

核燃料物質選択的沈殿法再処理における回収ウランのイエローケーキ化と 架橋ピロリドン沈殿剤のリサイクル

Recycling Double-headed 2-pyrrolidone Derivatives through Conversion of
Recovered Uranyl Nitrate Deposits to Yellowcake in NUMAP Reprocessing

*小野遼真¹, 鷹尾康一郎¹

¹東工大ゼロカーボン研

次世代再処理技術のひとつである核燃料物質選択的沈殿法で用いられる架橋 2-ピロリドン沈殿剤(L)のリサイクル性を検討するため、L を含む硝酸ウラニル配位高分子のイエローケーキ化を試みた。その結果、アンモニアの添加によって期待通りのイエローケーキ生成および 90%以上の収率での L 回収に成功した。

キーワード：使用済み核燃料再処理、沈殿剤リサイクル、イエローケーキ、硝酸ウラニル錯体

1. 緒言

架橋 2-ピロリドン誘導体(L)と UO_2^{2+} は硝酸水溶液中で難溶性硝酸ウラニル配位高分子、 $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ を形成し得る。これを基本原理として、我々は核燃料物質選択的沈殿法を提案してきた[1]。回収した $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ の焼成によりウラン酸化物を得られるものの、再処理プロセスという観点からは沈殿剤である L のリサイクルがより望ましい。そこで、本研究では $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ をイエローケーキへ転換することにより L の分離回収を試みた。

2. 実験

本研究では *p*-キシリレン骨格で架橋された L (図 1) を用いた。 UO_2^{2+} と L を 3 M 硝酸水溶液中で混合することにより $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ を合成し、PXRD および IR によって同定した。得られた $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ を 28%アンモニア水溶液で 3 回処理した後、さらにエタノールで 3 回洗浄した。得られた黄色粉末を乾燥した後、PXRD および TG/DTA によって分析した。また、エタノール洗浄液の乾燥により得られた析出物を重水に溶解し、 ^1H NMR スペクトルを測定した。

3. 結果および考察

合成した $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ およびアンモニア処理とエタノール洗浄によって得られた黄色粉末の PXRD パターンを図 2 に示す。前者について、以前報告した結晶構造[2]との比較より、 $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ が得られたことを確認した。一方、後者の黄色粉末においては $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ の回折パターンが完全に消失し、12°および 27°付近にブロードな回折ピークが見られた。これはイエローケーキの一種である $2\text{UO}_3 \cdot \text{NH}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ に帰属できる[3]。TG/DTA および ^1H NMR スペクトルより、本検討におけるウランおよび L の回収率はそれぞれ > 95% および > 90% であった。以上の結果より、アンモニア処理およびエタノール洗浄によって $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ のイエローケーキへの転換および L の分離回収が可能であることを実証した。

参考文献：[1] Takao, K.; Ikeda, Y. *Eur. J. Inorg. Chem.* **2020**, 3443-3459. [2] Kazama, H.; Takao, K. *Chem. Lett.* **2020**, 49, 1201-1205. [3] Eloiardi, R. *et al*, *J. Mater. Sci.* **2014**, 49, 8436-8443.

*Ryoma Ono¹, Koichiro Takao¹

¹Laboratory for Zero-Carbon Energy, Tokyo Tech

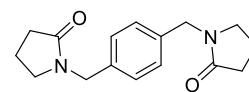


図 1 今回使用した架橋 2-ピロリドン誘導体(L)の構造式

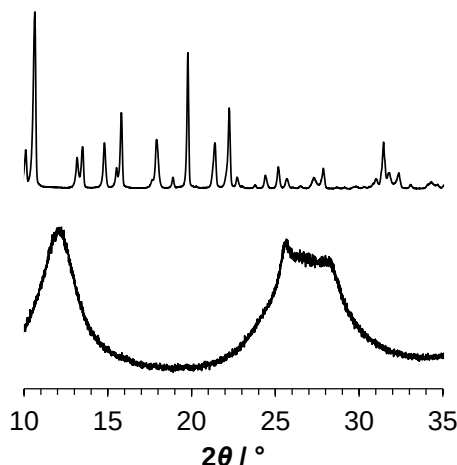


図 2 本研究で得られた $[\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2\text{L}]_n$ (上)およびイエローケーキ(下)の PXRD パターン