

福島第一原子力発電所の燃料デブリの元素分析方法の検討

Study on elemental analysis method of fuel debris of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

*比内 浩^{1,2}, 戸田 暢史^{1,2}, 柴田 淳広^{1,2}, 野村 和則^{1,2}

¹ 日本原子力研究開発機構, ² 国際廃炉研究開発機構 IRID

福島第一原子力発電所（1F）の燃料デブリの構成元素を精度よく分析するためには、前処理として定量性が確保された溶解法が必要である。本検討では、難溶解性である燃料デブリの前処理として、燃料デブリで想定されている各種物質について、アルカリ融解法の融解条件等の適応性評価を実施した。また、汎用的な ICP-AES による金属元素の定量分析法では、主成分元素の干渉影響を調べた。結果として、燃料デブリ試料の元素分析について見通しが得られた。

キーワード：福島第一原子力発電所、燃料デブリ、元素分析

1. 緒言

1F の事故により燃料、被覆管及び炉内構造物が熔融固化した燃料デブリが生成している。今後、原子炉内部から採取されるこれらの燃料デブリの構成元素を精密に分析するためには、試料の破壊分析が必要であるが、スリーマイル島原子力発電所(TMI)等における知見から加熱強酸に対して難溶解性と推定され、前処理として定量性が確保された溶解法が必要である。そこでより強い分解力を期待できるアルカリ融解法について融解条件の最適化、及び燃料デブリで想定されている各種物質への適応性を検討した。また、アルカリ融解法により溶液化した試料中に含まれる金属元素に対する汎用的な ICP-AES による定量分析法について、課題抽出とその解決策の検討を行った。

2. 実験方法

融剤として過酸化ナトリウムを使用し、融解条件として試料粒径、融剤比、及び加熱温度をパラメータとした融解試験を実施した。また、表に示す物質を対象として、融解法の適応性を調べた。ICP-AES による元素分析では燃料デブリの主成分元素（Al, B, Ca, Cr, Fe, Gd, K, Mg, Ni, Si, Zr, U, Pu）の相互干渉の影響を調べた。

3. 結果

燃料デブリで想定されている各種物質について、アルカリ融解法により表に示す時間にて溶解可能であることを確認した。このうち B₄C については、融解加熱時に反応が激しいため、段階的に昇温する必要があることがわかった。また、U 及び Pu を含む物質を対象に本操作を遮蔽セル内で行うことにより、遠隔操作で実施可能であることを確認した。

ICP-AES 測定の干渉評価では、定量分析に適し、分光干渉等の影響がより少ない分析線を調べた。その結果、Si や Pu ではすべての分析線で図に示すような U による干渉影響が認められた。この問題を解決するため、U 濃度による補正を検討し、適切に導出した補正式によりこれら元素の定量が可能であることを見出した。

これらの結果により燃料デブリ試料の元素分析について見通しが得られた。

表 対象物質

試験対象物質	全量融解の時間(min)
酸化物	
ZrO ₂	15
SiO ₂	15
Al ₂ O ₃	15
Cr ₂ O ₃	15
Fe ₃ O ₄	15
ZrSiO ₄	15
(U,Zr)O ₂	30
(U,Pu,Zr)O ₂	30
金属	
ジルカロイ2	30
Zr(O)	15
SUS316	60
Fe ₂ Zr	15
ホウ化物等	
B ₄ C	15
ZrB ₂	15
Fe ₂ B	15
混合物	
ZrO ₂ + SUS316	15
(U,Pu,Zr)O ₂ + SUS316	30

試料量：50～100mg

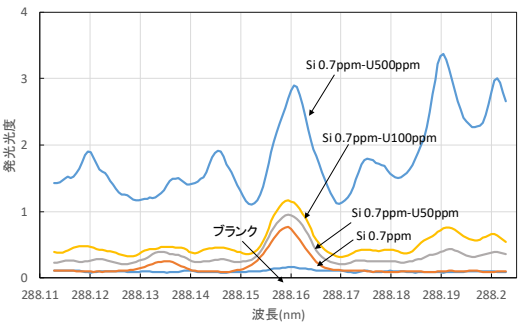


図 ICP-AES プロファイル（一例）

※本件は、経済産業省／平成 26 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリ性状把握)」及び平成 28 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリの性状把握・分析技術の開発)」に係る補助事業の成果の一部である。

*Hiroshi Hinai^{1,2}, Nobufumi Toda^{1,2}, Atsuhiko Shibata^{1,2}, and Kazunori Nomura^{1,2}
¹Japan Atomic Energy Agency, ²International Research Institute for Nuclear Decommissioning