

ウラン(VI)選択性環状尿素沈殿剤の耐熱性

Thermostability of Cyclic Urea Derivatives for Selective Precipitation of Uranium(VI)

*西村 圭右¹, 鈴木 智也^{2#}, 野上 雅伸¹, 池田 泰久²

¹近畿大院総理工, ²東京工業大先端原子力研, [#]現:産総研

硝酸酸性水溶液系でのウラン(VI)選択性候補沈殿剤である環状尿素化合物 1,3-dimethyl-3,4,5,6-tetrahydro-2(1H)-pyrimidinone(DMPU)及び tetrahydro-2-pyrimidinone(PU)の耐熱性について検討した。

キーワード: ウラン, 再処理, 沈殿, 尿素, 耐熱性

1. 緒言 DMPU 及び PU (図 1) は硝酸水溶液中でプルトニウム(IV)を水溶液中に残したままウラン(VI)を選択的に沈殿させることが見出されており[1,2]、使用済み核燃料の再処理に用いられる PUREX 法に代わる、沈殿法による新たな再処理法における沈殿剤として利用できる可能性がある。本研究では、再処理実運転付近、及びそれより高温での両候補沈殿剤の安定性について検討した。

2. 実験 0.5mol/l (=M) DMPU 及び PU を含む 1~8M の硝酸水溶液をそれぞれ調製し、DMPU は 50, 90°C、PU は 90°C で 360 分加熱した。加熱中、所定時間毎に試料をサンプリングし、溶液の ¹H NMR を測定した。各時間における試料中のピーク面積比から各試料の残存率の経時変化を算出した。

3. 結果 ¹H NMR スペクトルの図 1 (a) のピーク面積比から算出した DMPU と PU の耐熱性をそれぞれ図 2, 3 に示す。DMPU の残存率は、50°C で全ての硝酸濃度で 360 分後もほぼ 100% を維持した。また、90°C での加熱においても 1M 硝酸ではほぼ 100% であった。一方、2M 硝酸では 360 分後に約 20% の減少が見られた。PU においては、1~6M 硝酸で 360 分後の残存率がほぼ 100% を示したが、8M 硝酸では 300 分で約 20% の減少が見られた。以上より、PU の耐熱性は DMPU より優れていると考えられる。

なお、DMPU では 4M 硝酸において 90°C への昇温中約 85°C で、また PU では 8M 硝酸において 90°C、330 分で激しく NO_x ガスが発生し、DMPU 及び PU の全てのピークが消失したため、残存率を算出することはできなかった。このように、両沈殿剤には分解が突発的に生じる閾値が存在し、この抑制の観点から、DMPU は硝酸濃度 4M かつ 50°C 以下、PU は硝酸濃度 6 かつ 90°C 以下での使用が望ましいことが示唆された。

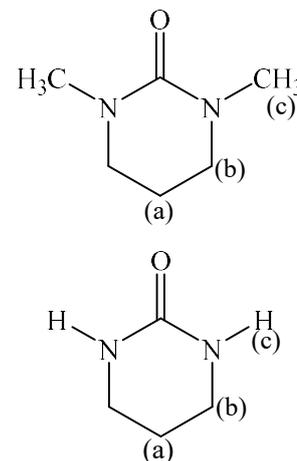


図 1: DMPU (上) 及び PU (下) の化学構造

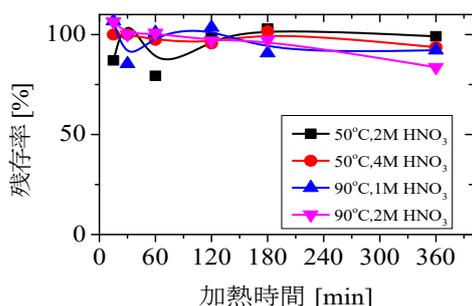


図 2: 加熱による DMPU 残存率の経時変化

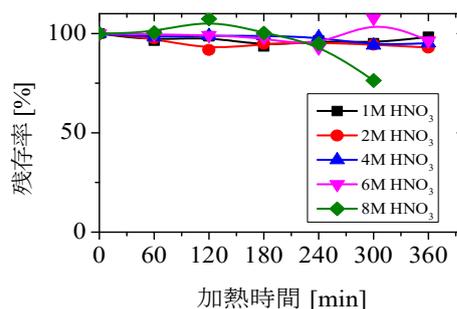


図 3: 90°C での加熱による PU 残存率の経時変化

参考文献

[1] T.Suzuki, et al., J.Nucl.Sci.Technol., **51**(2014)514-520

[2] T.Suzuki, et al., Polyhedron, **96**(2015)102-106

*Keisuke Nishimura¹, Tomoya Suzuki^{2#}, Masanobu Nogami¹, and Yasuhisa Ikeda²

¹Graduate School of Science and Engineering Research, Kindai University, ²Laboratory for Advanced Nuclear Energy, Tokyo Institute of Technology, [#]Present Affiliation: National Institute of Advanced Industrial Science and Technology