

ウラン選択性沈殿剤を用いたトリウム燃料簡易再処理技術基盤研究

(3) 4価金属イオンに対する架橋ピロリドン誘導体の沈殿能評価

Fundamental Study on Simple Reprocessing Method for Spent Thorium Fuels by Using Uranium Selective Precipitant

(3) Precipitation Behavior of Tetravalent Metal Ions upon Contact with Double-Headed 2-Pyrrolidone Derivatives

*風間 裕行¹, 津島 悟^{2,3}, 池田 泰久¹, 鷹尾 康一郎¹

¹東工大先導原子力研, ²Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, ³東工大 WRHI

2-ピロリドン誘導体(NRP)は、U(VI)に選択的な沈殿能を示すため、使用済みトリウム燃料簡易再処理技術への応用が期待される。本研究では、効率的かつ選択的に U(VI)を沈殿分離するために開発を進めている架橋 NRP の Zr⁴⁺, Ce⁴⁺, Th⁴⁺, U⁴⁺に対する沈殿挙動を検討した。

キーワード: 再処理, ウラン, トリウム, 沈殿

1. 緒言 次世代原子力システムにおいてトリウム燃料サイクルは有望な選択肢の一つである。使用済みトリウム燃料再処理の主たる目的である U(VI)/Th(IV)相互分離を簡易に実現するため、近年我々は高効率かつ高選択な U(VI)沈殿剤として期待される架橋 NRP を開発している(図 1)。U(VI)の選択的な沈殿分離の達成には Th(IV)をはじめとする 4 価金属イオンの挙動を理解することも重要である。本研究では、Zr⁴⁺, Ce⁴⁺, Th⁴⁺, U⁴⁺に対する架橋 NRP の沈殿能を系統的に評価した。

2. 実験 0.1 M の 4 価金属イオン(Zr⁴⁺, Ce⁴⁺, Th⁴⁺, U⁴⁺)を含む 3 M 硝酸水溶液に等モル量の架橋 NRP を加え、沈殿試験を行った。上澄み液に含まれる金属イオン濃度を ICP-AES を用いて定量した。沈殿物に対して、赤外吸収分光, 単結晶 X 線構造解析, 元素分析を用いて同定した。

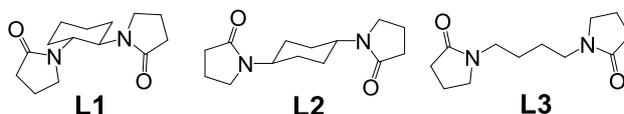


図 1. 架橋 NRP の構造式。

3. 結果と考察 沈殿試験結果を表 1 に示す。L1 は、Ce⁴⁺, Th⁴⁺, U⁴⁺に対して沈殿能を示し、結晶性の H₂[M(NO₃)₆]・2L1 (M=Ce, Th, U)を与えた。沈殿率は配位数 12 の場合の M⁴⁺のイオン半径の序列^[1]と相関が見られる。一方、L1 が Zr⁴⁺に対して沈殿能を示さないことは、Zr⁴⁺のイオン半径がより小さいために配位数 12 を要する[M(NO₃)₆]²⁻錯イオンの形成が困難になるためと考えられる。L2 は Th⁴⁺, U⁴⁺に対して L1 と同様の沈殿挙動を示す一方で、Ce⁴⁺に対してはより高い沈殿率を示した。これは L2 が Ce⁴⁺に配位した [Ce₂O(NO₃)₆(L2)₂]_n の形成に起因する。L3 は Ce⁴⁺に対してのみ沈殿能を示し、沈殿物の IR 測定より L3 の Ce⁴⁺への配位が示唆された。以上より、架橋 NRP の分子構造及び中心金属のイオン半径が 4 価金属イオンの錯体構造並びに沈殿挙動に影響を与えることを明らかにした。

表 1. M⁴⁺沈殿率(%)および M⁴⁺のイオン半径 R_i (Å, 配位数 12)^[1]

M ⁴⁺	L1	L2	L3	R _i
Zr ⁴⁺	n.d.	n.d.	n.d.	n.a.
Ce ⁴⁺	48.4	87.6	35.0	1.14
U ⁴⁺	43.3	41.4	n.d.	1.17
Th ⁴⁺	42.2	40.5	n.d.	1.21

参考文献 [1] R. D. Shannon, *Acta Cryst.*, **1976**, *A32*, 751-767.

*本研究は、文科省委託事業「ウラン選択性沈殿剤を用いたトリウム燃料簡易再処理技術基盤研究」の成果です。

¹Hiroyuki Kazama¹, Satoru Tsushima^{2,3} Yasuhisa Ikeda¹ and Koichiro Takao¹

¹LANE, Tokyo Tech., ²HZDR., ³WRHI, Tokyo Tech.