

新任教員紹介

エネルギー工学科・講師 浅沼徳子

略歴

- 1973.9 神奈川県生まれ
- 1996.3 東海大学工学部原子力工学科 卒業
- 1998.3 東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻 修士課程修了
- 2001.3 東京工業大学大学院理工学研究科原子核工学専攻 博士課程修了
- 2001.4 日本原子力研究所 博士研究員
- 2003.1 財団法人産業創造研究所 研究員
- 2005.4 東京工業大学 産学官連携研究員
- 2006.4 現職



担当科目

放射化学、放射化学特論、エネルギー工学実験 I・II (共担)、エネルギー工学入門 I (共担)

研究活動内容

炭酸塩水溶液中で行う核燃料再処理

原子力発電によりエネルギーを取り出した後の使用済核燃料には、核分裂生成物 (Fission Products: FP) の他に未燃焼のウラン (U) や核反応によって新たに生成したプルトニウム (Pu) が含まれている (図 1)。これらを再び燃料として使用するために行う処理のことを再処理という。核燃料再処理法として唯一商用化されている手法は、PUREX 法と呼ばれる溶媒抽出法である。この方法は、使用済核燃料を濃硝酸水溶液中で加熱溶解し、抽出剤のリン酸トリブチルを *n*-ドデカンで希釈したものを用いて、溶解液から U(VI)と Pu(IV)を抽出回収するものである。U と Pu を回収する観点において PUREX 法は優れた方法であるが、濃硝酸を加熱するという過酷な条件で燃料溶解を行うこと、可燃性の有機溶媒を使用すること等、放射性物質を扱う上で避けるべき環境下で処理が行われる。これらの危険性を排除し、よりマイルドな条件で行う再処理法を考案した。考案プロセスを図 2 に示す。この方法は、燃料の溶解機構とウランの錯体化学に関する知見に基づいている。

核燃料には、原子炉内の環境に耐えるように安定な二酸化ウラン (UO₂) が使われている。過去の研究により、UO₂

が硝酸水溶液中に溶解する場合の溶解機構が、直接的な電子移動による酸化反応であることが明らかになった。このことは、UO₂ の溶解には酸ではなく酸化剤が必要であることを意味している。従って、PUREX 法で燃料の溶解に加熱した濃硝酸を用いるのはまさに硝酸の酸化力を高めているのであり、適切な酸化剤を用いれば濃硝酸を用いる必要はない。事実、Ce(IV)等の強力な酸化剤を添加すれば、よりマイルドな条件で UO₂ の溶解が可能であることが証明されている。

UO₂ が溶解すると水溶液中ではウラニルイオン (UO₂²⁺) として存在する。このウラニルイオンは弱アルカリ性水溶液中で炭酸イオンと安定な炭酸ウラニル錯体 (UO₂(CO₃)₃⁴⁻) を形成することが知られている。一方、このような水溶液中では、FP を構成する大部分の金属イオンは、水酸化物や炭酸塩を生成して沈殿する。従って、炭酸塩水溶液中で燃料の溶解を行うことができれば、UO₂ が溶解すると同時に FP を沈殿として分離することが可能になる。しかし、アルカリ性水溶液中で効果的な酸化剤を入手することは難しい。一方、UO₂ は酸化物のため絶縁体であるが、その不定比性 (UO_{2+x}) により半導

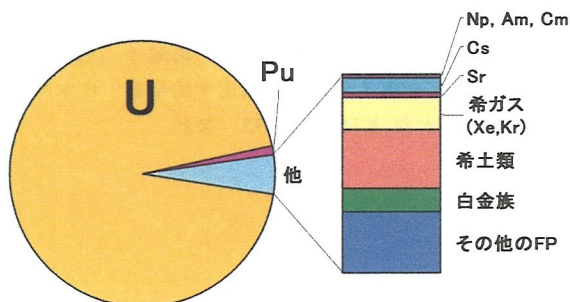


図 1 使用済核燃料組成

ORIGEN 計算コードより、PWR 燃料, 4.5%濃縮, 45000MWd/t, 4年冷却

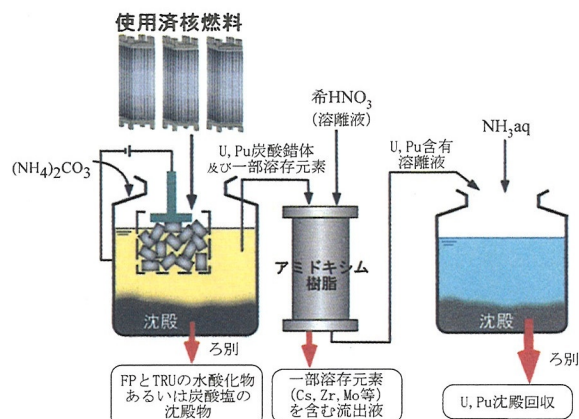


図 2 炭酸塩水溶液を媒体とする再処理プロセス

体的な性質を持つことが知られている。また、FPのような不純物を含む UO_2 の場合、その導電性はさらに向上する。このことを利用し、 UO_2 を電極として炭酸アンモニウムもしくは炭酸ナトリウム水溶液中で陽極溶解することを試みた。その結果、 UO_2 は炭酸ウラニル錯体として溶解することが明らかになった。また、FP 模擬元素を含有する模擬使用済燃料ペレットを同様に陽極溶解したところ、 UO_2 の溶解と同時に模擬 FP 金属イオンが沈殿することも確認した。炭酸塩水溶液中で可溶性であるアルカリ金属イオン (Cs^+) 等、一部の金属イオンは溶解液中に残存する。これらを分離するため、考案プロセスでは、海水からのウラン回収のために開発されたアミドキシム樹脂を利用して吸着精製処理を行う。そして、希硝酸溶離液にアンモニア水を添加し、ウランを沈殿回収して燃料へとリサイクルする。

考案プロセスの各工程について、ウラニルイオンと各種金属イオン (FP) の挙動を追跡し、プロセスの成立性について検討を行っている。

[参考論文]

N. Asanuma, et al., "Anodic dissolution of UO_2 in aqueous alkaline solutions", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **37**, 486(2000).

N. Asanuma, et al., "New approach to the nuclear fuel reprocessing in non-acidic aqueous solution", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **38**, 866(2001). など

イオン液体を用いた電解によるウラン回収処理

PUREX 法などの水溶液を用いる方法を湿式法と呼ぶのに対し、水溶液を用いない方法を乾式法と呼ぶ。乾式法は、経済性や核拡散抵抗性に優れていることから研究開発が進められている。一般に乾式法といえば、アルカリ金属塩化物の熔融塩を媒体とした熔融塩電解による再処理法のことを指す。しかし、アルカリ金属塩化物は融点が高いため、 $700^\circ C$ にもなる高温で処理を行う。また、使用する熔融塩が最終的に FP を含む放射性廃棄物となることなどが課題となっている。

ところで近年、イオン液体と呼ばれる新規媒体が注目されている。イオン液体はイオンから成る有機塩であるが、常温で液体であることから、常温熔融塩とも呼ばれる。また、イオン液体は、不揮発性及び難燃性であり、電気伝導性に優れる等の特長を有することから、揮発性有機溶媒に代わるグリーンソルベントとして各方面での応用が期待されている。また、図3に示すように、陽イオンと陰イオンの組み合わせにより多種多様なイオン液体をデザインすることが可能である。

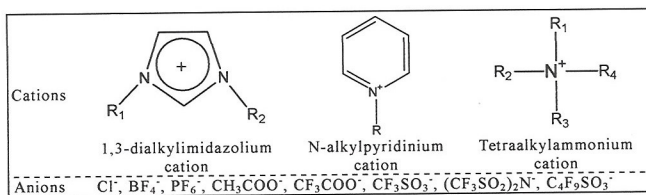


図3 イオン液体を形成する代表的な陽イオンと陰イオン

以上のような特長を有するイオン液体を乾式再処理の媒体として利用できれば、常温での処理が可能となり安全性に優れた方法を構築できる。また、イオン液体は一般的に難燃性であるが、有機物であるためその多くが $300^\circ C$ 程度の温度で分解する。従って、最終的に焼却処理が可能であり、廃棄物発生量を低減できる可能性がある。

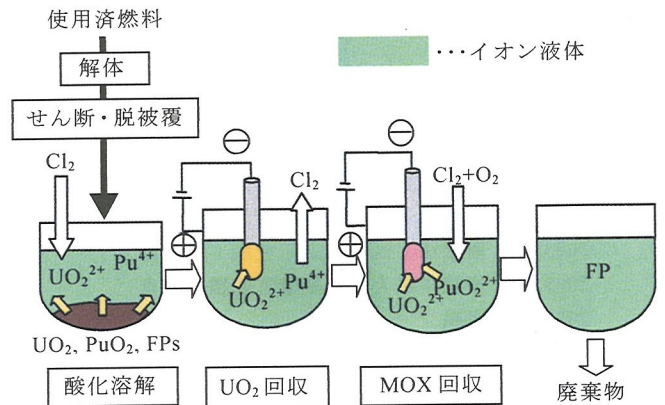


図4 イオン液体を用いた電解による再処理プロセス

イオン液体を乾式再処理法の媒体に適用した場合のプロセスを図4に示す。このプロセスの成立性を評価するため、陽イオンが 1-Butyl-3-methylimidazolium ion (BMI^+) で、陰イオンが $Cl^-, BF_4^-, C_4F_9SO_3^-$ の組み合わせの各イオン液体を用いて、燃料溶解やウラニルイオンの電気化学的挙動について検討を行ってきた。これまでに、イオン液体に塩素を導入することでウラン酸化物 (UO_2 や U_3O_8) が溶解することを確認している。また、イオン液体に塩化ウラニルを溶解したところ、イオン液体の種類によりその溶存化学形態が異なり、電気化学的挙動も様々であることが明らかになった。特に、陰イオンに $C_4F_9SO_3^-$ を用いた場合、電解還元によりウラン化合物が電極に析出することが分かっている。

現在、塩化コリンと尿素の共融混合物をイオン液体の代替化合物とし、再処理媒体への適応性について検討すると共に、ウラン廃棄物処理へのイオン液体の適応性についても検討している。特に、ウラン濃縮処理において発生するフッ化ウランにより汚染した廃棄物からのウラン回収のためにイオン液体を利用する方法について検討を行っている。

[参考資料]

池田ら, "乾式再処理プロセスへのイオン性液体の適応性検討 (1) 塩素吹き込みによる酸化燃料の溶解, (2) ウラニルイオンの電気化学的挙動", 日本原子力学会 2005 年秋の大会, J39 及び J40.

池田ら, "乾式再処理プロセスへのイオン性液体の適応性検討 (3) ウラン酸化物と模擬 FP 金属イオンの溶解性, (4) ウラニルイオンと模擬 FP 金属イオンの電気化学的挙動" 日本原子力学会 2006 年秋の大会, K74 及び K75 など