



4群群分離プロセスのNUCEF内群分離試験装置  
によるコールド試験及びセミホット試験

2000年6月

森田 泰治・山口 五十夫・藤原 武・溝口 研一\*・久保田 益充\*

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財團法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行 日本原子力研究所

## 4群群分離プロセスのNUCEF内群分離試験装置による コールド試験及びセミホット試験

日本原子力研究所東海研究所物質科学部研究部

森田 泰治・山口五十夫・藤原 武・溝口 研一\*・久保田益充\*\*

(2000年4月10日受理)

現在開発中の4群群分離プロセスについて、NUCEFのプロセスセル内に設置した群分離試験装置により、模擬高レベル廃液を用いたコールド試験、及び少量の実高レベル廃液とTcを添加した模擬廃液を用いたセミホット試験を実施した。抽出工程への供給液を調製するための高レベル廃液に対する前処理工程、超ウラン元素分離のためのジイソデシルリン酸による抽出工程、Tc-白金族元素分離のための脱硝沈殿工程及び活性炭吸着工程、Sr-Cs分離のための無機イオン交換体吸着工程の各工程を一連の操作で試験し、Am、Tcを含め各元素はほぼ想定どおり分離されることを確認した。例えば、抽出工程においてAmは、99.99%以上が抽出され、99.92%が抽出溶媒より逆抽出された。脱硝沈殿工程では、Tc沈殿率として96.6%が得られた。

以上の試験により、群分離試験装置の元素分離性能を確認することができた。また、実高レベル廃液による群分離試験の結果と比較するためのデータを取得することができた。

---

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

\* 石川島播磨重工業株式会社

\*\* (財)高度情報科学技術研究機構

Cold and Semi-Hot Tests of 4-Group Partitioning Process at NUCEF

Yasuji MORITA, Issoo YAMAGUCHI, Takeshi FUJIWARA,  
Kenichi MIZOGUCHI\* and Masumitsu KUBOTA\*\*

Department of Materials Science  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received April 10, 2000)

The 4-Group Partitioning Process was tested in the Partitioning Test Facility installed in a hot cell at NUCEF (Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility) using simulated high-level liquid waste (HLLW) or the simulated HLLW added with a small amount of real HLLW and Tc. Behavior of each element was examined in a series of the following separation steps: pretreatment for HLLW to prepare the feed solution to extraction step, extraction with diisodecylphosphoric acid for the separation of transuranium elements, precipitation by denitration and adsorption step with active carbon for the separation of Tc and platinum group metals, and adsorption with inorganic ion exchangers for the separation of Sr and Cs. It was confirmed that each element behaved as expected. More than 99.99 % of Am were extracted with DIDPA and 99.92 % of Am were back-extracted with 4 M nitric acid. In the precipitation step by denitration, ratio of Tc precipitated was 96.2%.

The present tests confirmed the expected performance of each equipment in the Partitioning Test Facility for the separation of elements and gave useful data for the comparison of element behavior with a result of a partitioning test using real HLLW.

Keywords : Partitioning, High-level Liquid Waste, Actinides, Diisodecylphosphoric Acid, Technetium, Platinum Group Metals, Denitration, Extraction, Precipitation, Adsorption,

---

\* Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.

\*\* Research Organization for Information Science & Technology

## 目 次

1.はじめに .....	1
2.実験 .....	5
2.1 群分離試験スタート液 .....	5
2.2 試薬類 .....	5
2.3 試験操作 .....	6
2.4 分析 .....	10
3.結果と考察 .....	15
3.1 前処理工程 .....	15
3.2 抽出工程 .....	16
3.3 脱硝沈殿工程 .....	18
3.4 活性炭吸着工程 .....	18
3.5 無機イオン交換体吸着工程 .....	20
3.6 今後の課題 .....	22
4.結論 .....	53
謝辞 .....	53
参考文献 .....	54

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental .....	5
2.1 Starting Solution .....	5
2.2 Reagents .....	5
2.3 Procedure .....	6
2.4 Analysis .....	10
3. Results and Discussion .....	15
3.1 Pretreatment Step .....	15
3.2 Extraction Step .....	16
3.3 Precipitation Step by Denitration .....	18
3.4 Adsorption Step with Active Carbon .....	18
3.5 Adsorption Step with Inorganic Ion Exchangers .....	20
3.6 Subject to be Examined .....	22
4. Conclusion .....	53
Acknowledgment .....	53
References .....	54

This is a blank page.

## 1. はじめに

使用済核燃料の再処理により発生する高レベル廃液をより合理的に処分すること、及び廃液中に存在する有用な元素を回収利用することを目的として、高レベル廃液中の元素を、その化学的性質や放射能毒性に応じて分離する群分離プロセスの開発を進めている<sup>(1,2)</sup>。現在、超ウラン元素(TRU)群、Tc-白金族元素(PGM)群、Sr-Cs群及びその他の元素群の4群に分離するプロセス(4群群分離プロセス)を開発しており、Fig. 1.1にそのブロックフローを示す。4群群分離プロセスは、濃縮高レベル廃液を対象としており、これにより取扱い液量の低減、プロセス規模の縮小を図っている。

群分離における最も重要な元素群であるTRUの分離については、ジイソデシルリン酸(DIDPA : diisodecylphosphoric acid)による溶媒抽出法を開発した<sup>(3)</sup>。この方法により、3価のAm、Cm<sup>(4)</sup>及び4価のPu、6価のUはもとより、5価の状態にあるNp<sup>(5)</sup>をも高い回収率で抽出分離できる。Fig. 1.2に4群群分離プロセスにおけるDIDPA抽出工程のフローを示す。このプロセスでは、TRU、U及びランタノイドを一括して抽出した後、4M硝酸にてAm、Cm及びランタノイドを逆抽出する。Am、Cmのランタノイドからの分離は、第2サイクルにてジェチレントリアミン五酢酸(DTPA)による選択的逆抽出により達成する。第1サイクルにおいては、4M硝酸による逆抽出の後、シュウ酸により4価のアクチノイドであるNp(抽出時に添加する過酸化水素により4価に還元される)及びPuを、炭酸ナトリウムにより6価のアクチノイドであるUを順に逆抽出する。

この抽出工程へ高レベル廃液を供給するには、その硝酸濃度を約0.5Mに下げる必要がある。この抽出工程のための前処理法として、ギ酸による脱硝法を開発した<sup>(6,7)</sup>。添加するギ酸の量を廃液中の硝酸量の1.5倍当量として、高レベル廃液を脱硝すれば、硝酸濃度を約2Mから0.5M程度に下げることができ、また、高レベル廃液を脱硝する前に十分に加熱すれば脱硝後の沈殿をろ過の容易なもの(易ろ過性沈殿)にすることができる<sup>(8)</sup>。しかし、この易ろ過性沈殿の得られる前処理を実施すると約半分のZrが液中に残留し、これが脱硝時にコロイドとなることがわかった。コロイドは、DIDPA抽出工程において有機相と水相が接触したときの乳化の原因となる。そこで、コロイドの生成防止あるいは生成した場合の除去について検討し、リン酸或いはMoを脱硝前の加熱後液或いは脱硝ろ過後のろ液に添加してコロイドを沈殿物に変換し、分離除去する方法を開発した<sup>(9)</sup>。

DIDPA抽出プロセスのラフィネートからのTc-白金族元素の分離法としては、脱硝による沈殿法<sup>(10-12)</sup>と、活性炭を用いる吸着法<sup>(12-15)</sup>を開発した。脱硝沈殿法では、添加するギ酸の量を硝酸に対し2倍当量以上として脱硝を行うことで、脱硝後液のpHを2以上にし、Tcをほぼ定量的に白金族元素と共に沈殿させることができる。この際、被処理液中の白金族元素の濃度が、Rh及びPdの和として0.005M以上でなければTcが十分に沈殿しないことが指摘された<sup>(10)</sup>が、処理対象としている濃縮高レベル廃液では、被処理液であるDIDPA抽出ラフィネートにおいてこの条件を十分満たすことができる。この脱硝沈殿法には、過酸化水素を用いることでTcを沈殿より選択的に溶解できる<sup>(10,12)</sup>という利点もある。活性炭吸着法は、TcO<sub>4</sub><sup>-</sup>の化学形で存在するTcを陰イオン交換的に吸着分離するもので、共存する白金族元素の濃度が低くても、容易な操作で高いTc回収率が得られるという特徴を持つ。しかし、白金族元素の回収率が低いという欠点がある。

最後のSr-Cs分離工程には無機イオン交換体による吸着法を適用する。Srの吸着にチタン酸を、Csの吸着にゼオライト(天然モルデナイト)を用いるもので、混合カラムに被処理液(pH5程度以上)を供給するという方法を探っている。これらの交換体は、そのまま1200°C程度で焼成することで安定な固化体とすることができます<sup>(17)</sup>という利点がある。

以上のような4群群分離プロセスについて実際の高レベル廃液を用いた試験を実施するため、NUCEFのプロセスセル( $\alpha$ - $\gamma$ セル)内に群分離試験装置を設置した<sup>(18)</sup>。この装置は、2~3ℓの高レベル廃液を処理することができ、濃縮・脱硝装置、ろ過装置、抽出装置、カラム吸着装置等を備えている。抽出工程については、Fig. 1.2の一点鎖線で囲まれた部分を試験することができる。硝酸を用いた装置性能試験<sup>(19)</sup>を経て、①模擬高レベル廃液による群分離試験(コールド試験)及び②少量の実高レベル廃液を添加した廃液を用いた試験(セミホット試験)を実施した。本報告は、これら2つの試験の結果をまとめたものである。

模擬廃液試験の第一の目的は、装置の元素分離性能を確認することであるが、最も重要である第二の目的は、元素分離挙動について後に行う実廃液試験の結果と比較するためのデータを取得することである。模擬廃液試験と実廃液試験とで結果を比較することで、模擬廃液試験の有効性と限界を知ることができる。これは、やや規模の大きい化学工学的観点からの群分離試験<sup>(20)</sup>等では、どうしても模擬廃液を使わざるを得ないという点で重要な知見である。

セミホット試験では、模擬高レベル廃液に少量の実廃液及びTcを添加したものを使用し、放射性核種の挙動把握を行った。Tcに関しては、先に行った小規模(液量数10ml)でのTc挙動把握実験<sup>(12)</sup>の結果を、NUCEFの群分離試験装置による試験で確認するという意味もある。

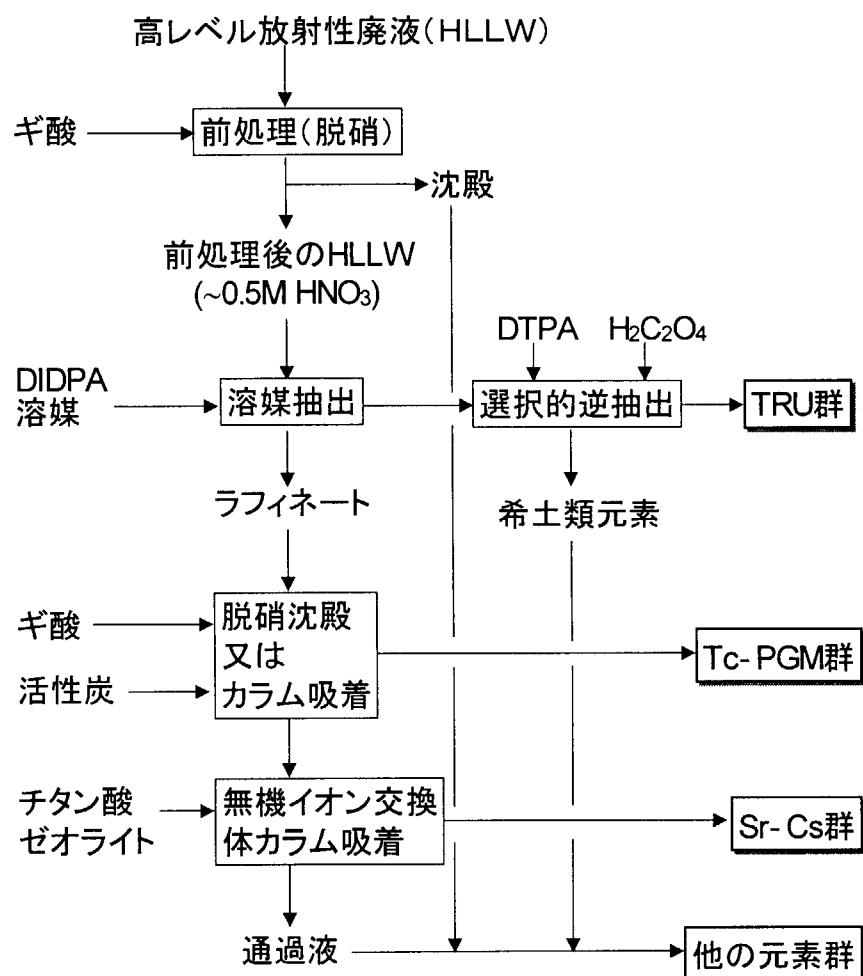


Fig. 1.1 4群群分離プロセスのブロックフロー

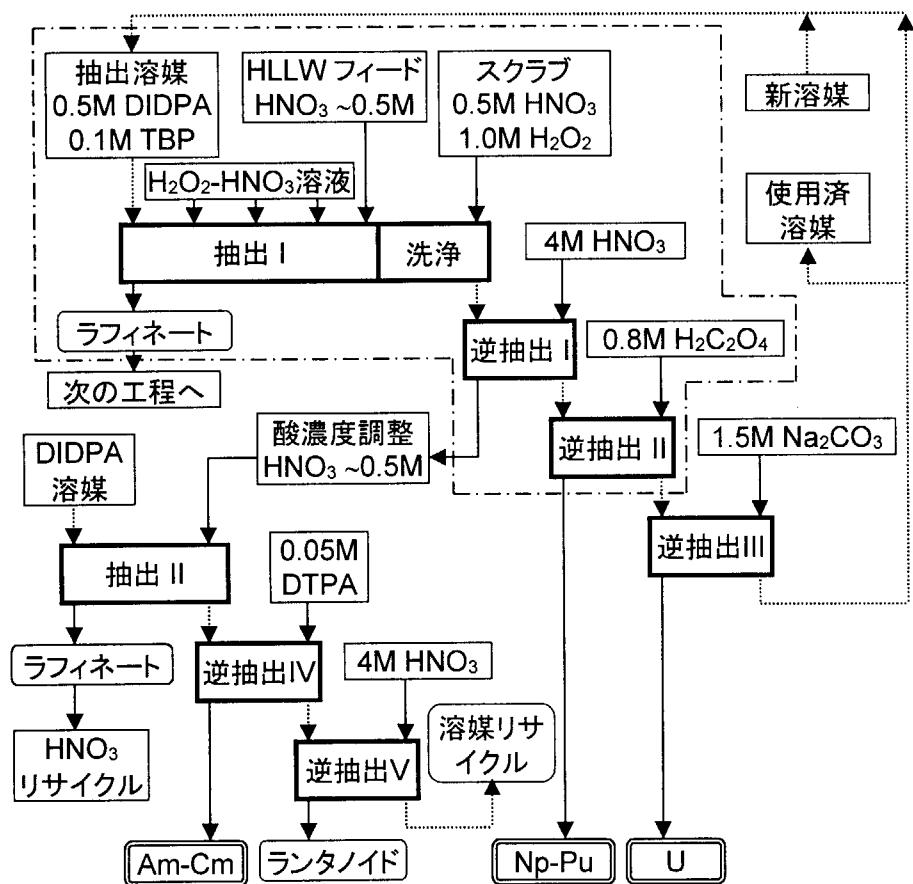


Fig. 1.2 4群群分離プロセスにおけるDIDPA抽出工程

## 2. 実験

### 2.1 群分離試験スタート液

Table 2.1に本研究で使用した模擬高レベル廃液の組成と添加した試薬の化学形を示す。この組成は、燃焼度28000MWd/tの使用済燃料の再処理によって発生する高レベル廃液が、燃料1t当たり500Lであるとしたときのものである<sup>(4)</sup>。コールド試験では、この模擬廃液2ℓを調製し、プロセスセル内に搬入して群分離試験のスタート液とした。

セミホット試験では、模擬廃液2ℓに少量の高レベル廃液とTc-99液及びTc-95m液を加えたものをスタート液とした。添加した実高レベル廃液は、昭和57年(1982年)2月及び3月に、3群群分離プロセスの実廃液試験<sup>(21-23)</sup>のため動力炉核燃料開発事業団(現在核燃料サイクル開発機構)より原研のR I 製造棟へ搬入したもの一部である。保管されていた実廃液より約 $2.7 \times 10^7$ Bqを分取し、NUCEFへ運搬、セル内へ搬入した後、模擬廃液と混合した。なお、放射能量は、 $\gamma$ 線分析の結果及びORIGEN2コードによる計算結果より求めた。また、添加した放射能量は、試験で得たサンプルを希釈することなく直接 $\gamma$ 線測定できる量として決定した。Tc-99溶液は、先のプラスコスケール試験<sup>(12)</sup>での調製法により準備した。使用量は $3.47 \times 10^8$ Bqであり、2ℓとなったときの濃度は0.0028Mである。この濃度は、想定される0.015M<sup>(12)</sup>の約1/5であるが、マクロ量存在することには変わりがない。TcトレーサーとしてのTc-95mの使用量は、試験開始時で $1.5 \times 10^6$ Bqである。Tc-99、Tc-95m共にフランスDUPONT社より購入したものであり、化学系はそれぞれNH<sub>4</sub>TcO<sub>4</sub>及びNaTcO<sub>4</sub>である<sup>(12)</sup>。模擬廃液への添加はフード内で実施した。

### 2.2 試薬類

抽出工程の試験に用いたDIDPA溶媒は、(株)大八化学工業所製DIDPA及び関東化学工業(株)製TBP(Tributylphosphate)をジャパンエナジー製 n-ドデカンで希釈し、0.5M DIDPA - 0.1M TBPの濃度に調整したものである<sup>(3)</sup>。

活性炭は、和光純薬工業(株)製クロマトグラフ用活性炭素をふるいにかけ、粒径を20~50meshに揃えたものを使用した。ゼオライトは、仙台近郊産出の天然モルデナイトを粉碎し、ふるいにかけ、粒径を20~50meshに揃えたものを使用した。チタン酸は、東和合成(株)製オルトチタン酸(K型)樹脂成形体<sup>(24)</sup>を使用した。入手した成形体は、径約0.8mm、長さ2~3mmの円筒状のものであったが、これを、さらに粉碎及びふるい分けすることなく、そのまま使用した。以前には、樹脂成形していないチタン酸を使用していたが、これをNUCEF群分離試験装置の吸着カラム<sup>(18)</sup>に充填して使用すると、粒子の機械的強度の不足から微細粒子が生成し、目詰まりを起こすという現象が発生した。この問題を克服するため、樹脂成形体を使用することとしたが、この成形体には、吸着速度が遅く、吸着容量が低いという欠点がある<sup>(24)</sup>。

## 2.3 試験操作

### (1) 概要

Fig. 2.1にNUCEF群分離試験装置による試験操作のフローを示す。操作は、前処理工程、抽出工程、脱硝沈殿工程、活性炭吸着工程及び無機イオン交換体吸着工程からなる。以下に各工程毎の操作経過を述べる。

### (2) 前処理工程

コールド試験においては、前処理工程の試験を2回実施した。Fig. 2.2にその操作フローを示す。前処理操作(1)においては、濃縮操作の経験を積むため、まず、2.1節に記した模擬廃液2ℓに対し、水を加え8ℓとした後に濃縮操作を加えた。この操作は、易ろ過性沈殿を得るために脱硝前の加熱操作を兼ねており、約17時間を要した。その後、濃縮後液2.2ℓに、全Zr量に対しモル比0.82倍量のリン酸を加え(1.4Mリン酸80ml)、Zrを沈殿させた<sup>(9)</sup>。引き続き、ギ酸を添加して脱硝を行った。脱硝後液2.7ℓをろ過し、ろ液について酸濃度、液量の調整を加えて、前処理済高レベル廃液、即ち、抽出工程供給液(4.0ℓ、硝酸濃度0.50M)を調製した。但し、脱硝後液中の沈殿量が多く(沈殿の主成分であるリン酸ジルコニウムはかさ高く、また全Zrが沈殿しているため)、ろ過の際、流路を閉塞するという問題が生じた。臨時のラインを設置して対処することができた(ろ過所要時間約10分)が、全Zrがリン酸及びMoとともに沈殿している状況は、NUCEFの装置にとっては処理能力の限界を超えていると考えられる。(但し、この問題は装置設計の工夫で対処できると考えられる。本ろ過装置の設計時にはリン酸ジルコニウムのろ過を想定していなかった。)沈殿をセル外へ持ち出し、スラリーの移送試験を実施したところ、少しの流路断面積の減少で目詰まりを起こすことがわかり、流路を閉塞しやすい沈殿であることが確認された。これは、易ろ過性で粒径が大きい反面、粒径がそろっているためであると推定される。

前処理操作(2)は、スタート液の組成によっては必ずしもコロイドが生成するとは限らないことから、脱硝操作とコロイド除去操作を分ける方が合理的であるとの考え方より開発されたものであり<sup>(9)</sup>、ろ過操作が2回となることから、上記の問題にもある程度対処できる。この前処理操作(2)では、スタート液に対し、まず7時間の加熱操作の後、脱硝を行った。次に、脱硝後液に対し、ろ過した後にMo(全Zrと同じモル数のMoを含むパラモリブデン酸アンモニウム水溶液)を添加し、加熱(5時間)して、コロイドとなっているZrを沈殿物に変換した<sup>(9)</sup>。この前処理操作(2)による試験において、脱硝後液及びコロイド除去後液ともに、臨時のラインを設置することなく、ろ過することができた(ろ過所要時間：脱硝後液約7分、コロイド除去後液約70分)。Mo添加による沈殿は、リン酸添加による沈殿に比べ、単位Zr量当たりの見かけ体積が小さく、ろ過比抵抗が小さい<sup>(9)</sup>とともにろ過操作を容易にする効果があったと考えられる。また、以上のろ過操作より、経験的知見として、ろ過の初期段階には減圧度を低く(約-20kPa)設定し、ある程度沈殿がフィルター内へ移動した後に減圧度を上げる(約-80kPa)と効率的にろ過を行うことができることがわかった。なお、コールド試験における前処理操作(2)の試験は、この部分のみの試験として実施し、前処理後液を用いた抽出工程以降の試験は行わなかった。

セミホット試験においては、前処理操作(2)により本工程の試験を実施した。脱硝後のろ過の際

流路閉塞の問題が生じたが、脱硝槽内のスラリー移送配管に逆向きに空気を流すことで閉塞現象を解消することができた。スラリー移送配管は、脱硝中も液に浸されており、従って配管内にも沈殿が生じる。この沈殿が閉塞の原因となっていることが推定された。加熱後(コロイド除去後)のろ過の際には、上記の空気吹き込みを事前に行ったので、閉塞することなく、スラリー移送及びろ過を行うことができた。沈殿物自体は易ろ過性であった(ろ過所要時間：脱硝後液約20分、コロイド除去後液約30分)。

すべての試験において、脱硝操作では、硝酸に対しモル比1.5倍当量のギ酸を添加した後に加熱を開始し、反応開始後7時間加熱を継続した。いずれの場合も、溶液の温度が76°C程度となつた時点で脱硝反応が始まったことが溶液の密度測定値の変化から確認された。

### (3) 抽出工程

4群群分離プロセスにおける抽出工程はFig.1.2に示したものであるが、NUCEFの群分離試験装置においては、設置したミキサーセトラーが2台のみであることから、Fig.1.2中の一点鎖線で囲んだ部分の工程、即ち、抽出・洗浄、4M硝酸による逆抽出及びシュウ酸による逆抽出の各工程を試験する。Fig.2.3に2台のミキサーセトラーの運転条件を示す。

第1ミキサーセトラーにおいては、抽出・洗浄工程及び4M硝酸による逆抽出工程を試験する。スクラブ液には、Npを効率的に抽出するための試薬である過酸化水素を添加する<sup>(5)</sup>が、コールド試験においては、過酸化水素が他の元素に及ぼす影響を調べる目的で過酸化水素を添加しないスクラブ液を用いた試験も実施した。コールド試験では先ず、0.5M硝酸をスクラブ液とした運転を7時間行った後、各段の水相及び有機相をサンプリングし、次にスクラブ液を過酸化水素添加の0.5M硝酸に換えて15.7時間終夜連続運転し、再度サンプリングを行った。2度目の運転途中で有機相を貯留槽より排出し、第2ミキサーセトラーの運転で用いる有機相供給液は、すべて過酸化水素添加の系で得られた有機相となるようにした。2度目のサンプリングの後、運転を再開し、前処理後液すべてを第1ミキサーセトラーで処理した。

セミホット試験における第1ミキサーセトラーの運転では、過酸化水素添加のスクラブ液のみを使用し、23時間の終夜連続運転の後サンプリングを行った。その後、コールド試験と同じく、前処理後液すべてを処理した。

第2ミキサーセトラーの試験においては、コールド試験、セミホット試験とともに、約7時間の運転の後一旦中断し、翌日再び約7時間の運転を実施してからサンプリングを行った。

Table 2.2に供給液の条件、サンプリングのための運転停止直前の流速を示す。セミホット試験において、供給液の流速はポンプの不調により本来の流速より低下してしまったが、サンプリング時には十分この流速で平衡に達していること、つまり流速低下後十分時間が経過していることを貯槽の液位変化等から確認した。また、いずれの試験においても、2台のミキサーセトラーの運転では、有機相／水相の分相状態は良好であり、安定した運転を行うことができた。

### (4) 脱硝沈殿工程

Tc-白金族元素分離のための脱硝沈殿工程に関しては、先の研究<sup>(11)</sup>で、これらの元素を確実に沈殿させるには、被脱硝液であるDIDPA抽出ラフィネートを初期の段階で弱く加熱する(40-60°C

における液の昇温速度を8°C/min以下とする。これは被脱硝液に対する正味の加熱量として0.56W/g以下に対応する。)か、ラフィネートを4倍程度に濃縮した後に脱硝することが最適であるとの結果が得られている。コールド試験では濃縮せずに脱硝、セミホット試験では濃縮した後に脱硝という操作で本工程の試験を実施した。NUCEFの脱硝濃縮装置においては、溶液量約2.5 lでの昇温速度は約1°C/minである。

コールド試験では、セル内装置による脱硝試験に先立ち少量のラフィネートを用いた予備脱硝試験をフードにおいて実施した。これは、ラフィネートへの有機物の混入による脱硝時の発泡現象<sup>(25)</sup>の有無を調べるためのものである。この予備脱硝試験では、ラフィネート20mlを100ml丸底フラスコに入れマントルヒーターで加熱するという方法で、ギ酸／硝酸比2.2として脱硝した。その結果、特に問題となる発泡現象は観察されなかつたので、セル内の装置による脱硝試験に移行した。

セル内の脱硝試験は、2回実施した。これは、次の無機イオン交換体吸着工程で用いる脱硝後液をある量以上確保するためである。2回の操作いずれにおいても、ラフィネート2.1 lを用い、硝酸に対し2.2倍当量のギ酸を添加した後に加熱を始め、反応開始後7時間加熱を継続した。反応開始は、液温が約70°Cとなったときであったが、これは前処理における脱硝に比べ低温での開始である。なお、用いたラフィネートの硝酸濃度は0.62Mであった。(この濃度は、供給液及びスクラブ液の初期酸濃度0.5Mとランタノイド等が抽出された際イオン交換で水相側へ移る水素イオンによる酸濃度の增加分0.12Mとの和に一致した。)

セミホット試験においてはラフィネートを濃縮した後に脱硝するというプロセスを試験した。濃縮操作では、硝酸濃度0.66Mのラフィネート7.3 lを6.7時間×2回=計13.4時間の加熱で2.3 lとした(3.2倍濃縮)。濃縮後の硝酸濃度は2.1Mとなつたことになる。この濃縮後液に2.2倍当量のギ酸を添加し、同様に脱硝した。

いずれの試験においても、脱硝後のろ過には問題が無く10分以内に終了した。

なお、ギ酸添加量は、硝酸量の2.2倍当量としたが、これは最低限必要な量(2.0倍当量<sup>(11)</sup>)に比べ多い。この理由は、セル内における液量測定での誤差等を考慮して、ギ酸が少なすぎる恐れのないようにしたためである。Tc及び白金族元素はpH2以上で沈殿するが、脱硝後のpHを2~3に制御することは難しく、ギ酸を少過剰添加することでpHを中性付近まで上昇させ(pH6以上)、Tc及び白金族元素の沈殿を確実なものとすることが適當な方法であると考えられる。また、沈殿ろ過後のろ液のpHが6以上であればこれをそのまま無機イオン交換体吸着工程への供給液とすることができる。

## (5) 活性炭吸着工程

吸着試験に用いるカラムは4部屋に分かれており、溶液は順に直列に通過する<sup>(18)</sup>。コールド試験における活性炭吸着工程の試験では、この4部屋すべてに活性炭を詰めたもの(以下4/4カラムと記す)と、出口に最も近い1部屋のみに活性炭を詰め、残りの3部屋には1mm φのガラスビーズを詰めたもの(1/4カラム)の2つのカラムを用意した。この1/4カラムは、元素の飽和吸着に至る破過曲線を得るためのものである。カラムの調製手順は以下のようである。①ふるい分けされた活性炭を0.5M硝酸に浸し、一晩以上を放置する。②水である程度硝酸を洗い流した後、活性炭を水に

浸した状態でカラムに振動充填する。1/4カラムではガラスウールを予め詰めておき、活性炭とガラスピースが混合しないようにした。③0.5M硝酸をカラム体積の3倍以上流し、コンディショニングする。

カラム実質体積は、1/4カラムが127ml、4/4カラムが510mlであった。活性炭の見かけ比重は0.185g/mlであるので、それぞれ23.5g、94.4gが充填されることになる。また、ガラスピースを詰めた部分の空隙率は約34%と測定されたので、1/4カラムでは、溶液が活性炭に到達する前にカラム内で約130mlのフリーボリュームがあったことになる。

コールド試験では、セル内において、1/4カラムと4/4カラムを順に直列につなぎ、DIDPA抽出ラフィネート(硝酸濃度0.62M)を410ml/hの流速(線速 $1.4\text{cm/min} = 2.4 \times 10^{-4}\text{m/s}$ )で総計3.4ℓ流した。そして、1/4カラム出口でのサンプリング(中間サンプリング)を20分間隔で、4/4カラム出口でのサンプリングを40分間隔で行い、元素の破過挙動を調べた。抽出ラフィネートすべてを通液した後に、0.5M硝酸1.5ℓをラフィネートの入っていた貯槽に入れて同じように通液し、追い出し操作を行った(途中中断あり)。さらに、水を流して洗浄操作を加えた(この時は1/4カラムと4/4カラムとを別に行つた)。なお、本試験においては溶離試験を行わなかったが、これは、Tcについてはアルカリ性チオシアン酸溶液等で溶離できる<sup>(14,15)</sup>ものの、白金族元素に対しては有効な溶離方法が確立していないためである。

セミホット試験では、活性炭吸着工程の試験は実施しなかった。これは、ラフィネートを濃縮した後に脱硝するという操作による脱硝沈殿工程の試験の方に重点を置いたためであり、ラフィネートのほとんどを消費してしまったことが主たる理由である。

#### (6) 無機イオン交換体吸着工程

無機イオン交換体のカラムについても、活性炭カラムの場合と同様に1/4カラムと4/4カラムを用意した。カラムの調製法は次のとおりである。①チタン酸とゼオライトを重量比8:1となるよう秤り取り、それぞれ別に水洗-デカンテーションの操作でふるい分けでは取れなかつた微細粉末を除去する。ゼオライトについては、粉末成分がなかなか取り除けなかつたので、水中でのふるい分けを行つた。②両者を混合し、カラムに水に浸した状態で振動充填する。充填前の見かけ体積と充填後残つたものの見かけ体積との比から、充填割合を求め、これより充填量を算出した。③脱気水(一度沸騰させた水)を、流出液の白い濁りがなくなるまで流す(基本的にはカラム体積の3倍以上)。なお、チタン酸とゼオライトとの混合比8:1は、用いた樹脂成形チタン酸の吸着容量についての予備的実験の結果からSrとCsがほぼ同時に破過すると予想される比として求めた。

コールド試験においては、より詳細なデータを得る目的で、本工程の試験をセル内ではなく実験室で実施した。また、対象となる溶液が、脱硝沈殿工程の試験で得たろ液と活性炭吸着工程カラム通過液の2種があることから、それぞれ別に1/4カラムを用いた無機イオン交換体による吸着試験を行つた。脱硝沈殿工程ろ液には黒色沈殿が存在することがセル外へ持ち出した際観察された(セル内でのろ過後さらに析出したものと推定される)ので、5Cろ紙にて再度ろ過した後にカラムに供給した。この供給液のpHは6.6であった。活性炭カラム通過液に対しては、セル内において中和・ろ過した後にセル外へ持ち出し、吸着試験を行つた。そのpHは6.9であった。1/4カラムの充填量はともにチタン酸106g、ゼオライト13gであった。

コールド試験では、上記2種の1/4カラムによる吸着試験のカラム通過液を混合した後、4/4カラムにフィードするという試験も実施した。この際の供給液のpHは8.2であった。4/4カラムは、チタン酸481g、ゼオライト60gを含む。

コールド試験における供給液の流速はいずれの場合も0.41L/hとした。

セミホット試験においては、コールド試験における活性炭吸着工程試験の場合と同様に、セル内において直列に接続した1/4カラムと4/4カラムを用いて、無機イオン交換体による吸着試験を行った。供給液は脱硝沈殿工程のろ液であり、pHは9.1であった。流速は0.46L/hであった。カラムへの充填量は、1/4カラムのチタン酸が104g、ゼオライトが13g、4/4カラムのチタン酸が501g、ゼオライトが63gであった。なお、使用済のカラムについては、長期保管のため、カラム内の水分を除去する必要がある。この目的のため、カラムに対してカラムが100°Cとなるような条件で30時間の加熱乾燥操作と加えた。

#### 2.4 分析

コールド試験におけるサンプル中の元素濃度は、アルカリ金属については炎光光度法により、その他の元素についてはプラズマ発光分析法により測定した。セミホット試験においては、放射性核種の挙動を $\gamma$ 線及び $\alpha$ 線の測定により調べた。加えた実高レベル廃液より検出された $\gamma$ 放射性核種は、Cs-137、Eu-154、Eu-155及びAm-241の4種のみであった。Tcの挙動は、Tc-95mの放出する $\gamma$ 線の測定により決定した。

酸濃度の測定は、シュウ酸アンモニウムを錯形成剤として加える滴定法<sup>(9)</sup>でセル外で行った。

Table 2.1 模擬廃液の組成と添加した試薬の化学形

元素	濃度(M)	添加した試薬の化学形
HNO <sub>3</sub>	2.0	HNO <sub>3</sub>
Na	0.076	NaNO <sub>3</sub>
Cr	0.0091	Cr(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O
Fe	0.038	Fe(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> ·9H <sub>2</sub> O
Ni	0.0060	Ni(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·6H <sub>2</sub> O
Rb	0.0074	RbNO <sub>3</sub>
Sr	0.0165	Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
Y	0.0084	Y(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Zr	0.069	ZrO(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> ·2H <sub>2</sub> O
Mo	0.069	(NH <sub>4</sub> ) <sub>6</sub> Mo <sub>7</sub> O <sub>24</sub> ·4H <sub>2</sub> O
Ru	0.034	RuNO(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Rh	0.0080	Rh(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Pd	0.018	Pd(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> 硝酸溶液
Te	0.0068	H <sub>2</sub> TeO <sub>4</sub> ·2H <sub>2</sub> O
Cs	0.0371	CsNO <sub>3</sub>
Ba	0.0207	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
La	0.0147	La(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Ce	0.0330	Ce(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Pr	0.0137	Pr(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Nd	0.0446	Nd(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Sm	0.0086	Sm(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Eu	0.0019	Eu(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Gd	0.0010	Gd(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 硝酸溶液
Tc*	0.0028	NH <sub>4</sub> TcO <sub>4</sub> , NaTcO <sub>4</sub>

\* Tcについてはセミホット試験において添加

Table 2.2 抽出工程試験における供給液条件

	供給液	コールド試験		セミホット試験
		H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 非添加	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 添加	
第1ミキサー-セトラー	供給液	[HNO <sub>3</sub> ] (M)	0.50	0.54
		流速 (ml/h)	97	94
	スクラブ液	[HNO <sub>3</sub> ] (M)	0.50	0.50
		[H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> ] (M)	-	1.05
		流速 (ml/h)	101	101
	抽出溶媒	流速 (ml/h)	391	387
	逆抽出液	[HNO <sub>3</sub> ] (M)	4.1	4.1
		流速 (ml/h)	105	102
	有機相フィード	流速 (ml/h)		301
第2ミキサー-セトラー	逆抽出液	[H <sub>2</sub> C <sub>2</sub> O <sub>4</sub> ] (M)		0.81
		流速 (ml/h)		301
				296

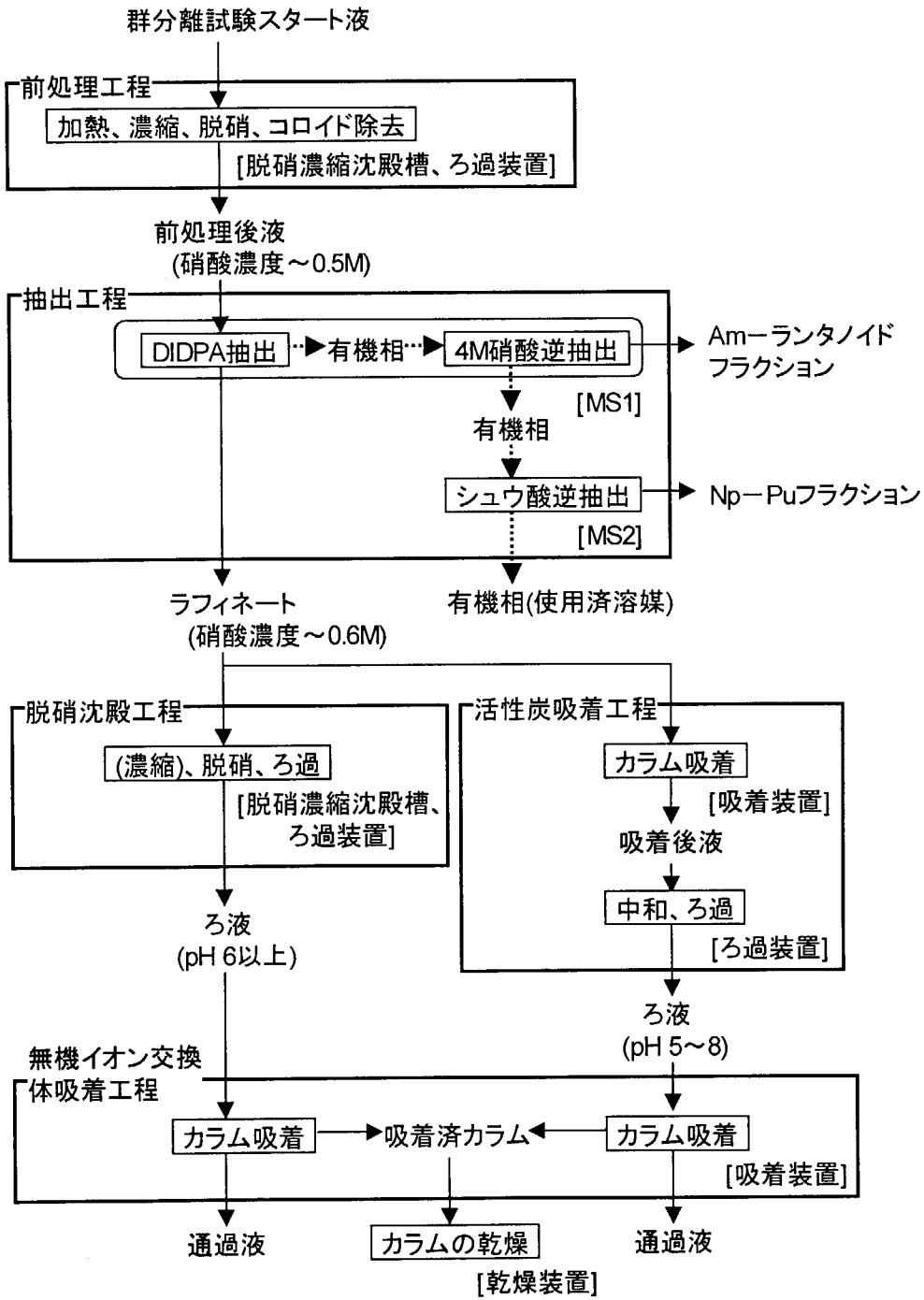


Fig. 2.1 NUCEF群分離試験の操作フロー

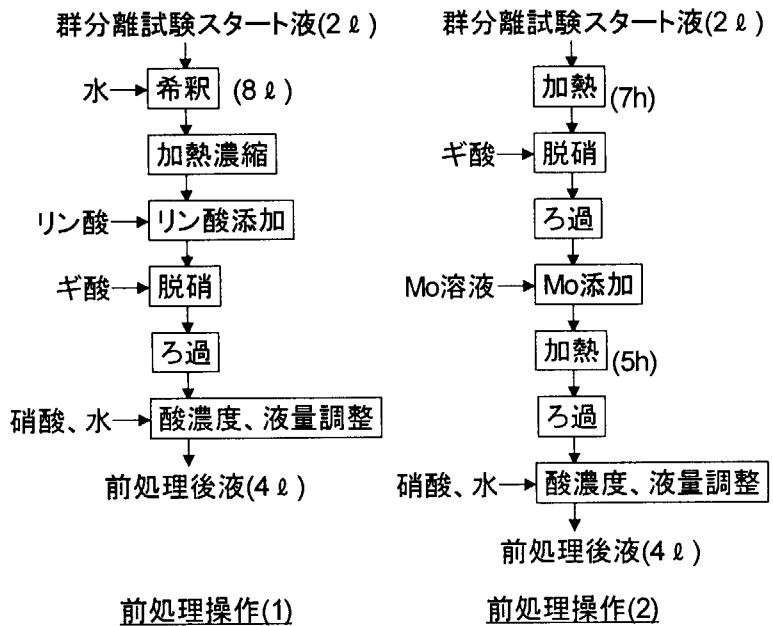


Fig. 2.2 前処理工程試験操作フロー

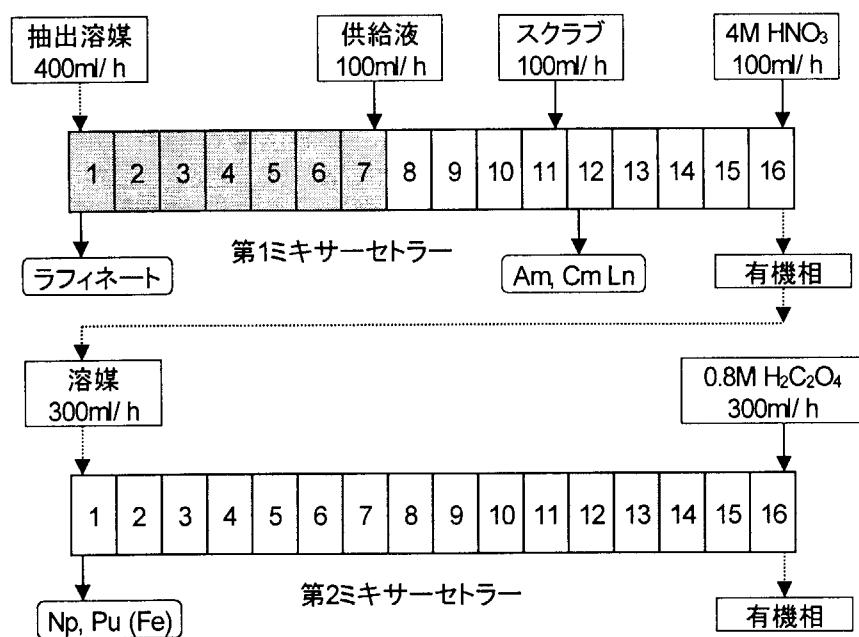


Fig. 2.3 NUCEF群分離試験装置のミキサーセトラー運転条件

フィード：前処理済高レベル廃液, ~0.5M HNO<sub>3</sub>スクラブ : 0.5M HNO<sub>3</sub> - 1.0M H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>

抽出溶媒 : 0.5M DIDPA - 0.1M TBP - n-ドデカン

### 3. 結果と考察

#### 3.1 前処理工程

Table 3.1及び3.2に、それぞれコールド試験の前処理操作(1)及び(2)の試験で得られた元素挙動の結果を示す。表中の数値は、各操作の後に溶液中に存在する元素量のスタート液中の量に対する比率(%)であり、元素濃度測定値を全ランタノイド元素の濃度の平均値を基準にして規格化して求めたものである。これら液中残留率の結果について図としたものをFig. 3.1及びFig. 3.2に示す。

Table 3.1及びFig. 3.1に示した前処理操作(1)の試験では、加熱濃縮後にMoの95%、Zrの50%及びTeの20%が沈殿した。リン酸添加によって、わずか20分の攪拌後にもかかわらずコロイドの原因となるZrのほとんどが沈殿し、残留率は0.4%となった。脱硝後もZrの沈殿率は維持され、Mo、Teの沈殿率も上昇した。これら以外の元素では、Feが明らかに沈殿している他は、Ru、Sr及びCsの一部が沈殿した。以上の結果は、先の研究<sup>(9)</sup>の結果によく一致した。リン酸の添加量が多いとMo等が再溶出してくるが、今回の結果ではそれがなく、添加量が最適だったことがわかる。脱硝後液の硝酸濃度は0.55Mであった。また、脱硝後液について試験管内での振とうによりDIDPA溶媒と接触させる実験(以下抽出予備試験)を行ったところ、エマルジョンの生成は観察されず、コロイドの存在しない抽出工程への供給液が調製されたことが確認された。

Table 3.2及びFig. 3.2に示した前処理操作(2)の試験結果も先の研究<sup>(8,9)</sup>の結果に一致した。即ち、加熱によってMoの95%、Zrの60%及びTeの15%が沈殿し、その後の脱硝によっては新たな沈殿はほとんど生じなかった。コロイド除去のためのMo添加一加熱一ろ過の操作により、Zrの残留率は1.7%となり、Teがさらに沈殿した。Moについては、スタート液での存在量と同量のMoをさらに添加しているが、前処理後の溶液における残留量はスタート液での存在量の36%であった。即ち、全体としては82%のMoが沈殿したことになる。この他の元素では、Ru及びFeの共沈が明らかである。特にRuの沈殿率は前処理操作(1)に比べ高い。これらの結果も先の研究<sup>(9)</sup>とよく一致している。逆にプラスコスケールの実験がNUCEFの試験装置での試験をよく模擬しているとも言える。コロイド除去後液について抽出予備試験を実施したところ、エマルジョンは生成せず、適切に前処理されたことが確認された。

セミホット試験では、前処理操作(2)により本工程の試験を実施した。Am、Eu、Tc及びCsの放射能測定値の比率をとってみると、Am、Eu、Tcの三者間では、放射能比率が前処理操作を通してほぼ一定であり、沈殿しなかったことが言える。Csについては、コロイド除去操作後に、その放射能の他の3核種のそれに対する比がわずか(7%)に低下しており、共沈があったことが示された。これはコールド試験及び先の研究<sup>(9)</sup>の結果と一致する。Csの共沈現象の解明とその防止法について今後の検討が必要である。但し、ここでは共沈と記したが、実際はZr-Moの沈殿物への吸着である可能性がある。なお、硝酸濃度は脱硝後液で0.50M、コロイド除去後で0.62Mとなり、酸濃度、液量の調整で0.54Mとした。また、コロイド除去後液について抽出予備試験を行ったが、エマルジョンは生成せず、2分の静置で分相した。

### 3.2 抽出工程

#### (1) 第1ミキサーセトラー

Fig. 3.3～Fig. 3.7に、コールド試験で得た抽出工程試験における過酸化水素添加系での第1ミキサーセトラー内の各元素の濃度分布を示す。Fig. 3.3及び3.4のランタノイドの濃度分布では、DIDPAに抽出され、4M硝酸に逆抽出されている様子がはっきりと示されている。水相中濃度は、抽出部の第7段から第1段に向かって直線的に減少しており、また、逆抽出部では第16段から第12段に向かい直線的に増加している。元素濃度が高い系であるが、その影響はほとんどなく、非常に効率的に抽出及び逆抽出が進行していることが明らかである。ランタノイドは原子番号が大きいほど分配比が大きくなるが、抽出部及び逆抽出部の直線の傾きはそれをよく反映している。

Fig. 3.5のアルカリ金属、アルカリ土類金属及びCr、Ni、Te、及びFig. 3.6の白金族元素は抽出されない元素である。しかし、Ru及びPdは有機相中でも検出されており、わずかに抽出されたことがわかった。Fig. 3.7には、Mo、Fe及びYの濃度分布を示した。Fe及びYは定量的に抽出され、4M硝酸によっては逆抽出されない元素である<sup>(26,27)</sup>。Moは、通常の状態ではDIDPA溶媒に抽出される<sup>(28)</sup>が、過酸化水素が共存すると過酸化物の化学形となり、Fig. 3.7に示したように抽出されなくなる。TRU分離の観点からMoは抽出されない方が好都合であるので、過酸化水素の添加はMoに対しても好ましい効果を示す。

Fig. 3.8にMo、Nd及びFeの濃度分布における過酸化水素添加系と非添加系との比較を示す。Moは上記のように過酸化水素添加の影響が顕著に現れる元素であり、Ndは分配比で、Feは抽出速度で<sup>(26)</sup>それぞれの挙動が決定される元素である。過酸化水素添加の系では気泡発生があるため攪拌状態が変化し段効率等に差ができる可能性があるが、Nd及びFeの挙動は基本的に差がなかった。Ndについて各段ごとの抽出効率が、過酸化水素非添加の系の方がわずかに高いことが観察されたが、全体として高い抽出効率が得られていることに変わりがなかった。

Table 3.3及び3.4に、過酸化水素添加及び非添加の系での第1ミキサーセトラーにおける各フラクションへの元素の移行率を示す。ここで移行率は、3つのフラクションで測定されたマスフローの和に対する各フラクションでのマスフローの割合であり、マスバランスは、3つのフラクションのマスフローの和の、供給液のマスフローに対する比である。過酸化水素添加の有無にかかわらずランタノイドは定量的に抽出され、ラフィネート中の濃度はいずれも検出限界以下であった。最もAmと挙動が近いNdの抽出率は99.99%以上が得られ、目標値<sup>(29)</sup>が達成されている。Feの抽出は、過酸化水素添加系で95%、非添加系で92%であった。Zrについては、供給液中の濃度が低くマスバランスが非常に悪かったが、抽出されていることは確かである。Moは、上にも述べたように過酸化水素添加の場合抽出されず、96%が水相に残ったが、過酸化水素非添加系では3%が残ったのみであった。その他の元素では、Te、Ru及びPdがわずかに抽出されている以外には抽出されなかった。Srは99.98%がラフィネート中に見出された。スクラブの段数を少し増やせばさらに改善される可能性があることはFig. 3.5の濃度分布からわかる。Csのラフィネートへの移行率は、炎光分析の定量性があまりよくないことから、99.9%にとどまった。（後に述べるようにセミホット試験では定量性の問題がなく99.99%の値が得られた。）

4M硝酸による逆抽出では、ランタノイドが完全には溶媒より回収されず、逆抽出率としては99

～96%であった。これは、段数が必要数より少ないためであり、予想されたことである。段数を増やすか、温度を上げること<sup>(3,5)</sup>で改善できる。逆抽出液の流速を上げることでも対処できるが、逆抽出後の液量が増えるので、やむを得ない場合の手段である。Y、Fe及びZr(及びMo)は4M硝酸では逆抽出されない。

セミホット試験では、放射性核種の挙動を調べた。Fig. 3.9に第1ミキサーセトラーにおけるAm、Tc、Cs及びEuの濃度分布を示す。Tc及びCsが抽出されないこと、Am及びEuが抽出され、4M硝酸により逆抽出されている様子がはっきりと現れている。このうち特に重要なAmの濃度分布をFig. 3.10に拡大して示す。 $\alpha$ 放射能についても測定したが、Am-241の $\gamma$ 放射能の測定結果によく一致した。Am-241以外の $\alpha$ 放射性核種としては、U、Pu、Cmの同位体及びNp-237が存在するが、本工程においてCmはAmと同じ挙動をとる。U、Pu及びNpの $\alpha$ 放射能は、Amのそれに比べ非常に小さく、検出することはできなかった。Fig. 3.10の抽出部有機相濃度についてのプロットはほぼ直線となっているが、この直線の傾きより近似的に求めたAmの分配比は3.2であった。同様にして求めた逆抽出部でのAmの分配比は0.05であった。また、スクラップ部での有機相、水相濃度より求めたAm分配比の平均は5.1であった。

Table 3.5に、セミホット試験での第1ミキサーセトラーにおける各フラクションへの核種の移行率を示す。 $\gamma$ 線分析の定量性の良さ及び希釈過程が入っていないことにより、非常によいマスバランスが得られた。Amでは、99.99%以上が抽出され、99.92%が逆抽出された。いずれも99.99%以上が目標値であるが、逆抽出部での回収率を改善できることは前述の通りである。Fig. 3.10に示した濃度分布から、Amの逆抽出率は、逆抽出部段数を1段増やすことで99.98%に、2段増やすことで99.995%に改善できることが推定される。Euについての結果はコールド試験の結果と一致した。Tc及びCsについては、99.99%以上が抽出されずにラフィネート中に残り、Amと非常によい分離ができることが確認された。

## (2) 第2ミキサーセトラー

第2ミキサーセトラーでは、シュウ酸によるNp及びPuの逆抽出について試験する。ここでは、Np、PuとともにFeが逆抽出される。Fig. 3.11にコールド試験の結果得た第2ミキサーセトラーにおけるFe、Y及びZrの濃度分布を示す。また、Table 3.6にこれら3元素のシュウ酸逆抽出液及び有機相の両フラクションへの移行率を示す。ICP測定ではこれら3元素以外には検出できなかった。

Fe及びZrはシュウ酸によりDIDPA溶媒から逆抽出されるが、その逆抽出速度は遅い。以前の研究によれば、分配比がほぼ平衡値に到達するのに必要な時間は、Feでは20°Cで約60分、50°Cで約10分<sup>(26)</sup>、Zrでは25°Cで約60分<sup>(30)</sup>であった。また、0.8Mシュウ酸に対する25°Cでの平衡分配比は、Feが0.13<sup>(31)</sup>、Zrが0.7<sup>(30)</sup>であるとの結果が得られている。Fig. 3.11のZrの濃度分布は逆抽出速度が遅いことを顕著に表しており、逆抽出率は約80%であった。但し、すでに述べたように、ほとんどのZrは前処理工程で除去されているので、本工程ではあまり重要ではない。一方、Feは高レベル廃液中に含まれるもののはほとんどが本逆抽出工程へ移行してくるので、その挙動を十分に把握しておく必要がある。本試験の結果、Zrより平衡分配比が低い分、Feの逆抽出率は大きくなつており、ほぼ十分な値である99.8%が得られることが明らかとなった。なお、第2ミキサーセトラーにおける有機相／水相の接触時間、即ちミキサー部における滞留時間は約28秒である。

Yはシュウ酸によっても逆抽出されない。Fig.1.2に示したように、DIDPA抽出工程では次に炭酸ナトリウムによるUの逆抽出工程が続くこととなっているが、ここでYは逆抽出される<sup>(32)</sup>。

セミホット試験では、Am-241以外の $\alpha$ 放射性核種が検出できなかつたためにシュウ酸逆抽出工程については特に有効な結果が得られなかつた。

### 3.3 脱硝沈殿工程

コールド試験における脱硝沈殿工程の試験は、フラスコスケールで1回、セル内操作で2回行つたが、それぞれの脱硝後の溶液のpHは6.6、7.6及び7.8であった。Fig. 3.12に、各操作における脱硝後の液中元素残留率を示す。白金族元素の沈殿率は、2回のセル内脱硝の平均で、Ru 92%、Rh 90%、Pd 83%であった。本操作による白金族元素の分離では、高い回収率は期待できないが、90%程度は達成できることが再確認された。他の元素では、まずアルカリ金属は共沈した様子は観測されなかつた。遷移金属、アルカリ土類金属では、脱硝後のpHが高いほど液中残留率が低い、即ち沈殿率が高いことが観察された。Crは90～100%が沈殿した。最も重要な元素はSrであり、3回の操作でそれぞれ6%、17%、27%が沈殿した。従つて、沈殿からのSrの洗浄或いは再溶解操作が必要である。Srは炭酸塩として沈殿している可能性が高いので、Srの再溶解にはある量の酸が必要であろう。Sr再溶解法として考えられるのは、一つは、脱硝後液に酸を加えて白金族元素及びTcが再溶解しない範囲でpHを下げ、Srのみを溶出するという方法であり、もう一つは、ろ別した沈殿に対し適当なpHに調整された溶液或いは適当な濃度の硝酸でSrを洗い出すという方法である。いずれも適用性は高いと考えられるが、実験による検討は今後の課題である。

セミホット試験では、DIDPA抽出工程ラフィネートを濃縮後に脱硝するという操作で本工程におけるTcの挙動を調べた。コールド試験結果から明らかなように本工程の脱硝ではCsは沈殿しないことから、脱硝前後のTc/Cs放射能比を比較することでTcの沈殿率を求められる。この方法で求めたTcの沈殿率は96.6%であった。先のTc挙動についてのフラスコスケールでの試験<sup>(12)</sup>では98.2%の沈殿率であったことと合わせ、少なくとも本工程では95%以上のTc回収率が得られるることは明らかである。なお、セミホット試験における脱硝後の溶液のpHは、9.1であり、コールド試験に比べ高かったが、これは、セミホット試験では脱硝前に濃縮操作を加えており、脱硝時の元素、特にアルカリ金属の濃度が高かつたためである。他の元素、特にSrの共沈率を下げるためにはpHは低い方がいいが、白金族元素を十分な収率で沈殿させるためにはpHを中性領域にまで高めなければならないため、Sr等の共沈を全くなくすることはできない。従つて、コールド試験でのpH7.6或いは7.8とセミホット試験でのpH9.1との差は問題を生じない。必要なのは、すでに述べたように、Tc及び白金族元素を沈殿に残した状態でSrを再溶解させる方法の開発である。

### 3.4 活性炭吸着工程

Table 3.7にコールド試験活性炭吸着工程におけるカラムへの供給液(即ち抽出工程ラフィネート)中の元素濃度を示す。カラム供給液元素濃度は、想定どおりに、前処理工程及び抽出工程で除去される元素を除き、スタート液元素濃度の約1/4になつてゐる。これは、前処理工程で液量

を2倍とし、さらに抽出工程でスクラブ液との混合により液量が2倍になるためである。この供給液を1/4カラムー4/4カラムと順に流した。

1/4カラム出口での元素破過挙動をFig. 3.13及びFig. 3.14に示す。Fig. 3.14のNi、Cr、Sr、Ba、Na、Rb、Csの7元素の挙動は、これらが活性炭に吸着されないことを示している。Fig. 3.13では、Teについての破過曲線の立ち上がりが上記7元素のそれとほぼ同じであり、Fig. 3.13における吸着されない元素の代表である。白金族元素及びMoの吸着量について、Teの破過曲線と各元素の破過曲線で囲まれた部分の面積より求めた結果をTable 3.8に示す。以前の試験<sup>(15)</sup>の結果と比べ、活性炭単位重量当たりの元素吸着量は小さかった。また、Fig. 3.13に示した破過曲線の形においても、Pdについては今回2段階で破過するような曲線が得られたが、これは以前の試験では観察されなかったことである。この破過曲線は、約30%の割合で活性炭に吸着されにくい化学形のPdが存在することを示しており、後に示すように、この吸着されにくい化学種は4/4カラムでも吸着されなかった。逆にRuについては、以前の試験では複数の化学種の存在が示唆されたが、今回得られた破過曲線はこれを直接的に示すようなものではなかった。以前と今回の試験操作の違いは、1) 今回の試験では抽出操作を経た溶液をカラムに供給していること、2) 今回の試験では模擬高レベル廃液に対する脱硝操作(前処理工程)から活性炭吸着まで約1ヶ月の時間を経ていること、3) 脱硝条件が異なること(今回：元素濃度がカラム供給液中濃度の約4倍、リン酸共存下での脱硝。以前の試験：カラム供給液元素濃度を同一濃度で脱硝)の3点である。流速については、線速の比較で、今回 $2.4 \times 10^{-4}$ m/s、以前 $2.1 \times 10^{-4}$ m/sと大きな差はない。

Pdに関し、活性炭に吸着されにくい化学種が約30%も存在したという今回の試験結果は重要であるので、原因を探るための実験を行った。その結果、脱硝或いは希釀により硝酸濃度を0.5M程度まで下げると数日のオーダーで活性炭に吸着されにくい化学形のPdが生成していくことがわかった。これはPdの加水分解反応の進行<sup>(33,34)</sup>によるものと推定される。また、吸着される化学種と吸着されにくい化学種との間での変化は遅いが、少なくともPd単成分溶液では可逆的であり、同一の酸濃度では同一の平衡関係が成立する様子が観測され、硝酸濃度を2M程度に上げることによって、ほとんどのPdを活性炭に吸着される化学種に戻すことができた。また、共存元素が存在すると、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>イオン濃度の増加に起因して、Pd単成分系の場合と比べ平衡関係が変化することもわかった。即ち、完全に解明したわけではないが、Pdに関する今回の結果と以前の試験の結果との違いは、試験操作の違いにおいて今回は脱硝後長時間経過していることが主な原因であると推定できる。

今後もさらに検討が必要であろうが、活性炭吸着法の白金族元素分離への適用は難しいことは明らかである。今回の試験ではTcの吸着分離については検討しなかつたが、別の実験<sup>(12)</sup>で、吸着されにくい化学形のPdが存在する溶液においてもTcは以前の検討<sup>(13,15)</sup>と同様に活性炭に吸着されることが確認されており、活性炭吸着法はTc分離には十分適用できる。従って、群分離プロセスにおいては、Tcと白金族元素を脱硝沈殿法により分離することとし、活性炭吸着法はTcの回収率を更に上げる必要があるときの付加プロセスとして位置付けることが適当であると考えられる。

Fig. 3.15及びFig. 3.16に、4/4カラム出口での元素破過挙動を示す。Pdについては、1/4カラムで吸着されなかつた成分が4/4カラムでも吸着されずにそのまま破過した。吸着される成分である約70%のPdのうち、1/4カラムを流出してものは、すべて4/4カラムで吸着された。Fig. 3.15より、

Fig. 3.13において行ったのと同様にTeの破過曲線との比較からRhの吸着量を求め、1/4カラムで吸着された分を差し引いて4/4カラムでの活性炭単位重量当たりの吸着量を算出したところ0.013mmol/gとなった。これは、1/4カラムでの吸着量の2.5倍であり、以前の試験における吸着量0.019mmol/gの68%である。同様に、飽和吸着に至っていないが、追い出し操作開始までのRuの吸着量を求めると0.12mmol/gとなった。これは1/4カラムでの吸着量0.11mmol/gに近いが、飽和してないことを考慮すれば、RuについてもRhと同様に4/4カラムの方が吸着量が大きいことは明らかである。Ruの破過曲線は吸着速度が遅いことを明確に示しており、これが上記の原因であると考えられる。

### 3.5 無機イオン交換体吸着工程

コールド試験における本工程の試験では、脱硝沈殿工程のろ液(以下脱硝後液と記す)及び活性炭吸着工程流出液の中和後液をそれぞれ別に用いた1/4カラムによる吸着、及び両者の流出液の混合液を用いた4/4カラムによる吸着の3種の試験を実施した。各吸着試験におけるカラムへの供給液の元素濃度をTable 3.9に示す。脱硝後液と中和後液との比較から、中和後液ではSr及びBaの50%以上が除去されてしまっていることがわかる。これは、セル内において行った中和操作において操作ミスにより溶液のpHが11.7まで上昇してしまい、この溶液をそのままろ過したことによる。本来は、pHを5~8に調整することになっており、この操作においては今回のようにSr及びBaが沈殿することはない<sup>(24)</sup>。

脱硝後液及び中和後液を供給液として1/4カラムに通液した吸着試験の結果を、Fig. 3.17とFig. 3.18及びFig. 3.19とFig. 3.20にそれぞれ示す。どちらの吸着試験においても、分離目的元素であるCs(及び同族のRb)とSr(及び同族のBa)が吸着されていることが示されているが、これらの破過は早い。Srの破過が早いのは、チタン酸の吸着速度及び容量が樹脂成形のため低下している<sup>(24)</sup>ことによる。チタン酸のSr吸着容量が低いためCs吸着用のゼオライトの混合比率を下げざるを得ず、Csの破過も早まったと考えられる。今回は、チタン酸とゼオライトを重量比8:1で混合したが、以前の樹脂成形でないチタン酸を用いた試験では重量比4:1で混合していた<sup>(25)</sup>。また、1/4カラムでは交換体の上流側にガラスビーズが詰められていることも破過挙動に影響していると考えられる。以前に行った樹脂成形でないチタン酸と今回と同じゼオライトとの混合カラムによる動的吸着特性についての実験<sup>(35)</sup>では、このような破過曲線は観測されず、破過開始までの通液量と破過開始から100%破過までの通液量とがほぼ等しくなるような破過曲線が得られている。今回の試験では交換体の物理的強度を上げる必要性からやむを得ず樹脂成形のチタン酸を用いたが、今後は新たな成形体を開発するか、従来使用していた樹脂成形でないチタン酸を用いることができるようカラムに工夫を加えることが必要である。また、2種の交換体を混合せずに、カラム床を分けて用いることも対策の一つとなる可能性がある。

Table 3.10に1/4カラムを用いた2種の吸着試験における元素吸着量を示す。吸着量の算出では、吸着されない元素としてMoを基準とした。2つの試験の結果に大きな差はない。ゼオライトは本来1.1~1.2meq/gの吸着容量を持つが、今回の試験結果はその60~80%であった。チタン酸に対しては、飽和吸着には至っていないが、吸着量として0.1meq/g程度と非常に低い結果しか得られな

かった。ゼオライトとチタン酸の混合比率は、ほぼ想定どおりの元素組成を持つ供給液を用いた脱硝後液による試験の結果(Fig. 3.17)から、適切であったと考えられる。

その他の微量元素に関しては、Fig. 3.18から脱硝後液を供給液とした場合には白金族元素及びCrもある程度吸着されている様子が観測された。中和後液を用いた場合のPdの吸着については、供給液中の濃度が低く有効な結果が得られなかった。

1/4カラムによる吸着試験における流出液のpH測定結果をFig. 3.21に示す。通液開始後の高pHは、カラム内に存在していた水によるものである。供給液が流出するようになるとpHは下がり、最終的にはpH8程度となった。

以上の2つの吸着試験の流出液を混合した後、これを4/4カラムに通液する試験では、約10Lの通液後もSr及びBaの流出液中濃度は、供給液中濃度の0.1%以下であるという結果であった。即ち、除染係数1000以上が得られた。このように、4/4カラムでの試験では、1/4カラムでの試験と比較してSrについてよい吸着分離性能が得られたが、これは供給液が、1/4カラムへの供給液と比べ、元素濃度が低く、pHが8.2と高かったこと(1/4カラム試験では6.6及び6.9)による。Csについては、Csの炎光分析においてCsが非常に低い濃度であるにもかかわらずNaが高濃度で共存している点について配慮しなかったので、有効なデータが得られなかった。NaはCsの炎光分析を妨害する。供給液中のCs量は、1/4カラムの試験で得られたゼオライト単位重量当たりの吸着量(Table 3.10)から求めた4/4カラム全体での吸着容量の80~90%であったので、十分吸着されたと考えられる。

セミホット試験においては、1/4カラムと4/4カラムとを直列につなぎ、脱硝沈殿工程からのろ液を供給液としてセル内において無機イオン交換体による吸着試験を実施した。Fig. 3.22に、1/4カラムの出口から採取したサンプルの分析により得られたCs及びTcの破過曲線を示す。何らかの原因により分析結果にばらつきが大きくなり(特にTc)、100%破過に至るような曲線が得られなかつたが、吸着されないTc<sup>(12)</sup>との比較からCsが吸着されていることは明確である。1/4カラムにおけるCsの吸着量については、コールド試験の結果について行った2つの破過曲線で囲まれた部分の面積による算出方法を用いることができなかつたので、近似的な方法としてTc及びCsの50%破過点間の通液量から求めた。その結果、ゼオライト単位重量当たりで0.7mmol/gという値が得られた。この値はコールド試験で得られた値と同等である。なお、セミホット試験では、脱硝沈殿工程において濃縮操作が加わっているため、カラム供給液でのCs濃度は15.4mM(コールド試験での濃度の約3倍)と高い。

4/4カラム出口で採取したサンプルを分析した結果、Csについて約2%の破過で一定となるという異常事象が観測された。この原因是、供給液が交換体に接触せずに流出してくるようなバイパス流路が存在していたためと考えられる。かつてカラム容器にこのような不具合が発見され補修したことがあるが、この補修が十分でなかつたと言えよう。供給液中の全Cs量は、42mmolであり、ゼオライト吸着容量0.7mmol/gとしたときの1/4カラム4/4カラムとを合わせたカラム全体での吸着容量は53mmolCsであるので、その比は80%であり、コールド試験での比と同等である。バイパス流路の存在と考えられる現象により約2%まで破過したが、それ以上の流出液Cs濃度の増加は見られず、Csは4/4カラムにおいて十分な回収率で吸着されたと考えられる。

### 3.6 今後の課題

以上の試験から明らかとなった今後検討すべき課題を挙げると次のようになる。第一に、前処理工程コロイド除去操作におけるCsの共沈(吸着)現象の解明とその対策について検討しなければならない。第二に、Tc-白金族元素分離のための脱硝沈殿工程において共沈するSrの再溶解法を開発する必要がある。そして、第三に、無機イオン交換体吸着工程の試験において樹脂成形のチタン酸はカラム法での利用に耐えないことが明らかとなったので、新たな成形体を開発するもしくはカラムを改善することが要求される。

Table 3.1 コールド試験前処理操作(1)の試験における元素の挙動  
—溶液中残留率(%)—

元素	濃縮後	リン酸添加後	脱硝後
Mo	4.5	4.2	2.2
Zr	49.0	0.4	0.4
Te	78.9	70.7	56.7
Ru	100.4	97.4	93.2
Rh	105.1	104.8	103.5
Pd	101.4	101.8	115.7
Sr	97.8	95.4	93.8
Ba	95.3	96.6	97.4
Fe	98.4	95.7	78.2
Ni	102.5	101.9	102.7
Cr	106.8	108.8	109.1
Y	97.8	96.7	96.9
La	98.6	97.6	99.1
Ce	100.4	101.5	100.6
Pr	100.3	100.6	101.4
Nd	99.7	100.2	100.2
Sm	100.9	101.2	100.9
Eu	100.0	100.0	98.7
Gd	102.3	102.2	102.2
Na	107.8	110.4	141.9
Rb	97.8	93.2	90.2
Cs	95.8	93.3	85.9

Table 3.2 コールド試験前処理操作(2)の試験における元素の挙動  
—溶液中残留率(%)—

元素	加熱後	脱硝ろ過後	コロイド除去 処理後
Mo	9.5	8.3	36.2
Zr	40.7	40.5	1.7
Te	84.0	78.6	5.6
Ru	107.7	106.3	58.7
Rh	105.8	106.3	106.4
Pd	120.5	127.5	128.3
Sr	102.4	100.9	100.4
Ba	107.6	107.8	109.0
Fe	101.5	100.5	91.7
Cr	119.9	119.9	118.9
Ni	110.7	110.4	109.4
La	100.2	100.6	100.1
Ce	100.1	99.6	99.7
Pr	99.8	99.0	98.0
Nd	99.3	99.7	101.8
Sm	100.2	100.7	101.0
Eu	100.5	100.4	99.5
Gd	95.5	95.4	91.1

Table 3.3 コールド試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける各フラクションへの元素移行率(%)  
—過酸化水素添加系—

元素	ラフィネート	4M硝酸 逆抽出液	有機相	マスバランス
Y	<0.002	5.6	94.4	164
La	<0.06	>99.93	<0.01	110
Ce	<0.02	97.9	2.1	115
Pr	<0.02	>99.85	<0.13	111
Nd	<0.01	98.7	1.3	110
Sm	<0.008	96.5	3.5	114
Eu	<0.006	96.3	3.7	116
Gd	<0.04	97.5	2.5	117
Fe	4.6	0.5	94.9	143
Ni	99.3	0.7	<0.14	119
Cr	99.85	0.15	<0.009	116
Zr	<0.4	3	97	1450
Mo	95.9	4.1	<0.5	131
Te	88.4	11.6	<0.6	126
Ru	98.7	0.2	1.1	121
Rh	99.1	0.9	<0.01	115
Pd	98.2	0.8	1.0	117
Sr	99.98	0.02	<0.001	113
Ba	99.99	0.01	<0.001	116
Na	99.4	0.6	<0.2	80
Rb	>99.96	<0.03	<0.01	125
Cs	>99.91	<0.07	<0.02	129

Table 3.4 コールド試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける各フラクションへの元素移行率(%)  
—過酸化水素非添加系—

元素	ラフィネート	4M硝酸 逆抽出液	有機相	マスバランス
Y	<0.0015	6.2	93.8	119
La	<0.02	99.97	<0.01	109
Ce	<0.004	95.7	4.3	107
Pr	<0.1	99.14	0.76	106
Nd	<0.0005	98.85	1.15	106
Sm	<0.01	97.1	2.9	110
Eu	<0.02	96.4	3.6	111
Gd	<0.05	98.2	1.8	105
Fe	8.1	0.6	91.3	128
Ni	99.45	0.55	<0.15	113
Cr	99.83	0.17	<0.01	112
Zr	<0.8	4	96	1200
Mo	3.0	3.6	93.4	136
Te	91.2	8.8	<0.7	123
Ru	99.65	0.27	0.08	113
Rh	99.97	0.03	<0.01	111
Pd	98.9	0.7	0.4	110
Sr	99.98	0.02	<0.0006	110
Ba	99.98	0.02	<0.0004	113
Na	96.4	3.6	<0.12	61
Rb	>99.96	<0.03	<0.01	124
Cs	99.90	<0.07	<0.03	123

Table 3.5 セミホット試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける各フラクションへの核種移行率(%)  
—過酸化水素添加系—

元素	ラフィネート	4M硝酸 逆抽出液	有機相	マスバランス
<sup>241</sup> Am	<0.009	99.92	0.08	99.8
<sup>154</sup> Eu	<0.04	95.0	5.0	104.5
<sup>99</sup> Tc	>99.99	<0.002	<0.008	98.7
<sup>137</sup> Cs	>99.99	0.005	<0.002	110.8

Table 3.6 コールド試験抽出工程第2ミキサーセトラーにおける各フラクションへの元素移行率(%)

元素	シウウ酸 逆抽出液	有機相	マスバランス
Y	0.52	99.48	63
Fe	99.79	0.21	61
Zr	80	20	167

Table 3.7 コールド試験活性炭吸着工程カラムへの供給液の元素濃度

元素	群分離試験スタート液(mM)	活性炭吸着供給液(mM)	比(%)
Na	76	20.1	26.5
Cr	9.1	2.14	23.5
Fe	38	0.31	0.83
Ni	6.0	1.36	22.6
Rb	7.4	1.71	23.0
Sr	16.5	3.6	21.9
Mo	69	0.065	0.09
Ru	34	6.9	20.4
Rh	8.0	1.97	24.7
Pd	18	4.5	25.1
Te	6.8	0.79	11.6
Cs	37.1	7.4	20.0
Ba	20.7	4.7	22.7

Table 3.8 コールド試験活性炭吸着工程1/4カラムにおける元素吸着量

元素	吸着量		以前の試験 <sup>(15)</sup> における 吸着量(mmol/g)	比
	(mmol)	(mmol/g)		
Mo	0.11	0.0046	—	—
Ru	2.5	0.11	0.262	0.41
Rh	0.12	0.0052	0.019	0.27
Pd	3.9	0.17	0.269	0.62

Table 3.9 コールド試験無機イオン交換体吸着工程カラムへの供給液の元素濃度

元素	群分離試験		カラム供給液				
	スタート液 (mM)	脱硝後液 (mM)	比率* (%)	中和後液 (mM)	比率* (%)	4/4カラム 供給液(mM)	比率* (%)
Na	76	15.1	19.9	388	510	190	250
Cr	9.1	0.023	0.26	0.032	0.35	0.017	0.19
Fe	38	0.060	0.16	0.041	0.11	0.024	0.063
Ni	6.0	0.480	7.99	0.036	0.60	0.172	2.87
Rb	7.4	1.19	16.0	1.01	13.7	0.839	11.3
Sr	16.5	1.93	11.7	0.434	2.63	0.775	4.70
Mo	69	0.314	0.46	0.195	0.28	0.236	0.34
Ru	34	0.341	1.00	0.516	1.52	0.318	0.94
Rh	8.0	0.106	1.33	0.117	1.46	0.083	1.03
Pd	18	0.487	2.70	0.0277	0.15	0.176	0.98
Te	6.8	0	0	0.0011	0.017	0.033	0.48
Cs	37.1	5.30	14.3	5.44	14.7	3.71	10.0
Ba	20.7	1.79	8.65	0.780	3.77	0.449	2.17
K	0	0.0527	-	0.663	-	30.9	-
Ca	0		-		-	0.265	-
pH		6.6		6.9		8.2	

\* 群分離試験スタート液における元素濃度に対するそれぞれのカラム供給液における元素濃度の比率

Table 3.10 コールド試験無機イオン交換体吸着工程1／4カラムにおける元素吸着量

供給液	元素	ゼオライトに対する吸着量 (mmol/g)	チタン酸に対する吸着量 (meq/g)
脱硝後液	Cs	0.60	0.60
	Rb	0.064	0.064
	Sr		0.014
	Ba		0.034*
	Ni		0.0020
計		0.66	0.050*
中和後液			0.101*
中和後液	Cs	0.74	0.74
	Rb	0.064	0.064
	Sr		0.010*
	Ba		0.032*
	計	0.81	0.063*
計		0.81	0.084*

\* 吸着は飽和に達していない。

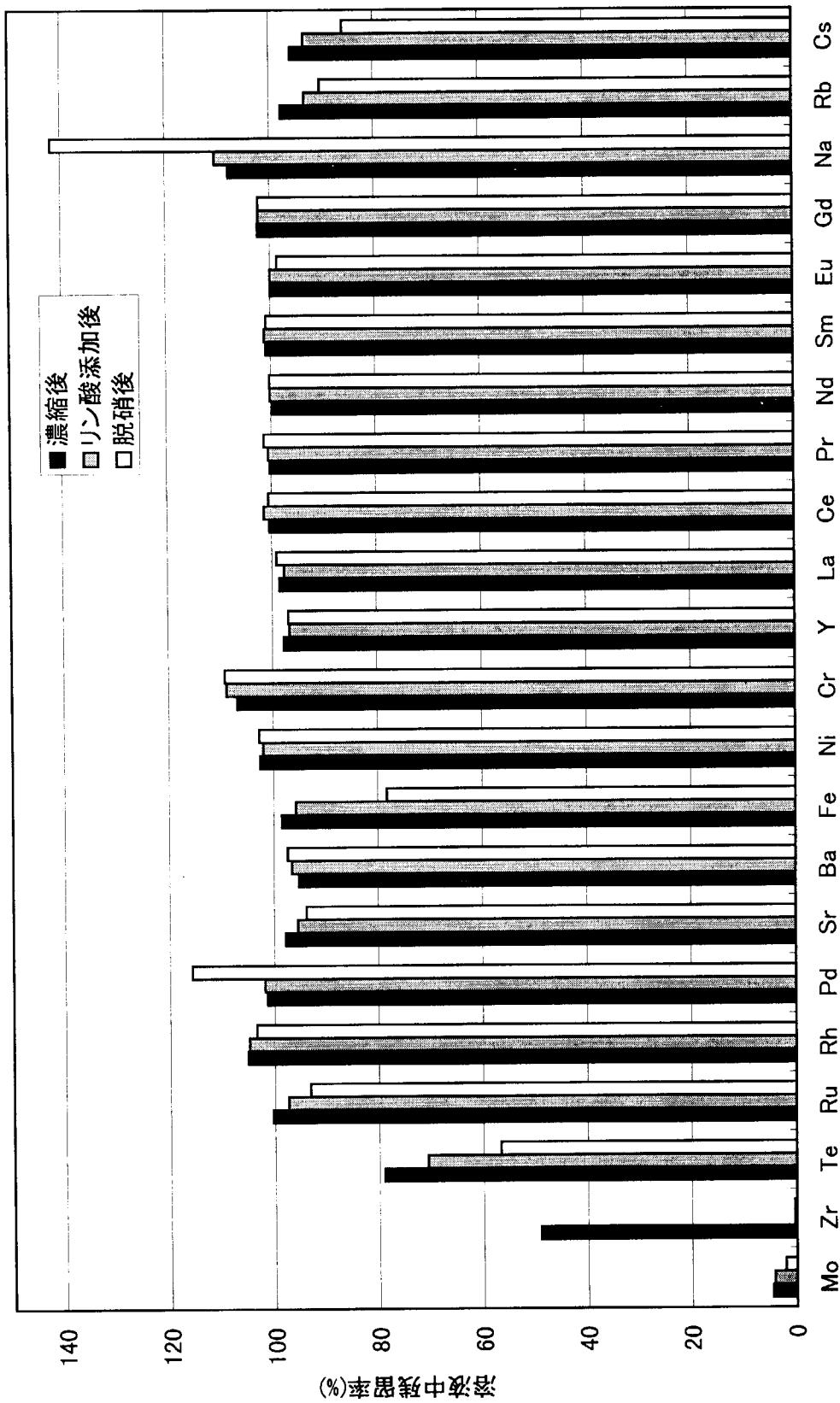


Fig. 3.1 コールド試験前処理操作(1)に試験における各元素の液中残留率(%)

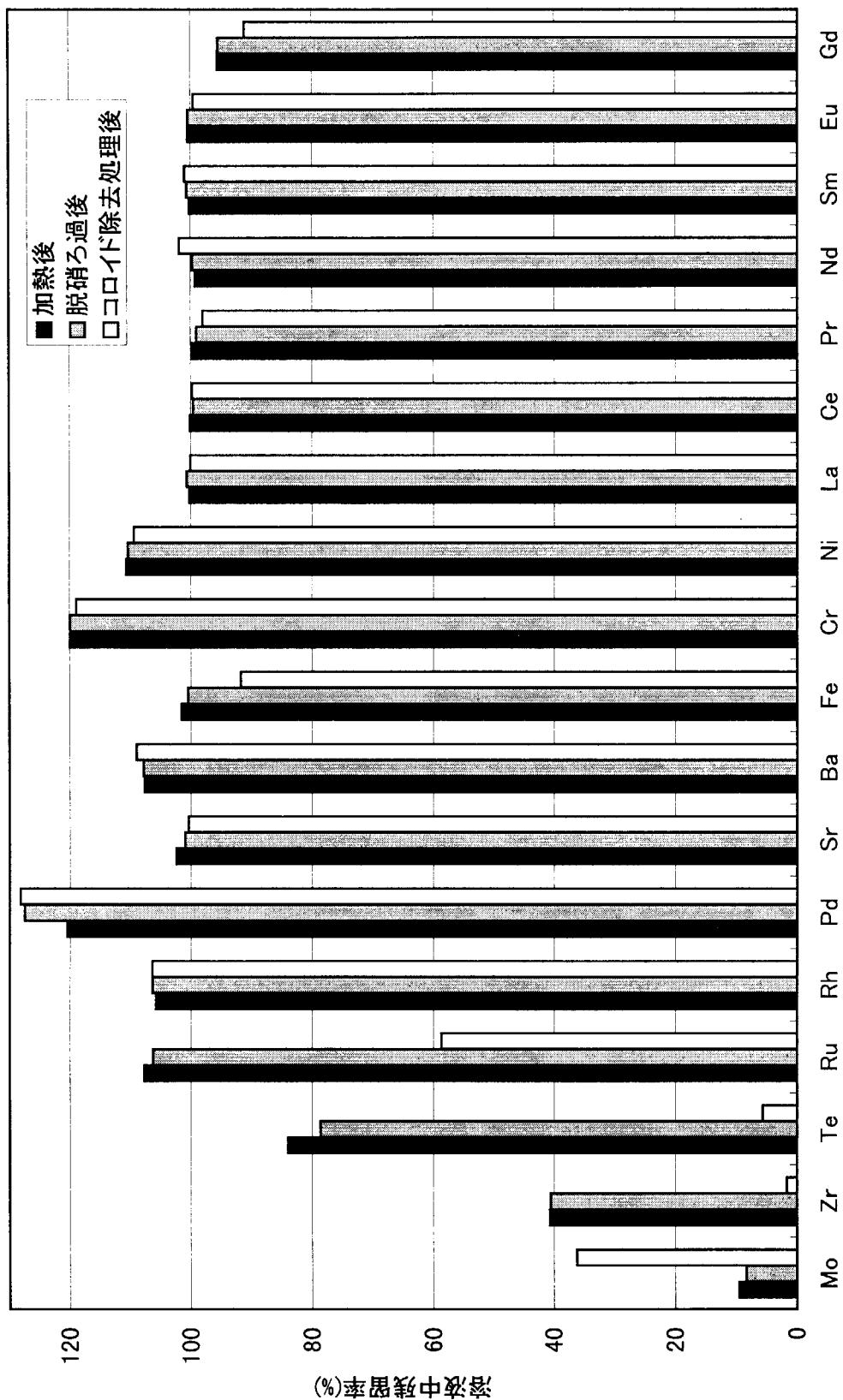


Fig. 3.2 コールド試験前処理操作(2)に試験における各元素の液中残留率(%)

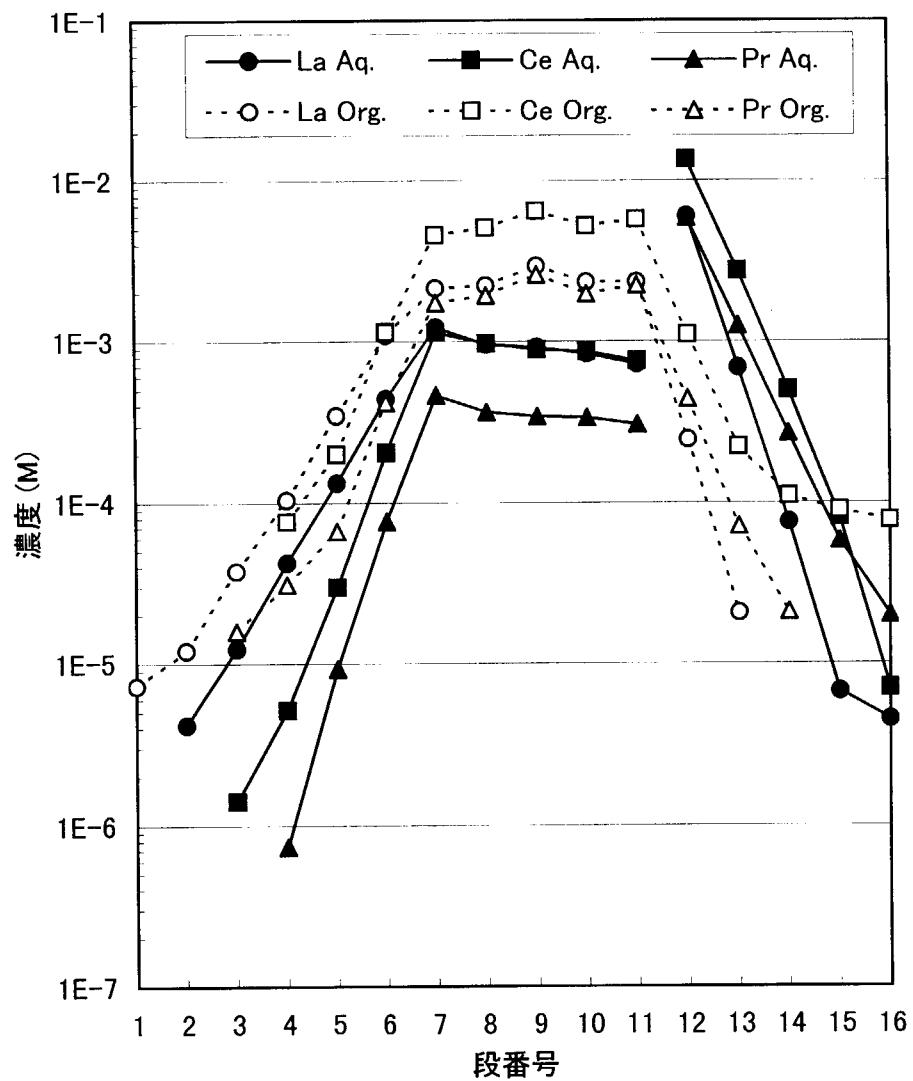


Fig. 3.3 コールド試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける  
La, Ce及びPrの濃度分布(過酸化水素添加系)

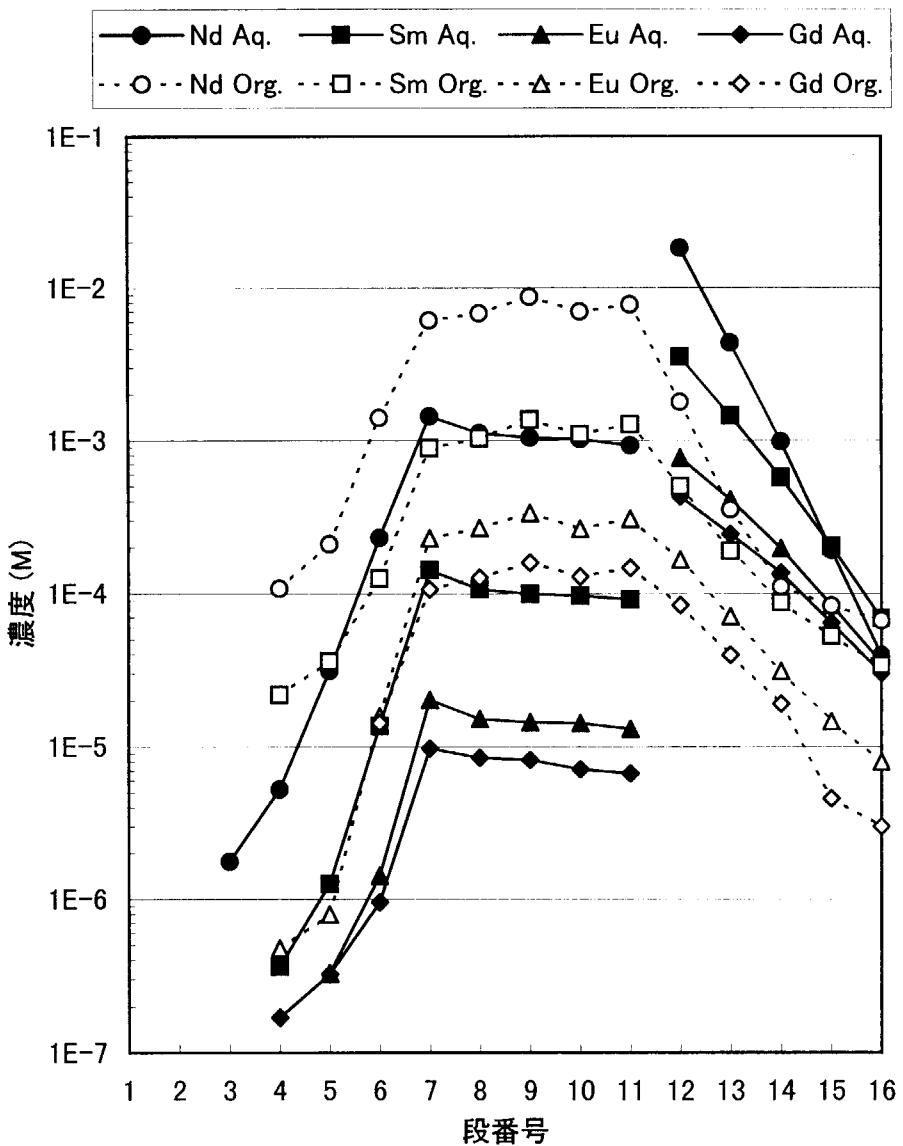


Fig. 3.4 コールド試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける  
Nd, Sm, Eu及びGdの濃度分布(過酸化水素添加系)

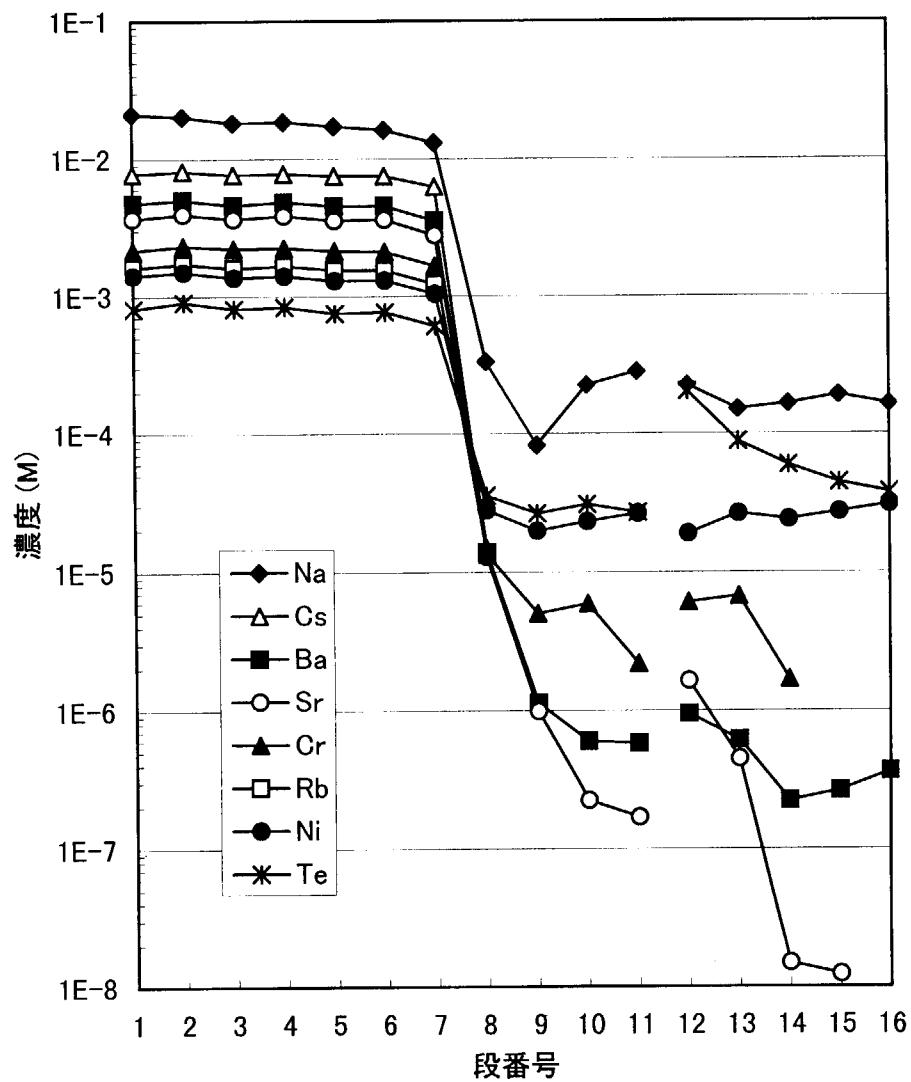


Fig. 3.5 コールド試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける  
非抽出性元素の水相濃度分布(過酸化水素添加系)

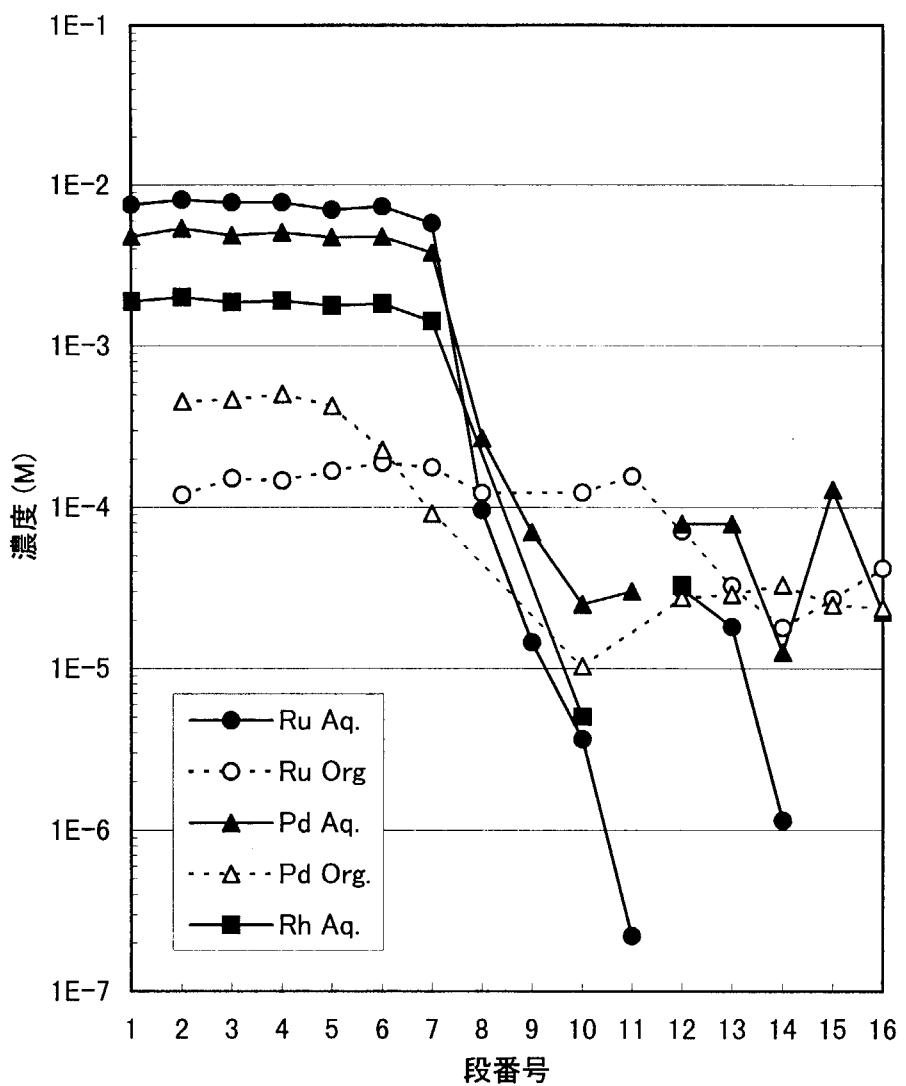


Fig. 3.6 コールド試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける白金族元素の濃度分布(過酸化水素添加系)

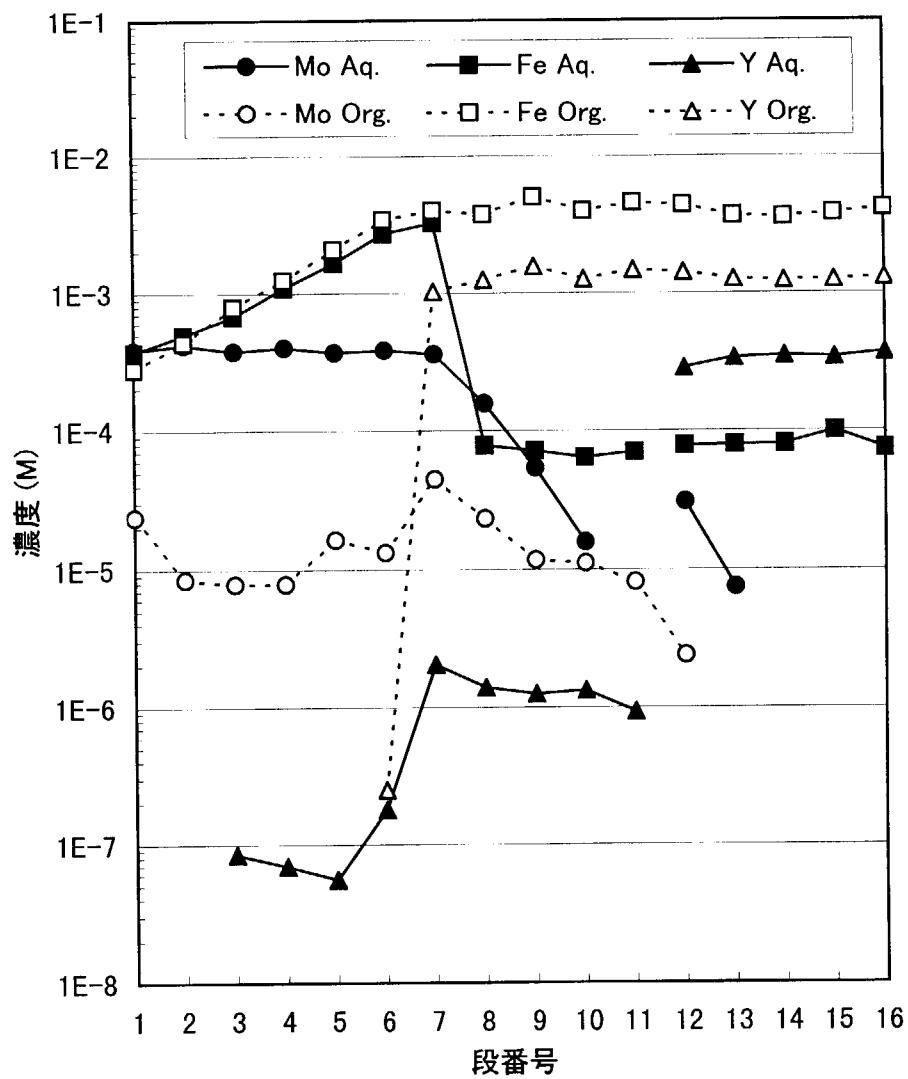


Fig. 3.7 コールド試験抽出工程第1ミキサーセトラーにおける  
Mo, Fe及びYの濃度分布(過酸化水素添加系)

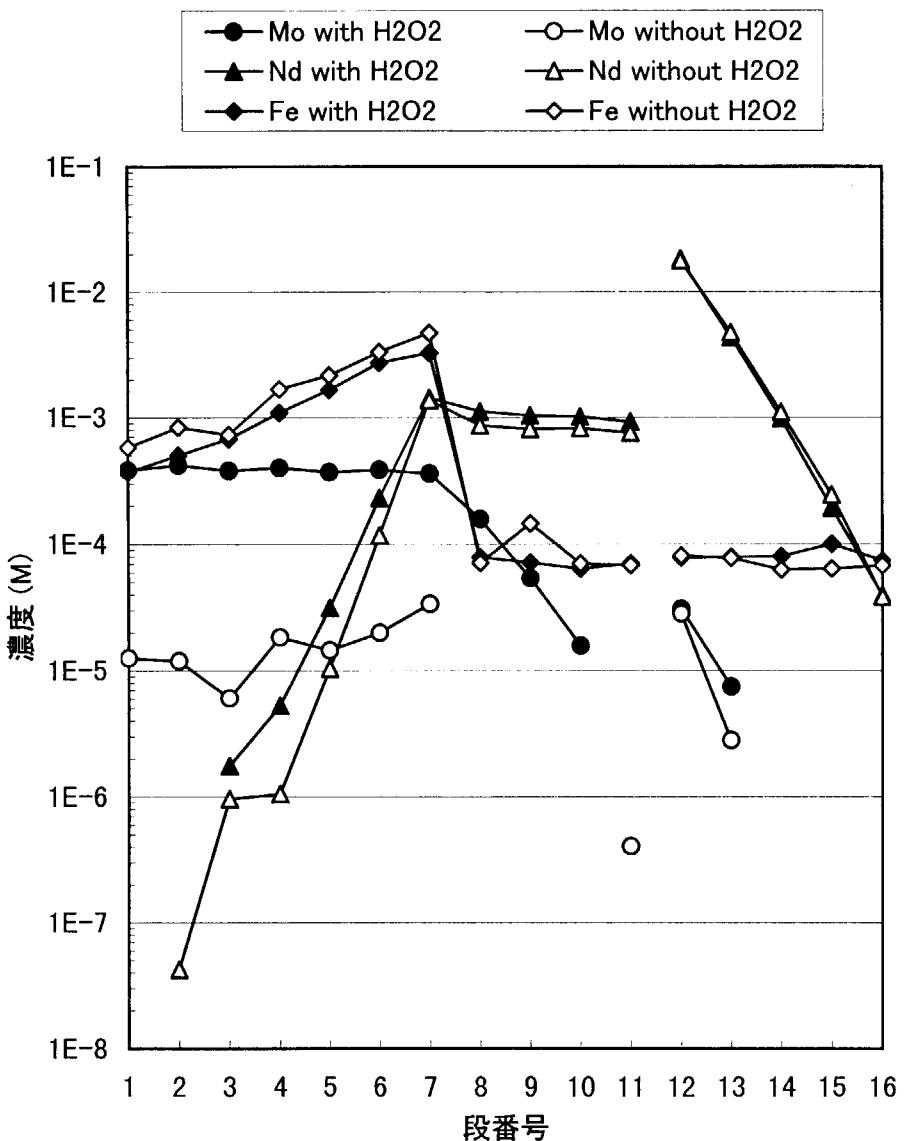


Fig. 3.8 Mo, Nd及びFeの抽出挙動に及ぼす過酸化水素の影響  
—コールド試験第1ミキサーセトラー水相濃度分布—

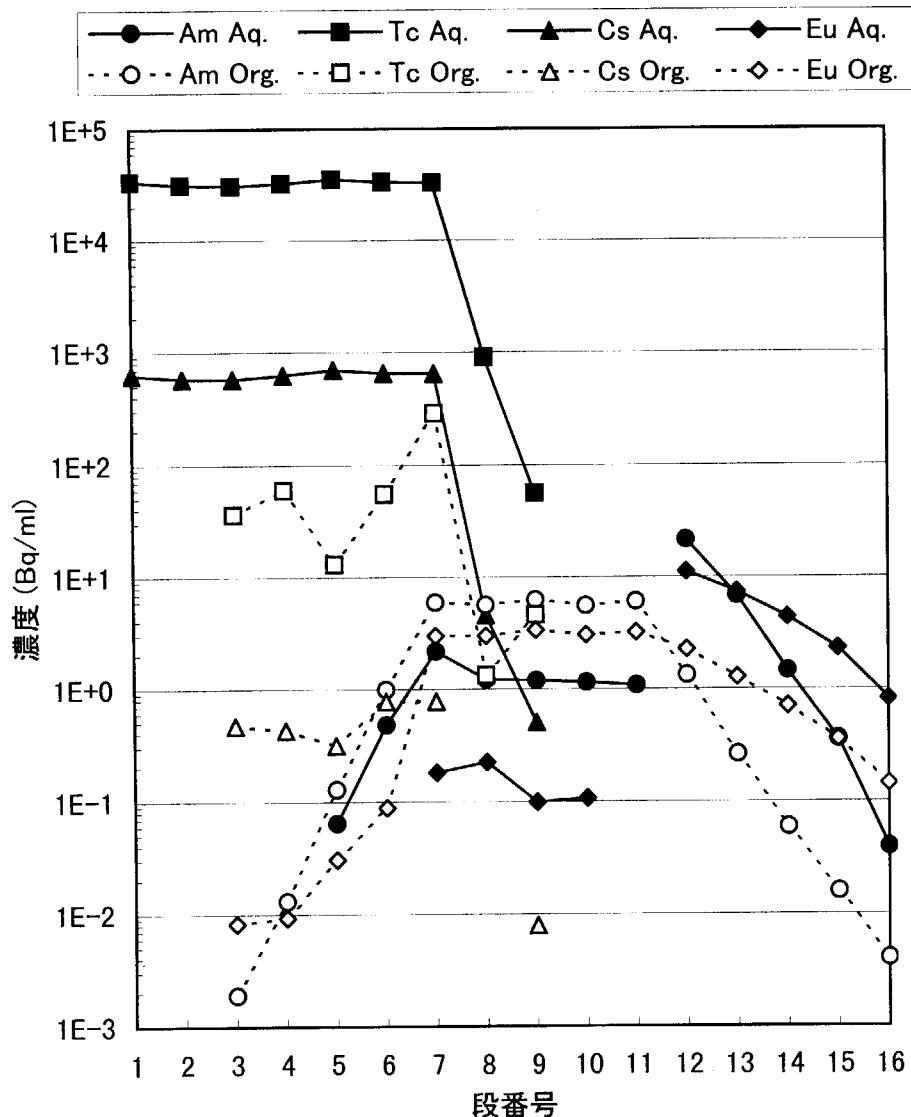


Fig. 3.9 セミホット試験第1ミキサーセトラーにおける  
 $^{241}\text{Am}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  及び  $^{154}\text{Eu}$  の濃度分布

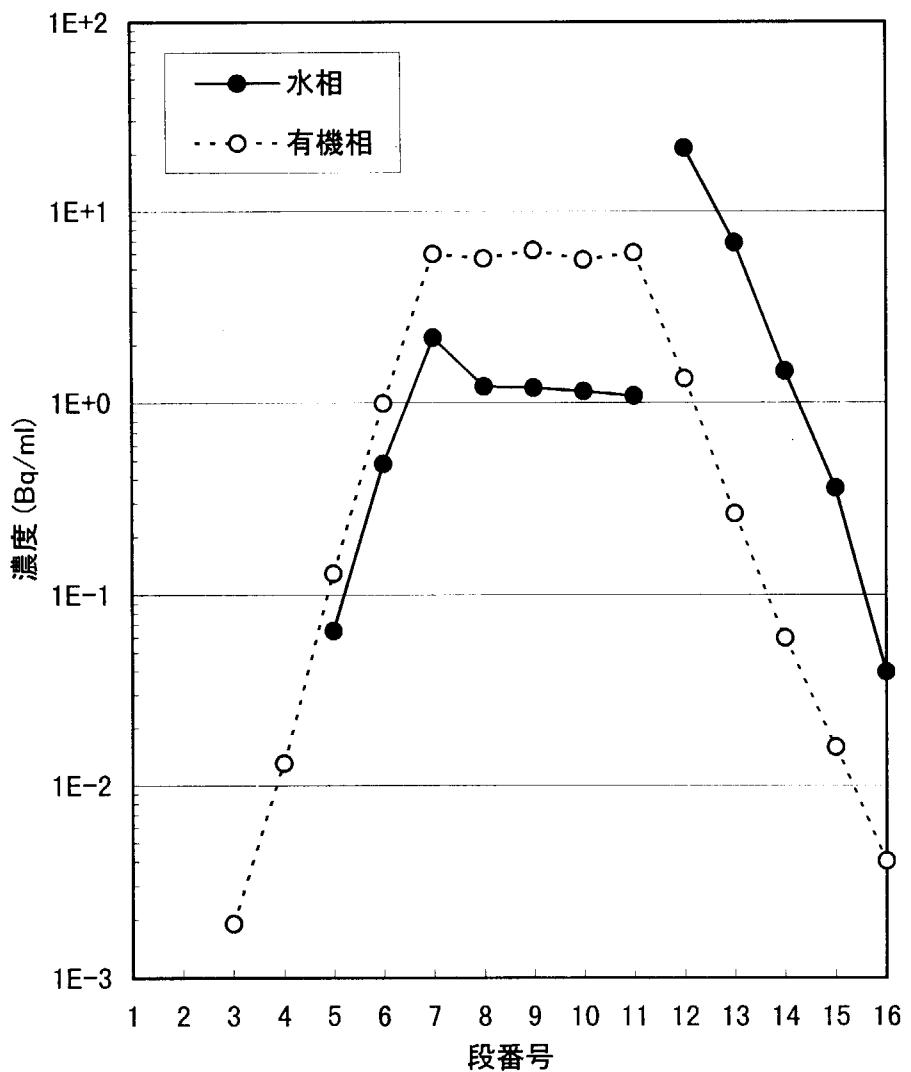


Fig. 3.10 セミホット試験第1ミキサーセトラーにおける  
 $^{241}\text{Am}$ の濃度分布

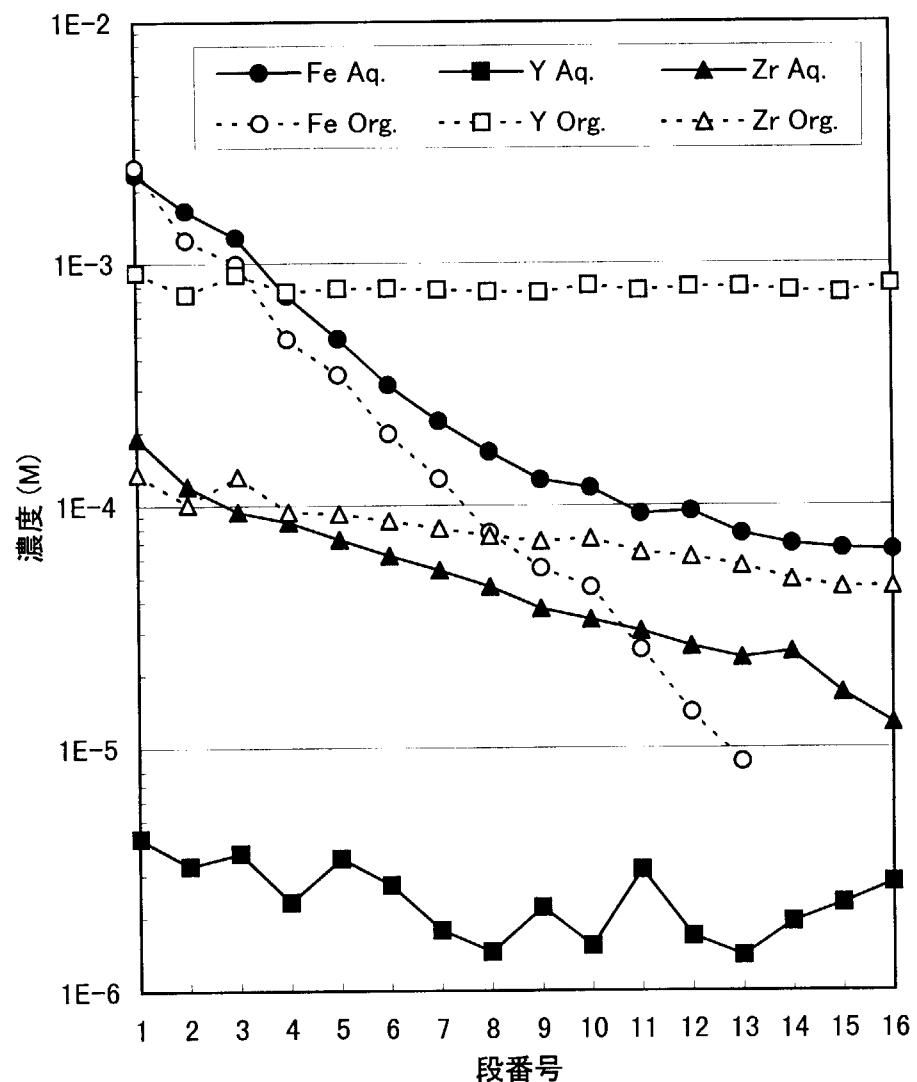


Fig. 3.11 コールド試験抽出工程第2ミキサーセトラーにおける  
Fe, Y及びZrの濃度分布

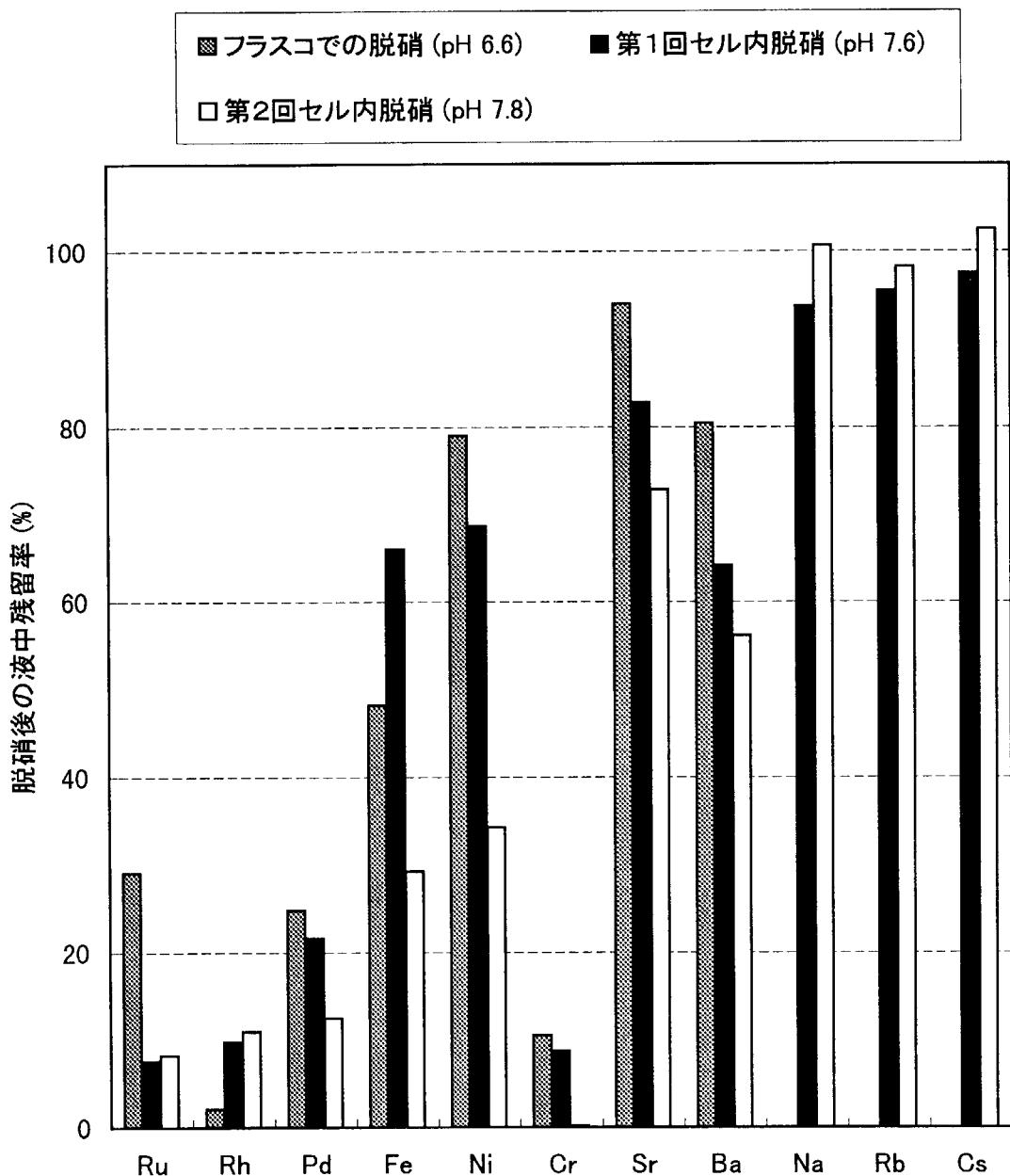


Fig. 3.12 コールド試験脱硝沈殿分離工程における各元素の挙動

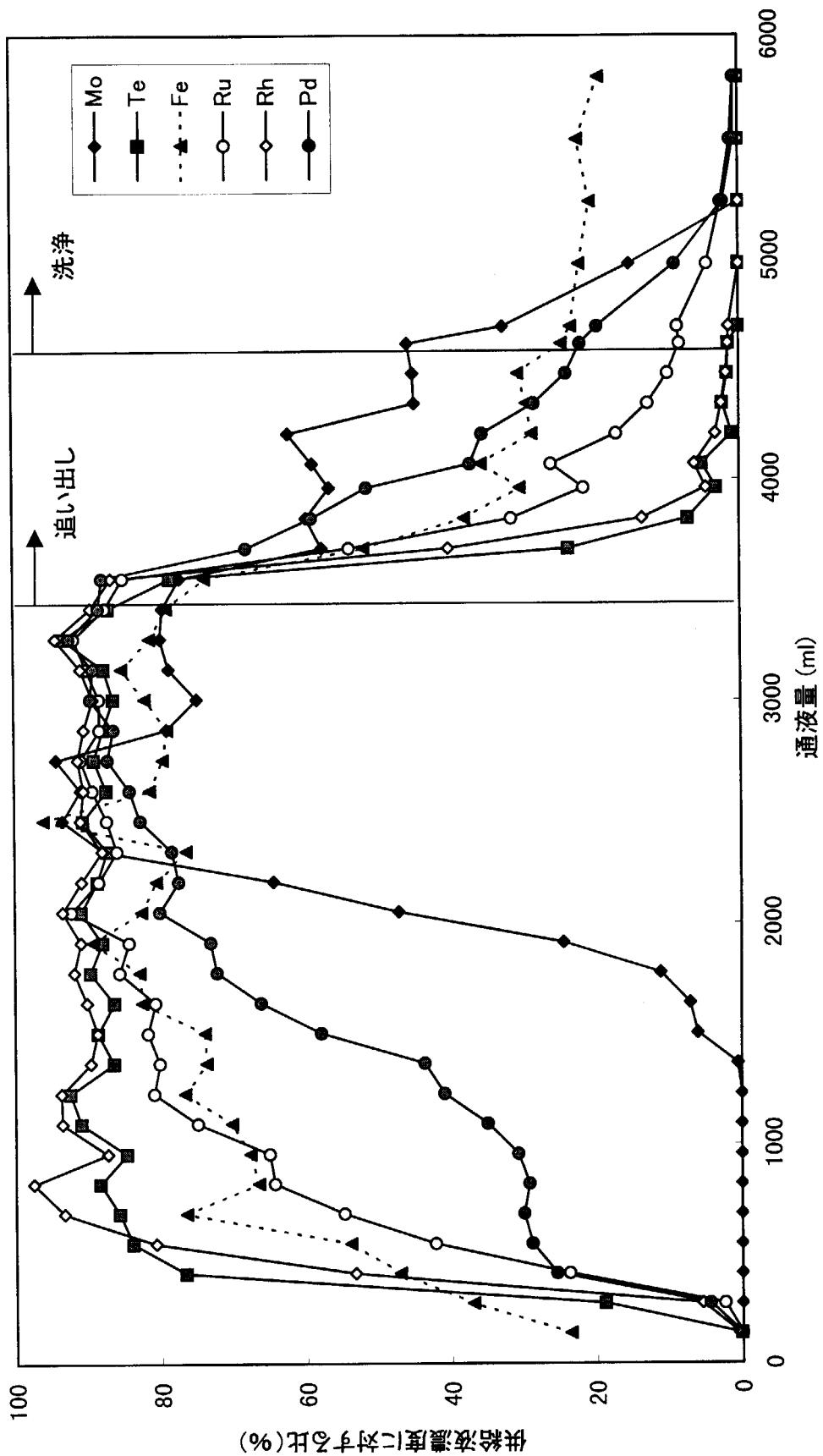


Fig. 3.13 コールド試験活性炭吸着工程 1／4カラム出口での元素破過挙動(その1) カラム体積:127ml

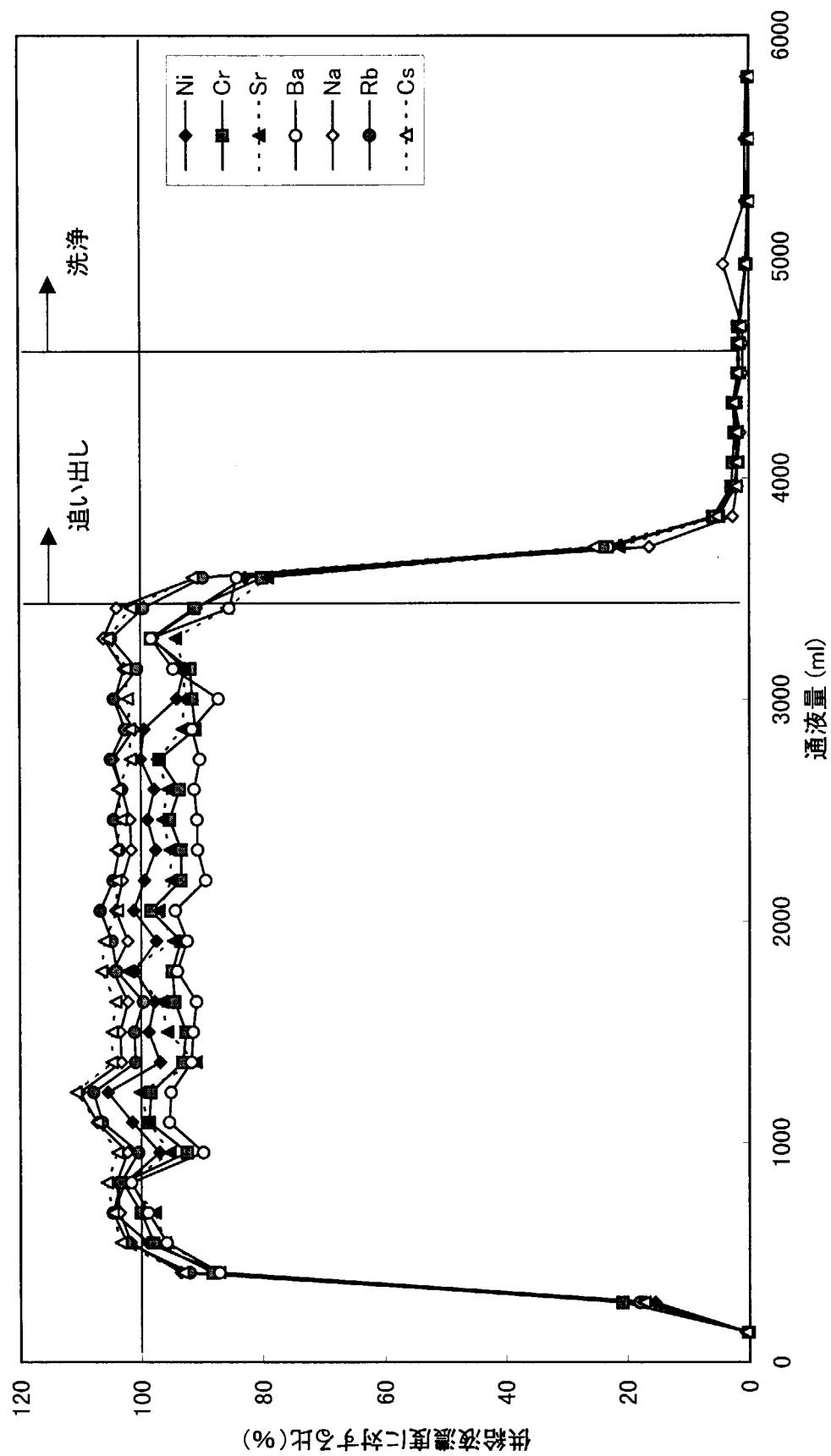


Fig. 3.14 コールド試験活性炭吸着工程1／4カラム出口での元素破過挙動(その2) カラム体積: 127ml

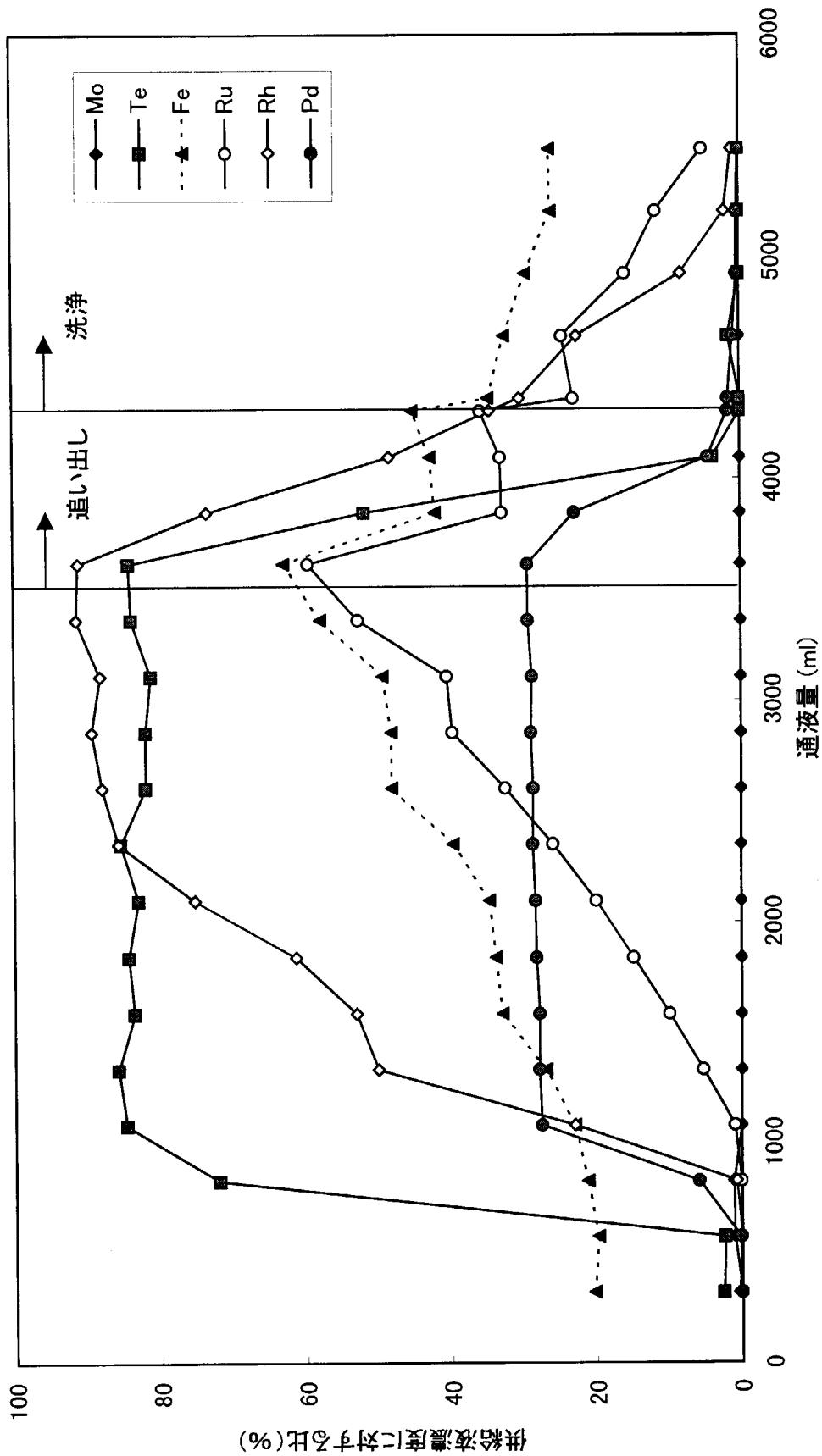


Fig. 3.15 コールド試験活性炭吸着工程 4／4カラム出口での元素破過挙動(その1) カラム体積:510ml

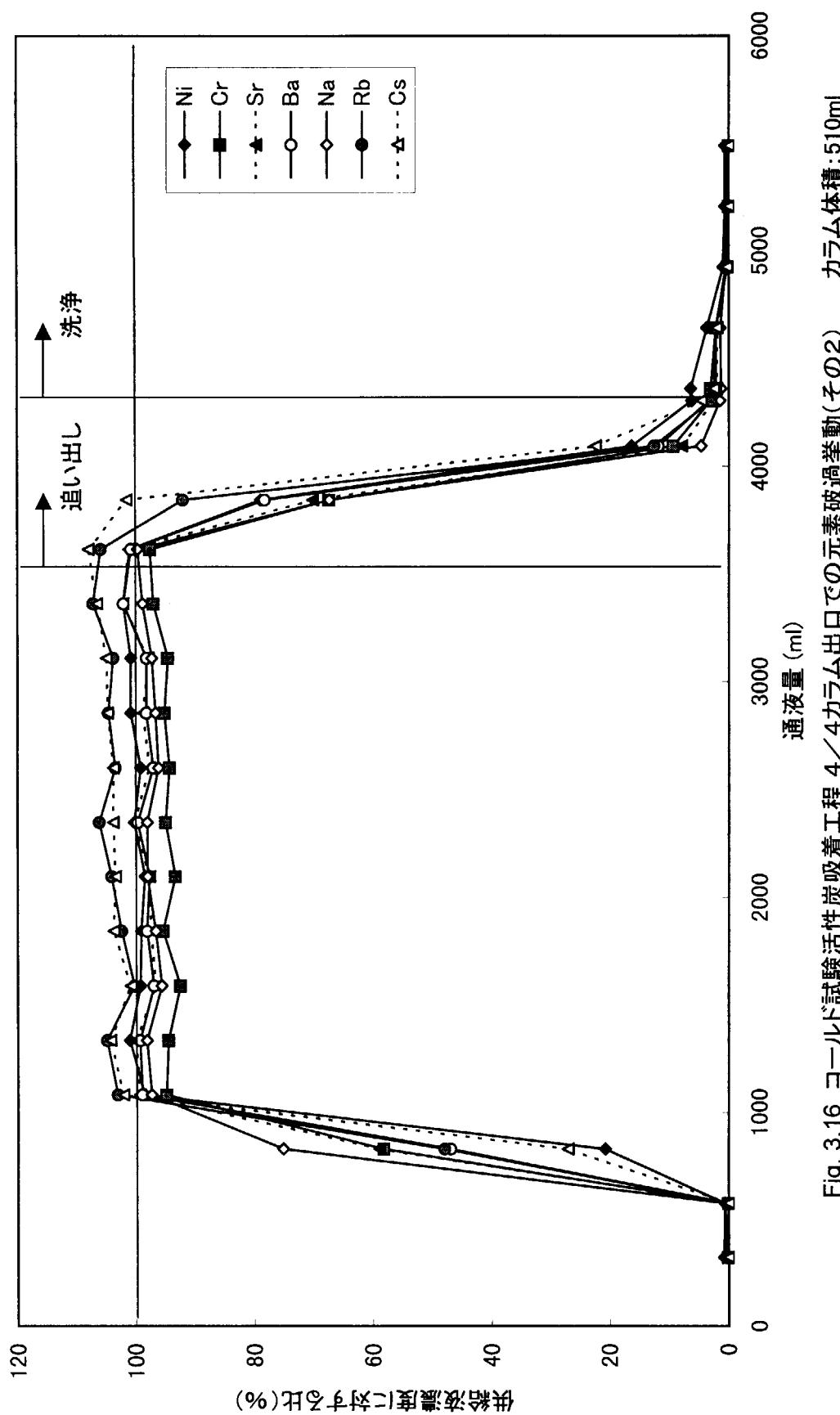


Fig. 3.16 コールド試験活性炭吸着工程 4／4カラム出口での元素破過挙動(その2) カラム体積:510ml

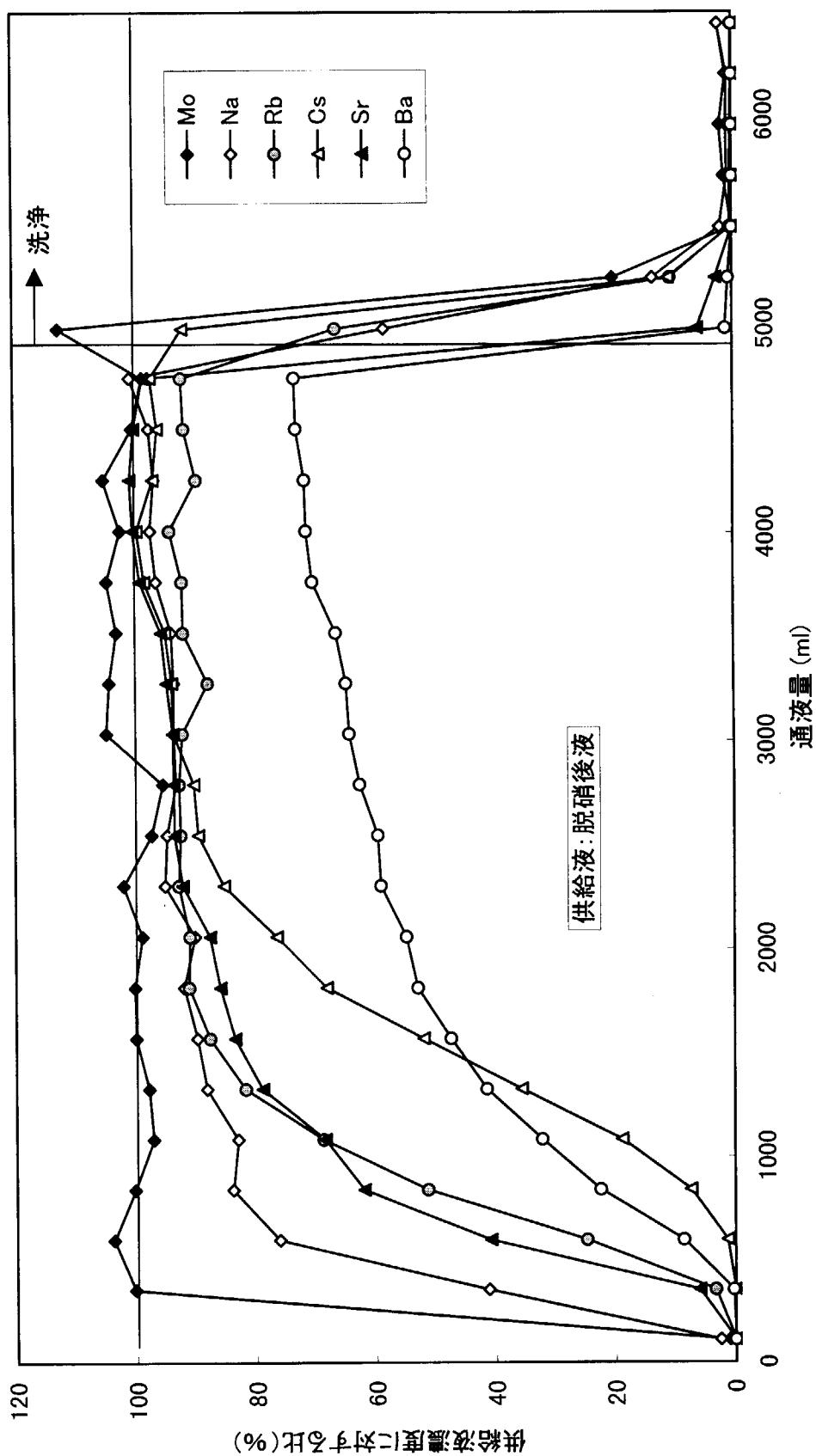


Fig. 3.17 コールド試験無機イオン交換体吸着工程 脱硝後液を用いた1／4カラムによる  
吸着試験における元素破過挙動(その1) カラム体積: 127ml

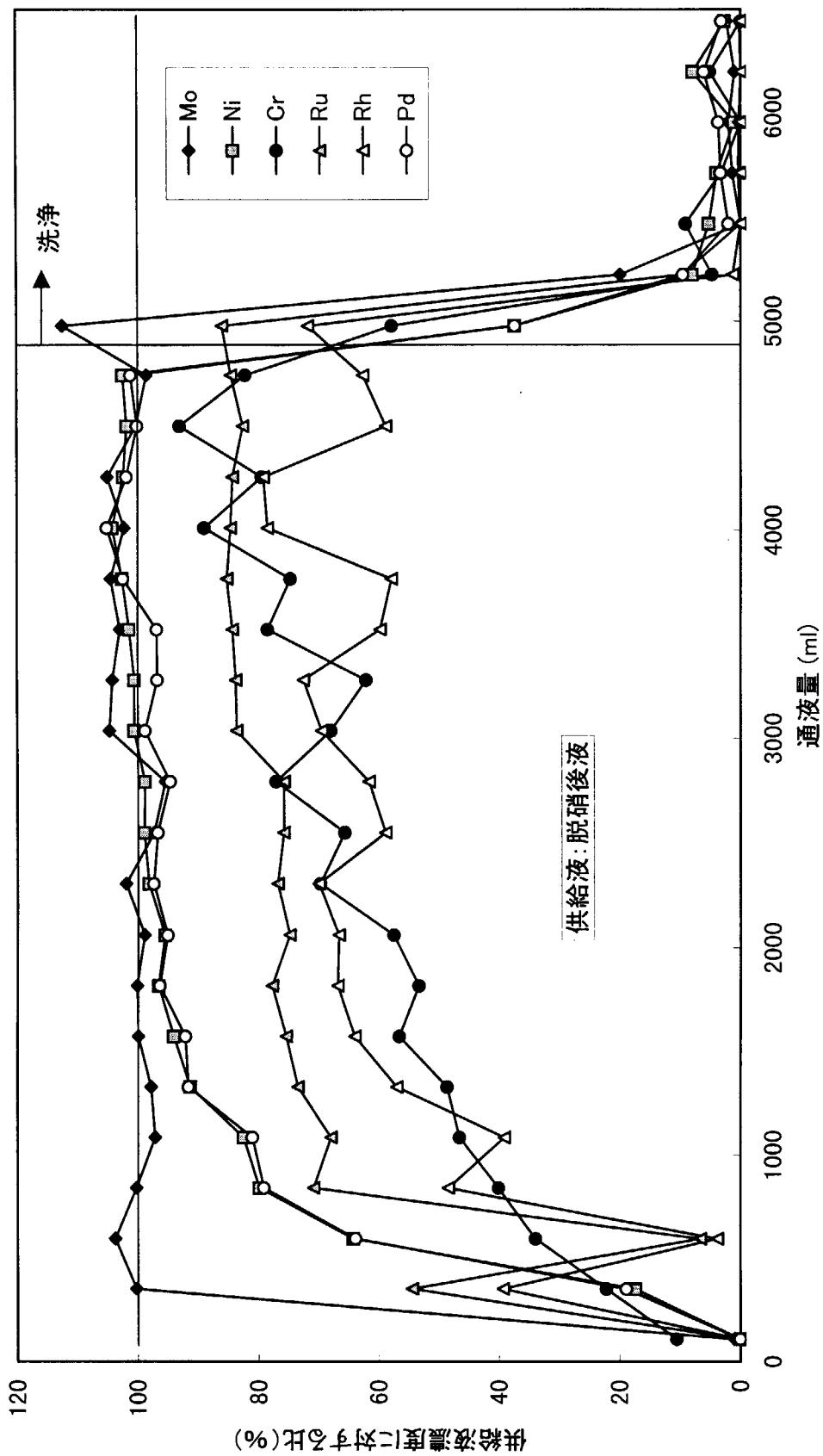


Fig. 3.18 コールド試験無機イオン交換体吸着工程 脱硝後液を用いた1／4カラムによる  
吸着試験における元素破過挙動(その2) カラム体積: 127ml

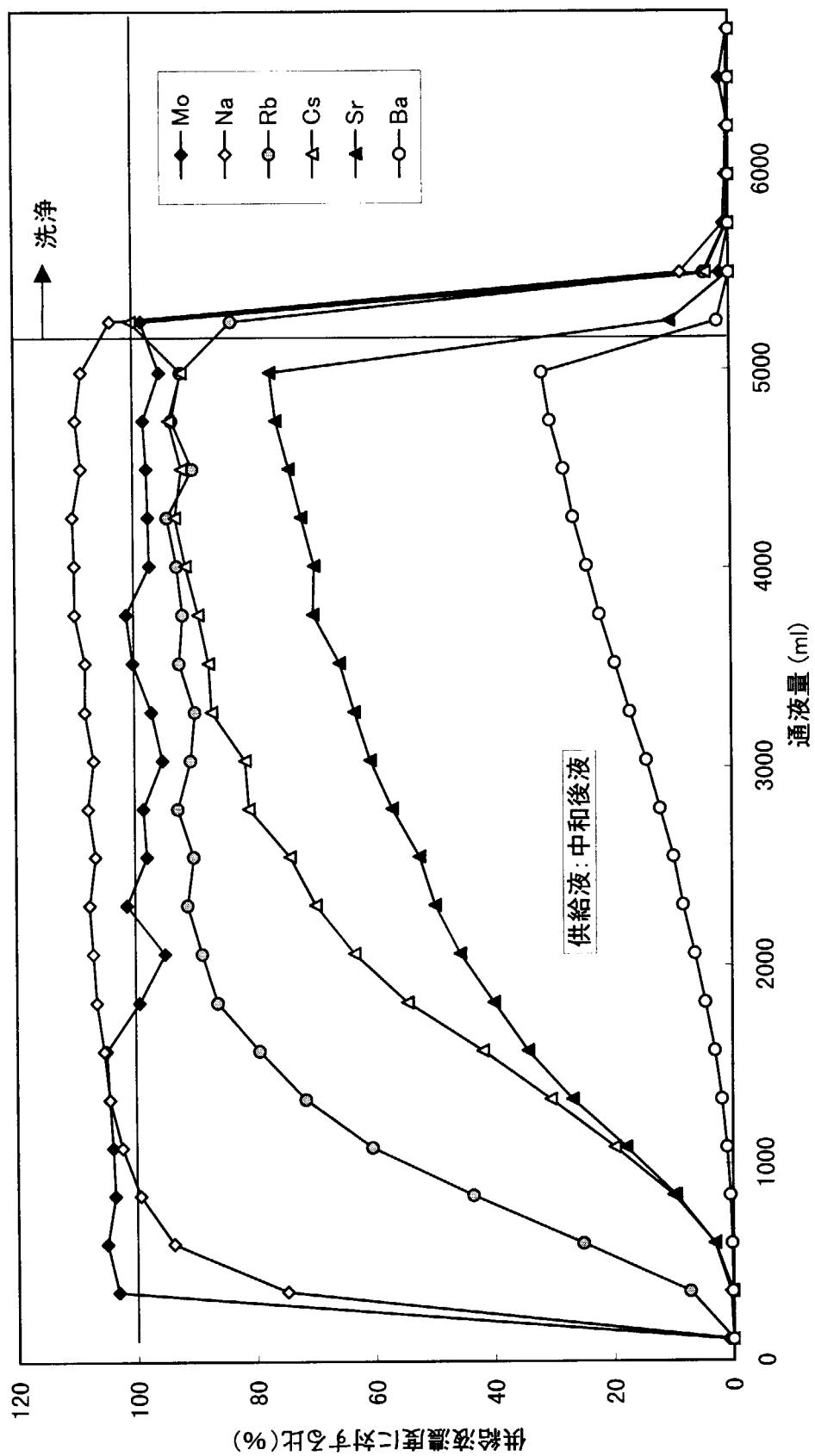


Fig. 3.19 コールド試験無機イオン交換体吸着挙動(その1)  
吸着試験における元素破過挙動(その1) カラム体積: 127ml

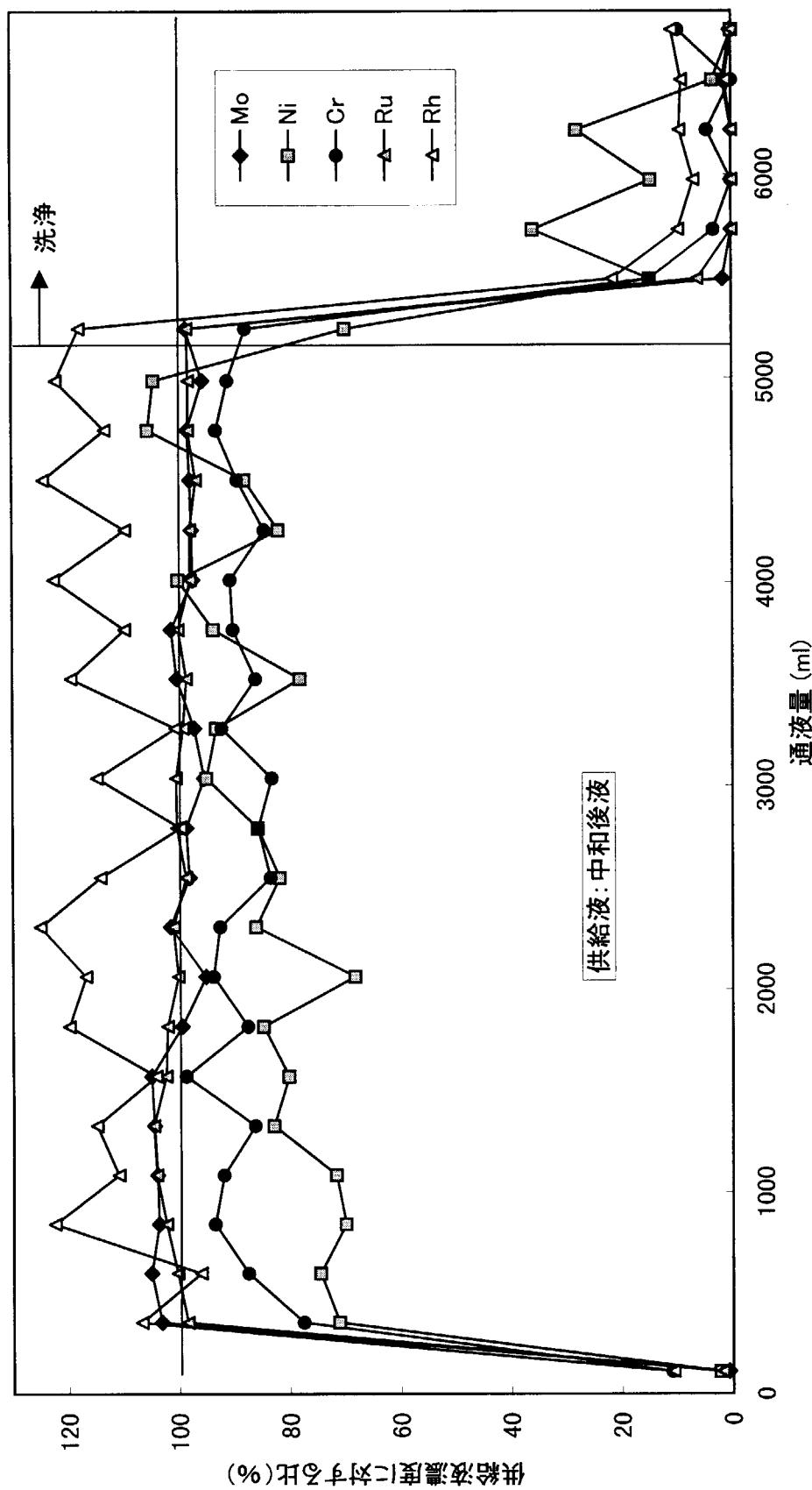


Fig. 3.20 コールド試験無機イオン交換体吸着工程 中和後液を用いた1／4カラムによる  
吸着試験における元素破過挙動(その2) カラム体積: 127ml

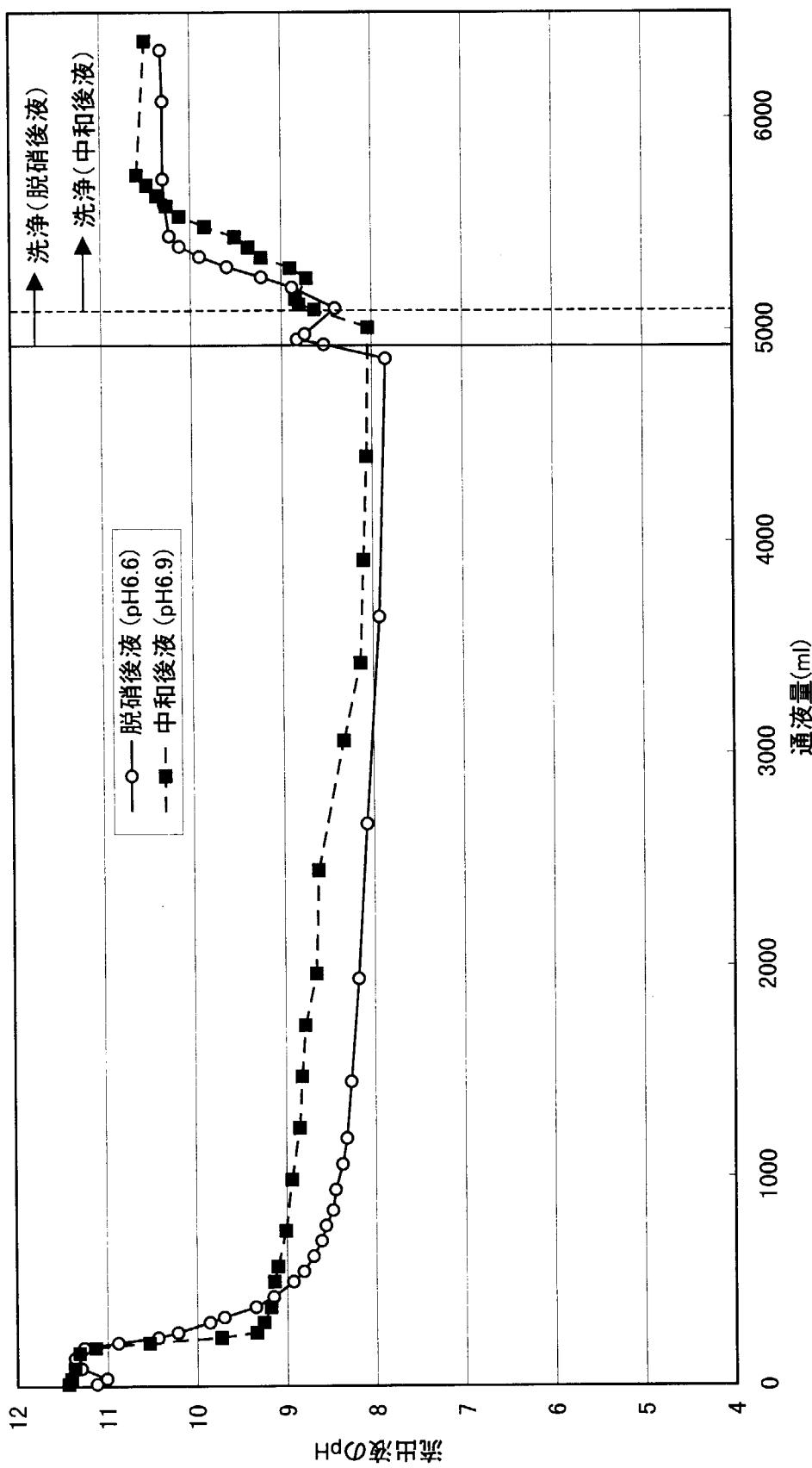


Fig. 3.21 コールド試験無機イオン交換体吸着工程 1／4カラムによる吸着試験における  
流出液pHの変化 カラム体積: 127ml

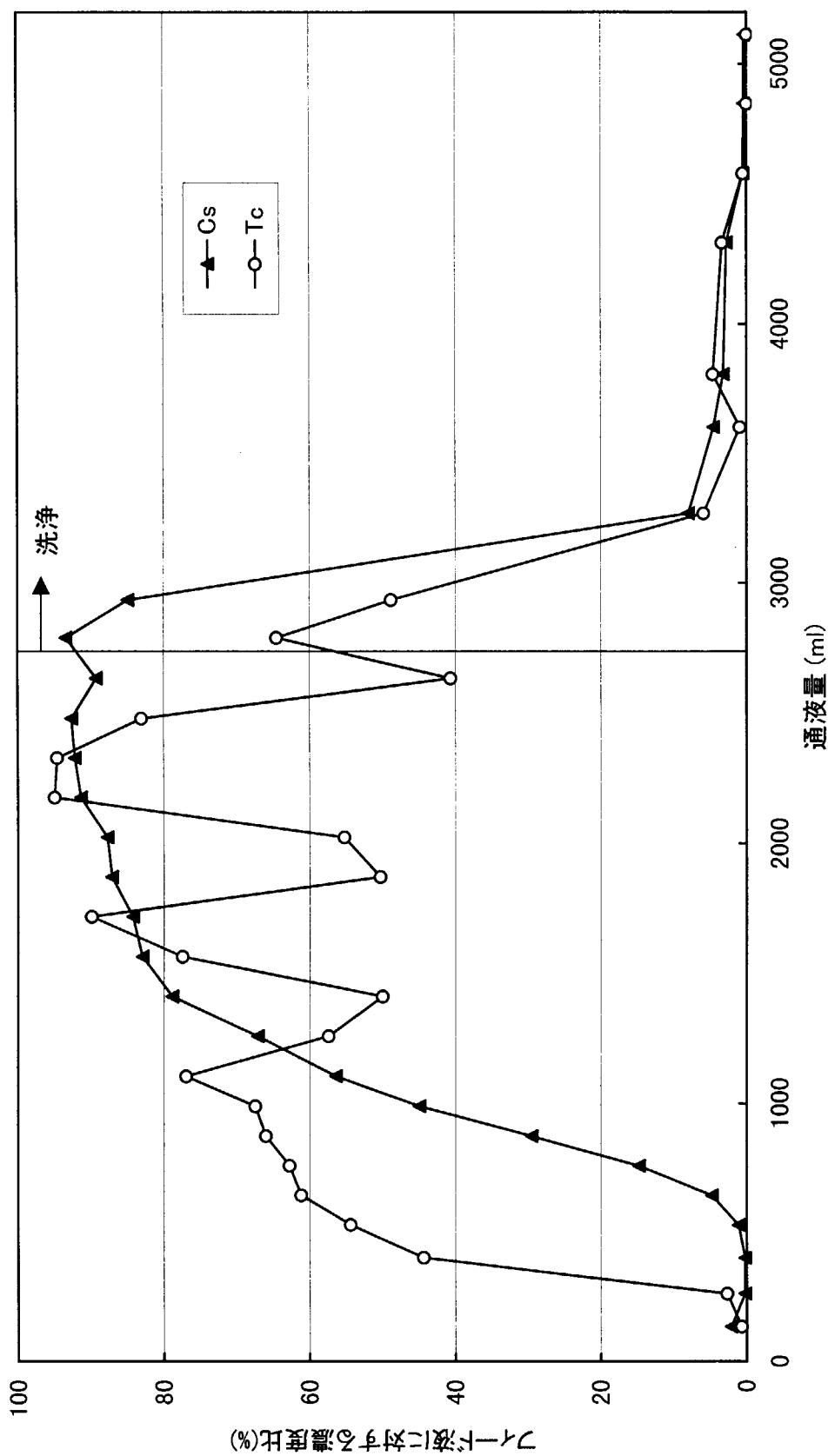


Fig. 3.22 セミホット試験機イオン交換体吸着工程 1／4カラム出口での  
Tc及びCsの破過挙動 カラム体積: 127ml

#### 4. 結 論

現在開発中の4群群分離プロセスについて、NUCEFのプロセスセル内に設置した群分離試験装置により、模擬高レベル廃液を用いたコールド試験及び少量の実高レベル廃液及びTcを添加した模擬廃液を用いたセミホット試験を実施した。その結果、得られた元素分離挙動は、これまでの様々な試験の結果にほぼ一致することを確認した。

高レベル廃液に対する前処理工程では、脱硝操作にコロイド除去操作を付加することで硝酸濃度約0.5Mのコロイドのない抽出工程への供給液を調製することができた。超ウラン元素分離のためのジイソデシルリン酸による抽出工程の試験では、Nd及びAmの抽出率として99.99%以上、4M硝酸による逆抽出においてAm回収率99.92%等の結果が得られた。Tc-白金族元素分離のための脱硝沈殿工程の試験では、Tc及び白金族元素の沈殿率としてそれぞれ96.6%及び約90%が得られた。Tc分離には効率のよい活性炭吸着法は、白金族元素の分離には適さないことが明確に示された。今後活性炭吸着法は、Tcの高回収率が要求されるときの脱硝沈殿法の附加プロセスとして位置付ける。Sr-Cs分離のための無機イオン交換体吸着工程におけるCsの挙動では、ゼオライトの飽和吸着容量の60～80%を利用して吸着分離されることがわかった。

以上の試験により、群分離試験装置の元素分離性能を確認すると共に、実高レベル廃液による群分離試験の結果と比較するためのデータを取得することができた。

今後の課題としては、前処理工程コロイド除去操作におけるCsの共沈(吸着)現象の解明とその対策、Tc-白金族元素分離のための脱硝沈殿工程において共沈するSrの再溶解法が挙げられる。無機イオン交換体吸着工程においてSrの吸着には樹脂成形のチタン酸を用いたが、Srの破過の様子からカラム法での使用に耐えないことが示された。これに対しても今後検討が必要である。

#### 謝 辞

本報告書の執筆にあたり貴重な意見をいただいた物質科学部の館盛勝一氏に感謝いたします。また、Tc酸化物の溶解、活性炭吸着における元素挙動等に有益な助言をいただいた物質科学部抽出分離化学研究グループの山岸 功氏に感謝いたします。

## 参考文献

- (1) Kubota, M., Yamaguchi, I., Morita, Y., Kondo, Y., Shirahashi, K., Yamagishi, I., Fujiwara, T. : "Proc. of Int. Conf. and Technology Exposition on Future Nuclear Systems : Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options (GLOBAL'93)", 588 (1993).
- (2) Kubota, M. : "4th Int. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (RECOD'94)", Proc. Vol.I, Session 7A, Paper No.2 (1994).
- (3) Morita, Y., Fujiwara, T., Shirahashi, K., Watanabe, M., Tatsugae, R., Kubota, M. : "Proc. of Int. Conf. on Evaluation of Emerging Fuel Cycle Systems (GLOBAL'95)", 1163 (1995).
- (4) Kubota, M., Nakamura, H., Tachimori, S., Abe, T., Amano, H. : "Management of Alpha-Contaminated Wastes", 551 (IAEA-SM-246/24) (1981).
- (5) Morita, Y., Tani, S., Kubota, M. : "Proc. of 3rd Int. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (RECOD'91)", 348 (1991).
- (6) Nakamura, H., Yamaguchi, I., Kubota, M. : J. Nucl. Sci. Technol., 15, 760 (1978).
- (7) Kubota, M., Fukase, T. : J. Nucl. Sci. Technol., 17, 783 (1980).
- (8) 松村昌明, 近藤康雄, 久保田益充 : JAERI-M 93-009, "群分離法の開発 : 模擬高レベル廃液の脱硝により生成するスラリーのろ過特性" (1993).
- (9) 森田泰治, 山口五十夫, 藤原 武, 溝口研一, 久保田益充 : JAERI-Research 97-046, "群分離法の開発 : 群分離プロセス前処理工程におけるコロイドの生成防止及び除去" (1997).
- (10) 山口五十夫, 久保田益充 : JAERI-M 87-034, "群分離法の開発 : テクネチウムの回収法ーその1" (1987).
- (11) 溝口研一, 山口五十夫, 森田泰治, 藤原 武, 久保田益充 : JAERI-Research 97-071, "群分離法の開発 : 脱硝によるTc-白金族元素の最適沈殿分離プロセスの構築ー脱硝後の液の酸濃度に影響を与える諸因子及び反応の考察ー" (1997).
- (12) 森田泰治, 溝口研一, 山口五十夫, 藤原 武, 久保田益充 : JAERI-Research 98-046, "群分離法の開発 : 小規模実験による4群群分離プロセスにおけるテクネチウムの挙動の確認" (1998).
- (13) Yamagishi, I., Kubota, M. : J. Nucl. Sci. Technol., 26, 1038 (1989).
- (14) Yamagishi, I., Kubota, M. : J. Nucl. Sci. Technol., 27, 743 (1990).
- (15) Yamagishi, I., Kubota, M. : J. Nucl. Sci. Technol., 30, 717 (1993).
- (16) Kubota, M. : Radiochim. Acta, 63, 91 (1993).
- (17) Kubota, M., Okada, K., Yamaguchi, I., Morita, Y. : Radioact. Waste Manag. Nucl. Fuel Cycle, 7, 303 (1986).
- (18) 山口五十夫, 龍ヶ江良三, 森田泰治, 近藤康雄, 白橋浩一, 山岸 功, 藤原 武, 藤本啓一, 谷津 修, 藤田民義, 黒羽根史朗, 青山三郎, 久保田益充 : JAERI-Tech 94-030, "群分離法の開発 : N U C E F 内に建設した群分離試験施設" (1994).
- (19) 山口五十夫, 森田泰治, 近藤康雄, 山岸 功, 藤原 武, 渡邊雅之, 溝口研一, 龍ヶ江良三, 青山三郎, 久保田益充 : JAERI-Tech 96-009, "群分離法の開発 : N U C E F 内群分離試験装置によるコールド試験( I )" (1996).

- (20) 近藤康雄, 藤原 武, 森田泰治, 久保田益充 : JAERI-Tech 94-008, "群分離法の開発 : 群分離プロセスの化学工学的試験( I )—溶媒抽出工程試験装置による連続抽出試験—" (1994).
- (21) Kubota, M., Yamaguchi, I., Okada, K., Morita, Y., Nakano, K., Nakamura, H. : Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 26, 551 (1984).
- (22) 久保田益充, 山口五十夫, 岡田賢造, 森田泰治, 中村治人 : JAERI-M 83-011, "群分離法の開発 : 動燃再処理廃液による群分離試験—その 1 " (1983).
- (23) 山口五十夫, 久保田益充, 岡田賢造, 森田泰治, 中村治人 : JAERI-M 84-070, "群分離法の開発 : 動燃再処理廃液による群分離試験—その 2 " (1984).
- (24) 溝口研一, 山口五十夫, 森田泰治, 山岸 功, 藤原 武, 久保田益充 : JAERI-Research 98-026, "群分離法の開発 : バインダで造粒したチタン酸へのSrの吸着挙動" (1998).
- (25) 久保田益充, 山口五十夫, 中村治人, 館盛勝一, 佐藤 彰 : JAERI-M 9627, "群分離法の開発 : 群分離試験装置によるコールド及びセミホット試験" (1981).
- (26) 森田泰治, 久保田益充 : JAERI-M 89-139, "群分離法の開発 : ジイソデシルリン酸抽出における鉄の挙動" (1989).
- (27) Sato, T. : J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 158, 391 (1992).
- (28) Shirahashi, K., Morita, Y., Kubota, M. : J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 185, 173 (1994).
- (29) Kubota, M., Dojiri, S., Yamaguchi, I., Morita, Yamagishi, I., Kobayashi, T., Tani, S. : "High-Level Radioactive Waste and Spent Fuel Management", Slate, S.C., Kohout, R. and Suzuki, A., Eds. The American Society of Mechanical Engineers, p.537 (1989).
- (30) 白橋浩一, 森田泰治, 久保田益充 : JAERI-Research 95-012, "群分離法の開発 : ジルコニウムとモリブデンのDIDPA抽出剤からのシュウ酸溶液による逆抽出挙動" (1998).
- (31) 谷 俊二, 森田泰治, 久保田益充 : JAERI-M 90-168, "群分離法の開発 : DIDPAによる超ウラン元素抽出分離プロセスにおける他の元素の挙動(連続操作実験における検討)" (1990).
- (32) 龍ヶ江良三, 白橋浩一, 久保田益充 : JAERI-Research 95-011, "群分離法の開発 : DIDPA溶媒からのウランの逆抽出法" (1995).
- (33) Izatt, R. M., Eatough, D., Christensen, J. J. : J. Chem. Soc. (A), 1967, 1301 (1967).
- (34) Shorokhov, N. A., Vashman, A. A., Samsonov, V. E., Chuklinov, R. N., Shmidt, V. S. : Russ. J. Inorg. Chem., 27, 1773 (1982).
- (35) 森 良平, 山口五十夫, 久保田益充 : JAERI-M 86-013, "群分離法の開発 : チタン酸、ゼオライト混合交換体カラムのSr, Csイオンに対する動的吸着特性" (1986).

This is a blank page.

## 国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	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
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	$s^{-1}$
圧力、応力	ニュートン	N	$m \cdot kg/s^2$
エネルギー、仕事、熱量	パスカル	Pa	$N/m^2$
功率、放射束	ジュール	J	$N \cdot m$
電気量、電荷	ワット	W	$J/s$
電位、電圧、起電力	クロン	C	$A \cdot s$
静電容量	ボルト	V	$W/A$
電気抵抗	アーマー	$\Omega$	$V/A$
コンダクタンス	ジーメンス	S	$A/V$
磁束	ウェーバ	Wb	$V \cdot s$
磁束密度	テスラ	T	$Wb/m^2$
インダクタンス	ヘンリー	H	$Wb/A$
セルシウス温度	セルシウス度	C	
光束度	ルーメン	lm	$cd \cdot sr$
照度	ルクス	lx	$lm/m^2$
放射能	ベクレル	Bq	$s^{-1}$
吸収線量	グレイ	Gy	$J/kg$
線量等量	シーベルト	Sv	$J/kg$

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	L, l
トントン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
$10^{18}$	エクサ	E
$10^{15}$	ヘキサ	P
$10^{12}$	テラ	T
$10^9$	ギガ	G
$10^6$	メガ	M
$10^3$	キロ	k
$10^2$	ヘクト	h
$10^1$	デカ	da
$10^{-1}$	デシ	d
$10^{-2}$	センチ	c
$10^{-3}$	ミリ	m
$10^{-6}$	マイクロ	$\mu$
$10^{-9}$	ナノ	n
$10^{-12}$	ピコ	p
$10^{-15}$	フェムト	f
$10^{-18}$	アト	a

(注)

- 表1~5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EIC開僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

## 換算表

力	$N (=10^5 \text{ dyn})$	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa} \cdot \text{s} (N \cdot \text{s/m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)(g/(cm \cdot s))}$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストーカス)(cm}^2/\text{s)}$$

圧力	MPa( $=10 \text{ bar}$ )	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
1	10.1972	9.86923	$7.50062 \times 10^3$	145.038	
0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233	
0.101325	1.03323	1	760	14.6959	
$1.33322 \times 10^{-4}$	$1.35951 \times 10^{-3}$	$1.31579 \times 10^{-3}$	1	$1.93368 \times 10^{-2}$	
$6.89476 \times 10^{-3}$	$7.03070 \times 10^{-2}$	$6.80460 \times 10^{-2}$	51.7149	1	

エネルギー・仕事・熱量	$J (=10^7 \text{ erg})$	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV	1 cal = 4.18605J (計量法)	
								$= 4.184J$ (熱化学)	$= 4.1855J$ (15°C)
1	0.101972	2.77778 $\times 10^{-7}$	0.238889	9.47813 $\times 10^{-1}$	0.737562	$6.24150 \times 10^{-8}$	$= 4.1868J$ (国際蒸気表)		
9.80665	1	2.72407 $\times 10^{-6}$	2.34270	9.29487 $\times 10^{-3}$	7.23301	$6.12082 \times 10^{-9}$			
$3.6 \times 10^6$	3.67098 $\times 10^5$	1	8.59999 $\times 10^5$	3412.13	2.65522 $\times 10^6$	$2.24694 \times 10^{-25}$			
4.48605	0.426858	1.16279 $\times 10^{-6}$	1	3.96759 $\times 10^{-3}$	3.08747	$2.61272 \times 10^{-19}$			
1055.06	107.586	2.93072 $\times 10^{-1}$	252.042	1	778.172	$6.58515 \times 10^{-21}$			
1.35582	0.138255	3.76616 $\times 10^{-7}$	0.323890	1.28506 $\times 10^{-3}$	1	$8.46233 \times 10^{-18}$			
$1.60218 \times 10^{-10}$	$1.63377 \times 10^{-20}$	$4.45050 \times 10^{-26}$	$3.82743 \times 10^{-30}$	$1.51857 \times 10^{-22}$	$1.18171 \times 10^{-19}$	1			

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad		
						1	$2.70270 \times 10^{-11}$
	$3.7 \times 10^{10}$	1		0.01	1		

照射線量	C/kg	R		
			1	3876
	$2.58 \times 10^{-3}$	1		

線量当量	Sv	rem		
			1	100
	0.01	1		

(86年12月26日現在)

4群群分離プロセスのNCCS上内群分離試験装置によるホールド試験及びセミホット試験