選択フッ化と溶融塩電解による燃料デブリの処理

(3)溶融塩化物浴中におけるフッ化物イオン共存下でのジルコニウムの 電気化学的挙動

Selective fluorination and molten salt electrolysis of fuel debris

(3)Electrochemical behavior of zirconium in molten chloride coexisting fluoride

*江森 達也1、内山 孝文2、松浦 治明1,2

1東京都市大学大学院,2東京都市大学原子力研究所

2011年の東日本大震災による福島第一原発事故によって発生した燃料デブリの処理方法として選択フッ化及 び溶融塩電解法が検討されている。この処理プロセスにおける、溶融塩電解法に着目しジルコニウムの回収 を目的として、その溶融塩中におけるジルコニウムの電気化学的挙動を調査した。

キーワード:燃料デブリ,電気化学,溶融塩電解,塩化物溶融塩,ジルコニウム

1. 緒言

2011年の東日本大震災による福島第一原子力発電所の事故により発生した燃料デブリの処理方法の一つと して、選択フッ化及び溶融塩電解法を組み合わせた方法を検討してきた。本研究では、選択フッ化、選択溶 解、溶融塩電解法という一連の処理プロセスの中で溶融塩電解法による処理方法に着目し、燃料デブリの主 成分とされているウラン-ジルコニウム混合物からのジルコニウムの電解回収を目的として、電気化学的挙動 を調査した。上流プロセスでは、選択フッ化によってフッ化物に転換されるが、本検討では、高速炉燃料の 再処理に用いられる塩化物浴を電解浴として用いた。

2. 実験

電気化学測定は、東京都市大学原子力研究所のアルゴン雰囲気下のグローブボックス内に設置されている 電気炉で、LiCl-KClにZrF4を0.6wt%,0.9wt%,1.2wt%,1.5wt%と濃度を変化させ加え、873Kに加熱し、作用極 に1mm^ΦのW棒、対極に5mm^Φのグラッシーカーボン棒、参照極に銀一塩化銀電極、容器は石英ガラスセ ルを用いて行った。測定方法は、サイクリックボルタンメトリー(CV)及び矩形波ボルタンメトリー(SWV)を 用いた。

3. 結果と考察

走査速度 50 mV/s のサイクリックボルタモグラムをま とめて Fig.1 に示す。Fig.1 の(a)より-0.9 V、-1.2 V 付近に 還元のピークがみられるが、これは Zr^{4+}/Zr^{2+} 及び Zr^{2+}/Zr^{0} によるものである。^[1]また、 ZrF_4 はその融点及び塩化物に 対する溶解度の制約により溶解しにくいと当初は考えら れていたが、 ZrF_4 濃度が大きくなるにつれて還元反応の電 流密度が大きくなるということは、浴中に溶解性のジルコ ニウムイオンがより多く存在していることを示している。

更に、Fig.1 の(b)より Zr⁴⁺/Zr²⁺の還元挙動を詳細に観察 すると ZrF₄ 濃度に依って電流密度の増減がみられ、浴中 に溶解したフッ化物イオンが Zr(II)の安定度に影響を及 ぼしている可能性が示唆され、それが実際の電析工程にお いて電析物の状態に影響を与える可能性がある。

参考文献

[1] 飯塚政利,電力中央研究所狛江研究所研究報告書 T98001,23,1998 本研究は、JSPS 科研費 JP15K06665 による成果である。

*Tatsuya Emori¹, Takafumi Uchiyama², Haruaki Matsuura^{1,2}

¹Tokyo City University Graduate School, ²Tokyo City University Atomic Energy Research Laboratory

