

H102

有機合成用廃触媒に含まれるウランとアンチモンの分離

(名大エコトピア) (正)澤田佳代*・榎田洋一

【緒言】 80年代にアクリロニトリル製造に用いられたウラン触媒は、処分方法がないまま、国内化学メーカー数社に保管されており、その総保管量はウラン量として200トンと報告されている。ウラン触媒は、ウランとアンチモンの複合酸化物をシリカに担持したもので、この複合酸化物は化学的に安定であり、酸による浸出が不可能である。本研究では、塩化揮発と超臨界流体抽出を併用してウランとアンチモンを触媒担体から個別に分離する方法の実証を行った。

【分離法】 本法は、最初に塩化水素を用いて複合酸化物のアンチモンのみを塩化揮発させた後、超臨界二酸化炭素を用いてウランを溶解抽出する方法である(図1)。塩化アンチモン(III)の沸点は493Kと極めて低く、493K以上で塩化水素によって複合酸化物中のアンチモンを塩化させることができれば、揮発分離が可能となると考えられた。一方、シリカ担体の表面に残るウラン酸化物は、リン酸トリブチル(TBP)-硝酸錯体を超臨界二酸化炭素に溶解した流体と接触させることで、TBP硝酸ウラン錯体として分離が可能となると考えられた。

【実験】 試料として表1の組成の模擬廃触媒を用いた。白金皿に模擬触媒37mgを取り、管状炉に設置した石英管内に吊した。アルゴンガスで希釈した1vol%塩化水素ガスを流通させながら1073Kで3時間反応させ、アンチモンを塩化揮発させた。白金皿に残った試料を内容積5cm³の高圧容器に詰め替え、TBP-硝酸錯体(TBP(HNO₃)_{1.8}(H₂O)_{0.6})を0.5cm³溶解した超臨界二酸化炭素と323K、25MPaで3時間接触させ、ウランを溶解抽出した。試料をアルカリ溶融した後、塩酸で溶解し、ICP-AESを用いてウランとアンチモン、ケイ素の濃度を測定し、組成を調べた。

【結果】 表2に組成分析結果を示す。塩化揮発後の試料のウランとケイ素の含有率は増加し、アンチモンの含有率は3.9wt%と低くなった。塩化揮発後の試料は黒色であり、八酸化三ウランの存在がXRD分析により確認された。塩化水素ガスと接触させることで、複合酸化物を分解できることが明らかとなった。超臨界流体抽出を行った後の試料は白色であ

り、ウラン含有率は1wt%と低減した。処理中にシリカ担体は化学変化せずに処理後も同一量含有されると仮定し、未処理の模擬触媒のウランとアンチモンの含有量を基準に求めた残存割合を表2中に括弧書きで併記した。本法により、94%のウランを分離することができた。

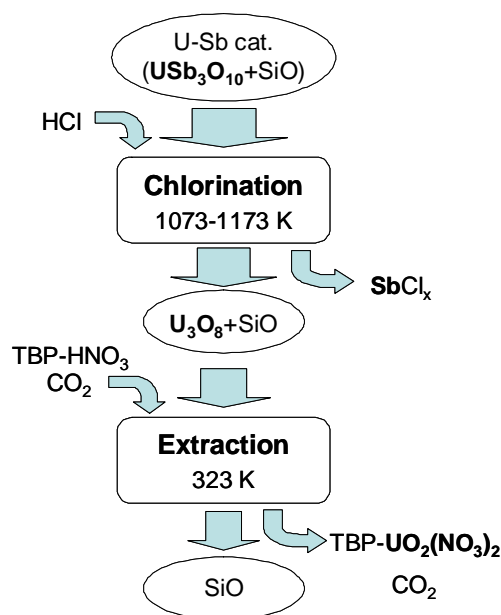


図1 分離のフローチャート

表1 模擬触媒の組成

Sample	U, wt%	Sb, wt%	Si, wt%
Waste catalyst	12	12	21

表2 組成変化

Treatment	U, wt%	Sb, wt%	Si, wt%
Chlorination	14 (110%)	3.9 (31%)	22
Chlorination +SFE [†]	1 (6%)	2.2 (28%)	29

[†] Supercritical fluid extraction

*Tel: 052-747-6437, Fax: 052-789-5936
E-mail: k-sawada@nucl.nagoya-u.ac.jp