

走査電子顕微鏡による各種配合の超重泥水の微視的な構造観察

早稲田大学 学生会員 ○根本大志

早稲田大学 正会員 小峯秀雄, 王海龍, 伊藤大知, 山田味佳, 阿部慎太郎 フェロー会員 後藤茂
オリエンタル白石 (株) 正会員 鈴木忠勝, 本間美湖
NB 研究所 正会員 氏家伸介, 成島誠一

1. 目的

福島第一原子力発電所の廃炉における、燃料デブリ取出し後の工程の一案として、燃料デブリの地下式中間保管施設が提案されている^{1),2)}。図1には、地下式中間保管施設における燃料デブリの収納缶格納容器内の模式図を示す。図1の通り、燃料デブリ収納缶周辺には、放射線の遮蔽を目的として土質系材料「超重泥水」の活用が検討されている。著者らは、上述の提案に基づく超重泥水からの燃料デブリ収納缶の取出し時を想定し、ステンレス製ロッドの超重泥水からの引抜き抵抗調査を進めてきた。超重泥水の配合を変化させた場合のステンレス製ロッドの引抜き抵抗測定の結果³⁾、材料配合により抵抗要因が変化することが推察された。そこで、本研究では、超重泥水中における引抜き時の抵抗要因解明を目的として、各種配合の超重泥水に対して、走査電子顕微鏡（以下、SEM）による微視的な構造観察を実施した。

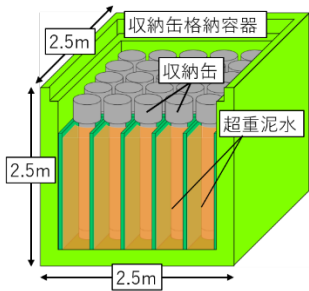


図1 収納缶格納容器²⁾

表1 水 100 g に対する構成材料の配合量

目標比重	1.1	1.8	2.5
バライト粉末 TB(g)	10	140	400
ベントナイト SC(g)	12	10	7
ピロリン酸ナトリウム(g)	0.2		

2. 超重泥水の概要

超重泥水は、放射線遮蔽をはじめ、遮水、変形追従、高比重等の機能を有した高機能土質系材料である。また、超重泥水は、水、バライト粉末、Na 型ベントナイト、ピロリン酸ナトリウムにより構成される。本研究では、バライト粉末 TB（テルナイト製・テルバー）およびベントナイト SC（ホーゲン製・スーパークレイ）を用いた。表1には本研究で対象とした水 100 g に対する各構成材料の配合量を示す。以降、それぞれの配合の超重泥水の目標比重を指し、「比重 1.1」のように記載する。

3. 試料作製から SEM による構造観察までの流れ

はじめに、各配合の超重泥水を攪拌機により作製した。作製が完了した超重泥水をガラス片などに採り、凍結時の構造変化が小さくなるよう液体窒素を用いて急速冷凍させた。その後、図2に示す凍結乾燥装置（東京理化器械製・FD-1000）により絶対圧力 5 Pa 程度、温度 -50℃ 程度の下に試料を数時間置き、凍結乾燥させた。乾燥後の試料は、薬さじなどを用いて試料の大きさを調整し、SEM 用の試料台上にカーボンテープにより試料を固定した。導電性のない試料の表面を SEM により観察する場合、導電性の確保や電子線による試料の損傷を軽減するため、試料表面に対してイオンスパッタコーティングを行う必要がある。そのため本実験では、白金・パラジウム（Pt・Pd）コーティングを行った。そ

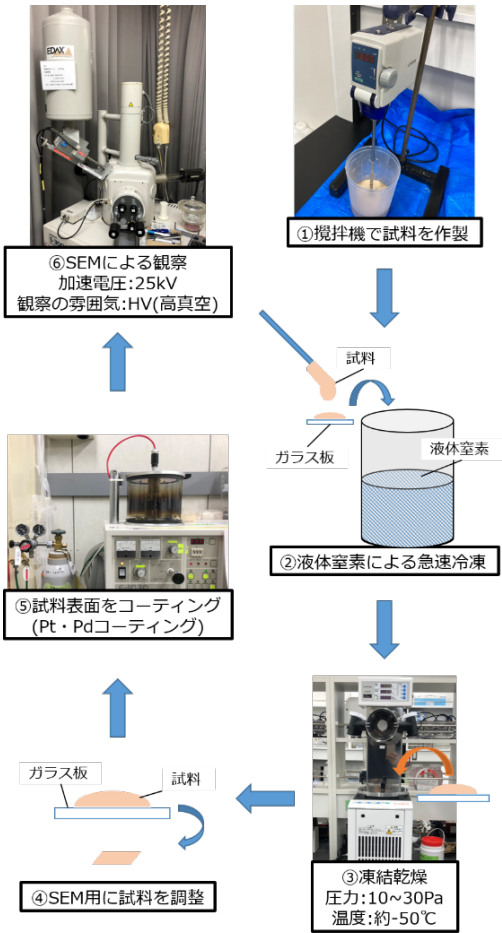


図2 SEM による構造観察の流れ

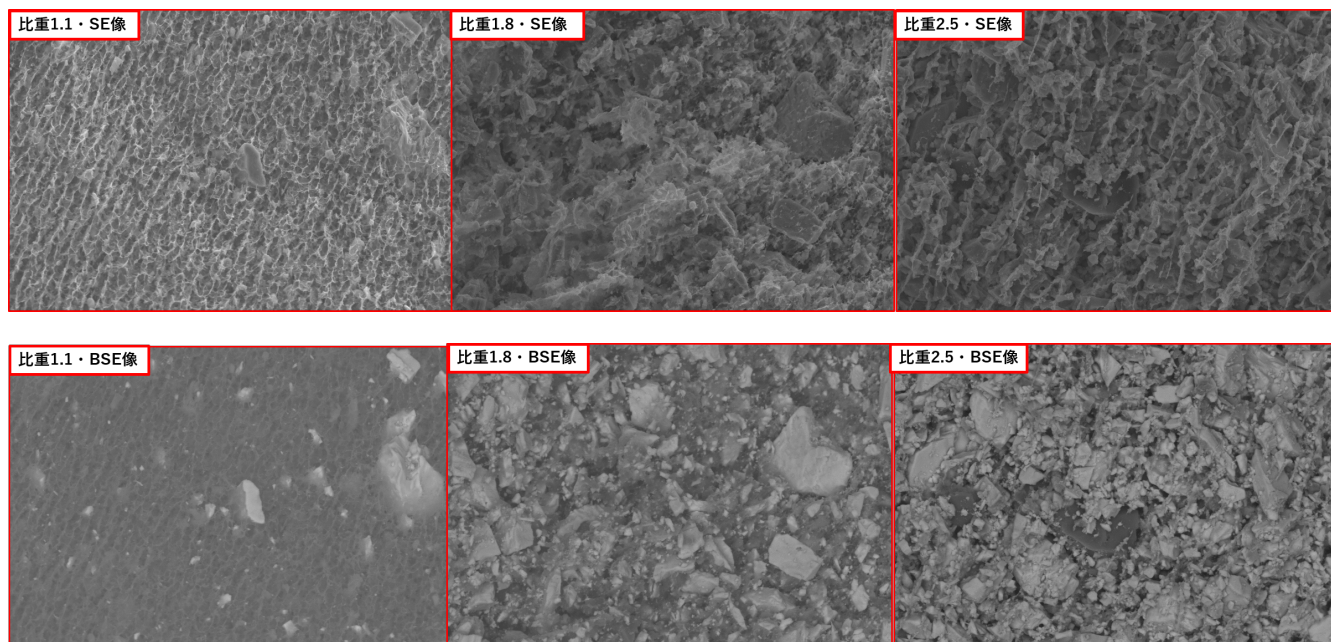


図3 倍率500倍における各比重の超重泥水の構造観察の結果(上段:SE像, 下段:BSE像)

の後, 図2に示すSEM (Hitachi製・S-3000N)に, 試料を載せた試料台をセットし, 二次電子像(SE像), 反射電子像(BSE像)を測定した. SE像では, 試料に照射した電子線に対して表面の深さ10 nm程度における試料中の二次電子を検出するため, 表面の凹凸を観察することが可能である. 一方, BSE像では, 試料表面から数 μm までの照射した電子線の反射電子を検出する. 元素により反射電子放出率が異なるため, BSE像では, 原子番号が大きい元素ほど明度が高く, 原子番号が小さい元素ほど明度が低く表示される.

4. SEMによる超重泥水の構造観察結果

図3に, 倍率500倍における各比重の超重泥水のSE像およびBSE像による構造観察の結果を示す. 比重1.1のSE像の結果から, 全体的に網目状のスポンジのような構造が確認できる. 一方, 比重の増加に伴い比重1.1に見られる網目状の構造は, 顕著に確認されず, 角を持つ粒子が散見されるようになる. 図3のBSE像の結果では, 比重1.1は全体的に明度が低く, 一部明度の高い粒子が確認される. 一方, 比重の増加に伴い明度の高い粒子が増加し, 比重2.5では, これらが密集していることが確認できる. SEMによる観察と並行して実施したEDS (Energy Dispersive X-ray Spectrometry) 分析の結果, BSE像にて観察された明るい粒子はバライト粉末TBであり, その他の暗い部分については, ベントナイトSCであることが確認された.

以上のSEMによる各比重の超重泥水の構造観察の結果から, 比重1.1の超重泥水ではバライト粒子が接触状態になく, ベントナイトSC中の主要鉱物であるモンモリロナイト粒子がスポンジ状の構造(カードハウス構造)を形成していると推察される. 加えて, 既往研究⁴⁾における実験および考察の結果から, 比重2.5の超重泥水では, バライト粒子が密に接触した構造であると推察される. 一方, 比重1.8の超重泥水は, バライト粒子が分散しているが一部接触した状態であると考えられる.

5. おわりに

本研究では, 作製した超重泥水を液体窒素により急速冷凍した後, 凍結乾燥させた試料に対して, SEMによる微視的な構造観察を行った. その結果, 比重1.1ではスポンジ状の構造体の形成が確認され, モンモリロナイト粒子によるものと推察された. 一方, 比重2.5ではバライト粒子が密に接触した構造が視覚的に確認された.

謝辞: 本研究において, SEMに関する事項は, 早稲田大学物性計測センターラボにおいて測定を実施した. また, 装置の使用・測定に際しては, 物性計測センターラボの高木牧子様にご支援をいただいた. ここに感謝いたします.

【参考文献】 1)本間美湖, 阿部慎太郎, 鈴木忠勝, 小峯秀雄, 後藤茂, 岩波基: ニューマチックケーソン工法を活用した福島第一原子力発電所の廃止措置に伴い発生する燃料デブリや放射性固体廃棄物の中間保管の概念, 土木学会第74回年次学術講演会, CS-14-25, 2019. 2)鈴木忠勝, 阿部慎太郎, 本間美湖, 小峯秀雄, 後藤茂: 福島第一原子力発電所の燃料デブリの収納缶寸法に基づくニューマチックケーソンによる中間保管施設の保管可能容量の試算, 土木学会第75回年次学術講演会, CS11-26, 2020. 3)根本大志, 小峯秀雄, 後藤茂, 王海龍, 山田味佳, 伊藤大知, 阿部慎太郎, 鈴木忠勝, 本間美湖, 氏家伸介, 成島誠一: 粘度測定結果に基づく超重泥水からの引き抜き抵抗推定の試み, 土木学会第77回年次学術講演会, III-34, 2022. 4)根本大志, 小峯秀雄, 後藤茂, 王海龍, 伊藤大知, 山田味佳, 阿部慎太郎, 鈴木忠勝, 本間美湖, 氏家伸介, 成島誠一: 骨格間隙比および引抜き抵抗測定の結果に基づいた超重泥水中のバライト粒子の接触状態に関する調査, 第58回地盤工学研究発表会, 2023年発表予定