再処理工程から生じる溶媒劣化物の高圧熱水処理に対する金属担持触媒の影響

Effect of metal-supported catalyst on the hydrothermal decomposition of solvent degradation products in reprocessing process

*下沢 舞優[1]，堀米 達哉[2]，安齋 喜代志[2]，兼平 憲男[2]，本間 哲雄[1]
[1]八戸工業高等専門学校，[2]日本原燃株式会社

再処理工程で生じる溶媒劣化物リン酸ジブチル(DBP)のアルカリ廃液中における処理方法として、高圧熱水処理を検討した。特に、高圧熱水中での DBP 分解温度低減を目的に、様々な金属担持触媒を用いた高圧熱水処理を行った。得られた DBP 分解率から、反応速度定数を比較し、反応機構を検討した。

キーワード：高圧熱水、アルカリ廃液、溶媒劣化物、DBP、固体触媒

1. 緒言

PUREX 法における抽出溶媒であるリン酸トリブチルは放射線により劣化し、DBP 等の溶媒劣化物を生成する。そのため抽出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される。洗浄により生じるアルカリ廃液に含まれる DBP は配管閉塞やガラス固化を阻害するリスクがある。本研究ではこれまでに DBP 対策技術として、高圧熱水中での DBP 分解を行い、反応解析から 300 ℃で 30 分間、350 ℃では 5 分間で 99%分解率を得ることを明らかにした。一方、アルカリ廃液に含まれる炭酸ナトリウムが 300 ℃以上で反応装置の閉塞を引き起こすことが課題となり、これまでに金属酸化物触媒による反応温度低減を試みてきた。本報告では、引き続き高圧熱水中での DBP の分解温度の低減を目的に、様々な金属担持触媒を用いた DBP 分解のための高圧熱水処理を行い、得られた反応速度定数から分解挙動を検討した。

2. 実験方法

DBP 分解試験は内容積 6.8 mL の SUS316 製回分式反応器を使用した。原料液の DBP 濃度は 5000 ppm とし、NaOH で pH 10.2 に調製した。反応管には原料液 3.4 g と含浸法を用いて合成した金属担持触媒 0.14 g を仕込み、超音波洗浄器で固体触媒を液中分散させ、300 ℃の溶融塩浴中で反応させた。反応管投入から所定時間経過後、反応管を氷水浴中へ投入して冷却することで反応を停止させた。反応液は超音波洗浄器で触媒を液中分散させてから回収した。DBP 濃度は、反応液を HPLC/RI で分析し、絶対検量線法で定量した。反応速度定数は DBP 濃度の一次反応と仮定して算出し、同条件の実験を 2 回行った。

3. 結論・考察

図 1 は 300 ℃での各種金属担持触媒を用いて行った 1 次反応速度定数である。速度定数は全ての金属種で無触媒を上回り、Ni 担持 ＞ 担体(γ-Al_2O_3)＞Co 担持 ＞Zn 担持 ＞Cu 担持の順で触媒活性が見られた。Ni 担持触媒の反応速度定数は無触媒と比較して約 9 倍であり、Ni 担持触媒の触媒効果が最も高いと考える。担体のみと比較して Ni 以外の金属担持触媒の反応速度定数が低下したのは、焼成や還元処理による触媒表面積の低下に起因すると考える。

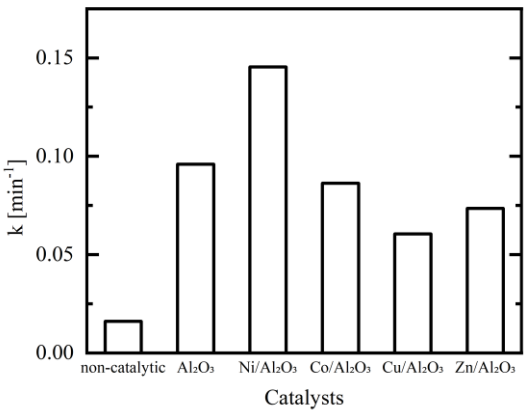

図 1　触媒種ごとの反応速度定数

謝辞

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁「令和 4 年度放射性廃棄物の減容化に向けたガラス固化技術の基盤研究事業」(JPJ010599)の成果の一部である。

*Mayu Shimosawa[1], Tatsuya Horimai[2], Kiyoshi Anzai[2], Norio Kanehira[2] and Tetsuo Honma[1]
[1]NIT Hachinohe, [2]JNFL