

酸化物燃料の電解還元処理に関する技術開発 ー軽水炉サイクルから金属燃料サイクルへー

背景

当所が研究開発に取り組んできた金属燃料サイクル(金属燃料高速炉と乾式再処理)は、次世代の有望な高速炉サイクルの1つとして高い評価を受けている。一方、現在の軽水炉サイクルは酸化物燃料と湿式再処理から成るシステムであるため、将来、金属燃料サイクルに移行していくためには、軽水炉サイクルの酸化物燃料を原料として受け取り、金属形態に還元して金属燃料サイクルに供給するシステムが必要である。簡素なプロセスが特徴である電解還元法(図1)は、その最有力候補である。

目的

UO₂の還元に適した電解条件を見いだす。次に、工学規模での還元処理システムを構築するために必要な基盤データを取得して、電解還元法によるウラン金属の回収技術を実証する。

主な成果

1. 電解条件の選定

LiCl(試験温度:650°C)、より低温での操業を期待したLiCl-KCl共晶塩(600°C)および還元力が一番強いCaCl₂(820°C)の各熔融塩中でUO₂の還元試験を行った結果、継続的に還元が進行したのはLiClのみであった。LiCl中では多孔性の金属が還元率100%で得られたのに対して、LiCl-KCl共晶塩やCaCl₂中では還元は試料表面のみに限られていた(図2)。これら一連の試験から、工学的な還元速度は、還元力の大きさで決まるのではなく、酸化物試料内部から熔融塩中への酸素移行速度が支配していることが分かった。還元反応が安定に継続するためには、還元に伴って生じる隙間(熔融塩の浸入経路)の存在が重要であり、LiCl以外の塩では生成物(金属ウランあるいはLi₂O)が隙間を塞いで酸素移行のバリアとして作用し、結果として還元を抑制した。

2. ウラン金属の回収

熔融塩としてLiClを選定し、UO₂やLiCl自身の還元電位(図3)、陽極反応、電流効率などの基盤データを取得した。そして、陰極バスケット構造(図4(a))などを工夫した試験体系を構築して還元試験を行った結果、100g規模でUO₂試料の全量が金属に還元できることを確認した(図4(b)(c))。引き続き、高温で蒸留することによって、付着するLiClを完全に分離でき、かつ目的のインゴット状ウラン金属が回収できた(図4(d))。これらの試験結果から、得られた基盤データにもとづいてスケールアップすれば、実用規模のシステムを構築することが可能であると結論できた(陰極1つ当りに5~10kgの酸化物を入れ、10時間程度で還元)。

本研究は、電源開発促進対策特別会計法に基づく文部科学省からの受託事業として当所が実施した「酸化物燃料の電解還元処理に関する技術開発」(平成14年度~平成17年度)の成果の一部である。

今後の展開

MOX(PuO₂-UO₂)もUO₂と同様に金属に還元できることが小規模試験で実証されている(M. Iizuka *et al.*, *J. Nucl. Mater.*受理済)。今後は、より実用に近い体系でプロセスを確立するための研究を行う。

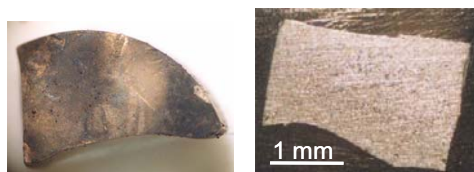
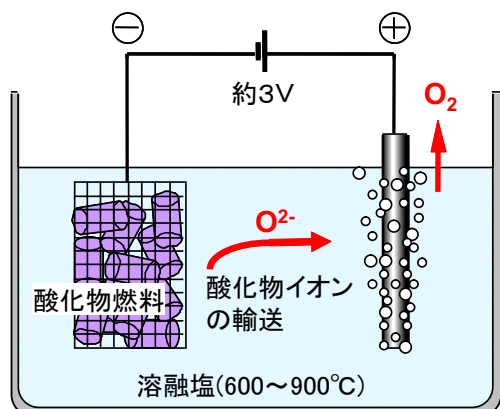
主 担 当 者 原子力技術研究所 次世代サイクル領域 主任研究員 坂村義治

関連報告書 Y. Sakamura, M. Kurata and T. Inoue, "Electrochemical reduction of UO₂ in Molten CaCl₂ or LiCl", *J. Electrochem. Soc.*, **153** (3), D31-D39 (2006).

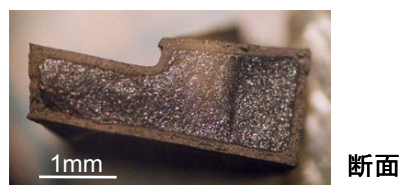
平成14年度~平成17年度「酸化物燃料の電解還元処理に関する技術開発」成果報告書、電力中央研究所(2003年3月、2004年3月、2005年3月、2006年3月)

2. 金属燃料・乾式リサイクル技術

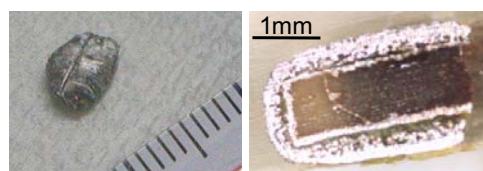
陰極: 金属への還元 陽極: 酸素ガス発生
 $MO_2 + 4e^- \rightarrow M + 2O^{2-}$ $2O^{2-} \rightarrow O_2 + 4e^-$



外観 研磨断面
 (a) LiCl: 完全に還元



断面
 (b) LiCl-KCl共晶塩: 表面のみ還元



外観 研磨断面
 (c) CaCl₂: 表面のみ還元
 (電解を2回行ったため二重構造を形成)

図1 電解還元法の原理:

電解により、陰極の酸化燃料から酸素がイオンとなって溶け出し、酸化燃料は金属に還元される。一方、陽極では酸素ガスが放出される。

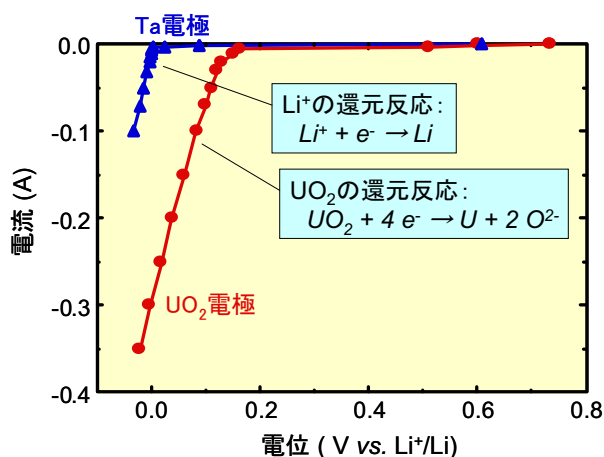


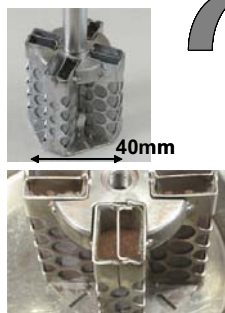
図3 650°CのLiCl中で測定したUO₂電極とタンタル(Ta)電極の分極曲線

図2 (a)LiCl、(b)LiCl-KCl共晶塩、(c)CaCl₂の各溶融塩中で電解還元した後のUO₂試料片

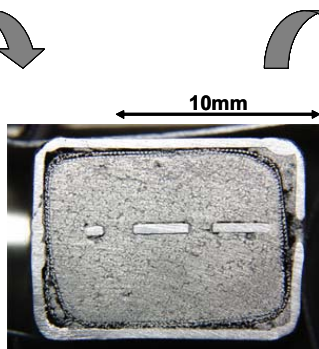
手順① LiCl中で電解還元

手順② 陰極容器から取出し

手順③ 塩の蒸留分離



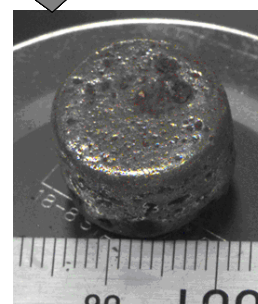
(a) UO₂を入れた陰極容器



(b) 還元後の断面



(c) ウラン金属と塩の混合物



(d) ウラン金属の塊

図4 LiCl中での電解還元によるウラン金属の製造