

1号機堆積物試料/TMI-2デブリの分析速報

(2月16日分までの作業報告)

JAEA 原子力科学研究所

1. 1号機堆積物試料の分析
 - (1) 溶解液のICP-AESによる元素分析速報
 - (2) SEM/EDXによるU粒子の検出と顕微ラマンによる分析速報
2. TMI-2デブリの破碎・溶解

1. 1号機堆積物試料の分析

(1) 溶解液のICP-AESによる元素分析速報値 *最終評価結果ではないのでご了承ください

(mg/100mg-sample)

	1PCV2301A チ1-③ (1)	1PCV2302A チ2-③ (2)	1PCV2304A へ2-② (4)	1PCV2303A へ1-③ (3)
溶解量 (mg)	51.5	42.2	178.7	15.7
Si	5.3	4.1	7.0	5.1
Al	6.3	4.9	9.6	7.6
Fe	24.3	20.3	23.6	46.9
Zn	7.4	5.0	1.9	10.4
Pb	5.1	22.0	1.4	8.0
Mg	2.5	2.0	3.7	2.9
Ca	1.8	2.0	1.6	4.1
Mn	1.7	1.9	0.8	4.8
U	検出限界以下	0.2	定量下限値以下	0.7
Ti	0.2	0.2	0.1	0.7
S	2.2	1.4	0.4	2.0
計	56.8	64.0	50.1	93.2

- るつぼ材のNiと融剤のNaは評価対象外
- ブランクの値はまだ差し引いていない(るつぼ材不純物であるZn、Mnの定量性は低い)
- 一部の試料は追加分析の可能性あり、最終的な不確かさの評価はこれから
- Uの定量下限値:0.075ppm、検出限界値:0.016ppm
- Zrは有意に検出されなかった

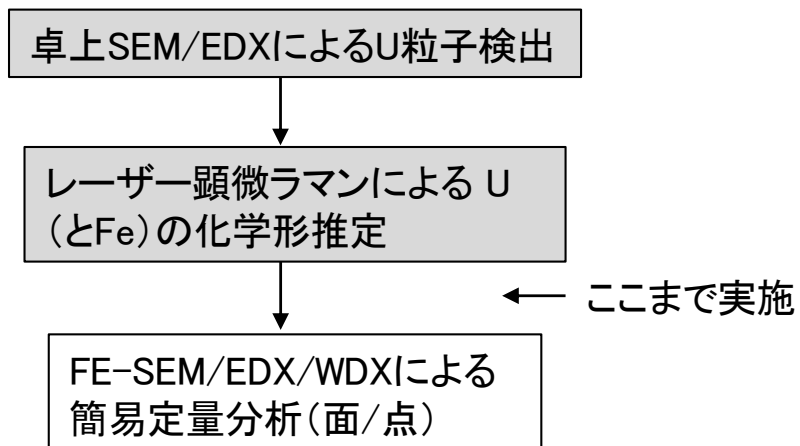
1. 1号機堆積物試料の分析

(2) SEM/EDXによるU粒子の検出と顕微ラマンによる分析速報

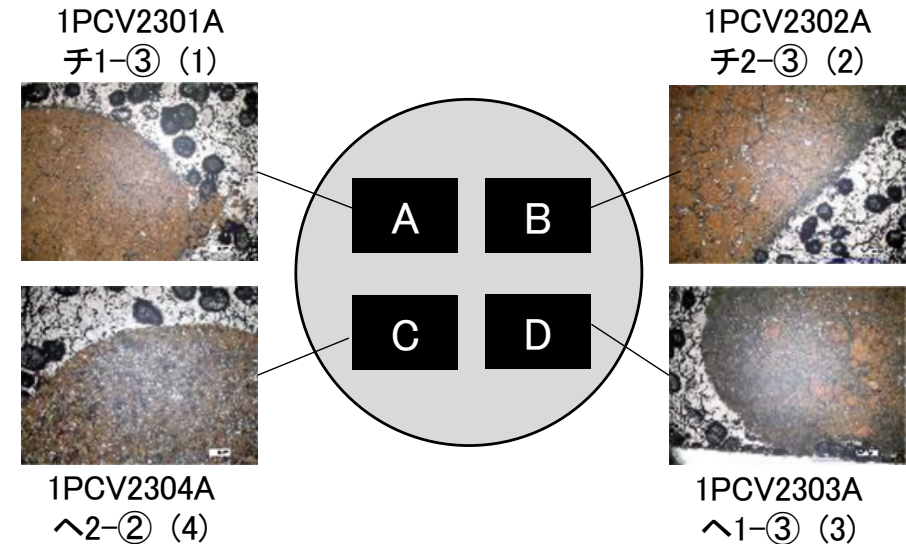
➤ 観察試料作製(12月)

- φ32アルミ円盤にカーボンテープ4枚貼り付け、懸濁液を滴下・乾燥

➤ 当初の分析の流れの予定



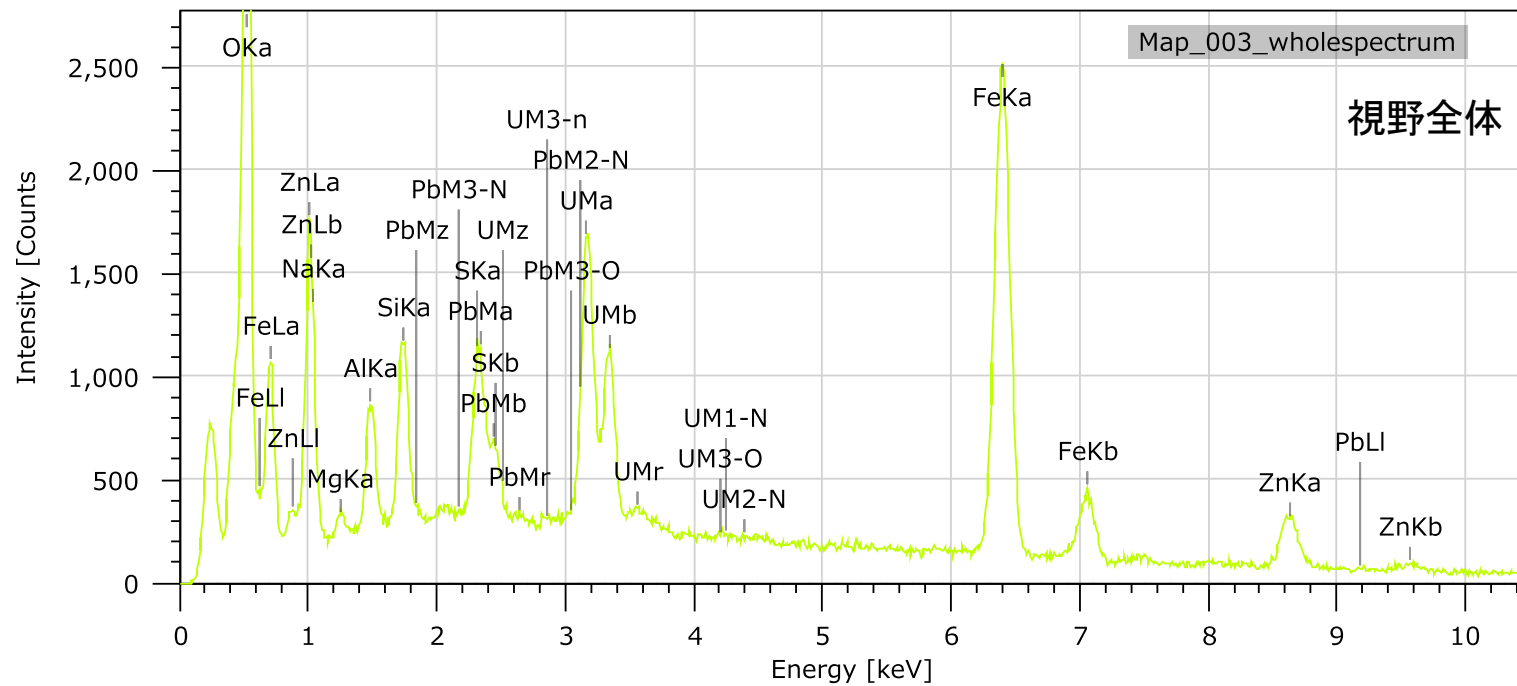
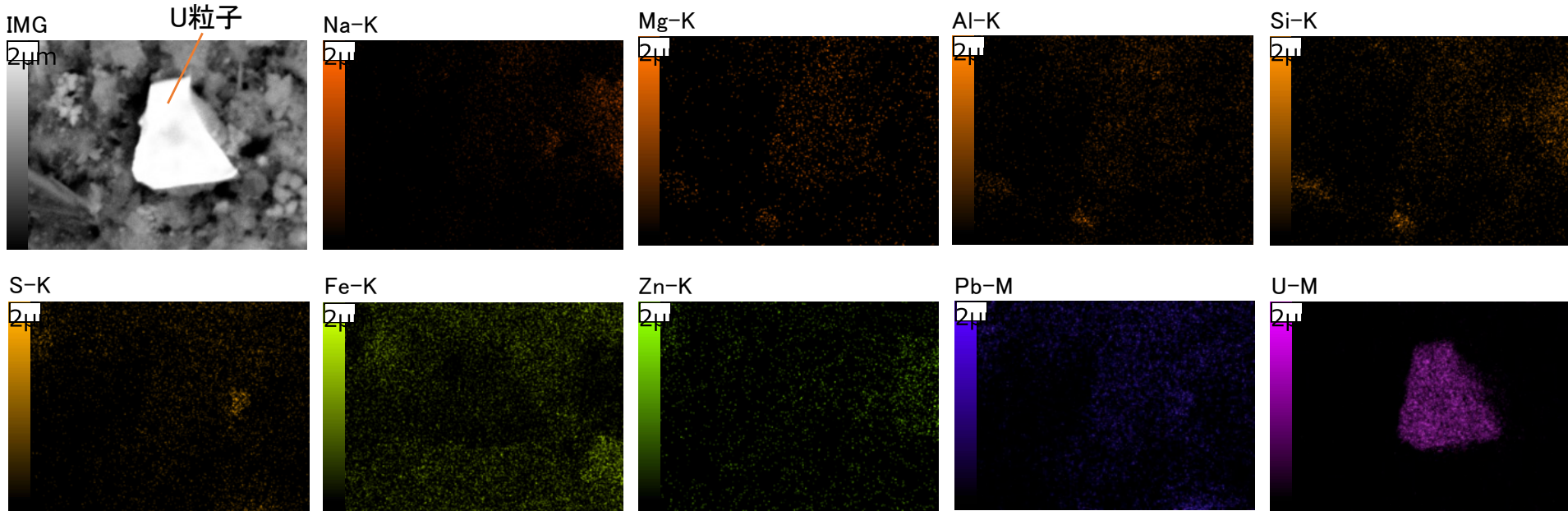
*FE-SEMに装荷し、ビームを当てた瞬間に真空異常でトリップし、測定停止中。3月以降再測定を試みる。



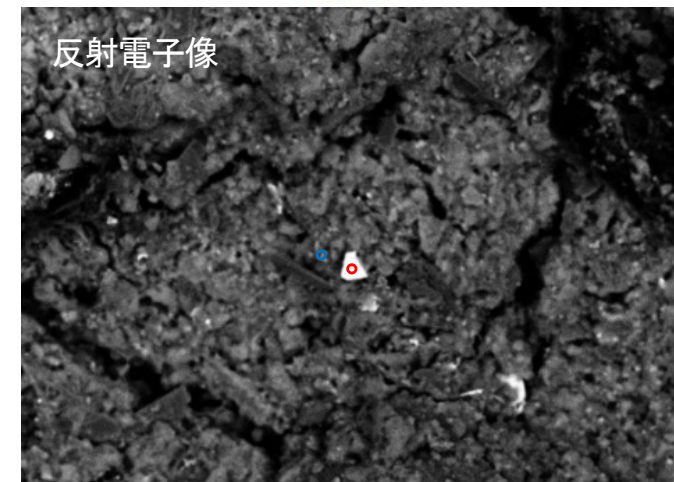
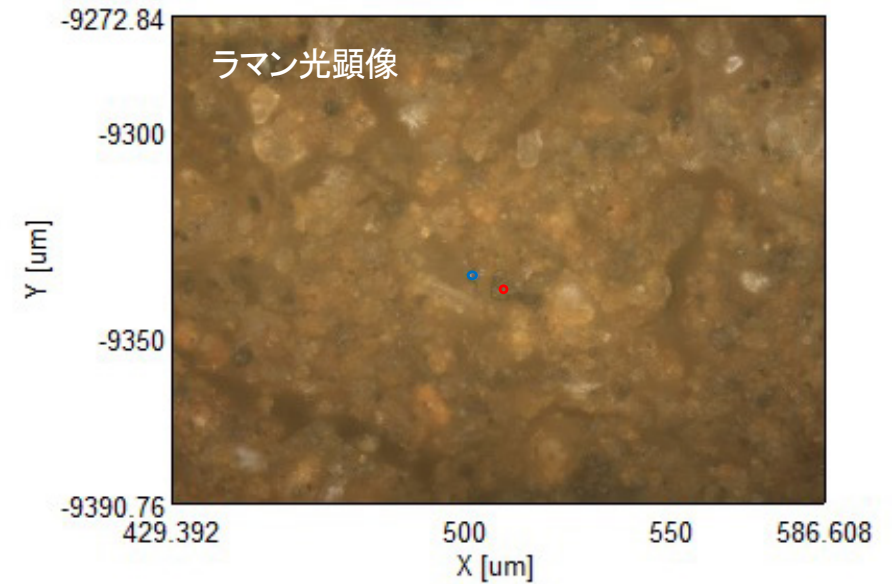
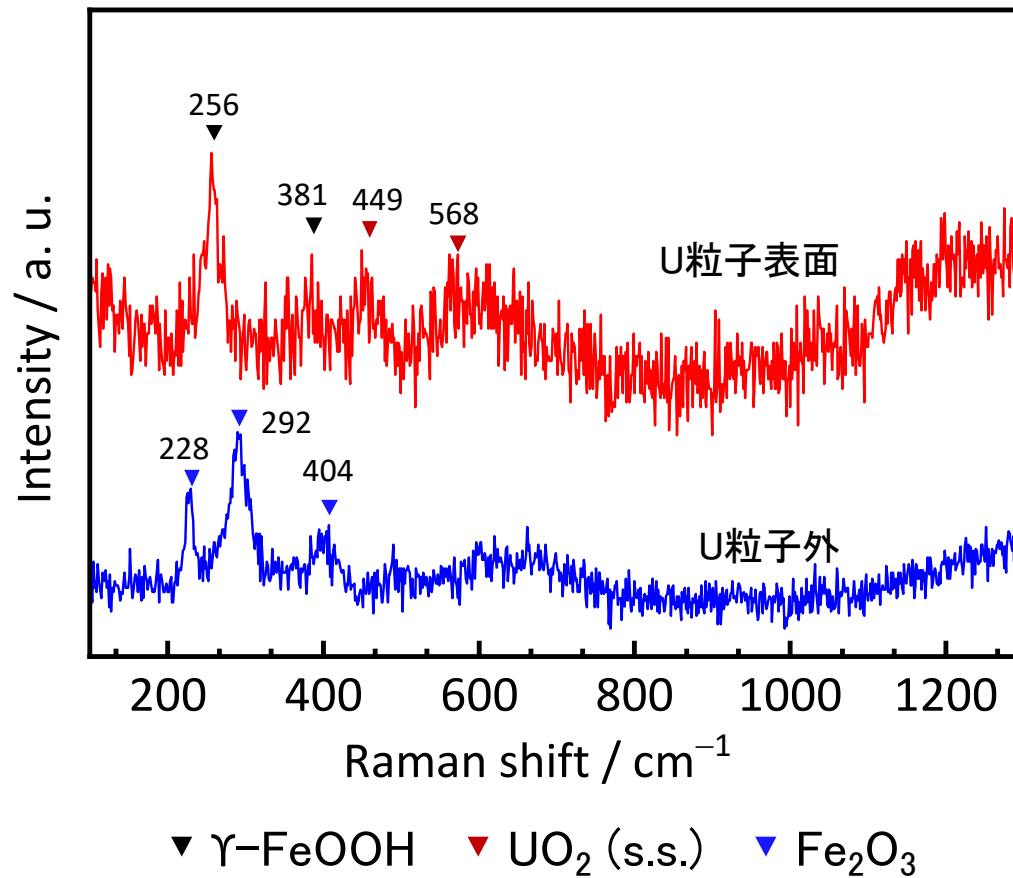
➤ U粒子表面のレーザー顕微ラマン分析

- SEM像とラマンの光顕像を照らし合わせて、X-Y 2μm角でU粒子上と周辺をスキャン
- 試料表面からの信号検出深さはせいぜい1μm (SEMより浅い)
- 既存のスペクトルデータを参考に、UとFeの化学形を推定

A: 1PCV2301A チ1-③ の反射電子像/元素マップ/X線スペクトル



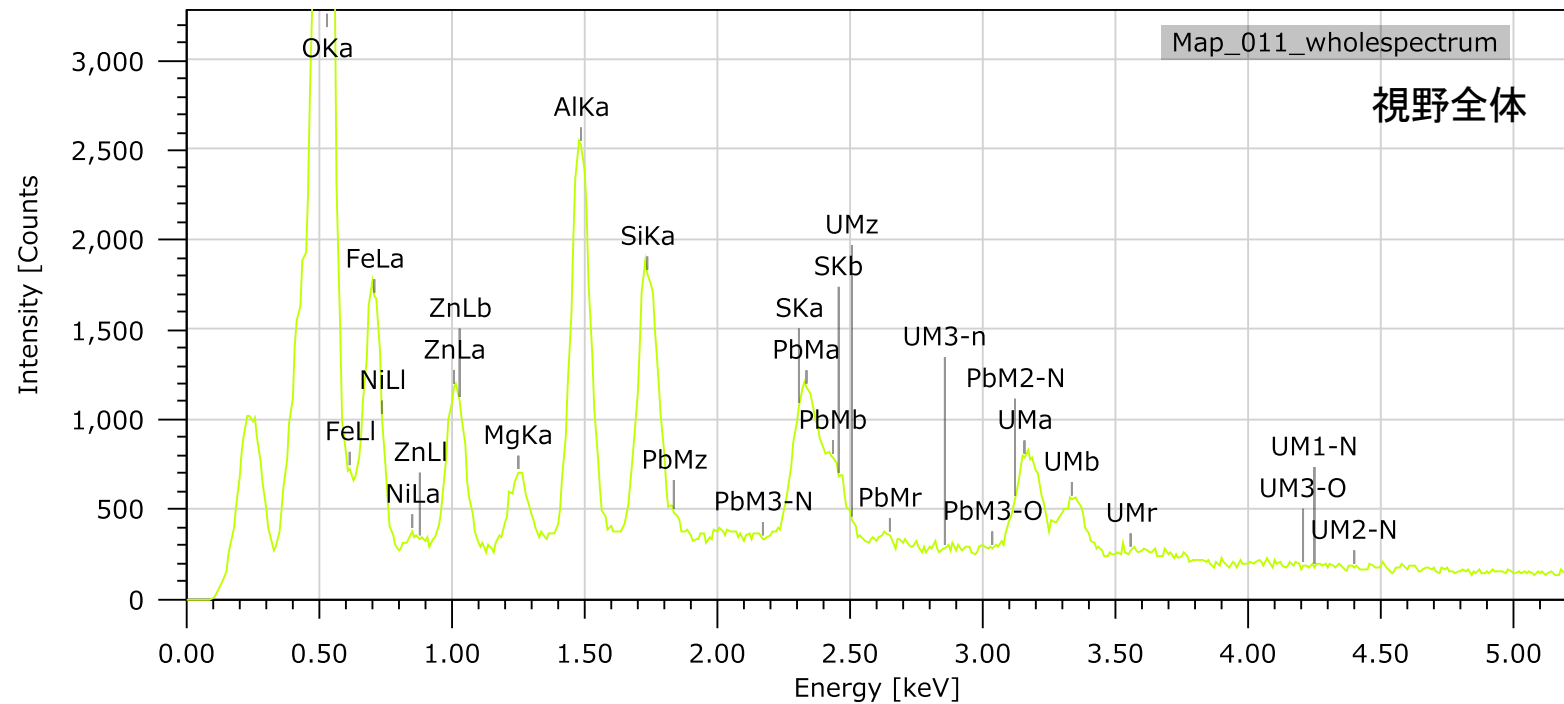
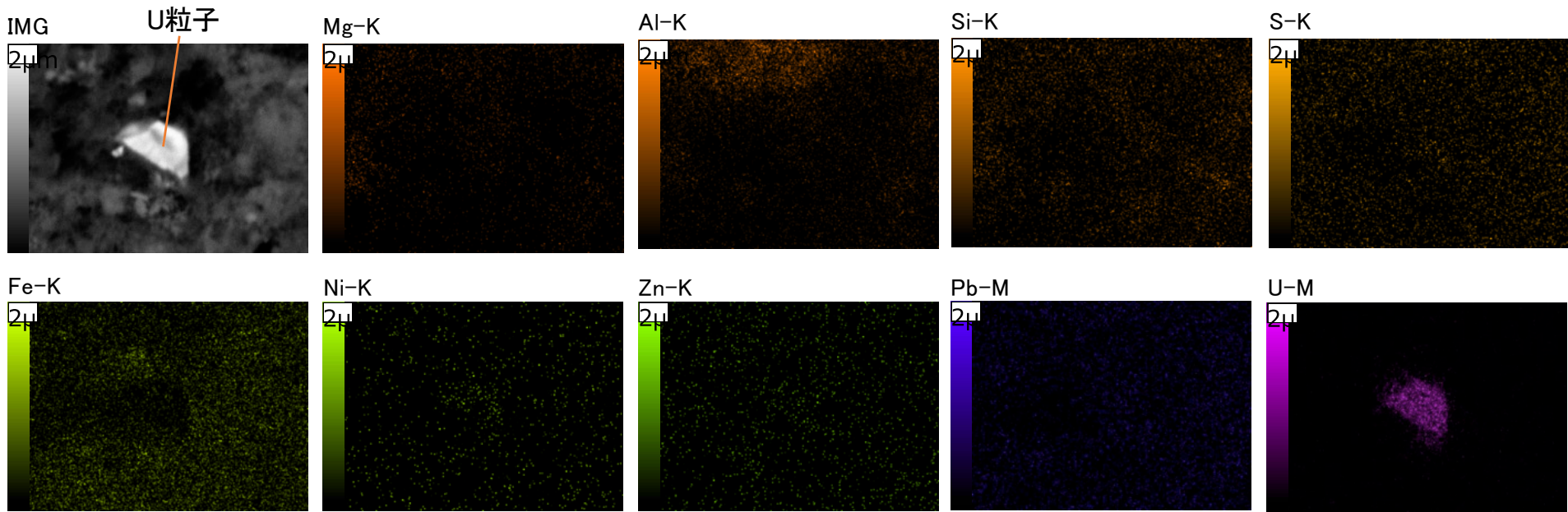
A: 1PCV2301A チ1-③ のU粒子部分のラマンスペクトル



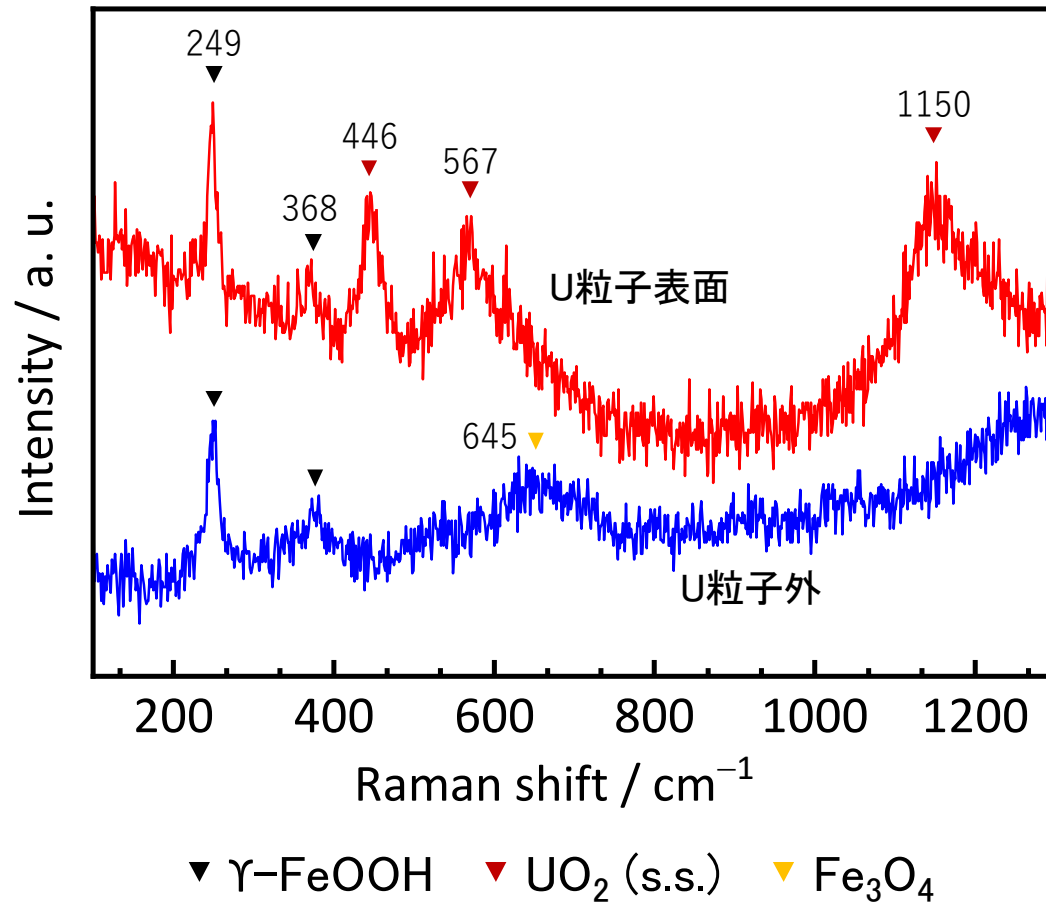
ラマンスペクトル取得位置

- U粒子外の測定点は Fe_2O_3 が主成分
- U粒子は、定比の UO_2 ではなく酸化状態が高い、あるいは他の金属元素と固溶状態にあり酸素欠陥があることを示している。U粒子表面には $\gamma\text{-FeOOH}$ を検出。

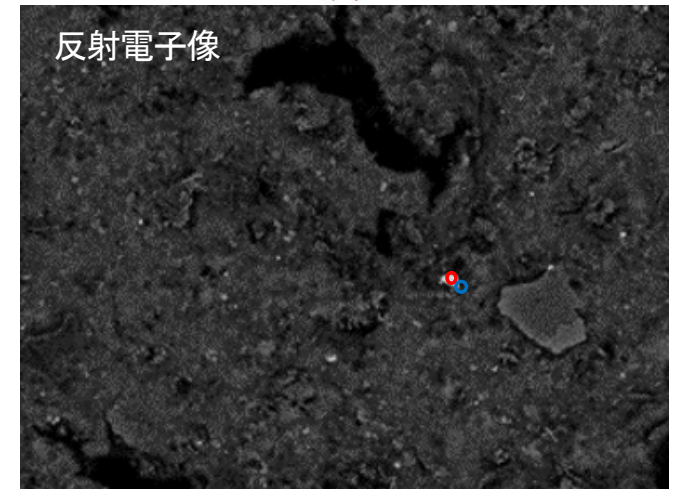
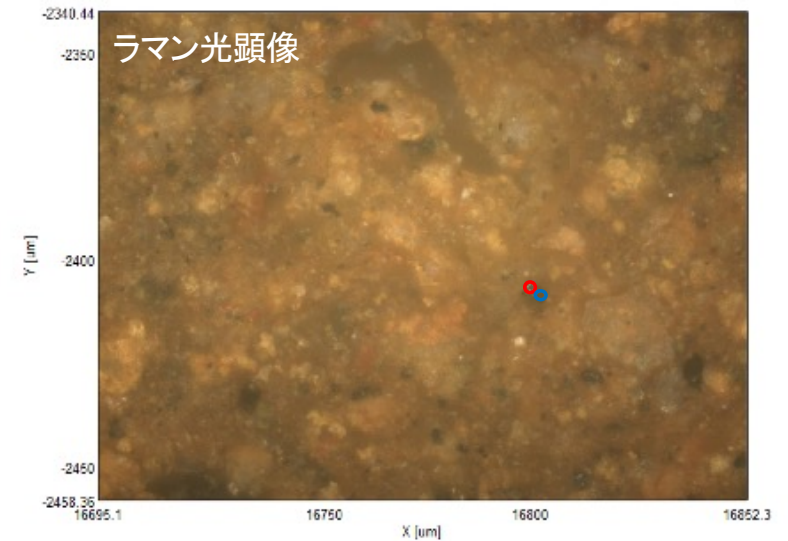
B: 1PCV2302A チ2-③ (2) の反射電子像/元素マップ/X線スペクトル



B: 1PCV2302A チ2-③ (2) のU粒子部分のラマンスペクトル

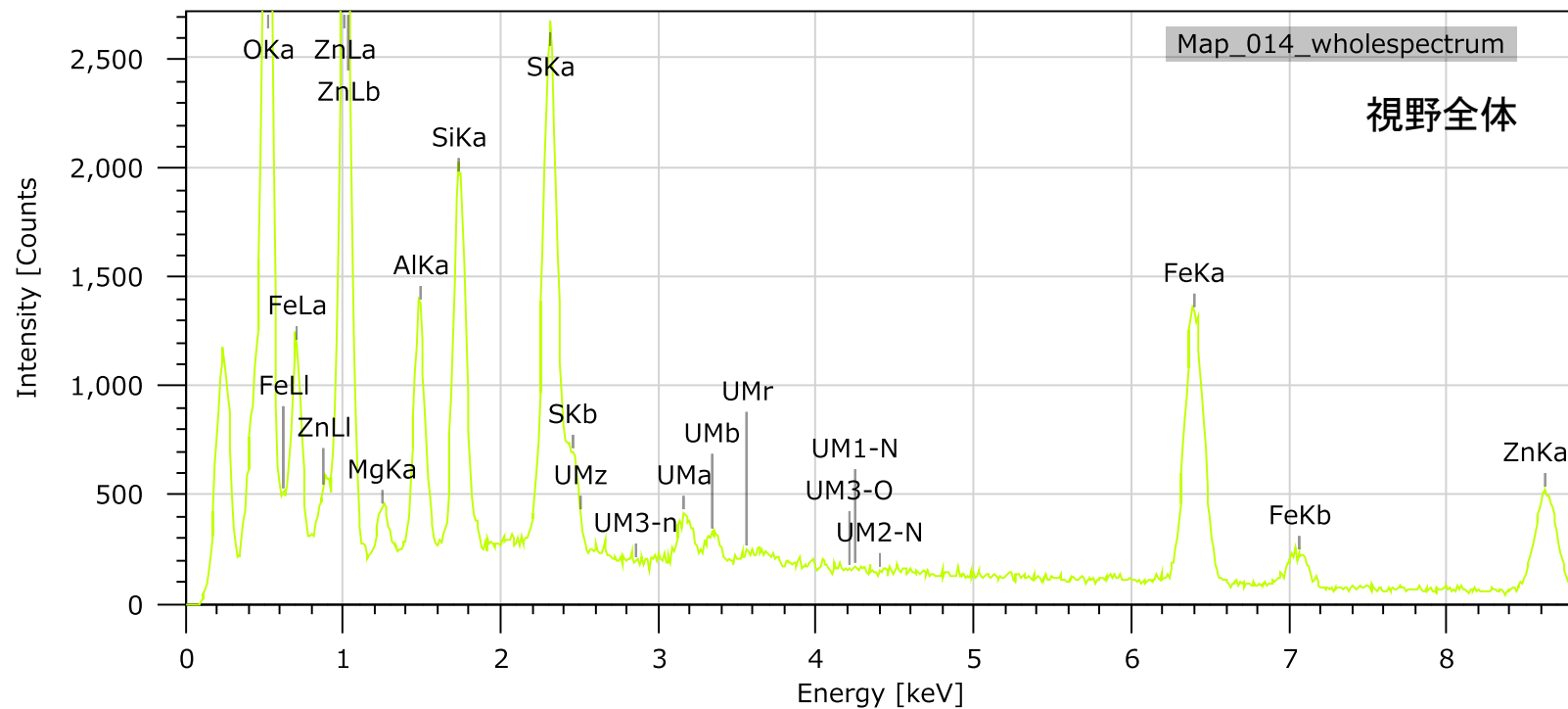
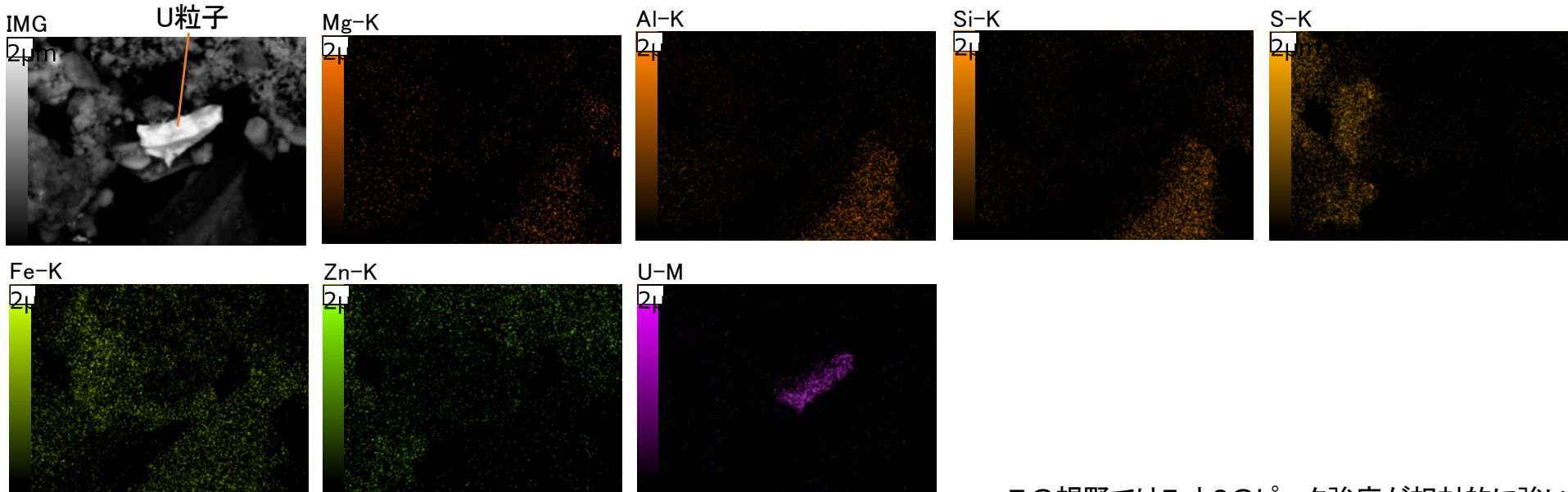


- U粒子外の測定点は $\gamma\text{-FeOOH}$ と Fe_3O_4 を検出
- U粒子はAと同様(Aより明瞭にピーク検出)。U粒子表面には $\gamma\text{-FeOOH}$ を検出。

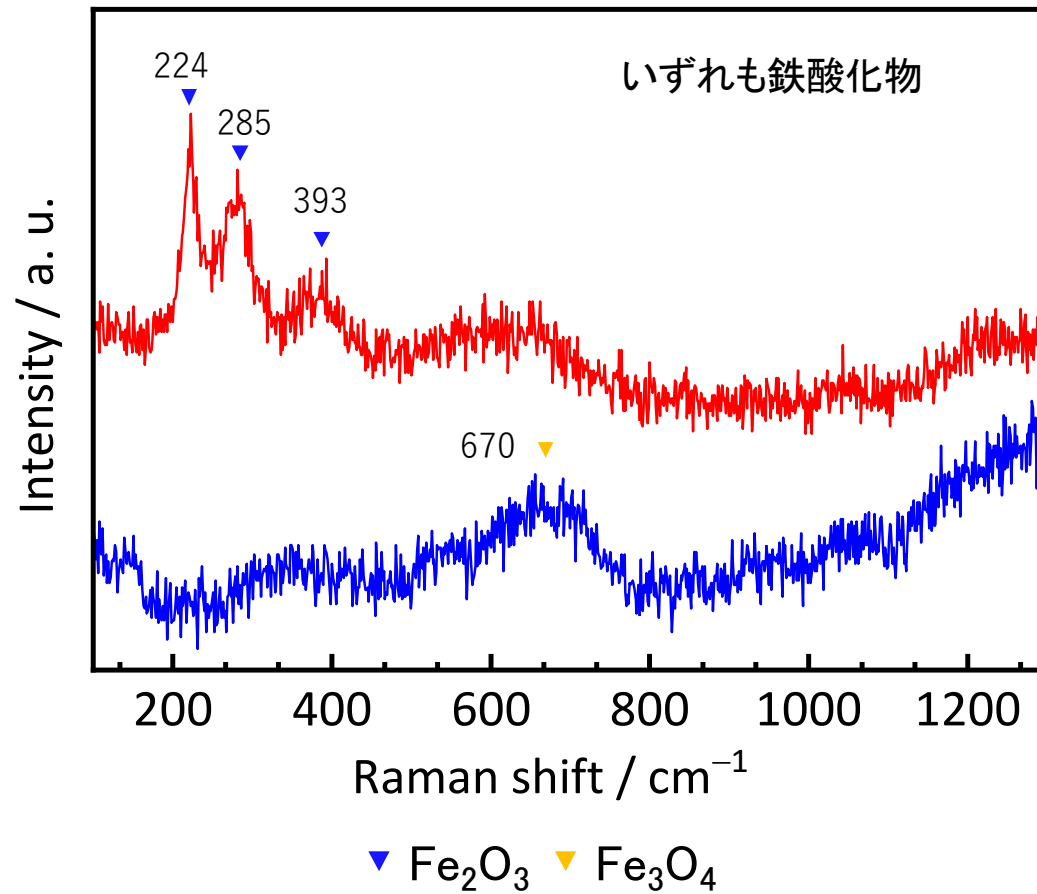


ラマンスペクトル取得位置

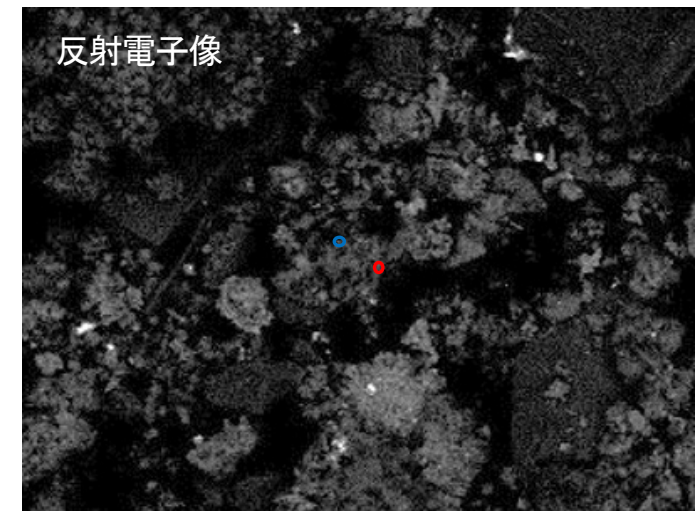
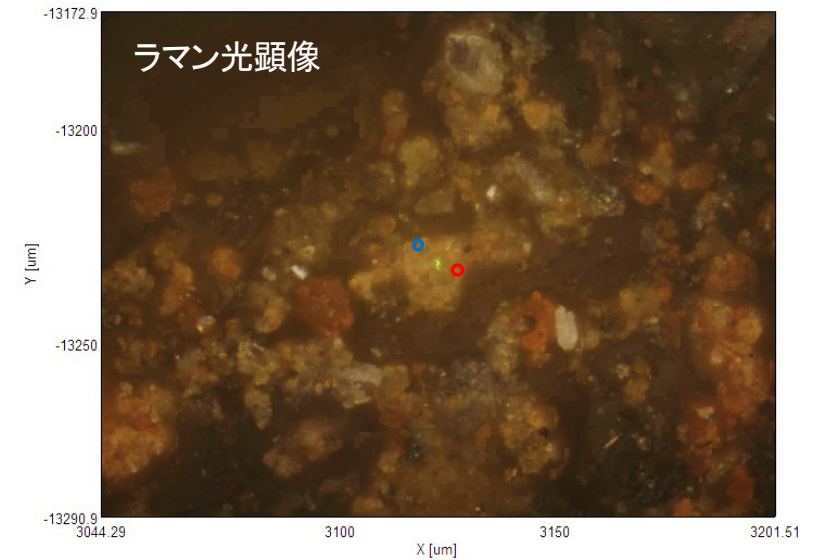
C: 1PCV2304A へ2-② (4) の反射電子像/元素マップ/X線スペクトル



C: 1PCV2304A へ2-② (4) の鉄酸化物のラマンスペクトル

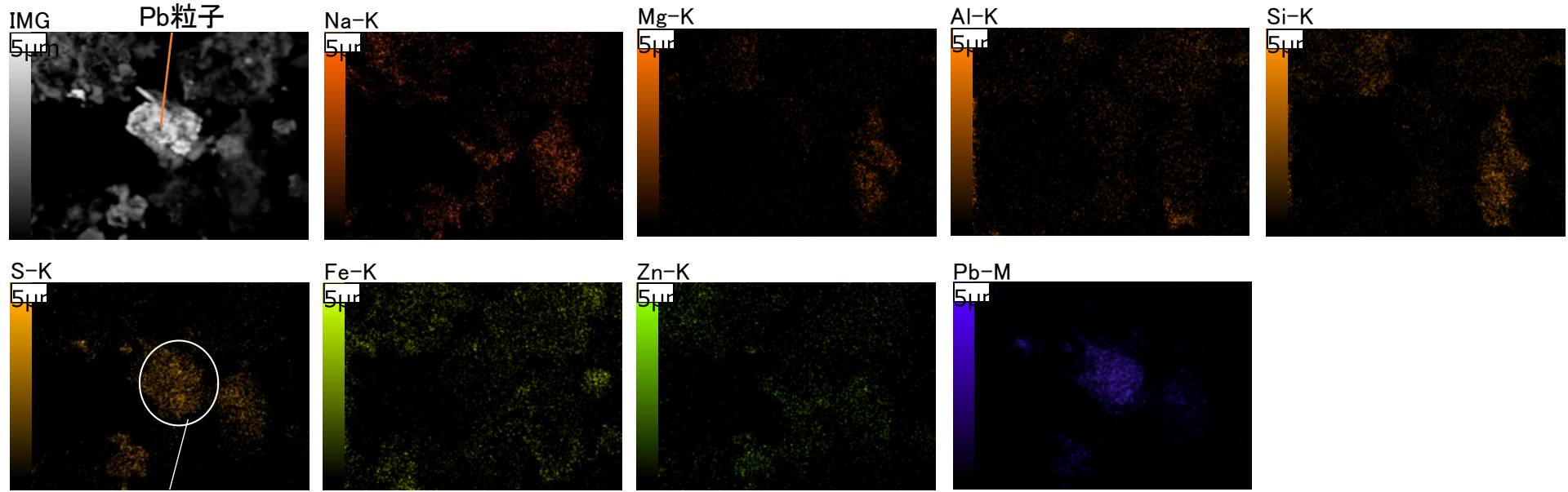


- 測定時にU粒子を捉えられていなかった(後日再測定予定)。
- 測定点により Fe_2O_3 と Fe_3O_4 がある。

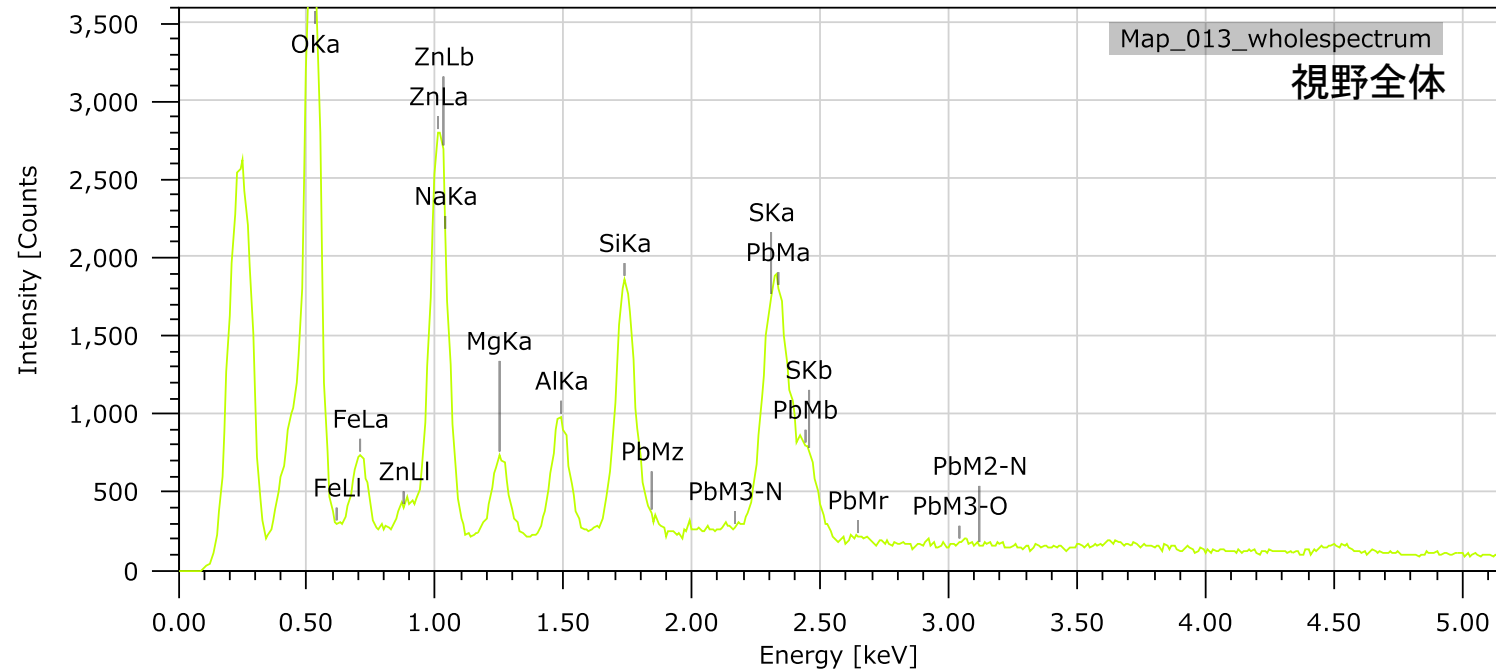


ラマンスペクトル取得位置

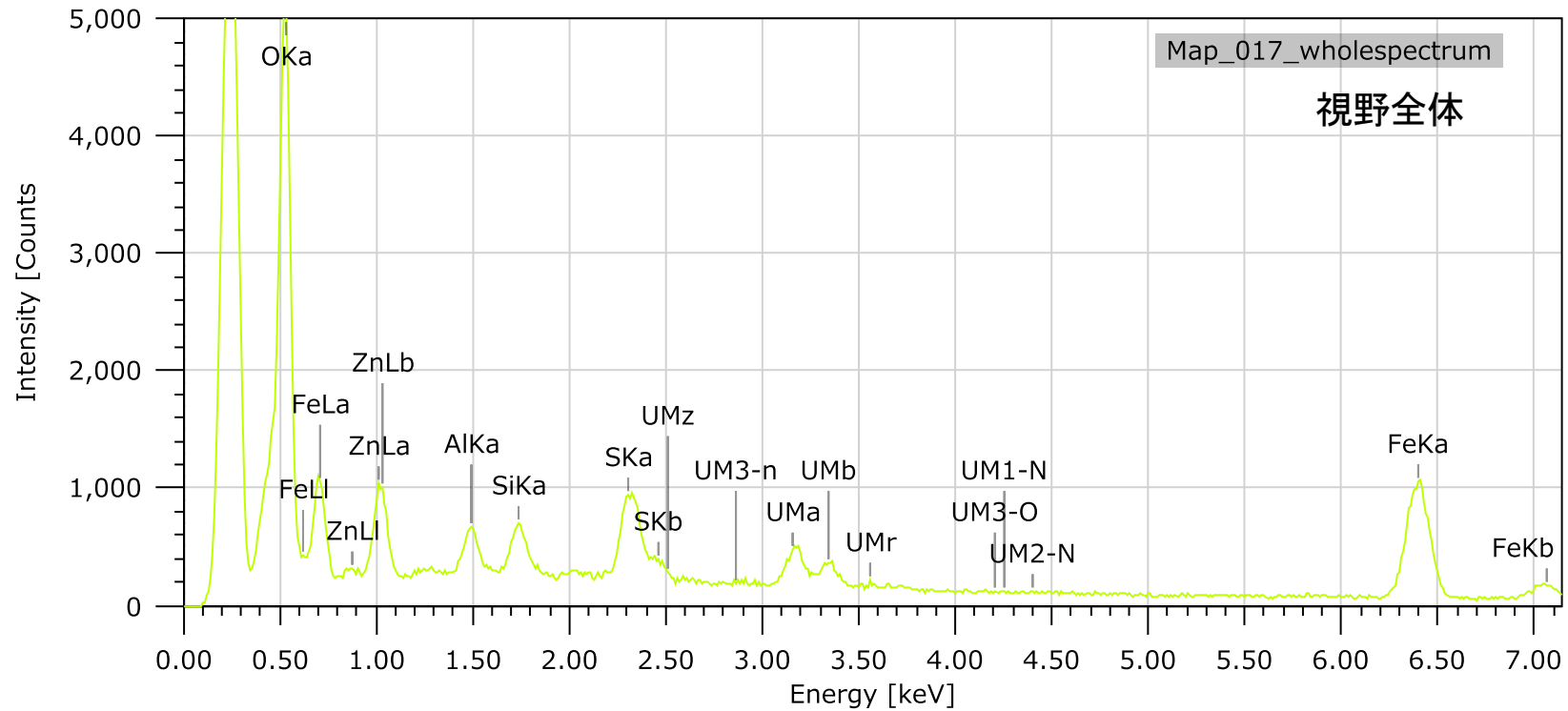
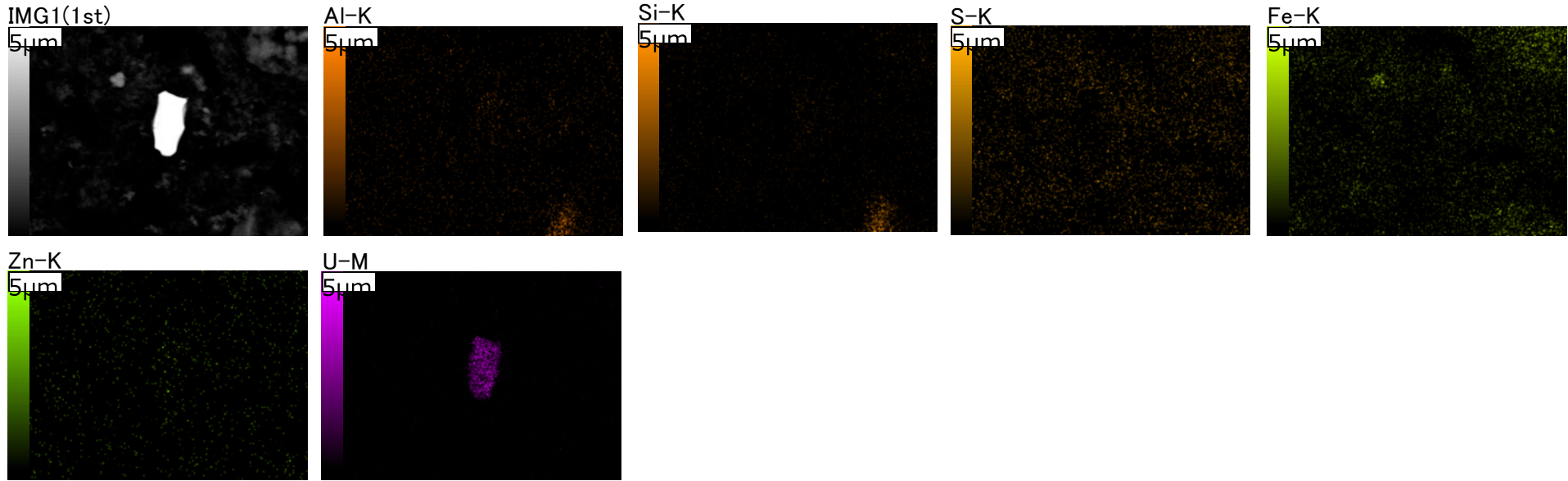
C: 1PCV2304A へ2-② (4) の鉛粒子の反射電子像/元素マップ/X線スペクトル



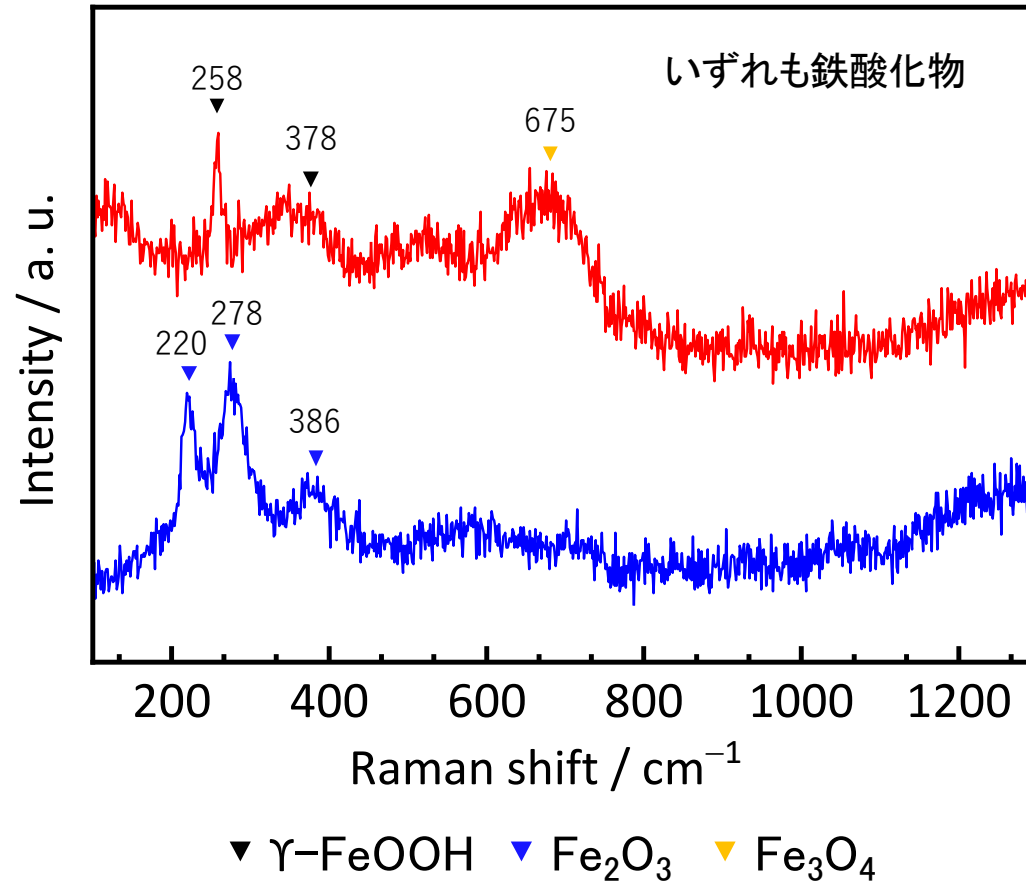
PbをSとして検出



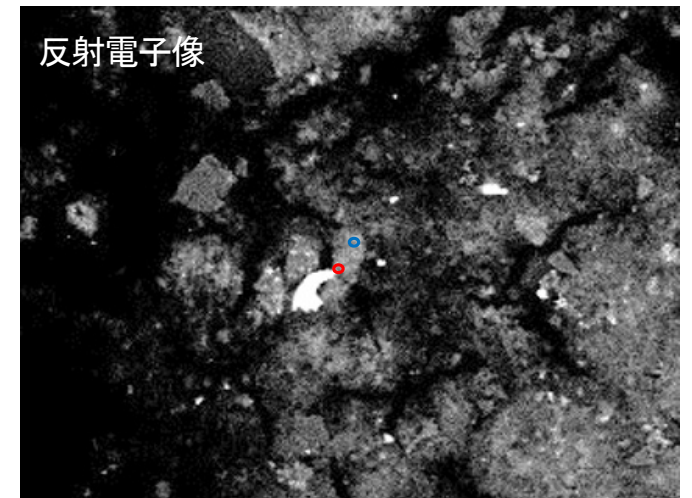
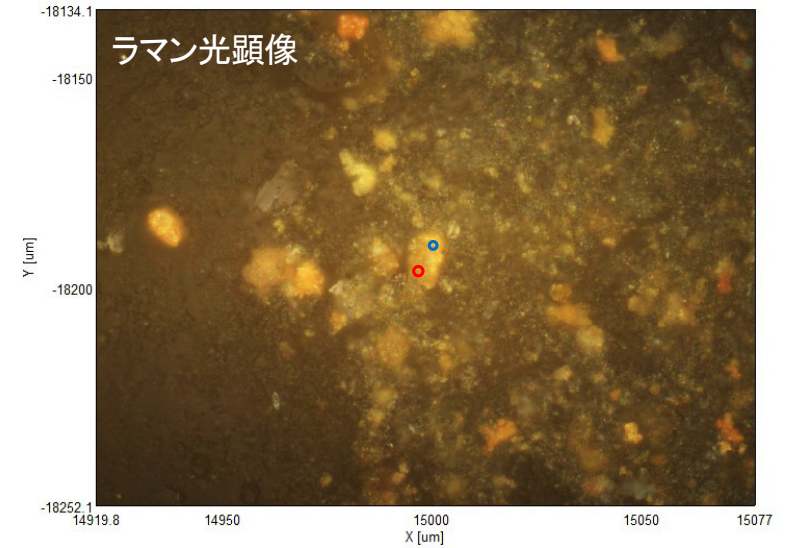
D: 1PCV2303A へ1-③ (3) のU粒子の反射電子像/元素マップ/X線スペクトル



D: 1PCV2303A へ1-③ (3) の鉄酸化物のラマンスペクトル



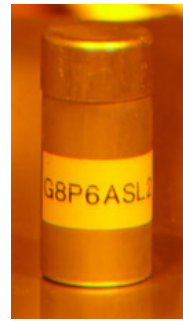
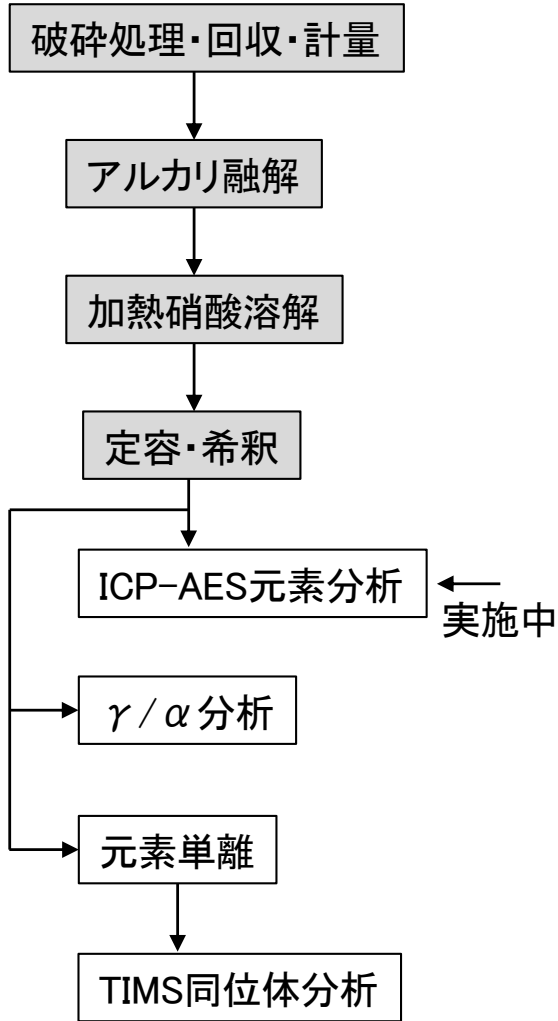
- 測定時にU粒子を捉えられていなかった(後日再測定予定)。
- 測定点により Fe_2O_3 が主の部分と、 $\gamma\text{-FeOOH}$ と Fe_3O_4 からなる部分がある。



ラマンスペクトル取得位置

2. TMI-2デブリの破碎・溶解

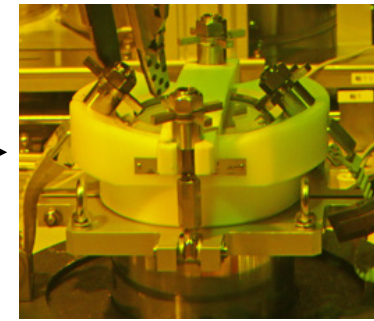
➤ 分析の流れ



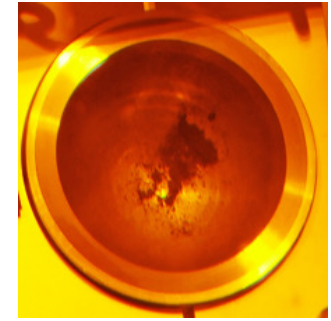
元容器



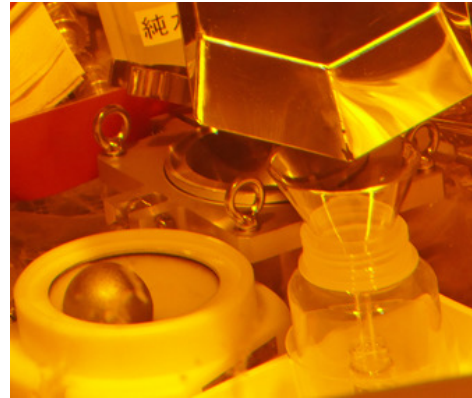
破碎前のかげら



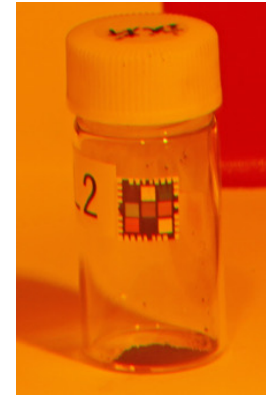
振動ミル WCボール・容器



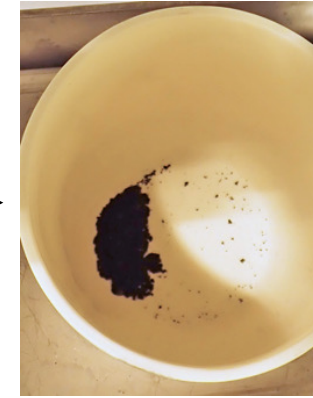
5時間破碎処理



破碎粉末回収 0.2779→0.2004 g (72%) ↓



アルミナるつぼ+破碎粉末
106.2 mg



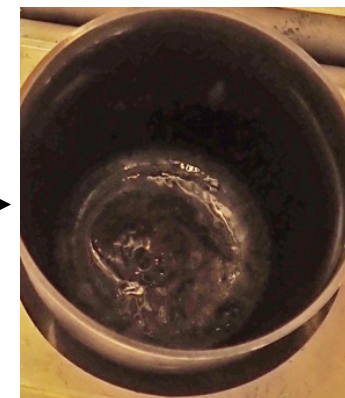
融解処理後



Niるつぼ+破碎粉末
93.6 mg



+Na₂O₂融剤

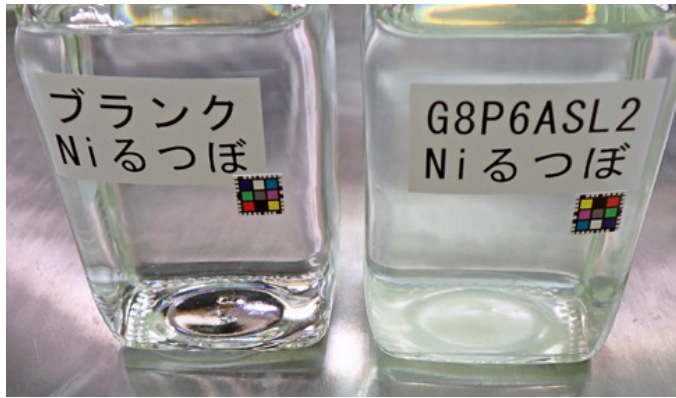


融解処理後

2. TMI-2デブリの破碎・溶解



硝酸溶解中の様子



溶解液(Ni るつぼ)



溶解液(アルミナ るつぼ)

いずれも完全溶解を確認したが、セル外に搬出した際、白色の浮遊物を確認
(不溶性残渣ではなく、再沈殿したものと推測)

➤ 今後の予定

- 放射線分析 (γ/α)
- 元素単離とTIMSによる同位体分析

1F堆積物はU

TMI-2デブリはU, Pu, 有意量あればNdとGdも