

## トリアルユース課題実施報告書

実施課題番号： 2003A0866-RI-np  
実施課題名： 炭素電極電析物のその場 X 線回折測定  
実施責任者： 核燃料サイクル開発機構東海事業所 明珍宗孝  
使用ビームライン： BL19B2 多軸 X 線回折装置  
実験結果：

### 炭素電極電析物のその場 X 線回折測定

(核燃料サイクル開発機構, <sup>1</sup>神戸大, <sup>2</sup>東工大, <sup>3</sup>高輝度光科学研究センタ) 明珍宗孝, 小藤博英, 梶並昭彦<sup>1</sup>, 大西宏一<sup>1</sup>, 大西要介<sup>1</sup>, 出来成人<sup>1</sup>, 松浦治明<sup>2</sup>, 梅咲則正<sup>3</sup>, 廣沢一郎<sup>3</sup>

#### 1. 目的

核燃料サイクルにおいて、熔融塩電解を用いた乾式再処理技術が注目を浴びている。この方法は、従来の湿式法と比較すると、汚染物質が出にくく、環境負荷低減が可能な経済性に優れた方法である。しかし、使用済み燃料の熔融塩電解において、残存ウラン燃料以外の核分裂元素などにより、電解制御の困難になったり、電流効率が著しく低下する現象が知られている。しかしこのような問題のメカニズムについては、あまり明らかになっていない。本研究は熔融塩電解中の電極のその場 X 線回折 (XRD) 測定を行うことにより、その反応メカニズムの検討を行うことを目的としている。

今回は、その測定手法を開発し、測定条件を確立するために模擬析出物としてニッケル金属を析出させた炭素電極を NaCl・2CsCl 高濃度水溶液に浸漬し、放射光により XRD 測定を行った。その回折強度およびピーク幅から光学系および X 線エネルギーの最適条件をもとめた。

#### 2. 方法

黒鉛電極 (幅 2.5mm, 厚み 1mm) を普通浴 (硫酸ニッケル: 150g/dm<sup>3</sup>, 塩化アンモニウム: 15g/dm<sup>3</sup>, ホウ酸: 15h/dm<sup>3</sup>) に入れ、10mA/cm<sup>2</sup> の電流密度にて所定時間、金属ニッケルを黒鉛電極上に電析させた。その電極を内径 3mm、厚み 1mm の石英ガラスセルに入れ、NaCl・2CsCl 高濃度水溶液 (密度 1.52 g/cm<sup>3</sup>) をセル内に充填し XRD 測定をおこなった。XRD 測定は Spring-8 の BL19B2 ビームラインの多軸回折計により、所定のエネルギーの X 線を用いて透過法で行った。検出器はシンチレーションカウンタを用いて、 $2\theta = 0.05^\circ$  間隔で 5 秒積算にて  $2\theta$  スキャンを行った。

### 3. 結果および検討

図1には、電析時間から求めたニッケル析出膜の厚みによるニッケル被覆黒鉛電極のXRDパターン変化を示した。ニッケル皮膜の厚みが0, 1.7 $\mu\text{m}$ では黒鉛ピークしか見られないが、10 $\mu\text{m}$ 以上の厚みになると、ニッケルのピークが現れることが明らかとなった。また厚みが増加するにつれて、ピーク強度が増加することがわかる。図2には、入射X線の光子エネルギーによるXRDパターン変化を示した。入射X線が30keVの場合が一番回折強度が高いことがわかる。また40keVが回折強度が一番低いことが明らかとなった。電解浴中のCsのK吸収端が約36keVであるので、40keVではCsによる吸収の影響により、回折強度が低下したと考えられる。50および60keVでは、Csによる吸収の影響は少なくなるが、入射X線強度が低下するため、30keVの場合が最高強度になったと考えられる。またピーク幅も30keVの場合が一番狭く、角度分解能が高く回折ピークの微小なシフトを捉えることができると思われる。したがって、熔融塩電解でのその場XRD測定には、30keVのX線を使用することが好ましいことが明らかとなった。

本研究の一部は文部科学省の「革新的原子力システム技術開発公募」における受託事業として実施したものである。

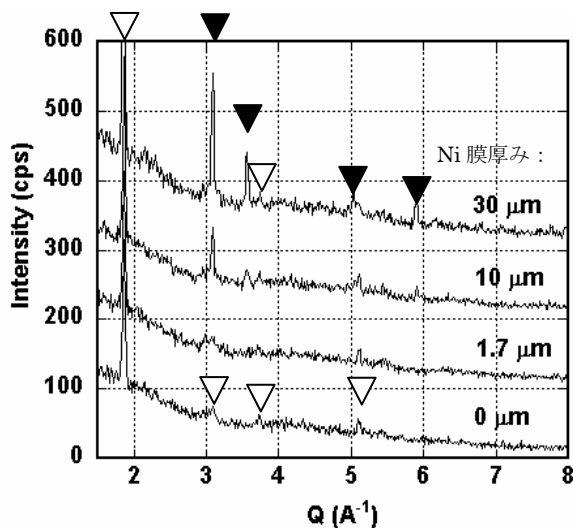


図1 ニッケル電析による黒鉛電極のXRDパターン変化 (X線エネルギー: 30keV)  
 ▼ : Ni 金属      ▽ : 黒鉛

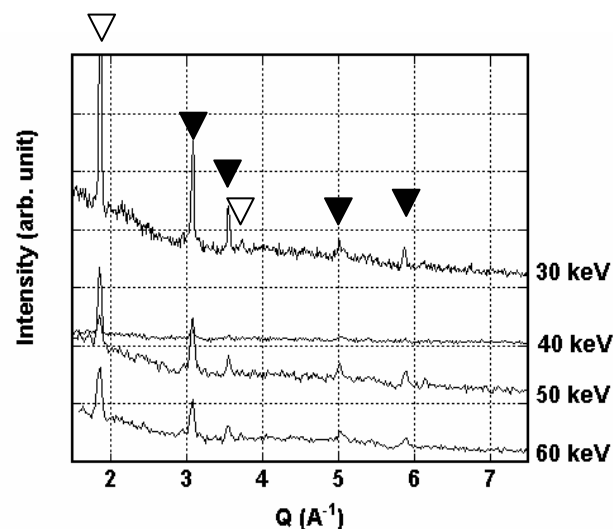


図2 入射X線エネルギーによるニッケル析出黒鉛電極(Ni膜厚み: 30 $\mu\text{m}$ )のXRDパターン変化