

溶融塩電気化学法を用いた汚染土壌からのセシウム除去と 放射光 XAFS 分析による電解還元効果の解明

Cesium removal and separate from Fukushima weathered biotite using molten salt electrochemistry

*本田 充紀¹, 後藤 琢也², 坂中 佳秀², 鈴木 伸一^{1,3}, 矢板 毅^{1,3}

¹原子力機構・物質科学研究センター, ²同志社大学, ³原子力機構・福島環境安全センター

本研究では、我々は放射能汚染土壌の減容および再利用化へ向け、溶融塩電気化学法を用いた汚染土壌からの Cs 除去と電解制御によるエネルギー材料創製技術開発を目的とし、溶融塩電気化学を用いた還元反応について放射光 XAFS 分析により電解還元効果を検討した。それにより土壌中の Fe の還元を明らかにし、生成する結晶も変化することから結晶生成過程を制御できる可能性を示唆した。

キーワード：溶融塩電気化学法, 福島風化黒雲母, Cs 除去, 分離

1. 緒言

放射性汚染土壌の減容は、環境回復における重要な課題である。我々は、Cs 吸着能が高い風化黒雲母 (WB) [1]と溶融塩の混合加熱による Cs 脱離[2]と、複数種の結晶生成[赤鉄鉱(Fe_2O_3), 方解石(CaCO_3), 普通輝石($(\text{Ca,Mg,Fe,Al})_2(\text{Si,Al})_2\text{O}_6$), 和田石($(\text{Ca,Mg})_6(\text{Al,Fe})_4(\text{Si,Al})_3\text{O}_4\text{Cl}_3$)を明らかにした[3]。再生利用促進へ向けてさらなる結晶制御が必要であり本研究では溶融塩電気化学法による土壌からのエネルギー材料創製技術の開発を目的とし、電解還元による構造変化を放射光 XAFS 分析により検討した。

2. 実験

本研究では溶融塩($\text{NaCl}-\text{CaCl}_2$)電気化学法にて土壌の電解還元を行った。今回-1.4 V の Fe が還元される電位により、700°C・2 時間反応を行った。試料は蛍光 X 線分析(XRF)による組成分析、X 線回折法 (XRD) による結晶構造解析を行った。また X 線吸収分光法(XAFS)(KEK-PF BL27B)から Fe の局所構造解析を行い、電解還元効果を検討した。試料は (a)WB のみ(b) WB+混合塩・700°Cおよび(c) WB+混合塩添加・700°C / -1.4V についてそれぞれ比較検討した。

3. 結果と考察

XRF 測定にて(a)の Cs 吸着を確認した後(b)および(c)でほぼ 100%の Cs 除去を確認した。XRD 測定では (a)WB と比較し(b)および(c)でそれぞれパターンが異なることを確認した。これは電解還元により Cs 除去後の結晶が異なることを示唆している。そこで放射光 XAFS 分析により Fe の局所構造解析を行った。Fe *K*-edge XAFS 測定結果を図に示す。Fe の pre-edge ピークから (a)WB はブロードなピークを 7110.6 eV に確認した。これは 3 価/2 価混合を意味する。また(b)は 7113.4 eV にピークを確認した。Fe³⁺は 7113.5 eV であり 3 価であるが (c) 混合塩添加・-1.4V・700°Cでは 7110.1 eV にピークを確認した。これは(a)よりも 0.5 eV 低エネルギー側にシフトしており、Fe²⁺の結果と一致しており、2 価であることが分かった。溶融塩電気化学法による電解還元について XAFS により検討した結果 (a)WB 中は 3 価/2 価の混合(b)は 3 価、(c)では 2 価であることを明らかにした。

参考文献[1]H. Mukai *et al.*, Sci. Rep. (2016) 2-4. [2]M. Honda *et al.*, ACS Omega.2(2017)721-727[3]M. Honda *et al.*, ACS Omega. 2(2017) 8678-8681.

*Mitsunori Honda¹, Takuya Goto², Yoshihide Sakanaka, Shinichi Suzuki^{1,3}, Tsuyoshi Yaita^{1,3},

¹JAEA, Materials Research Science Center, ²Doshisha University, ³JAEA Fukushima Environmental Safety Center.

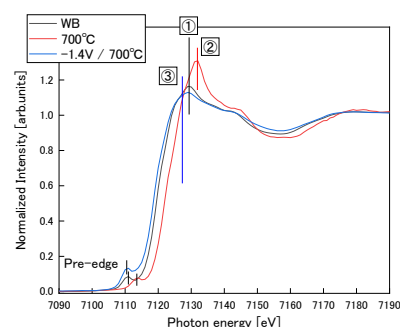


図 (a)WB, (b) 混合塩添加・700°C, (c) 混合塩添加・-1.4V・700°C 処理試料についての Fe *K*-edge XAFS スペクトル