

2005-041



原研における群分離に関する研究開発
－4群群分離プロセス開発までのレビュー－

2005年9月

森田 泰治・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、このほかに財団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, Nakagun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

原研における群分離に関する研究開発
－4群群分離プロセス開発までのレビュー－

日本原子力研究所東海研究所安全性試験研究センター燃料サイクル安全工学部
森田 泰治・久保田 益充*

(2005年8月10日受理)

原研における群分離に関する研究開発について、研究開発開始当初より、4群群分離プロセス開発及びその実高レベル廃液試験までの成果を取りまとめ、総括した。

1980年(昭和55年)頃に構築した3群群分離プロセスでは高レベル放射性廃液中の元素を超ウラン元素、Sr-Cs及びその他の元素の3群に分離する。その後研究開発された4群群分離プロセスでは上記にTc-白金族元素群を分離対象に加えられている。4群群分離プロセスについては、燃料サイクル安全工学研究施設(NUCEF)内に整備した群分離試験装置を用いて濃縮実高レベル廃液による実証試験が実施された。この間、様々な分離手法が研究、試験され、各分離対象元素(群)に最適な分離手法、分離条件等について多くの検討がなされた。高レベル廃液は、希ガスとハロゲンを除く第1族から第16族までの多くの種類の元素を含んでおり、分離対象も様々であることから、取り扱った際に起こる事象は非常に複雑である。従って、過去の経験、知見や成果をきちんと整理して、これを今後の研究に活かすことが非常に重要である。

本報告は、今後の研究開発に役立たせるため、これらの研究開発の内容及びその成果をレビューしたものである。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

* 財団法人高度情報科学技術研究機構

Research and Development on Partitioning in JAERI

- Review of the Research Activities until the Development of 4-Group Partitioning Process -

Yasuji MORITA and Masumitsu KUBOTA*

Department of Fuel Cycle Safety Research

Nuclear Safety Research Center

Tokai Research Establishment

Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 10, 2005)

Research and development on Partitioning in JAERI are reviewed in the present report from the beginning to the development of the 4-Group Partitioning Process and its test with real high-level liquid waste (HLLW).

In the 3-Group Partitioning Process established in around 1980, elements in HLLW are separated into 3 groups of transuranium element group, Sr-Cs group and the other element group. The 4-Group Partitioning Process subsequently developed contains the separation of Tc-platinum group metals additionally. The process was tested to demonstrate its performance with real concentrated HLLW using the equipment for partitioning process installed in a hot-cell in Nuclear Fuel Cycle Safety Engineering Research Facility (NUCEF). Until the establishment and demonstration test of the 4-Group Partitioning Process, various separation methods for various elements were studied and selection and optimization of the separation methods were carried out to establish the process. Very complicated phenomena are often observed in the treatment of HLLW which contains all kinds of elements from group 1 to 16 except group 17 (halogen) and group 18 (noble gas). Review of the experience, findings and results is, therefore, very important and valuable for future study on partitioning. The present report is prepared from this point of view.

Keywords: Partitioning, High-level Radioactive Waste, Minor Actinide, Long-lived Fission Product, 4-Group Partitioning Process, DIDPA, Solvent Extraction, Precipitation, Adsorption, Denitration

* Research Organization for Information Science & Technology

目 次

| | |
|-------------------------------|----|
| 1.はじめに | 1 |
| 2.研究開発の経緯 | 2 |
| 3.3群群分離プロセスの研究開発 | 4 |
| 3.1 TRU群分離法の研究開発 | 4 |
| 3.2 Sr-Cs群分離法の研究開発 | 5 |
| 3.3 前処理法の研究開発 | 5 |
| 3.4 実高レベル廃液による群分離プロセス試験 | 5 |
| 3.5 群分離二次廃棄物処理法の研究開発 | 6 |
| 3.6 群分離後各群の安定化固化法の研究開発 | 6 |
| 3.7 3群群分離法の評価 | 6 |
| 4.4群群分離プロセスの研究開発 | 7 |
| 4.1 TRU群分離法の研究開発 | 7 |
| 4.2 Tc-白金族元素群分離法の研究開発 | 13 |
| 4.3 前処理法の研究開発 | 14 |
| 4.4 4群群分離プロセスの構築 | 14 |
| 4.5 NUCEFでの4群群分離プロセス試験 | 15 |
| 4.6 4群群分離プロセスのプロセス規模の評価 | 20 |
| 5.まとめと今後の展望 | 26 |
| 謝 辞 | 27 |
| 引用文献 | 28 |

Contents

| | |
|---|----|
| 1. Introduction | 1 |
| 2. Background of Research and Development on Partitioning Process | 2 |
| 3. Research and Development on 3-Group Partitioning Process | 4 |
| 3.1 R&D on Separation of TRU Group | 4 |
| 3.2 R&D on Separation of Sr-Cs Group | 5 |
| 3.3 R&D on Pre-treatment Step | 5 |
| 3.4 Tests of Partitioning Process with Real High-level Liquid Waste | 5 |
| 3.5 R&D on Secondary Waste Treatment | 6 |
| 3.6 R&D on Solidification of the Separated Group | 6 |
| 3.7 Evaluation of 3-Group Partitioning | 6 |
| 4. Research and Development on 4-Group Partitioning Process | 7 |
| 4.1 R&D on Separation of TRU Group | 7 |
| 4.2 R&D on Separation of Tc - Platinum Group Metal | 13 |
| 4.3 R&D on Pre-treatment Step | 14 |
| 4.4 Establishment of 4-Group Partitioning Process | 14 |
| 4.5 Tests of 4-Group Partitioning Process in NUCEF | 15 |
| 4.6 Evaluation of Process Scale of 4-Group Partitioning Process | 20 |
| 5. Summary and Future of Research and Development | 26 |
| Acknowledgements | 27 |
| References | 28 |

1. はじめに

原研では、1970年(昭和45年)頃より、高レベル放射性廃液中の元素をいくつかのグループに分離する群分離の研究を実施してきた。分離された元素群は、それぞれの性質に応じて最適な処理・処分を行うことが可能となる。長寿命放射性核種は核変換により短寿命化を達成することができる。また、群分離により、有用元素の利用、即ち高レベル廃棄物の資源化が可能となる。

1980年(昭和55年)頃には、高レベル放射性廃液中の元素を超ウラン元素、Sr-Cs及びその他の元素の3群に分離するプロセスを構築し、実高レベル廃液による試験が実施された。この成果を評価した上で、1985年(昭和60年)頃からは、上記にTc-白金族元素群を分離対象に加えた4群群分離プロセスの開発に着手した。国の「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画」(通称オメガ計画)のもとで研究開発を実施し、燃料サイクル安全工学研究施設(NUCEF)内に群分離試験装置を整備し、4群群分離プロセスの濃縮実高レベル廃液による実証試験を行うに至った。

この間、様々な分離手法が研究、試験され、各分離対象元素(群)に最適な分離手法、分離条件が明らかにされ、さらに各分離工程を最適に接続することによって群分離プロセス全体を構築するための多くの検討がなされてきた。高レベル廃液は、希ガスとハロゲンを除く第1族から第16族までの多くの種類の元素を含んでおり、分離対象も様々であることから、取り扱った際に起こる事象は非常に複雑である。経験、知見、ノウハウが重要となる場面も多いことから、これまでの研究開発をきちんとレビューしておくことは、今後の研究開発に非常に有益である。

本報告では、上記の考えのもと、群分離研究開始の頃より、4群群分離プロセスの実廃液試験までの研究開発の成果をレビューする。主には、分離手法、分離プロセスそのもの研究を対象とする。群分離によって分けられた元素群或いは発生する廃棄物の評価については別途報告することとした。

2. 研究開発の経緯

原研における群分離研究の始まりは、1973年頃からで、これは日本における群分離研究の始まりでもある。当時、この研究はアイソトープ事業部製造部製造技術課において開始された。もちろんこのとき全く新しく始まつたのではなく、高レベル放射性廃液(HLLW)から有用放射性同位元素(RI)の製造技術開発の一環として、1968年頃から行ってきた短寿命核分裂生成物RI (Mo-99, Te-132, Ba-140など)の製造技術開発、さらには、この技術開発の延長として1971年頃に始まつた長寿命RI (Sr-90, Cs-137など)の製造技術開発の流れを受けて、スタートしたものである。

当時、Sr-90, Cs-137などの大線源の需要は、RI利用時の安全性についての世論の懐疑的雰囲気もあり、伸びをみるに至らなかつた。一方、再処理工場で発生するHLLWの処理処分の理想的な方法として、長寿命の放射能毒性の高いRIを分離減容し、それぞれの性質に応じた処理処分を行う、いわゆる群分離によるHLLWの処理処方式が注目されるようになつた。この大きな原動力となつたものは、1971年8月から約1年10ヶ月にわたつて木村健次郎先生を座長とする日本原子力産業会議の「核分裂生成物等総合対策懇談会」がまとめた「放射能クローズドシステムの構想」である。報告書¹⁾が1973年5月に発行され、その内容は、総説、及び利用開発、処理処分、消滅処理の3つのワーキンググループからの報告となつてゐる。総説では、放射能クローズドシステムの構想、開発手順、開発のための施設などが示され、今日でも大いに参考になる内容となつてゐる。以下に、序章における最後の文章を記す。

「それぞれの国における地理的、地質的条件或いは、人口密度、経済規模などの諸条件が核分裂生成物対策としての利用開発或いは処理処分法の選択をかなりの程度左右することは否めないにしても、地球環境を保全するという基本理念の下で作成された本懇談会の報告は、今後の放射性廃棄物問題の検討に新たなビジョンを提供するものと確信している。」

製造部における群分離の研究開発は、研究テーマ“FPからの長寿命RIの製造技術の開発”の中で実施されていたこと也有つて、RIの製造をも十分に意識した分離法の開発でもあつた。このような状況の中で、1976～1977年には、HLLWの処理処分技術の研究開発に従事しているグループが会合を持ち、HLLW処理処分に関する研究開発をレビューし、その問題点と今後の研究課題について討議した。その結果、廃棄物処理処分技術の開発は、核燃料サイクルの見直しをも含めた総合的かつ長期的観点から進めるべきであり、処分時の安全性評価、群分離、核変換処理(当時の用語では「消滅処理」)などは原研の行うべき重要課題であるとの共通認識を得た。これらの議論を踏まえて、研究開発を高レベル廃棄物の新たな処理処分法の開発と位置付け、その立場を明確にするため、1979年には環境安全研究部内に群分離研究室が誕生し、1980年本格的活動開始となつた。(その後群分離研究室は、燃料安全工学部(1991年)、燃料研究部(1993年)、物質科学研究部(1998年)と移籍した。)

研究開始当初の目標は、HLLWからTRUのみならず、発熱性核種であるSr-90、Cs-137の分離をも含めた3群(TRU、Sr-Cs、その他の元素)への分離を目的とした群分離プロセスの開発であり、1973年頃からの開始後、1984年頃まで継続した。その後は、外国の影響を受け、研究活動も一時

はかなり低下した時期もあったが、従来の分離対象核種に加えて、Np-237(半減期214万年)及びTc-99(半減期21万年)の分離をも重点とした4群(3群+Tc-白金族元素)群分離プロセスを提案し、研究開発を進めた。この間、4群群分離プロセスの考え方は、1988年10月に原子力委員会廃棄物対策専門部会においてまとめられた「群分離・消滅処理技術研究開発長期計画」(通称オメガ計画)²⁾において、重点開発課題として位置づけられた。

群分離技術の研究開発に関する経緯をTable 1に示す。

Table 1 群分離技術の研究開発に関する経緯

| 年 | 経緯及び主な研究成果 |
|--------------|--|
| 1970年(昭和45年) | 核分裂生成物からの短寿命RI製造技術の確立(1971年) 再処理廃液からの長寿命RIのイオン交換法による分離技術確立 <u>高レベル廃棄物の群分離プロセス開発に着手(1973年)</u> |
| 1975年(昭和50年) | |
| 1980年(昭和55年) | RI製造棟内のケーブの改造と群分離試験装置の完成(1979年) 群分離研究室本格活動開始(1980年) 実高レベル廃液を用いた3群群分離プロセス試験の開始(1981年) |
| 1985年(昭和60年) | <u>3群群分離プロセスの完成及び3群群分離プロセス評価(1984年)</u> <u>4群群分離プロセスの開発に着手(1985年)</u> |
| 1990年(平成2年) | ネプツニウムの分離法について注目発明選定証受賞(1987年) テクネチウムの回収について注目発明選定証受賞(1988年) 国のオメガ計画における4群群分離構想の採用(1988年) ネプツニウムの分離法について注目発明選定証受賞(1990年) |
| 1995年(平成7年) | <u>4群群分離プロセスの構築(1993年)</u> 群分離プロセスの開発について日本原子力学会技術賞受賞(1994年) NUCEF内に群分離試験装置完成(1994年)、CEA研究協力開始(1994年) 模擬高レベル廃液を用いた4群群分離プロセス試験(1995-1996年) |
| 2000年(平成12年) | トレーサーレベルの実高レベル廃液を用いた群分離試験(1997年) <u>実高レベル廃液を用いた群分離試験(1998-2000年)</u> オメガ計画チェック・アンド・レビュー(1999-2000年) |

3. 3群群分離プロセスの研究開発

1973年(昭和48年)頃から1984年(昭和59年)にかけては、高レベル廃液に含まれる元素を、TRU群、Sr-Cs群及びその他の元素群の3群に分離するプロセスの研究開発を実施した。その主な成果は次のようなである。

3.1 TRU群分離法の研究開発

Am及びCmの分離には、従来の抽出溶媒を用いた方法における酸濃度調整、沈殿生成、相分離などの問題を解決するため、独自に新しい抽出剤であるジイソデシルリン酸(DIDPA: diisodecylphosphoric acid)による抽出分離プロセスを開発し、約0.5M硝酸溶液からのAm及びCmの効率的分離を可能にした³⁾⁻⁶⁾。Fig. 1に、DIDPAと、同種の抽出剤であり従来より良く知られていたDEHPA(di(2-ethylhexyl)phosphoric acid)との比較を、Amとほぼ同じ挙動をとるNdの分配比で示す。DEHPAの場合、Ndの分配比として10以上を得るには硝酸濃度を0.2M程度下げなくてはならないが、DIDPAでは硝酸濃度0.5M程度までの低下で十分である。0.2Mまで硝酸濃度を下げるとき生じる沈殿へのAm, Cm等の共沈が無視できない量となる。

DIDPAの耐放射線性について、Co-60のガンマ線による照射試験により評価し、吸収線量が 7×10^5 GyではTRUの抽出能力が約10%程度低下することがわかった⁷⁾。TRU群の抽出分離において、DIDPAの受けける吸収線量は、1年間冷却した使用済み燃料の再処理によって発生する高レベル廃液を処理する場合に、1回の使用で 7×10^3 Gyになることを計算によって求め⁸⁾、DIDPAが長期の繰り返し使用に十分に耐えることを明らかにした。

Purex法による再処理工程で抽出されずに高レベル廃液に移ったU及びPuは、高レベル廃液が調製される段階で濃縮と脱硝が行われることから、2M硝酸溶液から、再びリン酸トリブチル(TBP)により抽出できることがわかった⁹⁾。

Am及びCmと一緒に抽出される希土類元素との分離には、巨大網目構造型陽イオン交換樹脂を用いたカラム法を用いることにより、従来のように亜鉛形のイオン交換樹脂を用いる必要のない、亜鉛を含む二次廃棄物の発生がない、効率のよい分離法を開発した⁶⁾。

陽イオン交換樹脂の耐放射線性について、Co-60ガンマ線による照射試験により評価し、吸収線量が約 2×10^6 Gyまで使用できることがわかった¹⁰⁾。Am及びCmと希土類元素の分離において、イオン交換樹脂の受けける吸収線量は、1回の使用で約 1×10^5 Gyであるので、約20回の

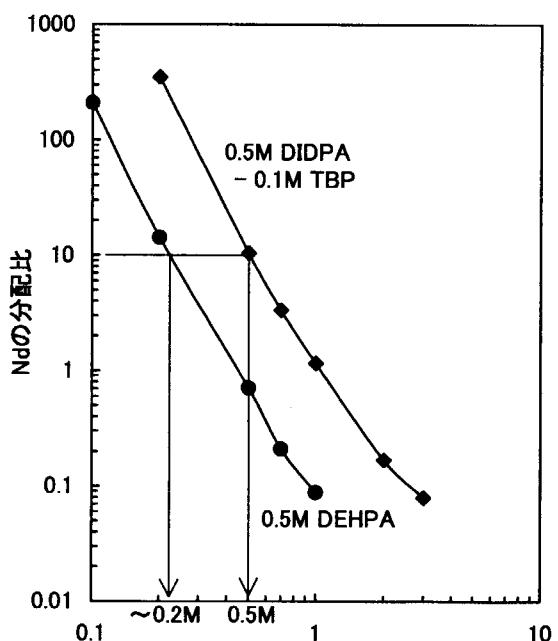


Fig. 1 DIDPA及びDEHPAによる抽出におけるNd分配比の比較

使用が可能であることを明らかにした。

3.2 Sr-Cs群分離法の研究開発

Sr-Cs群の分離では、耐放射線性に優れ、分離に使用した材料が直接処分に適したSr及びCsの安定な固化体に変換できることなどから、Srをチタン酸で、Csをゼオライト(天然モルデナイト)でそれぞれ吸着分離する無機イオン交換体カラム吸着法を開発した。これにより、二次廃棄物発生量の少ない効率のよいSr-Cs群の分離を可能にした^{6),9),11),12)}。

3.3 前処理法の研究開発

高レベル廃液からのAm及びCmのDIDPAによる抽出分離に先立って、廃液中の硝酸濃度を2Mから約0.5Mに調整することが必要である。このため、模擬高レベル廃液を用いて、ギ酸による脱硝反応、さらには、脱硝に伴う沈殿生成を研究し、TRU群の抽出の際に妨害となるZr及びMoが脱硝により除去できること¹³⁾、脱硝反応装置の安全性を確保するためには、反応により大量に発生する窒素酸化物ガスの発生速度を亜硝酸塩を添加することにより制御することが有効であることなどを見出した¹⁴⁾⁻¹⁷⁾。

3.4 実高レベル廃液による群分離プロセス試験

溶媒抽出法とイオン交換法を主体とした各群の分離法をシステムとしてまとめ、3群群分離プロセスを構築した。そのフローをFig. 2に示す。この3群群分離プロセスについて、模擬高レベル廃液を用いたコールド試験に引き続いだ、原研での使用済み燃料の再処理試験により発生した高レベル廃液及び動力炉核燃料開発事業

団(当時、現核燃料サイクル開発機構)の再処理施設で発生した高レベル廃液をそれぞれ原研東海ラジオアイソotope製造棟に設置した群分離試験施設に搬入し、実廃液試験を実施した^{9),18),19)}。その結果、Puについて99.9%以上、Am及びCmについて99.99%以上、Sr及びCsについて99%以上の回収率でそれぞれ分離できることを確認し、群分離プロセスの有効性を実証した²⁰⁾。

実廃液試験に先立ち群分離試験施設及び高レベル廃液輸送容器の設計製作を実施した。特に輸送容器については、多量の高レベル廃液を輸送できるBM型輸送容器として、わが国で初めて認可を受けたものであり、

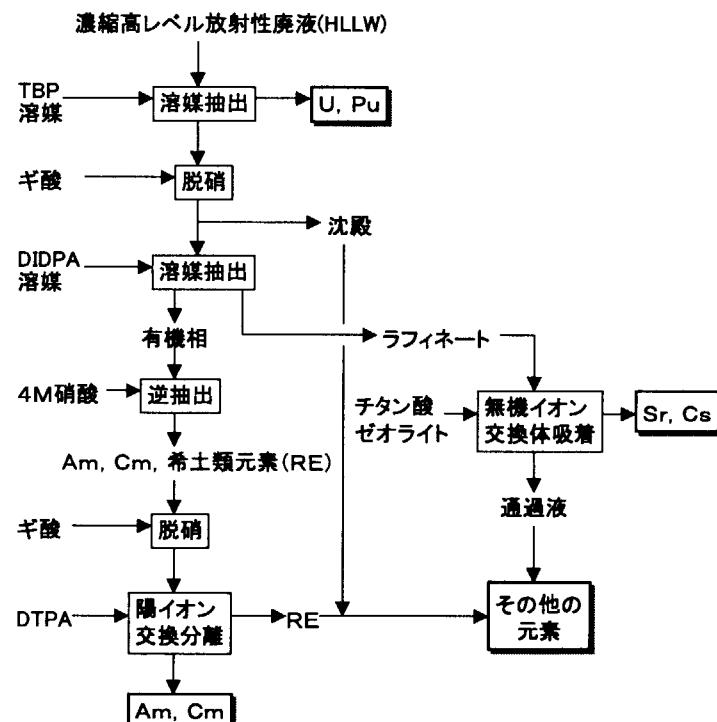


Fig. 2 3群群分離プロセスのフロー

今日でも同種の輸送容器が原子力施設内で使用されている。

3.5 群分離二次廃棄物処理法の研究開発

群分離によって発生する二次廃棄物について、分解処理法を開発した。放射線により劣化した陽イオン交換樹脂は、鉄(Fe)イオンを触媒として過酸化水素により分解する方法^{21),22)}を、また、群分離によって得られるTRU群の溶液からTRU酸化物を得るために使用するシュウ酸の廃液については、マンガン(Mn)イオンを触媒として硝酸により分解する独自の方法^{23),24)}を開発した。

低レベル廃液の処理法の開発では、チタン酸及びゼオライトを混合した無機イオン交換体カラムによる処理法を考案し¹¹⁾、3群群分離プロセスの実廃液試験によって発生した各種の廃液の処理試験を実施した。その結果、Sr-90、Cs-137、Pu-239を含めた大部分の放射性核種がほぼ完全に除去できることが明らかとなり、この方法の有効性を実証した。

3.6 群分離後各群の安定化固化法の研究開発

群分離後の固化体としては、TRU群について酸化物を、Sr-Cs群について無機イオン交換体焼成体を、その他の元素群についてはガラス固化体を想定している。これまで特に検討してきたSr-Cs群についての固化法の開発では、分離に用いた無機イオン交換体を直接1000°C以上で焼成することにより、Sr及びCsの浸出率がガラス固化体とする場合の1000分の1以下となり、浸出率が低く、熱的にも優れた安定な固化体が得られることを明らかにした²⁵⁾。

3.7 3群群分離法の評価²⁶⁾

群分離後の各群について固化体とする場合の体積総量について解析した結果、一般に考えられる高レベル廃液の全量をガラス固化体とする場合に比べて、Sr-Cs群を無機イオン交換体焼成体とすることで、体積は2分の1以下となり、大きな減容率が得られることがわかった。

群分離後固化体の潜在的毒性について国際放射線防護委員会ICRP Pub.2の最大水中許容濃度を基準に解析した結果、Sr-Cs群及び他の元素群の固化体の毒性は、1000年後においてU 3%含有鉱石相当以下になることがわかった。一方、ICRP Pub.30の年摂取限度を基準にして、わが国における代表的な処分条件を想定した高レベル廃棄物地層処分の環境影響について、既存コードを改良して解析した結果、高レベル廃液からのNp-237及びTc-99の分離が新しい課題になることを明らかにした²⁷⁾。

4. 4群群分離プロセスの研究開発

3群群分離プロセスの研究開発及び評価の結果²⁶⁾を受け、Np及びTcの分離に重点を置き、Tc-白金族元素群を新たな分離元素群として加えた4群群分離プロセスの開発を1985年(昭和60年)頃より開始した。プロセスの構成としては、Fig. 3に示すように、群分離において最も重要なTRU群の分離を第一工程、Tc-白金族元素群及びSr-Cs群の分離を順に第二、第三工程として、プロセス開発に当たった。処理対象は、硝酸濃度2Mの濃縮高レベル廃液とした。研究開発の主な成果は次のようにある。

4.1 TRU群分離法の研究開発

TRU群の内でもAm及びCmは、DIDPAにより99.99%以上を抽出分離できることが3群群分離プロセスの開発において実証されていることから、4群群分離プロセスの開発では、Npの分離を重点に研究を実施した。なお、TRU群の分離法としては、より経済的なプロセスになる可能性のあるシュウ酸による沈殿法についても研究した。さらに、DIDPA抽出後のTRUと希土類元素の相互分離法について、プラントへの適用性を考慮し、イオン交換法に代わって抽出法の研究を実施した。

(1) 溶媒抽出法

3群群分離プロセスの実廃液試験において採取した試料の分析から、Npの98%以上がDIDPAにより抽出されていることがわかった²⁸⁾。このことはDIDPAがNpの分離にも有効であろうとの見方を示唆するものである。事実、種々の原子価のNpを用いた抽出試験では、4価及び6価は勿論、高レベル廃液中で安定に存在し、一般に抽出が困難とされる5価のNp(Np(5))が、徐々にではあるがDIDPAにより抽出されること、及びこの抽出はNp(5)の不均化反応を伴っていることを明らかにした^{29),30)}。その後、Np(5)についての抽出速度の改善について研究し、過酸化水素を共存させることによって、抽出を大きく促進できることを見出した^{31),32)}。過酸化水素共存下での抽出では、Np(5)のNp(4)への還元反応が進行する。

DIDPAの放射線分解生成物の一つであるモノイソデシルリン酸(MIDPA)の存在が、過酸化水素共存下で、Np(5)の抽出速度に与える影響について、DIDPAにMIDPAを加えて実験した結果、MIDPAの存在によってNpの抽出速度が僅かに増加することはあっても、その効果は過酸化水素に比べ非常に小さいことがわかった³³⁾。また、DIDPAをCo-60のガンマ線により照射し、Np(5)の抽出速度に与える影響について、照射後のDIDPAを用いて研究した結果、吸収線量が1MGy程度まではNpの抽出速度が増加するが、この現象はMIDPAの濃度の増加によってほぼ説明することができた³⁴⁾。

高レベル廃液からのNp(5)の分離を目的として、DIDPAによるNpの抽出とシュウ酸による逆抽

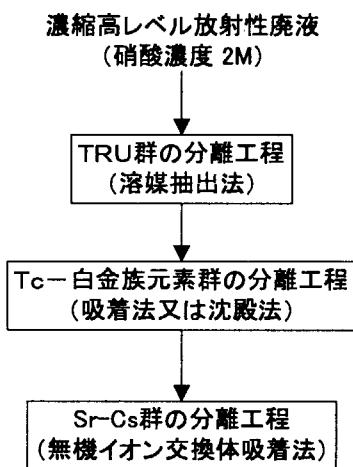


Fig. 3 4群群分離プロセスの構成

出試験をミキサーセトラーを用いて行った結果、過酸化水素を添加すれば、模擬高レベル廃液から、99.96%以上のNp(5)を抽出できることがわかった^{35),36)}。過酸化水素はPdなどの共存元素の影響を受け、ミキサーセトラー内で分解してしまうため、Npの抽出を促進する効果が減少するが、再添加し、その消費を補うことによって、Npの抽出を再び速くすることができた。逆抽出試験では、0.8Mのシュウ酸で99.94%以上のNpが逆抽出できることを明らかにした^{35),37)}。

過酸化水素添加系でDIDPAによりTRUを抽出分離する際の、TRU以外の元素の挙動について、模擬高レベル廃液を使用し、ミキサーセトラーを用いて研究した。抽出分離のプロセスは、TRUと希土類元素の一括抽出、0.5M硝酸による溶媒洗浄、4M硝酸によるAm、Cmと希土類元素の逆抽出、及びシュウ酸によるNp、Puの逆抽出の工程からなる。実験の結果、群分離の対象元素であるAm及びCmと挙動を共にするNdは、99.99%以上が抽出されること、また、99.9%のFe及び6.5%のRuがDIDPAに抽出されるが、高レベル廃液中の放射能の大部分を占めるSr、Csなど、他の元素はほとんど抽出されないことを確認した。なお、抽出されたFeはシュウ酸により逆抽出され、4M硝酸による逆抽出で得られるAm及びCmを含む溶液中には、希土類元素以外の混入が極めて少ないことを明らかにした^{37),38)}。

DIDPA溶媒（0.5M DIDPA-0.1M TBP-ドデカン）によりTRUを抽出する際に、溶媒中の元素濃度が高くなっている限界を超えるとエマルジョンが生成する。ランタノイドの場合、原子番号が大きくなるほどエマルジョンを生成しない元素濃度（限界濃度）が低くなる。La、Nd、Gdの有機相中の限界濃度は、それぞれ、>0.4M、0.25M、0.035Mであった³⁹⁾。

DIDPA抽出において、最もエマルジョンを生成しやすい元素はFeである。そこで、Feの挙動について、抽出速度、エマルジョン生成の観点から研究した結果⁴⁰⁾、Np(5)と比較すると、Feの抽出速度の方が大きいことがわかり、Npが抽出されるような条件では、Feも抽出されることが明らかとなった。エマルジョン生成に関しては、Feの濃度を制限するか、温度を上げることで、十分生成を抑えられることが確認できた。ミキサーセトラーによる連続抽出に関する研究では、抽出速度についてのバッチ実験の結果によりFeの挙動を良く説明できることがわかった。Feの逆抽出については、シュウ酸を用いれば十分可能であることを明らかにした⁴⁰⁾。また、Feによるエマルジョン生成におけるランタノイド及びDIDPA溶媒組成の影響について検討し、ランタノイドがFeの抽出速度に及ぼす影響はわずかであるが、DIDPAの純度及びTBPの添加はFeのエマルジョン生成限界濃度に大きく影響することを明らかにした^{39),41)}。また、Feを2価に還元する或いはFeの錯化剤を添加することによってエマルジョンの生成を防止する方法についても検討した⁴²⁾が、その適用性は低い。

以上のランタノイド及びFe以外の元素についても、エマルジョン生成の限界濃度をバッチ抽出法により求め、プロセスの適用範囲を明らかにした。エマルジョンが生成しない各元素の濃度とDIDPA濃度との関係は、次式で表される。

$$(DIDPA) = \{(Am + Cm + ランタノイド) \times 8 + (U + Np + Pu) \times 6 + (Fe + Y) \times 20 + (Zr + Mo) \times 4\} \times 1.25$$

ここでは、DIDPA濃度として20%の裕度を持たせた。

DIDPAに抽出され、硝酸やシュウ酸により逆抽出されない元素としてはUがあるが、この元素の逆抽出法について検討し、リン酸が有効であることがわかった⁴³⁾。しかし、リン酸の使用は、

逆抽出後のUとリン酸との分離が容易でない、多量のリン酸塩廃棄物が発生するという欠点があるため、更に、炭酸塩による逆抽出について研究した。その結果、炭酸ナトリウムーアルコール溶液又は炭酸ヒドラジンーアルコール溶液がUの逆抽出に使用できることを明らかにした^{44),45)}。炭酸ヒドラジンは、塩フリーの試薬であり、二次廃棄物の発生を抑えることができるが、Uと同様に硝酸やシュウ酸では逆抽出されないYを逆抽出できない。そこで、塩廃棄物は発生するが、Yをも逆抽出できる炭酸ナトリウムをUの逆抽出剤として選択することとした。

DIDPAの精製法としては、メタノール水溶液或いはアセトン水溶液を用いる方法を新たに開発した^{46),47)}。

DIDPA抽出法の新たな適用例として、後に述べる前処理工程において沈殿となるZr及びMoを硝酸濃度調整前の高レベル廃液より抽出分離する方法についても検討した。その結果、TRU分離に用いる溶媒と同一組成の0.5M DIDPA-0.1M TBPにより、両元素を高硝酸濃度の溶液より効率的に抽出でき⁴⁸⁾、かつ、シュウ酸により逆抽出できること⁴⁹⁾を明らかにした。本手法では、U及びPuも抽出されるので、実際の適用にはさらに検討が必要である。

(2) 沈殿法

高レベル廃液に、直接、粒状のシュウ酸を加えることで、AmやCmなどのTRU及び希土類元素を沈殿として分離できること⁵⁰⁾、Np(5)を効率よく沈殿させるためには、アスコルビン酸を加えることが効果的であることなどを、模擬高レベル廃液を用いた実験により明らかにした^{51),52)}。

3価のTRU及び希土類元素の代表として使用したNdを定量的に沈殿させるため、添加するシュウ酸量を増加させると、Sr及びBaのアルカリ土類金属、さらにZr及びRhの一部が共沈した⁵³⁾。この原因としては、模擬廃液中の元素の種類を減らした実験から、Zr及びMoの影響によるものであることがわかった。

15成分元素からなる模擬高レベル廃液を加熱するとZr、Mo及びTeの一部が沈殿することから、加熱処理を行って沈殿物をろ別した後、ろ液についてシュウ酸沈殿を行った結果、Srの沈殿率は、90%から75%まで低下した⁵³⁾。[ギ酸]/[硝酸]=1.5の条件で脱硝を行った後、沈殿をろ別し、ろ液にシュウ酸を添加したところ、Sr及びCsの沈殿率をそれぞれ10%及び2%以内に抑えることができた。これにより、ギ酸によって高レベル廃液を脱硝した後に、シュウ酸沈殿を行う方法が、高レベル廃液に直接シュウ酸を加える方法に比べて、共沈をより少なくできることを見出した⁵³⁾。

これらの研究からは、シュウ酸沈殿法によりTRU群の99%を沈殿として回収することはできるが、Srなどの共沈は避けられず、沈殿法を有効なものとするためには、さらなる検討が必要であることがわかった。

(3) 希土類元素とTRUの相互分離

Am及びCmから希土類元素を分離するため、3群群分離プロセスの開発では陽イオン交換樹脂カラム法による分離について研究してきたが、連続操作が可能な方法として、DIDPAからの逆抽出の段階で両者を分離する方法について研究した。

逆抽出剤として、錯形成剤であるジエチレントリアミン5酢酸(DTPA)又はトリエチレンテトラミン6酢酸(TTHA)を用い、希土類元素からのAmの分離の可能性について研究した結果、逆抽出後の水相のpHが3.0~4.0の範囲において、希土類元素とAmの分配比の比である分離係数がDTPAで10以上、TTHAで25以上になることがわかった。しかしながら、Amの分配比が1以下になるの

は、DTPAでpH3.4以上、TTHAでpH3.6以上で、かつ、TTHAの場合は、DTPAよりもより第三相を生成しやすいことがわかった。このため、DTPAの方が分離係数では劣るものの、Amの分配比を低くでき、第三相を生成しにくい点で優れていることがわかった。

DTPAを逆抽出剤とする希土類元素とTRUの相互分離について、予備的試験として、Nd単成分でのミキサーセトラーを用いた連続逆抽出時の各段におけるpH及びNdの濃度分布について検討した。その結果、水相のpHは、有機相入口付近で、アンモニウムイオンの抽出に伴い変化するものの、ほとんどの段で水相入口段のpHと同じであった。各段のpH分布はバッチ実験の結果から計算した値とほぼ一致し、これにより抽出プロセスのシミュレーション計算が可能なことを明らかにした。Ndの濃度分布についても、計算から求めたものとほぼ一致した⁵⁴⁾。さらに、DTPA溶液のpHを4程度に上げ、NdがAmの模擬元素として挙動するように設定して、LaとNdとの分離試験を行った結果、ほぼ想定どおり、Laを有機相に残し、NdをDTPA溶液側へ逆抽出して、両元素を良好に分離できることを確認した^{54),55)}。

以上の試験結果をもとに、Am, Cmとランタノイドの共存系での各段毎のpH分布を考慮したシミュレーション計算を行い、各ランタノイドの除染係数(DF)を算出し(例えばLa 5400, Nd 56, Sm 31, Gd 55)、Am及びCmを99.99%以上回収した上でのAm-Cm製品組成を求めた。その結果、Am-Cm製品へのランタノイド混入量は分離前の量に対し約1%程度であり、製品純度として75wt%が得られることがわかった。この結果をTable 2に示す。さらに、シミュレーション計算により有機相スクラップを加えたプロセスではAm-Cm製品の純度として98%が得られるとの見通しも示したが、有機相スクラップを含むプロセスの試験は実施されていない。

(4) DIDPA抽出プロセスの構築

以上のDIDPA抽出法についての研究の成果を基に、高レベル廃液からTRU及びUを分離するための抽出プロセスを構築した。ここでの検討ポイントは、DTPAによるAm及びCmの選択的逆抽出工程をどのように組み込むかである。当初は、TRU及びUを一括抽出した後、4M硝酸による逆抽出の前にこの工程を入れるプロセス(1サイクルプロセス)を構築した^{56),57)}。しかし、DTPAによる逆抽出においてエマルジョンを生成しない有機相中元素濃度の限界(限界濃度)が低いことが明らかになった。一括抽出直後の有機相はFeやUをも含むため、このプロセスでは有機相中の元素濃度を下げる必要があり、単位量の高レベル廃液を処理するのに多量の抽出溶媒を使用しなければならないことが判明した。DIDPA溶媒の抽出容量、エマルジョン生成限界に関するデータを基に計算したところ、4M硝酸でAm、Cm及びランタノイドを逆抽出した後、再びDIDPA溶媒でこれらの元素を抽出し(第2サイクル)、次にDTPAによる選択的逆抽出工程を入れるプロセスの方が、総合の溶液取扱量が少ないことがわかった。この考えに基づき構築したDIDPA抽出プロセスのフローをFig. 4に示す⁵⁸⁾。

Table 2 DTPA逆抽出法によるAm, Cmとランタノイドとの分離のシミュレーション
計算による評価

計算条件 有機相 : Am,Cm,ランタノイド(Ln)を抽出したDIDPA溶媒、
水相 : 0.05M DTPA-1M乳酸-硝酸アンモニウム、pH 3.52
有機相／水相 流量比 : 1、逆抽出段数 : 16段、Am逆抽出率 : 99.995%
元素量 燃焼度45000MWd/t, 5年冷却の使用済燃料1tonからの高レベル廃液

| 元素 | 分離前 | | DF | 分離後 | | |
|-------|----------|---------|------|----------|--------|---------|
| | モル数(mol) | 重量(g) | | モル数(mol) | 重量(g) | 組成(wt%) |
| Am | 1.865 | 450.45 | | 1.865 | 450.45 | 70.06 |
| Cm | 0.1393 | 34.00 | | 0.1393 | 34.00 | 5.29 |
| La | 12.00 | 1656 | 5400 | 0.0022 | 0.307 | 0.048 |
| Ce | 23.21 | 3271 | 560 | 0.0414 | 5.842 | 0.91 |
| Pr | 10.82 | 1526 | 190 | 0.0569 | 8.029 | 1.25 |
| Nd | 38.3 | 5550 | 56 | 0.684 | 99.11 | 15.42 |
| Pm | 0.30 | 44.1 | 37 | 0.0081 | 1.192 | 0.185 |
| Sm | 7.41 | 1107 | 31 | 0.239 | 35.72 | 5.56 |
| Eu | 1.26 | 193.1 | 36 | 0.0350 | 5.365 | 0.83 |
| Gd | 1.00 | 156.4 | 55 | 0.0182 | 2.844 | 0.44 |
| Tb-Yb | 0.0321 | 5.146 | 86 | 0.00037 | 0.0598 | 0.0093 |
| Am+Cm | 2.004 | 484.45 | | 2.004 | 484.45 | 75.35 |
| 全RE | 94.33 | 13509.3 | | 1.085 | 158.47 | 24.65 |
| 総計 | 96.34 | 13993.8 | | 3.090 | 642.92 | 100 |

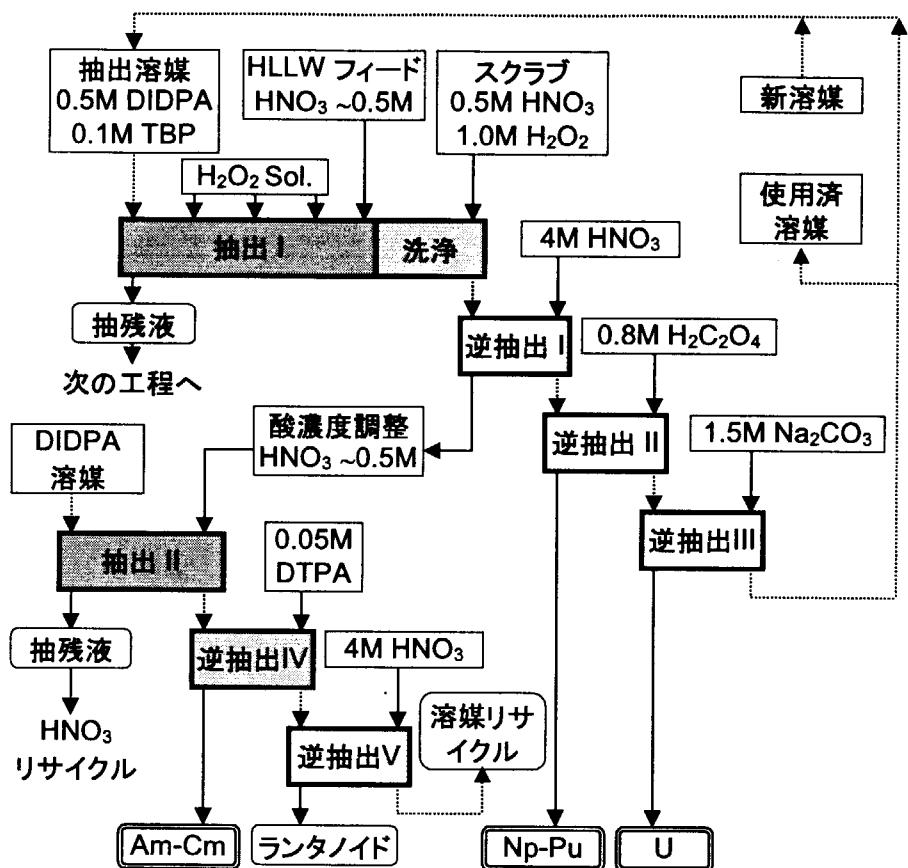


Fig. 4 DIDPA抽出分離プロセスフロー

このDIDPA抽出分離プロセスの特徴をまとめると次のようにになる。

- ・濃縮高レベル廃液を対象としている。
- ・TRUの中で最も高回収率での分離が難しいNpについて99.95%以上の抽出率で高レベル廃液より分離が可能。
- ・すべてのアクチノイドに対し極めて高い回収率での分離が可能。
- ・分離対象外ではあるがアクチノイドの中で最も存在量の多いUに対しても逆抽出法が開発されている。他のすべての元素の逆抽出も可能で、これにより、溶媒のリサイクル使用が確実なものとなっている。
- ・同一溶媒でAm, Cmとランタノイドとの分離も可能。
- ・最も影響が大きいDIDPAの放射線分解生成物はMIDPA (monoisodecylphosphoric acid、基本的にDIDPAと同様の抽出挙動をとる。) であるが、MIDPA濃度を一定に保つという方針でプロセスが組まれている。(リサイクルされる溶媒の一部を廃溶媒とし、その分MIDPAを含まないDIDPA溶媒を加えている。)
- ・供給液としての高レベル廃液の硝酸濃度を約0.5Mに調整する必要がある。(これは欠点ではあるが、一方で抽出や後のTc-白金族元素及びSr-Csの分離の際妨害となるZr, Moをこの段階で除去できるという利点もある。)

また、DIDPAの抽出剤としての特徴をまとめると次のようになる。

- ・全てのアクチノイドについて高い回収率が得られる。
- ・爆発などの危険がない。
- ・耐放射線性が高く、しかも放射線による分解生成物の抽出に及ぼす影響が少ない。
- ・TBPと同等の値段で比較的安価である。

4.2 Tc-白金族元素群分離法の研究開発

特にTc-99の分離に重点をおいた研究として、TRU群分離後の廃液からTc-99をギ酸による脱硝沈殿法及び活性炭による吸着法により分離する方法を開発した^{59),60)}。

(1) 脱硝沈殿法

模擬高レベル廃液を用いた試験により、硝酸に対してモル比1.8以上のギ酸を添加して脱硝することにより、98%以上のTcを白金族元素とともに沈殿として分離できることがわかった^{61),62)}。また、脱硝沈殿法は高レベル廃液中の白金族元素の濃度が0.005M以上のときに有効であることを明らかにした。さらに、沈殿物からのTcの回収法についても研究し、過酸化水素を用いることで、Tcのみを選択的に溶出できることがわかった^{61),63)}。

白金族元素に関しては、Ru, Rh, Pdの3元素の沈殿率と脱硝後のpHとの関係を明らかにし、pHを6.5以上にすることで3元素いずれもを98%の回収率で沈殿として分離できることを示した⁶⁴⁾。

(2) 活性炭吸着法

脱硝沈殿法では白金族元素の濃度が0.005M以下のときTcを高回収率で分離できないため、このような欠点のない方法として吸着法を検討し、活性炭がTcの分離に適用できることを見出した。0.5M硝酸溶液でのTcの活性炭に対する分配係数は100ml/g以上で、高レベル廃液濃度でのTcの平衡吸着量は0.33meq/gとなり、TRU群分離後の廃液からTcを活性炭により吸着分離できることを明らかにした^{65),66)}。また、活性炭に吸着させたTcは、アルカリ性チオシアン酸塩溶液で効率的に脱着できることがわかった^{67),68)}。

活性炭カラムでの吸着・溶離の試験では、模擬高レベル廃液中の12元素の内、Tc、Ru、Rh及びPdの4元素が活性炭カラムに吸着し、吸着の強さは、Pd=Tc>>Ru>Rhの順となった。また、カラムからの溶離試験では、アルカリ性チオシアン酸塩溶液により99.9%以上のTc及び80%のRuを溶離できた⁶⁹⁾。Pd及びRhの80-90%は溶離されずにカラムに残留するが、活性炭を焼却することでこれらを酸化物として回収できることがわかった。また、活性炭の再利用という観点から吸着・溶離操作を2回繰り返した試験の結果、白金族元素が残留してもTcの再吸着量は10%程度の減少であることわかった。活性炭自体は安価なため、Tcの回収に数回利用した後にPd等を焼却回収することが経済的であると考えられる。

活性炭の吸着性能をより高める方法として、チオシアン酸イオンを担持させた活性炭について研究した結果、0.1-2M硝酸溶液におけるTcの分配係数は10⁵ml/g以上となり、未処理の活性炭に比べて3桁以上も大きな値となること⁷⁰⁾、また、pH2以上では、10ml/g以下となり、未処理の活性炭に比べて10分の1以下になることがわかった。この現象は、Tcの化学形がpHによって変化することによるこことを解明した⁶⁷⁾。

4.3 前処理法の研究開発

TRUのDIDPAによる抽出分離に先立って、高レベル廃液の硝酸濃度を約2Mから0.5Mに低下させる必要がある。このため、ギ酸による脱硝を行うが、この段階で発生する沈殿物のろ過特性について、模擬高レベル廃液を用いて研究した⁷¹⁾⁻⁷⁴⁾。

高レベル廃液をより模擬した状態として、15成分模擬高レベル廃液について、脱硝前に所定時間加熱還流操作(還流)を行ったのち、[ギ酸]/[硝酸]=1.5 で脱硝を行い、得られるスラリーのろ過試験を行った結果、還流時間が短時間であり、還流時の蒸発速度が小さい場合、ろ過比抵抗は増大し、短時間でろ過機構がケークろ過から閉塞ろ過に移行し、ろ過が困難になった。一方、還流時間を長くするか蒸発速度を大きくすれば、ろ過比抵抗は小さくなり、易ろ過性のスラリーを調製できることがわかった。即ち、脱硝前に模擬廃液1L(リットル)当たり 5.7×10^6 J以上の熱を加えて脱硝するか、脱硝時に模擬廃液に1L当たり 1.1×10^7 J以上の熱を加えることにより、易ろ過性のスラリーを調製できることがわかった⁷¹⁾。このことは、1バッチ当たり最大10Lの模擬高レベル廃液を処理できる工学的規模のろ過装置を用いた試験においても実証できた⁷²⁾。

高レベル廃液の脱硝時におけるTRU の沈殿挙動及び沈殿物の溶解法について研究した結果、[ギ酸]/[硝酸]=1.5 での脱硝時におけるAmの沈殿率は0.1%以下であるが、Puについては90%以上が沈殿することがわかった⁷⁵⁾。Puは、脱硝をしないで模擬廃液を単に加熱するだけでも14%が沈殿することから、脱硝操作の有無に拘らず、沈殿物からの回収を行う必要がある。シュウ酸を用いた沈殿物の溶解試験では、模擬高レベル廃液1Lを脱硝した時に得られる沈殿物約15gについて、0.5M シュウ酸溶液約800mlを用いて、完全に溶解できることがわかった⁷⁵⁾。溶解液からのPu回収法については、シュウ酸を分解して硝酸溶液とした後にTBP抽出法を適用することなどが考えられる。

また、脱硝時の発熱及び排ガス発生速度を低減させる方法、脱硝反応を停止する方法についても検討した⁷⁶⁾⁻⁷⁸⁾。

4.4 4群群分離プロセスの構築

以上の主に模擬高レベル廃液を用いて行ってきた4群群分離に関する研究の成果及び以前の3群群分離プロセスについての実高レベル廃液による試験の結果を基に、TRU群の分離にDIDPAを使用する溶媒抽出法を、Tc-白金族元素群の分離に脱硝沈殿法又は活性炭吸着法を、Sr-Cs群の分離に無機イオン交換体吸着法を用いる4群群分離プロセスを構築した⁵⁶⁾。Fig. 5に4群群分離プロセスのフローを示す。

この4群群分離プロセスの特徴をまとめると次のようになる。

- ・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が図られている。
- ・すべての分離工程で妨害元素であるZrを前処理の段階で除去する。Zrは沈殿となり、その取扱いが必要であるが、濃縮高レベル廃液にはもとより沈殿が存在すると考えられ、程度の差こそあれ、沈殿の取扱いは避けられないという認識である。
- ・すべてのアクチノイドに対し極めて高い回収率での分離が可能なDIDPA抽出分離プロセスを適用している。

- ガス以外の二次廃棄物の発生が全くない脱硝沈殿法によりTc及び白金族元素を一括分離する。生じたTc・白金族元素の沈殿に対し過酸化水素を加えることでTcを選択的に溶解できる。また、この工程で生ずるろ液を次のSr-Cs分離工程へ直接供給できる。
- Sr-Cs群の分離に使用する無機イオン交換体は、Sr-Csの固化剤として利用できる。即ち、Sr-Csを吸着した無機イオン交換体をそのまま高温で処理することで、耐熱性や難溶性に優れた固化体に変換可能で、二次廃棄物の発生がない。

4.5 NUCEFでの4群群分離プロセス試験

4群群分離プロセスの元素分離性能を実際の高レベル廃液を用いて実証するとともにプロセスの最適化を図ることを目的として、燃料サイクル安全工学研究施設(NUCEF)のプロセスセル内に群分離試験装置を設置した。この施設は1984年に建屋及び装置の設計を開始し、1992年には建屋及びセルが完成、1994年には群分離試験装置が完成した⁷⁹⁾。この装置で取り扱うことのできる高レベル廃液の量は1バッチ当たり2Lで年間 1.85×10^{14} Bqである。抽出工程での処理速度から求めると、本試験装置の規模は想定される実プラントの1/1000程度である。この装置を用いて、Table 3に示すように、コールド試験、セミホット試験、ホット試験と順に4群群分離プロセスの試験を実施した。

(1) 第1回コールド試験とその後の検討

第1回コールド試験⁸⁰⁾は、試験装置の運転性能・元素分離性能や遠隔操作性の確認、及びプロセスと試験装置の改良すべき点の摘出を目的に実施した。

脱硝を中心とする高レベル廃液の前処理工程の試験では、元素の沈殿挙動、沈殿物のろ過特性などそれまで行なわれてきた実験室での試験とほぼ同様の結果が得られた。しかし、脱硝処理後の模擬廃液をDIDPAによる抽出工程に供給したところ、DIDPA溶媒との接触によりエマルジョンが生成し抽出操作が困難になった。この原因は、加熱・脱硝操作によって生成するZrを主成分とするコロイドの存在によることを明らかにした⁸¹⁾。高レベル廃液に対して十分に加熱後脱硝を行うことによって生じる沈殿は易ろ過性となるが、約50%のZrが溶液中に残留する^{71),82),83)}。この残留するZrがコロイドとなっていることがわかった。4群群分離プロセス構築当初の想定では、高レベル廃液に対し、加熱操作を加えることなく脱硝操作を行うこととしており、この場合、ZrはMoと共にほぼ全量沈殿するが、生じた沈殿物は難ろ過性となる。初めに加熱操作を加えると沈殿は易ろ過性となるが、Zrがコロイドとして残留する。これは、高レベル廃液中でZrとMoはモル比がほぼ1:1で存在し、脱硝によってモル比1:1で沈殿するのに対し、硝酸濃度が高い状態において加

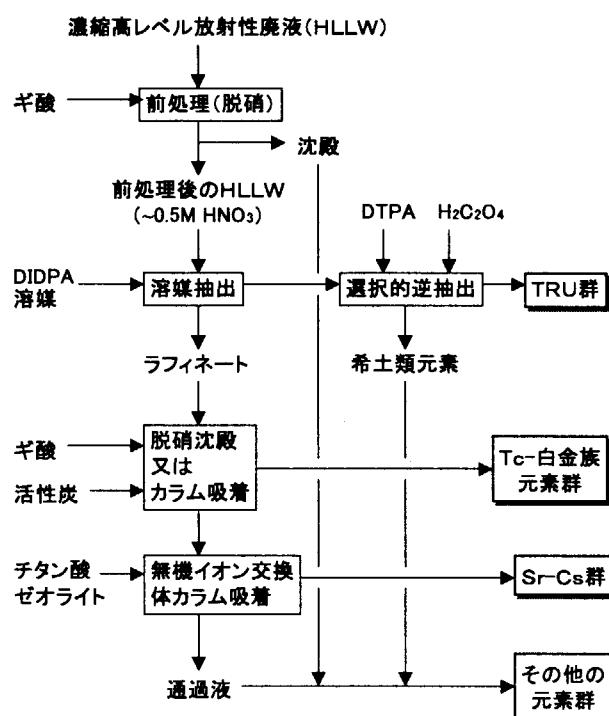


Fig. 5 4群群分離プロセスのフロー

熱したときに生ずる沈殿ではモル比がZr:Mo=1:2であることに起因する。

Zrコロイドの対策について研究した結果、前処理工程において、リン酸或いはモリブデン酸を添加して加熱処理することでコロイドの生成を防止できること、また、生成したコロイドを沈殿物として除去できることを明らかにした^{81),84)}。

TRUを抽出分離した後の溶液からは脱硝により白金族元素やTcを沈殿として分離するが、この時の加熱の仕方によっては、溶液のpHが3以上にならずに、沈殿としての回収ができなくなることが分かった。沈殿を生成させるためには、加熱の速度を遅くするか、或いは、溶液を濃縮した後で脱硝する必要があることを明らかにした⁸⁵⁾。

3群群分離プロセス開発の当時よりSrの吸着分離にはチタン酸を用いてきた。このチタン酸は、硫酸チタニル水溶液をアンモニア水で中和し、生成した沈殿を洗浄・乾燥・粉碎したものであるが、機械的強度が比較的高い粒子を製造するには操作条件の微妙な調整が必要であることが知られていた。4群群分離試験のため入手したチタン酸は粒子の機械的強度が低く、これをNUCEFの群分離試験装置で用いるカラムに詰めて通液したところ、生成した微粒子によりカラム出口の焼結金属フィルタが目詰まりを起こした。そこで、有機物バインダで造粒したチタン酸(樹脂成形チタン酸)を使用することとし、この樹脂成形チタン酸の吸着性能について実験を行った。その結果、樹脂成形チタン酸は、粒子の機械的強度は十分高いが、以前のチタン酸と比べてSrの分配係数は低く、吸着平衡に達するまでの時間も長いことがわかった。しかし、使用前に十分水洗することによって吸着速度をある程度速めること可能であることを明らかにした⁸⁶⁾。

Table 3 NUCEFにおける群分離試験

| 実施年月 | 試験名称 | スタート液 | | 備 考 |
|----------------------|--------------------|-------|-------------------------|---|
| | | 模擬廃液 | 実廃液 | |
| 1995.6.- 1996.1. | 第1回コールド試験 | 2L | - | |
| 1996.4.- 1996.6. | 第2回コールド試験 | 2L | - | 第1回試験より いくつかの改良 |
| 1997.9.- 1997.12. | セミホット試験 | 2L | 2.7×10^7 Bq | ^{99}Tc 3.7×10^8 Bq 及び $^{95\text{m}}\text{Tc}$ 1.5×10^6 Bq を添加 |
| 1998.6.- 1999.3. | 第1回ホット試験 | - | 3.7×10^{11} Bq | 元素濃度はセミホット 試験と比べ 約1/100 |
| 1999.8.- 2000.5. | 第2回ホット試験 (実証試験) | - | 5×10^{12} Bq | 濃縮高レベル廃液 |

(2) 第2回コールド試験

第2回コールド試験の最も重要な目的は、元素分離挙動について、後に行う実高レベル廃液による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の結果

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。

濃縮廃液相当の模擬高レベル廃液2Lを用いて行った試験の結果は以下のようである^{87),88)}。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DIDPAによる抽出工程の試験では、Am, Cmと挙動がほぼ同じであるNdの抽出率として99.99%以上、4M硝酸による逆抽出での回収率として99%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では、白金族元素の沈殿率として約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、今後は、活性炭吸着法を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こととした。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。

(3) セミホット試験

セルでの群分離試験に先立ち、模擬廃液にマクロ量のTc-99(0.015M)及びTc-95mを添加した試料を用いて、フードにおけるフラスコスケールの小規模実験により、4群群分離プロセスにおけるTcの挙動を調べた⁸⁹⁾。その結果、前処理工程での沈殿物へのロスは0.4%程度、DIDPA抽出工程では抽出割合が0.07%と低く、98%以上のTcを脱硝沈殿法により分離できた。これらの結果は、トレーサー量のTcで行ってきた従来のデータとほぼ一致し、マクロ量のTcにおいても、その分離回収を確認した。

セル内群分離試験装置によるセミホット試験では、模擬高レベル廃液にトレーサー量の実高レベル廃液とTc-99及びTc-95mを添加した溶液を使用し、放射性核種の挙動把握を中心に試験した^{87),88)}。本試験は、放射線レベルは低いが元素濃度が実プロセスで想定しているものにほぼ近いという点が特徴的で、この条件で分離対象元素として重要なAm, Tc及びCsの分離挙動を確認することが本試験の主たる目的である。試験の結果、抽出分離工程では、99.99%以上のTc及びCsを水相に残した上で、99.99%以上のAmを抽出でき、4M硝酸により99.92%のAmを溶媒より逆抽出できた。この逆抽出率は段数の増加或いは加温により容易に改善できる。また、脱硝沈殿工程では、Tcの沈殿率として96.6%が得られた。

(4) 第1回及び第2回ホット試験

NUCEFのプロセスセル内に設置した群分離試験装置を用いた実高レベル廃液による4群群分離プロセスの試験として2回のホット試験を実施した。第1回ホット試験⁸⁹⁾⁻⁹¹⁾では、同じセル内の再処理試験施設における、燃焼度8000MWd/tの使用済燃料の再処理試験で発生したPurexプロセス共除染工程のラフィネート約2L(370GBq)を濃縮せずそのまま用いた。第2回ホット試験では、燃焼度29,000MWd/tの使用済燃料の再処理試験で発生した共除染工程ラフィネート約12.5L(5TBq)を濃縮した上で使用した。ここでは、実証試験と位置付けられる濃縮高レベル廃液を用いた第2回ホット試験の結果を述べる。

第2回ホット試験では、初めに、加熱-脱硝-ろ過-濃縮-脱硝-ろ過-コロイド除去の操作で上記共除染工程ラフィネート約12.5Lを濃縮・調製・前処理した。この操作で99%のZrを沈殿として除去することができ、前処理の目的の一つを達成した。上記操作はこれまでの前処理法改善についての検討結果を活かしたもので、生じた沈殿をすべて易ろ過性とすることができた。また、

Am, La, Eu, Srの沈殿は観察されず、コロイドの存在しない抽出工程へ供給可能な濃縮高レベル廃液を調製することができた。一方、無視できない量のCsがコロイド除去工程で沈殿した。これは、操作条件の検討が不十分であったために、コロイドを沈殿させるためのMoを大過剰に加えてしまったことが原因である。溶液中に残留するZrの量にあわせて適切な量のMoを加えなければならないことは、以前の試験⁸⁾でも観察されていた。コロイド除去工程の操作には十分な注意が必要である。

TRU分離のためのDIDPAによる溶媒抽出工程の試験においては、Am, Cmについて、99.998%以上が抽出され、99.98%が4M硝酸により逆抽出された。Fig. 6に、実証試験における、抽出(7段)、洗浄(4段)及び4M硝酸による逆抽出(5段)を含む第1ミキサーを示す。Table 4に3つのフラクションへの元素移行率の結果を示す。なお、本試験では、逆抽出のための4M硝酸の流量を本来の100ml/hから160ml/hに上げている。これは、次のシュウ酸による逆抽出工程におけるNp及びPuの分析限界を下げるため、Am及びCmを可能な限りここで除去しようとしたためである。先にも述べたが、4M硝酸による逆抽出におけるAm, Cmの回収率向上は、段数増もしくは加温により達成されるべきものである。

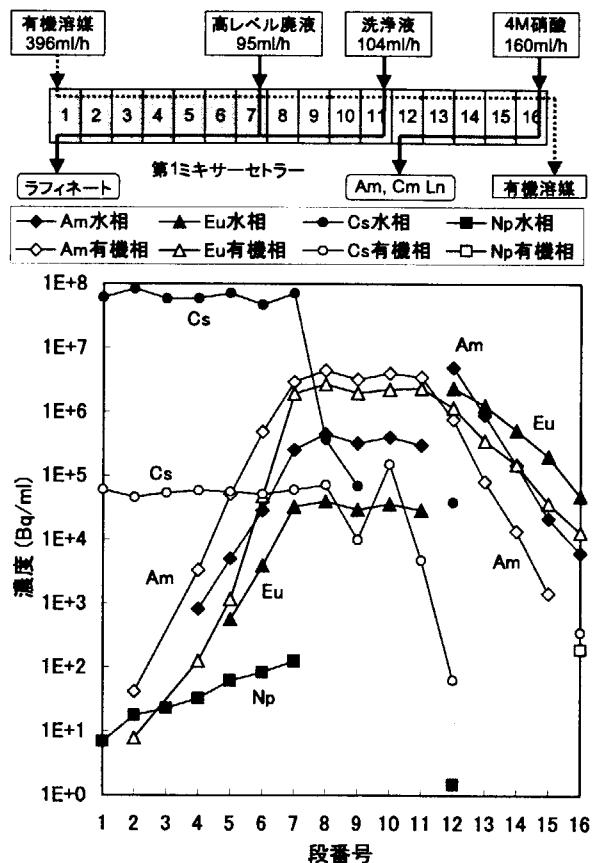


Fig. 6 第2回ホット試験(実証試験)抽出工程における第1ミキサーの操作条件と試験の結果得られた放射性核種の濃度分布
有機溶媒 : 0.5M DIDPA - 0.1M TBP - n-ドデカン
洗浄液 : 0.5M HNO₃ - 1.0M H₂O₂
高レベル廃液硝酸濃度 : 0.49M

Table 4 第2回ホット試験(実証試験)抽出工程における第1ミキサーでの各フラクションへの元素移行率(%)

| 元素 | ラフィネート | 逆抽出液 | 有機溶媒 |
|----|---------|--------|-------|
| Am | < 0.002 | 99.986 | 0.012 |
| Cm | < 0.001 | 99.984 | 0.015 |
| Eu | < 0.004 | 98.7 | 1.3 |
| Np | 1.8 | 0.3 | 97.9 |
| Cs | 99.95 | 0.05 | 0.01 |

Npの抽出率は98.2%だったが、これは、本試験での操作条件がNpの高回収率での分離に必要な条件を満たしていなかったためである。以前に行ったNpを添加した模擬廃液によるNp抽出試験^{36,37)}の結果と今回の試験結果とでは、Npの抽出挙動に差がなく、従って、実廃液からの分離においても最適な抽出条件とすれば、以前のNp抽出試験で得られた99.95%以上という高回収率が達成できると結論した^{90,91)}。Fig. 7に最適抽出プロセス条件を示す。

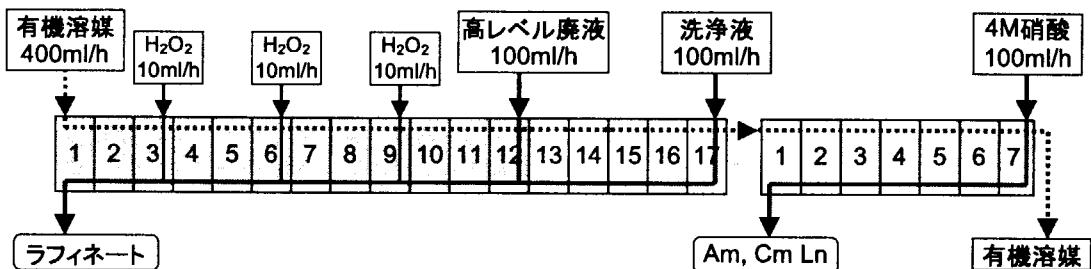


Fig. 7 DIDPA抽出分離プロセスにおける抽出工程及び
4M硝酸による逆抽出工程の最適操作条件

第2ミキサーセトラー(16段)で試験した0.8Mシュウ酸による逆抽出工程においては、Npの99.93%以上、Puの99.98%以上が逆抽出された。Table 5に2つのフラクションへの元素移行率の結果を示す。以上の結果よりDIDPA抽出プロセスの有効性、TRU分離性能が実証された。

なお、第2サイクルのDTPAを用いたAm, Cmとランタノイドとの分離工程については、試験装置がなく実廃液では試験することができなかった。

Table 5 第2回ホット試験(実証試験)抽出工程における第2ミキサーセトラーでの各フラクションへの元素移行率(%)

| 元素 | 逆抽出液 | 有機溶媒 |
|----|---------|--------|
| Np | > 99.93 | < 0.07 |
| Pu | > 99.98 | < 0.02 |
| Am | 99.985 | 0.015 |
| Cm | 99.996 | 0.004 |
| Eu | 88.1 | 11.9 |

実証試験におけるTc-白金族元素分離のための脱硝沈殿工程の試験では、抽出工程ラフィネートに対し、濃縮-脱硝-ろ過-中和-ろ過の操作を加え、その結果、白金族元素の沈殿率として、脱硝後(pH2.8)で Ru 42%, Rh 90%, Pd 97%、中和後(pH6.7)で Ru, Rh及びPdの3元素いずれも99%以上という値を得た。即ち、高レベル廃液からの白金族元素の一括分離を初めて実証した。一方、Srの一部が共沈したが、これに対処するため、0.01M硝酸を用いる沈殿からのSrの選択的溶出法を開発した。この方法によれば、白金族元素を沈殿として残したままSrを選択的に溶出可能である。第2回ホット試験においても0.01M硝酸による沈殿の洗浄を試みたが、十分なSr溶出は

得られなかつた。これは使用した装置ではそれを想定していなかつたので、溶出液と沈殿とが十分に接触できなかつたためであると推定される。実際の装置の設計では工夫が必要である。

無機イオン交換体によるSr及びCsの吸着分離工程では、Sr及びCsの除染係数として10⁴及び10⁶以上という高い値を得た。なお、本実証試験では、チタン酸としてSrTreat®(フィンランドSelion社)^{92),93)}を使用した。この吸着剤は、供給液中のNa濃度を0.1M以上としなければならないが、吸着容量が大きく、十分速い吸着速度を示す。また、群分離試験装置で使用可能な粒子の機械的強度を持つ。なお、ここでSrは、Sr-90と放射平衡にある娘核種のY-90をDIDPA抽出法によって他のβ放射性核種から分離した後にその崩壊を観測することによって定量した。

以上、濃縮実高レベル廃液を用いた群分離試験により、4群群分離プロセスの元素分離性能を実証することができた。ここでは、濃縮高レベル廃液を使用した点、及び超ウラン元素分離-Tc-白金族元素分離-Sr-Cs分離を一連の操作で確認した点が重要であり、想定どおりの元素分離を確認できた。模擬廃液試験と実廃液試験との間で、元素分離挙動の違いは観察されず、元素化学形の違いはない、もしくはあっても4群群分離プロセスにおいては影響しないと結論できる。また、遠隔操作上の問題は特になく、放射線の元素分離に及ぼす影響も特に観察されなかつた。以上、NUCEFの群分離試験装置を最大限に活用し、当初目的を達成することができた。

4.6 4群群分離プロセスのプロセス規模の評価

開発した4群群分離プロセスの評価の一環として、高レベル廃液の処理に4群群分離プロセスを適用した場合の溶液取扱量及びプロセス規模について解析評価した^{94),95)}。なお、もう一つの重要な評価項目である4群群分離プロセスから発生する廃棄物の種類、組成、発生量については別途報告する。

プロセス規模評価の基準は、これまで用いてきた燃焼度33,000MWd/tの使用済燃料(SF) 1ton(初期U量として)の再処理によって発生する高レベル廃液と、現時点より現実的な燃焼度45,000MWd/tのSF 1tonからの高レベル廃液の2種とした。再処理までの冷却期間はいずれも5年とし、高レベル廃液中の元素量は文献96の値を用いた。

(1) DIDPA抽出プロセスの規模

抽出プロセスの規模は、取扱い液量と段数で決定される。取扱い液量は、使用する溶媒の抽出容量が支配因子となって決定される場合がほとんどである。DIDPA抽出の場合、エマルジョンを生成しない有機相中の元素限界濃度から溶媒の必要量が求められる。DIDPA抽出プロセスの第1サイクルでは、5.3節で示した次式のエマルジョンが生成しない各元素の濃度とDIDPA濃度との関係、及び溶媒中のDIDPA濃度は0.5Mとするという条件より、SF 1tonからの高レベル廃液を処理するのに必要な溶媒量が決定できる。

$$(DIDPA) = \{(Am + Cm + ランタノイド) \times 8 + (U + Np + Pu) \times 6 + (Fe + Y) \times 20 + (Zr + Mo) \times 4\} \times 1.25$$

また、第2サイクルについてはDTPAによる逆抽出工程においてエマルジョンが生成しない限界濃度から必要溶媒量が求められる。以上を評価した結果、33,000MWd/tの場合で、第1サイクル3.0m³、第2サイクル4.0m³の溶媒が必要なことがわかつた。水相の取扱い液量は、抽出プロセスとして最適な有機相/水相比より求められる。以上の結果とこれまでに決定されている各ステッ

プロセスの必要段数とを合わせて、Fig. 8に、DIDPA抽出プロセスの規模を視覚的に示す。この図で、抽出装置(ミキサーセトラーを想定)を表す太線の長方形は、縦の長さを有機相及び水相の流量の和に、横の長さを段数(長方形内の数値)に、それぞれほぼ比例するように描いた。DIDPA抽出分離プロセスでは、DTPAによるAm, Cmの逆抽出工程が最も規模の大きいステップであることがわかる。

45,000MWd/tの場合では、SF 1tonからの高レベル廃液を処理するのに必要な溶媒量は、第1サイクル 3.4m³、第2サイクル 5.5m³と評価された。33,000MWd/tの場合と比較すると、それぞれ13.3%及び37.5%の増加である。第1サイクルフィード液は 0.85m³、第2サイクルフィード液は 1.38m³となる。

(2) 抽出工程以外の4群群分離プロセスの各工程における取扱い液量

前処理工程では、抽出工程へのフィード液と同一元素濃度、同一液量を取り扱うのが最も自然で無駄がないと考えられる。Tc-白金族元素分離のための脱硝沈殿工程では、脱硝前に硝酸濃度が2M程度となるまで濃縮することとしており、抽出工程ラフィネート(抽出反応に伴うイオン交換反応により硝酸濃度は0.70Mに増加している) 1.65m³を 0.57m³まで濃縮するのが適当である。吸着工程では脱硝沈殿工程のろ液 0.57m³をそのままフィード液とする。これらをまとめて、33,000MWd/tの場合の評価結果としてFig. 9に示す。

(3) 再処理プロセスとの比較

再処理ピューレックスプロセスに関して、取扱い液量或いは各溶液の流量を定量的に評価した結果を明確に示す公開文献はない⁹⁷⁾。そこで日本原燃(株)による六ヶ所再処理工場についての再処理事業指定申請書⁹⁸⁾を詳細に吟味して、単位量の使用済燃料を処理するのに必要な各種溶液の取扱量を推定した。その結果をFig. 10に示す。この図に示す取扱い液量推定値は、あくまで目安値であるが、塙田らの評価結果⁹⁷⁾とほぼ一致した。

以上の4群群分離プロセス及びピューレックスプロセスにおける使用済燃料1ton当たりの取扱い液量を比較するとTable 6のようにまとめられる。また、この比較を視覚的に示すとFig. 11となる。4群群分離プロセスでの取扱い液量はピューレックスプロセスでのそれの33,000MWd/tの場合で約30%、45,000MWd/tの場合約35%であると言えよう。取扱い液量の大きさは廃液処理工程の規模にも直接的に結びつき、その比較はプロセス全体の規模の比較と大きくは違わないと考えられる。即ち、4群群分離プロセスの規模は、再処理プロセスの規模の30~35%と推定されるということが本評価の結論である。

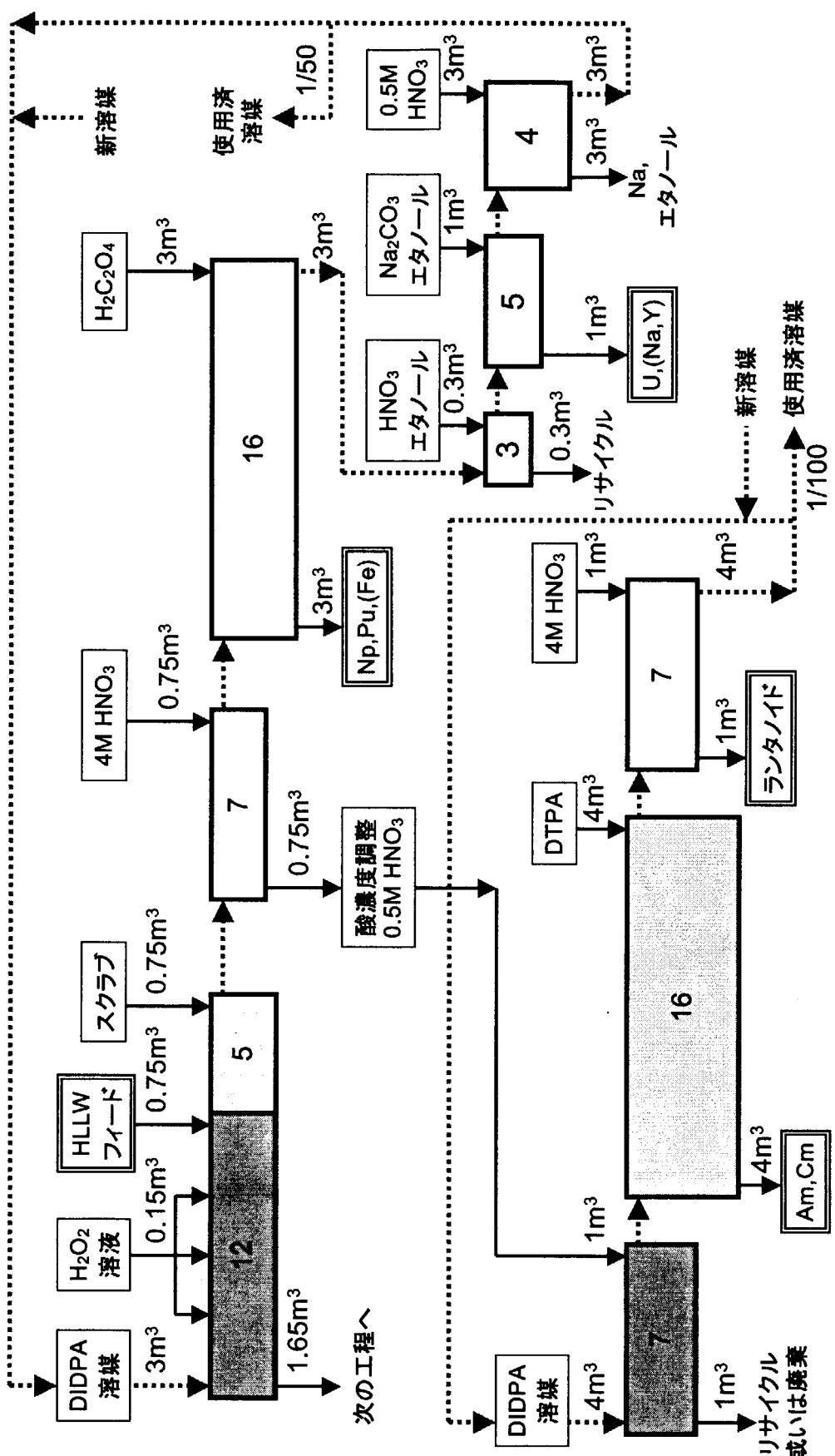


Fig. 8 DIDPA抽出プロセスの規模

図中の数値：軽水炉使用済燃料(33,000MWd/t) 1tonより発生する高レベル廃液を処理する際の取り扱い液量
太線の長方形は抽出装置を表し、その大きさは、縦が流用量に、横が段数に比例させてある。長方形内の数値は段数を表す。

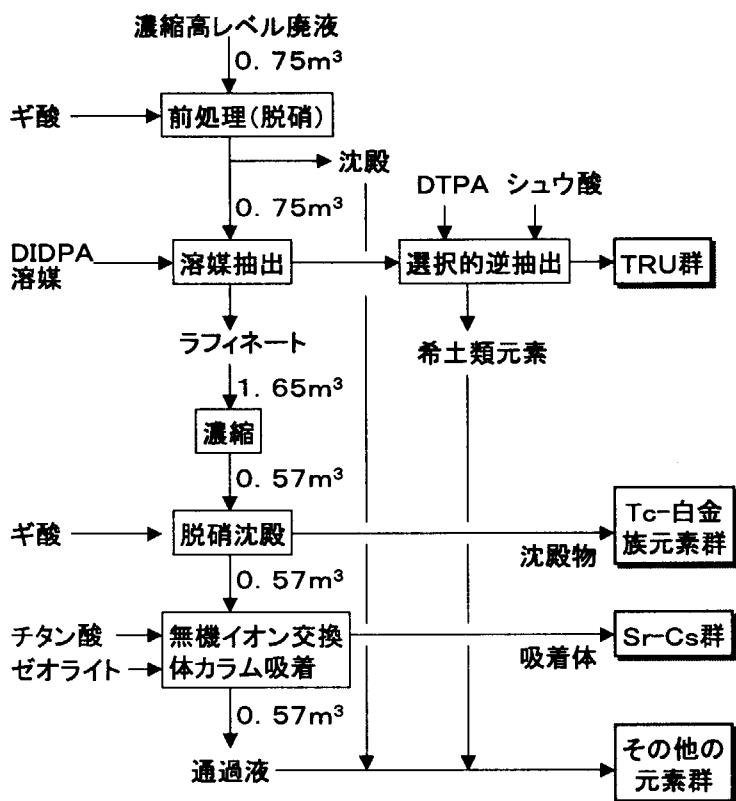


Fig. 9 4群群分離プロセス主工程における、33,000MWd/tの
使用済燃料1tonより発生する高レベル廃液を処理する
際の取扱い液量

Table 6 ピューレックスプロセスと4群群分離プロセスでの取扱い液量(m³)の比較

| 工程 | ピューレックス プロセス | 4群群分離プロセス | | | |
|-------|------------------|------------------------|------|---------------|------|
| | | (33,000MWd/t) | 比 | (45,000MWd/t) | 比 |
| 前処理 | 4 (溶解) | 0.75 (脱硝等) | 19% | 0.85 | 21% |
| 抽出 溶媒 | 26 | 7 | 27% | 8.7 | 33% |
| 水相 | 50.5 | 15.7 | 31% | 19.3 | 38% |
| 濃縮 | 16.5→3 (U精製前) | 1.65→0.57 (脱硝沈殿工程前) | <10% | 1.87→0.65 | <11% |
| 脱硝 | — | 0.57 (Tc沈殿) | — | 0.65 | — |
| 吸着 | — | 0.57 | — | 0.65 | — |

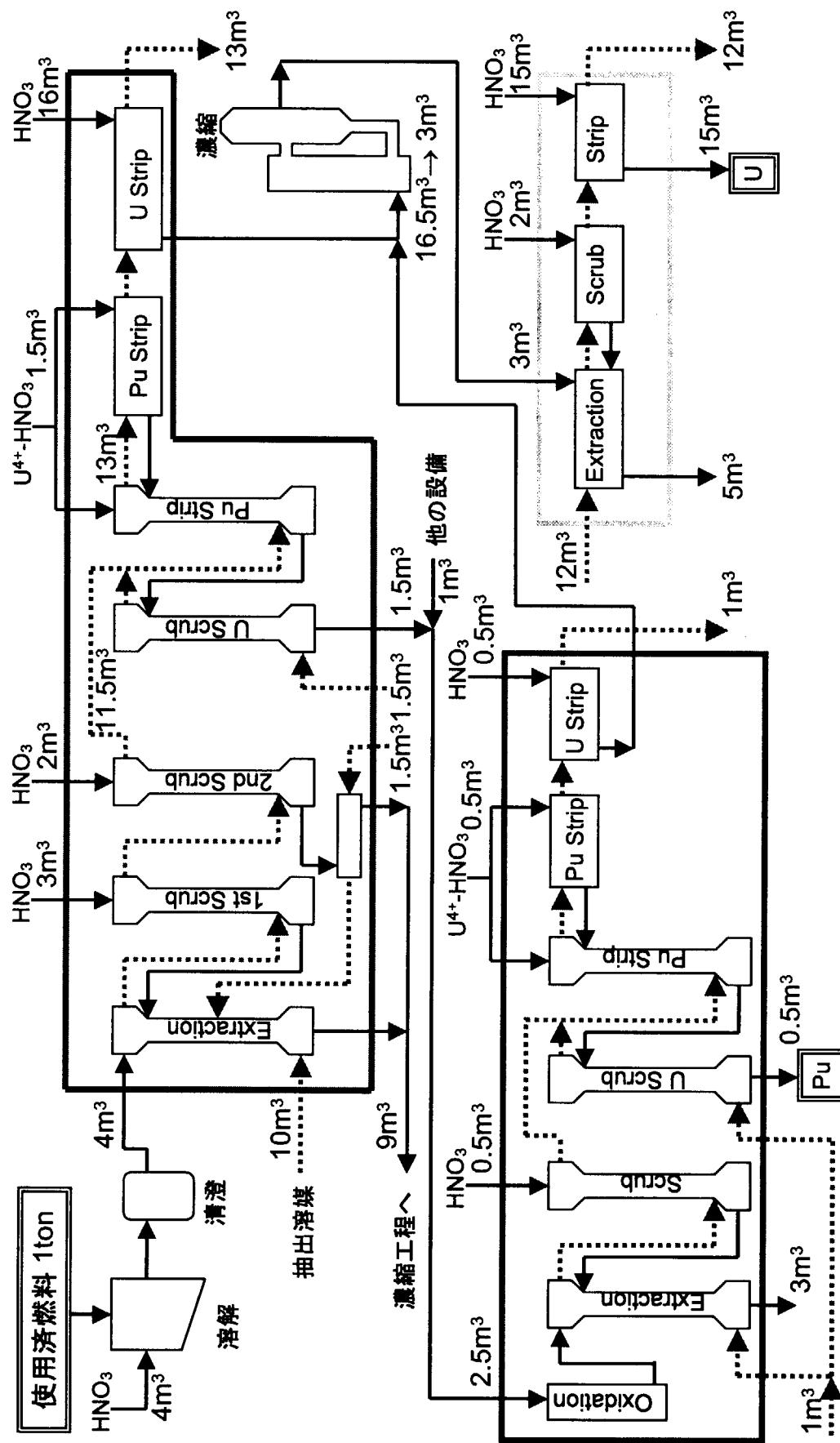


Fig. 10 再処理ピューレックスプロセスにおける使用済燃料1ton当たりの取扱い液量の推定値

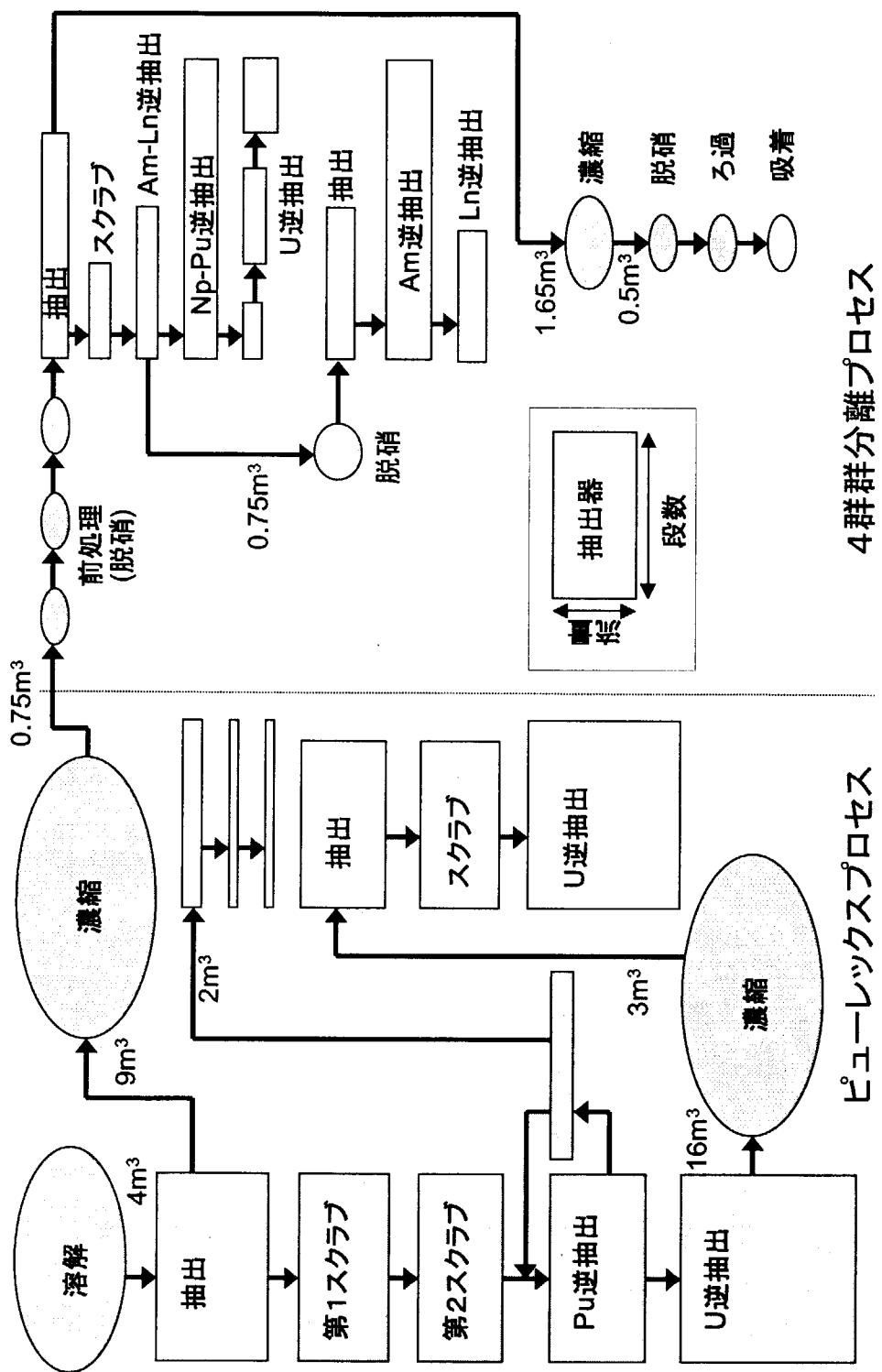


Fig. 11 再処理ピューリングプロセスと4群群分離プロセスの規模の比較

5. まとめと今後の展望

以上の群分離プロセス研究開発の結果、高レベル廃液中の元素を超ウラン元素群、Tc-白金族元素群、Sr-Cs群及びその他の元素群に分離する4群群分離プロセスについて、実際の濃縮高レベル廃液試験により元素分離性能を実証し、主工程は完成の段階へ到達した。今後さらに研究開発を実施するに当たっては、オメガ計画チェック・アンド・レビュー⁹⁹⁾でも指摘されたように、経済性向上と二次廃棄物発生量低減が要点である。4群群分離プロセスでは、濃縮高レベル廃液を対象とすることでプロセス規模の縮小ひいては経済性向上を図っているが、一方で工業的には経済性を悪化させる可能性の高い「沈殿取扱い工程」が必要となっている。

超ウラン元素の抽出分離前の沈殿生成を回避する方法としては、抽出法により沈殿構成元素であるZr及びMoを予め除去する方法、及び高レベル廃液の硝酸濃度を低下させずに超ウラン元素を抽出分離する方法が考えられる。前者に関しては、これまでにDIDPA抽出法の適用^{48),49)}及び中性ホスフィン系抽出剤の適用¹⁰⁰⁾を検討した。後者に関しては、原研において超ウラン元素に対し高い抽出能力を示し、ドデカンに溶解可能な三座配位の抽出剤であるN,N,N',N'-tetraoctyl-3-oxapentanediamide (tetraoctyldiglycolamide, TODGA)が開発され、プロセス開発が開始された段階にある^{101)~105)}。このTODGA抽出分離プロセス開発の進展が大いに期待されるが、いずれにおいても、沈殿生成回避という考え方の一貫性を保つため、高レベル廃液を濃縮するとしてもある限度があって、抽出プロセスとしてはDIDPA抽出プロセスと比べて規模が大きくなる可能性が高い。これと沈殿生成回避という利点とを考慮して、真に経済性向上となるかを十分に評価しなければならない。なお、TODGA抽出法には、DIDPA法のようなリン酸塩廃棄物の発生がないという利点もある。

経済性向上に結びつく抽出分離プロセスの合理化策としては、Am, Cmとランタノイドとの分離工程の効率化、合理化も重要である。本分離工程に対する現在の世界的動向は、いわゆるソフトドナー系抽出剤適用によるAm, Cmの選択的抽出である¹⁰⁶⁾。原研においても検討が進められており、今後の更なる進展が望まれる。

上記とはレベルの異なる事項ではあるが、抽出分離プロセスの開発研究に当たって実験装置としての遠心抽出器の利用は非常に有効である。溶液インベントリーが少なく、実験をより効率的に進めることができる。かつて筆者の一人が在外研究員としてヨーロッパ超ウラン元素研究所に滞在した際には遠心抽出器を用いたDIDPA抽出分離プロセスの実廃液試験を実施し¹⁰⁷⁾、その有効性を確認している。

Tc-白金族元素の分離に関しては、4群群分離プロセスにおける脱硝沈殿法は、Tc及び白金族元素の一括分離が可能でかつTcの白金族元素からの分離が容易で、二次廃棄物の発生がないという利点を持つ非常に効率的な分離法であると考える。今後の課題としては、共沈するSrの溶出法のプロセスとしての成立性検討、Tcの高純度化が挙げられ、さらに、もしも前の工程が変更された場合には本工程の対象溶液の組成変化への対応策の検討が必要となる。・

Sr-Csの分離では、これまで混合無機イオン交換カラムによる一括分離を検討してきた。しかし、SrとCsでは、Csが長半減期核種のCs-135を含むのに対して、Srではこれがないという違い

があり、処分に際しては別の固化体として別の形で処分することが処分の合理化につながる可能性があるとの指摘がある¹⁰⁸⁾。現状のSrをチタン酸で、Csをゼオライト(モルデナイト)でそれぞれ吸着分離する方法であっても、別に分離することは可能である。この場合、ゼオライトによるCsの吸着を先に行なうことが適当で、供給液としては硝酸濃度0.5Mの溶液が適用できる¹⁰⁹⁾。さらに、新しい無機イオン交換体の適用による酸性媒体からのSr及びCsの分離と固化について検討も進められており¹¹⁰⁾、これをとおしてSr-Csの分離一固化プロセスの合理化を図る考えである。

上記の処分システムの合理化は、以前から指摘されていたことではあるが、今後の研究開発のもう一つの要点である。より具体性を持って評価すること、分離変換システム全体にわたって廃棄物を評価すること¹¹¹⁾が重要であり、処分システム合理化が示されることで群分離さらには分離変換システムの有効性が明確になり、実現へ向けての動きをより活発なものにできると考えられる。

以上のような観点をもとに、今後も継続して群分離プロセスの研究開発を進めることが肝要である。

謝 辞

群分離の研究開発は、多くの方々に支えられてきた。本レポートに記載した成果は、群分離研究室に所属された多くの職員及び出向でいらした方々の大いなる貢献によるものである。ここに深く感謝申し上げる。

引用文献

1. 日本原子力産業会議 核分裂生成物等総合対策懇談会：“放射能クローズドシステムの構想”(1973).
2. 原子力委員会 放射性廃棄物対策専門部会，“群分離・消滅処理技術研究開発長期計画”(昭和63年10月11日)(1988).
3. S. Tachimori, A. Sato, H. Nakamura : “Extraction of Lanthanoids(III) with Di-isodecyl Phosphoric Acid from Nitric Acid Solution”, J. Nucl. Sci. Tech., **15**, 421 (1978).
4. S. Tachimori, A. Sato, H. Nakamura : “Separation of Transplutonium and Rare-Earth Elements by Extraction with Di-isodecyl Phosphoric Acid from DTPA Solution”, J. Nucl. Sci. Tech., **16**, 434 (1979).
5. S. Tachimori, H. Nakamura : “Extraction of Some Elements by Mixture of DIDPA-TBP and Its Application to Actinoid Partitioning Process”, J. Nucl. Sci. Tech., **19**, 326 (1982).
6. M. Kubota, H. Nakamura, S. Tachimori, T. Abe, H. Amano : “Removal of Transplutonium Elements from High-Level Waste”, IAEA-SM-246/24 (1981).
7. S. Tachimori, H. Nakamura, A. Sato : “A Study of Radiation Effects on the Extraction of Americium(III) with Acidic Organophosphates”, J. Radioanal. Chem., **50**, 143 (1979).
8. S. Tachimori, H. Nakamura : “Radiation Damage of Organic Extractant in Partitioning of High-Level Liquid Waste, (II)”, J. Nucl. Sci. Tech., **16**, 363 (1979).
9. 久保田、山口、中村、館盛、佐藤;：“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”, JAERI-M 9627 (1981).
10. M. Kubota, Y. Konami, H. Nakamura, H. Amano : “Radiation Stability of Macro-Porous and Gel-Type Cation Exchangers”, J. Radioanal. Chem., **45**, 73 (1978).
11. 久保田、山口、中村、岡田、水野：“群分離法の開発－無機イオン交換体カラム法によるSr-90およびCs-137を含む廃液の処理法の開発”, JAERI-M 82-144 (1982).
12. 森、山口、久保田：“群分離法の開発：チタン酸、ゼオライトと混合交換体カラムのSr、Csイオンに対する動的吸着特性”, JAERI-M 86-013 (1986).
13. 久保田、深瀬：“放射性物質含有液の処理方法”, 特許出願S53-26170(1978.3.8), 特許公開S54-118998 (1979.9.14), 特許第1342216号, 特許概要:高レベル廃液の酸濃度をpH 0.5に調整することによってMo、Zr又はTeを沈殿として分離することを特徴とする高レベル廃液の処理方法。
14. 山口、久保田：“硝酸及び/または硝酸イオンの分解法”, 特許出願S52-034924 (1977.3.29), 特許公開S53-120100(1978.10.20), 特許第1394061号, 特許概要:高レベル廃液の脱硝操作において、急激な反応によるガスの一時的な発生を制御する方法として、亜硝酸イオンをあらかじめ添加することを特徴とする硝酸及び硝酸イオンの分解法。
15. H. Nakamura, I. Yamaguchi, M. Kubota : “Effect of Platinum Group Elements on

- Denitration of High-Level Liquid Waste with Formic Acid", J. Nucl. Sci. Technol., 15, 760 (1978).
16. M. Kubota, I. Yamaguchi, H. Nakamura : "Effects of Nitrite on Denitration of Nuclear Fuel Reprocessing Waste with Organic Reductants", J. Nucl. Sci. Technol., 16, 426 (1979).
 17. M. Kubota, T. Fukase : "Formation of Precipitate in High-Level Liquid Waste from Nuclear Fuel Reprocessing", J. Nucl. Sci. Technol., 17, 783-790 (1980).
 18. 久保田、山口、岡田、森田、中村：“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”，JAERI-M 83-011 (1983).
 19. 山口、久保田、岡田、森田、中村：“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”，JAERI-M 84-070 (1984).
 20. M. Kubota, I. Yamaguchi, K. Okada, K. Nakano : "Partitioning of High-Level Waste as Pretreatment in Waste Management", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 26, 551 (1984).
 21. M. Kubota : "Decomposition of Cation Exchange Resin with Hydrogen Peroxide", J. Radioanal. Chem., 78, 295 (1983).
 22. 久保田、四方：“イオン交換樹脂の分解法”，特許出願S55-75865(1980.6.5), 特許公開S57-14446 (1982.1.6), 特許概要: 鉄イオン及び/またはクロムイオンと過酸化水素とを共存させることからなるイオン交換樹脂の分解法。
 23. M. Kubota : "Decomposition of Oxalic Acid with Nitric Acid", J. Radioanal. Chem., 75, 39 (1982).
 24. 久保田、山口：“シュウ酸及び/または硝酸の分解法”，特許出願S55-30910(1980.3.13), 特許公開S56-129079(1981.10.8), 特許概要: 硝酸及びマンガンイオンを共存させ加熱することでシュウ酸を分解する、或いはシュウ酸及びマンガンイオンを共存させ加熱することで硝酸を分解することを特徴とするシュウ酸及び/または硝酸の分解法。
 25. M. Kubota, K. Okada, I. Yamaguchi, Y. Morita : "Immobilization of Strontium and Cesium Using Hydrous Titanium Oxide and Zeolite", J. Radio. Waste Manag. and Nucl. Fuel Cycle, 7, 303-316 (1986).
 26. 久保田、中村：“高レベル廃液群分離技術の研究開発の成果と将来計画”，JAERI-M 85-066 (1985).
 27. 中野、久保田、中村：“群分離法の有効性評価－高レベル廃棄物の地層処分における環境影響（共同研究成果報告）”, JAERI-M 84-123 (1984).
 28. Y. Morita, M. Kubota : "Behavior of Neptunium in the Chemical Process of Partitioning Long-Lived Radionuclides from High-Level Waste", J. Nucl. Sci. Technol., 22, 658 (1985).
 29. 久保田、森田：“ネプツニウムの分離方法”，特許出願S59-152077(1984.7.24), 特許公開S61-30799 (1986.2.13), 特許概要: 抽出溶媒としてジイソデシルリン酸を使用することを特徴とするネプツニウムの分離方法。
 30. Y. Morita, M. Kubota : "Extraction of Pentavalent Neptunium with Di-isodecyl phosphoric Acid", J. Nucl. Sci. Technol., 24, 227 (1987).

31. 森田、久保田：“ネプツニウムの分離方法”，特許出願S62-48754(1987.3.5)，特許公開S63-218510 (1988.9.12)，特許第2561831号，特許概要：ジイソデシルリン酸などの酸性リン酸エステル系抽出剤を使用するネプツニウムの抽出法において、抽出系に過酸化水素を共存させることを特徴とするネプツニウムの分離方法。
32. Y. Morita, M. Kubota : "Extraction of Neptunium with Di-isodecyl Phosphoric Acid from Nitric Acid Solution containing Hydrogen Peroxide", Solv. Extr. Ion Exch., **6**, 233 (1988).
33. Y. Morita, M. Kubota, M. Yoneya, O. Tochiyama, Y. Inoue : "Influence of Monoisodecyl Phosphoric Acid on Extraction of Neptunium with Diisodecyl Phosphoric Acid", J. Nucl. Sci. Technol., **26**, 698 (1988).
34. Y. Morita, M. Kubota, Y. Shin : "Radiolysis of Diisodecyl Phosphoric Acid and Its Effect on the Extraction of Neptunium", Solv. Extr. Ion Exch., **8**, 529 (1990).
35. 谷、森田、久保田：“群分離法の開発：DIDPAによるネプツニウムの連続抽出及びシュウ酸による連続逆抽出”，JAERI-M 90-023 (1990).
36. Y. Morita, S. Tani, M. Kubota : "Separation of Neptunium from High-Level Waste by Extraction with Diisodecyl Phosphoric Acid", Solvent Extraction 1990 (Proc. of ISEC'90), T. Sekine (Ed.), Elsevier, Part A, p.585 (1992).
37. Y. Morita, S. Tani, M. Kubota : "Separation of Transuranic Elements from High-Level Waste by Extraction with Diisodecyl Phosphoric Acid", Proc. of the 3rd Int. Conf. on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (RECOD'91), April 14-18, 1991, Sendai, Japan, Vol.1, p.348 (1991).
38. 谷、森田、久保田：“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元素の挙動(連続操作実験における検討)”，JAERI-M 90-168 (1990).
39. 渡邊、森田、久保田：“群分離法の開発：DIDPAによる鉄、ラントノイドの抽出挙動と第三相生成”，JAERI-Research 99-001 (1999).
40. 森田、久保田：“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”，JAERI-M 89-139 (1989).
41. 須郷、山岸、久保田：“ジイソデシルリン酸抽出系における鉄による第三相の生成”，JAERI-Research 97-091 (1997).
42. 須郷、山岸、久保田：“ジイソデシルリン酸／鉄抽出系で生じる第三相の抑制－還元剤及び錯化剤の添加”，JAERI-Research 97-090 (1997).
43. 久保田(和)、森田、久保田：“群分離法の開発：DIDPA 溶媒中のアクチニドの逆抽出挙動”，JAERI-M 88-028 (1988).
44. 龍ヶ江、白橋、久保田：“群分離法の開発：DIDPA溶媒からのウランの逆抽出法”，JAERI-Research 95-011 (1995).
45. 渡邊、龍ヶ江、高田、森田、久保田：“群分離法の開発：炭酸ヒドラジンによるアクチノイド及びラントノイドの逆抽出”，JAERI-Research 99-034 (1999).
46. 渡邊、森田、久保田：“群分離法の開発：DIDPAの精製”，JAERI-Research 98-025 (1998).
47. 渡邊、森田、久保田：“ジアルキルリン酸の精製方法”，特許出願H10-88543(1998.4.1)，特許

公開H11-286495(1999.10.19), 特許概要：ジアルキルリン酸からメタノール、メタノール水溶液、又はアセトン溶液を用いて不純物であるモノアルキルリン酸を除去する方法。

48. K. Shirahashi, Y. Morita, M. Kubota : "Extraction Behavior of Molybdenum and Zirconium with Diiso-decylphosphoric Acid from Nitric Acid Solution", *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **185**, 173 (1994).
49. 白橋、森田、久保田：“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”, JAERI-Research 95-012 (1995).
50. 宮代、久保田：“群分離法の開発：シュウ酸沈殿法の基礎的検討”, JAERI-M 86-014 (1986).
51. 小林、森田、久保田：“群分離法の開発：シュウ酸による超ウラン元素の沈殿分離法”, JAERI-M 88-026 (1988).
52. 久保田、小林：“超ウラン元素の沈殿分離法”, 特許出願S62-253895(1987.10.9), 特許公開 H01-96019 (1989.4.14), 特許第2549532号, 特許概要:高レベル廃液から超ウラン元素をシ ウ酸塩として沈殿分離する操作において、予め廃液にアスコルビン酸又はヒドロキシルア ミンを共存させることを特徴とする超ウラン元素の沈殿分離方法。
53. 小林、白橋、久保田：“群分離法の開発：シュウ酸による超ウラン元素群の分離における他元 素の沈殿挙動”, JAERI-M 89-168 (1989).
54. M. Kubota, Y. Morita, R. Tatsugae, T. Fujiwara, Y. Kondo : "Development of Partitioning Process at JAERI", Proc. of the 3rd Int. Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, Dec. 12-14, 1994, Cadarache, France, OECD/NEA P&T Report No.13, p.394 (1995).
55. 近藤、藤原、森田、久保田：“群分離法の開発：群分離プロセスの化学工学的試験－溶媒抽出 工程試験装置による連続抽出試験”, JAERI-Tech 94-008 (1994).
56. M. Kubota, I. Yamaguchi, Y. Morita, Y. Kondo, K. Shirahashi, I. Yamagishi, T. Fujiwara : "Development of a Partitioning Process for the Management of High-Level Waste", Proc. of Int. Conf. and Technology Exhibition, Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options (GLOBAL '93), Sep. 12-17, 1993, Seattle, USA, Vol. 1, p.588 (1993).
57. Y. Morita, I. Yamaguchi, Y. Kondo, K. Shirahashi, I. Yamagishi, T. Fujiwara, M. Kubota : "Research and Development on the Partitioning Process at JAERI", IAEA-TECDOC-783, p.93 (1995).
58. Y. Morita, T. Fujiwara, K. Shirahashi, M. Watanabe, R. Tatsugae, M. Kubota : "Diisodecylphosphoric Acid, DIDPA, as an Extractant for Transuranium Elements", Proc. of Int. Conf. on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Systems (GLOBAL '95), Sep. 11-14, 1995, Versailles, France Vol. 2, p.1163 (1995).
59. M. Kubota : "Recovery of Technetium from High-Level Liquid Waste Generated in Nuclear Fuel Reprocessing", *Radiochimica Acta*, **63**, 91 (1993).
60. M. Kubota, I. Yamaguchi, Y. Morita, I. Yamagishi : "Separation of Technetium from High-Level Liquid Waste", *Radiochemistry*, **39**, 299 (1997).

61. 山口、久保田：“群分離法の開発：テクネチウムの回収法－その1”，JAERI-M 87-034 (1987).
62. 山口、久保田：“テクネチウムの回収法”，特許出願S60-231308(1985.10.18), 特許公開S62-93320 (1987.6.28), 特許概要：高レベル廃液にギ酸などの還元剤を添加し、加熱することによってテクネチウムを沈殿として回収する方法。
63. 山口、久保田：“テクネチウムの分離回収方法”，特許出願S61-132683(1986.6.10), 特許公開S62-292621(1987.12.19), 特許概要：高レベル廃液から脱硝により沈殿として分離した白金族元素を含むテクネチウムの沈殿から過酸化水素により選択的にテクネチウムを溶出する方法。
64. Y. Kondo, M. Kubota : “Precipitation Behavior of Platinum Group Metals from Simulated High-Level Liquid Waste in Sequential Denitration Process”, J. Nucl. Sci. Technol., **29**, 140 (1992).
65. I. Yamagishi, M. Kubota : “Separation of Technetium with Active Carbon”, J. Nucl. Sci. Technol., **26**, 1038 (1989).
66. 久保田、山口、山岸：“テクネチウムの吸着分離法”，特許出願S63-37625 (1988.2.22), 特許公開H01-215727(1989.8.29), 特許概要：高レベル廃液からのテクネチウムの分離に活性炭を吸着剤として使用することを特徴とするテクネチウムの吸着分離法。
67. I. Yamagishi, M. Kubota : “Desorption of Technetium from Active Carbon with Alkaline Thiocyanate Solution”, J. Nucl. Sci. Technol., **27**, 743 (1990).
68. 久保田、山岸：“活性炭からのテクネチウムの溶出方法”，特許出願S63-203765 (1988.8.18), 特許公開H02-54732(1990.2.23), 特許概要：チオシアノ酸イオン又はヨウ素イオンを含む溶液を用いて、テクネチウムを吸着させた活性炭からテクネチウムを溶出する方法。
69. I. Yamagishi, M. Kubota : “Recovery of Technetium with Active Carbon Column in Partitioning Process of High-Level Liquid Waste”, J. Nucl. Sci. Technol., **30**, 717 (1993).
70. 久保田、山岸：“テクネチウムの吸着分離方法”，特許出願S63-209436(1988.8.25), 特許公開H02-59433(1990.2.28), 特許概要：活性炭を使用するテクネチウムの吸着分離法において、チオシアノ酸又はチオシアノ酸イオンを共存させることを特徴とするテクネチウムの吸着分離方法。
71. 松村、近藤、久保田：“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”，JAERI-M 93-009 (1993).
72. 松村、近藤、山口、久保田：“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工学的規模でのろ過試験”，JAERI-M 93-010 (1993).
73. Y. Kondo, M. Kubota : “Formation and Filtration Characteristic of Solids Generated in a High-Level Liquid Waste Treatment Process. I. Solids Formation Behavior from Simulated High-Level Liquid Waste”, J. Radioanal. Nucl. Chem., **221**, 45 (1997).
74. Y. Kondo, M. Kubota : “Formation and Filtration Characteristic of Solids Generated in a High-Level Liquid Waste Treatment Process. II. Filtration Characteristic of Solids Formed in Simulated High-Level Liquid Waste”, J. Radioanal. Nucl. Chem., **221**, 53 (1997).

75. K. Shirahashi, M. Kubota : "Precipitation Behavior of Transuranium Elements during Denitration of High-Level Radioactive Liquid Waste by Formic Acid", *J. Nucl. Sci. Technol.*, **29**, 559 (1992).
76. Y. Kondo : "Development of a Safety Denitration Method to Remove Nitric Acid from Mixtures", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **240**, 123 (1999).
77. Y. Kondo : "Removal of Nitric Acid from a Simulated High-Level Liquid Waste by a Safe Chemical Denitration", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **242**, 505 (1999).
78. Y. Kondo : "Influence of Urea on Initiation and Termination Between Nitric Acid and Formic Acid", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **242**, 515 (1999).
79. 山口、龍ヶ江、森田、近藤、白橋、山岸、藤原、藤本、谷津、藤田、黒羽根、青山、久保田 : "群分離法の開発：NUCEF内に建設した群分離試験施設", *JAERI-Tech 94-030* (1994).
80. 山口、森田、近藤、山岸、藤原、渡辺、溝口、龍ヶ江、青山、久保田 : "群分離法の開発：NUCEF内群分離試験装置によるコールド試験(1)", *JAERI-Tech 96-009* (1996).
81. 森田、山口、藤原、溝口、久保田 : "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", *JAERI-Research 97-046* (1997).
82. Y. Kondo, M. Matsumura, M. Kubota : "Solid Formation in Simulated High-Level Liquid Waste of Relatively Low Nitric Acid Concentration", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **177**, 301 (1994).
83. Y. Kondo, M. Matsumura, M. Kubota : "Solid Formation Behavior During the Conditioning of Simulated High-Level Liquid Waste for Transuranic Elements Extraction", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **177**, 311 (1994).
84. 久保田、森田、山口、藤原 : "高レベル放射性廃液の処理方法", 特許出願 H08-242536(1996.8.27), 特許公開H10-68798(1998.3.10), 特許第2921506号(1999.4.30), 特許概要:高レベル廃液にリン酸、リン酸塩、モリブデン酸或いはモリブデン酸塩を添加し、コロイド或いは微細沈殿の状態にあるジルコニウムを沈殿として除去する方法。
85. 溝口、山口、森田、藤原、久保田 : "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－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", *JAERI-Research 97-071* (1997).
86. 溝口、山口、森田、山岸、藤原、久保田 : "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", *JAERI-Research 98-026* (1998).
87. 森田、山口、藤原、溝口、久保田 : "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", *JAERI-Research 2000-024* (2000).
88. Y. Morita, I. Yamaguchi, T. Fujiwara, H. Koizumi, M. Kubota; "The First Test of 4-Group Partitioning Process with Real High-Level Liquid Waste at NUCEF", The 2nd NUCEF Int. Symp., NUCEF'98, Nov. 16-17, 1998, Hitachinaka, Japan, *JAERI-Conf 99-004*, p.491 (1999).
89. 森田、溝口、山口、藤原、久保田; "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挙動の確認", *JAERI-Research 98-046* (1998).

90. Y. Morita, I. Yamaguchi, T. Fujiwara, H. Koizumi, M. Kubota; "The First Test of 4-Group Partitioning Process with Real High-Level Liquid Waste", Proc. of the Int. Conf. on Future Nuclear Systems (GLOBAL'99), Aug. 30 – Sep. 3, 1999, Jackson Hole, USA, (published in CD-ROM) (1999).
91. 森田、山口、藤原、小泉、久保田：“NUCEFにおける群分離プロセス実廃液試験”，第4回NUCEFセミナーワーキンググループ編、“第4回NUCEFセミナー講演報文集，2000年2月18日、東海研究所、東海村”，JAERI-Conf 2000-012, p.6 (2000).
92. J. Lehto, et al., Proc. 6th Int. Conf. Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Singapore, Oct.12-16 (1997).
93. 山岸、山口、久保田：“吸着及び触媒酸化法による群分離試験廃液からの放射性核種の除去”，JAERI-Research 2000-038 (2000).
94. 森田、久保田：“湿式群分離と廃棄物”，放射性廃棄物研究, 2, 75 (1996).
95. M. Kubota, Y. Morita : "Preliminary Assessment on Four Group Partitioning Process Developed in JAERI", Proc. of Int. Conf. on Future Nuclear System (GLOBAL '97), Oct. 5-10, 1997, Yokohama, Japan, Vol. 1, p.458, (1997).
96. 安藤、高野：“使用済軽水炉燃料の核種組成評価”，JAERI-Research 99-004 (1999).
97. 塚田、高橋：“再処理シミュレーションコードの開発と溶媒劣化物発生量の評価及び廃棄物低減方策”，日本原子力学会誌, 43, 282 (2001).
98. 日本原燃(株)：“再処理事業指定申請書 本文及び添付書類”，平成元年3月，平成8年4月変更(平成9年7月一部補正)(1997).
99. 原子力委員会 原子力バックエンド対策専門部会，“長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方”(平成12年3月31日) および 参考資料 (2000).
100. 須郷、山岸、森田、久保田：“CYANEX925による模擬高レベル廃液からのZrの選択的抽出”，日本原子力学会1999年春の年会，広島大学, M13 (1999).
101. Y. Sasaki, Y. Sugo, S. Suzuki, S. Tachimori : "The Novel Extractants, Diglycolamides, for the extraction of Lanthanides and Actinides in HNO₃ – n-Dodecane System", Solvent Extr. Ion Exch., 19, 91 (2001).
102. 館盛、鈴木、佐々木：“アミド系抽出剤を用いたTRU暫定備蓄を伴う使用済燃料処理プロセス”，日本原子力学会誌, 43, 1235 (2001).
103. 館盛：“ARTISTプロセス－使用済み核燃料の新規処理プロセス”，JAERI-Research 2001-048 (2001).
104. S. Tachimori, Y. Sasaki, S. Suzuki : "Modification of TODGA-n-Dodecane Solvent with a Monoamide for High Loading of Lanthanides(III) and Actinides(III)", Solvent Extr. Ion Exch., 20, 687 (2002).
105. Y. Morita, Y. Sasaki, S. Tachimori : "Development of TODGA Extraction Process for High-Level Liquid Waste - Preliminary Evaluation of Actinide Separation by Calculation", Proc. of Int. Conf. on "Back-End of the Fuel Cycle: From Research to Solution" (GLOBAL2001), Sept. 9-13, 2001, Paris, France, Paper No.036 (published in

CD-ROM) (2001).

106. C. Madic, M. J. Hudson, J. O. Liljenzin, J. P. Glatz, R. Nannicini, A. Facchini, Z. Kolarik, R. Odoj : "New Partitioning Techniques for Minor Actinides", EUR-19149EN (2000).
107. Y. Morita, J. P. Glatz, M. Kubota, L. Koch, G. Pagliosa, K. Roemer, A. Nicholl : "Actinide Partitioning from HLW in a Continuous DIDPA Extraction Process by Means of Centrifugal Extractors", Solvent Extr. Ion Exch., 14, 385 (1996).
108. T. Ohe, K. Nakamura, A. Tsukagoshi, T. Nishiyori : "Separated Disposal of HLW Wastes for Reducing the Total Occupational Area of the Repository", The 3rd NUCEF Int. Symp. NUCEF2001, Oct. 31 – Nov. 2, 2001, Tokai, Japan (To be published in JAERI-Conf).
109. L. Donnet, Y. Morita, I. Yamagishi, M. Kubota : "Development of Partitioning Method: Adsorption of Cesium with Mordenite in Acidic Media", JAERI-Research 98-058 (1998).
110. 山岸 : "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).
111. S. Nakayama, Y. Morita, K. Nishihara : "Radioactive Wastes Generated from JAERI Partitioning -Trans-mutation Cycle System", Proc. of Int. Conf. on "Back-End of the Fuel Cycle: From Research to Solution" (GLOBAL2001), Sep. 9-13, 2001, Paris, France, Paper No. 242 (published in CD-ROM) (2001).

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 | ニュートン | N | m·kg/s ² |
| 圧力、応力 | パスカル | Pa | N/m ² |
| エネルギー、仕事、熱量 | ジュール | J | N·m |
| 功率、放射束 | ワット | W | J/s |
| 電気量、電荷 | クーロン | C | A·s |
| 電位、電圧、起電力 | ボルト | V | W/A |
| 静電容量 | ファラード | F | C/V |
| 電気抵抗 | オーム | Ω | 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·s |
| 磁束密度 | テスラ | T | Wb/m ² |
| インダクタンス | ヘンリイ | 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·sr |
| 光度 | 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 |
| 線量当量 | 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 | ペタ | 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 | μ |
| 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、ヘクタ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。
- EC閣僚理事会指令では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。

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

| 名称 | 記号 |
|----------|-----|
| オングストローム | Å |
| バーソル | b |
| バール | bar |
| ガル | Gal |
| キュリ | Ci |
| レントゲン | R |
| ラド | rad |
| レム | rem |

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

換算表

| 圧 | MPa(=10 bar) | kgf/cm ² | atm | mmHg(Torr) | lbf/in ² (psi) |
|---|----------------------------|----------------------------|----------------------------|---------------------------|----------------------------|
| 力 | 1 | 10.1972 | 9.86923 | 7.50062 × 10 ³ | 145.038 |
| 力 | 0.0980665 | 1 | 0.967841 | 735.559 | 14.2233 |
| | 0.101325 | 1.03323 | 1 | 760 | 14.6959 |
| | 1.33322 × 10 ⁻⁴ | 1.35951 × 10 ⁻³ | 1.31579 × 10 ⁻³ | 1 | 1.93368 × 10 ⁻² |
| | 6.89476 × 10 ⁻³ | 7.03070 × 10 ⁻² | 6.80460 × 10 ⁻² | 51.7149 | 1 |

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

原研における群分離に関する研究開発—4群群分離プロセス開発までのレビュー—



古紙配合率100%
白色度70%の再生紙を使用しています