

高レベル放射性物質研究施設における 放射性廃液の安定化処理

Comprehensive Treatment of Radioactive Liquid Waste
of Chemical Processing Facility

小木 浩通 荒井 陽一 栗飯原 はるか 渡部 創
柴田 淳広 野村 和則

Hiromichi OGI, Yoichi ARAI, Haruka AIHARA, Sou WATANABE
Atsuhiko SHIBATA and Kazunori NOMURA

核燃料・バックエンド研究開発部門
核燃料サイクル工学研究所
環境技術開発センター
再処理技術開発試験部

Department of Reprocessing Technology Development
Nuclear Backend Technology Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

June 2021

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).

Even if the results of this report (include data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Intellectual Resources Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

高レベル放射性物質研究施設における放射性廃液の安定化処理

日本原子力研究開発機構 核燃料・バックエンド研究開発部門
核燃料サイクル工学研究所 環境技術開発センター 再処理技術開発試験部

小木 浩通*、荒井 陽一、栗飯原 はるか、渡部 創、柴田 淳広、野村 和則

(2021 年 4 月 2 日受理)

放射性物質取扱施設である高レベル放射性物質研究施設（CPF: Chemical Processing Facility）では、過去の試験や分析で発生した多種の廃液をホットセル及びグローブボックス内で保管してきた。2015 年 7 月より、保管されている放射性廃液について、管理方法の適正化を図るべく、実廃液の安定化処理を進めている。また、分析廃液等の多種多様な試薬が混在する廃液については安定化処理が非常に困難であるため、大学等と共同で STRAD（Systematic Treatments of Radioactive liquid wastes for Decommissioning）プロジェクトを発足させ、処理技術の研究開発を進めている。これらの実績は、他の放射性物質取り扱い施設においても保管する廃液の処理をより効率的かつ安全に進められることが期待できる。

本書は、CPF で安定化処理を実施した実廃液の処理方法及び処理状況に関して報告するものである。

Comprehensive Treatment of Radioactive Liquid Waste of Chemical Processing Facility

Hiromichi OGI*, Yoichi ARAI, Haruka AIHARA, Sou WATANABE, Atsuhiro SHIBATA and
Kazunori NOMURA

Department of Reprocessing Technology Development
Nuclear Backend Technology Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 2, 2021)

Chemical Processing Facility (CPF) of Japan Atomic Energy Agency (JAEA) has been developing the fast reactor fuel reprocessing and vitrification technology. The various kinds of radioactive liquid wastes, which were generated by those experiments and analysis, stored in the hot cells and glove boxes of CPF. The treatment of radioactive liquid wastes were started since July 2015; however, treatment of several kinds of liquid wastes are revealed to be difficult due to contain the various hazardous chemicals. Therefore, in order to establish the new technology suitable for radioactive liquid waste treatment, several collaborative research programs with several universities and national research organizations were started. The combined project lead by JAEA was named to be STRAD (Systematic Treatments of Radioactive liquid wastes for Decommissioning) project. In this project, the process flow for treatment of several actual liquid wastes were established.

In this report, treated method and progress of actual liquid wastes of CPF are summarized.

Keywords : Radioactive Liquid Waste, Chemicals, Treatment, Hot Laboratory

* Inspection Development Company Ltd.

目 次

1. はじめに.....	1
2. 保管溶液の処理計画.....	2
2.1 試験溶液（硝酸,ナトリウム）.....	2
2.2 試験溶液（硝酸,フッ化物）.....	2
2.3 試験溶液（硝酸,フッ化物,アンモニア）.....	3
2.4 試験溶液（硝酸,HAN,ヒドラジン）.....	3
2.5 試験溶液（硝酸,乳酸）.....	3
2.6 試験溶液（塩化物,硝酸）.....	4
2.7 試験溶液（塩化物,分析試薬）.....	4
2.8 試験溶液（塩化物,シュウ酸）.....	4
2.9 試験溶液（塩化物,ヒドラジン）.....	5
2.10 試験溶液（塩化物,フェロシアン化物）.....	5
2.11 試験溶液（リン酸）.....	5
2.12 試験溶液（過硫酸アンモニウム）.....	5
2.13 試験溶液（TBP,n-ドデカン）.....	5
2.14 試験溶液（CMPO,TBP,n-ドデカン）.....	6
2.15 分析溶液（水相）.....	6
2.16 分析溶液（有機相）.....	7
3. 処理実績.....	8
3.1 試験溶液（硝酸,ナトリウム）.....	8
3.2 試験溶液（硝酸,フッ化物）.....	8
3.3 試験溶液（硝酸,フッ化物,アンモニア）.....	8
3.4 試験溶液（硝酸,HAN,ヒドラジン）.....	8
3.5 試験溶液（硝酸,乳酸）.....	8
3.6 試験溶液（塩化物,硝酸）.....	9
3.7 試験溶液（塩化物,分析試薬）.....	9
3.8 試験溶液（塩化物,シュウ酸）.....	9
3.9 試験溶液（塩化物,ヒドラジン）.....	9
3.10 試験溶液（塩化物,フェロシアン化物）.....	9
3.11 試験溶液（リン酸）.....	9
3.12 試験溶液（過硫酸アンモニウム）.....	10
3.13 試験溶液（TBP,n-ドデカン）.....	10
3.14 試験溶液（CMPO,TBP,n-ドデカン）.....	10
3.15 分析溶液（水相）.....	10
3.16 分析溶液（有機相）.....	10
4. まとめ.....	11
謝辞.....	11
参考文献.....	12

Contents

1. Introduction	1
2. Processing plans.....	2
2.1 Experiments solution (Nitric acid, Sodium).....	2
2.2 Experiments solution (Nitric acid, Fluoride)	2
2.3 Experiments solution (Nitric acid, Fluoride, Ammonium)	3
2.4 Experiments solution (Nitric acid, HAN, Hydrazine).....	3
2.5 Experiments solution (Nitric acid, Lactic acid)	3
2.6 Experiments solution (Chloride, Nitric acid)	4
2.7 Experiments solution (Chloride, Analyses reagent).....	4
2.8 Experiments solution (Chloride, Oxalic acid)	4
2.9 Experiments solution (Chloride, Hydrazine)	5
2.10 Experiments solution (Chloride, Ferrocyanide)	5
2.11 Experiments solution (Phosphoric acid)	5
2.12 Experiments solution (Ammonium persulfate).....	5
2.13 Experiments solution (TBP, n-dodecane)	5
2.14 Experiments solution (CMPO, TBP, n-dodecane)	6
2.15 Analyses solution (Aqueous)	6
2.16 Analyses solution (Organic)	7
3. Processing results	8
3.1 Experiments solution (Nitric acid, Sodium).....	8
3.2 Experiments solution (Nitric acid, Fluoride)	8
3.3 Experiments solution (Nitric acid, Fluoride, Ammonium).....	8
3.4 Experiments solution (Nitric acid, HAN, Hydrazine).....	8
3.5 Experiments solution (Nitric acid, Lactic acid)	8
3.6 Experiments solution (Chloride, Nitric acid)	9
3.7 Experiments solution (Chloride, Analyses reagent).....	9
3.8 Experiments solution (Chloride, Oxalic acid)	9
3.9 Experiments solution (Chloride, Hydrazine).....	9
3.10 Experiments solution (Chloride, Ferrocyanide)	9
3.11 Experiments solution (Phosphoric acid)	9
3.12 Experiments solution (Ammonium persulfate).....	10
3.13 Experiments solution (TBP, n-dodecane)	10
3.14 Experiments solution (CMPO, TBP, n-dodecane)	10
3.15 Analyses solution (Aqueous)	10
3.16 Analyses solution (Organic)	10
4. Summary	11
Acknowledgement.....	11
References.....	12

表リスト

表 1	保管溶液の分類	14
表 2	技術検討委員会 議題一覧.....	15
表 3	分析溶液（水相,核燃料物質無）分類表	17
表 4	分析溶液（水相,核燃料物質有）分類表	19
表 5	分析溶液（有機相,核燃料物質無）分類表	20
表 6	分析溶液（有機相,核燃料物質有）分類表	21
表 7	保管溶液処理状況.....	22

図リスト

図 1	分析溶液（水相）フロー案.....	23
図 2	試験溶液（硝酸,HAN,ヒドラジン）処理状況.....	24
図 3	試験溶液（硝酸,乳酸）処理フロー	25
図 4	試験溶液（硝酸,乳酸）処理状況	25
図 5	試験溶液（塩化物,硝酸）処理状況	26
図 6	試験溶液（リン酸）処理状況.....	26
図 7	アンモニウムイオン分解装置構成図.....	27
図 8	試験溶液（過硫酸アンモニウム）処理状況.....	27

This is a blank page.

1. はじめに

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、原子力機構）高レベル放射性物質研究施設（以下、CPF）では、これまで高速炉燃料湿式再処理試験、高レベル放射性廃液ガラス固化試験、溶融塩電解基礎試験、材料腐食等の基礎試験及び東京電力福島第一原発汚染水の処理方法に関する性能試験を実施してきており、各試験に付随する分析として、放射能分析、金属元素濃度分析、酸分析等を行ってきた [1]。約 35 年間の試験や分析で発生した放射性廃液は、廃液貯槽で保管するとともに SUS 缶、ポリ容器またはガラス容器に入れ、ホットセル内またはグローブボックス内で保管管理してきた。

CPF で発生する廃液は、高レベル放射性廃液、中レベル放射性廃液（ 3.7×10^7 Bq/cm³ 未満）、低レベル放射性廃液（ 3.7×10^4 Bq/cm³ 未満）、極低レベル放射性廃液（ 3.7×10^{-3} Bq/cm³ 未満）及び廃溶媒に区分される。高レベル放射性廃液、中レベル放射性廃液及び廃溶媒については廃液貯槽にて保管する。低レベル放射性廃液は、蒸発缶にて蒸発処理し、濃縮液は中レベル放射性廃液、蒸発凝縮液は極低レベル放射性廃液として処理する。また、極低レベル放射性廃液は各種分析後、隣接する東海再処理施設の廃液処理施設へ払い出す。

CPF では廃液貯槽として、高レベル廃液貯槽 4 基、中レベル廃液貯槽 4 基、低レベル廃液貯槽 4 基、極低レベル廃液貯槽 4 基、廃溶媒貯槽 2 基、予備貯槽 2 基を有している。高レベル及び中レベル廃液貯槽は、核分裂生成物の崩壊熱を除去するための冷却水による温度管理、水の放射線分解により発生する水素の希釈のための空気の吹き込みを行っている。

廃液貯槽へ廃液を送液する際は、反応性試薬の無害化処理を行った後、含有する核燃料物質を取り除く必要があるため、これまでは高レベル放射性廃液相当の硝酸溶液及び核燃料物質が取り除かれた PUREX 法で用いる溶媒（TBP・n ドデカン）のみを送液してきた。

実際の試験や分析で発生する廃液は多種にわたり、また保管場所もホットセルやグローブボックス内と特殊な環境であったため、無害化処理及び核燃料物質を取り除く処理をするためには適切な処理方法の調査及び十分な安全評価が必要となる。そのため、無害化処理（及び核燃料物質を取り除く処理）を行っていない廃液が 2015 年 1 月時点で約 607 L、ホットセルやグローブボックス内に蓄積されていた。

このような保管溶液の管理の適正化を図るべく、核燃料物質の回収、反応性物質の無害化、沈殿物の除去、油分の分離等の処理を行うことにより、CPF の廃液貯槽において安定的に保管管理することを目的に、保管中の廃液の調査、処理方法の検討、処理技術の開発及び実廃液の無害化処理を 2015 年 7 月から開始した。

また、CPF だけでなく、発電炉、研究所や医療機関をはじめとした様々な施設においても、放射性物質は種々の化学物質と混合して使用され、処理困難な廃液が発生、蓄積されていると予想される。これらの溶液に含まれる化学物質の特性を考慮し、個別に安全な処理方針及び方法を検討する必要がある。また、このような放射性廃液はホットセルやグローブボックスといった特殊な環境で使用、保管されることが想定されるため、遠隔操作性や装置に起因した使用上の制限などを加味した操作によって処理を実施しなければならない。

そこで、本報告において、CPF で安定化処理を実施した実廃液の処理方法及び処理状況について詳述することで、他の放射性物質を取り扱う施設においても保管する廃液の処理をより効率的かつ安全に進められることができ、将来的に発生する廃液の保管量の削減が期待できる。

2. 保管溶液の処理計画

CPF で保管されてきた液体は、試験と分析から発生したものに大別され、更にそれぞれ水相と有機相に分かれる。溶液の性状調査として、保管溶液毎に、①核燃料物質の有無、②放射能レベル（高レベル、中レベル）、③共存試薬の種類、④酸性/アルカリ性、⑤有機物の有無（水相の場合）、⑥SS（浮遊物質）の有無等について調査し、リスト化した。その後、溶液の性状により分類した。保管溶液の分類表を表 1 に示す。これらの分類毎に個別に処理方法の検討を実施した。

処理方法の検討にあたり、反応性を有する化学物質に着目し、引火性、自己反応性、腐食性、揮発性、沈殿生成の性状を有する物質について無害化する方法を検討した。また、処理によって発生するプロダクトとして、液体は CPF の廃液貯槽に受入可能な形態にすること、核燃料物質は酸化物に転換した後に CPF 貯蔵庫に保管すること、固体は廃棄物として払い出し可能な形態とすることを前提とした。現状の CPF においては、液体は高レベル放射性廃液相当の水溶液、または PUREX 溶媒の構成成分（TBP 及びノルマルドデカン）及びその劣化物（炭化水素、DBP 等）が受入可能な形態である。固体廃棄物は化学的に安定であり、乾燥した状態を目標とした。処理手順については、処理の効率、処理に伴う二次廃棄物の発生量、処理時間等を考慮し、最も合理的方法を用いて現状の CPF の許認可の範囲内の作業により実施することとした。

上記の条件を満たすよう化学物質の処理方法について調査・検討を行い、コールド試験等による性能確認、及び条件の最適化を行った。また、実液の処理にあたっては、事前に手法の妥当性、安全性について、機構内外の放射性物質や化学物質等の取扱に関する専門家等で構成する CPF 保管溶液処理に係る技術検討委員会（以下、技術検討委員会）の審議を受け、承認された後に実施した。2021 年 3 月末において、技術検討委員会を計 8 回開催している。技術検討委員会での議題等の一覧を表 2 に、廃液の発生履歴及び個別の処理計画を以下に記す。

2.1 試験溶液（硝酸、ナトリウム）

過去の再処理試験でプルトニウムの原子価調整剤として亜硝酸ナトリウムを添加した溶液または試験後に中和処理のため炭酸ナトリウムを添加した溶液であり、核燃料物質が共存している。溶液に含まれるナトリウムは廃液貯槽周辺機器上への析出が懸念されるため、廃液貯槽へ送液する溶液からは可能な限り取り除く必要がある。また、過去に実施した遠心抽出器を用いた溶媒抽出による核燃料物質回収作業において、装置内でナトリウムの沈殿が発生しており、沈殿を生成させずに核燃料物質を回収する条件の設定が必要である。

模擬廃液を用いたコールド試験の結果、硝酸イオン濃度が 7 M 以下かつナトリウム濃度が 40 g/L 以下であれば、ナトリウムを沈殿させずに PUREX 法の抽出操作を遂行出来ることを確認した。このため、ナトリウム濃度及び核燃料物質含有量が少ない溶液（70.3 L）は、廃液貯槽へ送液しナトリウム濃度が 40 g/L を超えないよう、廃液貯槽の液量を管理することとした。核燃料物質を比較的多く含む溶液（23.6 L）については、ナトリウムが沈殿しない条件にて、溶媒抽出により核燃料物質回収を実施し、残液を廃液貯槽へ送液することとした。なお、回収した核燃料物質を含む水溶液は脱硝・転換し貯蔵庫で貯蔵する。

2.2 試験溶液（硝酸、フッ化物）

東京電力福島第一原発の燃料デブリに関する試験において、模擬デブリを硝酸水溶液で溶解する際に、フッ酸を少量添加した溶液である。溶液に含まれるフッ化物イオンは鉄塩やアルミニ

ウム塩と反応して貯槽内にて沈殿を生成するため、フッ化物イオンを除去することを目的として、硝酸カルシウムを添加して、フッ化カルシウムの沈殿として除去することとした。除去の目標は、海域以外の公共用水路への排水基準濃度（8 mg/L）とした。核燃料物質の回収は、フッ化物イオン除去後に実施することとした。なお、沈殿処理で発生したフッ化カルシウムは固体廃棄物として廃棄する。

2.3 試験溶液（硝酸,フッ化物,アンモニア）

東京電力福島第一原発の燃料デブリに関する試験において、フッ酸を少量添加して模擬デブリを溶解した溶液であり、溶液中に含まれるフッ化物については 2.2 と同様とする。なお、酸分析時に硝酸アンモニウムを添加しているため、フッ化物処理後は後述の分析溶液（水相）と同様のアンモニウムイオン分解処理をする。

2.4 試験溶液（硝酸,HAN,ヒドラジン）

プルトニウムの還元剤として試験で使用する予定だった試薬を保管していたものである。対象溶液を分析した結果、溶液中に 0.06 mol/L の HAN（硝酸ヒドロキシルアミン）及び 1.44 mol/L のヒドラジンが含有していた。HAN 及びヒドラジンは強い還元性を有し、爆発性を有することから廃液貯槽へ送液する前に除去しておく必要がある。そこで、無害化処理として、Fe(III)を添加して酸化分解することとした。コールド試験にて、試薬添加後に発泡を伴う急激な反応が生じることが判明したため、対策として試薬を 10 回に分割して添加することとした。また、発泡が収まるまで静置し次の添加をしないこと、最後の添加から 60 分間以上は処理後液の観察をすること及び発泡が完全に収まるまでは容器の蓋を閉めないことも合わせて対策とした。HAN の測定はオキシシン吸光光度法、ヒドラジンの測定には p-ジメチルアミノベンズアルデヒド吸光光度法で行い、自己加速的な反応が生じないとされる濃度（0.77 mol/L）[2]まで HAN 及びヒドラジンを除去する。なお、分解処理後はアンモニア溶液となるため、分析溶液（水相）と同様の処理を実施する。

2.5 試験溶液（硝酸,乳酸）

過去に使用済高速炉燃料の再処理技術開発として、プルトニウムの逆抽出のための錯形成剤として乳酸を用いた試験が実施され [3]、乳酸が硝酸と混合した状態で長期間保管されていたものである。対象溶液を分析した結果、溶液中に 2 mol/L の乳酸及び 4 mol/L の硝酸が含まれていた。乳酸は硝酸との混触による水素の発生及び金属イオンとの錯形成による沈殿生成が懸念され、廃液貯槽へ送液する前に除去しておく必要がある。乳酸の処理として、コールド試験にて活性炭による吸着除去[4]や TBP による抽出濃縮[5]を試みたが、硝酸水溶液からの回収性能が十分ではなかった。これらの技術は発酵液からの L-乳酸の回収のために開発された技術であり、酸濃度の影響が大きかったものと考えられる。そこで、有機物の酸化処理に実績のあるフェントン反応[6]を用いた分解処理について検討した。フェントン反応では、2 価鉄と過酸化水素の反応によってヒドロキシルラジカルが生成し（次式参照）、その強い酸化力によって有機化合物の分解が促進すると期待される。



模擬廃液を用いたコールド試験の結果、下記の式によって乳酸の分解が進行することが明らかとなった。乳酸由来の炭素の変換割合は、酢酸、ギ酸、CO₂でそれぞれ 65.5、0.3、34.2%であり、乳酸の分解による水素ガスの発生はなかった [7]。



本結果をもって、フェントン法による酸化分解を乳酸の処理方法として採用することとした。

2.6 試験溶液（塩化物,硝酸）

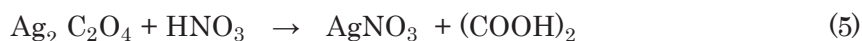
熔融塩電解基礎試験に関する分析等で発生した溶液や、福島にて採取された海水を含む汚染水等の分析廃液である。溶液中の塩化物イオンはステンレス製の廃液貯槽を腐食させることから、廃液貯槽へ送液する前に除去しておく必要がある。塩化物イオンの除去として、銀イオンの添加によって塩化銀沈殿を生成して除去し、残留液中の核燃料物質は溶媒抽出法によって回収することとした。コールド試験による確認を経た後、実廃液を少量用いたバッチ試験を実施し、塩化物が 99%以上除去が可能で、U、Pu は塩化物と共沈しないことを確認した [8]。回収した沈殿物（塩化銀）は光分解による塩素発生を防止するため、金属容器で遮光して保管する。

2.7 試験溶液（塩化物,分析試薬）

亜硝酸分析用試薬の塩酸を含む溶液である。溶液中の塩化物イオンを上記の手法により除去し、残留液は後述する分析溶液（水相）と同様の処理を実施する。

2.8 試験溶液（塩化物,シュウ酸）

東京電力福島第一原発から輸送された汚染水試料に含まれる ⁹⁰Sr の分析によって発生した溶液である。硝酸濃度は約 5 mol/L、塩化物濃度は最大で 179 mg/L、シュウ酸濃度は 5×10⁻³ mol/L である。また、試料中の Cs を除去するために添加したリンモリブデン酸アンモニウム中のアンモニウムイオンが 10 mg/L 含まれる。塩化物の無害化として硝酸銀を添加すると爆発の危険性の高いシュウ酸銀を生成する可能性がある。一般的に、シュウ酸銀は硝酸溶液においては以下のような反応を示すことが知られている。



この反応により、硝酸溶液中においてはシュウ酸銀は生成しないと判断し、塩化物の無害化処理を実施する。塩化物処理後は廃液貯槽へ送液し保管する。なお、移送先の廃液貯槽中の廃液の酸濃度は約 3 mol/L であり、銀化合物は含まれていないため、ここでシュウ酸銀を生成することはない。また、廃液貯槽に全量移送した場合でも、硝酸アンモニウム重量は最大 0.3 g 程度と想定され、後述する硝酸アンモニウム管理値 500 g を十分に下回っているため、アンモニア処理は実施しないこととした。

2.9 試験溶液（塩化物, ヒドラジン）

福島における放射性滞留水であり、分析のため CPF にて受け入れたものである。溶液中の塩化物イオンを硝酸銀沈殿により除去し、Fe(III)を添加してヒドラジンの酸化分解処理を実施する。なお、分解処理後はアンモニア溶液となるため、後述の分析溶液（水相）と同様の処理を実施する。

2.10 試験溶液（塩化物, フェロシアン化物）

福島における放射性滞留水であり、CPF にて実施した除染試験[9]で発生した溶液である。フェロシアン化物は熱や酸で有毒なシアン化水素を発生することから、溶液中のフェロシアン化物の無害化処理が必要である。除染試験[9]では、亜鉛イオンとフェロシアン化物によって、不溶性フェロシアン化物を形成させ、沈殿として除去する方法が報告されており、同様の処理方法を実施する。塩化物イオンは上述の通り塩化銀として沈殿除去する。

2.11 試験溶液（リン酸）

過去にセル内で実施した電解除染試験で発生した電解質溶液である。リン酸は遷移金属やアルカリ土類金属と難溶性の塩を形成するため、廃液貯槽内にて沈殿物を生成する恐れがある。また、高濃度のリン酸は腐食性を有するため、廃液貯槽へ送液する前に除去しておく必要がある。リン酸イオンは分解、イオン交換、固化による処理が可能であるが、操作の簡便さから、固化による処理を実施することとした。リン酸アルミニウムは無機接着剤として知られており[10, 11]、リン酸自体をバインダーの構成成分として利用可能である。

模擬廃液を用いたコールド試験により、下記の反応でリン酸アルミニウムが形成可能であることが分かった [7]。



また、生成物の示差熱分析の結果、処理後に発生する廃棄物が熱的に安定であることが分かり、本手法の適用性が示された。以上の結果から、リン酸の処理として、硝酸アルミニウムの添加による固化を採用することとした。なお、処理にて発生する廃棄物は、自然乾燥後、固体廃棄物として廃棄する。

2.12 試験溶液（過硫酸アンモニウム）

高レベル放射性廃液ガラス固化試験で使用した銅をエッチングした際に発生した廃液である。無害化処理は、後述する分析溶液（水相）と同様のオゾン吹き込みによるアンモニウムイオン分解処理を実施する。

2.13 試験溶液（TBP, n-ドデカン）

再処理試験で発生した PUREX 溶媒である。希硝酸での逆抽出により核燃料物質を回収後、核燃料物質を取り除いた溶液は廃液貯槽へ送液し保管する。

2.14 試験溶液（CMPO, TBP, n-ドデカン）

再処理試験で発生した TRUEX (TRans Uranium EXtraction) 溶媒である[12]。溶液に含まれる CMPO の劣化生成物としてベンゼン化合物が想定される。これらの引火点にはドデカン (74 °C) より低いもの (ベンゼン : -11 °C、トルエン : 4 °C) があり、廃液貯槽へ移送する前に CMPO の無害化処理が必要である。また、この溶液には抽出剤として TBP が含まれ、約 30 年間セル内の高放射線下で保管されていたため、TBP の放射線分解や硝酸による加水分解の影響で生成された DBP が混在している状態であると想定される。DBP はウラン及びプルトニウムと低硝酸領域においても安定な錯体を形成し、溶液中に含まれる核燃料物質を希硝酸による逆抽出で回収することが困難となるため、核燃料物質の回収方法の検討が必要である。

核燃料物質の回収方法として、水酸化ナトリウムを用いて核燃料物質を沈殿物として回収する処理方法を検討し、コールド試験によりこの方法の妥当性を確認した。模擬廃溶媒として Pu を模擬である Zr(IV) を装荷した CMPO (濃度 0.05 mol/L)、DBP (濃度 0.7 mol/L)、TBP (濃度 0.6 mol/L) と n-ドデカンの混合溶媒を使用し、Zr の回収率を調査した。コールド試験の結果、1 バッチの処理で約 80% の Zr を沈殿物として回収できることを確認した[13]。バッチ処理を繰り返す多段の操作によって全量の回収が見込まれる。

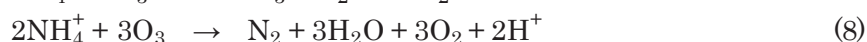
核燃料物質を取り除いた残溶媒の処理方法として、ジオポリマー（主原料：メタカオリン）等による固化[14]や分解について現在検討している。

本溶液については残液の処理方法が決定していないが、核燃料物質の安定化の観点から、アルカリ沈殿による核燃料物質回収については先行して実施することとした。

2.15 分析溶液（水相）

各種試験で発生した分析試料の分析後溶液である。分析の工程において多種多様な試薬が添加されているため、CPF に保管中の分析溶液に添加されている試薬について調査を実施した。分析溶液（水相,核燃料物質無）分類表を表 3、分析溶液（水相,核燃料物質有）分類表を表 4 に示す。

引火性、自己反応性、腐食性、揮発性、沈殿生成の性状を有する化学種について無害化する方法を検討した結果、まず、分析溶液（水相）に含まれる化学物質として、爆発性である硝酸アンモニウムを生成する可能性のあるアンモニウムイオンに着目した。工場排水のアンモニウム処理方法としては、微生物の出す酵素で窒素に分解する微生物処理[15]、高温で燃焼し窒素に分解する燃焼処理[16]及び残留塩素と反応させ窒素に分解する塩素添加処理[17]が用いられているが、処理対象の廃液は雑多な試薬を含んだ放射性廃液であり、セルまたはグローブボックス内で処理を行う必要があるため、これらの処理方法の適用は困難である。そこで、比較的低温かつ常圧にてアンモニウムイオンを分解できるオゾンを用いた手法[18]に着目し、反応メカニズムの調査及び操作条件の最適化を実施した[19]。模擬廃液を用いたコールド試験の結果、処理対象溶液の pH を制御することにより、高い効率でアンモニウムイオンを NO₃⁻や N₂ ガスに転化出来ることが分かった。下記の反応が進行しているものと考えられる。



以上の結果をもって、分析溶液（水相）中のアンモニウムイオンをオゾン、触媒により酸化分解し、NO₃⁻や N₂ ガスへ転化することとした。アンモニウムイオン分解後のその他の化学種につ

いては、無害化方法の検討を行うとともに固化等による閉じ込めを現在検討している。分析溶液（水相）の処理フロー案を図 1 に示す。

始めに、沈殿物及び SS を除去するため、濾紙による濾過を実施し、有機相が含まれる溶液については、油水分離を実施する。分離した有機相は、分析溶液（有機相）と同様の処理方法で処理する。沈殿物及び SS を取り除いた核燃料物質を含まない水相溶液は、逆浸透膜（RO 膜）装置にて濃縮を実施する。この際、排出されるアンモニウムイオン等を取り除いた濾過液は廃液貯槽へ送液する。なお、廃液貯槽に送液する際には、移送先の廃液貯槽で生成される硝酸アンモニウム重量が 500 g 以下になるようアンモニウムイオンを除去した上で送液する。硝酸アンモニウム重量の設定根拠は次の通りである。

CPF には、現在、アンモニウムイオンを含有している分析溶液（水相）が 257.5 L 保管されている。そのなかで最もアンモニウムイオン濃度が高いものは、10%硫酸アンモニウムが含まれる廃液であり、濃度は 27.3 g/L である。保管されている 257.5 L の廃液に最大濃度のアンモニウムイオンが含まれると仮定した場合、生成される硝酸アンモニウムは約 31 kg となる。硝酸アンモニウムの管理値としては、消防法の 1000 kg、航空法の 10 kg、船舶安全法の 5 kg があるが、安全性を十分に考慮して、廃液貯槽での硝酸アンモニウム重量管理値を 500 g 以下（船舶安全法の 1/10）に設定する。なお、送液予定の廃液貯槽については、液量管理及び冷却水による温度管理を行っており、硝酸アンモニウムの SDS に記載されている取扱いまたは保管時の禁止事項である、摩擦、熱、有機物、可燃物及び還元性物質（アルミニウム、アルミニウム酸化物、無水酢酸）との接触についての可能性はない。

核燃料物質を含有している溶液については、核燃料物質を回収後、核燃料物質を含有していない溶液と同様の処理を実施することとする。

2.16 分析溶液（有機相）

分析溶液（水相）と同様、各種試験で発生した分析試料の分析後溶液である。分析の工程において多種多様な試薬が添加されている。

また、含有される核燃料物質は微量であるがセル等の放射線環境下での放射線分解及び水素の発生等の安全性の問題が懸念されるため、廃液貯槽への送液は想定されておらず、これまで処理方法が未定であった。

まず、CPF に保管中の分析溶液に添加されている試薬について調査を実施した。分析溶液（有機相、核燃料物質無）分類表を表 5、分析溶液（有機相、核燃料物質有）分類表を表 6 に示す。

分析溶液（有機相）の処理として、複数の手法にて並行して検討を行う。核燃料物質の回収については、試験溶液（CMPO, TBP, n-ドデカン）と同様に水酸化ナトリウムによる沈殿処理が適用可能である。核燃料物質を取り除いた溶液の安定化処理については、反応性有機物の分解及びポリマー等による固化処理について検討を実施している。これらの手法については、現在基礎研究の段階であり[20]、今後適切な手法を選定した後に実液処理を実施する。一方、核燃料物質の安定化の観点から、アルカリ沈殿による核燃料物質の回収作業については先行して実施することとした。

3. 処理実績

前章の処理計画に基づき、CPF のホットセル、グローブボックス及びフード内にて溶液の処理を実施してきた。2020 年 12 月末現在における溶液処理の実施状況を下記に記す。

3.1 試験溶液（硝酸,ナトリウム）

核燃料物質を含む溶液（23.6 L）については、沈殿が生成しない条件下（硝酸イオン濃度が 7 M 以下かつナトリウム濃度が 40 g/L 以下）での核燃料物質回収を実施し、核燃料物質を取り除いた溶液はナトリウム濃度、核燃料物質含有量、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。回収した核燃料物質は脱硝した後、酸化物に転換し貯蔵庫に貯蔵した。また、ナトリウム濃度を測定した結果、廃液貯槽内でナトリウムが沈殿しない条件（ナトリウム濃度が 40 g/L 以下）を満たす核燃料物質を少量含有する溶液（70.3 L）は、核燃料物質含有量、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液し、処理が終了した。

3.2 試験溶液（硝酸,フッ化物）

フッ化物の無害化処理として、硝酸カルシウム添加による沈殿処理をグローブボックス内で実施した。無害化処理後、濾過を実施し、核燃料物質を少量含有する濾液（3.5 L）は、フッ化物濃度、核燃料物質含有量、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。また、核燃料物質を含む濾液（1.8 L）については、酸化物に転換し、貯蔵庫で貯蔵した。なお、沈殿処理で発生した濾紙上のフッ化カルシウムは固体廃棄物として廃棄した。

3.3 試験溶液（硝酸,フッ化物,アンモニア）

無害化処理として、フッ化物については硝酸カルシウム添加による沈殿処理、アンモニアについてはオゾン、触媒による酸化分解をグローブボックス内で実施した。処理後の溶液は、フッ化物濃度、アンモニア濃度、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。なお、沈殿処理で発生した濾紙上のフッ化カルシウムは固体廃棄物として廃棄した。

3.4 試験溶液（硝酸,HAN,ヒドラジン）

HAN 及びヒドラジンの無害化処理として、硝酸鉄の添加による酸化分解処理をグローブボックス内で実施した。処理状況を図 2 に示す。

分解処理後の溶液はアンモニア溶液となるため、オゾン、触媒による酸化分解をグローブボックス内で実施した。処理後の溶液は、HAN 濃度、ヒドラジン濃度、アンモニア濃度、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。

3.5 試験溶液（硝酸,乳酸）

乳酸の無害化処理として、硝酸鉄及び過酸化水素水添加によるフェントン反応での酸化分解をホットセル内で実施した。

フェントン法の初期反応は Fe^{2+} の触媒分解反応〔反応(1)〕があり、大量のヒドロキシルラジカルが発生する。ヒドロキシルラジカルは反応性が高いため、反応速度が速く、また、反応時には発熱する（発熱反応）との特徴がある。活性エネルギーの観点から、発熱反応においては温度と反応速度には関係性があるため、温度をコントロールすることで全体の反応を制御を試みた。予

め硝酸鉄を添加した溶液を湯煎にて 60 °C まで加熱した後、過酸化水素水を少量ずつ 20 回に分割して添加した。また、添加中も溶液の温度を監視し、液温が 60 °C～65 °C まで低下したことを確認した上で、次の添加を実施する手順とした。過酸化水素水を全量添加後、反応が完了するまで 70 °C で加熱した。セル内での実液の処理フローを図 3 に、処理状況を図 4 に示す。

分解処理後の溶液は、乳酸濃度、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。

3.6 試験溶液（塩化物,硝酸）

塩化物処理として、硝酸銀添加による沈殿処理をグローブボックス内で実施し、検出下限値未満 (0.4 mg/L) まで取り除いた。処理状況を図 5 に示す。

塩化物処理後、核燃料物質を含まない溶液 (56.7 L) については、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。また、核燃料物質を含むもの (23.1 L) については、酸化物に転換し、貯蔵庫に貯蔵した。なお、処理に伴い発生した沈殿物（塩化銀）は、回収した上で SUS 缶内に保管した。

3.7 試験溶液（塩化物,分析試薬）

沈殿物及び SS を除去するため、濾紙による濾過を実施した。現在、沈殿物及び SS を取り除いた水相溶液を、逆浸透膜 (RO 膜) 装置にて濃縮する作業を実施中である。今後、核燃料物質の回収及びアンモニウムイオン分解作業を実施する予定である。

3.8 試験溶液（塩化物,シュウ酸）

塩化物処理として、硝酸銀添加による沈殿処理をグローブボックス内で実施し、検出下限値未満 (0.4 mg/L) まで取り除いた。塩化物処理後、放射エネルギー及び酸濃度を測定し、廃液貯槽へ送液した。処理に伴い発生した沈殿物（塩化銀）は、回収した上で SUS 缶内に保管した。

3.9 試験溶液（塩化物,ヒドラジン）

ヒドラジンについては、試験溶液（硝酸,HAN,ヒドラジン）と同様の手順で硝酸鉄添加による酸化分解処理をグローブボックス内で実施した。また、塩化物については、試験溶液（塩化物,硝酸）と同様の手順で硝酸銀添加による沈殿処理を実施した。なお、処理後の溶液はアンモニア溶液となるため、オゾン、触媒による酸化分解をグローブボックス内で実施した。処理後の溶液は、ヒドラジン濃度、アンモニア濃度、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。

3.10 試験溶液（塩化物,フェロシアン化物）

フェロシアン化物の処理として、硝酸亜鉛添加による沈殿処理をグローブボックス内で実施した。その後、塩化物処理として、硝酸銀添加による沈殿処理をした後、放射エネルギー及び酸濃度を測定し、廃液貯槽へ送液した。

3.11 試験溶液（リン酸）

リン酸の処理として、事前にモリブデン青吸光光度法によりリン酸濃度を測定した上で (2.7 M)、以下の手順で凝縮沈殿処理をホットセル内で実施した。

まず、1L のポリ容器に試験溶液 (2.7 M リン酸) 250 mL を入れ、そこに 2.16 M 硝酸アルミニウム溶液 317 mL および 20 M 水酸化ナトリウム水溶液 130 mL を添加した。その後、マニブ

レータにて攪拌した上で、ポリ瓶の蓋を開けたまま静置し、自然乾燥を実施した。1 週間後、乾燥したことを目視にて確認した後、ポリ瓶の蓋を閉め、高レベル放射性固体廃棄物として廃棄した。処理状況を図 6 に示す。

3.12 試験溶液（過硫酸アンモニウム）

オゾン吹き込みによるアンモニウムイオン分解処理をグローブボックス内で実施した。なお、アンモニウム濃度はインドフェノール青吸光光度法にて測定した結果、1000 mg/L であった。

始めに、水酸化ナトリウムを添加し、pH を 9 程度に調整した処理対象溶液 0.1L をセパラブルフラスコに入れ、分解処理中の pH をアルカリ性に維持するため酸化マグネシウムを 5 g 添加した。その後、ホットスターラで攪拌及び 60 °C に加熱した後、オゾンを 600 ml/min で 3.5 時間吹き込みを行った。アンモニウムイオン分解後の溶液中のアンモニウム濃度は 294 mg/L であり、生成される硝酸アンモニウムは約 0.1 g と廃液貯槽での硝酸アンモニウム重量管理値 500 g を十分下回っていることから、放射エネルギー及び酸濃度を測定し、廃液貯槽へ送液した。装置構成図を図 7、処理状況を図 8 に示す。

3.13 試験溶液（TBP,n-ドデカン）

希硝酸での逆抽出により核燃料物質を回収後、核燃料物質を取り除いた溶液は廃液貯槽へ送液した。また、回収した核燃料物質は酸化物に転換した上で、貯蔵庫に貯蔵した。

3.14 試験溶液（CMPO,TBP,n-ドデカン）

沈殿物及び SS を除去するため、濾紙による濾過を実施した。また、水酸化ナトリウムを用いた沈殿法により、有機相中の核燃料物質を回収した。沈殿物中の核燃料物質については、硝酸で溶解し、核燃料物質含有量、放射エネルギー及び酸濃度を測定後、廃液貯槽へ送液した。

3.15 分析溶液（水相）

沈殿物及び SS を除去するため、濾紙による濾過を実施し、有機相が含まれる溶液については、油水分離を実施した。現在、沈殿物及び SS を取り除いた水相溶液を、逆浸透膜（RO 膜）装置にて濃縮する作業を実施中である。2021 年初頭より、アンモニウムイオン分解作業を実施する予定である。

3.16 分析溶液（有機相）

沈殿物及び SS を除去するため、濾紙による濾過を実施し、水相が含まれる溶液については、油水分離を実施した。また、水酸化ナトリウムを用いた沈殿法により、有機相中の核燃料物質を回収した。

2021 年 3 月末時点での処理状況を表 7 に示す。保管されていた廃液約 607 L の内、235 L が処理済であり、残量は 372 L である。残った廃液は、多種の試薬が混在したものが主であり、処理にむけて基礎的な研究が必要である。現在、種々の化学種を含む放射性廃液の処理のための技術開発を、原子力機構を中心とした複数の機関との共同研究（STRAD プロジェクト[7]）により実施している。ここで得られた研究成果を、残存する廃液の処理方針の策定に反映し、処理を進めていく予定である。

4. まとめ

CPF では 2015 年 7 月より、保管されている放射性廃液について、管理方法の適正化を図るべく、ホットセルやグローブボックスといった特殊な環境下での廃液処理を実施してきた。処理は、可能な限り常温常圧で行うことを前提として、処理の効率、処理に伴う二次廃棄物の発生量、処理時間等を考慮し、最も合理的な方法を選定した上で実施した。2021 年 3 月末時点において、一部の溶液を除いてその処理方針が確定し、当初保管されていた溶液の約半分の処理が完了した。これらの検討及び処理作業によって得られた知見や経験は、CPF のみならず発電炉、研究所や医療機関をはじめとした、放射性物質を取り扱う施設で蓄積されている廃液及び将来的に発生する廃液の処理に貢献できると考えられる。

また、現在進行中の STRAD プロジェクトにおいては、処理が困難な多種の試薬が含有する廃液について処理方法の研究開発を実施しており、その結果について CPF の実廃液処理で安全性、効率性等を実証することで、試薬を取り扱う多くの分野における廃液処理に貢献できると考えられる。今後も研究開発を継続するとともに、他の実験施設等における放射性廃液の処理に関する需要も調査し、国内のみならず海外施設との情報交換及び協力も積極的に進めていく予定である。

謝辞

溶液処理方法の検討及び実液の処理にあたっては、研究開発第 1 課所属株式会社アセンドの岩佐和宏氏、行川淳氏、河合雅史氏に多大なご協力を頂きました。ここに記し、心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1] K. Nomura, H. Ogi, M. Nakahara, S. Watanabe and A. Shibata, “Waste management in a hot laboratory of Japan Atomic Energy Agency – 1; Overview and activities in Chemical Processing Facility”, International Journal of Nuclear and Quantum Engineering(Internet) , 13, 5, pp.209-212 (2019).
- [2] 木田孝 他, “硝酸溶液中硝酸ヒドラジンの安全性試験”, JAERI-Tech 2004-019 (2004), 30p.
- [3] 岸本洋一郎 他, “高速炉燃料リサイクル試験(16)第 11 回ホット試験”, PNC TN8410 88-026 (1988), 192p.
- [4] T. Shimamura, N. Ishida and M-T. Gao, “L-lactic Acid Fermentation under Non-neutralizing Conditions and Oligomerization”, R&D Review of Toyota CRDL, 43, 2, pp.17-24 (2012).
- [5] 村田雅洋 他, “溶媒抽出法による醗酵液からの乳酸回収方法の検討”, SCEJ 70th Annual Meeting, G118 (2005).
- [6] K. Dutta, S. Mukhopadhyay, S. Bhattacharjee and B. Chaudhuri, “Chemical oxidation of methylene blue using a Fenton-like reaction”, Journal of Hazardous Materials, 84, 1, pp.57-71 (2001).
- [7] S. Watanabe, H. Ogi, Y. Arai, H. Aihara, Y. Takahatake, A. Shibata, K. Nomura, Y. Kamiya, N. Asanuma, H. Matsuura, T. Kubota, N. Seko, T. Arai, T. Moriguchi, “STRAD project for systematic treatments of radioactive liquid wastes generated in nuclear facilities”, Progress in Nuclear Energy, 117, 103090 (2019).
- [8] K. Tada, S. Kitawaki, S. Watanabe, H. Aihara, A. Shibata, K. Nomura, “Research of Process to Treat the Radioactive Liquid Waste Containing Chloride Ion Generated by Pyroprocessing Plant in Operating”, Proceedings of GLOBAL 2017, Seoul Korea, September 2017, (2017).
- [9] Y. Takahatake, S. Watanabe, A. Shibata, K. Nomura and Y. Koma, “Decontamination of radioactive liquid waste with hexacyanoferrate(II)”, Procedia Chemistry, 7, pp.610-615 (2012).
- [10] M. Vippola, J. Karänen, X. Zou, S. Hovmöller, T. Lepistö and T. Mäntylä, “Structural Characterization of Aluminum Phosphate Binder”, Journal of American Ceramic Society, 83, 7, pp.1834-1836 (2004).
- [11] C. L. Mulcahy and W. J. Clegg, “Increase the Effectiveness of Aluminum Phosphate Binders”, Key Engineering Materials, 317-318, pp.355-358, (2006).
- [12] Y. Koma, M. Watanabe, S. Nemoto and Y. Tanaka, “A counter current experiment for the separation of trivalent actinides and lanthanides by the SETFICS process”, Solvent Extraction and Ion Exchange, 16, 6, pp.1357-1367 (1998).
- [13] Y. Arai, S. Watanabe, T. Kubota, K. Nomura, “Radioactive nuclides recovery from spent solvent in STRAD project (1) Zr recovered by alkaline solutions”, Proceedings of DEM 2018, Avignon France, October 2018 (2018).
- [14] S. Watanabe, Y. Arai, H. Ogi, M. Nakamura, A. Shibata, T. Osugi, T. Taniguchi, T. Sone

- and K. Nomura, “Treatment of spent solvent in STRAD project”, Book of Abstract, HOTALAB2019, Mamallapuram India (2019).
- [15] I. Schmidt, O. Sliekers, M. Schmid, E. Bock, J. Fuerst, J.G. Kuenen, M.S.M. Jetten and M. Strous, “New concepts of microbial treatment processes for the nitrogen removal in wastewater”, FEMS Microbiology Reviews, 27, pp.481-492 (2003).
- [16] S. Imamura, A. Doi and S. Ishida, “Wet oxidation of ammonia catalyzed by cerium-based composite oxides”, Industrial & Engineering Chemistry Product Research and Development, 24, pp.75-80, (1985).
- [17] W. J. Eilbeck, “Redox control in breakpoint chlorination of ammonia and metal ammine complexes”, Water Research, 18, 1, pp.21-24 (1984).
- [18] S. Ichikawa, L. Mahardiani and Y. Kamiya, “Catalytic oxidation of ammonium ion in water with ozone over metal oxide catalysts”, Catalysis Today, 232, pp.192-197 (2014).
- [19] H. Aihara, S. Watanabe, K. Nomura, Y. Kamiya, “Development of treatment method for analytical waste solutions in STRAD project (1) Oxidative decomposition of ammonium ion with catalyst”, Proceedings of DEM 2018, Avignon France, October 2018 (2018).
- [20] S. Watanabe, H. Ogi, A. Shibata and K. Nomura, “Waste Management in a Hot Laboratory of Japan Atomic Energy Agency – 2: Condensation and Solidification Experiments on Liquid Waste”, International Journal of Nuclear and Quantum Engineering (Internet), 13, 4, pp.169-174 (2019).
- [21] 辻信雄 他, “再処理工程における標準分析方法(Ⅱ)工程分析編”, PNC TN852 79-08 (1979), 305p.
- [22] 佐藤均 他, “再処理確性試験のための分析法”, PNC TN841 72-24 (1972), 86p.

表 1 保管溶液の分類

発生由来	水相・有機相	含有試薬等	核燃料物質の有無	保管量(L)
試験溶液	水相	硝酸,ナトリウム	有 (少量)	70.3
		硝酸,ナトリウム	有	23.6
		硝酸,フッ化物	有 (少量)	3.5
		硝酸,フッ化物	有	1.8
		硝酸,フッ化物,アンモニア	無	3.1
		硝酸,HAN,ヒドラジン	無	0.4
		硝酸,乳酸	無	40.0
		塩化物,硝酸	無	56.7
		塩化物,硝酸	有	23.1
		塩化物,分析試薬	有	2.0
		塩化物,シュウ酸	無	6.5
		塩化物,ヒドラジン	無	0.9
		塩化物,フェロシアン化物	無	2.4
		リン酸	無	1.6
		過硫酸アンモニウム	無	0.1
	有機相	TBP, n-ドデカン	有	0.7
		CMPO, TBP, n-ドデカン	有	37.5
分析溶液	水相	分析試薬 (硫酸アンモニウム等)	無	102.1
			有	155.4
	有機相	分析試薬 (n-ドデカン等)	無	16.1
			有	58.9
			合計	606.7

表 2 技術検討委員会 議題一覧 (1/2)

開催番号	開催日時	議題
1	2015 年 12 月 15 日	①CPF 保管溶液処理に係る対応計画 ②個別処理計画 ・リン酸 ・HAN ・乳酸 ・ナトリウム ・試験溶液（有機相）
2	2016 年 1 月 22 日	①進捗状況説明（コールド試験結果報告） ・リン酸 ・HAN ・乳酸 ②個別処理計画 ・塩化物 ・ヒドラジン ・フェロシアン化物 ・分析溶液（水相）
3	2016 年 3 月 31 日	①進捗状況説明（コールド試験結果報告） ・リン酸 ・HAN ・乳酸 ・塩化物 ②個別処理計画 ・分析溶液（水相）
4	2016 年 10 月 5 日	①実液処理報告 ・リン酸 ・塩化物 ②進捗状況説明（コールド試験結果報告） ・HAN、ヒドラジン ・乳酸 ③個別処理計画 ・分析溶液（水相） ・試験溶液（有機相）

表 2 技術検討委員会 議題一覧 (2/2)

開催番号	開催日時	議題
5	2017 年 3 月 24 日	①実液処理報告 ・ HAN、ヒドラジン ・ 塩化物 ②進捗状況説明（コールド試験結果報告） ・ 乳酸 ・ 試験溶液（有機相） ・ 分析溶液（水相） ③個別処理計画 ・ ナトリウム
6	2017 年 9 月 14 日	①実液処理報告 ・ 乳酸 ②進捗状況説明（コールド試験結果報告） ・ ナトリウム ・ フッ化物 ・ 試験溶液（有機相） ・ 分析溶液（水相） ③個別処理計画 ・ シュウ酸 ・ 分析試薬（有機相）
7	2018 年 8 月 31 日	①実液処理報告 ・ ナトリウム ・ フェロシアン化物 ・ フッ化物 ・ 塩化物 ②進捗状況説明（コールド試験結果報告） ・ 試験溶液（有機相） ・ 分析試薬（水相） ・ 分析溶液（有機相） ③個別処理計画 ・ シュウ酸 ・ 分析試薬（水相）
8	2020 年 11 月 2 日	①進捗状況説明（コールド試験結果報告） ・ 試験溶液（有機相） ・ 分析溶液（有機相） ②個別処理計画 ・ 分析溶液（水相）

表 3 分析溶液（水相,核燃料物質無）分類表（1/2）

分析項目	含有試薬	液量(L)
Pu 分析 1,酸分析	過硫酸アンモニウム、硝酸銀、スルファミン酸、硝酸、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、アスコルビン酸	25.13
Pu 分析 1,酸分析, Np 分析 1	過硫酸アンモニウム、硝酸銀、スルファミン酸、硝酸、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、アスコルビン酸、硫酸第一鉄、ヒドラジン	2.0
Pu 分析 2,酸分析	硫酸、硝酸、硫酸第一鉄アンモニウム、スルファミン酸、硫酸第二セリウムアンモニウム、重クロム酸カリウム、過酸化銀、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム	3.0
Pu 分析 2	硫酸、硝酸、硫酸第一鉄アンモニウム、スルファミン酸、硫酸第二セリウムアンモニウム、重クロム酸カリウム、過酸化銀	2.0
Pu 分析 1,酸分析, Np 分析 2	スルファミン酸、還元鉄、硝酸銀、硫酸アンモニウム、TTA、キシレン、水酸化ナトリウム、過硫酸アンモニウム	6.1
微量 Pu 分析	HAN、亜硝酸ナトリウム、硫酸第一鉄、スルファミン酸	1.25
Np 分析 1	硫酸第一鉄、ヒドラジン、硝酸	0.55
Np 分析 2	スルファミン酸、還元鉄、硝酸銀、TTA、キシレン	13.8
Np 分析 1, Np 分析 2	スルファミン酸、還元鉄、硝酸銀、硫酸アンモニウム、TTA、キシレン、水酸化ナトリウム、過硫酸アンモニウム、硝酸	2.2
MS 分析	硫酸第一鉄、スルファミン酸、亜硝酸ナトリウム、アスコルビン酸	0.4
アンモニア分析	フェノール、ニトロプルシドナトリウム、次亜塩素酸ナトリウム、水酸化ナトリウム	0.85
アジ化水素分析	硝酸第二鉄、アジ化ナトリウム、硝酸	0.15
電気泳動	硝酸、βアラニン、酢酸ナトリウム、TBP・ドデカン、リン酸ジブチル、プロパノール、トリトン X、メタノール	3.7
DBP 分析	硝酸、水酸化ナトリウム、DBP、アルコール	0.8
酸分析	硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム	4.0
酸分析,MS 分析	硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、硫酸第一鉄、スルファミン酸、亜硝酸ナトリウム、アスコルビン酸	2.0
福島試料 Pu 分析	硫酸第一鉄、スルファミン酸、亜硝酸ナトリウム、アスコルビン酸、硝酸	0.25
福島試料 Am 分析	過酸化水素、シュウ酸、硝酸	0.1
洗浄廃液	エタノール	1.8

表 3 分析溶液（水相,核燃料物質無）分類表（2/2）

分析項目	含有試薬	液量(L)
セル内雑廃液	硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、ヒドラジン、HAN、硫酸ヒドロキシルアミン、過硫酸アンモニウム、硝酸銀、スルファミン酸、スルファミン酸第一鉄、硝酸、TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA	32.0

Pu 分析 1：水相試料中の Pu 分析方法（過酸化銀酸化－プルトニウム(VI)直接吸光光度法） [21]

Pu 分析 2：水相試料中の Pu 分析方法（過酸化銀酸化－鉄(II)還元－硫酸第二セリウムアンモニウム逆滴定法） [22]

酸分析：水相及び有機相試料中の遊離酸分析方法（硫酸アンモニウム－電位差滴定法） [21]

Np 分析 1： ^{237}Np の分析方法（固相抽出分離－ α 波高分析法）

Np 分析 2： ^{237}Np の分析方法（TTA-キシレン抽出分離－ α 波高分析法）

微量 Pu 分析：高レベル放射性溶液中の微量 Pu 分析方法（ α 波高分析法）

アンモニア分析：水相試料中のアンモニア分析方法（インドフェノール直接吸光光度法）

アジ化水素分析：水相試料中のアジ化水素分析方法（硝酸第二鉄吸光光度法）

MS 分析：U、Pu 濃度分析法（同位体希釈）

電気泳動：水相及び有機相試料中のリン酸ジブチル分析方法（電気泳動法）

DBP 分析：水相試料中の DBP の分析方法（赤外分光光度法）

福島試料 Pu 分析：Pu の分析方法（固相抽出分離－ α 波高分析法）

福島試料 Am 分析： ^{241}Am の分析方法（固相抽出分離－ α 波高分析法）

表 4 分析溶液（水相、核燃料物質有）分類表

分析項目	含有試薬	液量(L)
酸分析	硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム	2.8
酸分析（微量有機相含む）	硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、TBP・ドデカン	2.1
Pu 分析 3	硫酸ヒドロキシルアミン、過硫酸アンモニウム、硝酸銀、スルファミン酸、硝酸、TBP・ドデカン	1.77
Pu 分析 2	過硫酸アンモニウム、硝酸銀、スルファミン酸、硝酸	2.3
Np 分析 1,MS 分析	硫酸第一鉄、ヒドラジン、硝酸、スルファミン酸、亜硝酸ナトリウム、アスコルビン酸	11.29
Pu 分析 1,酸分析	過硫酸アンモニウム、硝酸銀、スルファミン酸、硝酸、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム	29.34
Pu 分析 1,Pu 分析 3, 酸分析	硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、スルファミン酸、硫酸ヒドロキシルアミン、過硫酸アンモニウム、硝酸銀、硝酸、TBP・ドデカン	28.08
アルカリ溶融液	過酸化ナトリウム、炭酸ナトリウム	1.0
セル内雑廃液	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、硫酸ヒドロキシルアミン、過硫酸アンモニウム、硝酸銀、スルファミン酸、TBP・ドデカン、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、硫酸ヒドロキシルアミン、硝酸銀、過硫酸アンモニウム、スルファミン酸、TBP・ドデカン、炭酸ナトリウム、HAN、ヒドラジン、p-ジメチルアミノベンズアルデヒド	76.67

Pu 分析 3: 有機相試料中の Pu 分析方法(硫酸ヒドロキシルアミン逆抽出ー過酸化銀酸化ープルトリウム(VI) 直接吸光光度法) [21]

表 5 分析溶液（有機相,核燃料物質無）分類表

分析項目	含有試薬	液量(L)
U 分析 1	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸	6.12
U 分析 2	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、TBP・ドデカン	0.5
Np 分析 2	スルファミン酸、還元鉄、硝酸銀、TTA、キシレン	1.8
U 分析 1、Pu 分析 3	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、硫酸ヒドロキシルアミン、硝酸銀、過硫酸アンモニウム、スルファミン酸、TBP・ドデカン	1.0
U 分析 1、Pu 分析 3、Np 分析 1	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、硫酸ヒドロキシルアミン、硝酸銀、過硫酸アンモニウム、スルファミン酸、硫酸第一鉄、ヒドラジン、TBP・ドデカン	0.55
U 分析 1、酸分析 1、Np 分析 1、MS 分析	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、スルファミン酸、還元鉄、硝酸銀、TTA、キシレン、TBP・ドデカン	3.6
DBP 分析	硝酸、水酸化ナトリウム、DBP	1.0
分析装置廃液	TBP・ドデカン	0.8
	液体シンチレータ	0.49
四塩化炭素廃液	四塩化炭素、エタノール	0.2

U 分析 1：水相試料中の U 分析方法（TOPO・酢酸エチル抽出ージベンゾイルメタン吸光光度法）[21]

U 分析 2：有機相試料中の U 分析方法（希硝酸逆抽出ーTOPO・酢酸エチル抽出ージベンゾイルメタン吸光光度法）

表 6 分析溶液（有機相、核燃料物質有）分類表

分析項目	含有試薬	液量(L)
U 分析 1	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸	21.7
U 分析 1、酸分析 1	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム	3.35
U 分析 2、酸分析 1	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、硫酸アンモニウム、水酸化ナトリウム、硫酸ヒドロキシルアミン、TBP-ドデカン	15.75
U 分析 2、酸分析 1 (硫酸アンモニウム未使用)	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、水酸化ナトリウム、硫酸ヒドロキシルアミン、TBP-ドデカン	2.7
U 分析 2、酸分析 1、 Np 分析 1	TOPO、酢酸エチル、ジベンゾイルメタン、ピリジン、アスコルビン酸、エタノール、硝酸マグネシウム、EDTA、硝酸、硫酸ヒドロキシルアミン、硝酸銀、過硫酸アンモニウム、スルファミン酸、TBP-ドデカン	15.35

表 7 保管溶液処理状況

発生由来	水相・有機相	含有試薬等	核燃料物質の有無	保管量 (L)	処理状況
試験溶液	水相	硝酸,ナトリウム	有 (少量)	70.3	処理終了
		硝酸,ナトリウム	有	23.6	処理終了
		硝酸,フッ化物	有 (少量)	3.5	処理終了
		硝酸,フッ化物	有	1.8	処理終了
		硝酸,フッ化物,アンモニア	無	3.1	処理終了
		硝酸,HAN,ヒドラジン	無	0.4	処理終了
		硝酸,乳酸	無	40.0	処理終了
		塩化物,硝酸	無	56.7	処理終了
		塩化物,硝酸	有	23.1	処理終了
		塩化物,分析試薬	有	2.0	処理中
		塩化物,シュウ酸	無	6.5	処理終了
		塩化物,ヒドラジン	無	0.9	処理終了
		塩化物,フェロシアン化物	無	2.4	処理終了
		リン酸	無	1.6	処理終了
		過硫酸アンモニウム	無	0.1	処理終了
	有機相	TBP,n-ドデカン	有	0.7	処理終了
		CMPO,TBP,n-ドデカン	有	37.5	処理中
分析溶液	水相	分析試薬 (硫酸アンモニウム等)	無	102.1	処理中
			有	16.1	処理中
	有機相	分析試薬 (n-ドデカン等)	無	155.4	処理中
			有	58.9	処理中

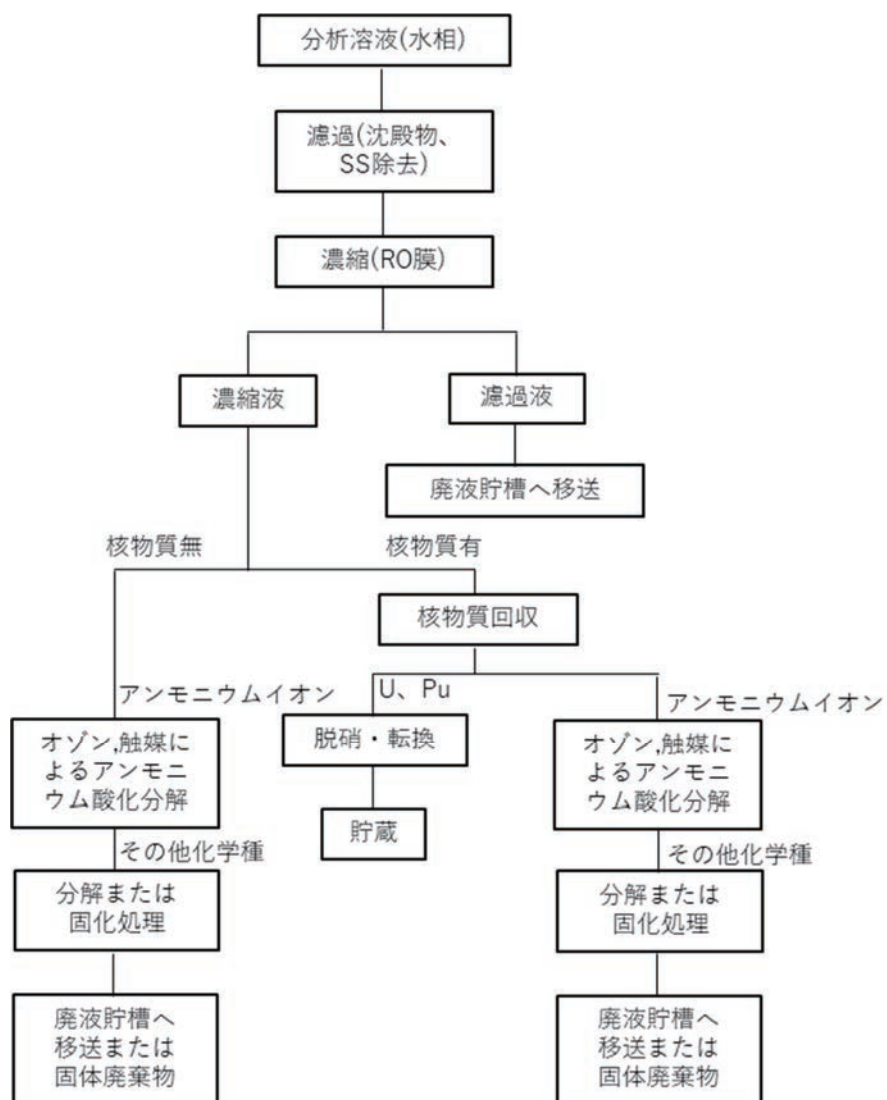


図 1 分析溶液（水相）フロー案

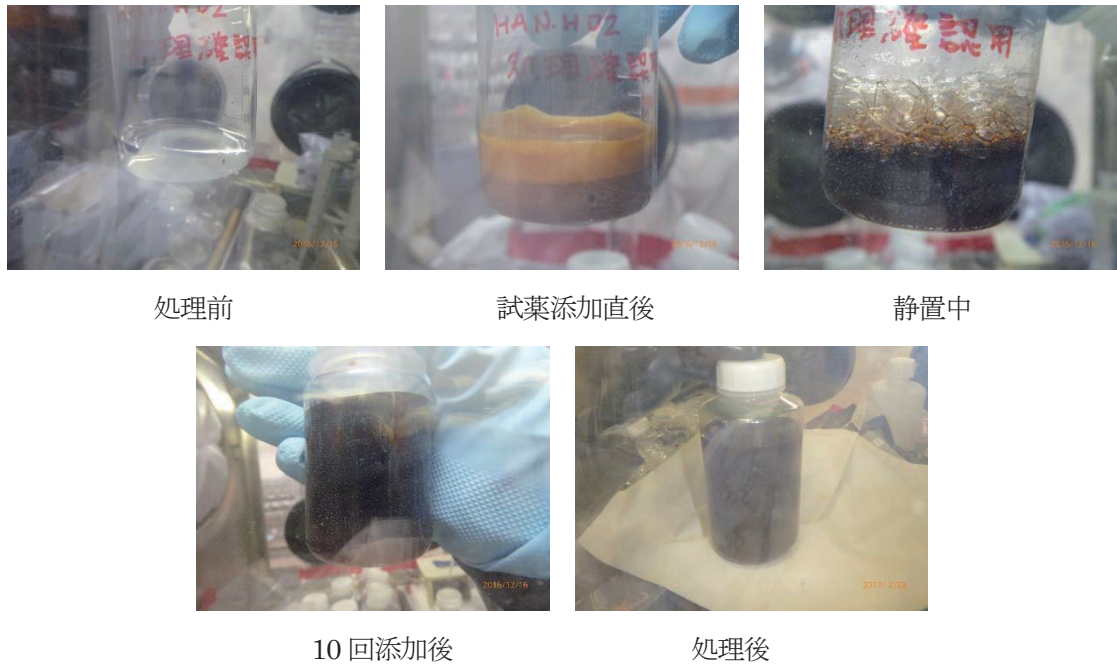


図 2 試験溶液（硝酸,HAN,ヒドラジン）処理状況

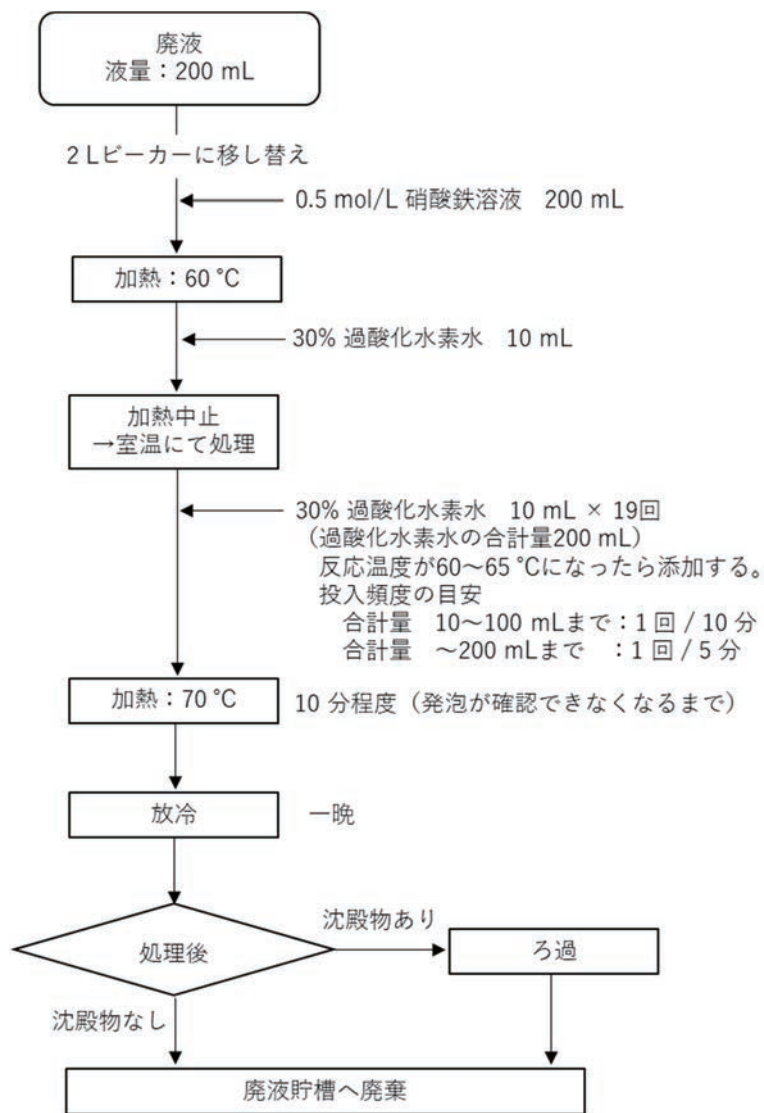


図 3 試験溶液（硝酸,乳酸）処理フロー



図 4 試験溶液（硝酸,乳酸）処理状況



図 5 試験溶液（塩化物,硝酸）処理状況

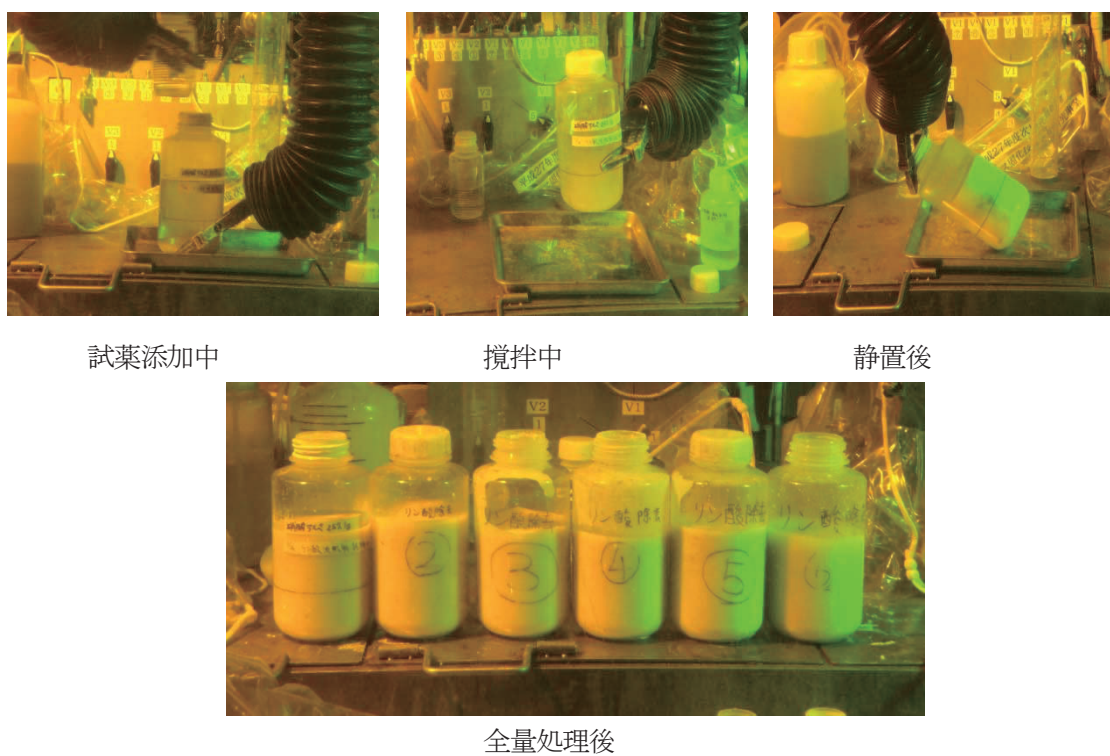


図 6 試験溶液（リン酸）処理状況

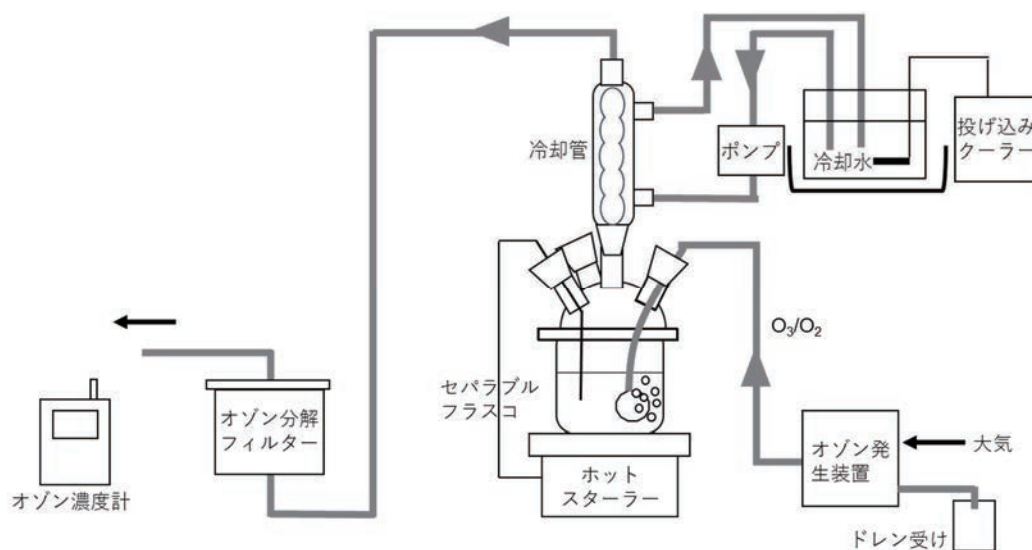


図 7 アンモニウムイオン分解装置構成図



図 8 試験溶液（過硫酸アンモニウム）処理状況

This is a blank page.

