

## 使用済み核燃料再処理プロセスから発生する廃溶媒処理技術の開発

### (3) 使用済みリン酸系抽出剤の分解処理

Development of treatment technology for spent solvent generated from fuel reprocessing process

#### (3) Oxidative decomposition treatment of the spent phosphoric acid extracting agent

\*安田 昌樹<sup>1</sup>, 新井 剛<sup>2</sup>, 渡部 創<sup>3</sup>, 荒井 陽一<sup>3</sup>, 野村 和則<sup>3</sup>

<sup>1</sup> 芝浦工業大学大学院, <sup>2</sup> 芝浦工業大学, <sup>3</sup> 日本原子力研究開発機構

**抄録** : STRAD(Systematic Treatments of RAdioactive liquid wastes for Decommissioning)プロジェクトの一環として、使用済み再処理プロセスで使用される有機リン酸の分解処理として促進酸化手法の一つであるフェントン法の適用性について検討した。本研究の成果より、フェントン処理は HDEHP の酸化分解処理に効果的であることが示された。

**キーワード** : 高レベル放射性廃液, 促進酸化手法, リン酸系抽出剤, 溶媒抽出法, 抽出クロマトグラフィ法

#### 1. 緒言

原子力施設で発生する放射性廃液の処理技術を確認する STRAD プロジェクトの一環として、廃溶媒の処理技術開発を実施している。本件では、マイナーアクチノイド(MA)回収プロセスとして抽出クロマトグラフィにて利用実績がある、octyl(phenyl)-N,N-diisobutyl carbamoyl methyl phosphine oxide (CMPO)または bis(2-ethyl hexyl)hydrogen phosphate (HDEHP)を含浸させた吸着材を対象として、フェントン法による酸化分解処理を試みた。

#### 2. 実験方法

0.1-1.0 mol・dm<sup>-3</sup>(M) FeSO<sub>4</sub> -1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>(10.71 cm<sup>3</sup>), 12.8 M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(32.14 cm<sup>3</sup>)溶液及び 6.0 M HNO<sub>3</sub>(7.14 cm<sup>3</sup>)を混合することでフェントン溶液を調製した。ジャケット付きビーカーにフェントン溶液と各吸着材を所定量注入した後、恒温槽を用いて 353 K で保持しながら 3 時間攪拌した。フェントン処理前後の吸着材について、バッチ法による Nd(III)の吸着挙動を評価した。試験溶液には、Nd(III)が 20 mM となるように 0.001 M HNO<sub>3</sub>に溶解し調製した。吸着材と試験溶液を体積比 1 : 20 で注入し、298 K の振とう恒温槽で振とうした。試験前後の水相中の Nd(III)濃度から吸着率を算出した。また、示唆走査熱量分析(Differential Scanning Calorimetry : DSC)により、試料の発熱・吸熱挙動を評価した。

#### 3. 結果・考察

フェントン溶液中の Fe<sup>2+</sup>濃度に対する Nd(III)の吸着率の変化を Fig.1 に示す。Fig.1 よりフェントン処理後の吸着材は Nd(III)の吸着率が大幅に低下することを確認した。吸着材に含浸された HDEHP 抽出剤の一部が、フェントン処理により酸化分解したと考えられる。処理後に発生した有機物を ESI-MS で分析した結果、HDEHP と比較して小さい分子量の化合物が生成していることを確認した。また、Fe<sup>2+</sup>濃度を増加させても吸着率の大きな変化は確認されなかった。次いで、フェントン処理前後の吸着材の熱特性を評価するため、DSC による熱分析を行った。Fig.2 に担体である SiO<sub>2</sub>-P, 抽出剤である HDEHP、HDEHP 吸着材及びフェントン処理後の HDEHP 吸着材の DSC の測定結果を示す。フェントン処理後の HDEHP 吸着材には、約 550K 付近の HDEHP 由来の吸熱ピークは確認されず、また、激しい発熱反応を示す分解物は生成していないことが確認できた。以上の結果から、フェントン処理により HDEHP が酸化分解され、安全を危惧すべき化合物は生成しないことを示唆する結果を得た。

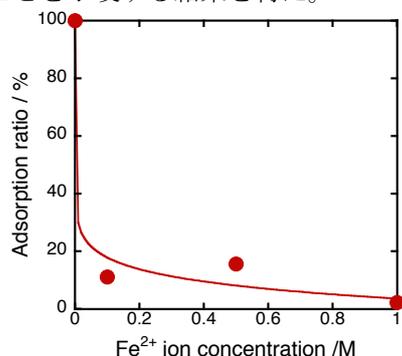


Fig.1 Fe<sup>2+</sup> concentration as a function of the adsorption rate of Nd(III) for HDEHP adsorbent [Nd(III)]=20 mM, Contact time : 60 min, Temp : 298 K

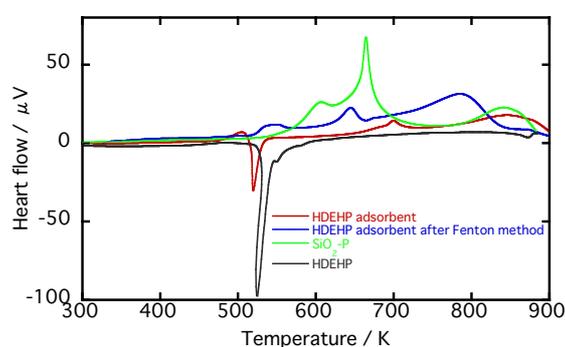


Fig.2 The DSC analysis results of HDEHP and HDEHP adsorbent after the Fenton method

#### 参考文献

1) 韋 悦周, 駒 義和, 新井 剛 : 日本原子力学会和文論文誌 vol.1, No.4, pp432-438 (2002).

\* Masaki Yasuda<sup>1</sup>, Tsuyoshi Arai<sup>2</sup>, Sou Watanabe<sup>3</sup>, Yoichi Arai<sup>3</sup>, Kazunori Nmura<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Shibaura Institute of Technology Graduate School, <sup>2</sup>Shibaura Institute of Technology, <sup>3</sup>Japan Atomic Energy Agency