

学位論文 博士（工学）

核燃料再処理における化学的・電気化学的物質変換
過程、物質分離過程およびそれらのプロセス化

(2013 年度)

慶應義塾大学大学院理工学研究科

土方 孝敏

主 論 文 要 旨

報告番号	乙 第 号	氏 名	土方 孝敏
主論文題目： 核燃料再処理における化学的・電気化学的物質変換過程、物質分離過程 およびそれらのプロセス化			
<p>(内容の要旨)</p> <p>使用済み原子炉核燃料からウラン (U) とプルトニウム (Pu) を採取し再利用することは、燃料資源の有効利用につながる。また、長半減期のマイナーアクチノイド (MA、ネプツニウムなど) も回収して原子炉内で核種変換すれば、廃棄物の環境負荷低減につながる。本研究では、このような核燃料再処理過程で不可欠な化学的・電気化学的な物質変換過程、物質分離過程を検討するとともに、関係する高温融体 (LiCl-KCl 系溶融塩、液体カドミウム (Cd) など) の最適輸送法を確立し、連続プロセスの構築につなげることを目的とした。</p> <p>第1章では、本研究の背景と目的として、酸化物燃料や金属燃料の再処理に関わる課題のうち、とくに物質変換と分離の過程、さらにそれらのプロセス化で要求される事項を整理して述べた。</p> <p>まず第2章では、高レベル廃液から導かれる MA 酸化物から MA 塩化物への転換を、反応装置の腐食抑制が期待できる、より低温で行う可能性を検討した。この結果、$C + Cl_2$ を用いる従来法に比べ 200 K 以上低い温度域でも、実用的な速度で塩化物転換が可能で、五塩化モリブデン ($MoCl_5$) 法を新たに提案できた。また ZrO_2 あるいは Nd_2O_3 を模擬酸化物として、Mo 副生物を目的塩化物から揮発分離する可能性なども示した。</p> <p>第3章では、アクチノイド金属 (AN : U, Pu および少量の MA) 種に対する一連の物質変換 (酸化物→塩化物→金属) 過程に伴う、希土類金属 (中性子を吸収する燃料毒) の除去を目的として、塩化物→金属の還元過程における分別を検討した。塩化物溶融塩 液体 Cd-Li 合金の二相界面における酸化還元反応を利用して、希土類よりも選択的に AN を Cd-Li 合金相側へ抽出できた。また、このような還元・抽出操作に対する NaCl (AN 塩化物のさらなる随伴物) の影響も検討し、LiCl-KCl 系溶融塩に混入する NaCl の影響は小さいことを示した。</p> <p>第4章では、U と Pu 金属の同時回収にあてる一連の電解精製・蒸留精製プロセスを検証した。ここでは UO_2 や PuO_2 を出発物質として、U や Pu を金属として回収でき、酸化物のリチウム還元→電解精製→蒸留精製の3ステップを連続プロセスとして成立させた。</p> <p>第5章では、まず高温融体 (溶融塩、液体 Cd、さらに陽極からの脱落粉体が混入する溶融塩スラリー) の輸送に関する詳細な検討を行った。それらの知見に基づいて、ガドリニウム金属を使用済み金属燃料の模擬陽極とし、電解で液体 Cd 陰極内へ移動させたのち、Cd を揮発除去する工学規模 (想定実機の約 1/8 スケール) の連続プロセス装置を設計・構築した。さらに、これを最適化条件で運転し、迅速かつ高収率な金属燃料再処理の可能性を示した。</p> <p>第6章には、本研究のまとめと今後の課題を述べた。</p> <p style="text-align: right;">以上</p>			

SUMMARY OF Ph.D. DISSERTATION

School Integrated Design Engineering	Student Identification Number	First name Surname Takatoshi Hijikata
Title Chemical and electrochemical material conversion, material separation, and their consecutive processes for the reprocessing of spent nuclear fuels		
Abstract <p>After reprocessing spent nuclear fuels, recovered U and Pu can be used again as new fuels to save the natural U resources. At the same time, it reduces the long-term radioactivity of high-level wastes to remove the minor actinoids (MA) and to lead their nuclear fission by neutrons. In the present study, various material conversion steps by chemical/electrochemical reactions and the material separation steps required for the reprocessing of spent oxide or metal (next generation) nuclear fuel have been investigated. The consecutive multistep processes, furthermore, have been demonstrated in a safely closed space based on the optimum transport of various high temperature melts; liquid Cd and LiCl–KCl binary molten salts including their slurries.</p> <p>In Chapter 1, the background and the object of this work have been described in detail, where the attention was focused on chemical and electrochemical material conversion, the material separation, and the construction of their consecutive processes for the improved reprocessing.</p> <p>In Chapter 2, a new low-temperature reaction using MoCl₅ has successfully been proposed for the chlorination of MA oxides, which come from high-level wastes. The chlorination of ZrO₂ and Nd₂O₃ (as simulants) by MoCl₅ can proceed at over 200 K lower temperature than conventional C + Cl₂ method, which might suppress the corrosion damage.</p> <p>In Chapter 3, the reductive extraction of actinoid (AN) chlorides at the molten salt liquid Cd–Li alloy interface has been studied in order to separate rare-earth (RE) chlorides contained as the fuel-poison from upstream materials. After redox reactions at the interface, AN metals have been extracted in Cd phase more selectively than RE. The effects of another impurity of NaCl contaminating the LiCl–KCl salts were small on the AN–RE separation factors.</p> <p>In Chapter 4, metallic U and Pu could be recovered successfully from their oxides by the consecutive [Li reduction] → [electrorefining] → [distillative purification] process.</p> <p>In Chapter 5, the various transport methods for high-temperature melts (liquid metals, molten salts including their slurry) have been studied extensively in order to optimize the required setup for the above various operations. The obtained knowledge was useful to construct a consecutive [electrorefining] → [distillative purification] small plant, which demonstrated highly efficient and rapid operation for Gd as an simulant of U/Pu.</p> <p>In Chapter 6, the summary of this work has been described in addition to further subjects.</p>		