

課題番号	: F-21-KT-0006
利用形態	: 技術代行、機器利用
利用課題名(日本語)	: 放射性核種の環境動態に関するナチュラルアナログを用いた研究
Program Title (English)	: Study on the migration behavior of radionuclide
利用者名(日本語)	: <u>小林大志¹⁾</u> , 佐藤侑太郎 ²⁾
Username (English)	: <u>T. Kobayashi¹⁾</u> , Y. Sato ²⁾
所属名(日本語)	: 1) 京都大学院工学研究科 2) 京都大学院工学部物理工学科
Affiliation (English)	: 1) Graduate School of Eng., Kyoto Univ. 2) Faculty of Engineering., Kyoto Univ.
キーワード/Keyword	: ジルコニウム複合酸化物、形状・形態観察、分析、SEM-EDS

1. 概要(Summary)

福島第一原子力発電所事故では、燃料成分であるウランや被覆管成分であるジルコニウムなどが高温で熔融した燃料デブリが形成したとされ、その取り出しや将来的な処理処分に向けて、性状把握が進められている。本研究では、種々の燃料デブリの性状のうち、ウランやジルコニウム、核分裂生成物などの酸化物を主成分とする酸化物デブリの水溶液への溶解挙動に着目し、ジルコニウムと核分裂生成核種の1つであるセリウムの混合酸化物を調製した。燃料成分における核分裂生成核種の割合は数%程度であるが、セリウムが共存することによるジルコニウム酸化物の構造変化や水溶液への溶解挙動の変化などを調べるため、両者の混合比を幅広くとり、ジルコニウム-セリウム混合酸化物を合成した。なお、ジルコニウム、セリウムとも放射性核種ではなく、天然に存在する安定同位体を用いた。調製した混合酸化物の結晶構造を粉末 X 線回折法により調べたところ、本実験条件下において得られた混合酸化物試料は、ジルコニウム酸化物およびセリウム酸化物を主成分とする固溶体の混合物であることが分かった。試料の外観や粒径、組成比などを調べるため、走査型電子顕微鏡(SEM)による観察およびエネルギー分散型 X 線分析装置(EDS)による分析を行った。

2. 実験(Experimental)

【利用した主な装置】

分析走査電子顕微鏡

【実験方法】

硝酸ジルコニウム水溶液および硝酸セリウムアンモニウム水溶液を所定の比で混合し、ポリビニルアルコールを加え、200℃で蒸発乾固させた。さらに、電気炉を用いて、乾固させた沈殿を 1000℃で 4 時間、加熱することでジルコニウム - セリウム混合酸化物試料を得た。得られた固相試料を pH 1-8、イオン強度 ($I = 0.5M$

$NaClO_4$) の試料溶液に添加し、4 週間程度、浸漬した。浸漬前後の固相試料を分離、乾燥し、SEM-EDS による分析を行った。

3. 結果と考察(Results and Discussion)

ジルコニウム:セリウム=7:3 のモル比で母溶液を混合、調製した固相試料の SEM 画像を Fig. 1 に示す。本実験条件において得られた固相は、数 μm 以上の凝集物のような外観をしていることが分かった。また、当該領域の EDS 分析では、O, Zr, Ce の原子数比が 70.94%、15.83%、および 13.24%となり、ジルコニウム酸化物およびセリウム酸化物を主成分とする固溶体が存在するという、X 線粉末装置を用いて得られた結果と整合することが確かめられた。

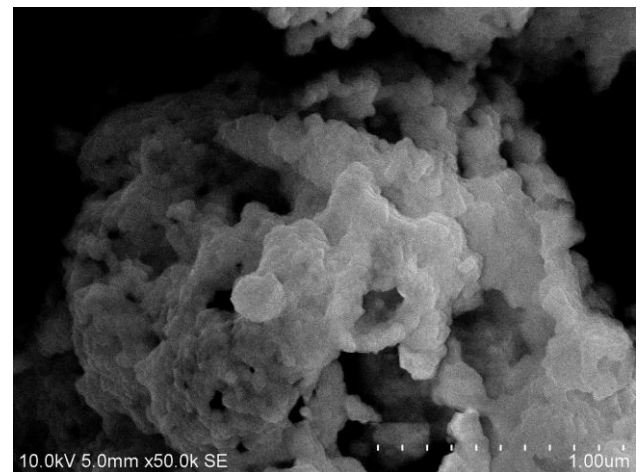


Fig. 1 SEM image of solid phase with Zr:Ce=7:3.

4. その他・特記事項(Others) なし

5. 論文・学会発表(Publication/Presentation) なし

6. 関連特許(Patent) なし