

フッ化法を用いた燃料デブリの安定化処理技術

HITACHI



日立GE ○星野国義、笹平朗、渡邊伸二、深澤哲生、
三菱マテリアル 菊池俊明、長田正信、東北大 桐島 陽、佐藤修彰

背景(必要性)

- (1)福島第一原子力発電所の事故にともない溶融燃料(デブリ)が発生
- (2)原子炉からデブリを回収して安定化、保管、計量管理などの処置が必要
- (3)革新炉及び軽水炉の安全基盤確保上、デブリの安定化処理技術が必須

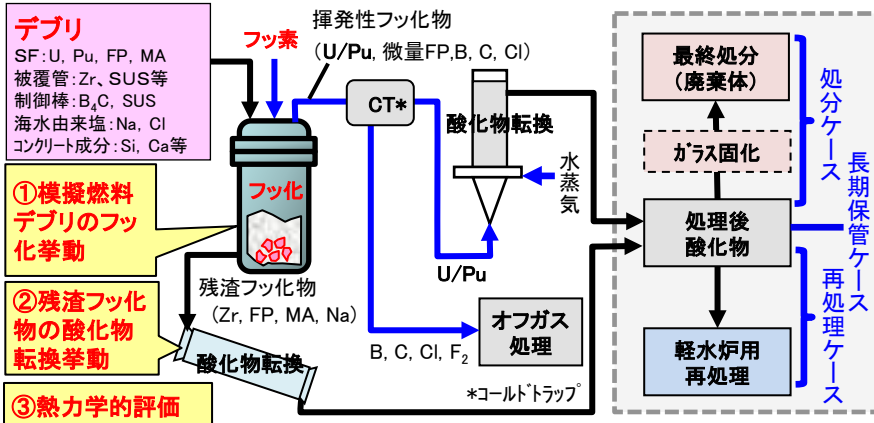
目標・方針

- (1)フッ化物揮発法によるデブリの安定化処理技術を開発(米国スリーマイル島原子力発電所のデブリは硝酸溶解困難)
- (2)フッ素ガスによりデブリをフッ化処理し、酸化物へ転換
⇒ 化学的に安定で均一な酸化物に転換
⇒ 核燃料物質と汚染物に分離
⇒ 長期保管、処理、処分等に柔軟に対応
- (3)これまで再処理法として開発してきた技術、装置を活用

フッ化物揮発法によるデブリ処理プロセスと開発工程

本法の特長

- 元素を選ばずフッ化可能 ⇒ デブリに好適
- 均一で安定な酸化物に転換 ⇒ 各種処理法に柔軟に対応可能
- デブリ処理施設がコンパクト ⇒ 低コストで実現可能



①模擬燃料デブリのフッ化挙動
②残渣フッ化物の酸化物転換挙動
③熱力学的評価

年度	'13	'14	'15	'16	'17	'18	'19	'20	'21	'22	'23	'24	'25~
Phase-1 (小規模フッ化試験)													
Phase-2 (工学規模試験)													
Phase-3 (実証試験)													
プラント適用													

予備検討: デブリのフッ化反応

- ・熱力学的評価及びこれまでのフッ化試験により、デブリ構成成分のフッ化反応性を確認
- ・ほとんどの成分でフッ化反応が進行
- ・確認できていない成分についてフッ化試験実施

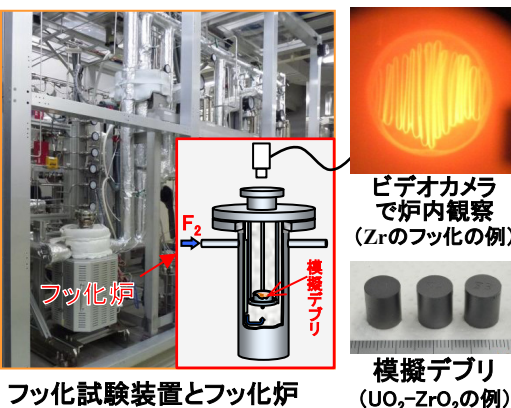
起源	グループ	区分	元素	熱力学的判定	反応式	ΔG(900K)	
						kJ/mol	
燃料成分	U, Pu		U	進行	$UO_2 + 3F_2 = UF_6 + O_2$	-969.739	
			Pu	進行	$PuO_2 + 3F_2 = PuF_6 + O_2$	-663.408	
			UO_2-PuO_2	進行	$(U_xPu_y)O_{2(x+y)} + 2(x+y)F_2 = xUF_6 + yPuF_6 + (x+y)O_2$	データなし(試験実績有)	
	FP		Cs	進行	$0.5Cs_2O + 0.5F_2 = CsF + 0.25O_2$	-353.064	
			Sr	進行	$SrO + F_2 = SrF_2 + 0.5O_2$	-563.848	
			Nd	進行	$0.5Nd_2O_3 + 1.5F_2 = NdF_3 + 0.75O_2$	-683.563	
デブリ特徴成分	冷却材		Na	進行	$Na + 0.5F_2 = NaF$ $0.5Na_2O + 0.5F_2 = NaF + 0.25O_2$	-480.302 -335.537	
			Fe	進行	$2Fe + 3F_2 = 2FeF_3$	-1678.271	
	被覆管構造材		Zr	進行	$ZrO_2 + 2F_2 = ZrF_4 + O_2$ $Zr + 2F_2 = ZrF_4$	-685.119 -1613.85	
			C	進行	$C + 2F_2 = CF_4$	-787.271	
	被覆材		SiC	進行	$SiC + 4F_2 = SiF_4 + CF_4$	-2217.36	
			制御棒	B_4C	進行	$B_4C + 8F_2 = 4BF_3 + CF_4$	-5052.83
	コンクリート		Si	進行	$SiO_2 + 2F_2 = SiF_4 + O_2$	-738.207	
			Ca	進行	$CaO + F_2 = CaF_2 + 0.5O_2$	-524.183	
	燃料と被覆管多成分			Fe-UO ₂ -PuO ₂	不明	$(Fe_xU_yPu_z)O_{2(x+y)} + [3(x+y)+3/2z]F_2 = xUF_6 + yPuF_6 + zFeF_3 + (x+y)O_2$	データなし
				Zr-UO ₂ -PuO ₂	不明	$(Zr_xU_yPu_z)O_{2(x+y)} + [3(x+y)+2z]F_2 = xUF_6 + yPuF_6 + zZrF_4 + (x+y)O_2$	データなし
U/Pu+種々成分				不明	データなし	データなし	
				不明	データなし	データなし	

赤字: ナトリウム冷却高速炉に特徴的な元素

開発成果(～2014年度)

1. 模擬デブリの調整およびフッ化試験

- ・デブリフッ化試験装置を整備
- ・コールド模擬試験により装置性能確認
- ・Uを含む主要成分模擬デブリを調製
- ・Uを含む模擬デブリのフッ化試験を実施予定
- ・Puを含む模擬デブリのフッ化試験をロシアRIAR(原子炉科学研究所)で実施予定

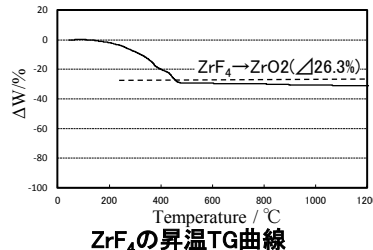


フッ化試験装置とフッ化炉

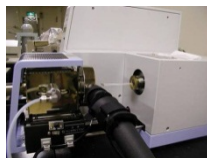
模擬デブリ (UO₂-ZrO₂の例)

2. 残渣フッ化物の酸化転換試験

- ・熱天秤、ポット炉試験装置で、残渣フッ化物の酸化物転換挙動を評価
- ・単成分における酸化物転換挙動を把握
- ・多成分*における酸化物転換試験を実施予定。(*1: 模擬デブリフッ化試験残渣含む)



ZrF₄の昇温TG曲線



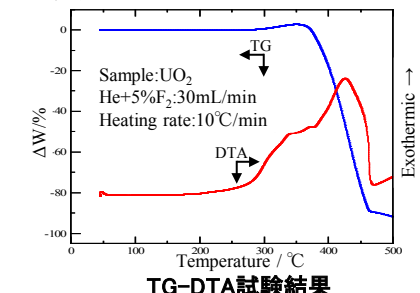
熱天秤試験装置



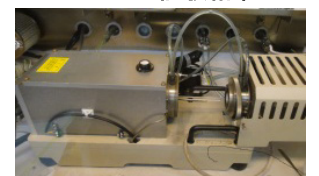
ポット炉試験装置

3. 熱力学的評価及び基礎試験

- ・グローボックス (GB) 内熱天秤試験装置等を整備し、フッ化反応の熱力学的評価を実施中



TG-DTA試験結果



熱天秤試験装置(GB内に設置)