



本報告は、令和5年度開始廃炉・汚染水・処理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)の成果に関するものである。

# 燃料デブリサンプルの非破壊分析結果と 分取結果について

# 2025年 3月 21日 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 東京電力ホールディングス株式会社

本資料は、以下の内容を統合・再編集したものである。

- ・ JAEA, 2号機燃料デブリの試験的取り出しによる燃料デブリサンプルの受入れについて,廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第132回),令和 6年11月28日. https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2024/11/11/3-3-4.pdf
- ・ JAEA, 燃料デブリサンプルの非破壊分析結果, 廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第133回), 令和6年12月26日. https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2024/12/12/3-3-4.pdf
- ・ JAEA,東京電力HD,燃料デブリサンプルの非破壊分析結果(続報)と分取結果について,廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第134回), 令和7年1月30日. https://Fukushima.jaea.go.jp/debris



- 試験的取り出し作業により、2号機ペデスタル内床面から燃料デブリサンプルが採取 された。
- 11月12日に、JAEA大洗原子力工学研究所照射燃料集合体試験施設(FMF) に燃料デブリサンプルを受入れ、11月14日から非破壊分析を開始した。



燃料デブリを収納したキャスク[1]

試料容器内の燃料デブリサンプルの様子

TEP

[1] JAEA, 2号機燃料デブリの試験的取り出しによる燃料デブリサンプルの受入れについて,廃炉・汚染水・処理水対策チーム会合/事務局会議(第132回), 令和6年11月28日.





- 得られたサンプルの分析を通じて、サンプル取得箇所の状況を把握するとともに、燃料デブリ の生成過程を推定する。
- ⇒ <u>炉内状況の推定をより精緻にする</u>ことで、燃料デブリを安全に回収し十分に管理された安定 保管の実現に向けて、<u>燃料デブリ取り出し本格化に向けた検討の基礎とする</u>。

<「炉内状況の推定」から「燃料デブリ取り出し方策検討」への反映例>

- ▶ 燃料デブリの硬さの推定→取り出し工法・工具の選定
- > 燃料デブリの臨界の可能性→安全対策、保管方法の検討



- . サンプル取得箇所の状況の把握
- ▶ 廃炉ニーズに即した情報の取得
  - ✓ サンプル中の主要構成成分(核種・元素)の種類・ 濃度等を把握し、<u>各成分の由来</u>を検討
  - ✓ サンプル中の燃料成分の含有率・分布を把握
- 2. 燃料デブリ生成過程の推定
  - 事故時の炉内環境の検討を通じた、燃料デブリ性状の 推定
    - ✓ サンプル中でUを含む相の微細構造、構成相の組 成や結晶構造等から、<u>サンプルの生成条件</u>を推定
    - ✓ 既存の事故シナリオや内部調査結果との比較から、 サンプル取得箇所の周辺を評価(今後採取される 複数のサンプル分析結果を踏まえて評価)
- [2] JAEA, 令和4年度開始「廃炉・汚染水・処理水対策事業費補助金(燃料デブリの性状把握のための分析・推定技術の開発(原子炉圧力容器の損傷状況等の 推定のための技術発))2022年度最終報告.



### 1. サンプル取得箇所の状況の把握

分析項目	分析方法	評価内容	廃炉への主な活用例
基本情報 ・外観、重量 ・線量率 ・密度分布	・外観、重量、線量率測定 ・イメージングプレート(IP) ・X線CT	基本情報の整理	取り出し検討のための基本情報 (空隙の有無や多さなど)
元素含有率 (元素組成)	•ICP-MS、ICP-AES	燃料成分の含有率 主要成分の由来	臨界評価などの取り出し時の安全対 策や、保管方法の検討のための基本
同位体比	<ul><li>∙TIMS</li><li>•SIMS</li></ul>	U同位体比	情報
元素、化合物分布	•SEM-EDX、SEM-WDX •TEM-EDX	元素、化合物(空隙含 む)の分布評価	取り出し工法・工具の検討のための基本情報(硬さ、じん性の推定など)
放射能濃度	・γ線スペクトロメトリ ・a線スペクトロメトリ	注目核種とUとの帯同性	燃料デブリ取り出し時の非破壊測定 技術開発の検討ための情報

### 2. 燃料デブリ生成過程の推定

分析項目	分析方法	評価内容	廃炉への主な活用例
Uを含む相等の結晶 構造、組成	・SEM-EDX、SEM-WDX ・TEM-EDX ・ラマン分光 ・µ-XAFS ・µ-XRF ・µ-XRD	Uを含む相等の生成時 の温度、雰囲気等の推 定 U等の酸化状態	炉内状況推定図の精緻化による取り 出し工法の検討や内部調査の検討



### ・分取が終了。計画していた分析機関に燃料デブリサンプルを輸送し、詳細分析を開始した。



※1 各分析の概要及び目的を参考資料に記載











# 外観観察、重量及び線量率の測定結果 **TEPCO** 7



## <外観>

- 受け入れた燃料デブリサンプルは、不均一のサンプルであった。
- 全体的に赤褐色であり、表面の一部に黒色の部分や光沢をもつ部分が認められた。
- ・スケールにより測定した結果、大きさは約9mm×約7mmであった。

### **<重量>**0.693g

### <線量率>約8mSv/h

(γ線:電離箱を使用し、試料をポリプロピレン製の容器に収納した状態で測定(試料から1~2cmの距離)) \*なお、線量率が高く、IP像(線量分布)は取得できなかった。









### 【測定方法】

ポリプロピレン製の容器に収納した状態
 で、垂直方向に0.2mmピッチずつ撮像
 を実施し、計38枚の画像を取得。



- CT値(密度値に相関関係)で色分け、高密度の箇所と低密度の箇所を把握。
- ・空隙と推定される低CT値箇所(黒:密度低)が広く分散。
- X線CT像から算出した結果、体積は約0.1cm<sup>3</sup>であった。



# **3 Dアニメーション** (外観写真、X線CT測定結果から作成)





- ・外観写真及びX線CT像(計38枚)をもとに、3Dアニメーションを作成。
- ・内部のX線CT値の分布状況を断面で観察可能。
- JAEA福島廃炉安全工学研究所のホームページで公開。
  【URL】 <u>https://Fukushima.jaea.go.jp/debris</u>



# γ線スペクトロメトリ測定結果

10

TEPC



• Eu-154の他、核燃料中のU-238の中性子捕獲反応等で生じるAm-241が検出されている ことから、核燃料成分が含まれていると考えられる。





- サンプルの詳細分析の方針の検討のため、サンプル表面の元素分布をSEM-WDX面分析により把握した。
  - ▶ 面分析の<u>測定位置</u>は、サンプル表面の広範囲の情報を得るため、サンプルの表裏で互いに離れた位置から<u>5箇所</u>を 選定(下図 測定位置1~5参照)。
  - 点分析後に面分析を実施。
  - ▶ 面分析の<u>測定対象元素としては、U,Fe(各測定位置で共通)</u>のほか、<u>点分析スペクトルで同定された主要元素</u> <u>を追加</u>(分析期間確保のため、1視野当たりの測定対象元素数は4~5元素に限定)。





# SEM-WDX測定結果 (2/4)





燃料デブリサンプルのSEM-WDX測定結果(測定位置 $1 \sim 3$ )



# SEM-WDX測定結果 (3/4)





燃料デブリサンプルのSEM-WDX測定結果(測定位置 4  $\sim$  5)





- 非破壊分析の一環として、燃料デブリサンプル表面上の5視野を選定し、WDXの面分析 を実施し、詳細分析の方針について検討した。
- <u>どの視野においてもU及びFeが観察</u>された。ただし、Uの存在箇所とFeの存在箇所は一致しない。また、視野によってはUが少なくFeが多いと示唆される測定位置(測定位置5) もあった。
  - ⇒ 燃料デブリサンプルは不均一ではあるが、少なくとも<u>サンプルの表面にはUが広く分布</u> していると考えられる。
- このほか、<u>Zr、Cr、Ni、Si、Ca、Mg、O等</u>も観察された。
  - ⇒ 被覆管やチャンネルボックスの成分(Zr)や構造材の成分(Cr、Ni)を含むと推定 される。また、Si、Ca、Mgは、海水をはじめ様々な由来が考えられる。これらの成分の <u>由来については、今後詳細分析で検討</u>していく。
- 今後、詳細分析として、破壊分析(固体分析、溶液分析)により、燃料デブリ内部の組成、結晶構造等の性状を詳細に評価する予定。



# 燃料デブリサンプルの分取結果





塊, NDC用

塊+粒, 原科研用

塊, NFD用

※NDC, NFD, 原科研用の輸送量は各0.1g程度。SPring-8用の輸送量は合計で0.003g程度。

- ・サンプルの分取作業(棒状のステンレス(約250g)を打撃し破砕)を実施し、各分析機 関用に破砕・分取ができた。そのため、計画どおり各分析機関に輸送することとした。
- ・ 非破壊分析の結果、各分取サンプルにはUが含まれているため、サンプル形状(塊状のサンプ ルを固体分析用とし、残りを溶液分析用に分配)を基に各サンプルの輸送先を決定した。



# 分取サンプルの外観写真(拡大写真) TEPCO<sup>16</sup>



• 破砕部の表面(燃料デブリ内部)においても、黒色や光沢の領域を確認した。





#### 【まとめ】 ○非破壊分析結果

- ・ 受け入れた燃料デブリサンプルは、不均一で全体的に赤褐色であり、表面の一部に黒 色、光沢の領域が認められた。
- 大きさは約9mm×約7mm、重量は0.693g、線量率(γ線)は約8mSv/hのサンプ ルであった。
- X線CTの結果、全体的に形状およびCT値が均一ではなく、空隙が広く分散している。
- γ線スペクトロメトリ及びSEM-WDXの結果、U等の燃料成分が含まれることがわかった。
- SEM-WDXの結果、どの視野においてもU及びFeが観察され、Uはサンプルの表面に広 く分布していると考えられる。U及びFe以外に、Zr、Cr、Ni、Si、Ca、Mg、O等も観察 された。

○分取の結果

- 破砕部の表面(燃料デブリ内部)においても、黒色や光沢の領域を確認した。
- 燃料デブリサンプルを粉砕し分取できたため、計画どおり各分析機関に輸送し、詳細分析(固体及び溶液分析)を開始した。

【今後の予定】

• 詳細分析(固体及び溶液分析)を継続し、まずは夏頃を目途に結果を取りまとめ、速 報する予定である。







# 参考 デブリ分析における各項目の概要と目的 TEPCO 19

#### 燃料デブリサンプルの分析では、次の3種類の分析を活用して、サンプルの特徴や成り立ち を明らかにする。

#### ● 非破壊分析

- 【概要】 受け入れたサンプルの状態をなるべく変えずに空隙や高密度物質の分布、含まれる成分などの情報を大雑 把に把握する。
- 【目的】 サンプルの基本情報を取得するとともに、核燃料に由来する成分(ウランや放射性核種など)の有無を早期に確認する。また、後段の固体分析や溶液分析においてどの部位に注目するか、分取後のサンプルの位置情報は取得できているかといった、分析の具体的な進め方を検討する。
- 【分析方法】 外観、重量、線量率、IP、X線CT、y線スペクトロメトリ、SEM-WDX(表面)

#### ● 固体分析

- 【概要】 サンプルの一部を分取してその断面を詳細観察することにより、ウランやジルコニウムなど原子炉からき た成分が、サンプル中でどのような状態にあるか(共存元素は何か、事故前の状態を留めているか、酸化 されているか、等)を確認する。
- 【目的】 どの材料が、どのような温度・雰囲気<sup>\*</sup>のもとで反応してサンプル形成に至ったかといった、サンプルの 「成り立ち」に関わる情報を得る。
  - ※前回報告から新たに追加したSPring-8の放射光分析では、サンプル中の元素の立体的な分布やウランの価数など、 従来の電子顕微鏡をベースとした観察手法よりも詳細なデータが得られることから、事故時の温度や雰囲気につ いてより精度の高い推定が可能になると考えられる。
- 【分析方法】 SEM-EDX、SEM-WDX、TEM-EDX、SIMS、ラマン分光、µ-XAFS、µ-XRF、µ-XRD

#### 溶液分析

- 【概要】 サンプルの一部を分取して酸等に溶解させ、得られた溶解液中の元素や核種量を測定する。
- 【目的】 ウランの同位体比や放射性核種濃度といった、燃料デブリを安全に取り出す/安定に保管するための工程検 討に必要な情報を得る。
- 【分析方法】 ICP-MS、ICP-AES 、TIMS 、γ線スペクトロメトリ、a線スペクトロメトリ

一連の分析の取り組みを継続し、炉内に堆積する燃料デブリの特徴を徐々に明らかにすることで、燃料デブリの取り出しや保管における安全評価・合理化に貢献する。









P7掲載の外観写真













②奥左から撮影

外観観察作業中に剥離さ れた破片の外観 繊維状のものを巻き込んで いる様子











P7掲載の外観写真

③真上から撮影

外観観察作業中に剥離さ れた破片の外観 繊維状のものを巻き込んで いる様子











### 燃料デブリサンプルの外観(色見本、スケールとの比較) 赤褐色に一部黒色のサンプル



## <u>大型放射光施設SPring-8</u>

放射光とは、電子を光とほぼ等しい速度まで加速し、磁石によって進行方向を曲げた時に発生する、細く強力な電磁波のこと。SPring-8の名前は<u>Super Photon ring-8</u> GeV (80 億電子ボルト) に由来している。



- 1µm程度まで集光した高輝度なビームを用いるため、数µm程度の粒子でも分析が可能 である。そのため、0.01g以下のサンプル量で分析ができる。
- 1µm程度の空間分解能でµ-XRF(元素組成分析:どのような元素があるか)、µ-XRD (結晶構造解析:どのような結晶を作っているか)を行い、局所的な相状態を同定する。
- µ-XAFS測定を行い、異なる価数のU標準試料の結果と比較することで、U等の価数を推定し、U等の酸化状態を評価する。



### <u>大洗原子力工学研究所での試料準備(SEM-EDXによる予備分析)</u>

【試料の準備】放射光分析に適したサイズのものを選定。No.1及びNo2に対しては、Uを含む ことをSEM-EDX分析で事前に確認。



3つの密封試料を作製(総重量約3mg)

### 密封後試料外観(No.1)





# 参考 SPring-8用試料準備状況(2/2) TEPCO 26

### 密封後試料外観(No.2)



500µm

SEM-EDX測定結果



Uをほとんど含有せず



# 参考 分析方法略称と分析方法概要 TEPCO



分析方法略称	分析方法名	分析方法概要
ICP-AES	誘導結合プラズマ 発光分光分析	高温プラズマ中に霧状の試料を導入し、発行する光を分光することにより元素特有のスペクトル を得て、元素の定性、定量分析を行う方法。
ICP-MS	誘導結合プラズマ 質量分析	高温プラズマ中に霧状の試料を導入し、試料中の元素をイオン化し、質量分析によりイオンの 質量/電荷比(m/z)におけるイオン数を測定することにより、元素および、その同位体の濃度を 測定する方法。
TIMS	表面電離型質量分析	金属フィラメント上に試料を塗布し、真空下で加熱することにより原子をイオン化し、質量分析に よりイオンの質量/電荷比 (m/z)におけるイオン数を測定することにより、元素および、その同位 体の濃度を測定する方法。
SEM	走查型電子顕微鏡	試料表面に電子線を照射し、表面を観察する装置で、X線分析装置を付帯させることにより、 元素分析を行うこともできる。
EDX	エネルギー分散型 X線分析	電子線照射により発生する特性X線を検出し、特性X線のエネルギーで分類し、元素分析や 組成分析を行う方法。
WDX	波長分散型X線分析	電子線照射により発生する特性X線を検出し、特性X線の波長で分光して元素分析や組成 分析を行う方法。
ТЕМ	透過型電子顕微鏡	薄片化した試料に電子線を照射し、試料を透過した電子や散乱した電子を結像して高倍率 で観察する方法で、X線分析装置を付帯させることにより元素分析を行うこともできる。また、回 折像から結晶構造を得ることができる。
SIMS	二次イオン質量分析	試料表面にビーム状のイオンを照射し発生した二次イオンを質量分析計で測定することにより、 イオンの質量/電荷比 (m/z)におけるイオン数を測定することにより、元素および、その同位体 の濃度を測定する方法。
ラマン分光	顕微ラマン分光分析	試料表面に光を照射し、ラマン散乱光を分光して、分子構造、温度、応力、電気的特性、配向・結晶性等の物性を得る方法。従来の光学顕微鏡とラマン分光法とを組み合わせ、μmオー ダーの微小領域の化学形態に関する情報を得ることができる。
X線CT	X線コンピュータ 断層撮影	試料にX線を照射し、透過してくるX線強度をコンピュータに取り込み、三次元的にスキャンする ことにより、試料の内部の密度分布を得る方法。異なる密度の相の分布が得られる。



# 参考 分析方法略称と分析方法概要 **TEPCO** 28

分析方法略称	分析方法名	分析方法概要
XAFS	X線吸収微細構造 解析	試料にX線を照射し吸収されるX線のエネルギーを精密に観察し物質の内部構造を分子、原 子レベルで分析を行う方法
XRF	蛍光X線分析	試料にX線を照射して発生する、物質に応じて発生するX線(蛍光X線)の波長やエネルギー を測定して構成する元素の含有量を定量分析する方法
XRD	X線回折法	試料にX線を照射して、得られるX線(回折X線)を測定し対象物の結晶構造、結晶方位、 結晶格子サイズなどを解析する方法
IP	イメージングプレート	放射線エネルギーを輝尽発光として検出する放射線画像測定器。サンプルの線量分布が取得 可能