溶融塩化物中からのセレンおよびテルルの分離回収

Separation of selenium and tellurium from molten chloride melts

*坂村 義治，村上 毅，魚住 浩一
電中研

Se^{2-}と Te^{2-}が溶解した LiCl-KCl 共晶塩等の溶融塩系において、陽極で Te が優先的に酸化され析出すること、Cu を陽極に用いれば Te と Se を安定な Cu 化合物として回収できることを実証した。

キーワード：セレン，テルル，溶融塩化物，陽極析出

1. 緒言

研究開発プログラム「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」の下で、ガラス固化体から長半減期 FP (^{135}Cs, ^{79}Se, ^{107}Pd, ^{93}Zr) を分離する技術を開発している。ガラス固化体を溶融塩中で還元すると[1]（注：ガラス固化体の保管・地層処分環境と全く異なる環境）、カルコゲン元素である Se と Te は、同族の O と同様に陰イオン (Se^{2-}と Te^{2-}) として塩中に溶出する。これまでに著者らは、LiCl-KCl 共晶塩および $CaCl_2$ 中で Se と Te の基礎的な酸化還元挙動を調べてきた[2]。本研究では、Se^{2-}と Te^{2-}、O^{2-}を共存させた塩中で電解を行い、陽極に Se と Te を析出させて回収すると共に、元素間の分離性を調べた。

2. 実験方法

MgO るつぼ (内径48 mm) に共晶組成の LiCl-KCl を 44.7 g 装荷し、高純度 Ar ガス雰囲気下で 450℃に加熱して溶融した。そして、Na_2Se と Na_2Te、Li_2O を所定量添加後、Cu 陽極を用いた定電位電解による Te と Se の回収を行った。なお、陰極には Al 線、参照電極には Cu 線 (Li 金属析出電位で校正し Ag/AgCl (1.0 wt% AgCl) 電位基準に換算) を用いた。

3. 結果および考察

電解前に測定した Cu 電極のサイクリックボルタモグラム (CV) を図 1 (a)に示す。塩中濃度は、Se=0.24 wt%、Te=0.29 wt% (ICP-AES 分析より)、Li_2O=0.17 wt% (添加量より) である。Te と Se の析出 (Cu 化合物生成) に対応する 2 つのアノードピークが明瞭に見られる。Te の方が析出しやすいものの、Se との析出電位差は小さい。第 1 回目の電解は、Cu 陽極電位を-0.8 V に設定し、3 h 行った (電流～5 mA、53 C)。引き続き、同様の電解を 11 回繰り返した (設定電位は、-0.6 V まで段階的に変更)。電解の進行に伴って、図 1 より、先ず Te 析出ピークが減少し、次に Se 析出ピークが減少する様子が分かる。一方、O 析出 (Cu_2O 生成) のピークはほぼ一定している。電解終了後の塩中濃度は、Se=0.040 wt%、Te=0.002 wt%まで低下した。析出物の分析結果から、Te 濃度が高い条件では Te が優先的に析出するものの、Se から Te を効率良く分離することは容易でないことが示唆された。

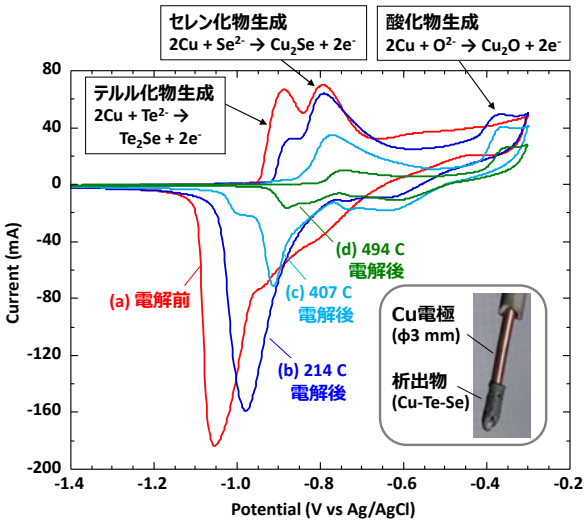

図1 LiCl-KCl-Na_2Se-Na_2Te-Li_2O中で測定したCu電極のサイクリックボルタモグラム (0.1 V/s, 450℃)。電解前の塩中濃度は Se=0.24 wt%、Te=0.29 wt%、Li_2O=0.17 wt%。電解の進行に伴って、(a)→(d)に変化。挿入写真は、-0.8 Vの定電位電解で析出したCu-Te-Se (代表例)。

本研究は、総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一環として実施したものです。

参考文献

[1] K. Katasho, X. Yang, K. Yasuda and T. Nohira, *J. Electrochem. Soc.*, **163** (10), D622-D627 (2016).
[2] 坂村義治、村上毅、魚住浩一、日本原子力学会 2017 年秋の大会 2K04、北海道大学、2017 年 9 月 14 日.

*Yoshiharu Sakamura, Tsuyoshi Murakami and Koichi Uozumi
Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI)