

# 燃料デブリサンプルの非破壊分析結果

2024年 12月 26日

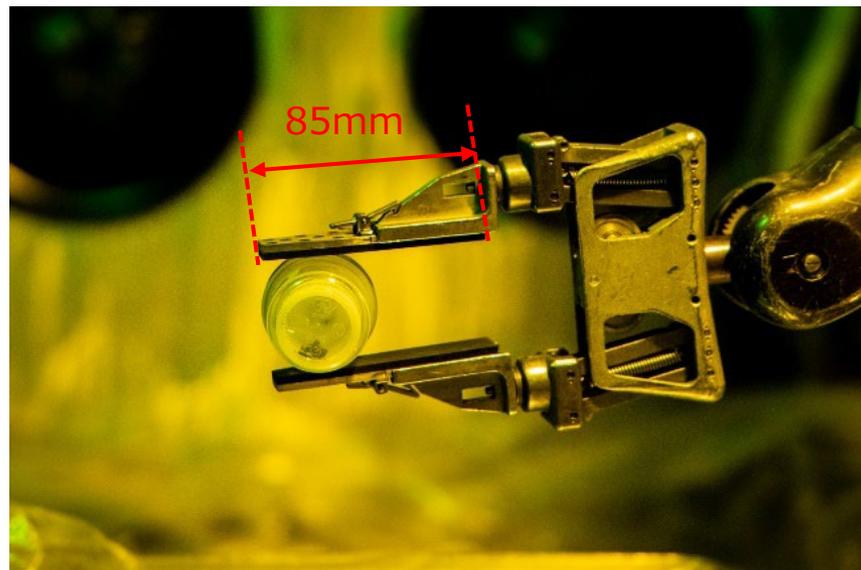
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

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。

- 試験的取り出し作業により、2号機ペDESTAL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<sup>[1]</sup>



試料容器内の燃料デブリサンプルの様子<sup>[1]</sup>

[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.

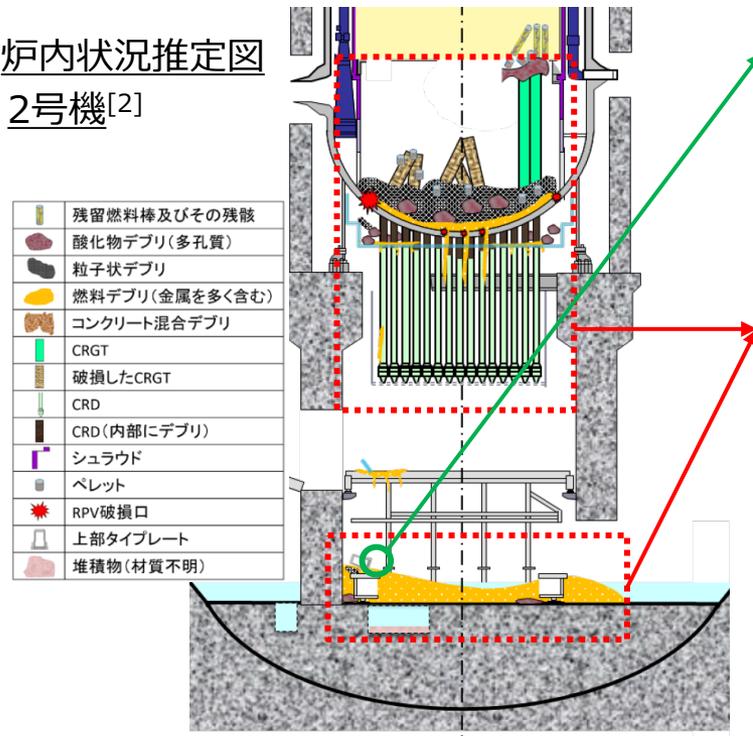
● 得られたサンプルの分析を通じて、サンプル取得箇所の状況を把握するとともに、燃料デブリの生成過程を推定する。

⇒ 炉内状況の推定をより精緻にすることで、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、燃料デブリ取り出し本格化に向けた検討の基礎とする。

＜「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

炉内状況推定図  
2号機<sup>[2]</sup>



1. 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、各成分の由来を検討
  - ✓ 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、サンプルの生成条件を推定
  - ✓ 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情報
同位体比	・TIMS ・SIMS	U同位体比	
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	・ $\gamma$ 線スペクトロメトリ ・ $\alpha$ 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 ・ $\mu$ -XAFS $\mu$ -XRF ・ $\mu$ -XRD	U粒子等の生成時の温度、雰囲気等の推定 <b>U等の酸化状態</b>	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

赤字：大型放射光施設SPring-8の分析による追加

分析方法の略語については末尾の略語集を参照

- 分析の優先順位を設定し、サンプルの分取状況に応じて対応※1
- 大型放射光施設SPring-8での分析を追加し、U等の酸化状態等を評価する予定

【福島第一原子力発電所 2号機】

↓燃料デブリ輸送

【JAEA大洗研】

X線CT  
外観、重量、線量率、IP  
γ線スペクトロメトリ  
SEM-WDX

非破壊分析※2

**進捗** ※1 サンプルの量や分取状況によって分析を実施しない項目もある。

- 11/12燃料デブリの受入れ
- 11/14分析開始（X線CT測定開始）
- 非破壊分析まで終了

大洗研：大洗原子力工学研究所  
原科研：原子力科学研究所  
NDC：MHI原子力研究株式会社  
NFD：日本核燃料開発株式会社

分取 【JAEA原科研】 【NDC】 【NFD】

【SPring-8】

固体分析※2  
(機械分析)

溶液分析※2  
(化学分析)

主要な  
分析結果

μ-XAFS  
μ-XRF  
μ-XRD

優先①  
SEM-WDX  
TEM-EDX  
SIMS

優先④  
ICP-MS  
放射能分析

優先②  
ICP-AES  
TIMS  
放射能分析

優先⑤  
ICP-MS  
ICP-AES

優先③  
SEM-EDX  
TEM-EDX  
ラマン分光

微小結晶  
構造  
U等の価数

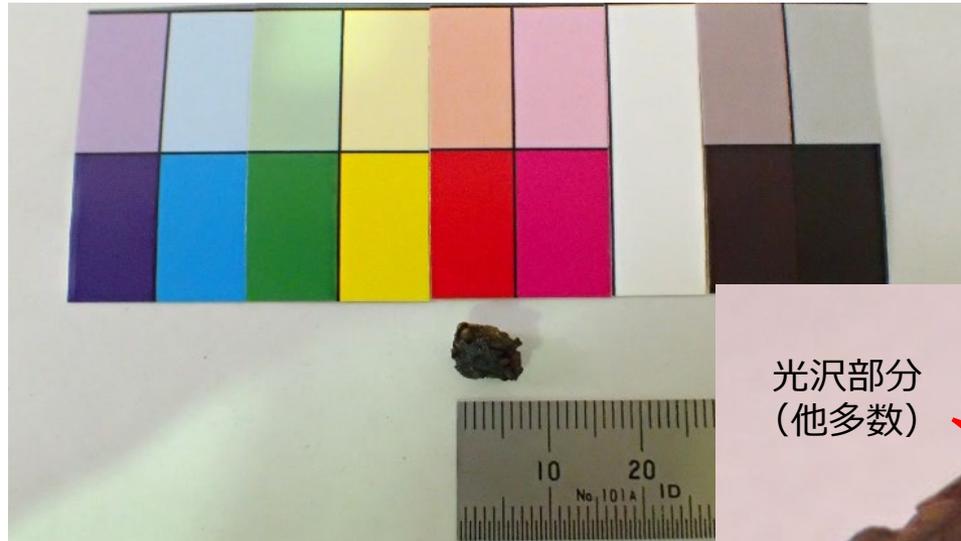
燃料成分元素組成  
U同位体比  
元素,化合物分布  
放射能濃度

主要元素組成  
U同位体比  
放射能濃度

主要元素組成  
微量元素組成  
U同位体比

U結晶構造、  
組成、  
元素分布

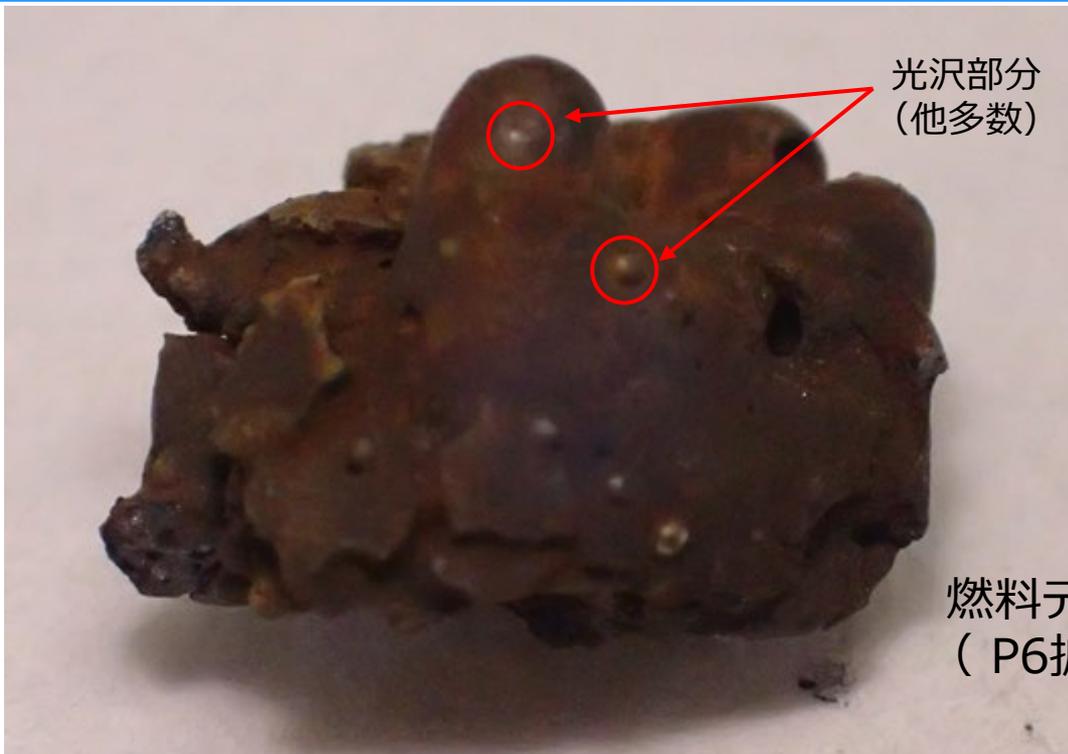
※2 各分析の概要及び用途（目的）を参考資料に記載



燃料デブリサンプルの外観  
(色見本、スケール付)



燃料デブリサンプルの外観・拡大写真  
(斜め約45度の角度から撮影)



光沢部分  
(他多数)

燃料デブリサンプルの外観・拡大写真  
( P6拡大写真の裏側：斜め約45度  
の角度から撮影)

## <外観>

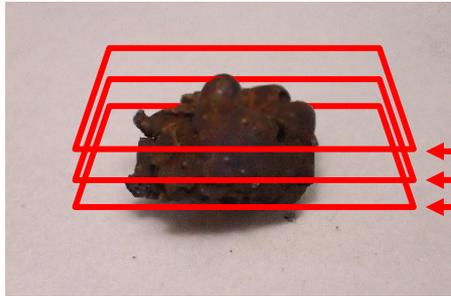
- 受け入れた燃料デブリサンプルは、不均一のサンプルであった。
- 全体的に赤褐色であり、表面の一部に黒色の部分や光沢をもつ部分が認められた。
- スケールにより測定した結果、大きさは約9mm×約7mmであった。

<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。

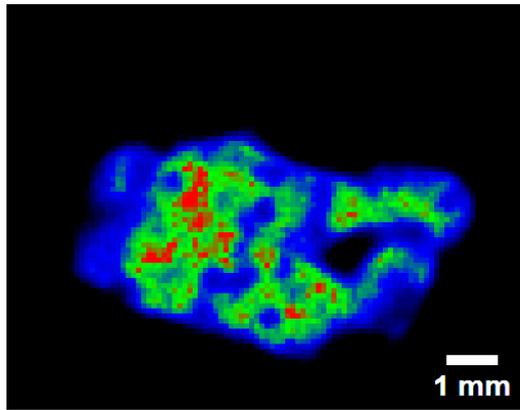


中央から1mm上部(A)  
中央(B)  
中央から1mm下部(C)

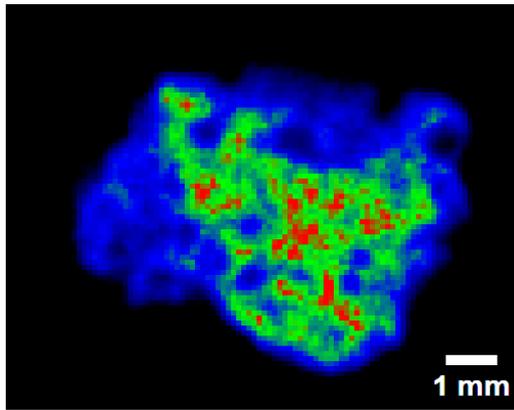
燃料デブリサンプルの外観 (X線CT撮像位置)

### 【測定方法】

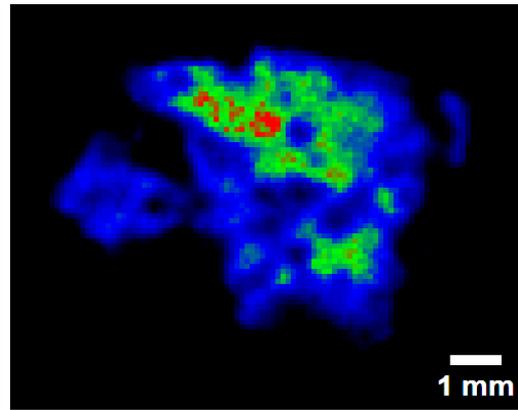
- ポリプロピレン製の容器に収納した状態で、垂直方向に0.2mmピッチずつ撮像を実施し、計38枚の画像を取得。



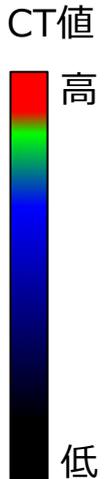
中央から1mm上部(A)



中央(B)



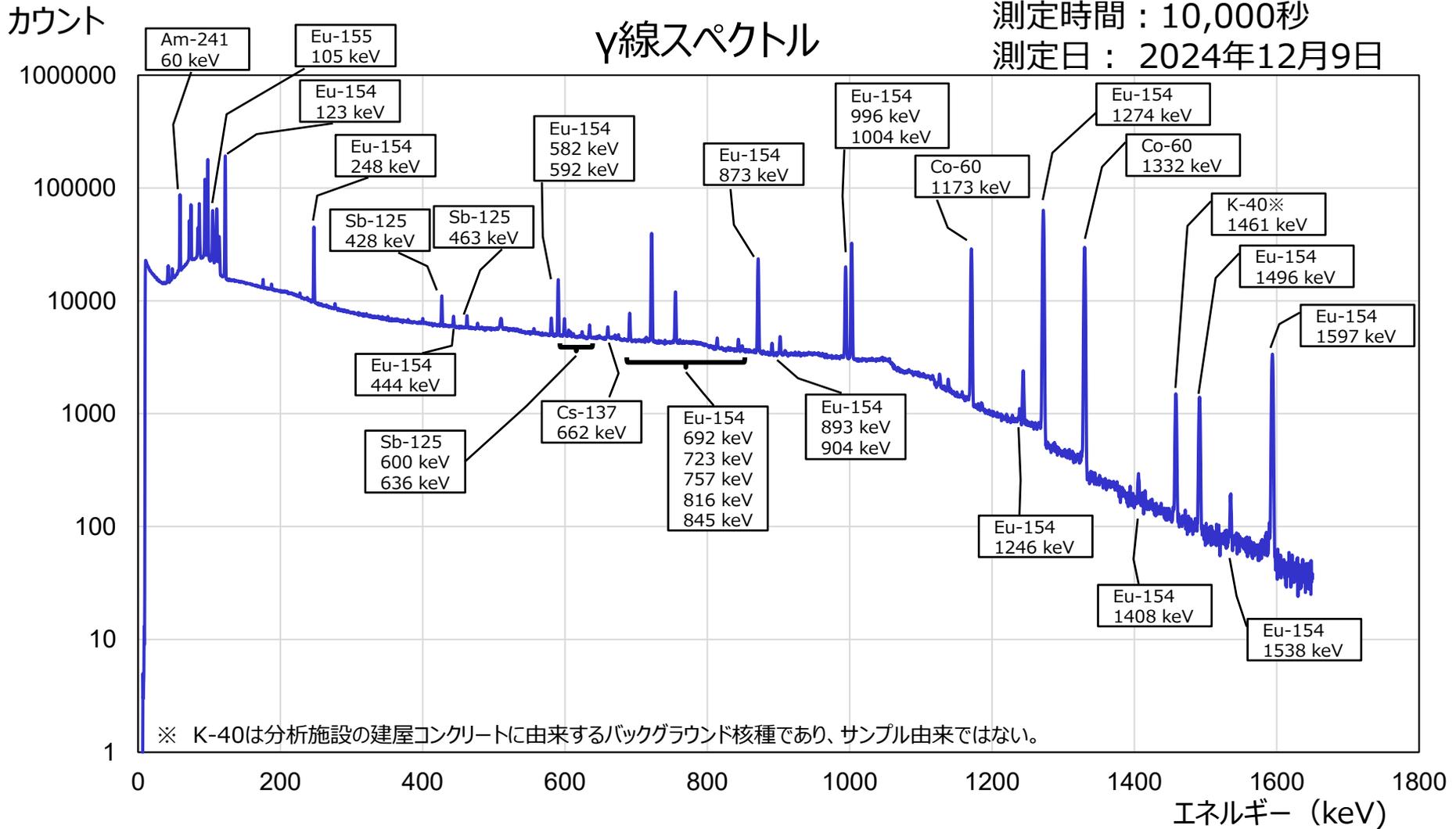
中央から1mm下部(C)



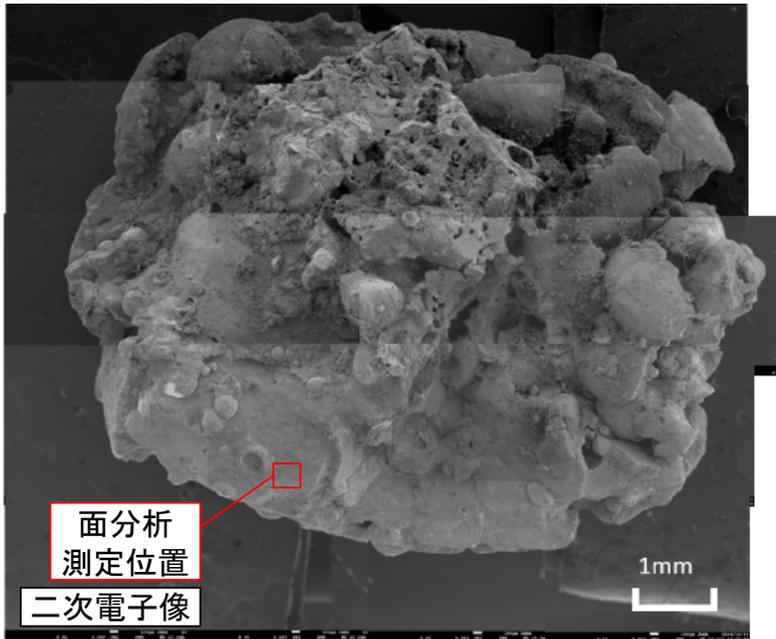
### 燃料デブリサンプルのX線CT像

※X線透過撮影データからCT (Computed Tomography : 断層撮影) 像を構築

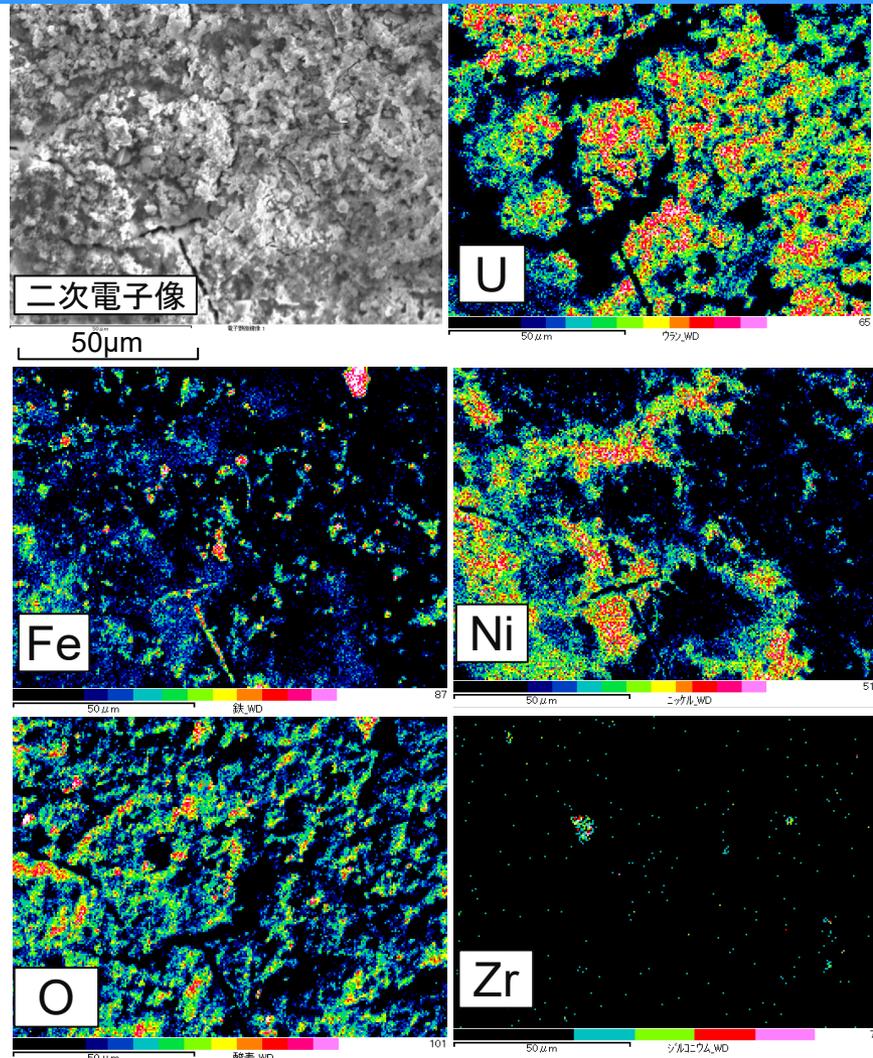
- CT値 (密度値に相関関係) で色分け、高密度の箇所と低密度の箇所を把握。
- 空隙と推定される低CT値箇所 (黒 : 密度低) が広く分散。
- X線CT像から算出した結果、体積は約 $0.1\text{cm}^3$ であった。



• 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。



燃料デブリサンプルのSEM観察結果  
(P6の外観写真とほぼ同じ面から撮影)



燃料デブリサンプルのWDX面分析測定結果  
(凡例右側の色ほど元素が含まれている)

- WDXの結果、表面に広くUを含む箇所があることを確認した。また、Fe、Ni、O、Zrも確認した。
- 固体分析、溶液分析により、詳細を評価する予定。

## 【まとめ】

- 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（ $\gamma$ 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。
- $\gamma$ 線スペクトロメトリ及びSEM-WDXの分析結果から、U等の燃料成分が含まれることがわかった。
- 上記に示したように、非破壊分析の目的（サンプルの基本情報の取得と燃料成分の有無を早期に確認）は達成できた。

## 【今後の予定】

- 燃料デブリサンプルを分取し、分析機関を決定、輸送する。
- 分析機関への輸送においては安全確保に最大限留意し、計画している詳細分析（固体及び溶液分析）を開始する。
- 今後半年から1年程度かけて詳細分析（固体及び溶液分析）を実施し、結果の取りまとめを行う予定であるが、評価結果については節目で速報に努める。



①

P7掲載の外観写真



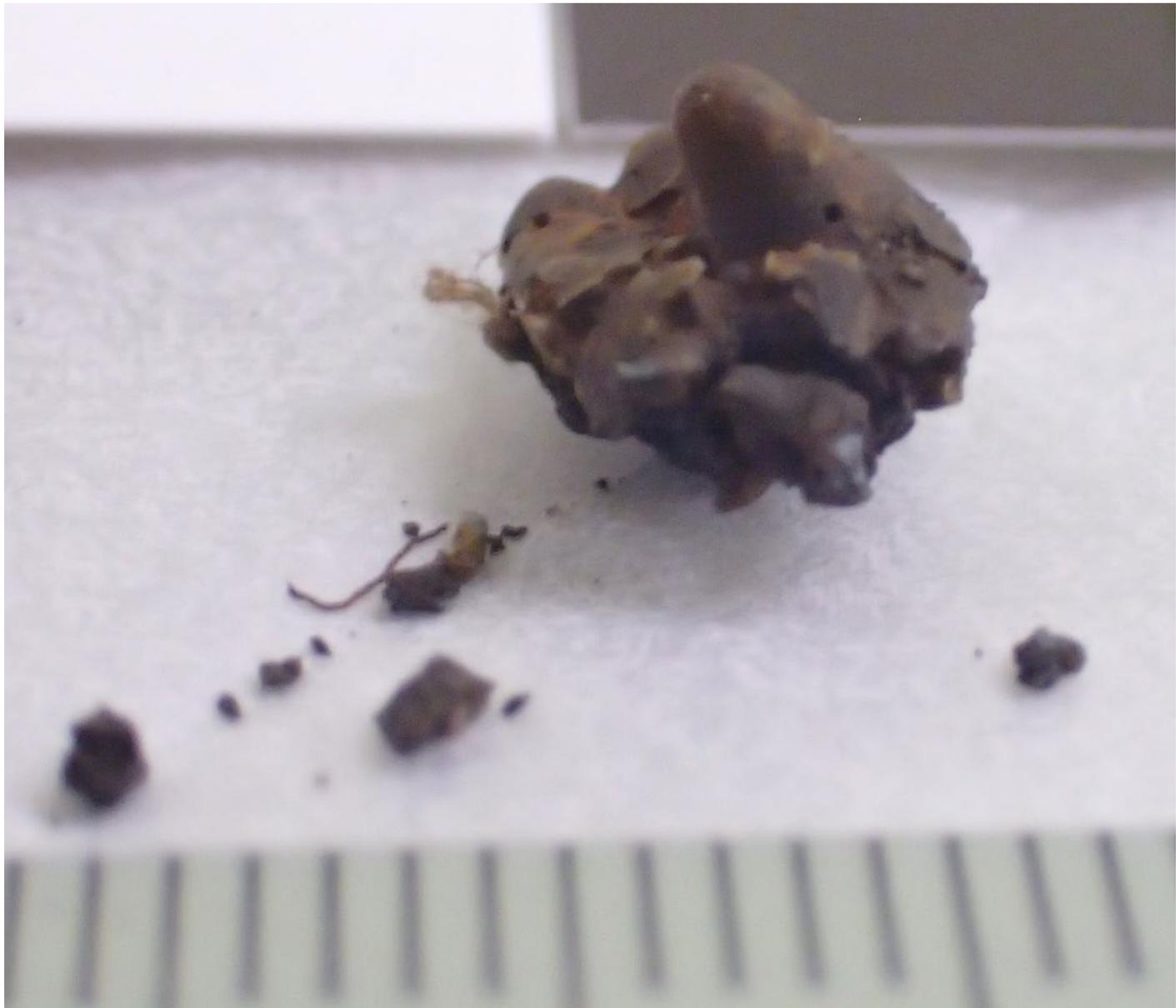
①奥右から撮影  
所々に空隙が観察された



P 7 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



③



P 7 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

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、どのデータをどれくらいの精度で取得するかといった、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、 $\gamma$ 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※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、 $\mu$ -XAFS、 $\mu$ -XRF、 $\mu$ -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、 $\gamma$ 線スペクトロメトリ、 $\alpha$ 線スペクトロメトリ

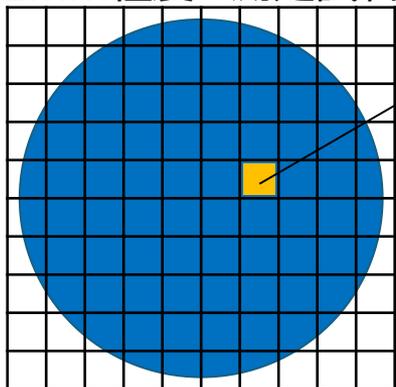
一連の分析の取り組みを継続し、炉内に堆積する燃料デブリの特徴を徐々に明らかにすることで、燃料デブリの取り出しや保管における安全評価・合理化に貢献する。

## 大型放射光施設SPring-8

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Super Photon ring-8 GeV (80億電子ボルト) に由来している。

引用: [www.spring8.or.jp/ja/about\\_us/whats\\_sp8/](http://www.spring8.or.jp/ja/about_us/whats_sp8/)

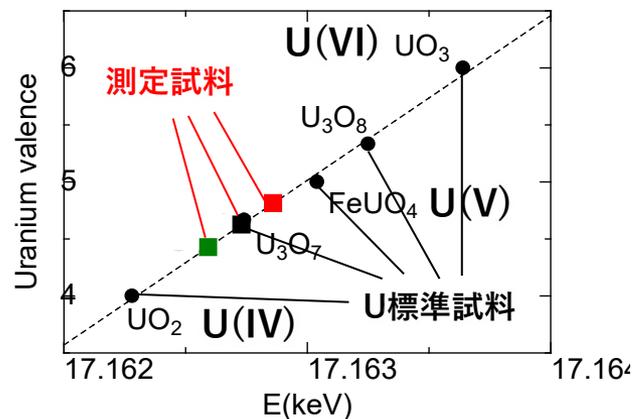
1mm程度の測定試料



- $\mu$ -XRF (元素組成分析)
  - $\mu$ -XRD (結晶構造解析)
- ↓
- 相状態の推定
- ↓
- $\mu$ -XAFS (価数等の測定)

} 1 $\mu$ m程度の空間分解能

測定イメージ

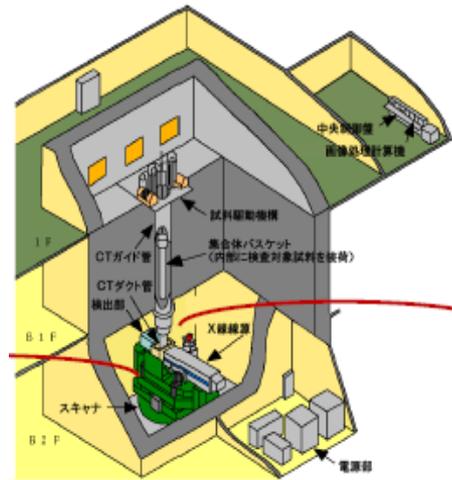


XAFSによるUの価数評価イメージ

- 1 $\mu$ m程度まで集光した高輝度なビームを用いるため、数 $\mu$ m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。
- 1 $\mu$ m程度の空間分解能で $\mu$ -XRF(元素組成分析:どのような元素があるか)、 $\mu$ -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。
- $\mu$ -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。

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	走査型電子顕微鏡	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。
TEM	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、 $\mu\text{m}$ 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。

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



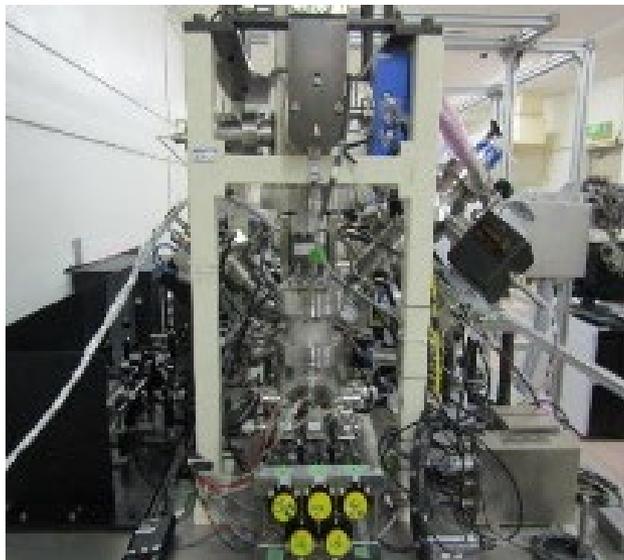
X線CT装置 (構造図)



SEM-WDX装置



TEM-EDX装置



SIMS装置



ICP-MS装置

## －γ線スペクトロメトリの解釈－

- 核燃料物質の燃焼による核分裂反応、捕獲反応及び原子核の壊変により、多くの核種が生成される<sup>[3]</sup>。
  - 核分裂反応では、Sr-90、Cs-137、Eu-154等が生成され、Eu-154は、燃焼に対して増加し、ガンマ線による検出が容易であり、燃焼度を推定する指標としても利用される。
  - 核燃料物質中のU-238は中性子を捕獲することなどの反応を繰り返し、段階的に中性子数または原子番号を増やしていき、様々なアクチノイド核種（Am-241等）が生成される。
- 一方、原子炉の運転において、中性子が吸収されることにより、構造材やコンクリート成分が放射化され、Co-60、Eu-152、Eu-154等が生成される<sup>[4]</sup>。
- 以上から、γ線スペクトロメトリ測定結果により、Eu-154の他に、燃料成分にのみ由来するAm-241が検出されたことで、サンプルに燃料成分が含まれていると考えている。

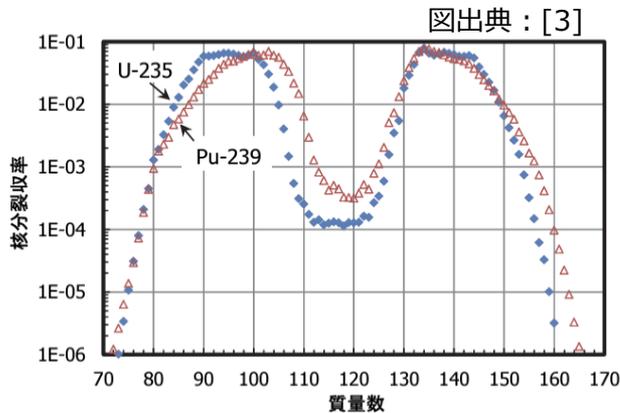
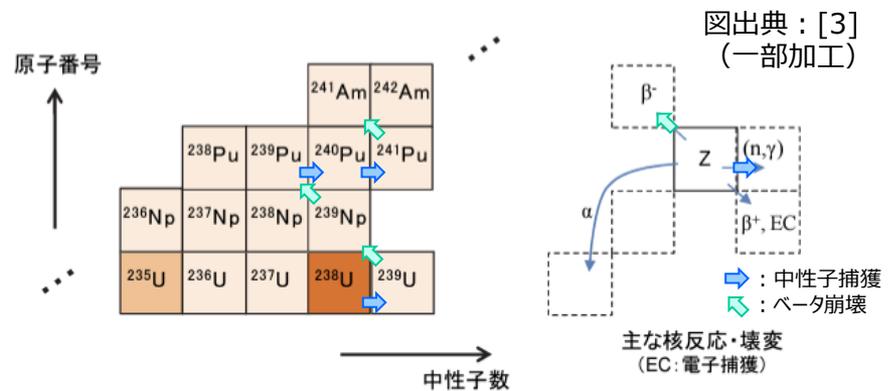


図 8-8 核分裂収率

(JANIS-4.0[1]より JENDL-4.0 の熱中性子に対する独立収率を引用)

核分裂反応により、質量数が80～110前後及び130～150前後の核種（Eu-154等）が多く生成される



Am-241の生成過程

U-238の中性子捕獲、その後のベータ崩壊など、一連の反応により、Am-241が生成される

[3] 日本原子力学会炉物理部会, 原子炉の物理 第8章 核燃料の燃焼, 2019年12月.

[4] ATOMICA 05-01-04-07