選択フッ化と溶融塩電解による燃料デブリの処理
（2）フッ化物溶融塩へのフッ化ジルコニウムの溶解挙動

Selective Fluorination and Molten Salt Electrolysis of Fuel Debris

(2) Dissolution Behavior of Zirconium Fluoride to Molten Fluoride

*佐藤　忠義[1]，松浦　治明[1]，内山　孝文[1]，佐藤　修彰[2]

[1]東京都市大学，[2]東北大学

燃料デブリの処理方法として検討されている乾式処理プロセス、溶融塩電解法の工程の前のプロセスである、選択溶解プロセスについて検討した。ここでは、作製した試料の上部と下部のジルコニウム含有量に着目し、フッ化物溶融塩（FLiNaK）中でのフッ化ジルコニウムの溶解挙動を評価した。

キーワード：フッ化ジルコニウム, FLiNaK, 蛍光 X 線分析

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所での事故により発生した炉心溶融に伴ってできた燃料デブリの処理方法が廃炉に向けた課題の一つになっている。従来の燃料再処理に用いられている湿式法と比較して臨界管理上の制約が緩和され、オンサイトでの処理も実行できる利点を持つ乾式処理プロセスが期待されている[1]。ここでは燃料デブリに混在するとされている燃料被覆管に含まれるジルコニウム由来の化合物が、選択溶融塩溶解プロセスにてどのような挙動をするかを考察するために、ZrF_4 とフッ化物溶融塩 FLiNaK [NaF-KF-LiF の共晶塩] を電気炉にて高温下で共存させ、炉冷後、試料の上部と下部の Zr 含有量を蛍光 X 線分析により定量することで FLiNaK 中での Zr の挙動を調査した。

2. 実験方法

LiF-KF-NaF=46.5:42:11.5mol%[2]を一定量グラッシーカーボン(以下 GC) 製のルツボに測り取り、正確な重量を記録した。加熱は Ar 雰囲気のグローブボックス(以下 GB)内の電気炉にて 800℃まで昇温させ、6 時間保持させた。室温まで電気炉の温度が下がった後に取り出し、タングステンカーバイド製のルツボで粉砕し FLiNaK とした。次に、ZrF_4 を GC 製のルツボに入れ、上からその FLiNaK を被せた。試料の物質量比は ZrF_4-FLiNaK=1:99,3:97,5:95,10:90,11:89 の計 5 試料である。試料を GB 内の電気炉にて 800℃まで昇温させ、6 時間維持した。電気炉が室温まで炉冷後に試料を取り出し、取り出した試料の上部と下部から 60mg をそれぞれ削り取り、同量の BN と混合し、ペレット成型を行い蛍光 X 線分析(XRF)試料とした。蛍光 X 線強度から検量線法を用いて測定試料の Zr 含有量を分析した。

3. 結果・考察

Fig.1 に ZrF_4 の物質量百分率に対し試料上部および下部に含まれる Zr の重量百分率をプロットした図を示す。Fig.1 の均質試料の計算値は混合前の物質量比から計算された値である。計算値と試料上部、試料下部からの定量結果とを比較し、FLiNaK 中での試料の挙動を推察した。測定結果から、試料上部、試料下部ともに計算値を下回っている。しかし、初期共存段階では存在しているはずのない試料上部に Zr が存在していることから下部から Zr が移動していると考えられる。このことから ZrF_4 の全体への拡散が確認できたが、計算値を分析結果が上部だけでなく、下部の試料も下回っていることから、下部の試料よりも試料中央部に Zr が試料内部に偏在している可能性がある。今後はより、ZrF_4 の溶解挙動を詳しく精査するため、ZrF_4 の濃度分析の細分化を行い、高温時での Zr の分布を固定するため、試料高温処理後に急冷を行う予定である。さらに、中央部の Zr 分布状態を把握するために EPMA での分析も行う予定である。

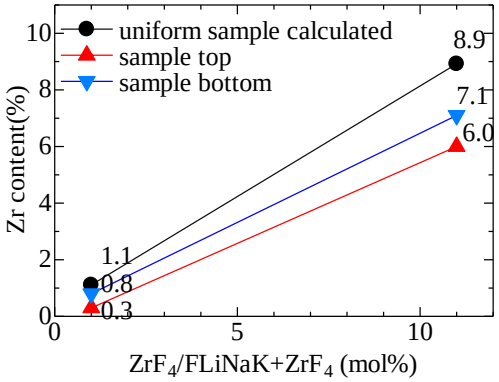


Fig.1 Change of Zr contents(wt%) with increasing ZrF_4 molar ratio.

参考文献

[1] T.Ono, NSato, A Nezu, T.Uchiyama. H.Matsuura, *ECS Trans*. **75**, 87-93(2016)

[2] Ernest M.Levin, Carl R.Robbins, Howard F,McMurdie, *PHASE DIAGRAM FOR CERAMISTS* **432** (1964)

本研究は JSPS 科研費 JP15K0665 による成果の一部である。

*Tadayoshi Sato[1], Haruaki Matsuura[1], Takafumi Uchiyama[1] and Nobuaki Sato[2]

[1]Tokyo City Univ., [2]Tohoku Univ.