

# フッ化法を用いた燃料デブリの安定化処理に関する研究開発

日立GE ○遠藤慶太、渡邊伸二、星野国義、笹平朗、深澤哲生  
三菱マテリアル 近沢孝弘、東北大 桐島陽、佐藤修彰

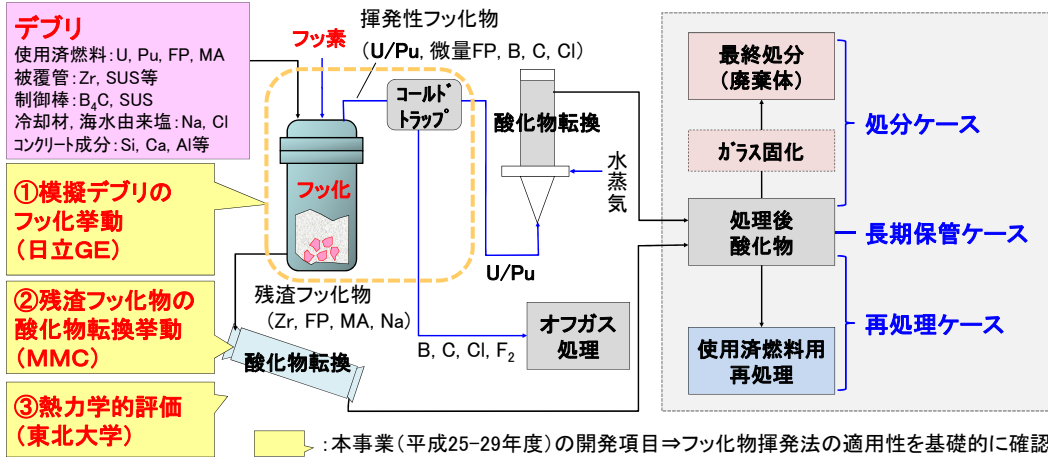
HITACHI



## 背景(必要性)

- (1)福島第一原子力発電所の重大事故により溶融燃料(デブリ)が発生、革新炉(高速炉)でもデブリ発生 of 想定が必要
  - (2)原子炉からデブリを回収した後で、計量管理、貯蔵保管、処理処分などの処置が必要
  - (3)上記処置を講ずるとともに、革新炉及び軽水炉の安全基盤を確保するため、デブリの安定化処理技術が必須
- ⇒使用済燃料再処理法としてこれまで開発してきたフッ化物揮発法をデブリ安定化処理技術に適用

## フッ化物揮発法によるデブリ処理プロセスと特徴



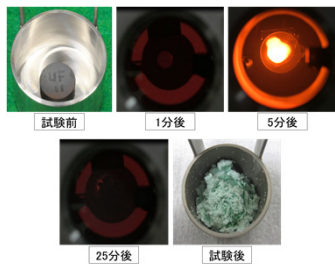
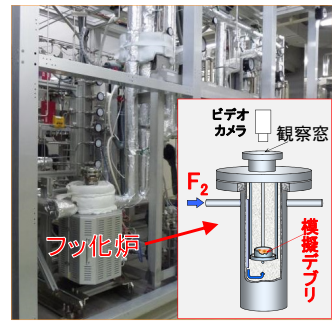
### 本法の特長

- 元素を選ばずにフッ化可能 ⇒ 多種多様のデブリを処理
- 均一で安定な酸化物に転換 ⇒ 各種処置法に柔軟に対応
- U/Puから多量不純物を除去 ⇒ 核物質計量管理が容易化
- デブリ処理施設がコンパクト ⇒ 低コストで安定化

## これまでの研究開発成果と今後の予定

### 1. 模擬デブリの調製及びフッ化試験

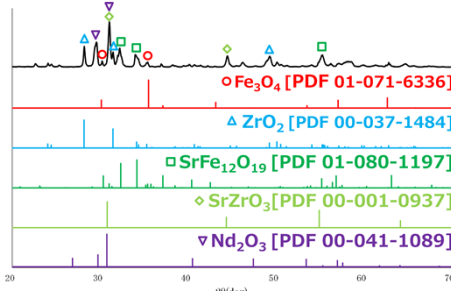
- U含有模擬デブリ試料の調製(14種類)、フッ化試験を実施中
- ⇒塊状の $UO_2-Fe$ 、 $UO_2$ とNdとの固溶化が見られた $UO_2-Fe-FP$  (Cs, Sr, Nd)を含め、10種の模擬デブリを30分程度の短時間でフッ化処理できることを確認
- ⇒物理的/化学的形態に依らず、Uは99%以上フッ化揮発し、主要不純物(Fe, Zr等)は残渣として残存したことから、Uから大部分の不純物を分離回収できる見通しを得た。
- ・Pu含有模擬デブリのフッ化試験をチェコ研究機関で実施予定



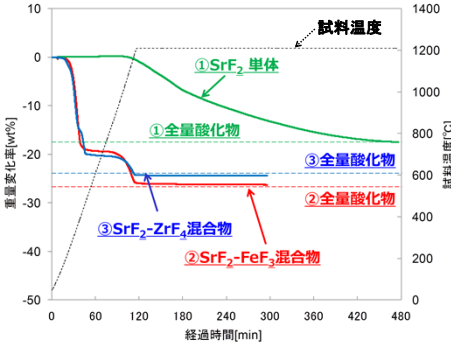
模擬デブリフッ化試験の試料状況 ( $UO_2-Fe$ 塊状)

### 2. 残渣フッ化物の酸化転換試験

- ・熱天秤、ポット炉試験装置による模擬残渣フッ化物の酸化転換挙動を評価
- ⇒5成分系( $FeF_3, ZrF_4, CsF, SrF_2, NdF_3$ )ポット炉試験で全量酸化転換されることを確認
- ⇒ $SrF_2$ は単独では酸化困難であるが、FeやZrと複合酸化物を形成したことにより、酸化反応が促進された。
- ・左記 $UO_2-ZrO_2-Fe$ フッ化試験の実残渣の酸化転換試験を実施予定



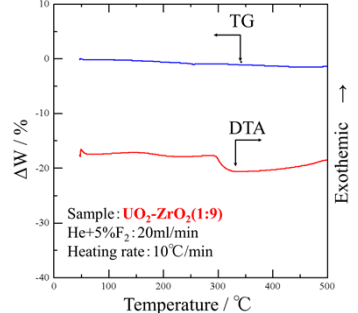
5成分系ポット炉試験後の残渣XRD



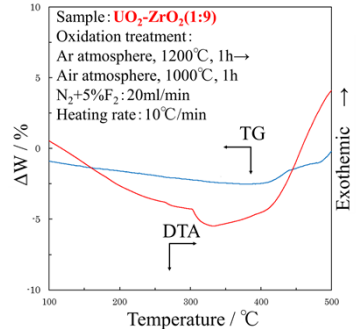
$FeF_3, ZrF_4$ 共存下における熱天秤試験結果

### 3. 熱力学的評価及び基礎試験

- ・熱天秤試験装置によるフッ化反応の熱力学的評価を実施
- ⇒Zrリッチの( $U, Zr$ ) $O_2$ 固溶体では重量変化がなく、フッ化反応が進行せず。
- ⇒Zrリッチ固溶体を酸化処理することにより、重量変化が生じフッ化反応が促進された。
- ・U含有模擬デブリのフッ化反応の熱力学的評価を纏める予定

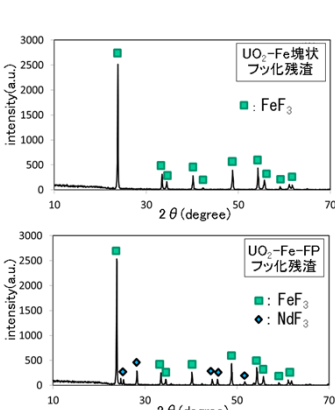


熱天秤試験結果(酸化処理前)



熱天秤試験結果(酸化処理後)

模擬デブリ	フッ化残渣*1	U揮発率*2 (%)
$UO_2-Fe$	$FeF_3$	99.8
$UO_2-SUS$	$FeF_3$	99.9
$U_3O_8-Fe_2O_3$	$FeF_3$	99.9
$UO_2-ZrO_2$	$ZrF_4$	99.3
$UO_2-ZrO_2-Fe$	$ZrF_4 + FeF_3$	99.6
$UO_2-Fe-Na$	$FeF_3$	99.9
$UO_2-Fe-B_4C$	$FeF_3$	99.7
$UO_2-Fe-FP$	$FeF_3 + NdF_3$	99.7
$UO_2-Fe-Al_2O_3$	$AlF_3 + FeF_3 + Al_2O_3$	99.8
$UO_2-Fe$ 塊状	$FeF_3$	99.7



フッ化試験後の残渣XRD ( $UO_2-Fe$ 塊状、 $UO_2-Fe-FP$ )

### 4. 技術評価委員会

- ・産官学の有識者13名による評価委員会を半年に1回開催
- ・研究計画・成果の妥当性を審議するとともに、助言・意見を研究開発推進に反映

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25~28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。