処理処分ニーズに係る分析におい ては、燃料デブリの結晶相の同定は SEM/EDX により行うため、PXRD は必須ではないが、事 故原因の究明に係る分析においては、相状態が未知の試料も分析対象とするため、PXRD によ る分析が重要である。PXRD はバルク相に対する分析であり、微量成分・不純物を主分析対象 とするものではない。上位機種では照射径を 0.1 mm 程度まで絞り込んで分析可能なものがあ り、微小領域に偏在する不純物等の分析に用いることもできるが、通常は 10 mm 程度のサン プル全体を一括して分析するものである。このため、サンプルサイズが比較的大きな燃料デブ リサンプル(~10 mm)については PXRD が適当であるが、サンプルサイズが小さく(~数 mm以下)かつその燃料デブリサンプル内に複数の結晶相が存在する場合、微小な各相の結晶 構造の同定を行うためには、特定の位置をスポット的に選択して複数の特定エリアに対する詳 細な観察・分析が必要となる。

このような微細組織部の空間分解観察・分析には、SPring-8の集光放射光ビーム利用した構造解析(µ-PXRD)が利用可能であれば有効である。µm サイズの集光 X 線ビームを利用することで、局所領域の回折測定を実施し、跡量(~fg)オーダーの試料量で結晶構造・相状態を選択的に分析することができる。

一方、微量領域の観察・分析には TEM も有効である。この手法ではサンプルに対して電子 線を照射、透過した電子を測定し、固有のブラッグ反射条件を持つ各結晶相の電子回折図形を 捉えることで、各結晶相の結晶構造が同定可能な装置である。また、TEM 付属の EDX 装置に より、各結晶相の構成元素の定性分析及び元素マッピングが可能である。なお、TEM 内に導 入するサンプルは、FIB により薄片加工(数 µm×数 µm×数 100 nm 厚さ)された極めて小さ なサンプルであり、これまでの放射化金属サンプルの EDX 分析の実績を踏まえると、サンプ ルからの放射線による影響は小さいと考えられ、定性分析は問題なく行えるものと考えられる。

燃料デブリは結晶と非晶質物質が混合していることが予想される。結晶相については上記の PXRD、μ-PXRD、TEM でその構造を同定できるが、非晶質相の分析には回折現象を利用した 分析手法を利用することはできず、別の手法が必要となる。例えば、SPring-8 の放射光 X 線 を利用した X 線吸収微細構造(XAFS)分析は、非晶質相の分析に有効な手法の一つである。 この手法は元素選択性が高く、X 線吸収原子周囲の局所構造に関する情報を得ることができる ため、この手法が利用できれば長周期構造に乏しい非晶質物質のようなサンプルにも適用可能 である。また集光放射光ビームを用いることで、μm の分解能での空間分解測定も可能となる ことが期待される(μ-XAFS)。

高線量の廃棄物の暫定的な保管あるいは将来の恒久処分にあたって、化学変化によるリスク を把握した対策を検討するために、含有成分の化学形態を分析するニーズがある。燃料デブリ は様々な化合物の混合物と想定されており、その相同定・構造解析は容易ではないが、上述の PXRD、μ-PXRD、TEM 及びμ-XAFS を組み合わせ、サンプル中に含まれる各成分を総合的に 分析できれば、燃料デブリ中の各成分の組成・構造を把握できる可能性がある。例えば、U や Pu がどういう化学形態にあるか調べることで、保管中や処分後の条件下での挙動を「臨界安 全評価に必要となると考えられる化学形」という観点から検討するための情報となる。また、 「長期健全性評価に必要となると考えられる化学形態」の観点からは、燃料に限らずそのほか の構造材に由来する物質も含めて化学形態に関する情報を取得することも重要と考えられる。

主な分析装置の概要

[PXRD]

・定性分析(バルク成分、不純物等、ただし微量では測定困難)

・集光 X 線源を利用した微小領域 μ-PXRD (μm 程度の微小領域の成分分析・相同定)
[TEM-EDX]

- ·結晶構造同定(電子回折図形)
- ・定性分析(元素分析 wt%、 at%)
- ・TEM 粒子像分解能: 0.2 nm 程度
- 高倍率:~100万倍
- ・標準の画像取得範囲:約1µm×1µm
- ・EDX 定量分析 感度:2000 ppm
- ・EDX 測定元素:B~U
- ・軽元素分析感度:5wt%
- ・分析精度:~1%(標準サンプル)

[XAFS]

- ・元素選択的価数分析:1 ppm 程度まで(理想条件:対象元素に大きく依存)
- ・元素選択的局所構造分析:10 ppm 程度まで(理想条件:対象元素に大きく依存)
- ・適用可能元素:主に Ti 以上
- ・集光光学系を利用した場合の空間分解能:1 μm

(7) 密度測定(見かけ密度、かさ密度)(液浸型天秤)

分析項目の詳細

燃料デブリ取出しに向けて、燃料デブリの臨界安全は最も重要な検討項目の一つとされてい る。同じく、燃料デブリを収納する収納缶の設計、許認可において、容器収納・保管時の臨界 安全評価は重要な検討項目の一つである。これらの評価の基礎データとして、燃料デブリの核 分裂性核種の量、中性子毒物の混入程度、燃焼率とともに密度の情報が必要であると考えられ る。さらに、燃料デブリサンプルの密度が評価できれば、燃料デブリの機械的性状を把握し、 取出し工程(切断及びサンプル採取方法の選定・最適化等)にフィードバックすることも可能 である。TMI-2における取出し作業ではボーリング装置が用いられたが、その先端部(ビット) の種類・材質の選択に当たっては、TMI-2のように、事前の分析に基づく情報に依らず選択す る、という手段もあり得る。しかし、事前に分析できる場合には、そのサンプルから得られる 情報に基づいて選択することが有効になる。

燃料デブリは、非均質であることが想定されるため、均質物質の測定に比べ誤差が大きくな ると考えられる。すなわち、燃料デブリサンプル表面にある細孔(開気孔)のみならず、内部 の閉気孔を考慮に入れる必要があると考えられる。一般に、均質部分の密度(真密度)に対し て、内部の閉気孔を含むものを見かけ密度、内部閉気孔と表面の開気孔も含むものがかさ密度 とされ、真密度に対して、見かけ密度、かさ密度の順に密度値が小さくなることに留意する必 要があると言われている。かさ密度は、ある容器に粉体等の対象試料を入れ、タップあるいは 静置した際の容器体積を基に求める密度である。

真密度測定は、一般にピクノメータが用いられる。比重瓶(ピクノメータ)に分散媒を入れ、 その後ある液面まで液を足して重量を量り、そのときの液温を計るという方法で密度を求める。 そのため、内部の閉気孔が反映されない方法である。また、気体(He ガス)を用い、圧力と 体積を変化させてサンプルの体積を求め、重量を測定し、求めるガス置換法を利用した装置も 利用されている。

一方、燃料デブリ非均質であるため、そのマクロ的な密度測定の一つに、液浸法がある。液 浸法とは、サンプル表面をぬらしやすい浸液に浸し、空気中での試料重量と浸液中でのサンプ ル重量を測定し、アルキメデスの原理を使って浮力よりサンプルの体積を求め、サンプルの密 度を評価する方法である。液浸法で測定される密度は、みかけ密度に近い密度となる。JAEA の燃料試験施設では、照射済燃料を対象に微小試料密度測定装置が開発され、φ3×1tのサイズ の試料において確度1%T.D.以内(理論密度との比率)かつ精度1.0%以内(平均密度地に対 する標準偏差の割合)を目標として開発が行われた実績がある[64]。

燃料デブリ内部全体の相状態への反映には多くの分析データが必要であるが、できるだけ均 質な部位の微小サンプリングでの測定を前提とする場合、そのベースとなるデータは、サンプ ル重量を数十mgと想定すると、秤量限度 0.01 mgレベルの分析感度で測定を行う必要がある。

② 主な分析装置の概要

【密度測定装置(液浸型天秤)】

- (a) 40 g レンジ
- ・秤量範囲:0~41g
- ・読取り限度:0.01 mg
- ・再現性:0.02 mg
- ・直線性:±0.03 mg
- (b) 200 g レンジ
- ·秤量範囲:0~205g
- ・読取り限度: 0.1 mg
- ・再現性:0.1 mg
- ・直線性:±0.2 mg

なお、必須ではないが、X線 CT 装置による非破壊での密度分布分析ができれば、分析の効率化に役立つ可能性が考えられる。例えば、2.2.1項に記載した、臨界安全評価に係る塊状燃料 デブリの複数断面切断と金相観察による SEM-EDX 等の分析部位特定について、X線 CT 装置 による空間分解能 1 mm 以下/密度分解能数%程度の非破壊密度分布測定により代替すること 等が考えられる。

- (8) 定性分析 (XRF)
- 分析項目の詳細

燃料デブリ中に含まれる B は、硬く複雑な化学状態である可能性が高いことから、燃料デブ リ取出しにおいて注目すべき元素の一つである。また、取出した燃料デブリを収納する収納缶 の設計、許認可において、容器収納・保管時の臨界安全を評価するための基礎データとなる。 この B 濃度の定量を非破壊で行える装置として XRF がある。 XRFは、サンプルにX線を照射した際に発生する2次X線を計測し、そのX線のエネル ギー(波長)及びその強度から、サンプル中に含有されている元素の種類(定性)及び定量を 行う分析手法である。蛍光X線の強度は目的元素の種類・数量及び化学状態、共存元素のエネ ルギーとの関係に依存するため、定量には同材質の標準サンプルによる検量線を必要とするが、 燃料デブリの分析では標準サンプルの準備が困難である。組成が未知のサンプルに対しては、 全ての蛍光X線強度から計算により組成を推定する手法(ファンダメンタルパラメータ法)が あるが、正確さは低く半定量分析となる。

分析対象としてステンレス鋼の成分(Fe、Cr、Ni等)を考えるとき、UO2 が主成分の燃料 デブリでは、ステンレス鋼成分元素からの蛍光 X線は U からの蛍光 X線によって遮蔽・減衰 される。そのため、ステンレス鋼成分元素の感度が悪くなり、各元素が 0.5%以上存在しない と分析が難しくなることが予想される。同様に、Bの場合、通常は5%程度の含有率を超える 場合のみ分析可能であることに留意する必要がある。このように、固体サンプルで、%オーダ ーの含有量の元素を迅速に定性もしくは半定量するスクリーニング用途として XRF は有用で ある。

なお、検出器としての EDX は、燃料デブリサンプルからの放射線による影響が大きくなる ことが予想され、一定量を超える燃料デブリサンプルを取扱う場合には採用できない可能性が 高い。EDX はサンプルの主要な構成元素の定性及び半定量分析という用途に対しては検出感度 が高いという点はあるが、XRF の装置構成としては、波長分散型の WDX が望ましいと考え られる。

また、将来的に SPring-8 の放射光 X 線を利用して XRF を行うことができれば、その高い輝 度を活かすことで、はやぶさプロジェクトにおける粉塵サンプルの分析のように、極微量の元 素の検出も可能となる。さらに、X 線検出器の前段にラウエ結晶等の分光器を設置すると、燃 料デブリのように多元素が混在し、測定対象元素以外の共存元素からの信号が大きい(バック グランド信号が非常に高い)サンプルの測定でも、痕跡量(~fg)オーダーで目的元素の分析 が可能となることも期待される。

主な分析装置の概要

[XRF]

- ・元素(成分)分析 10~100 ppm オーダー
- ・セル部のみグローブボックス・セル内に設置
- ・セル用: SUS 製 160 kV までの W ターゲット X 線管球使用、検出器 HPGe 検出器 (プレ ーナータイプ) U、Pu (K_α 線測定)
- ・グローブボックス用: Be 窓でグローブボックスの境界 60 kV Rh ターゲット X 線管球、 波長分散型、検出器ガス封入管検出器、U、Pu(L_α線、L_β線測定)

(9) 元素分析 (FP、構造材等の主要元素) (ICP-AES)

分析項目の詳細

燃料デブリ取出しにおける臨界安全評価に係る B、Nd 及び Gd の分析や、燃料デブリの切断 時 α ダスト、残留 FP 評価では、サンプルの平均的特徴の情報が重要となるが、サンプルが粉 末状、泥状等比較的小さな粒子の場合には、水溶液とした後に、そこに含有される対象元素の 濃度を評価する。また、経年変化における主要マトリクスの同定、中性子吸収材の分析におい て必要となる。またソースタームにおいては、制御ブレードからの B 放出挙動、FP エアロゾ ル生成・成長挙動の評価に際して、それぞれ B 残留量、エアロゾル中の FP 含有量の定量が必 要である。

ここで ICP-AES は、分析試料にプラズマのエネルギーを外部から与えると、含有されてい る成分元素(原子)が励起され、その励起された原子が低いエネルギー準位に戻るときに放出 される発光線(スペクトル線)を測定する方法である。発光線の位置(波長)から成分元素の 種類を判定し、その強度から各元素の含有量を求める。プラズマの生成には、アルゴンガスを 流し、トーチ管の先端部においたワークコイルに高周波電流を流し、トーチ管内に生成される 電磁場によりアルゴンガスが電離されプラズマを生成させる。このプラズマは高い電子密度と 高温(10,000 K)を持ち、このエネルギーにより試料を励起発光させる。多元素同時分析や逐 次分析(マルチチャンネル型、シーケンシャル型)が可能で、化学干渉、イオン化干渉が少な く、多くの元素が存在する試料の分析が可能である。また、検出下限は大半の元素に対して 0.1 ppm 程度で、測定可能元素が多いのが特徴である。

被覆管成分の主成分である Zr、構造材成分である SUS やインコネル等の金属成分の他、 MCCI に由来するコンクリート成分元素(Ca、Si)といった元素の高精度定量分析が可能であ る。これらの微量元素の定性・定量分析は、液体サンプルとして数 ppm オーダーで分析する ことが必要である。

主な分析装置の概要

[ICP-AES]

- ·測定可能元素:72元素程度
- ・波長取り込み方式:シーケンシャル型、マルチチャンネル型
- ・サンプル溶液中の元素分析レベル:ppb~1000 ppm
- ・ 検出限界:ppb レベル
- ・測定ばらつき:3%程度

(10) 溶出元素(Clイオン)(イオンクロマトグラフ)

分析項目の詳細

海水成分である塩素イオンは、構造材の腐食を促進する懸念がある。燃料デブリ取出しに与 える海水由来成分である残留塩素の分析により、その濃度や海水由来成分と核燃料や構成材料 成分の反応の有無を調べることで、燃料デブリ取出しに与える影響を事前に評価することは、 取出し設計に向けて重要な知見となる。また、SUS316 材を候補としている収納缶の腐食評価 や、ソースターム評価のための FP 化学形評価(揮発性が変化すること)における基礎情報と もなり得る。

燃料デブリ中の Cl イオンが収納缶等の金属材料に与える影響(腐食等)や環境因子へ与え る影響や、イオン自体に由来する化学反応による水の放射線分解と水素発生等、燃料デブリの 移送・保管への塩素成分の影響を評価するためには、燃料デブリ中の Cl の含有の有無及びそ の定量分析が必要であると考えられる。この分析結果は、燃料デブリ取出し後のサンプルの保 管の観点から必要になるだけでなく、燃料デブリの廃棄物処理処分においても有用な情報とな ると考えられる。これらの評価を行うためには、少なくとも ppm オーダーでの分析感度が必 要である。燃料デブリ中の塩化物イオンの定量分析方法として、一般的な軽元素の定量分析方 法であるイオンクロマトグラフが有効である。イオンクロマトグラフは液体試料中のイオン成 分(F、Cl等)を検出する手法である。固体(部材)表面に付着しているこれらの成分は、純 水に浸して抽出することで評価可能となる。一般的には、この溶離液を送るためのポンプ、イ ンジェクションバルブ、カラム、サプレッサー、電気伝導度検出器からなる。1 回の分析で複 数のイオン成分を同時に分析することが可能で、ppt~ppm レベルのイオン成分の分析が期待 できる。

② 主な分析装置の概要

【イオンクロマトグラフ】

- ・定量下限:25 ppm
- 分析精度:5%

(11) 有機物含有量(TOC)

分析項目の詳細

燃料デブリには、CRD に含まれる各種ケーブル類に由来する有機物成分が残存する可能性が 想定されており、燃料デブリ中の不純物として物質の安定性・反応性に影響を与える可能性が ある。燃料デブリの合理的な処理処分のため、処分環境条件に影響を及ぼす含有物質(影響物 質)の化学組成、量を把握し、信頼性の高い安全評価結果を示すことが必要とされ、その影響 物質の一つに有機物が挙げられている。また、ソースターム評価において、例えば PCV 内壁 面に付着したエアロゾルの性状、事故時状態を保持していると考えられる滞留水中に含まれる 物質を分析することができれば、事故時の PCV 内におけるヨウ素化学に関する情報の取得が 期待できる。その評価に資する分析項目の一つに、滞留水に含まれる有機物の濃度測定が挙げ られている。

燃料デブリ中の有機物は微量であることが考えられるため、比較的高感度・高精度な分析が 必要と考えられる。分析対象となる燃料デブリサンプルは固体であるため、導入機器の候補と しては TOC (全有機体炭素計)の高感度モデルが有用であると考えられる。一般的に TOC は、 水中の全有機体炭素を指し、TC (全炭素量)から IC (無機炭素量)を差し引いた量を TOC と している。燃焼触媒酸化法では、高温でサンプルを加熱し、触媒共存化で酸化燃焼処理を行い、 TC 量を測定しているが、固体サンプル中の TOC を測定するという場合、固体試料中の炭素を 完全に燃焼酸化させるために、固体試料燃焼装置を設置する等、導入には一定の検討を要する と考えられる。

② 主な分析装置の概要

[TOC]

- ・測定範囲:TC 0~30,000 mg/L、IC 0~35,000 mg/L
- ・検出限界:TC、IC 4 µg/L
- 【FT-IR (フーリエ変換型赤外分光)】
- SN 比: 60,000:1
- ・分解能:0.25 cm⁻¹
- ・測定回数:20回/s

(12) 核種分析 (B~Cm までの核種・同位体) (ICP-MS)

分析項目の詳細

U(5 核種)、²³⁷Np、Pu(5 核種)、Am や Cm 等のアクチノイド核種や同位体、FP、腐食生 成物に含まれる核種の定量データは、燃料デブリ取出し、保管管理、処理処分、ソースターム 評価等広範囲な分析ニーズに必要な基礎的データとなる。特に取出しにおける臨界安全のため の核種分析、燃料デブリ切断時の α ダスト、臨界対策における U・Pu 濃度及び同位体比、収 納缶設計に係る Eu、Cm、Nd や Gd、B 等の分析、発熱性核種の分析が必要とされると考えら れる。また、ソースタームにおいては、燃料デブリマトリクスの成分比、MCCI 構造物中の FP の量、構造材、R/B 壁面、床面、機器表面等に付着した FP の量、格納容器内面壁(ペイント残留 部及び剥離部)等に付着したエアロゾル、事故時状態を保持している滞留水等について ¹²⁹I の量等、 これらの分析値は、燃料デブリサンプルの固体物性測定、表面の構造解析、定性分析や放射線 計測データと併せて、挙動評価に用いられる。

ICP-MS は、ほぼ全ての含有成分を原子に分解し安定的にイオン化する誘導結合プラズマ (ICP) と質量分析計(MS)の組み合せにより、溶液中の元素をppt(1×10⁻¹²g/mL)からppq (1×10⁻¹⁵g/mL)まで分析可能である。燃料デブリ中に1µg/gしか含まれない核種が対象であ っても、試料1gを溶解して1000 mLの溶液に調製したときの濃度は1ppb(1×10⁻⁹g/mL) である。ICP-MS は数桁程度の異なった濃度の混合物試料でも分析できる。例えば、同一試料 で、ある元素は数 ppb 程度の濃度であり、他の元素は1万倍の10 ppm 程度の濃度であって も、同時に測定が可能である。これは試料中の多元素を同時分析するための必須の要件である。 ただし、目的とするおよその元素濃度を推測し、それぞれに適した検量線を作成する必要があ る。また、アルカリ溶融の前処理を前提とする場合、Na濃度が高く、希釈の必要性が高くな ると考えられるため、運用にあたっては事前の分離条件、希釈割合等の技術検討が重要となる。 一般的に ICP-MS の分析を妨げる要因としては、同重体イオンの干渉や共存物質の作用による イオン化効率の変化、コンタミネーションがある。同重体イオンに関しては、ガスとの衝突に より選別する技術(コリジョン/リアクションセル)や、さらに MSを1台追加した ICP-MS/MS が広く使われている。核燃料物質管理に係る破壊定量分析手法の開発ニーズにおいて、ICP-MS を用いた合理化定量分析法の検証や溶融塩を用いた燃料デブリの溶解の検証には、コリジョン/ リアクションセルによる同重体の影響除去効果の確認が必要となる。

一方、U、PuやNdの測定においては、同位体希釈法が用いられる。本法は、目的元素の濃度定量のために、同じ元素でありながら、目的元素の同位体比と大きく異なった同位体比をもつ物質を既知量添加し、混合物の同位体比を測定する手法であり、添加した物質の濃度と同位体組成、目的元素の同位体組成から、目的元素の濃度を計算できる。この手法は分析試料からの完全な目的元素の回収を必要とせず、濃度は同位体比から計算されるため、高精度・高確度の分析結果が得られる。

なお、元素分離やイオン化条件の検討が必要となるが、TIMS も核種によっては ICP-MS の 代替手段となり得、条件によってはより高精度なデータ取得も望める。TIMS は、測定対象元 素を金属フィラメント(レニウムやタングステン等)に直接塗布し、真空下で加熱することで イオン化させ、イオン源に導入・加速したのち、磁場又は電場を通過させることでイオンをそ の質量電荷比によって分離し、直接検出する装置であり、U、Pu、希土類元素等の同位体希釈 法による高精度同位体組成測定が可能である。測定においては、測定対象元素以外の元素が共 存するとイオン化への妨害や、また、同重体の共存においては測定結果に正の誤差を与える要 因となるため、測定前処理として元素分離工程が必要となる。TIMS による U や Pu の詳細測 定結果は、燃焼率評価のモニター核種である FP の Nd の分析結果と併せ、照射済燃料の燃焼 率評価、炉心計算コードへのデータ提供に用いられている [65]。

② 主な分析装置の概要

[ICP-MS]

- ・質量分析部:四重極 MS
- ・検出レベル: 12-15 ng/mL 程度まで測定可
- ・分解能:1amu
- ・ばらつき: 0.2% (存在比 1:1の場合、5回測定時)
 - : 3.2% (存在比 1:100000 の場合、5回測定時)

(13) α 線放出核種分析 (U、Np、Pu、Am、Cm) (α 線スペクトロメータ)

分析項目の詳細

燃料デブリサンプルにおける α 線放出核種は、U から Cm に至るアクチノイド核種が主な 分析対象核種である。保管管理のみならず収納缶設計における臨界安全対策でも同様に U、Pu の組成データが必要であると考えられる。収納物中に含まれる水素発生に寄与し得る核種の一 つとして、α 線源の測定が必要であると考えられる。一方、ソースターム評価において、燃料 破損・過熱時の燃料からの FP 放出挙動の解明に資するため、燃料サンプルの一部を溶解して 核種分離を行い、U、 Pu、 Am 等のアクチノイド核種、Nd 等の燃焼率指標核種の定量が重 要とされる。放出 FP の被覆管による化学トラップ挙動、炉心溶融物等からの FP 放出挙動及 び MCCI 時/生成物からの FP 放出挙動評価におけるアクチノイド核種の分析も同様である。さ らには、Am 等は揮発性が U と異なるため、燃料デブリ切断時の揮発、炉心溶融進展解明、ソ ースターム評価のための基礎情報となる。

α線のエネルギースペクトルを測定して核種を同定し、さらに定量することを目的とする α 線スペクトロメータを用いる。α線スペクトロメータは、その用途は ICP-MS や TIMS、放射 能計測と同じ場面において、並行してあるいは補完的な位置づけとして必要な分析項目とされ るものと考えられる。一般に、放射線検出器、プリアンプ、アンプ、波高分析器等で構成され る。検出器にはシリコン半導体検出器が用いられる。アクチノイド核種の α線エネルギーは、 概ね 3~6 MeV の範囲であるが、通常の照射済燃料組成の場合、半減期の長い U、Np は、Pu、 Am 及び Cm に対して検出が難しくなる。これは、サンプル中のわずかな不純物により、α線 スペクトルのピークにエネルギー減衰によるテーリングが観られ、その結果微小ピークの検出 が難しくなり、測定誤差要因となる。さらに、²³⁸Pu と²⁴¹Am、²³⁹Pu と²⁴⁰Pu、²⁴³Cm と²⁴⁴Cm は α線エネルギーが近接しており、ピーク分離が困難な複合スペクトルとなるため、それぞれ の核種を定量するためには、質量分析の結果との組み合わせる必要がある。α線スペクトル別 定による核種の分析精度は、通常 10%程度と考えられる。さらに高精度なα線スペクトルの 分析には、測定対象のα線放出核種を測定前に分離(事前の化学分離処理)する必要がある。

α 線放出核種(特にアクチノイド核種)の有無の確認及び定性分析が重要な場合は、α 線ス ペクトロメータによる分析は比較的簡便な方法であり、スクリーニングとしての利用も考えら れる。

② 主な分析装置の概要

【*α*線スペクトロメータ】

- ・検出器:シリコン半導体検出器
- ・測定レンジ:3~6MeV
- ・測定誤差:~10%程度

(14) β 線放出核種分析 (³H、¹⁴C、⁶³Ni、⁹⁰Sr、⁹³Zr、⁹³Mo、⁹⁹Tc、等) (LSC)

分析項目の詳細

燃料デブリの主な水素発生源としては、冷却水の放射線分解が考えられる。この核種の濃度 情報から、放射線分解で発生した水素の滞留も概算できる。取出した燃料デブリを収納する収 納缶の設計、許認可においては、水素爆発の可能性を評価する必要があると考えられ、この水 素発生に寄与しうる β 線源の一つとしての β 線放出核種が重要となる。また、 90 Sr (90 Y)の 崩壊熱にともなう発熱量の評価も同様に収納缶設計には重要であり、この発熱量評価から冷却 能力が確認できる。燃料デブリ収納時の管理においても同様であり、乾燥処理を行わない場合 には水素発生について、また、発熱核種として 90 Sr (90 Y)のインベントリ評価が重要となる。

現在、燃料デブリは廃棄物として扱われていないものの、長半減期核種が相当量含まれていることから地層処分対象であること、また膨大な量で発生すると思われる廃棄物の処分を考える必要があり、その際には精度の高いインベントリ情報が必要である。このようなインベントリ提示のため、1F サイトの放射性廃棄物の分析・研究施設では、重要と考えられる 38 核種を 選定しており、その中には β 線放出核種として、³H、¹⁴C、³⁶Cl、⁶³Ni、⁷⁹Se、⁹⁰Sr、⁹³Zr、⁹³Mo、 ⁹⁹Tc、¹⁰⁷Pd、¹³⁵Cs、¹⁵¹Sm が提示されている [30]。これらの核種を全て分析するかどうかは 今後の検討が必要である。

β 線放出核種の総量を把握するためには、LBC が用いられる。LBC には 2 つのカウンタ (GM 計数管) があり、一方のカウンタだけで測定される対象試料の β 線と、両方のカウンタで測定 される宇宙線等のバックグラウンド分を同時計測し、その差し引きで試料からの全 β 線を評価 するものである。

ー方、90Sr 等、特定の β 線放出核種を定量分析するには、対象核種を単離した後、LSC を 用いるのが一般的である。放射線と物質との相互作用の中で励起された原子や分子が基底状態 に戻る際、特定の波長の光(蛍光:Scintillation)を放出する物質をシンチレータというが、 この液体を対象とするサンプルと直接混ぜ合わせ、そこから発生するシンチレーション光を測 定する。混ぜ合わせた試料は専用の小型のビン(バイアル)に入っており、そこから出るシン チレーション光を、光電子増倍管にて測定する。液体シンチレータは放射性物質の周囲を包囲 しているため、4π 方向(サンプルの全方向)からの放射線を測定することができる。これによ り、直接放射性物質の濃度測定が可能となる。ただし、目的とする測定対象元素を単離するた めの化学分離が必要である。63Ni 等の核種によっては複数の分離プロセスを必要とするものも ある [61]。また、同分析法は誤差が 5%~10%となるため、ICP-MSでの測定も期待される。 ICP-MS を用いると、 β 線放出核種分析のみならず、事前の分離作業の合理化が図れる可能性 があり、今後の技術開発が期待される。

なお、LSC を用いて全 α 放射能測定が可能である。 α 線と β 線によるパルスの減衰時間 が異なることを利用する α/β 波形弁別法を適用することにより、ZnS(Ag)シンチレーション 計数装置及び 2n ガスフロー計数装置に比べ、さらに 1/3 程度レベルまで定量できる。核種に 関する情報は得られないものの、測定試料の調製が容易である等、 α 線放出核種の迅速な測定 に利用できる[66]。

(15) γ 線放出核種分析 (⁴¹Ca、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、¹⁵²Eu、¹⁵⁴Eu、⁵⁹Ni、⁶⁰Co、⁹⁴Nb、¹⁵¹Sm 等)
 ① 分析項目の詳細

被ばく管理や被ばく低減対策のためには、燃料デブリ取出し時や汚染の遊離による格納容器 等バウンダリ内の放射性物質濃度変化等を評価することが重要であり、¹³⁷Csに加えて、FP核 種についても可能な限り分析を行う必要があると考えられる。エアロゾル形状・寸法や構造材 表面酸化状態(相状態)、表面ふき取りや除染材による除染試験、水への浸漬試験に関して、 FP 浸出率等の分析が必要であると考えられる。収納物中に含まれる水素発生に寄与し得る核 種として、また、当面(数十年間)のγ線量率と崩壊熱は、主に¹³⁷Cs(^{137m}Ba)、⁹⁰Sr(⁹⁰Y) で決まることから、γ線源としての測定が必要である。発熱量に関しては、収納缶設計におけ る発熱量から冷却能力の確認を行うためにも必要となると考えられる。ソースターム評価では、 低温での Cs の物理・化学吸着挙動やエアロゾル移行、水相における FP の放出移行挙動の解 明に向け、ペイントやコンクリートサンプル、R/B 壁面、床面、機器表面等からスミア法やコ ア抜き等により採取したサンプル及び水中から採取したスラッジ等に対しては放射能分布のた めにγ線放出核種の測定が必要となる。 γ線スペクトロメータは、γ線のエネルギーを測定する装置である。γ線が物質中を通過 するとき、光電効果、コンプトン散乱、電子対生成によって物質中の電子に与えるエネルギー はγ線のエネルギーと一定の関係にあるため、電子のエネルギー分布を固体検出器、比例計数 管、シンチレーションカウンター等により測定してγ線のエネルギーを求める。高分解能の半 導体検出器が使われることが多い。γ線スペクトロメトリは、γ線の透過力が高く自己吸収が 少ない、試料の化学分析のための前処理を必要としない、エネルギー分解能が良い検出器を用 いれば核種の同定が容易等の利点から、応用面が広い。γ線は単色スペクトルで、放射性核種 が放出する主なγ線のエネルギー範囲は5keVから4MeV程度である。検出器としては原子 番号が高いものが適しており、NaIかCsIのシンチレーション検出器、ゲルマニウム(Ge)半 導体検出器が用いられる。照射済燃料等に含まれる主要なγ線放出核種については、通常の 40keV~2MeVをカバーする半導体結晶を用いればよく、分析精度としては3~10%程度が期 待される。

エネルギーが低い γ 線放出核種を測定する場合には、0~数 100 keV のエネルギー範囲をカ バーする Ge-LEPS を用いる。特に、50 keV 以下のエネルギーの γ 線放出核種に対して、良 好なエネルギー分解能を有する。廃棄物処理処分において重要と考えられる 38 核種の一つで ある ⁴¹Ca は、エネルギーが 3.3 keV と非常に低いため、放射線計測を行う場合には Ge-LEPS が用いられる。1F 廃棄物に含まれる ⁹³Mo、¹²⁶Sn を想定した分析技術開発が行われており、 その定量に Ge-LEPS が使用された報告がなされている[67]。

溶液サンプルについては、被ばく・バックグラウンド低減の観点から、高線量核種の化学分離や濃度調整等の事前処理が必要となる。

廃棄物処理処分やインベントリ評価を行うためには、分析精度を 3~5%程度まで向上させる 必要がある。なお、γ線放出核種は比較的測定しやすいやため、β線放出核種等測定のための 化学処理に時間を要する核種との比(相関)を予め求めておくことで、モニター核種となり得 るため、廃棄物インベントリ評価やソースターム解明に資するものと考えられる。

主な分析装置の概要

【 γ 線スペクトル測定装置】

- ・測定誤差: 3~10 %程度
- (放射線計測として、一般的な測定誤差は10%程度。サンプル調製技術により、低減は可能だ と思われるが、それでも3%を切ることは難しい。)
- ・検出器:高純度 Ge 半導体検出器(HPGe)

低エネルギー光子検出器 (Ge-LEPS)

・測定エネルギー範囲:HPGe: 40 keV~10 MeV

Ge-LEPS:数keV~数100keV

・標準エネルギー分解能:HPGe:1.75~2.3 keV (1.33 MeV)

Ge-LEPS : $200 \sim 500 \text{ eV}$ (5.9 keV)

(16) 線量分布 (イメージングプレート)

分析項目の詳細

燃料デブリの取出しにおける臨界安全評価では、サンプルの平均的特徴の情報が重要となる。 サンプルが粉末状、泥状等比較的小さな粒子の場合には、イメージングプレートにより、試料 全体での放射性物質(Pu、Am、FP等)の分布を調べ、構成相ごとに対象とする分析部位の同 定を行うことができれば、分析を効率的に進めることができる。ソースターム評価では、低温 での Cs の物理・化学吸着挙動やエアロゾル移行、水相における FP の放出移行挙動の解明に 向け、ペイントやコンクリートサンプル、R/B 壁面、床面、機器表面等からスミア法やコア抜 き等により採取したサンプル及び水中から採取したスラッジ等に対しては放射能分布の測定に イメージングプレートの使用を想定する。このように、線量が低く測定室で扱うことができる レベルのサンプルに適用可能で、全体の線量分布の把握、取得位置、分析箇所の特定や詳細分 析前のスクリーニングとしての機能を有する分析項目である。

イメージングプレートは、輝尽性発光体という特殊な蛍光体をプラスチックフィルム上に添付したものであり、X線、電子線、中性子等の放射線を高感度で検知し、2次元の画像が得られる。これを利用して、汚染分布の概観が可能となり、対象サンプル表面中のどの位置に放射線発生源があるかを特定できる。JAEA ではこれまで、1Fの放射性物質で汚染されたガレキ類やコンクリート壁のコア抜きサンプルに対してイメージングプレート測定を適用し、そこに付着する放射性物質の分布評価を実施した経験がある [68]。

イメージングプレート測定においては、対象サンプルを平滑に加工し、平滑面をイメージン グプレートに接触させることが重要である。平滑面でない場合も測定は可能であるが、イメー ジングプレートとサンプルが直接接触していない部位では、幾何学的な形状に起因する2次元 的な放射線の拡がりがイメージングプレートに記録されるため、像がぼやけてしまい、正確な 放射線発生源の位置の特定ができなくなることに注意が必要である。同様に、2 次元的な広が りを記録するものであるため、目視確認が困難なほど小さい面積で判断せざるを得ない試料の 場合には、適用が難しい。また、イメージングプレート測定時は、測定対象のサンプル以外か らの放射線をカットする必要があり、コンクリートセルやグローブボックス内のような放射線 のバックグランドが高いエリアでイメージングプレート測定を実施する際には、鉛等での遮蔽 を施し、遮蔽空間の中での測定が必要となる。イメージングプレートは可視光線の影響も受け るため、サンプル中の主な放射性物質が γ 線放出核種である場合はイメージングプレートをア ルミニウム箔等で覆った遮蔽状態での測定、α・β線放出核種が主な場合は暗室空間での測定 が必要となる。なお、イメージングプレート測定の時間は、放射線の種類と強度に依存し、サ ンプルごとに設定する必要がある。特に、燃料デブリのように、60Coや137Cs等の高エネルギ ー y 線放出核種の放射能量が多く、イメージングプレートに高強度の放射線が積算される場合 は、イメージングプレートの不可逆な損傷が生じる可能性があるため、長時間の測定は避けた 方が良く、適切な測定時間の設定が求められる。

② 主な分析装置の概要

【イメージングプレートの種類と読取装置】

- ・イメージングプレートサイズ: 20×25 cm、20×40 cm
- ・イメージングプレート種類(型式): MS(高感度) 保護層有り、蛍光面白色 SR(高解像度) 保護層有り、蛍光面青色

TR(³H 検出用) ³H 検出用、保護層なし、蛍光面青色

※解像度:MS=100 μm 以下、SR=50 μm 以下

- ・読取装置:レーザー:He-Ne レーザー (クラス 3R)
- ・画素サイズ:~200 µm
- ・階調数:~16 bit
- (17) 水分測定(カールフィッシャー水分計)

分析項目の詳細

燃料デブリ中の水分情報については、臨界安全対策と、水の放射線分解に係る水素発生量評価の二つの観点がある。水素発生量の観点からは、「半湿式-乾式保管時の水素発生量評価の観点からの水分量及び有機物中の水素量」、「乾燥作業時の残存水分量」、「長期保管/処分時の水分量」及びそれらに伴う水の放射線分解による水素発生量を評価することが必要になると考えられる。また、適切な廃棄体や処分施設の設計に際し、例えばオーバーパックによる閉じ込めの実現可能性を検討する際には、水素発生と腐食に係わる廃棄体中の水分含有率に関する情報が必要である。なお、含水率は、空隙率等からもある程度推測可能と考えられる。

施設への燃料デブリサンプル受入後、乾燥作業の前後に行われる重量測定により、1Fから取 出された燃料デブリに付着している大まかな水分量は把握できる。この方法では、乾燥器、天 秤等が必要である。

一方で、その水分除去作業後に燃料デブリ内に残留する水分評価にはある程度の分析感度が 求められると考えられる。さらに、MCCI生成物が混在した燃料デブリの場合は、前処理過程 での乾燥が十分か、或いは水和水・結晶水レベルまでの評価・乾燥が必要か否かを判断する必 要がある。こうした高感度の分析には、μg/g オーダーの分析が必要となるため、主にカールフ ィッシャー法を用いる。

カールフィッシャー法による水分測定法は、滴定セルにヨウ化物イオン・二酸化硫黄・アル コールを主成分とする電解液(カールフィッシャー試薬)が、メタノールの存在下で水と特異 的に反応することを利用して、物質中の水分を定量するものである。本法には、電量滴定法と 容量滴定法があり、特に電量滴定法は、検出感度が非常に高く、微量な水分を測定するのに有 効な手法である。装置構成としては、固体試料を加熱・排気する機能と水分を定量する部分と に分かれる。なお、一例として燃料ペレットの品質保証にかかる水分測定がカールフィッシャ ー法により実施されている [69]。 ② 主な分析装置の概要

【水分測定装置(カールフィッシャー水分滴定装置等)】

- ・最高加熱温度:600 ℃
- ・電量滴定装置 測定範囲:10 μgH₂O~99 mgH₂O、サンプル 2.5 g 中の 12.6~38.5 μg の水 分検出
- ・測定精度: 0.3%以内(1 mgH₂O/mLの水-メタノール約1gを10回測定したとき)

(18) ガス分析 (ガスクロマトグラフ)

分析項目の詳細

温度変化によって固体サンプルの酸化や蒸発等に伴うガス放出が生じれば、ガスクロマトグ ラフによって検出することができる。これらのデータは、金属系燃料デブリの酸化時のガス発 生等の取扱い安全性・作業性等、取出し工法や装置の妥当性確認に用いられる。反映は本格取 出し作業以降となる。他方、FP 再放出等のソースターム評価にも資する。セル内設置の場合 には十分な検討期間を要する。

加熱に伴い発生する水素をガスクロマトグラフで分析する場合は、加熱からガス捕集までの 物理的なガス収集システムが必要となるため、分析精度としては10%以内程度を許容する必要 がある。また、加熱温度により装置構成が異なってくる。通常の電気炉を用いた加熱ではなく、 高周波誘導加熱等により融点まで加熱する場合には、研究開発的な要素が必要となる可能性が 高い。

② 主な分析装置の概要

【ガスクロマトグラフ】

JAEA 大洗研究所のホットラボに設置の例 [70]

- ・実燃料試料加熱後のガス分析時の誤差:1~10%(標準試料測定時の実績)
- ・最高加熱温度:3,000 ℃
- ・カラムオーブン温度範囲:室温+10 ℃~450 ℃
- ・検出器型:光電離検出器 PID ユニット
- ・最小検出濃度:1 ppm 以下(He 1 mL 中の N₂)

(19) 硬さ・靭性(マイクロビッカース硬さ計)

分析項目の詳細

硬さ・靭性データは、主に燃料デブリ取出し時における切り出し工法・装置性能の妥当性確 認等に必要であり、本格取出し作業開始以降も、常にフィードバックを提供し続ける必要があ ると考えられる。また、実測の硬さデータを、事前に評価した Zr 相、U 相等の硬さデータと 比較することによって、燃料デブリのマクロ的な組成評価に資することも可能である。具体的 には、メゾスケールでの相や化合物として得られた知見に基づいて、取扱い上(例えば硬さ) 課題となりうる相が同定されるため、必要に応じてそれらの模擬物質を調製し、安全対策や取 扱いのモックアップ模擬試験を行うことで、マクロな領域の特徴評価へつなげていくことが期 待される。

さらに燃料被覆管、チャンネルボックス、制御材シース、ペデスタル内燃料デブリ境界付近 のコンクリート、格納容器内燃料デブリ付近格納容器壁鋼材の硬さの情報は、事故進展過程に おける各種構造材の健全性、熱負荷や熱移行等、原子炉容器内外の炉心溶融進展解明に寄与で きる可能性もある。

硬さ測定は、一般的なビッカース硬さ計を用いる。ダイヤモンドでできた剛体(圧子)を被 試験物に対して押込み、そのときにできるくぼみ(圧痕)の面積の大小でビッカース硬さを測 定するもので、試験方法や圧子サイズ、評価方法がJISで規定されている[71]。構造材やMCCI 生成物を場合のようにマクロな硬さを要求される場合と異なり、そのままでは線量の高い燃料 デブリの一部や微量サンプルの場合には、試験荷重をおおむね1kgf(9.8 N)以下で測定でき、 その際のビッカース硬さの測定装置をマイクロビッカース硬さ計という。いずれも、圧痕の対 角線の長さを光学装置で測定し、換算表または公式を使用して ビッカース硬さに変換する。圧 子を押し付ける荷重を試験荷重というが、試験荷重一定の下で硬い物質ほど圧痕は小さく、柔 らかい物質ほど大きくなる。一般にマイクロビッカース硬さ計の試験荷重は1 kgf以下とされ ている。なお、靱性評価が必要な場合については、硬さ測定の結果を基に評価することができ る(IF法)。

② 主な分析装置の概要

【マイクロビッカース硬さ計】

・試験荷重:10、25、50、100、200、300、500、1,000 gf

・荷重付加時間:5~99 s 可変

(照射金属材料の具体例として、試験条件(荷重 500 gf、保持時間 10 s)の標準偏差は1% 程度。)

(20) 融点測定(融点測定装置)

分析項目の詳細

炉心溶融進展の解明に資する情報として燃料デブリの固相線温度、液相線温度等、各相及び 各相間の溶解に関わる熱物性に融点がある。加熱時における試料温度変化等のデータを取得す ることで、主に炉心構成材料間の相互作用による溶融炉心の生成、溶融炉心の移行、溶融炉心 の酸化挙動、炉心支持板の破損状況の把握に資することができる。ただし、燃料融点に関して は測定時の試料と容器の反応等、測定をクリアする必要があり、また燃料デブリの取出し、保 管管理及び処理処分の課題に対して必須ではないものの、RPV 内外の炉心溶融進展評価におい ては有用な情報となりうる。

融点測定は、例えば原子炉燃料の場合、溶融する温度まで加熱し、その固相線温度、液相線 温度を測ることにより、融点を求める方法である。粉砕した燃料をV型フィラメント上で加熱 する方法や、タングステンキャプセルに封入して高周波誘導加熱によって溶融させる方法があ り、この際の温度測定は、2 色温度計が用いられる [72]。

JAEAの照射後試験施設では、コンクリートセル内において照射済燃料を3,000 ℃まで加熱

することが可能な融点測定装置開発の実績がある [72]。ただし、燃料デブリサンプルの場合、 非均質かつ極めて高融点の相を含むため、サンプル調製方法、封入方法のほか、加熱によって 生成する揮発性の物質等の対処方法の検討が必要である。

② 主な分析装置の概要

【融点測定装置】

- ・JAEA 大洗研究所 AGF の融点測定装置の例
- ·加熱方式:高周波誘導加熱方式
- ・サンプル加熱最高温度:3,000 ℃
- ・UO2の融点の文献値 3,128 K に対し、測定結果は 3,130 K (誤差±35 K)

3.3 個別課題と分析項目、評価項目の関係

3.2 節に示した分析項目において、使用する装置によって得られるデータを直接的に燃料デ ブリ分析評価に使用するものと、分析値を利用して評価を行うものに分けられる。各分析によ って得られる情報と、その分析値を利用する評価項目を整理し、個別課題に対する反映先を表 7に明示した。

	(f) (f)	融進展 ソースターム				00120 2.5.2(2)	3)(21) 2.5.2 (31)	2.5.2 (1) $2.5.2 $ (1))(4) 1) Z)						$(D1)2) = \frac{2.5.2(2)}{2.5.2(2)}$	$(3)@1) = \frac{2.0.2(2)(1)^{3}}{2.0.2(2)(1)^{3}}$	$(3) \otimes (1) = \begin{bmatrix} 2.5.2(2) \otimes (1) \\ 2.5.2(2) \otimes (1) \\ 2.5.2(2) \otimes (1) \\ 2.5.2(2) \\ 2.5.2(2) \end{bmatrix} $	$(4.1)2) = \frac{2.5.2(2)(3.1)^{4}}{2.5.2(5)(3.1)^{2}}$	(4) $(2.5.2(2)(4))(2)$ (4) $(2.5.2(2)(4))(2)$	(1)~(1)©(2)2.0.2			2.5.2(2)	2.5.2(2)(D1)~3)	2.5.2(2)		$1) \sim 41, 60.11$	$2.5.2(2) \otimes 1) \sim 4)$	0 E 0 (0) (0) (0)
	(3) (4)	処理処分 炉心落				2.5.1(3	2.4.2(3) 2.5.1(2.5.1(3						2.5.1(3)	2.5.1(2.4.2(2) $2.5.1(i)$	2.4.2(3) 2.5.1(3)	2.5.1										
	(3)	保管管理														2.3.1(2)	2.3.2(2)	2.3.3(2)								2.3.1(2)	2.3.3(2)		
反映先	(1)	取出し	2.1.1(2)	2.1.1(3)	2.1.2(3)	2.1.3(2)(D)3)	2.1.4(2)	2.1.5(2)	2.1.6(2)	2.1.8(3) ⁽²⁾	2.1.8(4) ⁽²⁾ 2)	2.1.1(2)	2.1.1(3)	2.1.2(2)	2.1.2(3)	2.1.3(2)(1)(3)	2.1.4(2)	2.1.5(2)	2.1.6(2)	2.1.8(2)	2.1.8(3) ⁽²⁾ 2)	2.1.8(4) (2)			2.1.1(3)	(6) 0 1 0	2.1.2(3)	2.1.8(2)2	
	分析値を利用する評価項目		・事故時の熱挙動・化学反応	・粒子径分布								・臨界安全評価	・長期健全性	・事故時の熱挙動・化学反応									・長期健全性	・事故時の化学挙動					
	取得できる情報		・形状	• 組織状態	・酸化膜厚							・外観・微細構造	·組織構造観察	・構成元素比									・化学形、化学状態						
試驗/装置	(下線は必須ではないがより	高度なデータが望める項目)	 光学顕微鏡 									• SEM-EDX	· SEM-WDX	• EPMA-WDX									・赤外分光装置	・ラマン分光装置	· HAXPES	(VA-GB) MAMA	(AA'AS) ININ (SK-AA)		_
	分析項目		金相観察									構成元素・不純物											化合物・相の定性分	析					

表7 各分析によって得られる情報と評価項目の反映先 (1/4)

JAEA-Review 2020-004

	試験/装置			反映先			-	
分析項目	(下線は必須ではないがより	取得できる情報	分析値を利用する評価項目	(1)	(2)	(3)	(†)	(4)
	高度なデータが望める項目)			取出し	保管管理	処理処分	炉心溶融進展	ソースターム
結晶構造・相同定	• PXRD	北京都晶時・	·長期健全性	2.1.1(2)				
	• TEM-EDX	・微小組織の結晶構造・化学形	・事故時の熱挙動・化学反応	2.1.1.(3)				0 7 0(0)
	• SR-XA	・非晶質相の構造情報	・採取位置付近の燃料デブリ	2.1.2(3)			(0(1))(0)1 × 0	2.0.2(2) 6 7 6(6)(1,1) 6)
	- μ-PXRD (放射光)		性状	2.1.3(2)(1)3)			2.10.1(3)(J.1)2)	2.5.2(2)⊕1)~3) 2.5.2(2)⊕1)~3)
	- XAFS (放射光)			2.1.4(2)	2.3.1(2)		2.5.1(3)(2)(1)	2.5.2(2)(2)(-7)
				$2.1.6(2) ext{(2)}$	2.3.3(2)		2.5.1(3)(3)1)	2.5.2(2)(3)
				9 1 8(9)@			$2.5.1(3) \oplus 1)2)$	$2.5.2(2) \oplus 1)2)$
				9 1 8(9)@9)				$2.5.2(2) \oplus 1 > 3$
				2.1.8(A)@9)				
索再測定・空隙率	• <i>游</i> 得型 天	・空隙盔 (気利率)	• 今水廢	1				
			・注水時の冷却効果	2.1.1(2)				
			・磯穂的性状	9 1 1(3)	931(9)⊕			
				(0) T. T. T.		2.4.2(3)	2.5.2(3) (3)	
				$2.1.2(2) \cup$	2.3.3(2)∪			
				2.1.4(2)				
定性分析	$\cdot { m XRF}$	・元素の非破壊同定・存在割合	·臨界安全評価	2.1.1(2)				
		・主要成分のスクリーニング		2.1.2(2)				
				2.1.3(2)(1)		2.4.2(2)		
				2.1.4(2)				
元素分析	• ICP-AES	・金属元素定量分析結果 (B, Gd、	·臨界安全評価	2.1.1(2)				
(FP、構造材等の」		Zr、Fe、Cr、Ni 等、ppm 才一	・事故時の熟挙動・化学反応	2.1.1(3)				2.5.2(2)(1)~3)
主要元素)		メー)		2.1.2(3)	(2.5.2(2) (2) (2) (-7)
				2.1.3(2)(1)	2.3.1(2)	2.4.2(2)		2.5.2(2) (3) 1)~5)
					2.3.3(2)			
				2.1.4(2)				2.5.2(2)(1)(2)
				2.1.6(2)				$2.5.2(2) \oplus 1$
				2.1.7(2)				
溶出元素	・イオンクロマトグラフ	・塩素イオン含有量(ppm オーダ	 収納管腐食 	9 1 8(1)	9 3 3(9)@			9 E 9(9)@E)
		(・水素発生	CT/0/1/	\$.0.0\Z\@			2.0.2/2/00)
有機物含有量	· TOC	・有機不純物含有量	・安定性・反応性		2.3.3(2)	2.4.2(2)		2.5.2(2) $35)$
			・放射線分解ガス発生					

表7 各分析によって得られる情報と評価項目の反映先 (2/4)

	試驗/装置			反映先	-		-	
分析項目	(下線は必須ではないがより	取得できる情報	分析値を利用する評価項目	(1)	(2)	(3)	(1)	(4)
	高度なデータが望める項目)			取出し	保管管理	処理処分	炉心溶融進展	ソースターム
核種分析	• ICP-MS	・アクチノイド同位体組成	・臨界安全評価	2.1.1(2)				
(B~Cm までの核		・FP 同位体組成	・燃焼率評価	2.1.1(3)				
種・同位体)			·線量評価	2.1.2(2)				
			 発熱量評価 	2.1.2(3)				2.5.2(2)
			・インベントリ(濃度、組成)	2.1.3(2)(D)3)				$2.5.2(2) \oplus 1) \sim 3$
				2.1.3(2)(2)	2.3.1(2)	2.4.2(2)		$2.5.2(2)(2)1) \sim 7$
				2.1.4(2)	2.3.3(2)			$2.5.2(2)(3)1) \sim 5)$
				2.1.6(2)				2.5.2(2)(4)1)2)
				2.1.7(2)				$2.5.2(2)(5) \sim 3)$
				2.1.8(3) ⁽²⁾ 2)				
				2.1.8(4) (2)				
α 線放出核種分析	・ α 線スペクトロメータ	・α 線放出核種定量分析結果 (U、	・臨界安全評価	2.1.1(2)				
		Np, Pu, Am, Cm)	 ・発熱量評価 	2.1.1(3)				
			・インベントリ(濃度、組成)	2.1.2(2)	(2.5.2(2)
				2.1.2(3)	2.3.1(2)			$2.5.2(2) ext{(1)} 1)2)$
				2.1.4(2)	2.3.2(2)①②	2.4.2(2)		2.5.2(2) 2 6) 7)
				$2.1.7(2) \mathbb{D}$	2.3.3(2)	2.4.2(3)		2.5.2(2)(32)
				2.1.8(2)	2.3.4(2)U			2.5.2(2)(4)2)
				2.1.8(3) ⁽²⁾ 2)				2.5.2(2)@1)~3)
				2.1.8(4) (2)				
B 線放出核種分析	·LSC	・B 線放出核種定量分析結果 (3H、	・インベントリ(濃度、組成)	2.1.1(3)				
		$^{14}\mathrm{C},~^{63}\mathrm{Ni},~^{90}\mathrm{Sr},~^{93}\mathrm{Zr},~^{93}\mathrm{Mo},~^{99}\mathrm{Tc}$	·発熱量評価	2.1.2(2)				2.5.2(2)
		等*)		2.1.2(3)				2.5.2(2)(U1)2) 2.5.2(2)(0)2)
				2.1.5(2)	2.3.2(2) UZ	2.4.2(2)		2.5.2(2)(2)(1)
				2.1.7(2)	2.3.4(2)∪	2.4.2(3)		2.5.2(2)③2) 8 7 8(8)④8)
		*詳細は 3.2(14)参照		$2.1.8(2)$ U \sim 3				2.0.2(2)(4)2) 9 E 9(9)(E1)_0)
				2.1.8(4) (2)				/e~(1@/z\z.6.2

表7 各分析によって得られる情報と評価項目の反映先(3/4)

JAEA-Review 2020-004

				+ 1 1					
	礿翱/ 装直			风默光					_
分析項目	(下線は必須ではないがより	取得できる情報	分析値を利用する評価項目	(1)	(3)	(3)	(4)	(4)	
	高度なデータが望める項目)			取出し	保管管理	処理処分	炉心溶融進展	ソースターム	
y 線放出核種分析	・ γ 線スペクトロメータ	 , % 粮放出核種定量分析結果 	 ・線量率評価 	2.1.1(3)					
		$(^{41}Ca^{-134}Cs, ^{137}Cs, ^{152}Eu, ^{154}Eu,$	 発熱量評価 	2.2.1(2)				0 7 9(9)	
		59Ni、60Co、94Nb、151Sm 等)	・インベントリ(濃度、組成)	2.1.2(3)				2.5.2(2) 6 7 6(0)(11)6)	
				2.1.3(2) (2) (2) (2)	()			(Z(I))(Z)Z.6.Z	
				2.1.4(2)	$2.3.2(2) \cup 2$	2.4.2(2)		2.5.2(2)(2)(5)(7)	
				2.1.5(2)	2.3.4(2)	2.4.2(3)		2.5.2(2) (3) 2)	
				2.1.7(2)D				2.5.2(2)(12)	
				$2.1.8(2)$ D \sim 3				$2.5.2(2)(5) \sim 3$	
				2.1.8(4) (21) (2)					
線量分布	・イメージングプレート	 放射能分布 	・事故時の FP 等放出特性					2.5.2(2) (3)	
								$2.5.2(2) \oplus 1)$	
								2.5.2(2)(1)	
水分測定	・カールフィッシャー水	·含水率	・再臨界性評価						
	分計		 水蒸気発生 		0.0000				
			・放射線分解ガス発生	$Z.1.5(Z) \cup$	2.3.2(2)	2.4.2(3)			
			·過酸化水素発生						
FP 等放出特性	・ガスクロマトグラフ	・加熱時ガス放出量	・事故時の FP 等放出特性					2.5.2(2)(1)3)	
			·水素発生					2.5.2(2) (2)	
								2.5.2(2) (3)	
硬さ・靭性	・ビッカース硬さ計	・硬さ	・靱性						
	・マイクロビッカース硬								
	詰む						2.5.1(2)		
				2.1.2(2)	2.3.3(2)		2.5.1(3) (1)		
							2.5.1(3) (3) (3) (1)		
融点	・融点測定装置	 熱物性(固相線温度、液相線温度) 	・融点	2.1.2(2)			2.5.1(3)(2) 2.5.1(4)(4)		

表7 各分析によって得られる情報と評価項目の反映先(4/4)

謝 辞

この報告書を作成するにあたり、日本原子力研究開発機構外の有識者の皆様から貴重なご意 見、アドバイスを頂きました、ここに感謝の意を表します。

参考文献

- [1] 日本原子力学会 核燃料部会, ポジション・ステートメント(解説) 「燃料デブリ」について, 2018, http://www.aesj.net/document/aesj-ps022.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [2] 国際廃炉研究開発機構,一般財団法人エネルギー総合工学研究所,「廃炉・汚染水対策事業 費補助金(総合的な炉内状況把握の高度化)」平成 29 年度成果報告, 2018,
- http://irid.or.jp/_pdf/20170000_01.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [3] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構,東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電 所の廃炉のための技術戦略プラン 2019, 2019, p. 143,
- http://www.dd.ndf.go.jp/jp/strategic-plan/book/20190909_SP2019FT.pdf,(参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [4] 廃炉・汚染水対策関係閣僚等会議,東京電力ホールディングス(株),福島第一原子力発電 所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ,2019,

https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/20191227.pdf, (参照: 2020 年 4 月 6 日).

- [5] 廃炉・汚染水対策チーム会合/事務局会議(第67回),福島第一原子力発電所の廃炉・汚染水対策に関する分析・調査の計画的実施に向けた基本的考え方,2019, https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakute am/2019/06/4-1-1.pdf,(参照:2019年12月12日).
- [6] 国際廃炉研究開発機構,平成 28 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・分析技術の開発)」中間報告,2018,

http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000_12.pdf, (参照: 2020 年 4 月 6 日).

- [7] 日本原子力研究開発機構,平成 28 年度原子力規制庁委託成果報告書 東京電力福島第一原子力発電所 燃料デブリの臨界評価手法の整備, 2018, http://www.nsr.go.jp/data/000256179.pdf,(参照: 2019年12月12日).
- [8] 国際廃炉研究開発機構,平成 28 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金 (固体廃 棄物の処理・処分に関する研究開発)」平成 29 年度成果報告, 2019, http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000_14.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [9] F. Nagase, H. Uetsuka, Thermal properties of Three Mile Island Unit 2 core debris and simulated debris, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 49, 2012, pp. 96-102.
- [10] 国際廃炉研究開発機構,「廃炉・汚染水対策事業費補助金(総合的な炉内状況把握の高度 化)」平成 28 年度成果報告, 2017,

http://irid.or.jp/_pdf/20160000_01.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).

[11] 国際廃炉研究開発機構,「廃炉・汚染水対策事業費補助金(総合的な炉内状況把握の高度

化)」平成 29 年度成果報告, 2018,

http://irid.or.jp/_pdf/20170000_01.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).

- [12] 多田健一, 崎野孝夫, 簡易燃料デブリ臨界性解析ツール HAND の開発, 日本原子力学会 2019 年秋の大会予稿集, 2J04, 2019.
- [13] 木ノ内嗣郎, EPMA 電子プローブ・マイクロアナライザー, 技術書院, 2001.
- [14] 日本表面科学会, 電子プローブ・マイクロアナライザー, 表面分析技術選書, 1999.
- [15] M. Kurata, et al., Thermodynamic Evaluation on Effects of Sea Water to Degraded Nuclear Fuel in Severe Accident of LWR, Trans. Atom. Ene. Soc. Jpn., vol. 12, no. 4, 2013, pp. 286-294.
- [16] M. Schwarz, et al., PHEBUS FP: a severe accident research programme forcurrent and advanced light water reactors, Nucl. Eng. Des., vol. 187, 1999, pp. 47-69.
- [17] 国際廃炉研究開発機構,平成 28 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・分析技術の開発)」平成 30 年度実施分成果, 2019,

http://irid.or.jp/_pdf/20180000_12.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).

- [18] 永石隆二,シビアアクシデント後対策のための水の放射線分解研究の展開, RADIOISOTOPES, vol. 66, 2017, pp. 601-610.
- [19] 奥村啓介, 岡本力, 軽水炉使用済み燃料の核種インベントリ, JAEA-Data/Code 2011-020,
 2012, 193 p.
- [20] OECD/NEA, SFCOMPO2, Database of measured isotopic concentrations of spent nuclear fuel, with operational histories and design data,

https://www.oecd-nea.org/sfcompo/, (参照: 2019 年 12 月 12 日).

- [21] 石川真澄ほか,地層処分の安全評価の観点からのガラス固化体中の核種インベントリ評価の信頼性向上の取り組み,日本原子力学会和文論文誌,vol. 8, no. 4, 2009, pp. 304-312.
- [22] 廃炉・汚染水対策関係閣僚等会議,東京電力ホールディングス(株),福島第一原子力発 電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ,2017, p.18,
- https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning.html, (参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [23] 日本原子力研究開発機構,原子力規制庁受託事業「平成 27 年度原子力発電施設等安全技術対策委託費(燃料デブリの処理・処分に関する予察的調査)事業」報告書,2016, https://www.nsr.go.jp/nra/chotatsu/yosanshikou/itaku_houkoku_h27.html, (参照: 2019 年12月12日).
- [24] 日本原子力研究開発機構,基礎基盤研究の全体マップ(2019 年版), 2019, https://fukushima.jaea.go.jp/hairo/platform/map_2019.html, (参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [25] 増田純男ほか,わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性;地層処分 研究開発第2次取りまとめ,総論レポート,JNC-TN1400 99-020, 1999, 634 p.
- [26] 原子力安全委員会,低レベル放射性固体廃棄物の埋設処分に係る放射能濃度上限値について,2007.
- [27] 日本原燃, 六ヶ所低レベル放射性廃棄物貯蔵センター廃棄物埋設事業許可申請書, 1988.

- [28] 日本原子力研究所東海研究所, 廃棄物埋設事業許可申請書, 1993.
- [29] 電気事業連合会,核燃料サイクル開発機構,TRU 廃棄物処分技術検討書-第2次TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ-,JNC TY1400 2005-013/FEPC TRU-TR2-2005-02,2005, 590 p.
- [30] 東京電力ホールディングス株式会社,国立研究開発法人日本原子力研究開発機構,放射性物質分析・研究施設第2棟における燃料デブリの分析に係る検討について,特定原子力施設監視・評価検討会(第72回)資料2,2019,
- https://www.nsr.go.jp/disclosure/committee/yuushikisya/tokutei_kanshi/00000070.html, (参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [31] M. Kurata, et al., Phenomenology of BWR fuel degradation, J. Nucl. Mater., vol. 500, 2018, pp. 119-140.
- [32] R.O. Gauntt, L.L. Humphries, Final results of the XR2-1 BWR metallic melt relocation experiment, NUREG/CR-6527, SNL, 1997, 175 p.
- [33] R. Kasada, et al., Chemical state mapping of degraded B₄C control rod investigated with soft X-ray emission spectrometer in electron probe micro-analysis, Sci. Rep., vol. 6, 2016, 25700.
- [34] M. Osaka, et al., Results and progress of fundamental research on FP chemistry, Proceedings of The 8th European Review Meeting on Severe Accident Research -ERMSAR-2017, Source term issues 305, Warsaw, Poland, 2017.
- [35] W. Klein-Heßling, et al., Conclusions on severe accident research priorities, Ann. Nucl. Energy, vol. 74, 2014, pp. 4-11.
- [36] S. Suehiro, et al., Development of the source term PIRT based on findings during Fukushima Daiichi NPPs accident, Nucl. Eng. Des., vol. 286, 2015, pp. 163-174.
- [37] 「シビアアクシデント時の核分裂生成物挙動」研究専門委員会,核分裂生成物と燃料デブリの比較 -福島第一原子力発電所の廃炉作業時に留意すべき核分裂生成物の影響-,日本原子力学会誌, vol. 61, no. 9, 2019, pp. 661-666.
- [38] S. Miwa, et al., Release and transport behaviors of non-gamma-emitting fission products and actinides in steam and hydrogen atmospheres, Nucl. Eng. Des., vol. 326, 2018, pp. 143-149.
- [39] M. Gouello, et al., Analysis of the iodine gas phase produced by interaction of CsI and MoO₃ vapours in flowing steam, Nucl. Eng. Des., vol. 263, 2013, pp. 462-472.
- [40] P. Giordano, et al., Recent advances in understanding ruthenium behaviour under air-ingress conditions during a PWR severe accident, Prog. Nucl. Energy, vol. 52, 2010, pp. 109-119.
- [41] B. R. Sehgal (Ed.), Nuclear Safety in Light Water Reactors, Severe Accident Phenomenology, Academic Press, USA, 2012, 740 p.
- [42] 三輪周平ほか,化学形に着目した破損燃料からの核分裂生成物及びアクチニドの放出挙動 評価のための研究;研究の位置づけ及び計画,JAEA-Review 2013-034, 2013, 42 p.

- [43] A. Mohamad, et al., Chemical trapping of Sr vapor species by Zircaloy cladding under a specific chemical condition, Extended abstract of International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research (FDR2019), Fukushima, Japan, 2019.
- [44] F. G. Di Lemma, et al., Surface analyses of cesium hydroxide chemisorbed onto type 304 stainless steel, Nucl. Eng. Des., vol. 305, 2016, pp. 411-420.
- [45] M. S. Steinbrück, et al., Results of the QUENCH-09 Experiment with a B₄C Control Rod, FZKA-6829, 2004.
- [46] J. Imoto, et al., Experimental investigation on boron oxidative vaporization processes from zirconium-boron and iron-boron alloys in a high temperature steam atmosphere, Proceedings of International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research (FDR2019), Fukushima, Japan, 2019.
- [47] M. Plys, et al., Review of Japanese core team cesium chemistry model JFY2016 task.
 Palo Alto (CA), FAI/16-1416, Rev. 1, EPRI 3002009886, Electric Power Research Institute, 2017.
- [48] Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation decommissioning office, Technical strategic plan 2016 for decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station of Tokyo Electric Power Company holdings Inc., 2016, pp. 4-38.
- [49] S. Miwa, et al., Boron chemistry during transportation in high temperature region of the BWR under severe accident conditions, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 57, no. 3, 2020, pp. 291-300.
- [50] M. P. Kissane, I. Drosik, Interpretation of fission-product transport behaviour in the Ph'ebus FPT0 and FPT1 tests, Nucl. Eng. Des., vol. 236, 2006, pp. 1210-1223.
- [51] Thi Mai Dung Do, et al., Vaporization and deposition of cesium dimolybdate, Cs₂Mo₂O₇,J. Nucl. Sci. Technol., vol. 54, 2017, pp. 330-336.
- [52] F. G. Di Lemma, et al., Experimental investigation of the influence of Mo contained in stainless steel on Cs chemisorption behavior, J. Nucl. Mater., vol. 484, 2017, pp. 174-182.
- [53] N. Miyahara, et al., Chemical reaction kinetics dataset of Cs-I-B-Mo-O-H system for evaluation of fission product chemistry under LWR severe accident conditions, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 56, 2019, pp. 228-240.
- [54] K. Minato, Thermodynamic analysis of cesium and iodine behavior in severe light water reactor accidents, J. Nucl. Mater., vol. 185, 1991, pp. 154-158.
- [55] P. D. W. Bottomley, et al., Fission product and Actinide release from the Debris bed test Phebus FPT4: Synthesis of the Post Test Analyses and of the Revaporisation testing of the Plenum samples, Nucl. Eng. Technol., vol. 38, no. 2, 2006, pp. 162-174.
- [56] E. Suzuki, et al., Experimental study on Cs chemisorption behavior onto stainless steel at around 873 K, Extended abstract of International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research (FDR2019), Fukushima, Japan, 2019.

- [57] M. Rizaal, et al., Adsorption behavior of cesium on calcium silicate insulation of primary piping system in Fukushima Daiichi NPP unit 2, Proc. ICONE27, ICONE27-2045, 27th International Conference on Nuclear Engineering, Ibaraki, Japan, 2019.
- [58] N. Horiguchi, et al., Development of evaluation method for aerosol particle deposition in a reactor building based on CFD, Proc. ICONE27, ICONE27-2158, 27th International Conference on Nuclear Engineering, Ibaraki, Japan, 2019.
- [59] 東京電力株式会社,福島原子力事故調査報告書,2012,
- http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu12_j/images/120620j0303.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).
- [60] 国際廃炉研究開発機構,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)」進捗状況, 2016,

http://irid.or.jp/_pdf/201509to10_11.pdf, (参照: 2019 年 12 月 12 日).

- [61] 関晃太郎ほか,福島第一原子力発電所の廃止措置に向けた瓦礫・植物などの放射性核種分 析手法に関する検討, JAEA-Technology 2016-013, 2016, 37 p.
- [62] L. L. Taylor, TMI Fuel Characteristics for Disposal Criticality Analysis, DOE/SNF/REP-084, 2003.
- [63] K. Maeda, et al., Radial redistribution of actinides in irradiated FP-MOX fuels, J. Nucl. Mater., vol. 389, 2009, pp. 78-84.
- [64] 小野沢淳ほか, ワンススルー型微小試料密度測定装置の開発, JAERI-Tech 2004-061, 2004, 39 p.
- [65] S. Koyama, et al., Measurement of Burnup in FBR MOX Fuel Irradiated to High Burnup, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 40, no. 12, 2003, pp. 998-1013.
- [66] 文部科学省科学技術・学術政策局原子力安全課防災環境対策室, 放射能測定シリーズ 31 環境試料中全アルファ放射能迅速分析法, 2004.
- [67] 青野竜二ほか,福島事故廃棄物を対象とした ⁹³Zr, ⁹³Mo, ¹⁰⁷Pd 及び ¹²⁶Sn 分析法の開発, JAEA-Technology 2017-025, 2017, 32 p.
- [68] K. Maeda, et al., Distribution of radioactive nuclides of boring core samples extracted from concrete structures of reactor buildings in the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 51, 2014, pp. 1006-1023.
- [69] Y. Kihara, et al., Fabrication and short-term irradiation behaviour of Am-bearing MOX fuels, Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Workshop Proceedings of the Fourteenth Information Exchange Meeting, pp.241-350, San Diego, United States, 2017.
- [70] I. Sato, et al., Fission Products Release from Irradiated FBR MOX Fuel during Transient Conditions, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 40, no. 2, 2003, pp. 104-113.
- [71] 日本産業規格, JIS Z2244:2009 ビッカース硬さ試験-試験方法, 2009.
- [72] T. Hirosawa, I. Sato, Burnup dependence of melting temperature of FBR mixed oxide fuels irradiated, J. Nucl. Mater., vol. 418, 2011, pp. 207-214.

			(2020年3月現在)
	相当	氏名	所属
1	部会長	湊 和生	役員室 理事長首席補佐
2	委員	鷲谷 忠博	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 研究推進室長
3	委員	小山 真一	福島研究開発部門「福島研究開発拠点」廃炉国際共同研究センター「燃料デブリ研究ディビジョン長
4	委員	池田 篤史	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 燃料デブリ研究ディビジョン 一燃料デブリ科学グループリーダー
2	委員	倉田 正輝	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 炉内状況把握ディビジョン長
9	委員	間所 寛	福島研究開発部門「福島研究開発拠点」廃炉国際共同研究センター「炉内状況把握ディビジョン 燃料溶融挙動解析グループ
7	委員	鍛治 直也	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 大熊分析・研究センター プロジェクト管理課 マネージャー
8	委員	高野 公秀	原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター 燃料・材料工学ディビジョン 研究主席
6	委員	熊谷 友多	原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター 原子力化学ディビジョン 放射化学研究グループ 研究副主幹
10	委員	失板 毅	原子力科学研究部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター 副センター長
11	委員	川崎郁斗	原子力科学研究部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター 放射光エネルギー材料研究ディビジョン 電子構造物性研究グループ 研究副主幹
12	委員	前田 宏治	高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所 高速炉サイクル研究開発センター 燃料材料開発部 次長 兼 集合体試験課長
13	委員	関尾 佳弘	高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所 高速炉サイクル研究開発センター 燃料材料開発部 集合体試験課
14	委員	野村 和則	核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 環境技術開発センター 再処理技術開発試験部長
15	委員	市毛 良明	核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 環境技術開発センター 再処理技術開発試験部 研究開発第1課 技術主幹
16	オブザーバ	大井 貴夫	事業計画統括部 研究主席
17	オブザーバ	丸山 結	安全研究・防災支援部門 安全研究センター 副センター長
18	オブザーバ	字田川 豊	安全研究・防災支援部門 安全研究センター 原子炉安全研究ディビジョン 燃料安全研究グループ 研究副主幹
19	オブザーバ	茶谷 恵治	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 副センター長 (燃料デブリ作業部会長)
20	オブザーバ	奥村 啓介	福島研究開発部門「福島研究開発拠点」廃炉国際共同研究センター「燃料デブリ研究ディビジョン「計量管理・線量評価グループリーダー
21	オブザーバ	北垣 徹	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 燃料デブリ研究ディビジョン 燃料デブリ科学グループ
22	オブザーバ	仲田 祐仁	原子力科学研究部門 原子力科学研究所 臨界ホット試験技術部 次長
23	事務局	三次 岳志	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 燃料デブリ研究ディビジョン 副ディビジョン長 兼 燃料デブリ取扱技術開発グループリーダー
24	事務局	平野 弘康	福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 燃料デブリ研究ディビジョン 燃料デブリ取扱技術開発グループ マネージャー
25	事務局	逢坂 正彦	原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター 燃料・材料工学ディビジョン長
			兼 福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉国際共同研究センター 炉内状況把握ディビジョン 核種挙動解析グループリーダー

付録1 燃料デブリ等研究戦略検討作業部会 構成員

JAEA-Review 2020-004

付録2 略語一覧

- 【原子力・技術用語】
- BWR: Boiling Water Reactor (沸騰水型原子炉)
- CRD: Control Rod Drive(制御棒駆動機構)
- D/W: Dry-Well (ドライウェル)
- FP:Fission Products(核分裂生成物)
- GB: Glove Box (グローブボックス)
- G 值:G-value(放射線化学収量)
- MCCI: Molten Core Concrete Interaction (溶融炉心コンクリート相互作用)
- PCV: Primary Containment Vessel (原子炉格納容器)
- PIRT: Phenomena Identification and Ranking Table (現象重要度ランク表)
- PWR: Pressurized Water Reactor(加圧水型原子炉)
- R/B: Reactor Building (原子炉建屋)
- RCS: Reactor Coolant System (原子炉冷却系)
- RPV: Reactor Pressure Vessel (原子炉圧力容器)
- S/C: Suppression Chamber (圧力抑制室)
- SA: Severe Accident(過酷事故)
- SGTS: Standby Gas Treatment System (非常用ガス処理システム)
- SRV: Safety Relief Valve (逃がし安全弁)
- SUS:ステンレス鋼(JIS 規格における材料記号)
- T/B: Turbine Building (タービン建屋)
- TRU: Trans-uranium (超ウラン元素)
- Zry: Zircaloy (ジルカロイ)
- 【分析用語】
- ATR: Attenuated Total Reflection (減衰全反射)
- CCD: Charge-Coupled Device (電荷結合素子)
- EDX: Energy Dispersive X-ray Spectrometry (エネルギー分散型 X 線分光分析)
- EPMA: Electron Probe Microanalysis (電子線プローブ微小分析)
- FE型(電子顕微鏡について): Field Emission(電解放出型)
- FIB: Focused Ion Beam (集束イオンビーム)
- FT-IR: Fourier Transform Infrared Spectroscopy (フーリエ変換型赤外分光分析)
- Ge-LEPS: Germanium Detector Low Energy Photon Spectrometry (ゲルマニウム検出器型低 エネルギーγ 線分光分析)
- HAXPES: Hard X-ray Photoemission Spectroscopy(硬X線光電子分光分析)
- HPGe 検出器: High Purity Germanium Detector (高純度ゲルマニウム検出器)
- ICP-AES: Inductively Coupled Plasma-Atomic Emission Spectrometry (誘導結合プラズマ発 光分光分析)

- ICP-MS: Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry (誘導結合プラズマ質量分析)
- IF 法(靭性評価について): Indentation Fracture method (圧子圧入法)
- LSC: Liquid Scintillation Counter(液体シンチレーションカウンター)
- MS: Mass Spectrometry (質量分析)
- OM: Optical Microscopy(光学顕微鏡観察)
- PID: Photoionization Detector(光電離検出器)
- PXRD: Powder X-ray Diffraction(粉末 X 線回折)
- SEM: Scanning Electron Microscopy (走查型電子顕微鏡観察)
- SR: Synchrotron Radiation (放射光)
- STXM: Scanning Transmission X-ray Microscopy(走查型透過 X 線顕微鏡観察)
- SXES: Soft X-ray Emission Spectrometry (軟 X 線発光分光分析)
- TEM: Transmission Electron Microscopy (透過型電子顕微鏡観察)
- TIMS: Thermal Ionization Mass Spectrometry (表面電離型質量分析)
- TOC: Total Organic Carbon (全有機炭素)
- WDX:Wavelength Dispersive X-ray Spectrometry(波長分散型X線分光分析)
- XA: X-ray Analysis (X 線分析)
- XAFS: X-ray Absorption Fine Structure (X 線吸収微細構造)
- XRF: X-ray Fluorescence Analysis (蛍光 X 線分析)
- X線CT: X-ray Computed Tomography (X線コンピュータ断層撮影)
- 【略称】(組織・事業所・大規模実験・解析コード等)
- 1F:東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所
- ACE: Advanced Containment Experiments (大規模実験名称,米国)
- AGF: Alpha Gamma Facility (照射燃料試験施設)
- IAEA: International Atomic Energy Agency (国際原子力機関)
- IRID: International Research Institute for Nuclear Decommissioning(技術研究組合国際廃炉 研究開発機構)
- JAEA: Japan Atomic Energy Agency(日本原子力研究開発機構)
- MAAP: Modular Accident Analysis Program(過酷事故総合解析コード名称,米国)
- NDF: Nuclear Damage Compensation and Decommissioning Facilitation Corporation (原子 力損害賠償・廃炉等支援機構)
- PHEBUS-FP(T4): PHEBUS-Fission Products Programme (4th Test) (大規模実験名称, 仏国)
- TEPCO: Tokyo Electric Power Company Holdings (東京電力ホールディングス(株))
- TMI-2: Three Mile Island Unit 2(スリーマイル島原子力発電所 2 号機)

【単位】

- amu: atomic mass unit (原子質量単位)
- eV: electron volt (電子ボルト, 1.602×10⁻¹⁹ J)

gf:gram-force (グラム重, 9.80665 N) gr (回折格子について):groove (刻線数) ppm:parts per million (百万分率, 10⁻⁶) ppb:parts per billion (十億分率, 10⁻⁹) ppt:parts per trillion (一兆分率, 10⁻¹²) ppq:parts per quadrillion (千兆分率, 10⁻¹⁵) Wd/t:watt day per tonne (燃焼度の単位) FIMA: fission per initial metal atom (燃焼率の単位)

【元素記号】(原子番号順) H: Hydrogen (水素) He: Helium (ヘリウム) Be: Beryllium (ベリリウム) B:Boron (ホウ素) C:Carbon (炭素) N:Nitrogen (窒素) O:Oxygen (酸素) F:Fluorine (フッ素) Ne: Neon (ネオン) Na:Sodium (ナトリウム) Mg: Magnesium (マグネシウム) Al: Aluminium (アルミニウム) Si:Silicon (ケイ素) Cl: Chloride (塩素) Ca: Calcium (カルシウム) Ti: Titanium $(\mathcal{F}\mathcal{F}\mathcal{V})$ Cr: Chromium (クロム) Fe:Iron (鉄) Co: Cobalt (コバルト) Ni: Nickel $(= \gamma f \mu)$ Ge:Germanium (ゲルマニウム) Sr: Strontium (ストロンチウム) Y: Yttrium (イットリウム) Zr: Zirconium (ジルコニウム) Nb: Niobium (ニオブ) Mo: Molybdenum (モリブデン) Tc: Technetium (テクネチウム) Ru: Ruthenium (ルテニウム)

```
Rh: Rhodium (ロジウム)
Pd: Palladium (パラジウム)
Ag:Silver (銀)
Sn:Tin (スズ)
Sb: Antimony (\mathcal{P} \mathcal{V} \mathcal{F} \mathcal{F} \mathcal{V})
Te: Tellurium (テルル)
I: Iodine (ヨウ素)
Cs:Cesium (セシウム)
Ba: Barium (バリウム)
Ce:Cerium (セリウム)
Nd: Neodymium (ネオジム)
Sm:Samarium (サマリウム)
Eu: Europium (ユウロピウム)
Gd:Gadolinium (ガドリニウム)
W:Tungsten (タングステン)
U:Uranium (ウラン)
Np:Neptunium (ネプツニウム)
Pu: Plutonium (プルトニウム)
Am: Americium (アメリシウム)
Cm:Curium (キュリウム)
```

付録3 燃料デブリ分析に向けて今後検討が必要な課題についての考察

2.1 節に記したように、1F 炉内に堆積している燃料デブリは、様々なメカニズムで生成され た物質が混在し、かつ、炉内の領域ごとにその堆積状態が大きく異なっていると想定され、取 得したデブリサンプルにおける分析結果のばらつき、及び分析結果が取得領域における燃料デ ブリの特徴をどの程度表しているかといった二段階の評価(「燃料デブリサンプルの平均的特 徴とばらつき」及び「サンプル取得領域の燃料デブリの特徴」の評価)によって、各分析ニー ズに答える評価結果を示すことができると考えられる。これらは、実際の燃料デブリサンプル の分析結果を評価して次のサンプル取得を検討するなど分析計画に係る手順が必要であるため、 本報告書では検討の対象としてこなかったが、本報告書のアップデートに必要な知見として、 それらの考え方の一例をここに記す。

1. 燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつきの評価方法についての考察

「燃料デブリサンプルの平均的特徴とばらつき」の基本的考え方と、その評価のための分析 フローについて考察する。

2.1 節で記載したとおり、燃料デブリの分析においては、分析結果が、有意な大きさの燃料デ ブリサンプル全体としての特徴を表していることを担保することが重要である。また、燃料デ ブリは多成分多相で構成されることが予想され、サンプル全体としての特徴は、サンプル内部、 あるいはサンプル相互にばらつくことが想定されるため、このばらつきの情報も含めた特徴を 評価することが実用的と考えられる。サンプル全体の特徴とばらつきを評価する上での大きな 課題として、分析の対象とする領域は最大で数百 µm (SEM-EDX による面分析の場合)もし くは数十 mg から数百 mg 程度 (ICP-MS 等の化学分析の場合)であるのに対し、燃料デブリ サンプルは通常 cm オーダーかつ数百 g オーダーの大きさを有していると見込まれ、如何に効 率的に分析データを積み上げて「サンプルの平均的な特徴とばらつき」を評価していくかとい うことが挙げられる。

そこで本付録では、TMI-2事故やチェルノブイリ原発事故における燃料デブリの外観や金相 観察結果等を参照して予想される燃料デブリの特徴や非均質性等について示すとともに、こぶ し大の燃料デブリサンプルを例にとり、この特徴とばらつきを評価するための基本的かつ一般 的と思われる考え方の例を記載した。

(1) 予想される燃料デブリの形態による分析上の課題

燃料デブリは、多成分多相系の複雑な物質と予想されるが、その形成メカニズムにより、い くつかの類型に分類することができる。分析を効率的に進める上では、このような類型に応じ て、分析フローの具体化と得られるデータの整理の方法をとりまとめるのが効率的と考えられ る。以下では、現状で想定される類型を示し、その分析上の課題を考察する。 ① 多相系溶融物(コリウム)からの凝固物

SA 解析によると、多くの SA シナリオにおいて、破損燃料は RPV 内で堆積し、あるいは PCV に移行してコンクリートと反応する等により、多相系の溶融物(コリウム)を形成すると 考えられている[A1]。このうち、RPV 内部で形成されるコリウムは In-vessel corium と称さ れ、その主成分は、UO2燃料、Zry 被覆管・チャンネルボックス、制御棒やその他の燃料集合 体部材、等と考えられる。主成分の溶融・混合過程の複雑さから、In-vessel corium は複数の 液相からなる可能性が高い。

まず、主に金属系の物質からなる金属溶融層が形成される。燃料デブリサンプル中に、これ らの層が混在する可能性を考慮して分析する必要がある。金属層の主成分は Fe 等の構造材、 未酸化 Zr、及び、事故進展過程で一部還元されて出現する可能性のある U 金属、金属系 FP

(Ru、Rh、Pd、Tc、Mo、Nb等)等となり、その組成によっては、重金属層と軽金属層に成 層化する可能性も示唆される[A2, A3]。他方、UO₂とZryを主成分とする酸化物系のコリウム も形成される。図 A-1 に示すように温度と溶融状態によっては、この酸化物系のコリウムは、 Oxidic melt と Metallic melt に相分離すると考えられている。酸化物系コリウム中の2種類の Melt は水と油のように相互に分離して存在していると考えられる。酸化物系の溶融コリウム中 に、条件によっては、さらに、Oxidic melt と Metallic melt が形成される可能性があり、分析 においてはその可能性を考慮する必要がある。

これらの溶融物が凝固すると、高温溶融状態での成分の相互溶解度と固相中での相互溶解度 の違いにより、それぞれの溶融物内でマトリックス成分から析出物が形成されると予想される。 電力中央研究所が実施したマイナーアクチノイド含有金属燃料を用いた試験[A4]では、サンプ ルは上部の黒色層と下部の白色層に大きく成層化し、さらに、それぞれの層中で析出物が発生 していることが観察された。主要な成分は異なるが、多相系の溶融コリウムが凝固して形成さ れた燃料デブリでは、溶融状態と凝固時の溶解度の違いにより、実際の燃料デブリ中にも類似 の相構造が形成される可能性がある。

破損・溶融燃料が RPV から PCV に移行し、コンクリートと反応する等により形成される溶 融物質を Ex-vessel corium と称する。その主成分は、In-vessel corium の成分に加えてコンク リートや構造材となる。Ex-vessel corium も多相系の溶融状態になると予想されるが、PCV に おいてコンクリート等と反応することから、平均的な酸化度が In-vessel corium より高くなる ことが特徴となる。従って、熱力学的な予測からは、酸化物系の溶融物に Fe が酸化して溶融 する、あるいは、In-vessel corium 中に金属 U が形成されていた場合でもそれが再酸化して酸 化物系の溶融物に移行する等の現象が起こると考えられる。この観点で、チェルノブイリ事故 で形成された Lava (溶融燃料とコンクリートとの反応物) は、1F での Ex-vessel corium の参 考情報になる可能性がある。図 A-2 に、典型的な Lava の断面写真を示す。ここでも高温溶融 状態と固相状態での相互溶解度の差により、多様な析出物が発生している様子が観測される。 このような微小析出物の分析が、分析上の課題となる可能性がある。

このように、溶融状態から凝固した燃料デブリサンプルは、複数個の部位に分割され、かつ、 それぞれの中に微小な析出物が存在している可能性が高い。従って(2)で示す基本的な分析フロ ーの例において、部位ごとにやや大きいサイズで分取・破砕・混合を行い、そこから複数個の サンプルを分取して化学分析することで、部位ごとの平均的な特徴とそのばらつきを評価する ことが望ましい旨を記載している。併せて、部位ごとに典型的なエリアをいくつか選定し、 SEM-EDX や SEM-WDX の面分析でエリア平均の組成を評価し、化学分析結果とクロスチェ ックを行うことが望ましい。また、析出物が微小であることや、マトリックス中に析出途中の 物質が存在する可能性があること等から、SEM 分析で特徴的な箇所を抽出し、その TEM 分析 (EDX あるいは結晶構造)を行うことも有効と考えられる。

このようにして、初期の燃料デブリサンプルを用いて、その内部の部位ごとにその特徴とば らつきを評価することで、以降のサンプルでは、断面の画像解析を用いて、部位の堆積割合を 評価できれば、その特徴を概略評価できる可能性がある。また、複数個の燃料デブリサンプル で、領域の体積割合を画像解析することで、その燃料デブリサンプルが取得された領域全体の 評価に展開できる可能性がある。



図 A-1 U-Zr-O 三元系状態図(2573K):酸化物系の溶融コリウム中の典型的な Oxidic melt と Metallic melt の組成を図示



図 A-2 チェルノブイリ Lava の断面[A5]

② 溶融物・半溶融物・未溶融物の混合状態

事故進展過程では、溶融コリウムが移行・凝固する過程で構造材等を巻き込むこと、溶融物の周辺のクラスト層が形成されること、溶融中の成分再分布により高融点の固相(Zr や Cr の ホウ化物等)が析出すること、高融点の B₄C や UO₂ペレットでは未溶融物が混在すること等、 様々な要素現象が起こる可能性があり、その場合には、比較的マクロな分布で、酸化物・金属・ 化合物・コンクリート等の溶融物・半溶融物・未溶融物等が混合して存在する可能性が考えら れる。この場合には①で述べたような層構造を必ずしも形成しないと予想される。

溶融物・半溶融物については、①で示したようにその凝固時の特徴(凝固パス)を考慮しつ つ、適宜、領域に分割して分析結果をとりまとめることが妥当であろう。一方、未溶融物につ いては、構造材やコンクリート、あるいは、未溶融ペレットや未溶融 B4C である可能性が高く、 その平均的な特徴は、SEM-EDX の面分析や、分取したサンプルの ICP-MS 分析で比較的容易 に測定できると見込まれる。このような未溶融物では、詳細な元素分布の平均値とばらつきで はなく、溶融物との界面の情報を取得することが望まれる。また、溶融物内部で相状態の変化 が観測される場合には、その情報を取得することが望まれる。そのような情報は、事故進展時 の最高到達温度等の評価につながる可能性がある。 溶融物と未溶融物の混在と言う観点では、チェルノブイリ Lava で観測された Black Lava と Brown Lava の知見が参考になる可能性がある[A5]。図 A-3 と図 A-4 に、それぞれの外観を示 す。チェルノブイリ事故で生成した Lava は、Black Lava (上層) と Brown Lava (下層) に 大別されている。マトリックスはほぼ同様の物質であり、Brown Lava 中には微小な析出物が 沈降している。ロシアのクローピン研究所で実施された分析では、Black Lava は完全に溶融し ていた Ex-vessel corium であるのに対し、Brown Lava では、その内部に溶融状態においても 様々な析出物が固体で存在し沈降していたことが示されている。イメージとしては、泥水で、 下の方に泥がたまっている状態に近い。このような燃料デブリサンプルが採集された場合にも、 マトリックスと未溶融の析出物のそれぞれの分析が必要と考えられる。



図 A-3 チェルノブイリ原子力発電所事故における Lava (black lava) [A5]



図 A-4 チェルノブイリ原子力発電所事故における Lava (brown lava) [A5]

(2) 分析フローの例

燃料デブリについて分類したいくつかの類型((1)参照)に応じて、以下に、一般的な観点で の分析フローとデータの整理の方法の例を記載した。

①サンプルの概略的な特徴に基づく類似物質の探索

予め、TMI-2 事故、チェルノブイリ事故、SA 模擬試験で形成された様々な燃料デブリ、模 擬デブリの特徴を類型化しておき、1F から取得された燃料デブリサンプルの外観観察や放射 線測定から、類似する物質が存在するかどうかを調査する。類似物質が見つかった場合には、 その特徴に基づいて、以下の分析フローを具体化する。類似物質が見つからなかった場合に は、その形成メカニズムを予測評価し、分析の参考知見としてとりまとめる。なお、以降の分 析フローの各段階においても、既存物質との類似性は常にみておくことが重要である。これ は、本文 2.1 節で前述した様々な課題を効率的に評価する上でも重要となる。

②サンプルを代表する部位の同定と分析用サンプルの採取

燃料デブリサンプルに対し、断面金相観察等により、輝度や密度等の特徴が異なる複数個 所の部位を同定し、部位別に各種の分析用サンプルをできるだけ複数採取する。この際、採取 個所の位置情報やサンプル採取時の状況(炉内での取得位置・方向、周辺物質の状況等¹)を 記録する。

¹ ボーリング調査が行われないことを前提とする場合、堆積深さ方向の知見を如何に取得する かが大きな課題となる。従来の様々な模擬試験や TMI-2 事故の知見を考慮すると(例えば、 TMI-2 事故の際に溶融コリウムプールの下に形成されたクラスト層の厚みは数 cm から十数 cm)、数 kg サンプルであっても、その上層と下層で大きく特徴が変化する可能性がある。
サンプルが粉末状、顆粒状、小石状の場合には、まず、放射線測定等により高線量部位の同 定を行う。次に、可能な範囲で線量に応じて複数個の分析用サンプルを採取し、上記と同様に 位置情報や状況等を記録する。

③核種·元素量の分析

採取した分析用サンプルを粉砕・混合して均質化し、そこから一部を分取して溶解・元素分離等を行って ICP-MS、放射能分析等により核種・元素量を定量する。複数個の分取を行うことが望ましい。不溶解残渣は SEM-EDX や SEM-WDX 等により元素比を分析する。

④相状態の分析

①で採取した分析用サンプルから一部分取し、樹脂埋め・断面研磨の後、SEM-EDX、SEM-WDX 等により、相の体積割合と組成を求める。特徴的な微細構造等が見られた場合、TEM-EDX 等による詳細分析を行う。

⑤特徴とばらつきの評価

核種・元素量(③)と相状態(④)の分析結果から、分取箇所ごとの特徴とばらつきを評価 する²。核種・元素量分析では平均的な組成、相状態分析では相状態のいくつかの特徴的なも のへの区分と各区分での組成を求め、これらから特徴とばらつきを求める。これらの結果と 燃料デブリサンプル全体の画像データを照らし合わせ、燃料デブリサンプル全体としての平 均的な特徴とばらつきを評価する。

⑥サンプルの保管

残った燃料デブリサンプルや分析用サンプルの一部を保管し、必要に応じて追加の分析等 に対応できるようにしておくことが望ましい。

² 複数の施設でのブラインドテスト(ベンチマーク分析)等による分析技術の向上も有効と考 えられる。

2. サンプル取得領域における燃料デブリの特徴評価に関する予備的考察

(1) 基本的な考え方

TMI-2 事故後の炉心状況の調査では、コアボーリングがなされ、RPV 内の燃料デブリの堆積 状態を概略把握し、以降の燃料デブリ取出しに大きく貢献した。しかし、1F では RPV が破損 し燃料デブリが PCV に移行していること等により、現時点でコアボーリング調査は計画され ていないと認識している。ボーリング調査が実現すれば、以降で実施する燃料デブリの特徴評 価の考え方も大きく変化すると考えられるが、ここでは、ボーリング調査がないことを前提に 考察を進める。

1F の事故によって生じた燃料デブリ及び燃料デブリ由来の混合物の処理においては、取出 し時の取り扱い、保管管理、処理処分においてそれぞれの特性を十分に把握し、適切な安全対 策を講じる必要がある。しかしながら、採取できる燃料デブリサンプルは限られており、炉内 にある全ての燃料デブリの状況を、分析データの積み上げのみで理解する事は難しい。燃料デ ブリの分析を補完・外挿する方法として、過去の事故知見や模擬試験からの推定等を駆使して 炉内状況を解析的に把握する試みが進められているが、シミュレーションだけで事故進展シナ リオを裏付けることは困難で、実データに基づく検証評価が不可欠である。

検証評価においては、燃料デブリが数トン〜数百トンの規模で事故炉の様々な領域に堆積し ているという現実、また、SA解析技術で扱う体系が炉心規模であることに対し、実際に採取さ れる燃料デブリサンプルは数kg規模と考えられていること、また、これを小分けして物理的・ 化学的に分析する場合の分析領域は高々数gあるいはそれ以下のサイズであること、という6 桁から9桁あるいはそれ以上の評価オーダーの違いをどのように克服するかという観点が重要 となる。このため、試案として、本文2.1節に記載したとおり、分析・評価を大きく二つの段 階に分けて燃料デブリの特性を評価することを検討した。第一段階は、1.で示した「燃料デブ リサンプルの平均的特徴とばらつきの評価」であり、ここでは第二段階として、サンプル採取 位置における事故進展シナリオ等を踏まえ、「サンプル取得領域の燃料デブリの特徴」を評価す る。さらに、対象となる領域(例えば、2号機のペデスタル堆積物、等)を具体的に選定し、そ の領域から取得される複数の燃料デブリサンプルがそれぞれ代表性を有していると評価できる 範囲を重ね合わせ、かつ、他領域の評価結果等も含めて俯瞰的・多角的に解析評価することで、 対象となる領域の燃料デブリ全体の特性とそのばらつきを評価する。その評価結果が燃料デブ リ取出しの工程設計に十分であるかどうかを検討し、十分な情報が得られた領域とそうでない 領域を選別する。

このような段階的な評価により、燃料デブリ取出し作業で必要となる情報が十分に取得され ている領域・部位、そうでない領域・部位を整理し、実際の取出し工程で、同一の取出し方法 (安全性評価も含め)で取出すことのできる燃料デブリの範囲(場所・広がり・深さ)を定め ることに貢献できると認識している。逆に、情報が不十分で追加サンプル取得が必要となる領 域・部位も抽出できると認識している。このような評価手法を確立できれば、燃料デブリ取出 し作業が進捗するにつれて、評価できる領域・部位が広がり、効率的な燃料デブリ取出しにも 貢献できると考えられる。 実際の燃料デブリがどの程度の非均質性を有するかについては、これまでの現場観測やサン プル分析の結果から、少なくとも 1F2、3 号機ペデスタルの堆積物、燃料デブリ近傍の U 含有 粒子・相は、粒子・相ごとに化学的特性がかなりばらつくことが分かってきている。一方で、 できるだけ多くの測定点での定量分析を行うことで、統計的にデータを処理すると、全体的な 傾向(ばらつきが大きい因子とほとんど一定値を有する因子)が見えてくることも分かってき ている。このことは燃料デブリの非均質性を調べる上で、号機ごと領域ごとに、合理的な範囲 で、U 含有粒子・相の定量分析の測定数を増やし、その特性変化の傾向を把握することでサン プルの代表性をかなり評価できる可能性があることを示していると考えられる。この観点では、 U、Zr、Fe の SEM-EDX あるいは SEM-WDX 測定点数を積み重ねるのが特に効率的であると 考えられる。

また、最近の解析では、炉心部・下部プレナム部での燃料デブリの最高到達温度が、従来予 測に比べて低い可能性が指摘されており、その場合には、中間的な生成物となる U-Zr-O 溶融 物及びその酸化物の挙動と分布の評価が重要となる。分析により、堆積物の化学状態を明らか にすることで、1F での現実により近い模擬デブリを調製し、データを拡充すれば、RPV 内の 予測精度を向上できる可能性がある。このように、分析結果の統計処理からの燃料デブリ特徴 概略評価と、解析による予測を用いた概略評価を併用して、精度を向上していくのが望ましい。

(2) 分析と取得領域のスケールの違いについて

(1)で述べた二段階評価法は、地球科学の方法を参考にしており、以下で概説する。

点データから、マクロの現象を推定するという方法論は、隕石や岩石の分析等宇宙、地球科 学等、隕石から惑星の成因を探る作業と類似している部分もあり、参考にできる可能性がある



図 A-54 つの起源によるミキシングを仮定したキーダイアグラム解析

と考えられる。例えば、元素(主要、微量)分析や安定同位体比等をパラメータに、熱や圧力 を条件ごとに整理し、成分のミキシングあるいは同位体交換等の関係図を作成することによっ て点データを位置付ける方法である。一例として、4 成分によるキーダイアグラムを図 A-5 に 示す。いくつかの主要な起源による包括的なミキシングによる分類を考察するにはキーダイア グラム(図 A-5)等の解析手法が有効であると考えられる。キーダイグラムは、ミキシングに おける起源物質(端成分)を想定し、その全体に対する成分の割合をそれぞれのダイアグラム にプロットするものである。例えば、端成分を燃料、制御棒、RPV、ペデスタル等(コンクリ ート)と想定し、それぞれの主要成分の総和に対する注目成分の割合をそれぞれプロットする。 図 A-5 の中心の菱形の部分が 4 つの起源の成分の混合状態を理解するためのプロットとなる。 ここでは、ある点データがどのようなプロセスにより生成してきたポイントであるかを容易に 理解することができる。例えば、I~IVのカテゴリーに注目すると、カテゴリーIは、燃料と制 御棒の混合物であり、カテゴリーII は、燃料に対して RPV の成分が混入した際に生じたフラ クションであることが分かる。III、IV についても同様な考察が可能であり、どのようなミキシ ングプロセスや化学反応を経てきたかの理解を助けるために役立つ。本分析は、それぞれ燃料、 RPV 等の個別の成分に関しては、三角ダイアグラムでさらに細分化することで、それぞれの成 分がどのように混入したかの解釈の手助けにも役立つと考えられる。また、全溶解(破壊)し たバルク分析結果を利用すれば、高温での完全溶融反応、比較的低温での部分溶融であるか等 の区別や、非破壊分析による場合は、相の晶出過程での化学反応の推定、元素のやりとり等も 推定することも可能である。非破壊分析データのばらつきは、表面観察における相の割合等で データを補間することも有用であると考えられる。

これらの解析は、模擬デブリ等による実験結果について、反応温度条件、海水等の混合状況 等様々な化学反応を踏まえて分類しプロットし、さらに実データと比較することで、隠れた反 応条件、反応プロセス等が逆算して可視化できる可能性があり、限られたデータから代表性を 議論する参考になると考えられる。

参考文献(付録3)

- [A1] OECD/NEA, Benchmark Study of the Accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (BSAF Project) Phase 1 Summary Report, NEA/CSNI/R (2015)18, 2015.
- [A2] V. G. Asmolov, et al., Main Results of the First Phase of MASCA Project, OECD MASCA integrated report, NEA/CSNI/R(2004)23, 2004.

[A3] V. G. Asmolov, et al., Partitioning of U, Zr and FP between molten oxidic and metallic corium, MASCA Seminar 2004, Aix-en-Provence, France, 2004. https://oecd-nea.org/nsd/workshops/masca2004/oc/papers/RF_M_Partitioning.pdf, (参照:

2019年12月12日).

[A4] 倉田正輝ほか,長半減期核種の消滅処理技術の開発-超ウラン元素含有合金の製造とその特性の把握-,電力中央研究所研究報告 T92005, 1992.

[A5] V.G. Khlopin Radium Institute (KRI), Dr. Boris Burakov 氏の厚意により提供

_

表 1. SI 基本単位					
甘大昌	SI 基本単位				
本平里	名称	記号			
長さ	メートル	m			
質 量	キログラム	kg			
時 間	秒	s			
電 流	アンペア	Α			
熱力学温度	ケルビン	Κ			
物質量	モル	mol			
光度	カンデラ	cd			

表 2. 基本単位を用いて表されるSI組立単	位の例				
AI 立 是 SI 組 立 単位	SI 組立単位				
名称	記号				
面 積 平方メートル	m ²				
体 積 立方メートル	m ³				
速 さ , 速 度 メートル毎秒	m/s				
加 速 度メートル毎秒毎秒	m/s^2				
波 数 毎メートル	m ⁻¹				
密度,質量密度キログラム毎立方メートル	kg/m ³				
面 積 密 度 キログラム毎平方メートル	kg/m ²				
比体積 立方メートル毎キログラム	m ³ /kg				
電 流 密 度 アンペア毎平方メートル	A/m ²				
磁 界 の 強 さ アンペア毎メートル	A/m				
量 濃 度 ^(a) , 濃 度 モル毎立方メートル	mol/m ⁸				
質量濃度 キログラム毎立方メートル	kg/m ³				
輝 度 カンデラ毎平方メートル	cd/m ²				
屈 折 率 ^(b) (数字の) 1	1				
比 透 磁 率 (b) (数字の) 1	1				
(a) 量濃度(amount concentration)は臨床化学の分野では物質濃度					

(substance concentration)ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

			SI 租立单位	
組立量	名称	記号	他のSI単位による 表し方	SI基本単位による 表し方
平 面 角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体鱼	ステラジアン ^(b)	$sr^{(c)}$	1 (b)	m^2/m^2
周 波 数	ヘルツ ^(d)	Hz	-	s ⁻¹
力	ニュートン	Ν		m kg s ⁻²
E 力 , 応 力	パスカル	Pa	N/m ²	$m^{-1} kg s^{-2}$
エネルギー,仕事,熱量	ジュール	J	N m	$m^2 kg s^2$
仕 事 率 , 工 率 , 放 射 束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電 荷 , 電 気 量	クーロン	С		s A
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 kg s^{\cdot 3} A^{\cdot 1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} kg^{-1} s^4 A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2 kg s^{-3} A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	s	A/V	$m^{2} kg^{1} s^{3} A^{2}$
磁東	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2 kg s^2 A^{-1}$
磁束密度	テスラ	Т	Wb/m ²	$kg s^{-2} A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	$m^2 kg s^2 A^2$
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光東	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照度	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^2 s^2$
線量当量,周辺線量当量, 方向性線量当量,個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	$m^2 s^{-2}$
酸素活性	カタール	kat		s ⁻¹ mol

酸素活性(1) ダール kat [s¹ mol]
 (w)SH接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはや コヒーレントではない。
 (h)ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明 示されない。
 (a)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d)へルツは周期現象についてのみ、ペラレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。 セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。それシウス度とケルビンの
 (a)やレシウス度はケルビンの特別な名称で、温度器や温度開隔を表す整備はどもらの単位で表しても同じである。
 (b)放射性核種の放射能(activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g)単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM物告2 (CI-2002) を参照。

表4.単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

	S	[組立単位	
組立量	名称	記号	SI 基本単位による 表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
カのモーメント	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
表 面 張 九	リニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角 速 度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
角 加 速 度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m m^{-1} s^{-2} = s^{-2}$
熱流密度,放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	kg s ⁻³
熱容量、エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 kg s^{2} K^{1}$
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^{2} s^{2} K^{1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2 s^2$
熱伝導率	「ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電 荷 密 度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
表面電荷	「クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
電東密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² s A
誘 電 卒	コアラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$
透 磁 率	ペンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2 kg s^2 mol^1$
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^2 kg s^{-2} K^{-1} mol^{-1}$
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
吸収線量率	ダレイ毎秒	Gy/s	$m^{2} s^{3}$
放 射 強 度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4 m^{-2} kg s^{-3} = m^2 kg s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2 sr)$	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	$m^{-3} s^{-1} mol$

表 5. SI 接頭語							
乗数	名称	記号	乗数	名称	記号		
10^{24}	э 9	Y	10 ⁻¹	デシ	d		
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	с		
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m		
10^{15}	ペタ	Р	10^{-6}	マイクロ	μ		
10^{12}	テラ	Т	10^{-9}	ナノ	n		
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	р		
10^{6}	メガ	М	10^{-15}	フェムト	f		
10^3	+ 1	k	10^{-18}	アト	а		
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z		
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	v		

表6.SIに属さないが、SIと併用される単位				
名称	記号	SI 単位による値		
分	min	1 min=60 s		
時	h	1 h =60 min=3600 s		
日	d	1 d=24 h=86 400 s		
度	۰	1°=(π/180) rad		
分	,	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad		
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad		
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²		
リットル	L, 1	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³		
トン	t	$1 t=10^3 kg$		

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で

表される数値が実験的に得られるもの					
名称			記号	SI 単位で表される数値	
電子	ボル	ŀ	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J	
ダル	- F	\sim	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg	
統一原	子質量単	単位	u	1 u=1 Da	
天 文	単	位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m	

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海 里	Μ	1 M=1852m
バーン	b	$1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=(10^{-12} \text{ cm})^2=10^{-28} \text{m}^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位しの粉結的な朋友け
ベル	В	対数量の定義に依存。
デシベル	dB -	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値		
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J		
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N		
ポアズ	Р	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s		
ストークス	St	$1 \text{ St} = 1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{\cdot 1} = 10^{\cdot 4} \text{ m}^2 \text{ s}^{\cdot 1}$		
スチルブ	$^{\mathrm{sb}}$	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd cm}^{-2} = 10^4 \text{ cd m}^{-2}$		
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx		
ガ ル	Gal	1 Gal =1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²		
マクスウエル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$		
ガウス	G	1 G =1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T		
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe ≙ (10 ³ /4 π)A m ⁻¹		
(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ▲ 」				

は対応関係を示すものである。

			表	10.	SIに 尾	属さないその他の単位の例
	-	名利	5		記号	SI 単位で表される数値
キ	ユ		IJ	ſ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
$\scriptstyle u$	\sim	ŀ	ゲ	\sim	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$
ラ				K	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
$\scriptstyle u$				Д	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガ		$\boldsymbol{\mathcal{V}}$		7	γ	$1 \gamma = 1 \text{ nT} = 10^{-9} \text{T}$
フ	T.		N	"		1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メー	ートル	采	カラゞ	ット		1 メートル系カラット= 0.2 g = 2×10 ⁻⁴ kg
ŀ				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
+1	ы		11	_		1 cal=4.1858J(「15℃」カロリー), 4.1868J
15	Ц		9		cal	(「IT」カロリー), 4.184J(「熱化学」カロリー)
3	ク			~	u	$1 \mu = 1 \mu m = 10^{-6} m$