

模擬物質としてランタニド珪酸塩を用いた プルトニウム珪酸塩の硝酸溶解性に関する研究

Research on solubility of plutonium silicate in nitric acid solution
using lanthanides as surrogates for plutonium

*松本 裕昌¹, 有馬 立身¹, 出光 一哉¹, 稲垣 八穂広¹, 谷川 聖史², 加藤 良幸², 栗田 勉²

¹九州大学, ²日本原子力研究開発機構

PuO₂ は硝酸に難溶であるが、Pu 珪酸塩は高い硝酸溶解性を示すという報告がある。本研究では、Pu の模擬元素としてランタニドを用い、珪酸塩合成及び溶解試験を通して Pu 珪酸塩の硝酸溶解性を検討した。

キーワード：MOX 燃料，プルトニウム珪酸塩，硝酸溶解性，ランタニド珪酸塩

1. 緒言：MOX 燃料製造工程等から発生する規格外燃料中の U・Pu を効率的に回収・再利用することは、資源有効活用、Pu 計量管理及び放射性廃棄物低減の観点から重要である。従来 PuO₂ は低硝酸溶解性を持つため、沸騰硝酸に溶解させ回収していた。近年、Pu 珪酸塩が比較的低い温度で生成でき、常温硝酸に対して高い溶解性を示すことが確認されつつある[1,2]。本研究では Pu の模擬元素としてランタニド (Ln) を用い、それらの珪酸塩及び酸化物の合成及び溶解試験を行い Pu 珪酸塩の硝酸溶解性を考察した。

2. 実験：Ln 酸化物 (Ln=La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Er, Lu) と SiO₂ の粉末を Ln:Si=2:1 (モル比) で混合し、φ6 mm×1 mm の円盤状に加圧成形したものを大気中、昇温速度 200 °C/h、焼結温度 1450 °C、保持時間 6 h の条件で反応焼結した。反応後試料を粉砕し、X 線回折法で相を同定した後、常温 4 M 硝酸溶液に固液比 0.1 g/10 mL となるよう設定し、投入した。24 時間振とうした後、遠心分離し、上澄み溶液を採取・ろ過したもの蛍光 X 線分析装置で測定し、Ln の溶解割合を算出した。

3. 結果および考察：Ln₂SiO₅ の溶解試験の結果を図 1 に示す。Ln₂SiO₅ は底心及び単純単斜格子構造においてイオン半径の増大に伴い硝酸溶解割合が上昇する傾向が見られた。+3 価の Pu イオン半径は 100 pm (6 配位) であり、Pu₂SiO₅ も Ce₂SiO₅ や Pr₂SiO₅ 程度に高い硝酸溶解性を持つことが予想される。一方、O/M 比の異なる Ln 酸化物の溶解試験結果を図 2 に示す。O/M 比の低下に伴い溶解割合が大きくなっており、Pu においても O/M 比の低下が溶解性向上の一因となっていると考えられる。

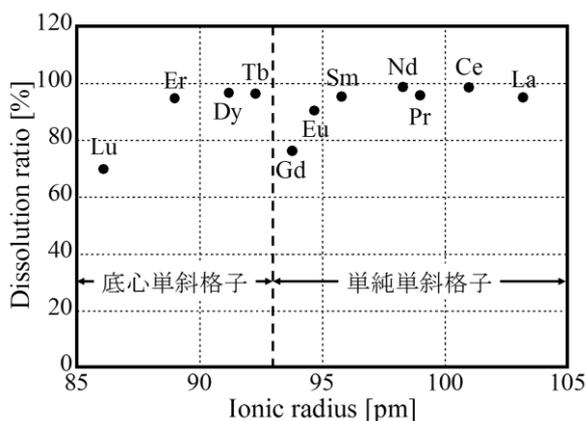


図 1 Ln₂SiO₅ の溶解割合

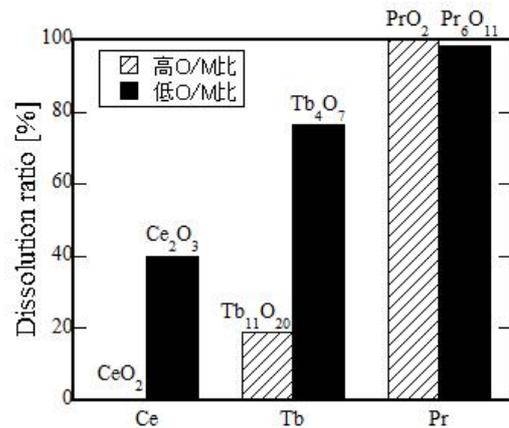


図 2 Ln 酸化物の溶解割合

参考文献

[1] 大久保, 有馬ら, 日本原子力学会 2013 年秋の大会 (八戸工大) M11

[2] 大久保, 有馬ら, 日本原子力学会 2014 年秋の大会 (京都大) D26

*Yusho Matsumoto¹, Tatsumi Arima¹, Kazuya Idemitsu¹, Yaohiro Inagaki¹, Masafumi Tanigawa², Yoshiyuki Kato², Tsutomu Kurita²

¹Kyushu Univ., ²JAEA