

ポスター No.	 <b>ポスターセッション ポスタータイトル</b> <small>* : ポスター掲載有</small>	<b>JAEA 所属・発表者</b>
①	<b>炉内核種インベントリの再評価</b> - 事故直前における詳細な3次元核種インベントリデータの開発 - <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span>	CLADS 燃料デブリ研究D 計量管理・線量評価Gr. 坂本 雅洋
②	<b>1F周辺環境中の微生物の特性</b> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">ポスター</span> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span> *	CLADS 燃料デブリ研究D燃料デブリ取扱技術開発Gr. 土津田 雄馬
③	<b>光ファイバを用いた新方式片側読み出し型放射線位置検出器の開発</b> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span>	CLADS 遠隔技術D 放射線システム開発Gr. 寺阪 祐太
④	<b>廃炉研究基盤データベース (debrisWiki) の整備</b> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">ポスター</span> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span> *	CLADS 炉内状況把握D 燃料溶融挙動解析Gr. 山下 拓哉
⑤	<b>燃料デブリ凝固特性の熱力学的な予測</b> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">ポスター</span> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span> *	CLADS 炉内状況把握D 試験技術開発Gr. 多木 寛
⑥	<b>燃料デブリ非破壊測定技術の開発</b> - 高線量率特化型ガンマ線スペクトロメトリシステム - <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span>	CLADS 遠隔技術D 放射線システム開発Gr. 冠城 雅晃
⑦	<b>2D Elemental Mapping of Simulated Fuel Debris using Laser Induced Breakdown Spectroscopy</b> (和訳：レーザー誘起ブレイクダウン分光法による模擬デブリの二次元分布測定) <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span>	CLADS 遠隔技術D 遠隔分析技術開発Gr. Batsaikhan Munkhbat
⑧	<b>汚染水処理二次廃棄物の安全な保管のために</b> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">ポスター</span> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span> *	CLADS 廃棄物処理処分D 保管機器健全性評価Gr. 加藤 友彰、山岸 功 大熊C 分析部 分析計画課 堀田 拓摩
⑨	<b>放射性核種の迅速分析におけるICP質量分析法の展開</b> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">ポスター</span> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span> *	CLADS 環境影響研究D 放射線計測技術開発Gr. 寺島 元基
⑩	<b>核種移行研究における固相分析装置の活用</b> - 土壌・生物系研究、材料研究への適用事例 - <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">ポスター</span> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span> *	CLADS 環境影響研究D 放射線計測技術開発Gr. 土肥 輝美
⑪	<b>河川から海洋への放射性セシウムの移動メカニズム研究</b> - 令和元年度台風21号接近時のモニタリング結果より - <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">ポスター</span> <span style="border: 1px solid red; padding: 2px;">原稿</span> *	CLADS 環境モニタリングD 広域モニタリング調査Gr. 御園生 敏治

# ① 炉内核種インベントリの再評価 — 事故直前における詳細な3次元核種インベントリデータの開発 —

炉炉環境国際共同研究センター 燃料デブリ研究 Div. 計量管理・線量評価 Gr.  
坂本 雅洋、奥村 啓介

現在、1F 1~3号機の事故直前における炉内の核種インベントリの再評価を実施しています<sup>1)</sup>。これは、今後の多岐に渡る1F 廃炉に係る研究開発及び事業者の許認可支援等にも適用できる3次元核種インベントリデータベースの構築を目指したものです。本報では開発中のデータベースの特徴及び、核種インベントリ計算手法の概要について紹介します。

## (1) はじめに

1F 事故直前の炉内の核種インベントリデータは、炉内状況の把握、燃料デブリと放射性廃棄物等の処理・処分計画の立案、事故進展の解明など、今後の1F 廃炉に係る研究開発において重要な情報を提供するものです。これまで、事故発生直後の間もない時期に、ORIGEN2コードにより評価されたデータベース<sup>2)</sup>が、多くの研究開発において活用されてきました。このデータベースは、事故当時の限られた情報を基に作成されたため、炉内領域を5~6領域に分割し炉心軸方向のボイド率分布を一定と仮定、燃料中の可燃性毒物(Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)や<sup>14</sup>Cや<sup>60</sup>Coの放射化生成に寄与する構造物中微量不純物の未考慮など、今後の廃炉を進めるにあたり、不足している点が多々あります。2022年度から予定されている燃料デブリの試験的取出しなどを含む1F 廃炉の工程を着実に進めていくにあたって、量的にも質的にも改善し、より詳細で正確な核種インベントリデータに見直す必要があります。

## (2) 計算の概要

本研究では1~3号機の①燃料、被覆管、チャンネルボックス等を含む燃料集合体部、②集合体上下部タイプレート等のエンドピース部、③十字型制御棒ブレード部を対象に、3種類の核種インベントリ計算を行っています。その全体概要を図1に示します。従来のデータベースでは、燃料と被覆管だけを対象にしていましたが、今回は燃料デブリとして混在していると考えられる他の炉内構造物も考慮し、より現実的な条件を想定した最確な評価を行っています。さらに、本計算では1~3号機の燃料集合体設計仕様や実機運転管理データに基づき、詳細な計算条件を設定しています。また、炉心軸方向の燃焼度分布やボイド率分布を考慮して、領域を平均化して扱うこ

とに伴うバイアス誤差を大幅に排除しています。表1に①を対象とした核種インベントリ計算の改良点を従来計算手法と比較してまとめました。正確に核種インベントリ計算を行うには、信頼性の高い核種インベントリデータの使用や計算領域の十分な分割などが必要です。それらをほぼ満足しており、かつ実用的な計算時間内で全炉心の約1,600核種に対する核種インベントリの計算が可能な手法を新たに開発しました。

本手法を2号機に適用する場合、集合体数548体×軸方向24領域=13,152領域に対して核種インベントリ計算が行われます。本手法の精度検証として燃料集合体1体(燃焼度約34GWd/t)を対象に、軽水炉燃料の照射後試験解析で実績がある連続エネルギーモンテカルロ法を用いた燃焼計算コードMVP-BURNによる計算結果との比較を行いました。図2に示すように、核種インベントリ評価で重要視される核種に対し、燃料集合体構造を非均質に扱う燃焼計算と同等精度で計算が可能なることを確認しました。

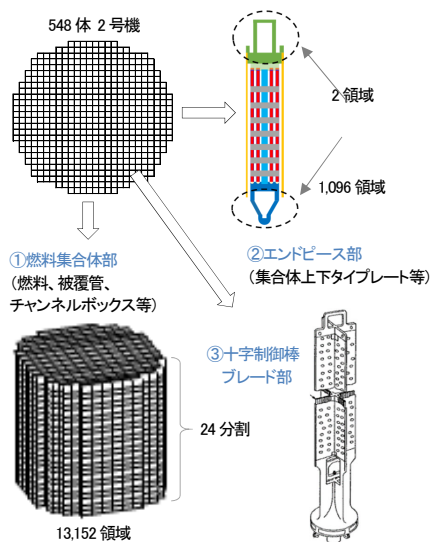


図1. 核種インベントリ計算の全体概要

表1. 従来データベースとの計算手法の比較

項目	従来手法 (JAEA-Data/Code 2012-019)	本計算手法 (対象: 燃料集合体)
断面積ライブラリ (核データ)	JENDL-3.3(335核種) 補充: ORIGEN2の1群ライブラリ	JENDL-4.0(406核種) 補充: JEFF3.3/A → MAXS2015
計算コード	ORIGEN2.2	MVP-BURN, ORIGEN2.2, Gd内挿 etc.
集合体設計仕様の考慮	代表値 (ORLIBJ33のBWR/STEP-3ライブラリ)	集合体設計仕様に基づく集合体タイプ 毎にORIGEN2ライブラリを新規開発
燃料組成	公開U濃縮度情報に基づき集合体 平均値を設定(Pu:推定)	各集合体設計仕様に基づき非均質 組成を設定(MVP-BURN)一均質化組成
可燃性毒物(Gd)	考慮なし	非均質計算(MVP-BURN)で考慮
ボイド率分布の考慮	代表値で一定(40%ボイド率の BS340J33ライブラリを使用)	炉心管理データに基づき軸方向履歴 ボイド率分布(24ノード層)を考慮
インベントリ計算領域数	炉内水平方向にバッチ毎 (5~6領域) → 炉内合計値	炉内3次元ノード領域毎 (2号機: 548体×24ノード=13,152領域)
比出力履歴	炉内水平方向領域の 燃焼度分布変化から推定	炉心管理データに基づきノード毎の 比出力履歴を設定
放射化構造物	酸素とジルコイ成分 (O, Zr, Sn, Fe, Cr, Ni)	左記に加え、燃料及び構造物材の 微量不純物元素の初期組成を考慮

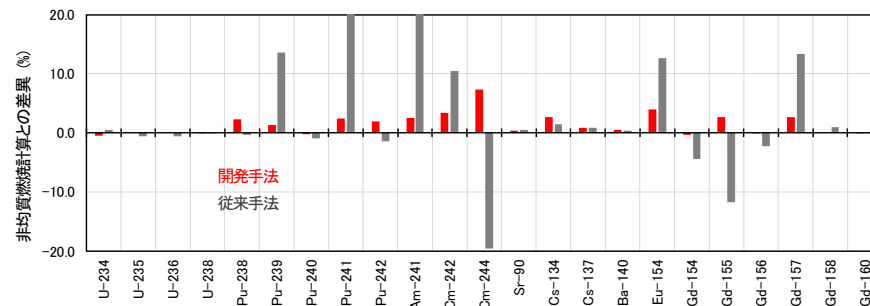


図2. 燃料集合体1体(34GWd/t)の燃焼計算による精度検証

また、図3に示すように、従来のORIGEN2コードによる計算では考慮できないGd核種の燃焼変化も本手法では正確に取り扱えていることが確認できました。

## (3) データベースの活用先

- 本研究で開発したデータベースは以下に示すような多様な研究開発に利用可能です。
- ・事故進展解析の高度化(崩壊熱分布)
  - ・燃料デブリ性状把握(分析データとの比較・解釈)
  - ・被ばく・環境影響評価(放射能比の利用)
  - ・処理・処分(放射能インベントリ評価)
  - ・崩壊熱、線量率、臨界性評価(デブリ取出し)
  - ・非破壊測定技術開発(仕分け技術開発)

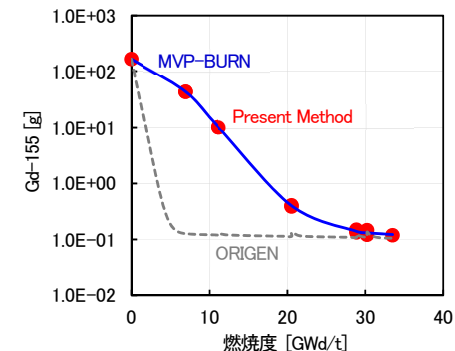


図3. 燃料集合体1体のGd-155の燃焼変化

## 参考文献

- 1) 坂本雅洋, 奥村啓介, 多田健一, 他: “東京電力福島第一原子力発電所の全炉心3次元核種インベントリ計算”, 日本原子力学会 2021年春の大会(3B02).
- 2) 西原健司, 岩元大樹, 須山賢也: “福島第一原子力発電所の燃料組成評価”, JAEA-Data/Code 2012-018 (2012).





# 1F周辺環境中の微生物の特性

土津田 雄馬

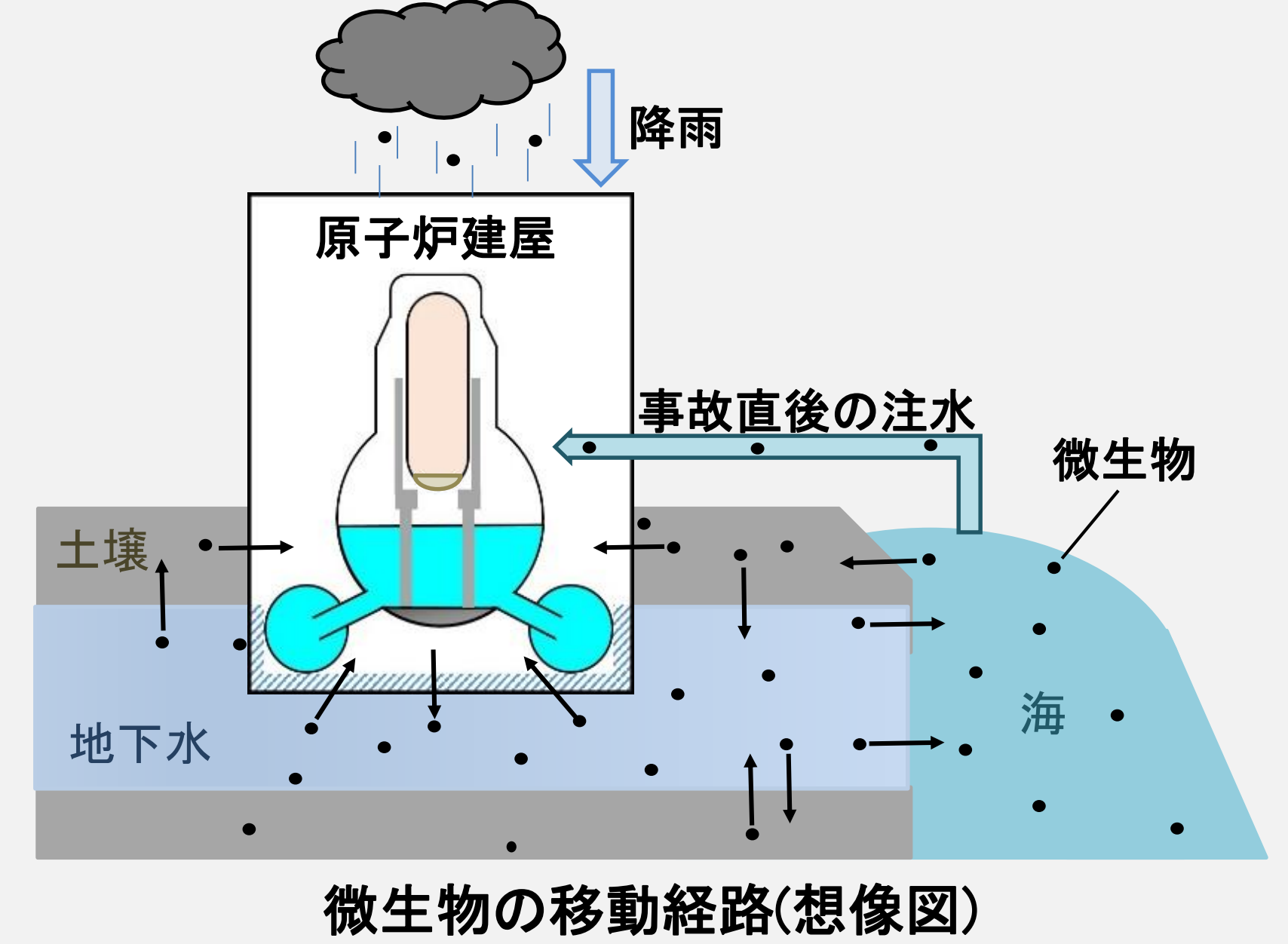
廃炉環境国際共同研究センター 燃料デブリ取扱技術開発Gr.

原稿へ

一覧に戻る

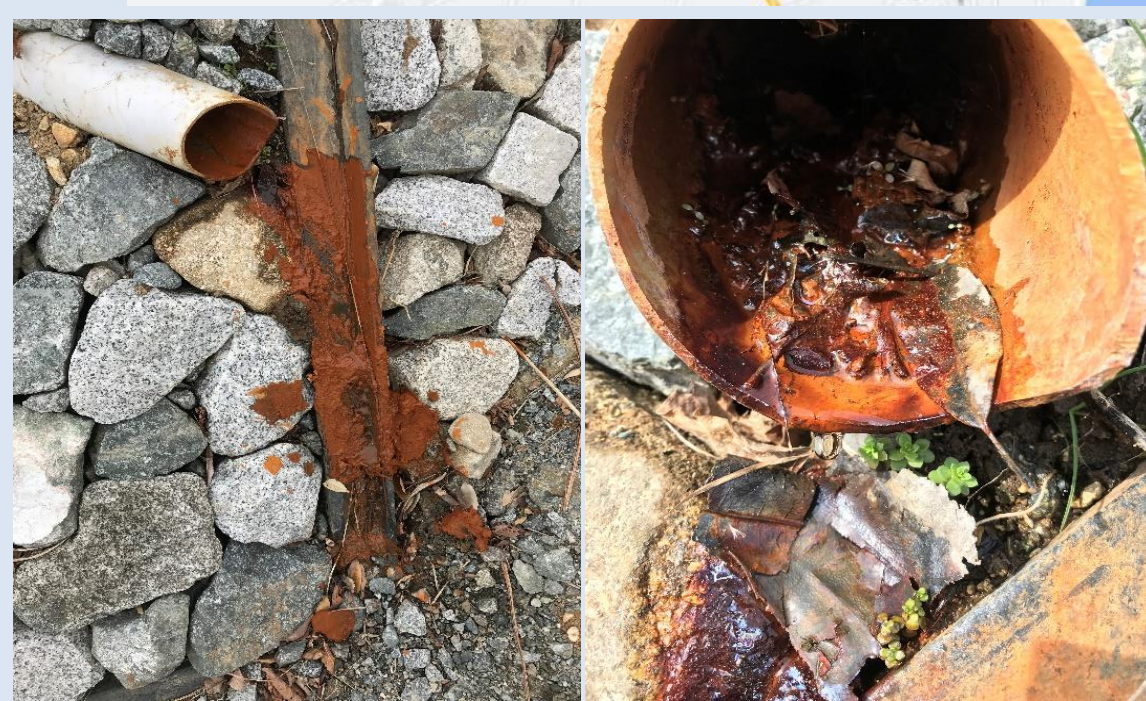
## 1. 研究背景

- 環境中には多種多様な微生物が存在し、環境に適応した微生物叢が形成される
- 一部の微生物は高放射線下でも生存・増殖が可能であり、かつての過酷事故後のスリーマイル島原発やチェルノブイリ原発でも存在が確認されている
- 福島第一原子力発電所(1F)では事故直後に海水が注水され、地下水の流入が今も続く



周辺環境中の微生物が侵入している可能性が非常に高く、  
長期間にわたる廃炉における微生物の影響を調査・予測することは重要！

## 2. 環境試料の採取と各種試験までの流れ



環境試料採取地点とその様子

ラボへ輸送



採取した環境試料

各種試験へ



ガラス試験管を用いた初代培養  
この他、遺伝子解析や水質測定なども並行して進める

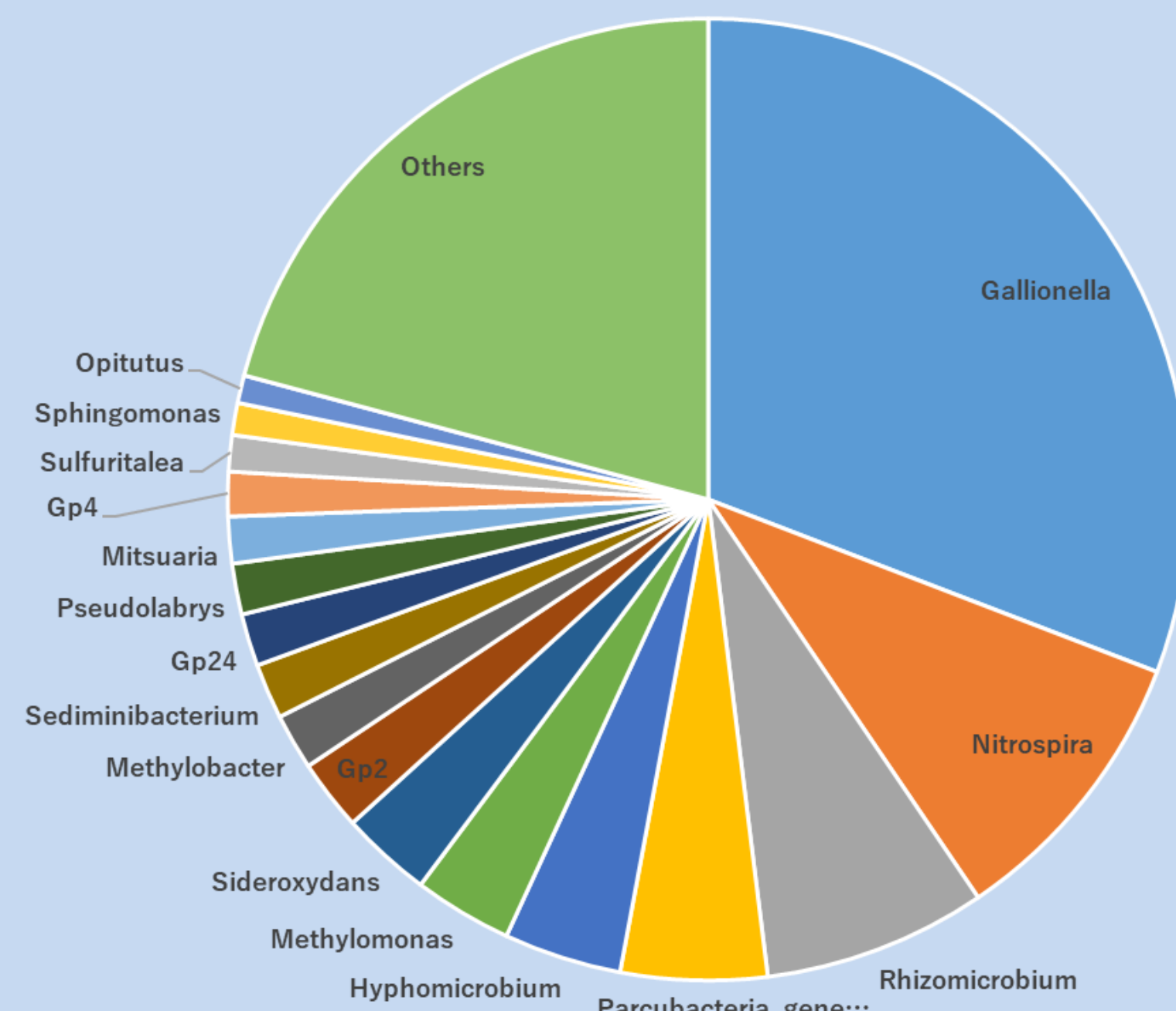
福島県双葉郡富岡町 CLADS国際共同研究棟付近で茶褐色の地下水を採取  
その他の場所で採取した環境試料と併せて遺伝子解析や培養など様々な試験を行う

## 3. 遺伝子解析

遺伝子の解析方法(解析までの流れ)

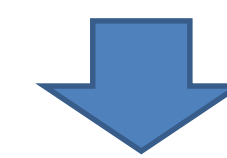
- PCRの標的遺伝子配列の選定  
細菌・古細菌: 16S rDNA, 菌類: ITS2
- 環境試料からDNAを抽出/精製
- PCRによる増幅
- PCR産物の確認/定量
- 次世代シーケンサーによる配列検出
- ペアエンド配列/アッセンブル
- フィルタリング/キメラチェック
- データ解析

国立遺伝学研究所のデータベースを利用



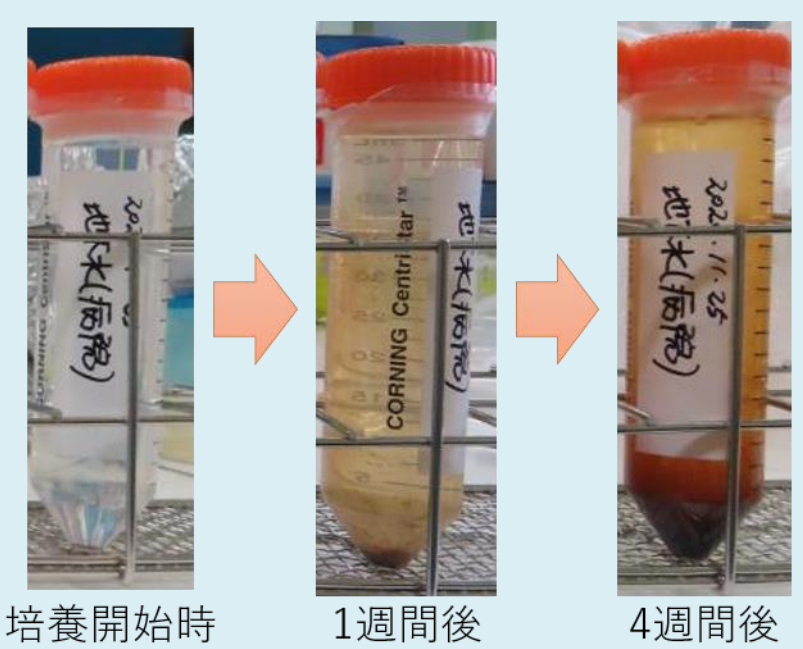
地下水の遺伝子解析の結果  
(細菌・古細菌)

- ・113科374属の微生物(細菌・古細菌)が検出
- ・鉄錆の原因となる鉄酸化細菌  
(*Gallionella*属, *Sideroxydans*属など)が非常に多く検出
- ・三価の酸化鉄を還元する鉄還元菌  
(*Rhizomicrobium*属など)も多く検出
- ・配管腐食や異臭の原因となる硫酸還元菌  
(*Desulfovibrio*属など)を少数ながら確認

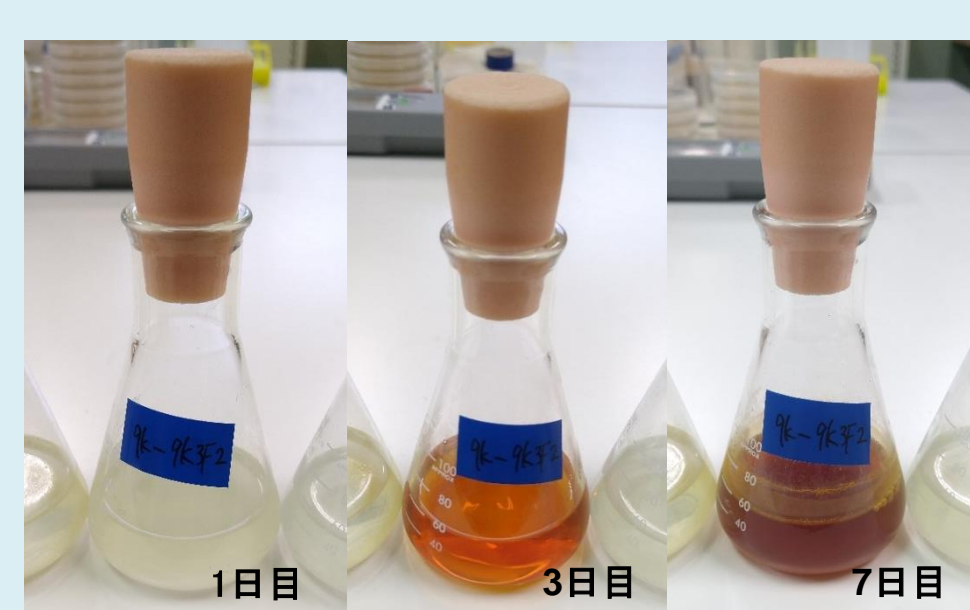


今回解析した環境試料は多様な微生物を含み、  
鉄の代謝を中心とする微生物叢が形成されていた

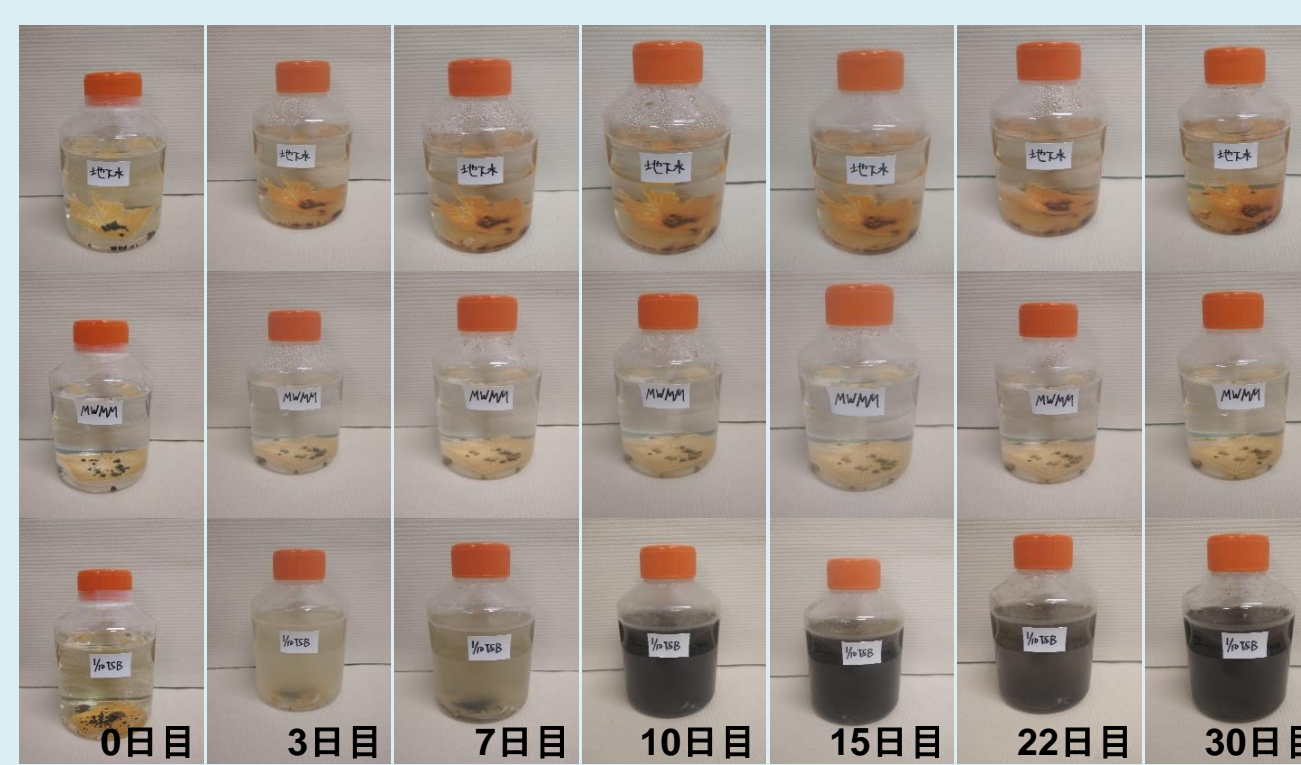
## 4. 微生物の分離・培養試験



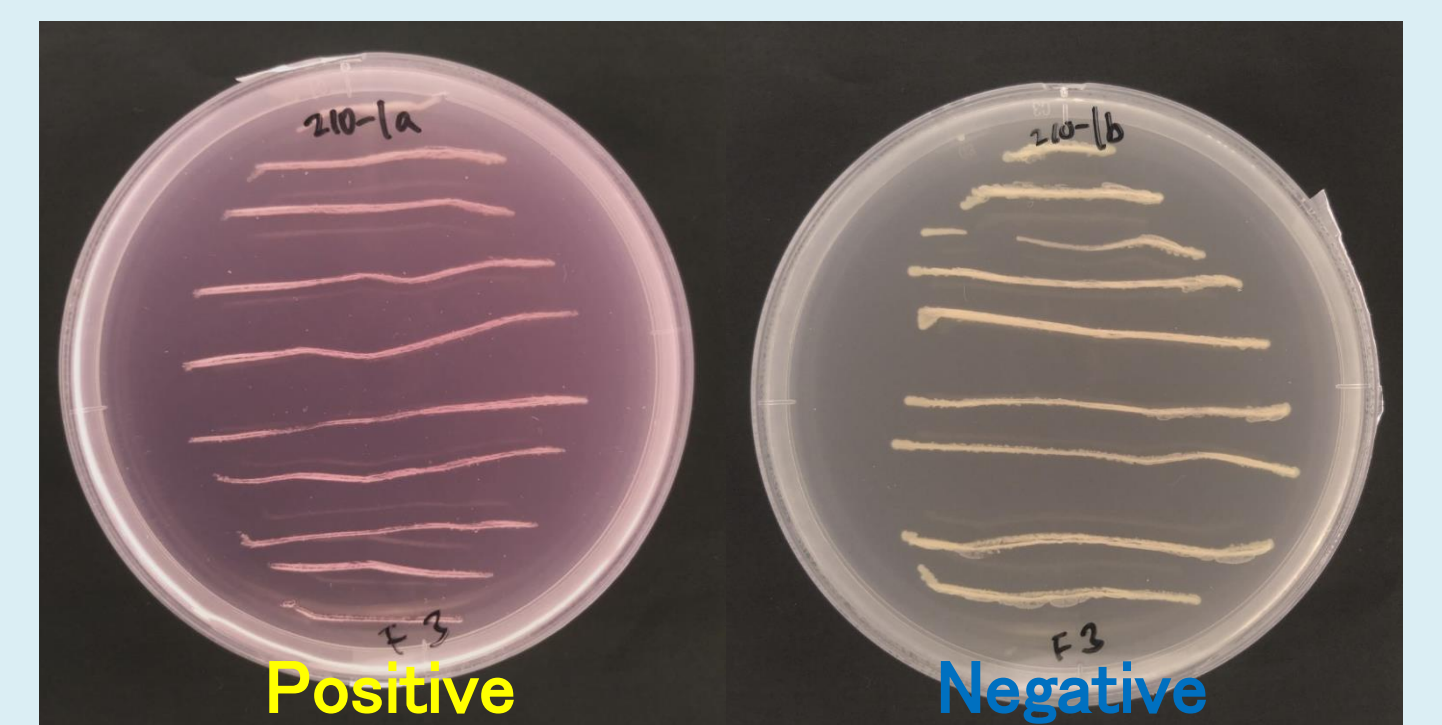
鉄酸化細菌の培養①  
(微好気的条件, 長期培養)



鉄酸化細菌の培養②  
(酸性条件, 短期培養)



金属片と微生物の混合培養試験  
(上段: 環境水, 中段: 有機物無, 下段: 有機物有)



バイオ鉱物生成細菌の分離

様々な条件で環境試料を培養し、微生物の増殖を確認した(赤褐色の沈殿生成, 濁度増加, 指示薬による培地の変色など)  
バイオ鉱物生成細菌などの有効活用が期待される微生物も分離・培養を進めている

## 5. まとめ

- ・1F周辺環境中から環境試料を採取し遺伝子解析および培養試験を行った
- ・遺伝子解析では、多様な微生物からなる鉄の代謝を中心とした微生物叢の存在を確認した
- ・培養試験では、鉄の酸化・還元に関連する微生物群の培養に成功した
- ・微生物の有効活用についても研究を進めており、今後も培養を続けていく



## ② 1F 周辺環境中の微生物の特性

廃炉環境国際共同研究センター 燃料デブリ研究 Div.  
燃料デブリ取扱技術開発 Gr. 土津田 雄馬

### (1) はじめに

環境中には多くの微生物が存在しています。それらは土壌、湖沼・河川、海、さらには人の体表や腸内など、多種多様な環境に適応し、生態系を築いています。高放射線下においても微生物は存在・増殖が可能で、かつての過酷事故、スリーマイル島原発事故の際はフィルターの目詰まりや配管腐食、大量の微生物の繁茂による視界不良などの問題が報告されており、チェルノブイリ発電所でも石棺・建屋内で微生物の存在が確認されており、ラボスケールで燃料デブリの分解を促進する微生物が存在するという報告があります。1Fでは、事故直後に海水注入が行われ、さらに、現在に至るまで地下水が流入し続けていることから、周辺環境中の微生物が建屋内に侵入している可能性は高いと考えられます。加えて、廃炉には長い時間を要するため、微生物による影響を予測しておくことは非常に重要です。そこで私たちは、1F 周辺環境中から環境試料(土、水など)を採取し、どんな微生物が存在しているか、また、その微生物がどのような特性を持っているのかについて検討を行うことにしました。

ここではその中の一例を紹介します。

### (2) 環境試料の測定

環境試料の採取は1Fから10km圏内の福島県双葉郡富岡町で行いました(図1(a)参照)。ここでは、CLADS 国際共同研究棟近くの法面より染み出る湧水を地下水としました。地下水の通じるパイプは、赤褐色の金属光沢を持つ堆積物を伴っており、初めにこの堆積物(図1(c))を採取・掻き出した後、滴下する地下水(図1(b))を回収しました。地下水は金属光沢を伴う析出物を含んでいたことから、鉄などの金属が多く含まれることが示唆されます。採取した環境試料は茨城県内の実験室に持ち帰り、水の成分測定、微生物の遺伝子解析 n 培養試験に用いました。

水の成分測定では、水素イオン濃度(pH)、酸化還元電位(ORP)、溶存元素濃度(測定元素:アルミニウムAl, カルシウムCa, 銅Cu, 鉄Fe, カリウムK, マグネシウムMg, マンガンMn, ナトリウムNa, 亜鉛Zn, リンP及びケイ素Si)を測定しました。微生物の遺伝子解析では、環境試料からDNAを抽出し、ポリメラーゼ連鎖反応(PCR)による

任意の配列の増幅を行い、次世代シーケンサーを用いて解析しました。解析では、細菌・古細菌(古細菌)を対象とした16SrDNA及び菌類を対象としたITS2の配列を増幅対象とし、アンプリコンシーケンス解析(PCRで増幅した遺伝子配列を解析する手法)を行いました。培養試験では、パイプ内に鉄錆状の析出物が多く見られたことから、鉄の代謝に係る微生物が存在するという仮定を基にそれらの微生物が増殖できる培養条件を検討しました。

(a)



(b)



(c)



図1 富岡町内環境試料採取地点とその外観

(a) CLADS 富岡の拠点(赤枠)、及び地下水採取ポイント(黒枠)、(b) 地下水採取地点及び(c) パイプ内堆積物写真。

### (3) 測定結果・解析

水の成分測定の結果は、pH 6.42、ORP 117.9 mV、元素濃度はCa 28 ppm、Fe 11ppm、K 12ppm、Mg 11ppm、Mn 1.5ppm、Si 9ppmでした。他方、Al, Cu, Na, Zn及びPは検出限界以下でした。これらの結果から、採取した地下水は中性かつ弱酸化的雰囲気、Feが溶存イオンとして検出されたことから、大気との接触時間が少ないものと考えられます。また、微生物の代謝に必要なPが検出されなかったことから、環境試料採取地点は微生物増殖の抑制環境であることが示唆されました。微生物(細菌・古細菌)の遺伝子解析結果を図2に示します。今回の解析では113科374属の微生物が検出されました。最も多く検出された *Gallionella* 属は鉄(II)を鉄(III)に酸化する鉄酸化細菌として知られています。また、この他にも鉄(III)を還元する *Rhizomicrobium* 属や、鉄(II)を酸化する *Sideroxydans* 属など、多くの鉄の代謝が得意な微生物群が見出されました。試料を採取したパイプ内に赤褐色の錆状の物質が析出していたのは、鉄の自然酸化に加え、これらの鉄代謝微生物が多く存在していたことが影響していると考えられます。また、硝酸イオンを還元する脱窒菌である *Nitrospira* 属や、硫黄酸化を行う *Sulfuritalea* 属、有機汚染物質の環境浄化で注目される *Sphingomonas* 属なども検出されており非常に多様な微生物が1F 周辺環境中の地下水に存在していることが明らかになりました。水質検査の結果と合わせ、鉄や有機物(炭化水素や硫黄化合物)を多く含むことが本検討で用いた地下水の特徴と考えられます。

培養中の培養液の経時変化を図3に示します。前述のとおり、鉄の代謝に係る微生物の培養を行い、実際に微生物を培養・増殖させることに成功しました。今後は、微生物株のさらに単離(単一の微生物株だけを取り出すこと)して、より詳細な微生物・遺伝子解析研究を進めていく予定です。

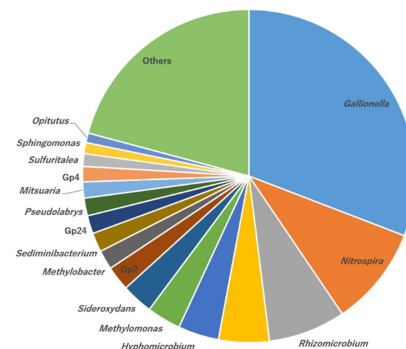


図2 遺伝子解析の結果

次世代シーケンサーによる環境試料(地下水)の細菌叢解析結果(検出された微生物を属ごとに分類、合計値を100%とした際の円グラフ)。

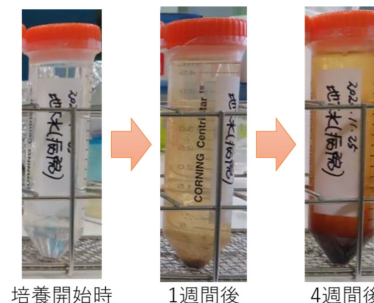


図3 鉄酸化細菌の培養液の経時変化

富岡町内(図1)で採取した地下水を用いた培養液。鉄細菌用の培地に金属鉄を添加し、時間の経過とともに遠沈管の下部から上部にかけて赤褐色の酸化鉄(III)が生成されて行くのが観察されました。添加した環境試料により酸化鉄(III)の生成量に差が見られました。

### 参考文献

大貫敏彦, 放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明, JAEA-Review, 2020-046, 2021, 69p









# 廃炉研究基盤データベース( debrisWiki )の整備

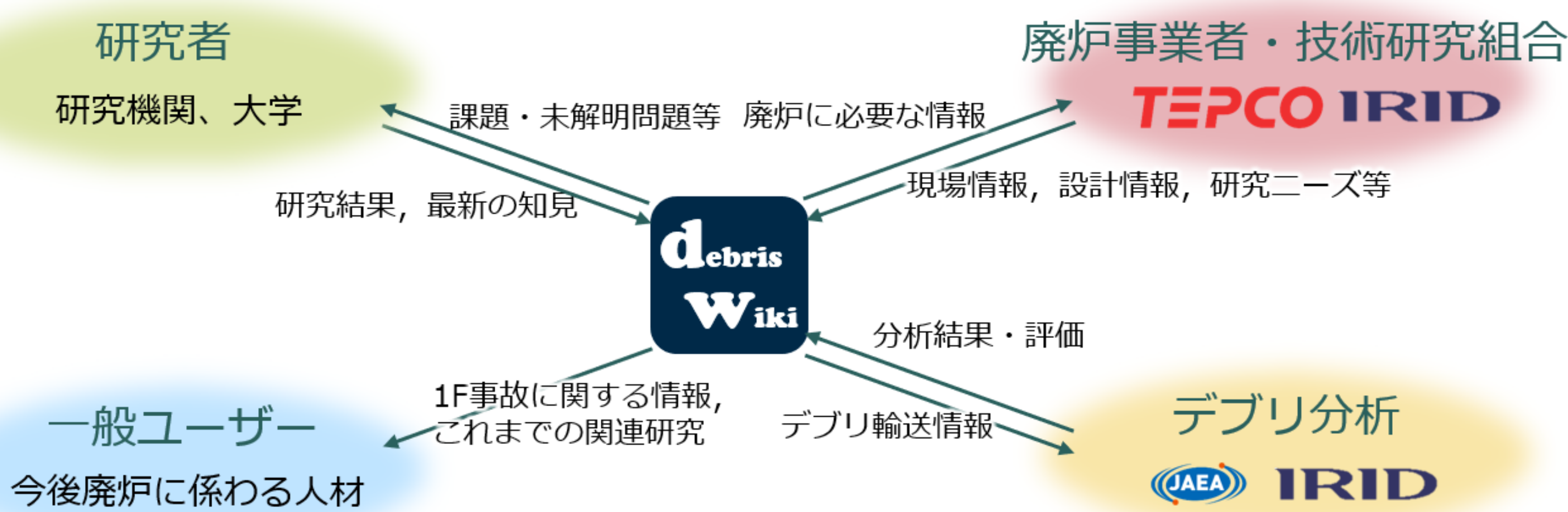
廃炉環境国際共同研究センター 炉内状況把握Div. 燃料溶融挙動解析Gr.

山下 拓哉

- 福島第一原子力発電所事故から10年以上が経ち、多くの現場情報、研究成果等が得られてきました。これらの情報を活用し、廃炉事業者等が効率的にデブリ取り出し方策・取り出し設備設計を検討するためには、信頼できて使用しやすいデータベースが必要となります。
- debrisWikiは原子力機構がTEPCOと共同で整備している廃炉研究基盤データベースです。

## 1F廃炉に関する情報のハブとなるツール

- ユーザーが必要とする情報をそのエビデンスと共に容易に得る
- 常に最新の正しい情報をユーザに提供
- 1F廃炉の百科事典を協働作業で創り上げる



## debrisWikiへのアクセス

- PCや携帯でいつでもアクセス可能
- 特殊なソフトウェアはいりません

▼ debrisWiki



URL: <https://fdada-plus.info>



## debrisWikiに記載されている情報を一部紹介

### 1Fデータベース(公開資料検索)

- 福島第一発電所事故に関する資料を一元的に検索
- 同時英訳にも対応



### 分析データ

- 各PJで取得された分析データを記載
- 分析結果、事故進展解析等から考えられる総合的な解釈を記載

分析結果一覧 [編集] [ソースを編集]

1号機 [編集] [ソースを編集]

探検位置	debrisWiki	TEPCO	各分析機関	分析機関	探検時期	分析時期	分析結果の説明	試料形状	外観	IP	SEM	TEM	ICP	放射線分析	PJ名等	備考
ウェルブラグ	1u-WELLP-1-2019	1u-4,②2-2	XM1916	JAEA	2019/7~8	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
ウェルブラグ	1u-WELLP-2-2019	1u-4,②7-1	XM1917	JAEA	2019/7~8	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
ウェルブラグ	1u-WELLP-3-2019	1u-4,②2-1	1uプラグ2	NFD	2019/7~8	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
ウェルブラグ	1u-WELLP-4-2019	1u-4,②4-1	1uプラグ4	NFD	2019/7~8	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
X-2ヘネ堆積物除去装置 (チャンパー)	1u-X2PEN-1-2019	1u-3,②チャンパー1-1	XM1911	JAEA	2019/5	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
X-2ヘネ堆積物除去装置 (チャンパー)	1u-X2PEN-2-2019	1u-3,②チャンパー1-2	XM1912	JAEA	2019/5	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
X-2ヘネ堆積物除去装置 (治具)	1u-X2PEN-3-2019	1u-3,②治具1-1	XM1913	JAEA	2019/5	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
X-2ヘネ堆積物除去装置 (治具)	1u-X2PEN-4-2019	1u-3,②治具1-2	XM1914	JAEA	2019/5	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
X-2ヘネ堆積物除去装置 (治具)	1u-X2PEN-5-2019	1u-3,②治具2-1	XM1915	JAEA	2019/5	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_H30	
X-2ヘネ堆積物除去装置 (治具)	1u-X2PEN-6-2019	1u-3,②治具2-2	1uX-2	NFD	2019/5	2020/1~2		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_R1	
原子炉建屋エアロック室堆積物	1u-Airlock-1-2017	1u-1,エアロック室堆積物	XM1708	JAEA	2015/12	2017/10~2019/3		スミア紙	●	●	●	●	●	●	IRID_H29	
格納容器底部堆積物	1u-PCV-1-2017	1u-2,格納容器底部堆積物	XM1705	JAEA	2017/4	2017/10~2018/3		紙	●	●	●	●	●	●	IRID_H29	
格納容器底部堆積物	1u-PCV-2-2017	1u-2,格納容器底部堆積物	XM1706	JAEA	2017/4	2017/10~2018/3		紙	●	●	●	●	●	●	IRID_H29	
格納容器底部堆積物	1u-PCV-3-2017	1u-2,格納容器底部堆積物	XM1707	JAEA	2017/4	2017/10~2018/3		紙	●	●	●	●	●	●	IRID_H29	

## 事故進展の推定

- 最近の知見に基づく事故進展の検討結果を記載

### 2号機の事故進展

目次 [非表示]

- 原子炉スクラム～炉心損傷
- 炉心損傷～燃料デブリの下部プレナム移行
- 燃料デブリの下部プレナム移行～RPV内移行
- RPV内移行結果
- 事故後の炉心損傷および外部調査結果

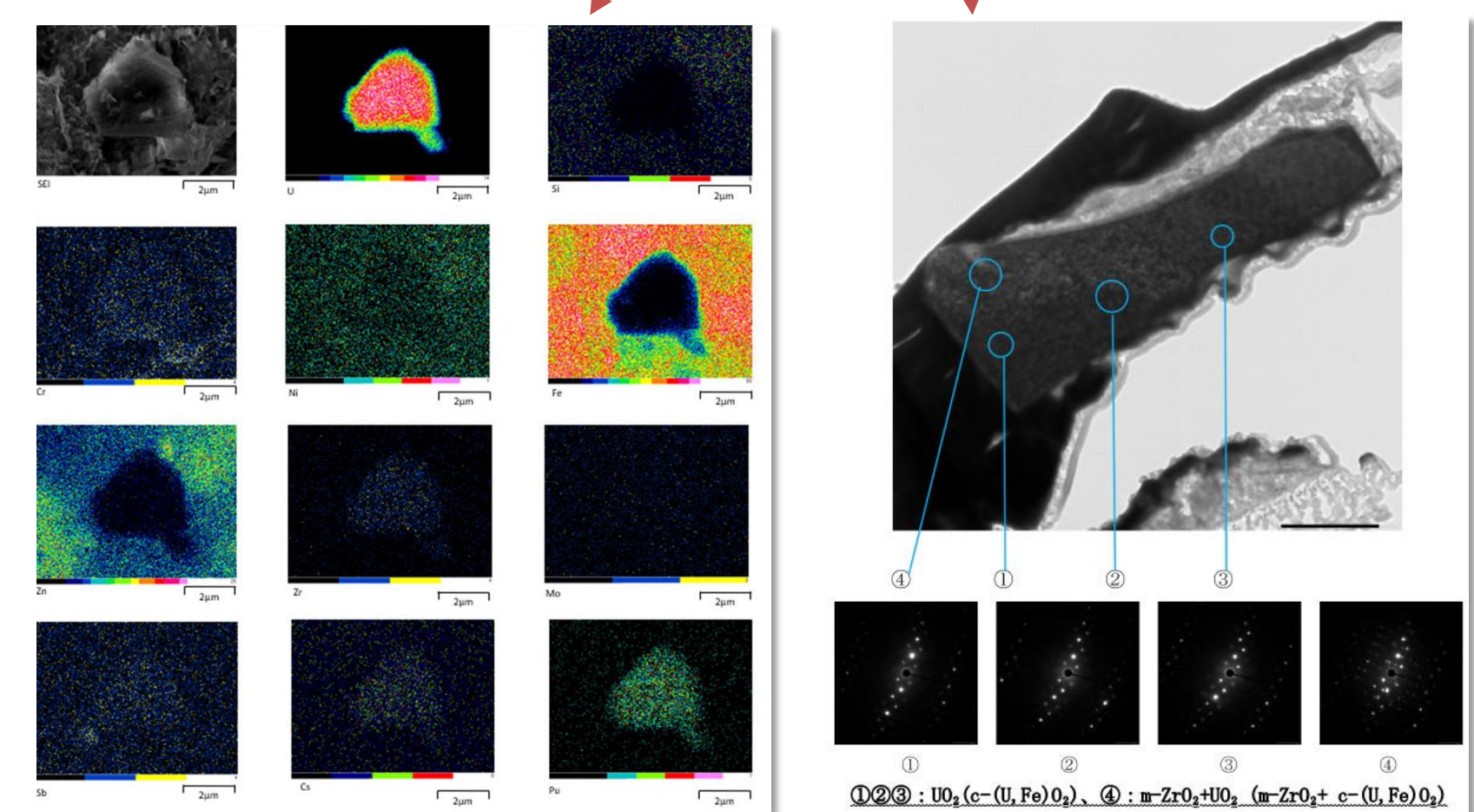
原子炉スクラム～炉心損傷 [編集] [ソースを編集]

図2-1に、2号機における事故進展推定シナリオを示す。2号機では、炉心損傷、ベドスタルへの炉心物質移行は、3/14 18:00頃のRPV閉鎖によるRPV減圧以降、3/15 16:00頃まで起こったと推定される。14日 18:00頃のRPV閉鎖によるRPV減圧によって短時間で水位はBAF以下となったと考えられる。減圧後数時間たった炉心は低圧で水蒸気が供給されにくい状態に陥っており、この条件下で炉心燃料は崩壊熱で昇温しつづくと考えられる。3/14 20:30頃からはRPV圧力が上昇しているが、この圧力上昇は主に水蒸気発生によるものと推定され、この段階で炉心が溶融している可能性がある。

炉心損傷～燃料デブリの下部プレナム移行 [編集] [ソースを編集]

3/14 18:00頃のRPV閉鎖による減圧後、3回のRPV圧力上昇が見られるが、第1圧力ピークは、崩壊熱で高度化しつつある炉心からの作用によって蒸気が発生し、Zry水蒸気反応によって水蒸気発生しているものと推定される。炉心の蒸気発生とともに、炉心によって下部プレナム水位が上昇し、炉心燃料が下部プレナムに落下したと考えられる。炉心燃料が下部プレナムに落下した結果、炉心燃料が下部プレナムで蒸気が発生した可能性がある。

長い報告書を読まなくても1クリックで結果にアクセス



## ユーザー登録

TOPページ

debrisWiki

参加申込書方法 [編集] [ソースを編集]

debrisWikiの編集者に参加を希望される方は氏名、所属、E-mailアドレスを記入の上、以下のE-mailアドレスまでお申し込みください。

E-mail: support[at]fdada-plus.info

※ [at] は@に変換をお願いします。

送付されるE-mailの件名を「debrisWiki参加希望」とし、本文に以下の申し込みフォームを利用して登録情報を記入してください。debrisWikiへのログイン方法は登録いただいたE-mailアドレスへ送付いたします。debrisWikiにおける個人情報取り扱いについて、プライバシーポリシーページをご確認ください。

申し込みフォーム

氏名: \_\_\_\_\_

氏名(フリガナ): \_\_\_\_\_

氏名(アルファベット): \_\_\_\_\_

所属: \_\_\_\_\_

IRID編成員: \_\_\_\_\_

E-mail: \_\_\_\_\_

- 各ユーザーの所属等を考慮し、アカウントと各コンテンツへのアクセス権を設定

ご不明な点がございましたら、下記担当までお問い合わせください。

debrisWiki管理者: support@fdada-plus.info



# ④ 廃炉研究基盤データベース (debrisWiki) の整備

## — 1F 廃炉の百科事典を協働作業で創り上げる —

廃炉環境国際共同研究センター 炉内状況把握 Div.  
燃料溶融挙動解析 Gr. 山下 拓哉

### (1) はじめに

1F 事故から 10 年以上が経ち、多くの現場情報、研究成果等が得られてきました。これらの情報を活用し、廃炉事業者等が効率的にデブリ取り出し方策・取り出し設備設計を検討するためには、信頼できて使用しやすいデータベースが必要となります。ここでいう信頼できるデータベースとは、最新の品質管理された情報のことです。これまで、廃炉事業者等がそれらを検討しようとしても、なにか最新知見で、どの知見が精度高く、どこが陳腐化しているのかが判断しづらい状況でした。

このような問題意識の解決に向けて当グループでは、東京電力と共同で廃炉研究基盤データベース (以下、debrisWiki) <sup>1)</sup> の整備に着手しました。

### (2) debrisWiki のコンセプト

debrisWiki は、Wikipedia が提供しているソフトウェア (MediaWiki) を用いて、1F 廃炉用に整備したものです。そのため、広く一般に知られている Wikipedia と同じ機能が実装されています。操作方法についても Wikipedia と同じで、携帯からでもパソコンからでも利用することができ、特殊な端末や技術はいりません。SNS 等ができる程度の知識がある方であれば簡単に利用いただけます。その機能性と操作性を活かし、debrisWiki は以下のコンセプトで整備をしています。

### ① ユーザーが必要とする情報のハブ

図 1 には各ユーザーが持つ情報と必要な情報を簡易的に示しています。各ユーザーから最新の情報が提供され、それを必要とするユーザーに活用して頂くという仕組みになっています。1F 廃炉に関わる研究者・技術者の情報交換の場としても活用頂きたいと考えています。

### ② 常に最新で、技術レビューを受けた正しい情報

提供された情報については、各ユーザーの権限でアップデートが可能となっています。もし、アップデートの後にデータに間違いがあったとしても、修正履歴を残して修正が可能です。紙媒体の報告書では手間であった情報のアップデートが迅速に行えます。アップデートされる情報については、各分野の専門家や技術レビューができる体制を整えています。

### ③ 各分野の専門家で作る知識の集大成

1F 廃炉は誰も成しえたことが無い課題です。現場の状況次第で廃炉作業に必要な情報は変化します。このような状況にマルチに対応するためには、多くの分野の専門家の知識が必要です。debrisWiki は、各分野の専門家で作る知識の集大成として、最新の 1F 廃炉の百科事典を目指しています。debrisWiki という百科事典により、1F 廃炉に関わる研究者・技術者の知識がボトムアップすることで、効率的に廃炉が進むと考えています。



図 1 debrisWiki と各ユーザーの関係

debrisWiki は情報のハブとなり、1F 廃炉に関わる研究者・技術者の情報格差を無くします。これにより、今から 1F の廃炉に関わる方でも、先駆者と同じ情報量で廃炉の課題解決に携わることができます。

### (3) コンテンツ

debrisWiki のコンテンツは、ユーザーの希望に合わせて適宜追加しています。図 2 はコンテンツのページの一部を抜粋したものです。以下は現状設けられている主なコンテンツになります。

#### ① 1F データベース (公開資料検索)

1F 事故に関する資料を一元的に検索することができます。必要な情報の項目 (号機、場所、データ種別、公開年) を選択することで情報を絞り込むことができます。また、資料名の日英翻訳機能もあり、日本語でしか公開されていない資料についても英語で検索することができます。

#### ② 炉内状況推定図

東京電力から提供される過去～最新の炉内状況推定図、及びそれらに関する論文が記載されています。こちらを見て頂く、とプラント全体の推定状況を簡易的に把握することができます。また、過去～最新の炉内状況推定図を並べて見て頂く、と、どのような情報が追加されたことで推定が高度化されてきたかが確認できます。

#### ③ 事故進展

最新の知見に基づき、当グループで検討している 1 号機～3 号機の事故進展について記載しています。炉内状況推定図に示す状態に至る事故進展の経過を簡易的な図と共に把握することができます。

#### ④ 分析データ

格納容器内部調査や試験的取り出しで得られたサンプルのデータが記載されています。各プロジェクトで採取されたサンプル名の対応表と共に分析データ (外観、SEM、ICP、放射線分析等) を確認することができます。開示制限はありますが、分析データの生データについても確認することができます。

#### ⑤ 既知知見

スリーマイル島原子力発電所事故、チェルノブイリ原子力発電所事故といった過去の原子力施設の事故事例やシビアアクシデントにおける模擬試験等の知見を確認することができます。

### (4) 今後の方針

1F 廃炉に必要なコンテンツを適宜追加していきます。また、debrisWiki に記載された情報を基に Web3D によるデジタルツインの作成を進めています。Web3D で描かれたプラントをクリックするだけで、その箇所の情報が取り出せるツールとなる予定です。効率的に廃炉を進める礎となるツールにしていきたいと考えています。



図 2 debrisWiki のコンテンツ (抜粋)

分析データの総合的な解釈について記載したページを抜粋したものです。分析データを評価し、廃炉に必要な情報を抽出しています。難しい専門用語については、単語をクリックすれば解説が表示されるようになっています。

参考文献 1) debrisWiki. <https://flada-plus.info>







# ⑤ 燃料デブリ凝固特性の熱力学的な予測

廃炉環境国際共同研究センター 炉内状況把握Div.  
試験技術開発 Gr. 多木 寛

これまでに1Fの様々な箇所にて内部調査が進められ、2022年度には本格的なデブリ取出し作業が開始される予定となっています。デブリ取出し作業を安全かつ効率的に実現するためには、過酷事故による燃料デブリ形成メカニズムを解明し、炉内デブリ特性を推定することが重要となります。本研究では、熱力学的アプローチにより、燃料デブリ形成メカニズムの評価を試みました。

1F事故で形成された燃料デブリは、炉心物質インベントリよりU-Zr-Fe-Oが主成分であると推測されています。そこで今回は、U-Zr-Fe-O系デブリに関する熱力学解析を行いました。具体的には、デブリの溶融から凝固に至る過程の相状態・結晶構造状態の変化（以下、凝固パス）を予測・評価しました。熱力学解析には、OECD/NEAで国際プロジェクトとして開発が進められている熱力学データベースであるThermodynamics of Advanced Fuels-International Database (TAF-ID)を用いました。U-Zr-Fe-O系デブリの凝固パスは酸化状態に大きく左右されると考えられます。そこで、凝固パス予測のために、酸化状態の影響を考慮した適切な状態図を描くことを試みました。つまり、金属成分比(U:Zr:Fe)を固定し酸素濃度を変化させて計算した擬二成分系状態図を作成しました。また、その状態図から酸素濃度ごとの凝固パスパターンを分類し、それぞれの凝固パス図を作成しました。

図1に金属成分比U:Zr:Fe=30:43:27(1Fの1、2、3号機のインベントリの平均値)、酸素濃度範囲をZrとFeの酸化物が存在しない条件(U<sub>0.2</sub>Zr-Fe)から金属成分が完全に酸化する条件(U<sub>0.2</sub>ZrO<sub>2</sub>-FeO)の範囲で計算を行い作成した擬二成分系状態図を示します。ここで、凝固パス傾向を規格化するために、6つの固相(立方晶(螢石型)、正方晶、単斜晶、α-Zr(O)、立方晶(岩塩型)、立方晶(スピネル型))の組み合わせによるカラーコードを導入しました。2000℃以上の高温域では、固相としては、立方晶(螢石型構造)のみが同定されています(赤色領域)が、温度が低温になると酸素濃度ごとに異なるカラーコードを示していることがわかります。これは、金属成分比が同じでも、酸化状態が異なると結晶構造が異なる、すなわち、材料の特徴が異なることを意味しています。図1の状態図のカラーコード傾向より4つの凝固パスパターンに分類しました。[・パターンI(≦42 mol%)：酸化度が非常に低く、ZrO<sub>2</sub>がほとんど存在しない。・パターンII(～54.5 mol%)：酸化度が低く、ZrO<sub>2</sub>とα-Zr(O)が共存する。・パターンIII(61 mol%)：ZrとFeの一部は金属固体として存在するが、

α-Zr(O)は存在しない。・パターンIV(≧61 mol%)：ほとんどが酸化物として存在する。]

図2～5に各パターンの典型的な凝固パス図を示します。

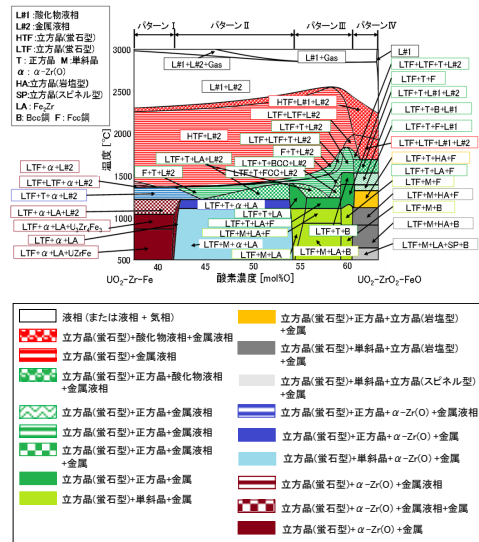


図1 U-Zr-Fe-O系デブリの擬二成分系状態図

横軸は酸素濃度であり、左端がU<sub>0.2</sub>Zr-Fe、右端がU<sub>0.2</sub>ZrO<sub>2</sub>-FeOの組成に対応しています。左端から右端に向けて金属成分の酸化度が大きくなっていることを意味しています。主要な固相の組み合わせで9つのカラーコードを設定しています。

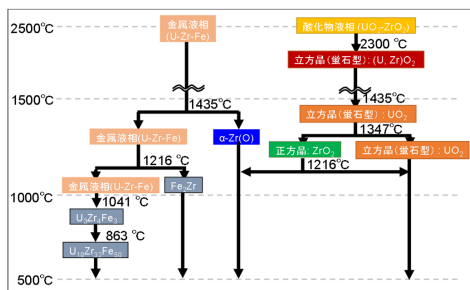


図2 パターンIの典型的な凝固パス図

金属液相から1435℃でα-Zr(O)が凝固を始めます。1357℃で微量の正方晶が形成されますが、1216℃でα-Zr(O)と立方晶(螢石型)になります。パターンIの場合、このような凝固パスであるために、ZrO<sub>2</sub>はほとんど存在しないこととなります。

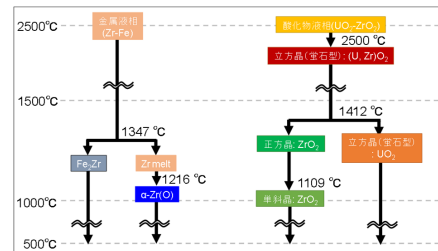


図3 パターンIIの典型的な凝固パス図

酸化物液相から2407℃で立方晶(螢石型)が凝固し、それが1412℃で立方晶(螢石型)と正方晶に分離します。そして、1216℃でα-Zr(O)が金属液相から凝固します。このように、パターンIIの場合は、ZrO<sub>2</sub>とα-Zr(O)が共存することになります。

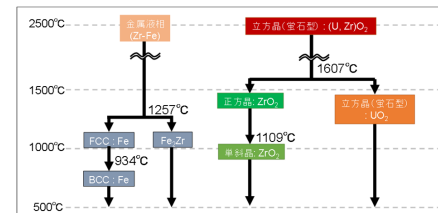


図4 パターンIIIの典型的な凝固パス図

立方晶(螢石型)が1607℃でU<sub>0.2</sub>に富む立方晶(螢石型)と正方晶に分離します。1257℃で金属液相から金属固体に凝固しますが、α-Zr(O)は形成されません。このように、パターンIIIの場合、ZrO<sub>2</sub>は存在しますが、α-Zr(O)は存在しません。

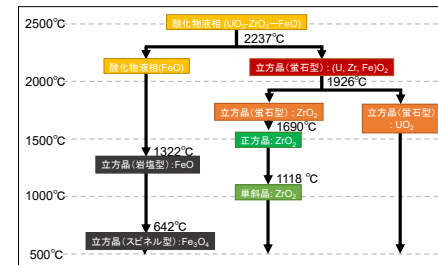


図5 パターンIVの典型的な凝固パス図

高温で液相は単一の酸化物液相として安定して存在しています。各種酸化物(UO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、FeO(Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>))が温度低下に伴い、凝固・分離し、ZrO<sub>2</sub>とFeOに関しては、更に結晶構造変化が起こります。パターンIVでは金属液相及び固相は存在しません。

U-Zr-Fe-O系デブリの凝固パスは、これら4つのパターンのいずれかに当てはまり、該当するパターンを特定することで形成メカニズムや材料の特徴を評価すること

とできます。今回、この熱力学解析を行い、金属成分比と結晶構造から凝固パスを予測する方法を“凝固パス逆問題解析法”と名付けました。

次に、内部調査時に採取したサンプルから検出された数μmのウラン含有粒子に関する凝固パス逆問題解析を行いました。今回、1F1号機格納容器(PCV)内から採取した1つのウラン含有粒子の解析結果を説明します。サンプル分析結果では、この粒子の金属成分比はU:Zr:Fe=51.0:25.4:23.6で、同定された結晶構造は立方晶(螢石型)、正方晶、α-Zr(O)でした。これらの分析結果より、ZrO<sub>2</sub>とα-Zr(O)が共存していることから、凝固パスはパターンIIに該当することが推定されます。また、金属成分比より酸素濃度範囲は、52～56mol%であると推定されます。図6にこのウラン含有粒子の凝固パス逆問題解析より求めた凝固パス予測図を示します。サンプル分析結果より中程度の温度域(1216℃～1109℃)で安定する結晶構造が同定されたことから、この粒子は高温から中程度の温度域までは徐冷され、その後、変態(結晶構造変化)が生じない冷却速度で冷却されたものと予測しました。

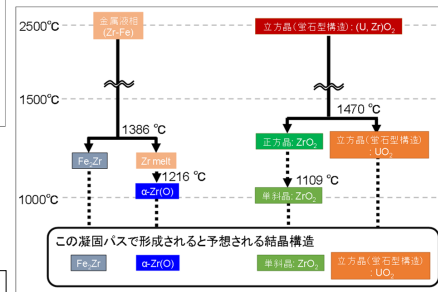


図6 1F1号機PCV内ウラン含有粒子の凝固パス予測図

実線がこのウラン含有粒子が遷移したであろう凝固経路を示しています。点線は急速冷却挙動など速度論的に遷移が進行しなかった経路を示しています。この粒子は、1216～1109℃までは徐冷され、その後、急冷された可能性が示唆されます。

また、このウラン含有粒子は1号機PCV底部の採取箇所周辺デブリの情報をも有していると考えられます。すなわち、採取箇所周辺デブリは、酸化度が低い状態で中程度の温度域(1200℃付近)まで徐冷され、その後、(変態を伴わない)早い冷却速度で急冷された可能性が示唆されます。この形成条件で生成されるデブリに関する特性を把握すれば、PCV底部デブリ取出し作業方法を考える際に非常に有効であると思います。今後、“凝固パス逆問題解析法”をより高度化するため、より多くの分析データとの比較や速度論的な知見の導入のなどを行おうと考えています。



## ⑥ 燃料デブリ非破壊測定技術の開発

### —高線量率測定用ガンマ線スペクトロメトリシステムの開発—

廃炉環境国際共同研究センター 遠隔技術 Div. 放射線システム開発 Gr.  
冠城 雅晃  
東京大学大学院工学系研究科 高橋 浩之、島添 健次  
産業技術総合研究所 黒澤 忠弘、加藤 昌弘

#### (1) はじめに

1Fでは、廃炉工程の最難関に位置づけられている原子炉格納容器内からの燃料デブリの取り出しに向けた準備が進められています。燃料デブリは、核燃料と構造材等が高温で溶けて混ざり冷えて固まったもので、組成が不均一です。さらに、原子炉格納容器内で燃料デブリは、その他の放射性物質とも混在しています。そのため、その後の保管や処理処分の方法を決めるためには非破壊測定等を用いて原子炉格納容器から取り出された物質の特性を把握する必要があります。通常の原子力施設では、燃料デブリのような高放射線を有する核燃料物質を測定する場合、半導体検出器に遮蔽を施した大型な測定装置が利用されます。しかし、1Fは、事故による損傷や瓦礫により狭窄部が多く、さらに、高線量率下での作業では遠隔機器を利用する必要があります。そのため、測定装置の小型軽量化が求められています。

#### (2) 測定手法の開発

高線量率場におけるガンマ線スペクトルを測定するために小型軽量の測定システムを開発しました(図1)。本システムでは、半導体検出器よりも高線量率測定に有利なシンチレータ方式を採用しました。その中でもCeBr<sub>3</sub>は、発光時間が短く(20 ns以下)、エネルギー分解能が良く(4%程度)、高線量率下でのガンマ線スペクトル測定に適したシンチレータです。このCeBr<sub>3</sub>を微小な立方体(5 mm × 5 mm × 5 mm)に加工し、潮解を防ぐために密封しました[図1(c)]。これを、高線量率測定のために開発した光電子増倍管と組み合わせて、センサーユニット[図1(b)]を製作しました。センサーユニットの寸法[図1(a)]は、35 mm × 35 mm × 80 mmと狭窄部の測定も可能にしています。さらに、本システムの信号処理では、1Fの高線量率かつ多様な測定環境を考慮し、デジタル信号処理を採用することで高速かつ柔軟な信号処理を可能としています。

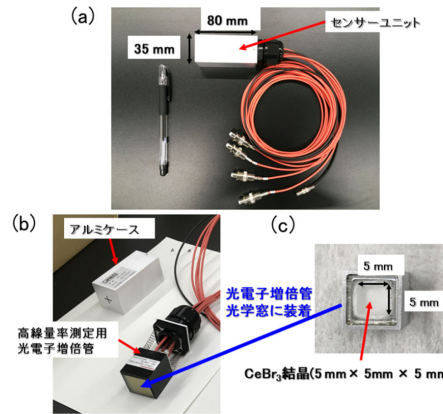


図1 高線量率測定用ガンマ線スペクトロメトリシステム

小型軽量の測定システムを開発しました(a)。高線量率測定に向け開発した光電子増倍管ヘンチレータが組み込める構造になっております(b)。微小な立方体(5 mm × 5 mm × 5 mm)のCeBr<sub>3</sub>を密封したパッケージを構築しました(c)。

#### (3) ガンマ線照射試験

本システムの線量率特性を調べるため、<sup>137</sup>Cs並びに<sup>60</sup>Coのガンマ線照射場において、線量率を変化させながら、それぞれ最大1,407 mSv/h並びに2,221 mSv/hまでのガンマ線照射試験を実施しました。従来の検出器では、1 Sv/hを超える高線量率環境におけるガンマ線スペクトル測定には、鉛やタンスステンでできた遮蔽材を利用する必要がありましたが、本システムでは、検出部であるセンサーユニット[図1(a)]を遮蔽せずに測定しました。

#### (4) 実験結果

図2は、<sup>137</sup>Cs照射場(a)並びに<sup>60</sup>Co照射場(b)において、本システムを用いて取得したガンマ線スペクトルです。それぞれ、1,407 mSv/h並びに2,221 mSv/hまでガンマ線スペクトルを取得することができました。さらに、エネルギー分解能を評価すると、<sup>137</sup>Cs照射場では、662 keVにおけるエネルギー分解能が、26 mSv/hで4.2%であるところ、最大線量率の1,407 mSv/hでは5.5%でした。同様に、<sup>60</sup>Co照射場では、1,333 keVにおけるエネルギー分解能を評価したところ、22 mSv/hで3.1%であるところ、最大線量率の2,221 mSv/hでは4.2%でした。

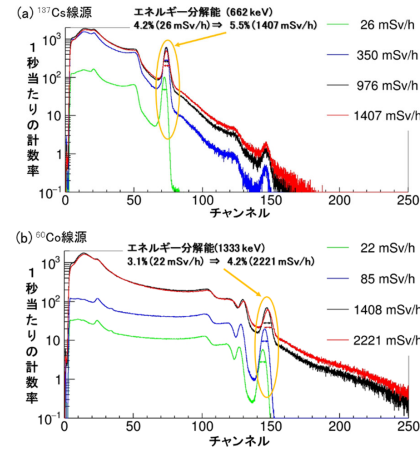


図2 高線量率におけるガンマ線スペクトル

<sup>137</sup>Cs照射場(a)と<sup>60</sup>Co照射場(b)で、それぞれ1,407 mSv/h並びに2,221 mSv/hまでの線量率までのガンマ線スペクトル測定をして、エネルギー分解能を評価しました。

#### (5) 考察

表1には、使用済み核燃料や放射性廃棄物の非破壊測定の対象となるガンマ線放出核種(<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs、

<sup>60</sup>Co、<sup>154</sup>Eu)について、その主要スペクトルと強度比を示しています。上記のガンマ線核種を分析するためには、それらの主要スペクトルを識別する必要があります。そのために必要なエネルギー分解能は、<sup>134</sup>Cs(604 keV)と<sup>137</sup>Cs(662 keV)を識別するためには、662 keVで8.8%以下です。また、<sup>60</sup>Co(1,333 keV)と<sup>154</sup>Eu(1,274 keV)を識別するためには、1,333 keVで4.4%以下になります。前項の実験結果では、上記の必要なエネルギー分解能の条件を満たしています。このことから、本システムは、1 Sv/hを超える高線量率環境において、遮蔽なしでガンマ線核種分析を実施することが期待できます。

表1 主要なガンマ線核種とスペクトル強度比

核種	主要スペクトル [keV]	強度比 [%]
<sup>134</sup> Cs	604	97.6
	795	85.5
<sup>137</sup> Cs	662	85.1
<sup>60</sup> Co	1,173	100
	1,333	100
<sup>154</sup> Eu	996	10.5
	1,004	18.0
	1,274	34.8
	1,596	1.8

#### (6) まとめと今後の展開

高線量率環境でガンマ線スペクトルを取得するための小型軽量の測定システムを開発しました。本システムは、センサー部の遮蔽が不要であるため狭窄部への投入が可能です。さらに、重要なガンマ線核種を分析するために必要なエネルギー分解能を有しています。しかし、実際に原子炉格納容器から取り出される放射性物質は、表面線量率が極めて高いことが予想されるため、現在、さらなる高線量率対応に向けた開発を進めています。

今後、燃料デブリの迅速な非破壊測定の実現に向けて研究を継続し、1Fの安全かつ円滑な廃止措置の実現に向けて貢献していきたいと考えています。

#### 参考文献

- Kaburagi et. al, Development of the Multi-Cubic  $\gamma$ -ray spectrometer and its performance under intense <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co radiation fields, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A, 1010, 2021, 9.
- Kaburagi et. al, Gamma-ray spectroscopy with a CeBr<sub>3</sub> scintillator under intense  $\gamma$ -ray fields for nuclear decommissioning, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A, 988, 2021, 8.
- Kaburagi et. al, A cubic CeBr<sub>3</sub> gamma-ray spectrometer suitable for the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A, 971, 2020, 8.



# ⑦ レーザー誘起ブレイクダウン分光法による 模擬デブリの二次元分布測定

## 2D Elemental Mapping of Simulated Fuel Debris using Laser Induced Breakdown Spectroscopy

廃炉環境国際共同研究センター 遠隔技術 Div.  
遠隔分析技術開発 Gr. Batsaikhan Munkhbat

### (1) Introduction

Since severe accident at Tokyo Electric Power Company's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F) on March 11, 2011, many efforts to decommissioning of the 1F moving forward steadily and safely. The internal investigation of the Primary Containment Vessel (PCV) had performed by robots and camera to gather variety of information. However, fuel debris information is still limited. Depending on the accident progression of each units the fuel debris can be metallic or oxidized. It is hard to distinguish materials based on the internal images of the PCV that taken by camera. Therefore, it is important to realize a measurement technique that can distinguish fuel debris from other materials. In the present study, we focused on Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) which is considered as a promising remote, on-site and radiation tolerance technique for fuel debris inspection at 1F [1]. The LIBS technique has been used as elemental surface mapping technique because it allows user to realize fast spatial scanning without sample preparation. Depending on sample size, geometry and spatial resolution of experiment, it requires to carry out multiple measurements. In such experiments, large amount of a dataset has accumulated for short time of measurement because single LIBS spectrum contains several tens of thousands of intensity values at one measurement location. Due to the size and

complexity of dataset, analysis of the dataset is challenging and it requires considerable computational effort and various chemometric methods have been proposed. In this paper, unsupervised data analysis method, Singular Value Decomposition (SVD), is applied to interpret a LIBS dataset which is obtained by 2D elemental mapping.

### (2) Experimental setup and procedures

Experimental apparatus that used in the present study is illustrated in Figure 1. It consists with optical fiber coupled with echelle spectrometer (ARYELLE-400, LTB Lasertechnik Berlin), Nd:YAG pilsed laser source (DEMON series), LIBS sample chamber (LIBSpector) where optical lenses, mirrors, laser head, CCD, laser focusing system and investigating sample are placed. Focusing system is provided by the LIBSpector sample chamber using pilot lasers. The plasma is guided to the spectrometer via a dichroic mirror and a fiber optics. Measurement range of spectrometer was from 435 to 650 nm. A simulated debris sample that consists with oxide and metal material (diameter of 36 mm) showed in Figure 2. Successive laser shot ablations were performed a point by point with spatial resolution of 1 mm along x and y directions over sample under atmospheric condition. In total, 1369 measurement spectra collected from 37x37 mm<sup>2</sup> area. The spectral dataset has a 3D structure with two spatial (x and y) and one spectral dimension ( $\lambda$ ).

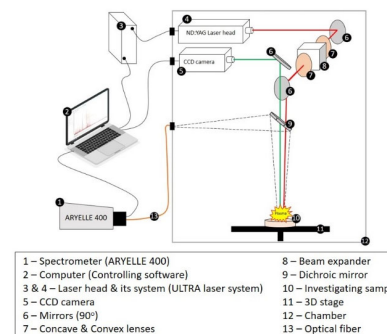


Figure 1. Experimental set-up.

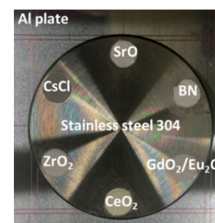


Figure 2. Prepared sample.

### (3) Data analysis and results

The 3D dataset unfolded into 2D matrix and decomposed with SVD method. In SVD analysis, number of principal components can be equal to the number of spectral variables included in the dataset. However, in the present case, first 10 principal components (PCs) are selected which were explaining over than 85% of total variance. An example of image of first principal component (PC-1) and its associated loading vectors demonstrated in Figure 3 and Figure 4, respectively. Most of the variation of the raw data is explained by this component. Examining the corresponding loading vector, it can be clearly seen that negative

contribution of the PC-1 correspond with the LIBS spectrum of stainless steel, whereas close to the positive ones seem to be associated with oxide materials.

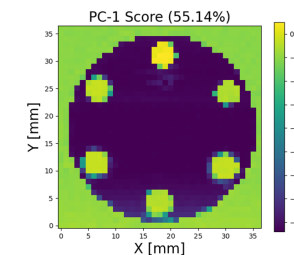


Figure 3. Score image of PC-1.

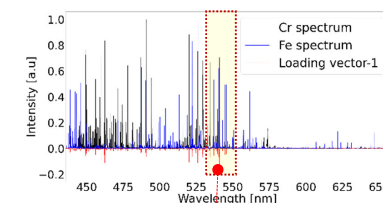


Figure 4. Comparison between references and loading vector of PC-1.

### (4) Conclusion

In this work, we demonstrated that capability of LIBS technique for 2D quantitative elemental mapping of simulated fuel debris based on SVD method.

### Reference

Chikara Ito et.al, Development of radiation-resistant optical fiber for application of observation and laser spectroscopy under high radiation dose, Journal of Nuclear Science and Technology, 51:7-8, 2014, 944-950, <https://doi.org/10.1080/00223131.2014.924883>.

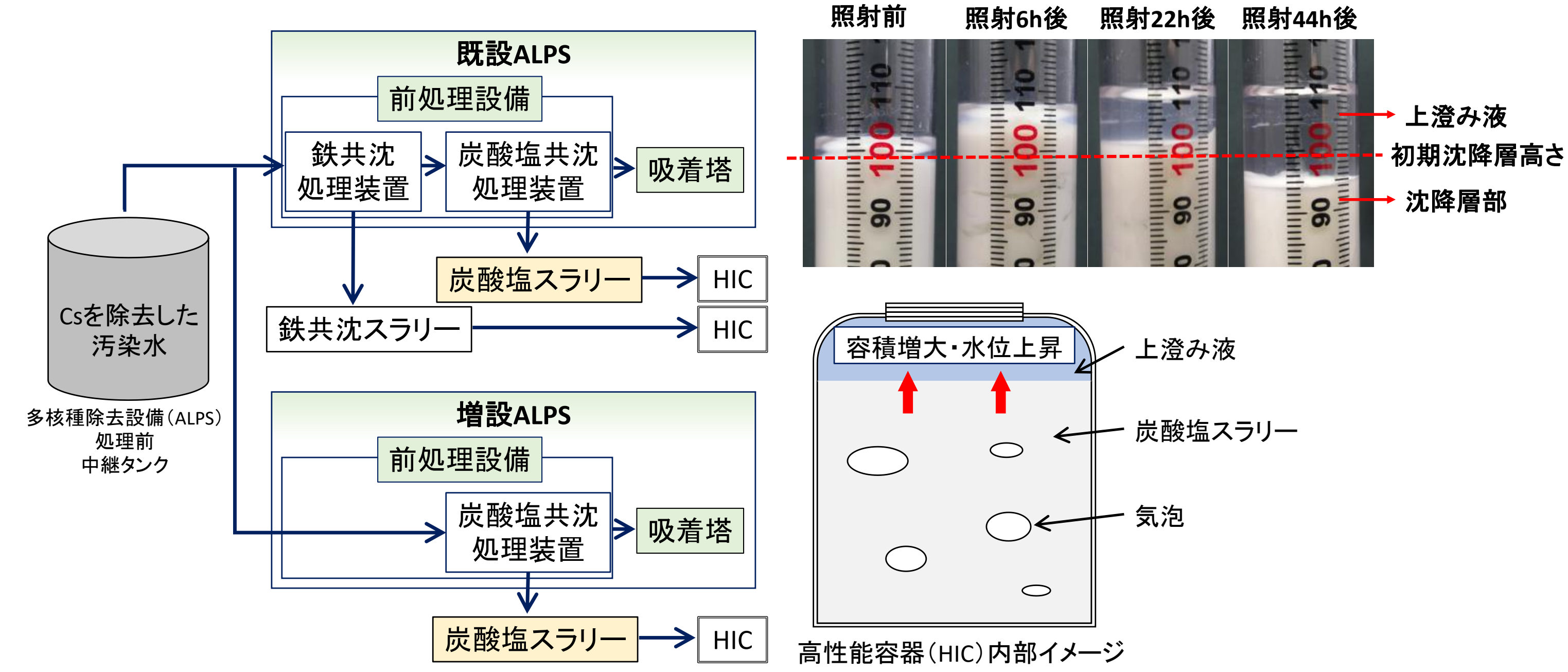


## 汚染水処理二次廃棄物の安全な保管のために

廃炉環境国際共同研究センター 保管機器健全性評価Gr (○加藤 友彰、山岸 功)  
大熊分析・研究センター 分析計画課 (堀田 拓摩)



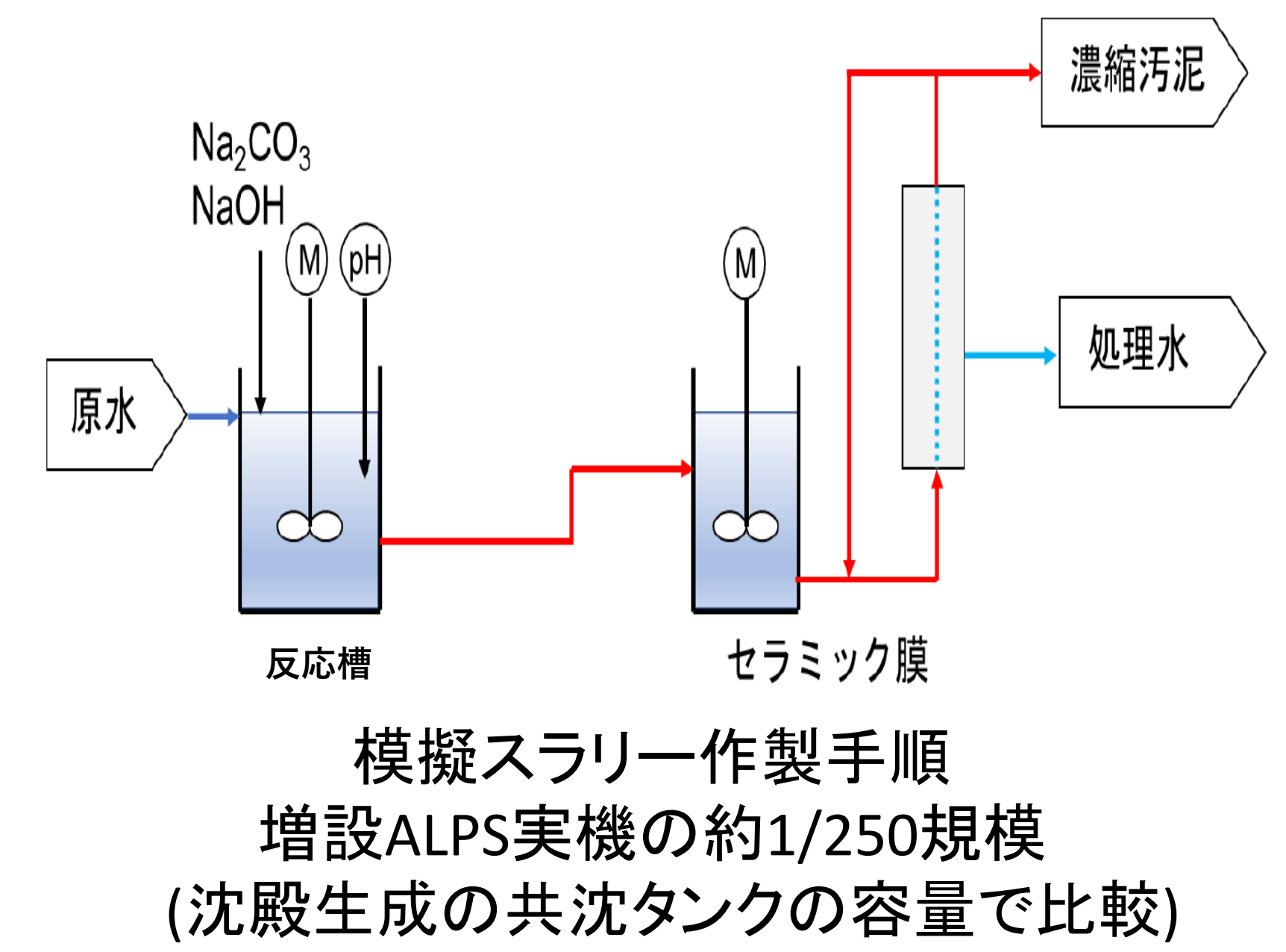
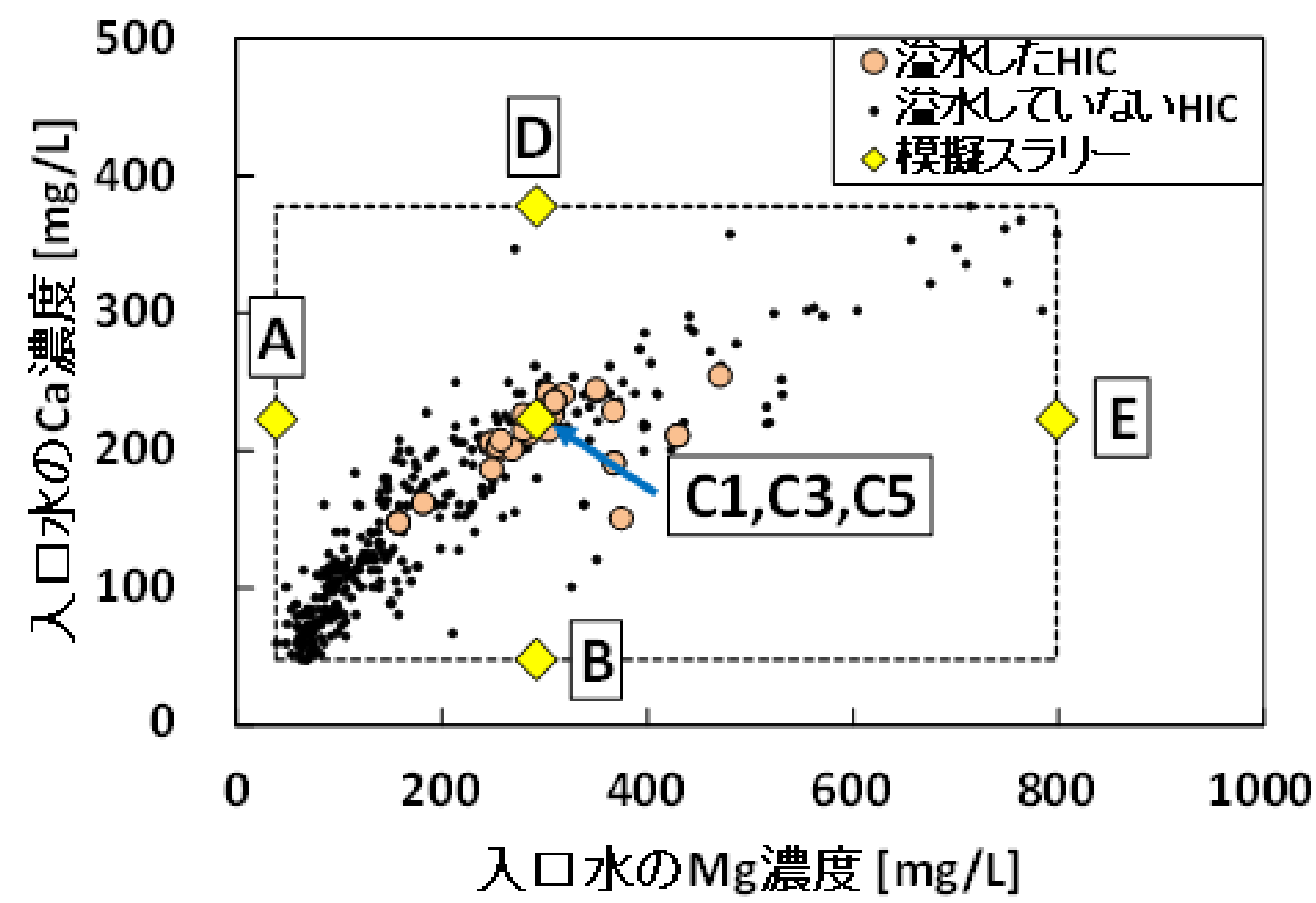
- 多核種除去設備 (ALPS) 前処理過程において発生した放射性のストロンチウム (Sr) -90を含む炭酸塩スラリー廃棄物は高性能容器 (HIC) に収納され、一時保管される。
- 2015年に炭酸塩スラリーを収納したHICの一部において、水の放射線分解により発生した水素ガスの保持が原因と推定される上澄み液のHIC外部への漏えい事象 (溢水) が発生。
- 原子力機構では模擬スラリーの提供を受けガンマ線照射試験を実施し溢水に至るまでの過程が再現された。
- しかしながら、ALPS入口水の濃度の変化がスラリー性状に与える影響や、生成した気泡がスラリー内部でどのように保持されているかは不明であった。



R1年度より (1) スラリーの化学組成が性状に及ぼす影響および (2) 模擬スラリー内部における気泡の保持特性の検討を実施。

## (1) スラリーの化学組成が性状に及ぼす影響

- ALPS入口水の濃度調査の結果、Mg、CaおよびSr濃度が高いときに発生したスラリーを収納したHICで溢水が発生していることが明らかとなった。
- ALPS入口水を模擬した原水の組成を、代表的なスラリーCを中心に5種設定。
- 反応槽での滞留時間  
スラリーA、B、D、E：30分  
スラリーC：10分、30分、50分  
(それぞれスラリーC1、C3、C5)



2週間静置後  
A B C D E  
作製した模擬スラリー  
(懸濁物質濃度はすべて150 g/L)

スラリー	Mg/Ca 重量比 [-]	2週間静置後の 沈降層の密度 [g/cm <sup>3</sup> ]	最頻粒径 (体積基準) [μm]
A	0.17	1.19	18.65
B	6.52	1.09	10.84
C	1.19	1.10	12.39
D	0.78	1.11	14.21
E	3.42	1.10	10.87

Ca含有割合が高いスラリー (AやD) ほど形成した上澄み液量が多く、高い沈降性が確認され沈降層部の密度が高くなった。

電子顕微鏡による粒子観察の結果、スラリーBやCでは小さな1次粒子が凝集して2次粒子を形成しているのに対し、スラリーAでは大きな定型の1次粒子に小さな粒子が付着し2次粒子を形成していた。

滞留時間を変え作製したスラリーC1、C3、C5については、スラリーの性状に違いは見られなかった。

これらの結果より、原水中のMgおよびCa濃度が炭酸塩スラリーを構成する粒子の形状に影響を及ぼし、沈降性などの性状の違いにも影響したと示唆される。

## (2) 模擬スラリー内部における気泡の保持特性

- 多段式照射容器を用いて、ガンマ線照射によりスラリー内で気泡を発生させ、模擬スラリーの気泡保持の高さ依存性を検討。
- どちらの照射試験においても気泡生成や、気泡の成長に伴うスラリーの容積の増大と上澄み液の形成といった気泡保持過程が観察された。

- 照射後にスラリー内気泡保持に起因する照射容器各段のかさ密度 (照射容器内容積を体積としたときの密度) の低下が確認された。
- 照射後のスラリーの脱泡前後における密度差より気泡保持量を算出。

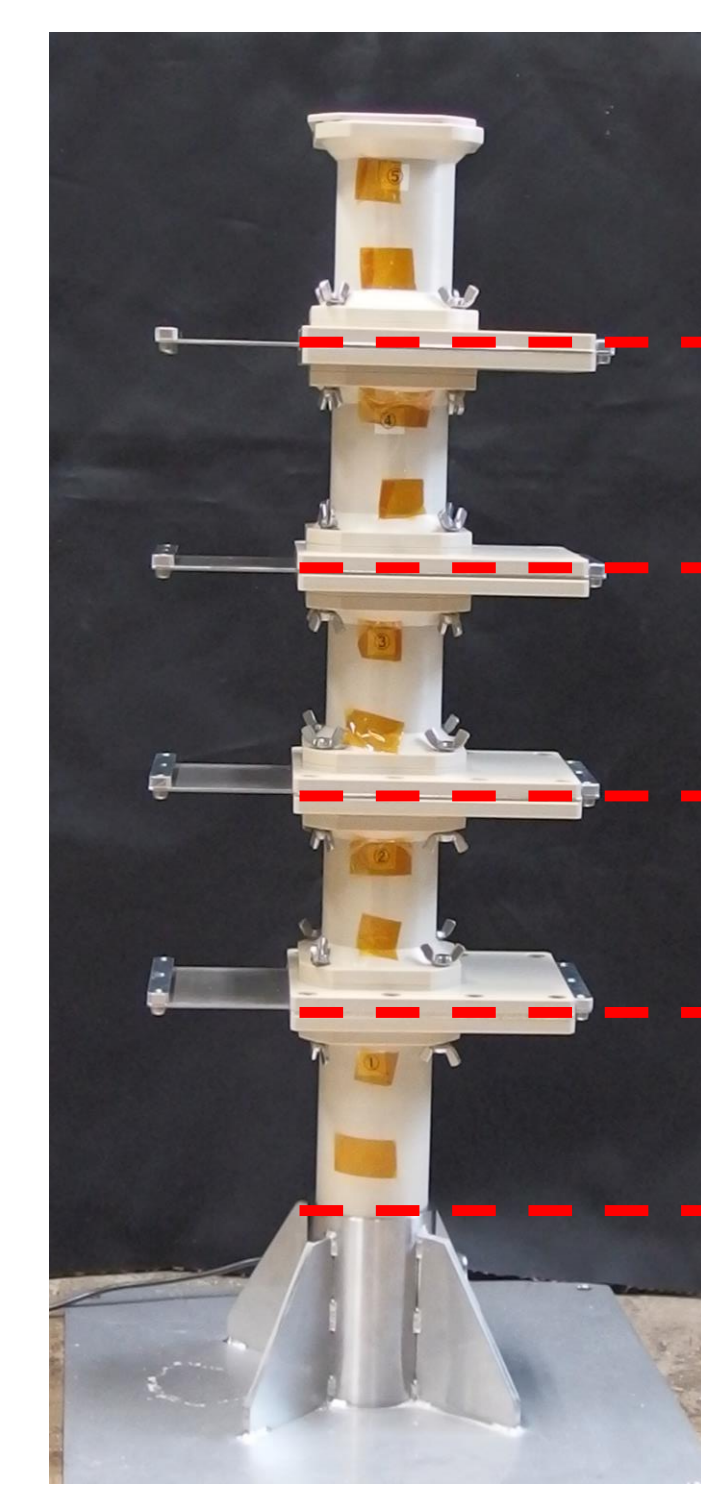
保持総量 短期照射：84 cm<sup>3</sup>  
長期照射：66 cm<sup>3</sup>

- 各段の気泡保持量に着目すると短期照射 (図中青線) では約20 cm<sup>3</sup>と同程度であった。

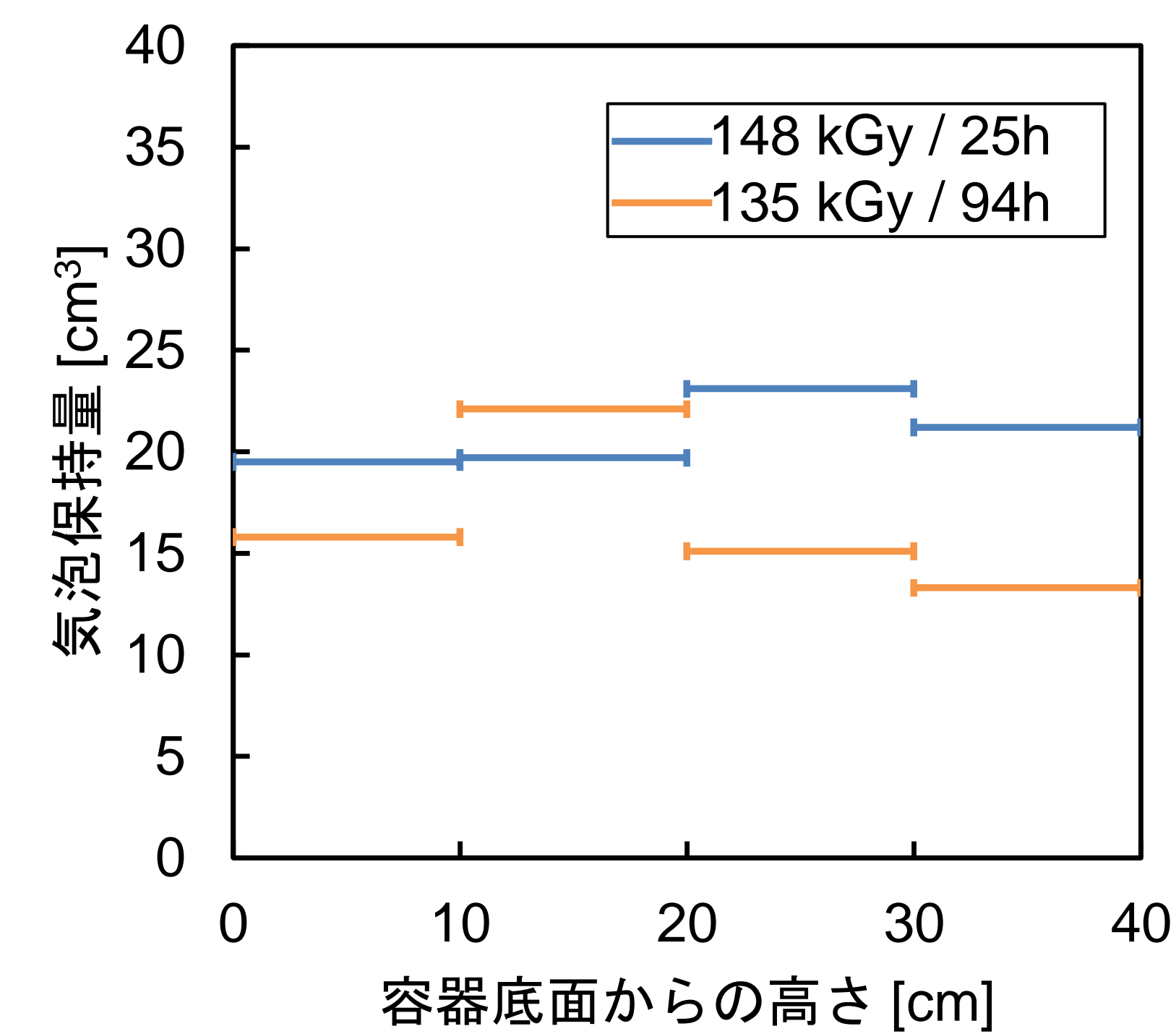
短期照射ではスラリー内での高さ方向における気泡の保持量が同程度であることが明らかとなった。短期照射に比べ長期照射では保持総量が低いことから、時間とともに一部の気泡が放出されたと考えられる。

試験条件	積算線量	使用スラリー	密度※ [g/cm <sup>3</sup> ]
短期照射試験	148 kGy / 25h	C3	1.16
長期照射試験	135 kGy / 94h	C5	1.16

※上澄み液をあらかじめ濾過により除去した後のスラリー密度



多段式照射容器



これら一連の観察された挙動は試験条件と実機条件との相違により、過大あるいは過少に評価され、例えば、寸法、時間、照射線量率 (水素発生速度) などを十分に留意する必要があるものの、炭酸塩スラリーの組成と性状との関係性、放射線により生じる気泡の保持特性について新たな知見を取得することができた。



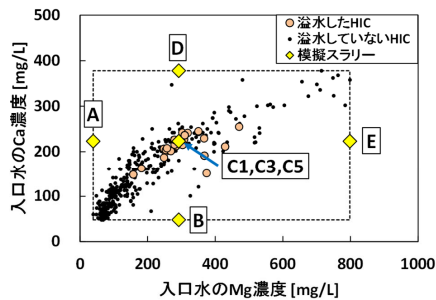
## ⑧ 汚染水処理二次廃棄物の安全な保管のために

廃炉環境国際共同研究センター 廃棄物処理処分 Div.  
 保管機器健全性評価 Gr. 加藤 友彰、山岸 功  
 大熊分析・研究センター 分析部 分析計画課 堀田 拓摩

### (1) はじめに

廃炉を進める上で放射性廃棄物の管理(保管・処理・処分)技術を確立していくことは重要なテーマです。保管機器健全性評価 Gr では汚染水処理で発生する放射性廃棄物の安全かつ合理的な保管に着眼した研究を行っています。セシウム吸着装置でセシウムを除去した汚染水は多核種除去設備(以下 ALPS: Advanced Liquid Processing System) 前処理過程においてマグネシウム(Mg)及びカルシウム(Ca)等の2価の金属イオンを除去するため炭酸塩沈殿処理が行われております。この過程において発生した放射性のストロンチウム(<sup>90</sup>Sr)を含む炭酸塩スラリー廃棄物は高性能容器(以下 HIC: High Integrity Container)に収納され、一時保管されます。

2015年に炭酸塩スラリーを収納したHICの一部において、水の放射線分解により発生した水素ガスの保持が原因と推定される上澄み液のHIC外部への漏えい事象(溢水)が発生しました。原子力機構では速やかな事象解明のためにALPS前処理過程を模擬した炭酸塩スラリー(以下、模擬スラリー)の提供を受けガンマ線照射試験を行いました。そして、スラリー中での気泡の発生及びそれに伴う体積の増加と上澄み液の生成という溢水に至るまでの過程が再現されました(図1)。しかしながら処理のためのALPSに導入された水(以下、ALPS入口水)の濃度が継続的に変化の中で、それらの変化がスラリー性状に与える影響や、生成した気泡がスラリー内部でどのように保持されているかは不明でした。そこで、東京電力ホールディングス(株)の要請を受け、①スラリーの化学組成が性状に及ぼす影響、②模擬スラリー内部における気泡の保持特性に関して検討を進めました。



(a) ALPS入口水中のMg, Ca濃度分布と模擬スラリーの原水濃度

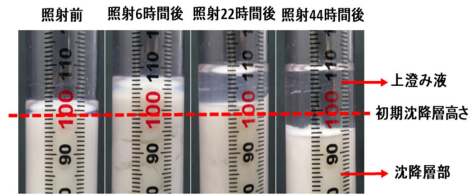
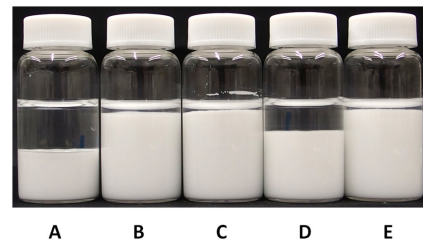


図1 過去の照射試験中に観察された模擬スラリーの変化  
 模擬スラリーにガンマ線を照射することで、スラリー内での気泡の発生に伴う体積増加及び上澄み液の生成が確認されました。

### (2) スラリーの化学組成が性状に及ぼす影響

模擬スラリーを作製する上で、溢水したHICに保管されていたスラリーがどのようなALPS運転条件で発生したのかを把握することが重要です。当時のALPS入口水の濃度の調査の結果、ALPS入口水中のMg, Ca及びSr濃度が高いときに発生したスラリーを収納したHICで溢水が発生していることがわかりました。そこで、ALPS入口水を模擬した原水の組成を、代表的なスラリーCを中心に5種設定しました(図2(a))。また、模擬スラリー作製における炭酸塩沈殿が生成する反応槽での滞留時間は30分を標準として設定しましたが、スラリーCに関しては10分、30分、50分としたスラリーを作製しました(それぞれスラリーC1、C3、C5)。

模擬スラリー内の懸濁物質濃度を150 g/Lに揃えて作製したスラリーはいずれも静置により透明な上澄み液と白色の沈降層への分離が確認されました(図2(b))。Ca含有割合が高いスラリー(AやD)ほど形成した上澄み液量



(b) 模擬スラリーの外観写真(2週間静置後)

### 図2 ALPS運転条件調査を踏まえた模擬スラリーの作製

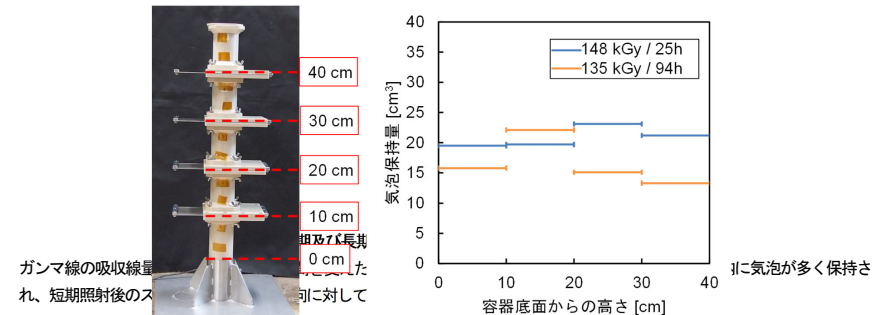
溢水当時のALPS入口水の濃度の調査を行い、(a) ALPS入口水中のMg, Ca濃度より模擬スラリー用の原水の組成を代表的なスラリーCを中心に5種設定しました。(b) 作製した模擬スラリーはいずれも静置により透明な上澄み液と白色の沈降層に分離しました。

が多く高い沈降性が確認されました。対照的にMg含有割合が高いスラリー(BやE)では形成した上澄み液量は少ないことが確認されました。2週間静置後の沈降層部の密度を算出した結果、スラリーAのような沈降性の高いスラリーほど沈降層部の密度が高いことがわかりました。

他方で、反応槽滞留時間を変えたスラリーC1、C3、C5については、沈降の様子や沈降層部の密度に違いは見られませんでした。これらの結果より、原水中のMg及びCa濃度が炭酸塩スラリーの沈降性などの性状に影響を及ぼすことが明らかとなりました。

### (3) 模擬スラリー内部における気泡の保持特性

高さごとにスラリーの採取が可能な多段式照射容器を用いて、ガンマ線照射によりスラリー内で気泡を発生させ、模擬スラリーの気泡保持の高さ依存性を調べました。スラリーC3及びC5を40 cm高さまで充填し1時間静置させた後に<sup>60</sup>Coガンマ線で容器側面を照射しました。照射終了時に速やかに段ごとにスラリーを採取しました。

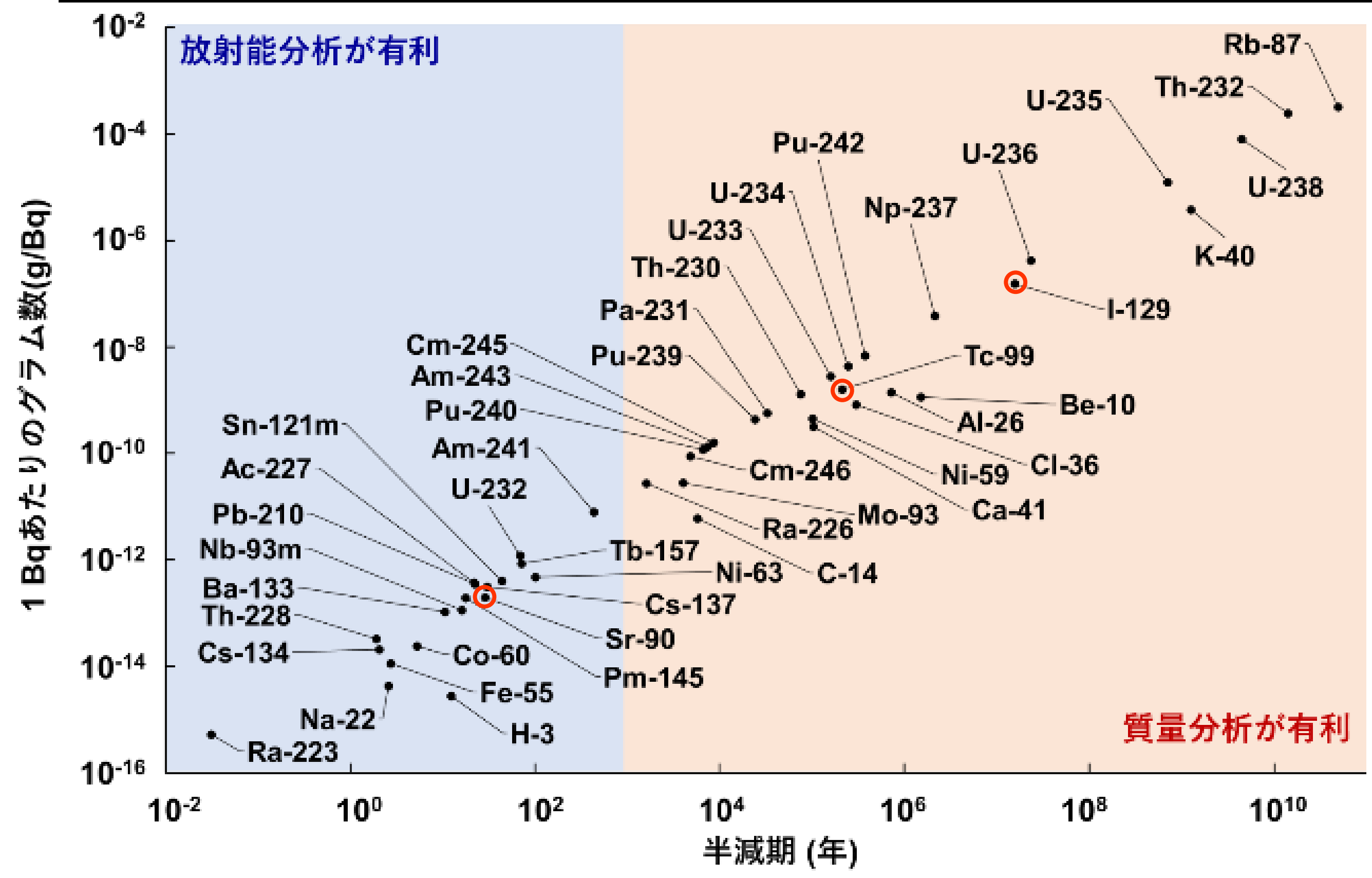


### 参考文献

- 堀田拓摩ほか、溢水した高性能容器内炭酸塩スラリーの組成を模擬した炭酸塩スラリーの作製と特性評価, JAEA Technology 2021-012, 2021, 42p.
- 山岸功ほか、HIC 模擬炭酸塩スラリーの照射実験(5) スラリーの化学組成が性状に及ぼす影響, 日本原子力学会 2021 年秋の大会予稿集, 2021, 2A09.
- 加藤友彰ほか、HIC 模擬炭酸塩スラリーの照射実験(6) 照射後スラリーの気泡保持特性, 日本原子力学会 2021 年秋の大会予稿集, 2021, 2A10.



## 放射能分析法と質量分析法



放射平衡時間を必要としない質量分析法は、<sup>90</sup>Sr等の放射性物質の迅速分析に有利となります。また、半減期が1000年を超える長半減期核種(<sup>99</sup>Tcや<sup>129</sup>Iなど)を分析する場合には、その放射能を測定するよりも、その原子数を直接測定の方が有利となるため、JAEAではICP-MSを用いた分析手法の開発を進めています。



高周波誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS)

## <sup>90</sup>Sr分析手法の開発

Koarai, K., et al., Rapid analysis of <sup>90</sup>Sr in cattle bone and tooth samples by inductively coupled plasma mass spectrometry. J. Anal. At. Spectrom., 36, 2021, 1678 - 1682

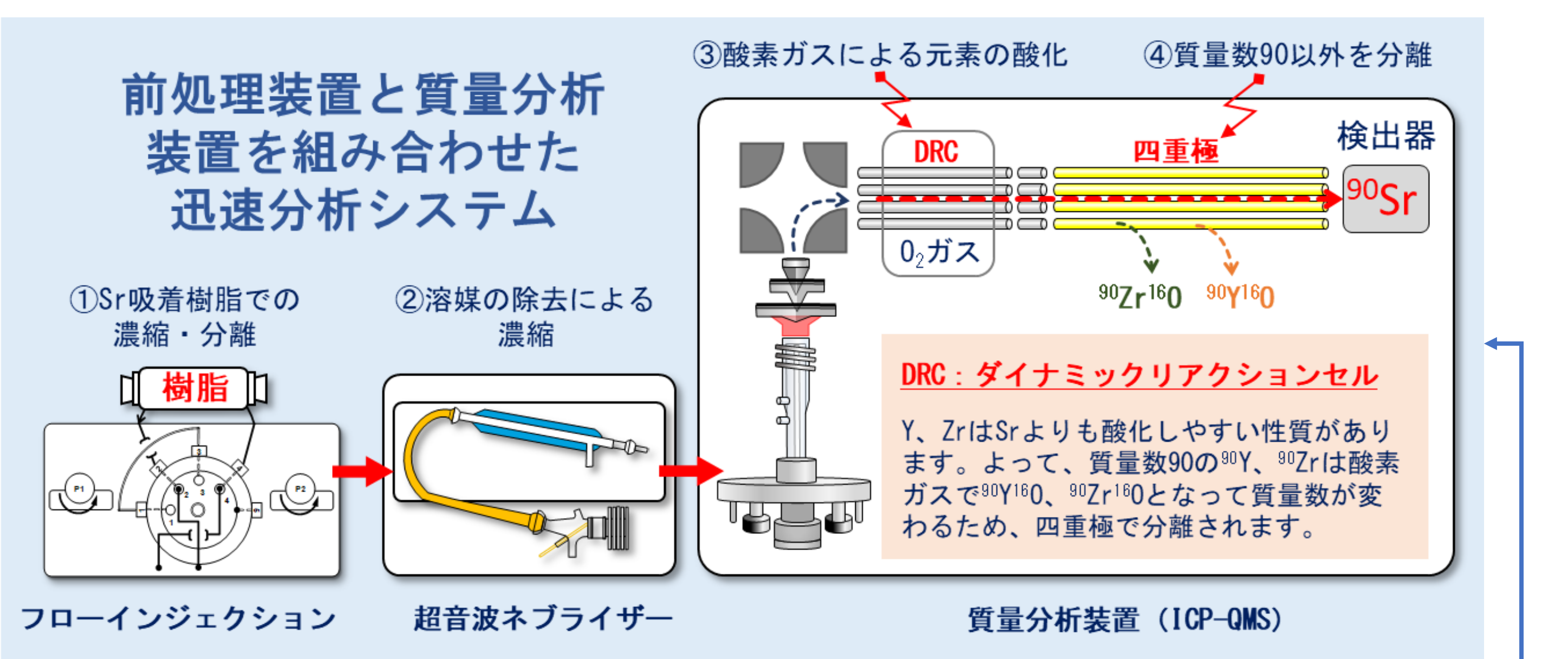


表 高選択性樹脂を用いた硬組織成分からの<sup>90</sup>Srの分離

元素	目的元素	マトリックス干渉元素			同重体干渉元素	
	Sr	Ca	Mg	Ba	Zr	Ge
回収率 (%)	82	8.4×10 <sup>-4</sup>	<9.1×10 <sup>-3</sup>	1.8	<4.4×10 <sup>-2</sup>	0.97

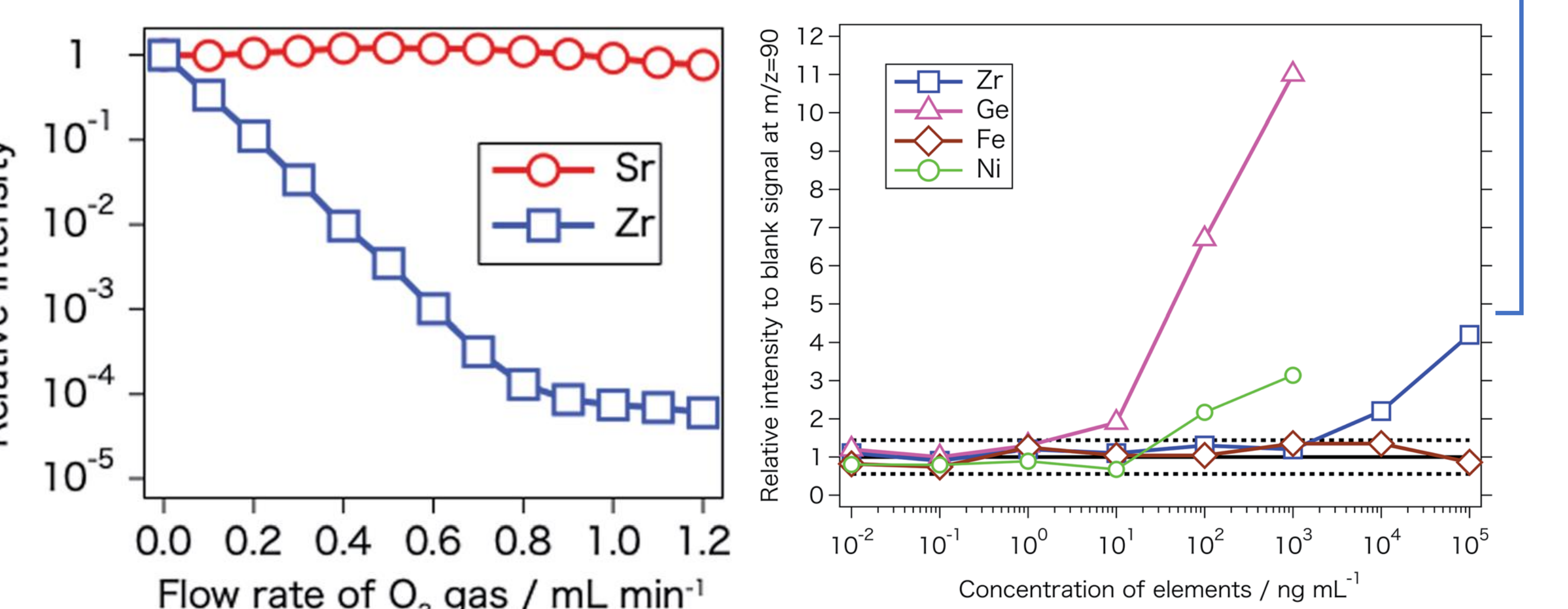


図 酸素ガスとの反応によるZrの除去 図 干渉元素による影響が発現する下限濃度

表 硬組織 (0.1g) 中<sup>90</sup>Srの分析における放射能測定とICP-MS法との比較

試料	ウシ骨		ウシ歯	
	ICP-MS	放射能測定	ICP-MS	放射能測定
<sup>90</sup> Sr濃度±SD (Bq/kg)	700±250	750±65	210±94	240±24
検出下限値 (Bq/kg)	36	91	36	87

SD: <sup>90</sup>Sr濃度の標準偏差

## 長半減期核種 (<sup>99</sup>Tc, <sup>129</sup>I) の分析手法開発

### 環境水中の<sup>99</sup>Tc分析手法の開発

Mastueda, M., et al., Online Solid-Phase Extraction-Inductively Coupled Plasma-Quadrupole Mass Spectrometry with Oxygen Dynamic Reaction for Quantification of Technetium-99, ACS Omega, 6, 2021, 19281-19290

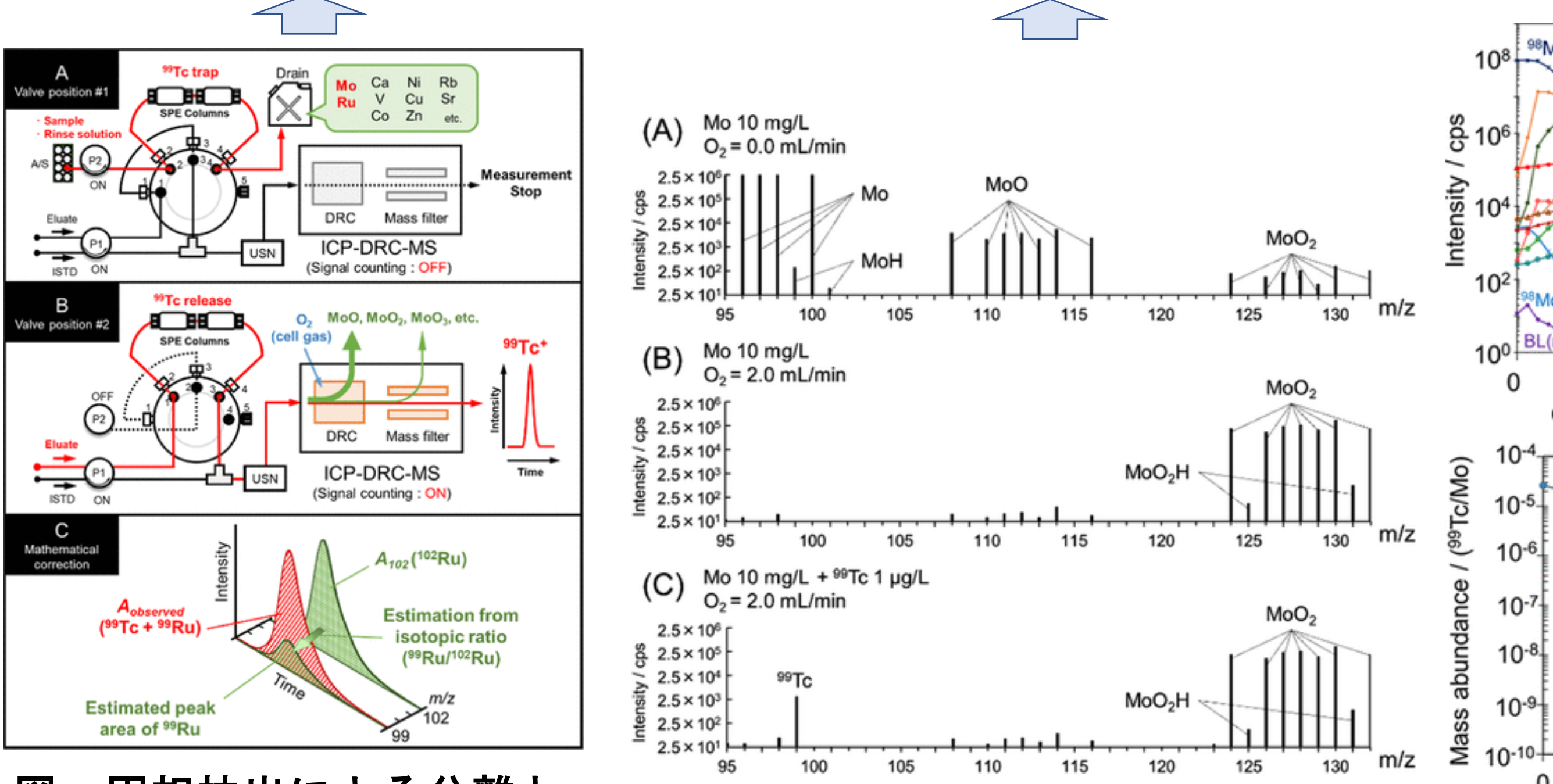
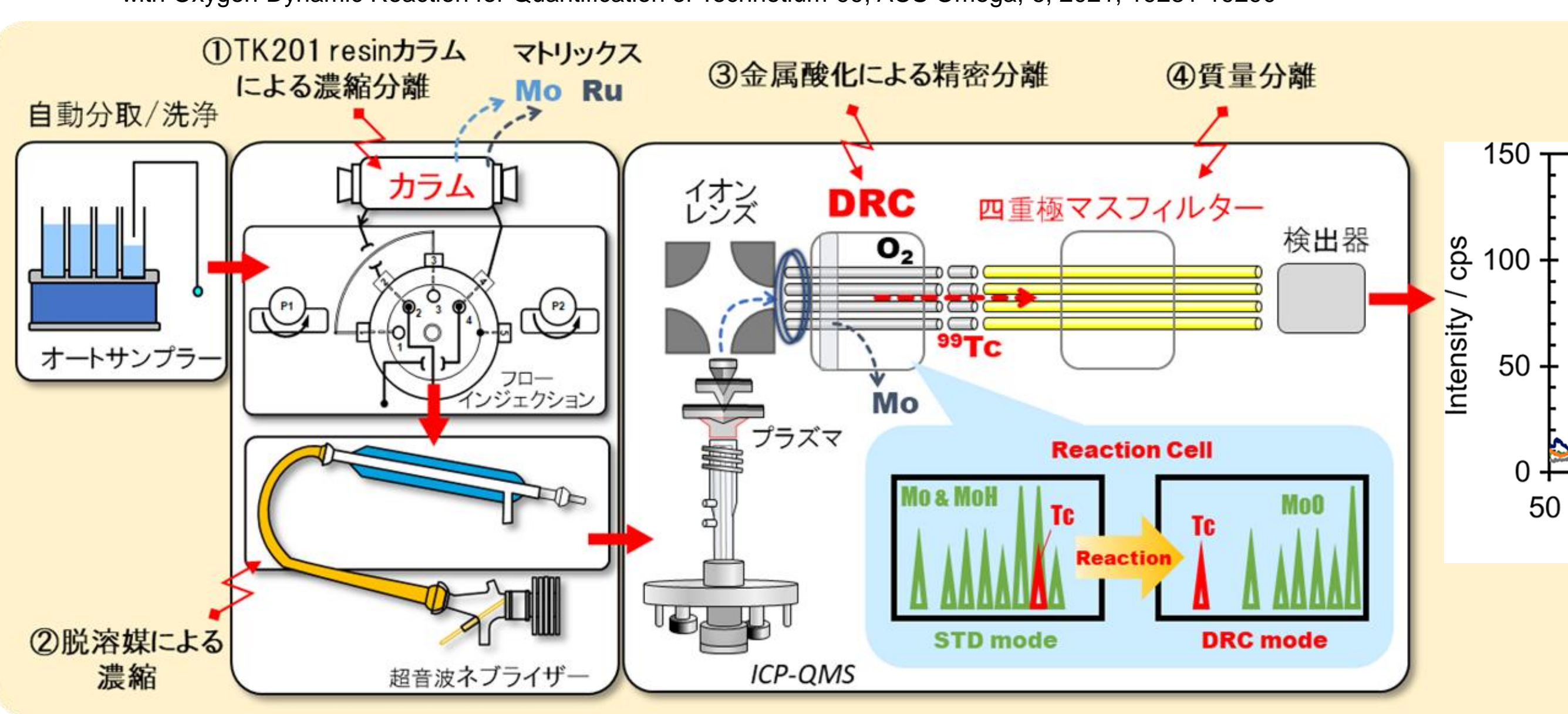


図 固相抽出による分離と干渉元素の補正 図 酸素ガスとの反応による質量数制御

表 様々な環境水を用いた<sup>99</sup>Tcの添加回収実験の結果

サンプル	雨水 (福島三春)	河川水 (熊本)	地下水 (茨城)	海水 (福島沿岸)
添加なし	< DL	< DL	< DL	< DL
<sup>99</sup> Tc 1.00 ng/L 添加	1.06 ± 0.01	0.99 ± 0.04	1.02 ± 0.01	1.11 ± 0.08

開発した自動分析システムの検出下限値は50mBq/L、分析時間は15分間。

### 環境試料中<sup>129</sup>IのICP-MS分析に向けた固相抽出法の開発

青木 謙ほか, 環境試料中ヨウ素-129のICP-MS分析に向けた固相抽出法の開発: 陰イオン交換樹脂および銀イオン担持樹脂の干渉元素除去特性の比較, JAEA-Research 2021-002

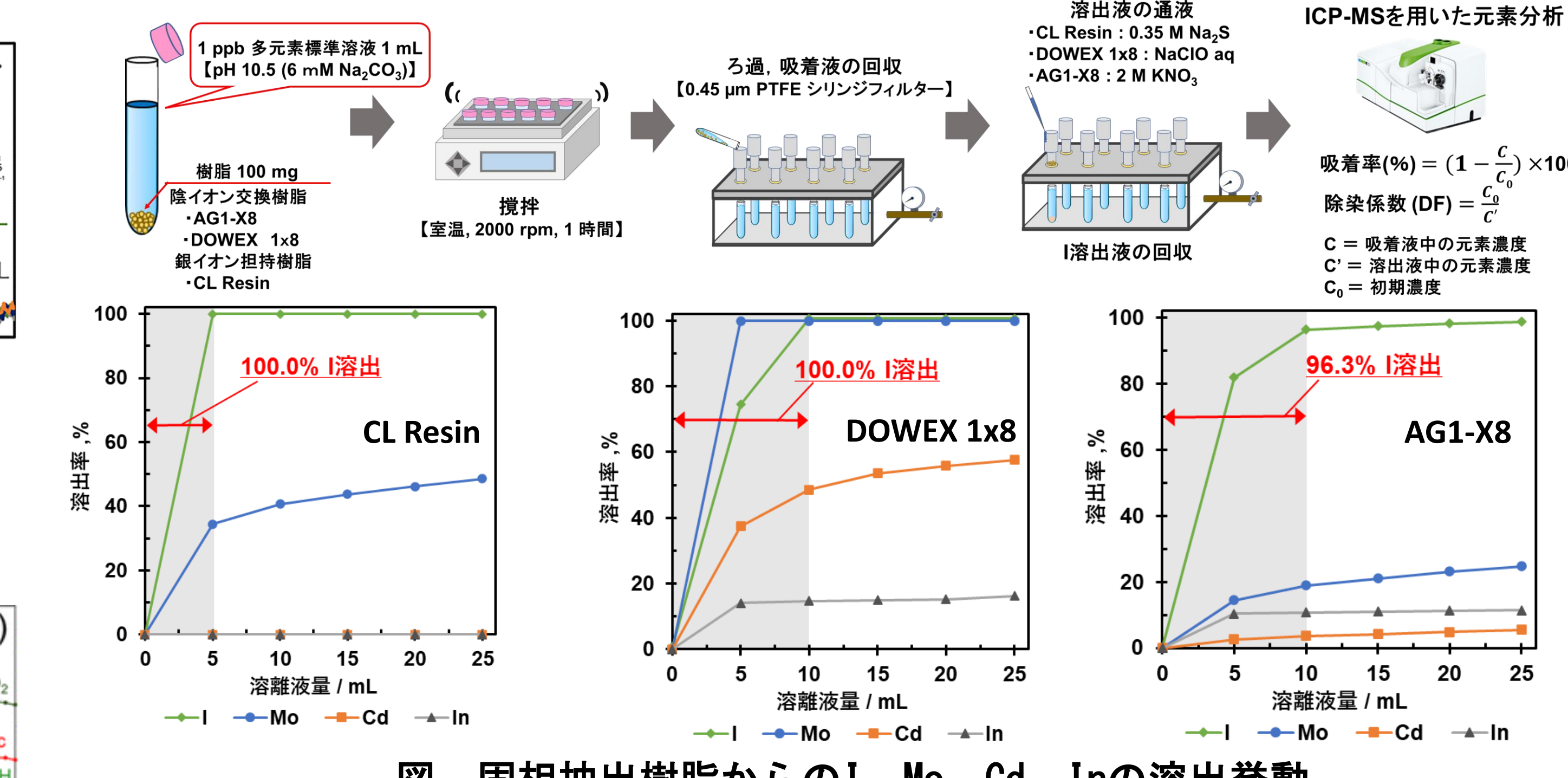


図 固相抽出樹脂からのI、Mo、Cd、Inの溶出挙動

表 固相抽出処理後のI及び同重体干渉元素の残存率

元素	残存率, %		
	CL Resin	DOWEX 1x8	AG1-X8
I	99.5	95.7	99.2
Na	N.M.	N.M.	< 4.8×10 <sup>-1</sup>
Mg	< 5.9×10 <sup>-1</sup>	< 5.9×10 <sup>-1</sup>	< 5.9×10 <sup>-1</sup>
K	< 2.9×10 <sup>-2</sup>	< 2.9×10 <sup>-2</sup>	N.M.※1
Ca	< 3.3×10 <sup>-2</sup>	< 3.3×10 <sup>-2</sup>	< 3.3×10 <sup>-2</sup>
Mo	3.1	18.8	98.8
Cd	< 1.9×10 <sup>-2</sup>	0.4	7.8
In	< 3.1×10 <sup>-2</sup>	10.7	14.6

### 今後の展開

- ・ ICP-MSMSによる高感度化
- ・ <sup>90</sup>Srや<sup>99</sup>Tcの分析: 適用可能試料の拡充
- ・ <sup>129</sup>Iの分析: 競合陰イオンの影響把握







### 廃炉環境国際共同研究センター 環境影響研究ディビジョン 放射線計測技術開発Gr. 土肥 輝美, 草野 桂一, 木村 茂, 菅野 太志, 持田 真陽

#### 概要

半減期が比較的長い放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ : 半減期約30年) は、人への被ばく影響を把握・予測する上で重要な放射性核種であるため、私たちは自然環境中における  $^{137}\text{Cs}$  の移行挙動を調べています。  $^{137}\text{Cs}$  がどのように動くのかを明らかにするには、例えば輸送媒体・大きさ・形状・溶けやすさ等の性質、を知る必要があります。このような物理化学的な情報をもとにして、  $^{137}\text{Cs}$  の移行挙動を明らかにすることは、将来的な  $^{137}\text{Cs}$  の分布や濃度予測に繋がるものと考えられます。

ここでは、当センター三春地区の電子顕微鏡やX線分析装置等の固相分析装置を活用した生物系および材料系研究成果の一部を紹介いたします。

#### 環境研究への適用事例

##### 生物が捕捉した放射性大気浮遊じんの性質

###### 大気浮遊じんを捕捉する生物種に着目

###### 地衣類(菌類):

根が無い・長寿命・大気から無機栄養分を体内に取り込む。

###### 樹皮:

大気浮遊じんが樹皮に付着する。

###### 放射性物質の分布状況

【放射線に感光する写真(オートラジオグラフィ)で可視化】

地衣類と樹皮のどちらにも放射性粒子の存在を示すスポット状の分布が見られた(例: 右図○)。

###### 「天然の大気浮遊じん観測」へ利用可能

###### 放射性の微小な粒子状物質を単離

【有機物分解と電子顕微鏡的手法を組み合わせた手法開発】

放射性の粒子状物質を取り出し、それらの性質(大きさ、形状、元素組成等)を電子顕微鏡(EPMA)で調べた。

###### 微小試料の質量情報を取得

【複合的な分析と、実試料の質量分析手法の開発】

ToF-SIMSを用いて、電子顕微鏡分析を経た粒子の同位体比を評価中。

1F事故で飛散した  $^{137}\text{Cs}$  を含む粒子状物質の化学形態や組成の特徴を把握・整理し、質量情報から起源推定へ

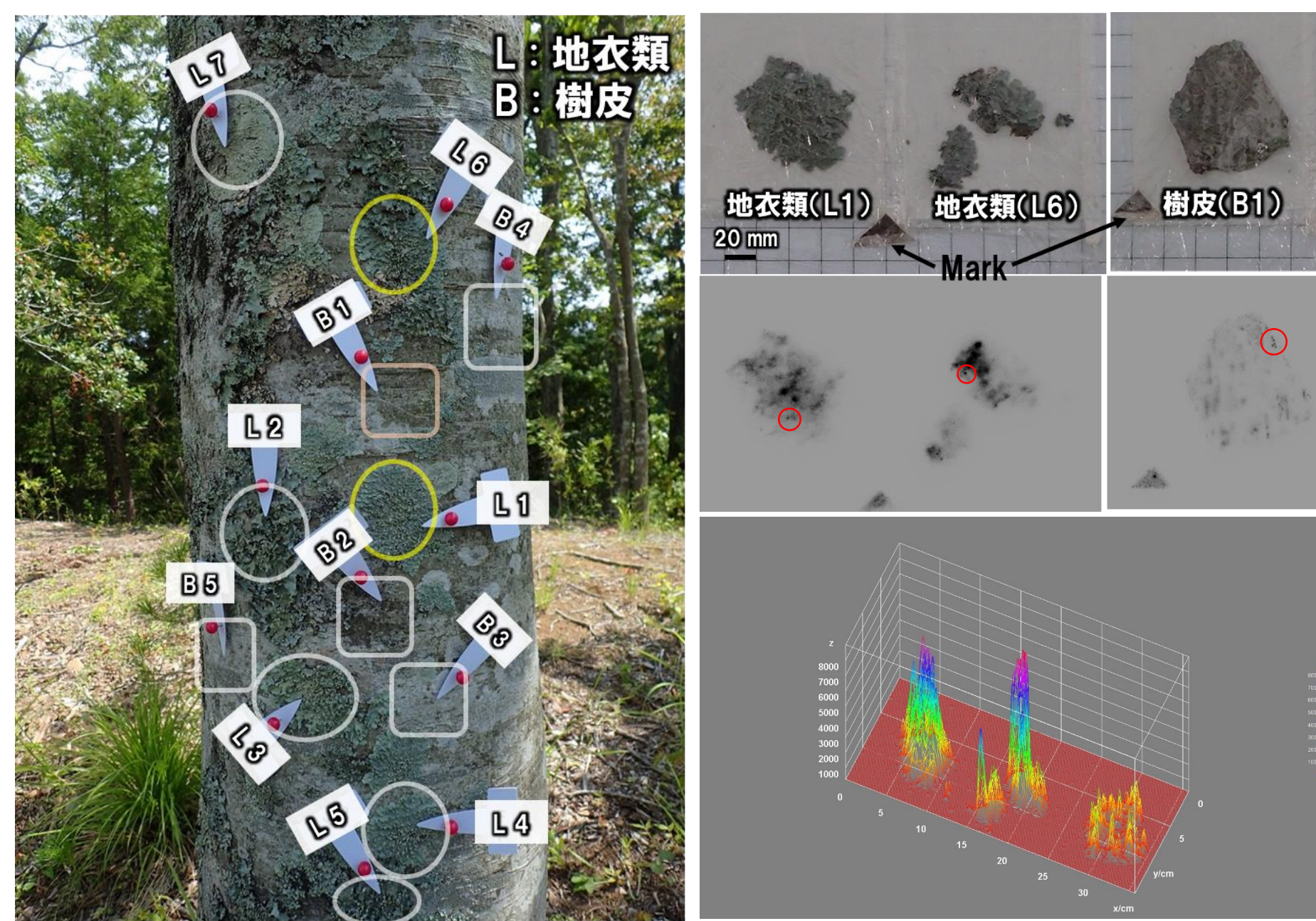


図1 地衣類と樹皮の生育状況(左)、各々の放射性物質の分布写真(右) (Dohi et al., 2021)

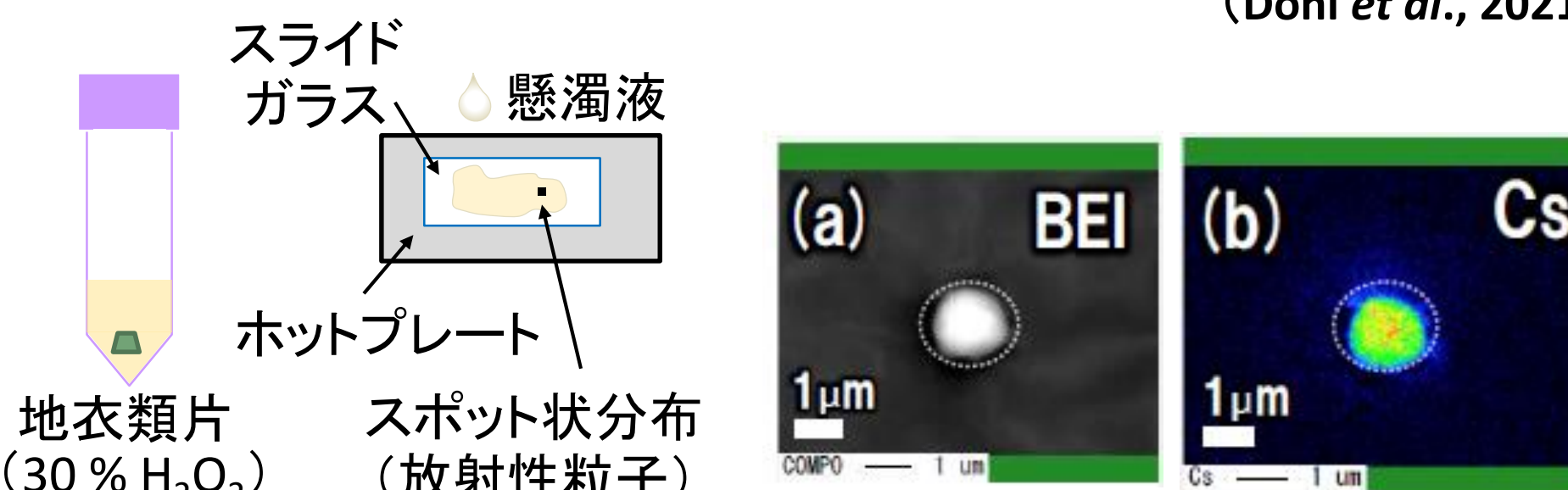


図2 放射性粒子の単離と(左)、単離された粒子の電子顕微鏡像(右) (Dohi et al., 2019)

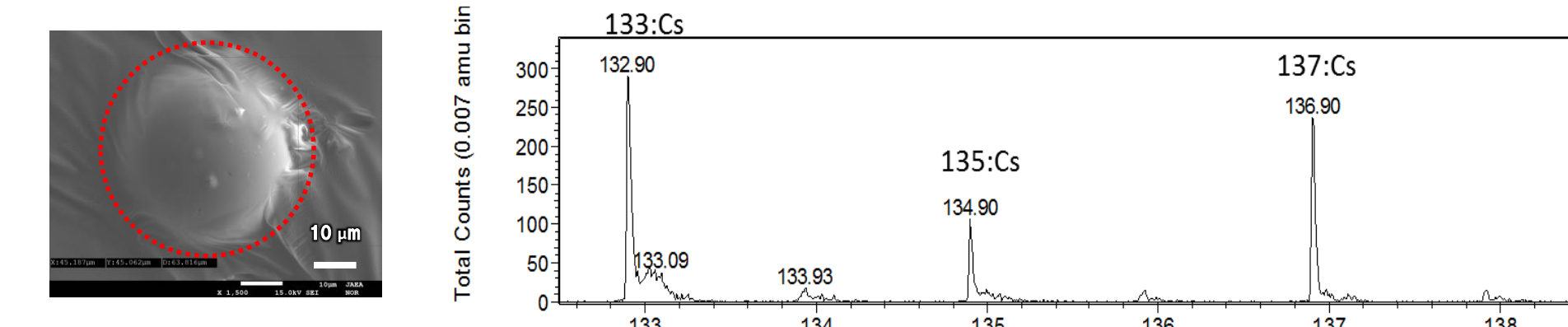


図3 単離された粒子(左)と、ToF-SIMS質量スペクトル(右) (Dohi et al., 2017, 2022 in preparation)

##### 微小領域分析

###### 海生生物の核種固定化



**円石藻(藻類):**  
植物プランクトン。炭酸塩の殻を形成する。



図4 円石藻の二次電子像 (尾崎 ほか, 2020)

炭酸塩殻形成時の核種分布や固定化の機構を調べるため、炭酸塩部分(硬組織)の観察手法、生体内組織の分析手法を検討中。

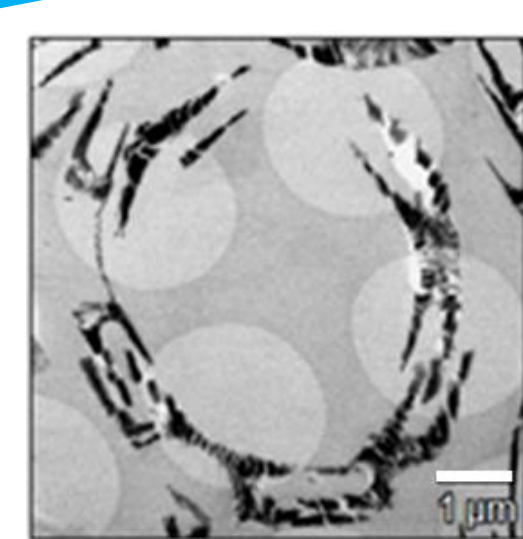


図5 円石藻断面のSTEM像 (尾崎 ほか, 2020)

生体内の元素動態(貯蔵・無毒化機構等)の基礎的知見の集積へ

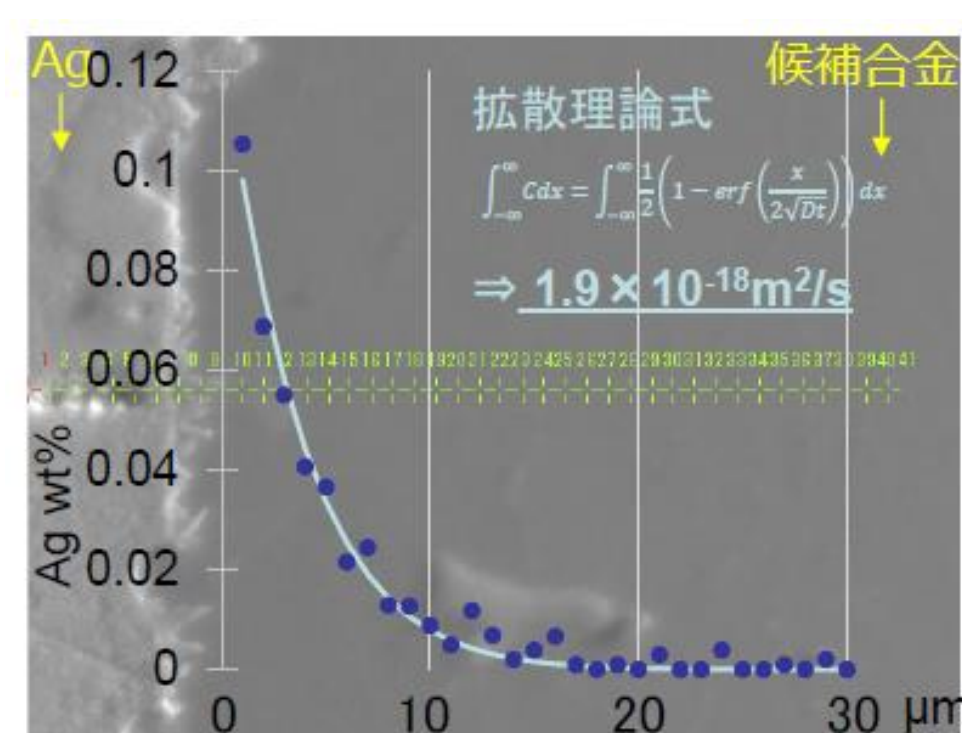
#### 材料研究への適用事例

##### 分析協力事例紹介

###### 高温ガス炉研究課題

【タービン翼材料候補合金中の元素拡散量評価】

- ・ガスタービンへの核分裂生成物 ( $^{110m}\text{Ag}$  など) の沈着が、作業員被ばくや廃棄物量低減を目指す上で課題である。
- ・EPMAを用いて、タービン翼材料候補の試験片(Ni合金中に安定Agを沈着させたもの)におけるAg深さ方向の分布を調べた。



試験片のAg拡散係数を評価でき、候補合金が核分裂生成物沈着量を低減できる見込みが得られた。

原子力施設の安全性向上に係る研究の貢献へ

図6 試験片のAg拡散量測定結果 (原子力機構 高速炉・新型炉研究開発部門, 2020)

##### 三春地区で運用中の固相分析装置

- ・電子顕微鏡および関連装置: SEM, EPMA, FIB, TEM
- ・質量分析装置: ToF-SIMS
- ・X線分析装置: XRD, XPS

##### 共同・協力研究機関(外部)

国立科学博物館, 京都大学, 九州環境管理協会, 東京大学, 秋田県立大学, ナポリ大学, ほか。

今後も、放射性核種の動態解明に向け、様々な機関と協力・協働しつつ、分析手法の開発・改良や分析データの拡充を進めるとともに、得られた成果を活用して、部署や機関の枠を超えた研究成果の創出にも貢献していきます。

##### 参考文献

- (1) Dohi, T., et al., 2021, PLOS ONE., 16(5): e0251828.
- (2) Dohi, T., et al., 2019, Environmental Radiochemical Analysis VI, pp.58-70.
- (3) Dohi, T., et al., 2017, 14th International conference on the biogeochemistry of trace elements. (in presentation).
- (4) 尾崎 ほか, 放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点 2020年度年次報告会 (in presentation).
- (5) 原子力機構 高速炉・新型炉研究開発部門, 令和元年度 研究開発・評価報告書, 評価課題「高温ガス炉とこれによる熱利用技術の研究開発」(中間評価) JAEA-Evaluation 2020-001, p. 98



# ⑩ 核種移行研究における固相分析装置の活用

## —環境研究、材料研究への適用事例—

廃炉環境国際共同研究センター 環境影響研究 Div. 放射線計測技術開発 Gr.  
土肥 輝美、草野 桂一、木村 茂、菅野 太志、持田 真陽

### (1) はじめに

IF 事故により、福島県内や周辺地域には放射性核種が沈着しました。そのうち、半減期が比較的長い放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ ; 半減期約 30 年) は、人への被ばく影響を把握・予測する上で重要な放射性核種であるため、私たちは自然環境中における  $^{137}\text{Cs}$  の移行挙動を調べています。 $^{137}\text{Cs}$  がどのように動くのかを明らかにするには、どのような形態で存在し移動していくのか、例えば輸送媒体・大きさ・形状・溶けやすさ等の性質を知る必要があります。このような物理化学的な情報をもとにして、 $^{137}\text{Cs}$  の移行挙動を明らかにすることは、将来的な  $^{137}\text{Cs}$  の分布や濃度予測に繋がるものと考えられます。

原子力機構・CLADS (福島県三春地区) では、電子顕微鏡や X 線分析装置等の固相分析装置を 5 年前に設置、整備・運用しています。著者のチームでは、それら分析装置により、様々な固相試料 (土壌・懸濁態粒子・生物系試料・大気浮遊じん・材料系試料等) を対象とした研究活動や分析協力を行っています。本稿では、生物系及び材料系試料の分析に係る成果の一部を紹介いたします。

### (2) 生物が捕捉した放射性セシウムの固相分析

陸上生態系の約 8% を占めるといわれる地衣類 (菌類と藻類の共生生物) は、 $^{137}\text{Cs}$  などの無機物を蓄積することが知られています。地衣類は通道組織を持つ植物のような根が無いため、大気浮遊じんに含まれる K などの無機栄養分を直接体内に取り込みます。この性質に着目し、著者らは IF 事故で大気中に飛散した  $^{137}\text{Cs}$  の化学形態や組成を明らかにすることを目的として、地衣類に捕えられた  $^{137}\text{Cs}$  を含む飛散物の特性を調べています。地衣類の生息環境の一つに樹木が挙げられますが、樹木の樹皮も地衣類と同様に大気浮遊じんを捕捉することが知られています。ここでは、地衣類と樹皮の双方の表面の状態や、地衣類から単離した粒子状物質を電子顕微鏡の一種である、電子線プローブマイクロアナライザ (EPMA) で調べました<sup>1), 2)</sup> (図 1)。

その結果、地衣類の表面は平滑であるのに対し、樹皮表面は細かな凹凸や亀裂が見られました。表面の状態は互いに異なるものの、双方ともに類似した大きさや元素組

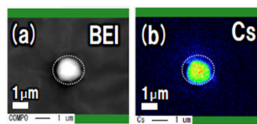


図 1 地衣類から単離した粒子<sup>2)</sup>

成の粒子状物質が見られました。また、放射線に感光する特殊なフィルム (IP) を用いた写真では、放射性粒子の存在を示す濃灰から黒色のスポット状の分布が双方に見られました (図 2)。これらの結果から、地衣類と樹皮試料では、 $^{137}\text{Cs}$  全体量や分布、放射性粒子の保持機構は異なると考えられるものの、類似した性質の放射性粒子を捉える能力を双方ともに有することが明らかとなりました。このことは「天然の大気浮遊じん観測点」として、地衣類や樹木の樹皮が利用できることを示しています。今後、単位面積当たりの大気浮遊じん量や含まれる  $^{137}\text{Cs}$  の割合を明らかにしていくことで、大気中の飛散物輸送量を定量的に求めることができると考えられます。

### (3) 微小試料を対象とした分析手法の開発

#### ① 固相試料の質量分析

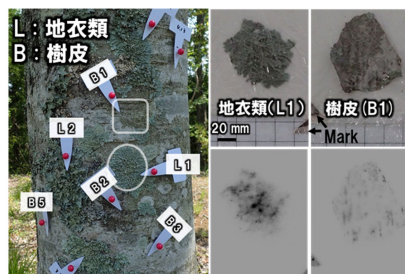


図 2 地衣類と樹皮の生育状況(左)、各々の放射性物質の分布写真(右)<sup>1)</sup>

当チームでは、放射性同位体を含む同位体組成の情報取得が容易である、飛行時間型二次イオン質量分析装置 (ToF-SIMS) を用いた微小試料 (粒子状物質) の分析法確立にも取り組んでいます<sup>3)</sup>。質量分析では、分析対象と同じ質量数を持つ核種、同重体を判別することが課題となります。この課題解決に向けて、様々な標準物質に加えて、機構外との共同研究により、アルミノケイ酸塩を模擬した焼成物 (九州環境管理協会)、ガラス質粒子を模擬した合成ガラス (東京大学) を対象として、EPMA の併用により同重体を判別する手法の開発、実試料への適用試験を進めています。このような質量分析手法の開発により同位体比を評価することで、試料の起源推定へ役立てます。ほぼ非破壊で質量情報が得られる利点は、放射性

核種分析や溶解が困難な試料、微量の試料など、様々な固相試料への幅広い適用が期待されます。

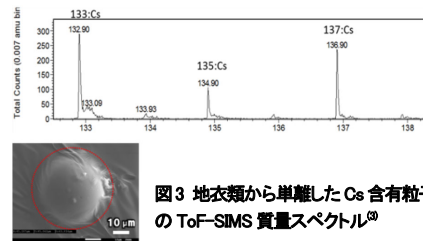


図 3 地衣類から単離した Cs 含有粒子の ToF-SIMS 質量スペクトル<sup>3)</sup>

#### ② 生体硬組織の微小領域分析

秋田県立大学との共同研究では、円石藻 (海生の植物プランクトン) がその殻として炭酸塩を形成する作用が、核種固定化のように寄与するかを調べています。円石藻は大きさが数  $\mu\text{m}$  径と微小なため、組織構造を調べるには透過型電子顕微鏡 (TEM) が必要となります。著者らは、円石藻の殻形成時の元素・結晶化情報を取得するために、TEM による炭酸塩部分 (硬組織) の観察手法の確立を進めています (図 4)<sup>4)</sup>。また、生体内組織を含めた分析手法についても検討しています。これら一連の手法確立は、硬組織や生体内組織における核種分布の研究に活かされ、生体内の元素動態 (貯蔵・無毒化等) の基礎的知見が得られると期待されます。

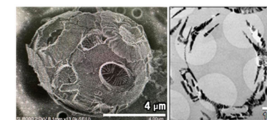


図 4 円石藻の二次電子像(左)、円石藻断面の STEM 像(右)

#### (4) 材料系試料の固相分析への協力

当機構では、原子力施設管理の安全性向上に係る材料研究も行っています。本項では、高感度かつ迅速な多元

素分析が可能という我々の EPMA の特徴を活かして、当チームが分析協力した事例を紹介いたします。

高温ガス炉の運用にあたり、ガスタービンへの核分裂生成物 (FP:  $^{110m}\text{Ag}$  など) の沈着は、作業員被ばく及び廃棄物量の低減を目指す上で課題となっていました。当機構の高速炉・新型炉研究開発部門では、タービン翼材料候補とする Ni 合金中の Ag の拡散量を評価しており、当チームとの協働で Ag 安定同位体を沈着させた試験片のごく表面付近における Ag の深さ方向の分布を EPMA で分析しました (図 5)。その結果、Ag の拡散係数を評価でき、候補合金が FP 沈着量を低減できる見込みが得られました<sup>5)</sup>。

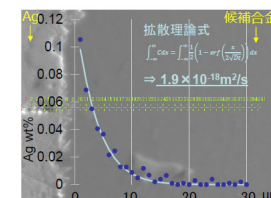


図 5 試験片の Ag 拡散量測定結果

また、当機構の原子力基礎工学研究センターでは、加速器駆動型核変換炉の冷却材候補である液体鉛合金と構造材料であるステンレス鋼との健全性を評価しており、当チームの EPMA を用いて、ステンレス鋼表面に生じる酸化被膜の組成変化を調べています。

#### (5) おわりに

当センターには、ここで紹介した EPMA、ToF-SIMS、TEM 以外にも、X 線回折装置 (XRD)、X 線光電子分光装置 (XPS) など様々な分析機器を運用しています。分析対象の試料も環境試料から材料系の試料まで多岐にわたります。今後も、放射性核種の動態解明に向け、様々な機関と協力・協働しつつ、分析手法の開発・改良や分析データの拡充を進めるとともに、得られた成果を活用して、部署や機関の枠を超えた研究成果の創出にも貢献していきます。

謝辞：本内容は、国立科学博物館、京都大学、九州環境管理協会、東京大学、秋田県立大学との共同研究成果の一部です。本稿作成に当たり、高速炉・新型炉研究開発部門炉設計部及び原子力基礎工学研究センター防食材料技術開発グループから資料等をご提供頂きました。ここに記して謝意を表します。

#### 参考文献

- 1) Dohi, T., et al., Radiocaesium accumulation capacity of epiphytic lichens and adjacent barks collected at the perimeter boundary site of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station, 2021, PLOS ONE., 16(5): e0251828.
- 2) Dohi, T., et al., Electron microscopic analysis of radiocaesium-bearing microparticles in lichens collected within 3 km of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, 2019, Environmental Radiochemical Analysis VI, pp.58-70.
- 3) Dohi, T., et al., Application of lichens to evaluate distribution of radionuclides nearby the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station, 2017, 14th International conference on the biogeochemistry of trace elements. (in presentation).
- 4) 尾崎 他, 生物の鉱物形成作用と核種固定化に関する研究, 放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点 2020 年度年次報告会ポスター発表 (in presentation).
- 5) 原子力機構 高速炉・新型炉研究開発部門, 令和元年度 研究開発・評価報告書, 評価課題「高温ガス炉とこれによる熱利用技術の研究開発」(中間評価) JAEA-Evaluation 2020-001, p. 98.

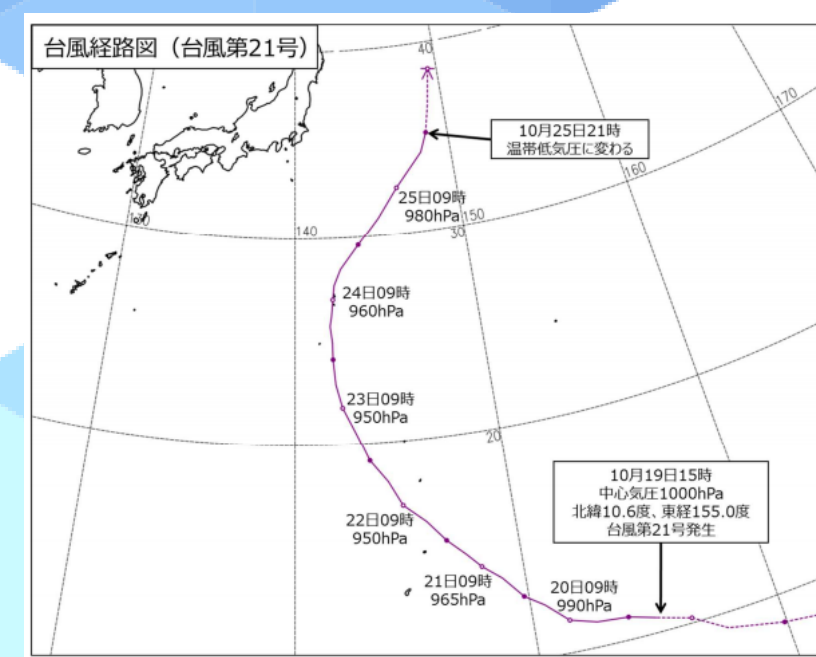


# 河川から海洋への放射性セシウムの移動メカニズム研究 —令和元年度台風21号接近時のモニタリング結果より—

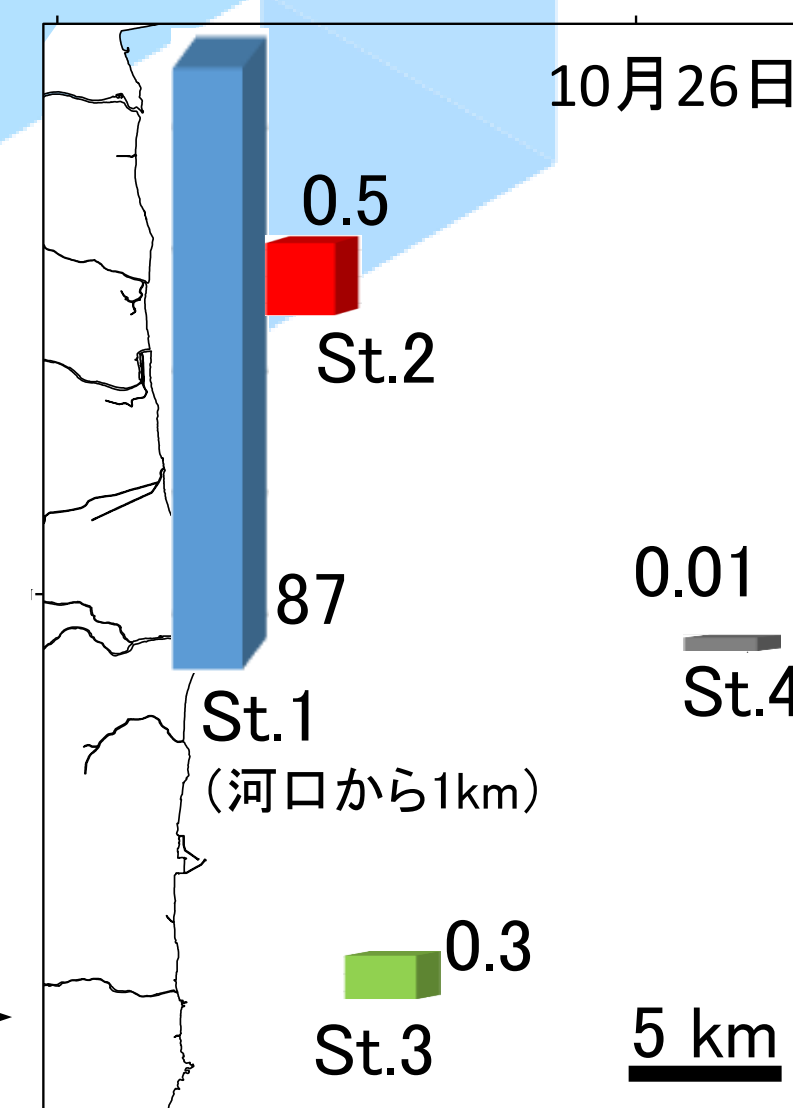
廃炉環境国際共同研究センター 広域モニタリング調査研究グループ  
御園生敏治

## 概要

台風などの洪水イベント時に陸域を通じた河川から流出した放射性セシウム ( $^{137}\text{Cs}$ を対象) が、どの程度沿岸域に影響を及ぼすのか? について評価を行いました。その結果、河口から1 kmのエリアにおいて顕著に台風の影響を受けることが示唆されました。しかしながら、その期間は2日程度と短く、海底堆積物の  $^{137}\text{Cs}$  の堆積量に比べると小さい値となりました。



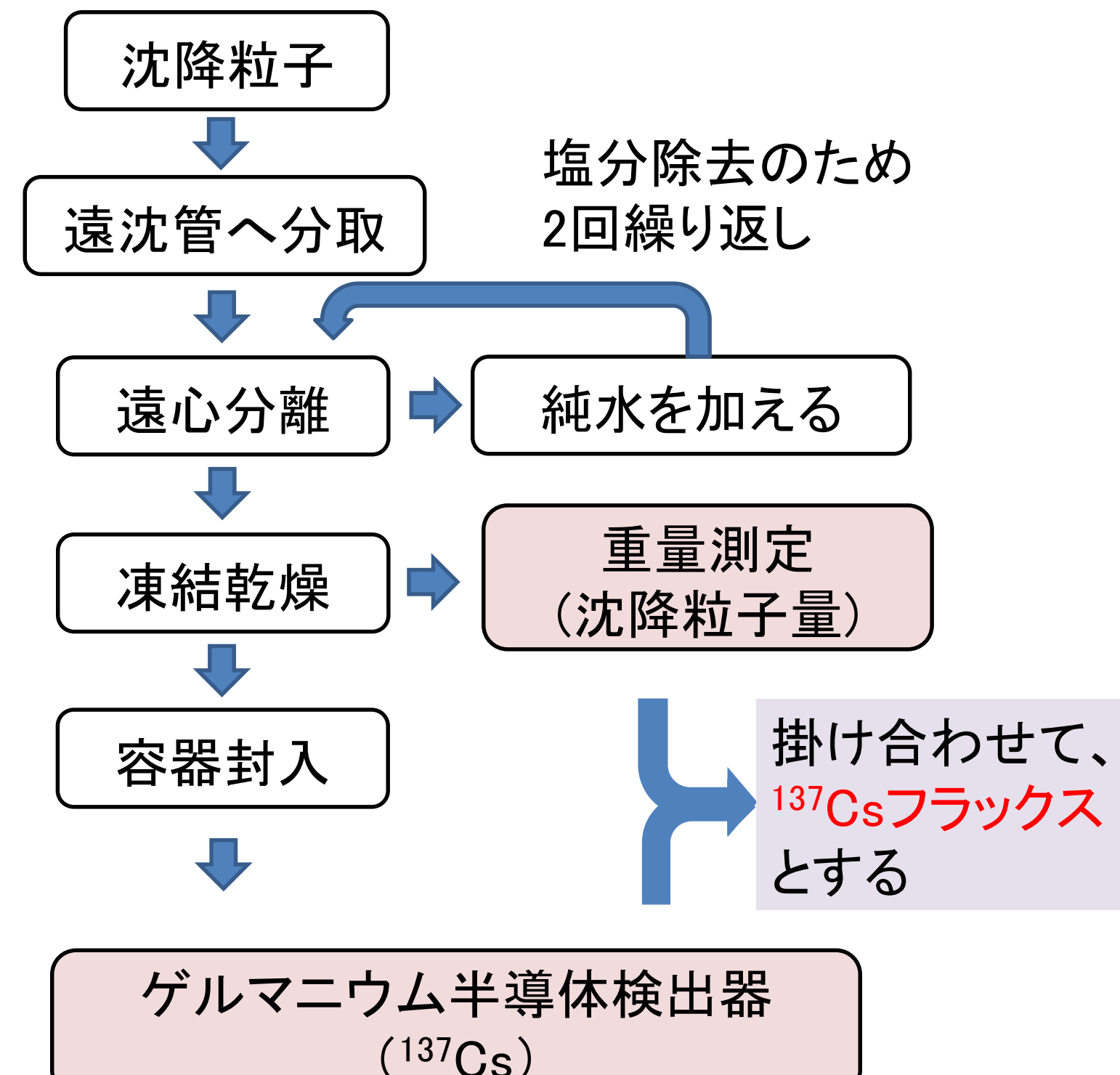
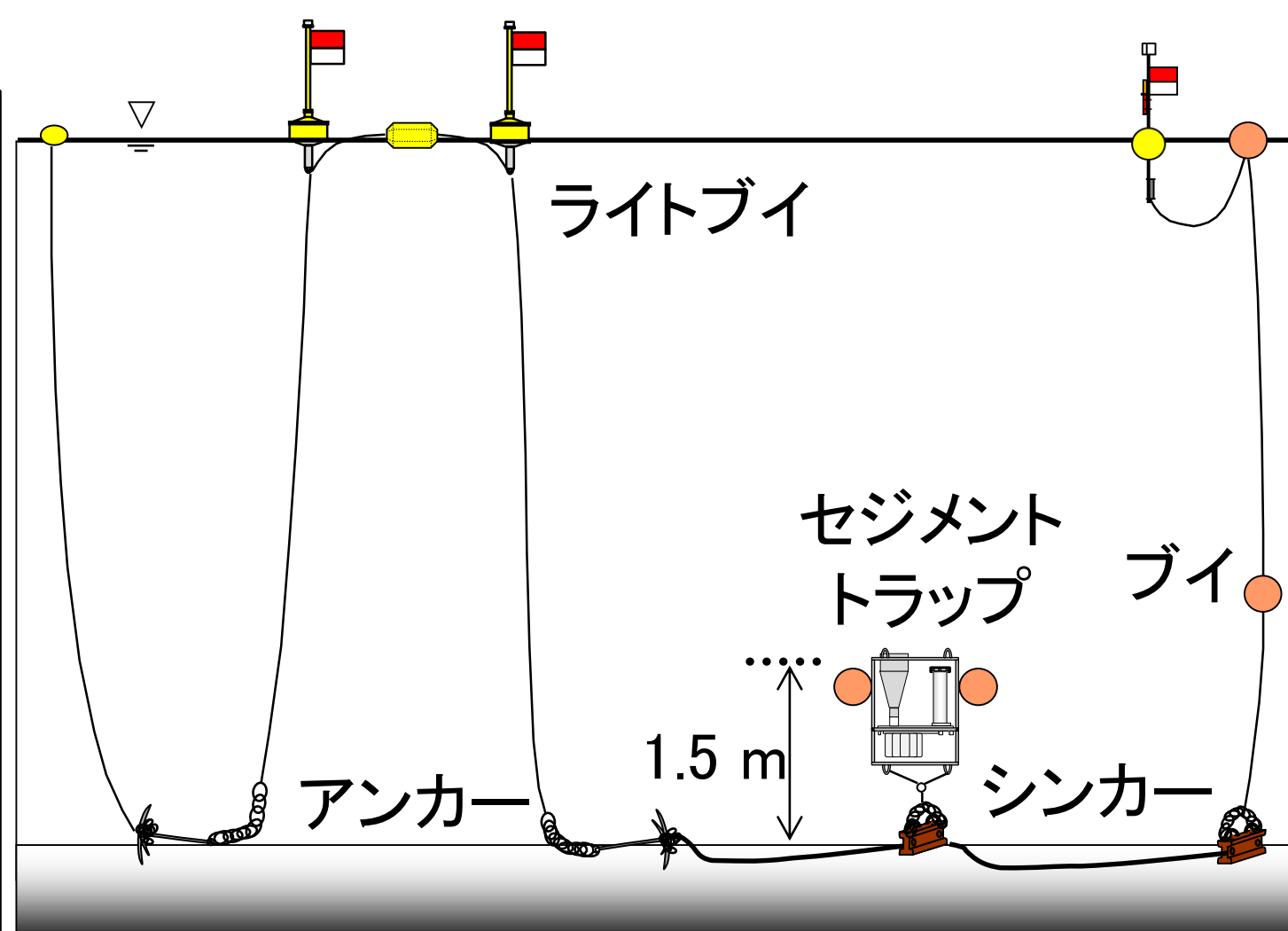
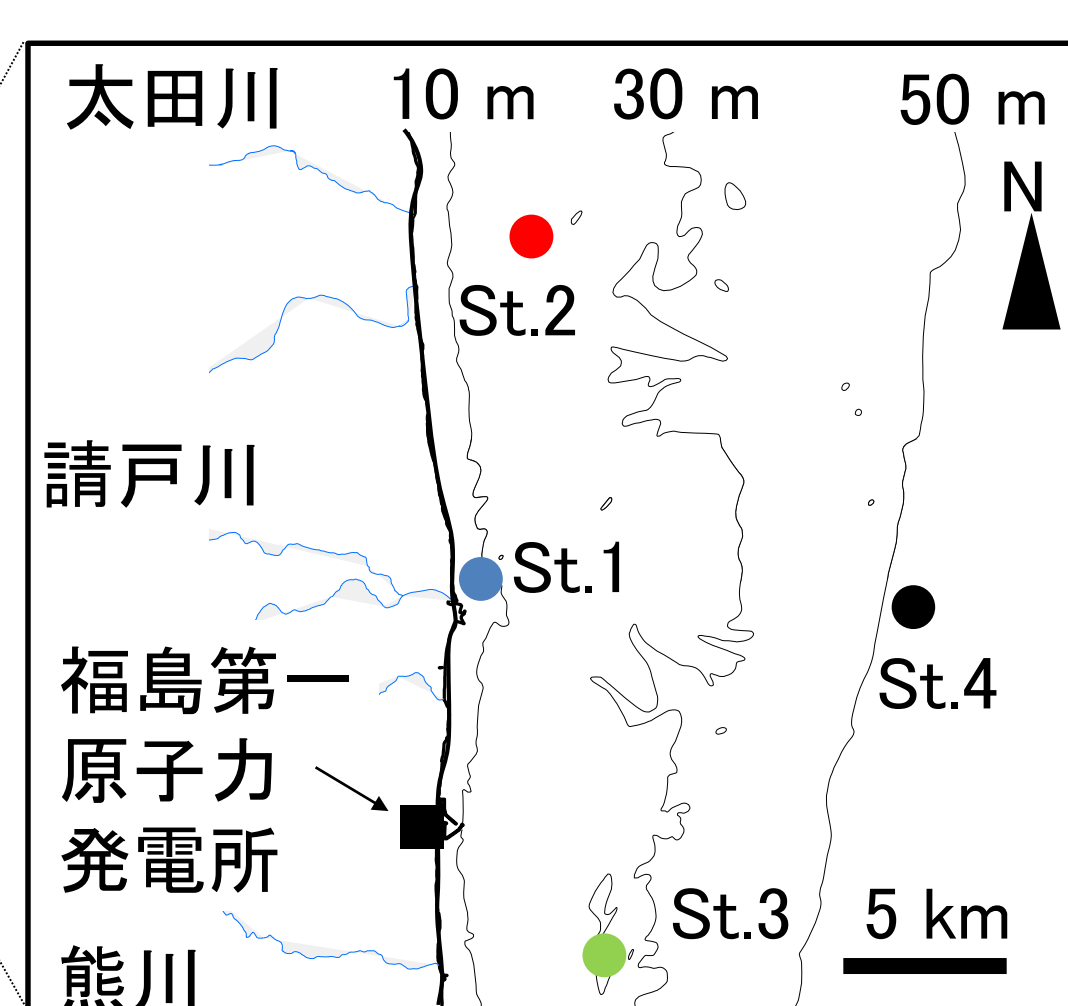
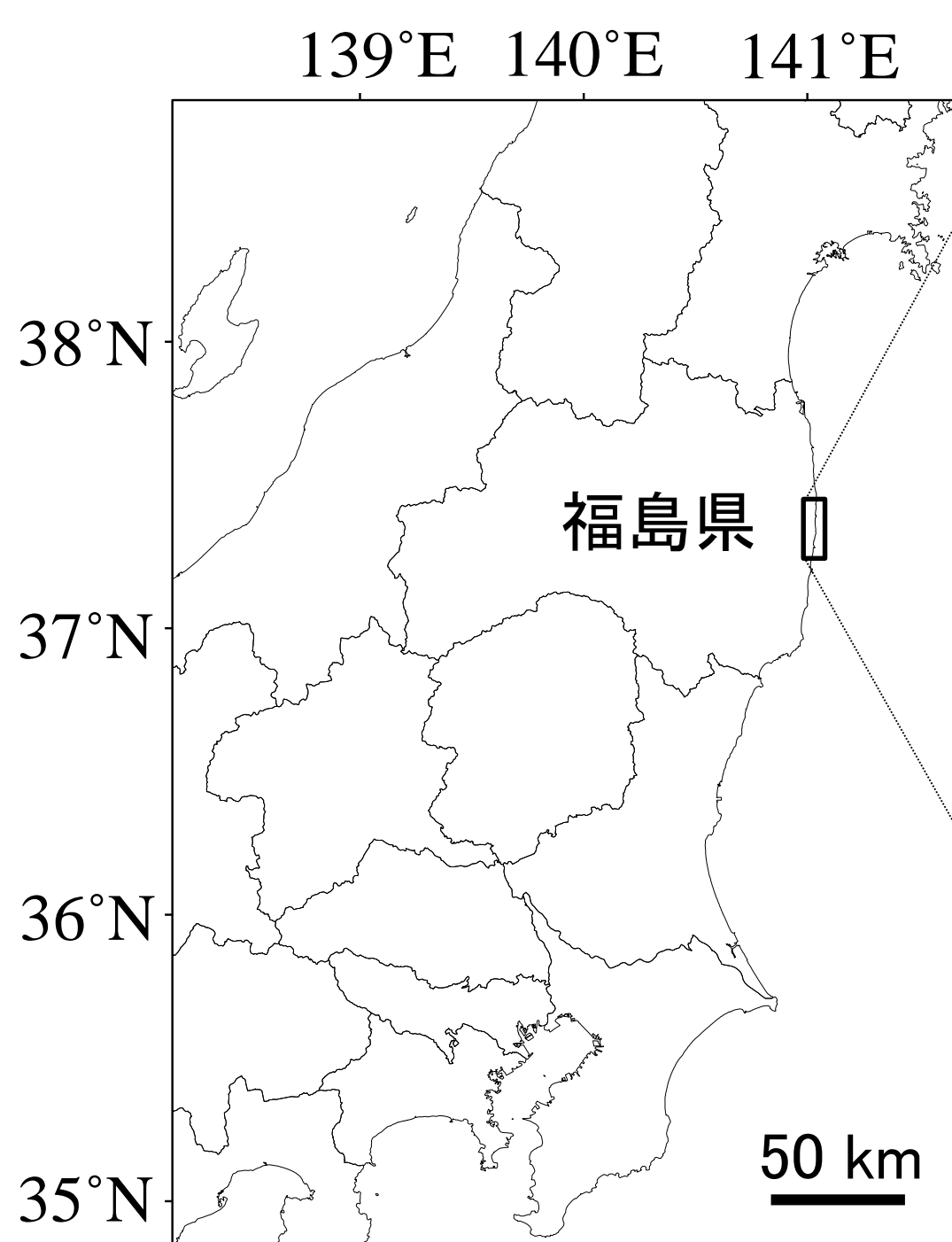
沈降粒子の  $^{137}\text{Cs}$  フラックス  
(単位は  $\text{Bq m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ )



## はじめに

福島第一原子力発電所(1F)の事故後、海産物への放射性物質の移行が懸念されることから、海域では放射性セシウムの動態研究が行われています。事故から10年経過した現在、1Fからの放射性セシウムの海洋放出は限定的となり、海洋への供給源としては、陸域から河川を介した輸送が主になると考えられます。特に台風などの洪水イベントの影響で、河川から微粒子が選択的に排出され、河川を通じた放射性セシウムの移動が顕著になることが報告されています。ここでは、洪水イベント中の沿岸域での放射性セシウムの移動メカニズムについて紹介します。

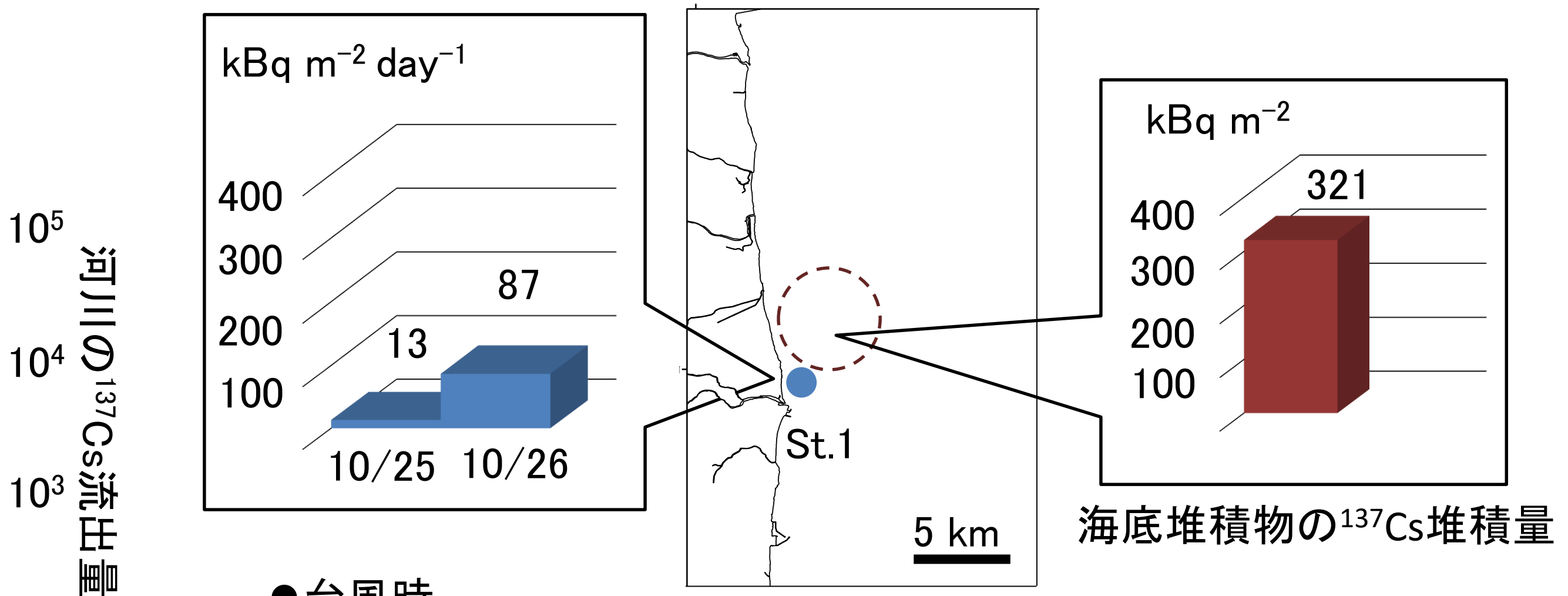
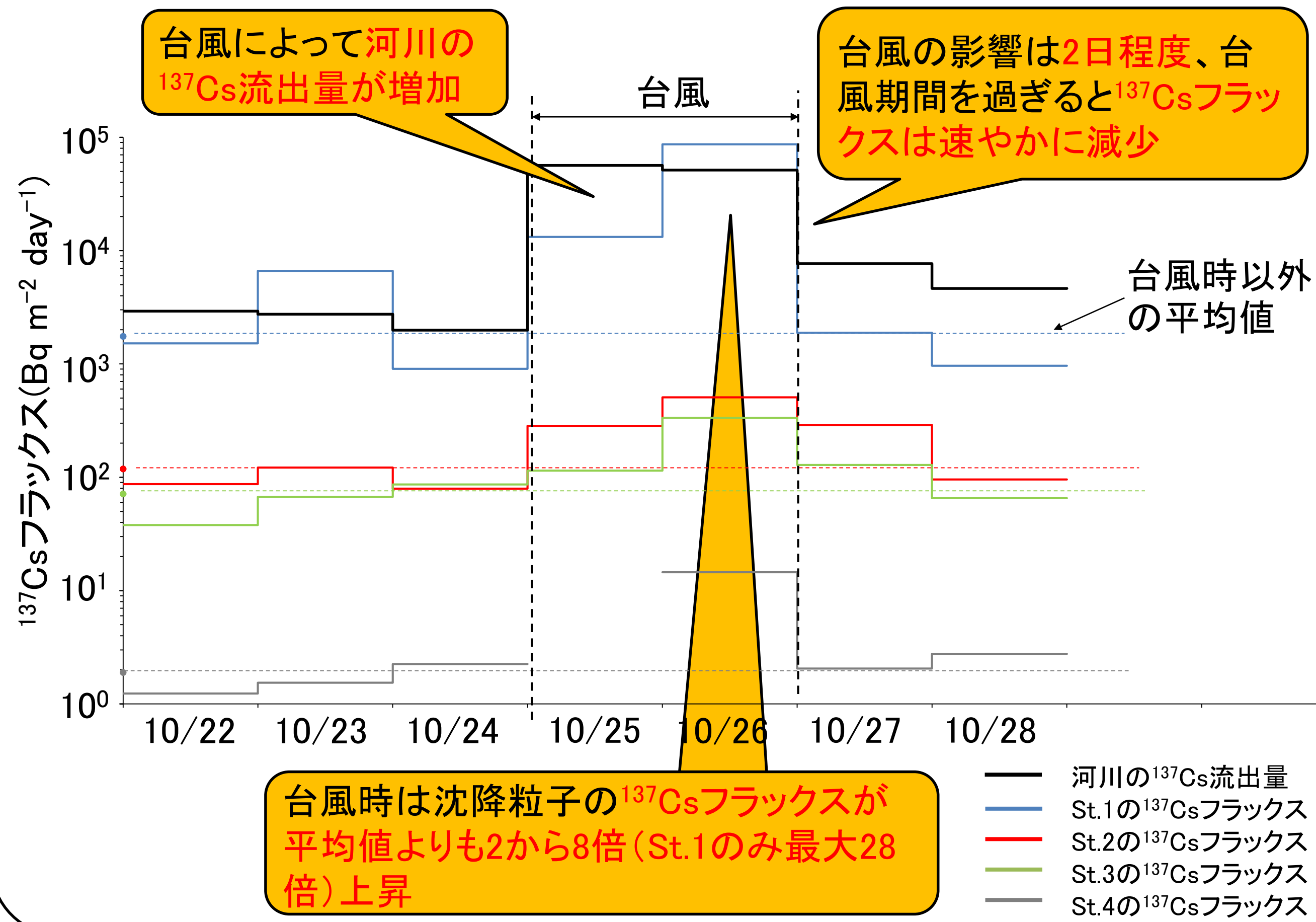
## 対象地域と手法



地点	緯度 (deg)	経度 (deg)	水深 (m)	請戸川河口からの距離 (km)
St.1	37.4910	141.0497	10	1
St.2	37.5847	141.066	27	11
St.3	37.3856	141.0918	30	13
St.4	37.4843	141.1994	60	14

調査期間(2019年)  
10/22-10/28(台風接近25、26日)

## 結果



●台風時  
沈降粒子の  $^{137}\text{Cs}$  フラックス:  
13 - 87  $\text{kBq m}^{-2} \text{ day}^{-1}$   
海底堆積物に対する寄与率:  
4.0 - 27%

※原子力規制庁、平成31年度放射性物質測定調査委託費(福島県近沿岸海域等における放射性物質等の状況調査)事業報告書より

海底堆積物に対する台風時の沈降粒子の寄与は、4.0から27%と試算され、出水で生じた  $^{137}\text{Cs}$  フラックスは堆積物のインベントリに対して小さいことが示唆されました



# ⑪ 河川から海洋への放射性セシウムの移動メカニズム研究 —令和元年度台風21号接近時のモニタリング結果より—

廃炉環境国際共同研究センター 環境モニタリング Div.  
広域モニタリング調査研究 Gr. 御園生 敏治

1F 事故後、海産物への放射性物質の移行が懸念されることから、海域では放射性セシウムの動態研究が行われています。事故から10年経過した現在、1Fからの放射性セシウムの海洋放出は限定的となり、海洋への供給源としては、陸域から河川を介した輸送が主になると考えられます。そこで、私たちは河川から海洋に供給される放射性セシウムの実態解明のため、河口域での調査を行いました。河川から海洋への放射性セシウムの移行は、台風などで河川水位が上昇し、流れが速くなる「洪水時」に、特に顕著です。これは、放射性セシウムが細かな粒子に吸着されやすく<sup>1)</sup>、洪水時に粒子とともに河川水に洗い流され<sup>2)</sup>、海洋に供給されるためです。本研究では、洪水時における海洋への放射性セシウムの移動メカニズムを評価するため、2019年の台風21号(Bualoi)時に、河口沿岸域の4か所にセジメントトラップ(ST)を設置して、海面付近から海底方向に沈降してくる粒子(沈降粒子)を連続的に捕集し、その放射性セシウム濃度(<sup>137</sup>Cs)、沈降粒子量の測定を行いました。

STによる沈降粒子のサンプリングは、10月22日から28日までの1週間で行いました(10月25日から26日が台風接近日)。

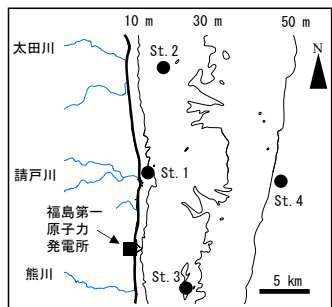


図1 対象地域 福島県沿岸域の河川の沖合に4か所の調査地点を設定しました(図中の St.1 から St.4)。図中には水深線(10 m, 30 m, 50 m)を記しています。

図1に示すように、調査地点は、1F周辺の浜通りの河川の中で流域面積の大きい請戸川を中心とした沿岸域としました。請戸川の河口と沖合に2地点(St.1: 水深10 mと St.4: 水深60 m)、請戸川より北側で1地

点(St.2: 水深27 m、請戸川より南側で1地点(St.3: 水深30 m)の合計4地点としました。各地点に、図2のようにSTを係留し、沈降粒子を日ごとに捕集しました。

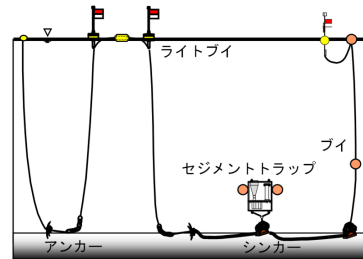


図2 係留系の詳細 各調査地点にSTを設置し、沈降粒子を捕集しました。STの設置水深は、St.1からSt.3では海底面より1.5 m離れた水深、St.4は海底面より2.5 m離れた水深としました。

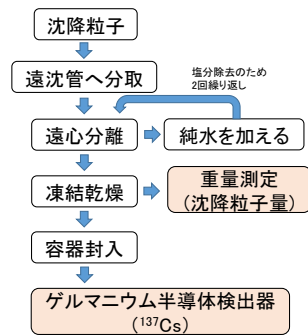


図3 沈降粒子の処理フロー 沈降粒子の量と<sup>137</sup>Cs濃度を測定する処理フローを示します。

捕集した沈降粒子は、図3のフローに従って処理し、沈降粒子量と沈降粒子の<sup>137</sup>Cs濃度を測定しました。両者を掛け合わせることで、<sup>137</sup>Csフラックス(<sup>137</sup>Csの移動量を表す指標)を計算しました。

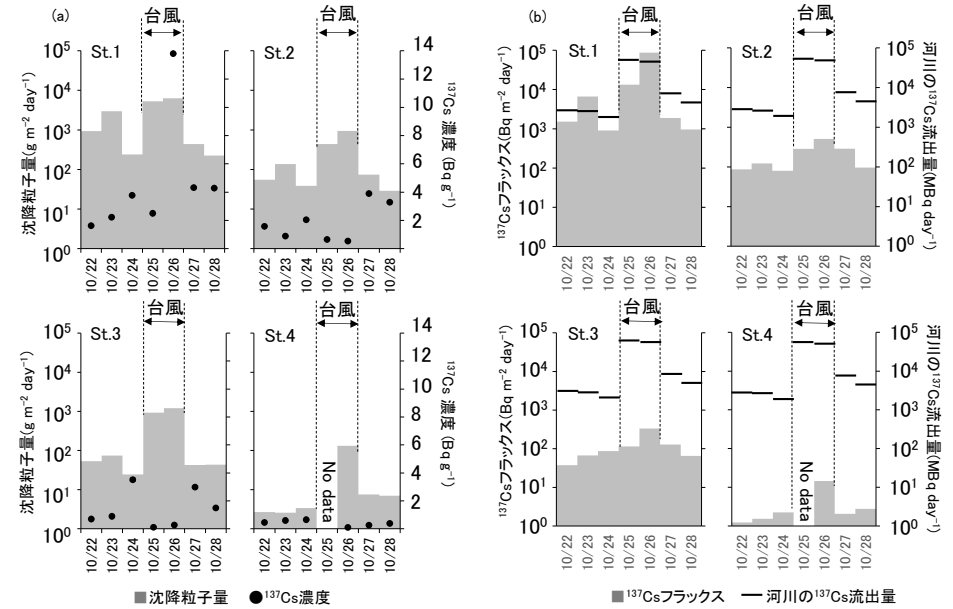


図4 沈降粒子の測定結果 (a) STで捕集した沈降粒子量を灰色の棒グラフで、<sup>137</sup>Cs濃度を黒点で示しました。(b) 沈降粒子の<sup>137</sup>Csフラックスを灰色の棒グラフで、河川の<sup>137</sup>Cs流出量を棒線で示しました。各図中に台風が接近した期間を示します。

図4(a)に沈降粒子量と<sup>137</sup>Cs濃度の日ごとの変動を示します。沈降粒子量は、台風接近時に、各地点で最も多くなるのが分かりました。また、地点ごとに比較すると、河口域に近いSt.1で最も多く、岸から14 km離れたSt.4の約100倍でした。また、St.2及びSt.3ではSt.1に比べて少ない沈降粒子量となりました。<sup>137</sup>Cs濃度はSt.1で1.6から4.3 Bq g<sup>-1</sup>、St.2とSt.3で0.1から3.8 Bq g<sup>-1</sup>、St.4で0.1から0.6 Bq g<sup>-1</sup>の範囲で推移しました。特に台風時において、河口に近いSt.1のみで最大14 Bq g<sup>-1</sup>を示した観測日がありました。

<sup>137</sup>Csフラックスは、台風接近時に大きく上昇しました(図4(b))。特にSt.1では、台風前より2桁ほど高い数値を示しました。これは、請戸川の観測点(河口から約3.5 km上流)で、JAEAが連続観測している水位(流量の指標)と濁度(河川水中<sup>137</sup>Cs濃度の指標)から推定された請戸川の<sup>137</sup>Cs流出量(流量×河川水中の<sup>137</sup>Cs濃度)の経時変化<sup>4)</sup>と同様の変動傾向を示しました。また、沈降粒子の<sup>137</sup>Csフラックスの上昇期間は、台風接近時の2日程度と短く、その後は台風前と同様

のレベルに速やかに戻る傾向を示しました。海底堆積物への沈降粒子の影響を見るために、沈降粒子の<sup>137</sup>Csフラックスが大きいSt.1に着目し、St.1周辺の海底堆積物の<sup>137</sup>Cs沈着量<sup>5)</sup>(321 kBq m<sup>-2</sup>)と沈降粒子の<sup>137</sup>Csフラックスを比較しました。台風時の<sup>137</sup>Csフラックスは13から87 kBq m<sup>-2</sup> day<sup>-1</sup>であるため、海底堆積物に対する沈降粒子の寄与率は4.0から27%程度となり、出水の影響が海底堆積物へ与える影響は小さいことが示唆されました。

本研究により、台風時における河川から海洋への流出量は請戸川河口域では顕著だったものの、概ね沿岸14 km以内に影響は留まり、期間も台風接近の一時期に過ぎないことが分かりました。また、海底堆積物への寄与も小さいことから、出水が沿岸に与える影響は小さいことが示唆されました。

本研究は、原子力規制委員会原子力規制庁からの受託研究「平成31年度放射性物質測定調査委託費(福島県近沿岸海域等における放射性物質等の状況調査)事業」の成果の一部です。

## 参考文献

- 1) Ambe et al., Five-minute resolved spatial distribution of radiocesium in sea sediment derived from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant., Journal of Environmental Radioactivity, 138, 2014, 264-275.
- 2) Nagao et al., Export of 134Cs and 137Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011, Biogeosciences, 10, 2013, 2767-2790.
- 3) 一般社団法人日本水路協会, 海底地形デジタルデータ M7000 シリーズ, 2012, CD-ROM.
- 4) Nakanishi et al., Impact of extreme typhoon events on the fluvial discharge of particulate radiocesium in Fukushima prefecture, Journal of coastal research, special issue 114, 2021, 310-314.
- 5) 原子力規制庁, 平成31年度放射性物質測定調査委託費(福島県近沿岸海域等における放射性物質等の状況調査) 事業報告書, 2020, https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/1600015193/view.html