

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
(4) 架橋ピロリドン沈殿剤を用いたウラン(VI)-トリウム(IV)相互分離[†]

Fundamental Study on Simple Reprocessing Method for Spent Thorium Fuels by Using Uranium-Selective Precipitant (4) Mutual Separation of U(VI) and Th(IV) by Using DHNRPs

*鷹尾 康一朗, 風間 裕行, 津島 悟, 池田 泰久
東工大先導原子力研

ウラン選択性沈殿剤としての分子設計に基づいて開発された架橋ピロリドン誘導体を用いてウラン(VI)-トリウム(IV)相互分離を試みたところ、沈殿剤分子構造によって(1)ウラン(VI)選択的沈殿回収、(2)トリウム(IV)選択的沈殿回収、(3)ウラン(VI)-トリウム(IV)一括沈殿回収が可能であることが判明した。

キーワード：再処理, ウラン(VI), トリウム(IV), 錯体, 配位高分子, 沈殿

1. 緒言 使用済み核燃料の再処理および核燃料サイクルの実現は、今後ますます増加する世界のエネルギー需要を満たす上で非常に重要である。ウラン資源の獲得競争や可採年数に対する懸念から、現行のウランサイクルに代わるオプションのひとつとしてトリウムサイクルがある。トリウム燃料再処理の主目的は²³²Th と ²³³U の相互分離および回収であり、結晶工学および錯体化学的観点からウラン選択性沈殿剤として我々が開発した架橋ピロリドン誘導体(架橋 NRP)の適用性を検討している。本発表では、硝酸水溶液系における架橋 NRP 沈殿剤を用いたウラン(VI)-トリウム(IV)相互分離を最終目標として実施した各種沈殿試験の結果を報告する。

2. 実験 図 1 に示す 4 種の架橋 NRP (L1~L4)を用いて 3 M 硝酸水溶液中における U(VI)単独系(初期濃度：0.13 M)および Th(IV)単独系(初期濃度：0.11 M)に対する沈殿試験を実施した。各溶液に対し、U もしくは Th とのモル比が 1:1 となるように架橋 NRP 沈殿剤を加えて激しく攪拌した後、上澄み液の分析より各沈殿率を求めた。U(VI)-Th(IV)混合系(初期条件：[U(VI)] = 0.25 M, [Th(IV)] = 1.0 M)についても同様の手順に従って沈殿試験を行った。

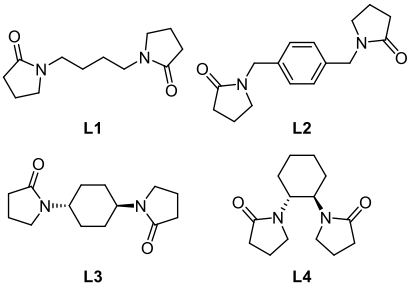


図 1. 本研究で使用した架橋 NRP 沈殿剤の構造式.

3. 結果と考察 各沈殿試験結果を表 1 にまとめる。U(VI)単独系において、いずれの沈殿剤についても 90%以上の高い U(VI)沈殿効率を得られた。一方、Th(IV)単独系においては、L1, L2 を用いた系では Th(IV)の沈殿生成が認められなかったのに対し、L3, L4 の系では 40%程度の Th(IV)沈殿生成が見られた。従って、L1, L2 を用いることにより U(VI)-Th(IV)相互分離の達成が期待される。実際、U(VI)-Th(IV)混合系に各沈殿剤を添加したところ、L1 を用いた系で U(VI)の高効率かつ選択的な沈殿生成を確認した(DF = 141)。L2 の場合には 5%程度の Th(IV)が沈殿するものの、依然として U(VI)に対する選択性(DF = 44)は保持されている。Th(IV)に対する沈殿能を示す L3 の系でも U(VI)の選択的沈殿(DF = 93)が確認されており、この選択性は U(VI)沈殿の方が Th(IV)沈殿よりも熱力学的に安定であることに起因すると考えられる。一方、L4 の系では U(VI)の沈殿生成は認められず、Th(IV)沈殿の生成が支配的であった。以上の知見は沈殿剤分子構造を適切に制御することによって U(VI)もしくは Th(IV)の選択的沈殿回収や U(VI)-Th(IV)一括沈殿回収の可能性を示すものであり、当初目標であった U(VI)-Th(IV)相互分離だけでなく一括回収も含めた多様な再処理シナリオの構築を可能とする。

表 1 架橋 NRP 沈殿剤を用いた 3 M 硝酸水溶液系における U(VI)-Th(IV)沈殿試験結果

架橋 NRP 沈殿剤	U(VI)単独系	Th(IV)単独系	U(VI)-Th(IV)混合系		
			U(VI)	Th(IV)	除染係数(DF)
L1	94.1%	沈殿せず	> 99%	3%	141
L2	99.9%	沈殿せず	59%	5%	44
L3	99.6%	40.5%	61%	3%	93
L4	91.8%	42.2%	沈殿せず	14%	—

[†]本研究は文科省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として東工大が実施した「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。

*Koichiro Takao, Hiroyuki Kazama, Satoru Tsushima, Yasuhisa Ikeda
LANE, TokyoTech