

ウランの光化学的反応性を活用した炭酸系簡易再処理技術基盤研究

(1) 炭酸系水溶液からのウラン回収原理の構築および実証

Fundamental Study on Carbonate-based Simple Reprocessing Utilizing Photochemical Reactivity of UO_2^{2+}

(1) Principle and Demonstration of Photochemical Recovery of Uranium from Carbonate Solution

内田昇吾,¹ 津島 悟,^{1,2} *鷹尾 康一郎¹

¹東工大ゼロカーボン研,²HZDR

炭酸系再処理技術基盤構築のため、炭酸ウラニル(VI)錯体の光還元を利用したウランの簡易回収を試みた。その結果、ヒドラジン共存下での光還元によって UO_2 として効率的に回収できることを見出した。溶液条件や照射光波長に対する依存性、および使用済み燃料溶解工程で酸化剤として用いられる過酸化水素の影響について検討を行った。

キーワード：炭酸系再処理, 炭酸ウラニル(VI), 二酸化ウラン(IV), 光還元

1. 緒言 中性から塩基性を示す炭酸塩水溶液中では UO_2^{2+} , Pu^{4+} はそれぞれ炭酸錯体を形成することにより可溶であるのに対し、多くの重金属イオンは加水分解もしくは炭酸塩形成のために難溶もしくは不溶である。従って、使用済み核燃料を炭酸塩水溶液に溶解するだけで核燃料物質の粗精製が達成される。このような化学的性質の差異を分離の基本原理とする炭酸系再処理は、PUREX 法などの従来型再処理技術とは逆の「不純物除去」を基本コンセプトとしており、酸も有機溶媒も必要としないユニークな手法である。一方、炭酸塩を多量に含む使用済み核燃料溶解液からの U, Pu 回収については、イエローケーキ生成や溶媒抽出など既存技術の範疇にとどまっており、未だ検討の余地が多分に残されている。本研究では、 UO_2^{2+} の光化学的反応性を活用した炭酸塩水溶液からの U 回収原理の構築および実証を目的とする。

2. 実験 0.50 M Na_2CO_3 もしくは NaHCO_3 , 40 mM $\text{Na}_4[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]$ および還元剤である 1.4 M ヒドラジン 1 水和物($\text{N}_2\text{H}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$)を溶解した水溶液に対してスポット型 LED 光源(EFICET 8332C)を用いて光照射を行い、一定時間ごとに上澄み液を採取して溶液中の残留 U 濃度を ICP-AES (iCAP7200Duo)により求めた。また、固体として得られた回収物については、ろ別・水洗後に粉末 XRD (D2PHASER)により同定した。

3. 結果と考察 365, 385, 405 nm の光を 40 mM $\text{Na}_4[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]$ と 1.4 M $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ を含む 0.50 M NaHCO_3 水溶液に照射したところ、いずれの波長においても黒色 UO_2 粉末の析出を確認した。各波長における U 回収率を図 1 に示す。可視光である 405 nm の光を照射した場合の U 回収が最も効果的であった。また、使用済み核燃料の溶解時に酸化剤として用いられる H_2O_2 (1.0 M)を試料溶液に加えると、405 nm の光を 30 分間照射しても UO_2 の析出は見られなかった。これは酸化力を持つ H_2O_2 が UO_2^{2+} の光還元を妨害したためであると考えられる。一方、試料溶液に粒状活性炭を加えて H_2O_2 を分解した後に光照射を行ったところ、回収速度は低下するものの、黒色 UO_2 粉末の析出を確認した。

本研究は、中部電力原子力安全技術研究所公募研究(一般)採択課題「ウランの光化学的反応性を活用した炭酸系簡易再処理技術基盤研究」の成果を含みます。

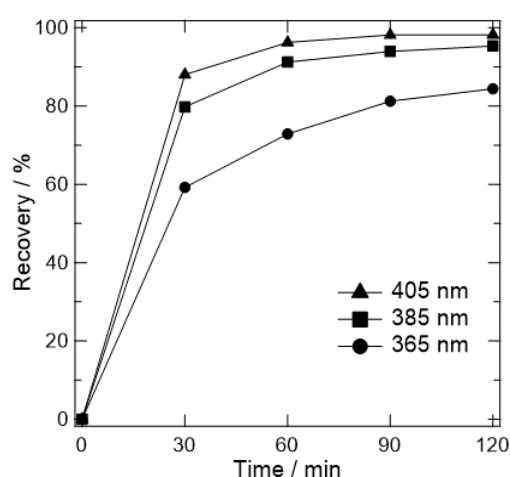


図 1. 異なる波長の照射光を用いた場合の 1.4 M $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ を含む 0.50 M NaHCO_3 水溶液からの U 回収率の時間変化。

Shogo Uchida,¹ Satoru Tsushima,^{1,2} *Koichiro Takao¹

¹Laboratory for Zero-Carbon Energy, TokyoTech, ²Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf