

選択フッ化と熔融塩電解による燃料デブリの処理

(1) 選択フッ化プロセス

Selective fluorination and molten salt electrolysis of fuel debris

(1) Selective fluorination process

*松浦 治明¹、内山 孝文¹、根津 篤²、佐藤 修彰³

¹東京都市大、²東工大、³東北大

東京電力福島第一原子力発電所事故によって発生した燃料デブリの処理・処分法として選択フッ化と熔融塩電解を組み合わせた方法を我々は検討してきた。本研究では、燃料デブリに随伴する可能性のあるジルカロイ、およびステンレスの HF によるフッ化挙動を調査した。メタル成分がデブリに残留する場合はあらかじめ酸化処理を施しておく方が、その後のフッ化プロセスが単純化されることが分かった。

キーワード：燃料デブリ，フッ化水素，ジルカロイ，ステンレス，示差熱分析

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所の炉心熔融に伴い生成した燃料デブリをいかに安全に取りだし安定化処理するかは、一連の廃炉工程における重要なプロセスの一つである。我々はそのプロセスに乾式法の適用を検討し、選択フッ化と熔融塩電解を組み合わせ、2次廃棄物発生量の少ないプロセス構築を目指している。デブリの主成分と目されている $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ については既に、ウランを選択的にフッ化させるためには、組成や出来た当時の雰囲気によりどのようにフッ化条件を換えればよいかの指針をえることができた[1]。ここでは、ジルカロイ(Zry-2)やステンレスがそのまま残留しデブリと混在している場合、どのようなフッ化挙動を取るか明らかにするために HF 雰囲気下での反応の熱力学的な検討を行った。

2. 実験

フッ化実験は全て東北大学多元物質科学研究所のホットラボにて行った。HF ガスを安全に使用できるようにグローブボックス内に設置された示差熱天秤装置を用い、白金セル中に保持された数 mg の各試料を Ar40 ml/min をキャリアーガスとして HF 20ml/min で流しながら、500°C まで 10°C/min の昇温速度で熱重量測定(TG-DTA)を行った。測定後白金セルに残留した試料について X線回折により生成物の同定を行った。

3. 結果と考察

Zry-2 を加熱したときの TG-DTA 結果を Fig.1(a)に示す。Zry-2 の質量増加および急激な発熱反応が 400°C 付近で起きており、この時点で速いフッ化が始まったと考えられる。また、360°C 付近にもわずかに質量増加が確認できる。この二段階の反応は ZrO_2 のフッ化の特徴と似通っていることから Zry-2 表面の酸化物層のフッ化反応も含まれていることが示唆される。

SUS304 粉末の TG-DTA 測定結果を Fig.1(b)に示す。重量増加はほとんどなく、測定後の試料の X 線回折でもフッ化物の有意量の存在は確認できなかったが、350 °C 付近での若干の発熱がフッ化の可能性を示唆している。よって SUS304 のフッ化は多成分の合金による安定化と表面酸化被膜の影響が結果に表れたものと考えられる。

参考文献

[1] T.Ono, et al, *ECS Trans.* **75**, 87-93 (2016)

本研究は、JSPS 科研費 JP15K06665 による成果である。

* Haruaki Matsuura^{1,2}, Takafumi Uchiyama², Atsushi Nezu³, Nobuaki Sato⁴

¹Tokyo City University, ²Tokyo Inst. Tech., ³Tohoku University

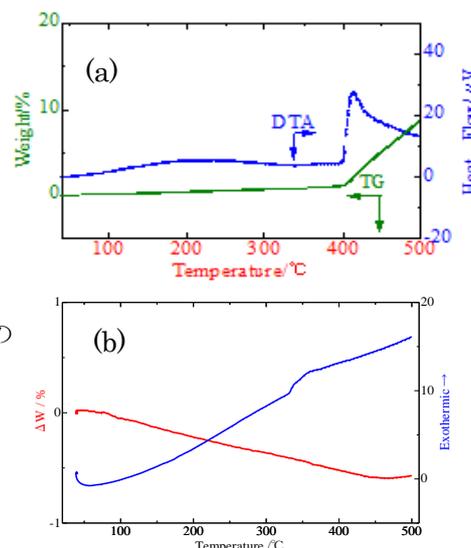


Fig.1 TG-DTA of Zry-2 (a) and SUS304 (b) in the presence of HF.