フッ化法を用いた燃料デブリの安定化処理技術の開発

(19) 多成分フッ化物の酸化物転換試験 (その 2)

Development of Fuel Debris Treatment Technology by the Fluorination Method

(19) Multi-component Fluorides Oxidation Experiments (Part 2)

*近沢 孝弘¹、深澤 哲生²

¹三菱マテリアル, ²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。多成分系フッ化物の酸化物転換試験の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

本研究の目的は、FBR 等の革新炉や LWR の重大事故で万一発生した場合の燃料デブリ及び福島第一原子力発電所の事故で生じた燃料デブリに対する安定化処理技術を開発することである[1]。燃料デブリをフッ素ガスと反応させることで、核燃料成分は揮発性フッ化物としてガス化回収し、構成材成分や核分裂生成物の大部分は不揮発性フッ化物として残渣側に残留する。この残渣フッ化物を酸化物に転換する条件について、これまでにフッ化物試薬を使った単成分系及び代表的な多成分共存系による試験によって、その酸化物への転換反応性を確認している[2]。それら結果をもとに、多成分系フッ化物試薬及び模擬デブリをフッ化処理して得たフッ化残渣を対象に酸化物転換試験を行った。

2. 実験

燃料デブリをフッ化処理した際に残渣となる成分の中から FeF_3 - ZrF_4 - CaF_2 の 3 成分系フッ化物、及び模擬デブリとして UO_2 - ZrO_2 - Fe の 3 成分系をフッ化処理して得た FeF_3 - ZrF_4 を主成分とするフッ化残渣の 2 種類を対象とした。これらを湿潤ガスの導入が可能な熱天秤及びポート炉により、所定温度に加熱して高温加水分解反応を生じさせる酸化物転換試験を行い、転換反応性や残渣物性等のデータを取得した。

3. 結果・考察

試験結果を表 1 に示す。3 成分系試料では、熱的に安定な CaF_2 が、 FeF_3 及び ZrF_4 との共存によって、 CaF_2 単成分系の場合よりも低温で酸化物 (複合系) に転換された。フッ化残渣 2 成分系試料では、フッ化物試薬で原料を調製したこれまでの結果と同様に、容易に酸化物に転換されることを確認した。 CaF_2 の混合酸化物転換反応については、 SrF_2 でも同様な挙動を確認しており[2]、アルカリ土類金属のフッ化物は、Fe や Zr などの酸化物 (又はフッ化物) と共存することで加水分解反応が促進されることが明らかとなった。

表 1 多成分フッ化物の酸化物転換試験結果 (1 グラム規模ポート炉)

フッ化物原料粉		3 成分系 (試薬調製) FeF_3 - ZrF_4 - CaF_2	フッ化残渣 2 成分系 FeF_3 - ZrF_4 (UO_2 - ZrO_2 - Fe のフッ化残渣)
試験条件	温度条件	昇温 10°C/min → 温度保持 1200°C × 3h	
	導入ガス	0.3atm - H_2O / N_2	
残渣形態	主要化学形態 (X 線回折)	Fe_3O_4 , ZrO_2 $\text{Ca}_2\text{Fe}_2\text{O}_5$, CaZrO_3	Fe_3O_4 , ZrO_2
酸化物転換率	フッ素含有率より算出	99.6 %	99.9 %

参考文献 : [1]深澤ら、日本原子力学会 2014 年春の年会 H56, [2]近沢ら、日本原子力学会 2017 年秋の大会 1A14

* Takahiro Chikazawa¹, Tetsuo Fukasawa²

¹ Mitsubishi Materials, ² 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 29 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。