# 核分裂生成物化学挙動の解明に向けた基礎研究

## (4)硬 X 線光電子分光による軽水炉シビアアクシデント時 Cs 化学吸着状態の研究

**Fundamental Research on Fission Product Chemistry**
**(4) Chemical state of adsorbed Cesium under LWR severe accident studied by hard X-ray photoelectron spectroscopy**

*小畠 雅明[1], 岡根 哲夫[1], 小林 啓介[1], 大和田 謙二[2],中島 邦久[1], 鈴木 理恵子[1], 逢坂 正彦[1]
[1]日本原子力研究開発機構, [2]量子科学技術研究開発機構

軽水炉シビアアクシデント時のセシウム(Cs)の化学吸着挙動を明らかにするために、原子炉構造体に使用されるステンレス鋼への Cs の化学結合状態を硬 X 線光電子分光により調査した。試料表面に吸着した Cs の化学結合状態が、ステンレス鋼基板中の Si 含有量によって異なることを明らかにした。

**キーワード**：硬 X 線光電子分光、軽水炉シビアアクシデント、化学結合状態、セシウム

### 1. 緒言

シビアアクシデント時には、高温に熱せされたステンレス鋼に含まれるケイ素(Si)と Cs が化学反応を起こし強固に化学吸着することが想定される。従って、福島第一原子力発電所(1F)廃止措置において、炉内構造材に付着したセシウム(Cs)からの被ばく線量評価および取出し工法選定等のために、Cs の付着性状を明らかにすることが重要である。そこで本研究では、原子炉構造材試料としてシビアアクシデント条件を想定した温度・雰囲気条件下でステンレス鋼（SUS304）をベースとして Si 含有量を変化させた試験片の表面に化学吸着させた Cs の化学結合状態の分布を硬 X 線光電子分光により調べた。

### 2. 実験方法

Si 含有量（0.2, 1%)の異なる SS 試験片を $Ar/H_2$ 気流雰囲気中に温度 800℃で保持し、CsOH・$H_2O$ を加熱蒸発させ SS 基板表面に Cs を吸着させた[1]。生成された吸着層(～30μm)の Cs の化学結合状態の分布を明らかにするために、試料の断面を斜め研磨して観察領域を広げる工夫を行った。さらに新規に K-B ミラー(集光系)を用いて 1μm 程度に集光した放射光をプローブとして用いる高空間分解硬 X 線光電子分光を実現した。各種の工夫・改良により、Cs 吸着層の表面から SS 基板界面までの Cs 化学結合状態及び分布を評価した。

### 3. 結果・考察

Si 含有量の異なる SS 基板に Cs を吸着した試料の吸着界面層について測定した価電子帯の硬 X 線光電子分光スペクトルを Cs 吸着前の SUS304 基板(Si 0.2%及 1.0%)並びに標準試料 $Fe_3O_4$ のスペクトルと比較したものを図 1 に示す。Cs 吸着後の各試料のスペクトルにおいて結合エネルギー10～15eV に見られる構造は Cs 5*p* 準位に由来するものである。0～10eV のスペクトル構造(主に Fe 3*d* 準位の寄与)について Cs を吸着した 2 つの試料を比較すると、Si 含有量 0.2%では、界面層の価電子帯の形状が吸着前から大きく変化し、$Fe_3O_4$ に近くなることがわかった。講演では内殻準位の測定結果とあわせて Cs 吸着による表面界面生成物の Si 濃度依存性について議論する。

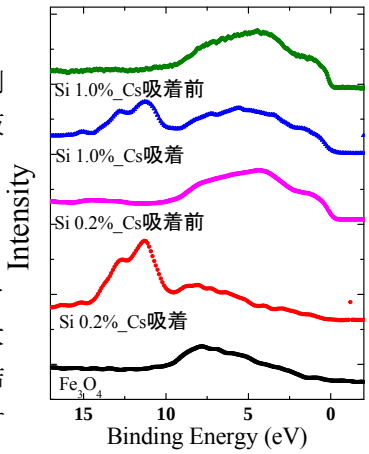


図1 硬X光電子分光により測定した価電子帯スペクトル

**参考文献**

[1] F.G. Di Lemma et al. / Nuclear Engineering and Design 305 (2016) 411–420

*Masaaki Kobata[1], Tetsuo Okane[1], Keisuke Kobayashi[1], Kenji Ohwada[2], Kunihisa Nakajima[1], Eriko Suzuki[1], Masahiko Osaka[1]
[1]Japan Atomic Energy Agency, [2]National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology