

再処理工程から生じる溶媒劣化物の亜臨界水分解処理

Subcritical water decomposition of solvent degradation products from reprocessing process

*堀米 達哉¹, 安齋 喜代志¹, 兼平 憲男¹, 本間 哲雄²

¹日本原燃株式会社, ²八戸工業高等専門学校

再処理工程で生じる溶媒劣化物であるリン酸ジブチル (DBP) のアルカリ廃液中における処理方法として亜臨界水分解法の検討を行い、亜臨界水中における DBP の分解挙動を明らかにした。

キーワード：亜臨界水、アルカリ廃液、溶媒劣化物、DBP

1. 緒言

PUREX 法において、抽出溶媒であるリン酸トリブチル (TBP) は放射線により劣化し、リン酸ジブチル (DBP) 等の溶媒劣化物を生成する。溶媒は再使用前に炭酸ナトリウム等の水溶液により洗浄し溶媒劣化物を除去するが、洗浄により生じたアルカリ廃液に含まれる DBP は、配管閉塞等を引き起こすリスクがある。そこで本研究では、DBP 対策技術として、周辺の設備等に影響を与える酸化剤が不要であり、装置の小型化が期待され、通常運転により放射性廃棄物を発生させない利点のある亜臨界水分解法に注目し、模擬アルカリ廃液中での DBP 分解試験を実施し、分解挙動を評価した。

2. 実験

分解試験には、炭酸ナトリウム、硝酸ナトリウム、亜硝酸ナトリウムを水に溶解して調製した模擬アルカリ廃液に DBP を 3000 mg/L 添加した溶液を用いた。分解試験は PTFE ライナーの回分式圧力容器 (試験温度：200～150℃、加熱：オープン方式)、SUS316 製の回分式反応器 (試験温度：400～250℃、加熱：溶融塩浴方式) および SUS316 製の小型および大型流通式反応装置 (試験温度：350～250℃、加熱：ヒーター+オープン方式) を用いて行った。得られた分解液は高速液体クロマトグラフにて DBP を定量分析した。

3. 結果

DBP の分解反応を、DBP 濃度より、一次反応を仮定して反応速度解析を行った。図 1 は 300℃ (大型流通式反応装置) における 1 次反応プロットである。プロットはほぼ直線を示しているため、一次反応による解析は妥当と考える。同様に、他の条件においても一次反応を仮定して速度定数 k を求め、図 2 に示すアレニウスプロットを作成した。各温度条件から得られた速度定数には良好な直線関係がみられたことから、400～150℃の温度範囲において、同じ一次反応のメカニズムで反応が進行していることを示唆している。アレニウスプロットから求めた活性化エネルギーより反応速度定数を逆算し、分解率を 99% とするときに必要な反応時間を求めると、300℃で約 30 分間、350℃で約 5 分間であり、他手法と比較して迅速に分解可能であることが明らかとなった。

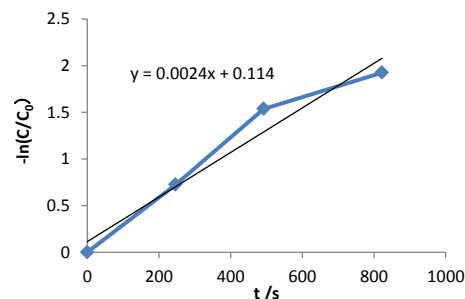


図 1 300℃における一次反応プロット

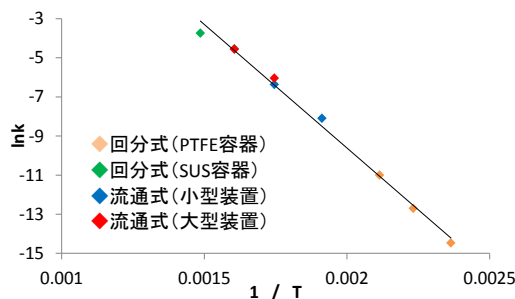


図 2 400～150℃におけるアレニウスプロット

参考文献

[1] 小島久雄, 核燃料サイクル工学概論, JAEA-Review, 020 (2008).

* Tatsuya Horimai¹, Kiyoshi Anzai¹, Norio Kanehira¹, and Tetsuo Honma²

¹JNFL, ²NIT Hachinohe.