

フッ化水素によるウラン-ジルコニウム混合試料のフッ化挙動

Fluorination Behavior of Uranium-Zirconium Mixture by Hydrogen Fluoride

*大野 貴裕¹, 佐藤 修彰², 根津 篤³, 内山 孝文¹, 松浦 治明¹

¹東京都市大学, ²東北大学, ³東京工業大学

福島第一原子力発電所事故により生じた燃料デブリの処理に関する研究の一環として、熱分析装置と X 線回折装置を用いて酸化ウラン - ジルコニウム混合試料のフッ化挙動を調査した。

キーワード：燃料デブリ, フッ化, 二酸化ウラン, 二酸化ジルコニウム

1. 緒言

福島第一原子力発電所の事故により生じた燃料デブリの処理処分にはこれまで用いられていた再処理プロセスの延長だけでは対応が困難な可能性がある。この燃料デブリを処理する方法として選択フッ化と熔融塩電解法を用いた乾式処理が検討している。本研究では選択フッ化プロセスに着目し、二酸化ウラン - 二酸化ジルコニウム混合試料のフッ化挙動を熱分析装置を用いて調査することを目的とする。

2. 実験

UO₂ と ZrO₂ をモル比で 1:9, 3:7, 5:5, 7:3, 9:1 に秤量し、めのう乳鉢にて磨砕混合した。混合後の試料を石英ボートに入れ、石英反応管にセットした後、酸化雰囲気 (Ar+2%O₂) および還元雰囲気 (Ar+10%H₂) 下、1200℃にて所定時間加熱処理した。調製した試料を白金パンに量りとり、熱重量・示差熱分析装置 (Rigaku Thermoplus2) にセットし、Ar+25%HF ガスを 80 ml/min にて流入させながら 500℃まで加熱して、熱重量分析を行った。実験後の試料は X 線回折装置 (Rigaku Miniflex) を用いて生成相を同定した。

3. 結果と考察

酸化雰囲気処理及び還元雰囲気処理を行った混合試料と UO₂, U₃O₈, ZrO₂ のみの場合について TG-DTA の結果を比較したところ、混合試料ではウランあるいはジルコニウムフッ化物の揮発が見られず、そのフッ化は抑制されていることが確認された。このことから、熱処理を行った場合、単純な混合物となるのではなく、試料中で固溶体化、あるいは試料のモルフォロジー変化などによるものと考えられる。還元処理を行った試料においてはウランとジルコニウムの複合化合物は確認されなかったが、酸化処理を行った試料においてジルコニウム及びウランの酸化物 UZr₆FO₁₄ となった。UO₂ をフッ化させた場合 UO₂F₂ を経て UF₄ になると考えられるが、酸化処理を行った試料では UO₂F₂ 及び UF₄ は確認されなかった。これは U₃O₈ そのもののフッ化速度が他より早いものの、一部固溶体化していたウランが先に安定となり、UZr₆FO₁₄ が生成されたものと考えられる。

参考文献

[1] N. Sato et al, Proc. Rare Metal Extraction Symposium, TMS, (2016).

*Takahiro Ono¹, Nobuaki Sato², Atsushi Nezu³, Takafumi Uchiyama¹, and Haruaki Matsuura¹.

¹Tokyo City University, ²Tohoku University, ³Tokyo Institute of Technology.

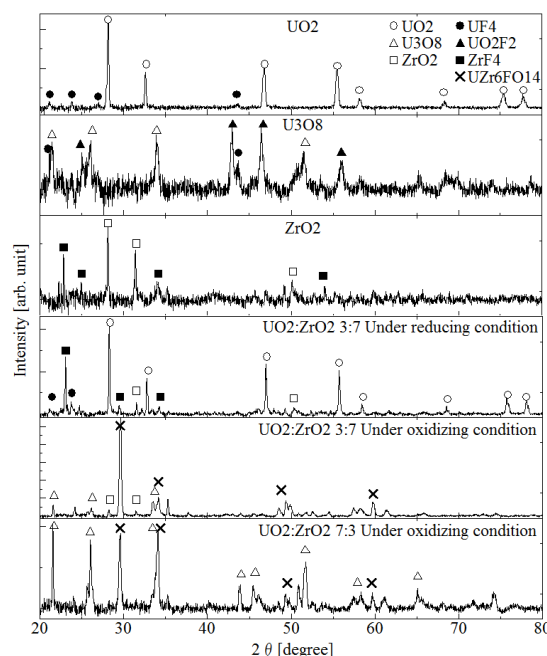


Fig.1 HF 雰囲気下の TG-DTA 測定により得られた試料の XRD 回折結果