

金属硝酸塩混合水溶液のマイクロ波加熱脱硝特性と複素比誘電率評価

Evaluation on the Denitration Characteristics of Metal Nitrate Aqueous Mixed Solution by Microwave Heating and the Complex Relative Permittivity

*瀬川 智臣¹, 川口 浩一¹, 石井 克典¹, 鈴木 政浩¹, 深澤 智典², 福井 国博², 北澤 敏秀³

¹日本原子力研究開発機構, ²広島大学, ³立命館大学

マイクロ波加熱による金属硝酸塩混合水溶液の脱硝特性の解明を目的とし, 本研究では, 硝酸銅・硝酸ニッケル混合水溶液のマイクロ波加熱脱硝特性と最終生成物および中間生成物の複素比誘電率の評価を行った.

キーワード: 金属硝酸塩混合水溶液, 硝酸銅, 硝酸ニッケル, マイクロ波加熱脱硝, 複素比誘電率

1. 緒言

使用済み燃料の再処理工程において, マイクロ波加熱直接脱硝法により硝酸ウラニル・硝酸プルトニウム混合水溶液から混合酸化物粉末へ転換している. Na 冷却高速炉で非均質サイクルを想定した場合には, マイクロ波加熱脱硝特性が明らかになっていない MA が主体的となった溶液を脱硝することが求められるため, 様々な物質を含む金属硝酸塩混合水溶液のマイクロ波加熱脱硝特性を把握する必要がある. 模擬物質を用いたマイクロ波加熱脱硝試験において, 物質により異なる脱硝特性となることが報告されている^[1]. また, 複数の金属硝酸塩の混合水溶液をマイクロ波加熱した場合, 金属硝酸塩混合水溶液の昇温速度は組成比の合成とはならず, 非線型の効果を示すことから^[2], 脱硝メカニズムの解明に向けた測定・評価を実施した.

2. 実験方法

全質量 20.0 g, 全金属イオン中の Cu の mol 分率が 0~100%になるように硝酸銅三水和物と硝酸ニッケル六水和物を計量した. これをイオン交換水 15.0 mL に完全に溶解させたものを混合水溶液として調製し, マイクロ波加熱装置 (μ Reactor, 四国計測製)により 2.45 GHz, 約 720 W のマイクロ波を照射した. K 型熱電対により混合水溶液の中心温度を計測し, 約 600 °C を保持するよう PID 制御を実施した. 200 °C (Medi-100%Cu), 270 °C (0%Cu)および 600 °C 到達後, 各試料を採取し, 空洞共振器に装荷し, その共振特性を測定した. 次に, 拡張スペクトル領域法とモードマッチング法を組み合わせた高精度ハイブリッド電磁界解析法^[3]による共振特性の理論値との比較により, 試料の複素比誘電率 ϵ を同定した.

$$\epsilon = \epsilon' - j\epsilon'' \quad (1)$$

$$\tan\delta = \epsilon''/\epsilon' \quad (2)$$

ここで, ϵ' は比誘電率, ϵ'' は誘電損率, $\tan\delta$ は誘電正接である. $\tan\delta$ は, 物質中におけるマイクロ波のエネルギー損失の程度を表している. また, 結晶構造を評価するため, 各試料の XRD 測定を実施した.

3. 測定結果および考察

マイクロ波照射時の混合水溶液の温度変化を Fig. 1 に示す. 0%Cu では, マイクロ波照射途中で昇温が停止した. 一方, 混合水溶液ではマイクロ波照射により加熱されやすくなり, 約 600 °C までの到達時間は Cu の比率により変化することを確認した. 各試料の ϵ' および $\tan\delta$ を Table 1 に示す. Medi-100%Cu および 0%Cu の $\tan\delta$ は低い値となった一方, 混合水溶液から得られた最終生成物の $\tan\delta$ は, Cu の比率とともに増加することを確認した. 各生成物の XRD 測定結果を Fig. 2 に示す. (a)Medi-100%Cu では, 中間生成物の硝酸銅水酸化物のピークのみが確認された. また, (b)0%Cu では, 中間生成物の硝酸ニッケル水和物および水酸化物のピークが確認された. (c)-(f)においては, CuO および NiO のピークのみが検出され, Cu の比率が増加するにつれて, CuO のピーク強度が強くなる一方, NiO のピーク強度は弱くなることを確認した. Table 1 に示すように, NiO は 100%Cu (CuO) に比べて $\tan\delta$ が大きいため, 加熱されやすいことがわかる. マイクロ波加熱によりまず生成した CuO により約 300 °C 以上に加熱され, 次に生成した NiO により試料の昇温が加速されたと考えられる.

本試験結果から, 中間生成物, CuO および NiO の生成温度の差やそのマイクロ波吸収性が硝酸銅・硝酸ニッケル混合水溶液の昇温速度に影響を及ぼすことが示唆される.

4. 結論

本研究により, 金属硝酸塩混合水溶液のマイクロ波加熱脱硝において, 混合割合や最終生成物である酸化物のマイクロ波エネルギー損失性が脱硝特性に大きく影響を及ぼしていることが明らかになった. マイクロ波照射による加熱および脱硝反応が進行しない硝酸ニッケルにおいても, 脱硝可能な硝酸銅と混合することにより, マイクロ波加熱脱硝が可能になることが確認できたことから, MA のうち, 硝酸ニッケルのようにマイクロ波加熱脱硝反応が進行しない物質においても, 硝酸銅のように脱硝可能な物質である硝酸ウラニルと混合することにより, マイクロ波加熱脱硝が可能になることが期待される.

参考文献

[1] K. Fukui, et al., Chem. Eng. J. 211-212 (2012) 1-8. [2] 文部科学省科学研究費補助金, 基盤研究(C), 研究成果報告書(平成 26 年度~平成 28 年度) 福井 国博, 2017. [3] M. Kinoshita, et al., J. J. Appl. Phys., 51 (2012) 09LF03. [4] T. Segawa, et al., Adv. Powd. Technol., 26 (2015) 983-990.

¹Tomoomi Segawa¹, Koichi Kawaguchi¹, Katsunori Ishii¹, Masahiro Suzuki¹, Tomonori Fukasawa², Kunihiko Fukui² and Toshihide Kitazawa³

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Hiroshima University, ³Ritsumeikan University

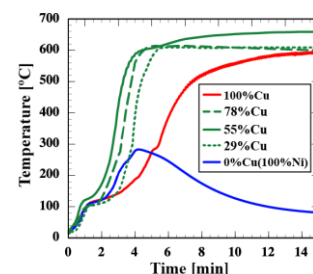


Fig. 1. 金属硝酸塩混合水溶液のマイクロ波加熱試験結果^[2]

Table 1 試料の複素比誘電率

Sample	ϵ'	$\tan\delta$
Medi-100%Cu	2.3	3.9×10^{-2}
100%Cu	2.6	2.6×10^{-1}
78%Cu	2.2	2.2×10^{-1}
55%Cu	2.2	2.0×10^{-1}
29%Cu	2.0	1.1×10^{-1}
0%Cu (100%Ni)	2.2	1.3×10^{-2}
NiO [4]	12	5.7×10^{-1}

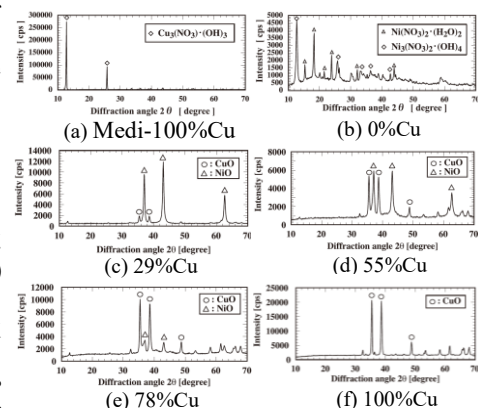


Fig. 2. 最終生成物および中間生成物の XRD 測定結果