

分子動力学法によるアルカリハライド熔融塩中の Cs、I の局所構造分析

Local structure analysis of Cs and I dissolved in molten alkali halide salts by molecular dynamics calculations

*関口 裕真¹, 魚住 浩一², 河村 雄行³, 寺井 隆幸¹

¹東京大学, ²電力中央研究所, ³東京工業大学

乾式再処理や熔融塩原子炉の事故時挙動に関する基礎研究として、溶媒であるアルカリハライド熔融塩中の Cs、I の局所構造を分子動力学(MD)計算によって実施した。その結果、Cs と I の結合頻度は特にフッ化物熔融塩中で高く、既往の蒸気圧測定試験でこれらの元素が高い活量係数を示したと整合した。

キーワード：熔融塩、分子動力学計算、セシウム、ヨウ素

1. 緒言

アルカリハライド熔融塩は乾式再処理や熔融塩原子炉の溶媒としての利用が検討されているが、塩に溶解した放射性物質の事故時の放出を検討する必要がある。報告者らはフッ化物熔融塩中の Cs、I の蒸気圧測定を実施し、両元素が塩中で高い活量係数を示すと共に、相互に作用していることが示唆された[1]。そこで高い活量係数や相互作用が塩中での Cs、I のミクロな偏在によるものと推測し、局所構造を MD により分析した。

2. 実験

MD ソフトウェアとして MXDORTO[2]を用い、溶媒である LiF-NaF-KF(46.5-11.5-42.0mol%: FLiNaK)塩もしくは LiCl-KCl(60-40mol%)塩中に溶解した Cs および I について、1000K においてそれぞれの濃度を 0~5mol% の範囲で変化させた際の配位数や二体相関関数の変化を調べることで局所構造を評価した。

3. 結果・考察

LiCl-KCl 塩中では Cl⁻に対する K⁺, Cs⁺の配位数は I 濃度上昇に伴い減少した一方で Li⁺の配位数は上昇した(図1)。また、Li⁺, K⁺に対する Cl⁻と I⁻の配位数の Cs 濃度上昇に伴い、特に I⁻の配位数が減少していることが示された(図2)。なお図2では 0%Cs を基準とする変化率を示す。また FLiNaK 塩中においても同様の効果が確認された。

また FLiNaK 塩中と LiCl-KCl 塩中における I を中心とする二体相関関数を比較したところ(図3)、I-Cs の第一ピークは LiCl-KCl 塩中よりも FLiNaK 塩中で大きく、一方で I-Li, I-K ピークは LiCl-KCl 塩中の方が大きかった。従って、Cs-I の結合頻度は FLiNaK 塩中において特に高いと言える。これは蒸気圧測定[1]における Cs、I の高い活量と矛盾しない。

参考文献

[1] Y. Sekiguchi, et al., LiF-NaF-KF Salt, Proc. AMS6, Gyeongju, Korea (2017).

[2] 河村雄行, MXDORTO, Japan Chemistry Program Exchange, #029 (1996)

*Yuma Sekiguchi¹, Koichi Uozumi², Katsuyuki Kawamura³, and Takayuki Terai¹

¹The University of Tokyo, ²Central Research Institute of Electric Power Industry, ³Tokyo Institute of Technology,

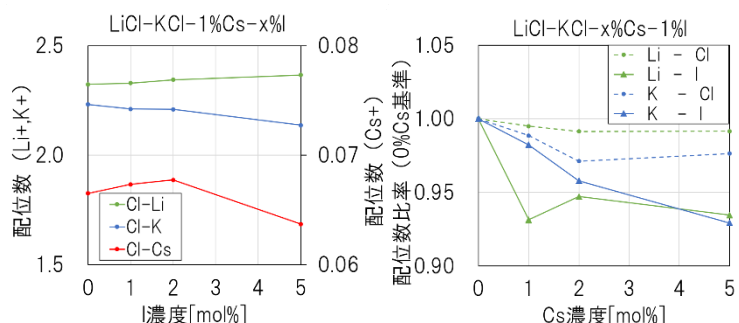


図1 Cl⁻に対する Li⁺, K⁺, Cs⁺配位数のI濃度による変化

図2 Li⁺, K⁺に対する Cl⁻, I⁻配位数のCs濃度による変化率

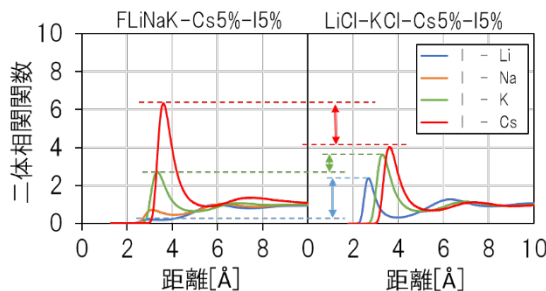


図3 I 中心の二体相関関数の比較 (左: FLiNaK 塩中、右: LiCl-KCl 塩中)