

逐次抽出法による模擬デブリからのマイナーアクチノイド溶出挙動の評価

Evaluation of minor actinide dissolution behavior from simulated fuel debris by a sequential extraction technique

*砂原 壮汰¹, 秋山 大輔¹, 横田 優貴¹, 桐島 陽¹

¹東北大学

抄録:燃料デブリ中のマイナーアクチノイド(MA)核種の溶出挙動を評価するために、MA トレーサー (^{237}Np , ^{241}Am) と ^{152}Eu を添加した(U, Zr) O_2 固溶体を模擬デブリとして合成し、これを対象として燃料デブリ版逐次抽出試験を実施し、各核種の溶出挙動を評価した。

キーワード: 燃料デブリ, マイナーアクチノイド, 逐次抽出法, 溶出挙動

1. 緒言

燃料デブリ中のマイナーアクチノイド(MA)核種は放射能毒性が高く、その化学的挙動を把握することは燃料デブリの安全な保管方法や処理・処分方法を検討していくうえで重要である。そこで本研究では燃料デブリ中の MA 核種の溶出挙動を評価するために、MA トレーサー (^{237}Np , ^{241}Am) と ^{152}Eu を添加した(U, Zr) O_2 固溶体を模擬デブリとして合成した。これを対象として燃料デブリ版逐次抽出試験を実施し、各核種の溶出挙動を評価した。

2. 実験

2-1. 模擬デブリの合成

MA トレーサー (^{237}Np , ^{241}Am) と ^{152}Eu を添加した U_3O_8 粉末を、Ar + 10% H_2 気流下 1000 °C で 4 時間加熱して MA 添加 UO_2 を調製した。この MA 添加 UO_2 粉末と ZrO_2 粉末とをモル比 U:Zr = 100 : 0, 90 : 10, 50 : 50 で混合後、Ar+10% H_2 気流下 1600 °C で 4 時間加熱して(U, Zr) O_2 固溶体から成る模擬デブリ試料を調製し、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試験

逐次抽出試験では小型遠心分離機とフィルターカップを使用した。模擬デブリ試料 200 mg と抽出液 400 μL をフィルターカップに入れ、1 時間浸漬後、遠心分離により固液分離した。ここでは抽出液として酢酸 (10^{-2}M)、塩酸 (10^{-2}M)、硝酸 (3 M) を逐次的に用いた。はじめの抽出終了後、超純水で試料を洗浄後し、次により反応性の高い抽出液を用いて抽出を行った。各抽出段階で液相に溶出した ^{238}U , ^{237}Np , ^{241}Am , ^{152}Eu の放射能を測定し、溶出率を導出した。 ^{238}U , ^{237}Np , ^{241}Am の放射能測定には Si 半導体型 α 線検出器を使用し、 ^{152}Eu の放射能測定には Ge 半導体型 γ 線検出器を使用した。

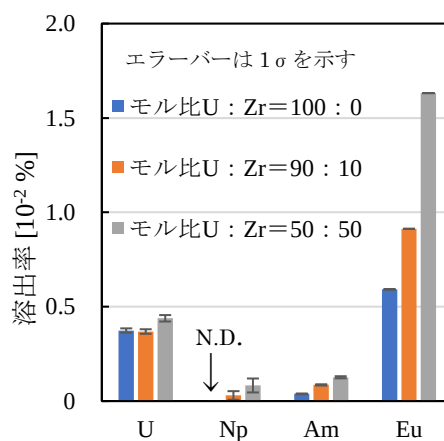


図 1 酢酸抽出時の各模擬デブリからの U, Np, Am, Eu の溶出率

3. 結果と考察

図 1 に酢酸抽出時の各模擬デブリからの U, Np, Am, Eu の溶出率を示す。Np, Am, Eu は模擬デブリ中の Zr 量の増加と共に溶出率が増加する傾向がみられた。Zr が UO_2 相に固溶する置換型の固溶体形成時に、MA や Eu の一部が UO_2 相から析出しマイナー相を形成したと見られ、酢酸のような反応性の低い抽出液においてはマイナー相からの溶出の影響が顕著となったと考えられる。このほか、他の抽出液で抽出した際の各核種の溶出挙動についても報告を行う。

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 JP23K26584 の助成を受けたものです。

*Sota Sunahara¹, Daisuke Akiyama¹, Yuki Yokota¹ and Akira Kirishima¹

Tohoku Univ.