

JNC TJ7628 90-001

~~JNC TJ7628 90-001~~

本資料は、〽年/〽月/〽日付けで登録区分
変更する。

人形峠環境技術センター
環境保全技術開発部 管理課

配布限定

受託研究報告書

生体系物質によるウラン吸着試験研究

平成2年3月28日

宮崎医科大学医学部化学教室

教 授 坂 口 孝 司

助 教 授 中 島 暉

教 務 職 員 平 田 豊

目次

[I] 緒言	1
[II] タンニン系吸着剤の概要	3
[III] 固定化柿渋 (Immobilized persimmon tannin) のウラン吸着特性	5
[IV] 人形峠事業所夜次ダム水のウランの定量	7
(1) 蛍光法によるダム水のウランの定量	
(2) 放射化分析法によるウランの定量	
[V] 固定化タンニン (固定化柿渋) を利用する人形峠事業所夜次ダム 水からのウランの回収除去試験	8
(1) 固定化柿渋のウラン吸着におよぼすダム水の pH の影響	
(2) 固定化柿渋のウラン吸着におよぼすダム水の水温の影響	
(3) 固定化柿渋に吸着されたウランの脱着	
(4) カラム法によるダム水からのウランの回収	
(5) カラム法 (中型カラム) によるダム水からのウランの回収	
(6) 2 段カラム方式によるダム水からのウランの回収	
(7) ダム水ウランの吸脱着繰り返し試験	
[VI] 結語および来年度への展開	12
図 第 1 図～第 15 図	14
表 第 1 表～第 9 表	29
文献	38

[I] 緒 言

地球上の石油などの化石エネルギー資源は有限であり、昨今、世界的にエネルギー資源の枯渇が憂慮されている。重要な核燃料物質であるウランは北米、南アフリカ、オーストラリアに偏在しており、我が国の資源量は極めて少なく、そのほとんどを海外からの輸入に頼っている。海水などの水圏中には40億トンにも及ぶ膨大なウラン資源が眠っており、この未利用ウラン資源をより効率的に回収しようとする試みが日本をはじめ世界各国で行われている。

一方、核燃料物質の製精錬、加工に伴って排出されるウラン等の放射性核種の処理については、地球環境保全の立場から精力的な研究が行われている。

当研究室では、ここ十数年来、微細藻類、放線菌などの微生物や未利用バイオマス資源を利用するウラン、トリウムなどの核燃料物質の回収、除去処理について、一連の基礎研究を行っている。その研究過程で、*Streptomyces viridochromogenes*, *Bacillus subtilis* などの微生物が優れたウラン濃縮能をもっていることを見出した。これらの微生物が、どのような仕組みでウランを濃縮していくのか、その機構を総合的に解析した結果、微生物によるウランの取り込みは、生物の物質代謝を通して行われるよりも、細胞物質への物理化学的吸着性が強いことが明らかになった。

また、一方、当研究室では、クリ果皮、タマネギ外皮、オレンジ外皮、キチン、キトサンなどの未利用バイオマスがウラン吸着剤として利用できるのではないかと考え、その可能性を検討している。その結果、クリ内外皮、タマネギ外皮、オレンジ外皮、リン酸キチンなどのバイオマスが優れたウラン濃縮能をもっていることがわかった。これらのバイオマスによるウラン濃縮の実態や機構について総合的に解析した結果、カルボキシル基、リン酸基、ポリオキシフェニル基などの官能基がウラン吸着に強く関与していることがわかった。

そこで、これらのウラン吸着官能基を多数もっている生体系物質について、そのウラン濃縮能を系統的に解析してみた。その研究の過程で、ポリオキシフェニル基を多数もっているタンニン系化合物が、ウラン、トリウムなどの核燃料物質に対

して極めて強い親和性を示すことを見出し、生物濃縮をモデルとする新規のウラン吸着剤を開発した。

本研究では、動力炉・核燃料開発事業団の協力を得て、タンニン系吸着剤を利用する人形峠事業所夜次ダム水からの微量ウランの回収除去試験を行い、実用化への適用性を検討した。

〔 II 〕 タンニン系吸着剤の概要

上述のように、タマネギ外皮、オレンジ外皮などのバイオマスは優れたウラン濃縮能をもっているが、これらのバイオマスにはケルセチンなどのフラボノール系色素が含まれている。このフラボノール系色素がウラン吸着に関与しているのではないかと考えられたので、フラボノイド系化合物のウラン吸着能を調べてみた。第1図に示したように、ケルセチン、モーリンは69～83%と高いウラン濃縮能を示すが、ナリンゲニン、ルチン、ヘスペリジンはウラン濃縮能がほとんど認められなかった。これらのフラボノイド系化合物のウラン吸着能の違いは、次のように考えることができる。ケルセチンの場合は、第2図に示したように、C-3についているOH基と、その隣接キノン基（C-4）との間で、ウラニルイオンが5員環のキレートリングをつくり、さらに、C-3'とC-4'についているOH基の間でも5員環のキレートリングをつくる。一方、C-5についているOH基と、C-4のキノン基との間では、6員環のキレートリングが形成されるが、キレート安定度定数は、5員環の方が6員環よりも大きいものと考えられる。ナリンゲニン、ルチン、ヘスペリジンは、ウラニルイオンと6員環構造をつくる官能基（C-5についているOH基と、C-4のキノン基）をもっているが、これらの化合物はほとんどウラン吸着能を示さない。これらのことから、ウラニルイオンは、5員環でキレートリングをつくる方が、6員環でキレートリングをつくる場合よりも安定と考えられる。従って、ウラニルイオンと5員環キレートリングをつくる酸素配位子をもっている化合物が、ウランに対して強い親和性を示すものと考えられる。

以上の観点から、ウラニルイオンと5員環キレートリングを形成する酸素配位子を多数もっている生体系物質を広く検索した結果、ポリフェノール系物質であるタンニンが、極めて強いウラン濃縮能をもっていることを見出した。タンニンは、植物界に広く存在するポリフェノール系化合物であり、カテコールを生じる縮合型タンニンと、ピロガロールを生じる加水分解型タンニンに大別される。ウラン吸着能は、概して、加水分解型タンニンの方が縮合型タンニンよりも高い。五倍子

タンニン (Chinese gallotannin) は加水分解型タンニンに属し, 1, 2, 3, 4, 6-ペンタガロイルグルコースを基本骨格とするポリガロイルグルコース (平均分子量, 1434) である.

タンニンは, 安価で, 自然界に豊富に存在する天然資源であるが, 水に溶けやすいので, そのままの形態ではウラン吸着剤として使用することができない. そこで, タンニンをセルロース, アガロース, ポリビニル-4, 6-ジアミノ-S-トリアジンなどの不溶性マトリックスに固定化してみることにした. 一例として, セルロースに固定化した五倍子タンニン (エピクロルヒドリン法で固定) の推定構造を第3図に示す.

これらの固定化タンニンは, ウランに対して極めて高い選択吸着能をもち, 且つ, 吸着速度も速いことがわかった. この吸着剤は, 天然海水から, 1 gの吸着剤当りに, 2530 μ gのウランを吸着することができる. また, 吸着されたウランは, 0.05~0.1 N程度の薄い酸溶液で定量的に脱着することができ, 吸脱着操作を繰り返し行うことができる.

一方, タンニンは, タンパク質を凝固させる性質をもっている. そこで, この性質を利用して, タンニンとタンパク質との複合体をつくり, そのウラン吸着能を調べてみた. その結果, アルブミン (水溶性タンパク質) -タンニン複合体は極めて強いウラン吸着能をもっているが, カゼイン-タンニン複合体や, ゼラチン-タンニン複合体は, ウランに対してほとんど吸着能を示さないことがわかった (第1表). これらの結果は, 次のように説明できる. 前項で述べたように, ウラニルイオンは, ポリオキシ化合物の隣接OH基の間で5員環のキレートリングを形成するが, タンニン-タンパク質複合体では, 第4図に示したように, タンニンのポリオキシフェニル基と, タンパク質のケトイミド基との間で水素結合が形成される. カゼイン-タンニン複合体や, ゼラチン-タンニン複合体では, タンニンのすべての隣接OH基がこの水素結合の形成に使われ, ウラニルイオンと結びつく遊離の隣接OH基がなくなってしまうので, これらのタンパク質-タンニン複合体はウランに対して吸着能を示さなくなるものと考えられる.

[III] 固定化柿渋 (Immobilized persimmon tannin) のウラン吸着特性

柿渋タンニンとは、加水分解型タンニンに属し、多数の隣接OH基をもっている。柿渋は、通常、液体、または、粉末状として得られるが、このままの形態ではウラン吸着剤として利用できないので、種々の方法で固定化を試みた。その一例を次に示す。液状柿渋をグルタルアルデヒドやホルムアルデヒドと接触させ、柿渋を水に溶けないゲル状物質に変換し、この固定化柿渋をウラン吸着剤として使用する。本吸着剤は、淡はだ色～淡茶色を呈する親水性物質であるが、ウランを吸着すると、第5図のように、濃黒褐色に変る。ウランを脱着すると、また元の色にかえる。この固定化柿渋は極めて優れたウラン吸着能を示し、1 gの吸着剤当りに、1.7 gのウランを吸着することができる。この吸着能は、現在、世界でトップレベルである。

このように、固定化柿渋が極めて高いウラン吸着能を示すのは、柿渋中にはタンニン、フラボノールなどのポリフェノール系化合物が微量存在し、これらの物質がもっている多数の隣接OH基が、ウランとキレートリングを形成するためと考えられる。また、柿渋をゲル状物質に固定化することにより、隣接OH基とウランとがキレートリングをつくりやすい立体的な場をつくり、且つ、この物質は極めて親水性であるので、ウランに対して強い親和性を示すものと考えられる。

固定化柿渋は、次のような優れたウラン吸着特性を示す。

- (1) 本吸着剤のウラン吸着速度は極めて速く、2時間程度で、ほぼ吸着平衡に達する。
- (2) 本吸着剤に吸着されたウランは、0.01 Nの極めて薄い塩酸で、容易に脱着することができる。
- (3) 本吸着剤は、ウランの吸脱着を10回程度繰り返してもウラン吸着能は劣化せず、吸脱着操作を繰り返して行うことができる。
- (4) マンガン、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、カドニウム、ウランを含む金属イオン混合溶液からの金属イオンの吸着量は、 $U \gg Cu > \text{他金属}$ の順になり

，固定化柿渋はウランに対して非常に高い選択吸着能を示す（第2表）。

また，本吸着剤はトリウムに対しても強い吸着能を示すことがわかった。

[IV] 人形峠事業所夜次ダム水のウランの 定量

(1) 蛍光法によるダム水のウランの定量

(i) フラックスの調製

炭酸カリウムナトリウム (NaKCO_3) 9 g, フッ化ナトリウム (NaF) 1 g, フッ化リチウム (LiF) 0.01 g を, 乳鉢でよく混和した後, 100℃で, 一夜乾燥し, デシケーター中に保存した.

(ii) ウランの定量法

一定量 (2~5 ml) の試料溶液を白金皿に測り取り, 蒸発乾固し, これに, 上記のフラックス 2 g を入れて, メッセルバーナーで熔融した. 冷却後, 固化したフラックスを白金皿から取り出して, フルオリメーター (アロカ製) で蛍光強度を測定した.

(iii) 人形峠事業所の夜次ダム水について, 上記の方法でウランを定量した結果を第6図に示す. この図から, 平成2年3月5日に採取した夜次ダム水のウラン濃度は, 13.0 ppb であることがわかった.

(2) 放射化分析法によるウランの定量

一定量の固体粉末状試料 (固定化柿渋吸着剤) を, ポリエチレン製袋に封入し, 立教大学原子力研究所 TRIGA 型 (100 kW) 原子炉中で熱中性子 ($5 \times 10^{11} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec}$) を10分間照射し, 2日間冷却後, Ge (Li) 検出器, 波高分析器を用いて, 生じた ^{239}Np (半減期 2.35 日) の 228 keV および 277 keV の γ 線を計測した. 第7図に, ウランを吸着した固定化柿渋の γ 線のスペクトルを示す.

一方, 夜次ダム水については, 一定量のダム水を濾紙に浸み込ませて乾燥した後, ポリエチレン製袋に封入し, 上記の条件で熱中性子を照射した. その結果, ダム水には, ^{24}Na , ^{56}Mn , ^{49}Ca , ^{38}Cl , ^{82}Br , ^{239}Np (U) の核種が検出された.

[Ⅴ] 固定化タンニン（固定化柿渋）を利用する人形峠事業所夜次ダム水からのウランの回収除去試験

[Ⅲ] 項で述べたように、固定化タンニンはウランに対して極めて高い吸着能を示すが、これらの固定化タンニン（ことに、固定化柿渋）を使って、夜次ダム水からのウラン回収除去試験を行った。

（１）固定化柿渋のウラン吸着におよぼすダム水のpHの影響

ダム水のpHを、4、5、6、7、8の5段階に変え、固定化柿渋のウラン吸着におよぼすダム水のpHの影響を調べた。その結果、第8図に示したように、ウラン吸着量はpH6で最大値を示したが、pH5～8の広い範囲で、固定化柿渋を、ダム水からのウラン吸着剤として利用できることがわかった。

（２）固定化柿渋のウラン吸着におよぼすダム水の水温の影響

ダム水の水温を、10、20、30、40℃の4段階に変え、固定化柿渋のウラン吸着におよぼす水温の影響を調べた。その結果、第9図に示したように、固定化柿渋によるウランの吸着は、30～40℃で高い値を示すが、液温の低下に伴い減少する傾向が認められた。

（３）固定化柿渋に吸着されたウランの脱着

固定化柿渋に吸着されたウランを脱着するため、塩酸と硫酸を使って、その脱着条件を調べた。その結果、第3表に示したように、塩酸、硫酸のいずれの酸についても、0.1N程度の薄い濃度で、吸着されたウランを定量的に脱着できることがわかった。

（４）カラム法によるダム水からのウランの回収

内径8mmのカラムを使って、カラム法によるダム水からのウラン回収試験

を行なった。その結果、第4表に示したように、吸着剤容積の約2000倍のダム水を流しても、100%のウランを回収することができ、固定化柿渋は、ダム水に溶存しているppbレベルの微量ウランを、定量的に効率よく回収できることがわかった。

一方、ダム原水および吸着剤通過液について、その陰イオン組成をイオンクロマトグラフィーで調べた。その結果、ダム原水には、硫酸イオン、塩化物イオン、硝酸イオン、臭化物イオン（痕跡量）の陰イオンが溶存していることがわかった。また、これらの陰イオンは、固定化柿渋にはほとんど吸着されず、素通りしてくることがわかった（第5表）。

(5) カラム法（中型カラム）によるダム水からのウランの回収

前項で述べたように、固定化柿渋は、カラム法で、ダム水中の微量ウランを定量的に回収できることがわかったので、26mmφのカラムを使って、第1段階のスケールアップテストを行った。その実験装置を、第10図に示す。なお、ダム原水、吸着剤通過液中のウランは、蛍光法により、また、吸着剤中のウランは放射化分析法により定量した。

その結果、第6表に示したように、固定化柿渋は、26mmφの中型カラムを使っても定量的にウランを回収できることがわかった。カラムの状態を、第11図に示す。この図に示したように、吸着剤の上層部は濃茶褐色に変色しており、この層にウランが吸着されていることがわかる。

なお、この吸着実験に使用したダム水の水温が、4～5℃と低かったので、カラムの上層部に気泡が生じた。この気泡の影響を避けるため、次項に述べる2段カラム方式によるウラン吸着試験を試みた。

(6) 2段カラム方式によるダム水からのウランの回収

ポリプロピレン製ミニカラムを、第12図に示したように、上下に2段連結し、ダム水からのウラン吸着試験を行った。ダム水の水温が4～5℃と低いため、上段のカラムには多数の気泡が生じたが、下段のカラムには気泡は全く

認められなかった。

実験結果を第7表に示す。なお、ダム水中のウランは蛍光法により、また、吸着剤中のウランは放射化分析法により定量した。第7表に示したように、吸着剤量の約700倍量のダム水を、S. V. 55 h^{-1} 程度のかかなり速い速度で流しても、2段カラム方式では100%のウランを回収できることがわかった。なお、上段カラムだけでは100%のウランを回収できず（上段カラムには81～87%のウランが吸着された）、残りのウランは下段カラムで回収された（13～19%のウランが下段カラムに吸着された）。このことは、ダム水の水温が低いために、上段カラムにかなりの気泡が生じ、且つ、カラム充填層も短かったので、気泡の影響が現れたものと考えられる。

次に、26 mm ϕ のガラスカラムを使って、2段カラム方式によるウランの回収を試みた（その実験装置を第13図に示す）。その結果、第8表に示したように、カラム充填層を長くすると、気泡の影響はほとんど受けず、上段カラムだけで100%のウランが回収できることがわかった。

以上のように、カラム充填層を長くするか、2段カラムを使うことにより、低温水に起因する気泡の影響を避けることができる。

(7) ダム水ウランの吸脱着繰り返し試験

上記のように、固定化柿渋は、ダム水ウランに対して極めて強い吸着能を示すことが明らかになった。また、吸着されたウランも0.1 N程度の薄い酸溶液によって定量的に脱着できることがわかったので、これらの基礎的知見に基づいて、ウランの吸脱着繰り返し試験を行った。

まず、バッチ法により、10回の吸脱着繰り返し試験を行った。その結果、第14図に示したように、ダム水からのウランの吸脱着を10回繰り返しても該吸着剤のウラン吸着能の劣化は全く認められず、吸脱着操作を繰り返し行えることがわかった。

一方、カラム法により吸脱着試験を5回繰り返しても、吸着能の劣化は全く認められず、吸脱着操作を繰り返し行えることがわかった（第15図）。

また、別途の繰り返し試験でも上記の結果が確認できた（第9表）。

なお、これらの吸脱着繰り返し試験では、5 p p mのウランを添加したダム水を使用した。固定化柿渋吸着剤は、p p bレベルの低濃度ウランのみならず、p p mレベルのウランも定量的に回収できることが確認できた。

[VI] 結語および来年度への展開

上述のように、固定化タンニン、ことに、固定化柿渋は極めて優れたウラン吸着能をもっており（吸着剤 1 g 当りに、1.7 g のウランを吸着できる）、該吸着剤を利用することにより、ppbレベルの低濃度のウラン溶液からも、また、数十 ppm の高濃度のウラン溶液からも効率よくウランを回収することができる。

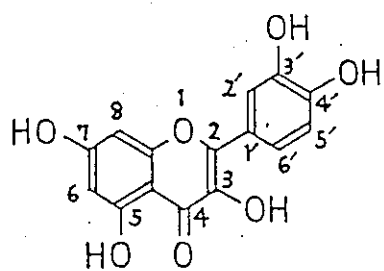
本年度の研究において、人形峠事業所の夜次ダム水に含まれる ppbレベルの微量ウラン、また、ppmレベルのウランも極めて効率的に回収除去できることが確認できた。一方、固定化柿渋担体に吸着されたウランは、0.1 N 程度のうすい酸溶液で容易に脱着することができ、吸脱着操作を 10 回繰り返しても、該吸着剤のウラン吸着能は劣化しないことが認められた。

固定化柿渋吸着剤は、豊富に存在する天然物を素材にして安価に製造することができ、また、ウラン吸着特性も優れているので、バッチ法、カラム法のいずれの回収法にも適用でき、実用化への適用性が強く示唆された。

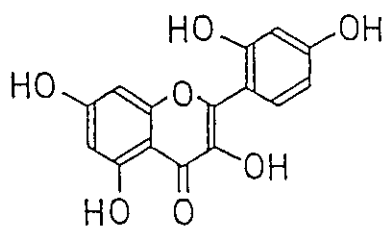
来年度は、本年度に得たこれらの基礎的知見に基づいて、次の事項について重点的に研究し、実用化への展開を図りたい。

- (1) 本年度に得た知見に基づいて、第 2 段階のウラン吸着のスケールアップテスト（数百～数千リットル規模）を行い、実用化への基礎条件を総合的に解析する。
- (2) カラム法でダム水を処理する場合、処理水量を多くするため、流速を速める必要があるが、 $S. V. 100 \sim 200 \text{ h}^{-1}$ の高速条件下でのウラン吸着能を調べ、実用化への条件を解析する。
- (3) 当研究室では、該吸着剤が、トリウムに対しても高い吸着能を示すことを認めているので、含トリウム廃水について実用化試験を行う。
- (4) 高濃度のウラン廃水からのウランの回収について、種々の角度から解析する。
- (5) 該吸着剤のラジウムに対する吸着能を調べ、ウラン、ラジウムの同時吸着の可能性について検討する。

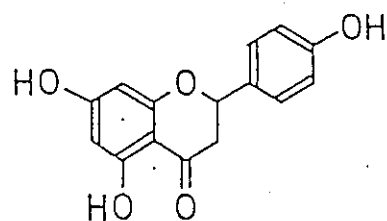
(6) ダム水からのウラン吸脱着繰り返しテストを，長期間にわたって行い，実用化への基礎条件を系統的に解析する．



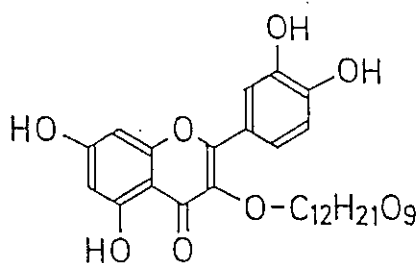
Quercetin
(83.3 %)



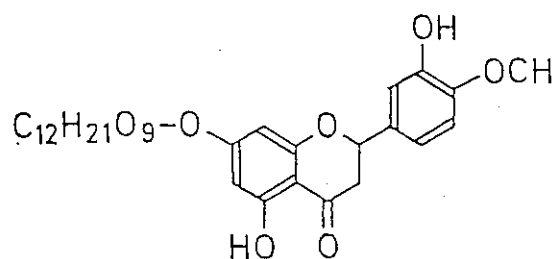
Morin
(69.3 %)



Naringenin
(1.4 %)



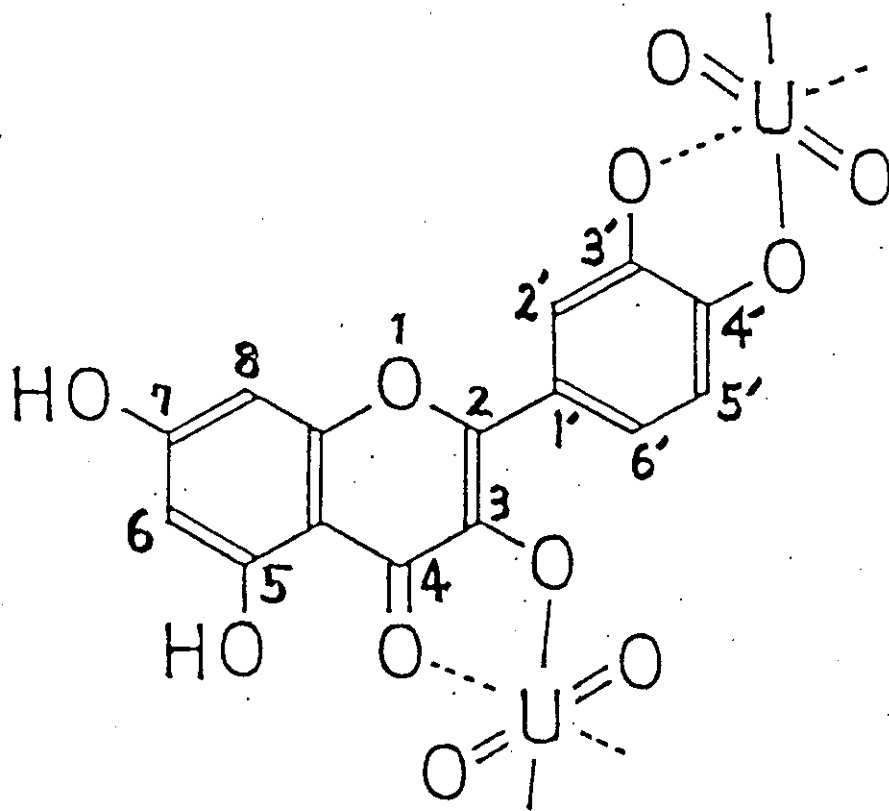
Rutin
(3.8 %)



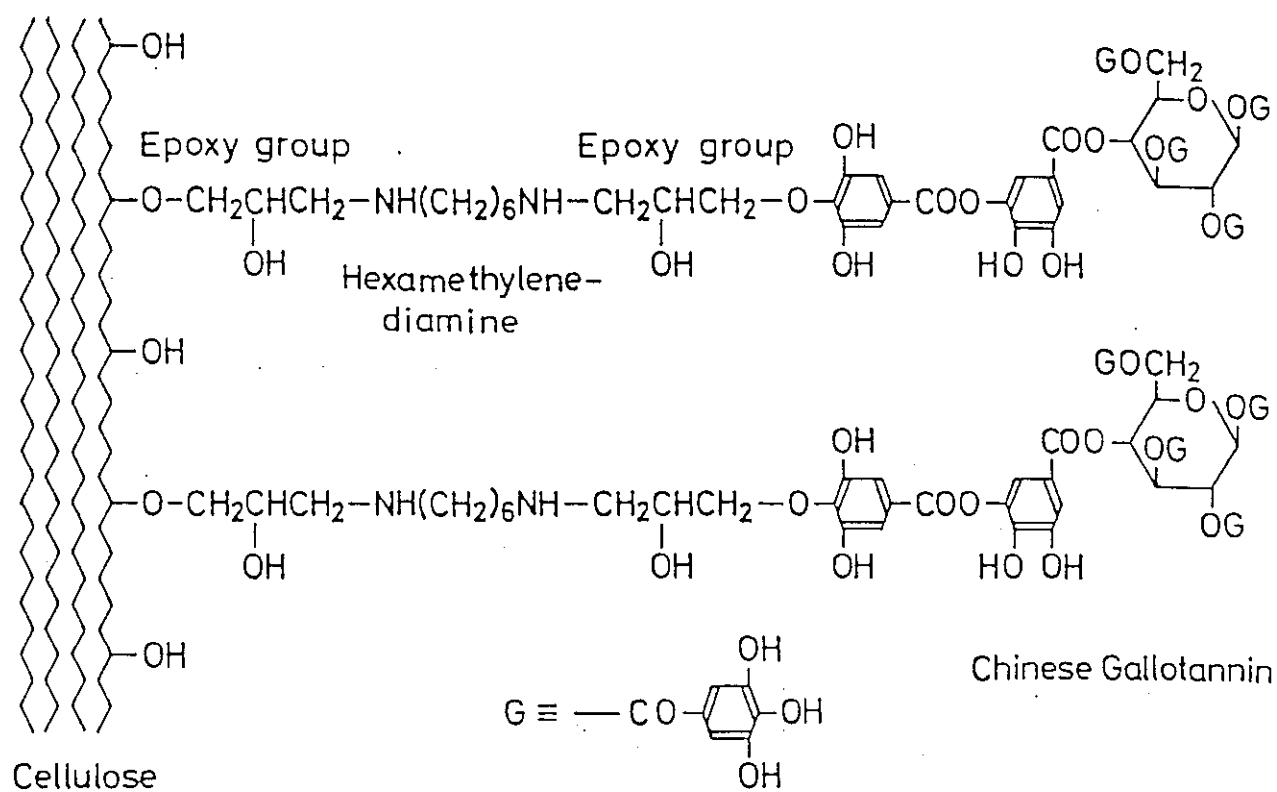
Hesperidin
(0 %)

第1図. フラボノイド系化合物の構造とウラン吸着能

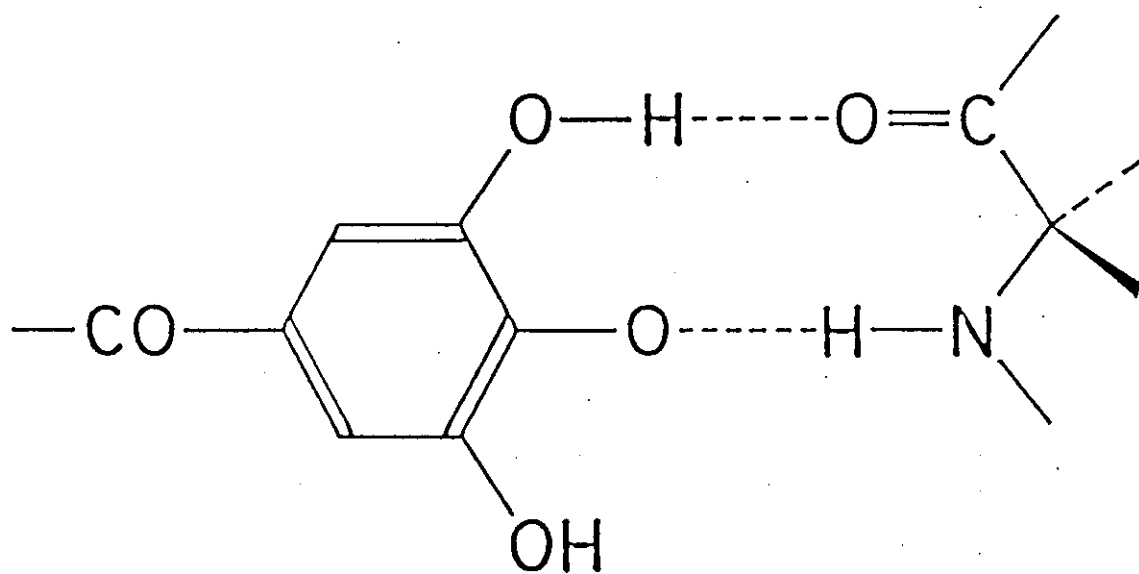
50 mgの担体を，10 ppmのウランを添加した海水100 mlに，
30℃で，1時間攪拌しながら接触させた．



第2図. クェルセチンにおけるウラニルイオンのキレート形成



第3図. セルローズに固定化したタンニンの推定構造

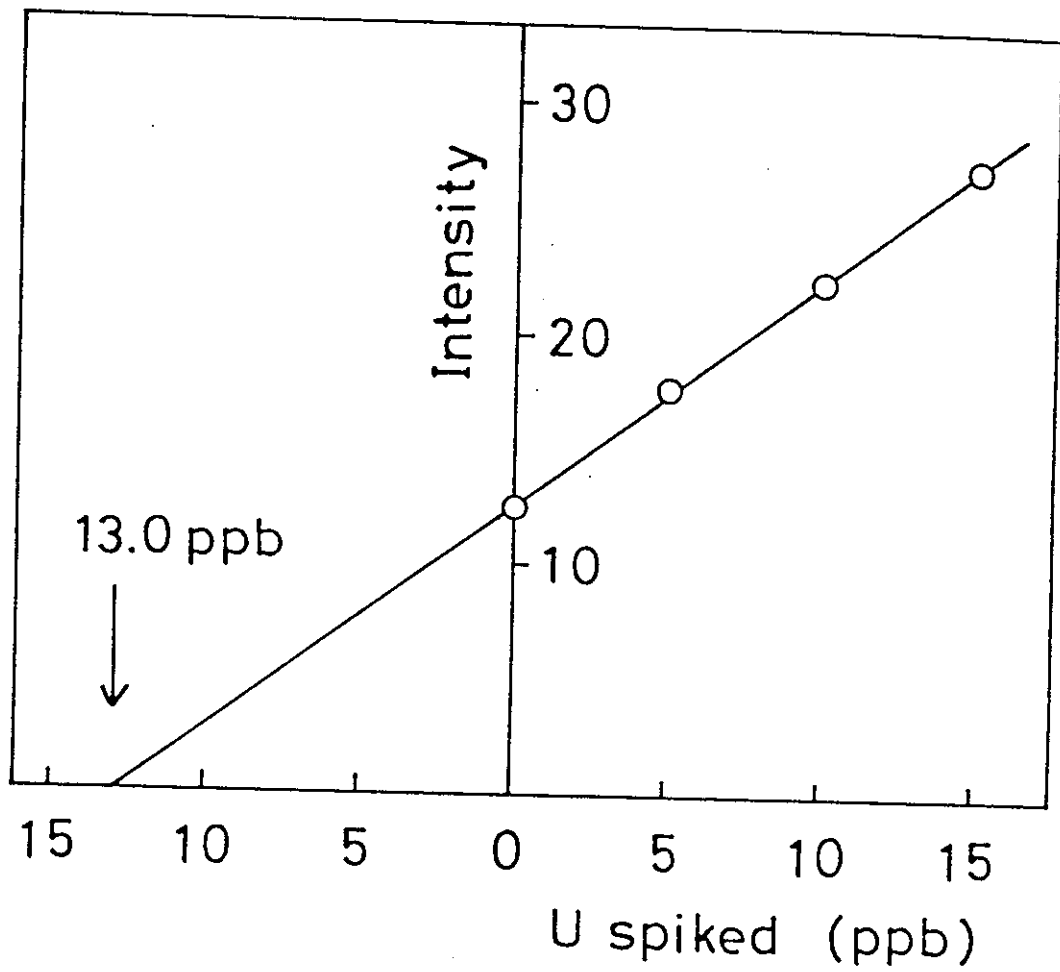


第4図. タンニソータンパク質複合体の推定構造

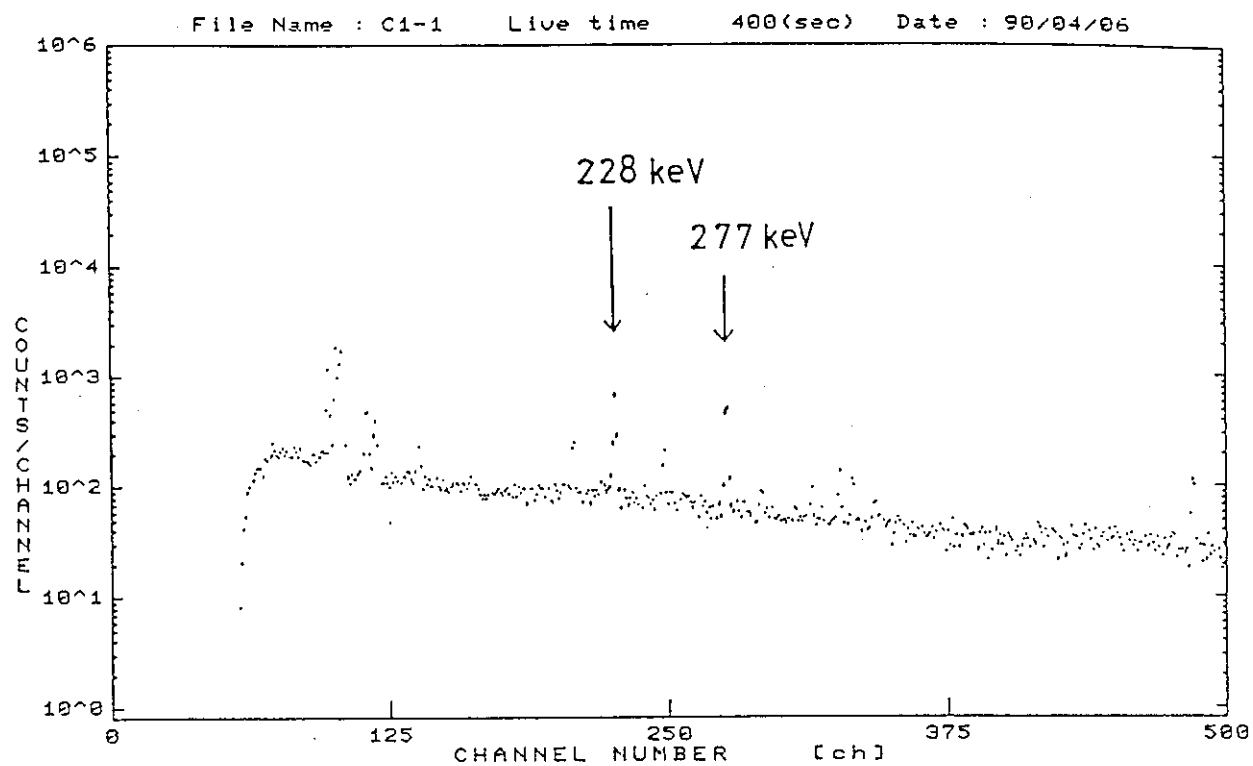


第5図. ウランを吸着した固定化柿渋

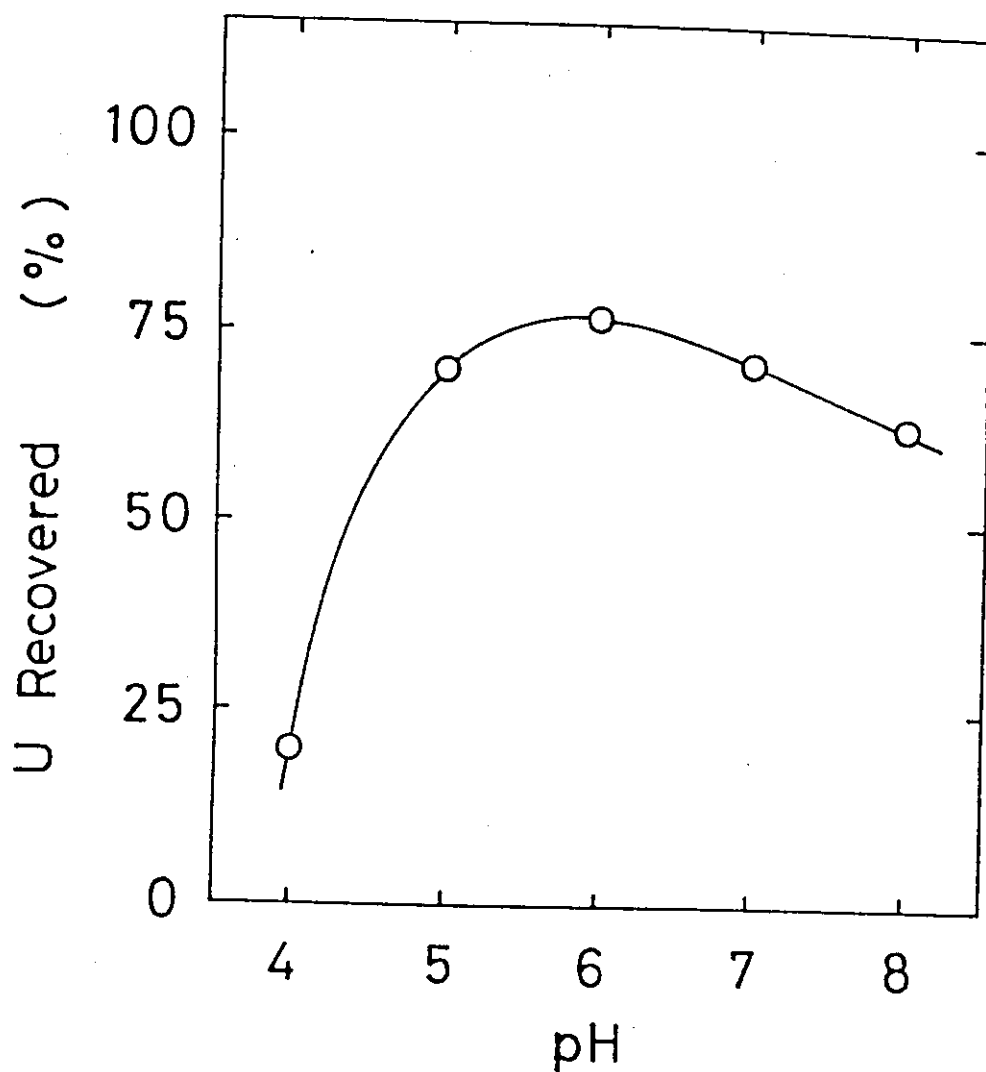
カラム上層部の濃黒褐色に変色した部分にウランが吸着されている。



第6図. 蛍光法によるダム水中ウランの定量

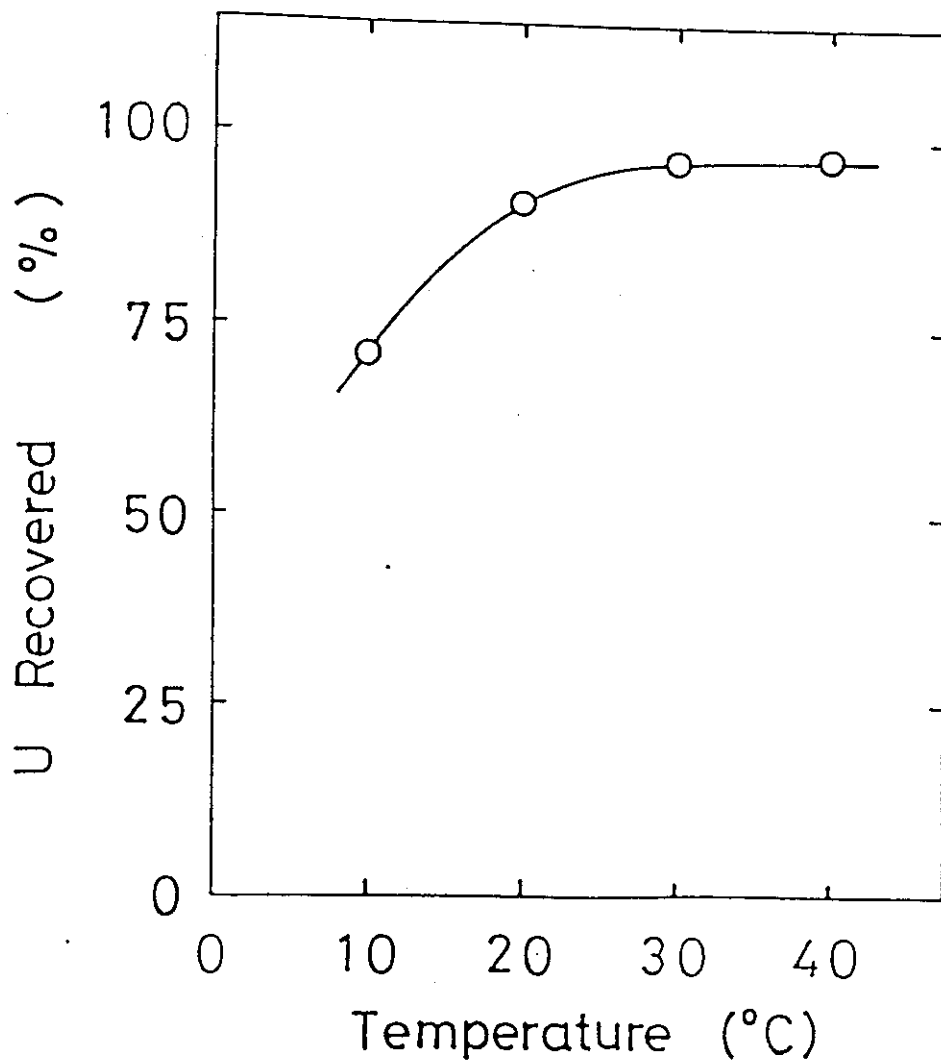


第7図. ウランを吸着した固定化柿渋担体の γ 線スペクトル



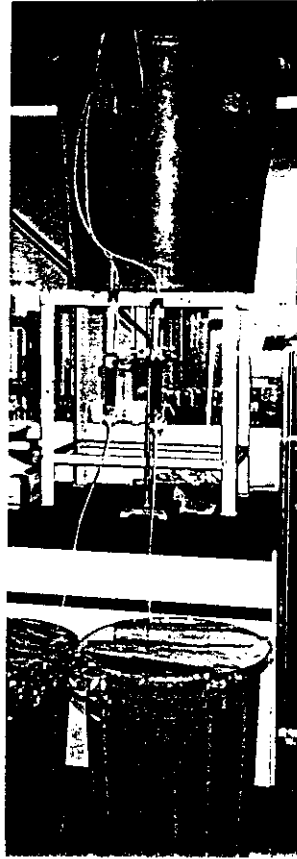
第8図. 固定化柿渋のウラン吸着におよぼすダム水のpHの影響

5 ppmのウランを添加したダム水のpHを、4～8の5段階に変え、それぞれの溶液に、吸着剤5 mg（乾重量として）を、室温で30分間攪拌しながら接触させた。吸着実験後、濾過して吸着剤を除き、溶液中のウランをアルセナゾⅢ比色法で定量した。

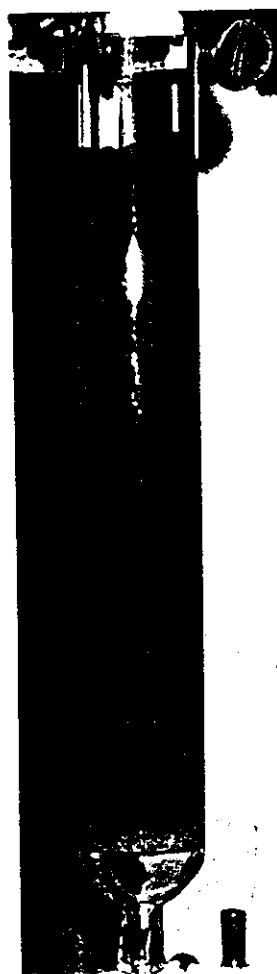


第9図. 固定化柿渋のウラン吸着におよぼすダム水の水温の影響

5 ppmのウランを添加したダム水（150 ml，pH 6）の水温を，10，20，30，40℃の4段階に変え，それぞれの溶液に，吸着剤5 mg（乾重量として）を30分間攪拌しながら接触させた．

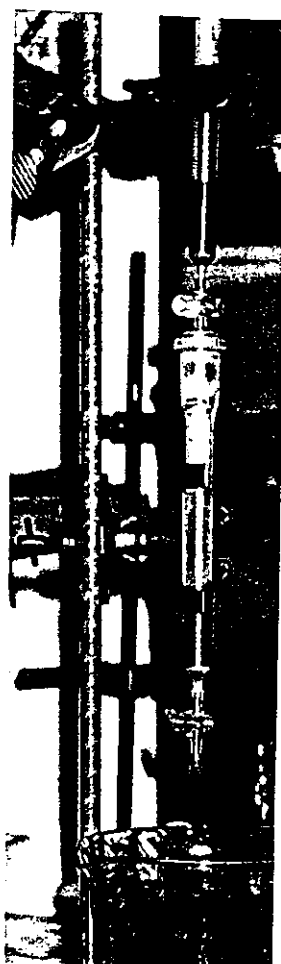


第10図. カラム法（中型カラム）によるダム水からのウラン回収装置

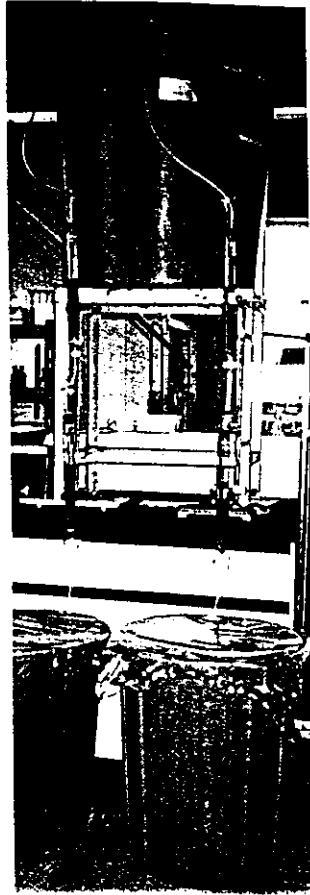


第11図. ダム水ウランを吸着した固定化柿渋

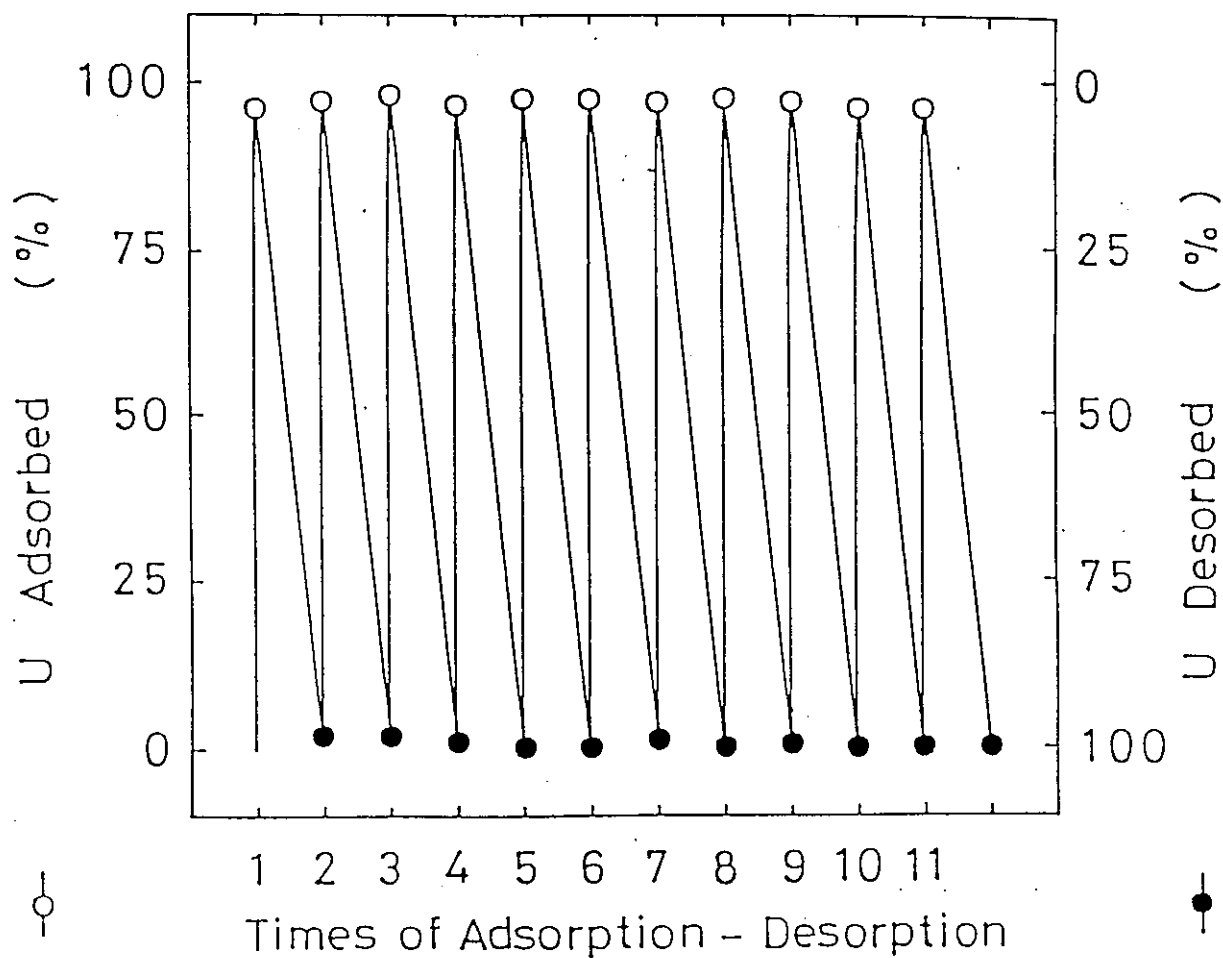
カラム上層部の濃茶褐色に変色した部分にウランが吸着されている.



第12図. 2段方式（ミニカラム）によるダム水からのウラン回収装置

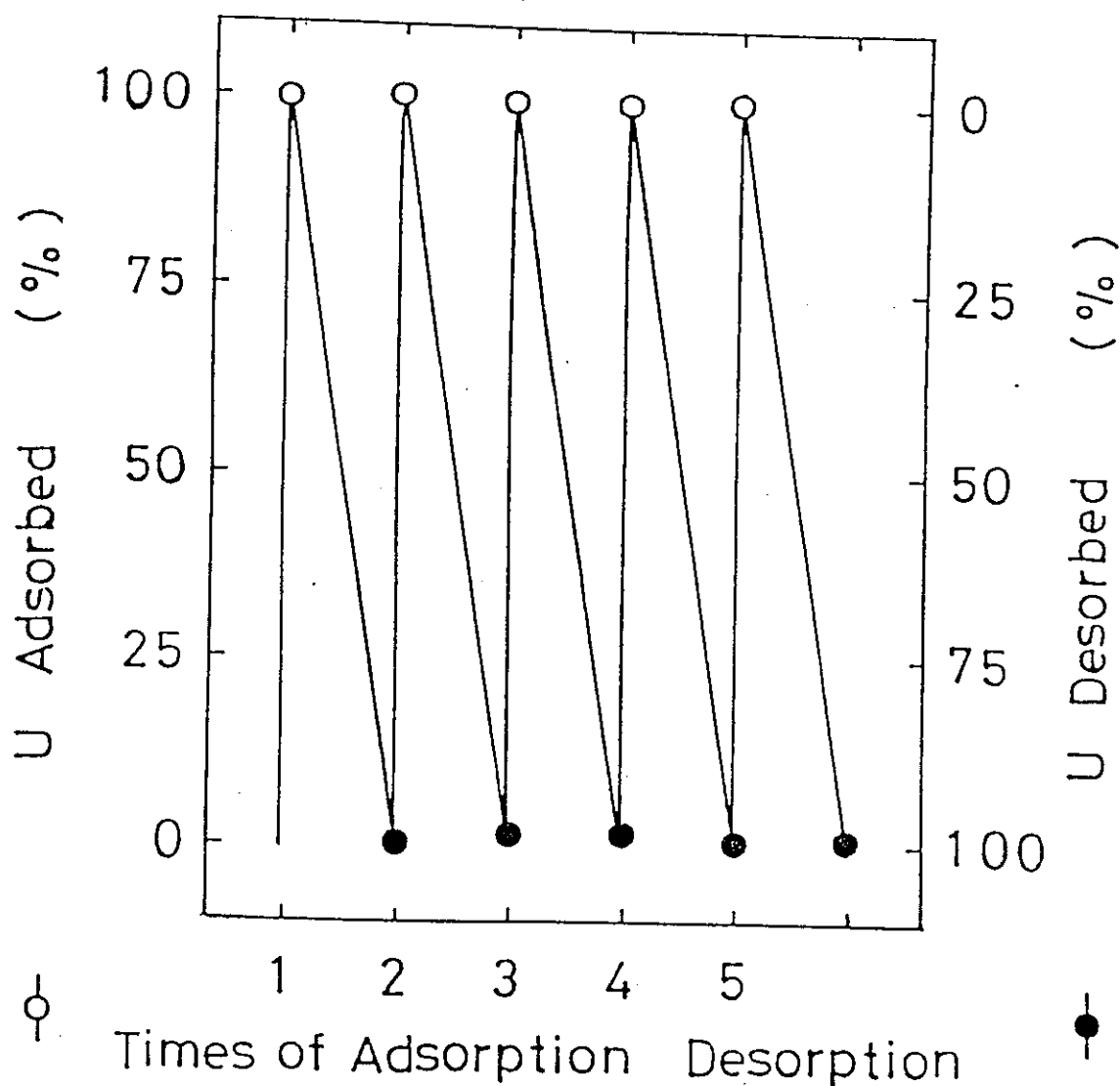


第13図. 2段方式 (中型カラム) によるダム水からのウラン回収装置



第14図. バッチ法によるウラン吸脱着繰り返し試験

5 ppmのウランを添加したダム水100mlに、吸着剤10mg
 (乾重量として)を、室温で、30分間攪拌しながら接触させた。
 吸着されたウランは、0.1N HCl 20mlで脱着した。



第15図. カラム法によるウラン吸脱着繰り返し試験

内径8mm, 高さ40mm, 床面積2.0mlのカラムに, 5ppmのウランを添加したダム水50mlを, S. V. 40 h^{-1} で通した. 吸着されたウランは, 0.1N HCl 20mlで脱着した (S. V. 20 h^{-1})

第1表. タンニン-タンパク複合体によるウラン吸着

タンニン-タンパク複合体	ウラン吸着率 (%)
タンニン-アルブミン	92.9
タンニン-カゼイン	2.4
タンニン-ゼラチン	0.0

10 ppmのウランを添加した海水100 mlに、担体20 mg（乾重量として）を30℃で1時間攪拌しながら接触させた。

第2表. 固定化柿渋による重金属の選択吸着

金属吸着量 mg/g吸着剤						
Mn	Co	Ni	Cu	Zn	Cd	U
0.0	0.0	3.4	23.6	0.0	1.5	439.3

2mg（乾重量として）の吸着剤を，7種の金属イオン（各イオン， 4×10^{-5} M）を含む溶液（pH5）100mlに，30℃で，1時間攪拌しながら接触させた．各金属イオンの定量はICP法によった．

第3表. 固定化柿渋に吸着されたウランの脱着

脱 着 液	ウラン脱着率 (%)
0. 1 N H C l	1 0 0
0. 5 N H C l	1 0 0
0. 1 N H ₂ S O ₄	1 0 0
0. 5 N H ₂ S O ₄	1 0 0

5 p p mのウランを添加したダム水1 5 0 m l (p H 6) に, 吸着剤5 m g (乾重量として) を, 室温で3 0 分間攪拌しながら接触させ, ウランを吸着させた. 吸着されたウランは, 各酸溶液2 0 m l で脱着した. なお, ウランはI C P法で定量した.

第4表. カラム法によるダム水からのウラン回収

試験Ⅰ. 担体97.6mg (乾重量として) S. V. 42 h ⁻¹			試験Ⅱ. 担体97.9mg (乾重量として) S. V. 40 h ⁻¹		
分 取		ウラン 回収率 (%)	分 取		ウラン 回収率 (%)
フラクション No.	液量 (ml)		フラクション No.	液量 (ml)	
1	1160	100	1	1121	100
2	916	100	2	886	100
3	1109	100	3	920	100
4	878	100	4	842	100

内径8mmφ, 高さ40mm, 床容積2.0mlのカラムに, ダム水 (pH7.93, U 11.2ppb) を通した. 2連試験.

第5表. ダム水中の陰イオン組成

陰イオン	濃度 (ppm)	
	ダム原水	カラム流出液
Cl ⁻	17.1	17.0
SO ₄ ²⁻	147.8	147.0
Br ⁻	<0.10	<0.10
NO ₃ ⁻	0.44	0.33

測定条件：島津イオンクロマトグラフHIC-6A

カラム：Shim-pak IC-A1

移動相：2.5mMフタル酸，

2.4mMトリス

(pH3.96)

オープン温度：40℃

圧力：120Kg f/cm²

流速：1.5ml/分

供試水：20μl

第6表. カラム法 (中型カラム) によるダム水からのウラン回収

試験	担体量 (乾重量として) g	流出液量 (ℓ)	空間速度 (h ⁻¹)	ウラン回収率 (%)
I	5. 6 6 6	2 8. 8 5	1 3. 4	1 0 0
II	5. 6 5 3	4 0. 6	1 8. 8	1 0 0

内径26mmφ, 高さ150mm, 床面積80cm²のカラムに
ダム水 (U 11. 2 ppb) を通した. 2連試験.

第7表. 2段カラム方式によるダム水からのウラン回収
(ミニカラム)

試験	S. V. (h ⁻¹)	分取		ウラン 回収率 (%)	カラム	担体量 (乾重 量として) m g	ウラン 回収率 (%)
		No.	液量 (ml)				
I	57	1	950	100	上段	151.8	87.1
		2	2990	100	下段	144.5	12.9
		3	460	100			
		全量	4400	100			
II	54	1	860	100	上段	140.9	81.2
		2	2750	100	下段	132.2	18.8
		3	570	100			
		全量	4180	100			

内径10mmφ、高さ40mm、床面積3.1mlのカラムを、上下2段に連結し、ダム水 (U 13.0ppb) を通した。2連試験。

第8表. 2段カラム方式によるダム水からのウラン回収
(中型カラム)

試験	S. V. (h ⁻¹)	流出液量 (ℓ)	ウラン回収 率 (%)	カラム	担体量 (乾重 量として) g	ウラン回収 率 (%)
I	13	31.2	100	上段	4.8744	100
				下段	4.8551	0
II	7.3	17.5	100	上段	4.8596	100
				下段	4.4807	0

内径26mmφ, 高さ190mm, 床面積100mlのカラムに,
ダム水 (U 13.0ppb) を通した. 2連試験.

第9表. カラム法によるウラン吸脱着試験

カラム通過液量 (ml)	ウラン吸着率 (%)	ウラン脱着率 (%)
920	100	100

内径8mmφ, 高さ40mm, 床面積2.0mlのカラムに, 5ppmのウランを添加したダム水をS. V. 40h⁻¹で通した. 吸着されたウランは, 0.1N HCl 20mlで脱着した(S. V. 20h⁻¹).

1. T. Horikoshi, A. Nakajima, T. Sakaguchi : Uptake of Uranium by *Chlorella regularis*; Agricultural and Biological Chemistry, Vol.43, pp 617-623 (1979).
2. A. Nakajima, T. Horikoshi, T. Sakaguchi : Ion Effects of the Uptake of Uranium by *Chlorella regularis*; Agricultural and Biological Chemistry, Vol.43, pp 625-629 (1979).
3. T. Sakaguchi, T. Horikoshi, A. Nakajima : Uptake of Uranium from Sea Water by Microalgae; Journal of Fermentation Technology, Vol.56, pp 561-565 (1978).
4. 坂口孝司, 中島 暉, 堀越孝雄 : 生体物質による海水ウランの吸着; 日本農芸化学会誌, Vol.53, PP 211-217 (1979).
5. T. Horikoshi, A. Nakajima, T. Sakaguchi : Uptake of Uranium from Sea Water by *Synechococcus elongatus*; Journal of Fermentation Technology, Vol.57, pp 191-194 (1979).
6. 坂口孝司, 中島 暉, 堀越孝雄 : 多糖キサントゲン酸チタン (IV) 塩による海水ウランの回収; 日本化学会誌, No.6 pp 788-792 (1979).
7. T. Horikoshi, A. Nakajima, T. Sakaguchi : Uptake of Uranium by Various Cell Fractions of *Chlorella* Cells; Radioisotopes, Vol.28, pp 485-487 (1979).

8. 坂口孝司 : ウランの生体濃縮 ; Isotope news, No.6, pp 1-5 (1979).
9. T. Horikoshi, A. Nakajima, T. Sakaguchi : Accumulation of Uranium by Chlorella Cells Grown under Autotrophic, Heterotrophic and Mixotrophic Culture Conditions; Agricultural and Biological Chemistry, Vol.45, pp 781-783 (1981).
10. A. Nakajima, T. Horikoshi, T. Sakaguchi : Distribution and Chemical State of Heavy Metal Ions Adsorbed by Chlorella Cells; Agricultural and Biological Chemistry, Vol.45, pp 903-908 (1981).
11. A. Nakajima, T. Horikoshi, T. Sakaguchi : Selective Accumulation of Heavy Metal Ions by Chlorella regularis; European Journal of Applied Microbiology and Biotechnology, Vol.12, pp 76-83 (1981).
12. T. Horikoshi, A. Nakajima, T. Sakaguchi : Accumulation of Uranium by Microorganisms; European Journal of Applied Microbiology and Biotechnology, Vol.12, pp 90-96 (1981).
13. T. Sakaguchi, T. Horikoshi, A. Nakajima : Adsorption of Uranium by Chitin Phosphate and Chitosan Phosphate; Agricultural and Biological Chemistry, Vol.45, pp 2191-2195 (1981).
14. A. Nakajima, T. Horikoshi, T. Sakaguchi : Recovery of Uranium by Immobilized Microorganisms; European Journal of Applied Microbiology and Biotechnology, Vol.16, pp 88-91 (1982).

15. 坂口孝司 : 放線菌などの生体を用いるウランの回収; 日本放線菌研究会
会報 Vol.41, pp 26-30 (1982).
16. T. Sakaguchi, A. Nakajima : Recovery of Uranium by Chitin Phosphate and Chitosan Phosphate; Proceedings of the 2nd International Conference on Chitin and Chitosan, pp 177-182 (1982).
17. T. Sakaguchi, A. Nakajima : Recovery of Uranium by Microorganisms; MIT Nuclear Engineering Department Report No. MITNE-256, "Progress Toward the Recovery of Uranium from Seawater" Chap.10, pp U165-U176 (1982).
18. 坂口孝司 : 生物体や生体物質を利用するウラン資源の回収; 海洋科学, Vol.15, pp 681-686 (1983).
19. T. Sakaguchi, A. Nakajima, Y. Suwa : Recovery of Uranium from Sea Water Using Biological Substances; Proceedings of an International Meeting Recovery of Uranium from Seawater, pp 276-283 (1983).
20. 坂口孝司 : 藻類によるウランの濃縮; 放射線科学, Vol.28, pp 149-158 (1985).
21. A. Nakajima, T. Sakaguchi : Selective Accumulation of Heavy Metals by Microorganisms; Applied Microbiology and Biotechnology, Vol.24, pp 59-64 (1986).

- 2 2 . A. Nakajima, T. Sakaguchi : Removal and Recovery of Uranium by Polyvinyl Polyacrylate; Journal of Chemical Technology and Biotechnology, Vol.36, pp 281-289 (1986).
- 2 3 . T. Sakaguchi, A. Nakajima : Recovery of Uranium by Immobilized Polyhydroxyanthraquinone; Separation Science and Technology, Vol.21, pp 519-534 (1986).
- 2 4 . T. Sakaguchi, A. Nakajima : Accumulation of Uranium by Biopigments; Journal of Chemical Technology and Biotechnology, Vol.40, pp 133-141 (1987).
- 2 5 . T. Sakaguchi, A. Nakajima : Recovery of Uranium from Seawater by Immobilized Tannin; Separation Science and Technology, Vol.22, pp 1609-1623 (1987).
- 2 6 . A. Nakajima, T. Sakaguchi : Recovery of Uranium by Tannin Immobilized on Agarose; Journal of Chemical Technology and Biotechnology, Vol.40, pp 223-232 (1987).
- 2 7 . A. Nakajima, T. Sakaguchi : Adsorption of Uranium by Vegetable Crude Drugs; Agricultural and Biological Chemistry, Vol.53, pp 2853-2859 (1989).
- 2 8 . T. Sakaguchi, A. Nakajima : Recovery of Uranium by Biological Substances; Proceedings 2nd International Conference on Separations Science and Technology, pp 331-336 (1989).