

Title	含水酸化チタンによる海水中ウランの採取に関する基礎的研究
Author(s)	山下, 壽生
Citation	
Issue Date	
Text Version	ETD
URL	http://hdl.handle.net/11094/1794
DOI	
rights	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/repo/ouka/all/>

氏名・(本籍)	山 下 壽 生
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	第 5076 号
学位授与の日付	昭和 55年 9 月 26日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
学位論文題目	含水酸化チタンによる海水中ウランの採取に関する基礎的研究
論文審査委員	(主査) 教授 井本 正介 (副査) 教授 田村 英雄 教授 塩川 二郎

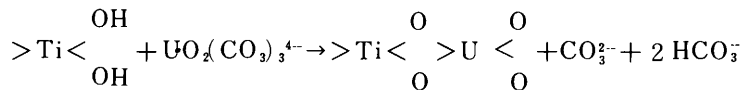
論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、含水酸化チタンによる海水中ウランの吸着及び脱着に関する基礎的研究として、吸着剤の物性とウラン吸着との関係、ウラン吸着機構、ウラン吸着に及ぼす共存イオンの影響ならびに効果的にウランを脱着させるための条件を明らかにしようとしたもので、本文6章より成っている。

第1章は緒論で、海水からウランを採取する意義を述べるとともに、その採取法については含水酸化チタンを吸着剤とする吸着法が最も実現の可能性の高いことを示し、またこの基本プロセスの説明を行っている。

第2章では含水酸化チタンの物性とウラン吸着との関係について調べた結果を述べている。含水酸化チタンは四塩化チタン溶液にアンモニア水を添加して調整しているが、調整温度の上昇(20℃→90℃)とともに無定形からアナタース形への結晶化が進み、比表面積が減少し細孔半径が大きくなるのが見られ、これが調整温度の高いものほど吸着量の大きい理由であるとしている。

第3章では含水酸化チタンによる海水中ウランの吸着機構について論じている。まず、海水と同じpHの水溶液中では安定なウラン化学種は $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ であることを平衡計算から求めるとともに、ウラン吸着量についても種々のウラニル錯体の中で $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ が最も吸着能が低いことを示している。次に $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ の吸着について温度の影響を調べ、吸着量が温度の上昇とともに増加すること、吸着熱は 7.8kcal/mol であることを見出している。さらに、吸着剤中には $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ に相当する量の炭酸イオンが検出されないことから、含水酸化チタンによる $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ の吸着機構を次のように推定している。



第4章ではウラン吸着に及ぼす共存イオンの影響について述べている。すなわち、模擬海水と実際の海水とについてウランの吸着等温線を求めて比較したところ、海水での吸着量は模擬海水の約1/10であることが分り、この原因を調べるために、NaCl-NaHCO₃溶液に種々のイオンを海水と同じ濃度で添加し、ウラン吸着量を測定している。その結果、Ca²⁺、Mg²⁺、F⁻がウラン吸着を妨害すること、なかでも主原因は、Ca²⁺が吸着剤上で炭酸カルシウムとなって析出し、吸着剤表面を覆ってしまうためであろうと推定している。

第5章は含水酸化チタンに吸着したウランの脱着について検討したものである。脱着剤としては、炭酸アンモニウム、炭酸ナトリウムなどの炭酸塩、塩酸、リン酸などの無機酸、酢酸、蔞酸などの有機酸を選んで比較し、その結果、炭酸アンモニウムとリン酸とが高いウラン脱着率を示すことを見出し、さらにリン酸に比べ、炭酸アンモニウムの方が高いウラン濃度の脱着液が得られること、ウランに対する選択的な脱着率が高いため脱着液中の不純物が少ないとの知見を得ている。

第6章は本研究で得られた結論をまとめたものである。

論文の審査結果の要旨

本論文は含水酸化チタンによる海水中ウランの採取に関して、含水酸化チタンの調整、炭酸ウラニルイオンの吸着機構、その吸着に及ぼす共存イオンの影響からさらに脱着剤の選定に至るまで、系統的に基礎的研究を行った結果をまとめたものである。

先ず、含水酸化チタンによるウランの吸着を調べ、これがFreundlich型吸着等温線を示すことを明らかにし、吸着量を支配するものは吸着剤の平均細孔半径であることを見出している。次に海水中のウランの主な化学種である炭酸ウラニルイオンの吸着について化学平衡と反応速度との両面から解析を行い、炭酸ウラニルの吸着は化学吸着であることを示し、一つの吸着機構を提案している。また多種類の水溶液について行った吸着実験から、炭酸ウラニル吸着は共存するカルシウムイオンによって強く妨害されることを導いている。最後に、含水酸化チタンに吸着したウランの脱着に関する広汎な実験を行い、炭酸アンモニウムが最も性能のよい脱着剤であることを確認している。以上のように本論文は、ウラン資源として最近特に関心を呼んでいる海水中ウランの採取に関し、含水酸化チタンのウラン吸着機構について多くを明らかにしたもので、試験化への確実な踏石を提供したものと見えよう。原子力工学ならびに原子力工業に貢献するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。