



## 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発

— Cs・Sr 分離技術開発 —

(受託研究)

Development of Separation Technology of Transuranium Elements and Fission Products

by Using New Extractants and Adsorbents

-Development of Separation Technology of Cs and Sr-

(Contract Research)

星 陽崇 菊池 孝浩 朝倉 俊英 森田 泰治 木村 貴海

Harutaka HOSHI, Takahiro KIKUCHI, Toshihide ASAKURA, Yasuji MORITA  
and Takaumi KIMURA

原子力基礎工学研究部門  
燃料・材料工学ユニット

Division of Fuels and Material Engineering  
Nuclear Science and Engineering Directorate

July 2010

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA  
Research

本レポートは独立行政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。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:[ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, 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](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発  
— Cs・Sr 分離技術開発 —  
(受託研究)

日本原子力研究開発機構  
原子力基礎工学研究部門 燃料・材料工学ユニット  
星 陽崇\*、菊池 孝浩\*\*、朝倉 俊英、森田 泰治、木村 貴海<sup>+</sup>

(2010年4月13日受理)

使用済核燃料の再処理で発生する高レベル廃液から発熱性の Cs 及び Sr を、抽出剤含浸吸着剤を用いて選択的に分離回収する方法を研究した。本研究で調製したカリックスクラウン誘導体を用いる Cs 吸着剤は、Cs に対して極めて高い選択性を示し、Cs を選択的に分離回収できることが明らかになった。また、カラム法での利用時にも、含浸吸着剤からの抽出剤の溶出は極少量であり、動的飽和吸着容量はほとんど減少しないことが確認できた。更に、 $\gamma$ 線に対する耐久性も高く、想定される線量ではほとんど動的飽和吸着容量が減少しないことが分かった。一方、クラウンエーテル誘導体を用いる Sr 吸着剤は、Ba 及び Tc が挙動を共にするものの、Sr 対して高い選択性を示し、高濃度硝酸溶液から Sr を選択的に分離回収できることが明らかになった。カラム法での利用時には少量の抽出剤が含浸吸着剤から水相へと溶け出すため、繰り返し利用すると動的飽和吸着容量が減少した。また、 $\gamma$ 線の照射により動的飽和吸着容量が減少し、想定される線量では約 30% 低下した。

加えて、NUCEF に貯蔵された実 HLLW を使用して、Cs 分離試験及び Sr 分離試験をカラム法で実施した。コールド試験で得られた結果と同様に、良好な分離結果が得られ、ホット試験でも不具合あるいは顕著な挙動の相違は見られなかった。最後に、想定される分離スキームに従ったフロー試験を実施し、上流側で添加されることが想定される錯形成剤等の影響を調べた。その結果、錯形成剤等の影響を受けず、Cs 及び Sr は効果的に他の FP 元素から分離回収された。本分離手法は、高濃度硝酸溶液から選択的に Cs 及び Sr を分離するためには、非常に有望であることが示された。

---

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、独立行政法人日本原子力研究開発機構が実施した平成 19 年度～平成 21 年度「新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発」の成果です。

原子力科学研究所(駐在)：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
+環境・放射線工学ユニット

\* 独立行政法人原子力安全基盤機構      \*\* 日揮株式会社

Development of Separation Technology of Transuranium Elements and Fission Products by Using New  
Extractants and Adsorbents  
— Development of Separation Technology of Cs and Sr —  
(Contract Research)

Harutaka HOSHI\*, Takahiro KIKUCHI\*\*, Toshihide ASAOKURA, Yasuji MORITA  
and Takaumi KIMURA<sup>+</sup>

Division of Fuels and Material Engineering, Nuclear Science and Engineering Directorate  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 13, 2010)

We have studied selective separation of Cs and Sr, which are included in high level liquid waste (HLLW) generated from reprocessing of spent nuclear fuel and are major heat generators, by using novel extractant impregnated adsorbents. Cs adsorbent prepared in this study using calix arane derivatives as an extractant showed excellent selectivity for Cs. Leakage of the extractant from the adsorbent through a packed column was negligibly small and dynamic capacity of Cs hardly decreased. In addition, it also showed significant stability against gamma irradiation; dynamic capacity of Cs was maintained after gamma irradiation. Sr adsorbent using crown ether derivatives as an extractant also showed high selectivity for Sr from nitric acid solution, except for Ba and Tc. Dynamic capacity of Sr decreased after the column was used repeatedly, because small amount of the extractant was leaked from the adsorbent into aqueous phase. Dynamic capacity decreased ca. 30% after gamma irradiation. Hot test using genuine HLLW stored in NUCEF was performed for separation of Cs and Sr through columns, respectively. Each Cs and Sr was separated from other typical fission product elements as well as the results obtained in preliminary experiments. Finally, Cs and Sr were separated according to a supposed separation scheme. Although some complexing agents were added in simulate HLLW, no negative effect was found.

Keywords: Cs, Sr, HLLW, Solvent Impregnated Resin, Column Separation, Irradiation

---

Present study includes the result of “Development of separation technology of transuranium elements and fission products by using new extractants and adsorbents” entrusted to JAEA by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan (MEXT).

+ Division of Environment and Radiation Science

\* Japan Nuclear Energy Safety Organization, \*\*JGC Corporation

## 目 次

1. 緒言 .....	1
2. Cs 分離技術開発 .....	3
2.1 吸着剤基本性能 .....	3
2.1.1 実験 .....	3
2.1.2 結果と考察 .....	4
2.2 改質剤の効果 .....	5
2.2.1 実験 .....	5
2.2.2 結果と考察 .....	6
2.3 照射試験 .....	7
2.3.1 実験 .....	7
2.3.2 結果と考察 .....	7
2.4 放射性核種を用いたカラム分離 .....	9
2.4.1 実験 .....	9
2.4.2 結果と考察 .....	9
2.5 実液試験 .....	10
2.5.1 実験 .....	10
2.5.2 結果と考察 .....	11
3. Sr 分離技術開発 .....	12
3.1 吸着剤基本性能 .....	12
3.1.1 実験 .....	12
3.1.2 結果と考察 .....	12
3.2 改質剤の効果 .....	13
3.2.1 実験 .....	13
3.2.2 結果と考察 .....	13
3.3 照射試験 .....	15
3.3.1 実験 .....	15
3.3.2 結果と考察 .....	15
3.4 放射性核種を用いたカラム分離 .....	16
3.4.1 実験 .....	16
3.4.2 結果と考察 .....	16
3.5 実液試験 .....	17
3.5.1 実験 .....	17

3.5.2 結果と考察 .....	17
4. プロセスフロー試験 .....	19
4.1 目的 .....	19
4.2 実験 .....	19
4.3 結果と考察 .....	19
4.4 まとめ .....	20
5. 結言 .....	21
謝辞 .....	21
参考文献 .....	22

## Contents

1. Introduction.....	1
2. Separation of Cs .....	3
2.1 Characterization of adsorbents .....	3
2.1.1 Experimental.....	3
2.1.2 Results and discussion .....	4
2.2 Effect of modifier .....	5
2.2.1 Experimental.....	5
2.2.2 Results and discussion .....	6
2.3 Irradiation test .....	7
2.3.1 Experimental.....	7
2.3.2 Results and discussion .....	7
2.4 Column separation using radioactive nuclides .....	9
2.4.1 Experimental.....	9
2.4.2 Results and discussion .....	9
2.5 Hot test.....	10
2.5.1 Experimental.....	10
2.5.2 Results and discussion .....	11
3. Separation of Sr .....	12
3.1 Characterization of adsorbents .....	12
3.1.1 Experimental.....	12
3.1.2 Results and discussion .....	12
3.2 Effect of modifier .....	13
3.2.1 Experimental.....	13
3.2.2 Results and discussion .....	13
3.3 Irradiation test .....	15
3.3.1 Experimental.....	15
3.3.2 Results and discussion .....	15
3.4 Column separation using radioactive nuclides .....	16
3.4.1 Experimental.....	16
3.4.2 Results and discussion .....	16
3.5 Hot test.....	17
3.5.1 Experimental.....	17

3.5.2 Results and discussion .....	17
4. Process flow test .....	19
4.1 Introduction .....	19
4.2 Experimental .....	19
4.3 Results and discussion .....	19
4.4 Conclusions .....	20
5. Concluding Remarks .....	21
Acknowledgement .....	21
References .....	22

## 1. 緒言

わが国において使用済核燃料(SF)の再処理で発生する高レベル廃液(HLLW)は、ガラス固化して30～50年間貯蔵した後に地層処分する計画が進められている<sup>1)</sup>。処分コストの削減及び限られた処分場の有効利用の観点から、廃棄物の減容化を図ることが重要である。SF中のCsとSrは高発熱性により、HLLWの処理処分に大きなインパクトを与える核分裂生成物(FP)元素である。使用済FBR-MOX燃料(平衡取り出し燃料)1t当たりのCs及びSrの重量組成、崩壊熱(平均燃焼度約70GWd/tHM, 冷却期間4年, ORIGEN2計算値)はSr:  $8.77 \times 10^2$  g,  $4.46 \times 10^2$  W(Sr+Y); Cs:  $7.11 \times 10^3$  g,  $1.46 \times 10^3$  W(Cs+Ba)である<sup>2)</sup>。

一方、CsとSrの主要核種<sup>137</sup>Cs及び<sup>90</sup>Srは強い放射能を持っているものの半減期が約30年と短く、従ってCs・Srを他のFPやTRUと分別して減衰貯蔵・浅地層処分を講じることは可能である<sup>3)</sup>。核燃料サイクル開発機構(当時)等の評価結果によれば、Cs・Srの分離／合理的な処置を導入するHLLW処分シナリオは、Cs・Srを分離しない場合に比べガラス固化体の本数が25～40%削減できる<sup>4,5)</sup>。分離回収したCs、Srは線源や熱源としての有効利用が可能である。従って、SFからCs、Srを分離すれば、固化体本数の顕著な削減及び冷却期間の大幅な短縮が可能となり、HLLW処理処分の経済性向上、環境負荷低減、資源有効利用の観点から極めて重要な意義がある。本研究ではFig. 1に示す分離スキームを想定している。即ち、HLLWからマイナーアクチニドを分離回収後、脱硝等の付加プロセスを経ずに、高濃度硝酸溶液から直接Cs及びSrを順に分離回収するプロセスである。

Cs、Sr分離研究は早くから原子力先進諸国で行われてきた<sup>6-10)</sup>。分離技術は吸着法と溶媒抽出法に大別できる。吸着法では、ゼオライト、チタン酸塩、不溶性フェロシアン化物等の無機吸着剤が用いられている。しかしながら、水素イオンや共存元素の競争吸着による妨害、中和・脱硝前処理による二次廃棄物発生、遅い吸着速度(多くの場合)、粉末状吸着剤のカラム吸着操作への適用が困難であること等の課題があり、効率的な分離プロセスは実現しにくいと考えられる。

近年、溶媒抽出法は主流であり、CsやSrに高い選択性を示すカリックスクラウン誘導体やクラウンエーテル大環状化合物抽出剤<sup>11-27)</sup>が開発されている。代表的なものは、Calix[4]arene crown 6が最もCs分離に適しているとされた仏CEA(フランス原子力庁)のCCCEX<sup>28-31)</sup>や米ORNL(オークリッジ国立研究所)とINEEL(アイダホ国立工学環境研究所)の抽出剤としてCalix[4]arene-bis(tert-octylbenzo-crown-6)(BOBCalixC6)を用いてアルカリ性廃液からのCs分離を目的としているCSSX<sup>32-34)</sup>プロセスである。Crown孔内径をCs(I)・Sr(II)イオンの捕捉に適合したサイズに制御することで、極めて高い選択性を有する。また、クラウン誘導体は通常の有機化合物抽出剤に比べ耐放射線性が優れないと報告されている<sup>10)</sup>。

一方、これらの大環状化合物は常用の炭化水素希釈剤ドデカン、ケロシン、ベンゼン等への溶解性が乏しいことが大きな欠点である。このため、上記CCCEX、CSSXプロセスではニトロベンゼンやニトロフェニルオクチルエーテル等の特殊希釈剤を使用したり、仏国ではドデカンと同等の希釈剤として使われているTPH(tetrapropylhydrogencene)を使用する場合でも飽和濃度が0.001～0.1M(=mol/dm<sup>3</sup>)とかなり低い<sup>8,9)</sup>。さらに第三相形成を抑制するために種々の有機調整剤を多量に添加する。抽出剤濃度が低いため溶媒使用量が多くなり、容量の大きな多段設備が必要であり、

後処理が困難な放射性有機廃液を多く発生する。さらに、溶媒の化学的不安定性に由来する安全性の問題も抱えている。

以上の動向をふまえ、近年開発された Cs・Sr に対し高い選択性を有するカリックスクラウン誘導体やクラウンエーテルを多孔性担体粒子に含浸担持し、カラムに充填して、抽出クロマトグラフ法による革新的な分離技術の研究開発を行った。含浸吸着剤を用いることで、希釈剤を用いる必要が無くなるため、使用する有機溶媒は吸着剤に含浸させる抽出剤と改質剤のみとなり、有機溶剤の使用量を大幅に低減できる。本研究では多孔性シリカの表面にスチレンジビニルベンゼンを添着させた複合担体<sup>35,36)</sup>を使用した。小粒径の多孔性シリカベース担体に担持されるため、既存有機吸着剤に比べイオンの拡散・吸脱着速度が著しく向上し、カラム内の圧損が小さく、高流速通液ができる。このように、本技術は上述した溶媒抽出法や従来の吸着剤の欠点を克服でき、十分な経済性・効率性を有する革新的な分離回収技術の実現が期待できる。

## 2. Cs 分離技術開発

### 2.1 吸着剤基本性能

#### 2.1.1 実験

平均粒径 50 μm のポーラスシリカにスチレンジビニルベンゼンポリマーを添着させた担体に、Fig. 2 に示す 1,3-[(2,4-diethyl-heptylethoxy)oxy]-2,4-crown-6-calix[4]arene (Calix) 抽出剤及び改質剤としてドデカノール、オクタデカノール又はヘキサデカノールを含浸させて吸着材を調製した。含浸方法等については既報に詳述されている<sup>37,38)</sup>。以下、特に断らない限り合成した吸着剤は「含浸させた抽出剤 + 改質剤 (改質剤と抽出剤のモル比: 改質剤 ÷ 抽出剤)”と表記した [例 : Calix + n-dodecanol (1.25)]。

吸着剤の組成は熱質量分析(TG)による重量減少から調べた。測定は、窒素気流中で室温～600°Cまで昇温速度 10°C/min で行った。Calix の分解温度は 370°C以上であるが、この温度は担体に含まれる、ポリスチレンジビニルベンゼンの分解温度とほぼ同じであるため、Cs 吸着剤中の Calix 含浸量は重量減少から直接求めることはできない。このため、担体の TG 測定も行い、担体中のポリスチレンジビニルベンゼンの重量を求めた(15wt%)。そこから各吸着剤中に含まれるポリスチレンジビニルベンゼン重量( $W_p$ )を式(1)に従って求めた。

$$W_p = \frac{W_f}{1 - 0.15} - W_f \quad (1)$$

式中の 0.15 は担体のポリスチレンジビニルベンゼンの割合(15wt%)、 $W_f$  は Cs 吸着剤の TG 測定後重量、すなわちポリスチレンジビニルベンゼンを除いた正味の担体重量を示す。下式に示すように、Cs 吸着剤の 370°C以上の重量減少( $W_{370}$ )から  $W_p$  を差し引いた値を、含浸量吸着剤中の Calix 重量 ( $W_c$ ) とし、含浸量(wt%)を計算した。

$$W_c = W_{370} - W_p \quad (2)$$

抽出剤や改質剤を担持する前後の構造変化を推定するため、BET 法による担体及び吸着剤の比表面積測定を行った。測定は窒素 30%ヘリウムガスを使用し一点法で行った。窒素吸着に伴う濃度変化は TCD (熱伝導度型検出器) で定量した。

各吸着剤の分離基礎試験をバッチ試験により行った。重量既知のガラスバイアル瓶に、吸着剤を約 0.25 g 秤取り、代表的な FP 等を含む硝酸溶液を 5 cm<sup>3</sup>加えた。主に 25°C若しくは 30°Cの恒温振とう槽中で 2 時間振とうさせたが、放射性物質を扱う試験では室温で振とうした。振とう後、目開き 0.45 μm のフィルターを用いて、速やかに濾別した。振とう前後の水相中の金属濃度を原子吸光、キャピラリー電気泳動装置、誘導結合プラズマ発光分光分析装置(ICP-AES)、または誘導結合プラズマ質量分析装置(ICP-MS)で定量した。放射性の元素、核種は放射能を測定した。分配係数  $K_d$  (cm<sup>3</sup>/g)を式(3)、または式(4)により算出した。

$$K_d = \frac{C_0 - C_{eq}}{C_{eq}} \times \frac{V}{W} \quad (3)$$

$$K_d = \frac{A_0 - A_{eq}}{A_{eq}} \times \frac{V}{W} \quad (4)$$

ここで、 $C_0$  及び  $C_{eq}$  は初期及び振とう後の水相中の対象となる金属の濃度を、 $A_0$  及び  $A_{eq}$  は初期及び振とう後の水相中の対象となる核種の放射能をそれぞれ示す。また、 $V$  (cm<sup>3</sup>) 及び  $W$  (g) は水相の体積及び吸着剤の乾燥重量をそれぞれ示す。含浸吸着剤から水相に溶出した Calix の濃度は液体クロマトグラフィー質量分析装置(LC/MS)を用いて定量した。

## 2.1.2 結果と考察

### 2.1.2.1 組成・構造

含浸法により調製した吸着剤が所定の組成として調製されたかを熱重量分析により確認した。代表的な Cs 吸着剤の、TG による重量減少から推定した抽出剤及び改質剤の含浸量と BET 法による比表面積測定データを Table 1 に示す。括弧内の数字は仕込み量を示している。また、Fig. 3 に Cs 吸着剤の熱重量測定結果の代表例を示す。仕込み量と分析結果は良く一致しており、所定量の抽出剤や改質剤が含浸されていることを確認できた。

他方、担体と比較し比表面積は低下した。抽出剤の含浸による比表面積の減少は、octyl(phenyl)-*N,N*-diisobutylcarbamoylmethylphosphine oxide (CMPO)を含浸させた吸着剤においても観察されており、この際の細孔容積の変化や走査型電子顕微鏡(SEM)の画像の変化から、比表面積の低下は、細孔内への CMPO の担持に起因していることが推察された<sup>39)</sup>。本吸着剤においても抽出剤や改質剤が担体の細孔内に含浸されていることが予想される。

### 2.1.2.2 選択性

Cs 吸着剤は Cs に対する高い選択性が求められるため、Cs 及び代表的な FP 元素の分配係数を調べた。Table 2 及び Fig. 4 に改質剤としてドデカノールを用いた Cs 吸着剤での、Table 3 及び Fig. 5 に改質剤としてヘキサデカノールを用いた Cs 吸着剤での、硝酸濃度を変えた場合の代表的な FP 元素等の分配係数を示す。分配係数が 10 cm<sup>3</sup>/g を超えたのは Cs と Pu のみであり、他の元素はほとんど吸着されないことが明らかになった。Cs の分配係数は改質剤にドデカノールを用いた場合には硝酸濃度 2~6 M で高く、一方、ヘキサデカノールを改質剤に用いた場合には 3~6 M で高い値を示した。何れも、低濃度硝酸では分配係数が低いため、高濃度硝酸溶液から Cs を吸着し、低濃度硝酸溶液に脱着・回収できる。Fig. 1 に示すように、本研究では HLLW に含まれる Pu は予め溶媒抽出法によって HLLW から除去されることを前提としており、本吸着剤は HLLW から Cs のみを選択的に吸着すると考えられる。

### 2.1.2.3 硝酸への溶出

本研究で使用した吸着剤は担体に抽出剤を含浸させて調製してあるため、硝酸等の溶液と接触させると、含浸させた抽出剤が水相へ溶出する。溶出挙動は抽出剤の疎水性等によって決定されると考えられるが、カラム法で繰り返し利用するためには、水相への溶出量は低いことが望ましい。25°Cの恒温振とう槽中で 1 時間振とうさせたバッチ法での Cs 吸着剤からの抽出剤の溶出濃度を Table 4 に示す。何れの吸着剤からも、Calix の溶出濃度は 1 ppm 未満であった。ただし、2.3.2 節で後述するように長時間硝酸と接触させると溶出量は増加した。短時間での Cs 吸着剤から硝酸への溶出は極微量であり、2.2.2.2 で後述するカラム試験の結果からも硝酸への耐溶出性は極めて高いことが分かる。

## 2.2 改質剤の効果

### 2.2.1 実験

本試験では改質剤と抽出剤のモル比(M/E)を変化させて、抽出剤重量( $W_E$ )、改質剤重量( $W_M$ )、担体重量( $W_S$ )について以下の関係を満たすように調製した。

$$\frac{W_E}{W_E + W_M + W_S} = 0.25 \quad (5)$$

M/E は抽出剤の分子量( $F_E$ )及び改質剤の分子量( $F_M$ )から、

$$\frac{M}{E} = \frac{F_M}{W_M} \frac{W_E}{F_E} \quad (6)$$

である。従って、担体重量を決定すれば、下式より抽出剤重量及び改質剤重量は M/E に応じて一意に決定される。

$$W_E = \frac{W_S \frac{M}{E}}{3 \frac{M}{E} - \frac{F_M}{F_E}} \quad (7)$$

$$W_M = \frac{W_S \frac{F_M}{F_E}}{3 \frac{M}{E} - \frac{F_M}{F_E}} \quad (8)$$

調製した吸着剤の静的飽和吸着容量はバッチ法により、動的飽和吸着容量はカラム法により測定した。バッチ法は 2.1.1 節と同様の方法により各吸着剤の吸着等温線を測定し、ラングミュア吸着を想定して、下式の回帰曲線へのフィッティングから静的飽和吸着容量を算出した。

$$A = \frac{k A_{\max} x}{1 + kx} \quad (9)$$

ここで、 $A$  は Cs の吸着量、 $k$  は平衡定数、 $A_{\max}$  は飽和吸着容量、 $x$  は溶液中の Cs の濃度をそれぞれ示す。

カラム法では内径 10 mm、高さ 300 mm のパイレックスガラス製カラムに Cs 吸着剤をスラリー状で充填した。系全体を純水で満たした後で硝酸を送液し、流出液の 300 nm における吸光度を測定することで、系全体の死容積( $V_0$ )を測定した。その後、Cs 吸着剤カラムを所定濃度の硝酸でコンディショニング後、Cs 濃度を 10 mM に調整した所定濃度の硝酸溶液を 1 cm<sup>3</sup>/min で送液した。流出液をフラクションコレクターにより一定時間毎に分画捕集して、流出液中の Cs 濃度を原子吸光、キャピラリー電気泳動装置又は ICP-MS で測定し、破過曲線を取得した。破過点( $V_P$ )は破過曲線の立ち上がり部分について直線近似を行い、近似直線と x 軸との交点を破過点とした。動的飽和吸着容量( $A_{dyn}$ )は下式より求めた。

$$A_{dyn} = \frac{C_0(V_P - V_0)}{V_B} \quad (10)$$

ここで  $C_0$  は供給液の Cs 濃度(10 mM)を、 $V_B$  はカラムに充填した吸着剤の体積(ベッドボリューム; BV)をそれぞれ示す。

## 2.2.2 結果と考察

### 2.2.2.1 静的飽和吸着容量

本研究で利用する吸着剤はカラム法で利用することを想定しているため、高レベル廃液中に含まれる Cs を他の FP から分離するためには、一旦 Cs をカラムに吸着させて分離する必要がある。従って、吸着剤の飽和吸着容量は十分に高いことが望ましい。ここでは、吸着剤の改質剤と抽出剤のモル比(M/E)を変化させ、最適な組成を評価した。

M/E 比を変化させた Cs 吸着剤への Cs の分配係数を Fig. 6 に示す。ドデカノールを用いた吸着剤では、Cs の分配係数は M/E 比が増加するに従って漸減した。また、改質剤をヘキサデカノールにした場合は、ドデカノールを用いた場合よりも分配係数が低くなった。

改質剤と抽出剤のモル比(M/E)を変化させた Cs 吸着剤の吸着等温線を取得した。硝酸濃度 4 M で取得した吸着等温線の代表例を Fig. 7 に示す。図中の曲線は式(9)でフィッティングした回帰曲線である。各吸着剤の吸着等温線から取得した静的飽和吸着容量と M/E 比の関係を Fig. 8 に示す。Cs 吸着剤では改質剤にヘキサデカノールを用いた場合、M/E 比が 2 付近で極小値を示すものの、広い M/E 比の範囲で高い飽和吸着容量を示した。一方、ドデカノールを用いた場合は、高い飽和吸着容量を得られる M/E 比の範囲が狭いことが明らかとなった。従って、Cs 吸着剤の改質剤にはヘキサデカノールが適すると考えられる。

Calix + *n*-hexadecanol 吸着剤は M/E 比が 4 を超えても高い飽和吸着容量が得られたが、M/E 比を高くすると含浸させる改質剤量が増加することで均一なスラリーを調製しにくくなり、カラムへの充填等での取り扱いが難しくなる。従って、M/E 比が低く飽和吸着容量も高い Calix + *n*-hexadecanol (1.25)が最適な Cs 吸着剤と選定した。

### 2.2.2.2 動的飽和吸着容量

本研究では含浸吸着剤を充填したカラムを用いた分離方法を想定している。カラム法での動的飽和吸着容量が高ければ、カラムサイズを小さくすることが可能になり、廃液量の削減に大きく貢献できる。一方、静的飽和吸着容量が高くとも、吸着速度が十分に速くなれば、必ずしも動的飽和吸着容量は高くはならない。ここではカラム法により動的飽和吸着容量を評価した。上記 2.2.2.1 節の結果に基づき、Calix + *n*-hexadecanol(1.25)の動的飽和吸着容量を調べた。Calix 系の吸着剤では硝酸濃度 4 M 付近で分配係数が最大となることから<sup>40)</sup>、供給液の硝酸濃度を 4 M に設定し、1 サイクルの分離に要する移動相の量を Table 5 に示す値として Cs 吸着剤カラムに繰り返し送液した。Cs 吸着剤カラムでの Cs の破過曲線を Fig. 9 に示す。初期の飽和吸着容量は 116 mmol/L であった。続いてカラムに溶離液を 10 サイクル分を送液した後、上記と同様の破過試験を実施した。更に、10 サイクル分を送液した後、同様に破過試験を実施した。破過曲線は Fig. 9 に示してある(図中の数値は延べサイクル数を示す)。新品と 10 サイクル、20 サイクル使用後の破過点にほとんど変わりはなく、耐久性が高いことが分かった。

一方、Fig. 1 に示す分離スキーム全体での廃液量等を考慮すると、各分離工程の硝酸濃度を 3 M 程度で統一することが望ましいことから<sup>41)</sup>、同様に供給液の硝酸濃度を 3 M に設定して Table

6 に示す移動相を繰り返し利用した場合の耐久性を評価した。本試験では供給液に Cs を加え、より実際の使用環境に近い条件を模擬した。Fig. 10 に 1~30 サイクルの溶出液のプロファイルを、Fig. 11 に 31~60 サイクルの溶出液のプロファイルを示す。ピーク幅と分画の間隔が完全に一致していないため、ピーク高さはばらつきがあるが、谷部分はベースラインまで下がっており、各分離サイクルで Cs の溶離が完了していることが分かる。また、全体の回収率は 1~30 サイクルでは 0.98、31~60 サイクルでは 0.94 とほぼ全量が回収された。Fig. 12 に、取得した破過曲線を示す。30 サイクル及び 60 サイクルの利用後も、動的飽和吸着容量はほとんど減少しておらず、本吸着剤は溶出が少なく耐久性が高いことが明らかとなった。Fig. 13 に上記試験で得られた動的飽和吸着容量の変化をまとめた。硝酸濃度 3 M 及び 4 M の何れの場合も動的飽和吸着容量はほとんど減少しないことが確認できた。

## 2.3 照射試験

### 2.3.1 実験

重量既知のガラスバイアル瓶に、所定量の吸着剤を秤取り、硝酸溶液もしくは代表的な FP を含む硝酸溶液を加えて沈積させた。 $\gamma$  線照射は日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所のコバルト 60 照射施設で行い、照射時にガスが発生することを考慮してバイアルの栓をゆるめた状態で照射した。線量率はアミノグレイ(日立電線製)を用いて測定した。所定の線量を照射後、濾別し、ろ液を LC/MS で分析し、MS 部のイオン化は大気圧化学イオン化法(APCI)を用いた。既知重量の抽出剤を 50%アセトニトリル水溶液に溶解し、定量用の標準試料として用いた。照射した吸着剤は乾燥させ、代表的な FP の分配係数を 2.1.1 節と同様のバッチ法で測定し、吸着性能を評価した。また、一部の濾別した吸着剤をカラムに充填し、2.2.1 節と同様の方法で動的飽和吸着容量を測定した。

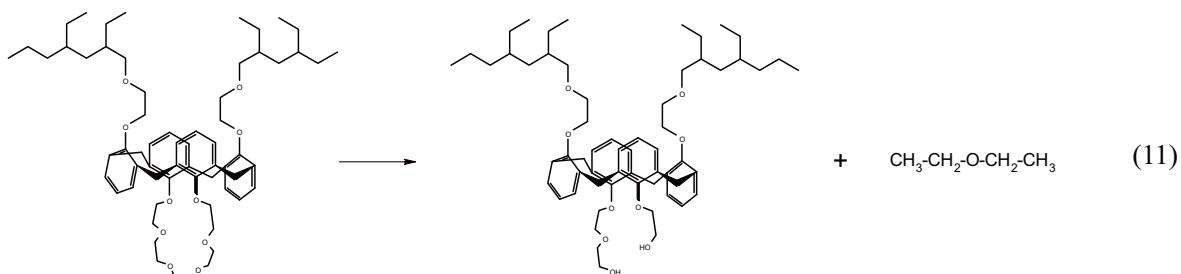
### 2.3.2 結果と考察

高レベル廃液の処理では吸着剤は強い放射線に曝される。吸着剤に担持した抽出剤や改質剤は有機物であり、放射線による劣化が生じる。放射線劣化による飽和吸着容量の減少、あるいは劣化生成物により高選択性が阻害されること等が考えられるため、ここでは吸着剤に  $\gamma$  線を照射し、その影響を評価した。

照射前後の吸着剤及び溶液の外観写真を Fig. 14 に示す。照射後の吸着剤は茶褐色の変色が認められ、概ね照射線量の大きい吸着剤ほど変色の度合いが強かった。4 M 硝酸と接触させて照射した Cs 吸着剤への Cs の分配係数を Fig. 15 に示す[Calix + n-dodecanol(5.56)]。横軸は吸着バッチ試験での水相の硝酸濃度を、縦軸は Cs の分配係数を示し、図中の数値は照射線量を表している。0 kGy の吸着剤は非照射ではあるが、照射試料(827 kGy)と同期間だけ硝酸溶液と接触させたものである。照射線量の増加に伴い、Cs の分配係数が低下し、827 kGy の照射で分配係数はほぼ半減した。Fig. 16 に照射線量と照射後の Cs の分配係数の関係を示す。点線は非照射ではあるが、照射試料と同期間だけ硝酸溶液と接触させた吸着剤で得られた分配係数であり、硝酸への改質剤の溶出などの影響で接觸時間が長くなることで Cs の分配係数が漸減している。これらのプロットとの差分が  $\gamma$  線照射による効果と考えられる。未照射の吸着剤では当初約 70 g/cm<sup>3</sup> であった分配係数が時間経過と共に低下し、約 60 g/cm<sup>3</sup> 付近で定常に達している。これは、この条件において

改質剤等の溶解が平衡に近づいたためと思われる。また、図中の注釈を付けたプロットは照射条件の一部を変更した吸着剤によって得られた分配係数であることを示している。照射時の硝酸濃度、液・固比、あるいは線量率が異なる場合でも、Cs の分配係数ほとんど変わりがなく、影響はほとんど無いと考えられる。

照射後の水相を LC/MS を用いて分析し、 $\gamma$  線照射による劣化挙動を調べた。Fig. 17 に示すように、Calix 抽出剤の標準試料を分析した場合の APCI による MS スペクトルは、フラグメントイオンのほとんど無いスペクトルが確認された。照射線量と照射後の水相中の Calix の濃度の関係を Fig. 18 に示す。横軸は照射線量を、縦軸は水相中の Calix の LC/MS による定量値を示している。図中の文字は一部の照射条件を変更していることを示している。「+Metals」は各 5 mM の Na、Rb、Sr、Y、Zr、Mo、Ru、Rh、Pd、Cs、Ba、Nd の 11 元素を代表的な FP 元素として含む 4 M 硝酸溶液中に浸して照射した。図中の点線は照射試料と同一期間硝酸溶液と接触させた試料での分析結果である。また、比較のため一部の照射条件を変更して照射した試料の分析も併せて示した。 $\gamma$  線を照射することで水相中の Calix の濃度が、非照射時よりも低下しており、 $\gamma$  線照射によって抽出剤の構造が破壊されていることが分かる。827 kGy 照射した場合の、ピーク部分の MS スペクトルを Fig. 19 に示す。標準試料で見られた m/z 1041 のピークはほとんど無くなり、m/z 969 を代表とする複数のピークが観察された。これより、Calix は $\gamma$  線により構造の一部が開裂し、水相へ溶出すると考えられ、下式の反応が推察される。



$\gamma$  線照射後(照射線量 267 kGy)の Cs 吸着剤の静的飽和吸着容量を Fig. 20 に示す[Calix + *n*-hexadecanol(4.17)]。横軸は $\gamma$  線照射時に浸漬させた硝酸濃度を、縦軸は Cs の飽和吸着容量を示す。図中の点線は新規吸着剤で取得した飽和吸着容量を示している。また、比較のため照射試料と同期間、硝酸中に浸漬させた吸着剤(非照射)で得られた値を併せて示した。濃度の高い硝酸(> 4 M)に浸漬させて照射した場合は、硝酸濃度の増加に伴い飽和吸着容量が低下したが、濃度の低い硝酸(< 4 M)に浸漬させて照射した場合は、硝酸濃度の影響が少ないと分かった。 $\gamma$  線を照射した場合と非照射の場合を比較すると、飽和吸着容量の減少の度合いに大きな違いがなかった。これは Fig. 16 の 800 kGy を超える線量に比べると、照射線量が 300 kGy 未満と低いために、照射による劣化よりも、硝酸への溶出の影響が強く表れたものと考えられる。このように、バッチ法において硝酸への抽出剤の溶出の影響が大きく現れるのは、以下の要因が考えられる。新規に含浸させた吸着剤では、担体のポリマー表面の細孔に含浸された抽出剤以外に、吸着剤表面に含浸されずに付着している抽出剤が存在すると考えられる。通常、バッチ法での分配比、静的飽和吸着容量測定では、短時間の測定になるため、表面に付着した抽出剤が分配比及び飽和吸着容量の底上げに寄与すると予想される。一方、本試験のように硝酸に長時間沈積させた吸着剤からは、表面に付着した抽出剤が溶解あるいは脱離するため、初期の吸着剤に比べ明らかな性能劣化が観

察されるものと推察される。カラムに吸着剤を充填するために吸着剤を純水に浸し、スラリー状にすると液面に「あく」のような浮遊物が現れることからも、上記のような現象が生じるものと類推される。

Cs 吸着剤は想定される使用頻度での線量は 30 kGy 程度である<sup>41)</sup>。想定される線量の  $\gamma$  線照射後の Cs 吸着剤の動的飽和吸着容量を評価するため取得した破過曲線を Fig. 21 に示す[Calix + *n*-hexadecanol(1.25)]。29.1 kGy 照射後の動的飽和吸着容量は 73.5 mmol/L となった。Fig. 13 に示したように、初期の動的飽和吸着容量は 70.2 mmol/L なので、Cs 吸着剤は想定される使用頻度での線量ではほとんど動的飽和吸着容量が低下しないことが明らかになった。 $\gamma$  線照射によって、上記のバッチ法のような飽和吸着容量の差異が生じていない。原因の一つは吸着剤のスラリーの調製及びカラムに充填する際にある程度の純水と接触あるいは洗浄されるため、表面に付着した抽出剤は破過試験以前に除去され、初期の動的飽和吸着容量は表面付着の抽出剤の効果の寄与が無い、あるいは少ないことが考えられる。また、照射線量も上記バッチ試験に比べると低いことも一因である。

## 2.4 放射性核種を用いたカラム分離

### 2.4.1 実験

パイレックスガラス製カラムに Cs 吸着剤を充填し、ポンプを用いて移動相を 1 cm<sup>3</sup>/min で送液した。溶出液はフラクションコレクターを用いて一定時間毎に分画して捕集した。溶出液中の金属濃度は ICP-AES、原子吸光、キャピラリー電気泳動装置、又は ICP-MS を用いて定量し、放射性核種について、Pu は  $\alpha$  放射能を、<sup>241</sup>Am 及び <sup>137</sup>Cs は  $\gamma$  放射能を測定した。死容積は系内を予め純水で満たしてから硝酸を送液し、流出液の吸光度を測定することで求めた。

### 2.4.2 結果と考察

バッチ法での結果に基づき、Cs 吸着剤を充填したカラムを用い、Cs と代表的な FP 元素の分離挙動を調べた。初めに、Cs の分配係数が最大となる硝酸濃度 4 M の場合の分離挙動を調べた。Cs 吸着剤カラムによる TRU 等の分離試験結果を Fig. 22 に示す。Sr 及び Am がカラムに吸着されずに初めに溶出され、Np は広いピークとして溶離された。次に Tc が溶離され、溶離液を純水に切り替えてから Pu 及び Cs が溶離された。吸着バッチ試験では明確ではなかったが、Tc は弱い吸着性を示すことが明らかとなった。溶離液の不足により、Cs のピークの裾が完全に溶離されなかつたため、Cs の回収率は 50% にとどまった。また、Pu は回収率が 4.9% とごく一部しか溶離されておらず、カラム内に蓄積されることが分かった。

M/E を低下させた Cs 吸着剤カラムによる TRU 元素等の分離試験結果を Fig. 23 に示す。なお、使用したカラムは 2.2.2.2 節の試験で 20 サイクル分の溶離液を送液済のカラムである。Cs 及び Pu 以外の元素がほとんど吸着されずに溶離されたが、ピーク位置が若干異なることから、分配係数の序列は Sr, Am < U, Np < Tc と考えられる。Pu は Cs の前方に溶離されたが、大部分はカラムに吸着されたまま残留した。Pu と重なるように溶離された Np は 4 倍と考えられる。Cs は純水により溶離されたが、ピークは幅広でテーリングが大きく、全量を回収するには約 3 BV の溶離液を要した。Fig. 22 の結果に比べると、M/E 比が低くなると Tc の溶離が速まり、Cs との分離が向上した。また、Cs の回収率は約 67% であった。

上述のように、Cs の分配係数が高くなるように硝酸濃度を 4 M に調整した溶液からは、Cs を選択的に分離することができた。一方、Fig. 1 の分離プロセスの概念設計によれば、Cs 分離、Sr 分離及び Mo 分離の工程を硝酸濃度 3 M に統一することが望ましいことから、硝酸濃度 3 M の条件で、同様に Cs を選択的に分離できるかを調べた。分離対象液の硝酸濃度を 3 M とした場合の、Cs 吸着剤カラムによる代表的な FP 元素の分離結果を Fig. 24 に示す。Y、Zr、Ru、Nd は 3 M 硝酸による洗浄工程で溶離ピークが現れたことから、カラムに若干カラムに吸着されたと考えられる。しかし、他の元素と同様に Cs のピークとは相互分離された。Cs は純水によって最終的に溶離され、カラムの洗浄工程では Cs の漏えいが検出されなかったことから、硝酸濃度を 3 M に低下させても十分に Cs を他の FP 元素と分離できることが明らかとなった。一方、Cs の収率は 130% であったが、Cs のピークは幅広のテーリングを示しており、その形状から、実際の溶離は不完全であったと考えられる。完全に溶離回収するには溶離液の増加、あるいは後述の試験結果から流速の低下等の対策が必要と考えられる。

## 2.5 実液試験

NUCEF に貯蔵された実 HLLW を使用して、Cs 吸着剤[Calix + *n*-hexadecanol(1.25)]のを用いたカラム分離試験を実施した。

### 2.5.1 実験

#### 2.5.1.1 コールド試験

予備試験として、実液試験と同じ装置による、模擬高レベル廃液を用いたコールド試験を行った。ポリプロピレン製ディスポーザブルカラム(ポリプレップカラム；バイオラド社製)に Cs 吸着剤をスラリー状で約 2 mL 充填した。模擬高レベル廃液は、硝酸濃度を 3 M とし、各 1 mM の Rb, Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Cs, Ba 及び Nd を含む溶液として調製した。移動相はエッペンドルフピペットで 1 mL 每分取し、カラム上部に供給した。移動相は重力により下部より滴下し、出口に設置したガラスバイアルで 1 回に供給した溶液を全量捕集した。エッペンドルフピペットで溶液を注入する際に、樹脂層の表面部分が懸濁状態になるため、試験操作の短い時間中に樹脂層内に空気が混入することはなかった。溶出液中の各金属濃度は ICP-AES 又は ICP-MS で定量した。

#### 2.5.1.2 ホット試験

NUCEF  $\alpha$   $\gamma$  セル内で、実高レベル廃液(HLLW)を用いたカラム分離試験を実施した。試験で使用した HLLW は、PWR からの使用済 UO<sub>2</sub>燃料(44 GWd/t)、及び ATR(ふげん)からの使用済 MOX 燃料(40 GWd/t)をピュレックス法で再処理した際に発生した HLLW の混合液である。UO<sub>2</sub>燃料と MOX 燃料の混合比は 55 : 45 と推定される。Fig. 25 の模式図に示すように吸着剤を充填したカラムに、エッペンドルフピペットを用いて所定の溶液を 1 cm<sup>3</sup> 注入した。全量をカラム下部に設置したバイアルに捕集した。試験の模様を Fig. 26 に示す。

## 2.5.2 結果と考察

### 2.5.2.1 コールド試験

Cs 吸着剤カラムでの模擬 HLLW の分離試験結果を Fig. 27 に示す。初めに Cs、Rb を除く他の元素がカラムに吸着されず、溶離された。次いで Rb、Cs の順に溶離回収され、Rb の一部が Cs のピークと一部重なるものの、Cs は効果的に単離された。Cs の回収率は約 53% であった。

### 2.5.2.2 ホット試験

硝酸濃度を 3 M に調整した実 HLLW の組成を Table 7 に示す。Zr, Mo, Tc, Ru 及び Rh は本来 HLLW に含まれているが、ICP-AES の分析では発光ピークが検出されなかったことから、高レベル廃液貯槽内で沈殿したものと推察される。

Cs 吸着剤カラムによる実 HLLW の分離試験結果を Fig. 28 に示す。コールド試験と同様に Cs 以外の元素はカラムに吸着されることなく、溶離された。Eu のピークが他の元素に比べて高く現れたが、HLLW に含まれる Eu の濃度が低く、ICP-AES での定量下限に近いために誤差が大きいことが原因と考えられる。Cs の回収率は約 84% であった。Cs の溶離ピークには谷が現れているが、該当フラクションは線量が高すぎたため、セルから搬出するために他のフラクションよりも 1 回余計に希釀を行っている。他のカラム分離試験では Cs の溶離ピークは一つの山として現れており、谷間が生じたのは希釀による誤差のためと考えられる。従って、Cs のピーク形状は一つの山形であったと考えられ、実際の回収率は更に高い値であったと推察される。前述の他のカラム分離結果では概ね Cs の回収率が低い値であったのに対し、本試験では高い回収率となった。ガラスカラムを用いた試験では線速が 1.27 cm/min、オープンカラムを用いた上記コールド試験では線速が約 0.37 cm/min であったのに対し、本試験では約 0.1 cm/min と線速が遅かったことが一因と考えられる。これより、Cs の回収率は線速を遅くすることで向上されると考えられる。

### 3. Sr 分離技術開発

#### 3.1 吸着剤基本性能

##### 3.1.1 実験

Sr 抽出剤として、Fig. 29 に示す di-t-butylcyclohexano-18-crown-6 (DtBu)、及び di(1,1-dimethylbutylcyclohexano)-18-crown-6 (DtHex)を用いた。2.1.1 節と同様に、これらの抽出剤及び改質剤を含浸させて吸着剤を調製し、使用した。

TG による吸着剤の分析では、120°C付近から 250°C付近での重量減少を改質剤(1-ドデカノール又は 1-ヘキサデカノール)の分解による重量減少、250°C付近から 370°C付近の重量減少を抽出剤(DtBu 又は DtHex)の分解による重量減少と見積もりそれぞれの含浸量を計算した。

##### 3.1.2 結果と考察

###### 3.1.2.1 組成・構造

含浸法により調製した吸着剤が所定の組成として調製されたかを熱重量分析により確認した。代表的な Sr 吸着剤の、TG による重量減少から推定した抽出剤及び改質剤の含浸量と BET 法による比表面積測定データを Table 8 に示す。括弧内の数字は仕込み量を示している。また、代表例として Fig. 30 に DtBu + *n*-hexadecanol (1.25)の熱重量分析の結果を示す。仕込み量と分析結果は良く一致しており、所定量の抽出剤や改質剤が含浸されていることを確認できた。

###### 3.1.2.2 選択性

Sr 吸着剤は Sr に対する高い選択性が求められるため、Sr 及び代表的な FP 元素の分配係数を調べた。抽出剤に DtBu を用いた Sr 吸着剤での代表的な FP 元素の分配係数を、改質剤にドデカノールを用いた場合の結果について Table 9 及び Fig. 31 に、改質剤にヘキサデカノールを用いた場合の結果について Table 10 及び Fig. 32 にそれぞれ示す。DtBu + *n*-dodecanol 吸着剤は硝酸濃度 1 M 以上で 10 cm<sup>3</sup>/g を超える分配係数を示し、硝酸濃度 2 M で 100 cm<sup>3</sup>/g を超える極大値を示した。また、硝酸濃度が低い場合は分配係数が低下しており、高濃度硝酸中で Sr を吸着させ、低濃度硝酸で脱着できることが分かった。一方、Ba が 10 cm<sup>3</sup>/g を超える分配係数を示したもの、他の FP 元素では分配係数は非常に低くほとんど非吸着性を示しており、Sr を選択的に吸着することが示された。DtBu + *n*-hexadecanol 吸着剤も同様に Sr に対して高い選択性を示したが、DtBu + *n*-dodecanol 吸着剤よりも分配係数は低くなる傾向を示した。

抽出剤に DtHex を用いた Sr 吸着剤での代表的な FP 元素の分配係数を、改質剤にドデカノールを用いた場合の結果を Table 11 及び Fig. 33 に、改質剤にヘキサデカノールを用いた場合の結果を Table 12 及び Fig. 34 にそれぞれ示す。DtHex + *n*-dodecanol 吸着剤は硝酸濃度 1 M 以上で 10 cm<sup>3</sup>/g を超える分配係数を示した。Tc の分配係数は概ね低い値であったが、後述のカラム試験の結果から、これらの値は分析誤差等の影響で実際より低い値を示したものと考えられる。Pu は硝酸濃度 3 M 以上で高い分配係数を示したが、本研究ではアクチニド元素は予め除去することを前提としているため Sr の分離に影響はないと考えられる。DtHex + *n*-hexadecanol 吸着剤も同様に Sr に対して高い選択性を示したが、DtHex + *n*-dodecanol 吸着剤よりも分配係数は低くなる傾向を示した。

### 3.1.2.3 硝酸への溶出

本研究で使用した吸着剤は担体に抽出剤を含浸させて調製してあるため、硝酸等の溶液と接触させると、含浸させた抽出剤が水相へ溶出する。溶出挙動は抽出剤の疎水性等によって決定されると考えられるが、カラム法で繰り返し利用するためには、水相への溶出量は低いことが望ましい。Table 13 に Sr 吸着剤からの抽出剤の溶出濃度を示す。DtBu は 20~50 ppm 程度の溶出があつたが、DtHex はほとんどの条件で溶出濃度が 1 ppm 未満と安定であった。これは、クラウンエーテルの側鎖がブチル基からヘキシル基へと長鎖になり、疎水性が高められた効果と考えられる。また、改質剤がドデカノールの場合よりもヘキサデカノールの場合の方が溶出量が高くなつた。

## 3.2 改質剤の効果

### 3.2.1 実験

吸着剤の調製は 2.2.1 節と同様に行った。静的飽和吸着容量の試験、算出方法、及び、破過曲線の取得も 2.2.1 節と同様である。Sr 濃度は Cs の場合と同様に 10 mM とした。

### 3.2.2 結果と考察

#### 3.2.2.1 静的飽和吸着容量

本研究で利用する吸着剤はカラム法で利用することを想定しているため、高レベル廃液中に含まれる Sr を他の FP から分離するためには、一旦 Sr をカラムに吸着させて分離する必要がある。従って、吸着剤の飽和吸着容量は十分に高いことが望ましい。ここでは、吸着剤の改質剤と抽出剤のモル比(M/E)を変化させ、最適な組成を評価した。

Fig. 35 に硝酸濃度 2 M の場合の、各 Sr 吸着剤での Sr の分配係数を示す。Sr の分配係数は、抽出剤が DtHex よりも DtBu の場合の方が高く、改質剤はヘキサデカノールよりもドデカノールの方が高くなつた。Sr の分配係数では  $DtBu + n\text{-dodecanol} >> DtBu + n\text{-hexadecanol} > DtHex + n\text{-dodecanol} > DtHex + n\text{-hexadecanol}$  となつた。

改質剤と抽出剤のモル比(M/E)を変化させた Sr 吸着剤の静的飽和吸着容量を Fig. 36(DtBu)及び Fig. 37(DtHex)に示す。DtBu では、改質剤にヘキサデカノールを用いた場合は M/E 比の増加に伴い飽和吸着容量が単調減少する傾向が見られ、ドデカノールを用いた場合でも M/E 比が 1.25 の場合が最も高い値を示したことから、M/E 比は 1.0 に近い値が好ましいと推察される。一方、DtHex では改質剤にヘキサデカノールを用いた場合は同様に M/E 比の増加に伴い飽和吸着容量が単調減少する傾向が見られたが、ドデカノールを用いた場合は M/E 比=2.0 近傍に極大を示した。また、総じて、DtBu よりも飽和吸着容量が低くなつており、上記 Sr の分配係数の傾向と一致する。DtHex は飽和吸着容量が低く、含浸させる抽出剤には DtBu が望ましいと考えられる。Fig. 36 の結果からは  $DtBu + n\text{-dodecanol}$  (1.25)が最も飽和吸着容量が高いが、水相への耐溶出性を考慮して  $DtBu + n\text{-hexadecanol}$  (1.25)を最適な Sr 吸着剤に選定した。

#### 3.2.2.2 動的飽和吸着容量

本研究では含浸吸着剤を充填したカラムを用いた分離方法を想定している。カラム法での動的飽和吸着容量が高ければ、カラムサイズを小さくすることが可能になり、廃液量の削減に大きく

寄与する。一方、静的飽和吸着容量が高くとも、吸着速度が十分に速くなければ、必ずしも動的飽和吸着容量は高くはならない。ここではカラム法により動的飽和吸着容量を評価した。

後述するカラム分離試験結果(Fig. 56)から、Sr 分離カラムでは一部の Sr がカラム内に蓄積されることが懸念されたため、初めに Sr 吸着剤[DtBu + *n*-hexadecanol(1.25)]を使用してカラム内への Sr の蓄積の有無を調べた。1 ベッド分の Sr 溶液を送液後、カラムを洗浄し、最後に Sr を溶離回収した。これを 6 回繰り返し、それぞれの Sr 回収率を評価した。1~3 回目の溶離曲線を Fig. 38 に、4~6 回目の溶離曲線を Fig. 39 に示す。また、それぞれの Sr 回収率を Fig. 40 に示す。初回、及び 2 回目の試験では回収率がそれぞれ、87.1%、80.7%と低い値を示し、定量的に Sr が回収されず、カラム内に蓄積されたことが分かる。後述する破過試験結果(Fig. 44 又は Fig. 45)より、本吸着剤の硝酸濃度 3 M での動的飽和吸着容量は 125 mmol/L である。カラムのベッド体積が 13.7 mL であるので、カラム全体の動的飽和吸着容量は 1.71 mmol (= 125 mmol/L × 13.7 mL)となる。1 回の試験で供給した Sr の量は 0.15 mmol (= 10 mmol/L × 15 mL) であるので、カラムの飽和吸着容量の 8.77%に相当する。従って、上記 2 回の試験でカラム内に蓄積した Sr の量は、同 2.82%に相当する。一方、3 回目以降は 100%前後の回収率を示しており、Sr の蓄積が長期間継続されるわけではないと判断される。Fig. 40 に示すように、4 回目及び 5 回目の試験の回収率は高い値を示しており、1 回目及び 2 回目の試験でカラム内に蓄積された Sr が溶離回収されたと考えられる。また、6 回の試験の回収率の平均値は 100.3%となることから、極初期においては Sr の蓄積が生じるが、繰り返し使用するに従い、蓄積された Sr は溶離回収され、定常的な利用時には Sr の蓄積は生じないと予想される。初期に一旦蓄積された Sr の総量に対して、設計上の裕度は十分に高く設定されており、処理能力及び分離性能への影響は無いと考えられる。

硝酸濃度 2 M における Sr 吸着剤カラムの耐久性を評価するため Table 14 に示す硝酸及び純水を繰り返し送液し、合計 10 サイクル分を送液した後、及び 20 サイクル分を送液した後にそれぞれ破過曲線を取得した。DtBu + *n*-hexadecanol (1.25) の破過曲線を硝酸濃度 2 M で取得した結果を Fig. 41 に示す。初期の破過曲線に比べて、破過点が左にシフトしており、動的飽和吸着容量が減少していることが分かる。

同様に、硝酸濃度 3 M での耐久性を評価するために Table 15 に示す溶離液をカラムに繰り返し送液した場合の溶離挙動を、1~30 サイクルの結果を Fig. 42 に、31~60 サイクルの結果を Fig. 43 に示す。繰り返し利用後の破過曲線を Fig. 44 に示す。上記硝酸濃度 2 M の場合と同様に、移動相の送液量の増加に伴い、破過点が左側にシフトし、動的飽和吸着容量が減少した。硝酸濃度 2 M の場合に比べると硝酸濃度 3 M では破過曲線の立ち上がりが緩やかであるが、これは Sr の分配係数が低くなったためと考えられる。

上記硝酸濃度 2 M 及び 3 M で得られた破過曲線から、繰り返し利用後の動的飽和吸着容量の変化を Fig. 45 に示す。横軸はカラムに送液した移動相の総量を、縦軸は動的飽和吸着容量を示す。初期の動的飽和吸着容量はほぼ同等であるが、硝酸濃度 2 M の場合は硝酸濃度 3 M の場合よりも減少の度合い高く、硝酸濃度 3 M で使用した方が耐久性が高いことが明らかになった。なお、硝酸濃度 2 M の試験では硝酸を、硝酸濃度 3 M の試験では Sr を含む硝酸溶液を用いて繰り返し送液した。ガラスバイアルに保存しておいた溶離フラクションを観察すると、Sr が溶離されたフラクションには数日経過すると析出物が目視で確認されており(他のフラクションには発生しない)、Sr がカラムから溶離される際には抽出剤、改質剤、あるいはその両方を伴うことが推察された。

Fig. 46 は硝酸濃度 3 M での試験後のカラム内の吸着剤の熱重量分析結果である。ピークの面積比を比較すると、改質剤の損失はほとんど無く、抽出剤(DtBu)が溶出して損失したことが分かる。

### 3.3 照射試験

#### 3.3.1 実験

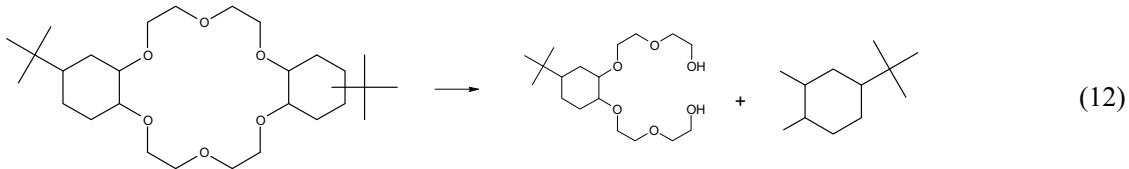
$\gamma$  線照射及び照射後試験は 2.3 節と同様の方法で行った。

#### 3.3.2 結果と考察

高レベル廃液の処理では吸着剤は強い放射線に曝される。吸着剤に担持した抽出剤や改質剤は有機物であり、放射線による劣化が生じる。放射線劣化による飽和吸着容量の減少、あるいは劣化生成物により高選択性が阻害されること等が考えられるため、ここでは吸着剤に  $\gamma$  線を照射し、その影響を評価した。2 M 硝酸と接触させて照射した Sr 吸着剤に対する Sr の分配係数を Fig. 47 に示す [DtBu + n-dodecanol(1.61)]。照射線量の増加に伴い、Sr の分配係数が低下し、827 kGy の照射で分配係数はほぼ半減した。0 kGy の吸着剤は非照射ではあるが、照射試料(827 kGy)と同期間だけ硝酸溶液と接触させたものである。Fig. 48 に 2 M 硝酸における照射線量と照射後の Sr の分配係数の関係を示す。黒丸は  $\gamma$  線非照射の硝酸に沈積させただけの吸着剤での結果を示しているが、短期間でも硝酸と接触させることで Sr の分配係数が急激に減少している。線量が 800 kGy を超えた場合は有意な違いが見られたが、300 kGy 程度では照射した吸着剤と非照射の吸着剤では分配係数に大きな違いはなく、照射による影響よりも硝酸への抽出剤の溶出の影響が大きいと考えられる。Sr の分配係数は照射線量の増加に伴い低下したが、照射時の硝酸濃度、液-固比、あるいは線量率の影響をほとんど受けないことが明らかとなった。

Sr 吸着剤を照射した場合の、照射線量と照射後の水相中の DtBu の濃度の関係を Fig. 49 に示す。図中の「+Metals」は各 5 mM の Na、Rb、Sr、Y、Zr、Mo、Ru、Rh、Pd、Cs、Ba、Nd の 11 元素を代表的な FP 元素として含む 2 M 硝酸溶液中に浸して照射した場合の結果である。Cs 吸着剤とは異なり、500 kGy 以下では硝酸中での照射時と非照射時での溶出量に大差はなかった。また、代表的な FP を含む場合は水相中の DtBu 濃度が増加することが確認された。これは、3.2.2.2 節で示したように、DtBu に一旦吸着された金属が吸着剤から脱離する際に、一部 DtBu が伴うためではないかと考えられる。

照射後の水相を LC/MS を用いて分析し、 $\gamma$  線照射による劣化挙動を調べた。Fig. 50 及び Fig. 51 に示すように、各抽出剤の標準試料を分析した場合の APCI による MS スペクトルは、フラグメントトイオンの少ないスペクトルが確認され、移動相または試料の保存用のガラスに由来すると考えられるナトリウムと結合したシャープなピークが観察された。827 kGy 照射した場合の、ピーク部分の MS スペクトルを Fig. 52 に示す(全イオン強度で作成したクロマトグラフィーには標準試料と異なるピークは存在しなかった)。標準試料で見られた m/z 507.5 のピーク高は極めて低くなり、m/z 370 を代表とする複数のピークが観察された。これより、DtBu は  $\gamma$  線により構造の一部が開裂し、水相へ溶出すると考えられ、下式の反応が推察される。



0.1~6 M の硝酸に沈積させて 267 kGy 照射した吸着剤の静的飽和吸着容量(2 M 硝酸から吸着)を Fig. 53 に示す[DtBu + *n*-hexadecanol(1.61)]。濃度の高い硝酸(> 4 M)に浸漬させて照射した場合は、硝酸濃度の増加に伴い飽和吸着容量が低下したが、濃度の低い硝酸(< 4 M)に浸漬させて照射した場合は、ほとんど飽和吸着容量が減少しなかった。Fig. 48 に示したように、ドデカノール改質剤では、2M 硝酸中において、耐放射線性より硝酸中の安定性の影響が大きいことが示唆されたが、ヘキサデカノール改質剤では、2M 硝酸中における飽和吸着量が、硝酸浸漬後、照射後吸着剤共に、新品とほとんど変化が無かった。

照射後の吸着剤の動的飽和吸着容量を調べた。3 M 硝酸に沈積させながら  $\gamma$  線を照射した吸着剤の破過曲線を Fig. 54 に示す[DtBu + *n*-hexadecanol(1.25)]。Fig. 45 に示したように、硝酸濃度 3 M での初期の動的飽和吸着容量は 125 mmol/L であるのに対し、29 kGy の照射後は 87.1 mmol/L に減少した。

### 3.4 放射性核種を用いたカラム分離

#### 3.4.1 実験

放射性核種を用いた Sr 吸着剤のカラム分離試験は 2.4.1 節と同様の方法で行った。

#### 3.4.2 結果と考察

バッチ法での結果に基づき、Sr 吸着剤を充填したカラムを用い、Sr と代表的な FP 元素の分離挙動を調べた。初めに、Sr の分配係数が最大となる硝酸濃度 2 M の場合の分離挙動を調べた。Sr 吸着剤カラムによる TRU 等の分離試験結果を Fig. 55 に示す[DtBu + *n*-dodecanol(1.79)]。Cs、Np、及び Am はカラムに吸着されず、Sr、Tc、及び Pu が一旦カラムに吸着・保持された。移動相を純水に切り替えると、Sr、Tc、及び Pu が極めてシャープな溶離ピークとして回収された。Pu の回収率は 130% であったが、Sr の回収率は 53% と低い値であった。Sr のカラム内への蓄積は無いと考えられるため、これはグローブボックス内に設置してある ICP-AES の分析精度に起因すると考えられる。後述のカラム試験でも Tc は吸着されており、バッチ試験での Tc の分配係数は分析誤差等の影響により低く評価されたと推定される。

3.2.2.2 節において、20 サイクル分の溶離液を送液して、動的飽和吸着容量が約 35% 減少した Sr 吸着剤カラムを用いて、劣化したカラムによる分離性能を確認した。劣化した Sr 吸着剤カラムによる TRU 元素等の分離試験結果を Fig. 56 に示す[DtBu + *n*-hexadecanol(1.25)]。Cs 及び Am はカラムに吸着されず、速やかに溶出された。U は Cs 及び Am の溶離ピークに比べて、溶離位置が若干遅れるため、弱い吸着を示すことが分かる。Tc 及び Pu は一旦カラムに吸着・保持され、溶離液を純水に切り替えることで、Tc はほぼ定量的に、Pu は一部が溶離された。Np は Cs、Am と同じ位置、Pu と同じ位置、及びその間にも溶出が認められるため、Np(V)、Np(VI)、Np(IV) の順に溶離されたと考えられる。Fig. 55 の結果と比較すると、他の元素はほぼ同様の溶離挙動を示

したのに対し、Np のみが明らかに異なる挙動を示したことから、吸着剤の影響ではなく、供給液調製時の Np の原子価のバランスに起因するとものと推察される。Sr は移動相を純水に切り替えることで溶離された。回収率は Cs(94%)及び Tc(99%)に対し、Pu は 21%と低くカラム内に蓄積された。他方、U(140%)、Np(130%)、Am(140%)は 100%を超えた。また、Sr の回収率は約 800%と不合理な値となったが、本試験の前に破過試験を行った際の Sr がカラム内に残留していた可能性が考えられる。

Fig. 1 の分離プロセスの概念設計によれば、Cs 分離、Sr 分離及び Mo 分離の工程を硝酸濃度 3 M 程度に統一することが望ましいことから、硝酸濃度 3 M の条件で、同様に Sr を選択的に分離できるかを調べた。Sr と代表的な FP 元素の分離挙動を確認するために、硝酸濃度を 3 M に調製した模擬溶液を用いて、カラム分離試験を行った。Sr 吸着剤カラムによる代表的な FP 元素の分離結果を Fig. 57 に示す[DtBu + n-hexadecanol(1.25)]。Y、Zr、Ru、Nd は 3 M 硝酸による洗浄工程で溶離ピークが現れたことから、カラムに若干カラムに吸着されたと考えられる。しかし、これらの元素も、Ba を除く他の元素と同様に Sr とは相互分離された。Sr は純水によって Ba を伴って溶離され、カラムの洗浄工程では Sr の漏えいが検出されなかったことから、Sr を Ba を除く他の FP 元素と分離できることが明らかとなった。

### 3.5 実液試験

#### 3.5.1 実験

Sr 吸着剤として、DtBu + n-hexadecanol (1.25)を用い、カラムのコンディショニングに 3 M 硝酸 (2 cm<sup>3</sup>)、HLLW (2 cm<sup>3</sup>)、カラムの洗浄に 3 M HNO<sub>3</sub> (2 cm<sup>3</sup>)、溶離に純水(10 cm<sup>3</sup>)を順次送液した。その他、用いた HLLW、実験方法は 2.5.1 節と同様である。

#### 3.5.2 結果と考察

##### 3.5.2.1 コールド試験結果

Sr 吸着剤カラムでの模擬 HLLW の分離試験結果を Fig. 58 に示す。ほとんどの元素はカラムに吸着されずに、溶離された。Pd は弱い吸着性を示し、やや遅れたピーク位置で溶離され、テーリングが大きく、一部が Sr のピークと重なった。Fig. 57 の試験結果と比較すると、ピークのテーリングが大きくなつたために、Sr と Pd のピークの重なりが大きくなっている。Fig. 57 では線速が 1.27 cm/min であるのに対して、Fig. 58 での線速は約 0.37 cm/min と遅く、吸着速度の遅いと考えられる Pd がカラムに吸着されやすい条件だったためと考えられる。

##### 3.5.2.2 ホット試験結果

実 HLLW を Sr 分離カラムで分離した試験結果を Fig. 59 に示す。Y、Cs、La、Nd、Eu、Am、及び Cm はカラムに吸着されずに溶離された。Fig. 58 に示すコールド試験結果に比べると、Pd のピークは右側にシフトしているが、これはホット試験ではカラムの出口形状を細くしたことで、線速度が低下した(コールド : 1 cm<sup>3</sup> の滴下に約 5 分 20 秒→ホット : 1 cm<sup>3</sup> の滴下に約 6 分)ために、吸着反応が遅いと考えられる Pd はカラムに吸着しやすくなつたものと考えられる。最後に、Sr は純水によって溶離回収された。Sr 製品に一部の Pd が含まれる結果となつたが、Fig. 57、Fig.

58 及び Fig. 59 の結果を比較すると、線速が速いほど Pd のテーリングを抑制できるため、流速を制御する方法で Pd と Sr のピークの重なりを抑制できると考えられる。

#### 4. プロセスフロー試験

##### 4.1 目的

上述のように、Cs 分離試験、及び Sr 分離試験は共に、良好な分離試験結果が得られ、高濃度硝酸溶液から Cs 及び Sr を選択的に分離回収できる見通しが立てられた。本研究は、Fig. 1 に示すように HLLW から TRU 元素をミキサーセトラーによって分離回収した後、Cs 及び Sr を順に分離回収することを目的としている。上流の溶媒抽出工程においては錯形成剤等の利用が想定されている。ここでは、錯形成剤等が Cs 分離及び Sr 分離に及ぼす影響を調べるために、模擬 HLLW からミキサーセトラー試験によって分離されたラフィネート<sup>42)</sup>を用い、Fig. 60 に示すプロセスフローに従って Cs 及び Sr を分離回収した。

##### 4.2 実験

模擬高レベル廃液からミキサーセトラーによって希土類元素を抽出された後のラフィネートを試験液として使用した<sup>42)</sup>。ミキサーセトラーによる分離前の模擬高レベル及び分離後のラフィネートの硝酸濃度を 3 M に調整した溶液(Cs 分離カラム用供給液)の組成を Table 16 に示す。模擬 HLLW には、クラッド生成防止及び Pd 抽出抑制のための錯形成剤としてヒドロキシルエチルエチレンジアミン三酢酸(HEDTA)、及び、還元剤としても働き、Zr の抽出を抑制する過酸化水素が加えられている。そのため、本試験で使用したラフィネートにも相当量の HEDTA 含まれている(分解せずに残留した過酸化水素の濃度は未分析のため不明)。カラム分離の方法は 2.4.1 節と同様である。

カラム分離で回収した製品又は廃液中のある元素の除染係数(DF)は、供給液中の濃度/製品中の濃度と定義し<sup>43)</sup>、下式より算出した。

$$DF_{n_1, n_2} = \frac{C_0}{\sum_{i=n_1}^{n_2} C_i V_i / \sum_{i=n_1}^{n_2} V_i} \quad (13)$$

ここで、 $C_0$  は注目元素の原料中の濃度を、 $C_i$  は  $i$  番目のフラクションの注目元素の濃度を、 $V_i$  は  $i$  番目のフラクションの体積をそれぞれ示す。Cs 及び Sr については  $n_1$  及び  $n_2$  を廃液となるフラクションの番号に、他の元素については  $n_1$  及び  $n_2$  を製品となるフラクションの番号とした。

##### 4.3 結果と考察

初めに模擬 HLLW から希土類元素等を除去したラフィネートを Cs 吸着剤カラム[Calix + *n*-hexadecanol(1.25)]に通液し、Cs を分離した。試験結果を Fig. 61 に示す。Cs 以外の元素はカラムに吸着されずに溶離・回収された。一方、Cs は移動相を純水に切り替えて硝酸濃度を低下させることで、カラムから脱着し、溶離・回収された。使用したラフィネートには錯形成剤が相当量含まれていたが、これらは Cs 分離には影響がないことが確認できた。溶出液中に Cs が検出された 17 番目から 20 番目のフラクションを Cs 製品、8 番目から 16 番目のフラクションを次工程である Sr 分離カラムの供給液とした。Cs 分離カラムでの Cs の除染係数( $DF_{8,16}$ )、Cs 製品中の各元素の除染係数( $DF_{17,20}$ )、及び回収率を Table 17 に示す。Ru 及び Pd が若干 Cs 製品に混入したが、Cs を効果的に分離できたことが分かる。Cs の回収率は 1 を超えたが、溶離ピークの形状から回

収は不完全であることが明らかであり、定量的な回収には溶離液の增量あるいは前述のように流速を下げる等の対策が必要である。

次いで、Sr 分離カラム[DtBu + *n*-hexadecanol(1.25)]を用いて上記試験の廃液から Sr を分離した。Cs 分離カラムからの Sr 分離用共給液の組成は Table 18 に示す。続く工程の Mo 分離試験に十分な試験液を確保するため、2 回の分離試験を続けて実施した結果を Fig. 62 に示す。Sr 及び Ba を除く他の元素はカラムに吸着されずに溶離・回収された。一方、Sr は移動相を純水に切り替えることでシャープな溶離ピークとして溶離・回収されたが、Ba も挙動を共にすることが確認された。Sr が検出された 16 番目から 24 番目及び 36 番目から 40 番目のフラクションを Sr 製品、9 番目から 15 番目及び 28 番目から 35 番目のフラクションを次工程である Mo 分離カラムの供給液とした。Table 17 に示すように、Ba の除染係数は低く、Sr との相互分離は困難であるが、他の元素については高い除染係数を得られた。Sr の回収率は非常に高く、分析における誤差の影響があつたと考えられる。

#### 4.4 まとめ

想定されるプロセスフローに従って、模擬 HLLW から Cs 及び Sr を順番に分離した。前述の基礎試験とは異なり、第三相の生成を抑制すること等を目的として、錯形成剤等が含まれていたが、Cs 分離及び Sr 分離には影響がないことが確認できた。Sr 製品の Ba の除染係数は低く、Sr と Ba の相互分離は達成できなかったが、他の元素については高い除染係数を得られた。

## 5. 結言

本研究で調製した Cs 吸着剤は Cs に対して極めて高い選択性を示し、使用済核燃料の再処理で発生する HLLW から Cs を選択的に分離回収できることが明らかになった。また、カラム法での利用時にも、含浸吸着剤からの抽出剤の溶出は極少量であり、動的飽和吸着容量はほとんど減少しないことが確認できた。更に、 $\gamma$ 線に対する耐久性も高く、想定される線量ではほとんど動的飽和吸着容量が減少しないことが分かった。従って、本 Cs 吸着剤を用いたカラム法は、高濃度硝酸溶液中から Cs を選択的に分離する極めて有望な分離手法である。ただし、流速の速い条件では Cs の定量的な回収が困難であるため、Cs の脱離は十分に遅い流速で行う必要がある。

一方、Sr 吸着剤は Ba 及び Tc が挙動を共にするものの、Sr 対して高い選択性を示し、高濃度硝酸溶液から Sr を選択的に分離回収できることが明らかになった。Sr と Pu の分離も困難であるが、本研究で想定する分離スキームでは Pu は予め高レベル廃液から分離されている。カラム法での利用時には少量の抽出剤が含浸吸着剤から水相へと溶け出すため、繰り返し利用すると動的飽和吸着容量が減少した。また、 $\gamma$ 線の照射により動的飽和吸着容量が減少し、想定される線量では約 30% 低下した。これらの結果から、本研究ではカラム法での Sr 分離工程のプロセス設計に資する有用な基礎データを取得することができた。処理量(吸着容量)、及び耐溶出性を考慮すると Cs 吸着剤は Calix + n-hexadecanol (1.25)が、Sr 吸着剤は DtBu + n-hexadecanol(1.25)が最適と考えられる。

加えて、NUCEF に貯蔵された実 HLLW を使用して、Cs 分離試験及び Sr 分離試験をカラム法で実施した。コールド試験で得られた結果と同様に、良好な分離結果が得られ、ホット試験でも不具合あるいは顕著な挙動の相違は見られなかった。

最後に、想定されるプロセススキームに従ったフロー試験を実施し、上流側で添加されることが想定される錯形成剤等の影響を調べた。その結果、錯形成剤等の影響を受けず、Cs 及び Sr は効果的に分離回収された。

以上の結果から、本研究で行った含浸吸着剤を用いたカラム法による分離手法は、高濃度硝酸溶液から選択的に Cs 及び Sr を分離するためには、非常に有望であることが分かった。

## 謝辞

本研究は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本原子力研究開発機構が実施した平成 19 年度～平成 21 年度「新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発」の成果です。

本研究の遂行にあたり、湿式分離プロセス化学研究グループ員各位の協力に深く感謝します。

$\gamma$ 線照射試験の実施にあたり、ご協力頂いた照射施設管理課 山縣 謙平氏に感謝申し上げます。

## 参考文献

- 1) 増田純男ら：“我が国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性”，日本原子力学会誌, 42, 6, p.486-506 (2000).
- 2) 田中 博ら：“再処理システムの技術検討書”, JNC TY9400 2000-025, p.18-20 (2000).
- 3 ) C. W. Forsberg : “Rethinking High-Level Waste Disposal: Separate Disposal of High-Heat Radionuclides ( $^{90}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ )”, Nucl. Technol., 131, 2, p.252-268 (2000).
- 4) 藤井敬治ら：日本原子力学会 2002 年秋の大会予稿集 F22, p.622 (2002).
- 5) 佐藤浩司ら：“高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究フェーズ II 中間報告”, JNC TN9400 2004-036, p.598-613 (2004).
- 6) 日本原子力学会「分離核変換工学」専門委員会：“総説 分離変換工学”, p.4-21 (2004).
- 7) 山岸 功：“無機イオン交換体を用いた酸性媒体からの Sr 及び Cs の分離と固定化(文献調査)”, JAERI-Review 2001-027 (2001).
- 8) C. L. Riddle, J. D. Baker, J. D. Law, et al. : “Fission Product Extraction (FPEX): Development of a Novel Solvent for the Simultaneous Separation of Strontium and Cesium from Acidic Solutions”, Solv. Extr. Ion Exch., 23, p.449-461 (2005).
- 9) P. Baron, M. Lecomte, B. Boullis, et al. : “Separation of the Long Lived Radionuclides: Current Status and Future R&D Program in France”, Proc. GLOBAL 2003, New Orleans (USA), Nov. 16-20, 2003, p.508-511 (2003).
- 10) S. V. Nesterov : “Crown Ethers in Radiochemistry. Advances and Prospects”, Russian Chem. Reviews, 69, 9, p.769-782 (2000).
- 11) 丸山和博ら：“有機化学序説 第一版”，化学同人, p.180 (1980).
- 12) R.T. Morrison, R.N. Boyd : “モリソンボイド有機化学(中)第四版”，東京化学同人, p.714 (1985).
- 13) E.P. Horwitz, M.L. Dietz, D.E. Fisher : “Correlation of the Extraction of Strontium Nitrate by a Crown Ether with the Water Content of the Organic Phase”, Solv. Extr. Ion Exch., 8, 1, p.199-208 (1990).
- 14) E.P. Horwitz, M.L. Dietz, D.E. Fisher : “SREX: A New Process for the Extraction and Recovery of Strontium From Acidic Nuclear Waste Streams”, Solv. Extr. Ion Exch., 9, 1, p.1-25 (1991).
- 15) D.J. Wood, T.J. tranter, T.A. Todd, et al. : “Effect of the Interference of Alkali and Alkaline Earth Metal Ions on the Extraction of  $^{90}\text{Sr}$  From Acidic Nuclear Waste Solutions by 18-Crown-6 Derivatives”, Solv. Extr. Ion Exch., 13, 5, p.829-844 (1995).
- 16) D.J. Wood, J.D. Law, P.A. Tullock, et al. : “Extraction of Lead and Strontium from Hazardous Waste Streams by Solvent Extraction with 4',4'-(5')-Di-(t-butylidicyclohexo)-18-Crown-6”, Solv. Extr. Ion Exch., 15, 1, p.65-78 (1997).
- 17) M. Draye, G.L. Buzit, J. Foos, et al. : “A Recovery Process of Strontium from Acidic Nuclear Waste Streams”, Sep. Sci. Tech., 32, 10, p.1725-1737 (1997).

- 18) A. Kumar, P.K. Mohapatra, V.K. Manchanda : "Extraction of Radiostrontium from Nitric Acid Medium Using Di-t-Butyl Cyclohexano 18Crown6 in an Aliphatic Alcohol Mixture Diluent", *Radiochim. Acta*, 85, p.113-117 (1999).
- 19) J.D. Lamb, A. Y. Nazarenko, R.J. Hansen : "Novel Solvent System for Metal Ion Separation: Improved Solvent Extraction of Strontium(II) and Lead(II) as Dicyclohexano-18-Crown-6 Complexes", *Sep. Sci. Tech.*, 34, 13, p.2583-2599 (1999).
- 20) K.K. Gupta, P.V. Achuthan, A.Ramanujam, J.N. Mathur : "Effect of Diluents on the Extraction of Sr from HNO<sub>3</sub> Solutions with Dicyclohexano-18-crown-6", *Solv. Extr. Ion Exch*, 21, 1, p.53-71 (2003).
- 21) R.Chiarizia, E.P. Horwitz, M.L. Dietz : "Acid Dependency of the Extraction of Selected Metal Ions by a Strontium Selective Extraction Chromatographic Resin: Calculated vs. Experimental Curves", *Solv. Extr. Ion Exch*, 10, 2, p.337-361 (1992).
- 22) M.L. Dietz, E.P. Horwitz, R.Chiarizia and H. Diamond : "Novel Extraction Chromatographic Materials for the Separation and Preconcentration of Radionuclides", Proc. of ISEC'93, York (UK), Sep. 9-15, 1993, D.H. Logsdail, M.J. Slater, Eds., "Solvent Extraction in the Process Industries", Vol.3, p.1587-1593 (1993).
- 23) E.P. Horwitz, R.Chiarizia, M.L. Dietz : "A Novel Strontium-Selective Extraction Chromatographic Resin", *Solv. Extr. Ion Exch*, 10, 2, p.313-336 (1992).
- 24) N.Takagi, Y. Izumi, K. Ema, et al. : "Radiolytic Degradation of a Crown Ether for Extract Ability of Strontium", *Solv. Extr. Ion Exch*, 17, 6, p.1461-1471 (1999).
- 25) L. Matel, T. Bilbao : "Extraction of Strontium Using an Irradiated Extraction Agent of Crown Structure", *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.*, 137, 3, p.183-190 (1989).
- 26) L. Matel : "Radiation-Chemical Changes of Benzo-15-Crown-5 in Chloroform", *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.*, 146, 2, p.85-93 (1990).
- 27) M. Draye, R. Chomel, P. Doutreluingne, et al. : "Radiolytic Products Study of Dicyclohexano-18-Crown-6, a Selective Extractant for Nuclear Fuel Reprocessing", *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.*, 175, 1, p.55-62 (1993).
- 28) J. F. Dozol, M. J. Schwing-Weill, F. Arnaud-Neu : "Extraction and Selective Separation of Long Lived Nuclides by Functionalized Macrocycles", EUR 19605EN (2000).
- 29) N. Simon, S. Eymard, B. Tournois, J.F. Dozol : "Caesium Extraction from Acidic High Level Liquid Wastes with Functionalized Calixarenes", Proc. ATALANTE 2000, Avignon (France), Oct. 24-26, 2000, Paper No. O2-06, Available in the website  
<http://www-atalante2004.cea.fr/home/liblocal/docs/atalante2000/index.htm>
- 30) P. Baron, M. Lecomte, B. Boullis, et al. : "Separation of the Long Lived Radionuclides: Current Status and Future R&D Program in France", Proc. GLOBAL 2003, New Orleans (USA), Nov. 16-20, 2003, p.508-511 (2003).

- 31) N. Simon, B. Tournois, S. Eymard, et al. : “Cs Selective Extraction from High Level Liquid Wastes with Crown Calixarenes : Where are we today?”, Proc. ATALANTE 2004, Nimes (France), June 21-25, 2004, Paper No. P1-57 (2004).
- 32) P. V. Bonnesen, L. H. Delmau, B. A. Moyer, et al. : “A Robust Alkaline-Side CSEX Solvent Suitable for removing Cesium from Savannah River High Level Waste”, Solv. Extr. Ion Exch., 18, 6, p.1079 (2000).
- 33) R. A. Leonard, S. B. Aase, H. A. Arifat, et al. : “Experimental Verification of Caustic-Side Solvent Extraction for Removal of Cesium from Tank Waste”, Solv. Extr. Ion Exch., 21, 4, p.505 (2003).
- 34) L. H. Delmau, T. J. Lefranc, P. V. Bonnesen, et al. : “Fundamental Studies Regarding Synergism Between Calix[4]arene-bis(tert-octylbenzo-crown-6) and Alcohol Modifiers in the Solvent Extraction of Cesium Nitrate”, Solv. Extr. Ion Exch., 23, 1, p.23 (2005).
- 35) 張安運ら：日本原子力学会 2003 年秋の大会予稿集 I60, p.545 (2003).
- 36) A. Zhang, Y.-Z. Wei, H. Hoshi, et al.: “Chromatographic Separation of Cesium and Strontium from High Level Liquid Waste Using Silica-Based Calixarene-Crown Extraction Resins”, Proc. GLOBAL 2005, Tsukuba (Japan), Oct. 9-13, 2005, Paper No. 056 (2005).
- 37) Y.-Z. Wei, et al.: “Studies on the Separation of Minor Actinides from High-Level Wastes by Extraction Chromatography Using Novel Silica-Based Extraction Resins”, Nucl. Technol., 132, p.413-423 (2000).
- 38) 星 陽崇ら：“TODGA 吸着材の基礎特性に関する試験”，JNC-TJ8410 2004-001 (2004).
- 39) 財団法人産業創造研究所：“平成 12 年度新湿式再処理システム技術開発等 (科学技術庁委託事業 成果報告書)”, 平成 13 年 3 月 (2001).
- 40) 星 陽崇ら：“Cs の抽出クロマトグラフィー分離に関する試験(2)”, JNC-TJ8400 2005-011 (2005).
- 41) 文部科学省原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発 平成 20 年度報告書 (2009).
- 42) 文部科学省原子力システム研究開発事業 新規抽出剤・吸着剤による TRU・FP 分離の要素技術開発 平成 21 年度報告書 (2010).
- 43) 原子力百科事典 ATOMICA, <[http://www.rist.or.jp/atomica/dic/dic\\_detail.php?Dic\\_Key=443](http://www.rist.or.jp/atomica/dic/dic_detail.php?Dic_Key=443)> (accessed 2010-01-05).

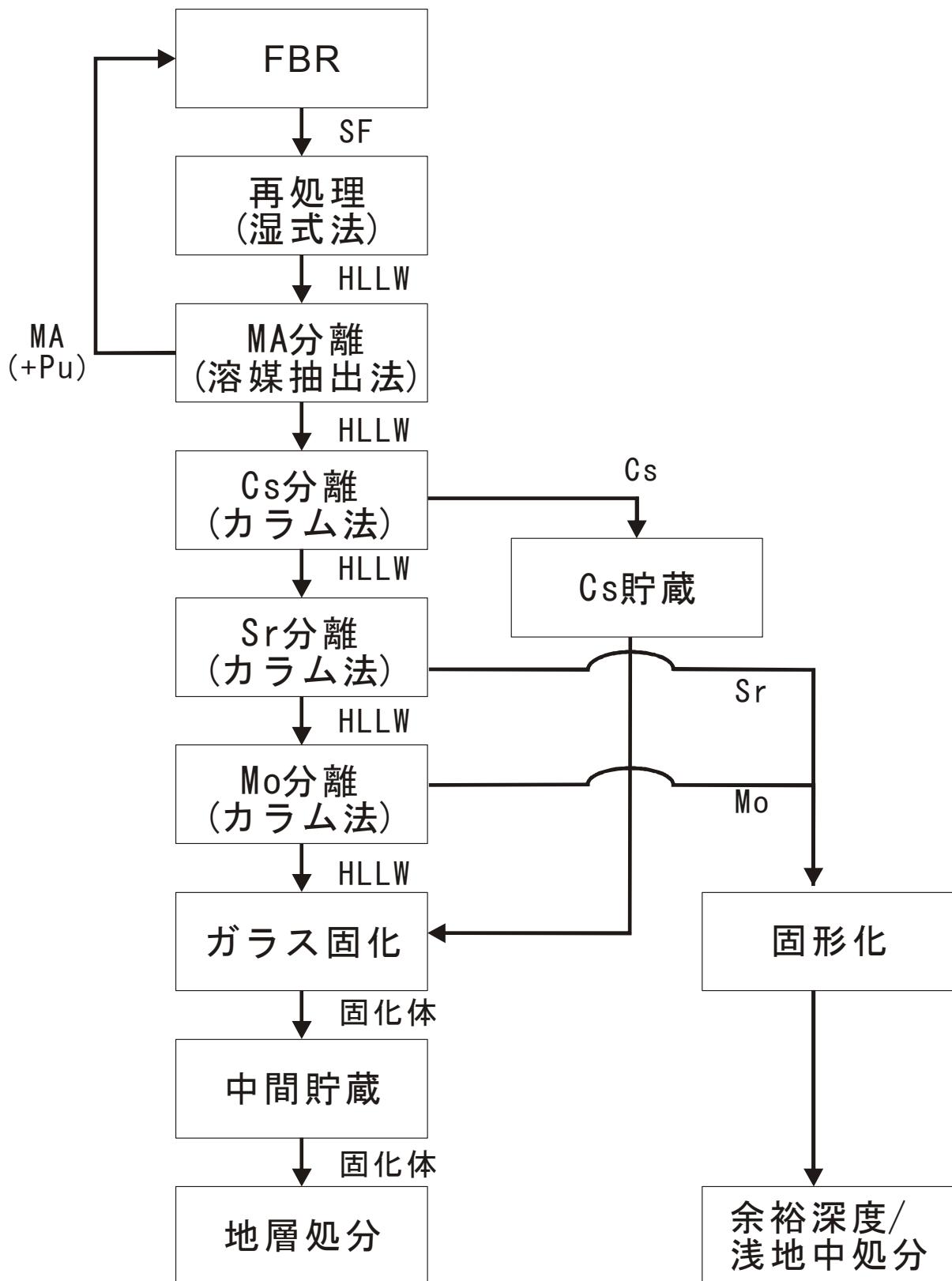


Fig. 1: Separation scheme.

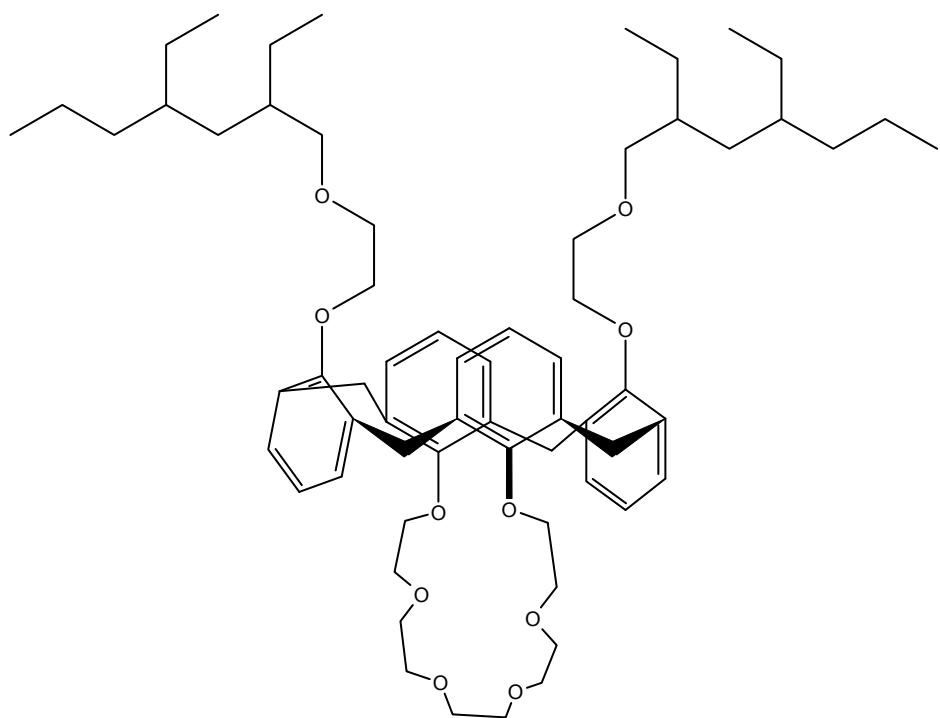


Fig. 2: Chemical structure of Cs extractant (Calix).

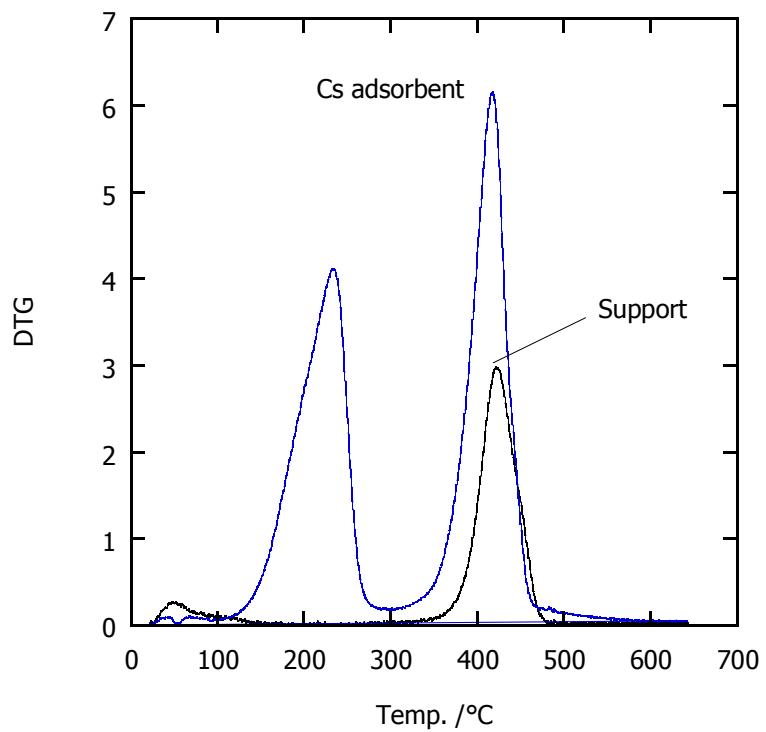
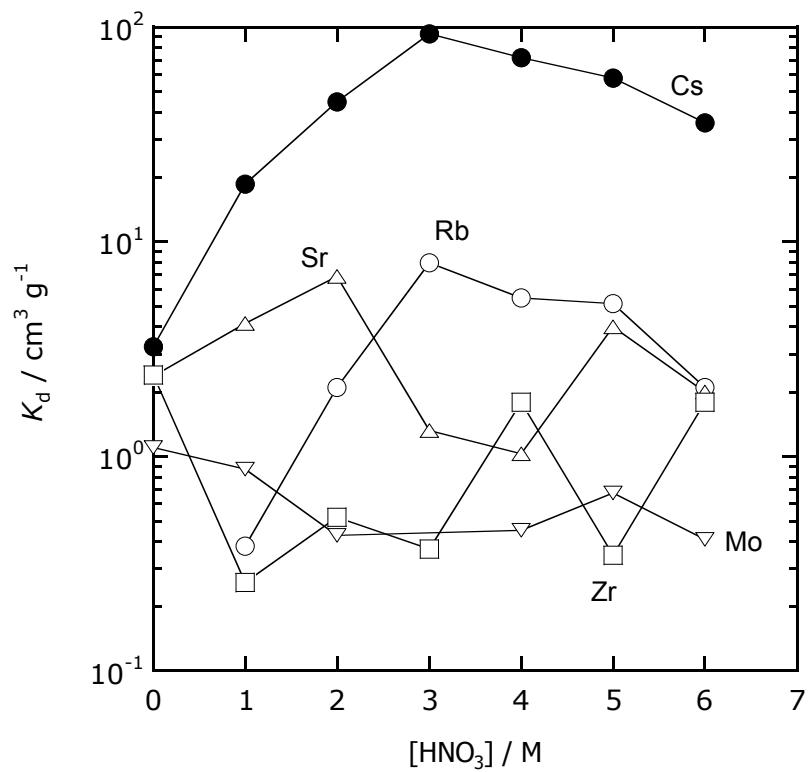
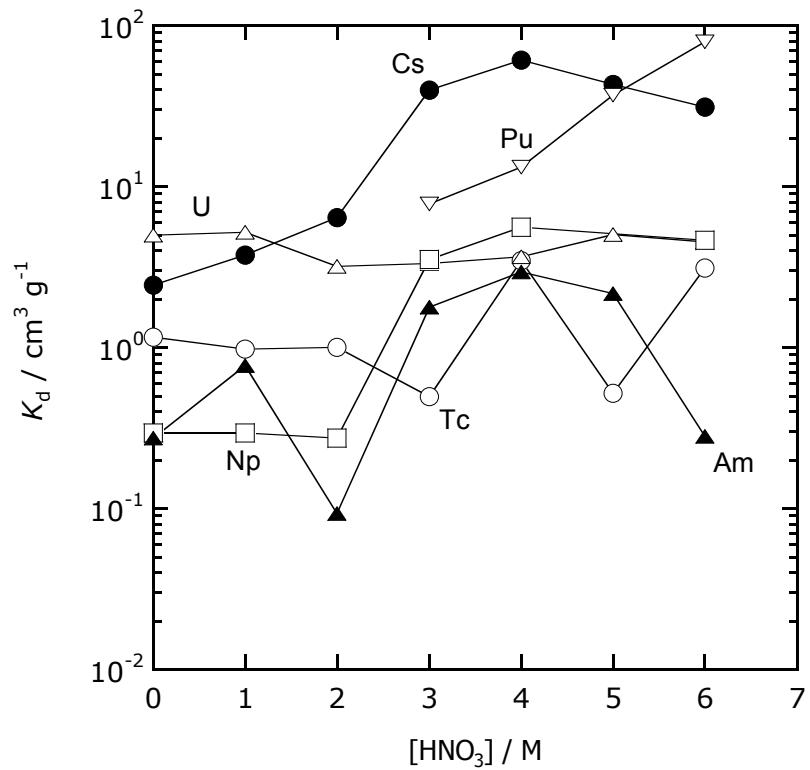


Fig. 3: Differential thermo-gravimetric analysis of Cs adsorbent.  
Calix + *n*-dodecanol (5.56).

Fig. 4: Distribution coefficient onto Calix + *n*-dodecanol (5.56).Fig. 5: Distribution coefficient onto Calix + *n*-hexadecanol (4.17).

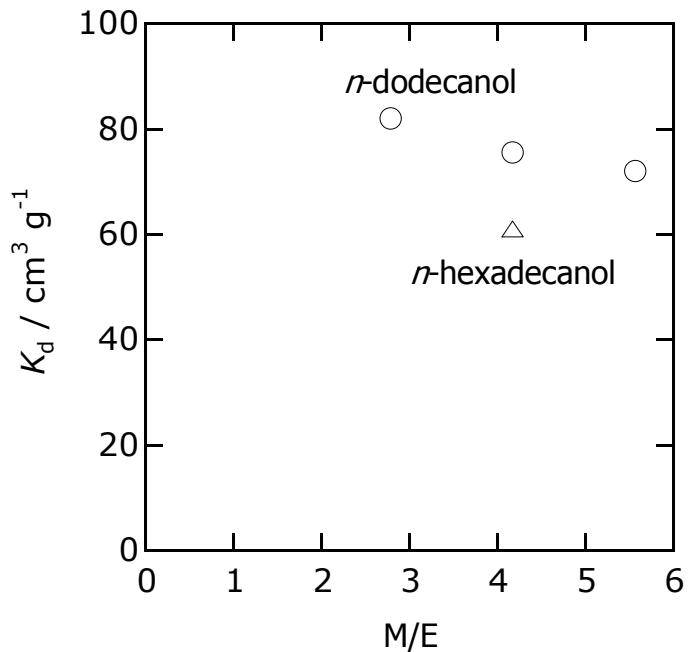


Fig. 6: Distribution coefficients of Cs onto Cs adsorbent.  $[\text{Cs}] = 10 \text{ mM}$ ;  $[\text{HNO}_3] = 4 \text{ M}$ ; temperature:  $30^\circ\text{C}$ ; contact time: 2 h.

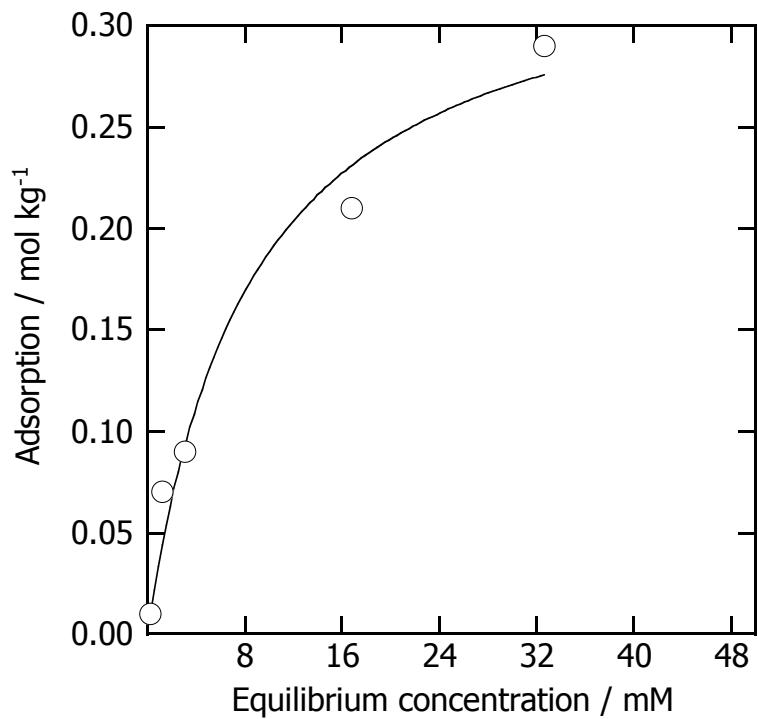


Fig. 7: Adsorption isotherms of Cs onto Calix + *n*-hexadecanol (4.17).  $[\text{HNO}_3] = 4 \text{ M}$ ; temperature:  $25^\circ\text{C}$ ; contact time: 2 h.

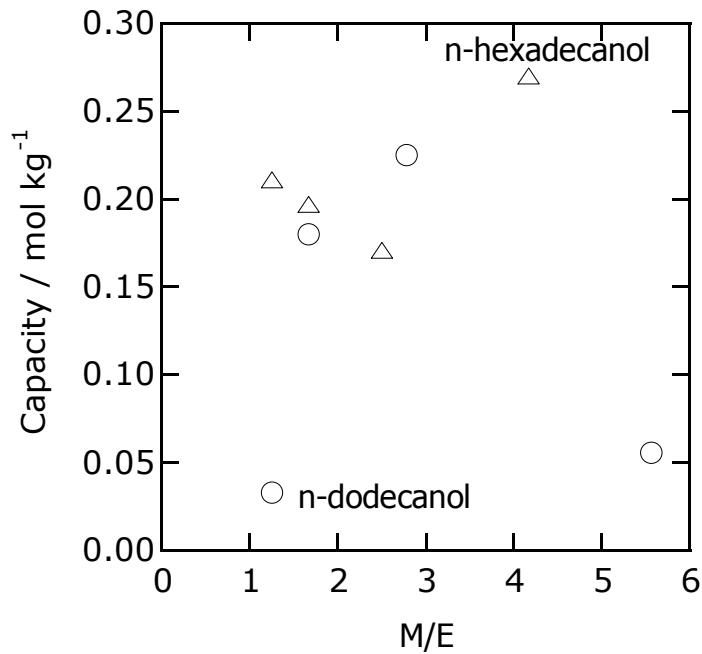


Fig. 8: Static capacity of Cs onto Cs adsorbent.  $[HNO_3] = 4\text{ M}$ ; temperature:  $25^\circ\text{C}$ ; contact time: 2 h.

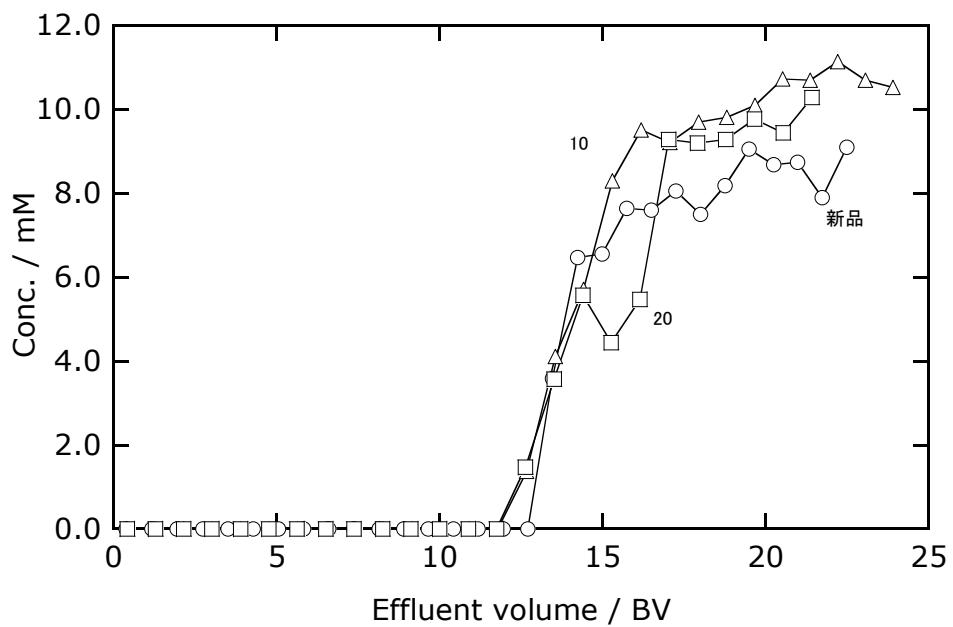


Fig. 9: Breakthrough curve through a packed column with Cs adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 300 mm height (bed height 230 mm); Calix + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1  $\text{cm}^3/\text{min}$ ; room temperature; Feed: 10 mM Cs in 4 M  $HNO_3$ .

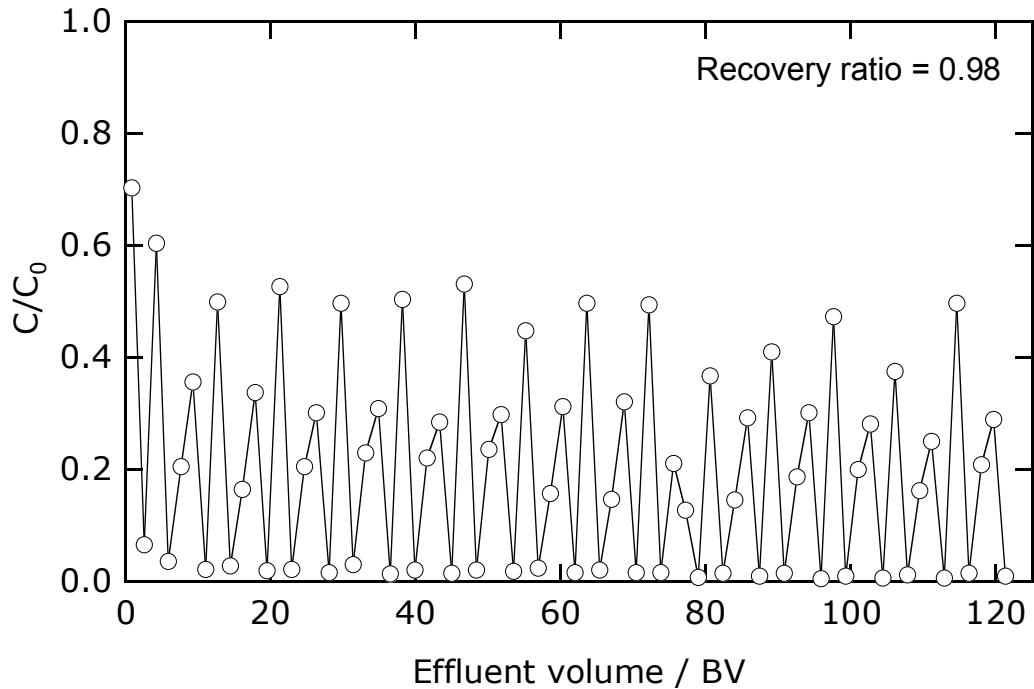


Fig. 10: Elution curve of Cs through a column by repetition of the separation procedure (1-30). Adsorbent: Calix + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 150 mm; flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10 mM Cs-3M HNO<sub>3</sub>.

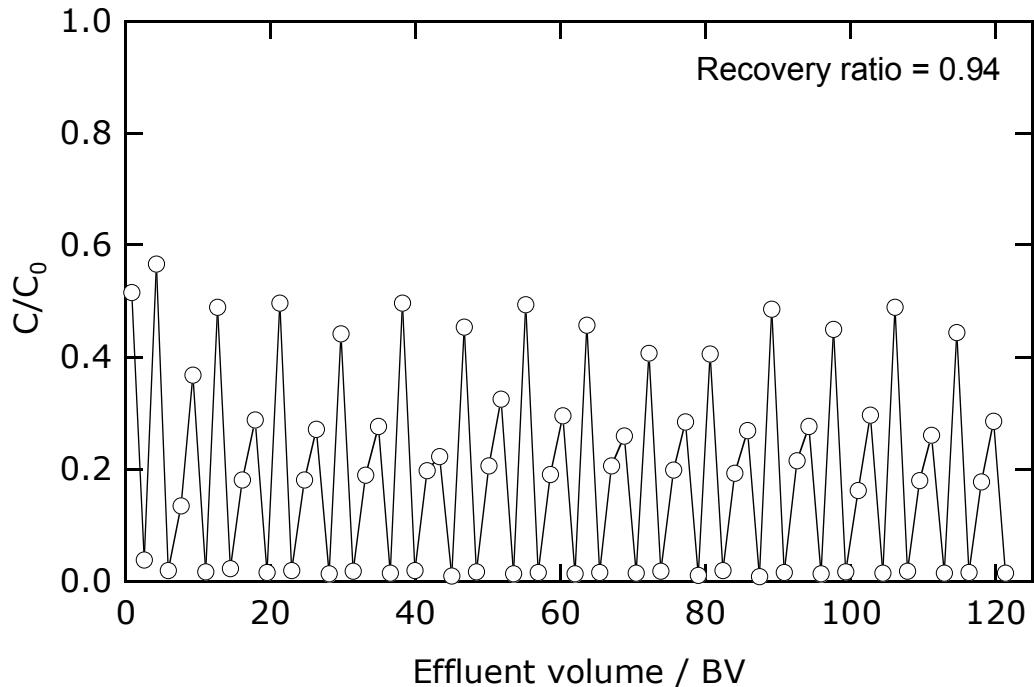


Fig. 11: Elution curve of Cs through a column by repetition of the separation procedure (31-60). Adsorbent: Calix + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 150 mm; flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10 mM Cs-3M HNO<sub>3</sub>.

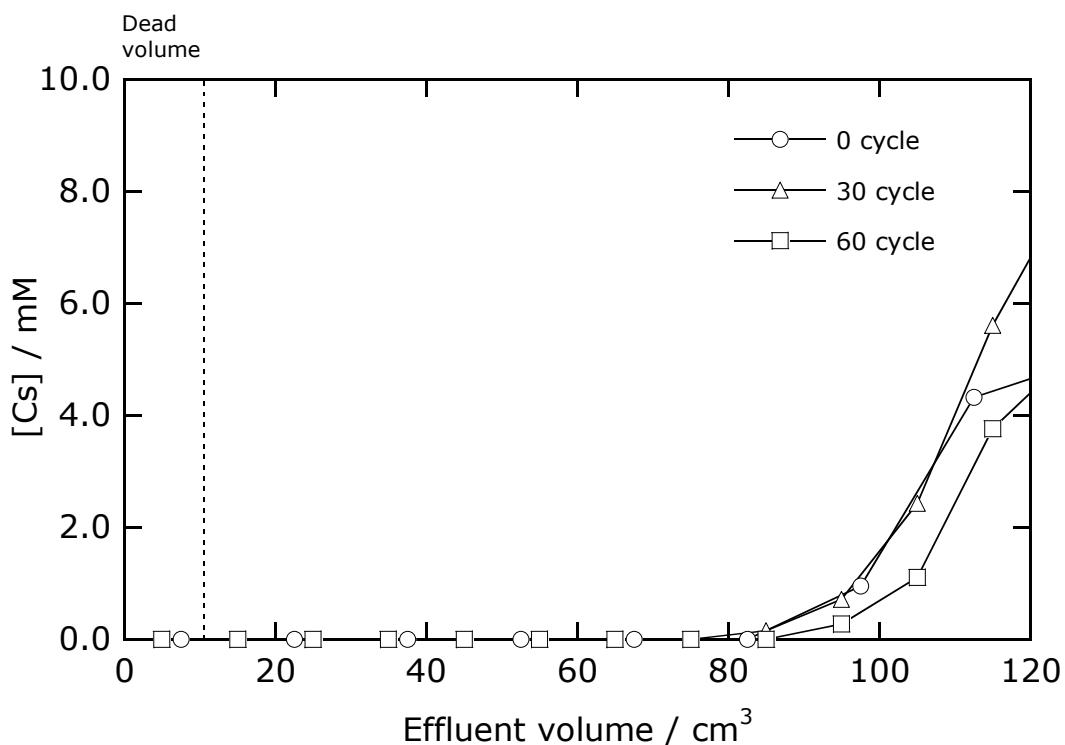


Fig. 12: Breakthrough curves of Cs. Adsorbent: Calix + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height:150mm; flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10mMCs-3MHNO<sub>3</sub>.

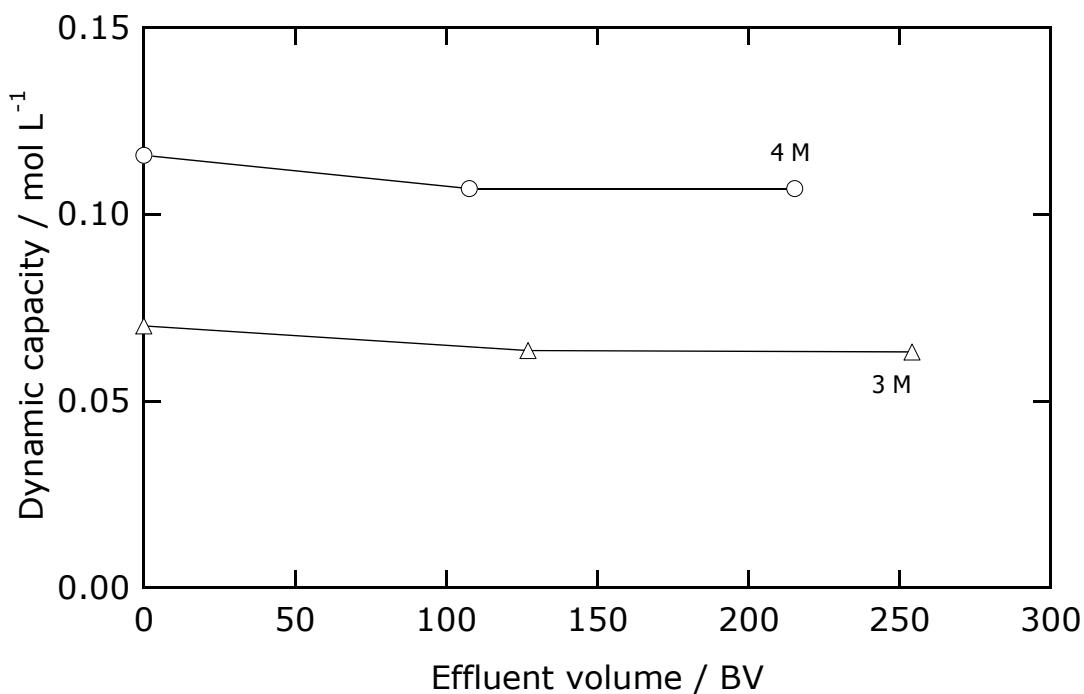


Fig. 13: Dynamic capacity of Cs adsorbent column. Column: i.d. 10 mm; Calix + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; room temperature.

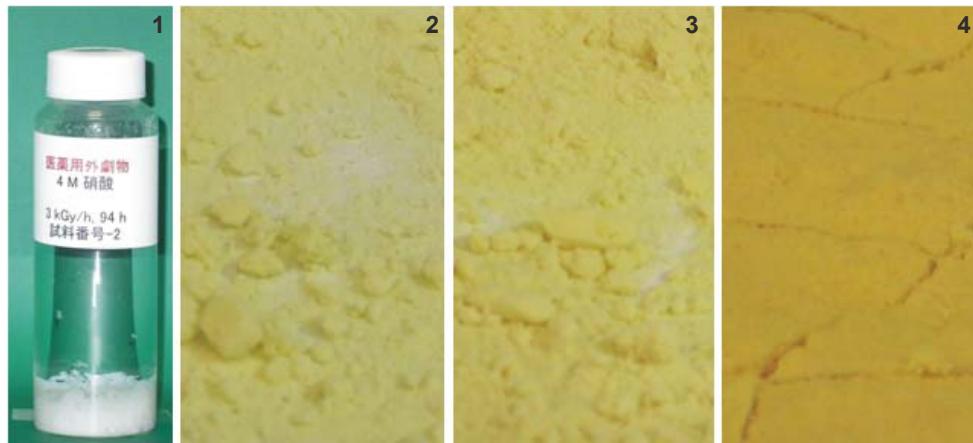


Fig. 14: Photographs of adsorbent soaked in nitric acid solution (1) and dried adsorbent [Calix + *n*-dodecanol (5.56)] after irradiation: 60 kGy (2), 256 kGy (3), 827 kGy (4).

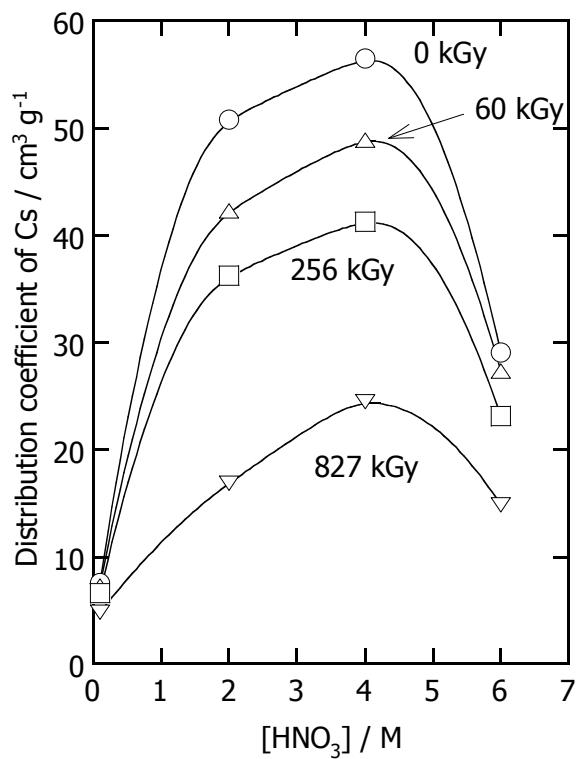


Fig. 15: Distribution coefficient of Cs onto irradiated adsorbent. Adsorbent: Calix + *n*-dodecanol (5.56); Dose rate: 2.72 kGy/h; soaked in 4 M  $\text{HNO}_3$ ; Adsorbed from 4 M  $\text{HNO}_3$ . Adsorbents (0 kGy) were not irradiated but were soaked in nitric acid solution as long as irradiated ones (827 kGy).

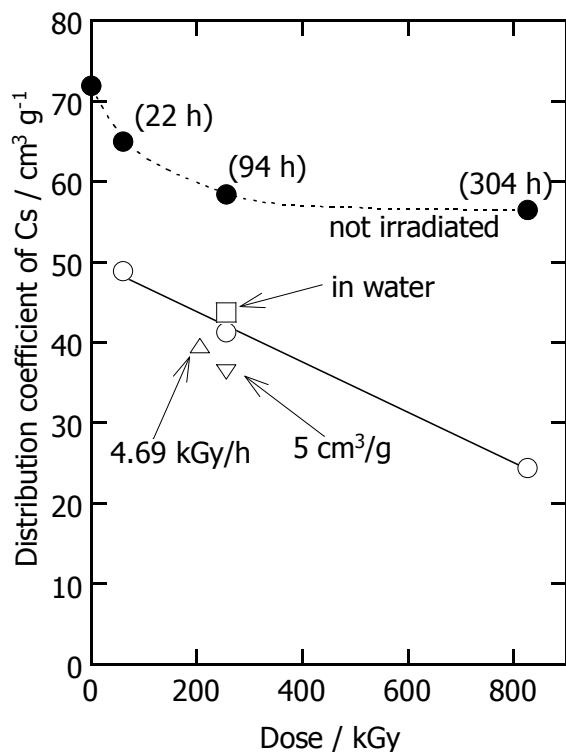


Fig. 16: Distribution coefficient of Cs after irradiation. Adsorbent: Calix + *n*-dodecanol (5.56); dose rate: 2.72 kGy/h; soaked in 4 M HNO<sub>3</sub> and liquid-solid ratio: 20 cm<sup>3</sup>/g; adsorption from 4 M HNO<sub>3</sub>. Closed circles indicate adsorbent was not irradiated but was soaked in nitric acid solution.

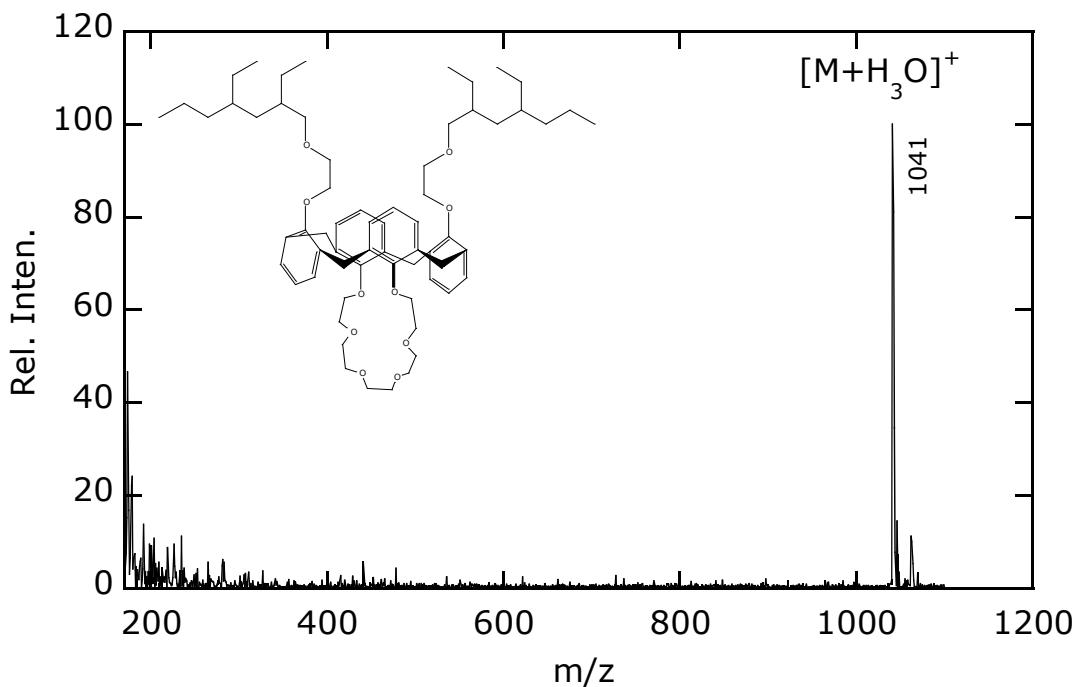


Fig. 17: Mass spectrum of Calix standard.

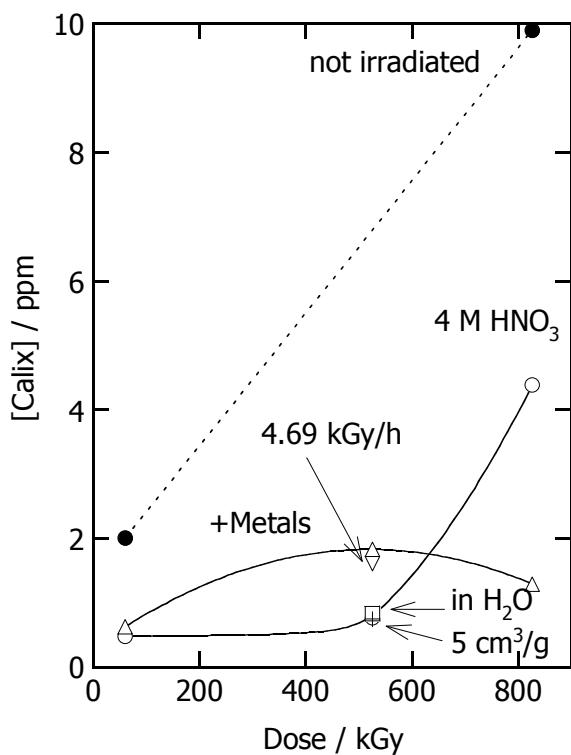


Fig. 18:Leakage of Cs extractant from adsorbent after gamma irradiation. Adsorbent: Calix + *n*-dodecanol (5.56); dose rate: 2.72 kGy/h; soaked in 4 M HNO<sub>3</sub> and liquid-solid ratio: 20 cm<sup>3</sup>/g; adsorption from 4 M HNO<sub>3</sub>.

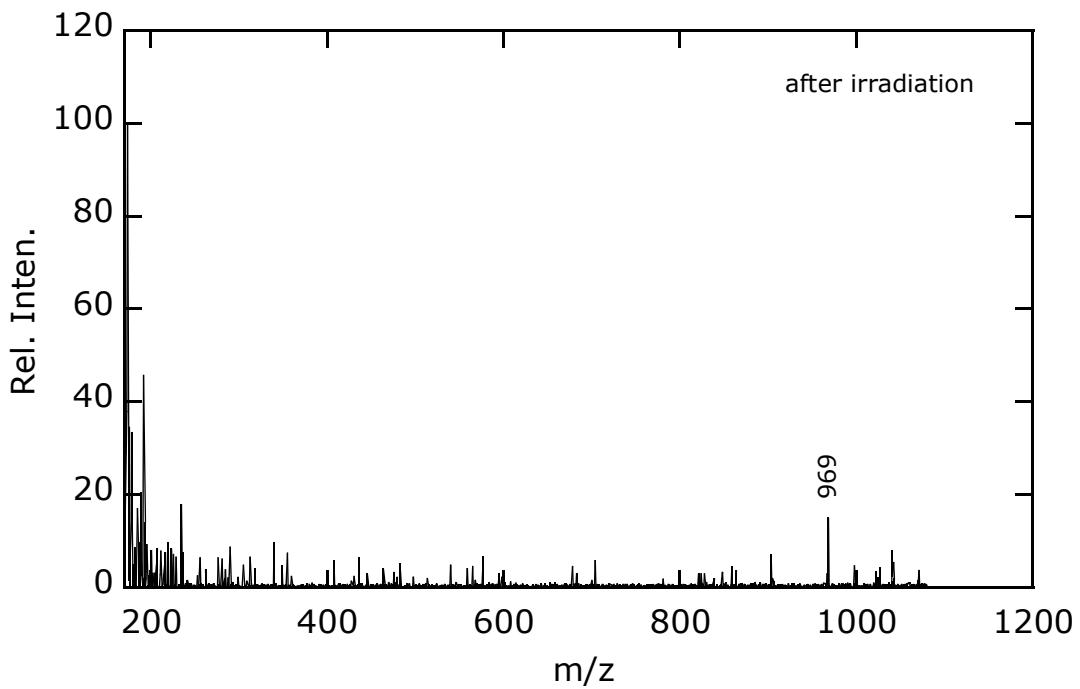


Fig. 19: Mass spectrum of Calix after gamma irradiation.

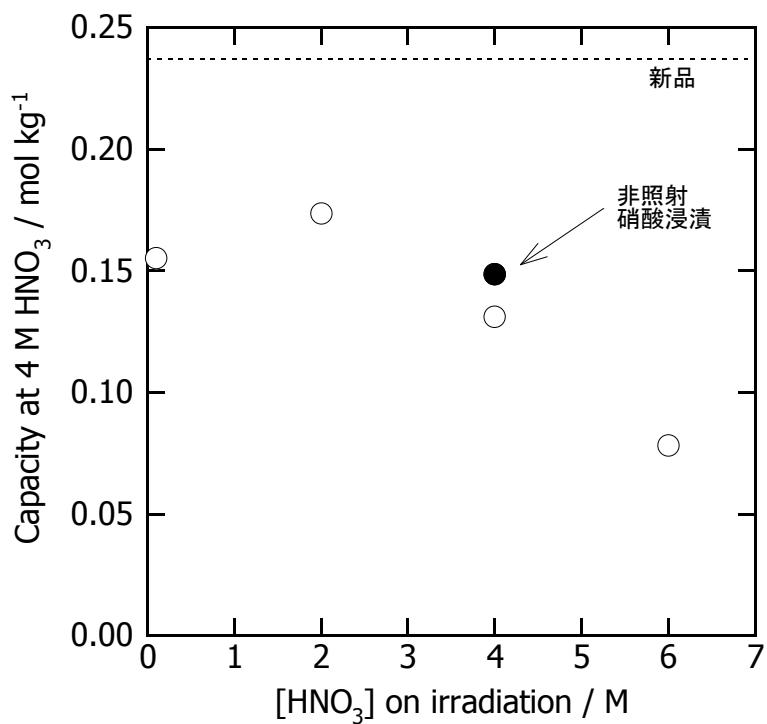


Fig. 20: Static capacity of Calix + *n*-hexadecanol (4.17) after gamma irradiation. Dose rate: 2.3 kGy/h; duration: 116 h; dose: 267 kGy; soaked in 0.1-6 M  $\text{HNO}_3$ ; adsorption from 4 M  $\text{HNO}_3$ .

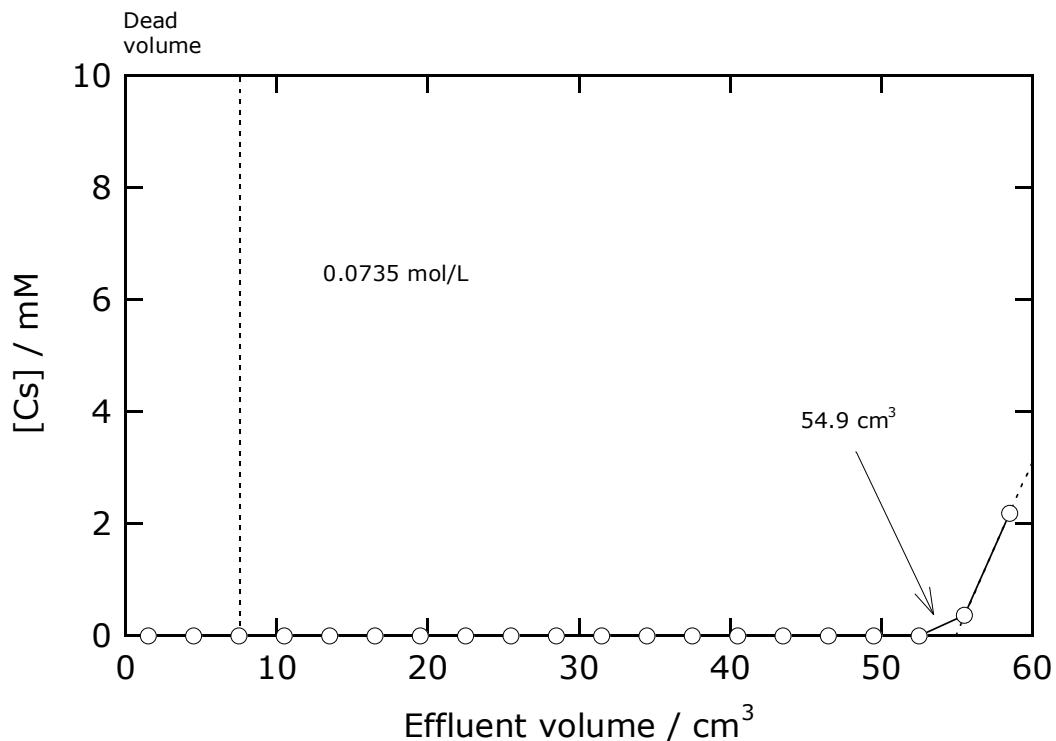


Fig. 21: Break through curve of Calix + *n*-hexadecanol(1.25) after gamma irradiation. Dose rate: 1.82 kGy/h; duration: 16 h; Dose: 29.1 kGy; soaked in 3 M  $\text{HNO}_3$ . Column: i.d. 10 mm x 100 mm height (bed height: 82mm); flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; mobile phase: 10mMCs-3MHNO<sub>3</sub>.

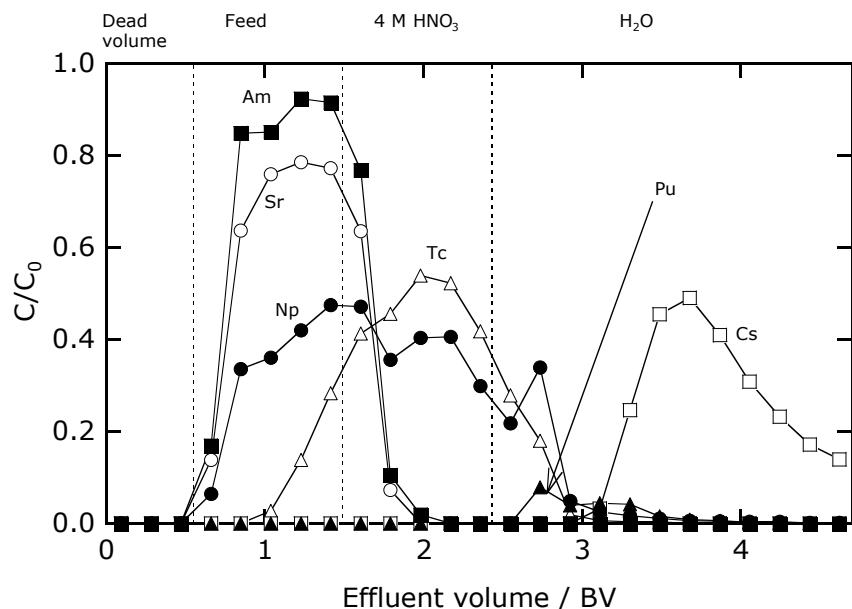


Fig. 22: Separation of Cs and TRU through a packed column with Cs adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 300 mm height (bed height 240 mm); Calix + *n*-hexadecanol (4.17); flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; room temperature; Feed: 4 M HNO<sub>3</sub> solution.

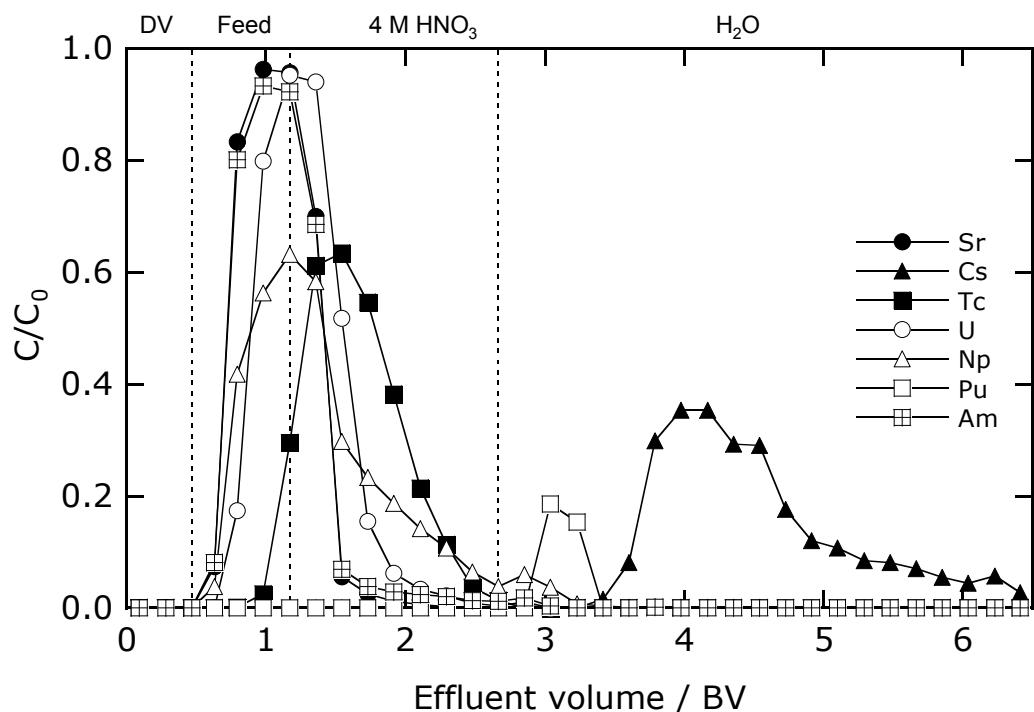


Fig. 23: Separation of Cs and TRU through a packed column with Cs adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 300 mm height (bed height 230 mm); Calix + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; room temperature; Feed: 4 M HNO<sub>3</sub> solution.

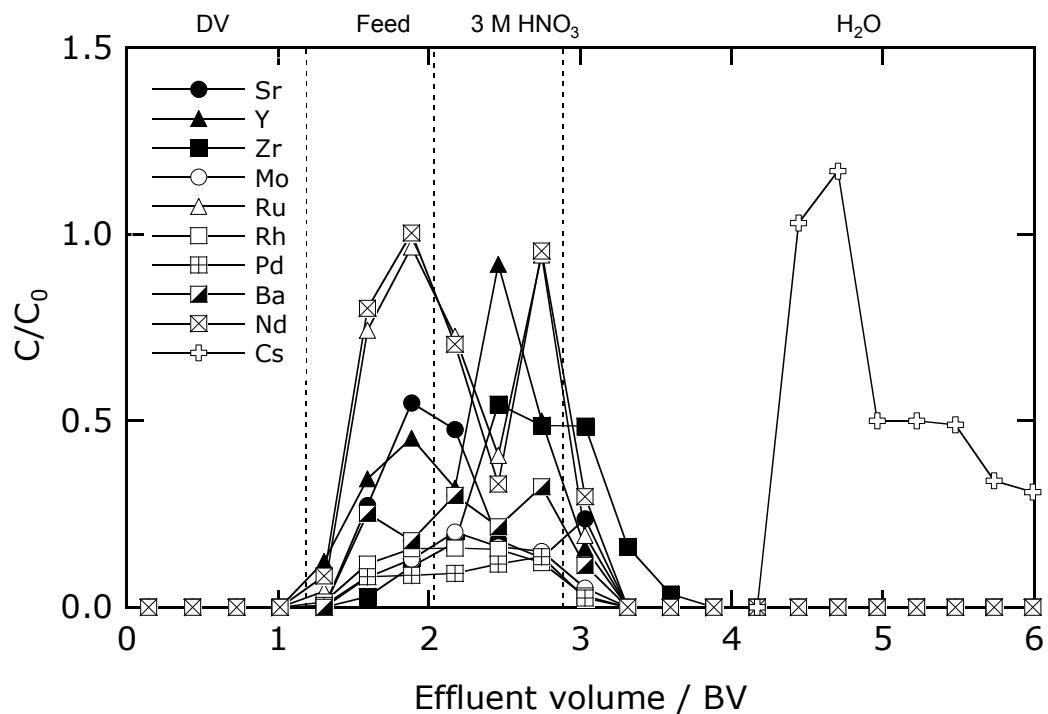
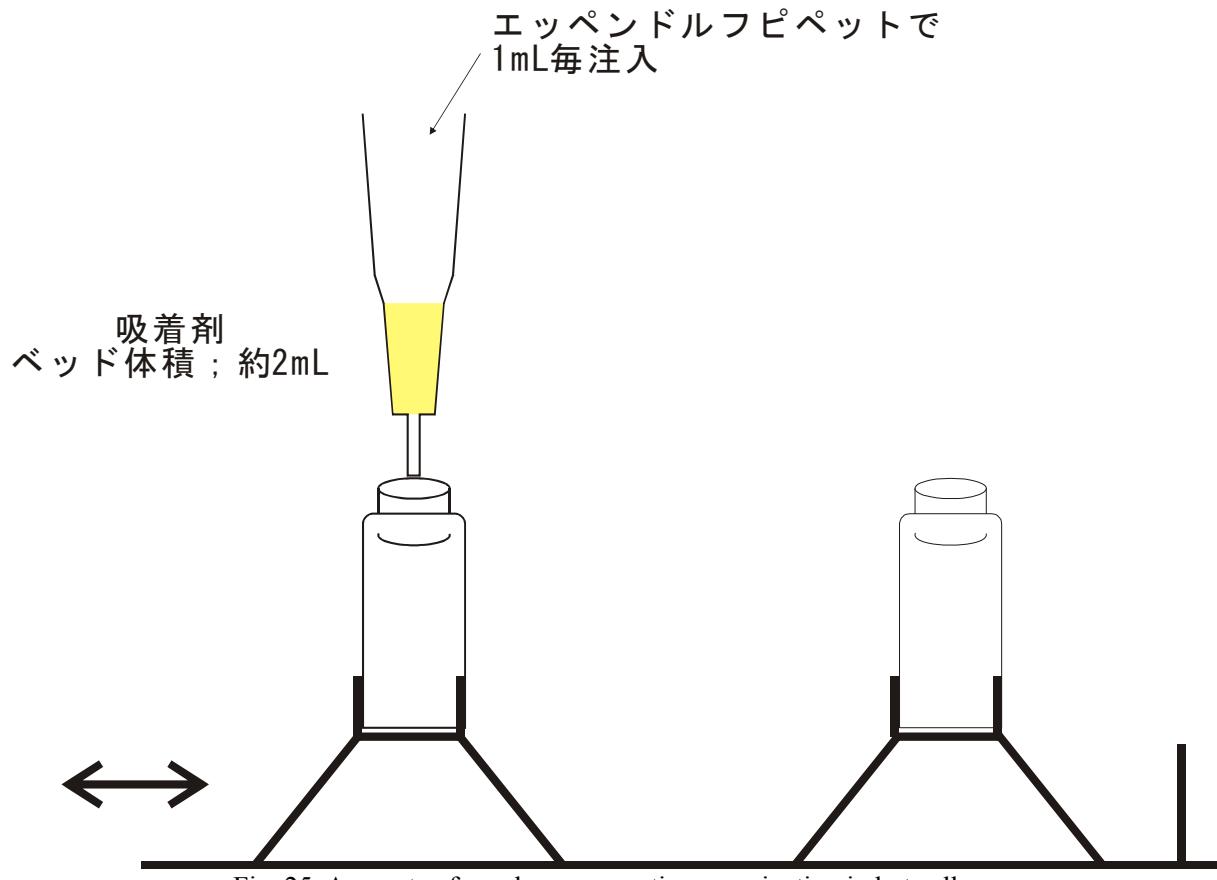


Fig. 24: Separation of Cs and typical FP through a packed column with Cs adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 100 mm height (bed height 75 mm); Calix + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; room temperature; Feed: 3 M HNO<sub>3</sub> solution.



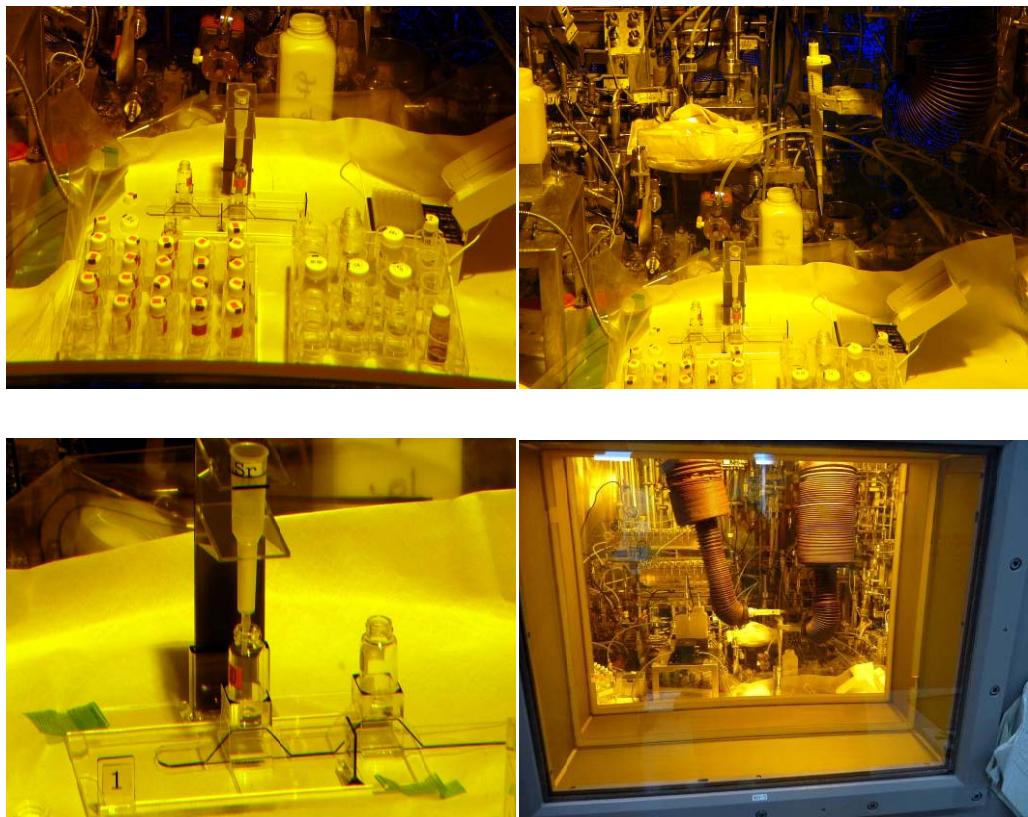


Fig. 26: Photographs of separation examination in  $\alpha\gamma$ -cell of NUCEF.

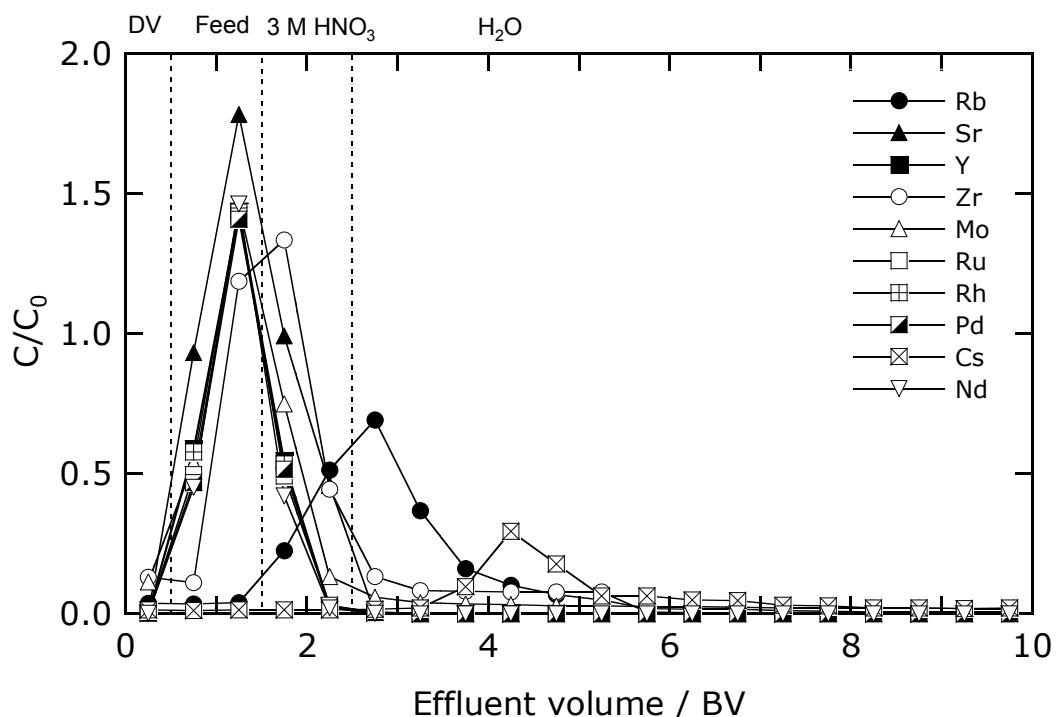


Fig. 27: Separation of Cs from simulated HLLW. Adsorbent: Calix + *n*-hexadecanol (1.25); bed volume: ca.  $2 \text{ cm}^3$ ;

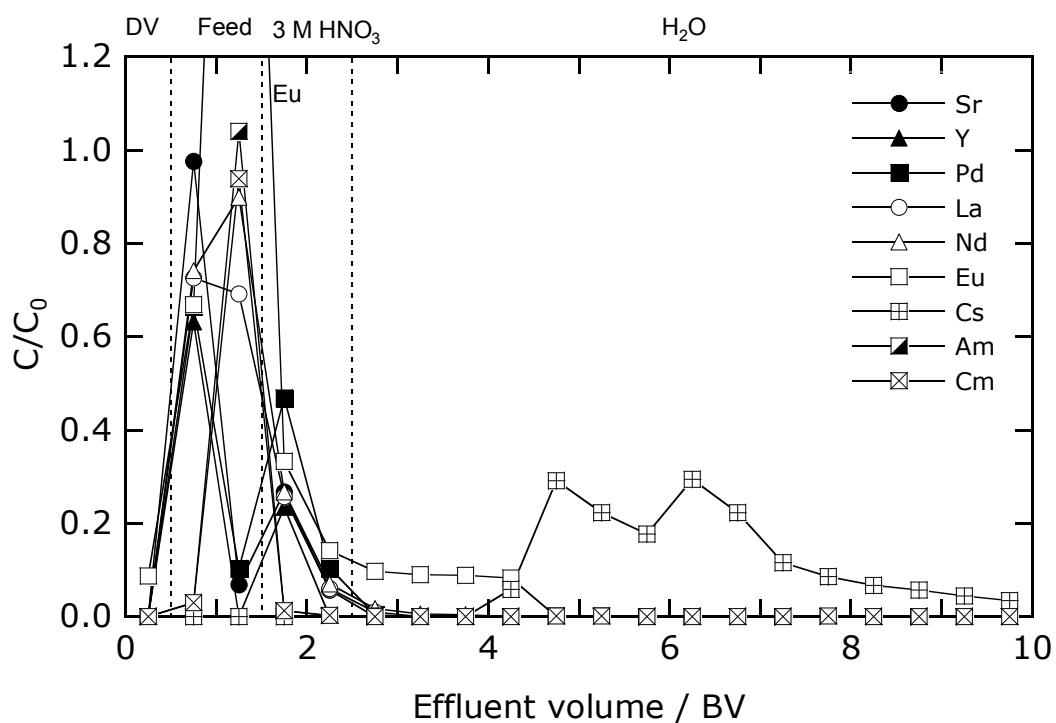


Fig. 28: Separation of Cs from genuine HLLW. Adsorbent: Calix + *n*-hexadecanol (1.25); bed volume: ca. 2 cm<sup>3</sup>.

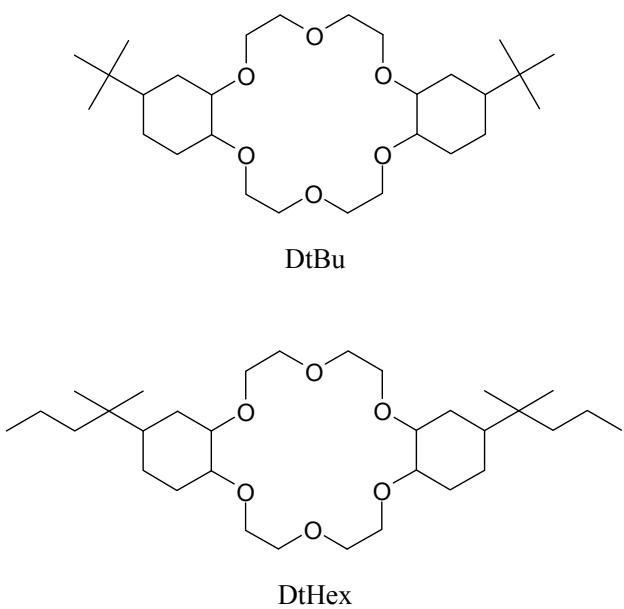


Fig. 29: Chemical structure of Sr extractant.

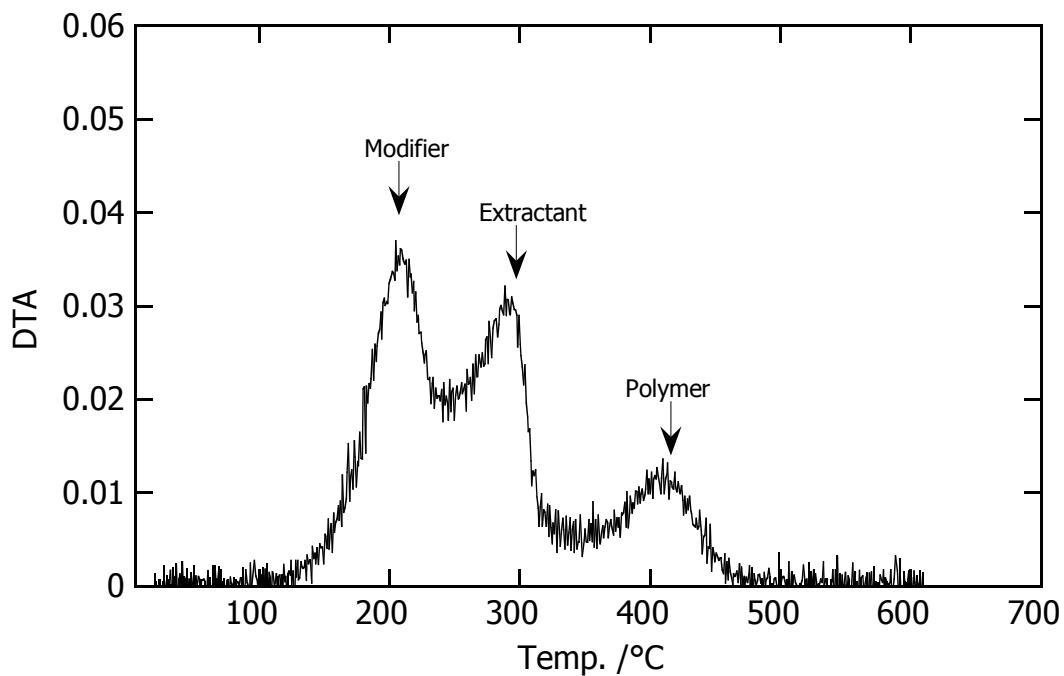
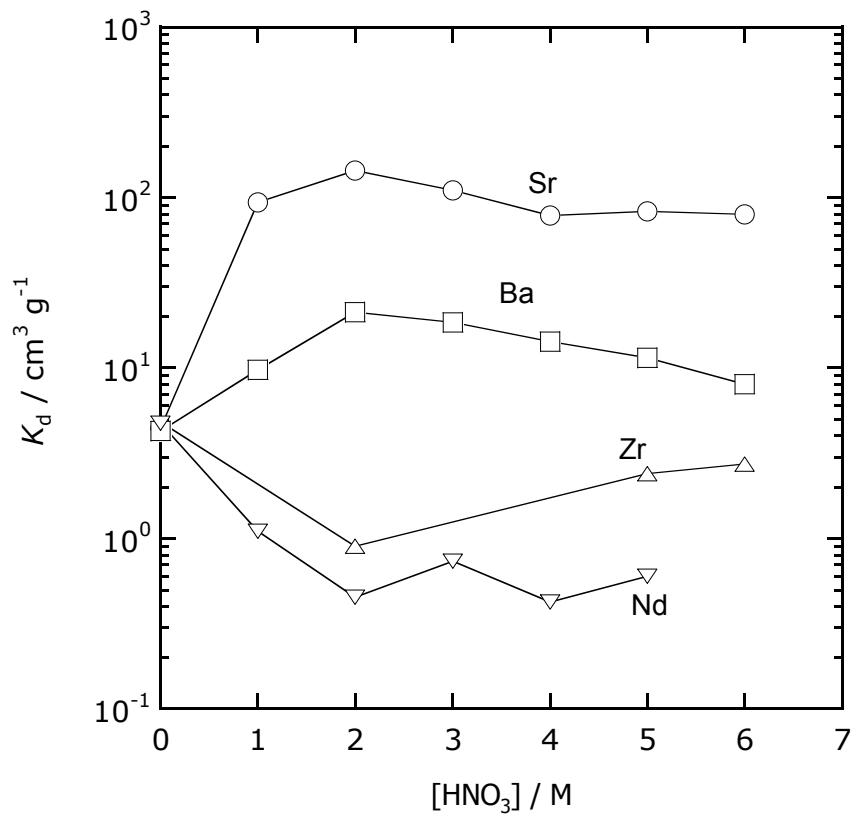
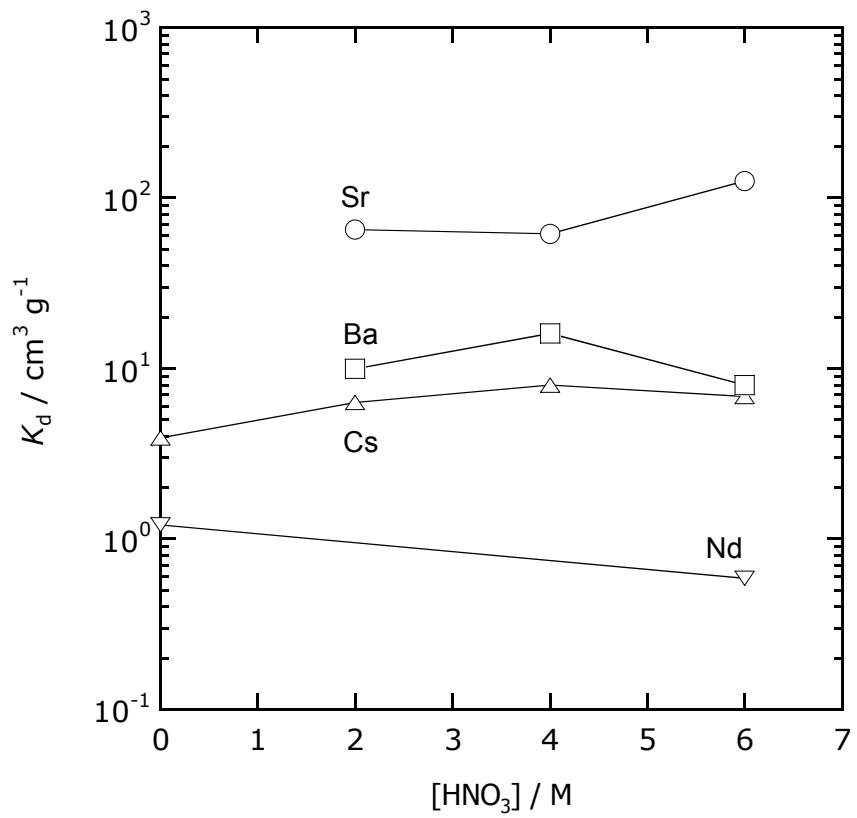
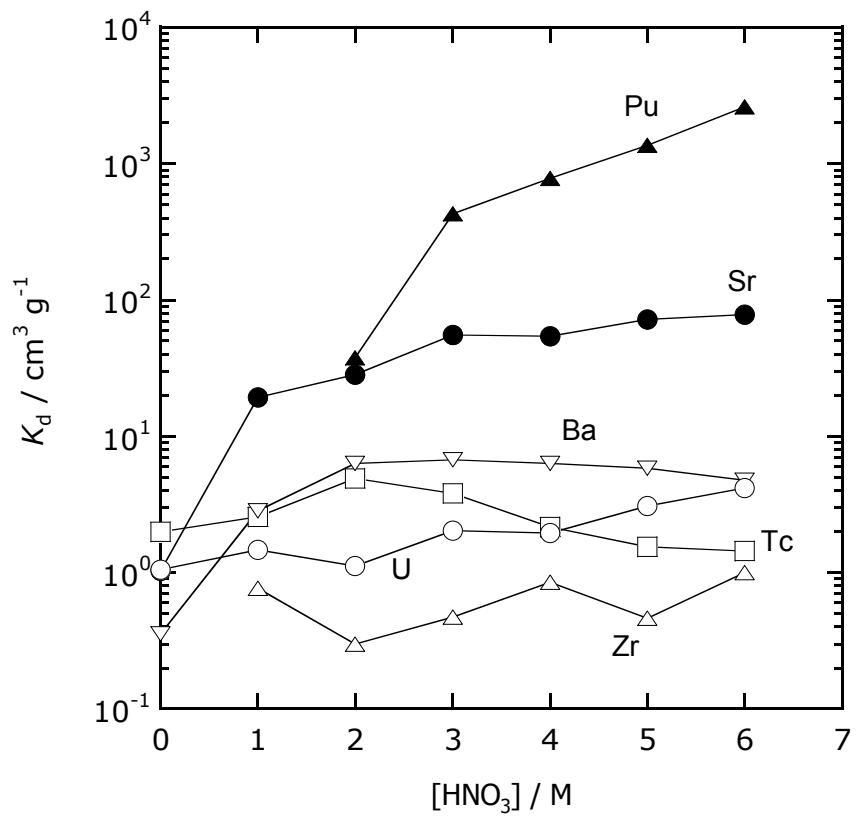
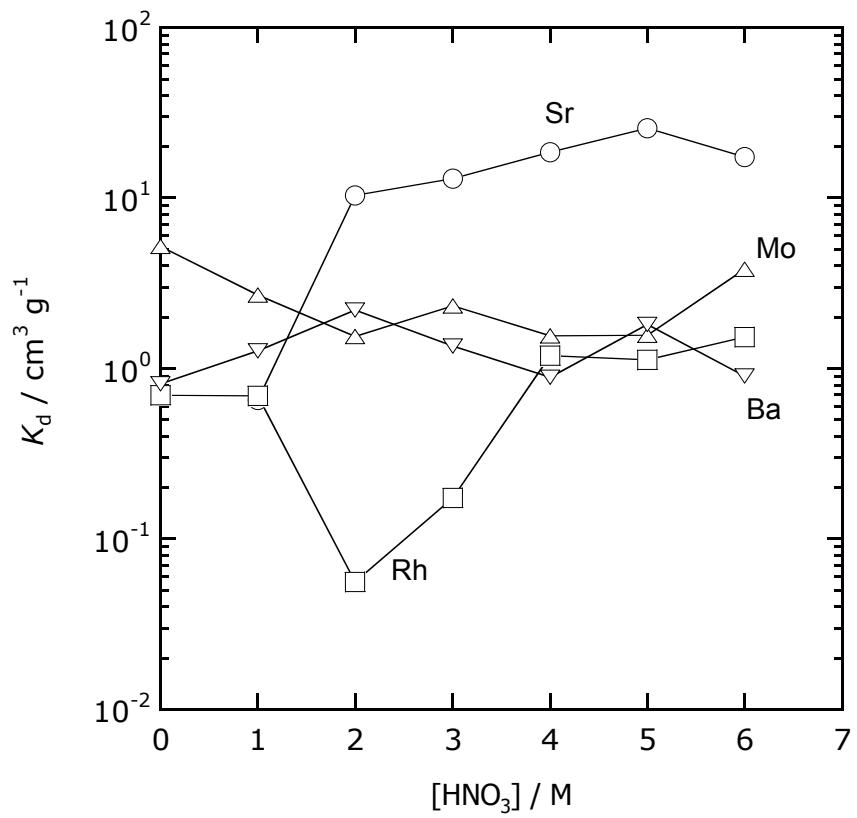


Fig. 30 Differential thermo-gravimetric analysis of Sr adsorbent.  
DtBu + *n*-hexadecanol (1.25).

Fig. 31: Distribution coefficient onto DtBu + *n*-dodecanol (1.61).Fig. 32: Distribution coefficient onto DtBu + *n*-hexadecanol (1.61).

Fig. 33: Distribution coefficient onto DtHex + *n*-dodecanol (1.79).Fig. 34: Distribution coefficient onto DtHex + *n*-hexadecanol (1.39).

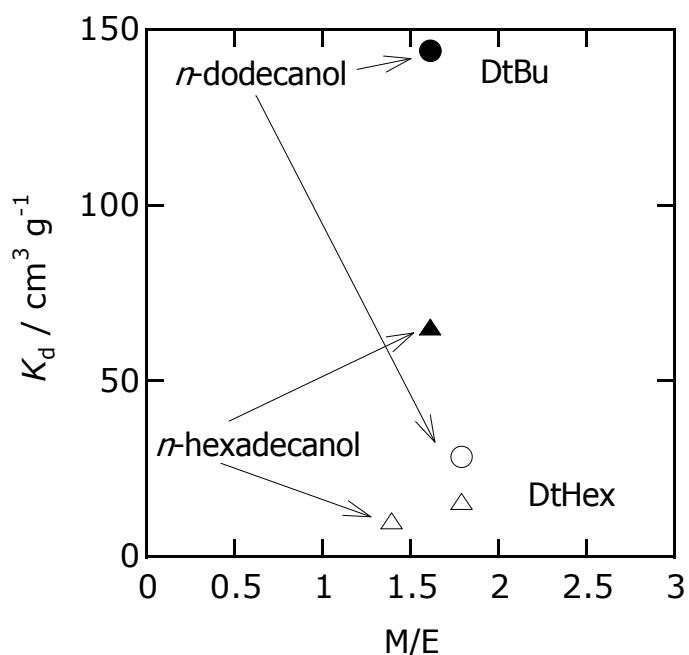


Fig. 35: Distribution coefficients of Sr onto Sr adsorbent from 2 M  $\text{HNO}_3$ . Open: DtHex; Closed: DtBu.

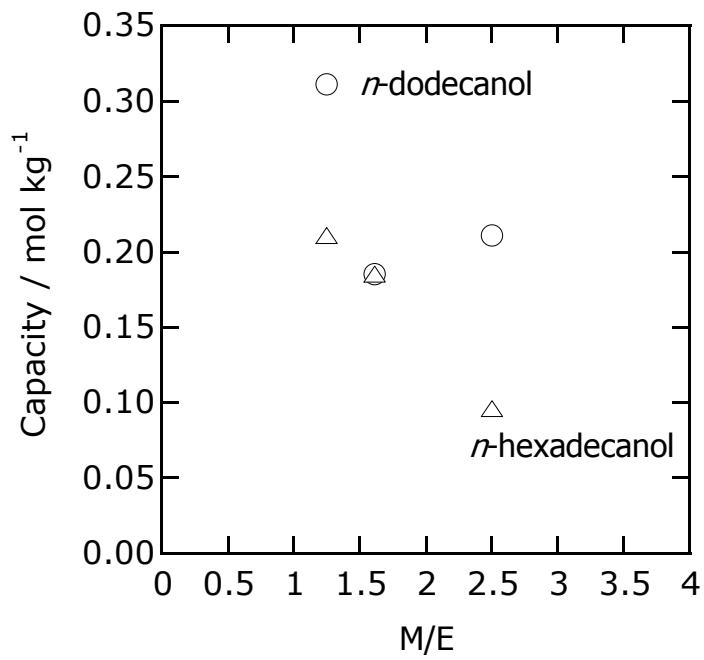


Fig. 36: Static capacity of Sr onto Sr adsorbent (DtBu).  $[\text{HNO}_3] = 2 \text{ M}$ ; temperature: 25°C; contact time: 2h.

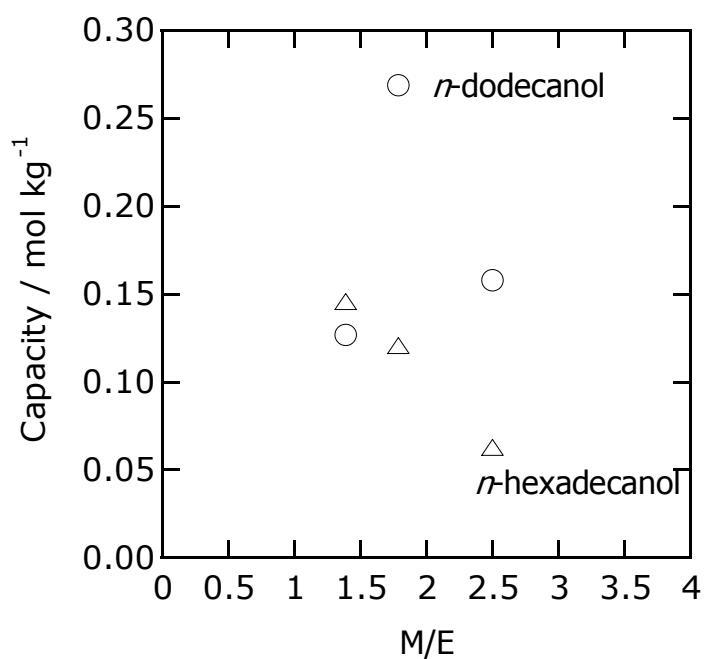


Fig. 37: Static capacity of Sr onto Sr adsorbent (DtHex).  $[HNO_3] = 2\text{ M}$ ; temperature:  $25^\circ\text{C}$ ; contact time: 2h.

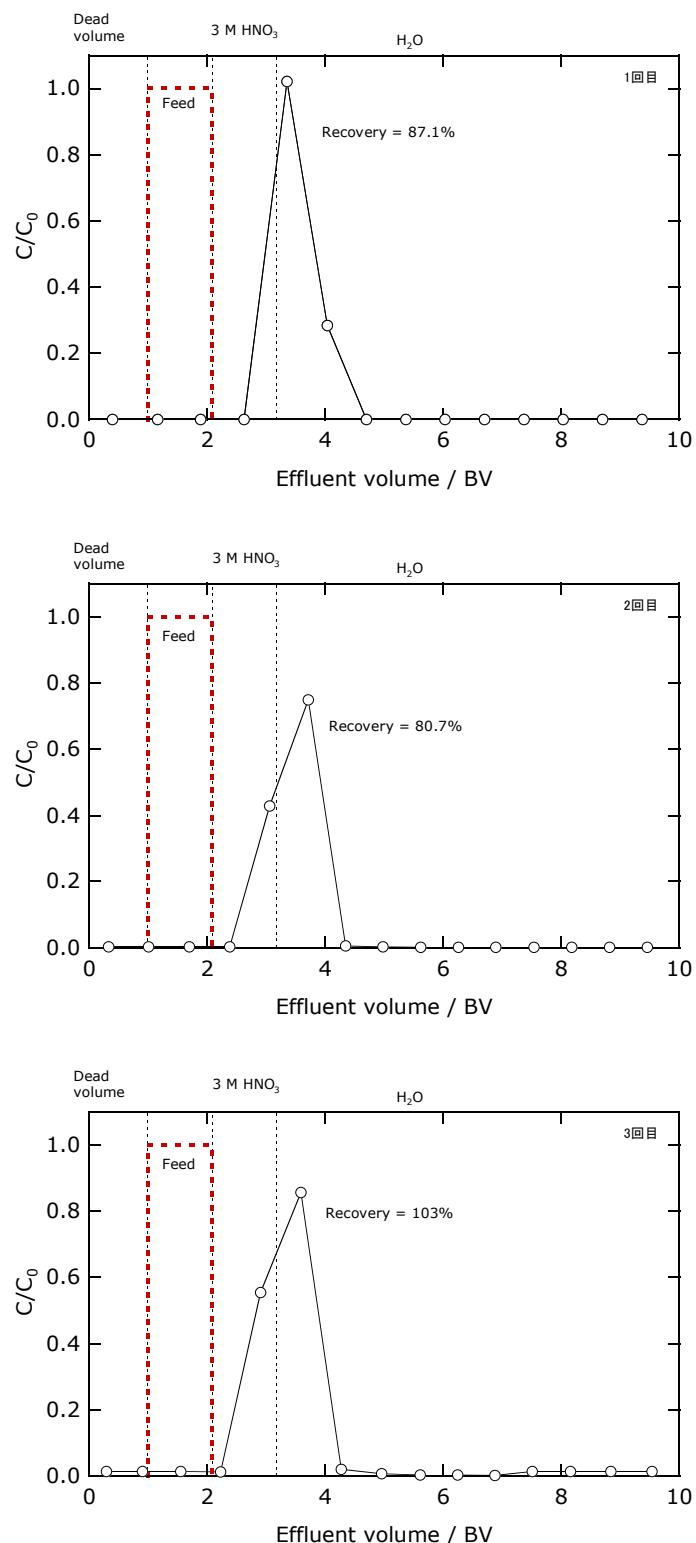


Fig. 38: Adsorption and elution examination of Sr-1. Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 175mm; flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10mMSr-3MHNO<sub>3</sub>.

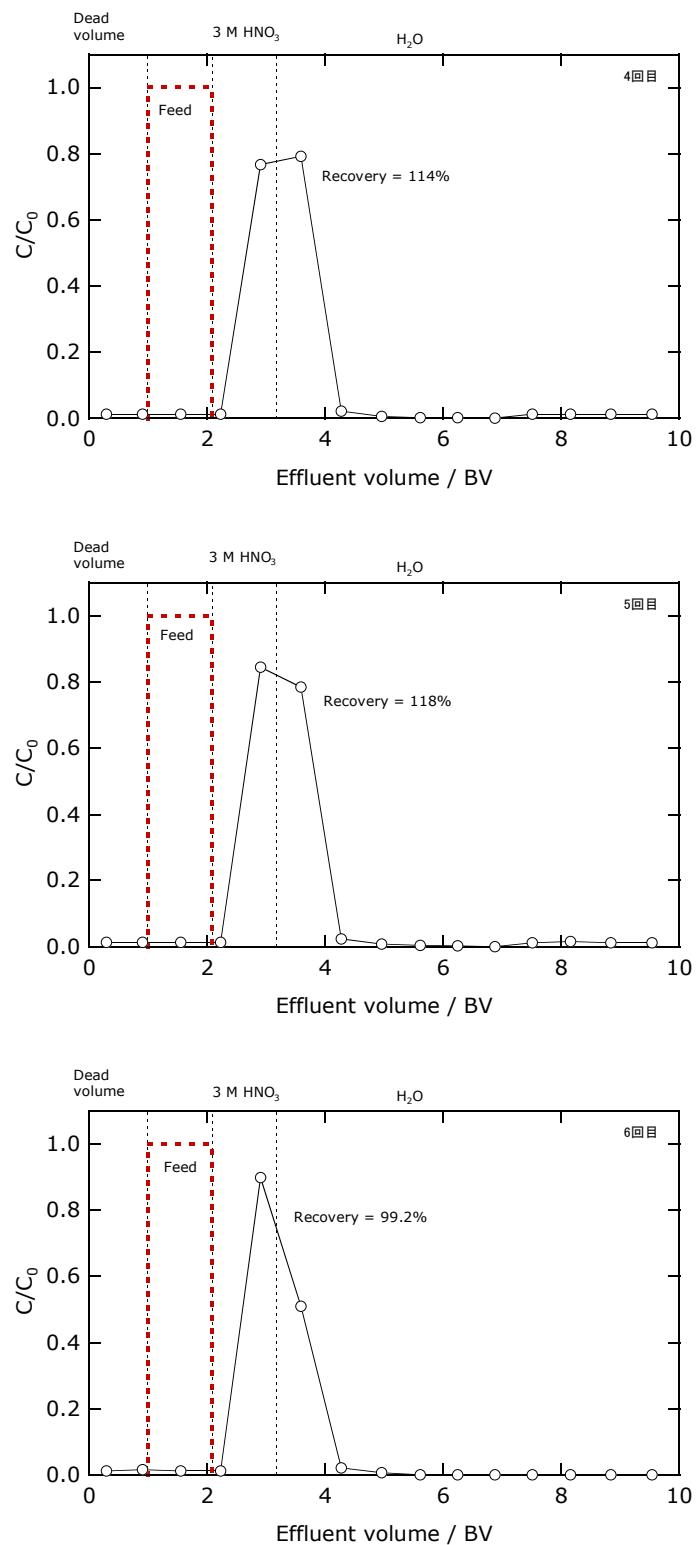


Fig. 39: Adsorption and elution examination of Sr-1. Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 175mm; flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10mMSr-3MHNO<sub>3</sub>.

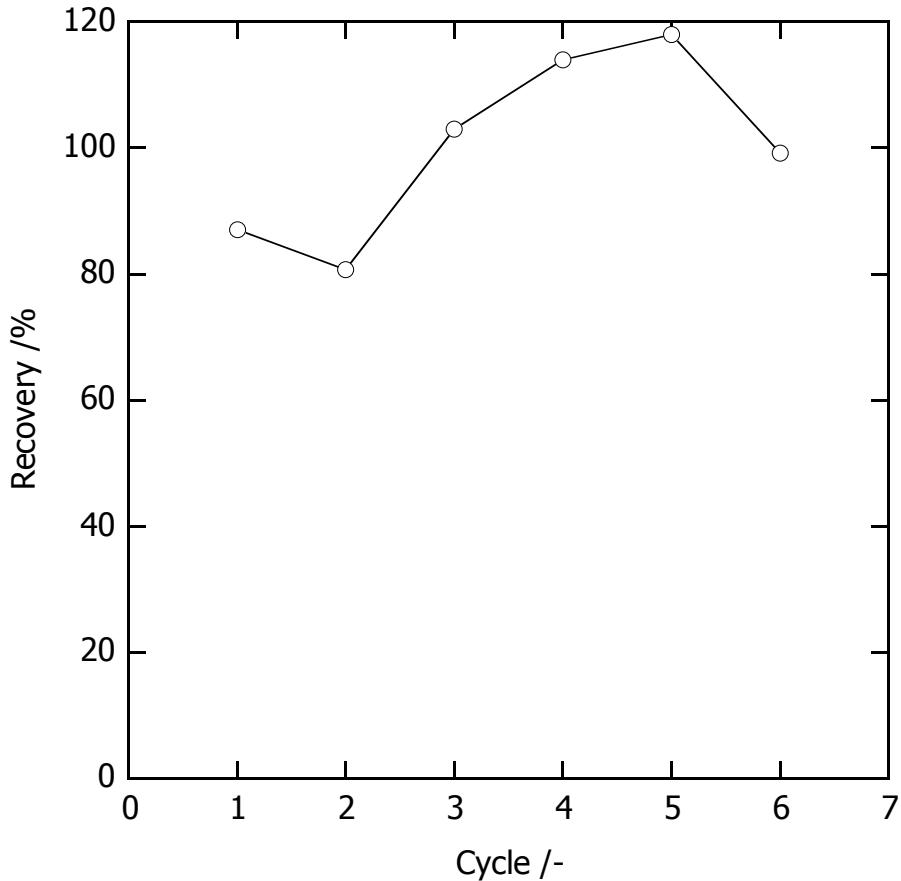


Fig. 40: Recovery ratio of Sr through a Sr adsorbent column. Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 175mm; flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10mMSr-3MHNO<sub>3</sub>.

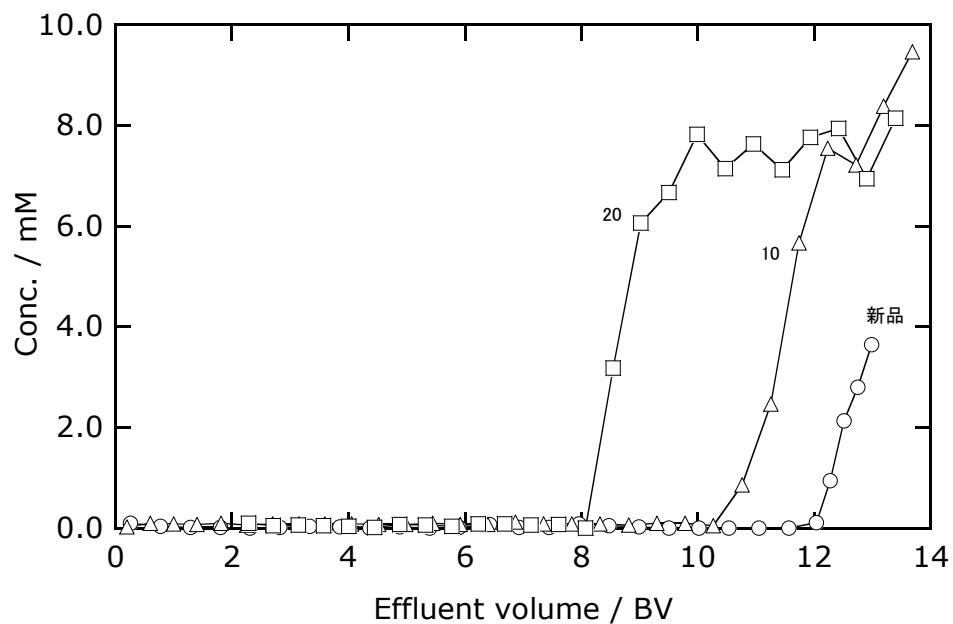


Fig. 41: Break through curve through a packed column with Sr adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 300 mm height (bed height 280 mm); DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; room temperature; Feed: 10 mM Sr in 2 M HNO<sub>3</sub>.

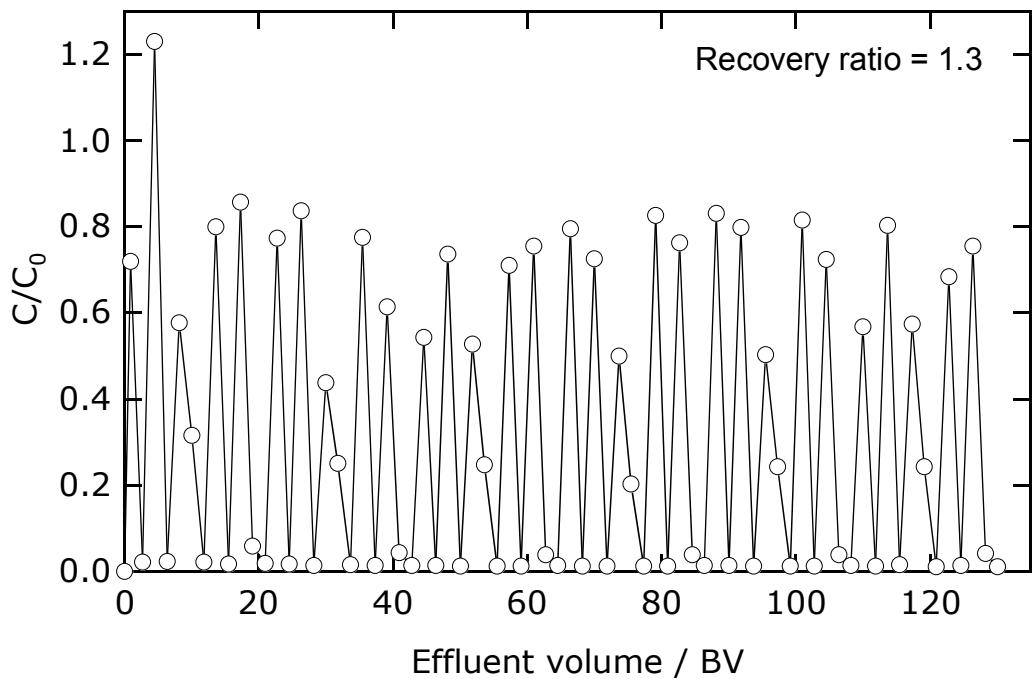


Fig. 42: Elution curv of Sr from 1 to 30 cycle.DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 175mm; flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10mMSr-3MHNO<sub>3</sub>.

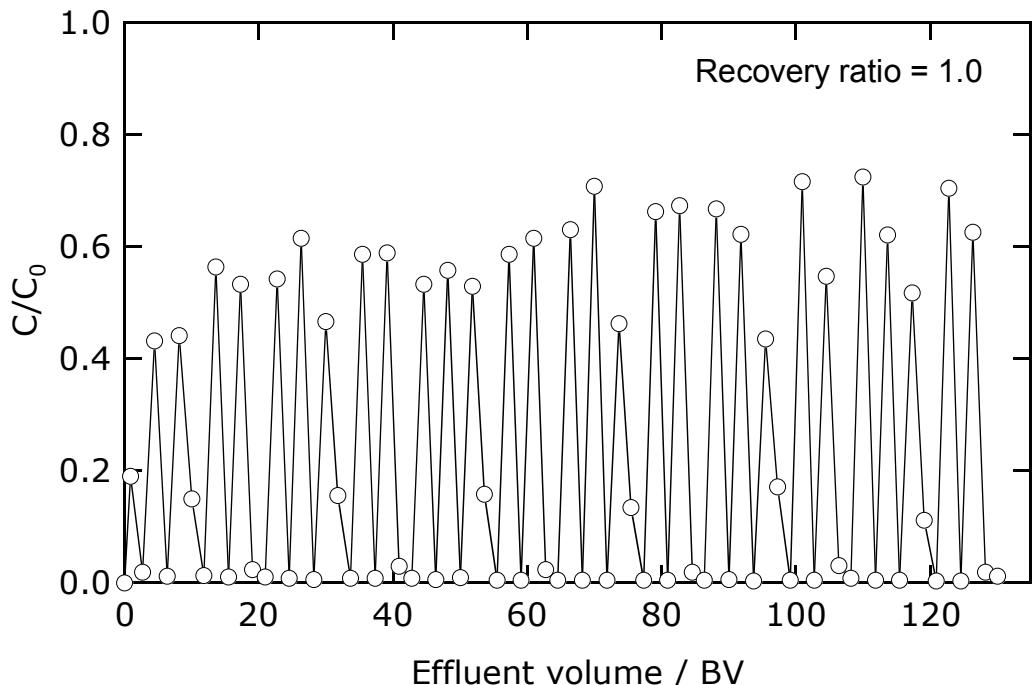


Fig. 43: Elution curv of Sr from 31 to 60 cycle.Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 175mm; flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; aq. phase: 10mMSr-3MHNO<sub>3</sub>.

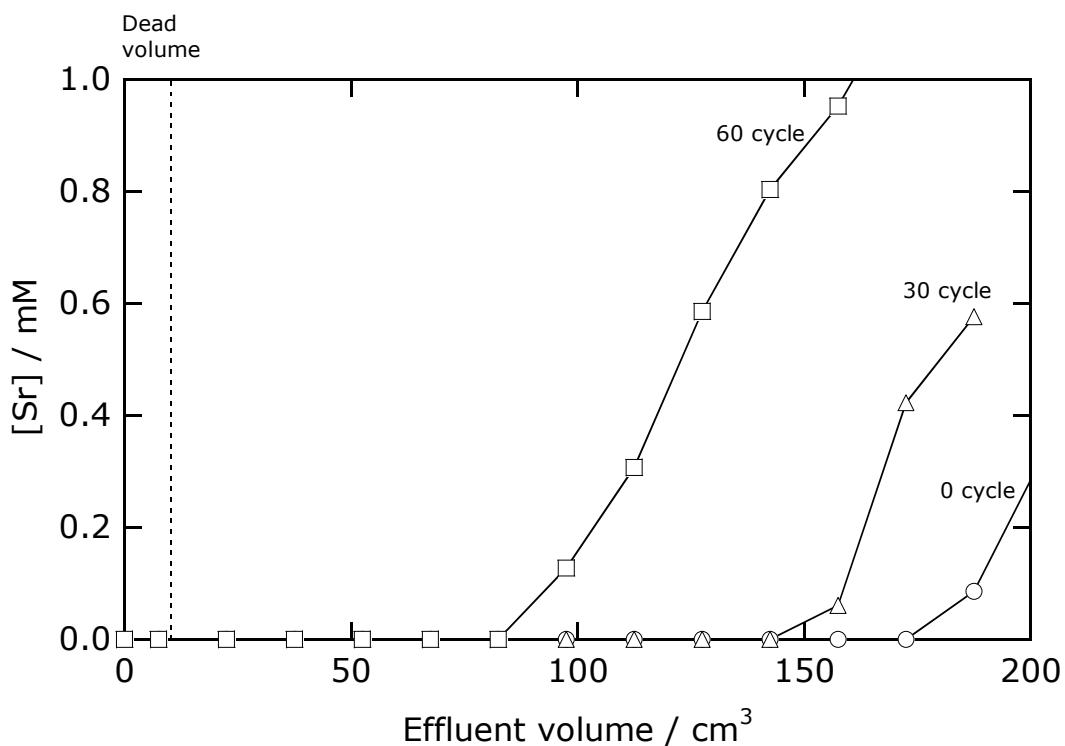


Fig. 44: Breakthrough curve of Sr. Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 175mm; flow rate: 1 $\text{cm}^3/\text{min}$ ; aq. phase: 10mMSr-3MHNO<sub>3</sub>.

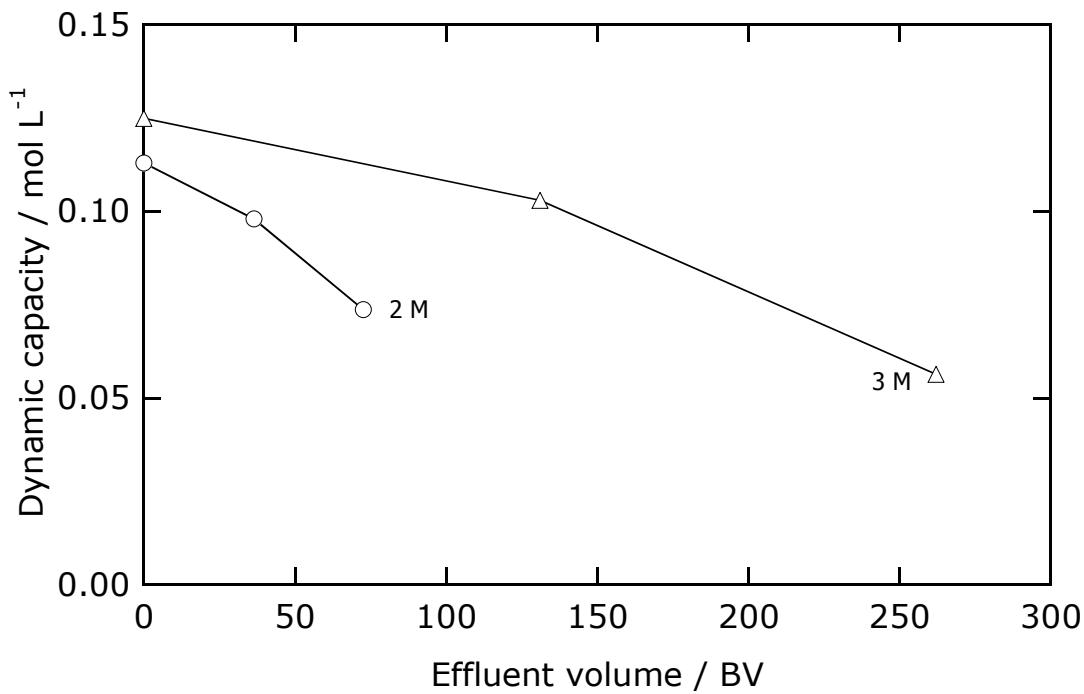


Fig. 45: Dynamic capacity of Sr adsorbent column. Column: i.d. 10 mm; DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1  $\text{cm}^3/\text{min}$ ; room temperature.

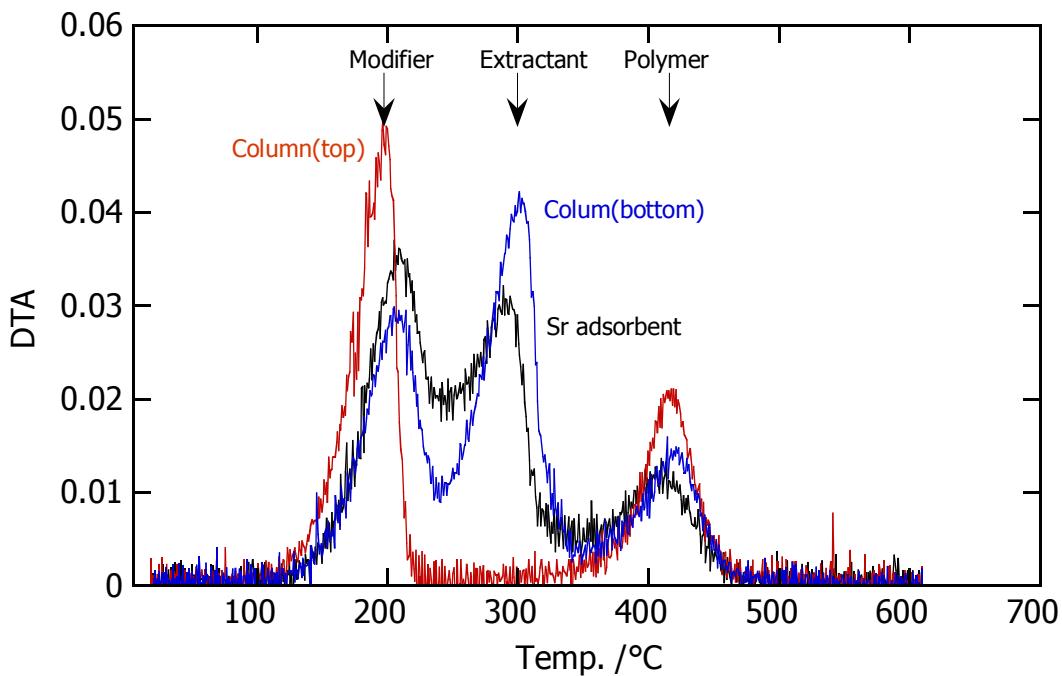


Fig. 46 Differential thermo-gravimetric analysis of Sr adsorbent.  
DtBu + *n*-hexadecanol (1.25).

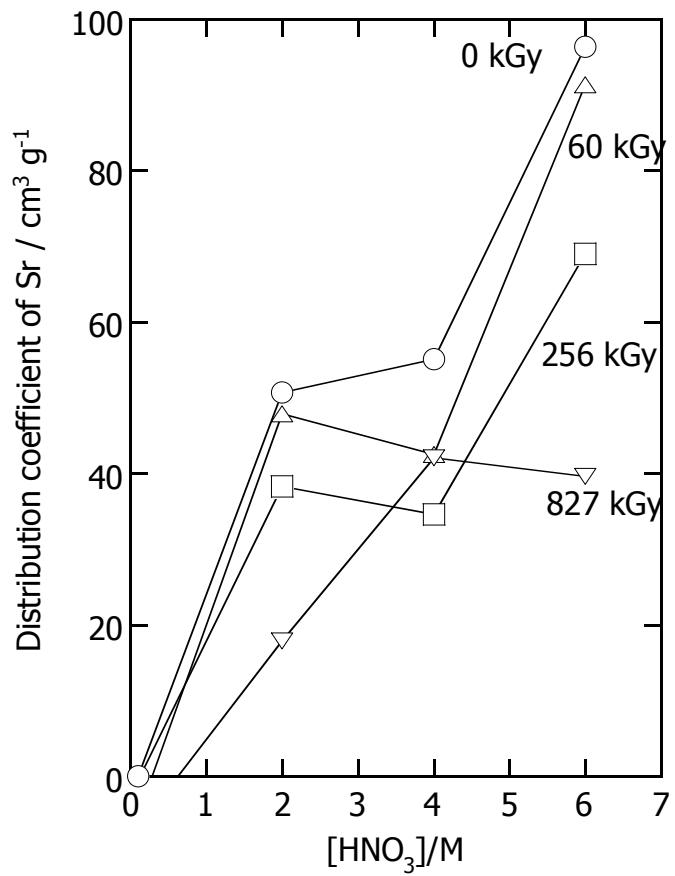


Fig. 47: Distribution coefficient of DtBu + *n*-dodecanol (1.61) after irradiation. Dose rate: 2.72 kGy/h; soaked in 2 M HNO<sub>3</sub>; Adsorption from 2 M HNO<sub>3</sub>. Adsorbents (0 kGy) were not irradiated but were soaked in nitric acid solution as long as irradiated ones (827 kGy).

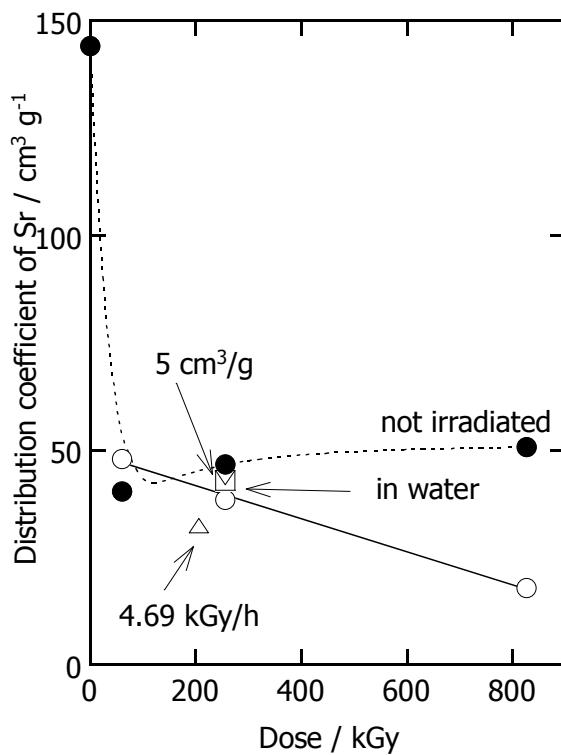


Fig. 48: Distribution coefficient of DtBu + *n*-dodecanol (1.61) after irradiation. Typical irradiation conditions: 20  $\text{cm}^3/\text{g}$ , 2.72 kGy/h, 2 M HNO<sub>3</sub>. Adsorption from 2 M HNO<sub>3</sub>.

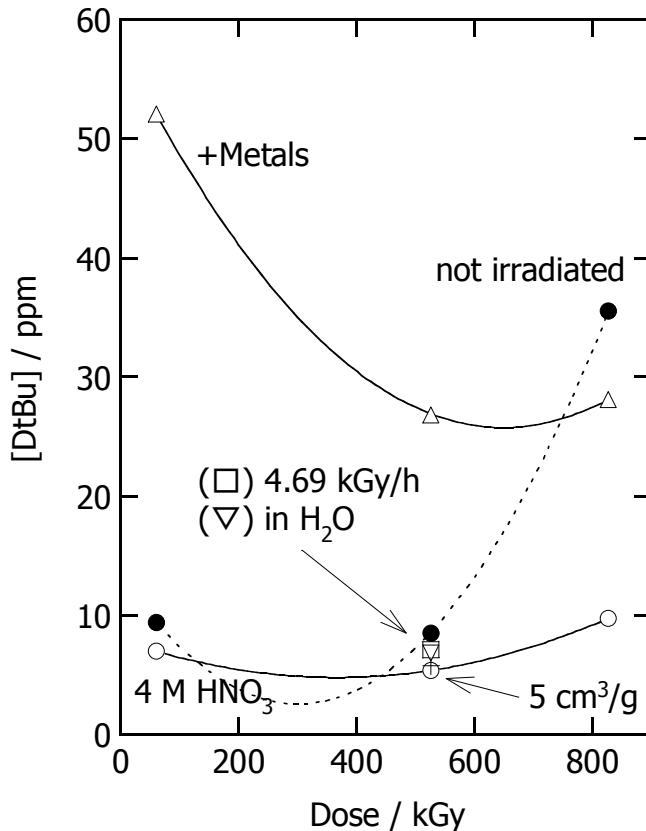


Fig. 49: Leakage of DtBu from adsorbent after irradiation. Typical irradiation conditions: 20  $\text{cm}^3/\text{g}$ , 2.72 kGy/h, 2 M HNO<sub>3</sub>. Adsorption from 2 M HNO<sub>3</sub>.

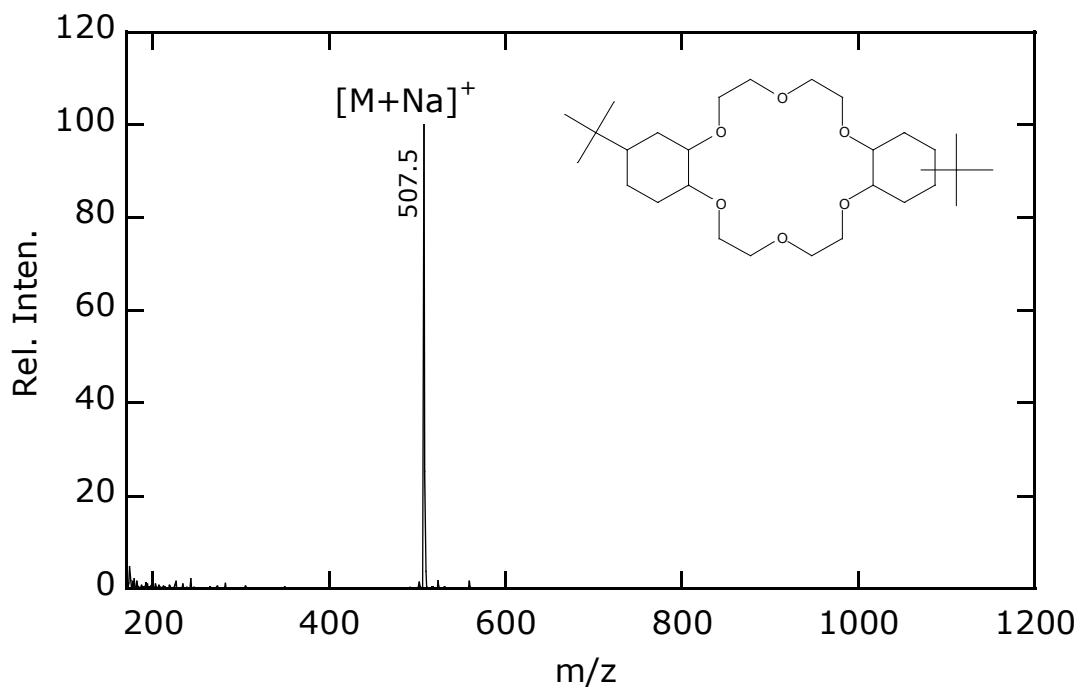


Fig. 50: Mass spectrum of DtBu.

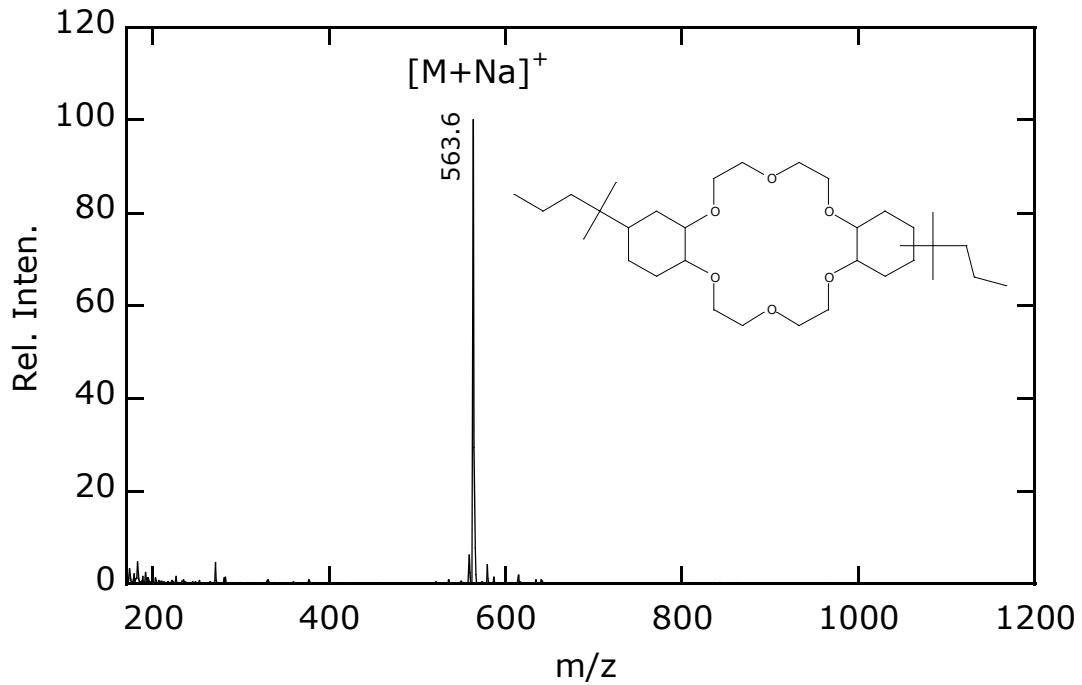


Fig. 51: Mass spectrum of DtHex.

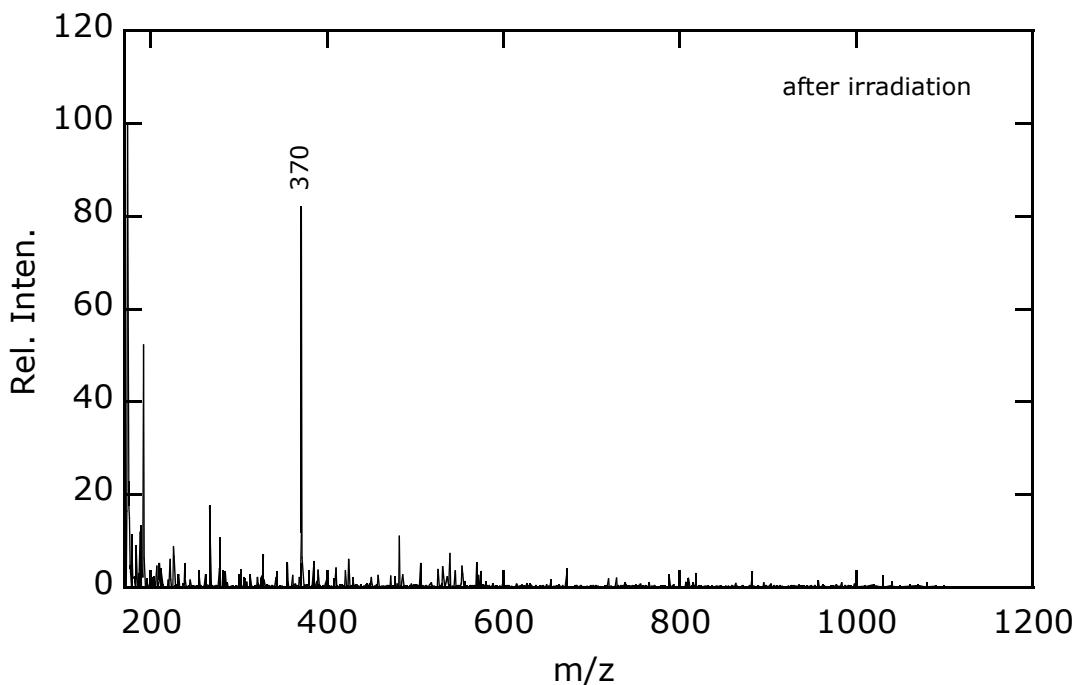


Fig. 52: Mass spectrum of Sr extractant (DtBu) after gamma irradiation.

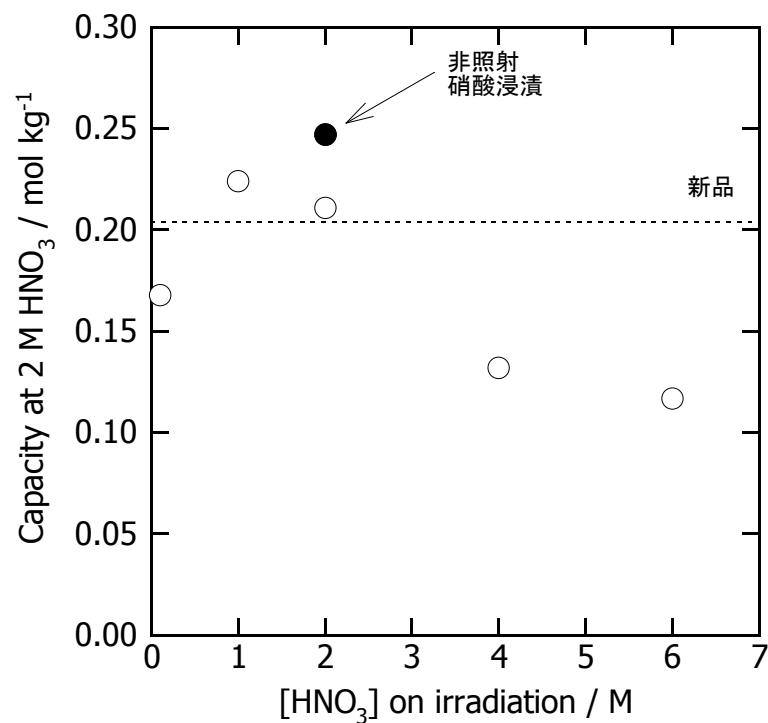


Fig. 53: Static capacity of Sr adsorbent after irradiation. DtBu + n-hexadecanol (1.61); dose: 267 kGy (2.3 kGy/h × 116 h).

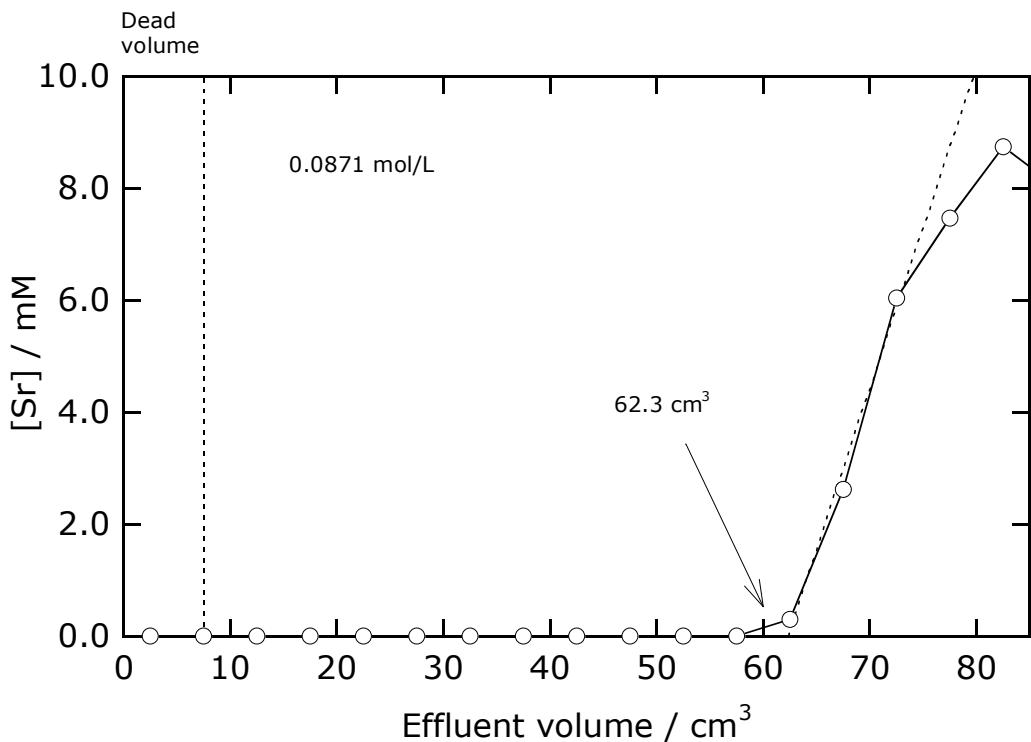


Fig. 54: Breakthrough curve of Sr adsorbent after irradiation. Column i.d.: 10 mm; bed height: 80 mm; flow rate:  $1\text{cm}^3/\text{min}$ ; aq. phase:  $10\text{mMSr-3MHNO}_3$ . Dose rate:  $1.82\text{ kGy/h}$ ; duration: 16 h; soaked in  $3\text{ MHNO}_3$ .

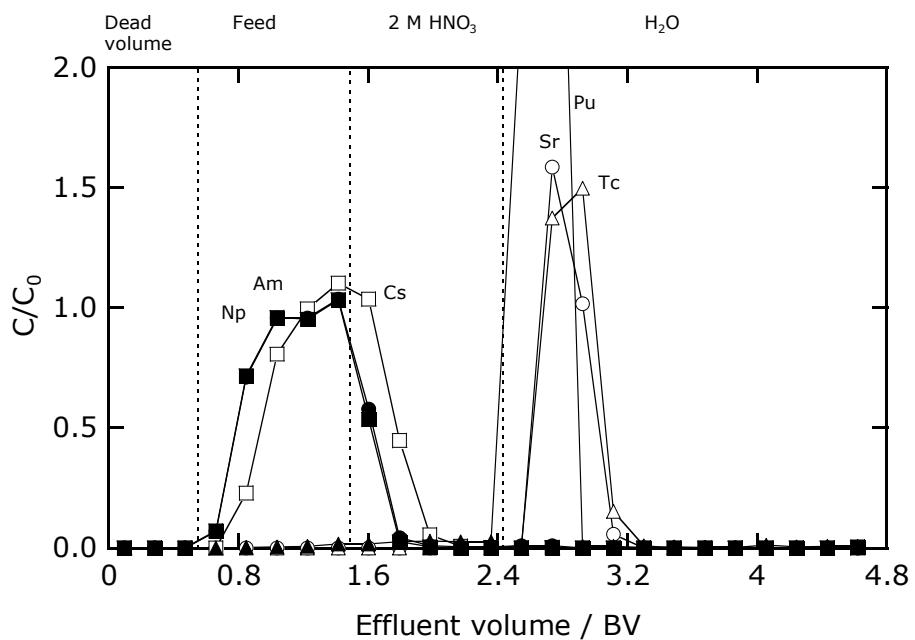


Fig. 55: Separation of Sr and TRU through a packed column with Sr adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 300 mm height (bed height 240 mm); DtHex + *n*-dodecanol (1.79); flow rate:  $1\text{ cm}^3/\text{min}$ ; room temperature; Feed: 2 M HNO<sub>3</sub> solution.

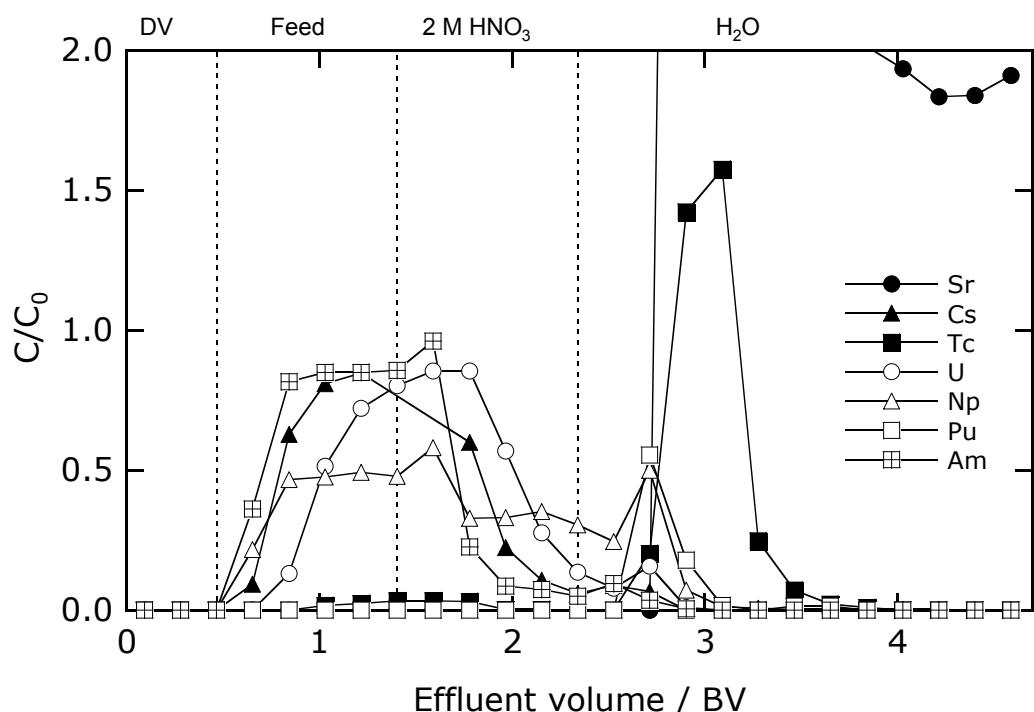


Fig. 56: Separation of Sr and TRU through a packed column with Sr adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 300 mm height (bed height 280 mm); DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; room temperature; Feed: 2 M HNO<sub>3</sub> solution.

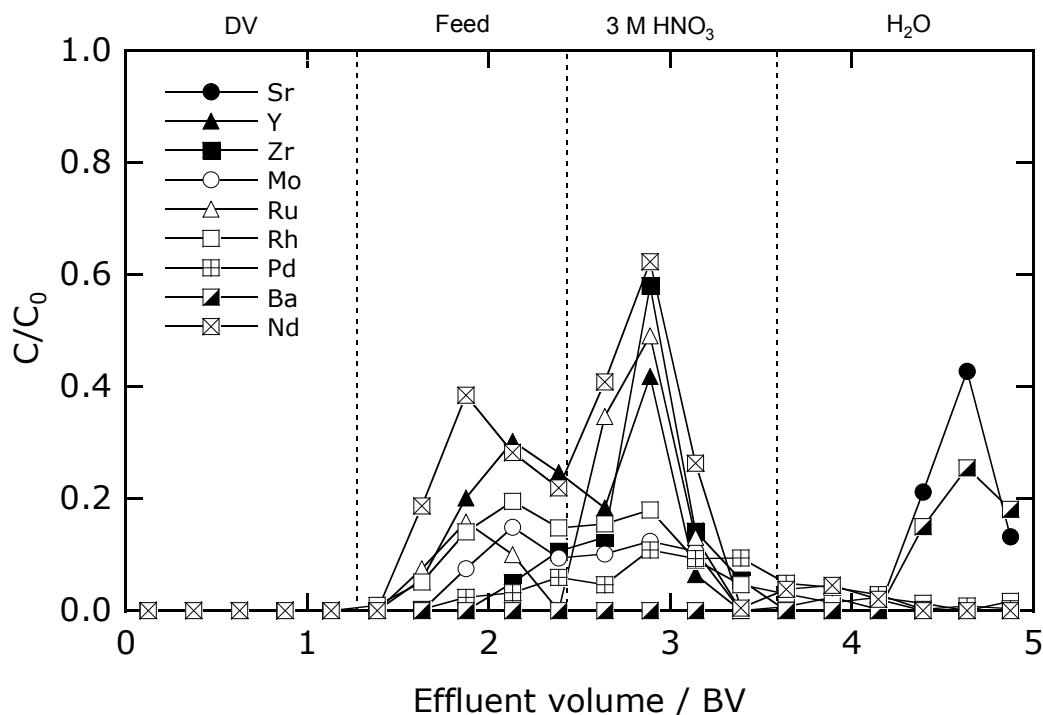


Fig. 57: Separation of Sr and typical FP through a packed column with Sr adsorbent. Column: i.d. 10 mm x 100 mm height (bed height 55 mm); DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; room temperature; Feed: 3 M HNO<sub>3</sub> solution.

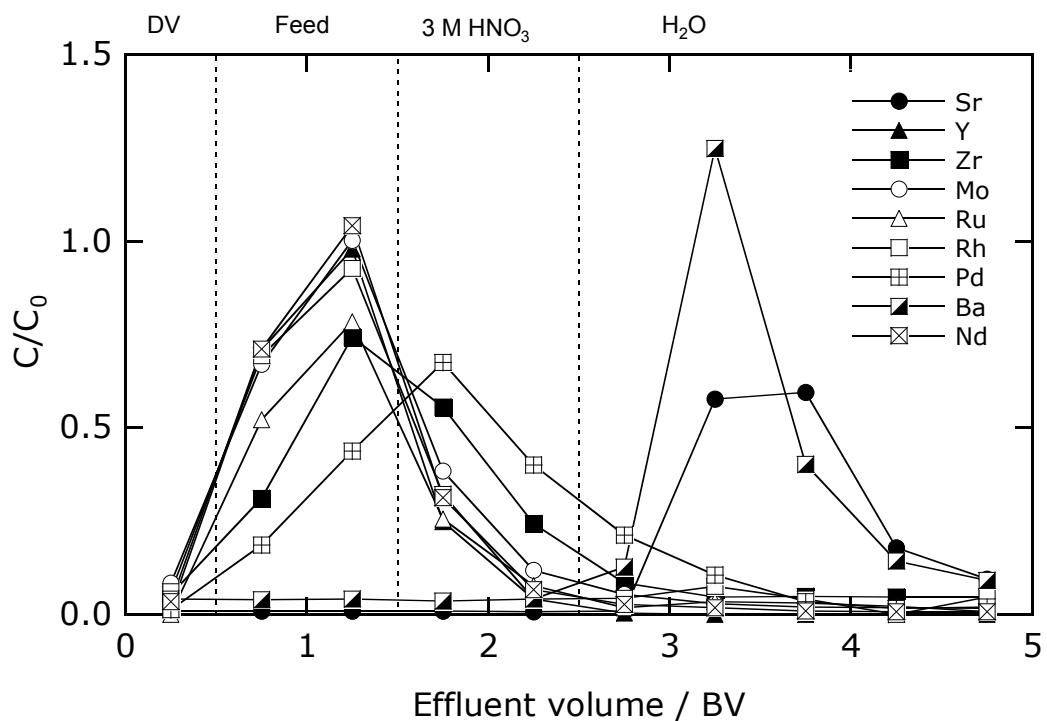


Fig. 58: Separation of Sr from simulated HLLW. Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); bed volume: ca. 2 cm<sup>3</sup>.

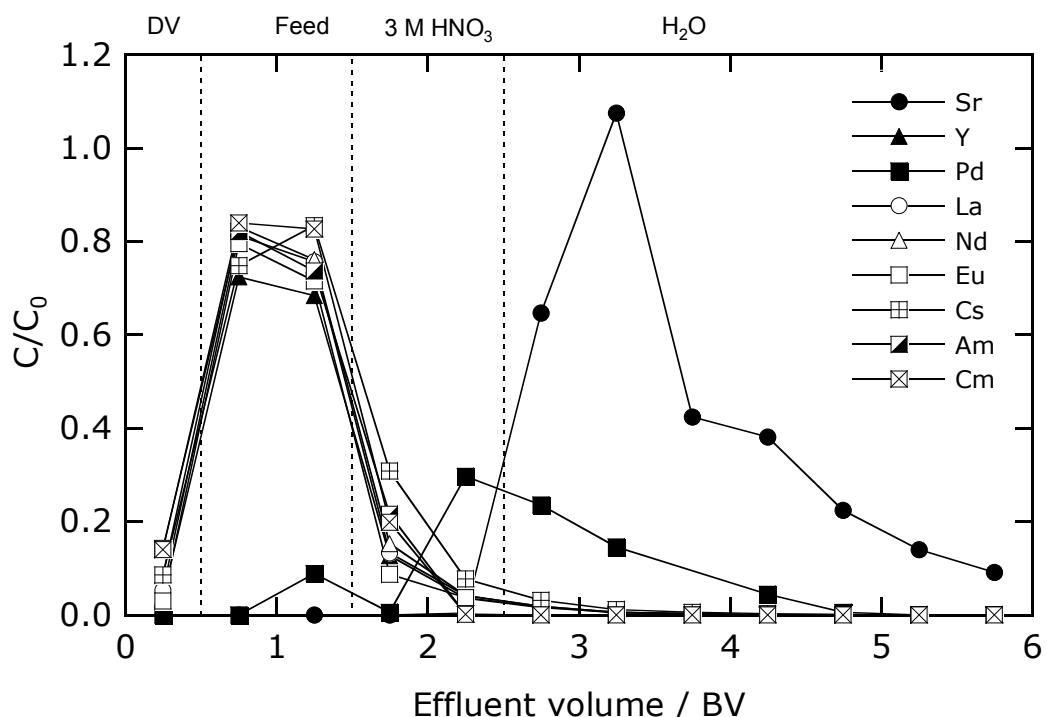


Fig. 59: Separation of Sr from genuine HLLW. Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); bed volume: ca. 2 cm<sup>3</sup>.

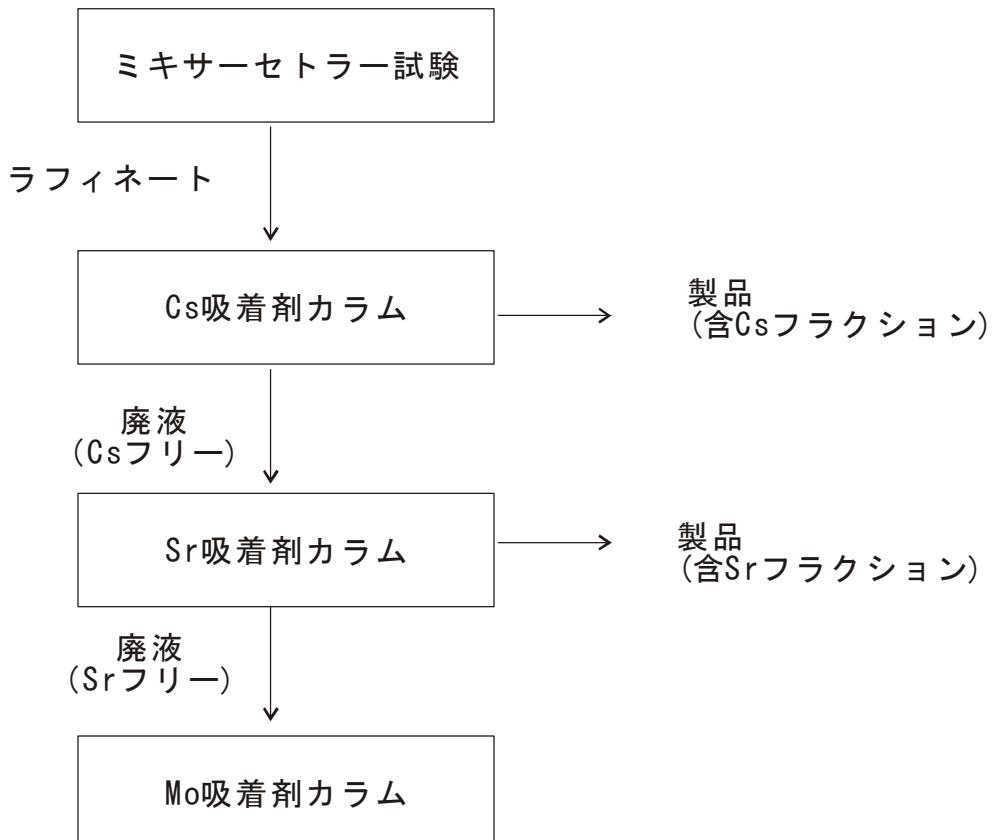
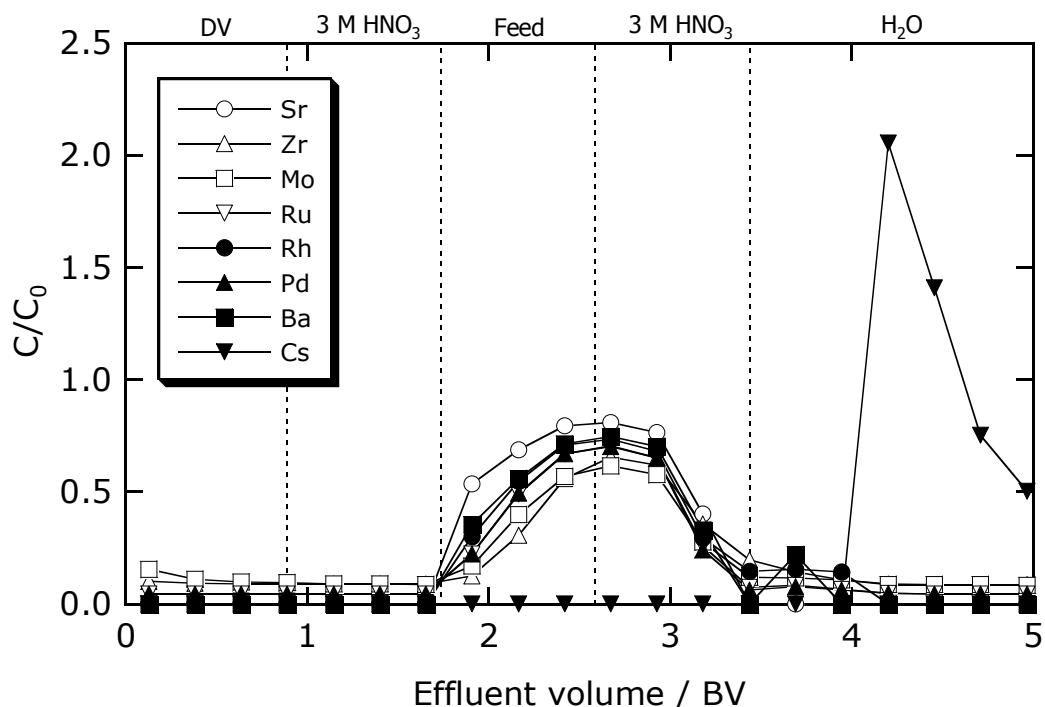


Fig. 60: Procedure of process schematic separation.

Fig. 61: Process schematic separation of Cs. Adsorbent: Calix + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 150 mm; flow rate: 1 cm<sup>3</sup>/min; conc. of feed solution: 3M.

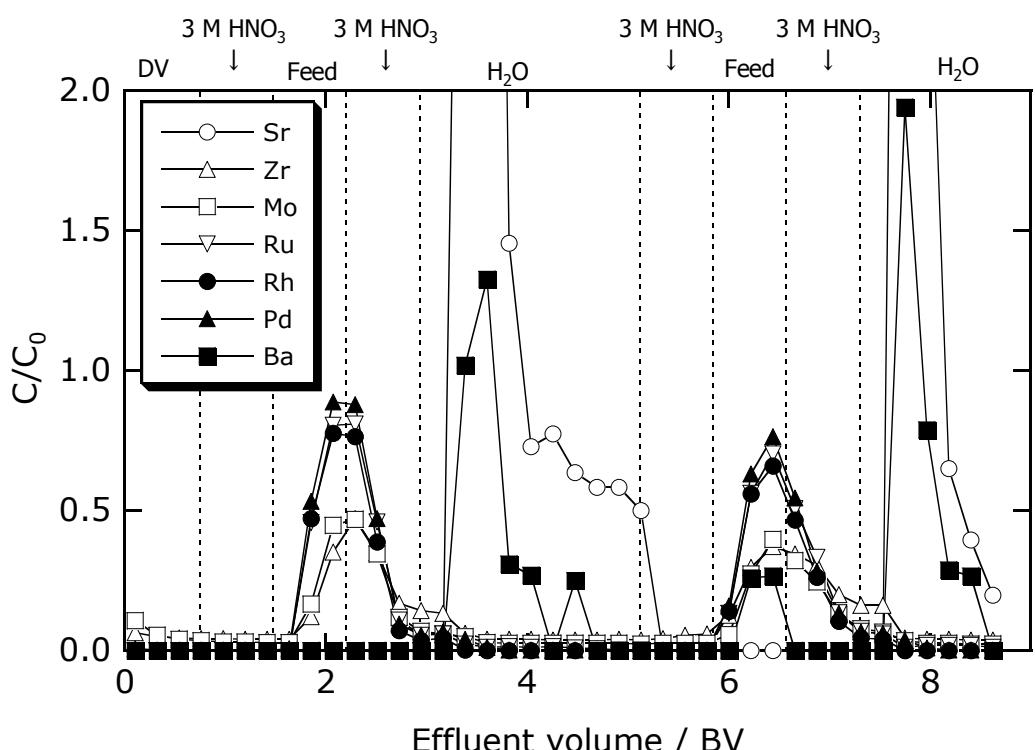


Fig. 62: Process schematic separation of Sr. Adsorbent: DtBu + *n*-hexadecanol (1.25); column i.d.: 10 mm; bed height: 175mm; flow rate: 1cm<sup>3</sup>/min; conc. of feed solution: 3M.

Table 1: Composition of Cs adsorbent

Adsorbent	Impregnated amount /wt%		Specific surface area m <sup>2</sup> /g
	Extractant	Modifier	
Support	-	-	15
Calix + <i>n</i> -hexadecanol (4.17)	24 (25)	25 (25)	5

( ): by design

Table 2: Distribution coefficient ( $K_d / \text{cm}^3 \text{ g}^{-1}$ ) onto Calix + *n*-dodecanol (5.56)

Element \ M	[HNO <sub>3</sub> ]	0	1	2	3	4	5	6
Na	—	—	—	—	—	6.15	—	—
Rb	—	$3.82 \times 10^{-1}$	2.10	7.98	5.48	5.14	2.09	—
Sr	2.37	4.17	6.91	1.32	1.03	4.01	2.00	—
Y	—	$4.43 \times 10^{-1}$	—	—	$2.26 \times 10^{-1}$	$9.97 \times 10^{-1}$	—	—
Zr	2.39	$2.59 \times 10^{-1}$	$5.20 \times 10^{-1}$	$3.71 \times 10^{-1}$	1.79	$3.45 \times 10^{-1}$	1.79	—
Mo	1.10	$8.70 \times 10^{-1}$	$4.29 \times 10^{-1}$	—	$4.52 \times 10^{-1}$	$6.75 \times 10^{-1}$	$4.09 \times 10^{-1}$	—
Ru	1.01	—	—	—	$8.44 \times 10^{-1}$	—	—	—
Rh	—	—	$2.96 \times 10^{-2}$	$2.46 \times 10^{-1}$	$1.93 \times 10^{-1}$	$4.17 \times 10^{-1}$	—	—
Pd	—	$7.50 \times 10^{-2}$	$2.07 \times 10^{-1}$	—	1.54	$2.49 \times 10^{-1}$	—	—
Cs	3.24	$1.86 \times 10^1$	$4.49 \times 10^1$	$9.30 \times 10^1$	$7.20 \times 10^1$	$5.79 \times 10^1$	$3.58 \times 10^1$	—
Ba	—	$9.11 \times 10^{-2}$	—	1.10	$5.95 \times 10^{-1}$	—	$3.97 \times 10^{-1}$	—
Nd	$7.44 \times 10^{-2}$	—	—	$4.16 \times 10^{-2}$	$8.28 \times 10^{-1}$	—	$1.38 \times 10^{-1}$	—

—:  $K_d < 1.00 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g}$

Table 3: Distribution coefficient ( $K_d / \text{cm}^3 \text{ g}^{-1}$ ) onto Calix + *n*-hexadecanol (4:17)

Element \ M	[HNO <sub>3</sub> ]	0	1	2	3	4	5	6
Na		1.35×10 <sup>-1</sup>	—	—	—	—	—	9.20×10 <sup>-1</sup>
Rb	—	—	—	—	4.98	5.42	4.52	3.31
Sr	—	—	—	—	—	—	—	—
Y	7.79×10 <sup>-2</sup>	7.02×10 <sup>-1</sup>	4.22	—	—	—	—	—
Zr	—	—	—	—	—	—	—	—
Mo	3.61	8.87×10 <sup>-1</sup>	2.10×10 <sup>-2</sup>	1.85	6.93×10 <sup>-1</sup>	8.94×10 <sup>-1</sup>	1.47	—
Tc	1.16	9.78×10 <sup>-1</sup>	1.00	4.94×10 <sup>-1</sup>	3.48	5.17×10 <sup>-1</sup>	3.12	—
Ru	—	—	—	—	—	—	—	—
Rh	7.80×10 <sup>-1</sup>	1.08	—	1.04	—	5.55×10 <sup>-1</sup>	—	—
Pd	1.25	2.08	—	7.54×10 <sup>-1</sup>	—	—	—	—
Cs	2.44	3.75	6.44	3.98×10 <sup>1</sup>	6.10×10 <sup>1</sup>	4.32×10 <sup>1</sup>	3.12×10 <sup>1</sup>	—
Ba	—	6.83×10 <sup>-1</sup>	2.53	—	—	2.95×10 <sup>-1</sup>	—	—
Nd	—	—	—	—	—	—	—	—
U	4.99	5.20	3.18	3.32	3.65	5.02	4.52	—
Np	2.94×10 <sup>-1</sup>	2.95×10 <sup>-1</sup>	2.74×10 <sup>-1</sup>	3.51	5.61	—	4.62	—
Pu	—	—	—	7.78	1.32×10 <sup>1</sup>	3.71×10 <sup>1</sup>	7.94×10 <sup>1</sup>	—
Am	2.73×10 <sup>-1</sup>	7.74×10 <sup>-1</sup>	9.33×10 <sup>-2</sup>	1.78	2.94	2.17	2.81×10 <sup>-1</sup>	—

—:  $K_d < 1.00 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g}$

Table 4: Leakage of extractant from Cs adsorbent

[HNO <sub>3</sub> ] / M	0	2	4
Adsorbent	Conc. of dissolved extractant / ppm		
Calix + <i>n</i> -dodecanol (5.56)	< 1.0	< 1.0	< 1.0
Calix + <i>n</i> -hexadecanol (4.17)	< 1.0	< 1.0	< 1.0
Calix + <i>n</i> -dodecanol (4.17)	< 1.0	< 1.0	< 1.0
Calix + <i>n</i> -dodecanol (2.78)	< 1.0	< 1.0	< 1.0

Contact time: 1 h

Table 5: Mobile phase for Cs column

Mobile phase	Volume / cm <sup>3</sup>
Conditioning 4 M HNO <sub>3</sub>	20
Feed 4 M HNO <sub>3</sub>	20
Washing 4 M HNO <sub>3</sub>	30
Eluent H <sub>2</sub> O	70

Table 6: Mobile phase for Cs column

Mobile phase	Volume / cm <sup>3</sup>
Conditioning 3 M HNO <sub>3</sub>	10
Feed 10 mM Cs-3 M HNO <sub>3</sub>	10
Washing 3 M HNO <sub>3</sub>	10
Eluent H <sub>2</sub> O	20

Table 7: Composition of HLLW at NUCEF

Element	Conc. / mM	Nuclide	Conc. / MBq cm <sup>-3</sup>
Sr	0.753	Cs-137	1289
Y	0.671	Am-241	28.64
Zr	< 0.1	Cm-244	60.18
Mo	< 0.1		
Tc	< 0.1		
Ru	< 0.1		
Rh	< 0.1		
Pd	1.31		
La	1.59		
Nd	4.69		
Eu	0.273	[HNO <sub>3</sub> ] / M	3.00

Table 8: Composition of Sr adsorbent

Adsorbent	Impregnated amount /wt%		Specific suface area m <sup>2</sup> /g
	Extractant	Modifier	
Support	—	—	15
DtHex + <i>n</i> -hexadecanol (1.39)	23 (27.6)	19 (17.1)	5

( ): by design

Table 9: Distribution coefficient ( $K_d / \text{cm}^3 \text{ g}^{-1}$ ) onto DtBu + *n*-dodecanol (1.61)

Element \ M	[HNO <sub>3</sub> ]	0	1	2	3	4	5	6
Na	—	—	1.86	—	—	—	—	—
Rb	—	—	—	1.74	—	—	—	—
Sr	4.44	9.40×10 <sup>1</sup>	1.44×10 <sup>2</sup>	1.10×10 <sup>2</sup>	7.84×10 <sup>1</sup>	8.33×10 <sup>1</sup>	7.99×10 <sup>1</sup>	—
Y	3.27	—	—	—	9.45×10 <sup>-1</sup>	5.30×10 <sup>-1</sup>	—	—
Zr	4.84	—	—	9.03×10 <sup>-1</sup>	—	—	2.41	2.74
Mo	3.27	—	—	—	—	—	3.60×10 <sup>-1</sup>	4.55×10 <sup>-1</sup>
Ru	—	5.34×10 <sup>-1</sup>	—	4.83×10 <sup>-1</sup>	1.62	8.55×10 <sup>-1</sup>	1.42×10 <sup>-1</sup>	—
Rh	—	—	1.23×10 <sup>-1</sup>	—	—	—	—	—
Pd	3.73×10 <sup>-1</sup>	—	9.73×10 <sup>-1</sup>	3.20×10 <sup>-2</sup>	8.15×10 <sup>-1</sup>	2.58×10 <sup>-1</sup>	4.25×10 <sup>-1</sup>	—
Cs	1.11	—	—	3.04	—	4.24×10 <sup>-1</sup>	—	—
Ba	4.26	9.80	2.13×10 <sup>1</sup>	1.86×10 <sup>1</sup>	1.43×10 <sup>1</sup>	1.15×10 <sup>1</sup>	8.08	—
Nd	4.74	1.10	4.52×10 <sup>-1</sup>	7.35×10 <sup>-1</sup>	4.25×10 <sup>-1</sup>	6.04×10 <sup>-1</sup>	—	—

—:  $K_d < 1.00 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g}$

Table 10: Distribution coefficient ( $K_d / \text{cm}^3 \text{ g}^{-1}$ ) onto DtBu + *n*-hexadecanol (1.61)

Element \ M	[HNO <sub>3</sub> ]	0	2	4	6
Rb	—	—	—	—	—
Sr	—	—	6.54×10 <sup>1</sup>	6.14×10 <sup>1</sup>	1.26×10 <sup>2</sup>
Y	—	—	—	—	3.44
Zr	—	—	—	—	—
Mo	4.13	—	—	—	7.00
Ru	—	—	—	—	—
Rh	—	—	—	—	—
Pd	—	—	—	—	—
Cs	3.90	6.30	8.01	6.86	—
Ba	—	9.92	1.60×10 <sup>1</sup>	7.97	—
Nd	1.21	—	—	—	5.87×10 <sup>-1</sup>

—:  $K_d < 1.00 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g}$

Table 11: Distribution coefficient ( $K_d / \text{cm}^3 \text{ g}^{-1}$ ) onto DtHex + *n*-dodecanol (1.79)

Element \ M	[HNO <sub>3</sub> ]	0	1	2	3	4	5	6
Na	—	—	—	—	5.38	—	—	—
Rb	—	—	—	2.95	4.15×10 <sup>-1</sup>	6.77×10 <sup>-1</sup>	—	—
Sr	1.03	1.92×10 <sup>1</sup>	2.84×10 <sup>1</sup>	5.53×10 <sup>1</sup>	5.40×10 <sup>1</sup>	7.19×10 <sup>1</sup>	7.83×10 <sup>1</sup>	—
Y	—	—	—	—	—	—	—	—
Zr	—	7.72×10 <sup>-1</sup>	3.00×10 <sup>-1</sup>	4.72×10 <sup>-1</sup>	8.51×10 <sup>-1</sup>	4.64×10 <sup>-1</sup>	9.95×10 <sup>-1</sup>	—
Mo	2.11	1.14	—	—	—	—	7.90×10 <sup>-1</sup>	—
Tc	1.99	2.57	4.93	3.79	2.15	1.55	1.44	—
Ru	4.12×10 <sup>-1</sup>	—	3.46×10 <sup>-1</sup>	—	—	3.27×10 <sup>-1</sup>	—	—
Rh	—	2.72×10 <sup>-1</sup>	1.24×10 <sup>-1</sup>	9.71	—	—	—	—
Pd	1.05	2.44	2.92	6.13×10 <sup>-1</sup>	8.49×10 <sup>-1</sup>	9.39×10 <sup>-1</sup>	3.52×10 <sup>-1</sup>	—
Cs	—	1.65×10 <sup>-1</sup>	9.96×10 <sup>-1</sup>	—	1.07	1.60	9.99×10 <sup>-2</sup>	—
Ba	3.54×10 <sup>-1</sup>	2.83	6.33	6.73	6.36	5.86	4.75	—
Nd	3.13×10 <sup>-1</sup>	—	1.67×10 <sup>-1</sup>	—	1.76×10 <sup>-1</sup>	—	—	—
U	1.05	1.47	1.12	2.04	1.96	3.08	4.17	—
Np	—	3.96×10 <sup>-1</sup>	1.14	4.21	8.16	—	8.62	—
Pu	—	—	3.76×10 <sup>1</sup>	4.31×10 <sup>2</sup>	7.79×10 <sup>2</sup>	1.36×10 <sup>3</sup>	2.60×10 <sup>3</sup>	—
Am	—	1.32	2.46×10 <sup>-1</sup>	5.88×10 <sup>-1</sup>	3.4	2.54	4.53×10 <sup>-2</sup>	—

—:  $K_d < 1.00 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g}$

Table 12: Distribution coefficient ( $K_d / \text{cm}^3 \text{ g}^{-1}$ ) onto DtHex + *n*-hexadecanol (1.39)

Element \ [HNO <sub>3</sub> ] M	0	1	2	3	4	5	6
Na	1.54	—	2.97	2.05	—	—	1.11
Rb	—	—	7.49×10 <sup>-1</sup>	2.72	8.10×10 <sup>-2</sup>	3.16×10 <sup>-2</sup>	—
Sr	—	6.51×10 <sup>-1</sup>	1.03×10 <sup>1</sup>	1.30×10 <sup>1</sup>	1.85×10 <sup>1</sup>	2.56×10 <sup>1</sup>	1.74×10 <sup>1</sup>
Y	9.05×10 <sup>-1</sup>	—	—	—	—	—	—
Zr	—	—	—	—	—	—	—
Mo	5.19	2.70	1.54	2.33	1.55	1.56	3.82
Ru	—	—	—	—	—	—	—
Rh	6.96×10 <sup>-1</sup>	6.91×10 <sup>-1</sup>	5.58×10 <sup>-2</sup>	1.74×10 <sup>-1</sup>	1.19	1.12	1.52
Pd	1.60	3.89	3.88	1.98	1.79	—	4.03
Cs	—	—	—	2.03	—	—	—
Ba	8.13×10 <sup>-1</sup>	1.27	2.21	1.35	8.88×10 <sup>-1</sup>	1.81	9.02×10 <sup>-1</sup>
Nd	—	—	—	—	—	—	—

—:  $K_d < 1.00 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{g}$

Table 13: Leakage of extractant from Sr adsorbent

[HNO <sub>3</sub> ] / M		0	2	4
Adsorbent		Conc. of dissolved extractant / ppm		
DtBu + <i>n</i> -dodecanol	(1.61)	19.8	18.4	20.5
DtBu + <i>n</i> -hexadecanol	(1.61)	50.7	31.5	50.6
DtHex + <i>n</i> -dodecanol	(1.78)	< 1.0	< 1.0	< 1.0
DtHex + <i>n</i> -hexadecanol	(1.39)	< 1.0	< 1.0	< 1.0
DtHex + <i>n</i> -hexadecanol	(1.78)	4.3	< 1.0	< 1.0

Table 14: Mobile phase for Sr column

	Mobile phase	Volume / cm <sup>3</sup>
Conditioning	2 M HNO <sub>3</sub>	20
Feed	2 M HNO <sub>3</sub>	20
Washing	2 M HNO <sub>3</sub>	20
Eluent	H <sub>2</sub> O	20

Table 15: Mobile phase for Sr column

	Mobile phase	Volume / cm <sup>3</sup>
Conditioning	3 M HNO <sub>3</sub>	15
Feed	10 mM Sr-3 M HNO <sub>3</sub>	15
Washing	3 M HNO <sub>3</sub>	15
Eluent	H <sub>2</sub> O	15

Table 16: Composition of simulated HLLW for process flow sheet test

Element	Conc. /mM	
	Simulated HLLW*	Raffinate
Sr	2.48	1.36
Y	1.39	–
Zr	14.39	5.69
Mo	9.87	4.52
Ru	14.78	6.24
Rh	4.41	2.19
Pd	11.56	5.77
Cs	14.07	3.91
Ba	5.87	3.01
La	11.7	–
Nd	20.75	–
Eu	4.57	–
[HNO <sub>3</sub> ] / M	2.06	3

\*Containing [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 0.5 M, [HEDTA] = 0.1 M

Table 17: Decontamination factors

Cs separation column			Sr separation column		
Element	DF	Recovery ratio	Element	DF	Recovery ratio
Cs	> 100	1.4	Sr	> 100	3.0
Sr	> 100	1.2	Zr	> 100	0.73
Zr	> 100	0.92	Mo	> 100	0.61
Mo	> 100	0.90	Ru	77	0.82
Ru	85	0.98	Rh	> 100	0.73
Rh	> 100	1.1	Pd	> 100	0.87
Pd	85	0.97	Ba	2.2	1.0
Ba	> 100	1.1			

Table 18: Composition of simulated HLLW for separation of Sr

Element	Conc. /mM		
	Simulated HLLW*	Raffinate	After separation of Cs
Sr	2.48	1.36	0.65
Y	1.39	–	–
Zr	14.39	5.69	2.03
Mo	9.87	4.52	2.26
Ru	14.78	6.24	2.30
Rh	4.41	2.19	0.86
Pd	11.56	5.77	2.14
Cs	14.07	3.91	–
Ba	5.87	3.01	1.27
La	11.70	–	–
Nd	20.75	–	–
Eu	4.57	–	–
[HNO <sub>3</sub> ] / M	2.06	3.00	3.00

\*Containing [H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>] = 0.5 M, [HEDTA] = 0.1 M

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度、質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比體積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> 、濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1

(a) 量濃度(amount concentration)は臨床化学の分野では物質濃度(substance concentration)ともよばれる。

(b) これらは無次元あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup> m/m m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 <sup>(b)</sup> Hz
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	N	m kg s <sup>-2</sup>
力	ニュートン	Pa	N/m <sup>2</sup> m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
圧力、応力	パスカル	J	N m m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	W	J/s m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
仕事率、工率、放射束	ワット	C	s A
電荷、電気量	クーロン	V	W/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電位差(電圧)、起電力	ボルト	F	C/V m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
静電容量	ファラード	Ω	V/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>
電気抵抗	オーム	S	A/V m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
コンダクタンス	ジーメンス	Wb	Vs m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
磁束密度	エーベル	T	Wb/m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
インダクタンス	テスラ	H	Wb/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(e)</sup>	℃	K
光度	ルーメン	lm	cd sr <sup>(c)</sup> lm/m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> cd s <sup>-1</sup>
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>	ルクス	Ix	lm
吸収線量、比エネルギー分与、カーマ	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq	J/kg m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
線量当量、周辺線量当量、方向性線量当量、個人線量当量	グレイ	Sv	J/kg m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
酸素活性	シーベルト <sup>(g)</sup>	kat	s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。

(b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。

(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。

(d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。

(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同じである。したがって、温度差や温度間隔を表す數値はどちらの単位で表しても同じである。

(f) 放射性核種の放射能(activity referred to a radionuclide)は、しばしば誤った用語で“radioactivity”と記される。

(g) 単位シーベルト(PV,2002,70,205)についてはCIPM勧告2(CI-2002)を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m <sup>1</sup> kg s <sup>-1</sup>
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>2</sup>
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱流密度、放射照度	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
熱容量、エンタルピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比熱容量、比エンタルピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>1</sup> kg s <sup>-2</sup>
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> sA
表面電荷密度	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
電束密度、電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
誘電率	ファラード毎メートル	F/m	m <sup>3</sup> kg s <sup>-4</sup> A <sup>2</sup>
透過率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>2</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>1</sup>
モルエンタルピー、モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>1</sup>
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> sA
吸収線量	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>-3</sup> s <sup>-2</sup>
放射強度	ワット毎メートル	W/sr	m <sup>1</sup> m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> =kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨ	タ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ
10 <sup>21</sup>	ゼ	タ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ
10 <sup>18</sup>	エ	ク	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ
10 <sup>15</sup>	ペ	タ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロ
10 <sup>12</sup>	テ	ラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ
10 <sup>9</sup>	ギ	ガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ
10 <sup>6</sup>	メ	ガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト
10 <sup>3</sup>	キ	ロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト
10 <sup>2</sup>	ヘ	ク	h	10 <sup>-21</sup>	ゼット
10 <sup>1</sup>	デ	カ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
リットル	L	1L=1dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852m
ノット	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>-12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネバール	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイーン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ボアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>
フォート	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> 10 <sup>4</sup> x
ガル	Gal	1 Gal=1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マックスウェル	Mx	1 Mx=1G cm <sup>2</sup> =10 <sup>8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド(c)	Oe	1 Oe△(10 <sup>3</sup> /4n)A m <sup>-1</sup>

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1cal=4.1858J (15°Cカロリー), 4.1868J (ITカロリー) 4.184J (熱化学カロリー)
ミクロシン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m

