

燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発 (7) 模擬廃棄物のフッ化試験 (その3)

Fluorination Method for Classification of the Waste Generated by Fuel Debris Removal

(7) Fluorination Experiment with Simulated Waste (Part 3)

*遠藤 慶太¹、渡邊 大輔¹、高野 公秀²、須藤 彩子²

¹日立 GE、²JAEA

炉心溶融物がコンクリート上に落下した状況を模擬した MCCI 生成物のフッ化試験を実施し、大部分の U 及び Si がフッ化揮発し、他元素は固体残渣として残留することがわかった。本研究で得られた試験結果より、1F で想定される MCCI 生成物からフッ化処理により U を 90%以上揮発できる見通しが得られた。

キーワード：福島第一原子力発電所，MCCI，模擬燃料デブリ，フッ化，廃棄物管理

1. 緒言 福島第一原子力発電所（1F）の燃料デブリ取出し時に発生する廃棄物の管理負荷を軽減するため、廃棄物をフッ化し核燃料物質を揮発させ、管理負荷の高い核燃料物質とその他の廃棄物とに分別する方法を開発している。本研究では、溶融炉心-コンクリート相互作用（MCCI）生成物に着目し、(U,Zr,Gd)O₂ やコンクリート等の混合物成型体を種々の条件で溶融・固化し、MCCI により生成し得る U 化合物のフッ化挙動を評価した[1]。本報告では、1F での MCCI 生成物の生成過程として炉心溶融物がコンクリート上に落下した状況を想定し、集光加熱により温度勾配下で調製した模擬 MCCI 生成物のフッ化試験結果を報告する。

2. 実験 炉心溶融物成分として(U,Zr,Gd)O₂、SUS316L、ZrH₂を原料とした混合物成型体を作製し、ZrO₂粉末を敷いた円柱状コンクリート上に混合物成型体を配置した後、集光加熱にて試料を溶融・固化した。試料底面の未溶融コンクリート部を一部切除し、フッ化反応炉内の試料ボートに装荷した後(装荷量：8 g)、炉内温度約 600 °Cにて F₂ガスを 300ml/min で供給し試料をフッ化した。反応時に生成した揮発性フッ化物は後段のコールドトラップ(CT)で回収し、炉内に残った残渣は試料ボート上で回収した。試験後はSEM/EDXやXRD、ICP-MS等による分析を行い、模擬 MCCI 生成物中の各元素のフッ化挙動を評価した。

3. 結果 フッ化試験前後の試料状況を図1に示す。試験前試料は溶融部が主であり底面に未溶融のコンクリートが残った状態であったが、試験後試料ではそれらがそのまま残っている様子は見られず、緑色及び茶色の固体へ変化していた。試験後試料を粉砕し試料状態を観察したところ、未反応と思われる箇所はなく試料内部までフッ化反応が進行していたことを確認した。SEM/EDX 及び XRD にて試験後の固体残渣を分析したところ、緑色及び茶色固体は Zr, Ca, Al, Fe を含むフッ化物であり CaZrF₆ や AlF₃ 等であることがわかった。また、ICP-MS 及び ICP-AES にて試験後試料の組成分析を行った。その結果、U 及び Si の揮発率は 90%を超え大部分がフッ化揮発した一方、Zr, Fe, Ni, Ca, Al, Gd は固体残渣として残留したと評価された。本研究での種々の試験結果より、1F で想定される MCCI 生成物からフッ化処理により核燃料物質である U を 90%以上揮発できる見通しが得られた。

参考文献：[1] 渡邊大輔ら、日本原子力学会 2022 年春の年会、1K07

本報告は、日本原子力研究開発機構からの受託事業として、日立 GE ニュー クリア・エナジー(株)が実施した令和3年度「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発」の成果を含みます。

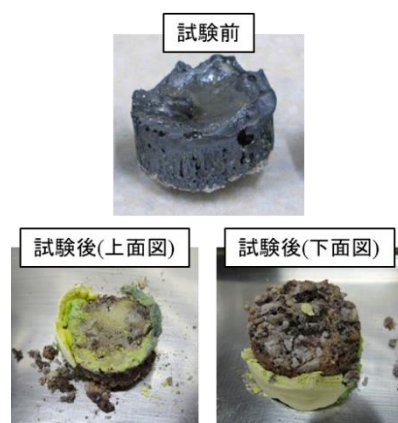


図1 フッ化試験前後の試料状況

*Keita Endo¹, Daisuke Watanabe¹, Masahide Takano² and Ayako Sudo²

Hitachi-GE¹, JAEA²