1号機格納容器底部堆積物の分析状況

2023/12/21

東京電力ホールディングス株式会社

「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）」に係る補助事業の成果を含む。

TEPCO

1．はじめに

- 2023年1~2月、1号機原子炉格納容器（PCV）内のペデスタル外周部において底部堆積物の表層を水中ロボット（ROV-E）を用いて採取した。採取位置は下図①~④の 4か所。
- 堆積物取得箇所の状況把握、堆積物の生成過程検討を行い、RPV・PCV内の状況把握に活用することを目的に、1F所外の分析機関に輸送し詳細分析を進めている。
- PCV内部調査では、ペデスタルのコンクリートが一部損傷していることが確認されているため、コンクリートが経験した温度など損傷メカニズム解明に関する情報が得られることも期待して分析を進める計画である。
- 本資料は、ペデスタル開口部（作業員アクセス口）に最も近い位置で採取した試料（採取位置③）に関するSEM/EDS分析結果を報告するもの。

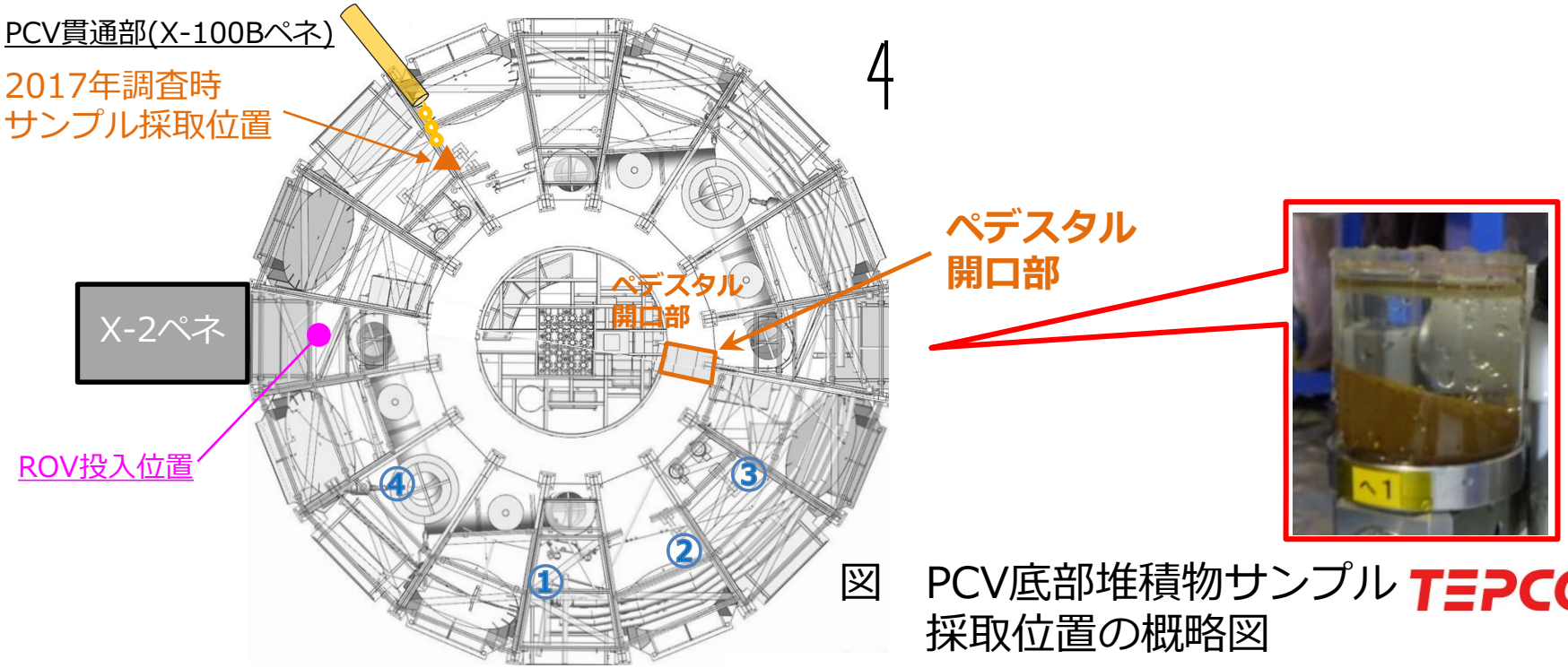


図　PCV底部堆積物サンプル採取位置の概略図

TEPCO

2．分析の計画

■ 10月~11月、サンプルは茨城県内の4施設に輸送を実施した。
■ 現在、各施設で分析を順次進めている。（2023年度末目途）

MHI原子力研究開発株式会社
- 光学顕微鏡、SEM/EDS
- XRD
- 質量分析（ICP-MS）

日本核燃料開発株式会社
- 光学顕微鏡、SEM/EDS、TEM/EDS/電子線回折
- 局所ナノラマン測定

JAEA大洗研究所
- イメージングプレート
- 光学顕微鏡、SEM/WDS、TEM/EDS
- 放射線分析（α、γ）、質量分析（ICP-MS）

JAEA原子力科学研究所
- 放射線分析（α、γ）、質量分析（ICP-AES、TIMS）

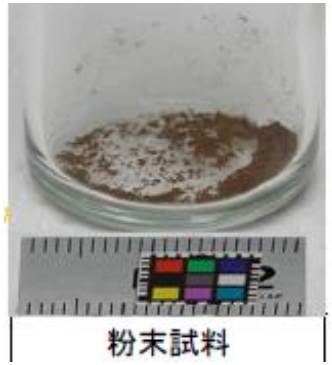
※本資料で掲載した分析項目について、赤字下線で示す。

3．サンプル受け入れの状況

受け入れ試料

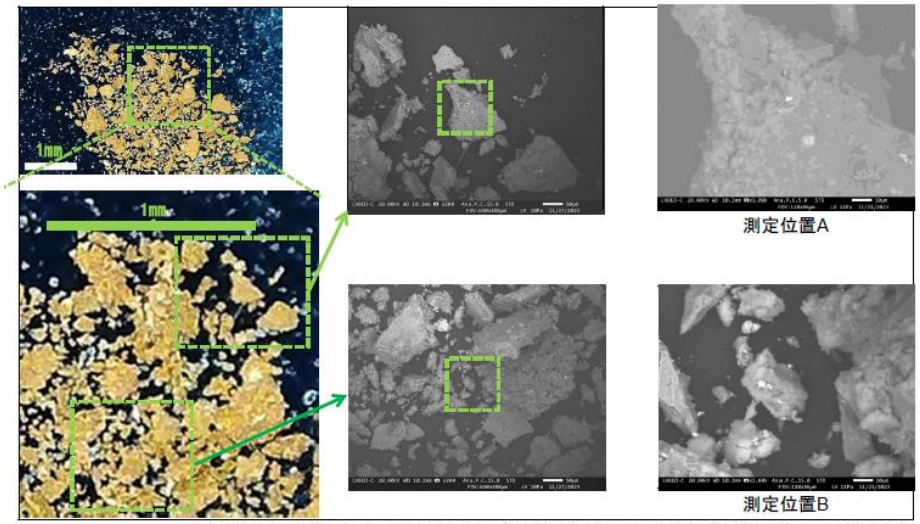
吸引ろ過により
沈殿物を分離

粉末試料回収



粉末試料

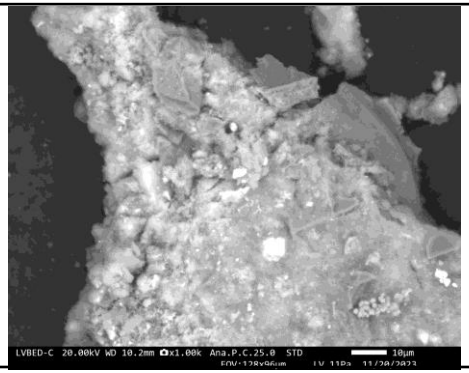
光学顕微鏡、
SEM/EDS観察

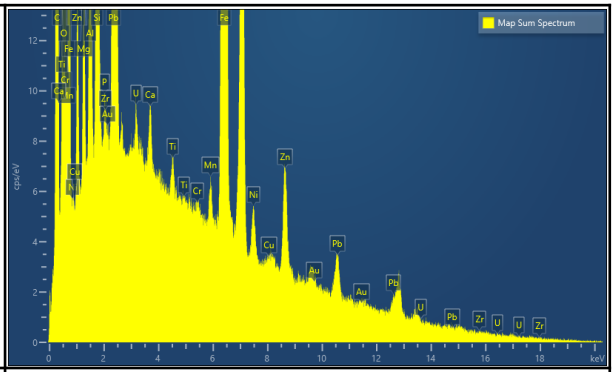


※SEM観察時には電子ビームによる加熱でCテープの伸縮が生じるために、光顕像と電子像とは若干形状が変化する

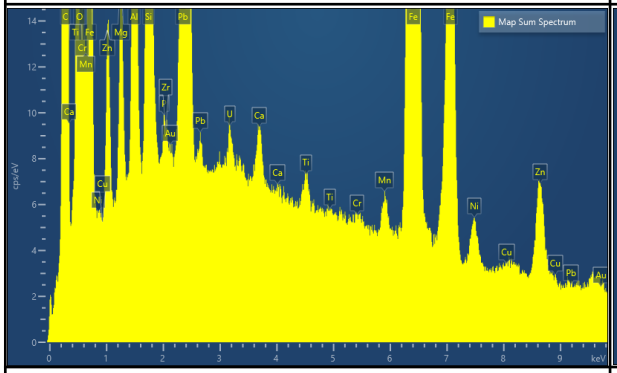
4．SEM/EDS分析結果（組成分析）

- SEM/EDS分析により、130μm×100μm程度の範囲での元素組成を測定（面分析）。
- Oが72at%と多く、酸化物が多く含まれる。
- その他、Fe（13 at%）、Si、Alが多く検出された。

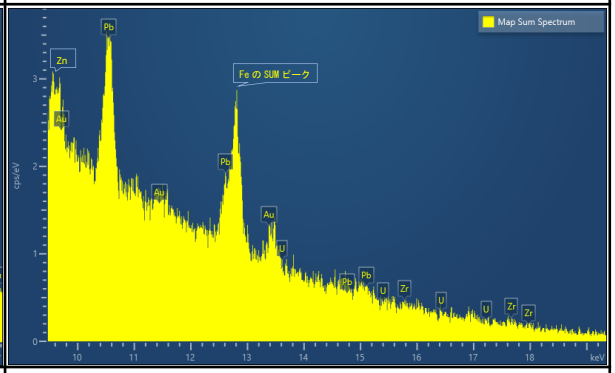




X線スペクトル（全体）



X線スペクトル（0~10keV）



X線スペクトル（10~20keV）

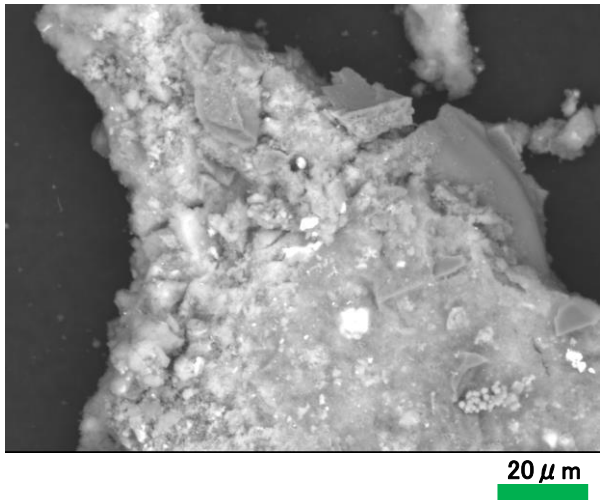
元素	N	O	Na	Mg	Al	Si	P	S	Cl	K	Ca	Ti	Cr	Mn	Fe
at%	7	72	0.33	0.70	1.8	2.4	0.05	0.16	≦0.01	0.00	0.09	0.07	0.02	0.12	13
元素	Co	Ni	Cu	Zn	Sr	Zr	Nb	Mo	Sn	Cs	Tb	Tm	Pb	U	―
at%	0.19	0.26	0.02	0.70	0.02	0.02	0.00	0.02	≦0.01	0.00	0.02	≦0.01	0.42	0.05	―

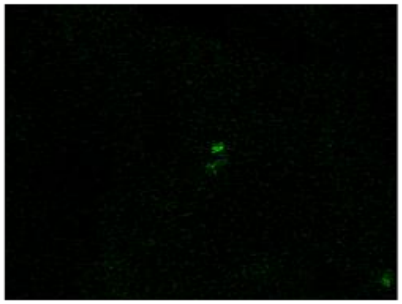
※数値は分析装置の出力した数値そのままを記載したものであり参考値。
※サンプルを固定するためのカーボンテープにCが含まれていることから、分析結果から除外。

MHI原子力研究開発　TEPCO

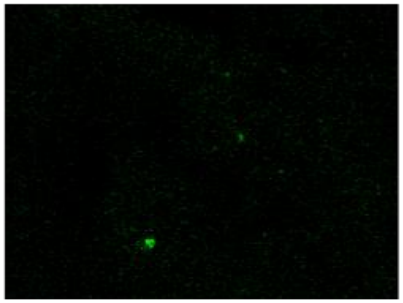
5．SEM/EDS分析結果（元素マッピング像）

- 粒子全体にFe、Oが存在し、鉄さびが主成分である。
- U、Zrを含有する粒子が点在し、燃料由来と考えられる。
- Si、Al、Mgを含む粒子が点在し、PCVのコンクリート、保温材等に由来する可能性がある。
- 上記の観察結果は2017年採取試料と類似している。

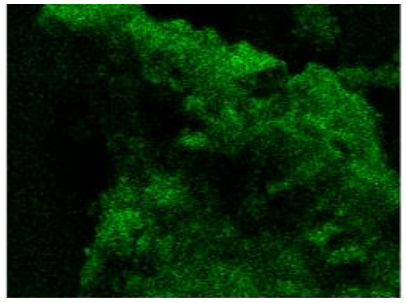




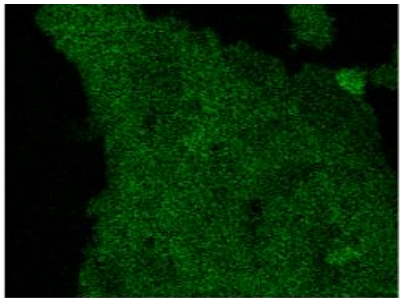
U



Zr

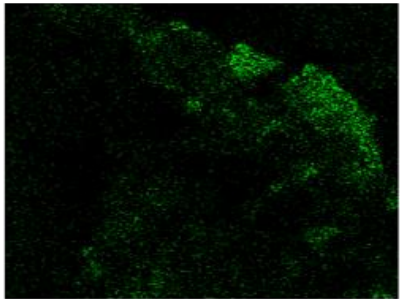


O

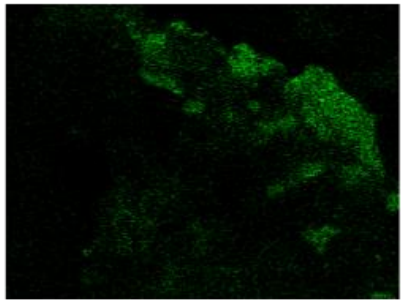


Fe

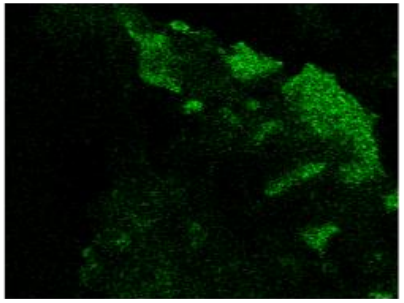
50μm



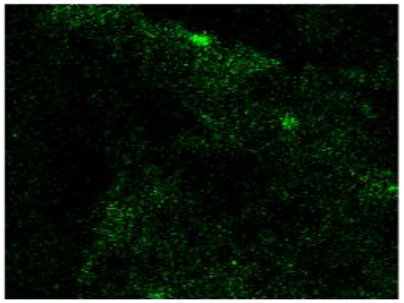
Mg



Al



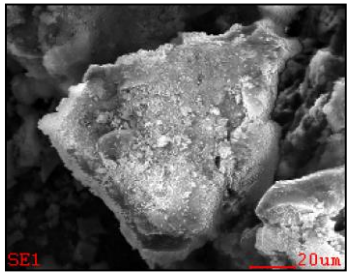
Si



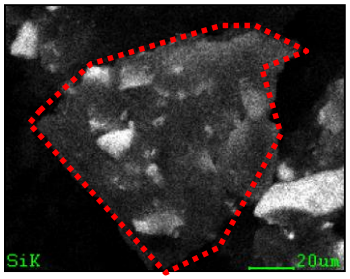
Zn

6． SEM/EDS分析結果（Uを含むSi含有領域）

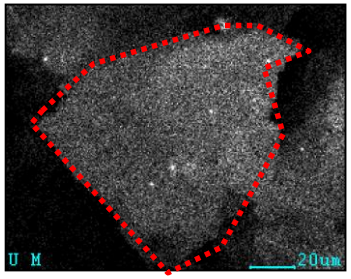
- 多くはないものの、Uを含むSi含有粒子が存在している。
  - Si含有粒子全体に、均一にUが分布している。
  - Uの存在状態（粒子表面にUが付着しているか、粒子内部にもUが存在するか）は不明。
- 溶融燃料（U）がコンクリート、保温材等と反応した場合には、Si含有粒子内部にUが存在すると考えられることから、粒子内でのUの存在状態を知ることは事故進展の把握に役立つ可能性がある。
- 上記のようなU存在状態を知るためには詳細分析が必要
  - 当該粒子または同様の粒子について、 TEM/EDS/電子線回折を用いた詳細観察を実施予定。
  - Uの存在状態、 Si-O（ケイ素酸化物）の結晶構造が分かれば、粒子が経験した温度域が分かる可能性がある。



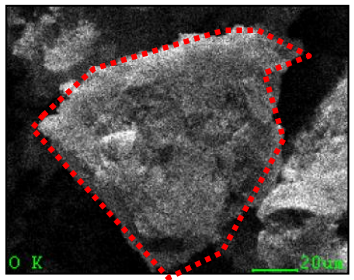
SEM像(SEI) 20μm



Si
Siは点線部の粒子全体に存在



U
Uは点線部の粒子全体に存在

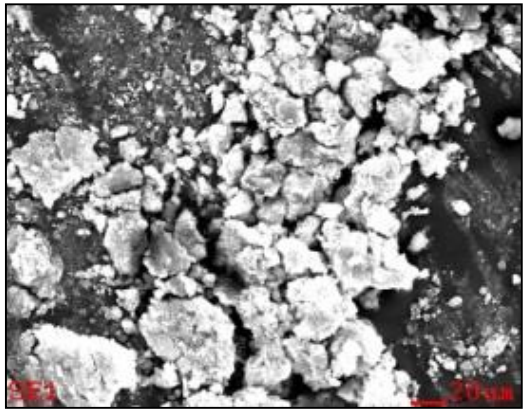


O
Oは点線部の粒子全体に存在

７．まとめ

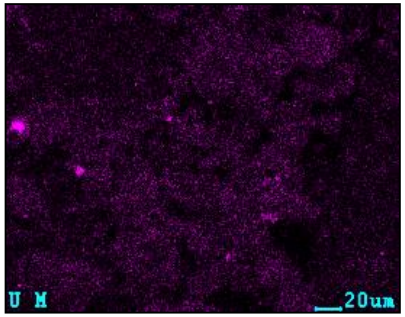
- ペデスタル開口部に最も近い位置から採取した試料についてSEM/EDS分析を実施。（現在、詳細に精査中）
- 2017年にペデスタル開口部から離れた位置から採取した試料と概略は類似
  - 鉄さび上にウラン含有粒子が点在していることを確認
  - Si、Al、Mgを含む粒子が点在し、PCVのコンクリート、保温材等に由来する可能性がある。
- 多くはないものの、Uを含有するSi含有粒子が存在
  - 今後、TEM/EDS/電子線回折を進める予定。
  - Si-O中のUの存在状態、結晶構造を確認し、粒子の経験温度の推定に活用。
- 他の採取位置、分析項目についても引き続き進める。（2023年度末目途）

（参考）2017年調査で取得した1号機PCV堆積物の分析結果



SEM像（SEI）

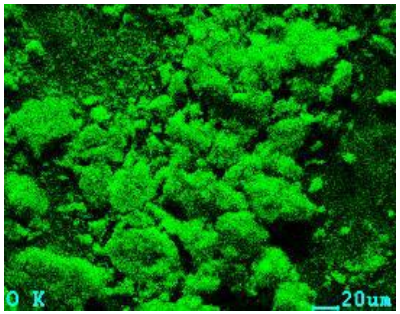
20μm



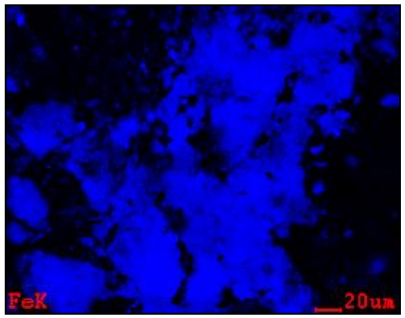
U

Zr

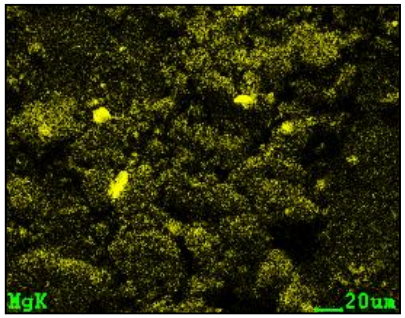
20μm



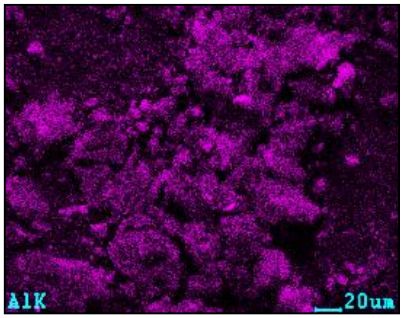
O



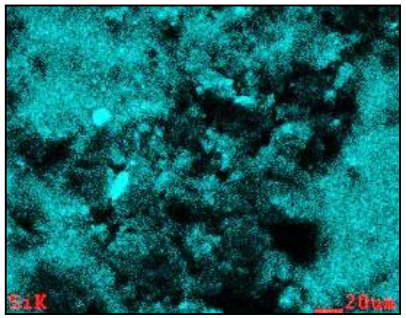
Fe



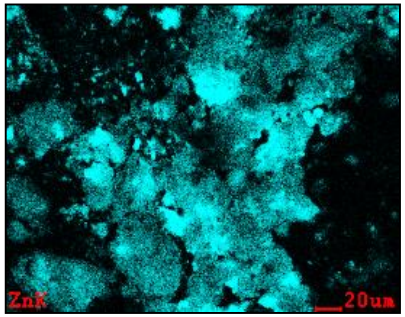
Mg



Al



Si



Zn

（参考）分析手法の概要

- イメージングプレート
  再利用可能な写真乾板のようなものにサンプルを接触させ一定時間経過させると，放射線強度に応じた記録が残る。これを専用の装置で読みだすと，サンプルの汚染分布がわかる。大まかにどこが汚染しているかを簡便に調べ，後段の分析を効率よく進めるために使用。
- SEM: Scanning Electron Microscope（走査型電子顕微鏡）
  電子顕微鏡の一種でサンプルに電子ビームをあて表面から放出される，または，反射した電子を測定することで，試料表面を観察するもの。EDSと合わせて用いることで試料表面の元素分布を取得することができる。
- TEM : Transmission Electron Microscope（透過型電子顕微鏡）
  試料を透過した電子を使って、微小領域の材料評価を行う。
- EDS: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy（エネルギー分散型X線分光法）
  特性X線を用いてサンプル中の元素の濃度を測定する方法。同時に複数元素を測定可能。
- WDS : Wavelength-dispersive X-ray Spectroscopy（波長分散X線分光法）
  試料に電子線を当て，試料に含まれる原子から出てきた特性Ｘ線を分光結晶（分光器）で波長ごとに回折し、その波長と強度から、試料に含まれる元素と含有率を求める。
- 電子線回折
  試料表面に電子線を入射させて反射した回折電子を観察する方法で、結晶構造を解析する。
- ラマン測定
  入射光と異なった波長をもつ光（ラマン散乱光）の性質を調べることにより、物質の分子構造や結晶構造などを知る手法。
- XRD : X-ray diffraction（X線回折法）
  試料にＸ線を照射した際、Ｘ線が原子の周りにある電子によって散乱、干渉した結果起こる回折から対象物の結晶構造、結晶方位、残留応力、転位密度、結晶子サイズなどを解析する。
- ICP-MS: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry（誘導結合プラズマ質量分析）
  サンプル中の元素の質量数ごとの濃度を測定することができる。サンプルを水や硝酸などの溶媒に溶かした上で分析を実施する。
- TIMS : Thermal Ionization Mass Spectrometer（表面電離型質量分析計）
  フィラメントに通電して高温で加熱することによって試料中の元素をイオン化し、イオン化された元素を加速して磁場をかけることで各同位体の分離と定量的検出を行う装置。

TEPCO