



ジルコニウムセリウム酸化物固溶体の結晶構造と溶解挙動について

SATテクノロジー・ショーケース2022

■ はじめに

10年前の福島第一原発事故のような原子炉過酷事故 においては炉心が過熱し溶融燃料と周囲の物質を巻き込 み冷えて固まった燃料デブリが生成した。[1]燃料デブリの 安全な処理に向けて考えられる手法の一つに地層処分が ある。地層処分とは燃料デブリを頑丈な容器に封入して、 深地層中に処分する手法であり、放射能が減衰するまで の長い間、保管する。地層処分における安全評価の一つ に地層中流れている地下水が、燃料デブリと地下水が接 触し、核種が溶出、地下水とともに核種移行する地下水シ ナリオがある。地下水シナリオに基づく、地下水への溶出 挙動の評価が現在求められている。そこで本研究では, 燃料デブリの主成分である酸化物デブリに着目して、酸 化物デブリの性状把握、溶解挙動の把握を目的とし、その 達成のために、燃料成分ウランのアナログであるCe [2][3] と、被覆管成分のZrの酸化物を対象にした種々の実験と 考察を行った。

■ 活動内容

1. 酸化物固溶体の作成

ジルコニウムセリウム酸化物固溶体を生成するためZrと Ceの母溶液に対してPVAを蒸発乾固させたのち、電気炉で1000℃で加熱。この際、Polymeric steric entrapmentと呼ばれる機構によって酸化物固溶体が生成される[4]

2. 結晶構造分析

生成した結晶構造に対してX線回折、SEMを用いて 分析を 行った。調製した 固相は、ZrO2(tetragonal, monoclinic)-basedおよびCeO2(cubic)-based固溶体の混合物であることが分かった。(右図) Zr:Ce = 5:5(初期混合比)では顕著.

Zr混合比およびCe混合比が小さい場合、それぞれCeO2(cubic)、ZrO2(tetragonal, monoclinic)に固溶.

3. 溶解举動

調製した固相のZr,Ceイオンの溶解度についてICP-MSを用いて分析。分析の結果、Zrに関してはpH1以下で溶解度が急上昇。ZrO2の溶解度と大差がないように見受け

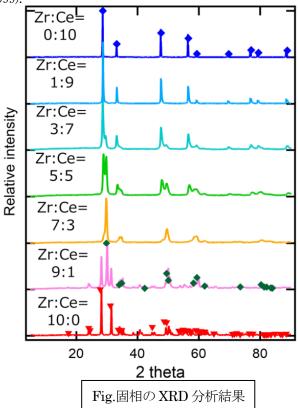
られた。

Ceに関してはpH4.5より酸性側で溶解度が急上昇した。pH0.8-5の間ではCeの比率が上がるにつれて溶解度が上昇傾向にあった。しかしCeO2単体の溶解度と比較した場合、溶解度が二桁ほど低く固溶体中のZrがCeの溶解を制限しているのではないかと考えられる。

■ 関連情報等(特許関係、施設)

[1]佐藤 修彰, Chemical Engineering, 57, 6, 414-418 (2012).

- [2] SGTE Nuclear Database (2004).
- [3] 八島正知,吉村昌弘,まてりあ, 34,4,448-454 (1994).
- [4] M. H. Nguyen et. al., J. Mater. Res., 14, 8, 3417–3426 (1999).



代表発表者

問合せ先

佐藤 侑太郎(さとう ゆうたろう)

京都大学大学院 工学研究科原子核工学専攻

〒615-8540 京都市西京区京都大学桂 s2N04

TEL:090-7687-1105 readeryutaro@yahoo.co.jp **■キーワード**: (1)原子力

(2)核燃料サイクル

(3) バックエンド