

フッ化法を用いた燃料デブリの安定化処理技術の開発 (9) フッ素によるウランおよびジルコニウム酸化物のフッ化挙動

Development of Fuel Debris Treatment Technology by the Fluorination Method

(9) Fluorination Behavior of Uranium and Zirconium Oxides by the Use of 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[1]。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材と、フッ素との反応について検討する必要がある。ここでは、ウランおよびジルコニウム酸化物について、フッ素雰囲気 TG-DTA によりフッ化挙動について調べた。

2. 実験

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。ジルコニウム金属および酸化物 (Zr, ZrO₂) は特級試薬を使用した。ウラン酸化物粉末約 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を用いて行った TG-DTA の TG 曲線においては、300°C 付近から緩やかな重量増加が見られ、その後、350°C からは発熱を伴う急激な重量減少となり、400°C では全て揮発した。U₃O₈ の場合には初期の重量増加が見られず、350°C 付近より揮発挙動が見られた。低温側では UO₂ がフッ素と反応してオキシフッ化物のような化合物を生成し、高温側ではオキシフッ化物のフッ化による UF₆ の揮発が促進されたと考えられる。これに対し、ZrO₂ の場合には 400°C 付近より発熱を伴う重量増加が見られ、オキシフッ化物を生成することが分かった。金属 Zr の場合には、400°C 付近より発熱を伴う重量減少となり、ZrF₄ を生成して揮発したものと考えられた。さらに、UO₂-ZrO₂ 試料の場合、ウランが過剰な組成では UO₂ と ZrO₂ のフッ化が見られたが、ジルコニウム過剰な組成では熱および重量変化が見られず、フッ化反応が抑制されることが分かった。

参考文献 [1] 深澤ら, 日本原子力学会 2014 年春の年会(東京都市大), H56

*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。