

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),<br>学位授与機関:東京工業大学,<br>報告番号:甲第9471号,<br>授与年月日:2014年3月26日,<br>学位の種別:課程博士,<br>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),<br>Conferring organization: Tokyo Institute of Technology,<br>Report number:甲第9471号,<br>Conferred date:2014/3/26,<br>Degree Type:Course doctor,<br>Examiner:,,,, |
| 学位種別(和文)          | 博士論文  |
| Category(English) | Doctoral Thesis   |
| 種別(和文)            | 要約  |
| Type(English)     | Outline   |

エネルギー資源に乏しい日本において、原子力発電により発生する使用済み核燃料の再処理は、純国産のエネルギー資源の確保につながることから、その技術の確立が重要となってくる。現在、日本における使用済み核燃料再処理の商業施設では、リン酸トリブチルを用いた Purex 法が用いられているが、将来的な廃棄物の処理・処分やまた安全性を考えると、さらに優れた技術の確立が必要である。それ故、様々な新規再処理法が提案されている。その一つとして、沈殿法に基づく再処理法がある。本プロセスでは使用済み核燃料の溶解後、2つの沈殿工程により U と Pu の分離を行う。第 1 沈殿工程では使用済み核燃料に含まれる U のうち 70% を回収し、第 2 沈殿工程で残りの 30% の U と全量の Pu を回収する。このプロセスに用いる沈殿剤として、様々なピロリドン誘導体 (NRP) が検討されてきた。その結果、U(VI)を選択的に沈殿分離しうる第 1 沈殿工程用沈殿剤として *N*-butyl-2-pyrroldione (NBP) が選定されている。しかし、第 1 沈殿工程において NBP 添加直後に一部の Pu(IV)が U(VI)と共沈することが課題となっている。過去の研究から、低疎水性の沈殿剤を用いることで、Pu(IV)に対する沈殿能が低くなることがわかっているが、同時に U(VI)に対する沈殿能も低くなることから沈殿剤の疎水性以外の制御因子の解明が重要である。そこで本研究では、沈殿剤の疎水性以外の U(VI)に関する沈殿能制御因子を明らかにし、U(VI)に高い選択沈殿能を有する化合物について検討した。

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、NRP 以外の様々な化合物の U(VI)及び U(IV) (Pu(IV)の模擬物質) に対する沈殿能が検討された。その結果、環状尿素化合物である 1,3-dimethyl-3,4,5,6-tetrahydro-2(1H)-pyrimidone (DMPU) が、低疎水性にもかかわらず U(VI)に高い沈殿能を示し、且つ、U(IV)は沈殿させない U(VI)に選択性を有する化合物であることがわかった。この DMPU の選択性をより詳細に検討するため、さまざまな NRP の U(VI)や U(IV)に関する沈殿能の比較を行った。その結果、U(VI)の沈殿能は、高融点の U(VI)沈殿物を形成可能な化合物や疎水性の化合物を沈殿剤として用いることによって高くなることとがわかった。U(IV)に関しては Pu(IV)同様に沈殿剤の疎水性が高くなると沈殿能が高まることとがわかった。これらの結果より、低疎水性且つ高融点の U(VI)沈殿物を形成可能な化合物が U(VI)高選択沈殿剤になることが示唆された。そこで、そのような性質を示す化合物の検討を行った。過去の知見から 2-pyrrolidone (2P), DMPU, 1,3-dimethyl-2-imidazolidone (DMI) が比較的低い疎水性と高融点の U(VI)沈殿物を形成することがわかっている。それ故、2P と DMI, 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 2-imidazolidone (EU) 及び tetrahydro-2-pyrimidone (PU) の U(VI)及び U(IV)に対する沈殿能について検討した。その結果、EU 及び PU は、低疎水性で且つ高融点の U(VI)沈殿物を形成することがわかった。また、U(VI)に対する沈殿能の検討結果から、EU 及び PU は、U(VI)をほぼ化学量論的に沈殿し、U(IV)溶液への添加においては、U(IV)を含む沈殿を生成しなかった。U(VI)及び U(IV)共存系において、EU, PU, DMPU の U(VI)及び U(IV)に関する沈殿挙動を検討した結果、DMPU では、攪拌初期に U(IV)を含む共沈を生じたが、EU 及び PU では U(IV)の沈殿が起こらず、より選択的に U(VI)のみを沈殿させることが明らかになかった。これらの結果から、EU 及び PU は、U(VI)高選択沈殿剤であること、また、沈殿剤の疎水性や U(VI)沈殿物の融点が U(VI)及び U(IV)の沈殿能を制御しうる重要な因子であることを明らかにした。

EU, PU, DMPU は、U(VI)に比較的高い選択性を示したことから、模擬核分裂生成物 (模擬 FP) に対する除染性を評価し、NBP, *N*-cyclohexyl-2-pyrroldione (NCP) の除染性と比較した。その結果、EU, PU, DMPU 系は、NBP, NCP 系に比べ、Sr(II), Rh(III), ランタノイド(III) (Ln(III)) に関し、より高い除染性を示すことがわかった。これは、EU, PU, DMPU が NBP, NCP に比べ比較的疎水性であるためだと考えられる。さらに、攪拌条件の最適化を行うために、EU, PU, DMPU 系における DF 値の攪拌速度及び攪拌時間依存性を評価した。その結果、EU 及び PU 系の DF 値は、攪拌条件に依存せず、DMPU 系では攪拌速度の上昇に伴い DF 値が大きく向上することがわかった。これらの結果から、EU 及び PU は攪拌条件の制御なしに、DMPU では速い攪拌を行うことで

U(VI)を選択的に沈殿可能であると言える。

以上の結果より、EU 及び PU は、第 1 沈殿工程の沈殿剤として有用であると結論付けられる。