

マイクロ波加熱直接脱硝法によるウラン-プルトニウム混合酸化物 (MOX) 原料粉末の製造特性、粉末特性及び溶解性に関する研究

加藤, 良幸

<https://doi.org/10.15017/1654865>

出版情報 : 九州大学, 2015, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 : 全文ファイル公表済

氏 名 : 加藤 良幸

論 文 名 : マイクロ波加熱直接脱硝法によるウラン-プルトニウム混合酸化物
(MOX) 原料粉末の製造特性、粉末特性及び溶解性に関する研究

区 分 : 甲

論 文 内 容 の 要 旨

我が国では原子力利用を平和目的のみに限定しているため、核兵器への転用が容易なプルトニウムを単独で抽出、固化することは許されない。こうした核不拡散の観点から、1977年より日本独自のウラン-プルトニウム混合転換技術としてマイクロ波による硝酸 Pu/U 混合溶液の熱分解反応を利用したマイクロ波加熱直接脱硝法(MH法)を開発してきた。しかし、開発方針が再処理工場の安定安全処理運転を中心としたプロセス開発に重きが置かれ、基礎的な知見は多くは得られてこなかった。

本研究では、MH法をより深く理解するために、①MH法転換時の反応機構解明、②マイクロ波加熱効率の向上、③硝酸 Pu/U 混合溶液および脱硝 MOX 粉末等の誘電特性取得、また、MOX 原料粉末の製造コスト低減のため、④MOX 原料粉末製造工程への造粒工程の付与、⑤高不純物含有スクラップ MOX 粉末からのプルトニウム回収を目的とした。

第1章では、Pu 転換技術に関する歴史的な背景を含めた開発経緯と MOX 原料粉末の製造方法について、これまでの研究を概説し、これを基に本研究の方法や着眼点について示した。

第2章では、マイクロ波加熱中で正確に温度測定できる温度計を開発した上で、硝酸ウラン溶液をマイクロ波脱硝する試験を実施した。脱硝反応過程で試料を採取して分析し、各脱硝段階での結晶形態等を明らかにすることで硝酸ウラン溶液がウラン酸化物へと転換する脱硝反応機構をデータに基づいて初めて明らかにした。

第3章では、マイクロ波加熱効率の向上を目指した実験研究を述べた。一般的なマイクロ波加熱は、水分が多い食品の温め直しなど加熱し易い条件で行われているため、効率が 60~80% と高い。一方、MH法では Pu/U 混合溶液の濃縮、硝酸塩分解など温度や形態の変化が大きいため加熱効率は低くなると考えられるが、報告例が無かった。そこで、マイクロ波加熱実験装置や実用規模工場施設の運転データから加熱効率を評価した。加熱条件の変化による加熱効率への影響を調査すると共に、電磁界解析を行い、加熱効率改善の方法を明らかにした。

第4章では、硝酸 Pu/U 混合溶液および脱硝 MOX 粉末等の誘電特性を求めた。マイクロ波加熱は、被加熱物質の誘電損失係数に比例して発熱する。このため、マイクロ波加熱特性を評価するためには、これらの物性値を把握しておくことが重要であるが、Pu/U 化合物の誘電特性の報告例は極めて少ない。そこで硝酸 Pu/U 混合溶液及び MOX 粉末等の誘電特性の温度依存性やかさ密度による変化を測定し、プルトニウムやウラン化合物の誘電特性を初めて詳細に示した。これにより、MH法に関する精度の高い電磁界解析が行えるようになるとともに、脱硝反応時のマイクロ波特性の面から脱硝反応機構を明らかにした。

第5章では、MOX 原料粉末製造工程への造粒工程の付与について検討した。従来の MOX 燃料製造においては、原料粉末に有機物等の助材を添加する方法で造粒しており、この助材はペレ

ット焼結前に予備加熱して除去する必要がある。一方、混合転換工程では、水を助材とした湿式造粒が適用可能であり、有機物除去の工程を省略できる。この手法で、粒子径が 1~2 μm の MOX 原料粉末に 12.5~13.5wt% 程度の水分を添加して造粒することによって 120~140 μm の粒径を持つ流動性指数 70 を超える良い造粒粉末が得られた。そのときの製品収率は 90% を超えた。これらの水分の添加割合と造粒粉末の生成状態から粉末の液架橋の状態や生じる結合力による顆粒の成長を評価し、湿式法による簡素で高性能な造粒が可能であることを明らかにした。

第 6 章では、スクラップ MOX 粉末からのプルトニウム回収について述べた。微細な MOX 粉末の一部はグローブボックス内に飛散して床ゴミと混ざり不純物濃度が高いダーティースクラップ(DS)粉末となる。この DS 粉末中からのプルトニウムの回収のためには、DS 粉末を溶解・精製する必要があるが、酸化プルトニウムは沸騰硝酸でも難溶である。そこで、MOX 粉末に炭化珪素を混合し 1300°C 程度に加熱することでプルトニウム珪酸塩に変え、常温硝酸に容易に溶解できることを確認した。本方法により、Pu 溶解率約 10% 程度の DS 粉末を、約 70% 程度の溶解率に上げることができた。

第 7 章では、マイクロ波加熱直接脱硝法によるプルトニウム・ウラン混合転換法の脱硝反応機構や技術的知見についてまとめた。