

低濃度ウラン溶液からのウラン 採取システムの技術開発

—高性能ウラン吸着剤利用システムに関する調査研究—

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1988年8月

海洋科学技術センター

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術管理部 技術情報室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to : Technical Information Service, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation
9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1987.

低濃度ウラン溶液からのウラン採集システムの技術開発

中川賢一郎*, 掘田 平*, 宮崎武晃*
鷺尾幸久*, 石井進一*

要 旨

昭和62年度に低濃度ウラン溶液からウランを回収するシステムの概念設計を行い、これに基づき経済性の検討を実施した。その結果、吸着剤の性能、特に吸着速度が経済性に及ぼす影響が大きく、それが向上すれば、本システムは実現可能であることが判った。

そこで、本年度は高性能の新型吸着剤の開発に主眼を置くこととし、その一環として、吸着剤の性能を評価するため低濃度ウラン溶液として海水を使用した大流量の定流量試験装置（カラム試験機）を開発製作した。さらに、これを用いてまず、動燃事業団殿より支給された8種類の試作吸着剤について各々10日間にわたり吸着試験を行って吸着ウラン量の分析を行い、性能を評価した。

その間、試験機は正常に作動した。また、試験に供した吸着剤の中からの非常に有望なものが出現した。

本報告書は、海洋科学技術センターが動力炉・核燃料開発事業団の依頼により実施した研究の成果である。

契約番号：

事業団担当者：

*：海洋科学技術センター

Research and Development of the System for
Extracting Uranium from Low Content Solution.

Kenichiro Nakagawa*

Hitoshi Hotta*

Yukihsa Washio*

Takeaki Miyazaki*

Shinichi Ishii*

Abstract

In Previous year, concept design of the system for extracting uranium from low content solution was done and recovering cost was estimated. In this study it was found that capability, especially the adsorption rate of adsorbent is the key element for the successful development of this system. With a new fast-adsorbing adsorbent, uranium recovery will be economically feasible.

In order to assist the chemicals company that develops the new adsorbent, a constant flow adsorbing test machine was developed and constructed. It is capable of large flow rate, using sea water as a low uranium content solution.

Adsorbing tests were done for 10 days on each of 8 kinds of new sample adsorbent and adsorbed uranium were analysed for the initial evaluation.

For whole series of tests, the test machine worked satisfactorily and some of the adsorbent that underwent the test showed very promising results.

Work performed by Japan Marine Science and Technology Center under Contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

PNC Liaison :

* : Marine Research and Development Department

目 次

1. 試験装置	1
2. 吸着剤	2
3. 試験方法	
3.1 吸着剤の充填	2
3.2 海水流量	3
3.3 吸着ウラン量の分析	3
4. 試験結果	4
5. 結論および今後の課題	5

図・表 目次

表 題	Page
表-1 ウラン吸着量	4
図-1 Diagram of Adsorbing Test Machine	6
図-2 Adsorbing Cell	7
図-3 Change of Flow Rate	9
図-4 Record of Water Flow Adjustment	10~15
写-1 Adsorbing Test Machine	8
写-2 Hose Arrangement and Gravity Tank	8
写-3 Water Storage Tank	8
写-4 Submersible Pump	8

まえがき

低濃度ウラン溶液からウランを回収するシステムを開発する上で、ウラン吸着剤の性能はその成否を左右し、中心となる重要な要素である。

従って、まず流量が既知である定流量試験装置によって、実験室レベルでその性能を確認しつつ改良を行い、その後に最良の吸着剤に最も適したシステムを開発することとした。

吸着剤の性能には、吸着容量、溶離に対する安定性、摩擦に耐える物理的強度等もあるが、ウラン回収の経済性に最も影響するのは、吸着速度である。

そこで、定流量試験機を製作し、8種類の試作吸着剤を選抜するため、まず各々につき10日間の吸着試験を実施した。

1. 試験装置

本装置は海から海水を汲み上げてカラム内に詰めた吸着剤に一定の流速で通して、ウランを吸着させて吸着剤の吸着速度を評価するカラム試験機である。

全体の系統図及び各構成機器の仕様を図-1, 2及び写真1~4に示す。

この装置の特徴は以下の通りである。

1. 大流量 (2ℓ/min×3 カラム) であり、実海域における空間速度 (10,000 H⁻¹ 程度) が再現できる。
2. カラムへは重力により海水を流しており、安定した流速が得られる。
3. ウラン以外の金属イオンが増加しないよう、各機器・配管・弁等は可能な限り非金属のものが使っている。
4. 吸着剤カラム部は泡の付着を監視するため透明アクリル製であるが、他の配管、弁等はすべて不透明とし、かつ各部はすべて分解掃除可能とし、生物付着による影響を最小限に抑えた。

本装置の主要目は下記の通りである。

カラム数 : 3本

吸着セル

内 径 : 35mm φ

高 さ : 40mm (全高)

2/10mm (吸着剤充填部)

流 量 : 各 2ℓ/min. (最大)

流 速 : 各 3.5 cm/sec (最大)

管内径 : 12mm φ (最小)

2. 吸着剤

試験は動燃事業団殿ご支給の下記8種の吸着剤について実施した。

No.	タイプ	性状
1	レバクストレル OC 1023	粒状
2	〃 OC 1026	〃
3	アミドキシム繊維	マット状
4	RMBP-1	粒状
5	〃 -2	〃
6	〃 -3	〃
7	ホスホン酸型 MPB -48	〃
8	〃 〃 -54	〃

3. 試験方法

3.1 吸着剤の充填

OC 1023 及び OC 1026は各々 9CC (層高9.4mm)、マット状吸着剤は35mm径を2層、その他の吸着剤は粒径が小さく流通抵抗が大きいと思われたので各々 6CC (層高6.3mm)メスシリンダーで測り、充填した。

その上下には吸着剤が流失しないようサランネットを挿入した。繊維状吸着剤は12メッシュのものを使用したが、その他の吸着剤については、予め各々の吸着剤を種々の目合のネット上に乗せて、上から通水して流失しない範囲でなるべく目の粗いものを選定した。その結果 OC 1023及び OC 1026は60メッシュ、その他の吸着剤は80メッシュのネットを使用した。

3.2 海水流量

一般に海水流速を上げて行くと、ウラン吸着量は増加するが、高速になるほど頭打ちの傾向が現われ、増加量は減少する。

そこで、吸着剤が持つ最高の性能を計測するため、従来にない空間速度10,000 H^{-1} 程度の高速で通水した。

ところで本装置においては、管及びホース内における気泡の蓄積及び吸着剤とネットへの生物の付着により、海水流速が時間と共に低下した(図-3)。その対策として、毎日少なくとも3回、流量を流量計で確認し、流量調整弁を全開して気泡を除去するとともに、必要な場合は吸着剤、ネットの洗浄を行った。

その際、各カラムとも次回の流量チェック時までには流速が低下しても所定の流量が流れるよう、試験速度より高く流量を再調整した。

3.3 吸着ウラン量の分析

分析は(株)群馬環境技研に委託しICPにより行ったが、その前処理の手順を付-3~6に示す。各手順の目的は以下の通りである。

方法①(HCl溶離法)は三井東圧(株)殿の指定に従って溶離を行い、その溶離液中のウラン量を分析するものである。

方法②、③は吸着剤の洗浄時の重量を求めるため、エタノールで洗浄し、乾燥した後に重量を計測しエタノール洗浄液および吸着剤それぞれを溶離して溶離液中のウラン量を分析するものである。

方法④(灰化法)は溶離後も吸着剤に残存するウランをも含む全ウラン量を求めるため樹脂を灰化した後に溶離を行い、ウランを分析するものである。

今回の一連の試験では0C1023と0C1026は上記すべての手順で、繊維状吸着剤は手順①、その他の吸着剤はすべて①および④で分析を行った。

4. 試験結果

本報告書に付録として添付した群馬環境技研(株)の分析結果報告書に示されている吸着ウラン量を試験状態とともにまとめて表-1に示す。

表-1. ウラン吸着量

試験期間	吸着剤	吸着剤量 (CC)	通水量 (l/min)	前処理 (付-3~6 参照)	U吸着量 ($\mu\text{g/g}$)
6/8	1. OC1023	9	1.5	①, ②, ③, ④	< 5
}	2. OC1026	9	1.5	①, ②, ③, ④	< 5
	6/26 3. 繊維状	3.5mm ϕ 2層	1.5	①	5.3
6/27	4. RMBP-1	6	1.0	①, ④	< 5
}	5. RMBP-2	6	1.0	①, ④	< 5
	7/9 6. RMBP-3	6	1.0	①, ④	< 5
7/11	7. MPB-54	6	1.0	①, ④	< 5
}	8. MPB-48	6	1.0	①, ④	35
	7/22				29

〔註〕通水時間はすべて 240時間である。

試験時の流量調整の記録を図-4~6に示す。これには流量調整前および調整後の流量を試験経過時間と共に各吸着剤について示してある。

図に見られるように海水流量は長時間の間に徐々に低下した。しかし平均的な流量は設定値である空間流速 $10,000\text{H}^{-1}$ を越える大流量であるので吸着性能への悪影響はないと思われる。従って予備的な実験を行なって吸着剤試作品を選抜するという今回の実験目的は達成された。

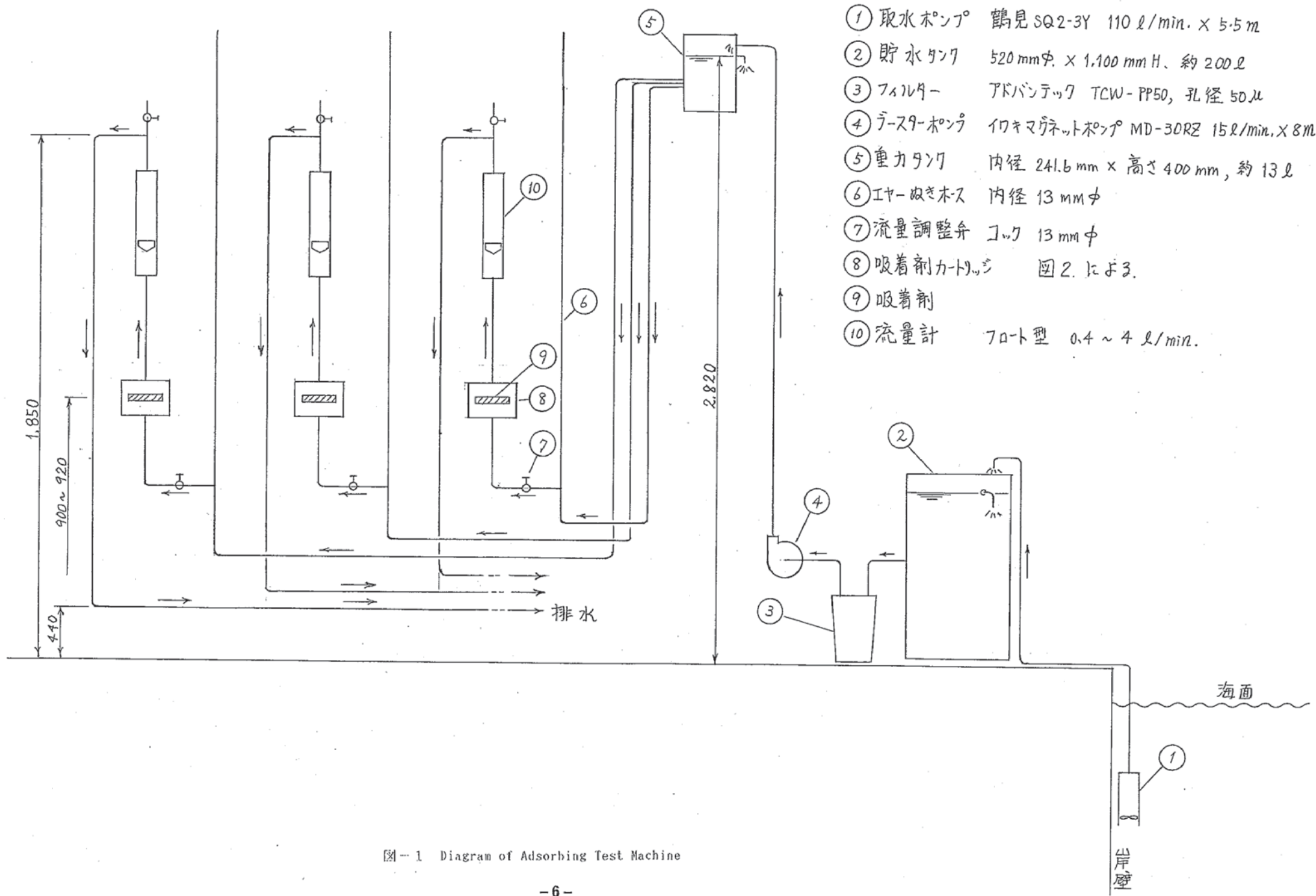
5. 結論および今後の課題

今回、吸着剤の性能を評価するため、実海水を用いた大流量ウラン吸着試験機（カラム試験機）を製作し、8種類の試作吸着剤について各々10日間吸着試験を行い吸着ウラン量の分析を行なった。

その結果、ホスホン酸型吸着剤 MPB-48 においてかなりの改善が見られた。

今後の課題としては吸着剤の性能の一層の改良、特に吸着速度の向上が望まれる。一方、試験機について今後、より高性能の吸着剤を使用した詳細な性能比較試験に備えて、精度良く長期間にわたって海水の流量を制御することが出来るよう改良していく必要がある。

その手段としては高出力の定量ポンプ等による海水供給能力の向上および流量計測・弁調整の自動化による流量制御精度の向上などが考えられる。



- ① 取水ポンプ 鶴見SQ2-3Y 110 $l/min.$ \times 5.5 m
- ② 貯水タンク 520 mm ϕ \times 1,100 mm H. 約 200 l
- ③ フィルター アドバンテック TCW-PP50, 孔径 50 μ
- ④ ティーザーポンプ イワキマグネットポンプ MD-3DRZ 15 $l/min.$ \times 8 m
- ⑤ 重力タンク 内径 241.6 mm \times 高さ 400 mm, 約 13 l
- ⑥ エアークロス 内径 13 mm ϕ
- ⑦ 流量調整弁 コック 13 mm ϕ
- ⑧ 吸着剤カートリッジ 図 2. に よ る.
- ⑨ 吸着剤
- ⑩ 流量計 フロート型 0.4 ~ 4 $l/min.$

図-1 Diagram of Adsorbing Test Machine

単位 : mm

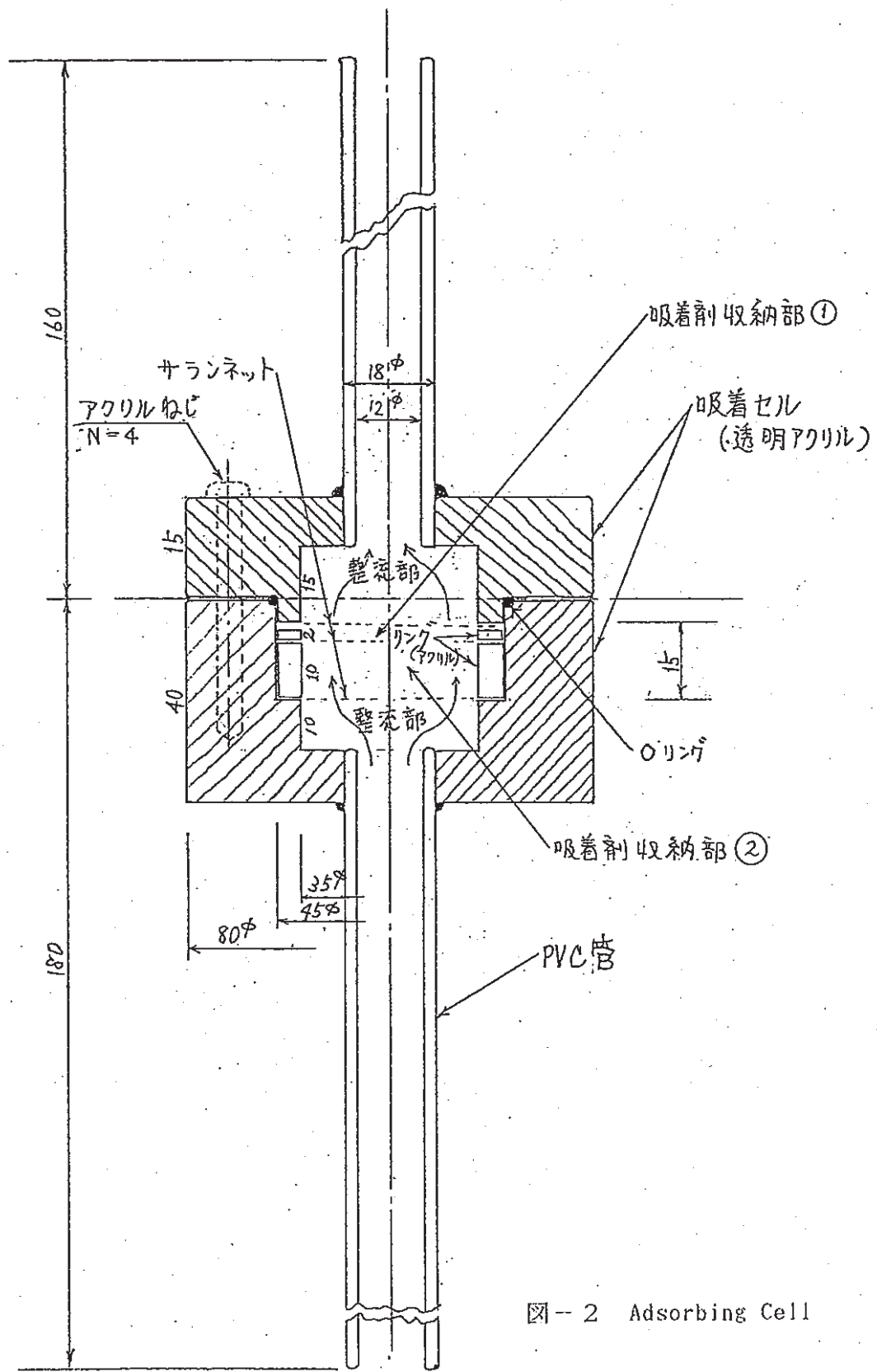
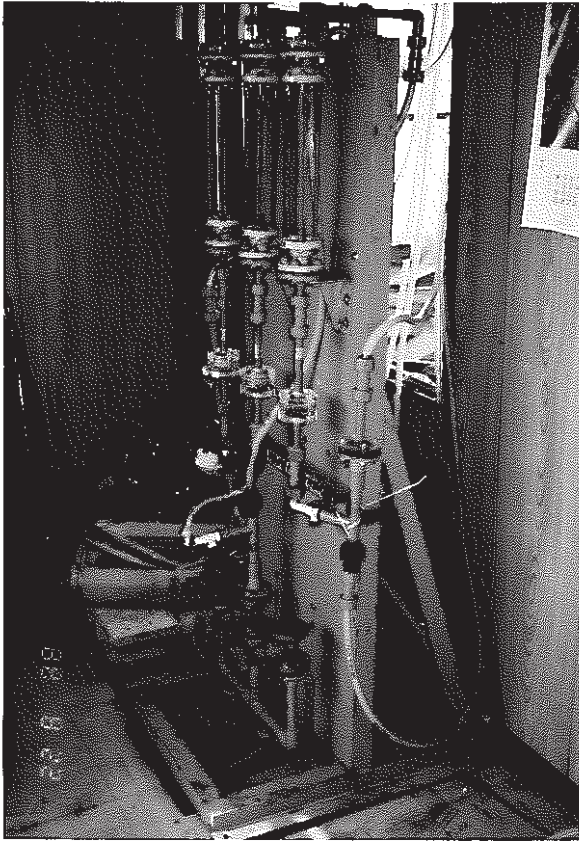


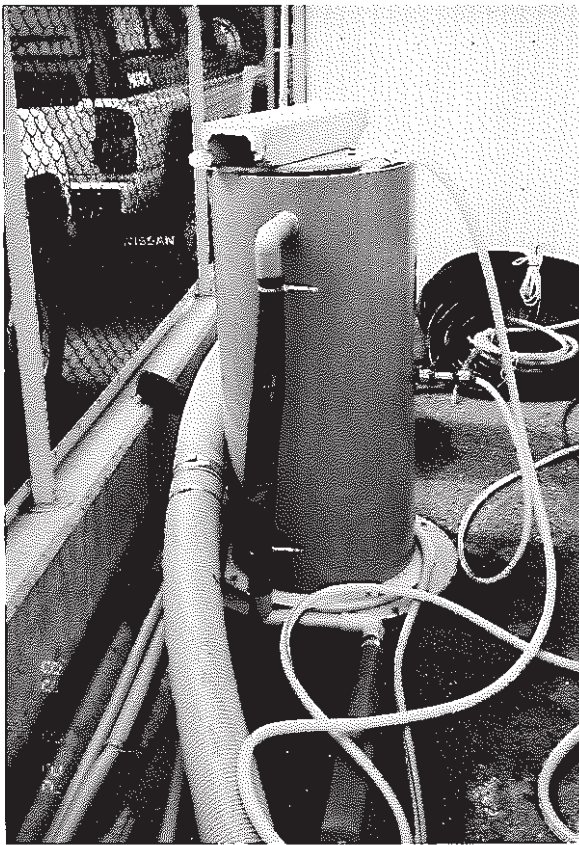
図-2 Adsorbing Cell



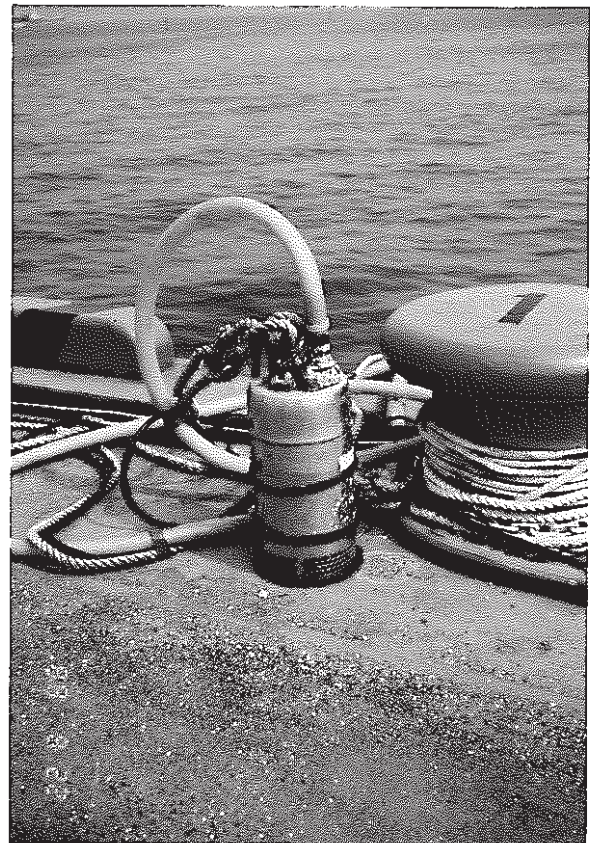
写 - 1 Adsorbing Test Machine



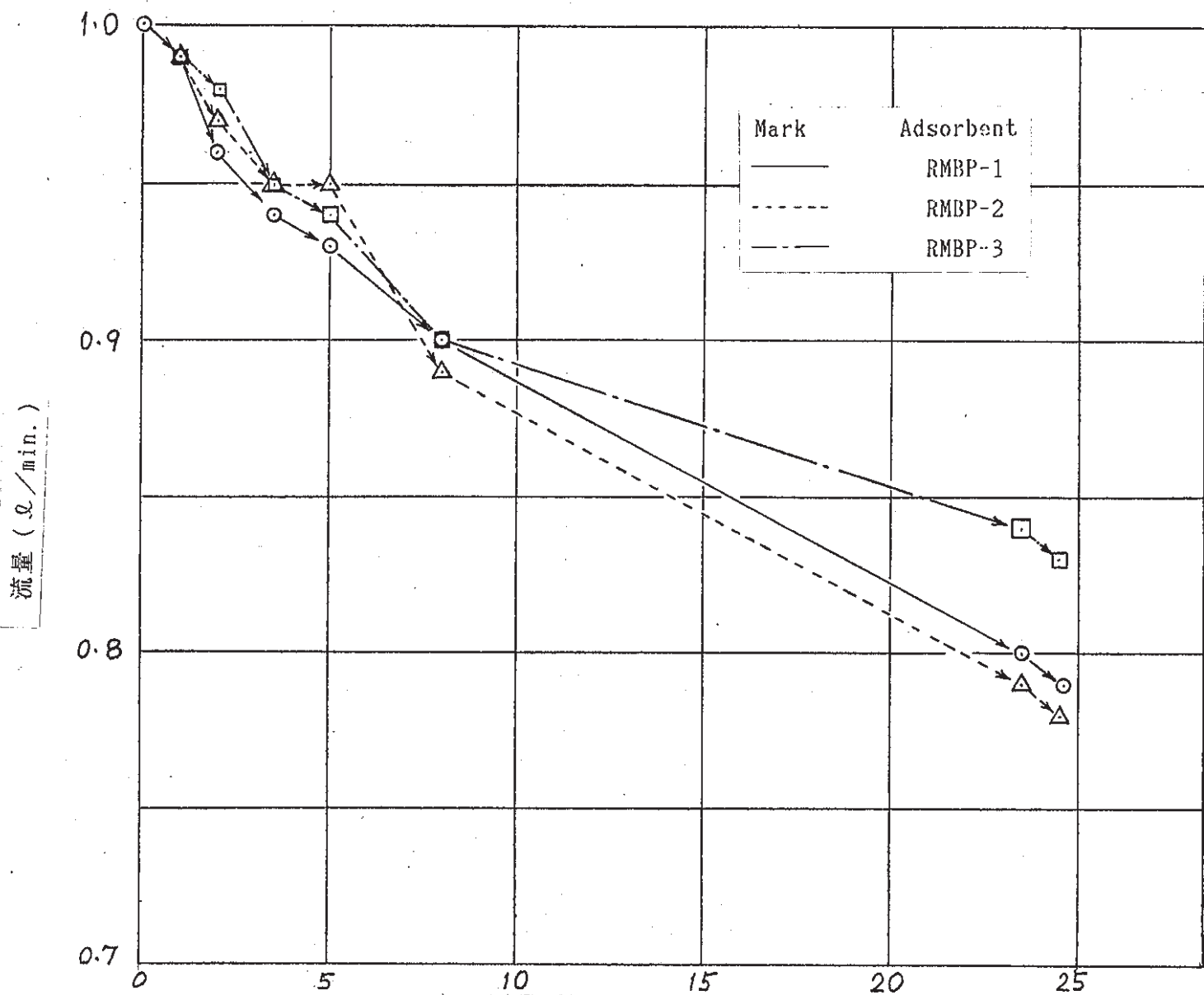
写 - 2 Hose Arrangement and Gravity Tank



写 - 3 Water Storage Tank



写 - 4 Submersible Pump



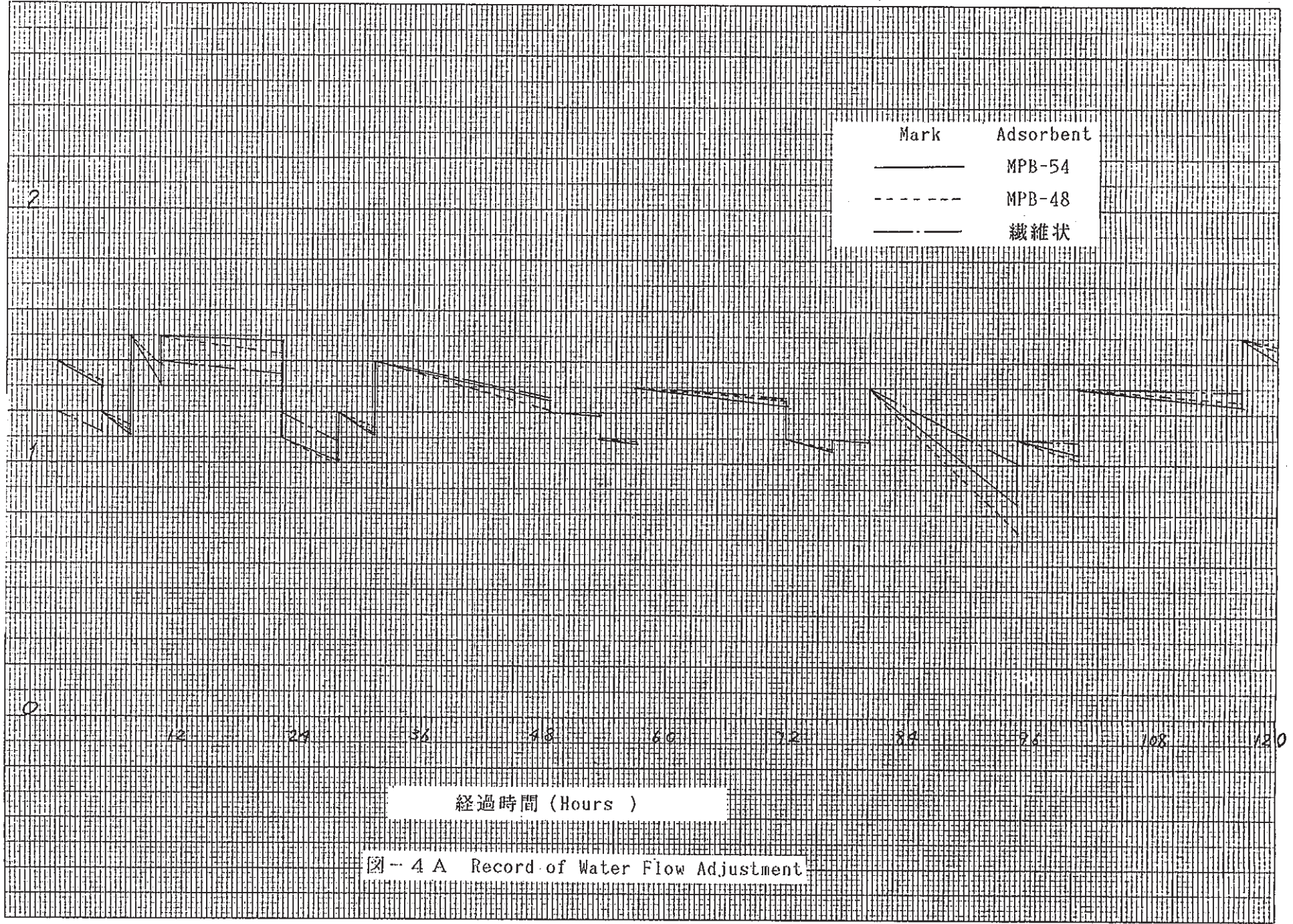
經過時間 (Hours)

圖-3 Change of Flow Rate

(min/ℓ) 流量

(SERIES) NO. 401 C

Mark	Adsorbent
————	MPB-54
-----	MPB-48
— · — ·	纖維状



經過時間 (Hours)

図-4 A Record of Water Flow Adjustment

Mark	Adsorbent
————	MPB-54
- - - - -	MPB-48
— · — · —	纖維状

2

(min/ℓ) 流量

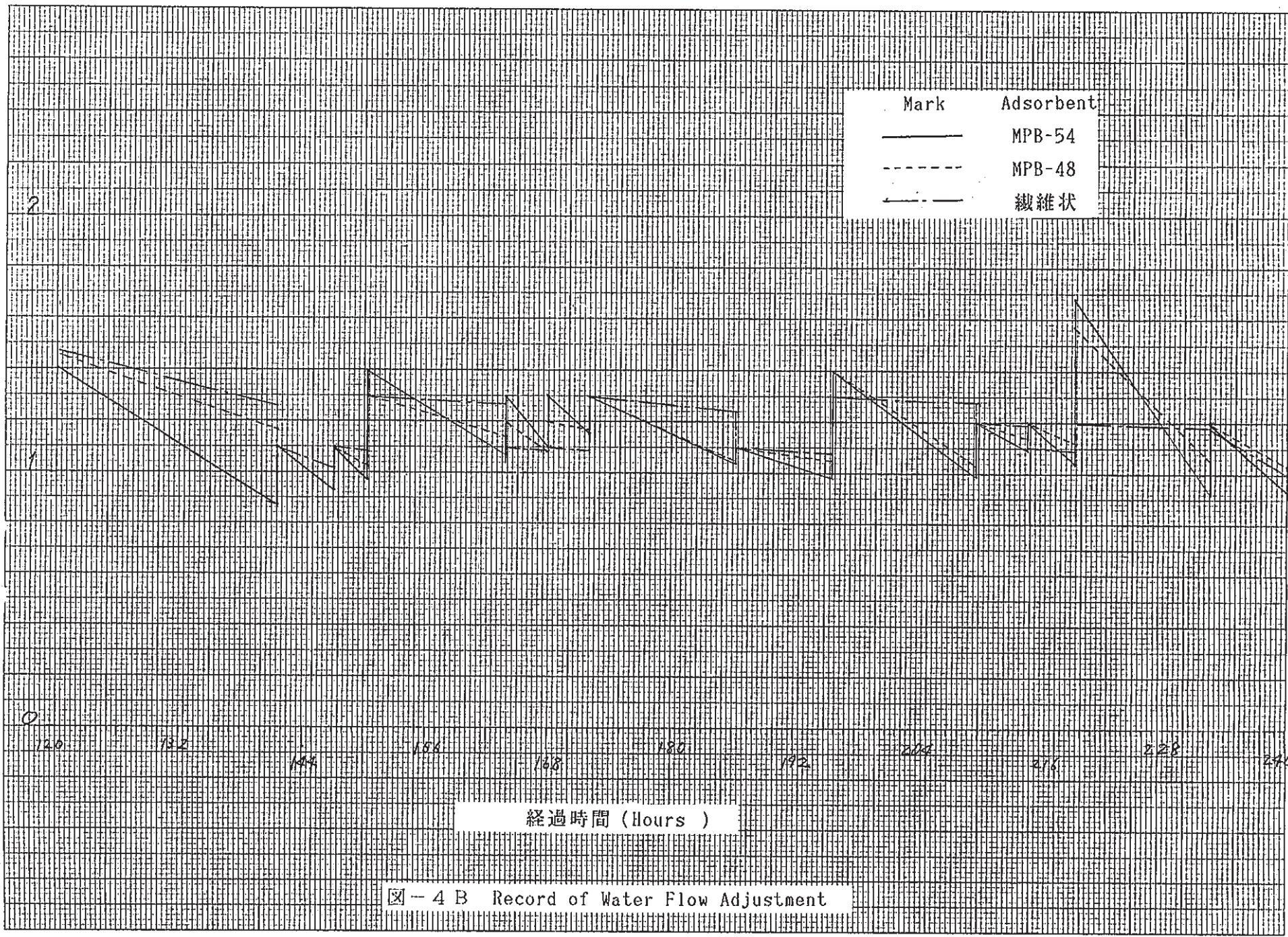
-11-

0

120 132 144 156 168 180 192 204 216 228 240

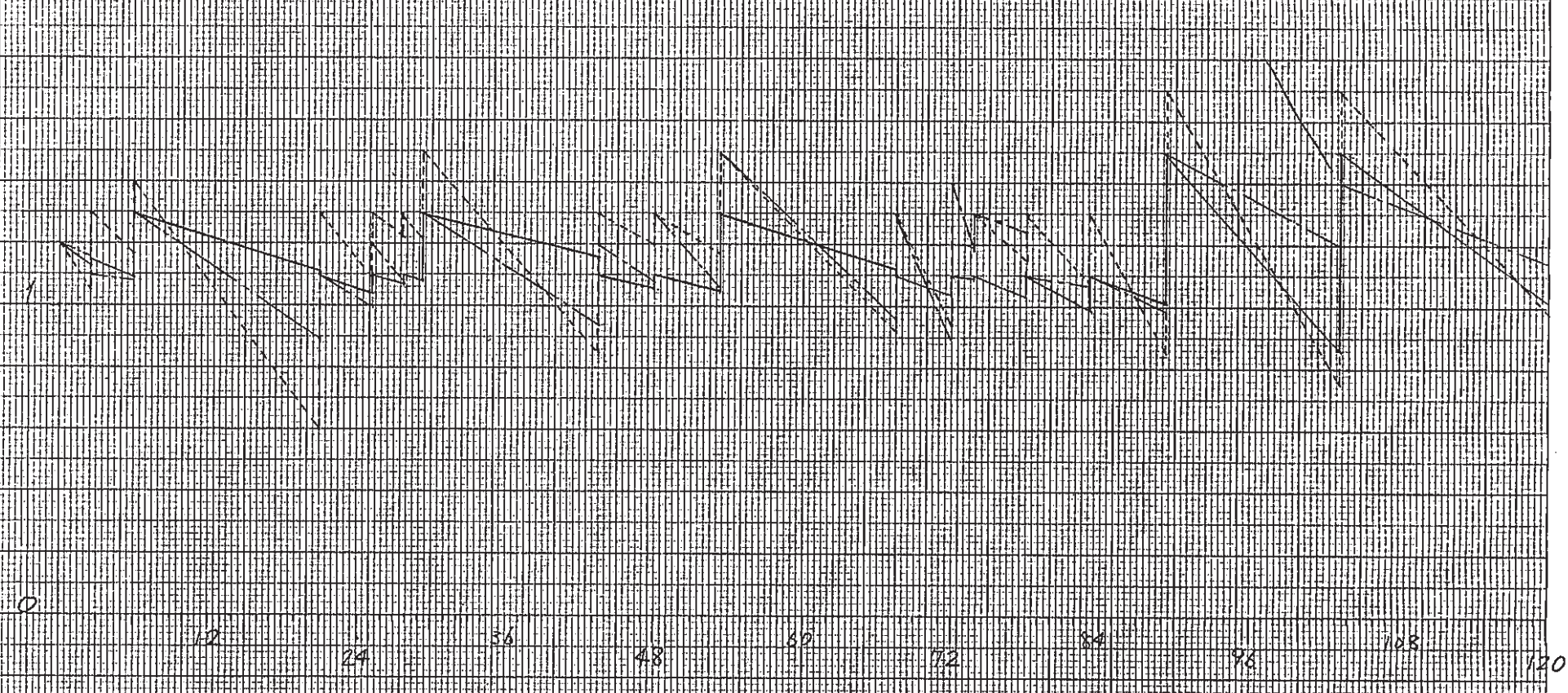
經過時間 (Hours)

図-4 B Record of Water Flow Adjustment



Mark	Adsorbent
————	RMBP-1
-----	RMBP-2
-----	RMBP-3

2

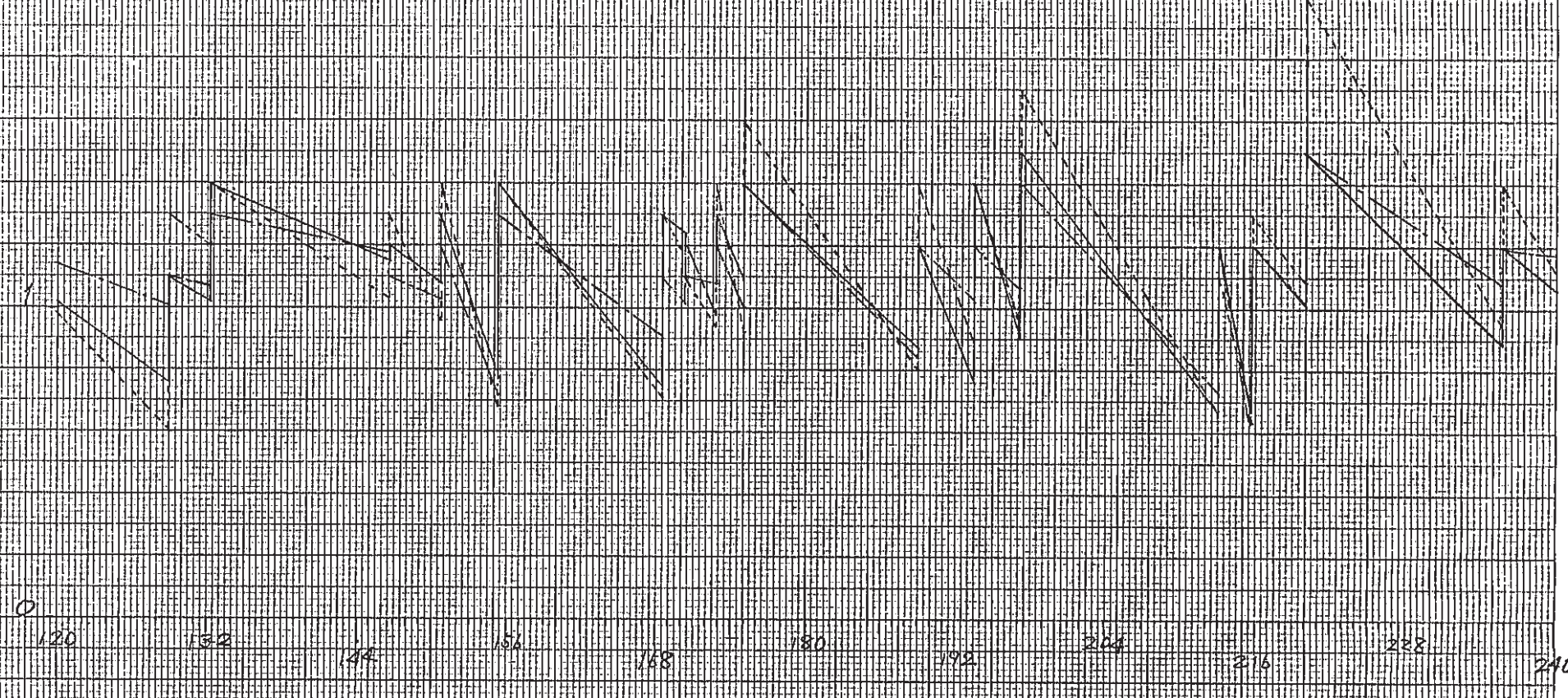


經過時間 (Hours)

圖-5 A Record of Water Flow Adjustment

Mark	Adsorbent
—	RMBP-1
- - -	RMBP-2
— · —	RMBP-3

2



經過時間 (Hours)

☒ - 5 B Record of Water Flow Adjustment

Mark	Adsorbent
—	OC1023
- - -	OC1026

2

(l / min) 流量

0

0 12 24 36 48 60 72 84 96 108 120

經過時間 (Hours)

圖 - 6 A Record of Water Flow Adjustment

Mark	Adsorbent
————	OC1023
-----	OC1026

(μm / g) 流量

-15-

2

0

120 132 144 156 168 180 192 204 216 228 240

經過時間 (Hours)

図-- 6 B Record of Water Flow Adjustment

測定結果報告書

御依頼先

海洋科学技術センター 殿

63 年 7 月 14 日

計量証明事業登録 環第5号・第15号
作業環境測定機関登録10-1
建築物飲料水水質検査業登録
群馬県 59 水 第1号

総合分析試験センター

株式会社 群馬環境技研

本社	群馬県高崎市上豊岡町560-4
〒370	TEL (0273) 43-2851(代)
	FAX (0273) 44-0424 番
リサーチセンター	新田郡新田町木崎字中通379-5
〒370-03	TEL (0276) 56-1277(代)
	FAX (0276) 56-1266 番
前橋出張所	前橋市表町1-7-1 2
〒371	TEL (0272) 24-9708 番

試 験 報 告 書

No 00222

昭和63年 7月14日

計量証明事業登録 環第15号 環第15号
 作業環境測定機関登録第10-1
 建築物飲料水水質検査業群馬県59承第1号

海洋科学技術センター 殿

株式会社 群馬環境技研

高崎市上豊岡町560-4
 電話 (0273)43-2851(代)

6月30日ご依頼いただきました試料の試験結果を下記の通りご報告申し上げます。

分析完了日 昭和63年 7月14日

品 名	試 料 分 析	件数 9件
試料採取年月日	63年 月 日	採取者及立会人 当社 先方 中川様依頼
サンプル名	前 処 理	ウラン分析値(μg/g)
OC 1023	①	5 μg/g 以下
"	②	5 μg/g 以下
"	③	5 μg/g 以下
"	④	5 μg/g 以下
OC 1026	①	5 μg/g 以下
"	②	5 μg/g 以下
"	③	5 μg/g 以下
"	④	5 μg/g 以下
繊維状樹脂	①	5.3 μg/g
以下 余 白		
試験方法： 前処理後、ICP分析法による。		
担当者	大 木	

前 処 理

① HCl 溶離

サンプル

↓ ← 1N HCl 20mℓ

時々攪拌しながら
2時間以上放置 (8時間位行っている)

↓

ろ 過

↓

洗 浄 ← 1N HCl 20mℓ 及びイオン交換水 30mℓ

↓

ろ 液

↓

蒸発乾固

↓

1N HCl 10.0mℓ

↓

ICP測定

② エタノール洗浄液

サンプル

↓ ← エタノール 20mℓ

時々攪拌しながら2時間放置

↓

ろ過

↓

洗浄 ← エタノール 20mℓ

↓

ろ液

残樹脂

↓ ← 1N HCl 10mℓ

↓

蒸発乾固

乾燥 (③に使用)

重量測定

↓

1N HCl 10.0mℓ

↓

ICP測定

③ エタノール洗浄後、HCl 溶離

②でエタノール洗浄した乾燥樹脂

↓ ← 1N HCl 20ml

時々攪拌しながら
2時間以上放置（8時間位行っている）

↓

ろ 過

↓

洗 浄 ← 1N HCl 20ml 及びイオン交換水 30ml

↓

ろ 液

↓

蒸発乾固

↓

1N HCl 10.0ml

↓

ICP測定

④ 灰化HCl溶解

サンプル (磁製るつぼ)

↓

300℃ 2時間灰化

↓

550℃ 2時間灰化

↓

放 冷

↓

3N HCl 10mℓ

↓

加熱溶解

↓

ろ 過

↓

洗 浄 ← 1N HCl 20mℓ 及びイオン交換水 30mℓ

↓

ろ 液

↓

蒸発乾固

↓

1N HCl 10.0mℓ

↓

ICP測定

測定結果報告書

御依頼先

海洋科学技術センター 殿

63年8月1日

計量証明事業登録 環第5号・第15号
作業環境測定機関登録10-1
建築物飲料水水質検査業登録
群馬県 59 水 第1号

総合分析試験センター

株式会社 群馬環境技研

本社 群馬県高崎市上豊岡町560-4
〒370 TEL (0273) 43-2851(代)
FAX (0273) 44-0424 番
リサーチセンター 新田郡新田町木崎字中通379-5
〒370-03 TEL (0276) 56-1277(代)
FAX (0276) 56-1266 番
前橋出張所 前橋市表町1-7-1 2
〒371 TEL (0272) 24-9708 番

試 験 報 告 書

№ 00306

昭和63年 8月 1日

海洋科学技術センター 殿

計量証明事業登録 環第5号・環第15号
作業環境測定機関登録第10-1
建築物飲料水水質検査業登録第10-1号

株式会社 群馬環境技研

高崎市上野町字6-4
電話 (0273) 4-3285(代)

7月19日ご依頼いただきました試料の試験結果を下記の通りご報告申し上げます。

分析完了日 昭和63年8月1日

品名	試料分析	件数
試料採取年月日	昭和63年 月 日	9件
		採取者及立会人 当社 先方 中川様依頼
サンプル名	前処理	ウラン分析値(μg/g)
RMPB-1	HCl 溶離法	5 μg/g 以下
"	灰化法	5 μg/g 以下
RMPB-2	HCl 溶離法	5 μg/g 以下
"	灰化法	5 μg/g 以下
RMPB-3	HCl 溶離法	5 μg/g 以下
"	灰化法	5 μg/g 以下
以下	余白	
試験方法： 前処理後、ICP分析法による。		
担当者	大木	

試 験 報 告 書

№ 00307

昭和63年 8月 1日

海洋科学技術センター 殿

計量証明事業登録 環第5号・環第15号
 作業環境測定機関登録第10-1
 建築物飲料水水質検査業群馬県59水第1号

株式会社 群馬環境技研

高崎市上野岡町5-6-30 4
 電話 (0273) 413-285 (代)

7月26日ご依頼いただきました試料の試験結果を下記の通りご報告申し上げます。

分析完了日 昭和63年8月1日

品名	試料分析	件数 4件
試料採取年月日	昭和63年 / 月 日	採取者及立会人 当社 先方 中川様依頼
サンプル名	前処理	ウラン分析値(μg/g)
MPB-54	Na ₂ CO ₃ 溶離法	5 μg/g 以下
"	灰化法	5 μg/g 以下
MPB-48	Na ₂ CO ₃ 溶離法	35 μg/g
"	灰化法	29 μg/g
以下	余白	
試験方法： 前処理後、ICP分析法による。		
担当者	大 木	