

フッ化法を用いた燃料デブリの安定化処理技術の開発

(11) フッ素による模擬デブリフッ化の熱力学的検討

Development of Fuel Debris Treatment Technology by the Fluorination Method

(11) Thermodynamical Study for Fluorination of Simulated Debris by Fluorine

*佐藤修彰¹, 桐島 陽¹, 深澤哲生²

¹東北大, ²日立 GE

高速増殖炉(FBR)や軽水炉(LWR)の重大事故によって発生する破損・溶融燃料含有物質(燃料デブリ)を、フッ化物揮発法を応用した方法で安定化処理する技術を開発中である。フッ素を用いて、ウランおよびジルコニウム酸化物のフッ化挙動についてフッ化実験とともに熱力学的評価を行い、それらの結果について報告する。

キーワード : FBR/LWR の重大事故、燃料デブリ、フッ化挙動、安定化処理、フッ素

1. 緒言

本研究の目的は、FBR 等の革新炉や LWR の重大事故で万一発生した場合の燃料デブリおよび福島第一原子力発電所の事故で生じた燃料デブリの、安定化処理技術を開発することである。処理技術としてフッ化物揮発法を適用し、U, Pu から大部分の不純物を除去して核物質含有量の低減と計量管理の容易化を図り、燃料デブリを最終的に安定かつ硝酸溶解可能な酸化物とする。その際、燃料デブリを構成する燃料酸化物や被覆管や圧力容器など構造物と、フッ素との反応について検討する必要がある。これまで、フッ素雰囲気での TG-DTA 法によりウランおよびジルコニウムや鉄系酸化物のフッ化挙動について調べた[1,2]。ここでは、個々の化合物のフッ化反応について熱力学的に評価するとともに、模擬デブリのフッ化挙動について検討した。

2. 実験および解析

UO₂は金属ウランを真空中 800 °C で加熱して得た U₃O₈ を 1000 °C において水素還元して得た。ジルコニウムや鉄の金属および酸化物は特級試薬を使用した。また、UO₂-ZrO₂ 等の模擬デブリ試料は酸化あるいは還元雰囲気にて、所定温度に加熱処理して得た。試料粉末約 10mg を Ni 製試料パンに入れ、高純度アルゴンガス雰囲気のグローブボックス内に設置した TG-DTA 装置の試料部にセット後、F₂ ガス (5%F₂-He) を 20ml/min で導入し、一定の昇温速度 (5°C/min、10°C/min) で室温から 500°C まで加熱し TG-DTA を行った。また、ウラン-フッ素系、ジルコニウム-フッ素系について MALT-II (科学技術社) を用いた熱力学的検討を行い、実験結果と比較検討した。

3. 結果・考察

UO₂ の場合には、フッ素が酸化剤であるため、低温より反応して、オキシフッ化物(UO₂F₂)を経由し、UF₆ として揮発することが分かった。ジルコニウムの場合、金属では低温より反応して重量が増加し、低級フッ化物を生成後、400°C 付近より発熱を伴う重量減少により、ZrF₄ を生成して揮発することが分かった。金属鉄の場合には、低温より反応して FeF₂ や FeF₃ を生成するが、鉄系酸化物の場合には、オキシフッ化物を経由することが分かった。さらに、模擬デブリとしての UO₂-ZrO₂ 混合試料の場合には、ウラン過剰の場合には UO₂ および ZrO₂ と同様のフッ化が見られたが、ジルコニウム過剰な組成ではフッ化反応が抑制される傾向が見られた。得られた結果について、熱力学的検討を行い、反応温度やフッ素分圧に影響について調べた。

参考文献 [1] 佐藤ら, 日本原子力学会 2015 年春の年会(茨城大), L17, [2]佐藤ら, 同 2016 年春の年会(東北大), 2I09

*Nobuaki Sato¹, Akira Kirishma¹ and Tetsuo Fukasawa²

¹Tohoku Univ., ²Hitachi-GE.

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 27 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。