

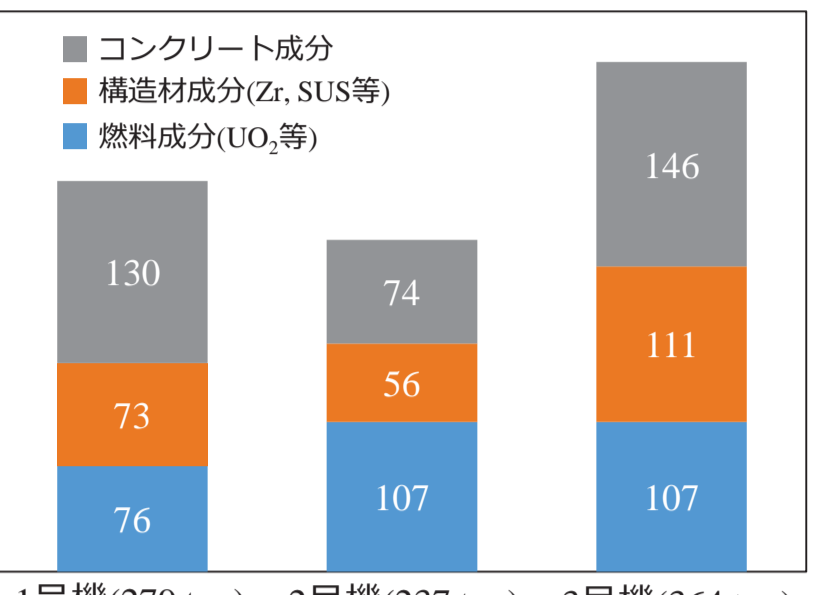


難溶解性物質の溶解のための 大気圧非平衡プラズマ発生装置の開発

松本 康平(s155043@stn.nagaokaut.ac.jp), 立花 優, 鈴木 達也
長岡技術科学大学大学院 工学研究科 原子カシステム安全工学専攻

Introduction

福島第一原子力発電所



ZrO₂, MCCI, PuO₂を含む
→硝酸に難溶^[2]

PUREX法による処理は困難

デブリ取り出し後の処置の検討 新たな溶解方法の開発が必要

デブリ取り出しに向けたロードマップ^[3]



- ・炉内アクセス方法の検討
- ・漏えい箇所の確認
- ・炉内デブリ位置の把握

デブリの溶解方法の提案

① **ボロキシデーションを応用した
酸素APNTPによるデブリの粉体化**

→ 塩素化反応の促進

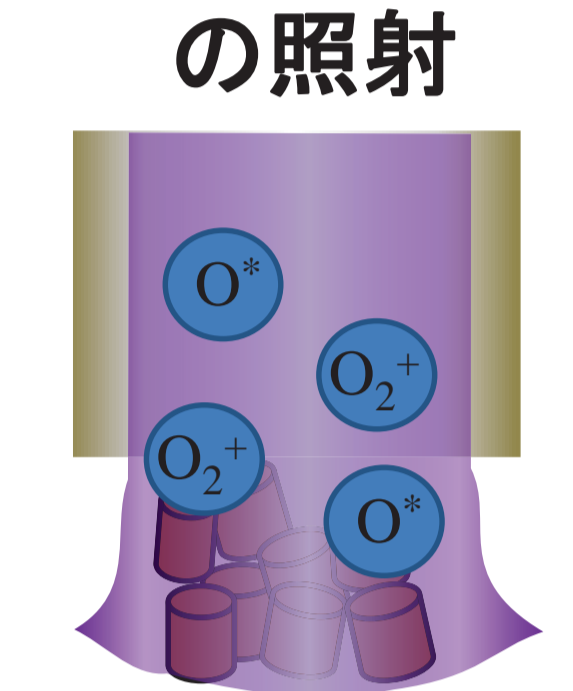
② **塩素系APNTPによる粉体化した
デブリの塩素化**

→ 塩酸系への処理へ



クロール法
高温下での反応
・揮発性のFP
・反応容器の腐食

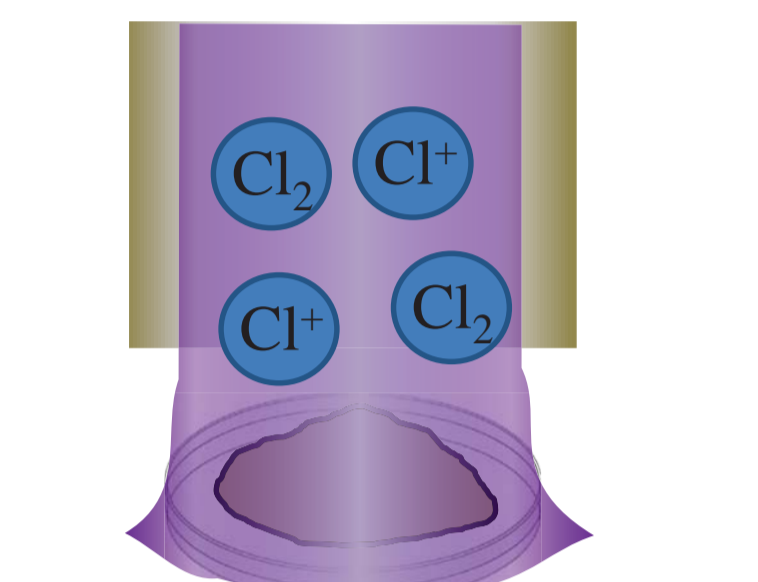
酸素プラズマ
の照射



ボロキシデーション
を利用した粉体化



塩素系プラズマ
の照射→塩素化



[1] Estimation of fuel debris distribution by the analysis and evaluation, International Research Institute for Nuclear Decommissioning, <http://irid.or.jp/wp-content/uploads/2016/10/20161004.pdf>, accessed 5 October(in Japanese).

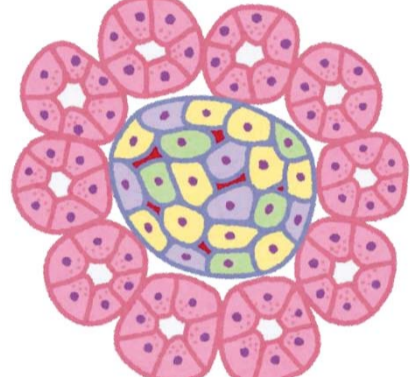
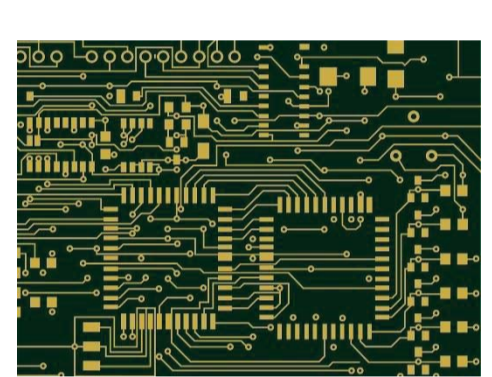
[2] H. Ikeuchi et al., "Dissolution behavior of (U, Zr)O₂-based simulated fuel debris in nitric acid", *Journal of Nuclear Science and Technology*, 51, 7-8 (2014) 996-1005.

[3] Progress of the medium- and long-term roadmap, Tokyo Electric Power Company Holdings, http://www.tepco.co.jp/n/fukushima-np/roadmap/images1/images2/d161124_05-j.pdf, accessed 24 November(in Japanese).

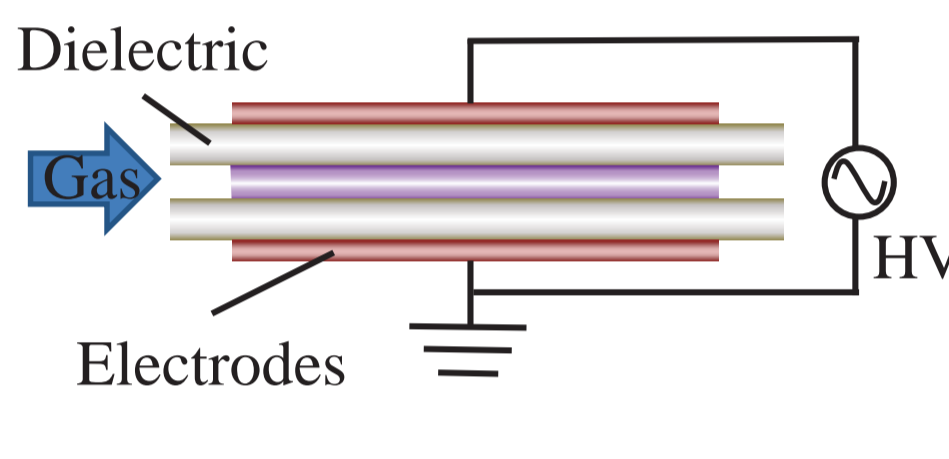
大気圧非平衡プラズマ

(Atmospheric-pressure non-thermal plasma, APNTP)

非常に活性なラジカル
常温、常圧下で生成可能



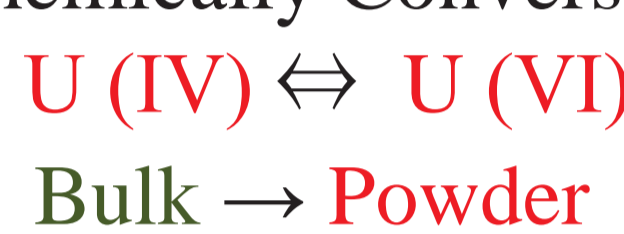
誘電体バリア放電
(Dielectric Barrier Discharge, DBD)



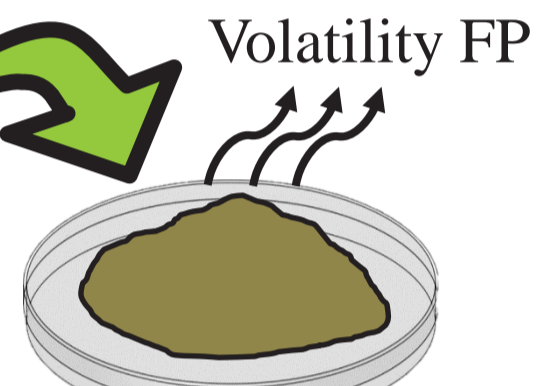
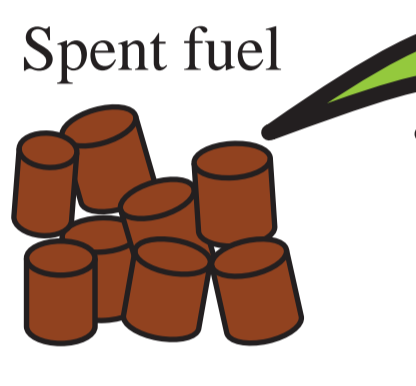
基盤材料 生体材料

ボロキシデーション

使用済み燃料の前処理
Chemically Conversion

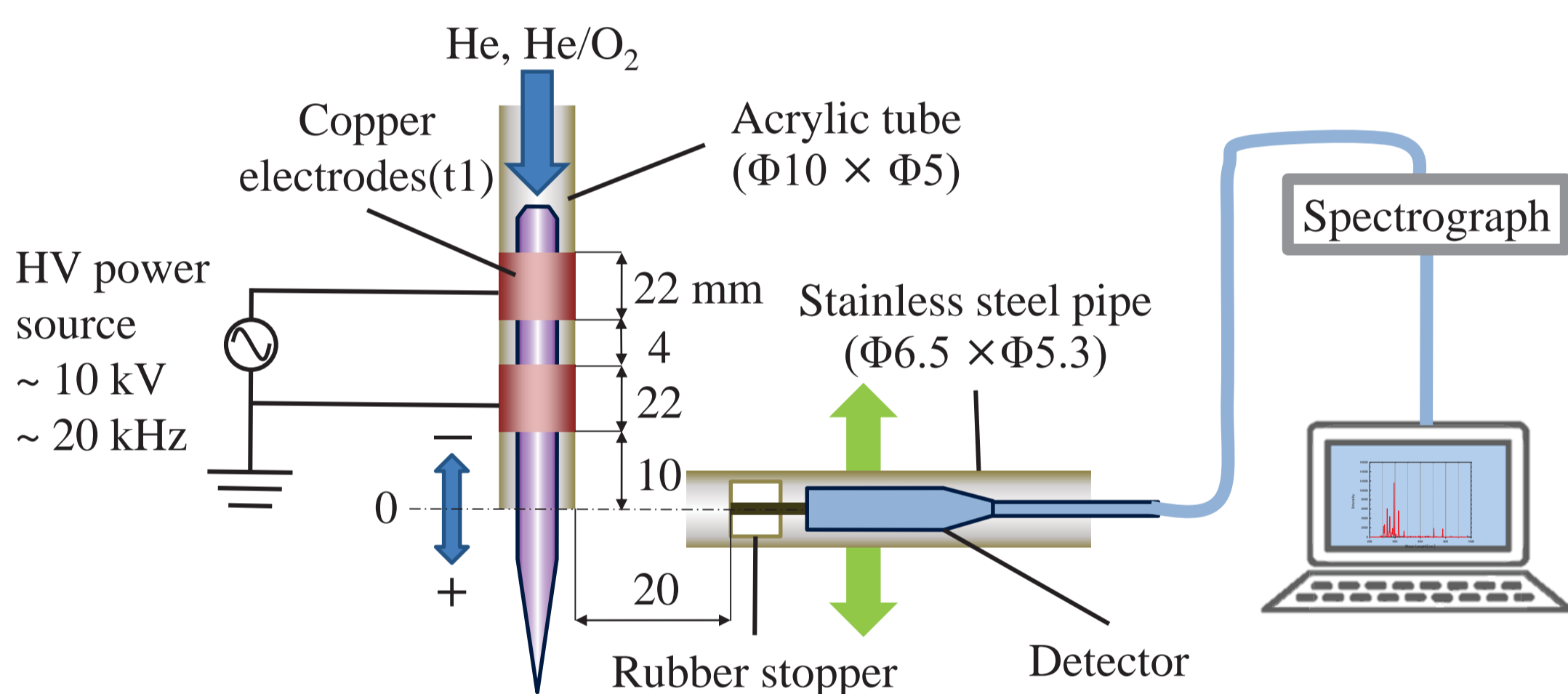


Bulk → Powder



Experimental Method

発光スペクトルの測定

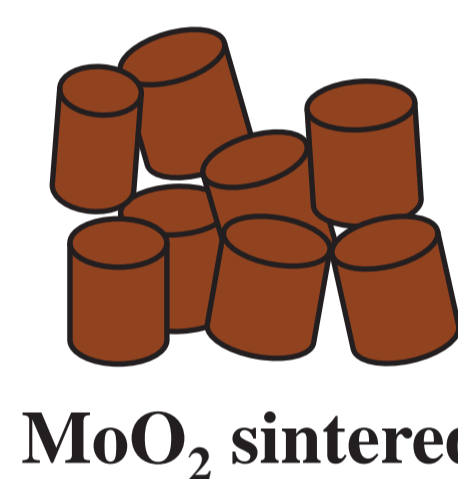


模擬物質の作製

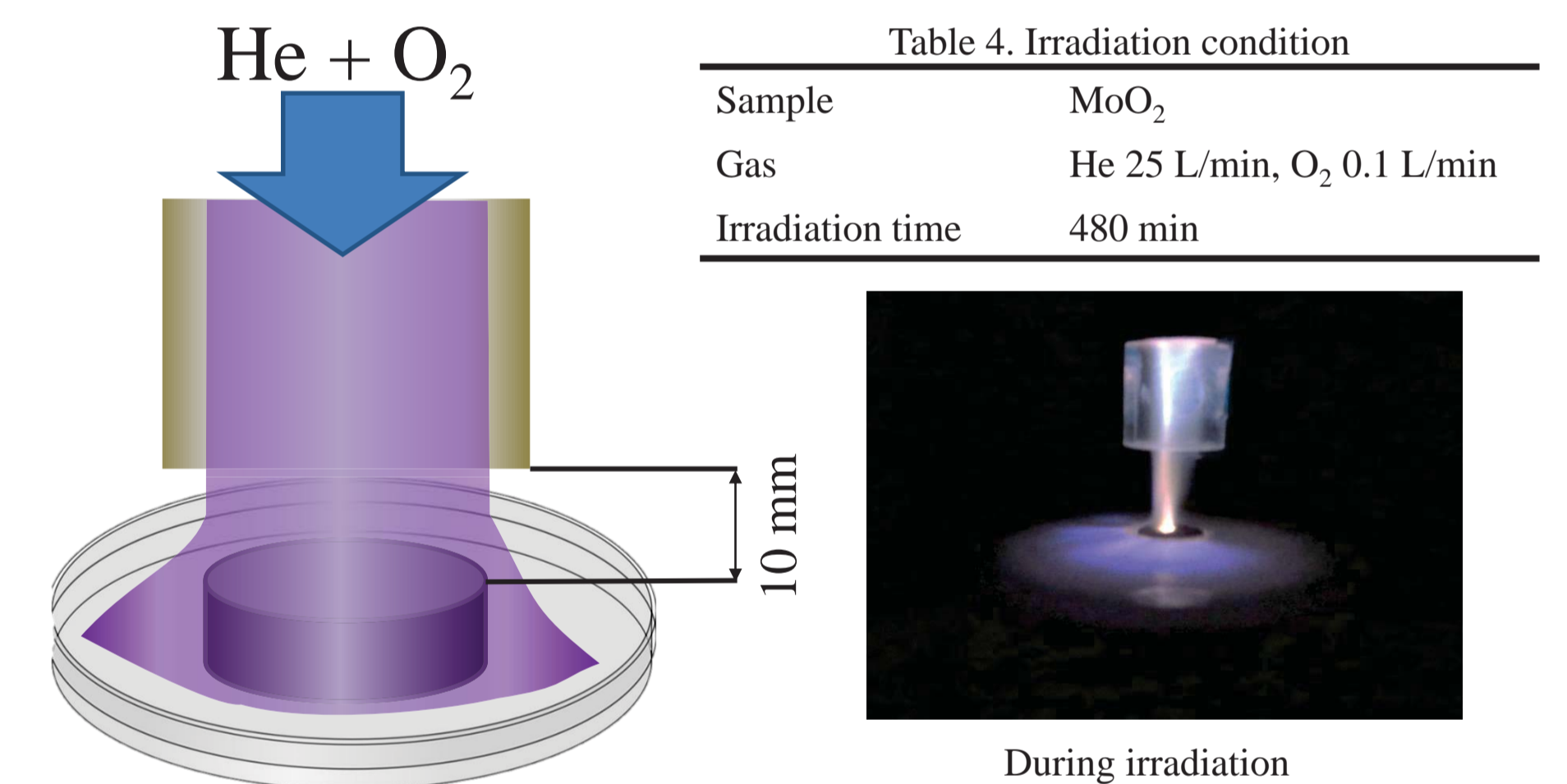
Oxide	Theoretical Density(TD) g/cm ³		Volume expansion rate
	(IV)	(VI)	
U	10.96	8.30	1.37
Mo	6.47	4.69	1.56

Raw powder	Atmosphere	Temperature [°C]	Keeping time [min]
MoO ₂	Ar 5 L/min	1100	300

Material	Size [mm]	Weight [mg]	Relative Density [%]
MoO ₂	Φ7 × t2.7	459.1	68.3



He/O₂プラズマ照射試験



Results and Discussion

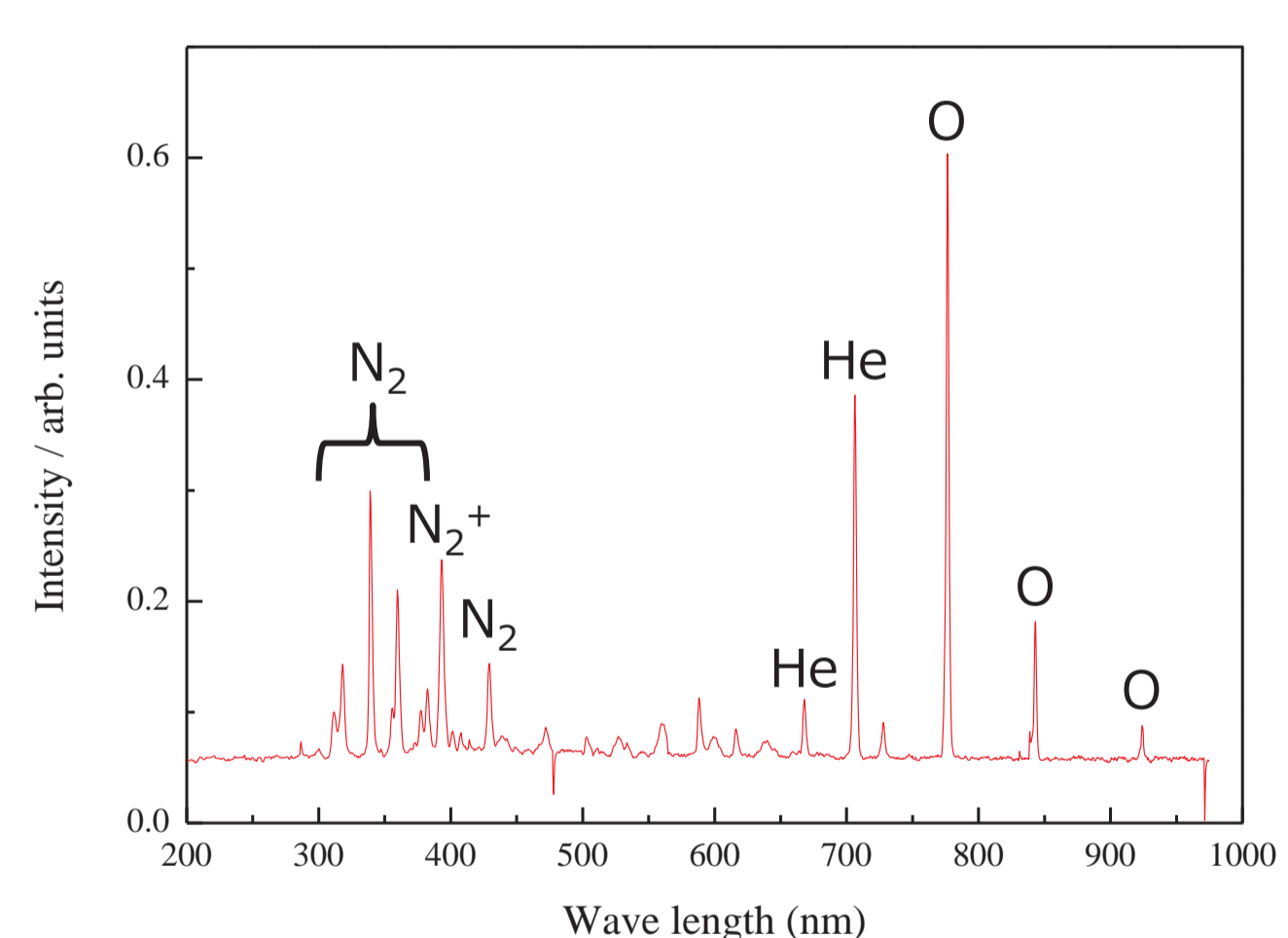


Fig. 1. Optical emission spectra of the He/O₂ plasma at +10 mm position. He gas flow rate: 25L/min, O₂ gas flow rate: 0.1 L/min.

ラジカルの生成を確認

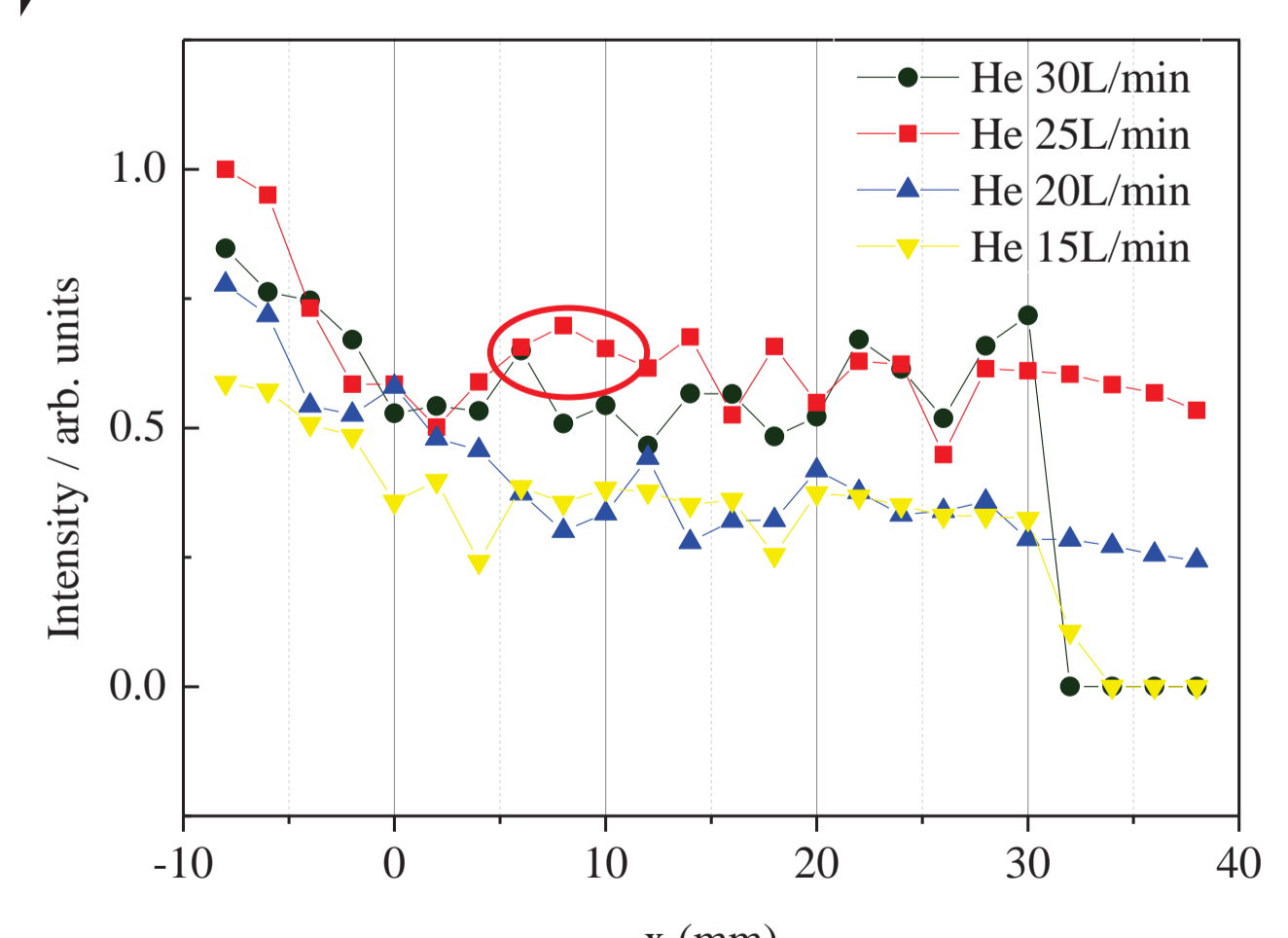


Fig. 3. Vertical emission profiles of O 776 nm. He gas flow rate: 15 ~ 30 L/min, O₂ gas flow rate: 0.1 L/min

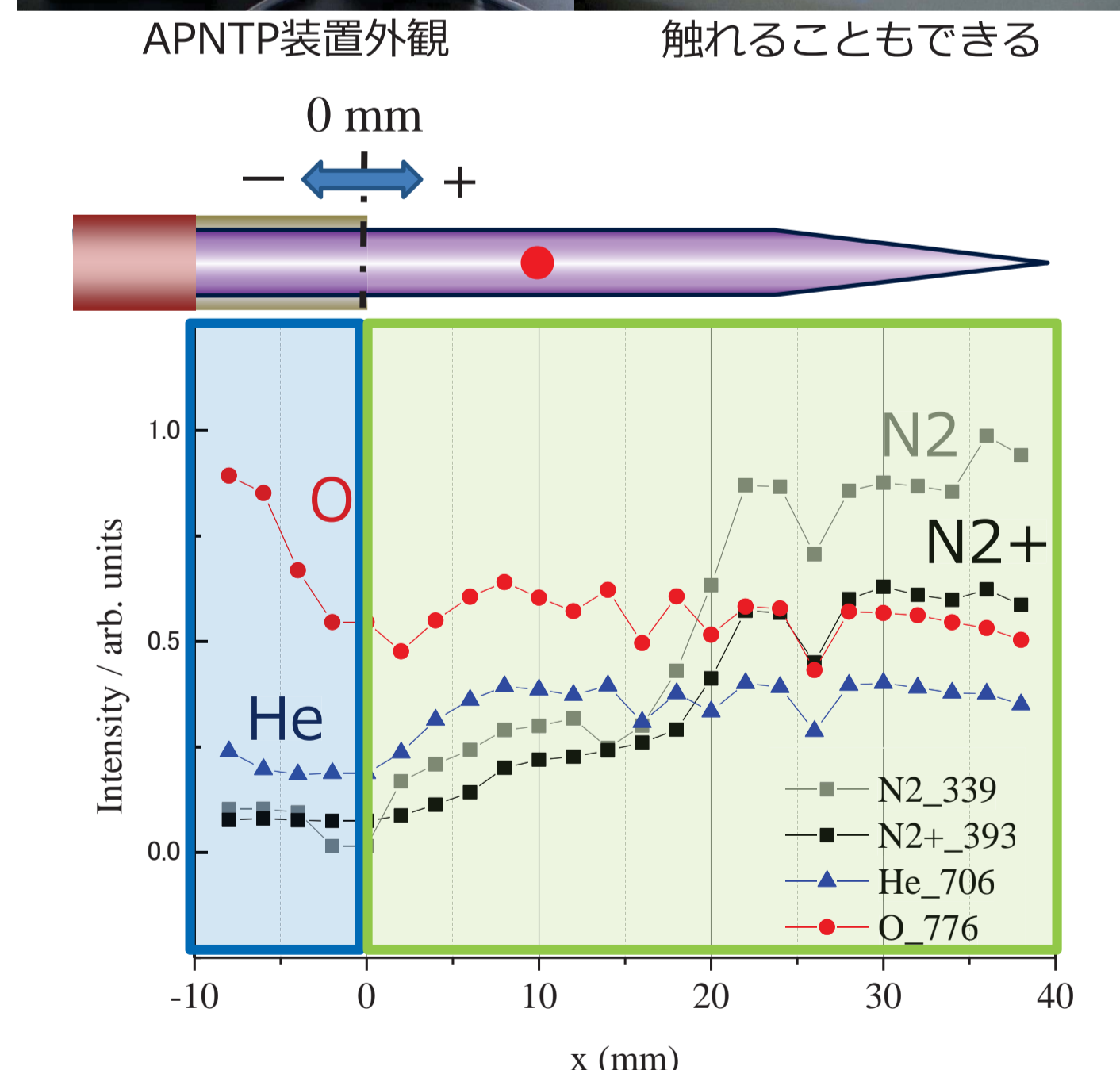
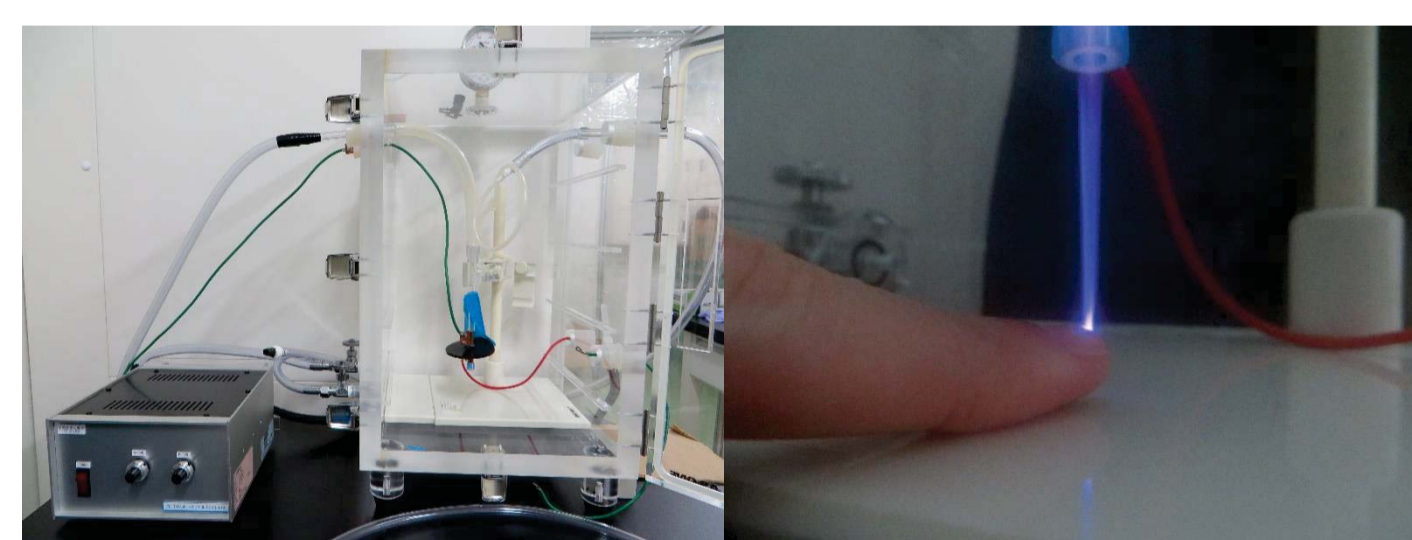
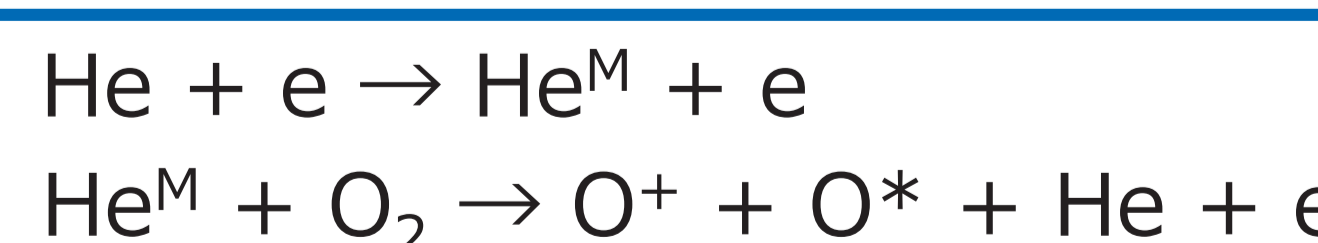


Fig. 2. Vertical emission profiles of He 706 nm, O 776 nm, N₂ 339 nm, N₂⁺ 393 nm. He gas flow rate: 25L/min, O₂ gas flow rate: 0.1 L/min. Position zero is the edge of the acrylic tube with positive values into the ambient atmospheric.



Mo(IV) → Mo(VI)の評価方法

MoO₃のみアルカリに可溶

→ 照射前後試料をアルカリ溶解
前後のMo濃度を観察

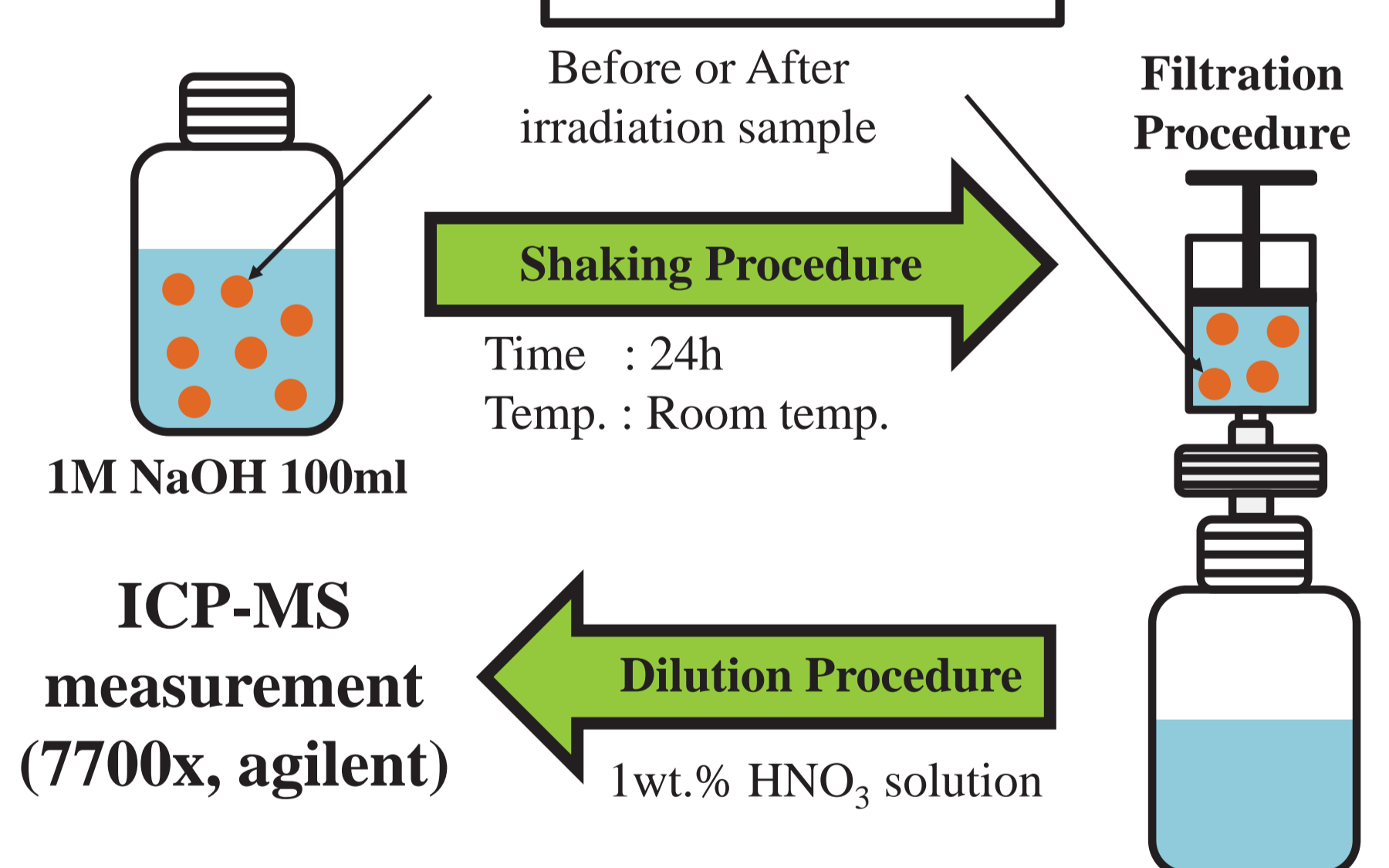
Sample	Concentration of Mo (ppm)	Dissolved raw powder (mg)
MoO ₂ raw powder	72.37	4.78
MoO ₃ raw powder	61.02	4.03
MoO ₂ raw powder	67.60	4.46
MoO ₃ raw powder	949.50	70.87
MoO ₂ raw powder	990.84	73.95
MoO ₃ raw powder	993.13	74.12

→ MoO₂とMoO₃のアルカリへの溶解度の差を確認

Sample	Dissolved Mo (mg)	Conversion of MoO ₃ (mg)	Conversion ratio (%)
Before irradiation	12.77	12.01	2.31
After 8h irradiation	20.81		

→ MoO₂からMoO₃への転換を確認

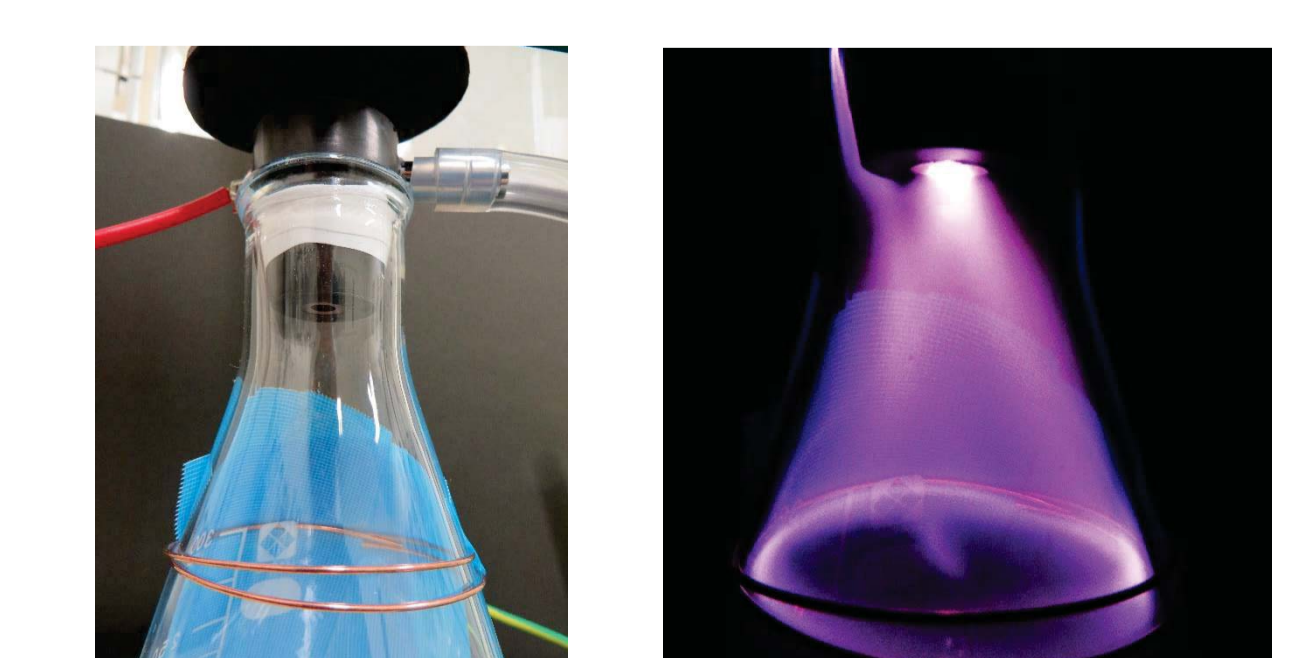
溶解試験の流れ



1M NaOH 100ml
ICP-MS measurement (7700x, agilent)

$$C = \frac{\text{Conversion MoO}_3 \text{ irradiated sample (mol)}}{\text{Before irradiation sample (mol)}} \times 100$$

Future Works...



より酸素ラジカルの多い
雰囲気下での照射を予定

Conclusion and Future works

本研究では、まず大気圧非平衡プラズマ発生装置の作製を行い、プラズマの発光スペクトル測定により酸素ラジカルを生成していることを確認した。さらに、U燃料の模擬物質として作製したMoO₂焼結体にHe/O₂プラズマを照射させる酸化試験を試み、ICP-MSによる濃度測定によりMoO₂からMoO₃へとわずかに転換していることを確認した。

今後は転換率を上げるために酸素のラジカル量を多くした条件下でのHe/O₂プラズマの照射を試み、目的としているボロキシデーションによる粉体化を目指す。