

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	沈殿法に基づく再処理法構築のためのU(VI)高選択沈殿剤の探索及びU(VI)選択性発現因子の解明に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	鈴木智也
Author(English)	Tomoya Suzuki
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:甲第9471号, 授与年月日:2014年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:池田 泰久,竹下 健二,小澤 正基,加藤 之貴,塚原 剛彦
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9471号, Conferred date:2014/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名		鈴木 智也	
論文審査 審査員		氏名		職名		氏名	職名
	主査	池田 泰久		教授	審査員	塚原 剛彦	准教授
	審査員	竹下 健二		教授			
		小澤 正基		教授			
加藤 之貴			准教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「沈殿法に基づく再処理法構築のための U(VI)高選択沈殿剤の探索及び U(VI)選択性発現因子の解明に関する研究」と題し、6章より構成されている。

第1章「序論」では、使用済み核燃料の再処理の重要性を述べるとともに、現行の Purex 再処理法の課題とその課題克服ために開発されている様々な新規再処理法について概説している。その中で、新規再処理法の一つである沈殿法に基づく再処理法の課題として、第1沈殿工程における U(VI)と Pu(IV)の共沈現象を挙げ、U(VI)に対する選択性の高い沈殿剤を見出すこと及び U(VI)と Pu(IV)に対する選択性発現因子の解明の重要性を述べ、本研究の目的と意義を示している。

第2章「U(VI)に対する沈殿能の比較と U(VI)沈殿能制御因子の検討」では、沈殿法再処理の第1沈殿工程における U(VI)と Pu(IV)による共沈の課題を解決するため、様々な化合物の U(VI)及び U(IV) (Pu(IV)の模擬物質) に対する沈殿能を検討し、環状尿素化合物である *N,N*-dimethylpropyleneurea (DMPU) を沈殿剤候補として見出すとともに、従来のピロリドン系化合物の沈殿能と比較することで、高融点の U(VI)沈殿物を形成する化合物が U(VI)に対し高い沈殿能を有し、また高疎水性の化合物が U(VI)及び U(IV)に対し高い沈殿能を有する可能性があることを見出している。

第3章「U(VI)高選択沈殿剤の探索」では、第2章の結果に基づき、U(VI)に対する高選択沈殿能を有すると期待される化合物として、DMPU の構造的特徴であるイミノ基と環状尿素構造を有する Ethyleneurea (EU)と Propyleneurea (PU)を選定し、これら化合物の U(VI)及び U(IV)に対する沈殿能について検討し、1~6 M の硝酸水溶液中の U(VI)をほぼ化学量論的に沈殿しうること、DMPU に比べ低疎水性かつ高融点の U(VI)沈殿物を形成すること、これら U(VI)沈殿物は DMPU と比べ低い溶解度を示すことを明らかにし、EU と PU が DMPU 以上の U(VI)選択沈殿能を有する化合物であることを確認している。また、低疎水性化合物である EU と PU は、U(IV)と錯形成するものの沈殿を生成しないこと、さらには U(VI)及び U(IV)共存系においても、U(VI)のみを選択的に沈殿しうることを確認している。これらの結果から、沈殿剤の疎水性と U(VI)沈殿物の融点が、U(VI)沈殿における重要な選択性発現因子であると提案している。

第4章「環状尿素系沈殿剤を配位子とする硝酸ウラニル錯体の結晶構造と融点の関係」では、高融点を有する硝酸ウラニル錯体の生成条件や $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{EU})_2$ 及び $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{PU})_2$ が高い融点を示す理由について調べるため、 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{EU})_2$ 、 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{PU})_2$ 、 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{DMPU})_2$ 、 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{MI})_2$ (1-methyl-2-imidazolidone) 等の単結晶 X 線構造解析を行い、これら錯体の結晶構造と融点の関係について考察し、 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{EU})_2$ 及び $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{PU})_2$ のように、1分子当たりの分子間水素結合の数が多く、かつ対称的な配位子を有する硝酸ウラニル錯体が、高い融点を示すことを見出している。

第5章「環状尿素系沈殿剤の核分裂生成物に関する除染性の検討」では、有望な沈殿剤候補として選定された EU, PU, DMPU の最適な沈殿処理条件を見出すため、U(VI)及び模擬核分裂生成物を含む硝酸水溶液を用い、除染係数 (DF) を求めている。その結果、EU, PU, DMPU 系は、Sr(II), Rh(III), ランタノイド(III)に関し、高い DF 値を達成しうること、Cs(I), Rb(I), Re(VII), Ru(III)に関しては、U(VI)沈殿物の焼成条件の制御により DF 値を高めることが可能であることを見出している。また、攪拌条件と DF の関係を検討し、EU と PU は攪拌条件を制御せずに U(VI)を選択的に沈殿し得ることを明らかにしている。これらの結果から、EU と PU が第1沈殿工程用の沈殿剤として有望な化合物であるとの結論を導き出している。

第6章「総括」では、各章において得られた結果を総括し、本論文の結論としている。

これを要するに、本論文は、硝酸水溶液中の U(VI)を高選択的に沈殿し得る化合物を見出すとともに、U(VI)沈殿生成における選択性発現因子を明らかにし、かつ候補沈殿剤による沈殿処理における除染性も評価し、沈殿法再処理の高度化に寄与するものであり、工学上及び工業上貢献するところが大きい。よって本論文は、博士 (工学) の学位論文として十分価値あるものと認められる。