

ウラン-ジルコニウム酸化物の化学的安定性評価のための逐次抽出法の開発

Development of sequential extraction procedure for the evaluation of chemical stability of uranium-zirconium oxide

*中角 弘樹¹, 秋山 大輔¹, 桐島 陽¹

¹東北大学

抄録：燃料デブリの化学的安定性評価のために、炉内環境及び今後の処理で想定される条件を考慮した逐次抽出法の開発を行った。本手法をウラン-ジルコニウム酸化物へ適用し、ウランとジルコニウムの溶出量の比較から安定性の評価を試みた。

キーワード：ウラン-ジルコニウム酸化物，福島第一原子力発電所事故，逐次抽出法，燃料デブリ

1. 緒言

東京電力福島第一原子力発電所の廃止措置において、今後燃料デブリの取り出し作業の確立や中長期の保管のためにも燃料デブリの化学的性状の調査は必須である。しかし、現状では化学的な安定性を評価する共通の指標が無く、研究グループ間で実験条件が異なるために結果を定量的に比較することは困難である。そこで、本研究では地球化学分野で土壌の化学的性状を調査するために用いられている逐次抽出法を応用した燃料デブリ版逐次抽出法を開発した。本手法をウラン-ジルコニウム酸化物固溶体に適用し、安定性の評価を試みた。

2. 実験

2-1. 模擬デブリの合成

U₃O₈粉末を Ar+10%H₂ 気流下 1000°C で 4 時間加熱し UO₂ を調製した。次に、調製した UO₂ 粉末と ZrO₂ 粉末をモル比 U:Zr= 9:1, 1:1, 1:9 等で混合し、Ar+10%H₂ 気流下 1600°C で 4 時間加熱し (U, Zr)O₂ 固溶体を調製し、それぞれ XRD を用いて結晶構造を評価した。

2-2. 燃料デブリ版逐次抽出法

実験には小型の遠心式ろ過デバイスを用いた。固相試料を 200 mg デバイスに入れ、そこに抽出液を 400 μl 注入し 1 時間浸漬後、遠心分離により固液分離した。次に、超純水で試料を洗浄後、より強力な抽出液を注入し浸漬を行った。各抽出段階で液相に溶出した U と Zr の元素濃度を ICP-AES を用いて測定した。用いた抽出液は純水、NaHCO₃ 溶液、過酸化水素水、酢酸、塩酸、硝酸等である。

3. 結果と考察

U:Zr= 9:1 で調製した模擬デブリは、立方晶の (U, Zr)O₂ 固溶体であることが確認された。UO₂ と (U, Zr)O₂ 固溶体を逐次抽出した結果を図 1 に示す。いずれの抽出液においても固溶体の形成により U の溶出が抑制される傾向がみられた。一方、酢酸による抽出と比較して、NaHCO₃ 溶液による抽出では UO₂ と (U, Zr)O₂ 固溶体からの U 溶出率に大きな差が見られた。NaHCO₃ 溶液による抽出試験は固溶体形成による溶出抑制効果を高感度で検出できる可能性がある。このほか U と Zr を異なる組成で調製した模擬デブリからの溶出挙動についても報告を行う。

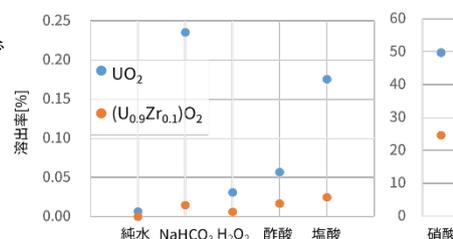


図1 UO₂ と (U_{0.9}, Zr_{0.1})O₂ 固溶体からの U 溶出率比較

*Hiroki Nakazumi¹, Daisuke Akiyama¹ and Akira Kirishima¹

¹Tohoku Univ.