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 (20) Np-Pd 合金の調製及び塩化反応試験

R&D on Nitride Fuel Cycle for MA Transmutation to Enhance Safety and Economy

(20) Preparation of Np-Pd alloy and the reaction of Np-Pd alloy with $CdCl_2$

*林　博和，柴田裕樹，音部治幹

原子力機構

核変換によって MA 窒化物燃料中に生成する FP 元素のうち Pd を含有する物質の化学形及びその安定性に関するデータを取得するため、MA 窒化物模擬物質である GdN 及び NpN を用いた反応試験を実施した。

キーワード：窒化物燃料，加速器駆動システム，核変換，乾式再処理，溶融塩，白金族元素

1. 緒言　使用済マイナーアクチノイド(MA)核変換用燃料中に残存する MA を高い回収率で分離回収し、回収した MA を原料として燃料を製造して核変換を繰り返す MA 核変換燃料サイクル技術の研究開発が実施されている。MA 核変換用窒化物燃料の処理方法を検討するためには、燃料中に生成する核分裂生成物(FP)を含む化合物の化学形とその安定性に関するデータが欠かせない。塩化物溶融塩を溶媒として用いる乾式処理技術の検討では、FP 含有化合物中の MA の塩化反応に関する知見が重要である。本研究では、MA 窒化物模擬物質である GdN 及び NpN を用いて、FP 元素である Pd と窒化物の反応によって生成する物質の化学形、及び生成した Pd 含有物質の塩化カドミウム($CdCl_2$)による塩化反応挙動に関するデータを取得した。

2. 実験　Np 系反応試験はアルゴン雰囲気のホットセル・グローブボックス設備である TRU 高温化学モジュール(TRU-HITEC)において実施した。まず、$^{237}NpO_2$ を原料として炭素熱還元法で調製した NpN と還元処理した Pd 金属粉末(高純度化学製、99.9%、1μm)を混合(モル比 1：3.0)・成型して Ar 気流中 1323K で 6 時間加熱した。次に、得られた Np-Pd 合金試料と $CdCl_2$(APL 製、99.9%)を混合(モル比 1:2.5)・成型して真空中 673K で 6 時間加熱した。それぞれの反応生成物の化学形を同定するために、粉末 X 線回折(XRD)測定を行った。これに先立ち、Gd 金属棒(NewMet 製、99.9%)を原料として、Ar-H_2 気流中加熱、窒素気流中加熱によって調製した GdN を用いて同様の実験を行った。

3. 結果と考察　図 1 に Np 系反応試験における各生成物の XRD 測定結果を示す。GdN 及び NpN と Pd との反応では、金属間化合物 $GdPd_3$ 単相及び $NpPd_3$ を主成分とする生成物がそれぞれ得られた。これらの結果は UN と Pd の反応による UPd_3 の生成反応[1,2] と同様であり、希土類元素窒化物及び MA 窒化物と Pd の反応においても MPd_3 型の金属間化合物が生成することが示された。また、MPd_3 (M=Gd,Np) と $CdCl_2$ との反応試験では、MCl_3 (M=Gd,Np) 及び Pd 相の生成が確認された。以上の結果は、MA 窒化物燃料中に $MAPd_3$ 相が生成した場合、$CdCl_2$ との反応によって MA を塩化物にし、Pd と分離して溶融塩中に溶解することが可能であることを示唆するものである。

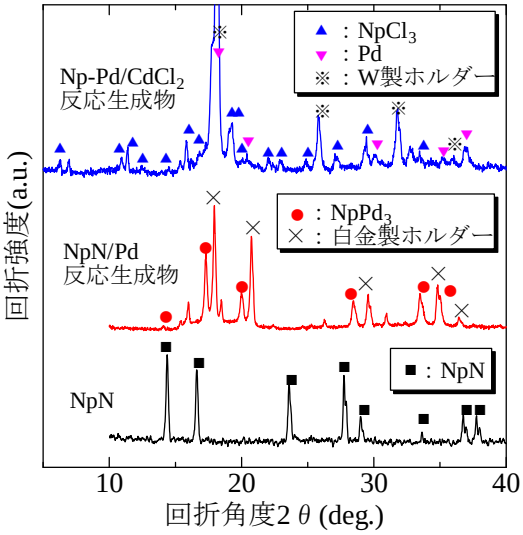

図 1 Np 系反応試験における粉末 X 線回折測定(Mo Kα線)結果

参考文献[1] R. Burriel, et al., J. Chem. Thermodyn., 20 (1988) 815-823.
[2] Hj. Matzke, “Science of Advanced LMFBR Fuels,” pp.428-461 (1986).

本報告は、原子力機構が委託先機関として実施した平成 30 年度及び令和元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。

*Hirokazu Hayashi, Hiroki Shibata, Haruyoshi Otobe, JAEA