

溶融塩化物中における Mn(II)、Fe(II)、Co(II)、Ni(II) の沈殿挙動

Precipitation behavior of Mn(II), Fe(II), Co(II), and Ni(II) in molten chlorides

*山本 由理¹, 横井 悠輝¹, 箕輪 一希^{1,2}, 高島 容子², 渡部 創², 中村 雅弘², 松浦 治明¹

¹ 東京都市大, ² JAEA

LiCl-KCl 共晶塩又は NaCl-2CsCl 塩に、Mn、Fe、Co、Ni の放射化物の代わりとなる安定同位体、沈殿剤を添加し沈殿評価実験と化学平衡計算によるシミュレーションを実施した。沈殿物及び上澄み塩について XAFS 等の測定、解析を行った。放射化物の代替は酸化物として浴塩から分離した。

キーワード：乾式再処理法、溶融塩、分離、沈殿、放射化生成物、XAFS

1. 緒言

使用済み核燃料の乾式再処理法では、浴塩を繰り返し使用するが、最終的には核燃料物質等をわずかに含む使用済み塩が発生する。核物質管理上、この使用済み塩に含まれる核燃料物質は単離回収されることが望ましい。これには沈殿法と蒸留法にて核燃料物質を回収する手法を提案している。本研究では、原子炉及び燃料構造材、溶融塩電解槽等から由来する放射化物である Mn、Fe、Co、Ni の沈殿時の挙動に関して検討を行った¹。

2. 実験

Ar 循環グローブボックス (GB) 内で石英管に LiCl-KCl 共晶塩又は NaCl-2CsCl 塩を入れた。そこに、MnCl₂ もしくは、CoCl₂、FeCl₂、NiCl₂ をそれぞれ浴塩に対し 10 wt% 入れた。沈殿剤の Li₂O は、Mn(II)、Fe(II)、Co(II)、Ni(II) それぞれの物質質量に対し化学量論的に 50 %、100 %、150 %、200 % にてそれぞれ投入した。石英管を GB 内の電気炉に入れ、LiCl-KCl 浴では 700 °C、NaCl-2CsCl 浴では 800 °C で加熱し、試料を溶融させた。石英管ごと試料を自然冷却、固化したのち、沈殿物と上澄み塩をそれぞれ採取した。沈殿物は粉碎し、BN と混合した。混合物はペレット状に成形し、XAFS 測定に供した。XAFS 測定は、KEK PF BL-27B にて行った。上澄み塩は一部を採取し純水に溶解させたものを AAS にて分析を行った。分析結果から、含有する Mn(II)、Fe(II)、Co(II)、Ni(II) それぞれの濃度を求め、沈殿率を算出した。また、実験で想定される反応については、熱力学データベース MALT と多元素化学平衡計算ソフト gem を用いた化学平衡計算による沈殿生成割合シミュレーション評価も行った。

3. 結果及び考察

塩化物の比較対照試料と沈殿物の EXAFS 動径構造関数を図 1 に示す。沈殿物の EXAFS 動径構造関数では、各元素の沈殿物において、約 2.7 Å に第一近傍構造ピークが確認された。これは塩化物の比較対照試料の第一近傍構造ピークと比較すると大きく異なっており、Li₂O を添加することで塩化物とは異なる生成物が沈殿したと考えられる。第一近傍構造ピークの類似性から、各元素における沈殿物は似た構造であることが想定される。発表では、gem による沈殿生成割合シミュレーション評価、AAS 分析結果から算出した沈殿率、XRD 測定による沈殿物と比較対照試料の XRD パターンについて説明する予定である。

実験の結果、Mn(II)、Fe(II)、Co(II)、Ni(II) の塩化物は Li₂O を添加することにより生成物を形成することがわかった。検討中のプロセスでは核燃料物質は酸化物として回収することを望んでいるため、これらの元素は核燃料物質に同伴する可能性が高く、Mn、Fe、Co、Ni と核燃料物質を分離する工程の検討が必要であると考ええる。

謝辞

本研究は東京都市大学及び日本原子力研究開発機構との共同研究によって行われた成果の一部である。

参考文献

1. Y. Yamamoto, K. Minowa, Y. Takahatake, S. Watanabe, M. Nakamura, and H. Matsuura, *Electrochemistry*, **92**, 043019 (2024).

*Yuri Yamamoto¹, Yuki Yokoi¹, Kazuki Minowa^{1,2}, Youko Takahatake², Sou Watanabe², Masahiro Nakamura² and Haruaki Matsuura¹

¹Tokyo City Univ., ²Japan Atomic Energy Agency.

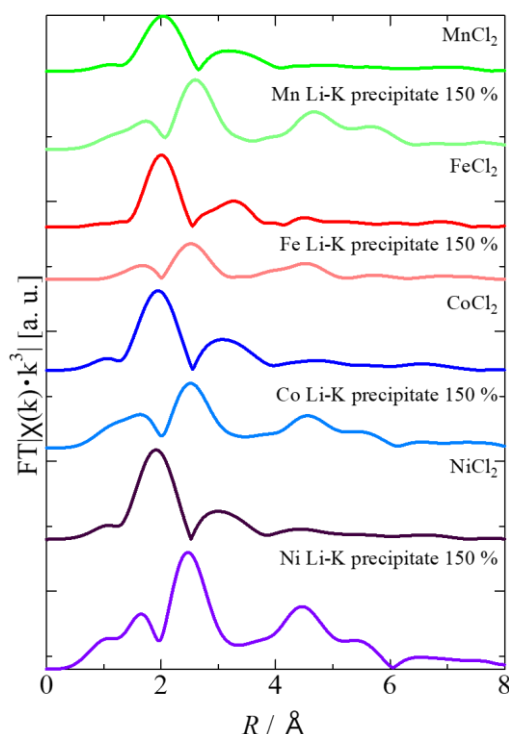


図 1; 塩化物の比較対照試料と沈殿物の EXAFS 動径構造関数