

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ウラン廃棄物からの選択的ウラン分離・回収技術に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	大橋裕介
Author(English)	Yusuke Ohashi
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:乙第4125号, 授与年月日:2016年3月31日, 学位の種別:論文博士, 審査員:池田 泰久,竹下 健二,小澤 正基,塚原 剛彦,鷹尾 康一郎
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:乙第4125号, Conferred date:2016/3/31, Degree Type:Thesis doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

(要 旨)

核燃料サイクルにおける各施設で発生するウラン廃棄物について、埋設処分可能な濃度までウラン含有量を低減するための合理的な技術の開発が求められている。本研究では、二次廃棄物の発生を可能な限り抑制し、かつ温和な条件で実施可能な安全性の高いウラン廃棄物の除染・ウラン回収法として、以下に示すように、2種類の方法を提案している。

(a)イオン液体を媒体として用いたウラン分離・回収技術

環境調和型溶媒（グリーンソルベント）として知られているイオン液体は低融点、不揮発性、高導電性、広電位窓といった性質を持ち、従来の熔融塩や乾式処理技術と比較して安全性が高く、ウラン廃棄物からウランを電解回収する媒体としての利用が期待できる。

そこで本研究では1-butyl-3-methylimidazolium chloride (BMICl)及び尿素-塩化コリン(UCC)共晶混合物を電解媒体として使用することにより、ウランを回収する技術の実現性について検討した。

具体的には、金属廃棄物及び使用済みNaFの除染とウラン回収を目的とし、これら廃棄物中のウラン化合物のBMIClへの溶解挙動及び電気化学的挙動を調べた。その結果、使用済みNaF中の70 %のウランが溶解したが、主成分のNaFはほとんど溶解しなかった。また、金属廃棄物はクリアランスレベルまでウラン濃度を低減できることが明らかとなった。また、これらのウラン廃棄物からBMIClに溶解したU(VI)化学種は、Cl⁻, F⁻が混合配位しており、一電子還元反応とそれに引き続く不均化反応によって、U(IV)及びU(VI)化合物を形成することを明らかにした。また、UCC共晶混合物への使用済みNaF、焼結アルミナ、珪藻土中のウラン化合物の溶解性について検討した結果、それぞれ92, 97, 82 %のウランが溶解することを見出した。UCC共晶混合物中のU(VI)種は、ウラニルイオンのエカトリアル位にCl⁻, F⁻, 尿素, 硫酸イオンが溶液組成に依存して様々な割合で配位していると考えられ、一電子還元反応とそれに続く不均化反応によって、電解回収可能であることを明らかにした。

(b)新規湿式ウラン回収技術

鉍酸による除染・ウラン回収処理については、スラッジのような比較的ウラン濃度が高い廃棄物を処理する場合、既存の吸着剤や溶媒抽出によってウランを回収する手法では、二次廃棄物やプロセスの複雑化が課題となる。

そこで本研究では従来の湿式処理をより発展させ、二次廃棄物を低減し、かつプロセスを簡素化する技術として、フッ素を多く含むスラッジ類（焼結アルミナ、使用済みNaF、活性アルミナ）を対象として、過酸化水素及びフッ素マスキング材を使用して、ウランを回収する方法について、過酸化ウラニル沈澱挙動を把握し、技術の適用性を検討した。

具体的には、フッ素のマスキング材として塩化アルミニウム水和物を添加した場合のフッ化カルシウム澱物及び含まれるウラン成分の塩酸への溶解性と、ウラン溶解液からの過酸化ウラニルの沈澱挙動について検討した。その結果、フッ化カルシウムに含まれるウランは、塩酸に99.9 %が溶解し、pH 3においてウランが99.9 %沈澱することを見出し、ウランを効率的に回収し得ることを明らかにした。