

# フッ化法を用いた燃料デブリの安定化処理技術の開発

## (8) 単成分酸化物転換試験

Development of Fuel Debris Treatment Technology by the Fluorination Method

(8) Single Element Oxide Conversion Experiments

\*菊池 俊明<sup>1</sup>, 近沢 孝弘<sup>1</sup>, 深澤 哲生<sup>2</sup>

<sup>1</sup>三菱マテリアル, <sup>2</sup>日立 GE

高速増殖炉 (FBR) や軽水炉 (LWR) の重大事故によって発生する破損・熔融燃料含有物質 (燃料デブリ) を、フッ化物揮発法を応用した方法で安定化処理する技術を開発中である。ポート炉を用いた単成分フッ化物の酸化物転換試験結果について報告する。

**キーワード** : FBR/LWR の重大事故, 燃料デブリ, フッ化, 安定化処理, 酸化物転換試験

### 1. 緒言

フッ化物揮発法を応用した燃料デブリの処理では、フッ化炉において燃料デブリをフッ素ガスと反応させてフッ化物とする。その際に、U, Pu 等の核燃料成分は揮発性フッ化物となるためガス系に分離し、一方で、FP, 集合体構成材料, 炉内外構造物等の成分は不揮発性フッ化物となるためフッ化炉の残渣として固体で回収する。この残渣フッ化物を酸化物に転換する工程の成立性確認を目的とし、これまでに NaF, KF, MgF<sub>2</sub>, CaF<sub>2</sub>, FeF<sub>3</sub>, AlF<sub>3</sub>, ZrF<sub>4</sub> を反応性確認が必要なフッ化物と選定し熱天秤により基礎的な反応挙動を確認した[1]。その結果をもとに代表的なフッ化物についてポート炉による酸化物転換試験を実施した。

### 2. 実験

フッ化物試料は、上記7種類のフッ化物のうち、プロセス操作温度で揮発することが判明した NaF, KF を除く 5 種類を対象とした。ポート炉試験装置は水蒸気を含む湿潤窒素ガスを導入できる管状型電気炉であり、フッ化物試料 1g を白金製ポートに装荷して、水蒸気流中にて設定温度に保持して高温加水分解反応を生じさせる。所定時間経過後に転換粉を取出してフッ素含有率を分析することで酸化物転換率を評価するとともに、X線回折により化学形態を把握した。また、かさ密度、水への溶解性等の物性を測定した。

### 3. 結果・考察

FeF<sub>3</sub>, ZrF<sub>4</sub>, AlF<sub>3</sub>, MgF<sub>2</sub> は、それぞれ 400°C, 500°C, 800°C, 1,000°C、3h の水蒸気処理にて、予想された酸化物化学形態に、高い転換率で転換された (表 1)。転換粉はポートに付着することなく回収され取扱い性に問題はなかった。転換粉中のフッ素分の水への溶解性は文献値より低く、粒子表面に生成した酸化物層が残留するフッ化物の溶解を抑制したと考えられる。CaF<sub>2</sub> は 1,200°C で約 5 割の転換に留まり、3h 程度の短時間での転換には設定温度を更に高温化する等の方策が必要である。

表 1 各フッ化物の酸化物転換挙動まとめ (ポート炉)

原料粉 (試薬)	FeF <sub>3</sub>	ZrF <sub>4</sub>	AlF <sub>3</sub>	MgF <sub>2</sub>	CaF <sub>2</sub>	
試験条件	加熱温度 (°C)	400	500	800	1,000	1,200
	温度保持時間、導入ガス	3 時間, 水蒸気分圧 0.3atm/N <sub>2</sub> ガス				
残渣形態	主要化学形態 (X 線回折)	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZrO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	CaO, CaF <sub>2</sub>
酸化物転換率	フッ素含有率より計算 (%)	98.9	99.8	99.7	99.6	53.8

### 参考文献

[1] 長田ら、日本原子力学会 2015 年春の年会, L16

\*Toshiaki Kikuchi<sup>1</sup>, Takahiro Chikazawa<sup>1</sup> and Tetsuo Fukasawa<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Mitsubishi Materials, <sup>2</sup>Hitachi-GE.

本報告は、特別会計に関する法律 (エネルギー対策特別会計) に基づく文部科学省からの受託事業として、日立 GE ニュークリア・エナジー(株)が実施した平成 26 年度及び平成 27 年度「フッ化技術を用いた燃料デブリの安定化処理に関する研究開発」の成果です。