安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発（13）液体 Cd 中への Zr 及びランタニド元素の還元抽出挙動

R&D on Nitride Fuel Cycle for MA Transmutation to Enhance Safety and Economy
(13) Reductive Extraction of Zr and Lanthanides in Liquid Cd

*村上　毅[1]，飯塚　政利[1]，林　博和[2]
[1]電中研，[2]原子力機構

溶融 LiCl-KCl(723 K)に $ZrCl_4$ および各種ランタニド塩化物を添加した系において、Zr およびランタニドの還元析出試験を行い、還元抽出工程での Zr^{4+}イオンの影響について検討した。

キーワード：窒化物燃料，還元抽出，Zr，ランタニド，乾式処理

1. 緒言

使用済窒化物燃料の乾式処理では、酸化剤($CdCl_2$ 及び $ZrCl_4$)を用いて燃料中の TRU を溶融塩浴中に溶解し、次に浴塩中の TRU^{3+}を液体金属中に還元抽出する。このとき還元抽出工程の浴塩中には Cd^{2+}や Zr^{4+}が多く残留するため、TRU と共に Cd や Zr も液体金属中に回収されると考えられる。しかしながら Zr^{4+}を多く含んだ系における TRU の還元抽出挙動に関する報告はほとんどないため、その基礎的な挙動から明らかにすることが求められる。本研究では TRU の模擬としてランタニドを用いた。

2. 実験

還元抽出試験は Ar 雰囲気のグローブボックス内で行った。溶融 LiCl-KCl-$ZrCl_4$-$LnCl_x$ 中(Ln = La, Ce, Nd, Eu, Gd, (浴塩中 Ln 濃度比)≈(使用済窒化物燃料中 Ln 濃度比)、浴温 723 K)において、Zr 及び Ln を液体 Cd 中に還元析出($(Zr\ or\ Ln)^{n+} + Li_{in\ Cd} \rightarrow (Zr\ or\ Ln)_{in\ Cd} + nLi^{+}$)する試験を 4RUN 実施した。Cd 中初期還元剤 Li 濃度(X_{Li})は 0.27~0.63 at%とした。試験後に採取した浴塩及び Cd 合金中の Zr 及び Ln 濃度を ICP-OES により測定した。

3. 結果

Ce 基準で Zr 及び Ln の分離係数($SF_M = (X_{Ce\ in\ melts})/(X_{M\ in\ melts})/(X_{Ce\ in\ Cd})\times(X_{M\ in\ Cd})$、$X_{M\ in\ melts}$：浴塩中濃度、$X_{M\ in\ Cd}$：液体 Cd 中濃度)を求めた(表)。Zr の分離係数は過去の報告値(3.8×10^{-4} [1])に近い。また、Ln の分離係数は浴塩中に Zr^{4+}を含まない系で得られた値[2]と近く、Ln の分離挙動に Zr^{4+}は大きな影響を与えないと示唆された。さらに、X_{Li} が最も高い場合(0.63 at%)でのみ、Cd を装荷したアルミナ坩堝の内壁を Cd が這い上がる様子が確認された。過去の報告[1]より、Zr 及び Ce を同時に還元抽出した際には(X_{Li} = 0.8 at%)アルミナ坩堝が Cd 合金薄膜により覆われ、一方、Zr のみ又は Ln のみの還元抽出では、そのような現象は見られないことが分かっている。以上より、被覆現象を防ぎ安定に還元抽出を進行させるためには、X_{Li} を低くする、又は Ln を Zr と同時に還元抽出しないことが必要であると考えられる。ただし、前者では還元抽出工程後の蒸留再窒化工程(窒素気流中で Cd を蒸留分離し TRU 窒化物を得る)での Cd 処理量が増加する。そこで、還元抽出前に Zr^{4+}及び Cd^{2+}を浴塩中から電気化学的に取り除く工程の追加を提案した。

表 Ce 基準の分離係数(SF_M)

	SF_{Zr}	SF_{La}	SF_{Ce}	SF_{Nd}	SF_{Gd}
4RUN の平均	4.8×10^{-4}	1.9	1	0.6	4.3
文献値[2] (773 K)	-	2.70	(基準)	0.96	3.71

*本報告は、原子力機構が受託し、電力中央研究所が再委託先として実施した平成 30 年度文部科学省原子力システム研究開発事業「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」の成果の一部です。

参考文献

[1] 平成 29 年度「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」成果報告書
[2] M. Kurata, Y. Sakamura and T. Matsui, J. Alloy. Compd., 234 (1996) 83-92.

*Tsuyoshi Murakami[1], Masatoshi Iizuka[1] and Hirokazu Hayashi[2], [1]CRIEPI, [2]JAEA