

長寿命超ウラン元素を燃焼可能な軽水炉 RBWR の開発 (15) RBWR 向け MA 回収工程における元素の移行挙動への硝酸抽出の影響

Development of RBWR for Long-lived Transuranium Elements Burner

(15) Effect of Nitric Acid Extraction on Element Transfer Behavior in MA Recovery

*渡邊 大輔¹、可児 祐子¹、笹平 朗¹、星野 国義²

¹日立研開, ²日立GE

RBWR 使用済燃料から溶媒抽出法により MA を回収するプロセスで用いる有機溶媒のオクタノールについて、硝酸の抽出量の硝酸濃度依存性を評価した。多段向流抽出において、オクタノールへの硝酸の抽出による抽出装置内での硝酸の蓄積を考慮することで、元素の移行挙動の予測精度を向上した。

キーワード: RBWR, 再処理, 溶媒抽出, 硝酸, 窒素ドナー抽出剤

1. 緒言

日立では、長寿命超ウラン元素 (TRU) を燃焼可能な沸騰水型軽水炉 RBWR を開発している[1]。RBWR 使用済燃料に残存する TRU を再利用するため、PUREX 法等で U と Pu を回収した後、溶媒抽出法でマイナーアクチノイド (MA) を回収するプロセスを検討している[2]。MA の回収プロセスにおいて有機溶媒に用いるオクタノールは窒素ドナー抽出剤の溶解度が高い反面、硝酸を抽出する性質も持つ。本研究では、オクタノールへの硝酸の抽出量を評価し、多段向流抽出試験[3]においてオクタノールへの硝酸の抽出が元素 (代表として Eu を使用) の移行挙動へ与える影響を検討した。

2. 実験

オクタノールへの硝酸の抽出量の評価試験では、オクタノールを等量の硝酸水溶液と 22 °C で振とうし、平衡時のオクタノール中の硝酸濃度を中和滴定により評価した。

多段向流抽出試験では、抽出剤として t-butyl-CyMe4-BTBP (4-tert-butyl-6,6'-bis(5,5,8,8-tetramethyl-5,6,7,8-tetrahydro-benzo-1,2,4-triazin-3-yl)-2,2'-bipyridine)、有機溶媒としてオクタノールを用いた。また、抽出段(3段)と洗浄段(5段)で構成されるバッチ式の多段向流抽出装置[3]を用いて Eu の抽出試験を行った。抽出剤濃度は 40 mM、供給する水相の Eu 濃度と硝酸濃度はそれぞれ 0.5 mM、4 M とした。洗浄液の硝酸濃度は 0.4 M とした。有機相と水相の体積比は、抽出段では 1:1、洗浄段では 2:1 とした。多段向流抽出試験における試験装置内の硝酸濃度および元素濃度の予測は、硝酸の抽出量の評価結果および元素の分配比の硝酸濃度依存性[3]を用い、平衡計算と各液相の移送を 1 バッチとする計算を繰り返すことにより評価した。試験装置内の各段における各相の Eu の存在比は、1 バッチで供給する Eu 量に対する各相の Eu 量の比で評価した。

3. 結論

オクタノールへの硝酸の抽出量の評価結果を図 1 に示す。水相の初期硝酸濃度が増加するにつれてオクタノール中の硝酸濃度は上昇し、水相の硝酸の 10 % 程度が移行することが判明した。

硝酸の抽出量の評価結果を用い、多段向流抽出試験における試験装置内の水相の硝酸濃度を予測した結果を図 2(a)に示す。硝酸の抽出を考慮しない場合と考慮する場合は、後者の方が各段における硝酸濃度の予測値が高く、特に洗浄段の 1 段目において差が大きくなった。また、硝酸濃度は最大で 2.8 M まで上昇することが予測された。

多段向流抽出装置内での有機相の各段における Eu の存在比の実験値および予測値を図 2(b)に示す。硝酸の抽出を考慮しない場合、洗浄段には Eu はほとんど移行しないと予測されたが、実験では多くの Eu が洗浄段に移行し、洗浄段 2 段目にピークを持つ分布となった。一方、硝酸の抽出を考慮した場合、考慮しない場合に比べて Eu の存在比のピーク位置が実験値に近い結果となった。硝酸濃度の予測精度が向上したことで、Eu の抽出量を予測する際に適切な分配比の値を設定でき、Eu の抽出量の予測精度が向上したためと考える。

有機溶媒にオクタノールを用いる場合、元素の移行挙動の予測にはプロセス中でのオクタノールへの硝酸の抽出を考慮することが必要であると考えられる。

参考文献

- [1] 日野ら. 2015 年原子力学会秋の大会. A04 (2015).
[2] 渡邊ら. 2016 年原子力学会春の年会. 2F21 (2016).
[3] Watanabe D et al., Proc. ANUP 2016; 2016 Oct 24-27; Sendai (Japan).

*Daisuke Watanabe¹, Yuko Kani¹, Akira Sasahira¹, Kuniyoshi Hoshino²

¹Hitachi, Ltd. ²Hitachi-GE Nuclear Energy, Ltd.

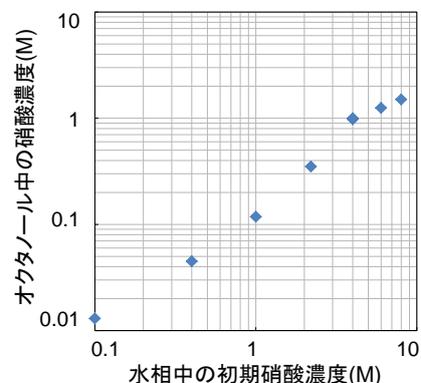


図 1 オクタノールへの硝酸の抽出量

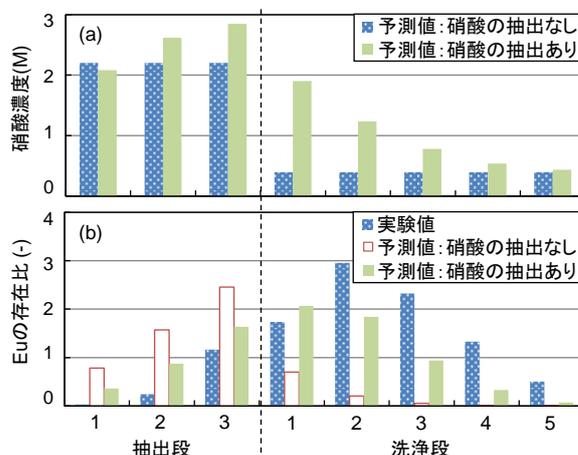


図 2 多段向流抽出試験における(a)水相中の硝酸濃度分布、(b)有機相中の Eu の存在比分布