

福島第一原子力発電所2号機原子炉格納容器 貫通部X-6内の堆積物の分析

Analysis of Deposits Inside "X-6 Penetration" for
the Unit 2 Primary Containment Vessel at
Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

米山 海 二田 郁子 田中 康之 小高 典康
菊池 里玖 坂野 琢真 古瀬 貴広 佐藤 宗一
三本木 満 田中 康介

Kai YONEYAMA, Ayako NITTA, Yasuyuki TANAKA, Noriyasu KODAKA
Riku KIKUCHI, Takuma SAKANO, Takahiro FURUSE, Soichi SATO
Mitsuru SAMBONGI and Kosuke TANAKA

福島廃炉安全工学研究所
大熊分析・研究センター

Okuma Analysis and Research Center
Fukushima Research and Engineering Institute

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。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Library, Institutional Repository and INIS Section,
Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

福島第一原子力発電所 2 号機原子炉格納容器貫通部 X-6 内の堆積物の分析

日本原子力研究開発機構 福島廃炉安全工学研究所

大熊分析・研究センター

米山 海, 二田 郁子, 田中 康之, 小高 典康, 菊池 里玖, 坂野 琢真,
古瀬 貴広, 佐藤 宗一⁺, 三本木 満, 田中 康介

(2025 年 7 月 22 日受理)

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（1F）の廃炉に向け、原子炉建屋格納容器内部の調査が行われている。燃料デブリの取出しや建屋解体の作業を安全に進めるためには、汚染状況を把握し、作業の計画や作業者の被ばくを管理する必要がある。本件は、2 号機原子炉格納容器貫通部 X-6 (X-6 ペネ) 内の堆積物について、含まれる元素、放射性核種濃度、核種組成を把握することを目的に分析を実施した。

本分析の対象試料は、スミヤロ紙に付着した X-6 ペネ内部の堆積物である。堆積物に含まれる γ 核種の把握、また、元素や元素の共存の様子を把握するため、非破壊分析として γ 線スペクトル分析、蛍光 X 線 (XRF) 分析、走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線 (SEM-EDX) 分析を実施した。さらに、堆積物に含まれる放射性核種やその組成を詳細に明らかにするために、堆積物を硝酸及びフッ化水素酸で溶解し、溶解液中の γ 核種、Sr-90 及び α 核種の放射能分析を実施した。得られた結果を、2020 年に X-6 ペネ内の異なる場所で採取された堆積物の分析結果と比較した。

非破壊での γ 線スペクトル分析では、Co-60, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155 及び Am-241 が検出された。XRF 分析では、格納容器内の構造物由来と考えられる Fe が主要な元素として検出され、そのほか燃料や燃料被覆管に由来すると考えられる微量の U 及び Zr が検出された。SEM-EDX 分析の結果では、堆積物の主要な元素として O と Fe が検出されたことに加え、U を含む粒子が観察され、U とともに Fe, Si, Cr, Ni, Zr が検出された。これらの結果は 2020 年採取試料と同様の傾向であった。

放射能分析では、非破壊測定で検出された γ 核種 (Co-60, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155) に加えて、Sr-90, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244, U-235, U-238 の定量値を得た。これらの結果をもとに、1F 事故に由来する汚染の主要な γ 線放出核種である Cs-137 を基準とした放射能比を算出した。さらに、U-238 に対する放射能比についても算出し、ORIGEN による 2 号機の燃料組成の計算値と比較した。

大熊分析・研究センター：〒979-1301 福島県双葉郡大熊町夫沢字北原 5

⁺戦略推進部

Analysis of Deposits Inside "X-6 Penetration" for the Unit 2 Primary Containment Vessel at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

Kai YONEYAMA, Ayako NITTA, Yasuyuki TANAKA, Noriyasu KODAKA,
Riku KIKUCHI, Takuma SAKANO,
Takahiro FURUSE, Soichi SATO⁺, Mitsuru SAMBONGI and Kosuke TANAKA

Okuma Analysis and Research Center
Fukushima Research and Engineering Institute
Japan Atomic Energy Agency
Okuma-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

(Received July 22, 2025)

At the TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F), an investigation inside the reactors has been carried out. In order to safely carry out the decommissioning work such as fuel debris retrieval and building demolition, it is important to estimate the contamination in primary containment vessel for control the decommissioning planning and the worker radiation exposure levels. Therefore, the analysis of the deposit inside the penetration for the 1F Unit 2 primary containment vessel ("X-6 penetration") was performed to clarify the components and activity.

The smears from the deposit were used for the analysis. Non-destructive analysis such as gamma-ray spectrometry, X-ray Fluorescence (XRF) and Scanning Electron Microscope-Energy dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDX) for the smear-samples were performed to determine the gamma-nuclides and the morphology of elements in the deposit. Furthermore, in order to evaluate the nuclides and nuclide composition of the deposit in detail, the smear-samples were dissolved and the quantitative analysis of gamma-nuclides, Sr-90, alpha-nuclides in the dissolved solution were conducted. The results (non-destructive analysis and quantitative analysis) were compared with the results of samples collected at different locations in the X-6 penetration in 2020.

In the gamma-ray spectrometry as non-destructive analysis where the smears were analyzed directly, Co-60, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155 and Am-241 were detected. In XRF results, Fe originating from construction material was detected as a major element and small amount of U and Zr originating from the fuel and fuel cladding were also detected. In SEM-EDX results, O and Fe were found as a major element of the deposit and U particles coexisting with Fe, Si, Cr, Ni and Zr were also found. These results were consistent with the SEM-EDX results of the samples collected in 2020.

In radioactivity analysis, quantitative values for gamma-nuclides (Co-60, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155), Sr-90, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244, U-235 and U-238 were obtained. Using the results, the ratios of radioactivity based on Cs-137 and U-238 were calculated. Both sets of the ratios were compared to the calculated value of the unit 2 fuel composition from ORIGEN.

Keywords: Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Deposits Inside Reactor, U-bearing Particles, X-6 Penetration, Radioactive Analysis

⁺Strategy and Management Department

目次

1.はじめに.....	1
2.目的.....	1
3.対象試料.....	1
4.分析項目.....	2
5.非破壊分析.....	2
5.1 分析方法.....	2
5.1.1 外観観察及び表面線量率測定.....	2
5.1.2 γ 線スペクトル分析.....	2
5.1.3 XRF 分析.....	3
5.1.4 SEM-EDX 分析.....	3
5.2 分析結果及び考察.....	4
5.2.1 外観観察及び表面線量率測定.....	4
5.2.2 γ 線スペクトル分析.....	4
5.2.3 XRF 分析.....	4
5.2.4 SEM-EDX 分析.....	5
6.放射能分析.....	7
6.1 分析方法.....	7
6.1.1 概要.....	7
6.1.2 試薬及び測定機器.....	7
6.1.3 試料の溶解.....	7
6.1.4 γ 核種分析.....	7
6.1.5 Sr-90 分析.....	8
6.1.6 α 核種分析.....	8
6.1.7 不確かさ.....	9
6.2 分析結果及び考察.....	10
6.2.1 試料の溶解.....	10
6.2.2 放射能測定結果.....	11
6.2.3 放射能比.....	11
7.まとめ.....	13
謝辞.....	13
参考文献.....	14
付録 測定時点におけるスミヤロ紙片あたりの放射能濃度.....	44

Contents

1. Introduction	1
2. Objective	1
3. Samples for analysis.....	1
4. Analysis plan.....	2
5. Non-destructive analysis	2
5.1 Analysis method.....	2
5.1.1 Appearance observation	2
5.1.2 Gamma-spectrum analysis	2
5.1.3 XRF	3
5.1.4 SEM-EDX	3
5.2 Result and discussion	4
5.2.1 Appearance observation	4
5.2.2 Gamma-ray spectrum analysis	4
5.2.3 XRF	4
5.2.4 SEM-EDX	5
6. Radiometric analysis	7
6.1 Analysis method.....	7
6.1.1 Overview	7
6.1.2 Reagents and measuring equipments.....	7
6.1.3 Sample dissolution	7
6.1.4 Radiation analysis for gamma-emitting nuclides	7
6.1.5 Radiation analysis for Sr-90	8
6.1.6 Radiation analysis for alpha-emitting nuclides	8
6.1.7 Uncertainties.....	9
6.2 Result and discussion	10
6.2.1 Sample dissolution	10
6.2.2 Result of radiation analysis	11
6.2.3 Radioactivity ratio	11
7. Conclusion.....	13
Acknowledgements	13
References.....	14
Appendix Radioactivity concentration of various radionuclides in smear sample at the time of measurement	44

表リスト

表 1	第1棟で受け入れたスミヤろ紙試料の試料番号と α 線計数率	15
表 2	各試料における分析項目	15
表 3	各試料における γ 線スペクトル分析（定性）の測定条件	15
表 4	SEM 観察, 元素マッピング画像条件	16
表 5	SEM-EDX 分析における各測定モードの測定時間	16
表 6	スミヤろ紙試料の表面線量率測定結果	16
表 7	各試料の γ 線スペクトル分析結果	17
表 8	U の特性 X 線におけるピーク面積の比率	17
表 9	SEM-EDX 分析を実施した箇所と検出された元素の一覧	17
表 10	使用した試薬	18
表 11	使用した測定機器	19
表 12	定量に用いた γ 線エネルギー	19
表 13	各核種の分析値に対して考慮した不確かさの要因	20
表 14	超音波前ろ紙片 (A) に対する超音波後ろ紙片 (B) と超音波回収物 (C) の放射能の割合	21
表 15	超音波回収物 (C) における溶解状況	21
表 16	超音波後ろ紙片 (B) における溶解状況	22
表 17	スミヤろ紙片あたりの放射能濃度	22
表 18	Am-241 における γ 線スペクトロメトリ, α 線スペクトロメトリの比較	22
表 19	U-235 と U-238 の質量比の比較	23
表 20	23P-2 の Cs-137 に対する放射能比	23
表 21	23P-2 の U-238 に対する放射能比	23

図リスト

図 1	2020 年に実施された X-6 ペネ内堆積物の調査の様子	24
図 2	2023 年に実施された X-6 ペネ内堆積物の調査の様子	24
図 3	第 1 棟で受け入れたスミヤロ紙試料の外観	25
図 4	23P-2 の γ 線スペクトル (0 ~ 1000 keV)	25
図 5	23P-2 の γ 線スペクトル (1000 ~ 2000 keV)	26
図 6	試料間の検出核種の計数率の比較	26
図 7	23P-2 の各分析への分割状況	27
図 8	23P-2 における XRF 分析の測定部位	27
図 9	23P-2 の XRF スペクトル (A : 測定全領域, B : 0~10 keV, C : 10~20 keV)	28
図 10	範囲 A の反射電子像 (各スポットに検出元素をプロット)	29
図 11	範囲 A の各スポットから検出された EDX スペクトル	29
図 12	範囲 B の反射電子像 (各スポットに検出元素をプロット)	30
図 13	範囲 B の各スポットから検出された EDX スペクトル	30
図 14	範囲 B の元素マッピング (赤点線枠内が元素マッピング範囲)	31
図 15	範囲 C の反射電子像 (赤点線枠内がエリアスキャン範囲)	31
図 16	範囲 C のエリアスキャンで検出された EDX スペクトル	32
図 17	範囲 C の EDX による元素マッピング (赤点線枠内が元素マッピング範囲)	32
図 18	範囲 D の反射電子像 (スポットに検出元素をプロット)	33
図 19	範囲 D のスポットから検出された EDX スペクトル	33
図 20	範囲 D の EDX による元素マッピング (赤点線枠内が元素マッピング範囲)	34
図 21	23P-2 における放射能定量分析フロー	35
図 22	Sr の化学分離フロー	37
図 23	U, Pu, Am, Cm の化学分離フロー	38
図 24	超音波照射前後のスミヤロ紙片と超音波回収物の外観	39
図 25	超音波回収物の溶解液の γ 線スペクトル	40
図 26	超音波後ろ紙片の溶解液の γ 線スペクトル	40
図 27	超音波後ろ紙片の残渣の γ 線スペクトル	41
図 28	23P-2 及び 2020 年採取試料 (2PEN2101, 2PEN2102) の Cs-137 に対する放射能比	42
図 29	23P-2, 2 号機燃料組成及び 2020 年採取試料 (2PEN2101, 2PEN2102) の U-238 に対する放射能比	43

1. はじめに

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（1F）の廃炉に向けて、原子炉建屋格納容器（PCV）内部の調査が行われている。燃料デブリの取出しや建屋解体の作業を安全に進めるためには、汚染状況を把握し、作業の計画や作業者の被ばくを管理する必要がある。

PCV 内部調査や燃料デブリの試験的な取出し作業のためのアクセスルート検討の一環として、2 号機原子炉格納容器貫通部 X-6（X-6 ペネ）のハッチの蓋に穴をあけ内部観察が行われた。その結果、X-6 ペネ内部に堆積物の存在が確認されている。2020 年に、東京電力ホールディングス株式会社（東京電力 HD）は、X-6 ペネハッチ蓋にあけた穴から調査装置を挿入して堆積物の調査を行った（図 1）^{[1][2]}。調査に使用されたアーム型装置先端に付着した堆積物の一部をスミヤロ紙で拭き取り、堆積物の試料が採取され（2020 年採取試料）、放射能分析及び元素分析が行われた^{[3][4]}。

2023 年 10 月に堆積物の撤去に向けてハッチの蓋を開放したところ、ハッチ蓋の内側と接する面では X-6 ペネの下部から上部まで堆積物が存在する状況が確認された（図 2、左）。堆積物について詳細に調査するため、2023 年 11 月 20 日に、ハッチの蓋内側に付着した堆積物をスクレーパにより剥がす作業が行われた（図 2、右）^[5]。作業に使用されたスクレーパの表面をスミヤロ紙で拭き取り、堆積物の試料が採取された。日本原子力研究開発機構（JAEA）大熊分析・研究センター 放射性物質分析・研究施設 第 1 棟（第 1 棟）では、この試料を受け入れ、元素分析及び放射能分析を実施した。また、得られた結果を 2020 年採取試料の分析結果^[4]と比較した。

2. 目的

格納容器内の汚染状況を把握し、廃炉に関わる作業管理に資するため、X-6 ペネ内の堆積物に含まれる元素、放射性核種濃度、核種組成を把握することを目的とする。

3. 対象試料

本分析の対象試料はスミヤロ紙に付着した X-6 ペネ内の堆積物（9 試料）である。採取時に東京電力 HD により α 線の測定が行われた結果、全ての試料で有意値が検出されており（表 1）、 α 核種を含む試料である。

4. 分析項目

第1棟で受け入れた9試料(23P-1～23P-9)全てに対して、外観観察を実施するとともに、試料に含まれる γ 線核種を把握することを目的に非破壊状態で γ 線スペクトル分析を実施した。そのうち1試料(23P-2、選定方法は5.2.2項を参照)について、元素分析として蛍光X線(XRF)分析及び走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型X線分光(SEM-EDX)分析を実施した。XRF分析は堆積物全体の主要な元素を把握すること、SEM-EDX分析は堆積物に含まれるU粒子についてUと共存する元素を把握することをそれぞれ目的とした。

さらに、元素分析を実施した試料(23P-2)について、 γ 核種以外の放射性核種を含めた汚染状況を核種組成にて評価するために、試料を溶解して放射能定量分析を実施した。1F事故による汚染の主要な放射性核種の汚染状況の把握、また、由来の異なる放射性核種の汚染状況の把握の観点から、次に示す放射性核種を分析対象とした。

- ・ 1F事故による汚染の主要な核種: Cs-134, Cs-137, Sr-90
- ・ 燃料を構成する核種: U-235, U-238, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244
- ・ 核分裂生成物: Ru-106, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155
- ・ 放射化生成物の代表的な核種: Co-60

9試料に実施した分析項目を表2に示す。

5. 非破壊分析

5.1 分析方法

5.1.1 外観観察及び表面線量率測定

9試料(23P-1～23P-9)について、堆積物の外観を目視により観察した。また、電離箱式サーベイメータにて試料の表面線量率を測定した。測定は、試料を収納しているポリ袋越しに実施し、試料とサーベイメータの検出面の距離は約1cmの位置とした。

5.1.2 γ 線スペクトル分析

9試料(23P-1～23P-9)について、含まれる γ 核種や試料による γ 核種の組成の違いを把握するため、 γ 線スペクトルの定性分析を実施した。

測定は、ウェル型ゲルマニウム半導体検出器(ORTEC社製、GWL-220-15)を使用した。試料の表面線量率に応じて、不感時間が10%以下となるよう、ウェル上部またはウェル上部から約50cm離した位置に試料を設置した。測定時間は2000秒とした。試料はポリ袋に収納された状態で、ジオメトリを統一していない。測定条件を表3に示す。スペクトルを解析するにあたっては、8種類(Am-241, Cd-109, Co-57, Ce-139, Ba-133, Cs-137, Y-88, Co-60)のRI標準液を混合して作製した校正用試料を測定し、エネルギー校正を行った。

本分析では、2020年採取試料で検出が報告^[4]された核種に加え、その他に検出される核種の存

在の有無に着目した。2020 年採取試料では、燃料の構成成分である Am-241, Am-243, 核分裂生成物である Ru-106, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Ce-144, Eu-154, Eu-155 及び放射化生成物である Co-60 が検出されている。主に核分裂生成物として生成する Eu-154 は、ランタニド核種でありアクチニドと化学的性質が類似するため、Eu-154 の γ 線測定による U, Pu の分布や量の把握として注目される核種である^[6]。

5.1.3 XRF 分析

23P-2 試料（選定の詳細は 5.2.2 項を参照）を対象に実施した。

XRF 分析装置はアワーズテック社製 OURSTEX170 を使用した。X 線発生装置のターゲット金属は Ag を使用し、電圧、電流をそれぞれ 40 kV, 10 μ A の条件で 600 秒間測定した。試料室の雰囲気は大気である。試料を、厚さ 0.04 mm のポリエチレン製の袋を二重にして収納し、スミヤロ紙の堆積物が付着している部位に X 線を照射して測定した。スペクトルを解析するにあたっては、Al と Sn の混合試料を測定してエネルギー校正を行った。なお、堆積物を構成する元素に由来する特性 X 線を抽出するため、ブランク試料として未使用のスミヤロ紙と同じ条件で測定した。

5.1.4 SEM-EDX 分析

23P-2 試料（選定の詳細は 5.2.2 項を参照）を対象に実施した。

測定試料の作製は以下の手順で実施した。スミヤロ紙に導電性のカーボンテープを軽く押さえつけて堆積物をカーボンテープ上に移した。非導電性の試料の測定において、SEM 観察時の帶電を防ぐために第 1 棟の通常の分析フローでは Au-Pd 蒸着を行うが、本分析では EDX 測定において着目する U や Zr の特性 X 線のエネルギーが Au や Pd の特性 X 線のエネルギーと重なることから、蒸着を行わずに観察した。

SEM は日立ハイテク社製 TM4000Plus, EDX はブルカー社製のシリコンドリフト検出器 Quantax75 を使用した。SEM 観察は、加速電圧 15 kV、観察倍率 60 倍～1800 倍で行った。元素の種類に着目し、質量数の違いがコントラスト（像の明るさ）に現れる反射電子像を取得した。蒸着を行っていないため、帶電軽減のために試料室の真密度を低真空（約 100 Pa）とした。測定条件を表 4 に示す。

EDX 測定では 3 種類の分析方法を用いた。視野の 1 点に電子線照射位置を固定して特性 X 線のスペクトルを得る「スポット分析」、電子線を指定するエリア内で走査させてエリア全体における特性 X 線のスペクトルを得る「エリヤスキャン分析」及び指定するエリアにおける特定の元素の二次元分布を得る「元素マッピング分析」である。各分析における測定時間を表 5 に示す。なお、スペクトルを解析するにあたっては、Cu の標準試料を測定し、エネルギー校正を行った。

5.2 分析結果及び考察

5.2.1 外観観察及び表面線量率測定

図3に試料の外観、表6に表面線量率の測定結果を示す。試料により堆積物が付着している量は異なるが、堆積物は黒色の細かな粒子であった。目視で堆積物の付着量が多いほど表面線量率が大きく、表1に示した α 線計数率も大きい傾向がみられた。また、 γ 線に対し、 $\beta\gamma$ 線の表面線量率が大きいことから、核種組成として β 核種の割合が大きいと考えられる。

5.2.2 γ 線スペクトル分析

9試料のうち、一例として23P-2で得られたスペクトルを図4,5に示す。また、着目核種に対する各試料の検出、不検出の結果を表7に示す。全ての試料において、Co-60, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155及びAm-241が検出された。これらは2020年採取試料で検出された核種と共通している。一方、2020年採取試料で検出されたRu-106, Ce-144, Am-243について、本分析9試料いずれからも不検出であった。Ru-106及びCe-144は半減期がそれぞれ、374日、285日と短いため、減衰したものと考えられる。Am-243は、長半減期(7.37×10^3 年)であるが、燃料における生成量が少なく(事故後10年において、放射能量でAm-241に対して100分の1^[7])、検出下限値未満であったと考えられる。

X-6ペネ内の堆積物には、燃料構成成分、核分裂生成物、放射化生成物と由来が異なる様々な放射性核種が検出された。これらを定量することで、格納容器内における放射性核種の挙動の推定に資することが期待できる(詳細は6章を参照)。検出された核種の計数率(cps)について、Eu-154に対する比を算出し23P-1～23P-9で比較したところ、9試料はおおよそ同等と考えられた。図6に、試料の表面線量率が比較的高い試料と低い試料から選んだ4試料のEu-154に対する計数率の比を例示する。この結果から、以降のXRF測定、SEM-EDX測定及び放射能定量分析については、スミヤロ紙上の堆積物が十分目視で確認でき、かつ、分析操作における作業者の被ばくの観点から、比較的線量率の低い23P-2を対象に行うこととした。23P-2試料の各分析への分割状況を図7に示す

5.2.3 XRF分析

23P-2試料について図8の部位にX線を照射して測定した。得られたスペクトルからブランク試料の測定で得られたスペクトルを差し引き、検出されたピークについて(図9)元素の同定を行った。最も強度が大きいピークはFeのK線であった。その他、Ti, Cr, Niが検出された。Fe, Cr, Niは構造材に由来すると考えられる。

また、UのL線($L_\alpha: 13.6\text{ keV}, L_{\beta 1}: 17.2\text{ keV}, L_{\beta 2}: 16.4\text{ keV}$), ZrのK線($K_\alpha: 15.7\text{ keV}, K_\beta: 17.7\text{ keV}$)のエネルギー位置に微小(数から十数カウント)のピークが見られた。これらがUまたはZrの特性X線であることを確かめるため、その他の元素の特性X線のエネルギー、主要ピークであるFe等のサムピークのエネルギーと比較し、干渉しないことを確認した。また、Uについては、 $L_\alpha, L_{\beta 1}, L_{\beta 2}$ 線に相当するピークの面積比が文献値^[8]とほぼ一致した(表8)。これらから、検出されたピークは、U, Zr由来の特性X線であると判定した。 γ 線スペクトル分析結果でAm-241が検出されていることから、Uは燃料に由来すると考えられる。また、Zrは燃料被覆管及び

チャンネルボックスの材料であるジルカロイの主要な構成元素であり、これに由来すると考えられる。

以上から、X-6 ペネ内の堆積物は損傷した金属構造材成分、燃料構成成分及び被覆管成分を含んでいると考えられる。

5.2.4 SEM-EDX 分析

はじめに、堆積物中に含まれる粒子を反射電子像で全体的に観察した（範囲 A）。反射電子の放出強度は試料表面に存在する元素の原子番号に依存し、大きいほど放出率は多くなるため、画像上では明るく表示される。

範囲 A の反射電子像（図 10）をみると、粒子は小さいもので数 μm 、大きいもので $10 \mu\text{m}$ 程であった。また、暗い粒子の中に極めて明るい粒子が存在した。観察された粒子から 5 つを選定し、EDX 測定により、各粒子の代表 1 点で元素分析（スポット分析）を行った。

観測された各スポットのスペクトル（図 11）より、各粒子からは O と Fe が共通して検出された。明るい粒子では共通して U が検出され、暗い粒子では検出されなかった。U を含む明るい粒子には、表面のコントラストが比較的均質な塊状の粒子と数 μm ～十数 μm 程度の複数の微粒子が凝集したような粒子が見られた。前者の粒子（スポット③、④、⑤）からは U、O、Fe、Si、Ni、Zr のピークが検出され、後者の粒子（スポット①、②）からは O、Fe、Si、Ni が検出された。各スポットの検出元素を表 9 に示す。

次に、堆積物中の粒子をさらに探索し、U 粒子について詳細な観察を行った。堆積物中の明るい粒子を低倍率から徐々に高倍率にして範囲を絞り、3 つの粒子を選定した（範囲 B～D）。これらについて元素分析（スポット分析またはエリヤスキャン分析）及び元素マッピング分析を行った。それぞれの範囲における各元素分析の結果を以下に述べる。また、反射電子像を図 12, 15, 18 に、EDX スペクトルを図 13, 16, 19 に、元素マッピング画像を図 14, 17, 20 にそれぞれ示す。

（1）元素分析及び元素マッピング分析

範囲 B

観察した粒子（図 12）は、明るい塊状の粒子と、複数の微粒子が凝集した形態であった。この粒子の大きさは十数 μm 程であり、範囲 A（図 11）で観察した粒子（数 μm ～ $10 \mu\text{m}$ ）に比べて大きい。塊状の粒子と微粒子では反射電子像のコントラストが異なる様子がみられたため、粒子状の 3 か所について元素分析（スポット分析）を実施した。各スポットから観測されたスペクトル（図 13）を見ると、全てのスポットから U, O, Fe のピークが共通して検出されたほか、明るい部位を測定したスポット①からは Cr, Zr が、暗い部位を測定したスポット③からは Si, Cr, Ni, Zr が検出された。粒子の元素マッピング画像（図 14）を見ると、粒子内で明るい部位（スポット①、②）に U が集積している様子が見られた。

範囲 C

観察した粒子（図 15）は、複数の明るい粒子や暗い粒子が凝集した形態であった。明るい微粒子の大きさは範囲 B で見られた明るい粒子と比べて小さい。範囲 C については粒子全体の構成元素を把握するため、エリヤスキャン分析を行った。スペクトル（図 16）から U, O, Fe, Si, Cr, Ni, Zr が検出された。粒子の元素マッピング画像（図 17）を見ると、粒子表面の明るい部位に U が集積している様子が見られた。

範囲 D

観察した粒子（図 18）は、平滑な表面を持つ粒子であった。1 点についてスポット分析を行ったところ、反射電子像では明るく見えた粒子だが、スペクトル（図 19）からは O, S, Ca, Fe が検出され、U, Cr, Zr 等の元素は検出されなかった。粒子の元素マッピング画像（図 20）から S と Ca が粒子全体に分布していることが分かった。

(2) 2020 年採取試料の分析結果との比較

2023 年に採取された本分析対象試料（23P-2）の分析結果（表 9）より、堆積物の主要な元素は U, Fe, O であることが確認された。観察した範囲では、粒子の大きさは数 μm から 30 μm 程度であった。また、粒子によって共存する元素は様々だが、U が Fe, Zr, Cr, Ni と共に存している様子が確認された。2020 年採取試料の SEM-EDX 測定の結果^[4]では、主要な元素は U, Fe, Zr, O であり、U 粒子または U を含む粒子の大きさは数 μm から 30 μm 程度で Fe, Zr, Cr, Ni 等の共存が報告されている。これより、23P-2 と 2020 年採取試料では粒子の大きさ、主要な元素及び U と共に存する元素について同様の傾向が見られた。

また、本分析で範囲 D に S, Ca を主とする粒子が確認されたことについては、2020 年採取試料においても S, Ca の存在箇所がわずかに検出されていることから^[4]、堆積物に S, Ca が微量に存在すると考えられる。

6. 放射能分析

6.1 分析方法

6.1.1 概要

23P-2 の放射能分析の方針として、スミヤロ紙に付着した堆積物を硝酸及びフッ化水素酸で溶解し、さらに、Sr-90 及び α 核種については化学分離により各元素を単離し、測定した。

堆積物の溶解においては、取扱いの中で堆積物がスミヤロ紙から剥離することによる損失と作業環境の汚染を限りなく低減することを目的とし、予めスミヤロ紙ごと超純水に浸漬し、液中で超音波処理によって堆積物をスミヤロ紙から回収することを試みた。処理によって一部の堆積物を回収できたが、半分程度の堆積物がスミヤロ紙に残留したため、超音波処理後のスミヤロ紙についてもスミヤロ紙ごと溶解して分析した。フローを図 21 に示す。

6.1.2 試薬及び測定機器

放射能定量分析で使用した試薬について表 10 に示す。また、測定機器類について表 11 に示す。

6.1.3 試料の溶解

超音波処理による堆積物の回収は、スミヤロ紙をガラスバイアルに入れ、10 mL の超純水に浸漬し、これに低周波の超音波 (42 kHz) を 30 分間照射して行った。超音波照射後のスミヤロ紙片を取り出し、浸漬液を孔径 0.1 μm のフィルタで吸引ろ過を行い、浸漬液中に剥離した堆積物を回収した。

超音波照射により回収した堆積物 (超音波回収物) は、フィルタごとテフロンビーカーに入れ、溶解を行った。硝酸 5 mL を添加してホットプレートにて沸騰状態で 30 分間加熱後、フッ化水素酸 0.1 mL を添加してさらに沸騰状態で 40 分間加熱した。目視にてフィルタ上の堆積物が溶解されていることを確認してフィルタを溶液から取り出し、残りの溶液をさらに加熱して蒸発乾固した。乾固物に硝酸を添加して再溶解し、孔径 0.1 μm のフィルタで吸引ろ過により残渣を回収し、ろ液を超純水で 50 mL に定容して溶解液とした。

超音波照射後のスミヤロ紙 (超音波後ろ紙片) は、はじめに有機物 (スミヤロ紙) を分解するために灰化処理を行った。超音波後ろ紙片を磁性るつぼに入れ、電気炉にて灰化 (450 °C, 10 分間) した。灰化処理した超音波後ろ紙片について、上述の超音波回収物と同様の溶解処理を行い、溶解液を得た。この際、超音波照射時に使用したガラスバイアルの硝酸洗浄液を合わせて、溶解操作を行った。

6.1.4 γ 核種分析

超音波回収物の溶解液、超音波後ろ紙片の溶解液及びそれぞれの残渣について γ 核種の定量分析を実施した。溶解液は 15 mL を 20 mL のガラスバイアルに入れて測定した。また、溶解残渣は回収したフィルタとともにプラスチック容器に入れて測定した。

測定は、ウェル型ゲルマニウム半導体検出器を使用した。溶解液は検出器上部に、溶解残渣は検出器上部から 5 cm 離した位置に試料を設置した。測定時間は 5000 秒とした。得られたスペク

トルを解析するにあたっては、8核種のRI標準液を混合して作製した試料と同じ形状の校正用試料を測定してエネルギー校正及び効率校正を行った。なお、各核種の定量に用いた γ 線エネルギーは表12のとおりである。

6.1.5 Sr-90 分析

図22にSrの化学分離フローを示す。溶解液1mLをガラスビーカーに入れ、1Mの硝酸で希釈して、Sr担体10mg、Ca担体50mg、Cs担体2mgを添加した。これに5M水酸化ナトリウム水溶液を添加してpHを12～14程度に調整後、炭酸ナトリウム5gを加えてSrを炭酸塩として沈殿させた。沸騰状態で10分間、約60℃で2時間加熱し、沈殿を熟成した。放冷後、炭酸塩沈殿を定量ろ紙5種Cでろ過回収し、8M硝酸で再溶解した。再溶解液をSrレジンに通液してSrを吸着させ、0.05M硝酸で溶離、回収した。回収液を、ガラスビーカーにて乾固直前まで加熱したところで速やかに0.1M硝酸で再溶解し、20mLに定容したものをSr分離液とした。Sr分離液8mLを分取してシンチレータ(Ultima Gold LLT)12mLと混合し、 β 線スペクトル測定を行った。

β 線スペクトル測定は液体シンチレーションカウンタにより行った。測定は、上記のSr分離後、Sr-90とその子孫核種であるY-90とが放射平衡となる2週間後に行った。測定条件は、エネルギー範囲5.0～980keV、測定時間1分間、測定回数10回とした。定量にあたっては、Sr-90のRI標準液を用いて調製した校正用試料を測定し、クエンチング補正曲線を作成した。また、BGとして0.1M硝酸8mLをシンチレータ(Ultima Gold LLT)12mLと混合したBG試料を堆積物試料の前後で同じ条件で測定し、BG値を得た。

化学分離における回収率は、Sr分離液のSr濃度を測定し、担体添加量に対する割合として算出した。Sr分離液の一部を分取し、ICP-AESにより、Srのイオン線である波長216.596nmの強度を測定した。Sr元素標準液で作成した検量線によりSrを定量した。

6.1.6 α 核種分析

α 核種分析においては2種類の標準物質を使用し、分析フローの回収率評価及びU-238、U-235の定量を行った。一つはU-238、Pu-238、Pu-239+240、Am-241を含みそれらの放射能濃度が認証されている放射能認証標準物質であるIAEA-385(標準物質①)、もう一つはUを含み元素量について認証されている元素認証標準物質(標準物質②)である。

図23にU、Pu、Am、Cmの化学分離フローを示す。溶解液0.2mLをガラスビーカーに入れ、超純水で希釈し、Fe担体10mgを添加した。水酸化ナトリウムでpHを約10に調整してU等の元素を水酸化鉄とともに共沈させた。約80℃で1時間加熱して沈殿を熟成後、沈殿をろ過回収し、7M硝酸で再溶解した。さらに、Al、Mgを除去することを目的としてアンモニアでpHを約10に調整してU等の元素を再度水酸化鉄と共に沈させた。80℃で1時間加熱して沈殿を熟成後、沈殿を定量ろ紙5種Bでろ過回収し、ガラスビーカーにて8M硝酸で再溶解した。これを蒸発乾固した後、3M硝酸及び1M硝酸アルミニウムの混合溶液15mLで再溶解し、20mLに定容した。ここから10mLをU、Pu分離フローへ、10mLをAm、Cm分離フローへ供した。

U、Puの分離においては、1.5Mスルファミン酸1mL、1Mアスコルビン酸1mL添加して30分間静置後、3.5M亜硝酸ナトリウム1.5mLを添加して、PuをIV価に調整した。この溶液を

TEVA レジン, UTEVA レジンの順に通液し, TEVA レジンに Pu を, UTEVA レジンに U を吸着させた。Pu は 0.1 M アスコルビン酸, 3 M 硝酸の溶液で Pu を III 値に還元して溶離, 回収した (Pu 分離液)。U は 0.01 M 硝酸で溶離した。Am, Cm の分離においては, 1.5 M スルファミン酸, 1 M アスコルビン酸及び 3.5 M 亜硝酸ナトリウムで, 共存する Pu を IV 値に調整後, UTEVA レジン, DGA ブランチドレジンの順に通液し, Am, Cm を DGA ブランチドレジンに吸着させた。0.01 M 硝酸を通液して溶離, 回収した (Am, Cm 分離液)。なお, 標準物質①を対象に分析した結果, U-238, Pu-239+240 及び Am-241 の測定値は認証値と不確かさの範囲で一致したことから, 本操作における回収率は 100 %を採用した。

Pu 及び Am, Cm の分離液については, α 線スペクトル測定用に次の操作を行った。Pu 分離液に硝酸 10 mL と過酸化水素 2 mL を添加して蒸発乾固し, 1 M 硝酸で再溶解した。再溶解液に Nd 担体を 0.1 mg 及びフッ化水素酸 1 mL を添加してフッ化ネオジムと Pu を共沈させた。沈殿をろ過回収し, 乾燥させたものを Pu 測定試料とした。Am, Cm 分離液には, Ce 担体を 0.05 mg, 過酸化水素 0.2 mL 及びフッ化水素酸 1 mL 添加し, フッ化セリウムと Am, Cm を共沈させた。沈殿をろ過回収し, 乾燥させたものを Am, Cm 測定試料とした。

U-235 及び U-238 は ICP-MS/MS 測定を行い, 検量線法により定量した。プラズマでイオン化された U (質量数 235 または 238) は, 質量電荷比を 235, 238 に設定した一つ目の四重極マスフィルターで抽出した。この状態では同重体として他のウラン同位体の水素化物 ($^{234}\text{UH}^+$, 質量数 235 など) が考えられることから, コリジョンリアクションセル内に酸素ガスを導入して, UO_2 (質量数 267, 270) にマスシフトを行い, 質量電荷比を 267, 270 に設定した二つ目の四重極マスフィルターで抽出し, 測定した。コリジョンリアクションセルの酸素ガス流量は, 0.3 mL/min に設定した。測定における積分時間は, U-235 は 10 秒, U-238 は 1 秒に設定した。検量線の作成には, 標準物質②から調製した溶液を使用した。それらの溶液を測定し, 質量電荷比 267, 270 の計測値に質量差別効果を補正して, 標準物質②の U-235/U-238 同位体比を算出した。算出した同位体比と各検量線溶液の U 元素濃度から, U-238 の検量線を作成した。なお, 質量差別効果の補正係数は標準物質①を測定して得られた質量電荷比 267, 270 の計測値と認証された同位体比から算出した。また, 試料中の U-235/U-238 同位体比についても同様に, 試料を測定して得られた質量電荷比 267, 270 の計測値に質量差別効果を補正することで得た。

Pu-238, Pu-239+240, Am-241 及び Cm-244 は α 線スペクトルを測定した。測定試料は, 上記の沈殿を回収したフィルタをステンレス板に貼り付け, 検出器からの距離約 3 mm の位置に設置し 26.7 Pa 以下まで真空引きした。測定時間は 80000 秒とした。定量にあたっては, Am-241 の RI 標準液からフッ化セリウムと共に沈させて作成した校正用試料を測定して求めた検出効率を使用した。また, BG の計数率は, 試料を置かない状態で 160000 秒間測定した値を用いた。

6.1.7 不確かさ

本分析における不確かさ^[9]を評価するにあたり, 採取から分析までの試料の変質はなく, スミヤロ紙に付着する堆積物の元素組成や放射性核種の分布に偏りがないことを前提とした。また, 超音波処理による堆積物の回収工程や, 超音波回収物及び超音波後ろ紙片それぞれの溶解操作については, 容器内の洗浄により全量回収し, γ 線スペクトル測定を行うことで残留は無視できると仮

定した。各核種の分析値に対する不確かさは、溶解液から測定までの因子を考慮し、次の相対不確かさを評価した^[9]。

- ・ u_1 : 溶液の分取における不確かさ
- ・ u_2 : 化学分離操作における不確かさ
- ・ u_3 : 測定における不確かさ

ここで、化学分離操作における不確かさは、回収率に含まれる不確かさで評価することとした。Sr-90については添加した担体の ICP-AES の測定に係る不確かさの合成、U-235 等の α 核種については回収率評価試験に使用した IAEA-385 の不確かさとその試料の繰返し測定結果の不確かさの合成である。核種ごとの相対不確かさの詳細を表 13 に示す。 u_1 、 u_2 、 u_3 を合成し、包含係数 $k = 2$ を掛け合わせた拡張合成相対不確かさを算出した。

$$\text{拡張合成相対不確かさ} = k \times \sqrt{u_1^2 + u_2^2 + u_3^2} \quad (k = 2)$$

6.2 分析結果及び考察

6.2.1 試料の溶解

図 24 に、放射能分析に供したスミヤロ紙片（超音波前ろ紙片、A）、その超音波照射後のスミヤロ紙片（超音波後ろ紙片、B）及び超音波照射で回収した堆積物（超音波回収物、C）の外観を示す。（A）と（B）を比較すると堆積物の黒色が超音波照射により薄くなり、（C）においてフィルタ表面が灰色あることから、スミヤロ紙片から堆積物の一部が回収されていることが分かる。超音波前ろ紙片、超音波後ろ紙片、超音波回収物について γ 線スペクトル測定を行い、カウント数から超音波でスミヤロ紙に残留した堆積物の割合（B の割合）及び超音波でスミヤロ紙から回収した堆積物の割合（C の割合）を以下の式を用いて算出した。

$$\text{B の割合} = \{\text{超音波後ろ紙片のカウント数}\} / \{\text{超音波前ろ紙片のカウント数}\}$$

$$\text{C の割合} = \{\text{超音波回収物のカウント数}\} / \{\text{超音波前ろ紙片のカウント数}\}$$

表 14 に結果を示す。本結果は、測定試料の形状が異なり、ジオメトリに違いがあるため、参考値とする。それぞれに含まれる放射性核種は、おおよそ同じ割合であることが分かった。なお、超音波回収物をろ過回収した後の純水について γ 線スペクトルを測定した結果、放射性核種は有意に存在しなかった。

超音波回収物（図 24 中（C））の酸溶解において、溶解後のフィルタ及び溶解液をろ過したフィルタ上に目視では残渣は見られなかった。これらについて γ 線スペクトルを測定したところ、溶解後のフィルタから Co-60、Sb-125、Cs-134、Cs-137 がわずかに検出された。検出された核種の計数値から算出した物質収支を表 15 に示す。各核種の計測値は溶解前の計数値の 5 %未満であり、超音波回収物のほとんどを溶解できたと考えられる。また、超音波後ろ紙片（図 24 中（B））の酸溶解においては、溶解液をろ過したフィルタ上に目視では残渣は見られなかったが、 γ 線スペクトルを測定したところ Co-60、Sb-125、Cs-137、Eu-154 が検出された。これについても計数値から物質収支を算出した（表 16）。Co-60、Cs-137、Eu-154 がいずれも溶解前に対して 2 %未満であること、Am-241 が検出されていないことから、 β 核種やその他の α 核種含め、超音波後ろ紙片のほとんどを溶解できたと考えられる。Sb-125 のみ、溶解前に対して 12 %程度が検出され、これは硝酸により難溶性の化合物となった Sb が沈殿^[10]したと考えられる。超音波回収物の溶解液、超音波処

理後ろ紙片の溶解液のスペクトル及び超音波処理後のろ紙片の残渣のスペクトルを、それぞれ、図 25, 26 及び図 27 に示す。

6.2.2 放射能測定結果

得られた放射能測定結果を表 17 に示す。超音波回収物の溶解液と超音波後ろ紙片の溶解液の測定結果を合算し、23P-2 から本分析に供したスミヤろ紙片あたりの濃度としてまとめた。放射能濃度は、試料の採取日である 2023 年 11 月 20 日に各核種の半減期を用いて補正している。ただし、Am-241 については Pu-241 の崩壊による生成の寄与を評価できないため、測定時点の放射能濃度を記載している。また、6.2.3 以降の考察においても測定時点の値を用いている。全ての核種について測定時点の放射能濃度は、付録に載せた。また、「±」の後の数値は拡張合成不確かさ（包含計数 $k = 2$ ）を示し、「<」は検出下限値未満であることを示す。

γ 核種については、残渣から Sb-125 が検出されたことから、溶解液と残渣の結果を合算することとした。Pu-238, Pu-239+240, Am-241 及び Cm-244 の定量において、化学分離操作における回収率は事前に回収率評価試験の結果（100%）を採用している。化学分離における回収率は、試料の構成元素により影響を受ける可能性がある。Am-241 は α 線（5.5 MeV）だけでなく、 γ 線（59 keV）も放出する。化学分離を伴わない γ 線スペクトルの定量値と α スペクトルの定量値と比較した結果を表 18 に示す。両者の値は良い一致が見られ、事前の回収率評価試験の結果を本試料に適用することが妥当であることを確認した。

U-235 及び U-238 は天然にも存在するため、検出された U-235 と U-238 の質量比について、天然存在比及び 2 号機燃料組成の計算値^[7]との比較を行った（表 19）。天然存在比は核データライブラリ（JENDL-5^[11]）の同位体比から算出した。本分析で検出された U の質量比は燃料組成の計算値に近く、堆積物の U が燃料に由来すると考えられる。

6.2.3 放射能比

測定結果を用いて、Cs-137 及び U-238 を基準とした放射能比を算出し、核種組成から考察を行った。Cs-137 は 1F 事故による汚染の主要な核種であり、 γ 線核種であることから比較的測定が容易である。これに対する核種組成を把握することで、廃炉に係る作業管理（作業計画や被ばく管理等）への反映が期待できる。U-238 は燃料の構成成分であり、これに対する核種組成を把握することで損傷した燃料等による格納容器内の汚染状況の推定への参考情報となる。Cs-137 基準の放射能比については、2020 年採取試料^[3]で得られた分析結果と比較した。U-238 基準の放射能比については、2020 年採取試料^[4]で得られた分析結果とともに 2 号機燃料の組成の計算値^[6]と比較した。放射能比の算出にあたっては、試料の採取日である 2023 年 11 月 20 日に各核種の半減期を用いて補正した値を用いた。ただし、Am-241 については Pu-241 の崩壊による生成の寄与を評価できないため、測定時点の放射能濃度を用いた。なお、全ての核種について測定時の放射能濃度については、付録に示した。

① Cs-137 基準の放射能比

Cs-137 に対する放射能比を表 20 に示す。また、図 28 には 2020 年採取試料（2PEN2101, 2PEN2102）の分析結果^[3]と合わせてプロットした。なお、2020 年採取試料は、Co-60, Cs-137, Eu-154, U-235,

U-238 及び Am-241 について値を引用しており、測定時（2021 年 1 月～2022 年 1 月）の分析値^[4]から放射能比を算出している。

23P-2 について、Co-60, Sb-125, Eu-154, Eu-155, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244 は、 $2.3 \times 10^{-1} \sim 7.7 \times 10^{-1}$ とおおよそ 1 であった。一方、Sr-90 は 1.4×10^{-1} とわずかに高く、U-235, U-238 はそれぞれ 1.5×10^{-5} , 1.3×10^{-4} 程度と低い傾向が見られた。2020 年採取試料と比較すると、ひと桁程度の違いは見られるが、Co-60, Eu-154, Am-241 が 1 近傍で同等の放射能比であるのに対して U-235, U-238 の放射能比が低い傾向は同様であった。このことから、X-6 ペネの堆積物について 2020 年採取試料と 2023 年に採取された本分析対象試料（23P-2）の結果はおおよそ一致した。

1F 事故による汚染物として、Tanaka らが原子炉建屋の周辺で採取された瓦礫や、敷地内の植物について放射能分析を実施し、結果を報告している^[12]。これらの試料は Cs-137 が主要核種で、Co-60, Eu-154 は Cs-137 に対して数 % 以下、Sr-90 については 0.01～1 % の放射能比であった。また、Pu-238 や Am-241 については不検出であった。これは、Cs-137 に対して Eu-154 や Pu-238 等の α 核種が同程度の放射能を含む X-6 ペネ内の堆積物の汚染状況とは大きく異なっている。

② U-238 基準の放射能比

U-238 に対する放射能比を表 21 に示す。また、図 29 には 2020 年採取試料の分析結果^[4]及び西原らが報告した 2 号機燃料組成の計算値^[7]から算出した値を合わせてプロットした。なお、6.2.3 ①と同様に 2020 年採取試料は、Co-60, Cs-137, Eu-154, U-235, U-238 及び Am-241 について値を引用しており、測定時（2021 年 1 月～2022 年 1 月）の分析値^[4]から放射能比を算出している。

23P-2 について、U と同じアクチニドである Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244、核分裂生成物のうち Sr-90, Sb-125, Eu-154, Eu-155 は、2 号機燃料組成とおおよそ一致した。一方で Cs-134, Cs-137 は 2 号機燃料よりも低く、Co-60 は高い傾向が見られた。これらのことから、X-6 ペネ内の堆積物の汚染は燃料や被覆管に含まれる核種のうち揮発性の低い核種についてその組成を保ったまま移行したことが考えられる。核分裂生成物のうち揮発性の高い核種である Cs-134, Cs-137 は、気中に放出されて他の核分裂生成物やアクチニドと異なる挙動をし、2 号機燃料組成より低いことが考えられる。また、Co-60 については、元素分析より堆積物の主要な成分が構造材と考えられることから、構造材の放射化に由来すると考えられる。評価に使用した 2 号機燃料組成は燃料ペレットと被覆管のみを考慮していることから、放射能比として高い値であったと考えられる。

2020 年採取試料の U-238 に対する放射能比においては Cs-137 が 23P-2 に比べて 2 号機燃料に近い傾向がみられ、燃料の組成から Cs-137 が放出される過程に違いがあるように見える。一方で、参考する 2 号機燃料組成は、炉内の平均燃焼度を推定し計算されており、実際には様々な燃焼度の損傷した燃料が炉内に分布する可能性がある。このため、核種挙動を詳細に評価するうえでは、分析の不確かさとともに燃料組成の計算値に含まれる不確かさも考慮していく必要がある。

7. まとめ

2023年11月20日にX-6ペネのハッチ蓋開放作業に伴い採取された、X-6ペネ内の堆積物、9試料(23P-1～23P-9)を第1棟で受け入れた。これらについて含まれる元素、放射性核種濃度、核種組成を把握することを目的に、9試料全てについて非破壊状態での γ 線スペクトル分析、そのうち1試料(試料番号23P-2)についてXRF分析及びSEM-EDX分析並びに試料を溶解して放射能定量分析を実施した。

非破壊での γ 線スペクトル分析から、 γ 核種としてCo-60, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155及びAm-241を検出し、燃料構成成分、核分裂生成物または放射化生成物を由来とする核種が含まれることが分かった。XRF分析の結果から、堆積物の主要な元素としてFe、その他微量のU, Zrが検出された。X-6ペネ内の堆積物は、金属構造材に由来する物質が主成分で、燃料(U)や被覆管(ジルカロイ)に由来する成分が混入していると考えられる。 γ 線スペクトル分析でAm-241が検出され、Uは燃料に由来すると想定されたことから、Uに着目したSEM-EDX分析を実施したところ、UとともにFe, Si, Cr, Ni, Zrが検出された。これらの結果は、2020年採取試料と同様の傾向であった。

放射能分析においては、非破壊での γ 線スペクトル測定で検出されたCo-60, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Eu-154, Eu-155に加え、Sr-90, Pu-238, Pu-239+240, Am-241, Cm-244, U-235, U-238について分析を行い、全ての核種が検出された。Cs-137及びU-238を基準とした核種組成を、2020年度採取試料^[3]や2号機の燃料組成の計算値^[6]と比較した。核種組成においても、23P-2は2020年採取試料とおおよそ同様の傾向であった。また、 α 核種、Eu-154, Eu-155, Sb-125, Sr-90の組成は2号機燃料組成の計算値とおおよそ一致し、揮発性の高い核分裂生成物のCs-137は燃料組成よりも低い、放射化生成物であるCo-60は燃料組成よりも高い比であった。X-6ペネ内の堆積物の汚染は燃料や被覆管に含まれる核種のうち揮発性の低い核種についてその組成を保ったまま移行したことが考えられる。

格納容器内の試料の分析結果は、廃炉に係る作業管理に資するとともに、今後取出しが本格化する燃料デブリの分析手法の検討や燃料デブリの性状の推定、また、燃料デブリ取出し後の建屋解体における格納容器内の汚染状況の把握においても重要なデータである。

謝辞

本分析を実施するにあたり、分析結果について有益なご助言・ご議論を頂いた、東京電力ホールディングス株式会社関係者各位に深く謝意を表する。

参考文献

- [1] 東京電力ホールディングス株式会社, 2号機X-6ペネ内堆積物調査の結果, 福島第一原子力発電所における循環注水冷却・滞留水等に係る定例会, 資料, 2020年11月20日, <https://www2.nra.go.jp/data/000337994.pdf> (accessed 2024-11-15).
- [2] 東京電力ホールディングス株式会社, 2号機PCV内部調査及び試験的取り出しの準備状況X-6ペネ内堆積物調査の結果, 廃炉・汚染水対策チーム会合／事務局会議(第84回), 資料3-3, 2020年11月26日, <https://www.mete.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2020/11/3-3-3.pdf> (accessed 2024-11-15).
- [3] 日本原子力研究開発機構, 国際廃炉研究開発機構, X-6ペネ調査装置付着物サンプルの分析結果(2021年度), 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会第41回会合資料3-1, 2023年12月25日, <https://www.nra.go.jp/data/000464327.pdf> (accessed 2024-11-15).
- [4] 池内宏知ら, 令和3年度福島第一原子力発電所の炉内付着物サンプル等の分析; 令和3年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金に係る補助事業(燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発), JAEA-Data/Code 2023-005, 2023, 418p.
- [5] 東京電力ホールディングス株式会社, 2号機X-6ペネに関する現場情報, 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会(第41回)資料3-2, 2023年12月25日, <https://www.nra.go.jp/data/000464328.pdf> (accessed 2024-11-15).
- [6] H. Sagara et al. "Feasibility study of passive gamma spectrometry of molten core material from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station unit 1, 2, and 3 cores for special nuclear material accountancy – low-volatile FP and special nuclear material inventory analysis and fundamental characteristics of gamma-rays from fuel debris," Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 51, No. 1, pp.1-23 (2014).
- [7] 西原健司ら, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, JAEA-Data/Code 2012-018, 2012, 190p.
- [8] J. McNab and A. Sandborg: The EDAX EDITOR, Vol. 14, No.1, p.37, 1984.
- [9] 池内宏知ら, 燃料デブリの分析精度向上のための技術開発 2020年度成果報告(廃炉・汚染水対策事業費補助金), JAEA-Technology 2022-021 (2022) 224p.
- [10] 日本分析化学会, "分析化学便覧 改訂五版" 丸善, p.79, 2001.
- [11] O. Iwamoto et al., "Japanese evaluated nuclear data library version 5: JENDL-5", J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 60, No. 1, pp.1-60 (2023).
- [12] K. Tanaka et al. "Radiochemical analysis of rubble and trees collected from Fukushima Daiichi Nuclear Power Station," Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 51, No. 7-8, pp.1032-1043 (2014).

表 1 第 1 棟で受け入れたスミヤロ紙試料の試料番号と α 線計数率*

試料番号	α 線計数率[cpm]
23P-1	23,000
23P-2	15,000
23P-3	> 100,000
23P-4	10,000
23P-5	5,000
23P-6	3,500
23P-7	6,500
23P-8	15,500
23P-9	900

*東京電力 HD 提供データ

表 2 各試料における分析項目

試料番号	非破壊分析			放射能定量分析
	γ 線スペクトル分析	XRF 分析	SEM-EDX 分析	
23P-1	○			
23P-2	○	○	○	○
23P-3	○			
23P-4	○			
23P-5	○			
23P-6	○			
23P-7	○			
23P-8	○			
23P-9	○			

表 3 各試料における γ 線スペクトル分析（定性）の測定条件

試料番号		23P-1	23P-2	23P-3	23P-4	23P-5	23P-6	23P-7	23P-8	23P-9
ウェル上部 からの距離	0 cm				○	○	○	○	○	○
	50 cm	○	○	○						
測定時間 [s]		2000	2000	2000	2000	2000	2000	2000	2000	2000

表 4 SEM 観察, 元素マッピング画像条件

条件	設定値
電子加速 (印加) 電圧 [kV]	15
真空間度 [Pa]	約 100
画像の解像度 [Pix]	1048×786
電子ビーム径 [μm]	1~2

表 5 SEM-EDX 分析における各測定モードの測定時間

測定モード	測定時間 [min]
スポット分析	1
エリヤスキャン分析	1
元素マッピング分析	2

表 6 スミヤロ紙試料の表面線量率測定結果*

試料番号	γ [$\mu\text{Sv}/\text{h}$]	$\beta\gamma$ [$\mu\text{Sv}/\text{h}$]
23P-1	180	3,000
23P-2	60	790
23P-3	190	3,500
23P-4	9	170
23P-5	4	73
23P-6	3	40
23P-7	2	40
23P-8	7	110
23P-9	1	20

*ポリ袋越しに電離箱サーベイメータで測定

BG ($\gamma, \beta\gamma$) : 0.5 $\mu\text{Sv}/\text{h}$

表 7 各試料の γ 線スペクトル分析結果*

試料番号	Co-60	Ru-106	Sb-125	Cs-134	Cs-137	Ce-144	Eu-154	Eu-155	Am-241	Am-243
23P-1	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-2	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-3	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-4	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-5	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-6	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-7	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-8	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND
23P-9	○	ND	○	○	○	ND	○	○	○	ND

*「○」は検出、「ND」は不検出を示す。

表 8 U の特性 X 線におけるピーク面積の比率*

特性 X 線	23P-2 測定値		文献値 ^[8]
	ピーク面積 [counts]	U-L _α 線のピーク面積 に対する比率 [%]	U-L _α 線のピーク面積 に対する比率 [%]
U-L _α	150.5	100	100
U-L _{β1}	41.6	62.7	50
U-L _{β2}	21.5	32.3	20

*BG を差し引いたスペクトルに対し、任意で設定した ROI に対する強度を積算した。

表 9 SEM-EDX 分析を実施した箇所と検出された元素の一覧

	分析箇所	O	Fe	U	Si	Cr	Ni	Zr	反射電子像での外観の色	備考
範囲 A	スポット①	○	○		○		○		灰	
	スポット②	○	○		○		○		灰	
	スポット③	○	○	○				○	白	
	スポット④	○	○	○	○		○		白	
	スポット⑤	○	○	○	○		○		白	
範囲 B	スポット①	○	○	○		○		○	白	
	スポット②	○	○	○					白	
	スポット③	○	○	○	○	○	○	○	白+灰の混交	
範囲 C	エリア	○	○	○	○	○	○	○	白+灰の混交	
範囲 D	スポット	○	○						灰	S, Ca 検出

表 10 使用した試薬

薬品名	メーカー	グレード
硝酸 (1.38)	関東化学(株)	特級
硝酸ウルトラピュア	関東化学(株)	Ultrapur TM
フッ化水素酸	関東化学(株)	特級 (46.0%~48.0%)
5M 水酸化ナトリウム水溶液	関東化学(株)	容量分析用滴定液
アンモニア水	関東化学(株)	特級 (28.0%~30.0%(as NH ₃))
過酸化水素水	関東化学(株)	特級 (30.0%~35.5%)
スルファミン酸	富士フィルム和光純薬(株)	特級
アスコルビン酸	富士フィルム和光純薬(株)	特級
エタノール	関東化学(株)	特級
炭酸ナトリウム	関東化学(株)	特級
亜硝酸ナトリウム	富士フィルム和光純薬(株)	特級
硝酸ストロンチウム	関東化学(株)	特級
硝酸カルシウム・四水和物	関東化学(株)	特級
硝酸アルミニウム・九水和物	関東化学(株)	特級
硝酸鉄(III)・九水和物	富士フィルム和光純薬(株)	特級
Cs 標準液 (1000ppm)	富士フィルム和光純薬(株)	JCSS
Sr 標準液 (1000ppm)	富士フィルム和光純薬(株)	JCSS
Nd 標準液 (1000ppm)	関東化学(株)	原子吸光分析用
Ce 標準液 (1000ppm)	富士フィルム和光純薬(株)	原子吸光分析用
U 認証標準溶液	SPEX CertiPrep	
放射能認証標準物質	IAEA-385	
Ultima Gold LLT	PerkinElmer	
Sr レジン	Eichrom	粒径 100-150 μm
TEVA レジン	Eichrom	粒径 50-100 μm
UTEVA レジン	Eichrom	粒径 50-100 μm
DGA ブランチドレジン	Eichrom	粒径 50-100 μm

表 11 使用した測定機器

機器	メーカー	型式
ウェル型ゲルマニウム半導体検出器	ORTEC	GWL-220-15
波高分析装置	セイコー・イージーアンドジー	MCA 7a
液体シンチレーションカウンタ	ALOKA	AccuFLEX LSC-LB7
誘導結合プラズマ発光分光計 (ICP-AES)	島津製作所	ICPE-9820
表面障壁型シリコン半導体検出器	ORTEC	ENS-U600 (有効面積: 600 mm ² , 半値幅: 5.486 MeVにおいて 25 keV)
波高分析装置	ORTEC	Alpha-Ensemble-8
誘導結合プラズマタンデム質量分析計 (ICP-MS/MS)	アジレント・テクノロジー	Agilent 8900

表 12 定量に用いた γ 線エネルギー

核種	エネルギー [keV]	放出率 [%]
Am-241	59.54	35.9
Eu-155	105.3	21.1
Sb-125	427.9	29.6
Ru-106	621.9	9.9
Cs-137	661.7	85.1
Cs-134	795.9	85.5
Eu-154	1274.4	34.8
Co-60	1332.5	100.0

表 13 各核種の分析値に対して考慮した不確かさの要因

	u_1 : 溶解液の分取における不確かさ	u_2 : 化学分離操作における不確かさ	u_3 : 測定における不確かさ
γ 核種	・ピペットの計量不確かさ	-	<ul style="list-style-type: none"> 校正線源の放射能の不確かさ 校正線源の計数値の不確かさ 試料の計数値の不確かさ
Sr-90	・ピペットの計量不確かさ	<ul style="list-style-type: none"> ICP-AES 測定溶液調整における ピペットの計量不確かさ 元素標準液の不確かさ 標準液の計数値（検量線）の不確かさ 試料の計数値の不確かさ 	<ul style="list-style-type: none"> 校正線源の放射能の不確かさ 校正線源の計数値の不確かさ 試料の計数値の不確かさ
U-235 U-238	・ピペットの計量不確かさ	<ul style="list-style-type: none"> IAEA の認証物質の放射能の不確かさ IAEA の認証物質の繰返し測定結果の 不確かさ 	・試料の計数値の不確かさ
Pu-238 Pu-239+240 Am-241 Cm-244	・ピペットの計量不確かさ	<ul style="list-style-type: none"> IAEA の認証物質の放射能の不確かさ IAEA の認証物質の繰返し測定結果の 不確かさ 	<ul style="list-style-type: none"> 校正線源の放射能の不確かさ 校正線源の計数値の不確かさ 試料の計数値の不確かさ

表 14 超音波前ろ紙片 (A) に対する超音波後ろ紙片 (B) と超音波回収物 (C) の放射能の割合*

核種	B の割合	C の割合
Co-60	45.8 %	41.1 %
Sb-125	42.0 %	42.1 %
Cs-134	36.4 %	25.1 %
Cs-137	45.8 %	27.4 %
Eu-154	46.1 %	35.4 %
Eu-155	49.1 %	36.2 %
Am-241	46.7 %	35.2 %

* γ 線スペクトル測定においてジオメトリの違いがあるため参考値。

表 15 超音波回収物 (C) における溶解状況*

核種	γ 線カウント値 [counts/10000s]			残渣中の割合
	溶解前	溶解後の フィルタ	溶解液をろ過した フィルタ	
Co-60	6.39×10^3	1.99×10^2	ND	3.1 %
Sb-125	2.50×10^3	7.36×10^1	ND	2.9 %
Cs-134	1.88×10^2	ND	ND	ND
Cs-137	1.21×10^4	2.21×10^2	ND	1.8 %
Eu-154	3.00×10^3	4.45×10^1	ND	1.5 %
Eu-155	1.76×10^3	ND	ND	ND
Am-241	2.81×10^3	ND	ND	ND

*ジオメトリの違いがあるため参考値。また、「ND」は不検出を示す。

表 16 超音波後ろ紙片 (B) における溶解状況*

核種	γ 線カウント値 [counts/10000s]		残渣中の割合
	溶解前	溶解液をろ過した フィルタ	
Co-60	7.12×10^3	1.26×10^3	1.8 %
Sb-125	2.50×10^3	3.93×10^3	11.7 %
Cs-134	2.73×10^2	ND	ND
Cs-137	2.02×10^4	1.22×10^4	0.6 %
Eu-154	3.90×10^3	7.31×10^3	1.9 %
Eu-155	2.39×10^3	ND	ND
Am-241	3.73×10^3	ND	ND

*ジオメトリの違いがあるため参考値。また、「ND」は不検出を示す。

表 17 スミヤろ紙片あたりの放射能濃度 [Bq/試料]*

測定核種	放射能濃度	測定核種	放射能濃度
Co-60	$3.0 \times 10^2 \pm 5.2 \times 10^1$	Eu-155	$1.3 \times 10^2 \pm 3.7 \times 10^1$
Sr-90	$7.6 \times 10^3 \pm 6.1 \times 10^2$	U-235	$8.7 \times 10^{-3} \pm 1.9 \times 10^{-3}$
Ru-106	$< 2.6 \times 10^1$	U-238	$7.6 \times 10^{-2} \pm 1.6 \times 10^{-2}$
Sb-125	$1.8 \times 10^2 \pm 4.0 \times 10^1$	Pu-238	$4.4 \times 10^2 \pm 1.2 \times 10^2$
Cs-134	$1.3 \times 10^1 \pm 9.2 \times 10^0$	Pu-239+240	$1.7 \times 10^2 \pm 4.8 \times 10^1$
Cs-137	$5.6 \times 10^2 \pm 9.9 \times 10^1$	Am-241	$3.0 \times 10^2 \pm 7.8 \times 10^1$
Eu-154	$4.3 \times 10^2 \pm 7.7 \times 10^1$	Cm-244	$1.9 \times 10^2 \pm 4.9 \times 10^1$

*2023年11月20日に各核種の半減期を用いて補正している。Am-241については、Pu-241の崩壊による精製の寄与を評価できないため、測定時点の値を記載している。

表 18 Am-241における γ 線スペクトロメトリ、 α 線スペクトロメトリの比較

	γ 線スペクトロメトリ		α 線スペクトロメトリ	
	放射能濃度*	不確かさ	放射能濃度*	不確かさ
超音波回収物	1.8×10^2	2.9×10^1	1.3×10^2	2.3×10^1
超音波処理後の スミヤろ紙片	2.5×10^2	4.0×10^1	1.7×10^2	3.1×10^1

*測定時点の値である。

表 19 U-235 と U-238 の質量比の比較

試料	ICP-MS/MS 測定溶液中の質量 [ng]		U-235/U-238 質量比	
	U-235	U-238		
23P-2	超音波処理で回収した付着物	6.02	346.08	0.017
	超音波照射後のスミヤロ紙片	15.74	876.16	0.018
2020 年採取試料	2PEN2101	-	-	0.020
	2PEN2102	-	-	0.019
2 号機燃料組成	-	-	0.019	
天然	-	-	0.007	

表 20 23P-2 の Cs-137 に対する放射能比*

測定核種	放射能比
Co-60	5.3×10^{-1}
Sr-90	1.4×10^1
Ru-106	$< 4.6 \times 10^{-2}$
Sb-125	3.2×10^{-1}
Cs-134	2.4×10^{-2}
Cs-137	1.0×10^0
Eu-154	7.6×10^{-1}

測定核種	放射能比
Eu-155	2.3×10^{-1}
U-235	1.5×10^{-5}
U-238	1.3×10^{-4}
Pu-238	7.7×10^{-1}
Pu-239+240	3.1×10^{-1}
Am-241	5.3×10^{-1}
Cm-244	3.3×10^{-1}

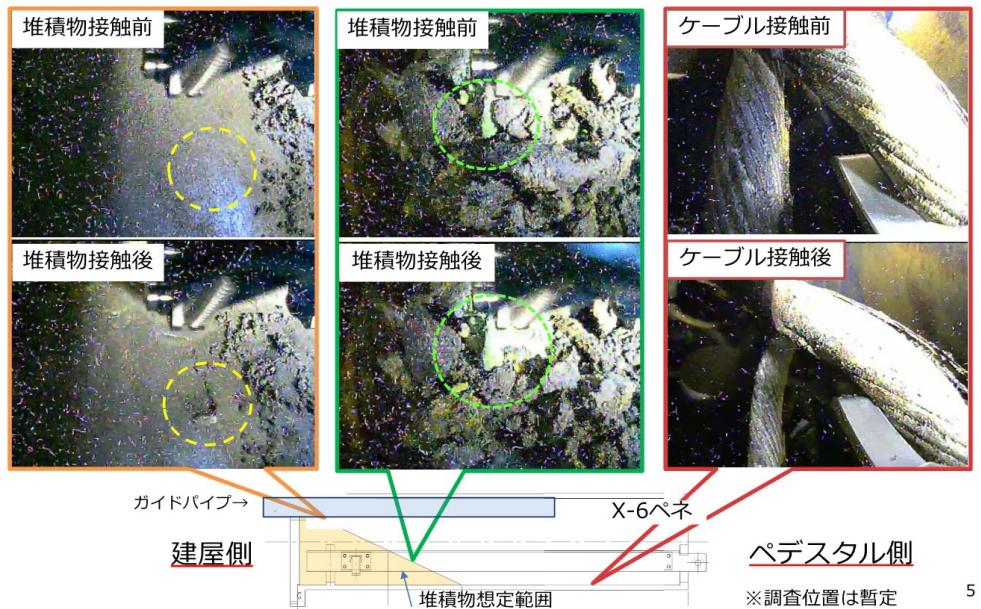
*2023 年 11 月 20 日に各核種の半減期を用いて補正した値から算出している。Am-241 については、Pu-241 の崩壊による精製の寄与を評価できないため、測定時点の値を用いている。

表 21 23P-2 の U-238 に対する放射能比*

測定核種	放射能比
Co-60	3.9×10^3
Sr-90	1.0×10^5
Ru-106	$< 3.4 \times 10^2$
Sb-125	2.4×10^3
Cs-134	1.8×10^2
Cs-137	7.4×10^3
Eu-154	5.6×10^3

測定核種	放射能比
Eu-155	1.7×10^3
U-235	1.1×10^{-1}
U-238	1.0×10^0
Pu-238	5.7×10^3
Pu-239+240	2.3×10^3
Am-241	4.0×10^3
Cm-244	2.5×10^3

*2023 年 11 月 20 日に各核種の半減期を用いて補正した値から算出している。Am-241 については、Pu-241 の崩壊による精製の寄与を評価できないため、測定時点の値を用いている。

図1 2020年に実施されたX-6ペネ内堆積物の調査の様子^[1]

開放されたX-6ペネハッチの当時の状況（上）とスクラーペの施工状況（下）

図2 2023年に実施されたX-6ペネ内堆積物の調査の様子^[5]



図3 第1棟で受け入れたスミヤろ紙*試料の外観

*スミヤろ紙の円形部分の直径：50 mm

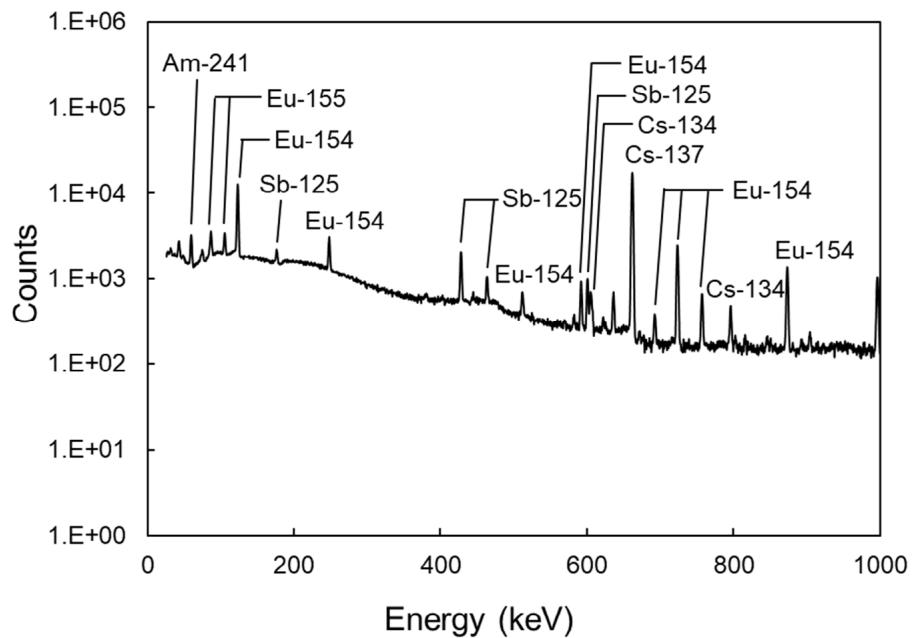


図4 23P-2 の γ 線スペクトル (0 ~ 1000 keV)

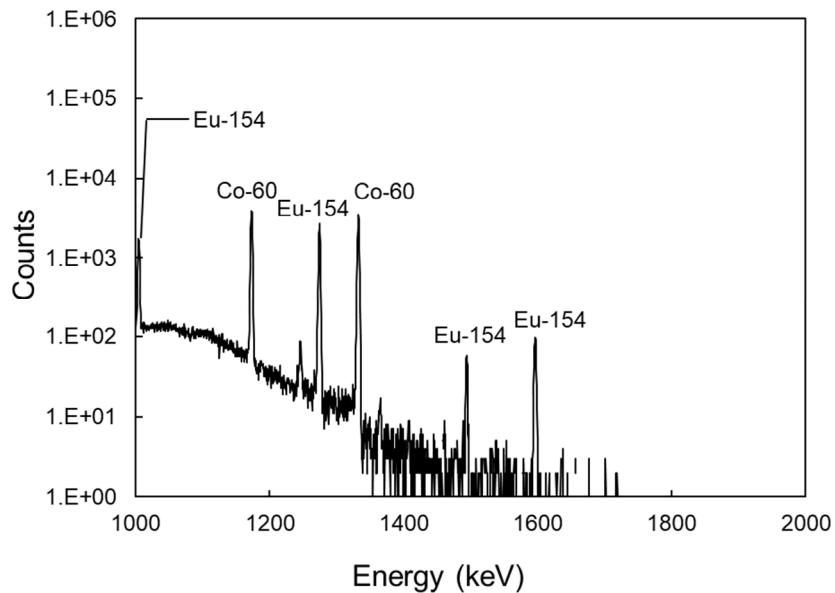
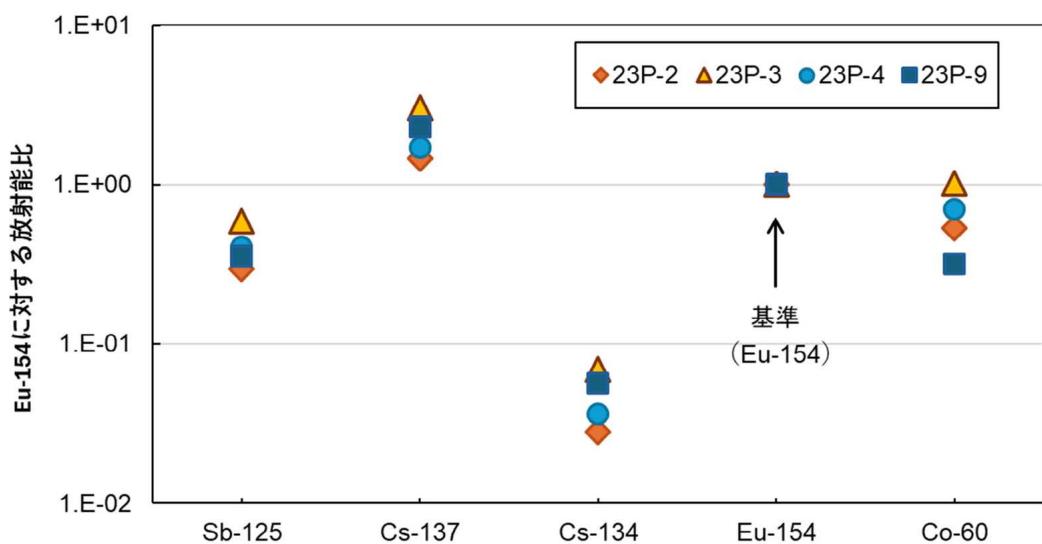
図 5 23P-2 の γ 線スペクトル (1000 ~ 2000 keV)

図 6 試料間の検出核種の計数率の比較

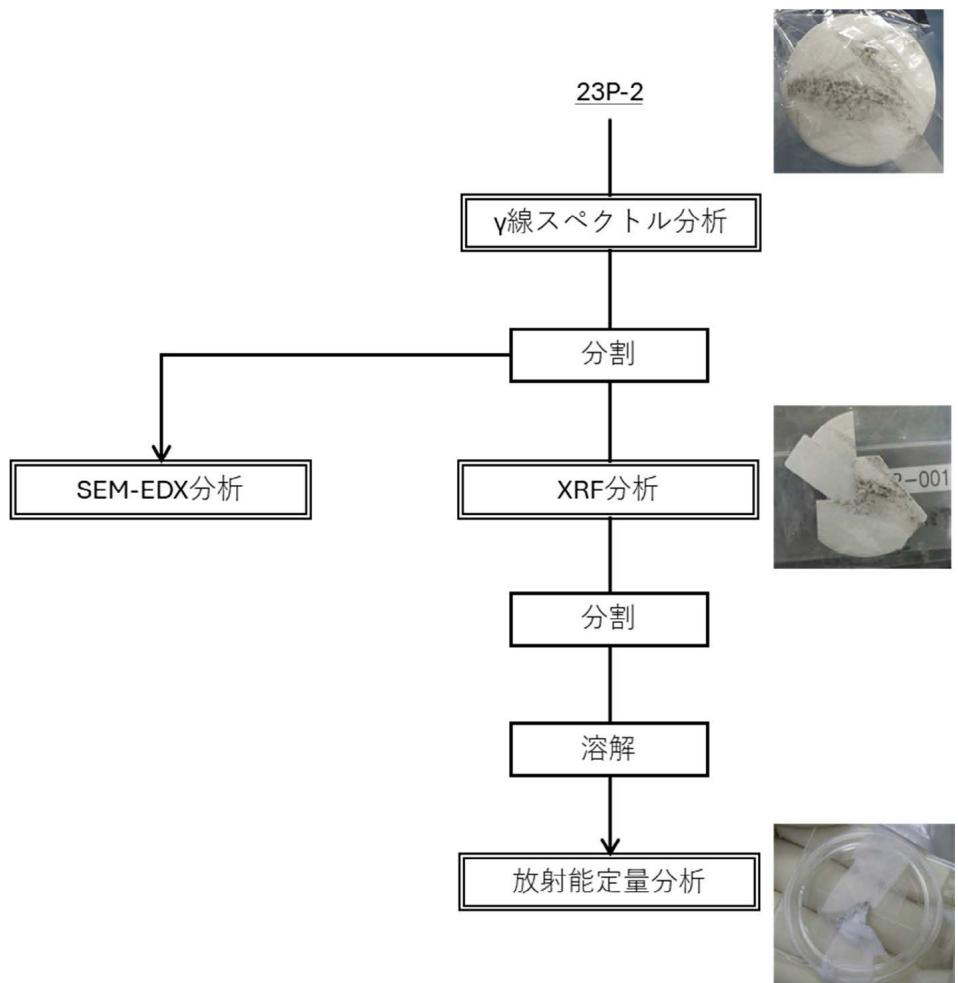


図 7 23P-2 の各分析への分割状況



図 8 23P-2 における XRF 分析の測定部位

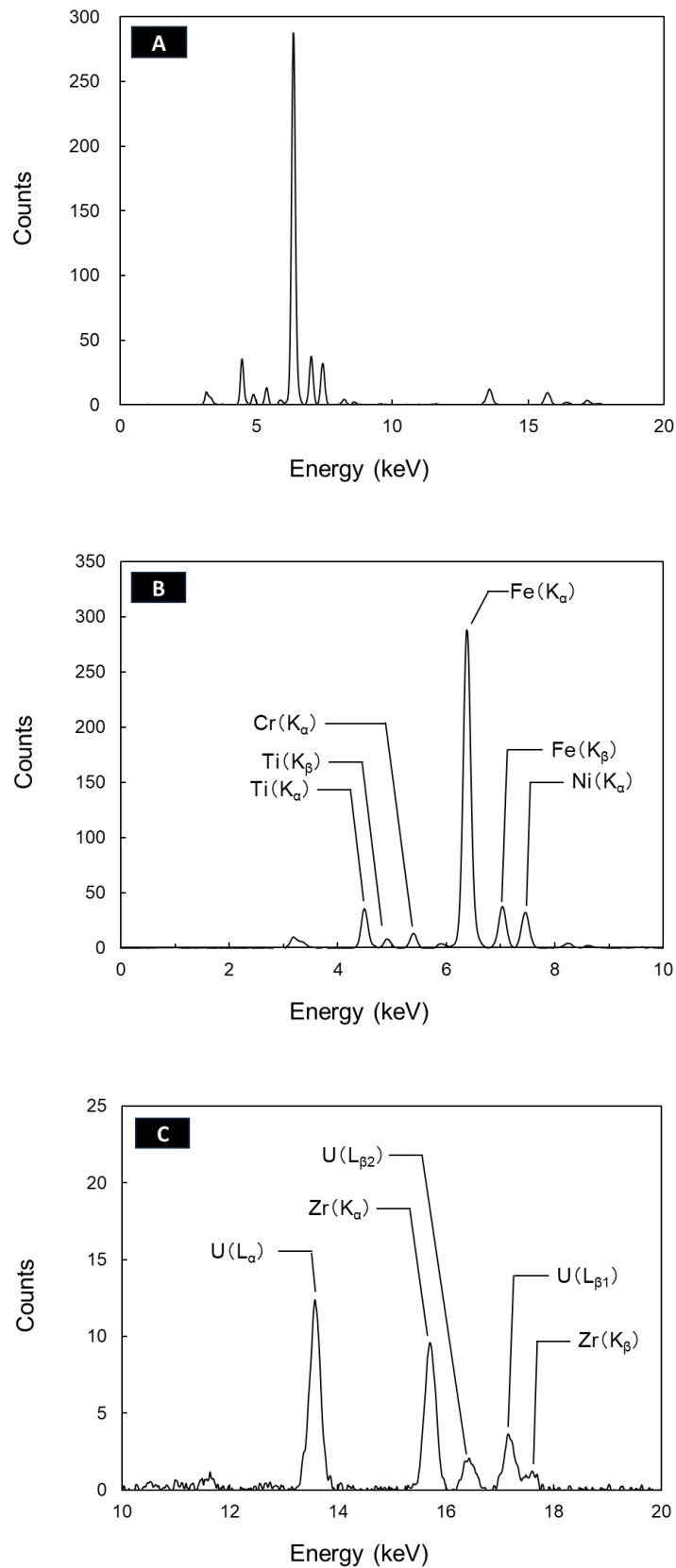


図9 23P-2 の XRF スペクトル (A : 測定全領域, B : 0~10 keV, C : 10~20 keV)

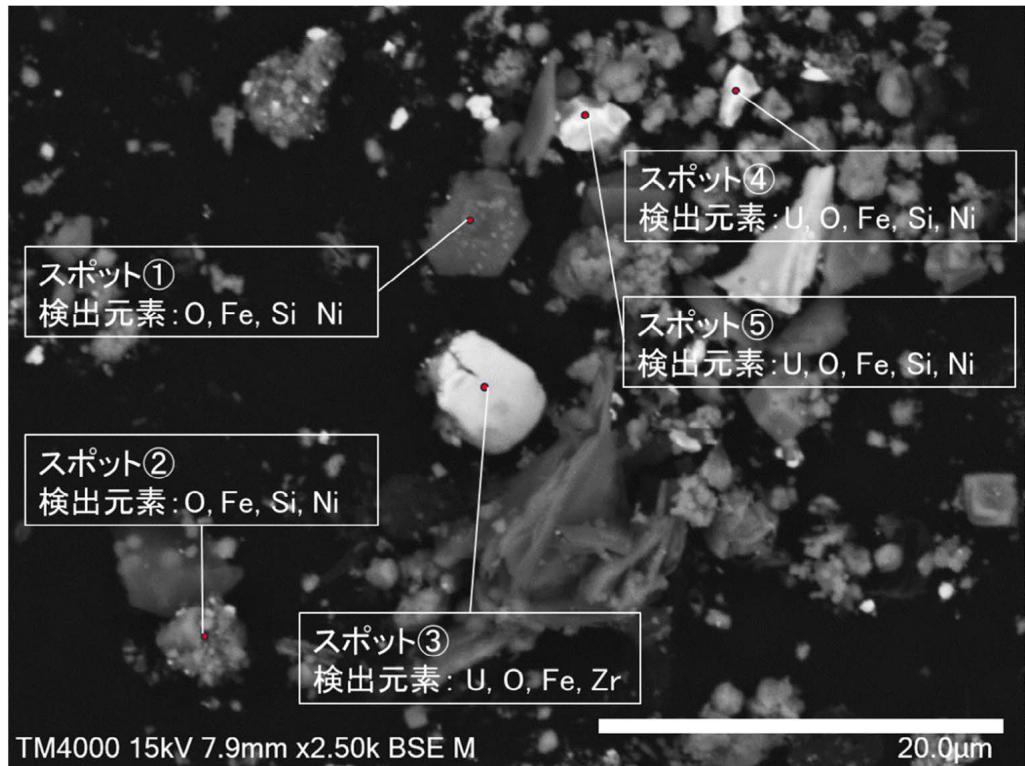


図 10 範囲 A の反射電子像（各スポットに検出元素をプロット）

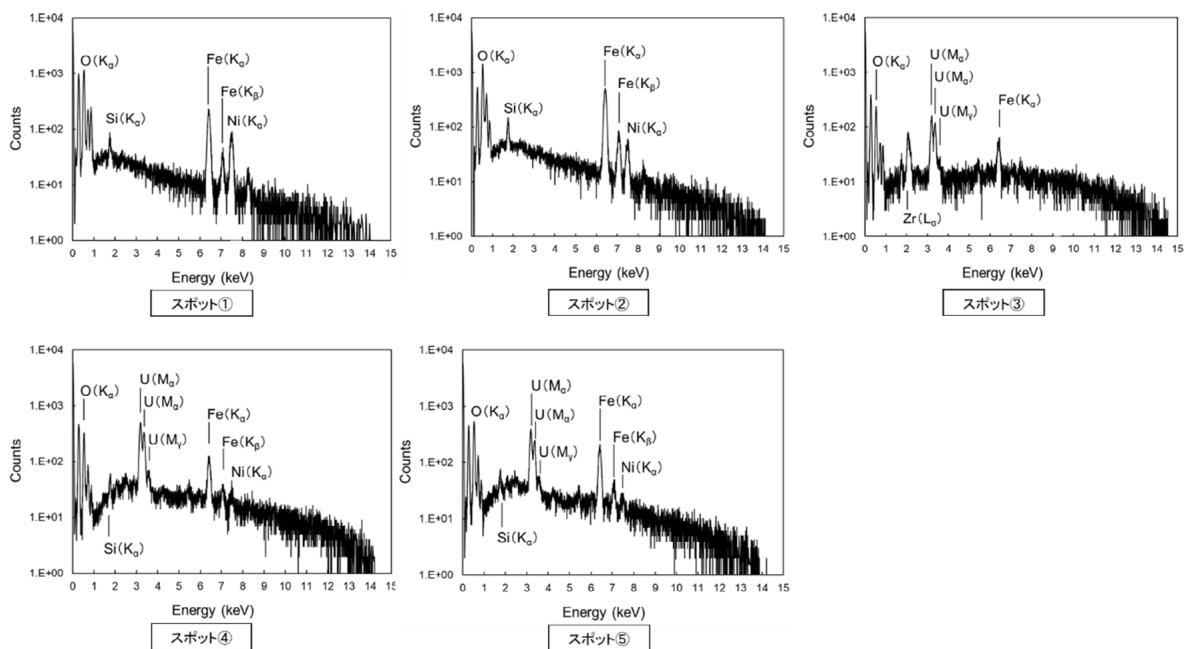


図 11 範囲 A の各スポットから検出された EDX スペクトル

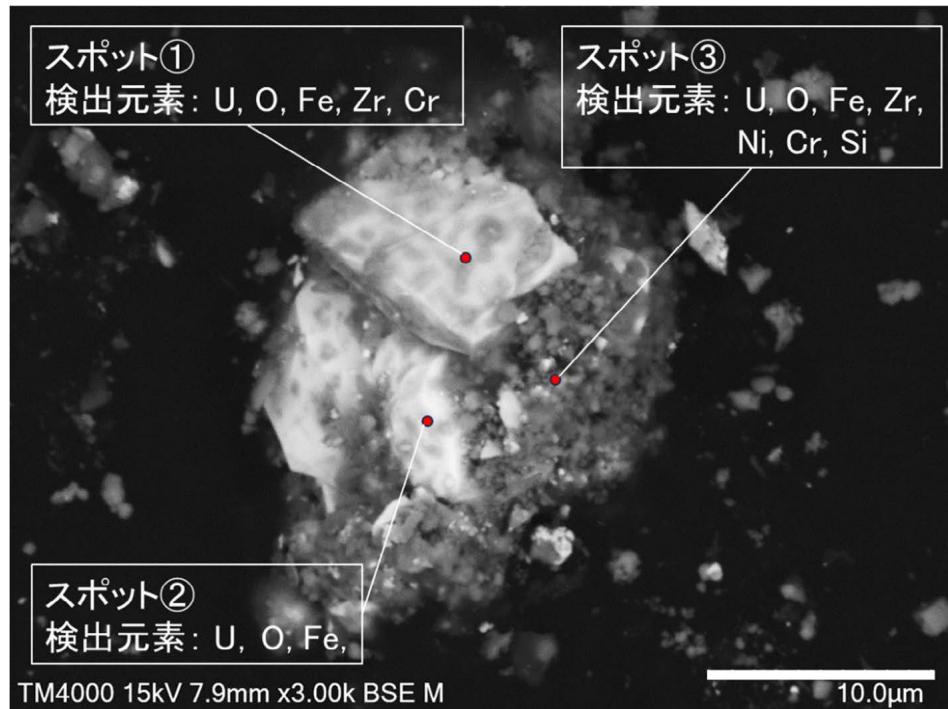


図 12 範囲 B の反射電子像（各スコットに検出元素をプロット）

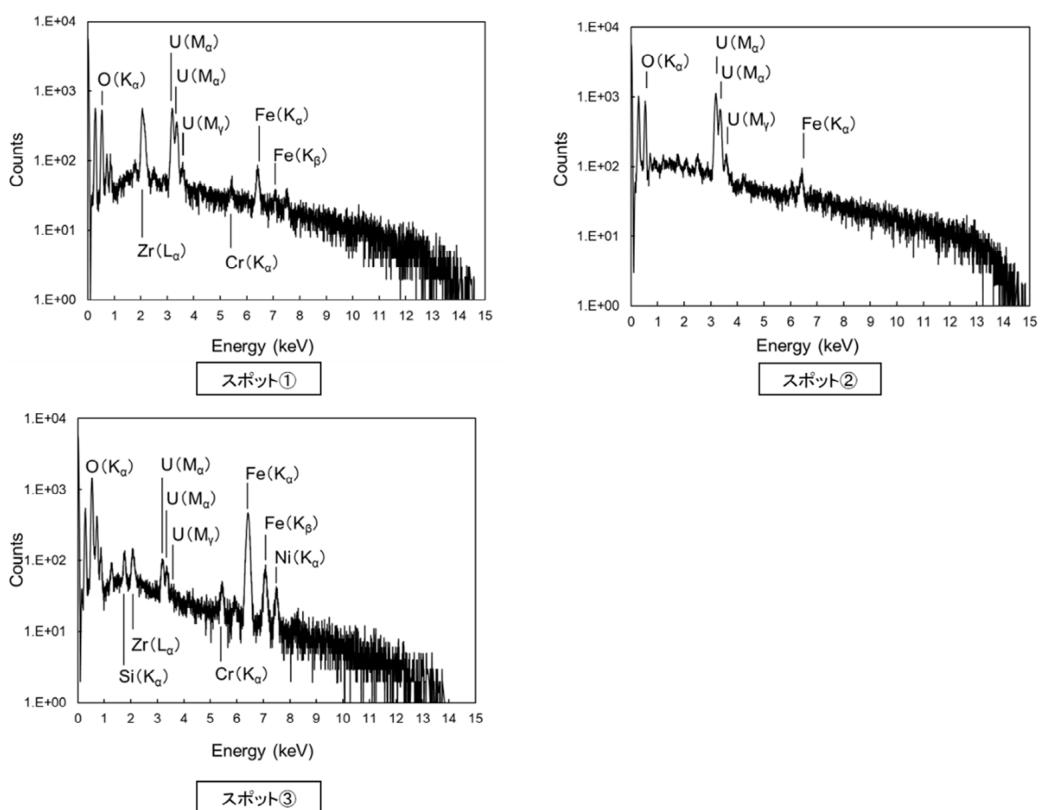


図 13 範囲 B の各スコットから検出された EDX スペクトル

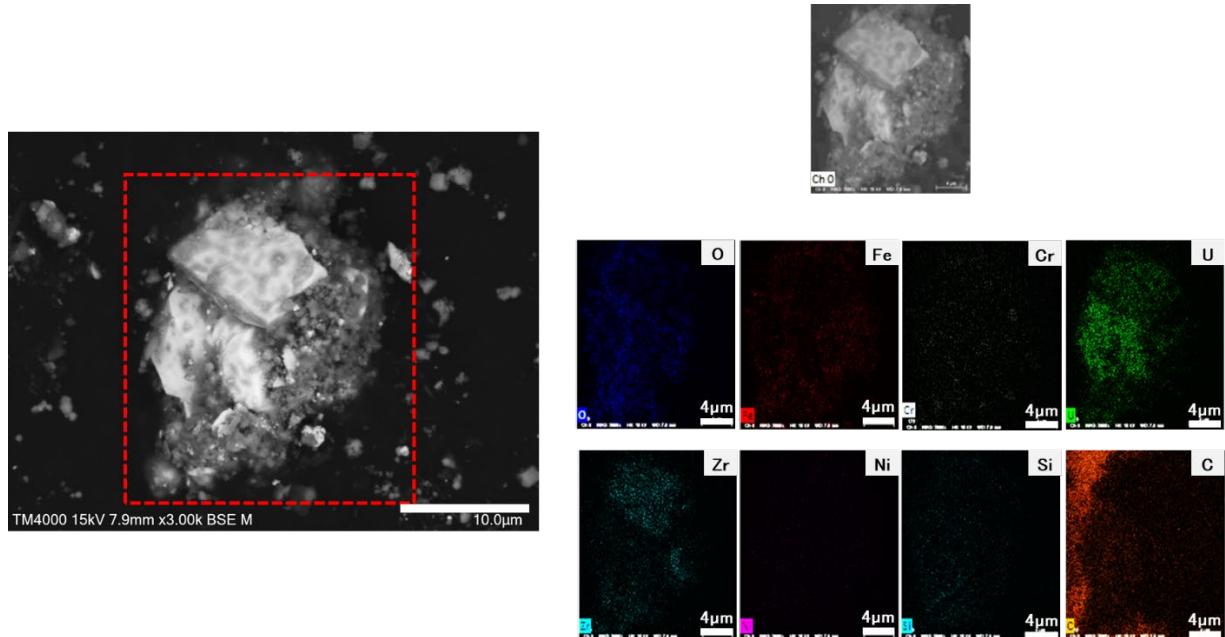


図 14 範囲 B の元素マッピング（赤点線枠内が元素マッピング範囲）

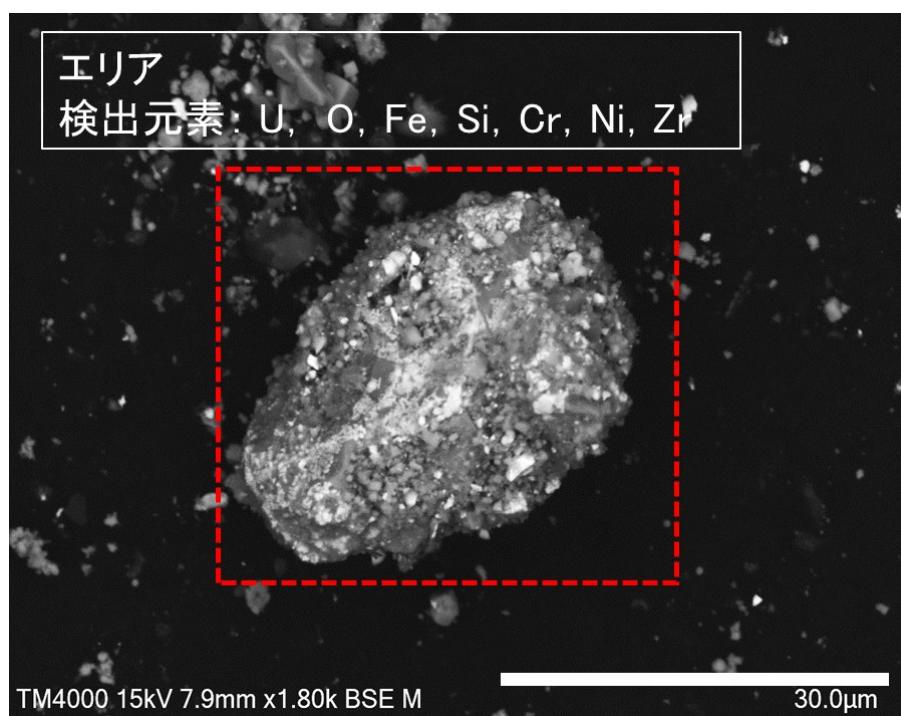


図 15 範囲 C の反射電子像（赤点線枠内がエリヤスキャン範囲）

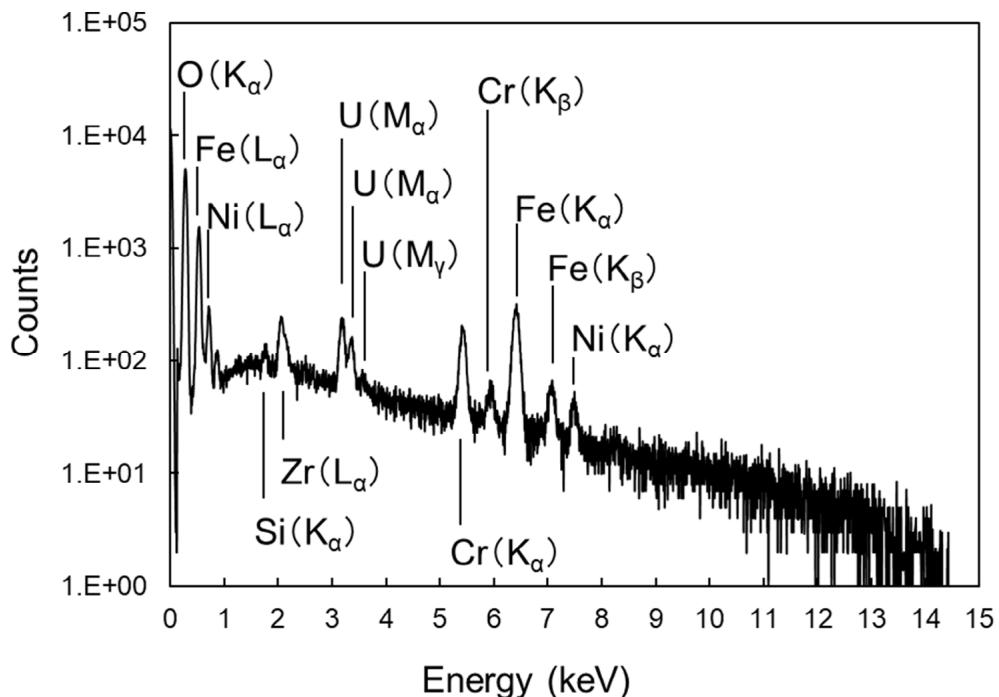


図 16 範囲 C のエリヤスキャンで検出された EDX スペクトル

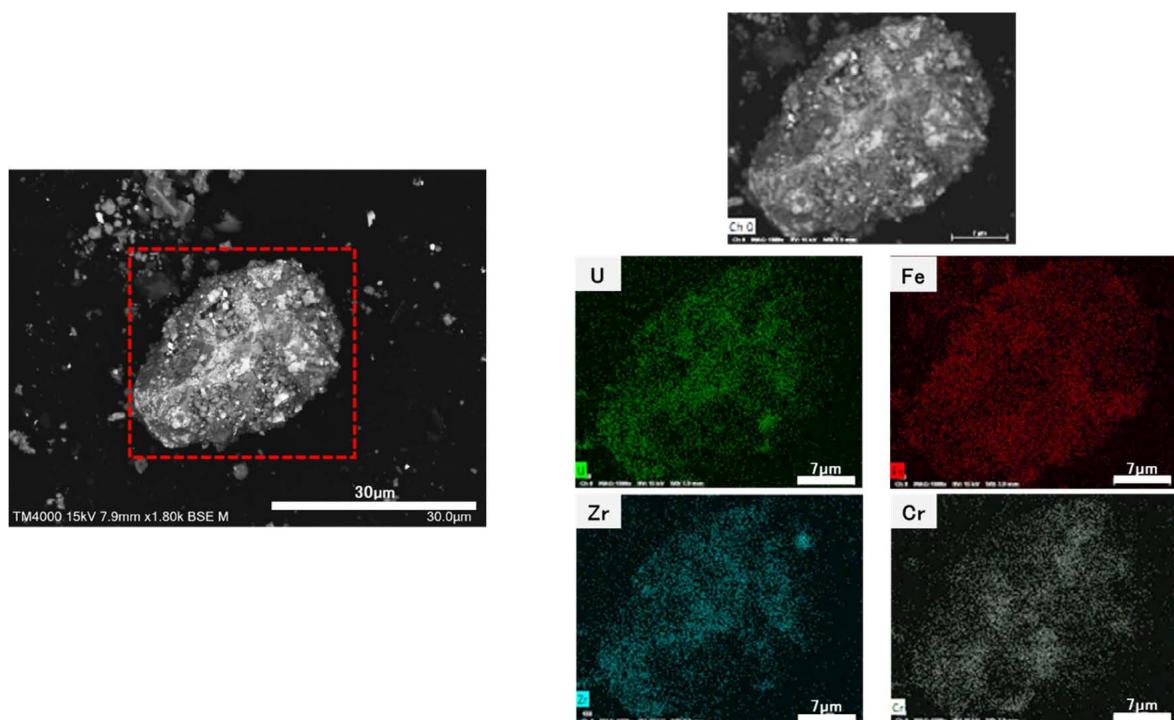
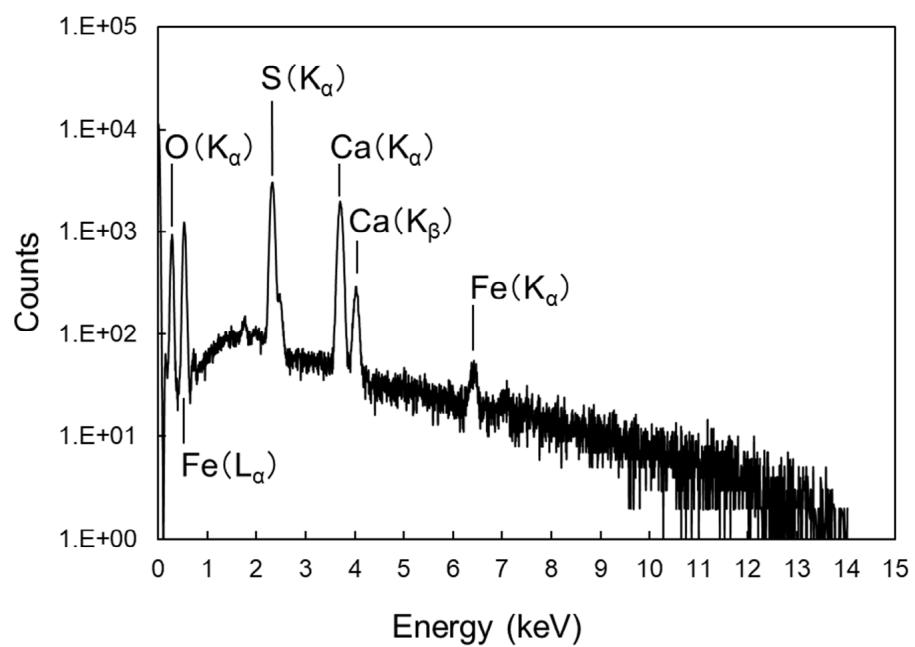
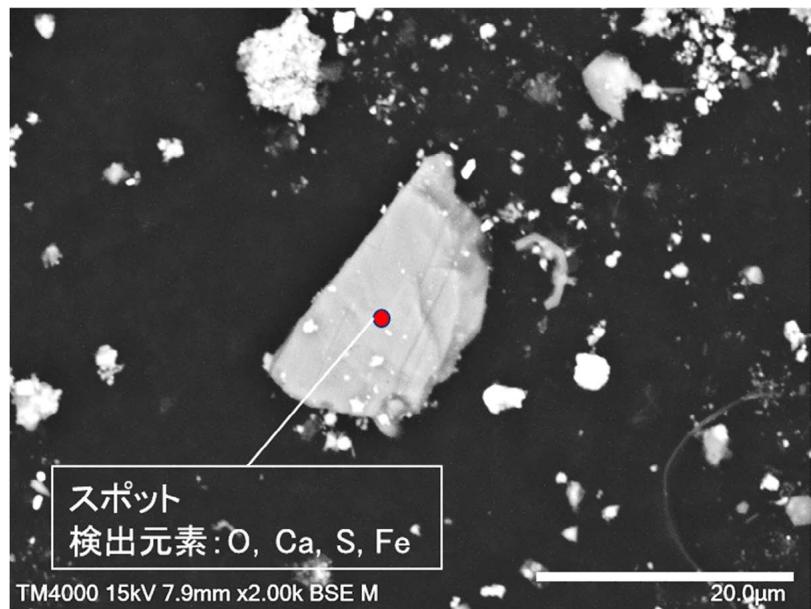


図 17 範囲 C の EDX による元素マッピング (赤点線枠内が元素マッピング範囲)



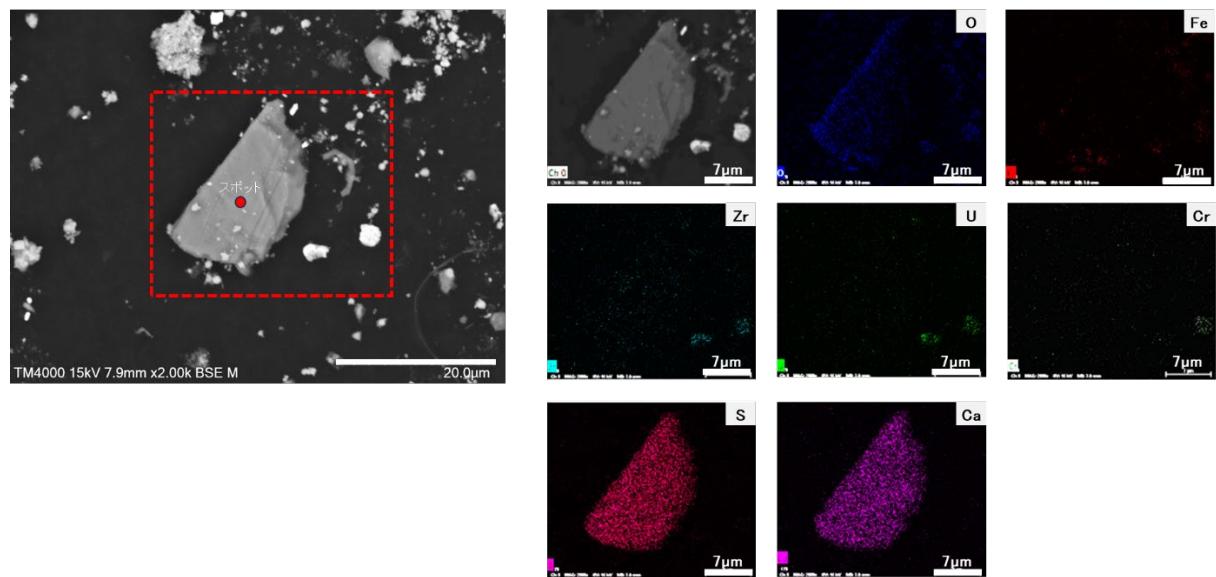


図 20 範囲 D の EDX による元素マッピング (赤点線枠内が元素マッピング範囲)

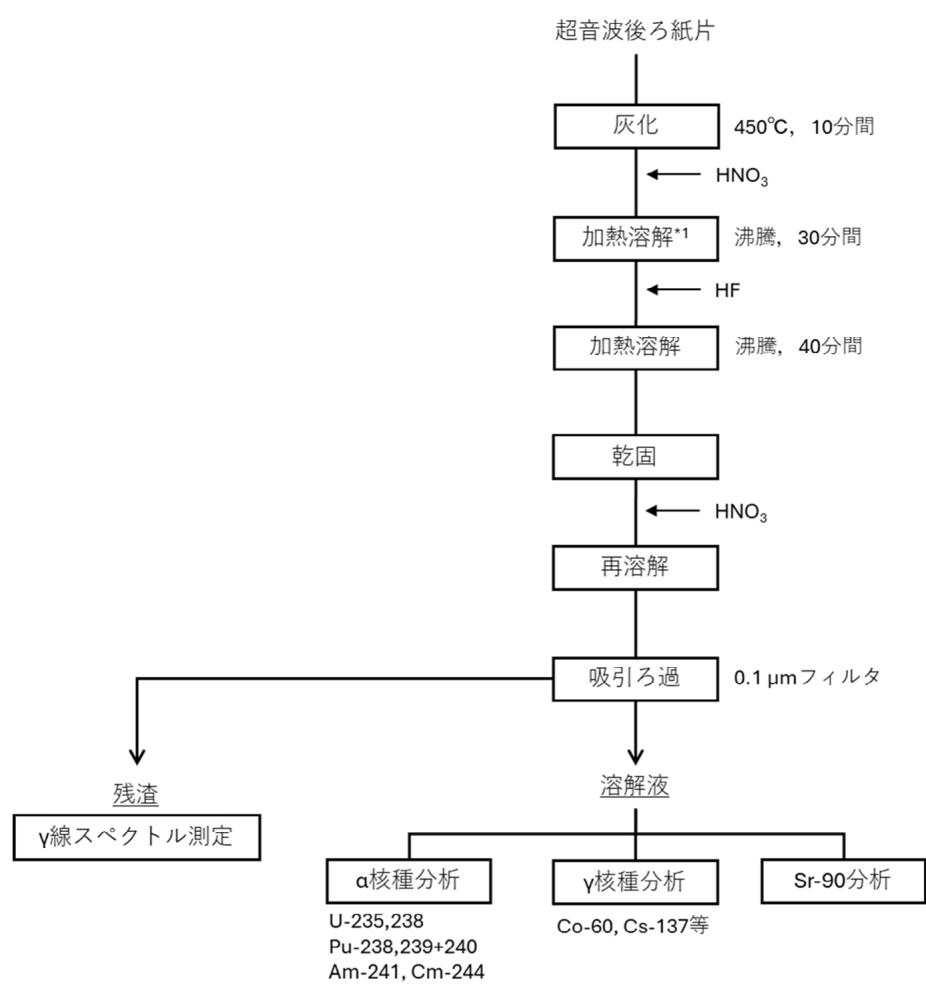
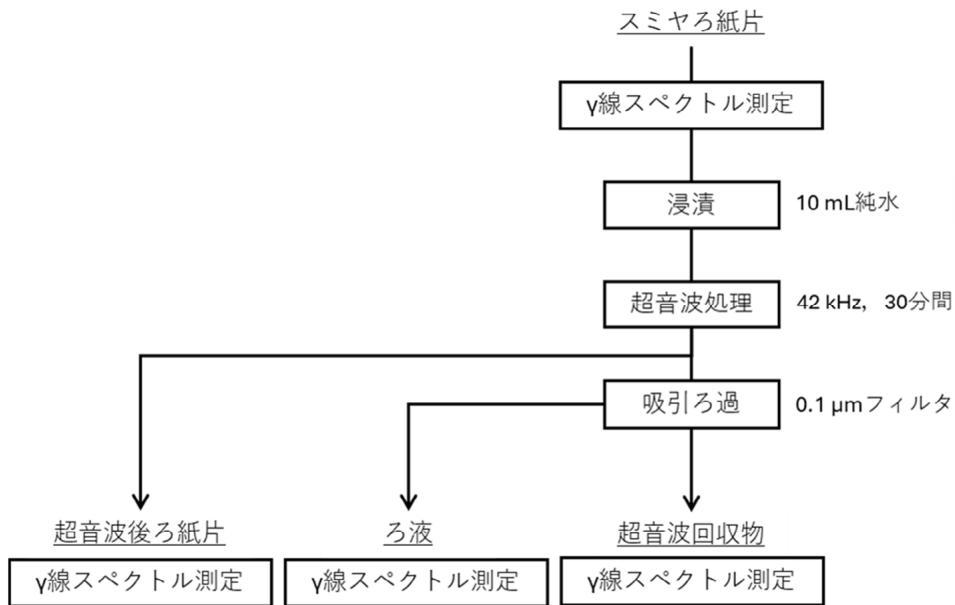


図 21 23P-2 における放射能定量分析フロー (1/2)

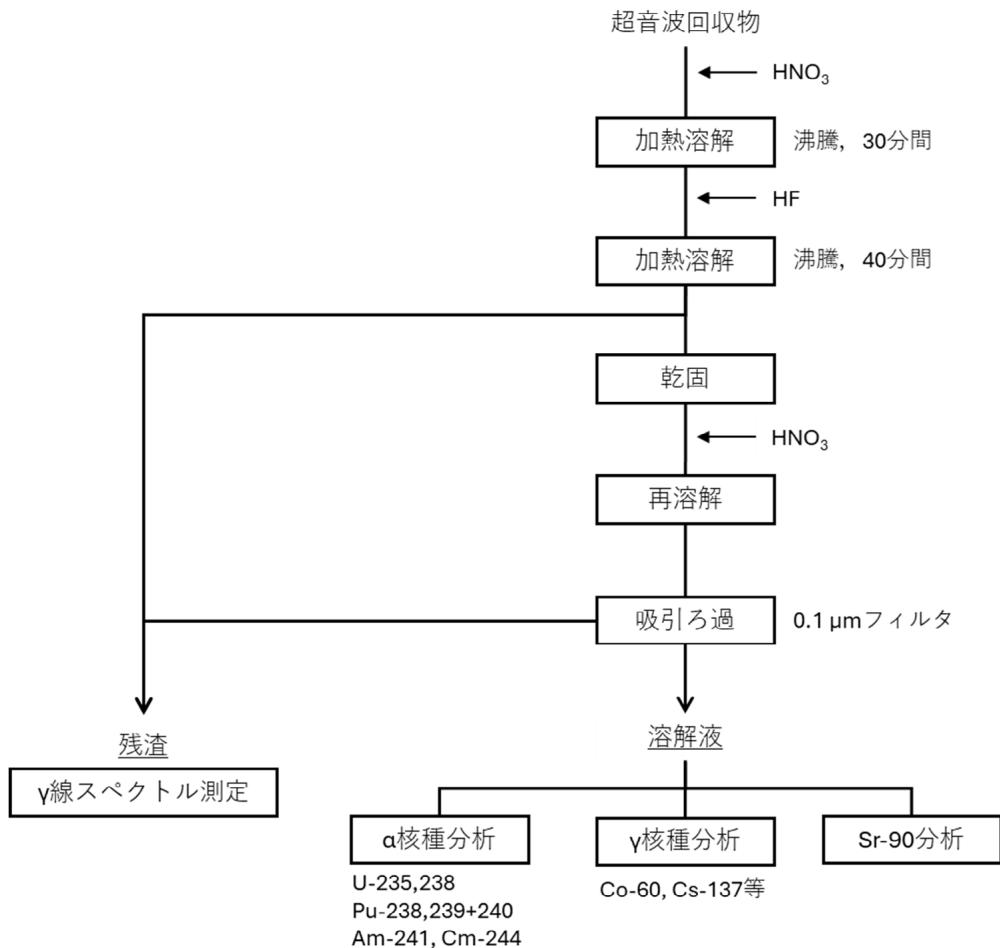


図 21 23P-2 における放射能定量分析フロー (2/2)

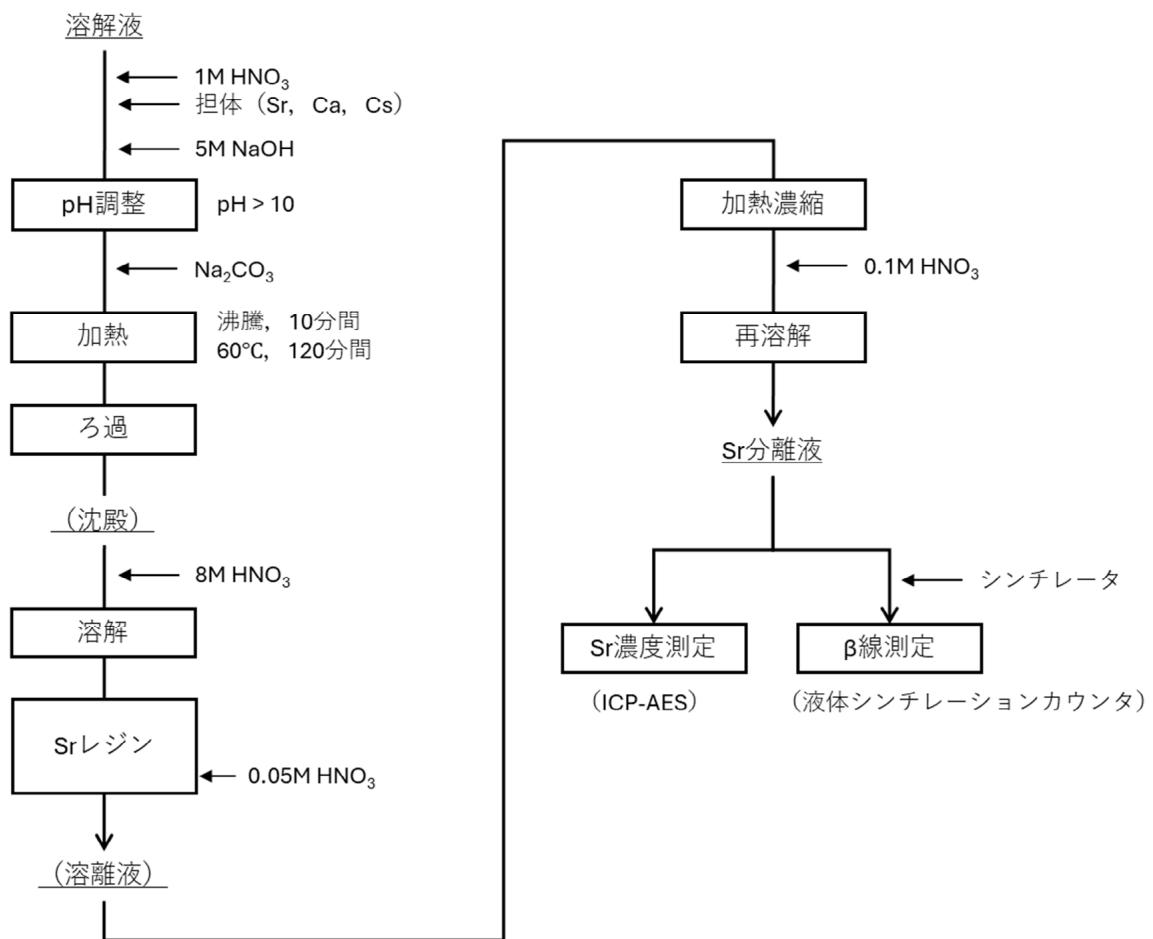


図 22 Sr の化学分離フロー

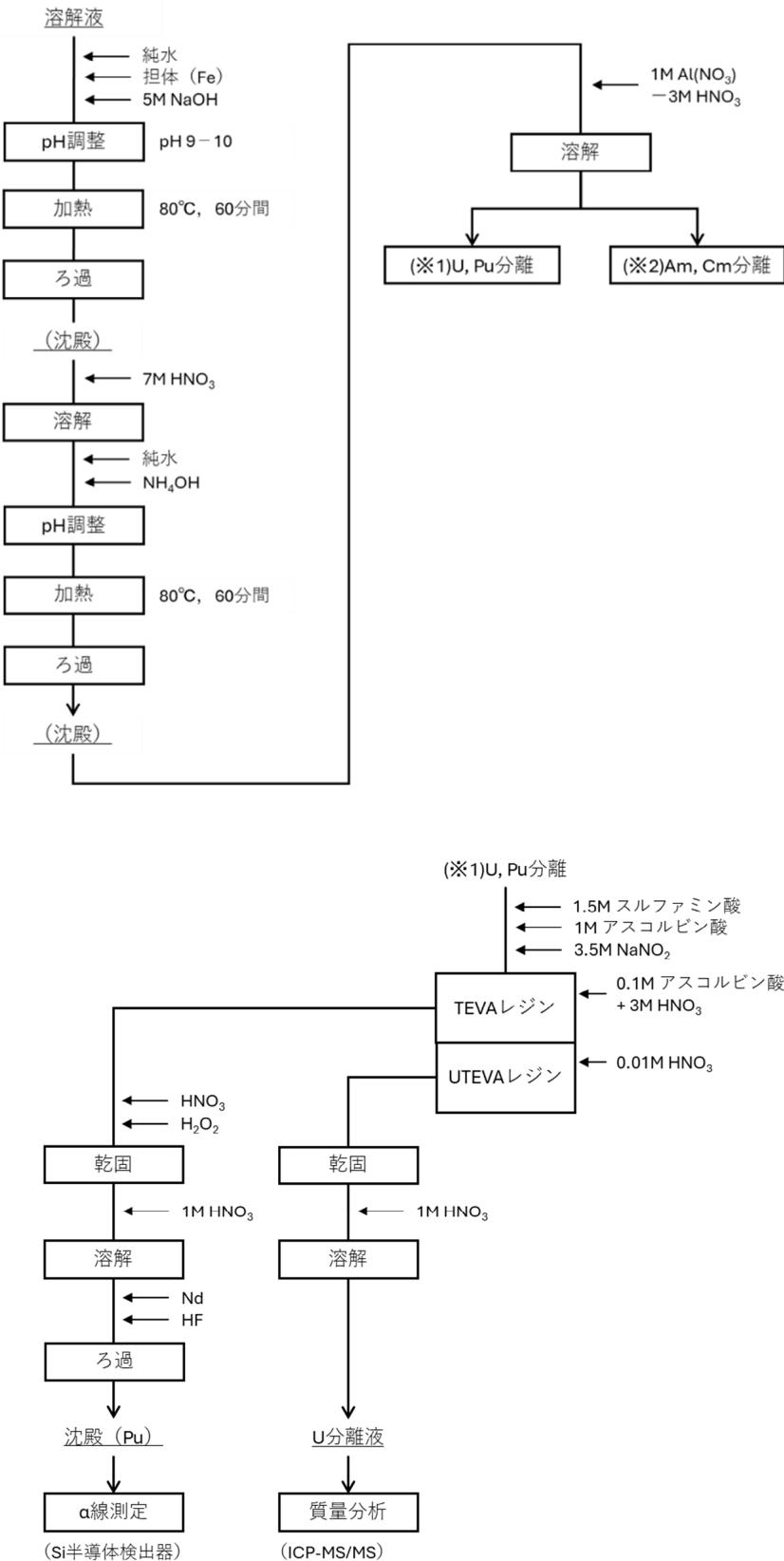


図 23 U, Pu, Am, Cm の化学分離フロー (1/2)

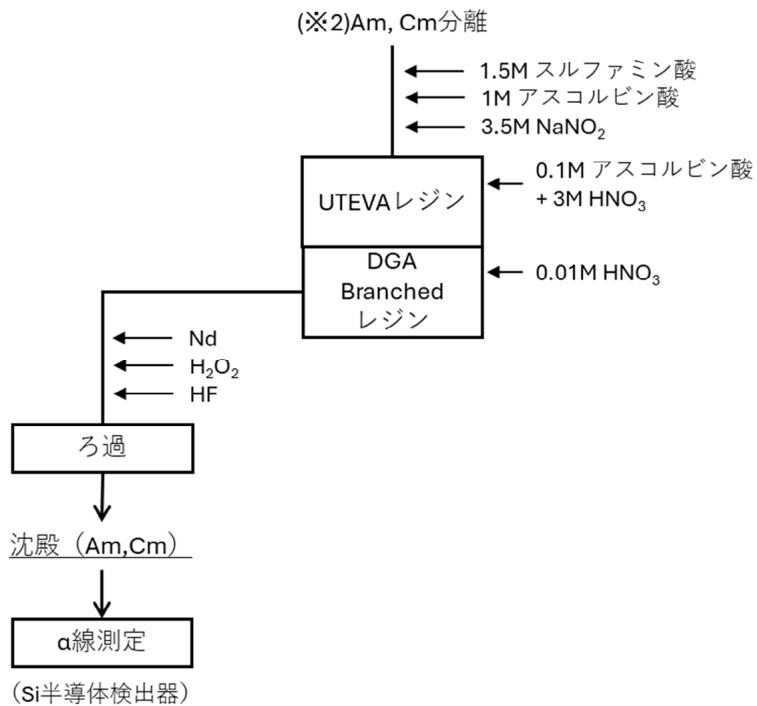


図 23 U, Pu, Am, Cm の化学分離フロー (2/2)

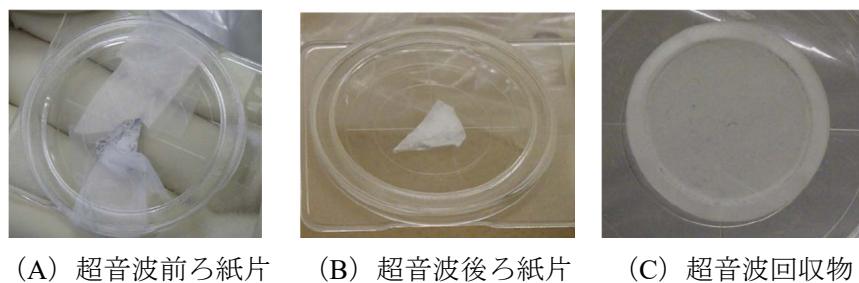


図 24 超音波照射前後のスミヤろ紙片と超音波回収物の外観

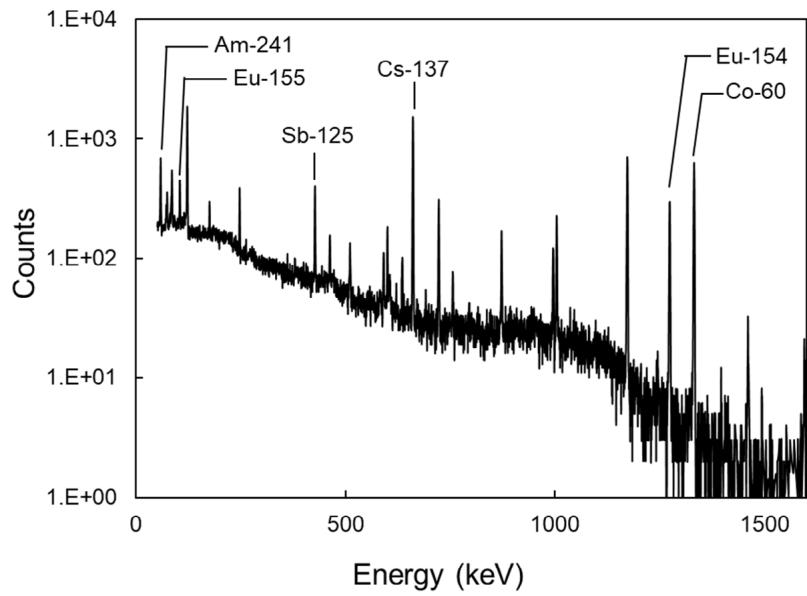


図 25 超音波回収物の溶解液の γ 線スペクトル

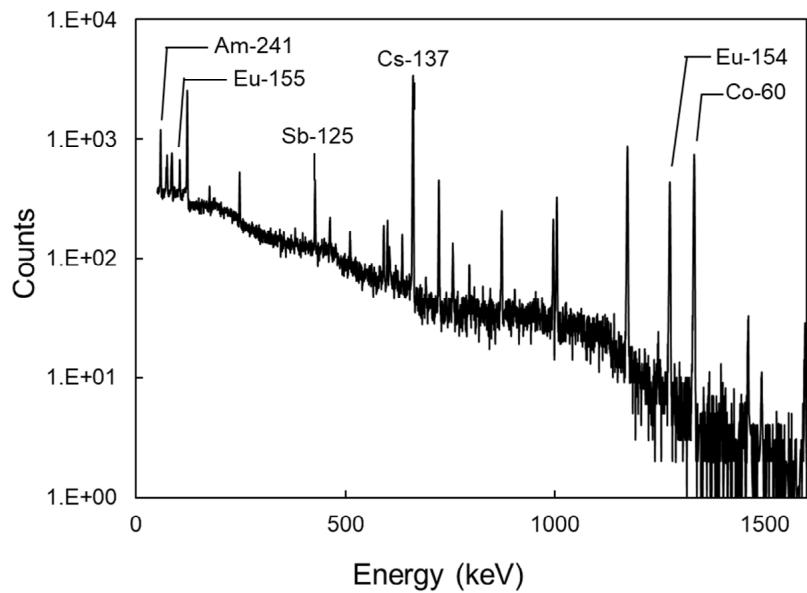


図 26 超音波処理後ろ紙片の溶解液の γ 線スペクトル

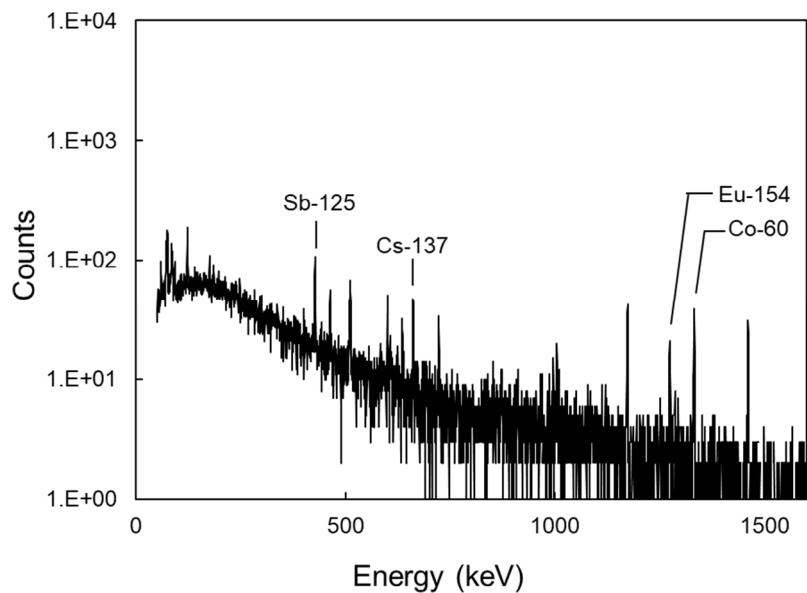


図 27 超音波処理後ろ紙片の残渣の γ 線スペクトル

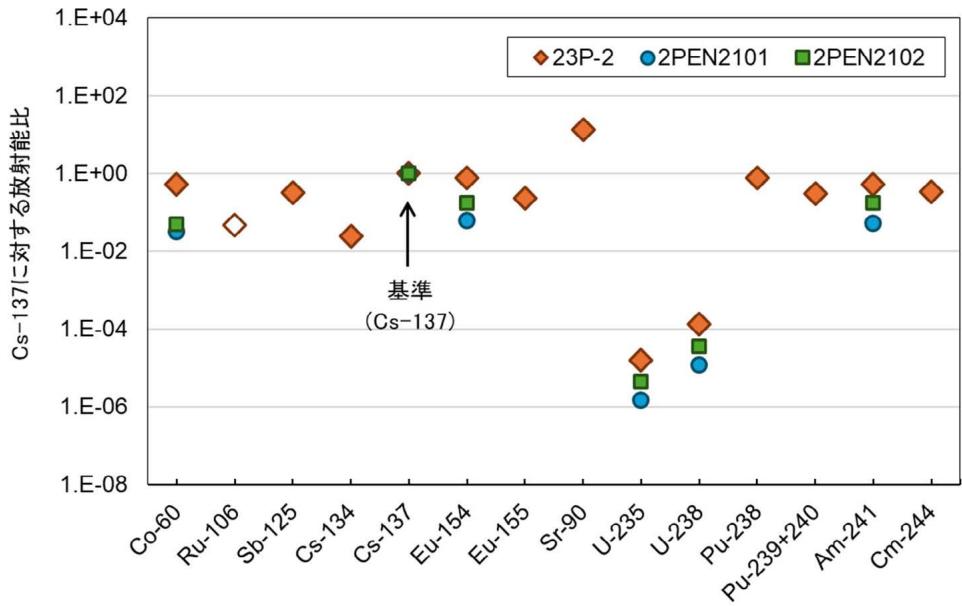


図 28 23P-2 及び 2020 年採取試料 (2PEN2101, 2PEN2102) の Cs-137 に対する放射能比*

* 2023 年 11 月 20 日に各核種の半減期を用いて補正した値から比を算出している。Am-241 については、Pu-241 の崩壊による生成の寄与を評価できないため、測定時点の値を用いている。

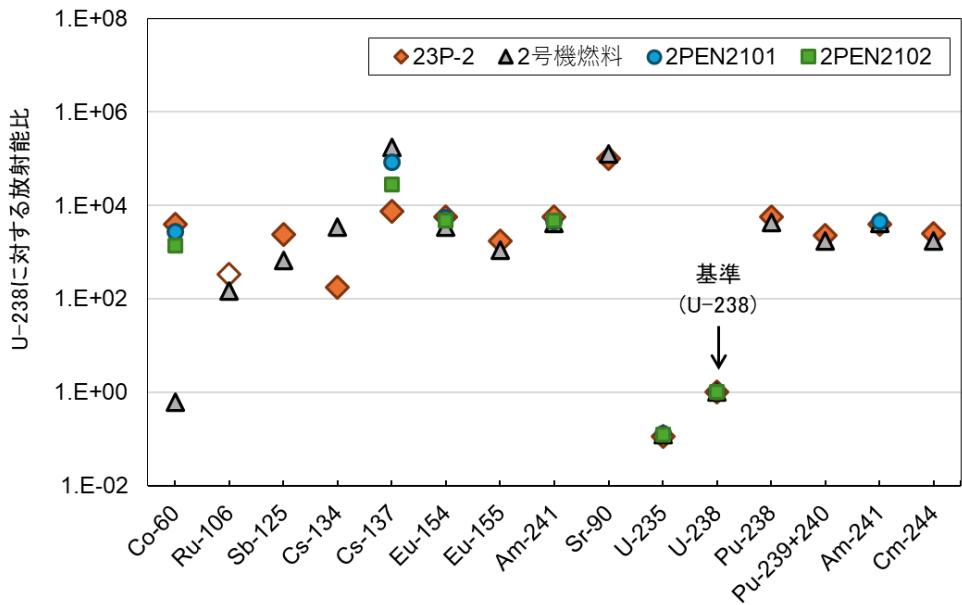


図 29 23P-2, 2号機燃料組成^{*1} 及び 2020 年採取試料 (2PEN2101, 2PEN2102) の U-238 に対する放射能比^{*1}

*1 2号機燃料の組成は燃料ペレットと被覆管のみを考慮している^[7]。

*2 2023 年 11 月 20 日に各核種の半減期を用いて補正した値から比を算出している。

Am-241 については、Pu-241 の崩壊による精製の寄与を評価できないため、測定時点の値を用いている。

付録 測定時点におけるスミヤろ紙片あたりの放射能濃度 [Bq/試料]

(1) 超音波回収物

測定核種	測定日	放射能濃度
Co-60	2024/6/18	1.2×10^2
Sr-90	2024/7/5	2.7×10^3
Ru-106	2024/6/18	$< 2.6 \times 10^1$
Sb-125	2024/6/18	7.2×10^1
Cs-134	2024/6/18	3.2×10^0
Cs-137	2024/6/18	1.7×10^2
Eu-154	2024/6/18	1.6×10^2
Eu-155	2024/6/18	5.2×10^1
U-235	2024/7/8	2.4×10^{-3}
U-238	2024/7/8	2.2×10^{-2}
Pu-238	2024/6/25	1.6×10^2
Pu239+240	2024/6/25	6.7×10^1
Am-241	2024/6/25	1.3×10^2
Cm-244	2024/6/25	7.7×10^1

(2) 超音波後ろ紙片

測定核種	測定日	放射能濃度
Co-60	2024/7/9	1.5×10^2
Sr-90	2024/7/24	4.7×10^3
Ru-106	2024/7/9	$< 2.7 \times 10^1$
Sb-125	2024/7/9	8.5×10^1
Cs-134	2024/7/9	7.8×10^0
Cs-137	2024/7/9	3.9×10^2
Eu-154	2024/7/9	2.4×10^2
Eu-155	2024/7/9	7.0×10^1
U-235	2024/7/22	6.3×10^{-3}
U-238	2024/7/22	5.4×10^{-2}
Pu-238	2024/7/17	2.7×10^2
Pu239+240	2024/7/17	1.1×10^2
Am-241	2024/7/17	1.7×10^2
Cm-244	2024/7/17	1.1×10^2

